

国立環境研究所特別研究報告

Report of Special Research from the National Institute for Environmental Studies, Japan

SR - 62 - 2004

湖沼における有機炭素の物質収支および
機能・影響の評価に関する研究
(特別研究)

Studies on mass balance of dissolved organic matter in lake and
its functions and effects on lacustrine ecosystems and water quality

平成 13 ~ 15 年度

FY 2001 ~ 2003

NIES



独立行政法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

<http://www.nies.go.jp/index-j.html>

湖沼における有機炭素の物質収支および
機能・影響の評価に関する研究
(特別研究)

Studies on mass balance of dissolved organic matter in lake and
its functions and effects on lacustrine ecosystems and water quality

平成 13 ~ 15 年度

FY 2001 ~ 2003

特別研究「湖沼における有機炭素の物質収支および機能・影響の評価に関する研究」
(期間 平成 13 ~ 15 年度)

特別研究責任者：渡辺正孝

特別研究幹事：今井章雄

特別研究報告書編集担当：今井章雄・松重一夫

序

本報告書は平成 13 年度から 15 年度の 3 年間にわたって実施した特別研究「湖沼における有機炭素の物質収支および機能・影響の評価に関する研究」の成果をとりまとめたものである。

近年、多くの湖沼において、流域発生源対策が精力的に行われているにもかかわらず、湖内の溶存有機物濃度、すなわち化学的酸素要求量 (COD) 濃度の増大傾向が観察されている。何らかの難分解性溶存有機物 (DOM) による新しいタイプの水質汚濁が進行していると推察される。この難分解性 DOM の蓄積は、湖沼環境基準の達成を困難なものとし、植物プランクトン等の湖沼生態系に大きな影響を及ぼし、重金属や農薬等の有害物質の能動化も促進し、さらに水道水源としての湖沼に着目すれば、浄水処理殺菌プロセスで生成される発ガン物質トリハロメタン等による健康リスクの懸念を増大させていると推察される。湖沼環境を保全・再生するために、早急に、湖水中でなぜ難分解性 DOM が漸増するのか、そのメカニズムを定量的に明らかにする必要がある。

このような背景のもとに、本研究では、湖における有機炭素収支に関する研究と湖水 DOM の特性・起源と機能・影響の評価に関する研究の 2 研究課題を取り上げて進められた。成果として、(1) 霞ヶ浦湖内 3 次元流動モデルが開発・構築され、難分解性フミン物質や湖水難分解性 DOM の場所的および季節的な変動を定量的に評価することができた (2) 霞ヶ浦へ流入する難分解性 DOM の負荷発生源としては生活系よりも面源系の寄与が大きいことが明らかとなった (3) 霞ヶ浦湖水中の溶存鉄の 99.9 % 以上が有機態として存在していた (4) アオコを形成する藍藻類ミクロキスティスの増殖・優占には、窒素、リン、溶存鉄のみならず鉄の存在形態が重要な因子であることが明らかとなった (5) 底泥からの DOM 溶出フラックスは経年的かつ季節的に大きく変動し、春季のほうが夏季よりも大きかった (6) アオコを形成する藍藻類ミクロキスティスの特異的プライマーを作成して RNA 含量 / セル数比から現場での藻類増殖速度を測定する手法を開発した (7) 水田から排出される難分解性 DOM としては親水性酸が最も多く、フミン物質は排出されなかった (8) 長期的モニタリングデータの比較検討により、過マンガン酸カリウム COD は湖水 DOM の質が変化すると酸化収率が顕著に変動するため DOM の長期的な指標として不適切であることがわかった。

本研究の成果を、湖沼環境保全のための具体的な施策に結びつけ、多くの湖沼の環境の維持、改善に役立ててゆきたいと考えている。

研究を推進する上で、研究所内外の多くの方々にご協力とご助言を頂いた。ここに深く感謝の意を表したい。

平成 16 年 12 月

独立行政法人 国立環境研究所
理事長 合 志 陽 一

目 次

1	研究の目的と経緯	1
1.1	研究の目的	1
1.2	研究の構成	2
2	研究の成果	5
2.1	湖における有機炭素収支に関する研究	5
2.1.1	全有機炭素 (TOC) ベース原単位と排出負荷量	5
2.1.2	湖内流動モデルの構築	6
2.1.3	湖水および流入河川水における有機炭素収支	10
2.2	湖水溶存有機物 (DOM) の特性・起源と機能・影響の評価に関する研究	19
2.2.1	湖水 DOM の藻類の増殖・種組成に及ぼす影響	19
2.2.2	内部生産 DOM 量の算定	25
2.2.3	藻類等の微生物群集構造解析	31
2.2.4	DOM の特性・起源の評価	36
2.3	まとめと展望	43
2.4	謝辞	46
[資 料]		
	研究の組織と研究課題の構成	49
1	研究の組織	49
2	研究課題と担当者	49
	研究成果発表一覧	50
1	誌上発表	50
2	口頭発表	51

1 研究の目的と経緯

1.1 研究の目的

湖沼環境は国民の共通の資産として未来の世代に受け継がれてゆかねばならない。ところが、湖沼の水環境はこのところ何となくおかしい。湖沼の環境基準達成率（化学的酸素要求量 COD として）はこの 10 年間で最低値を示し、40 % にすぎない。水質は改善されるどころか悪化の傾向すらある。これは流域発生源対策が進んでいるにもかかわらず、その効果が具現化していないことを意味する。このような状況は湖沼水を利用している国民に多くの不安を与えている。

この現状を反映するかのように、近年、多くの湖沼において、難分解性と考えられる溶存有機物（DOM, dissolved organic matter）が徐々に増え続けている。湖沼での難分解性 DOM が最初に注目されたのは 1990 年代前半、我が国最大の湖、琵琶湖北湖（中栄養湖）においてである。琵琶湖北湖における生物化学的酸素要求量（BOD）と化学的酸素要求量（COD）の経年変化（年平均濃度）を図 1 に示す。BOD は容易に分解する（易分解性）有機物量を、COD は有機物全量を表す。ともに有機物を酸素等量で表したものである。図から明らかに、琵琶湖湖水中の COD 濃度は 1984 年を境に徐々に増加している。ところが、易分解性有機物を表す BOD は横ばい、あるいは低減傾向にある。加えて、湖水 COD のほとんどは溶存態からなる。まとめると、琵琶湖北湖の湖水中では、易分解性ではない、すなわち難分解性で溶存態の有機物、難分解性 DOM が徐々に蓄積している

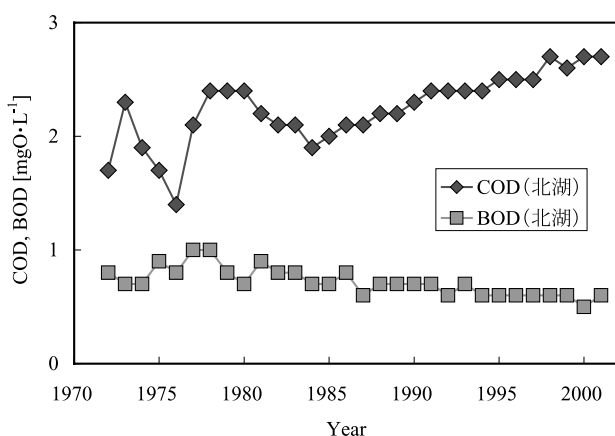


図 1 琵琶湖北湖における化学的酸素要求量（COD）と生物化学的酸素要求量（BOD）の経年変化

（漸増している）と言える。長年にわたる発生源対策によって流域から入ってくる有機汚濁量が増えているとは考えられない。湖沼環境保全対策の観点からみると、とても困惑してしまう状況にある。

琵琶湖北湖で観察された溶存態 COD 濃度の漸増現象は、その後、遍在的な広がりを見せている。同様な上昇現象が、霞ヶ浦、印旛沼、十和田湖、野尻湖、そして内湾である富山湾でも報告されている。すべてのケースで共通するのは、冬季にこれまで減少していた COD 濃度が増加に転じて年平均 COD 濃度を高めたことである。湖沼はその栄養塩（窒素、リン）濃度や植物プランクトン量で類別化される。植物プランクトン密度や栄養塩濃度の高い霞ヶ浦や印旛沼は富栄養湖、琵琶湖北湖は中栄養湖、十和田湖や野尻湖は貧栄養湖に該当する。つまり、湖の栄養状態にかかわらず、また、湖と海域の違いにも関係なく、溶存態 COD が漸増、特に冬季に増えている訳である。この原因が人間活動に起因するものと考えてもあながち不思議ではない。

湖水中の難分解性 DOM 濃度が上昇すると、以下の諸問題が顕在化すると想定される。

[環境基準達成の困難] 湖沼の有機物に関する環境基準は COD で規定されている。難分解性 DOM は COD と比例関係にあると考えられるため、難分解性 DOM の漸増は湖沼における環境基準達成をとっても困難なものとする。

[流域発生源対策のあり方] 湖沼流域発生源対策が行われているにもかかわらず湖水 COD 濃度が漸増している。現在の発生源対策の有効性に疑問符が打たれる。

[湖沼生態系への影響] DOM は植物プランクトンの増殖や種組成に大きな影響を及ぼすと報告されている。難分解性 DOM 濃度の上昇が湖沼生態系に与える影響が懸念される。

[有害物質の能動化] DOM は重金属や農薬等の有害化学物質と結合し可溶化させることが知られている。DOM 濃度上昇による湖での有害化学物質の能動化が懸念される。

[水道水源としての水質悪化] 水道水源としての湖沼に着目すれば、DOM は浄水処理塩素殺菌プロセスにおいて生成される発ガン物質トリハロメタン等の消毒副生成

物の前駆物質である。DOMの漸増による健康リスクの上昇が懸念される。

湖沼における難分解性DOM濃度の上昇は既存の水質汚濁現象の範疇に納まらない新しいタイプの有機汚濁現象と言える。湖沼環境保全上、早急に、湖水中でなぜ難分解性DOMが漸増するのか、そのメカニズムを定量的に解明する必要がある。

現在の湖沼有機物指標である過マンガン酸カリウム法COD (COD_{Mn})は、加算性がないという(1+1≠2)物質収支をとる上で極めて不都合な問題を抱えている。従って、COD_{Mn}の漸増現象が湖水DOM濃度の上昇のためか、あるいは質の変化のためか、厳密な意味では、区別することができない。一方、湖水DOMは極めて不均質な混合体であり、その複雑さの故に依然不明な部分が多い。よって、湖沼におけるDOM収支やDOMの特性・起源等を評価する際に、DOMの発生源、吸収源(シンク)および湖沼全体をブラックボックス的に取り扱わざるを得ないケースが想定される。このため、COD_{Mn}の漸増が研究の出発点であるにもかかわらず、湖水DOM研究には、COD_{Mn}ではなく、物質収支のとれる有機物指標、すなわち有機炭素(total organic carbon, TOC)を

メインパラメータとして用いる必要がある。

本研究では、湖水溶存有機物(DOM)の特性・起源、湖沼生態系への機能・影響に関する科学的知見を集積し、その知見を踏まえて湖沼における難分解性DOMの主要発生源や動態を有機炭素等の物質収支に基づいて定量的に明らかにすることを目的とする。その成果を、難分解性DOMに関して、湖沼環境を適切に管理するための具体的な施策やその立案に資する。

1.2 研究の構成

本研究は、全有機炭素(TOC)を有機物指標として湖(霞ヶ浦)における有機物収支をとることを目指すマクロ的(フレーム構築的)研究と湖水DOMの特性・機能評価、湖沼微生物群集の構造解析等のミクロ的(知見探索的)研究に大別される。前者において湖沼問題の枠組みを構築し、後者において新たな知見を得ることにより前者で構築した枠組みの要素を充実させる方向を目指す。研究フローチャートを図2に示す。

本研究の研究アプローチは、天然水中における典型的な難分解性DOMであるフミン物質の分離条件に基づくDOMの分画に基礎を置いている。非常に複雑なDOM

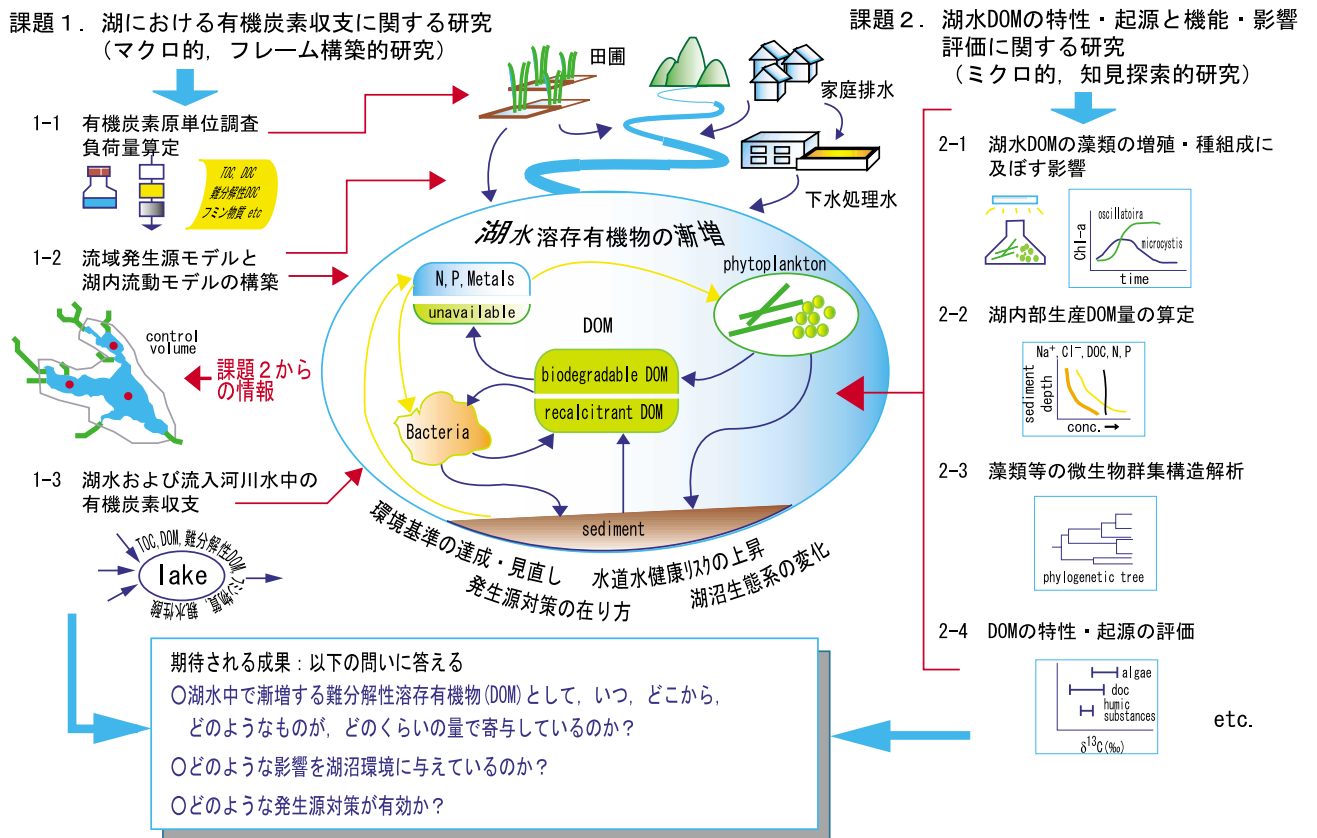


図2 研究フローチャート

をフミン物質を参照物質とした可能な限り化学的に明白な切り口でマクロ的に分画することによって、DOMの特性・起源や物質収支の評価・解析を目指す。

課題1 湖における有機炭素収支に関する研究

1-1 有機炭素原単位および負荷量調査

過マンガン酸カリウム COD (COD_{Mn}) に代わる有機物指標として、全有機炭素 (TOC)、溶存有機炭素 (DOC)、難分解性 DOC、難分解性フミン物質等を採用する。各指標の原単位を求め、排出源別の発生負荷量を算定する。

1-2 湖内モデルと流域発生源モデルの構築

TOC等をメインの変数とする湖内流動モデルと流域発生源モデルを構築する。湖内流動モデルは基本的に3次元流動モデルとする。流域発生源モデルは、実際に現場対策が反映できる市町村レベルで空間的な地理情報 (GIS) を活用したものとする。

1-3 湖水および流入河川水における有機炭素収支

霞ヶ浦および主要な流入河川で頻度高くサンプルを採取し DOM 分画手法に供し、DOM 分画分布や DOM および各画分の動態を明らかにする。得られた実測データとモデル計算値の比較検討によってモデルを検証し、さらに湖における物質収支についてモデルシミュレーションを実施して、難分解性 DOM 等の主要発生源を明らかにする。

課題2 湖水溶存有機物 (DOM) の特性・起源と機能・影響の評価に関する研究

2-1 湖水 DOM の藻類の増殖・種組成に及ぼす影響

湖水 DOM が藻類の増殖・種組成に与える影響を室内実験や屋外実験等により明らかにする。室内実験では、湖水中の DOM 濃度のみを UV 照射によって変動させる新しいタイプの藻類増殖能試験法や、可能な限り化学的に明白な組成の人工培地を用いたパッチおよび2種混合連続培養試験法等を開発・実施する。微量金属 (特に鉄) についてはポーラログラフィを用いた手法を確立し湖水中の溶存有機態濃度を定量する。

2-2 湖内部生産 DOM 量 (底泥溶出と藻類由来) の算定

湖沼底泥からの DOM 溶出量をフィールドモニタリングと底泥コア溶出実験により明らかにする。底泥間隙水中の DOM (DOC として)、リン、窒素の深さ方向のプ

ロファイルを把握する。DOC 濃度プロファイルから DOM 溶出量を算定する。藻類由来 DOM については、霞ヶ浦で代表的な藻類を選択し、DOM 濃度を極力低く抑えた培地で室内培養を行い、生産される DOM の特性・生産量を把握する。

2-3 藻類等の微生物群集構造解析

湖水 DOM の特性や機能を理解するためには、藻類の微生物群集構造と増殖状態に関する知見が必要である。近年急速に進歩する分子生物学的手法を用いて、湖沼における藻類・細菌等の微生物群集構造を解析する。同時に、特定藻類を同定 (FISH 法等) し、そのリボ核酸 (RNA) 含量を測定することにより優占藻類の増殖状態を予測する手法を開発・実施する。

2-4 DOM の特性・起源の評価

DOM の特性・起源は依然として不明な部分が多い。起源の明白な様々なサンプルを対象として DOM の物理化学的特性を詳細に評価する (DOM 分画分布、安定同位体比 (¹³C/¹²C)、3次元蛍光強度等)。

1.3 研究のアプローチ

湖水中の DOM は複雑で不均質な混合体であるため、長年にわたり研究が行われてきているが、依然としてその中味は不明瞭である。このような状況において我々が選択したアプローチは、可能な限り明白な切り口で DOM をマクロ的に (大まかに) 分画して、各画分の分布や特性を評価することであった。このマクロ分画の基礎となる参照物質として水環境中に存在するフミン物質 (aquatic humic substances) を選択した。フミン物質は、濃縮すると黄色から黒色を呈する、疎水性 (水を嫌う性質) の有機酸で、天然水中の DOM の 30 ~ 80 % を占める典型的な難分解性 DOM である。一般に土壌有機物、陸上・水生植物やプランクトン由来と言われ、湖水に流入する主要な外来性 DOM と考えられる。難分解性 DOM のモデル・参照物質として適切なものといえる。

溶存態のフミン物質は、現時点では、実験操作的に定義されている。最も一般的な手法では、非イオン性樹脂 (XAD-8 等) を用いた吸着クロマトグラフィーにおいて、カラム容量 50 の条件下で、その 50 % が XAD-8 樹脂カラムに吸着し 0.1 M NaOH で溶出するものをフミン物質と定義している。

フミン物質は難分解性で疎水性の有機酸である。すなわち、DOM 分画分布の切り口は、易分解性 - 難分解性、

疎水性 - 親水性（水に溶ける程度等を示す），酸性 - 塩基（アルカリ）性となる。我々は，この三つの切り口を使い，フミン物質の分離に基礎をおく DOM 分画分布手法を開発・適用した（図 3）。この分画手法は長期間生分解試験（易分解性 - 難分解性の切り口）と樹脂吸着分画手法（疎水性 - 親水性，酸性 - 塩基性の切り口）からなる。分画後に各画分の物理化学的パラメータ（DOM 分画分布，紫外部吸光度，分子量分布等）を測定することにより，DOM の特性を評価する。

長期間生分解試験では，ろ過サンプルを 450 ml で 4 時間熱処理したガラス瓶に入れ，100 日間，20℃，暗所，約 60 rpm の振とう条件で実施する。残存した DOM を難分解性 DOM と定義した。ろ過操作にはグラスファイバーフィルター（公称孔径 0.7 μm）を用いているため，ろ液中に十分な数のバクテリアが残存している（約 10^6 個・ml⁻¹）。湖水以外のサンプルの場合には，ろ過湖水をサンプル量の約 1% 添加した。樹脂吸着分画手法では 3 種類の樹脂（非イオン性樹脂 XAD-8，強酸性陽イオン交換樹脂，強塩基性陰イオン交換樹脂の順）を用いて DOM を 5 つに分画する：フミン物質，疎水性中性物質，親水性酸，塩基物質（親水性塩基物質），親水性中性物質。各画分に対応する有機化合物名は図 3 に表記した。

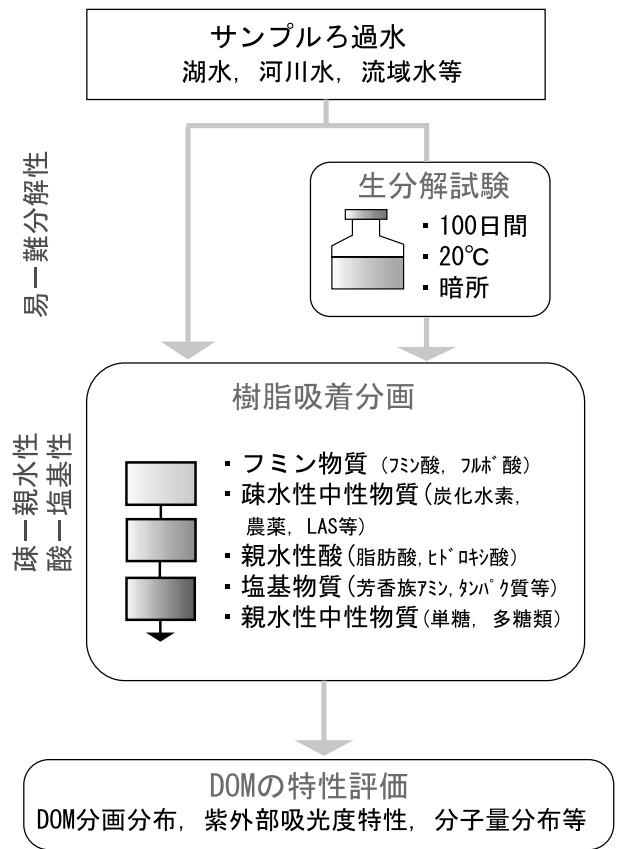


図 3 溶存有機物 (DOM) 分画手法の概略図

2 研究の成果

2.1 湖における有機炭素収支に関する研究

2.1.1 全有機炭素 (TOC) ベース原単位と排出負荷量

湖沼における有機物指標として、過マンガン酸カリウム COD (COD_{Mn}) の代わりに TOC を導入するために、既存の COD_{Mn} 原単位と実測データ等を収集して、COD_{Mn} と TOC の相関関係 (回帰式) 等から、TOC ベースの原単位、つまり TOC、溶存有機炭素 (DOC)、難分解性溶存有機炭素 (recalcitrant DOC, RDOC) の原単位を算出した。次に、この原単位を用いて、霞ヶ浦を対象として TOC、DOC および RDOC に係る発生源別排出負荷量を算定した。さらに、さまざまなサンプルについての難分解性 DOM の分画分布結果を用いて、難分解性フミン物質 (recalcitrant AHS, RAHS) と難分解性親水性酸 (recalcitrant HiA, RHiA) に係る発生源別排出負荷量も算出した。

図 4 に、平成 11 年 (1999 年) の霞ヶ浦における排出源別の TOC、DOC、RDOC 排出負荷量を示す。TOC 排出負荷量が最も大きい排出源は雑排水であり、排出負荷全体の約 30 % を占めていた。次に大きい排出源は市街地で全体負荷の 20 % を寄与しており、以下、畜産、山林の順となっていた。DOC 排出負荷量は TOC 排出負荷量の約 75 % で、TOC の場合とほぼ同様な負荷量の構成比を示した。RDOC 排出負荷量は TOC 排出負荷量の約

30 % に相当した。RDOC 負荷量の排出源別構成比は、DOC 負荷量とそれとは著しく異なるものとなった。DOC 負荷量で寄与が大きかった生活雑排水の負荷量が顕著に減少するため、生活系の排出負荷が相対的に小さくなり、一方、面源系の排出負荷の寄与は大きくなった。生活系では合併処理浄化槽の寄与が雑排水のそれよりも大きくなった。面源系では畜産系の寄与が顕著に低くなった。

TOC、DOC、RDOC の流達率を、排出負荷量と河川経由の霞ヶ浦への流入負荷量の比から求めた。TOC の流達率は 0.82 であり概ね妥当な値であった。DOC の流達率は 0.60 とやや低めであった。RDOC の場合、その流達率は 0.96 とかなり高い値を呈した。排出された RDOC はほとんど全て湖に流入することになる。

TOC と RDOC 排出源別負荷量を見比べるととても興味深いポイントが浮かび上がる。生活系負荷量は TOC と DOC としては各々 34 % と 32 % を占めるが、RDOC としては 13 % に過ぎない。湖水の DOM の大部分は難分解性である (RDOC である) ことを考えると、湖水 RDOC を削減するための対策としては、従来実施されてきた生活系排出源対策よりは、面源系排出源に対する対策のほうが有効であると推察される。

図 5 に RAHS と RHiA の発生源別排出負荷量を示す。

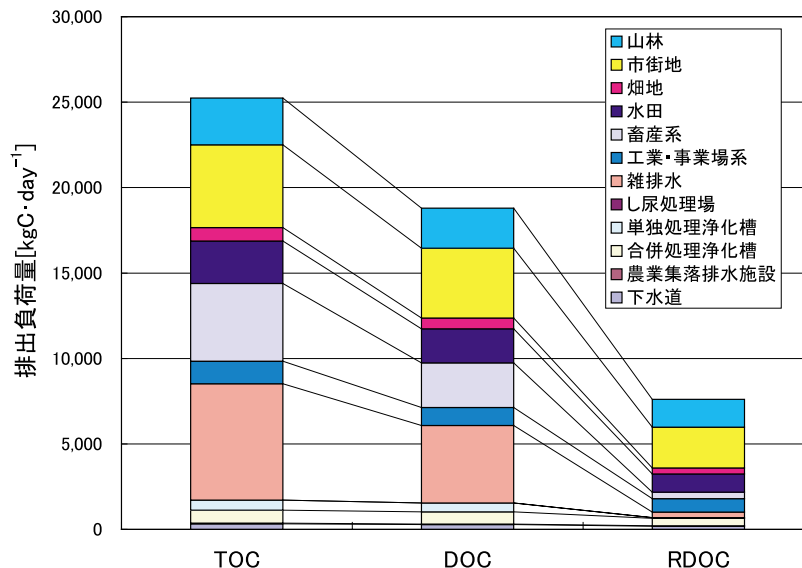


図 4 霞ヶ浦における全有機炭素 (TOC)、溶存有機炭素 (DOC)、難分解性溶存有機炭素 (RDOC) の発生源別排出負荷量 (1999 年)

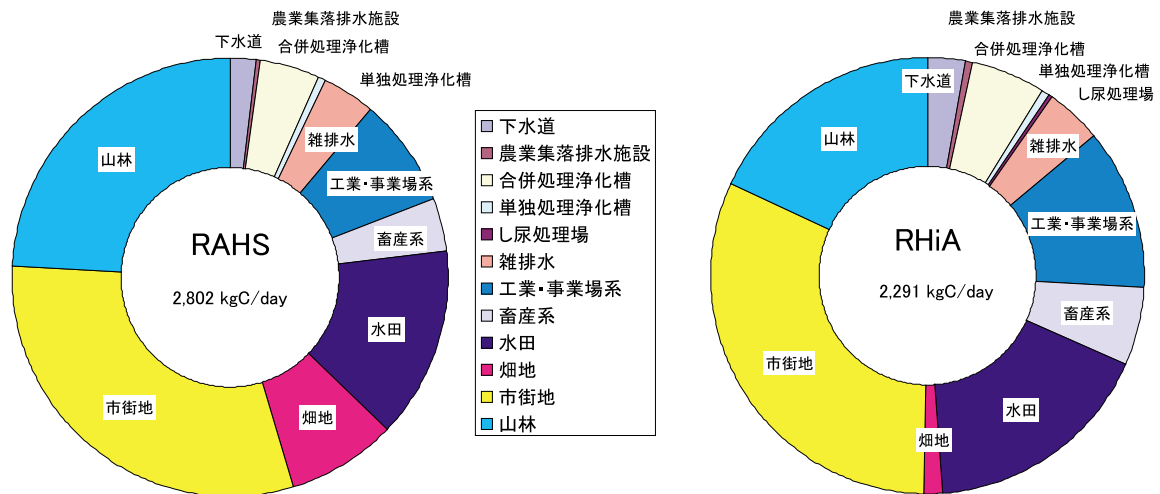


図5 霞ヶ浦における難分解性フミン物質 (RAHS) と難分解性親水性酸 (RHIA) の発生源別排出負荷量 (1999年)

全体の排出量としては、RAHSのほうがRHIAよりも1.2倍大きかった。従って、流域からの排出されるRDOCとしてはフミン物質の方が親水性酸よりは寄与が高いことになる。RAHSとRHIAの発生源別排出量を比較すると、RAHSでは山林や畑地からの寄与が相対的に多く、RHIAでは生活系(下水道等)、工場・事業場、畜産系からの排出が多かった。すなわち、RAHSの排出源はより面源系の寄与が大きく、RHIAの排出源はより点源系の寄与が大きいと言える。

