

洞爺湖及び流出河川におけるメタンの分布

吉 田 磨¹⁾・林 えれな^{1,2)}・吉 田 剛 司³⁾
加 藤 康 大⁴⁾・室 田 欣 弘⁵⁾

Methane distribution in the Lake Toya and its outlet river

Osamu YOSHIDA¹⁾, Elena HAYASHI^{1,2)}, Tsuyoshi YOSHIDA³⁾, Yasuhiro KATO⁴⁾ and Yoshihiro MUROTA⁵⁾
(Accepted 24 July 2009)

1. はじめに

1.1. メタンの生成と消費

メタン (CH_4) は一酸化二窒素 (N_2O) や二酸化炭素 (CO_2) と同様、対流圏における温室効果に寄与する重要な気体とされ、海洋のみならず、湖、湿地、水田などの自然の供給源からも放出されている。またメタンは、二酸化炭素の還元や酢酸のような炭素化合物の発酵によって生成される気体であり、メタンを生成する微生物は、酸素存在下では生息できない絶対嫌気性を示すため、メタンは還元環境で生成するとされている。湖底や河床の堆積物内の嫌気的環境で生成されたメタンが、拡散などにより好気的環境に輸送されると細菌群集による好気的メタン酸化が活発に起こる。このメタン酸化に関わる細菌群集であるメタン酸化細菌 (methanotroph) は、メタンを酸化することでエネルギーを獲得し、メタン由来の炭素を用いて有機物を生産する。生産した有機物が消費されることにより、メタンを基盤とするメタン食物連鎖が成立する。湖沼や河川においては、このメタン食物連鎖が生態系の重要な構成要素であることが指摘されている [Jones *et al.*, 1999; Bastviken *et al.*, 2003]。

湖は、メタンの自然放出総量の 6-16% とされてお

り、海洋からの放出量 3-7% よりも高く見積もられている [Bastviken *et al.*, 2004]。しかし、その見積り量には幅がみられ、メタンによる温室効果を見積もる上で不確実性が高い。

1.2. 湖沼の特徴

湖沼は、自然湖沼 (断層湖、堰止湖、海跡湖、火山湖、カルデラ湖、河道の蛇行跡の三日月湖) と人造湖 (ダム湖) に分類され、我が国における 1 ha 以上の自然湖沼は 483 湖沼ある [社団法人 日本水環境学会 水環境ハンドブック, 2006]。

一般に、我が国における湖沼環境は流入と流出の影響を受けやすい。流入水は集水域の降雨や湧水に依存し、その水量や水質は、集水域の土地利用、地質、植生、腐植堆積物、人工的な汚濁負荷などの影響を強く受ける。そのため、湖沼に湛水することで、洪水期、渇水期を通じ、下流河川の水量は一般に平滑化され、下流河川の水質は渇水域で生じる化学的、生物的作用を受けており、湖沼の存在しない河川のものとは大きく異なっている。流入量に対して湖沼の湛水体積が大きいことも特徴であり、水の平均滞留時間 (寿命) が長く、多少の栄養塩流入はあるものの、流入栄養塩の多くは、長年の湖内生産活動の結果として堆積された底質を介して水中に回帰す

¹⁾ 酪農学園大学環境システム学部生命環境学科環境地球化学研究室

Laboratory of Environmental Geochemistry, Department of Biosphere and Environmental Sciences, Faculty of Environment Systems, Rakuno Gakuen University, 582 Bunkyo-dai-Midorimachi, Ebetsu, Hokkaido 069-8501, Japan

²⁾ 現在, 東京工業大学大学院総合理工学研究科環境理工学創造専攻

Present Address: Department of Environmental Science and Technology, Interdisciplinary Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology, 4259 Nagatsuta-cho, Midori-ku, Yokohama, Kanagawa 226-8502, Japan

³⁾ 酪農学園大学環境システム学部生命環境学科野生動物保護管理学研究室

Laboratory of Wildlife Management, Department of Biosphere and Environmental Sciences, Faculty of Environment Systems, Rakuno Gakuen University, 582 Bunkyo-dai-Midorimachi, Ebetsu, Hokkaido 069-8501, Japan

⁴⁾ 環境省北海道地方環境事務所洞爺湖自然保護官事務所

Toyako Ranger Office for Nature Conservation, Hokkaido Regional Environment Office, Ministry of the Environment, 142-5, Toyako Onsen, Toyako-Town, Abuta-gun, Hokkaido 049-5721, Japan

⁵⁾ UW クリーンレイク洞爺湖

UW Clean Lake Toyako, 144, Toyako Onsen, Toyako-Town, Abuta-gun, Hokkaido 049-5721, Japan
所属学会: American Geophysical Union

るという過程を示し、短期的収支から、流入負荷よりも湖内循環の割合が多くなる。全自然湖沼の4分の1は貧栄養湖であり、これは水深30 mを超える湖に多く、溶存する栄養塩類、とりわけ窒素、リンが乏しく、沿岸帯の大型植物群落、植物プランクトン群集の現存量・生産量はともに小さい。湖水の吸光係数は小さく、透明度は5-10 m程度となる。溶存酸素の消費量は小さく、夏季にも溶存酸素濃度が減少することは少ない。また腐植栄養型は、全体の14%程度に当たり、北海道の湿原に多く、平均深度は、1.6 m程度と浅く、腐植質に富み、褐色をおびて弱酸から中性を示す。全自然湖沼の5%程度は、無機酸や有機酸に富んだ酸性湖に分類され、特に火山性地帯では、しばしば強酸性の湖沼がみられる。

森林や畑の影響の強い湖沼では溶存有機物に対してフミン物質の占める割合が高く、田面流出水、下水処理水および池の水が流入する湖沼では親水性酸の占める割合が高い。

水深の深い湖沼では、夏季に水温躍層が形成され、表層水と深層水は混ざり合わなくなり、それぞれ独立した水塊が形成され、成層化する。秋になり表層水温が低下すると水温躍層の位置は深くなり、やがて全層が混ざり合う。春に水温が上昇し、表層水温が淡水最大密度の4℃になると再び循環が起こり、夏の成層期へと移行する。成層期では河川からの流入水は密度(水温)が同じ中層に流入することから、表層水では栄養塩が消費しつくされ、植物プランクトンの量は減少する。深層では、表層から沈降してきた有機物の分解が起こり、酸素が消費されるとともに栄養塩が蓄積される。富栄養化した湖沼では、表層から沈降してくる有機物量が多く、大量の酸素が消費され貧酸素から無酸素の状態になる。深層が無酸素化すると底質から栄養塩の回帰量が多くなり富栄養化はいつそう促進される。多くのダム湖では深層が無酸素化し大きな利水障害が引き起こされている。また、淡水赤潮の発生やアオコの発生による水質悪化が深刻な問題になっている[畑, 1987]。河川水が中層へ流入した際、表層水は上流側へと移動する。赤潮プランクトンは水によって河口部分に集積するとともに、流入水に含まれる栄養塩を利用して大增殖する。

浅い湖では、夏季にも強固な成層構造が形成されることは少なく、風などにより容易に全層が混合するため、水質は湖底の影響を強く受ける。湖底では水温の上昇とともに有機物分解が盛んになり、底泥間隙水中には高濃度の栄養塩が蓄積され、水中に回帰する [Otsuki *et al.*, 1987]。河川を通しての流入

負荷は水量が多ければ増加するが、濃度としての変動は少ない。それに対して底泥から回帰する栄養塩は湖水へ直接負荷されることから直接湖水の濃度増加をもたらす。

1.3. 洞爺湖

洞爺湖は、北緯42度33分、東経140度50分に位置し、約11万年前の巨大な噴火により生まれた直径8-11 kmのカルデラ湖である。海洋、外洋域、沿岸域とは異なり準閉鎖系の淡水湖であり、面積70.7 km²の円形をしており、支笏湖に次ぐ日本で9番目の大きさを誇っている。また平均水深は、117.0 mであり、最大水深179.7 mと日本で4番目の深さをもっているため、夏季に水温躍層が形成され、主として湖内循環の起こる貧栄養湖の特徴のある湖といえる。

湖中央には、洞爺カルデラの誕生後、約5万年前に始まった火山活動によってつくられた、7個の密集した溶岩ドームからの中島、南岸には現在も活動し続けている有珠山があり、火山性の地域的特徴を示している。

また本湖は、長良川水系の第2級河川であり、洞爺湖で循環した湖水が流出して壮瞥川を流れ、長良川へと合流している(図1)。

本研究では特に温暖化物質が、貧栄養湖の洞爺湖ではどのような挙動を示すのかということに注目し、メタンの濃度に加えて、湖から大気へのフラックスを求め、生成消滅過程の特徴を空間的に明らかにすることを目的とした。併せて湖に生息する生物の生息環境を洞爺湖の水質から考察するため、濁度、COD、栄養塩、透明度を調べ、温室効果気体の湖水内物質循環と湖水環境に棲む生物環境を把握することで、洞爺湖生態系における生物地球化学的物質循環を明らかにする研究へと貢献することを期待している。

2. 方 法

2.1. 観測現場及び採水方法

観測は、2008年8月13日(8月①)、8月23日(8月②)、9月22日、10月23日、11月12日及び13日、12月3日及び4日の6回行った。

表面水及び河川は、プラスチック製バケツを用いて採取し、深層水は、ニスキン採水器(容量2.5 L)を用いて採取した。また、湖(桟橋付近6点13層、滝之上3点10層)及び新山沼(SR 03, SR 04)では、図2のように生命環境学科所有のカヌーを用いて採水した。

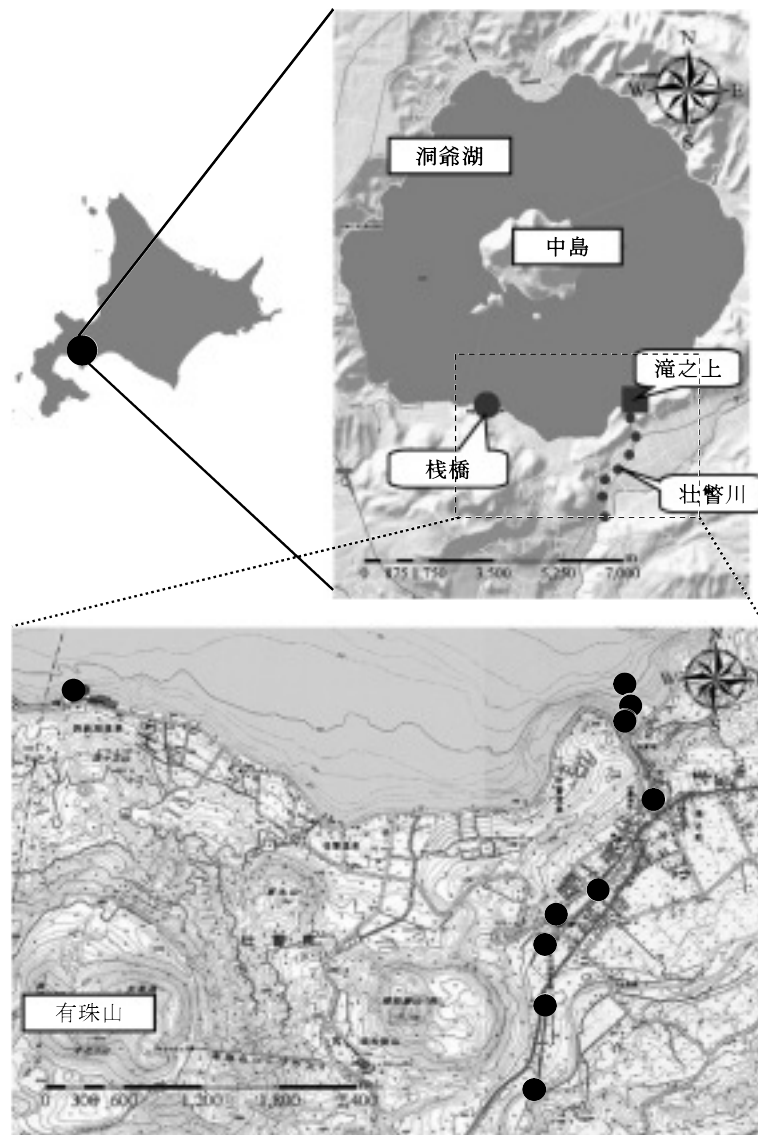


図 1. 洞爺湖の位置と観測点 (●)。

2.1.1. 栈橋付近測点

2005 年に栈橋付近で、外来種であるウチダザリガニ [*Pacifastacus leniunculus*] の生息が初めて確認されて以来、生息数は毎年増加している。この増加に影響する洞爺湖水質の解明及び増加に伴う湖水の溶存温暖化物質との関連を研究する目的でこの栈橋付近を選び、測点とした。測点は、測線を L で表し、4 ライン上で 6 点 13 層からなる (図 3, 4)。

