

ISSN 1346-7328

国総研資料 第263号

平成17年7月

ISSN 0386-5878

土研資料 第3976号

平成17年7月

国土技術政策総合研究所資料

Technical Note of National Institute for Land and Infrastructure Management
No.263 July 2005

土木研究所資料

Technical Note of Public Works Research Institute
No.3976 July 2005

平成16年度下水道関係調査研究年次報告書集

FY2004 Annual Report of Wastewater Management and Water Quality Control

国土交通省 国土技術政策総合研究所

National Institute for Land and Infrastructure Management,
Ministry of Land, Infrastructure and Transport, Japan

独立行政法人 土木研究所

Incorporated Administrative Agency
Public Works Research Institute

平成16年度下水道関係調査研究年次報告書集

国土技術政策総合研究所	下水道研究部	下水道研究室 下水処理研究室
	総合技術政策研究センター 危機管理技術研究センター	建設システム課 水害研究室
土木研究所	材料地盤研究グループ	リサイクルチーム
	水循環研究グループ	水質チーム
	耐震研究グループ	振動チーム
	材料地盤研究グループ	新材料チーム 土質チーム

概要

本報告書集は、平成16年度に国土交通省国土技術政策総合研究所及び独立行政法人土木研究所において実施された下水道に関する調査研究の成果を集約して資料としてとりまとめたものである。

キーワード：下水道、下水処理、高度処理、汚泥、水質浄化、リサイクル

Technical Note of NILIM
No.263 July 2005
Technical Note of PWRI
No.3976 July 2005

FY2004 ANNUAL REPORT OF WASTEWATER MANAGEMENT AND WATER QUALITY CONTROL

WASTEWATER SYSTEM DIVISION
WASTEWATER AND SLUDGE MANAGEMENT DIVISION
of WATER QUALITY CONTROL DEPARTMENT
CONSTRUCTION SYSTEM DEVELOPMENT DIVISION
of RESEARCH CENTER FOR LAND AND CONSTRUCTION MANAGEMENT
FLOOD DISASTER PREVENTION DIVISION
of RESEARCH CENTER FOR DISASTER RISK MANAGEMENT
NATIONAL INSTITUTE FOR LAND AND INFRASTRUCTURE MANAGEMENT,
MINISTRY OF LAND, INFRASTRUCTURE AND TRANSPORT, JAPAN

RECYCLING RESEARCH TEAM
of MATERIAL AND GEOTECHNICAL ENGINEERING RESEARCH GROUP

WATER QUALITY RESEARCH TEAM
of WATER ENVIRONMENT RESEARCH GROUP

GROUND VIBRATION RESEARCH TEAM
of EARTHQUAKE DISASTER PREVENTION RESEARCH GROUP

ADVANCED MATERIALS RESEARCH TEAM
SOIL MECHANICS RESEARCH TEAM
of MATERIAL AND GEOTECHNICAL ENGINEERING RESEARCH GROUP

INCORPORATED ADMINISTRATIVE AGENCY PUBLIC WORKS RESEARCH INSTITUTE

Synopsis

This Annual Report introduces researches on wastewater system, wastewater treatment, advanced wastewater treatment, wastewater sludge and water quality control carried out in Fiscal 2004 by National Institute Land and Infrastructure Management, Ministry of Land, Infrastructure and Transport, Japan and Incorporated Administrative Agency Public Works Research Institute.

Key words: wastewater system, wastewater treatment, advanced wastewater treatment, wastewater sludge, water quality control, recycling

序 文

本報告書集は平成16年度に国土交通省国土技術政策総合研究所（国総研）及び独立行政法人土木研究所（土研）により実施した下水道関連の調査研究の成果をとりまとめたものであり、全47編の報告書から構成されています。

国総研では主として下水道研究部の下水道研究室と下水処理研究室が担当し、総合技術政策研究センターの建設システム課、危機管理技術研究センターの水害研究室の協力を得ています。土研では主として材料地盤研究グループのリサイクルチームと水循環研究グループの水質チームが担当し、材料地盤研究グループの新材料チームと土質チーム及び耐震研究グループの振動チームの協力を得ています。

平成16年度に国総研で行った調査研究は22課題で、予算費目は下水道事業調査費、技術研究開発調査費、政府開発援助試験研究費、試験研究費、地球環境保全等試験研究費、などです。また土研で行った調査研究は25課題で、予算費目は運営費交付金、受託業務費などです。

国総研分と土研分を合わせて47課題のうち平成16年度に終了したものは以下の12課題です。

①社会資本形成における下水道投資戦略に関する調査（下水道研究室；下水道事業調査費）、②発展途上国に適した低コスト型新下水道システムの開発に関する研究（下水道研究室；開発途上国関連技術研究経費）、③自然共生型国土基盤整備技術の開発（下水道研究室；技術研究開発調査費）、④厨芥の管渠内流送特性に関する研究（下水道研究室；試験研究費）、⑤生ごみ等有機系廃棄物最適処理による環境負荷低減技術に関する研究（下水道研究室；試験研究費）、⑥下水処理水再利用システムの技術基準に関する調査（下水処理研究室；下水道事業調査費）、⑦下水道システムのLCA評価に関する調査（下水処理研究室；下水道事業調査費）、⑧下水高度処理の評価手法に関する調査（下水処理研究室；下水道事業調査費）、⑨下水処理水の安全性に関わる技術基準に関する調査（下水処理研究室；下水道事業調査費）、⑩下水放流水による水辺利用地域の衛生学的指標に関する研究（下水処理研究室；試験研究費）、⑪水環境再生技術の開発に関する研究（下水処理研究室；技術研究開発調査費）、⑫下水道施設への新素材の活用技術に関する調査（新材料チーム；下水道事業調査費）

また平成16年度から新たに開始した課題は以下の11課題です。

①最適都市雨水対策確立手法に関する調査（下水道研究室；下水道事業調査費）、②ディスポーザー対応型下水道の技術評価に関する調査（下水道研究室；下水道事業調査費）、③GISを活用した流域汚濁負荷情報データベースの構築に関する調査（下水道研究室；下水道事業調査費）、④下水道施設の変形量を考慮した液状化対策工の設計法に関する試験調査（下水道研究室；下水道事業調査費）、⑤雨水時における路面排水負荷対策に関する調査（下水道研究室；下水道事業調査費）、⑥土壌・地下水汚染が水域に及ぼす影響に関する研究（下水処理研究室；試験研究費）、⑦下水汚泥焼却灰の無機質特性に着目した有効利用方法に関する調査（リサイクルチーム；下水道事業調査費）、⑧水環境中における薬剤耐性菌の実態に関する研究（リサイクルチーム；運営費交付金）、⑨都市部からの栄養塩移動による沿岸海域環境への影響検討調査（水質チーム；調査調整費）、⑩下水道管渠の合理的維持・補修のための作用土圧の評価に関する調査（土質チーム；下水道事業調査費）、⑪下水道施設の変形量を考慮した液状化対策工の設計法に関する試験調査（振動チーム；下水道事業調査費）

研究成果の活用については、平成16年10月の中越地震において「管路施設の本復旧にあたっての技術的緊急提言」の取りまとめに国総研下水道研究室と土研振動チームのこれまでの成果が大いに貢献しているほか、16年度に取りまとめられた「下水処理水の再利用水質基準案等マニュアル」や「ディスポーザ普及時の影響判定の考え方」、「下水汚泥溶融スラグ骨材の標準化」などに各研究室及びチームの成果が反映されています。国総研と土研では行政のニーズに対応するとともに、国民の視点に立った調査研究を進めていきたいと考えています。これからも引き続きご指導をいただければ幸いです。

平成17年7月

国土技術政策総合研究所下水道研究部長 酒井 憲司

目 次

頁

序文

I. 下水道事業調査費による研究

1. 社会資本形成における下水道投資戦略に関する調査	(下水道研究室)	1
2. 最適都市雨水対策確立手法に関する調査	(下水道研究室)	5
3. ディスポーザー対応型下水道の技術評価に関する調査	(下水道研究室)	9
4. GISを活用した流域汚濁負荷情報データベースの構築に関する調査	(下水道研究室)	15
5. 下水道施設の変形量を考慮した液状化対策工の設計法に関する試験調査	(下水道研究室)	19
6. 雨水時における路面排水負荷対策に関する調査	(下水道研究室)	21
7. 下水処理水再利用システムの技術基準に関する調査	(下水処理研究室)	25
8. 下水道システムのLCA評価に関する調査	(下水処理研究室)	29
9. 下水高度処理の評価手法に関する調査	(下水処理研究室)	33
10. 下水処理水の安全性に関わる技術基準に関する調査	(下水処理研究室)	39
11. 下水汚泥中内分泌かく乱物質の汚泥処理過程および土壌環境中での挙動に関する調査	(リサイクルチーム)	45
12. 下水汚泥を活用した有機質廃材の資源化・リサイクル技術に関する調査	(リサイクルチーム)	51
13. 下水汚泥焼却灰の無機質特性に着目した有効利用方法に関する調査	(リサイクルチーム)	59
14. 下水道における微量化学物質の評価に関する調査	(水質チーム)	65
15. 下水道による水環境への影響に関する調査	(水質チーム)	73
16. 下水道事業の設計積算の効率化のための体系化に関する調査	(建設システム課)	79
17. 都市域における流出・氾濫モデルの開発に関する調査	(水害研究室)	83
18. 下水道施設への新素材の活用技術に関する調査	(新材料チーム)	89
19. 下水道管渠の合理的維持・補修のための作用土圧の評価に関する調査	(土質チーム)	95
20. 下水道施設の変形量を考慮した液状化対策工の設計法に関する試験調査	(振動チーム)	101

II. その他の予算による研究

[下水道研究室]

1. 発展途上国に適した低コスト型新下水道システムの開発に関する研究	(分担: 下水処理研究室)	105
2. 水循環・物質循環変動による影響評価技術の開発に関する調査		111
3. 厨芥の管渠内流送特性に関する研究		119
4. 生ごみ等有機系廃棄物最適処理による環境負荷低減技術に関する研究		121

[下水処理研究室]

1. 下水放流水による水辺利用地域の衛生学的指標に関する研究		123
2. 水環境再生技術の開発に関する研究		129
3. 生態系の観点から見た下水再生システムのあり方に関する研究		137
4. 河川等環境中における化学物質リスクの評価に関する研究		145
5. 人口急増地域の持続的な流域水政策シナリオ ガンジス川流域における水質保全対策の評価		153
6. 土壌・地下水汚染が水域に及ぼす影響に関する研究		157

[リサイクルチーム]

1. 病原性微生物の同定方法および挙動に関する研究	161
2. 下水処理水再利用のための残存物質の高度除去手法に関する研究	167
3. 底泥中の有機性有害物質の実態および挙動に関する研究	175
4. 草木廃材の緑化資材としての有効利用技術に関する研究	183
5. アジアモンスーン地域の下水処理施設における病原微生物の消長に関する研究	189
6. 水環境中における薬剤耐性菌の実態に関する研究	193

[水質チーム]

1. 水生生態系から見た河川水質の評価に関する調査	199
2. 底泥-水間の物質移動に関する調査	209
3. 都市排水由来の化学物質の水環境中での挙動に関する研究	217
4. バイオアッセイによるエストロゲン様物質の指標に関する研究	229
5. 水環境の評価に関する調査	235
6. 都市排水に含まれるエストロゲン様物質が魚類に及ぼす影響と指標化に関する研究	243
7. 遺伝子解析手法を用いた環境ストレスの検出技術に関する基礎的研究	253
8. 河川水質浄化事業の評価と改善に関する調査	257
9. 河川底質ダイオキシン類対策におけるモニタリング技術の実用化研究	261
10. 水環境中の化学物質が及ぼす生態影響に関する研究	265
11. 都市部からの栄養塩移動による沿岸海域環境への影響検討調査	271

付録

付録1. 平成16年度 下水道関係刊行報告書一覧	275
付録2. 平成17年度 下水道関係調査研究課題表（国土技術政策総合研究所）	279
付録3. 平成17年度 下水道関係調査研究課題表（土木研究所）	280

I. 下水道事業調査費による研究

1. 社会資本形成における下水道投資戦略に関する調査

下水道研究室 室 長 藤生 和也
研 究 官 吉田 敏章

1 研究の目的

閉鎖性水域におけるCODの環境基準の達成率は、東京湾で 68%、伊勢湾で 56%、瀬戸内海で 74%、湖沼で 45.8%と低い状況にあり¹⁾、公共用水域の水質改善は、今後の下水道事業の大きな目的の一つである。さらに、環境ホルモンなど微量化学物質への対応、生態系の保全等の新たな要求も生じている。しかし、高度処理の導入等の多額の事業費が必要となるため、水質改善レベルについて費用を負担する地域住民の合意形成が必要となる。そこで、望ましい水質改善レベルの決定においては、水質改善便益と事業費とを比較する費用効果分析の適用が有効と考えられる。

下水道事業による公共用水域の水質改善効果は、利水やレクリエーション等の利用価値、生態系保全等の直接的利用を伴わない非利用価値に分類される。非利用価値を含めた水質改善効果の経済評価方法として仮想評価法（CVM: Contingent Valuation Method）があり、下水道事業の便益計測手法として位置づけられているが²⁾、その適用事例は多くはなく汎用的な適用手法の確立が求められる。一方、米国では水浄化法（CWA: Clean Water Act）による水質改善効果の経済評価のために全米 61 か所でCVM調査を行い³⁾、その結果得られた支払意思額（WTP: Willingness To Pay）の原単位を全国に適用するという便益移転の手法が採用されている。我が国においても、便益移転の適用により公共用水域の水質改善効果の汎用的な経済評価が可能となるが、確立された便益移転手法は存在しない。そこで、本調査は、我が国における便益移転手法を検討し、公共用水域の水質改善効果の汎用的な経済評価手法を提示することを目的とする。

本年度は、過年度における便益移転手法のレビュー、望ましい水質改善レベルと地域・個人属性との関係の検討及び便益移転に関するケーススタディ^{4)、5)}を踏まえ、便益移転手法の一事例としてCVM調査を実施した。

2 調査方法

2.1 調査対象

便益移転関数への適用の観点から、候補地点の選定条件を明らかにした上で、本調査の対象地域として、茨城県境町を選定した。そして、対象地域において公共用水域の保全に対する、地域住民の支払い意思額を尋ねるための仮想評価法のアンケート調査票の作成を行った。アンケート調査票の設計にあたっては、評価対象の水環境について住民に理解されやすい情報を示し、支払い形態に対する抵抗回答などの不適切な回答を極力減らすように留意した。

2.2 調査手法

調査票を用いて、郵送アンケートを実施した。発送数は、対象地域の住民基本台帳より無作為に抽出した 1500 人ある。この際には、回収率の向上を図るため、 $\times$ 切前後に督促状の送付（および調査協力の御礼）を行った。このアンケートで得られた回答を基に、対象地域における水環境の改善に対する支払意思額などの算出を行った。

3 調査結果

回収数は 402 通であり、27%の回収率であった。

境町の水環境の改善に対する W T P を算出・分析する前に、回答の中から W T P の算出・分析に用いるデータとして適さないサンプルを排除するとともに、整備したデータの提示額に対する賛否の状況等の集計を行った。

【抵抗回答等の排除】

アンケート調査で得られた W T P 回答を用いて W T P 関数を推計し、W T P 値（中央値、平均値）を求めるが、推計の際に抵抗回答や辞書式選考などを排除する必要がある。

【抵抗回答の排除】

提示金額ではなく、負担方法や負担すること自体に異議を唱える回答については、これを除外する必要がある。本調査で、二段階の提示額に対して、ともに「反対する」とした回答者に対して、その理由を聞いている（選択肢）。ここで抵抗回答と見なされるサンプルの回答を除外することとした。具体的には、選択肢設問で「既に下水道につないでおり接続料や下水道料金で負担していると」回答した人（35人）と、「その他」の記述内容で抵抗回答と判断した人（19人）である。

【辞書式選考の排除】

辞書式選考とは、対象となる財を何よりも選好するというもので、この場合、回答者はどのような提示額でも「賛成」と回答するため、これを排除しなければ W T P は過大となる。本調査の二段階の提示額に対して、ともに「賛成する」とした回答者に対して、その理由を聞いている。このうち「とにかく実施してほしい」に○をした回答者は、境町の水環境改善に辞書式選考を持っていると考えられる。そこでこの12名の回答を除外することとした。

以上、排除件数は延べ148人であるが、一部重複があるので、排除件数は147人分で、W T P の計算に用いるデータは255人分（402人-147人）となった。なお、本件では提示額への賛否は一人あたり2回尋ねているが、直接には尋ねていないもう一つの W T P 設問にも、実質的には回答していると思なせる。例えば最初の提示額が1000円で yes を選択した場合、次は提示額2000円に対しての回答が求められるが、no を選択した場合に回答が求められる提示額500円は回答を求めている。しかしながら、この提示額500円に対しては、回答しなくても yes と回答したと思なせる。反対に1000円に対して no を選択した場合、次に提示額500円に対しての回答を求めているが、yes の場合に回答が求められる提示額2000円には、回答しなくても no と回答したと思なせる。

したがって、W T P データとしては、一人あたり3件が使用可能である。したがって255人×3件/人＝765件となるが、二回目の W T P 設問に無回答の人が3名いたため、利用可能なデータ数は762件である。この結果、 1 の受諾率曲線が得られた。

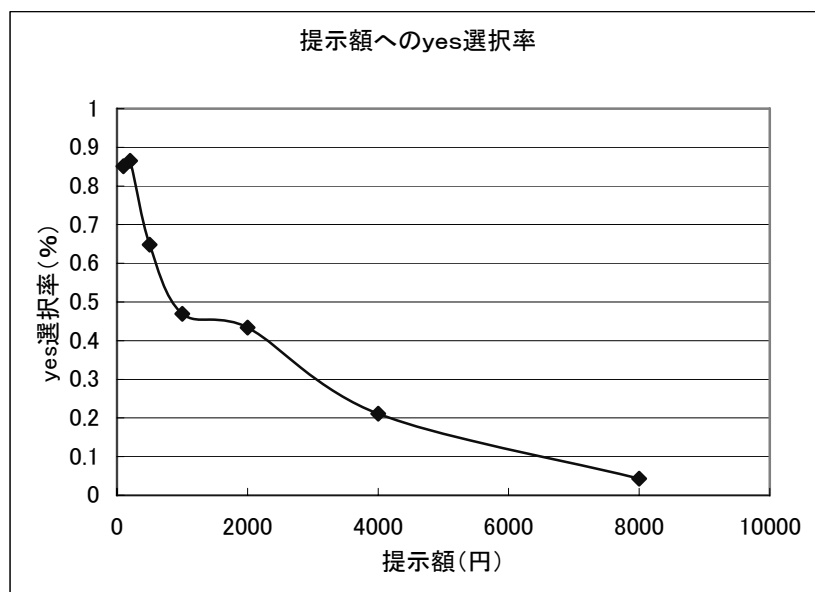


図 1 提示額に対する受諾率

WTP の推定には、ロジットモデルの適用を想定するランダム効用モデルを適用して分析を行った。受諾率の関数（累積分布関数）は、対数ロジスティック分布を仮定した上で、最尤推定法によりパラメタの推定を行う。推定式は、式(1)のとおりである。

$$\Pr(\text{yes}) = \frac{1}{1 + \exp(-C - \gamma \cdot \text{PAY})} \dots\dots\dots (1)$$

(ここで、 $\Pr(\text{yes})$ ：提示額(PAY)に yes と回答する確率、 C 及び γ ：パラメタ)

WTPの中央値は、式(1)で $\Pr(\text{yes})=0.5$ とおくことにより推定することができ、平均値 WTP_{mean} は理論的に式(2)により求めることができる。

$$WTP_{\text{mean}} = \int_0^{\infty} t d \Pr(t) = - \int_0^{\infty} t \Pr'(t) dt = - [t d \Pr(t)]_0^{\infty} + \int_0^{\infty} \Pr(t) dt \dots\dots\dots (2)$$

WTP の推計結果を表 1 に示す。

表 1 WTP の推計結果

		茨城県境町全域 係数 (t値)	
定数項	C	1.05083	-9.04765
提示額	PAY	0.000643	9.40171
サンプル数		762	
対数ゆう度		-449.782	
適合度		0.674541	
WTP(中央値)		1,633	
WTP(平均値)		2,109	

W T P 設問の提示額に対する賛成への回答割合を図 2 に示す。ほぼ全ての回答者の W T P をある特定の範囲（今回の提示額 100 円～8000 円）の範囲に抑えることができたことを確認できたといえる。

W T P（中央値）は 1,633 円/月・世帯、W T P（平均値）は 2,109 円/月・世帯であった。なお、W T P（平均値）算出の際の、切断値は 15,000 円/月・世帯を用いたが、これは図 2 で示すように、安全側を見越した適切な切断値であるといえる。

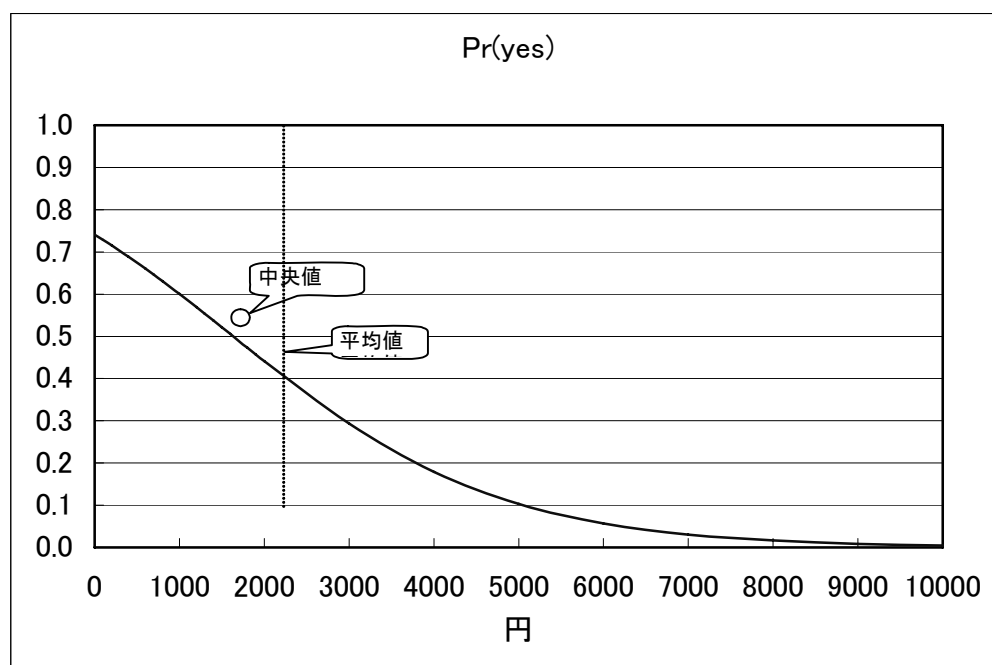


図 2 W T P の推計結果（境町の水環境保全に対する W T P）

参考文献

- 1) 環境省：平成 13 年環境白書
- 2) 社団法人日本下水道協会『下水道事業における費用効果分析マニュアル（案）』平成 10 年 3 月
- 3) Office of Water, U.S. Environmental Protection Agency: A Benefits Assessment of Water Pollution Control Program Since 1972: Part 1, The Benefits of Point Source Controls for Conventional Pollutants in Rivers and Streams Final Report, January 2000
- 4) 藤生和也、吉田敏章、山縣弘樹「社会資本における下水道投資戦略に関する調査」、『平成 14 年度下水道関係調査研究年次報告書集』
- 5) 藤生和也、吉田敏章、山縣弘樹「社会資本における下水道投資戦略に関する調査」、『平成 15 年度下水道関係調査研究年次報告書集』

2. 最適都市雨水対策確立手法に関する調査

下水道研究室 室 長 藤生和也

主任研究官 管谷悌治

交流研究員 岡本辰生

1. はじめに

都市型水害の頻発を背景に、新たに「特定都市河川浸水被害対策法」が制定され、下水道と河川が緊密な連携を図りつつ都市雨水対策を推進するとともに、貯留浸透施設などを流域全体で整備していくことが求められている。しかし、これまでは必ずしも下水道と河川の両者が一体となった計画策定や施設の運転管理は行われていないことから、具体的な調整方法を検討してゆくことが求められている。

現在調整が求められている事項の一つに河川を排水先とするポンプ施設の運転調整がある。運転調整とは、洪水時に河川の水位が危険な高さまで上昇した場合、堤防の決壊等を避けるために行う排水制限のことである。運転調整を実施した場合、河川の負担を軽減することができるが、そのトレードオフとして内水による浸水が発生する。河川流量に占めるポンプ排水量の割合が高い場合には、ポンプの運転方法が地域の浸水被害に与える影響が大きく、適切な運転方法の策定がより重要となる。

本研究では、仮想流域における流出解析を行い、ポンプ運転調整方法が浸水被害に与える影響を試算することにより、河川増水時のポンプ運転方法の最適化について基礎的な検討を行った。

2. 検討方法

2.1 解析モデル

本研究では、河川と下水道が相互に影響する非定常的な解析を行うことから、流出解析モデル活用マニュアル¹⁾で挙げられている一体解析が可能な流出解析モデルの一つであるInfoWorksを用いた。

2.2 仮想流域の諸元

仮想流域は、以下の点を勘案し、図-1、図-2に示すような諸元を設定した。

- ①現象特性把握の容易性を考慮し、単純なモデルとする。
- ②河川沿線複数のポンプ施設の運転による相互の影響を検討できるよう、河川の上・中・下流部にポンプ施設を配置し、各々の流域諸元は全ての流域で統一する。
- ③ポンプ運転停止時にポンプ井 H. W. L. を超えた雨水は調整池に越流するようポンプ場流入部に調整池をモデル化し、内水域での浸水量は、代替的に調整池湛水量で評価する。
- ④降雨は K 市の雨水計画に用いられている確率降雨強度式 (1/10) より中央集中型の降雨を作成した。

2.3 運転調整が浸水被害に与える影響の評価方法

浸水被害は、内水由来と外水由来に大別できる。ここで

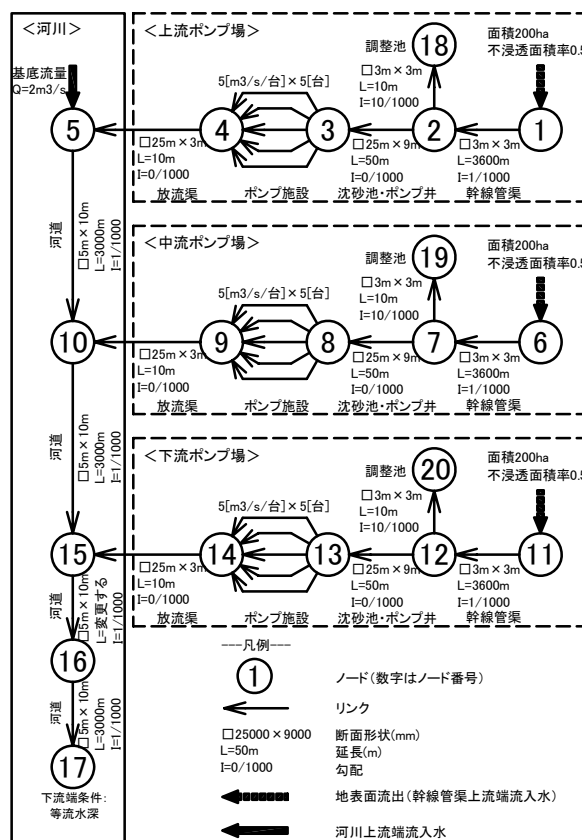


図-1 仮想流域のモデル図(平面図)

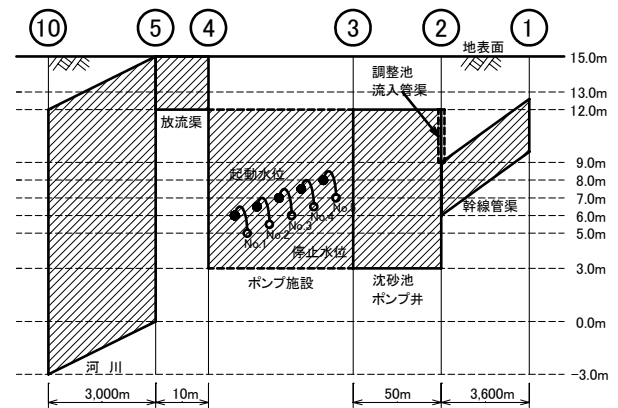
は、運転調整が浸水被害に与える影響について、内水被害と外水被害の二つの観点から評価を行うこととした。内水被害の評価には、内水区域における浸水量（＝調整池湛水量）を用いた。また、外水とは河川の溢水、越水、破堤等によるものであることから、その被害ポテンシャルは河川最大水深（ノード⑤、⑩、⑮、⑯、⑰の水深のピーク値）および基準点最大水深（基準点における水深のピーク値）によって評価した。

2.4 ポンプ施設の運転方法

本研究では、ポンプ施設の運転方法について、表－１に示す８ケースを設定し、それぞれの場合で運転調整が浸水被害に与える影響の相違を検討した。case1-1～1-6に関しては、運転調整の基準となる河川水位の観測地点（以下、基準点）をノード⑯一箇所とした場合、基準点位置（ノード⑮～⑯間の距離）が浸水被害に与える影響を比較することが目的であり、運転停止水深は1.5～3.5mに変化させ検討を行った。case2-1、2-2は、基準点を各ポンプ場の吐口近傍（ノード⑤、⑩、⑮）とした場合に発生する浸水被害について、case1-1～1-6と比較した。

3. 検討結果

解析によって得られた結果のうち代表的なものとして、case1-1、case1-4、case2-1の河川水深およびポンプ排水量の時系列データを図－３～図－８に示す。

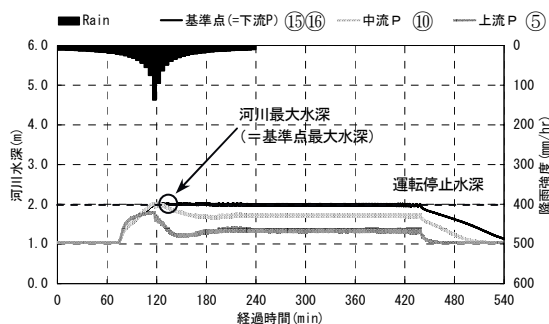


図－２ 仮想流域のモデル図(断面図)

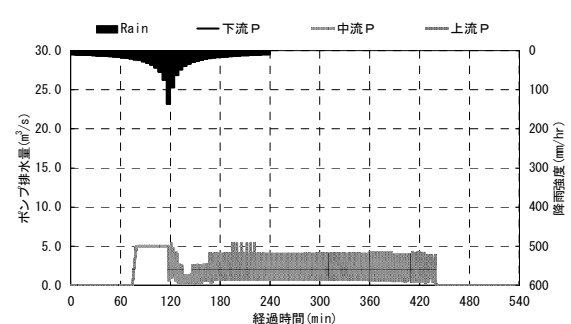
表－１ 排水ポンプの運転方法

運転方法	運転調整の基準となる水位観測地点				運転停止(再開)水深
	上流P	中流P	下流P	概要 ノード⑮～⑯の距離	
case 1-1	⑯	⑯	⑯	0km	
case 1-2				1km	1.5m
case 1-3				2km	2.0m
case 1-4				5km	2.5m
case 1-5				7km	3.0m
case 1-6				10km	3.5m
case 2-1	⑤	⑩	⑮	各ポンプ場の吐口位置の水位によって、それぞれのポンプの運転を独立して停止(再開)する。	上流: 2.2m 中流: 2.2m 下流: 2.2m
case 2-2				0km	上流: 1.6m 中流: 2.0m 下流: 2.2m

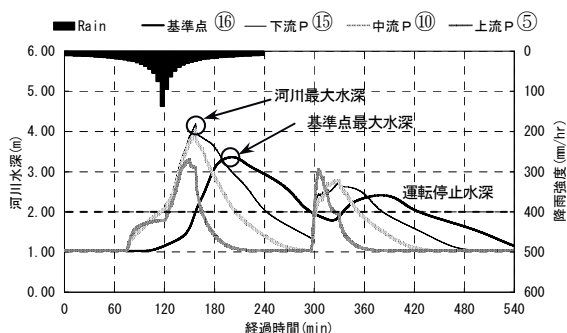
※「P」はポンプ場の略を表す。



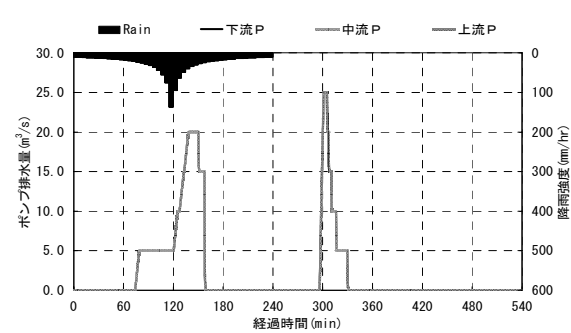
図－３ 河川の水深(case1-1,運転停止水深2.0m)



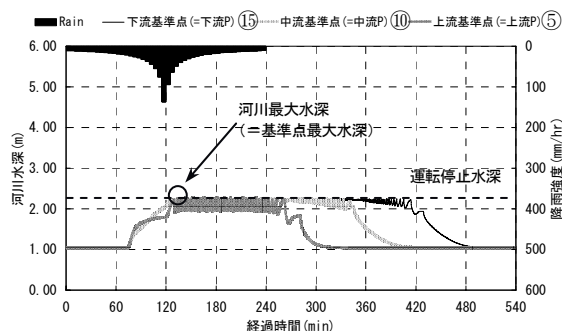
図－４ ポンプ排水量(case1-1,運転停止水深2.0m)



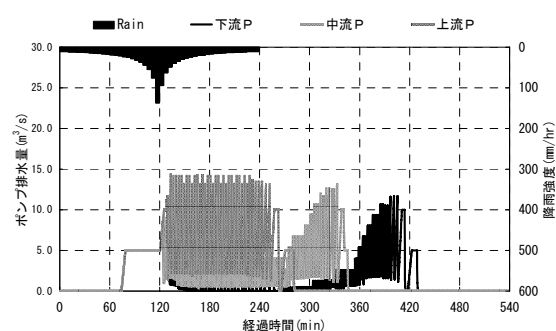
図－５ 河川の水深(case1-4,運転停止水深2.0m)



図－６ ポンプ排水量(case1-4,運転停止水深2.0m)



図ー7 河川の水深(case2-1)



図ー8 ポンプ排水量(case2-1)

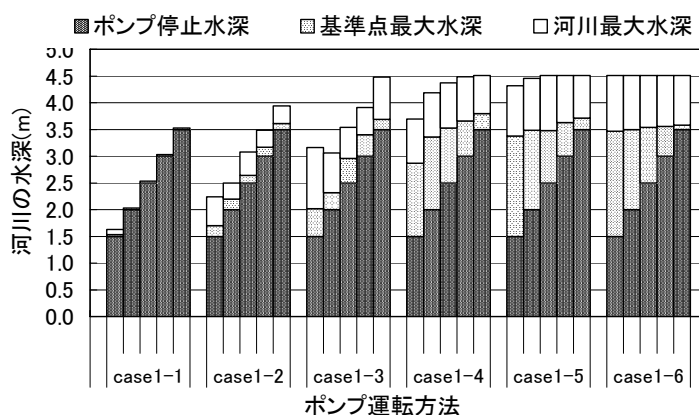
4. 考察

4.1 運転調整が外水被害に与える影響

case1-1 すなわち下流ポンプ場吐口近傍を基準点とした場合、河川最大水深は運転停止水深とほぼ同等であった（図ー3）が、case1-2～1-6 では、基準点最大水深と河川最大水深は運転停止水深よりも大きくなり（図ー5）、ポンプ場と基準点の間の距離が大きくなるとともに、基準点最大水深および河川最大水深と運転停止水深の差は大きくなる傾向を示した（図ー9）。これは、基準点との距離が大きい場合、上流部でのポンプ排水による水位上昇が基準点に到達するまでの時間差が大きくなり、ポンプ運転停止後も水位が上昇し続けるためであると考えられる。case1-6 では、運転停止水深によらず、河川最大水深は同じ 4.51m であった。これは、基準点が遠いため、基準点で運転停止水深に達する前に、洪水のピークが河川に流出したためと考えられる。

case1-1～1-6 では、河川最大水深は下流ポンプ場吐口部（ノード⑮）で記録され、上・中流ポンプ場吐口部（ノード⑤、⑩）の水深はそれ以下となる傾向がみられた（図ー3、図ー5）。一方、case2-1、2-2 では、各ポンプ場吐口部における最大水深は、各々のポンプ停止水深と同等に保たれる結果となった（図ー7）。

以上のことから、一箇所の基準点によって運転調整を行う場合には、基準点をできるだけポンプ場吐口に近い位置に設けることが河川の水位上昇の歯止めにも有効である、すなわち、外水被害軽減に一定の効果を与える可能性が示唆された。また、基準点を各ポンプ場吐口近傍に設けた場合、各地点の最大水位はほぼ運転停止水深で推移することがわかった。



図ー9 基準点位置と河川水位との関係

4.2 運転調整が内水被害に与える影響

ポンプ運転方法が内水被害に与える影響を調べるため、case1-1～2-2 の全ての検討結果から得られた河川最大水深と浸水量の関係をグラフ上にプロットした。同じ河川最大水深では、基準点の位置に近いほど、グラフの左側にプロットされ、浸水量が小さくなる傾向がみられた。すなわち、河川の最大水深を 3.0m に抑えるためには、case1-3 では 85,000～130,000m³ 程度の内水浸水が発生したのに対し、case1-2 では 55,000m³、case1-1 では 35,000m³ に抑えることができた（図ー10）。case1-4～1-6 では、浸水量は最大でも 25,000m³ 程度と小さかったが、これは基準点が遠い場合は、基準点の水深が運転停止水深に達するまでに、内水の大部分が河道に排出されていたため

である。

case2-1、2-2 のプロットは、case1-1 の一連のプロットとほぼ同じ傾向を示した。しかし、case1-1 では、浸水量は全ての流域で同等であったのに対し、case2-1 では上流部では殆ど浸水量は発生していない一方、下流部にいくにつれて浸水量が増大する結果となった（図-11）。これは、case1-1～1-6 では一箇所の基準点における水位によって全てのポンプを一斉に停止（再開）したため、ポンプ排水量は全ての流域で等しくなったものの（図-4、図-6）、case2-1 では、基準点を各ポンプ場吐口近傍とし、かつ運転停止水深を等しくしたため、上流部では優先的に排水される一方、上流部の排水量を背負う下流部では、排水できない時間帯が長くなり（図-8）、結果として、浸水量が大きくなったためである。上流のポンプ場ほど運転停止水深を小さくした case2-2 では、各流域において浸水量に目立った不均衡はみられなかった。このことから、基準点を各ポンプ場の吐口近傍に設ける場合は、運転停止水深の設定方法によって、地域による浸水量のバランスを調節できる可能性が示唆された。

5. まとめ

仮想流域を対象とした検討によって、以下の結論が得られた。

- 1) 運転調整の基準となる水位観測地点の位置や、運転停止（再開）水位の設定方法の違いによって、浸水の量や発生位置は大きく異なることがわかった。
- 2) ポンプ場下流側の一箇所の水位に基づき運転調整を行う場合には、基準点位置がポンプ場に近いほど、運転停止後の河川水位の上昇量、内水浸水量ともに小さく抑えることができることが示唆された。
- 3) 各ポンプ場の地先水位に基づき運転調整を行う場合、河川の最大水位はほぼポンプ運転停止水位に等しくなることがわかった。
- 4) ポンプ場下流側の一箇所の水位に基づき運転調整を行う場合は、全ての流域において内水浸水量は等しくなるが、各ポンプ場の地先水位に基づき運転調整を行う場合は、運転停止（再開）水位の設定方法によって浸水の発生位置が大きく異なることがわかった。

今回の検討は、非常に単純な仮想のモデル流域を対象としたが、今回得られた知見の実流域での適用性の検討は今後の課題である。

<参考文献>

- 1) 流出解析モデル利活用マニュアル，（財）下水道新技術推進機構，2003

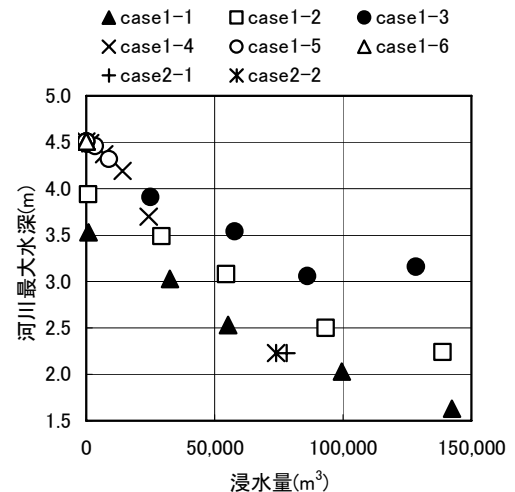


図-10 基準点位置による浸水量と河川最大水深の関係

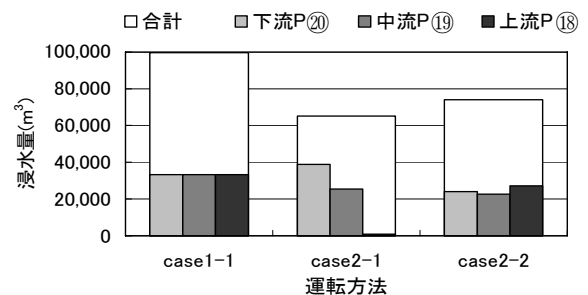


図-11 運転方法による浸水量の分布の違い

3. ディスポーザー対応型下水道の技術評価に関する研究

下水道研究室 室 長 藤生 和也
研 究 官 吉田 綾子
研 究 官 行方 馨

1 はじめに

直投型ディスポーザー（以下、ディスポーザー）の導入は、厨芥を効率的に回収し、既存の下水道システムで水処理する新たな厨芥の処理方法の一つと考えられる。しかし、直投型ディスポーザーを設置した場合、これまでの生活排水に厨芥が混入することとなるため、下水処理場への負荷増大、下水管渠内の堆積物の増加など排水を受け入れる下水道システムへの影響が懸念される。国土交通省では、このディスポーザーの導入による影響評価について北海道枝幸郡歌登町をモデル地域とした「ディスポーザー導入社会実験」を平成 12 年度から平成 15 年度の 4 年間実施してきた。この社会実験では、ディスポーザー導入による下水道システムやごみ処理システムへの影響を現地にて調査検討するとともに、地域全体の経済、環境への影響を費用効果分析、LCA 等を用いて総合的に評価する手法の確立に取り組んでいる。本研究では、この社会実験で得られた知見を整理し、さらに、ディスポーザー対応型の下水道施設の在り方を検討することを目的に、ディスポーザー排水の流入による下水道施設および維持管理方法への影響評価を行った。

平成 16 年度は、社会実験の追加調査として、歌登町内のホテル厨房におけるディスポーザー排水の汚濁負荷原単位に関する調査、2) 管渠内堆積物の性状調査、3) 管渠内の硫化水素発生に関する調査を実施した。なお、2) 3) については、歌登町以外の地域も対象とし調査を行っている。

2 ホテル厨房からのディスポーザー排水の汚濁負荷原単位に関する調査

歌登町には、市街から 7km 離れた地区に温泉付きホテルがあり、このホテル厨房では、平成 11 年度からディスポーザーの設置はなされていたが、ディスポーザー処理には手間が掛かるとしてこれまでほとんど使用されていなかった。しかし、平成 15 年度より厨芥を可燃ごみから分別して回収する厨芥の分別収集（広域のごみ処理システムでは、平成 15 年度より厨芥は汚泥再生処理センターで資源化されることとなったため）が開始されることが決まったことから、厨芥の分別廃棄の代替としてディスポーザーを使用したいという要望が上がった。厨芥の分別収集では、厨芥の回収に生分解性の専用ビニル袋を使うことが義務づけられており、生分解性のビニル袋は、通常のビニル袋より破れやすく価格が割高であるため、大量に厨芥を廃棄するホテル厨房では、作業効率、コスト面での負担が大きいと予想されたためである。この様な状況から、平成 15 年 4 月よりディスポーザーを厨房での厨芥処理方法として本格的に使用する試みが始まった。なお、設置されているディスポーザーは、業務用ディスポーザー（SS100-441HP 100V50-60Hz）である。

そこで、平成 16 年度はホテル厨房におけるディスポーザー排水の汚濁負荷原単位を把握するために、ディスポーザー投入厨芥量およびディスポーザー排水の水質転換率に関する調査を実施した。

【ディスポーザー投入厨芥量】

ディスポーザー投入厨芥量を把握するために、(1) 厨房の職員を対象としたアンケート調査、(2) 厨房のごみ量・ごみ質調査を実施した。アンケート調査では、ディスポーザー使用時刻、投入厨芥量、分別生ごみ廃棄量を 1 週間記録して頂いた。ごみ量・ごみ質調査では、ディスポーザー投入厨芥量、分別生ごみ、可燃ごみに含まれる厨芥量を実測している。(1) (2) の調査結果とレストラン利用者人数およびホテル宿泊者人数から算出した観光人口、食事回数を用いて、グリーンパークホテルにおける 1 食あたりのディスポーザー投入厨芥量を推定した。

（１） ディスポーザー使用状況に関するアンケート調査

事前調査として、ディスポーザー使用状況について厨房職員より聞き取り調査を行った結果、厨房では調理中にはディスポーザーを使用せず、厨芥を一時シンク内に溜め作業の少ない時間帯にまとめてディスポーザーで処理していることがわかった。そこで、アンケート調査では、ディスポーザー使用開始前にシンク容量の「何割程度まで厨芥が溜まっていたか」を厨房職員に記入してもらい、アンケート回収後、シンクの容量および厨芥のみかけ比重から、投入厨芥量に換算した。厨芥の重量換算は、シンクの大きさ(72L)38cm×70cm×27cm、厨芥のみかけ比重は文献値※から、0.55とし換算した。（シンク１杯の場合、39.6kgと換算）

ディスポーザー投入厨芥量は、平成15年8月は66.1kg/日(16kg/回)、平成16年8月は52kg/日(13.5kg/回)であった。また、利用者数が少ない1月は30.4kg/日(9.0kg/回)であった。なお、ディスポーザーを使用しているにも係わらず、毎日分別厨芥の袋(1.5L容)に1～2袋の厨芥が排出されていることが確認された。

ディスポーザーの使用時刻は、いずれの調査でも午前中：9時～10時、午後：14時～15時、夜：20時～21時であり、使用回数は4回程度であることがわかった。

※矢込堅太郎・大野茂・武藤暢夫・上野武・久保哲治郎、粉砕厨芥の処理（Ⅰ）、水道協会雑誌、339：82-89（1962）

（２） 厨房のごみ量・ごみ質調査

アンケート調査の結果から、厨房ではディスポーザー使用時にも「分別生ごみ」として厨芥が廃棄されていることが確認されており、厨房から廃棄される厨芥は、ディスポーザーに投入される厨芥、分別生ごみとして廃棄される厨芥、可燃ごみに混入している厨芥の3種類あると考えられる。そこで、本調査では、「ディスポーザー投入厨芥」、「分別生ごみ」、「可燃ごみ混入厨芥」を1週間毎日回収し、重量を測定した。調査は、平成16年11月～平成17年1月までに3回それぞれ1週間実施した。調査結果を表1に示す。

表１ ホテル厨房におけるごみ量・ごみ質調査結果

調査項目			H16年11月	H16年12月	H17年1月	平均
可燃ごみ量			9.8	9.1	7.7	8.8
厨芥量			38.8	30.3	17.8	29.0
可燃ごみ混入厨芥量			0.6	0.6	0.5	0.6
分別生ごみ量			2.8	0.7	0.4	1.3
D P 投入 厨 芥 量	朝	(kg/日)	9.4	9.3	7.0	8.6
	昼		15.7	6.2	5.0	9.0
	夜		10.3	13.5	5.2	9.7
	1日		35.4	29.0	17.2	27.2
	投入率	(%)	90.3	94.6	95.9	93.6

ディスポーザー投入厨芥量は、11月は16.0～65.9kg/日（平均35.4kg/日）、12月は11.2～58.2kg/日（平均29.0kg/日）、1月は11～37kg/日（平均17.2kg/日）であり、全3回調査の平均27.2kg/日であった。さらに、ディスポーザーへの投入率は、11月は平均90.3%、12月94.5%、1月95.9%であり、平均94%と高い値であった。

（３） ディスポーザー投入厨芥量と食事数との関係

事業所厨房で発生する厨芥は、一般家庭で発生する厨芥と質・量ともに異なると考えられる。また、ホテル内の厨房での厨芥発生量は、顧客数の季節変動による影響が多いことが予想される。一般に、事業系厨芥の原単位は、従業者数や延べ床面積あたりの厨芥量で整理されているが、ここでは、提供される食事数1食あたりの厨芥量を求めることとした。

平成 15 年度の日平均観光人口は 79 人/日（宿泊：41 人/日、日帰り：37 人/日）、食事数は 119 食/日であった。また、月別の観光人口をみると、7～8 月の観光人口は 130 人/日程度、食事数は 180 食/日以上であり、8 月は 132 人/日、199 食/日と最も多かった。一方、冬場の観光人口は少なく、1～4 月は 50 人/日以下、食事数は 80 食以下であった。

アンケート調査における 1 食あたりのディスポーザー投入厨芥量について、調査期間中の平均値を表 2 に示す。観光人口の多い 8 月では 1 日 80～90kg の厨芥がディスポーザーに投入され、1 食あたりの原単位では約 400～600g/食と推定された。また、観光人口の少ない 1 月の場合、ディスポーザー投入厨芥量は 41kg と 8 月の半量程度であるが、1 食あたりの原単位では 1,394g/食と試算され、食事数（観光人口）の少ない場合、1 食あたりの原単位は多くなる傾向がみられた。

表 2 ディスポーザー投入厨芥量の原単位（アンケート調査）

調査時期	観光人口 (人数)	食事 (回数)	ディスポーザー投入厨芥量 (kg/日) (g/食)	
H15年8月	140	224	88.1	393
H16年8月	79	131	79.7	610
H17年1月	12	29	41.0	1,394

ごみ量・ごみ質調査における 1 日あたりの観光人口、食事数、1 食あたりのディスポーザー投入厨芥量について、調査期間中の平均値を表 3 に示す。11 月と 1 月では観光人口が 2.5 倍程度異なるものの、ディスポーザー投入厨芥量はいずれも 36kg と同量であった。また、アンケート調査結果と同様、観光人口の少ない場合 1 食あたりの原単位は多くなる傾向がみられ、観光人口 1 日 10 人以下であった 1 月のディスポーザー投入厨芥量は約 1,200g/食と 350～450g 程度であった 11 月、12 月に比べて高い値を示した。平成 15 年度の日平均観光人口 79 人に最も近い 11 月の調査結果では、ディスポーザー投入厨芥量は 35.6kg/日、1 食あたりのディスポーザー投入厨芥量は 338g/人・日であった。

表 3 ディスポーザー投入厨芥量の原単位（ごみ量・ごみ質調査）

調査時期	観光人口 (人数)	食事 (回数)	可燃ごみ量 (kg/日) (g/食)		厨芥量 (kg/日) (g/食)		分別生ごみ量 (kg/日) (g/食)		ディスポーザー投入厨芥量 (kg/日) (g/食)	
H16年11月	81	118	9.8	93	38.9	361	2.8	19	35.6	338
H16年12月	49	80	9.1	135	30.3	476	0.7	16	29.0	450
H17年 1月	8	32	7.7	285	38.9	1,372	2.8	109	35.6	1,246

【ディスポーザー排水の水質転換率】

調査は、平成 16 年 11 月～平成 17 年 1 月までに 3 回、それぞれ 1 週間実施した。ディスポーザーは、概ね朝、昼、夜の調理および後かたづけの終了後にまとめて利用していることがアンケート調査の結果から明らかになっている。そこで、厨房職員の協力のもと、1 週間ディスポーザーに投入する予定の厨芥を朝、昼、夜それぞれポリバケツで保管してもらった。ディスポーザー排水は回収した厨芥を 20 kg 取り分け、厨芥と同量の水(20L)を流しながらディスポーザーにて粉碎し、流し台の下に容器を設置して全量回収したものを原液とした。分析には、原液を純水で 50 倍希釈したものを用い、分析項目は、SS、TS、BOD、溶解性BOD（以下DBOD）、ケルダール窒素（以下KN）、溶解性KN（以下DKN）、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-N、全リン（以下TP）、溶解性TP（以下DTP）、Cl⁻、n-Hexとした。分析方法は、下水試験方法に従った。なお、SSは、2mm以上の浮遊物も含み、ガラス繊維ろ紙を用いて 50 倍希釈液をそのまま吸引ろ過したものである。

ホテル厨房から回収した厨芥のディスポーザー排水の水質転換率を表 2 に示す。対照として歌登町の一般家庭から回収した厨芥の水質転換率を示す。

表 2 ホテル厨房の厨芥によるディスポーザー排水の水質転換率

	SS	TS	BOD	DBOD	COD _{Mn}	DCOD _{Mn}	TN	DTN	TP	DTP	Cl-	n-Hex
ホテル	5.6	12.5	13.9	6.5	5.6	3.7	0.47	0.13	0.05	0.04	0.43	1.76
一般家庭	8.2	14.6	11.3	5.7	5.5	2.2	0.73	0.23	0.11	0.08	0.33	1.75

ホテル厨房から回収したディスポーザー投入する予定の厨芥について、ディスポーザー排水を作成し、水質分析を行った結果、一般家庭から回収した厨芥の水質転換率と比較して、BOD でやや高い値を示したが、他の項目についてはほぼ同様の値を示した。なお、この結果は、3 回の調査の平均値を示したものであるが、一般家庭を対象に実施した調査に比べて厨芥の組成に大きな相違はなかった。

3 下水管渠への影響調査

【管渠内堆積物に関する性状調査】

歌登町におけるこれまでの管渠調査の結果、ディスポーザー設置地区には主に卵殻が堆積していることがわかっていて。本調査では、堆積物の性状として、強熱減量（IL）、油分（n-Hex 抽出物質：以下 n-Hex）に着目して、ディスポーザー設置地区および未設置地区の比較を行った。ディスポーザー設置地区として A 地区（若葉団地：72 世帯（150 人）中 45 世帯（91 人）にてディスポーザーを設置）より堆積物を採取したが、未設置地区については、平成 15 年以降、歌登町内ではディスポーザーを設置している住宅が町全体に分散している状況にあったため、ディスポーザーの影響のない管渠を選抜することが困難であった。そのため、町勢が歌登町に類似しており、地理的に近い中頓別町から堆積物を採取し分析に供した。なお、中頓別町で堆積物を採取したマンホールは、歌登町の A 地区と同規模の町営団地内にあり、管渠は口径 200mm の VU 管である。さらに、管渠内の堆積物について n-Hex 含有率と強熱減量の既往の分析データは少ないため、茨城県つくば市内の管渠（分流式）内の堆積物についても採取し分析した。表 3 に平成 16 年度の調査結果を示すとともに、これまでの調査結果についても整理した。

表 3 管渠内堆積物の強熱減量および n-Hex 含有率

分析項目	ディスポーザー設置地区					ディスポーザー未設置地区				
	A地区				魚津市	E地区	中頓別町	T市事例 ^{b)}		つくば市
	H14.2	H15.3	H16.7	平均	H14.2	H13.8	H16.7	S61.9		H16.8
強熱減量	7.8	8.7	4.7	7.1	6.8	1.70	2.76	1.7	2.2	3.30
n-Hex	0.10	—	0.15	0.1	—	0.00	0.12	—	—	0.37
n-Hex/IL ^{a)}	1.28	—	3.08	2.2	—	0.18	4.38	—	—	11.33

a) ILは強熱減量を示す。

b) 土木研究所資料、第2699号（1988）

注）表中の単位は％である。

強熱減量はディスポーザーを設置している歌登町 A 地区では平均 7.1％、魚津市では 6.8％であった。一方、ディスポーザー未設置の E 地区は 1.7％、中頓別町で 2.8％と比較的低い値であった。管渠内で堆積している土砂の強熱減量は測定した事例は少ないものの、分流式管渠内の土砂の強熱減量を 2％程度と報告している事例がある。また、茨城県のつくば市内の管渠より採取した土砂についても 2％程度であった。卵殻・貝殻を主体とする堆積物と土砂との強熱減量の差は、有機成分の付着・吸着等の機構が異なることによるものと考えられるが、明確な要因は特定できなかった。

【硫化水素発生に関する調査】

平成 15 年度までの調査では、ディスポーザー排水の流入している管渠を対象に気相中の硫化水素濃度を測定したが、硫化水素の発生が予想された圧送管吐け口やポンプ場手前よりも卵殻等の堆積箇所で硫化水素が確認された。そこで、平成 16 年度は、社会実験の追加調査として、卵殻等の厨芥由来の堆積物と硫化水素発生の関係を把握する目的で、ディスポーザー導入地区内の厨芥由来堆積物が堆積している箇所とディスポーザー未設置地区で土砂等の堆積物がある箇所を選抜し、硫化水素濃度を比較検討した。

平成 16 年 7 月 15 日から硫化水素濃度の測定を開始したが、硫化水素が観測されたのは A 地区 No. 13、および E 地区 No. 12 の 2 箇所であった。E 地区 No. 12、A 地区 No. 11 の調査結果を図 2 に示す。

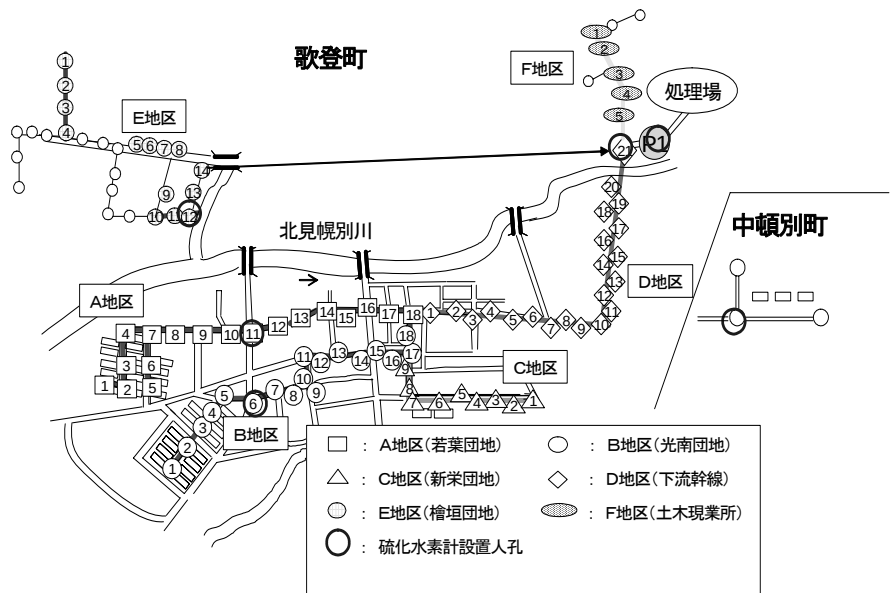
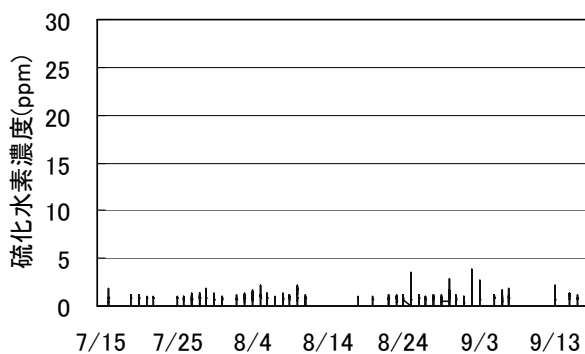
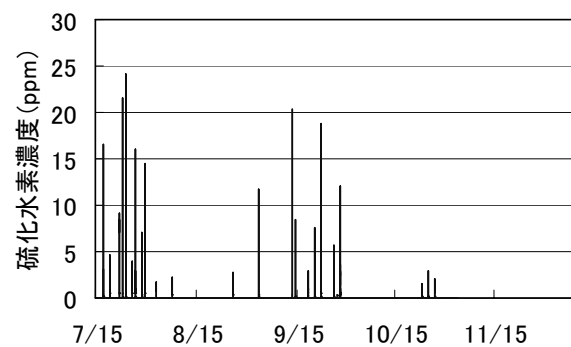


図 1 硫化水素計設置地点（平成 16 年）



ディスポーザー未設置地区（E 地区）



ディスポーザー設置地区（A 地区）

図 2 堆積箇所における硫化水素発生状況

E 地区 No. 12 地点は、ディスポーザーの影響を受けない土砂等の堆積物が確認されており、5ppm 以下の硫化水素が複数回観測された。なお、中頓別町については、土砂が堆積しているものの硫化水素の発生は確認されなかった。また、A 地区 No. 11 地点は、ディスポーザー導入後、卵殻を主体とする堆積物が多く堆積している箇所である。不定期であるが 20ppm 程度の硫化水素が複数回観測された。本調査では、8 月 15 日前後の最も気温が高い時期に硫化水素計の故障によりデータが欠損しているが、比較的気温の高い 7 月～9 月の期間に硫化水素が発生していることが明らかとなった。しかし、気温低下がみられた 11 月以降は、硫化水素発生はみられなくなった。なお、本調査では、管渠内の気温データが得られなかったが、通常、歌登町では 10 月下旬には管渠内の気温が 10℃程度である。

4 まとめ

ディスポーザー対応型下水道の技術評価に関する研究として、平成 16 年度はディスポーザー導入社会実験の追加調査として、歌登町内のホテル厨房におけるディスポーザー排水の汚濁負荷原単位に関する調査、管渠内堆積物の性状調査、管渠内の硫化水素発生に関する調査を実施した。得られた結果を以下に示す。

【ホテル厨房からのディスポーザー排水の汚濁負荷原単位に関する調査】

1) ホテル厨房から廃棄される厨芥は、分別生ごみ・可燃ごみとしても廃棄されているものの、ほとんどはデ

ィスポーザーに投入されており、ディスポーザー投入厨芥率は平均 94%と一般家庭でのディスポーザー投入厨芥率 45%に比べて高いことがわかった。

- 2) 観光人口ピーク時（8 月）に廃棄される厨芥量は、平均時（11 月）の 2 倍量程度であると推定されるが、1 食あたりのごみ量原単位は観光人口の減少時で高くなる傾向があった。
- 3) 平成 15 年度の日平均観光人口 79 人に最も近い 11 月の調査結果では、ディスポーザー投入厨芥量は 35.6kg/日、1 食あたりのディスポーザー投入厨芥量は 338g/人・日であった。

【下水管渠への影響調査】

- 1) 堆積物の強熱減量は、ディスポーザー未設置地区では 2～3%であるのに対し、ディスポーザー設置地区では 5～8%とやや高い値を示した。
- 2) ディスポーザー排水の流入より硫化水素の発生が予想された圧送管吐け口やポンプ場手前のマンホールでは、硫化水素はほとんど観測されなかった。
- 3) ディスポーザー導入後に増加する卵殻主体の堆積物が多く堆積する箇所では、夏季の気温が高い数ヶ月間は、瞬間的に 20ppm 程度、硫化水素が発生することがわかった。しかし、歌登町の管渠はいずれも塩ビ管（マンホールは除く）を採用しており硫化水素発生により腐食に至る条件にないため、管渠の維持管理等に影響しないといえる。

5 今後の予定

本年度検討したディスポーザー排水の負荷量原単位については、ディスポーザー投入厨芥量を中心により入手しやすいデータに基づいた推定方法の確立を目指すとともに、ディスポーザーによる厨芥の分別効率についても検討する予定である。また、管渠への影響については、歌登町では、硫化水素の発生により腐食に至る条件にないため、ディスポーザー導入後、管渠の維持管理に変化なし判断し、環境・経済性の試算を行っている。しかし、現状で腐食の問題深刻な地域では、ディスポーザー導入を検討する場合、硫化水素発生危険箇所におけるディスポーザー排水の影響評価は必要となると考えられ、今後の検討課題といえる。

さらに、本年度作成された「ディスポーザー導入時の影響判定の考え方」に整理された今後の技術的検討課題に準じて検討課題を整理して研究を進める予定である。

【参考文献】

- 1) 国土交通省都市・地域整備局下水道部、国総研下水道研究部、ディスポーザー導入時の影響判定に関する研究-ディスポーザー導入時の影響判定の考え方-、国総研資料 No. 222（2005）
- 2) 国土交通省都市・地域整備局下水道部、国総研下水道研究部、北海道庁、歌登町、ディスポーザー導入社会実験に関する報告書、国総研資料 No. 226（2005）
- 3) 吉田綾子・行方馨・高橋正宏・森田弘昭、ディスポーザーの導入による下水管渠への影響調査、下水道協会誌、42（514）：153-164（2005）
- 4) 吉田綾子、北海道歌登町におけるディスポーザー導入の社会実験-ディスポーザーに投入される厨芥に関する調査事例一、都市清掃、59（266）：336-340（2005）
- 5) 吉田綾子・山縣弘樹・吉田敏章・高橋正宏・森田弘昭、歌登町におけるホテル厨房におけるディスポーザー排水の原単位調査、投稿中
- 6) 吉田綾子・山縣弘樹・吉田敏章・森田弘昭、ディスポーザーに投入される厨芥に関する調査、第 5 回環境技術学会研究発表会講演集、2005 年 9 月発表予定

4. GIS を活用した流域汚濁負荷情報データベースの構築に関する調査

下水道研究室 室 長 藤生 和也
研 究 官 吉田 敏章
研 究 官 田本 典秀

1 はじめに

公共用水域の効率的な水質管理のために、汚濁負荷量に関する計画を流域単位で策定することが重要であるが、流域別下水道整備総合計画（以下、流総計画）は効果的な下水道事業の実施に資するために先導的な役割を果たしている。流域からの汚濁負荷量を推定し、下水道事業で推進すべき汚濁負荷削減につき広域的な観点から定めるためには、現状の流総計画の実践においては、集計や計算に大きな時間や労力を要するという問題がある。一方、地理情報システム（GIS: Geographic Information System）の進展は近年著しく、多くのデータが整備されその活用環境が整いつつある。

そこで、本調査は、GIS を活用して、流域の汚濁負荷の推定に関する情報データベースを構築し、精度が高く効率的な汚濁負荷量の推定を目指すことを目指すものである。本年度は、流総計画の事例検討を行い、メリット・デメリット等の適用性につき調査を行った。

2 調査方法

(1) 流総計画における関連情報の把握

流総計画で、基礎調査、発生汚濁負荷量の算定に関連し必要となる情報を整理した。

(2) 流総計画の事例検討

以下の流総計画 3 事例をとりあげ、点源負荷量・面源負荷量の推定手法、GIS データの活用状況を整理し、GIS の適用にあたり今後整備すべきデータ等を検討した。

- ・東京湾流域別下水道整備総合計画（神奈川県）
- ・天竜川流域別下水道整備総合計画
- ・北上川流域別下水道整備総合計画

(3) GIS データの整備状況の整理

流域汚濁負荷推定に関連する GIS データの整備状況について、現状把握を行った。多種のデータが GIS データ又は電子データとして整備されつつあるが、下水道事業については下水道整備区域や合流・分流区域等のデータは未整備であり、下水道事業に関連しないデータについても、整備されていないものもある。

(4) 流域汚濁負荷量の推定に対する GIS の適用性の定性的検討

適用につきメリット・デメリットを整理した。また、整備すべきデータや GIS データの精度のあり方等の課題を定性的に整理する。

3 調査結果

(1) 流総計画における関連情報の把握

基礎調査や発生汚濁負荷量の算定に関する情報は、(3) において GIS データの整備状況とあわせて示すこととする。

(2) 流総計画の事例検討

3 事例につき、基礎調査及び負荷量算定方法の比較を行うと、表 1 のとおりとなる。

表 1 流総計画 3 事例の比較

選定 No.		1		2		3	
計画名称		北上川流域別下水道整備総合計画に関する		天竜川流域別下水道整備		東京湾流域別下水道整備	
策定機関		国土交通省東北地方整備局		長野県		神奈川県	
計画概要	対象水域	北上川		天竜川・諏訪湖		東京湾・鶴見川等	
	対象流域	岩手県(32市町村) 宮城県(45市町村)		長野県(36市町村)		神奈川県(4市)	
	水質項目	※H15.3現在 BOD		※H15.3現在 (天竜川)BOD(諏訪湖)COD・T-N・T-P		(河川)BOD(東京湾)COD・T-N・T-P	
項目		調査内容	方法・出典	調査内容	方法・出典	調査内容	方法・出典
自然的条件	地形	両県地形図、GISデータ	地形図	県地形図	県地形図	地形	県地形図
	河川	両県河川部局資料、GISデータ	河川	県河川部局資料	河川	県河川部局資料	
	湖沼		湖沼	県資料	湖沼	基本方針策定調査資料	
	気象		気象	飯田測候所資料、諏訪測候所資料	気象	横浜管区気象台資料、7マス資料	
	現況水質	公共用水域の水質測定結果(環境省)	現況水質	公共用水域の水質測定結果(環境庁)	現況水質	公共用水域の水質測定結果(環境庁)	
水質及び下水道整備の状況	水質環境基準	両県環境部局資料	水質環境基準	県環境部局資料	水質環境基準	県環境部局資料	
	排水基準	(上乗せ基準)県条例	排水基準	(上乗せ基準)県条例	排水基準	(上乗せ基準)県条例	
	下水道整備状況	両県下水道部局資料	下水道整備状況	県下水道部局資料	下水道整備状況	県下水道部局資料	
	その他施設状況	両県関係部局資料、市町村アンケート	その他施設状況	県関係部局資料、市町村アンケート	その他施設状況	県関係部局資料、市アンケート	
	土地利用の現況と見通し	地目別土地利用面積	両県統計年鑑	地目別土地利用面積	県勢要覧	地目別土地利用面積	県勢要覧
基礎調査	都市計画面積	市町村都市計画部局資料	都市計画面積	市町村都市計画部局資料	都市計画面積	市町村都市計画部局資料	
	人口(現況)	両県統計年鑑	人口(現況)	県勢要覧	人口(現況)	県勢要覧	
	(将来)	(全県値)両県総合計画、(市町村値)トレンド推計	(将来)	(全県値)県企画課資料、(市町村値)トレンド推計	(将来)	(全県値)県総合計画、人口問題研究所資料(市町村値)トレンド推計	
	出荷額(現況)	岩手県統計年鑑、「宮城の工業」	出荷額(現況)	県勢要覧	出荷額(現況)	県勢要覧	
	(将来)	トレンド推計	(将来)	トレンド推計	(将来)	トレンド推計	
人口及び産業の動向	家畜頭数(現況)	岩手県統計年鑑、宮城県農林水産年報	家畜頭数(現況)	長野県農林市町村統計書	家畜頭数(現況)	県勢要覧	
	(将来)	(全県値)家畜振興計画等、(市町村値)現況比率配分	(将来)	トレンド推計	(将来)	トレンド推計	
	観光人口(現況)	両県観光統計概要	観光人口(現況)	県勢要覧	観光人口(現況)	県勢要覧	
	(将来)	トレンド推計	(将来)	トレンド推計	(将来)	トレンド推計、ピーク値固定	
	水需給	—	水需給	県河川課水理台帳調査、「長野県の水需給の見通し」	水需給	県河港課資料、「神奈川県の水資源」	
水利用の現況と見通し	河川流況	(観測所有り) 通年流量観測データ (観測所なし) 比流量により設定	河川流況	(建設省直轄河川) 建設省提示値 (その他観測所あり) 通年流量観測データ (その他観測所なし) 比流量により設定	河川流況	(観測所有り) 通年流量観測データ (観測所なし) 比流量により設定	
	算定方法	処理形態別負荷量原単位×処理形態別人口フレーム	算定方法	処理形態別負荷量原単位×処理形態別人口フレーム	算定方法	処理形態別負荷量原単位×処理形態別人口フレーム	
生活・営業	負荷量原単位	流域指針を参考に、処理形態別に設定	負荷量原単位	流域指針を参考に、処理形態別に設定	負荷量原単位	流域指針を参考に、処理形態別に設定	
	人口フレーム	流域内の処理形態別人口設定値	人口フレーム	流域内の処理形態別人口設定値	人口フレーム	流域内の処理形態別人口設定値	
	算定方法	(大規模)排水水質調査値×排水量実績 (その他)中分類別負荷量原単位×中分類別出荷額	算定方法	(大規模)排水水質調査値×排水量実績 (その他)中分類別負荷量原単位×中分類別出荷額	算定方法	(大規模)排水水質調査値×排水量実績 (その他)中分類別負荷量原単位×中分類別出荷額	
	水質・負荷量原単位	(大規模)特定事業所調査 (その他)細分類別負荷量調査結果(環境庁)より設定	水質・負荷量原単位	(大規模)特定事業所調査 (その他)細分類別負荷量調査結果(環境庁)より設定	水質・負荷量原単位	(大規模)特定事業所調査 (その他)細分類別負荷量調査結果(環境庁)より設定	
	上乗せ排水基準を考慮	上乗せ排水基準を考慮	上乗せ排水基準を考慮	上乗せ排水基準を考慮	上乗せ排水基準を考慮	上乗せ排水基準を考慮	
工業	排水量実績・出荷額	(大規模)工業統計調査票(両県統計部局) (その他)流域内出荷額設定値	排水量実績・出荷額	(大規模)工業統計調査票(両県統計部局) (その他)流域内出荷額設定値	排水量実績・出荷額	(大規模)工業統計調査票(両県統計部局) (その他)流域内出荷額設定値	
	算定方法	種別(牛・豚)原単位×家畜頭数フレーム	算定方法	種別(牛・豚)原単位×家畜頭数フレーム	算定方法	種別(牛・豚)原単位×家畜頭数フレーム	
	負荷量原単位	流域指針値	負荷量原単位	流域指針値	負荷量原単位	流域指針値	
	家畜頭数フレーム	流域内家畜頭数設定値	家畜頭数フレーム	流域内家畜頭数設定値	家畜頭数フレーム	流域内家畜頭数設定値	
	算定方法	日帰り宿泊別原単位×観光客数フレーム	算定方法	日帰り宿泊別原単位×観光客数フレーム	算定方法	日帰り宿泊別原単位×観光客数フレーム	
観光	負荷量原単位	流域指針値	負荷量原単位	流域指針値	負荷量原単位	流域指針値	
	観光客数フレーム	流域内観光客数設定値	観光客数フレーム	流域内観光客数設定値	観光客数フレーム	流域内観光客数設定値	
	算定方法	施設毎の排水量と水質を調査し、個別設定	算定方法	施設毎の排水量と水質を調査し、個別設定	算定方法	施設毎の排水量と水質を調査し、個別設定	
	施設		施設		施設		
	算定方法	自然負荷量原単位×流域面積	算定方法	自然負荷量原単位×流域面積	算定方法	自然負荷量原単位×流域面積	
自然・BOD	負荷量原単位	岩手県政経(S59.3)のL-Q式より算定	負荷量原単位	流域指針値	負荷量原単位	流域指針値	
	面積フレーム	流域内設定値	面積フレーム	流域内設定値	面積フレーム	流域内設定値	
	算定方法	面源負荷量原単位×種別面積	算定方法	面源負荷量原単位×種別面積	算定方法	面源負荷量原単位×種別面積	
	負荷量原単位	県計課農林資料	負荷量原単位	県計課農林資料	負荷量原単位	県計課農林資料	
	面積フレーム	流域内設定値	面積フレーム	流域内設定値	面積フレーム	流域内設定値	
面源:COD・TN・TP(市街地・水田・畑地)	算定方法	—	算定方法	—	算定方法	—	
	負荷量原単位	—	負荷量原単位	—	負荷量原単位	—	
	面積フレーム	—	面積フレーム	—	面積フレーム	—	
	算定方法	面源負荷量原単位×合流面積	算定方法	面源負荷量原単位×合流面積	算定方法	面源負荷量原単位×合流面積	
	負荷量原単位	関連市パネーション結果	負荷量原単位	関連市パネーション結果	負荷量原単位	関連市パネーション結果	
面源:COD・TN・TP(CSO)	算定方法	東京湾特定水域高度処理基本計画調査結果	算定方法	東京湾特定水域高度処理基本計画調査結果	算定方法	東京湾特定水域高度処理基本計画調査結果	
	面積フレーム	流域内設定値	面積フレーム	流域内設定値	面積フレーム	流域内設定値	
	算定方法	施設毎の排水量と水質を調査し、個別設定	算定方法	施設毎の排水量と水質を調査し、個別設定	算定方法	施設毎の排水量と水質を調査し、個別設定	
	施設		施設		施設		
	算定方法	負荷量原単位×水揚げ量	算定方法	負荷量原単位×水揚げ量	算定方法	負荷量原単位×水揚げ量	
その他産業:COD・TN・TP(温泉・ガス井戸)	負荷量原単位	諏訪湖漁業共同組合資料より設定	負荷量原単位	諏訪湖漁業共同組合資料より設定	負荷量原単位	諏訪湖漁業共同組合資料より設定	
	面積フレーム	—	面積フレーム	—	面積フレーム	—	
	算定方法	負荷量原単位×湖面積	算定方法	負荷量原単位×湖面積	算定方法	負荷量原単位×湖面積	
	負荷量原単位	諏訪保健資料より設定	負荷量原単位	諏訪保健資料より設定	負荷量原単位	諏訪保健資料より設定	
	面積フレーム	諏訪湖面積	面積フレーム	諏訪湖面積	面積フレーム	諏訪湖面積	
降雨:COD・TN・TP	算定方法	—	算定方法	—	算定方法	—	
	負荷量原単位	—	負荷量原単位	—	負荷量原単位	—	
	面積フレーム	—	面積フレーム	—	面積フレーム	—	
	算定方法	—	算定方法	—	算定方法	—	
	負荷量原単位	—	負荷量原単位	—	負荷量原単位	—	

表 2 発生汚濁負荷量の算定に関するデータ及び GIS データの整備状況

	項 目	内 容	計画作成上の主な用途	必要となるデータ	GISデータの有無			GISでの検討の必要性			
					有無	GIS及び電子データ	出典	一元管 理	効果的 図化	流総計画での検討の必要性	
										必要性	理由
汚濁負荷量	家庭排水	し尿	ブロック別汚濁負荷量の算定	処理形態別の定住人口	△	人口3次メッシュ、4次メッシュ（国勢調査）	統計情報研究開発センターHP	○	○	△	GIS利用によりブロック別集計を行う際の配分比の制度が向上するが、現在の手法はそれほど非効率ではない。効果的な図化も可能であり、流域フレームごとに集計しなければならないことを考えるとデータを一元管理の必要性はあると考えられるが、下水道部局のみでの整備には限界がある。
		雑排水									
		営業									
	工場排水	大規模工場	ブロック別汚濁負荷量の算定	工場排水量	×	－	－	○	○	△	GIS利用によって分布の偏りを考慮できるため、精度は向上する。しかしながら、データの公表が可能な否かの問題がある。また、効果的な図化も可能であり、流域フレームごとに集計しなければならないことを考えるとデータを一元管理の必要性はあると考えられるが、下水道部局のみでの整備には限界がある。
		その他の工場		工業出荷額	△	H12工業統計1kmメッシュ（中分類）※従業員数4人以上を対象としたデータ。	経済統計情報センター	○	○	△	
	観光排水	宿泊客	ブロック別汚濁負荷量の算定	宿泊客数	×	－	－	○	○	△	GIS利用によりブロック別集計を行う際の配分比の精度が向上するが、現在の手法はそれほど非効率ではない。また、効果的な図化も可能であり、流域フレームごとに集計しなければならないことを考えるとデータを一元管理の必要性はあると考えられるが、下水道部局のみでの整備には限界がある。
		日帰客		日帰客数							
	家畜排水		ブロック別汚濁負荷量の算定	家畜頭数	△	S55「農業センサス3次メッシュ（乳用牛、肉用牛、豚、にわとり、ブロイラー）」	「農業センサスメッシュ（国土数値情報ダウンロードサービス）」	○	○	△	GIS利用によりブロック別集計を行う際の配分比の精度が向上するが、現在の手法はそれほど非効率ではない。また、効果的な図化も可能であり、流域フレームごとに集計しなければならないことを考えるとデータを一元管理の必要性はあると考えられるが、下水道部局のみでの整備には限界がある。
	特定源	下水処理場	ブロック別汚濁負荷量の算定	施設毎の排水量、水質	△	処理場位置（H8年版）、処理場情報（処理水量、処理水質）	位置情報：「道路地図」、処理場情報：「下水道統計」	○	○	△	GIS利用によりブロック別集計を行う際の配分比の精度が向上するが、現在の手法はそれほど非効率ではない。また、効果的な図化も可能であり、流域フレームごとに集計しなければならないことを考えるとデータを一元管理の必要性はあると考えられるが、下水道部局のみでの整備には限界がある（下水処理場は除く）。
		し尿処理場			×	－	－	○	○	△	
		その他			×	－	－				
	面源	山林・原野	ブロック別汚濁負荷量の算定	山林・原野面積	△	H2「数値地図1kmメッシュ（全国）」、H2「細密数値情報10m（3大都市圏）」	「（財）日本地図センター」	○	○	○	フレーム集計の効率化が可能。流総計画では、地目別土地利用の面積集計となるのに対し、GISデータを使用する場合実際の土地利用で集計されるため、精度は向上すると考えられる。また、効果的な図化も可能であり、流域フレームごとに集計しなければならないことを考えるとデータを一元管理の必要性はあると考えられるが、下水道部局のみでの整備には限界がある（合流式下水道越流負荷は除く）。
		市街地		市街地面積							
		農地（水田、畑）		水田、畑地面積							
		自然負荷		流域面積	○	河川流域界（水系、河川、流域単CODE、河川名等の属性有）	国土数値情報（国土地理院）「河川台帳」「河川単位流域台帳」「流路位置」「流域界、非集水界線位置」「湖岸線位置」「湖沼台帳」「湖沼位置」等を基に独自に作成したもの	○	○	○	
		合流式下水道越流負荷（簡易処理、雨水吐）		合流区域面積	×	－	－	○	○	○	
		降雨		降雨量	○	アメダス観測点	「アメダス地点一覧ファイル」	○	○	△	

※表中の「GISデータの有無」のうち、○は「データ有り」、△は「データは有るが作成年度が古い」「基礎調査」で必要とされる項目のうち一部データがない」、×は「データ無し」を表す。

(3) GIS データの整備状況の整理

表 2 のとおり、発生汚濁負荷量の算定に必要なデータと GIS データの整備状況とが整理された。

(4) 流域汚濁負荷量の推定に対する GIS の適用性の定性的検討

流総計画に対する GIS の適用性については、以下のように作業の効率化のみならず、多様な効果が期待される。

①作業の効率化及び精度の向上

基礎となるデータが GIS データとして整理されていれば、例えば、市町村単位のデータを流域ブロック毎に再集計する際の作業の効率化が図れる。特に、面源負荷量算定においては、GIS の適用による効果が最も大きいと推察される。面源汚濁負荷量の算定は、一般に行政単位のフレームを、流域ブロックというフレームで再集計するために、大きい作業量を要するが、GIS の適用により作業の効率化が図れる。

さらに、地目別面積の集計による算定方法を現在の土地利用に即したメッシュデータによる集計方法に変更することにより、集計精度の向上も期待できる。また、従来行われていたデジタイザ等による面積配分値の設定等において、人為作業を排除することにより、常に同一の面積配分比の算出が可能となり、人為的ミスもなく精度の一定化を図ることができる。

②データの一元管理

GIS 上で位置情報を持たせ、それらの位置情報に流総計画で必要となる基礎情報を関連付けることで、データを空間情報として一元管理しやすくなる。また、データを一元管理することにより複合的な解析が可能となり、集計が容易となる。

③効果的図化

GIS は、データの加工や表現力に優れており、従来のような表形式では分かりづらかったデータを空間分布として図化することで、専門家だけでなく一般人にも分かりやすい表示が可能となる。よって、GIS により作成した図を用いることにより、汚濁負荷量の発生や削減、公共用水域の水質等を効果的に表示できる。そして、政策結果の図示や、流域ブロックや行政単位毎の汚濁負荷量等の情報の図化など、流総計画の内容を分かりやすく表現したり、意思決定支援ツールとしての役割を担ったりすることができる。

4 まとめ

流総計画の事例検討や GIS データの整備状況の把握を通じて、GIS の適用性につき検討を行ったところ、多様な効果が存在することが確認された。しかし、基礎調査で収集すべきデータの多くが電子データ又は GIS データとして整備されていず、整備されていても更新が進んでいず活用が難しいデータも存在する。また、計画の策定には統一した年次におけるデータが必要となるが、概して統一性は確保されていないのが実情である。さらに、点源として事業場のデータ等、公開できないデータも存在している。

したがって、全面的な適用ではなく、部分的な導入等を見据え GIS の活用を考えていく必要がある。例えば、発生汚濁負荷量の推定では、特に面源を対象として GIS を適用することが考えられる。また、汚濁負荷量の推定に対して GIS を適用するのみならず、流総計画の中身が見えるような汚濁負荷量に関する情報整理方法及び表示方法につき検討することも今後の課題である。

5. 下水道施設の変形量を考慮した液状化対策工の設計法に関する試験調査

下水道研究室 室長 藤生 和也

研究官 行方 馨

1. はじめに

平成 7 年(1995 年)兵庫県南部地震を契機として、「下水道施設の耐震対策指針と解説－1997 年版－」(以下、現耐震指針という)¹⁾により下水道施設の耐震対策の強化が提示されている。しかし近年、平成 15 年(2003 年)十勝沖地震、平成 15 年(2003 年)7 月 26 日宮城県北部の地震、平成 15 年(2003 年)5 月 26 日宮城県沖の地震等で下水道施設が被災したことから、下水道施設の耐震対策について検討する必要性が生じている。特に、平成 15 年(2003 年)十勝沖地震で被災した下水道施設の大半は、周辺地盤が液状化の恐れがないといわれている泥炭地盤の地区にて、埋め戻し部が液状化したことで被災したものであった^{2), 3), 4)}。現耐震指針では、レベル 1 地震動に対応した管路を布設する際、周辺地盤の液状化判定については定めているものの、その他の地盤条件については定めていない。そこで、近年発生した地震で被災した管路施設を有する市町村等を対象にアンケート調査を実施し、大きな被害につながる要因について検証した。

2. 調査方法

近年、国内で発生した平成 15 年(2003 年)十勝沖地震、平成 15 年(2003 年)7 月 26 日宮城県北部の地震、平成 15 年(2003 年)5 月 26 日宮城県沖の地震、平成 13 年(2001 年)芸予地震、平成 12 年(2000 年)鳥取県西部地震により下水道管路施設が被災した地方公共団体を対象として、アンケート調査を実施した。調査は、地震によって被災した管路施設の被災延長、被災マンホール数、マンホールの浮き上がり量、被災状況、周辺地盤、埋め戻し材、施工方法、周辺約 10ha あたりの管路延長等について、災害復旧工事 1 件ごとにアンケート調査票に記入するように依頼した。

3. 結果と考察

上記アンケート調査における地震別の回答件数および被災延長は、平成 15 年(2003 年)十勝沖地震 84 件 27.3km、平成 15 年(2003 年)7 月の宮城県北部の地震 25 件 4.2km、平成 15 年(2003 年)5 月の宮城県沖の地震 15 件 1.0km、平成 13 年(2001 年)芸予地震 3 件 0.3km、平成 12 年(2000 年)鳥取県西部地震 5 件 0.4kmの合計 132 件 33.2kmであり、その多くは開削工法で布設し砂を埋め戻し材に用いた箇所であった。回答のあった各地区の地震動を、(独)防災科学技術研究所のK-NETおよびKiK-net⁵⁾、気象庁⁶⁾、(独)港湾空港技術研究所⁷⁾から

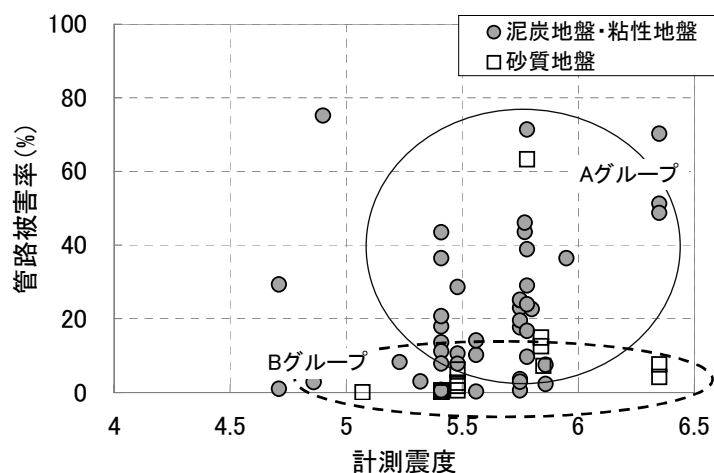


図-1 計測震度と管路被害率との関係

公開されている観測点情報から推測し、地震動と管路被害率との関係について整理を行った。計測震度と管路被害率との関係を図－１に示す。計測震度が 5.4 以上のものと、計測震度が 5.4 未満のものと比べ、管路被害率の高い箇所が多く見られる。また、周辺地盤が泥炭地盤もしくはゆるい粘性地盤であり埋め戻し材に砂を用いた箇所は、周辺地盤がゆるい砂質地盤で砂を埋め戻し材に用いた箇所に対して、管路被害率が高い値であった。すなわち、前者が集中する A グループの管路被害率は 10～80% であり、後者が集中する B グループの管路被害率は 0～20% と、計測震度が 5.4 未満の管路被害率と大きく変わらない傾向が見られた。A グループの箇所では、周辺地盤の透水性が低いため、地震発生時に過剰間隙水圧が周辺地盤に発散せず、埋め戻し部のみが液状化したものと考えられる²⁾。一方、B グループの箇所では、周辺地盤は透水性が高い地盤であることから、地震発生時に生じた過剰間隙水圧は周辺地盤に発散したことで、管路被害率が低く抑えられたものと考えられる。

4. まとめ

本調査では、平成 15 年（2003 年）十勝沖地震をはじめとした近年発生した地震で被災した管路施設についてアンケート調査を実施し、以下の結果が得られた。

- 1) 計測震度が 5.4 以上の箇所では、計測震度が 5.4 未満の箇所に対し、管路被害率が著しく高い傾向が得られた。
- 2) 計測震度が 5.4 以上で高い管路被害率が生じた箇所の多くは、周辺地盤が泥炭地盤もしくはゆるい粘性地盤であり埋め戻し材に砂を用いた箇所であった。
- 3) 計測震度が 5.4 以上でも周辺地盤がゆるい砂質地盤で砂を埋め戻し材に用いた箇所の多くは、管路被害率は 20% 未満に集中する傾向が見られた。

5. おわりに

最後に、本調査にあたりアンケート調査の対象となった管路施設を有する地方公共団体の関係者各位にご協力をいただいたことを、ここに記し感謝の意を表す。

参考文献

- 1) （社）日本下水道協会：下水道施設の耐震対策指針と解説－1997 年版－（1997）
- 2) 行方馨、田村敬一、石原雅規：十勝沖地震による下水道施設の被害状況、第 41 回下水道研究発表会講演集，pp. 708-710（2004）
- 3) 安田 進、規矩大義、田中智宏、石川敬祐：2003 年十勝沖地震による音別町の下水道被害、第 59 回土木学会年次学術講演会第Ⅲ部門（2004）
- 4) 規矩大義、安田進、田中智宏、伊藤 忠：2003 年十勝沖地震における豊頃町の下水道被害、第 59 回土木学会年次学術講演会第Ⅲ部門（2004）
- 5) （独）防災科学技術研究所HP，<http://www.bosai.go.jp/>
- 6) 気象庁HP，http://www.jma.go.jp/JMA_HP/jma/index.html
- 7) （独）港湾空港技術研究所HP，<http://www.pari.go.jp/>

6. 雨天時における路面排水負荷対策に関する調査

下水道研究室 室 長 藤生 和也
研 究 官 吉田 敏章
研 究 官 田本 典秀

1. はじめに

面源負荷の問題に関しては、公共用水域における水質保全等の観点から、その実態の把握と対策の重要性が認識されているが、点源の対策に比べると、実際にはどちらも十分に進んでいないのが現状である。しかし、点源負荷と面源負荷の違いは発生源のみであるため、発生源を区別せず全体としての汚濁負荷を削減するという考え方に立てば、面源負荷の流出実態を把握しておくことの意義は決して小さくないものと考えられる。

本調査では、分流式下水道の雨水排水区流末にて、雨天時に流出する市街地排水を時系列に採水し、SS、BOD等の一般的な項目のほか、既往の研究で調査されることが少なかった重金属・環境ホルモンに関しても水質分析を行うことで、市街地からの面源負荷の実態を詳細に調査した。

2. 調査方法

調査対象地域として選んだのは、分流式下水道が整備された市街地 3 排水区（A～C排水区）である。排水区間の直線距離は、最大でも十数キロであった。表 - 1 に調査地域の概要を示す。調査地域の選定にあたっては、次の 4 点に留意した。①河川等による背水の影響が少ないこと、②山林・農地等を極力含まないこと、③晴天時に不明水の流出が少ないこと、④ある程度の広さ（10ha程度以上）を持つこと。不浸透面積率に関しては、土地利用ごとに設定された屋根、道路、浸透域の割合¹⁾を、国土地理院発行の細密数値情報（2000 年調査）を基に集計した各土地利用の面積に乗じて算出した。この結果、3 地域とも 60%台の不浸透面積率を有することが分かった。

調査は同一降雨に対し 3 箇所同時に、合計 2 降雨に対して実施した。調査時の降雨の概要を表 - 2 に示す。試料は人力により一降雨一箇所あたり 20 検体ずつ採取した。その際の採水間隔については、降雨初期はファースト

表 - 1 調査地域の概要

		A排水区	B排水区	C排水区
面積(ha)		98	16	74
主 要 用 途 (%)	山林・荒地等	0	1	5
	畑	0	1	5
	空地	2	11	10
	一般低層住宅	16	25	54
	中高層住宅地	18	3	0
	商業・業務用地	13	18	1
	道路	22	18	21
	公園・緑地等	7	11	3
その他公共		21	7	0
不浸透面積率(%)		69	67	61

表 - 2 調査対象降雨の概要

	第1回調査			第2回調査		
	先行無降雨日数	総降雨量	時間最大降雨量	先行無降雨日数	総降雨量	時間最大降雨量
	(日)	(mm)	(mm/hr)	(日)	(mm)	(mm/hr)
A排水区	5	14	2.5	10	6	2.5
B排水区	5	15	3.5	4	9.5	2.5
C排水区	4	14.5	3	4	8	2.5

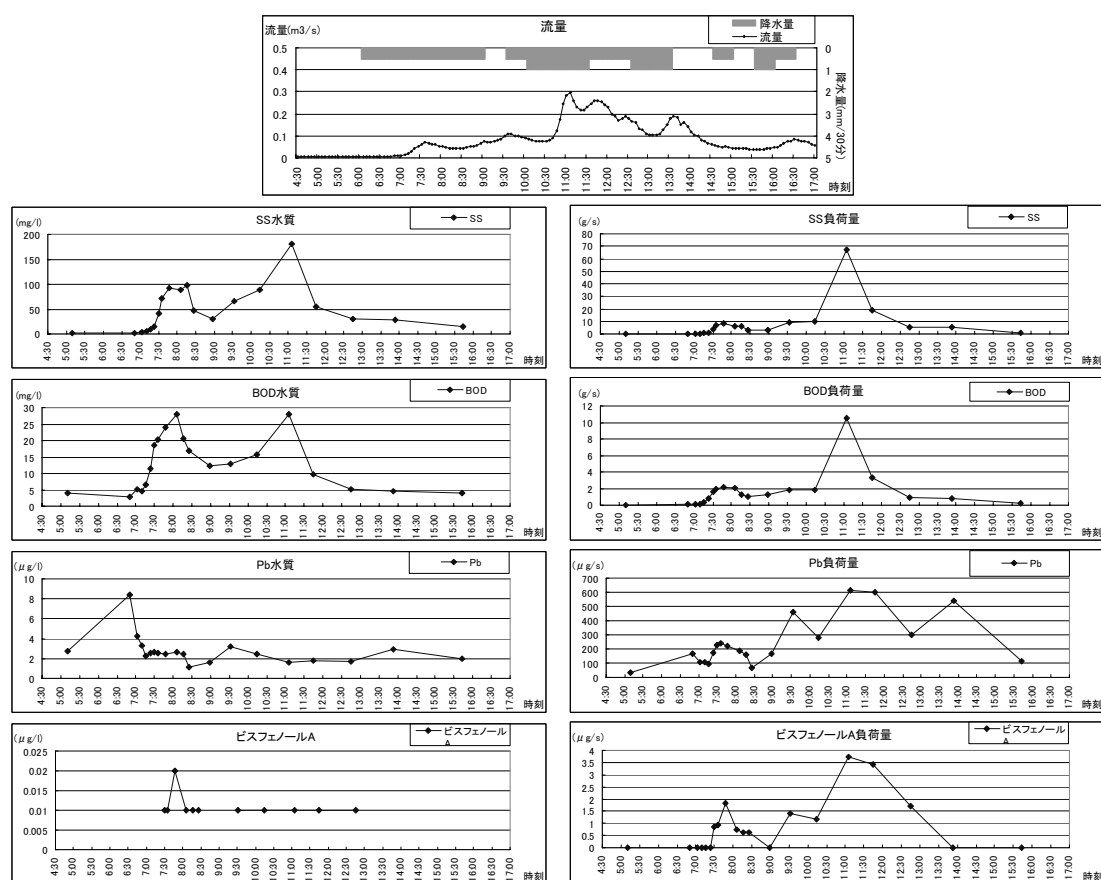
フラッシュを捕捉するために5分間隔とし、その後適宜10分から1時間程度に間隔を広げた。試料採取後は速やかに水質分析を行った。分析の対象とした項目は、一般的な項目(SS、VSS、BOD、COD_{Mn}、TN、TP、大腸菌数)、重金属(鉛、カドミウム、銅、亜鉛)、環境ホルモン(ベンゾ(a)ピレン、ビスフェノールA)である。分析方法はそれぞれ下水試験方法(大腸菌数については上水試験方法)に従った。なお、ベンゾ(a)ピレンはガソリンの燃焼により非意図的に生成される物質、ビスフェノールAは主に樹脂の原料として用いられている物質である。

また、流出特性の把握や汚濁負荷量の算出のため、雨量及び採水地点を通過する流量についても同時に計測を実施した。雨量については、各採水地点の近傍に雨量計(測定最小精度:0.5mm/5分)を設置することにより観測した。流量については、各採水地点における水位と流速を同時に計測することで得られた水位—流量曲線と、採水地点に設置した水位計(5分間隔で計測)のデータから、流量を把握した。

3. 調査結果

3-1. 汚濁負荷流出の特性

水質分析を実施した項目のうち、SS、BOD、鉛、ビスフェノールAの4項目について、図-1に水質・負荷量の経時変化(第1回調査)を示す。水質について見ると、排水区によって流出の特性が異なる。C排水区では、概してファーストフラッシュが他2排水区に比べ顕著である。ただし、鉛については検出することができなかった。他方、A排水区では、特にSS、BODでピーク濃度までの立ち上がりが緩やかであった。また、ビスフェノールAについては他の項目と異なる流出波形を示した。負荷量については、流量に大きく影響されるため、負荷量のピークがファーストフラッシュのピークよりも遅れて現れることが多く、降雨中期にピークを取る傾向が見られた。



(a) A排水区

図-1 第1回目調査における水質、負荷量の経時変化

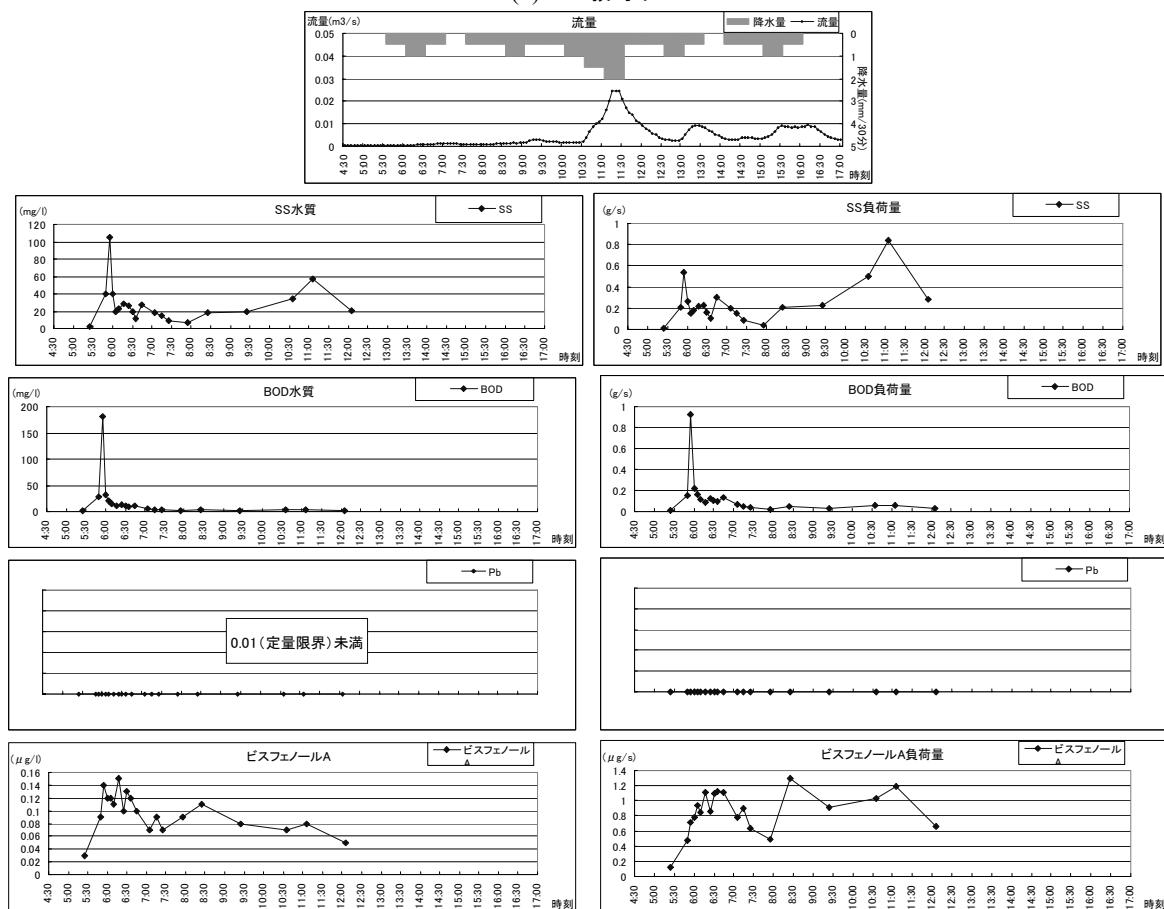
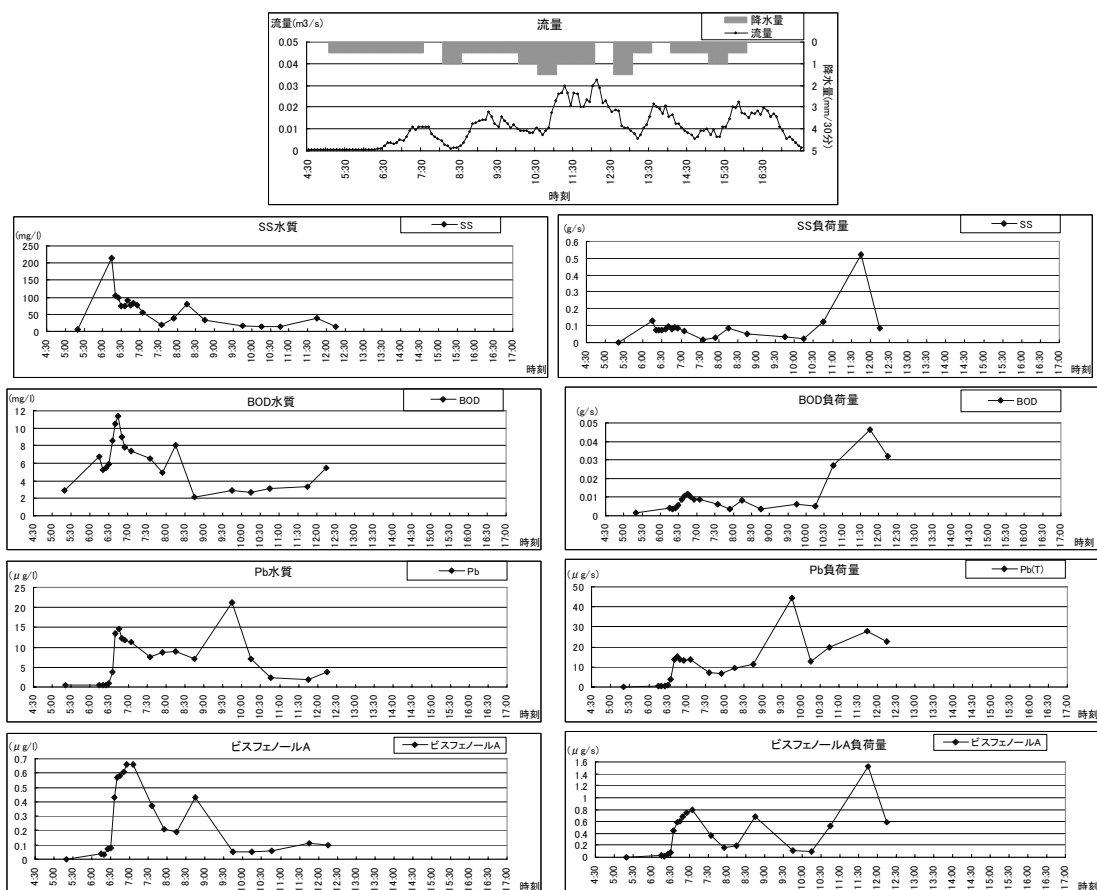


図 - 1 第1回目調査における水質、負荷量の経時変化 (続き)

3-2. 一降雨あたりの流出負荷量

各降雨の負荷量データより、一降雨あたり平均水質（EMC: Event Mean Concentration）²⁾及び比流出負荷量を算出した。これを表-3に示す。EMC、比流出負荷量共に、A排水区における値が他の2排水区に比べて高い傾向が見られる。例えば比流出負荷量について、A排水区とC排水区を比較すると、第1回目の調査ではBODで36倍、SSで28倍もの差となった。第2回目の調査ではこの差が小さくなっているものの、A排水区の比流出負荷量が高い傾向が続いている。この原因を特定することは難しいが、一つには、A排水区は中高層住宅が多く、土地利用の高度化によるものと推測される。また、一般低層住宅が多いため、道路交通量がA、B排水区より少ないC排水区では、自動車が大きな排出源と推測される鉛、カドミウムを第1回目の調査で検出することができなかった。第2回目の調査では、C排水区で非常に微量の鉛が検出されたが、カドミウムは検出されなかった。

