

大和川における生活排水起源の有機物分解 に関する窒素同位体と負荷量による解析

DECOMPOSE PROCESS OF SEWAGE ORGANIC MATERIAL USING
NITROGEN ISOTOPE AND LOAD ANALYZE IN YAMATO RIVER

谷口正伸¹・井伊博行²・平田健正³・西川雅高⁴・小川祐美⁴

Masanobu TANIGUCHI, Hiroyuki II, Tatemasa HIRATA, Masataka NISHIKAWA, Yumi OGAWA

¹学生会員 和歌山大学大学院 システム工学研究科 (〒640-8510 和歌山市栄谷 930)

²正会員 博(理) 和歌山大学教授 システム工学部 (〒640-8510 和歌山市栄谷 930)

³正会員 工博 和歌山大学教授 システム工学部 (〒640-8510 和歌山市栄谷 930)

⁴正会員 博(理) 独立法人国立環境研究所 (〒305-0053 茨城県つくば市小野川 16-2)

Concentrations of BOD derived from domestic sewage changed seasonally and high in winter and low in summer. The concentrations decreased with increase of water temperature. Therefore, organic compound was thought to be decomposed by biological process within river because BOD was an organic compound and biological activity depended on temperature. The actual BOD loads between two points along the Yamato River with no branch river and no drainage were measured and a rate of decomposition between them was calculated. BOD load analyze including the rate of decomposition was performed. Total BOD load was BOD load at both high water level and normal water level and the analyzed BOD load was thought to be equal to BOD load at normal water level because river at high water level had no time to decompose with high flow rate. NO_3^- was thought to be used for photosynthesis because pH, DO values, $\delta^{15}\text{N}$ of NO_3^- and chlorophyll concentration of the Yamato River increased with temperature and decrease of NO_3^- -N concentration.

Key Words: BOD, Nitrogen, Water Pollution, photosynthesis, pollutant load per unit production, Yamato River

1. はじめに

泥箱賞大和川は近年急激な都市化に伴い、水質汚濁が原因となっている河川である。その背景として、高度成長期に上流、中流域が格好のニュータウンとして注目され、人口が急増したことが挙げられる。そのため行政の社会基盤の整備が都市化の速度に追いつかず、下水処理施設の不整備などから生活雑排水が河川に流れ込み、水質汚濁が進んだためである¹⁾。このように自浄能力を超えた汚濁により、大和川では水質悪化が問題となっている。そこで、水質改善運動として、大和川クリーンキャンペーンが1985年から始まり2002年まで実施され、様々な生物が生息でき、良好な水環境へ改善しようと、さまざまなイベントが実施された。また、1994年11月

に、水環境改善緊急行動計画として大和川清流ルネッサンス21が策定された²⁾。そのため、計画で定められた水質目標を達成するために、河川の浄化、下水道整備、家庭での生活排水対策など、水環境にかかわる総合的な施策が実施された。しかしながら、近年浄化施設や下水処理施設が数々設置され、これらのイベント活動や地域の活動により水質は徐々に改善されてはいるもののその効果はあまりあがっておらず、依然として環境基準値を上回っているのが現状である。そのため、大和川支流の石川における環境同位体および化学組成から河川水と地下水の起源が解明され、大和川では1999年、2000年の現地調査のデータを用いた河川水の水質特性について研究がなされてきた³⁾。また、石川と大和川本流での定点長期データを用いて、BOD、アンモニア態窒素、陰イオン