L 01-5 <0 m>, L 01-5 <b-1 m>, L 01-10 <0 m>, L 01-10 <b-1 m>, L 01-15 <0 m>, L 01-15 <5 m>, L 01-15 <b-1 m>, L 02-10 <0 m>, L 02-10 <b-1 m>, L 04-10 <0 m>, L 04-10 <b-1 m>, L 06-10 <0 m>, L 06-10 <b-1 m> にて採水を行った (図 3)。

-5, -10, -15 はそれぞれ、およそ 5 m, 10 m, 15

m と測点の水深 (最大深度) を示している。5 m と 10 m は表層 0 m と深層 b-1 m (底より 1 m 浅い地



図 2. ニスキン採水器を用いた採水の様子。

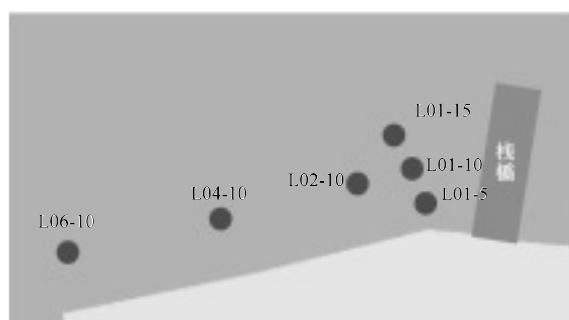


図 3. 棧橋付近測点。

点)の2層から採水を行い、15 mは表層0 m, 5 m, 深層b-1 mの3層から採水を行った(図4)。

2.1.2. 滝之上及び壮瞥川の測点

棧橋付近の測点と比較する上で、周りに自然の多い、洞爺湖東湖畔の滝之上キャンプ場付近に測点を設定した。滝之上では測点をTで表し、3地点10層、T01<0 m>, T01<5 m>, T01<10 m>, T01<20 m>, T01<b-1 m>, T02<0 m>, T02<7 m>, T02<b-1 m>, T03<0 m>, T03<b-1 m>にて採水を行った(図5-7)。測点の水深はそれぞれT01は27 m, T02は15 m, T03は3 mである。

壮瞥川は、測点をSRで現し、6地点、SR01, SR02, SR03, SR04, SR05, SR06にて採水を行った(図5)。

2.2. 分析方法

2.2.1. 栄養塩

栄養塩試料は100 mLのポリボトルに採取した。試料を研究室に持ち帰り、フィルターを通して冷凍保存した。

栄養塩の分析には、Nutrients Auto Analyzer (BLTEC)を用いた。標準溶液から検量線を作成し、硝酸塩(NO_3^-)、亜硝酸塩(NO_2^-)、リン酸塩(HPO_4^{2-})、ケイ酸塩(SiO_2)を測定した[海洋観測指針 第1部, 1999]。

標準溶液は、硝酸塩測定には硝酸カリウム(KNO_3)、亜硝酸塩測定には亜硝酸ナトリウム(NaNO_2)、リン酸塩測定にはリン酸二水素カリウム(KH_2PO_4)、ケイ酸塩測定にはヘキサフルオロケイ酸ナトリウム(Na_2SiF_6)を用いた。

標準溶液はそれぞれ[NIST, 2005], [RTI, 2005], [飯田ら, 2003], [奥, 2002], [水の分析, 2005]の方法を用いて試薬を恒量化するために検定済みの容量器具に正確にはかりとって溶解させたものを一次標準溶液(A Standard)として用いた。A Stan-

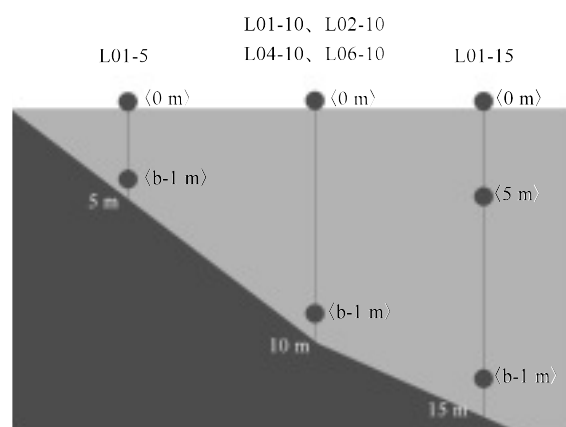


図 4. 棧橋付近採水層断面。

dardは冷暗所で半年間保存可能であるが、それを希釈して作成する2次標準溶液(B Standard)は数日間、測定用標準溶液(ワーキングスタンダード)は数時間しか使用に耐えられないため、測定毎に調整した[海洋観測指針 第1部, 1999]。

栄養塩4種硝酸塩(NO_3^-)、亜硝酸塩(NO_2^-)、リン酸塩(HPO_4^{2-})、ケイ酸塩(SiO_2)を測定したNutrients Auto Analyzeは、2種類ずつ分析のできる機械である。しかし、リン酸塩の値が低かったことで、リン酸塩とケイ酸塩を分けて測定を行った。

硝酸塩の標準試料である硝酸カリウム(KNO_3)は、110℃で乾燥させ、Cd-Cu還元法を、亜硝酸塩の標準試料である亜硝酸ナトリウム(NaNO_2)は、105℃で乾燥させ、ジアゾ法を、リン酸塩測定は、リン酸二水素カリウム(KH_2PO_4)を用いて105℃で乾燥させ、リンモリブデン法を、ケイ酸塩測定にはヘキサフルオロケイ酸ナトリウム(Na_2SiF_6)を120℃で乾燥させ、シリカモリブデン法を用いて分析した[吉田ら, 2009]。

2.2.2. 溶存酸素濃度

溶存酸素濃度(Dissolved Oxygen: DO)試料は、容量検定済みの容積約100 mLのDO瓶に、採取した[海洋観測指針 第1部, 1999]。

ディスペンサーを用いてI液硫酸マンガン溶液($\text{MnSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$)と続いてII液:ヨウ化カリウム・水酸化ナトリウム混合液($\text{NaOH} \cdot \text{NaI}$)を1 mLずつ加えて酸素を固定(式1)させて、DO瓶を静置し、沈殿を沈降させ、直射日光を避けて数時間熟成させた後、紀本電子工業株式会社製の溶存酸素滴定装置DOT-05を用いて測定を行った。

測定項目は、水中溶存酸素:溶存酸素濃度($\mu\text{mol kg}^{-1}$)、酸素飽和度(%), 飽和酸素量(mgO L^{-1})



図 5. 滝之上及び壮瞥川における測点。

であり、測定原理としてウィンクラー変法のチオ硫酸ナトリウム自動滴定を行っている [Knap et al., 1996]。

研究室で、5 M の硫酸(H_2SO_4)1 mL を加える(式 2)。滴定装置 DOT-05 にセットして沈殿をよく攪拌させ、ヨウ素を遊離させて、0.14 M のチオ硫酸ナトリウム ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5 \text{H}_2\text{O}$) を滴下して測定を行った(式 3) [Knap et al., 1996; 海洋観測指針 第1部, 1999]。

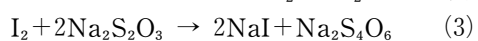
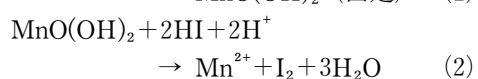
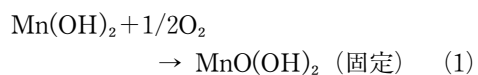


図 6. 滝之上採水測点。

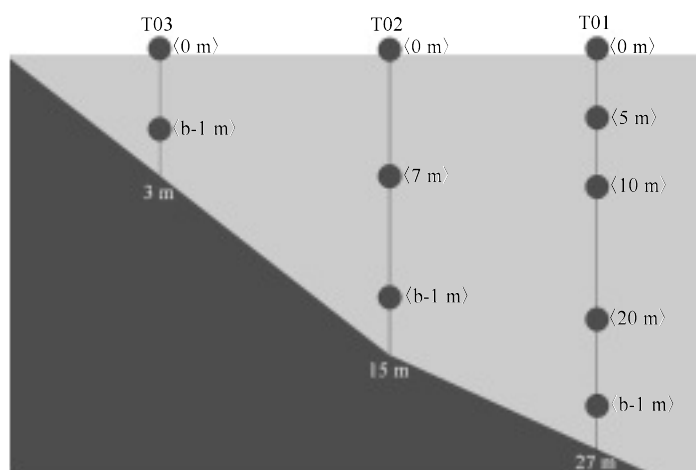


図 7. 滝之上採水層断面図。

2.2.3. 化学的酸素要求量

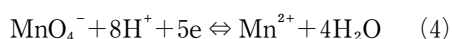
化学的酸素要求量 (COD: Chemical Oxygen Demand) の採水は, 1 N HCl で洗浄済みの 300 mL のポリボトルを使用した。2 回の共洗いの後に, ボトルの肩口 (約 8 割) まで試料水を取り, 研究室に持ち帰り冷蔵後, 手分析による滴定を行った。通常採水後 1 週間以内に分析を行うのが適している。

分析法は, 過マンガン酸カリウム酸性法 (KMnO₄ 法) を使用した [水の分析, 2005]。

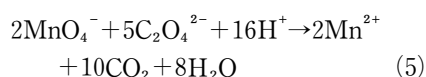
分析日に, 12.5 mM シュウ酸ナトリウム標準液を作成した。JIS K 8005 (標準試薬) のシュウ酸ナトリウム (Na₂C₂O₄) を 1.675 g 量りとり, 溶解させ, 1 L のメスフラスコでメスアップした。12.5 mM シュウ酸ナトリウム標準液は, 8 月 30 日, 11 月 18 日は, 10 mL を, 11 月 19 日, 20 日, 12 月 8 日, 12 月 9 日の滴定には, 15 mL をホールピペットで量りとり, 無色にし, 過マンガン酸カリウム (KMnO₄) 溶液を試料水に滴下したときの値を用いた [水の分析, 2005]。

ただし, 8 月 13 日, 9 月 22 日及び 10 月 23 日の試料は, 採水から 1 週間以内に分析を行うことができなかったため, データとしての信憑性は不確かなものである。

KMnO₄ は酸性溶液中で式 (4) のような反応をし, 強い酸化力を示す。



酸性にした試料水に一定量の KMnO₄ を加え, 一定条件で試料水中の被酸化性物質を酸化し, その後, 一定過剰量のシュウ酸ナトリウムを加えて未反応の MnO₄⁻ を分解する (式 5)。



続いて, 過剰の C₂O₄²⁻ を KMnO₄ 標準液で滴定し, 計算によって試料水中に含まれる被酸化物質と反応した MnO₄⁻ の量を求める。

試料水の量を V (mL), 5 mM KMnO₄ のファクターを f , 滴定に要した 0.025 M KMnO₄ の標準液の量を a mL, 空試料の 0.025 M KMnO₄ の標準液の量 b mL とし次式で計算し, COD を算出した。

$$\text{COD}(\text{mgO}_2 \text{ L}^{-1}) = f \times 0.2 \times (a - b) \times \frac{1000}{V} \quad (6)$$

COD 値の表現には, 酸素濃度 (mg O₂ L⁻¹) で表すほか, 過マンガン酸カリウム消費量 (mg KMnO₄ L⁻¹) およびミリ当量 (meq L⁻¹) の値で示すこともある。

$$\begin{aligned} \text{O}_2 : 8 \text{ mg L}^{-1} &= \text{KMnO}_4 : 31.6 \text{ mg L}^{-1} \\ &= \text{COD} : 1 \text{ meq L}^{-1} \end{aligned}$$

本研究では, ファクターを 1 とし, 試料水を 2 倍希釈行ったため, a , b を以下のように求めた。

$$a = \frac{\text{KMnO}_4 \text{ 滴定量} \times 2}{5} \quad b = \frac{\text{KMnO}_4 \text{ 滴定量} \times 2}{5}$$

2.2.4. メタン (CH₄)

2.2.4.1. 溶存メタン

メタン濃度, メタン炭素安定同位体比各試料は空気に触れないように 30 mL (濃度分析用), 125 mL (炭素安定同位体比分析用) バイアル瓶に 2 倍量オーバーフローした後分取し, サンプルング後直ちに飽和塩化水銀 (II) 溶液を 20 µL 加え [Tilbrook and

Karl, 1995; Yoshida *et al.*, 2004] ゴムキャップとアルミシールで密封し、冷暗所にて保存した。試料を研究室に持ち帰り脱気・精製し（図8）、水素炎イオン化検出器（Flame Ionization Detector; FID）付きガスクロマトグラフ（Gas Chromatograph; GC）（SHIMADZU, GC-8A）を用いてメタン濃度を分析した [Yoshida *et al.*, 2004]。Standard Loopと Standard Gasはそれぞれ 0.534 mL, 1.602 mLと 1.02 ppm, 1.82 ppm, 29.6 ppm を使用した。

