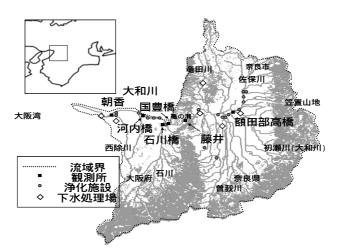
| 氏名(本籍)    | 谷 口 正 伸(和歌山県)                          |
|-----------|--|
| 学 位 の 種 類 | 博 士(工学)                                |
| 学位授与番号    | 甲第8号                                   |
| 学位授与日付    | 平成18年3月24日                             |
| 専 攻       | システム工学専攻                               |
| 学位論文題目    | 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  |
| 学位論文審査委員  | (主査)教授 井伊博行<br>(副査)教授 平田健正<br>助教授 江種伸之 |

## 論文内容の要旨

大和川における生活排水起源の有機物の分解過程について,濃度と流量,水温との関係を解析し,大和川全体での河川内で起こっている現象を解明した.さらに,窒素起源の同定,分解課程のトレーサとして,窒素同位体を用いて解析を行った.また,原単位法を用いた負荷量解析を行い有機物由来の窒素起源を特定した.

研究対象地として急激な都市化に伴い,水質汚濁で問題となっている大和川流域を選んだ.大和川流域で窒素を含む汚染物質の動向を解明した.大和川は下水道普及率が低く、全国1級河川でBOD75%においてワースト1位の水質である.流域面積が広く1070km²あり,流域人口は約200万人と流域面積の割には人口が多い河川である.河川の上流部には奈良市,生駒市,天理市,橿原市などの大きな都市が存在し,上流部で都市排水が流入している.王寺で奈良盆地のすべての支川が合流し,渓流である亀の瀬を流れ,大阪湾に流れる.

水質特性を把握するため,国土交通省の1995年から1999年までのデータを用い,流量,水温との関係について解析を行った.BODは有機物濃度の指標で,生活・農業・工業排水からの汚濁水には,有機物が多く含まれており,有機物



大和川流域の概略

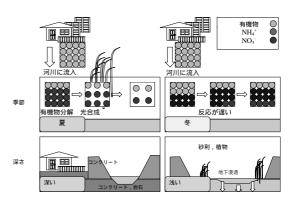
濃度から汚染の程度が測定され,そのため,河川水の水質評価として,BODが用いられている.有機物は河川内で,アンモニウム態窒素,硝酸態窒素などに変化するので,有機物による汚染を調べるためには,BODと共にアンモニウム態窒素,硝酸態窒素や洗剤に含まれる陰イオン界面活性剤,塩素イオンも生活排水の指標として重要である.大和川流域の代表的な4地点のBOD,アンモニウム態窒素濃度,陰イオン界面活性剤濃度の時系列変化は,2月をピークに冬に濃度が増加し,他の時期は低下する傾向が一様にみられた.しかし,塩素イオンや硝酸態窒素濃度にはそのような季節変化はみられず,規則的な変化が認められなかった.

河川水の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.そこで,流量と濃度の関係を見ると,塩素イオン濃度は,流量が増加すると濃度が減少する傾向が見られ,塩

素イオン濃度ほどではないが,アンモニウム態窒素,BODも流量との相関が見られた.しかし,硝酸態窒素濃度には流量との相関は見られなかった.一方,濃度と水温との関係では,

BOD, アンモニウム態窒素濃度, 陰イオン界面活性剤濃度は,水温が上昇すると濃度が減少する傾向が見られた.しかし,塩素イオン濃度は水温との相関が見られず,硝酸態窒素濃度はどちらともちがう傾向が見られた.このことから,BOD,アンモニウム態窒素濃度,陰イオン界面活性剤濃度は水温に依存し,塩素イオン濃度は流量に依存すると考えられる.硝酸態窒素濃度は流量には依存せず,水温が高い場合濃度は増加しない傾向が見られた.

この水温流量依存性に対し、流域で化学的にどのような反応により窒素が変化しているかについて解析を行った。また流域全体での流下方向の有機物由来の窒素について考察した。それ



大和川で起こっている現象のまとめ

ぞれの物質についての特徴を考慮に入れると,塩素イオンは分解や化学反応などにより変化しにくいため,雨水のよる流量増加による希釈が濃度を変化させていると考えられる.このため,塩素イオンは水温に依存せず,流量に依存すると考えられる.一方,有機物は生物により分解される.有機物が分解した場合,アンモニアイオンが生成し,その後亜硝化を経て硝化し,硝酸イオンに変化する.硝酸イオンは光合成または還元状態の場合には窒化により減少する.このように,有機物の分解や合成では生物が関与し,生物活動は温度に依存するので,これらの有機物と関連のある物質濃度も水温に依存する.そのため,BOD,アンモニウム態窒素濃度,陰イオン界面活性剤濃度は,水温に依存したと考えられる.そこで,この反応が起こっているかどうか確かめるために,pHと水温,DO(溶存酸素濃度)の関係に着目した.有機物が亜硝酸イオン,硝酸イオンに変化する場合,pHは最終的に小さくなり,酸素が消費される.この反応がおこれば,DOは小さくなる.

しかし,光合成が起こると,硝酸が消費されpHは大きくなり,酸素が発生するので,DOは大きくなる.

