

氏名	やま だ かず ひろ 山 田 一 裕
授与学位	博士（工学）
学位授与年月日	平成10年2月12日
学位授与の根拠法規	学位規則第5条第2項
最終学歴	平成元年3月 東京理科大学大学院工学研究科工業化学専攻修士課程 修了
学位論文題目	生活排水による汚濁負荷の評価と河川生態系への影響に 関する研究
論文審査委員	主査 東北大学教授 須藤 隆一 東北大学教授 野池 達也 東北大学教授 大村 達夫

## 論文内容要旨

近年、人間の健康に危害を与えるような重金属や有害化学物質による被害はほぼ回避されたものの、生活環境の保全に係わる湖沼や河川、海域の有機汚濁の環境基準の達成率は依然横ばいのままであり、汚濁の改善は進んでいない。その大きな原因として中小都市における生活雑排水の未処理放流が考えられる。生活排水の対策は、下水道をはじめ合併処理浄化槽、農村集落排水処理施設などで整備をされているが、中小都市では大規模な排水処理施設による生活排水対策は時間的・財政的に望めないため、小規模分散型の排水対策とならざるを得ない。しかも小規模分散型の排水対策を図った場合、その処理水は身近な水域である小河川や水路、支川に放流されるので、そのような水域への生活排水による影響や排水対策による改善効果を監視しておく必要がある。しかしながら従来はBOD・SSによる水質汚濁について管理されてきた。そのため生活排水に同様に含まれている、河川水中の溶存酸素を直接消費する窒素化合物や生物処理に障害を与えると言われている界面活性剤について家庭からの排出状況と河川生態系への影響について早急な知見の集積と対策を講じる必要がある。

窒素化合物が未処理のまま河川に放流されると、本来有機物による酸素消費（C-BOD）の他に、窒素由来の酸素消費（N-BOD）が加わる。排水の処理水は地域の重要な水資源となり、身近な河川の水質・水量を維持することで流域の広域的な水循環を担う。しかし高度処理に対応していない排水処理施設が普及すると、高濃度の窒素化合物を含む処理水が身近な河川に積極的に還元されるため、河川水中での過剰な酸素消費が懸念される。しかし、河川における硝化作用や要因についての検討は十分されておらず、さらに窒素化合物については水生生物にとって潜在的な毒性も懸念されている。

つぎに、一般家庭からは有機物や窒素・リンの他、生物処理に障害を与える合成洗剤（界面活性剤）が排出されている。流入水質・水量が安定している大規模下水処理場においては放流水中の界面活性剤の除去率

は高く、処理は安定している。一方、下水道整備が進みにくい中小都市において普及が図られている小型合併処理浄化槽など小規模な処理施設については、炊事や洗濯など生活行動による水質・水量変動が処理水質に影響を与えることが報告されている。しかも家庭用洗剤の主要成分として消費されている界面活性剤の淡水産魚類や無脊椎動物への半数致死濃度（LC<sub>50</sub>）が1mg/l以下という小さい値で報告されていることを考えると、処理水中の界面活性剤濃度をより低減できる安定した装置設計が必要となる。しかし、小規模排水を対象として界面活性剤の挙動を考慮に入れた水質特性の把握、および処理性能におよぼす水質変動の影響を検討した研究は少ない。

すなわち、生活排水由来の汚濁物質の負荷特性を把握しながら、その処理機能に与える影響と、河川生態系への影響を十分把握しておかなければ水質汚濁の改善や処理水の多目的利用にはつながらない。しかし、現行の環境基準には生態系保全のための監視項目は含まれておらず、水質のみで評価されていたが、これからは水辺環境、底質の性状、水圏生態系を構成する動植物、親水機能なども合わせて考える必要性が生じている。その一つの方策として水環境全体を評価する場合、モニタリングに「指標生物および生物検定（バイオアッセイ）」を加えることである。指標生物については、さまざまな環境条件によって評価方法が違ってくので、利水目的・親水目的などにより対象水域の保全レベルを決定し、それに見合う環境に生存できる生物種を選定し、河川生態系の保全を図る必要がある。生活排水には、本来有害物質は含まれていないが、水環境の保全に関しては汚濁物質の水質基準だけでなく、中小都市の生活者にとって身近な水域である小河川や水路等における、生活系汚濁物質についての生態影響評価も合わせて求められる。

そこで本研究では、まず生活排水に含まれている汚濁物質のうち、富栄養化原因物質の窒素化合物と合成化学物質の界面活性剤の負荷量および負荷特性を把握する。界面活性剤については排水処理施設内での挙動と負荷特性による処理機能への影響を明らかにし、窒素化合物については河川水のN-BOD検出の環境要因を明らかにした上で、河川水中の酸素消費特性に係わる硝化細菌と付着藻類の関係について検討する。さらに、窒素化合物と界面活性剤による魚毒性について検討することで、小規模排水処理施設での処理機能の安定化と高度処理の重要性を提言することを目的とした。

