

琵琶湖北湖における難分解性溶存有機物の 発生源の推定に関する研究 ～CODの月別変動に着目して～

井手慎司¹・李理史²

¹滋賀県立大学 助教授 環境科学部環境計画学科 (〒522-8533 滋賀県彦根市八坂町 2500)

E-mail : ide@ses.usp.ac.jp

²応用技術株式会社 (〒531-0074 大阪市北区本庄東 1-1-10 RISE88)

本研究では、琵琶湖北湖湖水中で近年、濃度上昇が続いている難分解性溶存有機物について、同物質が集水域で発生して湖に流入しているとの仮定に基づき、北湖における同物質の物質収支等から、集水域における同物質の主要な発生源の特定を試みた。その結果、難分解性溶存有機物の 40%が「山林・その他」から、21%が「水田」、19%が「産業系」から北湖へ流入しているとの推計結果を得た。

Key Words : Lake Biwa, nonbiodegradable dissolved organic matters, source determination

1. 研究の背景と目的

近年、琵琶湖北湖（以下「北湖」）では BOD 濃度がほぼ一定あるいは低下傾向にあるにも拘わらず、COD 濃度のみが上昇を続けている（図-1 参照）。北湖における COD 濃度上昇の原因とされているのが、BOD 試験では測定されない、つまり“生物にとって”分解されにくい「難分解性溶存有機物」（以下「NBDOMs」）量の湖水中での増加である。

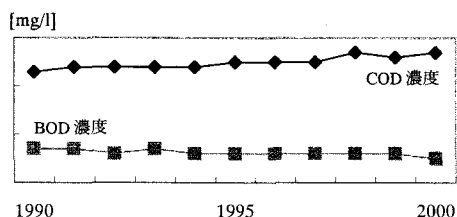


図-1 琵琶湖北湖における BOD と COD 濃度の推移¹⁾

本研究における NBDOMs の定義としては、滋賀県が使用している「90 日間の生物分解後に残存す

る、生物にとって難分解性な溶存有機物質²⁾との定義をそのまま用いる。

湖水中における NBDOMs の増加は、北湖だけの問題ではない。霞ヶ浦や十和田湖などの他の湖沼でも報告されている³⁾。NBDOMs は、浄水処理過程の塩素殺菌処理において生成する発がん性物質トリハロメタンの前駆物質であることから、削減のための対策が急がれている。

北湖における NBDOMs の主要な発生源は未だに明らかになっていない。仮説としては大きく「内部生産説」と「外部由来説」の 2 つに分かれるが、少なくとも琵琶湖については、どちらが主要な要因かの決着がついていない。しかし、湖水中におけるクロロフィル *a* 濃度の上昇がみられないことから、植物プランクトンによる内部生産量の増加が原因であるとは考えにくい。また、湖水中と流入河川中の溶存有機物のクロマトパターンが似ていることが報告されており³⁾、集水域（外部）で発生したものが北湖に流入している可能性が高い。

図-1 の COD 濃度は、北湖にある滋賀県水質測定局 28 地点それぞれの水深 0.5 m における年平均

COD 濃度の北湖全体での平均をとったものであるが、この COD 濃度の変化を月別に、さらに湖水鉛直方向の濃度勾配も考慮に入れ、北湖湖水全体における平均 COD 濃度（以下、単に「COD 濃度」と呼ぶ）として、より詳細に見たものが図-2 である。

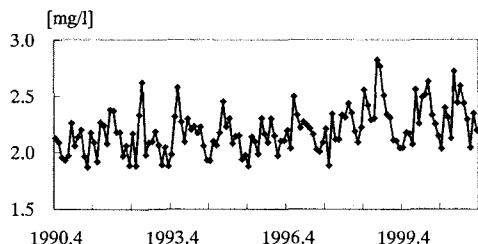


図-2 北湖湖水中における COD 濃度の月変動¹⁾

図-2 より、北湖湖水全体においても COD 濃度が間違いなく上昇していること、また、濃度の月変動がかなり大きなものであることがわかる。

本研究では、北湖湖水中の COD 濃度の上昇と月変動に着目して、北湖集水域から北湖に流入する NBDOMs の月別流入速度と北湖湖水中の同物質濃度の月変動との推計から、北湖における NBDOMs の主要な発生源の推定を試みる。これによって、北湖における同物質の削減に向けた政策決定に貢献できるものと考えている。

