

# 礼文島における河川環境変化によるリシリコンブへの影響と 温室効果気体の挙動

吉 田 磨<sup>1,2,3)</sup>・猪 瀬 正 嗣<sup>2)</sup>・安 藤 達 哉<sup>2)</sup>  
白 幡 和 也<sup>3,4)</sup>・中 谷 暢 丈<sup>3,4,5)</sup>

The effect on *Laminaria ochotensis* of river environmental change  
and distribution of greenhouse gases in Rebun Island.

Osamu YOSHIDA<sup>1,2,3)</sup>, Masashi INOSE<sup>2)</sup>, Tatsuya ANDO<sup>2)</sup>,  
Kazuya SHIRAHATA<sup>3,4)</sup> and Nobutake NAKATANI<sup>3,4,5)</sup>  
(Accepted 27 January 2012)

## 1. はじめに

### 1.1. 背景

礼文島(図 1a, b)は, 日本海に位置する日本最北の島であり島面積の半分が利尻礼文サロベツ国立公園に指定されている。主に, リシリコンブやウニなどを中心とした漁業が盛んであるが, 利尻島で問題となっていた磯焼け現象が 1990 年に礼文島でも発生した[浅海域生態系調査報告書, 2008]。磯焼け現象の原因として, 対馬暖流の流量増大によって冬季沿岸水温が上昇したためであり[Nabata et al., 2003], 礼文島沿岸域において影響があると考えられる。

さらに近年, 二年生コンブであるリシリコンブが二年目に移行しないことが礼文島香深井でも起こり始めており, その原因についてはまだ解明されていない。

礼文島は離島ゆえに河川が短く, 降雨の後では河川で浄化されずに人為起源の汚水が海へ流出し, 海洋環境を大きく変動・変化させている可能性がある。

日本最北端の湖である久種湖は礼文島に位置し, 5 年前まで上流域の一部が放牧地として利用されている。最大水深が約 6 m と浅く大量の水草が湖全体

に存在する中一富栄養湖である。秋期には, 大量のアオコが発生することから湖内が還元的になり, 還元環境下でのメタン生成が予想される[Utsumi et al., 1998]。

礼文町香深井にある下水処理場は酸化溝法(オキシデーションディッチ法)という曝気槽と最終沈殿池だけで作られた特殊な活性汚泥法を使用し, 紫外線処理で消毒を行っているが, 下水処理場は有機物を大量に分解し, 還元環境を作るため, 処理過程で温暖化物質を生成し, 河川に流出させていると考えられている[Hashimoto et al., 1999]。

### 1.2. リシリコンブ

リシリコンブの分類は, 褐藻綱(Phaeophyceae), コンブ目(Laminariales), コンブ科(Laminariaceae), リシリコンブ(*Laminaria ochotensis* Miyabe)である。

分布は, 利尻島, 礼文島, 稚内市を主産地に, 白神岬から日本海, オホーツク海沿岸を経て知床岬まで分布している。国後島, サハリン, 沿海州, 朝鮮半島にも分布している。

形態は, 根状部は繊維状, 5-7 層縦列して出ていて, 数回叉状に分岐し, 互いに絡み合い, 円錐状の

<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> 酪農学園大学環境システム学部生命環境学科水質化学研究室

Laboratory of Water Chemistry, Department of Biosphere & Environmental Sciences, Faculty of Environment Systems, Rakuno Gakuen University, Ebetsu, Hokkaido, 069-8501, Japan

<sup>5)</sup> 酪農学園大学農食環境学群環境共生学類水質化学研究室

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

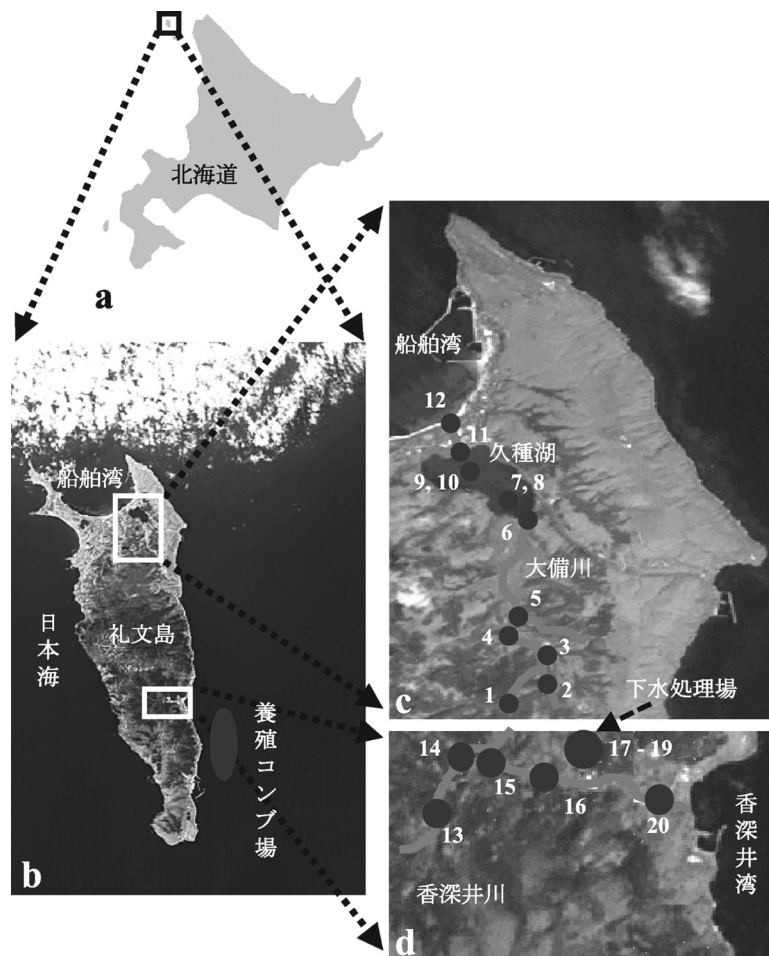


図1. 礼文島の位置と採水地点。図中の数字は測点番号を示す。

付着器を作る。茎状部は長さ5–9 cm、太さ5–10 mmで、上部で幅広く扁平になり、葉状部の基部に連なる。葉状部は細長い笹の葉状で、長さは1.5–2.5 m、ときに3 mを超える。幅は13–20 cm、縁辺部はわずかに波打つ。葉の中央の中帯部は、葉幅の1/3–1/2である。葉の基部は広くさび状で、よく成長するとしばしば円形となる。中帯部のくぼんでいる面をおもて面、膨らんでいる面をうら面と呼び、コンブは通常うら面を海底に向けている。子嚢斑(胞子嚢)は初め葉の裏面基部、中帯部の両側にすじ状にでき、その後全面に広がる。おもて面ではやや遅れてできる。本種の粘液腔道は葉状部、茎状部ともに形成される。

生態は、他のコンブ目の海藻同様、コンブ型の生活史をもつ。すなわち、無性の肉眼的な胞子体世代と、有性の顕微鏡的な配偶体世代がある。本種の寿命は2年であるが、1年目で寿命を終わるものも多く、年によりその移行率(再生率)が変動し、特に近年利尻島、礼文島では問題となっている。冬期間

を配偶体としてすごし、卵と精子が受精して発芽した胞子体が肉眼的になるのは、1–3月頃である。その後、4–8月にかけて、急速に葉長が増大する“第一次伸長成長期”となる。コンブは、葉の基部近くが成長する“介在成長”をするが、同時に葉の先端付近が徐々に枯れる“末枯れ”をしている。成長と末枯れのバランスで、葉長が決まる。稚内前浜では8月頃葉長が最大となり、約2 m(利尻では約1.6 m)となる。9月頃には成長量が減少し、末枯れで短くなる。この時期には葉体にマンニットなどの光合成同化産物を貯め込み、肥大度が大きくなり子嚢斑が形成され始める。1年目コンブでは肥大度が110 mg cm<sup>-2</sup>以上で子嚢斑が形成される。10–11月には、子嚢斑から遊走子(胞子)が放出される。10月には葉長が最小となり、約150 cm(利尻では約60 cm)になる。10–11月には、藻体から新たな根と葉が出る(再生期)。11月以降は、再び急速に葉長が増大する(第二次伸長成長期)。一般に再生期以前のコンブを1年目コンブ、以後を2年目コンブとよんで