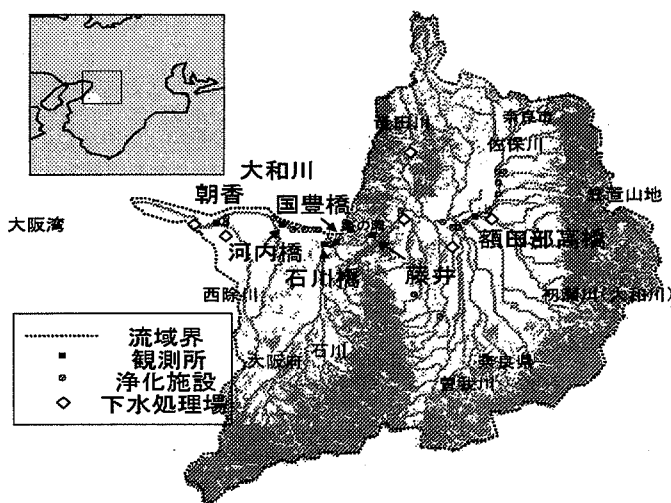


図-1 大和川流域の概略

界面活性剤について、生活排水に原因があり、濃度の水温依存性により冬に水質が悪化することを解明したが、詳しい水質変化の現象までは解明されていなかった⁹⁾。

そこで、本研究では過去の長期データにより水質の傾向と河川での物質の動向を把握し、水質変化の原因について解析を行う。その中で、生活排水や産業排水に主に含まれる窒素に着目し、広域の調査データから、BOD、硝酸態窒素濃度についての考察を行った。また濃度と水温、流量との関係について考察を行った。さらに代表的な河川について窒素同位体を用いて解析を行い、水温をパラメータとした負荷量解析から河川で起こっている有機物由来の窒素の変化について現象を解明する。

2. 研究対象地の概要

大和川は奈良県と大阪府南部を流れる全長 68km の 1 級河川である。大和川は笠置山地から始まり、佐保川、曾我川、竜田川などの奈良盆地の水を集め、奈良県と大阪府の境にある亀の瀬の溪谷部を経て、大阪平野に入る。奈良盆地を囲む山地や奈良盆地の地盤は火成岩からなり、奈良盆地の水は全て亀の瀬に集まる。この後、石川や西除川等を合わせ、大阪湾に注いでいる。流域面積は 1070km²であり、奈良県、大阪府の 41 市町村に約 200 万人の人が生活している。また、2000 年度の下処理普及率は大阪府で 55.0%、奈良県では 57.8%と低くなっている。大和川の上流部には奈良市、生駒市、橿原市など都市が存在し、都市排水が上流部で河川に流入する。また、2003 年度の全国 1 級河川の BOD75%値においてワースト 1 位を記録している⁹⁾。

3. 研究方法

研究を行うにあたり、国土交通省のデータと和歌山大

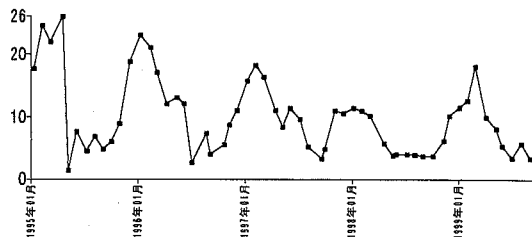


図-2 藤井のBODの経年変化

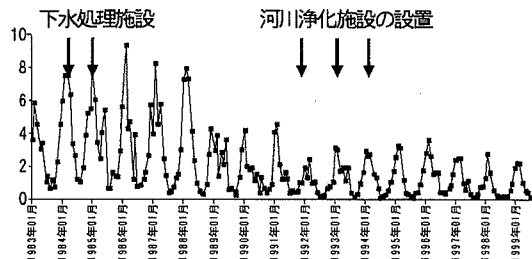


図-3 藤井のアンモニア態窒素濃度の経年変化

学で行った現地調査のデータを用いて解析を行った。国土交通省のデータは 4 地点の観測所の 1983 年から 1999 年のデータを用いた。考察に用いた項目は流量、水温、pH、DO、BOD、硝酸態窒素濃度である⁹⁾。観測所の位置を図-1 に示す。大和川には主な観測所として、下流から、浅香、河内橋、石川橋、国豊橋、藤井、額田部高橋があり、ここでは代表としてデータ数の最も多い「藤井」のデータを用いた。観測所ではそれぞれ月に 1 回の定期観測が行われている。流域にある下水処理施設で、奈良県は 1974 年に大阪府では 1979 年に設置されはじめ、1985 年前後にも多く稼動し始めている。また、河川浄化施設は 1992 年から 1994 年にかけて建設が行われている。この下水処理施設の設置年度や河川浄化施設の設置年度とともに、水質とあわせて考察する。過去の長期データだけでは平面的な変化が考察できないために、和歌山大学で 2000 年 1 月と 10 月に大和川全体で 70 地点の調査を実施した。さらに 2004 年 2 月と 2004 年 7 月に上流部から生活排水が混入する竜田川と曾我川流域について窒素同位体分析およびを行った。これらの水質、流量データとともに河川で起こっている現象を推察した。