2. 研究の方法

研究の方法としては、図-3 に示す 3 つの STEP から発生源の推定を試みる。まず STEP 1 では、

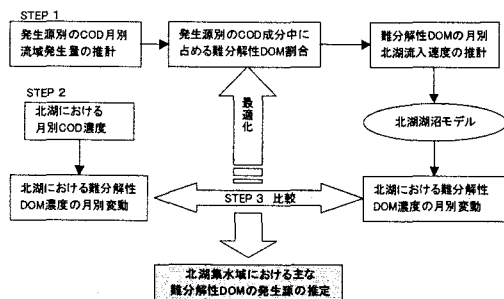


図-3 研究のフロー

① 北湖集水域からの月別 COD 流入量を、原単位やフレーム値、月変動パターンを用いて発生源別に推計する。

② 発生源別の COD 成分中に占める NBDOMs の割合（以下「NB 比」）と①から、北湖に流入する NBDOMs の月別流入速度を求める。

③ ②の値を北湖の物質収支モデルに入力し、北湖における NBDOMs 濃度の月変動をシミュレーションする。

次に STEP 2 では、北湖湖水中における COD 濃度の月データと湖水の NB 比から、北湖における NBDOMs 濃度の月変動を推計する。

最後に STEP 3 で、STEP 1 と STEP 2 でそれぞれ求めた北湖における NBDOMs 濃度の月変動を比較し、両者の値を一致させるように、発生源別の NB 比の一部を最適化する。最適化の結果から、北湖への NBDOMs の全流入速度に占める各発生源の寄与率を求め、北湖集水域における主要な NBDOMs の発生源を推定する。

3. NBDOMs の月別流入速度推計

(1) NBDOMs 流入速度の推計方法

滋賀県では「琵琶湖に係わる湖沼水質保全計画」^{4) 5) 6)}（以下「湖沼計画」）において、琵琶湖集水域における汚濁負荷発生源を表-1 のように分類している。

本研究では、NBDOMs の北湖への流入速度の推計に表-1 に示す 4 次湖沼計画（2000 年度）の COD 流入原単位および 2, 3, 4 次湖沼計画の北湖流域フレーム値を使用する。ただし、「下水道」「し尿処理」「産業系」については原単位を使用せず、排出 COD 濃度と排水量の実測値に基づき県が報告している表()内の COD 流入負荷量を用いる。なお本研究の対象期間は 2 次湖沼計画の 1900 年から 4 次の 2000 年までとし、計画年以外の年のフレーム値や「下水道」「し尿処理」「産業系」の COD 流入負荷量については 2 次多項式による補間によって求めた値を使用する。

北湖への NBDOMs 流入速度は、上述の COD 流入原単位にフレーム値を掛け合わせて求める 1 日当たりの流入 COD 負荷量に、さらに、後述する NB 比を乗じて求める。一例として、2000 年度における「宅地・道路」から北湖への NBDOMs の流入速度の計算方法を示すと以下ようになる。

$$144.0 \text{ [g/ha・日]} \times 31641 \text{ [ha]} \times 51.0 \text{ [%]} \times 1/10^3 \text{ [kg/g]} = 2323.7 \text{ [kg/日]}$$

表-1 COD 流入原単位と北湖流域フレーム値^{4) 5) 6)}

汚濁負荷発生源		原単位		フレーム値 (COD 流入負荷量 [kg/日])			NB 比 ¹⁾					
		単位	4 次 計画	単位	2 次計画 1990 年度	3 次計画 1995 年		4 次計画 2000 年				
生活系	下水道	—	—	人	(1)	(65)	27378 (230)	98.0 %*				
	し尿処理 (し尿分)	—	—		454248 (67)	370392 (52)	225641 (33)	98.0 %*				
	農村下水道	g/人・日	4.4		23493	60672	92921	18.9%				
	合併浄化槽		7.3		58637	83420	123930	11.4%				
	単独浄化槽 (し尿分)		6.1		113071	99719	93949	2.3%				
	農地還元 (し尿分)		1.0		88319	67311	12644	0%				
	雑排水 ¹⁾		19.2		655638	537422	332234	2.1%				
	宿泊観光客		6.2	3828 **	4200 **	4966	11.4%					
日帰り観光客	1.8		50854 **	55802 **	65979	11.4%						
産業系		—	—	—	(8810)	(8897)	(5111)	—				
系 畜産	牛	g/頭・日	53.0	頭	26909	25552	22328	0%				
	豚	18.2	14877		11751	9539	0%					
	鶏	g/羽・日	0.3		羽	941460	914093	870790	0%			
土地利用系	水田 (灌漑期)	g/ha・日	171.8	ha	43387	41684	39943	98.0%*				
	水田 (非灌漑期)		79.8		2471	2396	2256	98.0 %'				
	畑		62.0									
	ゴルフ場		62.0						2219	2444	2664	—
	宅地・道路		144.0						27864	29591	31641	51.0 %'
	山林・その他		47.0						205701	205527	205142	—
	湖面降雨		80.2						61600	61600	61600	38.5 %'

