

Table 5 Partial correlation coefficients for multiple regressions between DOM fraction load in river and watershed characteristics

DOC (n=9)		AHS (n=9)		HoN (n=9)	
domestic wastewater treatment	1.26 **	domestic wastewater treatment	1.22 **	domestic wastewater treatment	1.21 **
forest	0.65 *	forest	0.95 *	forest	0.48 *
R <sup>2</sup>	0.86	R <sup>2</sup>	0.78	R <sup>2</sup>	0.89
	p<0.05		p<0.05		p<0.01
HiA (n=9)		BaS (n=9)		HiN (n=9)	
forest	0.45 **	domestic wastewater treatment	0.63	domestic wastewater treatment	1.24 **
septic tank treatment	1.29 **			forest	0.66 *
field	-0.18 *				
R <sup>2</sup>	0.98	R <sup>2</sup>	0.40	R <sup>2</sup>	0.83
	p<0.01				p<0.01
R-DOC (n=6)				R-HoN (n=6)	
domestic wastewater treatment	0.85			domestic wastewater treatment	0.91 *
forest	1.05 *				
night soil collection	0.68				
urban sewer system	-0.18				
R <sup>2</sup>	1.00			R <sup>2</sup>	0.83
	p<0.05				p<0.05
R-HiA (n=6)		R-BaS (n=6)		R-HiN (n=6)	
domestic wastewater treatment	1.43 **	domestic wastewater treatment	1.11 **	domestic wastewater treatment	1.08 **
forest	0.62 **	paddy field	-0.26	urban area	-1.29 *
paddy field	-0.22 **			urban sewer system	0.64 *
rural sewer system	0.07 *			forest	-0.15
R <sup>2</sup>	1.00	R <sup>2</sup>	0.95	R <sup>2</sup>	1.00
	p<0.01		p<0.05		p<0.05

水性中性物質 (HoN) の存在割合が大きいことが改めて確認できた。

難分解性の画分についても同様に、比負荷量年間平均値と流域特性値との間の相関係数をTable 4に示す。R-DOCを含む全ての難分解性画分において合併浄化処理人口との相関係数0.7以上となっていることから、合併浄化処理水が河川の難分解性有機物負荷量に影響を与えている可能性を指摘することができる。また、R-HoNは総人口密度の間の相関も極めて強かった ( $r=0.99$ ) ことから、各種化学物質由来と考えられる疎水性中性物質の中でも難分解性画分は人間活動全般に伴う負荷の影響を受けていると考えられる。

一方で、人間活動関連の流域特性との相関がさほど強くないAHSについては、人為的負荷よりも山林から流出する自然系負荷の影響が大きいと考えられる。この傾向は、森林渓流水や森林系河川の安曇川の河川水においてAHSの全溶存有機物中の存在比が非常に高いという既報の知見<sup>4,11)</sup>と整合している。

### 3.3 重回帰分析による考察

溶存有機物分画データの比負荷量年間平均値を目的変数とする重回帰分析 (ステップワイズ変数増減法) を試みた結果をTable 5に示す。R-AHSについては、偏回帰係数が極端に小さい値となったため、解析対象から除いた。合併浄化処理人口密度がHiA、R-AHS以外の全ての項目において説明変数として選択されており、標準偏回帰係数の値も相対的に大きい値となっていることが目立つ。これらの結果は、合併浄化槽で処理されない難分解性有機物が河川水中の溶存有機物負荷量に影響を与えていることによるものと

考えられる。また、山林面積が、DOC、AHS、HoN、R-DOC、HiAにおいて説明変数として選択されている。森林渓流水の溶存有機物はAHSの存在比が高い<sup>11)</sup> ことから、AHSについては山林からの負荷の影響が明らかに大きいと言えよう。河川水中の溶存有機物は一般にAHSの存在比が高いことを考慮に入ると、DOCについてもAHSの影響により山林面積が比負荷量の説明変数として十分に機能している。

## 4. 溶存有機物分画データの流域内土地利用形態別流出負荷量原単位の解析

### 4.1 使用するデータの概要

ここでは、一般的な原単位モデルにより河川の比負荷量から溶存有機物分画成分の土地利用形態別流出負荷原単位を推定し、各分画成分の土地利用起源について考察する。対象河川は、流域単位の土地利用面積比率 (市街地、田、畑、山林) および河川流量データが各種統計資料<sup>11)</sup>より引用可能な琵琶湖流域3河川 (宇曾川、米川、安曇川) と霞ヶ浦流域10河川 (園部川、山王川、天野川、恋瀬川、桜川、新川、花室川、清明川、小野川、高橋川) である。ただし、恋瀬川流域の土地利用面積比率は天野川と恋瀬川を併せて一つの流域として集計<sup>11)</sup>してあったため、溶存有機物分画データについても天野川と恋瀬川の負荷量を足し合わせたものを恋瀬川の負荷量データとして解析に使用した。したがって、実質的な解析対象は合計12河川である。

