

## クッチャロ湖における温室効果気体の動態

吉田 磨<sup>1,2,3</sup>・佐々木 崇<sup>2,4</sup>・窪田 千穂<sup>3,5</sup>・小西 敢<sup>6</sup>

### Distribution of Greenhouse gasses in Lake Kutcharo

Osamu YOSHIDA<sup>1,2,3</sup>, Takashi SASAKI<sup>2,4</sup>, Chiho KUBOTA<sup>3,5</sup> and Kan KONISHI<sup>6</sup>  
(Accepted 5 August 2011)

#### 1. はじめに

##### 1.1. 温室効果気体

現在、地球温暖化が急速に進行している。その原因は様々であるが、地表から放射された赤外線の一部を吸収することにより温室効果をもたらす温室効果気体の存在が重要視されている。その中でも3大温室効果気体である二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>)、メタン (CH<sub>4</sub>)、一酸化二窒素 (N<sub>2</sub>O) は温暖化への寄与が高く、特に重要である。大気中における二酸化炭素濃度上昇の主な原因は、化石燃料の燃焼および森林伐採等の土地利用の変化によるが、メタンおよび一酸化二窒素の主な増加原因は農業であるとされている [IPCC, 2007]。

メタンは還元環境下でのメタン生成菌による生成や、浮遊粒子中及び動物プランクトンの腸内、消化管内における微小な還元環境下での生成が報告されている [Karl and Tilbrook, 1994; de Angelis and Lee, 1994]。メタンは二酸化炭素と比べ1分子あたり約25倍の温室効果をもたらす、産業化以前の約715 ppb から1990年代までに約1732 ppb と2倍以上に増加した [IPCC, 2007]。

一酸化二窒素は還元環境下においては脱窒過程の

中間生成物として生成されるほか、酸化的環境下では硝化過程の副生成物として生成される。大気中の二酸化炭素濃度が2005年では379 ppmであったのに対し一酸化二窒素は319 ppb と非常に低いが、二酸化炭素と比べ1分子あたり約300倍の温室効果をもたらす [IPCC, 2007] といわれている。

##### 1.2. クッチャロ湖

クッチャロ湖は、北海道枝幸郡浜頓別町北東部(北緯45度09分、東経142度20分)に位置し、小沼と大沼からなる周囲長が約27 km、面積13.3 km<sup>2</sup>、平均水深1.5 mの低層湿地である。海拔1 mと低く、河川を通じて、海水が逆流するため汽水湖となっている。日本有数のコハクチョウの中継地であり、1989年に日本で3番目にラムサール条約登録湿地に登録された。10-11月のピーク時には毎年数千羽のコハクチョウが飛来し、周辺の森林にはオジロワシも生息している。また、周辺河川からクッチャロ湖に入り込んだと思われるイトウも確認されており、豊かな生態系が形成されている。

渡り鳥の飛来に伴い糞が堆積し、還元環境となり温室効果気体であるメタンが生成されている可能性が示唆され、同じく還元環境下において脱窒過程の

<sup>1)</sup> 酪農学園大学農食環境学群環境共生学類環境地球化学研究室

Laboratory of Environmental Geochemistry, Department of Environmental and Symbiotic Science, College of Agriculture, Food and Environment Sciences, Rakuno Gakuen University, Ebetsu, Hokkaido 069-8501, Japan

<sup>2)</sup> 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 & Environmental Sciences, Faculty of Environment Systems, Rakuno Gakuen University, Ebetsu, Hokkaido 069-8501, Japan

<sup>3)</sup> 酪農学園大学大学院酪農学研究科酪農学専攻

Graduate school of Dairy Science, Rakuno Gakuen University, Ebetsu, Hokkaido 069-8501, Japan

<sup>4)</sup> 現在、盛岡市子ども科学館

Present address: Morioka Childrens Museum of science

<sup>5)</sup> 現在、酪農学園大学環境システム学部生命環境学科文部科学省大学教育推進プログラム

Present Adress: Program for Promoting University Education Reform, Ministry of Education, Culture, Sports, Science & Technology in Japan, Department of Biosphere & Environmental Sciences, Faculty of Environment Systems, Rakuno Gakuen University, Ebetsu, Hokkaido 069-8501, Japan

<sup>6)</sup> 浜頓別クッチャロ湖水鳥観察館

Hamatombetsu Lake Kutcharo Waterfowl Observatory, Hamatombetsu, Hokkaido 098-5739, Japan

中間生成物として一酸化二窒素が生成されている可能性もある [Ingo *et al.*, 2004]。また、クッチャロ湖周辺には酪農地帯が広がっており、家畜糞尿や飼料残骸、農薬等が河川に流出し、クッチャロ湖に流入していると考えられ [Chen *et al.*, 2004]、メタンや一酸化二窒素の生成に影響している可能性がある。クッチャロ湖から浜頓別町を流れる河川に物質の供給が確認された [土屋, 2009] ほか、コハクチョウの飛来によりクッチャロ湖の水環境が大きく変化しているとの報告もある [吉田ら, 2010]。

クッチャロ湖はラムサール条約登録湿地であり、富栄養湖でもある。近年、アオコ等の水質汚染が確認されており、水質汚染に関連したメタンや一酸化二窒素等の温室効果気体が生成されている可能性がある。

本研究では、湖沼における温室効果気体の生成場所、生成要因を明らかにし、温暖化への寄与を明らかにすることを目的とした。

## 2. 方法

### 2.1. クッチャロ湖における測点及び分析項目

2010年7月8日, 8月7日, 8月30日, 10月1日, 10月31日の計5回, 現地観測を行った。クッチャロ湖流入河川において3測点 (LR01, LR02, LR03), クッチャロ湖大沼において4測点 (K01, K02, K03, K07), クッチャロ湖流出河川と筑紫川が合流する1測点 (T01) の計8測点を設定し, 採水を行った (図1)。河川での採水は橋上から表面採水用バケツを用い, 湖内及び流出河川においては動力船で移動し, 2.5 L 横型ニスキン採水器を用いて中層にて採水した。K01-K03 においては, 天候により

動力船を使用することが出来ず, 試料を採取出来ない場合もあった。

溶存酸素濃度 (DO), 溶存メタン濃度 [Yoshida *et al.*, 2004], 溶存一酸化二窒素濃度 [Wang *et al.*, 2010], 浮遊懸濁物質 (SS) [江面, 1995], 濁度, 化学的酸素要求量 (COD) [日本分析化学会北海道支部編, 2005], 栄養塩類 ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{PO}_4$ ,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NH}_4$ ) [気象庁, 1999], 全窒素濃度 (TN), 全リン濃度 (TP) [清水, 2008] を測定するための試料を採取し, サンプリング現場で水温・pH (METTLER TOLEDO Seven Go pH), 塩分 (Lutron YK-31SA), 風速・気温 (CUSTOM WS-01) を計測した [吉田ら, 2009; 2011]。

メタン及び一酸化二窒素の分析結果からそれぞれ飽和度及び大気-水間フラックス [Wanninkhof, 1992; 吉田ら, 2011] を求めた。なお, 本研究における全球大気メタン濃度及び一酸化二窒素濃度はそれぞれ 1.80 ppm [Keppler *et al.*, 2006], 3.19 ppb [IPCC, 2007] を用いた。

## 3. 結果

### 3.1. クッチャロ湖における観測結果

#### 3.1.1. 溶存メタン濃度

クッチャロ湖の流入河川及び流出河川における溶存メタン濃度の結果を図2, クッチャロ湖内における溶存メタン濃度の結果を図3にそれぞれ示した。

8月7日 LR03 において, FID-GC の検出限界を超える高濃度のメタンが検出された。LR01, LR02 は8月7日に最も高い濃度となり, LR03 は8月7日及び10月1日において高濃度であった (図2)。K01, K07 では8月7日に高濃度のメタンが存在し