表-3 一降雨あたり平均水質及び比流出負荷量

		A排水区		B排水区		C排水区	
		第1回	第2回	第1回	第2回	第1回	第2回
一降雨あたり平均水質 (EMC)	BOD(mg/l)	12.8	19.8	3.9	20.7	4.4	17.7
	COD(mg/l)	15.5	29.3	5.7	27.2	8.9	23.7
	SS(mg/l)	65.5	85.9	27.7	61.7	31.7	27.9
	VSS(mg/l)	19.5	36.0	9.3	30.6	12.8	17.7
	TN(mg/l)	2.9	4.0	2.1	3.8	2.1	3.5
	TP(mg/l)	0.30	0.51	0.12	0.20	0.12	0.14
	銅(mg/l)	0.02	0.06	0.003	0.026	0.034	0.057
	亜鉛(mg/l)	0.07	0.35	0.037	0.19	0.09	0.13
	鉛(mg/l)	0.0084	欠測	0.0024	0.0050	N.D.	0.0007
	カドミウム(mg/l)	0.001	欠測	0.0034	N.D.	N.D.	N.D.
	ビスフェノールA(μ g/l)	0.21	0.2	0.11	0.4	0.1	0.2
	ベンゾ(a)ピレン(μ g/l)	0.007	0.025	0.018	0.024	0.014	0.027
比流出負荷量	BOD(kg/ha)	0.72	0.52	0.02	0.16	0.02	0.13
	COD(kg/ha)	0.87	0.77	0.04	0.20	0.04	0.18
	SS(kg/ha)	3.68	2.25	0.17	0.46	0.13	0.21
	VSS(kg/ha)	1.09	0.94	0.06	0.23	0.05	0.13
	TN(kg/ha)	0.16	0.10	0.01	0.03	0.01	0.03
	TP(kg/ha)	0.017	0.013	0.00075	0.0015	0.00051	0.0010
	銅(g/ha)	0.95	1.56	0.02	0.19	0.14	0.43
	亜鉛(g/ha)	0.47	9.12	0.23	1.43	0.37	1.00
	鉛(g/ha)	0.47	欠測	0.015	0.038	N.D.	0.0054
	カドミウム(g/ha)	0.03	欠測	0.021	N.D.	N.D.	N.D.
	ビスフェノールA(mg/ha)	11.56	6.05	0.69	3.15	0.33	1.54
	ベンゾ(a)ピレン(mg/ha)	0.40	0.65	0.11	0.18	0.06	0.20

4. おわりに

今回の調査では、排水区により流出パターンや流出負荷量が大きく異なることが確認された。これには土地利用の状況や、周辺の道路交通量などに起因するものと推察されるが、詳細については不明な点が多く、今後の課題である。また、重金属や環境ホルモンに関しても、無視できない量が市街地から流出しており、その量は排水区により大きく異なることが確認された。最後に、本調査に協力いただいた関係自治体各位に感謝の意を表す。

参考文献

- 1) 脇岡靖明、古米弘明、市川新：下水道台帳データベースと細密数値情報を利用した分布型モデルによる都市雨水流出解析、下水道協会誌、Vol.38 No.469、pp.78-89、2001
- 2) Field, R. and Sullivan, D.: Wet-Weather Flow in the Urban Watershed, Lewis Publishers, 2002

7. 下水処理水再利用システムの技術基準に関する調査

下水処理研究室 室 長 南山 瑞彦
主任研究官 田嶋 淳
研 究 員 桜井 健介

1. はじめに

日本の年平均降水量は約 1,700mm で、世界平均の約 2 倍の量となっているが、国土面積が狭く人口が多いため、人口 1 人当たりの水資源賦存量は約 3,300m³ となっており、世界平均である約 7,800m³/人・年の半分以下となっている。また、日本の年平均降水量の経年変化をみると、小雨年と多雨年の開きが次第に増加し、渇水年の年降水量が減少する傾向にあり、水資源確保の重要性は今後益々高まってくるものと予想される¹⁾。

日本では、1978 年の異常渇水を契機に、福岡市において 1980 年に水洗用水として下水処理水の再利用が開始されて以来、水洗用水、融雪用水、環境用水、工業用水、散水用水等様々な用途に下水処理水が再利用されるようになってきている。しかしながら、2003 年度実績で、全国 1,924 箇所の下水処理場から年間約 137 億 m³ の下水処理水が放流されている²⁾ のに対し、246 箇所の下水処理場において下水処理水が再生水として場外に送水・利用されている程度で、その水量は年間約 2 億 m³、その割合は放流量の 2 % に満たない状況にある。都市内における貴重な水資源確保の観点、さらにヒートアイランド対策としての打ち水利用など新たな利用用途も期待される等、下水処理水再利用の重要性は今後益々高まっていくことが予想され、下水処理水の適切な再利用がより一層重要なものとなる。

その一方で、飲料水や食品を介したクリプトスポリジウム、ウイルス等の病原微生物による人間への健康被害が近年大きな社会問題となり、水の安全性への関心が高まってきており、下水処理水の再利用においても、今後こうした新たな問題に対応していく必要がある。また、再生水の色、濁り、臭い等の美観的要素に対して適切に配慮を行うことにより利用者の不快感を招かないように留意し、再生水利用システムにおける腐食や閉塞等の施設機能障害に対しても適切に対応していく必要がある。

以上を背景に、国土交通省都市・地域整備局下水道部及び国土技術政策総合研究所下水道研究部は、従来の下水処理水再利用に関する指針・マニュアルである「下水処理水循環利用技術指針（案）」（昭和 56 年策定）及び「下水処理水の修景・親水利用水質検討マニュアル（案）」（平成 2 年策定）における水質基準及び目標水質を見直すこととし、下水処理水再利用に関する新たな基準を設定するに当たり必要な知見を得るために、再生水の衛生学的安全性に関する実態調査及び下水処理水再利用に関する利用者意識調査を実施した。本報はこれらの調査結果のうち、下水処理水再利用に関する利用者意識調査を中心に報告を行うものである。

2. 検討対象とする再利用用途

検討対象とする再利用用途は、下水処理場において再生処理された再生水を不特定多数の人が利用する施設に直接供給する形態に限定することとし、日本における再利用の実態を踏まえ、水洗用水、散水用水、修景用水（人間が触れることを前提としていない環境用水）、親水用水（人間が触れることを前提としている環境用水）の 4 用途とした。

3. 下水処理水再利用関連の苦情・トラブルの実態把握

下水処理水再利用に関する新たな基準設定に向けた検討を行うにあたっては、①利用者の衛生学的安全性の確

保、②再生水利用施設における美観・快適性確保、③下水処理水再利用システムの施設機能障害防止、の3つの観点を考慮することとした。このうち、美観・快適性確保の観点及び施設機能障害防止の観点における検討事項については、下水処理水再利用関連の苦情・トラブルの実態を踏まえ設定することとし、苦情・トラブルの実態に関するアンケート調査を以下の要領で実施した。

調査対象

平成14年度に水洗用水、散水用水、修景用水、親水用水として不特定多数の人が利用する施設に再生水を供給した実績を有する全国の下水処理場

調査方法

再生水の供給先で過去に発生した下水処理水再利用関連の苦情・トラブルの具体的内容について、アンケート調査を実施

調査結果

(1) 美観・快適性

1) 再生水の外観

一般に再生水は上水と比較して、色、濁り、臭い等があるため、これらの問題に対して適切に対応する必要がある。調査の結果、水洗用水利用では再生水の外観に関する苦情が報告されたが、他の用途については殆ど報告されなかった。水洗用水利用は他の用途に比べ利用者数が多く、再生水を目にする機会が多いためと考えられる。

2) 修景用水利用及び親水用水利用における藻類の増殖

修景用水利用や親水用水利用における藻類増殖に関する苦情・トラブルの発生が報告された。一般に再生水は上水と比較して、藻類の発生・増殖に関わる主要な物質であるリン及び窒素を多く含んでいるためと考えられる。

3) 水洗用水利用におけるユスリカ（成虫・幼虫）の発生

水洗用水利用では、下水処理場で発生したユスリカの卵及び幼虫が生存したまま利用先まで運ばれ、受水槽、高置水槽、便器内で成長・繁殖して視覚的不快感を与えるとの苦情が報告された。一方、修景用水利用や親水用水利用では、ほとんどが屋外利用であり、ユスリカ等が飛散しやすく、自然環境と比較して問題視されにくいため、苦情の発生件数が少ないものと考えられる。

(2) 施設機能障害防止

再生水用の配管、器具類等で腐食が生じ、漏水のトラブルが生じたとの報告や、器具内に設置されているストレーナーや配管の屈曲部で閉塞が生じ、給水障害のトラブルが生じた等の報告がなされた。再利用における腐食発生の原因として、露出した鉄製部材と再生水との接水や異種金属の直接接合等が指摘されている。再生水の塩素イオンや硫酸イオン、残留塩素等の濃度が高い場合には、再生水の腐食性が大きくなるため、注意が必要となる。また、閉塞については、配管の腐食由来の溶解性鉄が残留塩素や溶存酸素によって酸化され、狭路部や屈曲部等、流水に変化がある部位で析出・集積し、閉塞が生じた等の原因が指摘されている。なお、これらのトラブルに対しては提言³⁾ ⁴⁾ がとりまとめられており、提言に基づき対策が講じられているとのことであった。

4. 基準設定に向けた検討事項

下水処理水再利用に関する新たな基準設定に向けた検討事項は以下の通りとし、必要となる調査を抽出した。なお、美観・快適性及び施設機能障害防止については、下水処理水再利用における苦情・トラブルの実態を踏まえ、検討事項を設定した。

（１）衛生学的安全性

塩素消毒が有効な細菌類と比較的塩素耐性のある原虫類を検討対象とし、新たな基準を設定するため必要な知見を得るための調査として、下水処理水再利用システムにおける細菌類の挙動を把握するための調査を実施した。なお、ウイルス類については測定方法等の課題が解決されていないため、今後も引き続き検討を行っていくこととした。

（２）美観・快適性

３．において挙げられた３項目の苦情・トラブル（再生水の外観、修景用水利用及び親水用水利用における藻類の増殖、水洗用水利用におけるユスリカ（成虫・幼虫）の発生）のうち、再生水の外観に関して新たな基準を設定するために必要な知見を得るための調査として、下水処理水再利用に関する利用者意識調査を実施した。なお、残りの２項目については、利用箇所等により状況が多様であること、対策の効果が十分明らかとなっていないこと等の状況を踏まえ、検討事項とはしないこととした。

（３）施設機能障害防止

腐食及び閉塞を検討対象項目とするが、既存の知見を基に基準設定に向けた検討を行うこととした。

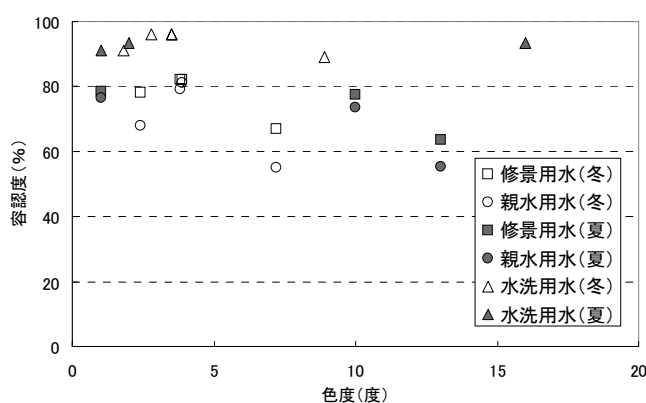
５．再生水利用に関する利用者意識調査

再生水の外観は利用者の嗜好と密接な関係があり、外観に関する基準等を検討するに当たっては、再生水に関する利用者の嗜好を把握することが重要である。そこで、再生水の色度、濁度、臭気強度が利用者の嗜好に対してどのような影響を与えるかを把握するために、処理水再利用箇所において、再生水の色、濁り、臭いに関する利用者の意識についてアンケート調査を行った。調査要領は表－１の通りとし、利用者層としては当該箇所を訪れる程度の人を想定した。なお、修景・親水用水の分類については、眺めると仮定した場合の回答を修景用水、触れると仮定した場合の回答を親水用水として扱った。

表－１ 調査要領

時期	水洗用水		修景・親水用水	
	H15 年 12 月～ H16 年 2 月	H16 年 7 月	H15 年 12 月～ H16 年 1 月	H16 年 7 月
箇所数	7 箇所	3 箇所	4 箇所	3 箇所
アンケート方式	対面方式及び配布・郵送方式			
回答者数	1,124 人	734 人	731 人	482 人
水質	色度、濁度、SS、臭気強度、残留塩素			

調査の結果、色、濁り、臭いに対する利用者の容認度は、水洗用水でそれぞれ89%～98%、89%～97%、85%～96%であった。一方、修景用水については、それぞれ 64%～84%、63%～82%、72%～86%、親水用水については、それぞれ55%～81%、51%～78%、57%～79%となっており、水洗用水と比較して修景・親水用水の容認度には幅が見られた。親水・修景用水は、個々の利用形態の差が大きく、また利用者の個人差も影響しているものと考えられる。なお、

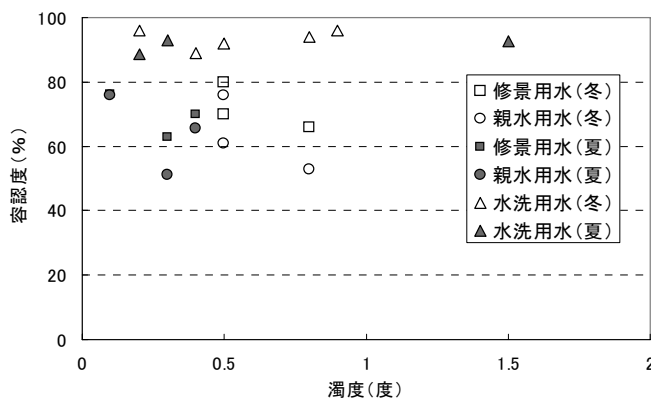


図－１ 色度と容認度の関係

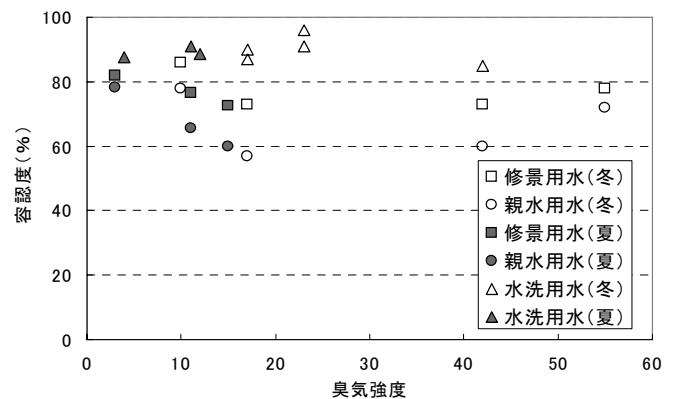
ここで言う利用者の容認度とは、再生水の色、濁り、臭いについて「気にならない」又は「殆ど気にならない」と回答した人の割合を示す。

夏期には、水温上昇により臭気の原因となる揮発性物質が揮発しやすい条件となり、臭いが強く感じられる等、臭いの容認度に影響することが予測されたが、今回の調査では夏期と冬期の間で臭いの容認度に大きな差は見られなかった（図－3 参照）。また、今回の水質の範囲内では、水質（色度、濁度、臭気強度）と容認度の間に有効な相関関係は見られなかった（図－1～3 参照）。

以上の結果を踏まえると、美観・快適性に関する利用者の意向については、個々の利用形態の差や利用者の個人差により大きな影響を受けるものと考えられ、美観・快適性の観点からの基準設定に当たっては、利用者の意向等を踏まえ、個々の事例にあわせた基準値を設定することが望ましいと考えられる。



図－2 濁度と容認度の関係



図－3 臭気強度と容認度の関係

6. 結論

下水処理水再利用に関する新たな基準を設定するに当たり必要な知見を得るために、再生水の衛生学的安全性に関する実態調査及び下水処理水再利用に関する利用者意識調査を実施した。調査の結果、再生水水質（色度、濁度、臭気強度）と利用者の容認度の間に有効な相関関係は見られなかったことから、美観・快適性に関する利用者の意向については、個々の利用形態の差や利用者の個人差により大きな影響を受けるものと考えられ、美観・快適性の観点からの基準設定に当たっては、利用者の意向等を踏まえ、個々の事例にあわせた基準値を設定することが望ましいと考えられた。

7. 謝辞

下水処理水再利用に関する利用者意識調査の実施及び基準策定に向けた検討は、財団法人下水道新技術推進機構との共同研究によるものである。

参考文献

- 1) 「日本の水資源（2004年版）」国土交通省土地・水資源局水資源部
- 2) 「2003年度版 下水道統計」社団法人日本下水道協会
- 3) 「集合住宅における再生水利用について（提言）」福岡市 集合住宅の再生水利用に関する協議会 1999年3月
- 4) 「集合住宅における再生水利用設備基準について（提言）」福岡市 再生水利用設備基準に関する研究会 2000年3月

8. 下水道システムの LCA 評価に関する調査

下水処理研究室 室 長 南山 瑞彦

研究官 荒谷 裕介

研究官 平出 亮輔

1. はじめに

環境への事業影響評価にあたっては、従来から環境影響評価（以下、EIA）が制度化されているが、近年、施設の建設、維持管理、さらには廃棄を含めたライフサイクルアセスメント（以下、LCA）を用いることが有効な手段であるとして注目を集めている。LCA 手法の特徴の一つとして、施設の全ライフサイクルにわたって消費する資源及び排出する環境負荷を定量的、客観的に評価出来ることが挙げられる。LCA は地球環境等広い地域の環境に及ぼす影響に視点を置いている。一方、EIA は事業の実施場所やその付近に及ぼす影響を評価する手法である。両手法を併用することによって事業実施に伴う環境への影響をより総合的に評価することが可能であると考えられることから、LCA による評価手法を早急に確立し、実務へ早期に適用することが求められている。LCA は、もともと自動車、家電機器といった製造業における製品を対象に実行されたものである。本研究は、社会資本整備に LCA 手法を適用することを想定し、下水道事業の計画・設計段階における事業評価手法として LCA を確立するために必要な基礎的データを得ることを目的として実施した。平成 16 年度は、下水道施設から排出される環境負荷量の排出特性をもとに負荷量算定の簡略化の可能性について検討するとともに、産業連関表の更新が一次原単位および環境負荷量に及ぼす影響についての検討を行った。

2. 環境負荷量算定の簡略化

事業計画や設計段階で、経済的な視点以外に環境保全の視点から事業を定量的に評価する場合には、環境負荷量を概算できる必要がある。

下水道施設は、道路、橋、ダムと異なり、土木・建築施設以外に機械・電気施設が大きな割合を占める。このような特徴を持つ施設に対してライフサイクルインベントリー（以下、LCI）分析を行った場合、算定される環境負荷量の傾向にも特色があらわれ、建設時よりも運転時に多くのエネルギーを消費し、CO₂を排出する。また、運転時負荷の大部分は電力消費に由来し、そのほとんどを主要な機器が占める¹⁾。このことは、これらの主要機器を抽出し、その能力や稼働時間等をパラメータとすることによって、下水道施設のライフサイクル全体にわたる負荷傾向をある程度把握することができ、また、環境負荷量の算定をより簡略化できることを示唆している。

ここでは、オキシデーションディッチ(OD)法を採用している下水処理場を対象としてLCI分析を行い、水処理施設の環境負荷量と主要機器との関連性について検討を行った。その結果、ばっ気装置（送風機＋攪拌機）の出力とCO₂排出量およびエネルギー消費量の間に関連性があることがわかった（図-1）。この結果から、主要機器としてばっ気装置を抽出し、それらの出力を求めることによって、水処理施設からの環境負荷量を概算できる可能性が示された。

過去の調査から、OD法以外の処理方式においても運転時負荷の大部分は主要な機器の電力消費に由来することがわかっている¹⁾。従って、LCI分析結果を蓄積することによって処理方式毎に主要機器と環境負荷量の関連性を求めることが可能と考えられる。これらの関連性を活用することによって、事業計画や設計段階等限られた情報のもとでの処理方式の評価を環境保全の視点から定量的に行うことが可能と考えられる。

3. 産業連関表の更新による一次原単位および環境負荷量への影響

現在、LCI分析の基本データである基礎資材（素材、基礎部品等）やユーティリティ等の一次原単位は、産業連関表の 1990 (H7) 年表に基づき算定されたもの²⁾を使用している。産業連関表は 5 年毎に作成され、現在は 1995 (H12) 年表に基づく LCI データベースが公表されている³⁾。ここでは、産業連関表の更新が一次原単位および環境負荷量に及ぼす影響についての検討を行った。

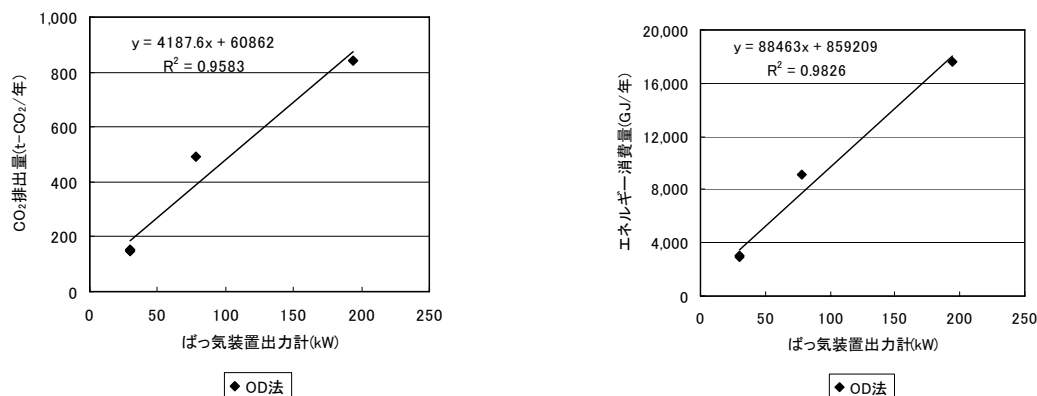


図-1 水処理施設の環境負荷量と主要機器との関係

表-1 一次原単位の変化の状況

3.1. 一次原単位の変化の状況

1990 (H7) 年表および 1995 (H12) 年表に基づき作成された単位物量あたりおよび単位価格あたりのCO₂排出量原単位の一例を表-1に示す。単位物量あたり原単位のうち、生コンクリートが 1990 (H7) 年表比 69.4%の増加、上水道・簡易水道が 50.7%の減少と大きく変化した。一方、単位価格あたり原単位については、生コンクリートが 1.6%の増加、上水道・簡易水道が 44.9%の減少であった。

単位物量あたり原単位と単位価格あたり原単位の間には以下の関係が成り立つ。

$$\text{単位物量あたり原単位} = \text{単位価格あたり原単位} \times [\text{製品総生産額} \div \text{製品総生産量}]$$

この関係から「製品総生産額÷製品総生産量」すなわち製品単価の増減率を求めた場合、生コンクリートで 66.7%上昇し、上水道・簡易水道で 10.5%下落した計算になる。一方、実勢価格等によると、生コンクリートおよび上水道・簡易水道でそれぞれ 19.3%⁴⁾、6.1%⁵⁾の上昇であった。

産業連関表の更新に伴う一次原単位の変化の要因としては、社会経済状況および製品単価が変化すること以外に、産業連関分析を行う過程での海外での活動分（輸入分）や固定資本形成分（工場の建設等）の計算方法の違い等が考えられる。1990 年表に基づく原単位²⁾は、固定資本形成分は考慮せず、また輸入分を含めて連関分析により算定されている。一方、1995 年表に基づく原単位³⁾は、輸入分は別途積み上げ計算により算定されており、また、固定資本形成分は産業連関表の内生部門に割り振った上で分析を行っている。このように分析方法が異なることから、計算値と実勢価格で大きな違いが生じたものと考えられる。産業連関表の更新に伴って一次原単位が著しく変化する場合は、その算出条件等を詳細に分析し、算定された原単位の妥当性を十分検討した上で見直すべきであると考えられる。

3.2. 運転時における環境負荷量に関するケーススタディ

下水処理施設に対してLCI分析を行った場合の負荷量排出特性として、運転時における負荷量の全負荷量に占める割合が大きいことが過去のケーススタディ結果より明らかとなっている¹⁾。そこで、産業連関表の更新に伴い一次原単位を見直した場合の運転時における環境負荷量の変化について、規模、処理方法の異なる

分類	項目	単位	kg-CO ₂ / *		
			1990年 ²⁾	1995年 ³⁾	
基礎資材	セメント	kg	0.839	0.816	(-2.7)
			90.46	109.906	(21.5)
			0.009	0.007	(-19.9)
	生コンクリート	kg	0.121	0.205	(69.4)
			24.083	24.477	(1.6)
			0.005	0.008	(66.7)
	普通鋼小棒	kg	1.163	0.941	(-19.1)
			20.305	25.155	(23.9)
			0.057	0.037	(-34.7)
	普通鋼型钢	kg	1.303	1.136	(-12.8)
			20.305	25.155	(23.9)
			0.064	0.045	(-29.6)
	碎石	kg	0.008	0.011	(37.5)
			5.737	5.254	(-8.4)
			0.001	0.002	(50.1)
	軽油	MJ	0.076	0.078	(2.6)
			56.027	58.004	(3.5)
			0.001	0.001	(-0.9)
	粗鋼(転炉)	kg	1.352	1.465	(8.4)
			33.003	42.053	(27.4)
0.041			0.035	(-15.0)	
鑄鉄品	kg	3.346	2.865	(-14.4)	
		15.818	14.47	(-8.5)	
		0.212	0.198	(-6.4)	
ユーティリティ	電力	kWh	0.533	0.564	(5.8)
			27.293	26.83	(-1.7)
			0.020	0.021	(7.6)
	上水道・簡易水道	m ³	2.011	0.992	(-50.7)
			12.692	6.997	(-44.9)
			0.158	0.142	(-10.5)

注) *: 各項目の単位
 上段: 単位物量あたり原単位(A)
 中段: 単位(生産者)価格あたり原単位(B)
 下段: (A)/(B)
 ()内は、前回調査の値に対する増減率(%)

4ヶ所の処理場を対象として検討を行った。その結果、CO₂排出量は約3～5%の増加、エネルギー消費量は5～7%の減少となった。処理場により使用する薬品や燃料の種類および量が異なることから、薬品類・燃料由来の負荷量の増減は各処理場で大きく異なったが、CO₂排出量、エネルギー消費量の大部分を電力由来の負荷量が占めていたことから、薬品類・燃料由来の負荷量が全負荷量に及ぼす影響は僅かであった。従って、多量の薬品や重油等の燃料を使用する場合を除き、1990(H7)年表から1995(H12)年表への産業連関表の更新に伴う一次原単位の見直しが、処理場の運転時における環境負荷量に及ぼす影響は小さいと考えられる。電力由来の負荷の算定においては、輸入分や固定資本形成分の扱い方がCO₂排出量原単位に及ぼす影響は小さい⁶⁾ことから、今回の更新によって原単位および環境負荷量に大きな変化は見られなかったものと考えられる。

4. まとめ

平成16年度は、下水道施設から排出される環境負荷量の排出特性をもとに、負荷量算定の簡略化の可能性について検討するとともに、産業連関表の更新が一次原単位および環境負荷量に及ぼす影響についての検討を行い、以下の知見を得た。

- 1) オキシデーションディッチ(OD)法による水処理施設の主要機器としてばっ気装置を抽出し、それらの出力を求めることによって、OD法による水処理施設からの環境負荷量を概算できる可能性がある。
- 2) 1990(H7)年表から1995(H12)年表への産業連関表の更新に伴う一次原単位の見直しが処理場運転時における環境負荷量に及ぼす影響を4つの処理場を対象に検討した結果、CO₂排出量で約3～5%の増加、エネルギー消費量で5～7%の減少とその影響度合いは僅かであった。

5. おわりに

本調査は、下水道事業の計画・設計段階における事業評価手法としてLCAを確立するために必要な基礎的データを得ることを目的として実施した。本調査で対象とした環境負荷項目は、原単位の整備状況を勘案して二酸化炭素排出量(LC-CO₂)及びエネルギー消費量(LCE)とした。ライフサイクル全体にわたって下水道システムから排出される環境負荷量を算定するための考え方をライフサイクルインベントリー(LCI)モデルとして構築するとともに原単位を整備し、環境負荷量の定量化を行う上で必要となる基本的な考え方や基礎データを整理した。また、構築したLCIモデルを基に、下水道施設の建設、運転・維持管理等に関するデータを用いて環境負荷量を算定し、建設時よりも運転時により大きな環境負荷を排出するとともに、水処理施設の環境負荷源はばっ気装置といった主要な機器の電力消費に由来する特性があることを把握した。これらの主要機器を抽出し、出力等を求めることによって、計画や設計段階といった限られた情報の中で環境負荷量を概算できる可能性を示した。また、産業連関表の改正にともなう一次原単位の更新にあたっての注意点をまとめた。

得られた成果は、マニュアル等としてとりまとめ、下水道システムを対象としたLCAを実施するにあたり活用されることが期待され、適切な事業推進に資するものと考えられる。

【参考文献】

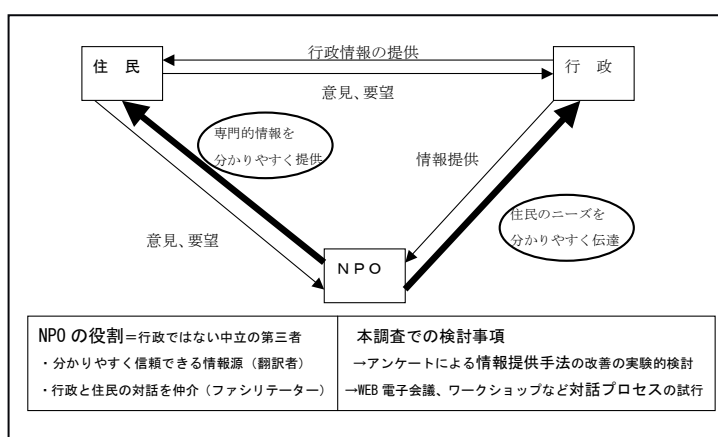
- 1) 中島英一郎、山下洋正、中島智史：下水道システムのLCA評価に関する研究、平成14年度下水道関係調査研究年次報告書集
- 2) 建物のLCA指針(案)1999年、日本建築学会
- 3) 建物のLCA指針(案)2003年、日本建築学会
- 4) 建設物価、(財)建設物価調査会、レディーミクストコンクリート、規格210-8-25(東京)、1990年および1995年4月号
- 5) 内閣府・国民生活政策ホームページ、<http://www5.cao.go.jp/seikatsu/koukyou/water/wa02.html>
- 6) LCA実務入門、(社)産業環境管理協会、135-137

9. 下水高度処理の評価手法に関する調査

下水処理研究室 室 長 南山 瑞彦
研 究 官 荒谷 裕介
研 究 官 山縣 弘樹

1. はじめに

閉鎖性水域の水質改善が求められており、下水の高度処理の実施が有効な対策の一つと考えられる。高度処理の費用の一部は汚染原因者負担の原則により下水道使用料により徴収されることとなるが、高度処理の必要性について住民の理解が必ずしも十分得られないという問題が発生している。そこで、高度処理の効果、便益や費用を含めた科学的知見に基づく議論を通じて、高度処理の必要性について住民の理解を深める手法が求められている。そこで、琵琶湖の水質保全や下水道に関する活動を行っている NPO と協力して、住民参加型の高度処理の評価手法を開発し、地域住民や NPO、学識経験者など多様な利害関係者が参加した社会実験を平成 15～16 年度に実施し、同手法の有効性を検証した（図－1）。



図－1 行政・NPO 協働の住民参加型評価手法の調査イメージ

2. 過年度の調査¹⁾

下水高度処理に対する住民の理解を得るための基礎調査として、平成 15 年度には、琵琶湖流域で活動する様々な NPO の下水道施策に対する現状認識を調査するとともに、琵琶湖の中では比較的汚れている南湖の東岸地域の代表地域として守山市と、比較的きれいな北湖西岸の代表地域として今津町（現高島市。以下「旧今津町」）において住民アンケートを行い、下水道施策に対する住民の現状認識を調査した。得られた主要な結果は以下の通りである。

（1）琵琶湖の水質保全に関する既往施策に対する NPO 等の意識を調査した結果、社会全体として重点的に進められるべき取り組みは、環境教育、生活排水対策、農業対策、下水道施策で、身近な問題を解決できる対策や汚濁物が削減できる対策が重視される傾向があった。一方、団体として関心を持つ取り組みは環境教育、生活排水対策、水源林保全、農業対策で、同じく身近な問題を解決できる対策が重視される傾向があった。

（2）NPO 等の意識では「植林・里山保全活動」のような身近な問題と感じられて取り組みやすい活動では関心が高くなるが、下水道のような身近に感じられず団体としての取り組みが難しい分野では必要と認識しつつも関心は低くなると考えられた。

（3）琵琶湖の水環境保全に関する住民意識アンケート結果より、琵琶湖の水環境に関して知識量の多い回答者グループの方が、知識量の少ないグループと比較して、琵琶湖の水質改善のためにより高い支払い意志額を示す傾向があった。

(4) 情報に対する住民ニーズをアンケート結果より検討したところ、琵琶湖の水環境に関する知識量が多い人ほど、下水道を含めた環境問題に関する関心や意識が高い傾向が見受けられた。従って、これらの問題に関する正しい知識を持つことが関心や意識向上に不可欠であり、常にそうした情報を積極的に提供していくことが必要と考えられた。また、もともと関心や意識が高くない人に対してはニーズを考慮して身近な情報から提供していくなど、情報提供手法に工夫が要求されるものと考えられる。

3. 社会実験の方法

住民の水環境に関する知識量が少ないことが下水の高度処理に対する理解が得られにくい原因であるとの問題意識に立脚し、平成16年度は、住民の水環境に関する知識を増やすことにより、下水高度処理に対する理解を得る方法を考案、試行した。住民の水環境に関する知識を増やす方法として、NPOが行政・住民の間の中立的な立場に立ち、住民の要求する情報に関するニーズを把握し、それに応じた専門情報を行政から得て住民に分かりやすい「ニュースレター」として提供する手法を考案した。ニュースレターの内容は、第1回は琵琶湖の水質汚濁の状況や原因、下水道を含めた総合的な対策（マザーレイク21計画、以下「ML21計画」という）の計画内容等（表-1）とし、第2回はよりのめを絞って下水道の役割や滋賀県が導入を検討している超高度処理（生物処理の後段にオゾン・活性炭等の物理化学処理を行い有機物・りんや微量化学物質の高度な除去を行う処理法）の内容と費用等（表-2）とした。ニュースレターは、国総研と滋賀県から専門的情報の提供を受け、NPOびわこ・水ネットが作成した。

情報提供による下水高度処理への理解の向上を評価するため、情報提供前（H16.3）、第1回ニュースレター配布後（H16.8）、第2回ニュースレター配布後（H17.2）の計3回住民アンケートを、守山市及び旧今津町（旧今津町は第1回、第2回のみ）において実施した（図-2）。アンケートの内容は、琵琶湖の水質に対する認識、琵琶湖を汚染する原因、関心を持つ琵琶湖の環境問題、共感できる琵琶湖の水環境保全対策、下水処理高度化の必要性、琵琶湖の水環境保全のための支払意志等とした。超高度処理に関する情報提供を行った後に実施した第3回目アンケートでは、超高度処理に期待する効果や、超高度処理に対する支払意志額（WTP）について調査項目に加えた。アンケートの実施はびわこ・水ネットが他のNPOの協力を得ながら行った。

また、比較的意識の高い住民を対象に、第2回、第3回アンケートと平行してワークショップによる情報提供を行った²⁾³⁾。

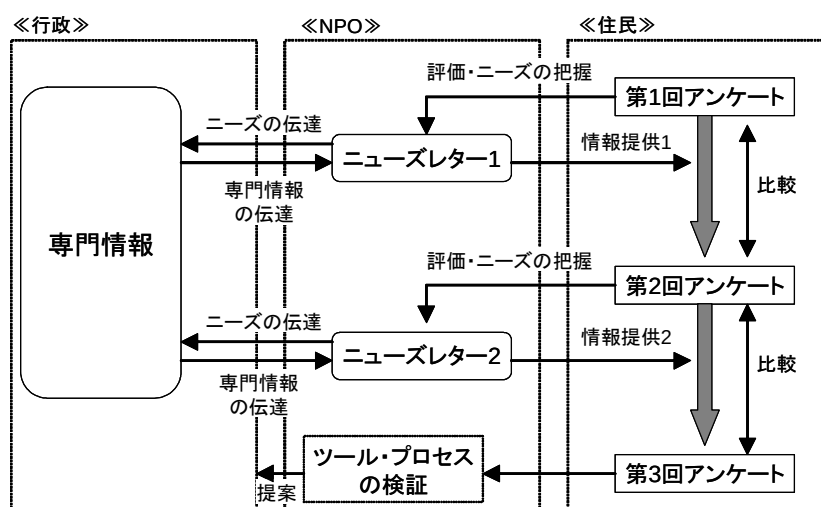


図-2 NPOと協働した情報提供による住民意識変化の調査

表-1 第1回ニューズレター内容

	内容	図表	語句説明
1	琵琶湖の水質動向	T-Nの経年変化 T-Pの経年変化 CODの経年変化 BODの経年変化	全窒素(T-N) 全リン(T-P) COD BOD
2	琵琶湖の水質の平面分布	全窒素(T-N) 全リン(T-P) COD 透明度	
3	その他の湖との比較	湖沼別T-N 湖沼別T-P 湖沼別COD	
4	琵琶湖の富栄養化	淡水赤潮の発生日数 アオコの発生日数	赤潮 アオコ
5	琵琶湖に流入する汚濁物質	発生源別T-N流入量 発生源別T-P流入量 発生源別COD流入量	
6	滋賀県の下水道整備	下水道普及率の推移 下水道普及率(守山/今津) 下水道高度処理人口普及率	
7	富栄養化防止条例		
8	マザーレイク21計画	基本理念 計画目標	
9	新たな問題		トリハロメタン 環境ホルモン
10	水質保全の費用負担	琵琶湖の水を利用している人口 標準家庭の月当たりの下水道使用料金 下水道処理費用の負担割合	

表-2 第2回ニューズレター内容

	内容	図表	語句説明
1	琵琶湖の水質動向	T-N経年変化 T-P経年変化 COD経年変化	全窒素(T-N) 全リン(T-P) COD
2	下水道の役割	下水道の4つの役割	
3	滋賀県の下水道整備の状況	全国普及率ランキング 下水道高度処理人口普及率ランキング 下水道水洗化率ランキング	
4	現在の下水处理のしくみ	高度処理のしくみ	標準活性汚泥法(2次処理) 凝集剤 沈砂池・スクリーン 最初沈殿池 生物反応層 最終沈殿池 砂ろ過池
5	今後の下水处理	超高度処理の目標水質	
6	超高度処理による 琵琶湖の水質改善効果	南湖水質変化予測結果 トリハロメタン生成能 環境ホルモン 臭気	トリハロメタン 環境ホルモン(外因性内分泌攪乱物質) ビスフェノールA 17β エストラジオール 臭気(臭気濃度)の測定方法
7	下水道整備と 維持管理にかかる費用の負担	建設費の負担割合 維持管理費の負担割合	
8	現在の下水道料金と 超高度処理にかかる費用	現在の下水道料金 超高度処理にかかる費用	
9	琵琶湖を汚す物質の発生源	現況の汚濁物質質量 汚染物質の発生源	家庭系 工業系 農業系 自然系
10	下水道以外の取り組み	農業用水の再利用 市街地排水浄化対策事業	貯留沈殿槽 植生浄化

4. 社会実験の結果

(1) 回収率

第1回アンケートでは、滋賀県守山市で433人、旧今津町で518人から回答を頂いた。そのうち8～9割の方には第2, 3回についても継続して回答を得ることができた。これだけ高い回収率を得られた理由は、NP0が主体となり、地元ネットワークを持つ団体と連携して調査を実施したことによると考えられる。

(2) 琵琶湖の水質に対する認識

「汚れている」という認識の方は24%から14%へと減り、「どちらかといえばきれい」と回答した人が23%から36%へと増えた(表-3)。これは第1回ニューズレターの「その他の湖との比較」の情報提供により、琵琶湖が他の湖沼と比べて比較的にきれいであると感じた人が多かったためと考えられる。

(3) 琵琶湖を汚染する原因に関する意識

琵琶湖の汚染源としては第1回～第3回ともに「家庭からの排水」を挙げる人が最も多かった。また、「農業からの排水」、「道路面からの排水」を原因と認識する人が増えた(表-4)。これは第1回ニューズレターの「琵琶湖に流入する汚濁物質」、第2回ニューズレターの「琵琶湖を汚す物質の発生源」の情報により、家庭からの排水や道路面など自然系からの排水による汚染割合が高いことを認識したためと考えられる。

(4) 関心を持つ琵琶湖の環境問題

第1回、第2回とも「アオコ・赤潮問題」がもっとも関心が高い結果となった。また、「ダイオキシン・環境ホルモン問題」への関心が高まった(表-5)。第1回ニューズレターの「新たな問題」の情報提供によりダイオキシン・環境ホルモンへの認識が高まったのではないかと考えられる。

(5) 共感できる琵琶湖の水環境保全対策

共感できる琵琶湖の水環境保全対策としては、下水道や浄化槽の普及が最も高く、工業排水の規制強化、住民への啓発、農業からの排水対策、湖内対策の順となった。下水の処理レベルの向上への理解については、13% (第1回) から21% (第3回) へ向上した。また、市街地からの排水対策についての理解も9% (第1回) から22% (第3回) へ向上した(表-6)。第2回ニューズレターの超高度処理や市街地排水対策事業に関する情報提供により住民の理解が向上したものと考えられる。

(6) 超高度処理に期待する効果

超高度処理に期待する効果としては、「トリハロメタン生成原因物質の除去」や「環境ホルモンの除去」

表-3 琵琶湖の水質に対する認識

項目	第1回		第2回	
	度数	%	度数	%
きれいである	8	1%	4	0%
どちらかといえばきれい	218	23%	304	36%
どちらかといえばよごれている	494	52%	413	49%
汚れている	226	24%	119	14%
計	946	100%	840	100%

表-4 琵琶湖を汚染する原因

項目	第1回		第2回		第3回	
	度数	%	度数	%	度数	%
家庭からの排水	625	66%	437	54%	158	59%
工業からの排水	171	18%	170	21%	32	12%
農業からの排水	130	14%	145	18%	48	18%
道路面からの排水	21	2%	55	7%	23	9%
計	947	100%	807	100%	270	100%

注) ・第1,2回の結果は守山市・旧今津町の合計値、第3回の結果は守山市のみの値である。

表-5 関心を持つ琵琶湖の環境問題

項目	第1回		第2回	
	度数	%	度数	%
アオコ・赤潮	688	72%	610	72%
水カビ	166	17%	176	21%
水草の繁茂	128	13%	109	13%
自然湖岸・ヨシの減少	496	52%	382	45%
外来魚の問題	653	69%	521	61%
水位の低下	233	25%	218	26%
ダイオキシン・環境ホルモン	396	42%	449	53%
その他	18	2%	5	1%
計	949	-	851	-

表-6 共感できる琵琶湖の水環境保全対策

項目	第1回		第2回		第3回	
	度数	%	度数	%	度数	%
住民への啓発	433	46%	271	32%	105	35%
下水道や浄化槽の普及	621	65%	562	66%	199	66%
下水の処理レベルの向上	125	13%	149	18%	64	21%
工業排水の規制強化	452	48%	433	51%	149	50%
農業からの排水対策	390	41%	403	47%	138	46%
市街地からの排水対策	84	9%	123	14%	67	22%
ヨシの保全や植栽	322	34%	219	26%	77	26%
湖内対策	377	40%	340	40%	90	30%
わからない	8	1%	6	1%	0	0%
計(回答者数)	951	-	851	-	301	-

注) ・第1,2回の結果は守山市・旧今津町の合計値、第3回の結果は守山市のみの値である。

・各回答者に、項目のうち、共感する上位3つを選択して頂いた。

が「窒素やリンの更なる除去」に比べ多かった（表-7）。第2回ニューズレターの超高度処理の水質改善効果に関する情報提供により、超高度処理による窒素・リンの更なる除去、トリハロメタン生成原因物質・環境ホルモン除去等の多面的な水質改善効果についての認識が向上したものと考えられる。

（7）琵琶湖の水環境保全のための支払意志の変化

琵琶湖の水環境保全のための支払意思については、「これ以上の負担は困る」が減少し、「負担は仕方ない」が増加するなど、琵琶湖の水環境保全のための新たな費用負担を容認する人が増える結果となった（表-8）。

超高度処理の導入に伴う費用負担に関しては、第2回ニューズレターで維持管理費が月・世帯あたり160円程度となることを示したが、それに対する支払意志額は平均値で189円となり（表-10）、一定の理解が得られた。しかし、支払意志額の分布を見ると、0円（導入には賛成）が最も多かった（表-9）。0円という回答者の割合を減らすことが今後の課題となった。

表-7 超高度処理に期待する効果

項目	度数	%
窒素やリンの更なる除去	67	23%
トリハロメタン生成の原因物質の除去	119	40%
環境ホルモンの除去	94	32%
臭いの除去	17	6%
合計	297	100%

注）・超高度処理に期待する効果の調査は第3回目のみ実施した。

表-8 琵琶湖の水環境保全のための支払意志

項目	第1回		第2回	
	度数	%	度数	%
もっと負担すべきだ	94	10%	66	8%
負担は仕方ないことだ	220	24%	250	31%
これ以上の負担は困る	515	55%	417	51%
これ以上の負担は必要ない	12	1%	11	1%
その他	94	10%	68	8%
計	935	100%	812	100%

表-9 超高度処理導入に対する支払意志額の分布

	度数	%
0円(導入に反対)	4	1%
0円(導入には賛成)	109	36%
50円	11	4%
100円	45	15%
200円	57	19%
300円	24	8%
500円	34	11%
1000円	14	5%
2000円	1	0%
合計	299	100%

表-10 超高度処理に対する支払意志額平均値

	含0円	除0円
WTP平均値	189	305

注）・超高度処理に対する支払意志額の調査は第3回目のみ実施した。

5. 結論

本研究では、住民の水環境に関する知識量が少ないことが下水の高度処理に対する理解が得られにくい原因であるとの問題意識に立脚し、住民の水環境に関する知識を増やすことにより、下水高度処理に対する理解を得る方法を考案、試行した。本研究の成果は以下のとおりである。

- （1） 住民の水環境に関する知識を増やす方法として、NP0が行政・住民の間の中立的な立場に立ち、住民の要求する情報に関するニーズを把握し、それに応じた専門情報を行政から得て住民に分かりやすい「ニューズレター」として提供する手法を考案した。
- （2） 住民への2回の情報提供の結果、琵琶湖の汚染源として家庭排水の他に農業排水や道路排水を認識する人の割合が増加し、関心のある琵琶湖の環境問題としてアオコ・赤潮の問題の他にダイオキシン・環境ホルモン問題を認識する人の割合が増加し、共感できる琵琶湖の水環境保全施策として下水処理レベルの向上や市街地排水対策への理解度が増加し、超高度処理による窒素・リンの更なる除去、トリハロメタン生成原因物質・環境ホルモン除去等の多面的な水質改善効果についての認識が向上するなど、住民の水環境問題や対策に関する知識・理解の向上が見られた。
- （3） 1回目の情報提供の後、琵琶湖の水環境保全のための新たな費用負担を容認する人が増えた。超高度処理に対する支払意志額は、月・世帯あたり160円程度という維持管理費を提示した結果、支払意志額平均値で189円となり、一定の理解が得られた。しかし、支払意志額の分布を見ると、0円（導入には賛成）という回答が3割以上で最も多く、0円という回答者の割合を減らすことが今後の課題となった。

このような住民参加型評価を行ううえでは、持続的な行政・住民間のコミュニケーションにおける住民への情報提供とニーズの把握の繰り返しが不可欠であり、それにはNPO等のネットワークを活用することが有効な手段の一つと言える。

謝辞 本報告は、国総研から NPO 法人びわこ・水ネット (<http://www.mizu-net.npo-jp.net/>) への委託研究（平成 15～16 年度）及び滋賀県と国総研の共同研究（平成 15～16 年度）に基づくものであり、びわこ・水ネットの調査研究部会の各位（山田淳部会長、田中伊三雄理事、堀野善司理事、井手慎司委員、藤井滋穂委員、只友景士委員、川嶋宗継委員、柴田和子委員）および滋賀県の川嶋幸徳氏、斎内正俊氏、山村幸男氏、立命館大学の小野敦史氏（現滋賀県）、滋賀県立大の平山奈央子氏他関係者のご尽力に感謝する。また、旧今津町アンケートの際に協力いただいた環境守るいまづの会、いまづ自然観察クラブ、大井川・庄垂川流域環境保全協議会の各位に感謝する。

参考文献

- 1) 山下洋正・荒谷裕介・中島英一郎・山田淳(2004)、行政・NPO協働による住民参加型の下水高度処理の評価手法、第41回下水道研究発表会講演集、pp. 282-284
- 2) 〈NPO レポート〉住民参加による琵琶湖水環境保全に関するワークショップ、月刊下水道、vol. 27, No. 9, p. 60(2004)
- 3) 「超高度処理テーマに NPO 法人びわこ・水ネット ワークショップを開催」、水道産業新聞、2004. 12. 20
- 4) 山縣弘樹・荒谷裕介・南山瑞彦・山下洋正・白崎亮・山田淳(2005)、行政・NPO協働による住民参加型の下水高度処理の評価手法、第42回下水道研究発表会講演集（掲載決定）
- 5) 山田淳・小野敦史・平井昭三・山下洋正・山縣弘樹(2005)、琵琶湖水環境保全対策を対象とした情報提供による住民意識の変化に関する基礎的研究、第33回環境システム研究論文集、土木学会（掲載決定）

10. 下水処理水の安全性に関わる技術基準に関する調査

下水処理研究室 室 長 南山 瑞彦
主任研究官 田嶋 淳
研 究 員 桜井 健介

1. はじめに

近年、下水処理水は修景・親水用水等への再利用、河川流量の維持等その重要性が増大している。一方、飲料水や食品を介した原虫クリプトスポリジウムによる集団感染や、ノロウイルスによる食中毒等の健康被害が近年大きな社会問題となり、水の安全性への関心が高まってきており、それらの病原微生物が下水処理水中にも存在する可能性があるため、その対策が求められている。また、下水処理水の再利用においても、同様にこうした新たな問題に対応していく必要がある。

以上を背景に、国土交通省都市・地域整備局下水道部及び国土技術政策総合研究所下水道研究部は、従来の下水処理水再利用に関する指針・マニュアルである「下水処理水循環利用技術指針（案）」（昭和 56 年策定）及び「下水処理水の修景・親水利用水質検討マニュアル（案）」（平成 2 年策定）における水質基準及び目標水質を見直すために必要な実態調査等を実施した。

本稿は基準等の見直しの検討材料とすることを目的として実施された実態調査のうち、下水処理水再利用の衛生学的安全性に関する実態調査について報告を行うとともに、原虫類対応の観点からの施設基準を検討するため、下水処理水再利用におけるクリプトスポリジウム感染リスク評価の検討を行うものである。

2. 下水処理水再利用の衛生学的安全性に関する実態調査

2. 1 調査方法要領

再生処理工程及び再生水供給過程における病原微生物の挙動を把握し、下水処理水再利用における衛生学的安全性確保に必要な対策を検討するために、A～E の 5 処理場における以下の 6 つの再生処理方法を有する下水処理水再利用システム（表－1 参照）を対象に、通年にわたり表－3 に示すような病原微生物及び関連指標等の測定を行った。測定対象とした病原微生物は、細菌類については、日本における食中毒の主要な原因であるサルモネラ属菌及びカンピロバクター、集団感染により大きな社会問題となった腸管出血性 0-157、再生水供給過程で増殖の可能性があるレジオネラ属菌とした。

また、採水箇所は、二次処理後、再生処理後、供給先受水槽の 3 箇所としたが、A-2 については、再生処理施設と供給先が隣接しているため、供給先での採水は行わなかった。

分析方法については、大腸菌群及び糞便性大腸菌群は、検水量 100mL として下水試験方法に基づき分析を行った。AOC、大腸菌及び従属栄養細菌は上水試験方法に基づき分析を行い、大腸菌の検水量は最大 100mL とした。レジオネラ属菌はレジオネラ症防止指針に基づき分析を行ったが、上水と比較して目的外コロニーの生育を抑えるため酸処理と熱処理を併用し、選択分離培地として GVPC 培地を用いた。カンピロバクターは Preston 培地、Skirrow 培地、ミューラーヒントン寒天培地を用いて、食品衛生検査指針に基づき分析を行った。腸管出血性大腸菌 0-157 は、ノボビオシン加 mEC 培地、CT-SMAC 培地、CLIG 寒天培地を用いて衛生試験法により分析を行った。サルモネラ属菌は TT ブロス培地、XLD 寒天培地、TSI 寒天培地、リジナー鉄斜面培地を用いて Standard Methods に基づき分析を行った。なお、病原細菌分析における検水量は、レジオネラ属菌については、最大 200mL、他の病原細菌については 100mL とした。

表－１ 再生処理方法

	再生処理方法	濁度*
A-1	砂ろ過＋塩素消毒	<0.1～1.4 (0.3)
A-2	砂ろ過＋紫外線消毒	<0.1～0.4 (0.2)
B	生物膜ろ過＋オゾン処理＋塩素消毒	0.3～1.6 (0.9)
C	砂ろ過＋オゾン処理＋塩素消毒	<0.1～0.8 (0.2)
D	凝集沈殿＋オゾン処理＋砂ろ過＋塩素消毒	0.1～0.7 (0.2)

表－２ 分析項目

分類	分析項目	分析頻度
一般項目	pH、水温、濁度、SS、残留塩素（遊離・結合）	月 1 回
	AOC	年 4～5 回
細菌類	指標	大腸菌群（MF-エンドウ培地法）、糞便性大腸菌群（M-FC 法）
		大腸菌（特定酵素基質培地法(MMO-MUG 培地)）
		従属栄養細菌（R2A寒天培地法）*
	病原微生物	レジオネラ属菌（ろ過濃縮法）
		サルモネラ属菌、カンピロバクター、腸管出血性大腸菌 O-157
		2～3 回／3 ヶ月**

* 再生処理後及び供給先受水槽のみ分析

** 塩素消毒が有効であり、供給過程での再増殖の問題がないと考えられるため、3 ヶ月間のみ分析を行った

2. 2 結果及び考察

再生処理過程及び供給先における大腸菌群の挙動を図－1 に示す。再生処理後では大腸菌群は殆ど不検出となったが、供給先受水槽では、C において 12 検体中 9 検体で大腸菌群が検出され、最大 120CFU/100mL まで増殖する場合もあった。表－3 に示すように C では供給先受水槽の残留塩素が十分に確保できておらず、また大腸菌群には土壌等動物の大腸以外でも増殖可能な細菌類が含まれているため、増殖したものと考えられる。また、再

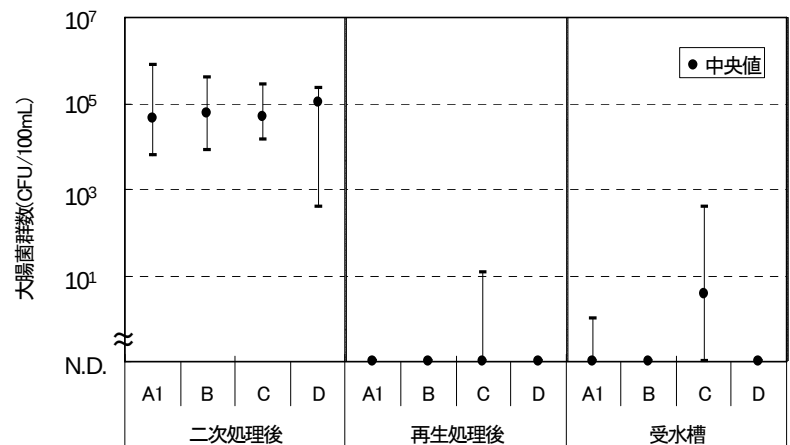


図-1 再生処理及び供給過程における大腸菌群の挙動

生処理後及び供給先受水槽における結合残留塩素と大腸菌群数の関係を図－2 に示す。大腸菌群は結合残留塩素濃度が 0.1mg/L 以下になると検出されることが多くなり、遊離残留塩素についても同様の傾向が見られ、結合残留塩素及び遊離残留塩素が 0.1mg/L 未満の場合、供給先受水槽では 12 検体中 9 検体で大腸菌群が検出された。一方、遊離残留塩素又は結合残留塩素が 0.1mg/L 以上の場合には、再生水では 44 検体中 43 検体、供給先受水槽では 33 検体中 32 検体で大腸菌群が不検出となった。

一方、大腸菌については、C では再生処理後の全てのサンプルについて大腸菌が不検出となり、供給先受水槽においても 7 検体中 2 検体でごく僅かに検出された程度であり、大腸菌群に見られたような増殖は見られなかった

(図－3 参照)。また、再生処理後及び供給先受水槽における結合残留塩素と大腸菌数の関係は図－4 に示す通りであり、再生処理後において大腸菌が完全に不活化されている場合には、供給先受水槽では残留塩素濃度に関わらず大腸菌は殆ど検出されなかった。

レジオネラ属菌の再増殖の場として考えられる生物膜やスライムの形成など清浄度の劣化を端的に表現する指標として優れているとされる従属栄養細菌については、結合残留塩素濃度が0.3mg/L以下の条件において、残留塩素濃度が小さいほど従属栄養細菌数が大きくなり、結合残留塩素濃度が0.3mg/L以上の条件では、従属栄養細菌数は残留塩素濃度によらずほぼ一定（ $10^1 \sim 10^3$ CFU/mL）となった（図－5 参照）。以上のことから、結合残留塩素を0.3mg/L以上保持することにより従属栄養細菌数を一定のレベルにまで低減できることが示唆された。但し、従属栄養細菌数と生物膜形成との量的な相関関係は明らかではないことから、生物膜の形成を抑制するためには、供給先に至るまで残留塩素を適切に確保するだけでなく、受水槽や配管等の定期的な清掃も併せ実施する必要があると考えられた。

その他測定対象とした病原細菌は全てのサンプルにおいて検出されなかった。なお、供給先受水槽底面には堆積物が見られたものの、堆積物について生物

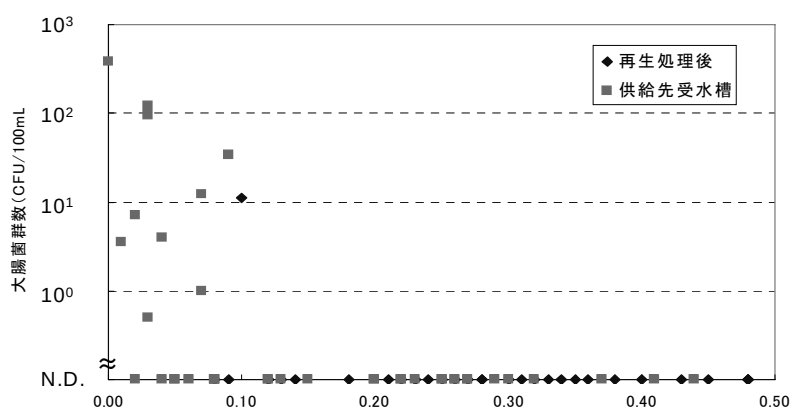


図-2 結合残留塩素と大腸菌群数の関係

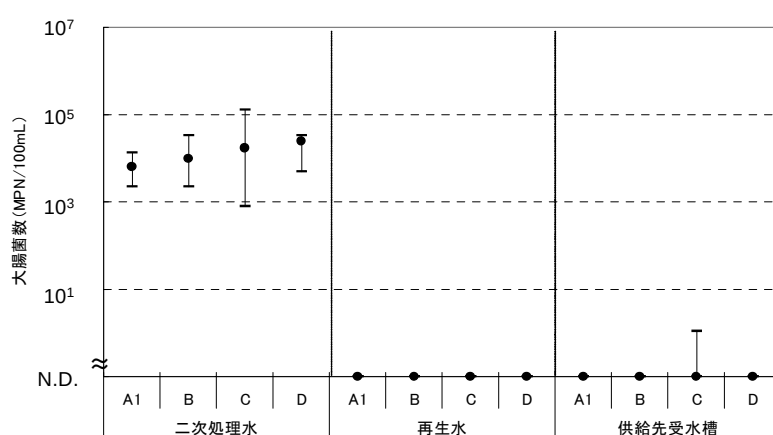


図-3 再生処理及び供給過程における大腸菌の挙動

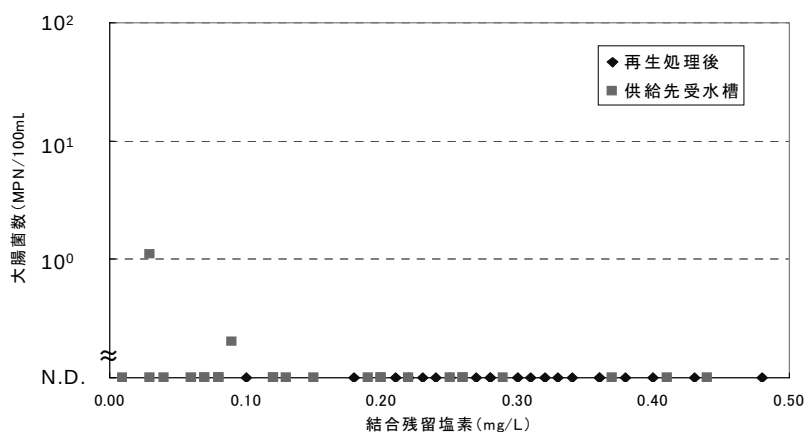


図-4 結合残留塩素と大腸菌数の関係

表－3 調査対象箇所残留塩素（単位：mg/L（括弧内は平均値））

	再生処理後		供給先受水槽	
	遊離	結合	遊離	結合
A1	0.20～2.80 (1.08)	0.26～1.34 (0.48)	0.02～0.49 (0.17)	0.02～0.66 (0.23)
B	0.07～1.70 (0.58)	0.12～3.20 (0.73)	0.09～1.16 (0.36)	0.13～1.20 (0.45)
C	0.07～0.92 (0.42)	0.08～0.67 (0.24)	0.00～0.16 (0.03)	0.00～0.09 (0.05)
D	0.16～1.28 (0.77)	0.12～1.92 (0.72)	0.05～1.04 (0.54)	0.04～0.92 (0.24)

検鏡を行った結果、レジオネラ属菌の宿主であるアメーバは検出されなかった。

以上の結果、大腸菌については、再生処理後において完全に不活化されている場合には、供給先受水槽では残留塩素濃度に関わらず殆ど検出されないこと、従属栄養細菌については、結合残留塩素濃度を 0.3mg/L 以上保持することにより、その数を一定のレベルにまで低減できることが示された。

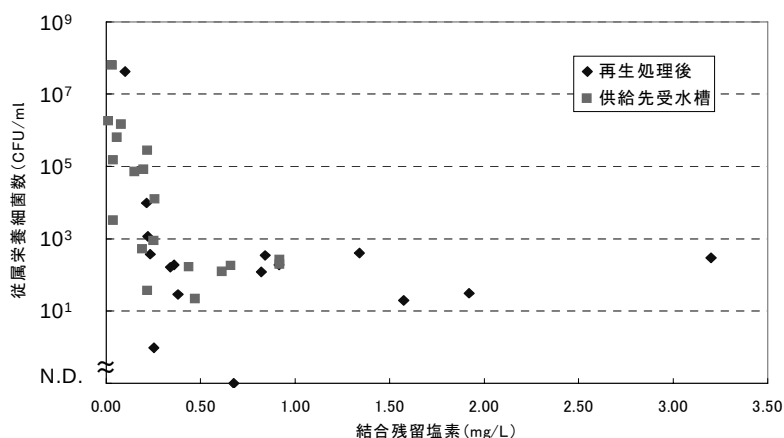


図-5 結合残留塩素と従属栄養細菌数の関係

3. 下水処理水再利用におけるクリプトスポリジウム感染リスクの評価

原虫類への対応の観点から下水処理水再利用において必要となる施設基準を検討するため、水洗用水、散水用水及び修景用水については砂ろ過施設を想定し、親水用水については凝集沈殿＋砂ろ過施設を想定した場合の、下水処理水再利用におけるクリプトスポリジウム年間感染リスクの評価を行った。なお、クリプトスポリジウム感染リスク評価は、「下水道技術会議 処理水、再生水の衛生学的水質検討プロジェクト」において収集されたクリプトスポリジウムの測定データを用いて行った。

3-1. 感染リスク算出方法

以下の手順により、下水処理水再利用におけるクリプトスポリジウム感染リスクを算出した。

- ①クリプトスポリジウム濃度に関する実態調査結果のうち、砂ろ過水のクリプトスポリジウム濃度が対数正規分布に従っていると仮定して、濃度分布を推定する。なお、砂ろ過水のクリプトスポリジウム測定結果は表－5に示すとおりであり、回収率を 0.351 と仮定²⁾して濃度分布を推定した。
- ②また、凝集沈殿＋砂ろ過水のクリプトスポリジウム濃度については、凝集処理により 2Log除去されると仮定³⁾した上で、クリプトスポリジウム濃度が対数正規分布に従っていると仮定して濃度分布を推定する。
- ③用量反応モデル及び摂取量を仮定し、①及び②で得られた濃度分布を用いて、モンテカルロシミュレーションにより感染リスク分布を導出する。なお、用量反応モデルには、Haasの式 ($P=1-\exp(-N/k)$ (P : 1回の摂取で感染する確率、 N : 1回当たり摂取量、 $k=238.6$ (パラメータ))) を用い、摂取量は表－6⁴⁾及び表－7³⁾を用いる。
- ④年間感染リスクの 95%信頼区間上限値をクリプトスポリジウム感染リスクとして算出する。

3-2. 感染リスク評価結果

水洗用水、散水用水及び修景用水については砂ろ過施設を想定し、親水用水については凝集沈殿＋砂ろ過施設を想定した場合の、下水処理水再利用におけるクリプトスポリジウム感染リスク評価の結果を図－6に示す。表－6及び表－7では、同じ用途であっても摂取量・摂取頻度が異なっているが、どちらの摂取シナリオを適用しても、全ての用途においてほぼ 10^{-4} 以下の感染リスクとなった。USEPAでは病原微生物による目標感染リスクとして 10^{-4} を提唱しており、平常時においては、前述の施設対応により、USEPAが提唱している目標感染リスク程度への対応は可能になるものと考えられる。但し、クリプトスポリジウム症に関しては散发例よりも集団感染発生時の対応が重要であり、集団感染発生時には、緊急的な追加処理等を行うか、あるいは利用の制限、再生水の供給停止等の対応が必要となるものと考えられる。

表－５ 砂ろ過水のクリプトスポリジウム測定結果（個／20L）

	2001.10～2002.9	2002.10～2003.9	2001.10～2003.9
試料数	24	24	48
算術平均	1.5	0.7	1.1
分散	4.1	1.9	3.2
標準偏差	2.0	1.4	1.8
最小値	0（9 件）	0（16 件）	0（25 件）
最大値	9（1 件）	6（1 件）	9（1 件）

表－６ 再利用形態ごとの再生水への接触頻度及び摂取量（１）

再利用形態	摂取形態	摂取頻度	摂取水量
親水用水（全身浴）	誤飲	8 回/年	30mL/回
親水用水（手足浴）	手についた水の間接経口摂取	20 回/年	0.3mL/回
滝・噴水（大規模）	ミスト吸引	10 回/年	1mL/回
釣り堀	手についた水の間接経口摂取	20 回/年	0.2mL/回
芝生散水	手についた水の間接経口摂取	20 回/年	0.1mL/回
水洗用水	しぶきが口に入る	3 回/年	0.02mL/回

表－７ 再利用形態ごとの再生水への接触頻度及び摂取量（２）

再利用形態	被曝露者	曝露形態	接触頻度	摂取量
親水用水	公園利用者	水遊び	100 日／年	10mL／日
修景用水	公園利用者	魚釣り	2 日／週	1mL／日
水洗用水	勤労者	飛沫による接触	5 日／週	0.1mL／日
散水用水	公園利用者	芝生等での接触	60 日／年	1mL／日

４．結論

下水処理水再利用に関する新たな基準を設定するに当たり必要な知見を得るために、下水処理水再利用の衛生学的安全性に関する実態調査を実施するとともに、原虫類への対応の観点から必要となる施設基準を検討するため、下水処理水再利用におけるクリプトスポリジウム感染リスクの評価を行った。調査の結果得られた知見を以下に示す。

（１）大腸菌群は再生処理後に増殖する場合があったが、大腸菌は再生処理後の増殖は殆ど見られなかった。下水処理水再利用のように再生処理後ある程度の時間を経た後の衛生学的安全性が重要となる場合には、水環境中で増殖するものを指標細菌として採用するのは適切ではないと考えられることから、指標細菌としては大腸菌群よりも大腸菌の方が適切である可能性が示唆された。

（２）結合残留塩素濃度を 0.3mg/L 以上保持することにより、従属栄養細菌数を一定のレベルにまで低減できることから、少なくとも結合残留塩素濃度 0.3mg/L 以上の基準値の設定が適切であることが示唆された。

（３）水洗用水、散水用水及び修景用水について砂ろ過施設を想定し、親水用水について凝集沈殿＋砂ろ過施設

を想定した場合のクリプトスポリジウム年間感染リスクは、平常時では全ての用途においてほぼ 10^{-4} 以下となっており、これらの施設対応により、USEPAが提唱している病原微生物による目標感染リスク程度への対応は可能であると考えられた。

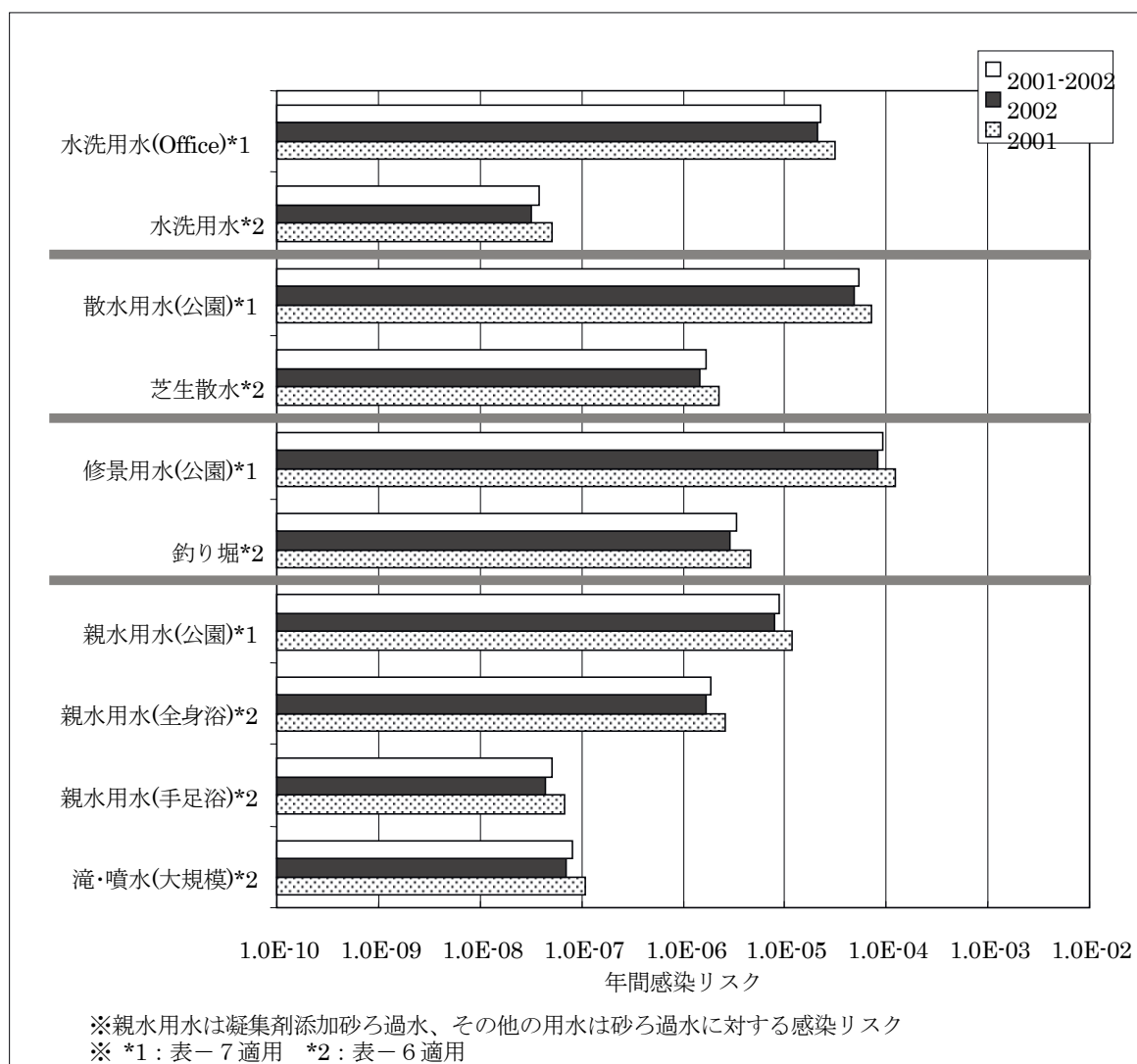


図-6 利用用途別のクリプトスポリジウム感染リスクの試算例

5. 謝辞

下水処理水の衛生学的安全性に関する調査の実施は、財団法人下水道新技術推進機構との共同研究によるものである。

参考文献

- 1) Dirk van der Kooij: Assimilable organic carbon as an indicator of bacterial regrowth, JAWWA, pp57~65 (1992)
- 2) 中島英一郎、山下洋正、斎野秀幸：「病原微生物の発生源および対策に関する調査」、平成13年度下水道関係調査研究年次報告書集、pp. 185-190、国土交通省国土技術政策総合研究所、2001
- 3) 「下水道におけるクリプトスポリジウム検討委員会最終報告」日本下水道協会 2000.3
- 4) 「ウイルスの安全性からみた下水処理水の再生処理法検討マニュアル」高度処理会議 2001.7

11. 下水汚泥中内分泌かく乱物質の汚泥処理過程

および土壌環境中での挙動に関する調査

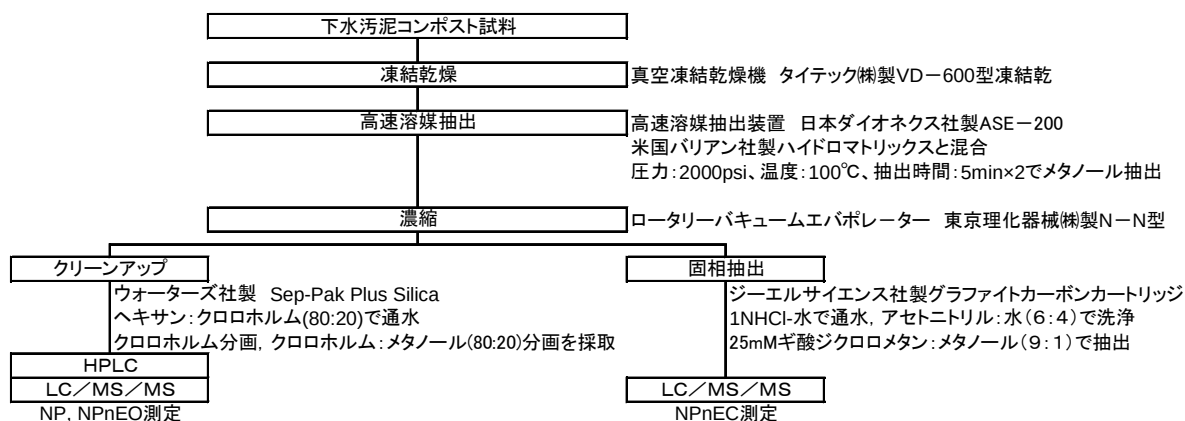
リサイクルチーム 室 長 尾崎 正明
主任研究員 山下 洋正

1. はじめに

近年、資源の有効利用の観点から下水汚泥の再利用が進んでいるが、このとき、下水中のノニルフェノール類やエストロゲン等の内分泌かく乱物質、微量化学物質が再利用される下水汚泥中に移行し、環境汚染につながる事が懸念される。このため、下水汚泥中および下水汚泥リサイクル製品中に含まれるこれら物質の制御技術の開発が求められている。本調査は、下水汚泥中のノニルフェノール類（NP 類）、エストロゲン等の内分泌かく乱物質、微量化学物質を分析するための抽出手法を提案し、下水汚泥コンポストの施用時の土壌環境での挙動を把握するとともに、下水汚泥処理過程における挙動および運転条件との関係を解明することを目的としている。平成 16 年度は、液体クロマトグラフータンデム型質量分析装置（LC/MS/MS）を用いたノニルフェノール（NP）、ノニルフェノールエトキシレート（NPnEO）、ノニルフェノールエトキシ酢酸（NPnEC）の分析法の開発、下水汚泥処理過程のうちコンポスト化過程における NP 類の挙動把握のための室内実験および実処理場のコンポスト中の NP 類の存在実態の調査を行った。

2. 液体クロマトグラフータンデム型質量分析装置（LC/MS/MS）を用いたノニルフェノール類（NP 類）の分析法の開発

下水汚泥等の試料中のNPnECについては、HPLCによる定量が困難であり、LC/MS/MS測定が必要である。また、NPおよびNPnEOについては、HPLCにより簡便に測定が可能であるが、例えばコンポスト副資材のおがくず等の共存物質の妨害ピーク等により正確な定量が困難な場合がある。よって、下水汚泥等の試料中のNP、NPnEO、NPnECについて、LC/MS/MSによる測定方法を開発することとした。抽出方法は南山ら¹⁾の方法を用い、LC/MS/MS分析は、下水試験法（追補暫定版）²⁾、八十島らの方法³⁾等を参考にした。測定フローについて図－1に示し、測定方法については表－1および表－2に、測定イオンについては表－3にそれぞれ示した。



図－1 HPLC および LC/MS/MS による NP, NPnEO, NPnEC の測定フロー

表－１ HPLC による NP, NPnEO 測定法

装置	ウォータース社製HPLC (2691 セパレーションモジュール)
検出器	ウォータース社製 475 スキャニング蛍光検出器
カラム	Inertsil Ph 5 μ m (4.6 ϕ * 151mm) ジーエルサイエンス社製
カラム温度	40℃
サンプル温度	5℃
注入量	20 μ l
測定波長	Ex 225nm Em 300nm
分析時間・溶離液	イソクラティック溶離法 (40分) メタノール：水 (70：30)
流速	1ml/min

表－２ LC/MS/MS による NP, NPnEO および NPnEC 測定法

HPLC装置	アジレント社製HPLC (1100 HPLCモジュール)
カラム	NP, NPnEO : Inertsil Ph 5 μ m (4.6 ϕ * 150mm) ジーエルサイエンス社製 NPnEC : Agilent Zorbax Eclipse XDB-C18 2.1mm x 150mm
カラム温度	40℃
サンプル温度	5℃
注入量	10 μ l
分析時間・溶離液	イソクラティック溶離法 (10分) メタノール：2mM酢酸アンモニウム (85:15)
流速	NP, NPnEO : 1ml/min NPnEC : 0.3ml/min
MS/MS装置	ABI社製4000QTRAPシステム
イオン化法	ESI (TurboSpray)
測定モード	MRM
極性	NP : Positive NPnEO, NPnEC : Negative

表－３ LC/MS/MS による NP 類測定における測定イオン

	測定イオン(m/e)			測定イオン(m/e)	
	Target	Product		Target	Product
NP	219.1	133.0	NP1EC	277.0	219.0
NP1EO	282.2	252.0	NP2EC	321.1	219.0
NP2EO	326.3	183.1	NP3EC	365.1	219.0
NP3EO	370.3	227.0	NP4EC	409.2	219.0
NP4EO	414.3	397.2	NP5EC	453.2	218.9
NP5EO	458.4	441.4	NP6EC	497.3	218.9
NP6EO	502.3	485.3	NP7EC	541.3	219.0
NP7EO	546.3	529.3	NP8EC	585.3	219.0
NP8EO	590.4	573.4	NP9EC	629.4	219.0
NP9EO	634.4	133.2	NP10EC	677.3	219.0
NP10EO	678.5	133.0			
NP11EO	722.5	89.1			
NP12EO	766.5	89.1			
NP13EO	810.6	89.1			
NP14EO	854.6	89.0			
NP15EO	898.7	89.1			

３．コンポスト化過程におけるノニルフェノール類 (NP 類) の挙動把握

下水道に流入するノニルフェノールエトキシレート(NPnEO)は、下水処理過程で短鎖化・分解され、nがより小さいNPnEO、ノニルフェノールエトキシ酢酸(NPnEC)及びノニルフェノール(NP)を生じる。これらは低極性の物質が多く、大部分が下水汚泥に吸着されて下水処理場外に排出されていると考えられる⁴⁾。下水汚泥はコンポスト化による緑農地利用が行われているが、コンポスト化の過程におけるNP類の挙動は十分に把握されていない。そこで、実験室規模のコンポスト化装置を用いたコンポスト化実験を行い、下水汚泥

のコンポスト化におけるNP類の挙動を調査した

3. 1 実験方法

嫌気性消化を行っているK処理場およびI処理場の消化脱水汚泥および副資材（おがくず）を用いてコンポスト化実験を行った。脱水汚泥および副資材等の性状について表－4に示し、運転温度等の実験条件について表－5に示す。

実験は、容量 4L のガラス製カラムに脱水汚泥、副資材および返送コンポストを充填し、恒温槽に設置して温度を管理し、カラム下部より強制通気して好気性条件下で連続運転を行った。用いた実験装置の概要を図－2に示す。実験期間中は1～2週間の所定の周期でコンポストの引き抜き、返送(50%)、新規材料の投入を行い、コンポスト化の開始時および返送・新規材料投入時に NP を人工的に添加した。

表－4 脱水汚泥および副資材等性状

	含水率 (%)	強熱減量 (%)	pH (-)	EC (ms/cm)	N (%)	C (%)
消化脱水汚泥K	80.6	62.5	7.7	3.2	4.38	30.1
消化脱水汚泥I	80.0	60.3	7.3	3.2	4.33	32.2
おがくず	11.4	97.9	5.5	0.5	0.0	46.3
返送コンポスト	60.9	83.7	6.2	1.8	1.91	40.2

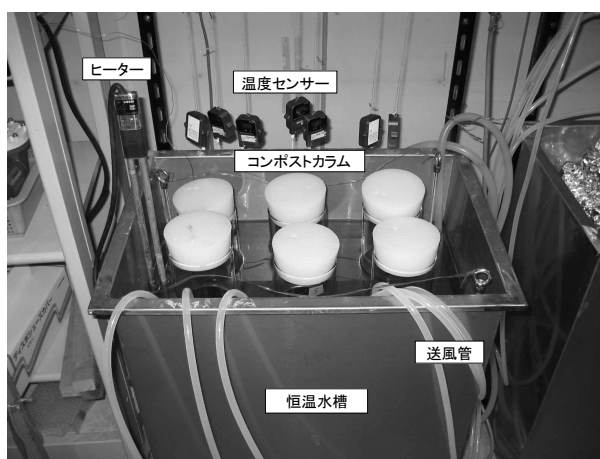
表－5 実験条件

	Run 1	Run 2	Run 3
運転温度	35	50	70
初期NP濃度	150	60	60
混合率	消化脱水汚泥 ⁽¹⁾	0.4	
	おがくず	0.1	
	返送コンポスト	0.5	
通気量	1		

Run1のみ15日目から汚泥Iを使用, それ以外は全て汚泥Kを使用

3. 2 測定

NP 類として, NP, NPnEO および NPnEC を測定した。NP および NPnEO については, HPLC による測定を主とし、一部の試料については LC/MS/MS による測定を併せて行った。NPnEC については一部の試料について LC/MS/MS により測定を行った。LC/MS/MS による測定方法は、表－1 から表－3 および図－1 に示した通りである。一般項目として、含水率および強熱減量（下水試験方法による）、pH および EC（肥料分析法による）ならびに TC および TN（下水試験方法に従い、CHN コーダーを使用）を測定した。



図－2 実験装置の概要

3. 3 結果および考察

原料に用いた消化脱水汚泥、おがくず中のノニルフェノール類の濃度を表－6に示す。これより、嫌気性消化汚泥を脱水した汚泥中には、NP が約 10～40 $\mu\text{g/g-dry}$ 存在しており、NPnEO はより低濃度であることが分かった。また、副資材であるおがくず由来のノニルフェノール類は低濃度で、コンポスト中のノニルフェノール濃度にほとんど寄与しないと考えられた。

表－6 消化脱水汚泥、副資材等のノニルフェノール類の濃度

濃度 ($\mu\text{g/g-dry}$)	消化脱水汚泥 K	消化脱水汚泥 I	おがくず	返送コンポスト
NP	40.8	10.4	8.4	25.8
NP1EO	6.0	8.5	4.5	3.7
NP2EO	3.1	2.5	0.09 ⁽¹⁾	2.0
NP3EO	1.1	0.7	5.2	0.1

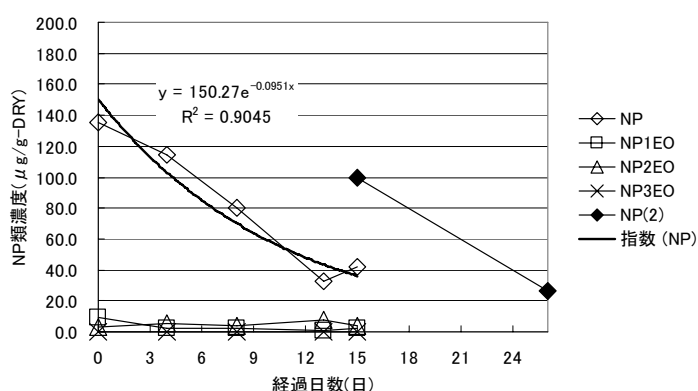
(1) のみLC/MS/MS測定値, 他はHPLC測定値

実験開始時点（0日目）で表－2に示す比率で混合した試料中の NPnEC(n=1-10)濃度 ($\mu\text{g/g-dry}$)は、2.7 (NP2EC)～0.14(NP7EC)といずれも低濃度であり、実験にほとんど影響しないと考えられた。

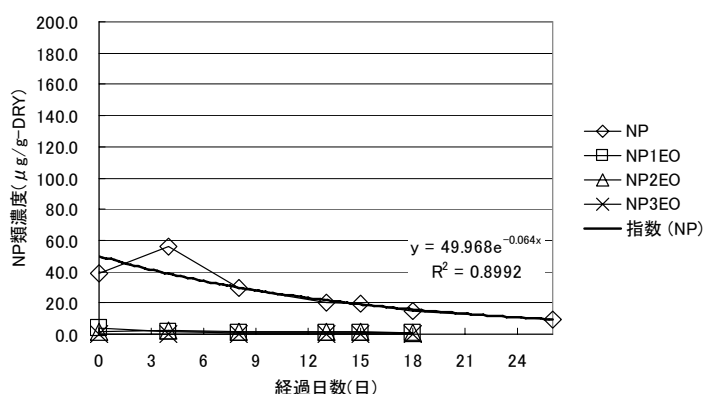
Run1 においては、35℃の運転条件下で、連続して安定的にNPが分解された。2周期におけるノニルフェノール類の挙動を図－3に示す。NP濃度 ($\mu\text{g/g-dry}$) が経過日数 t に関して指数関数的に減少するとして近似した場合は、 $C = 150 * e^{(-0.095t)}$ ($R^2=0.905$) なる関係式が得られ、半減期は 7.3 日と算出された。

一方、Run2 (50℃) においては、Run1 (35℃) より緩やかな減少が観察された (図－4)。指数関数近似として、 $C = 50 * e^{(-0.064t)}$ ($R^2=0.899$) なる関係式が得られ、半減期は 11 日と算出された。また、Run3 (75℃) においては、NPの減少は観察されなかった (図－5)。従ってこれらの温度が高い条件下においては、NP分解微生物の活性が低下して、分解速度の低下あるいは分解停止となる可能性が示唆された。ただし、Run2 および Run3 においては、高温という不利な条件を考慮して、NPの阻害等を避けるためにNP初期濃度をRun1 の 40%と低めに設定したために、減少が見かけ上小さくなっている可能性も否定できないので、今後はより高濃度での実験を行って確認する必要がある。また、いずれの実験においてもNPnEOの変化に有意な傾向は見られなかった。

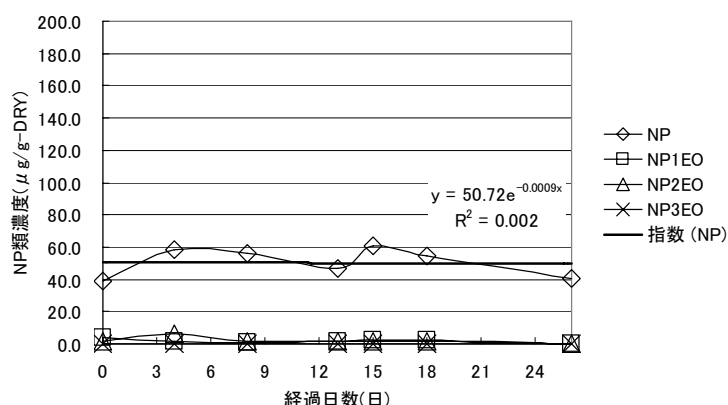
実際のコンポスト化施設の運転条件下においては、65℃以上で2日間以上保持するという運転管理が行われているため、この間にNPを分解する微生物が活性を失う可能性が考えられる。今後は、追加実験および実施設での調査を行って、コンポスト化過程におけるNP類の挙動をより詳細に把握する必要がある。



図－3 35℃でのコンポスト化におけるNP類の挙動



図－4 50℃でのコンポスト化におけるNP類の挙動



図－5 70℃でのコンポスト化におけるNP類の挙動

4. 実処理場の下水汚泥コンポスト中のノニルフェノール類 (NP 類) の存在実態

実処理場に流入したNP類の水処理における挙動については、調査報告がなされている⁴⁾が、下水汚泥に移行した後に、コンポスト化過程でどのような挙動を示すかについては、十分なデータがない。そこで、実処理場の下水汚泥コンポストを収集してNP類の分析を行い、その存在実態を把握した。

4. 1 実験方法

2003 年秋に国内 17 道県で製造された下水汚泥コンポスト（肥料及び土壌改良材）を収集し、高速溶媒抽出及び HPLC 法により、ノニルフェノール(NP)及びノニルフェノールエトキシレート(NPnEO)(n=1-15)を分析した。分析法の詳細は表－1 および図－1 に示すとおりである。収集した下水汚泥コンポストの種類・性状について、表－7 に示す。

17 種類の下水汚泥コンポストのうち、5 種類は嫌気性消化汚泥 (D) を原料としており、7 種類は生余剰汚泥 (R) を原料としており、残り 5 種類については原材料について十分な情報が得られなかった。そのうちいくつかについては、食品廃棄物やその他の雑多な有機物を含んでいると考えられた。

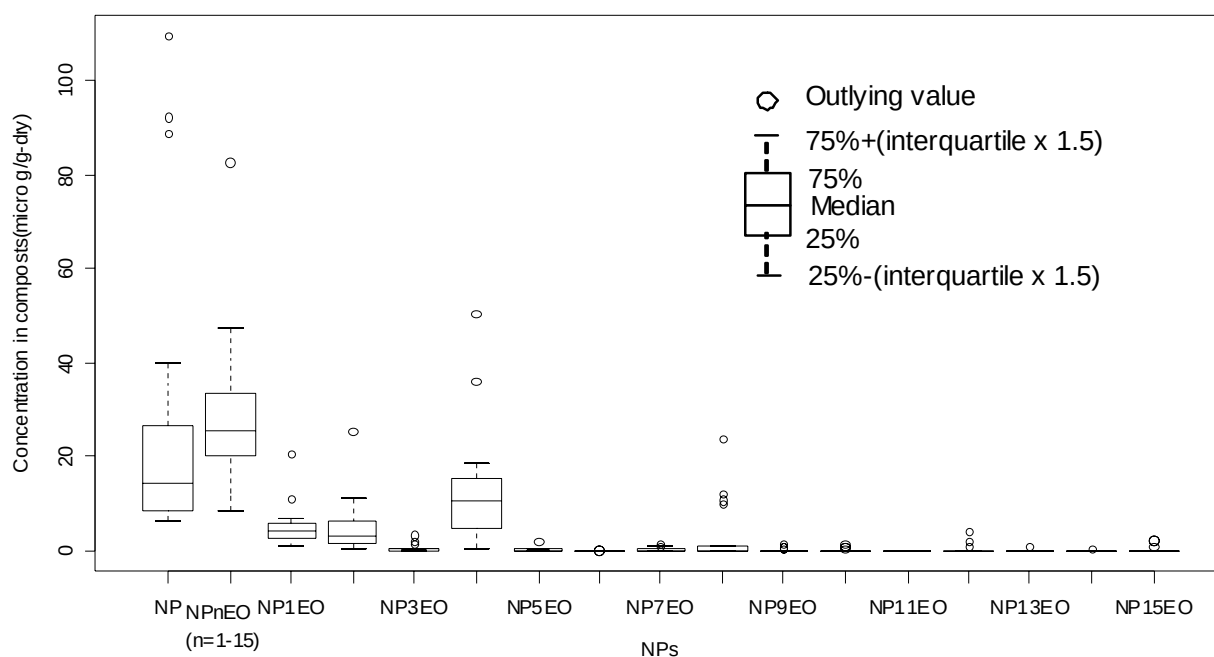
表－7 下水汚泥コンポストの種類と含水率

No.	type of sludge	% solids	No.	type of sludge	% solids
1	D	34.8	10	M	48.0
2	D	16.2	11	R	26.3
3	M	31.9	12	M	35.9
4	R	20.9	13	R	28.5
5	D	25.2	14	D	32.8
6	R	59.8	15	R	8.5
7	R	26.0	16	M	66.6
8	R	27.8	17	D	26.2
9	M	52.1			

D:anaerobically digested sewage sludge, R:raw excess sewage slud
M:other (data not available or sludge containing food waste etc.)

4. 2 結果と考察

下水汚泥コンポスト中の NP 及び NPnEO(n=1-15 の合計)ならびに NP 類合計の濃度は、それぞれ 6.5～110(μ g/g-dry), 8.3～82.3(μ g/g-dry), 23.6～174.9(μ g/g-dry)であった (図－6 および表－8)。



図－6 下水汚泥コンポストにおける NP 類の分布

表－８ 下水汚泥コンポストにおける NP 類濃度

Compost No.	NPCs (micro g/dry g)																	Σ NPCs
	NP	NPnEO	NP1EO	NP2EO	NP3EO	NP4EO	NP5EO	NP6EO	NP7EO	NP8EO	NP9EO	NP10EO	NP11EO	NP12EO	NP13EO	NP14EO	NP15EO	
1	26.2	25.5	4.2	2.4	0.5	18.4	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	51.7
2	92.2	82.7	20.4	6.5	1.5	50.5	0	0.2	1.4	0	0.7	1.5	0	0	0	0	0	174.9
3	21.4	28.2	3.4	4.7	0.6	18.1	0.5	0	0.5	0	0	0.4	0	0	0	0	0	49.6
4	6.5	33.7	11.3	9.7	3.4	8.7	0.6	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	40.2
5	40.0	19.9	2.7	0.9	0.2	14.2	1.9	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	59.9
6	19.6	8.3	1.3	0.6	0.2	4.4	0	0	0	1	0	0.8	0	0	0	0	0	27.9
7	11.1	37.2	4.5	11.1	0.6	15.2	0	0	0.4	0.3	0	0	0	4.2	0	0	0.9	48.3
8	7.3	16.3	5.4	1.8	0.5	8.6	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	23.6
9	8.7	23.1	0.8	9	0	0.5	0	0	0	10	0.6	0	0	2.2	0	0	0	31.8
10	6.6	47.4	5.5	25.5	0	3.9	0	0	0	10.8	0	0.9	0	0.8	0	0	0	54.0
11	9.6	29.7	6.9	5.8	0.7	14	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2.3	39.3
12	26.8	24.6	1.7	3.4	0	4.8	0	0.2	0.8	12.2	1.5	0	0	0	0	0	0	51.4
13	9.0	20.1	4.1	2.5	0.3	10.6	0.3	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2.3	29.1
14	88.8	45.8	5.6	2.2	0.6	36	0	0	1.1	0	0.3	0	0	0	0	0	0	134.6
15	14.3	23.1	6.9	3.3	2.2	10	0.4	0	0.3	0	0	0	0	0	0	0	0	37.4
16	6.8	29.6	1.5	1.5	0.2	1.2	0	0	0	23.7	0	0	0	0	1.2	0.3	0	36.4
17	109.7	16.0	3.2	0.7	0.1	12	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	125.7

n>5(NP5EO より長鎖) では 50%以上、n>9(NP9EO より長鎖) では 75%以上の試料において不検出であり、下水汚泥のコンポスト製品においては、NPnEO の短鎖化が進んでいることが分かった。

原料に関する情報が得られた 12 種類の下水汚泥コンポストについて、NP濃度によって整理した結果を表－９に示す。これより、嫌気性消化汚泥を原料とするコンポストは、生汚泥を原料とするコンポストと比較して、有意に高濃度のNPを含んでいた (P<0.05, Mann-Whitney's U test)。Gigerら⁵⁾は、NPが下水汚泥の嫌気性消化過程において生成されると報告しており、平成 15 年度の調査においても確認されている。従って、嫌気性消化過程において、NPnEO等よりNPが生成され、コンポスト化過程において残存していると考えられる。

表－９ 汚泥種類と NP 類濃度

NPs Rank	Compost No.	type of sludge	NPs	NPnEO (n=1-15)	Total NPCs
1	17	D	109.7	16.0	125.7
2	2	D	92.2	82.7	174.9
3	14	D	88.8	45.8	134.6
4	5	D	40.0	19.9	59.9
5	1	D	26.2	25.5	51.7
6	6	R	19.6	8.3	27.9
7	15	R	14.3	23.1	37.4
8	7	R	11.1	37.2	48.3
9	11	R	9.6	29.7	39.3
10	13	R	9.0	20.1	29.1
11	8	R	7.3	16.3	23.6
12	4	R	6.5	33.7	40.2

NPs, NPnEO and NPCs: micro g / g dry solid

嫌気性消化課程で生成したNPがコンポスト実験においては 35℃条件下ではNPが分解されるにもかかわらず、実際のコンポスト化施設でNPが残留している理由としては、すでに述べたとおり、実施設の運転条件下においては、65℃以上で2日間以上保持するという運転管理が行われているため、この間にNPを分解する微生物が活性を失った可能性が考えられる。例えば、Banatら⁶⁾は、50 および 100 mg/Lの 4-NPが 60℃、10 日間の実験室規模の好気性熱処理で 66%まで削減されたと報告しており、Moellerら⁷⁾は 65℃条件下のコンポスト化実験でNP分解が低下したと報告している。今後は、実施設における現地調査により、実際の運転条件下でのNP類挙動について確認を行うとともに、エストロゲンの挙動も調査する必要がある。

参考文献

- 1) 南山瑞彦他, 第 39 回下水道研究発表会講演集, pp.86-88, 日本下水道協会, 2002
- 2) (社) 日本下水道協会; 下水試験方法 (追補暫定版) 2002 年版
- 3) 八十島誠他, 下水中の環境ホルモン物質の分析技術, 土木技術資料 Vol.45, No.6, pp.68-73
- 4) 国土交通省都市・地域整備局下水道部, 平成 12 年度下水道における内分泌攪乱物質 (環境ホルモン) に関する調査報告(2001)
- 5) Giger, W., P. H. Brunner, and C. Schaffner. (1984). 4-Nonylphenol in sewage sludge: accumulation of toxic metabolites from nonionic surfactants. Science 225:623-5.
- 6) Banat, F. A., S. Pechtl, and F. Bischof. (2000). Aerobic thermophilic treatment of sewage sludge contaminated with 4-nonylphenol. Chemosphere 41:297-302.
- 7) Moeller et.al (2003). Degradation of nonylphenol ethoxylates (NPE) in sewage sludge and source separated municipal solid waste under bench-scale composting conditions. Bull Environ Contam Toxicol 70:248-54.

