琵琶湖における難分解性有機物の起源： 発生源における生分解試験とボックスモデルによる推計

佐藤 祐一^{1),*} 岡本 高弘¹⁾ 早川 和秀¹⁾
大久保 卓也²⁾ 小松 英司³⁾

The Source of Refractory Organic Matters in Lake Biwa: Estimation by Biodegradation Assay in Generation Sources and Box Model

Yuichi SATO^{1),*}, Takahiro OKAMOTO¹⁾, Kazuhide HAYAKAWA¹⁾,
Takuya OKUBO²⁾ and Eiji KOMATSU³⁾

¹⁾ Lake Biwa Environmental Research Institute, 5-34 Yanagasaki, Otsu, Shiga 520-0022, Japan

²⁾ School of Environmental Sciences, the University of Shiga Prefecture, 2500 Hassaka, Hikone, Shiga 522-8533, Japan

³⁾ Graduate School of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba, 1-1-1 Ten-noudai, Tsukuba, Ibaraki 305-8572, Japan

Abstract

In Lake Biwa, the gap between biochemical oxygen demand (BOD) and chemical oxygen demand (COD) is widening, so the increase in the amount of refractory organic matter has been of concern. The objective of this study is to estimate the source and the cause of the increase in the amount of refractory organic matter. In order to investigate the material flow using the box model, the generation (or inflow) load in the watershed and internal production are calculated by monitoring COD and total organic carbon (TOC) by biodegradation assay in drainage from each pollution source and lake water. As a result, it is revealed that although the generation load of organic matter has been reduced by domestic and industrial measures, the main cause is the reduction of labile organic matter. Model results indicate that autochthonous organic matter is the dominant source of refractory organic matter in the lake but is at the same level as the allochthonous organic matter in the case of the dissolved fraction. It is most likely that the change in the amount of the autochthonous organic matter caused the increase in the amount of refractory dissolved organic matter.

Keywords: Biodegradation assay; Box model; Lake Biwa; Refractory organic matter; TOC

1. はじめに

湖沼は閉鎖性の水域で水が滞留するため、流入した汚濁物質が蓄積しやすく、河川等の水の滞留時間が短い水域に比べて水質の改善が難しい¹⁾。平成 24 年度における日本の公共用水域の環境基準達成率は、有機物指標 (BOD または COD_{Mn} (以下 COD と記したときは COD_{Mn} を指すものとする)) で見た場合、河川 92.0%, 海域 77.3 % に比べて湖沼 55.1% と低く、有機汚濁やそれと密接に関わる TN (全窒素) および TP (全リン) による水質汚濁の改善には、なお努力が必要な状況にある²⁾。

しかし、同じ湖沼であっても有機物指標の間で経年的な推移の異なることが、有機汚濁の原因解明や対策検討を困難にしている。琵琶湖では、有機物や窒素、リンの流入負荷は削減対策により着実に減少してきたが、経年的に 1980 年代半ばから 2000 年代にかけて BOD は減少する一方で COD が増加から横ばいで推移するという乖

離現象が見られている (図 1)。その現象は霞ヶ浦や印旛沼、十和田湖、八郎湖などでも同様の傾向が報告されて

図 1 琵琶湖における BOD と COD の経年変化 (測定全地点 (北湖 28, 南湖 19 地点) の年平均値)

1) 滋賀県琵琶湖環境科学研究センター 〒520-0022 滋賀県大津市柳が崎 5-34

2) 滋賀県立大学環境科学部 〒522-8533 滋賀県彦根市八坂町 2500

3) 筑波大学大学院生命環境科学研究科 〒305-8572 茨城県つくば市天王台 1-1-1

* E-mail: sato-y@lberi.jp

いる³⁾。BOD と COD はともに有機物量を示す指標であるが、BOD は好気的微生物が5日間で有機物を分解する際に消費する酸素量であり、COD は酸化剤によって有機物が酸化される際に消費する酸素量を示すという違いがある。したがって、BOD と COD の傾向が乖離してきた原因として、微生物では分解されにくい有機物、いわゆる難分解性有機物の増加が指摘されている³⁻⁶⁾。

有機物の増加や質的な変化は、環境基準の達成が難しくなるといふ問題の他、浄水過程でのトリハロメタン生成の増加、湖底の溶存酸素消費量の増加、鉄イオンと錯形成して植物プランクトン群集に影響を与えるなどの問題を引き起こす可能性がある⁷⁾。以上のことから、難分解性有機物の起源を明らかにし、増加してきた原因を解明することができれば、有機汚濁の削減対策や有機物指標および目標値の見直しなど、適切な施策につなげられると考えられる。

難分解性有機物の起源に関する研究は、①有機物の物理化学的特性（分子量分布、糖類組成、アミノ酸組成、炭素同位体比等）や分光学的特性（紫外吸光度、三次元励起蛍光スペクトル法等）の違いを利用した推定^{5, 8-13)}、②有機物の流入負荷量や内部生産量から統計的手法やモデルシミュレーション等の解析により推定^{9, 14)}、③これらを組み合わせたもの^{6, 15)}に大別される。また、難分解性有機物が増加している原因としては、①排水処理施設の増加や市街地の増加など、点源・面源由来の難分解性有機物が増加してきたと考える「陸域由来説」^{6, 14)}、②湖内における植物プランクトン群集の種組成の変化やバクテリアの活性の変化など、湖内における有機物生産機構が変化してきたと考える「内部生産由来説」^{16, 17)}、③気候変動や湖水利用形態の変化、自然浄化機能の劣化など、陸域および湖内における水・物質循環の仕組みが変化してきたと考える「汚濁機構変化説」¹⁸⁾という3つの仮説が考えられる。しかしながら、採用する方法や前提条件、対象とする水域によって結果は必ずしも一致せず、依然として琵琶湖における難分解性有機物の起源およびその増加原因が明らかになったとは言い難い。陸域由来、内部生産由来の有機物、および汚濁機構変化を一体のものとして扱い、琵琶湖における難分解性有機物の増加要因を推定することが必要である。

本研究では、琵琶湖における発生（流入）負荷量および内部生産量を推定し、難分解性有機物の起源およびその増加原因を推定することを目的とする。その際、有機物指標として多くの問題点が指摘されているCOD¹⁹⁾ではなく有機物量を直接計測することができるTOC（全有機炭素）を用いるとともに、湖内における難分解性有機物の収支を再現できる琵琶湖ボックスモデルを構築してその起源を推定した。琵琶湖のCODの大半は溶存有機物であることから⁵⁾、TOCはその形態（懸濁態および溶存態）および分解性から、RPOC（難分解性懸濁有機物）、RDOC（難分解性溶存有機物）、LPOC（易分解性懸濁有機物）、LDOC（易分解性溶存有機物）の4成分に分割して（これらをまとめて以下「成分別TOC」と呼ぶ）以下の調査・解析を行う。

