

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 3 月 31 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22560545

研究課題名（和文） 生活排水に由来する多環芳香族炭化水素類がコンポスト利用を通して水環境に及ぼす影響

研究課題名（英文） The influences of PAHs loadings to aquatic environments by the composting processes from domestic wastewater

研究代表者

尾崎 則篤 (OZAKI NORIATSU)

広島大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：50294541

研究成果の概要（和文）：

本研究では、活性汚泥のコンポスト化における PAHs の変化に着目し、広島県内のコンポスト工場において受入、分解、負荷に調査を実施したそれに基づきコンポスト経由での土壌、水環境での負荷を算定した。その結果に基づきコンポスト由来 PAHs の環境中寄与を PAHs 負荷の大部分を占める大気降下粉塵由来のものと比較を行った。算定した結果広島湾流入域においてコンポスト由来のものは 4%と算定された。

研究成果の概要（英文）：

In this study, the changes of the concentration of PAHs during the composting processes of the excess sewage sludge were measured in a composting plant. From the overall field survey and the experiments, the total loading by the composting sludge were compared with those from atmospheric loadings. The contribution from the composting sludge was evaluated to be 4% in the Hiroshima bay area.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2011 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2012 年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：土木環境システム

キーワード：PAHs,多環芳香族炭化水素類,コンポスト,生物分解性

1. 研究開始当初の背景

社会活動によって非意図的に排出する微量環境汚染化学物質のひとつとして多環芳香族炭化水素類(PAHs)がある。PAHsは主に化石燃料の燃焼によって生じる物質群でありベンゾ(a)ピレンをはじめとする発癌性をもつものも多く、日本では10種類が大気汚染物質として、米国EPAではそれら6物質を優先モニタリング物質としている。また国連欧州経済委員会はPOPsとしてPAHsをリストしている。PAHsは自動車をはじめ広範な発生源を持ち、大気、水系汚染物質として環境リスクの大きさが懸念されている。PAHsの動態については様々な研究が行われており筆者等も大気と水系の両方をフィールドとして広島湾流入域で研究をおこない動態の解明を目指している。しかしながら未だリスクマネジメントを行うにあたっての十分な情報を得ているという状況からは遠い。研究における現状の問題点としては以下の2点がある：

- ・ 発生原単位が曖昧で、そのため解析の出発点となるべき発生総量の把握が困難である。

- ・ 大気環境と水環境を双方にまたがる研究が少ない。以上の問題点をふまえて大気・水環境の両方で環境中発生総量の包括的な把握を目指し研究を進めてきた。その結果は自動車交通以外の大きな寄与がありうることを明らかにした。それ以外の寄与としてバイオマス起源の寄与が有力であるが(Kumata et al, 2006 など)、筆者らによる測定でも大気・水環境負荷のバイオマス寄与は相当大きいと示唆された。一方、筆者らは分流式下水処理場を対象としPAHs負荷の検討を行っているところだが、得られた測定結果から割り出すと生活排水の発生負荷は大気降下の2~3割、自動車交通の数倍と概算された。生物分解などもありこれが単純に環境負荷となるわけではないが、多くは最終的に余剰汚泥に移行すると考えられ、そして汚泥の一部はコンポスト利用され環境中に戻る可能性がある。筆者らが広島県内でコンポスト製造業者に取り扱量に関する予備調査を実施したところ、対象流域においては下水汚泥の5割程度がコンポストとして農地還元されていることが明らかになった。そのため水環境中のPAHs負荷のうちかなりの部分が下水を経由してバイオマス起源の寄与として現れている可能性がある。全国ベースでは下水汚泥のコンポスト利用割合は14%程度であるが、広島県と限らずある程度の農業地域では使用割合が高い可能性がある。PAHsの環境中濃度は大都市地域以外でも結構高いことが多いが農業地域の負荷も原因として考えられる。そしてバイオマスというまづ野焼きな

