

MRI画像解析と同位体解析による
栄養塩や温室効果ガスの底泥からのフラックス予測
(分野横断型提案研究)

Flux estimation from sediment in nutrients and global warming gas
by MRI and stable isotope analysis

平成24～26年度

FY2012～2014

NIES



国立研究開発法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

<http://www.nies.go.jp/>

国立環境研究所研究プロジェクト報告 第110号

NIES Research Project Report, No.110

SR - 110 - 2015

MRI画像解析と同位体解析による
栄養塩や温室効果ガスの底泥からのフラックス予測
(分野横断型提案研究)

Flux estimation from sediment in nutrients and global warming gas
by MRI and stable isotope analysis

平成24～26年度

FY2012～2014

国立研究開発法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

<http://www.nies.go.jp/>

分野横断型提案研究「MRI 画像解析と同位体解析による栄養塩や
温室効果ガスの底泥からのフラックス予測」
(期間：平成 24 ～ 26 年度)

課題代表者：高津文人

執 筆 者：高津文人、広木幹也、坪井 隼

編 者：高津文人、今井章雄

序

本報告書は、平成 24～26 年度の 3 年間にわたって実施した分野横断型提案研究「MRI 画像解析と同位体解析による栄養塩や温室効果ガスの底泥からのフラックス予測」の研究成果を取りまとめたものです。底質環境はより良い湖沼環境を目指す上で最も大切な生態系要素であるにもかかわらず、現状では底泥の扱いの難しさからその研究は大幅に遅れています。特に底泥からの栄養塩類の溶出に関して言えば、拡散や間隙水の移流に伴う栄養塩の輸送フラックスの評価をするために必要な底泥の物理構造（透水性や巣穴構造等）に関する情報収集にかかるコスト（時間と労力）の削減および、底泥の物理構造が底泥コアごとに大きく異なることから非破壊での物理構造解析の手法開発が求められています。

底泥研究をとりまくこうした状況を打開するため、非破壊の画像解析技術として MRI 測定と X 線 CT 測定を底泥の物理構造解析に応用しました。その結果、世界に先駆けて湖沼底泥中の巣穴構造やガス泡構造を明らかにできることを確認しました。

また、温室効果ガスの生成プロセスを明らかにするために、底泥間隙水中に溶存しているメタンや炭酸ガスの炭素安定同位体比を測定しました。その結果、霞ヶ浦ではメタンガスが主として炭酸ガスの水素還元により生成されていることも分かりました。

さらに、こうした解析を進める中で、野外で大口径の底泥コアを効率よく採泥する手法開発や底泥コアを深度ごとに切り分け、一定の層の中に溶存態やガス態で存在するガスや間隙水の抽出システムを整備することもできました。

これらの成果が、自然湖沼やダム湖をはじめとする湖沼生態系の底質環境評価や底質改善施策を行う際の基礎データとして、研究および行政に役立つことを期待しています。

本分野横断型提案研究は、研究所内外の多くの方々にご協力・ご助言を頂きました。ここに深謝いたします。

平成 27 年 10 月

国立研究開発法人 国立環境研究所
理事長 住 明 正

目 次

1	研究の目的と経緯	1
1.1	研究の背景と目的	1
1.2	研究の構成	1
2	研究の成果	3
2.1	底泥間隙水の水質と底生生物密度との関係	3
2.1.1	背景と目的	3
2.1.2	方法	3
2.1.3	結果と考察	5
2.2	底生生物の巣穴構造の解析	16
2.2.1	背景と目的	16
2.2.2	方法	16
2.2.3	結果と考察	17
2.3	底泥中のガス泡構造の解析	20
2.3.1	背景と目的	20
2.3.2	方法	21
2.3.3	結果と考察	21
2.4	底泥中の温室効果ガスの濃度と同位体比の解析	25
2.4.1	背景と目的	25
2.4.2	方法	26
2.4.3	結果と考察	28
2.5	底泥中の微生物群集の多様性評価および酵素活性解析と底泥固相中の形態別リン濃度の解析	29
2.5.1	背景と目的	29
2.5.2	方法	30
2.5.3	結果と考察	31
2.6	まとめと今後の課題	34
	引用文献	36
[資 料]		
I	研究の組織と研究課題の構成	39
1	研究の組織	39
2	研究課題と担当者	39
II	研究成果発表一覧	40
1	誌上発表	40
2	口頭発表	41

1 研究の目的と経緯

1.1 研究の背景と目的

近年の指定湖沼の水質は、流域からの流入負荷の減少にもかかわらず、湖沼環境基準が達成されず、一向に改善されていない¹⁾。その理由としては長期間にわたり有機物の堆積した底泥表層が嫌氣的になり栄養塩類が底泥から放出され、藻類の異常繁殖が繰り返されるためと考えられている。また、メタンガスや亜酸化窒素や炭酸ガスといった温室効果ガスも嫌氣的底泥からは放出される。従って、より良い湖沼環境を目指す上で底泥環境は最も大切な生態系要素であると言える。しかしながら、現状ではその扱いの難しさから研究は大幅に遅れている。

底泥からの栄養塩類の溶出に関して言えば、下記のような問題が存在し、定量予測モデルの構築をより困難なものとしている。

1) 拡散による栄養塩のフラックス予測に関する不確実性

底泥表層の間隙水中の栄養塩濃度は通常、深度方向に勾配をもっており、この勾配によって生じる見かけ上の栄養塩のフラックス（以後「拡散フラックス」と表記）に関する不確実性を指す。この拡散フラックスは底泥直上水の流速や底生生物の巣穴表面密度などによって大きく変化する。底泥直上水の流速は測定できても、底生生物の巣穴表面密度を正確に定量することは難しく、予測をより困難にしている。

2) 間隙水の移流に伴う栄養塩の輸送フラックス予測に関する不確実性

二枚貝やユスリカをはじめとする底生生物は新鮮な湖水を吸い込み、巣穴表面を通して拡散してきた栄養塩をその中に蓄積し、底泥直上水へと出す。この水の動きに伴う栄養塩の輸送フラックス（以後「移流による輸送」と表記）は重要と言われながら、定量評価が難しく、野外での予測をより困難なものにしている。

一方、温室効果ガスの底泥からの放出に関しても2つのプロセスが存在する。一つ目は底泥間隙水や底泥直上水に溶存することで栄養塩と同様に濃度勾配により輸送されるプロセス、もうひとつはガス態の形態で直接泡となって湖水柱を移動し、大気へと輸送されるプロセスがある。前者のプロセスは溶存ガス濃度を定量することで定量評価がある程度可能である。一方、後者のプロセスはガス泡が底泥中にどの程度蓄積され、こういったタイミングでどの深度のガス泡が底泥から放出されるかの予測が難しく、定量予測モデルの構築を困難なものにしている。底泥から放出される温室効果ガスとしてはメタンガスが主たるものであるが、メタンガスは水に対し難溶性であることからガス泡による輸送プロセスが卓越する場合が多々あり、その意味でも温室効果ガスの底泥からの放出を予測することは難しいのが現状である。

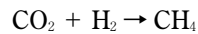
こうした底泥からの栄養塩溶出および温室効果ガスの放出という生態系に大きな影響を与える生態系機能を把握することは、流域の生態系サービスを評価する上で必要であるにも関わらず、上記のような困難な状況はそれを一層むずかしくしている。

そこで、本研究では既存の非破壊画像化技術と底泥間隙水の栄養塩や溶存ガスの濃度と同位体分析によるプロセス解析手法を組み合わせることで、底質環境の新たな解析手法の確立を目指す。次に浅い富栄養湖の霞ヶ浦を対象に上記解析手法を適応することで、各種解析結果を融合し、底泥からの栄養塩や温室効果ガスのフラックスの決定機構を理解し、それに影響する環境因子を絞り込むことでフラックスの予測に役立てることを目的とする。

1.2 研究の構成

本研究成果としては、従来所属研究室が行ってきた底泥間隙水の抽出方法の改良に始まり、非破壊画像化技術の導入やガスの同位体分析など新しい手法の開発と導入とそれによる新たな知見の集積が主たるものである。行った主たる調査・実験・解析は下記の3つであり、その成果をまとめることで、底泥からの栄養塩や温室効果ガスのフラックスの決定機構に関する研究を進めた。本報告書の中では、課題1)の結果は2.1に、課題2)の結果は2.2に、課題3)の結果は2.3と2.4に、それぞれ記載した。また、それ以外の研究成果は2.5にまとめ、全体の総括的内容を2.6に記載した。

- 1) 霞ヶ浦モニタリング調査：霞ヶ浦モニタリング調査時の底泥間隙水の栄養塩濃度とバックグラウンドデータの統計解析による拡散フラックスに及ぼす環境因子の検討を行った。具体的には、リン酸態リン (P) とアンモニウム態窒素 (N) の底泥表層からの拡散フラックスに、泥温とユスリカ生息密度がどう影響するかをステップワイズ変数選択法により解析し、泥温は栄養塩の拡散フラックスに促進効果が、ユスリカ生息密度はアンモニウム態 N の拡散フラックスに抑制効果があるという成果を得た。詳細は 2.1 を参照。
- 2) ユスリカ添加実験：ユスリカ生息密度と泥温はともに夏季に上昇するため、両者の効果を独立に議論することは野外データからは難しい。そのため生息密度を実験的に 10 倍以上に高めた際の拡散フラックスと移流による輸送フラックスの変化を解析した。具体的には、リン酸態 P とアンモニウム態 N のどちらに関しても、底泥からのフラックス全体は上昇したが、拡散フラックスに関しては若干低下することが分かった。このことから移流による栄養塩の輸送フラックスはユスリカ存在下で大幅に上昇するという知見を得た。詳細は 2.2 を参照。
- 3) 底泥中のガス泡構造とガスの生成・放出プロセスの解析：霞ヶ浦の湖心の底泥コアを対象に、X 線 CT 法による測定を行い、底泥中のガス泡密度の深度プロファイルの季節変化を世界に先駆けて明らかにした（詳細は 2.3 を参照）。具体的には、野外でのガス泡密度の変化に加えて、実験的に泥温を変えた時のガス泡密度とメタンガスと炭酸ガスの濃度と同位体比の変化から、泥温が高い時のガス泡密度の増加はメタンガスの生成によるものと強く示唆された。また、メタンガスの炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) から



が、霞ヶ浦の底泥中のメタンガスの主たる生成プロセスであるという知見を得た。上記生成プロセスは大きな同位体分別を伴う反応であり、基質である溶存無機炭素の $\delta^{13}\text{C}$ が高い時ほどメタン生成活性が高くなるという結果を得ることができ、溶存無機炭素の $\delta^{13}\text{C}$ がメタン生成の指標となりうることが明らかとなった。詳細は 2.4 を参照。

以上の研究を実施し、底泥からの栄養塩や温室効果ガスのフラックスの決定機構を定性的に理解できたことで、そのフラックスの予測に資する定性モデルの構築と底質改善施策を行う底泥深度等に関する情報提供を行った。詳細は 2.6 を参照。

上記の研究成果に加えて、メタン生成古細菌に関わる底泥中の細菌群集構造の解析やリン酸イオンの溶出に関わる酵素活性（フォスファターゼ活性）の解析結果を合わせて紹介する。詳細は 2.5 を参照。

2 研究の成果

2.1 底泥間隙水の水質と底生生物密度との関係

2.1.1 背景と目的

底泥間隙水の水質特に栄養塩濃度は底泥からの栄養塩溶出を予測する上で最も重要な測定項目である。しかしながら、底泥間隙水中の栄養塩濃度の決定機構は複雑であり、その決定因子を抽出し影響の強さを評価することは容易ではない。還元的な底泥から溶出する栄養塩としてはリン酸イオンとアンモニウムイオンの2つが代表的なものである。リン酸イオンは酸化的な底泥表層では通常水酸化鉄やアルミニウムと結合した状態で堆積しており、その鉄が還元環境で還元されると、結合していたリン酸イオンが溶出すると言われている²⁾。またアンモニウムイオンも有機物分解の結果、底泥間隙水中に溶出し、還元環境では安定だが、酸化環境では硝化菌により硝化され、亜硝酸や硝酸へと代謝される結果、低濃度に保たれる。以上の知見から、底泥間隙水中の栄養塩濃度に対して底泥表層の酸化還元環境は決定的に重要な因子であることは間違いない。しかしながら、この底泥表層の酸化還元環境は底泥直上水が酸化環境であったとしても、底泥表層の酸素消費速度や新鮮な底泥直上水を取り込む底生生物の巣穴密度によって、時空間的に大きく変動することが知られている³⁾。

そこで、本研究では底泥間隙水の水質、特に酸化還元環境の指標となるパラメーターとリン酸イオンとアンモニウムイオンの濃度の関係について霞ヶ浦を中心に解析した結果を紹介し、底泥間隙水中の栄養塩濃度とユスリカやイトミミズといった底生生物の生息密度との関係を解析した結果を示す。こうした解析結果から、底生生物の増減が底泥表層の間隙水中の栄養塩濃度にどのように影響し、結果として底泥からの栄養塩溶出にどう効いているかを明らかにする。

2.1.2 方法

底泥間隙水を抽出するためにはいくつかの方法があるが、所属研究室が行ってきた下記の手法を採用した(図1)。

- 1) 不攪乱柱状採泥器による底泥コアの採取
- 2) 採取された底泥コアを窒素ガス(N₂)雰囲気下で深度ごとに切り分け
- 3) 切り分けた層ごとの底泥を遠心分離後、間隙水の抽出

ただし、以下の点を改良することで、大口径底泥コアの間隙水を確実に採取できるようにした(図2)。

改良点1) φ4 cmの細い底泥コアでは採泥時の厚密効果

が大きくなるため、φ11 cmの太い底泥コアが得られるよう、RIGO社の不攪乱柱状採泥器(HR型)を採用した。

改良点2) 太くて長い底泥コアを得るため、上記採泥器のオモリを増強した。

改良点3) 底泥コアも太く長くなり、オモリも増強したため、採泥器全体の重量が40 kgを超えることとなった。人力での上げ下ろしを容易にするため、電動ホイストを設置し、電源も発電機を導入し冬場でも安定した動作が出来るようにした。

改良点4) 底泥表層の軟泥は採泥後も舞い上がりやすいため、採泥器の上部にアルミ製のフタを取り付け、底板閉時に底泥コア上部のフタが閉じるように改変した。

また、大口径の長いコアをN₂雰囲気下で深度ごと切り分

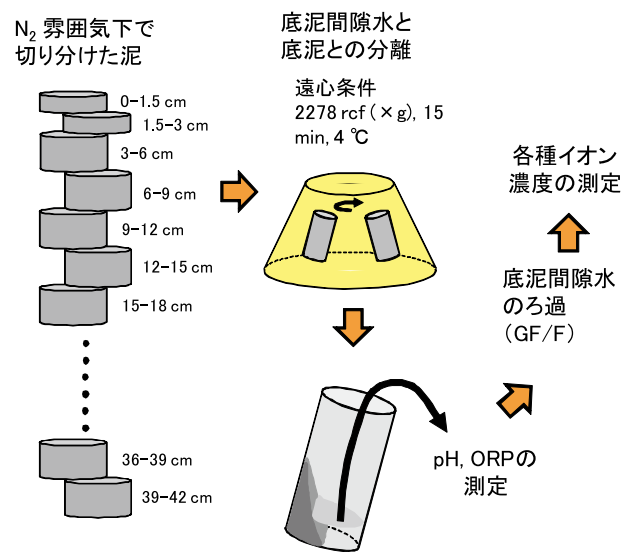
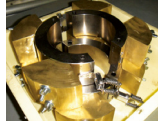


図1 採取された底泥コアの切り分けとその後の底泥間隙水の抽出方法
底泥コアの切り分けは図3の切り分け装置により行った。

モニタリング用設置型システムの構築と省力化
 総重量40 kgを超える採泥器を楽に引き上げ、船内に取り込むシステムを霞ヶ浦のモニタリング船であるNIES94Iにセットアップした

改良点1: RIGO社の不攪乱柱状採泥器の純正オモリを2.5倍に改良



↓
 堅い底泥でも長い底泥コアの採取が可能となった

改良点2: ホイストによる採泥器全体の上下駆動



↓
 重い採泥器のハンドリングを良くし、多地点でのコア採取を可能にした

改良点3: 従来のバッテリー駆動から発電機駆動へ変更



↓
 冬季および霞ヶ浦多地点調査でも安心してシステムを駆動し続けることができる

改良点4: 落水時は開いたままで、採泥器の底板の閉まる時に閉まるようにしたアルミ製上ブタ



↓
 底泥表層の軟泥と直上水を引き上げ時の攪乱から保護

図2 不攪乱柱状採泥器による底泥コア採取作業の効率化

主として4箇所の改良を行ったことで、年間を通してスムーズに大口径底泥コアを採取することが可能となった。

ける作業を単純な作業により確実に出来るように、アクリル樹脂製の底泥コア切り装置（図3）を自前で開発した。

こうして、底泥表層から深さ42 cmまでの底泥間隙水を採水することができた。採泥および底泥間隙水の抽出を行った湖沼と調査頻度は下記の通りであった。

霞ヶ浦（西浦）土浦入り（E 140°14.19', N 36°3.71'）：2012年9月～2015年1月までの毎月

霞ヶ浦（西浦）高浜入り（E 140°22.85', N 36°7.11'）：上記と同じ

霞ヶ浦（西浦）湖心（E 140°24.42', N 36°1.95'）：上記に加えて、2011年8月～2012年4月までの毎月

十和田湖（御門岩北 水深80 m）（E 140°53.39', N 40°29.22'）：2012年11月と2013年11月の2回

猪苗代湖湖心（E 140°5.64', N 37°28.45'）：2013年11月の1回

中禅寺湖最深部（水深168 m）（E 139°28.55', N 36°43.93'）：2013年5月の1回

琵琶湖（北湖）湖心（E 136°7.95', N 35°23.68'）：2013年8月と2014年2月と8月の3回

琵琶湖（南湖）湖心（E 135°53.6', N 35°2.33'）：2014年2月の1回

宍道湖湖心（S3）（E 132°56.97', N 35°27.97'）：2013年7月の1回

中海（大橋川河口沖 水深4.8 m）：2013年7月の1回

実施した水質分析項目は以下の3種類である。

1) 抽出直後に測定：間隙水の酸化還元電位（ORP）とpH

2) イオンクロマトによる各種イオン成分濃度

アニオン： SO_4^{2-} 、 Cl^- ほか

カチオン： Ca^{2+} 、 Mg^{2+} ほか

3) AutoAnalyzerによる無機態N、Pの濃度

NH_4^+ 、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 PO_4^{3-} ほか

pHとORPはpH/ORP計（KP-10Z, KRK）を使用し、遠心直後の未ろ過の底泥間隙水にセンサー先端部分を浸し測定した。イオンクロマトによる各種イオン成分の濃度の分析はIC25 Ion Chromatograph（Dionex）により測定した。測定条件は下記の通りであった。

カラム：カチオン Dionex IonPac CS12A

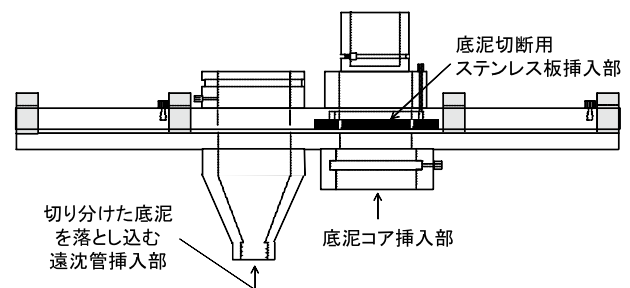


図3 採取された底泥コアの窒素雰囲気下での切り分け装置心臓部

実際には、このシステム全体をラックに組み上げ、窒素パージしながら、切り分けた底泥は下部のロータ上の部分をとって直接遠沈管へと入れられる。

アニオン Dionex IonPac AS17-C

溶離液：カチオン 20 mM メタンスルホン酸（アイソクラティック）

アニオン 水酸化カリウム（アイソクラティック）

AutoAnalyzer による無機態 N, P の濃度分析は Traacs 800 (Bran+Luebbe) により測定した。検出限界は NH_4^+ で 0.27 μM 、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 PO_4^{3-} ではすべて 0.1 μM 以下であった。

霞ヶ浦の解析結果は、泥温に応じて、以下の3種類に色分けして示した。

冬季（泥温が年平均より低い時期）：12月～4月

夏季（泥温が年平均より高い時期）：6月～10月

それ以外（泥温が年平均に近い時期）：5月と11月

また、間隙水の特徴を湖水や底泥直上水のそれと比較するため、湖水と底泥直上水のデータを重ねて示し、そのデータを区別できるよう図中に明記した。

2.1.3 結果と考察

(1) 底泥間隙水の酸化還元電位 (ORP)

底泥間隙水を N_2 雰囲気下で抽出後、速やかに測定した ORP は底泥表層の酸化還元環境を直接解析できる簡便で優れた方法である。しかしながら、底泥表層の酸化還元状態は微空間で大きくばらついていることが一般的であり、今回の結果はあくまで切り分けた層の平均的な酸化還元電位を表しているに過ぎない。従って、この値が上がったからと言って、決して強還元な環境が無くなったとは言えない。

霞ヶ浦の底泥間隙水の ORP を場所ごとに分けて図4に示した。この結果から、全体の傾向として表層から深層にかけて ORP は低下し、表層から 40.5 cm の深度ではおよそ -100 ~ +100 mV となった。また、土浦入りと湖心では表層で一旦 ORP が低下する ORP 極小値の存在が特に高泥温時期（6月～10月）に顕著となった。一方、高浜入りでは、そうした傾向は顕著ではなかった。また、深層の ORP に関しては、低泥温時期（12月～4月）の方が高泥温時期より低くなる傾向があった。

