

# 霞ヶ浦における脱窒について

佐々木 道也

## はじめに

霞ヶ浦の富栄養化に関連して、湖内における窒素収支について種々の検討がされているが、その中で湖底からの脱窒量についての報告は少ない。

これまで霞ヶ浦における脱窒については、吉田・他<sup>①</sup>が湖底からの脱窒について、また浜田・他<sup>②</sup>が抽水植物帯における脱窒についての報告等がある。

ここでは富栄養化の進んだ霞ヶ浦の最近の例として、本湖における脱窒について調査し、若干の知見を得たのでそれを報告する。

なお、本調査を行うに当たり元東北大学農学部狩谷貞二博士、茨城大学農学部高村義親博士にご指導を賜った。ここに深謝いたします。

## 1. 調査方法

### 1) 湖水中の溶存窒素ガス量について

調査は1992年5月20日、6月25日、7月24日および8月26日に行った。

調査地点は湖心 (St.1)、土浦入り (St.2)、高浜入り (St.3) の3地点で、図1に示した。

測定に用いた湖水は表層水とし、バケツで採水して250ml入りの褐色ビンに満たし、密栓して水中に収納して実験室に持ち帰り、直ちに菅原の方法<sup>③</sup>で水中の溶存窒素ガス量を測定した。

湖水の採水時には、同時にD.O.メーター (Y.S.I社製) で水温と溶存酸素量を測定した。

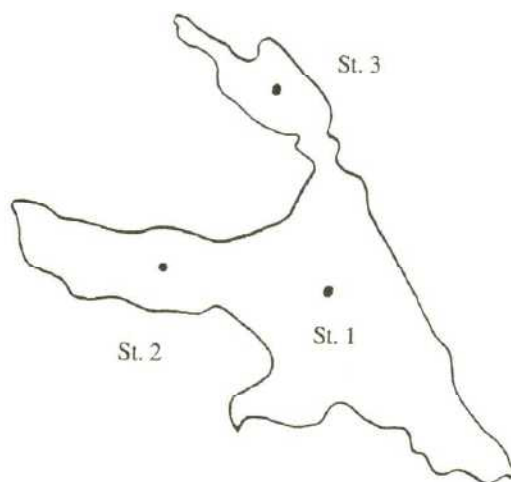


図1 水中の溶存窒素ガス調査地点

## 2) 湖底泥から産出される窒素ガスについて

調査は1992年8月19～20日および9月1～4日に行った。

調査地点は図2に示したように、湖心 (St.1、St.2)、湖尻 (St.3、St.4)、高浜入り (St.5、St.6)、土浦入り (St.7、St.8) および湖奥 (St.9、St.10) の合計10地点とした。

湖底泥から産出される窒素ガスの測定方法については、浜田・他<sup>2)</sup>の直接法 (湖水中にロートを逆さにして垂下し、底泥から発生するガスを直接捕集して、そのガスをガスクロマトグラフで分別定量する。) によったが、その際、ローは湖底から約1m上方に設置し、天候等の都合により1～3日間放置後回収した。

