

## D-3 グローバル水循環系のリン・窒素負荷増大とシリカ減少による海洋環境変質に関する研究

### (2) 陸水域のシリカシンクに関する研究

#### ① 河川・湖沼におけるシリカ循環の生物地球化学過程に関する研究

滋賀県立大学環境科学部 環境生態学科

三田村緒佐武・丸尾雅啓・後藤直成

平成14年度～16年度合計予算額 12,719千円

(うち平成16年度予算額 4,002千円)

[要旨] 陸水域の停滞水域における溶存シリカ減少過程の詳細を把握するため、琵琶湖を停滞水域の仮想的なダム湖と想定し、主に生物的要因による溶存シリカの変動過程を調査・評価した。平成14年度においては、琵琶湖とその集水域における溶存シリカの分布とその変動について調査し、その結果、琵琶湖のような水滞留時間が長く、水深の大きな水域はシリカシンクの場合として大きく作用していることが明らかとなった。また、各河川の溶存シリカ濃度は各河川の集水域地質に主に依存すること、そして、増水時(降雨時)における1フラッシュによって平水時の数倍から数十倍に相当する溶存シリカの負荷があることが示された。平成15年度においては、琵琶湖とその集水域における各態ケイ素の分布を調査した。その結果、全ケイ素の大部分(74～96%)は溶存シリカとして存在しており、生物態ケイ素、コロイド態ケイ素、鉱物態ケイ素は全ケイ素の数%から数十%の範囲にあることが明らかとなった。生物態ケイ素とコロイド態ケイ素は琵琶湖表層(30m以浅)においてその濃度が高くなっていたことから、琵琶湖に流入した溶存シリカは、主に、浮遊珪藻によって取り込まれ、生物態ケイ素となり、その後、沈降過程における珪藻被殻の分解により、コロイド態ケイ素を経て、再び溶存シリカへと回帰するものと考えられる。また、一部の生物態ケイ素は完全に分解されることなく湖底へと沈殿・堆積しており、琵琶湖湖底堆積物中に多量の生物態ケイ素が存在していることが明らかとなった。平成16年度においては、琵琶湖における生物態ケイ素を中心とした沈降粒子の動態を評価した。その結果、循環期は、比較的珪藻類が優占する季節であり、生物態ケイ素が大きく分解を受ける前にすみやかに表層から深層へと沈降するため、湖水中からの溶存シリカ除去作用が大きくなる時期であると考えられる。以上のことから、琵琶湖におけるシリカシンクの規模は、主に、湖内の生物作用、つまり、珪藻による溶存ケイ素の取り込み、そして珪藻被殻の湖底への沈降・堆積の程度によって決まると考えられる。

[キーワード] 琵琶湖、集水域河川、溶存態ケイ素、生物態ケイ素、沈降粒子

#### 1. はじめに

陸水域における停滞水域の増加と窒素・リンの負荷増大にともなう陸水産珪藻類の増加は、珪藻類による溶存態ケイ素(溶存シリカ)の吸収・沈降・堆積を増大させる。その結果、沿岸海域への溶存シリカの供給が減少し、海洋生態系を支える植物プランクトン種組成に変化(珪藻類から非珪藻類)が起こる可能性が示唆されている。以上のような仮説は「シリカ欠損仮説」として、近年問題視されており、陸水域における溶存シリカの動態を把握することは重要な課題である。琵琶湖は、琵琶湖-淀川水系への水供給源として重要な役割を担っている湖である。また、琵琶湖は淀川を通じた瀬戸内海への物質供給源でもあり、海洋への溶存シリカの供給源としても重要であると考えられる。そこで、本サブサブテーマでは、琵琶湖を仮想的なダム湖(滞留時間が5.5から8年ほど)と想定し、琵琶湖とその集水域における溶存シリカの動態を生物地球化学的視点から評価した。

本研究では、主に、(1)琵琶湖とその集水域における溶存シリカの分布と変動、(2)降雨イベントにおける琵

琵琶湖流入河川の溶存シリカ濃度・負荷量の短期変動 (3) 琵琶湖とその集水域における各態ケイ素 (溶存態ケイ素、生物態ケイ素、鉱物態ケイ素) の分布、(4) 琵琶湖北湖最深部付近における沈降粒子 (生物態ケイ素、その他各種懸濁物質)、以上4つのテーマについて研究を行った。

## 2. 研究目的

本サブサブテーマでは、琵琶湖とその集水域の河川および内湖を対象として、生物的要因・化学的要因による溶存シリカと関連物質の関係を評価し、陸水域における溶存シリカの減少過程の実態を明らかにすることを目的とした。平成14年度から16年度にかけて、琵琶湖を仮想的な大ダム湖と想定し、主に以下の4項目について研究を行った。

- (1) 琵琶湖とその集水域における溶存シリカの分布と季節変動 (平成14~16年度)
- (2) 降雨イベントにおける琵琶湖流入河川の溶存シリカ濃度・負荷量の短期変動 (平成14~15年度)
- (3) 琵琶湖とその集水域における各態ケイ素の分布 (平成15年度)
- (4) 琵琶湖北湖最深部付近における沈降粒子 (平成16年度)

## 3. 研究方法

- (1) 琵琶湖とその集水域における溶存シリカの分布と季節変動 (平成14~16年度)

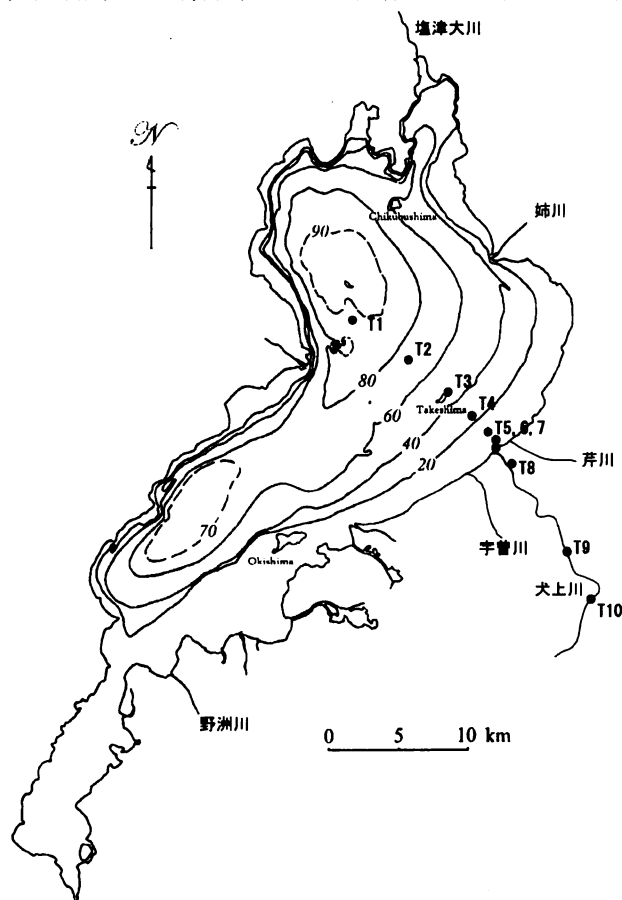


図1. 琵琶湖とその集水域河川における採水地点

- ① 琵琶湖北湖最深部付近 (T1) における溶存シリカ濃度の鉛直的季节変化

2002年1月より2005年2月にかけて、月に一回の頻度で、琵琶湖北湖最深部付近 (水深86m) において採水 (採水層: 0、2.5、5.0、7.5、10、15、20、25、30、40、50、60、70、80、86m) を行い、溶存シリカ濃度の鉛直分布を測定した (図1)。溶存態ケイ素はモリブデン黄色法により測定した。

- ② 琵琶湖表層全域における溶存シリカ濃度の水平分布 (平成14年度)

2002年6月6日から7日にかけて、琵琶湖全域56地点 (緯度、経度2分毎: 図2) において表面水をポリエチレン製バケツを用いて採水し、溶存シリカ濃度をモリブデン黄色法で測定した。

- ③ 琵琶湖内湖群における溶存シリカ濃度 (平成14年度)

2001年12月から2002年8月にかけて、月に1度の頻度で、琵琶湖内湖群 (24地点: 図3) の表面水における溶存シリカ濃度をモリブデン黄色法により測定した。