4. 流域における水質変化の傾向

藤井は大和川本流の奈良県内の最下流部にある。図-2 に BOD、図-3 にアンモニア態窒素濃度の経年変化をそれぞれ示す。流域中での現象を解明するために、それぞれの項目について変化パターンについて考察した。1 年での変化を見ると、BOD、アンモニア態窒素濃度は規則的な変化が明確に見られ、2 月前後をピークに、冬に濃度が高く、夏に低くなる傾向が見られる。人為的な影響でこの変化があるかどうかを確認するために、図-3 の矢印で浄化施設の設置年度を示した。濃度変化はと浄化施設が設置された年には大きな変化が見られず、濃度変化の

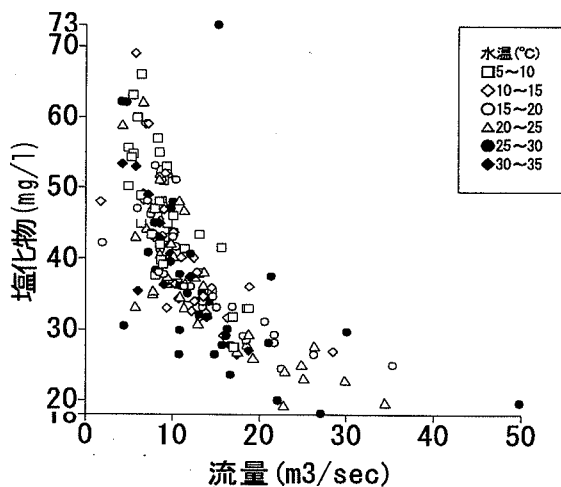


図4 塩素イオン濃度と流量、水温との関係

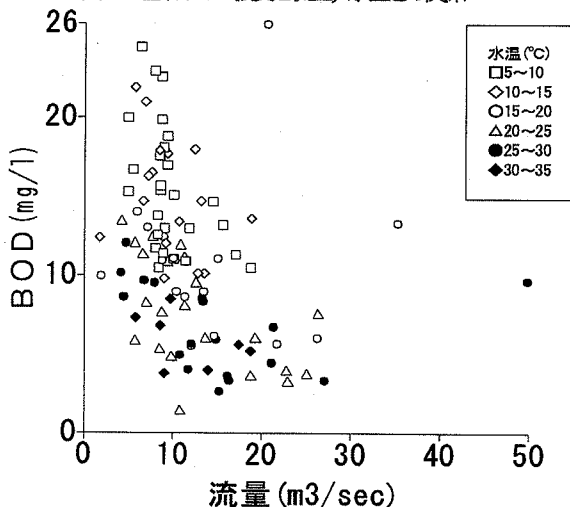


図5 BODと流量、水温との関係

原因は浄化施設などの人為的な影響とは考えにくい。また、BODは有機物量の指標であり、アンモニアは有機物が分解されるときに生成され、硝化菌により、硝酸イオンになる。このことから、濃度変化の原因として、河川への流入量の変化、有機物の分解、希釈の効果などが考えられる。

5. 濃度と流量及び水温との関係

BODは生活排水が起源であると考えられ、その濃度は河川への流入量、河川中での分解とともに河川水量に影響を受けると考えられる。そこで、毎年、冬季のみに生活排水が増加するとは考えられないため、図-4に塩素イオン濃度、図-5にBOD、図-6に硝酸態窒素濃度の流量および水温との関係をそれぞれ示す。図中に水温が25℃より高いときの濃度をぬりつぶしのマークで示す。図-4の塩素イオン濃度は流量が増加すると減少する傾向がみられ、水温が変化しても、濃度と流量の関係には変化がみられない。塩素イオンも生活排水に起因すると考えられ、濃度が流量に依存することから、降雨などにより河川流