i) NB 比は筆者が設定したものである。ii) 雑排水のフレーム値は、し尿処理・単独浄化槽・農地還元値の合計である。

* これらの NB 比は表-2 に基づいている (その他の NB 比の設定根拠は表-4 参照)。** 2, 3 次湖沼計画の観光客フレーム値は、それぞれの計画で報告されていた観光客の合計値に、4 次計画の宿泊と日帰り観光客の比率を乗じて求めた。

(2) NB 比の推定

本研究では、表-2 に示す滋賀県が実施した 2 つの暗条件下における生物分解実験の結果を発生源別の COD 成分中に占める NBDOMs の割合 (NB 比) を設定する根拠とする。

表-2 暗条件下における各試水の生物分解実験^{2) 7)}

試水	D-COD 測定値 [mg/l]		残存率
	00 日目	90 日目	
下水道処理水 ²⁾	4.60	4.50	98%
農業排水 ²⁾	5.70	5.60	98%
北湖湖水 ²⁾	1.81	1.37	76%
市街地排水 ⁷⁾ (出水開始 15 分後)	10.0	5.1	51.0%
雨水 ⁷⁾ (降雨開始～2 時間後)	1.3	0.5	38.5%

* 市街地排水と雨水に関しては D-TOC の 100 日後の残存率。

表-1 の NB 比のうち*印のものは表-2 の結果を直接その設定根拠としている。しかし県の生物分解実験はすべての発生源からの試水に対して実施されているわけではない。そのため一部の NB 比については推定する必要がある。そこで、生活系の雑排水とし尿に由来するであろう NBDOMs の流入原単位について先ず考えてみる。

たとえば下水道については、表-3 に示すように、2000 年度の COD 流入負荷量に処理水の NB 比をかけ、それを同年のフレーム値で割ることによって下水道経由で琵琶湖に流入する NBDOMs の流入原単

位を計算することができる。この原単位は生物学的処理を受けた雑排水とし尿に関する流入原単位であると考えることができる。

同様の考え方で、し尿処理に関するデータからし尿に関する流入原単位を計算することができる (表-3)。単純化して考えれば、し尿と雑排水に関する流入原単位の値からし尿に関する値を差し引いたものが、雑排水に関する NBDOMs 流入原単位となる (表-3)。

表-3 生活系 NBDOMs 流入原単位計算表

2000 年度	COD 流入 負荷量 [kg/日]	NB 比	フレーム 値 [人]	NBDOMs 流入 原単位 [g/人・日]
下水道 (し尿+雑排水)	230	98%	272378	0.83
し尿処理 (し尿)	33	98%	225641	0.14
雑排水				0.69

最後に、上で求めた生活系排水に関する NBDOMs 流入原単位をそれぞれの COD 流入原単位で割ることによって各発生源から湖に流入する COD 成分中に占める NBDOMs の割合 (NB 比) を求めることができる (表-4)。ただし、表-4 の NB 比は、処理水中に存在する NBDOMs の実際の割合を表すものではない。COD 流入原単位と乗じてはじめて意味をもつ値と考えるべきである。

表-4 NB比計算表

	NBDOMs 流入 原単位 [g/人・日]	COD 流入 原単位 [g/人・日]	NB 比
農村下水道(し尿+雑排水)	0.83	4.4	18.9%
合併浄化槽(し尿+雑排水)	0.83	7.3	11.4%
単独浄化槽(し尿)	0.14	6.1	2.3%
雑排水	0.69	19.2	2.1%
観光客(宿泊・日帰り)	—	—	11.4%*

