

◆特集：下水道による水・物質の制御◆

下水道整備途上の流域での汚濁負荷流出の変遷に関する研究

壬生勝泰* 津森ジュン** 田中宏明***

1. はじめに

我が国の下水道普及率（総人口に占める下水道利用人口の割合）は65.2%（平成14年度末時点）であるが、大都市と中小市町村における下水道の普及格差は非常に大きく、大都市（100万人以上）の下水道普及率は98.2%であるのに対し、人口5万人未満の市町村の普及率は31.8%である。下水道整備地区以外の地区では、集落排水施設やコミュニティプラントが整備されている場合があるが、下水道整備地区を含め、多くの単独処理浄化槽や合併処理浄化槽が利用されている。合併処理浄化槽はし尿と台所や風呂等の雑排水を微生物を用いて処理するが、単独処理浄化槽はし尿のみを微生物処理するものの、雑排水については未処理のまま家屋近くの側溝等を通じて河川や湖沼・海域に排出され、水環境悪化の大きな原因となっている。平成13年4月の浄化槽法の一部改正により下水道整備予定区域を除いて、新設浄化槽には合併処理の設置が義務付けられたが、依然として多数の単独処理浄化槽が使用されているのが現状である。

雑排水等に含まれる有機物は環境水中に排出されると、それ自体が腐敗の原因となるが、無機物であっても、窒素やリン（栄養塩）は湖沼や湾等の閉鎖性水域で植物プランクトンに摂取され、富栄養化の原因となる場合がある。また、最近では有機物や栄養塩である窒素、リン以外に、疫学的指標である糞便性大腸菌群数や水生生物への影響が懸念されている内分泌攪乱化学物質（いわゆる環境ホルモン）が問題となっている。

糞便性大腸菌群数は、人畜の排泄物由来の大腸菌による水の汚染状況を知るための指標であり、透視度と併せて水浴場の判定基準に用いられている。生活環境の保全に関する環境基準の項目として、現在、大腸菌群数が用いられているが、通常

の大腸菌群数には、大腸菌以外にも様々な土壌細菌が含まれ、人為汚染が無い水域においても高い数値の大腸菌群が検出されることがあるため、人畜由来の糞便を検出する指標として糞便性大腸菌群数が注目されている。また、水環境中の環境ホルモンについては、その内分泌攪乱作用の強さから人畜由来のエストロゲンが注目されている。代表的なエストロゲンとしては、17 β -エストラジオール（E2）、エストロン（E1）、エストリオール（E3）等がある。また、環境水中や下水中におけるその存在濃度と内分泌攪乱作用の強さから、エストロゲンに次いで水生生物に与える影響が大きいと考えられているのが、界面活性剤であるノニルフェノールエトキシレート（NPEO）の合成原料であるとともに、NPEOが環境中で分解・還元されることにより生成されるノニルフェノール（NP）である。国土交通省と環境省が全国的に行った環境水中の内分泌攪乱化学物質の実態調査においても、環境水において、これらの物質をはじめ、他にも多くの環境ホルモンの存在が報告されている。

本報告では、下水道整備途上の流域を持つ河川を対象として、SS、BODなどの一般項目のほか、糞便性大腸菌群数、環境ホルモンなどの汚濁負荷流出の実態調査結果を報告する。なお、晴天時の負荷流出は降雨時と異なることが従来から指摘されており、一般項目については降雨時を含めた実態調査の結果を併せて報告する。

2. 調査方法

2.1 対象河川と流域概要

対象河川は、手賀沼（千葉県）の主要な流入河川であり、過去に土木研究所で調査を行った事例^{1) 2)}がある大津川である。

手賀沼（千葉県）は水質汚濁が著しく進んでいる湖沼として知られている。1960年代までは手賀沼の水質の悪化は見られないが、1970年代に入ると流域の急激な都市化の進展により、富栄養化が

Chronological change in pollutant runoff from a watershed under development of sewerage system

著しく進行し、最も水質が悪化した1979年にはCOD(年平均値)で28mg/Lを記録した。最近では、その後の下水道整備と国土交通省が実施した北千葉導水事業による利根川からの浄化用水の導水効果等により手賀沼の水質は大きく改善し、平成13年度には、それまで27年間湖沼ワーストンであった汚名を返上した。平成13年度の手賀沼中央におけるCOD(年平均値)は11mg/Lであり、1970年頃の水質状況にまで回復した(図-1)。