2.2.4.2. メタンフラックス

大気平衡濃度・飽和度・メタンフラックスの計算方法は以下に行った。

海洋溶存メタンの理論的な大気平衡濃度は、水温、塩分を式（7）に入れ海洋の大気平衡濃度 C_a を求めた [Wiesenburg and Guinasso, 1979]。

$$\ln C_a = \ln f_G + A_1 + A_2 \frac{100}{T} + A_3 \ln \frac{T}{100} + A_4 \frac{T}{100} + S \left\{ B_1 + \frac{T}{100} B_2 + \left(\frac{T}{100} \right)^2 B_3 \right\} \quad (7)$$

ここで示すAとBは定数であり、メタンの場合は、以下の数値により計算する。

$$A_1 = -417.5053$$

$$A_2 = 599.8626$$

$$A_3 = 380.3636$$

$$A_4 = -62.0764$$

$$B_1 = -0.064236$$

$$B_2 = 0.034980$$

$$B_3 = -0.0052732$$

また、 f_G は大気中メタン濃度（=1.775 ppm/v）、 T は絶対温度、 S は塩分を表す。本研究の湖は淡水であるため、 S は0として扱った。

大気-湖水間メタンフラックスの計算式は以下に示したものをを用いた。

湖水から大気へのメタンフラックスは以下の式（8）で計算される [Wanninkhof, 1992]。

$$F = K_L (C_w - C_a) \quad (8)$$

F : 大気-湖水メタンフラックス

K_L : 気体移動速度

C_w : 混合層の平均湖水メタン濃度

C_a : 大気平衡濃度

表面湖水濃度（ C_w ）から大気平衡濃度（ C_a ）を引いた過飽和濃度に気体交換係数（ K_L ）をかけたものがメタンフラックスである。これは風速に依存する係数であり、以下の式（9）で表される。

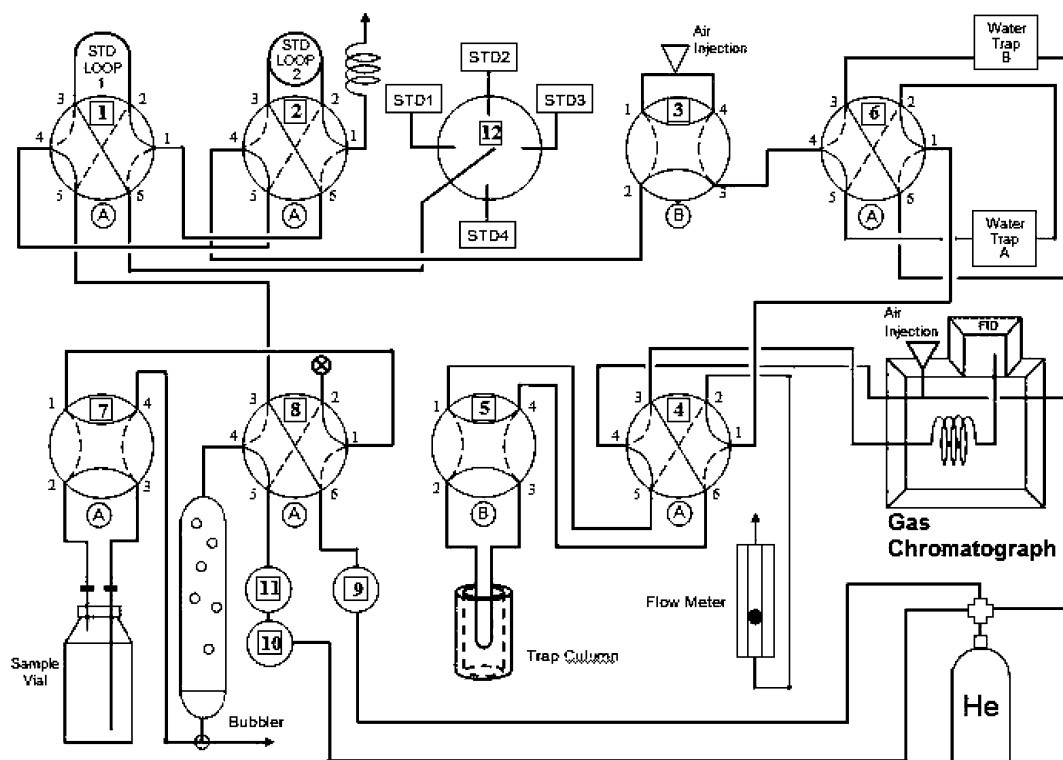


図8. ガスクロマトグラフ前処理ライン図。

$$K_L = \frac{0.31 \nu^2}{\sqrt{\frac{S_c}{660}}} \quad (9)$$

ν : 風速

S_c : シュミットナンバー

シュミットナンバー (S_c) は温度に依存する物質に固有の値であり、淡水では、メタンは以下の式(10)のようになる。

$$S_c = 1897.8 - 114.28T + 3.2902 T^2 - 0.039061 T^3 \quad (10)$$

T : セルシウス温度 (°C)

飽和度は、試料水メタン濃度の気平衡濃度に対する割合で以下の式で定義される。

$$\text{飽和度} = \frac{C_w}{C_a} \times 100 \quad (\%) \quad (11)$$

C_w : 試水中溶存気体濃度

C_a : 気平衡時の試水中溶存濃度

2.2.5. pH・水温・気温・風速

pH と水温は、pH メーター (METTLER TOLEDO SevenGo™ pH meter SG2) を用いて測定を行った。使用前日に、pH 標準液、pH 6.86 (中性リン酸塩 pH 標準液 (第 2 種) : Phosphate Equimolal pH Standard Solution 関東化学) 及び pH 4.01 (フタル酸塩 pH 標準液 (第 2 種) : Phthalate pH Standard Solution 関東化学) を用いて校正した。試料水で共洗いして試料水を満たしたデュラン瓶 100 mL に、pH メーターの電極を入れて測定した。風速と気温は、デジタル風速計/風量計 (CusTom WS-01) を用いて、測定を行った。

2.2.6. 濁度

濁度は、50 mL の褐色ポリボトルに試料水で 2 回共洗い後、8 分目 (約 40 mL) まで試料水を加え、冷暗所に保存し、研究室にて測定を行った。

測定には SHIMADZU UVmini-1240 水質測定プログラム (P/N206-89751-91) を用いた。測定原理は JIS カリオン標準液で検定している。測定範囲は 20.0-500°JIS であり、測定時間はセルをセット後約 3 秒で測定可能である。ただしこの測定機器の範囲基準の設定により、測定範囲以下 (20 以下) のものは、測定できない欠点があり、採水を行ったサンプルすべては、測定範囲以下であったため、今後清澄性の高い試料を測定するには現場濁度計を併用する

必要がある。

2.2.7. 透明度

図 9 に示す様に、透明度は、直径 30 cm の木製の白く平らな円盤を用いて測定する。5 kg のおもりをつけ、カヌーから垂直に水中に降ろしていき、真上から目視できる限界の深さのロープ線長を基準に m 単位で測定した [海洋観測指針 第 1 部, 1999]。

3. 結 果

得られた各成分濃度の分析結果を 3.1 洞爺湖と 3.2 壮瞥川に分けて示す。ただし、3.3 濁度、3.4 透明度、3.5 COD に関しては、データ量の関係で洞爺湖と壮瞥川を併せて示すこととする。

3.1. 洞爺湖

8 月から 12 月までの 6 回の観測における分析結果を、図 10-16 に示した。壮瞥川に関しては、測点ごとの違いを 2 回の観測である、11 月と 12 月を 1 つに表した (図 16)。また、8 月① (図 10)、8 月② (図 11)、9 月 (図 12)、10 月 (図 13) の分析結果は、桟橋付近の 6 測点のみからなり、11 月 (図 14)、12 月 (図 15) は桟橋と滝之上をあわせた分析結果を示した。

8 月① (図 10) では、DO (a) とメタン (b) が類似した傾向を示していた。

栄養塩では硝酸塩 (c) と亜硝酸塩 (d) が特に同様の傾向を示していた。L 01-15 m において、硝酸塩は表層よりも底層になるにつれ、6.86 μM から 7.71 μM と値が高くなっていったのに対し、亜硝酸塩では、表層 0.143 μM に対し底層 0.071 μM と低かった。

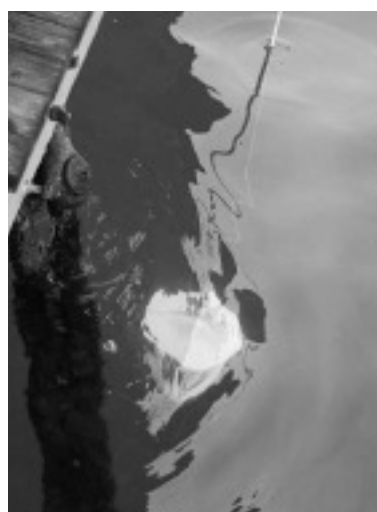


図 9. 透明度板を沈めている様子。

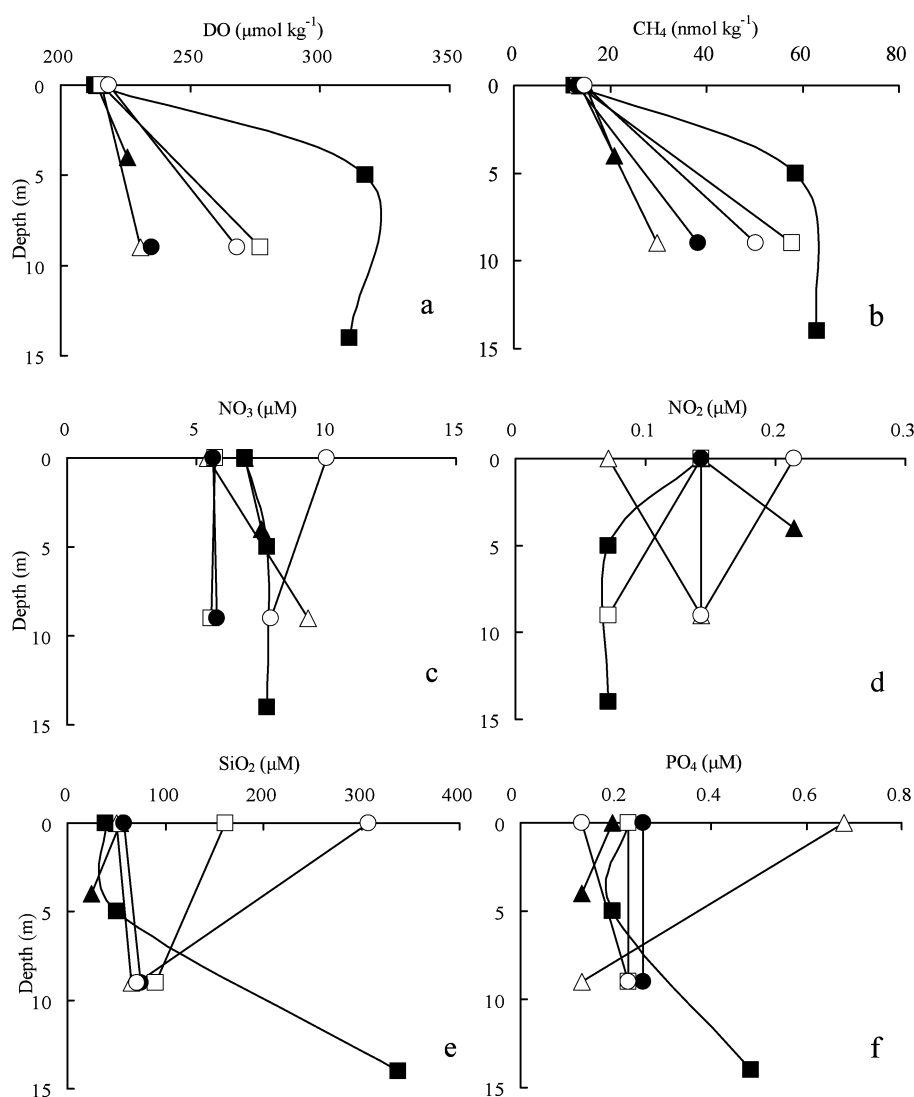


図 10. 8 月①における L 01-5 m (▲), L 01-10 m (△), L 01-15 m (■), L 02-10 m (□), L 04-10 m (●), L 06-10 m (○) での (a) 溶存酸素 (DO), (b) メタン濃度 (nmol kg^{-1}), (c) 硝酸 (NO_3), (d) 亜硝酸塩 (NO_2), (e) ケイ酸塩 (SiO_2), (f) リン酸塩 (PO_4) 分析結果。

また、この時期は、L 06-10 m の表層とともに硝酸塩 $10.0 \mu\text{M}$ と亜硝酸塩 $0.214 \mu\text{M}$ と最も高かった。底層では硝酸塩が、L 01-10 m の $9.29 \mu\text{M}$ で最も高く、亜硝酸塩は、L 01-5 m で $0.214 \mu\text{M}$ と最も高かった。