2.1.2 湖内流動モデルの構築

霞ヶ浦における湖水の流動を予測・再現するために、Princeton-Ocean-Model (POM)の境界条件を改良した3次元流動モデルを構築した。POMに基づく連続、運動量、乱流モデルに水温モデルを加え、全体モデルを構築した。

(1) 計算条件

霞ヶ浦全体を水平方向に500mメッシュに区分けして、鉛直方向には10層に分割して計算を行った。気象条件としては土浦における気象観測結果(気温、湿度、雨量、日射量、日蒸発量、雲量[気象庁館野測候所観測データ、アメダスデータ])を入力データとした。風向・風速については6地点(湖心、土浦、出島、小高、鉾田、潮来)で観測されたデータ[国土交通省霞ヶ浦河川工事事務所観測結果]を基に、湖心は湖心での観測結果を基準に、沿岸地域では湖心と沿岸地域との風速比を風向別に求め計算条件に反映させた。

河川水温は霞ヶ浦の流動に影響を及ぼす重要なパラメ

ータである。対象河川ごとに異なる水温設定を課すことが妥当と考え、計算対象河川(桜川、恋瀬川、園部川、新利根川、小野川、鉾田川)の公共用水域水質測定結果を用いて、各河川について気温と水温の関係を求めた。各河川とも気温と水温に良好な線形関係があり、また河川によって気温と水温の関係が異なっていることが確認された。よって、各河川の水温は気温の観測地から算出した。下水処理水放流水の水温としては霞ヶ浦流域下水道事務所の放流水水質測定結果を使った。

水文条件として、霞ヶ浦流域流出モデル解析結果((独)土木研究所)を霞ヶ浦への河川流量として採用するとともに、放流量については、常陸利根川水門からの放流記録を用いた。水道・工業・農業用水の取水量、下水処理場排水量も流域流出モデル解析で計算条件として与えられたデータを採用した。また、初期条件、検証データとして定期水質観測データ(霞ヶ浦河川事務所定期調査、(独)国立環境研究所霞ヶ浦全域調査)を使用した。計算期間は基本的に平成6年(1994年)~平成10年(1998年)の5ヵ年および平成9年(1997年)~平成10年(1998年)の2ヵ年とした。

(2) 水位と水温シミュレーション

湖心地点(St.9)での水位の計算値は実測水位と比較的良好に一致していた(図6)。これは流域流出モデルおよび流動モデルによって霞ヶ浦における水収支が良好に再現されたことを示している。湖心地点表層における水温の計算値も実測値と良く一致した変動を示し、精度の高い結果が得られた(図7)。水温計算が良好な結果

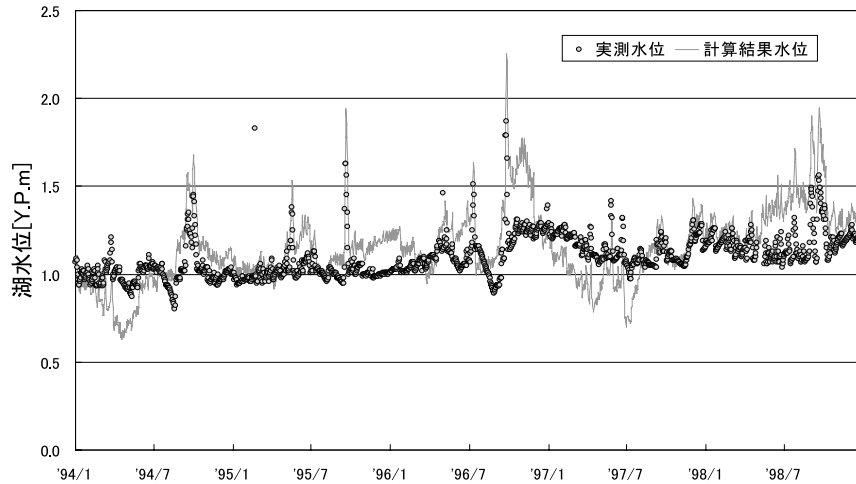


図6 霞ヶ浦湖心における水位の実測値とモデル計算結果の比較

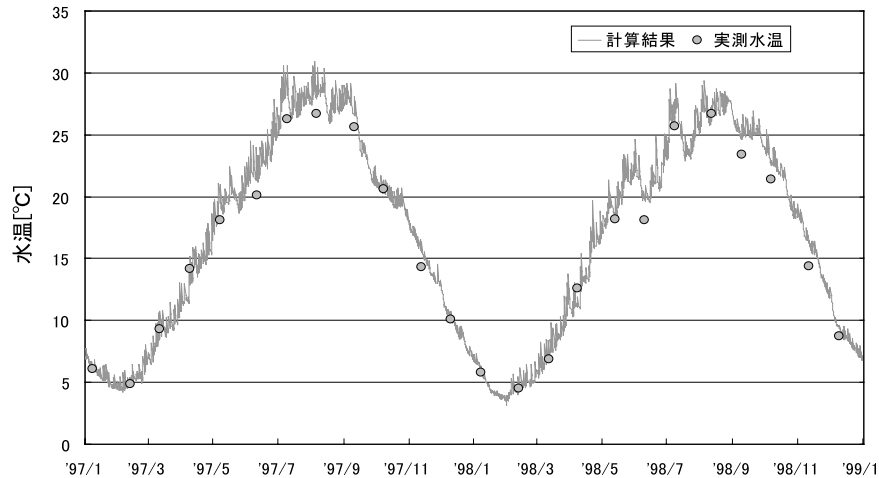


図7 霞ヶ浦湖心における水温の実測値とモデル計算結果の比較

となったことは、熱量収支計算が適切であったことを示している。

(3) 流動解析

1) 風の影響

霞ヶ浦における湖水流動は、風により生起する流れと降雨後の河川からの出水、水門からの放流によって支配されていると考えられる。風の影響を見るために、風が弱く（日平均風速 $2.5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ）放流による流れが顕著な日（図8(a),(b)）と風が少し強く（日平均風速 $4.8 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ）東北東から吹いているとともに放流による流れが顕著な日（図9(a),(b)）を選択して、湖水の流動について検討した。

風による流動への影響が小さい場合、表層において、放流により下流へと向かう流れが起こっている。一方、底層では時計回りの循環流が起こっていることがわか

る。これに対して、東北東からの風が吹いた日には、放流があったにもかかわらず、表層ではむしろ上流に向かう流れが発生し、底層では下流への流れが卓越している。従って、霞ヶ浦では風の影響によって湖水の流動は水平方向のみならず鉛直方向にもかなり複雑なものになっていると理解できる。浅い湖であるため、底泥からの溶出が顕著であると想定される霞ヶ浦の場合、3次元流動モデルの必要性は高いと判断される。

2) 水粒子の流動

霞ヶ浦に流入する河川水が湖内でどのように流れてゆくかを把握するために、水粒子と同様な動きをすると規定したビーズ粒子を高浜入りと土浦入りの河川流入ポイントに各々500個を投入して、ビーズの動きをモデル計算により経日的に追跡した。図10に、1997年1月1日にビーズを投入したケースでの、同年1～3月におけるビーズの挙動を表す。ビーズ粒子が河川流入ポイント

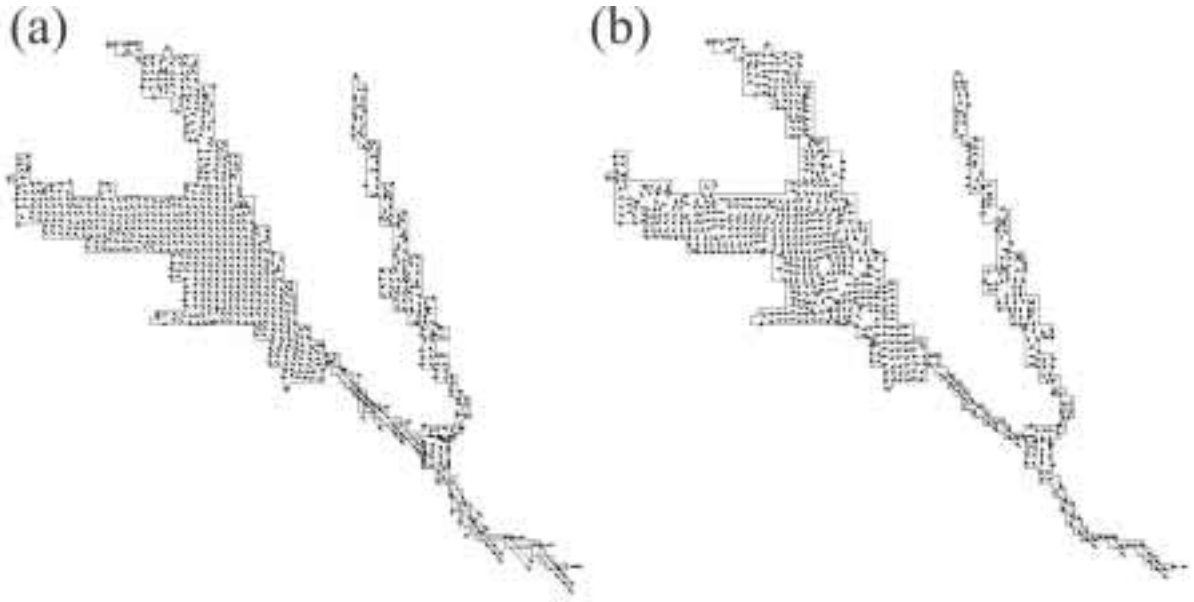


図8 風が少し強い場合の湖内流速分布計算結果
(a) 表層,(b) 底層。東北東風。水門放流の影響が顕著。

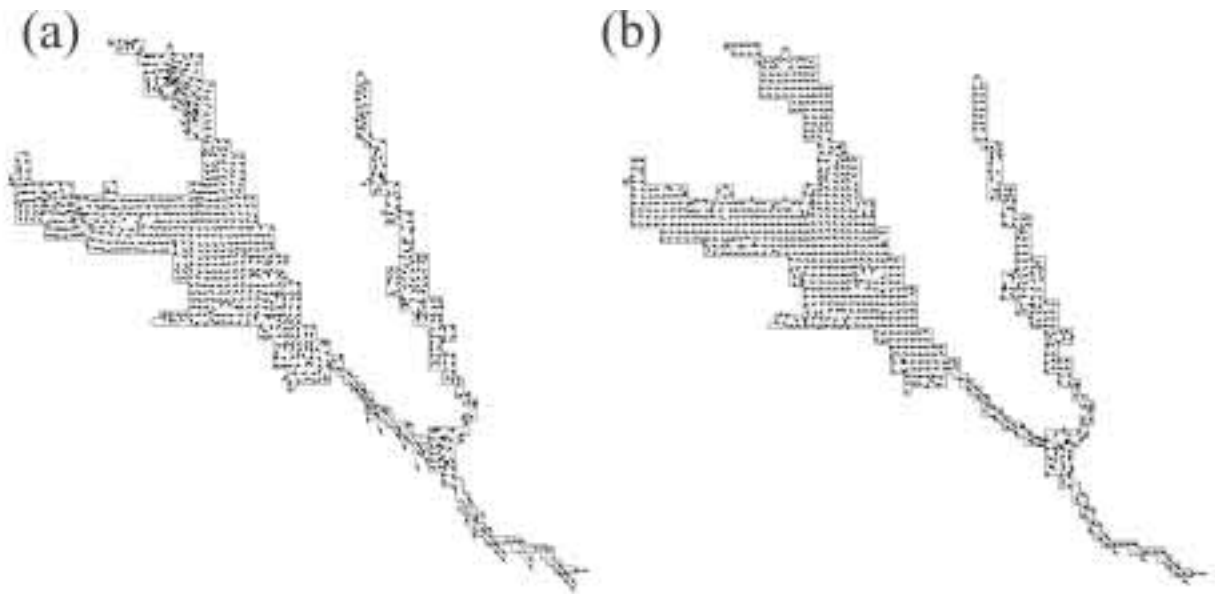


図9 風が弱い場合の湖内流速分布計算結果
(a) 表層,(b) 底層。水門放流の影響が顕著。

から徐々に流動により混合拡散してゆく様子がよくわかる。ところが、土浦入りと高浜入りではビーズ粒子の動きに大きな違いがあることが認められた。土浦入りに入れたビーズ粒子は比較的スムーズに湖盆（湖心）に向けて移動してゆくが、高浜入りの河川流入ポイントに入れたビーズ粒子はなかなか湖盆に入ってゆかず高浜入りに留まっていた。このビーズ粒子の流跡結果は、高浜入りの水塊は土浦入りに比べて湖盆域の水塊との交換・混合が相当に悪い（少ない）ことを明示している。すなわ

ち湖心付近では土浦入りからの水塊が卓越すると想定される。この解析結果は、さらに底泥溶出の影響についても興味深い示唆を与えている。湖の底泥から溶存有機物（DOM）や栄養塩（N, P）等が溶出してくる場合、直上水柱の物質濃度への底泥溶出の寄与は、水柱に入ってくる水のフラックスが小さいほど大きくなると考えられる。つまり、高浜入りと土浦入りの底泥性状に大きな差がないと仮定すると、底泥溶出の寄与は、高浜入りのほうが大きくなると考えられる。湖水中の DOM や栄養塩

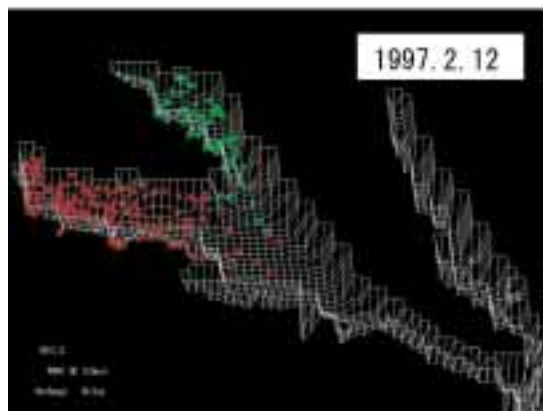
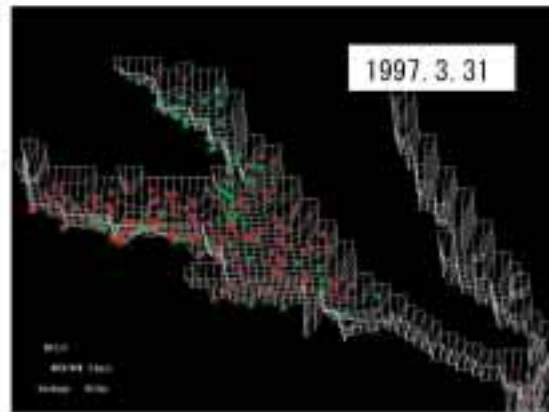
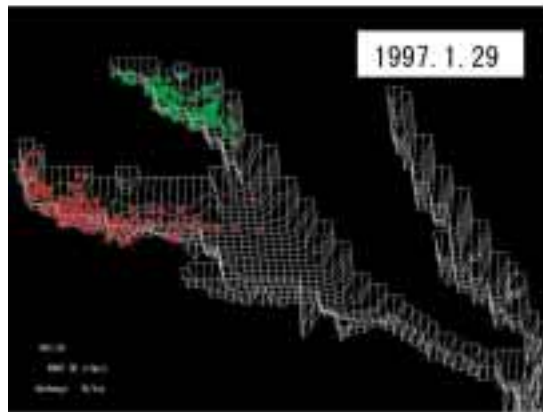
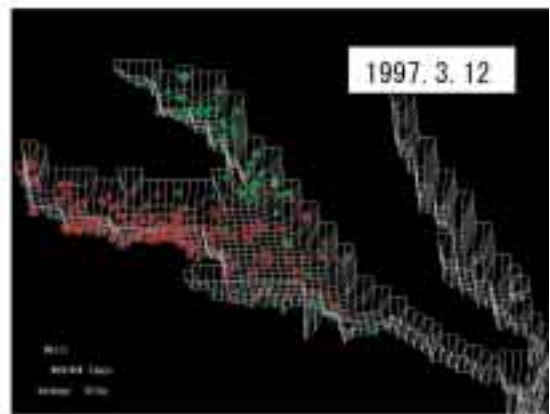
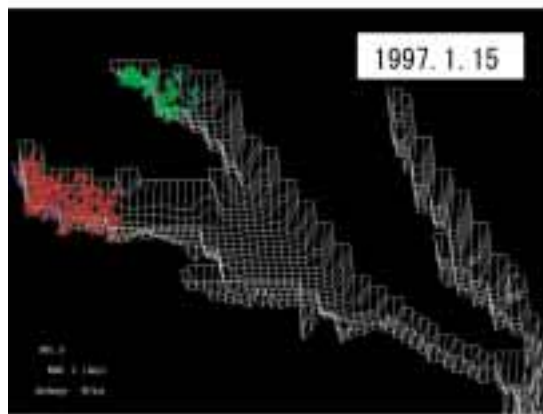
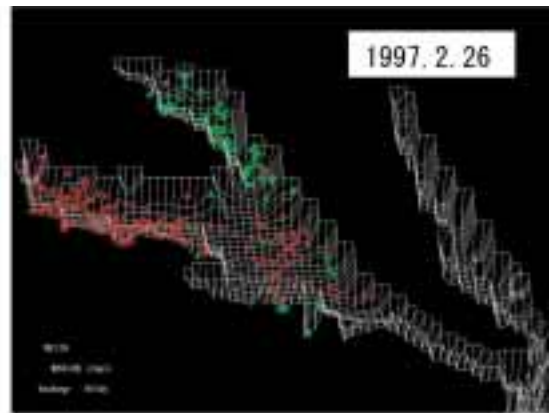
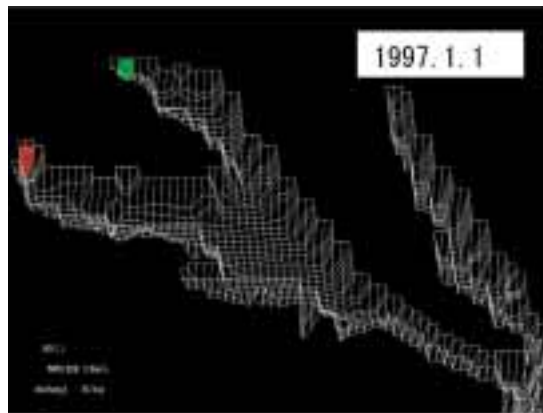


図10 霞ヶ浦における水粒子挙動のシミュレーション結果
 主要河川の流入ポイントである土浦入りと高浜入りに水粒子と同じ挙動をとるビーズをそれぞれ500個を1997年1月1日に投入した。

濃度を低減させる目的で底泥浚渫を実施するとすれば、土浦入りよりも高浜入りで浚渫の効果は現れると判断される。

2.1.3 湖水および流入河川水における有機炭素収支

霞ヶ浦湖水の採水は湖内5地点で1997～2001年の期間に毎月1回、流入河川については主要4河川(恋瀬川、桜川、花室川、小野川)で2001年4月から2002年3月の期間に毎月1回、水サンプルを採取した。サンプル採取地点を図11に表す。

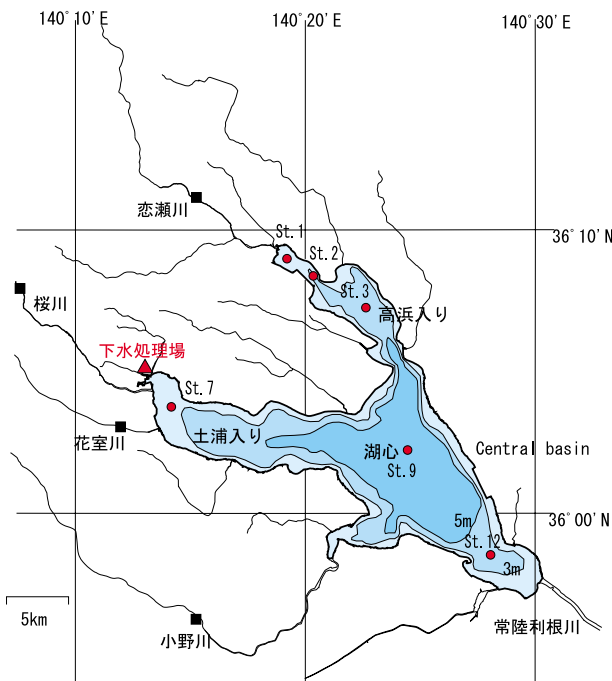


図11 湖水および河川水のサンプル採取ポイント

(1) 霞ヶ浦湖水におけるDOMの特性と動態

1) 湖水DOMおよび難分解性DOMの分画分布

霞ヶ浦湖心(St.9)におけるDOM分画分布(フミン物質[AHS], 疎水性中性物質[HoN], 親水性酸[HiA], 塩基物質[BaS]および親水性中性物質[HiN])を図12に示す。この図は1997～2001年の5年間にわたる年間平均値を表したものである。湖水DOMとしては有機酸画分のAHSとHiAが卓越していた。この二つの画分でDOMの70%以上を占めており、特にHiAの寄与が大きかった。DOM分画分布に関しては、1997～2001年の5年間で劇的な変化は観察されなかったが(AHS: 29～32%, HoN: 7～11%, HiA: 43～47%, BaS: 8～12%, HiN: 5～6%), 経年的な変化は認められた。AHSの存在比は経年的に減少し、一方HoNの存在比は漸増する傾向を示した。疎水性DOM(AHS+HoN)と親水性DOM(HiA+BaS+HiN)の割合はほとんど変化しなかったことを考えると、疎水性DOM自体に何らかの変化が生じて、結果としてその疎水性的傾向(HoN/AHS比)が高まったのかもしれない。

難分解性DOM(RDOM)の分画分布においても、DOMのケースと同様に、1997～2001年では、AHSとHiAが、特にHiAがRDOMの大部分を占めていた(図13)。従って、霞ヶ浦ではRDOMとしてHiAのほうがAHSよりも重要であると結論される。難分解性画分の経年変動はDOMの場合よりも明白で、AHSは存在比が減少し、HoNは増大傾向を示し、HiAは減少、BaSは増加傾向で、HiNの存在比には変化がなかった。まとめれば、

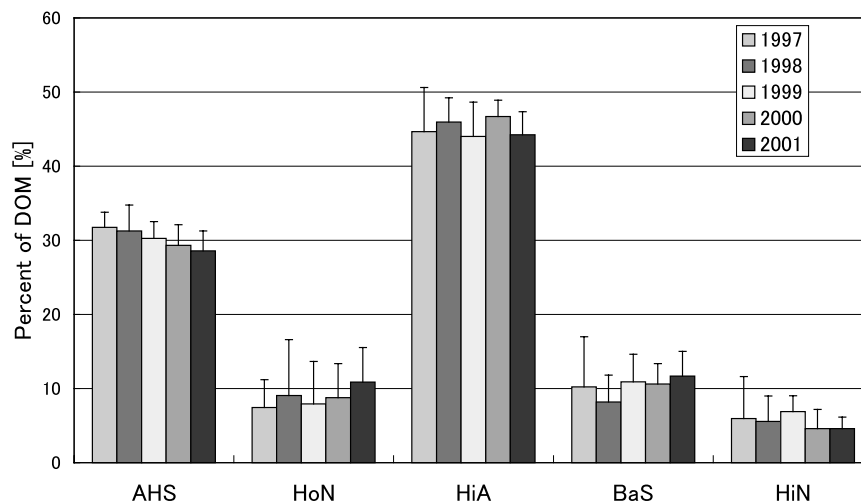


図12 霞ヶ浦湖水溶存有機物(DOM)の分画分布(1997～2001年) 湖心のデータの年間平均値。AHS:フミン物質, HoN:疎水性中性物質, HiA:親水性酸, BaS:塩基物質, HiN:親水性中性物質。

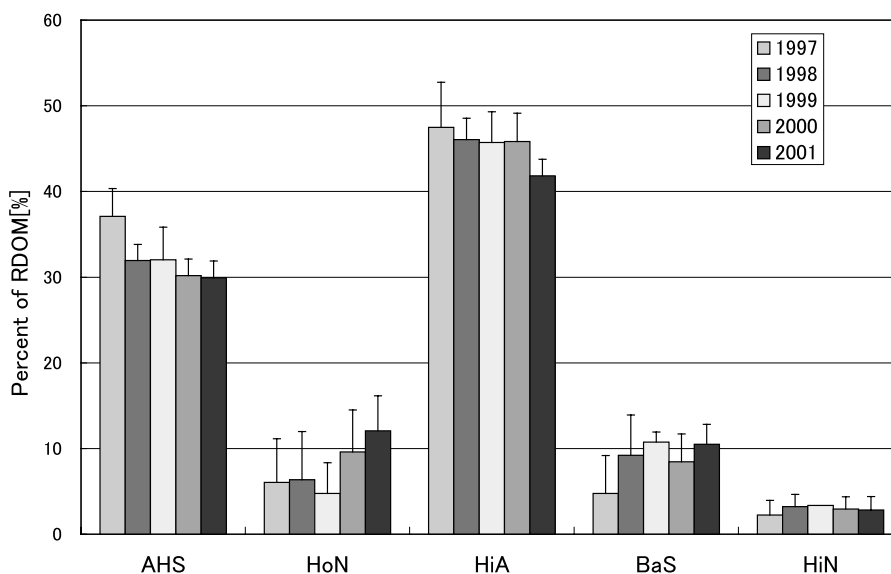


図 13 霞ヶ浦湖水難分解 DOM (RDOM) の分画分布 (1997 ~ 2001 年) 湖心のデータの年間平均値。AHS : フミン物質, HoN : 疎水性中性物質, HiA : 親水性酸, BaS : 塩基物質, HiN : 親水性中性物質。

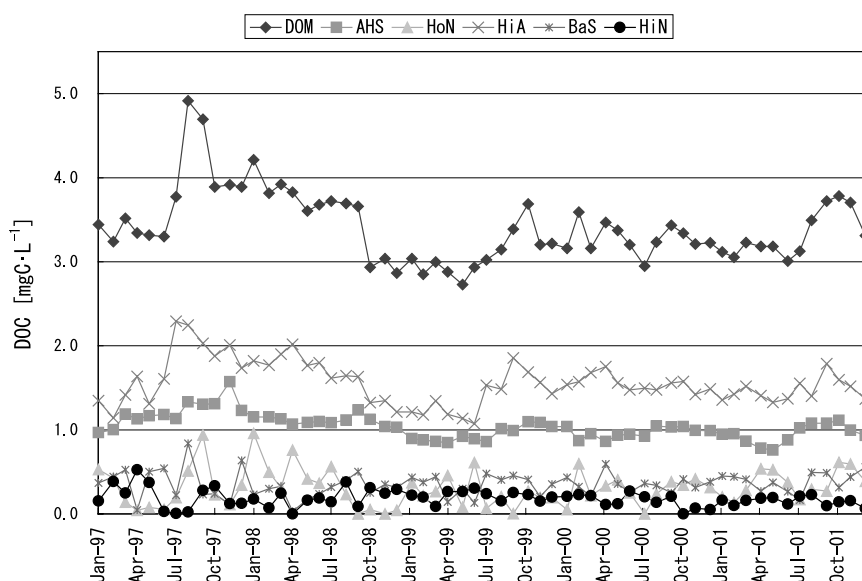


図 14 霞ヶ浦湖心における DOM および各分画成分の動態 (1997 ~ 2001 年) AHS : フミン物質, HoN : 疎水性中性物質, HiA : 親水性酸, BaS : 塩基物質, HiN : 親水性中性物質。

今回の調査期間においては、AHS と HiA の減少と HoN の増大が経年的変化として特徴的であった。

1997 ~ 2001 年における DOM と RDOM の分画分布結果をみると、各画分の経年変化に不連続的なトレンドの存在がうかがえる。生分解前後で AHS の存在比は増大したが、1997 年を除くと、その増加は非常に小さいものであった。一方、HiA の存在比は 1997 ~ 1999 年には上昇したのに対して 2000 ~ 2001 年には反対に減少した。HoN の存在比も、HiA と同様に、生分解に伴い 2000 ~ 2001 年に上昇に転じた。HiN は生分解後に、予

想通りに、その存在比は減少した。従って、何らかの DOM 特性の変化が 1998 ~ 1999 年に起きたと推測される。

2) 湖水 DOM および難分解性 DOM の動態

霞ヶ浦湖心 (St.9) における DOM, AHS, HoN, HiA, BaS および HiN の 1997 ~ 2001 年における動態 (月別濃度変化) を図 14 に示す。DOM (DOC として) は 1997 年から 1998 年初夏まで高い濃度を保っていたが、1998 年秋季から急激に減少し 1999 年には $3 \text{ mgC} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下にまでに低下した。その後 2000 年から 2001 年にかけて

て再び漸増する傾向が見られた。DOMの主要な構成成分であるAHSとHiAもDOMと同様なトレンドを示した。HoN, BaSやHiNには明白な変動パターンは認められなかった。

1998夏からのDOM濃度の急激な減少は、1998年の降雨量が著しく多かったことが原因と考えられる。1997年は平年より若干少ない降雨量(798 mm)であったが、1998年は雨がとても多く(1,288 mm)かつ冷夏であった。1999年の4月にも187 mmの降雨量が記録される。この降雨のためかこの年には明白な季節的変動パターンが認められなかった。

植物プランクトンの種組成の変化もDOM濃度の変化に影響を与えているかもしれない。霞ヶ浦湖心では1999年から藍藻類の密度が減少に転じ、この年を境に優占藻類は藍藻類から珪藻類に変化してしまった。1997～1998年の高いDOM濃度は藍藻類の優占に関係し、2000～2001年のDOMの上昇は珪藻類の優占・増大による可能性もある。