どが想定されるが、コンポスト利用も負荷の重要な一角を占めている可能性が大きい。

下水汚泥を循環利用するにあたり汚染物質のリスクは早くから認識されており重金属の含有、濃縮に関しては規制が整備されている。一方難分解性有機物質、特にPAHsに関しては研究が少ない。これは生活領域から発した残渣にこういった発がん性物質が高リスクになるほど入っていることはないと考えられているためと思うが、実際には上述のようにPAHsの環境動態に占める寄与は高い可能性がある。たとえば既往の測定事例を見るとBrändli et al. 2005が世界各国のコンポストの測定事例を総括して濃度は129~12792 ng g⁻¹ (中央値1803)としている(仏、独、スイスの10の測定事例に基づく；これ以外に米国、ポーランド、デンマーク、ブラジル、クウェートの事例が見いだされている；日本はなし)。日本においても一定程度の負荷が考えられその点を明らかにする必要がある。

2. 研究の目的

以上の背景をふまえて本研究の目的は、コンポストを経由したPAHsの水環境中での負荷と、PAHsの動態全体における寄与を明らかにすることである。そのため特に研究期間内では特定のコンポスト製造工場を対象とし、分流式下水道から発生する余剰汚泥から生成されるコンポスト中のPAHsの動態を明らかにし、コンポストに起因するPAHsの発生負荷を算定することである。

3. 研究の方法

コンポスト製造プラントへの汚泥持ち込み・製造でのPAHsの消長の測定し、それに基づき：

- (1) 負荷原因およびその原単位の検討と使用による農地・水環境への負荷の検討

- (2) 処理プロセスにおける物質収支の把握

- (3) 発酵槽内PAHsの生物分解量の把握

これらの点を検討した。本研究に必要なサンプリングは広島県内のプラントで実施した。

4. 研究成果

コンポスト製造に使用される6種類の汚泥および代表的な受入食品製造残渣に含有する16PAHsを測定した。それに基づき混合原料とコンポストの16PAHs含有量を比較すると、混合原料101±27 ng g⁻¹、コンポスト95±49 ng g⁻¹であり、負荷量ベースでは混合原料は454±10 g year⁻¹、コンポストは156±76 g year⁻¹となり、コンポスト化によって66%のPAHs分解が確認された。発光細菌を用いた毒性試験の結果は、混合原料5.24 L g⁻¹ (幾何平均)、コンポスト0.88 L g⁻¹であった。負荷量ベースに換算し分解率を算定したところ87%であった。Ahイムノアッセイによる毒性評価によると混合原料は23±33 ngTCDD g⁻¹,

コンポストは $14 \pm 19 \text{ ngTCDD g}^{-1}$ であった。負荷量ベースに換算し分解率を算定したところ 33%であった。またコンポスティングプロセスでの分解を実証するために分解実験を実施した (n=2)。室内に関しては低分子、高分子 PAH の平均分解量はそれぞれ $49 \pm 19\%$, $14 \pm 11\%$ であり、工場に関しては $35 \pm 26\%$, $7 \pm 12\%$ の分解が確認された。各 PAHs の減少も室内と工場で似た傾向を示しており、工場の工程をある程度再現できたと考えられる。また 2 度の実験で PAHs, 毒性の低減は同程度であり、両者とも実際に起こり得る一般的な状態を模擬していたと考えられる。PAHs 量の減少は揮発と生分解が考えられるが、設定温度がそれほど高くなかった (80°C 程度) を踏まえると高分子の PAHs が影響を受けるとは考え難い。従って分解は好気性微生物によるものが大きいと考えられる。

以上の結果に基づきコンポスト由来 PAHs の環境中寄与を PAHs 負荷の大部分を占める大気降下粉塵由来のものと比較を行った。算定した結果広島湾流入域においてコンポスト由来のものは 4% と算定された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 4 件)

