

B-30 湖山池水質浄化対策確認調査（EDTA 追跡調査）

鳥取県衛生環境研究所 ○南條吉之

1 はじめに

全国各地の富栄養化した湖沼では、アオコの増殖により景観の悪化、カビ臭問題^{1,2)}、有害藍藻問題³⁾など環境質の低下をきたしている。全国湖沼の環境基準達成率⁴⁾は1979年度には41.8%であったが、2003年には55.2%であり、河川の65.0%から87.5%の達成率に比べ改善されていないのが現状である。海域を含めた全体で見ると、66.7%から83.8%であり、特に閉鎖性の強い湖沼に問題がある。そこで、湖山池では、化学的水質分析と共に湖山池湖水と湖山池より分離単藻化したアオコを用いて藻類増殖試験⁵⁾(AGP試験)を行い、アオコ増殖の第一制限物質はEDTA様物質であることを明らかにしてきた。

平成13年度からは機会を捉えてEDTA様物質の削減を訴えるとともに平成14年度にはパンフレットを作成し湖山池流域全戸に配布し実践への啓発を行ってきた。平成16年度は、そのEDTA様物質量を錯化容量(キレート物質量)で表し、その削減施策効果判定を行った。

2 実験方法

1) 錯化容量の測定条件

銅イオン選択電極（東亜電波社製イオンメーター IM-55 銅イオン選択電極 Cu-125）を用いた滴定法により測定した。電極に光が当たることにより、指示値が不安定となることから、電極に覆いをして暗条件で測定した。銅イオン選択電極の使用における最適 pH 範囲は、取り扱い説明書によると 3～6、白井ら⁶によると 4.5～6.0、箕浦ら⁷によると 4～6.5 と述べられている。自然水をそのまま測定することが望ましいが、これらの最適 pH を考慮して 6.0 の設定し、水温は 25.0 ± 0.1 °C で測定した。試水は GF/C でろ過後測定に供した。

2) 測定方法

試験溶液100mlをビーカーに取りpH緩衝剤としてMES(Morpholinoethanesulfonic acid monohydrate)を0.1g添加後、NaOHを用いてpHを6.0に調整し、イオン強度調整剤10mlを添加し、0.629mM Cu(NO₃)₂(Cuとして40mg/l)水溶液を0.5mlから5mlの範囲で滴下しそれぞれ3分後の値を読み測定値とした。

3) 錯化容量の算出方法

箕浦らの方法で算出した。自然水中に、互いに独立なm種類の配位子 L_i がそれぞれ濃度 $[L_i]$ で存在すると仮定すると、マスバランスから全金属濃度 TM 、各配位子 N_i は

$$TM = [M] + \sum [MLi] \quad \dots \quad 1$$

$$Ni = [Li] + [MLi] \quad \dots \dots \dots \quad 2$$

$$K_i = [ML_i] / ([M] * [Li]) \quad \dots \quad 3$$

[MLi] は配位子と結合したそれぞれの金属濃度、[M] はフリーの金属濃度である。それぞれの配位子の錯形成安定度定数 K_i は次のようにになる。式 3 により式 1 を変形すると

$$(TM - [M]) = \sum (Ki * [M]) / (1+Ki) * [M] \quad \dots 4$$

Lが1種類の場合は

となる。

横軸に $(TM - [M])$ 、縦軸に $(TM - [M]) \wedge [M]$ をとると直線が得られる。

Scatchard プロットと呼ばれるこの直線の傾きと切片から、安定度定数 (K) と配位子の全濃度 (N) を求めることができる。

自然水の様な場合には、多様な配位子が複数種存在し、Scatchard プロットは下に凹型の曲線を描く。1 次近似で互いに独立な 2 種の配位子（強い配位子と弱い配位子）が存在するという 2 サイトモデルを仮定すると、2 つの直線部分に分割され、それぞれの濃