捕集ガスの分別定量時に酸素ガスが検出された場合には、空気中からの混入の可能性があったと考えて、その値は無効とした。

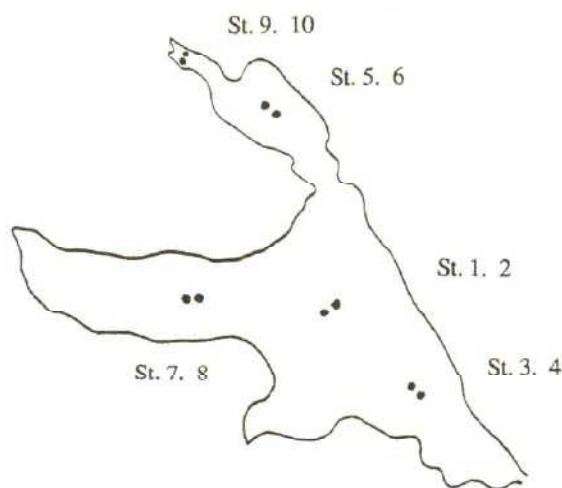


図2 底泥からの窒素ガス調査地点

なお、ローは直径14.5cmのものを用い、ロー設置時にD.O.メーター (Y.S.I社製) で、底層の水温と溶存酸素量を測定した。

また、湖底泥中のガスについては、直接法に用いたと同じガス捕集装置を、底泥直上約1m付近から垂直に落下させて強制的に底泥中のガスを水中に追い出し、これを捕集する方法によった。

## 3) 大気中に放出される窒素ガスについて

大気中に放出される窒素ガスについては、以下に説明する密閉容器内の、水中に溶存している窒素ガス量の増加量から検討した。

図3に示した内径9.4cm、長さ50cmの亚克力製円筒パイプを用い、パイプの開放している方の端

を底質中に約28cm垂直に突き刺した。装置内の水容積は約1.2Lであった。

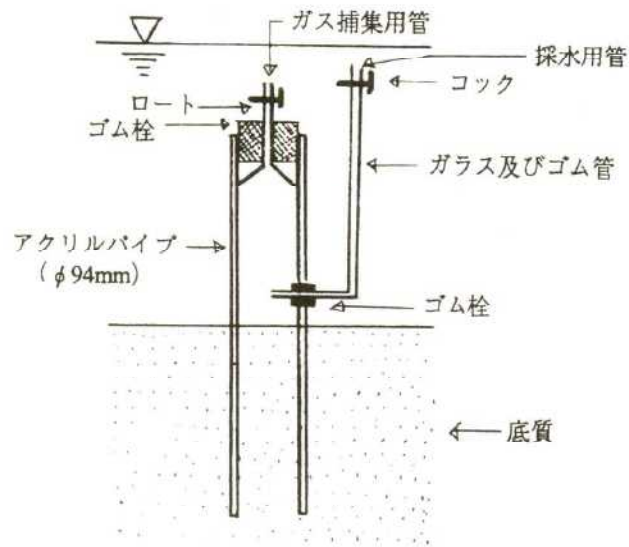


図3 水中の溶存窒素ガス量測定装置

調査は1993年7月～8月に行い、設置場所は波浪の影響が少なく実験設定の容易な、図4に示した抽水植物帯の水深約35～40cmの水域とし、測定装置が常に水中に完全に没しているような地点とした。

