

令和元年6月24日現在

機関番号：16301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04998

研究課題名(和文) 集落排水汚泥と汚泥再利用過程における生活排水由来医薬品の存在実態と対策手法の解明

研究課題名(英文) Actual conditions and control measures of pharmaceuticals and personal care products in sludge of rural sewerage for agricultural land application

研究代表者

治多 伸介 (HARUTA, Shinsuke)

愛媛大学・農学研究科・教授

研究者番号：60218659

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 10,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、実稼働中の農業集落排水施設における汚泥中の医薬品濃度の実態と、その汚泥を農地還元した場合の、農作物への医薬品の移行量を低める方策を主に検討した。農地還元前の汚泥の医薬品濃度を下げするためには、集落排水施設の汚泥貯留槽での滞留時間を長くし、曝気を行い、医薬品の微生物分解を促進することが重要である。乾燥、コンポスト過程では、処理時間を長く、温度を高く保つことで分解が促進できる。また、有機物含有量が多い農地土壌ほど吸着・分解能力は高く、根菜類より葉菜類の方が、作物可食部への医薬品移行量は小さくなる。これらに留意することで、農作物への医薬品の移行量を低減することが可能と考えられる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

農業集落排水施設の汚泥については、農地への還元利用が推進されている。その安全・安心な推進のためには、汚泥中の化学物質を低濃度に保つことが重要であるものの、生活排水由来医薬品については、汚泥中の濃度実態や対策は、これまで十分には明らかとされていなかった。本研究で得られた知見を活用することにより、今後の汚泥利用を検討している現場はもちろん、既に汚泥を利用している現場においても、集落排水汚泥への安心感と信頼感を向上させることができ、今後の安定的かつ発展的な汚泥利用の推進に繋がる。

研究成果の概要(英文)：In this research, we determined the actual concentrations of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in sludge of rural sewerage and the control measures for depression of the PPCPs concentrations in the crops applied the sludge. For the depression of the PPCPs concentrations in sludge, long retention time and aeration in the sludge storage tank in rural sewerage are effective. In the drying and compost process, longer treatment time and higher treatment temperature leads to the promotion of PPCPs degradation. The farmland soil containing the high concentration of organic matters have high adsorption capacity and biodegradation ability for PPCPs. Root vegetables tend to have higher PPCPs concentration than leafy vegetables. These findings would be valuable for the control the PPCPs concentrations in the crops applied the sludge.

研究分野：地域環境工学・計画学

キーワード：農業集落排水 汚泥 医薬品 コンポスト

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 一般家庭で使われる医薬品は、人体に吸収されなかった成分が尿尿に混入し、塗布された医薬品はシャワー等で洗い流されて生活雑排水に混入する。このような医薬品は、下水処理施設の整備が遅れていたり、処理施設で十分に除去されなかった場合、水環境中に放出される。医薬品は、水への混入が  $\mu\text{g/L}$ 、 $\text{ng/L}$  といった極微量であっても、生態系に悪影響を及ぼしたり、病原菌の遺伝子を変異させて耐性菌を発生させたり、水道水に混入して人の健康に悪影響を与える可能性がある。

(2) それゆえ、生活排水由来の医薬品は、新たな環境汚染物質として注目され、その水系での汚染状況の実態や対策に関する研究が世界中で進行している。日本農村では、2010 年前後から本研究の代表者(治多)が先駆者となり「河川、地下水、農業集落排水施設、戸別合併処理浄化槽、処理水の流入する水田や溜池」における医薬品混入の実態や対策方法などを明らかとしてきた。ところが、近年、多数の医薬品が、水だけでなく、排水処理施設で生じる汚泥(処理に伴って増殖する微生物等の凝集体)に数  $\mu\text{g}$  ~ 数  $10 \text{ mg/kg}$  オーダーで移行(吸着)することが示された。また、運搬を容易にし、易分解性有機物を分解し、病原性微生物を死滅させること等で農地還元の利便性を高める「汚泥調整プロセス(乾燥、コンポスト化、メタン発酵等)」でも、微生物や熱で分解され難い医薬品が残留することも分かった。さらに、調整した汚泥の農地還元により、医薬品が作物に移行(汚染)することも示され、海外では、その汚染リスクと対策の解明が緊急課題として研究され始めている。