2. 方法

2.1 試料の採取

琵琶湖への有機物の負荷量を把握するため、琵琶湖流域内に存在する各種発生源からの排水（一部流域外を含む）および湖水の採取を行うとともに、合計152件の試料について生分解試験を実施した。調査を行った時期は2006年度～2010年度である。

点源排水の採取には金属性容器を使用し、サンプル保存容器はペルオキソ二硫酸カリウム水溶液を満たして120℃で30分間オートクレーブをかけた後に超純水で洗浄を行ったポリカーボネート製NALGEN容器か、450℃で4時間加熱したガラス容器を使用した。生活系処理施設の処理水については、2007～2010年度に流域下水道、し尿処理施設、農業集落排水処理施設、合併・単独浄化槽の計20ヶ所より採取した。生活雑排水については、3団地における平日および休日の各朝昼夜に分けて、2006年度に計18サンプルを採取した。工場・事業場については、産業分類の中分類別に琵琶湖に係る湖沼水質保全計画第5期²⁰⁾（現況年度：2005年度）においてCOD負荷量の大きな業種を抽出し、業種ごとに1～数施設を選定、2007年度に計60施設で採取した。

面源排水についても採取方法は点源排水と同様であるが、降雨などの気象イベントや耕作スケジュールなどに大きな影響を受けるという非定常性を有する²¹⁾ため、平常時のみならず降雨時等における調査をあわせて実施することが必要である。面源を湖沼水質保全計画で用いられる区分と同様、水田、畑、宅地道路、山林他の4種類に分け、各面源において2007～2009年度にかけて複数回の降雨時調査を実施した。その方法は降雨中の任意の時間（概ね濁水が顕著に見られるとき）における排水を1サンプル採取する場合と、降雨期間中に複数回採取し流量比によりコンポジットして分析サンプルを作成する場合とがあった。水田は灌漑期と非灌漑期を分けて計10回（うち降雨時4回）、畑は麦および大豆畑を対象に計3回（全て降雨時）、宅地道路は住宅地および商業地が混在する地域を対象に計10回（全て降雨時）、山林・他は森林流域を対象に計7回（うち降雨時2回）の調査を実施した。降水については2地点において計4回の採取を行った。

後述する琵琶湖ボックスモデルにおいて湖水中の成分別TOCの検証およびパラメータの推定を行うため、北湖湖心1地点（今津沖中央（17B）：緯度35°23′41″，経度136°07′57″）および南湖湖心1地点（唐崎沖中央（6B）：緯度35°02′40″，経度135°53′36″）における湖水の採取と生分解試験を実施した。なお、両地点はともに湖心部の環境基準点であり、1960年代以降滋賀県によって継続した調査が実施されている。鉛直方向やプランクトンの定期モニタリングも同時に行い、水質変動に関する知見が最も蓄積されていることから、今回湖水の採取地点として両地点を選定した。モデルでは北湖において表水層と深水層を区別するため、表水層は水深0.5m、深水層は水深40mおよび60mから採取を行った。採取はバンドーン採水器を使用し、サンプル保存容器には、ポリ容器かポリカーボネート製NALGEN容器を用いた。容器の有機物による汚染を極力低減するため、ポリ容器

図2 点源・面源排水および琵琶湖水の採取地点

の場合は事前に超純水を満たし、TOC ブランク値が 0.02 mg L^{-1} 未満になるまで洗浄して使用した。ポリカーボネート製 NALGEN 容器の場合は、前述と同様の洗浄を行った上で使用した。調査期間は 2007 年 12 月～2011 年 2 月に四季ごとに実施した。採水回数は北湖表水層で 12 回、北湖深水層および南湖で各 8 回である。

以上の点源・面源排水および湖水の採取を行った地点を図 2 に示す。

2.2 生分解試験

点源・面源排水、および湖水の生分解試験の条件を表 1 に示す。

点源・面源から排出される有機物は、発生源によって水質等の現場条件が大きく変わること、また琵琶湖に到達するまでの流下過程において様々な作用を受けることから、琵琶湖内で発生した有機物とは分解過程が大きく異なる。琵琶湖における難分解性有機物の起源を推定するためには、点源、面源、および湖水の生分解試験の結果を汎用的に比較できる方法にする必要があるが、点源・面源排水の発生源ごとに琵琶湖に流入するまでの分解過程を厳密に再現することは困難である。そのため、点源・面源排水については、生分解が生じやすい実験条件で統

図3 点源・面源排水の生分解試験方法

一し、難分解性有機物の分析を行うこととした。実験条件としては、 450°C 、4 時間強熱した 5 L または 10 L のガラス容器に 4 L または 8 L の試水を入れ、 20°C で暗条件のもと、BOD 公定法 (JIS K0102 21) に基づく植種および栄養塩類と緩衝液を添加した。植種には市販品 (例えば、BI-CHEM BOD-seed: NOVOZYMES BIOLOGICALS 社製) を用いた。また、高濃度の有機物であっても好気条件を維持するために、高純度空気ガスを不純物の混入を防ぐための活性炭と、水分の蒸発を防ぐための超純水に通した後、散気管から供給し、ばう気 (給気速度 $0.01 \sim 0.02 \text{ L s}^{-1}$) を行った (図 3)。

湖水の生分解試験については、湖水中には常時生分解に必要な細菌数が存在していること、また現場に近い条件とするため、新たな細菌の植種や栄養塩添加と湖水のろ過は行わなかった。実験条件としては、2.1 節で記載した方法で洗浄を行ったポリカーボネート製 NALGEN 容器に 2 L の試水を入れ、 20°C 、暗条件で、水平振とうを 60 回分^{-1} で行った。

生分解に必要な日数を検討するため、北湖環境基準点の今津沖、長浜沖、北小松沖、愛知川沖の 4 地点において、2007 年 9 月に採取した湖水で 150 日間の生分解試験を行った。その結果、100 日目以降 TOC の減少が見られなかったことから、琵琶湖における難分解性有機物は、100 日生分解後に残存する有機物とした²²⁾。またこれに合わせ、点源・面源排水についても 100 日生分解後に残存する有機物を難分解性有機物とした。これより、成分別 TOC は以下の式により算出される。

$$\begin{aligned} \text{RPOC} &= \text{POC}_{100}, \quad \text{RDOC} = \text{DOC}_{100}, \\ \text{LPOC} &= \text{POC}_0 - \text{POC}_{100}, \\ \text{LDOC} &= \text{DOC}_0 - \text{DOC}_{100} \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、添字 0 もしくは 100 は、それぞれ生分解試験開始 0 日目、100 日目の POC または DOC の分析結果を示す (以下、特に記述がない限りは POC, DOC, TOC, COD と記載したときには 0 日目の分析結果を示す)。また、 $\text{RTOC} (= \text{RPOC} + \text{RDOC}) / \text{TOC}$ を「難分解性比率」と呼ぶことにする。

