

令和 4 年 6 月 1 日現在

機関番号：84406

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2021

課題番号：17K06628

研究課題名(和文) 下水処理場に流入するマイクロプラスチック処理の最適化

研究課題名(英文) Optimization of microplastic treatment flowing into waste water treatment plant

研究代表者

中尾 賢志 (NAKAO, Satoshi)

大阪市立環境科学研究センター・その他部局等・研究員

研究者番号：00649014

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は下水処理場におけるマイクロプラスチック(以下、MPs)の動態を明らかにし、河川や海域へ放流される下水処理水中のMPs削減に資するものである。MPsとは5mm未満の微細なプラスチックのことであり、有害な化学物質を吸着することから近年問題となっている。本研究では、20 $\mu$ m( $\mu$ mはmmの1000分の1)以上のMPsが下水処理場内でどういった動きをし、どうすれば下水処理場においてMPsの除去が最適に行われるかを明らかにした。本研究のように下水汚泥処理工程を含めた下水処理場全体のMPs処理を考察したものは国内外において少数であり、環境中を含めたMPs研究に与えた影響は大きいと言える。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、環境中のMPsは新たな環境問題として注目されており、環境中における動態やヒトを含む生物へどういった影響を与えるのかが盛んに研究されている。MPsは有害な化学物質を吸着することから特に海洋における魚介類や鳥類、海洋哺乳類といった生物に与える影響が懸念されている。本研究はMPsが下水処理場内でどういった動きをし、どうすれば下水処理場においてMPsの除去が最適に行われるかを明らかにしたという点で国内外における学術的・社会的意義は大きく、環境中へのMPs排出削減技術に資するものである。

研究成果の概要(英文)：This study clarifies the dynamics of microplastics (MPs) in sewage treatment plants and contributes to the reduction of MPs in treated sewage water discharged into rivers and the sea. MPs are plastics smaller than 5 mm and have recently become a problem because they adsorb harmful chemicals. This study clarified how MPs larger than 20  $\mu$ m ( $\mu$ m is 1/1000 of a millimeter) move in sewage treatment plants and how MPs can be optimally removed in sewage treatment plants. This study is one of only a few in Japan and abroad that have examined the treatment of MPs in the entire sewage treatment plant, including the sewage sludge treatment process, and its impact on the study of MPs in the environment is significant.

研究分野：環境工学

キーワード：マイクロプラスチック 下水処理場 収支 除去率 水処理工程 汚泥処理工程 汚泥濃縮工程 汚泥脱水工程

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

当時、下水処理場における MPs の挙動に関する研究は世界的に事例が少なく、知見が乏しかった。下水道に流入した MPs は下水処理場で除去され、最終的に汚泥に移行し焼却されると考えられていた。しかしながら、我々の予備調査では必ずしもそうではなく、MPs は下水汚泥の濃縮や脱水の際に汚泥ではなく分離液に移行する可能性が高いと推察していた。ただし、MPs のその後の挙動は不明であった。

## 2. 研究の目的

- (1) 下水処理場に流入した MPs の各処理工程における挙動を明らかにする。
- (2) 下水処理場における MPs の除去率を高める方法を検討する。

## 3. 研究の方法

- (1) 近畿地方の下水処理場における下水処理工程および下水汚泥処理工程(濃縮工程,脱水工程)の各工程において試料を採取し,過酸化水素処理による有機物分解をおこなった。水試料は反応液を目開き 20 $\mu\text{m}$ のニッケル製フィルターに吸引し,汚泥試料の反応液は 5.3M ヨウ化ナトリウム溶液で比重分離し,水試料と同様の操作を行った。フィルター上に捕捉された粒子を顕微 FT-IR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy: フーリエ変換赤外分光光度計)で観察し,ライブラリーヒット率が 60%以上のものをプラスチックと同定した(写真1)。プラスチックと同定された粒子はライブラリーヒット率とともに長軸と短軸,写真を記録した。各工程における試料中の MPs 濃度を算出し,各工程の水量と汚泥量を乗じて MPs 負荷量を推定し下水処理場内の MPs 収支図を作成した。