おり、4–5月にかけて急速に成長し葉長は稚内前浜では4月に3m近く、利尻では5月に2m近くなり、最大となる。この時期には、葉幅も急速に増大し、幅が広い立派なコンブとなっていく。その後、採取時期の7–8月にかけて、葉体は未枯れにより徐々に短くなるとともに、実入りが進行する。稚内前浜では肥大度が $140 \text{ mg cm}^{-2}$ 以上となった時を採取期としている。2年目コンブでは、1年目より早い7月中旬以降子葉斑が形成される〔水島ら、2003〕。

### 1.3. 目的

本研究では、河川・湖・下水処理場内の環境を把握し、これらが海洋環境とリシリコンブの生育環境にどう影響しているか、主に化学的酸素要求量(COD)、溶存酸素(DO)、栄養塩を使用した解析法で予測することを目的とし、温暖化物質であるメタンの動態にも着目して環境観測を行った。また、北海道立稚内水産試験場のデータから、磯焼け現象やリシリコンブの成長阻害の原因を調査し、海洋環境からの影響を考察した。

## 2. 方 法

### 2.1. 観測現場及び採水方法

2009年7月15日(雨)と10月15日(晴れ)に礼

文島にて観測を行った。

大備川上流から久種湖を經由して、船舶湾入り口までの河川水の12地点(図1c)と、香深井川上流から下水処理場を含めた下流までの河川水9地点(図1d)の合計21地点を側点とした。久種湖の観測(図1c)では動力船で行い、ニスキン採水器と表面採水用バケツを用いて表層・底層を採水した。河川・下水処理場内(図2)の観測では専用の表面採水用バケツを用いて採水を行った。採水方法・手順の詳細は表1、2に示す。

### 2.2. 測定・分析項目

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(アンモニウム塩・硝酸塩・亜硝酸塩・リン酸塩)〔Gordon *et al.*, 1993〕、メタン( $\text{CH}_4$ )〔Yoshida *et al.*, 2004〕、浮遊懸濁物質(SS)、全窒素(TN)、全リン(TP)、を採取し、測定分析した。また、溶存酸素(DO)〔Knap *et al.*, 1996〕、pH、水温、気温は現場で測定した。

### 2.3. 化学的酸素要求量(COD)

CODは、1000 mLのポリボトルにフタをして2回よく振り共洗いをしてから、サンプルを採取した。研究室に持ち帰り分析を行うまで冷蔵保存した。分析法は、水の分析〔2005〕に準じながら過マンガン

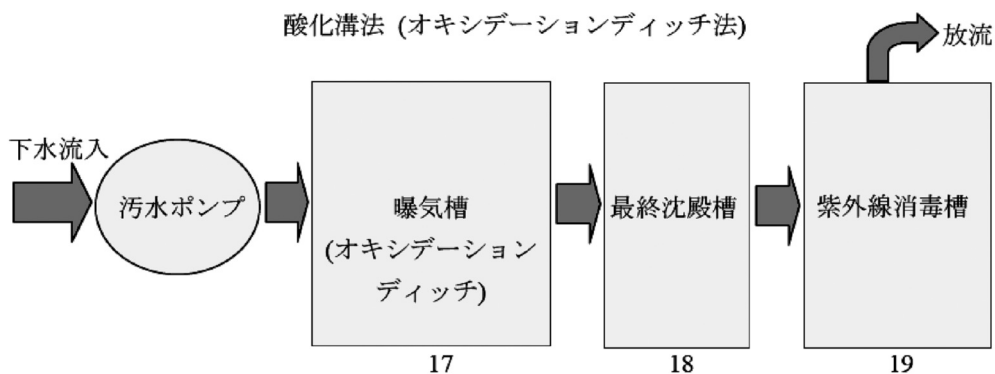


図2. 下水処理場内の採水地点。図中の数字は測点番号を示す。

表1. 採水順序、採水手順

| 採水順番 | 採水項目                              | 容器形状         | 共洗い | オーバーフロー     | サンプル量 | その他             |
|------|-----------------------------------|--------------|-----|-------------|-------|-----------------|
| 1    | DO, pH                            | 100 mLデュランビン | 2回  | 2倍量 (目安20秒) | ビン肩まで | 測定値・水温記録        |
| 2    | メタン濃度 ( $\text{CH}_4$ )           | 30 mLバイアルビン  | 2回  | 2倍量 (目安10秒) | 満タン   | ゴムキャップ容器も淡水で満たす |
| 3    | 一酸化二窒素濃度 ( $\text{N}_2\text{O}$ ) | 30 mLバイアルビン  | 2回  | 2倍量 (目安10秒) | 満タン   | ゴムキャップ容器も淡水で満たす |
| 4    | 栄養塩 (Nuts)                        | 50 mLポリビン    | 2回  | なし          | ビン肩まで | フタも洗浄           |
| 5    | SS                                | 1000 mLポリビン  | 2回  | なし          | ビン肩まで | フタも洗浄           |
| 6    | COD                               | 1000 mLポリビン  | 2回  | なし          | ビン肩まで | フタも洗浄           |
| 7    | TN (全窒素)                          | 1000 mLポリビン  | 2回  | なし          | 満タン   | フタも洗浄           |
| 8    | TP (全リン)                          | 1000 mLポリビン  | 2回  | なし          | 満タン   | フタも洗浄           |

表 2. 採水容量, 使用水量

| 番号 | 採取項目                     | 採水量 (mL) | オーバーフロー量 (mL) |
|----|--------------------------|----------|---------------|
| 1  | DO, pH メーター用のデュランビン      | 100      | 200           |
| 2  | メタン濃度 (CH <sub>4</sub> ) | 30       | 60            |
| 3  | 栄養塩 (Nuts)               | 50       | 0             |
| 4  | SS                       | 1000     | 0             |
| 5  | COD                      | 1000     | 0             |
| 6  | TN (全窒素)                 | 1000     | 0             |
| 7  | TP (全リン)                 | 1000     | 0             |

酸カリウム酸性法 (KMnO<sub>4</sub> 法) を使用した。サンプル 50 mL とイオン交換水 50 mL を合わせ 100 mL とし, 三角フラスコに入れ, 硝酸銀溶液 5 mL, 硫酸 (1+2) 10 mL, 5 mM 過マンガン酸カリウム溶液 10 mL を加えて 30 分加熱する。その後 12.5 mM シュウ酸ナトリウム標準液 10 mL を入れ, ビュレットを用いて無色から淡紅色になるまで 5 mM 過マンガン酸カリウム溶液を滴定する。計算方法は滴定した 5 mM 過マンガン酸カリウム溶液 (mL) を  $a$  とし, ブランクを  $b$ , ファクターを  $f$ , サンプルを  $v$  とし, 以下の式 1 で求めた。

$$\text{COD}_{\text{Mn}} = (a - b) \times f \times \frac{1000}{v} \times 0.2 \quad (1)$$

#### 2.4. 栄養塩

50 mL のシリンジにフタをして 2 回よく振り共洗いをしてから, 夾雑物を取り除くために 0.45  $\mu\text{m}$  のフィルターにかけた後 50 mL のポリボトルにサンプルを分取し, 冷暗所に保存して, 研究室に持ち帰った後は冷凍保存した。

栄養塩分析を行うために, 恒量化した塩化アンモニウム (NH<sub>4</sub>Cl), 硝酸カリウム (KNO<sub>3</sub>), 亜硝酸ナトリウム (NaNO<sub>2</sub>), リン酸カリウム (KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>) を用いてアンモニウム塩 (NH<sub>4</sub>), 硝酸塩 (NO<sub>3</sub>), 亜硝酸塩 (NO<sub>2</sub>), リン酸塩 (PO<sub>4</sub>) の標準溶液 (A-std.) を作った。A-std. 溶液から更に NO<sub>3</sub>・NO<sub>2</sub> の二次混合標準溶液 (B-std.) を作製し, 更に Milli-Q で希釈して検量線用三次標準溶液 (C-std.) を 4 種類調製した。同様に, NH<sub>4</sub>・PO<sub>4</sub> の標準溶液を作った。

分析方法は, アンモニウムイオン (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) はインドフェノール青法, 硝酸イオン (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) は銅-カドミウムカラム還元法, 亜硝酸イオン (NO<sub>2</sub><sup>-</sup>) はスルファニルアミド・ナフチルジアミン発色法, リン酸イオン (PO<sub>4</sub><sup>+</sup>) はモリブデン・ブルー法によりそれぞれ自動化学分析装置 (BLTEC, オートアナライザー) を用いて分析を行った。