### 4.2 溶存有機物分画データの土地利用形態別流出原単位の算出方法

各集水域から河川に流入する負荷量は、集水域の気象、

地質、地形、土地利用被覆状態や人間の社会経済活動など多くの環境条件により変動する<sup>11)</sup>。しかしながら、個々の発生汚濁負荷原単位や流達率などが時間的にも地域的にも異なることから、様々な流域を対象とした平均値として取り扱う場合には原単位や流達率の値そのものが問題視されることが多い<sup>11)</sup>。このような問題に対して、河川の土地利用形態比率を基に流達率や流出率を併せた形での各土地利用形態別の流出負荷原単位の算定を試みる際には、①「生活排水は市街地負荷の一部として市街地面積に比例し、市街地面積比率の中に表現できる」、②「畜産排水はその大半が農地還元処分である場合、農耕地(田・畑)の面積比率で表現できる」といった仮定<sup>11)</sup>を設定することが提案されている。

これらに加えて、土地利用形態別原単位を算出する際に全ての土地利用形態別流出負荷原単位が正の値となるような制約条件の基に以下の(1)式で表す評価関数  $E$  が最小になるような土地利用形態別流出負荷原単位  $U$  を算出する方法<sup>11)</sup> が提案されている。

$$E = \sum_{i=1}^m \left( \frac{Li}{Ai} - \sum_{j=1}^n (Uj \cdot rij) \right)^2 \quad (1)$$

- $Li$  : 各河川年間負荷量 (kg/year)
- $Ai$  : 各河川流域面積 (km<sup>2</sup>)
- $Uj$  : 土地利用形態別流出負荷原単位 (kg/km<sup>2</sup>/year)
- $rij$  : 土地利用形態比率

ここで、 $i=1 \sim m$  は河川流域のサンプル数、 $j=1 \sim n$  は土地利用種別(例えば、市街地、田、畑、山林など)に対応している。本研究では、溶存有機物分画データを対象とした土地利用形態別流出負荷原単位の検討に際して、全ての原単位値が正の値となるような制約条件を重要視する主旨で、この(1)式による算定方法を基本として評価関数  $E$  が最小になるような係数  $U$  を各溶存有機物分画成分の原単位推定値として評価してみる。

#### 4.3 溶存有機物分画データの土地利用形態別流出原単位の推定結果

まず、実測された溶存有機物分画濃度と流量を用いて各河川の平均比負荷量を求めた。ただし、琵琶湖流入河川における難分解性の画分は1995年度のみ測定であるため、琵琶湖流入河川では1995年度の年間比負荷量平均値を解析対象とした。算出した比負荷量が年間を通して一定であると仮定して求めた各河川の年間総流出比負荷量から、先の(1)式により土地利用形態別流出負荷原単位を算出した。なお、最初の計算ではR-BaS以外の全ての項目で畑の流出原単位がほぼゼロと算出されたため、畑面積比率を除外した上で再度計算を行った。

土地利用形態別流出負荷原単位の予測結果をFig. 2に、負荷量の予測値と実測値の間の相関係数をTable 6に示す。AHS, HoN, HiAについては比較的高い予測精度が得られたが、一般水質項目を対象とした既往の報告<sup>12-14)</sup>と比較して全体的な精度は高いとは言えない。また、3.2でも述べたように、BaSの存在比率が平均で10%以下と低いことに加えて、HiNについても平均的な存在比率の低さから定量的な考察が困難となっている。市街地の原単位がどの画分につ

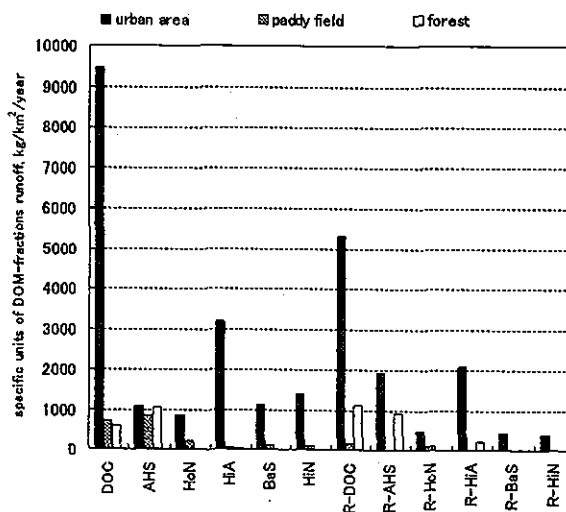


Fig. 2 Specific units of DOM-fractions runoff for three types of land use

Table 6 Correlation coefficients between observed load and estimated load of the specific unit modeling based on the load of DOM-fraction and the ratio of land use contribution in watershed