ケイ酸塩とリン酸塩に関しては、鉛直分布は類似した傾向を示していた。8 月①では、深くなるにつれどちらも低くなる傾向にあったが、L 01-15 m では、ケイ酸塩では表層の $39.3 \mu\text{M}$ に対して底層では $337.5 \mu\text{M}$ と高くなり、リン酸塩においても表層の $0.226 \mu\text{M}$ に対して底層では $0.484 \mu\text{M}$ と高くなった。

ケイ酸塩 (E) は、表層において、栈橋から離れた L 06-10 m では、高くなる傾向を示し、栈橋付近の測

点 (L 01-5 m, L 01-10 m, L 01-15 m) では値が低く、著しく大きな濃度差 ($50.7\text{--}65.3 \mu\text{M}$) は見られなかった。リン酸塩は、表層の L 01-10 m で $0.678 \mu\text{M}$ と最も高く、底層 ($0.129 \mu\text{M}$) との差が著しかった。ついで L 04-10 m ($0.258 \mu\text{M}$), L 02-10 m, L 01-15 m は $0.226 \mu\text{M}$ とほぼ等しかった。L 04-10 m は表層と底層で差は認められなかった。

8 月② (図 11) では、表層から底層にかけて高くなっている点では、DO (a) もメタン (b) も 8 月①と同様の傾向を示していた。

DO は、L 01-10 m における底層の $301 \mu\text{mol kg}^{-1}$ がこの月で最も高い濃度であり、メタンは、個々の値に差はなく表層では $20.1\text{--}25.9 \text{ nmol kg}^{-1}$ 、底層では $38.1\text{--}65.5 \text{ nmol kg}^{-1}$ の範囲内にあり、どの測点

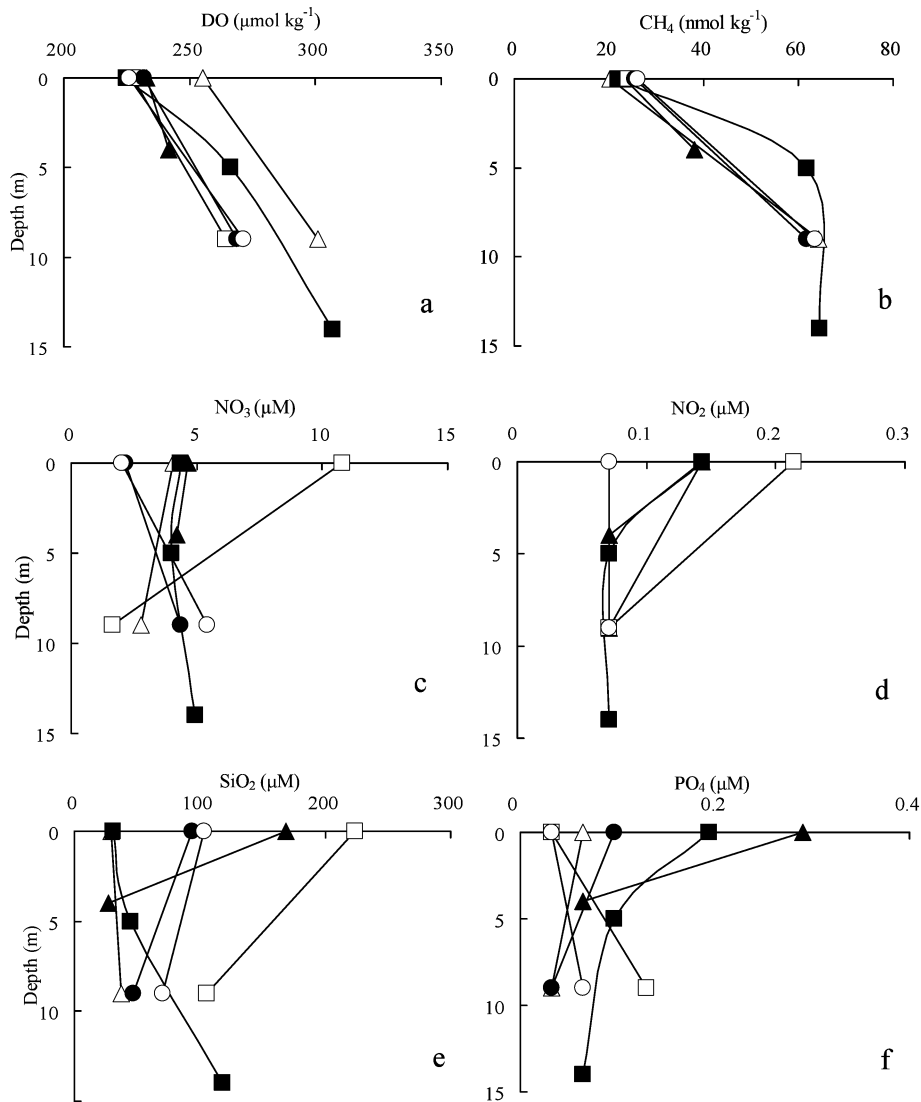


図 11. 8 月②における分析結果。図 10 と同様に示す。

においても著しい差はなかった。

また栄養塩は、硝酸塩 (c) と亜硝酸塩 (d) は類似した傾向を示しており、表層で、L 02-10 m の硝酸塩 $10.8 \mu\text{M}$ 、亜硝酸塩 $0.214 \mu\text{M}$ が最も高く、ついで L 01-5 m, L 01-15 m, L 01-10 m, L 04-10 m, L 06-10 m であり、硝酸塩は $2.0\text{--}10.8 \mu\text{M}$ 、亜硝酸塩は $0.071\text{--}0.214 \mu\text{M}$ の範囲内であった。

ケイ酸塩 (e) では、L 02-10 m の表層が $233.6 \mu\text{M}$ と最も高く、ついで L 01-5 m, L 06-10 m, L 04-10 m, L 01-15 m, L 01-10 m となり、 $29.6\text{--}233.6 \mu\text{M}$ の範囲であった。底層になると減少傾向にあるのに対し、L 01-15 m は、増加傾向を示していた。

リン酸塩 (f) は、表層では L 01-5 m で $0.291 \mu\text{M}$ と最も値が高く、ついで L 01-15 m ($0.194 \mu\text{M}$)、L 04-10 m ($0.097 \mu\text{M}$)、L 01-10 m ($0.065 \mu\text{M}$) で

あり、表層では L 02-10 m と L 06-10 m は $0.032 \mu\text{M}$ と同じ値であったが、底層ではこの 2 測点の値が $0.129 \mu\text{M}$, $0.065 \mu\text{M}$ と増加しているのに対して、他の値は減少していた。

9 月 (図 12) では、DO (a) とメタン濃度 (b) は、同様の傾向を示していた。DO は、 $225\text{--}307 \mu\text{mol kg}^{-1}$ 、メタン濃度 $18.0\text{--}54.4 \text{ nmol kg}^{-1}$ の範囲であった。L 01-5 m では、底層では濃度が低くなっていたが、(a) と (b) とともに他の測点では、底層になるほど高くなる傾向を示した。ただし、L 01-10 m <b-1> に関してはデータがない。

栄養塩では、硝酸塩 (c) は、表層で L 01-15 m, L 06-10 m が $6.8 \mu\text{M}$ と最も高く、ついで L 02-10 m, L 01-5 m, L 01-10 m, L 04-10 m であり、 $4.9\text{--}6.8 \mu\text{M}$ の範囲であった。底層になると、L 01-5 m が

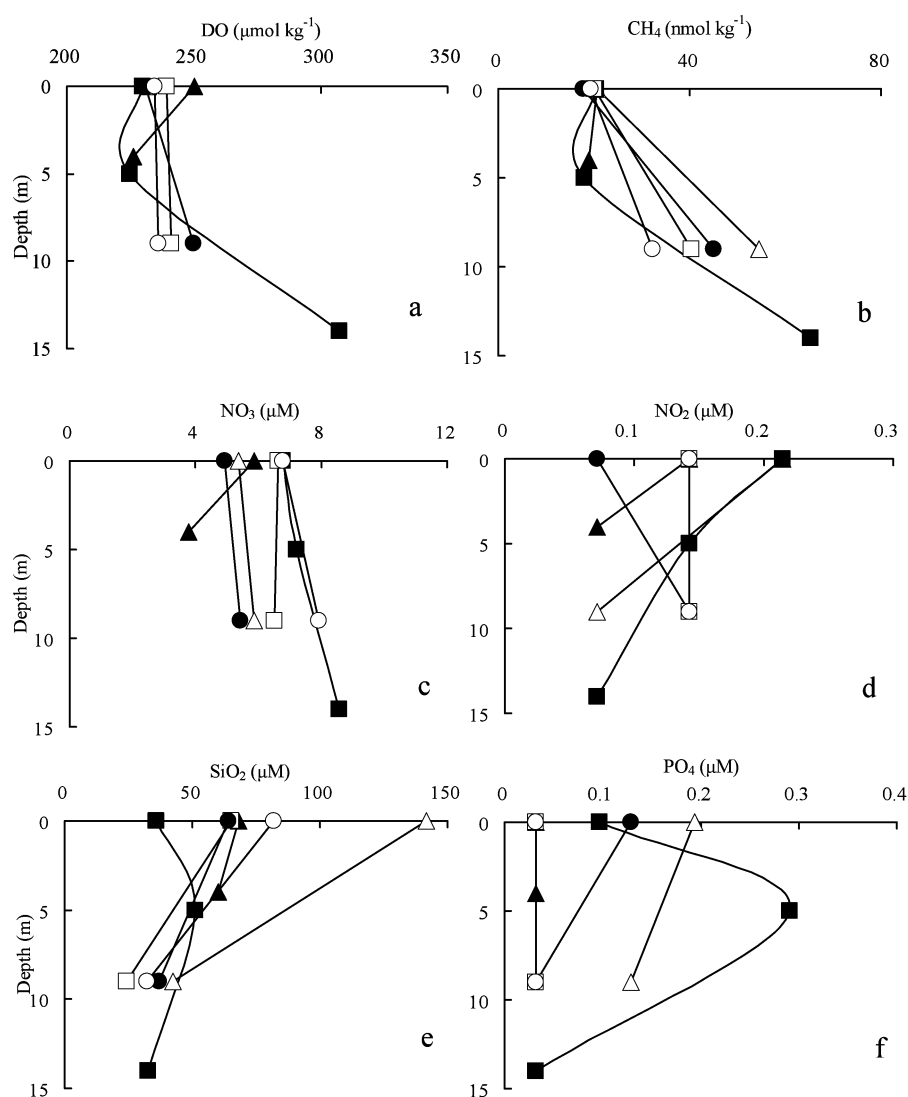


図 12. 9 月における分析結果。図 10 と同様に示す。

3.8 μM と著しく低くなるほかは、3.7–8.6 μM の範囲で表層よりも濃度が高くなる傾向を示した。

亜硝酸塩 (d) は、表層で L 01–15 m と L 01–10 m が 0.214 μM と最も高く、ついで L 01–5 m, L 02–10 m, L 06–10 m の値が等しく、L 04–10 m が 0.071 μM と最も値が低かった。底層になると L 04–10 m は大きくなっているが、他は減少していた。

ケイ酸塩 (e) は、表層の L 01–10 m が最も値が高く、ついで L 06–10 m, L 01–5 m, L 02–10 m, L 04–10 m となり、L 01–15 m が 35.9 μM と最も低かった。底層になるにつれて減少傾向を示し、24.4–60.3 μM の範囲になった。

リン酸塩 (f) は、(e) と同様に、L 01–10 m が 141.6 μM と最も高く、ついで L 04–10 m, L 01–15 m であり、L 01–5 m, L 04–10 m, L 06–10 m はほぼ一定である。底層になるにつれて、濃度は低くなるが、

L 01–15 m に関しては、5 m 付近で 0.291 μM 最も高く、底層で最も低くなり、メタン (b) の L 01–15 m と逆の傾向を示していた。

10 月 (図 13) になると、8–9 月 (図 10–12) とは異なり、測点における変動幅が小さく、値が一定になる傾向を示していた。

DO (a) とメタン (b) は同様の傾向を示していた。

栄養塩は、硝酸塩 (c)、亜硝酸塩 (d) とともにほぼ等しい。硝酸塩は全測点を見ても 11.71–11.79 μM とほぼ一定の値であった。8 月① (5.43–10.0 μM)、8 月② (1.64–10.8 μM)、9 月 (3.79–8.57 μM) と比較すると濃度は増加していた。亜硝酸塩は細かい変化の判別はできない。

ケイ酸塩 (e) も表層と底層では、大きな変化は見られないが、硝酸塩 (c) 同様に、8 月① (24.9–337.5 μM)、8 月② (2.68–223.6 μM)、9 月 (32.1–141.6