有機物の分析は、これまでの琵琶湖におけるモニタリングデータを活用するため、公定法および滋賀県公共用水域測定計画に準拠することとした。TOC 測定は、 450°C で 2 時間処理して有機物を除去した Whatman GF/B ろ紙 (公称口径 $1 \mu\text{m}$) でろ過後、ろ液を TOC 計

表 1 生分解試験条件

項目	湖水	点源・面源排水
分解期間	100 日間	
温度	20°C	
光	暗 (24 時間)	
酸素供給	60 rpm	曝気 (エアポンプ)
植種の有無	無	有 (BOD 分析用植種)
栄養塩添加	無	有 (必須元素の添加)
緩衝液添加	無	有 (リン酸緩衝液)

(SHIMADZU TOC-5000A) で測定した結果を DOC, ろ紙上の粒子態を NC アナライザー (SUMIGRAPH NC-22F) で分析した結果を POC, DOC と POC の和を TOC とした。COD については Whatman GF/B ろ紙によるろ過前を COD, ろ過後のろ液の COD を D-COD とした。

2.3 発生負荷量の算出

流域における発生負荷量は一般に原単位法²³⁾ で算出され、有機物指標としては COD が用いられる。本研究では TOC の成分別に発生負荷量を算出する必要があることから、各成分について以下の式により発生負荷量を算定した。

$$L_n = \sum_m (C_{m,n} \cdot U_m \cdot F_m) \quad (2)$$

ここで、 L : 発生負荷量, C : COD から成分別 TOC への換算係数, U : COD 原単位, F : フレーム値 (人口, 家畜頭数, 土地利用面積等), m : 各発生源, n : 成分別 TOC (RPOC, RDOC, LPOC, LDOC) である。これを、地理情報システム (GIS : ESRI 社 ArcGIS9.2) を用いて琵琶湖流域全域で集計し、流域における発生負荷量とした。

本来、各発生源について十分なサンプル数の調査を行うことができれば、COD 原単位を用いる必要はなく直接成分別 TOC の原単位を求めればよい。しかし、①本研究は発生源別の有機汚濁の質の違いを見ることを主眼に置いており、各原単位を求められるほど十分な数の調査を実施していない、②COD を用いた調査は全国で蓄積があり、これを活用して成分別 TOC を求められる方が汎用性が高いという理由から、上記変数 C を媒介にして成分別 TOC 発生負荷量を算出することとした。

変数 C について、COD から成分別 TOC への換算には、各発生源で測定した成分別 TOC と COD の濃度比の平均値を用いた。変数 U および F について、COD 原単位およびフレーム値は、第 6 期琵琶湖に係る湖沼水質保全計画の値²⁴⁾ を採用したが、過去に滋賀県が排水の量および COD 濃度を調査・測定した実績値が存在する場合には、それを利用した。具体的には、処理場系 (下水処理場, し尿処理場, 農業集落排水処理施設) は各処理場

の該当年度の排水量に水質の実績値を乗じることにより負荷量を算出し、産業系は各事業場の該当年度の排水量に水質の実績値がある事業場の場合はそれに乗じ、ない事業場の場合は業種 (産業中分類) 別の平均値を乗じることにより負荷量を算出した。また、面源系のフレーム値は、市町別の各土地利用面積に、3 次メッシュ 1/10 細分区分 (100 m) の土地利用データ²⁵⁾ から算出した流域内比率を乗じて求めた²⁴⁾。

発生負荷量は、湖沼水質保全計画 (第 1 期～第 6 期) の現況年である 1985 年度から 5 年おきに計算し、また北湖・南湖流域別に算出した。流域別の負荷については、GIS を用いて流域を 500 m メッシュに分割し、各発生源データをメッシュに割り当てた上で、各メッシュの平均標高から落水線を作成して求めた。

後述する琵琶湖ボックスモデルで流域からの負荷量を入力するためには、発生負荷量に流達率を乗じて琵琶湖への流入負荷量を算定する必要がある。しかし流達率は流域の状況や発生源の位置等によって変化して一般に明らかでないこと、また琵琶湖ボックスモデルで解析するのは難分解性有機物 (RPOC, RDOC) のみであり流域内における分解等の変化はないと考えられることから、これらについては発生負荷量を流入負荷量として (つまり流達率は 1 であると仮定して) モデル計算に用いることとした。

2.4 琵琶湖ボックスモデル

琵琶湖における難分解性有機物の起源を推定するため、北湖は停滞期には水温成層を考慮するために表水層と深水層の 2 ボックス、循環期には 1 ボックス、南湖は 1 ボックスにより成るモデル (琵琶湖ボックスモデル) を構築した。各ボックス内では完全混合と見なした。物質としては RPOC と RDOC を考慮し、ともに変質はしないが、RPOC については沈降速度に応じて沈殿、除去されるものとした。

琵琶湖ボックスモデルの基礎式を以下に、停滞期の概念図を図 4 に示す。

〈水循環〉

$$\text{北湖} : D_n^{in} + R_n - E_n - D_n^{out} = 0 \quad (3)$$

図 4 琵琶湖ボックスモデルの概念図 (停滞期)

$$\text{南湖：} D_n^{\text{out}} + D_s^{\text{in}} + R_s - E_s - D_s^{\text{out}} = 0 \quad (4)$$

〈物質循環〉

【停滞期】

$$\begin{aligned} \text{北湖表水層：} \frac{d(C_{ne} V_{ne})}{dt} &= L_n^{\text{in}} + C_r R_n + P_{ne} A_{ne} \\ &\quad - C_{ne} A_{ne} v_{ne} - C_{ne} D_n^{\text{out}} \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \text{北湖深水層：} \frac{d(C_{nh} V_{nh})}{dt} &= C_{ne} A_{nh} v_{ne} \\ &\quad - C_{nh} A_{nh} v_{nh} \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \text{南湖：} \frac{d(C_s V_s)}{dt} &= C_{ne} D_n^{\text{out}} + L_s^{\text{in}} + C_r R_s + P_s A_s \\ &\quad - C_s A_s v_s - C_s D_s^{\text{out}} \end{aligned} \quad (7)$$

【循環期】

$$\begin{aligned} \text{北湖：} \frac{d(C_n V_n)}{dt} &= L_n^{\text{in}} + C_r R_n + P_n A_{ne} \\ &\quad - C_n A_{ne} v_n - C_n D_n^{\text{out}} \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \text{南湖：} \frac{d(C_s V_s)}{dt} &= C_n D_n^{\text{out}} + L_s^{\text{in}} + C_r R_s + P_s A_s \\ &\quad - C_s A_s v_s - C_s D_s^{\text{out}} \end{aligned} \quad (9)$$