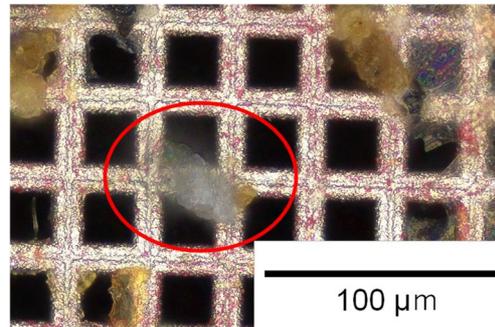


写真1 顕微 FTIR で検出した MPs (ポリスチレン)  
共焦点顕微鏡で撮影

- (2) 汚泥濃縮工程と脱水工程において凝集剤を用いて MPs を除去(汚泥へ移行させる)する方法を見出すため,濃縮工程には主として無機凝集剤を,脱水工程には高分子凝集剤を,種類(銘柄)を変え,さらに添加率を変動させてどのような条件下において最も効率的に MPs を汚泥処理工程において除去できるかを室内実験にて確認した。

## 4. 研究成果

- (1) MPs 濃度と流量を乗じて MPs の負荷量(個/日)を算出し,流入下水中の MPs 負荷量を 100%としたときの各処理工程での相対負荷量を示した(図1)。注目したいのは返流水を構成する濃縮分離液で 12%の MPs が下水処理系に戻ることである。この割合を減らすことにより,処理場全体の MPs 除去率を向上することができると考えられた。

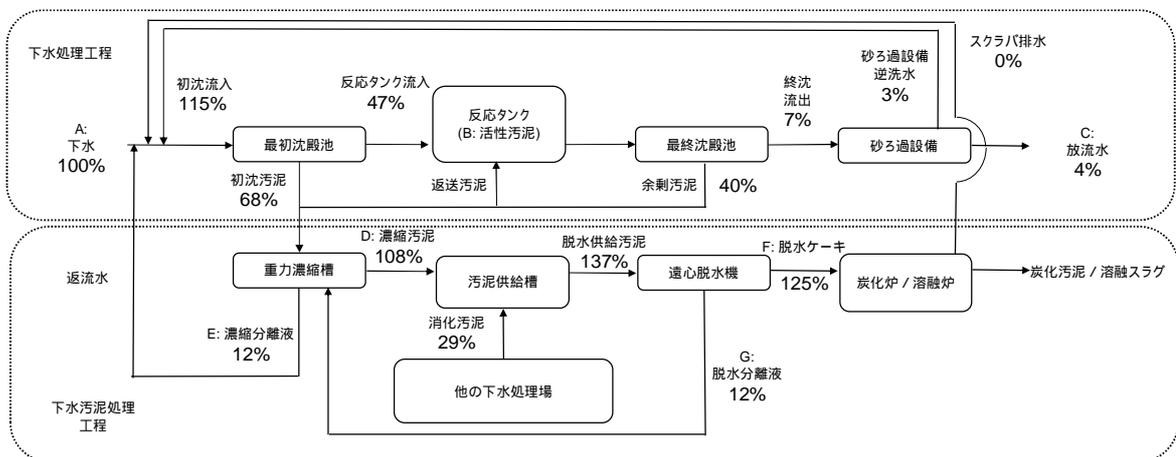


図1 下水および汚泥処理工程における MPs の収支図  
(流入下水を 100%として比率で示した)

(2) 各処理工程の代表的な工程で検出された MPs の種類を示す(図2)。A:流入下水とC:放流水を比較すると処理が進むにつれて比重の軽いポリエチレン(PE)やポリプロピレン(PP)が優占するようになった。これは比重の重い MPs は最初沈殿池や最終沈殿池で沈降しやすいからだと考えられる。B:活性汚泥にポリエチレンテレフタレート(PET)が優占する理由は、PETの MPs は MFs が多く、形状的に細長いため、活性汚泥に絡みやすいからだと考えられる。

