

有機物リンケージに基づいた湖沼環境の評価と改善シナリオ作成に関する研究 (報告書要旨)

1. 研究の背景と目的

琵琶湖北湖で初めて注目された難分解性と考えられる溶存有機物(DOM)濃度の漸増現象は、その後、十和田湖、野尻湖、霞ヶ浦、印旛沼と遍在的な広がりを見せている。難分解性 DOM 濃度の上昇は、湖沼微生物生態系や水道水源としての湖水の水質等に甚大な影響を及ぼすため、緊急に難分解性 DOM が湖水中で蓄積メカニズムを明らかにする必要がある。

本研究では、湖水有機物の化学的組成特性からその分解性や起源を評価する手法を開発・確立し、湖水や底泥中での DOM 特性と起源、生産と分解性、微生物群集との連動関係を評価することを目的とした。さらに湖沼での難分解性 DOM の動態、蓄積メカニズムおよび主要発生源をモデル解析により検討して、最終的には対策の費用対効果算定から発生源対策に係る具体的な提言を行った。

2. 報告書の要旨

サブテーマ 1. 有機物組成と分解性のリンケージ評価

1) 糖類組成

霞ヶ浦湖水(2004年)の全溶存糖濃度は冬季(1月)で $1.8\mu\text{mol/L}$ 、夏季(7月)で $3.0\mu\text{mol/L}$ であり、冬季に比べ夏季に高かった。DOM 中で糖類が占める割合は 12月で約 3%、7月で約 6%と存在濃度と同様に夏季に高くなった。単糖組成は年間を通してほとんど変化しなかった(図1)。均一化した単糖組成は微生物による分解を十分に受けていることを示すため、霞ヶ浦 DOM は年間を通じて生物分解を十分に受けている、難分解性の度合いが高いものであると言える。

霞ヶ浦で優占する藍藻類 3種の生分解前後の培地の糖類組成を分析した。藻類は定常期に多くの溶存糖を排出し、藻類種によって排出する溶存糖の量や質に顕著な違いがあった(図2)。藻類種によらず多く排出される糖は主にグルコースであった。藻類培地は生分解を受けると、グルコースが選択的に消費され、生分解後の糖類組成は湖水と同様にほぼ均一的なものとなった。すなわち、グルコース含量が多いほど DOM は分解性が高いと言える。

2) 放射性炭素同位体比による DOM の同位体識別化

霞ヶ浦湖水および流入河川水における炭素同位体 2次元プロットを図3に示す。霞ヶ浦湖水および河川水サンプルの放射性炭素同位体比($\Delta^{14}\text{C}_{\text{DOC}}$)は、約 -200‰ を境に湖水と河川水では、明瞭な違いを示した(湖水: -212‰ ~ -13‰ 、河川水: -475‰ ~ -17‰)。この結果は、湖水や河川水の DOM が、重い(年代として若い) $\Delta^{14}\text{C}_{\text{DOC}}$ 値を持つ湖水 DOM と、軽い(年代として古い) $\Delta^{14}\text{C}_{\text{DOC}}$ 値を持つ河川水 DOM とに、それぞれ同位体的に識別(分離)可能であることを示し、放射性炭素同位体比測定は、湖沼における DOM の起源推定を行ううえで、非常に有効な指標であると強く示唆された。

霞ヶ浦湖水 DOM の $\Delta^{14}\text{C}_{\text{DOC}}$ 値は -212‰ (年代 1,919 yr BP [year before present, 年前]) から -13‰ (年代 131 yr BP) の間で変動した。霞ヶ浦湖水 DOM の $\Delta^{14}\text{C}_{\text{DOC}}$ 値は、2月から6月の間は重く、7月から12月にかけては軽かった。周辺河川水 DOM の $\Delta^{14}\text{C}_{\text{DOC}}$ 値は -475‰ (年代 5,180 yr BP) から -17‰ (年代 137 yr BP) の間で変動した。霞ヶ浦湖水および流入河川水 DOM の放射性同位体年代測定 (^{14}C 年代値) は、非常に古い値(湖水で最大約 900 年前以上前、河川水で約 4500 年以上前)を示した。しかし、湖内植物プランクトン由来 DOM が 1000 年以上古い ^{14}C 年代値を持つとは考えにくい。