DOM, RDOM, AHS, 難分解性AHS (RAHS), HiA, 難分解性HiA (RHiA)の1997～2001年での霞ヶ浦湖心における動態(月別濃度変化)を図15に表す。DOMの分解率は1997～2001年の平均で約11%であった。霞ヶ浦DOMは非常に難分解性であることがわかる。

DOMの分解傾向は1997年, 1998～1999年, 2000～2001年で異なった3つのパターンを示した。1997年では、分解率は夏から秋にかけて高く冬季に極めて低くなった。1998～1999年では、春から夏の分解率が顕著に大きくなった。一方、2000～2001年では、春季での分解が1998～1999年同様に高くなったが、夏から冬にかけての分解率が著しく低下した。いずれのパターンにおいてもDOMの分解傾向はHiAのそれと良好な対応が認められた(平均分解率13.1%)。従って、DOMの分解は主に親水性DOMの分解によるものと推察される。典型的なRDOMであるAHSについては、予想通り、5年間を通じて季節に関係なくとても難分解性であった(平均分解率8.4%)。

RDOMの変動は、1998年を除くと、夏頃から上昇し始め秋季から冬季にピークを示す共通的なパターンが確認された。1999年の2月に最低の値を示したが、その後、秋季から冬季にピークとなるパターンで2001年まで漸増する傾向を示した。RDOMの年平均濃度は2.69 mgC・l⁻¹(1999年)から2.96 mgC・l⁻¹(2000年), 3.00 mgC・l⁻¹(2001年)に上昇した。RHiAとRAHSともにRDOMと高い相関性が認められた(線形回帰R², RHiA: 0.707, RAHS: 0.644)。

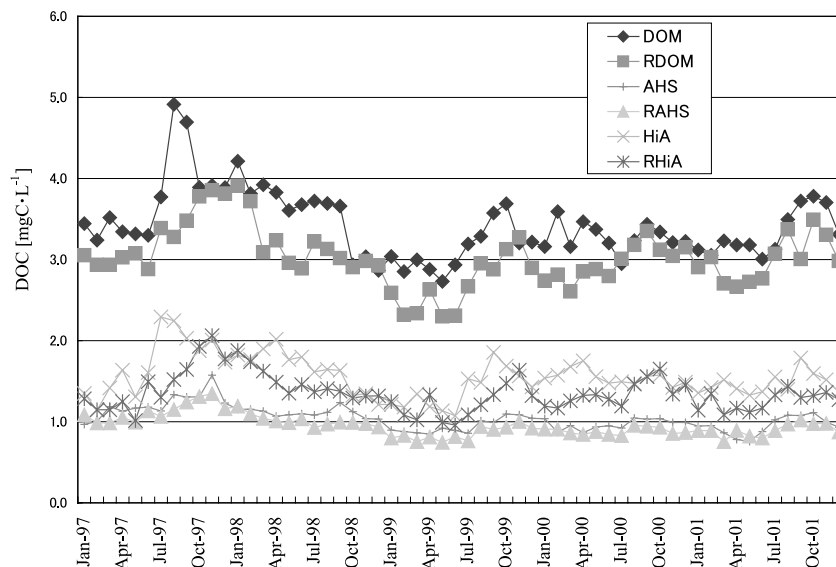


図15 霞ヶ浦湖心におけるDOM, フミン物質, 親水性酸および難分解性DOM, 難分解性フミン物質, 難分解性親水性酸の動態(1997～2001年)
DOM: 溶存有機物, RDOM: 難分解性DOM, AHS: フミン物質, RAHS: 難分解性AHS, HiA: 親水性酸, RHiA: 難分解性HiA。

(2) 流入河川水における DOM の特性と動態

1) 河川水 DOM および難分解性 DOM の分画分布

河川水の DOM 分画分布の月平均値 (2001 年 4 月 ~ 2002 年 3 月) を図 16 に表す。流入河川水についても霞ヶ浦湖水と同様に AHS と HiA が卓越していた。河川水 AHS の存在比 (4 河川平均 31 %) は湖水 (2001 年) のそれ (30 %) とほぼ等しく、HiA の存在比は湖水よりも小さかった (39 % vs. 42 %)。HoN と HiN は河川水の方が少し大きく、BaS は湖水の存在比のほうが大きかった。しかしながら、平均値としては、総じて河川水と湖水の DOM 分画分布には顕著な違いはなかった。1998

年に同じ 4 河川に対して年 4 回実施した際の実験データと比較すると、AHS が減少し (33 → 31 %), HiA が上昇していた (35 → 39 %)。この 3 年間で河川水の DOM 分画分布はより湖水のそれに近づいたと思われる。

難分解性 DOM (RDOM) の分画分布においても、DOM の分画分布と同様に、AHS と HiA が RDOM の大部分を占めた。生分解前後での分画分布の変化をみると、AHS の存在比の上昇が特徴的であった (図 17)。AHS は生分解試験前後で 31 % から 38 % と顕著に上昇していた。HiA も 39 % から 41 % とわずかに増大した。BaS と HiN の存在比は少し減少し、HoN は 14 % から 10 % と顕著

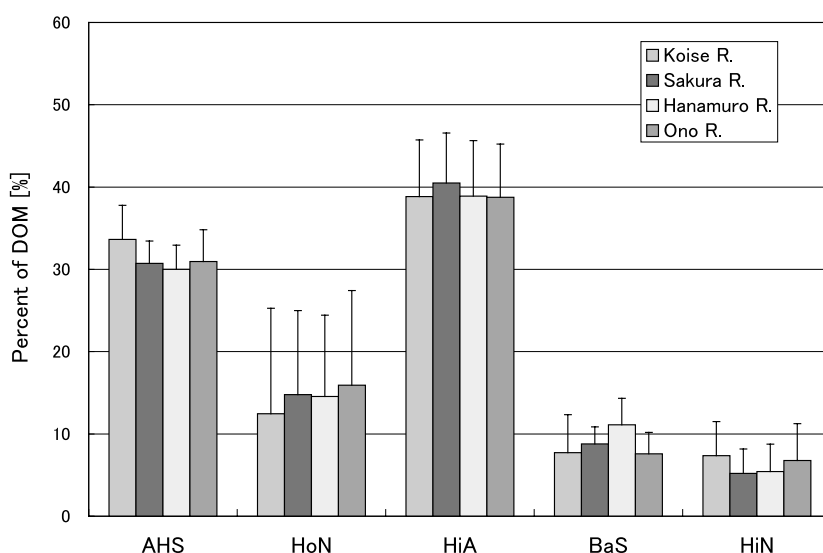


図 16 霞ヶ浦流入河川水の溶存有機物 (DOM) 分画分布
AHS : フミン物質, HoN : 疎水性中性物質, HiA : 親水性酸,
BaS : 塩基物質, HiN : 親水性中性物質。

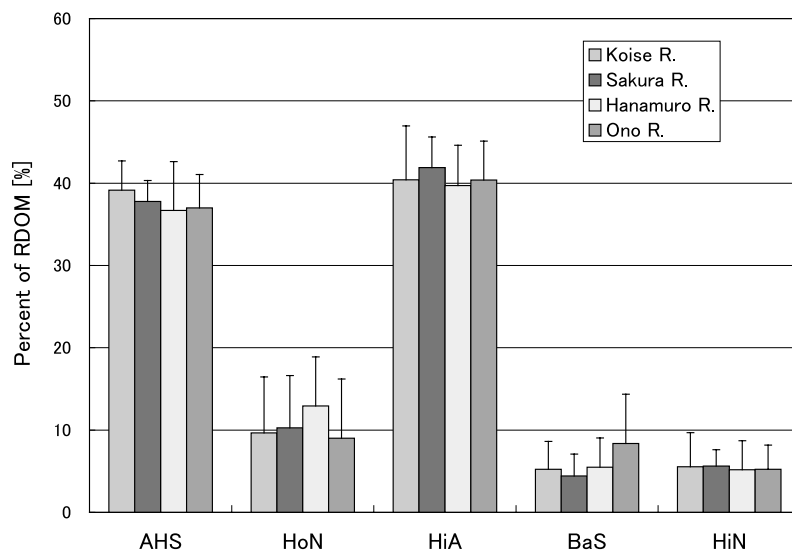


図 17 霞ヶ浦流入河川水中の難分解性 DOM (RDOM) の分画分布
AHS : フミン物質, HoN : 疎水性中性物質, HiA : 親水性酸, BaS : 塩基物質, HiN : 親水性中性物質。

に低くなった。この HoN の存在比の顕著な低下は、2001 年秋から冬に HoN 濃度の高いサンプルで分解後にその濃度が著しく低下したためであった。

2) 河川水 DOM および難分解性 DOM の動態

DOM 濃度の平均値は、恋瀬川、桜川、花室川、小野川で各々 1.83, 2.13, 2.93, 2.33 $\text{mgC}\cdot\text{L}^{-1}$ であった。予想通り、都市河川である花室川で DOM 濃度が最も高かった。DOM および各画分は、4 河川ともに、良く似た濃度変動パターンを示した。代表例として、恋瀬川の DOM と各画分の月別濃度変化データを図 18 に示す。DOM 濃度は春から夏に高くなり、秋から冬にかけて著しく減少した。河川水 DOM 濃度が 6 月に急落するのは降雨の影響によるものと思われる。AHS と HiA の変動は DOM の変動に対応したものであった。最も変動が激しかったのは HoN であった。流入 4 河川ともに、HoN の存在濃度が 11 月にピークに達し、AHS や HiA とほぼ同程度あるいは上回った。2001 年 4 月～2002 年 3 月の調査期間において最大月降雨量および最大日降水量を記録した月は 10 月であった（月降水量 258 mm, 最大日降水量 130 mm, 10 月 10 日）。降雨量と HoN の存在比との正の関係が示唆される。大量の降雨により流域から高濃度の HoN が湖に流れ込んできたと考えられる。

河川水 DOM の生分解性は 4 河川平均で 31 % であった。河川水 DOM は湖水 DOM（2001 年湖心で分解率 9 %）に較べてはるかに分解性が高いことが明らかとなった。AHS の分解率は 17 %、HiA のそれは 27 % であった。河川水でも AHS のほうが HiA よりも難分解性で

あった。ただし、湖水に比較すると、湖水 AHS の分解性は 7 %、HiA のそれは 14 % であるため、AHS と HiA とともに、湖水のほうが河川水よりもはるかに難分解性である。すなわち、河川水 DOM は湖水 DOM に比較してかなり不安定なもの、分解しやすいものと考えられる。

恋瀬川における河川水 DOM、RDOM、AHS、RAHS、HiA および RHiA の動態を図 19 に示す。RDOM、RAHS、RHiA の濃度はともに、春季から夏季に高く、夏季から冬季にかけて低下する傾向を示した。河川水 RDOM として、AHS ととも HiA も、季節にかかわらず、重要なコンポーネントであることがわかる。DOM の分解率は平均 31 % で、4 河川ほぼ共通に春季（4 月、5 月）に高く、6 月に最低値を示し、7 月から翌年 3 月までは再び高くなる傾向が認められた。しかし分解率の変動はとても大きくかつ複雑なため季節変化としてとらえることは難しい。

(3) 霞ヶ浦における難分解性 DOM 収支

本研究における重要な目的の一つは、霞ヶ浦において難分解性 DOM（RDOM）の物質収支等を湖内 3 次元流動モデルにより評価・再現することである。

前々節で検討したように、開発した 3 次元流動モデルは水収支に関しては適正なものであることが検証された。この流動モデルに RDOM 等（DOC として）を従属パラメータとして組み込み、合理的な前提条件のもとに、シミュレーションを実施し、実測値と計算値を比較検討することによりモデル計算の妥当性を検証した。さらに

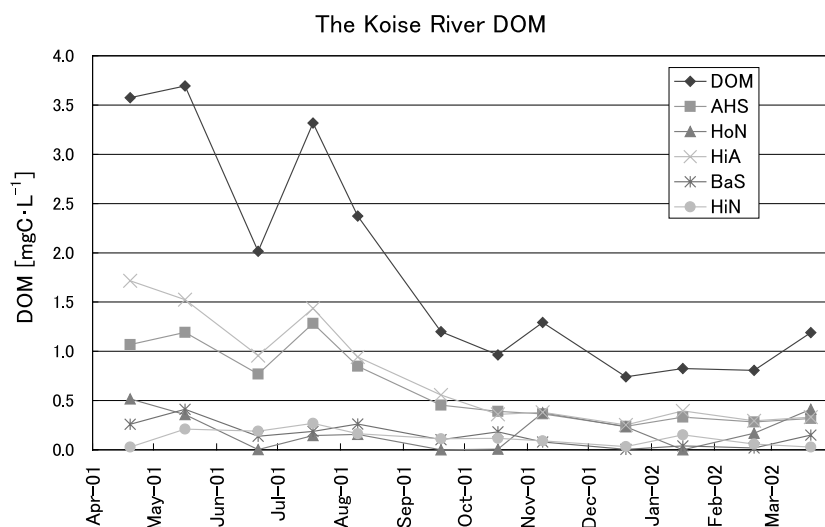


図 18 恋瀬川における DOM および各画分の動態
AHS：フミン物質，HoN：疎水性中性物質，HiA：親水性酸，
BaS：塩基物質，HiN：親水性中性物質。

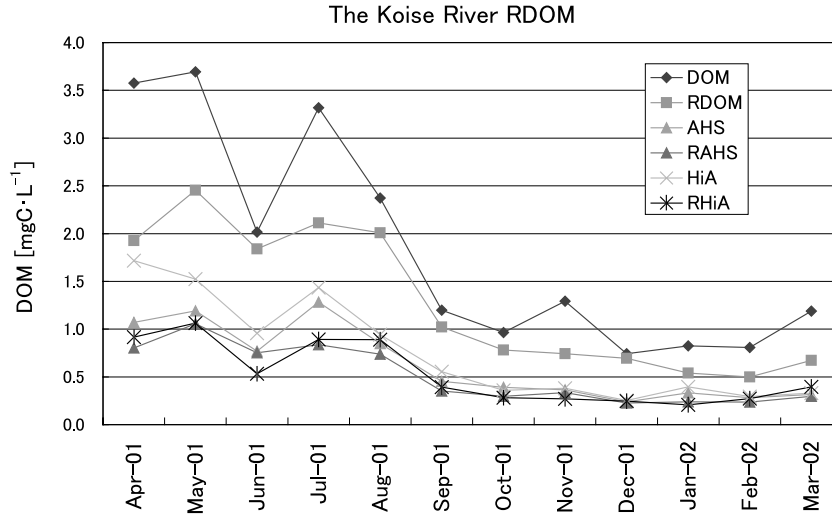


図 19 恋瀬川における難分解性 DOM (RDOM) および各画分の動態
 DOM : 溶存有機物, RDOM : 難分解性 DOM, AHS: フミン物質,
 RAHS: 難分解性 AHS, HiA : 親水性酸, RHiA : 難分解性親水性酸。

霞ヶ浦における RDOM の起源別の寄与, 季節的变化および場所的变化について解析・考察を行った。

1) 難分解性 DOM モデルと検証と計算結果

本研究でシミュレーションの対象となる RDOM 等は基本的に反応に関与しない不活性物質と考えられる。従って, 湖内で生起している様々な生物学および物理化学的反応とは無関係とみなされ, 物質収支を取る際に RDOM をトレーサー物質のように扱うことができる。すなわち物質収支計算が非常に簡単となる。

モデル計算において, 霞ヶ浦における RDOM の供給源は河川水, 湖内部生産 (湖水柱生産と底泥溶出) と下水処理水に由来するとした。計算期間は 1997 年 1 月から 1998 年 12 月までの 2 年間とした。この期間の数値解の安定性を高めるために, 実測値に基づいた適当な初期値を使い 1994 ~ 1996 年の期間に予備計算を実施した。河川水由来の RDOM 等のデータとしては 1994 ~ 1995 年と 1998 ~ 1999 年に実施された河川調査データを基に算定し, 底泥溶出由来の RDOM データとしては計算対象期間中に毎月実施された湖心での底泥間隙水データから算出した底泥溶出フラックスを霞ヶ浦全域に適用した。

実験結果から導出したシミュレーションにおける前提条件 (仮定) を以下に記す:

- [1] 植物プランクトン由来のフミン物質は湖水柱では生産されない (セクション 2.2.2 項の (1) 参照);
- [2] 底泥から溶出する DOM はすべて難分解性である (セクション 2.2.2 項の (2) 参照)。

[3] 流入河川水中の懸濁物質からの湖水 RDOM への寄与はない (セクション 2.2.4 項の (1) 参照);

2) モデルの検証

前提条件 [1] と前提条件 [3] は, 湖水柱において, 水柱での内部生産 (植物プランクトン由来) フミン物質と河川水中の懸濁物質に由来するフミン物質の存在は無視できることを示唆している。従って, 難分解性フミン物質については, 湖水柱での生産を考慮する必要がなくなり, 実測値および実測値に基づいた算定値を用いて物質収支を計算できることになる。この考え方に基づいて, 霞ヶ浦における難分解性フミン物質に関するモデル計算値と実測値の比較検討によってモデルの検証を目指した。

図 20 に霞ヶ浦 5 地点 (Sts. 1, 3, 7, 9, 12 [図 11 参照]) で難分解性フミン物質 (RAHS) の実測値と計算結果をプロットしたものを示す。各地点とも, RAHS の計算値と実測値はともに同期した変動を示し, 濃度レベルも多少の高低はあるが, 良好に対応した値となった。高浜入りの 2 地点 (Sts. 1 と 3) では 1998 年に計算値と実測値にかなりの違いが認められたが, その他の地点 (St.7, St.9 [湖心], St.12) では計算値と実測値はとても良好に一致していた。以上の結果から, 本研究で構築した霞ヶ浦湖内 3 次元流動モデルは RAHS や RDOM 等のトレーサー様物質の収支を計算予測するうえで適切なモデルであると結論される。

RAHS に関するモデル計算はとても興味深い結果を示している。湖水は, 河川水 (恋瀬川) St.1 St.3

St.9 (湖心) St.12 および河川水 (桜川) St.7
 St.9 (湖心) St.12 の経路で流れる。最も河川流入地点に近い採水ポイントである St.1 (高浜入り) では RAHS のほとんどは河川水由来であり、底泥溶出由来のものは極めて少ない。Sts.3 と 7 では底泥溶出の寄与が St.1 よりも大きくなり、Sts.9 と 12 では底泥由来の寄与がさらに増大している。すなわち、湖水の流れに沿って底泥から溶出した RAHS が湖水中に徐々に蓄積してゆくことがよくわかる。予想通りに、下水処理場に最も近い採水ポイントである St.7 で下水処理場由来 RAHS の寄与が最も大きく底泥由来 RAHS の寄与に匹敵するほ

どであった。

3) 難分解性 DOM の物質収支・動態のモデル解析 難分解性 DOM のシミュレーション

1997 ~ 1998 年の期間、霞ヶ浦における難分解性 DOM (RDOM) のモデル計算値と実測値 (霞ヶ浦 5 地点, Sts. 1, 3, 7, 9, 12) をプロットしたものを図 21 に表す。RDOM のモデル計算値と実測値は季節的な変動パターンについては比較的一致していたが、RAHS のケースとは異なり、モデル計算結果は実測値に較べてかなり低くなる傾向を示した。特に高浜入りにおける採水ポイント Sts.1 と 3 で違いが大きかった (St.1 と St.3 で各々、2 年間平均で、

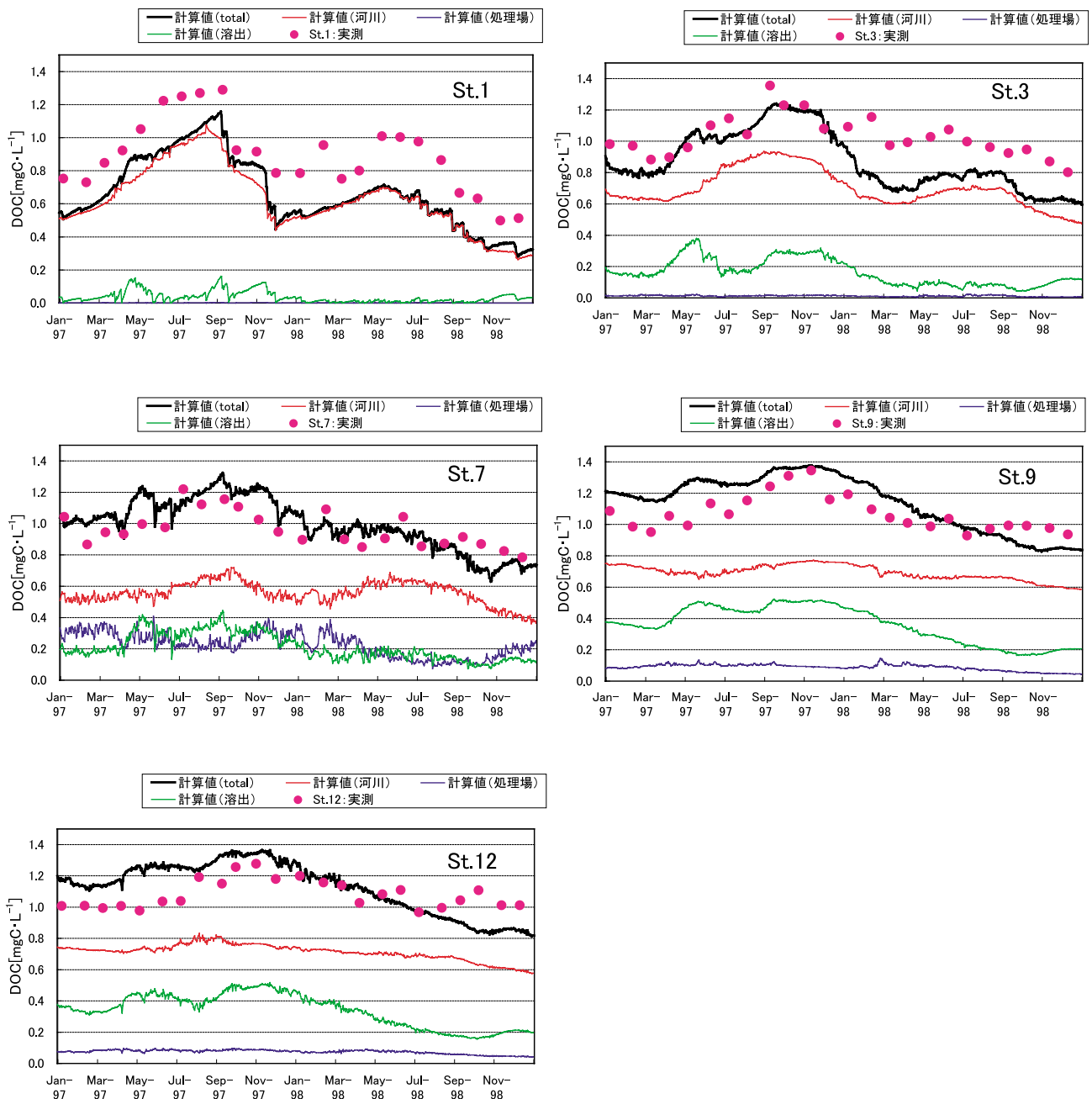


図 20 霞ヶ浦における難分解性フミン物質の実測値とモデル計算結果の比較検討

実測値は計算値の 1.8 倍と 1.5 倍) 誤差が最大となるのは, Sts.1 と 3 とともに 1998 年の 1 月, 2 月で, モデル計算値は実測値の 25 ~ 40 % しか説明できなかった。一方, 土浦入り (St.7) や湖心 (St.9) では比較的計算値と実測値が一致していた。

現在の RDOM の収支モデルでは, 湖水柱における基礎生産 (主に難分解性親水性酸の生産) メカニズムはまだモデル化されていない。RDOM に関するモデル計算値と実測値の違いは, モデルに組み込まれていない湖水柱での RDOM の生産をカウントしていないことが原因の一つと考えられる。RAHS の場合に計算値と実測値で

比較的に良好な一致が認められたことを考えると, モデル計算値が実測値よりも低くなる傾向は, 湖水柱で RDOM として, AHS ではなく, 主に HiA が生産されていることを示唆している。すなわち, この違いは, 湖水柱で植物プランクトンによって生産される RDOM のほとんどは HiA であるとするモデル前提条件および植物プランクトン培養実験の結果とは整合している (セクション 2.2.2 項の(1)参照)。

モデルシミュレーション結果は, 河川水, 下水処理水および底泥溶出に起源をもつ RDOM の霞ヶ浦における動態や拡散特性について興味深い知見を与えている。河

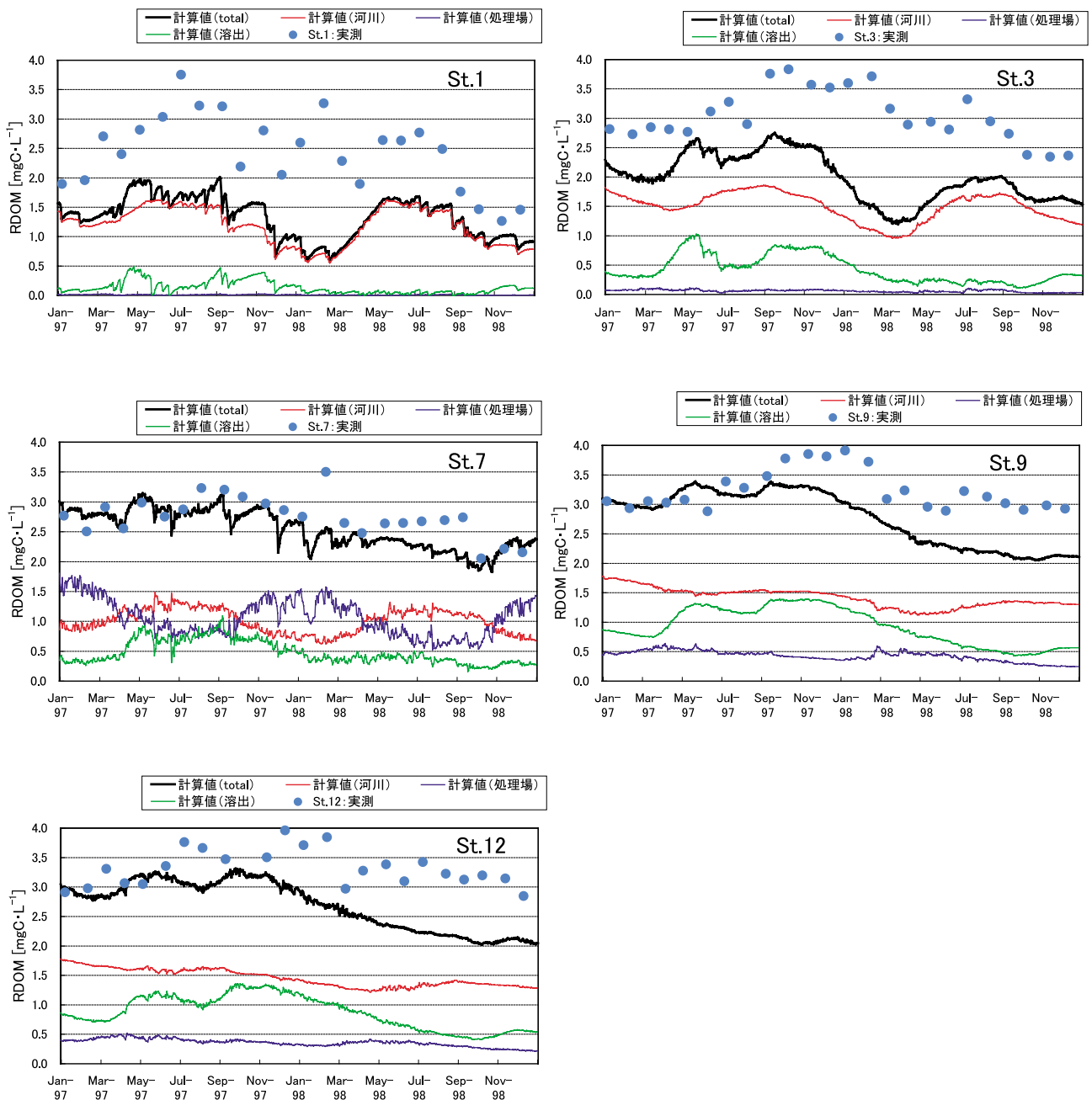


図 21 霞ヶ浦における難分解性 DOM の実測値とモデル計算結果の比較検討

川水由来 RDOM に着目すると、河川流入ポイントである高浜入り (Sts.1 と 3) や土浦入り (St.7) では、河川水由来 RDOM の季節変化、すなわち春季から夏季に高くなり夏季から冬季にかけて低下するパターンが 1997 年、1998 年ともに認められた。一方、湖心 (St.9) では、強い混合拡散のためか、この河川水由来 RDOM の季節変動はとても小さかった。

下水処理水の湖水 RDOM への寄与は土浦入り (St.7) で明白に現れた。下水処理水由来 RDOM には明瞭な季節変化が認められ、その RDOM 濃度は秋から冬に顕著に上昇し、春から秋にかけて減少した。冬季での処理場由来 RDOM の寄与は河川水由来 RDOM をはるかにしのいでいた (約 2 倍)。下水処理水由来 RDOM の季節変化は、土浦入りに流れ込む河川水由来 RDOM (桜川) のそれと全く反対に同期していた。この二つの RDOM 供給源の関係は、下水処理水は年間を通してほぼ一定量放流され、かつ一定 DOM 濃度であるのに対して、河川流量やその DOM 濃度は一般的に冬季において特徴的に低くなることと符号している。一方、湖心 (St.9) では、下水処理水由来 RDOM は、河川水由来 RDOM のケースと同様に、流動による混合拡散のためか、顕著な季節変化を示さず、2 年間の計算期間で漸減する傾向を示した。

