

令和 4 年 5 月 21 日現在

機関番号：13801

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K20436

研究課題名(和文) 沿岸域の都市化に伴う二酸化炭素循環変化と酸性化進行度の推定

研究課題名(英文) Spatiotemporal and Long-term Variations of Partial Pressure of Carbon Dioxide in Lake Hamana

研究代表者

久保 篤史 (Kubo, Atsushi)

静岡大学・理学部・講師

研究者番号：90803958

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：全炭酸濃度とアルカリ度の毎月観測から浜名湖における二酸化炭素分圧の時空間変動を調査した。その結果、浜名湖では二酸化炭素分圧が29 to 1476 マイクロatmの範囲で変動しており、大部分で大気中の二酸化炭素分圧に対して未飽和であった。これは、活発な生物活動が有機物分解の効果を上回っているためだと考えられた。

また、公共用水域データ(pHと塩分)と本研究で得られたアルカリ度と塩分の相関式から二酸化炭素分圧の長期変動推定を行った。その結果、二酸化炭素分圧は1995～2019年の間で有意な増減傾向は得られなかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題では、都市沿岸海域における二酸化炭素収支推定を行った。また、その結果から得られた塩分とアルカリ度の直線回帰式より、過去のデータが多くある塩分とpHから過去の二酸化炭素収支推定を行った。この手法を公共用水域調査が行われている日本沿岸海域に拡張することで、国内の二酸化炭素収支の時系列変化を明らかにすることが可能となる。

研究成果の概要(英文)：DIC and TA of surface waters were investigated monthly to identify the seasonal and spatial variations of pCO<sub>2</sub> in Lake Hamana. The pCO<sub>2</sub> in the lake water were ranged from 29 to 1476 micro-atm, and were undersaturated for atmospheric pCO<sub>2</sub> at the most observations. Since there was a strong negative correlation between pCO<sub>2</sub> and dissolved oxygen saturation, seasonal and spatial variations of pCO<sub>2</sub> were derived from primary production and organic matter decomposition. Carbon dioxide consumption due to active biological activity is the most controlling factor of seasonal and spatial variations of pCO<sub>2</sub> in Lake Hamana because pCO<sub>2</sub> was undersaturated and dissolved oxygen saturation were oversaturated at the most observations.

At the most surface water of the lake, pCO<sub>2</sub> was not change significantly during 1995 and 2019. In contrast, pCO<sub>2</sub> at the bottom layer of central lake and river mouth had a decrease trend because of decreasing trend of terrestrial organic carbon input.

研究分野：沿岸海洋学

キーワード：二酸化炭素 沿岸海域 海洋学 陸水学 有機物 アルカリ度 pH 酸性化

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

大気中の二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) 濃度は近年増加しており、産業革命以降の人間活動の活発化による大気への放出量増加が主な原因だと考えられている。産業革命前の大気中の CO<sub>2</sub> 分圧は約 280 ppm であったが、近年では年平均で 400 ppm を超えたことが報告されている。人間活動により放出された CO<sub>2</sub> の約 56% 相当量は大気中に残っており、約 31% 相当量が海洋で吸収していると報告されている (IPCC, 2013)。そのため、海洋における CO<sub>2</sub> 交換量を正確に評価していくことは、人為起源による CO<sub>2</sub> 循環変化とそれに伴う環境変化を予測していくために必要不可欠である。これまでの海洋における CO<sub>2</sub> 交換量の評価は外洋域で多くの観測が行われ、データが蓄積されてきた。その結果、外洋域は年間約  $1.6 \pm 0.9$  PgC の CO<sub>2</sub> を吸収していることが報告されている (Takahashi *et al.*, 2009)。しかし、この見積もりにおいて沿岸海域は考慮されていない。1998 年にヨーロッパの河口域で海洋から大気への CO<sub>2</sub> 放出フラックスが非常に大きく、沿岸海域が CO<sub>2</sub> の放出域であるという認識が広まった (Frankignoulle *et al.*, 1998)。これは陸域起源の有機物供給・分解による CO<sub>2</sub> 生成が生物活動による CO<sub>2</sub> 消費を大きく上回るためだと考えられている。この研究以降、多くの沿岸海域での観測結果が報告され全球規模での収支推定が行われるようになった (e.g., Chen *et al.*, 2013)。その結果、現在では沿岸海域の CO<sub>2</sub> 放出量は 0.1 ~ 0.5 PgC と見積もられており、外洋域の CO<sub>2</sub> 吸収量の最大約 30% にあたることを報告されている。しかし、沿岸海域での観測結果は外洋域に比べて大きく時空間変動をするため外洋域に比べ密な観測を行う必要がある。しかし、多くの観測は年に数回の観測であるため、現段階の推定には大きな不確かさが生じている。そのため、多くの沿岸海域で季節変動・空間変動を詳細に把握し、より詳細なデータを蓄積していくことが必要である。