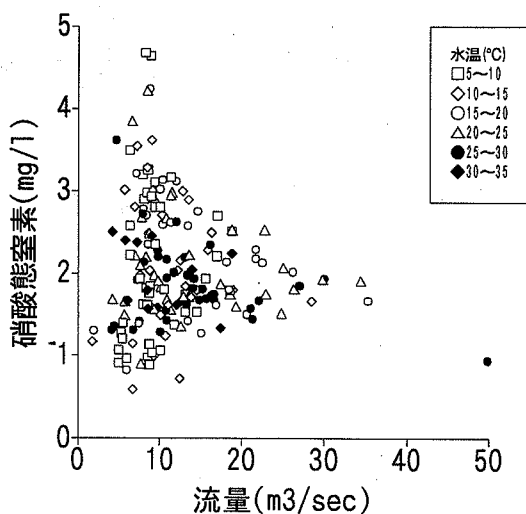


図6 硝酸態窒素濃度と流量、水温との関係

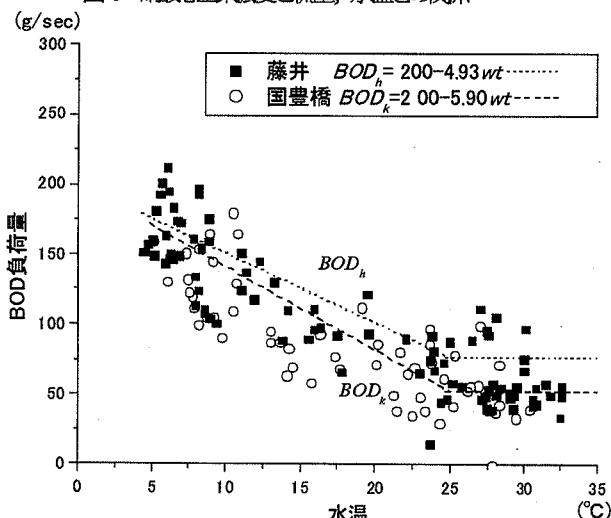


図7 藤井と国豊橋のBOD実測負荷量と水温の関係

量が増加すること（希釈効果）により、濃度が変動すると思われる。しかし、図-5のBODと流量との関係は水温が高いほど濃度が低い傾向を示す。このことから、BODは水温に大きく依存していることが判る。一方、図-6の硝酸態窒素濃度は、BODとは違った傾向が見られ、水温が低い場合に濃度がばらつき、水温が高くなると全体として濃度が低くなる傾向がある。

6. 河川中での有機物分解の影響について

図-7に藤井と国豊橋におけるBOD実測負荷量と水温との関係を示す。図-7中の点線は藤井、破線は国豊橋の近似直線を示す。藤井（上流観測地点）と国豊橋（下流観測地点）の間は亀の瀬と呼ばれる溪流となっておりほとんど生活排水などの新たな流入のない区間である。1995年から1999年の定期観測のBOD濃度と流量を乗算したものである。BOD負荷量は藤井と国豊橋ともに水温が上昇すると、負荷量は減少している。藤井と国豊橋の負荷量を比較すると、水温が5から10℃ではBOD負荷量に差は小さいが、水温が上昇すると藤井と国豊橋の負荷量の差が大きくなる傾向がある、25℃以上では藤井、

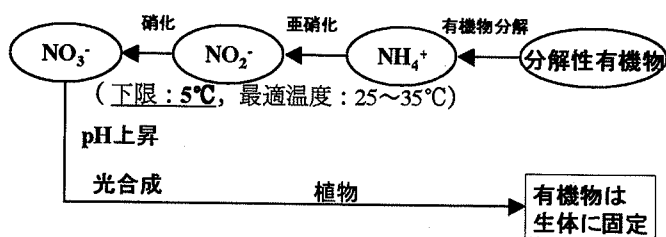


図-8 流域での反応概略図

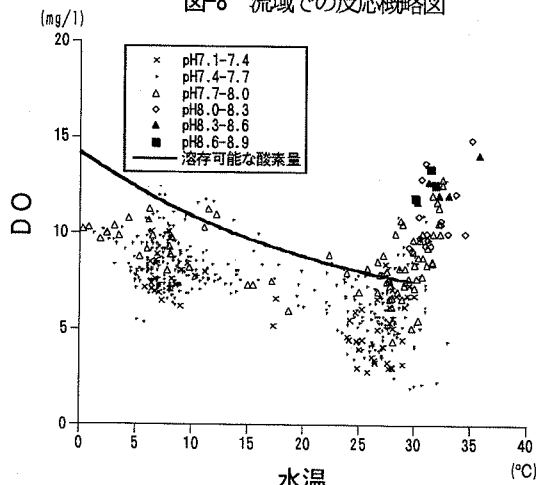
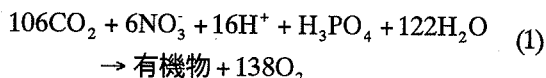


