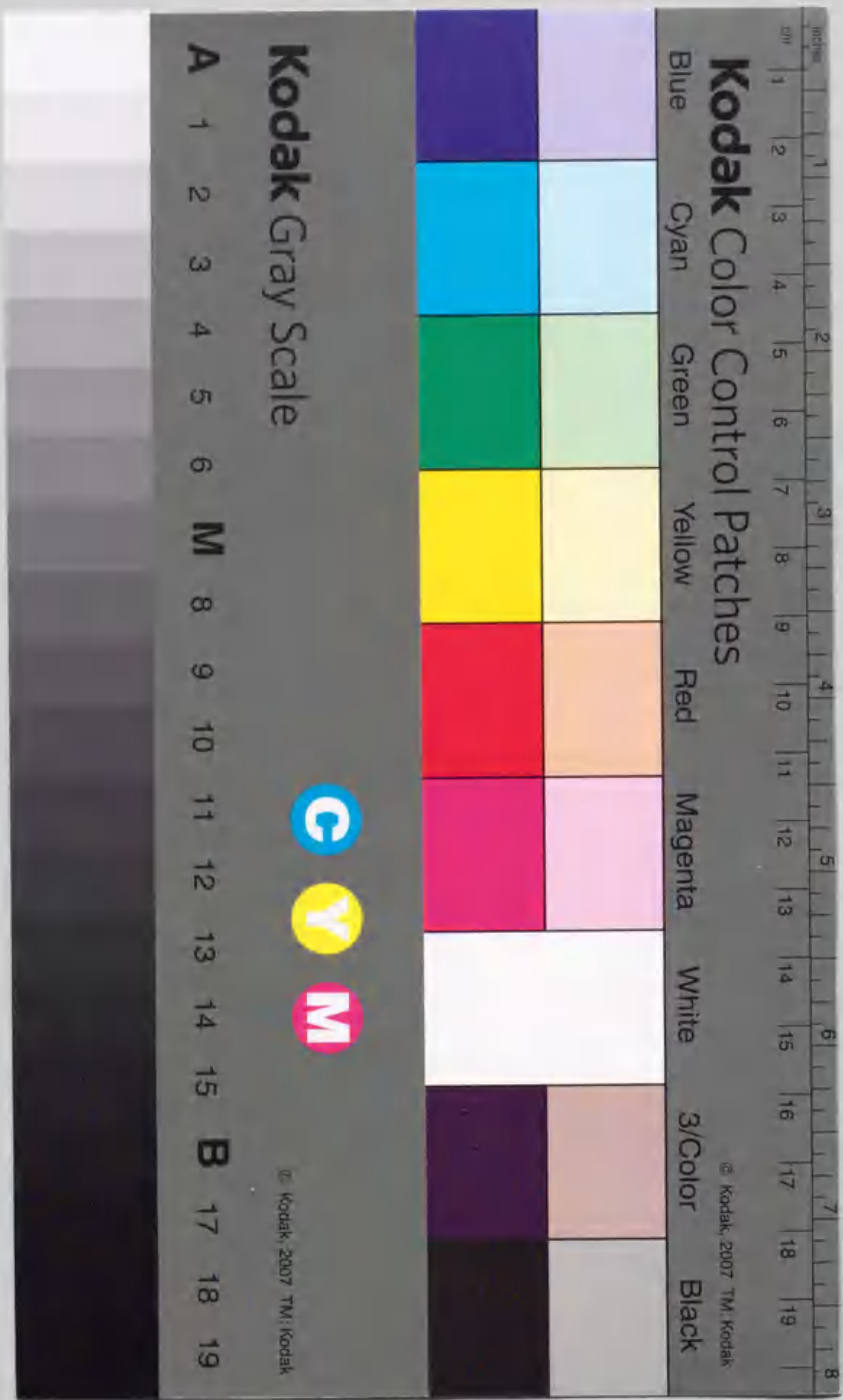


湖沼の酸化還元境界層におけるマンガンと鉄の動態

—微生物過程とその生物地球化学的意義—

入木明彦



報告番号 乙 第 4576 号

湖沼の酸化還元境界層におけるマンガンの動態

— 微生物過程とその生物地球化学的意義 —

目次

ページ

要旨	1
第1章 序論	
1) はじめに	3
2) 自然界におけるマンガンの分布とその生物地球化学的意義	4
3) 酸化還元境界層における微生物代謝に関する従来の研究	8
4) 本研究の目的	17
第2章 酸化還元境界層としての化学躍層におけるマンガンの分布	
1) はじめに	19
2) 研究方法	19
3) 結果	24
4) 考察	31
5) まとめ	36
第3章 植物プランクトンと光合成緑色硫黄細菌の一次生産	
1) はじめに	38
2) 方法	39
3) 結果	39
4) 考察	44
5) まとめ	46
第4章 紅色非硫黄細菌の増殖とその支配因子	
1) はじめに	47
2) 方法	47
3) 結果	48

4) 考察	54
5) まとめ	57
第5章 化学躍層におけるマンガンの微生物的還元と溶存有機態炭素消費	
1) はじめに	58
2) 方法	58
3) 結果	60
4) 考察	66
5) まとめ	70
第6章 深見池におけるマンガンと有機物のフラックス	
1) はじめに	72
2) 方法	73
3) 結果	73
4) 考察	77
5) まとめ	79
第7章 総合考察	
1) 水柱内における各代謝の相互関連	81
2) 深見池における炭素代謝	82
3) 深見池におけるマンガンの循環	84
4) まとめ	93
謝辞	95
引用文献	96

要 旨

湖沼におけるマンガンの分布と循環は化学的過程と共に、湖の物質代謝の一環としての多種の微生物過程によって大きく支配されるが、この事実はマンガン還元で、特に顕著であると考えられる。本研究では、春から秋にかけて安定な水温成層と化学成層が発達し、深水層が著しく還元的となる長野県深見池において、酸化還元境界層のマンガン還元に関わる微生物過程について研究を行い、湖沼のマンガン循環における微生物過程の役割の解明を試みた。

本研究で明らかにされた事実は以下のように要約される。

- 1) 生産層における植物プランクトンと緑色硫黄細菌による有機物の一次生産は、それぞれ $0.3\text{--}1.6 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ 、 $0.006\text{--}0.056 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ であり、成層期間平均として緑色硫黄細菌の生産は植物プランクトンの生産の3.3%であった。夏の成層期間中の生産層下部と深層水底における有機炭素の沈降フラックスは $1.01 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ 、 $1.18 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ で、植物プランクトンと光合成細菌による全有機物生産の27%、31%と、大きかった。また、冬期の全循環期の深水層水底における有機炭素の沈降フラックスも一次生産の70%に達した。
- 2) 酸化還元境界層において、紅色非硫黄細菌 (*Rhodospseudomonas palustris*) が $100\text{--}800 \text{ CFUs} \cdot \text{ml}^{-1}$ レベルで生育していることが見出され、かつ季節的にその現存量と分布濃度が変化した。培養実験による解析により、*Rh. palustris* による溶存有機炭素(DOC)同化効率は46%であった。*Rh. palustris* の生育にはマンガンの存在が不可欠な役割を果たしていることが明らかにされた。
- 3) 酸化還元境界層でマンガン還元菌が $10^2\text{--}10^3 \text{ cells} \cdot \text{ml}^{-1}$ のレベルで生育していることが見られた。酸化還元境界層から取られた試水に、 δMnO_2 を添加した培養で、マンガン還元と共役した DO^{14}C 無機化の促進(14%)が認められた。その際の DO^{14}C の菌体同化効率は64%であった。
- 4) 懸濁態マンガン(PMn)の集積が認められる酸化還元境界層上部で、DOCの鉛直分布における極小値が見い出された。酸化還元境界層の湖水の培養実験により、DOC消費と共役して、微生物作用により、PMnが Mn^{2+} に還元されていることが認められた。

- 5) 酸化還元境界層でDOCが減少する機構を明らかにするため、DOCと紅色非硫黄細菌の鉛直分布の経時変化、及び酸化還元境界層から取られた湖水の培養実験によるPMnとDOC量の経時変化を検討し、更に、マンガン還元菌と紅色非硫黄細菌の培養実験を行った。その結果、酸化還元境界層で見られるDOC消費の内、①無機化学的反応によるDOC消費が7%、②マンガン還元菌による消費が24%、③紅色非硫黄細菌 (*Rh. palustris*) による消費が17%で、④他の従属栄養細菌と吸着による消費が52%であると判断された。
- 6) 生産層下部と酸化還元境界層下部のマンガン沈降粒子フラックスは、循環期に $0.043 \text{ gMn} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ と $0.041 \text{ gMn} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ と大きく、成層期には両層においていずれも $0.005 \text{ gMn} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ と小さかった。湖底泥からの溶存態マンガン(DMn)の溶出フラックスは、深水層の還元化が急速に進む5月初めから6月下旬に特に大きく、 $0.093 \text{ gMn} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ となり、この1ヶ月間に深水層中に存在するDMnの大部分(約 $4 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$)が蓄積される。他方、酸化還元境界層における懸濁態マンガンは、5月初めから7月下旬までの成層期の初期には $0.0064 \text{ gMn} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ の速度で蓄積が見られたが、それ以後は増加はなく、懸濁態マンガンの生成と溶出が平衡状態となったと判断された。
- 7) 夏期成層安定期における温度躍層付近での鉛直渦拡散係数、湖底堆積物間隙水中の分子拡散係数、堆積物直上水と間隙水中のマンガン濃度勾配等からマンガンフラックスを計算した。DMn・溶存有機態マンガン(DOMn)の酸化還元境界層における上向きの鉛直フラックスは、それぞれ $0.043 \text{ gMn} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 、 $0.012 \text{ gMn} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ であり、湖底-堆積物境界層においては $0.002 \text{ gMn} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 、 $0.001 \text{ gMn} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。他方、酸化還元境界層のマンガン還元菌によるDMnフラックスは $0.004 \text{ gMn} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ で、この層の全溶存態マンガンフラックスの10%であった。
- 8) 深見池の酸化還元境界層に生育するマンガン還元菌及び紅色非硫黄細菌と溶存態・懸濁態マンガンとの相互作用の解明を試み、マンガン、DOC、マンガン還元菌、及び光合成紅色非硫黄細菌は、有機物とマンガンの生物地球化学的循環を通じて密接な相互関係にあることが明らかとなった。

1) はじめに

水圏の還元的環境下では、微生物作用により、電子供与体の有機物から電子受容体の無機物へ、分子状の酸素の介在なしに電子が伝達され、有機物が酸化される。このような還元的環境下における還元反応では、場の酸化還元電位によりそれに関わる微生物と電子供与体としての物質が大きく異なる。

Takai and Kamura (1966)、Stumm and Morgan (1981)及びNealson (1983)によると、それぞれの電位で起こる微生物の反応は、酸化還元電位の高い方から低い方へ順を追って、次のような順序で進む。まず約+800mV以下では、酸素呼吸によるO₂還元が進む。次いで約+750mV以下では、

脱窒菌によりNO₃⁻→N₂の脱窒素作用が起こる。次いで、約+500mV前後からマンガン還元菌によりMn(IV)→Mn(II)の反応が進み、約+400mV以下では微生物の作用による硝酸還元反応でNO₃⁻→NO₂⁻ or NO₃⁻→NH₄⁺が進行する。±10mV付近からは鉄還元菌の作用でFe(III)→Fe(II)、約-200mV以下では嫌氣的従属栄養細菌による嫌気発酵（有機物還元）が起こり、又、硫酸還元菌の作用によ

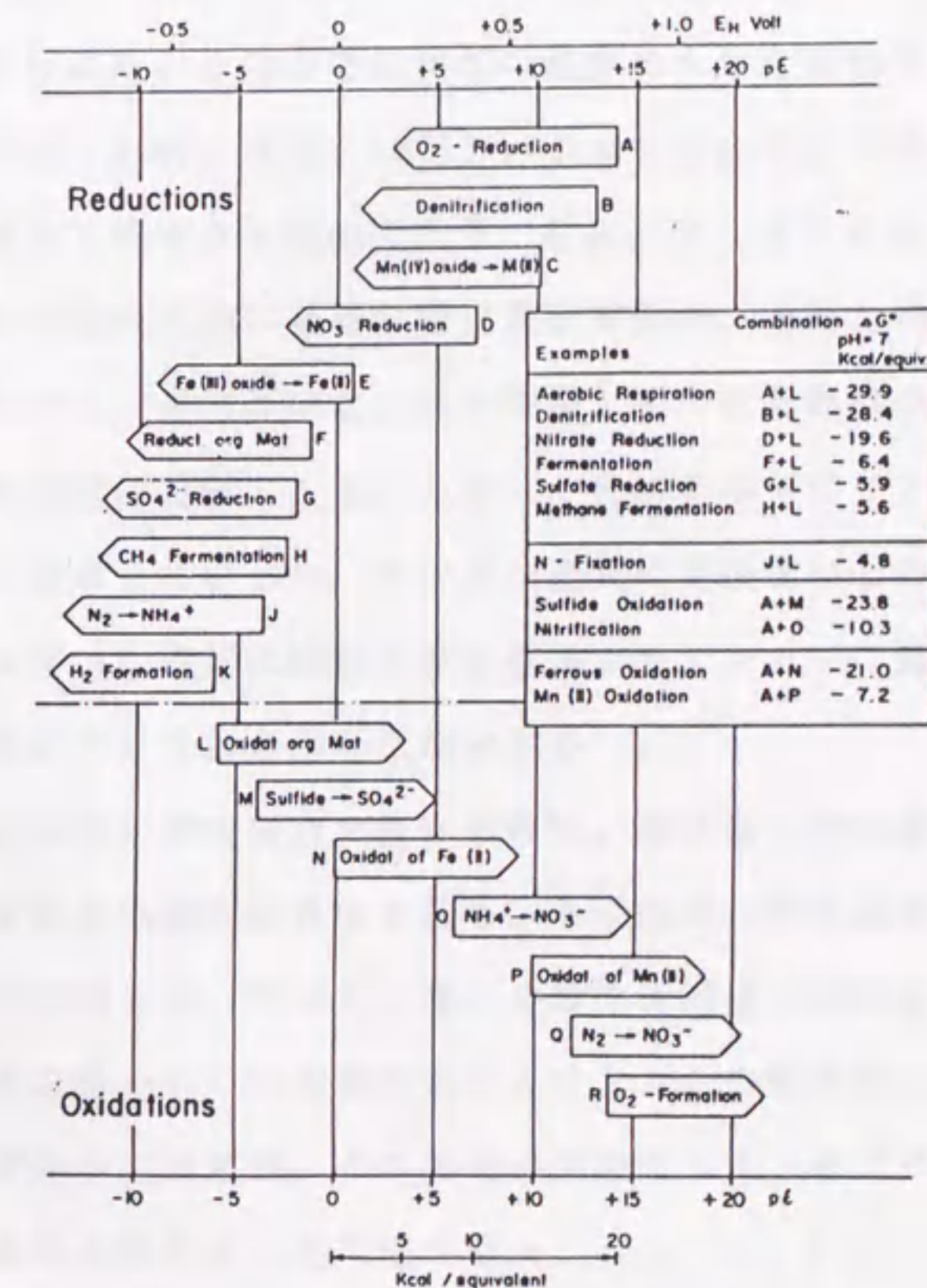


図1 酸素、窒素、マンガン、鉄、イオウの酸化還元電位
pH7で算定された生物によって触媒される酸化還元反応
(Stumm and Morgan, 1981)

り $\text{SO}_4^{2-} \rightarrow \text{S}^{2-}$ への硫酸還元反応が進み H_2S が生成される。外部から電子受容体の供給がない条件では、以上のように、高電位から低電位へと還元反応が段階的に進行する。これらの一連の還元反応の推移における、酸化還元電位の関係を、図1に示した。

この一連の反応で興味あることは、これらの全反応をカバーする酸化還元電位は自然界では、酸化還元環境が共存する限られた部位に局在することである。代表的場としては、水温成層の発達した湖沼の化学躍層や湖水と底泥の境界層をあげることが出来る。この様な酸化還元境界層内では、空間的に小さなスペース内で脱窒からマンガンへ還元、更に、硫酸還元と還元反応が連続で進み、これに関わる元素の存在を大きく支配している。水-泥境界層におけるこれらの反応については、今日まで多くの研究が進められている。特に、わが国では水田のこの過程について多くの重要な研究が行われ、この分野の科学の進歩に大きな役割を果たした (Takai and Kamura, 1966; 加村、吉田、1971)。この一連の還元反応過程の中で、マンガンの還元は極めて興味ある反応である。特に、マンガンの Mn(IV) から Mn(II) への還元は、その還元反応に必要な酸化還元電位が、脱窒と硫酸還元の間位置する。この理由から、自然界の生元素の循環とその支配機構の研究の中でマンガンの還元過程の研究は重要である。しかし、自然の場でのマンガンの還元は微生物がどのように関与しているか、マンガン還元は有機物がどのように共役しているか、などマンガンの還元に関わる微生物過程やマンガンの還元と他の微生物過程との相互関係については未解明な部分が多い。

著者は1985年より深見池の陸水学的研究を続ける中で、酸化還元境界層におけるマンガンの生物地球化学的変動過程に興味を持ち、その地球化学的過程の研究と平行し、微生物生態学的立場より、マンガン還元の微生物過程の研究を進めてきた。本論文は微生物過程を中心として本湖におけるマンガンの動態についての研究結果をまとめたものである。本章は、この論文の序論として、まずマンガン還元に関わる従来の研究結果を取りまとめて述べる。

2) 自然界におけるマンガンの分布とその生物地球化学的意義

2-1 地殻におけるマンガンの存在状態とその分布

マンガンは元素周期表の7族bの4周期に属する元素で、最高の典型的原子価は7価である。高い原子価のマンガン化合物は酸性が強く、低い原子価のマンガン化合物は塩基性が強い傾向がある。マンガンはClark数0.09%であり、地殻中では比較的存在量が多い元素である。地表では+2, +3, +4の原子価を持ったマンガン酸化物の存在が多い。マンガン鉱物としては、manganosite(MnO)、hausmannite(Mn₃O₄)、pyrochroite(Mn(OH)₂)、braunite(Mn₂O₃·MnSiO₃)、manganite(MnOOH)、pyrolusite(MnO₂)、rhodochrosite(MnCO₃)及びalabandite(MnS)の存在が現在まで認められている(Delfino, 1968; Stumm and Morgan, 1981)。軟マンガン鉱(pyrolusite)はMn(IV)の酸化物であり、通常はMnO₂の形態の α , β , γ , δ -MnO₂として存在する。このMnO₂は天然水中では不溶性であるが、しばしばコロイド状態で水中に存在する(Morgan and Stumm, 1964b)。MnO₄⁻は熱力学的には不安定で水で還元され易いため、酸化条件下の天然水中ではその存在量は極めて少ない(Delfino, 1968; Stumm and Morgan, 1981)。Mn(II)は還元的条件下でMn²⁺として安定に存在し、また、alabandite(MnS:MnS;pink, MnS:green)の2つの結晶形をとるが、rhodochrosite(MnCO₃)となり、還元的条件下での溶解度は比較的大きい(Delfino, 1968; Delfino and Lee, 1968)。Mn³⁺は非常に不安定で、自然水中には存在しないか、もし存在しても錯体状態であろうと推測されている(Ingols and Wilroy, 1963)。

2-2 水域におけるマンガンの存在状態と分布

自然水中ではマンガンは酸化還元電位により、懸濁態及び溶存態マンガンをとして存在する。一般に還元的環境下では、溶存態マンガンはイオン態Mn(II)及び有機錯体マンガンの主要な存在形態である。他方、酸化的環境下ではMnO₂やコロイド状態のMn(OH)₂の形で水中に懸濁して存在する。

湖水中のマンガンの存在量や分布(Ohle, 1934; Juday et al., 1938)、及び季節変化(Yoshimura, 1931a, b; Mackereth, 1966; Ruttner, 1963; Delfino, 1968; Delfino and Lee, 1968; Howard and Chisholm, 1975)については、多くの研究が進められてきた。Delfino(1968)、Stumm and Morgan(1981)らは、湖水中のマンガンの安定な鉱物型を知るために、Mn系とEh(V)-pHの関係を検討し、自然の水中で一般的なpHと溶存酸素の範囲では、Mn²⁺が熱力学的に不安定になること、

MnCO₃の安定領域がH₂Sのそれよりもかなり大きいことを示した。

マンガンと鉄は、酸化還元反応に必要な電位が近いこと、両者の存在状態や循環を関連づけて同時に取り上げた研究が多い (Mortimer, 1941, 1942; Hutchinson, 1957; Golterman, 1975; Wetzel, 1975; Verdouw and Dekkers, 1980; Campbell and Torgersen, 1980; Stumm and Morgan, 1981; Davison, 1981; Davison et al., 1982; Mayer et al., 1982; Jaquet et al., 1982; Davison and Woof, 1984; Kawashima et al., 1985; Morfett et al., 1988)。例えば、Krauskopf (1957)、Morgan and Stumm (1964a)は、実験系の溶液中及び天然水中でのマンガンの物理化学的解析により、これらの元素は湖水中の酸化的環境では、MnO₂ · xH₂O(s)、Fe(OH)₂⁺、Fe₂O₃ · xH₂O(s)、Fe(OH)₄⁻の形で存在し、還元的環境ではMn²⁺、Fe²⁺、MnCO₃(s)、FeCO₃(s)、MnS(s)、FeS₂、FeS(s)の形で存在することを示した。

Campbell and Torgersen (1980)、Tipping et al. (1981)、Davison (1981)、Mayer et al. (1982)、Davison and Woof (1984)、Kawashima et al. (1985)、Balistreri et al. (1992b)らは、イオンの活量度(IAP)の計算値を基に、湖水と間隙水中におけるマンガンと鉄の存在状態を検討し、還元的湖水中においてマンガンと鉄は酸化還元のサイクルにより、酸化的環境から還元的環境に酸素を運ぶ車輪の役目、manganous wheel 並びに ferrous wheelを果たしているとした。

湖水や海水中の酸化還元境界層付近では、還元層から上方に移送されたMn²⁺は、酸化層で酸化されるとMnO₂の懸濁態マンガンとなる。水中の懸濁態マンガン濃度が非常に高いときには、褐色の濁りをもたらし (Spencer et al., 1972; 塩沢ら, 1978)。Tanaka (1963)は懸濁態マンガン粒子を、ベンチジンで発色させることにより、木崎湖の20m深度で1,300個 · l⁻¹のマンガン粒子の存在を報告した。一方、Tipping et al. (1981)は英国の湖(Lake Esthwaite)の研究で、粒子状マンガンの70%は孔径0.2-0.35 μm、90%が孔径0.15-0.45 μmの範囲であると報告した。

懸濁態マンガンについては、その鉛直分布の研究に比べ、季節変化と動態を詳細に論じたものは少ない。Lake Esthwaite で懸濁態マンガンの鉛直分布と循環を述べたDavison and Tipping (1984)の報告や、Mendota湖のStauffer (1986)の報告はその数少ない例である。また、Balistreri et al. (1992a, b)は淡水湖の

深水層中の高濁度層で、高濃度に濃縮された懸濁態のFe, Mn, Zn, Cuの酸化物と硫化物の共存を見出した。

2-3 マンガンの沈降フラックスと堆積に関する研究

海底や湖底堆積物の内、特にマンガン存在量が多い堆積物をマンガンノジュールと呼ぶ。酸素が十分に供給され、表層堆積物中に有機物がほとんど存在しない場所に多産する傾向があり、貧栄養湖が多い北アメリカとヨーロッパの氷河地帯の湖に多く見いだされる(A. レルマン、1984)。淡水湖のマンガンノジュールに関しては、古くはカナダの湖水でKindle (1932, 1936)の報告がある。その後、Rossman and Callender (1968)のMichigan湖、Cronan and Thomas (1970)のOntario湖やその他の湖における研究がある(Edgington and Callender, 1970; Damiani and Thomas, 1974, Damiani et al., 1976、その他)。海洋のマンガンノジュールの形成については、バクテリアの関与が考えられており(Ehrlich, 1963)、また、その形成に熱水鉱床(Edmond et al., 1982)とも密接な関係があるとの報告もある。一方、Davison et al. (1982)はLake Estwaiteの研究で、粒状マンガンには、酸化層における Mn^{2+} の酸化より生成されたものばかりでなく、表層からの沈降性粒子マンガンも大きな影響を持つとした。

2-4 マンガンの溶存化

2-4-1 化学的還元によるマンガンの溶出

湖底堆積物から還元的深水層中への溶存態の Mn^{2+} の溶出は、広く知られた現象である(Campbell and Torgersen, 1980; Davison, 1981; Mayer et al., 1982; Davison and Woof, 1984)。還元的深水層中の溶存態マンガンの主な供給源として、沈降中の懸濁物質からの還元や湖底堆積物(Spencer et al., 1972; Davison, 1981; Davison and Woof, 1984; Davison and Tipping, 1984)からの還元物の溶出とがあるが、溶出の前段階として化学的還元は大きな役割を演ずる。