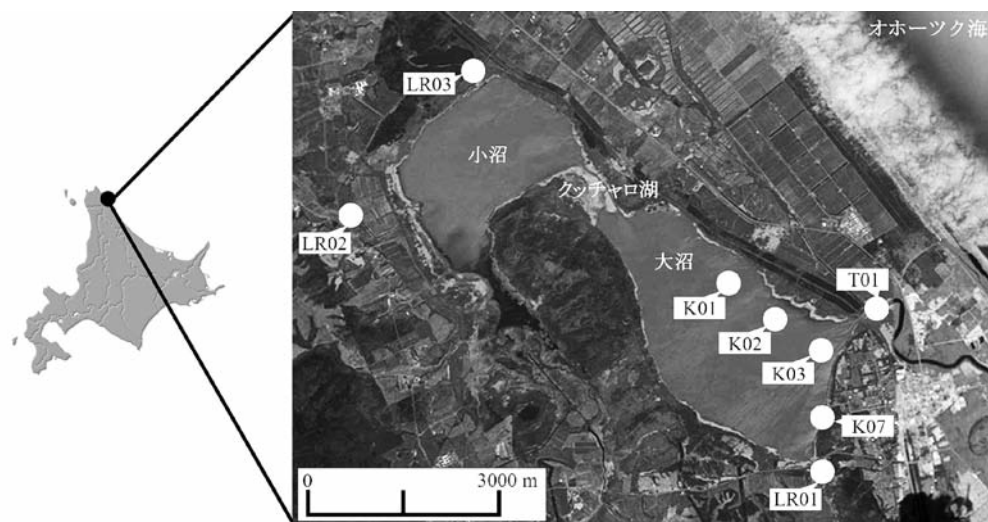


図1. クッチャロ湖の位置と測点。

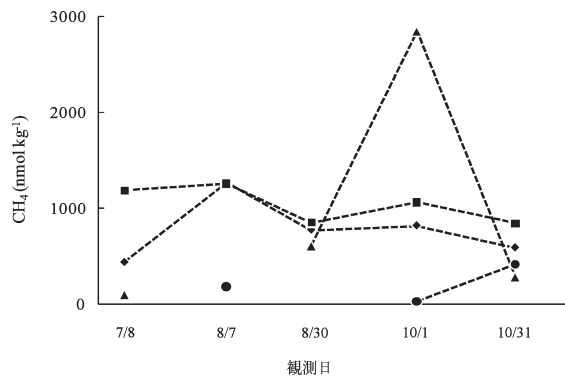


図 2. クッチャロ湖の流入河川 LR01 (◆), LR02 (■), LR03 (▲) および流出河川 T01 (●) における溶存メタン濃度。

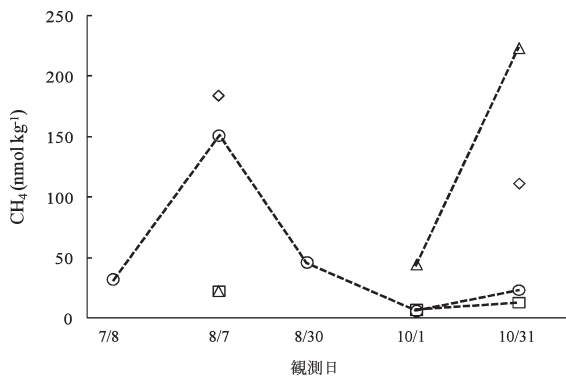


図 3. クッチャロ湖内 K01 (◇), K02 (□), K03 (△), K07 (○) における溶存メタン濃度。

た。クッチャロ湖内のすべての測点において、10月1日と10月31日はメタン濃度が増加傾向にあった(図3)。

### 3.1.2. 溶存一酸化二窒素濃度

8月7日において本研究におけるすべての測点で溶存一酸化二窒素濃度が減少した(図4, 5)。流出河川であるT01と流入河川(LR01-LR03)を比較すると、流入河川の方が高濃度であった(図4)。K07における溶存一酸化二窒素濃度は8月7日以降、増加傾向にあった(図5)。

### 3.1.3. 浮遊懸濁物質

7月8日のLR01において非常に高い値となったが、年間を通して大きな変化はなかった(図6)。クッチャロ湖内では7月8日から10月1日にかけて浮遊懸濁物質が減少傾向にあったが、10月31日の観測ではわずかに増加した(図7)。

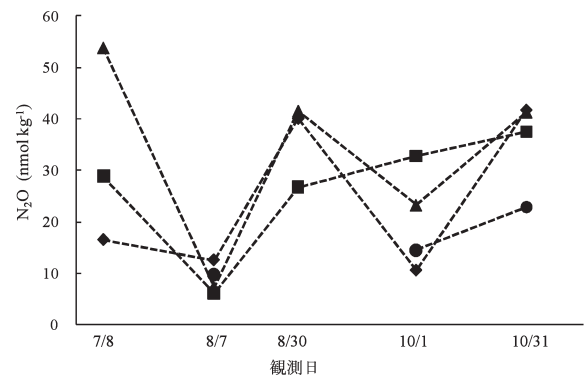


図 4. クッチャロ湖流入・流出河川における一酸化二窒素濃度。図2と同様に示す。

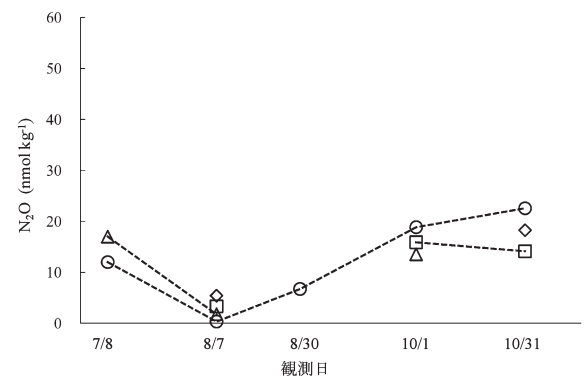


図 5. クッチャロ湖内における一酸化二窒素濃度。図3と同様に示す。

### 3.1.4. 濁度

流入河川及び流出河川における濁度は浮遊懸濁物質の挙動と類似し、7月8日から10月1日にかけて減少し、10月31日には増加傾向にあった(図8)。湖内では8月7日のK01-K03において高い値となり、流入河川及び流出河川と同様に10月31日は増加傾向にあった(図9)。

### 3.1.5. 溶存酸素濃度

秋季の流入河川及び湖内において高濃度の溶存酸素が観測された(図10, 11)。一方、流出河川では秋季において溶存酸素濃度に減少がみられた(図10)。

### 3.1.6. 化学的酸素要求量

8月7日のLR02, LR03において他の観測日よりもかなり高い値を示した(図12)。しかし、他の月では大きな変動はみられなかった。本研究のほとんどの測点において、湖沼の環境基準値である  $5 \text{ mg L}^{-1}$  [産業環境管理協会, 2009] を超える結果となった(図12)。湖内の測点であるK03及びK07は夏季から秋季にかけて減少傾向にあった(図13)。