近年、これまでの沿岸海域における CO<sub>2</sub> 放出とは異なり、一部の沿岸海域では CO<sub>2</sub> の吸収域であることが報告されている (Aby Lagoon, Kone *et al.*, 2009; Guanabara Bay, Cotovicz *et al.*, 2015; Tokyo Bay, Kubo *et al.*, 2017)。Aby Lagoon は、湾口部と外洋の入口が狭く浅く閉鎖的であり、年間を通して成層構造が維持されている。そのため、活発な生物活動により表層で生成した有機物が効率よく底層へと輸送されている。Guanabara Bay でも Aby Lagoon 同様に夏季に成層構造が形成しており、生物活動により生成した有機物が底層へと輸送されている。さらに、Guanabara Bay では非常に高い光合成有効放射により一次生産が高められている。一方、東京湾は流域にある下水処理場により大量の易分解性有機炭素が除去されていることにより、有機炭素に対して相対的に大量の栄養塩類が流入している。その結果、活発な生物活動による CO<sub>2</sub> 消費が陸域起源有機物分解による CO<sub>2</sub> 生成の効果を上回っていると考えられている。さらに東京湾は夏季に成層構造が形成される。そのため、夏季に生成した有機物は Aby Lagoon, Guanabara Bay 同様底層へと輸送されている。以上のメカニズムにより一部の沿岸海域では CO<sub>2</sub> の吸収域として働いていることが報告されている。

現在世界人口の 40% は沿岸域で生活を行っている。今後、沿岸域に居住する人口は増加し、それに伴い下水整備された沿岸域が増加すると予想されている (UNESCO, 2017)。そのため、下水整備が進みつつある沿岸海域では CO<sub>2</sub> 収支に大きな変化が起こる可能性がある。本研究の対象海域である浜名湖は、流域人口に対する下水整備率は 80% 程度であり日本の政令指定都市の中では最低水準である。そのため、人為起源による有機物負荷を強く受けていると考えられる。また、浜名湖は夏季に湖中央部で成層構造が発達することが知られている (松田, 1995)。さらに、浜名湖が位置する浜松市は全国有数の年間日照時間であるため年

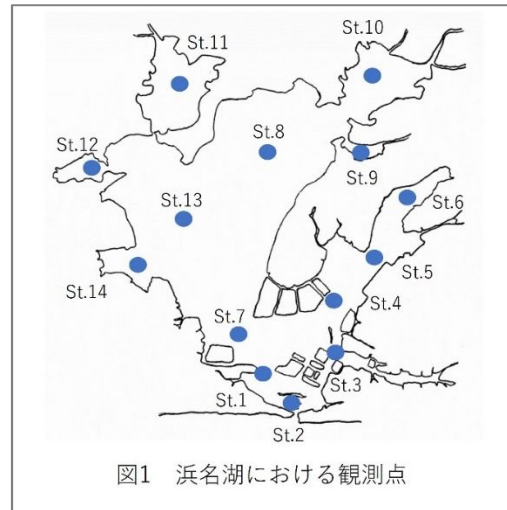
間を通して活発な生物活動が起こっている可能性がある。

## 2. 研究の目的

本研究で観測を行う浜名湖では人為起源の影響を受けつつも、活発な生物活動とその有機物を底層へと効率よく除去するメカニズムが備わっている。このような都市化が進みつつある海域における生物活動と下水処理場による有機物供給量について着目した CO<sub>2</sub> 収支研究例はこれまでにない。このような海域での継続した観測から CO<sub>2</sub> 収支を明らかにすることを目的として研究を行う。