度と安定度定数が求められる。自然系はマルチサイトであるが、ここでは箕浦らの2サイトモデルを使用した。その結果、2サイトの時と1サイトの時があった。

4) DOCの測定方法

採水後、研究所へ持ち帰り、GF/C濾紙でろ過し、ろ液を島津社製TOC5000で測定した。

3 結果と考察

湖山池湖水及び流入河川水の錯化容量とDOCを測定し、その結果を図1に示した。今まで言われているように⁽⁸⁾⁽⁹⁾錯化容量=0.858(DOC)+0.27(n=81, r=0.832)となり、錯化容量とDOCの間に良い相関のあることが明らかになった。そこで、DOCを用いて削減策効果を判定することとした。湖山池のDOCは、平成5年度より毎月測定しており、その結果を図2に示す。平成6年度に最高値を示し、その後漸減し、平成7年度～平成9年度は低値で推移しているが、平成10年度以降さらに低値で推移した。

特に平成14年～16年は低値で推移しており、表1に示したように汚水処理施設接続人口の増加及び水田の減反率の増加が反映しているものと考えられる。汚水処理施設は、家庭排水中に含まれるEDTA様物質を分解することから、図3に汚水処理施設接続人口の推移を図示した。平成5年度は114人であったが、平成15年度には2840人に増加しているが、平成16年度には2834人と微減している。また、水田の基肥にもEDTA様物質が混入していることから、減反率の推移を図4に示した。湖山池流域の減反率が無いので鳥取市(旧鳥取市)の減反率を使用した。平成5年度に27.8%であったが、平成10年度には40.8%となり、その後漸増し、平成15年度には42.5%に達し、16年度には41.0%と微減した。

水田の減反率と下水処理場接続人口を説明変数に、湖山池湖心上層水のDOCを目的変数にして重回帰分析を行った。平成5年度～12年度のデータを基に分析すると次式が得られた。

$$Y = 4.88498 - 0.00011X_1 - 0.06616X_2$$

(Y:DOC X₁:汚水処理施設接続人口 X₂:水田の減反率)

平成13年度～16年度はこの式を使用して計算し理論値とした。その結果を図5に示す。平成6年度が理論値、実測値共に最高値を示し、その後減少している。これは平成6年度の減反率が最低であったことを反映しているもの

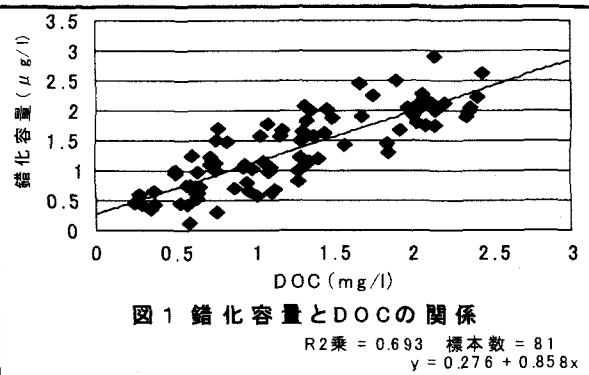


図1 錯化容量とDOCの関係

$$R^2 = 0.693 \quad \text{標本数} = 81 \\ y = 0.276 + 0.858x$$

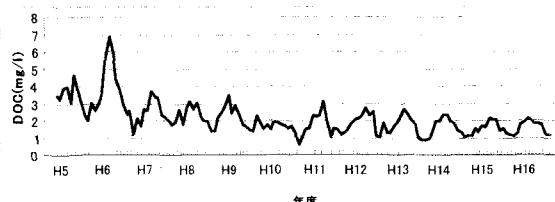


図2 DOCの推移

表1 水田の減反率と汚水処理施設接続人口の推移

	水田の減反率	汚水処理施設接続人口	湖山池湖心上層のDOC
H5	27.8	114	3.24
H6	19.9	356	3.88
H7	25.8	856	2.76
H8	30.6	950	2.34
H9	34.2	1279	2.31
H10	40.8	1798	2.09
H11	41.3	2330	2.05
H12	41.9	2573	1.90
H13	41.1	2797	1.72
H14	42.1	2736	1.63
H15	42.5	2840	1.64
H16	41.0	2834	1.67

