

霞ヶ浦の水質汚濁に関する研究(Ⅱ)*

—湖水中有機物の減衰について—

山本 哲也**・田口 勝久**

1. はじめに

霞ヶ浦は富栄養湖であるという指摘は古くからされている¹⁾が、近年急速に湖水が変質し始めていると思われる状況にある。湖水が非常に高い栄養レベルにあることは筆者らの報告²⁾からもすでに明らかであるが、さらに霞ヶ浦においては環境基準(湖沼A類型)のCOD不適合率はほぼ100%³⁾というように、湖沼水としては高有機物濃度を有している。そしてそれはますます増加の傾向にある。最近の測定値⁴⁾をみても、CODが5~10 O₂ mg/lの値を示し、特に夏季の藻類異常発生時にはCOD 60.0 O₂mg/l という驚くべき値に達している。

湖水中の有機物は、大別すれば湖沼外から供給されたものと湖沼内で生産されたものが、溶解性あるいは懸濁性の形態をとって存在している。これらの有機物は希薄濃度ではあるが、極めて多種類にわたっている。そして、これら有機物の水中での質的・量的変化は、湖沼のような停滞水域と河川等順流水域とは異なる様相を示すと考えられる。その最大の原因は、両者の水理学的条件の差から生じる水環境の違いであろう。

湖水中の有機物については、湖沼学・地球化学・生態学等の興味から研究がなされてきているが、湖沼水質汚濁制御に十分な情報を得るまでには至っていない。筆者らは、霞ヶ浦の水質汚濁に関する一連の調査研究の一環として、湖水中有機物の減衰という側面から霞ヶ浦の水質の特性を把握するために若干の実験検討を行ったので、その結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 実験 I

2.1.1 目的

霞ヶ浦の湖水中有機物濃度の季節変動と、その特性を把握するために行った。

2.1.2 実験方法

霞ヶ浦(北浦)鹿行大橋地点(図1)において毎月2~3回の割合で水質の連続観測を行った。

2.1.3 期間

昭和49・4~昭和51・3

2.1.4 分析項目および方法

水温：棒状水銀温度計

pH：ガラス電極 pH メーター

SS：Whatman GF/C ガラスフィルター法

DO：ウィンクラー法ナトリウムアザイド変法

COD(Mn)：過マンガン酸カリウム高温酸性法 (JIS K 0102)

{T-COD(Mn)：検水をそのまま分析した。

P-COD(Mn)：P-COD(Mn)=(T-COD(Mn))

(-F-COD(Mn))として求めた。

F-COD(Mn)：Whatman GF/C ガラスフィルターで濾過した検水について分析した。

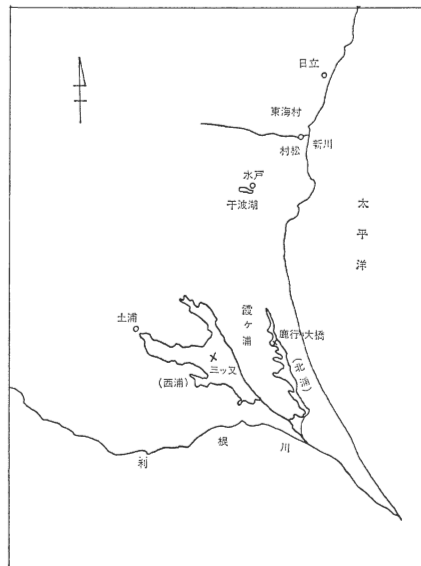


図1 試料採取地点略図

* Studies on Water Pollution of Kasumigaura Lake (Ⅱ)
—Degradation of Organic Substance in Lake Water—

** Tetsuya Yamamoto, Katsuhisa Taguchi(茨城県公害技術センター) The Environmental Pollution Research Center of Ibaraki-ken

NH₄-N：ネスラー比色法

2・2 実験 II

2・2・1 目的

湖水中有機物の減衰がどのような特性を有するか、実験装置をもって、河川水と人工下水の比較において把握することを目的として行った。

2・2・2 実験装置および実験方法

80 l 容の蓋付大型ポリバケツに試料水を70 l 入れ、攪拌(ヤマトラボスターラー LS-50型回転速度2)をセットした装置を恒温室内(20℃)で運転した。試料は所定の容器に入れた後、恒温室内に一夜放置、あるいはヒーターを用いて室温まで加温し、その後実験に入った。以後5~7日間最低1日1回(初期には短間隔で行った)試料を採取分析した。