(3) 一方、日本では、都市の公共下水道での生汚泥とメタン発酵汚泥の医薬品濃度調査のみで、日本農村の代表的な生活排水処理施設である「農業集落排水施設」における汚泥の医薬品に関する調査・研究は全くない。集落排水施設の汚水処理方式は公共下水道と異なり、汚泥の医薬品吸着性や医薬品分解性などの特性に差がある可能性が高い。また、都市と農村の居住者年齢や生活様式の違いから流入下水に含まれる医薬品濃度も異なる可能性がある。それゆえ、集落排水施設の汚泥は、公共下水道とは別に、独自に調査・研究を進めることが重要と考えられる。

### 2. 研究の目的

本研究では「集落排水施設の汚泥への医薬品混入の実態を解明し、集落排水汚泥の農地還元の安全性を評価するとともに、その安全性を更に高める方策を明らかにすること」を目的とした。現在、集落排水汚泥の農地還元を実施している施設は約 50% であり、農地還元の更なる推進が、農水省の重要方針である。それゆえ、本研究は、今後の汚泥利用を検討している現場はもちろん、既に汚泥を利用している現場においても、集落排水汚泥への安心感と信頼感を向上させ、今後の安定的かつ発展的な汚泥利用の推進に大きく貢献できると考えられる。

### 3. 研究の方法

本研究では、主に 3 つの方法によって研究を推進した。実際に稼働している集落排水施設の生汚泥への医薬品の混入特性と混入量低減策を明らかにするための現場調査と実験、各種調整汚泥への医薬品の混入特性と混入量低減策を解明するための現場調査と実験、調整汚泥が利用された農地での医薬品の分解・残留特性と作物への移行特性を解明するためのモデル圃場試験と室内実験である。分析対象とした医薬品は、集落排水施設の流入下水や処理水で検出実績のあるものを選定し、それらの医薬品を LC/MS/MS(液体クロマトグラフタンデム質量分析計)を用いて分析した。

### 4. 研究成果

本研究で得られた主な成果を以下に示す。

#### (1) 生汚泥に対する医薬品の混入の実態と特徴

実稼働中の 9 か所の農業集落排水施設の汚泥貯留槽から採取した生汚泥に対する、医薬品(解熱鎮痛消炎剤 3 成分、抗生物質 2 成分、鎮痒剤 1 成分、紫外線吸収剤 1 成分、抗鬱剤 1 成分、強心剤 1 成分)についての調査などから、以下のことが明らかとなった。

生物膜方式・活性汚泥方式といった処理方式や調査時期に関わらず、ほぼ全ての調査で、調査対象とした全種類の医薬品が検出され、その濃度範囲は約  $0.1 \sim 600 \mu\text{g/kg-dry}$  であった(図 1)。相対的に濃度が高かった成分は、微生物分解され難く、オクタノール/水分分配係数(Kow)が高めの成分で、例えば、Benzophenone(紫外線吸収剤)、Azithromycin(抗生物質)、Crotamiton(鎮痒剤)があげられた。また、解熱鎮痛消炎剤や抗生物質では、使用量が増加する冬季に、濃度が高まる傾向が見られる成分があった。従って、季節によって使用量が変動する成分については、使用量が高まる季節において、汚泥中の濃度が上昇しにくいようにする対策を考えることが重要と考えられた。その一方で、各医薬品の濃度は、日本や海外の公共下水道よりも低濃度傾向であった。そして、その低濃度傾向が顕著であったのは、汚泥貯留槽での汚泥貯留時間が長い施設や、悪臭発生防止のために、汚泥貯留槽での曝気が頻繁に行われていた施設であった。従って、そのような汚泥貯留槽では、医薬品の微生物分解が進行しやすく、濃度が低くなりやすかったと考えられた。以上より、農業集落排水施設の汚泥には、多様な医薬品が混入しているものの、汚泥貯留槽での貯留時間を長く、また、好気状態になりやすいような管理を行えば、汚泥の医薬品濃度を低下させることが可能と考えられた。

