

図9(a) 霞ヶ浦湖水における難分解性DOMの動態(2001年-2002年)(Sts. 1, 3, 7). AHS: フミン物質, HoN: 疎水性中性物質, HiA: 親水性酸, BaS: 塩基物質, HiN: 親水性中性物質, R-: 難分解性サンプル.

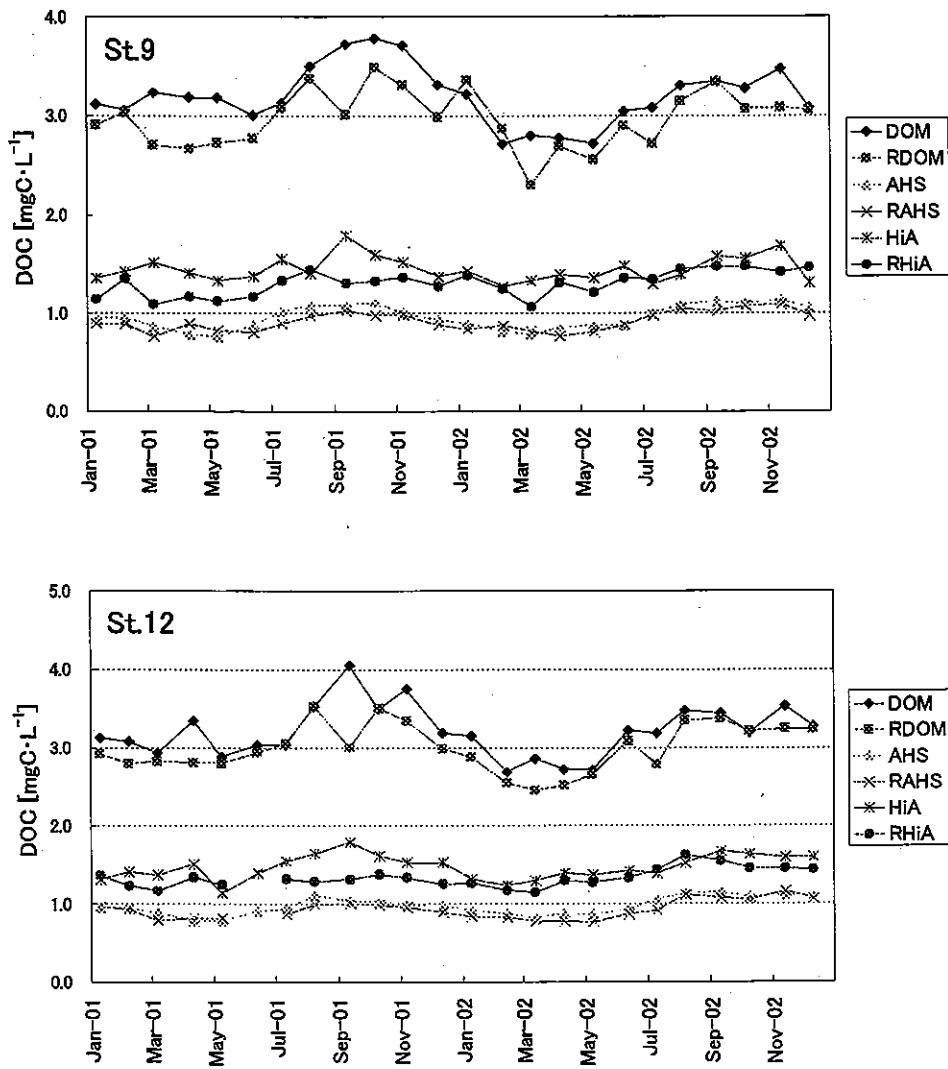


図 9(b) 霞ヶ浦湖水における難分解性 DOM の動態(2001 年-2002 年)(Sts. 9, 12). AHS: フミン物質, HoN: 疎水性中性物質, HiA: 親水性酸, BaS: 塩基物質, HiN: 親水性中性物質, R-: 難分解性サンプル.

[湖水・河川水中の DOM, フミン物質および親水性画分の分子量分布]

DOM, フミン物質および親水性画分 (= 親水性酸 + 塩基物質 + 親水性中性物質) 全てのサイズ排除クロマトグラムは, 明瞭には捉えられないピーク (ショルダー) と小さなピークを含む, 単一的モードの分子量分布を示した。DOM, フミン物質, 親水性画分の典型的なサイズ排除クロマトグラムを図 10 に表す。ほとんどのサンプルにおいて, 重量平均物質と数平均分子量の比 (ポリディスペルシティ, polydispersity) は 2 以下であった。この結果は, DOM, フミン物質や親水性画分に対応する有機物質は, それぞれ比較的狭い分子サイズの範囲にあると言える。つまり, 同じような分子量を持つ有機物質の集合体である。

DOM の平均分子量 (重量平均分子量) は比較的 low, 2000 年~2002 年の 3 年間の平均値で  $783 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  -  $712 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  であった。フミン物質は DOM よりも分子量が大きく,  $892 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  -  $940 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  の値を示した。親水性画分はフミン物質よりもさらに小さく, その分子量は  $595 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  から  $630 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  に留まった。

サンプル採取地点と各調査年の違いによって平均分子量に顕著な差が認められた (表 3)。全ての採水地点で, DOM の平均分子量は 2000 年から 2002 年にかけて減少する傾向を示した。同時に DOM の平均分子量は湖水の流れ方向に (St.1 → St.2 → St.3 → St.9 → St.12, St.7 → St.9 → St.12) に低下していった。フミン物質についても同様な調査年と採水地点に係る

トレンドが認められた。親水性画分の平均分子量は, DOM やフミン物質と異なり, 明白な傾向は読みとれなかった。2000 年から 2001 年にかけて全ての採水地点で分子量が増大したが, 2001 年 - 2002 年では, St.1 を除いて, 著しい上昇は認められなかった。

#### [霞ヶ浦湖水のトリハロメタン生成能]

霞ヶ浦 6 地点で採取されたサンプルの DOM, フミン物質および親水性画分 (= 親水性酸 + 塩基物質 + 親水性中性物質) のトリハロメタン生成能 ( $\mu\text{mol THM}\cdot\text{mgC}^{-1}$ , STHMFP [specific THMFP]) の 2001 年 - 2002 年の各年平均を図 11 に表す。全ての採水地点において, 親水性画分の STHMFP のほうがフミン物質の STHMFP よりも大きな値を示した。DOM, フミン物質, 親水性画分の全地点平均 STHMFP は, それぞれ 0.201, 0.201, 0.202  $\mu\text{mol}\cdot\text{mgC}^{-1}$  であった。フミン物質と親水性画分の STHMFP が同じ値であった。St.1 と St.2 ではフミン物質の STHMFP が, 他の地点では親水性画分の STHMFP のほうが大きな値を示した。

DOM STHMFP の動態をみると, 全ての地点で, 春季に STHMFP 値が低下し夏季から秋季にかけては増大に転じて, 秋季から冬季にかけては減少する傾向があった (図 12)。AHS STHMFP については, 夏季から夏季から秋季にかけての増大が特徴的であった。DOM や AHS の STHMFP とは異なり, HiF STHMFP は 2001 年から 2002 年にかけて漸増する傾向が認められた。

