

令和 5 年 9 月 13 日現在

機関番号：24201

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H04311

研究課題名(和文) 温暖化に伴う湖沼の水循環プロセスの変化が湖底堆積物中の脱窒に与える影響

研究課題名(英文) Influence of changes in lake water circulation processes due to global warming on denitrification in the sediment at Lake Biwa

研究代表者

尾坂 兼一 (Osaka, Ken'ichi)

滋賀県立大学・環境科学部・准教授

研究者番号：30455266

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,200,000円

研究成果の概要(和文)：湖底堆積物と湖水間の溶存窒素交換速度に与える湖底の溶存酸素濃度の影響を明らかにするコラム実験方法を世界で初めて開発した。それを用いて琵琶湖の湖底堆積物と湖水間の溶存窒素交換量を測定したところ、1年で琵琶湖水中の溶存全窒素量の10%程度が湖底堆積物から湖水へ供給され、その量は湖底の溶存酸素濃度が低下により増加することが明らかになった。しかし冬の全層循環が例年より弱く湖底の溶存酸素濃度の低かった2019年、2020年に琵琶湖水中に存在した溶存窒素量は例年よりも少なかった。このことは湖底堆積物から湖水への溶存窒素供給量が増えた以上に、湖内での溶存窒素の消費が起こっていることを示唆している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

世界各地の湖沼において、地球温暖化により表層水温が上昇することで湖水の鉛直循環過程が変化し、それによる湖水深層での溶存酸素濃度の低下や栄養塩の放出が問題となっている。本研究は湖水深層での溶存酸素濃度の低下が湖底堆積物と湖水間の窒素化合物交換速度に与える影響を明らかにするための手法を提示し、今後の地球温暖化に対する湖沼の応答に関する研究分野に貢献した。また近畿1400万人の飲料水を賄っている琵琶湖における窒素動態に関する重要な知見を得ることができた。

研究成果の概要(英文)：We developed the column method to clarify the effect of dissolved oxygen concentration in the lake bottom on the rate of dissolved nitrogen exchange between lake bottom sediments and lake water. Using this method, the dissolved nitrogen exchange rate between lake sediments and lake water in Lake Biwa was measured. It was found that about 10% of the total dissolved nitrogen in the water of Lake Biwa is supplied from the lake bottom sediments to the lake water in one year, and this amount increases with a decrease in the dissolved oxygen concentration in the lake bottom. However, the amount of dissolved nitrogen pooled in Lake Biwa water in 2019 and 2020, when the winter total circulation was weaker than usual and the dissolved oxygen concentration in the lake bottom was lower than usual, was lower than usual. This suggests that consumption of dissolved nitrogen in the lake occurred more than the increased supply of dissolved nitrogen from the lake bottom sediments to the lake water.

研究分野：陸水学

キーワード：窒素循環 温暖化 成層 同位体 微生物 溶存酸素

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

温帯，亜熱帯に属する多くの湖は循環湖であり，夏に表層水の温度が上がることで上下混合が起こらない成層状態が形成され，冬に表層水温が下がることで表層水の密度が大きくなり全層循環する．この冬の湖水循環プロセスが近年の温暖化により変化しつつあり，日本最大の湖である琵琶湖では 2018 年から 2019 年にかけての冬に表層水温が下がり切らず，観測史上初めて全層循環が起こらなかった(滋賀県, 2019)．通常，循環湖では夏の成層期に湖底生物による酸素消費のため深層水の溶存酸素(DO)濃度が低下し，冬に全層循環が生じることで表層水に含まれる DO が深層に供給されるサイクルを繰り返す．つまり，冬に全層循環が起こらなければ，深層水において夏に消費された DO が回復せず，DO 濃度が低い状態で次の成層期(夏)を迎えることになる．

2. 研究の目的

本研究では温暖化・気候変動による降雨の増加や，琵琶湖の水循環過程の変化が琵琶湖の窒素動態に与える影響を明らかにすることを目的とする．具体的には①琵琶湖底の DO 濃度の変化が琵琶湖底堆積物と湖水間の窒素化合物の交換速度に与える影響，②集水域から琵琶湖への窒素流出に与える降雨の影響，③それらが琵琶湖の窒素動態に与える影響について明らかにする．