め、湖内 DOM の非常に古い ^{14}C 年代値は、古い ^{14}C 年代値を持つ河川水 DOM の影響によると考えられる。

3) 雨水 DOM の特性

霞ヶ浦臨湖実験施設屋上に雨水サンプラーを設置して雨水を採取し、その DOM の分画分布（フミン物質、疎水性中性物質、親水性酸、塩基物質、親水性中性物質に分画）等の特性を調べた。雨水 DOM 分画分布はこれまで報告された例はない。

雨水 DOM 濃度は $0.08\sim 4.30\text{mgC/L}$ の範囲で大きく変動した。湖水よりも DOM 濃度が高いケースも多くあった。窒素やリンについても同様に湖水より濃度が高くなる傾向があった。雨水 DOM の分画分布では、親水性酸が卓越しており（43%）、次いで親水性中性物質（26%）、フミン物質は 17% で湖水よりも顕著に低い値を示した（図 4）。雨水 DOM は高い分解性（平均 40%）を示し、DOM 濃度が高いほど分解率が大きい傾向が示された。

4) 降雨時河川水中 DOM の特性

霞ヶ浦流入河川（恋瀬川等）で降雨時調査を行い、降雨時における河川水 DOM の特性を検討・評価した。同時に、懸濁物質（POM）を含むサンプル、とろ過サンプルを長期間分解試験に供して、POM から難分解性 DOM への寄与があるか否かを検討した。

降雨時に河川水量の上昇とともに、POM 濃度が急激に増大した（ $0.8\rightarrow 17.1\text{mgC/L}$ ）。DOM 濃度も上昇したが、著しいものではなく降雨前の約 60% に留まった（ $2.4\rightarrow 3.9\text{mgC/L}$ ）。DOM 分画分布も流量上昇に伴って変化した。フミン物質の存在比が 35% から 45% に増大した（図 5）。降雨は、河川にフミン物質を供給することが明らかとなった。

降雨時に採水したサンプルとそのろ過サンプル中の難分解性 DOM の濃度と分画分布には顕著な違いが見られなかった。従って、降雨時に河川から湖沼に供給される POM からの湖水難分解性 DOM への寄与は無視できる。

サブテーマ 2. 湖水柱・底泥での DOM と難分解性 DOM の生産メカニズムの解明

1) 底泥微生物群集構造解析

湖内の物質循環に大きく関与している底泥に着目し、分子生物学的手法（制限酵素断片長多型 [RFLP] 解析）を用いて霞ヶ浦底泥に棲息する微生物群集構造の季節変動を調査し、底泥の微生物群集と底泥環境との相互関係について評価した。

霞ヶ浦底泥中では季節変化に伴い真正細菌群集構造が 3 次元的に（深度的に）変動すること、 $0\sim 15\text{cm}$ 間の底泥中に多様な種が広く存在すること、特に夏季に細菌群集の多様性が高いことが示唆された。底泥からは硫酸還元菌に近縁な塩基配列を持つクローンが全ての月のサンプルで多数確認された。その分布は $0\sim 1\text{cm}$ 層からはほとんど検出されず、 1cm 以深で大部分が検出され、特に $4\sim 8\text{cm}$ にその検出が集中していた。すなわち、底泥表層から 8cm 程度の深さにかけて嫌気化が進行していると言える。また、硫酸還元菌に近縁な塩基配列を持つクローンが多く確認されたことから、かつて汽水湖であった霞ヶ浦の底泥がまだ完全に淡水化されていないことが示唆された。

