

17. 下水処理水の放流を受ける河川感潮部における N_2O の挙動

BEHAVIOR OF N_2O IN ESTUARY OF RECEIVING TREATED WASTE WATER

楠田哲也* · 李昇潤* · 大石京子* · 今村正裕**

Tetsuya KUSUDA, Seungyoon LEE, Kyoko OISHI, Masahiro IMAMURA

ABSTRACT ; Transport of nitrous oxide and treated waste water was investigated in an estuary receiving treated waste water. Seasonal change of water quality were also observed to assure origins of N_2O and to estimate the influence of treated waste water on N_2O production in the survey area. Based on nitrous oxide concentration profiles in the survey area, discharged treated waste water were traced, which flowed upstream at the flood tide and downstream at the ebb tide with concentration maxima. It is assumed that nitrous oxide discharged from treated waste water is transported to the survey area with partial and vertical mixture. To determine the production of N_2O in survey area, flux at each sampling sites were calculated and 25% of the produced N_2O was originated from treated waste water in result. The remaining percentage of the production, and also assumed to be the discharge from the sediment layers.

KEYWORDS ; N_2O , waste water, estuary, tidal rivers, nitrogen balance

1. 緒言

成層圏に存在するオゾン層は紫外線を遮断し、地表での生物の生存を可能にしている。 NO_x はこのオゾン層を破壊することが知られており、その中でも N_2O は NO_x の成層圏への供給源となっている。現在、大気中の濃度は約310ppbvであるが、年0.2~0.3%の割合で上昇していると推定されている。しかも、 N_2O は他の温室効果ガスに比べて寿命が130年程度と比較的長いため、わずかな排出量であっても、その影響は長期に及ぶことになる。地球温暖化を避けるためには、 N_2O の放出量を削減する必要がある。 N_2O の発生源は海洋や森林などの自然起源と施肥土壌や燃焼などの人為起源で、消失源は主に成層圏における光分解と言われているが、未だ定量的に、完全に把握されていない。発生源の一つとして、最近、下水処理場が注目されている（花木ら、1993）。下水処理場からの放流水中には排水処理過程で生成された N_2O の他に無機態窒素（DIN; NH_4^+-N 、 $NO_2^- -N$ 、 $NO_3^- -N$ ）も存在する。後者はさらに水中や底質中で N_2O や N_2 へ変換される可能性がある。一般に下水処理場は河口域に建設されており、潮汐の影響を受けるこの水域において放流水の複雑な輸送過程は N_2O の生成に大きな影響を及ぼすと考えられる。

本研究は、下水処理水の放流を受ける河川の感潮域を対象として、多岐にわたる N_2O の起源とその挙動を明らかにするとともに、処理水が水域の水質、特に N_2O の濃度に与える影響について検討するものである。

2. 調査内容

2.1 水質の調査地点と調査方法

福岡市の東部を流れ博多湾に注ぐ多々良水系を対象とした。多々良水系は博多湾流入河川内で最大の流域面積をもち、下水処理水の他、農業排水や浄化槽排水の流入も受けている。感潮域の混合形態は塩水楔型から緩混合型である。観測地点として、下水処理場から約1km下流の河口部（名島弁天橋）、下水処理場より上流に位置して上げ潮時に放流水が流入する3地点（塔の本橋、松崎橋、休也橋）、及び処理水の放流地点の5地点とした。図1に調査区域と観測地点を示す。1995年の6月20日~6月21日、9月20日~9月21日、12月13日~12月14日、1996年3月7日~3月8日の満潮-干潮-満潮時に渡って1時間毎に水温、流速、水質を測定した。水質の分析項目は N_2O 、各DIN、塩化物イオン、pH、DOである。

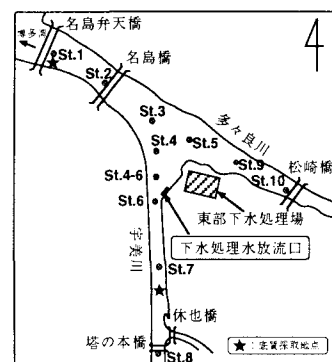


図1. 調査区域と観測地点

*; 九州大学工学部建設都市工学科 Dep. of Civil Engineering, Kyushu University

**; 財団法人電力中央研究所環境科学部

放流水の輸送過程を明らかにするために、1996年9月28日と12月18日の満潮時と干潮時に 図1のSt.1からSt.10までの水温、各DIN及び N_2O 、SS、塩化物イオンの濃度の鉛直分布状態を調査した。採水は水深方向に深さによって2から3点（上層水、中層水、下層水）とした。 N_2O の分析にはECD付きガスクロマトグラフ（島津製 GC-8A）を各DIN分析にはオートアナライザー（Chemlab Inst.）を用いた。塩化物イオン濃度の分析は下水試験方法に準じた。