#### 2.5. メタン (CH<sub>4</sub>)

ニスキン採水器・表面採水用バケツから得たサンプルは, 2 回共洗いした後 30 mL バイアルビンに採水し, 外気による汚染を避けるために約 2 倍量オーバーフローさせた。その後, 微生物の活動を停止させるためにディスペンサーを用いて 20  $\mu\text{L}$  の塩化水銀を添加し, ゴムキャップとアルミシールで確実に密封状態にした。サンプルは分析を行うまで冷蔵保存しておいた。分析は, 水素炎イオン化検出器 (Flame ionization detector: FID) 付きガスクロマトグラフ (SHIMADZU GC-8A) を用いて行った [Yoshida *et al.*, 2004]。分析の際, 1.82 ppm と 29.6 ppm のメタンをスタンダードに用いた。

#### 2.6. 溶存酸素 (DO)

ポータブル溶存酸素計 (飯島電子工業株式会社 F-102-5) を用いた。100 mL のデュラン瓶を 2 回共洗いし, サンプルをオーバーフローさせ, その中に DO メーターの先端を入れて測定した。DO の単位は  $\mu\text{mol kg}^{-1}$  で示す [Knap *et al.*, 1996]。

#### 2.7. pH, 水温, 気温

pH メーター (株式会社堀場 Compact pH Meter B-212) を用いた。デュラン瓶にサンプルを入れ, pH メーターの先端を入れて測定し, 水温は DO メーターで測定した値を用いた。気温は風速計 (CusTom 社 WS-01) を用いて計測した。

#### 2.8. 浮遊懸濁物質 (SS)

SS は, 1000 mL のポリボトルにフタをして 2 回よく振り共洗いをしてから, サンプルを採取し, 研究室に持ち帰った後は分析を行うまで冷暗所で保存した。分析には吸引濾過法を用いた。吸引濾過器にアスピレーターを取り付け, 濾過材 (孔径 1  $\mu\text{m}$  で直径 24–55 mm のガラス繊維濾紙) を Milli-Q で十分に吸引洗浄させ, この濾過材を 100–110°C で 2 時間乾燥し, デシケーター中で放冷した後, 質量を測定する。次に, この濾過材を吸引濾過器に固定し乾燥

後のSSが5 mg 以上になるように濾紙を通したサンプルの適量を注ぎ入れ、吸引濾過する。さらに、吸引を続けながらサンプル容器及び吸引濾過器の壁に付着した浮遊物質を Milli-Q で濾過材の上に洗い落とし、これを3回繰り返す。この濾過材を105–110℃で2時間乾燥し、デシケーター中で放冷した後、質量を測定する。計算方法は、サンプルを含んだ濾過材を  $a$  とし、Milli-Q で洗浄した濾過材を  $b$ 、使用したサンプル量を  $v$  として以下の式2で求めた。

$$SS = (a - b) \times \frac{1000}{v} \quad (2)$$

### 2.9. 全窒素 (TN)

1000 mL のポリボトルに2回フタをしてよく振り共洗いをしてから、サンプルを採取し、研究室に持ち帰った後は分析を行うまで冷暗所で保存した。分析法は、JIS ハンドブック [2008] に準じ、ペルオキシ二硫酸カリウム分解–紫外吸光光度法を用いた。サンプルが入ったポリボトルをよく混ぜた後、サンプル 50 mL を 100 mL デュラン瓶に移す。また、ブランクとして Milli-Q 50 mL を入れた 100 mL デュラン瓶も2本用意する。そして、デュラン瓶に水酸化ナトリウム–ペルオキシ二硫酸カリウム溶液を10 mL 加え、フタをし、120℃で30分加熱する。放冷後、上澄み 5 mL をねじ口式試験管に入れ、塩酸 (1+16) を加える。その溶液を石英製の吸光セルに移し、波長 220 nm の吸光度を分光光度計 (SHIMADZU UV-VIS SPECTROPHOTOMETER) を用いて測定する。スタンダードは窒素量 0, 5.0, 10.0, 20.0, 30.0 (μg) で検量線を作成した。計算方法は、 $a$  = 検量線から分取した 5 mL 中の窒素量  $a$  (μg) を用いて、以下の式3で求めた。

$$N = a \times \frac{60}{5} \times \frac{1000}{50} \quad (3)$$

### 2.10. 全リン (TP)

1000 mL のポリボトルを2回フタをしてよく振り共洗いをしてから、サンプルを採取し、冷暗所に保存して、研究室に持ち帰り、分析を行うまで冷蔵保存した。分析法は、ペルオキシ二硫酸カリウム分解–紫外吸光光度法を使用した。サンプルが入ったポリボトルをよく混ぜた後、サンプル 50 mL を 100 mL デュラン瓶に移す。ブランクとして Milli-Q 50 mL を入れた 100 mL デュラン瓶も2本用意する。デュラン瓶に水酸化ナトリウム–ペルオキシ二硫酸

カリウム溶液を10 mL 加え、フタをし、120℃で30分加熱する。放冷後、上澄み 10 mL をねじ口式試験管に入れ、モリブデン酸アンモニウム–アスコルビン酸混合溶液を1 mL 加え、フタをしてから混合し15分間放置する。その溶液をガラス製の吸光セルに移し、波長 880 nm の吸光度を分光光度計 (SHIMADZU UV-VIS SPECTROPHOTOMETER) で測定した。スタンダードはリン酸量 0, 2.5, 5.0, 7.5, 10.0 (μg) を用いて検量線を作成した。計算方法は、 $a$  = 検量線から分取した 10 mL 中の窒素量  $a$  (μg) を用いて、以下の式4で求め、測定値を0.326倍した。

$$P = a \times \frac{60}{10} \times \frac{1000}{50} \quad (4)$$

## 3. 結 果

### 3.1. pH, 水温, 気温, 栄養塩

#### 3.2. 大備川

各月のCODには相関が見られなかった (図3)。7月はStns. 4–6, 12の値が高かったが、10月はStns. 11, 12が高い値を示した。特に7月のStns. 4–6と10月のStns. 11, 12はStns. 1–3の3–4倍の値であった。

各月のDO濃度には相関がみられなかった (図4)。上流 (Stns. 1–6) では10月の方が高かったが、下流 (Stns. 11, 12) では10月の方が低い濃度を示した。

7月の栄養塩は (図5)、アンモニウム塩はStns. 11, 12の下流で濃度が高かった。硝酸塩濃度はStns. 1–6の上流で高かった。亜硝酸塩濃度はStns. 5, 6, 12で高い傾向がみられた。リン酸塩はStns. 5, 6の久種湖の入り口付近で高い濃度を示した。

10月の栄養塩は (図6)、アンモニウム塩はStns. 1, 6, 11で濃度が高かった。硝酸塩濃度はStns. 1–

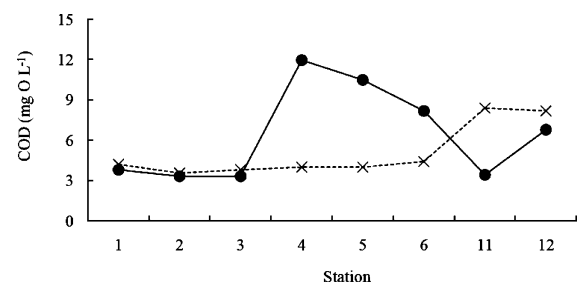


図3. 7月 (●) および10月 (×) における各測点のCOD。

7月は実線, 10月は点線で示す。

3の上流で高かった。亜硝酸塩濃度は Stns. 1-3, 5 で高い傾向があった。リン酸塩濃度は Stns. 1-6 の上流で高い濃度を示した。

各月のメタン濃度は Stns. 5, 6 の久種湖の入り口付近で高い傾向があった(図7)。特に、10月の Stn. 6\* は  $725 \text{ nmol kg}^{-1}$  と高い値を示した。

\*スタンダードの検量線範囲外のため、不確実性が高い。

### 3.3. 久種湖

各月の COD 濃度を比較すると、10月の方が高い値だった(図8)。特に、10月における Stn. 8 の底層 3 m 地点では Stn. 10 の底層 5 m 地点より約2倍の