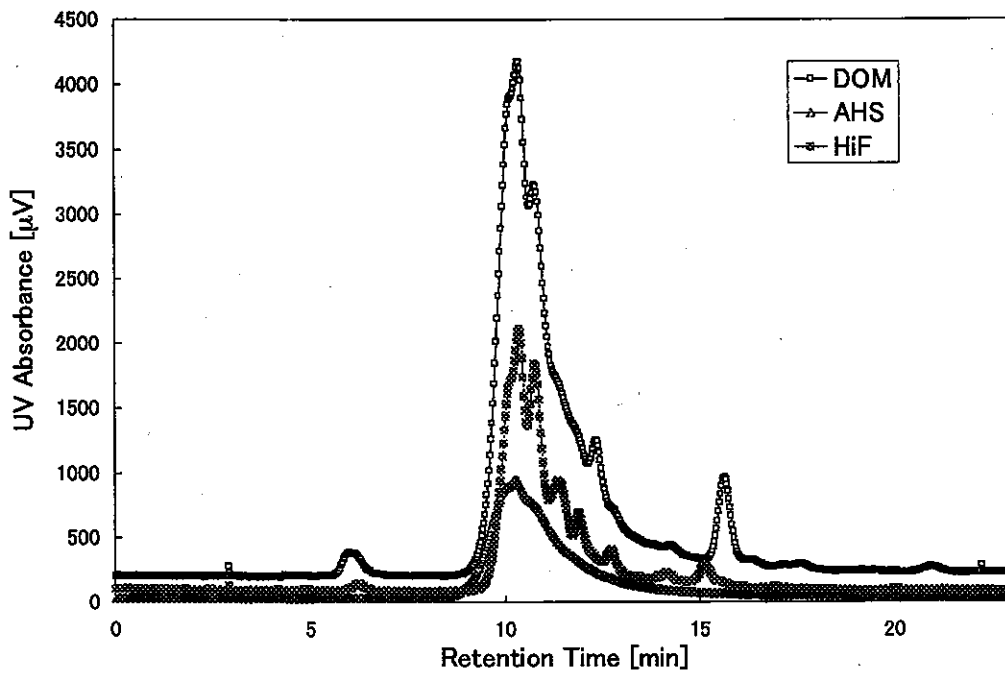


図 10 霞ヶ浦湖水における DOM, フミン物質 (AHS), 親水性画分(HiF)のサイズ排除クロマトグラム. サンプルは 2002 年 8 月 7 日の湖心(St.9)で採取. HiF=親水性酸+塩基物質+親水性中性物質.

表 3 霞ヶ浦湖水における DOM, フミン物質(AHS), 親水性画分(HiF)の平均分子量 (重量平均). HiF=親水性酸+塩基物質+親水性中性物質.

Weight-averaged molecular weight [ $\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$ ]						
	St.1	St.2	St.3	St.7	St.9	St.12
DOM						
Year 2000	804(32)	756(44)	765(28)	762(34)	735(22)	749(15)
Year 2001	785(87)	764(76)	731(43)	736(65)	705(42)	711(43)
Year 2002	759(64)	738(59)	711(53)	702(47)	694(56)	702(56)
AHS						
Year 2000	993(33)	950(33)	994(416)	982(502)	953(450)	909(366)
Year 2001	1000(177)	936(131)	923(131)	936(126)	920(121)	887(113)
Year 2002	918(167)	878(135)	892(135)	901(178)	889(135)	879(138)
HiF						
Year 2000	595(57)	590(55)	579(48)	576(49)	581(54)	582(59)
Year 2001	630(75)	625(74)	617(60)	607(64)	606(59)	613(63)
Year 2002	665(67)	627(79)	622(57)	601(60)	616(47)	613(54)

Note: ( )は標準偏差.

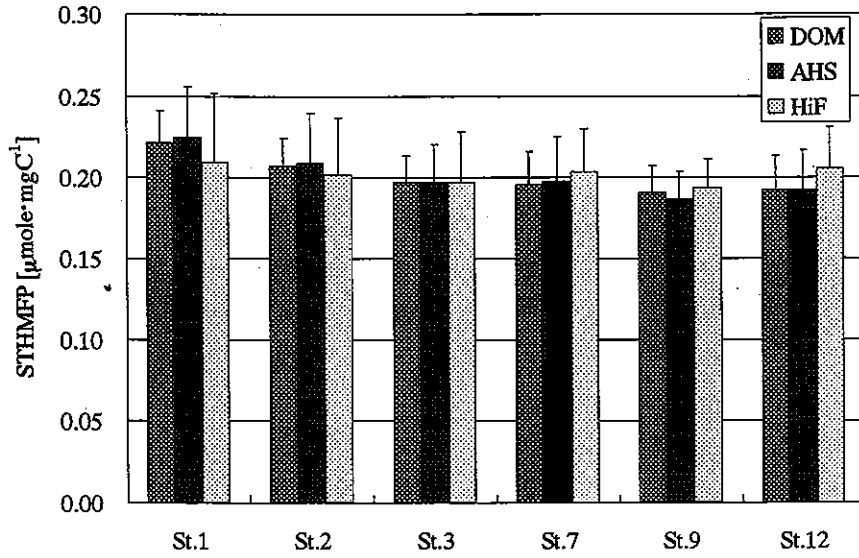


図 11 霞ヶ浦湖水における DOM, フミン物質 (AHS), 親水性画分 (HiF) のトリハロメタン生成能 (STHMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{mgC}^{-1}$ ). HiF = 親水性酸 + 塩基物質 + 親水性中性物質.

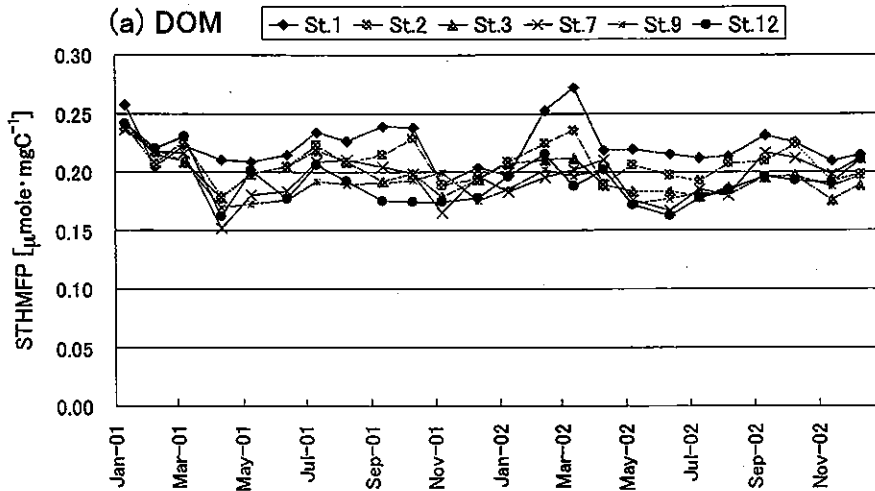


図 12(a) 霞ヶ浦湖水における DOM のトリハロメタン生成能 (STHMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{mgC}^{-1}$ ) の変動 (2001 年~2002 年).