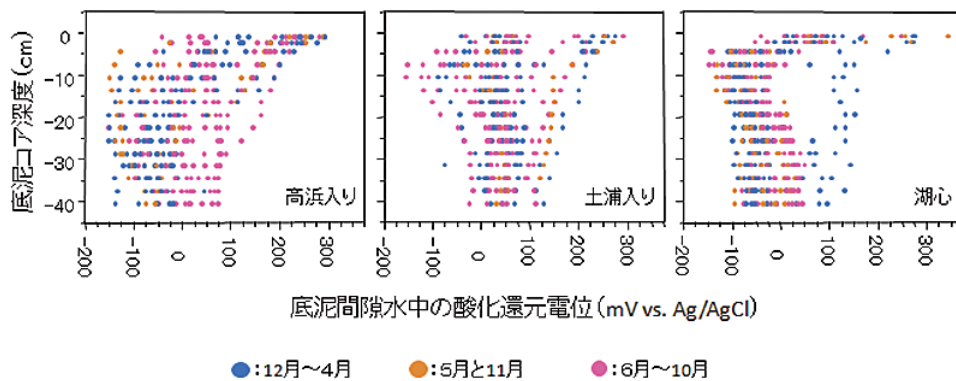


図4 霞ヶ浦（西浦）の3箇所（高浜入り、土浦入り、湖心）の底泥間隙水中の酸化還元電位の深度分布

霞ヶ浦以外の湖の底泥間隙水の ORP は湖沼ごと採取時ごと分けて図5に示した。この結果から、表層から深層にかけて ORP の低下はどの湖でも見られたが、霞ヶ浦で見られた表層での ORP 極小値の発現は他の湖では一般的な現象ではなく、宍道湖で見られたにすぎなかった。また、表層から深層にかけて ORP は低下の程度は湖沼によって異なり、十和田湖が最もゆっくりと深層にいくに従い ORP が低下したのに対し、猪苗代湖や中禅寺湖琵琶湖ではほぼ 5 cm で -100mV 程度まで低下し、それより深いところで一定するというパターンであった。

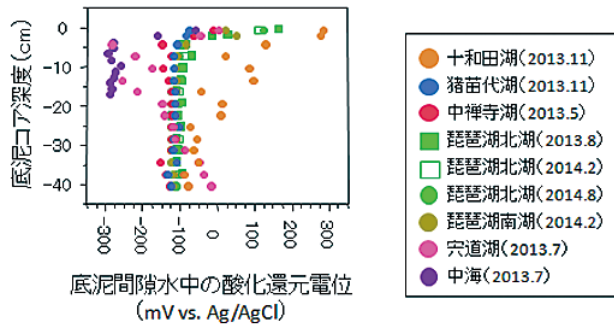


図5 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中の酸化還元電位の深度分布

(2) 底泥間隙水の pH

底泥間隙水の pH に関しても、その値は ORP 同様あくまで抽出した層の平均値を表しているにすぎない。水の動きの悪い底泥中では同じ深度であっても pH に関してもおそらく大きな空間変動があるものと考えられる。

霞ヶ浦の底泥間隙水の pH を場所ごとに分けて図6に示した。この結果から、3地点全体に共通する顕著な pH 変動パターンがあるわけではないが、採泥地点を限定すれば、深度方向に対する特有のパターンを見ることができた。湖心に関しては表層から 20 cm 程度まで pH が低下し続け、その後は比較的一定であった。全平均で比較するとその低下幅は 0.4 程度であった。一方、高浜入りでは表層から 10 cm 程度までは pH が若干低下するが、その低下幅は 0.1 程度と小さかった。また、土浦入りでは 10 cm 程度まで pH は比較的一定で、それ以深では平均で 0.4 程度上昇するという特異的なパターンを示した。

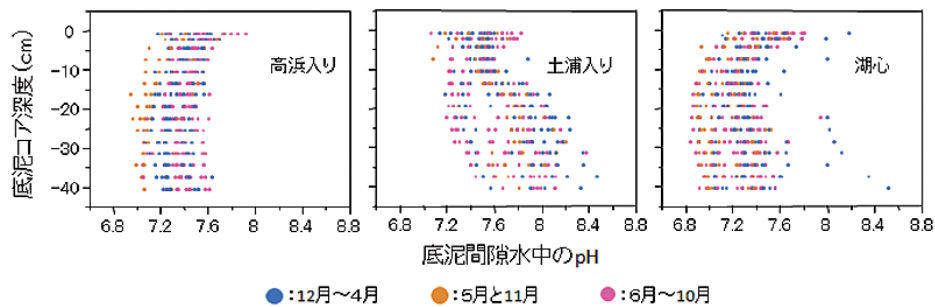


図6 霞ヶ浦（西浦）の3箇所（高浜入り、土浦入り、湖心）の底泥間隙水中の pH の深度分布

霞ヶ浦以外の湖の底泥間隙水の pH を、湖沼ごと採取時ごと分けて図7に示した。この結果から、湖沼によってさまざまな変動パターンのあることが分かった。霞ヶ浦2地点で見られたような表層で低下するパターンは琵琶湖北湖と中禅寺湖で顕著であったのに対し、それ以外の湖では異なるパターンを示した。宍道湖では、表層 10 cm から 20 cm で 0.2 程度低下し、それより浅い層や深い層での顕著な変動は見られなかった。また猪苗代湖や琵琶湖南湖での深度方向の変動幅も小さく、十和田湖では逆に表層 15 cm から 25 cm で、0.2 程度上昇するという特異的なパターンを示した。

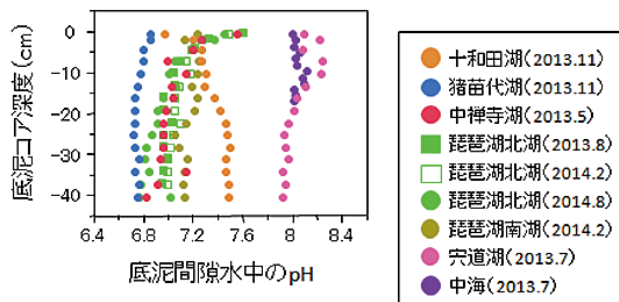
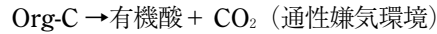
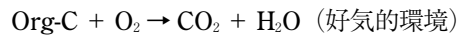


図7 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中の pH の深度分布

(3) 底泥間隙水の ORP と pH の関係とそれらの変動要因

底泥間隙水の ORP と pH は底泥中の有機物の分解に伴って変動することが考えられる。特に下記の反応により、易分解性有機物が好機的環境もしくは微好気環境で分解する場合には、pH を低下させる CO₂ や有機酸が生成されると考えられる。



その意味で、底泥表層から溶存酸素が拡散し、底泥中で有機物が分解される過程では、一般的に ORP と pH の低下が同時に見られることが期待される。

霞ヶ浦の底泥間隙水では、湖心と高浜入りで ORP と pH の間に有意な正の相関関係が見られたことから、上記のようなプロセスが働いていると推察される (図 8)。ただ、有機物分解は一般に高泥温時期に活発になるものと考えられるが、低泥温時期であっても ORP、pH とともに低い層が見られる点は興味深い。この事実は霞ヶ浦の底泥中の有機物分解は泥温によって影響される程度は比較的小さく、酸素供給や有機物の分解性など他の要因によって決まる部分が大いのかも知れない。事実浚渫を行った結果、底泥中に易分解性有機物の現存量が少ないと思われる土浦入りでは、ORP と pH の間に有意な正の相関関係が見られなかった。

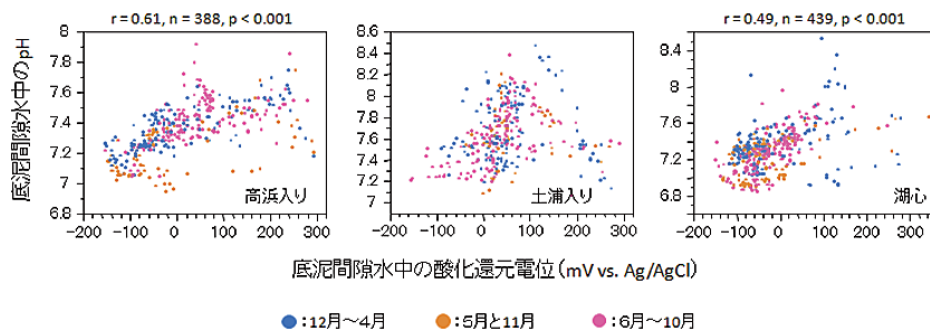


図 8 霞ヶ浦 (西浦) の 3 箇所 (高浜入り、土浦入り、湖心) の底泥間隙水中の酸化還元電位と pH の関係

霞ヶ浦以外の湖の底泥間隙水では、図 9 に示す通り ORP と pH の関係は湖沼ごと大きく異なっていた。宍道湖、中海、琵琶湖南湖では両者に有意な関係は無かった。一方、琵琶湖北湖 ($r = 0.87, n = 44, p < 0.001$)、中禅寺湖 ($r = 0.68, n = 15, p = 0.005$)、猪苗代湖 ($r = 0.63, n = 15, p = 0.011$) では両者に有意な正の相関が見られた。また、十和田湖では両者に強い負の相関が見られた ($r = -0.91, n = 15, p < 0.001$)。こうした事実は酸素消費や有機物分解に伴う ORP や pH の変動だけでは説明できない物質代謝が底泥中で進行していることを示唆している。有機酸や CO₂ を同化する微生物やそれらを基質としメタンガスを生成するメタン生成古細菌の活性が高い場合には、ORP と pH の間に有意な相関が見られなくなったり、負の相関が見られたりする現象を説明することは可能はあるが、これらの湖でこうした微生物に関する情報は乏しく、現時点でその理由は不明である。

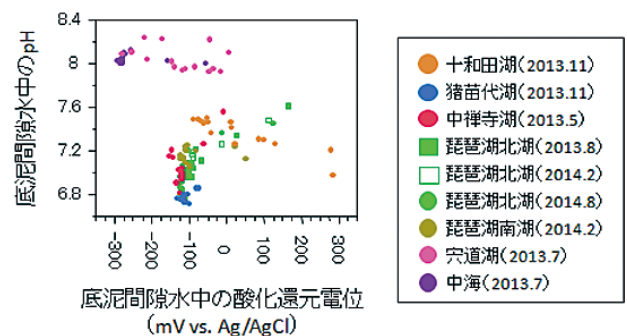


図 9 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中の酸化還元電位と pH の関係

(4) 底泥間隙水中の各種イオン濃度

底泥間隙水中のイオン濃度を議論する際に重要となるのが、底泥直上水と底泥間隙水との交換に影響する因子である。透水性や含水率が高いほど交換は促進されると言われているが、2.2 節で議論するように、ユスリカの巣穴密度の違いは、底泥直上水と底泥間隙水との交換に大きく影響するため、まず初めに霞ヶ浦の 3 地点 (高浜入り、土浦入り、

湖心) のユスリカ個体数密度の違いの結果について紹介したい。図 10 に示す通り、調査期間を通しての平均で議論すれば、{土浦入り} > {高浜入り} > {湖心} の関係がある。特に湖心のユスリカ生息密度が他の 2 地点と比較して有意に低かった。夏場のユスリカ生息密度の高い時であっても、湖心では平均で 86.3 匹/m² であるのに対し、高浜入りと土浦入りではそれぞれ、395 匹/m² と 386 匹/m² と 4 倍以上の高密度であった。このことから、高浜入りと土浦入りでは湖心に比べて底泥直上水と底泥間隙水との水の交換は大幅に促進されている可能性が高く、その結果として表層の底泥間隙水のイオン濃度が底泥直上水に近い値を取りやすいものと推察できた。

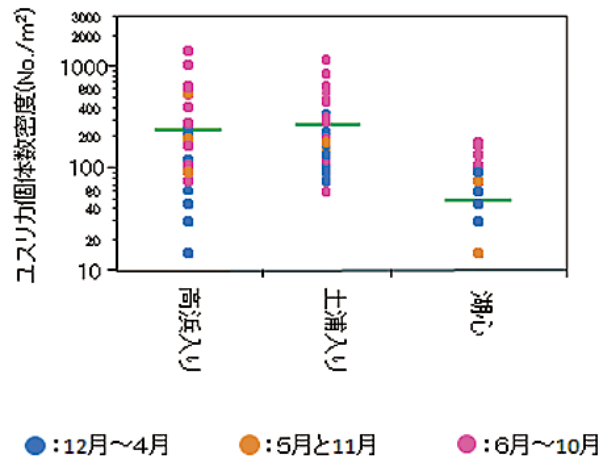


図 10 霞ヶ浦(西浦)の3箇所(高浜入り、土浦入り、湖心)のユスリカ生息密度

1) 塩化物イオン濃度について

まず初めに、生物的な反応を受けにくい塩化物イオンの底泥間隙水中の濃度の深度方向の変化を図 11 に示す。先述したようにユスリカ生息密度の高い高浜入りの 20 cm 以浅と土浦入りの全層で底泥直上水と似た低い値を取ることがわかった。霞ヶ浦では過去に汽水湖であった影響かと思われるが、底泥間隙水の深層で塩化物イオン濃度が高くなる傾向が顕著である。土浦入りでそうした傾向が見られない理由は不明であるが、こうした深層の底泥間隙水と底泥直上水との塩化物イオンの大きな差は、底泥直上水と底泥間隙水との交換の強さを評価する上で重要である。仮に土浦入りにおいても解析できていない 42 cm 以深で底泥間隙水の塩化物イオン濃度が他の地点同様高くなっているとすれば、底泥直上水と底泥間隙水との交換が強いのは 1) 高浜入りの 20 cm 以浅、2) 土浦入りの 42 cm 以浅、3) 湖心の 10 cm 以浅、ということになる。

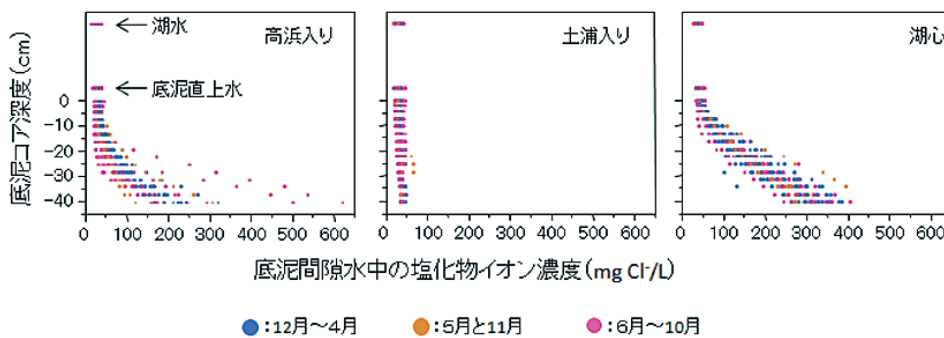


図 11 霞ヶ浦(西浦)の3箇所(高浜入り、土浦入り、湖心)の底泥間隙水中の塩化物イオン濃度の深度分布

含水率は 3 地点とも 0.80-0.90 の間にあり、有意な差は無かったにもかかわらず、これらの場所間で交換の影響の強く現れる深度が異なった事実は興味深い。冬場でも高いユスリカ生息密度を維持している土浦入りで一番深く、年間を通して生息密度が低い湖心で一番浅くなっていることから、こうした交換の強さにユスリカ生息密度が影響している可能性が高いと考えている。

霞ヶ浦以外の湖の底泥間隙水中の塩化物イオン濃度は、大きくは海水の影響下にある汽水湖かそれ以外かで分かれる(図 12)。汽水湖では潮汐の影響を常に受けており、塩水くさびが底泥直上を覆う時に塩化物イオン濃度の高い湖水が底泥間隙水中へと進入するのに対し、干潮時には低濃度の湖水が底泥間隙水の塩化物イオン濃度を低下させるものと思われる。宍道湖の 20 cm 以浅で見られる塩化物イオン濃度の極大ピークはこうした過去の変動を記録しているものと思われる。中海の表層から 6 cm 程度の深度で見られる塩化物イオン濃度の極小ピークもそうした変化を反映していると思われるが、底泥直上水の塩化物イオンの時間変動が分かればよりはっきりしたことが分かると思われる。汽水湖以外

の湖沼に関しては、深度方向の塩化物イオンの大きな変動は見られなかったが、中禅寺湖のように小さな変動ではあるが深度方向の有意な変動パターンをいくつかの湖で見ることができた。中禅寺湖では深くなるにつれて高くなるのに対し、琵琶湖では北湖、南湖ともに深くなるにつれて低くなった。こうした変動のひとつの説明として、湖水柱の塩化物イオン濃度の近年の塩化物イオン濃度の変動を反映している可能性がある。深層の底泥間隙水ほどより過去の湖水柱の塩化物イオン濃度を保存している可能性がある。近年、琵琶湖で塩化物イオン濃度が上昇している事実は⁴⁾、そうした考え方と矛盾しない。

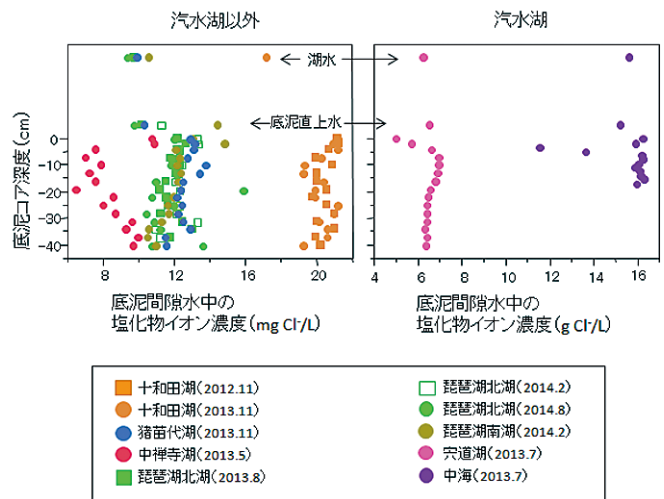


図 12 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中の塩化物イオン濃度の深度分布

2) 硫酸イオン濃度について

次に、生物的に塩化物イオンのように不活性ではなく、酸化還元の影響を受けやすい硫酸イオンについて注目する。硫酸イオンは酸化的環境ではパイライトに代表される硫黄鉱物等の酸化により生成される一方、還元的環境では硫酸還元が進行し減少する。硫黄鉱物の集積が一般的でない淡水湖沼においては、底泥中の還元的環境による硫酸還元の影響が強く見られる。霞ヶ浦においてもこうした傾向を示し、深層では低濃度なのに対し、表層では底泥直上水や湖水とほぼ同じ高濃度で存在した (図 13)。土浦入り、湖心ではともに表層から 5 ~ 15 cm の深度で ORP の極小値が見られるが、3 地点ともそうした深度で硫酸イオンが大幅に減少することからこうした硫酸還元の影響を強く受けていることがわかる。実際、底泥間隙水中の硫酸イオン濃度と酸化還元電位の間には有意な正の相関が存在した (図 14)。しかしながら、この図からも分かるように酸化還元電位が中程度 (0 ~ +150 mV) の層では非常に大きな濃度のばらつきを持っており、底泥中の酸化還元電位の大きな時空間変動

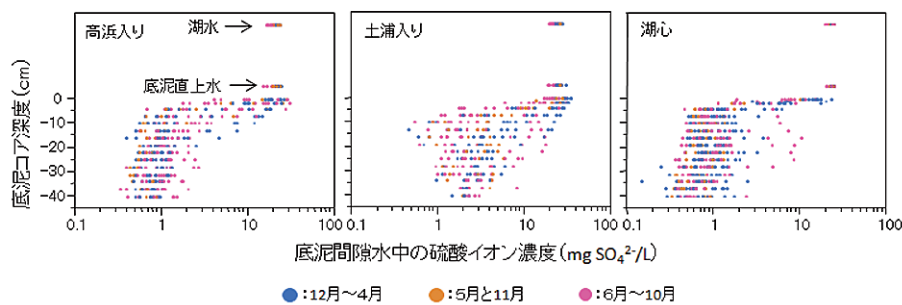


図 13 霞ヶ浦 (西浦) の 3 箇所 (高浜入り、土浦入り、湖心) の底泥間隙水中の硫酸イオン濃度の深度分布

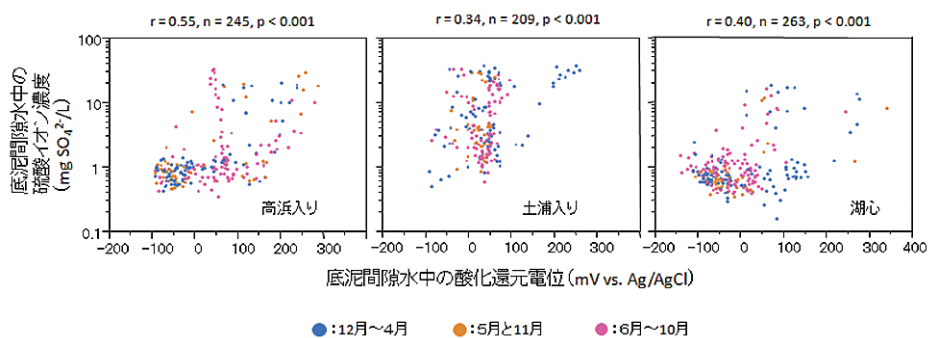


図 14 霞ヶ浦 (西浦) の 3 箇所 (高浜入り、土浦入り、湖心) の底泥間隙水中の酸化還元電位と硫酸イオン濃度の関係

に対応して、



の反応が双方向に進行しているものと推察された。底泥直上水との交換が一番悪いと思われる湖心の表層での硫酸イオン濃度の落ち込みが最も激しく、表層から 5 cm の深度で 1 ppm 前後の低濃度となったのに対し、高浜入りでは表層から 10 cm 程度の深さまで、土浦入りでは 20 cm 程度の深さまで、10 ppm を超える高濃度の時期のあることが分かった。