$Mn(IV) \rightarrow Mn(II)$ の化学的還元反応では、多くの有機物の関与が考えられ、フミン質のフェノールやdihydroxybenzene類もマンガンの還元に関与している(Stone and Morgan, 1984)。Stumm and Morgan (1981)は低濃度の溶存酸素の存在の下で、溶存有機物質は容易に MnO_2 を Mn^{2+} に還元することを示唆した。還元的深水層中における還元反応の中で、最も強力でかつ一般的なのは H_2S による

還元である (Burdige and Nealson, 1986)。

2-4-2 有機錯体形成によるマンガンの溶出

有機金属錯体の形成反応は、天然水中では金属の溶存化に重要である。しかし、マンガンは、その有機錯体の安定度定数が、他の2価遷移金属錯体のそれらに比べ小さいため、自然水中では重要でないと考えられてきた (Nissenbaum and Swaine, 1976; Alberts et al., 1976; Krom and Sholkovitz, 1978; Masuzawa and Kitano, 1982)。しかし、Linnik and Nabivanets (1977)は河川水中のマンガンの様々な形態を分画することにより、溶存有機物とマンガンとの錯体の存在の可能性を示唆した。

湖底堆積物からの金属イオンの遊離は、間接的には、イオン交換、及び溶存有機物との錯体形成によって生じる (Schnitzer and Khan, 1972; Benes et al., 1976; Guy and Chakrabarti, 1976; Nakata and Kuwabara, 1977)。このため、溶存有機化合物との金属錯体形成反応は、還元的環境における金属の溶存化反応として重要である。海洋の研究では、還元的な海底堆積物の間隙水中では、マンガン等の微量金属は溶存有機物と部分的に結びついていると考えられている (Presley et al., 1972; Krom and Sholkovitz, 1978; Wilson, 1978)。Mantoura et al. (1978)によると、様々な金属のフミン物質との安定度は、 $Mg < Ca < Cd = Mn < Co < Zn = Ni < Cu < Hg$ である。Mantoura et al. (1978)によると、泥炭、堆積物あるいは湖水、河川、海水から抽出されたマンガン-フミン酸錯体の安定度定数 (pK値) は、泥炭で4.17、湖水で4.3-4.85、土壌で3.7である。Buffle (1984)は淡水に於いて、マンガン-フミン酸錯体のpK値は3.8と報告した。湖沼中の溶存態有機マンガンについての報告は少ないが、溶存有機態マンガンの溶存マンガンに占める割合はChiswell and Mokhtar (1986)によると15%であり、またUrban et al. (1990)によるとDOC濃度が非常に高い (最高 $27 \text{mgC} \cdot \text{l}^{-1}$) 37の富栄養湖において、平均10%である。

3) 酸化還元境界層における微生物代謝に関する従来の研究

3-1 はじめに

湖沼の酸化還元境界層における物質代謝に関わる微生物には、硝化菌 ($\text{NH}_4^+ \rightarrow$

$\text{NO}_2 \rightarrow \text{NO}_3^-$ ）、硝酸還元菌 ($\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NO}_2^-$)、脱窒菌 ($\text{NO}_2^- \rightarrow \text{N}_2$)、マンガン酸化菌と還元菌 ($\text{MnO}_2 \leftrightarrow \text{Mn}^{2+}$)、鉄酸化菌と還元菌 ($\text{Fe}(\text{OH})_3 \leftrightarrow \text{Fe}^{2+}$)、硫酸還元菌 ($\text{SO}_4^{2-} \leftrightarrow \text{S}^{2-}$) 及び光合成細菌がある。この中で、光合成細菌は太陽光と CO_2 や H_2S 、さらには有機物を栄養源として光合成を営み、生育している。即ち、光合成細菌は光のエネルギーで深水層で生成される物質を水素供与体として CO_2 を有機物に変換すると共に、作った有機態炭素の一部を深水層に再び還元する役割を果たしている。特に、紅色非硫黄細菌は各種有機物を、炭素源と共に光合成反応の水素供与体として利用し、光合成従属栄養的にも生育する。

3-2 光合成硫黄細菌

光合成細菌は、光合成色素としてバクテリオクロロフィルを含有し、光があたる嫌気的場で酸素非発生型光合成を行って生育する (Pfennig, 1967, 1969; Pfennig and Trüper, 1974; 北村ら, 1984; Schlegel and Bowien, 1987; Rheinheimer, 1992)。この光合成細菌は、光合成の水素供与体として、 H_2S のような無機物あるいはリンゴ酸等のような有機物を必要とする点が、 H_2O を用いる緑色植物の光合成と異なっている (Van Niel, 1944)。

酸化還元境界層における有機物の物質代謝を研究する上で、この光合成細菌の分布と役割の解明は極めて重要である。例えば、夏期停滞期の湖沼の深水層に硫化水素が蓄積すると、酸化的表水層と還元的深水層の境界に当たる酸化還元境界層に紅色硫黄細菌や緑色硫黄細菌が生育する (Matsuyama, 1980; Parkin and Brock, 1981)。この酸化還元境界層の厚さ数10cmの層に光合成細菌が 10^5 - 10^6 cell \cdot ml $^{-1}$ レベルに増殖すると、細菌の優占種の色によって、その存在する水層がピンクや緑色に変色する (Van Niel, 1944; Lascelles, 1959; Pfennig, 1967, 1969; Pfennig and Trüper, 1974; Siefert et al., 1978; Clayton and Siström, 1983)。

光合成細菌には、紅色非硫黄細菌、紅色硫黄細菌、緑色硫黄細菌、滑走性糸状緑色硫黄細菌の4グループがある。光合成緑色硫黄細菌と光合成紅色硫黄細菌はいずれも CO_2 を炭素源、 H_2S を光合成反応の水素供与体として利用し、光合成により独立栄養的に生育する。自然水域で、光合成細菌が高濃度に増殖が可能なのは、光がとどく嫌気条件下であり、 H_2S を利用する生物が他には少ないこと、 H_2S が一

般に他の生物に生育阻害作用をすること、菌が特別な生育因子を必要としないこと、の理由による（北村ら、1984）。 H_2S を栄養源とし、光エネルギーを利用するこれらの菌は、昼に H_2S を消費するが夜は消費しない。他方、硫酸還元菌は昼夜に関係なく H_2S を生成し続ける。その結果、嫌気層の水層の位置が昼に低下し、夜に上昇する（Parkin and Brock, 1981; 北村ら、1984）。運動性のある紅色硫黄細菌は、この様な酸化還元境界層の上下変動につれ、上下に動くので、 H_2S 濃度に対応した変動をする結果となる。しかし、運動できない綠色硫黄細菌は昼でも H_2S が消費尽くされない酸化還元境界層の下の層、即ち紅色硫黄細菌が生育する下の層で増殖することになる（Van Niel, 1944; Pfennig, 1967）。

Sadler and Stanier (1960)は、綠色硫黄細菌は CO_2 を単一炭素源として生育するが、また、有機化合物を細胞構成の合成材料としても利用する（Clayton and Sistrom, 1983; 北村ら、1984）。それ故、 H_2S と CO_2 の他に多量の有機物を含むような富栄養湖では、これらの菌は有機物も炭素源として利用することになり、 CO_2 固定は必ずしも必要としないと推定される（北村ら、1984）。光合成細菌は窒素源としてアンモニウム塩、分子状窒素等も利用する（Pfennig, 1967）。また動物プランクトンなどに捕食され、食物連鎖上重要な位置を占める（Takahashi and Ichimura, 1968; Clayton and Sistrom, 1983）。

3-3 紅色非硫黄細菌

紅色非硫黄細菌は、低分子有機物を炭素源として用いると共に、光エネルギーで有機物を酸化して生育に必要なエネルギーを獲得して、生育する有機酸化有機栄養型微生物で、ほとんどの水域環境でその存在が確認できるが（Van Niel, 1944; Lascelles, 1959; Pfennig, 1967, 1969; Siefert et al., 1978; Clayton and Sistrom, 1983; 今井, 1984; Imhoff, 1988）、しかし、天然水で肉眼で確認できるまで高濃度に増殖するのはほとんど希である（Van Niel, 1944; 北村ら、1984）。自然水域における紅色非硫黄細菌の存在は、一般には、培養実験やメンブランフィルターによる濃縮によってのみ確認可能である（Swoagar and Lindstrom, 1971）。しかし、十分な有機物が供給されれば天然水でも大量に発生する可能性はあると推定されている（Van Niel, 1944; Pfennig, 1967; Cohen et al., 1977; 北村ら、1984）。代表的な紅色非硫黄細菌の *Rhodospseudomonas* は有機物を

用いて、明所では嫌氣的に、暗所では好氣的に生育し得る (Van Niel, 1944)。*Rhodospseudomonas palustris* (*Rh. palustris*) の形態的および生理的性質は、Van Niel (1944)、Whittenbury and Mclee (1967)あるいはHerbert (1976)によって研究された。

Pfennig (1967)によると、*Rh. palustris* はチオ硫酸や硫化物を水素供与体としては利用できないが、硫化物はその生育を阻害しない。しかし、現実には *Rh. palustris* が湖水中の酸化還元境界層に出現したと言う報告はない (Kaiser, 1966)。この理由の一つに、生育因子の不足が考えられる。例えば、マンガンは光合成バクテリアの色素、細胞形成にとって重要である (Lascelles, 1959; Jones et al., 1963; Weinberg, 1964; Zajic, 1969; 平山ら, 1976)。平山ら (1976) は微量の Mn^{2+} の添加はバクテリアクロロフィルの生成を促進させると報告した。しかし、自然水域で光合成非硫黄細菌の増殖とマンガンの関係を明らかにした報告はない。

酸化還元境界層における溶存有機物の微生物的消費には、炭素源として従属栄養的に利用するものと、合成反応に必要な電子供与体として有機物を酸化して、エネルギーを得るための利用がある。細菌はこれらの有機物利用様式を別々に持つわけではなく、複数の様式を兼ね備えている。

例えば、紅色非硫黄細菌 (*Rhodospseudomonas capsulata*) は低級脂肪酸を炭素源として好気条件下で従属栄養的に生育すると共に、嫌気明条件下では、光エネルギーを利用して有機物を水素供与体にして、光合成を行なう (野池, 1987)。下水処理の活性汚泥として光合成紅色非硫黄細菌を用い、Siefert et al. (1978) は、暗条件下ではこの細菌は増殖しないが、明条件下で増殖が著しくなり、菌数として $10^3 \rightarrow 10^8$ cells \cdot ml $^{-1}$ (21日間) の増加が認められたと報告した。光合成非硫黄細菌が都市下水に生育し、有機物に富む比較的好氣的な水中に生育可能なのは、この菌が通性嫌気性であり、好氣的・明条件で光合成従属栄養的に生育するばかりでなく、好氣的・暗条件でも従属栄養的に生育することができるからである (北村ら, 1984)。また、紅色非硫黄細菌によるし尿処理の結果では、BOD除去率は98%以上と有機物除去率が大きい (黒沢, 1979; 北村ら, 1984; 野池, 1987)。

3-4 マンガン変化の微生物過程

酸化的条件下で安定なマンガンの化学的形態は、水に不溶性な4価の酸化物である。この酸化物が沈降し還元的環境に到達すると、還元され Mn^{2+} となり溶解する。このとき各種の微生物反応により電子がマンガンの供与される。他方、酸化的環境では、 $Mn(II)$ と酸素の反応はゆっくりしか進まず、ある種の微生物の触媒作用で、始めてマンガンの酸化が活発に進むと考えられている (Hochster and Quastel, 1951)。この様に還元的溶解と酸化的凝集に微生物が作用している。

3-4-1 マンガンの微生物的酸化

微生物によるマンガン酸化の報告は古くからあり、微生物的マンガン代謝に関与する微生物はmetallogeniumと総称され、 Mn^{2+} から MnO_2 の微生物的生成が実験的に確認された (Molish, 1910; Beijerinck, 1913; Bromfield and Skerman, 1950; Hochster and Quastel, 1951; Ehrlich, 1963; Tyler and Marshall, 1967a,b; Tyler, 1970; Emerson, et al., 1982; Chapnik et al., 1982; Tebo et al., 1984; Rosson et al., 1984; Sunda and Huntsman, 1987, 1990)。Ehrlich (1968)によると、マンガン酸化菌 (*Arthrobacter* 菌) による Mn^{2+} の酸化は、非微生物的吸着と微生物的反応が組合わさり起こる。この時の酸化には、ペプトンか $NaHCO_3$ 等の微生物の炭素源を必要とする。しかし、有機物が存在しない場合、あるいは濃度がきわめて低い場合は、マンガン酸化菌は生育しない。

Krumbein and Altmann (1973)とDubinina (1973)は、ベルベリンブルー溶液を用いマンガン酸化菌を測定し、湖沼の酸化還元境界層付近 (溶存酸素 $0.05mg \cdot l^{-1}$) にマンガン酸化菌が集積 ($10^5 cells \cdot ml^{-1}$) していることを報告した。Hongve (1977)は多くの湖水でマンガン酸化菌を測定し、多くの場合、酸素濃度が $1mg \cdot l^{-1}$ 以下の層で、 $10^2 \sim 10^5 cells \cdot ml^{-1}$ の濃度で菌が生育していることを見出した。

以上のように、マンガン酸化菌によるマンガン酸化は、酸素濃度の低い酸化還元境界層で進むと判断してよい。しかし、マンガンを酸化する細菌は特定の微生物に限定されるのではなく、かなり広い範囲の細菌が、 $Mn(II)$ を酸化できる能力を有すると考えられる (Wada et al., 1978; Miyajima, 1992)。

微生物による酸化還元反応が進む場合、エネルギー源と共に水素供与体及び炭素源が必要となる。Dubinina (1978)はバクテリア増殖の炭素源として、グルコ

ース、酢酸及びこれらの混合溶液を用いて、マンガン酸化菌によるマンガン酸化過程と、 $^{14}\text{CO}_2$ 法による細菌の炭素取り込みを調べた。その結果、菌の単位炭素当たりの CO_2 比同化速度は1日当たり0.70~1.45であった。Bromfield and David (1976)は土壌より分離したマンガン酸化菌 (*Arthrobacter*) による Mn^{2+} の減少と MnO_2 の生成速度を調べ、土壌中における懸濁態マンガンの生成に、微生物的な酸化と無機化学的酸化があるとした(Grill, 1982; Burdige and Kepkey, 1983)。Stable and Kleiner (1983)はConstance湖で、マンガン酸化菌によって生成された懸濁態マンガンの沈澱量を調べ、年間のフラックスとして $1.5\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{y}^{-1}$ に達すると報告した。

3-4-2 マンガンの微生物的還元

(1) マンガン還元菌

有機物により二酸化マンガン(MnO_2)が微生物的に還元されることは、古くから知られており、海洋や土壌でマンガンの還元が有機物の分解と結びついているとした多くの報告がある(Mann and Quastel, 1946; Hochster and Quastel, 1951; Perkins and Novielli, 1962; Troshanov, 1967, 1968; Li et al., 1969; Marsalek, 1977; Marshall, 1979; Kozub and Madgwick, 1983; Lovley et al., 1987; Stone, 1987)。これらの研究によれば、マンガンの微生物的還元には、①還元的条件下で微生物学的に形成された H_2S 、 Fe^{2+} 等による間接的な還元と、②微生物による直接的還元がある。一般に、酸化還元境界層では後者の働きによりマンガンが還元される。この還元過程については、土壌や底泥で行われた研究が多い。Mann and Quastel (1946)は水田土壌中のプロピオン酸細菌が、色素存在下で二酸化マンガンを還元することを示した。水田土壌におけるマンガン還元菌の研究で、加村、吉田(1971)及び吉田、加村(1972)は、酸化還元電位が $\text{MnO}_2/\text{Mn(II)}$ よりも低い電位では土壌中のバクテリアの70%以上が MnO_2 還元能を有する微生物であると報告した。

湖沼のマンガン還元菌の存在を最初に確認したのは、Troshanov (1967, 1968)で、淡水湖と湖底泥においてマンガン還元菌16種を分離した。また、Tortoriello(1971)とDubinina (1973)は、湖水中からそれぞれ1種を分離した。Ehrlich (1980)によると、現在までに報告されたマンガン還元菌は、湖沼より18

種、海洋と海底堆積物から5種及び土壌より3種であったが、その後、湖沼のマンガンノジュールから1種 (Myers and Nealson, 1988a, b)、Oneda湖の湖底泥より、 Mn^{2+} の溶出をする1種が報告されている (Lovley et al., 1987)。

(2) 微生物によるマンガン還元

自然水界においては微生物によるマンガンの還元では、従来は、微生物学的硫酸還元で生じた H_2S によって、マンガンが還元されると言う2次的なマンガン還元ของ考えが一般的であった。事実、この様な H_2S 、 Fe^{2+} 、有機物によるマンガンの化学的還元は自然界では広く見られる。

Kozub and Madgwick (1983)は MnO_2 と有機物(蔗糖、ガラクトース、果糖、糖蜜)を加えた培地(最終濃度各1%)で、微生物の混合培養(*Pseudomonad*、*Bacillus*、*Clostridia*、*Aspergillus*)を行い、 Mn^{2+} の溶出を求めた所、溶存態マンガンの42%が微生物学的還元で、残りが化学的還元であると報告した。また、Ingols and Wilroy (1963)によれば、二酸化マンガンの還元微生物が重要な役割を果たし、リグニンとタンニンの微生物分解と共役して $Mn(IV)$ が還元され、 $Mn(II)$ が形成された。

有機物の利用とマンガン還元菌の増殖の関係を扱った初期の研究としては、海洋における、微生物的還元によるマンガンノジュールからの Mn^{2+} 溶出の研究がある (Ehrlich, 1963, 1966, 1968; Trimble and Ehrlich, 1968, 1970; Ghiorse and Ehrlich, 1976; Agate and Deshpande, 1977; Karavaiko et al., 1987)。Ehrlich (1966)は海洋のマンガンノジュールに0.05%ペプトンと海底泥より分離したマンガン還元菌(*Bacillus*菌)を接種し、菌の増殖と有機物の減少の関係を調べている。Trimble and Ehrlich (1968)は海洋マンガンノジュールに電子供与体として0.5%グルコースと海底泥より分離した2種のマンガン還元菌(*Bacillus*菌、*Coccus*菌)を接種し、マンガン還元菌が $(5\sim6)\times 10^7$ cells \cdot ml $^{-1}$ のレベルまで増殖するに伴い、グルコースが消費され、マンガンが $Mn(IV)\rightarrow Mn(II)$ に還元することを示した。しかし、消費されたグルコースの内、何%が増殖に使われ、何%が還元に使われたかは明らかにされていない。

Holden and Madgwick (1983)は土壌、淡水、鉱物より分離した2種のマンガン還元菌(*Bacillus*菌、*Pseudomonad*菌)及びこの2種の混合培養により、 MnO_2 の還

元を試みた。培養液中に炭素源として加えた炭水化物の消費に伴い菌の増殖とマンガンの還元が認められた。1種の培養では4日で Mn^{2+} の溶出は停止するが、2種混合の場合は1週間以上の溶出が確認され、1.0gの炭水化物消費に対して $74mg \cdot l^{-1}$ のマンガンの溶出が認められた。また、Holden and Madgwich (1983)は13種のマンガン還元菌を混合して加えた所、単種培養におけるよりも Mn^{2+} の溶出が大きくなることを示した。

Burdige and Nealson (1985)は海洋から分離した2種のマンガン還元菌を用い、微生物の作用による MnO_2 還元過程を研究し、マンガン還元菌が好気的環境下で電子供与体として乳酸や酢酸を用い、マンガン還元することを培養実験で確かめた。Lovley and Phillips (1988)は河川の底泥より分離したマンガン還元菌を、水素供与体としての酢酸を加えた溶液中で培養し、バクテリアと酢酸の変化に対する Mn^{2+} の生成過程を調べた。その結果、バクテリアの増殖 ($3 \times 10^7 cells \cdot ml^{-1} \sim 13 \times 10^7 cells \cdot ml^{-1}$) に伴い酢酸の消費が進み、形成された Mn^{2+} と CO_3^{2-} との反応で $MnCO_3$ の沈殿を確認した。また、Lovely et al. (1989)は乳酸、ピルビン酸を用い、マンガン還元菌 (*Alteromonas* 菌) を培養し、菌の増殖にともない、乳酸とピルビン酸が酢酸に変化し、マンガンは $MnCO_3$ となることを示した。

Lovely and Phillips (1988)はこれまで報告されてきたTrimble and Ehrlich (1968), Ehrlich (1980, 1981, 1987)及びMunch and Ottow (1983)の実験結果より、マンガン還元菌による Mn^{2+} 溶出量はグルコースの1モルの消費に対して、0.05~0.1モルに相当すると報告した。

Dubinina (1973)は湖沼の湖底堆積物に沈降したマンガン酸化物は、その還元時に、有機物が消費されると報告した。Verdouw and Dekkers (1980)は、還元的湖水中の微生物による有機物の消費と供役して二酸化マンガンが還元されるとして、マンガン還元菌が水素供与体としてDOCを利用し、 MnO_2 を Mn^{2+} に還元することを培養実験によって確認した。Myers and Nealson (1988a)は、Oneda湖より分離したマンガン還元菌 (*Alteromonas* 菌) に水素供与体としての酒石酸、酢酸の他に MnO_2 を与えて培養を行い、マンガン還元菌当たりのマンガン還元量は $(0.76-1.2) \times 10^{-9} \mu mol \cdot cell^{-1} \cdot h^{-1}$ であることを示すと共に、マンガンの還元にはH供与体として有機物が重要な役割を果たしていることを報告した。

以上のように、マンガン還元菌による有機物分解については、実験レベルでの培養実験による研究は数多く行なわれているが、マンガン還元菌によるマンガン還元とカップルした有機物の分解を現場の湖沼で検討した報告はない。また、微生物による直接的還元他に、微生物的作用により生じた有機錯体によりマンガンが Mn^{2+} に還元される可能性があるが (Ehrlich, 1987)、自然湖沼では確認はされていない。

(3) マンガン還元菌による Mn^{2+} 生成

湖の酸化還元境界層におけるマンガン溶出において、微生物作用がどの程度関与しているか、を知ることはマンガン循環を考える上で重要である。Burdige and Nealson (1985)によると自然の場における微生物作用による Mn^{2+} 生成速度(培養溶液中)は表1のようになる(δMnO_2 $0.1 g \cdot l^{-1}$ 添加、培養実験、)。

表1 マンガン還元菌による Mn^{2+} 生成速度

Source	$Mn^{2+} (\mu mol \cdot l^{-1} \cdot day^{-1})$
East eqatorial Atlantic sediments	0.38
Chesapeake Bay sediments	0.57
Lake Michigan sediments	0.47
Long Island Sound sediments	576
Anoxic water column (Saanich Inlet)	220
Marine sediments SK-13	363
Marine sediments SC-44	156

この様に、マンガンの微生物的還元速度は水域により著しく異なる。しかし、この様な差違をもたらす要因については、検討資料が充分でない。

自然水域におけるマンガン還元菌によるマンガン還元速度や、 Mn^{2+} のフラックスについては、淡水湖での研究例はほとんど無い。海底堆積物からの Mn^{2+} のフラックスについて、Elderfield (1976)は内湾で $0.16-16 mgMn \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$ 、Eaton (1979)はChesapeake Bayで $16.4-384 mgMn \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$ 、Aller (1980)はLong Island Soundで $36-205 mgMn \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$ 、Balzer (1982)はKiel Bight (Western Baltic)で $19.8-61.8 mgMn \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$ 、Hunt and Kelly (1988)はNarragansett Bayで $80 mgMn \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$ 、Schaanning (1988)はDrømmensfjordで11あるいは $1-6 mgMn \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$ をそれぞれ報告している。これらの溶出に、マンガン還元菌が作

用していると推定されているが、量的な把握はなされていない。

(4) まとめ

以上のように、湖沼におけるマンガンの存在状態及びその循環については非常に多くの研究が行なわれている。その多くは、マンガンの酸化還元的環境での存在形態や季節変化について理解を深める観点から行なわれている。特に、マンガン酸化菌とマンガン酸化については多くの研究がある。しかし、マンガン還元菌とこの菌によるマンガン溶出に関する研究は少ない。自然の湖沼の酸化還元境界層におけるマンガンの変化は、微生物過程と共に化学的還元が関与するが、それらがどのような割合で進むのかについての量的知見は極めて乏しい現状である。この反応が進む酸化還元境界層には、この他に紅色非硫黄細菌や各種の有機物利用細菌が存在している。これら多様な微生物による有機物の代謝の中で、マンガン還元菌がどのような関与を示すかについての知見はほとんどないと言って良い。

4) 本研究の目的

自然水域におけるマンガンの化学的、微生物学的還元には、還元性の化学物質と有機物が必要とされる。しかし、この反応の進行には還元的環境の成立が不可欠な条件である。自然の湖沼では、この様な還元的環境は、水温成層の発達期に、植物プランクトンにより生産された有機物が深水層に沈降し酸素を消費することで形成され、酸化還元電位が低下し、各種の元素の動きと存在状態が大きく支配される。この条件下で、マンガンの還元は有機物を水素供与体として進行するので、有機物の生産と供給は湖沼におけるマンガンの動態と密接に結びついている。マンガンは湖沼の還元的深水層では Mn^{2+} として溶存しているが、湖水が鉛直混合する循環期に入ると酸化的になるため、酸化物として沈降し湖底に堆積する。