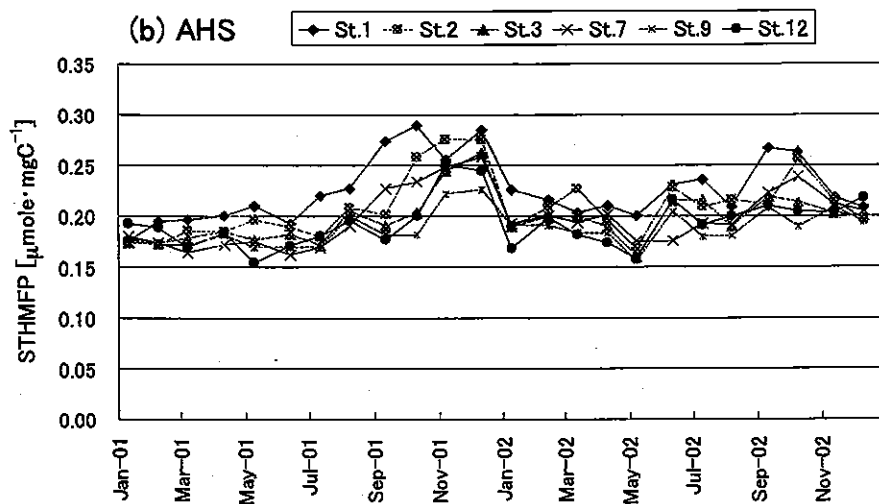


図 12(b) 霞ヶ浦湖水におけるフミン物質(AHS)のトリハロメタン生成能 (STHMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{mgC}^{-1}$ )の変動 (2001年~2002年).

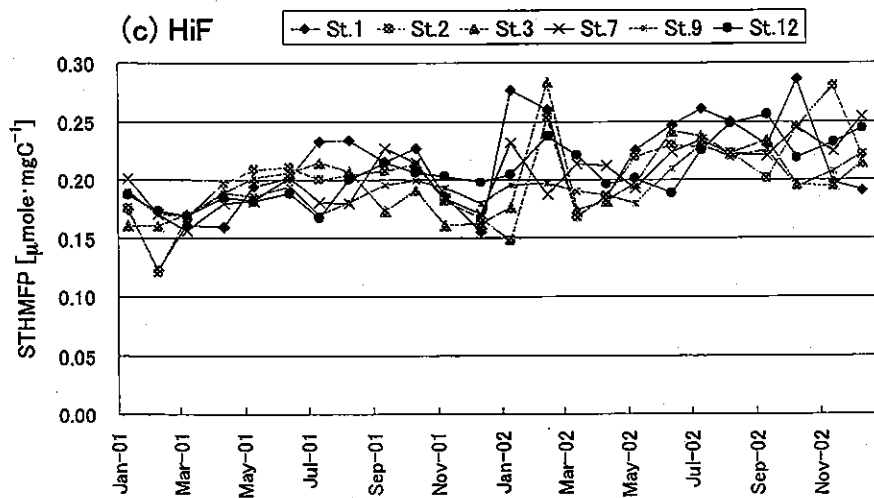


図 12(c) 霞ヶ浦湖水における親水性画分(HiF)のトリハロメタン生成能 (STHMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{mgC}^{-1}$ )の変動 (2001年~2002年). HiF=親水性酸+塩基物質+親水性中性物質.

#### [霞ヶ浦湖水の全トリハロメタン生成能]

霞ヶ浦 6 地点において、存在濃度を考慮してトリハロメタン生成能を濃度ベース (THMFP,  $\mu\text{mol THM}\cdot\text{l}^{-1}$ ) で評価した(表 4)。DOM の平均 THMFP は St.1 で最大(0.647[ $\pm 0.169$ (標準誤差)]  $\mu\text{mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ), St.7 で最小(0.572[ $\pm 0.086$ ]  $\mu\text{mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )となった。相対的に、高浜入りで土浦入りや湖心域よりも THMFP が高くなる傾向があった。フミン物質の平均 THMFP は DOM の場合と同じく St.1 で最大となったが、最小値は St.9 (湖心) で観察された。親水性画分の平均 THMFP は、DOM やフミン物質のパターンとは異なり、St.12 (湖尻) で最大となり、St. 1 で最小となった。

DOM の THMFP の変動パターンは、全採水地点でほぼ同じで、冬季から春季にかけてはそれほど変化せず、春季から夏季に増大して、秋季から冬季にかけて減少するトレンドであった(図 13)。フミン物質 THMFP の変動パターンは DOM のそれに類似しており、秋季にピークが現れた。親水性画分の THMFP の変動パターンも春季から秋季にかけて増大する傾向が見られた。

DOM THMFP の 29%–33%がフミン物質の寄与、55%–66%が親水性画分による寄与であった。親水性画分の THMFP がフミン物質よりも圧倒的に高いことがわかる。従って、明らかに、霞ヶ浦湖水においては、親水性画分のほうがフミン物質よりも重要なトリハロメタン前駆物質であると結論される。

#### [トリハロメタン生成能と分子量および紫外外部吸光度/DOC 比の関係]

DOM, フミン物質や親水性画分の STHMFP の値が平均分子量や紫外外部吸光度と溶存有機炭素の比(UV/DOC 比)に何らかの関係があるか否かを地点別に検討した(表 5)。線形回帰分析において ANOVA で評価した。結果、平均分子量に関しては、全ての採水地点において、DOM, フミン物質, 親水性画分と分子量の間に有意な関係 ( $p < 0.05$ ) は見出せなかった。湖水 DOM の分子量情報からそのトリハロメタン生成能を推測することは困難であると判断される。霞ヶ浦における DOM, フミン物質や親水性画分の平均分子量の変動幅は小さすぎて STHMFP に影響を及ぼすほどではないと思われる。一方、分子量とは反対に、UV/DOC 比に関しては STHMFP との間に有意な関係が認められた。DOM については St.1, St.3, St.7, St.12 で有意な線形相関があった。フミン物質に関しては、St.1, St.2, St.7, St.12 で、親水性画分に関しては、全ての採水地点で STHMFP と UV/DOC 比に有意な関係( $p < 0.05$ )が認められた。これらの結果は、湖水 DOM のトリハロメタン生成能を見積もる際に、UV/DOC 比は非常に有効な指標であることを示唆する。特に、フミン物質と比較して UV/DOC 比の低い親水性画分で STHMFP との有意な関係があることはとても興味深い。湖水 DOM のトリハロメタン生成能を見積もるために、紫外外部吸光度(260 nm)と DOC をモニタリングする必要性は非常に高いと言える。

表4 霞ヶ浦湖水におけるDOM,フミン物質(AHS),親水性画分(HiF)のトリハロメタン生成能(THMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{l}^{-1}$ , 存在濃度考慮). HiF = 親水性酸 + 塩基物質 + 親水性中性物質.

	St.1	St.2	St.3	St.7	St.9	St.12
DOM	0.647 (0.169)	0.619 (0.102)	0.628 (0.077)	0.572 (0.086)	0.611 (0.075)	0.613 (0.071)
AHS	0.211 (0.079)	0.193 (0.047)	0.184 (0.036)	0.185 (0.044)	0.178 (0.032)	0.185 (0.037)
HiF	0.357 (0.126)	0.365 (0.103)	0.383 (0.071)	0.351 (0.054)	0.373 (0.042)	0.404 (0.064)

Note: ( )は標準偏差. サンプル数は24(2001年1月~2002年12月).