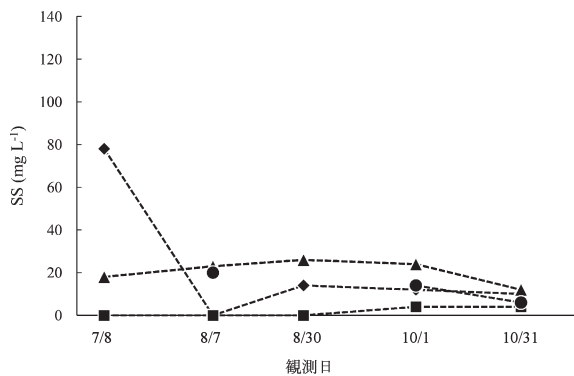


図 6. クッチャロ湖流入・流出河川における浮遊懸濁物質の結果。図 2 と同様に示す。

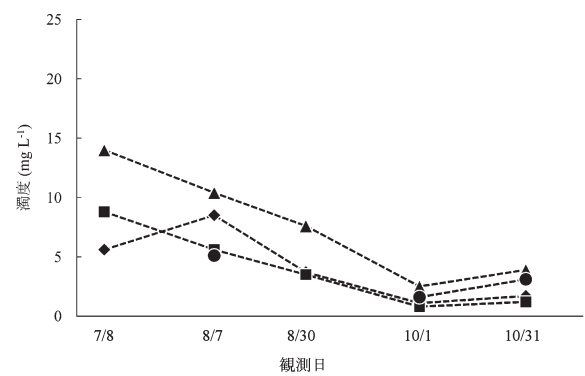


図 8. クッチャロ湖流入及び流出河川における濁度の結果。図 2 と同様に示す。

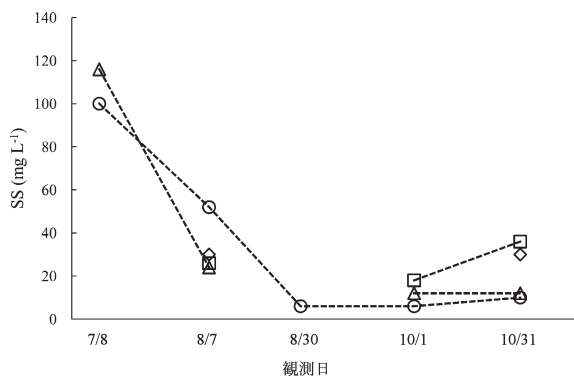


図 7. クッチャロ湖内における浮遊懸濁物質の結果。図 3 と同様に示す。

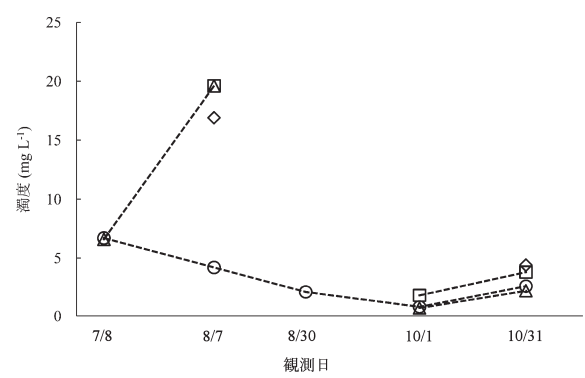


図 9. クッチャロ湖内における濁度の結果。図 3 と同様に示す。

### 3.1.7. 栄養塩類

LR02においてケイ酸塩濃度が、他の河川より高い結果となった(図 14a)。流出河川(T01)において、10月31日にリン酸塩濃度及び硝酸塩濃度が増加し、硝酸塩濃度は他の月と比べるとかなり高濃度であった(図 14b, c)。硝酸塩濃度と亜硝酸塩濃度を比較すると、硝酸塩濃度の方が高かった(図 14c, d)。

湖内におけるケイ酸塩濃度は7月8日および10月1日において濃度が低くなっていた(図 15a)。リン酸塩濃度は、どの測点においても大きな変動はみられなかったが、10月31日のK02, K03において増加がみられた。流入河川及び流出河川と湖内のリン酸塩濃度、硝酸塩濃度、亜硝酸塩濃度を比較すると、河川の方が高いことがわかる(図 14b-d 及び図 15b-d)。

### 3.1.8. 全窒素, 全リン

10月31日のT01において全窒素濃度, 全リン濃度が高濃度に存在した。流入河川における全窒素濃度の平均値は $\sim 46.2 \mu\text{M}$ であり, 全リン濃度の平均値は $\sim 1.1 \mu\text{M}$ であった(図 16)。8月7日のK03,

K07において全窒素がほぼ枯渇していた(図 17)。湖内における全窒素濃度の平均値は $\sim 22.1 \mu\text{M}$ であり, 全リン濃度の平均値は $\sim 0.4 \mu\text{M}$ と流入河川における全窒素濃度の約半分であった(図 16, 17)。

### 3.1.9. メタン飽和度

溶存メタン濃度の結果を用いて飽和度を算出した[Wiesenburg and Guinasso, 1979]。流入河川においてメタンがかなり過飽和な状態で水中に存在していることが分かった(図 18)。

### 3.1.10. 一酸化二窒素飽和度

溶存一酸化二窒素濃度も飽和度を算出した[Wiss and Price, 1980]。メタンと同様に一酸化二窒素も過飽和に存在した(図 19)。

### 3.1.11. 大気-水間メタンフラックス

メタン濃度の結果より Wanninkhof [1992] の式を用いて大気-水間メタンフラックスを見積もった(図 20)。流入河川において過飽和に存在したメタンは, かなり多く大気へと逃散していた(図 20a)。