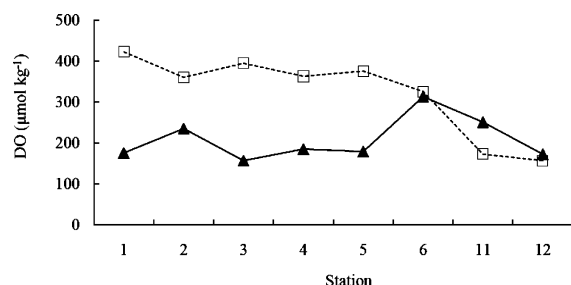


図4. 7月(▲)および10月(□)における各測点のDO濃度。図3と同様に示す。

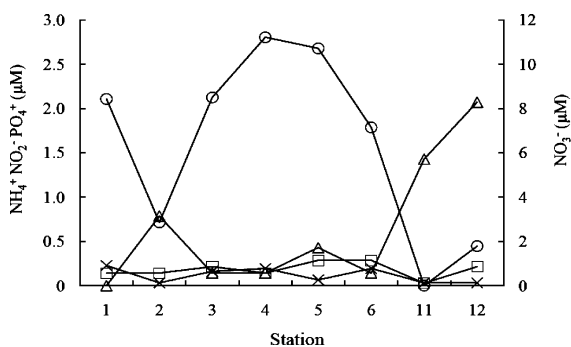


図5. 7月におけるアンモニウム塩濃度(△), 硝酸塩濃度(○), 亜硝酸塩濃度(□), リン酸塩濃度(×)。

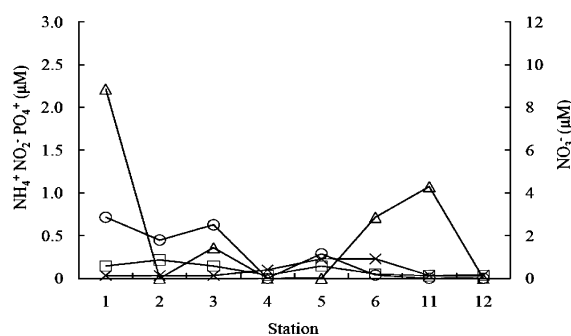


図6. 10月における栄養塩濃度。図5と同様に示す。

濃度があった。

DO濃度を比較すると、10月の方が高い値を示した(図9)。

7月の栄養塩は(図10), アンモニウム塩は Stns. 9, 10 で濃度が高かった。硝酸塩は Stns. 7-10 のすべてでほぼゼロであった。亜硝酸塩は Stns. 9, 10 が高かった。リン酸塩は Stns. 7-10 のすべてでほぼゼロであった。

10月の栄養塩は(図11), アンモニウム塩は Stns. 9, 10 で濃度が高かった。

硝酸塩濃度は Stns. 8, 10 の深層で高い傾向にあった。亜硝酸塩は Stns. 7, 8 で濃度が高かった。

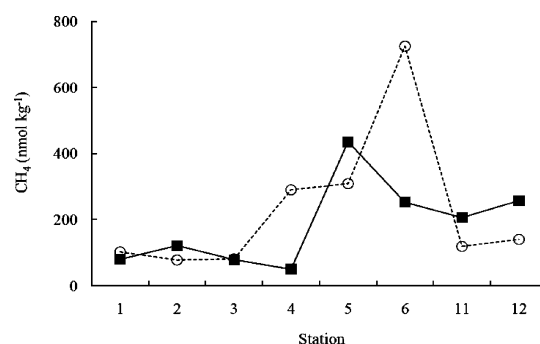


図7. 7月(■)および10月(○)における各測点のメタン濃度。

7月は実線, 10月は点線で示す。

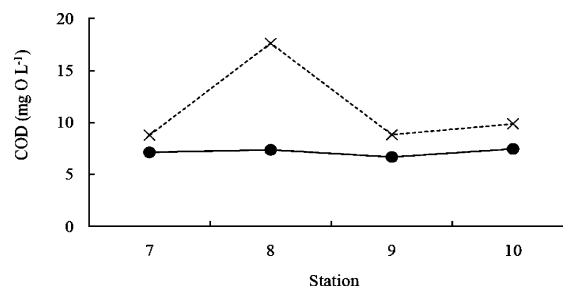


図8. 7月(●)および10月(×)における各測点のCOD。図7と同様に示す。

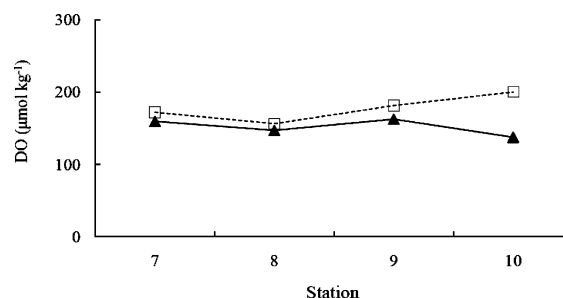


図9. 7月(▲)および10月(□)における各測点のDO濃度。図8と同様に示す。

リン酸塩濃度は Stns. 7-10 のすべてでほぼゼロの値を示した。

7月のメタン濃度は Stn. 10 が高く、10月は Stn. 8が高かった。7月、10月ともに底層(Stns. 8, 10)の方が高い濃度を示した(図12)。

### 3.4. 香深井川

各月のCODを比較すると、7月の方が高い値だった(図13)。特に、7月の Stns. 14, 15, 19は高

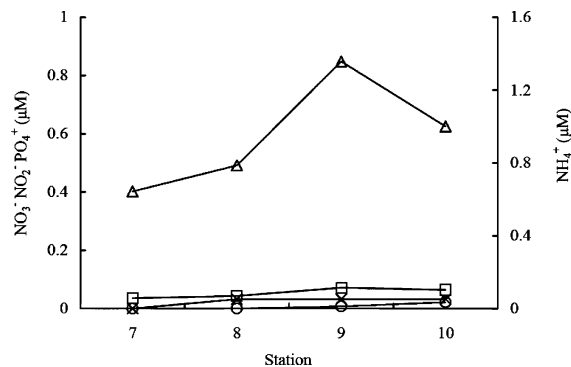


図10. 7月におけるアンモニウム塩濃度(△), 硝酸塩濃度(○), 亜硝酸塩濃度(□), リン酸塩濃度(×)。

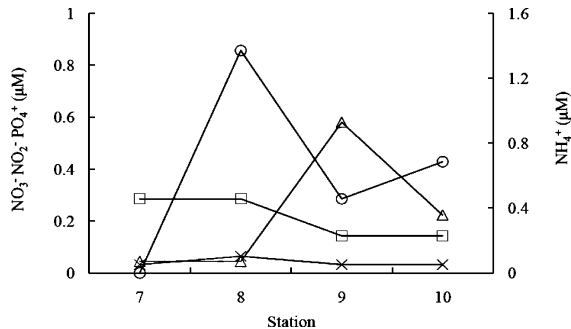


図11. 10月における栄養塩濃度。図10と同様に示す。

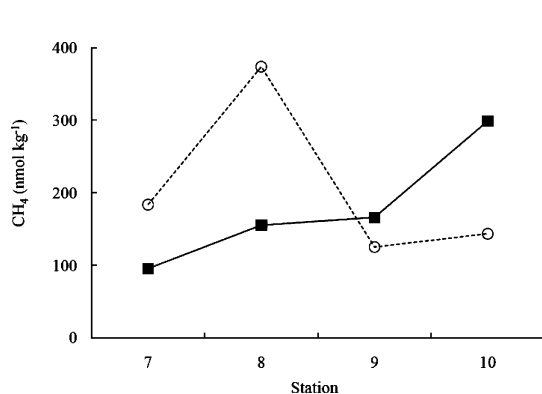


図12. 7月(■)および10月(○)における各測点のメタン濃度。7月は実線、10月は点線で示す。

い値を示した。

各月のDO濃度は10月の方が高い傾向であったが、10月は7月の Stns. 14, 15とあまり変わらない値だった(図14)。

7月の栄養塩は(図15), アンモニウム塩濃度については Stn. 20 で高かった。硝酸塩濃度は Stn. 15 が高い濃度を示した。亜硝酸塩濃度も Stn. 15が高い値だった。リン酸塩濃度は Stn. 20 で高い値を示した。