この様に、湖沼におけるマンガンの分布は化学的過程と共に、微生物過程によって大きく支配されていると考えられる。マンガン還元に関与する各種微生物や有機物がどのように関与し、共役しているかを明らかにすることは重要である。

長野県深見池は、春から秋にかけて安定な水温躍層が形成され、化学成層と還元的深水層が発達し、深水層中に高濃度の H_2S が集積すると共に、 Mn^{2+} 濃度も著

しく高くなる。その直上の酸化還元境界層では、各種化学物質の鉛直分布が急激に変化すると共に、光合成硫黄細菌を始め各種の微生物活動が活発であり、かつ Mn^{2+} の酸化で生じた懸濁態マンガンが集積している。従って、深見池の酸化還元境界層とその上下の水塊は、マンガンの酸化還元に関する微生物過程を研究するのに好適な場と考えられる。

本研究は深見池の酸化還元境界層におけるマンガンの動態、特に従来研究の少ないマンガン還元の微生物過程に重点を置いて研究を進め、微生物過程の生物地球化学的意義の理解を深めることを目指した。具体的には、以下の課題を取り上げ、その解明を目指して研究を行なった。

1. 酸化還元境界層としての化学躍層におけるマンガンの変化に対応する微生物過程と共に、化学過程についての知見を得るため、物理化学的要因とマンガンの分布の関連を明らかにする。
2. 有機物の一次生産が深水層の物質代謝に与える影響を明らかにするため、植物プランクトンと光合成緑色硫黄細菌の現存量と一次生産を明らかにする。
3. 酸化還元境界層における光合成紅色非硫黄細菌の増殖に対する溶存有機炭素(DOC)の利用を検討し、なぜ同細菌がこの層に高濃度で生育することが可能なのかを明らかにする。
4. 酸化還元境界層における二酸化マンガンの還元過程における、微生物活動と有機物の寄与度を、培養実験及び現場における鉛直分布の変化より検討し、DOCの利用と共役して起こる微生物のマンガン還元への関与度を明らかにする。
5. 深水層への有機物沈降と酸化還元の変化に伴うマンガンの鉛直フラックスを明らかにする。
6. 湖水の成層期と循環期における物理的過程、化学的過程、微生物的過程によるマンガンフラックスを求め、深見池の生物地球化学的マンガン循環とそこにおける微生物的過程の役割を明らかにする。

1) はじめに

深見池は山間にある富栄養湖で、風の影響を受けにくく、夏期に安定した水温成層が長期にわたり発達する。植物プランクトンの有機物の生産が活発であるため、成層期間には深水層は還元的になる。その上、湖水中の硫酸イオンの濃度が高いため、硫酸還元により形成される硫化水素が夏期深水層に蓄積し、深水層は著しい還元状態になる。上野 (1952)によると本湖沼の水中の硫酸濃度は $10-22 \text{ mgSO}_4^{2-} \cdot \text{S} \cdot \text{l}^{-1}$ であり、夏期深水層中の硫化水素濃度 $12 \text{ mgH}_2\text{S} \cdot \text{S} \cdot \text{l}^{-1}$ に達する。これは淡水湖の SO_4^{2-} 、 H_2S 濃度としては非常に高く、Matsuyama and Saijo (1971, 1973)とMatsuyama (1973)が報告した部分循環湖である水月湖の硫酸イオンの値 $33-117 \text{ mgSO}_4^{2-} \cdot \text{S} \cdot \text{l}^{-1}$ 、硫化水素濃度 $10-100 \text{ mgH}_2\text{S} \cdot \text{S} \cdot \text{l}^{-1}$ にも匹敵する。深見池においてはこのような深水層の還元化のため、中層に明瞭な化学躍層が発達し、酸化還元に伴う化学物質の明瞭な変化が期待される。これら化学物質の中で、マンガンは、その存在状態が酸化還元電位のわずかな違いで変化し、陸水学的に興味ある物質である。酸化還元過程におけるマンガンの変化は、微生物反応による変化と平行して、化学反応による変化が進むと考えられる。そこで、本研究では、この酸化還元境界層としての化学躍層に着目して、マンガンの変化における微生物過程と共に、化学過程についての知見を得るため、マンガンの変化を支配する物理化学的要因と、マンガンの分布の調査を1978年から80年にかけて集中的に進めた。

2) 研究方法

研究対象水域

深見池：深見池は長野県下伊那郡阿南町にあり、北緯 $35^{\circ} 19'$ 、東経 $137^{\circ} 49'$ に位置し、標高484m、短径150m、長径300m、面積2.2ha、最大深度8.5mである (図2-1、図2-2)。湖水は暗緑色あるいは褐緑色で濁っており、上野(1952)によると、透明度はすでに1950年頃から1.2-1.3mと小さい。桜井・渡辺(1974)の報告でも透明度は1m前後で富栄養湖に属している。これは、主として、周囲の田畑や

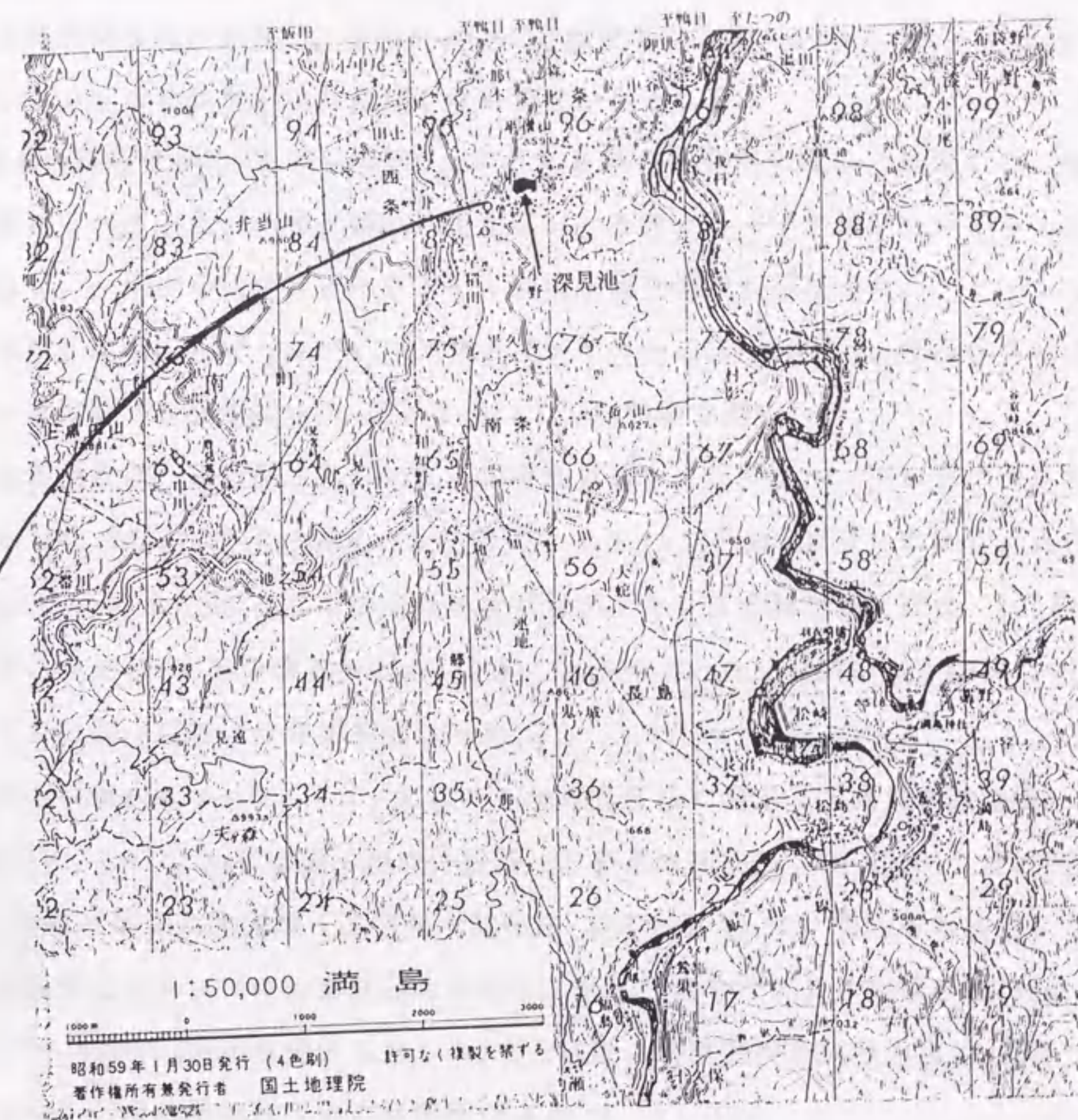


図2-1 深見池の周囲の地形 (自然環境保全基礎調査用メッシュ地形図、環境庁)

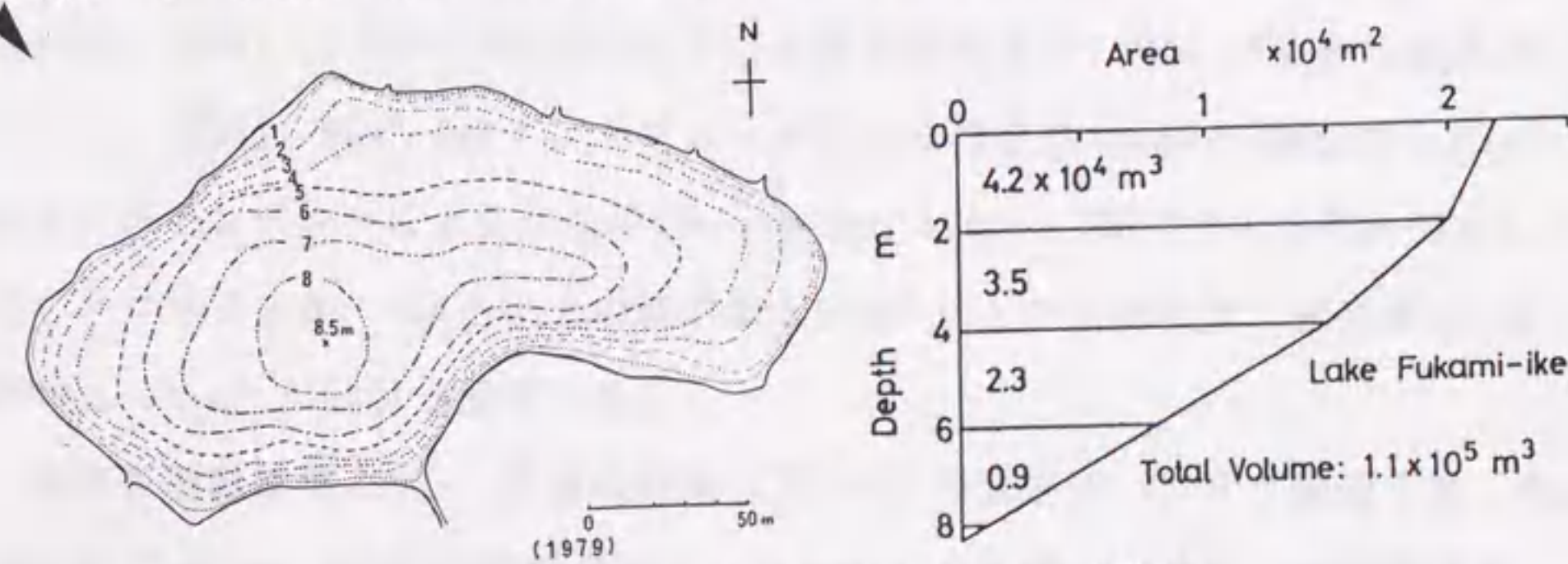


図2-2 深見池の深度分布図と深度-断面図

果樹園などから栄養塩の流入によるものと考えられる。湖水の水位変動は小さく、通年で0.5m以内である。この深見池の特徴は、周囲が小高い丘で囲まれているために風の影響が少なく、かつ表面積に比べて深度があるために、安定した成層構造が発達することである。冬期においても植物プランクトンのブルームが出現し、クロロフィル量は夏期よりも高くなる傾向が示される。

湖水の採取は湖心(水深8.5m)で、1978年～80年の間は2週間ごと、他の時期はそれぞれ後に示す日時に、塩化ビニール製チューブを用いたサイホン式で行ない、一部は小型ポリカーボネイト製採水器を使用し行なった。

水中照度はLi-Cor Quanta メーター (ライカー社LI-185型)、水温はサーミスター温度計 (東邦電探社ET-5D) を用いて、1m間隔で測定した。

水質項目は、採取試水について、溶存酸素はウインクラー・アジ化ナトリウム変法(JIS K0101 1978-1980)、またはDOメーター (YSI社507型) により、硫化水素はCdCO₃によりCdSとして固定後チオ硫酸ナトリウムで滴定法 (西条、1957) により、全炭酸 は非分散赤外CO₂分析法 (Satake et al., 1972) または、TOC分析計 (YANACO 8L) により分析を行なった。

未ろ過湖水について、Na⁺、K⁺はフレイム光度法で測定 (工業用水試験法 JIS K0101)、Ca²⁺、Mg²⁺は原子吸光分析法 (工業用水試験法 JIS K0101) で、SO₄²⁻は 硫酸バリウム比濁法 (工業用水試験法 JIS K0101) で、それぞれ測定した。

栄養塩とクロロフィル測定のためには、採水後直ちにガラス繊維ろ紙 (Whatman GF/C、430℃で3時間空焼きしたもの) でろ過後、ろ紙試料及びろ過水は-20℃で保存した。化学分析は以下の方法で行なった。

NO₂⁻-NはN-(1-ナフチル)エチレンジアミンによる比色法 (Bendschneider and Robinson, 1952) で、NO₃⁻-NはCd-Cu カラム還元法により、NO₂⁻-Nに準じ定量 (Wood et al., 1967)、NH₄⁺-Nはインドフェールによる比色法 (Sagi, 1966) で、PO₄³⁻-Pはモリブデンブルーによる比色法 (Murphy and Riley, 1962) でそれぞれ測定した。又、クロロフィル-aはろ紙上の沈殿物を92%アセトンで抽出後、蛍光法 (Holm-Hansen et al., 1965) で測定した。

溶存有機態炭素 (DOC)、懸濁態有機炭素 (POC) の測定は、ガラス繊維ろ紙 (Whatman GF/C、47mm、430℃で3時間空焼きしたもの) でろ過後、ろ紙上の沈殿物を、

CHNコーダー分析計(YANACO MT-3型)でPOC量を測定した。DOC量は試水をミリポア-フィルター(HA:直径47mm、予め蒸留水で洗浄)でろ過後、ろ液について1983年まではアンプル方式の過硫酸カリウムによる分解法(Menzel and Vaccaro, 1964)、1984年からはTOC分析計(YANACO 8L)でそれぞれ測定した。

マンガンの分析は以下の方法によった。

ガラスビンに採水した試水を、プラスチック製注射器(50ml)に気泡が入らないように採取し、この注射器にメンブランフィルター(ミリポア-HA、孔径 $0.45\mu\text{m}$ 、直径24mm)を入れたスィネックスろ過器を直結、加圧法によりろ過を行った。なお、HAフィルターは、あらかじめ2MHC1と蒸留水で洗浄したものをを用いた。

採水から分析処理までの時間については、Delfino (1968)はマンガン・鉄に関しては、12時間以内に冷暗所保存した試水の場合、特に大きな問題はないとしているが、本研究においては、現場で採水後4時間以内に処理した。ろ過後、HAフィルター上に残った沈澱物を懸濁態とし、ろ液中のマンガンは溶存態(DMn)とした。ろ液中の溶存態マンガンは試験管中で塩酸でpH1に調整後、沸騰水中で完全に溶解、又、懸濁態マンガン(PMn)は熱2NHClで抽出し、それぞれ原子吸光計(日立208型、定量限界 $0.01\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$)を用いてマンガン濃度を測定した。原子吸光の繰り返し標準偏差(JIS K0121, 1970)は2~5%であった。原子吸光法による水中のマンガンの定量限界については、Delfino (1968)は $0.001\sim 0.005\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であると報告している。

湖底堆積物間隙水の採取と化学分析は以下のように行なった。

最深部でピストン式コアサンプラー(Sakaguchi et al., 1982)で採集した堆積物コアサンプルを、密閉し研究室に持ち帰り(6時間以内)、テフロン製ナイフで5cm(or10cm)の厚さに切断後、空気を遮断して、遠心分離を行なった(4,000 rpm/20min; 室温)。遠心上澄み試水を間隙水として、湖水の分析に準じてマンガン濃度の測定を原子吸光法で行なった。

限外ろ過法による溶存態マンガン(DMn)の定量は以下の方法で行なった。

(a) 湖水中のDMn

前述のように、加圧ろ過したミリポア-フィルター(HA, 24mm)ろ液について、

以下の3種類の限外ろ過膜(43mm, TOYO製; UK-200, UK-50: ホリサルフォン、UH-1: 高分子電解質複合体)を用いて、段階的ろ過により分子量分画を行ない(Wilander, 1972; Andren and Harris, 1975; Laxen and Harrison, 1981)、それぞれのろ過について、DMnは原子吸光光度法により、DOCはTOC計でそれぞれ測定した。使用したろ過膜で分画できる分子量は、UK-200で<200,000、UK-50で<50,000、UH-1で<1,000、である。各分子量画分のDMn濃度は2種の限外ろ過膜ろ液のDMn濃度差から求めた。分画された4フラクションは次の名称を与えた。

分子量200,000以上: フラクション-A、分子量50,000~200,000: フラクション-B (50,000< M.W.<200,000)、分子量1,000~50,000 (1,000<M.W.<50,000): フラクション-C、分子量1,000以下 (M.W.<1,000): フラクション-D。

分子量分画を行なった試水は1987年4月23日、5月20日、6月18日に採取したものである。なお、培養実験においては、分子量分画に使用した限外ろ過膜は分子量5,000と100,000であり、遠心分離法(ミリポア製ウルトラフリーCL、遠心ろ過チューブ 2ml)を用いた。なお、限外ろ過時の Mn^{2+} のろ過膜への吸着の問題について検討を行った結果、ろ過の直前に、窒素で脱酸素した10mM $CuSO_4$ (pH4.6)を同量(2ml:2ml)試料に加え前処理操作を行なえば、 Cu^{2+} が Mn^{2+} の MnO_2 への吸着を阻止するので(Burdige and Nealson, 1986)、本実験においてもこの方法を用いた。

(b) 湖底堆積物間隙水中のDMn

1987年8月26日、10月30日、1988年4月26日、5月30日並びに6月30日に採取した堆積物間隙水について、湖水と同様にDMnの分画を行った。間隙水の堆積物からの分離は、すでに述べたように採取した堆積物コアをテフロンナイフで5cm(or10cm)厚に切断後、遠心分離(4,000 rpm/20 min; 室温)して得た間隙水の約70mlをミリポアフィルター(HA; 47mm)で加圧ろ過し、更に、限外ろ過膜で段階的にろ別して得た画分を、湖水と同じく、フラクション-A、フラクション-B、フラクション-C及びフラクション-Dと命名した。マンガンの定量は一滴原子吸光法(内田他、1978)で測定した。この時の相対誤差は $0.002mg \cdot l^{-1}$ で、繰り返し標準偏差は2~5%であった。

3) 結果

3-1 化学物質の酸化還元を支配する物理的環境

水温： 水温鉛直分布を基に、各0.5m間隔で求めた温度を、1m当たりの温度勾配($^{\circ}\text{C}/\text{m}$)に換算し、最大温度勾配を中心として、その温度勾配が $2.5^{\circ}\text{C}/\text{m}$ の大きさの範囲の深度を水温躍層とし、 B2-3 上で[IIII]で示した。4月は2.5-6.5m、5月中旬までは、2.5-6.0m、6月初旬までは3.0-6.0m、それ以後10月中旬までは3.5mと5.5mの間で温度勾配が最大値となる水温躍層が形成される。成層が最も発達した8月には、表面と底層の水温は 28°C と 10°C であった。他方、10月下旬から3月までは鉛直混合により上下に水温はほぼ均一となり、1月に全層通して約 4°C から 6°C で、時には結氷が見られた(B2-3 上)。

水中光条件： 透明度は夏期の成層期においては1.3 mで、循環期は0.5mであった。このことから、太陽入射光の1%到達深度は、即ち生産層の水深は、湖沼環境調査指針(1982)に従って、透明度の3倍とすれば、夏期4.0mで、他の季節は1.5 mと判断される。

3-2 化学物質の鉛直分布

3-2-1 溶存酸素・硫化水素

溶存酸素(DO)(B2-3 中)は春と夏にしばしば表面水で過飽和になり、1979年4月8日には最大値 $17.7 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ が観測された。一方、4~5m以深の深水層は4月から10月にかけて無酸素になり、逆に硫化水素(H_2S)が4m以深よりその濃度が急上昇し、深水層の硫化水素の濃度(B2-3 下)の最大値は8月に $8-9 \text{ mgH}_2\text{S} \cdot \text{S} \cdot \text{l}^{-1}$ となる。このため、3.5m~5.0mの深度にDOと H_2S が微量で鉛直的に共存する化学躍層が形成される。冬期は水温が鉛直にほぼ一様にもかかわらず溶存酸素濃度は、しばしば深さと共に減少することが観測された。例えば、1979年1月14日の水温は表層から底層まで 4.5°C から 4.4°C であるのに対して、溶存酸素濃度は0m、5m、8mにおいてそれぞれ $12.40 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、 $11.11 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、 $9.86 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。

3-2-2 栄養塩類

結果を B2-4 に示す。 NO_3^- は高い値($10-50 \text{ } \mu\text{gatom} \cdot \text{l}^{-1}$)が10月から5月にかけて、低い値($1 \mu\text{gatom} \cdot \text{l}^{-1}$ 程度)が8月から10月初期に観測された。6月か

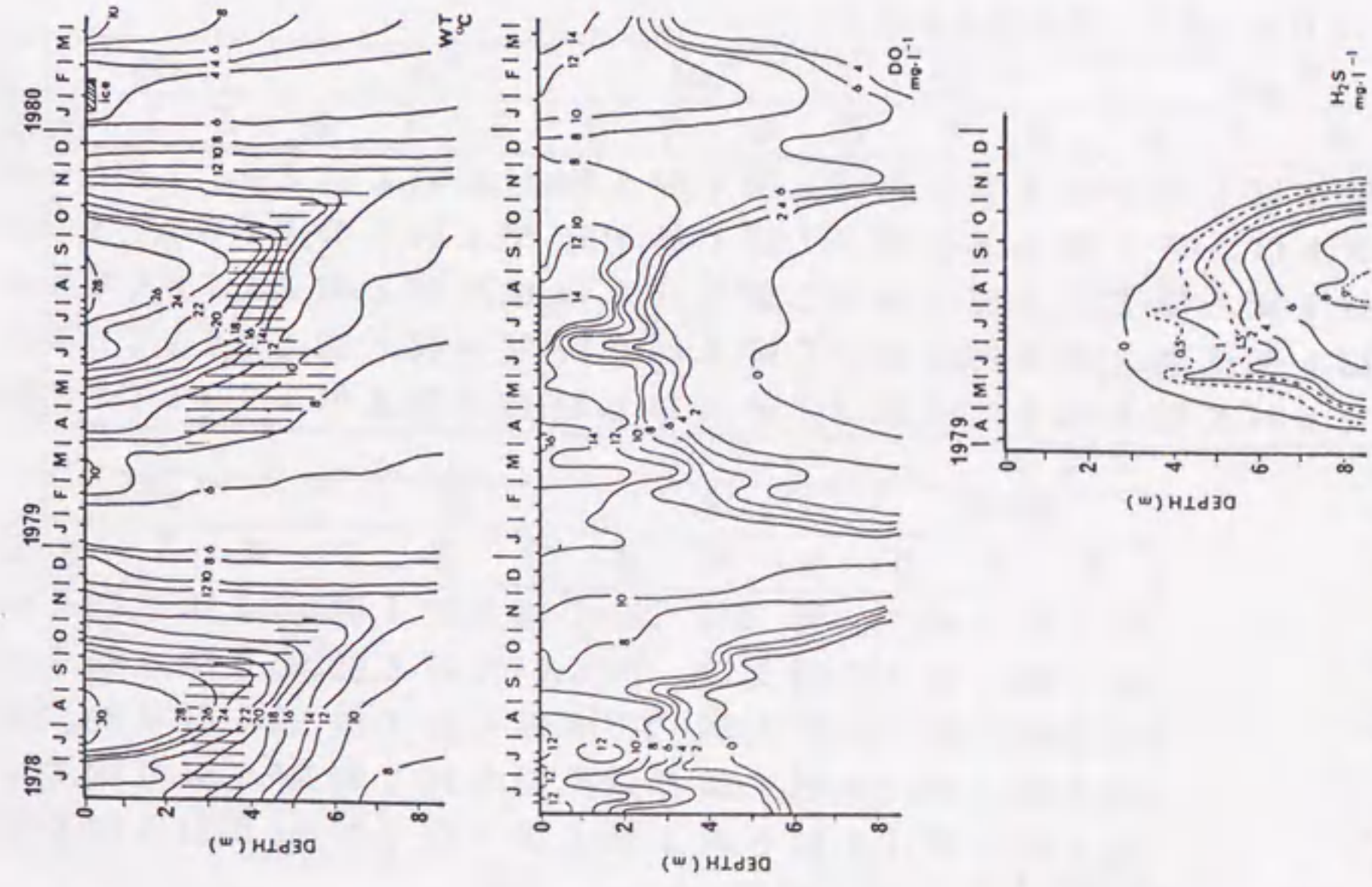


図-3 深見池における水温、溶存酸素、硫化水素の季節変化
 図上) が水温、[| | |] は水温層、図中) が溶存酸素、
 図下) が硫化水素を示す。図中の各月に印した点は調査時期を
 示す。