3. 研究の方法

①琵琶湖湖底堆積物-湖水間の窒素化合物移動量に対する湖水の DO 濃度の影響

本研究では，図 1 のような湖底堆積物と湖水の上に任意の酸素濃度のヘッドスペースを作成し，湖水を循環させたカラムを用いて実験を行なった．湖底堆積物，湖水は 2020 年 9 月から 2021 年 11 月に琵琶湖北湖第一湖盆の水深約 90 m 地点 (35°22.00'N, 136°06.00'E, 図 1) で採取した．湖水の DO 濃度を複数の濃度にコントロールした 24 カラムを現位置の水温(約 9°C)で，湖水中の DO 濃度を 5 分間隔で測定しながら約 10 日間培養した．培養途中で Port1 から湖水 20 mL 程度を数回採取し，湖水の硝酸+亜硝酸($\text{NO}_2 + \text{NO}_3$)，アンモニア(NH_4^+)，溶存窒素濃度変化の測定を行ない，その濃度変動から琵琶湖湖底堆積物と湖水間の窒素化合物の交換速度を算出した．また，2021 年 4 月から 2023 年 2 月にかけて示す，琵琶湖北湖の水深 10m 地点，30m 地点，60m 地点，90m 地点において，一ヶ月に 4 地点のうち 1~3 地点の湖底堆積物を採取し，湖水を現地の DO 濃度にして培養した．さらに，採取した湖底堆積物の一部からは DNA を採取し，微生物群集構造の解析を行なった．

②琵琶湖集水域における窒素流出に与える降雨の影響

滋賀県の琵琶湖北湖集水域に位置する土地利用パターンの異なる 20 の集水域(10.3-369.7km², 図 8)の河口付近におい滋賀県の琵琶湖北湖集水域に位置する土地利用パターンの異なる 20 の集水域(10.3-369.7km², 図 8)の河口付近において，2019 年から 2021 年の 3 年間に大規模降雨を含む計 29 回の異なる水文条件下で水質調査を行なった．調査日の水文条件は滋賀県が測定している河川水位を元に行なった．対象とした窒素化合物は全窒素(TN)，溶存全窒素(DTN)，粒子状窒素

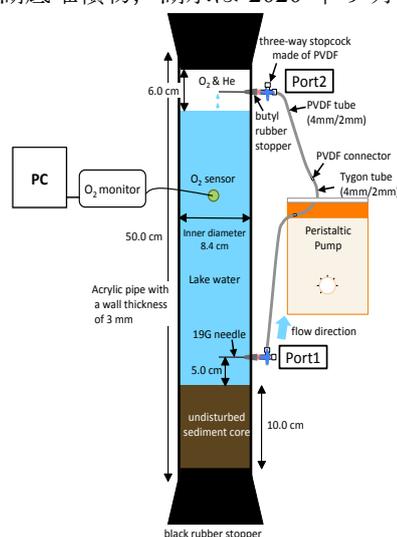


図 1. 本研究で検討を行った湖底堆積物培養カラム

(PN), 溶存有機態窒素(DON), 硝酸イオン(NO_3^-), アンモニウムイオン(NH_4^+)とし, 硝酸の窒素・酸素安定同位体比($\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$, $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$)も測定することにより, 硝酸イオンの起源についても考察した.

③琵琶湖内の窒素化合物の長期変動

琵琶湖北湖第一湖盆の水深 90 m 地点の湖底堆積物を採取した地点において, バンドーン採水器 (容量 10 L: 離合社製; 5026-D) を用いて, 0, 2.5, 5, 7.5, 10, 15, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 88 m の 14 深度から採水した. 採水は 2015/4 から 2023 年 3 月まで約月に 1 回の頻度で行った.

4. 研究成果

①琵琶湖湖底堆積物-湖水間の窒素化合物移動量に対する湖水の DO 濃度の影響

計 24 本のカラムを 179~269 時間培養した結果, 培養期間中の湖水中の平均 DO 濃度は 0.35~9.95 mgO_2/L の範囲であった. 図 3 に示す通り, ほとんどの場合, 培養期間中の DO 濃度は非常に安定しており, 5 分間隔で測定した DO 濃度の標準偏差は 0.1 mgO_2/L 以下であった.