ここで、 D ：流入出水量 ($\text{m}^3 \text{日}^{-1}$)、 R ：降水量 ($\text{m}^3 \text{日}^{-1}$)、 E ：湖面蒸発量 ($\text{m}^3 \text{日}^{-1}$)、 C ：難分解性有機物 (RPOC, RDOC) 濃度 (mg L^{-1})、 V ：容量 (m^3)、 L ：流入負荷量 (g 日^{-1})、 P ：内部生産量 ($\text{g m}^{-2} \text{日}^{-1}$)、 A ：ボックスの面積 (m^2)、 v ：沈降速度 (m 日^{-1})、上添字：流入 (in)、流出 (out)、下添字：北湖 (n)、北湖表水層 (ne)、北湖深水層 (nh)、南湖 (s)、降水 (r) である。

琵琶湖のように地点間、水深別の水質差が大きく、気象や内部生産、水生植物等の要因により水質が大きく季節変動する水域において、ボックスモデルで時々刻々の変化を表現することは困難である。本研究では、概ね2000年代の琵琶湖を対象として、北湖表水層、深水層、南湖の年平均あるいは停滞期と循環期の水質差を再現することを目指してモデルのキャリブレーションを行った。なお北湖表水層と深水層は、過去の観測結果を参考に水深30mで区分することとした。水質について任意の初期値を設定し、一定の変化に収束するまで25年間程度計算を実施し、最終年における結果を採用した。計算のタイムステップは1日としているが、日ごとの変化を見ることが目的ではなく、計算の安定性や入出力データの取り扱いの容易さから選定したものである。

入力データとして、流入量は琵琶湖流域水物質循環モデル²⁶⁾により計算、降水量は彦根気象官署の観測値、降水水質は観測値、循環期（停滞期）の期間は過去の観測から設定した。湖面蒸発量は風速および水と大気の蒸気圧差から以下の式²⁷⁾により計算した。

$$E = (A + BW)(e_w - e_a) \quad (10)$$

ここで、 W ：風速 (m s^{-1})、 e_w 、 e_a ：水および大気の水蒸気圧、 A 、 B ：実験定数（琵琶湖流域水物質循環モデル²⁶⁾による再現計算より、 $A = 0$ 、 $B = 0.09$ ）である。全ての入力データは季節変化等を考慮せず、年間の平均的な値を日単位に按分して設定した。

モデルによる計算結果が2.1および2.2で観測された

季節・水深別の湖水中観測濃度と概ね合致するように、内部生産量や沈降速度に関するパラメータを文献値を参考にして調整した。

具体的には、内部生産量については、琵琶湖北湖および南湖の沖帯における植物プランクトンの一次生産として、石川ら²⁸⁾が $0.03 \sim 2.2 \text{ gC m}^{-2} \text{日}^{-1}$ の値を報告している他、Kishimoto et al.²⁹⁾は1980～2000年代の値として $0.1 \sim 0.9 \text{ gC m}^{-2} \text{日}^{-1}$ 程度と推計している。また古田ら³⁰⁾は、琵琶湖から採取した緑藻 *Staurastrum arcticon* の生分解試験を実施し、200日後の細胞質POCの残存率が31%であり、初期POCの2～4%がDOCに変化したことを報告している。以上より、内部生産由来のRPOCを $0.009 \sim 0.6 \text{ g m}^{-2} \text{日}^{-1}$ 、RDOCを $0.0006 \sim 0.09 \text{ g m}^{-2} \text{日}^{-1}$ の幅の中で同定した。なお、ここでいう内部生産量とは、植物プランクトンの一次生産量のみならず、動物プランクトン等による捕食や呼吸、排泄等により結果として内部で生産される有機物の総量を示すものであるが、一次生産量が内部生産量を推定する一つの目安になると考え、上記のようにパラメータの幅を設定した。

沈降速度については、若林ら³¹⁾が植物プランクトンの単細胞もしくは群体の沈降速度を計測した結果として $0.11 \sim 14 \mu\text{m 秒}^{-1}$ ($0.01 \sim 1.2 \text{ m 日}^{-1}$)、岩佐³²⁾が琵琶湖を含む国内外の湖沼の結果として $0.01 \sim 3.08 \text{ m 日}^{-1}$ の値を報告している。また沈降フラックスとして、Yoshimizu et al.³³⁾は北湖の水深30mにおける沈降量を約 $100 \sim 500 \text{ mgC m}^{-2} \text{日}^{-1}$ ($36.5 \sim 182.5 \text{ gC m}^{-2} \text{年}^{-1}$)と報告しており、30mにおける湖面積を 384 km^2 とすれば、ここを通過する炭素量は $14,016 \sim 70,080 \text{ t 年}^{-1}$ となる。この一部が難分解性であると考え、表水層から深水層に移行するRPOCが数千～数万 t 年^{-1} 程度の範囲となるよう、沈降速度を $0.01 \sim 3 \text{ m 日}^{-1}$ の幅の中で同定した。

以上で構築されたモデルを用いて、RPOCおよびRDOCの物質収支図を描き、陸域および内部生産に起因する負荷量を集計し、各起源の比率を推定した。

3. 結果

3.1 発生源別生分解試験

発生源別生分解試験の結果を表2に示す。製造業およびサービス業等においては業種ごとの差異が大きいため、全業種平均について見ると、COD/TOCは発生源に応じて1.00（雑排水）～1.81（山林・他）の値を取り、COD/TOCの理論値 (O_2 とCの質量比から $32/12 \div 2.67$) よりもかなり小さくなった。難分解性比率 (RTOC/TOC) も0.16（雑排水）～0.78（し尿処理場）と発生源により異なった。

3.2 発生負荷量の経年変化

有機物に係る発生負荷量の経年変化を図5に示す。北湖・南湖流域ともに1985年度以降ほとんどの項目で減少傾向にあり、流域における有機物の発生負荷は、COD、TOCのいずれで見ても、主に生活系および産業系の対策等により削減されてきたことが明らかになった。一方、南湖流域のRDOCは処理場系の増加により1985年度と2010年度で同程度の負荷量となった。分解性別のTOCで見ると、TOCの削減に寄与してきたのは主に易分解性の画分であったが、難分解性画分についてもその傾向は穏やかであるものの減少していた。