本論文は以下に示す通り7章で構成されている。

第1章は総論であり、本研究の背景および目的とその意義について述べた。

第2章では、まず水圏生態影響評価の考え方を示すとともに、童謡にみる日本の原風景と一般市民の評価から河川生態系の指標生物を設定した。さらに、生活排水の汚濁負荷特性、界面活性剤および窒素化合物の処理状況や環境水中での挙動についての既往の研究をまとめ、窒素化合物による河川水中の酸素消費特性や窒素化合物、界面活性剤による魚類への毒性など河川生態系への影響に関して得られた知見を整理し、本論文の課題の抽出を行なった。

界面活性剤については、小規模排水の汚濁負荷特性や小規模排水処理施設での挙動についての知見が少ないこと、窒素化合物については、河川水中での酸素消費の環境要因に関して系統だった研究がなされていないこと、さらに両者の魚に対する毒性は呼吸障害に働くもののそれらの複合影響についての知見がないことを踏まえて、本論文の検討課題とした。

第3章では、排出規模の異なる生活排水を対象に、界面活性剤をはじめ各種汚濁物質の負荷量を求め、生活様式の違いが排水の水量・水質に与える影響を示すとともに、生活排水の水質特性を統計学的手法を用い

て明らかにした。

戸建住宅排水、戸建住宅団地排水、下水処理場流入水から排水量、BOD、SS、陰イオン界面活性剤、非イオン界面活性剤、せっけんのそれぞれの汚濁負荷量を算出できた。得られた汚濁負荷量はほぼ既往の研究の範囲内の値であることから、今後の小規模排水対策にも従来の知見を十分活用できることがわかった。一方、負荷特性については、ピーク係数等からBOD、陰イオン界面活性剤とも休日よりも平日の比の方が大きく、午前中と夕方以降に負荷が集中した。さらに主成分分析によって生活排水の特性が、第1主成分は生活排水中の有機汚濁負荷、第2主成分は家庭内における家事活動、とくに洗濯活動に由来する洗剤負荷であることが明らかとなった。

第4章では、小型合併処理浄化槽において界面活性剤の除去に与える排水特性の影響、下水処理場においては各処理工程での各種界面活性剤の挙動を明らかにした。さらに他の界面活性剤と挙動の異なる金属せっけんの生分解性について検討した。

小型合併処理浄化槽において、総排水量に対する3時間最大排水量の割合と処理水中の平均BOD、陰イオン界面活性剤濃度との関係から、その割合が大きくなるに従い、処理水中の平均濃度が上昇する傾向がみられ、流量変動が処理水質に影響を与えることが示された。つぎに、下水処理場における界面活性剤の挙動は界面活性剤の種類によって異なり、せっけんは主に懸濁態の金属せっけんとなって沈殿処理で除去されているのに対して、陰イオン界面活性剤や非イオン界面活性剤は生物処理で除去されていた。小型合併処理浄化槽に比べて下水処理場の方が界面活性剤を安定して除去できていた。また金属せっけんの生分解性をDO消費速度で検討したところ、攪拌条件では溶存態せっけんと同様に分解速度が速く、形態の違いには差が認められなかった。

第5章では、河川水のBOD測定における窒素化合物由来の酸素消費に着目し、C/N比と水温を考慮した河床礫生物膜の馴化条件からN-BOD検出の機構を明らかにするとともに、河床礫生物膜中での硝化細菌と付着藻類との窒素化合物をめぐる共存関係を明らかにした。

N-BOD値の検出においてはふらん瓶中の硝化細菌数が重要であることがわかった。つぎに下水2次処理水が河川に流入することで、BOD測定中の硝化寄与率が高くなり、N-BOD値は水温およびNH<sub>4</sub>-N濃度、BOD濃度と正の相関が高かった。以上の知見をもとに、河床礫生物膜を用いた室内実験からC-BOD/NH<sub>4</sub>-N比が低いほど硝化反応が検出されるまでの遅滞時間が短く、水温が高いほど硝化反応速度が速いことが明らかとなり、室内実験で得られた硝化反応速度定数等を用いてN-BOD値の予測が可能となった。また硝化細菌にとって付着藻類は窒素化合物摂取の上で競争関係にあるが、付着藻類と硝化細菌間における窒素化合物の移動量を算定した結果、硝化細菌に対する付着藻類由来の窒素化合物の占める割合が大きく、硝化細菌の活性を支える付着藻類の役割が大きかった。