DOC	AHS	HoN	HiA	BaS	HiN
0.59 *	0.81 **	0.73 **	0.73 **	0.62 *	0.56
R-DOC	R-AHS	R-HoN	R-HiA	R-BaS	R-HiN
0.61 *	0.59 *	0.51	0.66 *	0.50	0.63 *

\*\* : p<0.01    \* : p<0.05

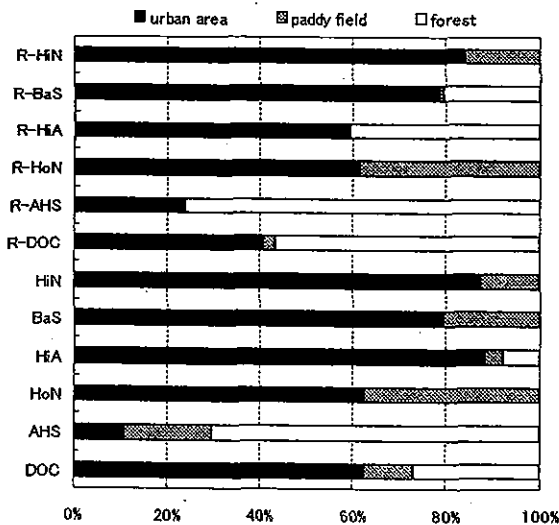


Fig. 3 Contributions of DOM-fractions runoff for three types of land use in the north basin of Lake Biwa

いても相対的に大きい値となっているが、特にDOC, HiA, R-DOC, R-HiAについて市街地の原単位が大きく、これらの画分は市街地という土地利用全般からの影響が大きいことを示している。また、AHSとR-AHSにおける山林の原単位が他の画分における山林の原単位より大きい結果につ

ては既報<sup>1)</sup>と整合している。

しかし、DOCとAHSの田、山林の原単位については、全ての画分を合わせた溶存有機物であるはずのDOC原単位予測値がAHS原単位予測値より低い値をとっている。これは、原単位予測の基本とした(1)式が「DOCの原単位は各画分の原単位の合計となる」という制約条件を含んでいないためである。この制約条件を加えた上で原単位の再推計を試みたが、いずれの有機物画分においても負荷量の予測値と実測値の間の相関が低下したため、有機物組成としての全体性には若干の問題が残るが、溶存有機物の各画分原単位予測結果の特徴を考察する主旨で当初の予測結果 (Fig. 2) を基本に検討を行った。

これらの原単位予測値と琵琶湖北湖流域の土地利用形態別面積<sup>9)</sup>を用いて、琵琶湖北湖流域における溶存有機物各画分の発生源内訳 (市街地、田、山林) を予測した結果をFig. 3に示す。畑からの流出については、先に述べた通り(1)式における残差最小計算によりほとんどの画分で流出ゼロと算定されたため寄与率を無視してある。各画分の負荷流出内訳を見ると、AHS、R-DOC、R-AHS以外はどの画分も市街地から排出される負荷が最も大きく、AHS、R-DOC、R-AHSは山林からの負荷の割合が大きくなっている。AHSのほとんどが難分解性であり河川水ではAHSの存在比が大きいことを考えると、琵琶湖北湖流域における難分解性溶存有機物は山林から流出するAHSの負荷が大部分を占めていると言える。

## 5. まとめ

本研究では、今後いっそう重要視される有機物指標としての溶存有機物分画データと流域特性の関係を統計解析することにより、河川水中の難分解性画分を含む溶存有機物成分ごとの発生源について検討した。本研究で得られた主な知見は、以下の通りである。

1) 疎水性中性物質および親水性酸は、比負荷量として合併浄化槽の処理水の影響を強く受けている可能性が高い。

2) 人間活動関連の流域特性との相関がさほど強くないフミン物質については、人為的負荷よりも山林から流出する自然系負荷の影響が大きい。

3) 合併浄化槽で処理されない難分解性有機物が河川水中の溶存有機物負荷量に与える影響は無視できない。

4) 各河川流域における溶存有機物分画データと土地利用面積率を用いて、溶存有機物の各分画成分の土地利用形態別流出負荷原単位を推定し、発生源の傾向を詳細に考察することができた。