表 2 発生源別生分解試験結果

大項目	小項目	詳細	調査数	比率	原単位*									
					COD/TOC	RTOC/TOC	RPOC/TOC	RDOC/TOC	単位	COD	TOC	RTOC	RDOC	RPOC
処理場系	下水処理場		3	1.44	0.72	0.05	0.67	-	-	実績値から算出**				
	し尿処理場		3	1.23	0.78	0.17	0.60	-	-	実績値から算出**				
	農業集落排水処理		5	1.38	0.62	0.14	0.48	-	-	実績値から算出**				
生活系	合併浄化槽		6	1.25	0.67	0.20	0.47	g 人 ⁻¹ 日 ⁻¹	7.3	5.8	3.9	2.8	1.2	
	単独浄化槽		3	1.40	0.75	0.22	0.53	g 人 ⁻¹ 日 ⁻¹	6.1	4.4	3.3	2.3	1.0	
	雑排水		18	1.00	0.16	0.10	0.06	g 人 ⁻¹ 日 ⁻¹	19.2	19.1	3.1	1.1	2.0	
産業系	製造業	(全業種平均)	44	1.48	0.46	0.22	0.24	-	-	実績値から算出**				
		食料品製造業	2	1.31	0.66	0.27	0.39	-	-	実績値から算出**				
		飲料・たばこ・飼料製造業	4	1.30	0.35	0.16	0.19	-	-	実績値から算出**				
		繊維工業	3	1.79	0.67	0.18	0.49	-	-	実績値から算出**				
		木材・木製品製造業(家具を除く)	1	2.02	0.28	0.12	0.12	-	-	実績値から算出**				
		パルプ・紙・紙加工品製造業	3	1.47	0.43	0.20	0.23	-	-	実績値から算出**				
		出版・印刷・同関連産業	1	1.26	0.53	0.13	0.39	-	-	実績値から算出**				
		化学工業	3	1.46	0.35	0.19	0.15	-	-	実績値から算出**				
		プラスチック製品製造業	5	1.57	0.66	0.49	0.17	-	-	実績値から算出**				
		ゴム製品製造業	1	1.37	0.44	0.22	0.22	-	-	実績値から算出**				
		窯業・土石製品製造業	2	1.18	0.26	0.12	0.14	-	-	実績値から算出**				
		鉄鋼業	1	1.69	0.71	0.54	0.17	-	-	実績値から算出**				
		非鉄金属製造業	1	1.41	0.52	0.17	0.34	-	-	実績値から算出**				
		金属製品製造業	2	1.50	0.50	0.31	0.20	-	-	実績値から算出**				
		一般機械器具製造業	3	1.83	0.48	0.23	0.25	-	-	実績値から算出**				
		電気機械器具製造業	7	1.43	0.38	0.21	0.17	-	-	実績値から算出**				
		輸送用機械器具製造業	4	1.48	0.46	0.10	0.37	-	-	実績値から算出**				
		その他の製造業	1	1.16	0.07	0.05	0.02	-	-	実績値から算出**				
	サービス業等	(全業種平均)	13	1.38	0.53	0.23	0.30	-	-	実績値から算出**				
		水道業	3	1.64	0.59	0.22	0.37	-	-	実績値から算出**				
		その他の小売業	2	1.12	0.47	0.22	0.25	-	-	実績値から算出**				
		洗濯・理容・浴場業	1	1.33	0.52	0.17	0.36	-	-	実績値から算出**				
		旅館、その他の宿泊所	3	1.28	0.72	0.24	0.48	-	-	実績値から算出**				
		自動車整備業	2	1.87	0.28	0.26	0.02	-	-	実績値から算出**				
		医療業	1	1.11	0.57	0.20	0.36	-	-	実績値から算出**				
		社会保険、社会福祉	1	1.33	0.58	0.30	0.28	-	-	実績値から算出**				
	観光客		6	1.25	0.67	0.20	0.47	g 人 ⁻¹ 日 ⁻¹	7.3	5.8	3.9	2.8	1.2	
	畜産(豚)		3	1.57	0.53	0.25	0.29	g 頭 ⁻¹ 日 ⁻¹	7.8	5.0	2.7	1.4	1.2	
	水田	(年平均)	10	1.38	0.74	0.38	0.36	g ha 日 ⁻¹	118.4	84.1	61.0	28.7	32.3	
面源系		灌漑期	4	1.47	0.69	0.39	0.30	g ha 日 ⁻¹	171.8	116.8	80.6	35.1	45.5	
		非灌漑期	6	1.32	0.77	0.38	0.40	g ha 日 ⁻¹	79.8	60.6	46.8	24.1	22.7	
	畑		3	1.33	0.72	0.22	0.50	g ha 日 ⁻¹	62.0	46.7	33.6	23.3	10.4	
	宅地道路		10	1.35	0.56	0.35	0.21	g ha 日 ⁻¹	144.0	106.5	59.6	22.8	36.8	
	山林・他		7	1.81	0.65	0.21	0.43	g ha 日 ⁻¹	48.1	26.6	17.2	11.5	5.6	
	湖面降水		4	1.62	0.32	0.17	0.15	mg L ⁻¹	1.8	1.1	0.4	0.2	0.2	

* 第6期湖沼水質保全計画で用いられたCODの原単位から、各比率を用いてTOCやRTOC等の原単位を算出(式(2)のC・Uに相当)

** 処理場あるいは事業場ごとの過年度調査における実績値から算出

3.3 琵琶湖ボックスモデルを用いた検証

琵琶湖ボックスモデルで採用した諸元およびパラメータを表3に、湖内中濃度の観測値と計算値の平均値を比較検証した結果を図6に示す。RDOC濃度が北湖表水層、深水層、南湖のいずれにおいても0.9~1.0 mg L⁻¹程度でほとんど差がないこと、RPOC濃度は南湖、北湖表水層、深水層の順に大きいこと等をほぼ再現することができた。停滞期と循環期の水質差を見るため、表3に示した条件を一定として25年間程度の計算を実施したときの経年変化を図7に示す。RDOC濃度について見ると、いずれの水域においても停滞期と循環期の水質差は非常に小さく、またRPOC濃度は、内部生産量の上がる停滞期に増加し、循環期に減少するという季節変動を示している。その結果、RDOC、RPOCとも、図6に示した観測値の変動レベルと概ね合致している。

本モデルにより物質収支をまとめたものを図8に、これを元に起源を推定した結果を表4に示す。琵琶湖全体(北湖および南湖)で見ると、難分解性有機物(RTOC)の起源としては内部生産由来が卓越し、全体の77.4%を占めた。一方で形態別に見ると、内部生産される難分解性有機物の大半が懸濁態(RPOC)であり、図8からこれらのほとんどは湖底に沈殿・除去されていることが分かる。近年琵琶湖で増加してきているのは溶存態有機物である⁴⁾ことからRDOCの起源を見ると、琵琶湖全体で陸域由来が52.2%、内部生産由来が47.8%と同程度の比

率になった。南湖に直接流入あるいは内部生産される分だけを対象として見た場合には陸域由来が70.7%となり、内部生産由来よりも卓越することが分かった。

4. 考察

4.1 琵琶湖における難分解性有機物の増加要因

琵琶湖において難分解性有機物、とりわけその溶存態成分(RDOC)が経年的に増加してきた原因について、①陸域由来説、②内部生産由来説、③汚濁機構変化説のいずれによるものか考察を行う。