*観光客については、湖沼計画と同様に合併浄化槽と同じ原単位を使用する。

また、農地還元(し尿分)と畜産系(牛、豚、鶏)については、NB比を0とおく。これは、畜産から発生する糞尿のほとんどが滋賀県では農地還元されていること、NBDOMsは水中では分解されにくいものの、土壌中では吸着や土壌細菌の働きによってかなりの部分が除去されることがわかっているためである⁸⁾。

なお「産業系」「ゴルフ場」「山林・その他」についてはNB比を設定できるだけのデータが不足していたために、後述するように最適化の対象として、湖水中のNBDOMsの物質収支から求めていく。

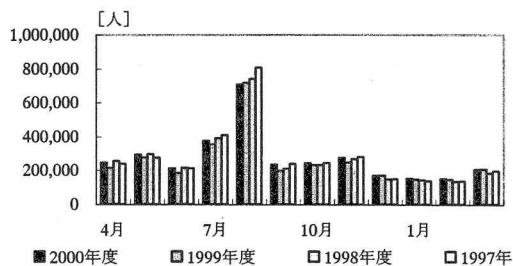
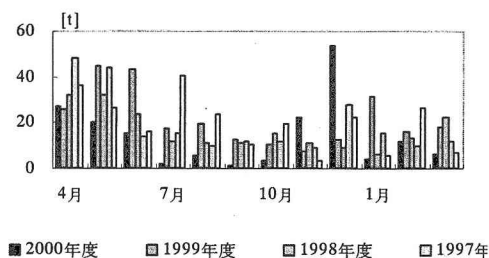
(3) NBDOMs 流入速度の月変動の考え方

本研究では、各発生源から北湖へのNBDOMs流入速度のうち大きな月変動が考えられるものに関しては、月変動パターンを考慮することにする。仮定した月変動パターンをまとめたものが表-5である。

表-5 NBDOMs 流入速度の月変動パターン

汚濁負荷発生源	月変動パターン
観光客(宿泊・日帰り)	滋賀県を訪れた観光客数の月変動
水田(灌漑期:4月～9月)	農業河川(田川)のCOD負荷量の月変動
水田(非灌漑期)、畑、ゴルフ場、宅地・道路、山林・その他、湖面降雨	各年の北湖集水域における降水量月変動

たとえば宿泊観光客数であれば、図-3に示すように毎年同じような月変動パターンを示す。グラフは割愛しているが、日帰り観光客についてもほぼ同様の傾向が見られる。したがって観光客に由来するNBDOMsに関しては、当該のCOD流入原単位にフレーム値をかけ、年間のCOD流入量を求めた上で、さらに平均的月変動パターン(月別の配分比)とNB比を乗じることでNBDOMsの湖への月別流入速度を求めることができる。灌漑期の水田についても図-4の月変動パターンを用い、同様の考え方でNBDOMsの月別流入速度を求める。

図-3 滋賀県を訪れた宿泊観光客数の月変動⁹⁾図-4 滋賀県田川におけるCOD負荷量の月変動¹⁾

またその他、土地利用系発生源からの湖へのNBDOMs月別流入速度の計算には、各年度の北湖集水域における平均月降水量の変動パターンを使用する。図-5は北湖集水域内にある11のアメダス観測地点(滋賀県:柳ヶ瀬、今津、虎姫、春照、南小松、彦根、近江八幡、蒲生、大津、信楽、土山)の2000年度データ¹⁰⁾を用いて、降水量の集水域平均を算術平均法とティーセン法で月毎に求めてみた結果である。本研究では算術平均法の値(月変動パターン)を計算に使用する。各発生源からの年間のCOD流入量を求め、これに降水量の月変動パターンとNB比を乗じてNBDOMsの月別流入速度を求める考え方は観光客や水田(灌漑期)と同じである。ただし降水量の月変動パターンは年度毎に異なる。

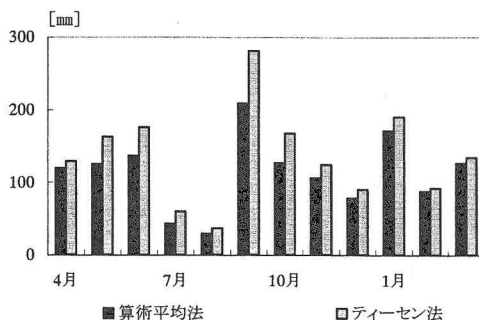


図-5 算術平均法とティーセン法による北湖集水域における月別降水量(2000年度)

