

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K04408

研究課題名(和文) 分流式下水道に流入する汚水のリスク物質の発生源～生活様式か雨天時流入か～

研究課題名(英文) Source of risk substances for domestic sewage flowing into separate WWTP

研究代表者

尾崎 則篤(OZAKI, Noriatsu)

広島大学・先進理工系科学研究科(工)・准教授

研究者番号：50294541

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は分流式下水道に流入する汚水のリスク物質-生物検定によって得られた毒性量について発生源を知ることである。処理プロセスを通じた比較の結果として、違いの原因は雨天時流入ではなく、また生活様式でもないことが明らかとなった。すなわち生活系の流入毒性負荷はいずれの処理場でも大きな違いはないことが明らかとなった。そこで処理場ごとの処理プロセスの違いを検討したところ、毒性が高いところと低いところでは、最初沈殿池の運用の有無に違いがあることが分かった。詳細に検討したところその最初沈殿池より発生する固形物の毒性負荷が最終の、余剰汚泥の負荷を増大させている可能性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の意義は生活排水に起因する下水汚泥の緑農地還元というかたちでの再利用におけるリスク因子を特定したことである。生活排水は下水処理過程において適切に処理され再利用汚泥としてもそのリスクは大きく低減される。一方最初沈殿池において沈殿した、生物反応プロセスを経っていない固形成分はその生物検定値が低減しない結果として、重量あたりのリスクは大幅に異なる点を指摘したことがその学術的・社会的意義となる。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to know the source of the toxicity by bioassay of sewage flowing into the separate sewer. By the comparison comparison through the treatment process, it became clear that the cause of the difference was not the inflow in rainy weather, nor was it from the lifestyle. In other words, there was no big difference in the inflow toxic load of the living system at any of the treatment plants. Therefore, when the difference in the treatment process for each treatment plant was examined, it was found that there was a difference in the operation of the settling basin at the place where the toxicity was high and the place where the toxicity was low. A detailed examination showed that the toxic load of solids generated from the first settling tank may have increased the final load of excess sludge.

研究分野：水環境工学

キーワード：下水処理場 生物検定 余剰汚泥 コンポスト リスク

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

下水処理場は生活排水をはじめさまざまな廃水を受入れ浄化する。処理は受入廃水の主成分たる有機系の macropollutants を対象とするが、そのほかにも微量な有害物質(micropollutants: 重金属類や微量有機有害物質)を含んでいる。本研究では特に疎水性の有機物質に着目する。それらは、化学種によっては生物分解されにくく多くが汚泥へ移行する。申請者らが近郊の下水処理場、広島県内のコンポスト製造業者を対象に取扱量を調査したところ、処理場で発生した汚泥の過半はコンポストとして農地利用されていた。全国で下水汚泥の緑農地利用は1割強に留まるが首都圏や京阪神など以外では半分程度に達し、それらの地域では下水汚泥の主要な行き先は農地となる。それは資源循環という観点からも望ましいが、一方同時に上記のようなリスク物質も循環させることになる。

研究代表者らはこれまで大気・水環境中の微量有害物質動態の研究をしておりその一環として下水汚泥およびコンポストに含まれる PAHs, PPCPs の測定、生物検定試験を実施してきた。特に発光細菌毒性試験では汚泥中の濃度は高く更に都市的な地域ほど高い、更に相当程度がそのままコンポストに残留することが分かった。例えば生物検定試験のひとつとして発光細菌毒性試験による汚泥、コンポストの $1/EC_{50}$ (TU 値)は 0.01-1L/g 程度であった(図1; 固形物から疎水性有機物を有機溶剤(ジクロロメタン(DCM))で抽出し DMSO 含有溶液へ置換後、毒性を測定; 濃度は固形物の相当濃度)。この意味するところは 1g のコンポストから、主要な有機物質が溶出した場合 1L まで希釈されても水中のバクテリアが半数程度死亡すると解釈される (TU=1L/g の場合)。疎水性有機物質の全量が短期に溶出することはないとしても、半数致死濃度からの安全係数として 100 倍程度を見込むことも考えると、肥料濃度が g/L 以下の薄いレベルで環境影響があり得ることになり農地還元材料の潜在的な毒性として高いと懸念された。そのため下水汚泥に含まれる疎水性有機系の有害物質の発生原因はなにか?を知ることが重要という考えに至った。