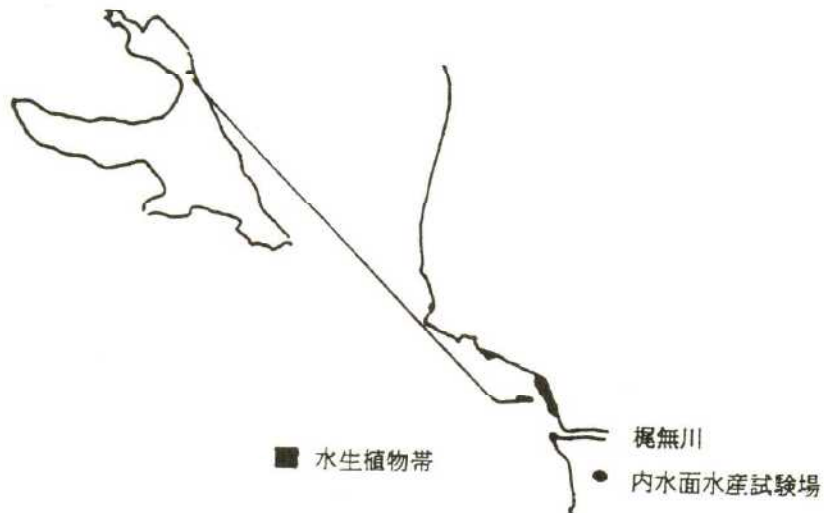


図4 窒素ガス量測定調査水域

測定に当たってはパイプ内の水を周囲の湖水と完全に置換し、装置内の採水用ゴム管およびガス捕集用ゴム管の栓を閉じ、装置内を密封状態にして放置し測定を開始した。

試験終了時には先ず装置内のガスを、湖水中でガス捕集用管からメスシリンダーに、湖水と置換して捕集しガス量を測定した。

その後、そのガスを再びガスクロマト用バイアル瓶に湖水と置換して移した。

実験室に持ち帰ったガスは、直ちに以下の条件でガスクロマトグラフで分別定量した。

#### ガスクロマトグラフの測定条件

装置 : Shimadzu GC-14B

検出器 : TCD

カラム : ガラス製、3m×φ3mm 充填剤モレキュラーシーブ5A (80~100mesh)

温度 : 注入部 50℃, カラム 50℃, 検出器70℃

キャリアーガス : He (11.5ml/min)

装置内の水については採水用ゴム管から250ml入り褐色瓶に採取し、密栓して実験室に持ち帰り、菅原の方法<sup>③</sup>によって直ちに水中の溶存窒素ガス量を測定した。

なお、ガスを捕集する際に、ガス捕集用の管周辺の湖水が装置内に流入するので、装置周辺の湖水中の溶存窒素ガス量も同時に測定し、装置内の溶存窒素ガス量を算出する時に、ガス容積分だけこの値を用いて補正した。

またこの場合、同時に測定されるアルゴンについては、窒素ガス量に比較して約2%と微量であるので、ここでは特に分別することをせず、アルゴンも含めて窒素ガス量とすることとした。

#### 4) 底質の間隙水中の溶存窒素ガスについて

図5に示した内径3.9cm、長さ約50cmの塩化ビニール製円筒パイプを、底質中に約15~20cm垂直に突き刺し、パイプ内の水を素早く注射筒で除いた後、先端部分に多数開けた小穴から、パイプ内に滲出してくる間隙水を、注射筒で250ml入り褐色瓶に採取して実験室に持ち帰り、直ちに水中の溶存窒素ガス量および溶存酸素量を菅原の方法<sup>③</sup>で測定した。

なお、測定場所は前項と同じ、図4の玉造町浜地先の抽水植物帯で、調査は1993年7月~8月に行った。

#### 5) 水中の溶存窒素ガス測定値の補正について

水中の溶存窒素ガス量を菅原の方法<sup>③</sup>で測定した場合、若干高目の値になっていることが考えられたので、このことについて次のようにして検討した。

蒸留水を約30~60分間振盪機で十分攪拌した後、菅原の方法<sup>③</sup>で水中の溶存窒素ガス量を測定した。



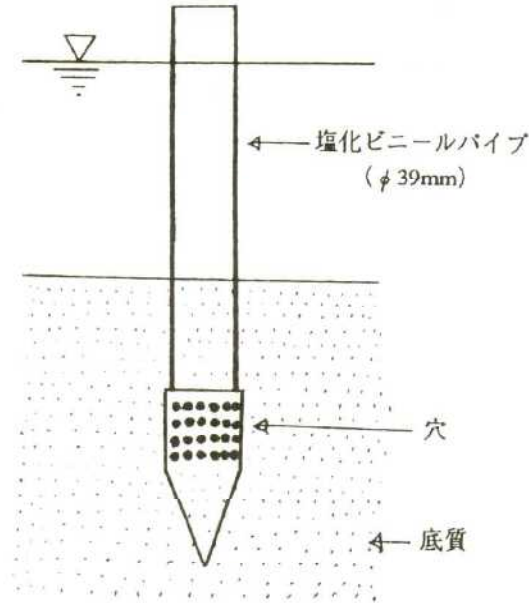


図5 底質の間隙水中の溶存窒素ガス量測定器具

結果を表1に示したが、6回の測定値の平均である108.9%をもって、菅原の方法<sup>④</sup>で求めた場合（ただし、同一の測定器具を用いるものとする）の、水中の溶存窒素ガスの100%飽和量とし、本試験での同法によって得られた測定値を補正することとした。