第6章では、界面活性剤とアンモニア性窒素によるヒメダカへの急性毒性試験から、魚類を用いた生活排水由来の汚濁物質による生態影響を示したうえで、魚類を含む河川生態系保全のための管理水質目標を検討した。

ヒメダカを用いた急性毒性試験(LC<sub>50</sub>)の結果、界面活性剤のうちC<sub>12</sub>-LAS > C<sub>15</sub>-せっけん > C<sub>12</sub>-ASの順に毒性が高かった。またNH<sub>4</sub>-N濃度を一定にして界面活性剤濃度を段階的に添加して界面活性剤とアンモニアとの複合急性毒性を検討したところ、せっけんにおいてNH<sub>4</sub>-Nとの複合影響が認められた。また、公共用

水域の河川水質データおよび界面活性剤と窒素化合物の環境水中への排出状況から、両者の環境濃度は水生生物にとって明らかに悪影響をおよぼす範囲にあることが示された。

第7章は総括および結論であり、調査や実験によって得られた知見を総括として示した上で、本研究分野の課題を明らかにすると共に今後の展望を述べた。

このように現場調査ならびに室内実験より得られた本論文の成果は、健全な河川生態系を維持するためには、家庭からの汚濁負荷の中でも窒素化合物と界面活性剤の削減と小規模排水対策が重要であるとともに、それらが安定して除去できる小規模排水処理施設の普及が重要であることを示している。一方、今後の課題として、まず日本の原風景にみられた動植物の復活をめざした、身近な生活空間としての河川環境の再整備を行なうためには、小規模排水処理施設での窒素化合物の除去をはじめとした高度処理の整備と処理機能の安定化に関する研究が求められる。つぎに、家庭で消費される化学物質は多種多様であり環境条件によって影響が異なる。そのため地域特性や化学物質に対する感受性を考慮した指標生物の選定と、バイオアッセイおよびバイオモニタリング手法の確立、各種毒性物質の複合影響を考慮した評価手法の開発が必要である。最後に、身近な河川生態系の復元をめざして水圏生態影響を考慮した水質管理と水域の整備を進める必要がある。親水護岸や多自然型河川の整備を進めるなかで、水質問題だけでなく近年問題となっているウイルス、クリプトスポリジウムなど病原性微生物に関する衛生学的な評価を求めることが重要である。

## 審査結果の要旨

河川の汚濁は、生活排水の未処理放流によって引き起こされる場合が多い。このため下水道の建設が遅れている地域の生活排水対策は緊急を要する課題であるが、生活排水中に多量に含まれる窒素や界面活性剤の処理機能におよぼす影響についての知見が少ない。また生活排水の処理水は身近な水域である小河川や水路、支川に放流されるので、生活排水由来の汚濁物質による河川生態系への影響を評価しておく必要がある。

本論文は、これらの課題に対応するため、まず河川生態影響評価の考え方を示したうえで、生活排水に含まれている窒素と界面活性剤の負荷特性を把握し、排水処理機能への影響を検討するとともに、河川水中の酸素消費に係わる窒素の影響とそれをめぐる河床礫生物間の関係を明らかにし、さらに窒素と界面活性剤による魚類への複合影響から河川生態系への影響を評価した成果を取りまとめたもので、全編7章より構成される。

第1章は総論であり、本研究の背景と目的を示している。

第2章では、河川生態影響評価の考え方を示すとともに、界面活性剤および窒素の河川生態系への影響に関する研究の現況、および今後取り組むべき研究課題について示している。

第3章では、排出規模の異なる生活排水を対象に、生活様式の違いが排水の水量・水質に与える影響を示すとともに、生活排水の排水特性を統計学的手法を用いて明らかにしている。これは有用な成果である。

第4章では、処理規模の異なる排水処理施設において界面活性剤の除去に与える排水特性の影響、および各処理工程での界面活性剤の挙動を明らかにし、排水の負荷変動による小規模排水処理施設の処理機能の不安定性を示した。これも有用な成果である。

第5章では、河川水中における窒素由来の酸素消費に着目し、炭素・窒素比と水温を考慮した河床礫生物膜の馴化条件から窒素に由来するBOD (N-BOD) 検出の機構を明らかにするとともに、河床礫生物膜中での硝化細菌と付着藻類との窒素をめぐる相互関係を明らかにした。これは重要な成果である。

第6章では、ヒメダカに対する界面活性剤とアンモニアとの複合急性毒性を調べ、生活排水由来の汚濁物質による河川生態系への影響を示したうえで、小河川・水路等の河川生態系の健全さを維持するためには小規模排水対策が重要であることを強調した。これは特に重要な成果である。

第7章は、総括と結論である。

以上要するに本論文は、生活排水の汚濁負荷の処理への影響を明らかにし、界面活性剤および窒素による河川生態系への影響を検討した成果を示したもので、環境工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。