2・2・3 試料(図1参照)

湖沼水

霞ヶ浦・三ツ又地点 昭49・2・20採水(第1回目)
昭49・4・23採水(第2回目)
干波湖・湖心地点 昭49・3・31採水(第1回目)
昭49・4・23採水(第2回目)

干波湖：水戸偕楽園から眼下に一望できる景勝地で、水戸八景にも数えられ、観光地として市民の憩いの場として貴重なものとされている。周囲約3 km、面積約330m²、平均水深約1 mの小型湖沼である。家庭下水の影響を受け、昭和48~49年における水質の概要は、pH 7~9 BOD 2~15 O₂mg/l T-COD(Mn) 5~30 O₂mg/l である。

河川水

新川・村松地点 昭48・12・16採水
新川：東海村を流れる小河川で、家庭下水の影響を受け、BOD 4~10 O₂mg/l 平水流量約0.6m³/sec である。

人工下水

原水(B液：35ml/70l 純水, A液：BOD が10 O₂mg/l 位になるような適当量)(表1)に、湖水(1.2l/70l 原水)を植種した。第1回目の実験では霞ヶ浦湖水を

植種液とし、第2回目のそれには干波湖々水を用いた。また第2回目には人工下水総量も40 l で行った。

2・2・4 分析項目および方法

実験Iに追加測定した項目について以下に記す。

BOD：20℃5日間希釈法(JIS K 0102)

COD(Cr)：重クロム酸カリウム法(JIS K 0102)

T-COD(Cr)・P-COD(Cr)・F-COD(Cr)はCOD(Mn)の場合と同様である。

U.V.E.(紫外外部吸光度)：0.45mμ ミリポアフィルターで濾過した検水を紫外外部領域(波長370~190mμ)の吸光度をU.V.E_λ(波長λとして)として求めた。使用した分光光度計は日立624型である。

大腸菌群数：LB・BGLB 培地37℃48時間培養 MPN 法
従属米養細菌数：PGY 培地⁴⁾20℃7~14日間培養混釈法

2・2・5 減衰係数の計算

分析結果から下式の関係が成立つ範囲において最小自乗法を用いて、減衰係数を計算した。

$$L_t = L_0 e^{-kt}$$

2・3 実験 III

2・3・1 目的

夏季の霞ヶ浦湖水についての検討、あわせて長期にわたる室内実験を行い、実湖沼との比較において湖水中有機物の減衰特性を把握することを目的とした。

2・3・2 実験装置および実験方法

実験装置については実験IIと同様である。ただし、実験開始2カ月以後は攪拌機を止め、また恒温も止め室温静置した。

2・3・3 試料(図1参照)

霞ヶ浦(北浦)鹿行大橋地点 昭50・9・15採水

2・3・4 分析項目および方法

実験I・IIに追加測定した項目について以下に記す。
クロロフィルa：Whatman GF/C ガラスフィルターで濾過した残渣を硫酸デシケータで乾燥後、92%アセトン溶液で抽出し、遠沈後比色定量した(海洋観測指針)。

3. 結果および考察

3・1 実験Iについて

鹿行大橋地点における湖水 T-COD(Mn)の連続観測結果を図2に示した。この図より霞ヶ浦の水質変動をみると、有機物濃度は7月下旬から指數的に急上昇し、8月下旬に頂点に達したのち、増減を繰り返しながら徐々に低下する傾向がある。このような夏季における急激な有機物の増加は、特に P-COD(Mn)の増大によるもので、SSの増加、pHの増大に付合している。このこと

表1 人工下水A・B液の組成

A 液		B 液	
グルコース	50g	K ₂ HPO ₄	200g
グルタミン酸ソーダ	50g	KH ₂ PO ₄	50g
NaCl	5g	純水	1,000ml
CaCl ₂	2.5g		
MgCl ₂	2.5g		
純水	1,000ml		