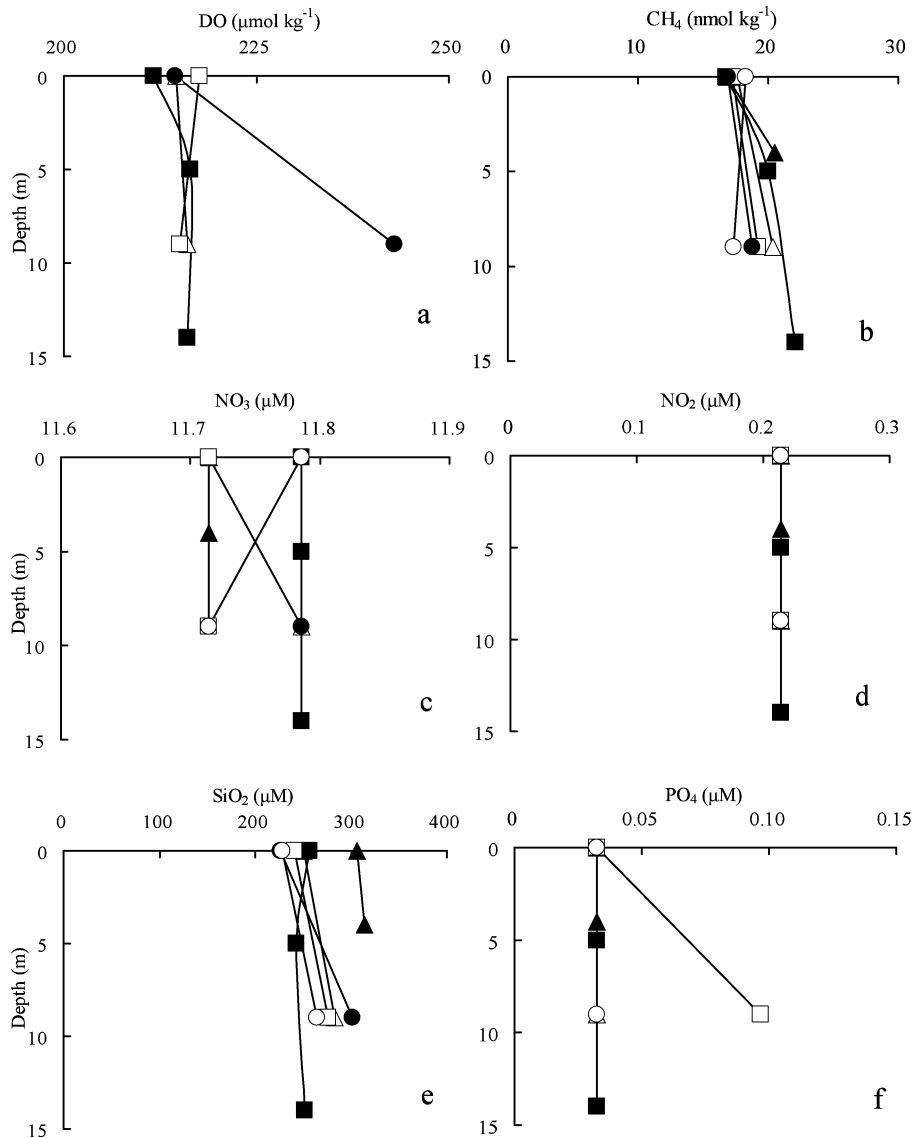


図 13. 10 月における分析結果。図 10 と同様に示す。

μM)と比較すると、10月 は $226.0\text{--}306.3\ \mu\text{M}$ の全体の値は増加していた。

リン酸塩 (f) は、どの測点においても値が一定であり、大きな変動幅はみられないが、L 02-10 m の底層は値が高くなっていた。また、リン酸塩は、9月 ($0.032\text{--}0.291\ \mu\text{M}$)と比較すると10月 ($0.032\text{--}0.097\ \mu\text{M}$)は値が低くなっている。

11月 (図 14) では、DO (a) とメタン濃度 (b) の分布は同様の傾向を示しており、DO の値が高いときは、メタン濃度も高くなった。DO は、表層の T 03 で $238\ \mu\text{mol kg}^{-1}$ と最大になったが、全体的に大きな差はなくほぼ一定の値を示し、 $233\text{--}238\ \mu\text{mol kg}^{-1}$ の範囲内であった。L 01-5 m (表層 $236\ \mu\text{mol kg}^{-1}$ 、底層 $232\ \mu\text{mol kg}^{-1}$) と T 03 (表層 $238\ \mu\text{mol kg}^{-1}$ 、底層 $234\ \mu\text{mol kg}^{-1}$) は表層と底層で差がみられ、表層では高く、底層では低い傾向を示した。一方 L 01-15 m (表層 $232\ \mu\text{mol kg}^{-1}$ 、底層 $234\ \mu\text{mol kg}^{-1}$)、L 02-10 m (表層 $232\ \mu\text{mol kg}^{-1}$ 、底層 $233\ \mu\text{mol kg}^{-1}$)、L 04-10 m (表層 $233\ \mu\text{mol kg}^{-1}$ 、底層 $234\ \mu\text{mol kg}^{-1}$) においては、表層よりも底層が高くなった。

メタンは T 03 が、 $28.4\ \text{nmol kg}^{-1}$ と値が高く、底層で低くなる傾向がみられた。L 01-10 m, L 06-10 m, T 01 においては底層では増加傾向を示していた。特に栈橋付近と滝之上では大きな差がなかった。

栄養塩では、硝酸塩 (c) をみると、滝之上における測点 (T 01, T 02, T 03) は一定であるが、栈橋付近の測点では、値に差がみられ、亜硝酸塩と同様

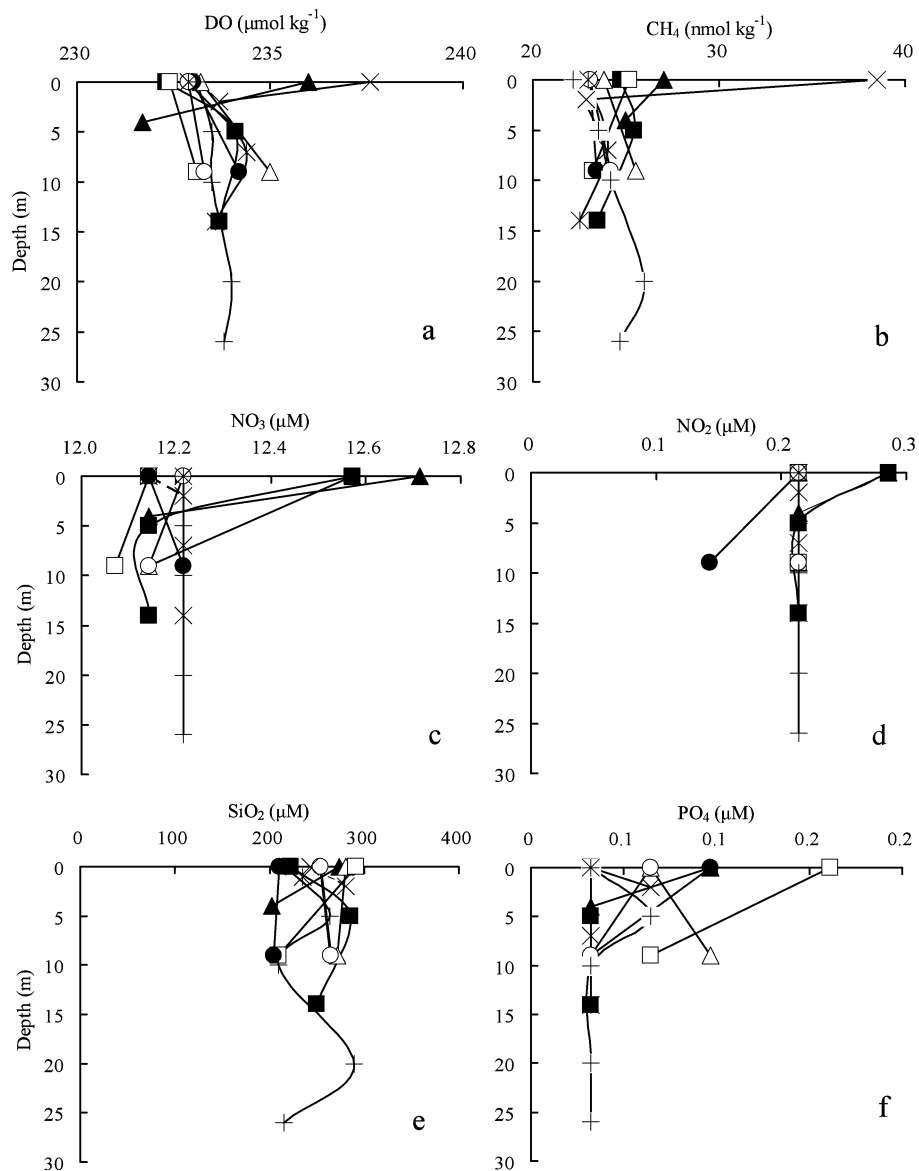


図 14. 11 月における L 01-5 m (▲), L 01-10 m (△), L 01-15 m (■), L 02-10 m (□), L 04-10 m (●), L 06-10 m (○), T 01 (+), T 02 (*), T 03 (×) での, (a) 溶存酸素 (DO), (b) メタン濃度 (nmol kg^{-1}), (c) 硝酸塩 (NO_3), (d) 亜硝酸塩 (NO_2), (e) ケイ酸塩 (SiO_2), (f) リン酸塩 (PO_4) 分析結果。

な傾向を示していた。

亜硝酸塩 (d) は、滝之上ではすべて一定であり、L 01-5 m と L 01-15 m 表層では、 $0.286 \mu\text{M}$ と濃度が高く、L 04-10 m の底層では $0.143 \mu\text{M}$ と低かった。

ケイ酸塩 (e) は、硝酸、亜硝酸に比べると T 01 では深さによる変動が顕著であり、5 m ($263.9 \mu\text{M}$) 付近と 20 m ($289.6 \mu\text{M}$) 付近では高くなっていたのに対し、10 m 付近では $209.3 \mu\text{M}$ と減少していた。表層では L 02-10 m の値が $291.8 \mu\text{M}$ と最大で、ついで L 01-10 m ($271.8 \mu\text{M}$), L 01-5 m ($273.2 \mu\text{M}$), L 06-10 m ($253.4 \mu\text{M}$), L 01-15 m ($222.3 \mu\text{M}$) と

なっており、L 04-10 m は $210.5 \mu\text{M}$ と最小であった。5 m 付近では L 01-15 m ($285.3 \mu\text{M}$) と T 01 ($263.4 \mu\text{M}$) は濃度が高くなっていたが、L 01-5 m の底層では $202.9 \mu\text{M}$ と減少していた。8 月、9 月と較べると、値は高くなっていた。

リン酸塩 (f) は、表層に近づくにつれて、値が高い。T 01 の 5 m 付近と T 03 の底層で $0.065 \mu\text{M}$ と高かった。表層は、L 02-10 m が $0.161 \mu\text{M}$ と最大であり、ついで L 04-10 m, L 01-5 m も $0.097 \mu\text{M}$ と高かった。L 01-10 m では、底層の値が $0.097 \mu\text{M}$ と高くなり、L 06-10 m では、底層の値が $0.032 \mu\text{M}$ と低かった。

12月(図15)では、DOとメタンは類似傾向を示した。

DO (a) は、それぞれ栈橋、滝之上において一定の傾向を示した。浅い測点である T 03 (表層 $229 \mu\text{mol kg}^{-1}$ 、底層 $231 \mu\text{mol kg}^{-1}$) と L 01-5 m (表層 $248 \mu\text{mol kg}^{-1}$ 、底層 $249 \mu\text{mol kg}^{-1}$) では、表層より底層の値が高かった。

メタン (b) も DO と同様に一定の値になる傾向があるが、栈橋付近の値は、滝之上よりも低く、T 03 の底層で $28.4 \text{ nmol kg}^{-1}$ で最大であり、T 01 ($30.4 \text{ nmol kg}^{-1}$)、T 02 ($30.6 \text{ nmol kg}^{-1}$) は 10 m 付近で濃度が高かった。栈橋付近では、L 01-15 m の底層で $26.9 \text{ nmol kg}^{-1}$ と最も高くなる傾向にあるが、ほとんど差はなかった。栈橋付近では、L 01-5 m の値は

$26.5 \text{ nmol kg}^{-1}$ と高く、底層では $25.9 \text{ nmol kg}^{-1}$ と低かったが、他の栈橋付近の測点では、やや底層の値が高くなっていた。

硝酸塩 (c) は、L 01-15 m において、5 m 付近の値が $12.8 \mu\text{M}$ と最も高かったが、滝之上では、ほぼ一定の値になっていた。