2) 底泥からの溶出

湖水有機物の供給源として底泥から溶出される DOM の寄与はとても重要である。しかし、DOM の底泥溶出を、長期に渡って実際に測定したとする報告は皆無に近い。そこで、本研究では、霞ヶ浦の底泥コアサンプルを採取し、間隙水 DOM の鉛直濃度プロファイルおよび DOM 溶出フラックスの経年変化や季節変化を検討した。

DOM 底泥溶出フラックスは経年的・季節的に顕著に変動することが確認された（図 6）。底泥溶出フラックスは 1997 年以降減少傾向にあり、季節的には、定説である夏季ではなく、春季（5、6 月）に最大になった。春季には底泥底生動物（ユスリカと貧毛類）の密度が急激に増大することが認められたため、春季における DOM の大きな底泥溶出フラックスは生物攪乱（バイオターベーション）によると示唆された。底泥微生物群集構造解析では、硝化細菌である *Nitrospira* 属に近縁なクローンが 6 月に 1~10cm で最大数が観測されている。この結果は、6 月に底泥深さ 10cm 程まで酸素が供給されることを示し、生物攪乱によって底泥に“水みち”ができた事を意味する。すなわち、生物攪乱説と整合する。

DOM と同様に底泥間隙水中の窒素 ($\text{NH}_4\text{-N}$) とリン ($\text{PO}_4\text{-P}$) の鉛直プロファイルと溶出フラックスについても検討した（図 7）。 $\text{NH}_4\text{-N}$ のピークは DOM と同様に概ね 10cm 以深にあったが、 $\text{PO}_4\text{-P}$ のピークは深さ 4~6cm に存在していた。 $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスは経年的に減少傾向にあったが、 $\text{PO}_4\text{-P}$ のフラックスは漸増していた。季節的にはともに夏季に最大フラックスを示した。DOM、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、および $\text{PO}_4\text{-P}$ の溶出メカニズムは相当に異なったものであると言える。底泥群集構造解析により硫酸還元菌が 4~8cm に集中して存在していることが判明している。従って、硫酸還元菌と $\text{PO}_4\text{-P}$ 溶出のリンケージが示唆される。

3) 分解性、サイズ、UV 吸収能の関係

湖水 DOM の分解性、分子サイズ (UV260nm 検出) および紫外外部吸光度 (UV) / 溶存有機炭素 (DOC) 比の長期的トレンド (1995~2004 年) を検討・評価した（図 8）。

霞ヶ浦湖水中の DOM は年々難分解性化していることが明らかとなった。1995 年に 25% であった DOM の分解率は徐々に低下して 2000 年に 10% を切り、以降 7%~9% を推移した。1995 年近辺を境に DOM の難分解性化が促進されたと示唆される。一方、紫外外部吸光度/DOC 比 (UV/DOC 比) は、DOM の分解率とは反対に、1995 年の $16.9 \text{ abs}\cdot\text{l}/[\text{cm}\cdot\text{gC}]$ から漸増し、2004 年には約 50% 増大して $25.1 \text{ abs}\cdot\text{l}/[\text{cm}\cdot\text{gC}]$ まで達した。さらに、DOM の分子サイズは 1997 年に 760 g/mol であったが 2004 年には 720 g/mol まで減少した。DOM の生分解率が減少するにつれ DOM の分子サイズが低下する傾向が認められた。この結果は、霞ヶ浦では、低分子で UV 吸収能の高いものが難分解性 DOM として残存・蓄積していることを示している。すなわち、生分解性と分子サイズと UV 吸収能の密接なリンケージが明らかとなった。

サブテーマ 3. DOM の動態および発生源対策効果の評価

湖内モデルによる対策の評価

霞ヶ浦湖内 3 次元流動モデルを使って、下水処理場放流水の放流先を変更した場合に（現状+9カ所）、環境基準点および上水取水口において、下水処理場由来の難分解性 DOM の濃度がどのように変化するかをモデル計算によって評価した（図 9）。