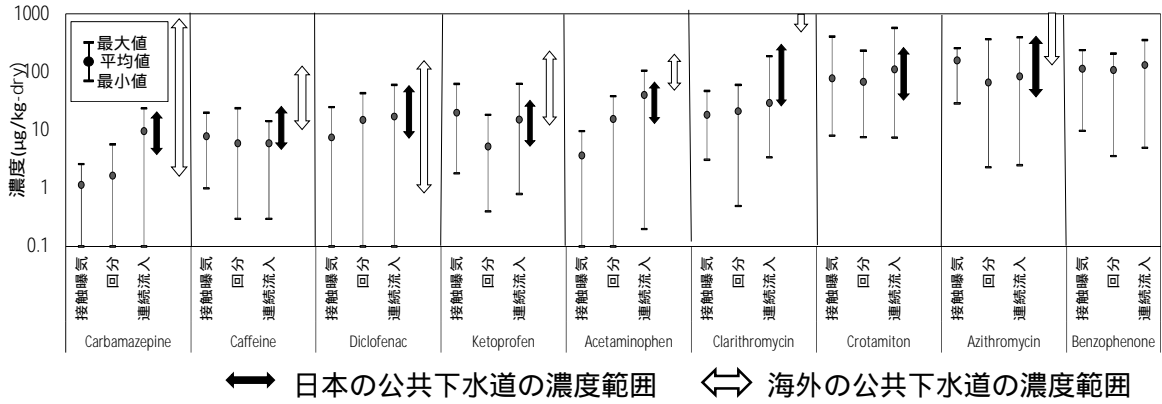


図1 検出された医薬品の濃度範囲と公共下水道での検出濃度との比較

(2) 調整汚泥に対する医薬品の混入の実態と特徴

実稼働中の農業集落排水施設(5 施設)の汚泥貯留槽内に貯留されていた汚泥を、実際の乾燥・コンポスト施設において乾燥、コンポスト化された調整汚泥について医薬品(解熱鎮痛消炎剤3成分, 抗生物質2成分, 鎮痒剤1成分, 紫外線吸収剤1成分, 抗鬱剤1成分, 強心剤1成分)を分析した調査などから、以下のように知見が得られた。汚泥貯留槽内の汚泥からは、0.02~174.5 µg/kg の範囲で、殆どの汚泥から今回調査した医薬品が検出された。一方、それらの汚泥に凝集剤を加えて脱水した汚泥についても調査を行ったところ、医薬品濃度は、汚泥貯留槽内の汚泥での検出濃度との差は殆どなかった。ただし、それらの汚泥中の医薬品濃度は、日本の公共下水道や、他国の汚泥に比較すると低濃度傾向にあった。乾燥処理ないしはコンポスト化の後の汚泥中の医薬品濃度を調べた結果、いずれの施設においても、処理前の汚泥に比較して低濃度となっており、調査した医薬品の濃度は、全ての施設で10µg/kg 以下となっていた(図2, 3)。しかしながら、乾燥処理とコンポスト処理による濃度低下程度は、施設毎に異なっており、乾燥処理、コンポスト処理ともに、温度が高く、処理時間が長い施設において、汚泥中の医薬品は、より低濃度になり易いことが明らかとなった。以上の結果から、日本の農業集落排水施設の汚泥には多様な医薬品が混入しているものの、その濃度は他の生活排水処理施設に比較して高いものではなく、乾燥処理やコンポスト処理によって、その濃度を大きく低減させることが可能であることが示された。また、乾燥処理とコンポスト処理の際には、必要であれば、温度を高め、また、処理時間を長くすることで、より大きな濃度低下効果を得られることが明らかとされた。

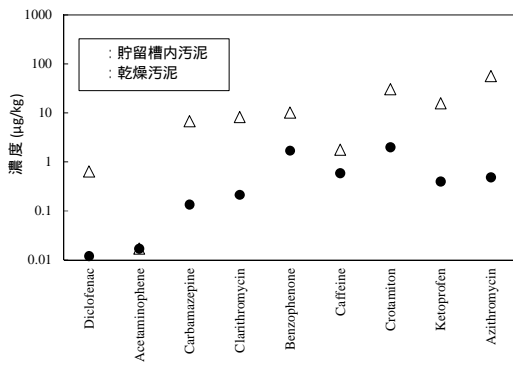


図2 A施設 (乾燥処理, 160℃, 2日)での PPCPs 濃度変化

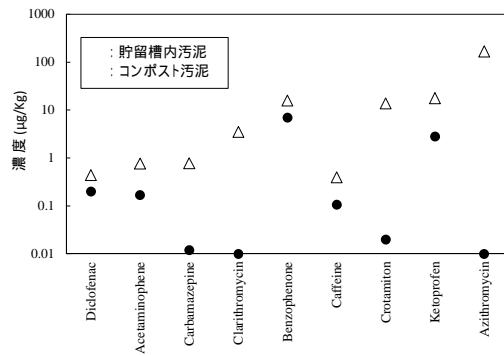


図3 B施設 (コンポスト処理, 60℃, 1.5ヶ月)での PPCPs 濃度変化

(3) 医薬品の農地土壌での吸着・分解と作物への移行

室内実験と栽培試験などによって、以下のことなどを明らかにできた。農地土壌に関しては、有機物含有量が多い農地土壌ほど吸着・分解能力は高かった。また、根菜類(今回検討したのは主に小カブ)より葉菜類(今回検討したのは主にホウレンソウ)の方が、作物中への移行量は小さくなる傾向がみられた。これらにより、土壌の管理方法や、作物の違いによって、汚泥からの作物への移行量は大きく変化し、土壌や作物を適切に選定、管理することで、移行量を減少させることができると考えられた。