2.2 底質の調査地点と調査方法

それぞれの測定日の干潮時にアクリルパイプでコア状に採取した底質を、持ち帰った後、冷凍した。凍結したまま、表面から0-1cm、1-2cm、2-3cm、3-5cm、5-7cmで切断し、間隙水を採取した。その後、間隙水中の各DIN及びDOC、 N_2O の濃度を測定した。各DIN及び N_2O の分析には2.1と同じ方法で、DOCの濃度は有機炭素計（島津製 TOC-500）で測定した。

3. 結果及び考察

3.1 感潮域における放流水の輸送特性

一例として、1995年12月13日の下水処理場の約1km上流に位置する塔の本橋において一潮汐（満潮→干潮→満潮）間にわたり水温、塩化物イオン、各DIN及び N_2O 濃度を測定した結果を図2に示す。上げ潮終期付近（11:00～12:00pm）で水温は若干ではあるが表層で高く底層で低くなっていた。これに対応して各DINと N_2O の濃度は上層で高く、塩化物イオンとは逆の分布になっていることから、この高濃度水塊は放流水由来と考えられる。またこのようになる理由として下水処理水の水温が年間を通じておおよそ13～27℃であり、水温の高い放流水の水塊が表層を移動すること、対象感潮域の混合形態が塩水楔型から緩混合型であり塩化物イオンの濃度が低い放流水が海水の進入によって上層に押し上げられることが考えられる。しかし、全般的に水温が下がる冬季には図2に示すような水温分布が認められるが、水温が高い夏季（6月、9月）には鉛直方向に水温の差は認められないし、水質（各DINや N_2O ）においても、冬季、夏季とも放流水は高濃度水塊を形成して表層を移動していることから、海水の混合形態の影響の方が大きいと考えられる。満潮時（2:00～3:00pm）に上層に存在していたDINや N_2O の高濃度水塊は、下げ潮時に上流からの河川水で希釈混合されながら流下し、次の上げ潮時に下水処理場からの放流水を上層に押し上げながら上流へ輸送するため満潮終期（1:00～2:00am）にかけて高濃度域を形成する。上げ潮時に（10:00pm頃）底層にも N_2O の高濃度水塊が存在する。この水塊のSS濃度も高いことから、上げ潮時に底質が巻き上げられたと考えられる。さらに塔の本橋付