12. 下水汚泥を活用した有機質廃材の資源化・リサイクル技術に関する調査

研究予算: 受託業務費

研究期間: 平 14～平 17

担当チーム: 材料地盤研究グループ(リサイクル)

研究担当者: 尾崎正明, 落修一, 庄司仁

【要旨】

本調査は、草木系のバイオマスと廃水処理から発生する下水汚泥の利活用を推進するために、双方の特性を活かした効果的な利活用技術を開発するものである。平成16年度は、草木廃材と下水汚泥を混合した有機酸発酵の特性を明らかにする実験を行った。その結果、草木廃材から酢酸を主成分とする有機酸の生産が可能であること、発酵を担う細菌群集は純粋セルロースの場合と近縁であること、といった特徴が分かった。さらに、下水汚泥などスラリー状有機質の液体コンポスト化手法を、常温から高温までの異なる温度の条件で調査した。液体コンポスト化には、高温条件による熱分解反応と、常温～中温条件での生物分解反応を組み合わせることが適していた。

キーワード: バイオマス, 酸発酵, 木質廃棄物, コンポスト, 下水汚泥, 微生物群集解析

1. はじめに

土木工事をはじめ、道路や河川、海岸、空港、公園などの緑地管理からは、大量の廃木材や刈草が発生している。現状では、これらの草木系バイオマスの利活用手法は限られており、資源としての利用につなげる技術開発が必要である。一方、下水処理の過程では多くのエネルギーや薬品を必要としているが、草木系バイオマスによって代替できる可能性がある。また、下水汚泥は多様な微生物群と豊富な無機分を含むことから、草木系バイオマスの生物学的な加工や改質に貢献できると考えられる。

本調査は、草木系バイオマスを中心とした有機質廃材と下水汚泥との混合により資源化を行う技術、および有機質廃材を加工して下水処理に活用する技術を開発し、草木系バイオマスと下水汚泥の利活用の推進に寄与することを目的とする。

2. 調査方法

下水処理場では、下水汚泥を対象とした嫌気性消化法によりメタン発酵を行っている所が多い。平成14年度は、消化槽に下水汚泥と木質を混合投入して、メタンガスの増産を図る方法について調査した。その結果、木質に前処理(蒸煮・爆砕処理)を施せば、効率的なメタンガスの生産が可能となった。平成15年度は、木質を加えた消化過程における発酵液の流動性や、発酵残渣(消化汚泥)の処理性能などについて検討し、運転上大きな問題はないことを明らかとした。さらに、下水の高度処理に必要な有機酸を生産する嫌気性発酵の検討も行い、純粋セルロースを基質とする場合のpHの影響などを明らかにした。

本年度は、昨年度に引き続いて嫌気性発酵による有機

酸生産に関して、蒸煮・爆砕処理した木質を用いた発酵実験を行った。また、発酵液残渣を有効利用に資するために、スラリー状の有機質に対して汎用的に適用できる液体コンポスト化法の開発に着手した。

3 調査結果

3.1 草木廃材と下水汚泥による有機酸の生産

3.1.1 実験の概要

10Lの密閉ガラス瓶に表1に示す培地等を投入して、攪拌しながら嫌気培養を行った。pH制御用のNaOH水溶液が消費されなくなった運転開始32日目で、実験を終了した。各系列の32日目の試料は、真正細菌(メタン細菌は含まない)の16S rRNA 遺伝子を標的とするPCR-DGGE法の解析に供した。DGGEで検出されたバンドは、塩基配列の解読までを行い、系統的な位置を整理した。

表1: 各系列の条件設定

	発酵基質	総投入量	培地*2	消化汚泥
A系	セルロース	240 gDS	9 L	75 mL
B系	蒸煮・爆砕物	194 gDS	9 L	75 mL
C系	Bの固形分*1	243 gDS	9 L	75 mL

共通な設定: pH 制御目標値 7.0, 温度 35°C(恒温室)

*1: 蒸煮・爆砕物を水洗したもの *2: 詳細な組成は文献¹⁾参照

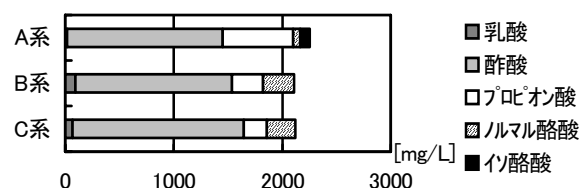


図1: 運転32日目の有機酸濃度

3. 1. 2 調査結果

(1) 有機酸生成に対する蒸煮・爆砕木質の影響

主な有機酸濃度の測定結果を図1に示した。どの基質を投入した場合も、32日時点での有機酸濃度は同程度で、その主成分は酢酸である。したがって、蒸煮・爆砕木質とセルロースは、有機酸生産という目的に対しては同等に活用できると考えられる。

一方、プロピオン酸と酪酸の濃度を個別に見ると、純粋セルロースを用いたA系と、蒸煮・爆砕木質を添加したB、C系で濃度の相違が見られる。このことから、酸発酵の反応経路として、セルロースを出発点とする場合にはプロピオン酸を経て、蒸煮・爆砕木質を出発点とする場合には酪酸を経て酢酸に至る反応が主に起きていたと考えられる。原因として、蒸煮・爆砕物に含まれるセルロース以外の成分の影響、あるいは、発酵を担う細菌群集が異なっていた可能性などを挙げられる。

また、累積ガス発生量は表2のとおりである。A系は、酢酸からのメタン生成($\text{CH}_3\text{COOH} \rightarrow \text{CH}_4 + \text{CO}_2$)が盛んであったと考えられる。結果として、発酵基質の分解量(表2の「合計」に相当)も最大だが、有機酸を多く回収するためには、B、C系のようにガス発生量の少ない方が望ましい。昨年度までの結果から分かるように、蒸煮・爆砕木質がメタン発酵を抑制するわけではないので、B、C系でも時間の経過とともにメタン発生量が増加する可能性が高い。したがって、有機酸生産に適した反応時間(滞留時間)の設定が重要である。

(2) 有機酸発酵を担う細菌群集の特徴

図2の DGGE 結果は、基質に応じてバンドパターン(細菌群集構造)が異なることを示している。つまり、それぞれの基質に応じて、異なる塩基配列を持つ(=異なる種類の)細菌が存在していることになる。しかし解読したバンドの塩基配列を既存のデータベースと照らし合わせると、大部分が *Clostridium* 属もしくは *Bacteroides* 属と近縁なものであった。これは、どの基質を与えた場合も、属としては同じような細菌によって群集が形成されていたことを意味する。また近縁種として名前の挙がった *Clostridium* 属や *Bacteroides* 属の細菌は、草食動物の腸内に存在するような、高い酸発酵能力(セルロースの嫌氣的分解能力)を持ち、そして非常に一般的なものである。これは、蒸煮・爆砕木質の分解には、通常の発酵性細菌だけで十分であることを意味している。一方で、セルロース基質と蒸煮・爆砕物基質との反応経路の違いについて、原因が細菌種の違いによるのかどうかは、データベースで照会可能な範囲では、明確にならなかった。

表2: ガス発生量および溶解性有機物増加量

	CO ₂ 発生	CH ₄ 発生	DOC 増加	合計
A系	5.8 gC	10.7 gC	13.4 gC	29.9 gC
B系	1.7 gC	4.9 gC	6.2 gC	12.8 gC
C系	2.2 gC	3.8 gC	12.5 gC	18.5 gC

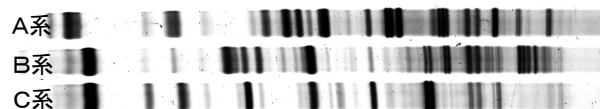


図2: 運転32日目の PCR-DGGE 解析結果

3. 2 スラリー状有機質の液体コンポスト化

下水汚泥をはじめとする各種のスラリー状有機質を緑農地還元するためには、脱水により含水率を低減させてからコンポスト化することが一般的である。しかしながら、有機物を好気条件で安定化させるというコンポスト化の目的は、スラリーの状態でも達成できる。本調査は、好気性消化に改良を加えた新たな手法により、余剰汚泥および消化汚泥の液体コンポスト化を行ったものである。

3. 2. 1 実験の概要

反応装置として、図3に示す密閉(耐圧)容器と攪拌装置、恒温水槽(恒温室では対応できない場合)を用意した。実験開始時に2気圧分の酸素を充填して、ガス組成を測定しながら必要に応じて酸素を追加した。温度条件として20、35、50、60、70、80℃の6系列を用意したが、80℃の装置で不具合が多発したため、本稿では主に70℃までの結果を報告する。

まず Pre-Run として、2種類の余剰汚泥と下水汚泥コンポストを混合して、各温度条件で馴致した。次に Run-1 として、余剰汚泥(基質)と Pre-Run で馴致した少量の汚泥(植種)による条件を設定した。最後に、消化汚泥(基質)と Run-1 で馴致した少量の汚泥(植種)で Run-2 を設定した。実験に用いた各汚泥の分析結果は表3に示した。

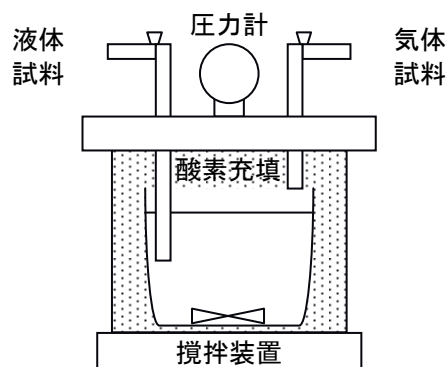


図3: 液体コンポスト化の実験装置

表3: 液体コンポスト化に用いた汚泥

Pre-Run		固形分 (MLVSS)	溶解性 TOC
植種源	余剰汚泥A* ¹	混合物で 12 g/L	混合物で 0.60 g/L
	余剰汚泥B* ²		
	コンポスト* ³		
Run-1		固形分 (MLVSS)	溶解性 TOC
植種源	Pre-Run 200 mL	4~16 g/L	0.6~3.6 g/L
基質	余剰汚泥 A 600 mL	26 g/L	0.043 g/L
Run-2		固形分 (MLVSS)	溶解性 TOC
植種源	Run-1 100 mL	7~14 g/L	1.7~7.2 g/L
基質	消化汚泥* ⁴ 700 mL	6.9 g/L	0.43 g/L

*1 余剰汚泥 A: 標準活性汚泥法の実処理場より採取

*2 余剰汚泥 B: 長時間曝気法の実験施設より採取

*3 コンポスト: 下水(脱水)汚泥を主原料とする市販のコンポスト

*4 消化汚泥: 余剰汚泥 A と同じ施設の嫌気性消化槽より採取

3. 2. 2 調査結果

(1) 余剰汚泥の液体コンポスト化過程

コンポスト化の進行状況を評価するために、有機物の安定化(酸化分解)にともなう二酸化炭素の発生量を指標とした。今回の実験では、負荷の異なるRun1とRun2を比較できるように、投入 MLVSS あたりの二酸化炭素発生量として図4に整理した。

既存の研究²⁾では、60℃の条件であれば、熱分解による汚泥の可溶化が数時間程度で進むとされている。一般的に、有機物の分解反応では固形分の可溶化が律速段階となっているので、高温条件は反応の高速化を促す要因の一つである。その一方で、今回の実験で用いた植種源(活性汚泥や安定化後のコンポスト)には、その馴致条件から考えて、超好熱性の細菌がほとんど含まれていないはずである。これらのことから、70℃で分解が進まないのは生物反応が起きないため、60℃以下の条件で温度順の分解速度となっているのは熱分解後に生物反応が起きているためと考えられる。なお、いずれの温度でも15日程度で二酸化炭素の発生が頭打ちとなっており、この時点でコンポスト化が完了しているとみなせる。

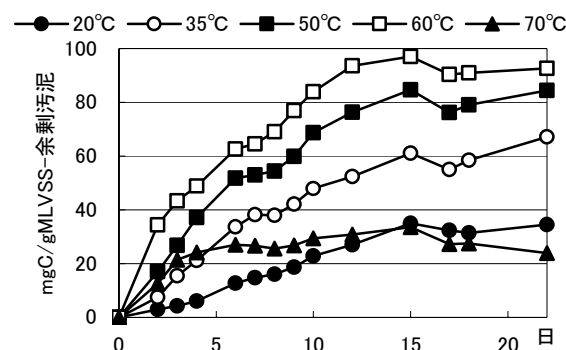
図4: 投入基質量あたりの累積CO₂発生量

表4: 余剰汚泥液体コンポストの分析結果

	pH	MLSS g/L	MLVSS g/L	溶解性成分		
				TOC g/L	NH ₄ -N* ¹ g/L	PO ₄ -P mg/L
20℃	6.7	18.1	14.1	1.9	0.9	220
35℃	7.1	16.1	11.8	1.7	1.3	220
50℃	7.0	13.7	9.5	2.4	1.5	190
60℃	7.1	12.8	7.8	3.4	1.2	180
70℃	6.1	9.8	6.9	7.2	0.5	200

*1: 無機の溶解性窒素のほぼ全量に相当

(2) 生産された余剰汚泥液体コンポストの特徴

本来ならば、植物への影響からコンポストの特徴を評価すべきであるが、そのための実験は継続中である。理化学的な分析結果の一部を表4に示したが、主要な有効成分である有機物(腐植質など)の各成分を定量的に確認することは難しい。そこで本稿では、定性的ではあるが、外観的な特徴を箇条書きで述べる。

- 色: 色の変化は少なく、余剰汚泥と同じ好気的な汚泥の色を呈している。ただし高温では、若干の白色化が見られる。遠心分離後の上澄み液は、どの温度でも腐植質のような茶褐色となっている。
- 粘性: MLSSとして10g/L程度が残存していても、粘度はかなり低下する。原因としては、細胞外高分子物質のような粘性物質が分解された可能性と、MLSSの減少(ほぼ半減)による効果などを挙げられる。
- 臭気: 70~80℃では、高圧蒸気滅菌器のような熱分解にともなう臭気が強。それ以下の温度では、高温ほど通常のコンポスト臭が、低温ほど汚泥臭が強いものの、両者を混合したような臭気である。
- 保存性: 冷蔵状態で20日ほど保管しても、硫化水素臭や黒変は見られず、安定した性状を保っていた。

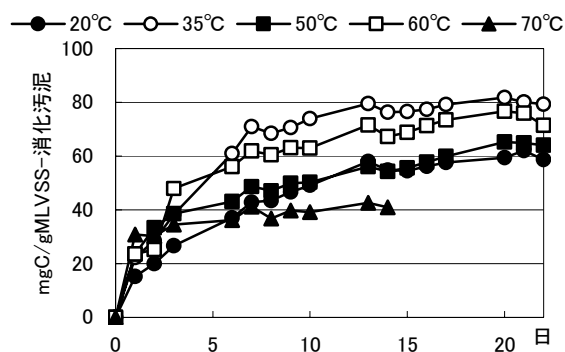


図5: 投入基質量あたりの累積CO₂発生量

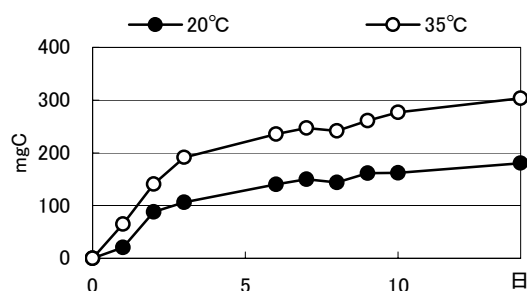


図6: 追加実験での累積CO₂発生量

表5: 消化汚泥液体コンポストの分析結果

	pH	MLSS g/L	MLVSS g/L	溶解性成分		
				TOC g/L	NH ₄ -N* ¹ g/L	PO ₄ -P mg/L
20°C	7.1	9.6	6.4	1.3	0.9	150
35°C	6.9	8.8	5.7	0.9	1.0	130
50°C	7.2	7.9	4.9	1.2	0.9	100
60°C	7.1	5.7	3.2	1.7	0.9	110
70°C* ²	7.6	5.3	2.8	3.1	0.7	90
→20°C	7.4	6.9	2.7	2.0	0.9	120
→35°C	7.4	5.4	2.7	1.6	0.9	100

*1: 無機の溶解性窒素のほぼ全量に相当 *2: 14日目分析結果

(3) 消化汚泥の液体コンポスト化過程

消化汚泥の液体コンポスト化についても、余剰汚泥の場合と同様に、投入 MLVSS あたりの二酸化炭素発生量として整理した(図5)。なお、生物分解の寄与が小さいと予想された70°Cについては、二酸化炭素発生頭打ちを確認した14日目まで実験を打ち切り、追加実験の基質とした。追加実験は、70°Cでの可溶化ー常温での生物分解という手法を念頭に、それぞれの温度で馴致した汚泥を植種して、20°Cおよび35°Cでコンポスト化実験に供した。こ

らの結果は、溶解成分であるTOCの負荷が無視できないほど高いため、図4や図5とは異なり、二酸化炭素発生量の推移として図6にまとめた。

消化汚泥を基質とする場合では、温度条件が異なっても、分解速度や量の差があまり大きくない。また、70°Cを除いて考えても、高温条件から順に分解速度や量が並んでいるわけではない。この原因としては、原料汚泥の馴致過程と本プロセスとの「条件の近さ」が考えられる。たとえば好気条件かつ常温で馴致された活性汚泥は、同様の条件(Run1の20°C)を続けても分解が遅い。しかし、熱分解や異なる細菌群集(好熱細菌)の生物反応となる条件(Run1の60°C)では分解が速い。これに対して消化汚泥は、嫌気的な環境での生物分解を経ている。したがって、好気的な液体コンポスト化過程では、温度によらず別の細菌群集(好気性細菌)の生物反応となるため、分解は常温でも速い(Run2の20°C)。実際、嫌気/好気条件の繰り返しによって、常温で汚泥の可溶化が促進されるという研究事例も報告されている³⁾。

以上の結果は、本手法を他のスラリー状有機質に適用する際の留意点を示唆している。すなわち、

- し尿や畜産廃水のように主に嫌気的な環境(動物の消化管)を経ているものは、容易に安定化が進む。
- 活性汚泥(余剰汚泥)のように好気的な環境を経ているものは、高温条件による熱分解が必要となる。

といったことが推察される。高温条件を前処理として用いる効果に関しては、追加実験で検討する。

(4) 高温条件の前処理としての効果

追加実験の結果は、70°Cで分解した後でも、常温～中温で生物分解される有機物が多量に残存していたことを示している。測定された二酸化炭素の発生量は、溶解性TOCの減少量とほぼ等しかつたので、熱分解によって可溶化された成分が生物分解されたものと考えられる。また二酸化炭素の発生で評価すると、70°Cでの熱分解には3日程度、その後の生物分解には10日弱しか必要ないことが分かる。この数字を合計しても、単一の温度条件で安定化までに要した日数(約15日、Run1と2でほぼ等しい)より短い。したがって、加温の費用を抑えつつ安定化を促すためには、熱分解のための高温条件と、生物分解のための常温～中温条件を組み合わせることが有効である。

(5) 生産された消化汚泥液体コンポストの特徴

余剰汚泥の Run1と同様に、理化学的な分析結果の一部(表5)と、外観的な特徴を述べる。

- 色: 好気的な汚泥の色を呈しているが、高温では若干の白色化が見られる。遠心分離後の上澄み液は、どの温度でも腐植質のような茶褐色となっている。

- 粘性: 元の粘性が低かったので, 変化は少ない。
- 臭気: 70~80℃では, 高圧蒸気滅菌器のような熱分解にともなう臭気強い。それ以下の温度では, 高温だと通常のコンポスト臭が, 低温だと腐葉土に近い臭気がある。追加実験のものは, 腐葉土の臭いへと変化している。
- 保存性: 冷蔵状態で20日ほど保管しても, 硫化水素臭や黒変は見られず, 安定した性状を保っていた。

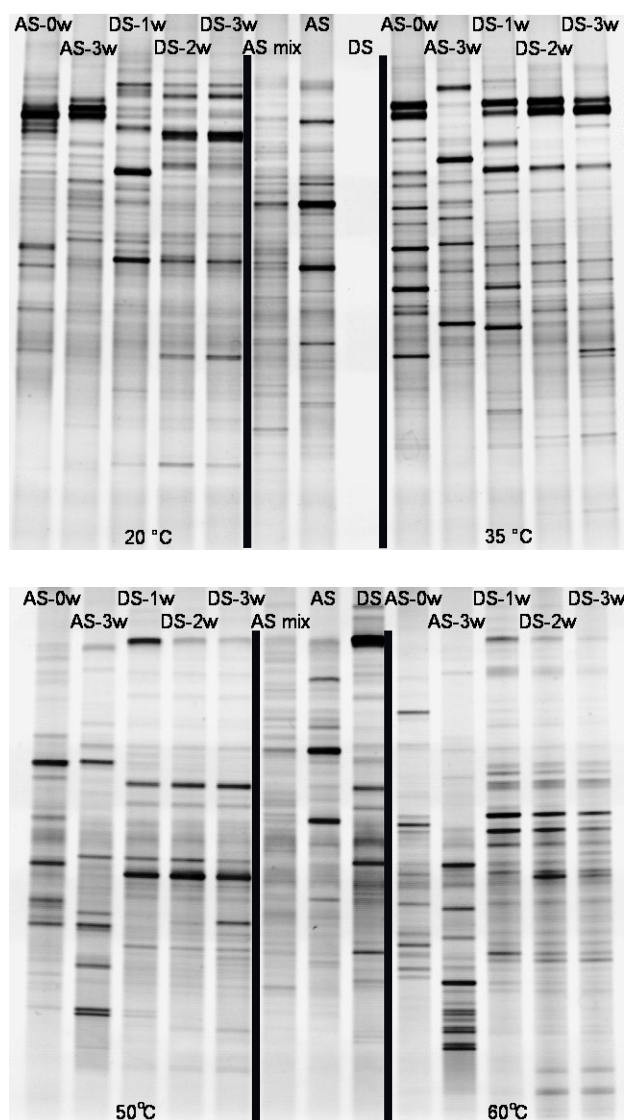


図7: 液体コンポストの PCR-DGGE 解析結果

AS-0w: Run1への植種汚泥

AS-3w: Run1の22日目かつ Run2の植種汚泥

DS-1,2,3w: Run2の7日, 14日, 22日目

AS mix: Pre-Run の植種汚泥

AS: Run1の基質(余剰汚泥)

DS: Run2の基質(消化汚泥)

<上図 DS はバンドが検出できていないが, 下図 DS と同じものである。>

(6) 液体コンポスト化プロセスにおける細菌群集構造

これまでの議論では, 温度条件や基質に応じて, 反応を担う細菌群集構造が異なることを想定してきた。この点は, PCR-DGGE 法のバンドパターンから, 視覚的にも確認することができる。各Runで用いた基質および植種の汚泥と, 60℃までの条件における経時変化の解析結果を図7に示した。全体的な傾向として, 温度や基質によってバンドパターンがまったく異なる。バンドパターンにこれほどの違いが見られるならば, 実際の細菌群集構造も異なっている。また, コンポスト化の進行した22日目のバンドパターンが, 植種源および基質のどちらも異なっていた。しかし, Run2(消化汚泥)の50℃だけは, 例外的に基質(消化汚泥)の主要なバンドが多く残っていた。消化プロセスが50℃で運転されていたことと関連するならば, 嫌気/好気を問わず汚泥の分解を行える高温細菌の可能性もあり, 実用的な面から興味深い細菌である。

群集解析は, 単に生物学的な知見を得るためではなく, コンポスト化を評価するためにも必要な解析である。というのは, コンポスト化の進捗状況(maturity=腐熟度)を表すために, 一般的な理化学分析だけでは限界があるためである。現状では, コンポストを構成する非常に多様な各成分ではなく, 炭素や窒素といった元素レベルの分析結果, あるいは温度変化や二酸化炭素の発生量が指標となっている。これに加えて, 腐熟度やコンポストの有効性に対応するような細菌の指標が見つければ, 生物学的な裏付けを有するプロセスの評価が可能となる。近年の生物学的な手法の発展にともない, 細菌群集解析をコンポストの評価に活かすという視点からの研究は重要である⁴⁾。

4. まとめ

有機酸発酵に関して以下が得られた。

- (1) 蒸煮・爆砕処理した木質廃材は, 純粋なセルロースと同様に, 酢酸を主成分とする有機酸発酵の原料として使用可能であった。ただし副成分には相違があり, セルロース基質に比べてプロピオン酸が少なく, 酪酸が多かった。
- (2) 有機酸の回収率を高めるためには, メタン発酵まで進行させないような運転管理手法, 具体的には反応時間の設定が重要である。
- (3) いずれの基質を用いた場合でも, 反応系内に存在していたのは *Clostridium* 属と *Bacteroides* 属に近い種類の細菌であった。ただしPCR-DGGE法で検出されたバンドパターンは異なっており, 種で見れば群集構造に違いがあった。

液体コンポスト化法に関して以下が得られた。

- (4) 余剰(濃縮)汚泥、消化汚泥とも、酸素を加圧充填した液体コンポスト化手法によって、2週間程度で安定化させることができた。70℃以上では熱分解が、60℃以下では生物分解が主要な反応であった。
- (5) 高温での熱分解は、主に固形分の可溶化反応であった。可溶化された成分は生物に利用されるので、短期間の高温条件の後に常温～中温条件を設定すれば、熱分解と生物分解を効率よく組み合わせられる。
- (6) 液体コンポストには、温度や基質に応じた多様な細菌群集が形成されていた。汚泥を分解・安定化する有用細菌の探索という観点に加えて、コンポスト評価手法の確立という観点から、群集解析の結果を活用することが重要である。

参考文献

- 1) 長沢英和, 落修一, 鈴木穰: 下水汚泥を活用した有機質廃材の資源化・リサイクル技術に関する調査, (独)土木研究所 平成15年重点プロジェクト研究報告書, p522-527, 2004
- 2) 長谷川進, 三浦雅彦, 桂健治: 好熱性微生物による有機性汚泥の可溶化, 下水道協会誌, Vol.34, No.408, p76-82, 1997
- 3) 宮永一彦, 高野俊, 丹治保典, 海野肇: 繰り返し嫌気-好気反応における汚泥中の生菌率評価, 第39回日本水環境学会年会講演集, p79, 2005
- 4) C. Mondini, H. Insam: Community level physiological profiling as a tool to evaluate compost maturity: a kinetic approach, *European Journal of Soil Biology*, Vol.39, p141-148, 2003

RECYCLING OF ORGANIC WASTES IN SEWAGE TREATMENT SYSTEM

Abstract To develop the recycling process of organic waste, especially wood waste, combined with sewage treatment, the anaerobic fermentation with sewage sludge was examined. The lab-scale experiment indicated that wood waste could be the source of acetate production by fermentation. Moreover, the liquid composting process was applied for sewage sludge. It was found that efficient composting was achieved when the temperature was appropriate. From the microbiological point of view, the population dynamics as well as the treatment ability was important to estimate and optimize the processes.

Key words: biomass, fermentation, wood waste, composting, bio-solid

13. 下水汚泥焼却灰の無機質特性に着目した有効利用方法に関する調査

土木研究所 リサイクルチーム 上席研究員 尾崎 正明

主任研究員 山下 洋正

宮本 綾子

1. はじめに

下水汚泥の約 8 割が焼却されて焼却灰が多量に生成されているが、その無機質特性は十分に解明されておらず、系統立てた有効利用方法が研究されていない。そのため、含有リンを資源として回収する場合に処理コストの面で問題があり、建設資材利用の安定的かつ有効な技術も限られている。本研究では、下水汚泥焼却灰のリン資源回収および建設資材利用の観点から、無機質の存在・分布状態や反応特性を明らかにするとともに、新たな資源回収方法と建設資材利用方法の提案および開発を行う。

平成 16 年度は、通常の下水汚泥、リンを高度に蓄積させた室内馴養汚泥、およびそれらの焼却灰を対象とし、SEM-EDS を用いた観察、X 線回折試験、逐次抽出試験を行い、各試料中のリンの化合状態および分布について調査した。

また、下水汚泥の建設資材への有効利用としては、2002 年に熔融スラグについて「一般廃棄物、下水汚泥等の熔融固化物を用いたコンクリート用細骨材」(TR A 0016)と「一般廃棄物、下水汚泥等の熔融固化物を用いた道路用骨材」(TR A 0017)の 2 つの TR が公表されており、今後、JIS として標準化される見通しとなっている。この JIS において溶出および含有量の基準が設定されているが、これまでは特に含有量基準について統一的にデータが集められていなかったため、今年度はこれらのデータ収集も行うものとした。また、コンクリート用骨材への利用の際、金属鉄を含有する場合は発錆による着色および密度変化の原因となる可能性があると考えられ、含有量の基準値が設定されている。ここでは、金属鉄の新たな測定方法として JIS に追加されることとなったメスバウアー分光分析法による分析を実施した。

2. 調査内容

2.1 下水汚泥焼却灰中のリンの性状に関する調査

本年度は下水汚泥焼却灰を対象としてリン回収のための基礎的な情報、すなわち粒子中のリンの含有量、分布状態および化合物の種類等について調査を行った。特に生物学的(嫌気-好気活性汚泥法)に除去したリンと、凝集剤を添加して化学的に除去したリンの焼却後の差異に着目した。

まず、焼却灰中のリンの分布について調べるため、SEM-EDS を用いた形状観察と主要元素のマッピングを行った。次に、処理方法等による焼却灰中の化合物の差異を調べるため、X 線回折による結晶相の分析を行った。

2.1.1 試料

試料は、表 1 に示すようにそれぞれ下水処理方式・焼却炉の形式の異なる下水汚泥焼却灰であり、ICP-AES による主要元素の含有量は表 2 に示す通りであった。

SEM-EDS 分析の際は、表面観察用の試料は直接、断面観察用の試料は樹脂硬化し研磨した後、炭素蒸着した。X 線回折には、110℃で炉乾燥させた後、めのう乳鉢で粉砕した試料を用いた。

また、生物学的リン除去法を用いた下水汚泥中でポリリン酸として菌体内に蓄積されるリンの性質を調査するために、表 3 に示すような人工基質で馴養し、ポリリン酸を高度に蓄積させた嫌気好気汚泥を試料とした。

表 1 試料詳細

	処理方式	薬品添加	焼却炉種別
A	標準活性汚泥法	—	階段式ストーカ炉
B	A2O法 修正バーデンフォ法 凝集剤併用型循環式 硝化脱窒法	ポリ鉄、PAC	流動焼却炉
C	A0法	ポリ鉄、高分子凝集剤	
D	標準活性汚泥法	高分子凝集剤	
E	ステップ流入式二段 循環硝化脱窒法	高分子凝集剤	
F	標準活性汚泥法 A2O法	高分子凝集剤、塩化第2鉄	

表 2 ICP による元素分析結果

	Al	Ca	Fe	K	Mg	Na	P
A	4.4	8.9	4.6	1.6	1.6	0.8	13.3
B	7.5	6.2	14.8	1.5	1.3	0.7	11.2
C	6.9	7.3	2.7	2.0	1.7	0.4	7.4
D	7.1	7.7	3.1	2.5	2.2	0.7	12.5
E	5.8	7.4	3.2	1.7	1.3	0.7	13.4
F	9.7	3.8	7.5	—	—	—	6.2

馴養の開始から 4 週間目で嫌気状態でのリンの吐き出しと好気状態におけるリンの摂取が顕著に現れるようになった。10 週目以降は基質中のリンを 1/4 に減らし、比較のための試料とした。この汚泥を酸化状態、700℃-2 時間で加熱した場合と加熱前の主要元素の含有量は表のようになった。780-800℃以上になると灰状の残留物がなくなり、るつぼ中で融解した。馴養前の汚泥は 850℃-2 時間の加熱で通常と同様の焼却灰が残ったことから、生物主体の汚泥の場合は融点が低くなるのではないかと考えられた。

この汚泥と、汚泥を 700℃で加熱したものの ICP 分析結果は表 4 のようになった。

表 3 人工基質 1L あたりの成分(mg)

CH ₃ COOH	302
CH ₃ COONa	222
酵母エキス	20
CaCl ₂ (2H ₂ O)	18
MgCl ₂ (6H ₂ O)	182
KCl	84
NH ₄ Cl	35
(NH ₄) ₂ SO ₄	43
K ₂ HPO ₄	36
KH ₂ PO ₄	28
ATU	0.025

表 4 ICP による分析結果

4w・・・4 週目の試料

10w・・・10 週目の試料

	Al	Ca	Fe	K	Mg	Na	P
4w	0.1	0.3	0.0	4.9	2.4	6.3	5.9
4w-700℃	0.2	0.6	0.2	12.7	10.7	1.1	34.2
10w	—	0.2	—	2.0	0.9	5.0	0.8
10w-700℃	0.1	1.7	0.1	13.2	8.6	20.9	22.4

2.1.2 焼却灰の表面分析

焼却灰に含まれる元素の分布状況を調査するために、エネルギー分散型 X 線分析装置 (SEM-EDS) を用いた分析を行った。この分析では、存在する元素の種類にもよるが、一般的には表面から 2~3 μm 程度の元素を同定することができ、走査型電子顕微鏡で撮影した写真上に元素の存在をマッピングし、分布状況を把握することが可能である。

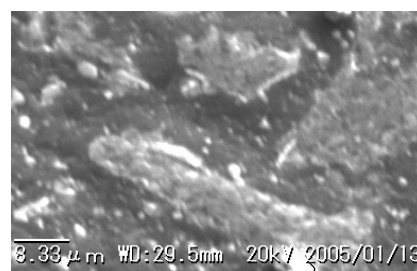
表 1 の試料 C の観察結果を図 1 に示す。焼却灰粒子はリンがその他の元素と同時に内部全体にわたって存在しているものと、カルシウム等を中心とした粒子の表面をリン化合物が覆っているものがあつた。

これは、リンの一部が溶けやすい状態になっており、核となる融点の高

図 1 X 線回折結果

上 : SEM 像 (×1200)

下 : 同一視野のリンをマッピングしたもの。
(白い点がリンの存在を表す)



い無機物の外部に付着したと考えられる。各試料について、リンの分布の仕方に大きな差異はなく、この分析からは、リンはアルミニウムあるいはカルシウム等と化合している割合が高く、リンのみで存在している粒子はほとんどないとみられた。人工基質馴養汚泥を加熱した試料では、リン、カリウム、マグネシウムが均一に分布した粒子がほとんどであった。また、これらの焼却灰の表面に存在する化合物の同定手段として光電子分光装置(ESCA)による分析があげられる¹⁾。同一の試料を用いてこの分析を行った結果、現段階では化合物の同定には至らなかったが、最表面のリン化合物はどの焼却灰にも共通した同一の物質である可能性が高かった。また、試料表面をアルゴンエッチングにより1.5~7nm削り、そこから1nm程度の深さまでの各元素濃度の測定値と、試料を全量分解しICPで測定した分析値を比較すると、リンの濃度はほぼ変わらなかったがカルシウムおよびアルミニウムは80%程度、マグネシウムは2倍~3倍となった。一方、鉄の濃度は30%以下のものが多く、元素によって深さによる分布の傾向が異なることがわかった。

2.1.3 X線回折による分析

X線回折の結果として得られたパターンの一例を図2に示す。処理方式等によらず、結晶化の割合が高かった。回折パターンをみると、主要なピークはどの試料でも同様に現れていることから、焼却した場合、すべての試料について主要な化合物はほぼ同じとなることがわかった。

リン化合物のピークと思われるものは複数現れたが、 SiP_2O_7 、 $\text{Al}(\text{PO}_3)_3$ 等が共通してみられた。 $\text{Al}(\text{PO}_3)_3$ は凝集剤としてのアルミニウム添加の有無に関わらず存在していることから、流入水中の土壌等に由来するアルミニウムと化合した可能性がある。

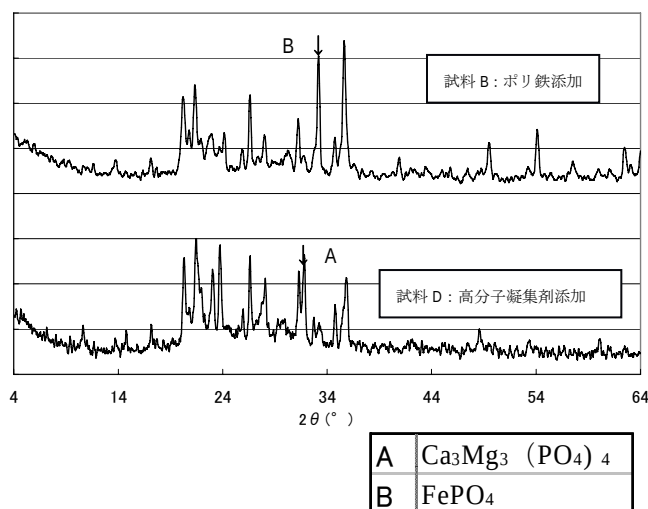


図2 X線回折結果

また、回折パターンは図に示したA、B2つのピークの大小で特徴づけられる2種類に分けられた。それぞれ $\text{Ca}_3\text{Mg}_3(\text{PO}_4)_4$ 、 FePO_4 とみられ、1試料で両方のピークが小さかった以外はどちらかのピークのみが顕著となった。 FePO_4 のピークが現れた2つの試料は鉄を含む凝集剤を使用している。

2.2 下水汚泥および焼却灰の逐次抽出試験

処理場に流入した後、下水中に含有されるリンの存在形態は水および汚泥の処理過程で変化すると考えられる。リンの回収を行う場合にどの処理過程で回収すれば効率がよいか、また、どのような回収方法が適用できるかを検討するにあたって、その化学形態を明らかにすることが有効となる。ここでは、汚泥および焼却灰を対象として、汚泥や底質に含まれる元素の形態別定量手法として用いられている逐次抽出試験を適用し、処理過程におけるリンの形態の変化を調査した。本実験では、標準活性汚泥法およびA20法の二つの処理系をもち、高分子凝集剤を使用している処理場を対象として、流入水、活性汚泥(A20法による処理系の好気槽終端より採取)、消化汚泥、焼却灰を採取し、試料とした。

2.2.1 逐次抽出試験方法

焼却灰以外の分画には、各試料を遠心分離し固形分1gを使用した。逐次抽出試験は2種類の方法によった。はじめにストーパー分画試験の第2画分までを行い(図3-①)、イオン交換態および吸着態の分画を行った。次に無機態をより詳細に分画するために、川崎らの方法²⁾による分画試験(図3-②)を行った。これらの分画試験による形態分別は底質を対象として最適化されているため、本実験の供試試料から抽出された形態が

試験①、②ともに各画分は遠心分離(3000rpm、20min)により残渣と抽出液に分離し、抽出液は硝酸分解、残渣についてはマイクロウェーブ分解した後、ICP-AESにより定量分析した。

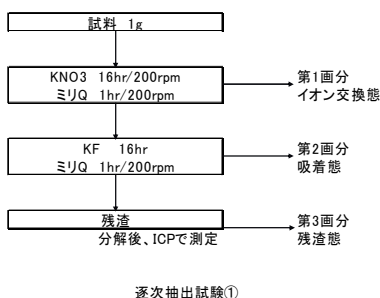
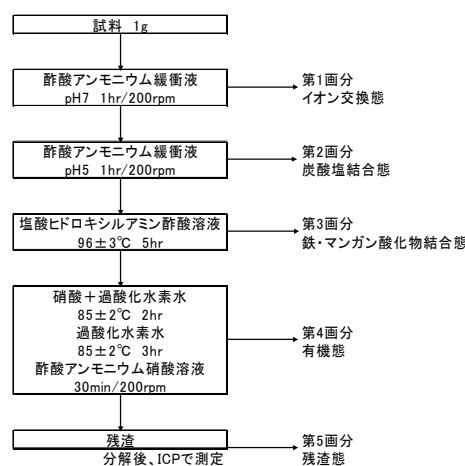


図 3 逐次抽出試験手順



必ずしも底質中での形態と同じであるとは限らず、それぞれの操作によって結合力の強さを分画するものといえる。

2.2.3 リンの分析結果

逐次抽出試験に供試した試料のリン含有量を表 5 に示す。表中の含有量は SS あるいは MLSS 中のものであり、液相中にもリンは含まれている。消化汚泥では全リンの 90%が固相中に含まれていたが、流入水および活性汚泥では 40%以下であった。活性汚泥については試料の採取から分析までに時間がかかったため、汚泥中に取り込まれたリンが液相中に放出され、実際の処理過程よりも固相中の含有量は減少したと考えられる。

表 5 各試料のリン含有量

	リン含有量	
	SS mg/L	mg/kg・DS
流入水	123.3	15,346
	MLSS mg/L	灰分 %
活性汚泥	1401.8	22,808 13.4
消化汚泥	6546.5	28,324 34.0
焼却灰	82,039	

試験①のリンの分析結果を図 4 に示す。この分画試験によるイオン交換態および吸着態、すなわち易溶性のリンが各試料中に占める割合は 17%~36%程度であり、活性汚泥でもっとも残渣態が少なくなった。イオン交換態は焼却灰にはほぼ存在しなかった。試験②の結果を図 5 に示す。ただし、試験①とは抽出に用いた試薬が異なるため名称が同じ画分でも定量される値は異なる。焼却灰ではリンの 94%が残渣態に含まれている。活性汚泥および消化汚泥の残渣態の割合は焼却灰より低く、それぞれ 12%、60%であった。それ以外の元素は、カルシウムとマグネシウムの第 3 画分がどの試料でも 40%程度と高かった。アルミニウムは図 6, 7 に示すように、第 3 画分が 40%と最も高くなった以外は残渣態が 80~95%を占めた。鉄もすべての画分で 80-95%が残渣態であった。これらのことから、流入水以外ではアルミニウムや鉄等との化合物となったリンが残渣態に存在していると考えられる。

活性汚泥および消化汚泥について試験①と②を比較すると、試験①で易溶性に分画されたリンが試験②の第 3 画分までの合計に近くなっている。一方、流入水では第 4 画分までの合計が①の易溶性画分の値に近い。これらのことから、試験②で定義される有機態に分画されるリンは、2 つ以上の異なった化合物から構成されているものと想定される。

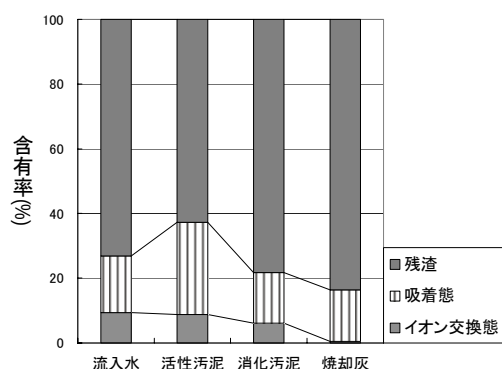


図4 逐次抽出試験①結果（リン）

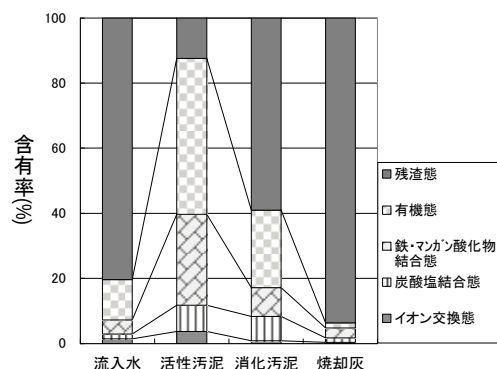


図5 逐次抽出試験②結果（リン）

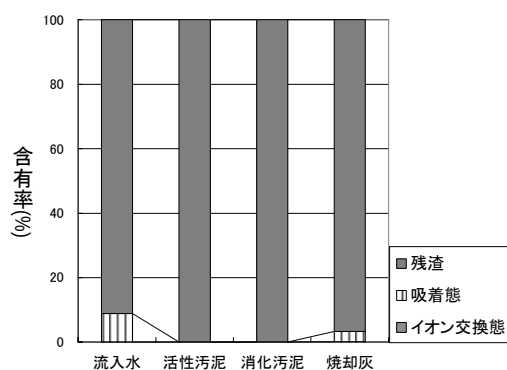


図6 逐次抽出試験①結果（アルミニウム）

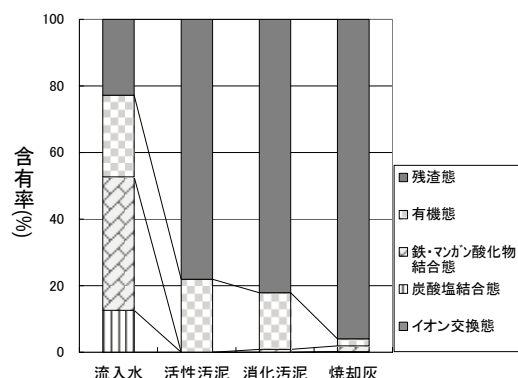


図7 逐次抽出試験②結果（アルミニウム）

2.3 下水汚泥溶融スラグの分析

2.3.1 含有量試験

溶融スラグ骨材 TR の JIS 化に先立ち、「スラグ類の化学物質試験方法-第 1 部：溶出量試験方法」（JIS K0058-1）および「スラグ類の化学物質試験方法-第 2 部：含有量試験方法」（JIS K0058-2）が平成 17 年 3 月 20 日に制定され、この内容が溶融スラグ骨材 JIS に盛り込まれることとなった。今回の調査では、17 の自治体の下水汚泥溶融スラグを試料として環告 19 号に基づく含有量試験を行い、それぞれの試料の安全性を確認した。この試験は試料を酸分解する全含有量試験とは異なり、1mol/L の塩酸を溶媒とした溶出試験による溶出量を、人体へ影響するという意味での含有量とみなすものである。

試験の結果を表 6 に示す。すべてのサンプルで、指定の項目についての基準値を下回った。なお、六価クロムについてはこの表に示していないが、クロム含有量が六価クロム基準値を超えた 5 検体についてのみ試験を行っており、いずれも基準値を下回った。含有量に関する調査結果はまだ少ないが、今回の調査結果からは下水汚泥溶融スラグの有害物質含有量は、基準値と比較して低い水準にあると考えられる。

2.3.2 金属鉄の分析

下水汚泥溶融スラグ中の金属鉄含有量の分析は、これまでフェロニッケルスラグに適用される金属鉄分析法と同様の化学分析が行われることとされていた。しかし、この分析方法では下水汚泥溶融スラグに特有であるリン鉄なども金属鉄として定量されてしまい、測定値が基準値の 1% を超える場合があり、このままでは JIS 規格適用の支障となる可能性が高い。一方、メスバウアー分光分析では化合物中の鉄を価数ごとに定量することができるため、より精度の高い金属鉄の分析が可能と考えられ、コンクリート用溶融スラグ JIS の

付属書に記載されることとなった。今回の調査では、これまで金属鉄の分析データのなかったものおよび従来の分析方法では金属鉄が基準値を超える可能性のあるスラグ 4 試料についてメスバウアー分析による金属鉄の定量を行った。

結果は表 7 に示すとおりとなった。ここで、Fe含有量とは酸分解による全量分析の結果である。試料Aでは金属鉄が検出されたが基準値の 1%を満たしており、その他の試料には金属鉄は含まれていなかった。なお、スラグ中の鉄は酸化鉄あるいは Fe_3P 等として存在している可能性が高く、使用時の発錆による悪影響はないと考えられる。

表 6 含有量試験結果(mg/kg・DS)

	測定値			基準値
	最小値	最大値	平均値	
As	N. D.	109.72	7.19	150.0
Cd	N. D.	1.44	0.46	150.0
Hg	N. D.	0.02	0.00	15.0
Pb	0.00	39.23	4.56	150.0
Se	N. D.	0.18	0.01	150.0
B	0.72	70.00	27.83	4000.0
F	N. D.	392.37	83.53	4000.0

表 7 メスバウアー分析 結果

試料	炉形式	スラグの種類	Fe含有量(wt%)	金属鉄含有量(wt%)
A	旋回溶融	水冷	37.8	0.57
B	コークスベッド		6.7	0.0
C	旋回溶融		4.8	0.0
D	表面溶融		3.4	0.0

3. まとめ

- ① 下水汚泥を焼却した場合、処理方式等によらずほぼ同じ化合物を形成し、結晶化の割合は高かった。また、アルミニウム、カルシウム、鉄との化合物が多かった。
- ② 焼却灰粒子表面のリン濃度は焼却灰全体での濃度とほぼ同じであったが、鉄の濃度は表面で低く、マグネシウムは逆に表面で高いなど、元素によっては表面と全体で濃度に顕著な差がみられた。
- ③ 逐次抽出試験の結果、焼却灰中のリンは含有量が高いものの難溶性の化合物が多かった。これらは主にアルミニウム等の金属との化合物と思われる。
- ④ 活性汚泥および消化汚泥に含有されるリンは、有機態に分画される割合が高かった。金属塩の割合が少なく、リンが最も溶出しやすいのは活性汚泥であった。
- ⑤ 下水汚泥溶融スラグの有害物質含有量調査の結果、安全性に問題のないことがわかった。また、今回調査した試料ではすべて金属鉄含有量も基準値の 1%を下回っていた。

参考文献

- 1) T. Taylor Eighmy et al., Comprehensive Approach toward Understanding Element Speciation and Leaching Behavior in Municipal Solid Waste Incineration Electrostatic Precipitator Ash, Environ. Sci. Technol. Vol. 29, 1995 pp.629-646
- 2) 川崎晃、木村龍介、新井重光 (2001). 廃水処理汚泥中の微量元素の存在形態、農業環境技術研究所資料、第 25 号

14. 下水道における微量化学物質の評価に関する調査

研究予算：受託経費（下水道事業調査費）

研究期間：平 13～平 17

担当チーム：水循環研究グループ（水質）

研究担当者：鈴木 穰、小森行也、岡安祐司

【要旨】

平成 16 年度は、下水道に流入する可能性のある内分泌かく乱作用が懸念される微量化学物質の評価手法の開発を目的とし、①微量化学物質の検出方法の簡易化、迅速化、②微量化学物質の下水道での挙動把握を行った。

下水試料中の Estrone, 17 β -estradiol 測定用 ELISA 法における、交差反応及び妨害物質を除去する簡易な前処理法として、SS 除去、ヒューミン分画の分離およびフミン酸分画の分離について検討し、特に生物処理を受ける前の段階の下水試料に関しては、フミン酸分画の分離が効果的であることが推察された。

また、下水処理の好気工程におけるエストロゲンの遊離体及び抱合体の挙動特性をラボスケールの実下水を用いた連続実験装置において検討した。MLDO>5mg/L、SRT=60 日という好氣的生分解に有利な処理条件においては、遊離体エストロゲンの除去は完全に行われ、エストロゲン硫酸抱合体も減少を示したが依然、二次処理水に残留する結果となった。好気条件下では、エストロゲン硫酸抱合体の難分解性が強いことが明らかになった。

さらに、10ヶ所の下水処理場において合成エストロゲンのエチニルエストラジオール（EE2）の実態を調査した。HR-GC/MS、LC/MS/MS の機器分析と ELISA により測定したところ流入水、処理水中の EE2 濃度は極微量であることが分かった。最も高感度で検出可能な HR-GC/MS によれば、流入水ではすべて nd、処理水では nd から 0.28ng/l であった。

キーワード：内分泌かく乱物質、エストロゲン、硫酸抱合体、エチニルエストラジオール、ELISA 法、下水処理

1. はじめに

下水道施設へ流入する内分泌かく乱作用が懸念される化学物質の多くは、未規制であり、下水道に流入する可能性があるが、下水処理施設での挙動・運命についての知見は不十分な状況である。下水中の内分泌かく乱作用が懸念される化学物質は、機器分析に基づく手法により測定されるが、高価な機器、熟練した技術等が必要であり、幅広く下水中での挙動を把握できる状況ではない。そのため、簡易かつ迅速に測定できる手法の開発が求められている。さらに、これらの物質は、下水処理工程において、大部分が除去されることが判明してきている。しかし、詳細な下水処理工程における挙動、運転条件と除去率の関係についての知見は限られている。将来的に、これらの微量化学物質対策に下水道が取り組む場合には、下水処理場における運転条件が化学物質の環境への排出に及ぼす影響を予測、評価することが必要となる。

本研究では、このような背景を受け、以下の課題を目的とする。

- ・ 下水道における内分泌かく乱物質の簡易・迅速測定法を確立し、監視を行う。
- ・ 下水道に流入している内分泌かく乱作用が懸念される微量化学物質（エストロゲンおよびノニルフェノール類）の挙動把握とその評価技術をまとめ、下水道における微量化学物質の対策に資する。

2. 研究方法

2. 1. 下水道における内分泌かく乱物質の簡易・迅速測定法の開発

本研究では、14 年度に下水中の Estrone (E1) を、15 年度に下水中の 17 β -estradiol (E2) を簡易に定量する手法の開発を検討した。迅速測定手法としては定量性に優れる GC/MS や LC/MS/MS の機器分析による測定手法に比較して、簡易に測定可能な Enzyme-Linked Immunosorbent Assay (ELISA) 法を選択した。E2 や E1 などのエストロゲンに特異的に反応するモノクローナルまたはポリクローナル抗体を用いた ELISA キットについては、既に複数の民間企業から市販がなされている。しかし、それ

ぞれのキットにおける、抗体と下水中の類似物質との交差反応性、下水中の他の物質による抗体・酵素などの活性の妨害の程度については、完全には把握されていない。一般的には、ELISA 法による測定結果は、交差反応・妨害等に由来する理由により、GC-MS や LC-MS/MS の機器分析による測定手法に比較して過大になることが指摘されている。本研究では、下水中の E1 および E2 を測定する ELISA キットを開発するとともに、比較的簡易に下水試料中の E1 や E2 を濃縮し、かつ交差反応・妨害等を示す物質を分離できる抽出手法を発見することを目的とした。14、15 年度の検討で日本エンバイロケミカルズ製 ELISA キットに対して、採水時後直ちに冷蔵保存、C18 固相抽出+フロリジルカラムによるクリンナップ+アミノプロピルカラムによるクリンナップからなる前処理を実施することにより、ELISA 法による測定結果は LC/MS/MS 法による測定結果に対して 1.5 倍程度以内となることが判明し、概ね簡易測定法としての精度を確保できたと考えられる。

16 年度は、前処理法のさらなる簡易化を目的とし、簡易な操作 (①SS 除去、②ヒューミン分画の分離、③フミン酸分画の分離) による測定対象エストロゲンと交差反応・妨害物質の分離除去の可能性について検討した。

① SS 除去

同一の 2 つの下水試料 500mL をガラス繊維ろ紙 (GF/B) によりろ過し、ガラス繊維ろ紙を、ろ紙が浸る量のメタノール中に置き、5 分間超音波抽出した。一方の抽出液を GF/B ろ紙でろ過し、ろ液を N₂ ガスパージにより乾固した後、再度 1mL のメタノールに溶解して 500 倍濃縮試料として、ELISA 法の測定に供した。他方の抽出液は、500mL の超純水に溶解し、固相抽出-液体クロマトグラフ質量分析法¹⁾により測定を実施した。

② ヒューミン分画の分離

同一の 2 つの下水試料 500mL へ 0.1N NaOH 溶液を添加し、溶液の pH を 10 に調整し、一晚 (約 18 時間) 冷蔵保存した。発生する沈殿物をガラス繊維ろ紙 (GF/B) によりろ過し、ガラス繊維ろ紙を、ろ紙が浸る量のメタノール中に置き、5 分間超音波抽出した。一方の抽出液を GF/B ろ紙でろ過し、ろ液を N₂ ガスパージにより乾固し、1mL のメタノールに溶解し 500 倍濃縮試料として、ELISA 法の測定に供した。他方の抽出液は、500mL の超純水に溶解し、固

相抽出-液体クロマトグラフ質量分析法¹⁾により測定を実施した。

③ フミン酸分画の分離

同一の 2 つの下水試料 500mL へ 0.1N NaOH 溶液を添加し、溶液の pH を 10 に調整し、一晚 (約 18 時間) 冷蔵保存した。発生する沈殿物をガラス繊維ろ紙 (GF/B) によりろ過して得たろ液に 1N HCl 溶液を添加し、溶液の pH を 2 に調整し、一晚 (約 18 時間) 冷蔵保存した。発生する沈殿物をガラス繊維ろ紙 (GF/B) によりろ過し、ガラス繊維ろ紙を、ろ紙が浸る量のメタノール中に置き、5 分間超音波抽出した。一方の抽出液を GF/B ろ紙でろ過し、ろ液を N₂ ガスパージにより乾固し、1mL のメタノールに溶解し、500 倍濃縮試料として ELISA 法の測定に供した。他方の抽出液は、500mL の超純水に溶解し、固相抽出-液体クロマトグラフ質量分析法¹⁾により測定を実施した。

なお、本研究は、日本エンバイロケミカルズ株式会社との共同研究「都市排水におけるエストロゲンおよびその関連物質の新しい検出技術の開発」で実施したものである。

2. 2. 微量化学物質の下水道での挙動把握

2. 2. 1. 人畜由来エストロゲン

英国の下水処理場下流の河川におけるローチの雌性化が社会問題化して以来、国内外で下水道におけるエストロゲン様物質に関する様々な調査が行われており、その水環境中の濃度とエストロゲン様活性から、遊離体エストロゲン (17β-エストラジオール (E2)、エストロン (E1)、) や合成エストロゲン (17α-エチニルエストラジオール (EE2)) が主に注目されている。しかし、人畜の体内から排出されるエストロゲンは、その大部分が抱合体の形態として排出され、水環境中では脱抱合し、遊離体に変化する可能性があることを考慮すると、エストロゲン抱合体を含めた調査の必要があると考えられる。15 年度には、土木研究所が開発した分析手法を用いて、遊離体エストロゲン E2, E1, E3) と合成エストロゲン (EE2) に加えて、E1、E2、E3 の硫酸又はグルクロン酸の抱合体の estrone-3-sulfate (E1-S)、β-estradiol 3-sulfate (E2-S)、estriol 3-sulfate (E3-S)、Estrone β-D-glucuronide (E1-G)、β-estradiol 17- (β-D)-glucuronide (E2-G)、estriol 3- (β-D)-glucuronide (E3-G)、β-estradiol 3-sulfate 17-glucuronide (E2-S&G)、estradiol 3,17-disulfate (E2-diS) の 12 化合物について、下水処理場の流入

下水および二次処理水中の濃度の実態を把握した。16年度は、下水処理で主に用いられている活性汚泥法における遊離体エストロゲンとエストロゲン硫酸抱合体の変化の特性を把握するために、実下水により好気条件で馴養した活性汚泥を用いた検討を行った。ここでは、既存の下水処理場の好気工程でのこれらの物質の除去を想定し、好気工程で設定可能な条件（曝気風量調整、汚泥の引き抜き調整）のうち最も除去のために有利と考えられる条件を設定した。なお、エストロゲングルクロン酸抱合体については、分析における添加回収率のバラツキが大きいため、今回の検討対象からは除外した。

1) 連続実験装置

連続実験装置の概略を図1に示す。連続実験の汚泥は、標準活性汚泥法を採用している実下水処理施設の好気槽より種汚泥を採取して、本報告の実験条件で3か月間馴致した。なお、本報告の連続実験は、冬期に行われたものであり、期間中、水温は10℃程度にまで低下した。反応槽は、茨城県霞ヶ浦流域下水道湖北処理場内の国土交通省国土技術政策総合研究所湖北総合実験施設室内に設置し、好気部分を7.2Lに設定した。好気槽および固液分離槽では、エアストーンを通じて曝気を行った。各槽における溶存酸素濃度は、実験期間を通じて5mg/L以上を維持した。固液分離には、交差流型中空糸膜モジュール（三菱レイヨン製超精密濾過フィルターSTNM424、保持粒径0.1μm）を用い、分離液は、一日あたりの流入水（一次処理水）投入量に相当する流量で連続的に排出し、反応槽における水理学的滞留時間（HRT）は8時間に設定した。余剰汚泥の排出は、1日あたり120mLの反応槽混合溶液を採

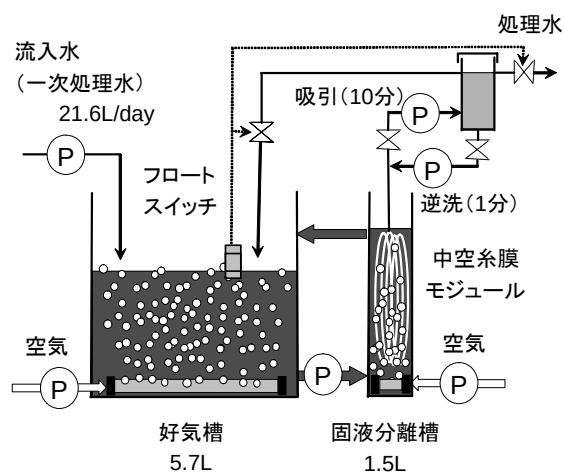


図1 連続実験装置の概要

取することで行い、固形物滞留時間（SRT）は60日に設定した。なお、連続運転期間中pHや水温の調整は行わなかった。

2) 測定方法

測定対象物質は、遊離体エストロゲンのE2、E1、E3、合成エストロゲンのEE2、エストロゲン硫酸抱合体の、 β -estradiol-3-sulfate（E2-S）、estradiol 3,17-disulfate（E2-diS）、estron-3-sulfate（E1-S）、estriol 3-sulfate（E3-S）の計8化合物である。これらの物質の分析計量は週1回、流入水および処理水をスポット採取し実施した。分析方法は、小森らの方法¹⁾によった。一般項目（DOC、 NH_4^+ -N、 NO_2^- -N、 NO_3^- -N）の分析計量は、基本的には週2回、流入水および処理水をスポットサンプリングして実施した。

2. 2. エチニルエストラジール

15年度に、内分泌攪乱化学物質（いわゆる環境ホルモン）に関する物質のうち、人畜由来のエストロゲン（女性ホルモン）と合成エストロゲンの下水道における実態について国内外の報告をまとめた。これら多くの調査により下水処理場における遊離体又は抱合体エストロゲンの存在実態が解明されつつある。しかし、経口避妊薬ピルの主成分である合成エストロゲンのエチニルエストラジオール（EE2）

表-1 下水処理場におけるEE2の実態調査結果(ng/l)

処理場	流入水		処理水		国名	文献
	機器分析*	ELISA	機器分析*	ELISA		
Southend STW Harpden STW Rye Meads STW Deephams STW Naburn STW Horsham STW Billing STW			nd - 7.0 nd nd nd 0.6 - 4.3 0.2 - 0.8 nd		イギリス	1)
16 STP 10 STP			nd - 15 nd - 42		ドイツ カナダ	2)
WWTP A WWTP B WWTP C WWTP D WWTP E			<1.4 <1.8 <0.3 - 7.5 <1.8 - 2.6 <0.3		オランダ	3)
Cobis Fregene Nord Sud	<0.5 - 10 <0.5 - 5.4 <0.5 - 3.2 <0.5 - 4.8		nd - 0.6 nd - 2.2 nd - <0.5 nd - <0.5		イタリア	4)
A B C D		5.3 4.5 9.5 10.0		1.8 1.9 0.9 1.2	日本	5)
DSP-1 DSP-2 DSP-3 DSP-4 DSP-5 DSP-6 DSP-7			nd nd nd nd nd nd nd		日本	6)
20処理場	nd		nd		日本	7)

* : GC/MS, LC/MS/MS

についてみると、海外ではいくつかの処理場の流入水、処理水から検出されているが、国内においてはどの調査においても検出下限値以下（nd）との報告であり、その存在濃度レベルは未だ不明である^{3) 4) 5) 6) 7) 8)}（表-1）。

ピルの使用が普及している欧米諸国での検出濃度は、流入水では0.5ng/l以下から10ng/l、処理水ではndから42ng/lである。従来日本ではピルの使用は認められていなかったが、平成11年に医師の処方が必要な医療用医薬品として承認された。土木研究所では平成11年にピルの使用が一般に普及する前の状況把握調査を4ヶ所の処理場で実施⁷⁾し、既に公表した。

本調査は、ピルの普及から数年が経過した下水処理場におけるEE2の実態把握を目的としたものであり、平成17年1月、2月に各処理場においてスポット採水を行った。EE2の測定方法は、土木研究所がこれまで開発・検討してきたGC/MSによる高感度分析手法⁹⁾（HR-GC/MS）を用いることで、従来より一桁低い濃度レベルでの測定を行った。調査対象とした処理場は、表-2に示す日平均処理水量約3,000～620,000m³/dayの10ヶ所の処理場である。また、全10ヶ所の処理場についてLC/MS/MSによる測定¹⁰⁾を行うとともに5ヶ所の処理場についてはELISAによる測定⁷⁾も行った。ELISAによる測定を行った5ヶ所の処理場の内、A、B、C、Dの4ヶ所の処理場は平成11年に土木研究所がEE2の調査を行った処理場と同じ処理場である。

表-2 調査対象とした処理場の概要

処理場名	主な処理方式	日平均処理水量 (m ³ /day)
A	標準活性汚泥法	233,500
B	標準活性汚泥法	186,650
C	標準活性汚泥法	73,452
D	標準活性汚泥法	65,131
E	ステップエアレーション法	3,274
F	標準活性汚泥法	16,087
G	標準活性汚泥法	35,574
H	標準活性汚泥法	120,630
I	標準活性汚泥法	349,134
J	標準活性汚泥法	620,937

3. 研究結果

3. 1. 下水道における内分泌かく乱物質の簡易・迅速測定法の開発

①から③の手法とも、遊離体エストロゲンの標準溶液を用いた検討においては、対象の遊離体エストロゲンは検出されず、残渣への移行は起こらないことを確認した。

① SS 除去

表-3に、ELISA法による測定結果とLC/MS/MS法による測定結果を示す。LC/MS/MS法の測定結果はいずれも検出下限値以下（nd）であり、測定対象の遊離体エストロゲンはSSには移行していないことが確認された。ELISA法による測定では、流入下水と一次処理水では有意に定量される結果となり、この測定値は交差反応・妨害物質によるものであると考えられた。よって、流入下水、一次処理水に関しては、SS除去により交差反応・妨害物質を除去

表-3 SS除去による交差反応・妨害物質の分離の効果

		E1	E2	EE2
流入下水①	ELISA法	2.18	0.20	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
流入下水②	ELISA法	1.44	0.16	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
一次処理水①	ELISA法	2.17	0.15	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
一次処理水②	ELISA法	0.55	0.11	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
二次処理水①	ELISA法	n.d.	n.d.	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
二次処理水②	ELISA法	n.d.	n.d.	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.

できる可能性が考えられた。

② ヒューミン分画の分離

表-4に、ELISA法による測定結果とLC/MS/MS法による測定結果を示す。LC/MS/MS法の測定結果はいずれも検出下限値以下（nd）であり、測定対象の遊離体エストロゲンはヒューミン分画には移行していないことが確認された。ELISA法による測定では、流入下水、一次処理水および二次処理水で有意に定量される結果となり、この測定値は交差反応・妨害物質によるものであると考えられた。よって、流入下水、一次処理水および二次処理水に関しては、ヒューミン分画を分離除去することにより交差反応・妨害物質を除去できる可能性が考えられた。

表-4 ヒューミン分画の分離による交差反応・妨害物質の分離の効果

		E1	E2	EE2
流入下水①	ELISA法	0.67	0.11	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
流入下水②	ELISA法	2.83	0.20	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
一次処理水①	ELISA法	2.87	0.33	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
一次処理水②	ELISA法	2.59	0.28	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
二次処理水①	ELISA法	0.10	0.09	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
二次処理水②	ELISA法	0.19	0.13	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.

③ フミン酸分画の分離

表-5に、ELISA法による測定結果とLC/MS/MS

法による測定結果を示す。LC/MS/MS 法の測定結果はいずれも検出下限値以下 (nd) であり、測定対象の遊離体エストロゲンはフミン酸分画には移行していないことが確認された。ELISA 法による測定では、流入下水、一次処理水および二次処理水で有意に定量される結果となり、特に生物処理を受ける前の段階である流入下水、一次処理水においては測定値が大きかった。その測定値は交差反応・妨害物質によるものであると考えられた。よって、特に流入下水

表-5 フミン酸分画の分離による交差反応・妨害物質の分離の効果

		E1	E2	EE2
流入下水①	ELISA法	72.3	2.13	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
流入下水②	ELISA法	71.4	2.13	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
一次処理水①	ELISA法	70.8	1.95	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
一次処理水②	ELISA法	37.9	1.34	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
二次処理水①	ELISA法	0.27	0.23	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.
二次処理水②	ELISA法	0.27	0.18	n.d.
	LC/MS/MS法	n.d.	n.d.	n.d.

および一次処理水に関しては、フミン酸を分離除去することにより交差反応・妨害物質を除去できる可能性が考えられた。

3. 2. 微量化学物質の下水道での挙動把握

3. 2. 1. 人畜由来エストロゲン

反応槽の平均的な汚泥濃度は、MLSS/VSS=2900/2500mg/L 程度であり、処理水中の溶解性窒素の形態は 80%以上を硝酸性窒素が占め、概ね硝化が進行していた。図 2 にエストロゲンの測定結果を示す。

図-3、-4 に、連続運転期間中に、反応槽の活性汚泥に、8 時間分の流入下水を添加して実施した回分実験の結果を示す。

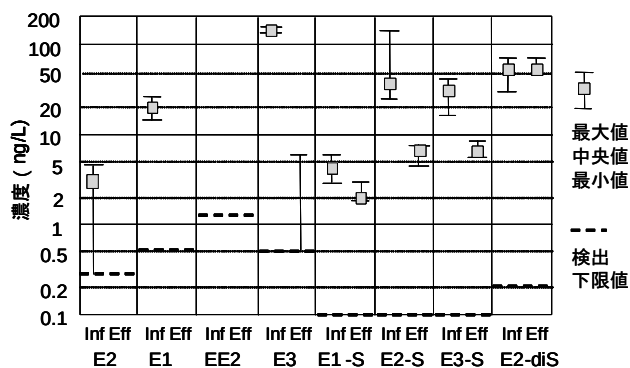


図2 流入水および処理水中のエストロゲン濃度

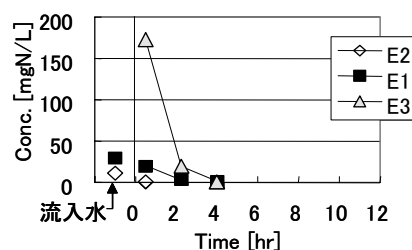


図-3 回分実験における、反応槽の遊離体エストロゲンの変化

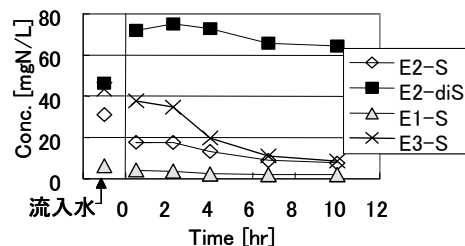


図-4 回分実験における、反応槽のエストロゲン硫酸抱合体の変化

遊離体エストロゲンは実験開始後 4 時間程度で水中からは検出されなくなったが、エストロゲン硫酸抱合体は、実験開始後 10 時間を経過しても検出され続け、一定濃度に漸近する挙動を示した。この結果は、連続実験結果を裏付けるものとなった。

結果を総括すると、下水処理場の一次処理水を流入水とした、HRT=8 時間、SRT=60 日、好気条件下(DO>5.0mg/L)での膜分離活性汚泥法での処理では、遊離体エストロゲンはほぼ完全に除去がなされる一方、エストロゲン硫酸抱合体のうち、E2-S、E1-S、E3-S に関しては一部の除去がなされるが、E2-diS に関してはほとんど変化を受けないと考えられた。よって、これらのエストロゲン硫酸抱合体は、遊離体エストロゲンと比較して、好気工程における分解性が小さいことが示唆された。

3. 2. 2. エチニルエストラジオール

10 処理場における EE2 の測定結果を表-6 に示した。HR-GC/MS による方法では、流入水ですべて nd (検出下限値以下)、処理水で nd から 0.28ng/l であった。従来から用いられている LC/MS/MS による方法では流入水、処理水とも全て nd であった。また、ELISA による方法では流入水で 6.3~25ng/l、処理水で nd~11ng/l の濃度が検出された。HR-GC/MS、LC/MS/MS、ELISA の各測定方法は、測定原理、検出方法が異なっており、それぞれ各方法の検出下限値は 0.05ng/l、0.13ng/l、0.6ng/l であ

表-6 EE2 測定結果 (ng/l)

処理場	HR-GC/MS		LC/MS/MS		ELISA	
	流入水	処理水	流入水	処理水	流入水	処理水
A	nd	0.06	nd	nd	11	nd
B	nd	0.07	nd	nd	25	11
C	nd	0.07	nd	nd	9.8	nd
D	nd	0.05	nd	nd	22	3.4
E	nd	nd	nd	nd	6.3	3.5
F	nd	nd	nd	nd	—	—
G	nd	nd	nd	nd	—	—
H	nd	0.12	nd	nd	—	—
I	nd	0.07	nd	nd	—	—
J	nd	0.28	nd	nd	—	—

注：ndはnot detectable(検出下限値以下)、—は未測定

る。検出下限値は、各測定法における検出下限値付近の濃度の標準試料を繰り返し測定し標準偏差 (S) を求め、その 3 倍 (3S) とした。

HR-GC/MS の測定結果をみると、流入水では検出下限値以下であるのに対し処理水では検出されているケースが見られる。流入水では処理水より夾雑成分が多く、前処理による精製が不十分となり EE2 のピークがベースラインのノイズに埋もれてしまったことが原因と考えられる。夾雑成分の多い試料で目的成分を検出しようとする場合、ベースラインのノイズが大きいことから、結果として、標準試料の繰り返し測定から求めた検出下限値に比べ検出下限値が高くなることもある。

HR-GC/MS、LC/MS/MS による機器分析と ELISA による測定を行った 5 ヶ所の調査結果のうち両測定方法で検出された B、D 処理場の処理水の測定値を比較すると、ELISA による測定値が 160 倍、70 倍高い値であった。ELISA による測定は抗原抗体反応と酵素反応を組み合わせた測定方法であり、目的成分 (EE2) 以外の類似化学物質の影響を受け測定値が高くなることもある。本調査では機器分析、ELISA の両測定方法で検出されたケースは 2 データのみであることから断定はできないが、ELISA による方法は機器分析に比べ 100 倍程度高い値を示す可能性があることが示唆された。

4. まとめ

(1) 下水試料中の Estrone, 17 β -estradiol 測定用 ELISA 法における、交差反応及び妨害物質を除去する簡易な前処理法として、SS 除去、ヒューミン分画の分離およびフミン酸分画の分離について検討し、特に生物処理を受ける前の段階の下水試料に関しては、フミン酸分画の分離が効果的であることが推察された。今後は、フミン酸分画の分離の手順を、前処理法のプロトコルへ編入することを検討する価値があると考えられる。

(2) 下水処理の好気工程におけるエストロゲンの遊離体及び抱合体の挙動特性を、実下水を用いたラボスケールの膜分離活性汚泥法の連続実験装置において検討した。水理学的滞留時間は、一般的な下水処理場のエアレーションタンクと同程度の 8hr に設定し、MLDO、SRT についてはそれぞれ >5mg/L、60 日という好氣的生物分解に有利な処理条件を設定したところ、低水温期にもかかわらず、遊離体エストロゲンの除去は完全に行われたが、エストロゲン硫酸抱合体は、二次処理水に残留する結果となった。好気条件下では、エストロゲン硫酸抱合体は遊離体エストロゲンに比べて難分解性であることが示唆された。今後の課題としては、グルクロン酸抱合体などの硫酸抱合体以外の形態の抱合体についても同様の検討が必要であると考えられる。また、抱合体の形態で放流されたエストロゲンの水域環境中における挙動 (特に脱抱合して遊離体化する) の可能性についても検討する必要があると考えられる。

(3) HR-GC/MS、LC/MS/MS の機器分析と ELISA により下水処理場の EE2 の実態把握を行った結果、下水処理場流入水、処理水中の EE2 濃度は極微量であることが分かった。HR-GC/MS による方法では、流入水はすべて nd、処理水で nd から 0.28ng/l、LC/MS/MS による方法では流入水、処理水とも全て nd であった。ELISA による方法では流入水で 6.3 ~ 25ng/l、処理水で nd ~ 11ng/l であるが、HR-GC/MS により検出された B、D 処理場の処理水の測定値と比較すると、160 倍、70 倍高い値であり、ELISA による方法は機器分析に比べ 100 倍程度高い値を示す可能性があることが示唆された。

【参考文献】

- 1) 社団法人下水道協会編 (2002) 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.285-299
- 2) 岡安祐司他 (2005) エストロゲン関連物質の好気条件下での分解特性について, 第 39 回日本水環境学会年会講演集, pp.52
- 3) C.Desbrow et al., Identification of estrogenic chemicals in STW effluent. 1. Chemical fractionation and in vitro biological screening, Environmental science and Technology, Vol.32, No.11, pp.1549-1557, 1998
- 4) T.A.Ternes et al., Behavior and occurrence of estrogens in municipal sewage treatment plants — I. Investigations in Germany, Canada, and Brazil, The Science of the Total Environment, 225,

pp.81-90, 1999

5) A.C. Belfroid et al., Analysis and occurrence of estrogenic hormones and their glucuronides in surface water and waste water in The Netherlands, The Science of the Total Environment, 225, pp.101-108, 1999

6) A.C.Johnson et al., Estimating steroid oestrogen inputs into activated sludge treatment works and observations on their removal from effluent, The Science of the Total Environment, 256, pp.163-173, 2000

7) 高橋 他, 下水試料中の環境ホルモン物質の測定, 第 37 回下水道研究発表会講演集, pp.264-266, 2000

8) 鳥貝真 他,GC/MS による下水処理場放流水及び河川水中のエストロゲンの分析, 環境化学, Vol.10, No.3, pp.595-600, 2000

9) 末岡 他,下水試料を対象としたエストロゲンの GC/MS による高感度測定法, 第 6 回日本水環境学会シンポジウム講演集, p.97,2003

10) K. Komori et al., Analysis and Occurrence of Estrogen in Wastewater in Japan, Water Science and Technology, (50)5, pp93-100, 2004

11) 矢古宇靖子 他,組み換え酵母を用いた下水中のエストロゲン活性の測定,環境工学研究論文集,第 36 巻,pp.199-208,1999

15. 下水道による水環境への影響に関する調査

水循環研究グループ水質チーム 上席研究員 鈴木 穰
主任研究員 津森 ジュン
主任研究員 宮島 潔
専門研究員 東谷 忠
専門研究員 山下 尚之

1. はじめに

下水道の整備に伴い河川水に占める下水処理水の割合が変化し、下水処理水が放流先河川の水生生態系に与える影響が大きなものとなっている可能性がある。また、これらの整備により都市排水の排出形態が変化し河川の流量や水質そのものにも変化を及ぼしていると考えられる。特に都市域では水資源の再利用に伴い、下水処理水の河川へ占める割合は大きくなっており、再利用比率が 90%を超えるような河川も報告されている。しかしながら、こうした都市河川の実態を明らかにするための実証的調査はほとんど行われていない。

本調査では、下水道の整備が河川流域の変化に与える影響（河川水量、有機物、栄養塩類等の物質の循環等）を把握するとともに、このような変化が河川水質や水生生態系といった水環境に及ぼす影響や、下水処理水中に存在している化学物質、特に女性ホルモン作用を持つ物質（内分泌攪乱物質）が魚類を始めとした水生生物に及ぼす影響について検討するものである。

平成 16 年度は、過年度までに実施した手賀沼に流入する都市河川である大津川及び関連都市排水路における汚濁負荷量の実態調査について整理を行うとともに、下水道整備等の流域条件が水・物質循環に与える影響を検討するため、千葉県の手賀沼流入河川である大津川を対象に解析モデルの構築を試みた。

また、下水処理水が放流先河川の水質に与える影響を評価するため、藻類を用いた AGP (Algal Growth Potential) 試験を用いることとした。下水処理水の流入する都市河川を対象として過年度に適用したマイクロプレートを用いた AGP (Algal Growth Potential) 試験方法について、従来の三角フラスコを用いた試験結果と同等であるかどうかの基礎検討を行った。さらに、下水処理水のエストロゲン作用が魚類に及ぼす影響を調べるため、下水処理場に設置した水槽でメダカを用いた曝露試験を過年度に引き続き実施した。

2. 水量・水質の循環機構に関するモデルの構築

下水道整備等の流域条件が水・物質循環に与える影響を検討するため、千葉県の手賀沼流入河川である大津川を対象に解析モデルの構築を試みることにした。

2-1 過年度に実施した実態調査の概要

解析モデルの構築に向けてシミュレーションを行う場合を想定し、過年度に大津川において実施した晴天時、雨天時調査のデータについて、整理を行った。

(1) 採水

採水は、晴天時及び降雨時に行い、晴天時に 5 回、降雨時に 3 回行った。

①晴天時調査

晴天時調査は、24 時間連続観測とし、3 時間ピッチで手賀沼に流入する河川、排水路での採水、流量観測及び水質分析を目的として実施した。

②降雨時調査

降雨時調査は、大津川本川、名戸ヶ谷排水路末流、増尾排水路末流の地点で実施した。

調査にあたっては、河川水の採取を行い、採水時に濁度の記録を行い、濁度及び水位の変化で採水サンプルを選定した。1回1地点にあたり15検体の採取を行った。

(2) 水位観測

水位観測は、水位計を大津川本川、名戸ヶ谷排水路末流、増尾排水路末流の3地点に設置して行った。観測データは、2週間に1回の頻度で回収した。

(3) 流量観測

流量観測は、水位－流量の関係を把握するため、水位計を設置している大津川本川、名戸ヶ谷排水路末流、増尾排水路末流の3地点で行った。

流量観測は、「建設省 河川砂防技術基準（案）」に準じて実施した。流量観測の断面は、水位計設置横断面で行うことを基本とし、大津川本川と増尾排水路は、流量が大きくなると河川を横断して流量観測を行うことができないため、上流側の橋上から流量観測を行った。流量観測は、「建設省河川砂防基準（案）」による流量観測によって水文データを収集した。

(4) 水質分析

(1) によって採取した河川試料についてBOD、COD、SS、大腸菌群数、糞便性大腸菌群数等の一般項目及び環境ホルモンの分析を行った。

(5) 調査期間

水位観測、流量観測及び水質調査の調査期間を表－1～表－2に示す。

表－1 調査の実施期間（水質調査）

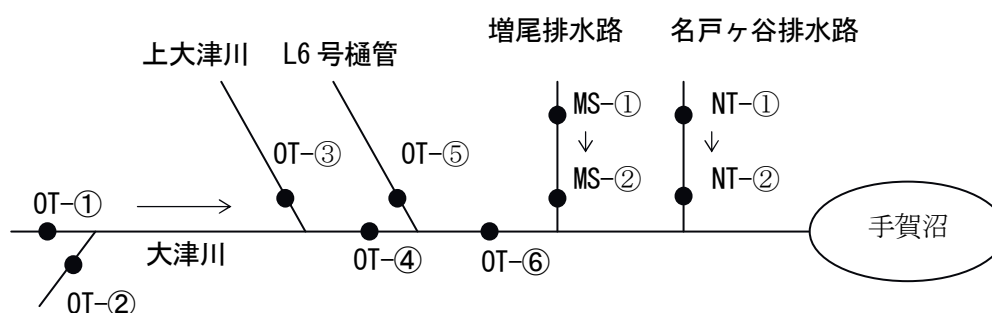
	第1回	第2回	第3回	第4回	第5回
(晴天時調査)	平成14年 11月5日～6日	平成15年 1月20日～21日	平成15年 2月17日～18日	平成15年 3月12日～13日	平成15年 12月5日～6日
(降雨時調査) 平成15年	5月31日～6 月2日	8月8日～9日	10月21日～23日	—	—

表－2 調査の実施期間（流量観測・水位観測）

	第1回	第2回	第3回	第4回	第5回
流量観測	平成15年 3月7日	平成15年 3月28日	平成15年 4月5日	平成15年 4月19日	平成15年 5月31日
水位観測	平成15年2月15日～6月3日				

(6) 調査地点

水質調査地点及び流量観測地点をそれぞれ図－1及び表－3に示す。



図－1 調査地点（水質調査）

表－3 流量観測・水位観測調査地点

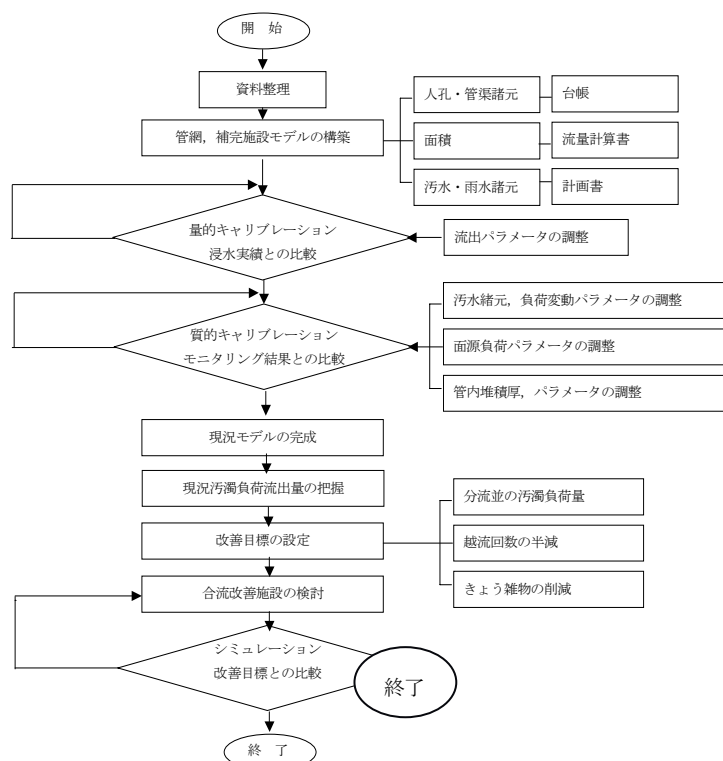
河川	調査地点 No.	調査地点
大津川	OT⑥	末流（下橋下流）
名戸ヶ谷排水路	NT②	名戸ヶ谷排水路末流
増尾排水路	MS②	増尾排水路末流

2-2 モデルの構築

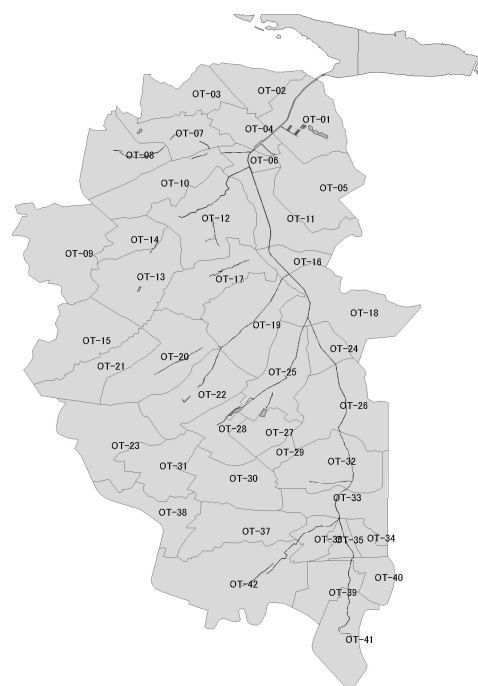
近年、下水道ネットワークを対象に不定流計算を用いた雨水流出解析モデルが広く実用化され、水質を含めたシミュレーションが可能なものが開発されており、ここでは代表的なソフトウェアの中から Wallingford 社の InfoWorks を使用することとした。流出解析モデルの構築には、様々な実測データ（流量、水質）とともに、河道情報、土地利用状況などの流域情報が必要である。InfoWorks は、下水道への適用を想定しており雨水が地表面を流れて下水管網に流入するまでを計算する「水文モデル」と、管網内での下水の挙動を計算する「水理モデル」からなる。下水管網のノード（マンホール）とリンク（管渠）によって構成され、リンクには上流端及び下流端のノード番号を振るという考え方を基本としている。雨水及び汚水は各ノードから流入することになっており、その算定に必要な土地利用や人口などの情報も同時にこのノードに入力し、別途降雨データを与えることで、吐口を含む下水管網内の任意の地点、任意の時間の時間における水量と水質を求めることが可能である。なお、今回検討対象とした流域は手賀沼流域下水道により整備され、処理水は域外放流となっているため、下水処理水の影響は全く考慮していない。

（1）モデル構築の概要

管渠網を河川に置き換えることで、浄化槽処理水を主たる排出源とする流域における流出解析モデルの構築を試みた。モデルの構築は、図－2の「管網、補完施設モデルの構築」に該当し、大津川等の河道形状の平面図、横断図の情報から作成した。



図－2 モデル構築・解析フロー



図－3 対象とした大津川流域

(2) モデル構築に必要な基本諸元

大津川をモデル化する場合、必要となる基本的な諸元は以下のものとなる。河川の地盤高、河川底高、小流域面積等は別途資料より変換入力し、(仮想)人孔の座標データは、河川形状の変化点等で任意に設定することとした。

2-3 まとめ

手賀沼の流入河川・大津川を対象に市販プログラムを用いた流出解析モデルの構築を試みた。今後は、流出シミュレーションを行い、流出汚濁解析に必要なパラメータについて検討することにより、実態調査の結果を再現できるようなモデルの構築を行っていく予定である。

3. 処理水質と生物影響との関連性の検討

水域の富栄養化の程度を測定する方法としては、AGP (Algal Growth Potential) 試験がある。これは、検水に藻類を接種して一定の条件下で培養を行い、検水の藻類増殖能力を観察するものであり、窒素・リンなどの栄養塩類を含め、検水の総合的な藻類増殖能力を測定するものである。しかしながら、AGP 試験は、機材と場所が多量に必要であり、多数のサンプルを同時に処理することが困難であるといった問題がある。本研究では、多数のサンプルを迅速に処理する手法として実施してきたマイクロプレートを用いた AGP 試験について、基礎的実験を行うことにより、本法の適用に課題があるかどうかを検討した。

3-1 実験方法

(1) マイクロプレートを用いた AGP 試験

AGP試験の供試藻類としては、藻類試験に一般的に用いられる緑藻類 *Pseudokirchneriella subcapitata* (NIES-35) を用いた。*P.subcapitata*は藻類培養用のAAP培地を用いて継代培養を行い、植え継ぎ後 4~7 日経過した対数増殖期のものを試験に用いた。試験では、継代培養を行っている *P.subcapitata*を滅菌した 15mg/L の NaHCO_3 溶液で洗い、培地成分を除いた後に使用した。

AGP試験は 96 穴のマイクロプレート (Falcon社製) を用いて行った。マイクロプレートの各ウェルには、200 μL のサンプルと 40 μL の *P. subcapitata* の細胞懸濁液を入れ、培養温度 24 $^{\circ}\text{C}$ 、120rpm の振とう条件で培養を行った。光条件は、照度 4000Lux、12 時間明暗周期とし、藻類の初期細胞濃度は 1×10^4 cells/mL とした。培養期間中、マイクロプレートリーダー (Wallac社、ARVO SX-1420) を用いて吸光度 (波長 450nm) を測定し、藻類増殖量をモニタリングした。藻類量がほぼ一定になった時点での藻類増殖量を AGP とした。本研究で使用するマイクロプレートリーダーは、吸光度の測定波長を自由に設定することはできず、リーダーに取付けるフィルターの設定波長に規定される。*P.subcapitata* 細胞懸濁液の吸光スペクトルを測定したところ、波長 450nm 付近にもピークが見られたこと、およびマイクロプレートリーダーを用いた測定においてよく使用される波長であることという理由から、測定波長は 450nm とした。

(2) 三角フラスコを用いた AGP 試験

マイクロプレートを用いた AGP 試験との比較を行うため、公定法に準拠して、三角フラスコを用いた AGP 試験を実施した。試験では、容量 100mL の三角フラスコに、40mL の試料と *P.subcapitata* 細胞懸濁液を入れて、培養温度 24 $^{\circ}\text{C}$ 、90rpm の振とう条件で培養を行った。*P.subcapitata* は、滅菌した 15mg/L の NaHCO_3 溶液で洗い、培地成分を除いたものを使用した。光条件は、照度 4000Lux、12 時間明暗周期とし、藻類の初期細胞濃度は 1×10^3 cells/mL とした。培養期間中、分光光度計 (島津製作所、紫外可視分光光度計 UV-160) を用いて吸光度 (波長 750nm) を測定し、藻類増殖量の変化をモニタリングした。

3-2 結果および考察

(1) マイクロプレートおよび三角フラスコを用いた AGP 試験の比較

マイクロプレートを用いた AGP 試験の適用性を見るため、マイクロプレートおよび三角フラスコを用いた

AGP 試験の結果について比較を行った。多摩川河川水および多摩川へ流入する下水処理水のサンプルについて、マイクロプレートを用いた AGP 試験と従来から実施されてきた三角フラスコを用いた AGP 試験を同時に実施し、両者の比較を行った。その結果を図-4に示す。

図-4より、マイクロプレートによる AGP 試験の値は、従来の三角フラスコを用いた AGP 試験の値と高い相関関係が見られた ($R^2=0.94$)。このことから、マイクロプレートを用いた AGP 試験は、従来の三角フラスコを用いた方法と同様に、水域の富栄養化の程度を評価するために有用な手法であると考えられる。マイクロプレートを用いた AGP 試験は、従来から実施されている三角フラスコを用いた AGP 試験と比較して、試験に必要なサンプル量が少量で済むこと、試験の実施に必要な場所が小規模で済むことといったメリットがある。また、マイクロプレートリーダーを用いた測定を行うことにより、測定のための操作が簡便化できることから、多数のサンプルを迅速に処理する方法として有用であると考えられる。

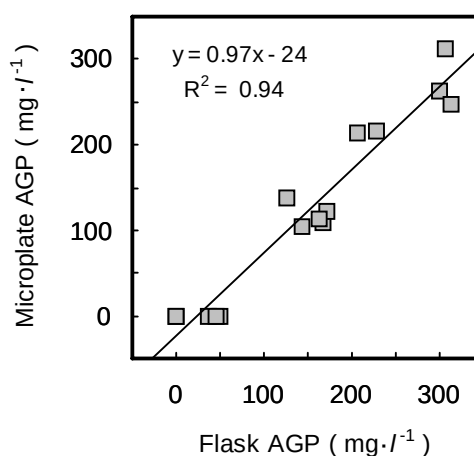


図-4 AGP 試験におけるフラスコ法とマイクロプレート法との関係

3-3 まとめ

本研究では、マイクロプレートを用いた AGP 試験について、その基礎的検討を行った。本研究で得られた主な結果は、以下の通りである。

- 1) マイクロプレートリーダーによる波長 450nm の吸光度と藻類細胞濃度との間には高い相関が認められ、吸光度の測定を行うことにより、藻類細胞濃度の測定を行うことが可能であることが示された。
- 2) マイクロプレートを用いた AGP 試験の適用性を見るため、マイクロプレートおよび三角フラスコを用いた AGP 試験の比較を行った。その結果、両者の間には高い相関関係が認められ、マイクロプレートを用いた AGP 試験は、三角フラスコを用いた AGP 試験と同様に有用な方法であることが示唆された。

4. 下水処理水による魚類曝露試験とその影響評価

土庫研究所では、下水処理水のエストロゲン作用がコイに及ぼす影響の有無、およびその程度を明らかにするため、処理水への直接的なコイ曝露試験法について検討し、曝露試験を繰り返し実施してきた。さらに、魚類生理学の観点から、エストロゲン作用による魚類影響を評価する上で必要な生理学的作用について検討してきた。下水処理水にコイを曝露した結果、処理水のエストロゲン様物質の濃度に変動はみられないにも関わらず、早春に雌雄のコイを同所的に曝露した場合に限り雄コイのビテロジェニン (VTG: 雌特異的な卵黄タンパク前駆物質) 生成が認められた。この現象は、下水処理水のエストロゲン作用が直接雄の VTG 生成に関わった可能性のほか、この時期に活性化する生殖活動にともなって、雄の体内で多量に分泌されるアンドロゲン (男性ホルモン) をもとに、アロマターゼ (薬物代謝酵素の一つ) のはたらきによってエストロゲンが合成され、その結果として VTG 生成が誘導された可能性が考えられた。また、代謝酵素であるアロマターゼについては、下水処理水に曝露されたことによってこれが生成している可能性が考えられた。

そこで平成 15 年度には、試験対象魚をメダカに変更し、現場型魚類曝露試験装置を導入して、下水処理水を対象とした新たな魚類曝露試験に着手した。砂ろ過後の放流水にメダカを 2 週間曝露した結果、雄メダカの VTG 生成は認められなかったが、処理水のエストロゲン作用は雄メダカの VTG 生成が生じる可能性のあるレベルであった。

平成 16 年度は、砂ろ過後の放流水の魚類影響を検討するため、二次処理水を対象とした同様のメダカ曝露試

験を実施して、これら下水処理工程の異なる段階での試験水のエストロゲン作用とメダカへの影響を明らかにすることとした。

4-1 方法

(1) 試験装置

メダカ曝露試験に用いる試験水槽は、新鮮な水を導水するとともに、水温、流量、日照時間等の試験条件を制御可能とする現場型魚類曝露試験システムを用いることとした。

試験条件は、環境省の実施した室内試験に合わせ、雄メダカを用いる2週間曝露試験とした。現地試験としての変更点は、餌を市販の粉末餌とし、自動給餌器を用いて与えることとした（表－4）。

(2) 影響指標

魚類の雌性化を判定する指標（バイオマーカー）として、コイの試験と同じく、この分野の研究では一般的な指標であるビテロジェニン（VTG）を用いることとした。なお、この測定はメダカ VTG-ELISA キット（製造：株式会社エンバイオテック・ラボラトリーズ、発売：アマシャムバイオサイエンス株式会社）を用いた。試料（希釈した肝臓抽出液）中の VTG 濃度は、二重測定した吸光度の平均値を基に標準曲線から算出した。これに肝臓抽出液の希釈倍率を乗じて、肝臓抽出液中の VTG 濃度を算出した。各 ELISA における定量範囲（Working range）は 2～64ng/mL とした。すなわち、肝臓中のビテロジェニン濃度の定量下限は、すべての曝露実験において 1ng/mg-liver weight とした。

4-2 結果および考察

二次処理水および放流水にメダカを 2 週間曝露した結果、二次処理水では雄メダカ 29 匹中 7 匹

（24.1%）に VTG 生成が確認された（表－5）が、放流水では VTG 生成が認められなかった。水質の測定結果から二次処理水の E1 およびエストロゲン活性が放流水に比べて高濃度の傾向を示しており、これらが雄メダカの VTG 生成にかかわったものと考えられた。

4-3 まとめ

下水処理水へのメダカ曝露試験として、現場型魚類曝露試験システムを用いた2週間曝露試験を実施した。その結果、二次処理水では雄メダカの24%にVTG生成が認められたが、放流水ではこのような現象は認められなかった。二次処理水中のエストロゲン活性が放流水のそれに比べて高いことが原因と考えられた。

参考文献

- 1) 日本下水道協会 (1997) AGP 試験、下水試験方法 上巻 (1997 年版)、554-562.
- 2) 日本水質汚濁研究協会 (1982) 藻類生産潜在力調査、湖沼環境調査指針、公害対策技術同友会、193-199.