濃縮工程におけるD:濃縮汚泥もB:活性汚泥と同じく MFs が多い PET が優占する結果となり、また、濃縮分離液では約8割が PET という結果になった。この濃縮分離液は水処理システムに返流水として戻ることから、PETを主とした濃縮分離液が下水処理工程に戻るようになる。そして、それが再び活性汚泥に捕捉され、また汚泥処理工程に移行するという、MFs は下水と汚泥処理工程を循環するような挙動をしていると考えられる。

脱水工程では濃縮工程とは異なり脱水ケーキ中の PET の割合は低い反面、脱水分離液から検出された MPs の全てが PET であった。この理由として、MFs の割合が高い PET の形状は細長い繊維状であり、遠心脱水機中では見かけ比重が低くなり分離液に移行すると考えた。

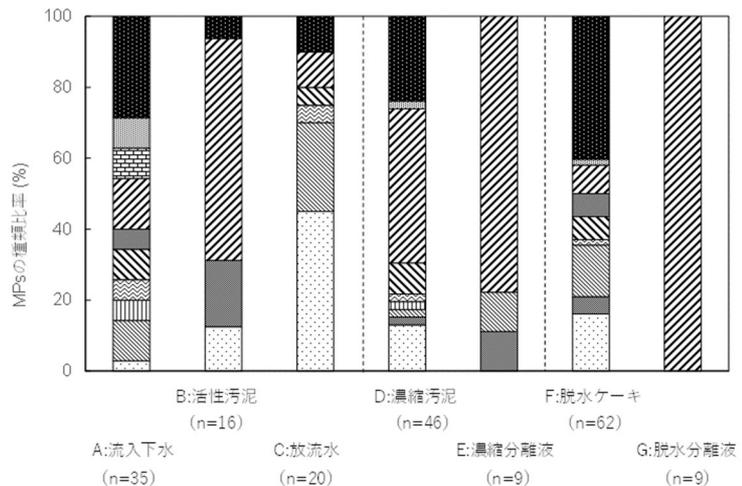


図2 各処理工程の代表的な工程で

検出された MPs の種類 (n は MPs 検出個数)

※凡例の括弧内は比重を表す。

- ポリエチレン(0.9), ● ポリプロピレン(0.9)
- ポリエチレン-ポリプロピレン共重合体(0.9)
- ▨ ポリスチレン(1.1), ▨ ポリウレタン(1.2)
- ▨ アルキド樹脂(1.2), ▨ アクリル系ポリマー(1.2)
- ▨ ポリエチレンテレフタレート(1.3), ▨ ポリビニルアルコール(1.3)
- ▨ ポリ塩化ビニル(1.4), ▨ その他

(3) 各処理工程の代表的な工程で検出された MPs の大きさ(長軸と短軸の算術平均値)を示す(図3)。A:流入下水中の MPs 平均粒径の中央値は 59 (23~430)  $\mu\text{m}$ , B:活性汚泥は 250 (46~1600)  $\mu\text{m}$ , C:放流水は 60 (24~170)  $\mu\text{m}$  であった。水処理工程を進むにつれて MPs の平均粒径は小さくなる傾向にあったが、最初沈殿池流入水の MPs 平均粒径は大きくなった。これは汚泥処理系からの返流水中の MPs による影響であると考えられる。また、反応タンク内の B:活性汚泥の MPs も比較的大きいが、これは長軸が長い繊維状の MFs が活性汚泥に吸着されているからだと考えられる。

濃縮工程から出ていく D:濃縮汚泥の MPs 平均粒径の中央値は 86 (33~1500)  $\mu\text{m}$ , E:濃縮分離液は 38 (160~910)  $\mu\text{m}$  となった。D:濃縮汚泥よりも E:濃縮分離液の MPs の平均粒径が大きいのは、脱水工程から濃縮工程に戻ってくる G:脱水分離液の全ての MPs が MFs であったことが関係している可能性がある。