霞ヶ浦以外の湖の底泥間隙水中の硫酸イオン濃度も塩化物イオン濃度と同様に、大きくは海水の影響下にある汽水湖かそれ以外かで分かれた (図 15)。また汽水湖の場合、硫酸イオン濃度の円直方向の変動要因には潮汐の履歴に加えて、深層にいくに従い、硫酸還元による減少の影響も加わると考えられた。汽水湖以外の湖沼においては、底泥間隙水中の硫酸イオン濃度は深層では 1 ppm 前後の低濃度で一定していた。十和田湖以外のほとんどの湖で表層から 5 cm 程度の深さで深層とほぼ同じ低濃度まで落ち切る特徴は、ORP が同様の深度で急激に低下したことに対応しており、硫酸還元の進行を示唆している (図 15)。ORP が徐々に深層に向かって低下した十和田湖では硫酸イオンの減少傾向も緩やかであった (図 5)。事実、汽水湖以外では底泥間隙水中の硫酸イオン濃度と酸化還元電位の間に有意な正の相関が存在した (図 16)。しかしながら、汽水湖では有意な相関は見られなかった。その理由は不明であるが、易

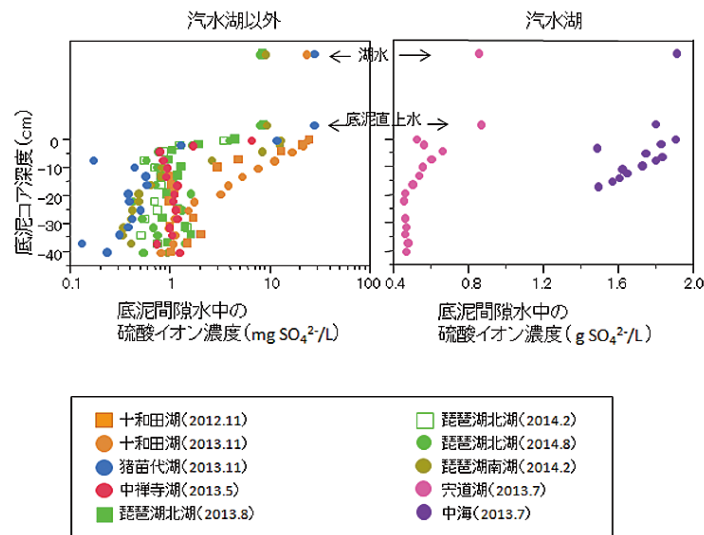


図 15 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中の硫酸イオン濃度の深度分布

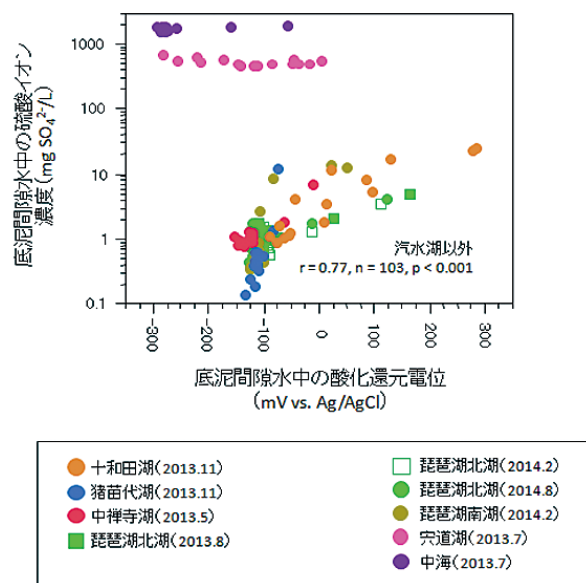


図 16 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中の酸化還元電位と硫酸イオン濃度の関係

分解性有機物を必要とする硫酸還元菌の活性を維持するのに十分な有機物が底泥中に欠乏している可能性は否定できない。汽水湖でも還元的な底泥中では硫酸還元が進行し、硫酸イオン濃度が深層で低下するのが一般的と考えられている⁵⁾。

3) カルシウムイオン濃度について

カルシウムイオン濃度は底泥中の炭酸塩鉱物の pH 低下にともなう溶出による上昇、もしくはその逆反応による低下に大きく影響されると予想される。霞ヶ浦底泥中には二枚貝の殻が柔らかく分解した状態で埋まっていることがよくある。こうした炭酸塩鉱物からのカルシウムの溶出が支配的な場合には pH とカルシウムイオン濃度との間に負の相関が期待できる。しかしながら、より酸性になり炭酸塩鉱物が底泥中に無くなった場合などはその限りではないと思われる。

霞ヶ浦においては、表層から 5～10 cm の深度で ORP の極小値の見られる土浦入りでは、ほぼ同じ深度にカルシウムイオンの極大ピークがあり (図 17)、事実、高浜入りと土浦入りでは、pH とカルシウムイオン濃度との間に有意な負の相関が見られた (図 18)。一方、湖心では両者の間に有意な相関は無かった。しかしながら、湖心においても底泥間隙水中のカルシウムイオン濃度は底泥直上水や湖水のそれの 2～3 倍程度あり、深くなるにつれて高くなることから、炭酸塩鉱物からのカルシウムの溶出が起きているものと思われた。実際、表層から 9 cm までの底泥間隙水に限定した場合、湖心においても底泥中の酸化還元電位が低くなるほど、カルシウムイオン濃度が上昇することが分かる (図 19)。表層では酸化還元電位の低下が pH 低下を伴うことから (図 8)、湖心で pH とカルシウムイオン濃度の間の相関関係の見られなかった点は、pH の時空間変動が酸化還元電位やカルシウムイオン濃度の変化に比べて激しいことを示唆しているのかもしれない。

霞ヶ浦以外の湖の底泥間隙水中のカルシウムイオン濃度も塩化物イオンや硫酸イオン濃度と同様に、大きくは海水の影響下にある汽水湖かそれ以外かで分かれた (図 20)。また汽水湖の場合、塩化物イオン濃度とよく似た深度方向の変動パターンを示し、両者の間に強い正の相関関係のあったことから (図 21 右図)、潮汐の履歴でその変動はほぼ説明で

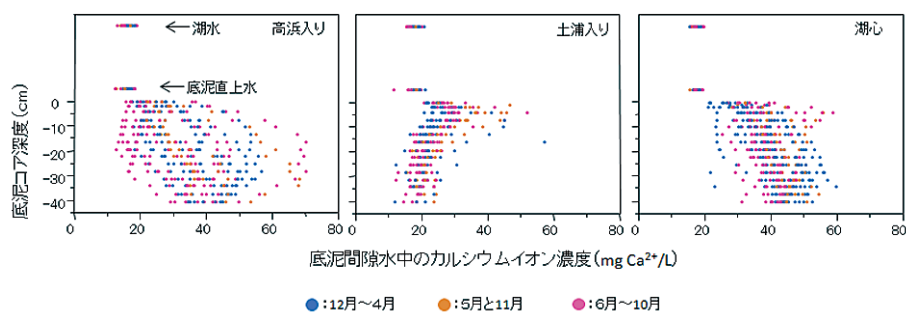


図 17 霞ヶ浦 (西浦) の 3 箇所 (高浜入り、土浦入り、湖心) の底泥間隙水中のカルシウムイオン濃度の深度分布

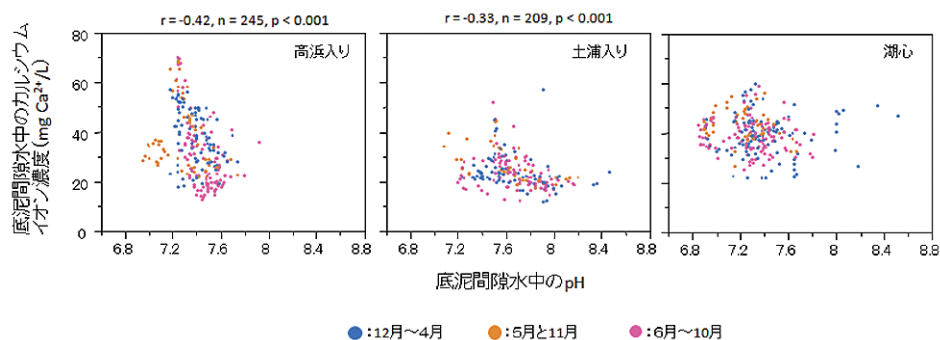


図 18 霞ヶ浦 (西浦) の 3 箇所 (高浜入り、土浦入り、湖心) の底泥間隙水中のカルシウムイオン濃度と pH の関係

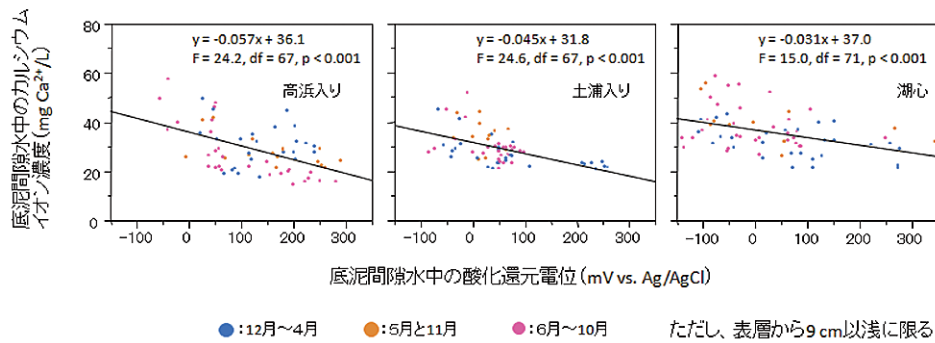


図 19 霞ヶ浦（西浦）の3箇所（高浜入り、土浦入り、湖心）の底泥間隙水中のカルシウムイオン濃度と酸化還元電位の関係

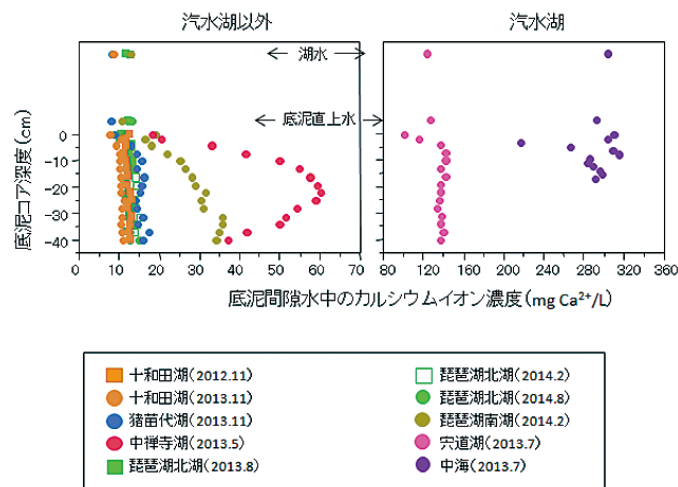


図 20 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中のカルシウムイオン濃度の深度分布

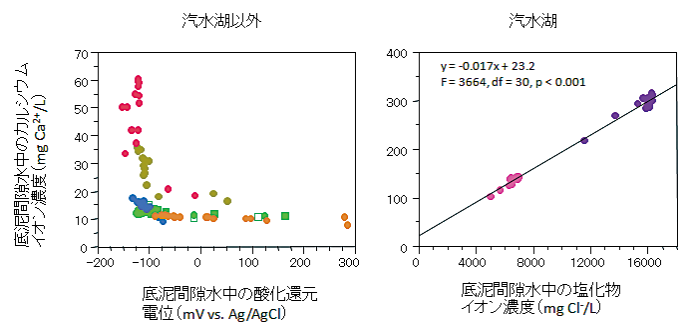


図 21 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中のカルシウムイオン濃度と酸化還元電位との関係（左図）および塩化物イオン濃度との関係（右図）

きると推測された。一方、汽水湖以外の湖では、霞ヶ浦同様、十和田湖を除く4湖沼すべてで底泥間隙水のpHおよび酸化還元電位と有意な負の相関関係を示したことから（図21左図）、炭酸塩鉱物からの溶出が強く影響していると考えられた。十和田湖だけは、酸化還元電位と負の相関を示したものの、pHとは正の相関を示した。その理由は不明である。

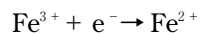
(5) 底泥間隙水中の栄養塩濃度

底泥間隙水中の栄養塩濃度は、前節の他のイオンと同様に、底泥直上水からの流入と底泥中での生成・消費プロセス

によっておおよそ説明できると思われる。しかしながら、その結果形成される間隙水中の栄養塩濃度の勾配は、底泥表層から底泥直上水への栄養塩の拡散フラックスを大きく規定することが知られており、その点湖水柱での一次生産に直接的な影響を持つ点で、他のイオンとは異なっている。霞ヶ浦を含め多くの湖沼で問題になっている富栄養化現象は、リンや窒素といった栄養塩の底泥からの溶出が原因になっていることから、本研究でもリン酸態リン濃度、アンモニウム態窒素濃度、硝酸態窒素濃度の3種類の栄養塩濃度について議論する。

1) リン酸態リン濃度について

リン酸態リンは、中性の湖沼の底泥中では水酸化鉄や水酸化アルミと結合した状態で固相に集積していることが多い。しかしながら、その水酸化鉄や水酸化アルミ中の鉄やアルミが貧酸素下で還元されることで、



カウンターイオンであったリン酸イオンの一部が底泥間隙水中に溶出することが、底泥間隙水中のリン酸態リンが上昇する最も大きな反応機構であると考えられてきた²⁾。逆に還元的な底泥が酸化的になる際には、底泥固相中の水酸化鉄や水酸化アルミに取り込まれることから底泥間隙水中のリン酸イオン濃度は低下する。

霞ヶ浦においては、3地点すべてにおいて表層から5～15 cmの深度でリン酸イオン濃度の極大ピークが見られた(図22)。このことは先述した底泥間隙水中のリン酸イオン濃度の決定機構と深く関連していると思われる。特に底泥表層

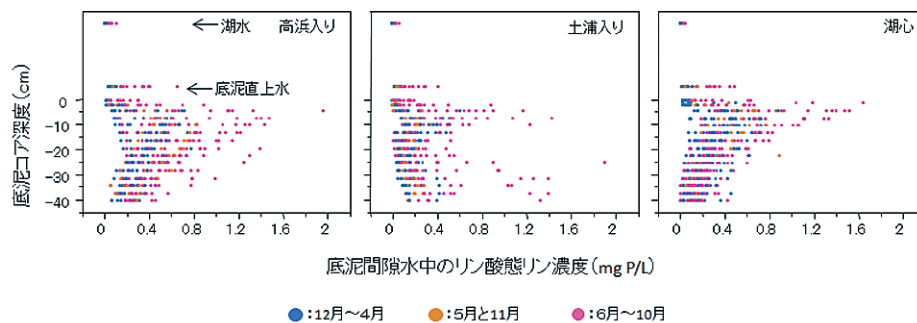


図 22 霞ヶ浦（西浦）の3箇所（高浜入り、土浦入り、湖心）の底泥間隙水中のリン酸態リン濃度の深度分布

でリン酸イオン濃度が急激に低下するのは、表層の酸化的になった底泥中の水酸化鉄や水酸化アルミにリン酸イオンが取り込まれることによると思われる。しかしながら、こういった機構は底泥中の酸化還元環境が安定している場所では機能しにくい可能性が高いと思われる。なぜなら、水酸化鉄や水酸化アルミ中の鉄やアルミの酸化数が変化しなければ、カウンターイオンの過不足も生じにくく、その結果、底泥間隙水中のリン酸態リンの濃度勾配も拡散により解消されると考えられるからである。夏季の湖心や土浦入りの底泥表層直下に形成される、鋭いリン酸態リン濃度の極大ピークはこうした層で、酸化的であった底泥が急激に還元的になった結果と思われる。酸化還元電位の低下がより深い層で顕著な高浜入りでは、リン酸イオン濃度の極大ピークもより深層に幅広で存在する点もこうした酸化還元環境と間隙水中のリン酸イオン濃度との密接な関係を示唆している。また、夏季に土浦入りの深層でもリン酸イオンの高くなる時がある。詳細な理由は不明だが、ユスリカの巣穴が土浦入りでは表層から30 cm以深でも見られ、年間を通して深層の酸化還元電位は他の2地点に比べて高くなっている(図4)。こうした深層の底泥の一部が夏季に還元的になることでリン酸イオンが放出された可能性があると思われる。

霞ヶ浦以外の湖の底泥間隙水中のリン酸イオン濃度では、湖による違いが大きく、霞ヶ浦で見られたような夏季のリン酸イオン濃度の極大ピークは明確ではなかった(図23)。各湖沼におけるサンプリング回数が少なす

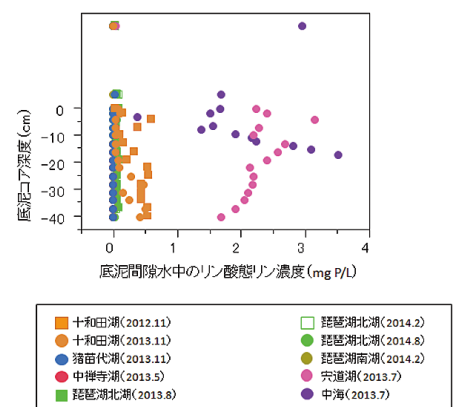


図 23 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中のリン酸態リン濃度の深度分布

ぎることも一因かと思われるが、おそらく底泥中の酸化還元環境以外に底泥中の固相に集積したリン酸態リンの結合形態（水酸化鉄結合体、水酸化アルミ結合体、カルシウム結合体等）が湖沼によって大きく異なり、還元的になった際の溶出のしやすさが異なることも背景にあると思われる。夏季の宍道湖には霞ヶ浦より高濃度に底泥表層の間隙水中にリン酸態リンが蓄積しており、これが宍道湖におけるアオコの発生の一因になっている可能性もあると思われる。

2) アンモニウムイオン濃度について

アンモニウムイオンは、有機物分解時の脱アミノ反応等をへて底泥間隙水中に供給される。酸化的な環境では硝化菌により硝酸イオンへと代謝されるが、還元的な環境では底泥間隙水中に蓄積することが一般的である。アナモックス反応の基質にもなるが、底泥間隙水中の濃度に関して言えば、有機物の分解性と硝化活性により説明できる部分が大きいと思われる。

霞ヶ浦においては、高浜入りと湖心で深度方向の濃度勾配が顕著であった（図 24）。一方、塩化物イオンの結果から、底泥直上水との交換の良い土浦入りや高浜入りの表層から 20 cm 以浅においてはアンモニウムイオン濃度が底泥直上水とほぼ同じ低レベルに維持されていることも多かった。実際、底泥直上水との交換の目安となる底泥間隙水中の塩化物イオン濃度との関係性をみると、どの地点も塩化物イオン濃度の低い時にはアンモニウムイオン濃度も低い結果が得られた（図 25）。以上のことから、溶存酸素を多く含む酸化的な底泥直上水との交換の良い底泥では、生成されたアンモニウムイオンが速やかに硝化されているのに対し、そうでない底泥では蓄積されている実態が明らかとなった。同じように塩化物イオンが高く、底泥直上水との交換の悪い深度であっても、高浜入りでは湖心に比べて 20 % 程度アンモニウムイオンの蓄積が軽減されていた（図 24）。その理由は不明だが、湖心の底泥有機物の方が分解性が高く、アンモニウムイオンの生成活性が高いのかもしれない。

霞ヶ浦以外の湖では十和田湖を除いて、霞ヶ浦と同様に深層にいくほど底泥間隙水中のアンモニウムイオン濃度は上昇する傾向を示した（図 26）。その上昇曲線は湖沼ごとに異なり、深層でのアンモニウムイオン濃度も大きく違った。

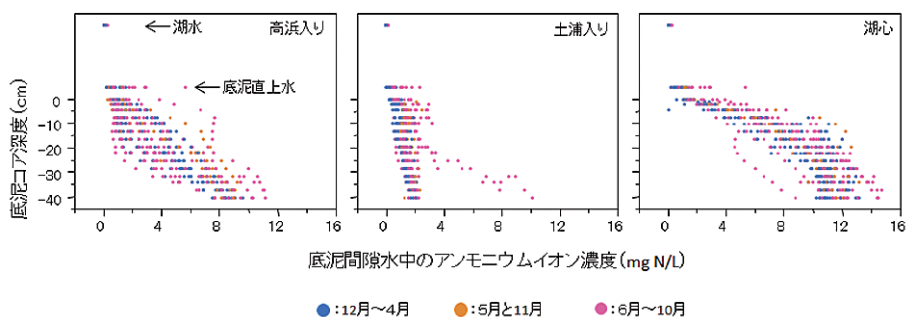


図 24 霞ヶ浦（西浦）の 3 箇所（高浜入り、土浦入り、湖心）の底泥間隙水中のアンモニウムイオン濃度の深度分布

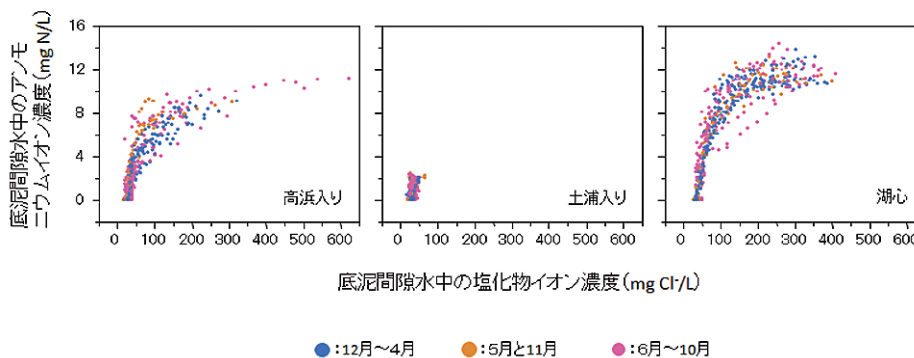


図 25 霞ヶ浦（西浦）の 3 箇所（高浜入り、土浦入り、湖心）の底泥間隙水中のアンモニウムイオン濃度と塩化物イオン濃度との関係

霞ヶ浦と同様に、アンモニウムイオン濃度が低い底泥直上水との交換のしやすさや底泥有機物の分解性がこうした違いをもたらしているものと推察されるが、今後そうした情報を蓄積する必要がある。十和田湖では、中層・深層でも酸化還元電位が他の湖に比べて高くなっており、酸性であることから、アンモニウムイオンの生成速度を硝化速度が上回り、深層でもアンモニウムイオン濃度が低く維持されていると推察できた。