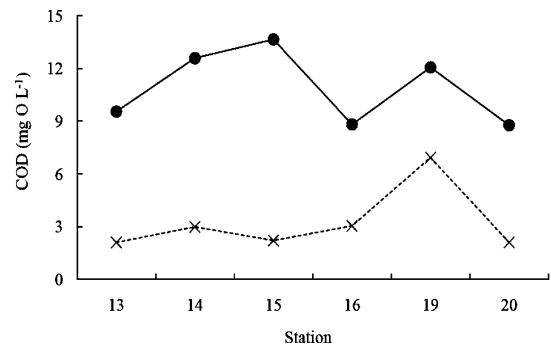


図13. 7月(●)および10月(×)における各測点のCOD。図12と同様に示す。

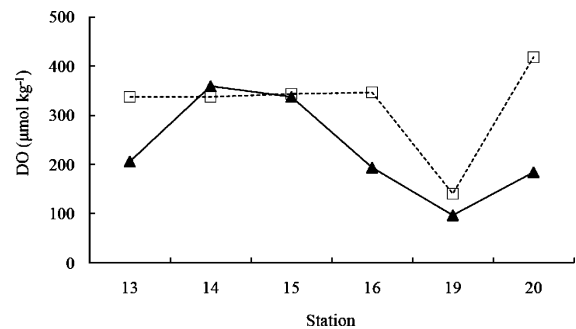


図14. 7月(▲)および10月(□)における各測点のDO濃度。図13と同様に示す。

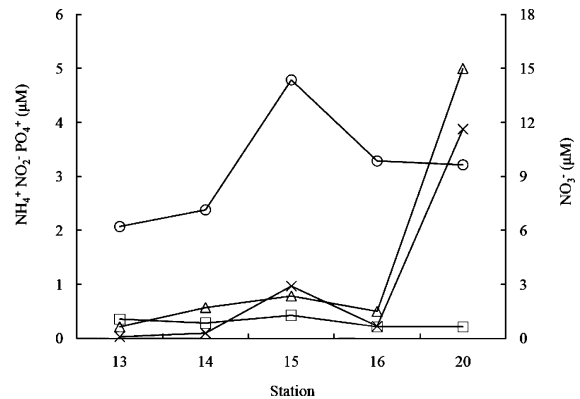


図15. 7月におけるアンモニウム塩濃度(△), 硝酸塩濃度(○), 亜硝酸塩濃度(□), リン酸塩濃度(×)。

10月の栄養塩は(図16), アンモニウム塩濃度については Stn. 20 で高かった。硝酸塩濃度も Stn. 20 で高く, Stn. 15 でも高かった。また, Stn. 20 の亜硝酸塩濃度も高く, リン酸塩濃度も高い値を示した。

各月のメタン濃度には正の相関が見られた(図17)。また, Stns. 14, 15, 19 のメタン濃度は高い値を示した。

### 3.5. 下水処理場

各月の COD には正の相関が見られ, 7月の方が高い値であった(図18)。Stn. 19 は高い値を示した。また, 下水処理場内の曝気槽(Stn. 17)の COD は, 各月ともに約  $46 \text{ mgO L}^{-1}$  と著しく高い値であった。

各月の DO 濃度には正の相関が見られた(図19)。Stn. 18 より Stn. 19 の方が高い値を示した。

7月の栄養塩は(図20), どの成分も Stn. 17 が最も高濃度であった。リン酸塩濃度はあまり変化がなかった。

10月の栄養塩は(図21), 7月同様 Stn. 17 が最も高濃度であった。また, 硝酸塩と亜硝酸塩濃度はあ

まり変化がなかった。

各月のメタン濃度には正の相関が見られ, 比較すると7月の方が高い値であった(図22)。また, Stn. 18\* は高い濃度を示した。下水処理場内の曝気槽(Stn. 17)はガスクロマトグラフの検出限界値を超えてしまったため, 測定値が得られなかった。

\*スタンダードの検量線範囲外であったため, 不

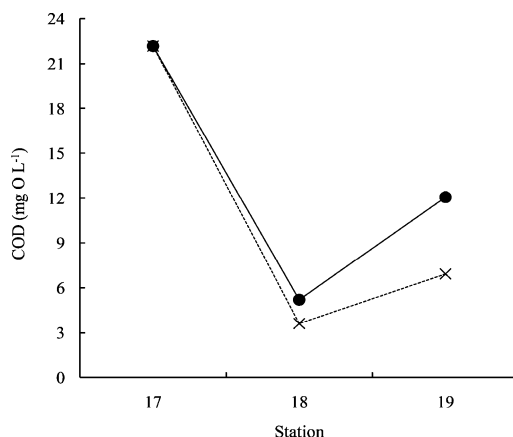


図18. 7月(●)および10月(×)における各測点のCOD。図17と同様に示す。

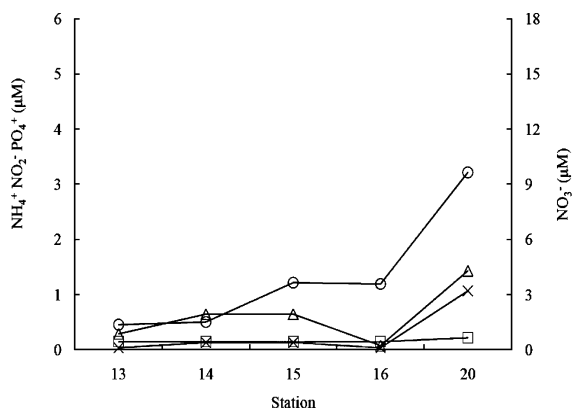


図16. 10月における栄養塩濃度。図15と同様に示す。

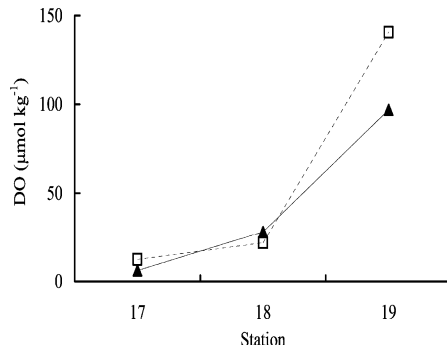


図19. 7月(▲)および10月(□)における各測点のDO濃度。図18と同様に示す。

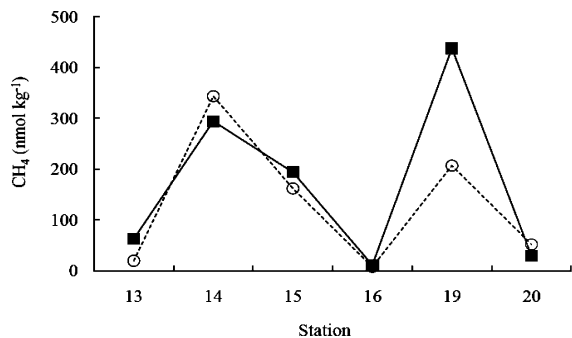


図17. 7月(■)および10月(○)における各測点でのメタン濃度。7月は実線, 10月は点線で示す。

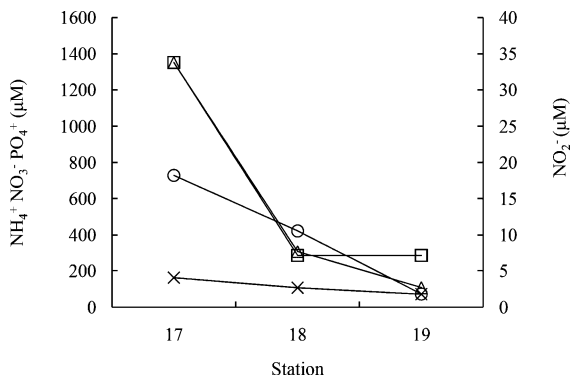


図20. 7月におけるアンモニウム塩濃度(△), 硝酸塩濃度(○), 亜硝酸塩濃度(□), リン酸塩濃度(×)。



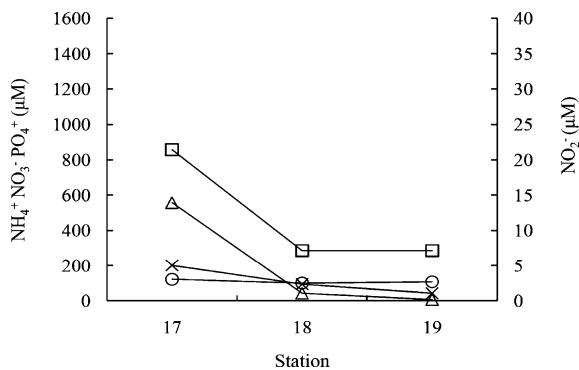


図 21. 10 月における栄養塩濃度。図 20 と同様に示す。

確実性が高い。

#### 4. 考 察

##### 4.1. 大備川

7 月では、COD、DO 濃度、アンモニウム塩は低い濃度であるが、硝酸塩、亜硝酸塩濃度が高い値を示したことから Stns. 1, 3, 6 の上流で硝化が起こっていると考えられる(図 3-5)。また、久種湖流出河川である大備川下流域 (Stns. 11, 12) の COD とアンモニウム塩濃度が高いことから有機物が海洋環境へ流れ込んでいると示唆される (図 3, 5)。