亜硝酸塩 (d) では、表層の値が $0.214 \mu\text{M}$ と等しい T 01、L 01-15 m は 10 m 付近では $0.143 \mu\text{M}$ と値が低く、底層における T 01 の値は $0.143 \mu\text{M}$ と一定であった。L 01-15 m、T 03 では、深さが増すにつれて値が低かったが、L 02-10 m ($0.286 \mu\text{M}$)、L 04-10 m ($0.214 \mu\text{M}$)、L 06-10 m ($0.286 \mu\text{M}$) は、値が高かった。

ケイ酸塩 (e) は、ほぼ一定であるが、深層になる

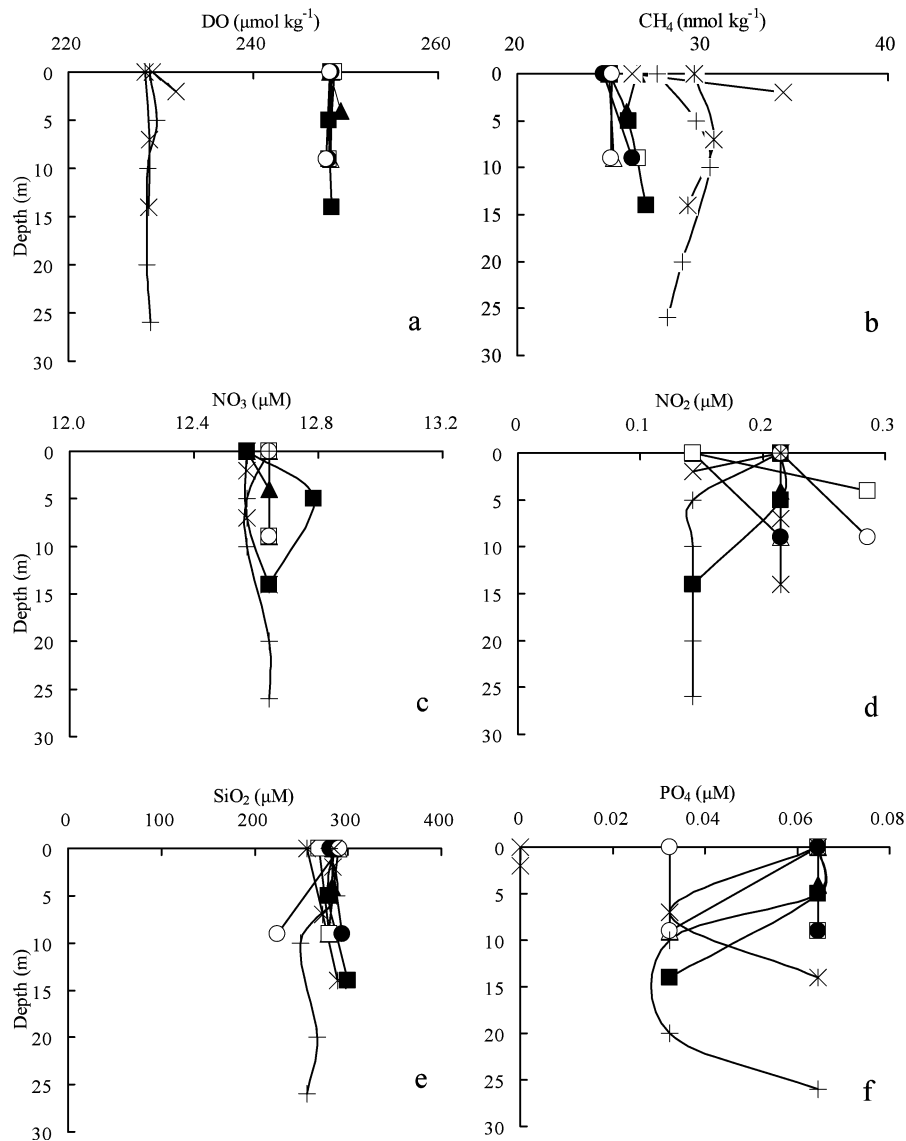


図 15. 12 月における分析結果。図 14 と同様に示す。

につれて、値が高い傾向を示していた。L 06-10 m は底層で $224.3 \mu\text{M}$ と値が低く、T 01 は、10 m ($249.5 \mu\text{M}$) 付近と底層 ($255.7 \mu\text{M}$) で低く、20 m ではやや高かった。

リン酸塩 (f) は、T 01 において 15 m、T 02 では 7 m の付近では値が小さかったが、底層と表層の値はほぼ等しかった。L 06-10 m、L 01-5 m、L 01-10 m、L 01-15 m では表層から底層まで変化がなく一定であった。T 03 に関しては測定範囲以下であり、検出されなかった。

3.2. 壮瞥川

壮瞥川のデータ (図 16) は、11 月の SR 03 と SR 04、12 月の SR 01、SR 02、SR 03、SR 04、SR 05、SR 06 の 8 点になる。11 月、新山沼という壮瞥川

の沼地になっている 2 点で採水を行い、12 月はこの 2 点と他の 4 点をあわせた 6 点から採水した。

図 10-15 より、メタン濃度と DO は同様な傾向がみられたが、壮瞥川における (a) と (b) を見ると、11 月、12 月ともに逆の傾向を示しており、DO の値が低いところはメタン濃度の値が高くなり、月による差はなかった。

硝酸塩 (c) と亜硝酸塩 (f) は、SR 06 の値が他の測点より、硝酸塩 $43.1 \mu\text{M}$ 、亜硝酸塩 $0.643 \mu\text{M}$ と高かった。11 月と 12 月ではほとんど差はないが、亜硝酸塩では、12 月の SR 03 では $0.143 \mu\text{M}$ と低かった。

ケイ酸塩 (e) とリン酸塩 (f) も同様に SR 06 の値が最も高く、ケイ酸塩 $443.3 \mu\text{M}$ 、リン酸塩 $0.323 \mu\text{M}$ であった。ケイ酸塩 (e) の 11 月では、SR 04 の

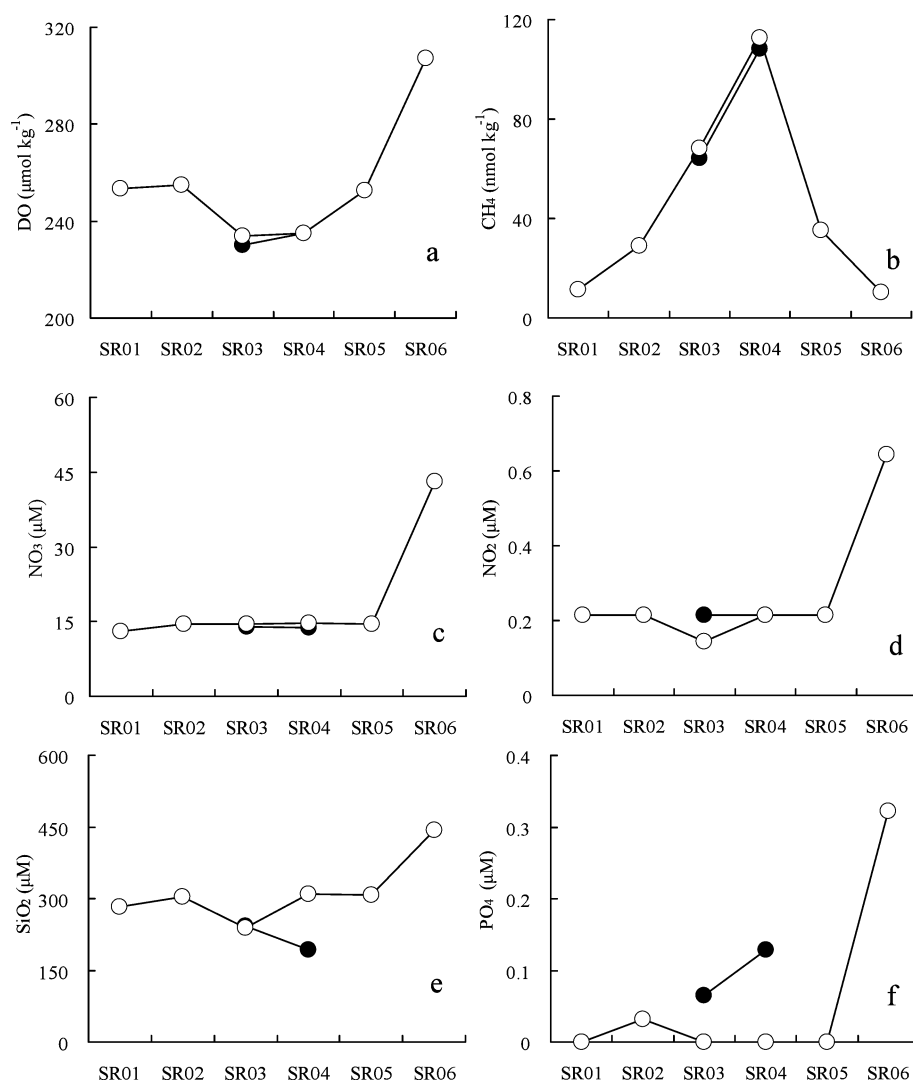


図 16. 11 月 (●), 12 月 (○) における壮瞥川での (a): 溶存酸素 (DO), (b): メタン濃度 (nmol kg^{-1}), (c): 硝酸塩 (NO_3), (d): 亜硝酸塩 (NO_2), (e): ケイ酸塩 (SiO_2), (f): リン酸塩 (PO_4) 分析結果。

値が $192.4 \mu\text{M}$ と低いのに対して、12 月では SR 03 が $238.7 \mu\text{M}$ と最も低かった。一方リン酸塩 (f) は、11 月の SR 04 ($0.129 \mu\text{M}$) の値がより高いのに対し、12 月では、SR 06 ($0.232 \mu\text{M}$) を除く各測点では、11 月の 2 点よりも極めて値が低かった。

3.3. 透明度

透明度は、8 月-10 月では、底まで透過していたため、各観測で平均を取った。12 m から 13 m の間で、観測月ごとの差はあまりみられなかった。10 月-12 月では、11 月の平均透明度が 10.75 m と低く、12 月には、14.75 m と高い値を示し、10 月は 13.5 m であった。

3.4. 濁 度

濁度は、測定範囲の $20.0\text{--}500^\circ\text{JIS}$ よりも試料水の値が非常に小さかったため、すべての試料で測定範囲外であった。

3.5. COD

表 1 に COD の分析結果を示す。

表 1 より、COD は、気温水温ともに高い夏季 8 月で最も高くなっている。

4. 考 察

4.1. メタンと DO 濃度

図 17 より、湖における月別変動をみるとメタン濃度は、8 月①、8 月②、9 月では、表層と底層で差が見られるが、10 月以降は大きな差がみられなくなる。これは、栈橋付近と滝之上の測点における底層で生成されたメタンが、図 17(E) より、深度に関わらず 10 月以降になると、表層と底層における DO 濃度に差がみられなくなったことがいえる。つまり、夏季で見られた湖内成層化によって、表層と底層での成分濃度の差が生じていたが、10 月以降では気温の低下に伴い湖水の鉛直混合が起こり攪拌されて成層化が解消されていったことが伺える。L 8 月②で

表 1. COD 分析結果

COD($\text{mgO}_2 \text{ L}^{-1}$)	8 月①	8 月②	9 月	10 月	11 月	12 月
L01- 5 <0m>	0.48	0.52	ND	ND	0.00	ND
L01- 5 <b-1m>	0.52	0.68	ND	ND	ND	ND
L01-10 <0m>	0.52	0.24	ND	ND	ND	ND
L01-10 <b-1m>	0.28	0.08	ND	ND	ND	ND
L01-15 <0m>	0.68	0.44	ND	ND	ND	ND
L01-15 <5m>	0.68	0.24	ND	ND	ND	ND
L01-15 <b-1m>	0.44	0.08	ND	ND	0.48	ND
L02-10 <0m>	0.44	0.16	ND	ND	ND	ND
L02-10 <b-1m>	0.52	0.28	ND	ND	0.16	ND
L04-10 <0m>	0.52	0.28	ND	ND	0.48	ND
L04-10 <b-1m>	0.36	0.60	ND	0.32	ND	ND
L06-10 <0m>	0.84	0.20	ND	ND	0.32	ND
L06-10 <b-1m>	0.52	0.20	ND	ND	0.00	ND
T01 <0m>					0.24	ND
T01 <5m>					0.32	ND
T01 <10m>					ND	ND
T01 <20m>					0.32	ND
T01 <b-1m>					ND	ND
T02 <0m>					0.24	ND
T02 <7m>					0.24	ND
T02 <b-1m>					0.24	ND
T03 <0m>					0.24	ND
T03 <b-1m>					0.56	ND
SR01						ND
SR02						ND
SR03					ND	ND
SR04					ND	ND
SR05						ND
SR06						ND

※ ND はベース値（ブランク試験に要した 0.025 M KMnO_4 標準液量 $b=1.44$ ）よりも試料水の値が小さかったものであり、ごく微量にしか被酸化性物質が含まれていないことを示している。