3) 硝酸イオン濃度について

底泥間隙水中の硝酸イオン濃度は先述した硝化による供給と、脱窒による消費が大きく影響していると考えられる。特に易分解性有機物が多く、還元的な環境のある底泥表層は活発に硝化と脱窒の起こっているサイトであり⁵⁾、その意味で底泥間隙水中の硝酸イオン濃度は両活性速度の差し引きによる正味の硝酸イオン生成速度によるところが大きいと考えられる。

霞ヶ浦においては、年間を通して全層で硝酸イオン濃度は低レベルに抑えられていた(図27)。このことから、年間を通して脱窒活性が硝化活性を上回っている可能性が高い。ただし、冬季に硝酸イオン濃度が概ねどの深度の底泥間隙水でも高くなることから、冬季には脱窒活性が硝化活性に比べて大幅に落ち込んでいることが示唆された。一方、底泥

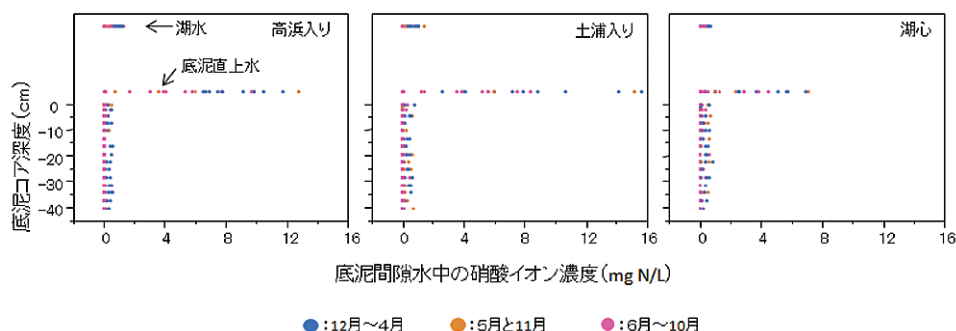


図27 霞ヶ浦(西浦)の3箇所(高浜入り、土浦入り、湖心)の底泥間隙水中の硝酸イオン濃度の深度分布

間隙水や湖水に比べ、底泥直上水の硝酸イオン濃度だけがとりわけ高くなった(図27)。こうした傾向を示したのは、測定した全イオン中硝酸イオンのみであり、正味の硝酸イオン生成速度が主として底泥表層それも底泥直上水と接した面で大きくなっていると推察された。脱窒が還元的な環境を必要とすることで、酸性環境が支配的な底泥の一番表層の部分で脱窒活性が抑えられ、正味の硝酸イオン生成速度が高くなったと理解できた。

霞ヶ浦以外の湖では十和田湖と琵琶湖南湖を除いて、霞ヶ浦と同様に全層にわたって底泥間隙水中の硝酸イオン濃度は低く、底泥表層と底泥直上水で高い硝酸イオン濃度を示すものが多かった(図28)。このことから、基本的には霞ヶ浦の底泥中での硝酸イオン濃度の決定メカニズムと同じ機構が働いていると理解できた。中層・深層の底泥間隙水が比較的酸性であった、十和田湖では脱窒活性が低下し、硝酸イオンの蓄積が見られたと推察された。一方、中

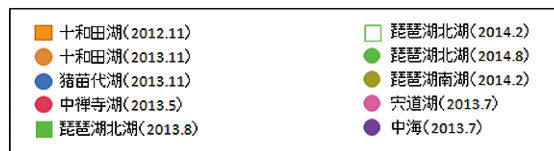
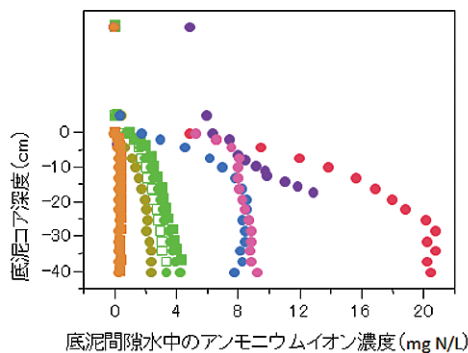


図26 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中のアンモニウムイオン濃度の深度分布

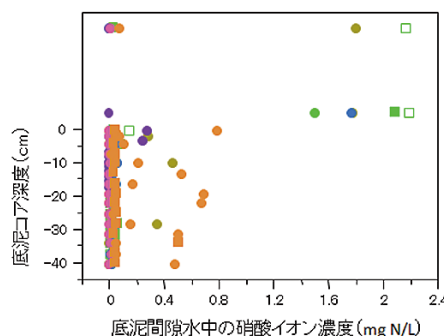


図28 霞ヶ浦以外の湖における底泥間隙水中の硝酸イオン濃度の深度分布

層・深層で還元的と思われる琵琶湖南湖で硝酸イオンの蓄積層が2層ほど確認された。その理由は不明だが、琵琶湖南湖の底泥には大型のイトミミズ類やユスリカの巣穴が多数あり、そうした酸化的な巣管内で硝化が進行した可能性がある。

2.2 底生生物の巣穴構造の解析

2.2.1 背景と目的

前節の「底泥間隙水の水質と底生生物密度との関係」で、霞ヶ浦の高浜入り、土浦入り、湖心の3地点が同じ湖沼の中にありながら、全く異なる底泥間隙水の水質となっていることを紹介した。それらの違いをもたらす最も大きな違いが酸化的な底泥直上水と底泥間隙水との交換の程度であり、その交換を担っているのが主としてユスリカ類を中心とした底生生物の巣穴を通じた活動によるものと思われた。この事実は、底生生物の巣穴構造が分かれば、逆に底泥中の栄養塩をはじめとする水質を推測できることとなり、ひいては底泥からの栄養塩類の溶出フラックスの推定に一步近づくことができること意味する。

にもかかわらず、ユスリカをはじめとする底泥中の巣穴構造を非破壊で評価する手法はほとんどないのが現状である。そのため、軟泥という扱いづらい研究対象をできるだけ非破壊で検査することで底泥中の巣穴構造を解析できる手法の開発が必要となる。そこで、我々は国立環境研究所が人の脳への健康影響を測定評価するのに用いてきたMRI測定法をこの解析に用いることとした。

2.2.2 方法

全く新しいMRI測定を底泥コアに対して行うにあたり、以下のような改良を行った。

改良点1) 底泥コアを人体の頭部測定用のコイルに入る大きさ(長さ20 cm以下)にまで小さく切り分けるための底泥コア専用カット台の製作(図29)

改良点2) MRI測定中に底泥間隙水が溢れたりせず、また内圧を逃がすことのできる測定専用の底泥コア容器の開発($\phi 11$ cmでL19 cmの底泥コア)

改良点3) 人体の脳から底泥コアへと測定対象変更に伴うMRI測定条件の最適化

装置はAgilent社製、人体用4.7 Tシステムに頭部用TEMコイルを用いた。霞ヶ浦で採取した底泥サンプルを用いて、グラジエントエコー(GE)法とスピネコー(SE)法でイメージング条件の検討を行い、両サンプルの3次元撮像をおこなった(図30)。3Dシークエンスの測定条件は以下の通りとした。TR = 400 ms、TE = 8 ms、FOV19.2x19.2x19.2(cm)、matrix 256x256x256、積算2回。RFパルスは160 μ sの短形波の非選択励起パルスを用いることで8 msのTEで測定できるようになった。この条件により約15時間(オーバーナイト)で測定を行った。

MRI測定を行った底泥コアは主として霞ヶ浦湖心のものである。霞ヶ浦湖心の底泥コアに対し、次の二通りの測定を行った。一つは、霞ヶ浦湖心での巣穴密度の変化を把握するために、2012年度

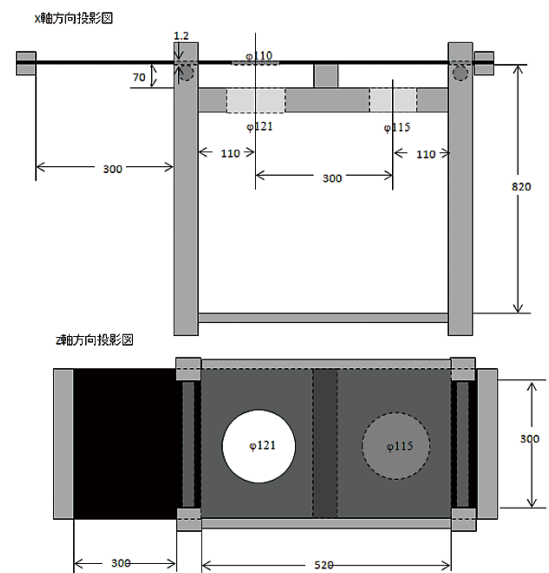


図29 底泥コア専用カット台

採取した底泥コアをMRI測定やX線CT測定用の短いコアへと移しかえる際に使用した。

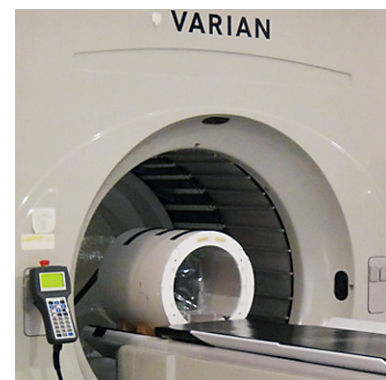


図30 底泥コアのMRI測定時の様子

中央下部に見える白い円筒(頭部撮影用コイル)の中にビニールに包まれた底泥コアの一部が見える。

および2013年度の2年間にわたって、奇数月に1本の底泥コア（底泥表層から18 cm程度の範囲）の測定を行った。ただし、2012.4と2013.2と2013.4は偶数月だけが測定を行った。また、コア間のばらつきを見るため、2013.7は底泥コア4本分の測定を行った。

もう一つはユスリカ放出実験に対して行った。ユスリカを底泥コア1本あたり9匹ずつ放して培養した底泥コア3本および放していない底泥コア3本の計6本の底泥コアに対し、実験開始前後でMRI測定を行い、巣穴構造と底泥間隙水の水質との関係性を解析した。図3のような装置を使って底泥コアの構造を壊して底泥間隙水を抽出する方法ではなく、この実験では初めて底泥構造を出来る限り破壊せずに間隙水を少量抽出して水質分析を行うRhizon Samplerによる採水方法を採用した（図31）。

また、霞ヶ浦湖心底泥コアと同じ測定方法で、単発で採泥した霞ヶ浦以外の湖底泥コアのMRI測定も行った。

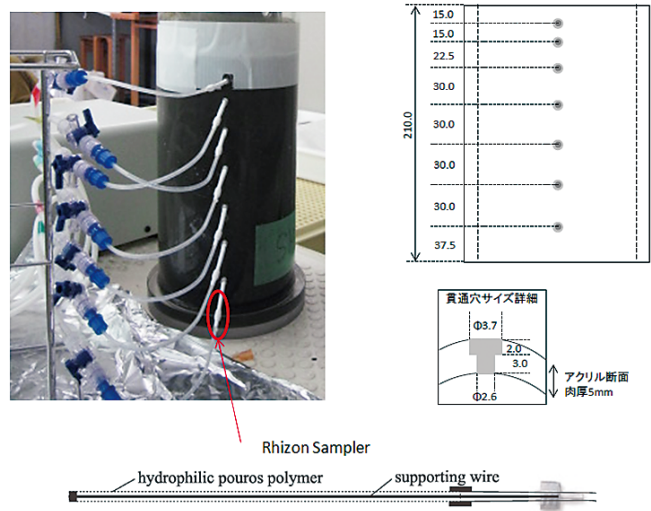


図31 底泥間隙水の微量採水システム

底泥コアにチューブの側面に開けた挿入穴より、Rhizon Samplerを入れ、1回、1か所から5～10分かけて数mlの底泥間隙水を抽出している。

2.2.3 結果と考察

MRI測定により見えるものは底泥中の水である。MRI測定を行った湖心底泥の表層から18 cm程度までの含水率は0.85以上あり、測定を始めるまでは信号が強すぎて、巣穴構造を検出することは難しいと考えていた。しかしながら、実際に測定してみると、通常の軟泥部分は磁場の不均一性が高く、水のシグナルはごくわずかであった。その結果、軟泥の中でも比較的水分の多い、巣穴内部や含水率の高い部分を水のシグナルを通して認識することができた。底泥中には巣穴構造以外に明らかに巣穴構造ではない含水率の高い部分（以後、「水泡構造」と呼ぶ）も存在することが分かったが、その生成・消滅メカニズムは全く不明である。現時点では明らかに巣穴構造と思われるものの底泥コア中での分布に着目し、その経時変化や深度方向の密度変化と底泥間隙水の水質変化との関係性について議論する。

(1) 霞ヶ浦（湖心）における巣穴構造

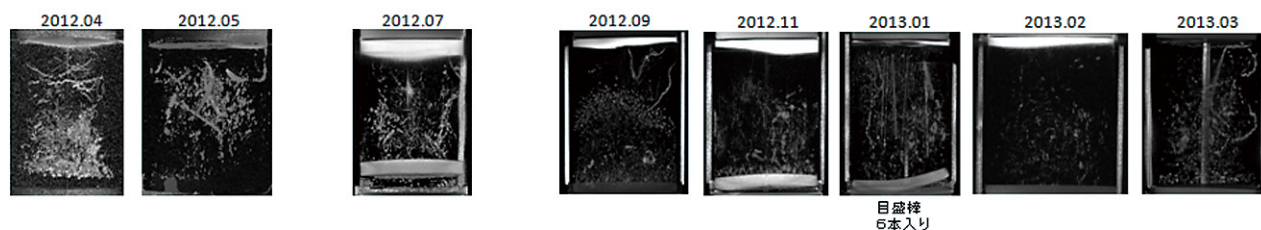
霞ヶ浦の湖心の底泥で優占する底生生物はユスリカ類と貧毛類である。中でもユスリカ類は新鮮な底泥直上水を巣穴に取り込むため、底泥環境を酸化的に維持するのに貢献していると考えられる。現在、湖心の底泥で優占するユスリカ類はオオユスリカとアカムシユスリカの2種と言われているが、オオユスリカの方が生息密度で見ると多くなってきている⁶⁾。オオユスリカは比較的太く壊れにくい巣穴を作る種である。2年間の霞ヶ浦の底泥コアのMRI測定の結果を図32に示す。湖心のユスリカの生息密度は多くても200匹/m²を超えることはないことから（図10）、内径11 cmの底泥コアの中に入るのは多い時で1.9匹程度となる。さらに、ユスリカは底泥中に一様に分布していないと言われていることから、湖心の底泥コアの中に巣穴が入ることはあっても、その増減から生息密度を推定することは、繰り返し数のない現時点では難しいといわざるを得ない。しかしながら、図32の結果から、ユスリカの巣穴形状の多様性とその到達深度等の情報を得ることはできる。

いくつかのコアで水泡構造と巣穴構造が重なり判別しにくくなってはいるが、巣穴構造に関して下記の興味深い特徴を明らかにすることができた。

特徴1) ユスリカの巣穴と思われる巣穴構造にも、太くて15 cm以深まで到達しているものもあれば、比較的表層のみ分布する細いものもあった。

特徴2) ユスリカの巣穴には底泥直上水の取り込み口と排出口があり、底泥中ではU字型とされてきたが、底泥中

2012年度



2013年度

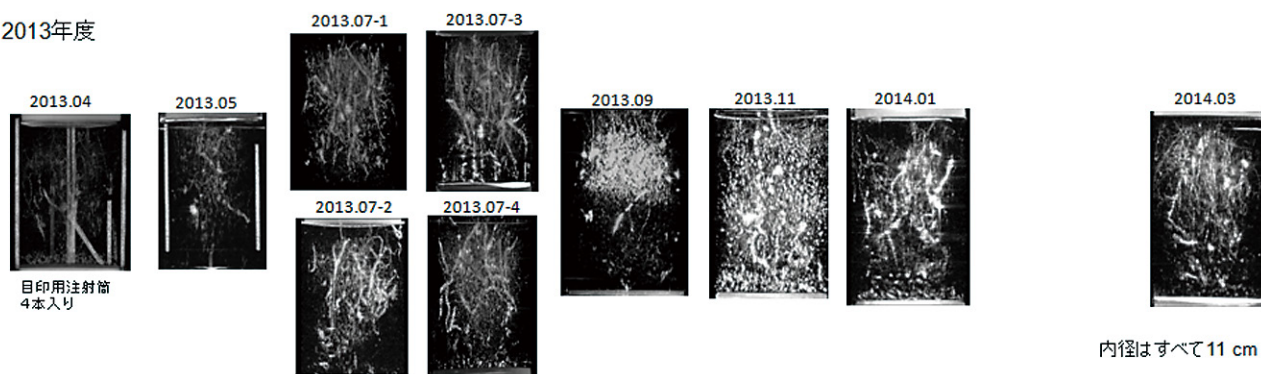


図 32 霞ヶ浦（西浦）の湖心の底泥コアのMRI 測定画像

底泥コアの内径は 11 cm で上下にシリコンゴム（MRI 測定画像では白く浮かび上がる）をかましてある。各画像上部に採取された年月を示した。2013 年 7 月のみ 4 本の底泥コアの測定を行った。

で幾度も曲がり、底泥表層とのつながりが不鮮明であるにも関わらず、底泥内部に発達した巣穴のある場合もあった。

特徴 3) 巣穴構造は生成と消滅を繰り返しているようで、明確にたどれるものもあれば、途中で何度も途切れるような巣穴もあり、使われなくなり消滅しつつある巣穴構造もあるものと推察できた。

(2) 巣穴構造が底泥間隙水の水質におよぼす影響

霞ヶ浦の湖心の底泥コアに霞ヶ浦産のオオユスリカの幼虫を添加したコアと非添加のコアの底泥間隙水の水質を比較する実験を行った。まずは、先述したように生物利用性の低い塩化物イオン濃度を元に底泥直上水と底泥間隙水との交換の程度を評価した。飼育期間は 2 週間という短期間であったが、底泥間隙水の水質への影響は顕著であった。偶然ではあるが、幼虫を添加した 3 本の底泥コアごとに幼虫が底泥中に作り上げた巣穴構造の到達深度に大きな違いがあった。それらを到達深度ごとに並べ、さらに非添加コアと比較した結果が図 33 である。MRI 測定により明らかとなった底泥コア中の巣穴分布深度（図中で黄色双方向矢印で表示）まで、底泥間隙水中の塩化物イオン濃度は低く維持されていた。一方、非添加コアや巣穴が分布していない深度では塩化物イオン濃度は深度方向に上昇していた。このことから、オオユスリカの幼虫が作る巣穴を通して、底泥直上水が取り込まれ、底泥間隙水との交換が促進されていることが強く示唆された。

底泥間隙水中のアンモニウムイオン濃度も幼虫添加コアと非添加コアで大きく異なっていた。特に深層では、幼虫添加コアで低くなっていた（図 34 左図）。この違いは 2 つのプロセスのいずれかもしくは両方で説明できる。ひとつは単にアンモニウムイオン濃度の低い底泥直上水との交換が良くなったために低下するプロセス、もうひとつは酸化的な底泥直上水の流入により交換が良くなったところで硝化が起き、アンモニウムイオン濃度が低下するプロセスである。塩化物イオン濃度とアンモニウムイオン濃度との関係性を見ると、強い正の相関関係があり、その関係性は幼虫添加コアと非添加コアで同じであったことから（図 34 右図）、幼虫添加コアの深層でアンモニウムイオン濃度が低かった理由は、巣穴が増えたことで底泥直上水との交換が良くなったことが原因の一つであることは間違いない。

幼虫添加実験で示された現象が野外でも支配的か否かを確認するため、底泥表層から直上水へのアンモニウムイオン

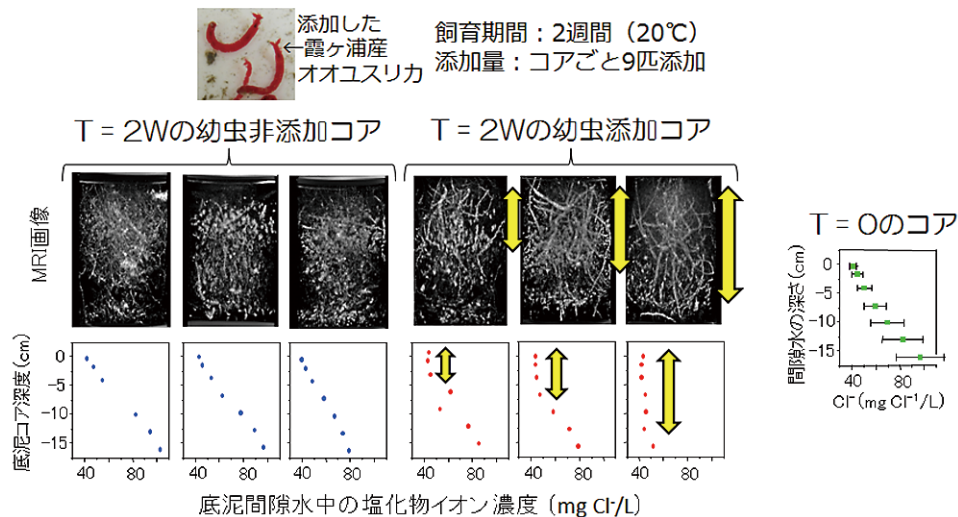


図 33 ユスリカ幼虫添加実験の結果

実験は幼虫非添加コア 3 本と幼虫添加コア 3 本の計 6 本で行った。
 幼虫添加コア 3 本の MRI 測定画像から分かるように、コアごと巣穴の到達深度（図中の黄色両矢印）が異なっていた。