図-9 DOと水温、pHとの関係

国豊橋ともに水温が上昇しても負荷量は減少していない。このことは一般に、生物活性は温度とともに上昇し、25°Cをピークに、25°C以上では変化しないため、BOD負荷量は水温が上昇しても変化しないと考えられる。また、BOD負荷量に差が小さいのは5°C以下では生物は冬眠し、有機物分解されないためであると考えられる。

7. 光合成の影響について

有機物の分解と同様に、河川内で水温の影響のある硝酸イオン濃度に影響を与える現象として、光合成が考えられる。図-8に流域内での反応概略を示す。光合成の反応は式(1)で示されるように硝酸が減少し、有機物として植物に固定される。このとき、反応により水素イオンが使われるため、pHは上昇し、酸素濃度は増加する。



このことから、光合成について解析するため、図-9に藤井におけるDOと水温、pHとの関係を示す。図-9の実線は1気圧25°Cにおける飽和溶解酸素量である。また、pHが7.7以上のプロットサイズを大きく示してある。25°C以下ではpHは8以下で、25°C以上でpHは8以上となっている。特に、25°C以上では、DOは、飽和曲線よりも上にあり、水中に過剰に酸素が存在するため、光合成によって、酸素が供給されたことが考えられる。さらに、図-10に藤井におけるクロロフィルa濃度と水温の変化を示す。光合成に含まれる物質としてクロロフィル

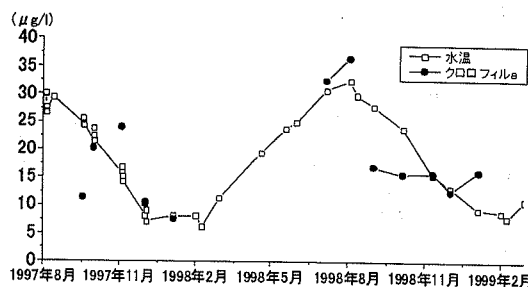


図-10 藤井におけるクロロフィルa濃度と水温の変化

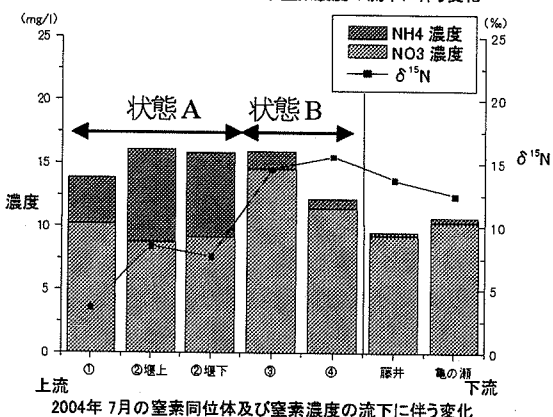
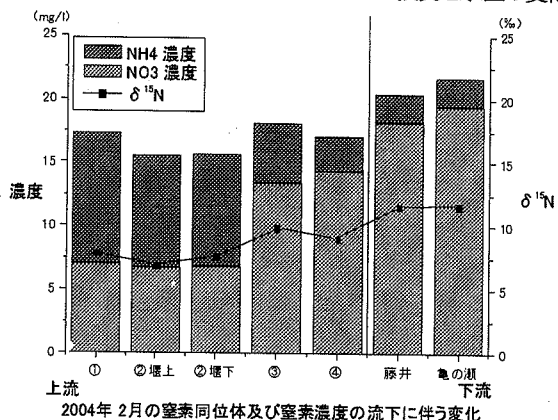