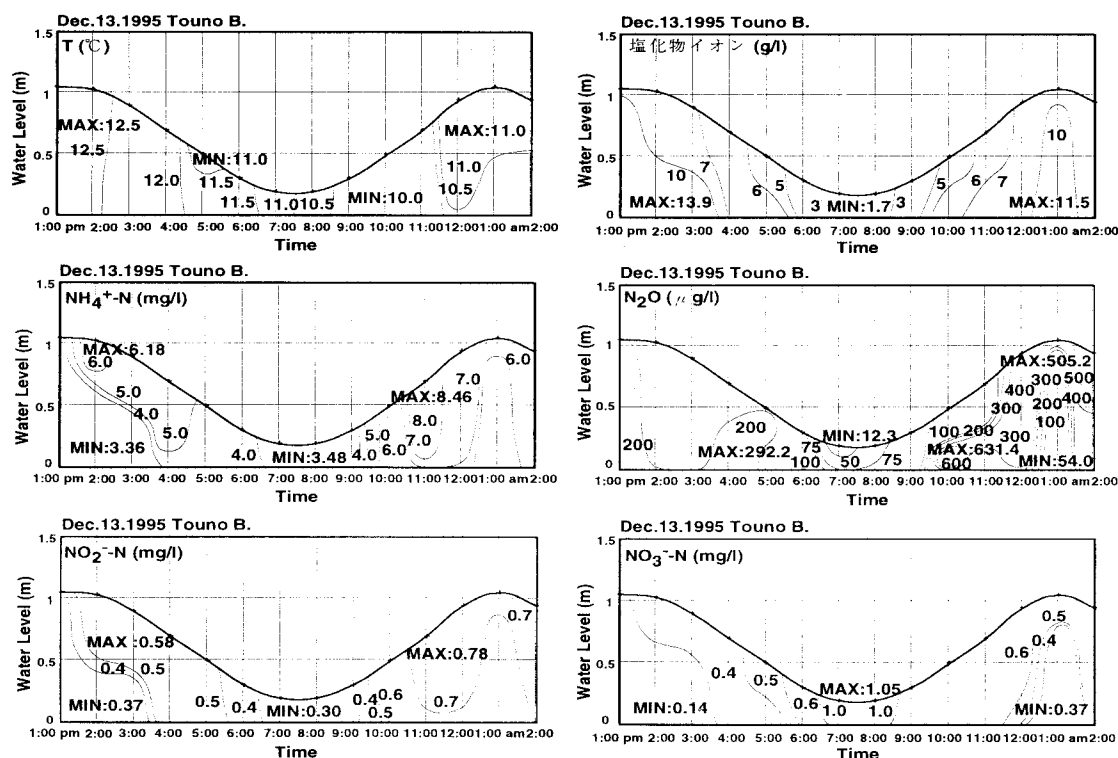


図2. 水温、塩化物イオン、 N_2O 及び各DIN濃度の鉛直分布（1995年12月13日；塔の本橋）

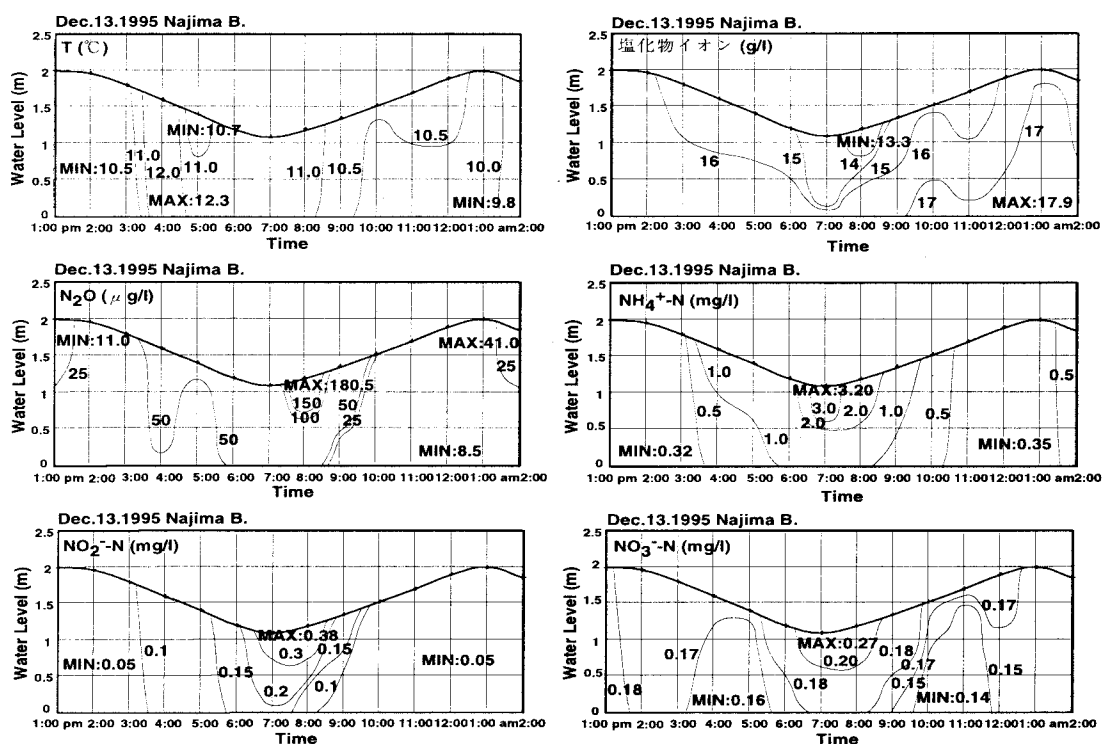


図3.水温、塩化物イオン、N₂O及び各DIN濃度の鉛直分布（1995年12月13日；名島弁天橋）

近において底質の窒素含有量が多いため、底質内での各種の物質変換活性が高く間隙水中に高濃度で存在する各DINが溶出した可能性もある(3.3参照)。

次に同一日に下水処理場より約1km下流に位置する名島弁天橋で一潮汐（満潮→干潮→満潮）間にわたって観測した水温、塩化物イオン、各DIN及びN₂O濃度の鉛直分布をそれぞれ図3に示す。河口に近い本地点においても、塩化物イオンは満潮時に下層で高く上層で低い分布を示す塩水楔ないし緩混合を示している。各DIN及びN₂O濃度は最干潮時に下層で低く上層で高い分布を示し、次の上げ潮時に海水と混合希釈されている。この地点は下水処理場より下流に位置していることやこれらの物質濃度が上流の濃度よりかなり高いことから高濃度水塊は下水放流水由来と考えられる。水温は昼夜の影響の方が大きく表れており、放流水との関係は認められなかった。しかし、これらの結果はこの水塊が下水放流水由来であることを示している。

さらに放流水の輸送過程を明らかにするために、1996年9月28日と12月18日の満潮時と干潮時に図1のSt.1からSt.10までの水温、塩分、各DIN及びN₂O濃度の鉛直分布を調査した。12月の観測結果を図4に示す。