の拡散速度に与える環境因子を解析した。底泥表層から直上水への拡散速度は底泥表層付近の濃度勾配と泥温によって決まる。濃度勾配が小さくなれば拡散速度も小さくなり、栄養塩の底泥溶出の影響も緩和される可能性がある。ユスリカ生息密度が上がれば、巣穴を通して底泥直上水と底泥間隙水との交換が促進され、底泥表層近くの底泥間隙水の栄養塩の濃度勾配も低下することが期待できる。それを確かめるために、霞ヶ浦の 3 地点でアンモニウム態窒素の底泥からの拡散速度を応答変数としたときに、選択される環境因子を解析した。解析では泥温、ユスリカ個体数密度、貧毛類個体数密度の 3 種類の環境因子を説明変数として、ステップワイズ変数選択法により選択される変数とその予測式の係数を図 35 にまとめた。結果からは、アンモニウム態窒素の底泥表層からの拡散フラックスはユスリカの個体数密度が増えると有意に減ることが明らかとなった（図 35）。こうした事実は、実験から類推されたユスリカ幼虫の底泥間隙水の水質への影響が野外で実際に存在する可能性の高いことを強く示唆していた。

(3) 霞ヶ浦以外の湖における底泥コアの MRI 画像

霞ヶ浦以外の湖では、中禅寺湖、琵琶湖北湖、宍道湖、十和田湖の底泥表層から 18 cm までの底泥コアを MRI 測定に供した。ある 1 時点の 1 地点の 1 コアの MRI 画像が、その湖をどこまで代表する情報を含んでいるかについては不明であるが、それらを並べた MRI

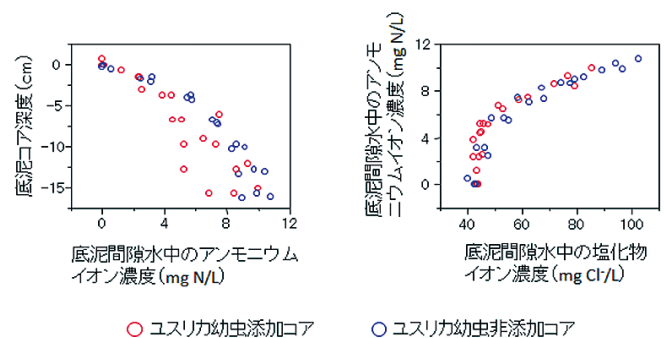


図 34 ユスリカ幼虫添加実験での底泥間隙水中のアンモニウムイオン濃度の深度分布（左図）と塩化物イオン濃度との関係（右図）

サイト名	高浜入り	湖心	土浦入り
泥温		+13.7***	+3.78***
ユスリカ個体数密度	-0.072*	-1.36**	-0.053**
貧毛類個体数密度		+0.041	+0.011

ステップワイズ変数選択法で選択された環境因子と予測式の係数 (p* < 0.05, p** < 0.01, p*** < 0.001)

図 35 霞ヶ浦（西浦）の 3 箇所（高浜入り、土浦入り、湖心）でのアンモニウム態窒素の底泥表層から湖水への拡散フラックスへの泥温、ユスリカ密度、貧毛類密度の影響評価
 拡散フラックスは底泥表層から 6 cm までの 3 層の底泥間隙水のアンモニウムイオン濃度の深度勾配に沿った変化率を元に計算し、エクマンバージにより採取した底生生物の生息密度や泥温の影響をステップワイズ変数選択法により評価した。

測定の結果(図36)からは、湖が異なれば底泥コアのMRI画像も全く異なっていることが分かる。霞ヶ浦の2年間の底泥コアのMRI画像と比較してみても分かることは、見え方そのものとしては巣穴が走っている宍道湖が霞ヶ浦に近いように思える。さらに宍道湖では、シジミと思われる二枚貝が一個体映し出されていた。一方、琵琶湖北湖の底泥コアのMRI画像ではうす雲のような構造が表層に映っていた。霞ヶ浦でも時として非常に細かい巣穴がうす雲のように表層に広がる時があり(図32の2013.09等)、この細かい巣穴の集まりは貧毛類に巣穴を作らせた時の見え方と極似していた(図36の右から3番目のコア)。その意味で琵琶湖北湖では、表層近くに貧毛類の巣穴と思われる構造が高密度に存在する可能性が高い。また、中禅寺湖や十和田湖は明らかに巣穴ではなく、多様な形状の水疱構造が高密度に見られた。こうした水疱構造の出現メカニズムは不明であるが、十和田湖ではX線CT画像と興味深い対応関係があり、水疱構造の維持される層の特徴を示していた(図36の右2つのコア比較)。具体的には、十和田湖の底泥の表層から18cmまでにはおそらく過去の火山灰の履歴を反映した5本の白い縞模様が見られる。X線の透過率の低い鉱物粒子を多く含んだ層ほど白く映ると考えられることから、こうした深度には急激に堆積した鉱物質の泥が堆積している可能性が高い。一方、それ以外の層は湖水柱で生産された植物プランクトンの遺骸からなる軟泥が堆積しているものと推察される。MRI画像では、ちょうどX線CT画像上で白く筋状に映った深度で、水疱構造が途切れていた。このことから、水疱構造は有機物質の軟泥で起こりやすい現象なのかもしれない。実際、霞ヶ浦のような全層にわたって有機物質の軟泥の底泥コアでは、頻繁にこうした水疱構造が確認できた(図32)。

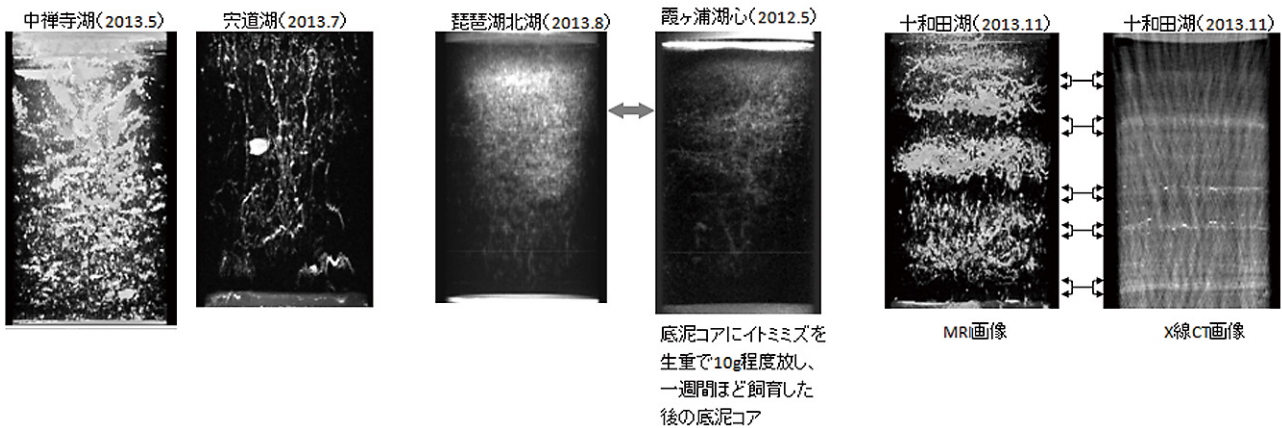


図36 霞ヶ浦以外の湖における底泥コアのMRI測定画像
底泥コアの湖名と採取年月を画像上部に示した。右端の画像のみX線CT測定画像。

2.3 底泥中のガス泡構造の解析

2.3.1 背景と目的

湖沼底泥中にはメタンガスが蓄積していることはよく知られている⁷⁾。メタンガスは水に難溶性の気体であるため、夏季のメタン生成速度の高い時にはガス泡の形でその多くが底泥中に蓄積されているものと思われる。従って、湖沼底泥からのメタン発生量を見積もるためには、湖水に溶存したメタンガスが湖水面表面から大気へと拡散するプロセス以外に、ガス泡が直接湖水柱へと移動し、そのまま大気へと放出される経路が重要とされている⁷⁾。にもかかわらず、こうした経路を定量的に評価することは難しく、定量評価手法の開発が望まれている。近年、湖水柱を通過する際のガス泡を魚群探知機のような音響機器により認識し、定量する試みがなされている⁸⁾。また、メタンハイドレートの研究と関連して、底泥中のガス泡を観察した研究例がある⁹⁾。しかしながら、こうした試みも底泥から大気へと放出されるガス泡を定量予測するには至っておらず、方法論の開発も含めた解析手法の進展が期待されている。

こうした、背景を踏まえて、本研究では底泥中の空隙(=ガス泡)を非破壊で画像化することの可能なX線CT測定を底泥コアに応用することで、底泥中にガス泡により蓄積されているメタンガスの動態を世界に先駆けて明らかにする研究を行った。底泥中のガス泡の蓄積層の変化・ガス泡の形態をX線CT測定から明らかにし、湖水柱を横切って大気へ放出されるガス泡の生成深度を解析することを目的とした。

2.3.2 方法

泥温操作実験では、2013年7月8日に霞ヶ浦湖心にて、採取した計5本の底泥コアをインキュベーター内に設置し、培養温度を4℃、10℃、30℃の3種類の泥温で培養した。設置期間は、短期実験に供した3本が29日間で、長期実験に供した2本が2カ月間である。それぞれ、実験開始前と開始後にX線CT測定を行った。培養中は底泥直上水を20cm程度の深さになるように維持し、霞ヶ浦湖心底泥直上付近のせん断応力の中央値(0.0236 dyn/cm²)付近とほぼ同じせん断能力が底泥表層にかかるようにスターラーバーの回転速度を調整し、実験に供した。

茨城県立医療大学のX線CT測定機材を使用させてもらい、人体測定の各種測定モードを底泥コア測定に最適化することで測定した。底泥コアはできるだけ長いコアをそのまま測定できるように、内径11cm、長さ37cmのアクリルチューブで採泥したものを使用した。測定条件は下記のとおりである。

使用機器：ECLOS

株式会社日立メディコ製マルチヘリカルCT

測定条件

スキャン方式 ヘリカルスキャン

スライスピッチ 0.625 mm

データ採集直径 400 mm

管電圧 130 kVp

管電流 150 mA

画素間隔 0.783 × 0.783 mm

画像解析にはX線CT測定で得られたグレースケールの横断面スライス画像を元に、2値化処理を行い、エネルギー量の少ない空隙に対応する画素数を積算し、そのスライス深度のガス泡密度計算に用いた。実際に集計する際には、間隙水の抽出幅と同じ3cm厚で平均化した。

X線CT測定に供した底泥コアは以下のとおりである。

霞ヶ浦(西浦)湖心：2013年3月～2014年2月(基本は奇数月)

十和田湖(御門岩北 水深80m)：2013年11月

猪苗代湖湖心：2013年11月

中禅寺湖最深部(水深168m)：2013年5月

琵琶湖(北湖)湖心：2013年8月

宍道湖湖心：2013年7月

2.3.3 結果と考察

(1) 霞ヶ浦(湖心)におけるガス泡構造

霞ヶ浦の湖心の底泥コア1年分のX線CT測定結果を図37にまとめた。各月1本の底泥コアの代表性については不明であるが、2013年7月に採泥した6本の底泥コアのX線CT測定結果を比較すると、少なくとも下記のような共通した特徴のあることが分かる。

特徴1) 表層から4cmの深さまでは、いつもガス泡が無い。以後層①と呼ぶ。

特徴2) 4cmから20cm程度の深さまでは、比較的大型でどちらかという不定形～球形に近いガス泡が存在する。以後層②と呼ぶ。

特徴3) 表層から20cm以深では、大きなガス泡も横に扁平で、数としては小さなガス泡の方が多い。以後層③と呼ぶ。

こうしたガス泡の季節変化を上記の3つの特徴に対応した層ごとにまとめてみた。

層①：ガス泡が無い層の厚さは7月の6本のコアの中でも変動した。6本の中でどちらかという球形の大きなガス泡が層②に多いコアほど(図37下段の左から2本目、5本目、6本目)、層①の厚さは薄くなっていた。逆に冬

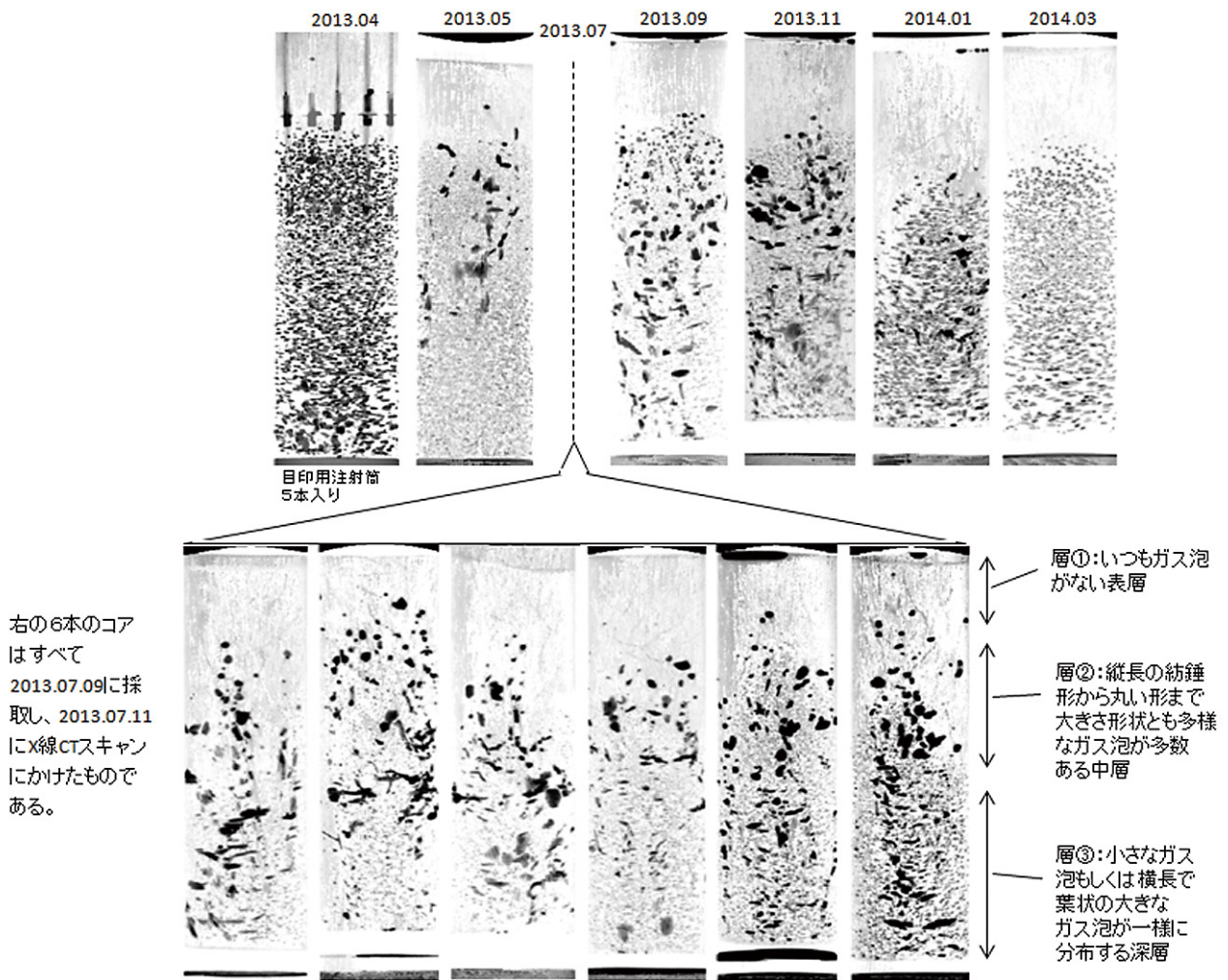


図 37 霞ヶ浦（西浦）の湖心の底泥コアの X 線 CT 測定画像

底泥コアの採取年月を画像上部に示した。2013 年 7 月のみ 6 本の底泥コアの測定を行った。

季に最も厚くなっていた。

層②：冬季や春季は小さく丸いガス泡が多数存在していたが、夏季から秋季にかけては大きく扁平ではないガス泡が多くなった。

層③：ガス泡は扁平で、特に大きなガス泡でその扁平度合いが強いように見える。冬季～春季にかけては大きなガス泡は少なく、夏季から秋季にかけて扁平で大きなガス泡が見られた。

以上の季節変化の特徴から、ガス泡の消長に関して次のようなメカニズムが働いているのではないかと推察された。

メカニズム 1) 夏場のメタン生成活性の高い時期に大型のガス泡が層②と③で多くなることから、ガス泡は成長すると、小さなガス泡同士がくっつき大きなガス泡へと変化している可能性が高い。

メカニズム 2) 堆積過程を反映してか、堆積物中のより深いところでガス泡が成長する場合、水平方向にガス泡が発達する。仮説ではあるが、ガス泡内部のガス圧が高くなり周辺の壁が裂けて行く時に、堆積粒子同士の結合の弱い水平方向に裂けやすい可能性がある。

メカニズム 3) 明瞭とは言えないが、層②の大きなガス泡はどちらかというより浅い層に多いように見える。これはガス泡が成長するにつれて上層へ移動し、層①を通過して湖水柱へと放出されていることの状況証拠と言える。層②ではまだまだ泥が流体の性質に近く、ガス泡が成長すると、体積に比例して増大する浮力が、表面積にしか比例しない移動時の摩擦抵抗を上回りやすくなるからではないかと推察した。

メカニズム 4) 層②では成長したガス泡は最終的には移動・放出されて底泥中から消えていく可能性が高い。一方、層③では水平方向の成長が卓越するため、上層へ抜けていく移動は最小限に抑えられている。となる

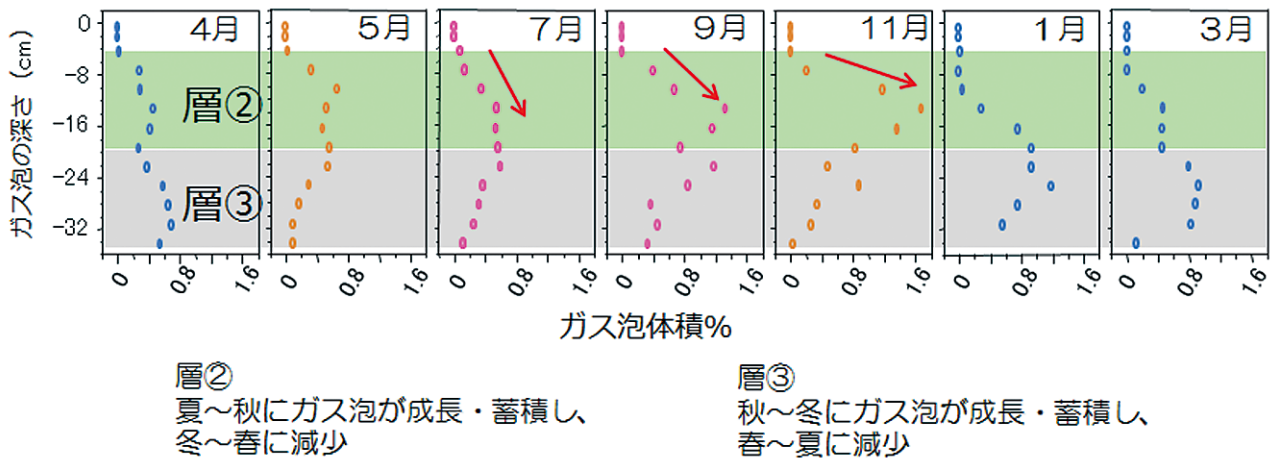


図 38 霞ヶ浦（西浦）の湖心の底泥コア中のガス泡の体積%

ガス泡の体積%は X 線 CT 測定画像から空隙セル数をカウントし算出した。

と夏季から冬季にかけて、層③でも大きなガス泡が減っていくのは、ガス泡が縮小していくメカニズムが存在することによる可能性が高い。

図 37 に示した画像データを画像解析にかけ、ガス泡の底泥体積に占める体積割合（以後、ガス泡体積比率と呼ぶ）に換算した結果を図 38 に示す。この結果から、霞ヶ浦湖心底泥中のガス泡は下記の特徴を持つことが分かった。

特徴 1) 中層のガス泡体積比率は、秋季に 10～14 cm の深さで最大となり、最大比率は 1.0～2.0 % 程度であった。

特徴 2) 深層でのガス泡体積比率は冬季に最大となり、1.0 % 程度であった。

特徴 3) 層②上部のガス泡体積比率の深度方向の変化率が最大になるのも秋季で、この時期にガス泡の放出に伴うメタンガスの底泥から大気への放出フラックスも最大になっている可能性が高い。

以上の事実から、底泥コアの X 線 CT 測定はガス泡の動態解析に極めて有効であり、底泥から大気へのメタンガスのフラックスを評価する上で貴重な情報をもたらしてくれることが明らかとなった。霞ヶ浦湖心では夏季から秋季にかけて、表層から 10～14 cm の深さにガス泡が蓄積し、それが次々と湖水柱へと放出されている可能性が高いと考えられた。