[流入河川水のトリハロメタン生成能]

霞ヶ浦主要流入4河川水で2001年4月~2002年3月に採取されたサンプルのDOM, フミン物質および親水性画分 (=親水性酸 + 塩基物質 + 親水性中性物質) の平均トリハロメタン生成能(STHMFP)を図14に表す。河川水DOM STHMFPは湖水DOM STHMFPよりも低かった。河川水フミン物質のSTHMFPは湖水フミン物質よりも高く、一方、親水性画分のSTHMFPはほぼ同じ値を呈した。河川水におけるフミン物質STHMFPの大きさは特徴的であった。フミン物質と親水性画分の比較では、湖水とは異なり、4河川全てでフミン物質STHMFPのほうが親水性画分STHMFPを上回っていた。トリハロメタン生成能という特性から見ると、河川水のフミン物質は湖水のフミン物質とはかなり異なったものであることが伺える。

存在濃度を考慮したトリハロメタン生成能, THMFPとしての月平均値は、4河川全てにおいて、親水性画分THMFPがフミン物質THMFPよりも大きかった(表5)。従って、流入河川水においても、湖水と同様に、親水

性画分のほうがフミン物質よりもトリハロメタン前駆物質として重要であると結論される。

本研究で対象となった霞ヶ浦湖水を水道原水として利用している浄水処理場は、土浦入りに位置する取水口から湖水を採水している。土浦入りに流入する主要河川は桜川である。この取水口に最も近い本研究でのサンプリング地点はSt.7のTHMFPとそこに流入する桜川のTHMFPを2001年4月~2002年3月において比較してみた(図15)。2001年4月から7月までは、St.7と桜川のTHMFPはほぼ同じレベルにある。しかし、8月以降はSt.7のTHMFPは桜川よりも遙かに高い値を呈していた。浄水処理場におけるDOM除去やトリハロメタン生成を考えると、土浦入りで原水を取水するよりも桜川で取水したほうが効率的かつ有効と推察される。上記の考察は、確かに、水道水需要に対応する取水量が桜川のみで確保されるかに依存している。しかし、将来、DOM除去やトリハロメタン等の消毒副生成物低減に対する要求が高まった際には、湖水と河川水の



取水を適宜切り替えて、あるいは両方を適正な比率で水道原水として用いるアプローチも有効な方策となるのではと想定される。

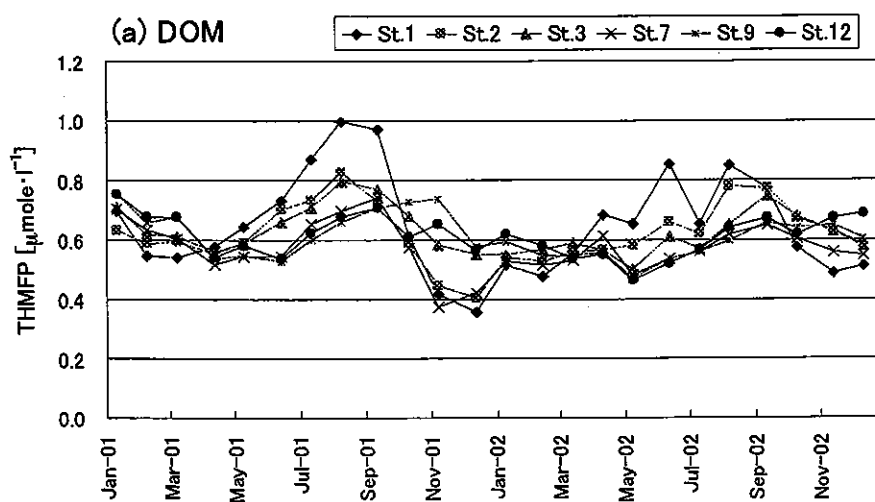


図 13(a) 霞ヶ浦湖水における DOM のトリハロメタン生成能(THMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{l}^{-1}$ )の変動 (2001 年~2002 年).

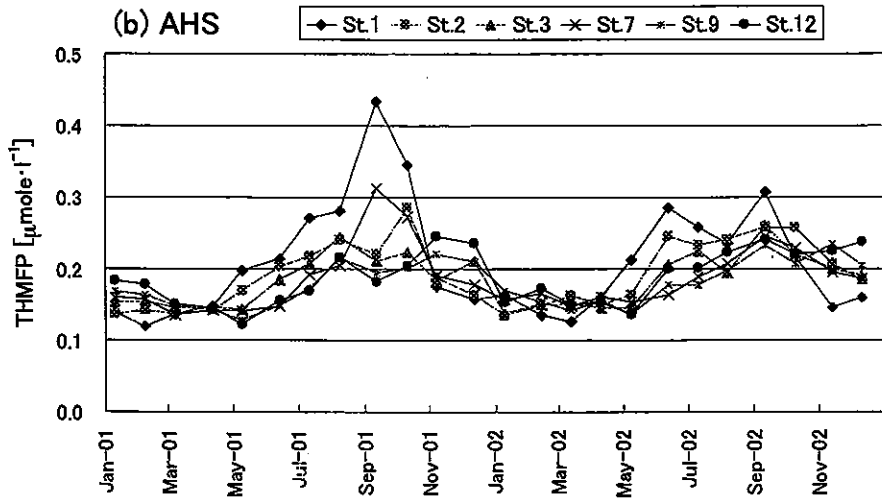


図 13(b) 霞ヶ浦湖水におけるフミン物質(AHS)のトリハロメタン生成能 (THMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{l}^{-1}$ )の変動 (2001年~2002年).

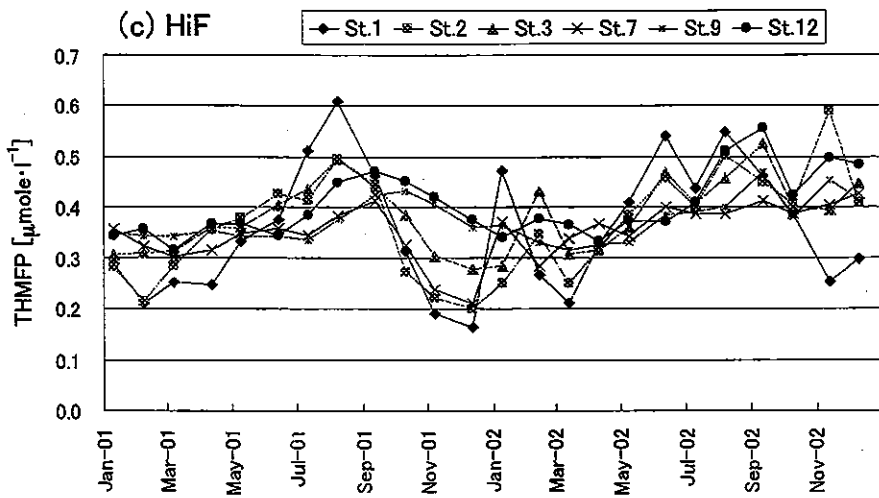


図 13(c) 霞ヶ浦湖水における親水性画分(HiF)のトリハロメタン生成能 (THMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{l}^{-1}$ )の変動 (2001年~2002年). HiF=親水性酸+塩基物質+親水性中性物質.