(4) 集落排水汚泥の農地還元について安全性を更に高める方策

以上を総合すると、以下のような方策が、集落排水汚泥の農地還元について安全性を高めるために有効かつ重要と考えられる。農地還元前の汚泥の医薬品濃度を下げるためには、集落排

水施設の汚泥貯留槽での滞留時間を長くし、曝気を行って、そこでの微生物分解を促進することが重要である。さらに、乾燥、コンポスト過程では、処理時間を長く、温度を高く保つことで、分解が促進される。また、有機物含有量が多い農地土壌ほど吸着・分解能力は高く、根菜類より葉菜類の方が、作物中への移行量は小さくなる。これらに留意することで、農作物への医薬品の移行量を低減することが可能と考えられる。

(5) 本研究の国内外における位置づけとインパクト、今後との展望

これまで全く検討されていなかった農業集落排水の汚泥に関する PPCPs の混入実態と対策を明らかにできたことで、今後の汚泥利用を検討している現場はもちろん、既に汚泥を利用している現場においても、集落排水汚泥への安心感と信頼感を向上させ、今後の安定的かつ発展的な汚泥利用の推進に繋がると考えられる。なお、本研究の成果の一部は、第 73 回農業農村工学会中国四国支部で発表され、支部奨励賞を受賞した。

## 5. 主な発表論文等

[学会発表](計 5 件)

治多伸介, 川原健太郎, 中野拓治, 久米崇: 農業集落排水施設における生活排水由来医薬品の汚泥への混入実態, 第 51 回日本水環境学会年会, 2017.

治多伸介, 川原健太郎, 中野拓治, 久米崇: 集落排水施設の汚泥に対する生活排水由来医薬品と分解中間生成物の混入実態, 平成 29 年度農業農村工学会大会講演会, 2017.

Xiangxiang Feng, Qun Xiang, Shuji Fukahori, Hirofumi Tsutsui, Shaolan Ding, Taku Fujiwara: Dynamics of sulfamethoxazole during composting of sewage sludge, The 10th CESE Conference International Conference in Challenges in Environmental Science & Engineering, 2017.

川原健太郎・久米崇・治多伸介: 農業集落排水施設の汚泥への生活排水由来医薬品混入実態と季節変動, 第 73 回農業農村工学会中国四国支部講演会, 2018.

治多伸介・程志・川原健太郎・久米崇・中野拓治: 農業集落排水施設の汚泥に対する乾燥・コンポスト化による生活排水由来医薬品の分解効果, 第 73 回農業農村工学会中国四国支部講演会, 2018.

## 6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 藤原 拓

ローマ字氏名: (FUJIWARA, Taku)

所属研究機関名: 高知大学

部局名: 教育研究部自然科学系農学部門

職名: 教授

研究者番号(8桁): 10314981

研究分担者氏名: 中野拓治

ローマ字氏名: (NAKANO, Takuji)

所属研究機関名: 琉球大学

部局名: 農学部

職名: 教授

研究者番号(8桁): 30595202

研究分担者氏名: 山岡 賢

ローマ字氏名: (YAMAOKA, Masaru)

所属研究機関名: 国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構

部局名: 農村工学研究部門

職名: ユニット長

研究者番号(8桁): 70373222

研究分担者氏名: 斎藤広隆

ローマ字氏名:(SAITO , Hirotaka)

所属研究機関名:東京農工大学

部局名:農学研究院

職名:教授

研究者番号(8桁):70447514

研究分担者氏名:久米 崇

ローマ字氏名:(KUME , Takashi)

所属研究機関名:愛媛大学

部局名:大学院農学研究科

職名:准教授

研究者番号(8桁):80390714

(2)研究協力者

研究協力者氏名:Chang , Andrew

研究協力者氏名:Gun , Jay

研究協力者氏名:Simunek , Jirka