脱水工程から排出

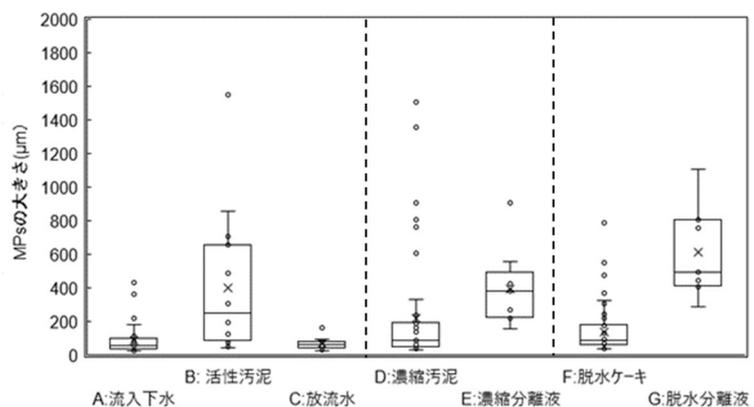


図3 各処理工程の代表的な工程で検出された MPs の大きさ

される F：脱水ケーキの MPs 平均粒径の中央値は 87 (36 ~ 790)  $\mu\text{m}$  , G：脱水分離液は 490 (290 ~ 1100)  $\mu\text{m}$  となった。脱水ケーキよりも脱水分離液の MPs の平均粒径が大きいのは、濃縮工程と同じく MFs の比率が高かったためと推測される。

(4) 図4に濃縮工程の MPs 除去率の変化, 図5に脱水工程の MPs 除去率の変化を示す。濃縮工程では無機凝集剤の添加量が多くなると MPs の除去率が上昇する傾向が見られたが、ポリ硫酸第二鉄液(ポリ鉄)は 1200 mg/L, 日鉄鉱業製フェリック S(フェリック S)は 1600 mg/L で最も高い除去率, それぞれ 92.6%, 84.0% を得た。硫酸バンドとフェリック S + 高分子凝集剤は 800 mg/L で除去率 91.7% を得た。フェリック S のみを 800 mg/L で添加した条件下での MPs 除去率は 63.1%, フェリック S (添加量: 800 mg/L) と高分子凝集剤を同時に添加した条件下での MPs 除去率は 91.7% となり、濃縮工程に無機凝集剤に加えて高分子凝集剤を添加することにより MPs 除去率が上昇した。なお、脱水工程では、高分子凝集剤無添加時と添加時とを比較して MPs 除去率に明確な相違は見られなかった。