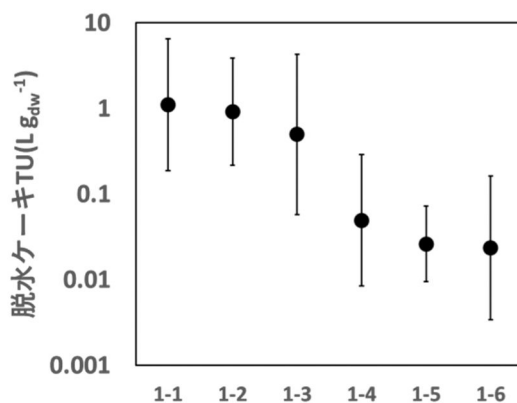


図1 先行研究における6つの下水処理場から発生した脱水ケーキの生物検定値(TU)

2. 研究の目的

本研究の目的は下水汚泥中の疎水性有機画分の毒性負荷の発生源を知ることである。方法論として、発生源の疑いを都市的な生活排水が雨天時流入に絞り込み、どちらが発生源なのか?を明らかにすることであった。なぜそのような切り口を考えたかという上記図1で高いところ(1-1 3)はいずれも都会で、低いところは(1-4 6)は田舎という印象であったためである。そこで可能性として、ひとびとの生活様式の違い(生活排水の違い)、事業系排水の流入、雨天時の影響、の3つをまず考えた。ただし早い段階で事業系排水の可能性は排除した1-1, 1-2は比較的狭小な、主に住宅を中心とする区域で事業系排水の流入がむしろ殆ど無いことと確認していたためである。一方、分流式下水道であるにもかかわらず雨天時の影響を可能性として考慮

したのは、市街地では、(特に 1-3 において)おそらく下水管が古いために雨水の流入量が相対的に大きいことを認めていたためである。市街地は相対的に早期に污水管が整備され相対的に雨水の流入の影響が大きい可能性がある、という予測は合理的と考えた。そこでまず目標として、生活排水/雨天時流入いずれか?更にそのいずれでもない場合はほかの可能性含めて原因を探索することを目的とした。

3. 研究の方法

方法としては下水試料の疎水性有機成分を対象とした生物検定試験(発光細菌毒性試験)を実施し、また合わせて必要に応じて同じく疎水性有機成分のトレーサー成分として PAHs, PPCPs の測定を行い生物検定試験の結果と比較するという方法論を採用した(なお、これらのトレーサー成分も研究では測定したが、本報告書の「主要な結果」としては掲載していない;後述するようにそれらを参照するまでもない明確な傾向を得たためである)。生物検定試験においては抽出成分を生物に対して比較的無害とされている DMSO に再溶解し、それを分散助剤として水中に溶解させ、海洋性の発光微生物である *Aliivibrio fischeri* に対する発光の減衰をもって指標とする。対象とした試料は先行研究と重なる複数の下水処理場の流入水、最終処分汚泥またその後の解析の必要に伴い代表的な下水処理場の処理過程ごとの試料とした。

4. 研究成果

(1) 雨天時流入ではないだろうと考えられた

結論としては雨天時流入ではないだろうと考えた。図 1 の、1-3 の下水処理場で、雨天時に生活排水を集中的に採取し生物検定を実施したが少なくとも図 1 のような大きな違いを説明できるような明確な差はなく、むしろ降雨時のほうが毒性が低い傾向であった(1-1 3 のうち 1-3 を採用したのは比較的近郊であったため降雨発生時の、機会を捉える採水がやりやすかったためである)。上記のような長期的な高値を得るためには降雨時の生物検定値は、無降雨時と比較して 10 倍以上程度高くないと負荷量的には説明がつかないはずであり、無降雨時と変わらず、むしろ低いという傾向は、その可能性を否定するものといえる。