図-11 流下に伴う窒素同位体とアンモニアおよび硝酸イオン濃度の変化

aがある⁹⁾。クロロフィルa濃度も夏に増加し、冬に低くなる傾向があり、光合成の活動が季節変化を示しており、夏により多くの硝酸イオンが消費されることがわかる。

8. 窒素同位体について

図-11に流下に伴う硝酸態の窒素同位体比、および硝酸イオン濃度の変化を示す。ここで、窒素同位対比は窒素起源により異なるため、窒素起源を特定できる。また、窒素が分解などの反応が起こると窒素同位体比は重くなる。一般に、窒素起源別に農業排水では0~3‰、生活排水は10‰程度である²⁾。竜田川は上流から①から④まで、本流の地点は藤井、亀の瀬である。番号で示す各地点は1~2km程度離れている。竜田川流域は最上流部が生駒市で、大きな都市が存在し、なおかつ考察した地点に浄化施設がないので、生活排水起源のNの河川内での変化

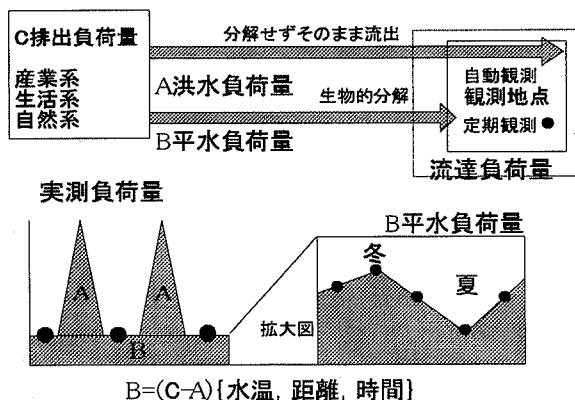


図-12 BOD 負荷量の算定の概略図

を考察できる。状態 A の区間はコンクリート張り堰が存在し、水深が深い。大和川流域では火成岩による固い岩盤であることから水が浸透しにくいと考えられる。一方、状態 B の区間は河床が広く確保され水深が低く、植物が存在する。NH₄⁺濃度は 2 月、7 月ともに上流部が高く、堰の下流で大きく減少し、その後、流下するにつれて減少する傾向がある。窒素同位対比は、2 月には流下するにつれて増加するが変化が小さく、7 月には竜田川流域で大きく増加する。しかし、本流では流下するにつれて減少するがその変化は小さい。上流の窒素同位対比が 7 から 8‰ であることから生活排水が多く流入していることがわかる。また、窒素同位体が 2 月 7 月ともに増加せず、硝酸イオン濃度が変化しないこと、アンモニアイオン濃度が減少しないことから、水深が深い地点では酸素が供給されず、硝化、光合成などの反応が起こらないと考えられる。また、本流の地点でも同様に、窒素同位対比が変化せず、硝酸イオン濃度が上流と比較すると下流の方が高いことから水深が深い地点では、硝化、光合成などの反応が起こらず、硝酸イオン濃度が減少しないと推察された。一方、状態 B の区間ではアンモニアは 2 月、7 月ともに流下につれて減少し、7 月は低い濃度である。硝酸イオン濃度は流下するにつれて 2 月は増加し、7 月は減少する。窒素同位対比は 7 月に 8‰ と大きく増加する。このことから、硝化、光合成などの反応は水深の浅い植物が存在する地点で行われていることが推察された。

9. 負荷量について

図-12 に BOD 負荷量の算定の概略図を示す。発生した負荷量は観測する地点に到達するまでに、2 つの方法で到達すると考えられる。1 つは洪水により直接到達するもの、1 つはゆっくりと流れ、分解しながら到達するものである。洪水時の影響について考察するにあたり、2003 年の河内橋の COD 自動観測データを用いて洪水時の負荷量を求めた。また、平水時における負荷量はおもに水温が増加すると負荷量が減少するという関係が見られた。このため、負荷量算定には洪水と平水時の 2 つに