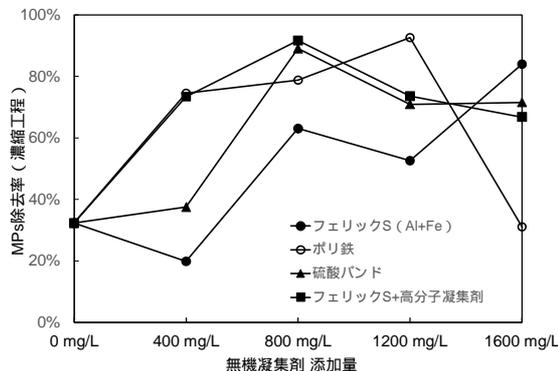


図4 濃縮工程の MPs 除去率の変化

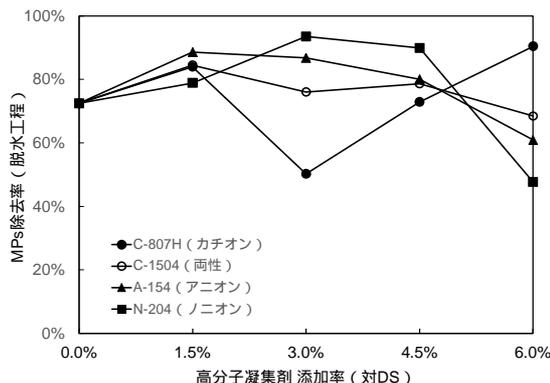


図5 脱水工程の MPs 除去率の変化

(5) 濃縮供給汚泥にフェリック S と高分子凝集剤 0.1% (対固形物添加率) 添加した実験系における添加量毎の濃縮分離液中に含まれる MPs の種類割合を図6に示す。濃縮供給汚泥中の MPs は偏りの少ない種類割合であったが、無機凝集剤無添加の分離液には比重の小さいポリエチレン(PE)やポリプロピレン(PP), PE-PP-co (PE と PP の共重合体)が多く分離液に移行した。無機凝集剤を添加すると比重の小さい PE や PP, PE-PP-co の割合は低くなる傾向になった。無機凝集剤を 800 mg/L 添加した系では分離液中の MPs は全て PET であった。ただ、無機凝集剤の添加率をさらに上昇させると PET の割合は低くなり、反対に PE や PP, PE-PP-co の割合が高くなる傾向にあった。無機凝集剤添加量 0, 400, 800, 1200, 1600 mg/L において、分離液中の MPs 濃度はそれぞれ 110, 32, 10, 26, 30 個/mL となり、無機凝集剤添加率が 800 mg/L の条件下で MPs は最も分離液に移行しにくく、濃縮汚泥に移行しやすい結果となった。ただし、無機凝集剤を添加すると無添加時に比べて分離液中のポリエチレンテレフタレート (PET) の割合が増えており、繊維状が多い PET の除去は他の MPs よりも困難であることが推測された。

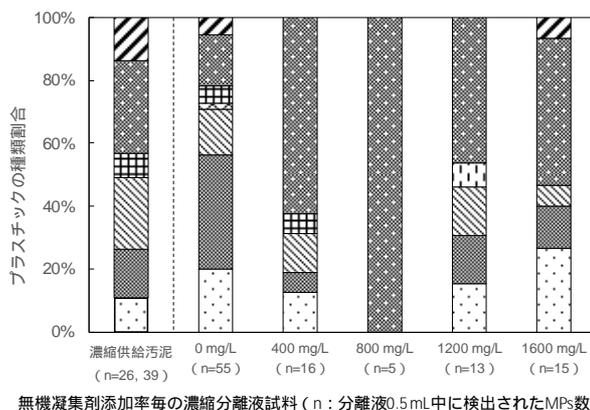


図6 無機凝集剤添加率毎の濃縮分離液試料中の MPs の種類割合 (凡例の括弧内は比重を表す)

- PE (ポリエチレン) (0.9)
- PP (ポリプロピレン) (0.9)
- PE-PP-co (ポリエチレン-ポリプロピレン共重合体) (0.9)
- PS (ポリスチレン) (1.1)
- ABSresin (ABS 樹脂) (1.1)
- PU (ポリウレタン) (1.2)
- アルキド樹脂 (1.2)
- Acrylic polymer (アクリル系ポリマー) (1.2)
- PET (ポリエチレンテレフタレート) (1.3)
- PVA (ポリビニルアルコール) (1.3)
- ポリ塩化ビニル (1.4)
- その他