①について、図5のRDOCの発生負荷量の経年変化を見ると、北湖流域では減少していることが分かる。南湖流域では必ずしも減少していないが、図8の物質収支を見ると北湖から流入する分が4,366 t 年⁻¹あり、流域から南湖に直接流入する520 t 年⁻¹などと比べてほぼ1桁多いことから、南湖のRDOC濃度は北湖の影響を強く受けると考えられる。また発生負荷原単位を全期間で一定としており、1980年代半ばから2000年代にかけてこれが増加してきた可能性もあるが、琵琶湖流域においてそうした報告は筆者らの知る限りなされていない。以上より、陸域由来により琵琶湖のRDOC濃度が増加してきた可能性は低い。

②について、まず天野ら⁶⁾および井手ら¹⁸⁾は、琵琶湖北湖湖水中においてクロロフィルa濃度の上昇がみられないことから内部生産由来説を否定しているが、近年は

図5 発生負荷量の経年変化

表3 琵琶湖ボックスモデルの諸元およびパラメーター一覧

諸元

項目	単位	北湖		南湖
		表水層	深水層	
面積	km ²	618	384	52
容積	億t	140	133	2

水循環

項目	単位	北湖	南湖	備考
降水量	億t 年 ⁻¹	9.7	0.8	彦根気象官署における実績値(1985～2010年平均)
蒸発量	億t 年 ⁻¹	3.4	0.3	風速および水・大気の蒸気圧を用いた換算式により計算(2000～2005年平均)
流入水量	億t 年 ⁻¹	39.9	3.1	琵琶湖流域水物質循環モデルにより計算(2004～2008年度平均)
循環期間	日 年 ⁻¹	85	-	近10年程度における平均的な日数

物質循環

項目	単位	RPOC		RDOC		備考			
		北湖	南湖	北湖	南湖				
		表水層	深水層	表水層	深水層				
降水水質	mg L ⁻¹	0.18	-	0.18	0.17	-	0.17	第6期湖沼計画原単位に各比率をかける	
流入負荷量	kg 日 ⁻¹	4,103	-	667	5,408	-	1,426	2010年度における負荷量(湖面降水除く)	
沈降速度	(停滞期)	m 日 ⁻¹	0.50	0.90	0.50	0.00	0.00	文献値 ^{31～33)} を参考に調整	
	(循環期)	m 日 ⁻¹	0.50	0.50	0.50	0.00	0.00		
内部生産量	(停滞期)	g m ⁻² 日 ⁻¹	0.06	-	0.08	0.012	-	0.014	文献値 ^{28～30)} を参考に調整
	(循環期)	g m ⁻² 日 ⁻¹	0.03	-	0.04	0.003	-	0.004	

表4 RPOC および RDOC の起源推定結果

項目	起源	負荷量・比率推定結果*					
		北湖		南湖		合計	
		t 年 ⁻¹	比率	t 年 ⁻¹	比率	t 年 ⁻¹	比率
RPOC	陸域由来**	1,673	12.3%	258	16.2%	1,931	12.7%
	内部生産由来	11,940	87.7%	1,340	83.8%	13,279	87.3%
RDOC	陸域由来**	2,139	49.0%	534	70.7%	2,673	52.2%
	内部生産由来	2,229	51.0%	221	29.3%	2,450	47.8%
合計	陸域由来**	3,812	21.2%	792	33.7%	4,604	22.6%
	内部生産由来	14,168	78.8%	1,561	66.3%	15,729	77.4%

* これらの推定結果にはモデルや測定誤差などに起因する不確実性が含まれる

** 湖面降水負荷は陸域由来として計算した

植物プランクトンの種構成が変化し、クロロフィル a 量では一次生産量の変化を評価できないと考えられていること^{16, 29)}から、この指摘はあたらない。

つづいて、RDOC の流入負荷および内部生産量の変化が湖内 RDOC 濃度に与える影響について考察する。BOD と COD に乖離が見られ始めた 1980 年代半ばの状況を再現するため、2.4 において構築したモデルにおいて、まず流入負荷量を 1985 年度見合いの量に変更して計算したところ、北湖表水層の RDOC 濃度は 1985 年から 2010 年にかけて 13.8% 減少することが分かった。この条件の下、RDOC の内部生産量を順次変化させ、北湖表水層の RDOC 濃度がどの程度変化するかモデルにより計算した。その結果を図 10 に示す。RDOC の流入負荷量が経年的に減少していることから、1985 年比で 2010 年の RDOC

内部生産量を 1.5 倍程度増加させることで両年の RDOC 濃度が同程度となり、5 倍程度で RDOC 濃度が約 30% 増加すると考えられた。琵琶湖の COD 濃度は 1985 年度には北湖（全観測地点・年平均値）で 2.0 mg L⁻¹であったのが、2010 年度には 2.6 mg L⁻¹（上昇率 30%）となっている。COD の変化が必ずしも RDOC の変化に対応するとは限らないが、RDOC 内部生産量が 1985 年から 2010 年にかけて少なくとも数倍程度上昇していることが示せれば、内部生産量の変化が主たる要因で琵琶湖の RDOC 濃度が増加してきたとの仮説は支持される。

③について、まず流域における浄化機能について考察する。北湖流域の RDOC 発生負荷量は、1985 年度から 2010 年度にかけて約 24.7% 減少している。仮に河道における植生の繁茂状況等の違いにより RDOC の流入負荷量

図6 琵琶湖ボックスモデルの検証結果 (n は観測数, ヒゲは最大および最小値を示す)

図7 琵琶湖ボックスモデル計算値の経年変化

が増加してきたとすれば、1985年度において少なくともこの負荷減少分以上の自浄作用が働いている必要があるが、100日間以上分解しない溶存態有機物が河川等を流下する数日のうちにこれだけ減少する根拠は見いだせない。

つづいて近年の気候変動により水循環上の変化が生じ、RDOC濃度が増加してきた可能性を考察する。彦根気象官署における1980～2000年代にかけての気温および降水量の経年変化を図9に示す。この間、降水量は概ね横ばいであるが、日平均気温は概ね1℃程度上昇しているこ

とから、気温が上昇することにより湖面蒸発量が増え、湖水が濃縮することにより濃度が上昇することが考えられる。そこで、2.4において構築したモデルにおいて、気温が現在より1℃低い状況（水循環のみ1980年代相当に置き換えたもの）における仮想的な計算を行った。その結果、1980年代に比べて1℃上昇することで蒸発量は24.5%増加したが、それに伴うRDOC濃度の上昇率は北湖表水層で1.9%、深水層で0.9%、南湖で1.7%にとどまった。したがって、蒸発量の増加だけでCOD濃度の変化を説明することは困難であり、汚濁機構の変化が主要な要