4. 北湖物質収支モデル

(1) 物質収支モデルについて

本研究において、北湖における NBDOMs の物質収支を考えるモデルの概念図を図-6 に示す。

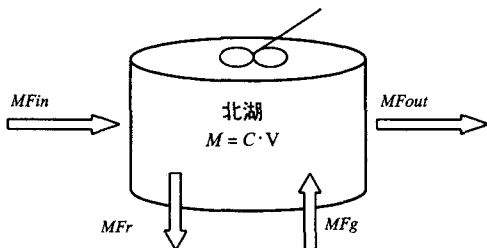


図-6 北湖物質収支モデルの概念図

ここで

M : NBDOMs 量 [g]

C : 湖水中 NBDOMs 平均濃度 [mg/l] = [g/m³]

V : 北湖の容積 [2.73 × 10¹⁰ m³]

$MFin$: NBDOMs 流入速度 [g/yr]

$MFout$: NBDOMs 流出速度 [g/yr]

MFr : NBDOMs 分解速度 [g/yr]

MFg : NBDOMs 生成速度 [g/yr]

あわせて以下のような仮定をおく。①湖水中では、NBDOMs は分解も生成もしない ($MFr = MFg = 0$)、あるいは分解・生成量の収支が常にゼロである ($MFr = MFg$) (外部由来仮定)。②北湖から流出する NBDOMs 濃度は北湖全体の平均濃度 (C) に等しい ($MFout = VC/R$)。

モデル式としては式(1)のようになる。

$$V \frac{dC_t}{dt} = MFin_t - V \frac{C_t}{R} \quad \dots(1)$$

ここで R は北湖の滞留時間 (5.5 年)。また式(1)の差分表示は式(2)となる。

$$C_{t+\Delta t} = C_t + \Delta t \left(\frac{MFin}{V} - \frac{C_t}{R} \right) \quad \dots(2)$$

5. シミュレーション結果

1990 年度から 2000 年度までの各発生源から北湖への NBDOMs の月別流入速度 ($MFin_t$) を式(2)に代入して、タイムステップ 0.5 ヶ月で、同期間の北湖湖水中における NBDOMs 濃度の推移をシミュレーションした結果が図-7 である。図中の点は北湖

湖水中における同物質の月濃度であり、図-2 の COD 濃度に、北湖湖水の NB 比 (76%) を乗じて推計した。

なお NB 比のうち、先に設定できていなかった産業系、ゴルフ場、山林・その他については、最適化の対象とし、図中の点とシミュレーション結果の誤差の二乗和が最小になるように共役傾斜法を用いて最適化した。主要な発生源におけるフレーム値の増減傾向と 1990 年度から 2000 年度の増減率、各発生源における最適化後の北湖への NBDOMs の流入速度 ($MFin$) の 11 年間の平均値を表-6 に示す。

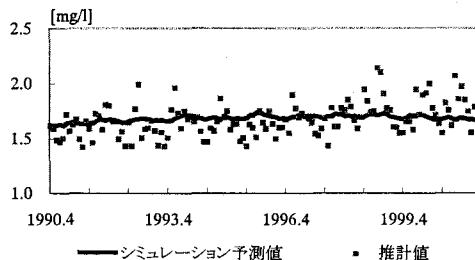


図-7 北湖湖水中における NBDOMs 濃度の推移 (最適化後のシミュレーション予測値及び実測値からの推計値の比較)

表-6 主要な発生源の NB 比と NBDOMs 流入速度、フレーム値の増減傾向

汚濁負荷 発生源	最適化後		フレーム値の 増減傾向
	NB 比	$MFin$ [t/yr]	
山林・その他	100%	3525	微減 (99.7%)
水田	98%	1765	減少 (92.1%)
産業系	47%	1377	減少* (58.0%)
ゴルフ場**	100%	55	増加 (120%)
全流入速度	—	8448	—

* フレーム値の設定はないため、北湖への COD の流入速度の増減傾向である。 ** ゴルフ場は主要な発生源ではないが、NB 比を最適化したため掲載する。

また、この最適化の結果に基づく、1990 年度から 2000 年度における北湖への難分解性 DOM の全流入速度に占める各発生源の平均的割合を図-8 に示す。

6. 結論

本研究の目的は、北湖湖水中における COD 濃度上昇の原因であると考えられる NBDOMs の主な発生源を推定することであった。そのため、同物質の北湖に関する物質収支から湖水中における NBDOMs 濃度の変動をシミュレーションによって再現することに試みた。しかし、結果として、シミ