表 5 湖水における DOM, フミン物質(AHS), 親水性画分(HiF)のトリハロメタン生成能 (THMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{l}^{-1}$ ) と平均分子量および紫外部吸光度/DOC 比との関係.

	St.1	St.2	St.3	St.7	St.9	St.12
Weight-averaged molecular weight vs. STHMFP						
DOM	0.057 (0.159)	0.085 (0.089)	0.019 (0.418)	0.059 (0.154)	0.037 (0.261)	0.005 (0.669)
AHS	0.004 (0.721)	0.011 (0.551)	0.053 (0.177)	0.011 (0.549)	0.050 (0.189)	0.037 (0.262)
HiF	0.021 (0.410)	0.015 (0.484)	0.004 (0.715)	0.000 (0.990)	0.042 (0.234)	0.057 (0.166)
Ultraviolet-ray absorbance over DOC ratio vs. STHMFP						
DOM	0.127 (0.033)	0.108 (0.051)	0.155 (0.018)	0.214 (0.005)	0.009 (0.578)	0.128 (0.032)
AHS	0.249 (0.002)	0.155 (0.018)	0.013 (0.506)	0.221 (0.004)	0.042 (0.231)	0.172 (0.012)
HiF	0.179 (0.011)	0.317 (0.000)	0.168 (0.014)	0.189 (0.008)	0.216 (0.005)	0.298 (0.000)

Note: HiF=親水性酸+塩基物質+親水性中性物質. 表の数値は線形回帰直線の R-squared. ( )の数値は ANOVA による p 値.

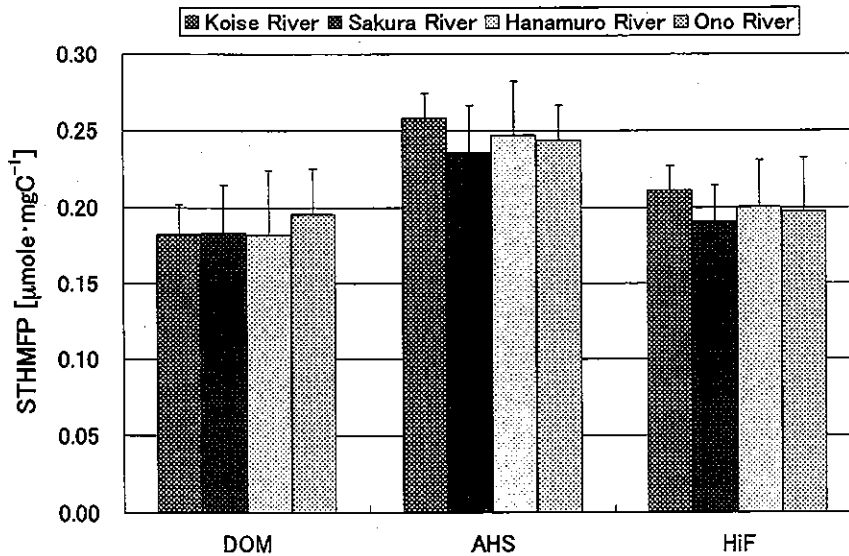


図 14 霞ヶ浦流入主要 4 河川水における DOM, フミン物質 (AHS), 親水性画分 (HiF) のトリハロメタン生成能 (STHMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{mgC}^{-1}$ ). HiF=親水性酸+塩基物質+親水性中性物質. 2001 年 4 月~2002 年 3 月.

表 6 流入河川水における DOM, フミン物質(AHS), 親水性画分(HiF)のトリハロメタン生成能 (THMFP,  $\mu\text{mole}\cdot\text{l}^{-1}$ , 存在濃度考慮). HiF = 親水性酸 + 塩基物質 + 親水性中性物質.

	DOM	AHS	HiF
Koise River	0.329 (0.205)	0.160 (0.096)	0.209 (0.128)
Sakura River	0.205 (0.146)	0.096 (0.070)	0.128 (0.086)
Hanamuro River	0.505 (0.144)	0.212 (0.071)	0.324 (0.162)
Ono River	0.447 (0.129)	0.187 (0.075)	0.249 (0.087)

Note: サンプル数は 12(2001 年 4 月~2002 年 3 月).

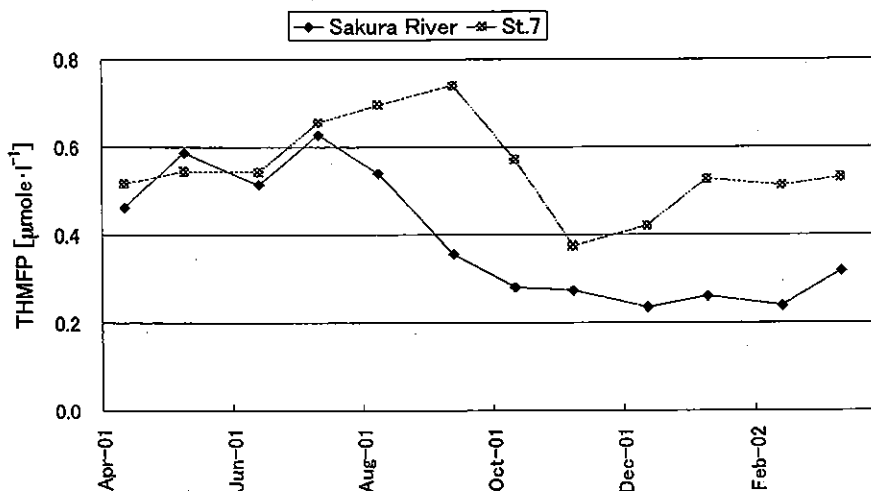


図 15 桜川と霞ヶ浦 St.7 における DOM のトリハロメタン生成能(THMFP)の変動.

[浄水処理場における DOM の特性とトリハロメゲン生成能]

霞ヶ浦湖水を取水源とする霞ヶ浦浄水場の浄水処理プロセスは、生物膜処理、高速凝集沈殿、急速ろ過、活性炭吸着から成っている。各単位処理プロセスの処理水サンプル中の DOM 濃度とその分画分布を図 16、図 17 に表す。湖水原水 DOM と生物膜処理水 DOM では分画分布に顕著な差はなかった。DOM 濃度 (DOC として) についても生物膜処理プロセスではほとんど変化しなかった (原水  $2.60 \text{ mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ , 生物膜処理水  $2.58 \text{ mgC}\cdot\text{l}^{-1}$ )。従って、生物膜処理は DOM 特性にほとんど影響を及ぼしていないと言える。

霞ヶ浦湖水が非常に難分解性であることを考えると、この結果は妥当であると考察される。凝集沈殿処理後に DOM 分画分布に顕著な変化が認められた。フミン物質、疎水性中性物質、塩基物質の存在比が低下して親水性酸の存在比が顕著に上昇した。DOM 濃度も 31%低下した。凝集沈殿により親水性 DOM の割合が増大したと言える。砂ろ過+活性炭吸着操作によって顕著な DOM 濃度低下は認められなかったが、フミン物質の存在比は減少した。浄水処理プロセスによってフミン物質は 46%除去されたのに対して親水性酸は 28%除去された。