下水処理水はSt.4-6付近に放流されており、この付近の上層部に各DIN及びN₂Oの高濃度水塊が認められることから処理水由来と考えられる。干潮時には放流口付近に干潟が形成されて満潮時と流況が異なる。すなわち、St.4-6、St.6は上流からの河川水がのみが流れ、放流水はその地点の反対側を流下してSt.3付近で多々良川の河川水と合流する。そのため、干潮時にはSt.3付近で各DIN及びN₂Oの高濃度水塊が現れる。図2～4から判断して、下水処理場からの放流水は水塊として干潮時に名島橋付近まで流下し、上げ潮時に海水と鉛直混合を受けながら遡上する。そして下水処理場からの放流水を受けて多々良川と宇美川へと分流して塔の本橋付近まで遡上すると考えられる。その際、放流水はSt.5→St.9→St.10よりSt.6→St.7→St.8への輸送が大きい（図4参照）。9月の観測結果にも同様の傾向が見られた。

3.2 観測定点における物質のフラックス

1995年の6月20日、9月20日、12月13日、1996年3月7日の観測5地点における流量、塩化物イオン、SS、TN、各DIN、N₂Oのフラックスを計算し、各物質収支をまとめて図5に示す。流量は4回の観測ともほとんど変わらないにもかかわらず、本来保存物質である塩化物イオンが内部生産された結果となっているのは、測定誤差と考えられる。塩化物イオンをすべて海水由来と考えると、最小で2.5%、最大で25%程度の誤差を含んでいる。SSの内部生産量は2月、3月に比べて水温が高い6月と9月に高く、さらに有機態N (TN-DIN) も同じ傾向を示すことから、これらはプランクトンの増殖によるものと考えられる。DINは一様に上流から負荷

