

九州大学工学部 ○今村 正裕
 楠田 哲也
 大石 京子

1. はじめに

N_2O の生成要因はさまざまである。その内でも淡水域・感潮域への窒素の人為的負荷による生物学的生成要因については、いまだ不明な点が多く残されている。一般に河川は、水中や底質中で流入物質を変換する機能を有している。下水処理水や雑排水などの負荷による NH_4^+-N や有機態窒素は、 $NO_2^- -N$ 、 $NO_3^- -N$ に酸化され、底質内で N_2O や N_2 に変換される。多量の流入負荷がある場合には、物質変換機能が大きく変化することは言うまでもなく、底質環境の変化により微生物が影響を受け、中間生成物である N_2O が生成される可能性が高くなることがある。

本研究では、都市域における N_2O 発生に着目し、そのなかでも人為的インパクトが大きいと考えられる、下水処理水・生活排水等の流入がある都市河川感潮域を対象とし、水質調査を行った。その結果をもとに、底質内及び河川水中で生物学的反応により生成される N_2O の挙動について検討を加え、若干の知見を得たので報告する。

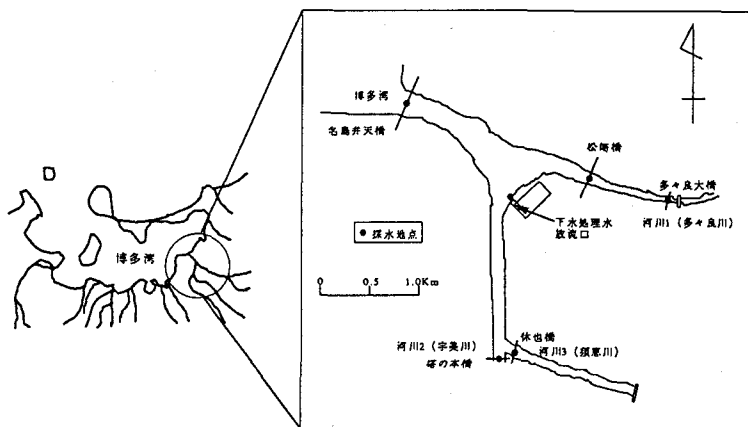


図-1 調査地点概要図

2. 調査方法

図-1に示すように、調査対象は福岡県の2級河川である多々良水系である。この流域面積は、博多湾流入河川の中で最大（約300Km²）で、水系は多々良川、宇美川、須恵川の3河川からなる。多々良川と宇美川の合流地点に下水処理場がある。流域では宅地化が進み、人口が増加している。上流域では、下水道の整備が進行しているが、依然として雑排水の流入が見られる。

今回の調査では、海水の混入のある河口地点（名島弁天橋）、下水処理場より上流に位置し雑排水流入の影響が考えられる3地点（松崎橋・塔の本橋・休也橋）、及び処理水放流地点の5地点を選び、処理水や雑排水の放流、および海水混入の影響を受けている区域内での物質移動について検討を加えた。以下に調査日時と方法を示す。

採水：1994年8月10日満潮-干潮-満潮の12時間測定（1時間毎）
 水質の分析項目は、 N_2O 、無機三態窒素、塩化物イオン、BOD、T-N、T-P、溶解性全有機炭素、pHである。 N_2O の測定には、ECDガスクロマトグラフを用いた。

採泥：1994年5月13日大潮干潮時

下水処理水放流口を中心に図-2に示す8カ所で、干潮時に底泥と直上水を7クリ製のコブを用いて採取した。持ち帰った後、1本は前処理を行い、他の1本は凍らせ、その後上端から0~1、1~2、2~4、4~6cmの間隔で切断し間隙水を採取した。残渣で粒度試験を行った。