## 3. 研究の方法

観測は静岡県水産試験場浜名湖分場調査船「はまな」に乗船し毎月一回行った。観測は 14 測点で行った (図 1)。pCO<sub>2</sub> の昼夜差を調べるため 2019 年 4 月から 2019 年 9 月まで昼間の観測の前日に測点 4 にて夜間の採水を行った。また、不定期に浜名湖流域河川でも観測を行った。すべての測点でバケツ採水により表面水を採取後、水温・塩分を測定した (EC300, YSI nanotech Inc.)。その後、サイフォンチューブを用いて気泡が入らないように全炭酸・アルカリ度用サンプルを 125 mL ガラスバイアル 1 本に採取した。採取後、飽和塩化水銀 ( ) 溶液を 150  $\mu$ L 加えアルミキャップで密閉した。全炭酸・アルカリ度用サンプルを採取後、残りの試水を 250 mL ポリエチレンボトルに採水した。採取した試料は、研究室に持ち帰りガラスファイバーフィルター (GF/F, Whatman, UK) で 150 mL ろ過を行った。フィルターは 6 mL の DMF を入れたポリプロピレン製チューブ (SARSTEDT, Germany) に入れ冷凍保存した (Suzuki and Ishimaru, 1990)。



全炭酸・アルカリ度濃度は全アルカリ度滴定装置 (ATT-15, Kimoto Denshi Co., Japan) を用いて測定した。アルカリ度・全炭酸濃度から CO<sub>2</sub>SYS (Lewis and Wallace, 1998) を使用し二酸化炭素分圧 (pCO<sub>2</sub>) を求めた。過剰溶存無機炭素 (ExcessDIC) は現場アルカリ度と大気 pCO<sub>2</sub> から、全炭酸濃度 (大気平衡時) を計算し、その後、現場全炭酸濃度から全炭酸濃度 (大気平衡時) を引いて求めた。クロロフィル *a* 濃度は蛍光光度計 (Trilogy, Turner Degins, Sunnyvale) を用いて測定した。

栄養塩類、全窒素、全リン、溶存酸素 (DO)、化学的酸素要求量 (COD) は静岡県が同観測時に採取している公共用水域データから得た。分析は日本工業規格に従った (JIS K0102:2013)。観測日の風速、気温、降水量、日照時間データは気象庁 Web ページの浜松市のデータを利用した。

## 4. 研究成果

浜名湖における pCO<sub>2</sub> は 29 ~ 1476  $\mu$ atm で変動していた。全ての測点において明瞭な季節変化が見られず、年間を通してほとんどが大気に対して未飽和だった (336 データ中 293 データ)。pCO<sub>2</sub> は測点 2 で 328  $\pm$  66  $\mu$ atm、測点 5 で 311  $\pm$  162  $\mu$ atm、測定 8 で 253  $\pm$  104  $\mu$ atm、測点 10 で 255  $\pm$  121  $\mu$ atm であった。平均では測点 3 が 353  $\pm$  88  $\mu$ atm で最も高く、測点 11 が 192  $\pm$  120  $\mu$ atm で最も低かった。pCO<sub>2</sub> は湖口付近の測点 1・2・3・7 や庄内湖に位置する