本培養法によって, 琵琶湖北湖第一湖盆の水深 90 m の地点から採取した湖底堆積物と湖水間の窒素化合物の交換速度の関係を詳細に測定したところ, 図 2 の結果が得られた. 琵琶湖北湖では, 湖水の DO 濃度が 3.0 mgO_2/L を下回ると $\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$ フラックスの一次反応係数が急激に増加することが示された. また NH_4^+ は常に湖底堆積物から湖水へ放出されていたが, 湖水の DO 濃度が低下するとその放出速度は大きくなった. 結果的に溶存無機窒素(DIN)は常に湖底堆積物から湖水へと放出されていた. この閾値と DO 濃度と栄養塩フラックスとの正確な関係は, 湖底の DO 濃度低下が堆積物からの栄養塩放出に及ぼす影響を予測する上で有用な情報を提供するものである.

2021 年から 2022 年の 2 年間は水深 90 m の地点に加えて水深 10, 30, 60 m の湖底堆積物も定期的に採取し, 現場の湖水 DO 濃度で培養した. それにより琵琶湖底の DO 濃度, 地点(底質), 水温, 水質などが湖水-湖底堆積物間の窒素化合物フラックスに与える影響を観測したところ, 琵琶湖底からの栄養塩フラックスはほとんど湖底の DO 濃度に影響されており, その他の要因にはあまり影響されていなかった. このことは微生物分析の結果と非常に整合的である. 図 3, 4 に湖底堆積物中の門