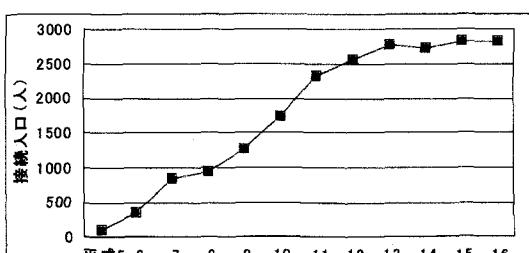


図3 汚水処理施設接続人口の推移

と考えられる。その後、平成7年度～9年度にかけて観測値が下回っていたが、その後の平成10年度～12年度は観測値が理論値を上回っていた。平成13年度から16年度にかけて、4年間連続して実測値が下回った。平成13年度から各種の会合などに出向き、EDTA様物質の削減について説明すると共に、平成14年度にはパンフレット（タイトル：湖山池からアオコをなくそう）を作成し、湖山池流域全戸に配布しアオコ削減の啓蒙を行った。この期間と一致し、施策効果のあったものと考えられる。

4まとめ

EDTA様物質の発生源として、明らかになっているものに、水田の基肥肥料と家庭用洗剤がある。家庭用洗剤は下水処理場において錯化容量（キレート能）が激減することと、水田に使用される基肥肥料にEDTA様物質が使用されていることから、水田の減反率と汚水処理施設接続人口を説明変数に、湖水のDOCを目的変数に重回帰分析を行った。その結果、平成10年度～12年度は観測値の方が高く、13年度からは4年間連続して低く推移している。これは、洗剤の適正使用及び水田等への施肥量の削減（側条施肥や苗箱全量施肥の推進、有機農業の普及）の削減施策効果の現れと考えられる。

行政施策への提言としては、今後も継続して錯化容量（キレート物質量）削減への啓発を行ってもらいたい。このことにより湖山池のアオコの発生頻度は確実に減少するものと考えられる。

謝辞

この調査研究を遂行するに当たり、鳥取市の減反率、汚水処理施設接続人口を快く提供して頂いた鳥取市下水環境部管理課、農林部農業振興課の皆様に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 八木正一(1989) 植物プランクトンによる異臭の実態、用水と廃水,31,859-867.
- 2) 佐藤敦久、真柄泰基(1996) 上水道における藻類障害,pp12-13,技報堂出版、東京.
- 3) 渡辺真理利代、原田健一、藤木博太(1994) アオコその出現と毒素,pp55-68 東京大学出版会、東京.
- 4) 環境省環境管理局(2004) 平成15年度公共用水域水質測定結果,
- 5) 須藤隆一、田井慎吾、矢木修身、岡田光正、細身正明、山根敦子(1981) 藻類培養試験法によるAGPの測定、国立公害研究所報,26,3-14.
- 6) 白井恵治、岸野拓男、東俊雄、進藤晴夫、丸本卓哉(1993) 湖沼堆積物中から抽出されたフルボ酸のXAD樹脂吸着による分画錯化能力、水環境学会誌,16,10,690-695.
- 7) 箕浦加穂、福島和夫(1988) 銅滴定-イオン選択電極法による河川水の錯体形成能力の評価、地球科学,22,47-54.
- 8) 小林節子、西村肇(1988) 富栄養湖の金属錯化容量、水質汚濁研究,11,647-653.
- 9) 南條吉之、道上隆文(1999) 藻類の増殖とDOC、錯化容量との関係について、衛生研究所報、第39号。

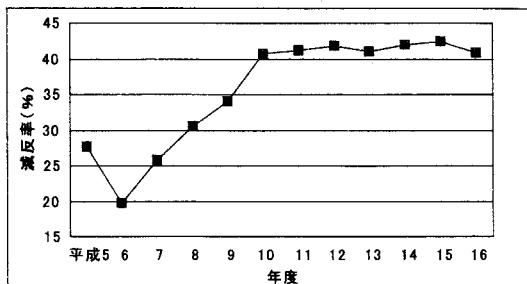


図4 減反率の推移

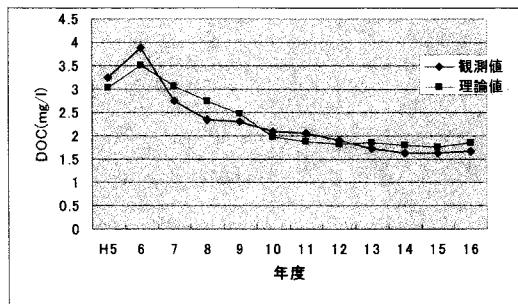


図5 重回帰分析結果