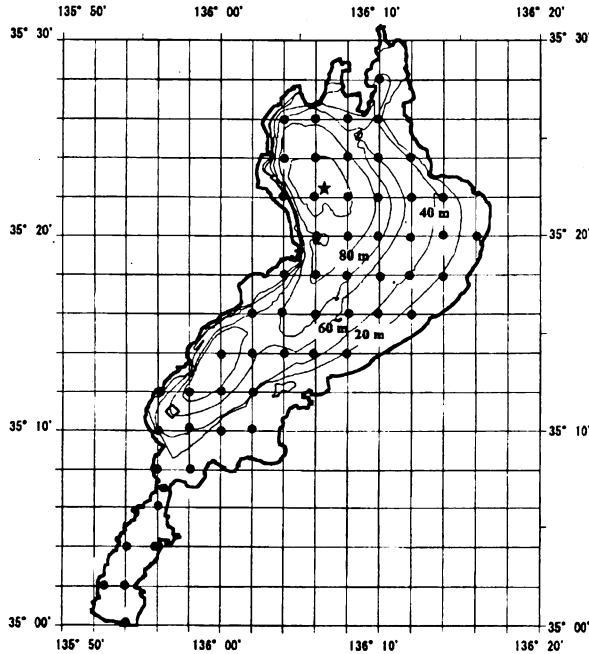


図2. 琵琶湖全域における表層水採水地点  
(★: 琵琶湖北湖最深部付近 Sta. T1)

は国土交通省琵琶湖工事事務所の観測データから算出し、溶存シリカ負荷量は実測した各河川の溶存シリカ濃度に流量を乗じて算出した。

(2) 降雨イベントにおける琵琶湖流入河川の溶存シリカ濃度・負荷量の短期変動

① 河川水中の溶存シリカ濃度と地質との関係 (平成14年度)

2002年12月10日から11日(24時間観測)にかけて、琵琶湖流入河川の塩津大川(花崗岩地帯)、芹川(石灰岩地帯)、宇曾川(凝灰岩・水田地帯)(図1)において1時間毎にポリエチレン製バケツを用いて河川水を採水し、溶存シリカ濃度を測定した。

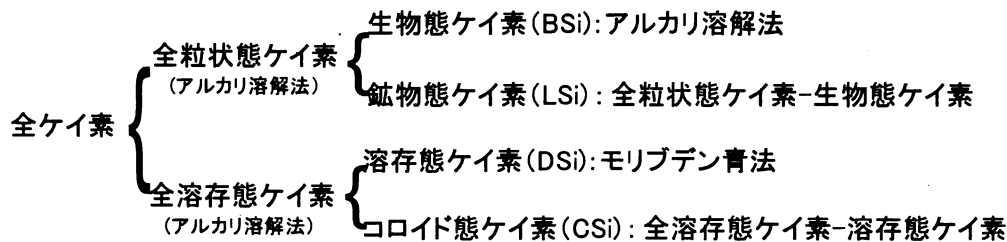
② 増水時における河川水中の溶存シリカ濃度・負荷量の短期変動 (平成15年度)

琵琶湖流入河川の平水時と増水時における溶存シリカ濃度および溶存シリカ負荷量を評価するため、2003年6月から同年12月にかけて、琵琶湖流入河川である野洲川と姉川において溶存シリカ濃度を測定した(図1)。2003年6月から12月までの野洲川と姉川の日平均流量

(3) 琵琶湖とその集水域における各態ケイ素の分布

① 琵琶湖湖水中および流入河川における各態ケイ素の分布 (平成15年度)

2003年10月6日と7日、犬上川上流から琵琶湖北湖最深部(St. 1~St. 10)にかけての測線において採水を行い、各態ケイ素(溶存態ケイ素(溶存シリカ)、生物態ケイ素、鉱物態ケイ素、コロイド態ケイ素)の分布を調査した(図1)。各態ケイ素は次のように分画・定義した。



まず、孔径0.4μmのポリカーボネートメンブランフィルターで試水を濾過し、濾液とフィルター試料中の全ケイ素をアルカリ溶解法にて測定した。濾液中の全ケイ素を全溶存態ケイ素、フィルター試料中の全ケイ素を全粒状態ケイ素と定義した。フィルター試料中の生物態ケイ素はDeMaster<sup>1)</sup>のアルカリ溶解法を改良し、測定した。つまり、0.2Mの水酸化ナトリウム溶液によって試料を溶解する際の鉱物態ケイ素と生物態ケイ素(珪藻の被殻)の溶解速度の違いを利用して、生物態ケイ素濃度を算出した。また、鉱物態ケイ素は全粒状態ケイ素と生物態ケイ素の差として算出した。濾液中の溶存態ケイ素はモリブデン青法で測定した。また、コロイド態ケイ素

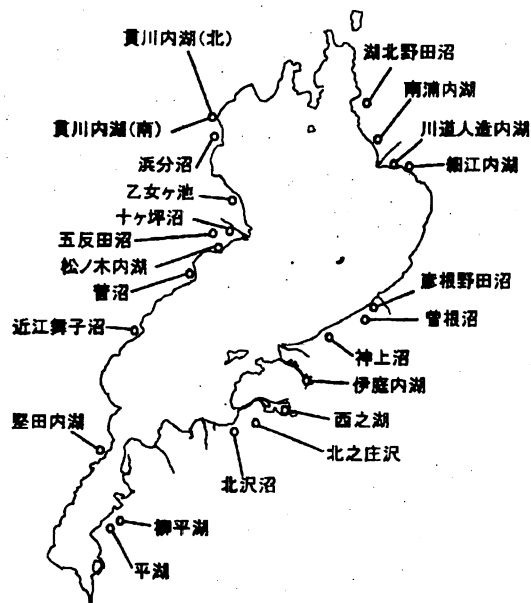


図3. 琵琶湖周辺内湖湖群の調査地点

は、全溶存態ケイ素と溶存態ケイ素の差として算出した。

② 琵琶湖湖底堆積物中における生物態ケイ素の分布 (平成14年度)

2002年10月24日、琵琶湖沿岸部から北湖最深部 (St. 1 ~ St. 7) において (図1)、表層0~10 cm までの湖底堆積物 (鉛直コアサンプル) を採取し、生物態ケイ素現存量を測定した。また、同時にクロロフィル a 含有量も測定した。生物態ケイ素の分析は DeMaster<sup>1)</sup> のアルカリ溶解法を改良して測定した。つまり、0.2M の NaOH 溶液によって試料を溶解する際の鉱物態ケイ素と生物態ケイ素 (珪藻被殻) の溶出速度の違いを利用して、生物態ケイ素現存量を算出した。クロロフィル a 濃度は 90% アセトンで色素を抽出したのち、ターナー蛍光光度計により測定した。

(4) 琵琶湖北湖最深部付近における沈降粒子 (平成16年度)

2004年11月より2005年2月にかけて、月に一回の

頻度で、琵琶湖北湖最深部付近 (T1) (水深 86 m) の水深 30、50、70 m 層にセジメントトラップ (内径: 67 mm、筒長: 550 mm、筒長/内径=8.2) を設置した (図1)。セジメントトラップの筒口にはヨコエビ等の侵入を防ぐため、目合 1 mm のナイロン製ネットを取り付けた。設置期間は2日から4日以内とした。セジメントトラップで採取した沈降粒子は、懸濁物質 (SS)、懸濁態炭素・窒素・リン (PC、PN、PP)、クロロフィル a (Chl.a)、フェオ色素 (Phaeo)、全ケイ素 (TSi)、生物態ケイ素 (BSi)、鉱物態ケイ素 (LSi) の測定に用いた。懸濁態炭素・窒素と懸濁態リンはそれぞれ CHN コーダー (MT-5、Yanako) とペルオキシ二硫酸カリウム分解法で測定した。クロロフィル a とフェオ色素は、90% アセトンで色素を抽出した後、蛍光法 (10-AU、Turner Design) にて測定した。全ケイ素は、試料をアルカリ融解した後、モリブデン黄色法で測定した。生物態ケイ素は、DeMaster<sup>1)</sup> のアルカリ溶解法を改良し、測定した。つまり、0.2M の水酸化ナトリウム溶液によって試料を溶解する際の鉱物態ケイ素と生物態ケイ素 (珪藻の被殻) の溶解速度の違いを利用して、生物態ケイ素濃度を算出した。また、鉱物態ケイ素は全ケイ素と生物態ケイ素の差として算出した。

また、懸濁粒子の元素組成を測定するため、2004年5月に T1 地点にて水深 30m、70m で採水をおこなった。試水 200ml をとり、Nuclepore フィルター (径 47mm、孔径 0.2 μm : Whatman 社) にて懸濁粒子を濾別した。フィルターは 60°C で 3 時間乾燥させ、5mm×5mm の切片に炭素蒸着を行った。これを走査型電子顕微鏡観察、併設した EDS による粒子数の計数、粒子径の測定および粒子物質に含まれる主要 15 元素について元素組成の測定を行った。粒子体積については球とみなして計算を行い、粒子の平均元素組成および体積換算後の組成を比較した。