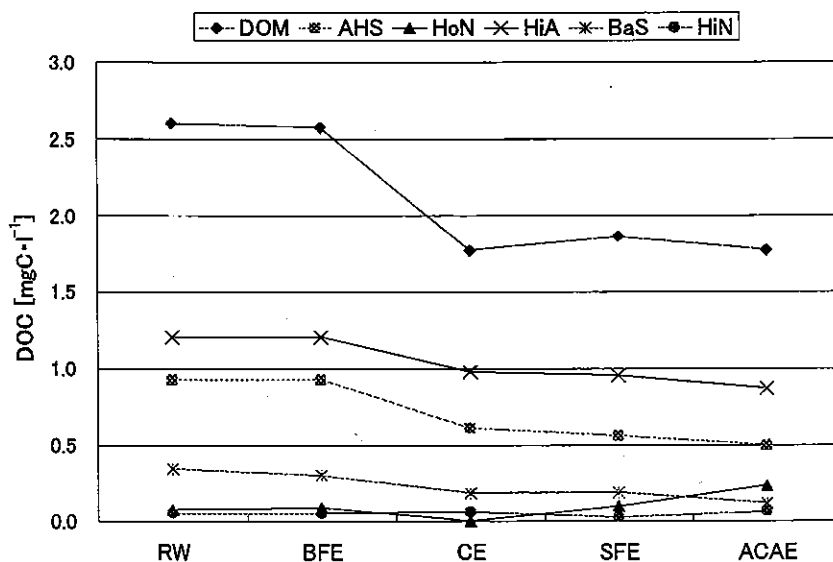


図 16 霞ヶ浦湖水を原水とする浄水処理場における DOM および各画分の処理プロセスの進展に伴う濃度変動. RW: 湖水原水, BFE: 生物膜, CE: 凝集沈殿, SFE: 砂ろ過, ACAE: 活性炭吸着. AHS: フミン物質, HoN: 疎水性中性物質, HiA: 親水性酸, BaS: 塩基物質, HiN: 親水性中性物質.

従って、浄水処理プロセスによって湖水 DOM はより親水性化されていると示唆される。実際に親水性酸/フミン物質の比は、原水(1.3)、生物膜処理水(1.3)、凝集沈殿処理水(1.6)、砂ろ過処理水(1.7)、活性炭吸着処理水(1.8)と処理が進むにつれて増大していた。

各単位処理プロセス流出水中の DOM, フミン物質, 親水性画分の THMFP ( $\mu\text{mole}\cdot\text{l}^{-1}$ )

を図 18 に表す。DOM 濃度の変化と同様に、THMFP も凝集沈殿処理においてのみ顕著に除去(45%)されていることが明らかとなった。凝集沈殿によってフミン物質と親水性画分の THMFP がほぼ同じ値になったが、その後位置する砂ろ過や活性炭吸着処理では再び親水性画分の THMFP の寄与がフミン物質のそれを大きく上回っていた。

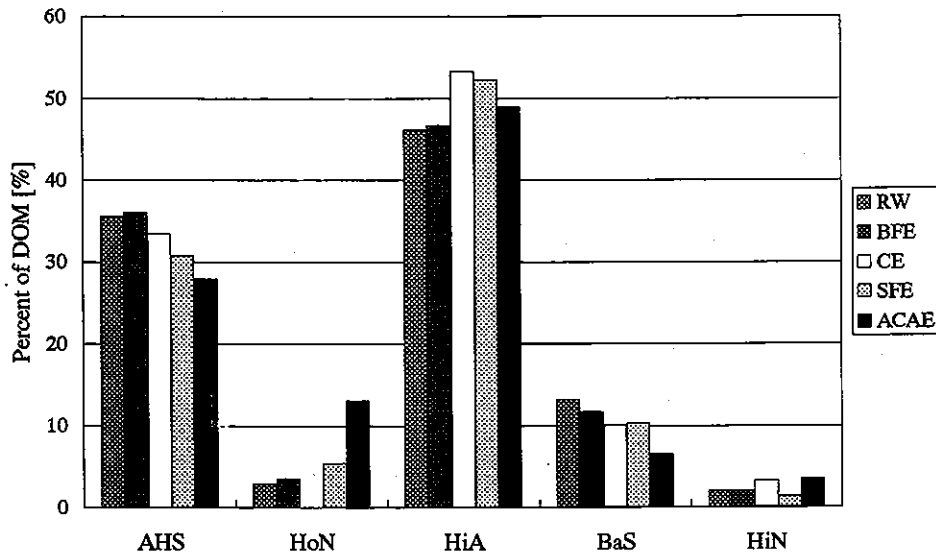


図 17 霞ヶ浦湖水を原水とする浄水処理場の各処理プロセス流出水の DOM 分画分布. AHS: フミン物質, HoN: 疎水性中性物質, HiA: 親水性酸, BaS: 塩基物質, HiN: 親水性中性物質. RW: 湖水原水, BFE: 生物膜, CE: 凝集沈殿, SFE: 砂ろ過, ACAE: 活性炭吸着.

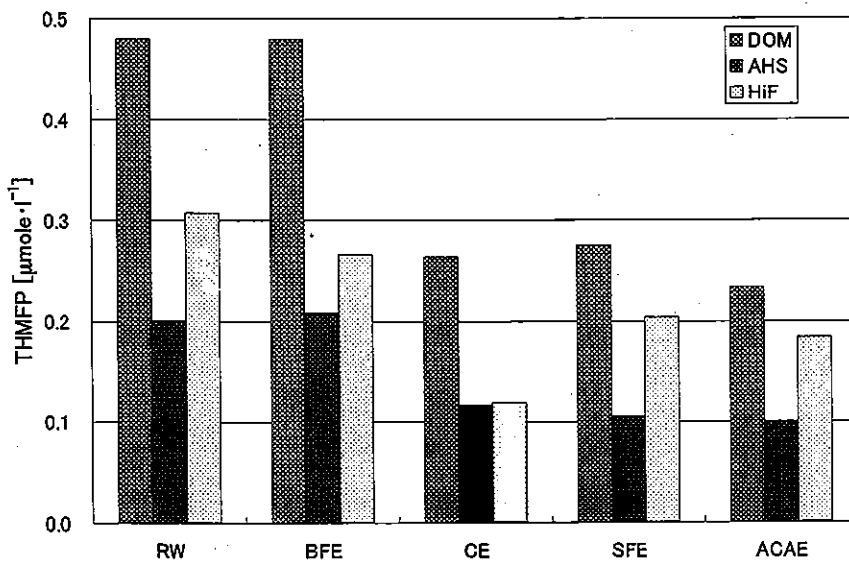


図 18 霞ヶ浦湖水を原水とする浄水処理場における処理プロセス進行に伴う DOM, フミン物質(AHS), 親水性画分(HiF)のトリハロメタン生成能( $\mu\text{mole}\cdot\text{l}^{-1}$ )の変化. RW: 湖水原水, BFE: 生物膜, CE: 凝集沈殿, SFE: 砂ろ過, ACAE: 活性炭吸着.