10 月では COD、DO 濃度、アンモニウム塩濃度が低く、硝酸塩、亜硝酸塩濃度が高いことから Stns. 2, 5 の上流で硝化反応が起きていると考えられるが (図 3, 4, 6)、大備川上流 (Stns. 1-5) における水温が 5.8-7.0℃ と低い (表 3)、生物が活発に活動できる範囲ではない [Kirstin et al., 2008]。よって、大備川上流環境における栄養塩濃度の増加は森林やササが茂っている環境から森林由来、または土壌由来と示唆される。また、下流 (Stn. 12) の COD が高い濃度を示していることから、海洋環境へ影響している可能性がある (図 3)。

7 月では、河川水の混合によって堆積物がより攪拌されたため、Stn. 5 においてメタンがより多く拡散したと考えられる (図 3, 7)。上流河川 (Stns. 4-6) では水深が浅く、流れが速いため有機物が攪拌しやすいという地理的な要因も関連している。

10 月では、メタン濃度が Stns. 4-6 で高いのは同様に地理的な要因も考えられる (図 7)。また、この観測日は風が強く森林に囲まれていない上流河川 (Stns. 4-6) は河川水の混合による堆積物がより攪拌されたと考えられる。

一方、メタン濃度が低い上流河川 (Stns. 1-3) は流れが速いが、森林に囲まれているため風速の影響を受けていないことが原因と考えられる (図 7)。

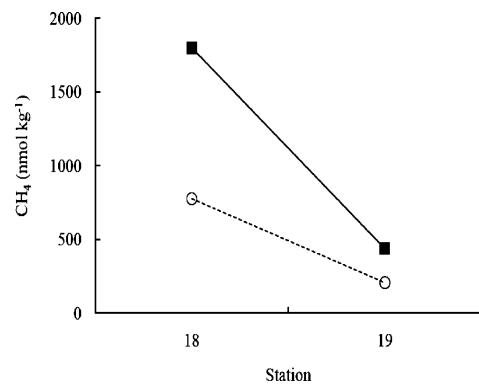


図 22. 7 月 (◆) 及び 10 月 (○) における各測点でのメタン濃度。7 月は実線、10 月は点線で示す。

##### 4.2. 久種湖

7 月では、COD とアンモニウム塩は高い濃度だが、DO 濃度は低く硝酸塩濃度とリン酸塩濃度はほぼゼロである。また、亜硝酸塩濃度は 40-70 nM であることから脱窒が起こっている可能性がある (図 8-10, 表 4)。しかし、7 月の久種湖内は大量の水草が生育しているため硝酸塩とリン酸塩を摂取している可能性が高い [Catarina et al., 2005]。

10 月では、COD は高いが DO は低い濃度を示し、7 月と同じような結果が得られた (図 8, 9)。栄養塩は、大備川上流に近い久種湖内表層 (Stn. 8) でアンモニウム塩濃度、硝酸塩濃度、リン酸塩濃度はほぼゼロであり、亜硝酸塩 (0.3 μM) だけ存在している。また、10 月の久種湖内は大量のアオコが発生しており、久種湖内 (Stns. 7-10) の水温もすべて 10.3℃ (表 3) と生物が活発に活動できる範囲であり [Kirstin et al., 2008]、還元環境になっている可能性が高いので、久種湖内のすべての測点 (Stns. 7-10) で脱窒が起こっていると考えられる。

各月ともに、湖内でメタンが高い濃度を示しており、還元環境下におけるメタンの生成と考えられる (図 12, 13)。特に 10 月における大備川上流に近い久種湖内底層 (Stn. 8) は非常に高いメタン濃度であり、COD の値が高いことや観測日の風速が強かったこと、水深 3 m と浅いことから堆積物が攪拌されたため、メタンがより多く放出されたと示唆される (図 8, 12)。また、大備川下流に近い久種湖内底層 (Stn. 10) は水深 5 m と浅いが風速による堆積物の攪拌が起こっていないことがわかった。

##### 4.3. 香深井川

7 月の香深井川上流の支流と集水域 (Stns. 14, 15) において、COD、DO 濃度と栄養塩濃度が高い値を示しているが、10 月でも同様の挙動がみられた

表 3. 各測点における pH, 水温, 気温

| 観測日    | 観測地点 (Station) | pH  | 水温 (°C) | 気温 (°C) |
|--------|----------------|-----|---------|---------|
| 7 月15日 | 1              | 7.1 | 11.2    | 16.8    |
|        | 2              | 7.1 | 7.50    | 16.8    |
|        | 3              | 7.5 | 11.6    | 16.8    |
|        | 4              | 7.3 | 13.5    | 16.7    |
|        | 5              | 7.8 | 13.5    | 16.7    |
|        | 6              | 6.8 | 11.6    | 14.3    |
|        | 7              | 7.5 | 16.3    | 14.3    |
|        | 8              | 7.4 | 16.6    | 14.3    |
|        | 9              | 7.4 | 16.1    | 14.3    |
|        | 10             | 7.3 | 16.2    | 14.3    |
|        | 11             | 7.3 | 17.6    | 14.3    |
|        | 12             | 7.1 | 16.9    | 14.7    |
|        | 13             | 7.6 | 12.8    | 19.0    |
|        | 14             | 7.6 | 12.8    | 19.1    |
|        | 15             | 7.3 | 12.2    | 19.0    |
|        | 16             | 7.3 | 12.3    | 19.0    |
|        | 17             | 7.1 | 17.7    | ND      |
|        | 18             | 6.6 | 17.5    | ND      |
|        | 19             | 6.8 | 18.1    | ND      |
|        | 20             | 7.1 | 13.1    | 19.0    |
| 10月15日 | 1              | 7.6 | 7.00    | 13.0    |
|        | 2              | 7.1 | 7.00    | 13.0    |
|        | 3              | 7.6 | 7.00    | 13.0    |
|        | 4              | 7.6 | 5.80    | 10.2    |
|        | 5              | 7.6 | 5.90    | 10.4    |
|        | 6              | 7.9 | 5.80    | 10.4    |
|        | 7              | 7.9 | 10.3    | 6.40    |
|        | 8              | 7.6 | 10.3    | 6.40    |
|        | 9              | 8.1 | 10.3    | 6.40    |
|        | 10             | 7.9 | 10.3    | 6.40    |
|        | 11             | 7.9 | 11.4    | 7.50    |
|        | 12             | 7.7 | 11.3    | 6.70    |
|        | 13             | 8.6 | 8.60    | 8.30    |
|        | 14             | 8.2 | 8.60    | 8.30    |
|        | 15             | 8.6 | 8.70    | 8.30    |
|        | 16             | 7.6 | 8.90    | 9.60    |
|        | 17             | 6.6 | 17.2    | ND      |
|        | 18             | 6.9 | 17.7    | ND      |
|        | 19             | 6.9 | 18.0    | ND      |
|        | 20             | 7.4 | 10.6    | 9.70    |

(図 13-16)。また、10 月の香深井川上流の水温は 8.6-8.9°C と低いため(表 3), 生物が活発に活動できる範囲ではない [Kistin *et al.*, 2008]。よって、香深井川上流環境における栄養塩濃度の増加も森林やササが茂っている環境から森林由来、または土壌由来であると示唆される(図 15, 16)。下水処理場放流河川である香深井川下流 (Stn. 20) は下水処理場前の測点 (Stn. 14) と比較すると、7 月におけるアンモニウム塩濃度は約 10 倍、硝酸塩濃度と亜硝酸塩濃度は変化なし、リン酸塩濃度は約 20 倍増加 (図 15) ており、10 月におけるアンモニウム塩濃度は約