表1 蒸留水中の溶存窒素ガス飽和度について（単位：％）

（単位：％）

測定No.	1	2	3	4	5	6	平均
N <sub>2</sub> 飽和度	108.5	107.9	108.9	110.1	108.9	109.3	108.9

（注）表中のN<sub>2</sub>は全てArを含む。

## 2. 結果および考察

### 1) 湖水中の溶存窒素ガス量について

調査結果を表2に示したが、これによるとこの期間、湖水中の溶存窒素ガス量については、水域別の差異は殆どみられなかった。

また、7月と8月の一部を除いて、多くの場合が過飽和の状態にあった。

このように湖水中に溶存している窒素ガスの飽和度が、100%以上を示していたことから、過飽和になった水中の溶存窒素ガスは、大気中に放出されていることが推測された。

表2 湖水（表層水）中の溶存窒素ガスについて

測定年月日	地点	水温	D. O.	N <sub>2</sub> +Ar 飽和度
92.5.20	1	18.6 ℃	— ppm	113.0 %
	2	18.7	—	120.6
	3	18.7	—	114.2
92.6.25	1	20.2 ℃	9.5 ppm	115.1 %
	2	20.2	10.8	115.8
	3	20.9	11.3	112.6
92.7.24	1	27.9 ℃	12.2 ppm	122.0 %
	2	29.0	11.6	122.0
	3	30.1	13.2	108.1
92.8.26	1	28.3 ℃	8.3 ppm	109.3 %
	2	28.8	9.5	104.2
	3	30.6	10.7	106.7

## 2) 湖底泥からの脱窒について

### (1) 底泥から産出される窒素ガスについて

底泥から産出され捕集されたガスの組成を表3に示したが、これによると捕集されたガスは窒素ガスとメタンガスであり、その組成比は各地点で異なっているものの、いずれも窒素ガスが測定されている。

各地点で測定された窒素ガス量を表4に示したが、この結果によると湖尻で2m mol/m<sup>2</sup>/Day前後、湖心、高浜入り、および土浦入りで4~8m mol/m<sup>2</sup>/Dayとなっているが、湖奥では15~20m mol/m<sup>2</sup>/Dayと大きな値となっている。

なお、湖心部のSt.2では、捕集されたガスの量が極めて微量で測定できなかったが、St.1とSt.2は約10m程度しか離れておらず、この捕集ガス量の違いが、波浪によって捕集器から、ガスが逃出すなどの原因によるものなのかどうかは不明であった。

表3 直接法で捕集したガス組成比

地 点	測定期間	N <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	O <sub>2</sub>
1	92.8.19~20	1	3.27	0
2	〃	—	—	—
3	92.9.1~4	1	1.47	0
4	〃	1	0.25	0
5	92.9.1~3	1	3.90	0
6	〃	1	2.73	0
7	92.9.1~3	1	1.04	0
8	〃	1	1.10	0
9	92.8.19~20	1	4.87	0
10	〃	1	3.31	0

表4 直接方法で捕集した窒素ガス量

地 点	測定期間	水 深	水 温	溶存酸素量	窒素ガス量
		m	℃	ppm	m mol/m <sup>2</sup> /day
1	92.8.19~20	5.6	27.6	6.1	5.42
2	〃	5.6	27.6	6.1	—
3	92.9.1~4	5.5	27.9	4.7	2.87
4	〃	5.5	28.9	4.7	1.63
5	92.9.1~3	4.0	28.9	4.2	8.40
6	〃	4.0	28.2	4.1	4.03
7	92.9.1~3	4.4	28.2	5.8	8.72
8	〃	4.4	29.1	5.3	6.08
9	92.8.19~20	2.9	28.6	3.8	15.57
10	〃	2.9	—	—	20.87