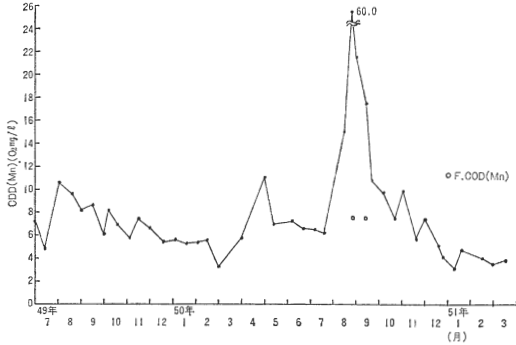


図2 T-COD(Mn) 季節変動

は、夏季において湖水中に存在する有機物の大部分は、植物プランクトンという湖水中に懸濁している生物体によって占められているためと考えられる。霞ヶ浦において同様の結果を国包ら⁶⁾も報告している。彼らによると、霞ヶ浦(土浦水道取水塔付近)のT-COD(Mn)の季節変動の大部分はP-COD(Mn)の変動に起因するもので、とくに夏季におけるT-COD(Mn)の急上昇は明らかに植物プランクトンの異常増殖によるものと考えられると述べている。

以上のことから、鹿行大橋地点における霞ヶ浦の湖水中有機物濃度はT-COD(Mn)が3.2~60.0 O₂mg/lで、T-COD(Mn)の増減は植物プランクトンの消長に起因し、冬季は低い値をとりF-COD(Mn)が主体を占め、夏季には著しく高い値をとり、植物プランクトン生物体有機物を主とするP-COD(Mn)によって大部分が占められている、といえよう。

3・2 実験Ⅱについて

各試料の水質変化特性は図3~6に示した。減衰係数K(10を底とする値)については表2に集計した。

3・2・1 霞ヶ浦

霞ヶ浦試料の第1回目の実験は50年2月21日から27日

表2 減衰係数K(10を底とする)

試料	SS	BOD	COD			
			KMnO ₄		K ₂ Cr ₂ O ₇	
			Total	filtrate	Total	filtrate
霞ヶ浦	—	—	—	—	—	—
干波湖	—	0.07	0.02	0.02	—	—
		0.05	0.02	0.03	0.02	0.01
新川	0.16	0.12	0.08	0.06	0.03	0.01
人工水	—	0.12	0.16	0.34	—	0.58
		0.12	0.13	0.35	—	0.40