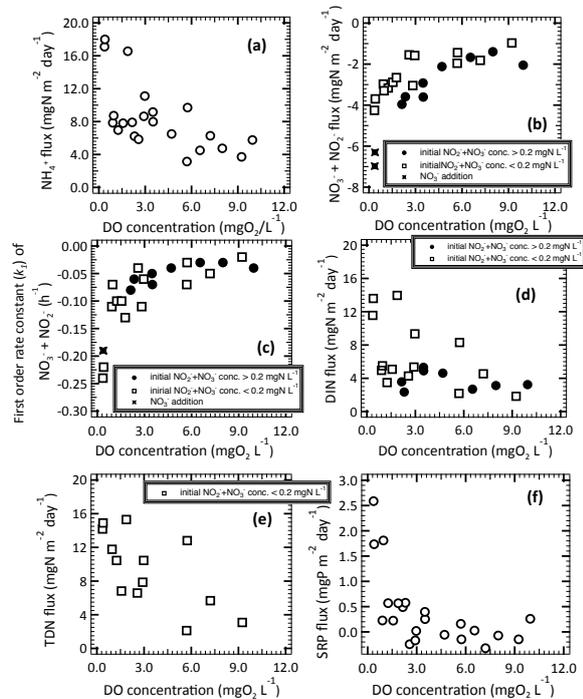


図 2. 琵琶湖第一湖盆水深 90m 地点における, 湖水中の DO 濃度と湖底堆積物-湖水間の栄養塩フラックスの関係

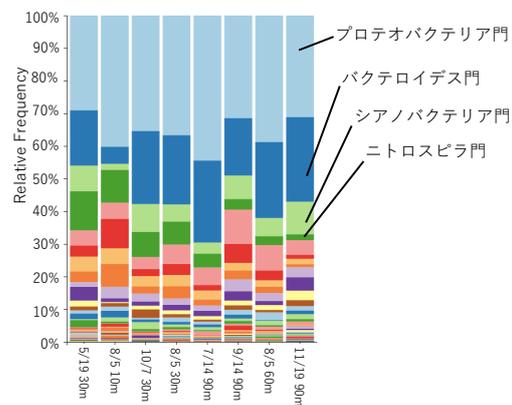


図 3. 湖底堆積物表層に存在する微生物の種類

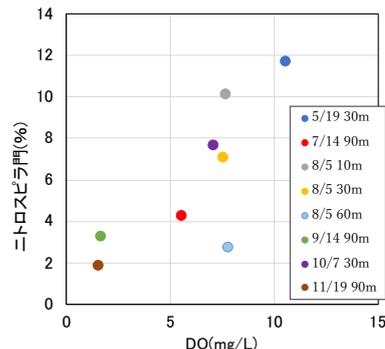


図 4. 湖底堆積物中のニトロスピラ門の割合と湖水の DO 濃度の関係

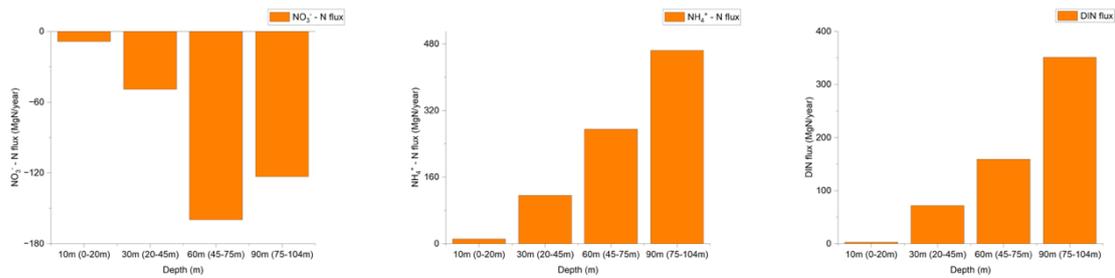


図 5. 深度別の琵琶湖湖底堆積物から湖水への窒素化合物の年間放出量

レベルの微生物群集構造と湖水中の DO 濃度と湖底堆積物に含まれる全細菌中のニトロスピラ門の割合を示す。ニトロスピラ門の微生物は硝化過程の一部である亜硝酸イオン(NO_2^-)を NO_3^- に酸化する亜硝酸酸化を担う微生物である。湖底堆積物表層に含まれる全細菌中のニトロスピラ門の微生物の割合は、季節や堆積物採取地点に関わらず、ほぼ湖水の DO 濃度のみに影響されていた。このことは DO の低い地点で NO_3^- 生成速度の低下を示唆する物であり、湖水-湖底堆積物間の窒素化合物交換量の測定結果と非常に整合的であった。

これらの深度別の湖水-湖底堆積物間の窒素化合物移動量データから算出した、琵琶湖における各深度湖底堆積物と湖水間の年間窒素化合物移動量の総量を図 5 に示す。図 2 に示した水深 90 m 地点のデータと同様、どの深度においても NO_3^- は湖水から湖底堆積物への吸収、 NH_4^+ 、DIN は湖底堆積物から湖水への放出であった。全体的に、湖水の DO 濃度が低くなりやすい水深 75-104 m で各フラックスは大きかった。ただし面積は水深 45-75 m の領域が最も広いので、 NO_3^- の吸収量は水深 45-75 m の領域で最も大きくなった。

②琵琶湖集水域における窒素流出に与える降雨の影響

ほとんどの水文条件において集水域から流出する窒素の主成分は NO_3^- であり extreme storm, heavy rainfall, large rainfall, small rainfall, base flow, drought における TN 濃度に対する NO_3^- 濃度の比の平均値は 44.2%, 52.9, 56.8, 66.5, 73.9, 78.9%であった。低水位な水文条件において NO_3^- 濃度は森林面積割合の低い集水域で高い傾向が見られたが、高水位な水文条件になるにつれて森林面積割合の低い集水域で NO_3^- 濃度が低下、森林面積割合の大きい集水域で NO_3^- 濃度が増加する傾向がみられた。結果として高水位時には低水位時にみられたような集水域の森林面積割合と NO_3^- 濃度の明瞭な関係はみられなくなった。また、高水位時には全集水域において PN 濃度が増加したが、extreme storm の時においてもほとんどの集水域で NO_3^- が最も重要な TN の構成要素であった。このことは本地域においては NO_3^- が下流域へ流出する窒素化合物として最も重要な成分であること、集水域における無機化、硝化速度などの NO_3^- 生成パラメーターが、集水域からの窒素流出に関するプロセスモデルなどに非常に重要であることを示している。