底泥溶出に由来する RDOM の濃度は、全ての採水ポイントで 1997 年の春から秋にかけて顕著に高くなり、その後 1998 年には著しく減少する傾向を示した。このトレンドの一因は、湖心で実測された底泥溶出フラックスの値を全域に適用したためかもしれない。湖心では、1997 年の冬季に、底泥由来 RDOM の寄与が河川水由来 RDOM の寄与に匹敵するほど大きい (11 月、河川水由来 $1.52 \text{ mgC} \cdot \text{l}^{-1}$ 、底泥由来 $1.39 \text{ mgC} \cdot \text{l}^{-1}$)、1998 年の冬季には河川水由来の約 40% まで低下した。以上の結果は、霞ヶ浦のような浅い湖では底泥からの RDOM の寄与が無視できない程大きいことを明示している。加えて、底泥溶出フラックスの季節的および経年的な変動は著しいため、そのフラックスを適切に評価することが極めて重要であることを示唆している。

河川水、下水処理水、底泥溶出の寄与

河川水由来難分解性 DOM (RDOM) の霞ヶ浦における水平面および鉛直断面 (高浜入 湖心 湖尻と土浦入り 湖心 湖尻) でのシミュレーション結果 (1998 年) を図 22 に表す。高浜入りと土浦入りともに、冬季 (1

月と 3 月) に、低濃度の河川水由来 RDOM が流れ込み、結果、湖心付近での河川水由来 RDOM 濃度は徐々に低下した。3 月の図では、河川水由来 RDOM があまり混合せずに湖心域に流入していくのがよくわかる。一方、春から夏にかけては、比較的に高濃度の河川水由来 RDOM が入ってきて、湖盆における河川水由来 RDOM 濃度は再び上昇に転じた。前節に指摘したポイントでもあるが、7 月と 9 月の図から、高浜入りの水塊は湖盆の水塊と非常に混合しにくいことが認められた。

下水処理水由来 RDOM の霞ヶ浦における水平面および鉛直断面 (高浜入 湖心 湖尻、土浦入り 湖心 湖尻) でのシミュレーション結果 (1998 年) を図 23 に表す。下水処理場のある土浦入りでは、冬季 (1 月と 3 月) に高濃度の下水処理由来 RDOM が湖心に向かって流出してきた。この時期、下水処理水の水温は湖水よりもかなり高いため、下水処理水は湖表層を滑るように流下すると想定されたが、冬季の風速がとても大きいため鉛直方向に十分混合されていた。春から夏にかけては、河川水量の増大による希釈効果によって、下水処理場由来 RDOM は河川流入ポイントでその濃度が急激に低下した。また全ての水平方向分布図をみると、土浦入りに流入する下水処理水由来 RDOM は高浜入りの水塊にほとんど混じり込まないことがわかる。

霞ヶ浦における難分解性 DOM の物質収支

難分解性 DOM (RDOM) の実測値とモデル計算値の差を湖水柱での RDOM 生産とみなして、霞ヶ浦 5 地点において物質収支を算定した。図 24 は、1997 ~ 1998 年における、湖水 RDOM に対する各供給源からの寄与を月平均値として表したものである。湖心 (St.9) における河川水、下水処理水、底泥溶出および湖水柱生産の寄与は、それぞれ 44%、14%、28%、15% であった。河川水由来 RDOM の寄与は予想以上に低く、下水処理水由来と底泥溶出由来の割合が大きかった。高浜入り (Sts.1 と 3) では、湖水柱生産由来の大きさと処理水由来の低さが特徴的であった。一方、土浦入りでは予想に違わず下水処理場由来 RDOM の寄与が特異的に大きかった (39%)。

霞ヶ浦の場合、流域下水処理場は湖に隣接しており、その処理水は湖に直接放流されている。この処理場の年間放流量は約 $67,000 \text{ m}^3 \cdot \text{day}^{-1}$ (平成 10 年) で、河川流量が最小となる冬季では全河川流量の約 6% に相当する。下水処理水中の RDOM 濃度は一般に河川水中のそ

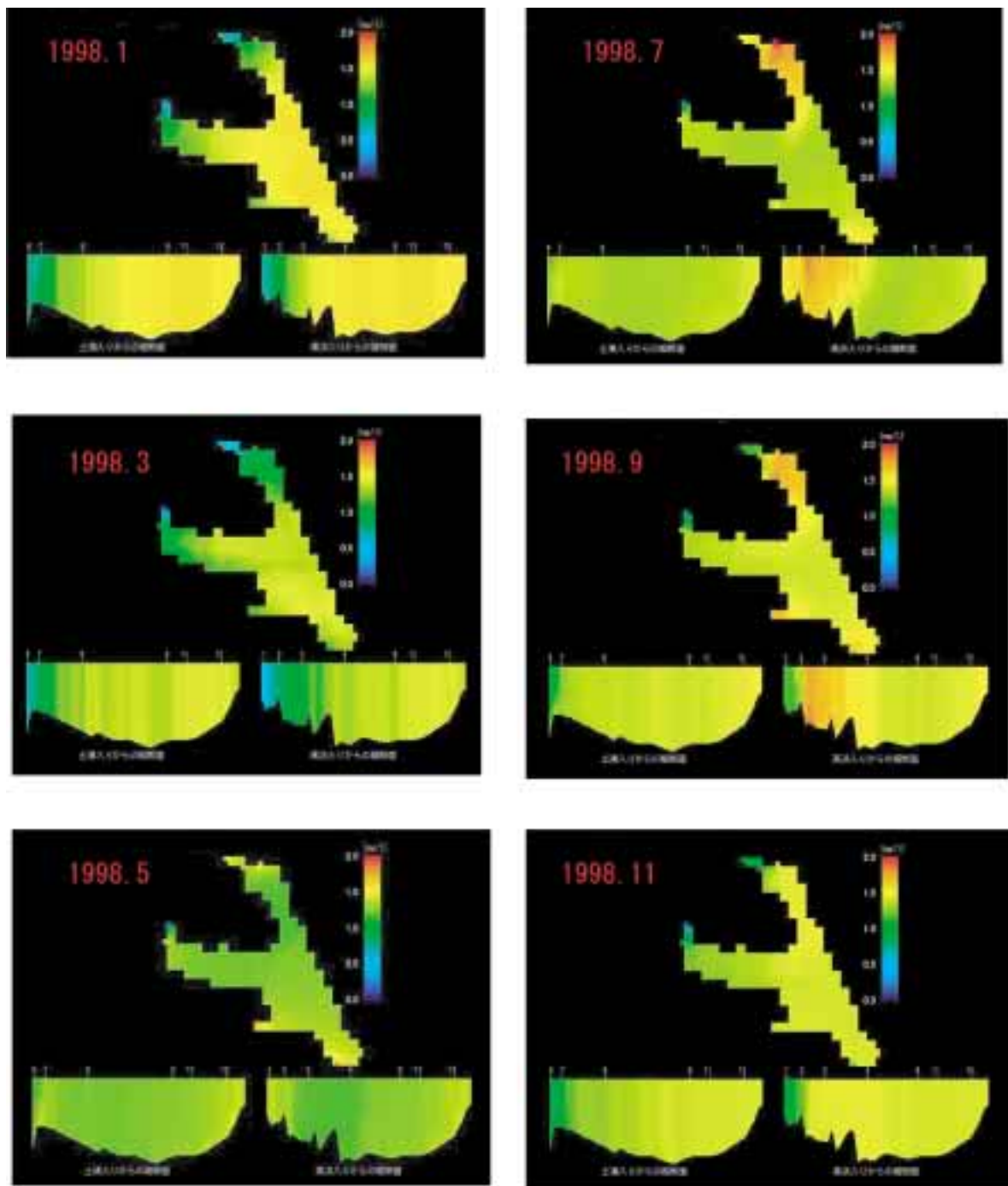


図 22 河川水由来の難分解性 DOM の湖内における挙動のシミュレーション結果
 上図は水平表層でのシミュレーション。下図左は土浦入り 湖心 湖尻における鉛直断面でのシミュレーション；
 下図右は高浜入り 湖心 湖尻における鉛直断面でのシミュレーション。

れよりも高いため、下水処理水の湖水 RDOM への寄与は 6%をはるかに越えると推測されていた。従って、本研究で得られた計算値 15% (8.7 ~ 19.8%) はとてもリーズナブルな値と言える。同時に、St.7 で下水処理水由来 RDOM の存在比が著しく高い (38.4%) ことも、この採水ポイントでは主に桜川のみによる希釈効果しか期待できないことを考えると合点がいく。

2.2 湖水溶存有機物 (DOM) の特性・起源と機能・影響の評価に関する研究

2.2.1 湖水 DOM の藻類の増殖・種組成に及ぼす影響 (1) DOM は植物プランクトンの増殖や種組成に関係するのか？

湖沼において藍藻類が水の華を形成し優占する要因として、窒素、リンの他に、鉄の利用性が重要な因子であると認識されつつある。藍藻類は、光合成、窒素固定、

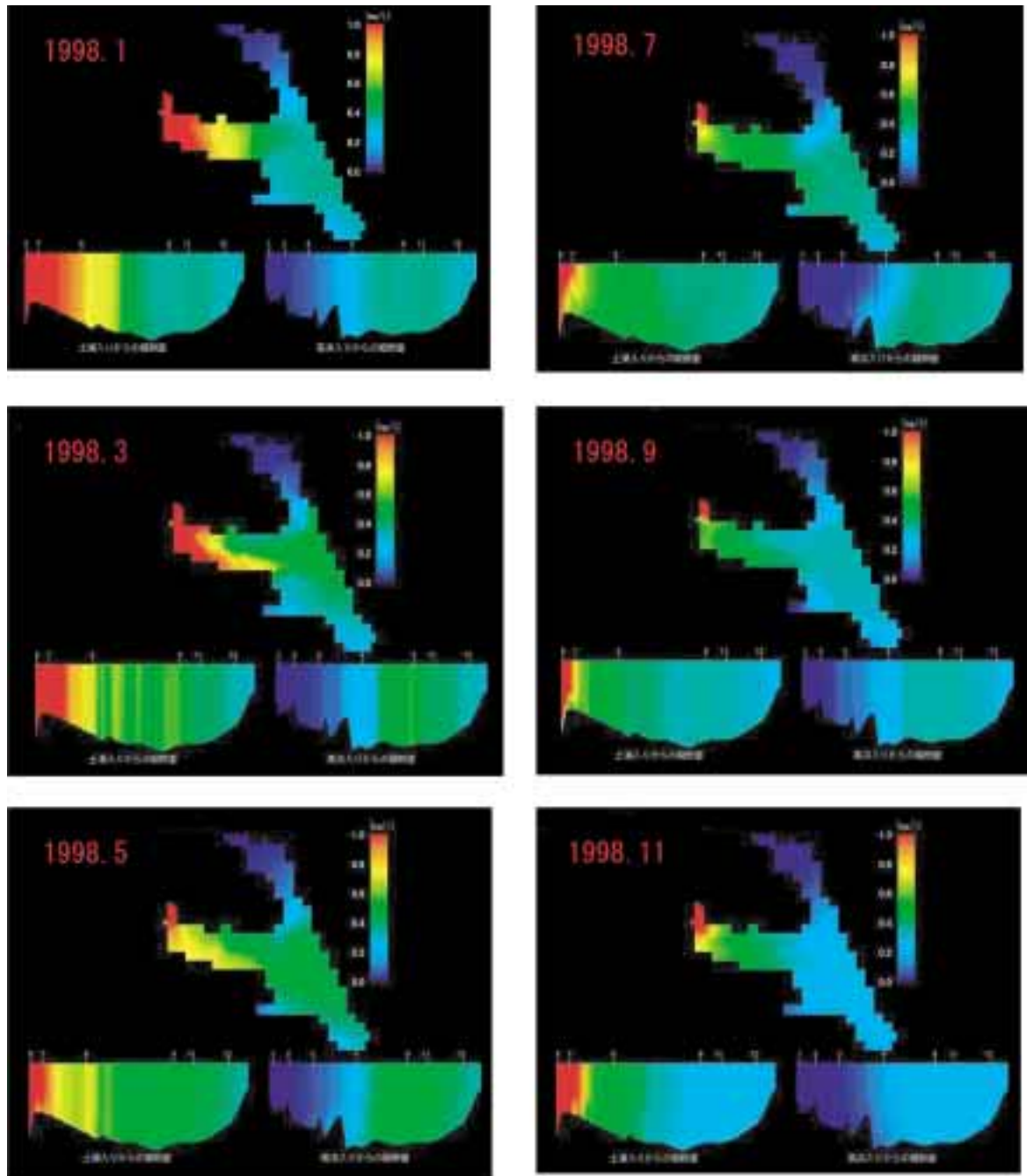


図 23 下水処理水由来の難分解性 DOM の湖内における挙動のシミュレーション結果
 上図は水平表層でのシミュレーション。下図左は土浦入り 湖心 湖尻における鉛直断面でのシミュレーション；
 下図右は高浜入り 湖心 湖尻における鉛直断面でのシミュレーション。

亜硝酸および硝酸還元，クロロフィル合成等の生理機能を維持するために鉄を必須とし，その要求量は他の植物プランクトン種に比較して大きい。鉄は自然界で 4 番目に豊富に存在する元素ではあるが，天然水中で溶存酸素が十分にある条件ではその溶解度 ($\text{Fe}(\text{OH})_{(s)}$ 沈殿) が非常に低い。すなわち，鉄の生物学的利用性は極めて低い。

植物プランクトンに利用される鉄 ($\text{Fe}(\text{III})$) はフリーイオン (水和イオン，あるいはアコイオン， Fe^{3+}) で

あると報告されてきた。しかし，最近の研究では， Fe^{3+} だけではなく，加水分解種 (hydrolyzed $\text{Fe}(\text{III})$) である FeOH^{2+} ， $\text{Fe}(\text{OH})_2^+$ ， $\text{Fe}(\text{OH})_3$ や $\text{Fe}(\text{OH})_4^-$ も生物利用可能と認識されている。

湖水等の天然水中には鉄と錯化する有機リガンドが存在する。その代表的なものは，本研究において DOM 分離の参照物質として選択したフミン物質 (フミン酸とフルボ酸) である。フミン物質は金属イオンと安定した錯体を形成し，一般的に鉄との錯化能 (安定度定数，stability

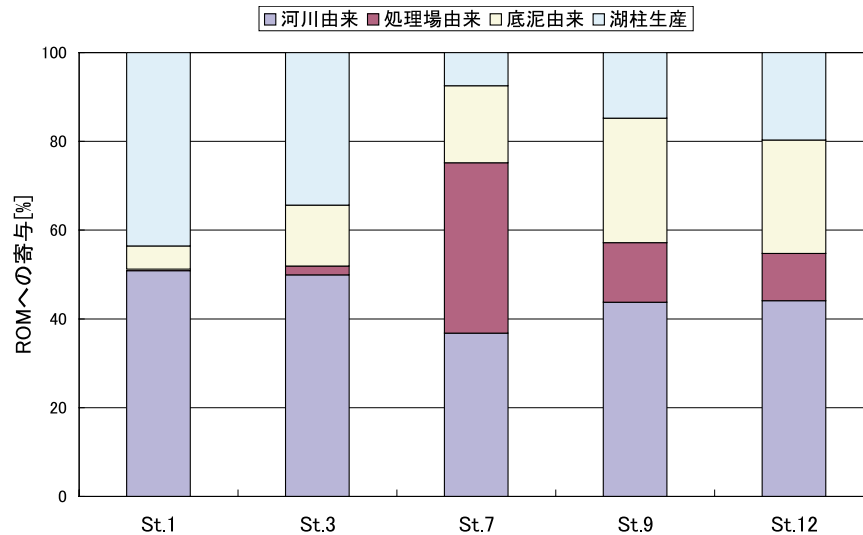


図 24 霞ヶ浦における難分解性 DOM (ROM) 物質収支 (1997 ~ 1998 年)

ty constant) は大きいと報告されている。フミン物質の存在は、鉄との金属錯体反応を介して、植物プランクトンの増殖に大きな影響を及ぼすと理解されている(図 25)。

我々は、以前、霞ヶ浦から抽出・精製したフミン物質(フルボ酸)を化学的に明白に定義された培地に添加して、アオコを形成する典型的な藍藻類である *Microcystis aeruginosa* の培養実験を行った。結果として、霞ヶ浦湖水中のフミン物質に匹敵する濃度レベルでも、*M.aeruginosa* の増殖は著しく抑制され増殖はほとんど認められなかった。フミン物質と鉄の錯化反応による生物利用可能鉄濃度の低下のために *M.aeruginosa* の増殖が抑制されたと考察された。霞ヶ浦の環境条件を入力して行った化学平衡計算によって、霞ヶ浦において *M.aeruginosa* は過酷な鉄制限状態にあると推察された。この推察は、1987 年以来、霞ヶ浦では *Microcystis* 属が優占種でなくなった事実と符合していた。

上記の考察は室内培養実験と化学平衡プログラム(MINEQL)を駆使して展開したもので、実際に湖水中の鉄の存在形態が分析・定量された訳ではない。この推察、すなわち、霞ヶ浦では生物利用可能鉄の濃度が非常に低いという仮説を実測データで検証する必要がある。ところが湖水や河川水において鉄の存在形態を定量したとする報告例はいまだなされていない。陸水中の鉄の存在形態を分析・定量する手法の開発が強く求められている。

(2) 溶存鉄とその存在形態の分析手法の開発

湖水中の溶存鉄濃度に関しては幾つかの研究報告があ

るが、一般に、前濃縮操作なしに天然湖沼における溶存鉄濃度を測定することは大変難しい。従来の分析法(原子吸光度法等)よりも感度の高い手法の開発が必要である。さらに、鉄の存在形態や生物利用可能な鉄の濃度を定量しなければならない。

海洋研究分野において、最近、濃縮吸着ボルタンメトリー(cathodic stripping voltammetry, CSV)という分析手法によって、海水中のサブ nM レベルの溶存鉄濃度が分析され、さらにその存在形態も決定された。この手法は、特性が既知のリガンド(配位子)を添加して、金属イオンとリガンドの錯体を吊り下げ水銀滴に特異的に吸着・濃縮させ、掃引電流ストリッピングによって吸着された金属イオンを定量する原理に基づいている。この電気化学的分析手法の利点は、nM レンジの溶存鉄を前濃縮操作なしに分析できることと、NN(1-nitroso-2-naphthol)のようなリガンドを用いて競合リガンド平衡化操作を加えることによって鉄の存在形態も決定できることである。

本研究において、我々は、湖沼等の陸水中における溶存鉄濃度とその存在形態を定量するために、NNを用いた海水対象に開発された CSV 法を適切に修正して、陸水対応の CSV 法を開発・確立した。溶存鉄濃度測定については、まず、サンプルをろ過(0.2 μm メンブレンフィルター)し、分析を妨害するサンプル中の溶存有機リガンドを除去するために低圧水銀ランプによる UV 照射処理を行った。次に UV 処理サンプルを Milli-Q 水で 10 倍希釈し、NN 添加、pH およびイオン強度等を調整した後に CSV 法により標準添加法(methods of addition)によって定量した(図 26)。鉄の存在形態については、

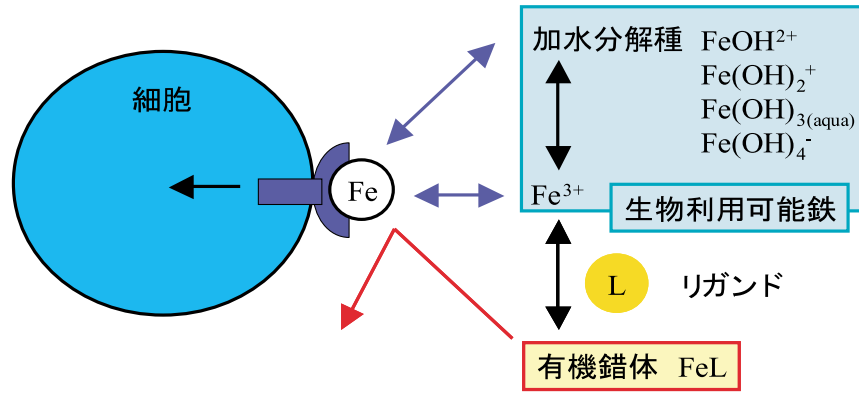


図 25 湖水における溶存鉄の存在形態と生物利用性についての概念図

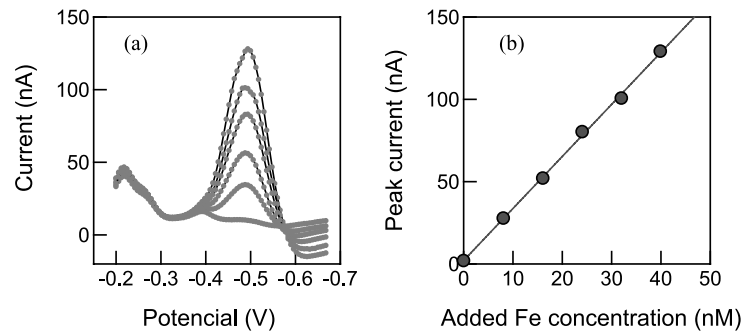


図 26 吸着濃縮ボルタンメトリー (CSV) 法による溶存鉄分析
(a) ボルタモグラム, (b) ピーク電流と鉄濃度の関係。

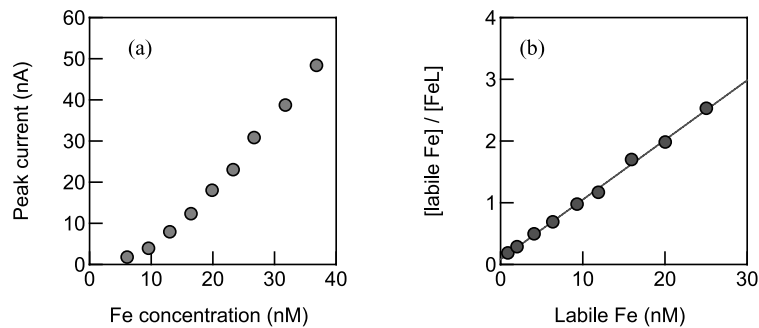
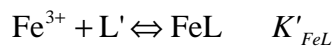


図 27 鉄錯化反応における条件安定度定数と錯化容量の決定
(a) Fe 滴定カーブ, (b) 線形化 (ラングミュア) プロット。

ろ過サンプルを Milli-Q 水で 10 倍に希釈した後に NN を添加し、pH およびイオン強度等の調整の後に、鉄 (Fe (III)) を段階的に添加し、一晚平衡化した後に CSV 法によって分析して、得られたデータをラングミュアプロットにより解析して条件安定度定数と錯化容量を決定した (図 27)。



$$K'_{\text{FeL}} = \frac{[\text{FeL}]}{[\text{Fe}^{3+}][\text{L}']}$$

$$C_L = [\text{FeL}] + [\text{L}']$$

ここで、L' : サンプル中のリガンド [M]; FeL : Fe (III) 有機リガンド錯体 [M]; K'_{FeL} : 条件安定度定数 [M^{-1}]; C_L : 錯化容量 [M]

1) 溶存鉄濃度測定

CSV 法による溶存鉄濃度の検出限界は 1.8 nM であった。我々の開発した分析法の精確性 (accuracy) を検証するために、日本分析学会の認証した標準河川水 (溶存鉄濃度 123.5 ± 9.0 nM JAC 0031, 1020.6 ± 35.8 nM JAC 0032) を適切に Milli-Q 水で希釈した後に CSV 法で定量し、その測定値と標準河川水の認証濃度に対して統計的な検定 (t-test) を実施したところ有意な差はなかった。

従って、CSV法の溶存鉄濃度測定に係る精確性が検証されたと言える。

霞ヶ浦湖心の溶存鉄濃度（0.2- μm メンブレンフィルター過）はCSV法による分析では40 nM程度であった。この湖心サンプル中の溶存鉄濃度を、一般的な測定法であるフレイムレス原子吸光度法やICP発光法（inductively coupled plasma emission spectroscopy [ICPおよびICP-MS]）によって定量を試みたが、やはり両分析法ともに検出限界以下で定量することができなかった。従って、我々の開発・確立したCSV法は、陸水中の溶存鉄濃度分析に非常に有効な分析法と言える。

2) 霞ヶ浦湖水中の溶存鉄の存在形態分析

2002年の4月と7月に霞ヶ浦4地点で採取した湖水中の溶存鉄濃度およびその存在形態の分析結果を表1に示す。溶存鉄濃度および錯化容量は河川流入ポイントから湖心に向かって減少する傾向が認められた。この溶存鉄の地点別、流れ方向での変動は既存報告と一致していた。鉄と溶存有機物の錯化に係る条件安定度定数や生物利用可能鉄濃度（[Fe']）については、地点による特徴的な差は認められなかった。鉄と溶存有機物の錯化に係る条件安定度定数 K_{FeL} (10^{25} - 10^{26} M^{-1}) は非常に大きく、海洋研究で報告されている定数値よりも数オーダー (10^{19} - 10^{23} M^{-1}) 高かった。CSV法によって決定した条件安定度定数は、以前実施した *Microcystis aeruginosa* の培養実験と化学平衡プログラム（MINEQL）から推定したフミン物質（霞ヶ浦のフルボ酸）と鉄との錯化に対する条件安定度定数 (K_{FeL}) $> 10^{25} \text{ M}^{-1}$ の値と整合していた。全てのサンプル採取地点において、溶存鉄の99.9%以上が有機錯体としてDOMに結合した状態で存在していることが明らかとなった。このため、結果として、[Fe'] は非常に低くなった（約 10^{-13} M ）。

霞ヶ浦における生物利用可能鉄濃度 [Fe'] の低さは注目に値する。霞ヶ浦湖水の [Fe'] は、植物プランクトンが鉄制限状態にあると報告されている外洋（HNLC: high nutrients and low Chlorophyll a）における生物利用可能鉄濃度にほぼ匹敵するものであった。霞ヶ浦の溶存鉄濃度は外洋のそれよりも10 ~ 100倍高いが、DOMの鉄に対する錯化能の強さ（条件安定度定数と錯化容量）のため、[Fe'] は外洋のそれと同じ程度に低くなり、結果として、霞ヶ浦のような富栄養湖でも外洋と同様に鉄制限状態となり生物利用可能な鉄の対する植物プランクトンの競合が起きていると想定される。以前の研究で、*M. aeruginosa* は [Fe'] が $10^{-12.9} \text{ M}$ で増殖可能であるが、[Fe'] $10^{-13.9} \text{ M}$ では増殖できなかったと報告されている。本研究で得られた [Fe'] $10^{-12.6} \text{ M}$ - $10^{-13.6} \text{ M}$ は *M. aeruginosa* が増殖可能か否かのボーダーラインに位置している。この鉄の存在形態分析で得られた結果は、以前我々の実施した室内培養実験と化学平衡プログラム計算より導出した仮説「霞ヶ浦における *Microcystis* 属から *Oscillatoria* 属への優占種の遷移は鉄制限によって引き起こされた」を支持している。

(3) *Microcystis* 属の増殖と鉄の存在形態の関係

前節で霞ヶ浦はアオコを形成する代表的な藍藻類 *Microcystis* 属にとって過酷な鉄制限状態にあることが強く示唆された。この結果を踏まえて、実際のフィールドにおける鉄の存在形態と藍藻類の増殖を制限している要因との関係を検討するために、*Microcystis* の存在が観察された用水路のサンプルを採取して、鉄の存在形態分析と *Microcystis* の増殖能（algal growth potential, AGP）試験を実施した。過去に、天然サンプルに対して鉄の存在形態分析と藻類の増殖能試験を同時に実施したとする研究報告はなされていない。

表1 霞ヶ浦における溶存鉄濃度および存在形態の分析結果

		DFe [nM]	L [nM]	$\log K_{FeL}$	$\log \text{Fe}'$	%Organic
4月	St. 1	73.8 ± 1.8	89.8 ± 19.8	26.2 ± 0.2	13.3	> 99.9
	St. 3	46.7 ± 3.7	92.8 ± 5.5	25.6 ± 0.3	13.3	> 99.9
	St. 7	75.4 ± 6.7	120.7 ± 31.9	25.1 ± 0.3	12.6	> 99.9
	St. 9	34.7 ± 5.2	68.2 ± 17.9	25.7 ± 0.1	13.4	> 99.9
7月	St. 1	127.2 ± 8.9	143.1 ± 17.0	25.8 ± 0.4	12.8	> 99.9
	St. 3	71.7 ± 5.3	101.0 ± 21.0	25.5 ± 0.6	12.9	> 99.9
	St. 7	61.2 ± 9.3	90.8 ± 16.6	26.1 ± 0.6	13.6	> 99.9
	St. 9	43.9 ± 4.5	63.4 ± 20.0	25.8 ± 0.8	12.9	> 99.9

DFe：溶存鉄濃度，L：鉄とDOMの錯化容量， K_{FeL} ：鉄とDOMの錯化に係る条件安定度定数 [M^{-1}]，Fe'：無機態（生物利用可能）鉄濃度，%Organic：有機態鉄の割合

我々は毎年 *Microcystis* によるアオコが発生する霞ヶ浦に注ぐ用水路を見つけた（図 28）。この用水路（農業用排水路）では流れがほとんどなく、アオコの発生量は霞ヶ浦に向かって連続的に減少している。例えば、霞ヶ浦流入口である St.1 では、目視で、アオコ発生はなく、St.2（St.1 の数百 m 上流地点）ではアオコはコロニー状（粒状）で存在し、St.3（St.2 の数百 m 上流地点）ではアオコがマット状で優占していた。このアオコ発生量に傾斜のある用水路サンプルを採取して、ろ過後に、溶存鉄とその存在形態分析と *Microcystis aeruginosa* の制限物質を評価するための AGP 試験を実施した。

用水路サンプルの分析結果を表 2 に示す。*Microcystis* のセル数、栄養塩である窒素、リンおよび溶存鉄の濃度は St.1 から St.3 にかけて上昇していた。溶存鉄の大部分は有機態として存在していた（75.3 ~ 99.9 %）。アオコが発生していない St.1 での生物利用可能鉄濃度は非常に低く *Microcystis aeruginosa* が増殖できないと報告されている濃度に近い。一方、アオコが発現している St.2 と 3 では St.1 よりも生物利用可能鉄濃度はとても高かった。溶存鉄濃度は St.3 の方が St.2 よりも約 2 倍高かったが、生物利用可能鉄濃度は反対に St.2 の方が