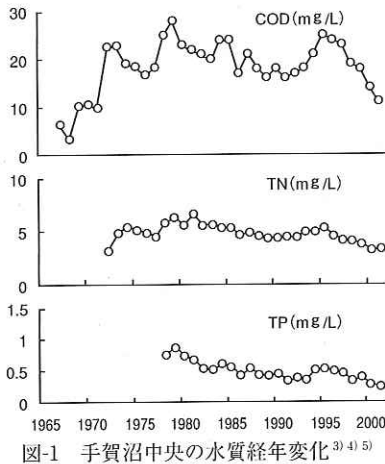


図-1 手賀沼中央の水質経年変化^{3) 4) 5)}

大津川の流域面積は、手賀沼(手賀沼、下手賀沼を含む。)流域の約23%であり、約20%を占める大堀川流域と併せて手賀沼流域全体の半分弱を占めるが、流域人口については2000年度末現在で手賀沼流域全体のそれぞれ約4割、約3割と合計で7割を占め⁶⁾、流域全体において大きな汚濁負荷源となっている。

大津川流域の汚水処理形態別人口の変化を図-2⁷⁾に示す。大津川流域では下水道整備が大幅に進んできているものの、排出汚濁負荷量が多い単独処理浄化槽の利用者の割合が依然として大き

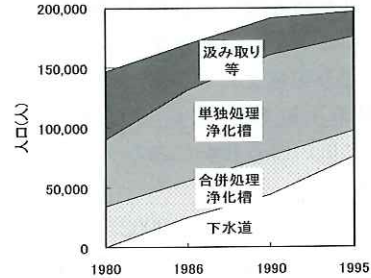


図-2 汚水処理形態別人口の経年変化⁷⁾(大津川流域)

な比率を占めている状況にある。なお、大津川流域における下水道整備は手賀沼流域下水道により行われており、下水処理場に収集された汚水は高度処理した後、利根川に放流されている。

2.2 調査地点

調査地点を図-3に示す。なお、大津川中の橋付近には千葉県による河川直接浄化施設が設置されており、その取水用ラバー堰により生じる背水の影響が及ばないように調査地点を設定した。

各調査地点の上流域について、概要を表-1⁷⁾に示す。流域面積は大津川本川流域が一番大きく、



図-3 対象河川と調査地点

表-1 各調査地点の上流域のフレーム⁷⁾

	流域面積 (ha)	流域人口 (人)	処理形態別人口割合 (%)				処理形態別人口密度 (人/ha)				計
			下水道	合併処理浄化槽	単独処理浄化槽	汲み取り等	下水道	合併処理浄化槽	単独処理浄化槽	汲み取り等	
大津川本川	2,400	109,537	20.1	12.5	50.8	16.6	9.2	5.7	23.2	7.6	45.7
各戸ヶ谷排水路	437	36,493	75.1	1.6	19.4	3.9	62.7	1.4	16.2	3.3	83.5
増尾排水路	424	25,421	15.1	29.0	51.4	4.5	9.0	17.4	30.8	2.7	59.9
大津川流域全体	3,698	196,123	38.2	11.1	39.9	10.8	20.3	5.9	21.1	5.7	53.0

名戸ヶ谷排水路と増尾排水路は同程度の流域面積となっている。下水道普及率については名戸ヶ谷排水路が75%を超えているものの、他の2流域では大津川本川流域が20%、増尾排水路流域が15%と共に低い普及状況にある。

2.3 採水

晴天時の試料の採水は、2002年11月実施の調査では河川流末であるOT⑥、NT、MSの3地点で行い、2003年2月及び3月実施の調査では、これらに加えてOT①～OT⑤の5地点についても実施した。採水頻度は、流末の3地点では3時間間隔で24時間連続採水を行い、試料をそのまま分析に供した。それ以外の地点については、採水は3時間間隔で行い、一般項目についてそのまま分析に供したが、環境ホルモンについては、流量比例の1日コンポジット試料に調整したうえで分析に供した。

また、降雨時調査は2003年5月に実施した。採水は、OT⑥、NT、MSと、大津川上流地点のOT①、OT②の5地点で実施し、採水間隔は降雨初期の水質変動が比較的大きい時間帯は頻度を高くし、数分～数時間間隔で行った。

