

湖沼における洗剤汚染の評価と予測について

国立公害研究所 ○天野耕二, 福島武彦, 中杉修身

1.はじめに

合成洗剤の主成分である界面活性剤は現在ではすべて易分解性であるとされているが、水生生物に対する毒性や他の有害物質との相互作用などの環境影響については多くの問題を残している。各種界面活性剤の濃度が全国で測定されているが、時間的にも空間的にも変動が大きく、現場におけるこれらの物質の運命を定式化することは容易ではない。本研究では、数多い界面活性剤の中で最も大量に生産・消費・排出されている直鎖アルキルベンゼンスルホン酸塩(LAS)を対象として、湖沼における合成洗剤による汚染状況を評価・予測する手法について検討する。

2.調査方法と調査水域

日本国内の28の湖沼において水および底質中のLASの分布状況を各湖沼で1度調査し、特にLASによる汚染の激しい手賀沼において定期的な観測(月1回)を1年間行った。各湖沼とも原則として主要な流入河川の河口に近い上流地点と湖心で調査し、手賀沼では定期観測以外に河口と湖心を結ぶ流下方向の複数地点における調査を2回(2月,8月)行った。底質は深さ2cmごとにスライスして各層の吸着LAS濃度をHPLCにより同族体・異性体別に測定したが、本研究では、C₁₁~C₁₄同族体の合計をLAS濃度データとして以後の解析に用いた。調査した28湖沼80地点の内、底質中にLASが検出され、流域人口などのデータが整備されている13湖沼22地点を解析の対象とした。Table1に各湖沼の主要な諸元とLAS濃度の調査結果を示す。手賀沼のLAS濃度は1年間12回(月1回)の平均値である。

Table1 Characteristics and survey results of 13 lakes

DATE	LAKE(symbol)	AREA OF LAKE km ²	POPULATION DENSITY cpt/km ²	STATION	TRAVELING TIME day	LAS IN dissolved mg l ⁻¹	WATER particulate μg g ⁻¹	LAS IN SEDIMENT μg g ⁻¹
86.9.24	IMBANUMA(IB)	11.55	1035	e	1.2	0.001<	0.1<	2.0
87.4-88.3	TEGANUMA(TG)	6.50	2453	e	2.6	0.281 *	909.2 *	226.4 *
				c	15.3	0.011 *	60.2 *	0.7 *
86.10.7	SUWAKO(SW)			c	17.0	0.001<	0.1<	0.2
				e	2.5	0.001<	0.1<	3.1
86.10.8	ABURAGAFUCHI(AR)	0.64	1289	e	0.9	0.021	89.6	27.0
				c	4.5	0.009	151.2	5.9
86.10.8	SANARUKO(SR)	1.21	2717	e	6.6	0.001<	0.1<	4.9
				c	11.0	0.001<	0.1<	2.3
86.11.6	KAHOKUGATA(KH)	6.05	339	e1	1.7	0.015	178.1	8.2
				e2	5.2	0.003	75.1	0.2
86.11.6	KIBAGATA(KB)	1.14	467	e	0.8	0.034	431.0	17.7
86.11.7	SHIBAYAMAGATA(SB)	1.85	315	e	0.4	0.006	99.5	5.1
87.4.13	KOJIMAKO(KJ)	10.88	900	e1	6.6	0.004	84.4	1.6
				e2	6.6	0.001<	0.1<	0.3
87.4.14	TOGOIKE(TO)	4.08	168	e	2.2	0.002	118.5	0.0
87.10.5	HARUTORIKO(HR)	0.38	3880	e1	7.3	0.001<	0.1<	31.6
				e2	7.3	0.001<	0.1<	84.2
87.10.29	IZUNUMA(IZ)	2.89	250	e	1.8	0.027	55.6	2.9
88.3.24	TOYANOGATA(TY)	1.62	1834	e1	0.3	0.146	901.5	95.5
				e2	0.3	0.197	1415.3	176.0
				e3	0.3	0.217	1304.8	371.6

c: center e: estuary

*: average in 1 year

3.底質中LAS濃度の代表性と水中濃度との関係

手賀沼上流地点の1年間の調査結果を用いて、水中LAS濃度と底質中濃度(0~2cmの測定値と0~8cmの4層の平均値)の関係をFig.1に示す。水中のLAS濃度は検出限界以下(<0.001mg/l)から1mg/l程度まで3~4オーダーの幅で季節変動を示したが、底質中の濃度は数倍程度の変動幅しかなかった。底質深さ0~8cmの平均濃度は水中濃度の変動の