測点 4・5・6 で高い傾向があった。一方，2018 年 4 月に測点 6，8 月に測点 2・3，9 月に測点 4～6・8，10 月に測点 6，11 月に測点 5・6，2019 年 4 月に測点 5・10～12・14，7 月に測点 6 で 500  $\mu\text{atm}$  を越える過飽和となっていた。2018 年 4・9 月と 2019 年 7 月は観測日前 5 日間の合計降水量が非常に高く，降雨により陸域起源有機物の供給とその分解により大量の  $\text{CO}_2$  が生成した可能性が考えられる。また佐鳴湖湖心の表層における COD の年平均は  $8.2 \pm 0.8$  (平成 29 年度静岡県公共用水域データ) であり，浜名湖全測点と比べてかなり高い値であった ( $1.8 \pm 0.7$ )。そのため，測点 2～6 で  $\text{pCO}_2$  が過飽和となっていたのは，佐鳴湖からの有機物流入・分解による  $\text{CO}_2$  生成による可能性が考えられる。2019 年 4 月の測点 5・10～12・14 ではクロロフィル a 濃度が低く ( $1.32 \sim 3.51 \mu\text{g/L}$ )，DO 飽和度も未飽和だった ( $86.9 \sim 100\%$ )。そのため  $\text{pCO}_2$  が過飽和となったのは光合成による  $\text{CO}_2$  の消費量が少なかったためだと考えられる。

大気 - 海洋間の  $\text{CO}_2$  交換量は測点 2 で  $-0.20 \sim +0.20 \text{ mol/m}^2/\text{h}$ ，測点 5 で  $-0.40 \sim +0.58 \text{ mol/m}^2/\text{h}$ ，測点 8 で  $-0.55 \sim +0.21 \text{ mol/m}^2/\text{h}$ ，測点 10 で  $-0.53 \sim 0.21 \text{ mol/m}^2/\text{h}$  の範囲で変動していた。マイナスは浜名湖における  $\text{CO}_2$  吸収，プラスは大気への  $\text{CO}_2$  放出を示している。 $\text{CO}_2$  交換量は  $\text{pCO}_2$  同様に明瞭な季節変化が見られなかったが，風速が 4.0 m/s 以上と強かった 2017 年 12 月～2018 年 2 月や，降水量の多かった 2018 年 5・9 月，2019 年 7 月の観測ではほとんどの測点で高い  $\text{CO}_2$  交換量が見られた。浜名湖はほとんどの海域で  $\text{CO}_2$  の吸収域であり，全海域での年平均値は  $-0.13 \pm 0.20 \text{ mol/m}^2/\text{h}$  となっていた。

日変動の観測データは潮汐による塩分変化に伴うアルカリ度の変化を取り除くため，測点 4 の平均塩分である 27.6 に規格化したアルカリ度 (NTA) を算出した。NTA，全炭酸， $\text{pCO}_2$  の昼夜差はなかったため (t 検定;  $p > 0.1$ )，浜名湖における炭酸系パラメータの変動は小さいと考えられる。

全測点における  $\text{pCO}_2$  と塩分・クロロフィル a ではそれぞれ有意な相関関係は見られなかった (t 検定;  $p > 0.1$ )。一方， $\text{pCO}_2$  と DO 飽和度には有意な負の相関関係がみられた (t 検定;  $p < 0.001$ )。このことから，浜名湖の  $\text{pCO}_2$  と DO 濃度には大きく関係があると考えられる。すなわち，有機物の分解による  $\text{CO}_2$  生成と活発な生物活動による  $\text{CO}_2$  消費の影響を大きく受けていると考えられる。さらに，浜名湖の大部分では  $\text{pCO}_2$  が未飽和・多くの測点で DO 濃度が過飽和であったことから，活発な生物活動により大量の  $\text{CO}_2$  消費・DO 生成が起こっていると考えられる。