RPOC

単位: t 年^{-1}

RDOC

単位: t 年^{-1}

* 循環期において表水層と深水層の間で移流・拡散する物質量を別途算定することができないため、深水層移行としてはRPOCの沈殿分のみを集計している

図8 RPOC および RDOC の物質収支

図9 彦根気象官署における気温および降水量の経年変化

図10 RDOC 内部生産量と北湖表層 RDOC 濃度の関係 (1985 年比)

因となって琵琶湖の RDOC 濃度が増加した可能性は低い。

これらのことから、琵琶湖の RDOC 濃度は主に②の内部生産由来が原因で増加してきた可能性が高いと考えられる。

4.2 内部生産量の変化に影響する機構

RDOC 内部生産量の変化に影響する陸域あるいは湖内の水質汚濁機構について考察を加える。植物プランクトンの長期変遷では、1980 年代と比べて種類数と総細胞炭素量が減少傾向である一方で、藍藻網については全体に占める割合が増加していることが明らかになっている³⁴⁾。

Kishimoto et al.²⁹⁾ はこの藍藻網の増加が琵琶湖における一次生産量の増加にも寄与してきたことを指摘しており、1980 年代前半に $0.1 \sim 0.2 \text{ gC m}^{-2} \text{ 日}^{-1}$ 程度であったのが 2000 年代には $0.6 \sim 0.9 \text{ gC m}^{-2} \text{ 日}^{-1}$ 程度にまで上昇したと推定している。琵琶湖から分離した藍藻 2 種について生分解試験を行った結果、その一部 (2.8%) が RDOC として残存することが報告されており、珪藻や緑藻を含む全 12 種の RDOC 残存率の平均値 (2.8%) と同程度である³⁵⁾。これにより RDOC 内部生産量が数倍程度以上に増加した可能性は十分にあり、②内部生産由来説を裏付けるものと考えられる。

一方、藍藻網が増加してきた原因としては、流入するリン負荷量の減少や沿岸帯の改変、内湖の消失、地球温暖化、動物プランクトンの補食圧変化等、陸域の影響も含め様々なものが考えられる³⁴⁾が、明らかににはなっていない。有機汚濁に対する水質管理の観点からは、この原因について明らかにしていくとともに、陸域の環境変化と湖内生態系の関わりなどに関する調査・解析を行っていくことが必要である。

5. まとめ

本研究では琵琶湖における難分解性有機物の起源およびその増加原因を推定することを目的として、各種発生源からの排水および湖水の採取を行い、それらの生分解試験を実施した。またこれより流域における発生源負荷量の経年変化を算出し、琵琶湖ボックスモデルを構築して解析を行った。得られた結果は以下の通りである。

- (1) COD/TOCは発生源に応じて1.00~1.81の値を取り、COD/TOCの理論値よりもかなり小さくなった。難分解性比率 (RTOC/TOC) は0.16~0.78と発生源により異なった。
- (2) 流域における有機物の発生源負荷は、COD、TOCのいずれで見ても、主に生活系および産業系の対策等により削減されてきた。またTOCの削減に寄与してきたのは主に易分解性の画分であったが、難分解性画分についてもその傾向は穏やかではあるものの減少していた。
- (3) 難分解性有機物 (RTOC) の起源としては内部生産由来が卓越し、全体の77.4%を占めた。一方で内部生産される難分解性有機物の大半が懸濁態 (RPOC) であり、RDOCの起源を見ると琵琶湖全体で陸域由来が52.2%、内部生産由来が47.8%と同程度の比率になった。
- (4) 琵琶湖におけるRDOC濃度の増加原因について、①陸域由来説、②内部生産由来説、③汚濁機構変化説に分けて考察を行ったところ、①や③が主要因となって増加した根拠は見いだせず、主に②の内部生産由来が原因で増加してきた可能性が高いと考えられた。

謝 辞

滋賀県琵琶湖政策課 (小松直樹氏、三和伸彦氏はじめ担当職員各位)、琵琶湖環境科学研究センター (矢田稔氏、小林博美氏はじめ担当職員各位)、環境省水・大気環境局水環境課、国立環境研究所 (今井章雄氏) の各位には、調査研究の計画から実施、結果の取りまとめに至る全般にわたり、多大なご協力とご支援をいただいた。(公財)琵琶湖・淀川水質保全機構研究所 (和田桂子氏)、東レテクノ (株)、パシフィックコンサルタンツ (株)、いであ (株)、(株)日水コンの各位には、調査の実施やデータの整理・解析においてご協力をいただいた。その他、滋賀県の各種委員会等でご助言をいただいた委員各位、調査にご協力いただいた県内事業場、関係市町、市民等に、ここに記して謝意を表する。本研究は滋賀県琵琶湖環境科学研究センター試験研究の一環で実施された。

(原稿受付 2015年5月29日)

(原稿受理 2015年9月19日)