2.4 水質分析

分析項目は、一般項目(SS、BOD₅、COD_{Mn}、各態窒素、各態リン)、糞便性大腸菌群数、環境ホルモンとした。環境ホルモンとしては、エスト

ロゲン(E2、E1、E3)、NP、NPEO、及びNPEOが分解する過程での中間生成体と考えられているノニルフェノキシ酢酸(NPEC)を対象とした。

一般項目のSS、BOD₅、COD_{Mn}、大腸菌群数、糞便性大腸菌群数の分析については河川水質試験法⁸⁾によった。各態窒素及び各態リンについては、ブラン・ルーベ社製自動比色分析装置TRAACS2000により分析した。NP、NPEOの分析は「下水試験方法(追補暫定版)内分泌攪乱化学物質編及びクリプトスポリジウム編」⁹⁾に概ね準拠し、HPLCを用いて行った。また、NPEC¹⁰⁾、エストロゲン¹¹⁾の分析は、LC/MS/MSを用いて行った。

3. 調査結果

3.1 一般項目

2003年3月の晴天時調査の結果を図-4に示す。

流量の時間変動を見ると、大津川本川流末OT⑥地点では12:00に最大となり、その後18:00までは減少するが0:00にかけて徐々に増加し、もう一つのピークを形成している。この変動は家庭での水道水の使用サイクルと似ており、大津川本川の河川水の由来として生活排水の割合が大きいことを示唆している。なお、名戸ヶ谷排水路流末NT地点と増尾排水路流末MS地点においては、大津川本川ほど顕著な時間変動は見られなかった。

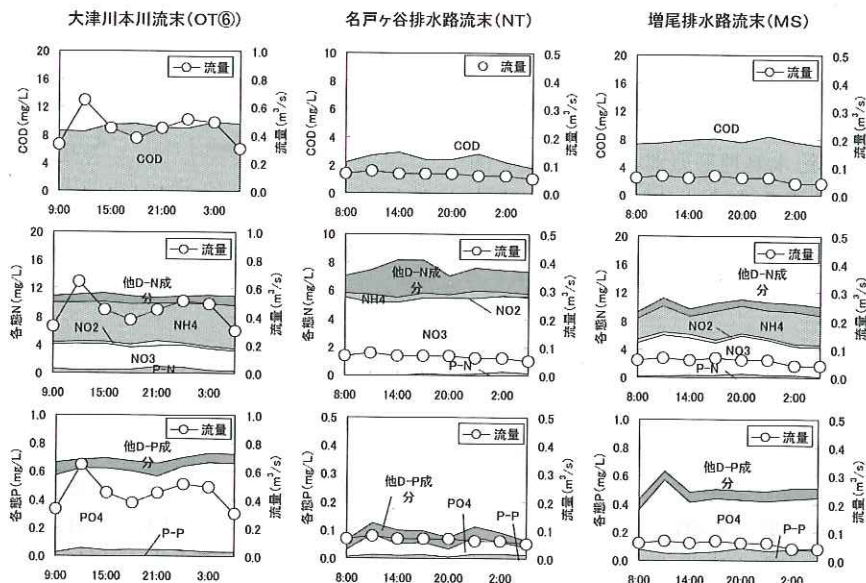


図-4 晴天時負荷量調査結果(一般項目:2003年3月調査)

水質については、OT⑥地点とMS地点では、NT地点と比較して、COD、全窒素、全リンのいずれの項目についても高い値で観測された。

今回実施した3回分の大津川流域の晴天時流出負荷量を、土木研究所で過去に行った調査結果¹²⁾と比較して示す(図-5)。ここで、今回調査における大津川流域の流出負荷は、OT⑥、NT、MSの流出負荷量の和として算定した。これを見ると、晴天時の流出負荷量は大きく減少している。水質については、有機汚濁指標であるBOD、CODについては改善しているものの、全窒素についてはその傾向は見られない。これは、流域に残る単独処理浄化槽や合併処理浄化槽は、し尿や雑排水中の窒素やリンといった栄養塩の除去効果が期待できないためと推察される。

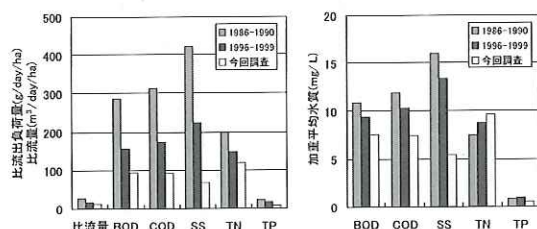


図-5 晴天時汚濁負荷の推移

また、2003年5月31日から6月2日の2日間にかけて実施した降雨時調査結果を図-6に示す。なお、総降雨量は2日間の合計で59mm、最大で15mm/hrであった。COD、全窒素、全リンのいずれの項目についても、流量の増加に従って濃度が晴天時よりも高くなった。これを負荷量ベースに換算して、晴天時と比較した結果を表-2に示す。今回の調査はひとつのケースに過ぎないが、降雨時には晴天時と比較してCODで13～37倍、