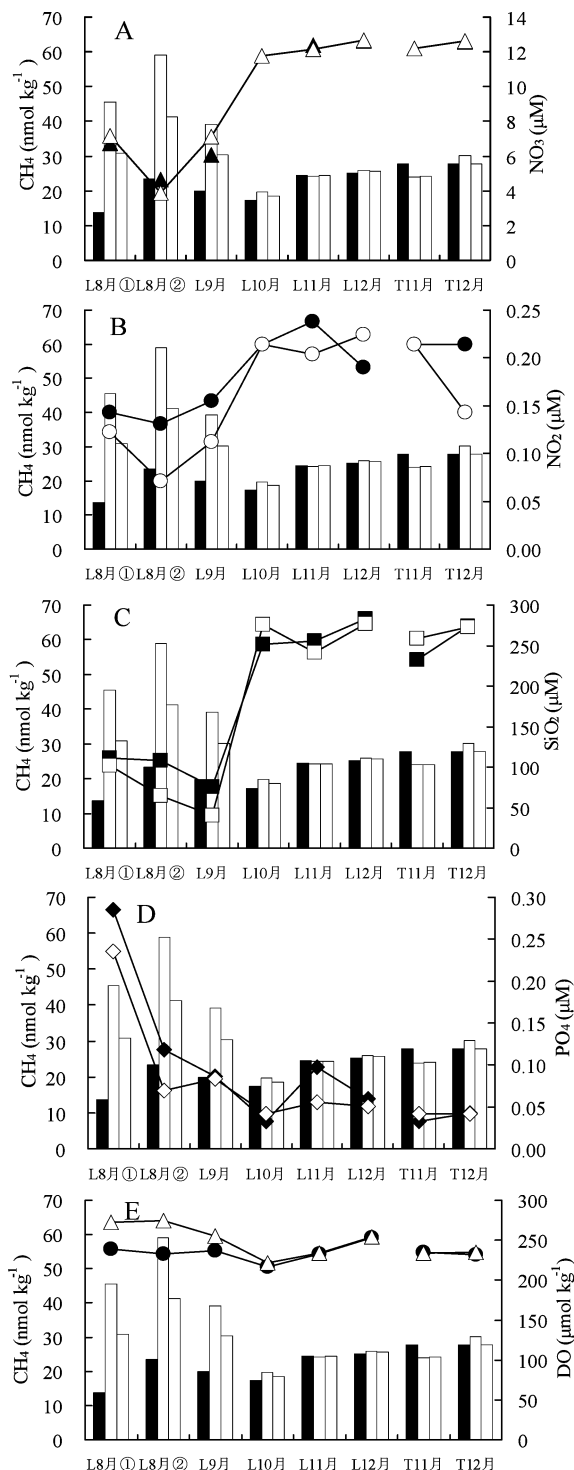


図 17. 月別平均からみたメタン濃度と栄養塩及びメタン濃度と DO との関連。栈橋を L、滝之上を T で表し、メタンは棒グラフで表した。それぞれ黒い棒グラフ、白い棒グラフ、灰色の棒グラフは、メタンの表層平均、底層平均、全体平均を示し、それぞれのグラフ中の記号の黒は表層、白は底層を表す。A：硝酸塩、B：亜硝酸塩、C：ケイ酸塩、D：リン酸塩、E：DO とメタンの関係を表す。

は、顕著な成層化が生じていたことで、水塊内の明確な層の形成を述べることはできるが、底層の DO 濃度が高くなり、同様にメタン濃度も底層で高いことから、湖水内の生物が、表層での酸素を消費して栄養塩などを取り込んで有機物を生成したと考えられる。この有機物が堆積した湖水底層では、微小な還元環境がつくり出されることになり、メタン生成菌により底層の還元環境においてメタンが生成されたことで、表層よりも底層でメタン濃度が高くなっていると考えられる [Rudd and Hamilton, 1978; Harrits and Hanson, 1980; Kankaala et al., 2006a]。更に先に述べたように、夏季における湖は、成層化していることで、層を超えたメタンの鉛直拡散は起こりにくく、表層よりもメタン濃度が高くなると考えられる。実際に、表 2 より、飽和度をみると、栈橋付近の測点 (L) における飽和度は、平均した値の 8 月②では、777% という過飽和の状態であることから、湖水内に生息するメタン生成菌によるメタン生成の影響が現れており、湖水の循環の影響と合わせて底層と表層でみられたメタン濃度を月ごとの溶存酸素とあわせて説明できる。しかし、L 12 月では、DO 濃度が一時的に高くなっているにも関わらず、メタン濃度は夏季ほど高くはないことから、湖水内生物活動との関連性が伺えるが、このメタンが生物由来であるのかどうかは、炭素の安定同位体比を測定することでより明らかになる [Whiticar, 1999]。

4.2. メタンと栄養塩との関係

図 17 より、メタン濃度が夏季を最大に減少傾向であったことに対し、栄養塩の硝酸塩、亜硝酸塩、ケイ酸塩は、10 月以降に増加する傾向がみられた。これは表層と底層でメタン濃度に差がみられなくなる時期に対応している。つまり、メタン生成菌や湖水中のプランクトンによる栄養塩の消費が減少したことから説明することができる。季節的な変化に伴う水温変化は、生物活動の低下をもたらし、10 月以降の湖水中に栄養塩が多く含まれるようになると考えられる。しかし、この栄養塩の増加傾向を示す硝酸、亜硝酸、ケイ酸塩に見られる急激な値の変化は、栈橋や滝之上でも同様な傾向を示しているように、栄養塩を取り込んで有機物を作り出す微生物などによる、栄養塩消費量の減少が栄養塩の増加をもたらしたと考えられる。また、人為的に栄養塩が湖水内に供給されたことで増加したことも考えられる。

図 10-15 より、夏季に表層よりも底層になるにつれ、栄養塩の減少が明確になっており、底層におけ

表 2. 洞爺湖におけるメタンの年間放出量及び飽和度

	L8月①	L8月②	L9月	L10月	L11月	T11月	L12月	T12月
フラックス	243.0	356.4	212.9	268.4	2.108	47.0	1.654	173.4
飽和度	476.2	777.3	669.3	482.1	630.8	788.2	491.5	671.1

*フラックスは, gCH₄, 飽和度は%で表す。

るメタン生成菌などの湖水に生息する生物による消費が示唆され [Bartlett *et al.*, 1988; Rudd and Hamilton, 1978], 生成されたメタンは底層の有機物由来であることが考えられる [Kankaala *et al.*, 2006b; Taipale *et al.*, 2007]。冬季になると湖水の鉛直混合により栄養塩も表層と底層との差がなくなっていることから栄養塩もメタンと同様に, 水柱で均一に拡散されていることがわかる。

また図 17 (B) より, 亜硝酸塩は 8 月に表層で高くなっていることから, 表層における滞留が確認できることに加え, 表層での亜硝酸塩の生成が考えられる。

リン酸塩は, 硝酸, 亜硝酸, ケイ酸塩とは異なり, 月変化で減少傾向にあり, メタンと類似した挙動を示した。また図 17 (D) より, 栈橋の 8 月①や 11 月から, 表層に多くリン酸塩が滞留して拡散されたか, 岸からの人為起源供給なども示唆される。

4.3. メタンフラックス

8-9 月にかけて, 表層と底層では, 表層のほうがよりメタン濃度が低くなり, 差がみられたことから底層においてメタンの生成環境であることが示され, 夏季でみられた表層との差は, メタンが表層から大気中への逃散したことが示唆される (図 18)。

メタンフラックスを求めると図 18 のような結果が得られた。

特に, 図 17 で表層と底層で差の大きかった 8 月①, 8 月②では, フラックスの値が高く, 表層のメタン濃度が低いことから成層化による鉛直混合抑制

と共に, 大気への逃散がおきていることがわかる。しかし, 10 月では, 9 月よりもメタン濃度が低いにも関わらず, フラックスが高くなっていることから, 底層に堆積していた有機物内の還元環境で生成されたメタンが湖水の鉛直混合によって, 層構造がなくなり, 水柱にメタンが放出され, 大気中への拡散が頻繁に起きていたことが示唆される [Phelps *et al.*, 1998; Striegl and Michmerhuizen, 1998; Kankaala *et al.*, 2006a]。しかしフラックスは風速に影響される値であり [Stumm and Morgan, 1996], 飽和度を用いた議論や客観解析データに基づく月平均フラックスの算出が適していると考えられるが, 本研究では現場観測値を用いた。今後の継続観測の課題となる。

L 8 月①, L 8 月②, L 9 月, L 10 月, L 11 月, L 12 月の観測値は, ウチダザリガニが生息する周辺であることや, 人為的影響のある湖内環境と判断できる栈橋付近であり, 本研究における洞爺湖の自然のメタン放出量は, 人為的影響の少ない滝之上の分析データをもとにして考察する。図 18 の値を 1 年あたり, 洞爺湖の面積 70.7 km² を乗じて年間放出量に換算したものが, 表 2 である。表 2 より, 滝之上の T 11 月 47.0 gCH₄ と T 12 月 173.4 gCH₄ を比較すると 12 月では, 夏季の成層化から冬季混合層に移行したことで, 底層より放出されていたメタンが水柱内に拡散し, 表層から大気へ放出されたと考えられ [Kankaala *et al.*, 2007], 滝之上測点の冬季における大気中への逃散が活発に起こると考えられる。しかし, 詳細な季節変動と湖内循環等を明確に判断するには, 夏季の観測の必要性がある。

Bastviken *et al.* [2004] による全球的な湖からの放出量の見積りが, 年間 8-48 TgCH₄ であるとされ, 自然起源放出量としては海洋より高い 6-16% をしめるとされている。しかし, 本研究のメタンのフラックスを Bastviken *et al.* [2004] で研究された湖の合計面積 46,789 km² で換算すると, 1.0-236 kg CH₄ となり, 湖からのメタン放出は低い値として見積もることができる。従って洞爺湖における温室効果への影響は極めて小さく, 同様の環境の湖で全球収支を計算すると寄与は小さい。また表 2 の飽和度からも, 観測月や測点ごとで, 476-788% の幅がみら

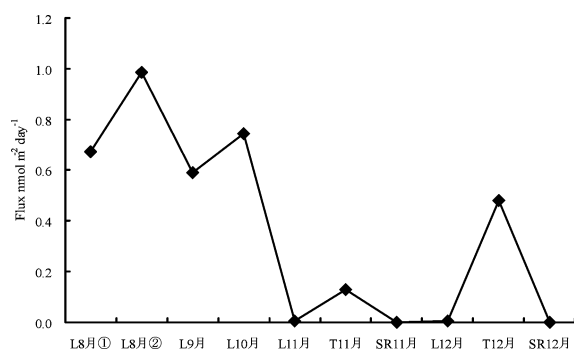


図 18. 観測点, 月別に見たメタンフラックス平均値。

れたが、飽和度の高い夏季8月では、棧橋付近のデータのみであることに加え、過飽和であるといえることから、栄養塩を取り入れて有機物を生産する生物の影響が強く現れていることが考えられる。つまり底層における還元環境下でメタンが生成されたことで、飽和度が高くなったことが説明できる。

また、湖におけるメタン放出は、底層からの噴出、水柱拡散、貯留、水中植物を媒介して生じているとされ、湖の面積によりメタンの放出が異なるとされている。洞爺湖の面積の大きさでは、噴出によるメタン生成寄与が考えられるが [Bastviken et al., 2004], 棧橋付近では、人為的な作用による栄養塩などが湖水中に流れ込むことで、栄養塩を利用するメタン生成菌、或いは窒素循環に大きく作用する硝化菌、脱窒菌等かの影響が考えられる。これらの細菌が作り出した有機物を利用して植物プランクトンやザリガニへと続く湖の生態系内におけるメタン食物連鎖の作用が考えられる。生物が作り出したものであるのかどうかは、洞爺湖においては現段階ではまだ明確にされていない。底層でのメタン極大からも見られるように、特に人為起源物質の影響が強い場所での生物による有機物生成や、その有機物内の還元環境におけるメタン等の温室効果気体の生成は、湖から放出される温暖化物質の収支にも大きく影響すると考えられ [Striegl and Michmerhuizen, 1998; Utsumi et al., 1998a], 生成消費過程を特定できるより詳細な研究が待ち望まれるところである。

4.4. 濁度, COD, 透明度からみた生物活動の指標

メタンは浮遊粒子中や動物プランクトンの腸内・消化器官内という還元環境のもとで生成されている可能性があると考え [De Angelis and Lee, 1994], 栄養塩が豊富に存在し、植物プランクトンの多く生息する環境では、植物プランクトンを摂餌する動物プランクトンが多く生息し、動物プランクトンの遺骸や糞粒などが多く滞留して、過剰のメタン濃度をもたらすと考えられる [Sasakawa et al., 2008]。しかし、本研究の結果から、栄養塩の濃度が高くなる10月以降では、メタンの生成量が少なかったことから季節的变化による作用として影響を受けていることが考えられる。