活発な生物活動による光合成，陸域起源有機物供給・分解の関係を明らかにするため，三次元プロットを作成した (図 2・3)。浜名湖における DO 飽和度は 90～110%，塩分は 25 以上，クロロフィル a 濃度は  $< 10 \mu\text{g/L}$  のものが多かった。これらの  $\text{pCO}_2$  は約 200～400  $\mu\text{atm}$  であり，全観測の 52% を占めていた (288 データ中 149 データ)。一方，中塩分の点も多く存在した (塩分 15～25) が塩分と  $\text{pCO}_2$  に明瞭な関係は見られなかった。中塩分域では極端に  $\text{pCO}_2$  が低い時 ( $< 200 \mu\text{atm}$ ) と高い時がみられた ( $> 400 \mu\text{atm}$ )。  $\text{pCO}_2$  が低い時は同様にクロロフィル a 濃度も高く最高 117.6  $\mu\text{g/L}$  であり，その時の  $\text{pCO}_2$  は 110  $\mu\text{atm}$  であった。一方， $\text{pCO}_2$  が高い時は主に 2018 年 9 月であり，降雨の影響を強く受けていたためだと考えられる。一般的に，降雨後の観測では濁度が高くなり，栄養塩が高濃度でも有光層が極端に浅くなるため生物活動が起こりにくい (e.g., Wondie *et al.*, 2007)。その結果，有機物分解による  $\text{CO}_2$  生成が上回り， $\text{pCO}_2$  が過飽和になっていると考えられる。また，通常時の河口域でも栄養塩濃度は高くても塩分が低く生物活性が低くなる (Costanzo *et al.*, 2003)。そのため，中塩分域で生物活性が高くなり  $\text{pCO}_2$  が極端に低くなっている可能性がある。

Excess DIC と見かけの酸素消費量 (AOU) の回帰直線は次のように求められた。

$$\text{【Excess DIC】} = (1.11 \pm 0.06) \times \text{【AOU】} - 47 \pm 3$$

Excess DIC と AOU の変化量 (直線の傾き)は 1.11 であった。傾き 1 の直線上にあれば、水域における全炭酸と酸素濃度の変化は植物プランクトンによる有機物生成 (光合成) と分解 (呼吸) によるものだと考えられる (Cotovicz *et al.*, 2015)。また、浜名湖では Excess DIC がマイナスであり、多くの測点で AOU が 0 に近かったことから活発な生物活動により CO<sub>2</sub> が消費されていると考えられた。しかし、回帰直線の切片が -47 ± 3 であったことから陸水からの Excess DIC かつ DO 飽和度が過飽和ではない水による供給が考えられる。炭酸カルシウムの溶解による全炭酸の供給も考えられる (Borges and Abril, 2011) が、本研究では炭酸カルシウム量の評価を行っていないため寄与の詳細は不明である。

pCO<sub>2</sub> とその他のパラメータ (DO 飽和度、クロロフィル a 濃度、塩分、水温、COD、日照時間、降水量)を用いて主成分分析を行った。測点 1・8・10 では pCO<sub>2</sub> と強い相関関係がみられた変数はなかった。それ以外の測点では pCO<sub>2</sub> と DO 飽和度に負の相関がみられた。これは、活発な生物活動による CO<sub>2</sub> 消費の効果であると考えられた。また、測点 2~4 に関しては、塩分と負の相関がみられたものの、測点 7, 11~14 においては塩分と正の相関がみられた。これは湖口付近の観測点においては塩分の低下に伴う陸域起源有機物の負荷量増加により、pCO<sub>2</sub> が増加していると考えられる。一方、奥まったところに位置する測点においては (測点 11~14)、元々中塩分であることが多く塩分が高まることにより生物活性が高くなり pCO<sub>2</sub> が低下していると考えられる。その結果、浜名湖の湖口付近と河口付近で塩分に対して逆の結果が得られた可能性がある。

pCO<sub>2</sub> は、測点 2~4 ではクロロフィル a 濃度と正の相関関係が、測点 5, 7, 11~14 では負の相関関係がみられた。さらに測点 2, 3 では降水量と正の相関がみられた。これは降水に伴う陸域起源有機物の供給量増加・分解による CO<sub>2</sub> 生成で説明することが出来る。また、測点 5, 7, 11~14 では COD と負の相関関係がみられたが、測点 2~4 では正の相関関係がみられた。これは測点 2~4 において陸域起源の有機物の分解や負荷による CO<sub>2</sub> 生成が活発に行われていることを示している。測点 2~4 に流入する佐鳴湖は COD が環境基準値を大きく上回っているため、この影響を強く受けていると考えられる。