計算結果を解析したところ、湖水の流れは複雑に影響することが明らかとなった。土浦入りや湖盆域に放流した場合には湖心での濃度寄与は上昇し、一方、高浜入り左岸や湖尻に放流するとその寄与は低下した。ほとんどのケースで湖尻へ放流すると処理水の寄与は著しく減少した（湖心：-84%、上水取水口：-90%）。全 DOM に対する低減効果を見積もると、平均で掛馬沖は 28%、玉造沖は 8%、湖心は 11%、麻生沖はマイナス 0.8%（増）、取水口は 19%。

湖尻への放流先変更に伴う費用を年価として算定した（年価=年当たりの建設費+年当たりの維持管理費）。湖周（陸上）ルートと湖底ルートの二つのケースを想定した。湖周ルートでは 446 百万円/年、湖底ルートでは 620 百万円/年と算定され、湖周ルートのほうが安価であった。

同様に、下水処理場に高度処理を導入した場合についてもモデル計算を実施してその効果を検討し

た：①砂ろ過，②砂ろ過＋オゾン，③砂ろ過＋活性炭，④砂ろ過＋オゾン＋活性炭，⑤凝集沈殿＋砂ろ過，⑥凝集沈殿＋砂ろ過＋オゾン，⑦凝集沈殿＋砂ろ過＋活性炭，⑧凝集沈殿＋砂ろ過＋オゾン＋活性炭，⑨凝集沈殿＋砂ろ過＋逆浸透膜。結果として，下水処理水の湖尻への放流先変更に匹敵する難分解性 DOM 濃度の低減効果を持つものは高度処理⑨だけであった。高度処理⑨導入に係る年価を試算すると 1,054 百万円／年であった。放流先の湖尻へ変更のほうが高度処理の導入よりも費用対効果は高いと判断された。

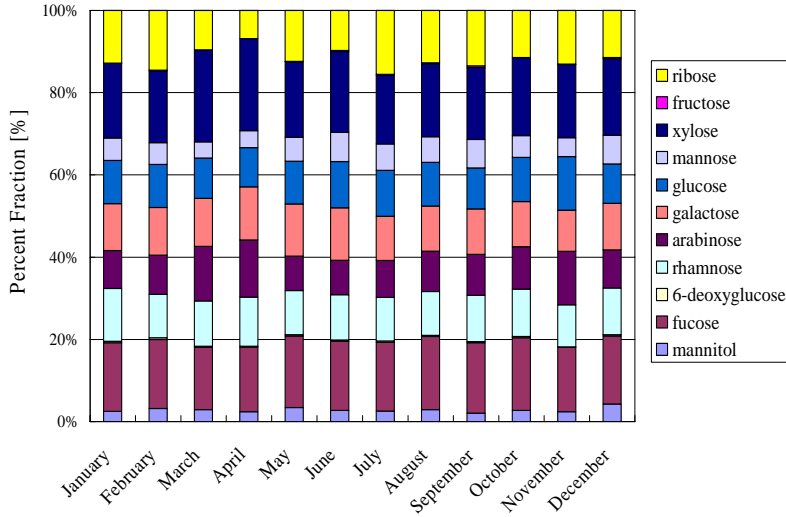


図1 霞ヶ浦湖水 DOM の糖類組成 (湖心 2004 年)
 fucose, rhamnose, arabinose, galactose, glucose, xylose, ribose が主要単糖,

突出したものなし
 年間を通して糖類組成に顕著な変化なし.