- ① 尾崎 則篤, 高村 斎弘, 小島 啓輔, 金田一 智規, 分流式下水処理場に対する PAHs の流入負荷および処理場内での除去性の検討, 土木学会論文集 G (環境) Vol. 69 (2013) No. 1 p. 25-36 (2013 Mar. 19)., 査読有り
DOI: 10.2208/jscejer.69.25
- ② Noriatsu Ozaki, Akihiro Nakazato, Kazuki Nakashima, Tomonori Kindaichi, Akiyoshi Ohashi., Photocatalytic Decomposition of Atmospheric Toxic Substances on the TiO₂-loaded Glasses Set on the Roadside of a Highway., Journal of Water and Environment Technology, Vol.10, No.4, pp.399-408 (2012. Dec) ., 査読有り
<http://dx.doi.org/10.2965/jwet.2012.399>
- ③ Takehiko Fukushima, Seigo Watanabe, Kouichi Kamiya, and Noriatsu Ozaki., Vertical distributions of PAHs in the sediments of four lakes in Japan., Journal of Soils and Sediments., No.12(10)., pp1530-1540., (

2012 December) ., 査読有り

DOI : 10.1007/s11368-012-0598-6

- ④ Noriatsu Ozaki, Shin-ya Takeuchi, Keisuke Kojima, Tomonori Kindaichi, Toshiko Komatsu and Takehiko Fukushima, PAHs concentration and toxicity in organic solvent extracts of atmospheric particulate matter and sea sediments, Water Science & Technology., Volume 66., No. 5, pp.983-992., (2012. July) ., 査読有り
DOI:10.2166/wst.2012.268

[学会発表] (計 9 件)

- ①. 赤木勇磨, 尾崎則篤, 金田一 智規, 大橋晶良, 日本国内の様々な地域における幹線道路の路面堆積物中 PAHs 含有量とその影響因子, 第 47 回水環境学会年会 (2013.3.11-13), 大阪
- ②. 古米弘明, 尾崎則篤, 中島典之, 和田桂子, 村上道夫, 市街地からの流出負荷量の実態と検討課題, 第 15 回日本水環境学会シンポジウム講演集 pp.58 (2012.9.10) , 佐賀
- ③. 尾崎則篤, 中島和希, 中里聡洋, 金田一 智規, 大橋晶良, TiO₂ を担持した壁面に付着した PAHs の分解と毒性の低減, 第 67 回土木学会全国大会年次学術講演会 (2012, 9.5-7), 名古屋
- ④. 間瀬賢一, 中島和希, 尾崎則篤, 大橋晶良
汚泥のコンポスト化による PAHs 含有量及び環境毒性の変化, 第 46 回水環境学会年会 (2012.3.14-16), 東京
- ⑤. 中島和希, 尾崎則篤, 金田一 智規, 大橋晶良
下水汚泥のコンポスト化における PAHs および毒性の変化と環境負荷量の把握, 第 45 回日本水環境学会年会講演集 (2011.3.18-20), 札幌
- ⑥. 上村浩樹, 尾崎則篤, 金田一 智規, 大橋晶良
土壌表面での多環ムスク類及びトリクロサンの光照射下での消失, 第 45 回日本水環境学会年会講演集 (2011.3.18-20), 札幌
- ⑦. Noriatsu OZAKI
PAHs concentration and toxicity of

atmospheric particulate matters and
sea sediments ., IWA DIPCON2011,
18-23 September,2011 , Rotorua,
NEW ZEALAND

- ⑧. 尾崎則篤、中里聡洋、金田一智規、大橋
晶良
下水汚泥コンポスト化における PAHs
および毒性の変化、第 65 回土木学会全
国大会年次学術講演会 (2010.9.1-2), 札
幌
- ⑨. 中島和希、尾崎則篤、金田一智規、大橋
晶良
TiO₂ を担持した個体表面の PAHS 光分
解で初期 PAHS 量が分解効率に及ぼす
影響
第 62 回土木学会中国支部 研究発表会
発表概要集(2010.5.14-15) 徳山

[その他]
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

尾崎 則篤 (OZAKI NORIATSU)
広島大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号：50294541

(2) 研究分担者

金田一 智規 (KINDAICHI TOMONORI)
広島大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号：10379901

(3) 連携研究者

()

研究者番号：