(2) 霞ヶ浦（湖心）のガス泡構造への泥温影響

霞ヶ浦の湖心の底泥コアを短期間（29 日間）と長期間（2 ヶ月）3 種類の泥温で培養した際のガス泡構造の変化を X 線 CT 測定により明らかにした（図 39）。短期・長期に関わらず、4℃の培養では、底泥表層に近い比較的小さなガス泡が消滅し、大きなガス方も若干小さくなっている傾向が明らかであった。また、底ブタ近くの底泥深層においても同様の傾向が認められた。一方、底泥コアの中層ではガス泡の形状・密度ともに大きな変化は無く、保存されていることが明らかとなった。以上の事実から、底泥表層や深層といった底泥直上水や底ブタを通して拡散する溶存酸素の影響の強いところでガス泡密度の低下が起きやすいことを示唆している。同様の傾向は 10℃での培養でも認められ、より低い泥温下で酸化的になった際に顕在化すると考えられた。ガス泡の主成分はメタンガスと炭酸ガスと考えられ、特にメタン生成活性の温度依存性が高いことから¹⁰⁾、こうしたガス泡密度の減少の背景にはメタン生成活性が酸化的で低温な環境下で低下し、ガス泡内部のガス圧が低下したことなどが関係していると考えられた。ただ、たとえこうした仮説が成り立つとしても、ガス泡から周辺の間隙水へと溶存するメタンガスの速度もしくはメタンガスのガス泡内部での消費活性がメタン生成活性を低温下で上回る必要があるが、現時点では詳細は不明である。

一方、泥温を 30℃まで上げた際には、顕著なガス泡の増大が認められた（図 39）。その際、もともとあった大きなガス泡は成長していないか逆に若干小さくなっている傾向があるのに対し、小型のガス泡の密度が大幅に上昇したように見受けられた。この事実は、メタンガス等の底泥中のガス生成活性が一旦大きく成長したガス泡表面ではなく、小さなガス泡周辺で高まっていたことを示している。また、泥温が 10℃の時の中層でもガス泡密度の上昇が認められた。

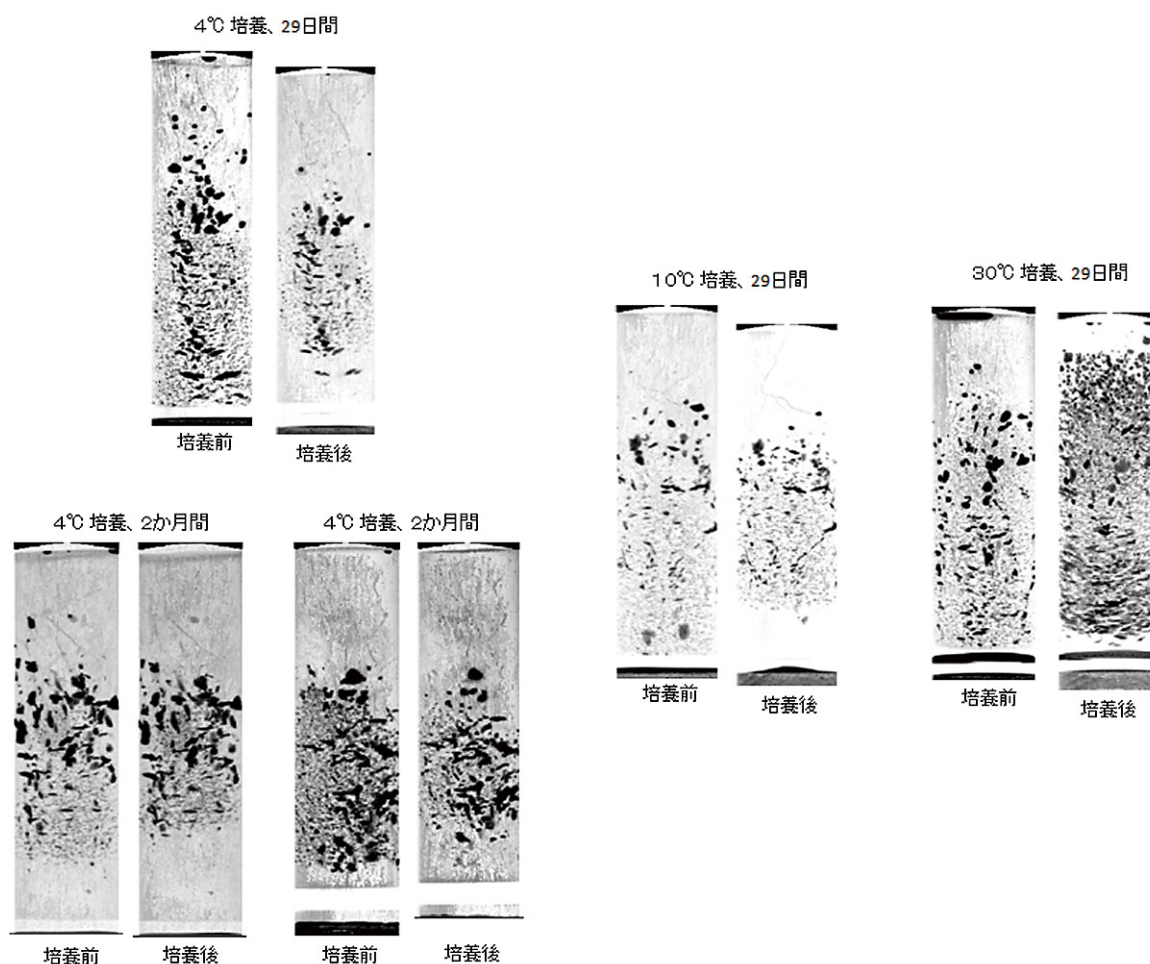


図 39 泥温操作実験の培養前後での底泥コアの X 線 CT 測定画像の比較
底泥コアはすべて霞ヶ浦（西浦）の湖心のものを使用した。

こうしたことから、泥温の上昇は底泥コア内の微生物活性を増大させ、酸素要求速度が増すことから、底泥中に還元的な環境が広がり、メタン生成活性自体も上がるため、ガス泡密度が劇的に増大したと考えられた。

(3) 霞ヶ浦以外の湖における底泥コアの X 線 CT 測定画像

霞ヶ浦以外の湖でも数少ないが X 線 CT 測定を行った（図 40）。X 線 CT 測定が底泥中の空隙の認識能力が高いことは先述したとおりであるが、X 線透過率の低い炭酸塩や金属なども白く浮かび上がるため、底泥の他の部分と区別することができる。十和田湖の底泥コアで見られた白い水平方向に入る筋は、おそらくは有機物濃度の少なく鉱物質の多い堆積物からなるため、X 線透過率が低くなったものと思われる。また、宍道湖では底泥コア中に多くのシジミの遺骸が含まれており、炭酸カルシウムを主成分とするシジミの殻を明確に認識できる。

底泥中のガス泡に関しては、各底泥コアの代表性に関して不明な部分があるものの、下記のような順にガス泡を多く含んでいた。

- 1 番少ない湖) ほとんどガス泡の無い十和田湖と宍道湖
- 2 番目に少ない湖) 深層にわずかなガス泡が認められる琵琶湖北湖
- 2 番目に多い湖) 表層を除き全層に小さなガス泡のある猪苗代湖
- 1 番多い湖) 中層に大きなガス泡、深層に扁平なガス泡が多数認められる中禅寺湖

メタンガスは有機物の嫌気性分解の最終産物として生成する。したがって、一般的には易分解性有機物が多い堆積物中で蓄積しやすいと考えられる。今回調査した各湖の有機物の分解性に関しては解析できていないが、一つの目安として底泥中のアンモニウムイオン濃度が底泥有機物の分解性を反映しているとするならば、図 26 の結果から

十和田湖 < 琵琶湖北湖 < 猪苗代湖 < 宍道湖 < 中禅寺湖

の順に湖底堆積物の分解性は上がっているように思われる。一方、嫌気的な環境でもメタン生成を阻害する要因として、高濃度の硫酸イオンの存在がある。詳細な理由は専門書に譲りたいが、硫酸還元は還元環境下でメタン生成より進行しやすい還元反応であり、それゆえ硫酸還元の基質である硫酸イオンが高濃度で存在するとメタン生成は一般に進行しにくいと言われる。上記の5つの湖の中で宍道湖だけが底泥間隙水中の硫酸イオン濃度が深層であっても他の湖の40倍程度あることを考えると、有機物の分解性が高かったとしてもメタン生成が阻害されていた可能性が高い。以上のことから、底泥中のガス泡の蓄積しやすさは、1) 汽水湖か淡水湖か、2) 堆積物中の有機物の分解性、の観点からかなり説明できる可能性がある。

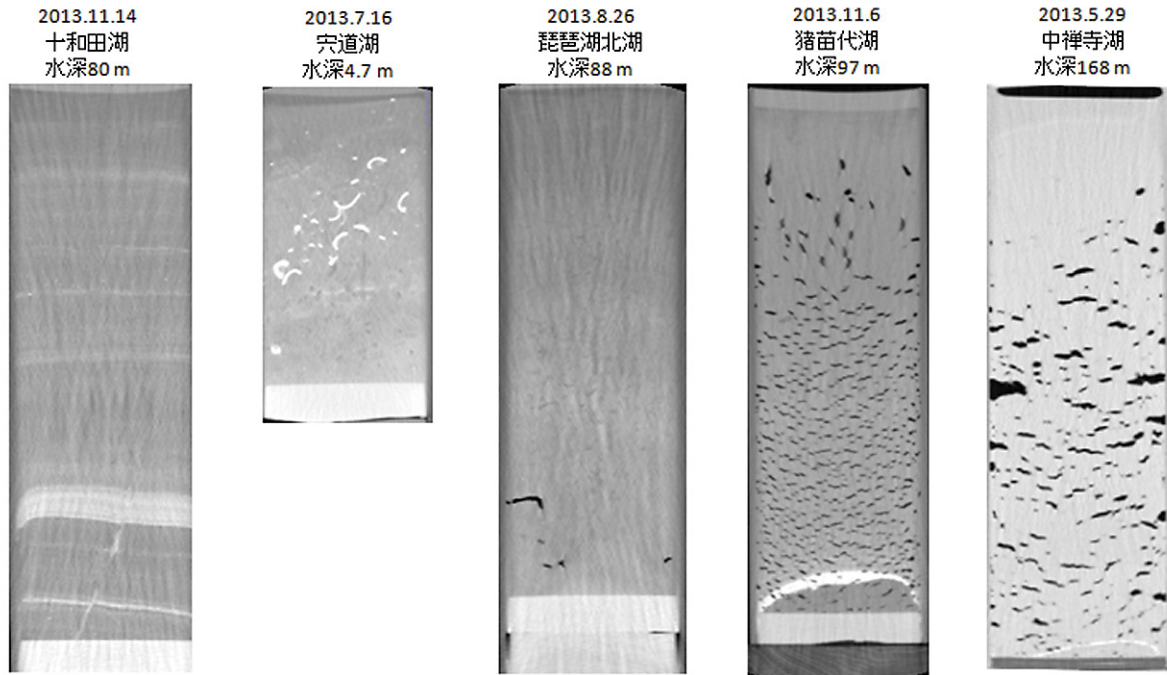


図 40 霞ヶ浦以外の湖における底泥コアの X 線 CT 測定画像

画像中の白く映っているのは炭酸塩をはじめとする鉱物を主体とする堆積層と考えられる。一方、黒く映っているのはガス泡である。底近くに見える円盤状の白色のものは底ブタとしてかましたシリコンゴムである。

2.4 底泥中の温室効果ガスの濃度と同位体比の解析

2.4.1 背景と目的

霞ヶ浦をはじめとする湖沼底泥中にはガス泡構造の見られることが前節で明らかとなり、その消長が泥温や酸化還元環境と深く関連していた。ガス泡の主成分はメタンガスと炭酸ガスと思われるが、間隙水中に溶存したものも含めたそうしたガス成分の濃度とガス泡密度との関係性を明らかにすることができれば、ガス泡密度の深度プロファイルをはじめとするガス泡構造を底泥環境の指標として扱うことができる。その上でも、X 線 CT 測定を行った底泥コアを深度ごとに切りだし、間隙水中およびガス泡中に存在するメタンガスと炭酸ガスといった温室効果ガスの濃度を測定する必要がある。また、それらの炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) を測定することで、こうしたガスの生成・消費プロセスを明らかにすることも重要と考えられる。

以上のことから、切りだした底泥コア中のメタンガスと炭酸ガスの濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の測定システムを考案し、質量分析計へ導入する前の前処理ラインを構築した。底泥間隙水を少量抽出し、その溶存ガス濃度や同位体比を測定する研究は今までもいくつかあるが¹¹⁾、水への溶解性の低いメタンガスの場合、大きなガス泡を含めた大容量の底泥試料中の底泥間隙水およびガス泡に含まれるメタンガスを抽出しなければ、深度ごとの正確なメタンガス存在量を評価することはできないと思われる。従って、従来の注射筒を用いて少量の間隙水を直接抜く方法ではなく、世界に先駆けて大容量の底泥コア中のガス泡を評価することのできる解析システムを考案した。

しかしながら、こうしたゼロからの開発には多くの時間がかかり、実際にガスを抽出する際にも煩雑な手順を踏むこととなり、現時点では高速で多試料の処理が行える X 線 CT 測定と十分な対応関係をつけるには至っていない。

2.4.2 方法

切りだした底泥コア中のメタンガスと炭酸ガスの濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の測定システムの開発は大きく分けて、2種類のサブシステムの構築からなる。一つ目は採取した底泥コアを新規開発したガス捕集容器に閉じ込め、ガス泡構造を破壊し、気液平衡を利用することで、元の底泥コア中のメタンガスと炭酸ガスの濃度を解析するガス捕集に関わる技術の開発であり、もう一つは、捕集した温室効果ガスを精製し、質量分析計に導入することで、メタンガスと炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ を測定する計測部分の開発であった。

(1) 大口径底泥コア中のガス捕集に関わる技術開発

X 線 CT 測定の結果をみても明らかであるが、底泥中のガス泡は不均質に分布し、その大きさも大きなもので直径数 cm 以上に発達する場合もあることから、シリンジ等による特定の微小部位から間隙水を抜いていたのでは、濃度に大きなばらつきが出るのが容易に予想される。そこで、本システム開発にあたっては、大口径コアの底泥コアを深度ごと切り分けた後、できるだけ底泥構造を壊さずに周囲のバックグラウンド大気由来のガスを追い出すようにした。ガスのパージが終了した後、溶存ガスを追い出した底泥試料と同体積の Milli-Q 水と合わせることで、底泥の含水比を増やし、振とう機にセットし、70 rpm で攪拌を行った。ここまでの手順の詳細を図 41 に示した。

ただ、本ガス捕集容器のガス捕集効率などはまだ検討できていない。結果のメタンガスの $\delta^{13}\text{C}$ 等から概ね採取できていることは間違いがないが、30分間の純窒素ガスによるパージで十分なのかどうかなど、今後検討の余地がある。また、本研究の場合攪拌を行い底泥構造が崩れた後の泥水を気液平衡させるため2時間程度静置した後、液相の泥水の一部をシリンジで抜いてバイアル瓶に詰め、塩化水銀飽和水を0.2ml入れることでガス測定用試料とした。しかしながら、結果的には液相を試料とした場合、バイアル瓶試料中でのメタン生成を完全に止めることができなかったことから、気

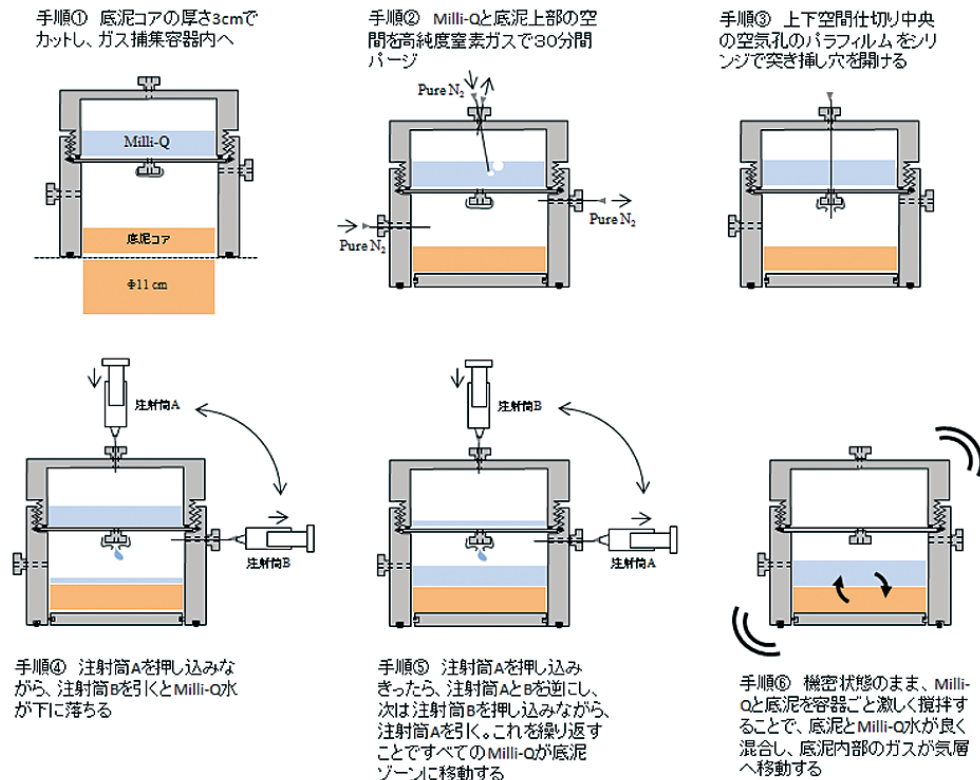


図 41 ガス捕集容器による底泥コア中のガス捕集手順

相のガス試料をバイアル瓶に詰め、ガス測定用試料とすべきであることが分かった。

(2) 底泥中のメタンおよび炭酸ガスの濃度・同位体比の測定のための前処理ラインの開発

上記手順により 20 ml バイアル瓶に気泡が入らないように気液平衡後の泥水を密封したものを 2 本採取し、1 本を溶存メタンガスの濃度と $\delta^{13}\text{C}$ 測定用とし、もう一本を溶存無機炭素の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ 測定用として、分析まで 4°C で静置保管した。

溶存メタンガスの濃度と $\delta^{13}\text{C}$ 測定用としては図 42 の前処理ラインを作成し、3 種類のア駆動バルブと 2 つの電動アクチュエーターの動きをコントロールすることで、質量分析計には炭酸ガスの形で導入し、濃度と $\delta^{13}\text{C}$ 測定を行った。本前処理ラインにより、補正後の測定精度は 20 nmol 程度の導入量で $\text{SD} \pm 0.5\text{--}0.6\%$ 、40 nmol 程度の導入量で $\text{SD} \pm 0.48\%$ となっている。補正に用いたメタンの標準ガスは 1) 100% のメタンガス ($\delta^{13}\text{C} = -42.7\%$: 昭光通商への依頼分析による値決め)、2) 200 ppm のメタンガス ($\delta^{13}\text{C} = -45.6\%$: 同様の値決め) の 2 種類のメタンガスを用いた。

溶存無機炭素の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ 測定用としては図 43 の前処理ラインを作成し、バイアル中の試料水にあらかじめ He で

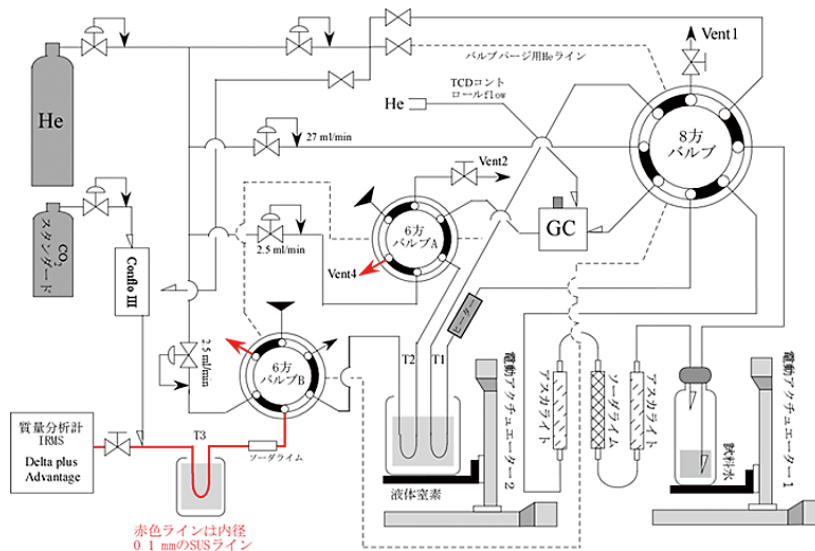


図 42 メタンガスの濃度と炭素安定同位体比の測定のための前処理精製ライン

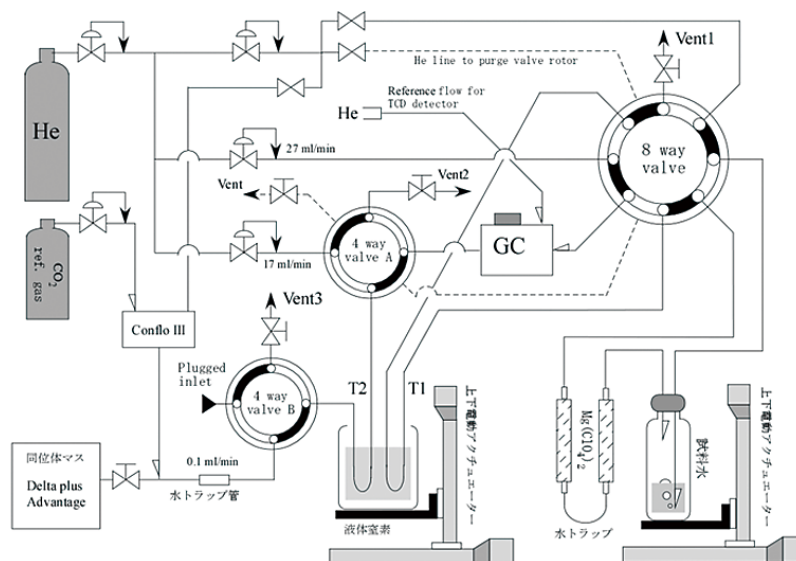


図 43 炭酸ガスの濃度と炭素安定同位体比の測定のための前処理精製ライン

パージした0.2%リン酸溶液を添加し、炭酸ガスを液体窒素で精製し、質量分析計へと導入した。精製前処理ラインのブランク値がメタンの場合と異なり、比較的高かったため、メタンガスのように質量分析計と前処理ラインを直接つなぐのではなく、間にHeで希釈するConflo IIIを介することで、より多くの溶存無機炭素を前処理ラインに導入し、ブランクの影響を小さくすることができた。そのため、溶存無機炭素の質量分析系への導入量は200~1200 nmolとなり、その時の測定精度SDは±0.14~0.25%であった。補正には炭酸ガスの標準ガスは、IAEAより入手した国際標準試薬のCO1 ($\delta^{13}\text{C}$: +2.49‰)、CO8 ($\delta^{13}\text{C}$: -5.76‰)、LAVEC ($\delta^{13}\text{C}$: -46.6‰)、NBS19 ($\delta^{13}\text{C}$: +1.95‰)の4種類を用いた。