影響を若干受ける表層(0~2cm)濃度よりも安定していたが、年間平均値は0~2cmと0~8cmでは1%程度の差だった。手賀沼における年間平均値に全国湖沼の測定値も加えて、底質中LAS濃度の0~2cm値と0~8cm値の関係をFig.2に示す。全国湖沼の測定値は調査時期(春期あるいは秋期)から考えて年間平均に近いものと推定され、0~2cm値と0~8cm値はほぼ一致している。厳密には、底質データの鉛直方向の代表性については泥の積もり方や堆積後の鉛直混合、対象物質の分解の状況を考慮する必要がある。しかし、LASは水中濃度の季節変動が非常に大きく、表層付近の底質中濃度もその影響を受けることから、底質深さ0~8cmの平均値を用いることによって、季節変動とは無関係に水および底質におけるLAS汚染の状況が評価できると考える。

水中LAS濃度と底質(0~8cm)中LAS濃度の関係を、手賀沼上流地点(1年間,12回)、手賀沼湖心(1年間,12回)、手賀沼流下方向(冬期10地点)、および他の全国湖沼(11地点)の4グループに分けてFig.3に示す。底質データは季節的に安定しているため、手賀沼の河口(●)と湖心(○)の季節変動は図中の点線で描いたような水平の直線上にあり、流下方向の各途中地点における季節変動もこれらの直線を平行移動した状態で表わし得ることが予想される。流下方向のデータ(△)は各地点における水中濃度の年間最大値(一般に水中LAS濃度は冬期が最も高い)の集合と考えられるが、これらの点を回帰した直線(A)の傾きは、全国湖沼のデータ(□)による回帰直線(B)の傾きと異なった。調査時期から考えて全国湖沼の水中LAS濃度は年間平均に近い値であると推定され、水中LAS濃度からみた年間最大値グループ(△)と平均値(□)グループでは水/底質関係が異なっていると考えられる。しかし、それぞれのグループにおける高濃度側から低濃度側への分布については、手賀沼(△)は主に流下時間の違いによるものであるが、全国湖沼(□)の場合は地点ごとの流下時間に加えて湖沼ごとの流入濃度の違いも関係していると考えられる。

4. 湖内のLAS濃度の流下方向の変化

ここでは、湖内の流下方向の水および底質中のLAS濃度の変化について考察する。手賀沼の冬期(2月)と夏期(8月)における流下方向途中地点(河口・湖心を含めて10地点)の水中LAS濃度(懸濁物吸着態)と底質(0~8cm)LAS濃度を河口からの流下時間を横軸としてFig.4に示す。水中のLASは冬ではゆっくりとした生分解と底質への移行(沈降と拡散)により漸減し、夏では急激な生分解により湖心に到る前に消失している。底質LASの流下方向の変化のパターンは水質変化パターンの季節変動の間にある。河口から湖心にかけて流れが定常であることを仮定して、この流下方向の変化を一次反応にあてはめると、

$$C = C_0 \exp(-r_1 T) \quad (1)$$

$$S = S_0 \exp(-r_2 T) \quad (2)$$

C : 水中濃度, C_0 : 河口における水中濃度, r_1 : 水中濃度の減少速度定数

S : 底質中濃度, S_0 : 河口における底質中濃度, r_2 : 底質中濃度の減少速度定数

T : 河口からの流下時間

という式となる。河口からの流下時間を変数とした減少速度定数は最小自乗法により計算され、 r_1 (水中)が0.19(冬)

~1.45(夏)で、 r_2 (底質中)が0.49(冬)~0.67(夏)となった。このように、流下方向の変化の大きさが水中LASでは季節

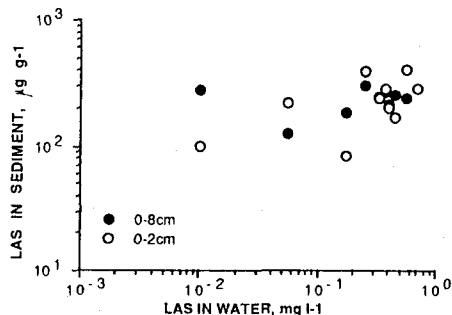


Fig.1 Relationship between LAS in water and sediment

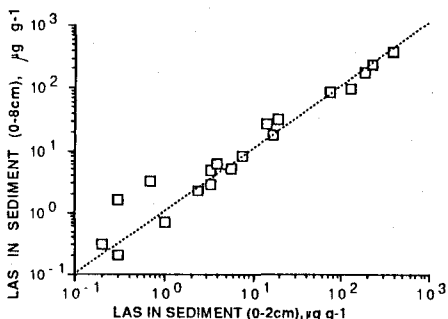


Fig.2 Relationships between LAS in 0-2cm and 0-8cm sediment

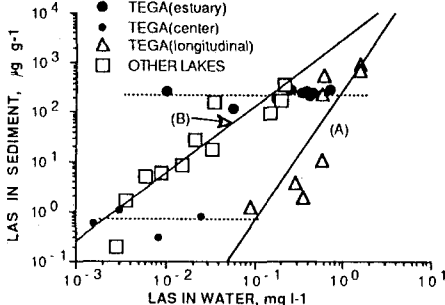


Fig.3 Relationships between LAS in water and sediment

により変動するのに対して、底質LASの流下方向の変化の大きさが年間で安定していることも水/底質関係が水質の最大値グループ(冬期)と平均値(春・秋)グループで異なる原因のひとつと考えられる。