#### D. 結論

霞ヶ浦湖水と主要流入河川水を毎月サンプル採取して DOM 分画手法に供し、DOM およびその各画分（フミン物質、親水性酸等）の濃度、分子量分布、紫外吸光度、トリハロメタン生成能をモニタリングした。結果として、DOM やその画分の濃度、その分解性やトリハロメタン生成能は、場所的にも季節的にも顕著に変動することが明らかとなった。また、霞ヶ浦を水道原水として利用している浄水処理場では DOM、特に湖水で卓越する親水性 DOM の除去が非常に困難であることがわかった。従って、水道水源としての湖沼の水質を保全するためには、湖沼環境の保全を図るとともに、信頼できる測定法による DOM の存在濃度とその特性を連続的にモニタリングする必要性がとても高いと言える。

以下に本研究の具体的な成果を列記する。

(1) 霞ヶ浦 6 地点全てにおいて湖水の DOM 成分としては有機酸、すなわちフミン物質と親水性酸が卓越していた。この二つの画分が DOM の 70%以上を占めており、特に親水性酸の存在比が顕著に大きかった。DOM 濃度は湖水の流れ方向に漸増する傾向を示したが、分画分布に顕著な地点間の差は認められなかった。DOM、フミン物質および親水性酸は顕著な季節変動を示した。夏季から秋季に上昇し冬季から春季にかけて減少するパターンが認められた。

(2) 霞ヶ浦に流入する主要 4 河川水の DOM 分画分布は湖水のそれと異なってい

た。湖水のケースと同様に、フミン物質と親水性酸が卓越していたが、湖水と比較してフミン物質の割合が高く、一方親水性酸の割合が低かった。流入 4 河川水とも同じ季節変動パターンを示した。DOM および各画分の濃度は、春季から夏季に上昇し、その後秋季から冬季にかけて急落する傾向が明白に認められた。

(3) 湖水と河川水で DOM の分解性を比較検討したところ、湖水は河川水に比べて非常に難分解性であることが明らかとなった。湖水 DOM の平均分解率は 6.5%–17.9%、河川水 DOM の平均分解率 28.8%–35.0%よりも顕著に低かった。フミン物質や親水性酸についても湖水のほうが河川水よりも分解率が低かった。DOM、フミン物質、親水性酸の分解率は湖水の流れ方向に低減する傾向があった。河川水についても最も汚濁している花室川での分解率が最大であった。

(4) 湖水と河川水ともに、難分解性 DOM としては有機酸画分（フミン物質+親水性酸）が卓越していた。湖水では生分解後にフミン物質の存在比が微増し親水性酸が微減したが、依然として親水性酸の存在比が最大であった。一方、河川水ではフミン物質の存在比が増大したが、その他の画分の存在比は少し減少した。結果として、河川水の場合、フミン物質の存在比が親水性酸のそれに匹敵する値となった。従って、湖水においては親水性酸、河川水ではフミン物質と親水性酸が代表的な難分解性 DOM 成分であると言える。

(5) 霞ヶ浦 5 地点における DOM、フミン物



質, 親水性酸および難分解性 DOM, フミン物質, 親水性酸の動態を評価した。全ての地点において, 難分解性 DOM, 難分解性フミン物質, 難分解性親水性酸の濃度は夏季から秋季にかけて増大する傾向を示した。難分解性フミン物質や親水性酸の季節変化は, 河川水が流入する地点に近いほど大きく, 湖心や湖尻では小さくなった。DOM の分解トレンドと親水性酸のそれは比較的良好に一致していた。フミン物質は概ね年間を通じて分解率が低く, そのトレンドは DOM や親水性酸とはあまり対応していなかった。難分解性親水性酸の濃度および変動幅はフミン物質よりも顕著に大きい。従って, 湖水における難分解性 DOM の挙動は, フミン物質よりも親水性酸によって規定されていると示唆される。

(6) 霞ヶ浦湖水中の DOM, フミン物質, 親水性画分 (=親水性酸+塩基物質+親水性中性物質) の分子量分布をサイズ排除クロマトグラフィーによって定量した。ほとんど全てのサンプルでポリディスペルシティ (重量平均分子量/数平均分子量) は 2 以下であり, DOM, フミン物質および親水性画分は比較的狭い範囲の分子量をもつ分子の集合体であることがわかった。

DOM の重量平均分子量 (以後, 平均分子量と記す) は比較的 low, 2000 年~2002 年の 3 年間の平均値で  $783 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$ – $712 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  であった。フミン物質は DOM よりも分子量が大きく,  $892 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$ – $940 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  の値を示した。親水性画分はフミン物質よりも小さく, その分子量は  $595 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  から  $630 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  に留まった。

(7) 霞ヶ浦 6 地点において, DOM, フミン物質, 親水性画分の全地点平均トリハロメタン生成能 (STHMFP,  $\mu\text{mol}\cdot\text{mgC}^{-1}$ ) はほぼ同じ値を示した。恋瀬川が流入する高浜入りに位置する St.1 と St.2 ではフミン物質の STHMFP のほうが親水性画分のそれよりも大きかったが, 他の地点では親水性画分の STHMFP のほうが大きな値を示した。DOM の STHMFP は夏季から秋季に増大し秋季から冬季にかけて減少する傾向があった。フミン物質の STHMFP は夏季から秋季にかけての増大が特徴的だったが, 親水性画分は季節に関係なく漸増する傾向が認められた。

(8) DOM, フミン物質や親水性画分の STHMFP と平均分子量の間に有意な関係は認められなかった。一方, 紫外部吸光度/DOC (UV/DOC) 比と STHMFP には有意な関係が観察された。特に, 親水性画分に関しては採水地点全てで線形関係が有意であることがわかった。

(9) 河川水 DOM の STHMFP は湖水よりも低かった。河川水フミン物質の STHMFP は湖水フミン物質のそれよりも高かったが, 河川水親水性画分の STHMFP は湖水とほぼ同じ値を呈した。湖水とは異なり, 4 河川全てでフミン物質の STHMFP は親水性画分の STHMFP を上回っていた。

(10) 霞ヶ浦湖水中の DOM, フミン物質および親水性画分の存在濃度を考慮したトリハロメタン生成能 (THMFP,  $\mu\text{mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) を求めた。ところ, 親水性画分の THMFP のほうが DOM THMFP は相対的に高浜入り (St.1 で最大) で高くなり, 土浦入り (St.7 で最小) で低くなる傾向を示した。フミン物質 THMFP も DOM と同様なトレンドを

示したが、親水性画分 THMFP は湖尻 (St.12)で最大、高浜入り (St.1)で最小となった。

(11) 湖水および河川水ともに、親水性画分 THMFP がフミン物質 THMFP をはるかに上回っていた。従って、霞ヶ浦湖水や流入河川水では親水性画分のほうがフミン物質よりも重要なトリハロメタン前駆物質であると結論された。

(14) 霞ヶ浦を水源とする浄水処理場の処理プロセスフロー (生物膜処理→凝集沈殿→砂ろ過→活性炭吸着) において、DOM の特性とトリハロメタン生成能を調査した。当該浄水処理場では、DOM は凝集沈殿に顕著に除去されたが (31%)、生物膜処理、砂ろ過、活性炭吸着ではほとんど除去されなかった。THMF ( $\mu\text{mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) に関してもその除去のほとんど全ては凝集沈殿によるものであった (45%)。浄水処理の進行に伴い、フミン物質の存在比が低下し親水性酸等の親水性 DOM の存在比が増大することが確認された。浄水処理プロセスによって DOM が親水性化すると示唆された。

#### E. 参考文献

Chin Y. P., Aiken G. R., and O'Loughlin E. (1994) Molecular weight, polydispersity, and spectroscopic properties. *Environ. Sci. Technol.* 28, 1853-1858.