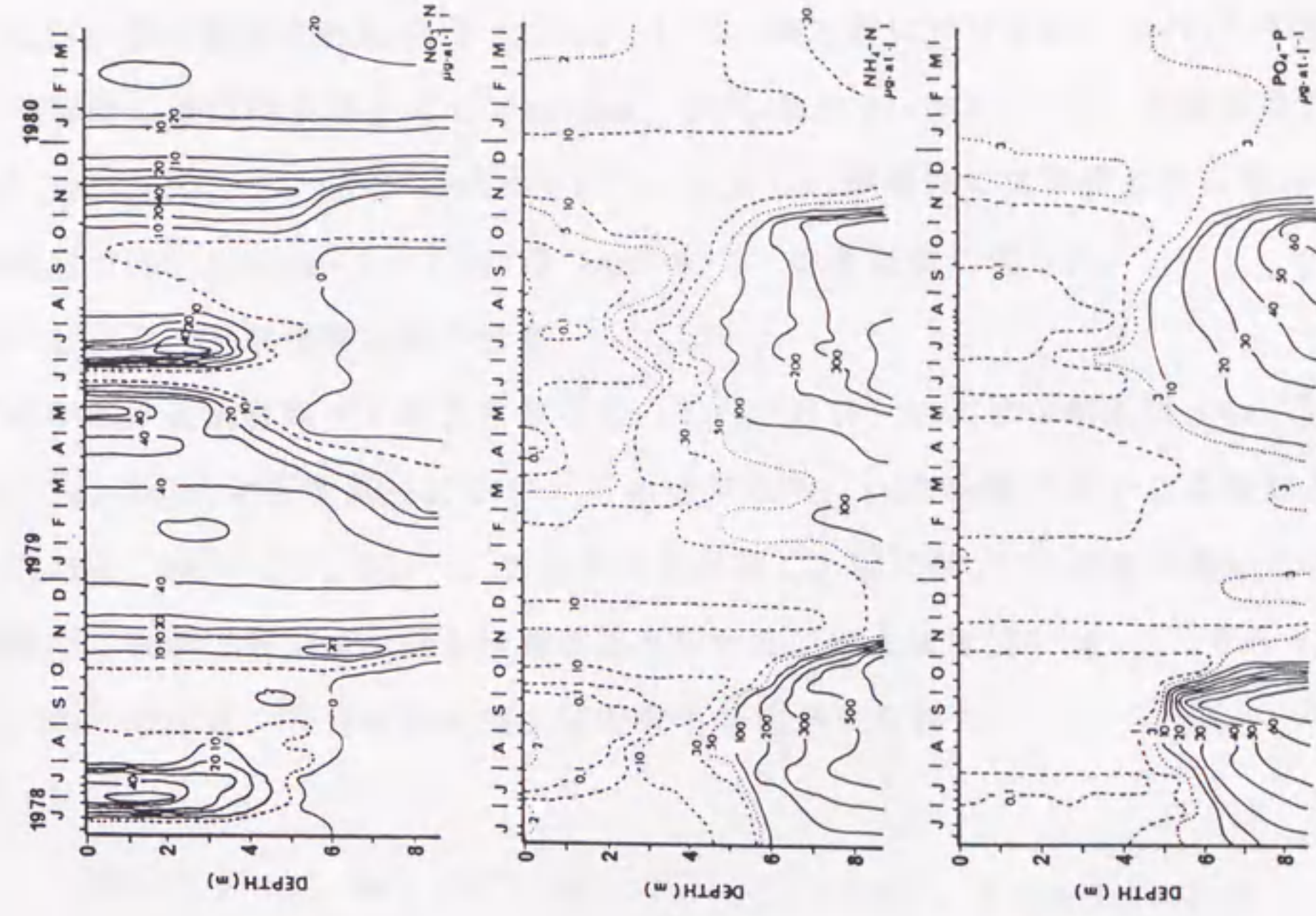


図-4 深見池における硝酸態窒素、アンモニア態窒素、リン酸態
 リンの季節変化
 図中の各月に印した点は調査時期を示す。

ら7月は周囲の田畑からの降水流入の影響と考えられる高いNO₃⁻値 (50 μgatom · l⁻¹) が観測された。NO₂⁻濃度は循環期に比較的高く (1-2 μgatom · l⁻¹)、成層期には低い (0.2-0.8 μgatom · l⁻¹)。しかしながら、4月と6月に還元層の上に極端に高い値が観測された (3-5 μgatom · l⁻¹)。表水層におけるNH₄⁺とPO₄³⁻の濃度は一般的に循環期は高く (2-10 μgatom · l⁻¹, 0.5 μgatom · l⁻¹)、成層期は低い (<1 μgatom · l⁻¹, <0.5 μgatom · l⁻¹)。しかし、成層期には深度と共に増加し、深水層で500 μgatom · l⁻¹と60-70 μgatom · l⁻¹の最高値に達した。

3-2-3 主な化学成分の分布

化学成分の成層期 (1979年6月、7月、8月) における深水層 (4m, 5m, 6m, 7m, 8m) の結果を表2-1に示す。この結果から、pHは4m層で高くなる傾向が認められる。Na⁺、Cl⁻、SO₄²⁻、アルカリ度が高く、特にSO₄²⁻の濃度が高いことが特徴で、4m層で最大値を取る傾向が認められた。最大値は150 mg · l⁻¹であった。又、Fe²⁺は7月、8月に6mで極大値を取る傾向が示された。

表2-1 pH、K⁺、Na⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、Fe²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻、アルカリ度の分布

深見池の成層期の深水層 (4m, 5m, 6m, 7m, 8m) の結果を示す。

(1984年6月、7月、8月)

月	pH			K ⁺			Na ⁺			Ca ²⁺			Mg ²⁺		
	6	7	8	6	7	8	6	7	8	6	7	8	6	7	8
4m	7.1	8.1	7.9	3.33	3.34	3.11	69.2	46.7	56.4	8.10	4.66	5.90	4.74	2.74	3.72
5m	7.0	7.7	7.1	3.48	3.15	3.85	52.4	46.1	62.1	5.55	4.80	4.66	3.77	2.79	4.72
6m	6.7	7.3	7.1	3.66	3.56	3.84	51.3	51.1	52.3	4.99	5.28	6.70	3.42	3.54	4.13
7m	6.7	7.2	7.0	3.82	3.61	4.33	54.0	48.3	57.9	4.60	5.06	6.96	3.59	3.08	4.56
8m	6.7	7.1	6.9	4.15	3.92	3.81	56.0	49.5	46.3	5.55	6.11	6.97	3.83	2.74	3.61

月	Fe ²⁺			Cl ⁻			SO ₄ ²⁻			アルカリ度		
	6	7	8	6	7	8	6	7	8	6	7	8
4m	0.02	0.02	0.03	20.1	16.1	44.2	150	110	98.2	1.64	1.16	1.24
5m	0.08	0.08	0.08	22.3	16.2	18.6	131	87.2	89.7	1.62	1.24	1.26
6m	0.08	0.15	0.22	18.1	17.7	20.3	112	86.4	77.4	1.58	1.26	1.31
7m	0.09	0.12	0.19	16.7	14.0	18.7	97.3	90.1	79.4	1.42	1.35	1.44
8m	0.10	0.12	0.14	15.8	13.1	20.2	85.2	76.5	78.6	1.16	1.26	1.51

単位：アルカリ度 (x10⁻³ eq · l⁻¹)、その他 (mg · l⁻¹)

3-2-4 溶存態マンガンの分布

溶存態マンガン(DMn)の季節変化を図2-5上に示す。DMnの深水層への集積は、著しい水温成層が始まる3月下旬から始まり、その濃度は時と共に徐々に増加、6月には、6m以深で $1\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以上に達し、その高濃度は10月まで維持された。1987年4月、5月及び6月の溶存態マンガン(DMn)の各分子量画分の鉛直分布を図2-6示した。DMn極大層の主な優占成分は、4月はフラクション-DとC、5月はフラクション-A、6月はフラクション-Cであった。フラクション-Dの濃度は6m以深で約 $0.2\text{-}0.38\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、フラクション-Cの高い値($0.15\text{-}0.5\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$)が5m以深で認められた。DMnに対して4

種の分子量画分百分率(最小-最大)は、フラクション-Dは3m層における80-100%の値から5m層における20-50%と言うように深さと共に減少するが、6m以深では再び40-60%に増加した。フラクション-Cは3.5-5mで20-30%の高い値を示し、6-8mで20-50%であった。フラクション-Aは3-30%と低い値であった。

深水層のフラクション中に占める比率が大きいフラクション-Cは、全DMnの

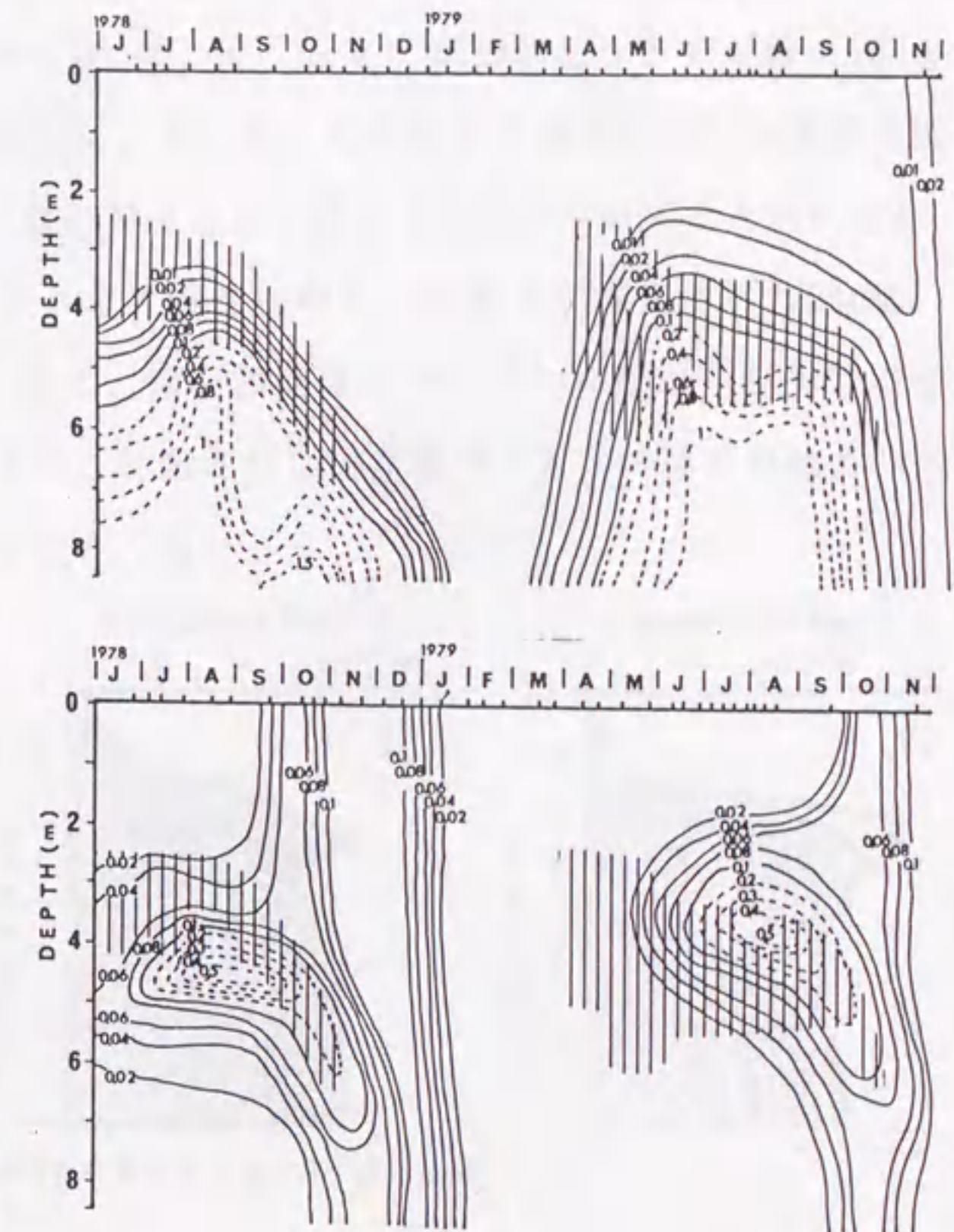


図2-5 深見池における溶存態マンガンと懸濁態マンガンの季節変化
溶存態マンガン、上；懸濁態マンガン、下
図中の各月に印した点は調査時期、[| | |]は水温躍層、数字は濃度(単位： $\text{mgMn}\cdot\text{l}^{-1}$)を示す。1978年6月~1979年11月

最小20%~最大50% (平均30%) になる。上記の結果を解釈するに当たり、限外ろ紙膜に無機態のマンガンが吸着するか、又は残留することにより、ここで得たマンガンの分子量分布に影響を与えているかどうかを検討する必要がある。そこで、 $2 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ の Mn^{2+} の溶液を作り、3種の限外ろ過膜を通して、次々とろ過した所、最後のフラクション-DにおけるDMnは、 Mn^{2+} として添加したマンガン量の $100 \pm 5\%$ であった。この事実から判断して、A、B、Cの限外ろ過膜に Mn^{2+} の残留は認められなかったと示唆された。言い替えると、限外ろ過膜を用いてのろ別により、A、B、C画分に Mn^{2+} がろ別される可能性はなく、各画分で測定されたDMnは、 Mn^{2+} 以外のDMnと考えて良い。特に、溶存無機性のマンガンは Mn^{2+} 以外は存在の可能性がないと考えられるので、分画された溶存態マンガンの殆どは錯体、又は溶存有機態マンガン (DOMn) と考えて良い。

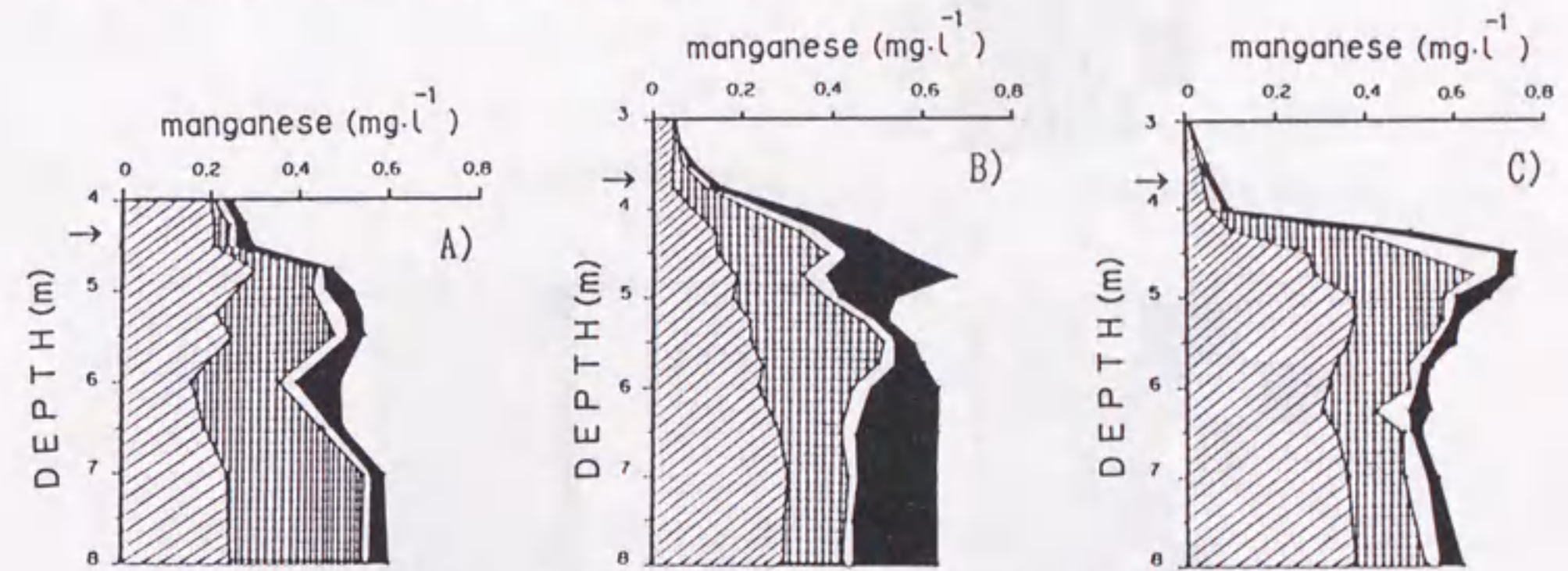


図2-6 深見池の深水層中における4種の分子量画分の溶存態マンガン
 フラクション-D: (/////); $\text{MN} < 1,000$ 、フラクション-C: (###); $1,000 < \text{MN} < 50,000$ 、フラクション-B: (□); $50,000 < \text{MN} < 200,000$ 、フラクション-A: (■); $\text{MN} > 200,000$ 、溶存態マンガン濃度 ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$)、MNは分子量画分を示す。(→)は酸化還元境界層の上部を示す。A):1987年4月23日、B):1987年5月20日、C):1987年6月18日。

3-2-5 懸濁態マンガンの分布

深見池では懸濁態マンガン (PMn) は、成層期間中深度3.5m~5.0mの化学躍層に集積が見られた(図2-5,下部)。このPMnの集積層は、湖水が黒褐色になっている高濁度層で、その厚さは0.5m~1.8mに達する。PMnの最大濃度は8月27日の深度4.0mで測定され $0.55 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ である。このマンガン濃度は図中におけるDMnの約5倍であった。

3-2-6 湖底堆積物間隙水中のマンガンの分布

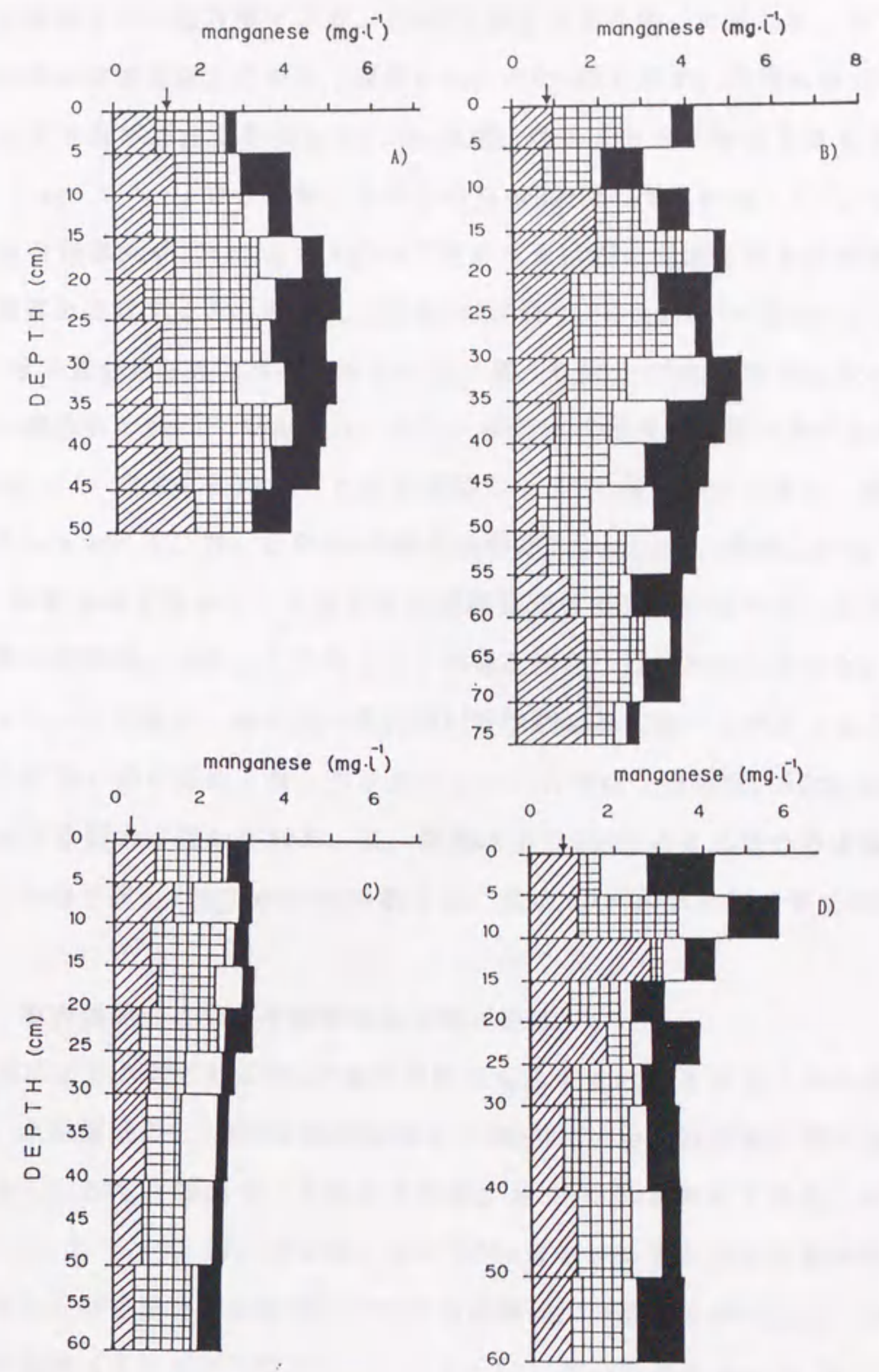


図2-7 深見池の湖底堆積物間隙水中の4種に分子量分画された
 溶存態マンガン
 湖底堆積物直上の湖水の値：(↓)
 フラクション-D：(/////); MW<1,000、フラクション-C：(||||); 1,000<MW<
 50,000、フラクション-B：(□); 50,000<MW<200,000、フラクション-A：(■);
 MW>200,000、
 採泥：A)：1987年8月26日、B)：10月30日、C)：1988年4月26日、D)：6月30日

湖底堆積物間隙水中の溶存態マンガン(DMn)の鉛直分布を図2-7に示した。なお、図2-7の↓印は湖底堆積物直上の湖水(深度8.2m)のDMn値を示す。間隙水中のDMnの鉛直分布は大きな季節変動を示した。DMnの極大値は1987年8月26日の20-25cmで $5.4 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、1987年10月30日の30-35cmで $4.9 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、1988年6月30日の5cm-10cmで $5.8 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。湖底泥直上水と湖底堆積物表層中の濃度を比較すると、底泥直上で全DMnは最小 $0.4 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ ~最大 $1.2 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であり、分子量分画したフラクシオン-A、B、C画分のDMnの総和は最小 $0.2 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ ~最大 $0.6 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。また、湖底堆積物表層間隙水中の全DMnは最小 $2.8 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、最大 $4.2 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と底泥間隙水中のDMn濃度の方が高い。間隙水中のフラクシオン-A、B、CのDMnの総和は最小 $1.8 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、最大 $3.0 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ あった。鉛直分布を見ると、8月は湖底堆積物表層で少ない傾向が、6月には5-10cmで高い傾向が、4月、10月ではこの様な傾向は認められなかった。常にフラクシオン-Cで高く、最小30~最大60%(平均40%)を占め、フラクシオン-Bにはしばしば高いのが認められ、フラクシオン-Dでは10月に、10cm-40cm以深では増加する傾向が認められた。又、間隙水中のDMnに占める限外ろ過膜により分画された分子量1,000以上のDMnの割合は、最小45%~最大80%で平均65%であった。

3-2-7 室内実験による分子量画分のDMn生成

限外ろ過膜により分画されるDMnが室内実験でも生成されうるかどうかを確認するために、水温躍層の4.75mと5.0mの試水を250ml瓶にそれぞれ空気に触れないように密栓をし、20℃/暗室で「そのまま保温」と「 KMnO_2 を加えて保温」の2種類を作り、0, 2, 4, 9, 12, 15日後におけるDMn量をマンガンの分子量分画法によって求めた。分子量分画に使用した限外ろ過膜は、分子量5,000と100,000の遠心分離式ろ過膜(ミリポア製ウルトラフリーCL、遠心ろ過チューブ 2ml)である。 KMnO_2 を加えた試水ではいずれも、分子量 $5,000 < \text{MW} < 100,000$ の画分でDMnの顕著な増加が認められると共に、 Mn^{2+} の溶出が見いだされた。溶出した全DMnに占める分子量5,000-100,000画分、及び分子量100,000以上画分の和の割合は平均 $6 \pm 0.7\%$ (N=2)であった。