St.3 よりも高い値を示した。

Microcystis aeruginosa を用いた AGP 試験の結果を図 29 に表す。St.1 では *M. aeruginosa* にとって窒素が第一の制限物質で、次に鉄が制限物質であった。アオコがコロニー状で存在する St.2 では窒素、アオコがマット状に存在する St.3 では鉄が増殖制限物質であった。溶存鉄濃度レベルをみると、St.3 での濃度は St.1 の約 10 倍、St.2 の約 2 倍も存在していた。つまり、溶存鉄濃度からだけでは St.3 における鉄による増殖制限状態を説明することができない。しかし、CSV 法で求めた生物利用可能鉄濃度のトレンドは AGP 試験の結果と整合した（表 2 参照）。つまり、St.2 で窒素制限、St.3 で鉄が増殖制限に変化したことは、生物利用可能鉄濃度が St.3 で St.2 の約 1/3 位に低くなったことによって説明できる。従って、実際に *Microcystis* によるアオコが発生しているフィールドでの分析・実験結果によって、アオコを形成する代表的な藍藻 *Microcystis aeruginosa* の増殖・優占には、窒素、リン、溶存鉄濃度のみならず、鉄の存在形態がとても重要な因子であると結論される。生物利用可能鉄の十分な供給がアオコ発生には必要である。



図 28 霞ヶ浦に注ぐ用水路の位置および採水ポイント
St.1 : アオコ無し, St.2 : アオコがコロニー状で存在, St.3 : アオコがマット状で存在。

表 2 用水路サンプルの分析結果

		St.1	St.2	St.3
<i>Microcystis</i>	cells·ml ⁻¹	1.2 × 10 ⁴	7.3 × 10 ⁴	2.8 × 10 ⁵
NO ₃ -N	μgN·l ⁻¹	185	1,440	2,600
NO ₂ -N	μgN·l ⁻¹	12	16	12
NH ₄ -N	μgN·l ⁻¹	7	6	4
PO ₄ -P	μgP·l ⁻¹	23	116	266
DFe	nM	236	1,330	2,640
Ligand	nM	307	986	2,520
log K _{FeL}		25.9	26.0	25.5
% Organic		> 99.9	74.3	95.4
Fe'	M	8.2 × 10 ⁻¹⁴	3.4 × 10 ⁻⁷	1.2 × 10 ⁻⁷

DFe : 全溶存鉄濃度, Ligand : 鉄錯化に係る錯化容量, K_{FeL} : 鉄錯化に対する条件安定度定数 [M⁻¹], %Organic : 有機態鉄の割合, Fe' : 無機態鉄 (生物利用可能鉄) 濃度

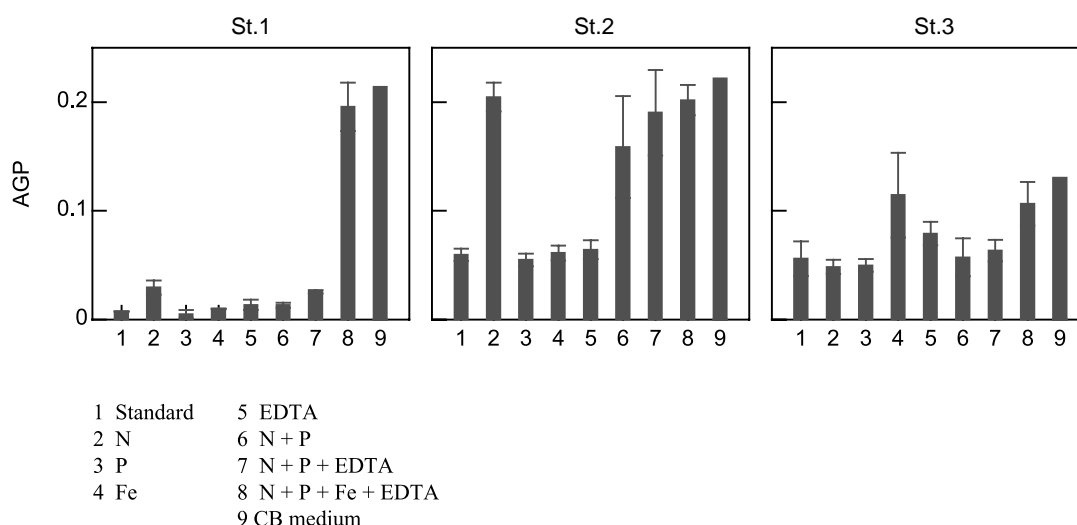


図 29 *Microcystis aeruginosa* を用いた藻類増殖能 (AGP) 試験結果

Standard:無添加, N : 窒素添加, P : リン添加, Fe : 鉄添加, EDTA : エチレンジアミン四酢酸, CB medium : *Microcystis* 培養用の一般的培地。

2.2.2 内部生産 DOM 量の算定

湖沼で内部生産 (湖の中で生産) される溶存有機物 (DOM) の主要な供給源は、(i) 湖水柱での植物プランクトン由来の DOM と (ii) 湖沼底泥から溶出される DOM と考えられる。この二つの供給源に由来する DOM の特性について検討した。植物プランクトン由来 DOM の湖水 DOM への寄与は定量化にいたらなかったが、底泥由来 DOM の寄与については定量的に評価することができた。

(1) 植物プランクトン由来 DOM

1) 植物プランクトン由来 DOM とはどのようなもの?

植物プランクトンは無機炭素を光合成によって固定し

たもののかなりの部分を細胞外に DOM として排出する。この植物プランクトン由来の DOM は湖内部生産 DOM の重要な供給源と位置づけられる。湖水の滞留時間の長い大きな湖や植物プランクトンの大量発生 (アオコ, 水の華形成) している湖では、植物プランクトン由来の DOM が湖水 DOM の大半を占めると言われている。

植物プランクトンから排出される DOM の大部分は多糖類と言われている。排出量は増殖状態に関係しており、対数増殖期よりも定常期や死滅期で大量の DOM が放出される。植物プランクトン由来 DOM は易分解性が高く、バクテリア等の微生物に速やかに利用され、そのほとんどが消失すると推測されている。しかし、植物プランクトン由来 DOM のどの程度が分解されるのか、残存する難分解性 DOM がどのような特性であるのか、について

はほとんど知られていない。

2) 植物プランクトン由来の難分解性 DOM の特性

植物プランクトン由来の難分解性 DOM の特性を評価するために、霞ヶ浦から分離された典型的な藍藻類 *Microcystis aeruginosa*, *Anabaena flos-aquae*, *Oscillatoria* (*Planktothrix*) *agardhii* と緑藻 (*Scenedesmus acuminatus*) を、溶存有機炭素 (DOC) 濃度を低く抑えた培地で、25℃、約 3000 ルクス連続照射条件で、無菌的に培養を行い、定常期および死滅期に培地サンプルを採取しその後 DOM 分画手法を適用した。

藍藻類 *M.aeruginosa*, *A.flos-aquae*, *O.agardhii* や緑藻 *S.acuminatus* の排出する DOM のほとんどは親水性 DOM (親水性酸 [HiA], 塩基物質 [BaS], 親水性中性物質 [HiN]) であった (図 30)。排出される DOM の量と質は植物プランクトンの種によって異なっていた。定常期・死滅期における DOM 濃度 (DOC として) は *M.aeruginosa* (44.9 mgC・l⁻¹), *A.flos-aquae* (38.3 mgC・l⁻¹), *S. acuminatus* (15.5 mgC・l⁻¹), *O.agardhii* (8.6 mgC・l⁻¹) の順に低くなった。*M.aeruginosa* の培地では HiA と HiN が、*A.flos-aquae* では HiA, *O.agardhii* では BaS が卓越していた。緑藻 *S.acuminatus* では、*M.aeruginosa* と同様に、HiA と HiN が卓越していた。全ての植物プランクトン種において、フミン物質 (AHS) の存在比はとても低いものであった (4 ~ 15%)。

植物プランクトンによって定常期・死滅期に生産される DOM の分解率 (100 日間生分解) も藻類種によって異なっていた。*O.agardhii* が生産する DOM の分解率は 90% 以上、*S.acuminatus* の生産する DOM は約 90%、一方 *M.aeruginosa* や *A.flos-aquae* の生産する DOM は分解しづらく、その分解率は約 50% に止まった。植物プランクトン由来の難分解性 DOM (RDOM) の分画分布、生分解試験を経て、かなり似通ったものに近づいた (図 31)。RDOM としては全ての藻類において HiA が卓越していた。特に DOM 排出量が大きくかつ分解率が低い *M.aeruginosa* や *A.flos-aquae* 由来の RDOM では HiA が圧倒的に卓越した。*O.agardhii* や *S.acuminatus* 由来の RDOM では AHS の割合が比較的高かったが (約 20%)、排出 DOM 量はとても少なくかつその分解率は極めて高かった。従って、以上の結果から、植物プランクトン由来の難分解性 AHS (RAHS) は霞ヶ浦湖水の水柱ではほとんど生成されないと示唆される。

(2) 底泥由来の溶存有機物 (DOM)

1) 底泥から溶出する有機物量の認識は?

湖沼における内部生産 DOM として底泥から溶出される DOM はとても重要である。例えば、霞ヶ浦の場合、COD の底泥溶出負荷は COD の全体負荷の 56.0% に相当すると算定されている (平成 12 年)。流域から流入する

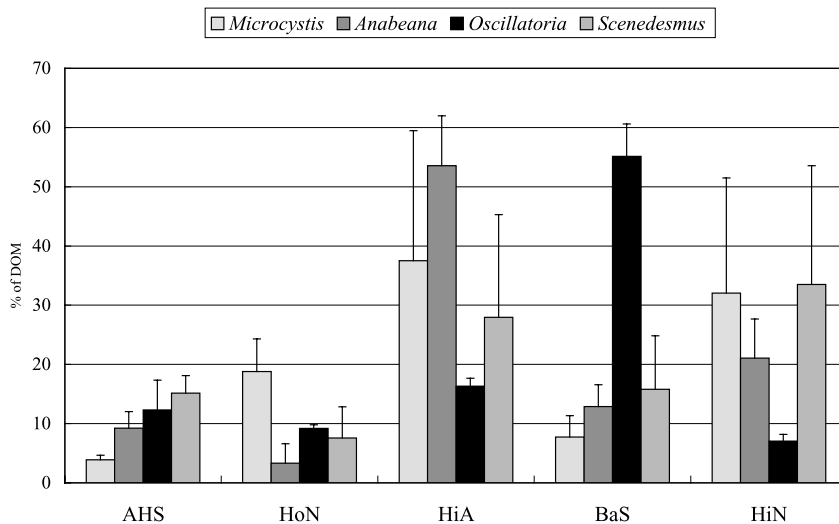


図 30 藻類由来の溶存有機物 (DOM) の分画分布
Microcystis : *Microcystis aeruginosa*, *Anabaena* : *Anabaena flos-aquae*, *Oscillatoria* : *Oscillatoria* (新名 *Planktothrix*) *agardhii*, *Scenedesmus* : *Scenedesmus acuminatus*, AHS : フミン物質, HoN : 疎水性中性物質, HiA : 親水性酸, BaS : 塩基物質, HiN : 親水性中性物質。

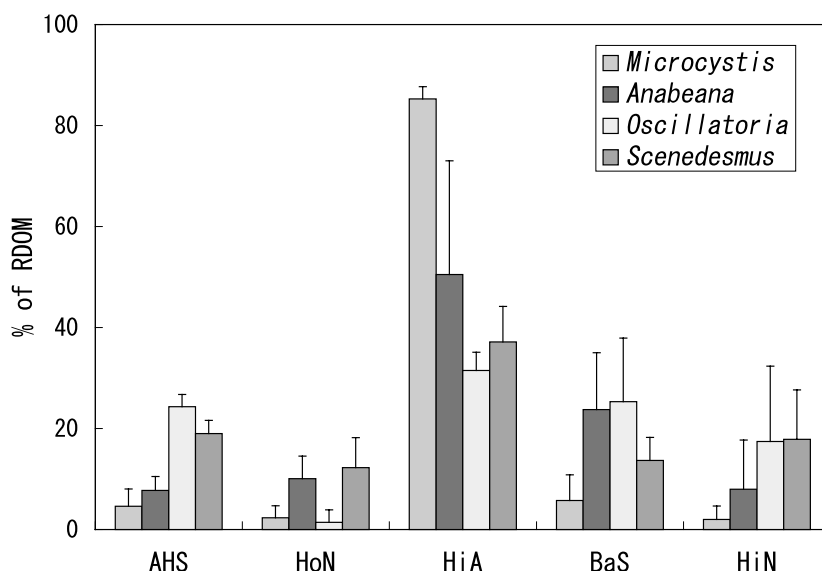


図 31 藻類由来の難分解性 DOM (RDOM) の分画分布

Microcystis : *Microcystis aeruginosa*, *Anabeana* : *Anabeana flos-aquae*, *Oscillatoria* : *Oscillatoria* (新名 *Planktothrix*) *agardhii*, *Scenedesmus* : *Scenedesmus acuminatus*. AHS : フミン物質, HoN : 疎水性中性物質, HiA : 親水性酸, BaS : 塩基物質, HiN : 親水性中性物質。

COD 負荷量が全体負荷量の 34.1 %であることを考えると、霞ヶ浦では底泥からの溶出がいかに重要であるかがよくわかる。底泥溶出の全体負荷量への寄与率は、COD のほうが全窒素 (33.7 %) よりも大きく全リン (55.6 %) とほぼ同じである。

このように底泥溶出はとても重要なはずなのであるが、実際に底泥からの COD 溶出を測定したとする報告はとても少ない。また報告されているデータについても解析が困難なものが多い。この理由は、底泥からの COD 溶出量を算定する場合に、COD 独特の問題に直面することによる。COD 測定の対象物質は有機物であるが、実際には過マンガン酸カリウムによって酸化されるものである。つまり、底泥から有機物以外にも還元性金属イオン等が溶出してくると、有機物と還元性金属の両方が COD として測定されることになる。この場合、算定される COD 溶出量の値は、その意味合いが非常に不明瞭のものになってしまう。

まとめれば、底泥由来有機物の寄与は COD を指標として報告されているが、その値はかなり不確かなものであり、COD 以外の信頼できる有機物パラメータ、すなわち TOC を使って、定量的に評価する必要があると言える。

2) 底泥 DOM 溶出量の算定方法

底泥からの溶出量を算定するのに幾つかの方法が報告されている。例えば、現場で溶出チャンバーを設置して

溶出量を測定する方法 (*in-situ* benthic chambers), 底泥コアサンプルを恒温槽内に設置して溶出実験を実施する方法 (on-deck whole-core incubation), 底泥コアを深さ方向に切った後、各断片の間隙水を採取する方法 (slicing and Centrifugation), 透析膜を付けたサンプル採取装置 (peeper) を底泥中に深さ方向に設置して間隙水を採取する方法 (peeping), あるいは先端にテフロンフィルターが付いているチューブを底泥中に深さ方向に設置して、シリンジによる引圧で関係水を採取する方法 (sipping)。上記の方法は溶出量を直接的に求める方法と間接的に求める方法に大別できる。どの方法がベストかについて色々議論がなされてきたが、最近になって、Holcome らの研究により、いずれの方法でも適切に行えばほぼ同じ溶出フラックス値が得られることが明らかとなった。

本研究では、霞ヶ浦における DOM モデル計算に底泥フラックスを組み入れるために、底泥間隙水の鉛直プロフィールから底泥溶出量を算定するアプローチ (slicing and Centrifugation) を選択した。毎月 1 回、霞ヶ浦湖心においてコアサンプラーによって底泥コアを採取し、N₂ ガス雰囲気中でコアを深さ方向に切り、遠心分離によって間隙水を採取した。算定式を以下に表す。

$$J = -\phi D_{SED} \left[\frac{\Delta DOM}{\Delta x} \right]$$

$$D_{SED} = \phi^2 D_0$$

$$D_0 (\text{cm}^2 \text{day}^{-1}) = 3.30 \sqrt[3]{\frac{1}{MW}}$$

ここで ϕ : 底泥深さ 1 cm でのポロシティ (間隙率に対応, 過去のデータから 0.96), D_{SED} : 底泥拡散係数, D_0 : 分子拡散係数, $\Delta DOM / \Delta x$: 湖水 - 底泥界面での DOM (DOC として) 濃度の傾き (鉛直方向 DOC プロファイルから 2 次多項式によるフィッティングにより算出), MW : 分子量 (実測値に基づいて約 1000 dalton とした)。

3) 間隙水 DOM の鉛直方向プロファイルと底泥 DOM 溶出量

間隙水 DOM 濃度の鉛直プロファイルは経年的にも季節的にも著しく変動することが明らかとなった。霞ヶ浦湖心 (St.9) における 1997 ~ 2000 年での底泥間隙水の DOM 濃度の深さ方向プロファイルを図 32 に表す。間

隙水 DOM 濃度は, 1997 年にとても高く, 1998 年に減少し, 1999 年には多少増大し, 2000 年にとても低下するというように経年的に大きく変化した。

間隙水 DOM の 1997 年における鉛直濃度プロファイルは極めて特徴的であった。間隙水 DOM 濃度は底泥全層にわたり季節変化が大きく, 冬季にはとても低い値を示した。間隙水 DOM 濃度は 5 月に急激に上昇し底泥全層で $20 \text{ mgC} \cdot \text{L}^{-1}$ を越えて年間最大値を示した。間隙水 DOM は夏季にも上昇し, 9 月には底泥上層の DOM 濃度が下層よりも高くなるという逆転現象が観察された。夏季には底泥上層部で DOM が活発に生産されていると考えられる。

1997 年とは反対に, 1998 年には顕著な季節的变化は認められなかった。間隙水 DOM は底泥下層から上層に低減する傾向を示し, 冬季 (1 月, 2 月, 12 月) には DOM が底泥最下層で蓄積した。1999 年は, 1997 年の場合と同様に, 春季 (5 月と 6 月) に間隙水 DOM 濃度が上昇した。特に 5 月には鉛直濃度プロファイルが逆転

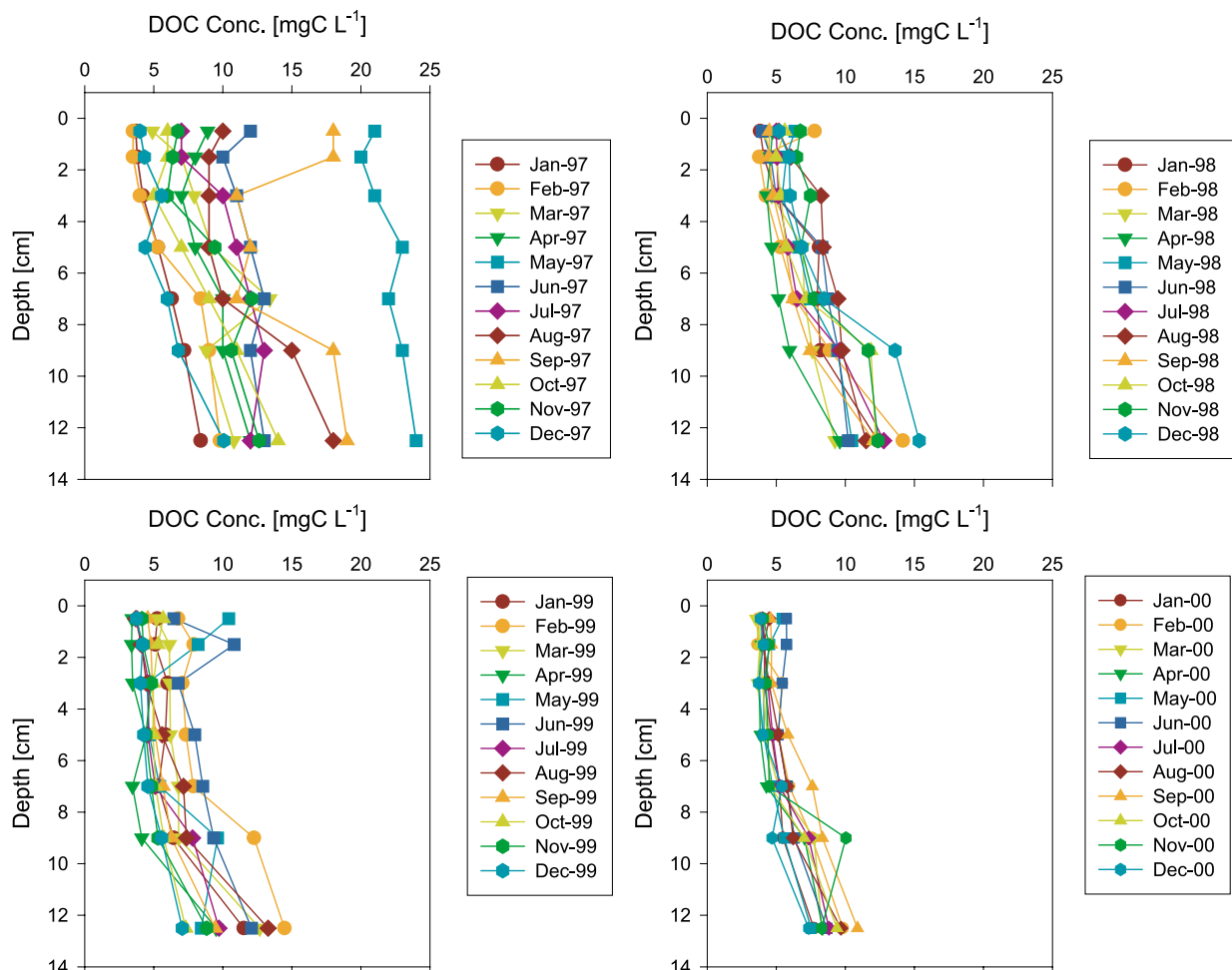


図 32 霞ヶ浦湖心における底泥間隙水中の溶存有機物 (DOM) の鉛直濃度プロファイル (1997 ~ 2000 年)

し底泥上層のほうが下層よりも濃度が高くなった。しかし、1997年では認められた夏季での濃度上昇は観察されなかった。2000年はDOM濃度が全体的に減少したが、1997年や1999年と同様に、やはり5月と6月に底泥上層のDOM濃度が上昇した。

以上の結果から、底泥間隙水中のDOM濃度の深さ方向プロファイルが経年的、そして季節的に著しく変動することを明白に理解できる。従来、水温が上昇し底泥の嫌気化が進む夏季に底泥溶出量や底泥間隙水DOM濃度が高くなると言われてきた。本研究の結果を見る限り、実際の間隙水DOMの挙動はそのように単純なものではないことがわかる。水温上昇が著しくない春季に間隙水DOM濃度が、特に底泥上層で高まる現象は非常に興味深い説明は大変難しい。

底泥間隙水中のDOM濃度鉛直プロファイルを用いて算出した1997～2000年での底泥溶出フラックスの経月変化を図33に表す。底泥溶出フラックスの算出には底泥上層の間隙水DOM濃度がキーになる。そのためか、求められた底泥溶出フラックスは、間隙水DOM濃度の鉛直プロファイルと同様に、経年的および季節的（あるいは経月的）変化が著しいものとなった。溶出フラックスは1997年にとても大きな値を示し、1998年には減少し、1999年には再び上昇して、そして2000年には調査期間中で最低レベルとなった。経年的に値の高低はあるが、溶出フラックスに季節的に共通したトレンドが観察された。春季（5月）と夏季-秋季（8月、9月、10月）に溶出フラックスのピークが認められ、全ての調査年に

において春季のほうが夏季よりも相対的に大きなフラックス値を示した。霞ヶ浦湖心では5月に水温はそれほど高くない。また河川流入の影響もそれほど大きくならない時期である。なぜ5月の底泥溶出フラックスがこのように高くなるのか、メカニズム解明が待たれる。

4) 底泥間隙水DOMの分画分布

底泥間隙水中のDOMにフミン物質や親水性酸がどの位の濃度で存在しているか、間隙水DOMはどの程度分解するのかについては報告例はない。その情報を得るために、霞ヶ浦湖心において底泥コアサンプルを多数採取して、底泥コア・スライシングと遠心分離等の操作で得られた間隙水をDOM分画手法に供した。1995年の冬（1995/11/24）と1996年の夏（1996/7/30）に採取した間隙水はサンプル採取後すぐに樹脂分画手法により分画し、残りのサンプルに対して約1%のろ過湖水を添加した後に長期間分解試験を実施した。分解試験終了後にサンプルを-30℃で保存した。本研究では、この分解処理済みサンプル（底泥表層[0-2cm]）を解凍後に樹脂分画手法に供してRDOMの分画分布を求めた。

冬季と夏季の底泥間隙水サンプルのDOM分画分布を、各々、図34と図35に表す。両サンプルともにフミン物質（AHS）の存在比が最も大きく特徴的であった（冬：39%、夏：31%）。また、親水性中性物質（HiN）の存在比がとても大きく、冬季サンプルでは親水性酸（HiA）とほぼ同等、夏季サンプルではHiAを上回った。底泥表層間隙水のDOM分画分布（分解試験前）は湖水のそれとは顕著に異なっていた（図12参照）。AHSと

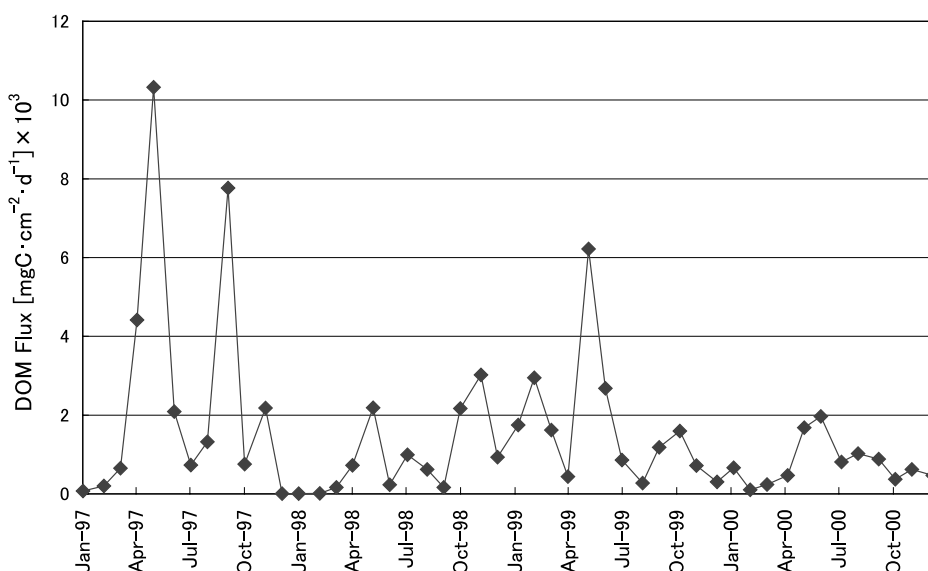


図33 霞ヶ浦湖心におけるDOMの底泥溶出フラックス（1997～2000年）

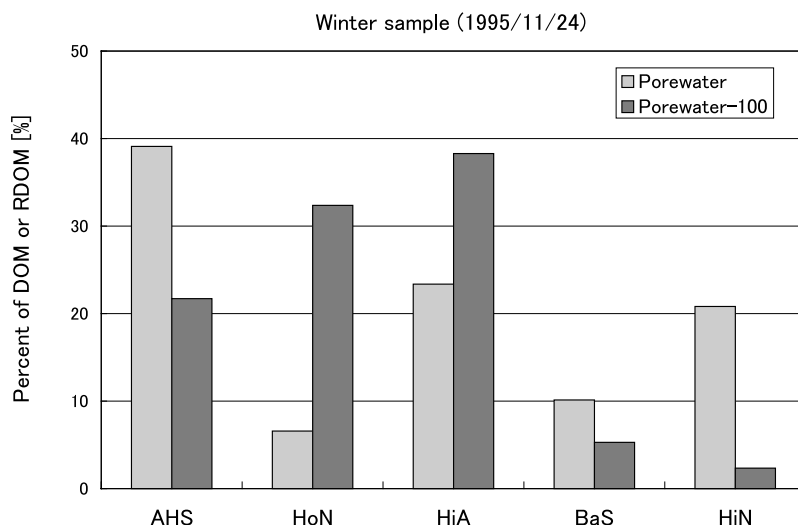


図 34 霞ヶ浦湖心の底泥間隙水 DOM の分画分布 (1995/11/24)
 表層 0 ~ 2 cm。-100 は難分解性画分を表す。
 AHS : フミン物質, HoN : 疎水性中性物質, HiA : 親水性酸,
 BaS : 塩基物質, HiN : 親水性中性物質。

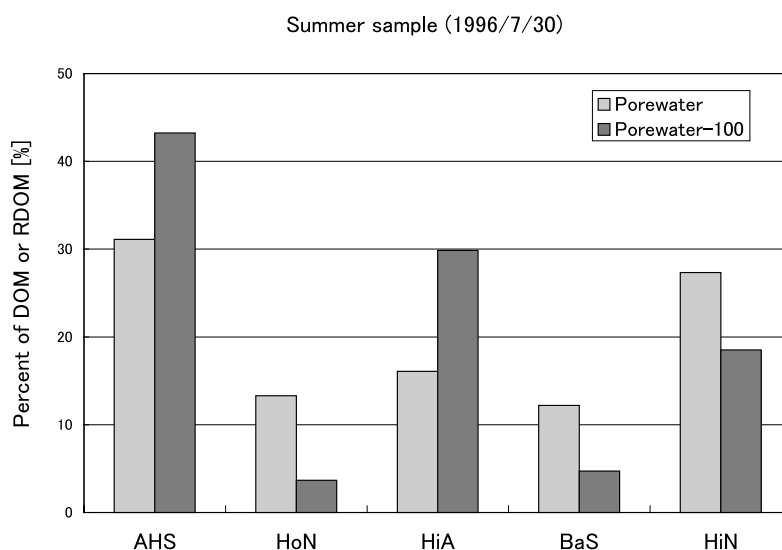


図 35 霞ヶ浦湖心の底泥間隙水中の難分解性 DOM の分画分布 (1996/7/30)
 表層 0 ~ 2 cm。-100 は難分解性画分を表す。
 AHS : フミン物質, HoN : 疎水性中性物質, HiA : 親水性酸,
 BaS : 塩基物質, HiN : 親水性中性物質。