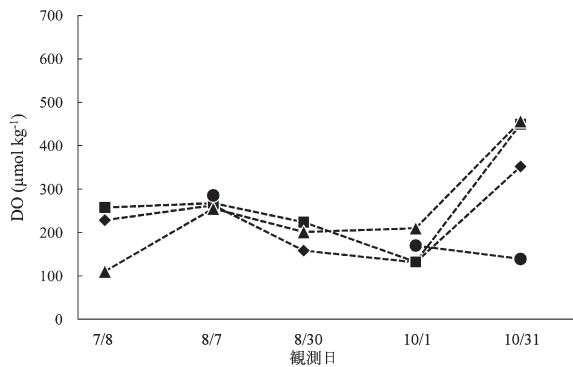


図 10. クッチャロ湖流入・流出河川における溶存酸素濃度。図 2 と同様に示す。

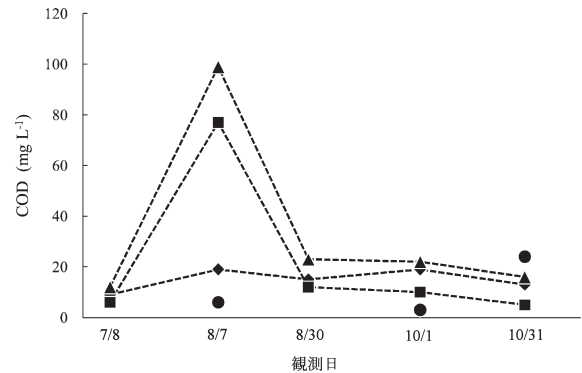


図 12. クッチャロ湖流入・流出河川における化学的酸素要求量の結果。図 2 と同様に示す。

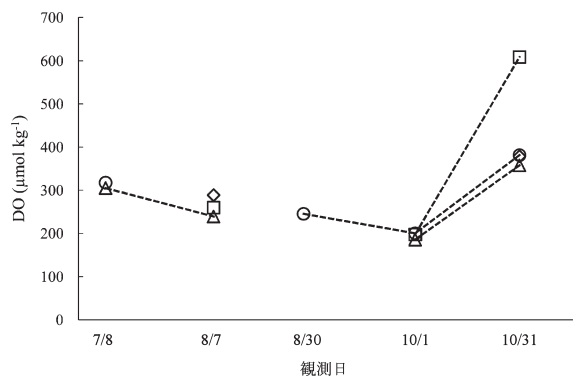


図 11. クッチャロ湖内における溶存酸素濃度。図 3 と同様に示す。

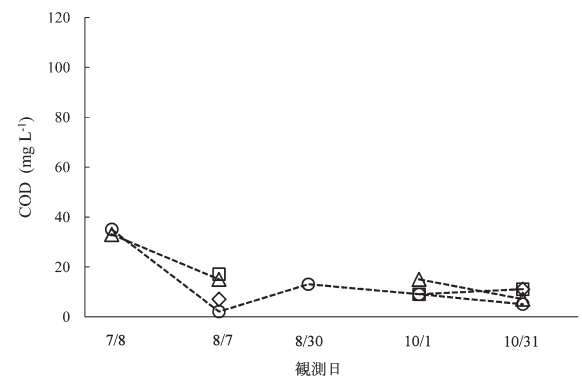


図 13. クッチャロ湖内における化学的酸素要求量の結果。図 3 と同様に示す。

### 3.1.12. 大気-水間一酸化二窒素フラックス

メタンと同様に、大気-水間一酸化二窒素フラックスを算出した。7月8日および8月30日は一酸化二窒素の放出はみられなかったが、8月30日以降は放出量が急激に増加した（図 21）。

### 3.1.13. アンモニア、塩分、pH、水温、風速、気温

7月8日のK01, K02, T01, 8月30日のK01-K03, 10月1日のK01は悪天候のため、採水出来なかった。また7月8日当日は雨が降っていたため、測定データは降雨の影響を受けている可能性がある（表 1）。

## 4. 考 察

### 4.1. クッチャロ湖

#### 4.1.1. 周辺河川におけるメタンの生成場所

図 2, 3 より、クッチャロ湖流入河川であるLR01-LR03の平均溶存メタン濃度 ( $\sim 942 \text{ nmol kg}^{-1}$ ) は、クッチャロ湖内のK01-K03及びK07の平均溶存メタン濃度 ( $\sim 68.0 \text{ nmol kg}^{-1}$ ) よりも高かった。8月

7日のLR02及びLR03におけるCODは高かったが、この日を除いたクッチャロ湖流入河川（LR01-LR03）におけるCODの平均値 ( $\sim 13.5 \text{ mg L}^{-1}$ ) と、クッチャロ湖内におけるCODの平均値 ( $\sim 15.4 \text{ mg L}^{-1}$ ) には、大きな差はみられなかった。また、クッチャロ湖流入河川において、溶存メタン濃度とCOD測定値との間に関係性がみられなかった ( $R^2 = 0.0564$ ) ことや（図 22）、溶存酸素濃度とCODに関係性がみられなかった ( $R^2 = 1 \times 10^{-6}$ ) ことから（図 23）、クッチャロ湖流入河川における高濃度のメタンは水中で生成されたものではなく、上流部の酪農地帯で生成されたメタンであると示唆された。

クッチャロ湖流出河川と筑紫川の合流部であるT01において、10月31日にクッチャロ湖内よりも高い溶存メタン濃度となった（図 2, 3）。このことから、筑紫川上流部からのメタンがクッチャロ湖内のメタンと共に頓別川へ流出している可能性がある。