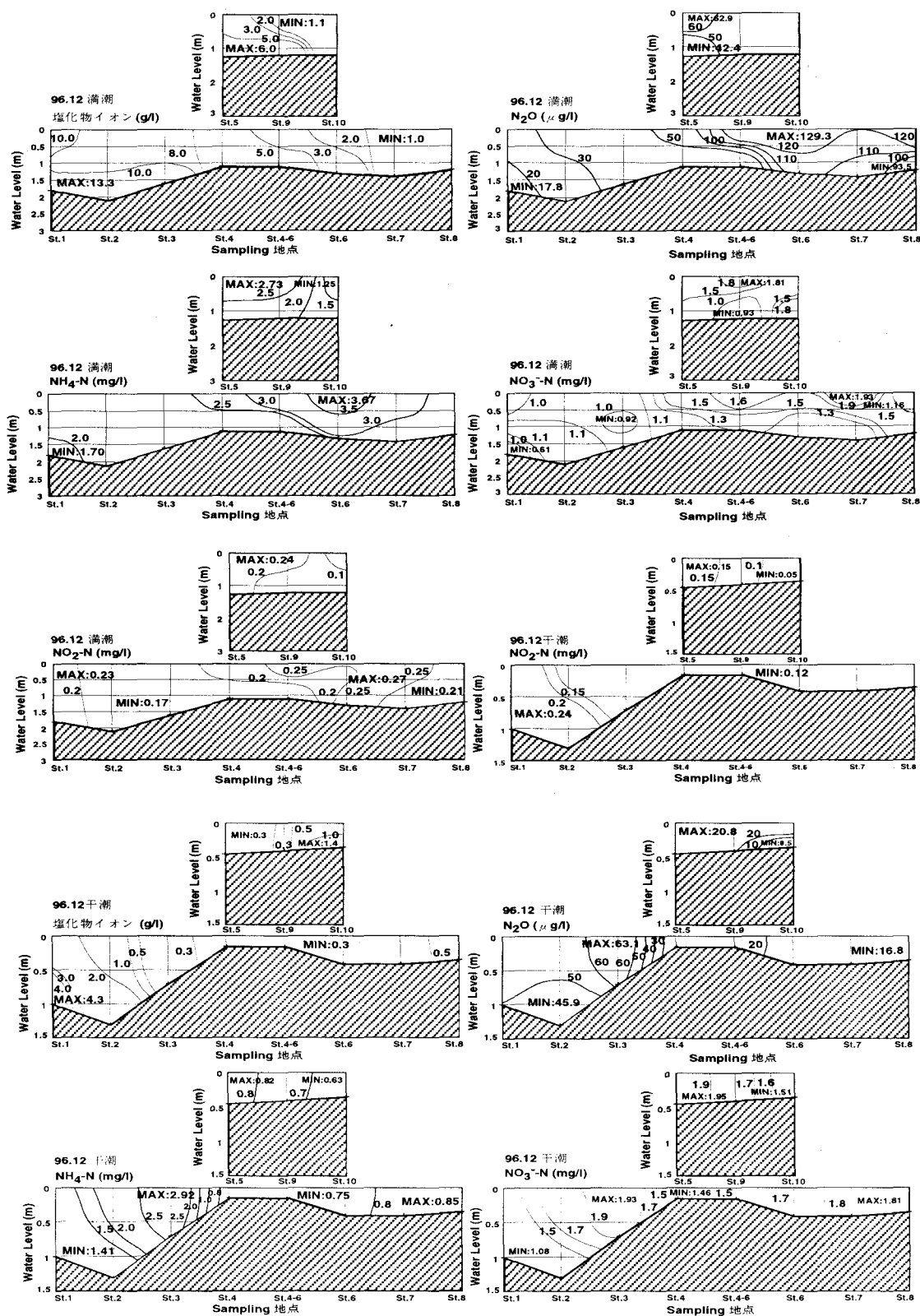


図4. 塩化物イオン、 N_2O 及び各DIN濃度の鉛直分布（1996年12月18日；St.1 - St.10）

されているが、主な負荷源は下水放流水である。また、年間を通じて放流口から名島弁天橋間におけるDINの見掛けの生産量の50%以上が NH_4^+-N であり、特に12月、3月の低水温時に80%と高かった。従って、この水域で底質からかなりのDINの溶出とそれらの物質変換があるものと考えられる。 N_2O は下水放流水の他に休也橋付近から下流へのフラックスが多く、松崎橋、塔の本橋では逆に上流へのフラックスが大きい。更に、下水処理水から名島弁天橋までの約1km間でかなりの生産が認められる。3.1で示したように、上げ潮に