HiN が卓越する理由は、間隙水が固相態である底泥と接触していることと、底泥表層中に湖底に堆積した植物プランクトン遺骸等が多く含まれているからと推察される。

冬季および夏季間隙水サンプルともに非常に難分解性であった。DOM 分解率は、夏季サンプルのほうが分解率 (11%) のほうが冬季サンプル (2%) よりも高かった。生分解前後で間隙水の DOM 分画分布は著しく異なっていた (図 34, 35)。冬季サンプルの場合、卓越していた AHS, HiN, 塩基物質 (BaS) のフラクションが顕

著に減少し、疎水性中性物質 (HoN) と HiA が著しく増大した。一方、夏季サンプルでは、HiN, BaS, HoN の存在比が減少し、フミン物質と HiA の存在比が相当に増大した。

両サンプルともに HiA 濃度が生分解により実質的に増大した。藍藻類由来 DOM の DOM 分画においても同様な現象が認められている (セクション 2.2.2 項の (1) 参照)。従って、底泥表層では、湖底に堆積した植物プランクトンやその遺骸に由来する DOM が卓越していると推測される。

疎水性画分，すなわち AHS と HoN の存在比の生分解に伴う変化は冬と夏で全く反対であった。DOM の芳香族性や疎水性の傾向を表す紫外外部吸光度 / DOC 比 (UV/DOC 比) を見てみると，冬季間隙水 DOM の UV/DOC 比は夏季間隙水 DOM のそれよりも 2 倍以上高かった (冬: $41.8 \text{ mAbs} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{l} \cdot \text{mgC}^{-1}$ ，夏: $17.6 \text{ mAbs} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{l} \cdot \text{mgC}^{-1}$)。夏に採取した底泥表層間隙水の UV/DOC 比は湖水のそれとあまり違わなかった。従って，冬季の底泥表層間隙水中の DOM は極めて疎水性が強いと言える。冬季サンプルの UV/DOC 比の大きさは，主に HoN 画分に起因していた。冬季サンプルで生分解後に HoN が増えたのは，メカニズムは不明であるが，生分解試験を経て，疎水的傾向が一段と強くなり，結果，DOM が沈殿して，見かけ上 HoN 画分が増えたと推測される。

一方，夏季サンプルで AHS が増えたのは，生分解によって HoN に酸性基が付与され結果として AHS (有機酸) が生成されたのではないかと推測される。

間隙水中の DOM は，季節によって，生分解に伴う芳香族性・疎水性の変化が著しく異なることがわかった。従って，底泥から溶出される DOM の特性は季節的に大きく変化するだろうと予測される。間隙水 DOM の特性や反応性は従来考えられていたよりもはるかに複雑であると言える。この分野での基礎的な情報の集積・蓄積が望まれる。

2.2.3 藻類等の微生物群集構造解析

(1) DOM と微生物群集の関係？

湖水溶存有機物 (DOM) は不均質な混合物であり，その複雑さのゆえに依然として不明な部分が多い。特に，主要な内部生産 DOM である底泥や藻類等に由来する DOM の特性については情報が圧倒的に不足している。藻類に由来する DOM の生産量や生分解性は，DOM を生産する藻類種やその増殖状態により異なる (セクション 2.2.2 項の (1) 参照)。同様に，DOM を分解・利用する細菌種によっても，生分解後に残存する DOM (難分解性 DOM) の量や質も変化すると考えられる。藻類等の微生物に由来する DOM の量と質を評価・理解するためには，湖に棲息する微生物の群集構造や増殖状態に関する情報を得る必要がある。

(2) 霞ヶ浦湖水における微生物群集構造

本研究では，近年発達してきた分子生物学的手法を用

いて，藍藻類を含む細菌群集の種組成，季節変動および地点間の差異について検討することにより，これまでほとんど解明されてこなかった湖沼における微生物群集構造についての知見を得ることを目的とした。

細菌群集解析のための試料採取は月 1 回 (1999 年 2 月 ~ 2000 年 3 月)，河川流入域 (Sts.1, 3 および 7)，湖心 (St.9) および湖尻 (St.12) の 5 地点で行った。3 μm のフィルターによる前ろ過によって細菌群集解析に影響を及ぼす原生動物及び藻類を除去した後，孔径 0.2 μm のフィルターを用いて，細菌菌体を捕集した。次に，細菌菌体から抽出したデオキシリボ酸 (DNA) 試料を鋳型とし，プライマー (357F-GC や 518R) を用いてポリメラーゼ連鎖反応法 (PCR) を行った。得られた PCR 産物を変成剤濃度勾配ゲル電気泳動法 (DGGE 法) に供し，細菌群集の解析を行った。細菌群集構造の解析は DGGE 法による泳動像に対する多変量解析 (主成分分析法と多次元尺度法) および多様性指数 (Shannon Index) の算出によって実施した。さらに主要バンドについては DNA のシーケンスを行い細菌群集種組成の変動の解析を試みた。

多変量解析に用いた 2 つの手法はほとんど同じ結果を示し，細菌群集構造はサンプリング時期によって大きく変化することがわかった。多変量解析の結果，細菌群集構造は 1999 年春，夏および秋 (8 月を除く)，8 月，そして 2000 年春に大別された (図 36, 37)。夏と秋の細菌群集が類似していたことから細菌群集に周年変動の傾向が認められたが，1999 年春と 2000 年春の微生物群集は大きく異なった。一方，サンプル採取地点間による差異については恋瀬川，山王川の流入地点である St.1 の細菌群集が他の地点のそれとは異なった動きをした以外は，大きな違いは認められなかった。主成分分析により細菌群集の変動に最も大きな影響を及ぼしているバンドが 2 本特定され，シーケンスの結果，夏季の群集を特徴づけるバンドは *Actinobacteria* (放線菌) に属する細菌に由来し，2000 年春の大きな変化を引き起こしているバンドは *Synechococcus* に近縁の藍藻に由来していることが明らかとなった。多様性指数 (Shannon Index) 解析によって，夏季に多様性が低下する傾向と 2000 年春に多様性の著しく低下することが認められた。以上のことから，霞ヶ浦においては，微生物群集構造は季節的変動し，その季節変動には放線菌や藍藻類の変動が大きな影響を及ぼしていることが明らかとなった。

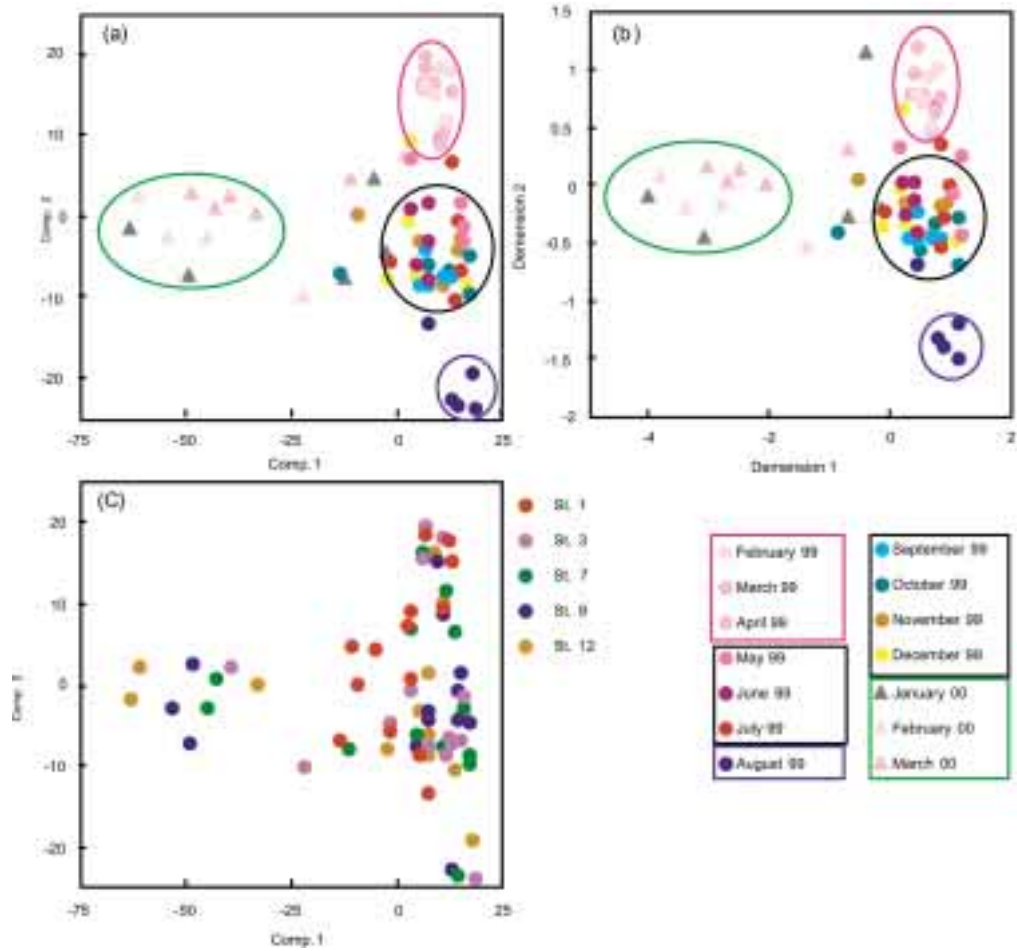


図 36 DGGE 法に基づく細菌群集構造の季節およびサンプリング地点間の変動についての多変量解析結果
 (a) 主成分分析による季節変化の解析, (b) 多次元尺度法による季節変化の解析,
 (c) 主成分分析によるサンプリング地点間変化の解析。

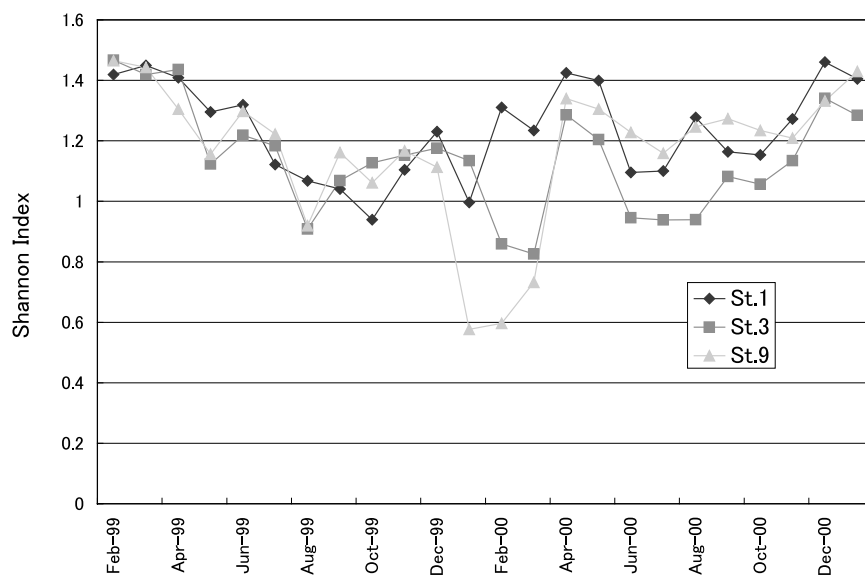


図 37 霞ヶ浦における多様性指数の変動

(3) 藻類の現場増殖速度・ポテンシャルの評価

1) 藻類の増殖速度を現場で測定するのは難しい？

霞ヶ浦のような富栄養湖では藍藻類に由来する溶存有機物 (DOM) が湖内部 DOM 生産に大きく寄与している。藻類から生産される DOM の特性や生産量は藻類の種とその増殖状態によって大きく左右されるが、実際の湖沼で特定藻類種の増殖状態 (あるいは速度) を測定・定量することは非常に難しい。現場での細胞密度の変化は見かけの増殖速度であり、必ずしも生理状態 (増殖ポテンシャル) を反映したものとはならない。一方、基礎生産をはかる方法では、特定藻類種のみ増殖速度には結びつかない。現場で培養して細胞密度の変化を測る方法もあるが、培養期間があるためにバッチ培養では環境を一定に保つことはできない。これらの問題に対処するため、現在ではサンプルを実験室に持ち帰り連続培養を行って増殖速度を測る方法 (ケモスタット法) が一般的である。ところが、この方法も、実験室で培養を行うため光源として蛍光灯を使用することになり、現場での光の影響を評価することができない。

現場 (*in-situ*) 増殖速度の測定には、培養期間を必要とせず、特定の種の、生理状態を確実に反映した増殖速度の測定方法の開発が求められてきた。水産学の分野で報告されているリボ核酸 (RNA) とデオキシリボ核酸 (DNA) 含量の比を増殖速度の指標とする方法はこの必要条件を満たしている。しかしながら、環境水中の懸濁物質から特定藻類種のみを正確に分離することは不可能である。一方分子生物学の分野では、環境中から高い特異性で特定の種の遺伝子のみを吊り上げて増幅させ、さらに元々存在した量を定量する方法が進歩してきた。この方法を用いれば、一点のサンプリングでサンプル中から特定藻類種 (例えば *Microcystis* のみの遺伝子を抽出し、その存在量から、その時点で *Microcystis* の増殖速度を算出することが可能となる。よって、本研究では、近年発達してきた分子生物学的手法を用いて、湖水中で優占している種を特定するとともに、優占している種の RNA 含量を測定し、存在している藍藻類の増殖ステージ、その後の増殖の可能性について予測する手法の開発と確立を目指すこととした。

2) RNA/DNA 比に基づく藻類増殖速度測定手法の開発

測定原理：リボソーム RNA (rRNA) は遺伝子から読み出された情報 (メッセンジャー RNA, mRNA)

からタンパク質を合成する場であり、タンパク質の合成が盛んな細胞は rRNA を多量に生産し、タンパク質の合成が活発でないときにはその濃度が減少することが知られている。本測定手法は、この現象を利用して、細胞の rRNA 含量を測定することにより、細胞の活性を算定しようとするものである。一つの細胞が有する rRNA 遺伝子 (rDNA) の数は細胞活性にかかわらず普遍であることから、rRNA/rDNA 比を求めることによって、rRNA 含量を測定することが可能になる。また、rRNA は mRNA に比べると比較的安定なため、環境中の細胞の増殖状態をモニターするのに適している。

プライマー作成：*Microcystis* 属藍藻を特異的に検出して藻体中の RNA (rRNA), DNA (rDNA) 量を定量するためには、まず当該藍藻に対する特異的なプライマーを作成する必要がある。*Microcystis* 属藍藻の分類は現在再編成が行われており、ほとんど全ての株が *Microcystis aeruginosa* に分類されるようである。しかし、今回は、現在登録されている *Microcystis* 属藍藻を基準として、これら全てに 1 塩基以下のミスマッチとなるようにプライマーを作成した (図 38)。他の藍藻類、例えば糸状藍藻類 (*Phanktothrix* [旧名 *Oscillatoria*] *agardhii* 等) とは最低 5 塩基以上異なる様に設計を行った。合計で 4 つのプライマーを作成した (Micro1 - Micro4)。 *Microcystis aeruginosa* (NIES 843) について PCR 増幅を行った結果、Micro1-4 全て *Microcystis* の検出に有効であることが確認された。次に、霞ヶ浦で近年増加している糸状藍藻類、 *Phanktothrix agardhii*, *Phormidium tenue*, *Synechococcus* sp. の各培養株を用いてプライマーの特異性の検討を行ったところ、Micro1 と Micro3 のみに特異性があることがわかった (図 39)。さらに、Micro1 と Micro3 について、霞ヶ浦湖水サンプルを使って PCR 反応を行い、プライマーの特異性を確認した。その結果、Micro3 では非特異部位で PCR 産物の増幅が認められ、その特異性に問題があることがわかった。一方 Micro 1 については、特異的部位においてのみ PCR 産物が確認され、このバンドを切り出してシーケンスを行った結果、PCR 産物はすべて *M. aeruginosa* に由来することが明らかとなった。すなわち、Micro1 は *Microcystis* 属藍藻を特異的に増幅可能であり、このプライマーを用いれば定量的 PCR によって自然湖水中の *Microcystis* 属藍藻の RNA, DNA を定量解析することが可能であると示唆された。

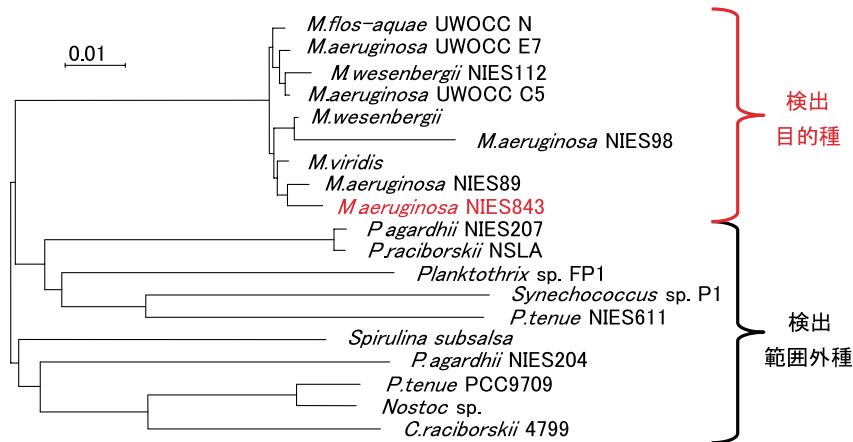


図 38 プライマー作成のための *Microcystis* 属とその近縁種の系統樹

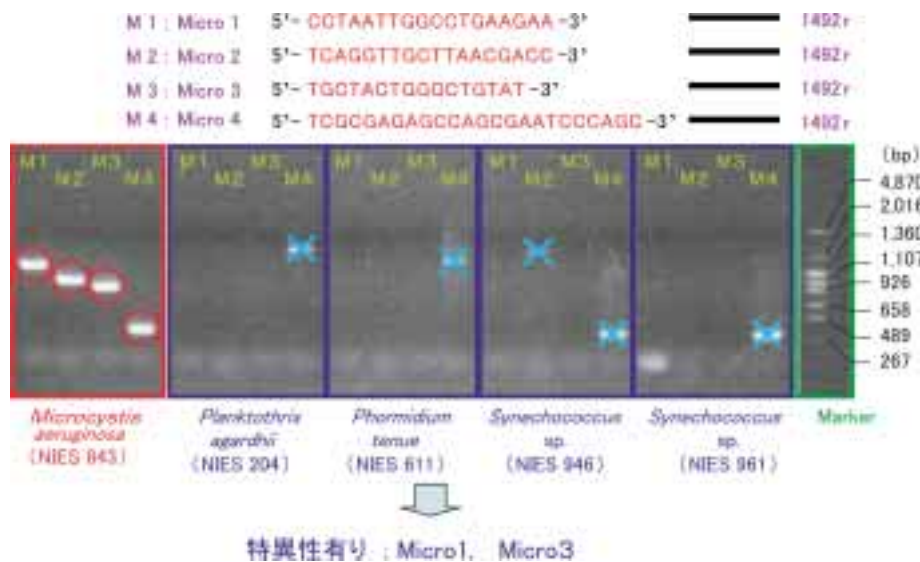


図 39 *Microcystis* 属藍藻用プライマーの有効性と特異性の確認

3) フィールドでの *Microcystis* の増殖速度とその制限要因

霞ヶ浦では毎月一回の全域調査を実施しているが、藻類の増殖を解析する場合には、藻類の増殖速度や各環境要因の変動速度を考えると観測間隔が長すぎる。そこで、本研究では、現在でもアオコが毎年発生する霞ヶ浦に隣接する用水路において週二回の調査を行い、現場における *Microcystis* の増殖とその制限要因の解析を行った。この用水路は長さ約 4.6 km、平均深さが 1.5 m であり、霞ヶ浦に通じているが流れがほとんどない(図 28 参照)。調査期間は 2003 年 7 月から 9 月にかけての 3 ヶ月間とした。

増殖速度は見かけの増殖速度(現場 [in-situ] 増殖速度, 細胞密度の変化から算出), 従来法であるケモスタット増殖速度, そして我々が開発した核酸含量(RNA/DNA

比)に基づく増殖速度を測定して比較検討を行った。ケモスタット法については、コントロールボリューム 1 L で、ろ過滅菌したサンプルを希釈率 0.5 day⁻¹ にて流した。培養期間は二日間、温度はサンプリング時の水温に保ち、光は約 3000 ルクスの強度でサンプリング日の日の出、日の入り時間に合わせ明暗を切り替えた。核酸含量については、サンプル中から *Microcystis* の遺伝子を抽出し、DNA, RNA 量の定量を行った。RNA に関しては二連で行った分析の結果が良く一致し分析値は信頼できると考えられた。DNA に関しては、二連で行った結果のばらつきが大きく、定量が困難であった。DNA の濃度は RNA に比べて 1 ~ 2 桁低いため精度が低くなったと考えられた。よって、今回は、DNA 分析値を採用せず、RNA 濃度を *Microcystis* の細胞密度で割り細胞あたりの RNA 含量 (RNA/細胞数 (cell) 比) を増殖速度の指標と

した。増殖制限要因としては窒素，リン，水温，気候条件（日射，風速，雨量）をターゲットとした。気候条件は霞ヶ浦臨湖実験施設に設置してある気象モニターの値を用いた。

2003年は冷夏となり，高温を好む *Microcystis* の増殖には厳しい条件となった。調査期間中の *Microcystis* の細胞密度と水温の変化を図 40 に示す。水温は 20 台前半が多く，*Microcystis* の細胞密度はいわゆる“アオコ”状態の目安となる $10^5 \text{ cell} \cdot \text{ml}^{-1}$ を超えることは一度も無かった。調査期間の前半は *Microcystis* が植物プランクト

ンの中で優占していたが，8月14，15日に大雨があり（二日間で約 200 mm）その後は緑藻，クリプト藻など *Microcystis* 以外の藻類が優占していた。

図 41 に 3 種類の増殖速度の変動を示す。*In-situ* 増殖速度と RNA/cell 比の変化は似ているが，ケモスタット増殖速度は他の二つの増殖速度とは違う変化をしていた。この増殖速度の違いはそれぞれの増殖速度の持つ意味の違いから来していると考えられる。*In-situ* 増殖速度は栄養塩，温度，光，雨や風などの物理条件，捕食，沈殿などすべての要素の影響を受ける。RNA/cell 比の場合は

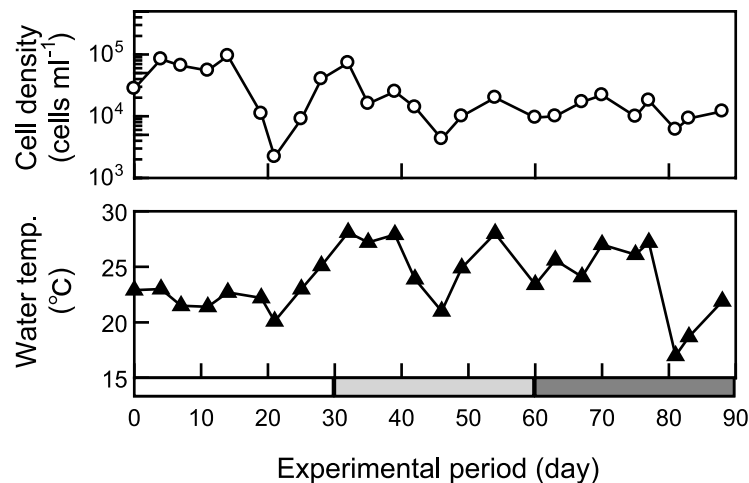


図 40 調査期間における *Microcystis* spp. の細胞密度と水温
 □ は 7 月，▒ は 8 月，■ は 9 月を示す。

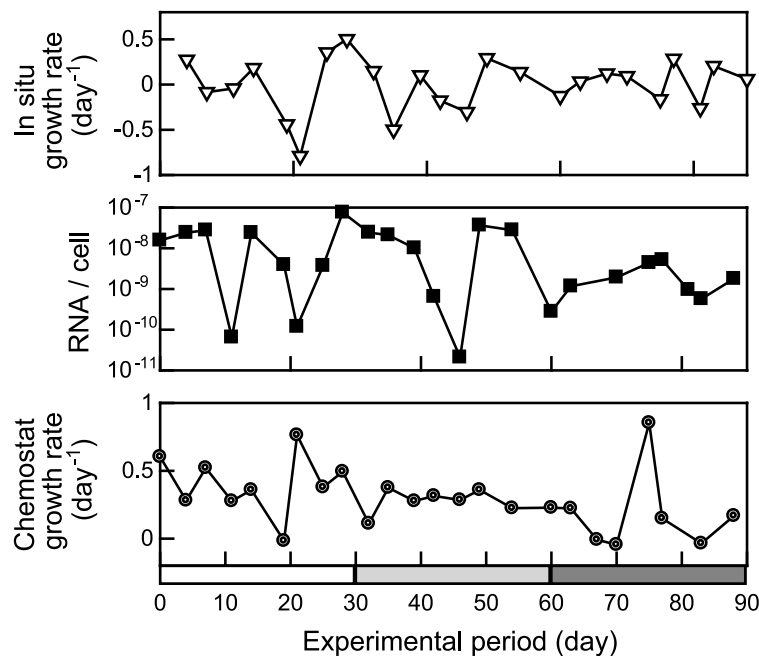


図 41 調査期間における *Microcystis* spp. の見かけの増殖速度 (*In situ* growth rate)，細胞あたりの RNA 含量 (RNA / cell)，ケモスタット法による増殖速度 (Chemostat growth rate)
 □ は 7 月，▒ は 8 月，■ は 9 月を示す。

生理状態を反映するものなので近い過去～現在の栄養塩、温度、光に影響を受ける。ケモスタット増殖速度の場合は実験室で培養を行うため、その時点での栄養塩と温度のみに影響を受ける。*In-situ* 増殖速度と RNA/cell 比が似た変化を示したことは、雨や風などの物理条件（流される）、捕食、沈殿などの影響が少なかったことを示唆している。調査を行った用水路は流れがほとんど無いこと、*Microcystis* のコロニーは動物プランクトンに捕食されにくいこと、さらに *Microcystis* は水面に浮く性質があるので沈殿しにくいことなどを考えるとこの結果は矛盾しない。それに比べて RNA/cell 比とケモスタット増殖速度の変化の違いが大きかったことは、現場では光の影響が大きかったことを示唆している。この結果も冷夏で日照不足であったことと矛盾しない。

次に各増殖速度と制限要因との相互関係の解析を行った。RNA/cell 比は水温、日射量と良く似た変動をしており、ケモスタット増殖速度は硝酸濃度と最も良く似た変動をしていた（図 42）。水温と日射量は相関が高いが、ケモスタット増殖速度と水温との間に相関が見られないことから、RNA/cell 比の制限要因となっているのは実際には日射量であると言える。このことは実際の現場では光の影響が大きかったという先の示唆と一致する。

各増殖速度とそれぞれの制限要因について考察する。*In-situ* 増殖速度は水温、日射と正の相関があり、雨量、平均風速と負の相関があったが、栄養塩との相関は得ら

れなかった。RNA/cell 比は水温、日射と相関が得られ、栄養塩との相関は得られなかった。ケモスタット増殖速度は硝酸濃度との相関が得られ、リン濃度、水温との相関は得られなかった。このように実際の現場では日射量が制限要因になっているにもかかわらず、従来のケモスタット法ではその影響を評価できなかった。しかしケモスタット法により、栄養素としてはリンよりも窒素が不足していることが判明し、栄養素として何が不足しているのかを知りたい場合には、逆に実験室での培養は有効であることがわかる。

以上をまとめると、2003 年夏の用水路における *Microcystis* の増殖は日射量に最も強く制限され、栄養素としては窒素に制限されていることが判明した。新しく開発した核酸含量に基づく増殖速度測定方法は現場における特定種の生理状態を正確に反映した増殖速度の測定と、その制限要因の解析に非常に有効であることが判明した。さらに、実験室での培養を組み合わせることにより、より詳細な増殖制限要因の解析が可能となることも判明した。

2.2.4 DOM の特性・起源の評価

湖沼環境中の DOM については依然として不明な部分がとても多い。DOM の特性や起源に関する明白な情報を集積する必要がある。本研究では、様々な観点やアプローチから DOM に関する新しいあるいは明白で有益な知見を探索した。

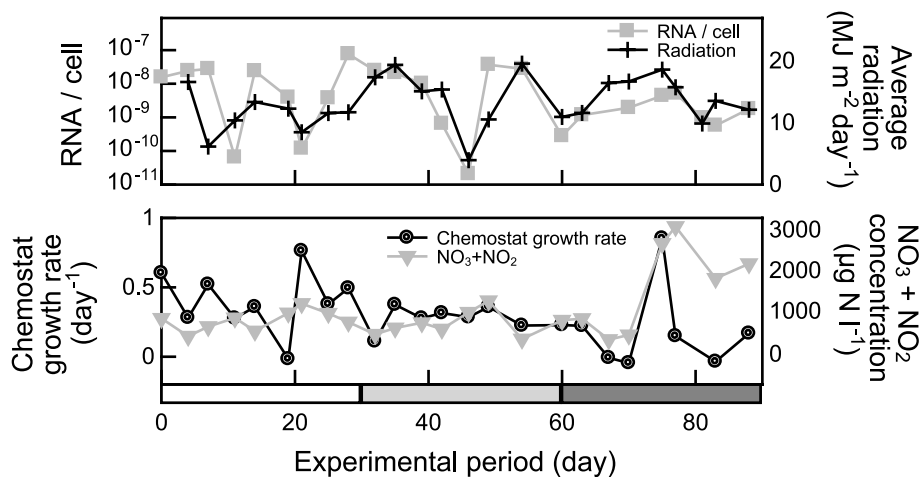


図 42 調査用水路における増殖速度と増殖制限要因との相互関係の解析
 (a) RNA / cell と（前回のサンプリング日からの）平均日射量との比較、
 (b) ケモスタット増殖速度と硝酸濃度との比較。
 □ は 7 月、□ は 8 月、■ は 9 月を示す。