2.4.3 結果と考察

X線CT測定後の底泥コアを切り分け、ガス捕集容器と前処理ラインを使って、溶存態およびガス態として底泥中に存在していたメタンガスと炭酸ガスの濃度と $\delta^{13}\text{C}$ を求めた。ただ、その作業には多くの煩雑な工程を含み(たとえば図41)、測定方法の開発に時間を取ったため、実際にはX線CT測定後、数カ月から半年程度の間、底泥コアを4℃の部屋に保管していた場合もあり、ガス泡密度はX線CT測定時とガス捕集時とは大きく異なってしまったと思われる。そのため、本来の目的であるガス泡密度と底泥中のこうした温室効果ガス濃度との関係性を明らかにするには至らなかった。しかしながら、測定したバイアル瓶の泥は霞ヶ浦湖心の底泥コアの各深度のものであり、低温下に置かれていた期間が長かったにしても、メタンガスの生成・消費および有機物分解による炭酸ガスの生成プロセスが $\delta^{13}\text{C}$ および濃度に反映されていることは間違いない。

(1) 霞ヶ浦(湖心)の底泥コア中のメタンガスと炭酸ガスの濃度

メタンガスの濃度は、バイアル瓶の保存中にもメタンガス生成が進行したと思われる試料がいくつか見られたことから、そうした影響も込みとなってしまっている。その意味で、底泥コアを採取した時のメタンガス濃度とは異なるものとなっており、どちらかというともタン生成ポテンシャルを示している可能性がある。図44の左図からは、底泥表層から8~16 cmに高濃度のメタンガスが底泥中に存在しており、メタンガスの難溶性を考えれば、その多くはガス態として存在していると思われる。この深度は、年間の底泥コアのX線CT測定結果と比較すれば分かりやすいが、夏場大型のガス泡が集積する深度と一致する。年間を通してガス泡密度が高い深度はもう少し深いところと思われる(図38)。以上の結果から、おそらく夏場のメタン生成は8~16 cmで活性が高くなっていると推察できた。興味深いことに底泥表層から4 cm以浅の極表層にも0.4 mM程度の高いメタン濃度が検出されることがあり、これが溶存メタンガスの拡散によるものか、極表層でもメタン生成が進行しているのかは、現時点では不明である。

炭酸ガスの濃度は底泥中でもガス泡と底泥間隙水が気液平衡状態にあると仮定し、ガス泡中の pCO_2 として示した(図44右図)。大気中の pCO_2 が0.0004より小さいことを考えれば、底泥中は炭酸ガスで極端に過飽和な状態にあると言える。にもかかわらず、底泥間隙水中のpHはそれほど酸性に傾いていない理由としては、炭酸ガスからのメタン生成($\text{CO}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4$)といった炭酸ガスの消費プロセスがガス泡から離れた間隙水中で進行していることが考えられるが、詳細は不明である。いずれにしても、 pCO_2 は底泥表層に近い浅い深度で高くなる傾向があり、メタン生成の高かった30℃での培養を経験したコアで低くなる傾向があった。底泥表層では絶えず易分解性有機物が湖水柱から供給され、酸化有機物分解が活発に起き、微生物呼吸による炭酸ガスの生成活性が高くなっていると考えられた。

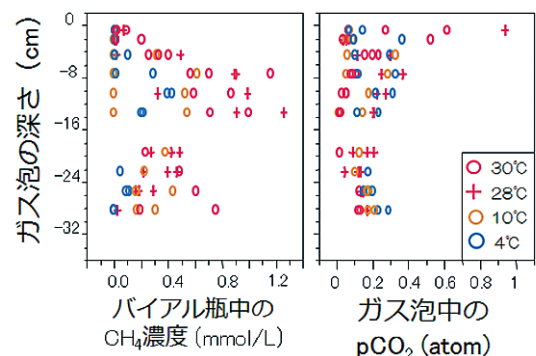


図44 底泥中に溶存もしくはガス態として存在していたメタンガス(左図)と炭酸ガス(右図)の濃度の深度分布

底泥コアはすべて霞ヶ浦(西浦)の湖心のもを使用した。図中の凡例に示したシンボルの違いは底泥コアが1ヵ月間だけ培養した時の泥温に対応する。ただし、28℃のものは培養を経ない夏季の底泥コアそのものである。

(2) 霞ヶ浦（湖心）の底泥コア中のメタンガスと炭酸ガスの炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$)

メタンガスの $\delta^{13}\text{C}$ は図 45 の右図に示すように、 -70% 付近の値を示した。一般論として底泥間隙水中に高濃度で存在する炭酸ガスの水素還元によるメタン生成プロセス ($\text{CO}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4$) では、特に大きな同位体分別の生じることが知られており¹²⁾、 -70% という低いメタンガスの $\delta^{13}\text{C}$ はこのプロセスが底泥中のメタン生成の主たるプロセスであることを示していた。また、 $\text{CO}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4$ の同位体分別の結果、反応物である CO_2 には逆に ^{13}C が蓄積し、その $\delta^{13}\text{C}$ は極端に高くなると考えられる。一方、上記のメタン生成プロセスが働かない時には、 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ は底泥有機物の $\delta^{13}\text{C}$ に近い -24% 前後の値をとると思われる。

以上の仮説を検証するため、メタンガスの $\delta^{13}\text{C}$ を炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ に対してプロットした結果を図 45 の左下に示した。両者は傾きがほぼ 1 のライン上に位置することから、メタンガスは CO_2 と密接な関係のあることが分かる。ただし、両者の $\delta^{13}\text{C}$ の傾きがほぼ 1 のライン上にプロットされる場合でも、反応物が CO_2 で生成物がメタンの場合と反応物がメタンで生成物が CO_2 の場合の 2 ケースが考えられる。後者のケースはメタン酸化といわれるプロセスであり、その場合には、 $\delta^{13}\text{C}$ の低いメタン由来の炭素が CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ を大きく低下させることから、メタン生成および酸化が働かない時の CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ (底泥有機物の $\delta^{13}\text{C}$ と同じ -24% 前後) より、底泥間隙水中の CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ は大きく低下するはずである。実際はそれとは逆の傾向を示し、 $-10 \sim +8\%$ の高い値を示したことから、反応物が CO_2 で生成物がメタンという炭酸ガスの水素還元によるメタン生成プロセスが霞ヶ浦底泥中で駆動しているということが確認できた。また、大きな同位体分別を有する $\text{CO}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4$ が進行すればするほど、 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ はより高くなることが予想されることから、逆に CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ からメタン生成活性を評価することもできる。実際に、 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ とバイアル瓶中のメタンガス濃度との間には強い正の相関関係が認められた (図 45 の左上図)。

本来なら、底泥コア深度とこうしたメタンや炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ との関連を議論したかったが、切り分けた後のバイアル瓶中でのメタン生成を止め切れなかったことから、今回はそうした議論を差し控えたい。

2.5 底泥中の微生物群集の多様性評価および酵素活性解析と底泥固相中の形態別リン濃度の解析

2.5.1 背景と目的

これまでに紹介した本研究成果から霞ヶ浦をはじめとする湖の底泥環境、とりわけ酸化還元環境に関する支配要因が明らかになってきた。従来言われているように、底泥表層は酸化的で深くなるにつれて還元的という点は、多くの湖沼や地点で当てはまるが、下記のような要因が酸化還元環境に大きく影響することが分かってきた。

底泥環境をより酸化的にする要因

要因 1) 低い泥温

要因 2) ユスリカ等の巣穴が高密度であること

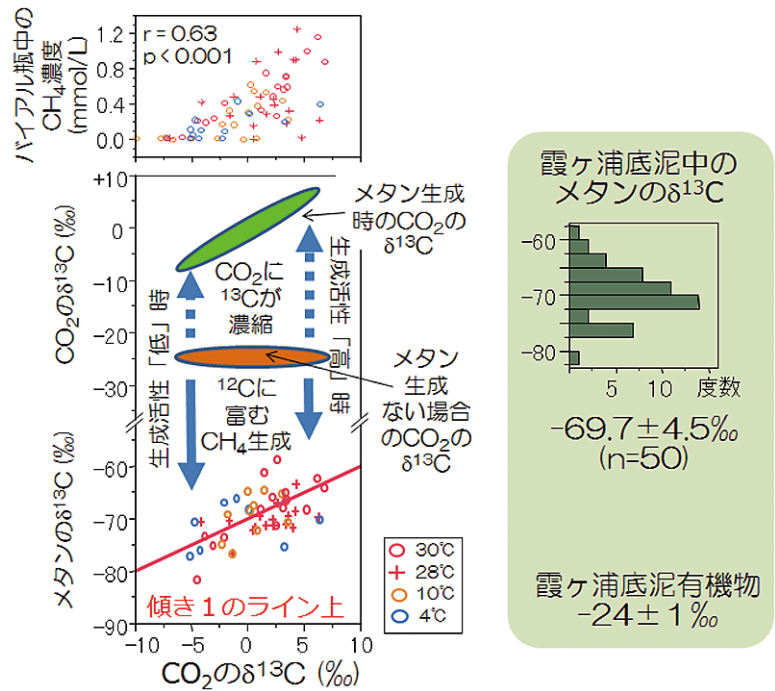


図 45 底泥中に溶存もしくはガス態として存在していたメタンガスと炭酸ガスの炭素安定同位体比の関係 (左下図) と炭酸ガスの炭素安定同位体比とメタンガス濃度との関係 (左上図) とメタンガスと底泥有機物の炭素安定同位体比 (右図)

メタン生成の無い場合の炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ との比較により、 $\text{CO}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4$ が霞ヶ浦湖心での主たるメタン生成プロセスと思われる。

要因3) 易分解性有機物が少ないこと

さらに、底泥表層であってもメタンガス濃度が高い場合のあることから、還元的な環境が底泥表層にも存在することは間違いない。逆に霞ヶ浦だとユスリカの巣穴は15 cm以深まで夏場到達し、中層であっても巣穴周辺は酸化的環境が維持されていると推測される。また、おそらく時間スケールに関しても、酸化還元環境は複雑に変化しており、底泥中の酸化還元環境ひとつとっても表層から深層にかけての変化は時空間的に複雑であることが明らかとなってきた。

さらに、一般的に還元環境下で進行すると考えられるメタンガス生成やリン酸イオンの底泥間隙水への溶出についても、還元環境の指標としてとらえることはできても、なぜその深度が還元的になったのかや、酸化的⇔還元的の入れ替わりが激しい表層で、メタンガス生成やリン酸イオンの溶出に関わる細菌や古細菌が実際にどのように適応し、生態系機能を発揮し続けているのかについては不明な点が多い。

この章では、複雑に変化する底泥環境に適応して、メタン生成に関わる微生物群集の深度方向の変化パターンと、リン酸イオンの底泥間隙水への溶出に関わる底泥中の形態別リン濃度やフォスファターゼ活性に関する研究成果を紹介する。

2.5.2 方法

メタン生成古細菌群集解析および酵素活性の解析ともに2013年度の霞ヶ浦(西浦)湖心の底泥コア試料を用いて行った。メタン生成古細菌群集解析では2013年9月の底泥コアの4層(0-1.5 cm, 3-6 cm, 9-12 cm, 15-18 cm)を用いて解析した。18cm以深ではメタン生成古細菌のrRNAは検出できなかった。

(1) 底泥中の活性あるメタン生成古細菌群集の評価方法

RNA抽出方法: FastRNA©Pro™Soil-Direct kit を用いて抽出した。

プライマー選択: メタン生成古細菌の16S rRNA 遺伝子に特異的なプライマー(1106F-1378R)により RT-PCRを行った。

系統解析方法: クローニングおよびシーケンス系統分析は各約90クローンを用いて行った。

(2) 底泥固相中の形態別リン濃度や酵素活性等の理化学的性の測定方法

1) 有機物量(強熱損量)

乾燥させた底泥試料0.5 gを電気炉内で550℃、2時間強熱して、そのときの重量減少量(強熱損量)を有機物濃度とした。

2) 有機および無機態リン濃度

I.P. O'Halloran (1993)の方法に従って有機態および無機態のリン濃度を測定した。すなわち、底泥乾燥試料0.5 gを0.5M硫酸25 mL中で16時間振とう抽出した。遠心分離(2500 rpm, 10 min)後、上澄液中のリン酸濃度をモリブデンブルー法で定量し、元の底泥中の無機態リン酸濃度を求めた。別に、乾燥試料0.5 gを坩堝に測りとり、550℃で1時間強熱、灰化した後、上記と同様に0.5 Mの硫酸で抽出し、リン酸濃度を測定し、全リン濃度とした。強熱後に抽出されたリン濃度(全リン濃度)と、強熱せずに抽出されたリン濃度(無機態リン濃度)の差を有機態のリン濃度とした。

3) 酵素活性

β -グルコシダーゼ(GLU)活性、フォスファターゼ(PA)活性を測定した。

GLUはグルコシド結合を加水分解する酵素で、自然界ではセルロースをグルコースに分解する過程で重要な酵素の一つである。不溶性のセルロースを利用できる微生物は限られているが、水溶性のグルコースは多くの微生物が基質として利用できることから、易分解性有機物の供給の指標にもなり得ると考える。

GLU活性はMeyer-Reil (1987)を改変して測定した。湿潤試料0.4 gに蒸留水0.5 mLとリン酸クエン酸緩衝液(pH 6.2) 1.5 mLを加え、更に基質として3 mMの4-メチルウンベリフェリル-D-グルコピラノシド(MUF-Glc) 1 mLを加えた。これを30℃で2時間振とう培養したのち、エタノール8 mLを加えて反応を停止させた。これをNo.5 Bろ紙

でろ過した後、ろ液 5 mL に 1 M トリス緩衝液 2 mL を加え、蛍光分光光度計 (RF-1500、Shimadzu、Kyoto) を用いて 365 nm の励起光に対する 455 nm の蛍光強度を測定した。4-メチルウンベリフェロン (MUF) 標準液から作成した検量線によって、培養によって生じた MUF 量を求め、底泥の GLU 活性を求めた。

PA は有機態のリン酸モノエステルを加水分解して無機態リン酸を生成する酵素である。

PA 活性の測定には基質としてりん酸 4-メチルウンベリフェリル (3 mM) を用い、リン酸緩衝液の代わりに蒸留水を用いた他は、GLU 活性の測定と同様に測定した。

湿潤試料の一部を 105 °C で乾燥し、水分濃度を求めた。GLU、および PA 活性は乾燥重量当りに換算した。

2.5.3 結果と考察

(1) 霞ヶ浦湖心底泥中の活性のあるメタン生成古細菌群集構造

特定の時点の一本の底泥コアの 4 層の比較ではあるが、活性のあるメタン生成古細菌の群集構造は深度方向に興味深い変化を示した。具体的には炭酸ガスを基質として水素還元によりメタン生成を行う、Methanomicrobiales が高頻度で全層にわたって見られた (図 46)。この結果は、メタンや CO₂ の δ¹³C から類推されたメタン生成プロセスと矛盾しない。一方、中層 (15-18 cm) では酢酸からのメタン生成を行う Methanosaetaceae も相対出現率で 30% 以上と高頻度で検出されたことから (図 46)、中層では酢酸を基質とするメタン生成プロセスも働いている可能性が高い。

また系統解析の結果からは、全層で見られる Methanomicrobiales には表層のみで見られる系統のあることが明らかとなった (図 47 の緑囲い込み)。さらに、中層で見られる Methanosaetaceae に関して、

Methanogenic archaea

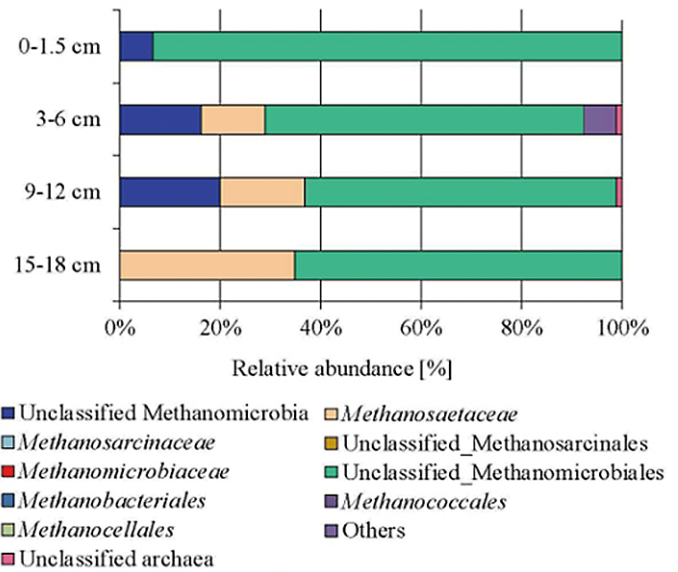


図 46 霞ヶ浦 (西浦) の湖心の活性のある底泥コアのメタン生成古細菌の群集構造

2013 年 9 月に採取されたコアの解析結果。4 深度ごとの群集構造をグループごとに色別に出現頻度に対してプロットした。

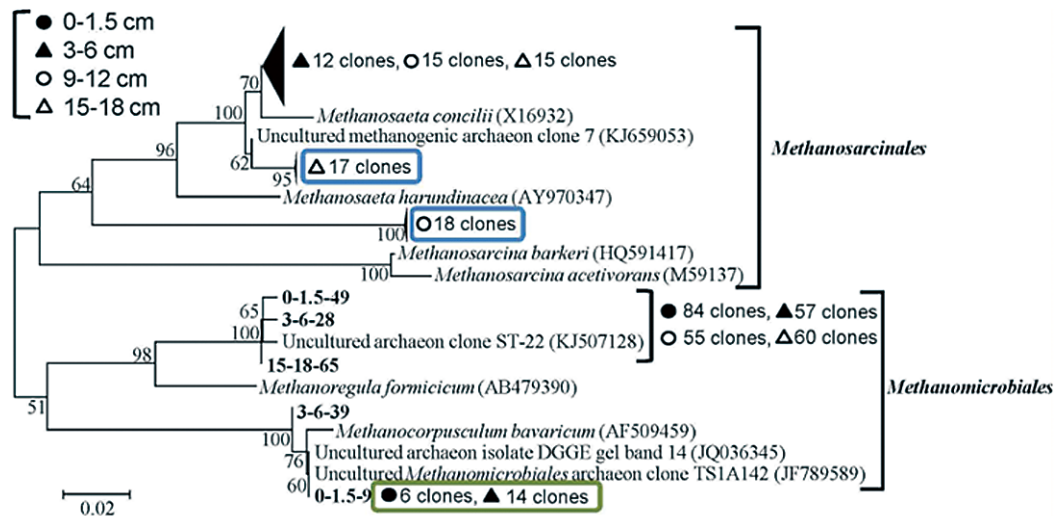


図 47 霞ヶ浦 (西浦) の湖心の底泥コアの活性のあるメタン生成古細菌の系統解析結果

緑で囲い込んだクローンは表層のみで見られた Methanomicrobiales。青で囲い込んだクローンは中層で見られる 2 系統からなる Methanosaetaceae。

9-12 cm で検出されたものと 15-18 cm のものとは系統が異なることが明らかとなった (図 47 の青囲い込み)。以上の知見から、活性あるメタン生成古細菌の genotype には深度間で違いのあることが明らかとなった。以上の結果から、メタン生成を担っている古細菌群集は深度方向で多様であり、基質利用性に関しても変化していることが明らかとなった¹³⁾。

(2) 霞ヶ浦湖心底泥固相中の形態別リン濃度・酵素活性の解析

1) 霞ヶ浦底泥固相中の形態別リン濃度と酵素活性の垂直分布

図 48 に霞ヶ浦底泥中の強熱損量 (有機物量) と全リン濃度の垂直分布を示した。底泥中の強熱損量は表面 (0.16 g/g) から深くなるにつれて漸減したが、25 cm 付近でも 0.14 g/g (表層の約 88 %) 含まれており、それ以深では再び増加していた。一方、全リン濃度は底泥表面 (1.47 mg/g) から深くなるにつれてほぼ一定の割合で減少し、40 cm 層では、ほぼ半減 (0.78 mg/g) していた。

この様に、深さに対して強熱損量にあまり変化が見られなかった理由としては、①表層に堆積してきた有機物のうち易分解性の画分は速やかに分解、消失し、比較的安定な形態の有機物が残存すること、②底泥が攪拌、混合されることにより均一化がはかられていることなどが考えられる。しかし、このうち②は全リン濃度などの他の理化学性が深さによって異なることから、均一化がなされるほど底泥が攪拌されているとは考え難い。底泥中の有機物は比較的安定な形態で残留しているものと思われる。また、25 cm 以深で強熱損量が再び増加したが、各層位の底泥が堆積した時の環境条件の相違 (例えば、有機物の堆積速度が大きかった可能性など) を反映しているのかもしれない。