4. 結果・考察

(1) 琵琶湖とその集水域における溶存シリカの分布と季節変動

① 琵琶湖北湖最深部付近における溶存シリカ濃度の鉛直的季節変化

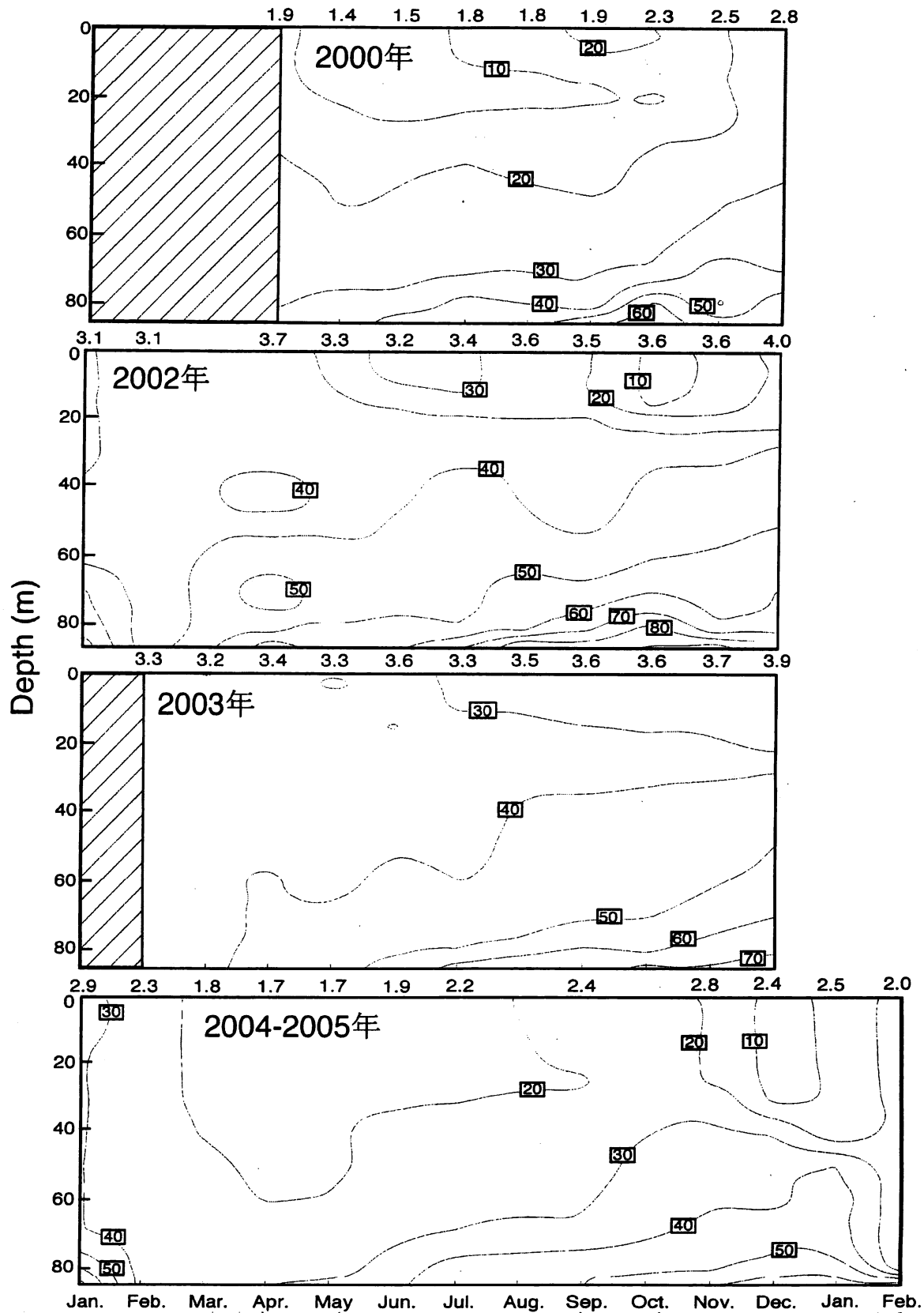
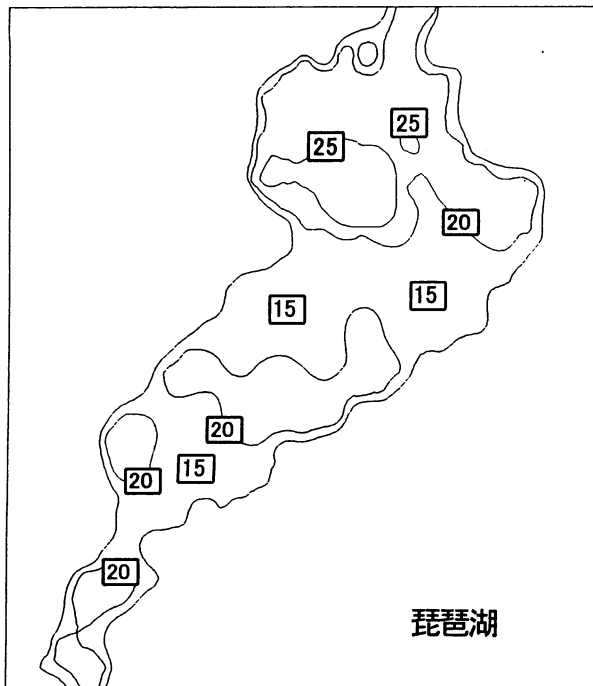


図4. 琵琶湖北湖最深部付近 (Sta. T1) における溶存シリカ濃度 ( $\mu\text{mol Si L}^{-1}$ ) の鉛直分布  
 グラフ上の値は水柱あたりの溶存シリカ現存量 ( $\text{mol Si m}^{-2}$ ) を示す

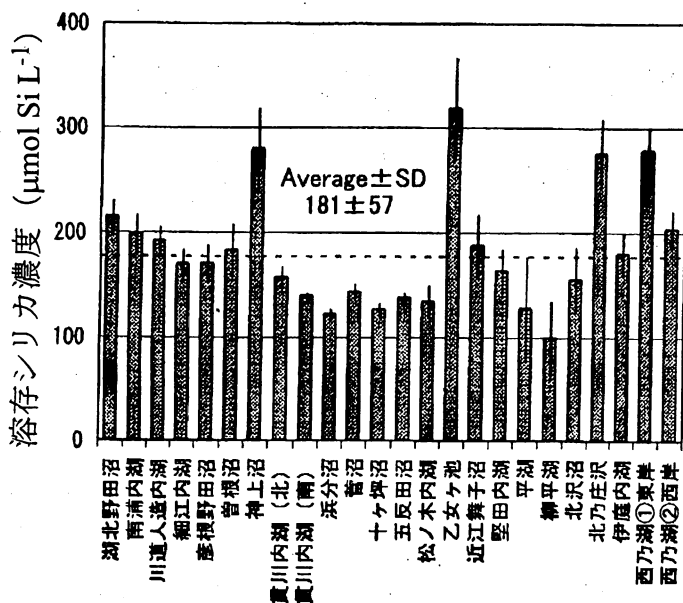
平成14～16年にかけて、北湖最深部付近における溶存シリカ濃度は $7.0 \sim 72.5 \mu\text{mol Si L}^{-1}$ の範囲を変動しており、2月の循環期を除いて、表層でその濃度が低く、表層以深では水深が深くなるにつれて濃度が上昇する傾向が観測された(図4)。特に、湖底付近での溶存シリカ濃度の上昇は著しく、成層初期(4月～5月)から徐々にその濃度が高くなり、成層後期(11月～12月)には $60 \mu\text{mol Si L}^{-1}$ 以上に達した。このような溶存シリカ濃度の季節変動パターンは毎年観察されている。しかし、その濃度と水柱あたりの現存量は年毎に異なり、2004年は、2003年と2002年と比較して低くなっていた。琵琶湖の溶存シリカ濃度は、湖外(集水域河川)からの溶存シリカの負荷量と湖内における生物・化学的作用の両者によって決まると考えられる。しかしこの時、年間降水量と溶存シリカ濃度との間には有意な関係が見られなかったことから、琵琶湖においては、湖内での諸作用、主に生物的作用によって溶存シリカ濃度が決まると考えられる。



② 琵琶湖表層全域における溶存シリカ濃度の水平分布

琵琶湖表層における溶存シリカ濃度は $15.2 \sim 24.1 \mu\text{mol Si L}^{-1}$  ( $20.4 \pm 5.4 \mu\text{mol Si L}^{-1}$ : 平均±標準偏差)の範囲にあった(図5)。その分布パターンは流入河川の溶存シリカ濃度を反映しており、北湖の天の川、芹川など石灰岩地帯を流れる河川の河口延長部で低く、花崗岩地帯を流下する塩津大川の河口沖で高くなっていた。つまり、琵琶湖表層における溶存シリカ濃度の分布は主に河川からの供給量を反映していると考えられる。

図5. 琵琶湖全域表層における溶存シリカ濃度 ( $\mu\text{mol Si L}^{-1}$ ) の水平分布 (2002年6月7、8日)