表-2 降雨時と晴天時の流出負荷量の比較

項 目		COD			TN			TP		
地 点 名		OT⑥	NT	MS	OT⑥	NT	MS	OT⑥	NT	MS
晴天時調査 (kg/日)	1回目	198	14	30	229	46	40	16.5	0.8	2.3
	2回目	200	19	34	247	38	43	13.7	0.7	2.3
	3回目	353	14	38	423	43	52	26.6	0.5	2.5
降雨時調査 (kg/降雨)		9258	1034	1105	2208	301	285	394.5	19.5	34.0

注1) 晴天時調査で1回目は2002年11月、2回目は2003年2月、3回目は3月に実施の各調査結果。

注2) 降雨時は2003年5月31日～6月2日にかけての2日分の調査結果。

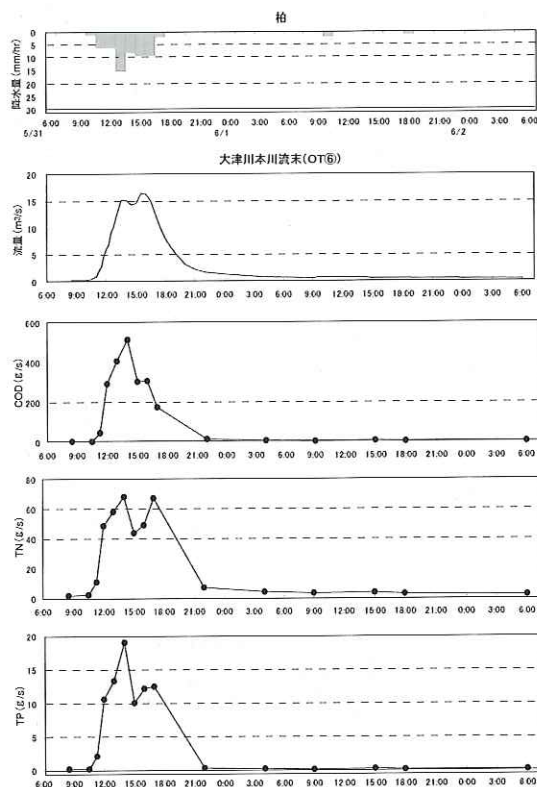


図-6 降雨時負荷量調査結果(一般項目)

全窒素で2.6～4.8倍、全リンで6.8～20倍という非常に大きな負荷の流出が観測された。なお、降雨時調査は2日間にかけて実施したため、晴天時2日分の負荷量と比較した。

3.2 糞便性大腸菌群数及び大腸菌群数

大津川本川OT⑥、名戸ヶ谷排水路流末NT、増尾排水路流末MSの各地点における糞便性大腸菌群数及び大腸菌群数の測定結果を図-7に示す。

糞便性大腸菌群数については、OT⑥地点で19～192個/mL、NT地点では62～450個/mL、MS地点では3～250個/mLであり、特にMS地点については、時間帯により二桁以上の変動が見られた。一方、大腸菌群数では、OT⑥地点で $1.3 \times 10^4 \sim 1.3 \times 10^5$ MPN/100mL、NT地点では $7.9 \times 10^4 \sim 2.3 \times 10^5$ MPN/100mL、MS地点では $2.3 \times 10^3 \sim 2.3 \times 10^5$ MPN/100mLであり、いずれの地点においても、大腸菌群数は糞便性大腸菌群数より1オーダー程度大きい値を示した。本調査における糞便性大腸菌群数、大腸菌群数の測定結果

は、他の一級河川と比較して非常に大きい。建設省関東地方建設局が2000年に実施した調査では、糞便性大腸菌群数が $3.3 \sim 7.0 \times 10^4$ 個/100mL、大腸菌群数が $1.7 \times 10^2 \sim 1.1 \times 10^5$ MPN/100mLであり、それと比較しても最も数値の高い河川に属する結果となった。