以上の結果から、これまでに述べてきた通り、測点 2~4 では陸域起源による有機物の分解負荷による CO<sub>2</sub> 生成が行われているが、浜名湖全体における pCO<sub>2</sub> はそれを上回る活発な生物活動により CO<sub>2</sub> の吸収域として働いていると考えられる。

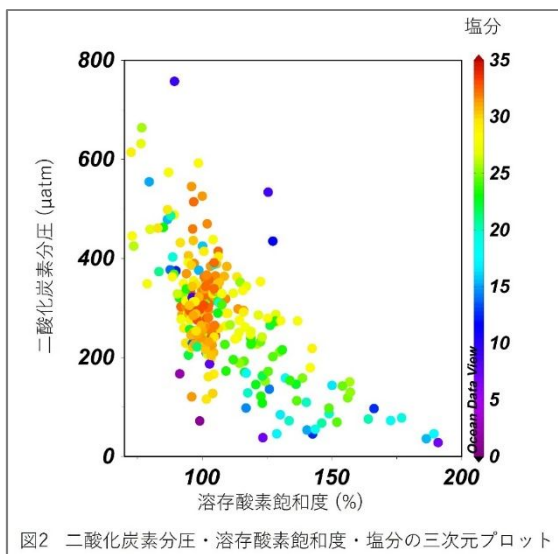


図2 二酸化炭素分圧・溶存酸素飽和度・塩分の三次元プロット

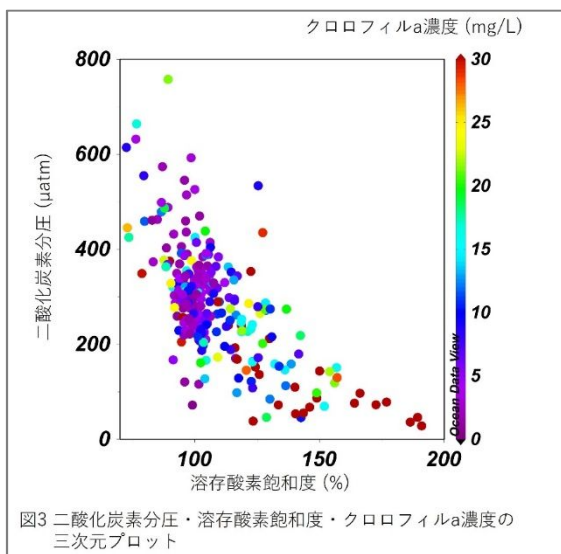


図3 二酸化炭素分圧・溶存酸素飽和度・クロロフィルa濃度の三次元プロット

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Kubo A, Imaizumi, R and Yamauchi S	4. 巻 27
2. 論文標題 Lake water phosphate reduction with advanced wastewater treatment in watershed, at Lake Hamana, Shizuoka Prefecture, Japan, from 1995 to 2016	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Environmental Science and Pollution Research	6. 最初と最後の頁 2120, 2130
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s11356-019-06947-5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Kubo A and Kanda J	4. 巻 10
2. 論文標題 Coastal urbanization alters carbon cycling in Tokyo Bay	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 20413
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-020-77385-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Kubo A and Yamahira N	4. 巻 27
2. 論文標題 Super typhoon induced high silica export from Arakawa River, Japan	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Environmental Science and Pollution Research	6. 最初と最後の頁 36838, 36844
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s11356-020-09634-y	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件／うち国際学会 0件）

1. 発表者名 吉田圭佑、鈴木慧、久保篤史、山内悟
2. 発表標題 浜名湖における二酸化炭素分圧の時空間変動
3. 学会等名 水環境学会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------