4-1 深見池の夏期における酸化還元境界層の特性

化学成層

序論で述べたように、自然の場では酸化還元条件により存在状態が大きく変化するものはC, N, Fe, Mn, Sの化合物である。これら物質の変化を考える場合重要なことは、酸化還元電位の低下に伴い微生物の活動による物質変化がより還元的な系へ移行することである。このため、土壌や湖沼では酸化層から還元層へ向けて、化学物質の遷移が生じる。この遷移層を酸化還元境界層と呼ぶ。湖沼では底泥-湖水境界層か、不完全循環湖の水温躍層付近の化学躍層部にこの境界層が形成される (Emerson et al., 1979; Stumm and Morgan, 1981; Davison et al., 1982)。この境界層では、一般に溶存酸素と硫化水素の濃度の鉛直分布が逆方向に変化する (Sorokin, 1970)。Davison et al. (1982)の表現によれば、酸化還元境界層では O_2 の負の濃度勾配と、 H_2S 、 Mn^{2+} 、 Fe^{2+} の正の濃度勾配が現れる。なお、Burdige and Gieskes (1983)は、海洋においてマンガンが酸化されたり還元される層を酸化還元境界層と定義している。

深見池では夏期成層期に、3.0~5.0m層に水温躍層が形成され、この躍層付近(3.5~5.0m)で、共存する O_2 と H_2S 濃度が逆方向に急激に変化することが見出された。又、この層で懸濁態のMnやFeの高濃度層が観測された。この層で低濃度で共存している溶存態のMnやFeは、この層以深でその濃度が急増する。この様に化学物質の急変がこの層で見られる。この化学躍層では、 O_2 が $1.0 \sim 0.1 \text{ mgO}_2 \cdot \text{l}^{-1}$ 、 H_2S が $0.1 \sim 1.8 \text{ mgH}_2\text{S-S} \cdot \text{l}^{-1}$ と鉛直的に急激に変化することから、この化学躍層は酸化還元境界層を形成していると見ることが出来る。深見池の深水層における硫化水素濃度は3-2-1で述べたように、 $7.5 \sim 8.5 \text{ H}_2\text{S-S} \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ で、上野(1952)の報告の $11 \sim 12 \text{ mgH}_2\text{S-S} \cdot \text{l}^{-1}$ よりやや低い、淡水湖の値としては極めて高い。この H_2S 濃度の高い原因として、上野(1952)は $10 \sim 22 \text{ mgSO}_4^{2-}\text{-S} \cdot \text{l}^{-1}$ と硫酸イオン濃度が高いことを指摘した。この高い硫酸濃度は海水の侵入している汽水湖である水月湖の値 $33 \sim 117 \text{ mgSO}_4^{2-}\text{-S} \cdot \text{l}^{-1}$ (Matsuyama, 1978)の値には及ばないものの、淡水湖としては異常に大きな値で、本湖の還元的深水層におけ

る硫酸還元を活発化を可能にしている。

深水層のイオンバランス

深見池の夏期における深水層の特性は図2-4(中、下)に示したように、高濃度のNH₄⁺-NやPO₄³⁻-Pの集積が認められたのに対し、表層水中のこれらの値は低い。水温成層が比較的長期間安定して存在することから、深水層中に高濃度の硫化水素が集積し、還元化が顕著になる。深見池における主な化学成分と他の湖沼との比較のため、まとめると表2-2になる。深見池ではCa²⁺は他の湖沼より低いが、Na⁺、SO₄²⁻が他の淡水湖と比べ高いことが認められる。

成層期間の深水層におけるイオンバランスを明らかにするため、成層期の各深度について、pH、アルカリ度、Cl⁻、NH₄⁺、PO₄³⁻、H₂S、Na⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、SO₄²⁻、Fe²⁺、Mn²⁺の値を用いて次式より深水層のイオン強度(I)を算出した。

$$I = \frac{1}{2} \sum C_i \cdot Z_i \quad (C_i: \text{イオンの重量モル濃度}, Z_i: \text{イオンの電荷}) \quad (2-1)$$

1979年6月17日、7月22日及び8月27日の4m~8m層におけるイオン

表2-2 深見池における深水層中の主な化学成分と他の湖沼との比較

	pH	アルカリ度 ×10 ⁻³ eq/l ⁻¹	Na ⁺ mg·l ⁻¹	K ⁺ mg·l ⁻¹	Ca ²⁺ mg·l ⁻¹	Mg ²⁺ mg·l ⁻¹	T-Mn mg·l ⁻¹	T-Fe mg·l ⁻¹	Cl ⁻ mg·l ⁻¹	SO ₄ ²⁻ mg·l ⁻¹	H ₂ S mg·l ⁻¹	DOC mgC·l ⁻¹
深見池	6.6~6.9	1.16~1.64	46.6~69.2	3.15~4.33	3.99~5.84	2.74~4.74	1.5	5.0	13.1~20.1	77.4~150	<12	<15
深見池 1)	6.5	0.5~1.0						5.0	5.0	31.0~66.5	<13	(<10)
木崎湖 2)	6.6						9.5	5.1		2		
諏訪湖 3)			12.2	3.2	12.90	2.8				14.5		3.15
余呉湖 4)			6.9~9.4	2.0	13	2	0.1~2	0.3~3	6	8~10		
高須賀沼 5)	6.4						15	50				
Mendota 6)		2.8~3.86	4.5~8.0	3.5~4.5	26~36	23~28	0.01~0.9	0.02~0.2	6.2~9.6	18~30		9~11
Titicaca 7)			176		66	34			260	280		
水月湖 8)										100~350	10~110	
油ヶ瀬 9)	6.6				9.6~116	8~302			83~4170	24~699		
日本の富栄養湖 10)					2.4~28.0	2.5~11.3		0.5~0.7		0.6~28.6		

1)上野, 1952 2)Koyama and Tomino, 1967 3)渡辺ら, 1982 4)Horie, 1969 5)Yoshimura, 1931a
6)Delfino, 1968 7)Goldman and Horne, 1983 8)Matsuyama, 1978 9)小山ら, 1989 10)Sakamoto, 1966

強度は、それぞれ 2.9×10^{-3} - 6.5×10^{-3} 、 2.2×10^{-3} - 3.7×10^{-3} 及び 3.7×10^{-3} - 5.1×10^{-3} であった。最高値は、琵琶湖の $1.4 \sim 1.7 \times 10^{-3}$ (Kawashima et al., 1985)の約4倍と高く、Emerson (1976)が報告した淡水湖の還元的湖底堆積物間隙水中の値 ($I = 7 \times 10^{-3} \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$) に近い。この様に深見池のイオン強度が高い理由は、他の湖沼の化学成分に比べて、 Na^+ 、 SO_4^{2-} が高いためである。

4-2 湖水中におけるマンガンの鉛直分布

酸化還元境界層を通してのマンガンの酸化還元サイクルは、manganous wheel (Mayer et al., 1982) と呼ばれる様に、様々な天然水域における還元的環境や酸化還元境界層中における、物質循環に大きな役割を果たしている (Hutchinson, 1957; Verdouw and Dekkers, 1980; Campbell and Torgersen, 1980; Stumm and Morgan, 1981; Davison, 1981; Davison et al., 1982; Mayer et al., 1982; Jaquet et al., 1982; Davison and Woof, 1984; Kawashima et al., 1985)。Kawashima et al. (1985) と Miyajima (1992) は深水層中のマンガン (Mn(II)) の沈殿反応は微生物的酸化過程により、Mn(II)の酸化がMn(IV) O_2 に吸着する形で起こると示唆した。深見池の酸化還元境界層にPMnが集積する機構については2つの可能性が考えられる。1つは、深水層から上方拡散により供給された Mn^{2+} が、還元境界層の溶存酸素と反応し、 MnO_2 としてのPMnを形成する可能性である。他は、湖の周囲から湖水の中へ懸濁物の形でマンガンの酸化物が流入する可能性である (Campbell and Torgersen, 1980; Davison, 1981; Mayer et al., 1982; Davison and Woof, 1984)。鉛直的濃度躍層であるDMnの濃度勾配の最大値は、3月下旬から7月29日までの間、5.5m-6.0m層→5.0m-5.5m層→4.5m-5.0m層→4.0m-4.5m層と徐々に上層へ移行し、6月始めに4.5m層で $1.4 \text{ mgMn} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ の最大値に達する。この期間、図2-7で示したように、湖底堆積物直上水と間隙水のDMn濃度の間には大きな濃度勾配 (平均 $1.03 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-3} \cdot \text{cm}^{-1}$) があるので、湖底泥から湖水へのDMnフラックスがあると推定される。

4-3 深水層におけるDMnの分子量分布

3-2-4と3-2-6で述べたように、限外ろ過法により深見池の深水層および湖底堆積物間隙水中のDMnは3つの分子量画分に分けられた。限外ろ過膜に保持されたフラクション-C ($1,000 < \text{MW} < 50,000$)のDMnが全DMnに占める割合は深

水層で20%~50% (平均30%)、湖底泥間隙水で30%~60% (平均40%)であった。

湖水及び底泥間隙水中の限外ろ過膜画分中のDMnは、 Mn^{2+} の限外ろ過膜への残存のないことから、有機態または錯体のマンガンと考えられる。

マンガンの錯体形成の有機リガンドとしては、湖水中ではDOCの可能性が高い。本研究では、DMn濃度が湖水に比べ5~9倍多かった湖底堆積物表層間隙水中では、DOC濃度は、湖底堆積物間隙水の方が湖底堆積物直上の湖水における値より2~5倍大きい。そこで、DOCが部分的にMnの有機リガンドとして働き、Mn錯体を形成しているかどうかを調べるため、3種の高分子量画分及びその合計量のそれぞれについてDOC濃度と分画されたマンガン(Mn(UF))濃度の間の量関係を調べた(図2-8)。

両者の間の相関はフラクシオン-C ($DMn=0.070DOC+0.25$, $r^2=0.85$; $p<0.001$)において有意であった。傾きはモル比でDOC/DMn(mol/mol)=60であった。

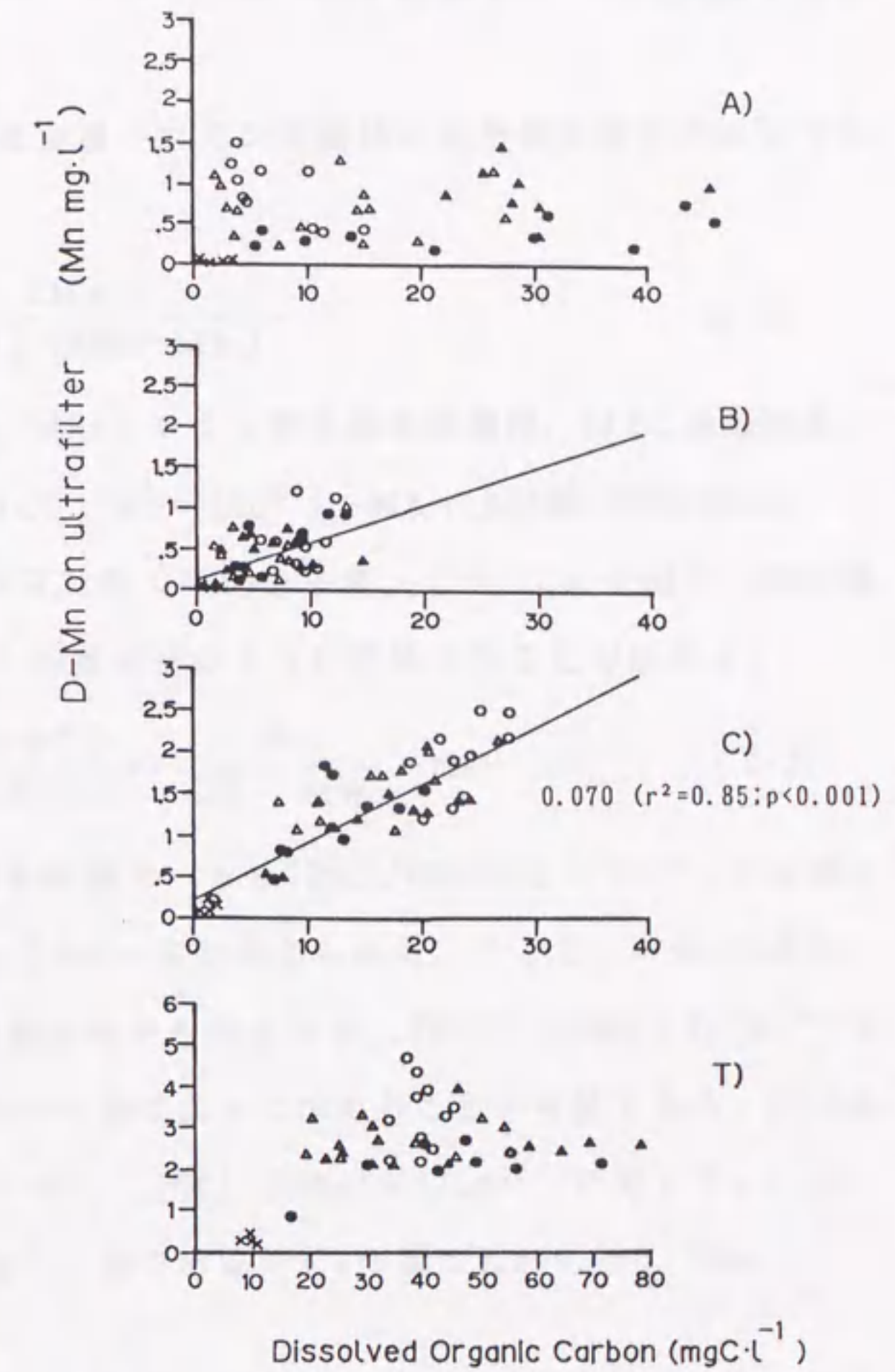


図2-8 深見池の深水層・湖底堆積物間隙水の分子量画分1,000以上のDMnと溶存有機炭素(DOC)の分散分布図
 A):フラクシオン-A: $MW>200,000$ C):フラクシオン-C: $1,000<MW<50,000$
 B):フラクシオン-B: $50,000<MW<200,000$ T):フラクシオン-A+B+C
 採泥: 1987年8月26日(O), 10月30日(Δ), 1988年4月26日(\bullet), 6月30日(Δ)
 湖水: 1987年6月18日(x)

Thurmann(1985)は河川中のDOCの50-70%は、DOC 1mgがおおよそ1 μ g当量の金属-有機物の錯化容量を有すると報告した。これは、マンガンの場合、モル比でDOC/Mn \approx 83に相当し、深見池の値はこれに近い。これらの事実は、限外ろ紙に保持されるフラクション-CのDMnはかなりの部分が有機錯体である可能性が高いことを示すとみてよい。

Mantoura and Riley (1975)は金属-フミン酸錯体の全平衡定数を次のように定義した：

$$K_o = \frac{[Mn_o]}{[Mf][MHA-Mb]} \quad (2-2)$$

ここで、Mb：結合金属濃度、MHA：フミン酸全配位基濃度、Mf：遊離金属イオン濃度である。(2-2)式において、Mf=[Mn²⁺]、Mb=[限外ろ紙上のDMn;DOMn]、MHA=[DOC]/[CM·MW]、MW：フミン酸の平均分子量、CM：フミン酸中一配位基当たりの炭素濃度とすると、(2-2)式は次のように変換することが出来る。

$$\frac{1}{[Mn^{2+}]} = \frac{[DOC]}{[DOMn]} \cdot \frac{K_o}{CM \cdot MW} - K_o \quad (2-3)$$

この式において、一定の分子量範囲で、もし[DOC]/[DOMn]と1/[Mn²⁺]との間に直線関係が成立すれば、MWとCMは一定と考えられる。そこで、-K_oの値は[DOC]、[DOMn]、[Mn²⁺]の濃度値のみから求められ、[DOC]/[DOMn]と1/[Mn²⁺]をグラフ上にプロットし、y軸切片の値によって求めることが可能である。図2-9に示した、フラクション-Cについて、[DOC]/[DOMn]が1/[Mn²⁺]に対して、一次の有意な直線関係を示し、y軸切片の値である-K_oの値はK_o=4,200、即ちlog K_o=3.6と計算される。

Mantoura et al.(1978)によれば、Mn-フミン化合物のlog K_oの値は泥炭で4.17、湖水で4.3-4.85、海水で4.05-4.51、及び土壌で3.7であり、本値log K_o=3.6は土壌のMn-フミン化合物の安定度定数の範囲に極めて近い。

自然水中の微量金属錯体は、分子量1,000-2,000の範囲のフルボ酸やフミン酸が含まれる有機物との結合錯体であることが多いと言われている(Hart, 1981; Aiken et al., 1985, Baccini and Suter, 1979)。フラクション-C (1,000<MW<50,000)画分中のDMnが大部分有機錯体であるとする、その有機リガンドは

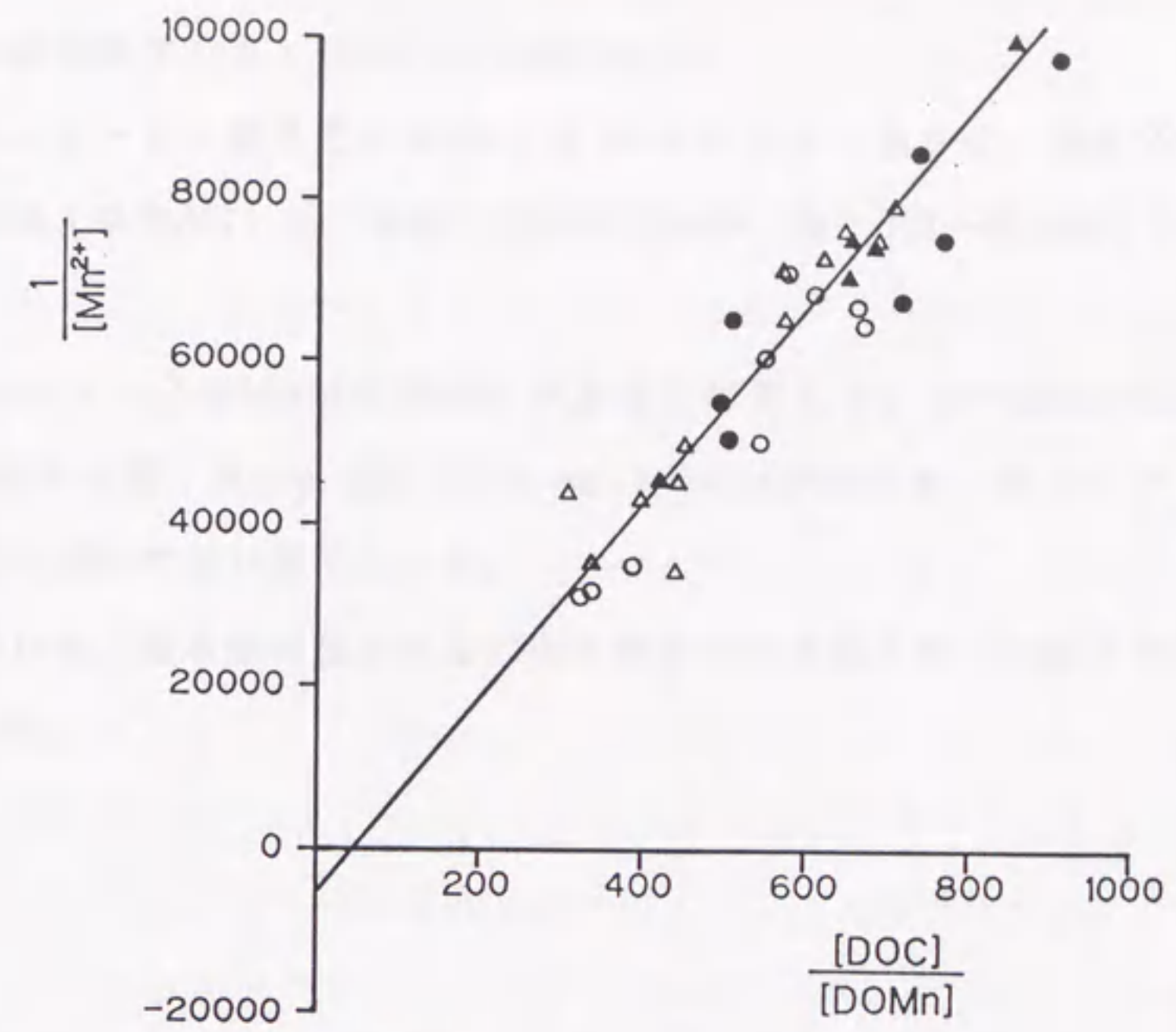


図2-9 深見池の湖底湖底堆積物間隙水のフラクシオン-Cでの [DOC]/[DOMn] と $1/[Mn^{2+}]$ との関係
 回帰直線は以下の通りである。

$$\frac{1}{Mn^{2+}} = 109 (\pm 9) \frac{[DOC]}{[DOMn]} - 4200 (\pm 3900) \quad r^2 = 0.78 (p \leq 0.001)$$

採泥：1987年8月26日 (○)、10月30日 (Δ)、
 1988年4月26日 (●)、6月30日 (▲)

フミン酸とフルボ酸で構成されている可能性が高い。

錯体としての有機態マンガン (DOMn) が生成されうるかどうかを確認するために、酸化還元境界層に相当する 4.75m と 5.0m の試水に δMnO_2 を加えて、室内の培養実験より DMn の生成の経日変化を求めた所、特に分子量画分 5,000 < MW < 100,000 範囲の DMn の顕著な増加があった。この画分の DMn は全溶出 DMn の 6% に相当した。この実験結果は湖水中でも有機態又は有機錯体としての DMn が形成されることを示唆する。

5) まとめ

懸濁態マンガンの黒褐色の高濁度層が酸化還元境界層に集積していた。
 深水層中の分子量画分された DMn の内、フラクシオン-D (M.W. < 1,000) は Mn^{2+} 、フラクシオン-C (1,000 < W < 50,000) 中の DMn のかなりの部分は有機態又は有機

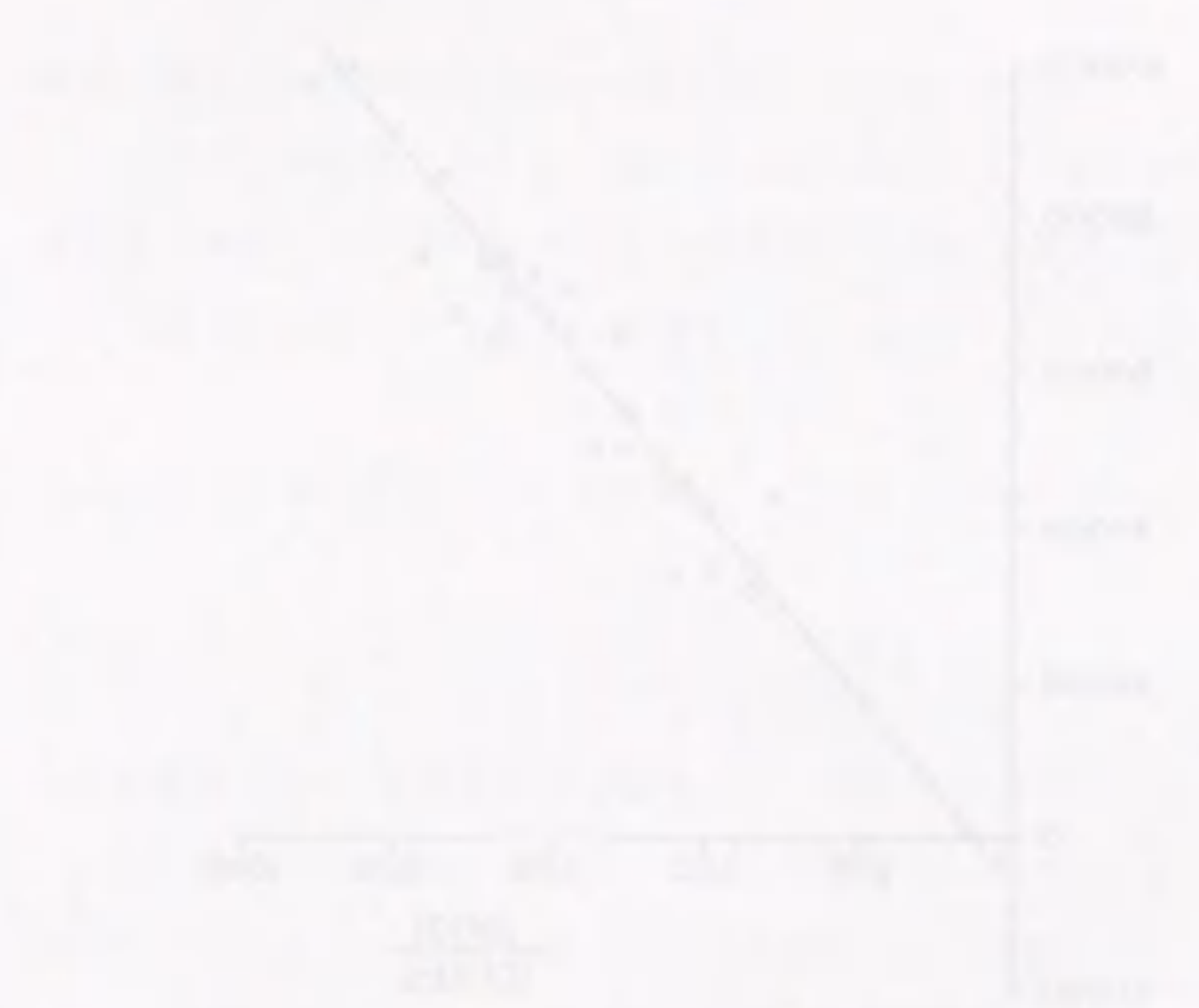


Figure 1: Relationship between DOMn and DMn concentrations. The graph shows a linear correlation where DMn concentration increases proportionally with DOMn concentration. The axes are labeled in mg/L.