#### 4.1.2. 周辺河川における一酸化二窒素の生成場所

クッチャロ湖流入河川であるLR01-LR03におい

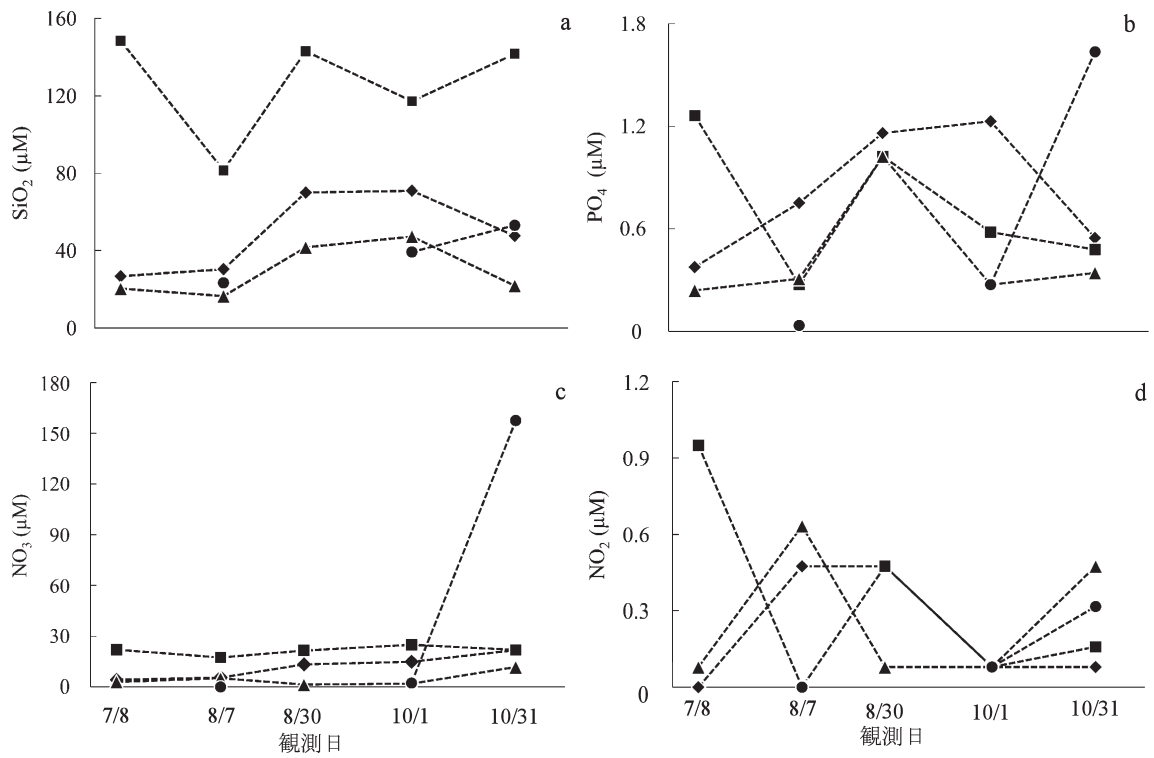


図 14. クッチャロ湖流入・流出河川における (a) ケイ酸塩, (b) リン酸塩, (c) 硝酸塩, (d) 亜硝酸塩濃度。図 2 と同様に示す。

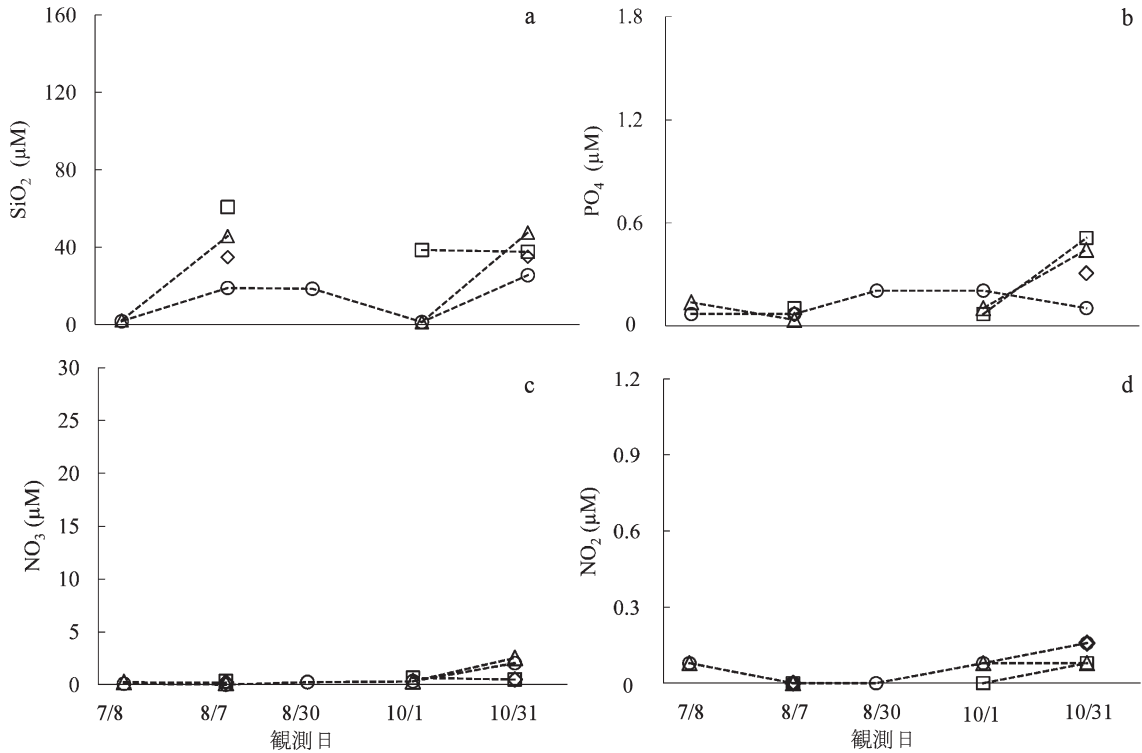


図 15. クッチャロ湖内における (a) ケイ酸塩, (b) リン酸塩, (c) 硝酸塩, (d) 亜硝酸塩濃度。図 3 と同様に示す。

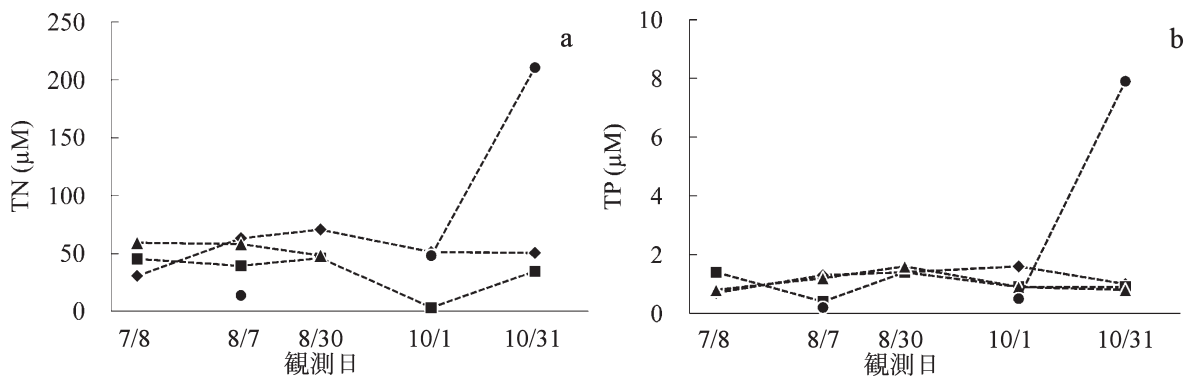


図 16. クッチャロ湖流入・流出河川における (a) 全窒素濃度, (b) 全リン濃度。図 2 と同様に示す。

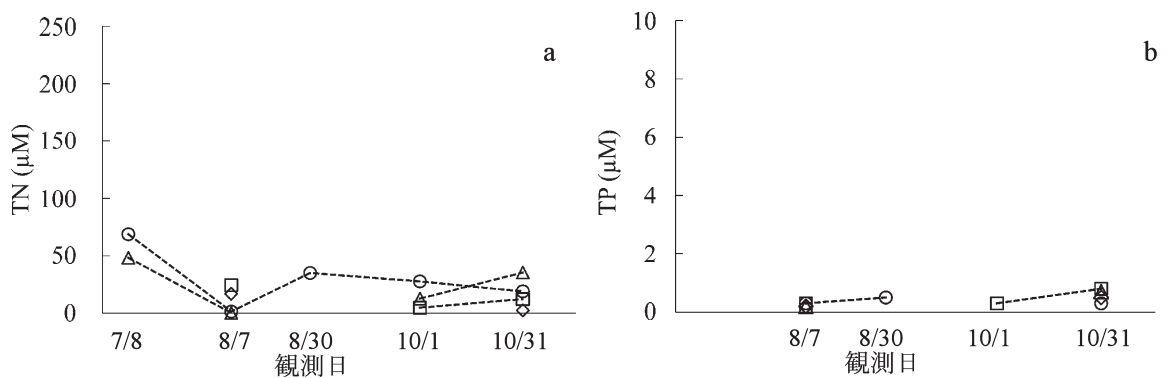


図 17. クッチャロ湖内における (a) 全窒素濃度, (b) 全リン濃度。図 3 と同様に示す。

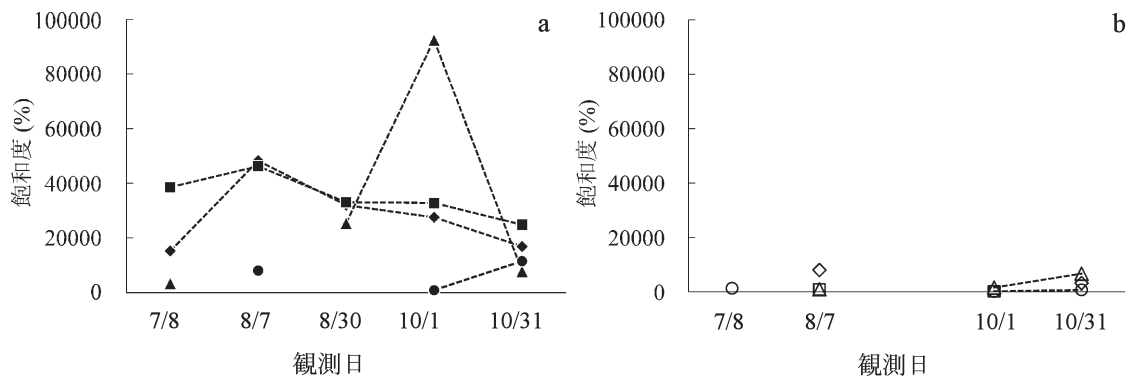


図 18. (a) クッチャロ湖流入・流出河川及び (b) クッチャロ湖内におけるメタン飽和度。図 2, 3 と同様に示す。

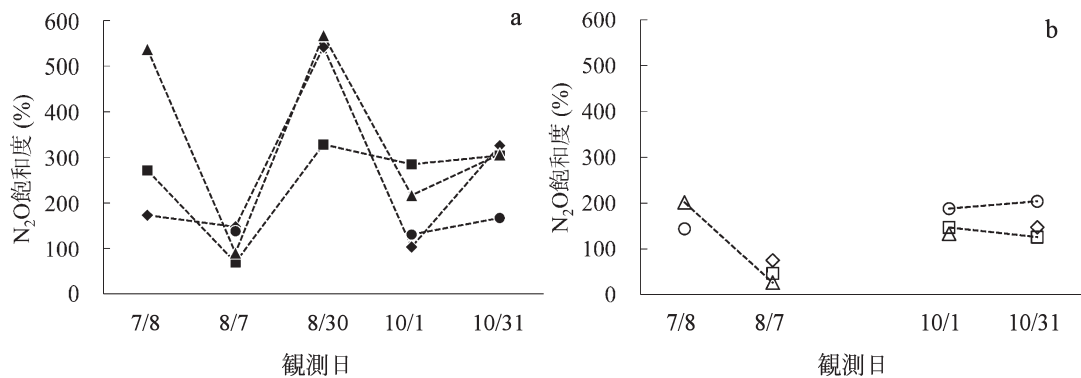


図 19. (a) クッチャロ湖流入・流出河川及び (b) クッチャロ湖内における一酸化二窒素飽和度。図 2, 3 と同様に示す。

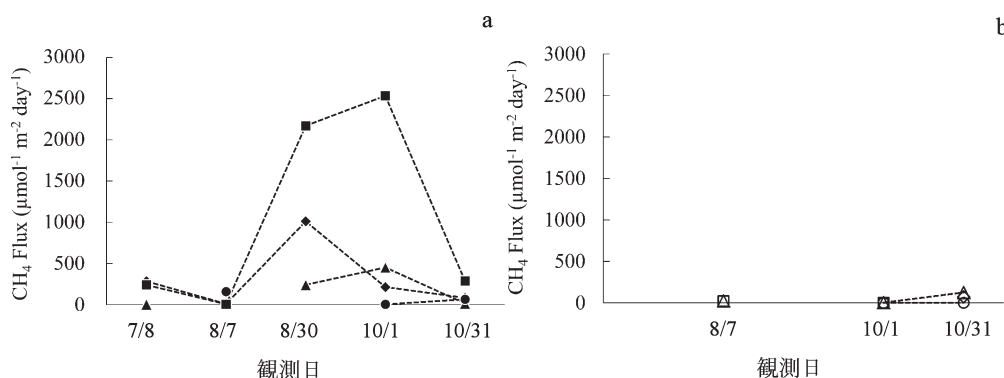


図 20. (a) クッチャロ湖流入・流出河川及び (b) クッチャロ湖内における大気-湖水間メタンフラックス。図 2, 3 と同様に示す。

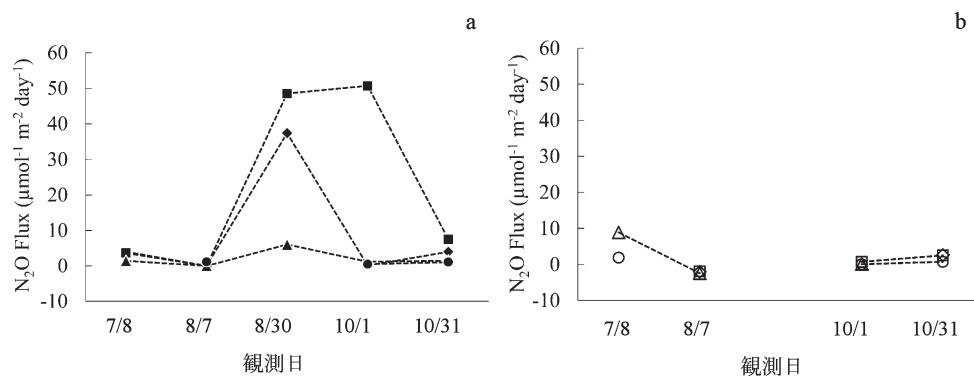


図 21. (a) クッチャロ湖流入・流出河川及び (b) クッチャロ湖内における大気-湖水間一酸化二窒素フラックス。図 2, 3 と同様に示す。