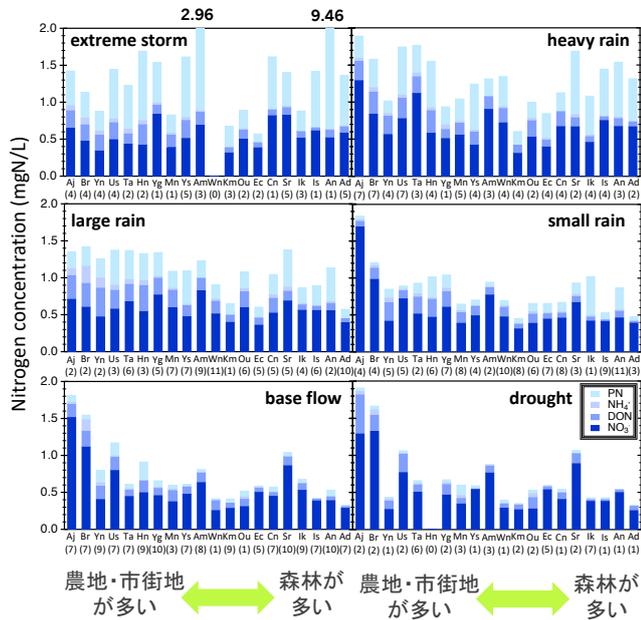


図 6 水文条件別の集水域から流出する窒素化合物濃度

③琵琶湖内の窒素化合物の長期変動

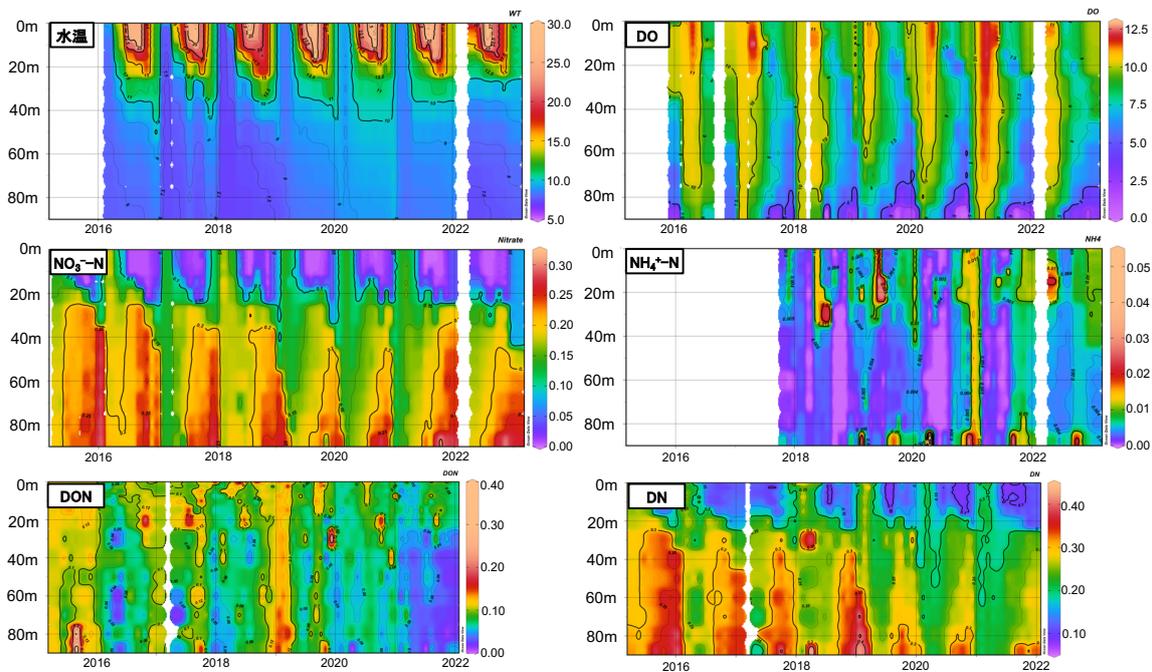


図 7. 琵琶湖北湖第一湖盆の水深 90 m 地点における水温, DO, NO₃⁻, NH₄⁺, DON, TDN 濃度

図 7 に観測期間中の水温, DO, NO₃⁻, NH₄⁺, DON, DN 濃度, 図 8 に琵琶湖北湖第一湖盆の水深 90 m 地点の栄養塩プロファイルから推定した琵琶湖の窒素化合物現存量を示す. 2018 年冬から 2019 年春にかけて, 2019 年冬から 2020 年春にかけての冬は例年のような冬期全層循環が起こらなかった. その結果, 2018 年冬から 2019 年春にかけて, 2019 年冬から 2020 年春にかけての冬は深層の例年よりも DO 濃度が低いまま推移した. また, 冬期の水循環が弱く冷たい水が全層に行きわたらなかったため, 2019 年, 2020 年は深層の水温が例年よりも少し高くなった.

この例年のような全層循環が起こらなかった 2019 年, 2020 年は琵琶湖北湖第一湖盆の水深 90 m 地点の NO₃⁻濃度, DTN 濃度は他の年と比べて低かった(図 12). また全層循環が起こらなかった 2018 年から 2019 年の冬期を境にして, 湖水中の TDN 量も減少している(図 8). 図 2(e)で示したとおり, 溶存態の窒素化合物の総量である溶存全窒素(DTN)の湖底堆積物-湖水間のフラックスは, DO 濃度が低下すると湖底堆積物から湖水の方向で増加する. すなわち, 2019 年, 2020 年は冬期に湖底に例年ほど DO が供給されず, 湖底堆積物から湖水への DIN フラックスは大きいと考えられたが, 湖水中の TDN 量は減少していた. また, 2019 年は琵琶湖集水域の降水量が例年よりも少なかったため, 集水域からの栄養塩流入量が少なかったと考えられるが, 2020 年は例年と同程度の降水量であり, 集水域からの窒素流入量が少なかったとは考えられない. また 2019 年, 2020 年の琵琶湖水中の TDN, NO₃⁻のδ¹⁵N は例年よりも高いことから, 冬期の全循環が例年よりも弱かった 2019 年, 2020 年は, 湖内での DON や NO₃⁻の消費が例年よりも多く, 琵琶湖水中の TDN, NO₃⁻量が低下した可能性が高いと考えられる. ただしその更なる詳しいメカニズムの解明は今後の課題である.