5. 河口における水中LAS濃度の評価と予測

全国湖沼のデータ(手賀沼は年間平均値)を用いて、底質(0~8cm)

LAS濃度と河口からの流下時間の関係をFig. 5に示す。上流地点と湖心の両方にデータのある湖沼(TG, SR, AR, SW)では流下方向の濃度の減少と流下時間の関係が確認されたが、河口における濃度(流下時間がゼロのときの値)が湖沼により違うことが予想された。そこで、流域特性から予測した「河口(流域の終点)における水中LAS濃度(予測値A)」と、流下方向の減少や水/底質関係に関する知見を用いて湖沼底質中のLAS濃度からさかのぼって予測した

「河口(湖内流下時間の起点)における水中LAS濃度(予測値B)」を比較する事によって、流域特性から湖沼の水および底質中LAS濃度を予測する手法の検証を行なう。予測手法を単純化するために以下のような仮定をおく。1) LASの排出原単位は一定で、発生源は流域内に一様に分布し、LASは河川を通して一様に湖沼へと流入する。2) 河口に到るまでの減少(分解や吸着)は流域面積の平方根に従った一次反応で表される。3) 河口から湖心までの流れは定常で湖内のLAS濃度は流下時間を変数とする一次反応で流下方向に減少する。4) 季節変動は考慮せず、年間平均値を対象とする。

仮定1)、2)および4)より、予測値Aは排出原単位、流域人口、降水量から予測した総流入水量および流域面積から計算される。LASの排出原単位はMBASに関するこれまでの報告から推定し1g capita'dとした。また流域内のLASの減少を評価するパラメータは手賀沼流入河川(大堀川、大津川)の年間の測定値から推定した。仮定3)および4)より、予測値Bは底質LAS濃度、流下時間、流下方向の減少速度定数、水/底質の濃度関係式から計算される。全国湖沼の中には塩分濃度の比較的高い汽水湖もあるため、海水による希釈の効果を湖水中のナトリウムイオン濃度から推定した。また、流下方向の減少速度と水/底質の濃度関係式は手賀沼および全国湖沼の調査結果から年間平均値を推定した。予測値Aと予測値Bの関係をFig. 6に示す。同じ湖沼で予測値Bの値が2通りある場合は、上流地点と湖心の濃度から別々に予測した値が異なったためである。全体として、流域からの予測値と湖沼底質からの予測値はよく合っているが、いくつかの湖沼では仮定1)~4)で切り捨てた情報が重大な環境要因となっているために予測結果にばらつきが生じたものと考えられる。

6. おわりに

水中濃度の変動が大きい界面活性剤(LAS)による汚染状況について時間的に平均した評価を行なう際に、ある程度の厚み(例えば0~8cm)をもった底質中のLAS濃度が有用であることがわかった。さらに、底質中のLAS濃度が主に流域からの流入負荷量と湖内での流下方向の変化の大きさと説明できると考え、全国湖沼の河口における水中LAS濃度の予測値を計算することによってこの考え方を検証した。湖沼における洗剤汚染状況の一次近似的な予測を簡易な方法で行なうには、このような因果関係を単純化して統計モデル的な概念を導入することも考えられる。

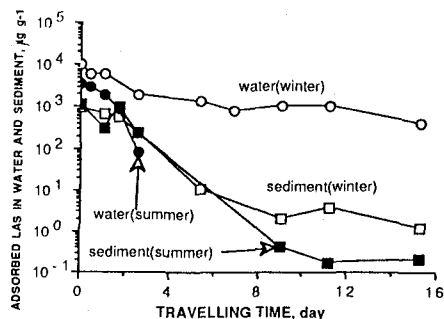


Fig. 4 Longitudinal changes of LAS in Lake Teganuma

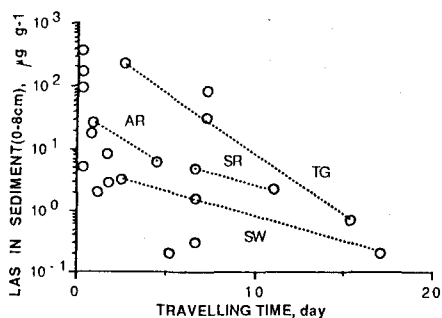


Fig. 5 Relationship between LAS in sediment and residence time

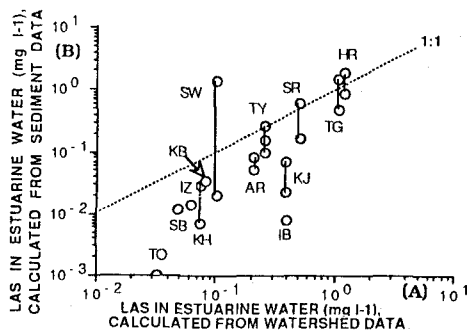


Fig. 6 Calculation results of LAS in estuarine water