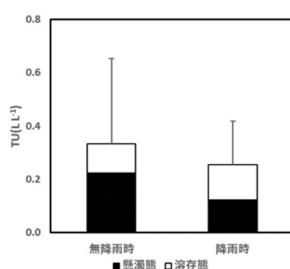


図 2 処理場 1-3 における無降雨時(5 回)と降雨時(5 回)との生物検定値の比較

結果を見るとあたりまえのこのようであるが都市的な処理場で雨天時流入が高いといった可能性があってもおかしくない、あることはあったので、無駄な検討だったとは考えていない。ともあれ実際には分流式下水道において降雨時の影響は毒性の全体を左右するほどの違いはあらわれないであろうという、至極当然な結果が出たといえる。

(2) 生活排水の違いでもなかった

先の解析から採取時には少なくとも降雨の有無についてはあまり大きな考慮は払う必要はないと理解し、あらためて下水処理場の流入水を複数回採取し、生活排水の流入段階での違いを調べた(図 3; 処理場 1-5 は遠方のため外した)。2-1,2-2,2-3 は比較的出自の明確な住宅地の生活排水である。結果として生活排水であれば都市的な地域であろうと田舎であろうと大きな違いは

なく、生活排水自体の違いもまた、最終的な脱水ケーキの違いとは関係ないのではないかと考えられた。

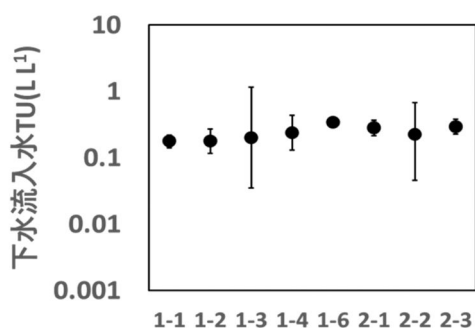


図3 処理場 1-1 6(1-5 は除く)における生物検定値の比較; 更に一般的な生活排水も採水した(2-1 3) それぞれ測定回数は1 7回

なおこの段階で改めて検討する必要が生じたのは先行研究の測定と当該研究との時期的な差である。先行研究は10年以上以前の測定であり、現在改めて汚泥を測定したら既に何らかの理由で差が消失していた可能性である。そこであらためて、1-5を除いた処理場で脱水ケーキを入手して測定した。結果は以下のようにやはり同様の差は保持された。

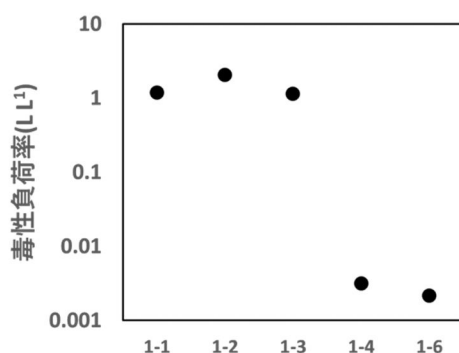


図4 処理場 1-1 6(1-5 は除く)における脱水汚泥の生物検定(流入水あたり負荷率換算)

このことから、生物検定値の違いは現在も継続しており、その違いは脱水ケーキの原材料である、流入水の違いでもない、ということが明らかになった。

ここで改めて原因は何だろうか?と考えた。雨水であれ生活排水であれ「原材料」の違いはない、というのがこれまでの結果であり、となれば理由は処理プロセスの違いしかない。改めて処理場ごとの処理プロセスの違いを比較したところ、生物検定値が低かった田舎の処理場(1-4 6)は、高かった都会の処理場(1-1 3)と比較して重要と思われる違いがあった。それは田舎の処理場は、最初沈殿池を運用していなかったことである。最初沈殿池の沈殿物は生活排水の固形物をそのまま沈殿させ最終沈殿物にいれこむことであり、活性汚泥が主体となる最終沈殿池の汚泥とはその由来が大きく異なる。そこでプロセス全体でのマスフローを詳細に調査することにした。

(3) 最初沈殿池汚泥の流入が原因ではないか?と考えられた

都市と田舎の代表として、比較的近郊で継続的な採取がしやすかった 1-3 と 1-4 とをそれぞれ選びプロセス内の生物検定値を継続的に調査し、そのマスフローを記述した。