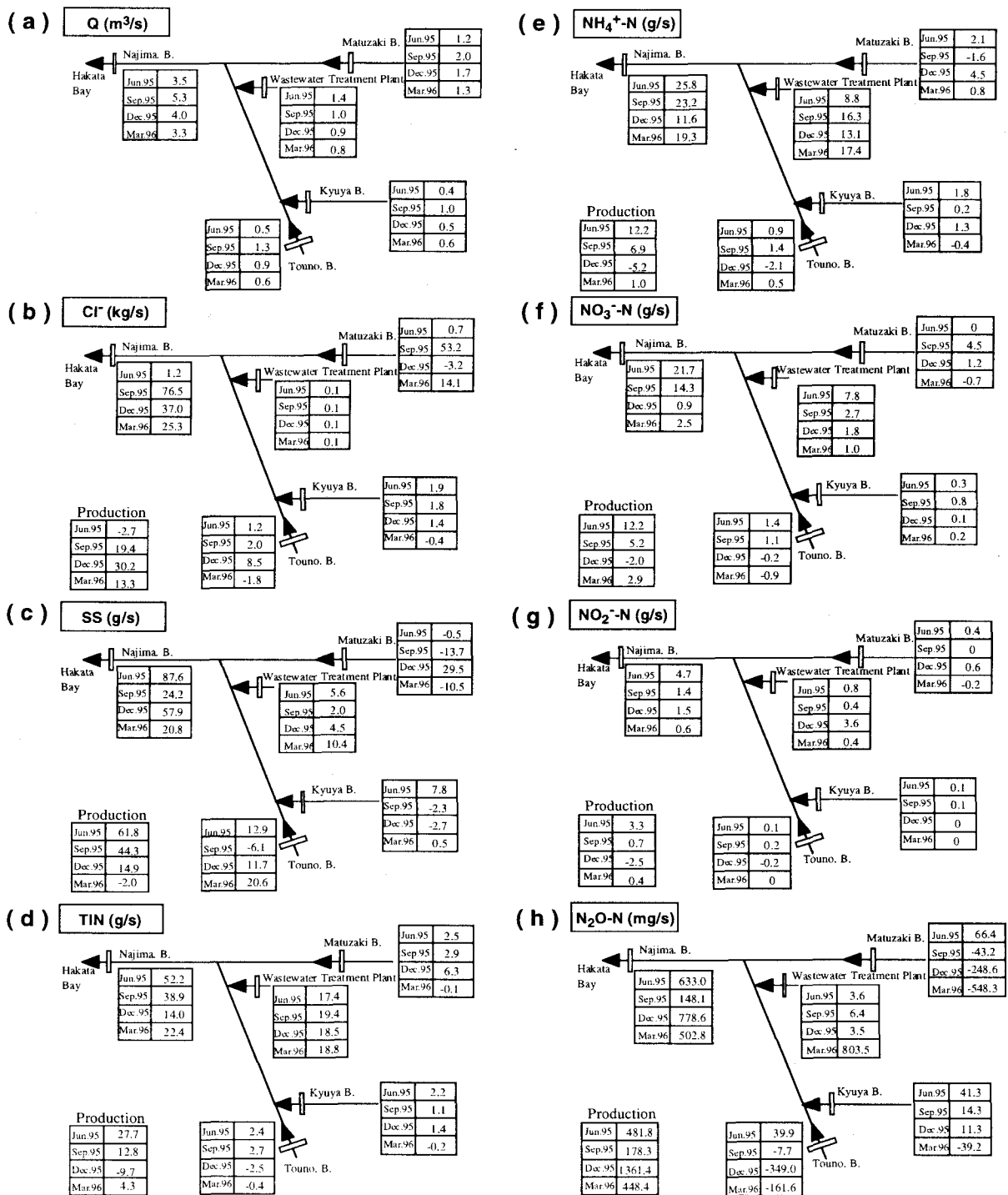


図5. 各調査地点における流量、塩化物イオン、SS、TN、各DIN、N₂Oの時期別フラックス

多々良川と宇美川の合流付近で放流水を受けて、両河川へ分岐して輸送されていることから、松崎橋と塔の本橋において上流へ輸送されるN₂Oは放流水と、放流口から名島弁天橋間で生産されたN₂Oと考えられる。各時期の物質収支から計算した処理場からの平均N₂O放出量は、調査区域内のN₂O生産量の約25%であり、残りの75%が底質からのフラックス又は水中のDINからの変換によるものと推定される。しかし、これは単なる存在量だけで計算した結果であり、大気へのフラックスとN₂への還元量を考慮すると、全生産量はさらに大きくなり、処理水由来のN₂Oの放出量が全生成量の内では占める比率は小さくなると考えられる。しかし、処理水のN₂O濃度は季節的又は時間的に変化するため、その比率は一定ではなく流動的になり、大気へのフラックス、N₂への還元率、放流水中のN₂O濃度変化を考慮した収支計算により明らかにする必要がある。