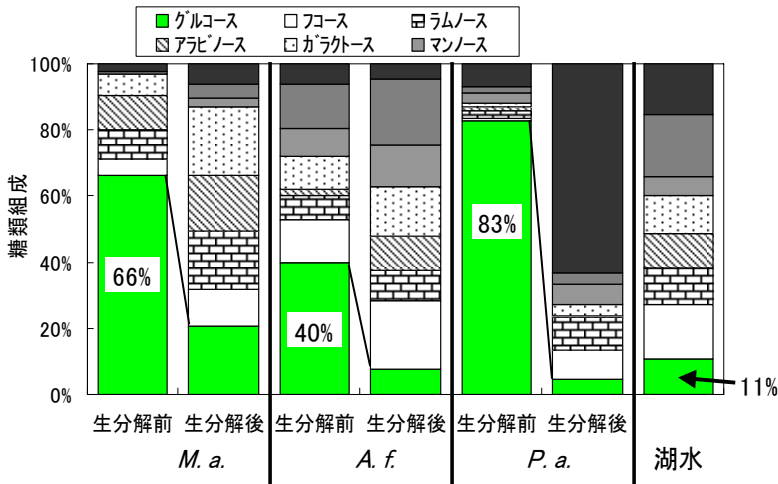


図2 藍藻類由来 DOM の生分解前後における糖類組成

M. a. : Microcystis aeruginosa,
 A. f. : Anabaena flos-aquae,
 P. a. : Planktothrix agardhii.
 藻類由来 DOM の分解率は
 M. a. : 53%, A. f. : 26%, P. a. : 92%.

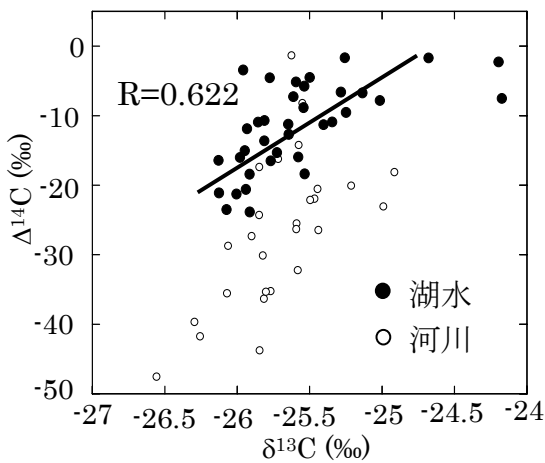


図3 霞ヶ浦及び流入河川水における溶存有機物 DOM 中の炭素同位体 2次元プロット

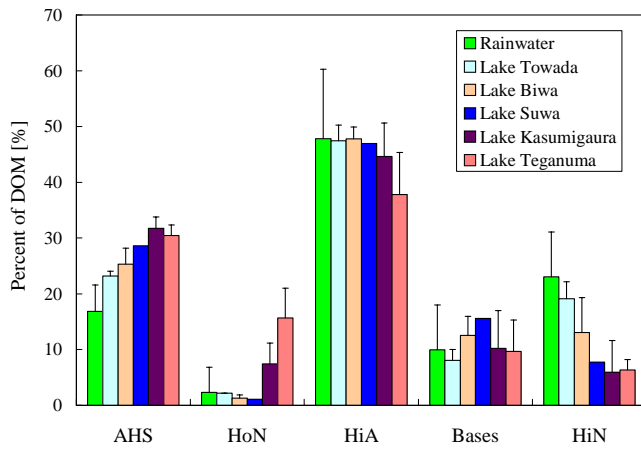


図4 雨水中の溶存有機物 DOM の分画分布

AHS: フミン物質, HoN: 親水性中性物質, HiA: 親水性酸, Bases: 塩基物質, HiN: 親水性中性物質. 参考のために, 十和田湖, 琵琶湖, 諏訪湖, 霞ヶ浦, 手賀沼の DOM 分画分布を図に加えた.