本調査における調査地点の上流域には、畜産農家は見られないため、糞便性大腸菌群数の排出源は、主として単独処理浄化槽あるいは合併処理浄化槽の放流水であると考えられる。本来、浄化槽の処理水を放流するにあたっては消毒を行う必要があるが、今回の調査における糞便性大腸菌群数の数値の高さは、家庭用の浄化槽について度々指摘されている¹³⁾ことであるが、保守点検が十分に行われていないことによる機能不全が原因であると考えられる。

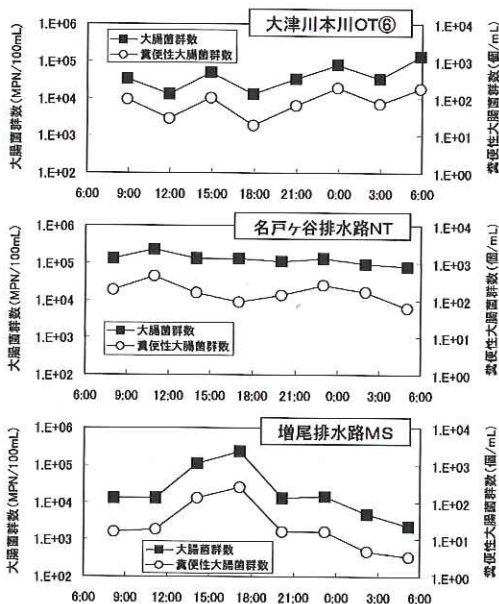


図-7 糞便性大腸菌数及び大腸菌群数の調査結果
(2003年3月晴天時調査)

3.3 環境ホルモン

大津川本川 OT⑥、名戸ヶ谷排水路流末 NT、増尾排水路流末 MS の各地点におけるエストロゲン、NP 類の測定結果を図-8 に示す。

E2 は、2002 年 11 月の調査では、OT⑥で 2 回検出された以外は検出下限値未満であったのに対し、2003 年 2 月調査では、ほとんどの地点で通日検出され、その範囲は $< 0.3 \sim 4.1$ ng/L であった。

E1 については、2002 年 11 月調査では、採水の時間帯によっては検出下限値未満の場合もあったものの、いずれの地点においても検出された。その範囲は、OT⑥が $7.5 \sim 11.8$ ng/L、NT が $< 0.2 \sim 0.8$ ng/L、MS が $< 0.2 \sim 2.9$ ng/L であった。2003 年 2 月調査における E1 は、OT⑥においては通日検出されたもののその濃度範囲は $4.5 \sim 8.3$ ng/L であり、全般的に 11 月の測定結果よりも低い値であった。NT、MS の E1 は、いずれの時間帯でも検出されなかった。

国土交通省の全国の一級河川 109 水系において実施した実態調査¹⁵⁾では、E2 が 2ng/L 以上であった調査地点は全調査地点の約 14.7% であり、OT⑥及び MS における E2 はその濃度範囲に相当し、全国的にも比較的高い濃度であった。

図-9 に示すように、NP については 2 回の調査で顕著な差異は見られないものの、OT⑥における NP の濃度範囲は $1.82 \sim 8.64$ nmol/L であり、

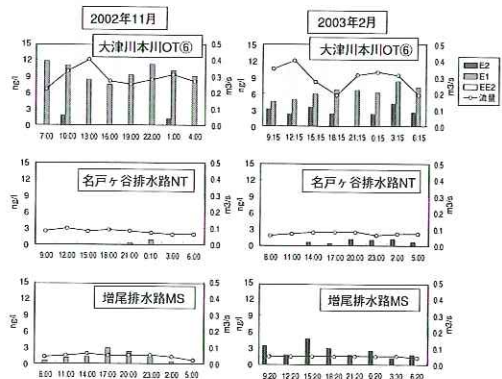


図-8 エストロゲンの経時変化
(2002 年 11 月、2003 年 2 月晴天時調査)

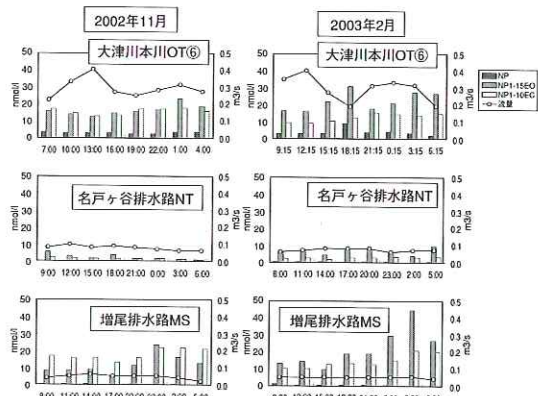


図-9 NP 類の経時変化
(2002 年 11 月、2003 年 2 月晴天時調査)