ュレーションによる同物質濃度の再現は成功したとは言いがたい。図-7に見られるように、シミュレーション結果は NBDOMs 濃度の明確な上昇を再現しておらず、また月変動についてはまったく再現できていない。その意味で図-8 の結果の解釈には注意が必要である。

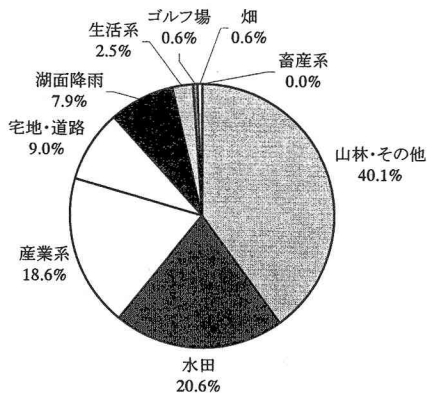


図-8 北湖への NBDOMs の全流入速度に占める各発生源の割合 (1990 年度～2000 年度)

シミュレーションがうまくいかなかった原因としては、外部由来説の立場をとり、湖内での同物質の生産をまったく無視したこと、また、NB 比を期間中一定と仮定し、長期的な変化も月毎の変化もまったく考慮しなかった点などが考えられる。

特に NBDOMs の長期的増加傾向については、表-6 や図-8 で示した主要な発生源のフレーム値や流入負荷量が期間中ほぼ一定または減少の傾向を示しており、NB 比一定の条件では、再現することはできないと考えられる。

また、早川・高橋¹¹⁾によれば、北湖湖水中における NBDOMs を含む全溶存有機物の半分以上は、

湖内で生産されている。特に、表層の溶存有機物の生産速度は、夏季は盛んな光合成によって上昇し、冬季は低下する。光合成によって、内部で生産される溶存有機物の大部分は生物にとって易分解性である。すなわち、湖水における NB 比は、夏季は相対的に低く、逆に冬季は高い可能性がある。

今後は、上記のような点を考慮して、NBDOMs の発生源のより正確な推定を行なっていきたい。

参考文献

- 1) 滋賀県琵琶湖環境部環境政策課：昭和 56 年度～平成 13 年度版滋賀県環境白書－資料編一，(株)中村太古舎
- 2) 滋賀県：各発生源由来有機物の生物分解調査概要，1997
- 3) 地域環境研究グループ湖沼保全研究チーム：湖沼において増大する難分解性有機物の発生原因と影響評価に関する研究，1999
- 4) 滋賀県・京都府：琵琶湖に関わる水質保全計画（2 次湖沼計画），1992
- 5) 滋賀県・京都府：琵琶湖に関わる水質保全計画（3 次湖沼計画），1997
- 6) 滋賀県・京都府：琵琶湖に関わる水質保全計画（4 次湖沼計画），2002
- 7) 滋賀県・他：路面排水の COD 対策実証実験，琵琶湖・淀川水質浄化共同実験センター年報，第 1 号，pp.247-254，1999
- 8) 琵琶湖・淀川水質保全機構：難分解性有機物削減実験，琵琶湖・淀川水質浄化共同実験センター年報第 1 号，pp.203-215，1999
- 9) 滋賀県商工観光労働部商工観光政策課：平成 9 年～平成 13 年滋賀県観光入込客統計調査書
- 10) 気象庁：アメダス観測年報 CD-ROM 1990～2000 年
- 11) 早川和秀・高橋幹夫：琵琶湖北湖における溶存有機物の動態と COD 増加をとりまく現状，琵琶湖研究所所報，19，pp.42-49，2001

DETERMINING THE SOURCES OF NON-BIODEGRADABLE DISSOLVED ORGANIC MATTERS INTO THE NORTH BASIN OF LAKE BIWA

Shinji IDE and Satoshi MOKU

The concentration of non-biodegradable dissolved organic matters (NBDOMs) has been increasing gradually in the northern basin of Lake Biwa for more than ten years. Assuming that those organics are generated in the catchment area and then flowing into the basin, the objective of this study is to determine the major sources of NBDOMs in the catchment area based upon a mass balance with respect to the compounds in the basin. As a result, it is revealed that NBDOMs are coming into the lake 40% from "forest and others", 21% from "paddy field", and 19% from "industry".