(1) 河川水中の懸濁物質の難分解性 DOM への寄与

湖に流入する河川水には懸濁態（あるいは粒状態）有機物（particulate organic matter, POM）が存在する。河川 POM の起源は、河川内で生産される水生生物の排泄物や死骸および水系外から供給される有機物、例えば落葉、倒木、土壌由来有機物である。河川水 POM は河川生態系における重要なえさ資源（エネルギー源）であり、微生物分解の過程で、かなりの部分は DOM へ変換されると言われている。河川 POM から微生物分解によって、どのような難分解性 DOM が生成されるかについての情報は極めて乏しい。河川水 POM の難分解性 DOM (RDOM) への寄与に関する情報は、湖沼における RDOM の物質収支を取る際にとっても重要である。

河川水 POM の RDOM への変換特性を評価することを目的として、霞ヶ浦に流入する主要 4 河川（恋瀬川、桜川、花室川、小野川）で 1 年間に渡り毎月河川水を採取し、河川水サンプル（POM を含む）および河川水ろ過サンプルを長期間分解試験に供し、残存する DOM (RDOM) に対して樹脂吸着分画操作を行い、両サンプルの RDOM の濃度と分画分布を比較検討した。

図 43 に、典型例として、恋瀬川におけるろ過サンプルおよび未ろ過サンプルの RDOM、難分解性フミン物質 (RAHS)、難分解性親水性酸 (RHIA) の濃度変動を表す。RDOM に関しては、6 月と 7 月にろ過サンプルと未ろ過サンプルでは多少違いが多少観察されたが、それ以外は

ほとんど差はなかった（差の絶対値の平均で 5.2 %）、RAHS や RHIA についても大きな違いは認められなかった（RAHS: 9.5 %、RHIA: 14.6 %）。他の三つの河川水についても恋瀬川の場合と同様な結果を示した（RDOM で 5.9 ~ 6.2 %、RAHS で 6.1 ~ 10.6 %、RHIA で 12 ~ 17.6 %）。平均値で比較すると、ろ過サンプルのほうが未ろ過サンプルよりも濃度が少し高くなる傾向が認められた。恋瀬川、桜川、花室川の RDOM については、ろ過サンプルと未ろ過サンプルで統計的に有意な差はなかった（exact Wilcoxon signed-rank test）。4 河川のうち最も汚濁程度の高い花室川で有意な差が認められた [($p=0.0093$)] が、その差の平均は 6.2 % で DOC 濃度で $0.08 \text{ mgC}\cdot\text{L}^{-1}$ しか違わなかった。RAHS と RHIA ではほとんどのケースで有意な差が認められたが ($p < 0.05$)、DOM 分画実験の誤差（相対誤差は AHS で 6 ~ 9 %、HiA で 7 ~ 14 %）を考えると、RAHS と RHIA についてもろ過サンプルと未ろ過サンプルの差は非常に小さいと判断される。すなわち、河川水 POM の有無にかかわらず、長期間生分解後の DOM 濃度および DOM 分画分布に顕著な差は無かったことになる。従って、河川水が湖沼に流入しても、河川水中の懸濁態有機物（POM）は湖水の RDOM にはほとんど寄与しないと結論される。河川からの湖水 RDOM への寄与はほとんど全て河川水 DOM に由来する RDOM に因ると想定できる。

長期間分解試験の結果から、河川水中の POM と DOM

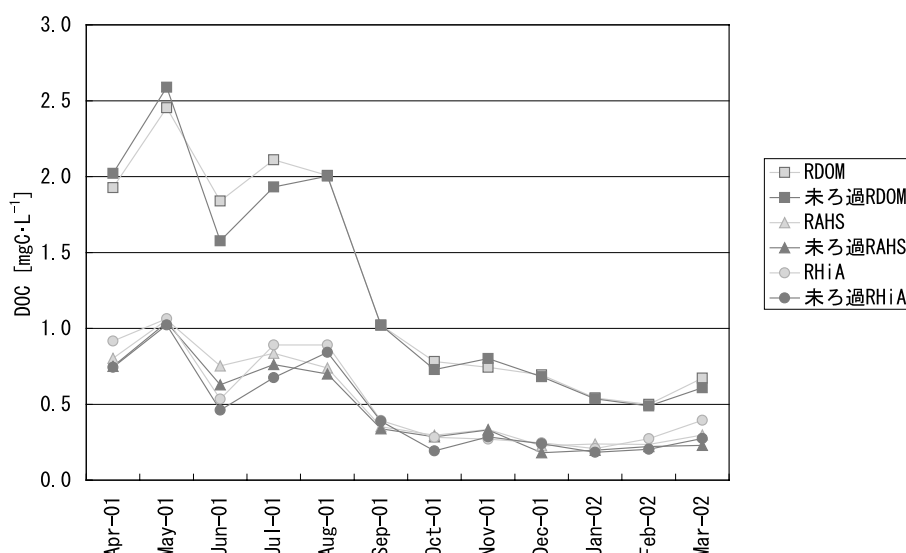


図 43 恋瀬川におけるろ過サンプルと未ろ過サンプルの難分解性 DOM 分画分布の比較
RDOM : 難分解性 DOM, 未ろ過 RDOM : ろ過せずに分解試験を実施した後の RDOM, RAHS : 難分解性フミン物質, 未ろ過 RAHS : ろ過せずに分解試験を実施した後の RAHS, RHIA : 難分解性親水性酸, 未ろ過 RHIA : ろ過せずに分解試験を実施した後の RHIA。DOC : 溶存有機炭素。

とでは分解性が異なることがわかった。河川水（POMを含む）の長期間分解試験前後でのPOMとDOMの濃度を比較すると、POMの平均分解率は約38%でDOMの平均分解率31%よりもかなり高い値を示した。この実験結果は、POMは分解しやすいのに分解に伴うPOMからDOMへの変換がほとんどないことを示している。微生物にとっては、POMとして存在する有機物のほうがDOMよりも資化効率が高く食べやすいえさなのかもしれない。

(2) 水田におけるDOMの収支

霞ヶ浦流域において水田は流域面積の約20%を占め、流入負荷としては全体の10%程度（CODとして）占める重要な面源負荷である。水田について窒素やリン等の栄養塩に関する研究が数多くなされ物質収支や動態が詳細に調査されてきた。しかしながら、水田からどのよう

なDOMがどの程度排出されるかに関する報告はほとんどなされていない。水田は湖沼への重要なRDOMの供給源である可能性が高く、水田由来DOMの特性や量に関する情報が求められている。

本研究では、灌漑水量、排水量、浸透水量、蒸発散量が定量可能な水田（つくば市真瀬, 53.7 m × 100 m, 53.7 a, 表面排水形式）を対象として、灌漑開始（2002年4月19日）から最終落水（2002年8月11日）まで、DOMの特性や水田における物質収支を調査した（図44）。

調査期間中の灌漑水と田面排水のDOM濃度の変化を図45に示す。灌漑水（河川水）と田面排水水と比較すると、全期間に渡り田面排水のほうが高い濃度を示した。灌漑初期では田面排水DOM濃度は比較的低かったが、代掻き・田植え後の5月上旬にピークを示し、その後一旦濃度は低下するが、5月下旬に急上昇し6月下旬まで高いレベルを維持した。中干しのため落水が行われ

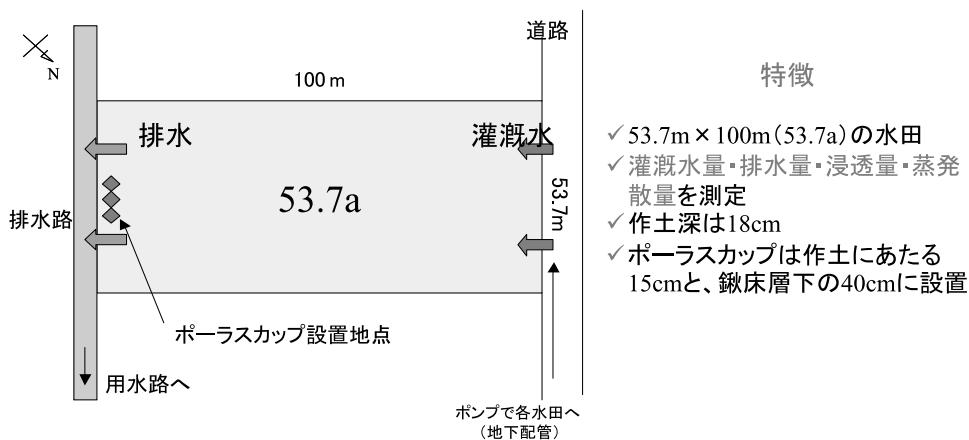


図44 調査水田の概況図

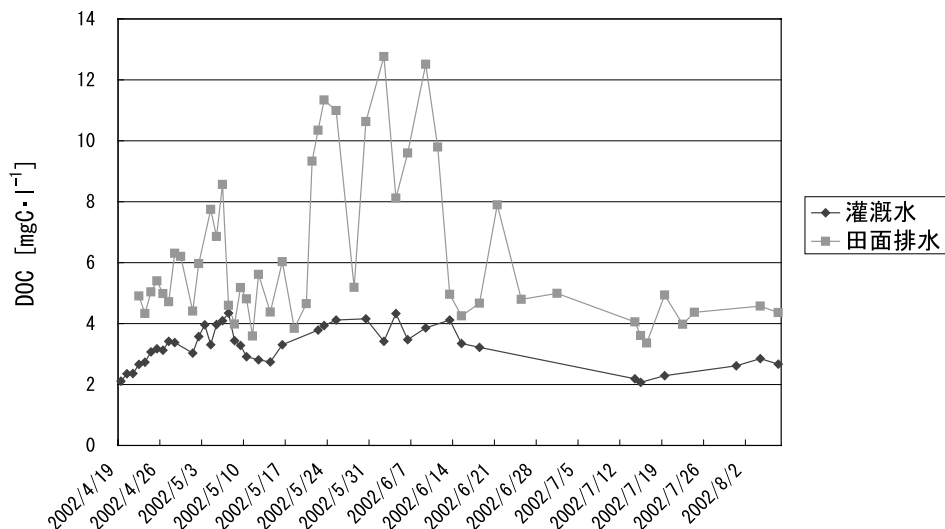


図45 水田灌漑水および田面排水中の溶存有機物（DOM）濃度変化

た7月以降は再び低い濃度レベルで推移した。灌漑開始後の4月と中干し後の7月では、水の水田土壌への浸透のためにDOM濃度の低下が起きたと考えられる。

2002年における水田でのDOM収支を表3に示す。DOMの流出は、田面排水が大部分で、浸透水は全体の四分の一程度であった。DOMの流入は、灌漑水が大部分で、降水による流入はわずかであった。DOMの収支はプラス20.6 kgC・ha⁻¹と排出過多となり、間違いなく、水田からDOMが排出されていることが明らかとなった。月別収支をみると、特に6月の田面排水としての流出が多く、年間DOM流出量の大部分が6月に排出されていた。これは6月にDOM濃度はとても高くかつ降雨量も多く、結果、排水量が多かったためと考えられる。興味深いのは、代掻きが行われた4月で収支がマイナスになったことである。当初の予想では、代掻きによって水田土壌が攪乱され土壌中の有機物が多量に溶出するためDOMが大量排出されると考えていたが、全く予想に反する結果となった。

2002年の灌漑期間中におけるDOMおよび各分画成分の収支（差引排出量 = 田面排水 - 灌漑水）を表4に表す。この収支をみると、水田から最も多く排出されているのはHiAで、次いでAHSが多く排出されていた。

つまり、水田から排出されるDOMの大部分は有機酸画分で、その中でもHiAが卓越していた。HiAは全期間を通じて排出が最も多かったが、灌漑後の8月にはその割合が低下し、疎水性画分（AHS + HoN）の割合が上昇した。これは、田面排水中のAHSの存在比が8月に高まり、一方HiAの存在比が低下したためである。従って、灌漑初期から中期にかけてはHiAが排出の大部分を占め、灌漑後期にはAHSとHoNが多く排出されることがわかった。

灌漑期間中の難分解性DOM（RDOM）の収支（差引排出量 = 灌漑水 - 田面排水）を表5に表す。全期間を通じて差引排出されたDOM（4.8 kgC・ha⁻¹）の大部分にあたる4.4 kgC・ha⁻¹がRDOMであった。RDOMの水田からの排出が多かったのは6月であった。これは田面排水のDOMの生分解率が20%程度と低く、5月下旬から6月にかけては、田面排水中のDOMの生分解率は灌漑水のそれを下回ったためと考えられる。RDOMのなかで最も排出されていたのはHiAであった。DOMのなかで代表的な難分解性成分であるAHSは流出と流入が均衡しており、RAHSは正味の収支としては排出されないことがわかった。RDOMの主要画分であるAHSとHiAは、6月と8月に排出が集中していた。6月にRHIA

表3 調査水田におけるDOM収支（2002年）

2002年	流出		流入		収支
	田面排水	浸透水	灌漑水	降水	
4月	1.3	4.3	6.8	0.3	-1.6
5月	13.2	1.9	11.3	1.5	2.3
6月	31.6	6.8	21.9	1.3	15.1
7月	7.5	6.4	12.9	1.5	-0.6
8月	15.4	1.3	11.1	0.2	5.3
全期間	68.9	20.5	64.1	4.8	20.6

単位：kgC・ha⁻¹。

表4 調査水田におけるDOMおよび各分画成分の収支（2002年）

	AHS	HoN	HiA	BaS	HiN	DOM
4月	-1.8	-0.6	-2.3	-0.7	-0.1	-5.5
5月	0.3	-0.1	1.3	0.5	0.0	1.9
6月	2.4	1.1	5.3	0.8	0.1	9.7
7月	-2.7	-0.1	-3.1	0.7	-0.3	-5.5
8月	1.3	1.7	1.2	0.2	-0.2	4.2
全期間	-0.6	2.0	2.4	1.4	0.3	4.8

単位：kgC・ha⁻¹。AHS：フミン物質，HoN：疎水性中性物質，HiA：親水性酸，BaS：塩基物質，HiN：親水性中性物質。

表5 調査水田における難分解性 DOM および各分画成分の収支 (2002 年)

	RAHS	RHoN	RHiA	RBaS	RHiN	RDOM
4月	-1.6	0.0	-1.8	-0.1	-0.3	-3.8
5月	0.3	1.0	0.8	0.0	0.0	2.1
6月	2.1	1.6	4.0	0.2	0.4	8.3
7月	-2.3	-1.1	-2.0	0.2	-0.1	-5.3
8月	1.5	0.1	1.1	0.1	0.3	3.0
全期間	0.0	1.6	2.1	0.2	0.3	4.2

単位: $\text{kgC}\cdot\text{ha}^{-1}$ 。RAHS: 難分解性フミン物質, RHoN: 難分解性疎水性中性物質, RHiA: 難分解性親水性酸, RBaS: 難分解性塩基物質, RHiN: 難分解性親水性中性物質。

が排出の大部分を占めていたが、8月には RAHS が RHiA を上回る排出量を示しており、灌漑後期には RHiA よりも RAHS の排出が多かった。

本研究で調査を行った水田では、DOM の収支は排出型であった。DOM の排出が多いのは大雨が集中した時期で、降雨パターンに大きく影響されていた。排出される DOM および RDOM とともに HiA の割合が最も多かった。AHS や RAHS はほとんど排出されなかった。つまり、湖沼流域において水田は AHS ではなく HiA の供給源であると言える。

以上の結果は、水田から排出される DOM に関する今までの既存の考え方を覆したと言える。水田は水深が浅く水と水田土壌との接触が顕著であり、また代掻き時に排出される水が着色しているため、水田で生産・排出される主要な DOM は水田土壌由来の AHS であると考えられてきた。しかし、今回の実験結果から、少なくとも表面排出形式の水田の場合、年間収支という観点から考えると、水田で生産・排出される主要な RDOM は AHS ではなく HiA であると結論される。

(3) 浄水処理場における DOM の特性

霞ヶ浦は、その流域および隣接地区の 100 万人以上の人々に水道原水として利用されている重要な水源である。セクション 2.1.3 項の(1)で示されているように、霞ヶ浦湖水中の DOM の主要成分は親水性酸である。親水性酸はフミン物質に比べてより親水性であり、かつ分子サイズが非常に小さいため(フミン物質 [AHS]: 約 1,000 dalton, 親水性画分 = [HiA] + [BaS] + [HiN]: 約 600 dalton), 通常の浄水処理プロセスでは、その除去は大変困難であると考えられていた。

本研究では、霞ヶ浦湖水を実際の原水として利用している浄水処理場において、原水と各単位処理プロセスの

流出水を採用し(2004年1月)、DOM 分画手法に供することによって、浄水処理における DOM の特性や挙動を調査・検討した。当該浄水処理場の処理プロセスフローは、生物膜 凝集沈殿 砂ろ過 活性炭吸着である。

図 46 に、原水と各単位処理プロセス流出水の DOM 濃度および各分画成分濃度を示す。湖水 DOM は浄水処理によって 32% が除去され、DOM 濃度は $2.60 \text{ mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ から $1.77 \text{ mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ まで低減した。すなわち、稼働中の高度浄水処理プロセスにおいて、霞ヶ浦湖水 DOM の除去は困難であることが確認された。DOM 除去のほとんどは凝集沈殿処理プロセスで達成され、他の処理プロセスでは顕著な DOM 除去は見られなかった。生物膜処理で DOM が除去されないのは、湖水 DOM の分解率が極めて低い冬季に採水したためと考えられる。活性炭吸着プロセスもほとんど DOM を除去できなかった(砂ろ過プロセス流出水に対して除去率 5%)。採水時は活性炭を交換する直前だったため、この活性炭処理プロセスの低い DOM 除去率は活性炭の吸着能力が低下したことによるのか、あるいは湖水 DOM が活性炭では吸着しにくいことによるのか、判断は難しい。

図 47 に原水および各単位処理プロセス流出水中の DOM 分画分布を表す。全ての処理水では、原水(湖水)と同様に、AHS と HiA が卓越しており全 DOM の 70% 以上を占めていた。AHS と BaS は、単位処理プロセスを経るごとに、その存在比が低減する傾向を示した。AHS と BaS は浄水処理プロセス過程において選択的に除去されていると言える。HoN は凝集沈殿処理でほとんど無くなったが、活性炭吸着を経て、その存在比が増大した。HiN の存在比はあまり変化しなかった。HiA の存在比は、生物膜プロセスでは変化せず、凝集沈殿プロセスにより急激に増大し、砂ろ過および活性炭吸着プロセスでは少し減少した。HiA と AHS の比の変化を各単

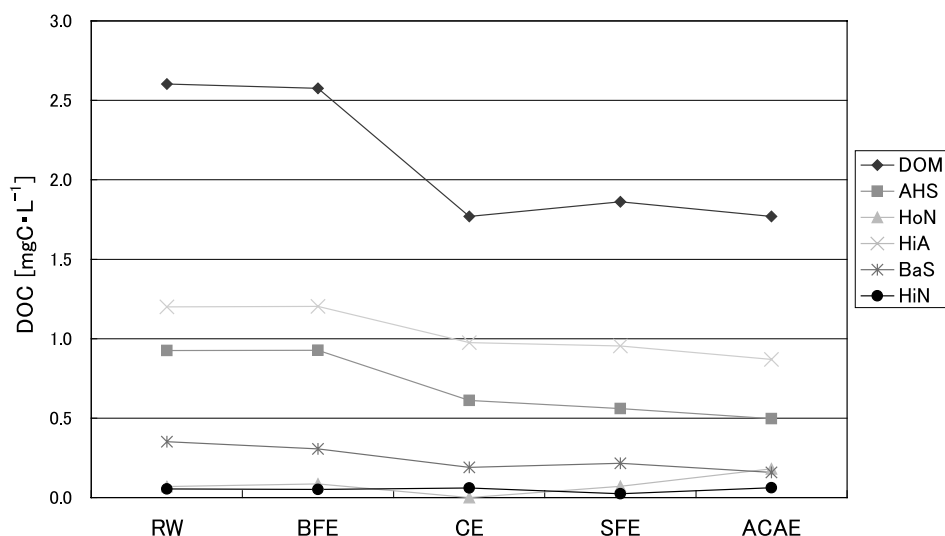


図 46 浄水処理場における各単位処理プロセス流出水中の DOM および各分画成分の濃度変化
 RW : 湖水原水, BFE : 生物膜処理プロセス流出水, CE : 凝集沈殿プロセス流出水, SFE : 砂ろ過プロセス流出水, ACAE : 活性炭吸着プロセス流出水。AHS : フミン物質, HoN : 疎水性中性物質, HiA : 親水性酸, BaS : 塩基物質, HiN : 親水性中性物質。

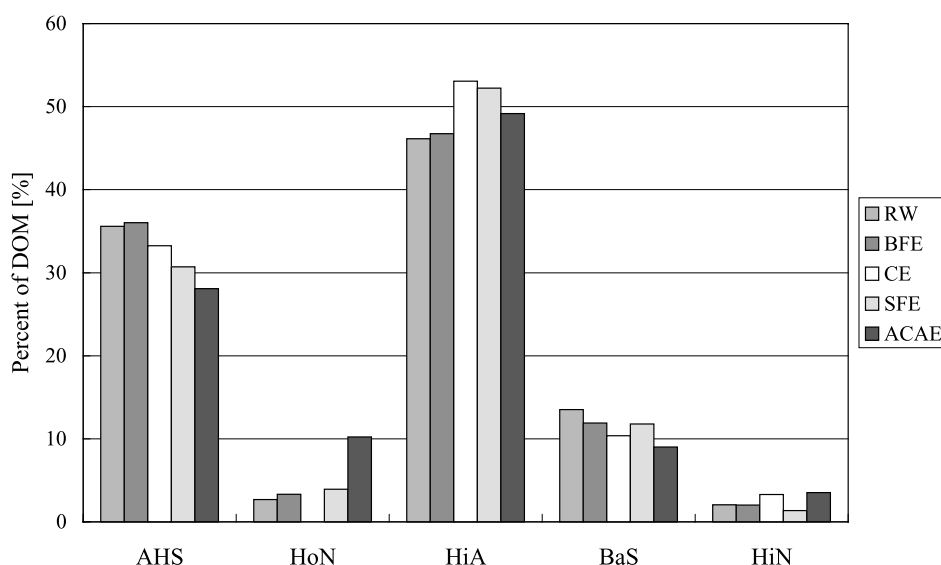


図 47 浄水処理場における各単位処理プロセス流出水中の DOM 分画分布
 RW : 湖水原水, BFE : 生物膜処理プロセス流出水, CE : 凝集沈殿プロセス流出水, SFE : 砂ろ過プロセス流出水, ACAE : 活性炭吸着プロセス流出水。AHS : フミン物質, HoN : 疎水性中性物質, HiA : 親水性酸, BaS : 塩基物質, HiN : 親水性中性物質。

位処理プロセスごとに処理進行に沿って見てみると、HiA/AHS 比は生物膜プロセスでは変化しないが、凝集沈殿、砂ろ過、活性炭吸着プロセスの順に段々に上昇していった。すなわち、DOM の組成は浄水処理プロセス過程において、AHS が少なく HiA が多いものになると言える。

以上の結果は通常の浄水処理（凝集沈殿 + 砂ろ過）では DOM を除去することがとても困難であることを明白に示している。活性炭吸着プロセスを組み入れた高度浄

水処理でも、約 70 % の DOM は残存していた。そして残存する DOM の大部分は、HiA を始めとする親水性 DOM であり、AHS ではなかった。浄水処理はそもそも懸濁物質を除去することを目的としたものである。しかし湖水を水道原水とする場合には、DOM は全有機物 (= DOM + POM) の 40 ~ 60 % を占めるため、トリハロメタン前駆物質の除去も処理目的として要求される場合には、DOM の除去を考慮せざるを得ない。特に浄水処理プロセス過程でその存在比が増大する HiA の効率

的な除去法の開発が望まれる。

(4) 有機物指標の長期トレンド

我々は1977年以来、霞ヶ浦全域調査と称して(1996年からはGEMS/Water 霞ヶ浦トレンドモニタリングとして)、毎月霞ヶ浦で湖水を採取して、霞ヶ浦における水質や生物相の変化をモニタリングしている。霞ヶ浦全域調査でDOMを表す指標として測定されている溶存態COD(D-COD)濃度と本研究で測定対象である溶存有機炭素(DOC)濃度の長期トレンドを比較検討したところ、この二つの有機物指標についてとても興味深い関係が浮き彫りとなった。

図48は霞ヶ浦湖心(St.9)におけるD-CODとDOCを1988年から2001年までプロットしたものである。図から明らかなように1995年あたりを境として、DOC濃度とD-COD濃度の乖離現象が認められる。DOC濃度は、全調査期間に渡って、基本的に同一の測定手法に基づいて乾式燃焼型の全有機炭素(TOC)装置によって測定されたものである。D-COD測定も同一の分析手法で測定されてきた。従って、この乖離現象は、1995年前後で霞ヶ浦DOMの特性に何らかの変成が起き、過マンガン酸カリウムでは酸化し難いDOMが増えてきたために起きたと考えられる。

図49は湖心におけるDOC濃度、D-COD濃度およびDOM分解率の年平均値をプロットした図である。この

図からも、図48と同様に、1995年を境にしてDOCとD-CODの関係が急激に変化したことが容易に理解できる。一方、DOMの分解率は1995年から急減に減少しており、2000年からは分解率は10%を下回っていた。すなわち、このDOCとD-CODの関係の急変に、DOM分解率の変化がピタリと対応していた。これらの関係は、つまり、DOMがより難分解性になると、DOC当たりのD-CODの収率が低くなってしまふことを示唆している。

D-COD、すなわち過マンガン酸カリウム法によるCODは、基本的にDOCとの相関性がとても高い、そして過去のデータの蓄積がある等の理由により、過去20年以上にわたって湖沼有機物指標として採用されてきた。図49に示されたデータは、湖水DOMの特性(このケースでは分解性)に変化が起きると、D-CODとDOCの関係が顕著に変動してしまうことを明示している。DOMの特性が著しく変化しない場合にだけ有効なD-CODという指標は、DOMの長期的なトレンドを表す指標として不適切である。1988～2001年の期間において、DOC濃度の年間平均値は漸増する傾向を示しているのに対して、D-COD濃度は反対に横ばいか低減傾向にある。疑いの余地無く、D-CODというパラメータは霞ヶ浦湖水中のDOMの全量を定量的にとらえていない。従って、1988～2001年の14年間に蓄積されたD-CODのデータの価値は相当に制限されたものとして扱わざるを得ない。

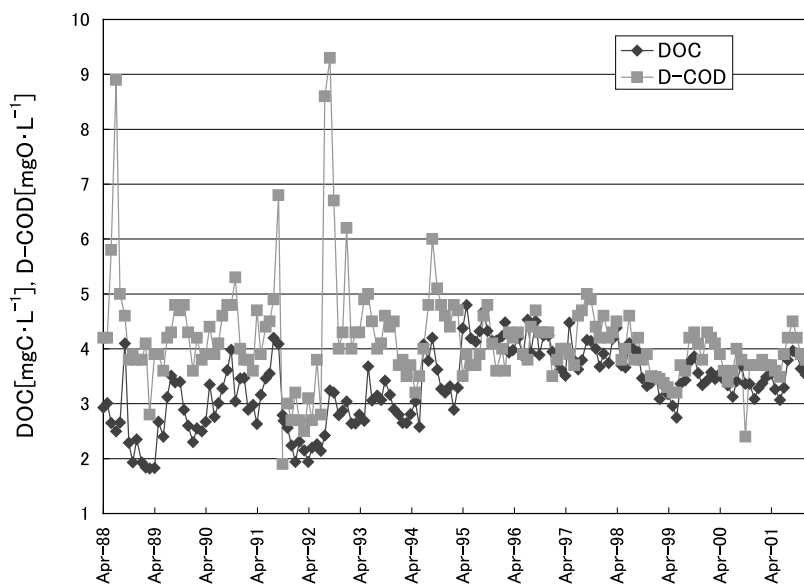


図48 霞ヶ浦湖心における溶存有機炭素(DOC)と溶存態COD(D-COD)濃度の比較(1988～2001年)

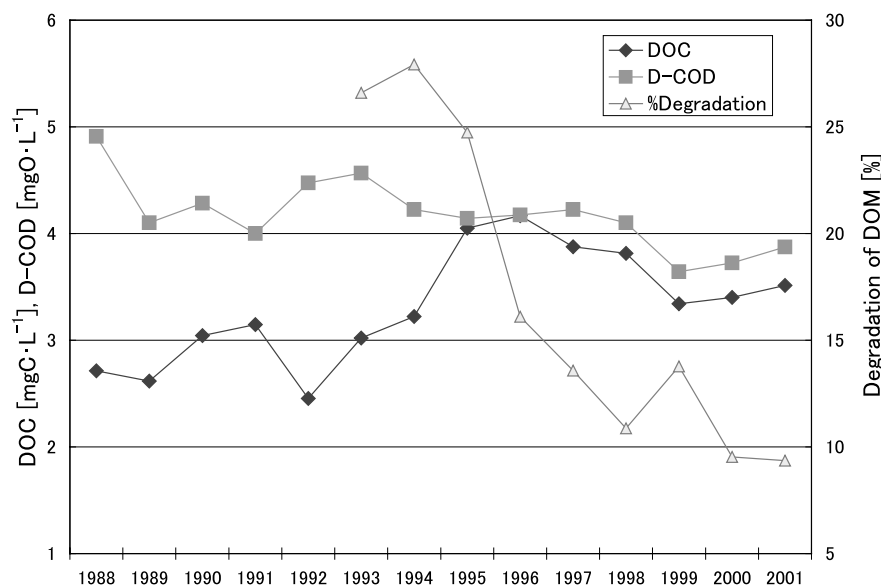


図 49 霞ヶ浦湖心における溶存有機炭素 (DOC) 濃度, 溶存態 COD (D-COD) 濃度および DOM 分解率の経年変化 (年平均値)