106  $CO_2$  +  $16NO_3^-$  +  $16H^+$  + $H_3PO_4$  + $122H_2O$  =  $(CH_2O)_{106}(NH_3)_{16}H_3PO_4$  +  $138O_2$  (光合成)

大和川の河川水は、25 以上で、D0 は飽和濃度よりも高く、pH は 8 以上であった.一方、25 より低い時には、D0 は飽和濃度よりも低く、pH は 8 以下であった.このことから、温度の高い夏場は、光合成などの生物活動によって、硝酸イオンは減少する.光合成によって合成された有機物は、植物体(水生植物)として蓄えられ、BOD としては検出されない.有機物は分解されるので、最終的に有機物量は減少する.したがって、有機物から分解物であるアンモニウム態窒素濃度も低くなる.また、陰イオン界面活性剤も有機物であるので分解される.一方、温度の低い冬には光合成はおこらないので、BOD、アンモニウム態窒素、陰イオン界面活性剤濃度は分解されず、高い値になる.2 月の BOD、アンモニウム態窒素濃度は最高濃度に達しているので、2 月の水温と各濃度との関係を比較した.水温は、1989 年以前は5 以下の年が多く、その時の BOD、アンモニウム態窒素濃度は高い.1989 年から 1994 年までの水温は高く、このときの BOD、アンモニウム態窒素濃度は減少傾向にあった.このことからも、有機物の指標である BOD、有機物の分解物であるアンモニウム態窒素濃度は、水温依存性があり、生物活動が関与していることがわかった.

大和川全域での濃度の分布を把握するために,2000年1月と10月の67地点を比較すると,10月のBOD,アンモニウム態窒素濃度は,奈良市の南部や大和川最下流で高く,大和川本流では低い.一方,1月には全域で高い傾向が見られた.そこで,土地利用と比較したところ,アンモニウム態窒素濃度が高い地域には都市(松原市,大和郡山市)が存在し,生活排水の流入源がある場所であった.流下方向の傾向として,夏は低くなる傾向にあり,冬はその高濃度が維持されていた.これは,夏場に有機物が分解されることで説明された.

窒素汚染源の特定と流下過程での分解,合成を解明するために,トレーサとして窒素同位体比を用いて解析した.また原単位法を用いた負荷量解析もあわせて行い窒素汚染源の特定を違った視点から解析した.現在,生活排水,農地排

水,工業排水などたくさんの汚染源が存在し,窒素汚染源を特定できないのが現状である.微生物による分解や光合成 が起こると,窒素同位体比は変化し,起源により窒素同位体比が変化することから,窒素の起源や反応が起こっている ことを特定できる. 負荷量解析をする際,原単位を工業,自然,生活系にわけて算定する.工業の原単位は細分類の 100 万円あたりの発生負荷量から求められ,中分類の産業別に求められる.自然系は作物ごとに求め,平均したものを 使う . 生活系は処理排水別に下水道 , 合併浄化槽 , 単独浄化槽でそれぞれ別に求める . このため大和川の隣接した流域 の紀ノ川流域と大和川流域で比較し,負荷量解析結果の精度を確認した.紀ノ川では有機物の負荷源として生活系,窒 素の負荷源として果樹園、リンの負荷源として産業系特に繊維業から多く負荷された結果となった、大和川でも同様に 負荷量解析をした結果, 有機物, 窒素の両方で生活系, 産業系の割合が高く算出された.この結果は紀ノ川, 大和川流 域での特徴を反映していることが確認できた.ここで大和川では有機物である平水時のBOD負荷量が季節により変化し ていることから,年間の総負荷量から月ごとの負荷量を算出することを試みた.従来の負荷量を算定する際,分解や洪 水などの影響を流量のみに依存する係数、流達率を乗じることにより、流域の負荷量を算定する、しかし、流域での起 こる現象を考察する場合,新たな指標が必要である.そこで新しい手法を提案する.大和川ではBOD負荷量にも水温依 存性が認められたことから、水温をパラメータにした負荷量算定方法を提案した.この結果、ある程度の精度で流域で の実測した負荷量の変化パターンと一致した.河川内での窒素汚染源の分解を特定するため,大和川流域で生活排水が 直接流入し、3 面張りで地下に水が浸透せず、植物が生育していない地点と十分に河川敷があり植物が生育している地 点で窒素と硝酸態窒素同位体の流下方向の変化を見た.その結果,3面張りの地点で硝酸態窒素濃度が低く,さらに窒 素同位体も変化しないことから、3面張りの地点では窒素の分解反応は起こってないことが証明できた.また、河川敷 があり植物が生育している地点では硝酸熊窒素濃度が低くなり、窒素同位体が大きく増加することから、河川敷があり 植物が生育している地点で窒素の分解反応が起こっていることがわかった.

## 論文審査結果の要旨

本論文の大きな特徴は、以下に示すとおりである。

- 1) 大和川の河川水質が1級河川でワースト1になる原因は、国土交通省が提唱していた冬季に河川流量が減少するためではなく、河川の浄化機能が冬季に落ちることが原因であることを明らかにした。
- 2) 窒素同位体比を使って、河川内での有機物の分解、窒素の吸収が起こっていることを明らかにした。
- 3) 大和川が本来持っている河川浄化機能(有機物の分解、光合成による硝酸イオンの吸収)は夏季に十分に働き、水質が改善されていることを明らかにした。
- 4) 河川内での有機物分解項をいれた負荷量解析法を提案し、季節変化に伴う負荷量の変化を表現できるように改善させた。

以上の研究に関しての新規制、有効性、独創性を鑑みて、博士学位の授与に値する論文と判断する

## 最終試験結果の要旨

2006 年 2 月 14 日 (火), 全審査員出席のもとに学位申請者に対して, 論文内容および論文内容に関しての事項について試問を行い, 最終審査に合格に値すると判断した.