Figure 1 shows a linear relationship between DOMn and DMn concentrations. The x-axis represents DOMn (mg/L) and the y-axis represents DMn (mg/L). The data points indicate that as DOMn increases, DMn also increases proportionally, suggesting a strong positive correlation between the two variables.

The linear relationship shown in Figure 1 suggests that DOMn is a significant component of DMn. This finding is consistent with the text on the right page, which discusses the fractionation of DMn and the stability of Mn-DOC.

錯体の溶存有機態マンガン (DOMn) と示唆された。

フラクシオン-Cに画分されたDMnの全DMn中に占める割合は、深水層中で最小20%~最大50% (平均30%) と、湖底堆積物間隙水中で最小30%~最大60% (平均40%) であった。

フラクシオン-CのDMnが有機錯体であると仮定して、Mn-DOCの安定度定数 (K_o) を求めた所、 $K_o=4,200$ 、即ち $\log K_o=3.6$ が得られ、Mn-フミン質の安定度定数に極めて近い値であった。

室内実験から、湖水中に見られるDOMnは湖水中で生成されている可能性があると示唆された。

The text discusses the fractionation of DMn and the stability of Mn-DOC. It notes that the fraction of DMn in fraction C varies between 20% and 50% in deep water layers and 30% and 60% in lake bottom sediment pore water. Assuming DMn in fraction C is an organic complex, the stability constant (K_o) for Mn-DOC was determined to be 4,200, with $\log K_o = 3.6$. This value is very close to the stability constant of Mn-humic substances. The text also suggests that DOMn found in lake water is likely generated in the lake water itself, based on indoor experiments.

The text further elaborates on the implications of these findings, discussing the potential for Mn-DOC to act as a nutrient source for aquatic organisms and the role of DOMn in the manganese cycle. It highlights the importance of understanding the stability and fractionation of Mn-DOC in aquatic environments.

1) はじめに

湖沼における一次生産者としては植物プランクトン、大型水草、付着藻類及び光合成細菌がある。光合成硫黄細菌は、部分循環湖又は夏期に顕著な水温躍層の発達と深水層に H_2S の蓄積が認められる富栄養湖の水温躍層付近に増殖する(Takahashi and Ichimura, 1968; Matuyama and Saijo, 1971)。光合成硫黄細菌には、紅色硫黄細菌と緑色硫黄細菌があり、硫化水素の水素を用いて、光合成により独立栄養的に生育する(Takahashi and Ichimura, 1968; Parkin and Brock, 1981)。従って、硫酸還元により生じた硫化水素が深水層中から供給され、かつ、太陽光が到達可能な中層の密度躍層付近で増殖する。この理由から光合成硫黄細菌の増殖は、この条件が成立する一部の湖沼に限られる。Takahashi and Ichimura (1968)によると、日向湖、湧池、湯の湖の夏期表水層における植物プランクトンの生産は $167\sim 411\text{ mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{day}^{-1}$ であり、酸化還元境界層における光合成細菌の生産は $5\sim 62\text{ mgC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{day}^{-1}$ であるので、光合成細菌の生産はこれら湖の全一次生産の3.0~13%に当たることになる。Matuyama and Saijo (1971)は、水月湖において、光合成紅色硫黄細菌の生産量は、植物プランクトンの生産 $113\text{ mgC}\cdot\text{m}^3\cdot\text{day}^{-1}$ の0.34倍に相当することを示した。1日当たりの全一次生産量に占める光合成細菌の生産の割合の例としては、Solar湖で91%(Cohen et al., 1977)、Mirror湖で3.8%(Parkin and Brock, 1980)が報告されている。

植物プランクトンと光合成細菌による一次生産により作られた有機物は、その一部は生産層中で分解されるが、残りは生産層以深に沈降していく。従って、酸化還元境界層における還元環境の発達やそこにおける各種の物質代謝を大きく支配すると考えられる。特に、 H_2S の発生する湖では植物プランクトンと共に光合成細菌も一次生産者として重要である。深見池における有機物の一次生産が湖内の物質代謝に占める関与度を求めるために、植物プランクトンと光合成緑色硫黄細菌の現存量と一次生産の研究を行なった。

2) 方法

植物プランクトンのクロロフィルは湖水からろ別によりGF/Cフィルター上に集められた試料について、蛍光法 (Holm-Hansen et al., 1965) で測定した。光合成細菌の存在する試水では、試水をヌクレポアフィルター ($0.4\mu\text{m}$) 上に集め、Takahashi and Ichimura (1968) に従って、720nmと650nmとの吸光度差よりバクテリオクロロフィルc-d差を求めた。

植物プランクトンの総生産量は、生産層の各試水について、溶存酸素法 (ウィンクラー・アジカNa変法) による明瓶、暗瓶の現場法 (1956-57年は24時間、1978-80年は4時間インキュベートし、明瓶と暗瓶の値の差を総生産量とし、1日当たりの総生産量は測定時の日の出から日の入りまでの時間を求め、4時間値を補正) で測定 (日本海洋学会、1979) した。

純生産量は $\text{NaH}^{14}\text{CO}_3$ をトレーサーとして用いて、同じ現場法で3時間または日の出から日の入りまでインキュベーションを行い、インキュベーション試料はミリポアフィルター(HA)ろ別後、ろ液はシンチレーションカウンターで放射能を測定、現場の $\text{ICCO}_2\text{-C}$ 濃度を用いて炭素固定差を計算した。

3) 結果

3-1 クロロフィル分布の鉛直分布と季節変化

クロロフィル-aの鉛直分布の季節変化を図3-1に示す。クロロフィル-a濃度は循環期に $50\text{--}100\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 、またはそれ以上が観測されたが、成層期には表層水(0-3m)では $60\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 、またはそれ以下の値であった(図3-1)。

バクテリオクロロフィルの季節変化をバクテリオクロロフィル-cとして、図3-2に示す。バクテリオクロロフィル-cの極大値が、1978年 ($140\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$) と1979年 ($120\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$) の成層期に4m~6m深度の酸化還元境界層で観測された。このことから、図3-1の成層期間に見られる水温躍層以深に存在する高いクロロフィル-aの値の大部分は緑色植物のChlorophyll-aではなく、図3-2に示すようにバクテリオクロロフィルに依るものと考えられた。

1956-57年と1978-79年における表面から3m水深までの生産層内のクロロフィル-a量の季節変化を図3-3に示す。両年共クロロフィル量は秋から

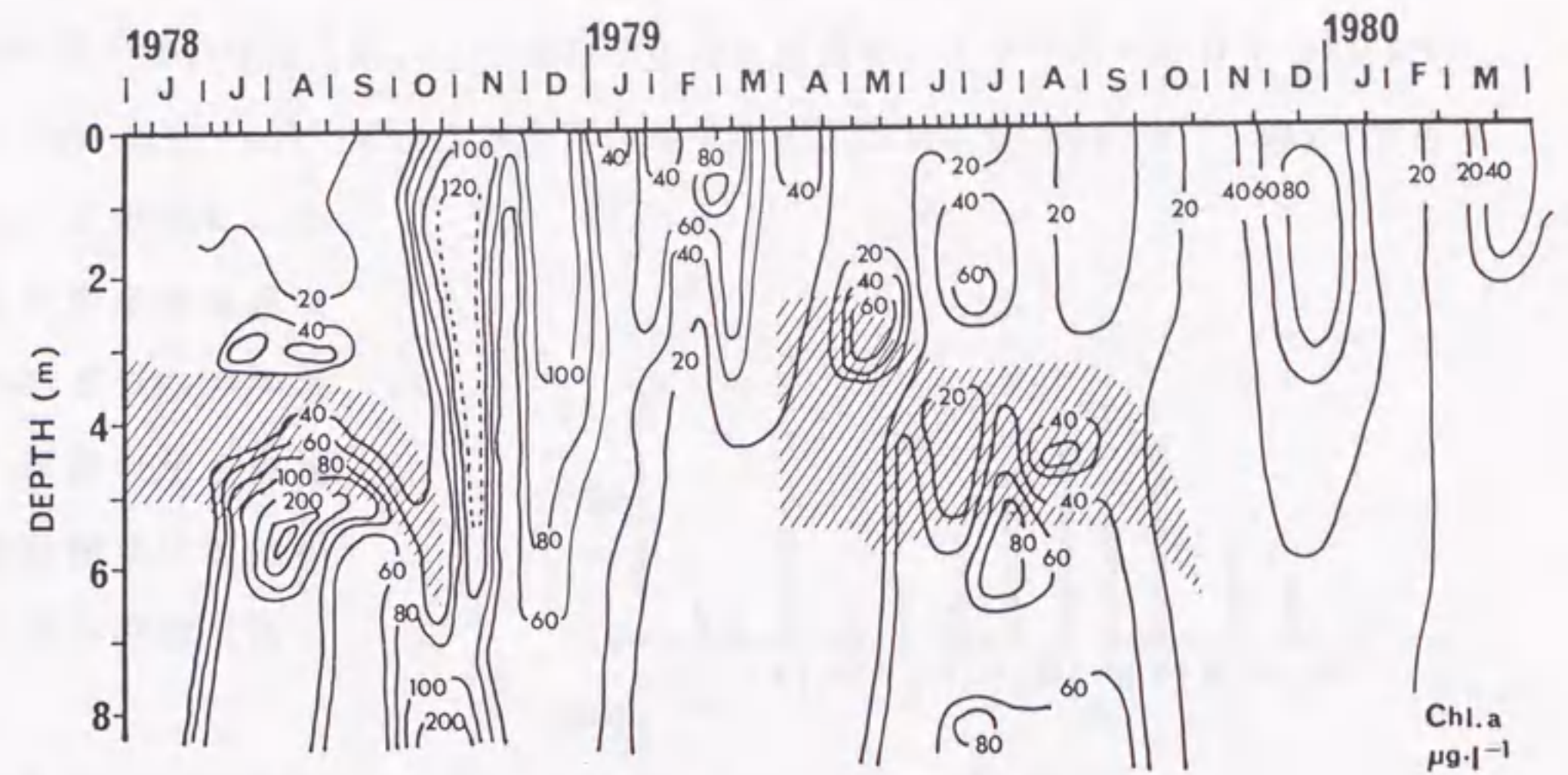


図3-1 深見池におけるクロロフィル-aの季節変化
4 m以深のクロロフィル-aにはバクテリオクロロフィルが含まれている。[////]は水温躍層、横軸の各月に日を示す。



図3-2 深見池におけるバクテリオクロロフィル-cの季節変化
[////]は水温躍層、[.....]は無酸素層、横軸の各月に日を示す。

冬への全循環期に大きく、夏期の水温成層期に低くなる傾向が明瞭に見られる。

3-2 一次生産

酸素法により求めた表面から3m深度までの植物プランクトンの総生産量の季節変化を図3-4に示した。1956-57年の観測では、現場でのインキュベーション時間は日の出から日の出までの24時間であったが、1978-80年は午前

11時から午後3時までの太陽光が最大となる期間の4時間インキュベートした。照射時間の違いはあるが、1日当たりの総生産量は、1978-80年の $11.2 \pm 2.38 \text{ O}_2\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ で、1956-57年で $3.07 \pm 0.95 \text{ O}_2\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ であった。この様に、年により生産量は異なるが、どちらの年度も、年間の総生産量の変動幅は比較的小さいのが特徴であった。

深見池では6月から9月の間、4m以深では無酸素状態になる。この無酸素層の上部の4mから5mの間には光合成緑色硫黄細菌の濃密な集積が形成された。この光合成細菌 (Green sulfur bacteria: GSB) 群は *Prosthecochloris* 属によるもので、その現存量は湖水濃縮液の吸光度測定 (650と750nmの差より算出) により把握できる。

深見池における光合成細菌の一次生産に対する寄与を調べるために、 ^{14}C 法による光合成活性の測定を行った。1979年7月29日の現場法における $^{14}\text{CO}_2$ 取り込み実験の結果を図3-5に示す。図3-5(C)に○印で示した様に植物プランクトン

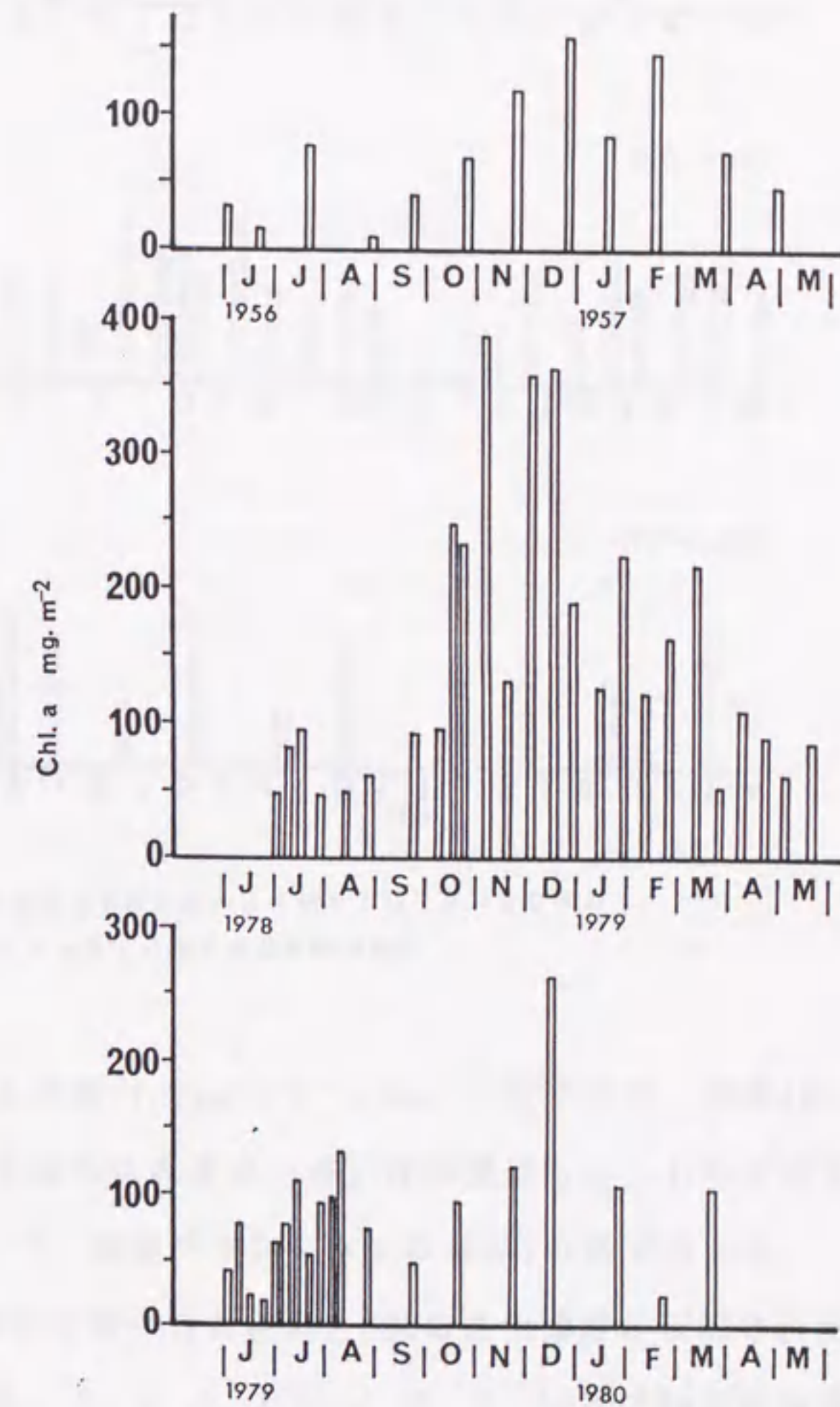


図3-3 深見池における1956-57年と1978-80年の表面水から3mまでのクロロフィル-a量の季節変化

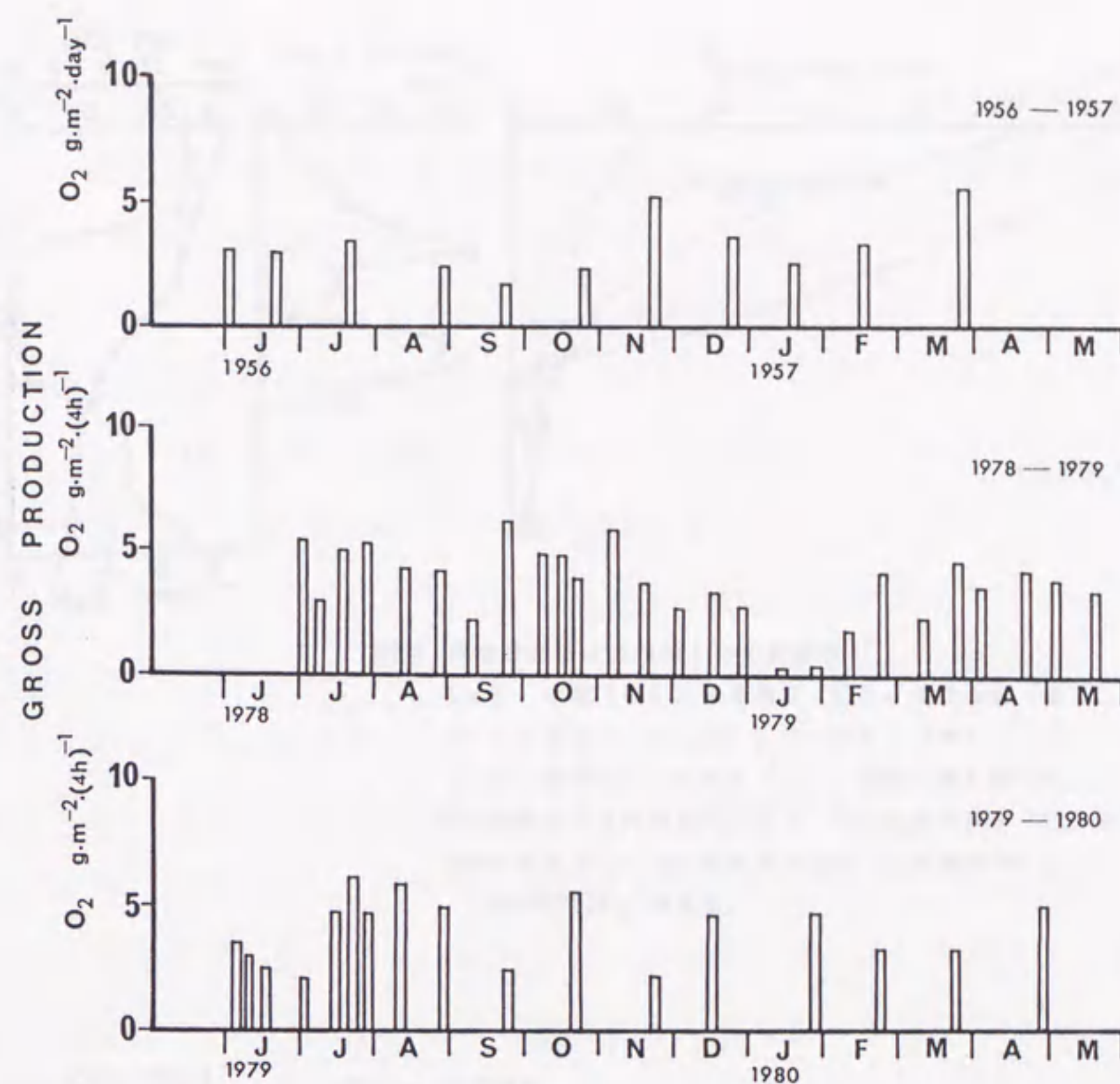


図3-4 深見池における1956~57年と1978~80年の表面水から3mまでの総生産量の季節変化

は0mで、高い炭素の取り込み活性($1.6 \text{ mgC} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$)を示すが、深度4mにおける緑色硫黄細菌による炭素の取り込み量は、高い現存量にもかかわらず非常に小さく($0.04 \text{ mgC} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$)、植物プランクトンの40分1の値であった。

GSB光合成活性の光強度依存を調べるために、GSBの最大濃度が観測された4.8m層の試水に $\text{NaH}^{14}\text{CO}_3$ を添加し、0、2、4、4.5、4.75、5、6m及び8mの各深度でインキュベートした。図3-5(C)に□印で示した様に、緑色硫黄細菌は、表層で最も高い炭素の取り込み量($0.33 \text{ mgC} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$)を示した。このGSB光合成活性の光強度依存をより詳しく明らかにするため、1979年9月24日に、0、1.5、3、3.5、4、4.5、4.75、5.0及び5.5mから採取した試水を光量を一定条件にするため

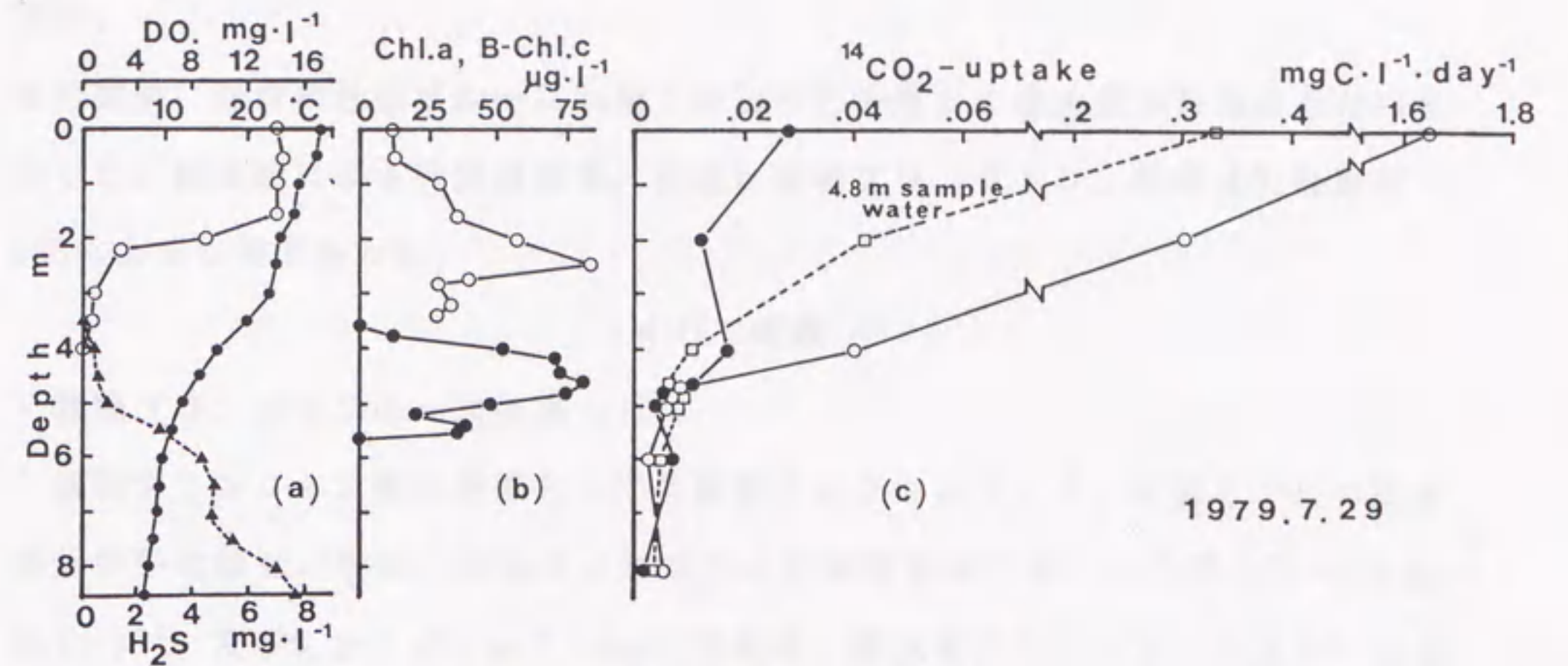


図3-5 光合成活性（現場法）の鉛直分布

(a) : 水温 (●), 溶存酸素 (○), 硫化水素 (▲)、
 (b) : Chl. a (○), B-Chl. c (●)、
 (c) : 現場法による明瓶 (○)、暗瓶 (●) 法での
 光合成活性 (3時間照射) と 4.8 m 深度の試水 (□) を
 各深度に吊るし、光合成活性を測定 (3時間照射)。
 (1979年7月29日、深見池)