強熱損量の変化が小さかったことに対し、全リン濃度は深くなるにつれて顕著に減少していた。この様な濃度分布は、底泥表面に負荷されたリンが濃度勾配に従って下層へ移動したか、あるいは、表層付近にリンが集積しやすい条件にあることを想起させる。

図 49 に底泥中のリンを無機態リン (左) および有機態リン (右) に分けて、垂直分布を示した。無機態、有機態リ

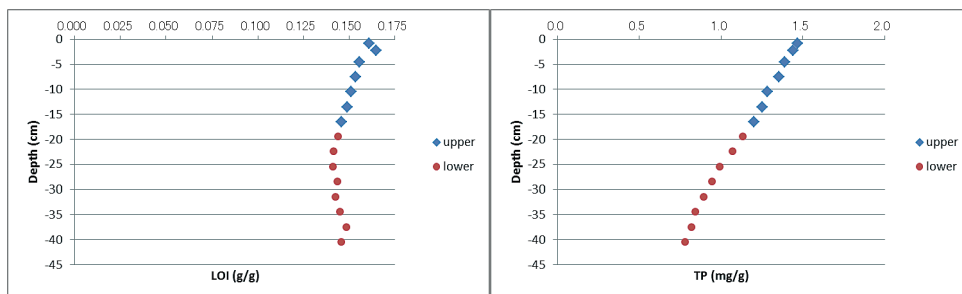


図 48 霞ヶ浦 (西浦) の湖心の底泥の強熱損量 (左図) と全リン含量 (右図) の深度分布
値は 13 回の調査の平均値。(18 cm 以浅を上層として◆、18 cm 以深を下層として●印
で示した)

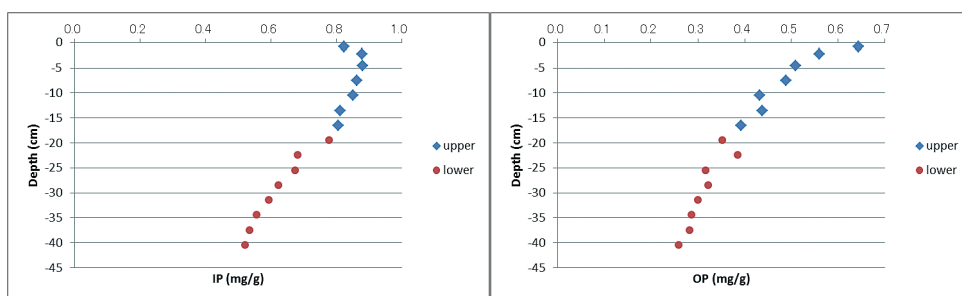


図 49 霞ヶ浦 (西浦) の湖心の底泥中の無機態リン含量 (左図) および有機態リン含量 (右図)
の深度分布
値は 13 回の調査の平均値。表示形式は図 48 と同じ。

ン濃度ともに全リン濃度と同じく表層から深くなるにつれて低下する傾向にあったが、無機態リン濃度は0～18 cmの間（上層）で0.1 mg/g 低下していたのに対し、18～40 cmの間（下層）では減少幅が大きく0.26 mg/g 低下していた。全リン濃度から無機態リン濃度を差し引いた有機態リン濃度は無機態リン濃度と逆に、0～18 cmの間（上層）で大きく（0.21 mg/g）減少し、18 cm～40 cm（下層）での減少は緩やか（0.09 mg/g）であった。すなわち、全リン濃度は表層から下層にかけてほぼ一様に減少していたが、上層では主として有機態リンが減少していたのに対し、下層では無機態リン濃度が減少していたことが分かる。

また、底泥中の強熱損量が深さに対してほぼ同様であったのに対し、有機態リンの分布パターンが異なったことは、これら有機態リンを含む有機物が強熱損量で表される底泥有機物の一部に過ぎないことを示している。

図50に霞ヶ浦底泥中の酵素活性の垂直分布を示した。GLU、PAとも表面で高い活性を示し、約18 cm層まで（上層）は深くなるにつれて指数関数的に漸減していた。18 cm以深（下層）では上層に比較してGLU、PAとも低下率は大きくなったが、GLU活性は30 cm以深では再び漸増の傾向にあった。25 cm以深でLOIが再び増加していることが、この層位のGLU活性を高めている（図50左図）ことの原因かもしれない。

深くなるにつれて酵素活性が低下したことは、表層からの酸素や基質の拡散・供給が次第に低下し、微生物のバイオマス、活動が減少してくることによると思われるが、18 cm付近を境として、これより深い層ではさらに微生物活性が低下していることは、これより上の層と下層の間で酸素や基質の拡散のしやすさが異なることを示唆する。

上層はユスリカなどの底生動物が生息する層位と重なっており、これらの活動が微生物にとっても活動しやすい環境を提供しているのかもしれない。

また、先述したように18 cm付近を境として、これより上層では有機態のリン濃度が深さによって大きく変化したのに対し、下層では無機態のリン濃度が変化していた。底泥の有機物に含まれるリンは、無機化されてリン酸として間隙水に溶けだし、再び生物によって吸収、再有機化されたり、底泥中の無機粒子に結合したりして不溶化する。生物活動の活発な上層ではこの無機化と有機化が繰り返される過程で主に有機態リンの無機化で生じた水溶性のリン酸が濃度勾配に沿って下層へ拡散移動したことが考えられる。それに対し、生物活動が比較的活発な下層では無機態のリンが条件の変化で溶存態と結合態（例えばFe-Pなど）の間で変化を繰り返し、拡散して再び底泥粒子に吸着、不溶化することが考えられる。

すなわち、底泥中で移動、拡散し得るリンのプールとして、上層では有機態のリンが、下層では無機態のリンが重要であると思われる。

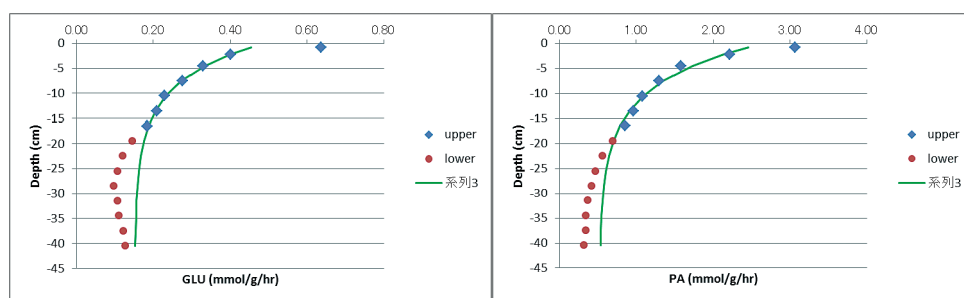


図50 霞ヶ浦（西浦）の湖心の底泥中のグルコシダーゼ活性（左図）とフォスファターゼ活性（右図）の深度分布。

値は13回の調査の平均値。表示形式は図48と同じ。図中の近似曲線は上層の値に対する指数関数近似。

左図（GLU）の近似曲線： $x = 0.335 * \text{EXP}(0.136 y) + 0.152$

右図（PA）の近似曲線： $x = 2.128 * \text{EXP}(0.126 y) + 0.520$

酵素活性は上層で高く、下層で低い傾向にあったが、18 cm付近を境として活性の低下率は異なっていた。

2) 霞ヶ浦底泥固相中のリン濃度の季節変化

図 51 に霞ヶ浦底泥表層 (< 6 cm) における無機態 (左) および有機態リン濃度 (右) の季節変化を示した。表層では、無機態リンの濃度は季節的な変動は小さかったが、有機態リン濃度は夏季 (7~9月) に少なく、冬季 (1~3月) に高い傾向にあった。

酵素反応は温度への依存が大きく、10℃上昇すると反応速度は数倍高まる。有機態リンの濃度が水温の高い夏季に減少し、水温の低い冬季に増加する傾向にあったのは、野外の自然条件下では、有機態リンを無機化するフォスファターゼ活性は夏季に高くなり、無機化速度が有機化速度を上回ったのに対し、冬季に有機態リン濃度が高くなったのは逆に、無機化速度を有機化速度が上回ったためと思われる。先に述べたように、底泥、特に上層では有機態リンとリン酸の間での無機化、再有機化の循環が、リンの可溶化、移動に大きく関わることが考えられる。実際、表層の間隙水中のリン酸濃度は底泥中の有機態リン濃度とは逆に、夏季に高く、冬季に低くなっていった。換言すれば、底泥中の有機態リンのプールが大きくなるような条件を保つことが、リンの可溶化、溶出を抑える手立てにつながる、と言えるだろう。

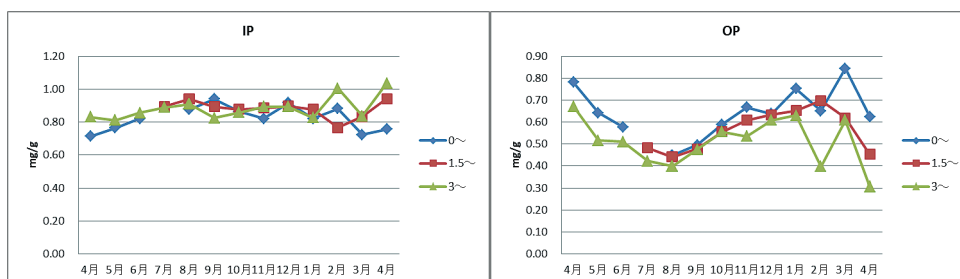


図 51 霞ヶ浦 (西浦) の湖心の底泥表層における無機態 (左図) および有機態リン含量 (右図) の季節変化

2.6 まとめと今後の課題

本研究では既存の非破壊画像化技術と底泥間隙水の栄養塩や溶存ガスの濃度と同位体分析によるプロセス解析手法を組み合わせることで、底質環境の新たな解析手法の確立を行った (図 52)。具体的には物理構造のひとつである巣穴構造を描き出せる MRI 測定技術とガス泡構造を 3D に構築できる X 線 CT 測定技術の底泥コアへの応用に成功した。

また、底泥環境を理解する上で重要な底泥間隙水を少量ずつ各深度から取り出せる Peeper 法の確立、底泥間隙水に溶存もしくはガス泡にガス態で存在する温室効果ガスを捕集するガス捕集容器の開発にも成功した。これらを霞ヶ浦を



図 52 本研究課題全体の研究成果の学術上の貢献と環境施策上の貢献

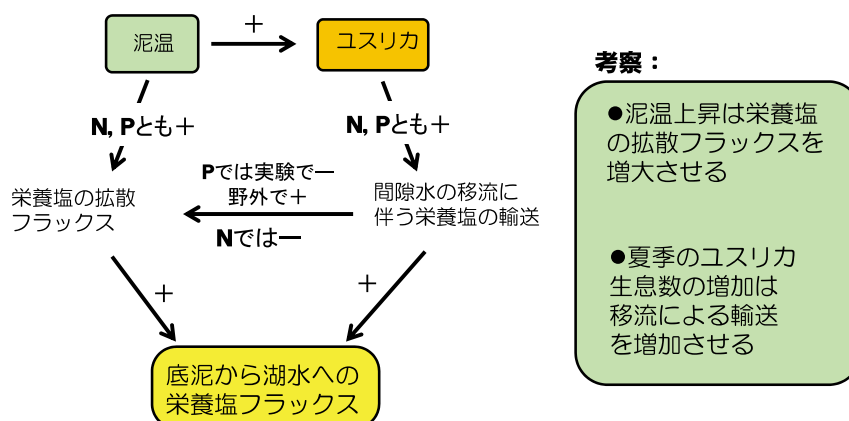
はじめとする大型湖沼に適応することで、各種解析結果を融合し、底泥からの栄養塩や温室効果ガスのフラックスの決定機構を理解し、それに影響する環境因子を絞り込むことでフラックスの予測に役立てることができた。具体的には、

成果1) 泥温とユスリカ生息密度が底泥からの栄養塩フラックスに与える影響を解析できた(図53上模式図)。現在も進行している地球温暖化による泥温の上昇は、最終的に底泥から湖水への栄養塩フラックス上昇に結びつく可能性の高いことが明らかとなった。

成果2) メタンや炭酸ガスといった温室効果ガスの底泥からのフラックスには底泥中層の上部から夏~秋にかけてガス泡の形で直接大気へと輸送されるプロセスが大きいと予想された(図53下模式図)。底泥中層のガス泡は夏季発達し、上部から抜けている可能性の高いことがX線CT画像から明らかとなった。

今後の課題としては、確立した方法論の検証実験を行い、その有効性を示すデータを蓄積していく必要がある。また、MRI測定やX線CT測定により得られた高解像度の画像データには巣穴やガス泡以外のノイズや詳細不明な水泡構造など、現時点では画像解析ソフト上で識別し、削除していくことの自動処理が困難な部分が数多く残っている。こうした処理の自動化を進めることで、より正確な巣穴密度やガス泡密度の解析が可能になると思われる。底泥中のユスリカ生息密度の変化は底泥中の酸化還元状態を大きく変え、底泥からの栄養塩フラックスにまで大きな影響を与える可

栄養塩 (N, P) の底泥からのフラックスに影響する因子



温室効果ガスの底泥からのフラックスに関する考察

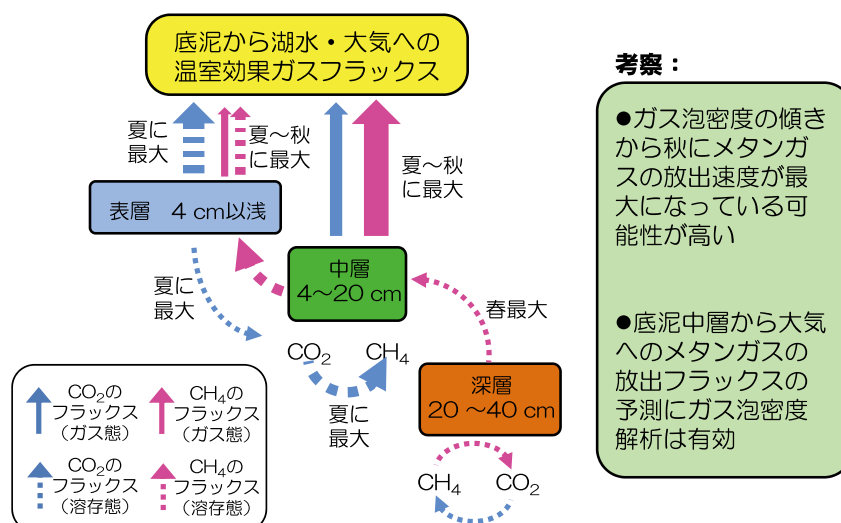


図53 本研究課題の大きな研究成果として、栄養塩の底泥からのフラックスに影響する因子に関する解析結果(上図)と温室効果ガスの底泥からのフラックスに関する解析結果(下図)

能性が高い。こうした重要な機能を有している生物個体数の管理手法が湖沼の水質保全の重要な一要素になってくると期待される。

引用文献

- 1) 環境省 水・大気環境局 (2014) 平成 25 年度公共用水域水質測定結果. <http://www.env.go.jp/water/suiiki/>
- 2) Slomp C.P., Epping E.H.G., Helder W., Van Raaphorst W. (1996) A key role for iron-bound phosphorus in authigenic apatite formation in North Atlantic continental platform sediments. *J. Mar. Res.*, 54, 1179-1205.
- 3) Aller R.C. (1982) The effects of macrobenthos on chemical properties of marine sediments and overlying water. P.L. McCall, M.J.S. Tevesz (Ed.), *Animal-sediment relations*, Springer, New York, 53-102.
- 4) 早川和秀, 岡本高弘 (2010) 琵琶湖における塩化物イオン濃度の長期変遷とその増加要因 (2) 琵琶湖の塩化物イオンの負荷量推定と過去 30 年間の増加要因について. *日本陸水学雑誌*, 71, 285-303.
- 5) Burdige D.J. (2006) *Geochemistry of Marine Sediments*. Princeton Univ. Press, Princeton.
- 6) Iwakuma T. (1992) Emergence of Chironomidae from the shallow eutrophic Lake Kasumigaura, Japan. *Hydrob.*, 245, 21-40.
- 7) Walter K.M., Smith L.C., Chapin F.S. (2007) Methane bubbling from northern lakes: present and future contributions to the global methane budget. *Phil. Trans. R. Soc. A*, 365, 1657-1676.
- 8) Ostrovsky I., McGinnis D.F., Lapidus L., Eckert W. (2008) Quantifying gas ebullition with echosounder: the role of methane transport by bubbles in a medium-sized lake. *Limnol. Oceanogr. Methods*, 6, 105-118.
- 9) Boudreau B.P., Algar C., Johnson B.D., Croudace I., Reed A., Furukawa Y., Dorgan K.M., Jumars P.A., Grader A.S., Gardiner B.S. (2005) Bubble growth and rise in soft sediments. *Geology*, 33, 517-520.
- 10) Schulz S., Matsuyama H., Conrad R. (1997) Temperature dependence of methane production from different precursors in a profundal sediment (Lake Constance). *FEMS Microb. Ecol.* 22, 207-213.
- 11) Adams D.D., Baudo R. (2001) Gases (CH₄, CO₂ and N₂) and pore water chemistry in the surface sediments of Lake Orta, Italy: acidification effects on C and N gas cycling. *J. Limnol.*, 60, 79-90.
- 12) Balabane M., Galimov E., Hermann M., Letolle R. (1987) Hydrogen and carbon isotope fractionation during experimental production of bacterial methane. *Org. Geochem.*, 11, 115-119.
- 13) 坪井 隼, 山村茂樹, 高津文人, 今井章雄, 岩崎一弘 (2014) 富栄養淡水湖底泥における活性のあるメタン生成古細菌群集の多様性. *環境微生物系学会合同大会講演予稿集*, 202.

[資料]

I 研究の組織と研究課題の構成

1 研究の組織

[A 研究担当者]

地域環境研究センター	
湖沼・河川環境研究室	高津文人 今井章雄 小松一弘
共同研究員	三浦真吾
岩崎主席研究員室	岩崎一弘
特別研究員	坪井 隼
環境計測研究センター	
生体応答計測研究室	渡邊英宏
常駐協力業者	高屋展宏
生物・生態系環境研究センター	
生態系機能評価研究室	広木幹也
生物多様性保全計画研究室	上野隆平

[B 所外研究協力者]

茨城県立医療大学	
放射線技術科学科	阿武 泉 津田啓介

2 研究課題と担当者

- サブテーマ1 底泥間隙水の水質と底生生物密度との関係
高津文人、上野隆平、今井章雄、小松一弘
- サブテーマ2 底生生物の巣穴構造の解析
渡邊英宏、高屋展宏、高津文人
- サブテーマ3 底泥中のガス泡構造の解析
津田啓介、阿武 泉、三浦真吾、高津文人
- サブテーマ4 底泥中の温室効果ガスの濃度と同位体比の解析
高津文人、今井章雄
- サブテーマ5 底泥中の細菌群集の多様性評価および酵素活性解析と底泥固相中の形態別リン濃度の解析
坪井 隼、広木幹也、岩崎一弘

II 研究成果発表一覧

1 誌上発表

発表者・(刊年)・題目・掲載誌・巻(号)・頁

Tsuboi S., Yamamura S., Imai A., Satou T., Iwasaki K. (2014) Linking temporal changes in bacterial community structures with the detection and phylogenetic analysis of neutral metalloprotease genes in the sediments of a hypereutrophic lake. *Microbes and Environments*, 29(3), 314-321

Kawasaki N., Komatsu K., Kohzu A., Tomioka N., Shinohara R., Satou T., Watanabe N.F., Tada Y., Hamasaki K., Kushairi M.R.M., Imai A. (2013) Bacterial Contribution to Dissolved Organic Matter in Eutrophic Lake Kasumigaura, Japan. *Applied and Environmental Microbiology*, 79, 7160-7168

2 口頭発表

発表者・(暦年)・題目・学会等名称・予稿集名・頁

坪井 隼, 山村茂樹, 高津文人, 今井章雄, 岩崎一弘 (2014) 富栄養淡水湖底泥における活性のあるメタン生成古細菌群集の多様性. 環境微生物系学会合同大会 2014, 同予稿集, 202

三浦真吾, 高津文人, 津田啓介, 阿武 泉, 山口雅之, 高屋展宏, 渡邊英宏, 佐藤貴之, 今井章雄 (2013) X線 CT 撮影による湖沼底泥中のガス泡構造の解析. 日本陸水学会第 78 大会, 同予稿集, 3B03

高屋展宏, 渡邊英宏, 高津文人, 今井章雄, 小松一弘, 佐藤貴之 (2013) MRI による湖沼底泥内部構造の可視化. マイクロイメージング研究会第 17 回, 同予稿集, 57-58

高屋展宏, 渡邊英宏, 高津文人, 今井章雄, 小松一弘, 佐藤貴之 (2012) MRI を用いた湖沼サンプルの撮像条件の検討. 日本磁気共鳴医学会第 40 回大会, 同予稿集, 32S, 401-401

国立環境研究所研究プロジェクト報告 第110号
NIES Research Project Report, No.110

(SR - 110 - 2015)

MRI 画像解析と同位体解析による
栄養塩や温室効果ガスの底泥からのフラックス予測
(分野横断型提案研究)
平成 24 ~ 26 年度

Flux estimation from sediment in nutrients and global warming gas
by MRI and stable isotope analysis
FY2012 ~ 2014

平成 27 年 10 月 30 日発行

編 集 国立環境研究所 編集委員会

発 行 国立研究開発法人 国立環境研究所

〒305-8506 茨城県つくば市小野川 16 番 2
E-mail: pub@nies.go.jp

Published by the National Institute for Environmental Studies
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan
October 2015

組 版 株式会社 イ セ プ

〒305-0005 茨城県つくば市天久保 2 丁目 11-20

無断転載を禁じます

国立環境研究所の刊行物は以下の URL からご覧いただけます。
<http://www.nies.go.jp/kanko/index.html>