—減衰のみられないもの

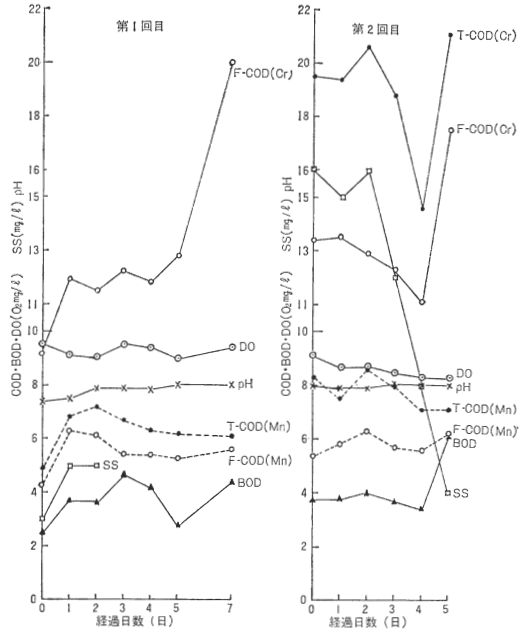


図3 霞ヶ浦試料水質変化

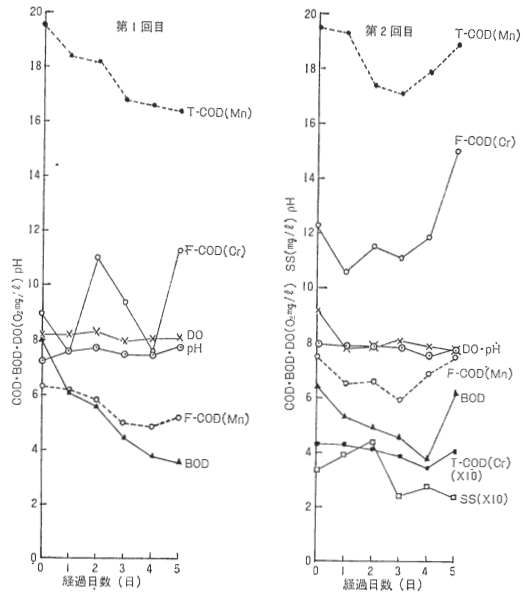


図4 干波湖試料水質変化

まで、第2回目は50年4月24日から29日まで行った。

第1回の実験ではpHが7.4から徐々に上って8.0までになったが、DOは多少の変動をみせながらもほぼ平行状態であった。BODは実験開始の翌日から少々上昇し、途中で一時低下したこともあったが、ほぼ横ばい状態が続いた。したがってK値の算出は不可能であった。

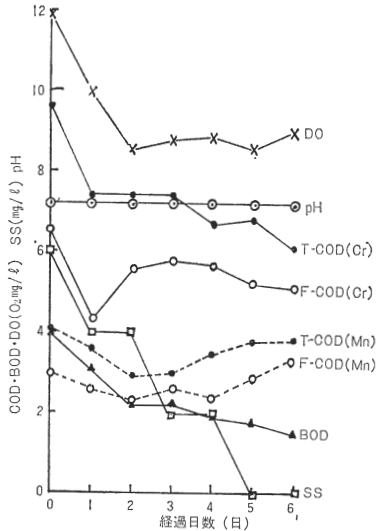


図5 新川試料水質変化

COD(Mn)・COD(Cr)についても実験開始の翌日から少々上昇して、そのまま横ばい状態の継続となりBOD値とほぼ同じ傾向でK値を求めることはできなかった。U.V.E.は波長増大につれ吸光度が漸減するという同一パターンで、しかも吸光度には変動はみられなかった。

第2回目の実験ではpHとDOは平行状態を保ったが、SSは後半に減少した。BODは第1回目のような上昇はみられず最初からほぼ平行状態が続いたのち、最後の5日目に約2倍に急上昇を示した。COD(Mn)・COD(Cr)の原水、汙水のいずれもBODとほぼ同じ傾向を示して減少はみられなかった。今回は細菌試験も行ってみたが、大腸菌群数は微量で変化なく、従属栄養細菌数は実験開始3日目まで漸増して、その値は約10倍に達し(1.1×10⁶no./ml)、その後減少傾向を示した。また、3日目までは色素生成細菌と非色素生成細菌の出現はほぼ半数ずつであったが、4日目以後の検水中からは色素生成菌の出現が急激に減少し始めた(4日目22%、5日目8%)。

以上のように霞ヶ浦の湖水を試料とした実験では、BOD・CODの主要項目が5～7日間にはほとんど変化しないか、あるいは逆に上昇の傾向さえ示して特異な現象がみられた。本湖水は年に1～2回程度の水循環があるといわれるが、今回の実験によって有機物の分解も極めて緩慢であると考えられる。

3・2・2 干波湖

干波湖試料の第1回目の実験は50年4月1日から6日まで、第2回目は50年4月24日から29日まで行った。

第1回目の実験ではpHがわずかながら上昇傾向をみせていたが、SSは最初と最後で大差がなく、DOもほ

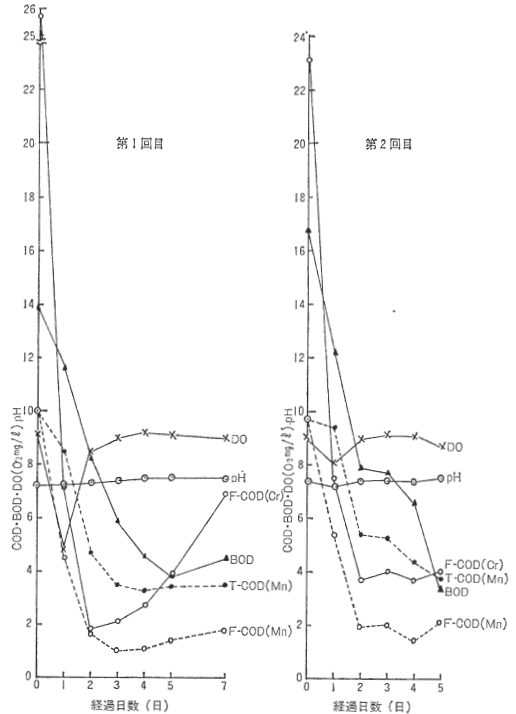


図6 人工下水試料水質変化

ぼ平行状態であった。BODは徐々に減少して、5日目には最初の半分以下となり、K=0.07で実測値の下降カーブもよく揃っていた。COD(Mn)は原水、汙水ともごくわずかずつながら下降して、K値はともに0.02を示して分解の遅いことが明らかになった。F-COD(Cr)についてみると、1日毎に高低が交互に現われて判断に苦しむ成績が得られた。