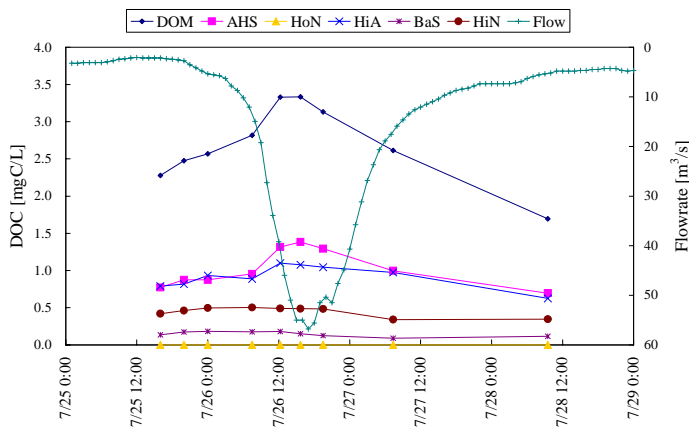


図5 恋瀬川の降雨時 DOM, 各画分成分の変動

AHS: フミン物質, HoN: 親水性中性物質, HiA: 親水性酸, Bases: 塩基物質, HiN: 親水性中性物質.

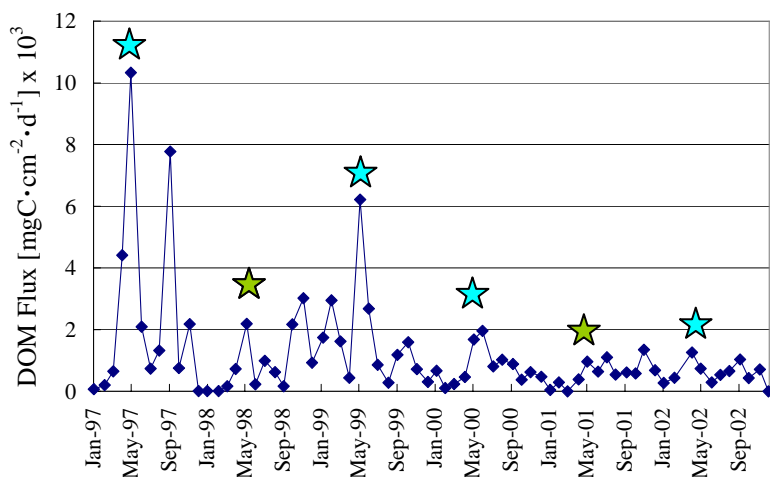


図6 霞ヶ浦湖心における DOM の底泥溶出フラックス

経年的・季節的变化が大きい。底泥溶出フラックスは経年的に減少傾向。夏ではなく、春に(4, 5, 6月)に最大ピーク(1998と2001年を除いて)が観察された。

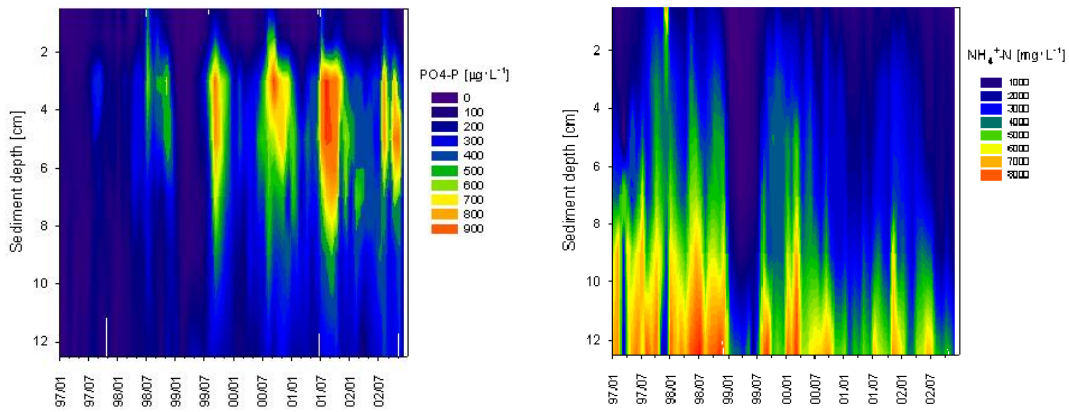


図7 霞ヶ浦湖心における底泥間隙水中の $\text{PO}_4\text{-P}$ および $\text{NH}_4\text{-N}$ の深度方向濃度等高線プロファイル