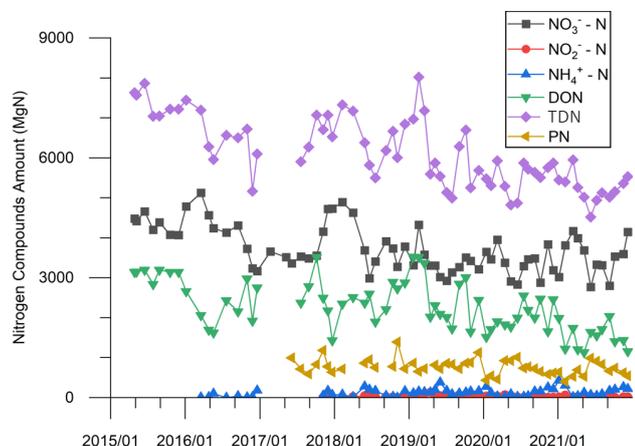


図 8. 琵琶湖北湖第一湖盆の水深 90 m 地点の栄養塩プロファイルから推定した琵琶湖の窒素化合物現存量

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 2件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Osaka, K., Chishiro, S., Matsumoto, Y., Iwata T., Okuda, N.	4. 巻 36(10)
2. 論文標題 Hydrological control of the chemical characteristics of suspended particulate phosphorus in the Yasu River watershed, Japan: Implications for its source and bioavailability	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Hydrological Processes	6. 最初と最後の頁 e14734
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/hyp.14734	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Osaka, K., Yokoyama, R., Ishibashi, T., Goto, N.	4. 巻 36
2. 論文標題 Effect of dissolved oxygen on nitrogen and phosphorus fluxes from lake sediments and their thresholds based on incubation using a simple and stable dissolved oxygen control method	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Limnology and Oceanography: Methods	6. 最初と最後の頁 1 - 14
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/lom3.10466	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 0件／うち国際学会 5件）