③ 琵琶湖内湖群における溶存シリカ濃度

琵琶湖内湖群の溶存シリカ濃度は $101 \sim 320 \mu\text{mol Si L}^{-1}$  ( $181 \pm 57 \mu\text{mol Si L}^{-1}$ )の範囲にあった(図6)。内湖群の溶存シリカ濃度は琵琶湖流入河川の溶存シリカ濃度とほぼ同じ範囲にあり、琵琶湖湖水中の溶存シリカ濃度よりも数倍高くなっていた。このことから、内湖のような水深が浅く、水の滞留時間が短い水域はシリカシンクの場合としては大きく機能していないと考えられる。

図6. 琵琶湖内湖群における溶存シリカ濃度 ( $\mu\text{mol Si L}^{-1}$ )

(2) 降雨イベントにおける琵琶湖流入河川の溶存シリカ濃度・負荷量の短期変動

① 河川水中の溶存シリカ濃度と地質との関係

黒雲母花崗岩地帯を流下する塩津大川の溶存シリカ濃度 ( $233 \pm 9.8 \mu\text{mol Si L}^{-1}$ ) がもっとも高く、次いで、上流が凝灰岩地帯で中流以下水田を流れる宇曾川 ( $212 \pm 13.0 \mu\text{mol Si L}^{-1}$ )、石灰岩地帯を流れる芹川 ( $88.5 \pm 3.1 \mu\text{mol Si L}^{-1}$ ) となっていた (図7)。この時、降水中の溶存シリカ濃度は  $3 \mu\text{mol Si L}^{-1}$  以下であったことから、各河川の溶存シリカ濃度は各河川の集水域の地質を反映しているものと考えられる。

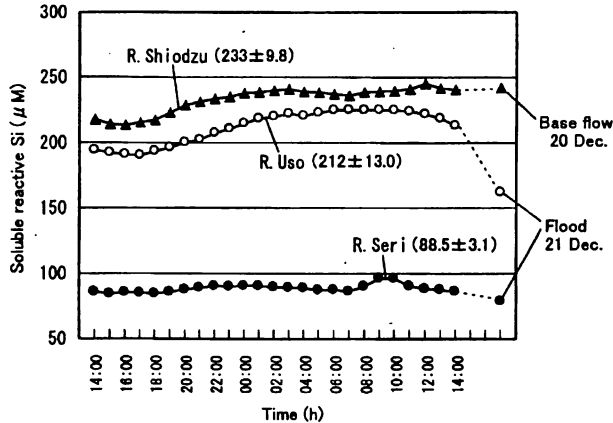


図7. 塩津大川 (花崗岩地帯)、宇曾川 (凝灰岩、水田地帯)、芹川 (石灰岩地帯) における溶存シリカ濃度 ( $\mu\text{mol Si L}^{-1}$ ) の経時変化

よぶ溶存シリカの負荷量があることが明らかとなった。つまり、増水時の1フラッシュで、平水時の数日から数十日分に相当する溶存シリカが琵琶湖に供給される。これらの結果より、河川水中の溶存シリカ濃度は、降水量によってそれほど顕著な濃度増減の影響は受けないが、河川から琵琶湖への溶存シリカ負荷量は河川流量に大きく依存し、大きく変動することが明らかとなった。

② 増水時における河川水中の溶存シリカ濃度・負荷量の短期変動

姉川と野洲川における溶存シリカ濃度と琵琶湖への負荷量 (各河川の溶存シリカ濃度に日平均流量を乗じた) を図8に示す。姉川と野洲川の溶存シリカ濃度は  $150 \sim 260 \mu\text{mol Si L}^{-1}$  程度の範囲にあり、比較的、濃度の変動幅は小さく、その負荷量は姉川と野洲川、それぞれ、 $29 \sim 3107 \text{ kmol Si d}^{-1}$  (平均  $286 \pm 453 \text{ kmol Si d}^{-1}$ )、 $3 \sim 2215 \text{ kmol Si d}^{-1}$  (平均  $482 \pm 730 \text{ kmol Si d}^{-1}$ ) の範囲にあり、増水時には平水時の数倍から数十倍にお

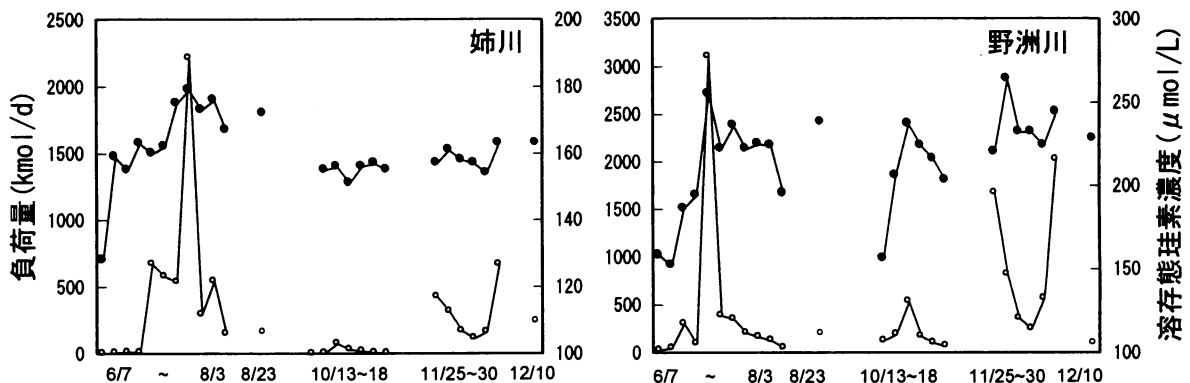


図8. 姉川と野洲川における溶存シリカ濃度  $\mu\text{mol Si L}^{-1}$  (●) と負荷量  $\text{kmol Si d}^{-1}$  (○)

(3) 琵琶湖とその集水域における各態ケイ素の分布

① 琵琶湖湖水中および流入河川における各態ケイ素の分布

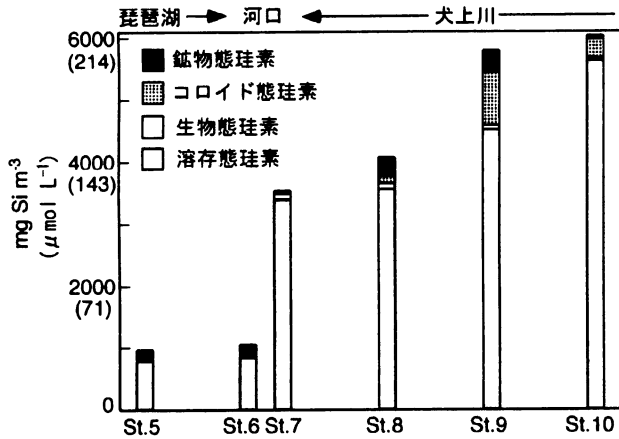


図9. 琵琶湖湖水中および流入河川における各態ケイ素 (mg Si m<sup>-3</sup>, μmol Si L<sup>-1</sup>) の分布

犬上川上流から下流にかけては、全ケイ素の 80~93%が溶存態ケイ素 (溶存シリカ) として存在しており、生物態ケイ素、コロイド態ケイ素、鉍物態ケイ素は、それぞれ、1~3%、1~15%、2~8%の範囲で変動していた (図9)。また、河川上流部から下流部にかけて、溶存態ケイ素濃度は減少傾向にあった。これは、河床に生息する付着ケイ素や河原に生息するイネ科の植物による溶存態ケイ素の取込のためと考えられる。琵琶湖河口域では、溶存態ケイ素濃度が急激に減少していた。この時、同時に行った調査では、この河口域における溶存態ケイ素の急激な減少は単に湖水 (低濃度) によってほぼ説明することができた。