て溶存一酸化二窒素濃度と硝酸塩濃度に関係性がみられなかった ( $R^2=0.0056$ )。また、アンモニアと硝酸塩濃度においても関係性はみられなかった ( $R^2=0.0047$ )。このことから、硝化過程における一酸化二窒素の生成は考えにくい。また、クッチャロ湖流入河川はほとんどの測点において、一般に生物の息に最低限必要な溶存酸素濃度といわれている、 $\sim 156.3 \mu\text{mol kg}^{-1}$  [産業環境管理協会編, 2009] 以上の溶存酸素濃度はあり (図 10), 還元環境になっていない。そのため、脱窒過程における一酸化二窒素の生成も考えられない。よって、クッチャロ湖流入河川における溶存一酸化二窒素濃度は、上流部の酪農地帯で生成された一酸化二窒素であると考えられる。

#### 4.1.3. 周辺河川的环境変動要因

クッチャロ湖流入河川の硝酸塩濃度の平均値は  $\sim 12.7 \mu\text{M}$  であり (図 14), これは北海道東部に位置する根釧地方を流れる河川である標津川の硝酸塩濃

度 ( $\sim 14.3 \mu\text{M}$ ) と同程度である [佐々木, 2009]。標津川は酪農地帯の影響を受けている河川であるといわれており、クッチャロ湖流入河川においても酪農地帯からの影響が示唆される。また、クッチャロ湖流入河川におけるリン酸塩濃度の平均値は  $\sim 0.7 \mu\text{M}$  であり、クッチャロ湖内の平均値である  $\sim 0.2 \mu\text{M}$  と比較すると高い傾向にある (図 14, 15)。全窒素濃度においても同様の結果であったことから (図 16, 17), クッチャロ湖流入河川は酪農地帯からの影響があると考えられる。

クッチャロ湖流出河川と筑紫川の合流部である T01 において、COD 測定値, 硝酸塩濃度, リン酸塩濃度, 全窒素濃度, 全リン濃度がクッチャロ湖内より高くなっており (図 12-17), 筑紫川も同様に酪農地帯の影響を受けていると示唆された。

#### 4.1.4. クッチャロ湖内におけるメタンの生成場所と生成要因

クッチャロ湖内 (K01-K03, K07) の平均メタン



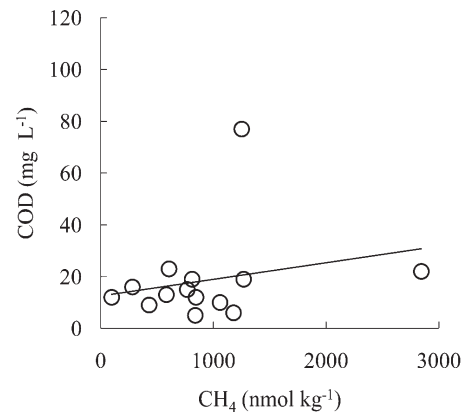
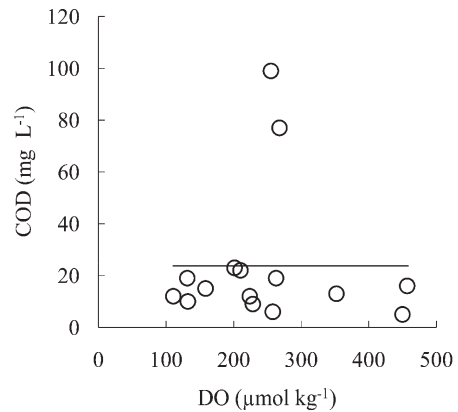
表 1. クッチャロ湖における, アンモニア, 塩分, pH, 水温, 風速, 気温。