20 倍、硝酸塩濃度は約 3 倍、亜硝酸塩濃度は変化なし、リン酸塩濃度は約 33 倍増加した(図 16, 表 4)。さらに、7 月と 10 月の香深井川下流 (Stn. 20) を比べると、アンモニウム塩濃度は 7 月の方が約 4 倍高く、硝酸塩濃度 (9.6  $\mu\text{M}$ ) と亜硝酸塩濃度 (0.2  $\mu\text{M}$ ) は変化なし、リン酸塩濃度も 7 月の方が約 4 倍に増加していた(図 15, 16, 表 4)。両月の香深井川下流 (Stn. 20) における COD と栄養塩濃度の結果から、香深井村では COD の減少、栄養塩濃度の増加が必要であると考えた。

各月における COD, DO 濃度, メタン濃度には正

表 4. 各測点における栄養塩濃度

| 観測日    | 観測地点 (Station) | $\text{NH}_4^+$ ( $\mu\text{M}$ ) | $\text{NO}_3^-$ ( $\mu\text{M}$ ) | $\text{NO}_2^-$ ( $\mu\text{M}$ ) | $\text{PO}_4^{+}$ ( $\mu\text{M}$ ) |
|--------|----------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------------|
| 7月15日  | 1              | 0                                 | 8.43                              | 0.143                             | 0.226                               |
|        | 2              | 0.786                             | 2.86                              | 0.143                             | 0.0323                              |
|        | 3              | 0.143                             | 8.50                              | 0.214                             | 0.161                               |
|        | 4              | 0.143                             | 11.2                              | 0.143                             | 0.194                               |
|        | 5              | 0.429                             | 10.7                              | 0.286                             | 0.065                               |
|        | 6              | 0.143                             | 7.14                              | 0.286                             | 0.194                               |
|        | 7              | 0.643                             | 0                                 | 0.0357                            | 0                                   |
|        | 8              | 0.786                             | 0                                 | 0.0429                            | 0.0323                              |
|        | 9              | 1.36                              | $7.14 \times 10^{-3}$             | 0.0714                            | 0.0323                              |
|        | 10             | 1.00                              | 0.0214                            | 0.0643                            | 0.0323                              |
|        | 11             | 1.43                              | 0                                 | 0.0286                            | 0.0323                              |
|        | 12             | 2.07                              | 1.79                              | 0.214                             | 0.0323                              |
|        | 13             | 0.214                             | 6.21                              | 0.357                             | 0.0323                              |
|        | 14             | 0.571                             | 7.14                              | 0.286                             | 0.0969                              |
|        | 15             | 0.786                             | 14.4                              | 0.429                             | 0.969                               |
|        | 16             | 0.500                             | 9.86                              | 0.214                             | 0.226                               |
|        | 17             | $2.35 \times 10^3$                | 729                               | 693                               | 161                                 |
|        | 18             | 307                               | 421                               | 7.14                              | 107                                 |
|        | 19             | 107                               | 71.4                              | 7.14                              | 71.0                                |
|        | 20             | 5.00                              | 9.64                              | 0.214                             | 3.87                                |
| 10月15日 | 1              | 2.21                              | 2.86                              | 0.143                             | 0.0323                              |
|        | 2              | 0                                 | 1.79                              | 0.214                             | 0.0323                              |
|        | 3              | 0.357                             | 2.50                              | 0.143                             | 0.0323                              |
|        | 4              | 0                                 | 0                                 | 0.0357                            | 0.0969                              |
|        | 5              | 0                                 | 1.14                              | 0.143                             | 0.226                               |
|        | 6              | 0.714                             | 0.143                             | $5.00 \times 10^{-2}$             | 0.226                               |
|        | 7              | 0.0714                            | 0                                 | 0.286                             | 0.0323                              |
|        | 8              | 0.0714                            | 0.857                             | 0.286                             | 0.0646                              |
|        | 9              | 0.929                             | 0.286                             | 0.143                             | 0.0323                              |
|        | 10             | 0.357                             | 0.429                             | 0.143                             | 0.0323                              |
|        | 11             | 1.07                              | 0                                 | 0.0286                            | 0.0323                              |
|        | 12             | 0                                 | 0                                 | 0.0357                            | 0.0323                              |
|        | 13             | 0.286                             | 1.36                              | 0.143                             | 0.0323                              |
|        | 14             | 0.643                             | 1.50                              | 0.143                             | 0.129                               |
|        | 15             | 0.643                             | 3.64                              | 0.143                             | 0.129                               |
|        | 16             | 0.0714                            | 3.57                              | 0.143                             | 0.0323                              |
|        | 17             | 557                               | 121                               | 21.4                              | 200                                 |
|        | 18             | 42.9                              | 100                               | 7.14                              | 93.6                                |
|        | 19             | 7.14                              | 107                               | 7.14                              | 42.0                                |
|        | 20             | 1.43                              | 9.64                              | 0.214                             | 1.07                                |

の相関が見られた(図 13, 14, 17)。特に、メタンは香深井川上流の支流、集水域と水処理場内紫外線消毒槽 (Stns. 14, 15, 19) で高い濃度であった。香深井川上流の支流と集水域 (Stns. 14, 15) は、高い COD, DO 濃度から堆積物がより攪拌されたため、メタンが発生したと考えられる。

#### 4.4. 下水処理場

各月ともに、曝気槽内 (Stn. 17) で硝化が起こっており、曝気槽 (Stn. 17) は硝化槽となっていることがわかる。また、各月の最終沈殿槽 (Stn. 18) と

紫外線消毒槽 (Stn. 19) の結果より、COD が増加している傾向があるので紫外線消毒槽 (Stn. 19) では滅菌しきれていないことや有機物が香深井川に流出している可能性がある (図 18–21)。

各月ともに、曝気槽内 (Stn. 17) で大量のメタンが放出され [Hashimoto *et al.*, 1999], 還元環境下で生成したメタンが曝気槽内 (Stn. 17) に残り、最終沈殿槽 (Stn. 18) と紫外線消毒槽 (Stn. 19) に流出していると考えられる (図 22)。

#### 4.5. 河川環境におけるリシリコンブへの影響

観測月である7月のリシリコンブの生態は、「第一次伸長成長期（一年目コンブ）」が優先種となっており、二年目コンブも成長しきっている。この状況でのコンブの生育悪化は報告されていない。したがって、リシリコンブは栄養塩を摂取することから、降雨時の栄養塩が香深井湾に流れ込み、海洋に生息しているリシリコンブを生育させていると考えられる。また、観測月である10月のリシリコンブの生態は、胞子を放出する時期になる。よって、晴れの日では栄養塩が香深井湾に流れ込む量が少なく、秋季でのリシリコンブの生長に必要なことがわかった。

#### 4.6. 利尻・礼文島におけるリシリコンブの生産量

図23より、1990年に礼文島で磯焼け現象が起きた時には利尻島・礼文島のどちらもコンブ生産量が低く、1995、1998年にもコンブ生産量が低い。また、1992、1996、1997、2002年にはどちらもコンブ生産量が高いことから1990–2002年の利尻島・礼文島リシリコンブの生産量に相関が見られる。

#### 4.7. 海洋環境変動によるリシリコンブへの影響

リシリコンブが生育していない環境における硝酸塩+亜硝酸塩濃度とリン酸塩濃度を図24に示す。

図23や、図24の秋季と冬季のリン酸塩濃度の結

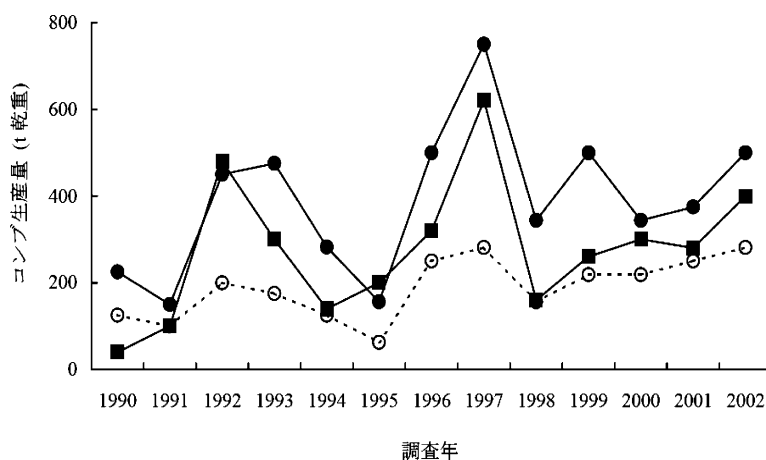


図23. 利尻島・礼文島におけるコンブ生産量の経年変化。利尻町は実線(●)，利尻富士町は点線(○)，礼文町は実線(■)で示す。稚内水試事業報告書[2004]を改変した。