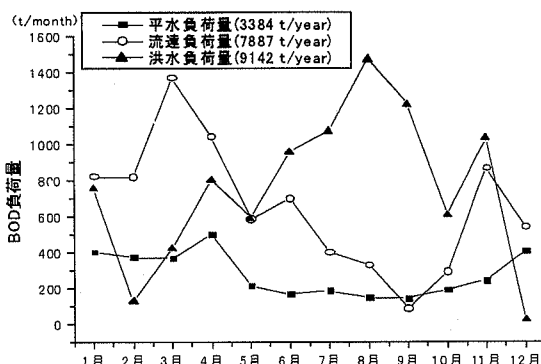


図-13 BOD 負荷量の算定結果と実測値の変化

分けて算定する必要があると考えられる。流量と COD 濃度はほぼ毎日 1 時間ごとに観測されている。ここで洪水時の負荷量算定に COD を用いたのは 1 時間ごとにデータがあるのに加え、流量依存する指標であり、洪水時では有機物は分解する前に流れるため、生物分解の影響が少ない COD の方が妥当であると考えられる。また、COD のみ観測されていない場合については、 $L(\text{COD 負荷量})=0.00569 \times Q(\text{流量})^{1.4714^{10}}$ で計算し、補間した。洪水時の負荷量を求める際に、COD 負荷量を 1 時間あたりの流量変化量(現在の流量-1 時間前の流量 以下変化量と記す)が 1m³/sec 以上であるときを洪水時の始めとして、洪水の終わりは、変化量が 1m³/sec 以下の場合、洪水始めの 1 時間前の流量を平水流量として、その平水流量との差が 5 以下になったとき、あるいは変化量 1m³/sec 以上の場合、流量が平水流量以下になったときを洪水の終わりとした。この方法で洪水時のデータを抽出し、洪水負荷量は図-12 中に A で表されるように、月毎に洪水負荷量を算出した。

m 月における平水負荷量 B は $C-A$ で求められ、市町村 j の m 月における BOD 負荷量は以下の式に示される。

$$BODj(m) = (C-A) \times \text{市町村 } j \text{ の負荷割合} \quad (2)$$

ここで、市町村の負荷割合は原単位法により、求められた各市町村の負荷量の全体に対する割合で求められる。

また、1 ヶ月での負荷量を求めるために、図-7 中に示すように、藤井、国豊橋の区間(約 7km)で、水温と BOD 負荷量(g/sec)の関係から、1km あたりの分解率を求めることができる。なお 25℃以上では生物活性が変わらないことから 25℃での値を使用する。この藤井と国豊橋の式をもとに BOD 分解率は以下の式で表される¹¹⁾。

$$BOD \text{ 分解率 (wt)/km} = \frac{BODk}{BODh} \times \frac{1}{7} \times 100 \quad (3)$$

$(0 < wt < 25)$

$$BOD \text{ 分解率 (wt)} = 9.7\%/\text{km} \quad (wt \geq 25) \quad (4)$$

観測地点での m 月における流達負荷量 $BODr(m)$ は、

BOD_{j(m)}に水質の観測地点のある藤井までの分解率を乗じて、合計したものであり、以下の式で表される。

$$BOD_r(m) = \sum_{j=1}^T \sum_{i=1}^L (BOD_j(m) \times BOD \text{ 分解率}(wt)) \quad (5)$$

(L = 負荷源からの距離: T = 市町村数)

月毎の洪水負荷量に各市町村で発生した負荷量の割合に応じ、洪水負荷量を減算した後に、水温による分解量を減算し、それぞれの流達負荷量とした。

図-13はBOD負荷量の算定結果と実測値の変化を示す。算出した流達負荷量は3500tの誤差で2倍多く算出されているが、従来の流達率を使用した方法では4倍の誤差が生じたが、誤差は少なくなり、平水負荷量に近い変化パターンを再現できた。図-13中の白抜きで示されるように、算出した流達負荷量の変化は、平水時の負荷量の変化パターンと類似した変化を示した。このことから、有機物の負荷量は発生負荷の半分以上が洪水により流出しており、夏に有機物の活性が高く、有機物分解により負荷が減少することがわかった。