観測日	測点	NH <sub>4</sub> (μM)	塩分	pH	水温 (°C)	風速 (ms <sup>-1</sup> )	気温 (°C)
7月8日	LR01	28.6	0	5.97	18.1	3.01	14.5
	LR02	28.6	0	6.67	14.8	1.74	14.6
	LR03	28.6	0	6.61	16.5	0.91	14.7
	K01	—	—	—	—	—	—
	K02	—	—	—	—	—	—
	K03	—	30.9	6.18	16.1	5.10	15.0
	K07	14.3	31.0	6.76	16.4	3.60	14.1
	T01	—	—	—	—	—	—
8月7日	LR01	14.3	0	9.37	21.7	0.30	25.3
	LR02	21.4	0	9.02	20.3	0.30	28.6
	LR03	21.4	0	5.54	23.5	0.30	28.1
	K01	14.3	13.0	8.28	24.3	5.30	25.4
	K02	28.6	5.0	7.31	25.9	3.50	26.1
	K03	14.3	2.0	7.57	28.8	3.50	25.6
	K07	—	—	—	—	—	—
	T01	14.3	13.0	6.87	25.2	3.30	26.3
8月30日	LR01	21.4	0	7.02	26.2	3.85	26.3
	LR02	14.3	0	7.15	23.0	5.58	26.3
	LR03	21.4	0	6.97	26.5	2.11	26.3
	K01	—	—	—	—	—	—
	K02	—	—	—	—	—	—
	K03	—	—	—	—	—	—
	K07	14.3	—	8.68	26.8	8.40	26.3
	T01	—	—	—	—	—	—
10月1日	LR01	14.3	2.1	6.62	15.7	1.96	20.1
	LR02	14.3	0	7.44	12.5	6.15	19.5
	LR03	21.4	0	7.43	14.6	1.54	21.2
	K01	—	—	—	—	—	—
	K02	14.3	9.1	6.38	12.7	1.88	12.5
	K03	14.3	20.9	6.99	12.4	1.02	10.6
	K07	14.3	21.2	7.52	12.7	0.31	19.4
	T01	21.4	10.0	7.70	11.8	1.89	8.8
10月31日	LR01	21.4	0	5.62	9.6	1.57	14.3
	LR02	35.7	0	6.12	10.6	2.40	13.2
	LR03	28.6	0	6.21	8.2	0.98	14.9
	K01	14.3	0.8	8.21	10.3	3.35	11.8
	K02	14.3	8.2	8.65	11.8	4.65	12.9
	K03	14.3	12.5	7.60	7.8	3.21	12.5
	K07	14.3	17.3	7.42	10.6	1.13	11.8
	T01	—	4.5	8.23	7.1	1.73	11.7

濃度は、 $\sim 68 \text{ nmol kg}^{-1}$  であり、同じくラムサール条約登録湿地である琵琶湖において観測されたメタン濃度 ( $\sim 70 \text{ nmol kg}^{-1}$ ) とほぼ同程度のメタン濃度があった [Bastiviken, 2004]。

クッチャロ湖内において K01-K03 及び K07 の溶存酸素濃度と COD との間に関係性が見られなかった ( $R^2=0.0063$ )。湖内の平均溶存酸素濃度は  $\sim 305.0 \mu\text{mol kg}^{-1}$  であり (図 11), 一般に生物の生息に最低限必要な溶存酸素濃度の約 2 倍の濃度があった。以上より, クッチャロ湖内における水柱は還元環境ではない。よって, クッチャロ湖内のメタンは水柱において生成されたものではないと考えられる。

K07 において観測された溶存メタン濃度は, LR01 において観測された溶存メタン濃度とほぼ同

図 22. クッチャロ湖流入河川における化学的酸素要求量とメタン濃度の相関図 ( $R^2=0.0564$ )。図 23. クッチャロ湖流入河川における化学的酸素要求量と溶存酸素濃度の相関図 ( $R^2=1 \times 10^{-6}$ )。

様の挙動を示した (図 2, 3)。K07 と LR01 との距離はそれほど離れていないため, LR01 において観測された溶存メタンが K07 の溶存メタン濃度に影響していたと考えられる。

8月7日の K01 において他の月に比べると比較的高濃度のメタンが観測された (図 3)。K01 は小沼から大沼への流入口に最も近いため, 8月7日に LR02 及び LR03 で確認された, 酪農地帯由来である高濃度のメタンが影響していると示唆された。

また, 10月31日の K01 及び K03 でのメタン濃度の増加は, 10月1日から10月31日までの間に白鳥類の飛来数がピークを迎えていたこと (図 24) やクッチャロ湖が還元環境ではないことから, 白鳥類の糞が底質に堆積し, 底質においてメタン生成が行われた可能性がある。10月31日は10月1日と比較してクッチャロ湖内の浮遊懸濁物質と濁度の値が高くなった (図 7, 9)。浮遊懸濁物質においては, 同日の流入河川以上の値を示し (図 6, 7), 濁度に関

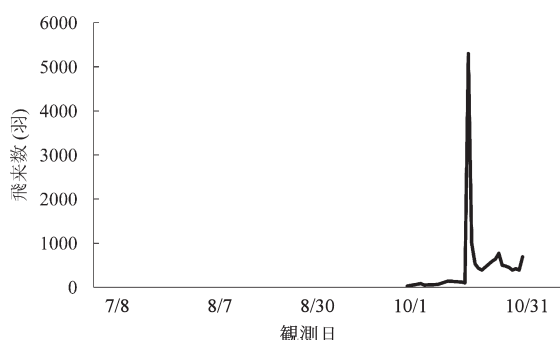


図 24. クッチャロ湖における白鳥類の飛来数 (浜頓別町役場 Web-site より引用; <http://www.town.hamatonbetsu.hokkaido.jp>)。

しても同日の流入河川と同等か、それ以上の値であった(図 8, 9)。このことから、白鳥類の採食行動や着水する時や、飛び立つ際に底質を攪拌し、底質にあったメタンが水中に拡散したと考えられる。10月19日においてK01付近に多数の白鳥類が飛来していた(図 24)。クッチャロ湖の流出河川へ湖水が流出する際、K03付近にメタンが移流したために、K03において高濃度のメタンが存在したと示唆された。

#### 4.1.5. クッチャロ湖内における一酸化二窒素の生成場所と生成要因

K01-K03において、硝酸塩濃度が増えると溶存一酸化二窒素濃度も増加する傾向がみられた(図 25)。また、クッチャロ湖内は亜硝酸塩濃度よりも硝酸塩濃度の方が高く(図 15)、アンモニアも豊富に存在する(表 1)。また、クッチャロ湖内が還元環境ではないことからクッチャロ湖内の一酸化二窒素は、硝化作用による副生成物として水中において生成されているといえる。

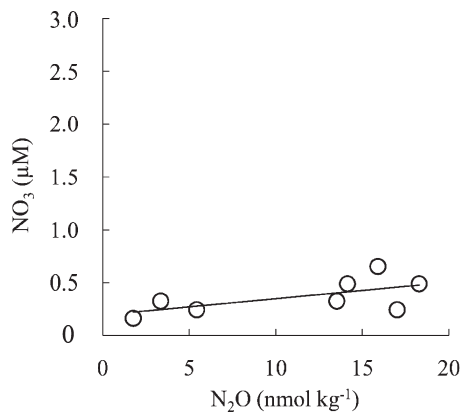


図 25. クッチャロ湖内における硝酸塩濃度と一酸化二窒素濃度の相関図 ( $R^2=0.3921$ )。

7月8日及び10月31日において溶存一酸化二窒素濃度が高くなっている。この時、流入河川のアンモニアが高くなっていることから、クッチャロ湖内の溶存一酸化二窒素の生成には流入河川上流部の酪農地帯が影響していると考えられる。

#### 4.1.6. 大気-水間メタンフラックス及び一酸化二窒素フラックス

クッチャロ湖における大気-湖水間メタンフラックスの平均は $\sim 30.9 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ と見積もられた。湖沼面積を乗じて湖沼全体から1日に放出されるメタンを計算すると、クッチャロ湖における平均は $\sim 411 \text{ mol day}^{-1}$ であった。