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 7件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Nakao Satoshi, Akita Kohsuke, Ozaki Asako, Masumoto Keiko, Okuda Tetsuji	4. 巻 795
2. 論文標題 Circulation of fibrous microplastic (microfiber) in sewage and sewage sludge treatment processes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 148873 ~ 148873
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2021.148873	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 中尾賢志	4. 巻 21
2. 論文標題 都市環境における微細マイクロプラスチックの動態調査	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 環境浄化技術	6. 最初と最後の頁 72 ~ 78
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 中尾賢志, 秋田耕佑, 榎元慶子, 尾崎麻子, 奥田哲士	4. 巻 62(9)
2. 論文標題 顕微FTIRによるマイクロプラスチック分析の試みと課題	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 用水と廃水	6. 最初と最後の頁 649-655
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 中尾賢志, 森 恵美, 榎元 慶子	4. 巻 61
2. 論文標題 3. 環境プラスチック問題の現状と課題	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 繊維製品消費科学	6. 最初と最後の頁 502 ~ 518
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11419/senshoshi.61.7_502	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 中尾賢志	4. 巻 62(11)
2. 論文標題 環境プラスチック問題解決に対するそれぞれの役割	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 用水と廃水	6. 最初と最後の頁 777-782
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 中尾賢志	4. 巻 30(3)
2. 論文標題 環境工学的マイクロプラスチック研究の新展開	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 クリーンテクノロジー	6. 最初と最後の頁 1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 中尾賢志, 尾崎麻子, 榎元慶子	4. 巻 44(4)
2. 論文標題 環境プラスチック問題の全容と課題および大阪市立環境科学研究センターの啓発・研究活動	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 全国環境研究会誌	6. 最初と最後の頁 161 - 171
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakao Satoshi, Ozaki Asako, Yamazaki Kazuo, Masumoto Keiko, Nakatani Tadashi, Sakiyama Takanori	4. 巻 -
2. 論文標題 Microplastics contamination in tidelands of the Osaka Bay area in western Japan	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Water and Environment Journal	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/wej.12541	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 中尾賢志, 尾崎麻子, 榎元慶子	4. 巻 64(9)
2. 論文標題 下水処理場におけるマイクロプラスチックの除去	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ケミカルエンジニアリング	6. 最初と最後の頁 7 - 12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 中尾賢志	4. 巻 61(6)
2. 論文標題 マイクロプラスチック問題の本質と課題	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 用水と廃水	6. 最初と最後の頁 54 - 61
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計13件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 中尾賢志, 秋田耕佑, 尾崎麻子, 榎元慶子, 奥田哲士
2. 発表標題 下水処理場に流入するマイクロプラスチックの挙動解析 (第4報 (最終報))
3. 学会等名 第59回下水道研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中尾賢志, 秋田耕佑, 尾崎麻子, 榎元慶子, 奥田哲士
2. 発表標題 下水および下水汚泥処理工程におけるマイクロプラスチックの挙動
3. 学会等名 第37回全国環境研究所交流シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中尾賢志 , 秋田耕祐 , 尾崎麻子 , 榎元慶子 , 奥田哲士
2. 発表標題 下水処理場に流入するマイクロプラスチックの挙動解析 (第3報)
3. 学会等名 第58回下水道研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中尾賢志 , 秋田耕祐 , 榎元慶子 , 尾崎麻子 , 奥田哲士
2. 発表標題 下水処理場に流入するマイクロプラスチックの挙動解析 (第2報)
3. 学会等名 第57回下水道研究発表会 (誌上発表)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中尾賢志 , 尾崎麻子 , 榎元慶子 , 山崎一夫 , 中谷正 , 先山孝則
2. 発表標題 大阪湾圏域の干潟泥と生息生物から検出されたマイクロプラスチックの特徴
3. 学会等名 第36回全国環境研究所交流シンポジウム「現場から考える環境研究」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Satoshi NAKAO, Asako OZAKI, Keiko MASUMOTO
2. 発表標題 Fate of Microplastics in a Japanese Wastewater Treatment Plant and Optimization of Microplastics Treatment
3. 学会等名 8th IWA - ASPIRE Conference and Exhibition in Hong Kong (Oral) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中尾賢志, 尾崎麻子, 榎元慶子
2. 発表標題 下水処理場に流入するマイクロプラスチックの挙動解析(第1報)
3. 学会等名 第56回下水道研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中尾賢志, 榎元慶子
2. 発表標題 マイクロプラスチックについての啓発活動とマイクロビーズに関する市民意識
3. 学会等名 第29回廃棄物資源循環学会研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中尾賢志, 尾崎麻子, 山崎一夫, 仲谷正, 先山孝則, 榎元慶子
2. 発表標題 淀川河口干潟に生息する生物体内からのマイクロプラスチックの検出
3. 学会等名 第18回環境技術学会年次大会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>マイクロプラスチックについて  <a href="https://www.city.osaka.lg.jp/kankyo/page/0000463800.html">https://www.city.osaka.lg.jp/kankyo/page/0000463800.html</a></p>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	梶元 慶子  (MASUMOTO Keiko)  (20332447)	大阪公立大学・工学研究科・客員教授    (24405)	
研究分担者	尾崎 麻子  (OZAKI Asako)  (80332435)	地方独立行政法人 大阪健康安全基盤研究所・衛生化学部・主幹研究員    (84407)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	秋田 耕佑  (AKITA Kohsuke)	大阪市立環境科学研究センター・その他部局等・研究員    (84406)	
研究協力者	奥田 哲士  (OKUDA Tetsuji)	龍谷大学・先端理工学部・教授    (34316)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関