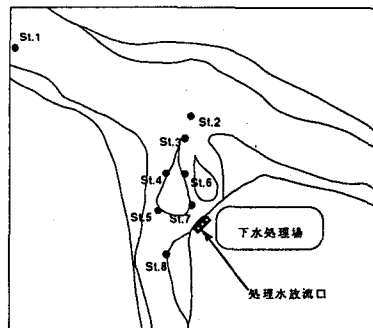


図-2 採泥地点

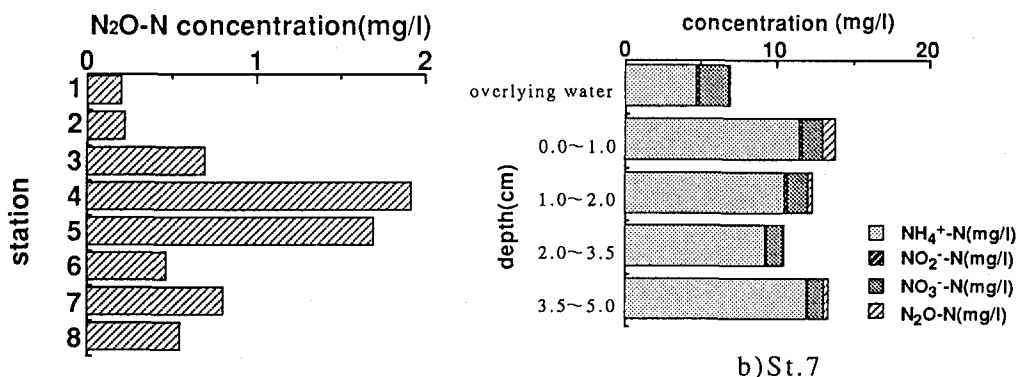


図-3 各地点の底質表層部 (0~1cm) の N_2O -N濃度

3. 調査結果

図-3に、各地点表層部 (0~1cm) における間隙水中の N_2O 濃度を示す。全ての地点で 0.4mg-N/l 以上存在し、特にSt.4,5では約 2mg-N/l と高い。 N_2O 濃度が一番高いSt.4と処理水放流口直下流のSt.7での底質内鉛直方向の濃度分布を図-4に示す。両者とも鉛直方向にはほとんど変化していない。St.7では、直上水の三態窒素濃度が処理水の影響で高くなっている。一方、St.4では全層で NO_3^- -N濃度が低く、 N_2O -Nの割合が増している。脱窒反応を考えた場合、 NO_3^- -N濃度が高く、DOが低いほど脱窒速度は増加する。St.4の表層部 (0~1cm) では NO_3^- -Nは 1mg-N/l 前後で、DOも直上水で $6\sim 8\text{mg/l}$ の飽和状態である。 N_2O -N濃度がこの地点で高くなっている理由は、現時点では明確にはし得ない。今後検討する予定である。このような表層部での高 N_2O 濃度の出現は、溶出により直上水中の N_2O 濃度を増加させることになる。

表-1は、底質表層部 (0~2cm) の粒度組成と20%粒径の測定結果である。St.1,2を除いて全体的に砂質土 (砂分約 $60\sim 70\%$ 、特にSt.7では礫分約 $20\sim 30\%$) の性状を示し、シルト分はほとんど存在しない。一方、河川の合流地点にあたるSt.2や河口地点に近いSt.1では、20%近くがシルト分であり、表層部だけを比較すると他と異なり細粒になっている。

これは、合流地点で川幅が急激に増大し、流速が低くなり細粒径のものが沈降し易くなったためである。またSt.4,6,7は粗砂分が多く、20%粒径も $0.35\sim 0.55\text{mm}$ の中粒砂で透水係数が $10^{-3}\sim 10^{-2}(\text{cm/s})$ と大きくなっている。このことは、直上水の流れによって、溶解性物質の底泥からの溶出がかなり大きくなることを示している。

次に、処理場を中心に調査区を

設け、1潮汐間の観測を行い、区域内の物質移動量について検討した。図-5に区域からあるいは区域への物質移動量を示す。この期間の処理場からの放流水の三態窒素と全窒素の平均濃度は、 NH_4^+ -N (3.0mg/l)、 NO_3^- -N (6.2mg/l)、 NO_2^- -N (1.6mg/l)、T-N (12mg/l)であった。

図-4 St.4,St.7における底質内の無機態窒素濃度

表-1 調査地点の底質表層部 (0~2cm) の粒度組成

	地点番号 粒径(mm)	1	2	3	4	5	6	7	8
粗砂分	0.425~2.0	30	32	30	75	40	75	70	60
細砂分	0.075~0.425	30	27	50	10	40	17	20	30
シルト分	0.005~0.075	25	20	3	2	5	5	7	2
粘土分	0.005以下	15	21	17	13	15	3	3	8
20% 粒径 $D_{20}(\text{mm})$		.038	.008	.100	.550	.150	.350	.400	.250