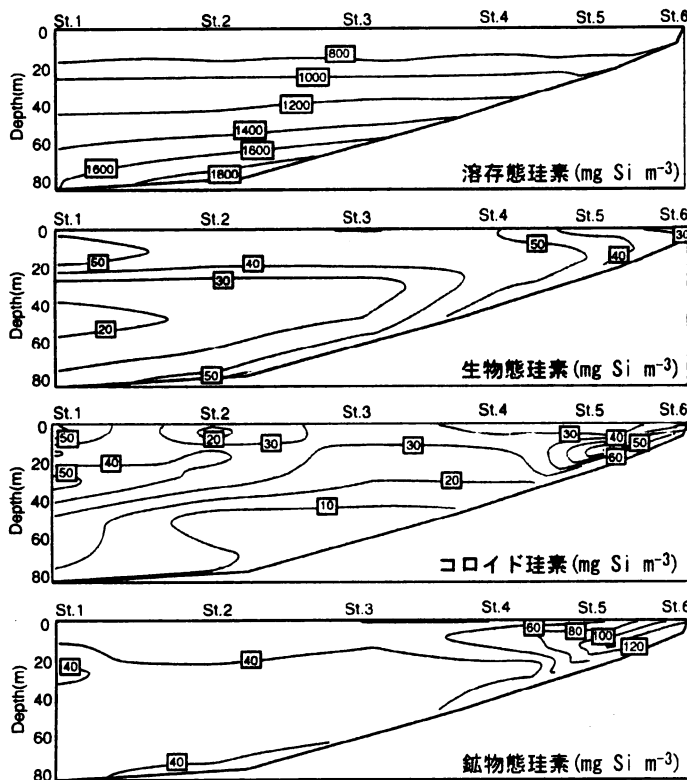


図10. 琵琶湖湖水中における各態ケイ素 (mg Si m<sup>-3</sup>) の分布

琵琶湖沿岸から北湖最深部において、溶存態ケイ素濃度は、浮遊珪藻による取込のため、表層で低く、表層で深、深度が深くなるにつれて増加した (図10)。また、全ケイ素に対する溶存態ケイ素の割合は、沿岸から沖合にかけて 74~96%の範囲で変動した。一方、生物態ケイ素濃度は、表層で高く、深度が増すにつれて一旦減少するが、深層で再び増加傾向となった。この深層での増加は有光層から沈降してきた珪藻の殻によるものと考えられる。また、全ケイ素に対する生物態ケイ素の割合は、2~8%の範囲で変動しており、表層でその割合が高くなっていた。鉍物態ケイ素濃度は沿岸部で高く、沖に行くに従って減少した。全ケイ素に対する鉍物態ケイ素の割合は2~13%の範囲で変動しており、沿岸でその割合が高くなっていた。



コロイド態ケイ素は表層から中層で高く、深層で低くなっていた。これは、有光層で増加した浮遊珪藻の被殻がその沈降過程において分解して生じたものであると考えられる。このように表層で生成されたコロイド態ケイ素は、深層に達することなく、表層から中層でさらに分解を受け、溶存態ケイ素へと回帰するものと考えられる。また、全ケイ素に対するコロイド態ケイ素の割合は、1~8%の範囲で変動しており、沖合の表層から中層と沿岸部の底層付近でその割合が増加していた。

② 琵琶湖湖底堆積物中における生物態ケイ素の分布

湖底堆積物中の生物態ケイ素現存量は、沿岸から最深部に渡り、0.1~100 mg Si (g dry sediment)<sup>-1</sup>の範囲で変動しており、琵琶湖湖底には多量の生物態ケイ素が堆積していることが明らかとなった(図 11)。また、その濃度分布は沖合に行くにしたがって増加した。この時、堆積物中の生物態ケイ素/クロロフィル a 比は 362~63800 となっていた。培養浮遊珪藻 2 種と付着珪藻 4 種の生細胞中の生物態ケイ素/クロロフィル a 比が、それぞれ、59~119, 27~47 となっていたことから、湖底堆積物中の生物態ケイ素のほとんど全ては、沿岸部の極表層を除いて、死んだ珪藻の被殻として存在していると考えられた。

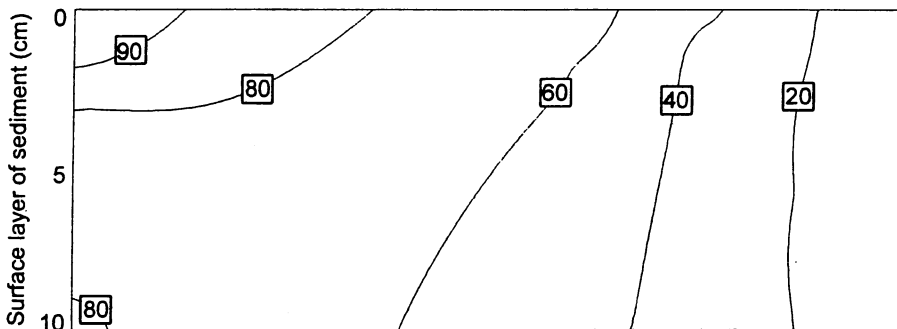


図 11. 琵琶湖北湖最深部付近 (T1) における湖底堆積物中の生物態ケイ素 (mg Si (g dry sediment)<sup>-1</sup>) の分布

(4) 琵琶湖北湖最深部付近における沈降粒子

沈降粒子を捕集するためのセジメントトラップは水温成層後期 (2004 年 11 月) から循環期 (2005 年 2 月) にかけて、北湖最深部付近 (水深 86m) の水深 30、50、70 m 層に設置した (図 12)。

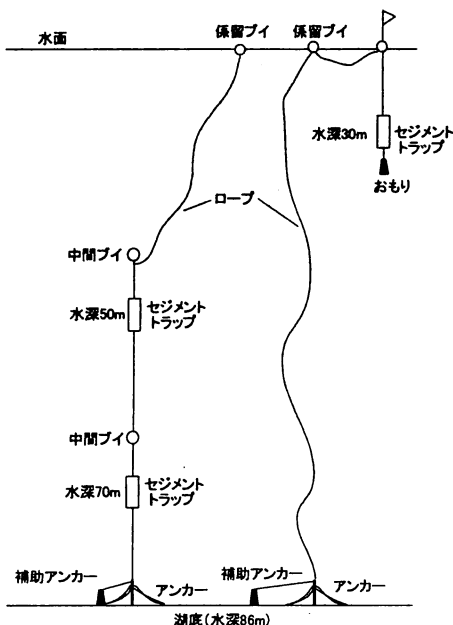


図 12. 北湖最深部付近 (水深 86m) におけるセジメントトラップ設置図

2004 年 11 月と 12 月には水深 30~40m に水温躍層が形成されており、2005 年 1 月には水深 40~50m に形成、2005 年 2 月には水温躍層は消失し、全層で水温 (8.0 °C) が一様となった (図 13)。

全沈降粒子 (懸濁物質) は表層 (水深 30 m) で 2845~4848 mg m<sup>2</sup> d<sup>-1</sup>、深層 (水深 70 m) で、1178~2924 mg m<sup>2</sup> d<sup>-1</sup> の範囲を変動していた (図 14)。全沈降粒子における懸濁態炭素・窒素・リンの割合は、それぞれ、5~15%、0.3~1.4%、0.1~0.2% となっていた。また、全沈降粒子におけるクロロフィル a+Phaeo の割合は 0.1~0.5% となっていた。全沈降粒子における生物態ケイ素の割合は 10~25% となっており、測定したパラメータ中で最も高い割合となっていた。また、全ケイ素における生物態ケイ素の割合が 40~82% となっていたことから、表層から沈降し、セジメントトラップに捕集されるケイ素の多くは生物態ケイ素であることが明らかとなった。

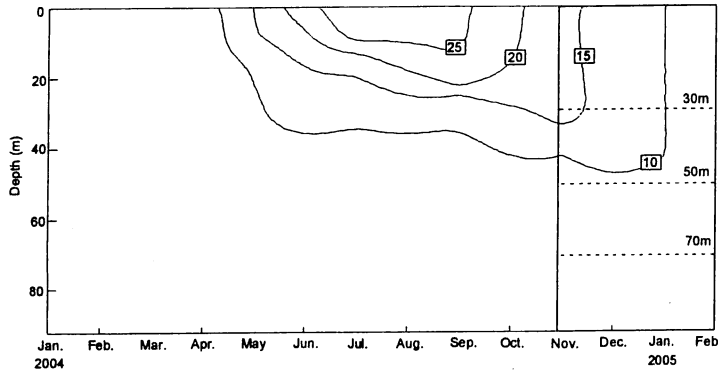


図 13. 琵琶湖北湖最深部付近 (T1) における水温の鉛直分布  
黒枠内はセジメントトラップを設置した期間の水温分布を示す

水温成層が消失する循環期は、比較的珪藻類が優占する季節であり、生物態ケイ素が大きな分解を受ける前にすみやかに表層から深層へ沈降するため、湖水中からの溶存シリカ除去作用が大きくなる時期であると考えられる。

表層 (水深 30 m) における生物態ケイ素の沈降量は 12 月に最大 ( $1090 \text{ mg Si m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ ) となっていた。この時、表層の溶存シリカ濃度が 2004 年 11 月 ( $19 \mu\text{mol Si L}^{-1}$ ) から 12 月 ( $7 \mu\text{mol Si L}^{-1}$ ) にかけて急激に低下しており、一方、表層以深でその濃度は増加していた。つまり、この時、表層の溶存シリカの急激な低下と深層における溶存シリカの増加は、珪藻による溶存シリカの取込、そして、深層への沈降・溶解の結果であると考えられる。このように、