表－4 メダカ曝露試験 条件一覧

試験魚	ヒメダカ <i>Oryzias latipes</i> d-rR系統
試験個体数	雄成魚 30個体／水槽
試験期間	2週間
試験水	流水式
流量	0.5 L/min (30 L/h)
試験温度	水温 25℃
日長条件	16時間－明、8時間－暗
餌	粉末餌、一日あたり 4 回の給餌

表－5 二次処理水に曝露した雄メダカの VTG

個体No. TR0412	全長 mm	体長 mm	体重 mg	肝重量 mg	肝指数 %	VTG濃度 ng/mg-liver
SEC-001	33.5	27.8	389.7	6.5	1.7	<1.0
SEC-002	33.7	28.2	358.9	7.5	2.1	<1.0
SEC-003	30.1	24.3	310.8	5.9	1.9	ND
SEC-004	34.0	27.4	418.0	6.7	1.6	<1.0
SEC-005	33.9	27.3	435.6	8.1	1.9	<1.0
SEC-006	32.2	26.8	387.8	9.9	2.6	<1.0
SEC-007	31.0	24.5	303.2	3.7	1.2	10.8
SEC-008	33.7	27.7	408.6	5.9	1.4	<1.0
SEC-009	33.7	26.7	421.9	10.2	2.4	<1.0
SEC-010	34.7	28.3	411.4	3.7	0.9	1.5
SEC-011	33.2	26.9	375.2	7.6	2.0	<1.0
SEC-012	34.4	28.4	410.0	3.0	0.7	<1.0
SEC-013	30.9	24.7	295.2	3.9	1.3	<1.0
SEC-014	33.2	26.9	351.5	6.6	1.9	<1.0
SEC-015	31.4	25.2	318.6	7.1	2.2	2.5
SEC-016	35.0	28.5	436.6	6.8	1.6	<1.0
SEC-017	32.0	24.9	334.8	6.9	2.1	<1.0
SEC-018	31.3	25.1	348.2	8.8	2.5	<1.0
SEC-019	33.9	27.5	395.6	6.2	1.6	<1.0
SEC-020	30.2	23.7	269.6	3.1	1.1	<1.0
SEC-021	32.9	27.1	377.9	3.6	0.9	2.7
SEC-022	30.8	25.1	300.1	5.3	1.8	2.2
SEC-023	32.5	26.3	348.9	4.6	1.3	<1.0
SEC-024	33.0	26.7	406.9	4.3	1.1	<1.0
SEC-025	32.2	26.0	360.6	3.3	0.9	<1.0
SEC-026	32.0	25.5	340.9	4.4	1.3	<1.0
SEC-027	33.7	28.0	406.2	10.3	2.5	1.5
SEC-028	33.7	28.8	428.7	9.0	2.1	<1.0
SEC-029	33.3	27.7	377.8	5.1	1.3	1.4
最大	35.0	28.8	436.6	10.3	2.6	－
最小	30.1	23.7	269.6	3.0	0.7	－
平均	32.8	26.6	370.0	6.1	1.7	－
標準偏差	1.3	1.4	46.6	2.2	0.5	－

*ND <0.5 ng/mg-liver

16. 下水道事業の設計積算の効率化のための 体系化に関する調査

建設システム課 課 長 溝口 宏樹
主任研究官 中筋 康之

1. はじめに

新土木工事積算大系(以下「新大系」という)は、公共土木工事の請負契約の透明性向上、契約内容の明確化、建設事業の国際化に対応し、また、発注者側の積算業務の効率化に資するため、契約・積算に関する手法や図書類を密接に関連づけながら体系的改善を図る一連の整備大系である。下水道事業は、事業主体が都道府県・市町村であることから、従来各自治体がそれぞれ個別にそれら手法・図書類を整備してきた。そのため各自治体でそれらの統一がとれておらず、整備が進んでいない自治体も多く、各自治体がそれらを独自で整備するのは大きな負担となっており全国統一版の作成が望まれている。

一方、下水道事業におけるコスト縮減については、平成 9 年 4 月に政府が策定した「公共工事コスト縮減対策に関する行動指針」を踏まえ、様々な取り組みが行われているが、効率的なコスト縮減を進めるためには、工事費の占める割合が大きい分野を重点的に推進していくことが必要であり、そのためには、工事工種体系における各工種の価格構成比や機械・労務・材料費の価格構成比等を分析することが有効である。

本研究では、下水道分野の上記積算・契約関連図書類の作成・体系化の一環として、「下水道土木工事数量算出要領・数量集計表様式」の案を検討した。また、下水道土木工事コスト構造の分析として、各地方自治体の積算実績を基に各工種の価格構成比を明らかにした。

2. 「下水道土木工事数量算出要領・数量集計表様式」の案作成

「数量算出」は、予定価格を作成するための積算に必要な数量を算出し整理しておく作業であり、その数量を扱う設計コンサルタント、発注者、施工業者は、算出項目や算出方法等について共通認識を持つことが必要となる。この「数量算出」の統一された標準的なルールを規定したものが数量算出要領であり、これにより、積算担当者の恣意性の排除、積算業務の合理化、契約内容が明確になることが期待される。

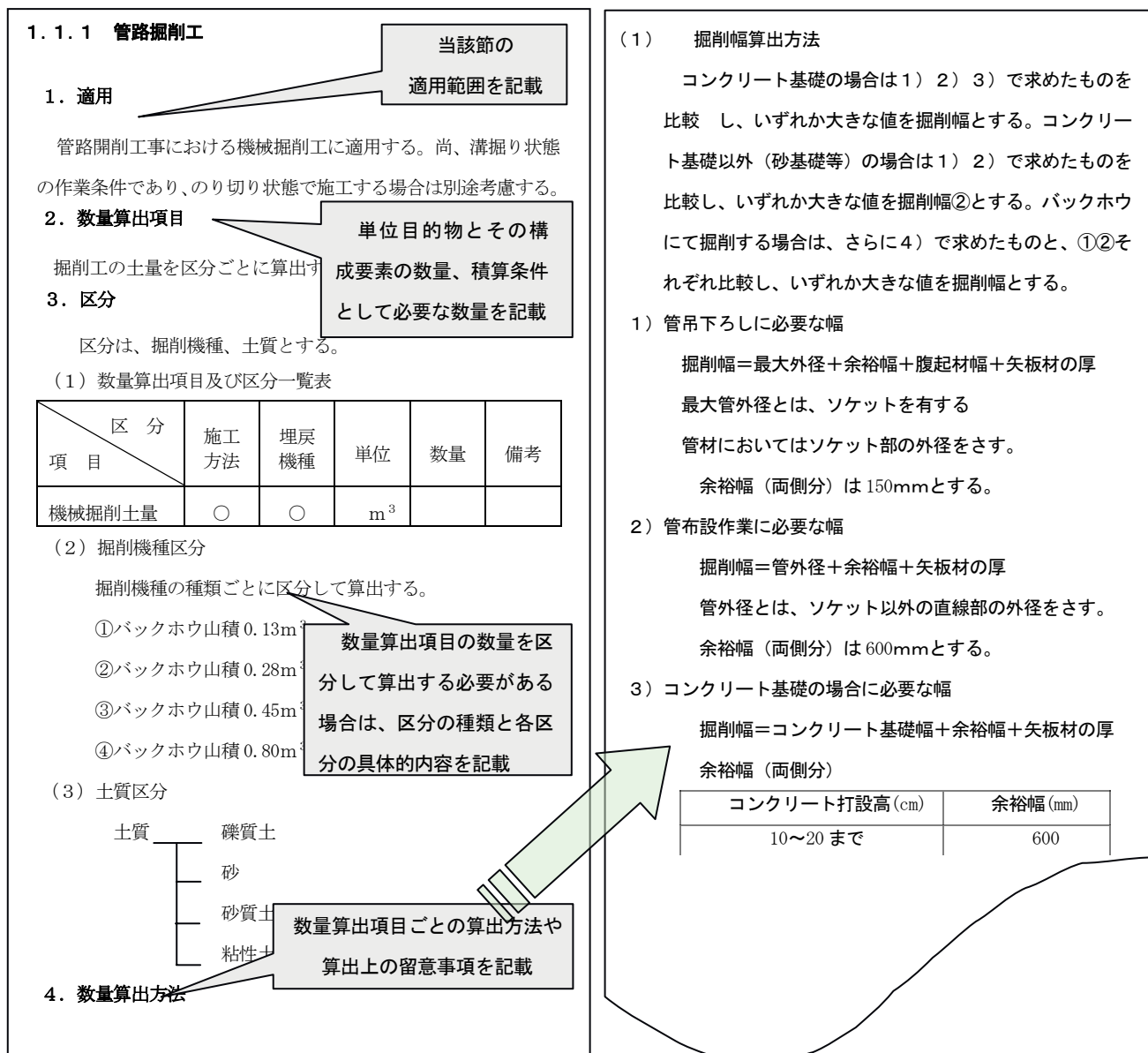
(1) 数量算出要領

既に整備されている一般土木分野の「国土交通省数量算出要領・数量集計表様式」(以下、国交省要領・様式)の「下水道編」として整備することとし、数量算出要領に記載する項目等は基本的には、国交省要領・様式と同様、数量算出項目・数量算出区分・単位・数量算出方法とした。また、各積算者が特に判断に迷う箇所、例えば管路掘削工の掘削幅等については、その設定方法についてさらに詳細に記述した(図-1)。

(2) 数量集計表様式

管路の工事発注単位は、基本的にレベル 2 の開削工法・小口径推進工法・推進工法・シールド工法に大きく 4 つに分けることができ、さらにそれぞれのレベル 2 工種において、マンホール工・特殊マンホール工・取付管・ます工・地盤改良工・付帯工・立坑工等が必要に応じて計上される。そこで、記載形式としては、実際の工事発注単位を考慮し、上記 4 つのレベル 2 工種ごとにファイルを作成する。また、図-2 は、このうち「管路(開削工法編)」の「管路土工」の記載例を示したものであり、基本構成として、国交省要領・様式と同様、①レベル 1 (工事区分)～レベル 6 (積算要素—数量区分)、②積算用単位、③数量計算用単位、④数量区分、⑤工区、⑥内訳数

量表別紙を記載する。また、工事グループ（工区等）ごとに集計できるように配慮した。



図－1 数量算出要領の記載例

レベル1 (工事区分)	レベル2 (工種)	レベル3 (種別)	レベル4 (細別)	レベル5 (規格)	積算用 単位	数量計算用 単位	数量区分	合計	A	B	C	D	内訳数量表 別紙
管路	管きょ工（開削） <管径 250mm>	管路土工	管路掘削		m ³	m ³	合計						
							機械掘削工						
							バックホウ 0.13						
							バックホウ 0.28						
							バックホウ 0.45						
							バックホウ 0.8						
							人力掘削工						
			管路埋戻	発生土	m ³	m ³	ベルトコンベア 併用人力掘削						
							合計						

図－2 数量集計表様式の記載例

においても土工や土留工のシェアが高く 2 種別で 40%以上のシェアを占め、管径が小さいほど管本体にかかる工事費よりも、マンホールや舗装復旧等にかかる工事費のシェアが大きいことが分かる。また、管径が大きいほど管本体や地下水位低下工といった仮設工事の工事費のシェアが大きい。以上より、土工、土留工、および比較的大口径の管布設工でコスト縮減が図られれば、コスト縮減効果が高いと言える。

（2）管きょ工（小口径管推進）

管きょ工（小口径管推進）におけるレベル3種別の工事費シェアは、管径200mmでは、「小口径推進工」が約40%で最も高いシェアを占め、以下「鋼製立坑工および土工」、「土留工」、「仮設備工」、「補助地盤改良工」と続き、これら5種別で約70%を占める（図-5）。管径400mmでは、「小口径推進工」が約73%で最も高く、以下「鋼製立坑工および土工」「補助地盤改良工」、「仮設備工」、「組立マンホール工」と続き、これら5種別で約90%を占める（図-6）。

小口径推進では、各口径を通じて、「小口径推進工」のシェアが突出しており、以下「鋼製立坑工および土工」、「補助地盤改良工」のシェアが高く、これらの種別でコスト縮減が図られれば、コスト縮減効果が高いと言える。

おわりに

数量算出要領等は、先に作成した「下水道土木工事施工管理基準」等と同様、全ての自治体が整備しているとは言えず、また整備している図書についても記載内容が統一されていないため、国土交通省が全国統一版としてこれらの図書を整備する意義は大きい。今後は、今回作成した「下水道土木工事数量算出要領・数量集計表様式」の案について成案化を図る予定である。

工事コスト構造の分析については、工事工種ごとの価格シェアを明らかにし、さらに管径別の価格シェアを分析することによりコスト縮減効果の高い分野を明らかにしたが、今後は工種ごとの機械・労務・材料費の構成比についても詳細に分析し、コスト縮減の方向性を示していきたい。また、これらの成果は、標準歩掛の簡素化等の積算合理化にも活用されることが期待される。

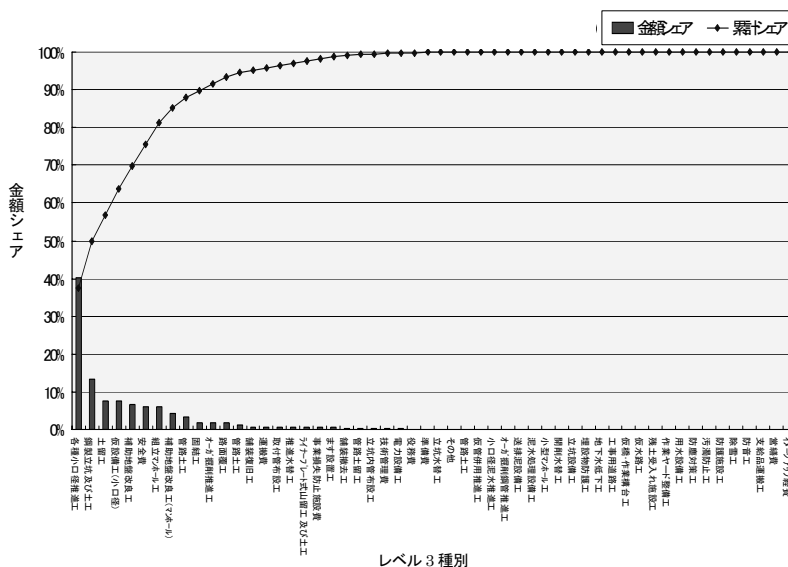


図-5 管きょ工（小口径推進φ200）におけるレベル3価格シェア

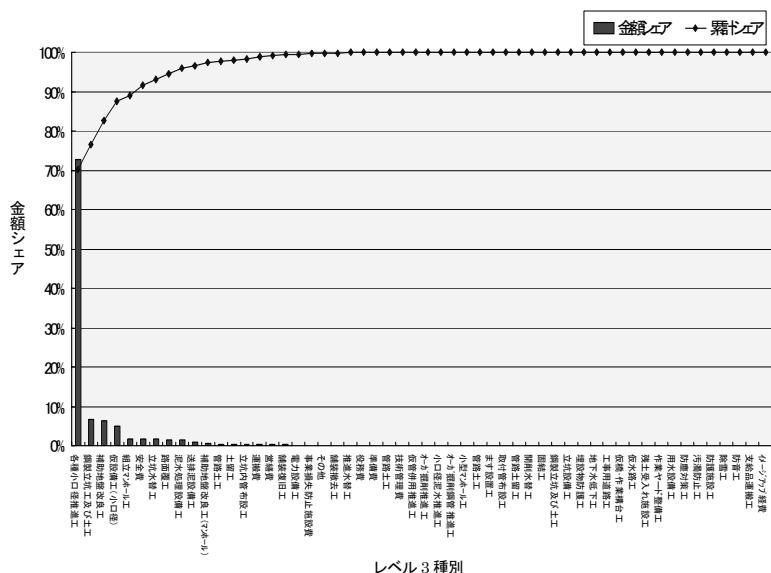


図-6 管きょ工（小口径推進φ400）におけるレベル3価格シェア

17. 都市域における流出・氾濫モデルの開発に関する調査

水害研究室 室 長
主任研究官
研 究 官

中村 徹立
佐々木 淑充
水草 浩一

1. まえがき

現在、都市域では急速な IT 化の進展や地下空間の高度利用がされていることから、これら区域における浸水対策を早急に進めることが急務となっており、特定都市河川浸水被害対策法が制定された。この法では、特定都市河川および特定都市河川流域の指定、都市洪水想定区域・都市浸水想定区域の指定、総合的な浸水被害対策のための流域水害対策計画の策定等を行うこととされているが、こうした政策を進める上で、浸水解析モデルを活用し、都市域の浸水状況把握が極めて重要になっている。

一方、これら都市域では、一般的に下水道等排水路網が高度に発達しており、浸水対策を検討する場合にはこうした排水路網を組み込んだ浸水状況の検討が不可欠である。そのため、地表面と下水道を同時に考慮した浸水解析を行う必要が生じており、また一体型の浸水解析モデルの開発は各方面で試みられている。しかし、水の挙動の表現が非常に複雑となるため、国内ではこうしたモデルの公開・実用化には至っていないのが現状である。また海外には既に市販されたモデルがあるが、本来下水道管路内の流出解析を行うモデルとして開発されたという経緯と、中核の計算部分が非公開とされているなどの理由から、本格的な浸水現象の検討に用いるには解決すべき課題が多い。

そこで水害研究室では、地表面の浸水解析と下水道管路内の流出解析を同時に行うことが可能な公開型モデルとして、『N I L I M (New Integrated Low-land Inundation Model)』の開発を継続的に行ってきた。

2. 調査目的及び内容

水害研究室が開発を行ってきた N I L I M を一般公開し、全国において有効に利用および活用されることを最終目的とする。特に特定都市河川流域における都市浸水想定区域図を作成する際には、都市域における下水道管路の流出解析を含む浸水解析が必要不可欠となるため、N I L I M の貢献度は非常に高い。

モデルの公開に当たっては、精度及び信頼性の高いモデルが求められるため、平成 16 年度は以下のプログラム上の課題を解決するための調査を行った。

1) 解析速度の向上

二次元氾濫解析と管路解析の組合せは、水理挙動が複雑となることと、種々の収束計算を併用するため計算時間がかかることが難点であり、プログラムの非効率なループや収束計算手法の改良等を行った。

2) 逆流及び分流計算への対応

現在の N I L I M で扱える管路網は合流のみで、分流は扱えない。実際の下水道管路は、流出管が複数ある分流も考えられ、これに対応できなければ実現象の再現性向上は図れない。

また、湛水が挙動する中では、満管の圧力状態が次々と変化するため、同じ管路勾配においても水が管路下流方向に流れる順流であっても相当の流下能力を要する場合や、平衡状態となり流下能力がほとんどなくなる場合など、氾濫の挙動により管路の流下能力が変化する。さらに、現在計算できない逆流状態が続くことも想定され、これら複雑な現象にも対応を行った。

3) 開水路網への対応

都市に網目状に存在する開水路（側溝等）の流れは、地表面の氾濫流全体の挙動よりも早く、場合によっては地表面の氾濫流が到達していない氾濫原に浸水を及ぼすこともある。また、暗渠と開水路が混在して流れる排水施設も数多い。

現状の N I L I M の管路モデルは暗渠を前提としており、開水路と混在した場合のモデルとしての特徴も明らかでなく、解析事例も少ない。現在のモデルでの工夫や他の方法との組

み合わせの検討を行った。

4) 雨水のマンホールへの集水方法の改良

現状のN I L I Mでの雨水集水方式は、背負っている集水面積の雨水がすべて順次に一旦管路に入り、呑めなかった量が溢水するモデル化手法を用いている。

表面流出してくる雨水がどのような過程で集水されるかを詳細にモデル化することも現象を捉える要素の一つである。

また、敷設管路をすべてモデル化することは、現実的ではないがゆえに、末端管路での集水をどのように表現するか検討を行った。

3. 調査結果

3.1 プログラムの改良

1) 解析速度の向上

管路モデルにおける解析速度は、管路数などの物理的絶対数も要因のひとつであるが、流量又は水深の収束計算で収束するまでの回数を少なくすることが効果的である。

現状の収束の打ち切り回数は、100回となっているが、特に根拠があるわけでもない。収束しなかった場合は、さらに計算時間間隔 Δt を1/5にし、各々100回の打ち切り回数で収束しなければ、誤差の最小値をとるシステムとなっている。つまり、最後まで収束しなければ、1STEPで最大500回の繰り返し計算を行うこととなり、この繰り返し回数を影響のない範囲で抑えることが必要である。

そこで、2ha程度の矩形状の二次元仮想領域において、ピークで200mm/hrの台形降雨分布を与えた状況時の収束回数の調査を行った(図-3.1～図-3.2)。

収束状況は、安定した水理状態を示す自由水面時は収束も早いことから流出のピーク前後には10回程度が頻度的にも高い。ピークである7000STEP前後では水理状態が不安定であることから収束状態は悪くなる(図-3.1)。図-3.2では概ね30回以内の間で収束する傾向にあることがわかる。

また、現状の流量又は水深の収束計算における収束条件は0.005(無次元)としている¹⁾。収束した際の誤差(前ステップとの差の最小値)と収束回数との関係では、収束条件0.005内に収まっているものは概ね30回内に固まっていることがわかる。繰り返し回数が概ね30回以上のものは、収束条件に収まらず最小の誤差をもって次のステップに進んでいる。

これらのことから、収束の打ち切り回数を30回程度と少なくした。

実際の解析では、管路数や計算桁能力にもよるが以前は実時間の1.2～1.5倍程度かかっていたものが0.7倍程度に短縮された。

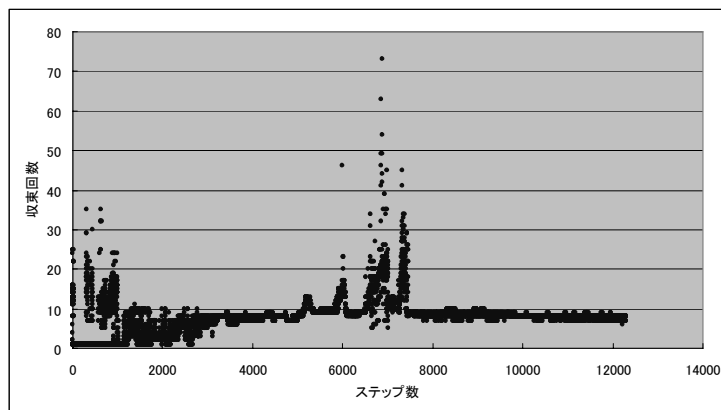


図-3.1 各ステップにおける収束回数

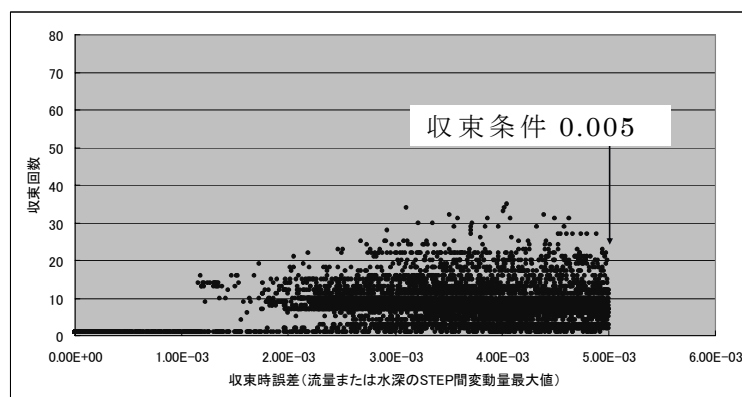


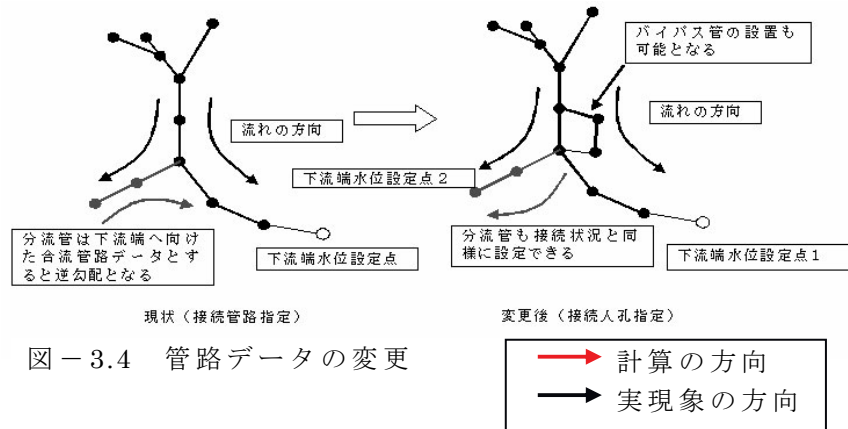
図-3.2 収束回数と収束時の誤差

2) 逆流及び分流計算への対応

① 管路とマンホールデータの分離

分流計算を可能とするためには、現状の管路の上流端マンホールとその下流に接続する管路を一つの管路データとした入力形式では、分流管を合流管の逆とみなして入力データを作成する必要がある等内部処理が複雑となる上に、バイパス管等も扱いにくい。

そこで、管路とマンホールデータの分離を行った(図-3.4)。



② マンホールにおける流出入パターンの分類

N I L I Mは下流端水位を設定しながら上流へ計算を進める手法であるため、分流を含めた計算を行うには、各STEPにおいてマンホールにおける流出入パターンを分類し、常に下流から順に計算を行う必要がある。これにより、逆流計算への対応も可能になる。

そこで、図-3.5の4つのパターンに分類を行った。

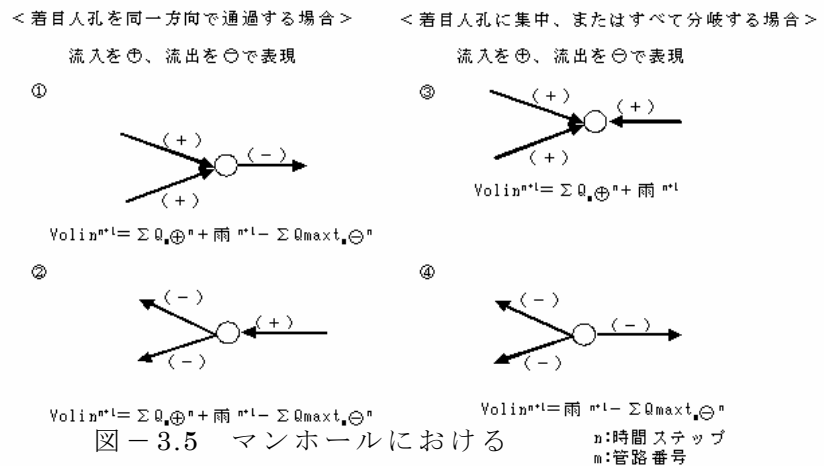


図-3.5 マンホールにおける流出入パターン

③ Duple-Sweep法における計算順序の逆転

N I L I Mのdiffusion wave法における漸化式は流れの上流に流量を与えることを前提としているから、流れの方向が変われば、計算順序も逆転させる必要がある。従来は下流側に負の値に最大流下能力を与えており、流れ方向の下流側における流量境界条件では対象管路内の流量を規定することにならない。

具体的には、以下のように管路の上端と下端の番号を規定している変数IBとIEの境界条件と計算順序を変更した。

これにより、図-3.5に示す流出入パターンから、管路の計算順序を以下のように変更する。

- ・管路の下流端または上流端及び水位が谷底状態になる点（逆流状態、流入集中＝上記パターン3）から計算を開始する。
- ・同パターン1の状態は下流から計算すれば問題ない。
- ・次に流入が1つ以上ある分流点（＝同パターン2）での計算で水位を設定する。
- ・最後にすべて流出する分流点（同パターン4）での計算を行う。
- ・上流端および谷底地点ではその地点の雨量（流出量）を水位に変換して（流出量／マンホ

（境界条件）ibに流量、ieに水位
（算出順序）ib→ieへ係数、ie→ibへdh、dq
↓ 逆順に変更
（境界条件）ieに流量、ibに水位
（算出順序）ie→ibへ係数、ib→ieへdh、dq

ール断面積) 現時刻水位に足しこむ(湛水位があれば湛水位をとる)。

3) 開水路網への対応

ある程度の規模の開水路の場合、通常の外水氾濫解析で使われている水路モデルの構築を図るほうが合理的な場合がある。そこで、土木研究所「氾濫シミュレーションマニュアル」に基づいた水路モデルを付加した。

水路モデルの入力形態は、盛土モデルと同様にメッシュの一边で定義される線上形式であるが、水路長の変化にも対応が可能である。ただし、水路形状は矩形のみである。

本モデルでは不定流式を用いて、氾濫計算を行っている。

また、暗渠と開水路が混在する水路網にも対応できるように開水路への対応を図った。

その際、暗渠と同様に接続点では仮想のマンホールを設定する必要があるが地表面への溢水がマンホールで出入りする形態は、暗渠と同様であるため、1つの開水路でマンホール間を長距離に設定してしまうと、浸水箇所が実現象と相違が生じる。そこで、通過するメッシュに最低1つは仮想マンホールを設定している(図-3.6)。

また、地表面以上の水位計算の際には、安定化を図るため、プライスマンスロットと同様に水路高以上は微小幅のスリットを与え、径深を設定している(図-3.7)。

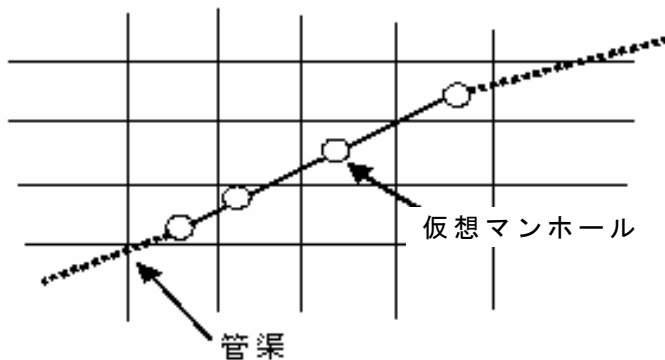


図-3.6 管路モデルにおける
開水路仮想マンホールの設置

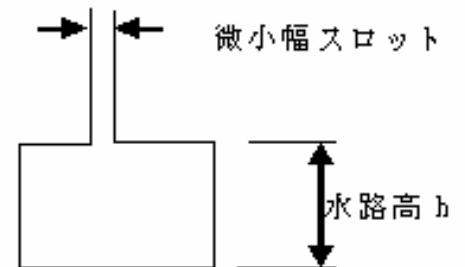


図-3.7 水路高以上の開水路
計算時の処置

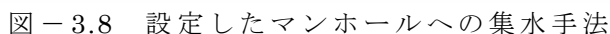
4) 雨水のマンホールへの集水方法の改良

マンホールへの集水は、自身の集水域の降雨のみを扱う手法だけでは、地形条件による表面流出現象に対応できない上に、マンホールのあるメッシュからの溢水浸水しか表現できず、マンホールが無いメッシュから溢水浸水を表現できない。しかし、枝管路まですべてモデル化することは時間的、経済的にも現実的ではない。一方、実際には枝管が集水している集水域におけるマンホールから離れた地点からは、ある程度の遅れ時間を考慮しなければならない。

そこで、これら集水域からの流入現象を簡略化した手法として、以下のような手法を組み込んだ。

- ・ メッシュに直接、降雨を降らせ、各メッシュには集水するマンホールを割り当てた。
- ・ マンホールが負担する雨水集水範囲のメッシュから直接流入マンホールまで仮想水路を内部で想定した(φ250mm程度)。
- ・ 遅れを考慮するため kinematic wave 法で行った。
- ・ 流入するメッシュまでの降雨流入距離を斜面長とした。
- ・ 流速から Manning 式で逆算し、斜面勾配を設定。断面は満管状態を想定した。粗度係数は管種をヒューム管と考え、0.013とした。
- ・ 降雨集水面積は、1メッシュ分とした。
- ・ 下水道の計画降雨等を設定し、それ以上の流入は管路には流入せず地表面流出させた。

設定した $\phi 250\text{mm}$ 程度の管路での勾配は、約 0.01 程度となり都市域における商業地等における斜面

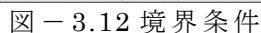
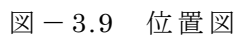
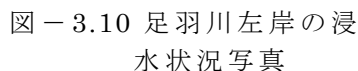


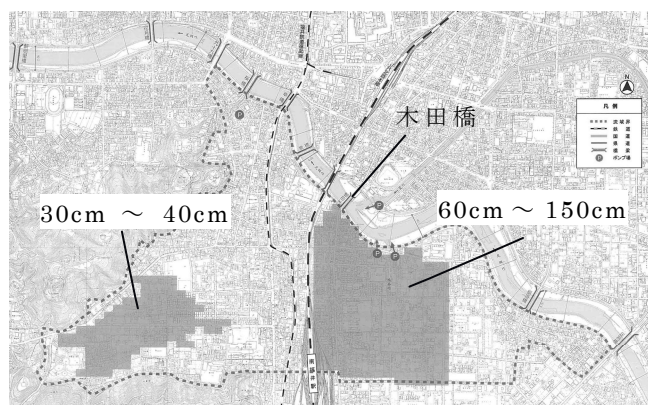
3.2 実績と解析との比較

検証降雨は図-3.11 に示す福井地方気象台の H16.7.18 の降雨データを対象とした。

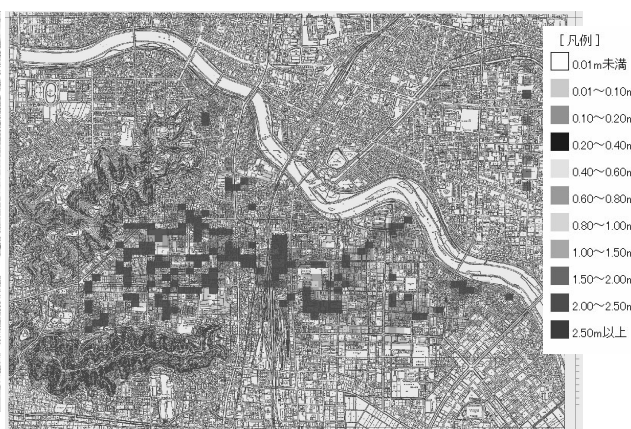
木田橋付近左岸が破堤し、外水氾濫が発生する
13:45 頃までの内水浸水状態での最大湛
水深と浸水範囲との比較を行った。

実績と解析との比較の結果、湛水深については若干の誤差があるものの、浸水範囲については概ね一致している（図-3.13・14）。





図－3.13 実績最大湛水深（破堤前）



図－3.14 解析最大湛水深（破堤前）

5.まとめ

今回の調査により、地表面の氾濫解析と下水道管路内の流出解析を同時に行うことが可能なN I L I Mモデルの精度および信頼性の向上が図られた。

そのうち、N I L I Mが市販モデルに比較して特に優位な点としては、以下のことが挙げられる。

- ・マンホールからの溢水が地表面を流下し、別のマンホールへ流入して下水道に環流する現象を、水収支にもとづく物理量によって表現することが可能である。
- ・地表面の氾濫解析に2次元メッシュを使用しており、1次元氾濫解析の諸条件の設定が必要な市販モデルと比較して、使用者による主観の影響を受けにくい¹⁾。
- ・浸水範囲の解析結果を出力する場合には、メッシュでそのまま表現可能なため、浸水の時系列変化や、浸水の範囲の全体把握が容易である。

また今回の調査により、以下のような課題が抽出された。

1) 地表面湛水流入の妥当性検証

現状のシステムでは、湛水深がマンホール上にあると瞬時に下水道内に流入するという前提条件をとっている。しかし、下水道内部の水理状態によってはその前提と異なる可能性があるため、マンホール周辺の水理現象を把握しておく必要がある。

2) メッシュに直接降らせる降雨と亀甲集水域との併用

低平地における氾濫原では、メッシュ直接降雨による集水システムは有効であるが、部分的に丘陵地帯や山地等をもつ氾濫域では集水の遅れを生じることが考えられる。このような流域にも対応できるよう、集水システムを低平地及び丘陵地帯等の両者併用にできるよう対応を図っておく必要があると思われる。

3) 流下能力の妥当性検証

流れの下流方向における管路の流下能力計算を図ることで、計算の安定性を保持することができつつあるが、自由水面を有している場合や、管路距離が長い場合等、いろいろな水理状況において管路流下能力の妥当性を実験等で検証する必要がある。

4) 計算時間のさらなる短縮

今後も機能的な要求は尽きないと思われることから、現状あるいは将来的なハード・ソフトを含めた電子計算機技術を活用して、1ケースあたりの計算時間を極力短縮することを先駆けて研究していく必要があると思われる。

具体的には、言語の載せ変え、あるいは並列計算をさせる手法等が考えられる。

参考文献

- 1) 国土交通省 国土技術政策総合研究所：都市域氾濫解析モデル活用ガイドライン（案）－都市浸水－、2004

18. 下水道施設への新素材の活用技術に関する調査

新材料チーム 上席研究員 西崎 到
研 究 員 富山 禎仁

1. はじめに

本研究は、耐食性に優れた新素材とその性能評価方法を検討し、これらを活用した既設下水道施設の新しいコンクリート補修技術の確立を目的とし、平成 13 年度より開始された。平成 14 年度からは研究をより効率的に実施するため、要求性能を満たす材料・補修技術が開発できる組織・機関を公募し、民間 11 社と公益法人 1 団体の参加を得て「下水処理施設のコンクリート補修材料に関する共同研究」を実施した。

平成 16 年度は、これまでに試作した耐食性新材料について、適切な性能評価手法に基づき下水道環境における耐食性・適用性を評価するとともに、これらの現場施工性に関する調査を実施した。

2. 研究の概要

本研究で研究対象とした、コンクリート補修用防食材料を以下に示す。

(1) 耐酸性モルタル

耐酸性モルタルの下水道施設のコンクリート補修への適用には、防食材料として無塗装で利用される場合と、塗布型ライニング材の下地材として用いられる場合がある。前者は、穏やかな腐食環境条件に対する比較的安価な防食材料としての用途であり、平成 15 年度にはその耐食性についての検討結果を報告した。後者は、塗布型ライニング材の表面に傷やピンホールが発生しても、膨れ・はがれへの進行を抑制することができる材料である。ここでは、その施工条件および膨れ・はがれ抑制効果について報告する。

(2) 塗布型ライニング材

塗布型ライニング材は多種製品が販売され、最も普及している補修材料である。過年度までに、塗布型ライニング材の主な劣化現象である“膨れ”を抑制する新しい塗装系と、膨れ抑制能力の指標となる新しい付着能力試験方法（引き剥がし試験）について検討し、平成 15 年度にその結果を報告済みである。

(3) 炭素繊維シート

炭素繊維シート工法は、炭素繊維を一方向に引き揃えた一方向シートまたは縦横二方向に織り込んだ二方向シートを、室温で硬化する樹脂を用いてコンクリート表面に含浸させながら接着させ、構造物を補修・補強する工法である。本工法は下水道環境においても優れた耐食性を示す可能性があり、防食効果と補強効果を兼ね備えたコンクリート補修工法として活用できるものと期待される。

(4) シートライニング材

シートライニング材は防食効果が高いため、腐食環境が厳しく点検・補修が困難な場所に使われる工法である。しかし、従来のシートライニング材は塗布型ライニング材と比較すると高価である上に、施工性が劣る場合もある。そこで本研究では、FRP 引抜成形材あるいは金属被覆材料（チタン板）を活用し、より経済的かつ施工性に優れた新しいシートライニング工法の開発に取り組んだ。

3. 耐酸性モルタルの施工条件に関する検討

3.1 概要

モルタルの凝結・硬化は、配合されたセメントの水和反応によって起こる。水和反応の進行は、温度や湿

度などの環境条件に左右されやすい。そこで、耐酸性モルタルの適切な養生条件の把握を目的として、耐酸性モルタルの成形時および養生時の温度や湿度条件が、その水分率や表層引張強さに及ぼす影響を確認した。

3.2 試験方法

耐酸性モルタル3種類（SBR系、アクリル系、エポキシ系ポリマーセメントモルタル）および汎用モルタル3種類（セメントモルタル）を、それぞれ300×300×60のコンクリート平板上に20mmの厚さで塗布し、表-1に示す環境で養生後、表面水分率およびモルタルの表層引張強さを求めた。

表-1 モルタルの養生条件

養生条件	成形および養生環境		表層引張試験の材齢	備考
	温度	湿度		
1	5℃	60±5%RH	2, 3, 7日	
2	20℃	40±5%RH	1, 3, 7日	
3		60±5%RH		
4		90%RH以上		ビニール袋封緘養生
5	30℃	60±5%RH		
6		90%RH以上		ビニール袋封緘養生

3.3 試験結果

一部のモルタルを除き、養生期間の経過と共に表面水分率は低下し、モルタルの表層引張強さは向上した。表面水分率は養生温度が高く、湿度が低いほど小さくなる傾向となった。また、低温環境では十分な表層引張強さが得られるまでに長時間を要することが明らかとなった。

図-1は養生材齢とモルタルの表層引張強さの関係の一例として、養生温度20℃での試験結果を示したものである。汎用モルタルの結果を見ると、低湿度ほど強度が低く、水分の蒸発による表層部分の脆弱化現象（ドライアウト）が発生しているものと推察される。この場合、時間が経過しても大幅な強度の向上は認められなかった。一方、耐酸性モルタルは短時間で強度が向上し、養生期間1日で1N/mm²以上、7日では2～4N/mm²程度の表層引張強さが得られた。耐酸性モルタルは低湿度環境においても乾燥の影響を受けにくく、高い強度が得られることが明らかとなった。

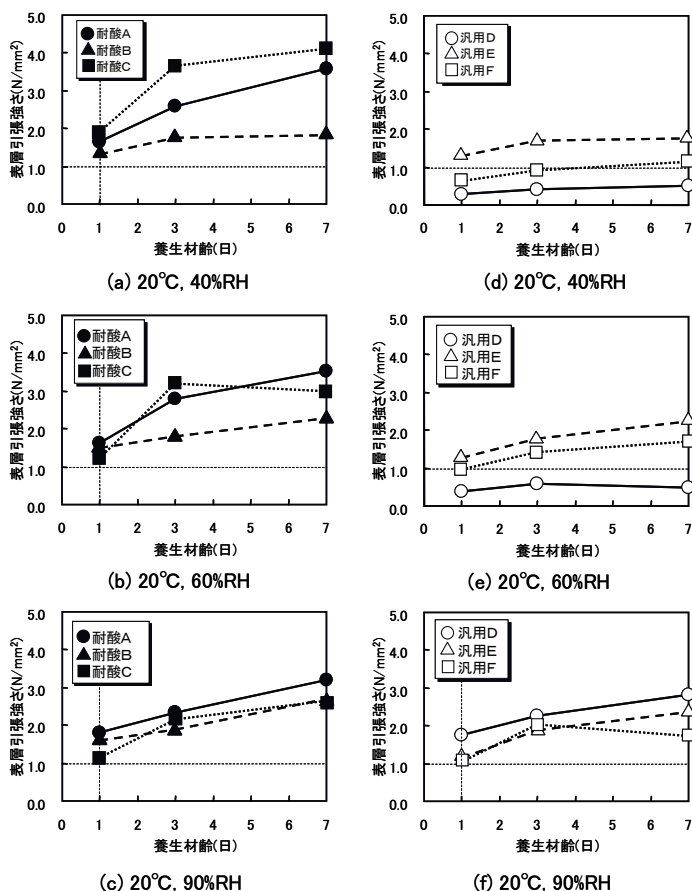


図-1 養生材齢とモルタルの表層引張強さの関係

4. 塗布型ライニング材の施工管理条件に関する検討

4.1 概要

下水道施設の補修工事において塗布型ライニング材を使用する場合、劣化部を除去して断面修復を行った後、ライニング材を施工するのが通常である。塗布型ライニング材の性能を最大限発揮させるためには、断面修復材施工後、どのタイミングでライニング材を施工するのが重要なポイントとなる。そこで、塗布型ライニング材を施工する時点での断面修復材の表層水分率と引張強さが、塗布型ライニング材塗膜の付着強さに及ぼす影響について検討した。

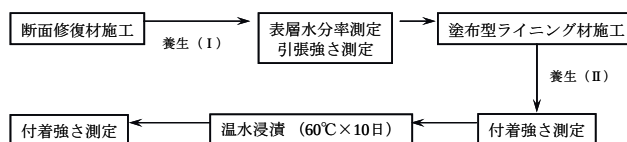


図-2 試験のフロー

4.2 試験方法

試験は断面修復材 4 種類（耐酸性モルタル 3 種類、汎用モルタル 1 種類）と塗布型ライニング材 2 種類（汎用エポキシ、FRP）を用いて行った。供試体の作製から付着力試験までのフローを図 - 2 に示す。まず、5℃および 20℃の環境下でコンクリート基板上に断面修復材を 20mm の厚さで施工し、同一条件下で一

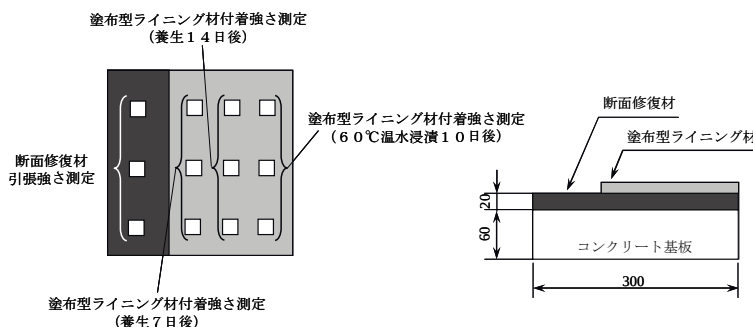


図 - 3 供試体の概略図

定期間養生（養生Ⅰ）後、断面修復材の引張強さと表層水分率を測定した。この直後に、塗布型ライニング材を図 - 3 のように塗布し、同一条件下で一定期間養生（養生Ⅱ）後、塗布型ライニング材塗膜の付着強さを測定した。この供試体をさらに、60℃温水中に 10 日間浸漬した後、再び塗膜の付着強さを測定した。

4.3 試験結果

断面修復材と塗布型ライニング材との付着強さは、ライニング材被覆後の養生期間を長く取ることにより、概ね日本下水道事業団規格値（ 1.5N/mm^2 ）を満足する結果となった。

一般に塗布型ライニング材の施工管理条件は、下地からの水蒸気による塗膜の膨れや付着性の低下を防止する観点から、下地含水率 8%以下とされている場合が多いが、塗布型ライニング材施工時における断面修復材表層水分率と塗布型ライニング材付着強さ（材齢 14 日）との関係（図 - 4）からは、これを裏付ける明確な相関は認められなかった。一方、塗布型ライニング材施工時における断面修復材の引張強さと塗布型ライニング材の付着強さ（材齢 14 日）との関係（図 - 5）から、断面修復材の引張強さ 0.5N/mm^2 を境に、それ以上の領域で塗布型ライニング材付着強さが規格値（ 1.5N/mm^2 ）を満足することが明らかとなった。

本試験の結果から、次工程に塗布型ライニングを施工する場合の養生期間は、引張強さ 0.5N/mm^2 が得られるまでとし、目安として 5℃では養生期間 2～3 日以上、20℃および 30℃では養生期間 1 日以上確保することが望ましい、との結論が得られた。

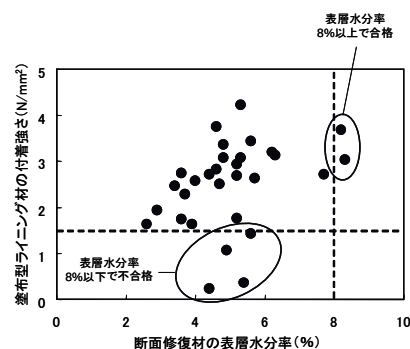


図 - 4 塗布型ライニング材の付着強さと断面修復材の表層水分率との関係

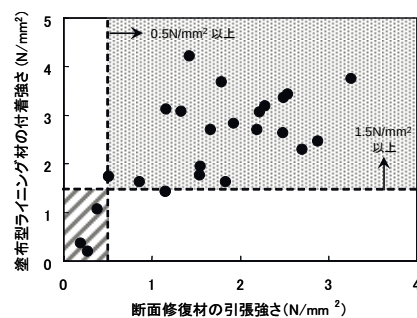


図 - 5 塗布型ライニング材の付着強さと断面修復材の引張強さとの関係

5. 耐酸性モルタルと塗布型ライニング材との併用効果に関する検討

5.1 概要

塗布型ライニング材によるコンクリートの防食工法では、何らかの原因により塗膜に欠損が生じる場合がある。その際、欠損部から浸透する硫酸により下地の断面修復材が腐食劣化し、塗布型ライニング材のはがれにつながる場合がある。そこで、下水環道境下においてライニング材塗膜に欠損が生じたと想定し、下地材の劣化挙動を調べた。

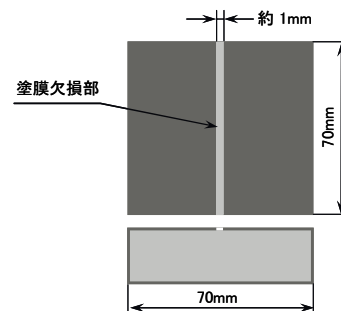


図 - 6 供試体の概略図

5.2 試験方法

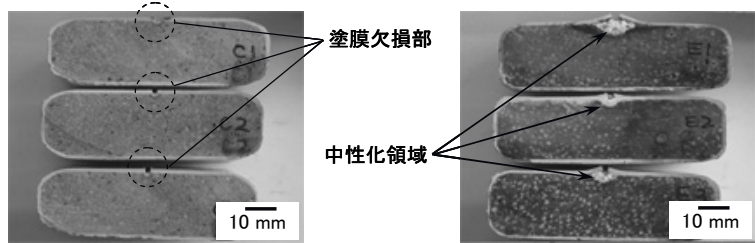
3種類の耐酸性（ポリマーセメント）モルタルと、1種類の汎用（セメント）モルタルを試験に用いた。これらのモルタルを JIS A1171 に基づき 70×70×20mm の寸法に成形し、表面水分率が8%以下になった時点で、表面にエポキシ樹脂系ライニング材を塗布した。供試体上面のライニング材には、カッターで基材モルタル表面に達する切れ目を入れた（図 - 6）。この供試体を 5wt%、20℃の硫酸に 28 日間浸せきした後、外観観察、質量測定、供試体断面の観察等を行った。

5.3 試験結果

硫酸浸せき後の供試体断面に 1%フェノールフタレイン溶液を噴霧し呈色状況を調べたところ（図 - 7、表 - 2）、汎用モルタルの塗膜欠損部は中性化領域が大きく、硫酸の浸透による腐食劣化の進行により塗布型ライニング材に膨れが発生していることがわかった。汎用モルタルは、水酸化カルシウムの生成量が耐酸性モルタルに比べて多く、硫酸との反応により二水石膏を生成しやすい。この二水石膏が欠損部の塗膜を押し広げ、硫酸劣化を助長したものと考えられる。

一方、耐酸性モルタルの塗膜欠損部は僅かに中性化領域が認められたが、ライニング材に膨れ、ひび割れ等の変状はなかった。耐酸性モルタルは、少ない水酸化カルシウム生成量と緻密な硬化体組織を意図した配合設計により耐酸性が付与されているため、欠損部に硫酸溶液が接触した場合においても二水石膏が生成されにくく、モルタル中に硫酸が拡散

しにくい。そのため、塗膜欠損部に変状が発生しなかったものと考えられる。以上の結果から、塗布型ライニング材の下地に用いる断面修復材として、耐酸性モルタルを適用することの優位性が確認された。



(a) 耐酸性モルタル C

(b) 汎用モルタル E

図 - 7 硫酸浸せき後の供試体断面（1%フェノールフタレイン溶液を噴霧）

表 - 2 硫酸浸せきによる供試体の質量変化率と中性化領域の面積

試験 No	外観観察	質量変化率 (%)		中性化領域 (mm ²)	
耐酸性モルタル A	変状なし	0.25 *	0.10	8.3	7.5
	変状なし	0.10		6.0	
	変状なし	0.09		8.2	
耐酸性モルタル B	変状なし	0.11	0.12	3.8	3.8
	変状なし	0.12		4.6	
	変状なし	0.12		3.1	
耐酸性モルタル C	変状なし	0.19	0.18	2.4	2.9
	変状なし	0.19		3.0	
	変状なし	0.17		3.2	
汎用モルタル E	欠損部に膨れ	0.76	0.50	37.6	24.3
	欠損部に膨れ	0.35		14.2	
	欠損部に膨れ	0.40		21.1	

6. 炭素繊維シートによるコンクリート補強工法の下水道施設施設への適用性に関する検討

6.1 概要

炭素繊維シートによる補修・補強工法を下水道環境下のコンクリート構造物に適用する場合には、補強効果と同時に補強材料の耐硫酸性も要求される。そこで、炭素繊維シートとコンクリートとの付着性能が特に要求される下水道施設施設の床スラブや梁の曲げ補強を想定し、小型供試体を用いた曲げ強度試験により硫酸環境下における炭素繊維シートの曲げ補強性能について検討した。

6.2 試験方法

50×40×250mm のモルタル表面に炭素繊維シートを貼付して作製し

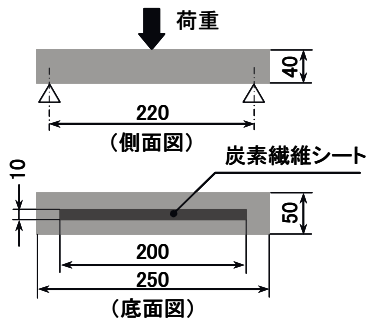


図 - 8 供試体載荷方法

た供試体を、40℃・10wt%の硫酸水溶液に所定の期間浸せきし、浸せき後の供試体曲げ強さを求めた。炭素繊維シートの上塗り材は3種類とした。曲げ強度試験は JIS R5201 に基づき、支持スパン 220mm の中央集中荷重（図 - 8）で行った。

6.3 試験結果

硫酸浸せき時における供試体の曲げ強度保持率の経時変化を図 - 9 に示す。供試体 HA と HC については炭素繊維の剥離によって、供試体 HB については炭素繊維の破断によって、それぞれ最大耐力に至った。各供試体とも浸せき時間が増加しても破壊モードが変化することはなかった。120 日のデータに関しては試験継続中であるが、56 日時点ではほぼ初期の曲げ強度を維持していることが確認された。供試体断面の元素分析結果から、120 日浸せき後においても硫酸は上塗り材塗膜内までしか浸入していなかったことから、本浸せき試験期間内においては、硫酸浸入による炭素繊維シート補強層の劣化は生じていないと考えられる。これらの結果から、本工法は硫酸環境下でも高いレベルで曲げ補強効果を維持することができることが明らかとなった。

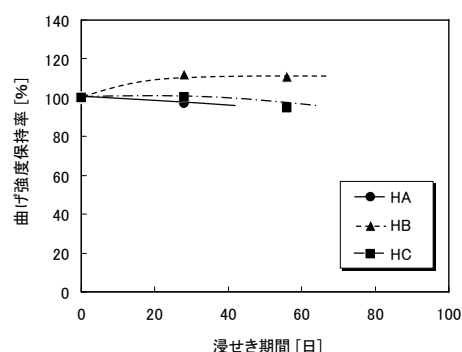


図 - 9 硫酸浸せき時における供試体曲げ強度保持率の経時変化

7. 新しいシートライニング工法の下水道施設施設への適用性に関する検討

本研究では、従来のシートライニング工法で問題となっている経済性と施工性を改善するために、FRP あるいはチタン板を利用した新たな工法の開発に取り組んだ。それぞれの工法の概要は次の通りである。

(1) FRP 引抜成形材によるシートライニング工法

FRP はこれまでもシートライニング材として用いられたことがある、耐食性に優れた素材である。単体でシートを作ることにより軽量化、施工性の向上が期待できる。本研究では引抜成形法により作製した FRP を使用することで、比較的安価で高品質なシートライニング工法の確立を目指した。開発したシートライニング用 FRP パネル（図 - 10）は、E ガラスのロービングをコンティニアスストランドマットで包んだ構造となっており、幅 600mm に 15 度傾斜した L 型アンカーを 4 本配置している。マトリックス樹脂にはビニルエステル樹脂と不飽和ポリエステル樹脂の 2 種類を用いた。

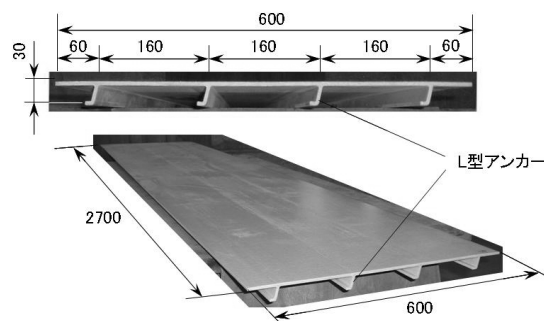


図 - 10 シートライニング用 FRP パネル

(2) 純チタンによるシートライニング工法

チタンは pH 1 程度の硫酸に侵されず、環境液の浸透もないため長寿命が期待できる。また薄板で用いれば十分に軽量であるため、施工性の向上も図れる。開発した工法では、適切に下地処理しプライマーを塗布したコンクリート面に、両面粘着シート（テープ）あるいは接着剤を使用してチタン板を貼付し施工する。チタン板と下地

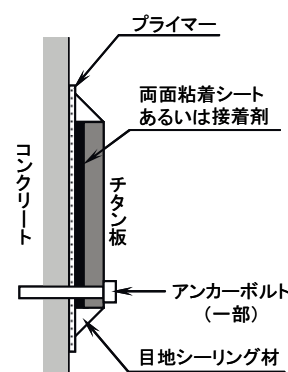


図 - 11 チタンシートライニング工法の概略図

コンクリートとの接着の安全率を向上させるために、チタン板端部に 500mm 程度の間隔で、接着剤を塗布したアンカーボルトを打設する。また、チタン板の端部、目地部およびボルトの外周をシリコン系シーリング材でシールすることにより環境液の遮水性を確保することとした。

開発したそれぞれのシートライニング工法について、日本下水道事業団編纂の「下水道コンクリート構造物の腐食抑制技術マニュアル(参考資料-3. 防食被覆層の品質試験方法)」を参考に試験項目および試験方法を設定し、コンクリートとの固着性、耐硫酸性、耐アルカリ性、透水性、硫酸遮断性などについて評価した。これらの結果から、いずれの工法も下水道環境へ十分適用可能であると判断された。

8. 現場施工性に関する検討

本研究において開発した各種補修材料・工法については、室内試験における性能評価により下水道施設のコンクリート補修への適用可否について検討し、良好な結果が得られた。しかし、その実用化に先立って、実大規模での施工性を検証し、施工技術に関する知見を得ておく必要がある。そこで、霞ヶ浦浄化センター内の実験用送水施設の壁面に各種補修材料を数㎡程度ずつ試験施工することにより、現場施工性や施工上の留意点等を検討した。

施工性試験は、既に広く普及し施工技術も確立している塗布型ライニング材を除き、耐酸性モルタル、FRP シートライニング、チタンシートライニングについて行った。実験用送水施設(吐出水槽)内部の劣化したコンクリート壁面をウォータージェットではつき取り(平均はつき深さ 20~30mm)、水洗、下地処理後、各補修材料を工法仕様に基づき施工した(図-12)。

一方、各補修材料の実環境下での耐久性試験を行うために、暴露供試体を作製し、吐出水槽および嫌気調整槽内部に設置した。現在、各水槽内部を実環境に近い状態に設定し、温度および硫化水素濃度のモニタリングを行っている。

暴露 5 ヶ月の時点で水槽内の下水を排出し、暴露供試体の外観調査および各種評価試験を行った。いずれも供試体に汚れの付着はあるものの、劣化を示す物性の変化は認められなかった。今後、最長で 5 年程度まで引き続き暴露し、追跡調査を行う予定である。

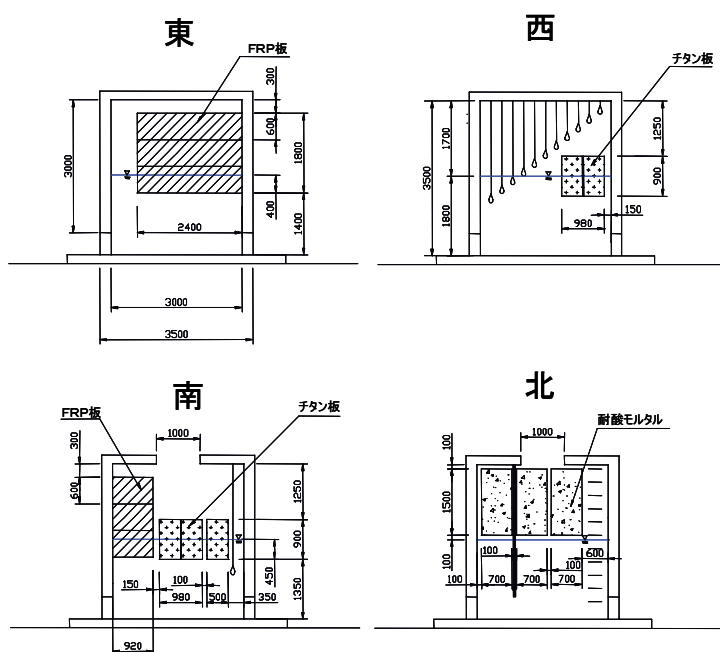


図 - 1 2 各補修材料の施工位置と寸法(吐出水槽)



(a) 吐出水槽

(b) 嫌気調整槽

図 - 1 3 暴露供試体設置状況

9. まとめ

平成 16 年度は、試作した耐食性新材料について、適切な手法に基づき下水道環境における耐食性・適用性を評価すると共に、これらを用いた補修工法の現場施工性に関する調査を実施した。

効率的な下水道整備に関する研究

19. 下水道管渠の合理的維持・補修のための作用土圧の評価に関する調査

独立行政法人土木研究所材料地盤研究グループ（土質） 上席研究員 小橋 秀俊
主任研究員 桑野 玲子
交流研究員 堀井 俊孝

1. はじめに

下水道整備の拡大とともに既存施設が増大するにつれて、耐用年数を超過した管渠も増え始めており、今後老朽化は急速に進むと予測される。しかし、補修工法を選定する重要な要素となる、補修時における既設管渠に作用する外力等の状態は不明な点が多く、管渠に予想以上の作用土圧が発生し構造上の問題が生じる可能性や、場合によっては管渠に想定以下の土圧しか作用せず、補修が過剰となる場合もある。そこで、合理的な下水道管渠の維持、補修を進めるにあたっては、管渠に作用する土圧の経年変化や管渠周辺地盤の乱れやゆるみの状態を明らかにし、的確な土圧評価をする必要がある。本研究は、下水管渠に作用する土圧の経年変化を調べるとともに、その作用土圧に乱れやゆるみを発生させるような外部攪乱要因について調査し、管渠更新時を念頭においた合理的管渠埋設方法の提案をめざすものである。

2. 研究のアウトライン

本研究に先駆けて実施した“下水道管渠の補修工法選定のための作用土圧の評価に関する調査（平成 13～15 年度）”で、実験土槽内に敷設したゲージ付管模型の 2 年間にわたる長期モニタリング、移動床実験によるゆるみ土圧の時間依存性の検討等を実施し、以下の知見が得られた。

- ・ 管渠に作用する土圧には、管渠及び周辺地盤の変形が重要な影響要因である。
- ・ 管渠埋設材料に固結性をもたない通常の土質材料を用いた場合、十分に締め固めを行い良好な施工状態であれば、時間経過に伴う周辺地盤の変形は顕著でなく土圧も変化しないと考えられる。
- ・ 改良土などの自硬性のある材料で埋戻すと、埋設後の時間経過により周辺地盤は安定し、管の変形も抑制される傾向にある。
- ・ 固結性のない埋設材料の場合は、管の劣化や破損により周辺地盤に乱れやゆるみが発生しやすい。

以上の事から、現地の発生土や砂質土等の埋め戻し材料を管渠埋設に使用している場合は、補修工法選定において、周辺地盤に変形を及ぼさない（ゆるませない）方法の選択が有効であることが示唆されると共に、今後は“ゆるみにくい”適切な埋戻し材料の選定が効果的であることがわかった。

本研究では、埋設管渠の作用土圧の長期挙動を引き続き調査すると共に、作用土圧の攪乱要因を調べることで、より“ゆるみにくい”埋設条件を明らかにし、管渠の合理的維持・補修に資することを目的とする。

本年度は、まず下水管渠の状況が周辺地盤に与える影響の実態を把握するため、道路陥没と下水管渠状況の関連の実態調査を行った。また、移動床土槽による埋設構造物模型の土圧測定実験を行い、周辺地盤の変形に伴う作用土圧の変化を検討した。

3. 道路陥没と下水管渠の関連に関する実態調査

3. 1 調査概要

下水管渠の老朽化・劣化は、終局的に破損に至り、道路陥没や管の閉塞などを引き起こす場合がある。そこで、管渠の老朽化の状況、及びその周辺地盤への影響の実態を把握し今後の検討の基礎データとするために、東京都区部など7都市を対象に道路陥没事例と下水管や周辺地盤状況の関連を調査した。

下水道管渠を敷設した道路で陥没が発生した現場において、陥没や管渠の概要及び周辺地盤などについて、自治体へのヒアリング及びアンケート調査を行った。対象とした都市は、管路施設の維持管理に積極的に取り組んでいるとみられる都市を選定し、仙台市、東京都区部、町田市、横須賀市、新潟市、名古屋市、福岡市の7都市とした。

3. 2 調査結果

道路陥没が発生した場合、緊急に対応される事が多いため、陥没状況に関する詳細な資料やデータは少ない。調査対象都市のうち、アンケート調査に対して2都市（D市、E市）から回答が得られ、計172件の事例が得られた。さらにヒアリングで具体的なデータを収集できたのが2都市（A市、F市）あり、その他の都市ではそれぞれの都市における総括的な情報を入手した。

3. 2. 1 陥没の要因

陥没の要因となる下水管渠の損傷原因として以下のものが挙げられた。

- ・ 自然破壊： 老朽化や劣化による破壊
- ・ 他工事破壊： 水道やガスなどの他工事による破壊
- ・ 施工不良： 取付管の目地、接合部、埋戻し等の施工不良
- ・ 閉塞不良： 不使用管の閉塞不良

個々の事例における損傷原因を明確に把握するのは困難であるが、老朽化等の自然破壊と施工不良が大半の要因となっている都市が多い。

3. 2. 2 管の破損状況

道路陥没に至った下水道管渠の損傷状況の内訳を表－1に示す。

表－1 道路陥没部の下水道管渠の損傷状況

	破損	クラック	ズレ、段差、隙間	その他	不明
A市（215件）	49%	5%	42%	4%	—
E市（157件）	29%	5%	47%	4%	15%

破損、クラック等の何らかの原因による管渠本体の損傷に加え、ズレ、段差、隙間など施工不良等に起因するものが多い。破損に至らないまでも継ぎ目のズレ程度の軽微な損傷でも陥没を引き起こすケースが多いといえる。陥没は内空1m³以下のものが多い。大きな管の破損が生じた場合は短期間に大規模な陥没が発生する。

3. 2. 3 埋設年代と方法

アンケート調査で回答を得られたD市、E市（172件）の、道路陥没部の下水管の埋設年代は、昭和45年以前；44%、昭和45～50年；35%、昭和51～55年；8%、昭和56～60年；6%、昭和61年以降；5%、不明；2%となっている。

D市、E市では道路陥没部の損傷下水管渠の埋設年代は昭和50年以前が79%を占めている。西山ら（2003）の新潟市における下水管渠の布設経過年数と単位長さあたり異常箇所数の調査例によると、経過年数

25年超で管渠異常箇所（TV カメラ調査によるクラック、侵入水等）が増える傾向が報告されているが、本調査の場合も同様に、埋設後25～30年程度で老朽化の影響が顕著になると思われる。なお、その他に、昭和50年付近を境として取付管の管種が陶管から塩ビ管に変わったことが影響している可能性がある。

埋設方法は開削が大部分で推進工法は1事例のみであった。

3. 2. 4 管種と管径

アンケート調査で回答を得られたE市(157件)のデータより、道路陥没部の下水管の管種を整理すると、陶管39%、ヒューム管25%、塩ビ管10%、その他2%、不明24%であった。またDおよびE市の計172件のデータから、φ150が50%、φ200が2%、φ250以上が23%、不明が25%であった。

道路陥没部の下水管渠は敷設年代の古い陶管が多く、次いでヒューム管、塩ビ管となっている。これは西山ら(2003)の新潟市における管種と単位長さあたり異常箇所の調査例とほぼ同様の傾向である。塩ビ管も道路陥没事例の10%にのぼり、その破損原因は施工不良が半分を占めている。

陥没事故は取付管部に多く発生し、50～80%程度を占める。特に本管との接続部に多い。また本管では人孔周辺部に問題が多いとのことである。管径は取付管が多いことからφ150が半分を占めている。

3. 2. 5 埋設条件

周辺地盤、埋設材料、地下水などの影響については、データが少なく分析ができなかった。ヒアリングによると埋戻し材料として砂を使用しているところが多く、陥没箇所も砂質土が大半のようであった。

3. 2. 6 その他の要因

図-1にA市における平成14年度の月別道路陥没件数を示す。下水施設に関連する陥没は、5月から9月の多雨の時期に多いことがわかる。ヒアリングの中でも、降雨の多い年、及びその翌年に陥没件数が多いという話があった。図-2にF市における平成10年度から12年度の月別陥没件数を降水量と共に示す。ここでも春から秋にかけて雨の多い時期に陥没件数が多い傾向がうかがえる。

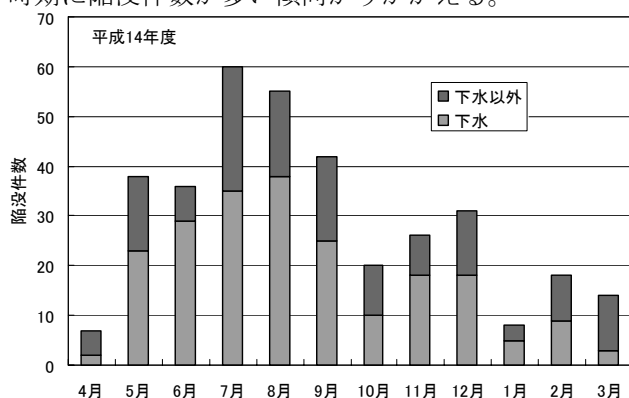


図-1 月別道路陥没件数 (A市、平成14年度)

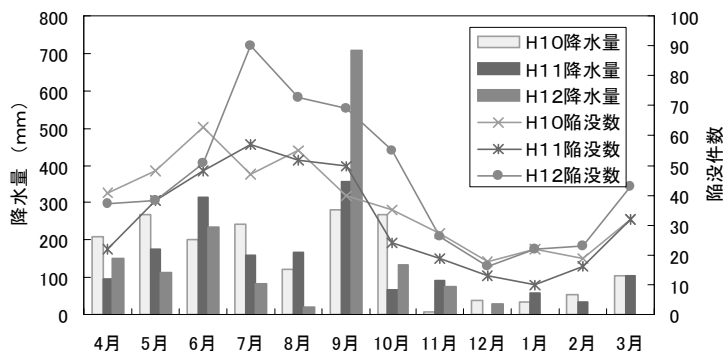


図-2 道路陥没と降雨の関係 (F市)

3. 3 まとめ

道路陥没に至るような地盤のゆるみ・乱れと下水管渠の状況の関連について基礎データを得るため実態調査を行ったところ、以下の傾向があることがわかった。

- ・ 道路陥没を引き起こす下水管渠の損傷は破損に至るような大きな損傷の他、ズレや隙間などの軽微なものも多い。
- ・ 損傷原因は老朽化、施工不良、他工事破損等があげられる。
- ・ 埋設後25年以上経過した管渠に損傷が多い。
- ・ 道路陥没と関連が深いのは、取付管、小口径管、管種としては陶管、ヒューム管である。
- ・ 道路陥没には降雨が強く影響している。

4. 移動床土槽による埋設構造物模型の土圧測定実験

埋設管の変形に伴う地盤との相互作用による土圧変化とその時間依存性について、平成13～15年度に土槽中央部の底版を降下させる移動床実験で検討したところ以下のことがわかった。

- ・ 埋設管に作用する土圧は、埋設による管のわずかな変位が地盤内応力の再分配をおこし、アーチ効果が作用することにより大きく変化（減少）する。
- ・ 移動床実験では、（ゆるみ）土圧と変位の関係はその速度履歴にあまり影響されない。細粒分を含んだ砂を用いた実験ではアーチ効果の形成に、より大きな変位を必要とすることが分かった。
- ・ アーチ効果の形成によって変化した移動床に作用する荷重は、その幅に影響されるが、土被り厚の大きさにはあまり影響されない。
- ・ 移動床上に形成されたアーチ効果は、その後降下床を微小に上下することによって攪乱がみられる。その攪乱の程度は、細粒分を含んだ砂のほうが小さい。
- ・ アーチ効果が発揮された地盤に上載荷重を繰り返し載荷させても、アーチ効果は攪乱されない。

すなわち、埋設後一旦安定した作用土圧は、その後の埋設管周辺地盤に相対変位（乱れ）が生じると変化する可能性があるが、乱れが生じない程度の上載荷重の変化であれば大きな影響を与えないことがわかった。

上述の実験は、埋設管頂部の変形(陥没)または溝型の埋設形式を模擬しているといえる。本年度は移動床土槽中央部に埋設構造物模型を設置し、左右の底版を降下させることにより周辺地盤の沈下、あるいは突出型の埋設形式を模擬し、作用土圧及びその時間経過による変化特性を調べた。

4. 1 実験装置及び方法

土槽寸法は幅100cm×奥行60cm×高さ60cmで、分割底版の中央部110mmに埋設構造物模型(幅110mm×高さ110mm)が設置されている。埋設構造物模型は管形状が望ましいが、土圧計配置が困難であるため矩形とした。なおこれは剛性構造物を想定し、中詰めを施している。土圧計は埋設構造物模型の頂部3箇所（土圧計③④⑤）と左右側部1箇所ずつ（土圧計②⑥）、及び左右の土槽底版1箇所ずつ（土圧計①⑦）に配置した。

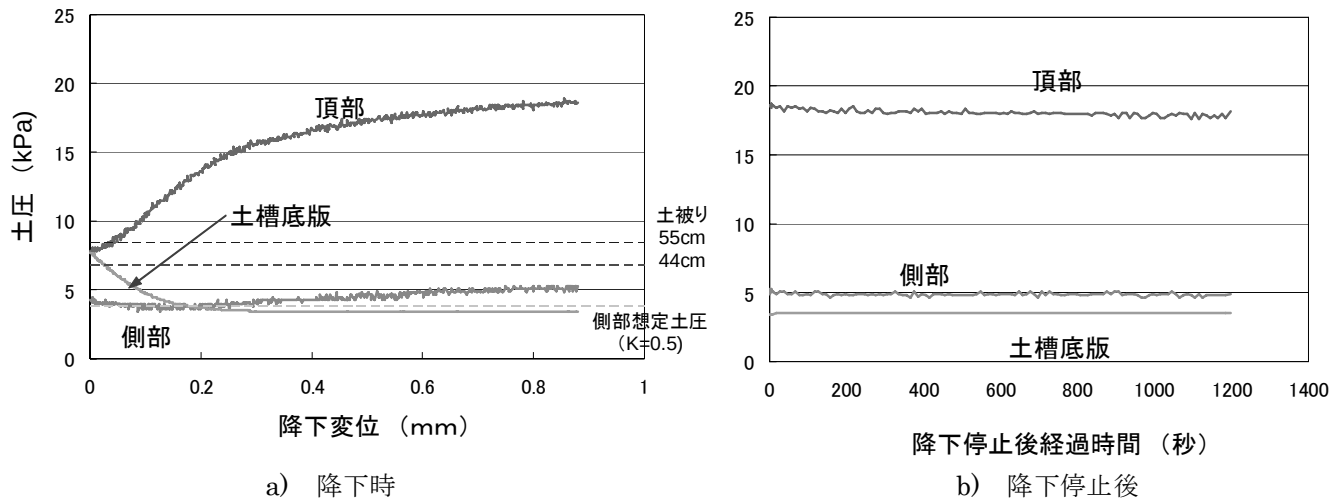
地盤材料には豊浦標準砂と細粒分混じり砂の2種類を使用し、所定の密度に1層2.5cmで敷き均し所定の高さ（土被り11cm～44cm：地盤高22cm～55cm）まで盛り立てた。移動床は変位速度0.1mm/分で1mmまで降下させ、降下停止後少なくとも20分間は土圧測定を継続した。実験ケースを表－2に示す。

表－２ 移動床実験ケース

ケース	地盤材料	土被り	密度	実験内容
1	豊浦標準砂	44cm	1.57g/cm ³	1mm 降下後放置
2	豊浦標準砂	11cm 22cm 33cm 44cm	1.57g/cm ³	各土被りにて 1mm 降下後 20 分放置 (計 4mm 降下)
3	豊浦標準砂＋ 細粒分(20%)	44cm	1.53g/cm ³	1mm 降下後放置

4. 2 実験結果

図－３にケース１で得られた移動床の a)降下時の降下変位と土圧の関係、及び b)降下停止後の経過時間と土圧の関係を示す。個々の土圧計測定値にはバラツキがあったが、設置位置ごとの概略の傾向は似通っていたため、土槽底部部の土圧は土圧計①と⑦を、側部は土圧計②と⑥を、頂部は土圧計③～⑤を平均した。また、a)図中の破線は土圧計設置位置の土被り厚から計算される理論土圧を示している。



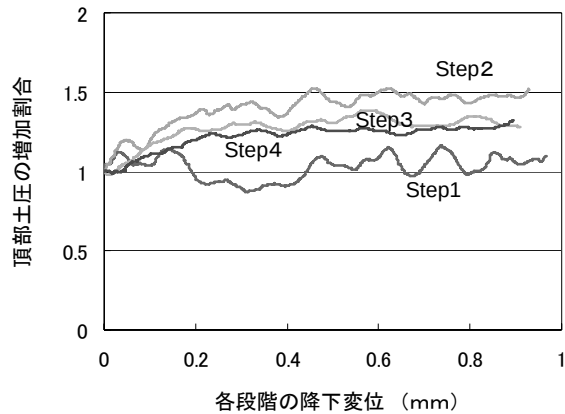
図－３ 周辺地盤の変位による埋設構造物の作用土圧変化（ケース１：豊浦砂 ４h）

埋設構造物模型の周辺地盤の沈下に伴い、頂部に作用する土圧が増大し、土槽底部部の土圧は減少した。頂部土圧は変位 0.3mm で実験開始時の 2 倍程度になり、その後はゆるやかに増加を続け降下停止時(変位 0.9mm)には 2.4 倍となった。側壁の作用土圧は実験開始時に土被り圧の約 0.5 倍だったが、降下と共にわずかに増加した。降下停止後約 20 分間の土圧は、ほとんど変化が見られない。それ以上長時間放置した記録も収集したが、周辺温度の変化等による影響の評価などさらなる検討が必要である。

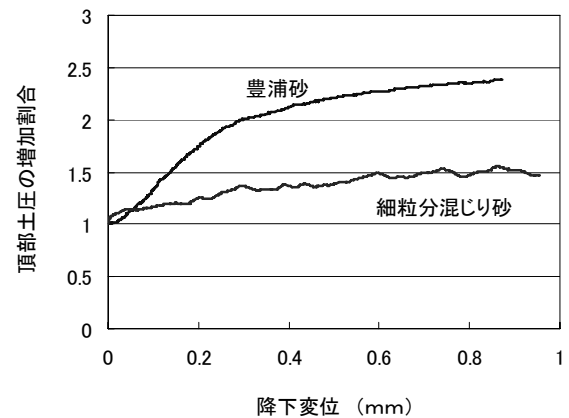
ケース２は、埋設構造物模型高さを h として、1 h、2 h、3 h、4 h の土被り厚に段階的に盛り立て、1 段階につき約 1 mm の降下変位を与えたものである。図－４には各段階の盛り立て時の土圧に対する頂部土圧の増加割合を示す。測定値のバラツキが大きいため図－４ではスムージングを施している。これらから、土被り厚が大きくなるほど移動床降下による頂部土圧の増分が大きくなるが、初期値に対する増加割合という観点では土被り圧 1 h を除いてほぼ一定値 (1.3～1.5) であること、各段階の土圧増加は 0.2～0.3mm 程度のわずかな変位でほとんどが発生すること、土圧の増分は累積していくことがわかる。

また図－５にはケース１とケース３で得られた頂部土圧の増加割合を示す。細粒分混じり砂では最終的な増加割合は 1.5 程度で豊浦砂地盤の 2.4 よりも大幅に小さい値となった。一方、土圧の変化が収束するのに要す

る変位は細粒分混じり砂の方が大きい。今後地盤材料の物理・力学特性とこれらの挙動との関連を調べたい。



図－4 盛立て各段階の頂部土圧の増加割合（ケース2）



図－5 頂部土圧の増加割合（ケース1 & 3）

4. 3 まとめ

移動床実験により埋設構造物の作用土圧について調べた。得られた知見、及びそれらから示唆されることは以下の通りである。

- ・ 周辺地盤の沈下によって土圧の作用形態が突出型になると、わずかな沈下で埋設構造物に作用する土圧は増大する。
- ・ 一旦発生した土圧増分は、その後の時間経過や上載などによって解消することなく逐次累積する。
- ・ 裏込材によって土圧増分特性は異なる。裏込材自体が良好に施工されていても、埋設構造物の基礎部以深が沈下すると、かえって大きな土圧増分が発生する可能性がある。

5. まとめ

長期間にわたる埋設環境において“ゆるみにくい”地盤の埋設条件を明らかにすることを目的として、まず下水管渠の状況が周辺地盤に与える影響の実態を把握するため、道路陥没と下水管渠状況の関連の実態調査を行った。また、移動床土槽による埋設構造物模型の土圧測定実験を行い、周辺地盤の変形に伴う作用土圧の変化について調べた。それぞれの検討から得られた主要な知見は以下の通りである。

- ・ 道路陥没を引き起こす下水管渠の損傷は、埋設後25年以上経過した管渠に多く見られ、全体の破損に至るような大きな損傷の他、ズレや隙間のような軽微な損傷も多い。
- ・ 道路陥没には降雨が強く影響している。
- ・ 周辺地盤のわずかな不同沈下により埋設構造物に作用する土圧は増大する。一旦発生した土圧増分はその後も残留し累積する。
- ・ 地盤材料によって不同沈下に伴う土圧増分特性は異なる。

20. 下水道施設の変形量を考慮した液状化対策工の設計法に関する試験調査

(独)土木研究所 耐震研究グループ(振動) 上席研究員 杉田 秀樹

主任研究員 佐々木哲也

研究員 石原 雅規

1. はじめに

平成 15 年 9 月には 2003 年十勝沖地震が、平成 16 年 10 月には 2004 年新潟県中越地震が発生し、下水道管路が多大な被害を受けたため、本年度は下水道管路の被害原因に関する検討および耐震対策工法の効果の確認を行った。

上記地震による管路被害^{1), 2), 3)}は、掘削埋戻しを行った範囲の路面の陥没やマンホールの浮き上がり、管路継ぎ手部の折れ曲がりなどが多い。被害箇所も多くは、周辺の現地盤において液状化現象が確認できないにもかかわらず、陥没した路面上に噴砂が見られることから、埋戻し土の液状化が被害の直接の原因であると考えられている。このため、被害箇所の埋戻し土の液状化特性などを調べるために現地調査及び採取した埋戻し土の室内土質試験を行った。

また、被害の多く発生した地域では、泥炭地盤や軟弱な粘土層が存在することが多い。例えば、釧路市では、海岸に沿った砂丘上では被害がほとんど見られず、内陸に入った泥炭層が分布する地域において被害が多く発生している。このため、埋戻し土の特性だけではなく、原地盤の特性が被害の発生に大きな影響を及ぼしていると考えられる。そこで、泥炭地盤や軟弱な粘土層の影響について調べるために、動的遠心模型実験を行った。

さらに、碎石による埋戻しと十勝沖地震による被災箇所の多くで採用されたセメント改良土による埋戻しの 2 つの耐震対策工法の効果を動的遠心模型実験により確認した。

2. 現地調査及び室内土質試験

2.1 現地調査箇所

現地調査は、下水道管渠が被害を受けた 4 地区 (A～D) において、復旧工事の掘削に合わせて実施した。

A 地区の調査地点周辺は A 地区の中でも最も大きな変状があったところで、マンホールが 1.4m 程度浮き上がり、路面舗装も下水管きよを埋設した側半分が 10cm～40cm 程度沈下した。沈下した路面には、噴砂によるものと思われる細かい砂が堆積していた。B 地区も被害の大きかった地区である。調査地点周辺が浮き上がり量が最も大きく、マンホールが約 1.6m 浮き上った。マンホール埋設位置が路肩脇のため、地表面の沈下は確認できなかった。マンホール付近では、噴砂が確認されている。C 地区は、道路の下の泥炭層は全て山砂に置き換えられており、下水管路は置き換えた山砂の中に設置されている。調査地点周辺では、マンホールが 1.0m 程度浮き上った。調査地点周辺の舗装面は起伏・傾斜していたが、沈下は確認できなかった。造成地と歩道の境目に噴砂によるものと思われる砂が堆積していた。D 地区のマンホールの浮き上り量は、最大でも 0.5m 程度であり、埋戻し部の沈下や舗装面の変状などは確認できなかった。また、管路の変状は、継ぎ手部で折れ曲がるような形で蛇行する程度であり、調査を行った 4 地区では最も軽微な被害であった。

4 地区に共通する特徴としては、地下水位が高い、埋設深度が比較的深い (4～5m 程度)、原地盤に泥炭層が分布することである。

2.2 調査方法

各地区において、埋戻し土を対象として、土研式貫入試験、攪乱試料採取などの現地調査を実施するとともに、採取した試料を室内土質試験を実施した。室内土質試験は、含水比試験、土粒子密度試験、粒度分布試験、締固め試験、液状化強度試験を実施した。

2.3 試験結果

採取した攪乱試料の粒度分布試験結果を図-1 に示す。A 地区の埋戻し土は、礫を多く含む良配合の材料である。その他の地点の埋戻し土にも所々礫が確認できたが、B 地区は細砂を主体とした、D 地区は粗砂～中砂を主体とした

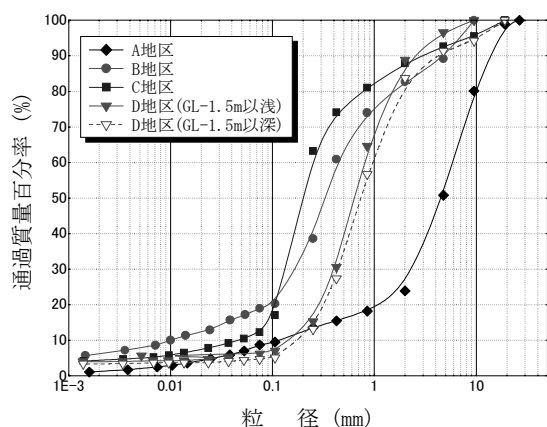


図-1 粒径加積曲線

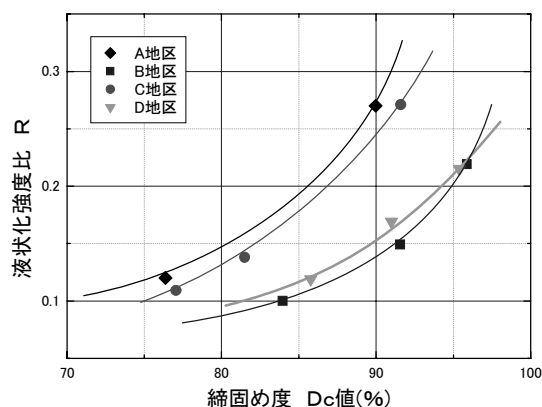


図-2 液状化強度比と締固め度の関係

比較的貧配合の材料である。B 地区は、砂を主体としているが、礫分及び細粒分もある程度含む材料である。

A 地区の埋戻し土は礫の影響が無視できないため、 $\phi 150\text{mm} \times \text{H}300\text{mm}$ の大型供試体により、液状化強度試験を行った。その他は、礫の影響が少ないと考えられるため、粒径 4.7mm 以下に調整し、 $\phi 50\text{mm} \times \text{H}100\text{mm}$ の供試体により非排水繰返し三軸試験を行った。供試体の締固め度は、取り除いた礫分の補正を行った値を目標とした。

液状化強度試験の結果を図-2 に示す。締固め度とともに液状化強度比が増加し、その傾向は2つに分類できる。より礫分を多く含む緩やかな粒径加積曲線の A、C 地区において液状化強度比が高く、貧配合の B、D 地区において液状化強度比が低い。

現地調査結果から推定した液状化強度比は、以下のとおりとなった。

マンホールの浮き上がり量が多い A 地区と B 地区では、液状化強度比は 0.15 程度と非常に液状化しやすい状態にあったと考えられる。

C 地区は、部分的に液状化強度比が 0.2 を上回る結果が得られた。マンホールは 1m 程度浮き上がったものの、路面の沈下が明確に見られなかったのは、比較的密度が高いために液状化後の体積圧縮が発生しにくかったためであると考えられる。

また、D 地区の埋戻し土は、貫入試験の結果から、地表面付近の約 2m が比較的強く、その下から管路までの約 2m は弱いことが分かっている。この地表面付近の液状化強度比が 0.15 程度であると推定される。その下の埋戻し土の液状化強度比はさらに小さいものと推測される。D 地区の被害程度が比較的小さかったのは、地表面付近の埋め戻し土が相対的に強かったことと、原地盤の N 値が他の地区よりも若干高かったためであると思われる。

埋戻し土の液状化強度比は、いずれの地区でも 0.15～0.20 の範囲に分布しているため、2003 年十勝沖地震により十分液状化することが確かめられた。しかし、被害程度と埋戻し土の液状化強度比の間に明確な関係は認められなかった。したがって、今回の現地調査の範囲では、埋戻し土の液状化強度比のみで被害の有無や被害の程度を説明・予測することは難しい。浮き上がり被害は、埋戻し土の液状化強度のほかに様々な要因が複雑に影響しあって発生しているものと考えられるため、埋戻し土の締固め度のほかに、埋戻し土の周辺地盤に着目して次節の遠心模型実験を行った。

3. 下水道管路の動的遠心模型実験

3.1 実験条件

高さ 300mm、幅 800mm、奥行き 200mm の土槽の中に、図-3 に示すような模型を作成した。実験条件は、表-2 に示すとおりである。

土槽底面に飽和及び排水のための碎石を敷き、その上に 7 号珪砂をよく締め固めた支持層を設けた。1 つの土槽の中に、埋戻し部を 3 箇所設け、締固め度を変化させた。周辺地盤に江戸崎砂と合成ゴムを用いた 2 種類のケースがある。江戸崎砂を用いた Case2～4 では、周辺地盤の締固め度をそれぞれ約 70%、約 80%、約 90% と変化させ、埋戻し部と同じく、湿潤状態で締め固めて作成した。合成ゴムを用いたケースでは、底面に飽和・排水用の切り欠きがある直方体の合成ゴムの塊を用意し、土槽底面に固定した。合成ゴムは、泥炭などと同程度の硬さの材料（弾性係数＝

約 1.2MPa) を使用した。下水道管路の模型は、直径 20mm のアクリル製の円筒に、管路の鉛直変位を計測するためのターゲットを取り付けるなどの加工を施したものである。また、土層前面のガラス面の内側には、画像処理のための多数の標点を埋め込み、加振時の周辺地盤のせん断ひずみ振幅を算出した。

模型地盤作成後、真空槽内において、水の粘性の 25 倍に調整したメトロース溶液により底面から時間をかけて飽和した。その後、真空槽から取り出し、地下水位が地表面となるよう水位調整を行った。25G の遠心加速度を作用させた後、加振した。入力波形は、図-4 に示すとおり、最大加速度約 10G (400gal 相当) 25Hz (1 Hz 相当) 20 波の波である。

3.2 実験結果

図-5 に対策工を除くケースの浮き上がり量を図示する。周辺地盤を江戸崎砂としたケースでは、Case4 の埋戻し土の締固め度 90%を除き、埋戻し土の密度が高いほど、浮き上がり量が少なくなる傾向にあることがわかる。埋戻し土の密度が高いほど、水圧が一旦上昇しても、正のダイレイタンスが生じ管路の浮き上がりに対して抵抗するためであると考えられる。また、今回の実験条件では周辺地盤の密度が変わっても、浮き上がり量に有意な差は見られなかった。

周辺地盤に合成ゴムを用いた Case8,9 では、埋設深度を浅くしたケースにおいて、浮き上がり量が非常に大きくなった。合成ゴムのように柔らかいものが周辺にある場合に大きな浮き上がり量となることを示している。一方、Case8,9 と同様合成ゴムを用いたが、埋設深度を深くした Case5 では、周辺地盤が江戸崎砂のケースとほぼ同じ比較的小さな浮き上がり量となった。周辺地盤を合成ゴムとした場合に管路の埋設深度によって浮き上がり方が異なるのは、管路と同じ深度の周辺原地盤の振幅が異なるためであると考えられる。合成ゴムの下端を土槽底面に剛結したため、埋設深が浅いほど原地盤の振幅が大きくなる。浮き上がり量と原地盤の振幅の関係を整理するために、Case2 ~6,8,9 の高速度カメラの画像を解析し、管路周辺地盤のせん断ひずみを求めた。その結果得られたものが図-6 である。管路周辺の原地盤の振幅が大きいほど、また、埋め戻し土の締固め度が低いほど浮き上がり量が大きくなる傾向にあることが明らかとなった。

管路の浮き上がる理由として、埋戻し土が液状化し管路に浮力が作用するためという説明が一般的であるが、これだけでは、原地盤の振幅が大きいほど浮き上がり量が大きくなる現象は説明できない。加振中の管路と現地盤の動きを観察すると、加振によって管路と原地盤の間隔が広がったり狭くなったりし、その度に管路は浮き上がっているこ

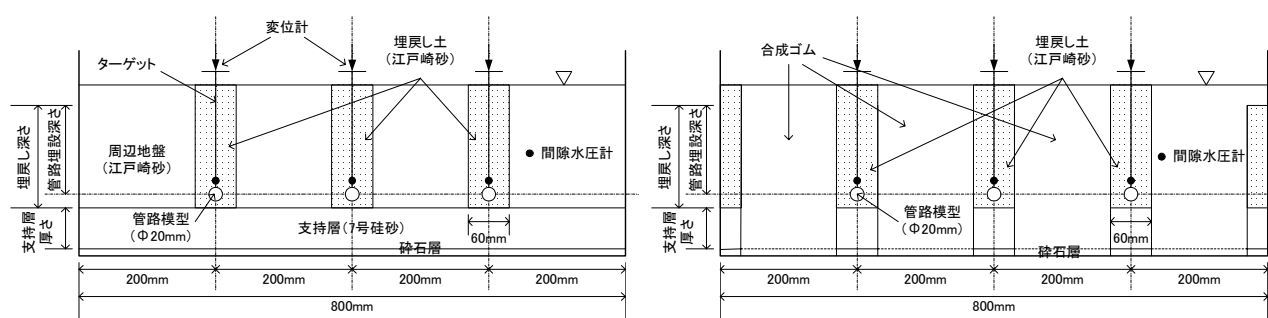


図-3 遠心模型

表-2 動的遠心模型実験条件と浮き上がり量

Case	埋め戻し土				支持層		周辺地盤		浮き上がり量(mm)		
	材料	締固め度	埋戻し深さ	管路埋設深さ	材料	厚さ	材料	締固め度	埋戻し土の締固め度		
		(%)	(mm)	(mm)					70%	80%	90%
2	江戸崎砂	70, 80, 90	180	160	7号珪砂	60	江戸崎砂	70	14.7	7.12	-2.6
3	江戸崎砂	70, 80, 90	180	160	7号珪砂	60	江戸崎砂	80	19.4	4.6	-1.5
4	江戸崎砂	70, 80, 90	180	160	7号珪砂	60	江戸崎砂	90	17	23	0
5	江戸崎砂	70, 80, 90	180	160	7号珪砂	60	合成ゴム		13.5	4.3	-1.8
6	セメント改良土	70, 80, 90	180	160	7号珪砂	60	合成ゴム		6.64	-3.1	-2.09
7	7号砕石	小, 中, 大	180	80	7号珪砂	180	合成ゴム		-5.81	-4.83	-4.39
8	江戸崎砂	70, 80, 90	180	80	7号珪砂	60	合成ゴム		29	22	4
9	江戸崎砂	70, 80, 90	180	80	7号珪砂	180	合成ゴム		33	25	15

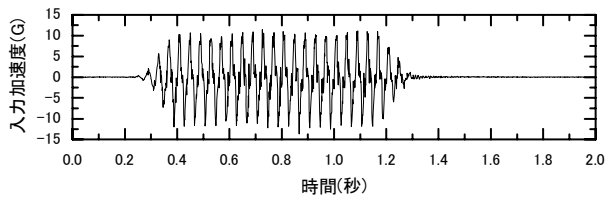


図-4 入力加速度（全ケース共通）

とがわかる。間隔が狭まる時に、管路と原地盤の間にある埋戻し土は、管路の上下どちらかに移動する必要があるが、管路には浮力が作用しているため、管路の下側に移動する埋戻し土の方が多いものと考えられる。地震動によりこのようなメカニズムで管路の脇の埋戻し土が繰返し管路の下側に回りこむために徐々に浮き上がっていくものと考えられる。このため、周辺の原地盤の振幅が大きいほど、埋戻し土の回り込み量も大きくなると考えられる。一般に、泥炭層や軟弱な粘土層でひずみ振幅が大きくなるため、このような層がある地域で被害が多く発生するものと考えられる。

また、Case6,7 により、セメント改良土及び碎石埋戻しの浮き上がり抑制効果を確認した。セメント改良土については、埋め戻す際にある程度締め固めることで大きな効果が発揮されることが分かった。また、碎石については、液状化の可能性がない粒度分布の材料でなくても（多少の細粒分や砂分を含んでいても）ある程度の対策効果が期待できると思われるが、このような材料の評価・選別を如何に行うかという課題が残る。

4. まとめ

地震により下水道管路が被害を受けた地区の現地調査及び室内土質試験より、調査した被災箇所の埋戻し土は液状化強度比が0.2を下回っており、液状化しやすい状態であったことが明らかとなった。しかし、被害程度と埋戻し土の液状化強度比の間に明確な関係は認められなかったため、今回の現地調査の範囲では、埋戻し土の液状化強度比のみで被害発生の有無や被害程度を予測することは難しい。

また、動的遠心模型実験を行い、以下の結論を得た。埋戻し土の密度が低いほど、周辺原地盤が大きく振動するほど管路の浮き上がり量は増加することを明らかにした。また、そのメカニズムについて考察を加えた。

さらに、碎石及びセメント改良土による埋戻しの対策効果を確認した。

謝辞： 現地調査は北海道庁及び関係市町等の支援により行うことができたものである。ここに感謝の意を表す。

参考文献：

- 1) 行方、田村、石原：十勝沖地震による下水道施設の被害状況、第41回下水道研究発表会、2004年
- 2) 安田、規矩、田中、石川：2003年十勝沖地震による音別町の下水道被害、第59回土木学会年次学術講演会第Ⅲ部門、2004年
- 3) 規矩、安田、田中、伊藤：2003年十勝沖地震における豊頃町の下水道被害、第59回土木学会年次学術講演会第Ⅲ部門、2004年

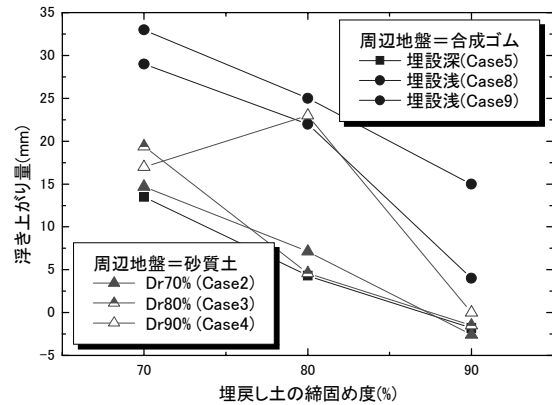


図-5 Case2～5,8,9の浮き上がり量の比較

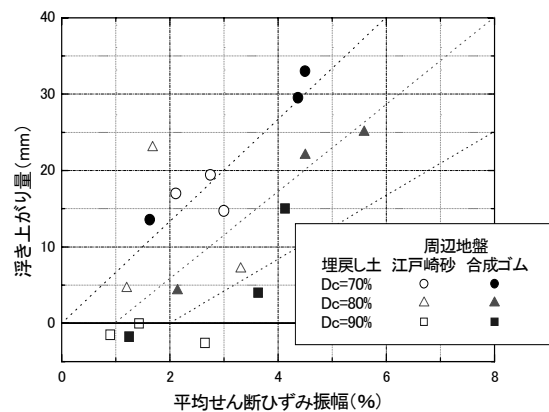


図-6 浮き上がり量と周辺地盤のせん断ひずみ振幅の関係

II. その他の予算による研究

[下水道研究室]

1. 発展途上国に適した低コスト型新下水道システムの開発に関する研究

下水道研究室 室 長 藤生 和也
主任研究官 管谷 悌治
主任研究官 那須 基
下水処理研究室 室 長 南山 瑞彦
研 究 官 平出 亮輔
研 究 員 桜井 健介

1. はじめに

発展途上国においては、著しい都市化の進展により衛生環境が悪化し、水環境の改善と水資源の確保が、従前にも増して重要となってきている。都市周辺市街地では、都市中心部よりも、排水を処理することへの理解が乏しく、住民は水系伝染病の蔓延や水資源の不足により、劣悪な衛生環境におかれている。これらの課題を解決するには、都市中心市街地に加えて周辺住宅地においても、都市内河川や湖沼等の水質改善を優先して、標準的な下水道整備ではなく、水路、腐敗槽等の既存施設や土壌、植生等を水質向上手法として組み入れた低コスト下水道システムを構築する必要がある。

そこで、本研究では下水道の整備が比較的遅れており、早急な対応が必要と思われるこれら都市周辺の市街地を対象として、住民参加、効率的な下水道管理等のソフト面も考慮しつつ、既存施設の下水収集・処理機能を評価し、土地、気候、安価な労力等開発途上国の特長が活用できる低コスト型の新下水道システムを開発する。

2. 発展途上国における低コスト型下水道システムの課題の整理

インターセプター下水道(図-2)は、既存の排水施設を継続使用できることから、下水道整備を進めるに当たって最大の支障となる管渠敷設に係る費用を大幅に節減でき、また遮集管のみの整備により、放流先への流入負荷を確実に低減し、水質改善効果の早期発現を図ることが可能であると考えられている。また、ラグーン法は、標準的な下水処理場に比べ広い処理面積が必要であるが、維持管理費がより少なく済むため、今後汚水処理施設整備が求められる発展途上国の郊外部に適した処理方式であると考えられている。しかし、下水道に関する JICA 開発援助専門家経験者にヒアリングを行った結果、次のような課題が指摘された。

・タイにおけるラグーンの処理場の区域は、インターセプター方式を採用しており、腐敗槽、管渠内での浄化(沈殿を含む)、地下水浸透等により、処理場への流入水濃度が処理水質とほとんど変わらない。腐敗槽の浄化、管渠内の浄化の定量的な評価、ラグーン処理の効率化の検討が必要である。

・バンコクでは、通常水路の底泥は汚く、雨天時には堆積物の巻き上げ等により大幅に悪化する。既設水路、下水側溝にゴミ、砂がたまり、定期的に浚渫が必要であり、極力浚渫しなくてよい卵形管などの水路構造が望ましい。

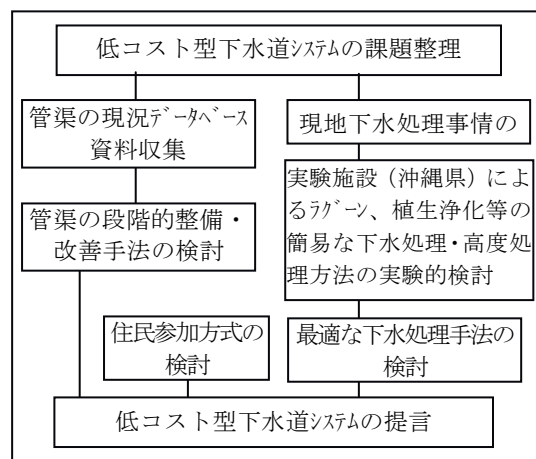


図-1 研究のフロー

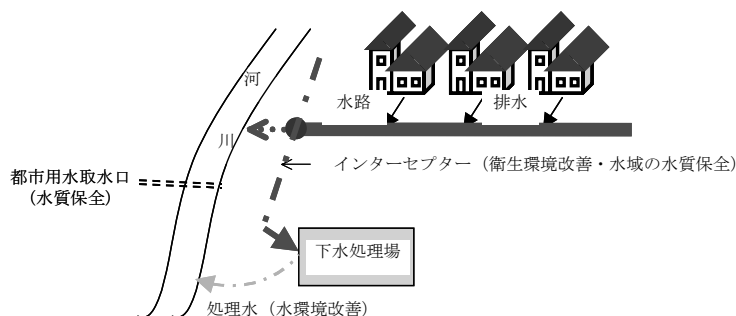


図-2 インターセプター下水道の概念

そこでインターセプター下水道の現状等を調査し、課題の整理を行うと共に解決策について検討を行った。

3. 現地下水処理事情の調査

インターセプター下水道において流入下水の水質が低くなるメカニズムを解明し、ラグーン処理施設において、処理水質が悪化するメカニズムを解明するため、平成 14 年 11 月に、タイ及びインドネシアを対象に、インターセプター下水道及びラグーン処理施設の現地調査を実施した。インターセプター下水道について、現地調査の結果、管内での堆積や浄化の状況については確認できなかったが、雨季では河川水がインターセプターに逆流しており、新たな河川水質汚染が懸念された。また、ラグーン処理水質悪化の原因として、藻類の流出が原因の一つであることが現地調査からも示唆された。

4. 管渠の現況データベース資料収集

4.1 目的・方法

インターセプター下水道の整備・維持管理状況を明らかにし、問題点を把握するために、インターセプター下水道が採用されているタイ王国東北部のコンケン市において、平成 16 年 3 月に下水道管理者へのヒアリング調査及び資料収集を実施した。

4.2 結果

(1) コンケン市のインターセプター下水道の概要

コンケン市は人口約 13 万人、4 万 4 千世帯（2001 年時点）の都市である。多くの家庭は腐敗槽と土壌浸透枡で汚水処理を行っており、市の中心部では既に整備された標準的な下水道に接続している箇所もある。市内から発生する汚水及び雨水の大半は、コンクリートパイプやコンクリート側溝、陶製 U 字溝などの排水路を經由して、Khlong Rong Muang 川の両岸に整備されたインターセプター（全長 11,826m）に流入し、Bung Thung Sang 処理場（曝気式ラグーン方式）で処理される（図-3）。インターセプターには雨水吐が 50 箇所あり、雨天時には越流水が Khlong Rong Muang 川に流出する。処理場は、流入水量 7.8 万 m³/d、流入水 BOD160mg/l、処理水 BOD20mg/l、曝気式ラグーン滞留時間 2.6d、安定化池滞留時間 1.5d で設計されているが、実際には晴天時流入水量 4.5～5.5 万 m³/d、流入水 BOD30～40mg/l、処理水 BOD10mg/l 程度である。

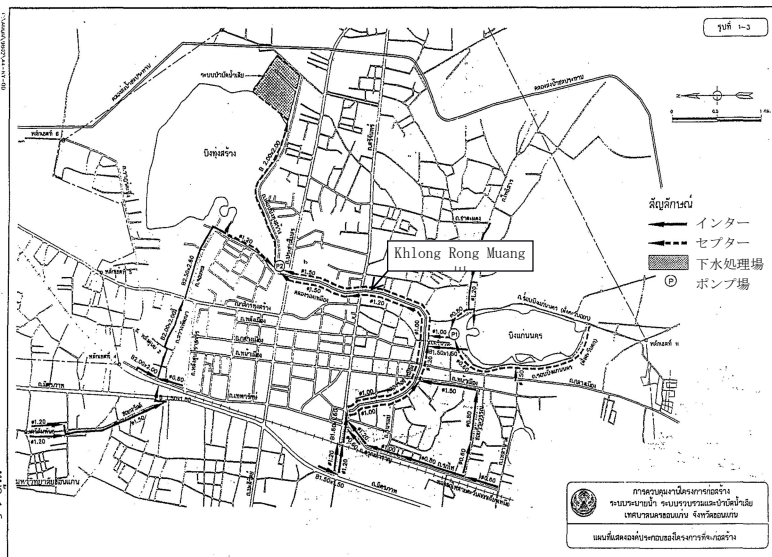


図-3 コンケン市のインターセプター管渠の位置図

(2) コンケン市のインターセプター下水道の問題点

①家庭の腐敗槽・土壌浸透枡

- ・多くの家庭は下水道に未接続で腐敗槽・土壌浸透枡を用いているが、その維持管理について市に権限が無い。
- ・腐敗槽は、定期的に汚泥の引き抜きを行っていないため、高濃度の汚水が排水路に流れ込む原因となっている。
- ・土壌浸透枡が十分に機能していないため、住民による腐敗槽から道路側溝への違法な接続が後を絶たず、雨期に頻発する浸水時には、深刻な問題を引き起こしている。
- ・腐敗槽から汲み取った汚泥の投棄場所は、特に定められておらず、十分な管理がされていない。

②管渠

- ・家庭への下水道の接続が進んでいない。
- ・市の中心エリアはその周辺部よりも低地になっているため、雨天時には周辺部からの雨水が市の中心部に集まり、インターセプターの排水能力を超過する。

- ・インターセプター内の堆積により流下能力の低下が懸念されるが、管渠の維持管理方法に関するガイドラインがなく、維持管理を行う人的・財政的余裕もないため、適切な維持管理が行われていない。

③下水処理場

- ・安定化池からの処理水は、緑色を呈している。処理水放流口付近は、嫌気状態となっている。
- ・計画処理能力は、下水道接続が進んだ状態を想定しているが、現時点では BOD の流入負荷量は計画の 2 割弱に過ぎず、施設能力が過大になっている。したがって、流入負荷量に応じ適切な維持管理方法を検討する必要がある。

5. 管渠の段階的整備・改善手法の検討

インターセプター下水道は、既存の排水路を利用することから、管渠の整備費用を大幅に抑制する効果がある。その反面、標準下水道には見られないインターセプター下水道特有の問題点も抱えている。

従って、インターセプター下水道の整備を基本としつつ、その問題点の解消も踏まえた、段階的整備・改善手法について整理した。

5.1 土砂・ゴミ等の堆積防止

インターセプター下水道は雨天時等における土砂の流入や、開渠部におけるゴミの混入など流下能力を阻害する要因が多い。そこで土砂堆積については、管渠を卵形とする方法やインバートを設けることが考えられる。また、ゴミ等の混入については、開渠区間の暗渠化やスクリーンの設置などが考えられる。

5.2 啓蒙活動

現状では、住民の下水道システムに関する理解は十分ではなく、また、施工業者についても技術的に未熟な業者が多く見られる。そこで、住民の環境意識を高め、下水道システムへの理解と協力を得るため、住民への講習会（環境や下水道に関する）の開催、パンフレットの配布、ポスター、看板等の設置などを行うことが考えられる。また、業者に対する啓蒙活動として、下水道管理者による技能講習会を実施し、その受講を義務付けることなどが考えられる。

5.3 工場排水規制に係る法整備

発展途上国では、直接、生産に結びつかない施設への投資余力が小さいことから、有害物質を多く含む工場排水を前処理しないままに下水道に受け入れる場合が多く、管渠を傷つける大きな要因となっている。そのため、工場排水を規制する法制度を確立することが必要である。

6. 屋外実験施設を使用したラグーン処理機能の改善に関する検討

6.1 目的

当検討では、事前に行った開発援助専門家へのヒアリングにより、下水処理場に流入してくる生下水が計画に比べかなり低い場合があることや、ラグーン処理水の BOD 上昇の原因が槽内で繁殖した藻類の流出であること等の現地に即した情報を得、以下の 2 検討項目を抽出し、屋外実験施設を用いた実験により、検討を行うことが目的である。実験は、日本唯一の亜熱帯地域である沖縄県において、同県との共同研究で行った。

- 1) 低負荷流入水におけるラグーンの適正維持管理に関する検討
- 2) ラグーン後段に植生帯を設置した高度処理実験に関する検討

6.2 実験方法

実験では、沖縄県具志川浄化センター内のラグーン処理実験施設を使用した。実験施設の概略図を、図-4 に示す。実験施設は、大きく分けて流入下水混合槽・ラグーン処理施設・植生帯流入タンク・植生帯の 4 施設からなる。流れとしては、流入下水混合槽からでた流入下水が、ラグーン処理施設で処理され、その処理水が植生帯に流入する。

(1) 低負荷流入水におけるラグーンの適正維持管理に関する検討

熱帯・亜熱帯地域の発展途上国の処理場の中には、下水管路内において下水に沈降・浄化作用が加わり、常時、計画値に比べかなり低負荷の流入水が処理場に流入している現状がある。このため当実験においては、浄化センター本施設の 1 次処理水を処理水で希釈して、ラグーンに流入させ、処理状態を確認することで、低負荷条件での適切な維持管理に関する検討を行った。

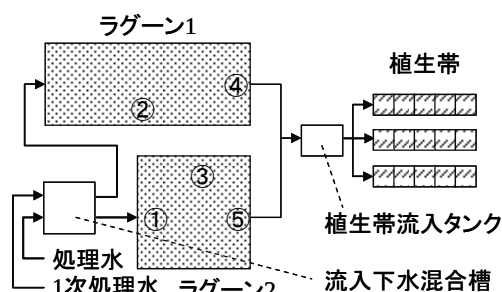


図-4 ラグーン施設の概略図

実験施設としては、図-4の流入下水混合槽とラグーン1・2である。流入下水混合槽では、浄化センター本施設より生下水と処理水を引き入れ、目標BODの混合流入水を作成し、ラグーンに流入させた。混合槽の容量は3 m³で、ラグーンへの流入水量は最大50 m³/dまで上げられる。次にラグーン処理施設は、2つのラグーン（通性嫌気性安定化池）で構成した。ラグーン2池は共に、容量100 m³、水深2 mであるが、池の形状が異なっている。ラグーン1は、14×5.5 mの長方形の形状であり、ラグーン2は8.6×8.6 mの正方形とした。実験では、流入水の設定をBOD 50, 100, 200 mg/L、HRT 30, 20, 10, 5, 2 dに変更し、処理状態を確認しながら、適正な維持管理について検討を行った（BOD 200 mg/L、HRT 2 dの設定は、負荷が高すぎ、その後の実験に影響があるため、設定しなかった）。実験中は、週1回の水質測定およびサンプリングを行い、図-4の図中の番号のポイントでサンプリングを行った。各名称を順番に①流入水、②ラグーン1槽内、③ラグーン2槽内、④ラグーン1処理水、⑤ラグーン2処理水とした。測定項目は、水温・pH・DO・ORP・SS・BOD・COD・大腸菌群数・クロロフィルaの測定を行った。

(2) ラグーン後段に植生帯を設置した高度処理実験に関する検討

ラグーンにおいて、ある程度の処理水質が維持できることは確認されている。しかし、処理水中に藻類が含まれているため、処理水と流入水がほぼ変わらないBODの値を示し、藻類の流出が問題となっている。また、ラグーンは、大腸菌のような病原性微生物の除去を考慮したものではないため、その処理が十分ではない。このため、ラグーン後段に植生帯を設置し、処理水のさらなる高度化についての検討を行った。

実験施設としては、図-4の植生帯流入タンクと植生帯である。植生帯流入タンクは、植生帯への流入水（ラグーン処理水）の流量調節・分配を行うものである。容量は0.5 m³であり、ラグーン処理水を3つに分配できる構造とした。植生帯は、外寸1,337×864×793 mmの容器（0.5 m³）に、赤土を水深20cmになるように敷き詰め、現地で自生しているヨシを植付けた。その容器を縦に5つ並べたものを1系列として、合計3系列の植生帯を作製した。うち1系列は、ヨシを植付けないブランク系列とし、簡易の土壤浄化法として処理状態を確認するものとした。サンプリングポイントは、植生帯流入水を流入タンクで採取し、あとは各系列ごとに中間点で槽内の水を、最終槽の末端で処理水を採取した。実験は、各系列に同時期・同処理水を流入させ、ブランクと植生帯槽の対照実験を行うこととした。

6.3 実験結果

(1) 低負荷流入水におけるラグーンの適正維持管理に関する検討

各設定条件の処理状態として、図-5にT-BOD・D-BOD・DO・ORP・クロロフィルa・大腸菌群数の設定HRTごとの平均値を示す。T-BODの図より、流入BOD 200 mg/LのHRT 5 dの処理水で高い値を示しているものの、その

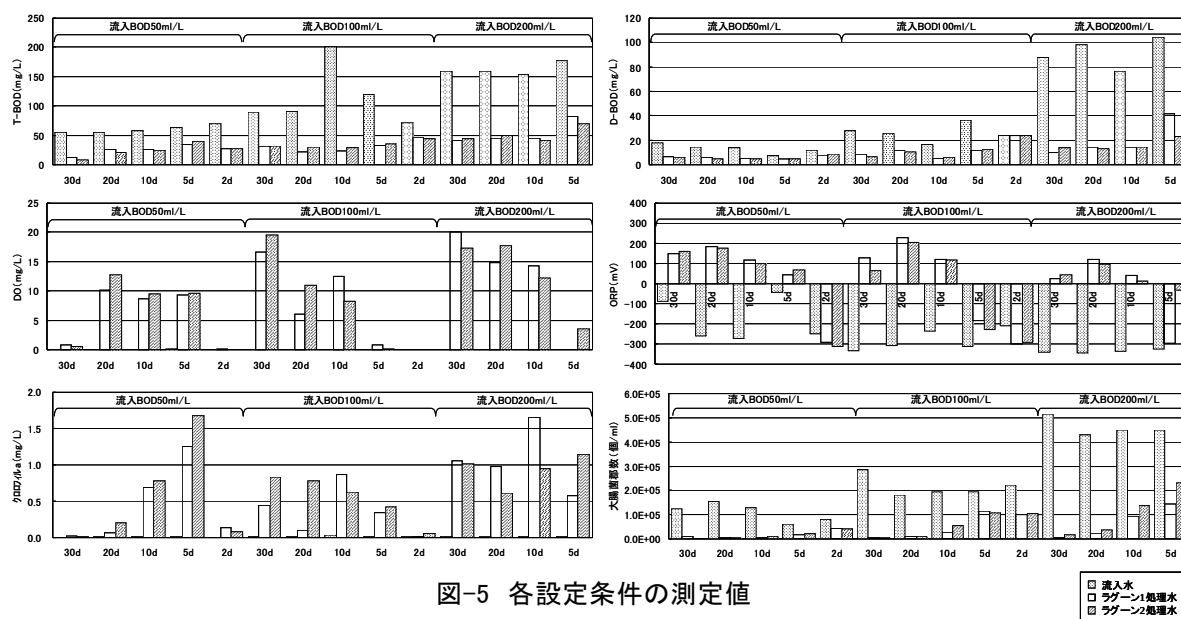


図-5 各設定条件の測定値

他の条件に関しては処理水の水質にさほど大差はなかった。しかし、全体的な傾向として、BOD 負荷が高い設定条件の方が、処理水のT-BODも比較的高い値を示していた。次にラグーン槽内の状態としてDO・ORPを

見ると、流入 BOD 50 mg/L の HRT 2 d、流入 BOD 100 mg/L の HRT 5, 2 d、流入 BOD 200 mg/L の HRT 5 d の処理水の DO がなく、ORP もマイナス値で嫌氣的な状態であることを示している。クロフィル a の値は、流入 BOD 50 mg/L の HRT 2 d と流入 BOD 100 mg/L の HRT 2 d でほとんど検出されていない（ここで、流入 BOD 50 mg/L の HRT 30 d の DO・クロフィル a 値が低いのは、実験初期段階に水温が低く、流入負荷の設定も低く、藻類の繁殖が良好に行えていなかったためである）。この結果から次の 2 つのことが考えられる。1 つは、藻類の繁殖がありクロフィル a もあるが、藻類からの酸素の供給より槽内で消費される酸素の方が多いため、槽内の DO が低い値を示した。2 つ目は、藻類を槽内に維持することができなくなったため、DO やクロフィル a の値が低い値を示した。1 つ目の原因としては、流入負荷が高過ぎるため、好氣的に処理する物質の供給が増加し、槽内の藻類が光合成により生成する酸素量より、好気処理に使用される酸素量の方が多くなったため、槽内の DO が維持できなくなった。もしくは、HRT が短いため、光合成で生成された酸素が、処理水と一緒に槽外に排出され、DO が維持できなくなってしまったとも考えられる。2 つ目の原因としては、流入負荷が増えることで、アンモニア性窒素などの藻類繁殖に悪影響を与える毒性物質の濃度が高まり、槽内で藻類の繁殖が進まなくなったため、もしくは、短い HRT のため、藻類の繁殖速度より処理水と一緒に槽外へ排出される藻類の速度の方が速まり、槽内に藻類が維持できなくなったとも考えられる。今回の調査では、詳細な理由は不明だが、単一もしくは複数の原因により、発生したと考えられる。次に D-BOD を確認すると、流入 BOD 50 mg/L では HRT 2 d が、流入 BOD 100 mg/L では HRT 2 d が、流入 BOD 200 mg/L では HRT 5 d が高い値を示している。藻類を含まない溶解性のみの値であるため、流入水と処理水の値がほぼ同程度であるということは、流入水の処理が完全に行われないまま処理水として流れ出ていると考えられ、T-BOD に関しても、処理水中に藻類と未処理の下水が混在していると考えられる。このように、T-BOD のようなトータルサンプルのみの確認では、その値が未処理の下水由来なのか、それとも処理中に発生した藻類の影響なのか、確認することは不可能である。そのため、その他の因子に関しても合わせて確認することが必要である。ラグーン処理では、反応槽内に溜めた下水に藻類が十分に繁殖し、その藻類から発生される酸素を使い、下水中の汚濁物質を好気処理することが基本であるため、藻類濃度を示すクロフィル a や槽内酸素濃度の DO 値が重要であり、その他、処理水中の藻類を含まない溶解性のみの汚濁負荷の指標である D-BOD が重要な指標となる。今回の実験により、汚濁物の処理を考えた場合、ラグーンがシステムとして機能している設定条件は、流入 BOD 50 mg/L の場合 HRT 5 d 以上、流入 BOD 100 mg/L の場合 HRT 10 d 以上、流入 BOD 200 mg/L の場合 HRT 10 d 以上が必要である。

測定期間中の大腸菌群数の値は、各流入 BOD 設定値で HRT が短くなるごとに値が大きくなっていく傾向にあった。流入 BOD 50 mg/L であれば HRT 5 d から、流入 BOD 100 mg/L であれば HRT 10 d から、流入 BOD 200 mg/L であれば HRT 20 d から値が増加した。今回の実験では、処理が良好に行えている場合、大腸菌群数は 1.0×10^4 個/ml 程度に抑えることが可能であった。