ところで、表5に底泥中のガスを強制的に水中に追い出して捕集した、気泡中のガス組成比を示したが、捕集されたガスは窒素ガスとメタンガスであり、いずれの地点でも窒素ガスの存在が確認された。

このことから今回の直接法で測定された窒素ガスは、底泥中のガスと同一のものであり、脱窒による窒素ガスと思われる。

表5 底泥中から強制的に捕集したガスの組成比

地 点	測定年月日	水 深	N <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>
		m		
1	92.8.20	5.6	1	1.92
3	92.9.4	5.5	1	0.72
5	92.8.20	4.0	1	1.51
7	92.9.3	4.4	1	1.39
10	92.8.20	2.9	1	4.68

(2) 大気中に放出される窒素ガスについて

湖水中の溶存窒素ガスが過飽和であったことは既に述べたが、この過飽和分の溶存窒素ガスは、底泥からの脱窒に由来していることは明らかであり、この過飽和分の溶存窒素ガスが、随時大気中に放出されていることが推測できる。

したがって前項で底泥から産出された、気泡中の窒素ガスのみを脱窒量とした場合には、実際の脱窒量の値よりも小さく見積もられていることになる。

そこでここでは、底泥からの脱窒によって水中に溶存し大気中に放出されているのではないか、と推測される窒素ガス量について調査を行った。

表6は、先に図3に示した装置内の、一定時間後のガス量および水中に溶存している窒素ガス量の増減について調べた結果である。

なお、気泡として放出された窒素ガス量の測定に際しては、二度も水中で湖水と置換しているため、この過程で空気中の酸素ガスが混入する恐れがあったが、図6の測定例に示したように、捕集された気泡中の酸素ガスは極めて微量であり、酸素ガスの混入は考慮しなくともよいことがわかった。



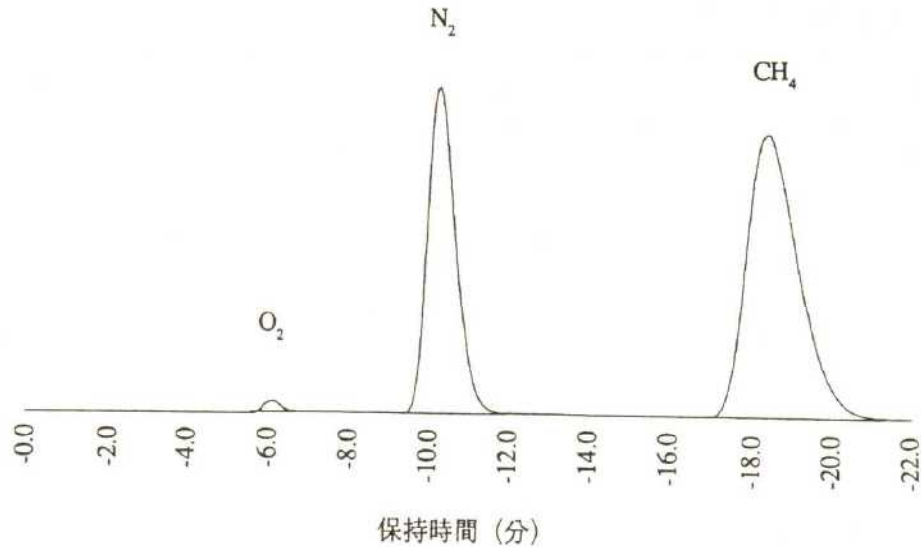


図6 ガスクロマトグラフによる捕集ガスの測定例 (7.23~8.3)

この調査結果からすると、或る一定時間における底泥からの脱窒量は、気泡として放出された窒素ガス量と、水中に溶存している窒素ガスの増加量の二つを合わせたものになる。

図7にはこの二つを合わせた脱窒量と、気泡として放出された窒素ガス量との関係を示した。これによると、脱窒量と気泡として放出された窒素ガス量との関係は、次式で表された。

$$N_T = 0.94 N_G + 7.72$$

$N_T$  : 脱窒量 (m mol/m<sup>2</sup>/Day)