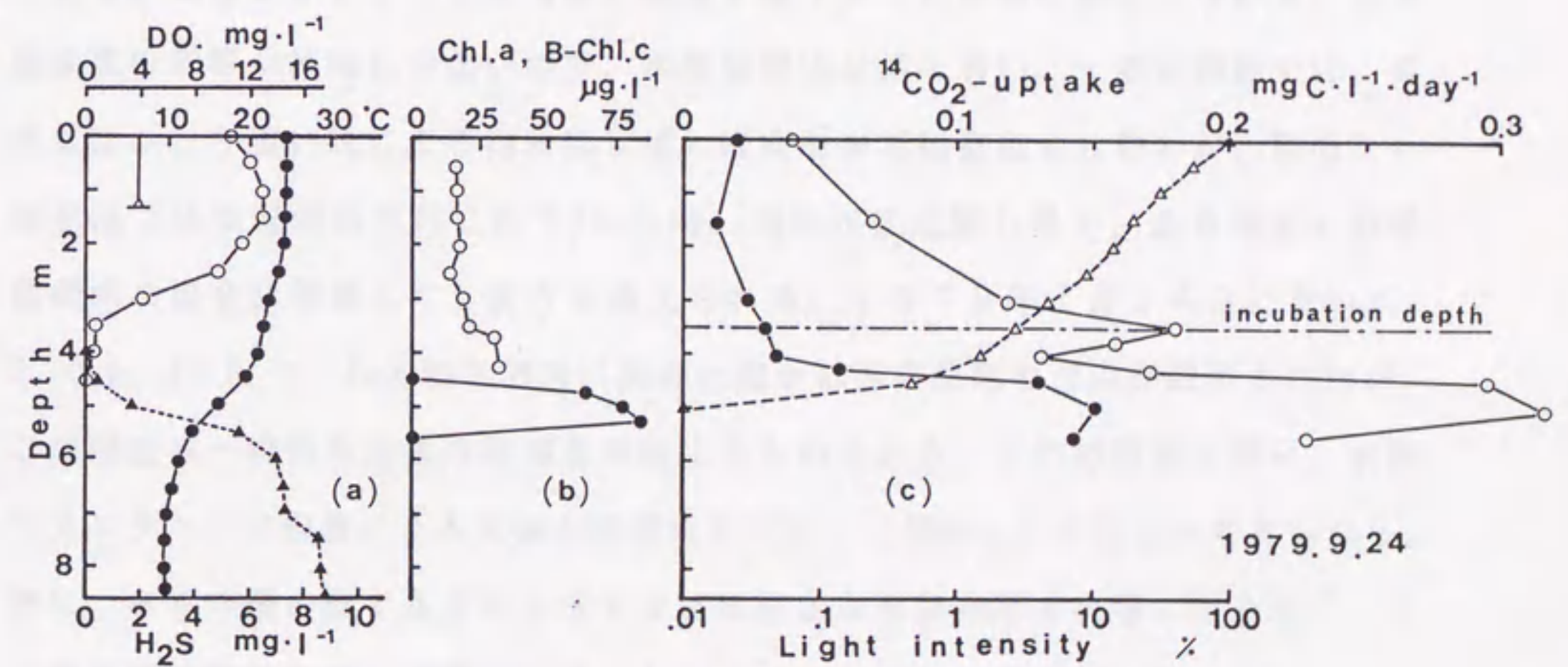


図3-6 現場法による、低照射光での (3.5m) 光合成活性の比較

(a) : 水温 (●), 溶存酸素 (○), 硫化水素 (▲)、
 (b) : Chl. a (○), B-Chl. c (●)、
 (c) : 相対照度 (Δ)、各層の試水を ^{14}C 法により現場で
 3.5m層にインキュベートした時の炭素固定量。日の出より
 日没まで、明瓶 (○)、暗瓶 (●) 法で測定。
 (1979年9月24日、深見池)

3.5mの深度(3%相対光度)で日の出から日の入りまで現場インキュベートした(図3-6)。

その結果、光合成活性は3m~3.5m層と4.5m~5.0m層とに極大値が見られる分布を示した。顕微鏡による同定の結果、前者は植物プランクトン、後者は5.0m層のGSBによるものであった。

4) 考察

植物プランクトンの一次生産

植物プランクトン量の指標として生産層中のクロロフィル-a量と1日の純生産量の平均値は、坂本(1986)によれば日本の富栄養湖では、それぞれ30-150 mg Chl · l⁻¹、及び0.3-5 gC · m⁻² · day⁻¹である。深見池のクロロフィル量と一次生産量は30-400 mgChl · l⁻¹及び3-4 gC · m⁻² · day⁻¹であり現存量に比較し生産がやや低い傾向が認められた。

晩秋から初春にかけての湖水の全循環期に表層近くで高いクロロフィル濃度が確認された。全循環期にこのように現存量の高い理由として、秋から冬に向かい、大気からの冷却効果による一時的な表面水の温度低下により表面近くで密度成層が生じ、植物プランクトンの増殖が表層で高くなった可能性が考えられる。深見池は風の影響が極端に少ないので、水温成層は発達し易い。一般の湖沼では、冬季にはかなり強い風により湖水はしばしば底層まで鉛直混合し易いが、風のない深見池では気温が低下(4℃以下)した時、湖水が逆成層し易く、ある程度の期間は湖水の混合は停滞してしまうと考えられる。1979年1月14日において、0、0.5、1、2、3、4mと深さ方向に向かい僅かに溶存酸素の減少が観測されたが、この理由は一時的な湖水の停滞を示唆するものである。この停滞期の中に、植物プランクトンが表層にある十分な栄養塩を利用して増殖した可能性が考えられる。特に、冬季の優占種であるオンシラトリアは僅かな水温成層で表層に浮き易く、この逆成層状態で急速な増殖を可能にしたのではないかと考えられる。

光合成細菌の一次生産

部分循環湖、及び夏の停滞期の富栄養湖における湖水中の光合成細菌の炭素固定に関しては多くの研究がある(Sorokin, 1970; Takahashi and Ichimura, 1968; Culver and Brunskill, 1969; Matsuyama and Saijo, 1971; Cohen et al.,

1977; Parkin and Brock, 1980)。これらの研究によれば、1日あたりの光合成細菌による一次生産量の全一次生産に占める割合は表3の様になる。

深見池における植物プランクトンの生産とバクテリアの生産は、測定回数は少ないが表3-5で示した様に、前者は $0.3-1.6 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ (平均 $0.95 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$)、後者は $0.006-0.056 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ (平均 $0.031 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$)とバクテリアの生産は植物プランクトンの生産の3.3%にすぎない。この理由について、深見池では、表層光度に対する各深度の相対光度は3.5mで3%、4.5m以深では1~

表3 光合成細菌による一次生産量 (1日あたり)

湖沼	生産量 ($\text{mgC} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$)	細胞生産の割合 (%)
1) Solar湖	7294	91
2) Mirror湖	59	3.8
3) Fayetteville湖	655	83
4) Wadolek湖	17.31	-
5) 日本の湖沼	5-62	3.0~13

1):Cohen et al., 1977, 2):Parkin and Brock, 1980, 3):Culver and Brunshill, 1969, 4):Czeczuga and Gradski, 1973, 5):Takahashi and Ichimura, 1968

0.01%となるが、GSBが集積する5m層付近では更に光量 (0.01%)が少く、細菌の光合成が著しく制限されるためであると考えられる。現場での4.8m層の試水を、浅い層でインキュベートした時、4.8mで $0.01 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ の値が2mで $0.04 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ 、更に0mで $0.33 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ と高くなる。光量の少ない5m層付近にGSBが集積するのは、その層では H_2S が硫黄細菌の増殖を可能にする濃度になっていたためでないかと考えられる。この層の H_2S 濃度 ($\text{mg} \cdot \text{S} \cdot \text{l}^{-1}$)は1979年7月29日と9月24日の4.5mでそれぞれ $0.40 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と $0.38 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、5.0mで $0.90 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と $1.75 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、及び5.5mで $2.76 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と $5.58 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。松山(1988)は緑色硫黄細菌の菌数の増殖の H_2S 濃度依存性を実験的に調べ、 $6 \text{ mg} \text{ H}_2\text{S} \cdot \text{S} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ 以下では増殖に制限があると報告した。従って、深見池の5.5m層の H_2S 濃度は緑色硫黄細菌の増殖を可能にする濃度にあるとみて良い。この層では、相対光度は0.01%、即ち、光が到達するぎりぎりの条件にあり、硫黄細菌の増殖を可能にした結果、この層に同細菌が集積していたと判断される。これは、光合成細菌を含む深水層の試水 (4.5m、5m) を光の強い3.5m深度でインキュベートしたとき、高い光合成活性が得られたことから説明がつく。

松山(1988)は、貝池の H_2S 層上端に密集する大型光合成細菌の生態研究から、光合成活性の低い弱光下で高い現存量を維持する他の機構を次のように述べている。即ち、光合成硫黄細菌の密集分布層における急速な光の減衰は細菌の自己吸収のためであり、細菌の光要求を可能なレベルまで低下させ、生産速度を可能な限り低いレベルにまで抑制することにより、多少の環境要因の変動を濃密な個体群の競争に転嫁させ、安定した系を維持するためであると、示した。深見池においてもこのような現象により、低い光合成活性にもかかわらず、弱光下で緑色硫黄細菌の高い現存量が維持されていると推定される。

5) まとめ

1956-57年と1978-80年の観測により、生産層のクロロフィル-a量は夏の成層期に低く、冬の循環期に高いことが見いだされた。

その多い表層の一次生産者は植物プランクトンであるが、酸化還元境界層には *Prosthecochloris* 属の光合成緑色硫黄細菌 (Green sulfur bacteria: GSB) が主要な一次生産者であった。

深見池における植物プランクトンの生産は $0.3-1.6 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ 、光合成緑色硫黄細菌の生産は $0.006-0.056 \text{ gC} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ であり、この緑色硫黄細菌の生産は植物プランクトンの生産の平均として3.3%と少なかった。

緑色硫黄細菌最大濃度の4.8m層試水を各深度でインキュベートした結果、光の十分な表層で最も高い炭素の取り込み量を示した。

緑色硫黄細菌の密度の高い層で光合成速度が小さい理由は、同細菌の増殖を可能にする H_2S 濃度の水深に、光が十分に透入せず、炭素固定量を制限しているためと判断された。

1) はじめに

前章までに述べたように、深見池では夏期成層期を通じて酸化還元境界層に PMn と DMn が高濃度に見いだされると共に、光合成紅色非硫黄細菌が高密度に生息していることが確認された。紅色非硫黄細菌は低級脂肪酸、アルコール類、炭水化物の溶存有機物を炭素源とし、明条件下で半独立栄養的に生育するが、微または好気暗条件下では従属栄養的に生育し、CO₂固定は必要でない (Van Niel, 1944; Pfennig, 1967, 1969; 北村ら, 1984; 今井, 1984)。光合成紅色非硫黄細菌は、その色素形成にマンガンの供給が必要とすることが知られている。

深見池の酸化還元境界層における光合成非硫黄細菌の溶存有機炭素 (DOC) 利用と、Mn²⁺供給との間の因果関係を明らかにする基礎として、まず光合成紅色非硫黄細菌の分布と増殖に対する DOC とマンガンの関係を検討し、深見池の酸化還元境界層でなぜ光合成非硫黄細菌が高濃度で生育することが可能なのかを考察した。

2) 方法

2-1 一般的水質項目

現場湖沼における水温、溶存酸素、硫化水素、DMn、DOC、全炭酸 (T-CO₂) の測定は第2章～第3章に述べた方法で測定を行なった。

2-2 細菌数の測定

湖水の紅色非硫黄細菌の生菌数の計測は、下記の北村ら (1984) の培地に炭素源としてリンゴ酸ナトリウム、コハク酸ナトリウムおよび酢酸ナトリウムを各0.05%加え、最終的に寒天1.2%になるように調整したものをを用いて平板培養法により行なった。

北村の培地 (1984) は、KH₂PO₄ (0.5g)、K₂HPO₄ (0.6g)、NH₄Cl (1.0g)、MgCl₂ · 6H₂O (0.2g)、CaCl₂ · 2H₂O (0.05g)、酵母エキス (0.1g)、微量元素溶液 (1ml)、生育因子溶液 (1ml)、を蒸留水 (1000ml) に溶かし作成する。微量元素溶液は Fe-EDTA (2000mg)、FeSO₄ · 7H₂O (2000mg)、H₃BO₃ (100mg)、CoCl₂ · 6H₂O (100mg)、ZnCl₂

(100mg)、 $\text{MnCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (100mg)、 $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (20mg)、 $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (20mg)、 $\text{CuCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ (10mg)、 Na_2SeO_3 (1mg)を蒸留水1,000mlに溶解し、冷暗所保存したものをを用いた。生育因子溶液はチアミン-塩酸(50mg)、ナイアシン(50mg)、p-アミノ安息香酸(30mg)、ビタミン- B_{12} (5mg)、ピリドキシン-塩酸(10mg)、ピチオン(5mg)を蒸留水1,000mlに溶解し、冷暗所保存したものである。

生菌数の測定のためには、予め、高圧滅菌してある瓶に、採集した試水の0.1mlと1.0mlを上記の平板培地に植え付け、15℃、タングステンランプの照射下($25 \mu\text{E} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{S}^{-1}$)で15日間培養後、コロニー数を計測した。従属栄養細菌はGPY培地(桜井氏培地、1975; 2g peptone, 0.5g Glucose, 1g Yeast extract, 15g Agar/1L H_2O , pH7.0)を用い平板培養法で20℃、48時間行なった後、コロニー数を計測した。

2-3 紅色非硫黄細菌(*Rh. palustris*)の培養実験

深見池における紅色非硫黄細菌によるDOCとマンガン利用特性を明らかにするため、同湖より分離した*Rh. palustris*の液体培養を15日間、15℃、タングステンランプによる連続照射下($25 \mu\text{E} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{S}^{-1}$)で行ない、その期間内の細菌の増殖とマンガン還元とDOC消費を調べた。培養中の細胞密度は860nmと830nmにおける吸光度(OD)の差から求めた。

実験1: 北村の液体培地で予め3週間培養した紅色非硫黄細菌を、ミリポアフィルター(HA)ろ過滅菌した湖水のろ液(試水は1986年7月19日に2.75m、3.25m、3.75m深度より採取、1986年7月30日には3.25m、3.75mより採取したものである)に接種し、バクテリアの生長にともなう菌数、DOC及び全炭酸(T-CO_2)の変化を実験開始後の3、7、12、15日目に測定し、それらの相互関係を調べた。

実験2: 北村の液体培地に MnCl_2 、 MnO_2 を添加、及び無添加のものに、紅色非硫黄細菌を接種し、バクテリアの生長にともなう菌数とマンガン量の変化を追求し、光合成紅色非硫黄細菌の増殖へのマンガン添加の影響を調べた。

3) 結果

3-1 深見池における紅色非硫黄細菌の分類学的位置づけと分布

深見池の酸化還元境界層に分布する紅色非硫黄細菌の分類学的位置づけを明ら

かにするため、同層より採集した試水から室内で北村の培地を用いて数回集積培養後、最終的に15日間培養して対数増殖期に達した試料について、Pfennig and Truper (1974)に従い同定を行なった。

同定は、東京都立大学松浦克美、渡辺泰徳両博士により行なわれ、紅色非硫黄細菌、*Rhodospseudomonas palustris* と同定された。

図4-1は1986年度の観測結果で、6月から12月までの紅色非硫黄細菌 (*Rh. palustris*) の鉛直分布とその季節変動を示す。月により若干の変動はあるが現存量の最大値は6月から10月にかけては数百CFUs・ml⁻¹の密度があり、D0とH₂S濃度の低い4m層付近に分布する。10月に入ると、湖水の部分的鉛直混合が表層から始まるため、水温躍層の深度は少しずつ下降するに伴い酸化還元境界層も下降する。このため紅色非硫黄細菌のピーク層も深くなり、5.75m層で760 CFUs・ml⁻¹に達した。湖水が12月に鉛直混合を始めると *Rh. palustris* の密度は急減し、0-40 CFUs・ml⁻¹となる。

紅色非硫黄細菌の鉛直分布の支配要因を明らかにするため、1987年度には紅色非硫黄細菌、水温、溶存酸素、硫化水素、及び紅色非硫黄細菌数の鉛直分布の時間的変化を調べた。図4-2には4月23日、5月20日、6月18日及び7月23日の紅色非硫黄細菌と水温、D0、H₂S濃度の鉛直分布を示す。*Rh. palustris* の高密度層は成層期初期の4月には、水温躍層の下に出現しているが、5月以後水温躍層が3-5m→3.5-6mと深くなると、水温躍層の上部に出現するようになる。こ

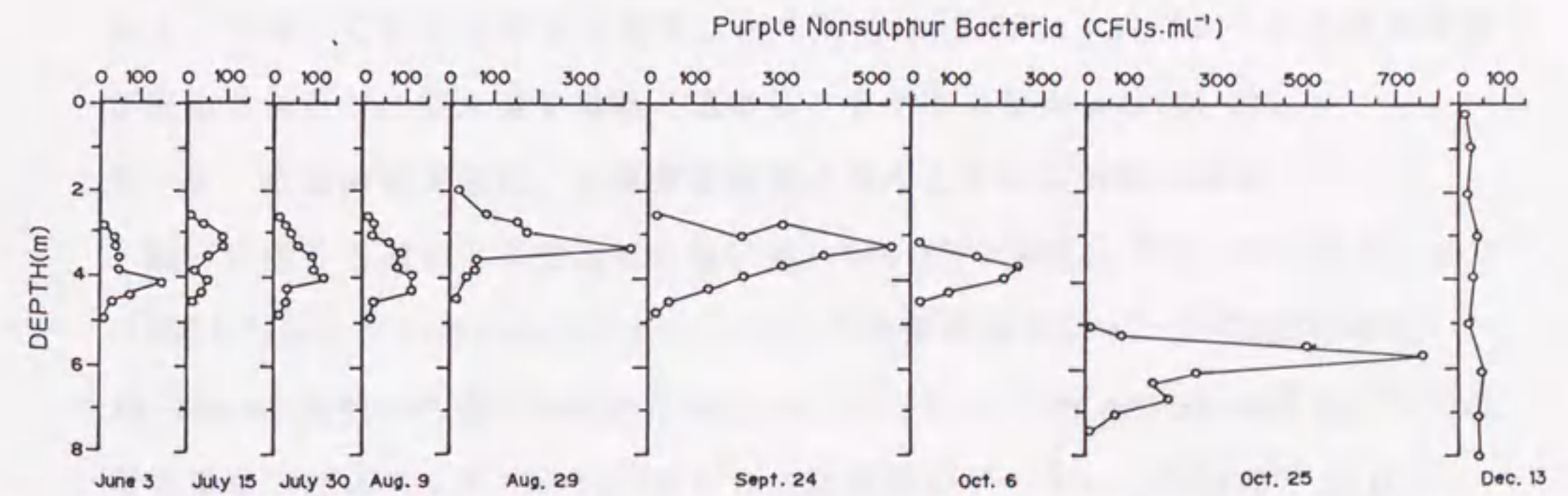


図4-1 深見池における紅色非硫黄細菌 (*Rh. palustris*) の鉛直分布と季節変化

1986年6月~12月、単位: CFUs・ml⁻¹

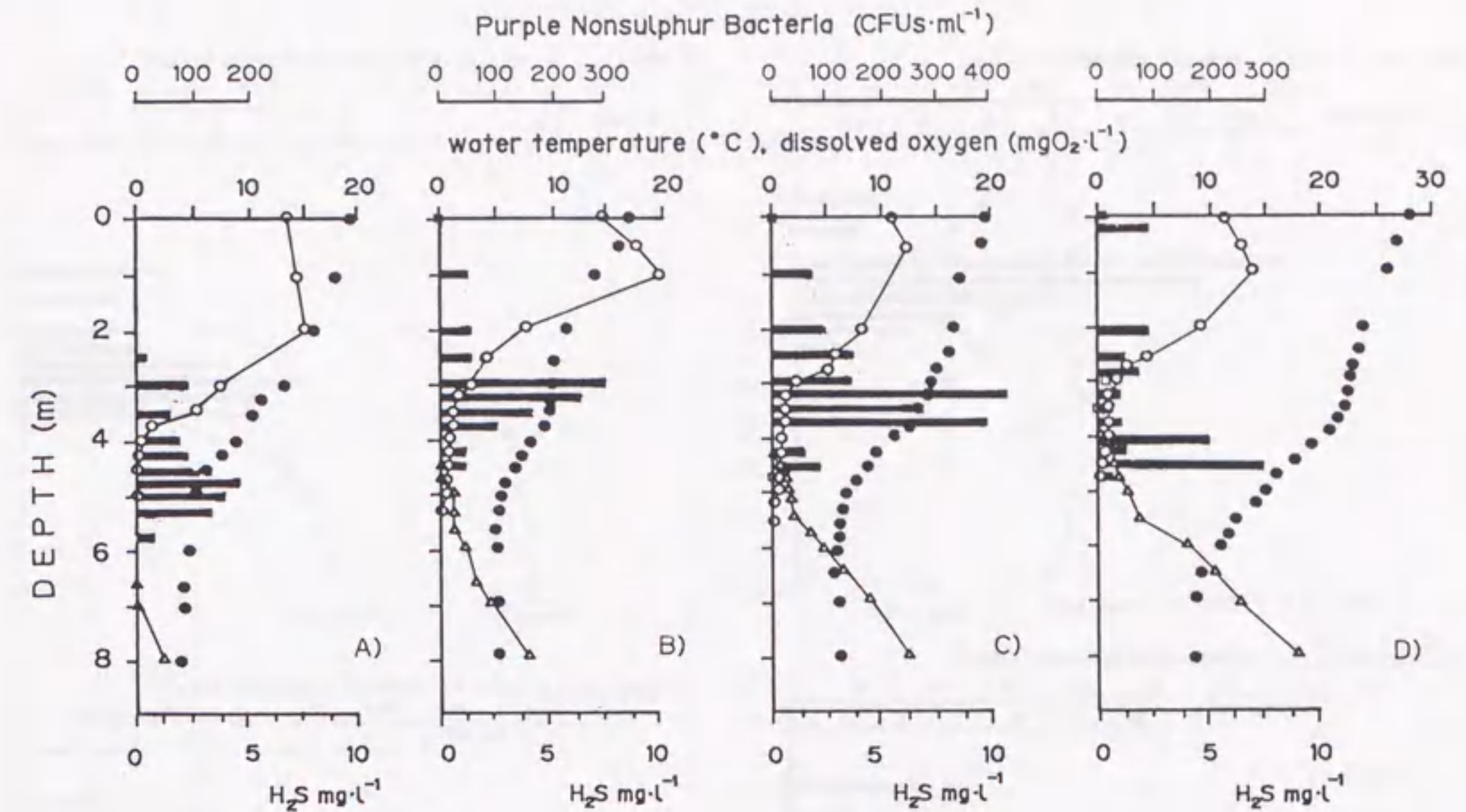


図4-2 深見池における水温、溶存酸素濃度、硫化水素濃度、紅色非硫黄細菌密度 (*Rh. palustris*) の鉛直分布
 水温 (●)、溶存酸素 (○)、硫化水素 (△)、
 紅色非硫黄細菌 (*Rh. palustris*) (■)
 A): 1987年4月23日, B): 5月20日, C): 6月18日, D): 7月23日

れは硫化水素が4月には7m以深しか存在しないが、5月以後は硫化水素の存在層が上昇してくる結果と考えられる。その後は、水温躍層付近で溶存酸素と硫化水素が低い濃度で共存する酸化還元境界層で紅色非硫黄細菌の高濃度増殖が認められた。なお、この紅色非硫黄細菌は表水層では50 CFUs · ml⁻¹レベル程度の存在が認められるが、深水層では殆ど認めることが出来なかった(図4-2)。

3-2 紅色非硫黄細菌、従属栄養細菌の分布とDOC分布の対応

図4-3は限外ろ過により分画した分子量1,000以下 (DOC<1,000) のフラクションのDOCと分画していない全DOC (total-DOC) の鉛直分布を示す。このDOC分布と *Rh. palustris* 菌数の分布との対応を明らかにするため、*Rh. palustris* の菌数としての現存量を下記のバクテリア1CFU当たりの炭素量のデータ (4.5x10⁻³ μgC · (CFU)⁻¹) を用いて炭素の現存量に換算したものを同図中に示した。バクテリアのCFU当たりの菌体炭素量は、純粋培養した *Rh. palustris* 菌の懸濁液について、顕微鏡検鏡で求めた菌数の計測値とCHNコーダーを用いて求めた全炭素量を基に、