クッチャロ湖において酪農地帯からの影響がみられた8月7日、白鳥類の影響がみられた10月31日を比較すると、8月7日の方がメタンフラックスの値は大きい。クッチャロ湖内においては酪農地帯からの負荷がより温暖化に寄与していると考えられる。更に酪農の影響を受けている流入河川においては、クッチャロ湖内以上に過飽和であったため、河川から大気へと多くのメタンが逃散し、より一層温暖化に寄与している。

一方、湖内における一酸化二窒素フラックスの平均は $\sim 1.02 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ であった。メタンと同様に湖沼全体から1日に放出される一酸化二窒素を計算すると、 $\sim 13.6 \text{ mol day}^{-1}$ と見積もられた。また、メタンフラックスと同様に流入河川における大気への逃散がクッチャロ湖内よりも大きい。メタンと比較すると一酸化二窒素の放出量は少ないが、一酸化二窒素はメタンの約10倍の温室効果をもたらすため、地球温暖化をより促進させる温室効果気体として決して無視できない。

## 5. 結 論

クッチャロ湖において、流入河川上流部の酪農地帯から温室効果気体が流入していると考えられた。また湖内におけるメタンは、底質中に還元環境下で生成されていると考えられ、一酸化二窒素に関しては水中において硝化作用の副生成物として生成されていると考えられる。白鳥類の飛来期にはメタン濃度が高くなり、白鳥類の影響が示唆されたが、8月7日において人為起源である酪農地帯からの影響によって、メタン濃度が高くなることも示唆された。白鳥の飛来時期と酪農の影響を受けている観測日の両日における大気-湖水間メタンフラックスを比較したところ、人為起源である酪農地帯からの影響がより温暖化への寄与が大きかった。

本研究において、秋季におけるクッチャロ湖のメタンは底質で生成されていると結論付けたが、本研究では底質のサンプリングを行うことが出来なかったため、本研究内容を裏付けるために底質をサンプリングし、底質におけるメタンの動態を把握する必要がある。

クッチャロ湖で漁業を営む菅生さんからの情報によると、クッチャロ湖の大沼南西部において酪農由来と思われる水質汚染が確認されているため、今後は大沼南西部を視野に入れた継続的観測を行う必要がある。

本研究において観測を行った3河川の流入河川の内2河川が小沼へ流入しているため、今後は小沼の観測を行い、クッチャロ湖全域における考察を行う必要がある。

## 謝 辞

本研究を進めるにあたり、菅生勇造様、菅生直子様、北海道宗谷総合振興局の廣瀬寿裕様にはサンプリング準備や実施にあたり大変お世話になりました。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。心より感謝申し上げます。

本稿の改訂に際し貴重なコメントを頂きました2名の校閲者に深く感謝致します。

## 参考文献

- 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, 1-12.
- Chen, J., D. He, N. Zhang, and S. Cui (2004), Characteristics of and human influences on nitrogen contamination in Yellow River system, China, *Environ. Monit. Assess.*, 93, 138-152.
- de Angelis M. and C. Lee (1994), Methane production during zooplankton grazing on marine phytoplankton, *Limnol. Oceanogr.*, 39(6), 1298-1308.
- 江面竹彦(1995), *環境化学 第2版*, pp.16-17, 産業図書株式会社.
- 浜頓別町役場 Web-site, <http://www.town.hamatonbetsu.hokkaido.jp> 2011/2/18
- Ingo S., R.J.M. Spanning, M.S.M. Jetten (2004), Denitrification and ammonia oxidation by *Nitrosomonas europaea* wild-type, and NirK- and NorB-deficient mutants, *Microbiology*, 150, 4107-4114.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (2007), Couplings Between Change in the Climate System and Biogeochemistry, in *Climate Change 2007: The Physical Science Basis: Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, edited by S. Solomon, et al., pp. 501-568, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Karl, D.M. and B.D. Tilbrook (1994), Production and transport of methane in oceanic particulate organic matter, *Nature*, 368, 732-734.
- Keppler, F., J.T.G. Hamilton, M. Braß, and T. Röckmann (2006), Methane emissions from terrestrial plants under aerobic conditions, *Nature*, 439, 187-191.
- 気象庁(1999), *海洋観測指針 第1部*, 気象業務支援センター, 東京.
- 気象庁(2010), <http://www.jma.go.jp/jma>. 2011/2/18
- 日本分析化学会北海道支部編(2005), *水の分析 第5版*, 日本分析化学会北海道支部, 京都.
- 産業環境管理協会編(2009), *新・公害防止の技術と法律 2009*, pp.178-182.
- 佐々木章晴(2009), 釧路地方の酪農開発が自然環境に与える影響, *日草誌*, 55(3), 251-261.
- 清水芳久(2008), 流域内関係者の参加を考慮に入れた天橋立・阿蘇海流域における最適な水環境保全対策の影響評価システムの構築, 河川整備基金助成事業.
- Tilbrook, B.D. and D.M. Karl (1995), Methane sources, distribution and sinks from California coastal waters to the oligotrophic North Pacific gyre, *Mar. Chem.*, 49, 51-64.
- 土屋 愛(2009), 畜産活動による河川環境汚染と温室効果気体の挙動に関する研究, 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 卒業論文.
- Wang, Y., Y. Wang and H. Ling (2010), A New Carrier Gas Type for Accurate Measurement of N<sub>2</sub>O by GC-ECD. *Adv. Atoms. Sci.*, 27(6), 1322-1330.
- Wanninkhof, R. (1992), Relationship between wind

- speed and gas exchange over the ocean. *J. Geophys. Res.*, *97*, 7373-7382.
- Weiss, R.F. and B.A. Price (1980), Nitrous oxide solubility in water and seawater. *Mar. Chem.*, *8*, 347-359.
- Wiesenburg, D.,A. and N.L. Guinasso (1979), Equilibrium solubilities of methane, carbon monoxide, and hydrogen in water and sea water, *J. Chem. and Engine. Data*, *24*(4), 356-360.
- Yoshida, O.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*(9), 1-10. Doi: 10. 1029/2003JC000910.
- 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.
- 吉田 磨, 大類壮央, 佐々木崇, 小西 敢 (2010), クッチャロ湖及び周辺河川におけるメタンの動態, *J. Rakuno Gakuen Univ.*, *135*(1), 103-112.
- 吉田 磨, 今井 翔, 窪田千穂(2011), 地球の測り方, 中原准一教授退職記念論文集—酪農学徒として考えてきたこと—, pp. 159-169.

#### Abstract

We measured the greenhouse gases in Lake Kutcharo, which is registered in the Ramsar List of wetlands of international importance, and influent rivers that run through dairy lands. The methane ( $\text{CH}_4$ ) concentration at all stations did not show seasonal variability from July to October, but the concentrations in the influent rivers were very high (98-1179  $\text{nmol kg}^{-1}$ ). This suggests that the methane produced in the upstream dairy land flows into the lake. The nitrous oxide ( $\text{N}_2\text{O}$ ) concentration did not have seasonal variability neither.  $\text{N}_2\text{O}$  concentration in the lake increased in proportion as the nitrate concentration increased. Considering the abundant ammonias in the lake,  $\text{N}_2\text{O}$  ought to be produced as a by-product in nitrification process.  $\text{CH}_4$  and  $\text{N}_2\text{O}$  were supersaturated at almost all stations, and their air-water flux were estimated at  $4.66-2.53 \times 10^3$  and  $5.51 \times 10^3-48.6 \text{ mol km}^{-2} \text{ day}^{-1}$ , respectively. Compared to  $\text{CH}_4$ , the emission of  $\text{N}_2\text{O}$  was smaller. Still, the impact of  $\text{N}_2\text{O}$  on global warming cannot be disregarded, as its greenhouse effect is ten times stronger than that of  $\text{CH}_4$ .