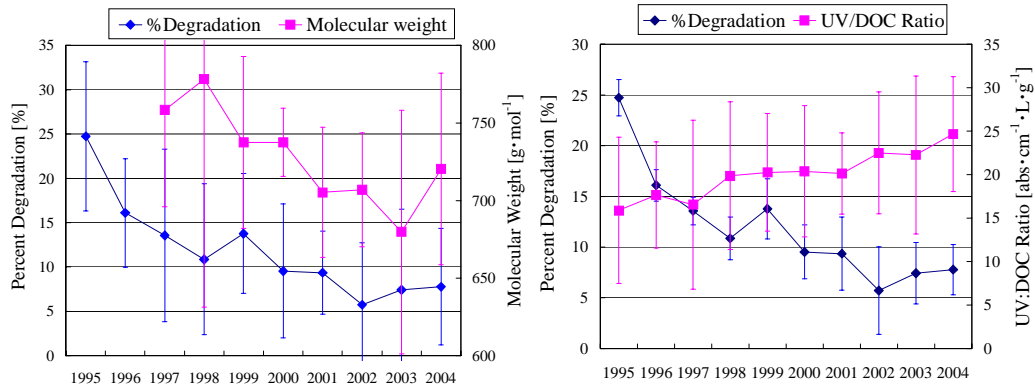


図8 霞ヶ浦湖心における DOM の分解率，分子サイズ，紫外部吸光度 (UV) /DOC 比の長期的トレンド
 プロットは年平均値，バーは年間標準偏差を表す。分子サイズは UV 吸収検出器 (260nm) で測定。

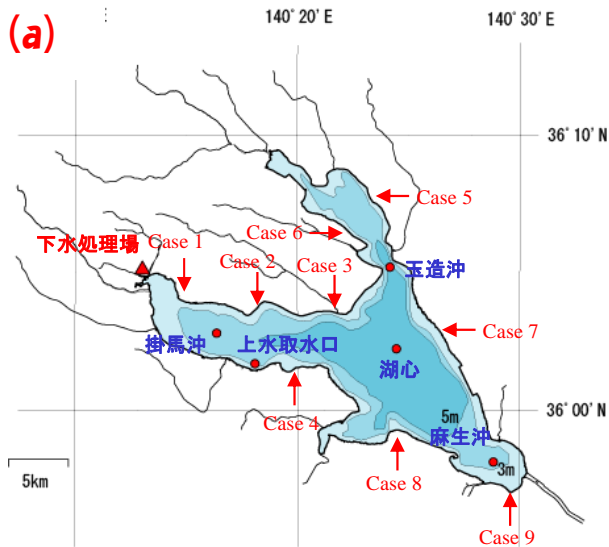


図9 霞ヶ浦における下水処理水放流先変更に伴う処理水由来難分解性 DOM 濃度の変動に係るモデル解析評価

(a) 想定放流先変更地点,
 (b) 現状を1とした場合の放流先変更に伴う下水処理水由来難分解性

※DOM 濃度のパーセント変化率. 赤字は増大, 白字は減少を表す.

放流先変更に伴う影響は環境基準点 (湖心, 掛馬沖, 玉造沖, 麻生沖) と上水取水口で評価した。

(b)

	掛馬沖	玉造沖	湖心	麻生沖	上水取水口
Present	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
Case 1	9%	17%	17%	17%	16%
Case 2	-12%	52%	50%	52%	43%
Case 3	-44%	30%	24%	25%	-4%
Case 4	-52%	15%	18%	18%	-11%
Case 5	-63%	127%	-6%	-5%	-36%
Case 6	-60%	151%	2%	4%	-31%
Case 7	-65%	-6%	1%	14%	-38%
Case 8	-57%	13%	29%	41%	-21%
Case 9	-94%	-85%	-84%	13%	-90%