NT、MSはこれより低い値であった。NPEO、NPECについては、下水道整備率が高い名戸ヶ谷排水路 NTでは、他の2地点に比べ低い濃度であった。国土交通省の全国一級河川における実態調査¹⁴⁾ではNP濃度が $0.1 \mu\text{g/L}$ 以上の調査地点は全調査地点ののべ23.4%であり、OT⑥地点におけるNP濃度はその範囲に相当するものである(NPの分子量は220)。

4. おわりに

本研究では、下水道整備途上の流域を対象に、水質一般項目の他、糞便性大腸菌群数、環境ホルモンについて実態調査を行い、以下の結果を得た。

- 1) 晴天時の流出汚濁負荷は、下水道整備により大きく減少傾向にあることを確認した。しかし、水質では、栄養塩である全窒素は増加傾向にあり、この主な原因は流域に残る単独処理浄化槽や合併処理浄化槽等の排出源は窒素やリンといった栄養塩の除去効果が期待できないためと推察される。
- 2) COD、全窒素、全リンの降雨時の流出負荷は晴天時と比較して非常に大きく、今回観測した降雨のケースでは、CODや全リンについて1降雨で数十倍にものぼることが観測された。
- 3) 糞便性大腸菌群数及び大腸菌群数は一級河川の全国調査と比べ非常に高く、その主な排出源と考えられる単独処理浄化槽や合併処理浄化槽の消毒が十分機能していないことが推測された。また、環境ホルモンについて、人畜由来のE2は大津川本川流末及び増尾排水路流末で、また、NPについては大津川本川流末で、全国の一級河川と比較して高い数値が観測され、浄化槽放流水や生活雑排水がこれらの負荷源になっていることが示唆された。

参考文献

- 1) 村上健、渡部春樹、小森行也、閉鎖性水域における栄養塩負荷削減の効果評価に関する調査、土木研究所資料第2129号、pp.197 - 202、1984
- 2) 高島英二郎、田中宏明、中村栄一、手賀沼流入河川における汚濁負荷量の流出特性および年間負荷量の把握、水環境学会誌、Vol.18、No.4、pp.297 - 306、1995
- 3) 千葉県、手賀沼水質管理計画の基礎資料、1982
- 4) 柏市環境部環境対策課、柏市の水質保全、各年度版
- 5) 環境庁水質保全局監修、全国公共用水域水質年鑑、各年版
- 6) 千葉県、手賀沼水循環回復行動計画、2003
- 7) 千葉県東葛飾土木事務所、総合浄化対策特定河川事業検討委員会資料、1996
- 8) 建設省河川局監修、河川水質試験方法(案)1997版 試験方法編、技報堂出版、1997
- 9) 社団法人日本下水道協会、下水試験方法(追補暫定版)内分泌攪乱化学物質編及びクリプトスポリジウム編、pp.250 - 262、2002
- 10) 八十島誠、小森行也、田中宏明、下水試料中のノニルフェノキシ酢酸類の分析、第36回日本水環境学会年会講演要旨集、p.256、2002
- 11) 小森行也、八十島誠、田中宏明他、LC/MS/MSによるエストロゲンの分析、第36回日本水環境学会年会講演要旨集、p.431、2002
- 12) 田中宏明、小森行也、白崎亮、竹歳健治、流域循環系に占める下水道整備効果に関する調査、平成11年度下水道関係調査研究年次報告書集、pp.235 - 240、2000
- 13) 眞柄泰基、浄化槽研究助成に係わるアンケート結果からみた浄化槽問題の現況と課題、月刊浄化槽、No.283、pp.33 - 38、1999
- 14) 国土交通省、水環境における内分泌攪乱化学物質に関する実態調査結果、2000

壬生勝泰*



独立行政法人土木研究所
水循環研究グループ(水質)交流研究員
Katsuhiko MIBU

津森ジュン**



独立行政法人土木研究所
水循環研究グループ(水質)主任研究員
Jun TSUMORI

田中宏明***



独立行政法人土木研究所
水循環研究グループ(水質)上席研究員、工博
Hiroaki TANAKA