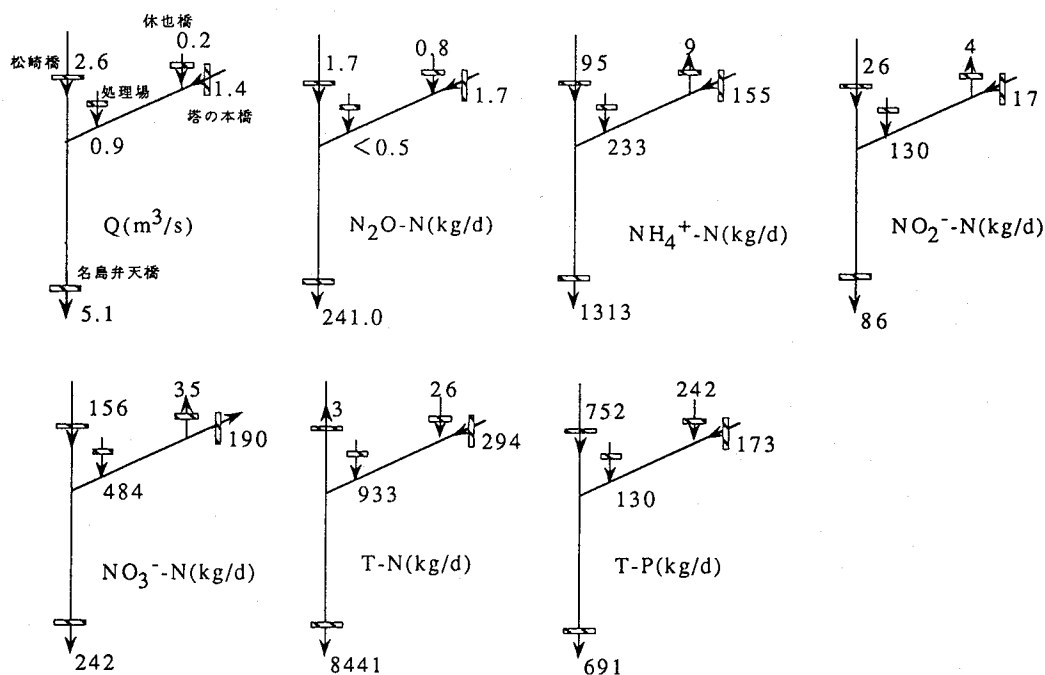


図-5 調査区間における物質収支

N_2O -Nは上流側の松崎橋、休也橋、塔の本橋ともに1.7kg/d前後であり、処理場放流水にいたっては0.5kg/d以下である。しかし、河口地点（名島弁天橋）では241kg/dの流出があり、地下水としての流入が無視できるとすれば、ほとんどが区域内の底質からの溶出によるものと考えられる。 NH_4^+ -Nの負荷は、処理場放流水によるものが最も大きい、名島弁天橋からの流出量は1313kg/dなので、収支上、区域内での生産が839kg/dであることになる。合流地点（Sl.2, Sl.3）の底質表面は、他の地点と異なり嫌氣的でありヘドロ化していた。表層を乱すと硫化水素の臭気がしたことから、底質表層部ですら酸化還元電位が低いと考えられる。底質表層中での NH_4^+ -N濃度も10~15mg-N/lと高く、脱アミノにより生成した NH_4^+ -Nが、河川水へ供給されていると考えられる。 NO_3^- -Nや NO_2^- -Nの負荷も、処理場放流水によるものが最も大きくなっている。名島弁天橋地点の流出量は、区域内への全流入量より小さくなっており、区域内での消費が認められる。 NO_3^- -Nや NO_2^- -Nの区域内消費量の合計は256kg/dで、これは N_2O -Nの区域内生成量(236kg/d)にほぼ近い。

N_2O の生成は、 NH_4^+ -Nの酸化、 NO_2^- -Nの還元による。Sl.1,2,3を除いて、他の地点では、好気性部位が3cm前後あったことを考えると、 N_2O -Nの生成要因は NH_4^+ -Nの酸化である可能性が大きい、 NO_2^- -Nと NO_3^- -Nの減少量が N_2O 生成量に等しくなっており、いずれの過程が卓越しているかは結論づけられるまでには至っていない。

T-Nは区域内からの生成が多く、内、30~50%が有機態窒素である。各地点の有機態窒素平均濃度はそれほど変化がなく、 NH_4^+ -Nの底質からの供給がT-Nの生成に影響を与えていると考えられる。またT-Pは、区域内で約600kg/dの減少が見られる。昼間のDOやpHの増加から判断すると、植物プランクトンや藻類の増殖と、それに続く沈降が考えられる。植物プランクトンの増殖は、pHの変化を招き、 N_2O の生成に影響を与えるので、今後検討する必要がある。

4. おわりに

本調査では、 N_2O の底質中での濃度が、上層水中のものと比べてかなり高くなっていることが明らかになった。 N_2O の生成が NH_4^+ -Nの酸化あるいは、 NO_2^- -Nの還元のいずれにより大きく依存しているかを結論づけることはできなかった。今後より詳細に検討を続けていく予定である。

参考文献 1)福岡市環境保全部；福岡市の環境