2.3 まとめと展望

(1) まとめ

本研究では、湖水溶存有機物 (DOM) の特性・起源、湖沼生態系への機能・影響に関する科学的知見を集積し、その知見に基づいて、湖沼における難分解性 DOM の主要発生源や動態を有機炭素 (TOC) 等の物質収支によって明らかにすることを目指した。本研究の成果を以下に列記する。

課題 1 湖における有機炭素収支に関する研究

[難分解性 DOM の排出負荷量] 有機炭素 (TOC), 溶存有機炭素 (DOC), 難分解性 DOC (RDOC) 等を有機物指標として、原単位法によって発生源別の排出負荷量を算定した。TOC 排出負荷量のうち生活系は 34 % を占めるが、RDOC 排出負荷量としては生活系は 13 % に過ぎず面源系の寄与が大きかった。

[湖水難分解性 DOM の分画分布] 1997 ~ 2001 年の 5 年間において、霞ヶ浦湖水の難分解性 DOM としてはフミン物質と親水性酸が大部分を占めた。特に親水性酸の寄与が最も大きかった。湖水の難分解性 DOM としては親水性酸のほうがフミン物質よりも重要である。

難分解性 DOM の分画分布に経年変動が認められた。フミン物質や親水性酸の存在比が減少し、疎水性中性物質や塩基物質が増加傾向を示した。

[湖水 DOM の分解性] 湖水 DOM の分解率は約 11 % で非常に難分解性であった。DOM の分解傾向は親水性

酸のそれと良好に対応していた。DOM の分解は主に親水性酸の分解によるものと推察された。

[河川水 DOM および難分解性 DOM の分画分布] 河川水 DOM ではフミン物質と親水性酸が卓越していた。総じて河川水の DOM 分画分布は湖水のそれと顕著な違いはなかった。河川水難分解性 DOM としてもフミン物質と親水性酸が大部分を占めたが、生分解前後でフミン物質の存在比が顕著に上昇した (31 % から 38 %)。

[河川水 DOM の分解性] 河川水 DOM の分解率は平均 31 % で、湖水 DOM (同一時期で分解率 9 %) に比べてはるかに高かった。フミン物質や親水性酸についても、河川水のほうが湖水よりも分解性が高かった (フミン物質: 河川水 17 % vs. 湖水 7 %, 親水性酸: 河川水 27 % vs. 湖水 14 %)。

[霞ヶ浦湖内流動モデルの構築] 霞ヶ浦を対象として 3 次元流動モデル (500 m メッシュ, 鉛直 10 層) を構築した。水粒子 (ビーズ粒子) の挙動解析の結果、高浜入りの水塊は土浦入りのそれに比べて湖盆域の水塊との交換・混合が非常に悪いことがわかった。湖心付近では土浦入りから流れ込む湖水が卓越していた。

難分解性フミン物質を対象として、霞ヶ浦 5 地点で実測値と計算値を比較検討して、湖内 3 次元流動モデルを検証した。実測値と計算値は良好に一致していた。

[難分解性 DOM の物質収支] 難分解性 DOM (RDOM) のモデル計算によって、霞ヶ浦湖心における河川水, 下水処理水, 底泥溶出および湖水柱生産の寄与 (月別平均)

は、それぞれ 44 % , 14 % , 28 % および 15 % であると算定された。

下水処理水が放流される土浦入りにおいて RDOM に対する下水処理水の寄与が特徴的に現れた (38 %)。下水処理水由来 RDOM は明瞭に季節変化した。秋季から冬季に顕著に上昇し、春季から秋季にかけて減少した。冬季での処理場由来 RDOM の寄与は河川水由来 RDOM をはるかにしのいでいた (約 2 倍)。

土浦入りに放流される下水処理水の RDOM は高浜入りの水塊にほとんど流入しないことがわかった。

課題 2 湖水溶存有機物 (DOM) の特性・起源と機能・影響に関する研究

[溶存鉄の存在形態と藻類増殖] 湖水等の陸水中の溶存鉄濃度およびその存在形態を分析・定量する手法、濃縮吸着ボルタンメトリー法 (cathodic stripping voltammetry, CSV) を開発・確立した。

霞ヶ浦湖水中の溶存鉄の 99.9 % 以上が有機錯体として DOM に結合した形で存在することが明らかとなった。生物利用可能鉄 (フリー + 加水分解種) の濃度は非常に低く ($10^{-12.6}$ - $10^{-13.6}$ M), 植物プランクトンが鉄制限状態にある外洋のそれに匹敵していた。霞ヶ浦のほうが外洋よりも溶存鉄濃度は 10 ~ 100 倍高いが、この生物利用可能鉄濃度の低さは湖水 DOM の鉄に対する錯化能の圧倒的な強さ (条件安定度定数と錯化容量) に起因した。

Microcystis 属によるアオコが発生している農業用水路において、*Microcystis aeruginosa* を用いた藻類増殖能 (AGP) 試験と鉄の存在形態分析を同時に実施した。その結果、実際のフィールドサンプルで、アオコを形成する *Microcystis* 属の増殖・優占には、窒素、リン、溶存鉄濃度のみならず鉄の存在形態が重要な因子であることが明らかとなった。

[藻類由来 DOM の特性] 植物プランクトン由来の難分解性 DOM の特性を評価するために、霞ヶ浦から分離された典型的な藍藻類 *Microcystis aeruginosa*, *Anabaena flos-aquae*, *Oscillatoria* [*Planktothrix*] *agardhii* と緑藻 *Scenedesmus acuminatus* を DOM 濃度を極力低く抑えた培地で培養して培養後の培地ろ液サンプルを DOM 分画手法に供した。

植物プランクトン由来 DOM の分解性は藻類種によって異なっていた。*O. agardhii* 由来 DOM の分解率は 90 % 以上、*S. acuminatus* は約 90 %、*M. aeruginosa* や

A. flos-aquae の場合は約 50 % の分解率であった。難分解性 DOM として全ての藻類種で親水性酸が圧倒的に卓越していた。植物プランクトン由来の難分解性フミン物質は湖水柱ではほとんど形成されないと示唆された。

[底泥間隙水 DOM の鉛直プロファイル] 霞ヶ浦湖心において、1997 ~ 2000 年に渡り、底泥コアサンプルを採取して間隙水中の DOM の深さ方向の濃度プロファイルを求めた。間隙水 DOM の深さ方向プロファイルは経年的、季節的に著しく変化することがわかった。水温が上昇して底泥の嫌気化が進む夏季よりも、水温がそれほど高くない春季 (5 月) に間隙水 DOM 濃度が、特に底泥上層で高まった。

[底泥間隙水 DOM の分画分布] 春季と冬季での底泥表層 (0 ~ 2 cm) の間隙水を DOM 分画手法に供して、間隙水の DOM および難分解性 DOM の分画分布を初めて評価した。

間隙水 DOM と難分解性 DOM の分画分布はともに、湖水とは異なり、フミン物質の存在比が最も大きかった。また、親水性中性物質の割合がとて大きく、冬季サンプルでは親水性酸と同程度、夏季サンプルでは親水性酸を上回った。冬季および夏季の間隙水サンプルともに非常に難分解性であった (各々 11 % と 2 %)。難分解性 DOM の分画分布は DOM の分画分布と顕著に異なっていた。冬季サンプルでは、フミン物質、親水性中性物質、塩基物質の存在比が顕著に減少して、親水性酸と疎水性中性物質が卓越していた。一方、夏季サンプルでは、フミン物質と親水性酸の存在比が増大して、特にフミン物質が卓越した。底泥表層の間隙水中の難分解性 DOM の特性は夏季と冬季で顕著に異なることがわかった。

[底泥溶出フラックスの算定] 底泥間隙水中の DOM 濃度鉛直プロファイルから DOM の底泥溶出フラックスを求めた。DOM 溶出フラックスは経年的および季節的に大きく変動した。1997 年にとても大きな値を示したが、1998 年には減少し、1999 年には再び上昇して、そして 2000 年で調査期間中で最低レベルに減少した。溶出フラックスに共通した季節の変動パターンが認められた。春季 (5 月) と夏季 - 秋季 (8, 9, 10 月) に溶出フラックスのピークが観察されたが、全ての調査年で春季のほうが夏季のそれよりも大きなフラックス値を示した。

[湖水微生物群集構造の解析] 変性剤濃度勾配ゲル電気泳動法 (DGGE 法) を用いて、霞ヶ浦における細菌群集 (藍藻類を含む) の種組成および変動を評価した。

季節変動および地点間の差異について検討・解析を行った。結果、細菌群集は、1999年春、同年夏と秋（8月を除く）、同年8月と2000年春に大別された。特に1999年春と2000年春の微生物群集は大きく異なっていた。地点間による大きな差異は、認められなかった。シーケンスの結果、夏季の群集を特徴づけるのは *Actinobacteria*（放線菌）に属する細菌、2000年春の変動を引き起こしたのは *Synechococcus* に近い藍藻であることがわかった。

[藻類の現場増殖速度の測定] 実際の湖沼で特定藻類種の増殖状態（あるいは増殖速度）を定量する目的で、特定藻類種のリボ核酸含量（RNA/DNA比等）に基づく藻類の増殖速度測定手法を開発した。

まず *Microcystis* 属藍藻に対する特異的なプライマーを作成し、その特異性を検証した。次に、*Microcystis* 属によるアオコが発生している霞ヶ浦に隣接する用水路でサンプルを採取した。そして、特異的プライマーと定量的PCRによって *Microcystis* のRNA含量を定量してRNA/cell比を求め、既存手法から求めた増殖速度（*in situ* 増殖速度とケモスタット増殖速度）と比較検討した。結果、新しく開発した核酸含量に基づく増殖速度測定方法は、現場における特定種の生理状態を正確に反映した増殖速度の測定と、その制限要因の解析に有効であることが判明した。

[河川水懸濁態有機物（POM）のDOMへの寄与] 河川水由来の懸濁態有機物（POM）が微生物分解によってどの程度DOMへ変換されるかを評価するために、河川水サンプルを通常のDOM分画手法に供するとともに、ろ過せずに（POMが存在する条件下）長期間分解実験を行い、その後ろ過さらに樹脂吸着分画を実施した。

結果、河川水ろ過サンプルと未ろ過サンプルでは難分解性DOMの濃度およびDOM分画分布に関して顕著な違いは認められなかった。従って、河川水POMが湖に流入しても湖水柱では難分解性DOMに寄与しないと結論された。

[水田におけるDOM収支] 灌漑水量、排水量、浸透水量、蒸発散量が定量可能な水田を対象として、灌漑開始から最終落水まで、DOMの特性や水田における物質収支を調査した。

対象水田におけるDOMの収支は排出型で、親水性酸が最も多く排出された。調査期間中の難分解性DOMの収支をとると、全期間を通じて排出されたDOMのほと

んどは難分解性であった。難分解性DOMとして最も排出されたのは親水性酸であった。年間収支からみると、水田から難分解性フミン物質は排出されなかった。

[浄水処理場におけるDOM特性・変成] 浄水処理場におけるDOMの特性や挙動を評価するために、霞ヶ浦を原水として利用している実際の浄水処理場において原水と各単位処理プロセス流出水（生物膜凝集沈殿砂ろ過活性炭吸着）のサンプルを採取してDOM分画に供した。

結果、湖水DOMは浄水処理により32%が除去され、その除去のほとんどは凝集沈殿プロセスで達成されることがわかった。フミン物質と塩基物質は、浄水処理プロセスによって、選択的に除去される傾向が認められた。親水性酸/フミン物質の比は浄水処理が進行するに従って上昇する傾向を示した。すなわち、浄水処理プロセス過程において、DOMはより親水性に変性されていると言える。

[溶存態CODとDOCの関係] 霞ヶ浦湖心において長期間に渡る（1988～2001年）モニタリングによって蓄積されたDOC（DOMの指標として）と溶存態COD（D-COD）のデータを比較検討した。

14年間のトレンドにおいてDOC濃度とD-COD濃度に明白な乖離現象が認められた。1995年前後で、霞ヶ浦DOMが急激に難分解性化したため、過マンガン酸カリウムでは酸化しにくいDOMの割合が増えたためと示唆された。

(3) 研究成果に基づく提言

➤ 難分解性DOMの発生源負荷削減対策は面源系を重視する

難分解性溶存有機炭素（RDOC）の発生源別負荷量算定では生活系の寄与はわずか13%であった。湖水難分解性DOMの発生源対策としては、生活系よりも面源系からの排出負荷を削減する対策が明らかに有効であると判断される。

➤ 底泥浚渫は効果的な実施場所を選定する

流動モデルの計算結果によれば、高浜入りの水塊は土浦入りの水塊に比較して滞留する傾向が非常に強い。つまり、高浜入りのほうが湖水柱へ流入する湖水フラックスが小さくなるため、底泥溶出の湖水DOM濃度への寄与が大きくなる。従って、溶出抑制を目的とする底泥浚渫は土浦入りよりも高浜入りで実施することが効果的と

言える。

➤ 流域下水処理場に高度処理プロセスを導入する

湖内流動モデルによる難分解性 DOM のシミュレーションにより、下水処理水が放流されている土浦入りでは、下水処理の難分解性 DOM への寄与が平均 38 % に達することが示唆された。流域下水道の利点、つまり大量の下水を集中的に処理できる利点を活かして処理レベルを高度化する必要がある。

➤ 下水処理水の放流先を変更する

放流先を変更することによって下水処理水の湖水難分解性 DOM 濃度への寄与を効果的に低減させることも可能である。下水処理水を霞ヶ浦の湖尻、流出ポイント直前に放流すれば、湖心域での下水処理水由来難分解性 DOM の湖水難分解性 DOM への寄与は 1/10 程度になると予測される。

➤ 浄水処理場では親水性 DOM の効率的除去を目指す

通常の浄水処理プロセス（凝集沈殿 + 砂ろ過）では DOM、特に親水性酸を除去することはとても困難であることが確認された。高度処理プロセスである活性炭吸着でも効率的に除去されなかった。親水性 DOM、特に親水性酸を効率的に除去するプロセスの開発が望まれる。

➤ 水田は難分解性 DOM の供給源と認識する

表面排出形式の水田では田面排水中の DOM は非常に難分解性であり、親水性酸が最も多く排出された。水田は湖沼流域における難分解性親水性酸の供給源と言える。

水田は DOM および難分解性 DOM の供給源であり、窒素やリンの場合のような浄化機能を期待することはできない。灌漑中期に排水量が多くなると難分解性 DOM の排出量が増えるため、その時期に、親水性酸を低減させる何らかの手段を講じる必要がある。

フミン物質も親水性酸ともに、田面排水 作土層（深さ 15 cm） 耕盤層下部（深さ 40 cm）の深さ方向に、浸透水中の濃度が減少する傾向を示した。水田を DOM 吸収型に変換するには浸透水、すなわち地下浸透・伏流での排出量を増大させる他に方策はない。圃場整備に作られたコンクリート 3 面張りの排水路では DOM の除去は期待できない。複雑な形態になるざるを得ないかもしれないが、水田群全体として地下浸透を促進するような、水の流れを形成する必要がある。

➤ 有機炭素指標（TOC，DOC）を導入する

1998 ~ 2001 年の間に、霞ヶ浦湖心において DOC（DOM の指標として）と溶存態 COD（D-COD）の関係が大きく変化していることが明らかとなった。この結果は、DOM の質が変わると過マンガン酸カリウム COD（COD_{Mn}）の酸化効率が変化することを明示している。すなわち、流域発生源対策や総量規制等、物質収支に基づく施策に COD_{Mn} は適用できない。湖沼環境の指標として有機物を今後も使い続けて行くのであれば、加算性のある全有機炭素（TOC）や DOC を有機物指標としての採用すべきである。

2003 年（平成 15 年）、水道水・水道原水の有機物指標として、過去 100 年に渡り実施されてきた過マンガン酸カリウム消費量（COD_{Mn} と同一原理）は TOC に変更された。今後、霞ヶ浦のように水道水源として利用されている湖沼で一斉に TOC 濃度がモニターされることになる。湖沼においても、将来的に有機物指標として TOC を採用することを念頭において、過去に集積されたデータを活用することを目指して、COD_{Mn} と TOC との関連性を把握するために、5 年程度、COD_{Mn} と TOC の測定を同時並行的に実施すべきである。

➤ モニタリングデータの充実・集積する

水環境モニタリングは地道で根気の要る仕事である。しかし、長年に渡り集積された信頼性の高い環境データは、湖沼環境を評価する際に極めて貴重な基本情報となる。例えば、本研究では霞ヶ浦における DOC 濃度と D-COD 濃度の乖離現象が 14 年間にわたる連続モニタリングによって明らかにされた。長期的展望に根ざした湖沼環境パラメータのモニタリング体制の構築とその着実な実施が望まれる。

2.4 謝辞

本研究課題を遂行するにあたり、客員研究員や共同研究員という形式にかかわらず、数々の研究者に協力を頂きました。大阪教育大学自然研究講座・横井邦彦教授、筑波大学生命環境科学科・内海真生講師、筑波大学応用生物化学系・東照男教授、筑波大学大学院生命環境科学研究科（当時）・菅谷龍雄君、独立行政法人農業環境技術研究所生物環境安全部・平舘俊太郎博士、国土交通省国土技術政策総合研究所環境研究部（当時）・安部和雄主任研究員には多くの実質的なご協力と貴重なご助言を頂きました。ここに深く謝意を表します。

[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] (現在の職員の現職, 転出者は転出時の職)

水圏環境研究領域	
湖沼環境研究室	今井章雄 松重一夫 永井孝志
水環境質研究室	富岡典子
土壌環境研究室	林 誠二
流域圏環境管理研究プロジェクトグループ	
海域環境管理研究チーム	木幡邦男
生物圏環境研究領域	
生態系機構研究室	野原精一
環境研究基盤技術ラボラトリー	
環境分析化学研究室	佐野友春

[B 客員研究員]

相崎守弘	(島根大学)	(平成 13 ~ 15 年度)
福島武彦	(広島大学)*	(平成 13 ~ 15 年度)
井上隆信	(岐阜大学)**	(平成 13 ~ 15 年度)
海老瀬潜一	(摂南大学)	(平成 13 年度)
永淵 修	(福岡県環境保健研究所)	(平成 13 ~ 15 年度)
天野邦彦	(独立行政法人土木研究所)	(平成 14 ~ 15 年度)

[C 共同研究員]

朴 慶勳	(島根大学)	(平成 13 年度)
金沢真文	(広島大学)	(平成 13 年度)
金 庸桓	(韓国嶺南大学校)	(平成 13 年度)
崔 洸洵	(韓国江南大学校, 京都大学)	(平成 13 ~ 14 年度)
金子卓生	(筑波大学)	(平成 14 年度)
白砂大生	(筑波大学)	(平成 15 年度)
川村修平	(筑波大学)	(平成 15 年度)
安 現妹	(韓国ソウル大学校)	(平成 15 年度)

* 現在の所属 筑波大学

** " 豊橋技術科学大学

2 研究課題と担当者 (* 客員研究員)

(1) 湖における有機炭素収支に関する研究

今井章雄・松重一夫・永井孝志・林 誠二・木幡邦男・相崎守弘*・福島武彦*・天野邦彦*

(2) 湖水溶存有機物 (DOM) の特性・起源と機能・影響に関する研究

今井章雄・松重一夫・永井孝志・富岡典子・木幡邦男・野原精一・佐野友春・相崎守弘*・福島武彦*・海老瀬潜一*・永淵 修*

Ⅱ 研究成果発表一覧

1 誌上发表

発表者・題目・掲載誌・巻(号)・頁・刊年

- Imai A., Fukushima T., Matsushige K., Kim Y. H. : Fractionation and characterization of dissolved organic matter in a shallow eutrophic lake, its inflowing rivers and organic matter sources, *Water Res.* 35(17) : 4019-4028, 2001
- Choi K., Imai A., Kim B., Matsushige K. : Properties of dissolved organic carbon (DOC) released by three species of blue-green algae, *Korean J. Limnol.*, 34(1) : 20-29, 2001
- Fukushima T., Ishibashi T., Imai A. : Chemical characterization of dissolved organic matter in Hiroshima Bay, Japan, *Estuarine, Coastal and Shelf Sci.* 53 : 51-62, 2001
- 福島武彦, 中島俊之, 今井章雄, 松重一夫, 尾崎則篤 : EEMS による水中溶存有機物の特性解析, *水環境学会誌*, 24 : 686-692, 2001
- Imai A., Fukushima T., Matsushige K., Kim Y. H., Choi K. S. : Characterization of dissolved organic matter in effluents from wastewater treatment plants, *Water Res.* 36 : 859-870, 2002
- Choi K., Kim B., Imai A., Matsushige K. : Vertical distribution and fractionation of dissolved organic carbon in a deep Korean reservoir, *Lake Soyang, Archive Fur Hydrobiologia*, 155(2) : 333-352, 2002
- Kim Y. H., Lee S. H., Imai A., Matsushige K. : Characterization of dissolved organic matter in a shallow eutrophic lake and inflowing waters, *Korean Society of Environmental Engineers, Environ. Eng. Res.*, 7(2) : 93-101, 2002
- 今井章雄 : 湖沼における難分解性溶存有機物の蓄積, *海洋と生物*, 140 (Vol. 24 no.3) : 203-208, 2002
- 福島武彦, 松重一夫, 尾崎則篤, 藤岡那津子, 金澤真文 : 水域生物活性鉛直分布の測定, *水環境学会誌*, 25(11), 663-668, 2002
- 今井章雄 : 河川と湖沼・海域の環境基準の違い, *日本医事新報*, (4077) : 99, 2002
- 八馬正幸, 福島武彦, 尾崎則篤, 今井章雄, 松重一夫 : 光分解・生物分解による水中溶存有機物の変質とその EEM への影響, *水環境学会誌*, 26, 507-514, 2003
- 今井章雄 : 湖沼において漸増する難分解性溶存有機物の特性と影響, *かんぎぎょう*, 92 : 4-10, 2003
- Imai A., Matsushige K., Nagai T. : Trihalomethane formation potential of dissolved organic matter in a shallow eutrophic lake, *Water Res.* 37 : 4284-4294, 2003
- 金 庸桓, 李 淳和, 今井章雄, 松重一夫 : 雲門湖水中の溶存有機物の特性, *水環境学会誌*, 26 : 861-868, 2003
- Choi S., Imai A., Matsushige K., Nagai T., Kim Y. H., Kim B. : Photoalteration in biodegradability and chemical compositions of algae-derived dissolved organic matter, *Korean J. Limnol.*, 36(3) : 235-241, 2003
- 今井章雄 : 湖沼トレンドモニタリングでみる難分解性溶存有機物の特性と動態, *地球環境研究センターニュース*, 14(7) : 11-14, 2003
- Choi S., Ueki M., Imai A., Kim B., Kawabata Z. : Photoalteration of dissolved organic matter (DOM) released from *Microcystis aeruginosa* in different growth phases : DOM-fraction distribution and biodegradability, *Arch. Hydrobiol.*, 159(2) : 271-286, 2004
- 今井章雄 : 水環境におけるフミン物質の特徴と役割, *水環境学会誌*, 27(2) : 76-81, 2004
- Fukushima T., Matsushige K., Takamura N., Fukushima M. : Metabolic quotient measured by free-water method in six enclosures with different silver carp densities. *Hydrobiologia*, 511, 201-213, 2004
- Nagai T., Imai A., Matsushige K., Yokoi K., Fukushima T. : Voltammetric determination of dissolved iron and its speciation in freshwater, *Limnology* 5, 87-94, 2004

2 口頭発表

発表者・題目・学会等名称・開催都市名・年月

八馬正幸, 福島武彦, 尾崎則篤, 今井章雄, 松重一夫: 光分解・生物分解の水中溶存有機物, EEM への影響, 日本水環境学会 (第 36 回日本水環境学会年会講演集), 岡山, 2002.3

天野耕二, 松本邦治, 今井章雄, 松重一夫: 琵琶湖における溶存有機物分画データと流域特性の関連について, 日本水環境学会 (第 36 回日本水環境学会年会講演集), 岡山, 2002.3

菅谷龍雄, 東 照雄, 今井章雄, 田村憲司: ハス田を集水域とする小河川の水質動態, 日本土壌肥料学会 (日本土壌肥料学会講演要旨集, Vol. 48), 名古屋, 2002.3

駒井幸雄, 梅本 諭, 井上隆信, 今井章雄: 小集水域における溪流河川水質の変動からみた流出プロセスの推定, 第 36 回日本水環境学会年会 (第 36 回日本水環境学会年会講演集), 岡山, 2002.3

梅本 諭, 駒井幸雄, 井上隆信, 今井章雄: 自動採水システムによる降雨調査 - 降雨強度と栄養塩類濃度変動状況, 第 36 回日本水環境学会年会 (第 36 回日本水環境学会年会講演集), 岡山, 2002.3

Imai A., Matsushige K., Choi K., Fukushima T.: Characterization of dissolved organic matter in shallow eutrophic Lake Kasumigaura, ASLO Summer Meeting, Inter-disciplinary Linkages in Aquatic Sciences and Beyond, Victoria, Canada, 2002.6

小澤秀明, 福澤久子, 今井章雄: 河川水中の臭化物イオンがトリハロメタン生成能に及ぼす影響, 第 11 回環境化学討論会, 箱根, 2002.6

永井孝志, 今井章雄, 松重一夫, 横井邦彦: 吸着濃縮ボルタンメトリーによる湖水中の溶存鉄とその存在形態の分析, 日本陸水学会第 67 回大会, 府中, 2002.9

駒井幸雄, 梅本 諭, 井上隆信, 今井章雄: 東六甲山系における硝酸イオンを中心とした溪流河川水質の濃度特性, 日本陸水学会 第 67 回大会, 府中, 2002.9

今井章雄: 湖沼における新たな問題: 難分解性溶存有機物 - 霞ヶ浦を例として, 第 21 回琵琶湖研究シンポジウム, 大津, 2003.1

永井孝志, 今井章雄, 松重一夫, 横井邦彦: 霞ヶ浦における溶存鉄とそのスペシエーション, 第 37 回日本水環境学会年会, 熊本, 2003.3

池木葉子, 内海真生, 今井章雄, 松重一夫: 霞ヶ浦底泥中のメタン酸化菌とメタン生成菌の季節における群集構造変動, 第 37 回日本水環境学会年会, 熊本, 2003.3

梅本 諭, 駒井幸雄, 井上隆信, 今井章雄: 自動採水システムによる降雨調査 - 降雨量と栄養塩類の降雨時流出量 -, 第 37 回日本水環境学会年会, 熊本, 2003.3

駒井幸雄, 梅本 諭, 井上隆信, 今井章雄: 溪流河川における無機イオンの年間流出負荷量とサンプリング頻度の関係について, 第 37 回日本水環境学会年会, 熊本, 2003.3

菅谷龍雄, 東 照男, 今井章雄, 田村憲司: 水田における溶存有機物の分画と年間収支, 日本土壌肥料学会 2003 年度神奈川大会, 川崎, 2003.8

濱田洋平, 今井章雄, 松重一夫: 霞ヶ浦湖水中の溶存有機炭素の安定同位体比, 日本陸水学会 68 回大会, 岡山, 2003.9

梅本 諭, 駒井幸雄, 井上隆信, 今井章雄: 栗鹿山山林域からの栄養塩類の年間流出量, 第 38 回日本水環境学会年会, 札幌, 2004.3

駒井幸雄, 梅本 諭, 竹田洋子, 井上隆信, 今井章雄: 都市近郊山林集水域からの窒素流出の特徴について, 第 38 回日本水環境学会年会, 札幌, 2004.3

白砂大生, 福島武彦, 松重一夫, 今井章雄: 都市域からの降雨時負荷流出特性, 第 38 回日本水環境学会年会, 札幌, 2004.3

永井孝志, 今井章雄, 松重一夫, 福島武彦: 鉄の形態分析によるアオコ増殖制限物質の解析, 第 38 回日本水環境学会年会, 札幌, 2004.3

篠原 梓, 今井章雄, 松重一夫: 霞ヶ浦湖水中の糖類組成の評価, 第 38 回日本水環境学会年会, 札幌, 2004.3

発表者・題目・学会等名称・開催都市名・年月

川村修平，福島武彦，恩田裕一，今井章雄，松重一夫：湖沼への流入負荷，水質及び底質の関係，第38回日本水環境学会年会，札幌，2004.3

[招待講演]

今井章雄：富山県環境科学センター招待セミナー「湖沼において漸増する溶存有機物の特性と影響」，富山県環境科学研究所，富山，2002.12

今井章雄：第21回琵琶湖研究シンポジウム「湖沼における新たな問題：難分解性溶存有機物～霞ヶ浦を例として～」，琵琶湖研究所，大津，2003.1

今井章雄：下水道政策研究セミナー・国土交通省都市・地域整備局下水道部+（社）日本下水道協会共催「霞ヶ浦における難分解性溶存有機物の発生源原因と影響評価」国土交通省都市・地域整備局下水道部長室，2003.7

REPORT OF SPECIAL RESEARCH FROM
THE NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES, JAPAN

国立環境研究所特別研究報告

SR - 62 - 2004

平成 16 年 12 月 28 日発行

編 集 国立環境研究所 編集委員会

発 行 独立行政法人 国立環境研究所

〒 305-8506 茨城県つくば市小野川 16 番 2

電話 029-850-2343 (ダイヤルイン)

印 刷 前田印刷株式会社筑波支店

〒 305-0033 茨城県つくば市東新井 14-3

Published by the National Institute for Environmental Studies
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan
December 2004

無断転載を禁じます