(2) ラグーン後段に植生帯を設置した高度処理実験に関する検討

図-6 に、各 HRT ごとの処理水が安定した期間のみの T-BOD、クロフィル a の平均値を示す。HRT がblankで 5d、植生帯 1 で 5d、植生帯 2 で 5d（以下、「HRT blank, 植生帯 1, 植生帯 2 d」と表示する。）以上の設定条件では、植生帯処理水は流入水に比べ T-BOD、クロフィル a とともに低く、植生帯の遮光、沈殿効果が見られた。しかし、HRT 2, 1, 2d 設定時には、T-BOD、クロフィル a とともに、HRT 2d の植生帯 2 で若干上昇、HRT がその半分の設定の植生帯 1 では

さらに高い値を示し、特に T-BOD に関しては流入水に近い値であった。さらに、それ以降に行った短い HRT 条件では、両項目ともに比較的高い値を示し、T-BOD では流入水に比べ処理水が若干低い値であったが、クロフィル a は

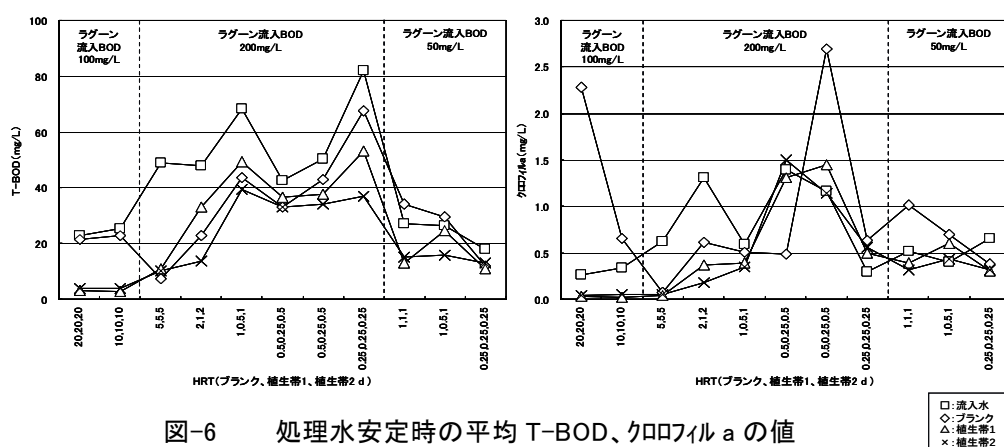


図-6 処理水安定時の平均 T-BOD、クロフィル a の値

流入水と処理水がほぼ同程度であった。この理由としては、HRT を短く設定することで、池への送水量が多くなったことにより、植生帯の遮光や沈降作用により藻類濃度の低下の効果が現れる前に、池内の水が押し流されてしまうため、流入水と処理水がほぼ同様の値になったと考えられる。T-BOD とクロフィル a の差に関しては、様々な含有物を含む T-BOD に比べクロフィル a 値に影響する藻類の方が高い浮遊性を持っているため、T-BOD のうち比較的比重が重いものが先に沈降し、軽い藻類はほぼすべてが水に押し流され、濃度に差が生じたと考えられる。このため、植生帯の適切な HRT は、押し出し流れの影響を若干受けているものの、クロフィル a 値が比較的低い値であり、かつ T-BOD の影響も低い、HRT2d が藻類流出を抑制するための限界ラインであると考えられる。

7. 最適な下水処理手法の検討

財政的な余裕に乏しい発展途上国においては、建設費及び維持管理費が安価となり、かつ運転、維持管理が容易である処理方法を選定する事が重要である。具体的には、①電力事情、②技術的な成熟度、③気候条件への配慮、④低濃度流入水質への対応性、⑤維持管理性を勘案して処理方式を選定する必要がある。

これまで発展途上国では、主として、標準活性汚泥法、安定化池法、オキシデーションディッチ法、エアレーティッドラグーン法が採用されてきた。

上述の条件を勘案すると、安定化池法は、嫌気性池＋通性池＋熟成池から構成される処理方式であり、他の処理方式に比べて必要用地が大きい反面、池構造は簡素で、かつ機械的な装置を全く必要としない利点があることから、用地的な制約がない場合は、発展途上国に最も適する処理方式であると考えられる。

8. 住民参加方式の検討

住民の下水道システムに関する理解が十分ではないことから、住民参加方式の検討を行うにあたり、タイにおける住民参加の状況について調査を行った。

その結果、タイにおいては、下水道事業に関する住民参加はほとんど行われておらず、地域社会は下水道の必要性、メリット・デメリットに無関心である。このことにより、下水処理場の建設が始まり、維持管理費の回収を考える用になった時点で問題が発生しているようである。また、地域社会は、下水処理よりも洪水防止の利益が優先される傾向にある。

しかしながら、Dankhantod 市の事例では、住民が計画の実施、ゴミ拾い、水路の保全を行っており、結果的に、水路の汚濁、美観の改善につながった。また、このことにより低コストの植生浄化システムを可能とした。このことから、住民参加の必要性を裏付ける一つの事例であると考えられる。

9. まとめ

今回の調査では、タイ及びインドネシアにおける現地調査や、沖縄におけるラグーン（安定化池）の実験結果等を踏まえて低コスト型下水道システムの開発に関する検討を行ってきた。その結果、これまでにわかったいくつかの課題を解決しなければならないことを前提に、急激に悪化している発展途上国の環境改善に対して、即効性があり、低コストで簡便な方策として、下記項目を提言としてまとめた。

(1) インターセプターによる下水道整備の推進

①管渠内への汚泥の堆積防止、②住民や施工業者への啓蒙活動、③工場排水の流入を防止する法制度の整備、④河川水の逆流を防ぐ技術の開発

(2) 低コストで維持管理の容易な処理方式の採用

①ラグーン（安定化池）方式の採用、②池構造の簡素化、③インターセプター管内での汚水浄化の適切な評価

今後は、現地調査によるさらなる情報収集行い、知見の集積に努める必要があると共に、各種の調査研究において低コスト型下水道システムを構築するために有望であると判断される新たな手法等については、実験施設を設けるなどして現地での採用を積極的に進め、その適用性を見極めることも必要である。

謝辞:

本研究の一部は、沖縄県と国土技術政策総合研究所の共同研究「ラグーンおよび後段処理システムに関する研究」（平成 13～16 年度）として実施されている。協力をいただいた沖縄県の関係各位に御礼申し上げる次第である。

なお、本調査研究は、政府開発援助研究費により実施されたものである。

2. 水循環・物質循環変動による影響評価技術の開発に関する調査

下水道研究室 室 長 藤生 和也
主任研究官 管谷 悌治
主任研究官 那須 基
交流研究員 山田 和弘

1. はじめに

これからの我が国の国土づくりを進めていく上で、流域圏・都市を自然と共生したものとすることは重要な視点であり、とりわけ都市における健全な水循環を構築する取り組みが求められている。中でも、健全な水循環に重大な影響を与える合流式下水道の雨天時越流水については、お台場海浜公園（東京都港区）における白色固形物漂着の報道等を契機に対策推進の気運が高まり、平成 13 年 6 月には「合流式下水道改善対策検討委員会」が立ち上がり、平成 14 年 3 月には「合流式下水道の改善対策に関する調査報告書」として最終報告がとりまとめられたところである。

この中で、越流水の影響について放流先水域も含めて評価すべきとされ、当面の目標として「公衆衛生上の安全確保」が新たに加えられたが、どの吐き口において消毒を実施すべきか、越流回数をどの程度まで制御すべきか、といった点については、合流式下水道越流水と放流先水域の水質の関係について検討された事例や調査データがほとんどなく、具体的な議論が十分ではないのが現状である。

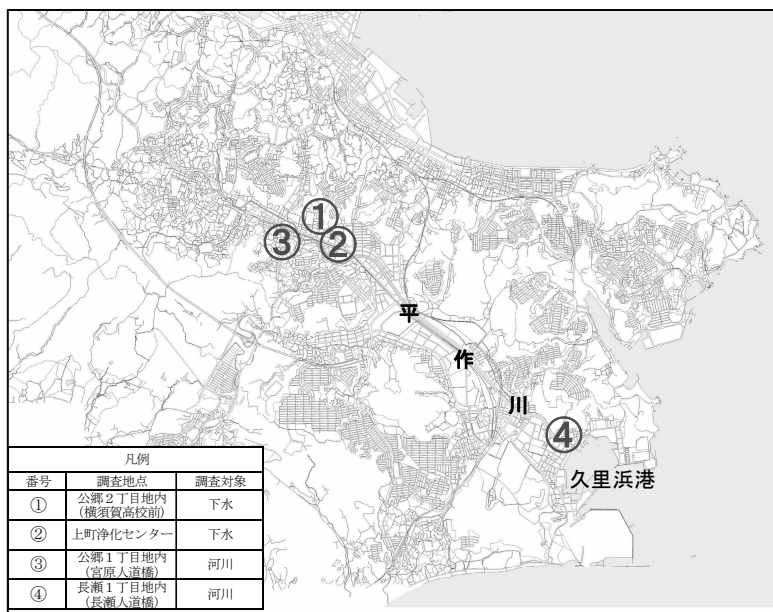
このような背景から、本調査では、放流先を含めた流域圏と都市を対象として、合流式下水道越流水の与える影響を評価するための手法を検討し、効率的な合流式下水道の改善の推進に資することを目的とし、本年度は、放流先の海域を含めたモデル流域において最も重要な負荷排出源となる合流式下水道排水区の放流先である河川における実態調査を実施するとともに、陸域から海域までの流出解析モデルについて検討した。

2. 実態調査

2. 1 調査方法

対象河川における汚濁負荷量流出解析モデルの構築および妥当性の検証に資することを目的に、先の下水道流域における調査と合わせて対象河川における雨天時水質および水量の把握を行った。採水調査は地点ごとに晴天時 2 回、雨天時 2 回実施した。雨天時に各調査地点における水質の変化をとらえるため、対象河川 2 箇所（③、④）、下水道管渠 1 箇所（①）、浄化センター 1 箇所（②）で採水を行った。

水質分析項目は BOD、COD、SS、窒素（T-TN）、リン（T-TP）、大腸菌群数、ふん便性大腸菌群数の 7 項目である。図－1 に調査流域及び調査地点を示す。



図－1 調査地点

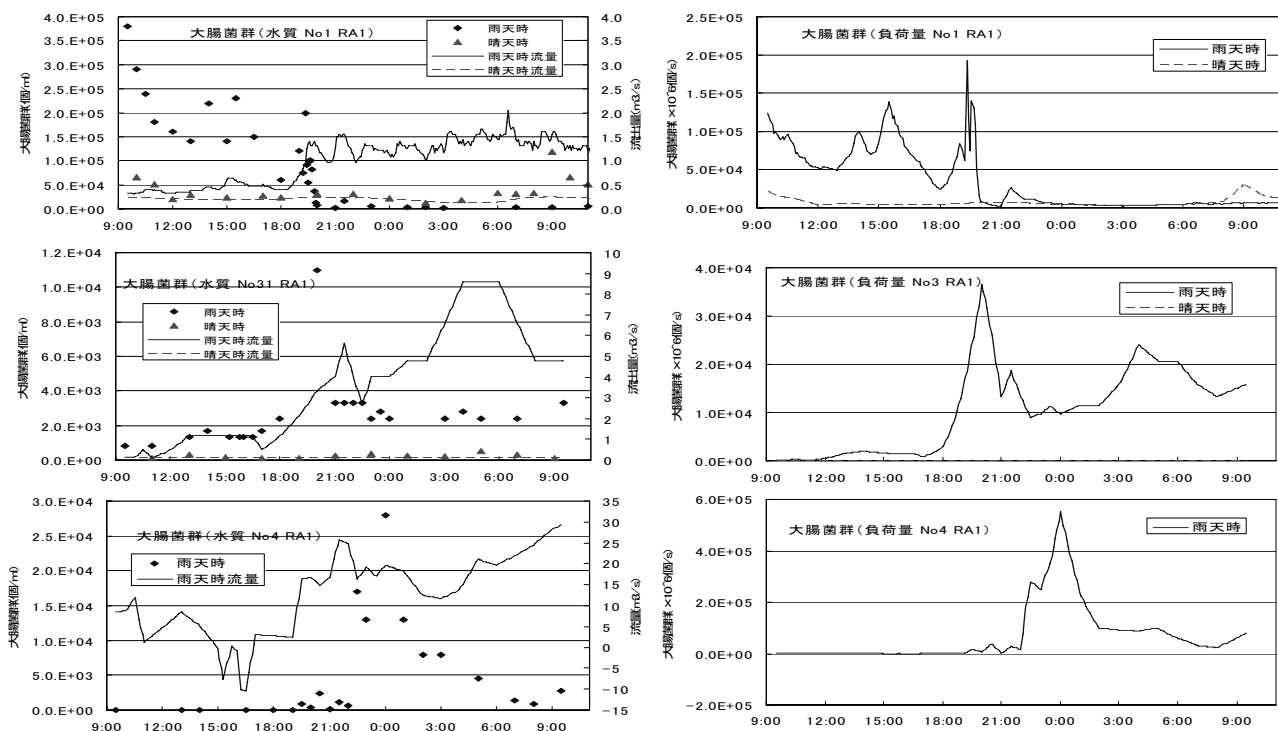
2. 2 汚濁負荷流出特性

1) 水質及び汚濁負荷量

図－2に降雨1（1回目の降雨）において観測した水質の一例（大腸菌群数）を示す。

下水管のNo.1地点で見た場合、ファーストフラッシュが認められ、No.1地点と近い河川No.3地点でもほぼ同時刻における負荷量の増加が認められる。

一方、感潮域で下流となるNo4地点では、負荷量のピークが、No3地点よりも2時間近く遅れており、ピークがシャープでないことがわかる。これはNo3地点より下流のほとんどが分流地区で、合流下水の影響が薄まっているためと考えられる。

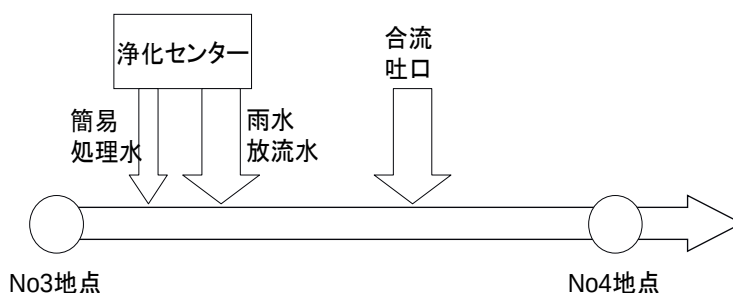


図－2 降雨1における観測水質（大腸菌群）

2) 平作川における負荷量収支

平作川へ放流される合流地区から流出する負荷量を、図－3に示すように仮定し、その負荷量の収支を検討した。なお、対象時間は上流（③）と下流（④）で2時間程の差があることから、この時間差を考慮することとした。

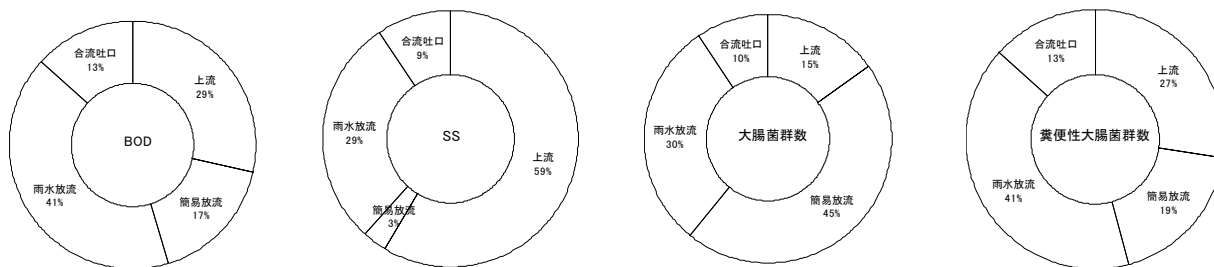
図－4、5に合流域から流出した汚濁負荷の内訳を示す。



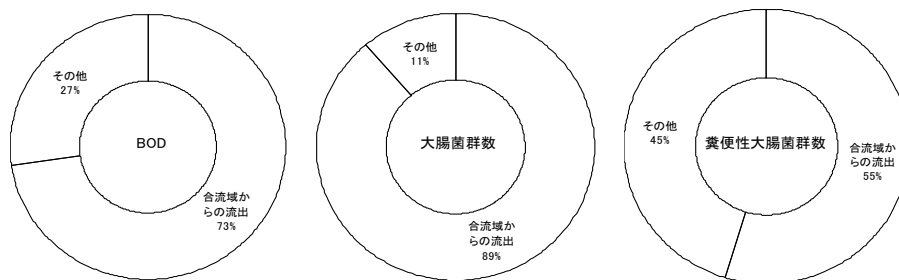
図－3 平作川への流出負荷量

浄化センターにおける「雨水放流量」の影響が最も大きく、「上流河川水」、「合流吐口」、「簡易処理水」の順となったが、SSは、「上流河川水」の影響が最も大きく表れている。

また、「合流域から流出した汚濁負荷が河川下流の汚濁負荷に占める割合」をみると（図－5）、河川下流No4地点の負荷量のうち、6～8割が合流域からの流出分であるといえる（※「合流域から流出した負荷量＞河川下流負荷量」となるため、SSは除外）。



図－4 合流域からの流出負荷内訳（降雨 1）



図－5 合流域からの流出が下流へ与える影響（降雨 1）

なお、図－5で「その他」とは、合流域以外からの負荷供給源である「分流域雨水からの汚濁負荷」と「高級処理水の汚濁負荷」を示す。

3. 分布型汚濁負荷量解析モデルの構築

3. 1 土研モデル（集中型）への適用

過年度の調査結果²⁾³⁾⁴⁾により大腸菌群数の「負荷量収支」および「流量相関とモデルの式形」の検討より、以下のことがいえる。

- ・ 大腸菌群の負荷収支バランスは、SSの負荷収支と類似しており、路面等から受ける供給負荷量は小さくないと考えられる。
- ・ 大腸菌群の流出負荷量は流量の2乗程度に比例すると判断できる（式1）。

$$L_{\text{Coli}} \propto Q^2 \dots\dots\dots \text{式－1}$$

これらのことから、大腸菌群数については、既存の土研モデル¹⁾を適用することが可能と考えられる。

ここでは、大腸菌群数について土研モデルが適用できるものとし、シミュレーションを行った。

また、糞便性大腸菌群数については、データが不十分なため、「負荷量収支」および「流量相関とモデルの式形」で、明確な関係が得られていないが、大腸菌群数と同様に土研モデルの適用が可能なものと仮定し、既存の土研モデル（集中型）でのシミュレーションを行った。

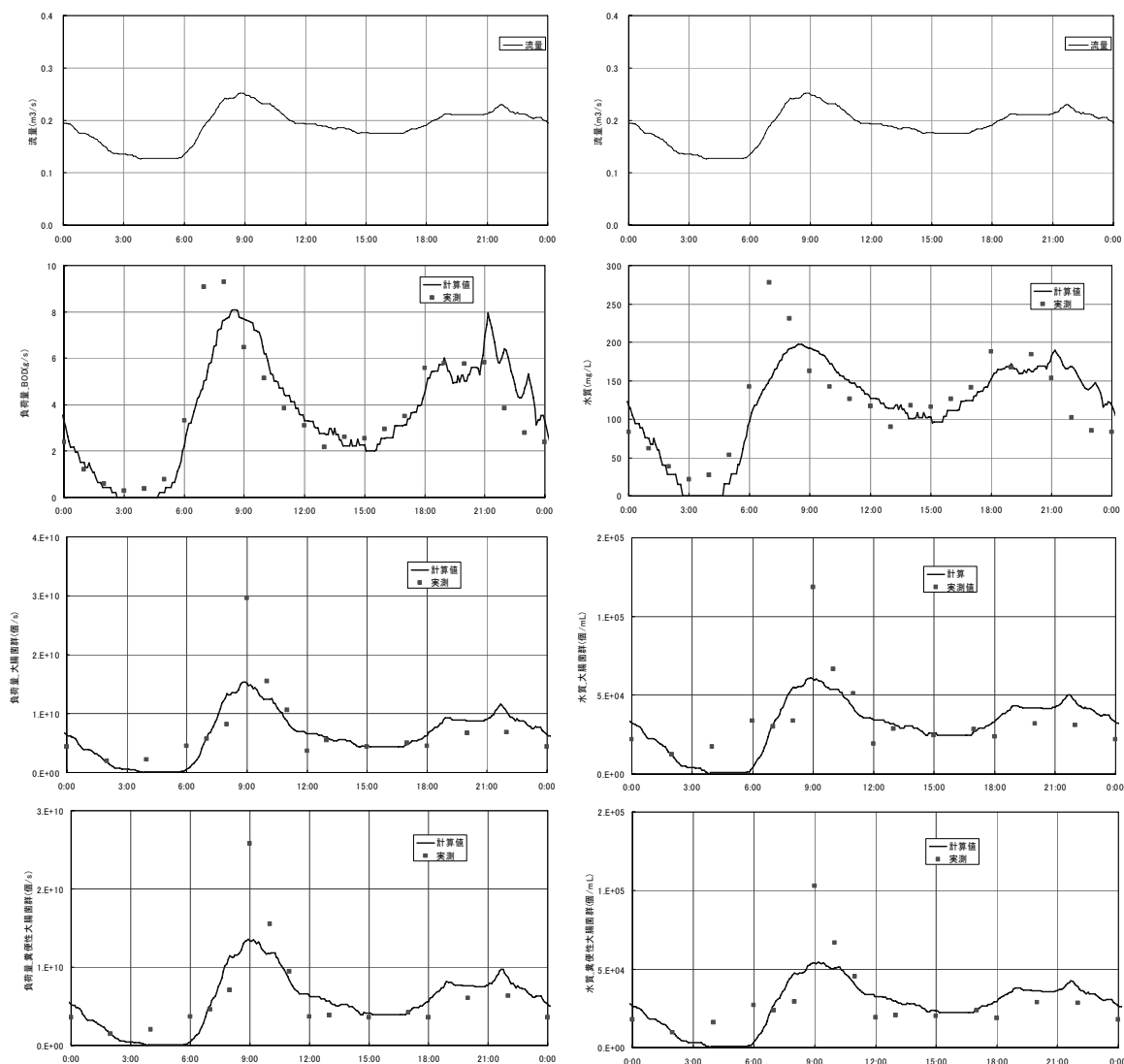
3. 1. 1 晴天時シミュレーション（集中型）

過年度の検討より、大腸菌群の流出特性は路面等からの供給負荷量があり、流量の2乗に比例すると考えられる。

このことから、BOD、COD、SS等と同様に式4-1-5,6で表現できるものと仮定し、他の汚濁負荷と同様に、暫定指針¹⁾に示されるパラメータ決定法で大腸菌群のシミュレーションを行った。また、糞便性大腸菌群についても大腸菌群と同様の方法でシミュレーションを行った。

晴天時シミュレーションの結果を図－6に示す。

図からも分かるように、従来からシミュレーションが確立されている BOD 等とほぼ同等の精度で、大腸菌群の晴天時における水質及び汚濁負荷の再現が可能となっていることが分かる。



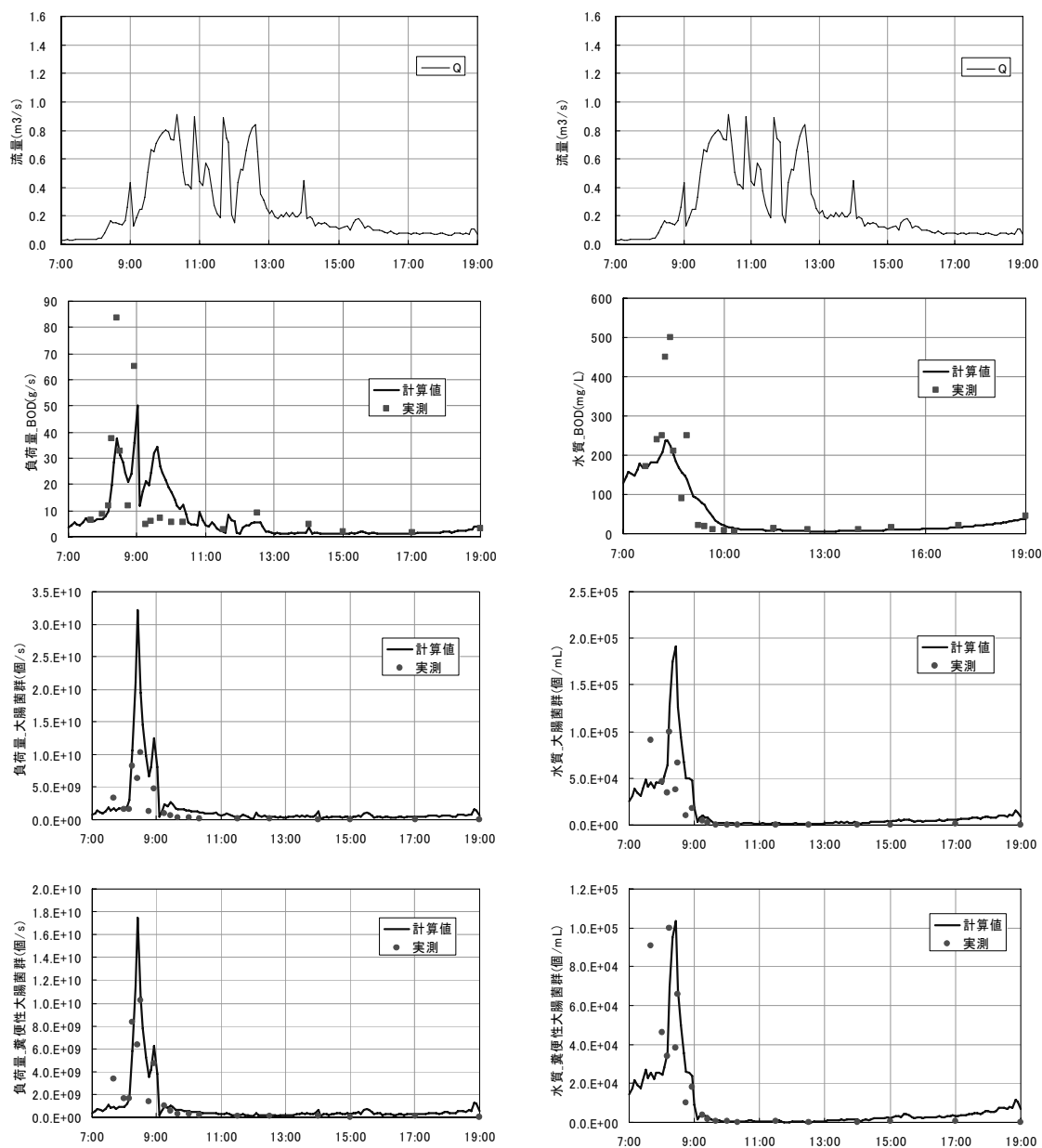
図ー6 晴天時シミュレーション

3. 1. 2 雨天時シミュレーション (集中型)

晴天時シミュレーションと同様に暫定指針¹⁾に示される方法でパラメータを決定し、大腸菌群および糞便性大腸菌群の雨天時シミュレーションを実施した。

雨天時シミュレーションの結果を図ー7に示す。

その結果、図からも分かるように、従来からシミュレーションが確立されている BOD 等とほぼ同等の精度で、大腸菌群および糞便性大腸菌群の雨天時における水質及び汚濁負荷の再現が可能となっていることがわかる。



図－７ 雨天時シミュレーション

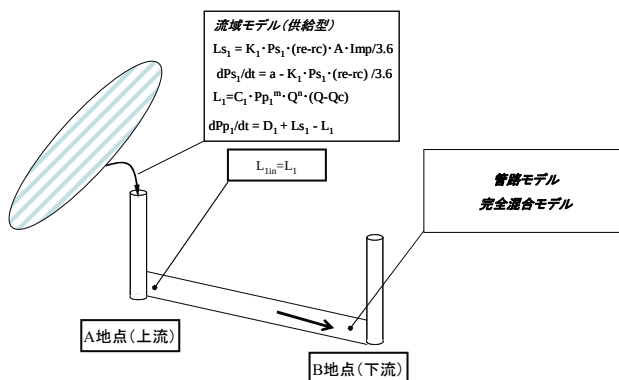
3. 2 土研モデル（分布型）への適用

従来の集中型汚濁負荷モデル（土研モデル）でモデル化した大腸菌群および糞便性大腸菌群等の分布型汚濁負荷モデルへの適用性について検討を行った。

3. 2. 1 分布型汚濁負荷モデルの概要

本検討で使用した分布型汚濁負荷モデルは、従来型の土研モデルを拡張し、分布型としたものである。

モデルは、図－８に示すように「流域モデル」と「管路モデル」に分かれ、「流域モデル」は従来の土研モデル（集中型モデル、一部改良）を適用し、「管路モデル」は完全混合モデルを採用している。⁴⁾



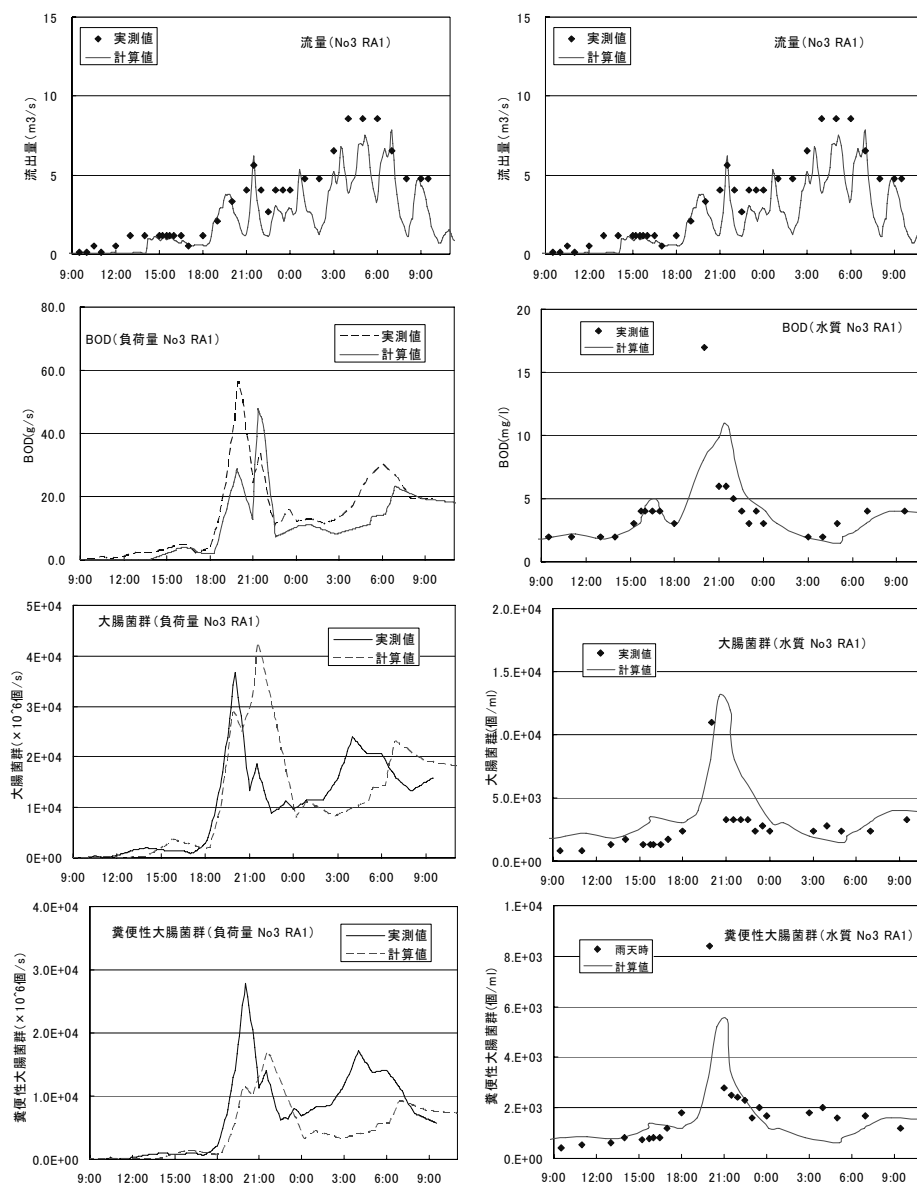
図－８ 基本ユニット

3. 2. 2 河川における流出汚濁負荷の再現計算

分布型土研モデルを用いて汚濁負荷シミュレーションによる計算を行った結果を図－9に示す。

採水調査結果と比較して、シミュレーションによる計算結果は、水質および負荷量は概ね再現できているものと判断された。

このことから、分布型土研モデルを用いた汚濁負荷解析が可能であると考えられる。



図－9

計算結果

4. 統合解析モデルによる流出汚濁負荷量の予測

4. 1 東京湾における雨天時の流出汚濁負荷量解析

東京湾周辺にある14の都市の内、分流式を採用しているのは千葉県のパ安市、袖ヶ浦市の2都市のみであり、12の都市で合流式下水道が採用されている。

ここでは、東京湾周辺の合流域から流出する汚濁負荷は、横須賀市の合流域から流出する汚濁負荷量を計算し、これと同等の汚濁負荷が東京湾に流入するものとし、大腸菌群が流入したと仮定し解析を行った。

また、東京湾における流出汚濁負荷解析には、国土技術政策研究所河川環境研究室で検討の東京湾流動・水質モデルの移流拡散を使用した。なお、本解析では、移流拡散のみの計算とするため生態系モデルで用いる内部変化項（生産、分解、及び沈降に関わる項）を使用しないこととした。

4. 2 計算対象降雨

流出量の違い及び流出のタイミングの違いによる移流拡散を比較するため、計算対象とする降雨は、A市における2003年1月1日から2003年1月

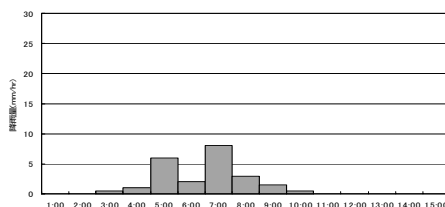


図-10 降雨1

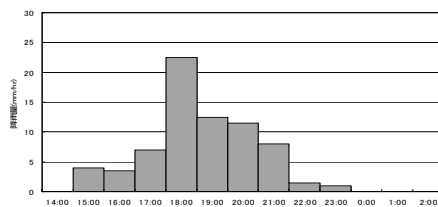


図-11 降雨2

31日までの降雨データを日降雨量として集計し、降雨全体の80%に相当する20～30mmの降雨より1降雨、降雨全体の95%に相当する80～70mmの降雨より1降雨、の大小2降雨を選定した（図-10, 11）。

4. 3 湾内の拡散

4. 3. 1 東京湾内の移流拡散

東京湾内での移流拡散状況の一例を図-12に示す。降雨1の合流ケースでは、河口部や埋立地周辺の閉鎖的な水域では、沖合への拡散が弱く、比較的長い時間この水域にとどまっているが、開放的な水域では比較的速く拡散するという特徴がある。また、大潮日の合流と小潮日の合流で比較すると、前者の方が初期の拡散速度が大きい

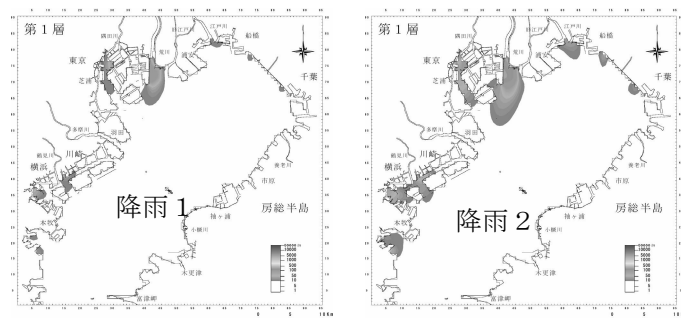


図-12 大腸菌群数計算結果（ピーク流量6時間後）

が、合流後約13日経過後（半月周潮後）の拡散範囲は両者とも同程度であった。

なお、水浴に適応できる大腸菌群数は1,000MPN/100ml（10MPN/ml）であり、各ケースとも、例えば、いなげの浜や小櫃川河口付近等ではこの濃度に達する可能性は低いと予測できる。

4. 3. 2 河口部（荒川、隅田川）での時系列変化

隅田川河口部、荒川河口部、東京湾3（三番瀬沖）及び東京湾5（いなげの浜沖）での大腸菌群数の時系列変化の1例を図-13に示す。

降雨1では、大腸菌群数は河口部付近において潮位拡幅に応じて徐々に減衰していく。また、東京湾3（三番瀬沖）や東京湾5（いな

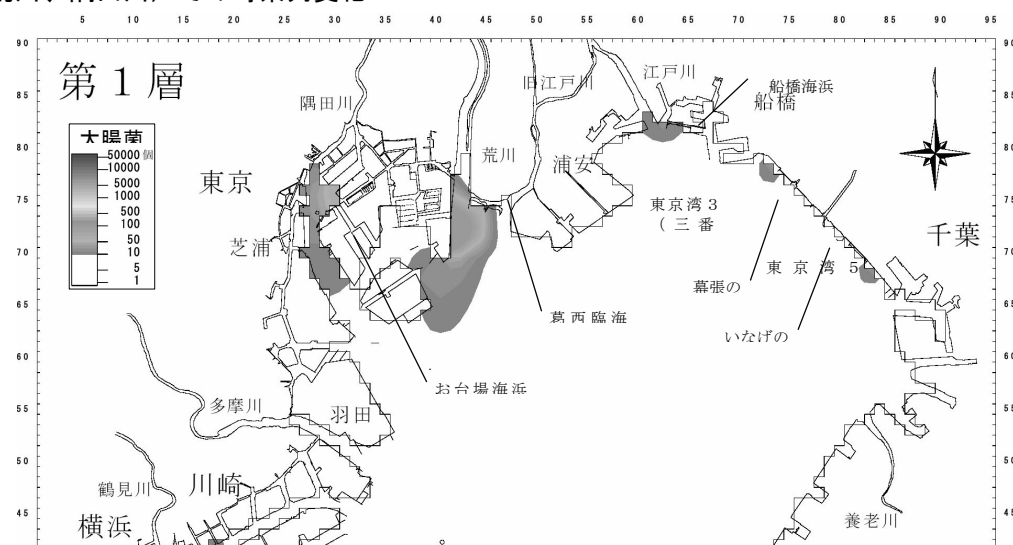


図-13 東京湾北岸における拡散領域（ピーク流量9.3時間後 降雨1）

げの浜沖)の地点までは流出水は到達していない。

5. まとめ

東京湾に面した合流式下水道の排水区を持つ河川流域において、晴天時及び雨天時にサンプリング、水質分析などのデータ実測作業を行った。また、それらの結果を基に、分布型土研モデルの適用性について検討を行うと共に、合流式下水道から東京湾に流入した汚濁負荷の拡散状況についてシミュレーションを行った。

その結果次のことがわかった。

- (1) 下水管からの雨天時流出負荷量においてファーストフラッシュが認められ、放流先に近い河川においてもほぼ同時刻における負荷量の増加が認められた。
- (2) 合流区から流出した汚濁負荷量の内訳は、浄化センターにおける「雨水放流量」の影響が最も大きく、次いで「上流河川水」、「合流吐口」、「簡易処理水」の順となったが、SS は、「上流河川水」の影響が最も大きく表れていた。
- (3) 「合流域から流出した汚濁負荷が河川下流の汚濁負荷に占める割合」をみると、河川下流地点の負荷量のうち、6～8 割が合流域からの流出分であった。
- (4) 大腸菌群数についても、BOD、COD、SS、T-N、T-P と同様に既存の土研モデル（集中型）を用いたシミュレーションの結果、ほぼ実測値を再現できることがわかった。

また、分布型土研モデルにおいても、既存の土研モデルと同様の再現性があることがわかった。

- (5) 東京湾に流入した合流式下水道からの汚濁負荷については、閉鎖的な水域では、沖合への拡散が弱く、比較的長い時間この水域にとどまっているが、開放的な水域では比較的速く拡散するという特徴があることがわかった。また、河口部付近においては、潮位振幅に応じて徐々に減衰していくことがわかった。

今後の課題として、大腸菌群は微生物であるので消長を含めた検討を行い、モデルの構築を行う必要があると考える。

なお、本調査研究は、技術研究開発調査費により実施されたものである。

【参考文献】

- 1) (社)日本下水道協会 合流式下水道越流水対策と暫定指針—1982 年版—,
- 2) 山田和弘、那須基、藤生和也：合流式下水道からの雨天時汚濁負荷流出現象の影響解析、第 11 回衛生工学シンポジウム論文集 北海道大学衛生工学会、P57～60
- 3) 山田和弘、那須基、藤生和也：合流式下水道からの汚濁負荷流出解析について、第 41 回下水道研究発表会講演集 平成 16 年度、(社)日本下水道協会、P324～326
- 4) 山田和弘、那須基、藤生和也：分布型汚濁負荷流出解析モデルについて、第 39 回日本水環境学会年会講演集 平成 17 年、(社)日本水環境学会、P295

3. 厨芥の管渠内流送特性に関する研究

下水道研究室 室 長 藤生 和也
 研 究 官 吉田 綾子
 研 究 員 浜田 知幸
 交流研究員 岡本 辰生

1 はじめに

直投型ディスポーザー（以下、ディスポーザー）は、台所のシンク内で生ごみを衛生的に処理するため、住環境の向上、高齢者の福祉対策、都市環境の改善等が期待できる一方、下水道システムへの影響、すなわち、管渠内堆積物の増加や下水処理場への過負荷が懸念される。下水管渠へのディスポーザー導入の影響については、社会実験を実施した歌登町の管渠調査において、ディスポーザー設置地区の管渠底面に厨芥由来の「卵殻・貝殻」が堆積していることが明らかとなっている。そこで、本研究では「卵殻・貝殻」の掃流条件の把握を目的とし、管渠内での堆積、掃流に至る条件を管渠模型実験から検証した。さらに、歌登町のディスポーザー設置地区にて定点観測を行い、管渠内堆積物の掃流状況を把握するとともに、管渠内の流況（下水量および流速）を推定し、実管渠における掃流パターンについて考察した。本報は、平成 14 年度～平成 16 年度の調査成果の概要を示したものである。

2 管渠模型実験

ディスポーザー導入後、増加が予想される厨芥由来堆積物の掃流特性を把握するために、実規模の管渠模型を用いた掃流実験を行った。管渠模型には、管渠内壁の粗度係数が硬質塩化ビニル管と同等であり、管渠内の観測が容易な直径 200mm の透明アクリル管を用いた。管渠模型延長は、上流側から堆積物投入区間 2m、実験区間 10 および低下背水区間 3m の計 15m とした。

1) 供試堆積物

卵殻は鶏卵、貝殻はアサリ貝を用いディスポーザーで粉碎後、比重、平均粒径、殻厚を測定した。殻厚は、粉碎した卵殻、貝殻を任意に 5～6 粒採取し、それぞれの厚さをノギスで測定し、その平均値から求めた。卵殻と貝殻の粒径は 0.85～4.75mm に集中しており、比重は卵殻 2.60、貝殻 2.84、平均粒径は 1.9～2.5mm、平均殻厚は卵殻 0.5mm、貝殻 1.0mm であった。

2) 既堆積物掃流実験

管渠模型中に供試堆積物塊（卵殻、貝殻、卵殻と貝殻の混合物）を所定の寸法に形成した後、流量を順次増加させ、堆積物の移動（掃流）開始流速と水深を測定した。その結果、堆積物が連続的な移動を起す「全面移動」時の流速は、卵殻 0.52m/s、貝殻 0.59m/s、混合物 A（卵殻：貝殻＝40：1）0.57m/s であり、設計指針に示されている流速 0.60m/s よりも小さいことがわかった。このときの摩擦速度は 0.03～0.04m/s であった。

3) 一様順勾配管渠での連続堆積・掃流実験

ディスポーザーを導入した場合、卵殻や貝殻はディスポーザーの使用に伴い半連続的に供給される。そこで、ディスポーザー使用時の卵殻および貝殻の半連続的な供給を想定した実験を行い、堆積状況の経時的な変化（堆積高、堆積延長）と水理量について検討した。その結果、通水量 0.5L/s では、堆積物の掃流は殆どみられず堆積高は最大 5cm（閉塞率 20%）まで上昇した。通水量を 1.0L/s に増加させると掃流が始まり、堆積高は 3cm（閉塞率 9%）まで減少し、その後堆積高さは平衡状態であった。すなわち、一様順勾配管渠での連続堆積・掃流実験では、通水量が 0.001m³/s 以上確保されれば、堆積高は 3cm 以上に成長しないと考えられた。

4) 「たわみ」管渠での連続堆積・掃流実験

管渠形状は 2.0‰ の順勾配管渠に ±5‰、±10‰、±20‰ の「たわみ」を設けた。「たわみ」量は 2.8cm、4.8cm、

8.8cm とした。堆積物のない管渠に上流側から堆積物を一定量 (60g/min) 連続投入し、「たわみ」区間に堆積する過程を観測した。その結果、時間経過とともに「たわみ」部が完全に堆積物で満たされて、最終的には堆積面は順勾配となり、順勾配管渠と同様の流況になることがわかった (表 1)。

3 実管渠における堆積物掃流パターンの推定

1) 管渠内堆積物の定点観測

ディスポーザー設置地区内の実管渠における堆積物の掃流の有無を把握するために、観測点を定め定期的に堆積物掃流状況の観察を行った結果、管渠内の堆積物量は比較的短期間に増減していることが確認された。

2) 定点調査期間における下水量および流速の推定

定点調査の結果、管渠内堆積物は比較的短期間に掃流・堆積を繰り返していることが確認された。そこで、調査期間中の下水量の変動を把握するために、定点調査期間中 (平成 15 年 8 月～12 月) の処理場における下水量を調査した。その結果、下水量は、午前 9～10 時に日最大 35～45m³/hr、午前 2～5 時に日最小 8～15m³/hr 変動していることが確認された。また、雨天時には、雨水浸入水により晴天日下水量のピーク値の 1.6 倍に下水量が増加することが確認された。1 時間あたり雨水浸入水の最大値は 49m³/hr であり、晴天日下水量のピーク値 45m³/hr の 1.1 倍とほぼ同量であるが、雨水浸入水のピークが晴天日下水量のピークと一致した場合には、下水量は晴天日下水量のピーク値の 2 倍以上に増加すると推定された。しかし、処理場において流入水量を 5 分間隔で測定する詳細調査を実施した結果、「処理場日報」に記録された 1 時間平均値の変動比 0.4～1.7 に対して、5 分間隔測定値の変動比は 0.0～2.9 大きく、さらに、平日の下水量の変動は休日に比べて大きい傾向にあることがわかった。

以上の結果から、堆積物の掃流の主な要因は下水量の日間変動によるものであり、晴天日の日常的な流況変動によって掃流・移動していることが示唆された。雨天時においては、雨水浸入水により下水量が一時的に増加するため、さらに掃流が進行するものと考えられた。

なお、本調査研究は、試験研究費により実施されたものである。

【参考文献】

- 1) 国土交通省都市・地域整備局下水道部、国総研下水道研究部、ディスポーザー導入時の影響判定に関する研究-ディスポーザー導入時の影響判定の考え方-、国総研資料 No. 222 (2005)
- 2) 国土交通省都市・地域整備局下水道部、国総研下水道研究部、北海道庁、歌登町、ディスポーザー導入社会実験に関する報告書、国総研資料 No. 226 (2005)
- 3) 岡本辰生・吉田綾子・高橋正宏、下水管渠内に於けるディスポーザー粉碎物の挙動に関する研究、第 39 回日本水環境学会年会講演集：360 (2005)
- 4) 岡本辰生・吉田綾子・森博昭・森田弘昭・高橋正宏、ディスポーザー由来の管渠内堆積物の挙動に関する調査、下水道協会誌、投稿中

表 1 「たわみ」管渠堆積実験の最終堆積状況

勾配 (%)	(※1) たわみ量 (cm)	仮想管底 ラインからの 堆積高 (cm)	(※2) 閉塞率 (%)	堆積形状 平衡時の 平均流速 (m/s)	(※3) 総通水 時 間 (hr)
±5	2.8 (0.14D)	3.1	17.4	0.433	24
±10	4.8 (0.24D)	2.8	31.2	0.389	11
±20	8.8 (0.44D)	2.6	56.4	0.462	12

(※1) ()内は、たわみ量を管径(200mm)比で表した値である。

(※2) 管渠断面積に占める堆積物断面積の割合を表す。

(※3) 堆積状況が平衡状態に達するまでの時間である。

4. 生ごみ等有機系廃棄物の最適処理による 環境負荷低減技術に関する研究

下水道研究室 室 長 藤生 和也
研 究 官 吉田 綾子
研 究 官 吉田 敏章

1 はじめに

本研究では、環境負荷の低減、循環型社会システムの構築や高齢者福祉に資する最適な有機系廃棄物処理・循環システムの確立を目指してディスポーザーに着目し、1)下水道による有機系廃棄物収集・処理技術に関する研究（ディスポーザー排水を受け入れた場合の下水道システムへの影響評価）、2)ディスポーザー導入による環境影響等の総合評価に関する研究（地域でディスポーザーを導入した場合の計画手法の提案）の2課題に取り組んだ。本報は、平成 14 年度～平成 16 年度の調査成果の概要を示したものである。

2 下水道による有機系廃棄物収集・処理技術に関する研究

諸外国のディスポーザー導入状況について文献調査を行うとともに、ディスポーザー導入時の下水道施設への影響として、特に管渠の効率的な維持管理技術についてディスポーザー普及率の高い米国の都市を対象として調査を行った。また、ディスポーザー排水の流入による増加負荷量の推定を目的に、国内でディスポーザー導入の社会実験を実施している北海道歌登町を対象にディスポーザー使用に係わる原単位調査を行った。さらに、モデル地域を選抜して合流式下水道越流水への影響について予測計算を実施した。主な結果を以下に示す。

1) 諸外国でのディスポーザー導入状況調査

アメリカでは、合流式・分流式を含め全ての都市で下水道へのディスポーザー接続に対する制限はない。家庭普及率は 44%と推測され（1999 年）、特に西海岸での普及率が高い。欧州では、イギリス、イタリア、スペイン、デンマーク、カナダ、オーストラリアの 6 カ国は使用許可又は黙認されている一方、ドイツでは法律により使用が規制されており、オーストリア、オランダ、スイス、スウェーデン、ノルウェー、フィンランド、フランス、ベルギーでは何らかの方法により規制している。

2) 米国における下水管渠の清掃頻度に関する調査

本研究は、すでに数十年前からディスポーザーが普及しているアメリカにおいて、都市ごとのディスポーザー普及率と分流式污水管の清掃頻度の関係を分析することにより、ディスポーザーの普及により分流式污水管の清掃頻度がどの程度増加するかを評価した。その結果、米国での管渠清掃率は 29%と日本の分流式污水管清掃率より高いものの、ディスポーザー普及率と管渠清掃率の相関性はみいだせなかった。また、ディスポーザー普及率・管渠清掃率が共に高いデンバーにおける現地調査の結果、管渠閉塞の主な原因は厨房施設からのグリースと木の根の浸入であり、ディスポーザー排水の管渠清掃への直接的な影響は確認できなかった。

3) 歌登町におけるディスポーザー排水の負荷原単位に関する調査

歌登町では、ディスポーザー導入後もごみ集積場に生ごみが廃棄されていることが確認された。また、ディスポーザー投入される生ごみは、発生量の約 45%、99g/人・日（非超過率 75%値 135 g/人・日）と推定された。

ディスポーザーを設置している世帯から定期的に生ごみを回収、ディスポーザーで粉碎、人口的に作成したディスポーザー排水について水質分析を行った結果、歌登町でディスポーザーに投入にされる生ごみの水質転換率（生ごみ 100g中の汚濁負荷量）は、SS : 8.2g、BOD : 11.3g、COD_{Mn} : 5.5g、TN : 0.73g、TP : 0.11g、Cl⁻ : 0.33g、n-Hex : 1.75gであった。ディスポーザー投入生ごみ量に 99g/人・日に水質転換率を乗じてディスポーザー排水の汚濁負荷量原単位を算出した結果、ディスポーザー導入による歌登町の下水処理場への流入負荷の増加率はSS、BOD、COD_{Mn}は 2～3 割、TN、TPは 1 割程度増加すると推定された。

4) 合流式下水道越流水への影響予測

合流式下水道へのディスポーザー導入の影響について、2 つのモデル排水区を設定し下水道からの放流負荷の増加程度を試算した結果、雨天時の汚濁負荷量は増加することがわかった。ただし、これらの試算は特定の

地区において特定の計算方法により影響を計算したものであり、対象とする排水区の状況や計算方法によってその影響の度合いは異なると考えられる。また、BOD 以外にも管渠に堆積しやすい卵殻や貝殻等により固形物の流出量が増加することも想定された。

3 ディスポーザー導入による環境影響等の総合評価に関する研究

ディスポーザー導入による下水道システム、ごみ処理システム、住民生活への影響・効果をLCA及び費用効果分析により総合評価する手法を検討した。検討対象地域は、わが国で初めて下水処理区域の一部にディスポーザーを平成 11 年度に導入した北海道歌登町とした。LCAはLC-CO₂及びLCEを評価項目とする手法について検討した。また、経済性は仮想評価法（CVM）を適用した住民の利便性向上便益を試算して評価した。

1) ディスポーザー導入の LCA による評価

歌登町のごみ処理システム及び下水道システム全体としては、二酸化炭素ベースではわずかに増加（4t-CO₂/年）し、エネルギーベースではわずかに増加（114GJ/年）する。しかし、環境負荷量全体に対する増加率は 1% 未満であり、ディスポーザー普及により環境負荷量はほとんど変わらないといえる。

2) ディスポーザー導入の地域経済への影響

ディスポーザーが 100%普及したときの行政コストを計算した結果、下水道への負荷増加にともなう下水道事業の費用増加（20 万円/年）が、可燃ごみの削減にともなう清掃事業の費用削減（34 万円/年）を下回り、町全体の行政コストはディスポーザー導入により毎年 14 万円削減されることが分かった。

下水道事業および清掃事業の行政コストと、ディスポーザー利用者の便益等とを統合した全体の費用便益分析を行ったところ、行政コストの変化分やディスポーザー運転費用と比較して、利便性便益およびディスポーザー購入・設置費用は卓越した値を有していることが分かった。また、ディスポーザー利用者の便益は 165 万円/年と正になることが推定され、行政コストの減少分 14 万円/年と下水道使用料の増加分 0.4 万円/年を加えた社会的余剰は 184 万円/年と正になった。

なお、本調査研究は、試験研究費により実施されたものである。

【参考文献】

- 1) 国土交通省都市・地域整備局下水道部、国総研下水道研究部、ディスポーザー導入時の影響判定に関する研究-ディスポーザー導入時の影響判定の考え方-、国総研資料 No. 222（2005）
- 2) 国土交通省都市・地域整備局下水道部、国総研下水道研究部、北海道庁、歌登町、ディスポーザー導入社会実験に関する報告書、国総研資料 No. 226（2005）
- 3) 山縣弘樹・野口綾子・森田弘昭、米国におけるディスポーザー普及率と下水管渠清掃頻度の関係の考察、第 40 回下水道研究発表会講演集 平成 15 年度：246-248（2003）
- 4) 吉田綾子・山縣弘樹・斎野秀幸・森田弘昭：北海道歌登町におけるディスポーザー排水の負荷原単位に関する調査、下水道協会誌、41（501）：134-146（2004）
- 5) 吉田綾子・山縣弘樹・高橋正宏・森田弘昭、ディスポーザーの導入が下水道システムに及ぼす影響、第 4 回環境技術学会研究発表会予稿集：80-81（2004）
- 6) 吉田綾子・山縣弘樹、ディスポーザー導入時の環境評価の試算事例、土木技術資料、47（2）：40-45（2005）
- 7) 吉田綾子・山縣弘樹・高橋正宏、ディスポーザー使用に係わる原単位調査、第 39 回日本水環境学会年会講演集：359（2005）
- 8) 山縣弘樹・吉田綾子・高橋正宏・森田弘昭、北海道歌登町における下水管渠清掃時の環境負荷量に関する調査、下水道協会誌、投稿中
- 9) 山縣弘樹・吉田綾子・高橋正宏・森田弘昭、LCA を用いたディスポーザー導入の影響評価に関する考察、投稿準備中
- 10) 吉田綾子・行方馨・山縣弘樹・高橋正宏・森田弘昭、ディスポーザー導入が合流式下水道越流水質に及ぼす影響に関する基礎的検討、投稿準備中

II. その他の予算による研究

[下水処理研究室]

1. 下水放流水による水辺利用地域の衛生学的指標に関する研究

下水処理研究室 室 長 南山 瑞彦
研 究 官 平出 亮輔
研 究 員 桜井 健介

1. はじめに

下水道の整備が進み、平成 13 年度時点で全国 1,718 箇所の下水処理場から年間約 130 億 m^3 もの下水処理水が放流されており、放流先の河川等に占める処理水の割合が増加している。また、都市域内における貴重な水資源確保の観点から下水処理水の再利用が進み、全国 218 箇所の下水処理場において、下水処理水が場外に送水され、水洗用水や修景用水、植樹帯散水、工業用水として年間約 1.9 億 m^3 利用されている¹⁾。その様な背景から、一般住民が下水処理水に接する機会がますます増大してきていると言える。

一方、下水中には、人間生活から排出される多種類の病原微生物が含まれている。そこで、大腸菌群、糞便性大腸菌群のような指標細菌が病原微生物の存在を示唆するものとして伝統的に用いられてきた。しかし、糞便に由来しない大腸菌群の存在、大腸菌群や糞便性大腸菌群のウイルスや原虫類に対する指標性の問題、塩素消毒後の損傷回復菌の存在の問題点が指摘されている^{2),3),4)}。

下水処理水や環境水の衛生学的安全性を適切に保つためには、各種の指標細菌の特性を把握し、目的に応じた適切な指標を選択するべきであると考えられるが、その特性については、不明な部分が多い。本研究では、従来から使われている大腸菌群と、大腸菌、糞便性連鎖球菌、ウェルシュ菌芽胞等の下水放流先での挙動を比較し、下水処理水を利用したせせらぎ等での、指標細菌の特性を把握することを目的として調査を行った。

2. 過年度の調査結果

2. 1 平成 14 年度の調査結果

2. 1. 1 模型水路実験

放流先水系での指標細菌の挙動の傾向を把握することを目的に、河川を模した模型水路に消毒した下水二次処理水を流し、水路の流入時と流出時で、指標細菌の測定を行った。全 17 回の測定の結果、それぞれ濃度が増加した回数は、大腸菌群 10 回、糞便性大腸菌群 8 回、大腸菌 5 回となり、大腸菌群は、水路内で増加しやすいと考えられた。

2. 1. 2 現地調査

実際の下水処理水が放流されている河川、なじみ水路、せせらぎから選んだ 5 地点において各指標細菌の測定を行った。その結果、なじみ水路、せせらぎでは、大腸菌を除く指標細菌が放流直後から増加した。大腸菌は増加せずほぼ一定であった。また、凝集剤併用型循環式硝化脱窒砂ろ過法に塩素消毒を行っている下水処理場の処理水中の指標細菌は、放流先の河川水中の指標細菌の存在量より少なかった。また、処理水が河川水に放流された場合、河川水に希釈されることによる指標細菌濃度の低下が確認されたが、その他の因子による濃度の増減は、この調査では観察されなかった。

2. 2 平成 15 年度の調査結果

2. 2. 1 模型水路実験

塩素消毒の程度の相違による放流先水系での指標細菌の挙動の把握を目的に、河川を模した模型水路に塩素添加量を変化させた下水二次処理水を循環させ、0、2、4、6、8、12、18、24、36、48 時間経過時に採水を

行って、指標細菌数を測定した。その結果、菌種によって再増加や生残性の違いが見られ、再増加がピークに達する時間は塩素消毒の程度によって変化した。

2. 2. 2 現地調査

規模の異なる茨城県内の3河川において、下水処理水が河川へ放流される前、放流された直後、その下流など、それぞれ5～6箇所にて採水し、それらの指標細菌を即日分析した。分析した結果、処理水が河川水で希釈されることによる指標細菌の濃度低下が測定できた。一方、模型水路実験で確認された様な指標細菌の再増加は、確認されなかった。

3. 平成16年度の調査内容

3. 1 目的

平成16年度は、模型水路実験を行った。

平成15年度の調査において、水路を流下している水中の指標細菌の生残性について、菌種によって相違が見られた。特にウェルシュ菌芽胞は水中の濃度が低下していたが、芽胞形成菌が死滅したとは考え難く、水路床の砂利層に捕捉されていると推測された。水路床の状況は、浮遊物質の砂利層での捕捉や巻き上がり等に影響を与え、それと共に菌数へも影響すると思われた。そのため、模型水路実験では、水路床の状況の違いが及ぼす指標細菌の挙動への影響を把握することを目的として実験を行った。

3. 2 実験方法

国土技術政策総合研究所湖北総合実験施設内に設置した模型水路に、ポンプを用いて循環するように供試水を流し、経時的に指標細菌の測定を行った。模型水路の概要を図-1に示す。模型水路は原水供給ポンプ、循環水槽、循環水供給ポンプ及び水路から構成されている。水路はステンレス（SUS304）で作られており、幅20cm、長さ30mの水路を2本直列に接続しており、合計で60mの長さがある。この水路はポンプを用いて供試水を循環式で流下させることが可能である。

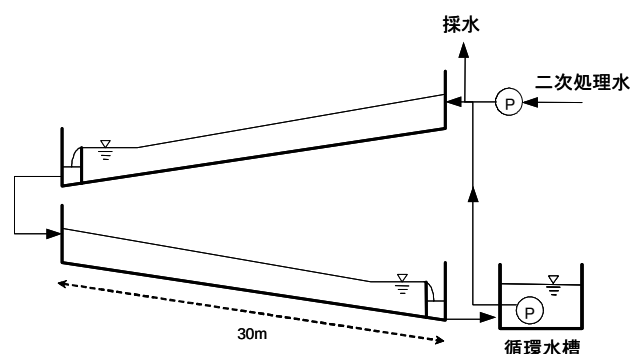


図-1. 模型水路の模式図

本実験の条件を表-1に示す。RUN-1とRUN-2は、水路床の玉砂利の有無による指標細菌数の挙動の相違を観察し、RUN-3では水道水の残留塩素を中和した水を循環させ測定し、実験中に微生物の混入による污染がないことを確認するために行った。

RUN-1,2の供試水は実下水を用いた反応槽容量10m³の標準活性汚泥法パイロットプラントから得られた二次処理水を利用した。標準活性汚泥法パイロットプラントの運転条件は、HRT(設定)8時間、汚泥返送比43.2%、SRT10日とした。実験では、水路及び循環水槽を二次処理水で満水にした後、二次処理水の流入を止め、水路及び循環水槽内の水を循環水槽内の水中ポンプを用いて循環させた。

供試水の水路一周の平均時間は9.7分であった。採水間隔は、循環開始後から、0、2、4、6、8、12、18、24、36、48時間とした。採水は、図-1に示したように水路の直前に行った。玉砂利の性状は、重量で85%が粒径8～12mmであり、空隙率は36.7%となった。

測定項目は、指標細菌として大腸菌群、大腸菌、糞便性連鎖球菌、ウェルシュ菌芽胞、及び、一般細菌とした。指標細菌の測定方法の詳細を表-2に示す。平板培養法による大腸菌の測定方法は、食品衛生検査指針に

表-1. 実験条件

	RUN-1	RUN-2	RUN-3
原 水	二次処理水		水道水
流下水量	100L/min		
勾 配	2.33‰		
水路床	SUS304	SUS304上に玉砂利	
平均石深	-	14.3mm	
平均水深	26.9mm	49.6mm	

示されている培地を利用した。菌数は、同一サンプルをシャーレ3枚に培養し、その相加平均値とした。下水試験方法等では、コロニー形成数が30～300個のシャーレの計数を推奨しているが、30個以下の場合でも計数し、括弧で囲んで表記した。シャーレ3枚全てにコロニー形成が確認されない場合はndと表記した。また、0と表記された欄は、コロニー形成が確認されたがシャーレ3枚の相加平均が0.5個未満であったことを示す。

表-2. 微生物試験方法

指標細菌	測定方法	準拠する試験方法
大腸菌群	デソキシコール酸塩培地法	下水試験方法
大腸菌	特定酵素基質培地法	食品衛生検査指針
糞便性連鎖球菌	M-エンテロコッカス寒天培地法	下水試験方法
ウェルシュ菌芽胞	ハンドフォード改良培地法	上水試験方法
一般細菌	標準寒天培地法	下水試験方法

指標細菌の他に一般水質項目として、水温、pH、SSを測定した。

3. 3 調査結果

模型水路実験の調査開始時の気温、水温、pH、SSを表-3に示す。水路は、1系列のみであり同時に実験を行えないため、実験時期が異なっている。そのため、各実験の原水とした二次処理水の水質が異なっていた。

表-3. 実験開始時の状態

	RUN-1	RUN-2	RUN-3
気温(°C)	22.9	17.5	18.5
水温(°C)	25.0	20.0	21.9
pH	7.51	7.48	7.38
SS(mg/L)	2.7	1.4	0.1

本実験の指標細菌及びSSの測定結果を表-4及び図-2,3に示す。経過時間0時間とは、循環開始直後を指す。ウェルシュ菌芽胞は、検水量10mLで測定を行っているため、単位を[CFU/mL]に換算した際に小数点1位まで表記した。図-2,3のエラーバーは、その培養した3枚のシャーレの内、コロニー形成数の最小と最大の個数を示す。

表-4. 測定結果

	水路床	経過時間(h)										定量 下限
		0	2	4	6	8	12	18	24	36	48	
大腸菌群 (CFU/mL)	RUN-1	209	187	167	159	176	184	183	169	147	156	30
	RUN-2	116	106	109	107	105	89	106	93	89	81	
	RUN-3	nd	(0)	nd	nd	nd	nd	(1)	nd	nd	nd	
大腸菌 (CFU/mL)	RUN-1	53	49	58	68	67	69	66	62	55	50	30
	RUN-2	50	43	45	46	36	46	40	37	(24)	(28)	
	RUN-3	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	
糞便性連鎖球菌 (CFU/mL)	RUN-1	(3)	(4)	(3)	(4)	(4)	(3)	(3)	(3)	nd	nd	30
	RUN-2	31	31	30	(20)	(25)	(15)	(18)	(13)	(4)	(4)	
	RUN-3	(5)	(3)	(2)	(2)	(2)	(3)	(4)	(3)	(2)	(3)	
ウェルシュ菌芽胞 (CFU/mL)	RUN-1	9.6	8.7	8.9	5.0	7.9	6.4	7.2	6.3	3.7	(1.7)	3.0
	RUN-2	4.8	(2.4)	(0.4)	(0.5)	(0.6)	(1.0)	(1.4)	(0.5)	(0.3)	(0.2)	
	RUN-3	nd	(0.1)	(0.3)	(0.1)	nd	(0.1)	(0.0)	nd	nd	nd	
一般細菌 (CFU/mL)	RUN-1	3,467	3,300	2,900	2,300	2,400	2,500	1,067	2,767	3,267	2,467	30
	RUN-2	1,313	1,583	4,833	9,600	9,667	9,400	11,133	8,467	7,533	6,600	
	RUN-3	195	303	370	627	620	683	723	563	493	633	
SS (mg/L)	RUN-1	2.7	2.4	2.5	2.3	2.4	2.3	2.1	1.5	1.3	1.5	0.1
	RUN-2	1.4	1.1	1.0	0.7	0.6	0.5	0.4	0.3	0.2	(0.0)	
	RUN-3	0.1	0.1	0.0	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.2	0.2	

*培養したシャーレ3枚のコロニー形成数の相加平均を記載した。

図-2,3 より、大腸菌群及び大腸菌の挙動は、RUN-1,RUN-2 共になだらかな右下がりを示し、それぞれ顕著な差異は無かった。糞便性連鎖球菌は、存在量が少なく定量下限を概ね下回ったため、差異は判断できなかった。ウェルシュ菌芽胞は、RUN-2 は 4 時間経過時で、コロニー数が 1 個を下回るなど大幅に減少していた。ウェルシュ菌芽胞は、芽胞を形成する芽胞菌であり、大腸菌群よりも長期間生残可能であると考えられることから、死滅による減少とは考え難い。RUN-1,2,3 の採水位置は、砂利層への沈殿物などが構造上採水できないことから、ウェルシュ菌芽胞は、砂利層へ沈殿していたものと推測された。

ウェルシュ菌芽胞が、沈んでいると推測されたため、再度 RUN-2 と同様の実験を行い、水路を流れる水の

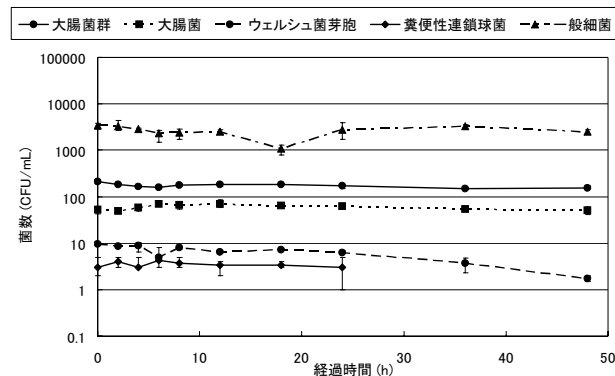


図-2. RUN-1 の指標細菌の挙動

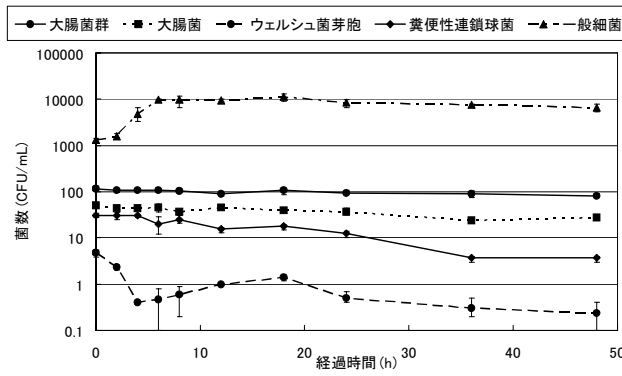


図-3. RUN-2 の指標細菌の挙動

上層部と下層部に分けて指標細菌を調査した。採水には、ピペットを用い、水路下端部の上層部(水面から 10mm 程度の深さ)と下層部(砂利層の中：水面から 40mm 程度の深さ)に直接挿入し、吸い出した。測定時間は、0,24,48 時間経過時のみとした。同時に、水路に流したものと同一二次処理水をビーカーに入れ、沈降しないようにビーカー内で攪拌し続けた二次処理水中の指標細菌も測定した。

測定結果を表-5 に示す。0 時間経過時の上層、下層、ビーカーの値は、循環させる直前の二次処理水の値とした。ビーカー内の SS は、一定であると思われるため測定しておらず、24、48 時間経過時の値は、0 時間経過時と同値とした。

表-5. 測定結果

	大腸菌群 (CFU/mL)			大腸菌 (CFU/mL)			糞便性連鎖球菌 (CFU/mL)			ウェルシュ菌 芽胞 (CFU/mL)			一般細菌 (CFU/mL)			SS (mg/L)		
経過時間(h)	0	24	48	0	24	48	0	24	48	0	24	48	0	24	48	0	24	48
上層	153	137	135	49	33	(23)	(5)	(4)	(2)	59.0	25.5	17.5	7850	11300	89650	1.8	0.3	0.5
下層	153	137	525	49	31	41	(5)	(20)	39	59.0	665.0	1055.0	7850	12050	99650	1.8	21.4	33.5
ビーカー	153	340	670	49	47	48	(5)	(8)	(5)	59.0	72.0	67.0	7850	36700	95850	1.8	1.8	1.8

*培養したシャーレ2枚のコロニー形成数の相加平均を記載した。

下層では、大腸菌群、糞便性連鎖球菌、ウェルシュ菌芽胞、及び、一般細菌が増加していたため、これらの指標細菌が沈降していた可能性がある。ただし、大腸菌群、及び、一般細菌は、攪拌したビーカー内でも同程度の比率で増加していたため、この 2 種については必ずしも沈降しているとは判断できなかった。糞便性連鎖球菌は、存在量が少なく定量下限以下となったものの、下層での増加傾向が示唆されたことから、沈降している可能性が高いと考えられた。ウェルシュ菌芽胞の上層では、ビーカーテストに比べ減少し、下層では細菌数が増加していることから、沈降していたものと思われる。下層でのウェルシュ菌芽胞については、24、48 時間経過時に原水に対しそれぞれ 11、18 倍となり、他の指標細菌よりも増加率が大きかった。また、SS はウェルシュ菌芽胞の増加率と同程度であったことから、この実験においては、ウェルシュ菌芽胞と同様な挙動を示した可能性があると考えられた。

4. まとめ

模型水路を用いて、水路床の玉砂利の有無による下水処理水中の指標細菌の増減の変化を調査した。調査の結果、指標細菌の特性について、以下のことを得た。

- ・ 大腸菌群は、流下の過程で水路床の違いの影響をあまり受けなかった。
- ・ 大腸菌は、水路床に玉砂利が有る時に、若干の減少があったものの、玉砂利層内での増加傾向は無く、水路床の違いの影響をあまり受けなかったと考えられた。
- ・ 糞便性連鎖球菌は、今回使用した測定方法で行うには存在量が少なく、明確な挙動に関する傾向は明らかにならなかったものの、玉砂利層がある条件での水路の下層で濃度がやや上昇する傾向が見られたことから、流下の過程で水路床の違いの影響を受ける可能性が示唆された。
- ・ ウェルシュ菌芽胞は、流下の過程で水路床の違いの影響を受け、水路の下層で濃度が上昇した。この傾向はSSの増加傾向と類似していた。

5. おわりに

本研究は、平成14年度から16年度にかけて、各種の指標細菌の下水処理水の放流後の挙動の解明を目標に研究を実施した。その結果、従来から糞便汚染の指標として使われている大腸菌群は、同一の水であっても僅かな時間経過により、細菌数が増加したため、下水放流水の消毒効果を把握するための指標としては一定の役割を果たすものの、下水処理水の再利用等、放流後ある程度の時間を経た後の衛生学的安全性の指標として利用することもあるような条件下では、必ずしも適切な指標とは言えない場合があると考えられた。今回の実験では塩素消毒後でもあまり増減の無かった特定酵素基質培地を用いた大腸菌を指標として用いた方が望ましい場合があると考えられた。糞便性連鎖球菌は絶対数が少なく、指標細菌としての利用は困難であると考えられた。ウェルシュ菌芽胞は、塩素消毒の程度が変化しても菌数に変化が無かったことから、強い塩素耐性を示していると言え、塩素耐性のある病原微生物の指標としての利用可能性があるが、大腸菌などと比べ強い沈降性が見られたことから、ウェルシュ菌芽胞の不検出のみを病原微生物による汚染が無いことの判断に用いることは困難であることが示唆された。

なお、本調査研究は試験研究費により実施されたものである。

参考文献

- 1) 「日本の下水道（平成15年）」、国土交通省都市・地域整備局下水道部監修、p. 206-209
- 2) 金子光美編著「水質衛生学」、技報堂出版、pp. 435-489、1996
- 3) 平田強「塩素消毒と細菌」、水道協会雑誌、Vol. 62、No. 5、pp. 6-9、1993
- 4) 芦立徳厚「水質環境基準項目としての大腸菌群の評価」、用水と排水、vol. 30、No. 3、pp. 229-238、1988

2. 水環境再生技術の開発に関する研究

下水処理研究室 室 長 南山 瑞彦
主任研究官 平山 孝浩

1. はじめに

近年、水環境における内分泌かく乱物質や有機塩素化合物等をはじめとする微量環境汚染物質の問題が大きくなってきている。これらの物質は主に都市活動により排出されるものであり、微量ではあっても自然環境や生態系、人体への影響が懸念されるものである。例えば内分泌かく乱物質については、生殖機能異常や生殖行動異常、雄の雌性化、孵化能力の低下、免疫系や神経系への影響など水系生態系への悪影響が懸念されており、有機塩素化合物についても、発ガン性が指摘されているトリハロメタン等、生物への高い毒性が問題視されている。

内分泌かく乱物質については、国土交通省より出された下水道における内分泌攪乱化学物質に関する調査結果¹⁾によると、流入下水中の内分泌かく乱物質が下水処理の過程で大きく低減し、放流水中では調査対象物質のほとんどが 90%以上減少しているとされているが、内分泌かく乱物質が生態系に与える影響については、調査研究が進められている段階であり、依然明らかにし得る知見が十分ではなく、今後更なる削減が求められる可能性もある。

オゾン処理については、これら微量環境汚染物質の除去に対する有効性が多数指摘されているが、日本の下水処理場における導入実績は少ない状況にあり、かつオゾン処理の導入目的は消毒や脱色が中心となっており、微量環境汚染物質除去を考慮したオゾン処理の運転管理がなされていないのが現状である。

本研究は、下水処理水中の微量環境汚染物質のうち、特に内分泌かく乱物質に焦点を当て、内分泌かく乱物質の除去を効率的に行うためのオゾン処理運転方法の確立を目的として、パイロットプラント実験により、オゾン処理条件による除去効果の違いについて検討を行うものである。

2. 実験方法

2-1. 実験装置

国土技術政策総合研究所湖北総合実験施設（茨城県霞ヶ浦浄化センター内）に実験装置を設置し、実下水を用いた反応槽容量 10m³の標準活性汚泥法パイロットプラントから得られた二次処理水（以下、「二次処理水」とする）及び霞ヶ浦浄化センターの砂ろ過水（以下、「砂ろ過水」とする）を原水槽（容量約 1.3m³）に貯留し、内分泌かく乱物質標準試薬を原水槽へ添加後、原水槽よりオゾン反応塔へ、原水槽内の試験水がなくなるまで試験水を連続通水し、2-3に示す実験条件によりオゾン処理を行った。実験装置の概要を図-1に、実験装置の主な仕様を表-1に示す。

表-1 実験装置主仕様

項目	仕様
オゾン発生装置	オゾン発生量：12gO ₃ /h オゾン濃度：40g/Nm ³ オゾン化空気量：0.3Nm ³ /h
オゾン反応塔	SUS 反応塔： φ 200mm×4,480mmH 但し、H=1,600mm、2,350mm、 3,100mm、4,100mm（有効容量 約 50L、75L、95L、130L）で可 変式 オゾン注入方式：散気方式

2-2. 除去対象物質

内分泌かく乱物質としては、「平成 12 年度下水道における内分泌攪乱化学物質に関する調査報告書」¹⁾において下水道で留意すべき物質として選定されたものとして挙げられた、エストロン（以下「E1」とする）、17βエス

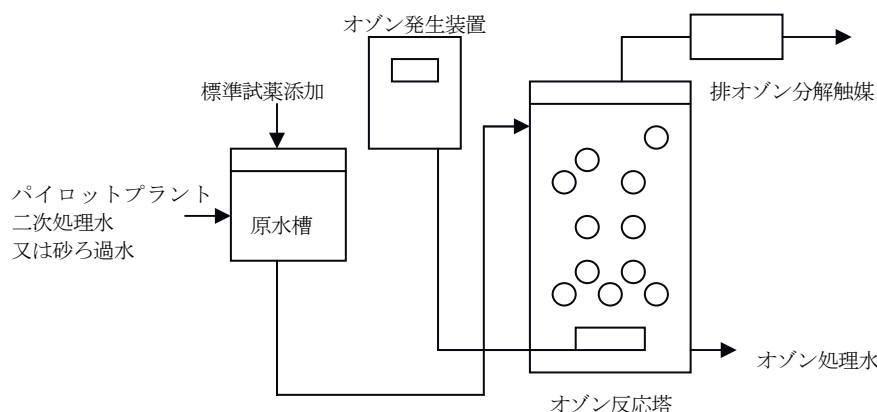


図-1 実験装置概要

トラジオール（以下、「E2」とする）、ノニルフェノール（以下、「NP」とする）、4tオクチルフェノール、ビスフェノールA（以下、「BPA」とする）、ベンゾフェノン、フタル酸ジ-2-エチルヘキシルのうち、NPは環境省調査²⁾により魚類に対し内分泌かく乱作用があると強く推察されていること、BPAは現在調査中ではあるが魚類に対し内分泌かく乱作用の可能性があると指摘されていること、人畜由来ホルモンであるE1及びE2は他の物質に比べエストロゲン活性が大きいことから、これらの物質を除去対象物質とした。

また、オゾン処理の重要な役割として消毒があり、オゾン処理の実施に当たっては、適切な内分泌かく乱物質の除去効果及び病原微生物の不活化効果を達成できるように留意する必要がある。そのため、病原微生物の除去効果を併せて確認するため、病原細菌の指標菌である大腸菌群、大腸菌、嫌気性芽胞を除去対象物質とした。

2-3. 実験条件

2-3-1. 試験水

実験には、二次処理水及び砂ろ過水を用いた。今回用いた試験水には、実験条件として想定した濃度の実験除去対象物質が存在していなかったため、二次処理水及び砂ろ過水に、概ねNP=1.0 μ g/L、BPA=0.5 μ g/L、E2=0.003 μ g/L、E1=0.06 μ g/Lの濃度となるように標準試薬を添加したものを用いた。この濃度は「平成12年度下水道における内分泌攪乱化学物質に関する調査報告書」¹⁾における下水処理場放流水の最大濃度を目安にして設定した。

実験に用いた試験水の水質は、表-2の通りである。なお、砂ろ過水は、霞ヶ浦浄化センターにおける生物処理法（凝集剤添加活性汚泥法、嫌気無酸素好気法、担体投入型修正バーデンフォ法及び凝集剤併用型循環式硝化脱窒法）による処理水を混合し、砂ろ過して得られたものである。

2-3-2. オゾン注入率・接触時間

「二次処理水を対象としたオゾン処理システム技術マニュアル」³⁾では、「オゾン注入率は、一般的には5～10mg/L程度とする」、「オゾン処理に必要な接触時間は一般に10～20分程度を標準とする」とされている。オゾン注入率5～20mg/L及び接触時間7～20minとした過年度の実験⁴⁾では、NP、E2、BPAが検出限界以下にまで除去されたとの結果が得られている。また、オゾン注入率と単位処理量当たりオゾン発生装置消費電力量は比例関係にあり、運転管理費用低減のためには必要最小限のオゾン注入率とすることが重要であることが分かっている。また、接触時間を短くすることができれば、オゾン反応塔の容量を小さくすることが可能となる。よって、本実験ではオゾン注入率1.5～5mg/L及び接触時間3～15minの範囲で3段階に設定した。なお、オゾンガス流量はオゾン化空気量として約0.34Nm³/hourとし、オゾンガス濃度は1.8～14.7g/Nm³の範囲で設定した。

表-2 オゾン反応塔への流入直前の試験水の水質

水質項目	二次処理水	砂ろ過水
pH	7.3～8.0	7.5～8.1
SS (mg/L)	0.3～3.7	0.2～1.1
BOD (mg/L)	3.8～17	5.1～9.1
TOC (mg/L)	4.5～8.2	4.5～7.7

2-3-3. 反応塔高さ

オゾン反応塔において、水深は溶解効率と発生効率を考慮して 4~6m程度とするのが適切であるとされている³⁾。そこで、水深が対象物質の除去効果に与える影響も把握できるように、反応塔の有効高さを2段階(1.6m、4.1m、有効容量約 50L、130L)に設定した。なお、反応塔高さ2段階それぞれにおいて、オゾン注入率は3段階に設定したが、反応塔高さ 1.6mにおいては、接触時間を約 3 minと約 8 minの2段階に設定し、反応塔高さ 4.1mにおいては、接触時間を約 8 minと約 15 minの2段階に設定した。

2-4. 試料の採取及び分析項目

オゾン反応塔への流入直前の試験水及びオゾン反応塔からの流出直後の試験水を、処理開始より約 15~45 分毎に 3 回採取し、混合したものを分析試料とした。水質分析項目は、内分泌かく乱物質であるNP、BPA、E2、E1の他に、pH、SS、BOD、TOC、E₂₆₀、大腸菌群、大腸菌、嫌気性芽胞とした。なお、下水試験方法に準拠し、NP、BPAの分析はGC/MS法により、E2及びE1の分析はLC/MS/MS法により実施した。また、上水試験方法に準拠し、大腸菌群及び大腸菌の分析は特定酵素基質培地法により、嫌気性芽胞の分析はハンドフォード改良培地法により実施した。

3. 結果と考察

3-1. オゾン注入率が除去効果に与える影響

オゾン注入率が除去効果に及ぼす影響を明らかにするため、オゾン注入率を 1.5~5mg/L の範囲で設定し、実験を行った。なお、本節では、接触時間等オゾン注入率以外の条件については限定せず、本実験で得られたデータ全てについて記述する。

オゾン注入率が BOD 及び TOC の除去に与える影響を図-2 に示す。オゾン注入率が増加するにつれ、各オゾン注入率(すなわち約 1.5、約 3 及び約 5 mg/L)での BOD 及び TOC 残存率の最小値が低下した。オゾン注入率約 1.5mg/L で最大で BOD が約 10%、TOC が約 5%除去され、オゾン注入率約 5mg/L で最大で BOD が約 30%、TOC が約 20%除去された。

次に、オゾン注入率が NP、BPA、E2、E1 の除去に与える影響を図-3~6 に示す。BPAについてはオゾン注入率約 5mg/L の全てのケースで、NP と E2 についてはオゾン注入率約 3mg/L 以上で殆どのケースにおいて検出下限値未満まで除去された。E1 についてはオゾン注入率約 5mg/L の全てのケースで定量下限値未満まで除去され、オゾン注入率が低下するにつれ、各オゾン注入率でのオゾン処理後の E1 濃度の最大値が上昇した。

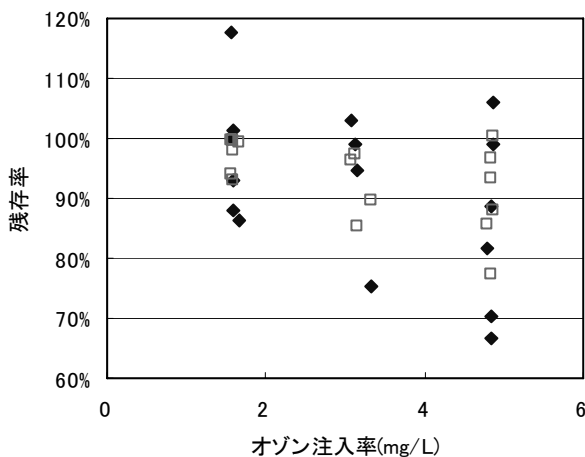


図-2 オゾン注入率と COD、TOC 残存率の関係

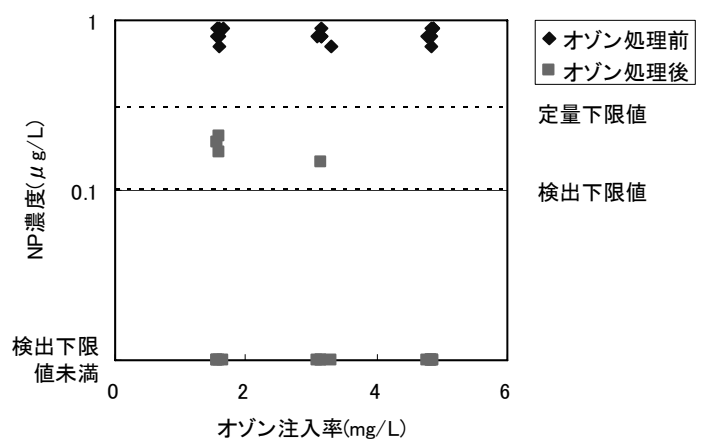


図-3 オゾン注入率と NP 除去効果の関係

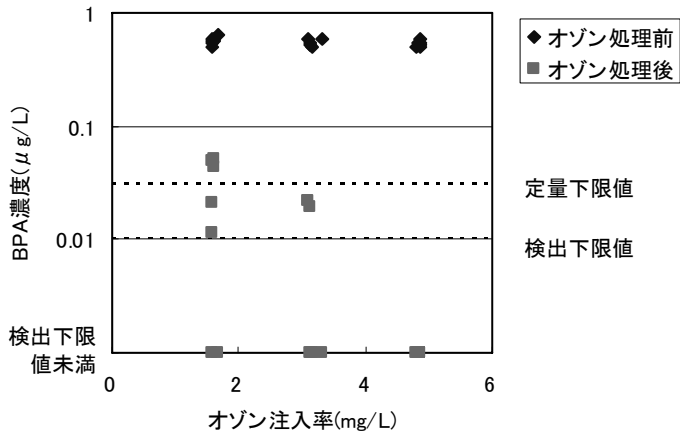


図-4 オゾン注入率と BPA 除去効果の関係

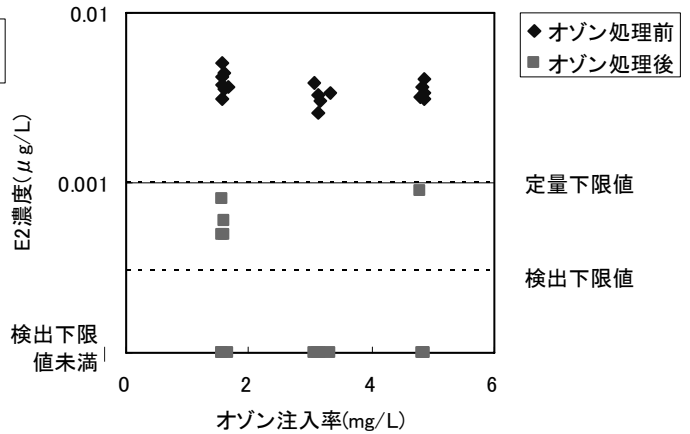


図-5 オゾン注入率と E2 除去効果の関係

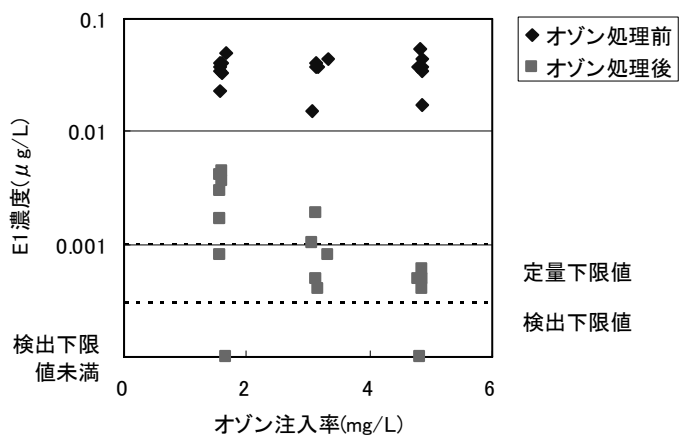


図-6 オゾン注入率と E1 除去効果の関係

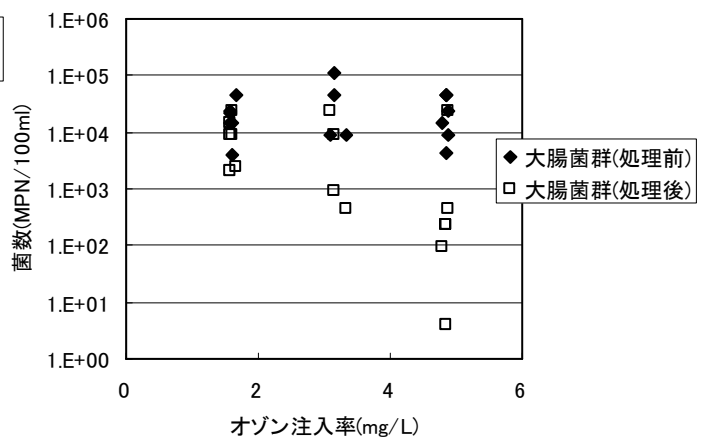


図-7 オゾン注入率と大腸菌群除去効果の関係

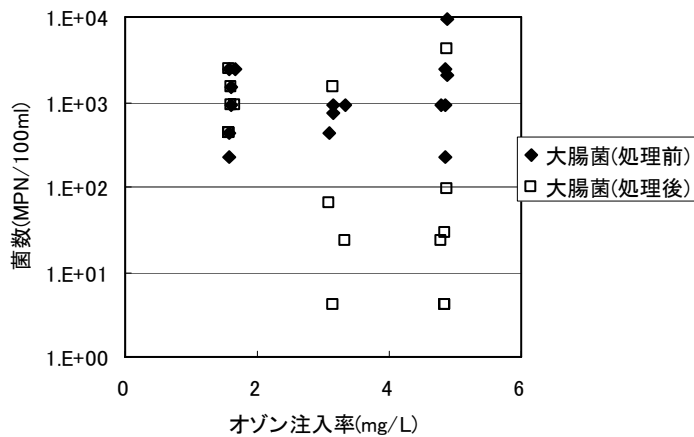


図-8 オゾン注入率と大腸菌除去効果の関係

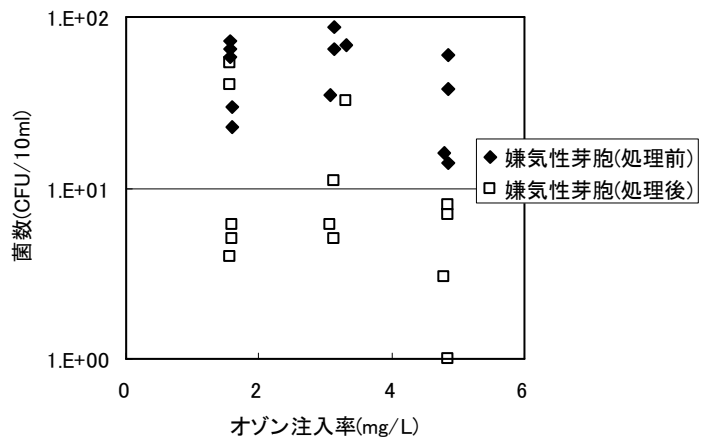


図-9 オゾン注入率と嫌気性芽胞除去効果の関係

また、オゾン注入率が、大腸菌群、大腸菌及び嫌気性芽胞の除去に与える影響を図-7～9に示す。大腸菌群については、オゾン注入率が約 1.5、約 3 及び約 5 mg/L の場合に、それぞれ最大で約 1、約 2 及び 4log 除去されたが、各オゾン注入率において接触時間約 3min かつ反応塔高さ 1.6m の条件では殆どのケースで除去されなかった。大腸菌については、オゾン注入率が約 3 mg/L、約 5 mg/L の場合に、それぞれ最大で約 2log、約 3log 除去されたが、オゾン注入率約 3 mg/L かつ接触時間約 8 分かつ反応塔高さ 1.6m の条件の 1 ケースで除去されなかった。オゾン注入率約 1.5mg/L では殆どのケースで大腸菌が除去されなかった。嫌気性芽胞については、オゾン注入率約 5 mg/L

で約 1log 除去され、オゾン注入率約 1.5～3mg/L では 0.5～1log 除去されたが、オゾン注入率約 1.5 mg/L で殆ど除去されないケースがあった。

オゾン注入率が約 3 及び約 5 mg/L の場合に大腸菌群、または、大腸菌が除去されないケースが 3 ケースあったが、いずれも試験水が二次処理水であり、なおかつ、反応塔高さが 1.6m の条件であったことから、反応塔高さが低い場合にはオゾンの溶解効率が低くなるためと考えられた。

本実験においてオゾン注入率が約 1.5 mg/L の場合とオゾン注入率が約 3.5～5mg/L かつ反応塔高さが 1.6m の場合に、大腸菌群または大腸菌が除去されないケースがあったため、これらの条件を採用あるいは適用する場合には、消毒効果が期待できない可能性が高いことが示唆された。

3-2. 接触時間が除去効果に与える影響

3-1 において、定量下限値以下にまで低減できないケースが多く見られたオゾン注入率約 1.5mg/L の条件における E1 について、接触時間がその除去に与える影響を図-10 に示す。接触時間が約 3～15min の範囲内では、E1 の除去効果に明確な違いは見られなかった。また、NP、BPA、E2 についても同様に、接触時間が約 3～15min の範囲内では、接触時間による除去効果の明確な違いは見られなかった。

オゾンの酸化力は非常に強いため、除去対象物質との反応が短時間で終了すると考えられることから、今回の条件では接触時間による除去効果の違いが見られなかったものと考えられる。接触時間が大きくなる程オゾン反応槽の規模が大きくなるので、接触時間はできるだけ小さくすることが望ましいと言える。3-1 の結果から、NP と BPA を検出下限値未満まで、E1 を定量下限値未満まで除去するためには、オゾン注入率約 5mg/L であれば、今回の条件では接触時間を約 3min にできると言える。

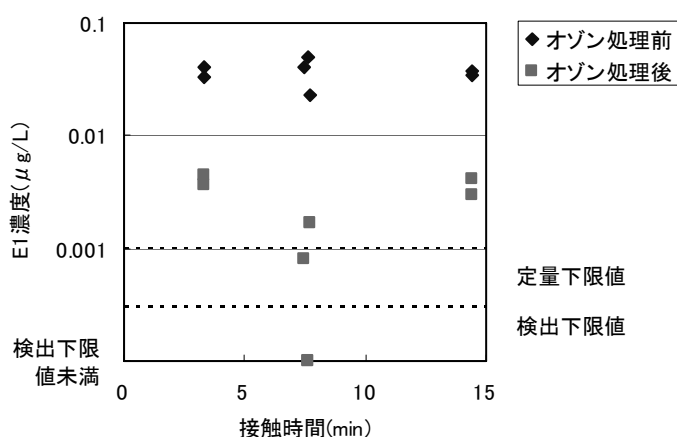


図-10 オゾン接触時間と E1 除去効果の関係
(オゾン注入率；約 1.5mg/L)

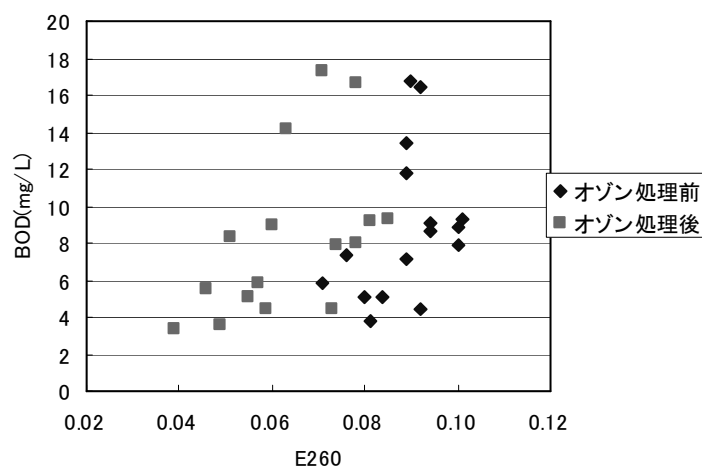


図-11 オゾン処理によるBOD及びE260の変化

3-3. 不飽和結合を有する有機物の影響

過年度の実験⁴⁾で、オゾンは不飽和結合を有する有機物との反応性に富んでいることがわかっている。本実験でも、オゾン処理によりBODに比べ不飽和結合を有する有機物の指標である E260の方が大きく低減しており（図-11）、オゾンが不飽和結合を有する有機物との反応に消費されていることが示唆された。

そこで、処理水中に含まれ、オゾンとの反応における競合物質の指標としての E260 に着目し、オゾン注入率約 1.5mg/L の条件におけるオゾン処理前の E260 と内分泌かく乱物質の除去効果の関係を整理し、図-12～15 に示す。オゾン処理前の E260 が 0.09 以下では、NP、BPA 及び E2 は検出下限値未満に、E1 は定量下限値以下に除去されていた。オゾン注入率が低く、オゾンにより酸化されやすい不飽和結合を有する有機物が多く存在する場合には、

内分泌かく乱物質の除去が阻害される可能性があると考えられる。

一方、E₂₆₀が大腸菌群、大腸菌及び嫌気性芽胞の除去効果に与える影響は特に見られなかった。

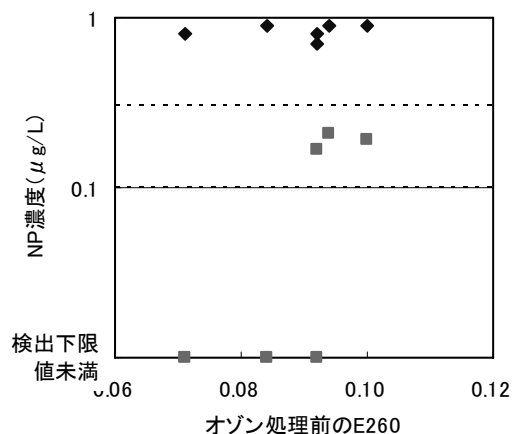


図-12 オゾン処理前のE₂₆₀とNP除去効果の関係
(オゾン注入率；約 1.5mg/L)

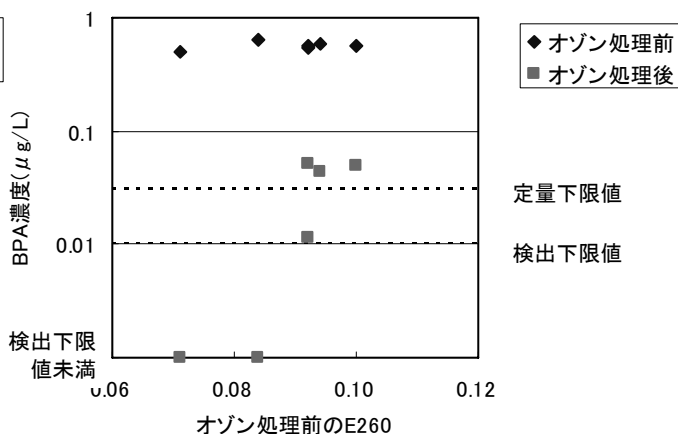


図-13 オゾン処理前のE₂₆₀とBPA除去効果の関係
(オゾン注入率；約 1.5mg/L)

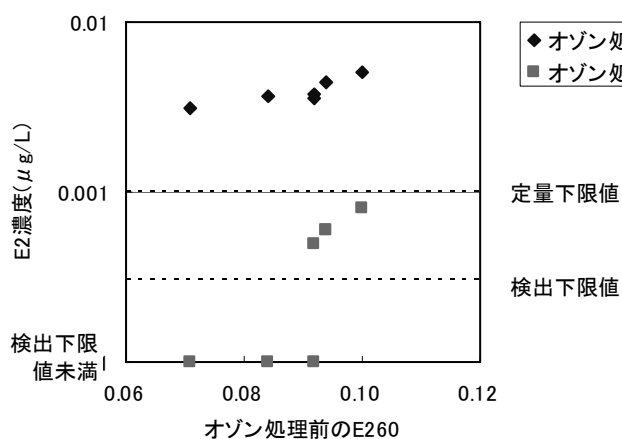


図-14 オゾン処理前のE₂₆₀とE2 除去効果の関係
(オゾン注入率；約 1.5mg/L)

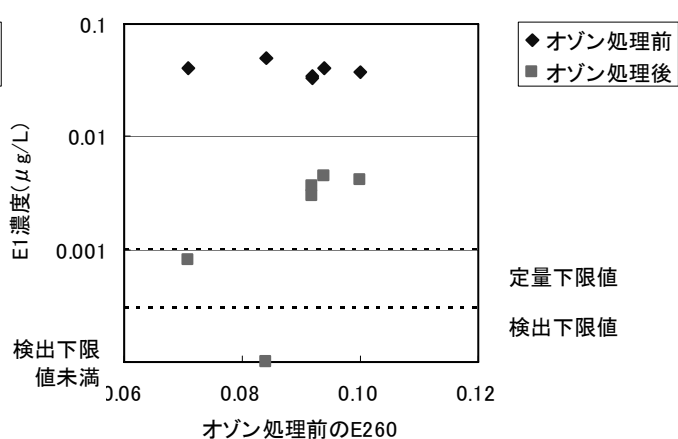


図-15 オゾン処理前のE₂₆₀とE1 除去効果の関係
(オゾン注入率；約 1.5mg/L)

3-4. オゾン反応塔高さが除去効果に与える影響

オゾン注入率約 1.5mg/L及びオゾン処理前のE₂₆₀が 0.09 以上の条件におけるオゾン反応塔高さと内分泌攪乱物質の除去効果の関係を図-16 に示す。反応塔高さが 1.6m と 4.1m では、E1 の除去効果に明確な違いは見られなかった。また、NP、BPA、E2 についても同様に、反応塔高さによる除去効果の明確な違いは見られなかった。

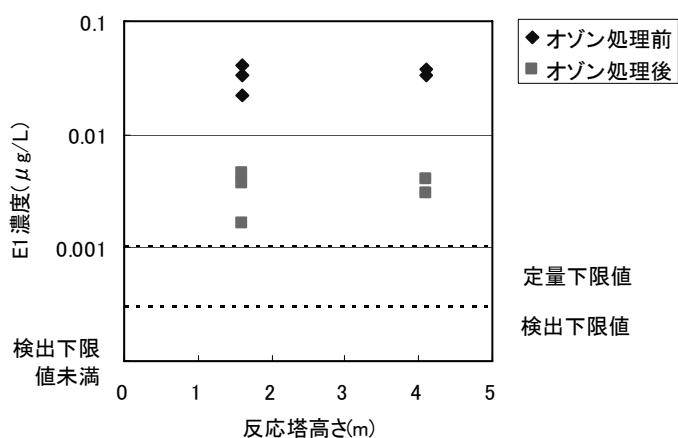


図-16 反応塔高さと E1 除去効果の関係
(オゾン注入率；約 1.5mg/L、
オゾン処理前 E₂₆₀；0.09 以上)

4. まとめ

内分泌かく乱物質の除去を効率的に行うためのオゾン処理運転方法を確立するため、パイロットプラント実験を実施した。結果を以下に整理する。

- (1) 接触時間約 3～15min、反応塔高さ 1.6～4.1m の範囲で、オゾン注入率が約 1.5～5mg/L の範囲では、BPA についてはオゾン注入率約 5mg/L で、NP と E2 についてはオゾン注入率約 3mg/L 以上で殆ど検出下限値未満まで除去された。一方、E1 についてはオゾン注入率約 5mg/L で定量下限値未満まで除去された。
- (2) オゾン注入率が約 1.5 mg/L の場合とオゾン注入率が約 3.5～5mg/L かつ反応塔高さが 1.6m の場合に、大腸菌群または大腸菌が除去されないケースがあったため、これらの条件を採用あるいは適用する場合には、消毒効果が期待できない可能性が高いことが示唆された。
- (3) NP、BPA、E2、E1 の除去効果に違いが見られたオゾン注入率が約 1.5mg/L の条件において、オゾン接触時間約 3～15min の範囲では、接触時間によるそれらの除去効果の明確な違いは見られなかった。
- (4) オゾン注入率約 1.5mg/L の条件において、オゾンにより酸化されやすい不飽和結合を有する有機物の指標である E₂₆₀ が 0.09 以下では、NP、BPA 及び E2 は検出下限値未満に、E1 は定量下限値以下に除去されており、オゾンとの反応における競合物質の簡便な指標として E₂₆₀ を用いることの可能性が示唆された。

なお、本研究は、技術研究開発調査費により実施されたものである。

参考文献

- 1) 国土交通省都市・地域整備局下水道部：平成 12 年度下水道における内分泌攪乱化学物質に関する調査報告書、2001.3.
- 2) 環境省総合環境政策局環境保険部：ノニルフェノールが魚類に与える内分泌攪乱作用の試験結果に関する報告（案）、2001.8.
- 3) (財) 下水道新技術推進機構：二次処理水を対象としたオゾン処理システム技術マニュアル、1997.6.
- 4) 国土技術政策総合研究所：水循環再生技術の開発に関する研究、平成 14 年度下水道関係調査研究年次報告書集、国総研資料第 138 号、pp.257-262、2003.