10. まとめ

大和川における長期データを用いた広範囲の流域についての水質についての研究を行った。大和川流域の代表地点である藤井のBOD、アンモニア態窒素濃度の時系列変化は、2月をピークに冬に濃度が増加し、他の時期は低下する傾向が流域全体にみられた。濃度と流量、水温との関係により、BOD濃度は水温変化に依存し、塩素イオン濃度は流量に依存することがわかった。また、硝酸態窒素濃度は流量、水温ともに依存しないことが分かった。河川水の水質濃度変化に影響するものとして、流量(雨水による流量増加と希釈効果)、水温(生物による活性)が考えられる。平面分布により上流から下流の変化を見ると、有機物の分解と同様に、河川内で硝酸イオン濃度に影響を与える現象として、光合成が考えられた。そこで、pHと水温、DO(溶存酸素濃度)の關係に着目した。光合成が起こると、硝酸が消費されpHは上昇し、酸素が発生するので、DOは大きくなる。大和川の河川水は25℃以上で、DOは飽和濃度よりも高く、pH8以上を示した。このことから、夏に硝酸イオンは光合成により減少することがわかる。これらの結果から、夏には温度が高く生物活性が高いため、有機物分解、硝化が速く反応し、BOD、アンモニア濃度は低くなる。また、硝酸イオンは光合成により消費され、河川水中の濃度は減少する。しかし、冬には有機物分解、硝化が遅く、光合成反応あまりし活発に起こらないため、河川水中でのBOD、アンモニア、硝酸イオン濃度が低くならないと考えられた。有機物分解、硝化、光合成反応がどこで起こっているか特定する

ため、窒素同位体を用いた結果、2面張りには植物が生育しており窒素同位対比は高くなった。さらにそのとき、硝酸、アンモニアが減少しており、反応が起こっていることが示された。また、負荷発生源の特定と負荷量の観点から流域での反応を考察するため、原単位法を用いた負荷量算定に新たに水温、洪水の影響を考慮した方法で解析を行った。その結果、負荷量の半分以上は洪水により流出しており、平水時には夏に有機物が分解することで、負荷が減少していることがわかった。

したがって、有機物濃度が高い排水が流入しても、夏には深刻な問題とならないが、冬には河川の自浄能力が低く、水質悪化を引き起こす。このため、冬には河川が汚染されないような十分な水質を満たした上で、河川に排水しなければ、水質が改善されないと考えられる。また、河床が砂であれば植物が生育することができ、有機物を自然に減らすことができると考えられ、3面張りではコンクリートにより水が浸透しないため、水深が深く、分解が起こりにくいため、2面張りにすることで植物が生育できる環境が整い、水質が改善されると推測される。

参考文献

- 1) 大和川清流ルネッサンス 21 協議会: 水環境改善緊急行動計画 大和川清流ルネッサンス 21.
- 2) 井伊博行・平田健正・長谷部正彦・江種伸之・坂本康・桑川高德・西山幸治・酒井信行・堀井壯夫: 環境同位体および化学組成から見た石川流域の河川水と地下水の起源について、水工学論文集第43巻, pp. 205-210, 1999.
- 3) 窪原拓馬・井伊博行・平田健正・江種伸之・石塚正秀・伊勢達男・宮川勇二: 大和川における河川水の水質特性について、水工学論文集45巻, pp. 985-990, 2001.
- 4) 井伊博行・谷口正伸・平田健正・江種伸之・石塚正秀・窪原拓馬・伊勢達男・宮川勇二: 大和川のBOD、アンモニア態窒素、陰イオン界面活性剤濃度の季節変動とその原因について、水工学論文集46巻, pp. 235-240, 2002.
- 5) 大和川工事事務所: <http://www.yamato.moc.go.jp/>
- 6) 水質水文データベース: <http://www1.river.go.jp/>
- 7) 有田正光・池田裕一・中井正則・道奥康治・村上和男: 水圏の環境, 東京電機大学出版局, p41-42, 1998
- 8) 宗宮功・津野洋: 水環境基礎科学, コロナ社 p106-109, 1998.
- 9) 武田育郎: 水質と水質環境の基礎, オーム社出版局, p56-57, 2001.
- 10) 高野芳隆・井伊博行・平田健正・石塚正秀・元永秀: 大和川での1時間毎の自動観測測定から導き出されたCODの流量依存性について、水工学論文集49巻, pp. 1513-1518, 2005.
- 11) 谷口正伸・井伊博行・平田健正・石塚正秀: 大和川における水温を考慮したBOD負荷量の推定, 水工学論文集49巻, pp. 1555-1560, 2005.

(2005. 4. 7 受付)