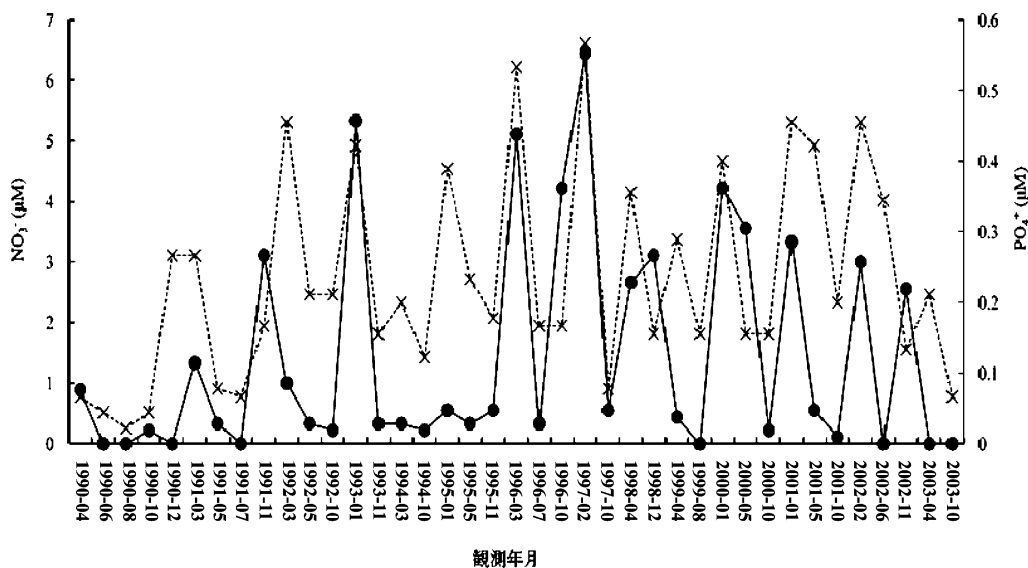


図24. 利尻町杓形沖800m地点の水深30mにおける水深0, 5, 10, 15, 20mの平均値としての硝酸塩+亜硝酸塩濃度(●)とリン酸塩濃度(×)の経年変化。硝酸塩+亜硝酸塩濃度は実線で、リン酸塩濃度は点線で示す。稚内水試事業報告書[2004]を改変した。

果より、10–11月にリン酸塩濃度が $0.16\mu\text{M}$ 以上、二年目コンブの移行時期の冬季でリン酸塩濃度が $0.45\mu\text{M}$ 以上存在するとコンブ生産量が高くなることから、リン酸塩濃度がリシリコンブの制限要因となっていることがわかった。しかし、硝酸塩濃度にはコンブ生産量との関係性が見られなかった。

## 5. 結 論

### 5.1. 結論

礼文島河川上流環境における栄養塩の増加は森林やササが茂っている環境から森林由来、または土壌由来と示唆された。

下水処理場内では、還元環境下においてメタンが生成し、河川環境では堆積物の攪拌によって逃散している可能性がある。

夏季の久種湖内は大量の水草が生育しているので硝酸塩とリン酸塩を摂取している可能性が高い。

秋季の久種湖内では大量のアオコが発生していることから、還元環境になっている可能性が高い。また、秋季の久種湖内では脱窒が起こっていると考えられる。

久種湖内では、還元環境下においてメタンが生成し、水深の浅い底層では堆積物の攪拌によってメタンが放出し、逃散している可能性が高い。

海洋環境において、秋期から冬期にかけてリン酸塩供給が不足していることが礼文島リシリコンブの生育悪化の原因であり、二年目コンブに移行しないと考えられる。対策としては、秋期から冬期にかけてリシリコンブの生育地に無機栄養塩供給がされる仕組みを構築するべきである。

### 5.2. 今後の課題

一酸化二窒素 ( $\text{N}_2\text{O}$ ) を分析し、河川・湖の窒素循環を含めたより詳細な環境を明らかにするべきである。

さらに、硝酸塩の窒素・酸素安定同位体比を測定し、硝化・脱窒過程や起源解析をする必要がある。また、礼文島海域の観測をする必要がある。

## 謝 辞

礼文町役場総務課の今井優様には礼文島河川・湖環境におけるデータを提供して頂きました。心より御礼申し上げます。

北海道立稚内水産試験場企画総務部主査である白幡康治氏には利尻・礼文島におけるリシリコンブ・海洋環境のデータを提供して頂きました。心より御礼申し上げます。

環境GIS研究室には観測や関してサポートして頂きました。心より感謝致します。

生命環境学科臨時職員として勤務されていた森本陽子氏には分析において数々のご助言頂きました。心より御礼申し上げます。

環境地球化学研究室の皆様には観測と分析の際多大なご協力を頂きました。心より御礼申し上げます。

本稿の改訂に際し貴重なコメントを頂きました校閲者に深く感謝致します。

## 参 考 文 献

- 赤池 章一, 瀧谷 明郎(2004), 北海道立稚内水産試験場事業報告書, 107-112.
- Catarina, M.M., W.J. Wiebe, S.B. Joye, and A.A. Bordalo (2005), Inorganic Nitrogen Dynamics in Intertidal Rocky Biofilms and Sediments of the Douro River Estuary (Portugal), *Estuaries*, 28, 592-607.
- Gordon, L.I., C. Jennings, Jr.A.A. Ross, and J.M. Krest (1993), A Suggested Protocol for Continuous Flow Automated Analysis of Sea-water Nutrients. 2.2 Volumetric Laboratory Ware, in *WHP Operations and Methods, WHP Office Report WHPO 91-1/ WOCE Report No. 68/91. Revision 1*, 6-8.
- Hashimoto, S., K. Goro, S. Hikota, N. Sendai and A. Otsuki (1999), Nitrous oxide emissions from coastal waters in Tokyo Bay, *Mar. Environmental Res.*, 47, 213-223.
- 環境省自然環境局生物多様性センター(2008), 浅海域生態系調査(藻場調査)報告書, 19-20.
- Knap, A., A. Michaels, A. Close, H. Ducklow and A. Dickson (eds.) (1996), Protocols for the Joint Global Ocean Flux Study (JGOFS) Core Measurements. *JGOFS Rpt.* Nr. 19, vi+170pp. Reprint of the IOC Manuals and Guides No. 29, UNESCO 1994.
- Kirstin, D., E. Bahlmann and K. Emeis (2008), A nitrate sink in estuaries? An assessment by means of stable nitrate isotopes in the Elbe estuary, *Limnol. Oceanogr.*, 53, 1504-1511.
- 水島 敏博, 鳥澤 雅修, 上田 吉幸, 前田 圭司, 嶋田 宏, 鷹見 達也 北海道新聞社 (2003), 漁業生物図鑑: 新 北のさかなたち, 1-645.
- Nabata, S., A. Takiya and M. Tada (2003), On the decreased production of natural kelp, *Laminaria ochotensis* in Rishiri Island, north-

- ern Hokkaido. *Sci. Rep. Hokkaido Fish. Exp. Stn.*, *64*, 127-136.
- 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.
- Utsumi, M., Y. Nojiri (1998), Oxidation of dissolved methane in a eutrophic, shallow lake: Lake Kasumigaura, Japan, *Limnol. Oceanogr.*, *43*, 471-480.
- Yoshida, O., H.Y. Inoue, S. Watanabe, S. Noriki, and M. Wakatsuchi (2004), Methane in the western part of the Sea of Okhotsk in 1998-2000, *J. Geophys. Res.*, *109*, C09S12, doi:10.1029/2003JC001910.

#### Abstract

Rebun Island is the northern most island of Japan and is located in the Sea of Japan. Fishermen mainly prosper by catching laminaria ochotensis and the sea urchin. This study investigates the river environment, lake and sewage plant and considers the influence of ecology on the river environment. In the sea, a decrease in phosphate in autumn and winter caused deterioration in the growth of laminaria ochotensis. It is predicted that laminaria ochotensis will not grow next year. I suggest that a system be provided to supply inorganic phosphorus to laminaria ochotensis in autumn and winter.