3. 生態系の観点からみた下水再生システムのあり方に関する研究

下水処理研究室 室 長 南山 瑞彦
研究官 荒谷 裕介
研究官 平出 亮輔

1. はじめに

下水道の普及に伴って下水処理水の量も増加し、平成 15 年度で年間約 137 億 m^3 の処理水が日本全国の下水処理場から放流されるに至り¹⁾、水循環における下水道の役割が増す中で、処理水を有効活用することによって、良好な水環境の創出等に役立てる機運が高まっている。都市部においては、都市化の過程で失われた水との触れ合いの場を再生・創出するために、下水処理水を積極的に活用することによってせせらぎ等の水辺環境を整備する事例が増えている²⁾。せせらぎ等の水辺環境は、様々な水生生物が生息する貴重な空間として位置づけられることから、下水処理水の性状が水生生物に影響を及ぼすと考えられる。しかし、これらの水辺環境に生息する水生生物と下水処理水の性状との関係については明確になっていないのが現状である。

これまで、栄養塩類濃度の違いが付着藻類相に及ぼす影響に関する室内水路実験を行い、1)硝酸性窒素($\text{NO}_3\text{-N}$)濃度が 1.1~43mg/Lの濃度範囲においては、付着藻類生物量との関係は認められない、2)リン酸態リン($\text{PO}_4\text{-P}$)濃度が 0.04~0.09mg/Lの濃度範囲において、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が高くなるにつれて付着藻類生物量が増加するとともに緑藻類が優占する傾向を示す、との知見を得ている³⁾。

本調査は、栄養塩類に関する室内水路実験で得られた知見を検証することを目的として、人工のせせらぎ水路を対象としたフィールド調査を実施した。対象としたせせらぎ水路は、水道水を用いて暫定的に運転された後に、下水処理水を再生水として活用することによって本格的に運転が開始された施設である。水道水と再生水では栄養塩類濃度が異なることから、栄養塩類濃度の変化と水路内に形成される付着藻類相の関係を比較・検討した。

2. 調査方法

2.1. 調査期間および調査箇所

香川県多度津町は、①下水処理場の水資源を活用した節水型リサイクル社会の形成、②公共用水域の水質及び環境保全、③慢性的渇水に対する安全度の向上、④人と水との接点としての自然的水環境の再生・安らぎある町空間の創出、の4つのテーマを柱とした「多度津町再生水利用計画」を策定している⁴⁾。この計画では、香川県中讃流域下水道金倉川浄化センターの下水処理水のうち 10,000 m^3 /日を町の独自施設である水環境処理施設においてオゾン処理や活性炭吸着処理などを行った後に、農業用水、河川浄化用水、親水用水等に利用することとしている⁴⁾。同計画において整備された施設の一部である栄町せせらぎ水路（以下、せせらぎ水路）は、平成 13 年 11 月より水道水を用いて暫定運転が開始され、平成 16 年 5 月より、下水処理水を用いた運転が開始された。

本調査は、水道水による運転期間のうち平成 16 年 1 月～平成 16 年 3 月（以下、水道水調査 1）、平成 16 年 2 月～平成 16 年 3 月（以下、水道水調査 2）、再生水による運転期間のうち平成 16 年 9 月～平成 16 年 11 月（以下、再生水調査 1）、平成 17 年 1 月～平成 17 年 3 月（以下、再生水調査 2）の合計 4 回実施した。

全長 92.2m、幅 0.7m のせせらぎ水路上流の吐水口（放流下）直下の 1 地点を調査地点とした。水路への供

給水は、水道水、若しくは標準活性汚泥法によって処理された未消毒の処理水を水環境処理施設でさらに[ろ過⇒オゾン消毒⇒活性炭吸着]処理された再生水である。せせらぎ水路流末に達した水は再度水路上流までポンプアップされて循環利用される（6 ターン/日）。循環の過程で蒸発等により減少した水量を補給する目的で給水されるとともに、消毒を目的として循環水の一部に[ろ過⇒紫外線消毒]処理がされている。水道水から再生水による運転に切り替える際は、全ての水を排出した後に改めて再生水を供給し、水道水の影響を排除したうえで運転を再開した。

2.2. 分析

調査地点に素焼き製の付着板をサンプリング回数分設置し、約 1～2 週間おきに付着板を回収して付着藻類を採取するとともに、水質分析用サンプルも併せて採取し、下記の項目について分析を行った。

2.2.1. 付着藻類

種名および細胞数について分析を行った。試料をよく混合して全容量を測定した後に一定量を取って顕微鏡で観察し、同定及び計数を行った。

2.2.2. 水質

pH、溶存酸素(DO)、生物化学的酸素要求量(BOD)、窒素化合物、リン化合物及び総残留塩素について分析を行った。

pH 及び DO は、HORIBA 社製水質チェッカーU-10 を用いたガラス電極法(pH)及び隔膜式ガルバニ電池法(DO)により測定した。

BODは、河川水質試験方法（案）^{5)9.}に記載の一般希釈法により測定した。

窒素化合物(T-N,NO₃-N,NO₂-N,NH₄-N)は、河川水質試験方法（案）^{5)53.}に記載の自動分析法及びペルオキシ二硫酸カリウム分解-銅・カドミウムカラム還元法により測定した。

リン化合物(T-P,PO₄-P)は、河川水質試験方法（案）^{5)54.}に記載の自動分析法及びペルオキシ二硫酸カリウム分解-吸光光度法により測定した。

総残留塩素は、SIBATA 社製残留塩素測定器を用いた DPD 法により測定した。

表－1 せせらぎ水路の環境条件（調査期間平均値）

項目	単位	水道水		再生水	
		1回目	2回目	1回目	2回目
		H16.1-H16.3	H16.2-H16.3	H16.9-H16.11	H17.1-H17.3
水深	cm	13	13	27	26
流速	cm/s	19	15	11	13
気温	℃	7.1	9.8	24	10
水温	℃	9.4	12	25	11
pH		7.8	8.0	7.3	7.5
DO	mg/L	9.0	8.7	6.3	9.6
BOD	mg/L	8.4×10^{-1}	7.1×10^{-1}	7.4×10^{-1}	8.6×10^{-1}
T-N	mg/L	8.8×10^{-1}	6.8×10^{-1}	6.9	6.9
NH ₄ -N	mg/L	2.0×10^{-2}	8.8×10^{-3}	2.4×10^{-2}	2.7×10^{-2}
NO ₂ -N	mg/L	1.0×10^{-2}	6.5×10^{-3}	2.4×10^{-2}	4.6×10^{-2}
NO ₃ -N	mg/L	6.1×10^{-1}	3.9×10^{-1}	5.6	5.7
T-P	mg/L	2.9×10^{-2}	2.7×10^{-2}	1.7×10^{-2}	4.4×10^{-2}
PO ₄ -P	mg/L	8.4×10^{-3}	5.6×10^{-3}	7.8×10^{-3}	1.2×10^{-2}
総残留塩素	mg/L	ND	ND	—	—
N/P比	mol/mol	50	48	501	344

ND: 0.05mg/L以下

3. 調査結果及び考察

3.1. 調査期間におけるせせらぎ水路の環境条件

調査期間におけるせせらぎ水路の環境条件を表－1 に示す。

流速は、4 回の調査で大きな違いは見られず、水道水調査 1,2 において 15～19 cm/s、再生水調査 1,2 において 11～13 cm/s であった。一方、水深は、水道水調査 1,2 において 13cm であったのに対し、再生水調査 1,2 において 26～27cm と再生水調査時に約 2 倍深かった。流速及び水深の違いは、水道水から再生水へ運転を切り替えた際に流量を変更したことが原因と考えられる。

水温は、気温の低い時期の調査である水道水調査 1,2 及び再生水調査 2 においてそれぞれ 9.4～12℃、11℃ と大きな違いが見られなかった。一般的に、下水処理水の水温は河川水や水道水に比べて高いが、今回の調査地点が処理施設から幹線延長で約 4km 離れていることから送水過程で水温が低下し、従って調査地点においては処理水が要因と考えられる水温の差は現れなかったものと推察される。一方、気温が高い時期の調査である再生水調査 1 においては 25℃ と高い値を示した。

pH、DO 及び BOD については、4 回の調査で大きな違いは見られず、それぞれ 7.3～8.0(pH)、6.3～9.6 mg/L(DO)、 $7.1 \times 10^{-1} \sim 8.6 \times 10^{-1}$ mg/L(BOD)であった。

窒素については、硝酸態窒素 ($\text{NO}_3\text{-N}$) 濃度に関して、水道水調査 1,2 と再生水調査 1,2 の間で大きな違いが見られた。 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の差が全窒素(T-N)濃度の違いに現れ、水道水調査時に $6.8 \times 10^{-1} \sim 8.8 \times 10^{-1}$ mg/Lであったのに対し、再生水調査時は 6.9mg/L と一桁近く高い値となった。

リンについては、全リン(T-P)濃度は 4 回の調査で大きな違いは見られず $1.7 \times 10^{-2} \sim 4.4 \times 10^{-2}$ mg/L(T-P)の範囲にあった。一方、リン酸態リン($\text{PO}_4\text{-P}$)濃度は、再生水調査 2 において僅かに高い状態であり、水道水調査 1,2 及び再生水調査 1 において $5.6 \times 10^{-3} \sim 8.4 \times 10^{-3}$ mg/Lであったのに対し、再生水調査 2 においては 1.2×10^{-2} mg/Lであった。

水道水調査 1,2 における総残留塩素濃度は検出限界 (0.05mg/L) 以下となった。これは、循環水に対して補給されている水道水が僅かであること、循環運転中に落ち葉等還元物質によって塩素が消費されたこと等によるものと考えられる。

3.2. 生物量

付着藻類生物量の経日変化を図-1 に示す。

調査期間における最大生物量については、水道水調査と再生水調査の間で大きな違いは見られず、水道水に対して一桁近く高い再生水の T-N 及び $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は生物量に影響を与えなかった。著者らが行った既往の研究結果から栄養塩類濃度と付着藻類との関連性に関して、1) $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が $1.1 \sim 4.3$

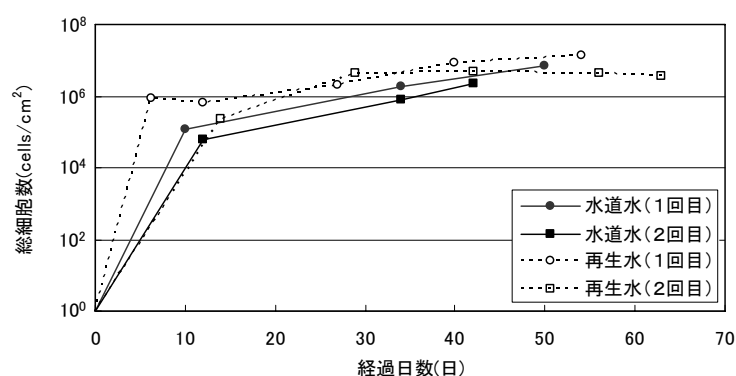


図-1 付着藻類生物量の経日変化

$\times 10^1$ mg/Lの濃度範囲においては、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度と付着藻類生物量との関係は認められない、2) $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が $4.0 \times 10^{-2} \sim 9.0 \times 10^{-2}$ mg/Lの濃度範囲において、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が高くなるにつれて生物量が増加する、との知見を得ている³⁾。再生水調査 1,2 における $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度はそれぞれ 5.6 mg/L、5.7 mg/Lと既往の研究結果の濃度範囲にある一方、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度は 7.8×10^{-3} mg/L、 1.2×10^{-2} mg/Lと既往の研究よりもさらに低い濃度レベルにあった。従って、再生水調査 1,2 は $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が生物量に影響を及ぼす栄養制限下にあり、水道水調査 1,2 と生物量の点で大きな違いが見られなかったものと推定される。

栄養塩類以外に付着藻類の増殖を支配する環境要因として水温や光が挙げられるが、水温や光条件が異なっていたと考えられる水道水調査と再生水調査において生物量に大きな違いが見られなかった。水温および光が複雑に作用する水環境において栄養塩類のうちリン濃度を低下させたことがその要因と考えられるが、今後、実験等を行うことによってさらに検討する必要がある。

3.3. 出現種

類別細胞数の経日変化を図-2 に、調査期間において細胞数が最大 (以下、最大細胞数) となった時点の類別細胞数を図-3 に、細胞数による優占上位 3 種を表-2 にそれぞれ示す。

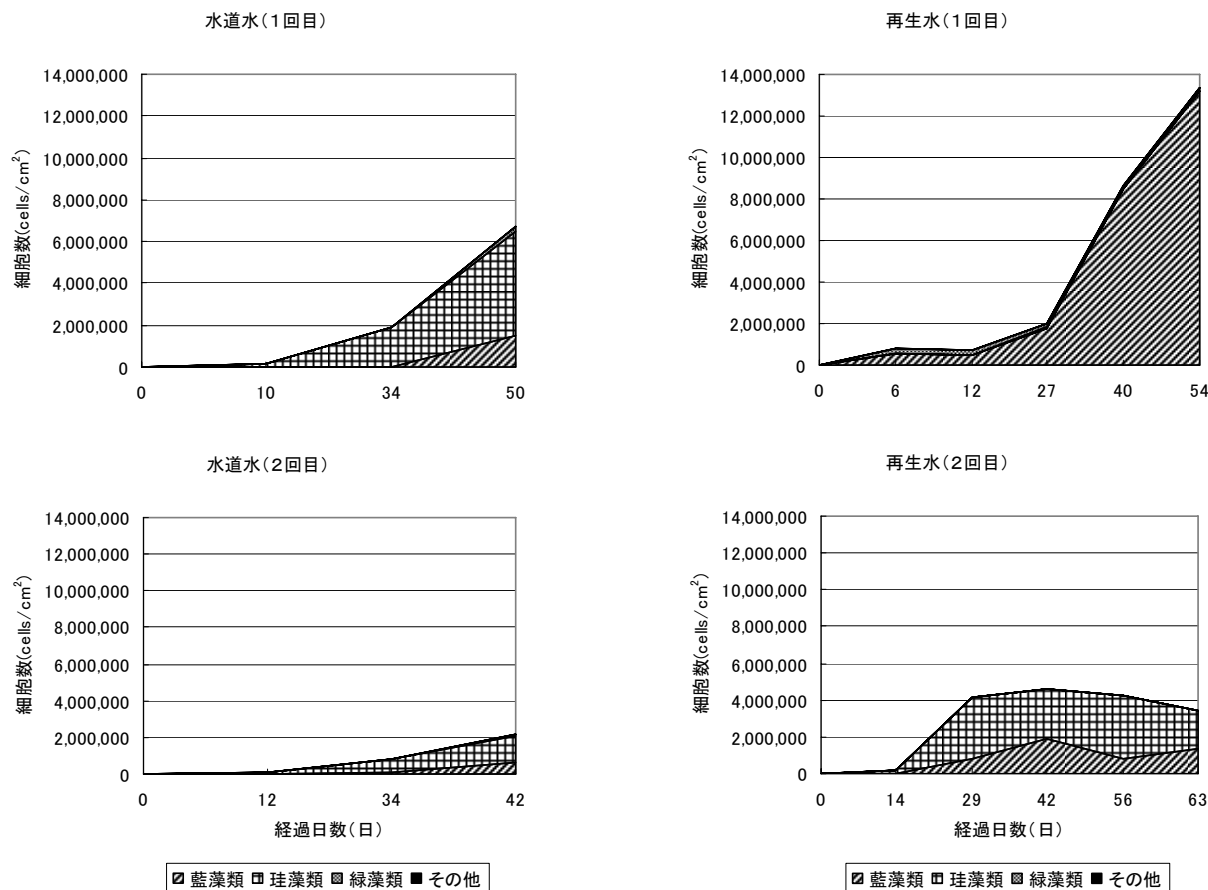


図-2 類別細胞数の経日変化

水道水調査 1,2 においては、調査開始時点では珪藻類が出現し、日数が経過してから藍藻類が出現し始めたのに対し、再生水調査 1 では、調査開始時点で藍藻類及び緑藻類が出現し、日数の経過とともに藍藻類の優占性が高まった（図-2、図-3）。水道水調査 1,2 においては、珪藻類の *Achnanthes* 属、*Synedra* 属、*Cymbella* 属、藍藻類の *Phormidium* 属、*Oscillatoria* 属が優占して出現したのに対し、再生水調査 1 においては、藍藻類の *Phormidium* 属、*Homoeothrix* 属、*Aphanocapsa* 属、PLEUROCAPSACEAE、緑藻類の *Ulothrix* 属、CHLOROPHYCEAE が優占し、珪藻類は優占種上位 3 種に現れなかった。優占種上位 3 種において *Phormidiumu* 属が僅かに共通した種として挙げられるが、再生水調査 1 の 6 日目以降には優占種として出現しなかったことから、水道水調査 1,2 と再生水調査 1 は、ほぼ異なった種の構成となっていた（表-2）。

再生水調査 2 においては、調査開始時点から終了に至るまで藍藻類及び珪藻類が出現し、最大細胞数時の類別細胞数においても水道水調査 1,2 の出現傾向と類似していた（図-2、図-3）。一方、優占種上位 3 種を比較すると、再生水調査 2 においては、珪藻類の *Fragilaria* 属、*Achnanthes* 属、藍藻類の *Phormidium* 属、*Aphanocapsa* 属、緑藻類の *Ulothrix* 属が優占していた。珪藻類の *Achnanthes* 属および藍藻類の *Phormidium* 属が僅かに水道水調査 1,2 と共通した優占種であったが、珪藻類や藍藻類が優占する傾向は水道水調査 1,2 と

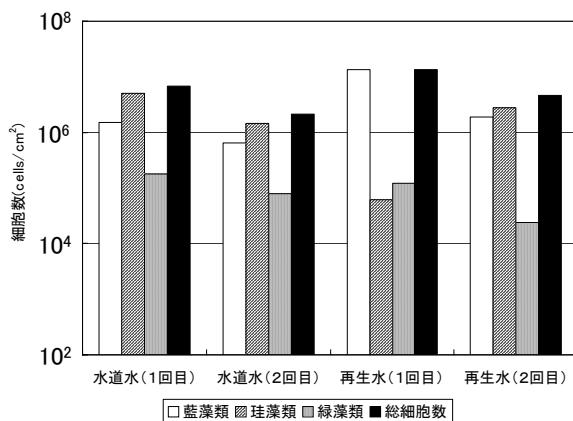


図-3 類別細胞数（最大細胞数時）

表－2 優占種上位 3 種

水道水(1回目)

経過日数	第1優占種			第2優占種			第3優占種			優占上位 3種占有率
	種名		細胞数 占有率	種名		細胞数 占有率	種名		細胞数 占有率	
10日	<i>Achnanthes minutissima</i>	珪藻	73%	<i>Synedra rumpens</i>	珪藻	11%	<i>Cymbella turgidula</i>	珪藻	9.4%	94%
34日	<i>Synedra rumpens</i>	珪藻	74%	<i>Achnanthes minutissima</i>	珪藻	24%	<i>Cymbella turgidula</i>	珪藻	0.50%	99%
50日	<i>Synedra rumpens</i>	珪藻	55%	<i>Achnanthes minutissima</i>	珪藻	18%	<i>Phormidium</i> sp.	藍藻	11%	84%

水道水(2回目)

経過日数	第1優占種			第2優占種			第3優占種			優占上位 3種占有率
	種名		細胞数 占有率	種名		細胞数 占有率	種名		細胞数 占有率	
12日	<i>Synedra rumpens</i>	珪藻	87%	<i>Achnanthes minutissima</i>	珪藻	6.8%	<i>Phormidium</i> sp.	藍藻	4.4%	98%
34日	<i>Synedra rumpens</i>	珪藻	56%	<i>Achnanthes minutissima</i>	珪藻	24%	<i>Phormidium</i> sp.	藍藻	13%	94%
42日	<i>Synedra rumpens</i>	珪藻	60%	<i>Oscillatoria</i> sp.	藍藻	18%	<i>Phormidium</i> sp.	藍藻	9.7%	87%

再生水(1回目)

経過日数	第1優占種			第2優占種			第3優占種			優占上位 3種占有率
	種名		細胞数 占有率	種名		細胞数 占有率	種名		細胞数 占有率	
6日	<i>Phormidium mucicola</i>	藍藻	44%	<i>Ulothrix</i> sp.	緑藻	30%	<i>Homoeothrix janthina</i>	藍藻	18%	92%
12日	<i>Homoeothrix janthina</i>	藍藻	38%	<i>Ulothrix</i> sp.	緑藻	31%	<i>Aphanocapsa</i> sp.	藍藻	19%	88%
27日	<i>Homoeothrix janthina</i>	藍藻	84%	<i>Ulothrix</i> sp.	緑藻	7.4%	CHLOROPHYCEAE	緑藻	3.6%	95%
40日	<i>Homoeothrix janthina</i>	藍藻	98%	<i>Ulothrix</i> sp.	緑藻	1.1%	PLEUROCAPSACEAE	藍藻	0.50%	99%
54日	<i>Homoeothrix janthina</i>	藍藻	97%	<i>Aphanocapsa</i> sp.	藍藻	1.2%	<i>Ulothrix</i> sp.	緑藻	0.90%	100%

再生水(2回目)

経過日数	第1優占種			第2優占種			第3優占種			優占上位 3種占有率
	種名		細胞数 占有率	種名		細胞数 占有率	種名		細胞数 占有率	
14日	<i>Fragilaria capucina</i> v. <i>gracilis</i>	珪藻	85%	<i>Achnanthes minutissima</i>	珪藻	13%	<i>Ulothrix</i> sp.	緑藻	1.3%	99%
29日	<i>Fragilaria capucina</i> v. <i>gracilis</i>	珪藻	72%	<i>Phormidium</i> sp.	藍藻	15%	<i>Achnanthes minutissima</i>	珪藻	8.1%	95%
42日	<i>Fragilaria capucina</i> v. <i>gracilis</i>	珪藻	45%	<i>Phormidium</i> sp.	藍藻	35%	<i>Achnanthes minutissima</i>	珪藻	13%	93%
56日	<i>Fragilaria capucina</i> v. <i>gracilis</i>	珪藻	42%	<i>Achnanthes minutissima</i>	珪藻	35%	<i>Aphanocapsa</i> sp.	藍藻	12%	89%
63日	<i>Fragilaria capucina</i> v. <i>gracilis</i>	珪藻	49%	<i>Phormidium</i> sp.	藍藻	38%	<i>Achnanthes minutissima</i>	珪藻	8.7%	95%

類似していた（表－2）。

再生水調査 2 と比較して水温が高い再生水調査 1 において、藍藻類の *Phormidium* 属や *Homoeothrix* 属が調査期間を通じて第 1 優占種であったこと、水道水調査 1 から 2 にかけて水温が高くなるにつれて藍藻類の *Phormidium* 属が調査の早い段階から優占して出現したことから、水温と藍藻類の優占性に関係があることがうかがわれる。水温の変化と付着藻類相との関連性について、今後、さらに検討を行う必要がある。

NO₃-N濃度が 3.9×10⁻¹～6.1×10⁻¹ mg/L、PO₄-P濃度が 5.6×10⁻³～8.4×10⁻³ mg/Lの濃度範囲にある水道水

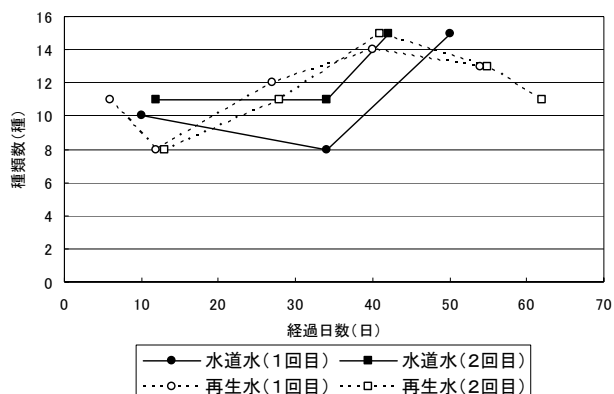


図-4 種類数の経日変化

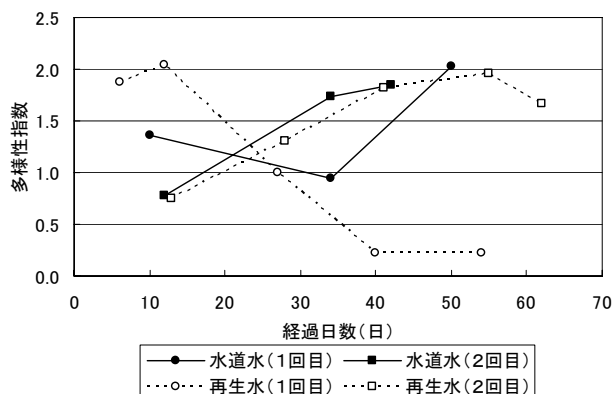


図-5 多様性指数の経日変化

調査 1,2 においては緑藻類が優占種として出現しなかったのに対し、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が $5.6 \sim 5.7 \text{ mg/L}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が $7.8 \times 10^{-3} \sim 1.2 \times 10^{-2} \text{ mg/L}$ の濃度範囲にある再生水調査 1,2 において、緑藻類の *Ulothrix* 属や *CHLOROPHYCEAE* が優占して出現した。著者らが行った室内実験水路を用いた研究によると、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が $4.1 \sim 4.4 \text{ mg/L}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が $4.0 \times 10^{-2} \sim 9.0 \times 10^{-1} \text{ mg/L}$ の濃度範囲において、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が高くなるにつれて緑藻類が優占する傾向を示した³⁾。また、著者らが行った現地調査によると、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が $4.4 \sim 6.8 \text{ mg/L}$ の濃度レベルにおいて、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が $7.0 \times 10^{-2} \sim 3.7 \times 10^{-1} \text{ mg/L}$ から $7.9 \times 10^{-1} \sim 1.2 \text{ mg/L}$ の濃度レベルに高くなるに従って緑藻類が優占して出現した³⁾。 $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度と糸状性緑藻類との関連性に関する知見^{6,7,8)}もあることから、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が緑藻類の優占性に影響を及ぼしているものと考えられる。

3.4. 多様性

調査期間における経過日数と種類数の関係を図-4 に、Shannonの多様性指数⁹⁾との関係を図-5 にそれぞれ示す。4回の調査において種類数に大きな違いは見られず、8～15種の範囲内にあった。一方、多様性指数については、再生水調査 1 において他の 3 ケースと大きく異なる傾向を示し、調査開始時点では最も高かったのに対し、時間の経過とともに極端に低下し、調査終了時点では最も低い値を示した。調査開始 6 日後には、藍藻類の *Phormidium mucicola* が 44%、緑藻類の *Ulothrix* sp. が 30%、藍藻類の *Homoeothrix janthina* が 18% であったのに対し、調査終了時の 54 日後には、*Homoeothrix janthina* が 97% と大幅に増加し、*Ulothrix* sp. が 0.90% と極端に減少したことが、多様性指数が低下した原因である。

一般的には、多様な生物が生息する環境が生物にとって好ましい環境と思われるが、再生水調査 1 において多様性低下の要因となった藍藻類の *Homoeothrix janthina* は、日本の比較的清浄な河川における代表的な付着藻類群集であるとの報告がある^{10,11)}。従って、生物にとって良好な生息環境との視点から評価するためには、多様性以外に汚濁指数等生物生息環境に関する指標を用いるとともにさらに知見を収集することによって総合的に評価する必要がある。

4. まとめ

本調査は、水道水による運転から下水処理水を再生水として活用した運転に変更された人工のせせらぎ水路を調査対象とし、水道水および再生水の栄養塩類濃度の違いと水路に形成される付着藻類相の関係を比較・検討することによって、下水処理水を活用することによる水生生物相に及ぼす影響を解明することを試みた。その結果、以下のことが明らかとなった。

- ・ 下水処理水を再生水として活用した場合でも、リンを水道水と同じレベルにまで低下させることによって付着藻類の生物量に影響を及ぼさない可能性が示された。

- ・ 再生水によって創出された水辺環境において、日本の比較的清浄な河川における代表的な付着藻類群集の一つである藍藻類の *Homoeothrix janthina* が優占して出現した。
- ・ 1月～3月の調査においては、水道水調査、再生水調査ともに珪藻類および藍藻類が優占して出現し、類別細胞数にも大きな違いは見られなかった。
- ・ 付着藻類の種類数については、水道水及び再生水で形成された水辺環境において大きな違いは見られなかった。

今後は、栄養塩類濃度以外の影響因子である水温や光条件と付着藻類相の関係に関する基礎的データを蓄積することによって、今回得られた調査結果を詳細に分析するとともに、下水処理水を再生水として活用する場合に求められる下水処理レベルの目標設定や、再利用先の水辺環境のあり方に関する基礎情報としたい。

謝辞：本調査を行うにあたりご協力いただいた多度津町役場建設下水道課の皆様に厚く御礼申し上げます。

なお、本研究は、地球環境保全等試験研究費により実施されたものである。

【参考文献】

- 1)下水道統計 平成15年度版、(社)日本下水道協会
- 2)日本の下水道 平成16年版、(社)日本下水道協会
- 3)荒谷裕介、竹歳健治、田嶋淳、中島英一郎、南山瑞彦：下水処理水中の栄養塩類濃度および残留塩素濃度と放流先に生成する付着藻類相の関係、下水道協会誌、Vol.42、No.510、111-123、2005/04
- 4)田中貫吾：多度津町再生水利用計画について、下水道協会誌、Vol.41、No.506、36-39、2004/12
- 5)河川水質試験方法(案)1997年版、技報堂出版
- 6)久納 誠、丹羽 薫：糸状藻類の溶解性オルトリン酸態リンの吸収能における濃度および水温依存性、水環境学会誌、第20巻、第4号、269-277、1997
- 7)Elwood J.W., Newbold J.D. Trimble A.F. and Stark A.F. (1981). The Limiting Role of Phosphorus in a Woodland Stream Ecosystem: Effects of P Enrichment on Leaf Decomposition and Primary Producers. *Ecology*, 62(1), 146-158.
- 8) Rosemarin A.S. (1983). Direct Examination of Growing Filaments to Determine Phosphate Growth Kinetics in *Cladophora glomerata* (L.) Kutz and *Stigeoclonium tenue* (Agardh) Kutz. In: *Periphyton of Freshwater Ecosystems*, Wetzel R.G. (ed.), Dr. W. Junk Publishers, The Hague, The Netherlands, 111-119.
- 9) 秋山優、有賀祐勝、坂本充、横浜康継 共編：藻類の生態、596-597、内田老鶴圃
- 10)後藤敏一、根来健一郎：清澄な河川 宇川(京都府)の珪藻植生、陸水学雑誌 47、77-86、1986
- 11)田中志穂子、渡辺仁治：日本の清浄河川における代表的付着藻類群集 *Homoeothrix janthina*-*Achnanthes japonica* 群集の形成過程、藻類 Jpn.J.Phycol.38、167-177、June 20、1990

4. 河川等環境中における化学物質リスクの評価に関する研究

下水道研究部長	高橋 正宏
下水道研究官	清水 俊昭
下水処理研究室	室 長 南山 瑞彦
	研 究 官 山縣 弘樹

1. はじめに

環境ホルモン等の化学物質によるヒトや生態系への影響は、社会的に大きな問題となっているところである。また、平成 11 年に「特定化学物質の環境への排出量の把握等及び管理の改善の促進に関する法律」によって PRTR 制度（Pollutant Release and Transfer Register：環境汚染物質排出移動登録制度）が導入され、事業者は 354 物質の排出や移動について登録しなければならないこととなった。さらに、水生生物保全という新たな観点から環境基準の検討が行われ、平成 15 年 11 月 5 日環境省告示第 123 号によって全亜鉛が環境基準として位置づけられた。以上のように、近年、化学物質に対する関心が非常に高まっているところである。

国土交通省は、河川、下水道、道路等を管理する立場から、環境中における化学物質のリスク管理を、地域の利害関係者とともに担っていく責務を負っている。しかしながら、膨大な種類の化学物質について、流域全体での発生量や水環境中での変化を測定することは、物理的にも経済的にも不可能に近く、対象とする流域で、どの物質のリスクが高いのか、どの物質を優先して調査すべきかを把握することは容易ではない。こうしたなかで、平成 14 年度から PRTR の集計結果の公表が開始されたことにより、対象流域における化学物質排出実態の概要が把握可能となってきた。そこで本研究は、PRTR の情報を元に、河川流域における化学物質の排出量や水環境中での挙動を把握するための実態調査手法を明らかにし、さらには実態を基にしたリスク評価を行い、その結果を地域の関係者と共有して、流域のリスク管理を進める手法を確立することを目的とするものである¹⁾。

2. 研究の全体計画及び過年度の内容

2.1 全体計画

本研究の全体計画は、図 1 に示すスキームに従うものとする。

まず①リスク評価対象化学物質の絞り込みを行う。絞り込みに当たっては、環境省等が公表している環境基準、PRTR や環境ホルモン等に関する情報を基に行う。次に、②流域の PRTR 情報の整理を行う。届出事業所の取扱物質、公共用水域への排出量及び下水道への移行量については、公表されている PRTR データより直接拾うことができるが、届出義務のない小規模事業所、家庭、農地からの化学物質量を推計するために、モデル流域において、面積・人口・土地利用・工場出荷額等の流域の基礎情報を収集することが必要である。さらに、絞り込まれた対象化学物質について、③水環境中の実態調査を行う。なお、PRTR データはあくまで、年間排出量であり、排出源の特性によっては排出される期間が特定の時間に集中する場合があること、下水道へ排出された化学物質は下水処理の過程で除去や質変換を受ける可能性があること、水環境中でも同様に沈殿、吸着、化学的質変換が起こりうることを考慮した調査計画を立案する必要がある。そして、PRTR 情報と実態調査結果を基に、④対象化学物質の排出源特定と流域での挙動把握を行う。その際は、水環境中の化学物質挙動モデルや、流域情報の GIS 化による小規模事業所、家庭、農地からの排出量の効率的な評価が必要となる。

以上が下水処理研究室の研究担当部分であるが、④対象化学物質の排出源特定と流域での挙動把握の結果を受けて、排出源者、水利用者など関係者を特定したうえで、⑤関係者とのコミュニケーション、⑥リスク低減のための対策の実施という一連のリスク管理の方法論については、河川環境研究室、住宅情報システム研究官と連携して研究を実施する。具体的には、関係者とのコミュニケーションを円滑に行うため、化学物質の排出源や環境での実態、リスクや対策による効果等の関係者が求める情報を分かりやすく提示するコミュニケーションツールの開発や、ファシリテータ（議論の司会者）、インタプリタ（専門情報の解説者）等を介した効果的なコミュニケーション手法の確立である。

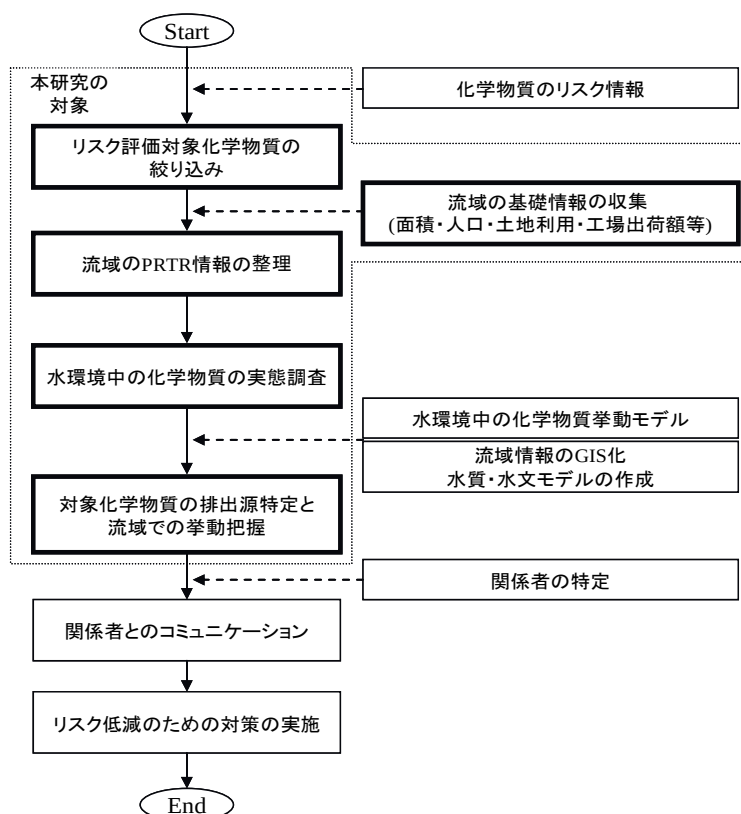


図-1 水域における化学物質リスク管理のスキームと本研究の対象範囲

2.2 過年度の内容²⁾

平成 15 年度は、モデル河川を選定し、リスク評価対象化学物質の絞り込みを行うとともに、モデル河川での化学物質の存在量調査を実施した。その結果を以下に示す。

- 1) 平成 13 年度の PRTR の集計結果を用いて、①関東地方にある、②化学物質の流入量が多い、③適当な規模である（大きすぎない）の条件を満たす谷田川（群馬県館林市）をモデル河川に選定した。
- 2) 人の健康に関する環境基準及び要監視項目、水環境保全に向けた取組のための要調査項目、水生生物保全に関する環境基準及び要監視項目、平成 13 年度 PRTR における公共用水域への排出量上位物質及び下水道からの排出量上位物質、河川において重要と考えられる内分泌かく乱物質等の情報を基に、30 物質を対象化学物質に選定した。
- 3) モデル河川における対象化学物質の存在量実態調査を行い、30 物質中 17 物質が検出された。

3. 目的

平成 16 年度は、前年度調査でモデル河川から検出された対象化学物質について、水中・懸濁物・底質を含めた河川中での挙動実態の把握を行い、人の健康及び水生生物保護の観点から内外の知見を基に濃度の評価を試みた。そして、検出された対象化学物質の排出源の把握のために、モデル河川に流入する下水処理場の流入水及び放流水中の対象化学物質の実態調査を行うとともに、モデル河川の流域（館林市、明和町、千代田町、邑楽町）で PRTR に基づき化学物質の排出量・移動量の届出を行った事業場（以下、「PRTR 届出事業場」）を把握し、PRTR 対象事業場からの対象化学物質の負荷量がモデル河川中の負荷量に占める寄与率について評価を行った。

4. 方法

4.1 対象化学物質のモデル河川における実態把握及びリスク評価

(1) 対象化学物質のモデル河川における実態把握

表-1 に 15 年度調査において対象化学物質に選定した理由、対象化学物質を物性（水・オクタノール分配係数及びヘンリー定数）により分類した結果、モデル河川中での検出状況を示す。16 年度は、検出された対象化学物質のうち、亜鉛及び亜鉛の水溶性化合物、鉛、砒素、マンガン及びその化合物、ニッケル、銅及びその化合物、クロム及び三価クロム化合物、フッ素、ホウ素、ポリオキシエチレン型非イオン界面活性剤、17β エストラジオール、エストロン、ノニルフェノール、ノニルフェノールエトキシレート、ノニルフェノキシ酢酸を対象にモデル河川での水質測定を実施した。

表-1 モデル流域での対象化学物質の検出状況と PRTR 届出状況

項目	グルーピングの境界条件		政令 番号	CAS番号	物質名(政令記載名)	H15 分析	H16 分析	検出	PRTR 開示	環境基準 健康項目	環境基準 水生生物	要監視 健康項目	要監視 水生生物	要調査
	揮発性 ～1.0×10 ⁻³ (揮発しにくい)	吸着性 ～3(Log Pow) (吸着しにくい)												
有機物	1		43	107-21-1	エチレングリコール	○		○	○					
			58	111-87-5	1-オクタノール	○								○
			172	68-12-2	N,N-ジメチルホルムアミド	○		○						
			208	75-87-6	トリクロロアセトアルデヒド	○								
			233	139-13-9	ニトリロ三酢酸	○								○
			266	108-95-2	フェノール	○		○					○	
	2		-	50-27-1	エストリオール	○								
			242	25154-52-3	ノニルフェノール	○	○	○						
			-	112-30-1	1-デシルアルコール(1-デカノール)	○								○
			-	143-08-8	1-ノナノール(1-ノニルアルコール)	○								○
			-	50-28-2	17β エストラジオール	○	○							
			-	53-16-7	エストロン	○	○	○						
	3		95	67-66-3	クロロホルム	○		○				○	○	
			241	75-15-0	二硫化炭素	○		○						○
	4													
	5		-	-	ポリオキシエチレン型非イオン界面活性剤	○	○	○	○					○
	6	情報が不明	309	9016-45-9	ノニルフェノールエトキシレート	○	○	○						
			-	139-33-3	エチレンジアミンテトラ酢酸二ナトリウム(EDTA)	○		○						○
			-	3115-49-9	ノニルフェノキシ酢酸	○	○	○						
無機物	7	無機物	1	-	亜鉛及び亜鉛の水溶性化合物	○	○	○	○		○			
			68	-	クロム及び(三価クロム)化合物	○	○	○	○					
			231	7440-02-0	ニッケル	○	○	○	○			○		
			311	-	マンガン及びその化合物	○	○	○	○			○		○
			-	7440-61-1	ウラン	○								○
			-	7782-41-4	フッ素	○	○	○		○				
			-	-	銅とその化合物	○	○	○	○					○
			*230	7439-92-1	鉛	○	○		○	○				
			*25	7440-36-0	アンチモン	○			○			○		
			*252	7440-38-2	砒素	○	○	○	○	○				
			*304	7440-42-8	ホウ素	○	○	○	○	○				
			*60	7440-43-9	カドミウム	○			○	○				

H15・H16分析: H15年度、H16年度の存在量調査で分析対象とした項目

検出: 存在量調査で対象地点のうち2地点以上で検出された物質(対象地点とは[Y-1-a]、[Y-1-b]、[Y-2-b]、[Y-3-a]を指す。)

PRTR開示: 平成14年度PRTR開示データで排出届出がされている物質

グルーピングの境界条件は、下水道における化学物質リスク管理の手引き(案)(2001)³⁾より引用した。

図-2 にモデル河川における測定ポイントと流域の PRTR 届出事業場の位置を、図-3 にその模式図を示す。
水質測定ポイントは、下水処理場（工業排水のみ受け入れ）の直下（Y-1-a）、上流に工業地帯を抱える地点

(Y-2-b)、Y-1-a と Y-2-b からの河川が合流する地点 (Y-1-b)、下水処理場の放流水が流入した下流の地点 (Y-3-a) の河川 4 箇所と、館林市下水処理場 (水質管理センター) の流入水及び放流水である。それぞれの箇所で 3 時間ごとの 24 時間コンポジット試料を作成した。河川での測定対象試料は水質、懸濁態、底質の 3 種類とした。また、河川の測定点では流量調査も行った。水質測定は平成 16 年 2, 3 月の計 2 回実施した。

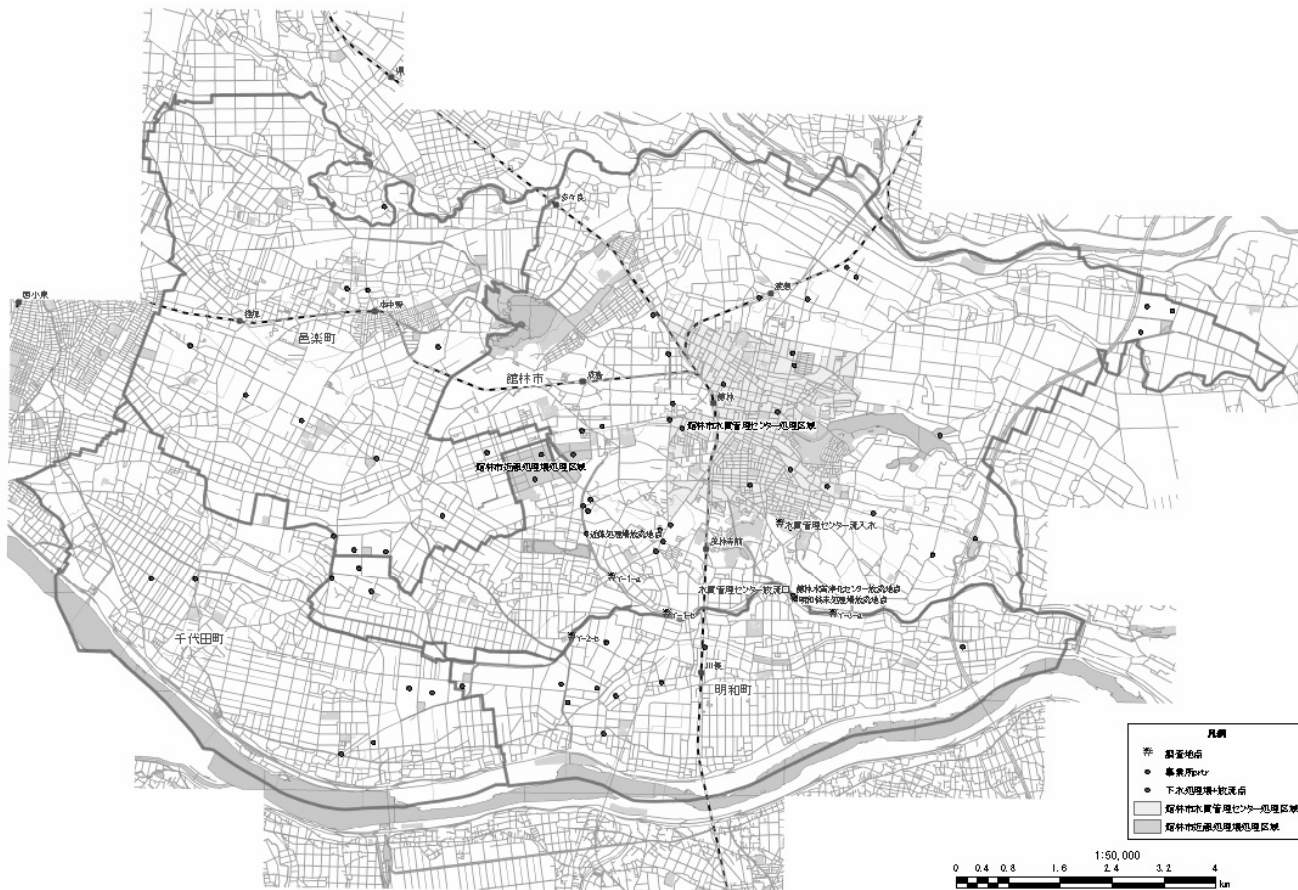


図-2 モデル河川における水質測定点および下水道区域、PRTR 排出事業場の位置

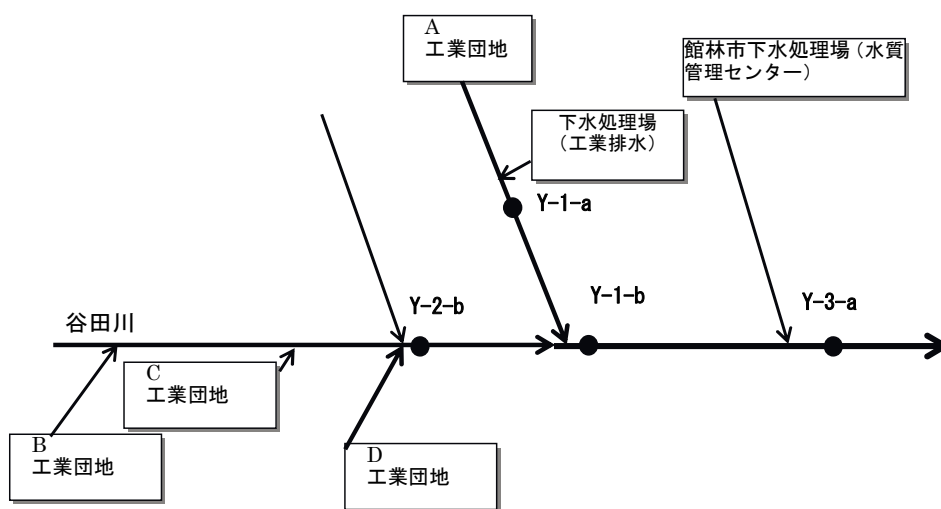


図-3 モデル河川の模式図

(2) 対象化学物質のモデル河川における濃度レベルの評価

モデル河川での実態調査を基に、以下の方法により、水中濃度レベルの評価を試みた。

- ①PRTR対象化学物質の内外の環境基準値やリスク管理の目安となる濃度レベルに関する情報が整理されている「身近な地域で出されている有害化学物質についての情報」（横浜国立大学大学院浦野・亀屋研究室／エコケミストリー研究会）³⁾の「全物質の大気・水域管理参考濃度・毒性重み付け係数総括表」に掲載されている対象化学物質の「人の健康保護のための水域管理参考濃度」及び「水生生物保護のための水域管理参考濃度」を引用した。
- ②測定地点での水中濃度について、人の健康に関する水域管理参考濃度及び水生生物保護に関する水域管理参考濃度を基に、以下のとおり４段階にランク分けした。

ランク１：測定地点で未検出
 ランク２：測定地点の水中濃度／水域管理参考濃度が 0%を超え、50%以下
 ランク３：測定地点の水中濃度／水域管理参考濃度が 50%を超え、100%以下
 ランク４：測定地点の水中濃度／水域管理参考濃度が 100%を超過

4.2 検出された対象化学物質の排出源の把握のための検討

水質・水量測定結果を基に、最下流地点（Y-3-a）での毎秒の物質収支（流量と濃度の積）を 100%とし、対象化学物質毎に下水処理場放流水及び処理場放流口より上流部（Y-1-a、Y-2-b、Y-1-b）での毎秒の物質収支と比較することにより、下水処理場放流水からの寄与を評価した。

さらに、処理場放流口より上流の測定地点（Y-1-a、Y-2-b）より上流部にある PRTR 届出事業場から公共用水域へ排出される対象化学物質（年間負荷量）を集計し、測定地点での毎秒の物質収支と比較することにより、PRTR 届出事業場からの寄与を評価した。

5. 結果及び考察

5.1 対象化学物質のモデル河川における実態把握及び濃度レベルの評価

モデル河川の各測定地点での２回の測定結果の平均値について、人の健康に関する水域管理参考濃度、水生生物保護に関する水域管理参考濃度の観点からランク分けした結果を表・2に示す。人の健康に関する環境基準項目では基準値の超過は見られないが、要監視項目であるマンガン及びその化合物が全域でランク４ないし３であり、Y-1-aでは銅及びその化合物、クロム及び三価クロム化合物、フッ素がランク３となっている。一方水生生物に関する環境基準項目である亜鉛及び亜鉛の水溶性化合物が全域でランク４ないし３であり、同河川は基準値が設定されていないものの、リスク管理の優先度が比較的高いと考えられた。また基準項目ではないが、マンガン及びその化合物、銅及びその化合物、クロム及び三価クロム化合物が一部でランク４であった。なお、17βエストラジオール、エストロン、ノニルフェノールなど内分泌かく乱物質については、水域管理参考濃度が示されていないため、現時点で濃度レベルの評価の対象外としている。

表-2 モデル河川での濃度レベルの評価結果

測定項目	実測濃度／人の健康に関する水域管理参考濃度				実測濃度／水生生物保護に関する水域管理参考濃度			
	Y-1-a	Y-1-b	Y-2-b	Y-3-a	Y-1-a	Y-1-b	Y-2-b	Y-3-a
亜鉛及び亜鉛の水溶性化合物								
鉛								
砒素								
マンガン及びその化合物								
銅及びその化合物								
クロム及び三価クロム化合物								
フッ素								
ホウ素								

リスク評価基準（エコケミストリー研究会より）			
人の健康保護のための水域管理参考濃度		水生生物保護のための水域管理参考濃度	
7.4	水質ガイドライン	0.03	— 基準値等
0.01	環境基準	0.002	— 基準値等
0.01	環境基準	0.033	— 基準値等
0.2	要監視	0.0038	魚類 ACQUIRE等
0.02	WHO飲料水	0.0025	— 基準値等
0.05	WHO飲料水	0.019	— 基準値等
0.8	環境基準	2.9	魚類 ACQUIRE等
1	環境基準	0.66	魚類 ACQUIRE等

実測濃度／水域管理参考濃度： ランク4 >100% ランク3 100%～50% ランク2 50%～0% ランク1 未検出

環境基準設定項目

5.2 検出された対象化学物質の排出源の把握のための検討

モデル河川の最下流地点（Y-3-a）での毎秒の物質収支を 100%とし、対象化学物質毎に下水処理場放流水及び処理場放流口より上流部（Y-1-a、Y-2-b、Y-1-b）での毎秒の物質収支と比較することにより、下水処理場放流水からの寄与を評価した（表-3）。その結果、CODcr、SS については下水放流水の寄与率が 9%,2% であるのに比べ、エストロン、ホウ素については下水放流水の寄与率が 29%, 20%と比較的高い割合であった。一方、その他の化学物質については CODcr、SS と比べて寄与率が低かった。

なお、ノニルフェノールエトキシレート、ノニルフェノール、ポリオキシエチレン型非イオン界面活性剤については、下水放流水の寄与率は 5%以下と低かったが、下水流入水段階での物質収支は 50%以上と高く、下水処理場で高い割合で除去されていることがわかった。

次に、処理場放流口より上流の測定地点（Y-1-a、Y-2-b）より上流部にある PRTR 届出事業場から公共用水域へ排出される対象化学物質（年間負荷量）を集計し、測定地点での毎秒の物質収支と比較することにより、PRTR 届出事業場からの寄与を評価した。その結果、工業排水の処理施設の直下にある Y-1-a 地点では、クロム、銅、ホウ素、亜鉛など PRTR 届出事業場からの寄与が確認されたが、寄与率は 100%から大きく乖離が見られ、PRTR 届出事業場から届出のあった年間負荷量のみで放流先河川での対象化学物質の濃度を評価することは難しいことが示唆された。その理由としては、PRTR 届出事業場からの放流水中の対象化学物質の濃度は、該当事業場の稼働状況等に応じて日変動・季節変動が大きいこと、放流先河川の水量についても日変動・季節変動が考えられること、PRTR 届出対象以下の事業場（いわゆる裾切り事業場）や事業場以外の排出源（生活排水、農業排水等）からの寄与などが考えられた。

表—2 対象化学物質の流下過程での物質収支の変化及び下水放流水の寄与
(Y-3-a での物質収支=100%として換算)

測定項目	モデル河川					下水処理場	
	Y-1-a	Y-2-b	Y-1-a、Y-2-b の合計	Y-1-b	Y-3-a	水質管理セン ター流入水	水質管理セン ター処理水
CODcr	13%	89%	103%	81%	100%	59%	9%
SS	21%	84%	105%	73%	100%	124%	2%
亜鉛及び亜鉛の水溶性化合物	38%	74%	112%	86%	100%	18%	7%
鉛	39%	33%	72%	64%	100%	29%	6%
砒素	13%	70%	83%	94%	100%	6%	5%
マンガン及びその化合物	13%	54%	67%	77%	100%	13%	1%
ニッケル	111%	36%	147%	104%	100%	2%	1%
銅及びその化合物	82%	49%	131%	94%	100%	40%	5%
クロム及び三価クロム化合物	162%	6%	168%	103%	100%	18%	1%
フッ素	69%	33%	101%	91%	100%	3%	2%
ホウ素	194%	325%	519%	436%	100%	49%	29%
ポリオキシエチレン型非イオン界面活性剤	58%	95%	153%	138%	100%	65%	1%
エストロン	4%	66%	71%	46%	100%	24%	20%
ノニルフェノール	51%	70%	121%	107%	100%	77%	4%
ノニルフェノールエトキシレート(n=1)	68%	89%	157%	148%	100%	99%	5%
ノニルフェノールエトキシレート(n=2)	47%	75%	122%	112%	100%	50%	5%
ノニルフェノールエトキシレート(n=3)	42%	117%	158%	148%	100%	57%	3%
ノニルフェノキシ酢酸(n=1)	14%	71%	85%	106%	100%	2%	2%
ノニルフェノキシ酢酸(n=2)	20%	52%	72%	88%	100%	3%	7%
ノニルフェノキシ酢酸(n=3)	18%	57%	75%	99%	100%	4%	3%

6. まとめ

本研究は、PRTR の情報を元に、河川流域における化学物質の排出量や水環境中での挙動を把握するための実態調査手法を明らかにし、さらには実態を基にしたリスク評価を行い、その結果を地域の関係者と共有して、流域のリスク管理を進める手法を確立することを目的とするものである。平成 16 年度の研究内容を以下にまとめる。

- 1) 平成 15 年度にモデル河川から検出された対象化学物質について、水中・懸濁物・底質を含めた河川中での挙動実態の把握を行い、人の健康及び水生生物保護の観点から内外の知見を基に濃度レベルの評価を試みた。その結果、モデル河川では水生生物保護の観点からリスク管理を優先すべき物質として亜鉛が抽出された。
- 2) 検出された対象化学物質の排出源の把握のために、モデル河川に流入する下水処理場の流入水及び放流水中の対象化学物質の実態調査を行った結果、エストロン、ホウ素の下水放流水の寄与率が COD_{Cr}, SS と比べて高かったが、その他の化学物質については寄与率が低かった。またノニルフェノールエトキシレート、ノニルフェノール、ポリオキシエチレン型非イオン界面活性剤については、下水処理場で高い割合で除去されていた。
- 3) モデル河川の流域で PRTR 届出事業場を把握し、PRTR 対象事業場からの対象化学物質の負荷量がモデル河川中の負荷量に占める寄与率の評価を行ったところ、PRTR 届出事業場から届出のあった年間負荷量のみで放流先河川での対象化学物質の濃度を評価することは難しいことが示唆された。その理由としては、PRTR 届出事業場からの放流水中の対象化学物質の濃度は、該当事業場の稼働状況等に応じて日変動・季節変動が大きいこと、放流先河川の水量についても日変動・季節変動が考えられること、PRTR 届出対象以下の事業場（いわゆる裾切り事業場）や事業場以外の排出源（生活排水、農業排水等）からの寄与が考えられた。

なお、本調査研究は、試験研究費により実施されたものである。

参考文献

- 1) 高橋正宏(2004)、水環境中の化学物質の総合的評価、国土技術政策総合研究所アニュアルレポート 2004、pp. 34-37
- 2) 高橋正宏・斎野秀幸(2005)、河川等環境中における化学物質リスクの評価に関する研究、平成 15 年度下水道関係調査研究年次報告書集、国土技術政策総合研究所資料第 228 号、pp. 227-234
- 3) 日本下水道協会(2001)、下水道における化学物質リスク管理の手引き(案)、p. 230
- 4) 横浜国立大学大学院浦野・亀屋研究室・エコケミストリー研究会、身近な地域で出されている有害化学物質についての情報、<http://env.safetyeng.bsk.ynu.ac.jp/ecocemi/PRTR2002/prtr-index.html>

5.人口急増地域の持続的な流域水政策シナリオ ーモンスーン・アジア地域等における地球規模水循環変動への対応戦略ー ガンジス川流域における水質保全対策の評価

下水処理研究室 室 長 南山 瑞彦
研究官 平出 亮輔
研究員 桜井 健介

1. はじめに

アジアを中心とした地域では、急激な人口増加や都市化による水問題や、人間活動による水循環の変動などの問題が進行している。このため、アジアの特徴を有する流域を対象として、様々な水問題解決のための政策シナリオを提示することを目的として、山梨大学砂田教授を研究代表者としたチーム型研究(科学技術振興機構:CRESTタイプ)を実施している。特に、当研究室では、ガンジス川流域を対象とし、水質問題に重点をおいた水政策シナリオを提示するための調査を行っている。

ガンジス川は、ヒマラヤを最上流として、中国、インド、ネパールを通り、最終的にバングラディッシュで海域に流れ込む、総延長 2,524km、流域面積 1,086 千km²の国際河川である。その流域面積の大部分はインドであり、全体の約 8 割を占める。インドにおけるガンジス川は、国民の約 4 割がその流域に生活しており、流域人口は 4 億 9 千万人にもなる。河川水の利用用途は、上水、農業用水の供給だけでなく、宗教上重要な河川として、人々は聖なる川での沐浴を行っている。しかし、近年の急激な人口増加により、ガンジス川への汚水、廃棄物などが増加し、河川の水質汚濁が問題化してきている。特に、病原微生物などの水系伝染病を引き起こす汚染に関しては、河川との接触が多いインド国民にとって、大きな社会問題となっている。

この問題を解決するには、水質問題に重点をおいた水政策シナリオが必要である。シナリオ作成にあたり、現地住民の生活様式や河川の水質汚濁状況、汚濁源、原単位などの基礎データを十分に収集することが必要である。しかし、インド政府によると、シナリオ作成のための基礎となる汚濁負荷源のデータが整理されていないとのことであった。このため、現地における汚濁負荷源の基礎的な調査が必要である。ガンジス川流域があまりに広範囲であるため、本研究では、大きな負荷源として代表的なニューデリー(周辺地域含む)を対象として詳細な調査を行い、基本となるデータを整備することとした。



図-1 ガンジス川流域の概略図

表-1 ヤムナ川の水質分析結果

2. ガンジス川の水質汚濁状況

ニューデリーには、ガンジス川の支流であるヤムナ川が流れている。乾季のニューデリー近郊のヤムナ川の水質汚濁状況を調査した。ニューデリーの都市部上流域のパラ(Palla)付近のヤムナ川は、都市の汚濁物が河川に流入する前であるため、水が透きとおりと、良好な状態であった。しかし、都市部通過後は、水が黒くにごり、ゴミが流下しており、都市部

項目		地点 採水日時	上流	下流		
			Palla	Majhaoli	Shergarh	Vrindavan
			25/2/05	26/2/05	26/2/05	26/2/05
			12pm	12pm	3pm	5pm
SS			120	257	247	230
DO			8.2	—	7	7.3
pH			7.4	7.5	7.2	7.3
T-BOD ₅			3	51	11	7
T-COD _{cr}			10	173	37	26
T-N			5.5	30	22.3	20.5
KJ-N			0.1	25	3.4	3.7
PO ₄ -P			0.4	14	5	5
NH ₄ -N			0.1	25	3.2	3.6
NO ₂ -N			0.4	<0.01	0.9	1.8
NO ₃ -N			5	5	18	15
大腸菌群数	MPN法	MPN/100ml	27	4.26E+05	5.42E+04	3.48E+03
	平板培養法	cfu/ml	<1	1.80E+03	4.10E+02	1.60E+02
糞便性大腸菌数	MPN法	MPN/100ml	7	4.26E+05	2.60E+03	1.20E+02
	平板培養法	cfu/ml	<1	1.80E+03	4.60E+02	1.10E+01

汚濁の影響を強く受けていた。特に都市部から約 40km 下流のマジョーリ (Majhori) 付近では、河川から硫化水素臭が発生していた。しかし、その 80km 下流のシェルガル (Shergarh)、さらにその先 26km 下流のブリンダヴァン (Vrindavan) においては、水は黒いものの、臭気はマジョーリに比べかなり弱く感じられた。これら 4 箇所のヤムナ川の水質調査の結果を表-1 に示す。上流部では、BOD が 3mg/L で、水質が比較的良好であった。一方、ニューデリー通過後の水質は悪く、大腸菌群数も高い値を示しており、生活排水の影響がうかがえた。下流部の中では、マジョーリからブリンダヴァンに向かって河川が流下するにしたがい BOD、COD、NH₄-N、大腸菌群数、糞便性大腸菌群数が低くなる傾向にあり、沈殿・自然浄化の効果がうかがえた。

3. ニューデリーにおける負荷量原単位調査

1) 調査方法

近年、都市部の人口急増に伴う生活排水の増加が問題となっている。このため、大きな汚濁負荷源として都市部の調査を行ったが、インドでは貧富の差が大きく、その生活様式が全く違うため、高・中・低所得者層それぞれの汚濁負荷源の調査を行った。その他、都市部以外の生活排水として農村部、主要な産業として多数存在し、負荷の高い排水を生成する牛舎（搾乳用）の調査を行った。本年度は、昨年度の現地調査時に調査が十分に行えなかった排出源である以下の地域に関して、現地の状況確認及び負荷量原単位調査を行った。調査箇所は以下のとおりである。

- ① 都市部 下水道整備地区 高所得者居住地区生活排水・・・2 箇所
- ② 都市部 下水道整備地区 低所得者居住地区生活排水・・・2 箇所
- ③ 農村部 下水道未整備地区 ニューデリー周辺集落 ……2 箇所
- ④ 牛舎 ……2 箇所

現地視察では、サンプリング箇所の決定、現地住民・関係者へのヒヤリングを行い、基礎的な情報を収集した。水質分析に関して、①、②、③の生活排水調査は、各地点において 24 時間調査を行った。試料採取は 2 時間に 1 回、12 時間で 1 つのコンポジットサンプル（流量比で混合）を作成し、水質分析を行い、水量測定（1 回/時間）も行った。牛舎排水である④は、朝夕の 2 回、牛舎内の清掃を行う以外に排水が出ないため、清掃時にコンポジットサンプルを作成し、水質測定を行い、水量は使用水量を計測した。

2) 調査地域の状況と採水箇所

① 都市部 下水道整備地域 高所得者居住地区生活排水

ニューデリー内のゴルフ・リンクス地区 (Golf Links Colony) とジョル・バー地区 (Jor Bagh Colony) の高所得者居住地の調査を行った。両地区とも、地区内に入ると数箇所の小さな公園があり、公園を中心にその周りに家が立ち並んでいた。地区内入口、各家の玄関前に警備員が常駐していた。収入は 20～30 万 Rs (約 50～75 万円) / 月であり、世帯人員は 7 人程度であり、その他雇い人が数名おり、家主の家の裏側の路地に面した家で生活しているとのことであった。原単位調査のための採水は、ゴルフ・リンクス地区では 5 世帯 (45 人)、ジョル・バー地区では 16 軒 (75 人) が接続している下水管において行った。



写真-1 高所得者居住区

② 都市部 下水道整備地区 低所得者居住地区生活排水

デリー内のラジュビルナガル (Raghuvirnagar) とサリマルバー (Shalimarbagh) の2地区で調査を行った。収入は 0.2～1.4 万 Rs (0.5～3.5 万円) /月であり、主に小売商人、運転手、工場労働者等の職業に従事しているとのことであった。3～4階建ての建物が立ち並んでおり、数多くの住民が密集して生活していた。この地区の貸家は、都市部の中では最低ラインにあたる。原単位調査のための採水は、ラジュビルナガルでは16棟(平均4階建てで各階に2～3世帯)、サリマルバーでは12棟(3階建てで、平均5～6世帯)が接続している下水管において行った。なお、この地区は低所得者の中でも比較的所得が高めの住民が住む地区である。



写真-2 低所得者居住区

③ 農村部 下水道未整備地区 ニューデリー周辺集落

ニューデリーの北にあるラトプル・チャテラ村 (Latpur Chatera Village) とニューデリーの南にあるミュージェリ村 (Mujeri Village) で調査を行った。収入は 0.3～1.6 万 Rs (0.75～4 万円) /月であり、基本的に農業を行っており、都市用の花、小麦、マスタードの実、野菜等を作っているとのことであった。水は地下水を利用しており、農業にも利用している。トイレは、腐敗槽がある家庭が若干あるものの、基本的には腐敗槽はない。生活排水は、村内の路地の端に簡易の側溝があり、そこに垂れ流され、村の隅にあるため池に流下、地下浸透で処理される。汚水池が村に隣接しており、しかも付近のハンドポンプで地下水を利用する場合もあるため、住民の衛生状態は良くないと思われた。なお、村内にはほぼ放し飼いで牛が数頭飼育されていた。原単位調査のための採水は、村の側溝で行った。



写真-3 農村部

④ 牛舎

デリー北部にあるバルサワ (Bhalsawa) の牛舎とデリー内南東部にあるマダンプル (Madanpur) の牛舎の調査を行った。基本的には、オーナーが1人おり、数件の牛舎を所有している。オーナーは、1つの牛舎に1人の労働者を雇っており、その労働者は牛舎付近のオーナーの貸家を借り、家族で生活しているとのこと、結果的に、労働者の家族全員で牛の世話をしているとのことであった。収入は、オーナーが5～8千Rs (1.25～2万円) /月、労働者が2～3千Rs (0.5～0.75万円) /月とのことであった。両地域とも、朝夕の2回、毎日搾乳を行うため、搾乳前に牛を水洗いするとのことであった。なお、バルサワでは、日中、牛を牛舎の外に出しているが、マダンプルでは牛を外には出さず、年中牛舎内で飼育しているとのことであった。原単位調査のための採水は、適当な牛舎を1つ選定し、その牛舎の排水溝において行った。

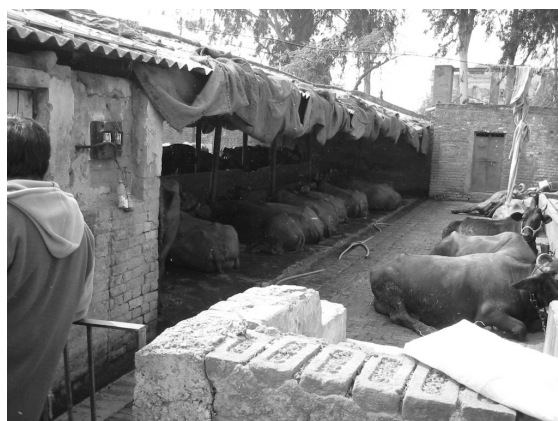


写真-4 牛舎

3) 汚濁負荷量原単位

調査結果を表-2 に示す。生活排水に関して、低所得地域のラジュビル・ナガルでの値は、他の値に比べすべての項目で非常に高い値を示した。これは、想定外の排水の流入すなわち、把握していた家庭以外の生活排水が混入した、もしくは、商店街に隣接しているため営業用水が混入した等の可能性があり、正確な使用者数を把握できていない。このため、今回の計算では、把握可能な範囲のみの使用者数で計算したため、1人あたりの汚濁負荷が高くなったと考えられる（表-2 には、参考値として記載しており、「(数値)」で表示した）。その他の都市部の値は、日本の値に比べほぼ同じような値であるものの、各項目それぞれに若干上下した値であり、生活習慣の違いによるものと考えられる。農村部に関しては、すべての負荷量が非常に低い値を示した。今回の調査での農村部の一人当たりの使用水量は平均 27L/日であり、かなり少なかった。これは、農村部では基本的にハンドポンプ式の手動ポンプで地下水を利用しており、蛇口を捻るだけの水道に比べ手間がかかるため、使用水量自体が少ない、日中農作業を行うため家で生活していない、日中は農作業を行っているため排泄を屋外で行う傾向が強いことが考えられる。

家畜に関しては、日本の値に比べると、BOD 負荷は比較的多かったが、SS 負荷は少なく、窒素やリンの負荷も低い値であった。飼料や飼育環境、牛の種類が違いため、この程度の差が生じたと考えられる。

表-2 汚濁負荷原単位

種類	区分		使用水量	BOD	CODcr	SS	T-N	T-P
			L/人/日	g/人/日	g/人/日	g/人/日	g/人/日	g/人/日
生活排水	日本	流総指針値		58	27(Mn)	45	11	1.3
	高所得	ゴルフ・リンクス	500	83	219	130	8.4	17.7
		ジョル・バー	140	27	51	131	8.9	2.2
	低所得	ラジュビル・ナガル	(372)	(150)	(372)	(112)	(50.9)	(24.3)
		サリマル・バー	154	39	102	55	13.1	5.5
	農村	ラトフル・チャテラ	17	3	6	3	2.3	0.9
		ミュージーリ	37	10	24	8	2.8	0.9
家畜	日本(家畜)	流総指針値	45-135	640	530(Mn)	3,000	290	50
	牛舎	バルサワ	71	875	1,849	1,536	84	9.1
		マダンフル	97	879	1,529	1,099	119	12.5

※流総指針値：流域別下水道整備総合計画調査指針と解説、平成11年版、(社)日本下水道協会

5. まとめ

河川の汚濁の現状を把握し、各排出源の汚濁負荷原単位を算出した。その結果、都市部排水が河川へ与える影響がかなり大きいこと、都市部の原単位は日本の値に似ていたが、農村部はかなり低い値であったことを確認した。今後、さらに低所得者、スラムの生活排水や工場排水など、現在までに行っていない汚濁源の調査やさらに精度を上げるための調査を行いながら引き続き現地調査を行い、水質問題に重点をおいた水政策シナリオを提示するための基礎的データの集積を行う予定である。

なお、本研究は CREST：戦略的創造研究推進事業委託研究費により実施されたものである。

6. 参考文献

- 1) 中島英一郎、他：ガンガ河流域における水質汚濁調査報告、第 41 回下水道研究発表会講演集 平成 16 年度、pp. 582-584

6. 土壌・地下水汚染が水域に及ぼす影響に関する研究

下水処理研究室 室 長 南山 瑞彦
研 究 官 山縣 弘樹

1. 目的

揮発性有機化合物（VOC）、重金属、硝酸・亜硝酸性窒素等による地下水汚染が問題となっており、平成 14 年には土壌汚染の状況の把握、土壌汚染による人の健康被害の防止に関する措置に関する土壌汚染対策法が施行された。国土交通省は、湖沼等の閉鎖性水域や河川におけるダイオキシン類・環境ホルモン等の化学物質による汚染実態について、近年精力的に調査や対策マニュアルの整備等を行ってきたが、地下水を経由した化学物質等の水域への影響については未解明の部分が多く残されている。

このため、土壌・地下水汚染のメカニズム解明や影響評価を行うとともに、有害化学物質等に関する情報の河川管理への活用方法を検討し、さらに関係者（官・民・事業者等）への情報提供方法や、リスクコミュニケーション方法を確立し、国民の不安を取り除き、リスクを予防・回避する体制・システムを作る必要がある。

そこで本研究では、水域に影響を及ぼすおそれのある土壌・地下水汚染の管理・予防措置の提案を行うための基礎的な知見として、調査対象物質を選定したうえで、地上から地下水に至る水と化学物質等の移動に関する知見の収集を行うことを目的とする。なお本研究は河川環境研究室と連携して実施している。

2. 方法

2.1 調査対象物質の選定

本研究で調査を行う対象として地下水を経由して水域へ影響を及ぼす可能性のある化学物質等を以下の観点から選定した。

(1) 土壌汚染対策法における溶出量基準物質

平成 14 年に施行された土壌汚染対策法では、汚染地下水等の摂取による人の健康への影響の観点から、土壌汚染に係る環境基準項目¹⁾に準拠し、第 1 種特定有害物質（VOC11 物質）、第 2 種特定有害物質（重金属等 9 物質）、第 3 種特定有害物質（農薬等 5 物質）について溶出量基準を設けている。これら化学物質を調査対象とした。

(2) 硝酸性窒素及びアンモニア性窒素

硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素は、古くから地下水からの検出事例は比較的多く、人の健康への影響（メトヘモグロビン血症）の観点から平成 11 年に地下水の水質汚濁に係る環境基準項目に指定された。しかし、硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素は、土壌での蓄積性がないこと、他の形態への変化や土壌・気象条件による影響が大きいこと、農用地では農作物によって土壌中から吸収される硝酸性窒素の量が作物種や品種によって大きく異なること等の理由により²⁾、一律の土壌環境基準が設定されていない。本研究では、土壌汚染対策法における溶出量基準対象ではないものの、地下水環境基準の対象に含まれていることから、硝酸性窒素を調査対象に含めた。また人畜排水に含まれるアンモニア性窒素についても、硝化により硝酸性窒素へ変化するため、調査対象に含めることとした。

(3) 水生生物保全に関する環境基準物質

平成 15 年に水生生物保全に関する環境基準（生活環境項目）として全亜鉛が指定された。人の健康への影響の観点から定められている土壌や地下水の環境基準の対象ではないものの、地下水から水域への移行を考慮し、調査対象に含めた。

(4) PRTR において土壌への排出及び事業所敷地内の埋立処分量の多い上位物質

平成 13 年から PRTR 法が施行され、環境基準項目を含む 354 種類の化学物質について、一定以上の従業員数及び取扱量を有する事業所からの土壌への排出量及び事業所敷地内の埋立処分量等が届出、公表されるようになった。事業所内の土壌への届出排出量の上位 10 物質は、エチレングリコール、スチレン、ふっ化水素及びその水溶性塩、バリウム及びその水溶性化合物、モリブデン及びその化合物、キシレン、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂、五酸化バナジウム、トルエン、ジウロンの順となっており、主に燃料小売業において凍結防止剤として土壌に排出されたエチレングリコールを除き、これらの物質は配管や容器等からの漏洩により事業所内の土壌へ漏出したものと想定されている。また、事業所内の埋立処分の届出量の上位 10 物質は、鉛及びその化合物、砒素及びその無機化合物、マンガン及びその化合物、クロム及び三価クロム化合物、ふっ化水素及びその水溶性塩、カドミウム及びその化合物、ニッケル化合物、テレフタル酸ジメチル、セレン及びその化合物、銅水溶性塩の順となっており、主に非鉄金属製造業、鉄鋼業、金属鉱業等からのス

ラグや鉱さい、排ガスダスト等に含まれ事業所内で埋立処分されたものと想定されている³⁾。これらのうち、エチレングリコールについては、環境基準項目ではないものの、事業所内の土壌への排出量が最も多いため、地下水から水域への化学物質の移動を追跡するという観点から、調査対象に含めた。

(5) その他

環境省が平成 14 年度化学物質環境汚染実態調査の暴露量調査の対象とした 6 物質のうち、ペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS) は、反復投与毒性が極めて強く、水生生物に対する急性毒性が強いとされ、全国 20 地点の水域のうち全箇所検出された⁴⁾。また住民 272 人の血清を分析したところ、すべてのサンプルから PFOS が検出され、年齢とともに上昇する傾向がみられたことから、人の健康影響の有無についても検討する必要があるとされている⁵⁾。しかし、地下水中からの検出に関する知見はないため、存在状況を把握するため、PFOS についても調査対象に含めた。

また、調査対象流域 (後述) において実際に使用・排出量が比較的多いと推定される物質を横浜国立大学大学院浦野・亀屋研究室・エコケミストリー研究会⁶⁾より引用して把握した結果を基に、農薬以外の化学物質としてヒドラジン、ポリオキシエチレンアルキルエーテル (C=12~15)、農薬として D-D (1,3 ジクロロプロペン) を調査対象に含めることとした。

2.2 地下水中の化学物質の存在量に関する実態調査

地下水の水域への影響の観点から、東京都多摩川中流部の永田地区及び茨城県谷田川流域を調査対象地域に選定した。

多摩川の永田地区 (図-1) は右岸があきる野市、左岸が福生・羽村市に接する延長約 1.6km の区間である。右岸側は草花丘陵と呼ばれる段丘崖に面しており、ここから湧水や多摩川本川の伏流水が高水敷付近に湧出し、湿地を形成している。河川生態学術研究会が 1996~98 年に同地域で実施した調査⁷⁾では、地下水について以下のような知見が示されている。

- ・ 1998 年 5 月の調査では、右岸・左岸からの地下水の多摩川への直接流入量は本川流量の約 3% であった。
- ・ 河川敷内の地下水中の Ca と Mg イオン濃度は河川水に比べて高く、その濃度から多摩川河川水が浸透した水と考えられる「低濃度の河川敷内地下水」と、低濃度の地下水が河川敷内に滞留し濃度が増加したと考えられる「高濃度の河川敷内地下水」とに分けられ、「高濃度の河川敷内地下水」は草花丘陵からの湧水も混合していると考えられる。
- ・ 塩化物イオンの調査により、低濃度の河川敷内地下水は 400m を 10 日前後、高濃度の河川敷内地下水は 400m を約 50~100 日で流下すると考えられる。

そこで本調査では、伏流水、丘陵からの湧水、河川水の化学物質等の実態把握のため、国土交通省京浜河川事務所によって設置された観測井のうち G-6 (低濃度の河川敷内地下水)、G-7 (高濃度の河川敷内地下水) と自然湧水地点 SP-7 (草花丘陵地下水)、多摩川河川水において 2005 年 2 月に採水、分析した。採水時の地表面から地下水面までの深さは 0.20m (G-6)、0.38m (G-7) であった。

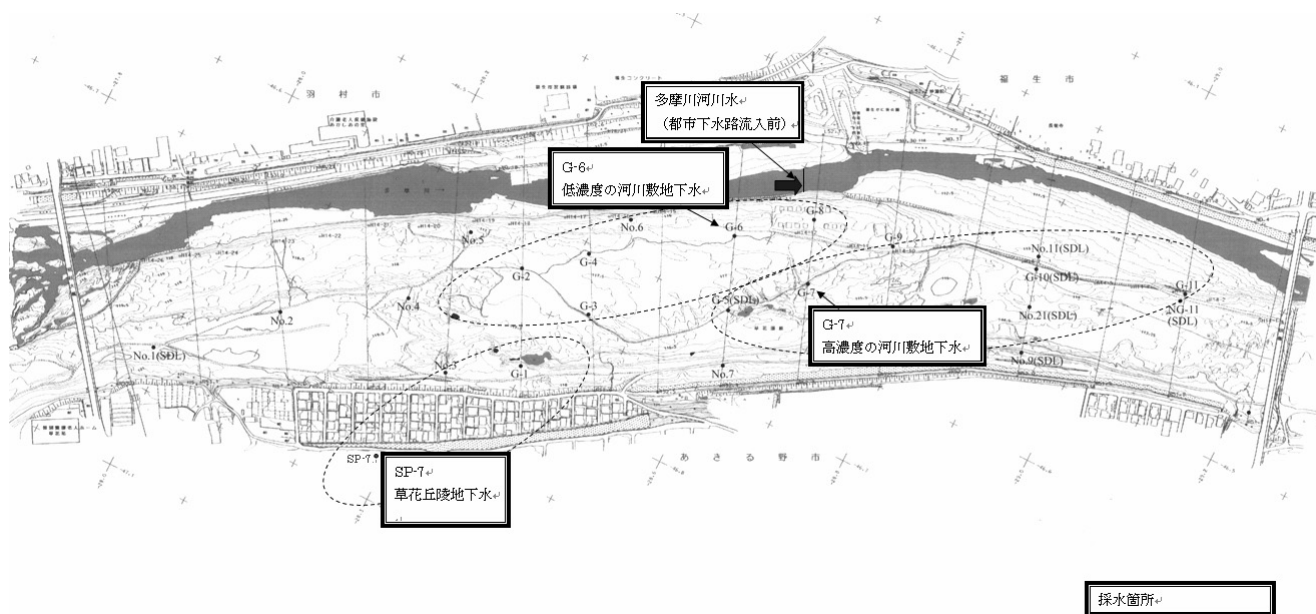


図-1 多摩川永田地区 (河川生態学術研究会⁷⁾ を基に作成)

一方、茨城県谷田川流域（図-2）はつくば市に位置し、主要な河川として谷田川、西谷田川、稲荷川があり、牛久沼に流入している。流域は筑波・稲敷台地にあり、河川沿いに幅 100～200mの谷底平野を形成している。建設省土木研究所都市河川研究室（当時）が実施した地下水調査⁸⁾によれば以下のような知見が得られている。

- ・ 流域の土地利用は畑・農地 33%、水田 14%、宅地 16%、山地・荒地 16%（1994 年）となっており、つくば市においては畑地のうち 79%が芝である。
- ・ 水循環解析の結果、地下水の河川への流出が低水流量に対して約 6 割に達し、地下水質の影響が河川に現れやすい。

そこで本調査では、畑・農地や水田における地下水中の化学物質等の実態を把握するため、茨城県によって設置された観測井のうち、W2（畑）、W3（畑）、W8（水田）、W9（芝）において 2005 年 2 月に採水、分析した。採水時の地表面から地下水面までの深さは、2.00m（W2）、5.15m（W3）、2.10m（W8）、5.15m（W9）であった。

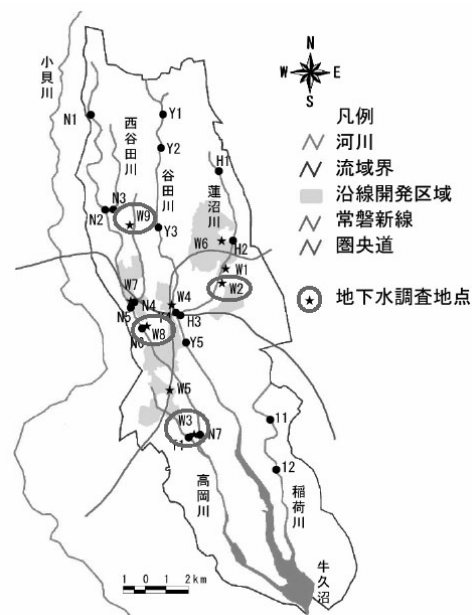


図-2 茨城県谷田川流域

3. 結果及び考察

永田地区及び谷田川流域での地下水現地観測の結果を表-1 に示す。検出された物質のうち土壤汚染対策法対象物質については、いずれも溶出量基準を下回る濃度であった。

表-1 地下水中の化学物質等の測定結果（多摩川永田地区及び茨城県谷田川流域、2005 年 2 月）

測定項目	分析法	定量限界	単位	東京都多摩川流域永田地区				茨城県谷田川流域			
				G6	G7	SP7	多摩川 河川水	W2	W3	W8	W9
1 エチレングリコール	GC-MS	0.1	μg/l	8.2	2.2	2.6	1.4	1.4	1.4	1.4	0.2
2 鉛及びその化合物	ICP発光分析法	0.001	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	0.001	tr	ND
3 マンガン及びその化合物	ICP発光分析法	0.01	mg/l	tr	0.11	tr	tr	tr	tr	tr	tr
4 砒素及びその無機化合物	原子吸光分析	0.005	mg/l	ND	tr	tr	tr	tr	tr	tr	tr
5 フッ化水素及びその水溶性塩	アリザリンコンプレクソン法	0.05	mg/l	tr	tr	0.08	tr	ND	ND	ND	ND
6 カドミウム及びその化合物	ICP発光分析法	0.001	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
7 全クロム	ICP発光分析法	0.01	mg/l	tr	tr	tr	0.05	tr	tr	tr	tr
8 シアン	吸光光度法	0.1	mg/l	ND	ND	tr	tr	tr	tr	tr	tr
9 総水銀	原子吸光分析	0.0005	mg/l	ND	ND	tr	ND	ND	ND	ND	ND
10 PCB	ECD	0.0005	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
11 全亜鉛	ICP発光分析法	0.01	mg/l	0.02	0.02	0.02	0.01	0.02	tr	0.01	0.02
12 四塩化炭素	GC-MS	0.0005	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
13 1,2-ジクロロエタン	GC-MS	0.0004	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
14 1,1-ジクロロエチレン	GC-MS	0.002	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
15 シス-1,2-ジクロロエチレン	GC-MS	0.004	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
16 1,3-ジクロロプロペン	GC-MS	0.0002	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
17 ジクロロメタン	GC-MS	0.002	mg/l	tr	ND	0.005	tr	0.019	ND	tr	ND
18 テトラクロロエチレン	GC-MS	0.0005	mg/l	tr	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
19 1,1,1-トリクロロエタン	GC-MS	0.001	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
20 1,1,2-トリクロロエタン	GC-MS	0.0006	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
21 トリクロロエチレン	GC-MS	0.002	mg/l	tr	tr	tr	tr	tr	tr	ND	tr
22 ベンゼン	GC-MS	0.001	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
23 チウラム	HPLC	0.0006	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
24 シマジン	GC-MS	0.003	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
25 チオベンカルブ	GC-MS	0.002	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
26 有機リン化合物	GC法	0.1	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
27 硝酸性窒素	吸光光度法	0.01	mg/l	1.39	0.12	3.26	0.62	12.58	12.96	0.03	12.66
28 アンモニア性窒素	吸光光度法	0.01	mg/l	tr	0.02	0.01	tr	tr	0.11	0.01	0.01
29 セレン	原子吸光分析	0.001	mg/l	tr	tr	tr	tr	tr	tr	tr	tr
30 ホウ素	ICP発光分析法	0.01	mg/l	0.02	tr	0.06	0.01	0.02	0.01	0.02	tr
31 ホリオキシエチレンアルキルエーテル(C=12～15)	GC-MS	1	μg/l	ND	ND	ND	ND	tr	2	tr	ND
32 ヒドラジン	GC-MS	0.01	μg/l	0.02	0.09	0.01	0.34	0.26	0.29	tr	0.33
33 D-D(1,3ジクロロプロペン)	GC-MS	0.0002	mg/l	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
34 PFOS(パーフルオロオクタフルボン酸塩)	LC/MS	0.00005	μg/l	0.00052	0.00043	0.0024	0.00058	0.00018	0.00028	0.00023	0.00014

(ND: 非検出、tr: 定量下限値未満)

(1) 全てまたはほとんどの箇所では非検出の物質

カドミウム及びその化合物、PCB、四塩化炭素や、農薬の基準項目（チウラム、シマジン、チオベンカルブ、有機リン化合物）、D-Dについては全ての箇所では検出されなかった。

D-Dについては農地での殺虫剤としての使用量が多いと考えられる⁶⁾にもかかわらず農地の多い谷田川流域で非検出だったのは、D-Dが土壌に散布された後、土壌中でガスとなり、空気中に放出されるためと考えられる。

また VOC についてはジクロロメタン、トリクロロエチレンが多摩川河川水、多摩川伏流水、草花丘陵湧水、谷田川流域地下水の一部で検出されたが、定量下限値未満が多く非常に低濃度であった。

(2) 全ての箇所では検出された物質

全箇所では検出された物質は、エチレングリコール、全亜鉛、硝酸性窒素、アンモニア性窒素、ヒドラジン、PFOS であった。なおマンガン及びその化合物、全クロム、セレン、ホウ素についても全箇所では検出されたが、ほとんど定量下限値未満あるいは定量下限値を若干超える程度の微量であった。

硝酸性窒素については、茨城県谷田川流域の W2,W3（いずれも畑）,W9（芝）で 10mg/l 以上と地下水環境基準値（10mg/l）を超過しており、施肥による影響と考えられた。また W9（水田）では低濃度であり、施肥量が少ないためと考えられた。永田地区の SP7（草花丘陵の湧水）でも、G6,G7（多摩川の河川敷内伏流水）に比べ硝酸性窒素濃度が高いことから、草花丘陵における農地やゴルフ場等の施肥由来の寄与が大きいと考えられた。

エチレングリコールについては、主に燃料小売業において凍結防止剤として土壌に排出されるが、事業所の影響がほとんどないと考えられる多摩川伏流水でも観測された理由は不明である。

全亜鉛については、伏流水、湧水、農地の地下水、河川水に関わらずほぼ一定濃度（0.01～0.02mg/l）検出されたことは、農地等によらず、この程度の濃度であれば自然界に存在することを示唆していた。

ヒドラジンについては、多摩川河川水、茨城県谷田川流域の W2,W3（いずれも畑）,W9（芝）で検出された、自然界には存在しないため、広範囲でその使用実績があることが示唆された。

PFOSについては、永田地区の伏流水や河川水では 0.0005 μ g/l 程度、谷田川流域では 0.0002 μ g/l 程度検出され、永田地区の草花丘陵湧水では 1 オーダー高い濃度（0.0024 μ g/l）であった。なお、多摩川で PFOS の調査事例では、下水処理場より上流で 0.0022 μ g/l との報告⁹⁾があり、永田地区・谷田川流域での観測値に近かった。PFOS は自然界に存在しないため、微量ではあるものの、伏流水、河川水、農地の地下水で一定濃度検出されたことから、広範囲でその使用実績があることが示唆された。

4. まとめ

平成 16 年度は、水域に影響を及ぼすおそれのある土壌・地下水汚染の管理・予防措置の提案を行うための基礎的な知見として、調査対象物質を選定したうえで、東京都多摩川中流部の永田地区及び茨城県谷田川流域を対象に地下水中化学物質等の実態把握を行った。今後は、今年度把握できなかった農繁期における農薬散布や施肥による地下水質への影響の把握を行うなど地下水汚染実態の把握を進めるとともに、化学物質の地下水への漏洩が発生した場合の時間・空間的な影響範囲の評価方法について検討を行うことが求められる。

なお、本調査研究は、試験研究費により実施されたものである。

参考文献

- 1) 環境省告示第 16 号（2001）、土壌の汚染に係る環境基準について
- 2) 中央環境審議会（2000）、土壌の汚染に係る環境基準の項目追加等について（答申）
- 3) 環境省（2003）、平成 13 年度 P R T R データの概要～化学物質の排出量・移動量の集計結果～
- 4) 環境省（2004）、平成 15 年度版 化学物質と環境
- 5) 厚生労働省医薬食品局化学物質安全対策室（2005）、内分泌かく乱化学物質の健康影響に関する検討会 中間報告書追補その 2、p.93
- 6) 横浜国立大学大学院浦野・亀屋研究室・エコケミストリー研究会、身近な地域で出されている有害化学物質についての情報、<http://env.safetyeng.bsk.ynu.ac.jp/ecocemi/PRTR2002/prtr-index.html>
- 7) 河川生態学術研究会多摩川研究グループ(2000)、多摩川の総合研究－永田地区を中心として－
- 8) 国土交通省土木研究所都市河川研究室(2001)、茨城県谷田川における水循環に関する研究(1)－地下水の実態調査と水循環の数値解析－、土木研究所資料第 3782 号
- 9) Harada K, Saito N, Sasaki K, Inoue K, Koizumi , Drinking water contamination with Perfluorooctane sulfonate(PFOS) in Tama River in Tokyo, Japan and its estimated effects on human serum levels among residents, Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 71(1), pp.31-36: 2003

II. その他の予算による研究

〔リサイクルチーム〕

1. 病原性微生物の同定方法および挙動に関する研究

研究予算：運営費交付金（一般勘定）

研究期間：平 11～平 17

担当チーム：材料地盤研究グループ（リサイクル）

研究担当者：尾崎正明、諏訪守、陶山明子

【要旨】

Cryptosporidium オーシストの感染能力を迅速かつ簡易に測定するため、細胞培養法による顕微鏡観察および ELISA 法の適用性に関し評価を行った。その結果、細胞培養法はマウスによる感染試験法と比較して、迅速かつ簡易に測定は行えるが、顕微鏡観察では 1 視野で観察されるオーシスト数にバラツキが大きく、また、ELISA 法でもセルシート上でのバラツキが吸光度測定に大きな影響を及ぼすと考えられた。ウイルスに関しては、セルロース・吸着凝集法およびポリエチレングリコール法によるウイルス濃縮法の最適化の検討を行うとともに、下水処理過程でのノロウイルスの除去率を求めた。

キーワード：*Cryptosporidium*、細胞培養法、ウイルス、リアルタイム PCR 法

1. はじめに

下水処理水が関与した病原微生物による集団感染を未然に防止するため、下水処理水の病原微生物に関する安全性確保が求められている。下水処理水の衛生学的安全性を評価するためには、下水中の極低濃度の病原微生物を、迅速・簡便・安全に検出できる方法の開発と、下水処理過程や環境水中での病原微生物の挙動を解明することが重要である。

本課題では上記の要請を踏まえ、分子生物学的手法（特に PCR (Polymerase Chain Reaction) 法）により、下水中・環境水中のウイルスおよび原虫を、迅速かつ高感度に検出できる手法を提案し、また下水処理過程や環境中でのウイルスおよび原虫の挙動を解明することを目的としている。本研究で研究対象としている病原ウイルスは *Norovirus*、原虫は *Cryptosporidium* であり、本年度は以下の研究を行った。

1) *Cryptosporidium* オーシストの感染能力を測定するため、細胞培養法による顕微鏡観察および ELISA 法の適用性に関し評価を行った。

2) ウイルスの検出にあたり、セルロース・吸着凝集法およびポリエチレングリコール法によるウイルス濃縮法の最適化の検討を行うとともに、下水処理過程でのウイルスの除去率を測定した。

2. 研究目的

2.1 細胞培養法によるオーシストの感染能力把握実験

オーシストの感染能力を測定するために様々な方法

が提案されている。その中でもマウスによる感染試験では、動物への感染有無を把握できることから、脱囊法や染色法と比較して精度は高いと考えられる。しかし、実験動物を扱うため、その維持管理、操作性、費用、倫理面などの観点から、現在では細胞培養法による評価手法が注目されている。

本実験の目的は、細胞培養法によりオーシストの感染能力を測定するため、顕微鏡観察および ELISA 法の適用性について評価を行うことである。

2.2 ウイルス

下水中のウイルスは通常、低濃度であることから、検出の前処理として濃縮・誘出操作が必要となる。また、細胞培養法で検出ができないノロウイルスについては、リアルタイム PCR 法により下水処理過程での消長を含めその実態を明らかにすることが求められている。

本実験の目的は、セルロース・吸着凝集法およびポリエチレングリコール法によるウイルス濃縮法の最適化を検討し、その検討結果から得られた成果を基にノロウイルスの定量検出を行い、下水処理過程での除去率を求めるものである。

3. 実験方法

3.1 細胞培養法による顕微鏡観察および ELISA 法の適用性

実験に使用したオーシストは、*C.parvum* HNJ-1 であり、大阪市立大学より分与されたものである。また、

細胞培養法に用いた細胞はヒト回盲腸管由来細胞の HCT-8 株である。

細胞は、以下の方法により準備した。細胞をPBSで洗浄を行いトリプシン液で37℃、5分間処理しフラスコ底部から細胞を剥離、その浮遊液を1,000rpm、10分間遠心沈殿させ、上澄液を捨て維持培地を加え浮遊させた。10⁵個程度の細胞に維持培地6mLを加え、37℃、5%炭酸ガスのCO₂インキュベーター内でウェル内に入れたカバーガラス上で培養し、4～7日毎に継代して被服率85%のセルシートになった状態の細胞を用いた。

感染方法は、細胞から維持培地を取り除いた後、新たに維持培地を加え、オーシストを細胞表面に添加して接着させた。これを37℃、5%炭酸ガスのCO₂インキュベーター内に静置して、2時間接着後にPBSで表面を洗浄し、接着しなかったオーシストを除去した。

感染後は、再度細胞維持培地を添加して37℃、5%炭酸ガスのCO₂インキュベーター内で48時間まで培養を行った。

培養後の感染能力の測定は、以下のように行った。

顕微鏡観察では、維持培地を除去してPBSで洗浄の後、メタノールで細胞を固定、染色キットを用いてオーシストの蛍光染色を行い、蛍光顕微鏡でオーシストをカウントした。

ELISA法では、固定した細胞を免疫染色し、プレートリーダーで吸光度を測定することでオーシスト数を定量した。

表1 使用したプライマーおよびプローブ

対象ウイルス		プライマー		プローブ
ファージQβ		Qβ+	Qβ-	Qβ probe
ノロウイルス	G1型	COG1F	COG1R	RING1-TP (a) と RING1-TP (b) を混合
	G2型	COG2F	COG2R と ALFP を	RING2AL-TP
エンテロウイルス		FEV1	REV1	EVP1
		FEV1	REV2	EVP2

3. 2 ウィルス濃縮法

実下水処理場の流入下水、二次処理水および三次処理水（嫌気－無酸素－好気法と凝集剤添加活性汚泥法の処理水を混合して急速ろ過を行ったもの）に対して既

知量のファージQβを添加して、以下に示す各種濃縮法によりウイルスを回収し、ウイルス濃縮液とした。得られた濃縮液に含まれるQβ数はブラック法およびリアルタイムPCR法によって測定し、回収率を算出した。

3. 2. 1 セルロース吸着・凝集法¹⁾

セルロース吸着・凝集法によるウイルスの濃縮にはウォーターコンセル（株）日研生物医学研究所）を使用した。すなわち試料水20Lを含む容器にスラリー状のDEAE-セルロース10ml（乾燥重量0.5g）を添加し、よく攪拌した。これにアニオン系高分子凝集剤10mlを添加し、よく攪拌してDEAE-セルロースを凝集させた。凝集処理の終了した試料を不織布バッグでろ過してDEAE-セルロースを回収し、10mlの牛肉エキス溶液（pH9.5）を添加して15分混合し、ウイルスを誘出させた。この誘出液をメンブランフィルター（0.2μm）でろ過した後、pH7.0に補正しウイルス濃縮液とした。

3. 2. 2 ポリエチレングリコール（PEG）沈殿法

試料水1LにPEG#6000（終濃度8%）およびNaCl（終濃度0.4M）を添加して攪拌し完全に溶解させた。4℃で一夜静置した後、10,000×g、30分遠心分離して沈殿を回収し、RNase-free水1mlに再浮遊させてウイルス濃縮液とした。

3. 3 リアルタイムPCR法によるウイルスの定量的検出

3. 3. 1 リアルタイムPCR法

内部蛍光プローブを用いるTaqManTM PCR法を用いてウイルスのゲノムRNAを定量した。すなわち上記で抽出したウイルスRNA1μgをランダムプライマー（ランダムヘキサマー）、Omniscript RT Kit（QIAGEN）を用いた逆転写反応によりcDNAを作製し、2μlをリアルタイムPCRに供した。リアルタイムPCRはQuantiTect Probe PCR Kit（QIAGEN）を用いて行った。使用したプライマーおよびプローブを表1に示す。

ファージQβの検出は、片山らの報告²⁾に準じた。またノロウイルスの検出に用いたプライマー、プローブおよび反応条件は、食安監発第1105001号「ノロウイルスの検出法について」に準じ、エンテロウイルスの検出はNijhuisらの報告³⁾に準じた。リアルタイムPCR装置はLightCycler（ロシュ・ダイアグノスティッ

クス社)を使用した。また、ウイルス濃縮液 1 ml からのウイルスのゲノム RNA の抽出には QIAamp Viral RNA Kit (QIAGEN) を使用した。抽出した RNA に微量に含まれている DNA を除去するため DNase I 処理し、RNeasy MinElute Clean up Kit (QIAGEN) を用いて RNA を精製した。

4. 実験結果と考察

4. 1 細胞培養法による顕微鏡観察および ELISA 法の適用性

細胞培養法による顕微鏡観察結果を図-1に示す。細胞に2時間感染させ洗浄を行った後に細胞表面に残存した平均オーシスト数は、10視野あたり210個程度であった。培養時間の経過とともに観察されるオーシスト数は減少し、24時間後では平均で7個となった。これは、オーシスト内のスポロゾイトが細胞に侵入することで、細胞表面に存在していたオーシストが減少したものと推定される。

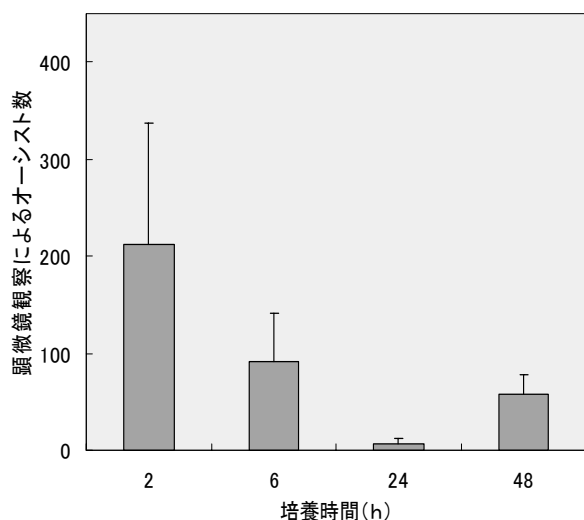


図-1 培養時間経過によるオーシスト数の推移

しかし、48時間後には平均で58個のオーシストが観察されており、細胞内で生活環を進行させた新たなオーシストが細胞表面に出現したものと考えられた。マウスによる感染試験と比較すれば、短期間で感染能力の把握が行えるものと考えられる。一方、グラフ上の棒線は平均値に対する標準偏差を示したが、バラツキが大きい結果となった。この原因は細胞の不均一性が1要因とも推定されることから、均一性に富んだ細

胞の作成は今後の課題であると考えられた。

ELISA法での測定では、上記顕微鏡観察結果から48時間後には細胞内で生活環を進行させた新たなオーシストが細胞表面に出現したものと考えられたため、オーシストを細胞へ接種してから48時間の細胞培養を行い、免疫測定と吸光度測定によるオーシスト数の定量を行った。細胞培養法によるELISA法の適用結果を図-2に示す。

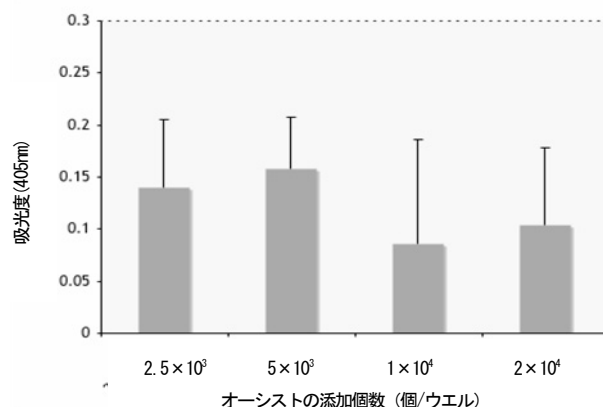


図-2 ELISA法によるオーシスト添加濃度と吸光度の関係

オーシストの細胞接種量を $2.5 \times 10^3 \sim 2 \times 10^4$ 個とし実験を行ったが、全てのケースで吸光度の増加が認められることから組織培養法によるELISA法によっても感染能力を測定できることが明らかとなった。しかし、ELISA法は、顕微鏡観察では検出が難しい細胞内へ潜り込んだオーシストの検出や機械的に吸光度の測定を行えるため、顕微鏡観察と比較して客観的により定量精度の高い結果が得られるものと予想されたが、オーシスト接種量と吸光度との関係は、かならずしも比例関係ではなく、接種量の増加に伴い吸光度は若干低下する傾向が見られた。また、グラフ上の棒線は平均値に対する標準偏差であるが、バラツキが大きい結果となった。これらの原因は先にも述べたが細胞の不均一性によること、細胞量とオーシスト接種量のアンバランスによるものと推定されることから、今後、均一性に富んだ細胞の作成や細胞量と接種量の良好な関係を明らかにする必要があると考えられる。

4. 2 ウイルス濃縮法の最適化

4. 2. 1 セルロース吸着・凝集法

セルロース吸着・凝集法の回収率に与えるファージ Q β 量の影響を検討した。試料水にファージ Q β を添加して、乾燥重量 0.5 g の DEAE-セルロースを用いてウイルス濃縮を行った結果を表 2 に示す。ファージ添加量が増加する程、セルロース吸着・凝集法による回収率は低下した。その原因として、ファージ Q β 添加量 (10^6 PFU 以上) に対してセルロース担体量が少なかったためであると考え、セルロース担体量を 1 g に増加して回収試験を行った (図 3)。

表 2 セルロース吸着・凝集法によるファージ Q β の回収率

操 作	ファージ数 (PFU/20 L)					
	二次処理水			三次処理水		
濃縮前	4.8×10^5	2.4×10^6	4.3×10^{11}	4.0×10^4	2.1×10^5	1.3×10^{12}
濃縮後	2.7×10^5	5.0×10^5	2.5×10^{10}	3.9×10^4	1.6×10^5	5.7×10^{10}
	[56 %]	[21 %]	[5.9 %]	[98 %]	[7.7 %]	[4.3 %]

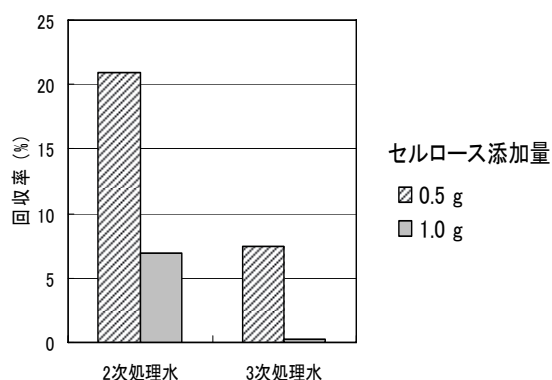


図 3 セルロース添加量がファージ Q β の回収率に及ぼす影響
(ファージ Q β 添加量 : 10^6 PFU)

その結果、セルロース添加量を増やすと回収率は低下した。ウイルス誘出液 10 ml に対して担体が過剰になり、誘出効率が低下したためと考えられる。

誘出時間を増加することで誘出効率が上がることを予想し、次にウイルス誘出時間が回収率に及ぼす影響を検討した (図 4)。

ファージ誘出時間を増加すると、ブラック法で測定した場合の回収率は低下した。一方、図には示していないがリアルタイム PCR 法で測定した場合の回収率は

一定であり、誘出時間の影響は認められなかった。

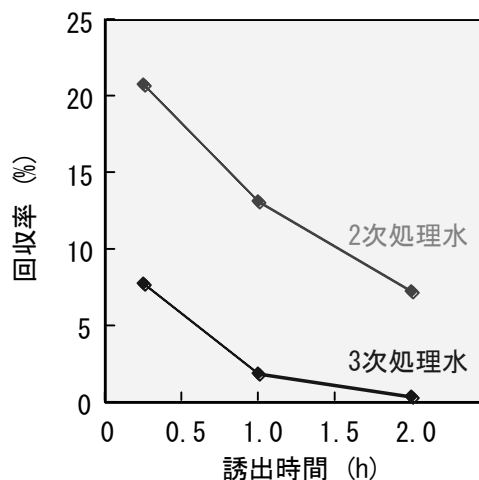


図 4 ウイルス誘出時間がファージ Q β の回収率に及ぼす影響
(ファージ Q β 添加量 : 10^6 PFU
ファージ Q β 量はブラック法で測定した)

これは、pH 9.5 の誘出液に長時間曝されたことによりウイルス感染力が低下したことを示している。一方、リアルタイム PCR 法ではファージ遺伝子を検出するため、感染力を失っているファージも検出することから、回収率の低下は認められなかったと推測した。

以上の結果より、セルロース吸着・凝集法はファージ量 10^5 PFU 以下の試料水に適していると考えられる。

4. 2. 2 ポリエチレングリコール沈殿法

ポリエチレングリコール沈殿法により、ウイルス回収率を評価した。

流入下水、200 mL、2 次処理水、3 次処理水 1 L に対して、 10^4 、 10^6 、 10^{10} PFU のファージをそれぞれ添加したが、すべてにおいて 60 % 前後の高い回収率を示した。

したがって、以降の実験ではポリエチレングリコール沈殿法によりウイルス濃縮を行った。

4. 3 リアルタイム RT-PCR 法による下水試料中のウイルスの定量

2004 年 6 月および 2005 年 1 月、2 月において週 1 回、A 下水処理場の流入下水 200 ml、2 次処理水および 3 次処理水 1 L を対象として、リアルタイム RT-PCR 法により、Norovirus G1 型、Norovirus G2 型の定量的検出を行った (表 3)。

冬季（2005 年 1 月、2 月）のウイルス量は夏季（2004 年 6 月）よりも非常に多かった。夏季において流入ノロウイルス濃度が低い場合には処理水中にウイルスは検出されないが、冬季にノロウイルス濃度が高濃度となることで急速ろ過を行った三次処理水中にもウイルスは残存していた。

表 3 A 下水処理場のウイルス量

採水月	試料	ノロウイルス量 (コピー/L)	
		G1 型	G2 型
2004 年 6 月	流入下水	3.2×10^1	3.3×10^2
	2 次処理水	ND	ND
	3 次処理水	ND	ND
2005 年 1, 2 月	流入下水	6.0×10^4	5.0×10^3
	2 次処理水	1.9×10^4	1.1×10^3
	3 次処理水	1.6×10^4	5.1×10^2

ND：検出限界（5 コピー/L）以下

冬季の三次処理まで行った場合のウイルス平均除去率は、70～90%程度であった。測定法の異なる他の腸管系ウイルスを対象とした活性汚泥法での除去率⁴⁾との比較では、若干低い除去率を示した。今後、データの蓄積を図り、これらの要因を解明する予定である。

4. 4 ノロウイルスの分子系統解析

ノロウイルスに属するウイルスは G1 型と G2 型の遺伝子群に分類され、さらにそれぞれは 14 種類と 17 種類の遺伝子型に分類されている。

A 下水処理場の流入下水試料においてノロウイルスの遺伝子型を判別し分子系統解析を行うため、capsid 領域を標的とした RT-PCR (primer set：G1-SKF & G1-SKR、G2-SKF & G2-SKR) を行い、PCR 産物をクローニングし、塩基配列を決定した。

その結果、流入下水中には複数の遺伝子型のノロウイルスが存在していること、また採水日ごとに検出される遺伝子型が異なっていることが明らかとなった。

5. まとめ

本年度は、細胞培養法によるオーシストの感染能力を測定するため、顕微鏡観察および ELISA 法の適用性について評価を行った。また、ウイルスに関しては、セルロース・吸着凝集法およびポリエチレングリコール法によるウイルス濃縮法の最適化を検討し、その検

討結果から得られた成果を基にノロウイルスの定量検出を行い、下水処理過程での除去率を求めた。以下に結果を示す。

- 1) 細胞培養法による顕微鏡観察および ELISA 法により、オーシストの感染能力の有無を判定できるため、マウスを用いた感染試験と比較すれば、短期間で感染能力の把握が行えるものと考えられた。
- 2) ポリエチレングリコール法によるウイルスの濃縮では、セルロース・吸着凝集法に比較して、試料中のウイルス量の変動に対しても安定した回収率を得られることが明らかとなった。
- 3) 流入下水中のノロウイルス濃度は、夏季と冬季で大きな違いがあった。その結果、夏季には処理水中にノロウイルスが検出されなかったが、高濃度のウイルスが流入する冬季では、処理水中への残存が測定された。
- 4) ノロウイルスの分系統解析を行ったが、流入下水中には複数の遺伝子型が存在しており、また採水日ごとに検出される遺伝子型が異なっていた。

今後は、接種量と増殖量の相関関係の把握、環境水中へ放流されたオーシストの経時的な感染能力減衰割合を細胞培養法により把握するとともに、測定精度向上のための課題を解決する予定である。また、ウイルスに関しては、リアルタイム PCR 法を活用した消毒による不活化効果の推定手法の構築、さらに、発生源調査を行う上で迅速かつ簡便な遺伝子型の判定法の開発を試みる予定である。

参考文献

- 1) Yano, K. et al. (1993). A practical method for the concentration of viruses from water using fibriform DEAE-cellulose and organic coagulant. Wat. Sci. Tech., 27: 17-21.
- 2) 片山浩之他 (2002). 陰電荷膜を用いた酸洗浄・アルカリ誘出によるウイルス濃縮法の開発. 水環境学会誌, 25(8): 469-475.
- 3) M. Nijhuis, N. van Maarseveen, R. Schuurman, S. Verkuijlen, M. de Vos, K. Hendriksen and A.M. van Loon. (2002). Rapid and Sensitive

Routine Detection of All Members of the Genus Enterovirus in Different Clinical Specimens by Real-Time PCR. J. Clinical. Microbiol. Vol. 40(10) p. 3666-3670.