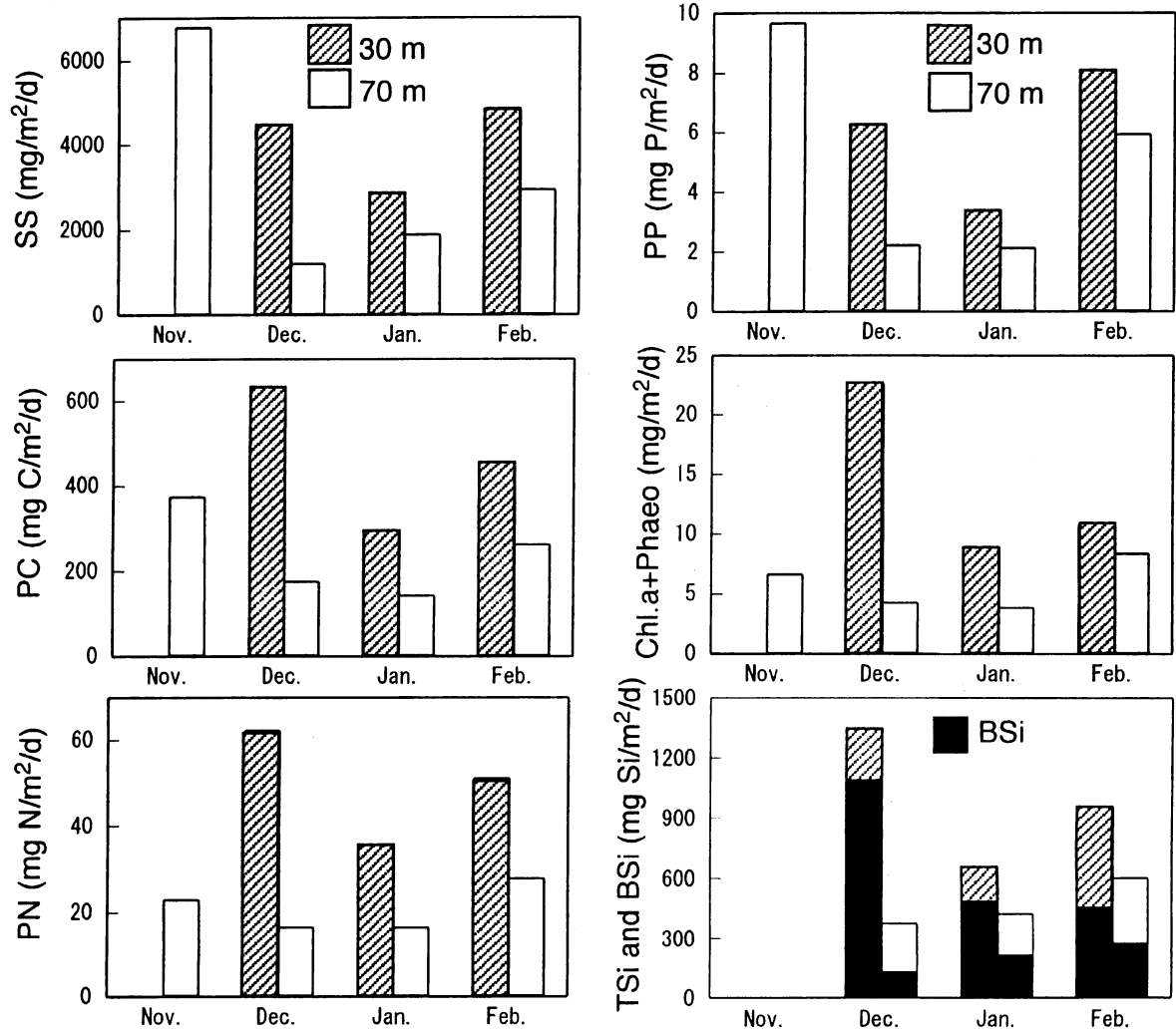


図 14. 琵琶湖北湖最深部付近 (T1) における沈降粒子 (2004 年 11 月～2005 年 2 月)

表1. 琵琶湖北湖最深部付近における沈降粒子の

炭素：窒素：リン：ケイ素 (モル) 比 (2004年11月～2005年2月)

採水月	水深(m)	C	N	P	Si
2004年11月	30	/	/	/	/
	75	100	5	1	76
12月	30	261	22	1	193
	75	207	17	1	72
2005年1月	30	225	23	1	158
	75	174	17	1	120
2月	30	145	14	1	62
	75	113	10	1	49

表2. 琵琶湖北湖最深部付近における懸濁粒子の

炭素：窒素：リン：ケイ素 (モル) 比 (2004年11月～2005年2月)

採水月	水深(m)	C	N	P	Si
2004年11月	30	99	10	1	48
	70	118	7	1	11
12月	30	193	25	1	75
	70	107	16	1	23
2005年1月	30	149	17	1	31
	70	102	15	1	27
2月	30	112	16	1	14
	70	119	17	1	16

セジメントトラップに捕集された沈降粒子と懸濁粒子中の炭素・窒素・リン：ケイ素 (モル) 比をそれぞれ、表1と表2に示す。沈降粒子と懸濁粒子ともに、成層後期(11月)から循環期(2月)にかけて、水深30mと70mにおける元素組成比の差が小さくなっている。これは、循環期においては、沈降粒子のほとんどは分解されることなく、表層から深層へと輸送されていることを示している。一方、成層期においては、水深30mと70mにおける元素組成比が大きく異なることから沈降粒子のかなりの部分が湖底へ堆積する前に分解されると考えられる。これらの結果は、循環期においてシリカシンの規模が拡大することを示している。つまり、琵琶湖におけるシリカシンの規模は物理的要因(水温成層の消長)と生物的要因(植物プランクトンの遷移)の両者の影響を受けて、季節的に大きく変動するものと考えられる。

次に2004年5月の懸濁粒子組成のSEMおよびEDSによる分析結果について述べる。図15に、EDSによって測定された、粒径 $0.4\mu\text{m}$ 以上の粒子について平均元素組成を示した。図15aは全粒子中の主要15元素平均組成を、図15bは粒子の体積を考慮した全粒子合計の元素組成である。水深30mの試料のほうが、特にシリカ比が高いことがわかる。水深30mの試料については計数された粒子280個のうち28個が粒径 $2\mu\text{m}$ 以上であった(水深70mでは253個中5個)ことから、大粒径の粒子に含まれるシリカの比率が高いことが示唆された。SEMの観察結果(図16a, b)からも、ケイ藻由来と見られる粒子が見られた。

次に、粒子のうち生物態と考えられるシリカの存在比について考察した。Nagai<sup>2)</sup>らは、琵琶湖における地殻由来粒子に含まれるSi/Al比を2.6としている。ケイ藻殻中のSi/Al比は、近年の文献では667~333とされているので、ほぼすべてのアルミニウムを鉱物態=地殻由来と考えることができる。アルミニウムの量から見積もられる鉱物態シリカを差し引くことで、各水深に存在する生物態ケイ素の存在比を見積もった。結果を表3に示す。水深30mの試料に含まれる懸濁粒子には、大型のものが多く含まれており、粒径 $2\mu\text{m}$ 以上のものは80%が生物態ケイ素であった。粒径が $1\sim 0.4\mu\text{m}$ のものはほとんどが鉱物態であり、生物態ケイ素は12%にとどまった。