第2回目の実験ではSSは初期に増加するがやがて漸減する傾向を示し、DOは実験開始の翌日に下降してからはほぼ平行状態が続いた。BODは4日目まで徐々に減少してK=0.05と第1回目に近い値が得られた。CODは第1回目とは異なり、後半増加を示す傾向がみられた。初期におけるK値はT-COD(Mn)0.02 F-COD(Mn)0.03、T-COD(Cr)0.02、T-COD(Cr)0.01であり、第1回目の結果とほぼ同様であった。大腸菌群数は途中まで平行線をとった(7,900no./100ml)が、後半急激な減少を示し、従属栄養細菌数は3日目まで増加(2.0×10⁵no./ml)し、後半減少の傾向をみせていた。また、従属細菌のうち色素生成菌の占める割合が、7.7, 20, 32, 50, 69%と増加の傾向がみられ、霞ヶ浦試料とは異なる結果であった。

3・2・3 新川

新川試料については、49年12月16日から22日まで1回だけ実験を行った。SSは漸次下降してK=0.16の値を

示した。DO は1日目、2日目と下降線をとったが、その後はほぼ安定した。BOD は徐々に下降して $K=0.12$ を得たが、COD(Mn) は原水、沓水とも前半は減衰傾向を示すが、後半増加傾向を示し、前半のK値はそれぞれ0.08, 0.06であった。COD(Cr) も原水、沓水とも変化は極めて緩慢であったが漸くK値は求められ、それぞれ0.02, 0.01を示した。U.V.E. は波長増大につれ吸光度が漸減するという同一パターンで、しかも吸光度に変動もみられなかった。

3・2・4 人工下水

人工下水の実験は2回行ったが、第1回は50年2月21日から27日、第2回は50年4月1日から6日である。

第1回目の実験では、pH は7.2から徐々に上って7.5になり、DO は1日目に約半減したが翌日以後ほぼもとに回復した。BOD は連日下降線をたどって最終日には $\frac{1}{3}$ に減少し、 $K=0.12$ の値を示した。T-COD(Mn) は2日目に半減し、最終日には約 $\frac{1}{2}$ となり $K=0.16$ となったが、F-COD(Mn) では最初の $\frac{1}{3}$ 以下まで減少し $K=0.34$ の値がみられた。F-COD(Cr) では1日目に $\frac{1}{3}$ 以下に減少したが3日目から逆に少々増加し、最終日には1日目の値とほぼ同じ程度に上昇したが、前半の計算値では $K=0.58$ であった。U.V.E. は波長増大につれ吸光度が漸減するという同一パターンで、しかも吸光度に変動もみられなかった。各初期試料における U.V.E. スペクトルの特性を図7に示した。

第2回目の実験では、pH はほぼ平行状態で、DO は第1回目程ではないが1回目にやや減少して翌日に回復するという同じ傾向を示していた。BOD は第1回目と同じような下降線をとって $K=0.12$ となった。T-COD(Mn)、F-COD(Mn) も第1回目と同様の減衰パターンで、 $K=0.13, 0.35$ であった。F-COD(Cr)も $K=0.40$ であった。DO 曲線が第1・2回で違う原因は、総液量の違いが攪拌強度に差を生んだためと考えられる。また、有機物の減衰様態が若干異なるのは植種液の違いによると考えられる。

3・2・5 まとめ

このような装置を用いての短期間の実験結果から次のことがいえよう。霞ヶ浦湖水試料と他試料では有機物減衰の特性が明らかに異なる。霞ヶ浦湖水試料では経日とともに有機物示標の値は横ばい状態かあるいは若干増加の傾向を示すのに対し、他試料では経日とともにBOD は漸減し、COD は初期には減少するが後期には横ばい状態、なかには増加する傾向(2種の一次反応)を示している。これは停滞水域と順流域における水質の差(特に有機物質の質の違い)・構成生物の違い(特に微生物)によるものと考えられる。干波湖試料も停滞水域