参 考 文 献

- 1) 社団法人日本水環境学会編, 2009. 日本の水環境行政 (改訂版). ぎょうせい, 東京.
- 2) 環境省水・大気環境局, 2014. 平成25年度公共用水域水質測定結果. URL: <http://www.env.go.jp/water/suiiki/> (2015年4月時点).
- 3) 岡本高弘, 佐藤祐一, 早川和秀, 一瀬諭, 2012. 水質汚濁メカニズムの解明に関する政策課題研究—難分解性を考慮した琵琶湖における有機物の現状と課題—. 滋賀県琵琶湖環境科学研究センター試験研究報告書 7, 87-102.
- 4) 岡本高弘, 早川和秀, 2011. 琵琶湖における溶存有機物の現状と課題. 水環境学会誌 34(A), 151-157.
- 5) 今井章雄, 福島武彦, 松重一夫, 井上隆信, 石橋敏昌, 1998. 琵琶湖湖水および流入河川水中の溶存有機物の分画. 陸水学雑誌 59, 53-68.
- 6) 天野耕二, 松本邦治, 今井章雄, 松重一夫, 2004. 河川水中の溶存有機物分画データと流域特性の関係. 水環境学会誌 27, 659-664.
- 7) 早川和秀, 2007. CODと難分解性有機物. 琵琶湖ハンドブック編集委員会編, 琵琶湖ハンドブック. 滋賀県, 滋賀, pp.174-175.
- 8) Fukushima, T., Park, J., Imai, A., Matsuhige, K., 1996. Dissolved organic carbon in a eutrophic lake; dynamics, biodegradability and origin. Aquatic Sciences 58, 139-157.
- 9) 国立環境研究所, 2007. 有機物リネージュに基づいた湖沼環境の評価および改善シナリオ作成に関する研究 (特別研究), 茨城.
- 10) 小松一弘, 今井章雄, 松重一夫, 奈良郁子, 川崎伸之, 2008. 三次元励起蛍光スペクトル法による霞ヶ浦湖水及び流域水中DOMの特性評価. 水環境学会誌 31, 261-267.
- 11) 吉岡崇仁, Mostofa, K.M.G., 2010. 琵琶湖およびバイカル湖とその集水域における溶存有機物の動態. Humic Substances Research 7, 5-14.
- 12) Nguyen, H.V., Hur, J., 2011. Tracing the sources of refractory dissolved organic matter in a large artificial lake using multiple analytical tools. Chemosphere 85, 782-789.
- 13) 金主鉉, 原田茂樹, 片野登, 須藤隆一, 2014. 難分解性有機物による八郎湖の水質汚濁機構と負荷量. 用水と廃水 56, 569-577.
- 14) 井手慎司, 李理史, 2004. 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—, 第32回環境システム研究論文発表会講演集, 377-382.
- 15) 国立環境研究所, 2004. 湖沼における有機炭素の物質収支および機能・影響の評価に関する研究 (特別研究), 茨城.
- 16) 一瀬諭, 池谷仁里, 古田世子, 藤原直樹, 池田将平, 岸本直之, 西村修, 2013. 琵琶湖に棲息する植物プランクトンの総細胞容積および粘質鞘容積の長期変動解析. 日本水処理生物学会誌 49, 65-74.
- 17) Kishimoto, N., Ueno, K., 2011. Influence of phosphorus concentration on the biodegradation of dissolved organic matter in Lake Biwa, Japan. Journal of Water and Environment Technology 9, 215-223.
- 18) 井手慎司, 小林文彦, 2004. 琵琶湖北湖集水域の貯水能力と湖水中難分解性有機物濃度との関係について—水と土壌の接触時間の推移に着目して—. EICA 9, 277-280.
- 19) 津田久美子, 早川和秀, 岡本高弘, 2014. 有機汚濁と環境基準: 琵琶湖を例にして. 用水と廃水 56, 213-226.
- 20) 滋賀県・京都府, 2007. 琵琶湖に係る湖沼水質保全計画 第5期, 滋賀.
- 21) 古米弘明, 2012. 非特定汚染源からの流出負荷量の推計手法に関する研究. 平成23年度環境研究総合推進費成果報告書 (RFB-11T1). 社団法人日本水環境学会, 東京.
- 22) 岡本高弘, 佐藤祐一, 早川和秀, 古角恵美, 2010. 難分解性有機物を含めた有機物による琵琶湖の水質汚濁メカニズムについて. 滋賀県琵琶湖環境科学研究センター試験研究報告書 5, 25-35.
- 23) 國松孝男, 村岡浩爾編著, 1989. 河川汚濁のモデル解析. 技報堂出版, 東京.
- 24) 滋賀県琵琶湖環境科学研究センター, 2011. 第6期湖沼水質保全計画に係る将来水質予測シミュレーションについて. URL.

- http://www.pref.shiga.lg.jp/shingikai/biwako_mizukankyoku/20111118.html (2015年4月時点).
- 25) 国土交通省, 国土数値情報 土地利用細分メッシュデータ, URL: <http://nlftp.mlit.go.jp/ksj/gml/datalist/KsjTmplt-L03-b.html> (2015年4月時点).
- 26) 佐藤祐一, 小松英司, 永禮英明, 上原浩, 湯浅岳史, 大久保卓也, 岡本高弘, 金再奎, 2011. 陸域—湖内流動—湖内生態系を結合した琵琶湖流域水物質循環モデルの構築とその検証. 水環境学会誌 34, 125-141.
- 27) 土木学会, 2005. 水理公式集 (平成11年版). 丸善, 東京, p.590.
- 28) 石川俊之, 熊谷道夫, 2007. 琵琶湖の一次生産. 琵琶湖ハンドブック編集委員会編, 琵琶湖ハンドブック. 滋賀県, 滋賀, pp.58-59.
- 29) Kishimoto, N., Yamamoto, C., Suzuki, K., Ichise, S., 2015. Does a decrease in Chlorophyll *a* concentration in Lake Biwa mean a decrease in primary productivity by phytoplankton?. Journal of Water and Environment Technology 13, 1-14.
- 30) 古田世子, 池谷仁里, 池田将平, 藤原直樹, 岡本高弘, 一瀬論, 馬場大哉, 岸本直之, 今井章雄, 2014. 琵琶湖に棲息する緑藻 *Staurastrum arcticon* (Desmidiaceae) の生分解特性に関する研究. 水環境学会誌 37, 103-109.
- 31) 若林徹哉, 一瀬論, 山中直, 松岡泰倫, 田中勝美, 1996. 植物プランクトンの沈降速度測定を試みについて. 日本陸水学会近畿支部会第7回研究発表会講演要旨集, 7.
- 32) 岩佐義朗編著, 1990. 湖沼工学. 山海堂, 東京, p.317.
- 33) Yoshimizu, C., Urabe, J., 2002. Carbon sinking flux and zooplankton grazing in Lake Biwa. New scope on sustainable watersheds in East Asia 3, 27-31.
- 34) 一瀬論, 藤原直樹, 古田世子, 池田将平, 岸本直之, 2012. 琵琶湖におけるプランクトン等の長期変遷に関する解析モニタリング—動・植物プランクトンおよび細菌を含む微生物の変動解析—, 滋賀県琵琶湖環境科学研究センター試験研究報告書 7, 196-218.
- 35) 一瀬論, 2011. 湖内生産および分解の変化と難分解性有機物を考慮した有機汚濁メカニズムの解明に関する研究. 環境省環境研究総合推進費終了研究成果報告書 (B-0805). 滋賀県琵琶湖環境科学研究センター, 龍谷大学理工学部, 株式会社東レテクノ環境科学技術部, 東京.

[論 文 要 旨]

琵琶湖ではBODとCODの濃度の経年変化に乖離が見られていることから、難分解性有機物の増加が懸念されている。本研究では、各種発生源からの排水と湖水の採取を行い、CODとTOCの測定およびそれらの生分解試験を実施することで、琵琶湖流域における発生（流入）負荷量および内部生産量を算出し、ボックスモデルを用いて難分解性有機物の起源およびその増加原因を推定した。その結果、陸域における有機物の発生負荷は主に生活系および産業系の対策等により削減されてきたが、削減に寄与してきたのは主に易分解性の画分であったことが明らかになった。モデルを用いた起源推定の結果、難分解性有機物の起源としては内部生産由来が卓越したが、そのうち溶存態成分について見ると陸域由来と内部生産由来で同程度の比率になった。この増加原因について考察したところ、主に内部生産量の変化が原因で増加してきた可能性が高いと考えられた。

キーワード：生分解試験；TOC；難分解性有機物；琵琶湖；ボックスモデル