- 4) ウイルスの安全性からみた下水処理水の再生処理法検討マニュアル（案），平成 13 年 7 月，高度処理会議。

2. 下水処理水再利用のための残存物質の高度除去手法に関する研究

独立行政法人土木研究所材料地盤研究グループ

リサイクルチーム 上席研究員 尾崎 正明

主任研究員 落 修一

交流研究員 牧 孝憲

専門研究員 庄司 仁

1. はじめに

地域から発生し、流量および水質が安定している下水処理水は、都市地域の代替水資源として様々な用途へ活用されているが、今後地球温暖化等の気候変動により起こりうる水資源不足に対応するためにも活用の幅を広げることが重要であると考えられる。しかしながら、下水処理水には低濃度ではあるものの有機物が残存し、送水管内での微生物増殖による水質劣化や放流先生物相の中腐水性化などの問題を引き起こしている¹⁾。それへの対応方法として、前者については塩素添加により微生物発生を抑制する手法が採られているが、配管の腐食や閉塞の事故も発生している²⁾。逆浸透（RO）などの物理化学的方法で有機物を除去する手法もあるが、設備、運転コストが高いというデメリットが挙げられる。このために、残存有機物に由来する潜在的な障害を取り除き、下水処理水の水資源としての価値を高め、良好な水循環を創造するには残存有機物を安価かつ効率的に除去する手法が必要となってくる。本研究は、下水処理水中に残存する有機物の性状を知り新たな浄化技術に繋げる基礎的な研究である。

2. 研究概要

昨年度までは、固定化法および膜分離活性汚泥法による下水処理水の残存有機物除去実験を行い、有機物画分ごとの処理特性と微生物増殖量から処理水の微生物再増殖の可能性を比較評価した。その結果、①下水二次処理水を更に固定化法および膜分離活性汚泥法によって処理しても除去されない有機物があり、その有機物の大部分は分子量が 1,000 以下のものであった。②下水二次処理水に占める残存有機物の画分は、溶解性の有機性炭素濃度として、親水性中性物質：60%，疎水性酸：23%，親水性塩基：9%，親水性酸：8%の割合であった。限外ろ過分画により、親水性塩基、親水性酸および親水性中性物質の大部分は分子量が 1,000 以下の低分子物質から構成されていた。③多段の固定化法の後段における担体への付着微生物量は少なくなったことから下水二次処理水の更なる生物学的処理により水資源としての価値を高められると考えられた。

平成 16 年度は、下水高度処理水中に残存する有機物の生物分解除去性を評価するための実際の高度処理水と固定化担体を用いたカラム通水実験、下水処理水中の残存有機物の実態を把握するための分子量分画分析および分子量画分の有機物分析を行った。

3. 研究結果

3.1 高度処理水カラム通水実験

3.1.1 実験方法

実験は、内径 200mm、高さ 1,000mm のアクリル樹脂製カラム 8 基に表－1 に示す微生物固定化用の資材を表－2 に示すとおり充填し、それぞれのカラムに下水高度処理水を流量：約 130mL/min で連続通水し

表－１ 微生物固定化用資材

担 体	性 状 概 要
活性炭	白鷺G _{2X} :粒状10mm炭
木炭	原料:ダム流木
坑火石	原石:30～80mm篩い
ゼオライト	原石:30～80mm篩い
化成炭	針葉樹間伐材木炭とCaCO ₃ の複合炭:2.8mm以上

表－３ 水質分析方法

項 目	方 法
TOC	島津製作所製全有機体炭素計 TOC-5000型
NH ₄ NO ₂ NO ₍₂₊₃₎ PO ₄	BRAN+LUEBBE社製自動比色分析装置 TRAA CS 2000型
CODcr	同上社装置 AAⅡ(UV-VIS SP-Ⅱ)型

表－２ 微生物固定化用資材充填量

実験カラム (充填資材)	資材の充填量
活性炭 (A)	活性炭:12.75kg
ゼオライト (B)	ゼオライト:19.18kg
木炭 (C)	木炭:3.84kg
坑火石 (D)	坑火石:18.51kg
化成炭	化成炭:6.06kg
(B)+(C)	ゼオライト:6.84kg, 木炭:2.67kg 混合
(C)+(D)	木炭:2.63kg, 坑火石:8.79kg 混合
(D)+(B)	坑火石:10.18kg, ゼオライト:9.27kg 混合

た。通水中のカラム内は散水ろ床法の形態を取り、内部に液が貯まるスペースはなく、カラム最下部の開口部(φ30mm)から液が流出し、外気が流入する。カラムを通過した液は全量が転倒升式雨量計を介して計量・積算される。これらの組立状況を写真－１に示した。なお、実験中のカラムはアルミ箔により遮光されている。また、用いた高度処理水は、一部合流式の下水を凝集剤添加活性汚泥法、嫌気・無酸素・好気法、担体投入型修正バーデンフォ法、凝集剤併用型循環式硝化脱窒法により、それぞれ0.17, 0.17, 0.11, 0.55の処理水量の比率で処理し、全量を急速ろ過したものである。実験に先立ち、カラム担体への微生物の植種を行った。植種源には畑、田、沼、山、川の土壌および底泥と長時間エアレーション法の活性汚泥を用いた。これらは任意量を混合、カラム担体の最上部に置いた容器内に綿布(ガーゼ)を介してセットし、これに高度処理水を1週間連続通水させた。その後、容器ごと取り外し、高度処理水を直接担体上部から通水する実験に入った。実験中は、試料を週1回の頻度でグラブサンプルとして採取し、表－３による分析を行った。

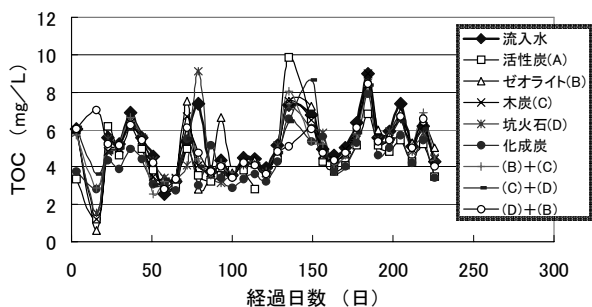
3.1.1 実験結果

これまでの連続通水から得られた水質分析の結果を、TOC、NH₄-N、NO₂-N、NO₍₂₊₃₎-N、PO₄-P、およびCODcrについて、それぞれ図－１～図－６に示す。ここで、TOCとCODcrの結果が有機物分解の状況を直接的に表していると見て良い。これらの水質項目では、徐々に、僅かずつではあるが通水日数の経過とともに有機物分解が起こってきていることが読み取れ、200日が経過したここ最近における最大分解率としてそれぞれTOC:21%、CODcr:36%が得られた。また、充填資材の違いによる効果には大きな差異は認められないが、幾分、化成炭と活性炭および木炭における効果が高いものとなっている。

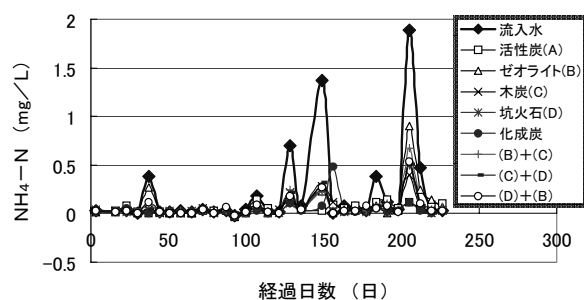
NH₄-Nの除去効果は、その経日的な変化から流入水中の濃度が高くなったときの各充填カラムの結果に明瞭に現れ、活性炭と化成炭での除去効果が高くなっている。そして、これらはNO₂-NとNO₍₂₊₃₎-Nの変化から硝化作用による除去が主体であったと言える。



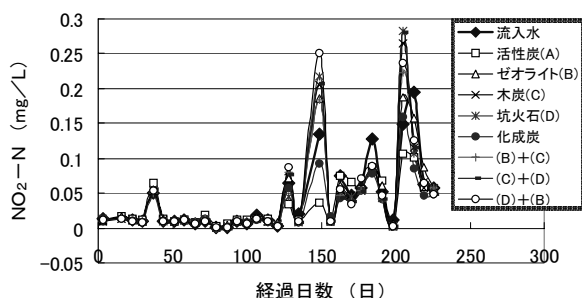
写真－１ カラム通水実験装置の組立状況



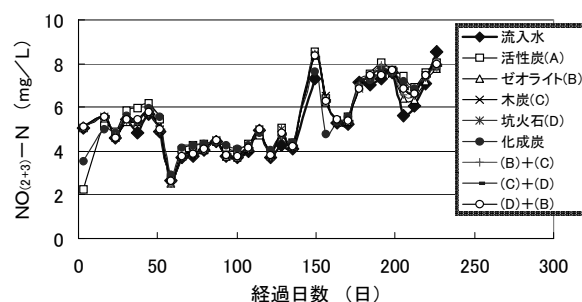
図－１ TOCの結果



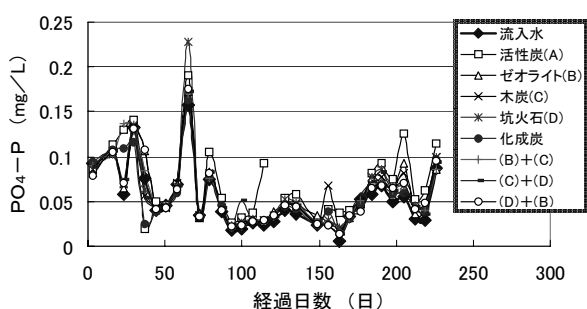
図－２ NH₄-Nの結果



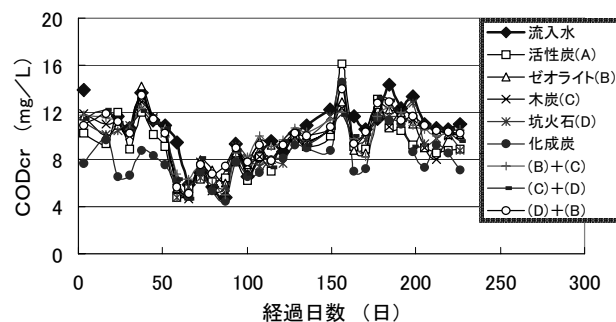
図－３ NO₂-Nの結果



図－４ NO₍₂₊₃₎-Nの結果



図－５ PO₄-Pの結果



図－６ COD_{cr}の結果

一方、上述の項目の結果に対してPO₄-Pは相反する特徴的な現象を表している。PO₄-P濃度は、いずれのケースでも流入水よりも高く、それは有機物分解や硝化作用が進んでいたケース、即ち活性炭と化成炭で最も高くなる（溶出する）傾向が明瞭に現れている。

以上の結果および傾向については、今後とも通水実験を継続しながら水質変化をモニタリングし、現象解明に繋げる必要がある。

3.2 下水処理水分子重量分析

3.2.1 方法

下水処理水の分子重量分析(GPC：Gel Permeation Chromatograph)分析は、表－４に示す下水処理場５カ所６種類の処理水を対象とした。ここで、Ko、Ki、Saの下水処理場は比較的規模の大きい処理場であり、Kokは供用間もない処理場でエアレーション時間が相当に長く、また流入水には食品加工排水が多く含まれている。

表－４ 分析に供した下水処理水

処理場記号	採取処理水
Ko	流域下水道高度処理水
Ki	流域下水道高度処理水
Sa	流域下水道高度処理水
Kok	流域下水道高度処理水
Ka	公共下水道処理水のオゾン処理前後

Kaの処理場は比較的小規模で処理法に酸素活性汚泥法を採用し、流入水には一部水産加工排水が含まれる。分析操作は、処理水を0.45μmメンブレンフィルターで吸引ろ過、得られたろ液をロータリーバキュームエバポレーター(EYELAN-1NW)で水温40℃にて濃縮後、分子量分画装置(Shodex GPC SYSTEM-21H)にて分析した。また、分子量分画装置からの排除液はフ

表－５ 溶解性成分の分析結果

	Ko	Ki	Sa	Kok	Ka	
					オゾン処理前	オゾン処理後
TOC	5.06	5.65	5.62	2.86	7.92	7.88
Na ⁺	51.4	62.8	38.3	112	115	111
K ⁺	9.95	8.80	10.9	11.3	12.7	12.6
Mg ²⁺	4.89	3.42	2.09	5.63	7.71	7.47
Ca ²⁺	16.9	13.6	12.1	82.8	13.6	13.8
NH ₄ ⁺	N.D.	0.346	1.43	N.D.	N.D.	N.D.
F ⁻	0.0687	0.0573	0.110	0.110	0.0335	0.0274
Cl ⁻	73.5	80.1	47.0	309	175	177
Br ⁻	0.109	0.359	0.105	0.728	0.256	0.283
NO ₂ ⁻	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
NO ₃ ⁻	24.9	25.4	23.2	3.88	63.2	68.0
PO ₄ ³⁻	0.135	1.81	N.D.	2.54	2.97	3.67
SO ₄ ²⁻	44.1	28.4	14.7	38.0	39.0	37.0

ラクションコレクター(ADVANTEC SF-3120)で分画分取し、TOCを有機炭素計(株島津製作所製 TOC-10B)により、陽イオンと陰イオンをイオンクロマトグラフ(DIONEX DX320)により分析した。

分子量分画分析の条件は、カラムの種類をShodex SB-806MHQとSB-802HQの連結カラムとし、カラム温度：40℃で、溶離液にイオン交換蒸留水(Milli-Q)を用い、流量：0.5mL/minで展開した。検出器には、紫外分光検出器：UV254nmと示差屈折率検出器(RI)を用いた。標準物質は分子量が10,000以上については直鎖状プルラン精製品(Shodex STANDARD p-82)を、それ以下についてはポリエチレングリコール精製品(WAKO製PEG)を適用した。

3.2.2 結果

分子量分画に用いた処理水の溶解性成分の分析結果を表－５に示す。結果には下水処理場の背景が反映され、Ko, Ki, Saの処理水は類似した値を示し、KokとKaの処理水ではNa⁺やCl⁻が高く、また、Kokでは低いTOCとなっており、それぞれ特徴が現れている。

各処理水の分子量分画の結果を図－７～図－12に示す。これらのRIやUVの結果は、処理水間で類似したものとなっている。中でも、リテンションタイム(R.T.)が30～50minのところに類似の大きなピーク出現があることが特徴的であり、当初は、ここのR.T.における大きなピークが有機物であろうと推察された。しかし、フラクションコレクターでの分画分取液の分析結果は、それが有機物によるものではないことを示唆した。その分析結果の一例を処理水：KoのケースのTOCおよび陽イオンについて図－13に示した。ここに示した分析結果のパターンはいずれの処理水でも非常に類似したものであり、大きなピーク出現をもたらしたのは処理水中に多量に溶存している無機物によるものと考えられた。このために、(NH₄)₂SO₄, CaCl₂, KNO₃, MgCl₂, NaClを用いて、これらの塩の濃度がそれぞれで1g/Lとなる混合液を準備し、そのGPC分析を行った。結果を処理水：Koのケースと対比して図－14に示す。無機塩・混合液のGPC結果は、処理水におけるR.T.：30～50minの出現ピークを相当に高い類似性を持って再現しており、処理水のGPC分析におけるR.T.：30～50minのピークは溶存した無機塩に起因すると結論付けて良い。

以上のように、溶存有機物を明瞭に分子量で分画することは出来なかった。この原因がGPC分析にあったことから分析条件を変えることで解決の可能性は残されるものの、このままでは溶存する無機塩の影響は排除できないことから溶存有機物のみの検出は不可能かも知れない。何らかの手法を見出す必要がある。

ただし、図－７～図－12の結果を精査すると、大きなピークが現れたR.T.：30～50min以外のところに出現したピーク数は非常に少なく、また、出現のR.T.にも処理水間に類似性が認められることから、下水の活性汚泥処理水に残存する有機物は数が限定された単純な物質構成となっている可能性がある。いずれにしても、これらの有機物の特定手法を見出すことが課題である。

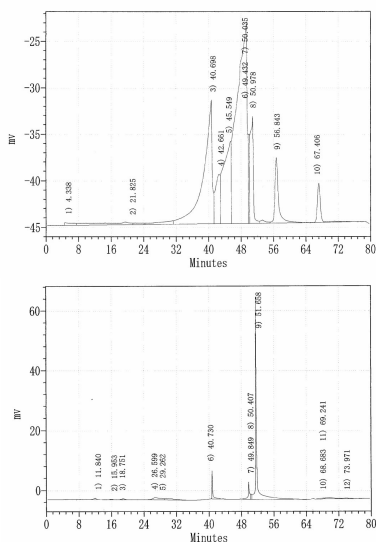


図-7 K_o処理水の
GPC結果

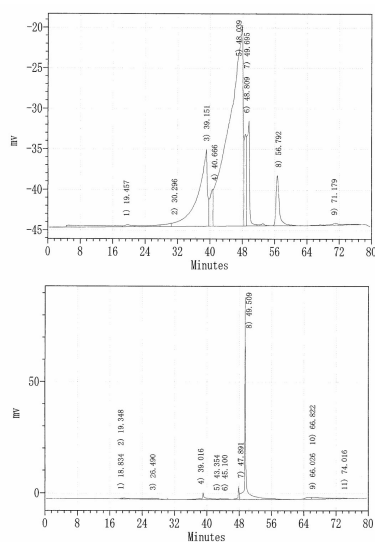


図-8 K_i処理水の
GPC結果

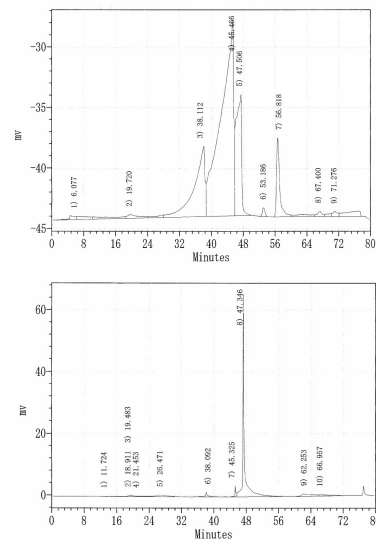


図-9 S_a処理水の
GPC結果

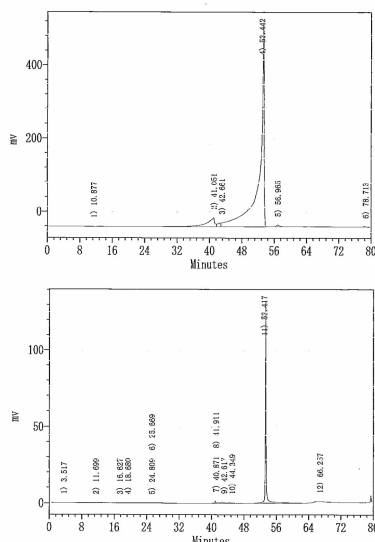


図-10 K_ok処理水の
GPC結果

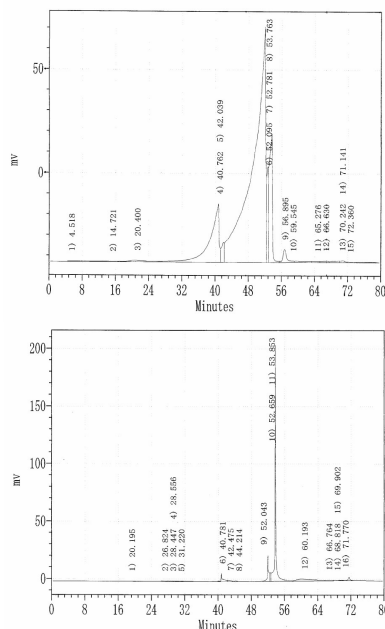


図-11 K_a処理水の
オゾン処理前のGPC結果

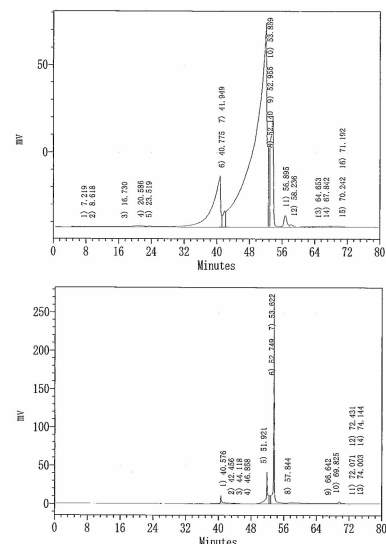


図-12 K_a処理水の
オゾン処理後のGPC結果

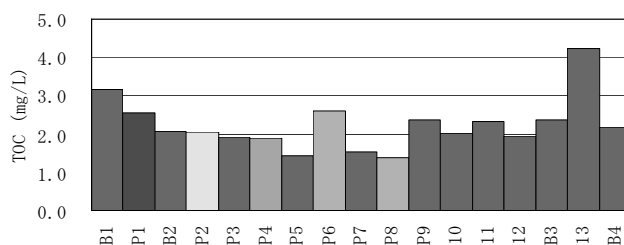
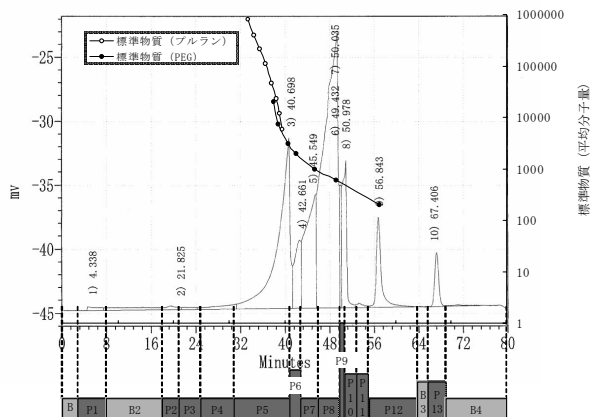


図-13 (1/2) K_o処理水における
分画分取液のTOC分析結

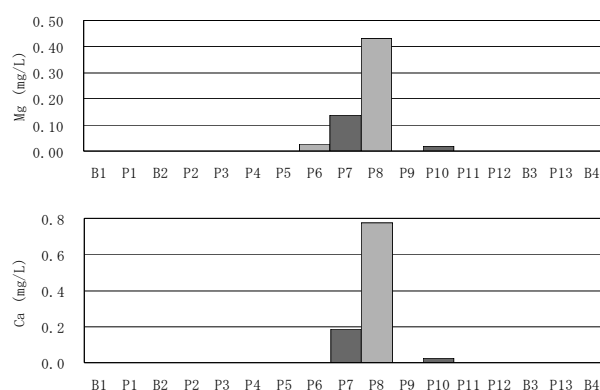
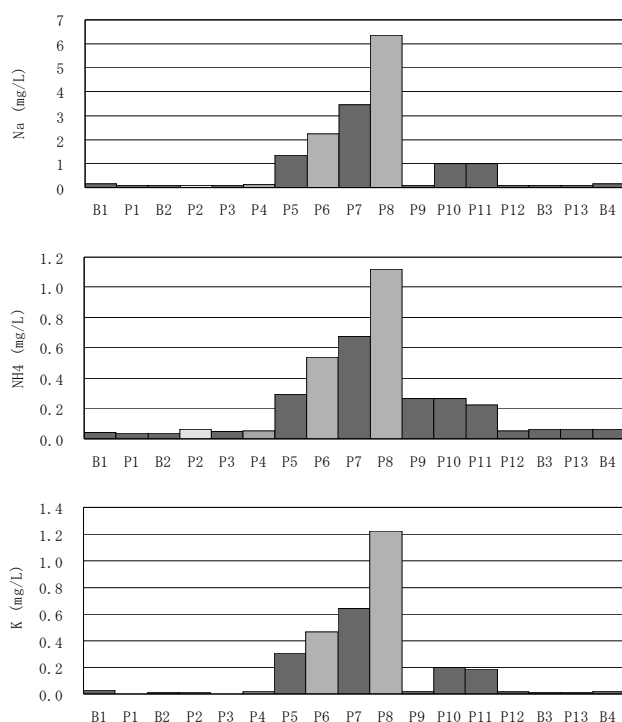


図-13 (2/2) K 〇処理水における
分画分取液の陽イオン分析結果

3.3 分子量画分の有機物分析

3.3.1 方 法

下水処理水の分子量分画分析においては限られたピーク出現が認められ、ここでは、そのピーク出現画分に存在する有機物の成分を調べる分析を試みた。試料には標準活性汚泥法による下水処理水を適用し、0.45 μ mメンブランフィルターで吸引ろ過して用いた。分析に用いた試料は、予め表-6に示す分析方法によりアミノ酸、糖および脂肪酸の含有量を調べた。その後、試料1Lを凍結乾燥後、純水10mLに溶解させ0.45 μ mメンブランフィルターでろ過、GPC(島津製作所製LC-10ADvpシステム)に供し、出現ピーク画分を分取、凍結乾燥して表-7に示す方法により糖分析を行った。ここで、GPCは、カラムにSHODEX ASAHIKAK GS-310 7G、標準物質に標準プルラン(昭和電工製)とオリゴ糖(生化学工業製 laminariheptaose, laminaritetraose, laminaribiose)を用い、カラム温度：室温、移動相：純水、検出器：示差屈折率検出器(島津製作所製 RID-6A)で行った。

3.3.2 結 果

(1) 試料中のアミノ酸、糖および脂肪酸

試料中のアミノ酸は種類、濃度とも少なく、トリプトファン：0.0136 μ g/mL とプロリン：0.0036 μ g/mL が検出されたのみであった。糖量は1.2 μ g/mLであった。脂肪酸としてはパルチミン酸、ステアリン酸などC14~C18として0.093 μ g/mLが検出され、これ以外にも僅かに未同定の脂肪酸が認められたが、これら全てを合わせても脂肪酸量は0.1 μ g/mL程度と推量された。これらの結果から、処理水中に溶存している有機物の大部分は糖類であると推察される。

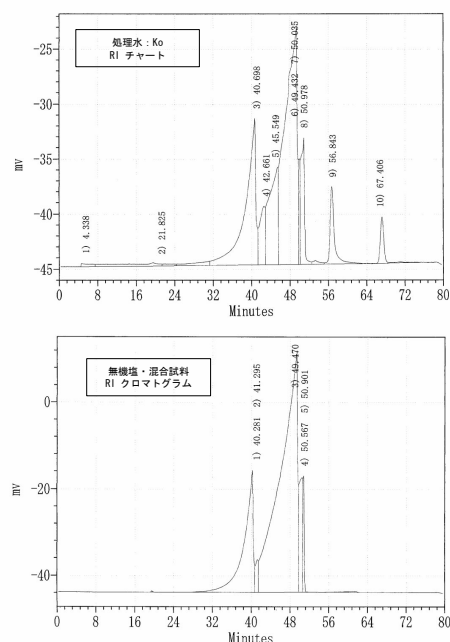


図-14 無機塩・混合液の
GPC結果と
K 〇処理水GPC結果の比較

(2) 分子量画分

の糖分析

GPC からは明瞭なピークとして5つが出現し、それらの画分から得られた凍結乾燥試料の状態を表-8に示す。なお、表中の分取物重量は概ね処理水1L当たりの量を表している。ここで、前(1)項の結果および外観の色調から推察するに、分取物重量の大部分は無機物が占めていると考えられ、これは前3.2項で出現

した大きなピークと同じ現象となっている可能性が高い。

各画分における糖分析の結果を表-9に示す。各画分からはグルコースが検出され、その存在量も多いことから、試料中にはグルコースやそのオリゴ糖が大半を占めている可能性が高いことを示している。

また、最

も高分子

画分に当

たる Fr.1

では各種

の中性糖

が検出さ

れ、ここ

では複雑

な糖組成

を持った多糖の存在の可能性がある。

処理水中に溶存している有機物は糖類が主体となっている可能性が高いことが示された。さらに、この糖類を糖化合物として特定して行くためには、分析上、多量の有機物を固形物として準備する必要があり、そのためには前3.2項で課題となったことと同様に試料中からの無機塩の分離排除が不可欠と思われる。

表-6 下水処理水の有機物分析方法

	アミノ酸分析	糖分析	脂肪酸分析
濃縮	試料80mLを凍結乾燥後、純水4mLに再溶解	同左	10倍濃縮液
調整	①濃縮試料1mLを減圧乾固 ②6N-HClを200mL添加 ③110°C-22hrで加水分解 ④減圧乾固 ⑤純水100μLに溶解 ⑥0.22μmでろ過	①濃縮試料200μL+純水300μL ②5%フェノール溶液500μL添加・攪拌 ③濃硫酸2.5mLを勢いよく添加 ④20min静置	①濃縮液6mLを乾固 ②5%-HCl・メタノール溶液1mL添加 ③80°C-3hr加熱後、冷却 ④ヘキサン1mL添加・激しく攪拌 ⑤ヘキサン層回収・乾固 ⑥クロロホルム100μLに再溶解
分析	日立L-8500型アミノ酸分析計(ニンヒドリン発色による)	490nm吸光度測定	ガスクロマトグラフ カラム: SP-2380 30m×0.25mm 膜厚: 0.2μm カラム温度: 50°C(1min) ~5°C/min~240°C 注入温度: 240°C 検出器: FID

表-7 糖分析方法

前処理	HPLC分析	ポストカラム標識
①試料0.82~1.67mg秤量 ②2N-トリフルオロ酢酸200μL添加 ③100°C-6hr加水分解 ④減圧乾固 ⑤純水500μLに溶解 ⑥0.22μmでろ過	装置: 島津製作所製LC-9Aシステム カラム: 東ソー製TSK-gel Sugar AXG 15cm×4.6mmI.D. カラム温度: 70°C 移動相: 0.5M-ホウ酸カリウム緩衝液 pH8.7, 0.4mL/min 検出法: ポストカラムラベル化による蛍光検出 検出器: 分光蛍光検出器(島津製作所製RF-10AXL) 注入量: 50μL	反応試薬: 1%-アルギニン / 3%-ホウ酸 反応試薬流量: 0.5mL/min 反応温度: 150°C 検出波長: Ex. 320nm、Em. 430nm

表-8 GPC画分凍結乾燥試料の状態

ピーク画分	概略分子量 (MW)	分取物重量 (mg)	外 観
Fr. 1	1400	6.1	白色粉末
Fr. 2	920	13.5	白色粉末
Fr. 3	300	48.2	白色粉末
Fr. 4	<200	55.0	白色粉末
Fr. 5	<200	8.8	緑色粉末

表-9 GPC画分凍結乾燥試料の糖分析結果

糖の種類	検出濃度 (μg/mg)					絶対量 (μg)					
	Fr. 1	Fr. 2	Fr. 3	Fr. 4	Fr. 5	Fr. 1	Fr. 2	Fr. 3	Fr. 4	Fr. 5	計
Rha	2.7					16.1					16.1
Man	1.8					10.8					10.8
Fru	4.7					28.3					28.3
Ara	4.7					28.6					28.6
Gal	3.6					21.8					21.8
Xyl	2.4					14.5					14.5
Glc	26.5	1.2	4.2	4.8	3.5	160.6	15.9	202.3	264	30.5	673.2
計	46.3	1.2	4.2	4.8	3.5	280.6	15.9	202.3	264	30.5	793.2

4. まとめ

下水高度処理水中に残存する有機物の生物分解除去性を評価するための高度処理水を固定化担体に通水するカラム実験と、下水処理水中の残存有機物の実態を把握するための分子量分画分析および分子量画分の有機物分析を行い、以下の結果を得た。

- ① 下水高度処理水のカラム通水実験は 230 日が経過し、有機物の分解が僅かずつではあるが進行してきていた。その進行の程度は化成炭と活性炭および木炭を固定化担体するケースが幾分高かった。また、有機物分解が進む固定化担体のケースほど PO_4^{3-} が多く溶出するような現象が得られた。高度処理水中に残存していた NH_4^+ は大部分が硝化作用により減少していた。
- ② 6 種類の下水处理水について分子量分画分析を行った結果、処理水中に多量に溶存している無機塩の影響を大きく受け、有機物のみの分子量分画が達成できなかった。しかし、出現ピーク数は各処理水に共通して少なく、下水の活性汚泥処理水中に残存する有機物は数が限定された単純な物質構成となっている可能性が示された。
- ③ 標準活性汚泥法の下水处理水中に残存する有機物を分析した結果、大部分は糖類となっている可能性が示された。同じ処理水に対して GPC を施し、得られた画分の糖分析を行った結果、各画分からはグルコースが検出され、その存在量も多く、糖類の大半はグルコースやそのオリゴ糖が占めている可能性が高いと思われた。また、最も高分子画分に当たる分子量：1,400 画分では各種の中性糖が検出され、ここでは複雑な糖組成を持った多糖の存在の可能性も示された。

参考文献

- 1) 濱本哲郎 (2002) 福岡市内河川の水生底生動物に関する調査研究—瑞梅寺川—、福岡市保健環境研究所 年報第 27 号
- 2) 有働健一郎、小越真佐司、鈴木穰 (2000) 再生水の配管に及ぼす腐食に関する影響について、第 37 回下水道研究発表会講演集、755-757

3. 底泥中の有機性有害物質の実態および挙動に関する研究

研究予算：運営費交付金（河川勘定）

研究期間：平 14～平 17

担当チーム：材料地盤研究グループ

（リサイクル）

研究担当者：尾崎正明，山下洋正

【要旨】

近年、有機性有害物質による環境汚染が懸念されている。閉鎖性水域には、その流域内で発生・使用された有機性有害物質が河川等を経由して集まることが予想されるため、それらの物質による汚染が懸念されている。特に、多環芳香族炭化水素類（PAHs）による底泥の汚染が指摘されている。文献調査によると、PAHs は水試料での検出頻度は低い一方で底泥試料からの検出頻度が高い。また、PAHs の中には閉鎖性水域の河川流入部近傍での局所的な高濃度域の存在が報告されている物質もある。これらのことから、本研究は、閉鎖性水域内の底泥における PAHs の分布状況の把握等、存在実態を明らかにすることを目的としている。16 年度は、閉鎖性水域の底泥中の PAHs 等の有機性有害物質の存在実態に関する研究を継続して行うとともに、閉鎖性水域の底泥中の有機性有害物質の挙動に関する研究を行った。その結果、河川等の流入とは別に、道路橋などから局所的な PAHs 負荷がもたらされている可能性が示唆されるとともに、汚染の由来として排ガスおよび道路堆積物が推定された。また、水域に関するベンゾ[a]ピレンの物質収支の試算結果によると、河川等の流入がベンゾ[a]ピレンの主要な負荷源であること、ベンゾ[a]ピレンの年間堆積量を上回る量が底泥の浚渫により水系外へ搬出されていることが推定された。

キーワード：多環芳香族炭化水素類，底泥，実態調査

1. はじめに

近年、有機性有害物質による環境汚染が懸念されている。閉鎖性水域には、その流域内で発生・使用された有機性有害物質が河川等を経由して集まることが予想されるため、それらの物質による汚染が懸念されている。特に、多環芳香族炭化水素類（Polycyclic aromatic hydrocarbons, 以下、PAHs）による底泥の汚染が我が国の湖沼においても指摘されており^{1, 2)}、底泥中での PAHs の存在実態の解明が必要である。2～6 環の主な PAHs の構造を図-1 に示す。16 年度は、達成目標①「底泥中の多環芳香族炭化水素の存在実態の解明」のうち、閉鎖性水域の近傍における道路交通の直接的影響について検討した。また、達成目標②「底泥中のベンゾ[a]ピレン等の挙動の解明」のうち、ベンゾ[a]ピレン

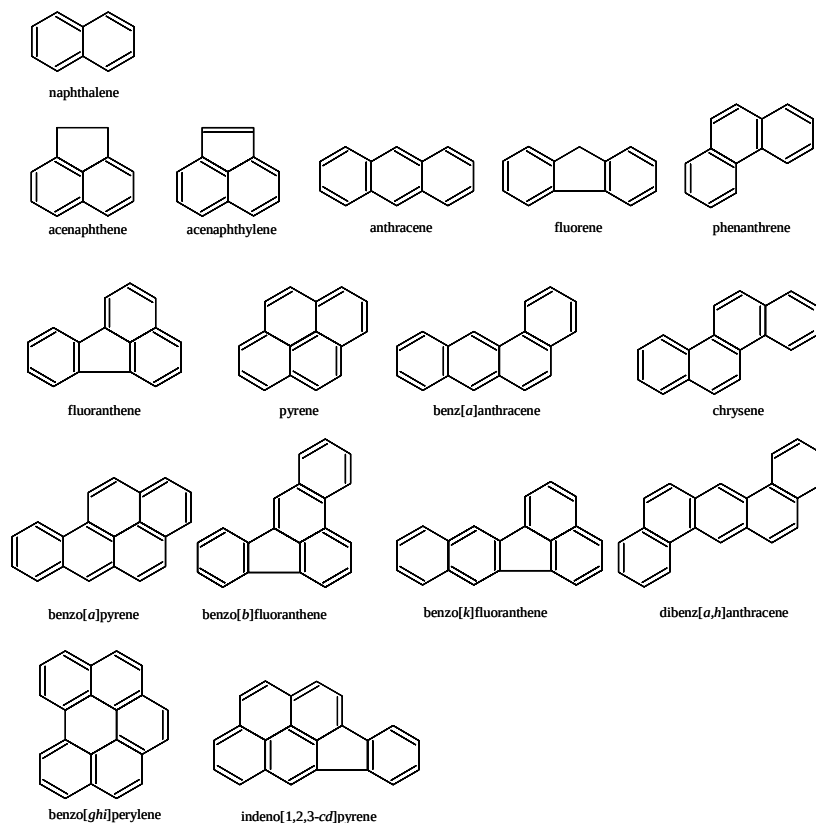


図-1 多環芳香族炭化水素類(PAHs)の例

等の流入・流出河川による移動および底泥における分解について調査を行い、物質収支の試算を行った。

2. 底泥中の多環芳香族炭化水素の存在実態の解明

閉鎖性水域の底泥中のPAHsの存在実態の把握のため、関東地方の比較的人

為な汚染が進んでいる水域（以下、水域A）の底泥を採取し、PAHsの含有量を調査した。

2. 1 調査方法

調査対象とした水域Aは14年度および15年度にも調査を行った水域である。14年度は、PAHsの主な流入源となりうる流入河川や橋等から離れた地点で底泥試料を採取して測定したところ、ベンゾ[a]ピレン（BAP）に関しては、これまでに日本で測定されている値の範囲内であり、より汚染程度が低いと思われる水域と同程度であった。

15年度は、閉鎖性水域へのPAHsの流入大きな流入源と考えられる流入河川や橋に比較的近い点で試料を採取して測定したところ、4環以上のPAHsの含有量が高くなっており、流入河川からもたらされると考えられるPAHsが、河口近傍で沈積している可能性が示唆された。一方、水域のほぼ中央部を縦断している道路橋による自動車交通の影響については、明確な結論は出なかった。

これらの結果を受けて16年度は、道路橋の自動車交通の直接的影響をより詳細に調査した。水域Aの概略と調査点を図-2に示す。試料採取は秋期および冬期に行った。試料は○で示した4点で表層試料を採取した。ポイントAC1は、道路橋より約300m上流の地点であり、道路橋の自動車交通の影響を受けない近傍点として設定した。ポイントAC3は道路橋直下であり、雨天時の路面排水が落下する、最も自動車交通の影響を受けている地点として設定した。AA1およびAD1はそれぞれ水域への流入および流出河川の水域に接する付近の地点であり、比較対照として設定した。

底泥試料中のPAHsの分析は、環境庁マニュアル

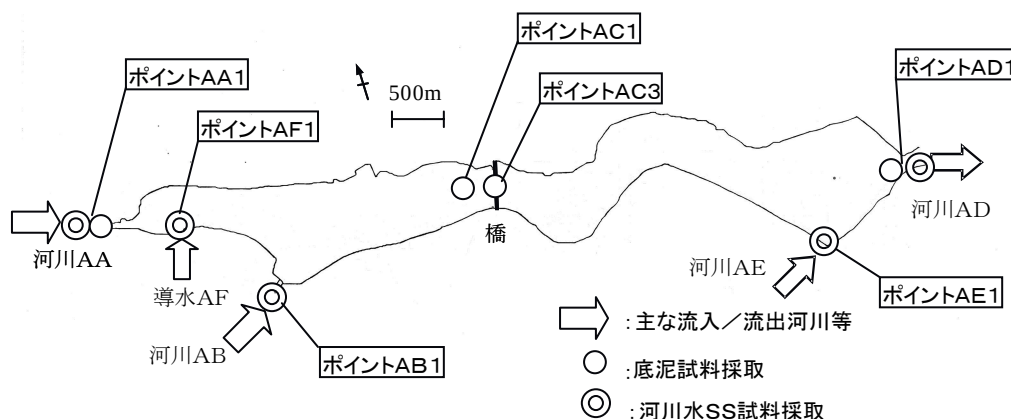


図-2 水域Aにおける調査点

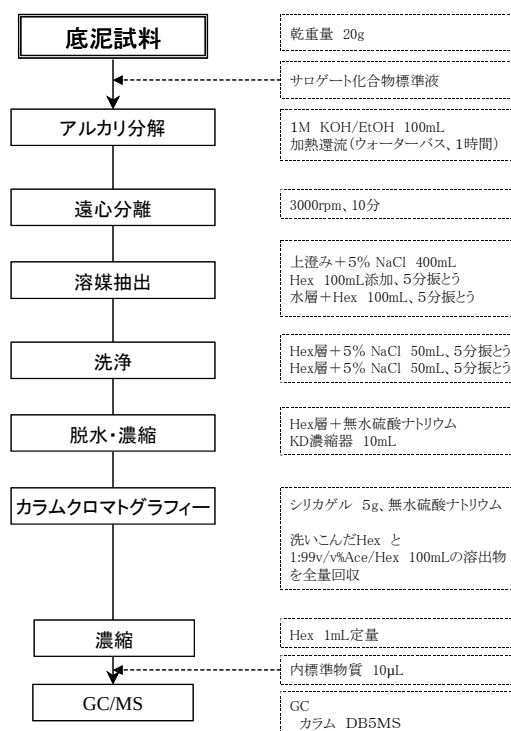


図-3 PAHsの分析フロー

ル³⁾のBAPの分析方法を一部変更して15年度に用いた方法を採用した。この方法は、底泥試料を加熱還流アルカリ分解し、液々抽出した後、シリカゲルを用いてクリーンアップし、ガスクロマトグラフ質量分析計（GC/MS）で検出する方法である。水域Aの試料について用いた分析方法の主な流れを図-3に示す。

定量対象物質は図-1に示した16種のPAHsおよびベンゾ[e]ピレン、ペリレンとした。

2. 2 調査結果

表層におけるPAHsの測定結果を表-1に示

す。ポイントAC3はAC1と比較してPAHs濃度が全体的に高くなっていた。

4地点の底泥中のPAHsを測定した結果について、自然由来とされるPRLを除いた16種について、SS当たりおよびVSS当たりの濃度ならびに存在比率をそれぞれ図-4および図-5ならびに図-6に、総PAHs濃度及び等価毒性係数TEFsを用いてBAPに換算した結果を図-7に、それぞれ示す。

底泥中のSS当たりの濃度(図-4)より各ポイントの汚染状態を比較すると、流入河川AA1、流出河川AD1及び道路橋直下AC3の3地点の濃度はほぼ同レベルであったが、4環以上のPAHs濃度は流入河川よりも流出河川の方が低い傾向にあった。道路橋上流AC1については、他の3点と比較して全体的に低濃度であった。PAHsは疎水性が強く主として有機物に吸着されて存在すると考えられていることから、底泥中のVSS当たりの濃度(図-5)で比較すると、流入河川AA1において最も高く、次いで道路橋直下AC3の底泥も高く、流出河川AD1は道路橋上流AC1と同程度に低かった。これらの結果より、流入河川の底泥は最も高濃度のPAHs負荷を受けており、道路橋直下の底泥も局所的ながらPAHs負荷を受けていると考えられた。一方、流出河川においては、底泥中の有機物濃度が高いためにSS当たりの濃度が高くなっており、これは湖内の底泥の巻き上がり流出等によりAD1に到達するSS中では、流入河川等と比較して有機物の占める割合が大きくなっていることによると考えられた。また、流入河川及び道路橋等の負荷源から離れている湖内地点(道路橋上流側)ではPAHs負荷量が少なく、濃度も低くなるという湖内分布が形成されていると考えられた。

PAHsの存在比率をプロファイル(図-6)として見ると、流出入河川及び道路橋直下ではほぼ同様であったが、道路橋上流(AC1)地点におけるプロファイルは5環以上のPAHsの存在比率が他の3点と比較して低めであった。

また、等価毒性係数⁴⁾によるBAP換算値(TEFs)(図-7)では、流出入河川及び道路橋直下ではほぼ同様であったが、道路橋上流側と道路橋直下を比較すると、総PAHs及びTEFsの両方で道路橋直下の方が増大していた。これらの結果より、道路橋上流地点へはSSに吸着して存在する5環以上のPAHsの到達割合が低く、逆に道路橋直下地点では道路交通の影響により総PAHs及び等価毒性TE

表-1 PAHsの存在実態

Aromatic rings	PAHs and abbreviations	Concentration of PAHs (ng/g-dry)			
		River AA	River AD	Near the Bridge	
		AA1	AD1	AC1	AC3
2	Naphthalene NAP	20	74.2	40.6	55
	Acenaphthylene ACL	8	26	17.1	23
	Acenaphthene ACN	9	11.4	4	9
3	Fluorene FLU	21	37	11	25
	Phenanthrene PHE	104	103	29	93
	Anthracene ANT	18	25	15	24
	Fluoranthene FLR	172	154	39	165
4	Pyrene PYR	184	130	32	167
	Benz[a]anthracene BAA	66	47	9	63
	Chrysene CHR	104	75	20	97
	Benzo[b+k+j]fluoranthene B(bkj)F	49	45	9	58
	Benzo[e]pyrene BEP	60	55	10	77
5	Benzo[a]pyrene BAP	63	46	7	72
	Perylene PRL	161	871	603	769
	Dibenz[a,h]anthracene DBA	12	11	1.2	16
6	Indeno[1,2,3-cd]pyrene INP	93	87	11	122
	Benzo[ghi]perylene BPR	80	68	10	100
Total PAHs without Perylene Σ 16PAHs		1062.7	993.4	264.8	1165.9

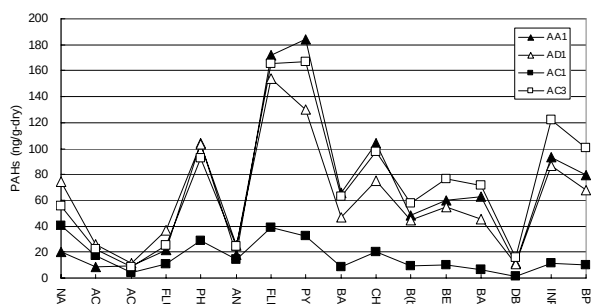


図-4 底泥中のSS当たりのPAHs濃度

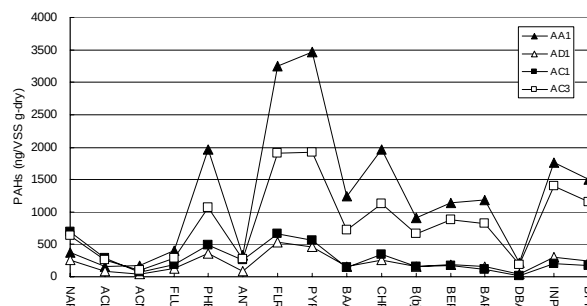


図-5 底泥中のVSS当たりのPAHs濃度

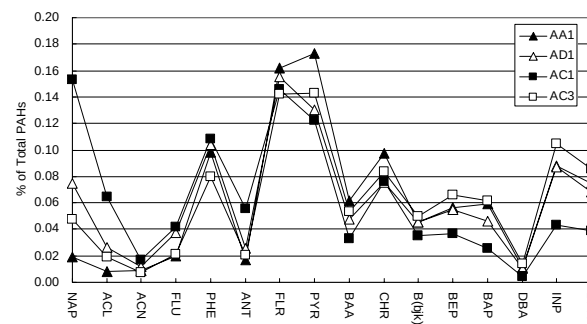


図-6 底泥中のPAHsの存在比率

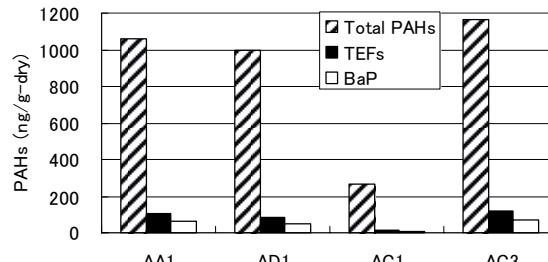


図-7 底泥中の総PAHs, TEFs(毒性等価係数換算値)およびBAP濃度

河川水および導水中の濃度については、表-2 の水中濃度をそのまま用いるのではなく、SSあたりのBAP濃度を求め、それに公共用水域の水質測定データ⁶⁾を参考に設定した年間平均SS濃度を乗じて求めた。表面流出水中BAP濃度は未測定であるため、控えめの推定値として、最も低濃度であった河川AEの値を用いた。(2)湖面への大気降下については、北欧における面積あたりの降下推定値 $4\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{y})$ を用いた⁷⁾。(3)道路橋からの路面流出については、交通量は実績値⁸⁾を参考に年間 11.1 百万台・kmと設定し、単位発生量を文献値より $0.2\mu\text{g}/\text{km}$ と仮定した⁷⁾。(4)地下水の影響および(8)水中での内部変化(内部生産等)は微小と考慮して無視した。また、(6)巻き上げは、(5)堆積に含める(相殺)形とした。(7)流出については、河川流量は(1)流入の総計と等しいとみなし、湖面への降雨および蒸発散による水量変化は微小と考慮して無視した。(9)底泥浚渫は、実績値⁹⁾を参考に年間 8 万 m^3 と設定した。(10)底泥での内部変化については、表層部でのみ分解が起こりそれ以下の層では嫌気条件であるため分解が進まないと仮定した。表層部の半減期は文献値¹⁰⁾より 6.2 年と設定し、表層に堆積した1年目のみ分解が起こると考えると、水中から湖底へ沈降するSS中のBAPの約11%が分解され、残り約89%が底泥化する計算となった。(5)堆積については、水中BAPの増加要因(1)(2)(3)から、減少要因(7)を差し引いた値とし、水中BAPの収支が差引ゼロとなるようにした。結果として水中から底泥へ移行する年間BAP量は約118gと算出され、沈降SS中の平均BAP濃度設定値 $7\mu\text{g}/\text{kg-dry}$ および底泥表層の含水率設定値約56%より計算される底泥の年間堆積速度の推定値は約0.5cmとなり、約0.3cmという既報¹¹⁾および土木研究所水質チームの底質年代測定結果¹²⁾(表層より40cmで1960年代後半)らの試算値約1.1cmの中間程度の値となっている。底泥の堆積速度が遅い場合は、堆積して2年目以降も水層より僅かながら溶存酸素が供給されてBAPの分解が進む可能性もあるため、底泥におけるBAP分解の実態については、引き続き調査が必要である。

試算結果として、年間に606.2gのBAPが水域に流入して488.7g(流入の80.6%, 以下同じ)が河川より流出し、残り117.5g(19.4%)は湖底へ沈降するが、そのうち12.4g(2.1%)が湖底で分解され、105.1g(17.3%)が底泥に堆積する。浚渫が行われる場合は、268.6g(44.3%)が水域外へ搬出され、結果と

表-4 ベンゾ[a]ピレンに関する物質収支の試算結果

(1) Inflow	Flow rate (m^3/y)	Concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Mass Flux (g/y)
Total	2.1.E+08		578.0
AA	3.0.E+07	4.9	144.8
AB	1.4.E+07	12.3	168.8
AE	6.5.E+06	2.3	14.7
AF	1.5.E+08	1.5	220.7
Surface runoff	1.3.E+07	2.3	28.9
(2) Lake surface air deposition	Area (km^2)	Deposition ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{y}$)	Mass Flux (g/y)
Total			26
Air Deposition	6.5	4.0	26
(3) Bridge runoff	Traffic (car km/y)	Emission ($\mu\text{g}/\text{km}$)	Mass Flux (g/y)
Total			2.2
AC	1.E+07	0.2	2.2
(4) Groundwater	Neglected		
(5) Sedimentation	Area (km^2)	Sedimentation rate ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{y}$)	Mass Flux (g/y)
Total			117.5
Net sedimentation	6.5	18.1	117.5
(6) Raise	Included in net sedimentation		
(7) Outflow	Flow rate (m^3/y)	Concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Mass Flux (g/y)
Total			488.7
AD	2.1.E+08	2.32	488.7
(8) Internal change	Neglected		
(9) Sediment dredge	Dredge rate (m^3/y)	Concentration (g/m^3)	Mass Flux (g/y)
Total			268.6
Dredge	8.0E+04	0.00336	268.6
(10) Internal change	Half-life (y)	Degradation rate (1/y)	Mass Flux (g/y)
Total			12.4
Surface layer degradation	6.2	0.106	12.4
Water body balance			0
Sediment balance without sediment dredge			105.1
Sediment balance with sediment dredge			-163.5

して163.5g(27.0%)が余分に除去されることから、BAP収支はマイナスとなり、底質が改善されたことになる。

3. 2 閉鎖性水域の底泥におけるベンゾ[a]ピレン等の分解特性の把握

3. 2. 1 調査方法

環境中に放出されたBAP等は、条件に応じて、光化学分解、生物分解等を受けることが知られている。水質汚濁の進んでいる閉鎖性水域の底泥においては、光および溶存酸素が不十分であり、水深の浅い地点の表層部を除いては、暗条件、嫌気条件下での反応が主体と考えられる。一般に、ベンゼン環が5環以上のPAHsは、嫌気条件下では生物分解はほとんど進まないと報告されており、湖沼に堆積している底泥においては、表層でのみ多少の分解が進行している可能性が考えられる。季節による水温や日照条件の変動、溶存酸素濃度により分解速度は変化すると想定されることから、温度、照度、溶存酸素の3因子をそれぞれ、 $10^\circ\text{C}/35^\circ\text{C}$ 、明(約1100Lux)/暗、嫌気/好気に設定した合計8通りの分解実験を行い、BAP等の分解特性を調査した。実験は、

300mL 容量の三角フラスコに、水域AのポイントA C 1およびA C 3にて採取した底泥を約2：1の比で混合して約250mL 添加し、温度条件については低温室／恒温室、照度条件については蛍光灯による照射／アルミ箔による遮蔽、溶存酸素条件については、無曝気／エアープンプによる曝気、によりそれぞれ制御した。サンプリングは1回あたり約70g をスタート時、2週間後、6週間後、14週間後の計4回行い、サンプリングにより減少した体積は、イオン交換水により補充した。2週間後までは、好気条件の曝気は水層のみ行い、2週間後のサンプリングも表層のみ採取した。それ以降は、底泥全体が曝気されるように好気条件を設定し、サンプリングも底泥全体を攪拌して実施した。

採取した試料のPAHsの測定方法は図-3に示す方法とほぼ同様であるが、HP5MS(5%フェニルメチルシリコン)カラムを用いて行い、測定対象は図-1に示す16種とした。

3. 2. 2 調査結果

分解実験の結果について各PAHsの変化を図-9に示し、このうちBAPの値を表-5に示す。図-9より、PAHs全体としては実験期間の経過とともに減少する傾向がみられるが、35℃、暗条件においては、途中で減少していたものが最後の14週間後で増加するという説明困難な結果となっており、データ全体を単純に解析する限りでは有意な傾向が見受けられなかった。分析においては変動係数が2.5%(NAP)～35.6%(DBA)であり、分析誤差が影響している可能性も考えられる。

また、BAPについては、照度因子と温度因子、溶存酸素因子との間でそれぞれ交互作用が見られ、分散分析で有意な結果が得られなかった。10℃、暗、嫌気の条件下においてもBAPが14週間で約45%分解されるという大きな分解速度となったが、こうした条件下では難分解であるという既報とは異なる結果となっており、また、10℃、明、好気というより有利と考えられる条件では約13%の分解にとどまるなど、現時点では整合性がとれた説明は困難である。今後の課題としては、物質毎にデータを精査し、分析誤差を排除して何らかの有意な傾向が見いだせるか再検討が必要である。また、再実験による確認も必要であるが、その際には、例えば温度条件範囲を変更するなど(35℃が高すぎる可能性がある)、条件の見直しも必要である。

表-5 分解実験におけるBAPの変化

	実験条件			ベンゾ[a]ピレン濃度(ng/g-dry)			
	温度	照度	溶存酸素	0	2week	6week	14week
CASE1	低	明	嫌気	36.9	31.2	31.4	29.1
CASE2	低	明	好気	36.9	33.0	32.2	32.1
CASE3	低	暗	嫌気	36.9	34.4	36.8	20.3
CASE4	低	暗	好気	36.9	45.6	45.2	20.1
CASE5	高	明	嫌気	36.9	29.0	28.4	27.4
CASE6	高	明	好気	36.9	28.9	25.8	23.2
CASE7	高	暗	嫌気	36.9	33.4	23.5	27.1
CASE8	高	暗	好気	36.9	29.1	27.7	44.2

温度:低 10℃、高 35℃
照度:明 約1100Lux

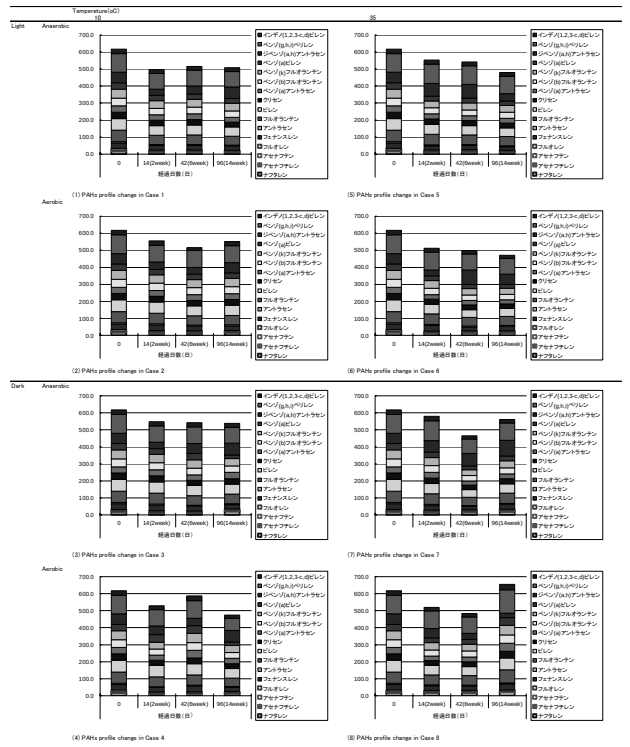


図-9 分解実験におけるPAHsの変化

4. まとめ

本研究は、閉鎖性水域内の底泥中の有機性有害物質の実態および挙動を把握するために、PAHsの存在実態を明らかにするとともに、ベンゾ[a]ピレン等の挙動を解明することを目的としている。

16年度は、達成目標①「底泥中の多環芳香族炭化水素の存在実態の解明」のうち、閉鎖性水域の近傍における道路交通の直接的影響について検討し、次の結果を得た。

(1) 閉鎖性水域の近傍の道路交通が底泥中の局所的なPAHs濃度の増大に寄与していると考えられた。

(2) 河川流入部や路面排水流入部において、道路及び屋根塵埃由来のPAHs負荷が底泥に堆積しており、湖内でも汚染の影響をあまり受けていない部分とで濃度分布が生じていると推察された。

また、達成目標②「底泥中のベンゾ[a]ピレン等の挙動の解明」のうち、ベンゾ[a]ピレン等の流入・流出河川による移動および底泥における分解について調査を行い、物質収支の試算を行った結果、以下のことが明らかとなった。

(3) 河川水中のSSには湖沼底泥と比較してより高濃度のベンゾ[a]ピレン等が存在していた。これは粒径が小さく、有機物を多く含んでいることによるものと考えられた。

(4) ベンゾ[a]ピレン等の物質収支の試算結果より、閉鎖性水域への流入としては、流入河川および導水中のSS由来のものが主要であり、水域からの流出としては、流出河川および底泥浚渫が主要であると推定された。

(5) 閉鎖性水域におけるベンゾ[a]ピレン等の挙動予測においては、導水等の外因要因に関するデータ、底泥における分解速度などのパラメータを正確に取得する必要がある、今後の調査が必要である。

なお、本調査研究は、運営費交付金（治水勘定）により実施されたものである。

参考文献

- 1) 環境庁環境保健部保健調査室：化学物質と環境，平成2年版，1990.12.
- 2) 環境省環境保健部環境安全課：化学物質と環境，平成12年度版，2001.3.
- 3) 環境庁水質保全局水質管理課：外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル（水質，底質，水生生物），pp.VI-1 - VI-8，1998.10.
- 4) John C. Larsen and Poul B. Larsen：Chemical Carcinogens, in Air Pollution and Health: Issues in Environmental Science and Technology 10, pp.33-56, The Royal Society of Chemistry, 1998.
- 5) 千葉県生活環境部水質保全課：公共用水域地点別水質測定結果データベース，平成16年10月15日更新，http://www.pref.chiba.jp/syozoku/e_suiho/3_kansi/3_databas e.html
- 6) 村上道夫，中島典之，古米弘明：多環芳香族炭化水素類（PAHs）含有率とそのプロファイルに基づく粒径画分ごとの道路・屋根堆積塵埃の識別，水環境学会誌，Vol.26, pp.837-842, 2003.12.
- 7) Carl-Elis Bostrom et.al.：Cancer Risk Assessment, Indicators, and Guidelines for Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Ambient Air, Environmental Health Perspectives v110,Supplemet 3, June 2002
- 8) 国土交通省道路局ホームページ，2004 道路整備効果事例集，<http://www.mlit.go.jp/road/koka4/3/3-219.html>
- 9) 千葉県：手賀沼水循環回復行動計画 資料編，資-22，平成15年7月
- 10) Shelby E. Walker et. al：Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Highly Industrialized Urban Estuary:: Inventries and Trends, Environ. Toxicology and Chemistry, 23:2655-2664, 2004.
- 11) 井内美郎：58 湖沼汚染底質の浄化手法に関する研究，海洋・湖沼の汚染防止に関する総合研究，平成2年度公害防止等試験研究，58-1-58-19，1991
- 12) 田中宏明，小森行也，津森ジュン：都市排水由来の化学物質の水環境中での挙動に関する研究，平成15年度重点プロジェクト研究報告書，pp.90-98，独立行政法人土木研究所，2004.3.

4. 草木廃材の緑化資材としての有効利用技術に関する研究

リサイクルチーム 上席研究員 尾崎 正明
主任研究員 落 修 一
研 究 員 宮本 綾子
交流研究員 牧 孝 憲

1. はじめに

土木工事を初め、道路や河川、海岸、空港、公園等の緑地管理からは大量の木質材や刈草が発生している。しかし、これらの草木に代表される有機質廃材のリサイクル手法は限られており、資源としての利用拡大に繋がる技術開発が求められている。他方、掘削や盛土などの土木工事にともなう法面保護や緑化、緑地造成のために多くの有機質資材が投入され、中には海外からの天然材に依存しているものもある。

本研究は、大量に発生する草木を法面保護や緑化、緑地造成、保全のための資材化技術を開発するとともに、地域や流域などにおける広域的な資源化・循環システムの構築を目指すものである。

2. 研究方法

本研究では発生する草木を資源と位置付ける。そして、発生量および発生形態をから個々に発生する草木の資源的価値を評価し、資源化利用に繋げるデータベース構築の基礎を得るための調査を行なう。資源化利用に関しては大きく 2 つに分けた技術開発を行なう。一つは土木工事に伴い発生する伐採木、抜根材の現地における完全利用・還元を図るための技術であり、他の一つは公園や緑地などのように同一地点から定期・定常的に発生してくるものの資源化・利用技術である。なお、後者に関しては、既に資源化利用技術・システムが存在し、機能している地域にあっては、その保全を図るとともに、残余草木がある場合の資源化利用技術の開発が対象となる。

3. 研究結果

平成 16 年度は、データベース構築化のための草木材発生量調査をダム流木について行なうとともに、伐採木・抜根材の有効利用を促進するために、爆砕処理を施した木質爆砕物の法面緑化資材化および園芸資材化の方法の確立を目指して法面緑化のための吹付材料の開発とピートモス代替物の開発を行なった。

吹付材料およびピートモス代替物の開発を行なうにあたり、爆砕法という技術を用いた¹⁾。爆砕法とは、木質チップを耐圧容器内で高温、高圧の水蒸気により一定時間蒸煮した後、急激に減圧し放出することにより細胞・繊維質を破壊、解砕する方法で、木材の飼料化などのために開発されたすでに確立された技術である。堅固な繊維状の木質材などは、爆砕処理の強度を調節することによりピートモスと類似した性状の改質物を得ることができるため、伐採木・抜根チップ爆砕物はピートモスの代替となる可能性がある。しかし、本研究により木質チップは爆砕処理を施すことで強酸性化、植物の発芽・生育阻害物質の生成によって植物の発芽・生育を阻害することが分かっている。

3. 1 草木材発生量調査

3. 1. 1 ダム流木発生量調査方法

調査は、財団法人ダム水源環境整備センターの協力のもと、流木発生実績に関するアンケート調査を実施した。調査は全国の直轄、公団に加え、代表的な補

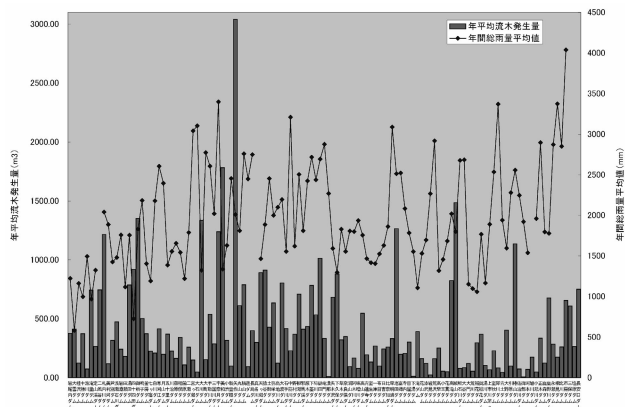


図1 年平均流木発生量と年間総雨量との関係

助ダムを加えた 199 ダムを選定した。アンケートは、郵送によりダム・貯水池の流況諸元、調査開始以降の流木発生量、年間降雨量、流木の取扱い方法、今後の課題・意見などを問う記述方式をとった。また、国土地理院発行のデジタル標高データをもとにダム集水域 GIS データを作成した。

3. 1. 2 ダム流木発生量調査結果

流木量の回答は 186 ダムから得られた。流木発生量と年間降雨量との関係を図 1 に示す。これによると、明確な相関が見られなかったため、個別のダムについて調査した。図 2 に桐見ダムの流木発生量と年間降雨量との関係を示す。このように、発生量と降雨量とに何らかの関係が見られる場合があり、これには大規模降雨の有無が大きく影響していると考えられる。

流木の利活用状況について図 3 に示す。これによると、直轄、水資源機構管理ダムの利活用の取組みが良く、55%に達するのに対し、都道府県管理ダムでは20%ほどにとどまっていた。次に、流木の処理にかかわる費用を図 4 に示す。これらの結果から、全国の年平均流木発生量に対する処分費用は直接工事費で17億円に達すると推定される。流木の廃棄処分の費用を図 5 に示す。これは非常にばらつきが大きい、平均すると 10,800 円/m³であった。このばらつきは、立地条件や処分方法の差異によるものだと考えられ、この値は全国の総処分費用を算出するための参考値として考える必要がある。

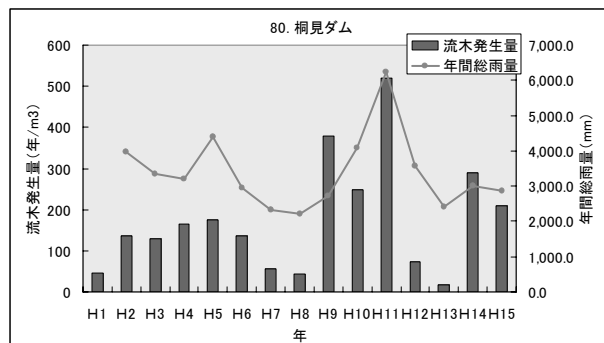


図 2 桐見ダムの年流木発生量と年間総雨量との関係

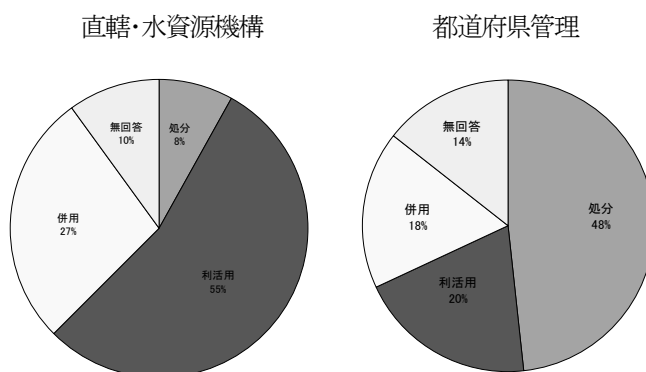


図 3 流木の取扱い方法

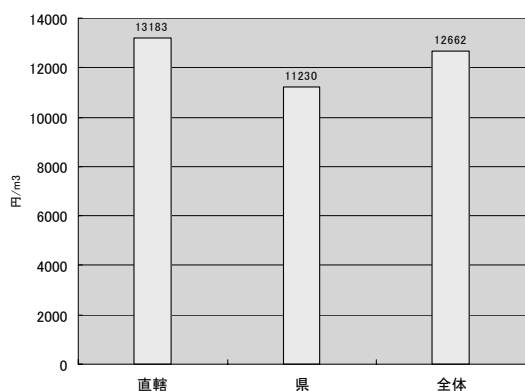


図 4 流木の収集、引上げ、運搬にかかる費用

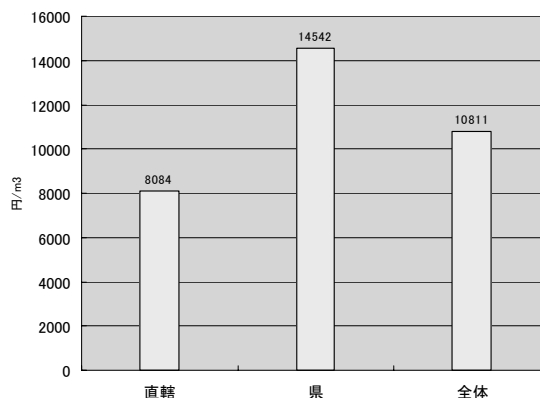


図 5 流木の廃棄処理費用

図 5 の結果から、流木を廃棄処分するのにかかる費用は全国で 3.6 億円にのぼると推定される。このことから、流木の集積等の管理と廃棄処分にかかる費用は 20 億円に達すると考えられる。

流木利活用にかかる費用を形態別に図 6 に示す。利活用する方法として、全体の 40%以上を占める木材チップ化は 8,000 円/m³程度であった。

最後に、得られたデータをもとに全国のダムにおける年間流木発生量を算出した。その結果、年間 34.5 万 m³発生していると推定された。地域別推定発生量を図 7 に示す。北陸地域の値が大きいのは、当該地域のダムは同一流域内で上下流に存在するケースが多く、流域面積を重複カウントしている可能性があり、精査する必要がある。

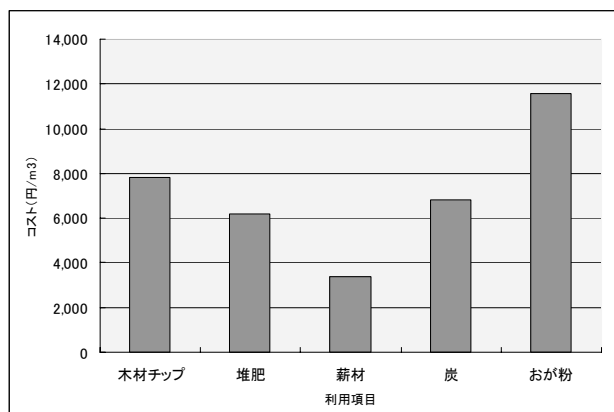


図6 流木利活用にかかる費用

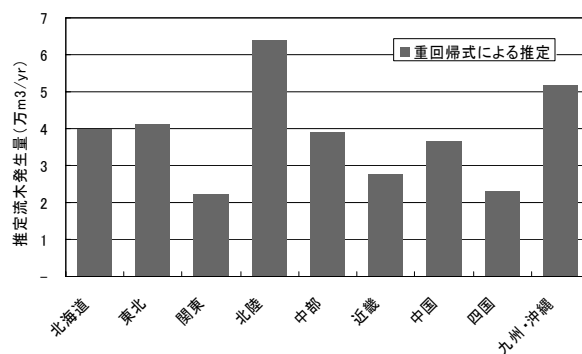


図7 地域別推定年間流木発生量

今後、より精度の高いデータを得るためには以下の項目を検討する必要がある。

- ① 流木の利用（加工）費用および処分費用に関する追加調査
- ② 近接ダムとの連携による効率的な流木の利用可能性
- ③ 地域の需要ポテンシャルマップの作成
- ④ 本アンケート対象外のダムを対象とした流木流入域面積の算出
- ⑤ 国土数値情報を利用したGISによる解析
- ⑥ 流木発生量と詳細な降雨データ、森林施業状況、森林の健全性、ダム堆砂量との関連
- ⑦ 平成16年度の流木流入量データの収集

①～③をより詳細に調査することにより、全国における処理費の詳細を算出することが可能となり、利用方法、利用先を明らかにすることで処理費の縮減、効率的な利用が可能になる。④～⑤により直接流入面積が明らかとなるため、正確な流木発生量が把握できる。⑥～⑦の調査によって、流木発生量と関連があると思われる日降雨量、時間降雨量等の詳細な降雨量、間伐方法、樹種、樹木の健全性、堆砂量を把握することで、流木発生要因を明らかにすることができる。平成16年度は多数の台風が上陸した特異年度だったため、台風による影響を顕著に受けたデータが得られると予想される。

以上の項目を検討することで、より精度の高いデータを得ることができると考えられるため、それをふまえた今後の流木対策に関する提言が可能になると考えられる。

3. 2 吹付資材の開発

3. 2. 1 木本植物の導入

2004年3月に土木研究所内で広葉樹爆砕物を緑化資材として使用した吹付試験を行なった（法面勾配1:1.0、南向き、盛土法面）。試験は表1の配合で行ない、緑化草本植物としてトールフェスクおよびメドハギを使用した。発芽期待本数はそれぞれ1,000本/m²、500本/m²とした。施工後1ヶ月目に木本植物を播種および苗木により導入した。播種による導入は、生育基盤の一部を掘取り、使用する種子をそれぞれ5穴ずつ5粒播き、最後にバーク堆肥によって覆土した。導入植物は、ヤマハギ、コマツナギ、ヌルデ、アキグミ、アカメガシワ、コナラ、ネズミモチ、シャリンバイ、シラカシおよびアラカシの10種を用いた。苗木による導入は、生育基盤の一部を掘取り、使用する木本植物をそれぞれ2本ずつ植栽し、最後にバーク堆肥によって覆土した。導入植物は、アキグミ、ヤマハギおよびアカメガシワの3種を用いた。

表1 吹付緑化試験配合表

	広葉樹爆砕物 (L)	バーク堆肥 (L)	肥料 (L)	接合剤 (g)	中和資材 (g)
試験区	1	510	1,190	170	850
	2	510	1,190	170	850
	3	850	510	170	850
	4	1,190	510	170	850
対照区	粉碎木質チップ 1,700L		170	850	
標準区	1,700		170	850	

3. 2. 2 植生追跡調査方法

施工後の追跡調査は平成 12 年 日本岩盤緑化工協会 植生追跡調査法ハンドブック²⁾に基づいて行なった。各試験区に 1m×1m のコドラートを設置し、コドラート内の出現本数、草高、被度、被覆率などを調査した。また、周辺からの侵入植物の出現数、苗木の活着状態、生育基盤の状態、土壌硬度などを調査した。

3. 2. 3 植生追跡調査結果

生育基盤の調査の結果、大きな侵食・流亡は確認されなかった。また、土壌硬度は全ての工区で根系伸長範囲内となり、文献 3 に基づく植物の生育基盤としての機能を有していることが確認できた。

植生調査の結果、標準区（植生基材吹付工区）では、吹付時に導入したトールフェスクおよびメドハギは良好な発芽・生育を示した。しかし、試験区 1～4 および対照区では、それらの緑化草本植物の発芽・生育は抑制された。ただし、標準区を除く試験区において、施工後 3 ヶ月以降より周辺環境より侵入・定着したとみられる植物が観察され始め、5 ヶ月程度経過した時点では生育している植物の多くがメヒシバ等 10 種程度の侵入種で占められるようになった（写真 1 および 2）。

苗木により導入した木本植物は、試験区 1～4 および対照区では順調な生育が観察された（図 1）。播種によって導入し、発芽・生育した植物本数を図 2 に示す（ただし、1 種につき 3 本以上生育したものは 3 本としてカウントした）。播種による導入でも、同試験区では木本植物の発芽・生育は順調な結果であった。これは、標準区で使用した吹付資材と比較して、試験区 1～4 および対照区の吹付資材は肥効成分が乏しいため、二見ら⁴⁾の指摘と同様、貧栄養環境を好む木本植物の生育に

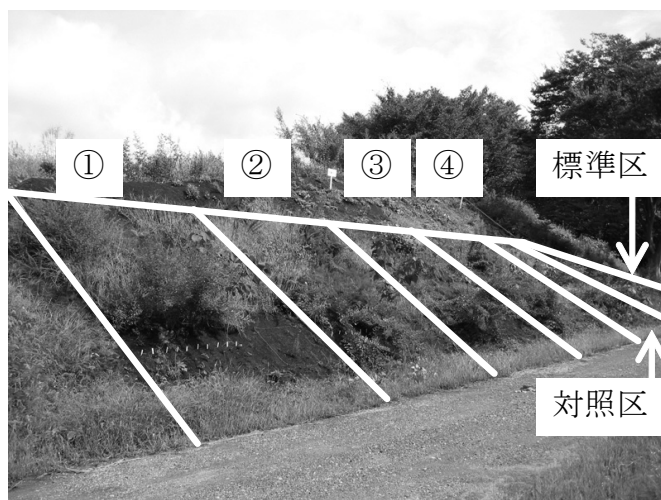


写真 1. 施工後 5 ヶ月目の全景 (番号は試験区)

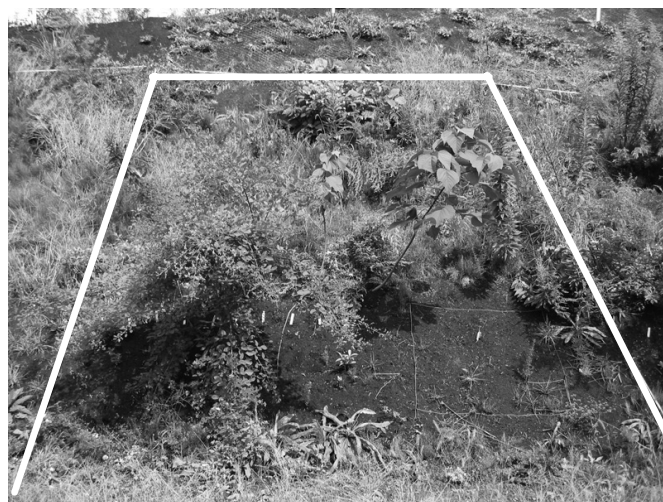


写真 2. 施工後 5 ヶ月目の試験区 3 の生育状況

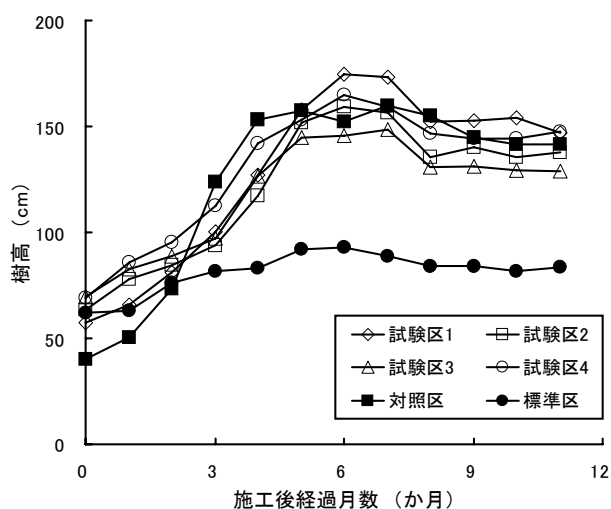


図 1. アカメガシワの樹高の経時変化

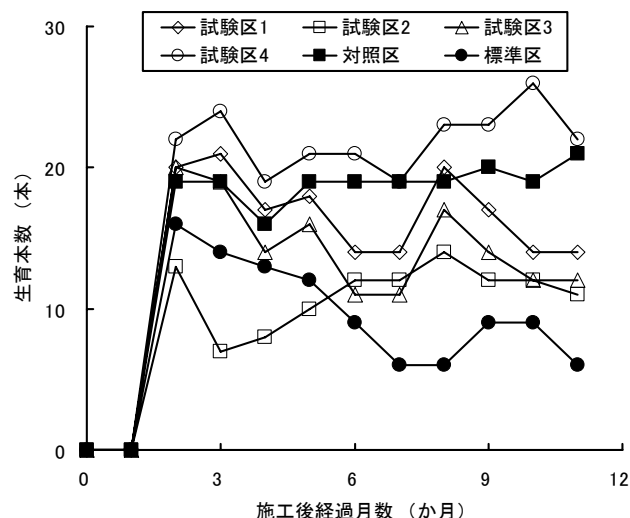


図 2. 播種導入によって発芽・生育した木本植物本数

とって有利であったことによると考えられる。また、時間の経過とともに侵入種の生育が観察されたのは、吹付資材（木質爆砕物）中の発芽・生育阻害物質が分解、または降雨により溶脱したためと考えられる。

これまでの結果より、爆砕物を用いた法面緑化は一般的な吹付資材と比較して緑化発現に時間を要するが、侵入種の定着によって周辺環境に調和する植生が期待できることが示された。ただし、法面緑化工は本来の植物群落の植生となるまでに数年を必要とするため、今後長期にわたる継続的な追跡調査による評価が必要である。

3. 3 木質爆砕物の園芸資材化

3. 3. 1 木質爆砕物コンポスト化実験方法

植物に対する木質爆砕物の発芽・生育阻害を回避する目的でコンポスト化実験を行なった。針葉樹および広葉樹の爆砕物（表 1）と種コンポストを用い、表 2 の配合で 35℃の恒温室にてコンポスト化実験を行なった。種コンポストは木質爆砕物、活性汚泥およびバーク堆肥を用いて本実験と同様の方法で事前に作製した。木質爆砕物は含水率 60・70%に調整した後、電気伝導率に配慮して針葉樹爆砕物：pH 6.0、広葉樹爆砕物：pH 4.5 となるように炭酸カルシウムを添加し、種コンポストと十分混合して 5L 容発酵カラムに充填した。周囲を断熱材で覆い、下部より 100mL/分の割合で空気を通気させた。発酵カラム内温度を連続測定し、発酵排ガスの二酸化炭素濃度を毎日測定した。1 週間ごとに切返しを実施して、その際に試料を採取した。採取した試料は、理化学性（pH（H₂O）、EC、TN、TC、NH₄⁺、水溶性P、有機酸、フェノール性物質）の測定および発芽・生育試験に供試した。

表 1. 木質爆砕物の理化学性

		針葉樹	広葉樹
pH	(H ₂ O)	3.3	3.4
電気伝導率	(dS/m)	0.6	0.8
アンモニア態窒素	(mg/kg)	9.8	7.6
硝酸態窒素	(mg/kg)	0.5	0.2
水溶性リン	(mg/kg)	19.3	18.3
陽イオン交換容量	(cmol(+)/kg)	5.5	5.4
リン酸吸収係数	(g-P ₂ O ₅ /kg)	33.9	38.0
フェノール性物質	(g/kg)	10.3	16.4
有機酸	(mg/kg)	629.7	570.8
全炭素	(%)	49.5	46.8
全窒素	(%)	0.3	0.2
炭素率		192.8	267.5

3. 3. 2 発芽・生育試験方法

表 2. 木質爆砕物コンポスト化実験の試験区

実験は、試料の抽出液を使用した試験（試験 1）と試料自体を使用した試験（試験 2）を行なった。供試植物にコマツナ、トールフェスクおよびメドハギを用いて 20℃の恒温室にて行なった。試験 1 では、試料 5g に常温水および熱水のイオン交換水 50mL を加えて振とうし、抽出液を作製した。ろ紙 2 枚を敷いたシャーレに抽出液を 7mL 加え、供試植物をそれぞれ 5 粒ずつ播種した。試験 2 では、試料をシャーレに充填した後供試植物をそれぞれ 3 粒ずつ播種し試料を覆土した。それぞれ 7 日後、10 日後に供試植物の生育長を測定し、発芽・生育の評価を行なった。対照区として試験 1 ではイオン交換水、試験 2 では砂を用いた試験区を設けた。

試験区	1	2	3	4	5	6
爆砕物量 (mL)	5,000	4,750	4,500	4,000	3,500	5,000
種コンポスト量 (mL)	50	250	500	1,000	1,500	0
種コンポストの割合 (%)	1	5	10	20	30	0

3. 3. 3 木質爆砕物コンポスト化実験結果

実験直後より 45℃程度まで上昇し、それに伴い二酸化炭素発生量が増加し、またコンポスト化期間が経過するに伴い各水溶性肥効成分が減少した。これは、微生物の分解活動により温度が上昇して二酸化炭素が発生し、水溶性無機態肥効成分が有機化したためと考えられる。これらのことから、木質爆砕物のコンポスト化は順調に進行したものと考えられる。また、有

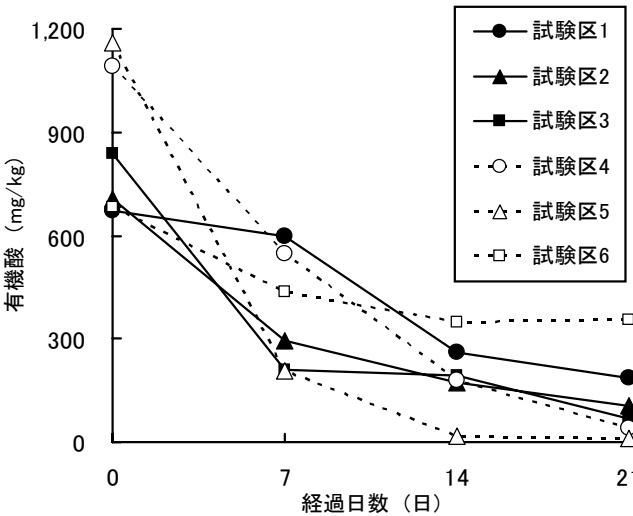


図 1. 広葉樹コンポスト化物の有機酸含有量の経時変化

機酸およびフェノール性物質含有量も経時的に減少した(図1)。これも微生物分解によると考えられる。

3. 3. 4 発芽・生育試験結果

試験1では抽出液の種類、コンポスト化期間または種コンポスト量などにかかわらず、試験区間で大きな差異は認められなかった。これは、抽出液中に溶出した発芽・生育阻害物質量が少なかったためと考えられる。一方、試験2ではコンポスト化期間が長く、また種コンポスト混合率が増加するほど植物生育長が大きくなる傾向を示した(図2)。また、発芽・生育阻害物質量と生育長に相関関係があることが示唆された(図3)。

以上の結果から、木質爆砕物はコンポスト化過程を経ることで有機酸およびフェノール性物質などの発芽・生育阻害物質が減少し、それに伴い植物生育は改善される傾向が示された。このことから、木質爆砕物はコンポスト化することでピートモスの代替物となる可能性が高いことが分かった。

4. まとめ

全国のダムからの流木発生量を把握するためのアンケート調査、木質爆砕物の法面緑化資材への適用試験、木質爆砕物を園芸資材として利用するためにコンポスト化実験を実施し、以下の結果を得た。

- (1) 流木発生量、利用形態、処理費用などの概要が分かった。
- (2) 吹付時に導入した草本植物による緑化は達成できなかったが、導入方法によらず木本植物の生育は良好で、対照区(生チップ区)と同等であり、周辺環境に調和する植生が期待できることが示された。
- (3) 有機酸およびフェノール性物質などの発芽・生育阻害物質が減少して、それに伴い植物生育は改善される傾向を示したため、ピートモスの代替物となる可能性が高いことが分かった。

謝辞

本研究を行なうにあたり、財団法人ダム水源地環境整備センター、東興建設株式会社、日本植生株式会社の皆様、井上義康 実務訓練生にご協力を頂きました。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 棚橋光彦：爆砕法による森林バイオマスの変換と総合利用，木材研究・資料，18，pp.34-65，1983年
- 2) 日本岩盤緑化工協会：植生追跡調査法ハンドブック、2000年
- 3) 日本法面緑化技術協会：有機質系厚層基材吹付工 技術資料、2003年
- 4) 二見肇彦ら：未分解チップを有効利用した生育基盤材による自然回復手法について、日本緑化工学会誌、29(1)、pp.185-188、2003年

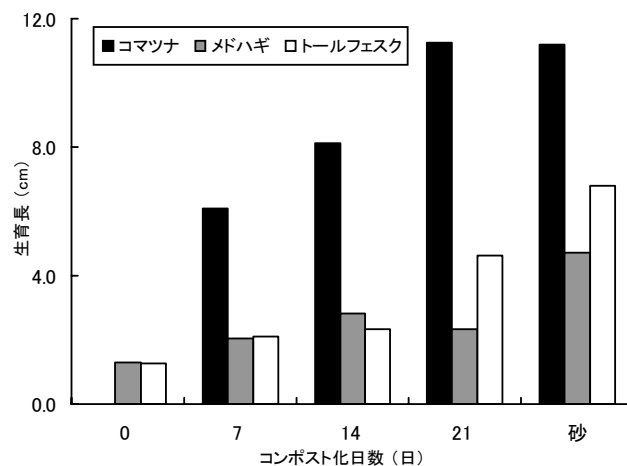


図2. 種コンポスト20%混合(広葉樹)における生育長

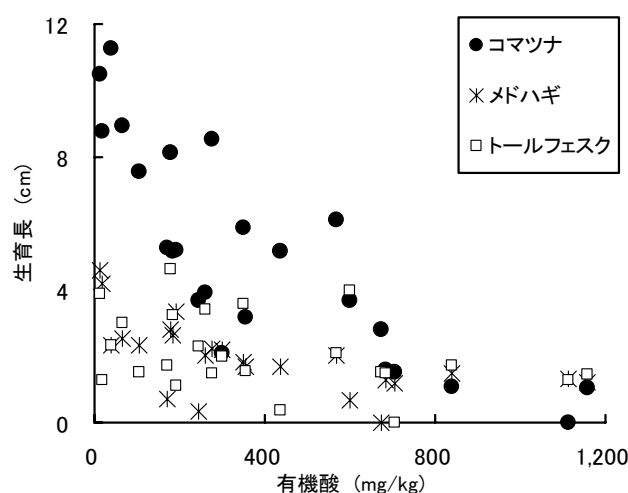


図3. 有機酸と生育長との相関関係

5. アジア・モンスーン地域の下水処理施設における病原微生物の消長に関する研究

材料地盤研究グループ (リサイクル)

尾崎正明、諏訪 守、陶山 明子

1. 要約

発展途上国では、一般的にラグーンにより下水処理が行われている。本研究では、アジア・モンスーン地域に属するタイにおいて、下水中の病原微生物の実態や現地で採用されているラグーンでの除去特性の解明を目的に実態調査を行った。タイでの調査は、病原微生物を細菌、ウイルス、原虫に分類し、コンケンおよびバンコクのアジア工科大学 (AIT) に隣接するラグーンを対象とした。コンケンと AIT において各々病原微生物の濃度に違いが見られた。15 年度に沖縄県で行ったラグーンの調査結果と比較すると、特に AIT の流入下水ではジアルジアのシスト濃度、ノロウイルス濃度は 2~3 オーダー高かった。クリプトスポリジウムは検出割合は比較的高いが、検出濃度はジアルジアに比較して低濃度であった。コンケンの流入下水の病原微生物濃度は AIT と比較してそれ程高濃度ではないが、沖縄県の流入下水のノロウイルス濃度と比較すると、最大検出濃度は 2 オーダー高かった。クリプトスポリジウムは全ての試料で不検出であった。コンケンと AIT における流入下水の病原微生物濃度の違いは、下水の排除方式の差によるものと推定された。ラグーンによる各々の病原微生物の除去率は、1log 程度から 3log 以上の平均除去率が得られており、沖縄県で行ったラグーンの滞留時間が 10 日間での調査結果と比較すると大腸菌群、ジアルジアの除去率は高い。除去率が高い要因はラグーンの配置が多段であることや、推定ではあるが滞留時間が異なることに起因するものと考えられる。しかし、大腸菌群、原虫類に比較してウイルス除去率の変動は比較的大きかった。

2. 研究目的

アジア・モンスーン都市部においても都市化の進展、人口集中などに伴いヒトからの排泄物により、病原微生物の汚染による水環境の悪化が懸念されている。水環境の改善、水資源の確保は重要であり、下水道整備によりその対応を講ずることが望まれる。発展途上国では一般的にラグーンなどにより下水処理が行われているが、処理方法や放流水系状況の違いによって病原微生物の消長は変化するものと考えられ、水環境の改善、水資源の確保の観点からその実態を解明する必要がある。

本研究の目的は、病原微生物を細菌、原虫、ウイルスに分類し、各々の分類毎に指標となる微生物の評価を行い実態を把握するとともに、ラグーン施設の運転条件が病原微生物の除去に及ぼす影響を調査し、水系での消長を解明するものである。

3. 研究計画

15 年度は、沖縄県のラグーン実験施設において、降雨、流出 SS、日間変動などが病原微生物の消長に及ぼす影響を把握するとともに、植生浄化法による病原微生物の消長を調査した。

16 年度は、アジア・モンスーン地域に属するタイにおいて、下水中の病原微生物の実態や現地で採用されているラグーンでの除去特性を解明するため、以下の調査をバンコクとコンケンにおいて実施した。

- 1) 流入下水の病原微生物の実態を調査
- 2) ラグーンにおける病原微生物の消長調査

平成 17 年度以降は、タイのコンケンにおいて降雨時の汚濁負荷上昇時に病原微生物の流出負荷特性を把握する予定である。

4. 研究方法および対象微生物

本研究では、アジア・モンスーン地域に属するタイにおける下水中の病原微生物の実態や現地で採用されているラグーンでの除去特性の解明を目的に実態調査を行った。タイでの調査は、コンケンおよびバンコクのアジア工科大学（AIT）に隣接するラグーンを対象とした。コンケンは個々の家庭でセプティクタンクあるいは浸透式トイレ形式と推定され、その流出水がラグーンに流入するものと考えられる。AIT では水洗トイレにより下水はラグーンに排出される。各々のラグーン施設の概要を図-1、2 に示す。コンケンは3 池のラグーンから構成さ

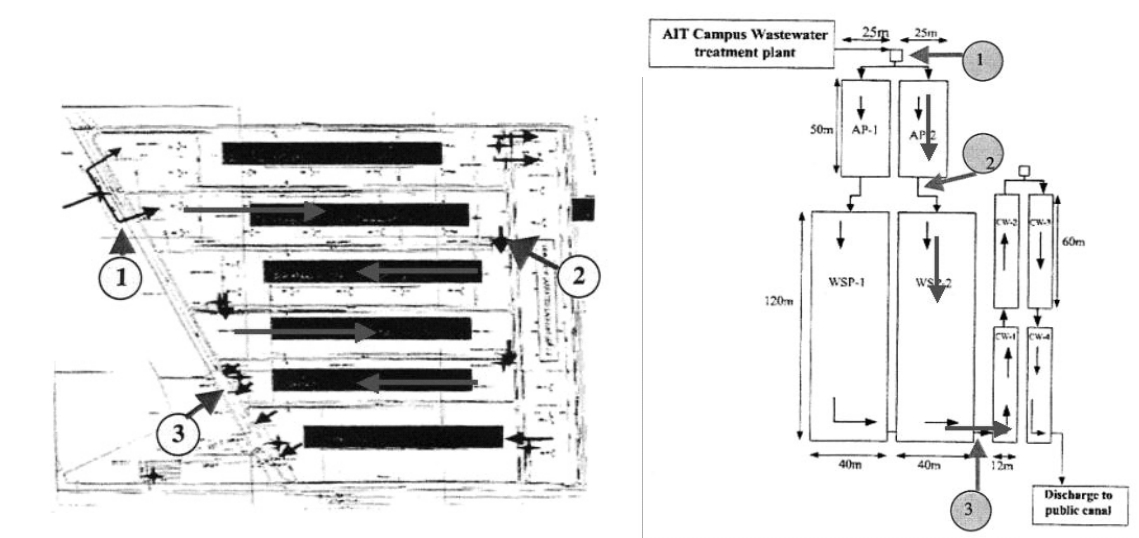


図-1 コンケンのラグーン施設

(1:流入下水, 2:第 2 池流出水, 3:第 3 池流出水)

図-2AIT のラグーン施設

(1:流入下水, 2:第 1 池流出水, 3:第 2 池流出水)

れており、第 2 池で間欠曝気を行い、総容量は $46,000\text{m}^3$ 、平均水深は 2 m である。AIT は 2 池のラグーンから構成されており、容量は $2,125\text{m}^3$ 、 $3,360\text{m}^3$ 、水深は 1.7m、0.7m である。

AIT では流入下水、第 1、2 池流出水、コンケンでは流入下水、第 2、3 池流出水の各々 3 試料について採水を行った。病原微生物の対象を大腸菌群数、ジアルジア、クリプトスポリジウム、ノロウイルスとした。各々の病原微生物の測定法を以下に示す。

大腸菌群数法は、MPN 法あるいは平板培養法とした。

原虫類のジアルジア、クリプトスポリジウムは試料を遠心濃縮、免疫磁気ビーズによる分離の後、間接蛍光抗体染色による顕微鏡観察とした。免疫磁気ビーズはダイナル社製のダイナビーズ GC-コンボキット、間接蛍光抗体染色には HYDORO-FLUOR-Combo キット、ENSYS INC.を用いた。

ウイルスの濃縮法は、ポリエチレングリコール (PEG) 沈殿法によるもので、試料中に PEG6000 (終濃度 8%) および NaCl (終濃度 0.4M) を添加・攪拌し完全に溶解させた。4℃で一晩静置した後、 $10,000\times g$ 、30 分間遠心分離して沈査を回収した。この沈査を RNase-free 水 (遺伝子分解酵素を除去した水) に再浮遊させてウイルス濃縮液とした。濃縮液中のウイルスは、リアルタイム PCR 法により定量を行った。また、リアルタイム PCR 法によるウイルスの定量感度を把握するため、ノロウイルス G1 型^{1, 2)} G2 型^{1, 2)} について各々の高度保存領域を

クローニングしたコントロールcDNAを作製し、TaqManプローブを用いて、その希釈系列に対してリアルタイムPCRを行った。ウイルス遺伝子の抽出は、ウイルス濃縮液からQIAamp Viral RNA Kit (QIAGEN社)を用いたグアニジン法とした。抽出したRNAに微量に含まれているDNAを除去するためDNaseI処理し、RNeasy MinElute Clean up Kit (QIAGEN社)でウイルスRNAを精製した。上記で抽出したウイルスRNA試料1μgをランダムプライマー、Omniscript RT Kit (QIAGEN社)を用い全量20μlの系で逆転写反応を行いcDNAを作製し2μlをリアルタイムPCRに供した。使用したプライマーおよびプローブを表-1に示した。

ノロウイルスの検出に用いたプライマー、プローブおよび反応条件は、食安監発第1105001号「ノロウイルスの検出法について」に準じた。リアルタイムPCRはQuantiTect Probe PCR Kit (QIAGEN社)を用い、リアルタイムPCR装置はLightCycler (ロシュ・ダイアグノスティックス社)を使用した。

表1 使用したプライマーおよびプローブ

対象ウイルス		プライマー		プローブ
ノロウイルス	G1型	COG1F	COG1R	RING1-TP (a) RING1-TP (b)
	G2型	COG2F	COG2R ALFP	RING2AL-TP

5. 研究結果および考察

調査結果を表-2および図-3～6に示す。コンケンとAITにおいて各々病原微生物の濃度に大きな違いが見られた。特にAITの流入下水ではジアルジアのシスト濃度の最大検出濃度は 1.8×10^4 (cysts/L)、ノロウイルス (G1型) 濃度は 3.5×10^6 (copies/L) となっており、15年度に行った沖縄県でのラグーンの調査結果との比較となるが、その流入下水と比較すると2～3オーダー高い。大腸菌群の濃度レベルは同程度であった。

表-2 各病原微生物の検出濃度範囲と除去率

微生物 地点		大腸菌群 (cfu or MPN/ml)	ノロウイルス G1 (copies/L)	ノロウイルス G2 (copies/L)	ジアルジア (cysts/L)	クリプトスポリジウム (oocysts/L)
記載データ		H16.6月～H17.2,3月	H16.6～12月、H17.1月		H16.6月～H17.1月	
コンケン	流入下水	4.4E+2～2.3E+5	1.1E+4～9.7E+5	4.1E+2～1.6E+5	ND～1.5E+2 [7/8]	ND [0/8]
	第2池流出水	4.0E+1～3.0E+4	ND～1.0E+3	ND～1.7E+4	ND～2.2E+1 [2/8]	ND [0/8]
	第3池流出水	3.8E+1～2.2E+4	ND～2.9E+2	ND～1.0E+4	ND～1.0E+0 [1/8]	ND [0/8]
	除去率の範囲(%)	0～99.6	82.3～100	0～100	99.3～100	—
	平均除去率(%)	83.2	94.2	85.0	99.9	—
AIT	流入下水	2.1E+4～9.0E+6	4.5E+4～3.5E+6	1.7E+4～2.0E+6	2.6E+2～1.8E+4 [9/9]	ND～1.6E+1 [5/9]
	第1池流出水	4.6E+3～1.6E+6	1.0E+5～2.2E+6	1.3E+4～1.3E+6	1.1E+1～4.1E+2 [9/9]	ND～2.0E+0 [2/9]
	第2池流出水	7.0E+1～5.0E+3	3.6E+1～4.2E+5	ND～6.0E+4	3.0E+0～2.8E+1 [9/9]	ND [0/9]
	除去率の範囲(%)	98.1～99.99	0～99.97	56.8～100	94.6～100	100
	平均除去率(%)	99.6	65.7	92.3	99.2	100

原虫類の欄〔〕内：下段分析検体数、上段検出検体数、検出限界値範囲1～4 oocysts/L
検出限界値以下の場合には除去率を100%として計算した

クリプトスポリジウムは検出割合は比較的高いが、検出濃度はジアルジアに比較して低濃度であった。一方、コンケンの流入下水の病原微生物濃度はAITと比較してそれ程高濃度ではないが、沖縄県でのラグーンの流入下水のノロウイルス濃度と比較すると、最大検出濃度は2オーダー高い。クリプトスポリジウムは全ての試料で不検出であった(検出限界値1～4oocysts/L)。コンケンとAITにおける流入下水の病原微生物濃度の違いは、先にも述べたが下水の排除方式の差によるものと推定されるが、今後、詳細な現地調査を行いこれらの違いについて

解明する必要がある。

環境水に大きな影響を及ぼすと考えられるラグーン処理水の病原微生物濃度は各々低レベルとなっている。ラグーンによって各病原微生物とも 1log 程度から 3log 以上の平均除去率が得られており、ラグーンの滞留時間が 10 日間での沖縄県で行った調査結果と比較すると大腸菌群、ジアルジアの除去率が高い。除去率が高い要因はラグーンの配置が多段であることや、推定ではあるが滞留時間が異なることに起因するものと考えられる。しかし、ノロウイルスの除去率の推移に関して図-3~6 示したが、比較的大きな変動を示した。ラグーン内の溶存酸素濃度とコリファージの藻類等の浮遊状粒子への吸脱着現象についての報告³⁾ があることから、ウイルス除去率と溶存酸素濃度との関係を整理したが、有意な相関関係は見られなかった。また、他の水質項目との関連も特に見られなかった。

6. おわりに

平成 16 年度では、アジア・モンスーン地域に属するタイにおいて、下水中の病原微生物の実態や現地で採用されているラグーンでの除去特性の解明を目的に実態調査を行った。その結果、コンケンと AIT において流入下水の病原微生物濃度に違いが見られたが、これは下水の排除方式の差によるものと推定された。ラグーンによる病原微生物の除去では、大腸菌群、原虫類に比較してウイルス除去率の変動は比較的大きかった。

なお本実態調査は、アジア工科大学のシピン博士、コンケン大学のパイラヤ博士と共同で実施した。

参考文献

- 1) 篠原美千代、影山努 (2002) 蛍光プローブを用いた RT-PCR 法 日本臨床. Vol. 60 (6) p. 1181-1187.
- 2) 影山努、小嶋慈之、福士秀悦、片山和彦 (2001) 蛍光プローブを用いた Norwalk virus (NV) の高感度検出法の開発. Vita. Vol. 18 (1) p. 42-49
- 3) 大垣眞一郎、アウラピン・ケラタナク、ウタイパン・プラセソム (1986) 酸化池内でのコリファージの挙動に及ぼす日射の影響、衛生工学研究論文集. 22: 163-172.