Japan Water Supply Association (JWSA) (1993) *Standard Methods for the Examination of Drinking Water.*

Krasner S. W., Scilimenti M. J. and Means E. G. (1994) Quality degradation:

implications for DBP formation. *J. Am. Water Works Assoc.* 86, 34-47.

Leenheer J. A. (1981) Comprehensive approach to preparative isolation and fractionation of dissolved organic carbon from natural waters and wastewaters. *Environ. Sci. Technol.* 15, 578-587.

Malcolm R. L., Aiken G. R., Bowles E.C. and Malcolm J. D. (1989) Isolation of fulvic and humic acids from the Suwannee River. In *Humic Substances in the Suwannee River, Georgia: Interactions, Properties, and Proposed Structures*, eds. R. C. Averett, J. A. Leenheer, D. M. McKnight and K. A. Thorn, pp. 23-35. Open-File Report 87-557 US Geological Survey, Denver.

Marker A. F. H., Crowther C. A. and Gunn R. J. M. (1980) Methanol and acetone as solvents for estimating chlorophyll a and phaeopigments by spectrophotometry. *Arch. Hydrobiol. Beith. Ergebn. Limnol.* 14, 52-69.

Perdue E. M. and Gjessing E. T. (1990) Introduction. In *Organic Acids in Aquatic Ecosystems*, eds. E. M. Perdue and E. T. Gjessing, pp. 1-3, Wiley, Chichester.

Rook J. J. (1977) Chlorination reactions of fulvic acids in natural waters. *Environ. Sci. Technol.* 11, 478-482.

Tardiff R. G. (1977) Health effects of organics; risk and hazard assessment

- of ingested chloroform. *J. Am. Water Works Assoc.* 69, 658-661.
- Thurman E. M. (1985) *Organic Geochemistry of Natural Waters*. Martinus Nijhoff/Dr W. Junk Pub., Dordrecht, The Netherlands.
- Thurman E. M. and Malcolm R. L. (1981) Preparative isolation of aquatic humic substances. *Environ. Sci. Technol.* 15, 463-466.
- Watanabe M. W. and Nozaki H. (1994) NIES-Collection, List of Strains: microalgae and protozoa, 4th ed., Natl. Inst. Environ. Stud., F-60-'93/NIES.
- Wetzel R. G. (1983) *Limnology*, 2nd ed. Saunders, Philadelphia.
- 環境庁 (1994) 浄水操作によって生じる有害物質の抑制に関する調査報告書. 26-36.
- F. 健康危険情報  
なし。
- G. 研究発表
1. 論文発表
- 今井章雄(2002). 湖沼における難分解性有機物の蓄積. *海洋と生物*. 24, 203-208.
- Imai, A. et al. (2003). Trihalomethanes formation potential of dissolved organic matter in a shallow eutrophic lake. *Water Research*. 37, 4284-4294.
- 今井章雄 (2003). 湖沼において漸増する難分解性溶存有機物の特性と影響. *かんぎきょう*. 92, 4-10.
- 今井章雄(2003). 湖沼トレンドモニタリングでみる難分解性有機物の特性と動態. *地球環境研究センターニュース*. 14, 11-14.
- 八馬正幸, 福島武彦, 尾崎則篤, 今井章雄, 松重一夫(2003). 光分解・生物分解による水中溶存有機物の変質とそのEEMへの影響. *水環境学会誌*. 26, 507-514.
- 金庸桓, 李淳和, 今井章雄, 松重一夫(2003). 雲門湖水中の溶存有機物の特性. *水環境学会誌*. 26, 861-867.
- Choi, S., Imai, A., Matsushige, K., Nagai, T., Kim, Y.H. and Kim, B. (2003). Photoalternation in biodegradability and chemical composition of algae-derived dissolved organic matter. *Korean J. Limnol.* 36, 235-241.
- Choi, S., Ueki, M., Imai, A., Kim, B. and Kawabata, Z. (2004). Photoalternation of dissolved organic matter (DOM) released from *Microcystis aeruginosa* in different growth phases: DOM-fraction distribution and biodegradability. *Arch. Hydrobiol.* 159, 271-286.

今井章雄(2004). 水環境におけるフミン物質の特徴と役割. 水環境学会誌. 27, 76-81.

Nagai, T., Imai, A., Matsushige, K., Yokoi, K. and Fukushima, T. (2004). Voltammetric determination of dissolved iron and its speciation in freshwater. *Limnology*, 5, 87-94.

Imai, A. and Matsushige, K. (2004). Characterization of dissolved organic matter in shallow eutrophic Lake Kasumigaura. *Proceedings of 2nd International Workshop on Water Dynamics*, Tohoku University, pp.61-66.

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.

## 2. 学会発表

Imai, A., Matsushige, K., Choi, K. and Fukushima, T. (2002). Characterization of dissolved organic matter in shallow eutrophic Lake Kasumigaura. ASLO 2002 Summer Meeting: Interdisciplinary Linkages in Aquatic Sciences and Beyond, Victoria, Canada, June 10-14.

濱田洋平, 今井章雄, 松重一夫

(2003). 霞ヶ浦湖水中の溶存有機物の安定同位体比. 日本陸水学会第68回大会, 岡山市, 9月.

篠原梓, 今井章雄, 松重一夫(2004). 霞ヶ浦湖水中の糖類組成の評価. 第38回日本水環境学会年会, 札幌市, 3月.

篠原梓, 今井章雄, 松重一夫, 小松一弘(2005). 霞ヶ浦湖水及び藻類由来有機物における糖類組成の評価. 第39回日本水環境学会年会, 千葉市, 3月.

松重一夫, 今井章雄, 小松一弘(2005). 霞ヶ浦長期モニタリングにおける水質変動. 第39回日本水環境学会年会, 千葉市, 3月.

今井章雄, 松重一夫, 天野邦彦, 小松一弘(2005). 霞ヶ浦間隙水中の溶存有機物の特性. 第39回日本水環境学会年会, 千葉市, 3月.

富岡典子, 田中祐子, 松重一夫, 今井章雄(2005). 霞ヶ浦底泥における有機汚濁物質変換プロセスに関する研究. 第39回日本水環境学会年会, 千葉市, 3月.

## 3. 招待講演

今井章雄(2003a). 「湖沼における新たな問題: 難分解性溶存有機物～霞ヶ浦を例として～」 滋賀県琵琶湖研究所主催, 第21回琵琶湖研究シンポジウ