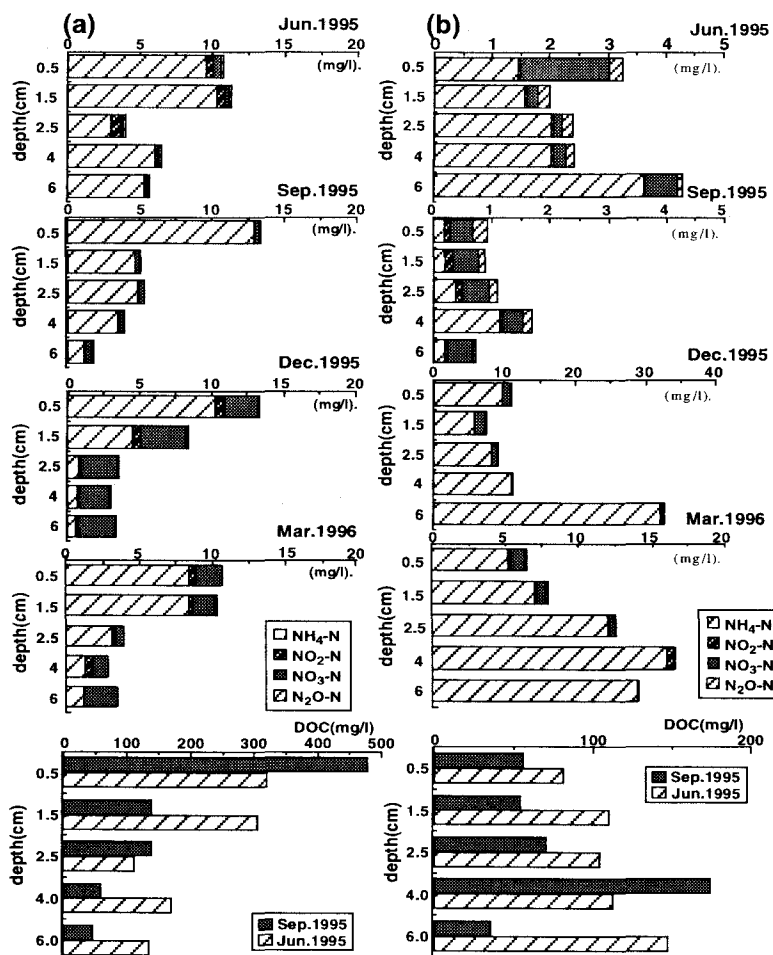


図6. 底質間隙水中における各DIN、 N_2O 、DOCの鉛直分布
((a)名島弁天橋、(b)塔の本橋)

3.3 観測水域内での水質に及ぼす底質の影響

図1に示す2地点の底質間隙水中における各DIN、 N_2O 、DOCの鉛直濃度分布を図6に示す。名島弁天橋付近の底質では、これらの物質は表層で高く、下層で低い濃度分布を形成しており、直上水から底質内への供給があることを示している。一方、放流口と塔の本橋の中間点付近の底質では、これと逆のフラックスを示しており底質からの溶出が大きいことを示している。間隙水の N_2O の濃度は微生物の活性が高くなる6月や9月に高い。また、 NO_3^- -Nや NO_2^- -Nの濃度は1~2例を除いて表層程高く、下層程低いことから、 N_2O は主に脱窒によって生成されているものと考えられる。脱窒過程で N_2O が生成される場合、供給されるNに対し有機物量が不足することが指摘されている。ここで測定したDOCのすべてが生分解性であるかどうかは不明であるが、C/Nは5以上あり、有機物不足であるとは考えられない(Kusuda et al., 1996)。一方で、間隙水中の NH_4^+ -N濃度が高く表面近くでは酸素の供給も期待できることから、硝化による可能性も高い。3.2で示したように、この水域で生産されるDINの

50%以上は底質由来の NH_4^+ -Nであり底質の寄与率が高いことが示唆された。

4. 結論

- 1) 対象水域において、下水処理場から放流された放流水は、各DINや N_2O の高濃度水塊を形成して表層を移動している。
- 2) 放流水の各DINや N_2O の高濃度水塊の形成には水温より海水の混合形態の影響が大きい。
- 3) 各DINや N_2O は、下水処理場からの負荷以外に、下水処理場より下流においてかなりの生産が認められる。特に N_2O はこの水域での生産量が多い。
- 4) 処理場からの N_2O 放出量は区域全体の N_2O 生産量の約25%であるが、 N_2O の酸化・還元プロセス及び大気へのフラックスを考慮した収支計算が必要である。
- 5) 底質間隙水中の N_2O 、各DIN濃度は高く、直上水の水質への影響が大きい。
- 6) 底質での N_2O 生成は硝化・脱窒によるが、どちらが卓越しているかは明確ではない。

参考文献

- 花木啓祐、鄭 紅、松尾友矩；(1993) 脱窒における一酸化二窒素生成と操作因子の関係、下水道協会論文集、Vol.30, pp30-41.
- Kusuda, T., S. Y. Lee, M. Imamura and K. Oishi；(1996) Production of Nitrous Oxide in an Estuary Receiving Effluent of Treated Waste Water, *The 3rd Int. Symposium on Environmental Quality Management And Control*, Taegu, Korea, pp.59-73.