$N_G$  : 気泡として測定された窒素ガス量 (m mol/m<sup>2</sup>/Day)

$$(r = 0.959)$$

図中45度の直接 (勾配1.0) は、気泡として放出された窒素ガス量を、脱窒量とみなした場合の両者の関係を示している。

これによるとこの二つの直線の勾配は、1.0および0.94と極めて良く似ている。

このことから脱窒によって気泡として放出される窒素ガス量に関係なく、水中に溶入する窒素ガス量は一定であることが推測される。

ただしこの場合、測定装置が密閉状態であることから、①測定装置内の湖水の低酸素状態による脱窒の促進、②測定装置内の基質の減少による脱窒量の低下、③測定装置内の水中の溶存窒素ガス含有量の増大に伴う、窒素ガスの水中への溶入量の抑制等の影響が考えられる。

しかし、既に述べたように脱窒によって水中へ溶入する窒素ガスの量と、気泡として放出された窒素ガス量との間に、ある一定の関係がみられることから、これらの影響があったとしても小さいのではないかと思われた。

表6 水中の溶存窒素ガスについて

測定月日	設置 日数	水 温		溶存N <sub>2</sub> 量		捕 集 ガス量	水中の 溶存N <sub>2</sub> 増加量	N <sub>2</sub> 量 (気泡)	全窒素 ガス量
		開始時	終了時	開始時	終了時				
1993	日	°C	°C	ml/l	ml/l	ml	mmol/m <sup>2</sup> ·D	mmol/m <sup>2</sup> ·D	mmol/m <sup>2</sup> ·D
6.28 ~ 7.1	3	26.0	21.0	11.72	14.57	0	8.01	0	8.01
6.28 ~ 7.1	3	26.0	21.0	11.64	13.82	0	6.10	0	6.10
7.1 ~ 20	20	21.0	20.1	12.90	25.21	245.0	4.13	30.77	34.90
7.1 ~ 20	20	21.0	20.1	12.90	23.72	47.0	4.56	4.58	9.14
7.20 ~ 23	3	20.1	20.1	12.28	15.60	1.0	9.32	0.60	9.92
7.20 ~ 23	3	20.1	20.1	12.28	15.05	15.0	7.78	12.55	20.33
7.23 ~ 8.3	10	20.1	21.2	12.21	18.40	29.5	5.22	6.02	11.23
7.23 ~ 8.3	10	20.1	21.2	12.21	21.61	85.0	7.92	18.12	26.03
8.3 ~ 10	7	21.2	22.0	11.67	16.49	18.5	5.79	3.23	9.02
8.3 ~ 10	7	21.2	22.0	11.67	22.88	43.0	13.49	8.71	22.20