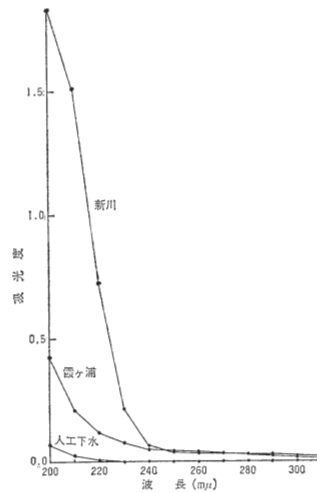


図7 各試料の UV スペクトル

のものであるが、滞留時間も短く、家庭下水が直接流入していることもあって、河川水や人工下水に近い特性を示したものと考えられる。

3・3 実験Ⅲについて

結果は図8に示した。実験Ⅱ同様、短期間(4日目まで)についてみると、COD(Mn)、BOD、クロロフィルaはほぼ横ばい状態、あるいは2日目からやや下降する傾向を示すものもあるがその程度はきわめて小さく、冬季の様態と同様であるといえる。つまり冬季・夏季ともに短期間の検討では霞ヶ浦湖水中の有機物は、明瞭な減衰様態を示さない。このことは湖沼水環境の特殊性からくる有機物の質的特異性・構成生物の偏在性等により、暗所に保温しても、示標をもって把握できるほどの分解過程が始まるまでには時間を用するためと考えられる。あるいはまた実験Ⅱの細菌試験からもわかるように、内部での微生物変遷はあるにせよ(有機物の質的变化も当然予想される)、CODという形では有機物変化を把握できないためとも考えられる。

長期的に検討してみると、T-COD(Mn) は13日目に一時増加するが、漸時減少の傾向にある。F-COD(Mn) は横ばい状態からやがて増加傾向を示し、13日目を頂点に以降減少傾向を示す。P-COD(Mn) は経日とともに減少傾向を示す。初期 T-COD(Mn) 17.50mg/l (F-COD(Mn) 7.70mg/l, P-COD(Mn) 9.80mg/l) は90日後には 10.50mg/l と60%に減少し、大部分が F-COD(Mn) となる。BOD、クロロフィルaは横ばい状

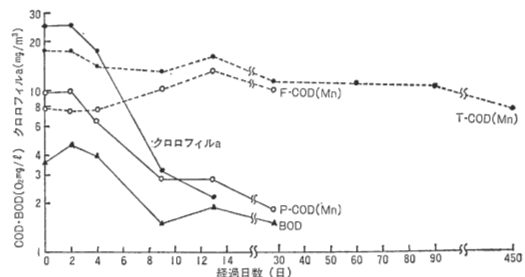


図8 霞ヶ浦夏季試料水質変化

態からやがて減少傾向をたどる。

ここで注目すべき点は、これらいずれの傾向も2日ないし4日目以降に顕著に表われ、そして9～13日目の間で一つの反応様式が終了していることである。その後の減衰は極めて緩慢となる。たとえば T-COD(Mn) は60日後でも 11.00mg/l, 90日後でも 10.50mg/l なんと一年数カ月を経ても T-COD(Mn) は7.50mg/l (水表面にスカムが発生しているため槽中心部の水を試料とした) であった。クロロフィル a と P-COD(Mn) の減衰様態が付合することは、両者とも植物プランクトンの死滅・分解を物語っているためと考えられる。また、これらがすみやかに減衰することは、植物プランクトンが容易に微生物分解をうけるためといえる。クロロフィル a, T・P-COD(Mn) の減少に反し、F-COD(Mn) が増大することは、植物プランクトンの死滅分解にともない溶解性有機物が生成されたためと考えられる。BOD は湖沼水中の有機物示標というよりも、生物呼吸量を表わす示標という結果であった。プランクトンの微生物学的分解については、小山も、湖水を暗所に保存したときの懸濁性有機炭素と窒素の時間的変化は、保温初期の10日間においては分解速度が速やかであり、その後は緩慢な速度で分解が進むと報告している⁶⁾。小倉は海洋についても同様の傾向があることを報告している⁷⁾。