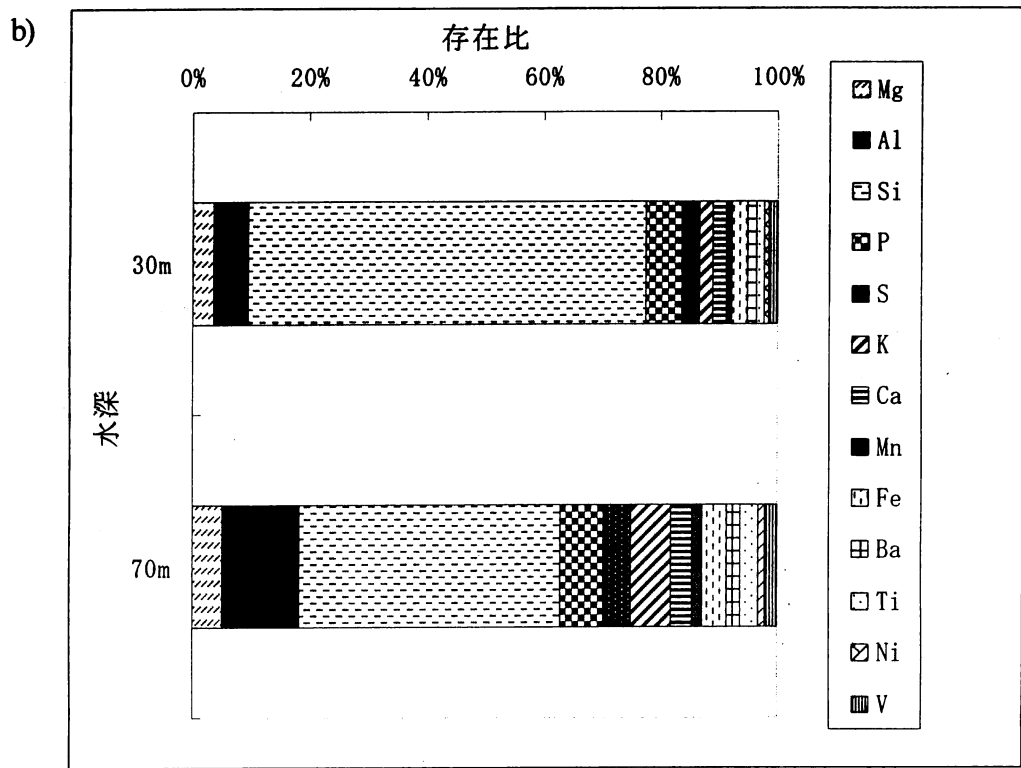
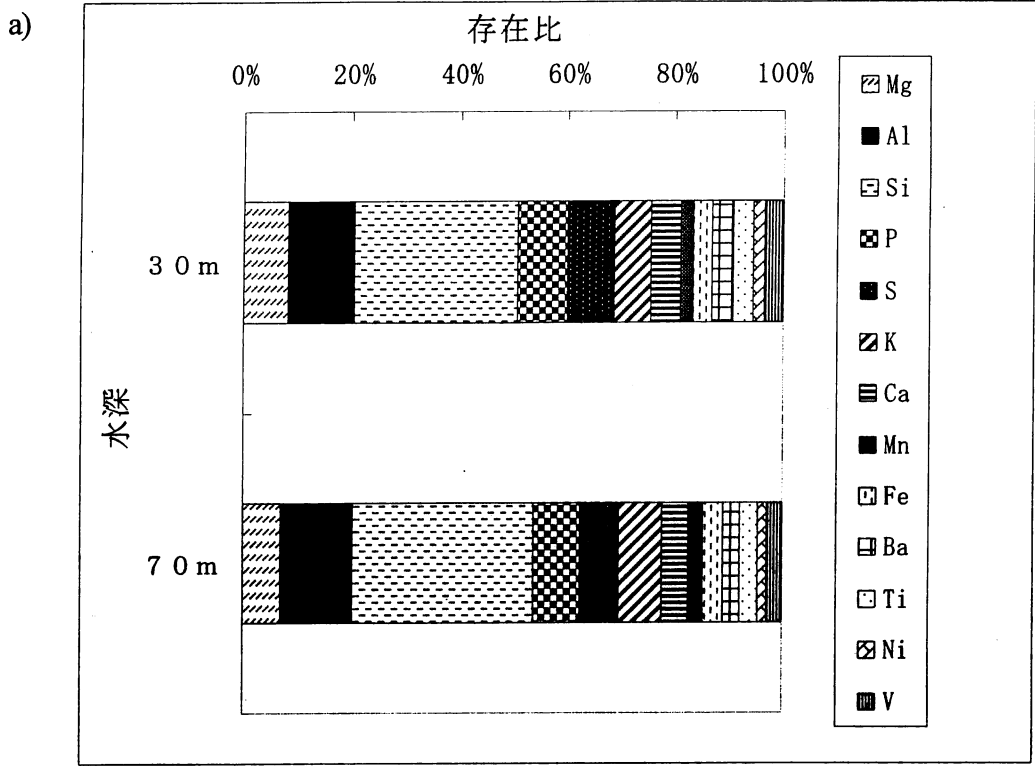


図 15 : a) 各粒子に含まれる主要 15 元素の平均存在比  
 b) 体積をかけた全粒子中の 15 元素存在比

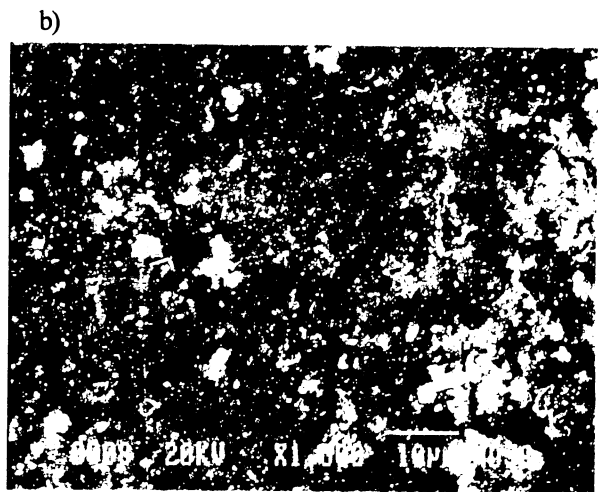
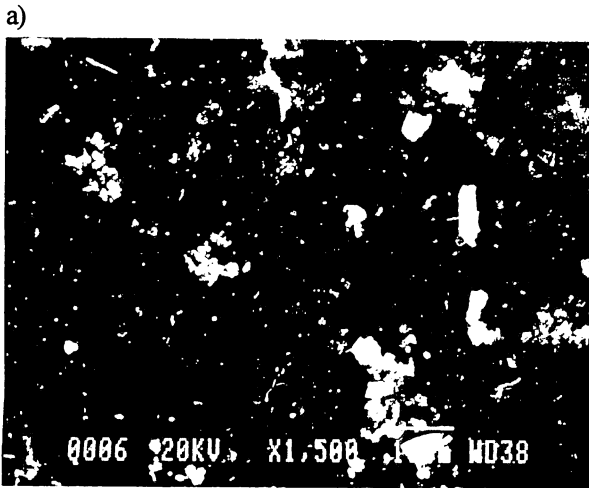


図 16 : a)水深 30m 試料の SEM 画像 : やや大型のケイソウ破片らしきものが見られる。

b)水深 70m 試料の SEM 画像 : 大型の粒子はほとんど見られない。

表 3 : 粒径別の鉱物態および生物態ケイ素の存在比 (すべて物質質量比を示す)

水深	粒径	鉱物態ケイ素	生物態ケイ素	個数	物質質量合計
30m	>2 $\mu$ m	20.5%	79.5%	28	505
	2-1 $\mu$ m	47.8%	52.2%	51	76
	1-0.4 $\mu$ m	88.4%	11.6%	201	26
70m	>2 $\mu$ m	53.2%	46.8%	4	55
	2-1 $\mu$ m	62.0%	38.0%	24	35
	1-0.4 $\mu$ m	93.1%	6.9%	223	30

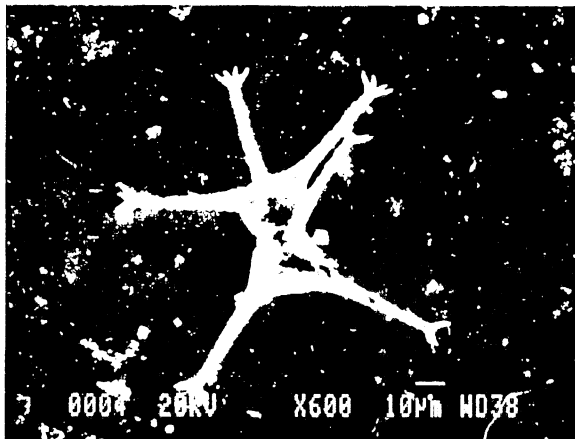


図 17 : (参考)琵琶湖懸濁態試料 (2000 年 6 月水深 60m) に含まれていた緑藻 (*Staurastrum*) の SEM 画像 : 拡大すると、多くの微小粒子が付着しているのが見える。EDS 測定の結果から半数近くが地殻起源粒子であり、半数はケイソウ由来と考えられる。

とどまった。水深 70m の試料に含まれる粒径  $2\mu\text{m}$  以上の粒子はわずかであり、生物態ケイ素も 47% であった。粒径が  $1\sim 0.4\mu\text{m}$  の粒子については 7% とほとんど変化がなかった。このことから、ケイ藻由来の懸濁粒子は浮遊・沈降に伴い徐々に溶解し、水深 70m 付近まではほとんど残っていないこと、また、粒径の細かい粒子は水深にかかわらず、ほとんどが地殻起源であることが明らかになった。生物態シリカのうち非常に大型の粒子は速やかに沈降すると考えられるが、沈降速度の遅い粒子は過程においてほとんど溶解してしまい、ほとんど残らないのに対し、径  $1\sim 0.4\mu\text{m}$  のほとんどを占める鉱物態シリカの粒子は変化を起こさない。これらの粒子は細かく、沈降にも時間がかかる。今回と採水時期は異なるが、図 17 の SEM 画像に示すように、ケイ藻殻表面や、他の藻類など大型の粒子に付着し、速やかに沈降するものも存在すると考えられる。ケイ藻の沈降は、深水層におけるケイ素をはじめとする栄養塩の再生に加え、微小鉱物粒子の深層への輸送も担っている可能性がある。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 琵琶湖とその集水域における溶存シリカの分布と季節変動 (平成 14~16 年度)