(注) 表中の水中の溶存窒素ガスは全てArを含む。

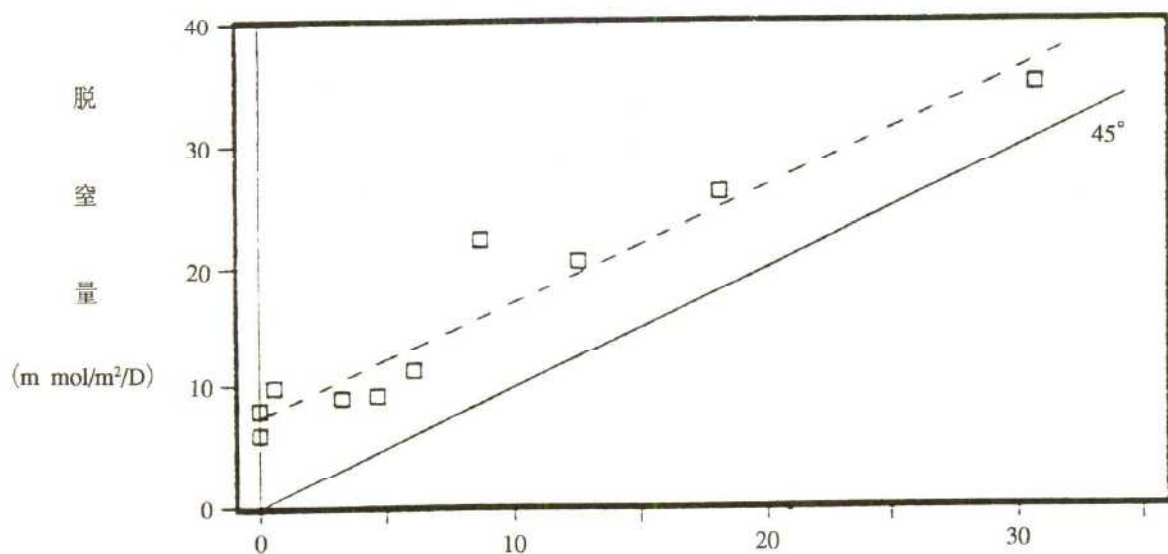


図7 脱窒による気泡としての窒素ガス量と全窒素ガス量との関係

したがって直接法によって捕集された窒素ガスについては、全て底質からの脱窒によるものと考えてよいものと思われる。

### (3) 霞ヶ浦底泥からの脱窒について

前項で求めた底泥から気泡として放出される窒素ガス量に、今回の調査で得られた大気中に放出される窒素ガス量 $7.2\text{m mol/m}^2/\text{Day}$ を加えると、大まかには霞ヶ浦底泥からの脱窒量が求められる。

1992年8月における霞ヶ浦底泥から気泡として産出される窒素ガス量は、先に述べたように平均 $7.9\text{m mol/m}^2/\text{Day}$ であったので、霞ヶ浦における8月の平均脱窒量は、これに大気中に放出されている窒素ガス量を含めて、 $15.1\text{m mol/m}^2/\text{Day}$ となる。

ところで、吉田・他<sup>(1)</sup>が1979年にアセチレン阻害法によって、霞ヶ浦底泥からの脱窒量を測定しているが、この値から計算すると8月の平均脱窒量は $794.5\text{mg/m}^2/\text{Day}$ と算出される。

今回の調査結果では、既に述べたように霞ヶ浦底泥からの8月の平均脱窒量は $422.8\text{mg/m}^2/\text{Day}$ となり、これより低めの値となっている。

## 3. 要 約

霞ヶ浦の夏期における脱窒について1992～1993年に調査し、以下のような結果を得た。

- (1) 湖水中の溶存窒素ガス量は水域による差異は殆どみられず、多くの場合が過飽和であった。
- (2) 湖底泥から産出される窒素ガスは、湖尻で $2\text{m mol/m}^2/\text{Day}$ 前後、湖心、高浜入り、および土浦入りで $4\sim 8\text{m mol/m}^2/\text{Day}$ となっていたが、湖奥では $15\sim 20\text{m mol/m}^2/\text{Day}$ と大きな値となっていた。
- (3) 湖底泥中で脱窒により産出され、その後水中に溶入して大気中に放出される窒素ガス量は、平均 $7.2\text{m mol/m}^2/\text{Day}$ と算出された。
- (4) 湖底泥間隙水中の溶存窒素ガス量は、 $130\sim 180\%$ と過飽和となっており、脱窒が起こっている底質の間隙水中の溶存窒素ガス量は、極めて多いことがわかった。
- (5) 1992年8月における霞ヶ浦底泥からの平均脱窒量は、 $15.1\text{m mol/m}^2/\text{Day}$ と算出された。

## 4. 参考文献

- (1) 吉田富男・他 (1979) 霞ヶ浦における生物固定と脱窒 陸水学雑誌40 (1)
- (2) 浜田篤信・他 (1991) 霞ヶ浦抽水植物帯における脱窒について 茨城県内水面水産試験場調査報告研究報告No27
- (3) 日本化学会編 (1968) 実験化学講座14 丸善 から引用