1. 発表者名 尾坂兼一，横山梁，石橋孝晃，後藤直成
2. 発表標題 FIAを用いた琵琶湖底堆積物からの栄養塩溶出速度の測定
3. 学会等名 第58回フローインジェクション分析講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 尾坂兼一，横山梁，石橋孝晃，後藤直成
2. 発表標題 琵琶湖における内部栄養塩負荷測定：任意の溶存酸素濃度による湖底堆積物カラム培養法の検討
3. 学会等名 陸水学会第86回大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石橋孝晃, 大手 信人, 尾坂 兼一, 富岡 知玄
2. 発表標題 琵琶湖における湖底からの栄養塩負荷の季節変動
3. 学会等名 第57回日本水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ohte, N., Katsuyama, M., Osaka, K.
2. 発表標題 Kiryu Experimental Watershed: the temperate forest catchment under Asian monsoon climate, Frontiers in Hydrology
3. 学会等名 Frontiers in Hydrology (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takaaki Ishibashi, Ken'ichi Osaka, Keisuke Koba, Kei Nishida, Takashi Nakamura
2. 発表標題 The influence of vertical water mixing on inter-annual nitrogen dynamics in Lake Biwa
3. 学会等名 JpGU meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ken'ichi Osaka, Haruto Tanabe, Syuhei Ban
2. 発表標題 Hydrological controls on phosphorus export from diffuse source in Lake Biwa basin, central Japan
3. 学会等名 JpGU meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ban, S., X. Liu, K. Osaka, N. Goto and J.C. Wells
2. 発表標題 High resolution monitoring for subsidiary nutrient loadings and phytoplankton production in north basin of Lake Biwa
3. 学会等名 JpGU meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Wells, J., S. Ban, X. Liu, K. Osaka and N. Goto
2. 発表標題 Monitoring and particle-tracking simulation to clarify littoral-to-pelagic nutrient export during the rice planting season in Lake Biwa
3. 学会等名 JpGU meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Wells, John, 伴修平, X. Liu, 尾坂兼一, 後藤直成
2. 発表標題 Particle tracking simulations of littoral to pelagic transport in the North Basin of Lake Biwa during the rice-planting season of 2020
3. 学会等名 日本陸水学会2021年大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 尾坂兼一, 田邊晴人, 石橋孝晃, 伴修平
2. 発表標題 琵琶湖集水域における河川のリン濃度と土地利用に対する水文条件の影響
3. 学会等名 日本陸水学会2021年大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 尾坂兼一, 田邊晴人, 佐藤祐一, 中村高志
2. 発表標題 集水域から琵琶湖に流入する窒素化合物に対する土地利用と水文環境の影響
3. 学会等名 第37回日本腐植物質学会講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石橋孝晃, 大手信人, 尾坂兼一, 木庭啓介, 西田継, 中村高志
2. 発表標題 琵琶湖水の窒素動態に及ぼす湖水循環の影響
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>知のリソース(尾坂兼一) http://db.spins.usp.ac.jp/html/100000141_ronbn_1_ja.html</p>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	佐藤 祐一 (Sato Yuichi) (30450878)	滋賀県琵琶湖環境科学研究センター・総合解析部門・専門研究員 (84201)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	後藤 直成 (Goto Naoshige) (40336722)	滋賀県立大学・環境科学部・教授 (24201)	
研究分担者	中村 高志 (Nakamura Takashi) (60538057)	山梨大学・大学院総合研究部・准教授 (13501)	
研究分担者	西田 継 (Nishida Kei) (70293438)	山梨大学・大学院総合研究部・教授 (13501)	
研究分担者	細井 祥子(田辺祥子) (Hosoi Shoko) (80423226)	滋賀県立大学・環境科学部・准教授 (24201)	
研究分担者	木庭 啓介 (Koba Keisuke) (90311745)	京都大学・生態学研究センター・教授 (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関