琵琶湖における溶存シリカ濃度は、 $7.0\sim 41.1\mu\text{M}$  (水深 30m 以浅)、 $12.0\sim 72.5\mu\text{M}$  (30m 以深) の範囲にあり、琵琶湖流入河川の溶存シリカ濃度の  $1/5\sim 1/10$  程度となっていたことから、琵琶湖はシリカシンクの場合であると言える。また、琵琶湖における溶存シリカ濃度の変動パターンは毎年同様の傾向を示した。つまり、成層初期 (4~5 月から、表層で溶存シリカ濃度が減少し始め、同時に深層で溶存シリカ濃度が増加し始める。その後、成層後期 (11 月~12 月) には湖底付近で溶存シリカ濃度が最大となり、循環期 (2 月) には全層で一様となる。しかしながら、その濃度と現存量 (水柱あたり) は年によって異なり、その主要因は外的要因 (降水量、河川からのシリカ負荷量) ではなく、内的要因 (琵琶湖内における生物・物理化学的要因) によるものであると考えられる。

琵琶湖内湖群の溶存シリカ濃度は  $101\sim 320\mu\text{mol Si L}^{-1}$  ( $181\pm 57\mu\text{mol Si L}^{-1}$ : 平均±標準偏差) の範囲にあり、琵琶湖流入河川の溶存シリカ濃度とほぼ同じ範囲にあった。このことから内湖のような水深が浅く、滞留時間の短い水域はシリカシンクの場合としては大きく機能しないと考えられる。

### (2) 降雨イベントにおける琵琶湖流入河川の溶存シリカ濃度・負荷量の短期変動 (平成 14~15 年度)

各河川の溶存シリカ濃度は各河川の集水域の地質に依存しており、花崗岩・火山岩地帯を流下する河川で濃度が高く、石灰岩地帯を流下する河川で濃度が低くなっていた。

流入河川から琵琶湖への溶存シリカの負荷量は河川における溶存シリカ濃度よりも河川流量に主に依存しており、増水時の 1 フラッシュによって平時の数倍から数十倍に相当する負荷があることが明らかとなった。

### (3) 琵琶湖とその集水域における各態ケイ素の分布 (平成 15 年度)

琵琶湖および流入河川においては、全ケイ素の大部分 (74~96%) が溶存態ケイ素 (溶存シリカ) として存在しており、生物態ケイ素、コロイド態ケイ素、鉱物態ケイ素は数% から十数% の範囲を変動していた。これら各態ケイ素の分布から、河川水中の溶存態ケイ素は河口域で湖水による希釈を受け、その濃度を大きく減少させ、琵琶湖流入後は主に浮遊珪藻による生物的取込によりさらに濃度を減少させると考えられる。浮遊珪藻によって形成された生物態ケイ素はその分解・沈降過程で一部はコロイド態ケイ素を介して溶存態ケイ素へと回帰し、一部 (琵琶湖に流入する溶存態ケイ素の 20~40%、平成 14 年度の研究成果より) は湖底へと沈殿・堆積するものと考えられる。

湖底堆積物中の生物態ケイ素現存量は単位面積 ( $\text{m}^2$ ) あたり  $8\sim 852\text{ g Si}$  (堆積物表層 0~5cm 積算) の範囲にあり、水柱中の生物態ケイ素現存量 ( $0.03\sim 6.6\text{ g Si m}^{-2}$ ) と比較して著しく高かった。また、その堆積物中における鉛直分布は表層 0~10cm までほとんど変化していなかったことから、生物態ケイ素は堆積後、ほとんど溶解しないものと推察される。このように多量の生物態ケイ素を含む堆積物からは、多量の溶存シリカが溶出して

いると考えられ、今後、湖底からの溶存シリカの溶出過程およびフラックスを把握することは琵琶湖のシリカ収支を考える上で重要であると考えられる。

また、堆積物中と培養した浮遊珪藻種および付着珪藻種の生物態ケイ素/クロロフィル a 比から、湖底堆積物中の生物態ケイ素は死んだ珪藻の被殻として存在していることが明らかとなった。

#### (4) 琵琶湖北湖最深部付近における沈降粒子 (平成 16 年度)

表層 (水深 30 m) からの移出速度 ( $0.41 \text{ d}^{-1}$ : 水深 30m における沈降速度 ( $\text{mg Si m}^{-1} \text{ d}^{-1}$ ) を表層 30m 以浅における溶存シリカ現存量 ( $\text{mg Si m}^{-2}$ ) で割った値) は 2 月の循環期に最大となった。つまり、循環期は、比較的珪藻類が優占する季節であり、生物態ケイ素が大きな分解を受ける前にすみやかに表層から深層へ沈降するため、湖水中からの溶存シリカ除去作用が大きくなる時期であると考えられる。一方、成層期は、水温躍層が形成されるため、表層から深層への生物態ケイ素の沈降が滞り、湖底に堆積する前にコロイド態ケイ素を経て溶存シリカへと溶解するため、この時期はシリカシンク作用が大きく働かないと考えられる。このことは、5 月に採取した懸濁粒子の生物態シリカの存在比が、深層でより低いこと、また SEM による直接観察からも確かめられた。

セジメントトラップに捕集された珪藻は、主に、円心目珪藻 (*Aulacoseira* spp., *Cyclotella* spp.) で、沿岸帯に生息する羽状目珪藻はほとんど見られなかった。同様に、堆積物中に見られる珪藻遺骸のほとんども円心目珪藻 (*Aulacoseira* spp., *Stephanodiscus* spp.) であることから、湖水中から溶存シリカ除去には、一部の円心目珪藻が大きく寄与していると考えられる。これらのことは、琵琶湖におけるシリカシンクの規模が季節的に大きく変動することを示唆している。

## 6. 引用文献

- 1) DeMater, D. J. (1981) The supply and accumulation of silica in the marine environment. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 45, 1715-1732.
- 2) Nagai M., Sugiyama M., Hori T. (2001) Environmental chemistry of rivers and lakes, Part VII. Fractionation by calculation of suspended particulate matter in Lake Biwa into three types of particles of different origins. *Limnology*, 2, 147-156.

## 7. 国際共同研究等の状況

なし

## 8. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表 (学術誌・書籍)

<論文 (査読あり)>

- ① H. Miyake, K. Nozaki, and O. Mitamura: *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, 28, 1727-1732 (2002)

"Chemical characteristics of small lagoons "Naiko" connected with Lake Biwa"

<その他誌上発表 (査読なし)>

なし

<書籍>

- ① 三田村緒佐武: 水ハンドブック編集委員会編, pp. 704, 丸善 (2003)

「水ハンドブック」

<報告書類等>

なし

(2) 口頭発表

①岩田拓朗、後藤直成、三田村緒佐武：日本陸水学会近畿支部会 (2003)

「琵琶湖における湖底堆積物および湖水中の生物態シリカの分布」

②岩田拓朗、後藤直成、三田村緒佐武：日本陸水学会 (2003)

「琵琶湖における湖底堆積物および湖水中の生物態シリカの分布」

③安積寿幸、後藤直成、三田村緒佐武：日本陸水学会近畿支部会 (2004)

「琵琶湖と流入河川における各態ケイ素の分布」

④後藤直成、丸尾雅啓、三田村緒佐武：日本水環境学会 (2004)

「琵琶湖とその集水域における溶存シリカの分布と変動」

⑤後藤直成、丸尾雅啓、三田村緒佐武：日本海洋学会シンポジウム「陸水域のシリカ欠損とその海域影響の可能性」つくば (2004)

「琵琶湖と流入河川におけるシリカ変動過程」

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

なし

(5) 一般への公表・報道等

なし

## 10. 成果の政策的な寄与・貢献について

本サブサブテーマ代表の三田村が、国土交通省「淀川水系流域委員会」のダム建設が自然環境に及ぼす影響の議論の中で「ダム湖水の平均滞留時間が長いと湖水中で植物プランクトンの発生を促すことが知られている。その際、珪藻の水の華形成が生じると、窒素、リン化合物と同様にケイ素化合物も植物プランクトンの栄養源として利用・固定され、下流域への供給が減少することがある。このことは、例えばケイ素欠損によって琵琶湖のような湖のプランクトン種組成に影響を及ぼすだけでなく、沿岸海域の赤潮プランクトン種を珪藻から鞭毛藻などで見られる毒性プランクトンへ遷移する可能性がある。このような側面からもダム建設が環境に及ぼす影響を精査検討する必要がある」とコメントし、水系管理政策への提言とした。