濁度はすべて機器の測定範囲よりも値が低く、表1よりCODは、湖水内の生物活動が盛んな8月のデータはあるが、9月以降になると、データがないものも多く、試料水内の酸化剤としての働きが小さく、栄養塩に乏しいということが伺え、CODと類似した挙動を示している。透明度においても12月の値

が13.5 mと高かったことから、冬季における物質循環や生物活動は小さく、特に成層化していると考えられる。洞爺湖は、一般的な湖と比較すると貧栄養湖であるといえるが、棧橋付近と滝之上で、異なる傾向もみられ、夏季の観測のある棧橋からは季節変化が明確になるが、滝之上との比較により、詳細な傾向が期待できる。

前節で考察した湖の全球収支を考察する上で、それぞれの湖の栄養状態をより詳細に特定する必要がある、今後も様々な湖で観測を継続することが期待される。

5. 結 論

5.1. 結 論

湖におけるメタンは、溶存酸素と同様な傾向を示し、酸素濃度の高いところでメタン生成が確認された。栄養塩とメタン生成では逆の相関があり、特にメタン生成の多い夏季には、プランクトンなど湖水内の生物による栄養塩の消費が示唆され、微小な還元環境における酸素を利用した生物活動によるメタン生成と考えられるが、明確に原因を特定するには同位体のデータが必要である。メタン濃度の急激な増加には、栄養塩の人為的供給も考えられた。

月変化に関わらず、表層と底層の差がみられ、表層の値が低いときにはメタンフラックスの値が高くなり、大気への逃散量が多くなることが確認できた。しかし、洞爺湖でのメタンの大気への寄与は小さいことが考えられるが、冬季では滝之上でメタンの生成が高くなる傾向にあることが示唆された。

水質からは、洞爺湖は貧栄養湖ということが確認できたが、夏季における違いは、明確にされていない。

5.2. 今後の課題

棧橋付近のみならず、滝之上や壮瞥川の観測を行ったが、11月、12月の2回というデータ数が少ないものもあり、季節変化による挙動の把握には、夏季におけるより詳細な観測の必要性がある。本研究では、湖水中に含まれる物質の分析を行っているが、生成物質の起源に不明確な部分が多く、今後は、本研究で分析することのなかった、メタン ($^{13}\text{CH}_4$) 同位体や一酸化二窒素 (N_2O) 濃度、一酸化二窒素 ($^{15}\text{N}_2\text{O}$) 同位体を分析することで、さらに温室効果気体の挙動を解明することから洞爺湖における物質循環解明につなげる必要性がある。

また、本研究では、透明度とあわせたクロロフィル *a* の分析や湖水内の植物プランクトンなどをあ

わせた生物活動による指標と栄養塩の生成過程を明らかにすることで、生物活動の詳細な分析による物質循環の把握ができ、湖環境の把握に繋がるといえる。

本研究では、浅い湖岸付近を中心とした分析に限定されているため、洞爺湖の深層部分における正確な分析を進めることで、層構造の把握から湖水の断面的に物質循環の挙動を把握することに繋がるといえる。

謝 辞

本研究を進めるにあたり、支笏洞爺国立公園環境省北海道地方環境事務所洞爺湖自然保護官事務所の鈴木祥之様には、数々のお力添えによる調査手続きをしていただき観測をすることができました。心より感謝申し上げます。

地元洞爺湖でご活躍のNPO法人クリーンレイク洞爺湖理事山本勲様、洞爺サンパレス支配人鈴木忍様には、観測や宿泊などの面でご支援くださいましたこと心から感謝申し上げます。

水質化学研究室の加藤勲教授ならびに齋藤恒典様には、分析を進めるにあたり、多くのご助言を賜いました。感謝申し上げます。共同プロジェクトとして、野生動物保護管理理学研究の学生には、洞爺湖での観測をすすめるにあたり、多大なるお力添えを頂きましたこと心より感謝申し上げます。発生生物学研究室の山舗直子教授には、分析をする上での支援をしていただきました。心から感謝申し上げます。臨時職員の森本陽子様には、分析の際のご助言及び、数々のご協力を頂きました。心より感謝申し上げます。

測定の測位ならびに地図作成にご協力くださいましたGISルームの木田麻子様、地域環境学科都市空間情報学研究室の橋浦弥里様、環境GIS研究室の金子正美教授をはじめ研究室学生みなさまに心より感謝申し上げます。

環境地球化学研究室の全ての学生には、現場観測及び分析において多大なる協力を頂きました。深く感謝致します。

本稿の改訂に際し貴重なコメントを頂きました2名の校閲者に感謝いたします。

本研究の一部は、2008年度生命環境学科学科共通重点プロジェクト（洞爺湖フィールド）の助成を受けたものである。

参 考 文 献

Bartlett, K.B., P.M. Crill, D.I. Sebach, R.C. Har-

riss, J.O. Wilson, and J.M. Melack (1988), Methane flux from the central Amazon floodplain, *J. Geophys. Res.*, *93*, 1571-1582.

Bastviken, D., J. Ejlertsson, I. Sundh, and L. Tranvik (2003), Methane as a source of carbon and energy for lake pelagic food webs, *Ecology*, *84*, 969-981.

Bastviken, D., J. Cole, M. Pace, and L. Tranvik (2004), Methane emissions from lakes: Dependence of lake characteristics, two regional assessments, and a global estimate, *Global Biogeochem. Cycles*, *18*, GB4009, doi: 10.1029/2004GB002238.

De Angelis, M.A., and C. Lee, (1994), Methane production during zooplankton grazing on marine phytoplankton, *Limnol. Oceanogr.*, *39*(6), 1298-1308.

Harrits, S. M., and R.S. Hanson (1980), Stratification of aerobic methaneoxidizing organisms in Lake Mendota, Madison, Wisconsin, *Limnol. Oceanogr.*, *25*, 412-421.

畑 幸彦(1987), グム湖における淡水赤潮の発生事例, 淡水赤潮, 門田 元, pp. 247-283.

飯田広恵, 内田哲男, 湯地昭夫, 小西美和, 伊藤聡美, 磯山博文(2003), 酸分解/フローインジェクション分析法によるケイ酸塩副成分の定量, *分析化学* *52*, pp. 527-532.

Jones, R.J., J. Grey, D. Sleep, and L. Arvola, (1999), Stable isotope analysis of zooplankton carbon nutrition in humic lakes, *Oikos*, *86*, 97-104.

Kankaala, P., J. Huotari, E. Peltomaa, T. Saloranta, and A. Ojala (2006a), Methanotrophic activity in relation to methane efflux and total heterotrophic bacterial production in a stratified, humic, boreal lake, *Limnol. Oceanogr.*, *51*, 1195-1204.

Kankaala, P., S. Taipale, J. Grey, E. Sonninen, L. Arvola, and R. Jones (2006b), Experimental $\delta^{13}\text{C}$ evidence for a contribution of methane to pelagic food webs in lakes, *Limnol. Oceanogr.*, *51*, 2821-2827.

Kankaala, P., S. Taipale, H. Nykänen, and R.I. Jones (2007), Oxidation, efflux, and isotopic fractionation of methane during autumnal turnover in a polyhumic, boreal lake, *J. Geophys. Res.*, *112*, G02003, doi: 10.1029/

- 2006JG000336.
- Kanp, A., A. Michaels, A. Close, H. Duklow, and A. Dickson (eds.) (1996), Protocols for the Joint Global Ocean Flux Study (JGOFS) Core Measurements, *JGOFS Rpt.*, Nr. 19 vi+170pp. Reprint of the IOC Manuals and Guides No. 29, UNESCO 1994.
- 気象庁 (1999), 海洋観測指針 第1部. edited by 気象庁, pp. 48-97, 財団法人 気象業務支援センター, 東京.
- NIST (2005), Certificate of Analysis Standard Reference Material 3185, Nitrate Anion Standard Solution.
- 奥 修 (2002), 吸光光度法ノウハウ ケイ酸・リン酸・硝酸塩の定量分析.
- Otsuki, A., M. Akizaki, and T. Kawai (1987), Long-term variations of three types of phosphorus concentrations in highly eutrophic shallow Lake Kasumigaura, with special reference to dissolved organic phosphorus, *Jpn. J. Limnol.*, 48 Special Issue: S1-S11.
- Phelps, A. R., K.M. Peterson, and M.O. Jeffries (1998), Methane efflux from high-latitude lakes during spring ice melt, *J. Geophys. Res.*, 103, 29, 029-29, 036.
- RTI (2005), NPS Anion Analysis Revision 3.
- Rudd, J.W.M., and R.D. Hamilton (1978), Methane cycling in a eutrophic shield lake and its effects on whole lake metabolism, *Limnol. Oceanogr.*, 23, 337-348.
- 社団法人 日本水環境学会 (2006), 水環境ハンドブック, pp. 37-58, 朝倉書店, 東京.
- Sasakawa, M., U. Tsunogai, S. Kameyama, F. Nakagawa, Y. Nojiri, and A. Tsuda (2008), Carbon isotopic characterization for the origin of excess methane in subsurface seawater, *J. Geophys. Res.*, 113, C03012, doi: 10.1029/2007JC004217.
- Striegl, R. G., and C.M. Michmerhuizen (1998), Hydrologic influence on methane and carbon dioxide dynamics at two north-central Minnesota lakes, *Limnol. Oceanogr.*, 43, 1519-1529.
- Stumm, W., and J.J. Morgan (1996), *Aquatic Chemistry: Chemical Equilibria and Rates in Natural Waters*, 1022 pp., John Wiley, New York.
- Taipale, S., P. Kankaala, and R.I. Jones (2007), Contributions of different organic carbon sources to Daphnia in the pelagic foodweb of a small polyhumic lake: Results from mesocosm DI^{13}C -additions, *Ecosystems*, in press.
- 田中俊逸, 田村紘基, 都築俊文, 工藤英博, 鈴木智宏, 笹木圭子 (2005), 水の分析, 第5版, pp. 290-296, 日本分析化学北海道支部, 京都.
- Tilbrook, B.D., and D.M. Karl (1995), Methane sources, distributions and sinks from California coastal waters to the oligotrophic North Pacific gyre, *Marine Chem.*, 49, 51-64.
- Utsumi, M., Y. Nojiri, T. Nakamura, T. Nozawa, A. Otsuki, and H. Seki (1998a), Oxidation of dissolved methane in a eutrophic, shallow lake: Lake Kasumigaura, Japan, *Limnol. Oceanogr.*, 43, 471-480.
- Wanninkhof, R. (1992), Relationship Between Wind Speed and Gas Exchange Over the Ocean, *J. Geophys. Res.*, 97, C5 7373-7382.
- Whiticar, M.J. (1999), Carbon and hydrogen isotope systematics of bacterial formation and oxidation of methane, *Chem. Geol.*, 161, 291-314.
- Wiesenburg, D.A., and N.A. Guinasso Jr. (1979), Equilibrium solubilities of methane, carbon monoxide, and hydrogen in water and sea water, *J. Chem. Eng. Data*, 24, 356-360.
- 吉田 磨, 今井 翔, 窪田千穂, 林えれな, 藤原沙弥香, 河島弘幸, 土屋 愛 (2009), 環境地球化学で生命圏の環境を化学する, 加藤勲教授退職記念論文集—35年間の酪農学園に感謝して—, pp. 191-227, 北海道.
- Yoshida, O., H.Y. Inoue, S. Watanabe, S. Noriki, and M. Wakatuchi (2004), Methane in the western part of the Sea of Okhotsk in 1998-2000, *J. Geophys. Res.*, 109, C09S12, doi: 10.1029/2003JC001910.

Abstract

Lake sediments are sources of methane in the landscape, however, regional and global lake methane emissions, contributing to the greenhouse effect, are poorly known. Seasonal changes in the vertical

distributions of dissolved methane in the water column of the Lake Toya and its outlet river were investigated during 6 observations in 2008 to obtain clues to the mechanism responsible for production of methane in the oligotrophic lake. Methane has accumulated in the hypolimnion during the stratification period. Distributions of methane in the Lake Toya in summer were related to dissolved oxygen distribution, but inverse correlation was found with nutrients. We report here addresses the possible correlation of methane with other biological variables, lake inhabitant such as Signal crayfish (*Pacifastacus trowbridgii*), and physical characteristics in the water column. Significant methane flux from the bottom sediments in the Lake Toya was confirmed but decreased gradually as the vertical diffusion and overturn proceeded. We estimate the methane emission from the Lake Toya to the atmosphere ranged between 1.65 and 356 g CH₄ yr⁻¹, indicating that the Lake Toya should be included as a minor source in global methane budgets now but human-induced ecological changes may alter the future natural regional environments and global climate.