以上のように、夏季植物プランクトンに由来する懸濁性有機物の多い試料について、実験室装置を使って湖水中の有機物の減衰について検討してきた。その結果を実湖沼の季節変化との比較(昭50・9から3カ月)において考察してみよう。

まず気づくことは、実湖沼の方が T-COD(Mn) は低い値を示していることである。90日後の値を比較すると、実験室の T-COD(Mn) は10.50mg/l, 湖沼は5.20mg/l である。この原因は何だろうか。藍藻類は細菌分解容易である⁸⁾ といわれるが、その分解結果として生成された溶解性有機物が水中では難分解性であるため、あるいは毒性物質も産出されたため等、実験室装置での有機物残存率が高いことがひとつ考えられる。いまひとつは、湖沼では異常繁殖した藻類が凝集し、波浪等により移動あるいは沈殿することによって水系から除去されやすく、懸濁性・溶解性有機物を他生物が餌あるいは付着・吸着して取り込むため、湖沼の方が生物分解力が大きくなり湖沼の方が見かけ上の有機物減少力が大きいことが考えられる。原因を断定するにはあまりにも情報が不足しているが、おそらく両者に起因するだろう。もしも、植物プランクトンが分解し生成された溶解性有機物が難分解性であったり、湖沼水中で生産された有機物が底質等に残存するのであるならば、湖沼水質汚濁制

御上重大な問題であり、今後の調査研究が望まれる。

4. 要 約

霞ヶ浦の水質汚濁に関する一連の調査研究の一環として、湖水中有機物の減衰という側面から霞ヶ浦の水質の特性を把握するために若干の実験検討を行った結果、次のような知見を得るに至った。

1) 鹿行大橋地点における霞ヶ浦の湖水中有機物濃度は T-COD(Mn) 3.2～60.00mg/l で、T-COD(Mn) の増減は植物プランクトンの消長に起因し、冬季低い値をとり F-COD(Mn) が主体を占め、夏季には著しく高い値をとり、植物プランクトン生物体有機物を主とする P-COD(Mn) によって大部分が占められている。

2) 実験室装置を用いた短期間の検討では、霞ヶ浦湖水試料は他試料と有機物減衰特性が明らかに異なる。霞ヶ浦湖水試料では経日とともに有機物示標の値は横ばい状態かあるいは若干増加の傾向を示すのに対し、他試料では一次反応あるいは2種の一次反応で減衰する。

3) 実験室装置を用いた長期間の検討では、霞ヶ浦湖水中有機物は、初期横ばい状態が続くがやがて速やかな減衰がおり、9～13日目の間で一つの反応様式が終り、その後の減衰は極めて緩慢となる。植物プランクトン生物体有機物を主とする P-COD(Mn) はすみやかに減衰し、F-COD(Mn) の増加を生み、F-COD(Mn) の減衰は極めて長期間を用する。実験室装置での T-COD(Mn) 減衰よりも、実湖沼での見かけ上の減衰の方が大である。

最後に、本研究にあたり水質連続観測に多大の協力をいただいた当センター野崎武・木所清治・田中敬一技師に深謝いたします。

— 参 考 文 献 —

- 1) 吉村信吉「湖沼学—増補版—」p. 付64, 生産技術センター, 東京, 1976.
- 2) 山本哲也他: 環境研究, No. 15, pp. 26—30, 1977.
- 3) 茨城県: 公共用水域の水質測定結果(昭和50年度)
- 4) 桜井善雄: 日本水処理生物誌, Vol. 2, No. 2, pp. 21—27, 1967.
- 5) 国包章一, 南部祥一, 金子光美: 第12回衛生工学研究討論会講演論文集, pp. 40—47, 1976.
- 6) 小山忠四郎: 用水と廃水, Vol. 18, No. 3, pp. 278—286, 1976.
- 7) 小倉紀雄「海洋生化学」(服部明彦編) pp. 141—173, 東京大学出版会, 1973.
- 8) Gumnison D., et al.: Limnol. Oceanogr. Vol. 20, No. 1, pp. 64—70, 1975.