5) 琵琶湖北湖流域の溶存有機物の総流入負荷を推定した結果、フミン物質および溶存有機物の難分解性画分では山林からの寄与が最も大きく、それ以外の画分は市街地からの寄与が最も大きいことがわかった。

上記知見1)~3)については、既報<sup>1,5,11)</sup>による各種発生源別の有機物分画データプロファイルに関する考察と整合するものであったが、実河川における比負荷量実測値と流域特性データによる相関分析や寄与率推定により現場のマクロな状況を裏付ける意義はあるものと考えられる。

今後の水質保全対策という観点では、河川水中の難分解

性溶存有機物負荷量は、下水処理水や合併浄化槽処理水などの市街地由来の晴天時負荷の影響を大きく受けると考えられるため、下水処理場や合併浄化槽における難分解性溶存有機物を考慮した処理機能の高度化が必要であると考えられる。特に、市街地からの難分解性溶存有機物負荷の大部分を占める親水性酸の削減が可能となるような高度処理技術の開発が望まれよう。

一方で、多くの河川や湖沼において年間負荷量に占める降雨時流出負荷の割合が大きいことを鑑みると、降雨時に流出する溶存有機物負荷についても分画データ情報が必要になるものと考えられる。土地利用形態別流出負荷原単位の算出に関しても、本研究で試みた土地利用面積比率による回帰分析型の原単位モデルを高い精度で検証するためには、各発生源から流出する溶存有機物について各分画成分の実測データの蓄積が求められる。溶存有機物成分の分画分析方法の簡易化に加えて、一般水質項目データによる難分解性有機物割合の推定方法なども実用的な流域環境管理において近々の課題となろう。

(原稿受付 2004年3月19日)

(原稿受理 2004年9月10日)

## 参考文献

- 1) 高橋幹夫 (1998) 溶存有機物の動態, 琵琶湖研究所報, 第16号, 49-50.
- 2) 今井章雄 (2000) 湖沼における新たな問題, 土木学会誌, 85, 53-55.
- 3) 早川和秀 (1999) 北湖のCOD増加と溶存有機物, 琵琶湖研究所報, 第17号, 36-39.
- 4) 滋賀県 (2000) 難分解性有機物浄化対策調査, 平成12年度環境省委託業務報告書.
- 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の溶存有機物の分画, 陸水学雑誌, 59, 53-68.
- 6) 今井章雄, 福島武彦, 松重一夫, 金廣恒 (1999) 琵琶湖湖水および流入河川水中の難分解性溶存有機物の分画, 第33回日本水環境学会年会.
- 7) Imai A., Fukushima T., Matsushige K. and Kim Y.H. (2001) Fractionation and characterization of dissolved organic matter in a shallow eutrophic lake, its inflowing rivers, and other organic matter sources, Water Res., 35(17), 4019-4028.
- 8) 今井章雄, 松重一夫 (2001) 湖沼において増大する難分解性有機物の発生源と影響評価に関する研究, 国立環境研究所特別研究報告, SR-36-2001, 環境省国立環境研究所.
- 9) Ichiki, A., Yamada, T., Sasaki, A., Amano, K. and Yamada, K. (2001) Availability of a GIS Application for Pollutant Runoff from Lake Biwa Watershed, Japan, 9th International Conference on the Conservation and Management of Lakes, Session 5, 345-348.
- 10) 松重一夫, 相崎守弘, 三浦信吾 (2000) 地理情報システムを活用した霞ヶ浦流域の流域管理に関する研究, 国立環境研究所研究報告, R-150-2000, 78.
- 11) 茨城大学農学部水環境再生工学研究室 (2002) 霞ヶ浦DataBase 小流域別人口, 土地利用, 家畜頭数, 窒素負荷 for each watershed (<http://irdr02.agr.ibaraki.ac.jp/mizu/data/index.html>).
- 12) 沖一雄, 安岡善文 (1997) リモートセンシングによる湖沼流域の年間全窒素負荷量の推定-霞ヶ浦におけるケーススタディ-, 日本リモートセンシング学会誌, 17, 22-35.
- 13) 東善広 (1998) リモートセンシング情報を利用した琵琶湖集水域土地利用被覆分布と河川水質の関係, 琵琶湖研究所報, 16, 58-63.
- 14) 海老瀬浩一 (1984) 流域内土地利用形態別流出負荷原単位の解析, 国立公害研究所研究報告, R-50-84, 89-102.