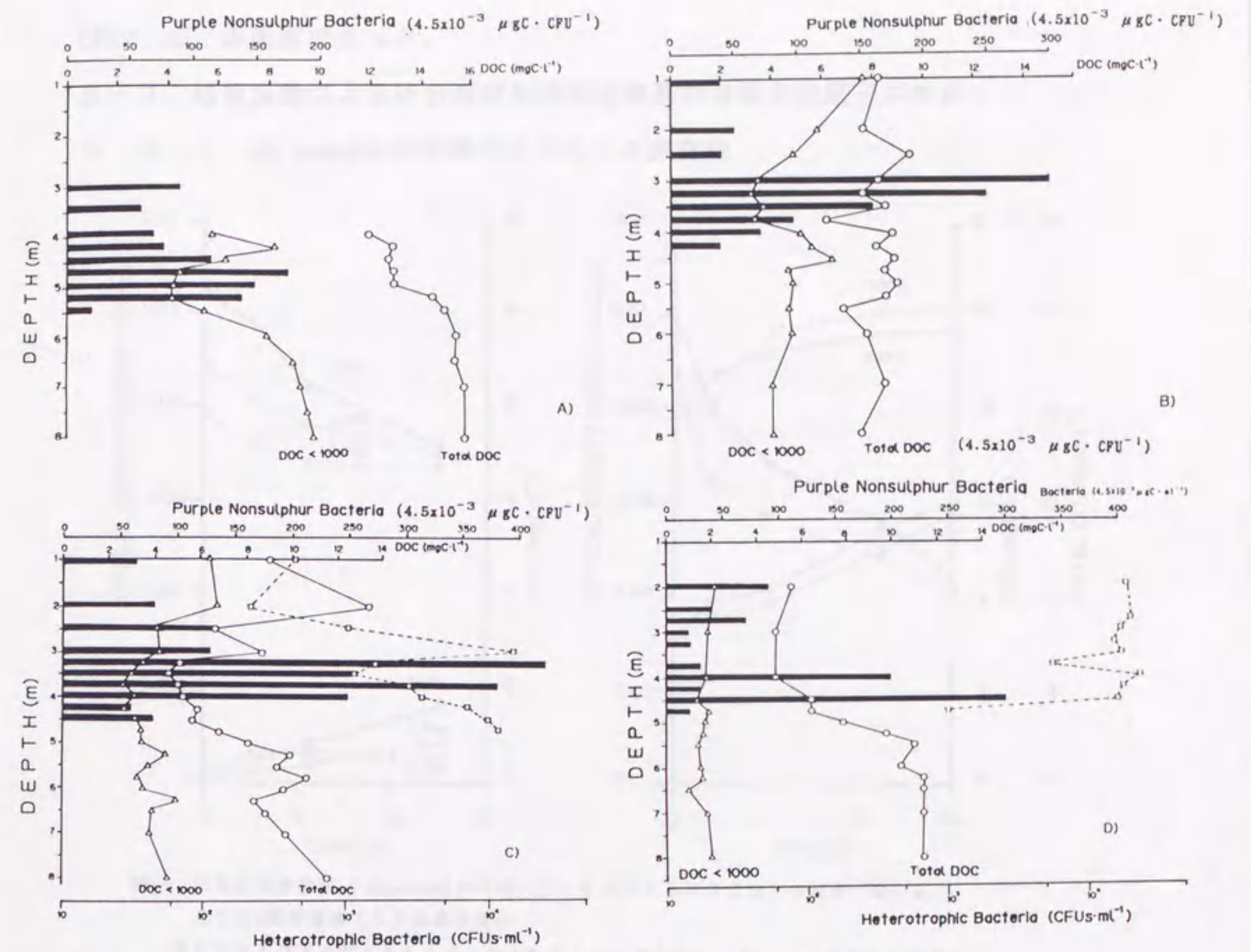


図4-3 深見池における紅色非硫黄細菌 (*Rh. palustris*)、DOC、一般細菌の鉛直分布。

□：一般細菌 (CFUs · ml⁻¹)；桜井培地法、○：Total DOC、△：分子量1,000以下のDOC画分、
 ■： *Rh. palustris* の細胞数から計算された菌体炭素量 (μgC · CPU⁻¹)。

A)：1987年4月23日、B)：5月20日、C)：6月18日、D)：7月23日

細胞当たりの炭素量 $(3.0 \pm 0.13) \times 10^{-4} \mu\text{gC} \cdot \text{cell}^{-1}$ を求め、これに平板法によるCFU数と顕微鏡による全菌数との比 (ファクター=15) を乗じたものである。

4月、5月、6月の観測を通じて、DOC濃度は酸化還元境界層付近で低下する傾向が認められた。興味深いことに、このDOC濃度の顕著な減少は、*Rh. palustris* 菌数の極大値の層で測定されることである。特にこの傾向はDOC<1,000画分において顕著である。このことは、光合成非硫黄細菌が酸化還元境界層において、低分子量のDOCを炭素源として従属栄養的に生育している可能性を示唆する。

他方、6月と7月の従属栄養細菌のコロニー数の分布は、紅色非硫黄細菌の分

布の様な特色ある増減は認められず、2.75m層から5m層までコロニー数は 10^3 - 10^4 CFUs \cdot ml $^{-1}$ の範囲であった。

3-3 培養実験による光合成紅色非硫黄細菌の増殖支配因子の解析

3-3-1 *Rh. palustris* の増殖のDOCへの依存性

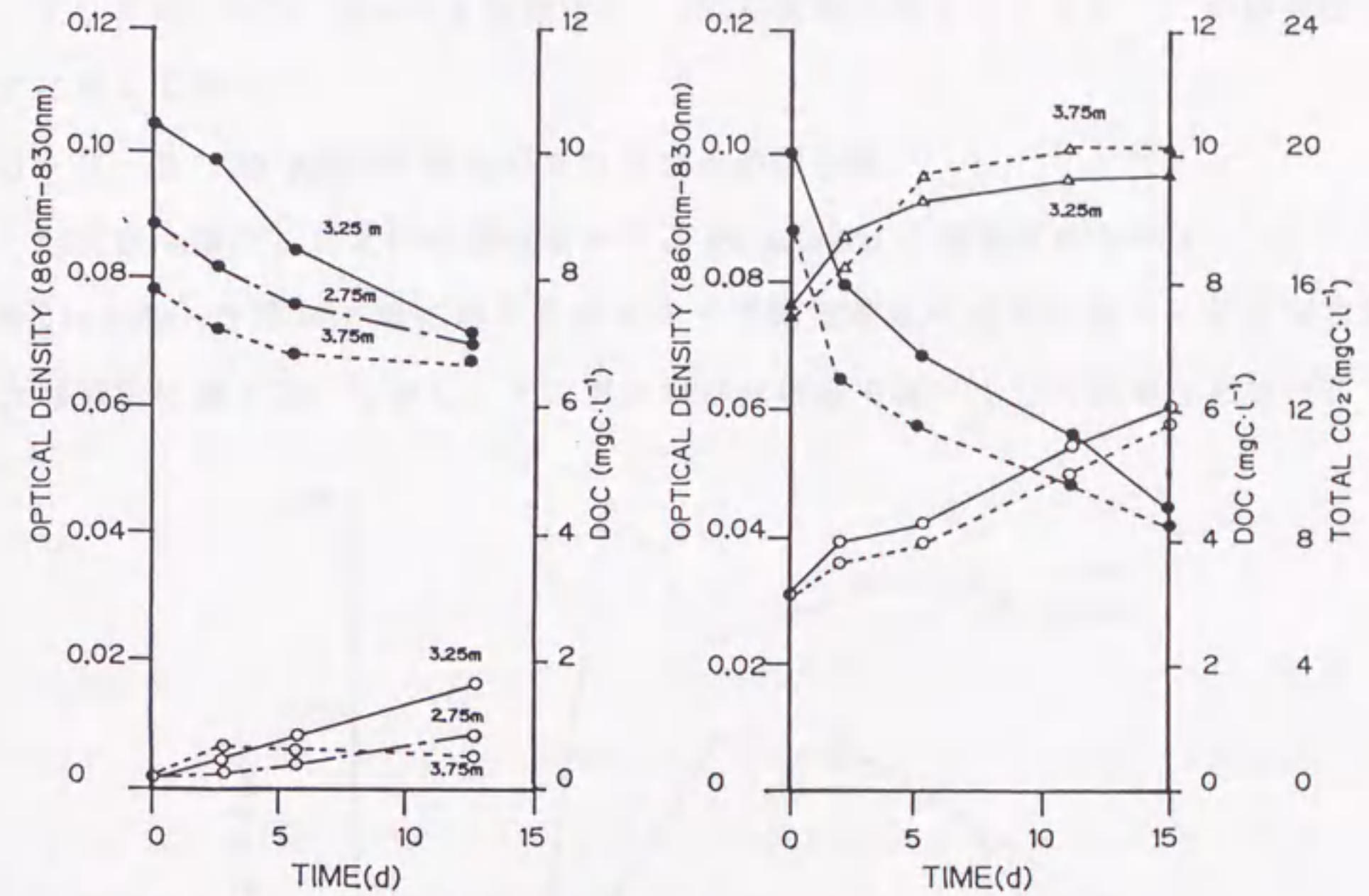


図4-4 紅色非硫黄細菌 (*Rh. palustris*) の増殖 (○) に対応するDOC濃度の減少 (●) と全CO $_2$ 濃度増加 (△) の経日変化

深見池の各深度の試水をミリポーフイルター-HAでろ過し、*Rh. palustris*を加えて培養し、細菌数、DOC、全CO $_2$ 濃度の経日変化を求めた(15℃/タングステンランプ25 μ E \cdot m $^{-2}$ \cdot S $^{-1}$)。左側：1986年7月19日、右側：1986年7月30日

深見池の酸化還元境界層で見られたバクテリアの増殖に伴うDOC濃度の減少の可能性を明らかにするために、7月19日と7月30日に、深見池より採取した湖水の試料について、培養実験を行なった。その結果は図4-4に見られるように、吸光度(OD)の増加で見られるように、日を追うに従い、*Rh. palustris*の現存量は増加するのに対して、DOC濃度は減少し、他方、全CO $_2$ 濃度は顕著な増加を示す。これは、バクテリアの増殖に伴うDOCの利用と無機化を暗示する。

以上の細菌増殖量を細胞当たりの炭素量に換算し、DOC、全炭酸(T-CO $_2$)の変化と比較してみる。7月30日の実験では、5日目から15日目までの10日間の増殖に対するDOC減少は(1.88 \pm 0.38) mgC \cdot l $^{-1}$ であった。CO $_2$ の増加は(1.07 \pm

0.02) $\text{mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。OD値の変化に相当する *Rh. palustris* 菌数 (0.001 OD = $(1.6\pm 0.25)\times 10^2 \text{ cells}\cdot\text{ml}^{-1}$) の (OD = 0.019 ± 0.001) は $(3.04\pm 0.64)\times 10^3 \text{ cells}\cdot\text{ml}^{-1}$ 即ち、 $0.91\pm 0.23 \text{ mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ の菌体炭素増加にあたる。従って、 CO_2 増加量とこの菌体増加量の合計値 $1.98\pm 0.25 \text{ mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ はDOCの減少値に近似しており、バクテリアが $1.07/1.98=54\%$ を無機化し、46%を菌体利用したことを、この結果は示すと考えて良い。

3-3-2 *Rh. palustris* 増殖のマンガンへの依存性

図4-5はMn添加した北村の培地における *Rh. palustris* の増殖反応を示す。
 MnCl_2 や MnO_2 を添加培地におけるバクテリア増殖速度は非常に速く、5日間で最大増殖量に達する。しかし、マンガン無添加培地では、10日間でもその1/4

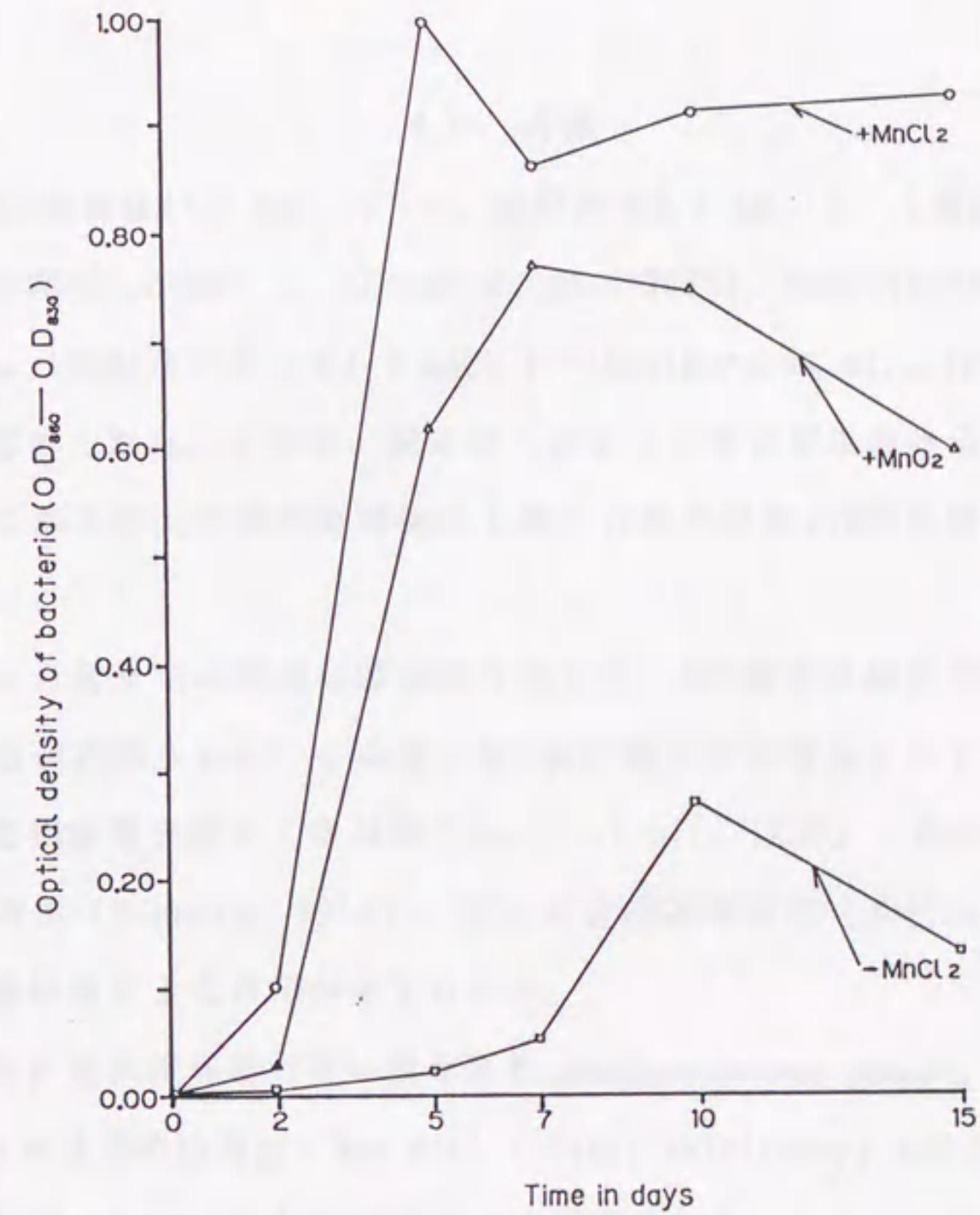


図4-5 紅色非硫黄細菌 (*Rh. palustris*) にマンガンの添加と無添加の成長曲線の比較
 +MnCl₂, +MnO₂: 表示のマンガン化合物を北村の培地に添加、-MnCl₂: マンガンを加えないコントロールを示す。

程度の低い増殖量しか認められなかった。そこで、紅色非硫黄細菌の増殖に伴うマンガンの利用量を明らかにするため、 $MnCl_2$ を(A): $5 \mu mol Mn \cdot l^{-1}$ と(B): $3.6 \mu mol Mn \cdot l^{-1}$ を添加した北村の培地で、*Rh. palustris*菌の増殖と Mn^{2+} 濃度の経日変化を追求した。7日間での Mn^{2+} の低下は、(A)シリーズの実験では $5 \mu mol Mn \cdot l^{-1} \rightarrow 0.6 \mu mol Mn \cdot l^{-1}$ ($4.4 \mu mol Mn \cdot l^{-1}$ の減少)、(B)シリーズでは $3.6 \mu mol Mn \cdot l^{-1} \rightarrow 0.2 \mu mol Mn \cdot l^{-1}$ ($3.4 \mu mol Mn \cdot l^{-1}$ の減少)であった。これに対するバクテリアの増殖はA, Bシリーズそれぞれ $1.6 \times 10^5 cells \cdot ml^{-1}$ 及び $1.2 \times 10^5 cells \cdot ml^{-1}$ であった。この結果は、単位細胞(1cell)当たりのマンガン吸収量は(A)、(B)共に $1.5 \times 10^{-6} \mu g Mn$ であることを示す。前述のバクテリア細胞当たりの炭素量を用いて計算すると、バクテリア細胞の単位炭素($\mu g C$)当たりのマンガン吸収量は(A)、(B)共に $5.0 \times 10^{-3} \mu g Mn \cdot \mu g C^{-1}$ となる。

4) 考察

深見池のDOC濃度は $4-16 mg C \cdot l^{-1}$ で、諏訪湖の $3.2 mg C \cdot l^{-1}$ (渡辺ら、1982)、Trohorningen湖の $6.2 mg C \cdot l^{-1}$ (Benes et al., 1976)、Mendota湖の $9-11 mg C \cdot l^{-1}$ (Delfino, 1968)及び海水の $1-3 mg C \cdot l^{-1}$ (Sugimura et al., 1979)と比較し、高いことが認められた。これは、既に述べたように生産層における一次生産活動が活発で、これらの生体構成有機物の一部と分解生成物がDOCを構成するためである。

4月から10月までの夏期停滞期間を通じて、DOC濃度は酸化還元境界層でしばしば低い値が観測された。この低いDOC値に関しての理由として、酸化還元境界層における硝酸還元菌による利用 (Terai et al., 1987)、光合成紅色非硫黄細菌による利用 (Pfennig, 1967)、他の光合成硫黄細菌 (北村ら、1984) 及び他の従属栄養細菌による利用が考えられる。

深見池の酸化還元境界層で見い出された *Rhodospseudomonas palustris* (*Rh. palustris*) の形態的および生理的性質は、Van Niel (1944)、Whittenbury and Mclellan (1967)、Pfennig (1967)、Herbert (1976)によって研究された。

北村ら(1984)によると光合成細菌によるDOC利用能力は、紅色非硫黄細菌 > 紅色硫黄細菌 > 緑色硫黄細菌の順番であり、また紅色硫黄細菌は *Thiocapsa*

roseopersicina を除いて好氣的環境で増殖能力が低い。

深見池の酸化還元境界層で *Rh. palustris* が存在するのは非常に興味あることである。この原因として、DOC濃度が $10\text{mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ と非常に高く、かつ 4-5 で明らかのように、*Rh. palustris* の増殖にマンガンが必要で、これが大きく影響を与えていると判断された。

深見池の酸化還元境界層で *Rh. palustris* の現存量の大きな季節変化が 1986 年観測され、10月25日に $760\text{CFUs}\cdot\text{ml}^{-1}$ 以上の極大値を示した。この季節変化に対応して、DOC濃度は *Rh. palustris* の現存量の増加に伴い減少することが観測された。このDOCの減少は、特に分子量1,000以下の小さい範囲 (M.W. < 1,000) で顕著であった。

DOCの鉛直分布と *Rh. palustris* 菌数の増加の関係

DOCの鉛直分布の減少と *Rh. palustris* 菌数の増加 (炭素量として) の関係を検討したところ、4月ではDOCの減少、 $3.12\text{mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ と $0.30\text{mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ 、5月で $3.0\text{mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ と $0.66\text{mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ 、6月 $7.56\text{mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ と $0.79\text{mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、*Rh. palustris* 菌数の増加量は、DOC減少量の9.6%~22%にしか相当しない。従属栄養細菌の全コロニー数の分布データが示すように、*Rh. palustris* の生育する酸化還元境界層には、他の細菌も数多く分布しており、これらの細菌によるDOC利用が、この残りのDOC減少に与えていると考えられる。

各期間におけるDOC量と *Rh. palustris* 現存量の変化

先に述べた、*Rh. palustris* によるDOCの利用関係をより明らかにするため現場におけるDOC減少と *Rh. palustris* 菌の増加の関係を検討した。1986年6月30日から7月15日、7月30日から8月9日及び1987年5月20日から6月18日にそれぞれ変化したDOCと *Rh. palustris* 菌体炭素量増加の関係をまとめると表4の様になる。

表4 各期間におけるDOC量と *Rh. palustris* 現存量の変化 (期間平均値)

A): DOC減少量 ($\mu\text{gC} \cdot \text{ml}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$)、B): *Rh. palustris* 増加量 ($\text{CFUs} \cdot \text{ml}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$)、
D): *Rh. palustris* 菌体生産量 (炭素量は $\mu\text{gC} \cdot \text{ml}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$)

期 間	1986		1987
	6/30-7/15	7/30-8/9	5/20-6/18
深度 (m)	3.5-4.25	3.25-4.0	3.25-4.5
A) DOC減少量	0.0615	0.101	0.127
B) <i>Rh. palustris</i> 増加量	1.34	1.75	3.28
C) 菌体炭素増加量	0.0060	0.0079	0.0147
D) 菌生育に要した全炭素量	0.0130	0.0172	0.0320
D)/A) DOC減少に対する菌生育利用の割合 (%)	21.1	17.0	25.1

C)は実測された菌の増加量を炭素に換算したもの、D)はC)に示した値に、*Rh. palustris* の炭素同化効率を考慮して、補正を加えた菌の生育に使われた全炭素量を示す。表4で明らかな様に、成層期始めはDOC減少に対する *Rh. palustris* の増加に利用された炭素量の比率は高く、成層期には低くなる傾向が認められる。7月30日から8月9日の最も成層の安定した時期には17%となる。データが少ないので、結論めいたことは言えないが、成層期初期には、*Rh. palustris* は他の細菌と比較して、DOC利用効率は高いが、*Rh. palustris* の現存量が大きくなるにつれて活性が徐々に低下し、逆に他の菌の活性が高まることを示すのではないかと考えられるが、今後の検討が必要である。

本研究で見い出されたもう一つの重要な事実は、マンガンが *Rh. palustris* の生育に不可欠であるということである。この特性が深見池では、酸化還元境界層にDMnが高濃度に存在することと結びついて、この層付近に *Rh. palustris* が高濃度生育している事実をもたらしていると判断された。*Rh. palustris* の増殖に伴い、 Mn^{2+} が水中から除去されるが、その速度は表4に示した各期間で、0.46、0.60、1.12 $\mu\text{gMn} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。酸化還元境界層には Mn^{2+} は常に0.4 $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以上存在しているので、この Mn^{2+} はバクテリアの生育には好都合と考えられる。*Rh. palustris* が高濃度に酸化還元境界層に存在するにも関わらず Mn^{2+} の減少がないのは、後述するように、マンガン還元菌の働きにより、つぎつぎとPMnが還元されて、 Mn^{2+} が供給されていることと、 Mn^{2+} の多い深水層からの拡散により Mn^{2+} が輸送され、*Rh. palustris* の高濃度の現存量維持を可能にしているものと判断される。

項目	測定値	単位	備考
DOC	1.25	mg/L	
DOC	1.31	mg/L	
DOC	1.34	mg/L	
DOC	1.37	mg/L	
DOC	1.40	mg/L	
DOC	1.43	mg/L	
DOC	1.46	mg/L	
DOC	1.49	mg/L	
DOC	1.52	mg/L	
DOC	1.55	mg/L	
DOC	1.58	mg/L	
DOC	1.61	mg/L	
DOC	1.64	mg/L	
DOC	1.67	mg/L	
DOC	1.70	mg/L	
DOC	1.73	mg/L	
DOC	1.76	mg/L	
DOC	1.79	mg/L	
DOC	1.82	mg/L	
DOC	1.85	mg/L	
DOC	1.88	mg/L	
DOC	1.91	mg/L	
DOC	1.94	mg/L	
DOC	1.97	mg/L	
DOC	2.00	mg/L	

（以下は非常に薄い文字で印刷された文章の抜粋です。内容は主に微生物の増殖とDOCの減少に関する実験結果の記述と見受けられます。）

5) まとめ

従来、自然の湖沼では出現しないとされてきた紅色非硫黄細菌が、深見池の酸化還元境界層で高濃度に生育していることが見いだされた。この紅色非硫黄細菌は *Rhodospseudomonas palustris* で季節的に現存量の大きな変化を示し、10月には5.75m層で極大値 760 CFUs・ml⁻¹に達した。

Rh. palustris の最大層ではDOC、特に分子量画分<1,000以下の減少が見いだされ、成層期の最も安定した時期において、*Rh. palustris* の増加量とDOCの減少量の経時変動より、DOC減少に対する菌生育利用量の割合は17%であった。

Rh. palustris の増殖にマンガンが必要なことが実験的に実証され、この特性がMn²⁺濃度の高い酸化還元境界層における *Rh. palustris* の高い現存量を可能にしていることが明らかとなった。