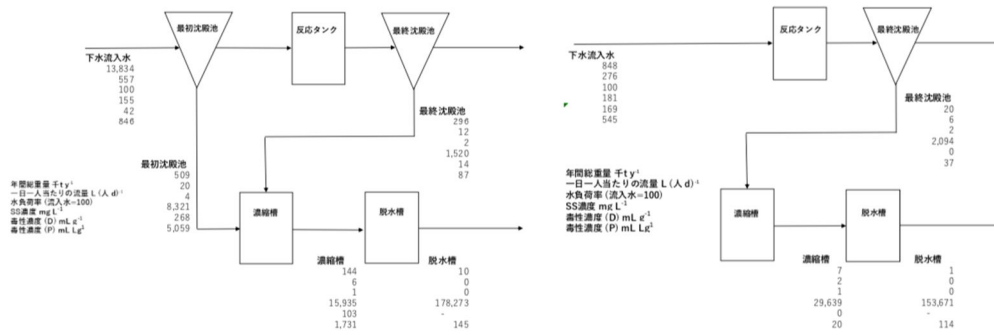


図5 処理場 1-3, 4 における脱水汚泥の毒性負荷率

するとやはり最初沈殿池からの生物検定値は高い傾向であり、予想を裏付けるものだった。また、参照として 1-1, 1-2 も限られた回数であったが調査し、同様の傾向であった。いまだ限られた回数の調査であり十分に系統的な調査とはいえない段階であるため、確定的に述べることは躊躇があるが、予測自体は十分合理的であり妥当な推論であろうと考えている。

成果として、下水処理場から発生する汚泥の生物検定による負荷量の、都市と田舎の違いの原因について検討した。当初予想した発生源の違いとして、雨天時、生活排水の質そのもの違い、いずれも予想を外していた。そして発生源の違いはないことが明らかになった。そこで処理場内での処理プロセスの違いについてみたところ、最初沈殿池運用有無の違いが浮かび上がり、その違いに基づく調査をしたところ、限られた数ではあるが予想を裏付ける結果であり、最初沈殿池の運用が汚泥の質に大きな影響を与えることが強く示唆された。

今後の展望について述べる。発生した汚泥はコンポスト工場ではさらなる安定化処理を施すため、上記の受入の生物検定負荷量がそのままコンポストの負荷となるわけではない。工場での処理プロセスがコンポストとしての質にどのような影響を与えるか、という点に焦点を当てた検討が重要となろう。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1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 Ozaki Noriatsu, Kindaichi Tomonori, Ohashi Akiyoshi	4. 巻 715
2. 論文標題 PAHs emission source analysis for air and water environments by isomer ratios ? Comparison by modified Cohen's d	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 136831 ~ 136831
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.scitotenv.2020.136831	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4件（うち招待講演 1件／うち国際学会 0件）

1. 発表者名 住本春樹, 金田一智規, 尾崎則篤, 大橋晶良
2. 発表標題 下水処理場における汚泥処理プロセスの違いが脱水ケーキの毒性評価値に与える影響
3. 学会等名 水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 住本 春輝, 尾崎 則篤, 大橋 晶良, 金田一 智規
2. 発表標題 分流式下水道流入水の疎水性有機物に起因する毒性の流入源
3. 学会等名 土木学会中国支部研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 尾崎 則篤, 太田 幸志郎, 金田一 智規, 大橋 晶良
2. 発表標題 市街地雨水流出口と下水処理場に流入する疎水性有機汚染物質 - 発光細菌毒性試験による生活排水とノンポイント負荷の比較 -
3. 学会等名 第22回日本水環境学会シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 住本 春輝, 尾崎 則篤, 大橋 晶良, 金田一 智規
2. 発表標題 分流式下水道流入水の疎水性有機物に起因する毒性の流入源
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	金田一 智規 (KINDAICHI Tomonori)	広島大学・先進理工系科学研究科(工)・准教授	
	(10379901)	(15401)	

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
---------	---------