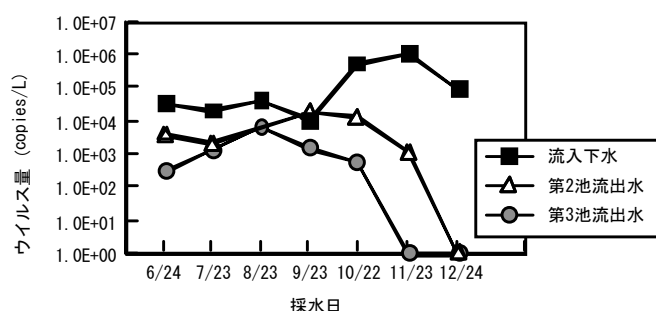


図3 コンケンにおけるノロウイルスG1型濃度

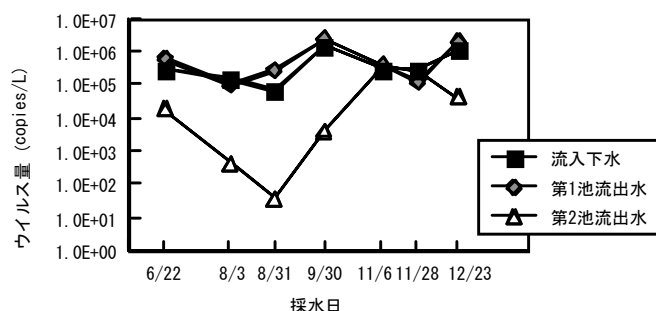


図4 AITにおけるノロウイルスG1型濃度

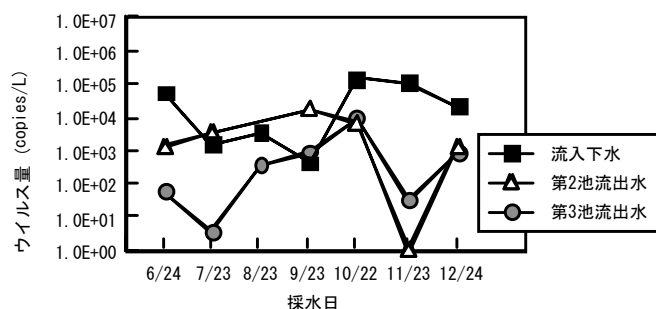


図5 コンケンにおけるノロウイルスG2型濃度

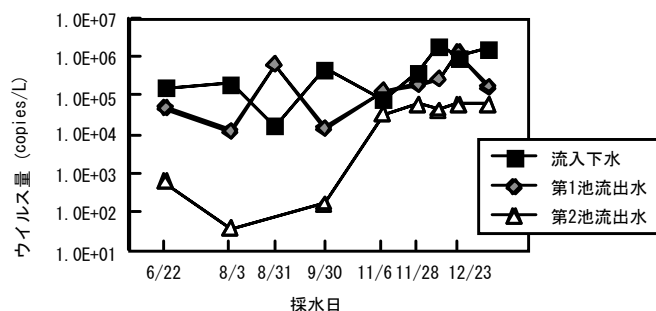


図6 AITにおけるノロウイルスG2型濃度

6. 水環境中における薬剤耐性菌の実態に関する研究

リサイクルチーム 上席研究員 尾崎正明
主任研究員 諏訪 守

1. はじめに

我が国でも抗生物質の多量使用により薬剤耐性菌が発生し、病院内などを中心に感染事例が多く報告されており社会問題となっている。またヒトが服用した抗生物質は最終的には体外へ排出されることから、下水処理場などを経て環境水中に放流される。現在、下水処理場や環境水中において、これら抗生物質や薬剤耐性菌などの調査、研究が徐々に行われてきている^{1) 2) 3)}。

一方、下水道の普及率も向上し環境水中に占める下水処理水の割合も向上しているため、下水処理場はこれらの薬剤耐性菌や抗生物質の新たな汚染源となりうる可能性があることから、その詳細な実態解明を求められることが今後予想される。また、下水処理過程において耐性遺伝子の伝達の可能性を指摘する報告⁴⁾もあるが、調査・研究事例は現在のところ少ない。

本研究では、環境水中における薬剤耐性菌の汚染実態を明らかにするとともに、環境水に大きな影響を及ぼすと考えられる下水処理場を含めた各種排水処理施設などからの耐性菌排出量を把握し、環境水への影響の大きさを検討する。さらに、河川環境を含めた微生物の混在系における耐性遺伝子の伝達特性や、薬剤耐性菌の消長と消毒耐性の解明を目的としている。

16 年度は、下水処理水とその流入下水、さらに病院排水とその活性汚泥処理施設の処理水について、大腸菌を対象とした薬剤耐性試験、薬剤感受性試験を行い、実態を調査した。

2. 研究方法

2. 1 大腸菌の検出法の評価

下水処理場へ排出される細菌群の汚染源はヒト由来のものが大部分を占めることから、腸内細菌科に属する細菌が優占すると考えられる。その中でも大腸菌は、ヒト腸管内の常在菌の一種でかつふん便汚染指標の代表種として位置づけられ、また、下水を含めた環境水における既存の薬剤耐性菌の調査・研究では大腸菌を対象とした事例が多く見受けられる。さらに、今後他の菌種を対象に調査を行った場合でも、基礎的データとして大腸菌との関連性を把握することは重要となることが予想される。このため、16 年度においては薬剤耐性菌の対象を大腸菌として実験・調査を行った。

まず、下水中より大腸菌を検出するための測定法を評価した。現在、大腸菌（大腸菌群）を水試料から検出するために様々な方法が提示されている。ここでの検出法の評価では、数種類の異なる培地を用いた平板培養法あるいはフィルター法により、検出された典型コロニーの菌種を同定し、その陽性割合から大腸菌検出のための最適な測定法を選定した。評価対象とした培地はクロモカルト培地、デソキシコール酸塩培地（37℃、44.5℃）の平板培養法、MF-エンドウ培地、M-FC 培地のフィルター法であり、各培地により検出された典型コロニー

を 20 ～ 30 株釣菌し、ID テスト（ニッセイ EB-20）を用いて菌種の同定を行った。

2. 2 薬剤耐性試験

薬剤耐性試験では、対象抗生物質をレボフロキサシン（LVFX）、アンピシリン（ABPC）の 2 種類とし LVFX の場合は最終濃度が 8mg/L になるようクロモカルト培地に添加、ABPC では 32mg/L とし、添加系と無添加系における大腸菌の検出濃度の違いにより耐性割合を把握した。LVFX は我が国における出荷量・額および尿排泄率から推定した体外排出量の多い抗生物質の一種であり¹⁾、また、ABPC は既存の調査・研究事例で比較的多く報告されているとともに、腸内細菌科の大腸菌に対してともに抗菌作用を有することから薬剤耐性試験の対象抗生物質として選定した。

試料の採取は下水試料で 3 回、病院試料で 2 回行い、各々薬剤耐性試験を実施した。下水試料は関東圏内の流域下水道の流入下水と活性汚泥処理後の処理水、病院試料は関東圏内にある比較的大規模な病院の下水とその活性汚泥処理施設から排出される処理水の計 4 種類とした。なお、流域下水道の流域内に今回調査対象とした病院試料は含まれていない。

2. 3 薬剤感受性試験

薬剤感受性試験は、上記 2.2 の抗生物質無添加培地によって検出された大腸菌の典型コロニーを釣菌、トリプトソイブイオン培地に接種の後 35℃で 3 時間程度培養を行い、培養液を平板に固めたミュラーヒントン S 寒天培地に塗布し、平板上に抗生物質の含有されたディスクを置いた。この平板を 35℃で 16 ～ 18 時間培養した後、平板上に形成された阻止円の直径を測定し耐性、中間、感受性の判定を行い、各抗生物質に対する感受性を調査した。対象抗生物質はレボフロキサシン（LVFX：キノロン系）、アンピシリン（ABPC：ペニシリン系）、セフジニル（CFDN：経口セフェム系）、テトラサイクリン（TC：テトラサイクリン系、カナマイシン（KM：アミノグリコシド系）、スルファメトキサゾール・トリメトプリム（ST：合成抗菌薬）、ゲンタマイシン（GM：アミノグリコシド系）、イミペネム（IPM：カルバペネム系）の 8 種類とした。これら抗生物質の選定理由は、我が国における出荷量・額および尿排泄率から推定した体外排出量などの報告例¹⁾を参考とし、併せて過去の調査・研究事例での報告が多く、腸内細菌科の大腸菌に対して抗菌作用を有するためである。薬剤感受性試験における抗生物質含有ディスクは KB ディスク（栄研化学）を利用した。感受性試験の判定基準などは、KB ディスクの手引き⁵⁾を参照したが、これらの基準は WHO や米国臨床検査基準委員会などの指針を参考に作成されている。

3. 研究結果および考察

3. 1 大腸菌の検出法の評価結果

大腸菌を検出するための測定法の評価結果を表 1 に示す。流入下水において典型コロニー中の大腸菌の割合が高い培地はクロモカルト培地、デソキシコール酸塩培地（44.5℃）の 2 種類であり、各々その割合は 90 % 程度であった。下水処理水で典型コロニー中の大腸菌の割合が比較的高い培地は、クロモカルト培地の 70 % 程度、次いで M-FC 培地の 65 % であり、流入下水、下水処理水ともクロモカルト培地で検出される典型コロニー中の大腸菌の割合は、他の培地と比較して若干高かった。このため、クロモカルト培地によって検出されるコロニーの大部分は大腸菌であると考えられることから、薬剤耐性試験、薬剤感受性試験による大腸菌の検出では、クロモカルト培地を利用した。

表－１ 大腸菌(E.coli)の検出法の評価結果

試料 培地	流入下水		下水処理水	
	E.coli/釣菌	E.coli(%)	E.coli/釣菌	E.coli(%)
クロモカルト培地	26 / 30	87	22 / 30	73
デシジュール酸塩培地	24 / 30	80	7 / 20	35
デシジュール(高温培養)	28 / 30	93	18 / 30	60
MF－エンドウ培地	13 / 30	43	7 / 20	35
M－F C 培地	18 / 30	60	13 / 20	65

３．２ 薬剤耐性試験結果

薬剤耐性試験結果を表－２に示す。下水試料における流入下水のLVFX耐性大腸菌の割合は平均1.3％、ABPCでは11.3％、活性汚泥処理を経た処理水ではLVFX0.9％、ABPC8.5％となっており、各々ABPCに耐性を示す大腸菌の割合は高い。活性汚泥処理を経ることで、各々耐性を示す菌数割合は若干ではあるが減少する傾向が見られた。多摩川流域の下水処理場で行った調査結果⁶⁾でも、ABPCの耐性割合は10.2～12.5％を示し、下水処理過程において耐性割合の変化は認められていない。

病院試料の流入下水ではLVFXの耐性割合は平均で10.2％、ABPCで40.5％、活性汚泥処理を経た処理水ではLVFX1.7％、ABPC13.4％となっており、下水試料と同様に各々ABPC

表－２ 薬剤耐性試験結果

試料 培地等		流入下水		下水処理水	
		検出濃度範囲 (cfu/mL)	平均	検出濃度範囲 (cfu/mL)	平均
下水試料	抗生物質無添加培地	$2.7 \times 10^4 \sim 6.0 \times 10^4$	39×10^4	$1.3 \times 10^1 \sim 2.0 \times 10^2$	7.8×10^1
	LVFX添加培地	$4.2 \times 10^2 \sim 6.2 \times 10^2$	49×10^2	$8.0 \times 10^{-2} \sim 2.6 \times 10^0$	0.9×10^0
	LVFX耐性割合(%)	1.0 ～ 1.6	1.3	0.3 ～ 1.3	0.9
	ABPC添加培地	$2.0 \times 10^3 \sim 4.4 \times 10^3$	32×10^3	$1.7 \times 10^0 \sim 7.8 \times 10^0$	4.8×10^0
	ABPC耐性割合(%)	6.3 ～ 16.3	11.3	3.9 ～ 13.1	8.5
病院試料	抗生物質無添加培地	$1.0 \times 10^3 \sim 7.3 \times 10^3$	42×10^3	$3.2 \times 10^0 \sim 4.0 \times 10^1$	2.2×10^1
	LVFX添加培地	$4.0 \times 10^1 \sim 1.2 \times 10^3$	62×10^2	1.0×10^{-1}	1.0×10^{-1}
	LVFX耐性割合(%)	4 ～ 16.4	10.2	0.3 ～ 3.1	1.7
	ABPC添加培地	$4.4 \times 10^2 \sim 2.7 \times 10^3$	1.6×10^3	$6.8 \times 10^{-1} \sim 2.3 \times 10^0$	1.5×10^0
	ABPC耐性割合(%)	37.0 ～ 44.0	40.5	5.7 ～ 21.1	13.4

に耐性を示す大腸菌の割合は高かった。下水試料と病院試料で耐性大腸菌の割合を比較すると、LVFXでは流入下水で8倍、下水処理水で2倍、同様にABPCで4倍、2倍程度、病院試料は高かった。この要因は、病院試料は抗生物質の投与を受けている入院患者の排泄物由来の負荷が一般の下水試料と比較して高いなど、排水性状の特異性に起因するものと推定さ

れる。今回の調査結果では、下水・病院試料とも活性汚泥処理を経ることで、各々耐性を示す菌数割合は減少する傾向が見られたが、活性汚泥処理により耐性菌の選択や耐性遺伝子の伝達などの可能性を指摘する報告^{4) 7)}や大腸菌群を含めた腸内細菌科細菌では、耐性割合が増加するという報告⁶⁾もある。また、下水中の抗生物質濃度と耐性遺伝子伝達との関連についての調査例⁸⁾もあり、今後他の菌種を含めデータの蓄積を図る必要があると考えられる。

3. 3 薬剤感受性試験結果

薬剤感受性試験結果を表－3に示す。各々の採水毎に整理を行ったものを記載した。下水試料の流入下水から検出された株の耐性割合はABPCで40～70％程度、TCで10～60％程度、次いでCFDNが0～30％程度であり採水毎にその割合は異なるものの、この3種類の抗生物質に対して耐性を示す株の割合は高かった。また、やや耐性があると考えられる中

表－3 薬剤感受性試験結果

試料 採水 No. 抗生物質		流入下水 (72株)			下水処理水 (86株)		
		感受性(割合%)	中間(割合%)	耐性(割合%)	感受性(割合%)	中間(割合%)	耐性(割合%)
		I, II, III	I, II, III	I, II, III	I, II, III	I, II, III	I, II, III
下水試料	ABPC	36, 54, 25	23, 8, 4	41, 38, 71	36, 33, 20	21, 29, 16	43, 38, 65
	CFDN	91, 50, 75	9, 19, 0	0, 31, 25	100, 48, 45	0, 14, 24	0, 38, 31
	LVFX	82, 88, 100	5, 0, 0	14, 12, 0	100, 81, 69	0, 14, 4	0, 5, 27
	TC	45, 38, 13	41, 35, 29	14, 27, 58	29, 43, 12	21, 29, 18	50, 29, 71
	KM	86, 88, 92	0, 8, 4	14, 4, 4	86, 86, 76	14, 10, 12	0, 5, 12
	ST	82, 96, 100	14, 0, 0	5, 4, 0	93, 86, 84	7, 10, 12	0, 5, 4
	GM	100, 88, 96	0, 0, 0	0, 12, 4	100, 90, 84	0, 0, 0	0, 10, 16
	IPM	100, 100, 100	0, 0, 0	0, 0, 0	100, 100, 100	0, 0, 0	0, 0, 0
試料 採水 No. 抗生物質		流入下水 (88株)			下水処理水 (88株)		
		感受性(割合%)	中間(割合%)	耐性(割合%)	感受性(割合%)	中間(割合%)	耐性(割合%)
		I, II	I, II	I, II	I, II	I, II	I, II
病院試料	ABPC	53, 48	25, 20	22, 32	55, 22	11, 0	34, 78
	CFDN	87, 55	0, 25	13, 20	100, 39	0, 10	0, 51
	LVFX	97, 95	0, 0	3, 5	100, 71	0, 7	0, 22
	TC	56, 20	35, 32	9, 48	72, 17	15, 27	13, 56
	KM	75, 77	16, 18	9, 5	81, 98	15, 0	4, 2
	ST	94, 88	0, 5	6, 7	100, 98	0, 2	0, 0
	GM	100, 100	0, 0	0, 0	100, 98	0, 0	0, 2
	IPM	100, 100	0, 0	0, 0	100, 95	0, 0	0, 5

間を示した株の割合でも、ABPCやTCは他の抗生物質と比較するとその割合は高かった。下水処理水に関しても若干割合は異なるものの、同様な傾向が見られた。しかし、出荷量・額および体外排出量の比較的多いと推定される抗生物質のLVFX、IPMに耐性を示す株の割

合は、ABPC、TC に耐性を示す株の割合と比較してかならずしも高いものではない。特に全ての株に対して IPM は感受性を示した。

病院試料でも ABPC、TC、CFDN に対して耐性を示す株の割合は、下水試料と同様に高いものとなっている。GM、IPM に関しては流入下水、下水処理水ともほとんどの株で感受性を示した。金目川、多摩川、鶴見川を対象とした河川水の調査結果²⁾でも ABPC、TC に対して耐性を示す株の割合は高く、LVFX に関しても感受性試験を行っているが、その割合は ABPC や TC と比較すると低い。都内の下水処理場における調査結果⁴⁾でも処理水中の耐性株は TC や ABPC に耐性を示すものが多い。今回の調査結果を含め流域・調査箇所、時期が異なっても同様な結果が得られるということは、広範囲かつ恒常的に ABPC、TC に対して耐性を持つ大腸菌が存在していることが示唆された。

一方、今回の試験結果では、抗生物質出荷量などと下水中の耐性大腸菌の割合は比例関係ではない可能性が伺えたことから今後、他の菌種を含め耐性菌の消長に影響を及ぼす条件を解明する必要があると考えられる。

2 種類以上の抗生物質に対し耐性を示す株を多剤耐性株と定義し、整理したものを表－4 に示す。下水試料の流入下水から得られた 72 株の内 25 株、下水処理水で 86 株の内 47 株、同様に病院試料では流入下水 88 株の内 23 株、下水処理水 88 株の内 33 株が 2 種類以上の抗生物質に対し耐性を示した。その割合は下水試料で 35 ～ 54 %、病院試料で 26 ～ 37 %であったが、その内 2 種類の抗生物質に対して耐性がある株の割合が最も多かった BPC と TC また、この 2 種類の抗生物質と他の抗生物質に対し耐性のある株は下水試料で 2 株の内 45 株、病院試料で 56 株の内 35 株であり、ABPC と TC に対してともに耐性のある株は多剤耐性株の中で両試料とも 60 %以上を占めていた。最大では 6 剤に対して耐性のある株が下水試料の流入下水、処理水から、病院試料では 5 剤耐性株が処理水から検出された。下水・病院試料とも活性汚泥処理を経ることで、多剤耐性の割合は若干ではあるが上昇している。多剤耐性の定義は異なるものの都内の下水処理場で行った調査結果でも流入水と処理水との間に増加傾向が見られたため、下水処理過程で耐性遺伝子の伝達や耐性菌の選択の可能性を指摘する報告⁴⁾もある。今後、他の菌種、下水処理場で行われている消毒による不活化効果、環境水も含めその消長に関しデータを蓄積する予定である。

表－4 多剤耐性株の割合

試料 \ 多剤		2 剤	3 剤	4 剤	5 剤	6 剤	7 剤	計(割合%)
下水	流入下水	17 (24)	5 (7)	2 (3)	0 (0)	1 (1)	0 (0)	25 (35)
	処理水	26 (30)	14 (16)	4 (5)	2 (2)	1 (1)	0 (0)	47 (54)
病院	流入下水	12 (14)	10 (11)	1 (1)	0 (0)	0 (0)	0 (0)	23 (26)
	処理水	16 (18)	10 (11)	6 (7)	1 (1)	0 (0)	0 (0)	33 (37)

()内数値(%) : (耐性株数/被検株数) × 100

4. まとめ

16 年度は、環境水へ大きな影響を及ぼすと考えられる下水処理水とその流入下水、さらに病院排水とその活性汚泥処理水について大腸菌を対象とした薬剤耐性試験、薬剤感受性試験を行い、実態を調査した。調査から得られた結果を以下に示す。

- 1) クロモカルト培地による検出法で検出される典型コロニー中の大腸菌の割合は、他の培地による検出法と比較して最も高かった。
- 2) 下水試料における流入下水の LVFX 耐性大腸菌の割合は、平均 1.3 %、処理水では 0.9 %、ABPC では流入下水 11.3 %、処理水 8.5 %であった。
- 3) 病院試料における流入下水の LVFX 耐性大腸菌の割合は、平均 10.2 %、処理水では 1.7 %、ABPC では流入下水 40.5 %、処理水 13.4 %であり、下水試料と同様に ABPC に耐性を示す大腸菌の割合は高かった。また、下水・病院試料とも活性汚泥処理を経ることで、各々耐性を示す菌数割合は減少する傾向が見られた。
- 4) 8 種類の抗生物質を対象とした薬剤耐性試験結果では、下水・病院試料とも ABPC、TC、CFDN に対して耐性を示す株の割合は特に高かったが、IPM に対して耐性を示す株はほとんど存在しなかった。
- 5) 2 種類以上の抗生物質に対し耐性のある株を多剤耐性株と定義し整理を行った結果、下水・病院試料とも下水処理水の多剤耐性株の割合は、流入下水と比較して若干上昇した。

参考文献

- 1) 八十島誠ら(2004)、下水処理水中に含まれるレボフロキサシン、クラリスロマイシンの分析と藻類生長への影響、水環境学会誌(27)11,707-714.
- 2) 清野敦子ら(2004)、金目川、鶴見川、多摩川における薬剤耐性菌大腸菌の分布、水環境学会誌(27)11,693-698.
- 3) 浦瀬太郎、山本和夫、岩根泰蔵(1999)、多摩川を例とした抗生物質耐性と河川の人為汚染指標の比較、土木学会第 54 回年次学術講演会講演集.
- 4) 岩根泰蔵、浦瀬太郎、山本和夫(1998)、下水中および河川水中の大腸菌における抗生物質耐性の分布、第 35 回環境工学研究フォーラム講演集,144-146.
- 5) 細菌感受性試験用、K B ディスク ‘栄研’ 手引き.
- 6) 岩根泰蔵ら(2003)、河川水中および下水中におけるアンピシリン耐性大腸菌の分布ならびに大腸菌群および腸内細菌科細菌を対象とした測定結果との比較、土木学会論文集(727) VII-26,1-12.
- 7) Reinthaler,F.F. et al.(2003) Antibiotic resistance of *E.coli* in sewage and sludge, *Water Research* (37) 1685-1690.
- 8) Ohlsen,K. et al. (2003) Impact of antibiotics on conjugational resistance gene transfer in *Staphylococcus aureus* in sewage, *Environmental Microbiology*(5) 8,711-716.

II. その他の予算による研究

[水質チーム]

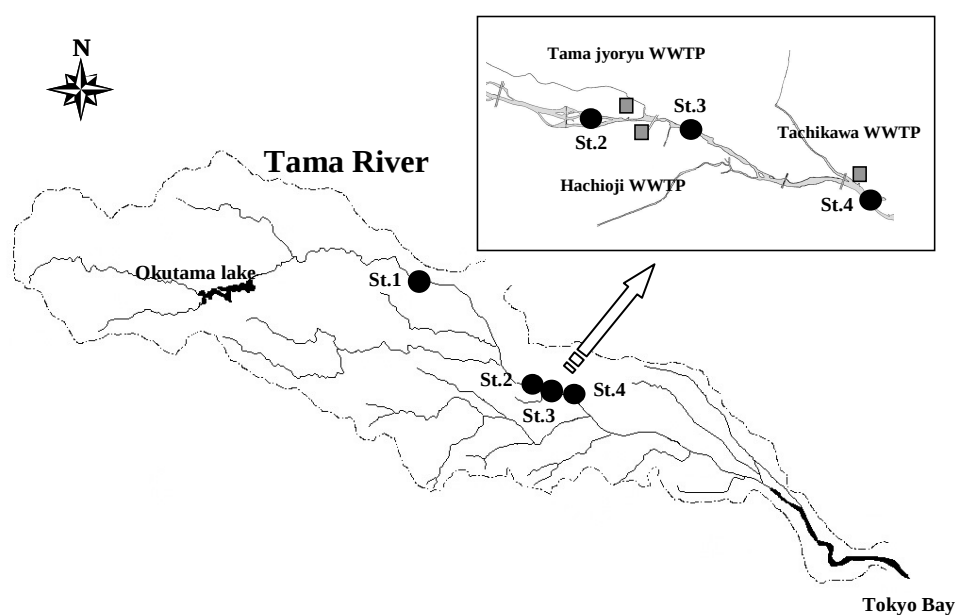
1. 水生生態系から見た河川水質の評価に関する研究

水循環研究グループ水質チーム 上席研究員 鈴木 穰
主任研究員 宮島 潔
専門研究員 山下 尚之
専門研究員 中田 典秀

1. はじめに

下水道整備により公共用水域の水質は改善され、水生生物への直接的な影響はある程度改善されてきたと考えられる。しかし都市域では人口の集中化に伴い、河川水に占める下水処理水の割合は年々大きくなっており、その割合が90%を超えるような河川もみられている。このような河川においては、公共用水域の水質保全に加え、多様な生物が棲めるような「生態系に配慮した取り組み」が必要となっている。また、都市の水循環を考慮し、自己水源である下水処理水の中に含まれる化学物質が放流された後どのような挙動を示すのかについても知見を深める必要がある。河川における水生生態系に関する研究は、河床材料、河床構造、及び河川水量等の物理的な要因について精力的に行われているものの、河川水質との関係について十分な知見は得られていない。本研究では、水質は改善しているものの、下水処理水の流入により水質が急激に変化する都市河川に着目し、そこに生息している水生生物と河川水質との関係を調べ、両者の関係を把握することを目的としている。

本研究ではこれまでに、河川に隣接する下水処理場の放流口付近において横断調査を行い、放流水と河川水の混合特性について明らかにした¹⁾。また、下水処理水の放流地点ならびにその上下流地点に形成される水生生物の調査から、処理水の混入により多様性指数が低下することを明らかにしてきた²⁾。平成15年度は、放流水と河川水が混合した後、下水処理水中に含まれる化学物質が流下に伴う挙動、底生生物の各栄養段階における化学物質の蓄積について調査を行った。平成16年度は、下水処理水由来の化学物質の河川における消長、及び底生生物の各栄養段階における化学物質の蓄積傾向について調査を行った。



2. 調査方法

2. 1 調査地区の概況

今回の調査の対象とした地区（多摩大橋地区）は、多摩大橋から下流約3000mまでの区間である（図-1）。この地区の上流には羽村取水堰があり、多摩川から水道原水として東京都東村山浄水場などに取水している他、下流域については約2m³/sの流量を水質浄化対策として放流しており、さらに秋川からの水が加わった流量が多摩川本川となりこの地区に到達している。多摩大橋地区の特徴は、この地区の上流域には大規模な下水処理施設がなく、この地区で初めて下水処理場からの放流水が排水樋管を経由して多摩川本川に流入し、河川流量だけでなく栄養塩類等の河川水質も大きく変化している地点であることがあげられる。

2. 2 流下変化調査地点と調査項目

調査は平成16年8月に実施した。観測地点は、過去の調査において下水処理水と河川水の混合が確認されている多摩大橋から下流1300m（図-1、St. 3）から3000m（図-1、St. 4）の区間内でほぼ等間隔に5地点を選出した。この区間には大きな樋管や支川が殆どなく、その負荷量も本川負荷量に比べ非常に少ない。このため流下に伴う化学物質の変化を確認するには適当な区間である。測定項目は、水深、流速（電磁流速計）の他に水質一般項目として、水温、pH、電気伝導度（現場測定）、CODMn、TOC、アンモニア態窒素（NH₄-N）、亜硝酸態窒素（NO₂-N）、硝酸態窒素（NO₃-N）、総窒素（T-N）、オルトリン酸態リン（PO₄-P）、総リン（T-P）、微量汚染物質としてエストロゲン類、ノニルフェノール関連物質とした。

2. 3 現場分解実験と調査項目

前項の調査にあわせ（平成16年8月）、多摩大橋から下流2000mの地点で、現場分解実験を実施した。実験は、まず同地点で約100Lの河川水を汲み、5Lの透明のネジ口瓶4本と、アルミホイルで遮光した同ネジ口瓶4本にそれぞれに満水となるように分注し、河川中に浸漬して行った（それぞれ明条件、暗条件とした）。これまでの調査において、前項の調査区間（多摩大橋下流の1300から3000m）における流達時間はおよそ90分であることが分かっている。そのため、分解実験においては、試料分注後0分、30分、60分、120分毎に両条件区からガラス瓶1本を回収し、一部（約100mL）を栄養塩類の分析用に分取し、直ちにアスコルビン酸を加え（1g/L）、氷冷暗所に保存した。測定項目は、CODMn、TOC、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-N、T-N、PO₄-P、T-P、エストロゲン類、ノニルフェノール関連物質とした。

2. 4 生物濃縮調査地点と調査項目

過年度までの調査において、底生生物の各栄養段階における化学物質（エストロゲン類およびノニルフェノール関連物質）の蓄積傾向を明らかにした。そこで、H. 15 年度は、金属類の生物濃縮に関連する調査を、図-1 に示す多摩川中流の多摩大橋地区および多摩川上流域の奥多摩橋下流で行った。多摩大橋地区の上流地点として日野用水堰（St.2）を、下水処理水合流後の地点として多摩大橋下流地点（St.3）および日野橋地点（St.4）を設定した。また、人為的な汚染の殆どない対照地点として、奥多摩橋地点（St.1）を設定した。調査は2002年9月～2003年4月にかけて実施した。各調査地点において、底生生物、付着藻類、底質、粒子状有機物を採取した。測定項目は、Cu、Zn、Pb、Mn、Mo、Ni、Cr、Cd、As、Co、Se、Fe、Alとした。

2. 5 試料の前処理

2. 5. 1 水質

試料はポリエチレン製（一般項目、栄養塩類、金属測定用）もしくはガラス瓶（エストロゲンおよびノニルフェノール関連物質）を用いた。

ェノール関連物質分析用)に採取し、アイスボックス中で冷却し、速やかに持ち帰り分析に供した。エストロゲンおよびノニルフェノール関連物質分析用試料については、輸送時の分解を最小にするため、アスコルビン酸を1Lに対して1g添加した。

2. 5. 2 付着藻類

付着藻類はハブブラシを用いて河床の砂礫からこそぎ採り、実験室に持ち帰った。この試料を遠沈管に入れ遠心分離(2500ppm、20分間)し、水層と分離させた。この際、ユスリカやブユ等の底生生物が上層に分離されるため、これらを目視にて取り除いた。また下部にはシルトが分離されるため、目視で下層部のシルトを採取しないように注意しながら中層部の試料のみを採取し、この試料を分析試料とした。

2. 5. 3 底生生物

底生生物はサバーネット(離合社製、方形枠50×50cm、オープニングメッシュ475μm)を用いて採取した。ここで大型種については、現地でソーティングをし、分析に供した。残りの生物種は実験室に持ち帰り、速やかにソーティングを行うとともに種の同定を行い、分析を行える試料量(湿重量で10g以上)が確保できた種については、種毎に分析を行った。その結果、ヒゲナガカワトビケラについては全地点で試料確保が行えたが、シマトビケラ科、カワゲラ亜科の数種については、試料量が十分に確保できなかったため、科もしくは亜科にまとめた。

2. 5. 4 底質

底質調査は生物調査に併せて実施した。採取した試料はガラスビンに入れ試験室に持ち帰った後、2mmのフルイを用いて大きな礫を除いた後、分析に供した。

2. 5. 5 粒子状有機物(POM)

有機物はプランクトンネット(離合社製、オープニングメッシュ63μm)を河床置き、その直上の礫を静かに持ち上げ河床の礫間の有機物を捕集した。この集めた有機物を16mm、1mmのステンレスのフルイに順次通過させた。16mmのフルイに補足された落ち葉および小枝取り除き、各フルイを通過した16~1mm分画をCPOM、1~0.063mm分画をFPOMとした。またこれら全て試料には水生生物が含まれているため、ピンセットを用いて全ての水生生物を取り除くとともに、超純水中にデカントして砂質やシルトを可能な限り分離して、遠心分離(2500ppm、20分間)を行い、水層と分離して分析に供した。

2. 6 分析方法

一般水質項目は、河川水質試験法に従った。水試料中のノニルフェノール(NP)およびノニルフェノールエトキシレート(NPnEO)の分析は小森らの方法³⁾に従い、固相抽出を行った後、高速液体クロマトグラフィーを用いて分析した。またノニルフェノールフェノキシ酢酸(NPnEC)は八十島らの方法⁴⁾に従い液体クロマトグラフ/タンデム質量分析法(LC/MS/MS)法によって分析した。17βエストラジオール(E2)、エストロン(E1)、エチニルエストラジオール(E2)は、Komoriらの方法⁵⁾に従い、LC/MS/MS法によって分析を行った。

付着藻類、底生生物、POM、底質試料は、外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル⁶⁾に準じ、メタノールを用いて固液抽出した。この抽出液を粗抽出試料とし、水試料同様に前述の手法で分析を行った。

金属類の分析において、水質分析用のサンプルは、硝酸分解を行った後、ICP質量分析装置を用いて金属類の測定を行った。底質、POM、付着藻類、底生生物については、0.2g(乾重)を採取し、純水及び硝酸を添加してマイクロ波加熱加圧装置で分解を行った。この検液をICP質量分析装置によって測定した。ただし、Feについては、ICP質量分析装置の代わりにICP発光分析装置により測定を行った。定量下限値は水質については各物質ともに0.1μg/Lであった。また底質、POM、付着藻類、底生生物については、ICP発光装置で分析を行ったFe及びAlについては10μg/g-dry、ICP質量分析装置で行った項目については0.25μg/g-dryであった。

3. 結果および考察

3. 1 窒素、リン、エストロゲン、NP関連物質の流下変化

調査区間内における各態窒素およびリン化合物の流下に伴う負荷量の変化を、過年度調査結果と合わせて図-2に示した。いずれの調査においても窒素化合物については硝酸態窒素の占める割合が高く、下水処理行程で硝化が充分行われてから放流されていることが確認された。過去に報告した夏期の調査（平成14年8月実施）を除くと、今回新たに行った夏期の調査（平成16年8月）においても、各態窒素化合物の負荷量は流下距離3km、流下時間およそ90分では減少することなく流下することが明らかになった。一方、リン化合物についても過年度夏期の調査（平成14年8月）において若干の減少傾向が確認されたが、今回新たに行った夏期の調査（平成16年8月）においては、窒素化合物同様流下に伴う顕著な濃度の低下は確認されず、同区間、流下時間では分解されにくいことが確認された。過去の調査において、両物質の減少が確認された原因としては、調査地点数が少なかったこと、採水順序、採水時間の間隔などが考慮されていなかった点が挙げられる。

NP関連物質の大部分はNPnECであり（図-2）、その中でもNP1ECおよびNP2ECの存在割合が高かった。今回実施した夏期の調査においては、3000m地点の濃度が、相対的に減少していたが、同調査全体としては、減少傾向は確認されなかった。

各調査地点で検出されるエストロゲンの大部分はE1であった（図-2）。過去の夏期の調査（平成14年8月）においては、流下に伴う濃度減少が確認されたが、NP関連物質同様に、H. 15年8月の調査では、流下に伴う濃度減少は見られず、保存的な傾向を示した。

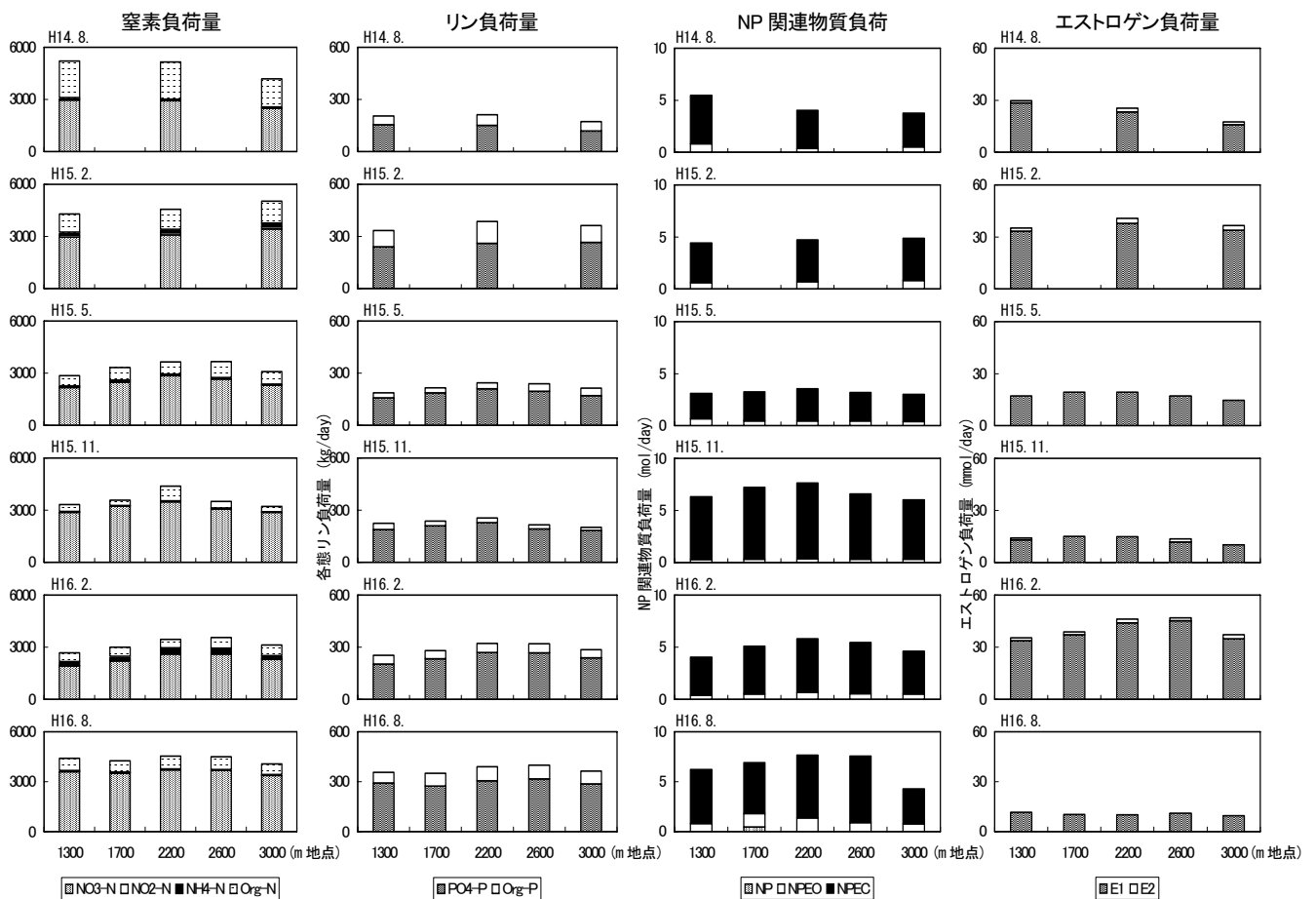


図-2 窒素、リン、NP関連物質、エストロゲンの流下に伴う付加量変化

3. 2 現場分解実験

現場実験の結果、NPEC、E1が有意に検出された。流下過程における挙動変化に関する前項の調査の結果（図-2）、NPECは夏期調査において、流下に伴い濃度の減少が確認された。しかし、現場での分解実験の結果、NPECは、明条件、暗条件ともに減少傾向は確認されなかった（図-3）。一方、E1については、流下過程での調査においては減少傾向が確認されなかったものの、明条件において時間の経過とともに濃度の減少が確認された。暗条件では濃度の減少が確認されなかったことより、E1の濃度減少について、光の作用が効いていると示唆された。しかし、NPEC、E1ともに、流下過程（縦断方向）での調査、現場分解実験での各物質の挙動に差があることより、本分解実験では再現できていない、流下過程における底質との相互作用などが問題として挙げられる。今後、底質との相互作用を含めた、物質の流下過程における挙動を明らかにする必要がある。

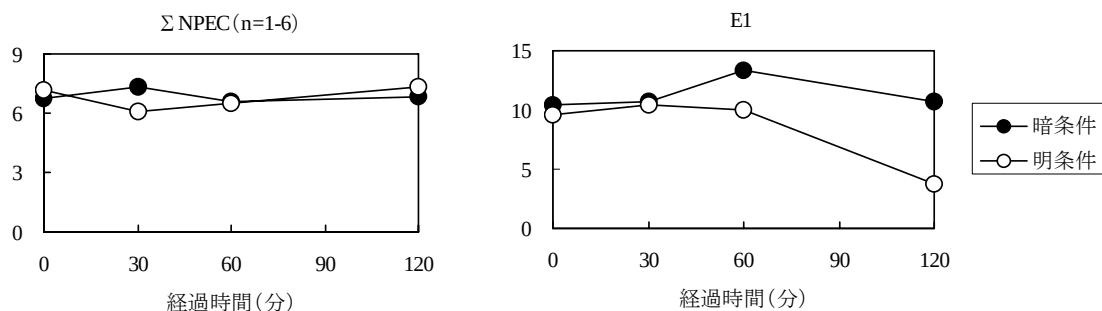


図-3 NPEC、E1の現場分解実験結果

3. 3 下水処理水流入による河川水中金属濃度の変化と生物濃縮

3. 3. 1 河川水中金属類の分布

図-4に多摩川におけるCu、Zn、Pb、Mn、Mo、Ni濃度の変化を示す。St.1及びSt.2は下水処理水流入前の地点であり、St.1は人為的汚染の少ない地点として設定された地点である。St.3及びSt.4は下水処理水合流後の地点である。図-4より、下水処理水流入によって、河川水中のCu、Zn、Pb、Mn、Mo、Ni濃度の上昇が見られた。これらの金属類は、その濃度が高い場合、生物に対して毒性作用を示す^{7, 8)}が、毒性情報と比較した場合、今回の結果は毒性影響の見られる濃度ではなかった。これらの金属類のうち、Cu、Zn、Mn、Moは、藻類にとって微量必須元素として重要であり、毒性影響の観点だけでなく、藻類の増殖促進物質としても作用している⁹⁾。図-5に多摩川におけるFeおよびAl濃度の変化を示す。FeおよびAlは先に示した物質と異なり、下水処理水流入による明確な濃度変化は確認できなかった。一方、Cr、Cd、As、Co、Seは、多摩川の河川水からは検出されなかった。

3. 3. 2 底質、POM、付着藻類、底生生物中の金属類含有量の変化

図-6に多摩川における底質、POM、付着藻類、底生生物（ヒゲナガカワトビケラ）中に含まれるCu、Zn、Pb、Mn、Mo、Ni含有量の変化を示す。これらの金属類は、下水処理水の流入によって河川水中の濃度が上昇した項目である。図-6より、POMおよび付着藻類中の金属類含有量は、底質や底生生物よりも高い傾向が見られた。一方、Moについてのみ異なる傾向が見られ、底生生物の含有量が高かった。金属類含有量が比較的高い値を示した付着藻類に着目して多摩川における金属類含有量の変化を見ると、付着藻類中のCu、Zn、Mn含有量は、下水処理水が流入した後の地点（St.3、St.4）において、値の上昇が観察された。またPbやMoについても、やや明瞭さを欠いているが、同様の傾向が確認された。一方、Niについては、このような傾向は確認されず、他の5物質とは異なる傾向が示された。

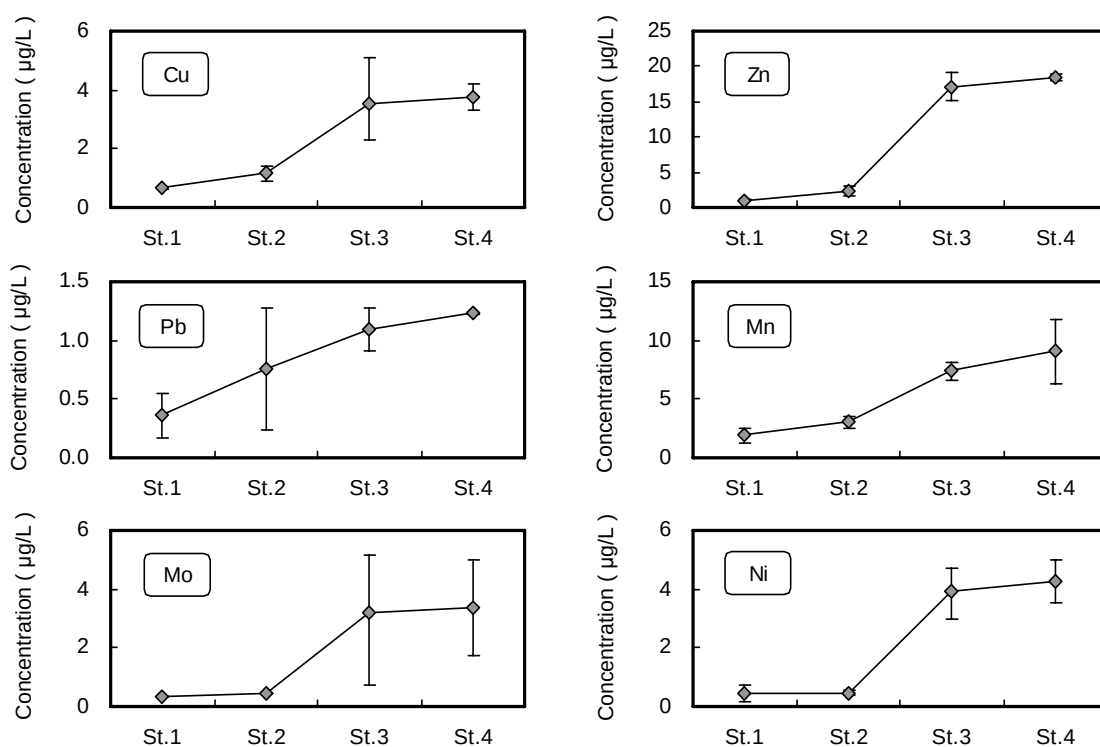


図-4 多摩川における河川水中金属類濃度の変化 (Cu, Zn, Pb, Mn, Mo, Ni)

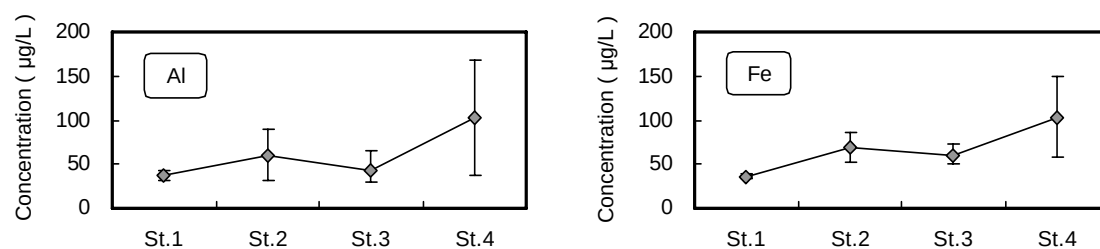


図-5 多摩川における河川水中金属類濃度の変化 (Al, Fe)

図-7 に多摩川における底質、POM、付着藻類、底生生物（ヒゲナガカワトビケラ）中に含まれる Fe および Al 含有量の変化を示す。これらの金属類は、下水処理水の流入後も河川水中濃度の上昇が見られなかった項目である。図-7 より、底質、POM、付着藻類、底生生物中の Fe および Al 含有量は、下水処理水流入後の地点（St.3、St.4）においても上昇は見られなかった。また、底生生物中の Fe および Al 含有量は、POM など他の要素の含有量よりも低く、底生生物への金属類の蓄積は観察されなかった。図-8 に多摩川における底質、POM、付着藻類、底生生物（ヒゲナガカワトビケラ）中に含まれる Cr、Cd、As、Co、Se の含有量の変化を示す。これら金属類は水試料については、検出限界以下であった項目である。これらの金属類についても、下水処理水流入後の地点（St.3、St.4）においても金属類含有量の変化は見られなかった。一方、Cr、Cd、As、Co、Se といった金属類は水試料については、検出限界以下であったが、POM や付着藻類などからは検出された。この結果より、例えば付着藻類は、水域における重金属汚染のモニタリング生物として利用できる可能性があることを示唆している。

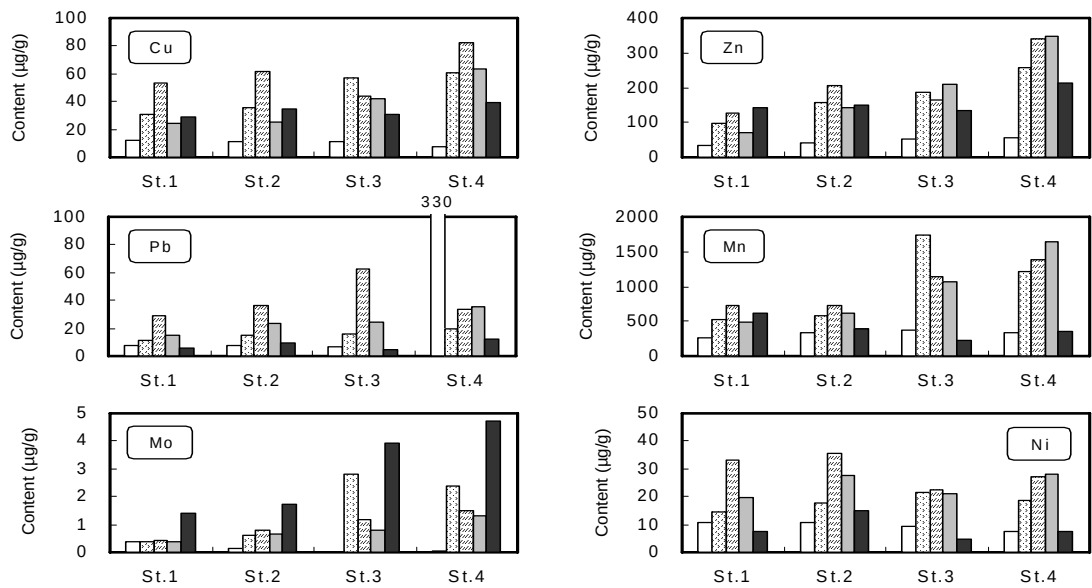


図-6 多摩川における底質，POM，付着藻類，底生生物中の金属類含有量の変化 (Cu, Zn, Pb, Mn, Mo, Ni)

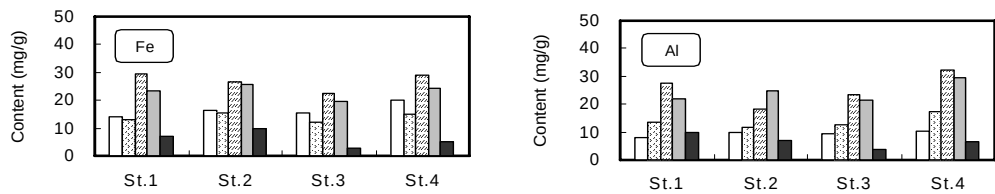


図-7 多摩川における底質，POM，付着藻類，底生生物中の金属類含有量の変化 (Fe, Al)

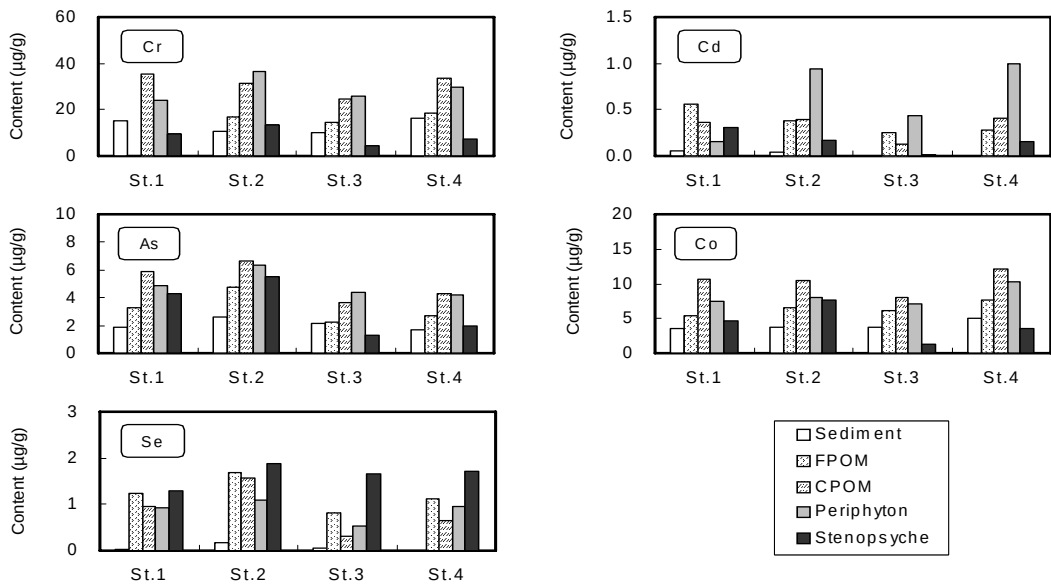


図-8 多摩川における底質，POM，付着藻類，底生生物中の金属類含有量の変化 (Cr, Cd, As, Co, Se)

3. 3. 3 底質、POM、付着藻類、底生生物中の金属類含有量の比較

図-9 に底質、POM、付着藻類、底生生物中に含まれる Cu、Zn、Pb、Mn、Mo、Ni 含有量について、多摩川の St.3 の地点における結果を示す。図-9 において、底生生物についてはヒゲナガカワトビケラ、シマトビケラ科、カワゲラ亜科の 3 種類について示している。POM および付着藻類中のこれら金属類含有量は、他の要素（底質、底生生物）よりも高い傾向が見られた。一方、底生生物の金属含有量については、Mo を除き POM や付着藻類よりも同じもしくは低いレベルであった。ヒゲナガカワトビケラ、シマトビケラ科、カワゲラ亜科の 3 種類の底生生物について比較したところ、金属含有量はほぼ同じレベルであり、明確な違いは観察されなかった。しかし、Mo についてのみ異なる傾向が観察され、ヒゲナガカワトビケラの含有量が高くなる傾向があり、カワゲラ亜科の含有量は低くなる傾向が示された。図-10 に多摩川の St.3 の地点における底質、POM、付着藻類、底生生物中に含まれる Fe および Al 含有量の結果を示す。POM および付着藻類中に含まれる Fe および Al 含有量は、他の金属類と同様に、底質や底生生物よりも高い傾向が見られた。一方、河川生態系における食物網において、高い地位にあると考えられる底生生物については、Fe および Al 含有量は、POM や付着藻類よりも低いレベルであった。この結果より、金属類は、高い栄養段階の生物へと濃縮される傾向は観察されなかった。

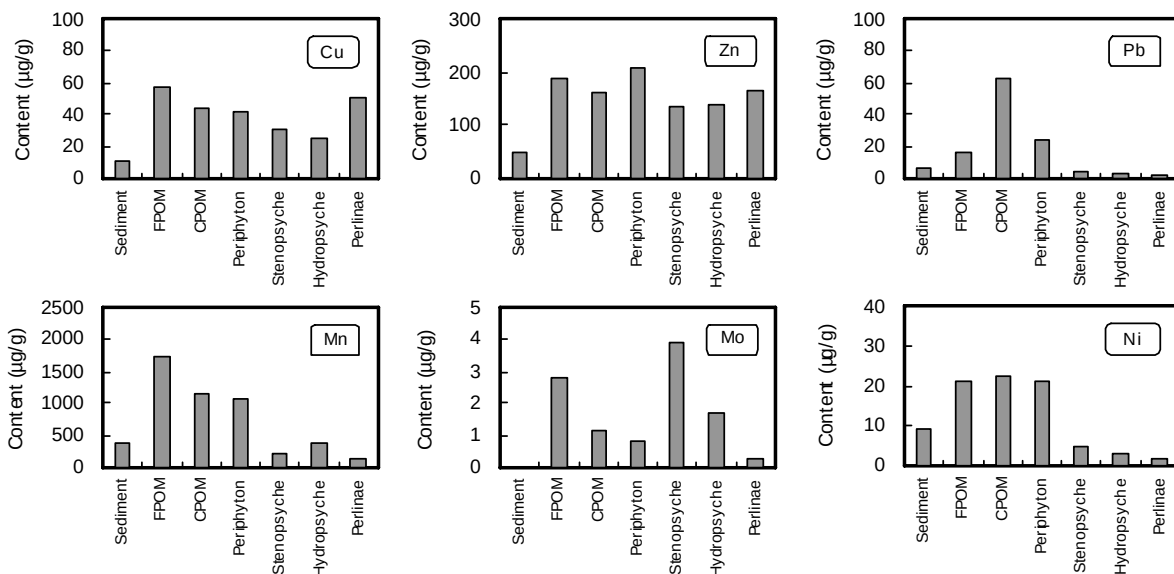


図-9 底質、POM、付着藻類、底生生物中の金属類含有量の比較 (Cu, Zn, Pb, Mn, Mo, Ni)

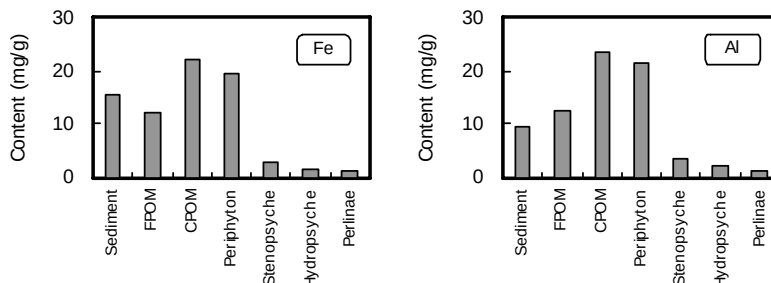


図-10 底質、POM、付着藻類、底生生物中の金属類含有量の比較 (Fe, Al)

ヒゲナガカワトビケラは摂食機能群としては filter-feeders に区分され、主に河川を流下してくる藻類を中心として食べているが、デトリタスやユスリカなども消化管内に含まれており食性は雑食である。シマトビケラ科の摂食機能群も filter-feeders で、今回採取された種の中では、オオヤマシマトビケラがデトリタス食性であるのを除くと、他の種はヒゲナガカワトビケラ同様、雑食である。またカワゲラ亜科は肉食者で、底生生物内においても上位栄養段階に位置する生物である。このような 3 種類の底生生物によって金属含有量に差が見られないこと、POM や付着藻類と比較して底生生物の金属含有量は同等か低いレベルにあることから、金属類は河川における食物網によって、高次の栄養段階の生物へと蓄積されないと推察される。

4. 結論

下水処理水中に含まれる化学物質の流下に伴う消長、および底生生物の各栄養段階における化学物質の蓄積傾向について調査を行った。

本調査の成果として、以下のことが明らかとなった。

- ① 下水処理場の放流口から下流約3kmの区間において、下水処理水を起源とする化学物質の消長を調べるため、夏期に再調査を行った。その結果、無機態窒素、リン、女性ホルモンおよびノニルフェノール関連物質について、下水処理場放流口から下流約3kmにおいても水中濃度の有意な減少が確認されなかった。同時に現場で行った分解実験（2h）においても、明暗両条件化ともにこれらの物質の有意な減少は確認されなかった。
- ② 多摩川において下水処理水の流入による河川水中金属類濃度の変化について調べた。その結果、下水処理水流入によって、Cu、Zn、Pb、Mn、Mo、Niについては、濃度の上昇が見られたが、FeおよびAlについては、明確な濃度変化は確認されなかった。一方、Cr、Cd、As、Co、Seについては、多摩川の河川水からは検出されなかった。
- ③ 多摩川において、底質、POM、付着藻類、底生生物中の金属類含有量の変化について調べた。その結果、POMおよび付着藻類中の金属類含有量は、底質や底生生物よりも高い傾向が見られた。付着藻類に着目して多摩川における金属類含有量の変化を見ると、付着藻類中のCu、Zn、Mn、PbおよびMo含有量は、下水処理水の流入によって、値の上昇が観察された。
- ④ 下水処理水流入後の地点について、底質、POM、付着藻類、底生生物中の金属類含有量の比較を行った。その結果、河川生態系において高次の栄養段階にある底生生物の金属含有量については、Moを除きPOMや付着藻類と同じもしくは低いレベルであった。ヒゲナガカワトビケラ、シマトビケラ科、カワゲラ亜科の3種類の底生生物について比較したところ、金属含有量はほぼ同じレベルであり、明確な違いは観察されなかった。これらの結果より、金属類は河川生態系における食物網によって、高い栄養段階の生物へと蓄積されないと推察された。

<謝辞>

本研究の一部は、河川生態学術研究会の総合的な調査研究の一環として実施されたものである。底生生物の調査に関しては、東京大学大学院農学生命科学研究科森林動物教室の加賀谷隆先生との合同調査で実施したものであり、先生には多大なご指導をいただいた。ここに感謝の意を表する。

<参考文献>

- 1) 田中宏明他（2001）水生生態系から見た河川水質の評価に関する研究、平成13年度下水道関係調査研究年次報告書集
- 2) 田中宏明他（2002）水生生態系から見た河川水質の評価に関する研究、平成14年度下水道関係調査研究年次報告書集

告書集

- 3) 小森行也、八十島誠、田中宏明（2001）GC/MSによるノニルフェノキシ酢酸類の分析、第4回環境ホルモン学会講演要旨集pp.95.
- 4) 八十島誠、小森行也、田中宏明(2001)LC/MSによるノニルフェノキシ酢酸類の分析、第4回環境ホルモン学会講演要旨集pp.171.
- 5) Koya KOMORI、 Akihiro TAKAHASHI、 Hiroaki TANAKA (2001) Detection of Estrogens in Wastewater by LC/MS/MS、 IWA 2nd World Water Congress、 Berlin、 Germany CD-ROM (pp.278)
- 6) 外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル（水質、底質、水生生物）、（1998）平成10年10月、環境庁水質保全局水質管理課.
- 7) 山本和義（1979）水生生物と重金属（1）銅、サイエンティスト社
- 8) 尾崎久雄、板沢靖男、小山次朗（1982）水生生物と重金属（2）カドミウム、サイエンティスト社
- 9) 日本化学会（1995）生物無機化学の新展開、季刊化学総説24、学会出版センター.

2. 底泥－水間の物質移動に関する調査

研究予算：運営費交付金（治水勘定）

研究期間：平 12～平 17

担当チーム：水循環研究グループ（水質）

研究担当者：鈴木穰，津森ジュン

【要旨】

本調査は、富栄養化対策の観点から底泥－水間の栄養塩類の移動現象を解明することを目的としている。

平成 16 年度はダム貯水池における底層環境改善実験、及び、採取した底泥サンプルを用いた栄養塩溶出試験や酸素消費速度試験などを行った。その結果は以下に示す通りである。

- 1) 平成 15 年度に引き続き貯水池底層への酸素供給実験を行い、水柱の水温、DO 及び ORP をセンサーで連続観測するとともに、酸素供給の有無による水柱の酸化環境と栄養塩濃度の変化を観測した。この結果、好気的環境でのリンの溶出抑制と嫌気的環境でのリン溶出の傾向が確認され、また、指標としての ORP の有効性が示唆された。
- 2) 高濃度酸素水の供給前後で底泥試料を採取し、静置状態・嫌気条件で溶出試験を行った結果、底泥への酸素供給によって底泥の $\text{PO}_4\text{-P}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 溶出ポテンシャルが低下する傾向が把握できた。
- 3) 貯水池底泥を用いた振とう回分溶出試験を行い、栄養塩類の溶出速度と溶出ポテンシャルに及ぼす諸因子の影響を定量的に評価した。その結果、嫌気条件下では初期リン溶出速度が顕著に大きいことが、2 日間ほどでその溶出は終了すること、溶出リンは底泥中では Fe などと結合していたと考えられること、好気条件においても緩速ながらリンは溶出し、最終的に嫌気条件における溶出量の 25～50%程度まで溶出することが明かになった。

キーワード：底泥，栄養塩，溶出，DO，ORP，モニタリング

1.はじめに

流域からの汚濁負荷の他に、底泥からの汚染物質の溶出が水質改善の遅れの原因となっており、また同時に、棲息する生物環境にも悪い影響を与えている。効果的な底泥の対策を立てるため、また、将来の水質を予測するために、底泥に含まれる栄養塩類等の汚染物質の変化機構を解明し、底泥が水質に与える影響を評価する手法の確立が求められている。

このため本調査においては、①底泥からの栄養塩などの溶出機構の解明、②底泥から水への栄養塩等溶出量推定方法の提案、③底泥からの栄養塩等の溶出量推定のための試験方法の提案、を達成目標として研究を行っている。

16 年度は、上記達成目標のうち、①に関して、溶出機構に影響する要素の明確化と溶出速度の把握を行うため、「貯水池底泥中栄養塩類の形態と溶出特性」の関係を検討し、②に関して、底層環境条件から溶出量を推定する方法を開発するため、「底層環境の相違による底泥性状の変化」について調査し、③に関して、溶出量推定に用いる指標を検討するため、「溶出量推定のためのモニタリングシステムの開発」を実施した。

2.調査の内容

2.1 溶出量推定のためのモニタリングシステムの開発

底泥からの栄養塩類などの溶出量を推定するため、14 年度より湖沼等の現地における水柱及び表層底泥のモニタリングシステムを検討している。これは、水温、DO 及び ORP センサ等による連続測定を行うことにより貯水池内環境を把握し、その結果から栄養塩類の溶出を推定するとともに、測定結果を活用した効率的な運転制御を行いながら、高濃度酸素水を底層部に供給することにより底層環境を改善することを目的としている。本実験は、(独)土木研究所、横河電機(株)と松江土建(株)の共同研究として実施している。

三春ダム牛楢前貯水池において平成 15 年 7 月から 9 月に実施した高濃度酸素水による底層環境改善システム¹⁾の結果に関し、現地実験と水温、DO 及び ORP センサ等による連続モニタリングの値と栄養塩類の溶出量との関係について検討を行った。モニタリング装置等の配置を図－1 に示す。

また、実験条件を表－1 に示す。Run1 では、吐出流量 $90\text{m}^3/\text{h}$ 、酸素供給は行わずに運転を行い、続く Run2 において酸素供給を開始した。溶解装置出口で測定した吐出水の DO は、運転開始から約 5 時間で $50\text{mg}/\text{l}$ に達し、その後は概ね $50\sim 60\text{mg}/\text{l}$ で推移した。Run3 では高濃度酸素水の吐出量を $30\text{m}^3/\text{h}$ に低下させ、攪拌および酸素供給の効果を調べた。Run4 では装置の運転を全面的に停止し、攪拌も酸素供給も行わない状態での水質変化を調査した。

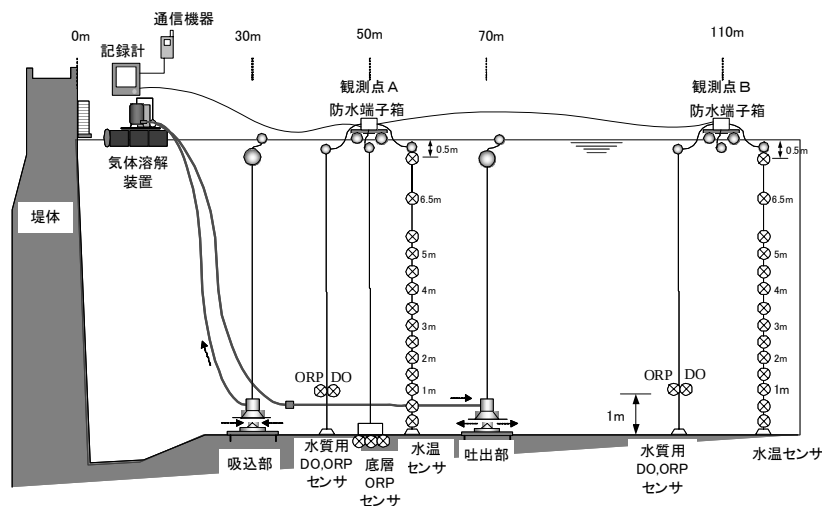


図-1 連続測定装置の概要

表-1 実験条件と稼働状況

Run No.	期間	日数	吐出流量 (m ³ /h)	酸素供給	稼働時間 (h)	稼働時間率 (%)
1	7/23~7/28	6日間	90	無し	59	47.9
2	7/30~8/12	14日間			142	44.6
3	8/12~8/19	8日間	30	有り	151	90.4
4	8/20~9/2	14日間	0	無し	0	0
5	9/3~9/18	16日間	30	有り	323	88.9
6	9/19~9/25	7日間	0	無し	0	0

Run5 では再度、高濃度酸素水の吐出量を 30m³/hとして運転を行い、酸素供給が底層水質に与える影響を調べた。Run6 は、Run4 と同様に酸素消費過程を調査するため、装置の運転を停止した。

Run2 では水温による自動制御の結果、稼働時間率（実験期間に対する装置運転稼働時間の割合）が約 45%となる間欠運転となった。Run3 及びRun5 では流量を 30m³/hとしたところ、稼働時間率が約 90%とほぼ連続運転となった。

2.1.1 水温、DO 及び ORP の経時変化

図-2 に B 地点の水温と DO の経時変化を示す。表層部は 0.5m 水深、中層部は 3.0m 水深、そして底層部は吐出口開口部がおおよそ 5.8m 水深に位置することから吐出高さの上下となる 5.0m と 6.0m 水深での値をプロットしている。

吐出流量の大きな Run1 および Run2 において、底層 5.0m と 6.0m 水深の水温が同程度になっていたことから装置の稼働により底層水が攪拌混合されたものと推測される。しかし、水深 3.0m の水までも混合されることはな

かった。一方、吐出流量を低下させた Run3 と Run5 では、底層 5.0m と 6.0m 水深で水温が異なっていたことから、水深 6.0m 付近の底層水のみが流動していたと考えられる。なお、Run5 最終日において、全水深でほぼ同程度の水温となったが、この原因は 9 月 13 日から 17 日の降雨と、平均気温の低下により循環期に入ったことによると考えられる。

Run2 の開始により、それまで中層 3.0m 以深でほぼ 0 であった DO が、底層部 5.0、6.0m において上昇した。このため、表層から底層に向けて好気、嫌気、好気の互層の溶存酸素構造が形成された。なお、Run3 後半で中層 3.0m の DO が上昇しているが、これは降雨流入により表層部と中層部が混合したことによると考えられる。その後、運転停止に伴い、Run4 では水深 6.0m、5.0m、3.0m の順に下層より再び酸素が減少する傾向を示した。

ORP の変化は、底層 5.0m、6.0m の DO が 0mg/l となるよりも遅れて生じており、実験期間中の観測では、常に DO 変化よりも遅れて ORP が変化する傾向が見られた。

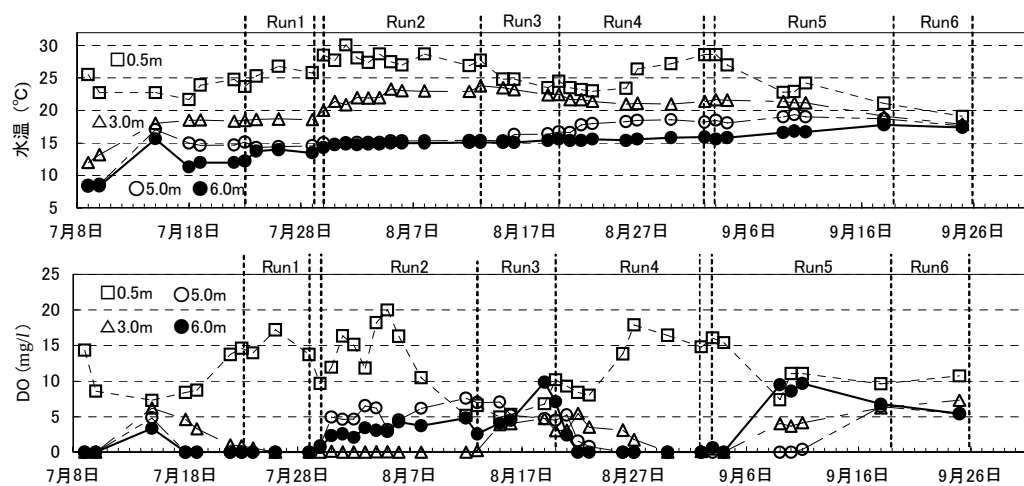


図-2 B地点の表層 0.5m、中層 3.0m及び底層 5.0、6.0m水深での水温、DO濃度の経時変化

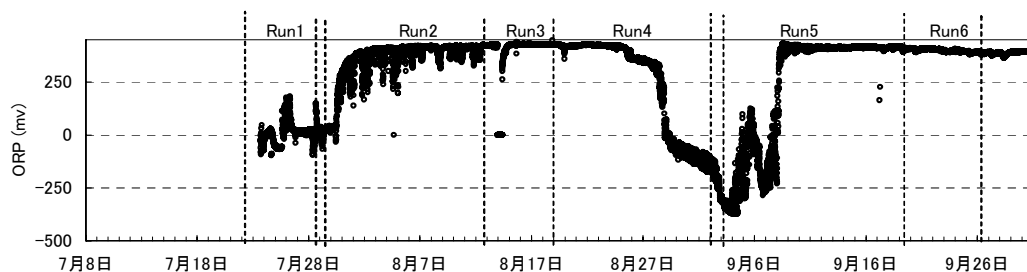


図-3 ORPの経時変化(B地点の湖底より1m上での連続観測結果)

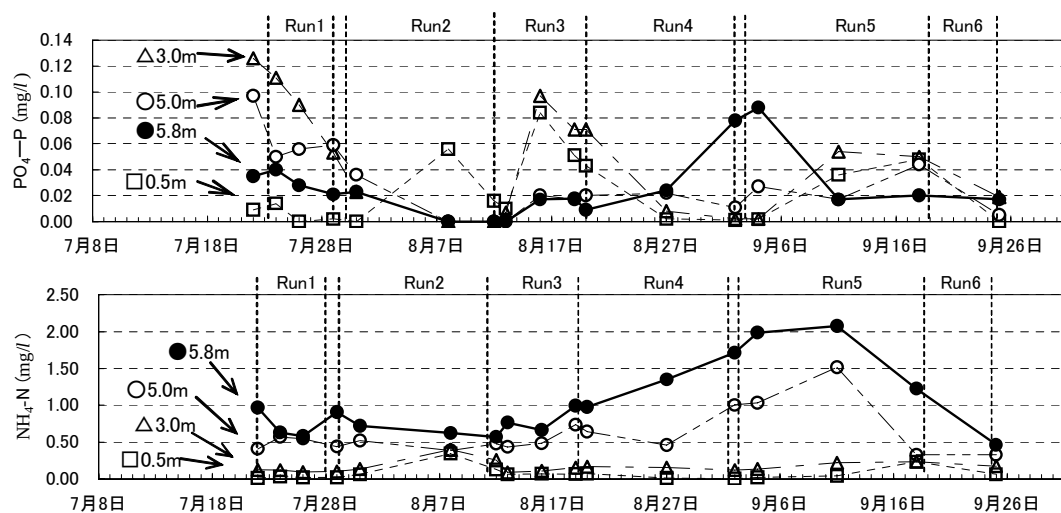


図-4 B地点の表層 0.5m、中層 3.0m及び底層 5.0m、5.8m水深での $\text{PO}_4\text{-P}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の経時変化

2.1.2 底層環境の変化による栄養塩類濃度の変化

図-4に、B地点の $\text{PO}_4\text{-P}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の経時変化を、表層0.5m、中層3.0m、底層5.0mと5.8mの各水深における測定結果について示す。

底層5.8mの $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度はRun2開始によって低下し、酸素供給中は0.02mgP/l以下がほぼ維持された。しかし、酸素供給を停止したRun4においては、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度は上昇

し、最高で約0.09mg/lに達した。このように酸素供給により $\text{PO}_4\text{-P}$ 溶出濃度の管理が可能であり、直接的にはDO濃度が指標となる。しかし、リンの溶出減少傾向は直上水のORPと、より相関があるように見受けられるので、今後指標としての検討を進める必要がある。なお、表層や中層で高い $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が観測されることがあったが、これは主に降雨に伴う流域からの負荷によると考えられ

る。

NH₄-N についても、酸素供給により底泥からの溶出が抑制される傾向を示したが、その程度はPO₄-Pほどには顕著でなかった。

2.2 底層環境の相違による底泥性状の変化

2.2.1 調査方法

高濃度酸素水の供給による底泥性状の変化を調べるため、平成16年7月から9月にかけて表-2に示す条件にて実験を行った。図-5に示した牛糞前貯水池の調査地点AとBにおいて、酸素供給実験(Run1)開始前の平成16年7月26日と酸素供給開始9日目の8月5日および酸素供給停止17日目の8月23日、酸素供給実験(Run2)再開後25日目の9月24日の計4回、底泥を採取した。なお、高濃度酸素水の吐出地点および湖水の吸込み地点は図-5に示すとおりである。

表-2 実験条件と稼働状況

Run No.	期間	日数	吐出流量 (m ³ /h)	酸素供給	稼働時間 (h)	稼働時間率 (%)
1	7/28~8/6	10日間	90	有	201	83.6
2(1)	8/30~9/8	10日間	90	有	212	88.2
2(2)	9/9~10/1	23日間	90	有	48	8.7

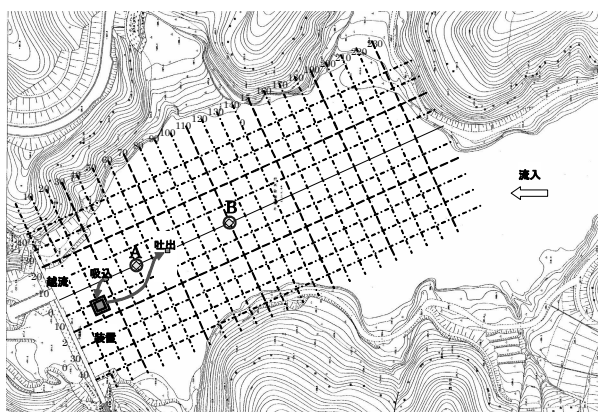


図-5 調査地点の概要

KB型柱状採泥器(離合社製)を用いて、アクリル製円筒型カラム(直径4cm×高さ100cm)に厚さ30cmの底泥を採取した。各地点3本を採取して実験室に持ち帰り、2本は溶出実験(好気条件、嫌気条件)に、残りは酸素消費速度実験に供した。溶出実験と酸素消費速度実験は20℃の恒温室にて図-6に示す実験装置を用いて行ったが、底泥上に満たした水は、貯水池の湖底上0.5mから別途採水した現地水を0.45μmのメンブレンフィルターにてろ過したものを用いた。

溶出実験においては、直上水を置換後、Air曝気による好気条件(DO8mg/L以上)と窒素曝気による嫌気条件(DO2mg/L以下)で実験を開始した。分析用試料の

採取は、実験開始日を0日目とし、1, 2, 3, 4, 7, 9, 12, 15, 20日目を目安に実施した。採水した試料は、オートサンプラーにて、NH₄-N, NO₂-N, NO₃-N, TN, PO₄-P及びTPの分析を行った。また、採水時には、水温、DO, pH, ORPを測定した。

酸素消費速度実験においては、溶出実験と同様に、別途採水した現地水(飽和水)に置換し、気相に窒素パージを行いながら、DO, pH, ORPの測定を0, 1, 2, 3, 4, 7, 10日目に実施した。

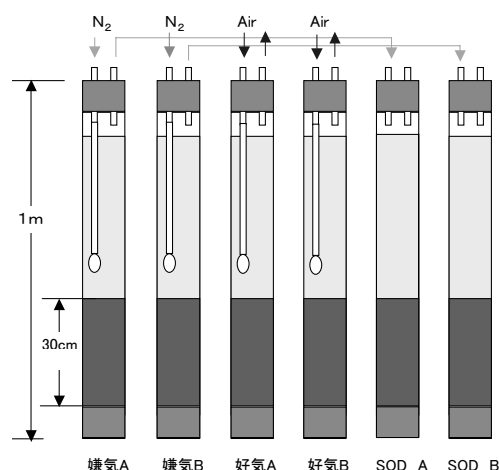


図-6 溶出実験装置の概要

2.2.2 実験結果

(1) 底泥溶出実験

調査地点AとBにおける溶出実験の結果をPO₄-P, NH₄-Nについて図-7に示す。また、嫌気条件における溶出速度(5日までの初期および20日目までの期間から算出)を表-3に、PO₄-P溶出速度を図示したものを図-8に示す。

嫌気条件における底泥からのPO₄-P溶出速度は、初期の値が、20日目までの平均的な溶出速度に比べて1.0~1.6倍のやや大きい値を示した。A, B地点ともに、酸素供給開始前に比べ、酸素供給開始9日目の底泥において溶出速度は低い値となり、高濃度酸素水の供給による底泥表面の改善効果が認められた。また、吐出口に近いA地点においてその効果は大きく、酸素供給停止17日目の底泥においても、PO₄-Pの溶出速度は酸素供給開始9日目の溶出速度と同等であった。これは酸素供給により酸化状態となった底泥の表面性状が、酸素供給停止後もしばらく維持されていたことによると考えられる。

酸素供給再開25日目(9月24日)の底泥においては、B地点において高濃度酸素水の供給による効果が再度認められたものの、A地点では溶出速度が高い値を示した。これは酸素供給実験(Run2)時に、吐出水による底泥の巻き上げが生じ、底泥表面の上下置換による影響と9

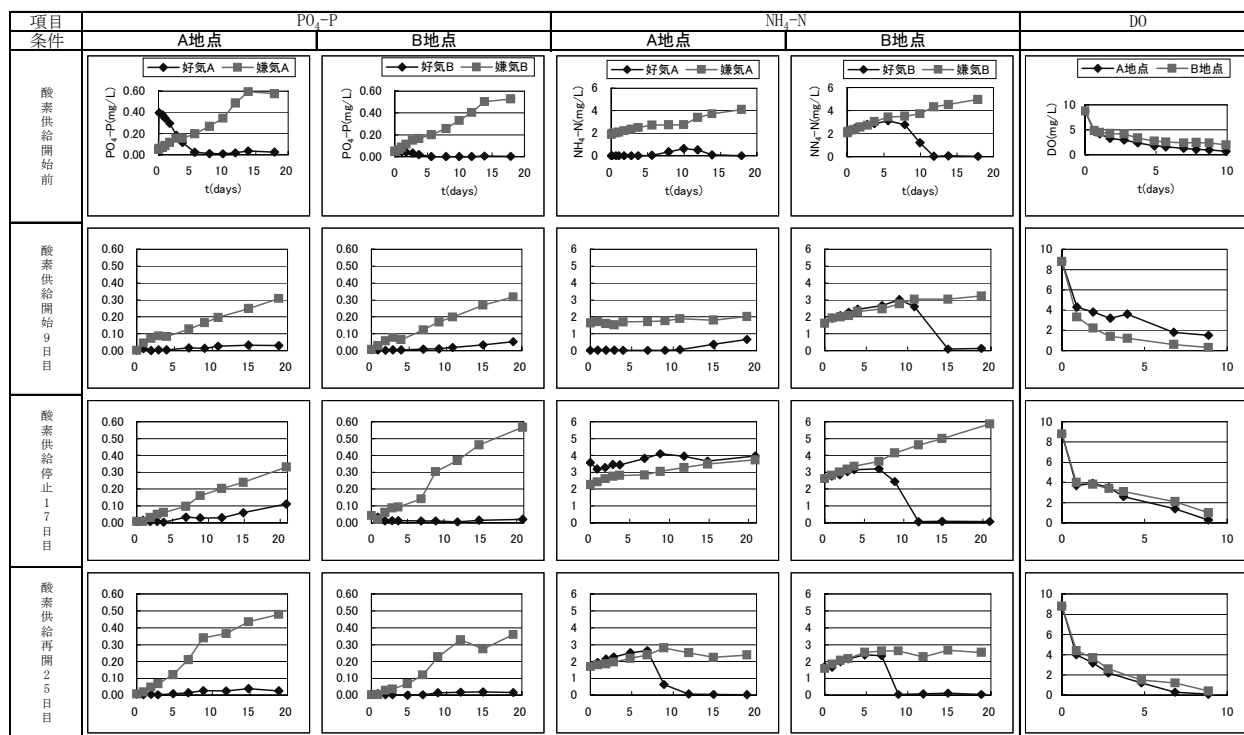


図-7 溶出実験および酸素消費速度実験の結果

表-3 溶出実験結果 (嫌気条件)

条 件	PO ₄ -P mg/m ² /day		NH ₄ -N mg/m ² /day	
	A地点	B地点	A地点	B地点
①酸素供給開始前	14.8 (17.5)	13.3 (19.3)	53.3 (89.9)	76.5 (134.6)
②酸素供給開始9日目	7.7 (12.5)	8.9 (10.6)	9.8 (6.5)	46.7 (98.5)
③酸素供給停止17日目	7.3 (8.6)	13.0 (9.9)	30.7 (83.1)	71.7 (109.2)
④酸素供給再開25日目	14.2 (17.1)	10.6 (10.0)	21.7 (70.3)	23.2 (137.4)

* () 内は初期溶出速度

表-4 底泥酸素消費速度

条 件	酸素消費速度 mg/m ² /day	
	A地点	B地点
酸素供給開始前	3.7×10^3 (237)	3.6×10^3 (181)
酸素供給開始9日目	2.9×10^3 (223)	3.7×10^3 (202)
酸素供給停止17日目	3.8×10^3 (274)	3.5×10^3 (233)
酸素供給再開25日目	3.5×10^3 (314)	3.2×10^3 (307)

* () 内は2日目以降の酸素消費速度

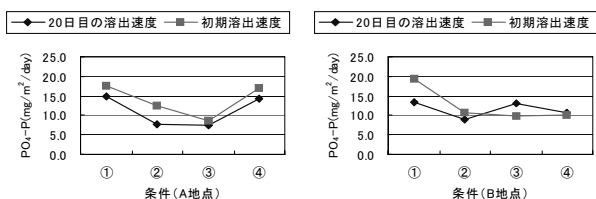


図-8 PO₄-Pの溶出速度 (地点比較)

月9日以降、底層における水深方向の水温差が小さくなり、過度の混合を防止する目的で設置された酸素供給制御装置が作動したため、酸素供給稼働時間が短くなったことによるものと考えられる。

NH₄-Nの溶出速度は、酸素供給開始前に比べ、酸素供給開始9日目のA、B地点ともに低い値を示した。また、A、B地点とも、酸素供給停止17日目の溶出速度は一時的に上がったが、酸素供給再開25日目には溶出速度が下ったことから、底泥への酸素供給により、底泥の表面

性状がNH₄-Nを放出しにくい状態になっていたことが示唆される。

なお、好気条件においては、嫌気条件に比べPO₄-Pの溶出が顕著に抑えられていたことから、PO₄-PはFe、Mn等の酸化状態にあるイオンとの結合によって、溶出しにくくなっていたと考えられる。

(2) 底泥酸素消費速度実験

酸素供給実験開始前後の底泥を用いた酸素消費速度実験の結果を図-7に示す。D0はそれぞれ初期の1日間で急減し、その後は緩やかに低下した。これより、主な酸素消費は初期1日間で起こったことが確認された。底泥の初期酸素消費速度を表-4に示す。酸素供給前後において、A、B地点とも、初期酸素消費速度に大きな差は見られなかった。

これら高濃度酸素供給前後の底泥を用いた溶出実験

と酸素消費速度実験の結果より、底泥への酸素供給は、底泥の $\text{PO}_4\text{-P} \cdot \text{NH}_4\text{-N}$ 溶出ポテンシャルを低下させることができるが、酸素消費ポテンシャルは低下させることが難しいことが明かになった。また、 $\text{PO}_4\text{-P}$ については、好気条件によって顕著に溶出速度が抑えられる結果が得られた。

2.3 貯水池底泥中栄養塩類の形態と溶出特性

底泥から溶出する栄養塩類は閉鎖性水域の富栄養化に大きく関与している。利水と水質保全の観点から、底泥中における栄養塩類の形態と含有量、好気と嫌気下における溶出ポテンシャルを的確に評価することが、対象水域に適した制御・改善技術を講じる上で有効と考えられる。本研究では、国土交通省直轄の三春ダム牛糞前貯水池を調査対象域として、コア採泥器にて採取した底泥を用いた回分式溶出実験を行い、窒素やリンの溶出挙動が好気、嫌気、水温、底泥の深さ方向での位置、時期などによって、どのように変化するかを溶出速度と溶出量の視点から検討した。また、採取した底泥に対する有機物、窒素及びリンの含有量とリンの形態などの性状項目を分析することにより、同水域における底泥性状の鉛直分布と季節変化特性を評価し、その上で、回分式溶出実験の結果と関連付けることを通じて、底泥による栄養塩類の溶出ポテンシャルを考察した。ここでは、リンの結果について報告する。

2.3.1 実験方法

国土交通省東北地方整備局所管の三春ダムの牛糞前貯水池を調査対象域とした。本ダムとの分離堰からそれぞれ50m, 150m, 230m離れた貯水池内のA, B, Cの3地点を対象に、2003/12, 2004/1, 2004/3, 2004/5, 2004/7及び2004/10の計6回で直径4cmのコアサンプラーによる採泥をそれぞれ行った。採取した底泥コア(厚さ約35cm)を窒素雰囲気の中で2cmずつ切り出し、含水率、強熱減量、炭素、窒素及びリンの分析に供した。ただし、リンについては、全リン、有機態リン、無機態リン及び難溶性リンのほか、結合型の無機態リンとして、Ca型リン、Al型リン、Fe型リンに分画した。

回分式溶出実験は底泥スラリーを用いて嫌気と好気の下で行った。底泥は表層0~2cm、中層14~16cm及び下層28~30cmの3層(以下、それぞれSL, ML及びBLと称す)とした。各々の底泥層の遠沈泥を2g秤とって300mlのpH調整済みのMilli-Q水(嫌気の場合では脱酸素済みのMilli-Q水)を入れた反応器(500mlの三角フラスコ)に加えたのち、反応器を10秒程度激しく振り混ぜ、光を遮断した条件下で振盪(120rpm)を開始させた。実験期間中

における好気と嫌気の保持状況を確認するため、反応器内における溶存酸素(DO)の濃度を断続的に測定した。好気実験の場合には、DOの値が8.5 mg/L付近で変動し、振盪攪拌により酸素が十分に供給されていたこと、また、嫌気実験の場合には、湿潤窒素ガスを混合液中にまで連続的に導入することにより、DOがないことを確認した。水温は20℃に設定した。

所定の時間間隔で反応器から混合溶液を採取し、遠心分離(3000rpmで3分間)・ろ過(0.45 μm のPTFEフィルター)の後に、ろ液中の窒素($\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$)とリン($\text{PO}_4\text{-P}$)を定量した。

2.3.2 実験結果

図-9に、好気と嫌気下における $\text{PO}_4\text{-P}$ の経時変化を示す。 $\text{PO}_4\text{-P}$ の溶出濃度は好気に比べて嫌気の方が、また、下層に比べて上層と中層底泥の方がそれぞれ高い値を示している。リンの溶出濃度は初期において直線的に上昇し、その後、徐々に一定の値に収束していくため、直線の勾配を初期溶出速度とみなし、その収束値を最大溶出量とみなした。

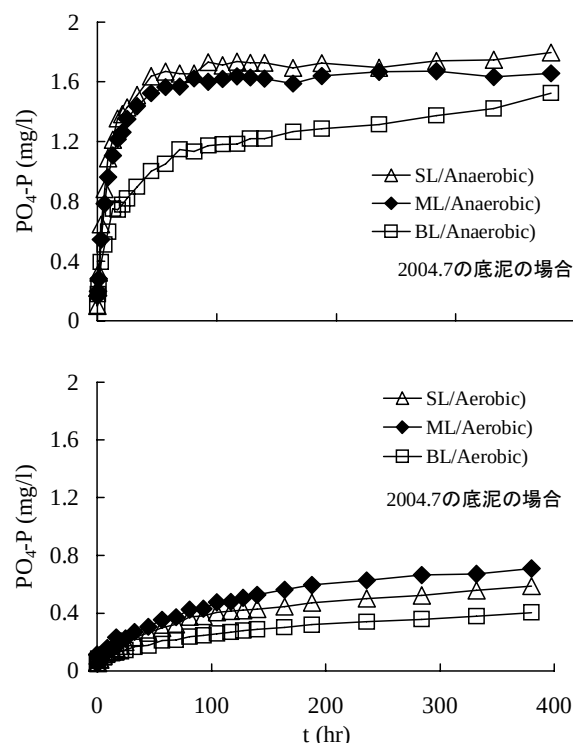


図-9 好気と嫌気下におけるリンの溶出挙動(20℃)

各々の採泥時期におけるリンの初期溶出速度を図-10に、対応の最大溶出量を図-11に示す。好気と嫌気とも、リンの初期溶出速度は2004年1月/好気を除いた殆んどの場合において、上層底泥の方が最も速く、上層・中層・下層の順で遅くなっている。好気と嫌気下における上層

底泥からのリンの初期溶出速度の値はそれぞれ 0.6～7.3 と 9.9～75.5 ($\mu\text{g hr}^{-1}/\text{g-dry SS}$)であり、好気に比べて嫌気の方が著しく速いことがわかった。一方、最大溶出量については、嫌気の方で高い値を示しているが、好気との差は初期溶出速度での差に比べて小さくなっている。好気下でリンが溶出されるのは好気性微生物による底泥中有機物の分解を通じて生じたものと考えられる。それに対し、嫌気下では、嫌気性微生物による有機物の分解によるよりも、硫酸還元菌などの関与によってFeやAlなどの結合型のリンが解離して溶出したことによる寄与が大きいと考えられる。

及びCa-Pであることが推測される。

リンの溶出量とこれら3種類の結合型リンの含有量との関係をそれぞれ回帰分析にて調べたところ、いずれの場合も高い相関は認められないものの、Fe型の方で相関係数が最も高い($r=0.5$)ことが示された。リンの溶出量と含有量の比を見かけの溶出ポテンシャルとして評価すると、上層底泥の場合には、全体の結合型のリン(0.51～1.08 mg-P/g-SS)の約50～100%に相当する分は嫌気条件下で速やかに溶出されたことがわかる。

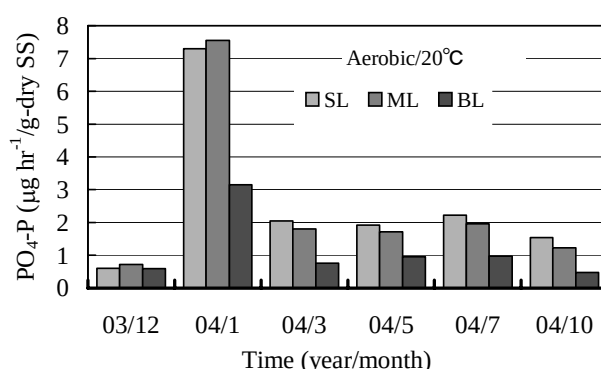
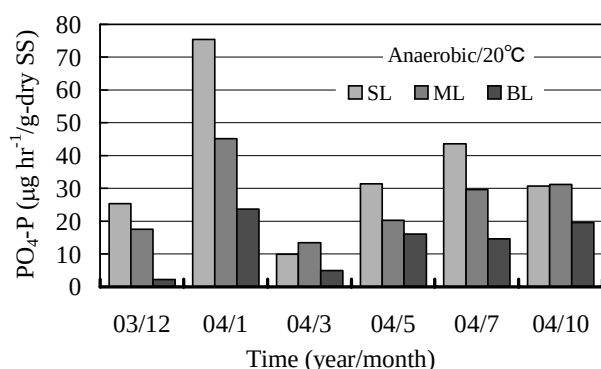


図-10 好気と嫌気下におけるリンの初期溶出速度の季節変化(20℃)

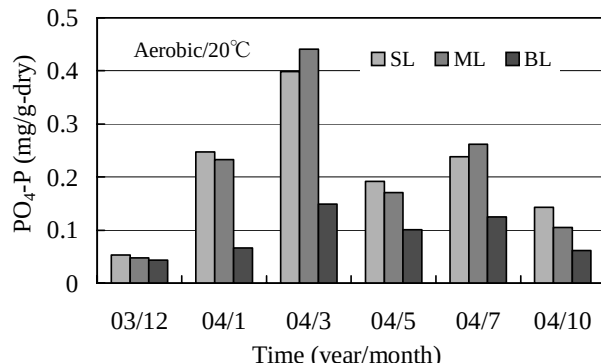
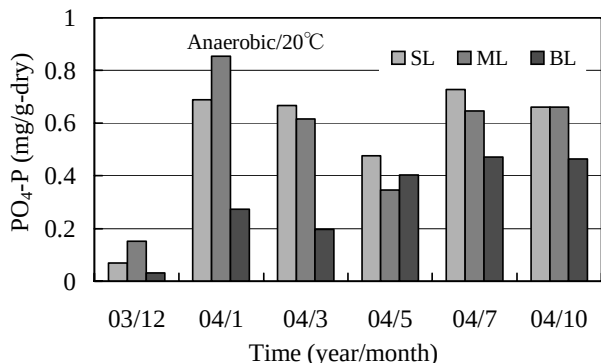


図-11 好気と嫌気下におけるリンの最大溶出量の季節変化(20℃)

図-12 に、嫌気下におけるリンの溶出量と底泥における全無機態リン、Fe、Al 及び Ca の結合型リン、全有機態リンの含有量との関係を示す。難溶性リンを含めた全無機態リンと有機態リンに比べて、結合型のリンの方で、リンの溶出量との関係を示すプロットが 1:1 line の下方の近い範囲に分布していることは、同結合型のリンが嫌気下で優先的に溶出されたことを示唆している。Fe、Al 及び Ca 単体の標準酸化還元電位(25℃)はそれぞれ 0.771、-2.07 及び -2.84 (V)であり、その値が高い反応では還元態になりやすいことを考えると、対応の結合型リン (Fe-P、Al-P 及び Ca-P) の溶出順位は Fe-P、Al-P

3. まとめ

富栄養化対策の観点から底泥－水間の栄養塩類の移動現象を解明することを目的として、ダム貯水池における底層環境改善実験、及び、採取した底泥サンプルを用いた栄養塩溶出試験や酸素消費速度試験を行い、以下の結果を得た。

1) 貯水池底層への酸素供給実験を行い、水柱の水温、DO 及び ORP をセンサーで連続観測するとともに、酸素供給の有無による水柱の酸化環境と栄養塩濃度の変化を観測した。この結果、好气的環境でのリンの溶出抑制と嫌气的環境でのリン溶出の傾向が確認され、また、指標とし

でのORPの有効性が示唆された。

2) 高濃度酸素水の供給前後で底泥試料を採取し、静置状態・嫌気条件で溶出試験を行った結果、底泥への酸素供給によって底泥のP04-P, NH4-N溶出ポテンシャルが低下する傾向が把握できた。

3) 貯水池底泥を用いた振とう回分溶出試験を行い、栄養塩類の溶出速度と溶出ポテンシャルに及ぼす諸因子の影響を定量的に評価した。その結果、嫌気条件下では初期リン溶出速度が顕著に大きいが、2日間ほどでその溶出は終了すること、溶出リンは底泥中ではFeなどと結合していたと考えられること、好気条件においても緩速ながらリンは溶出し、最終的に嫌気条件における溶出量の25～50%程度まで溶出することが明らかになった。

以上の結果により、達成目標①「底泥からの栄養塩などの溶出機構の解明」に関しては、溶出機構に影響する要素の明確化と溶出速度の把握を行い、達成目標②「底泥から水への栄養塩等溶出量推定方法の提案」に関しては、底層環境条件と溶出量の関係を明らかにし、達成目標③「底泥からの栄養塩等の溶出量推定のための試験方法の提案」に関しては、溶出量推定のための水質指標の明確化を行った。

なお、本調査は、運営交付金（治水勘定）により実施されたものである。

参考文献

- 1) 佐々木稔, 田中宏明, 李建華, 和田順之輔, 中村圭吾, 柴田省三, 田中克知, 福井真司: 底層環境改善のためのモニタリング技術と活用, 学会誌「EICA」, Vol.7, No.2, pp237-240, 2002.11.
- 2) 細見・須藤: 手賀沼における栄養塩類収支, 国立公害研究所研究報告, 第117号, pp. 69-86, 1988.

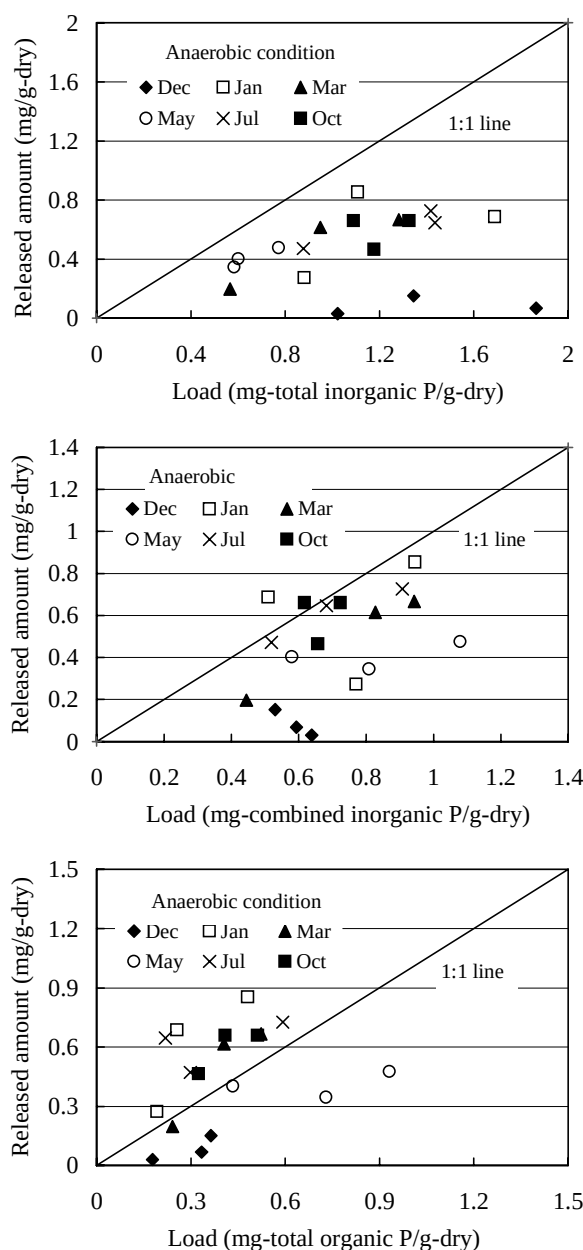


図-12 リンの含有量と最大溶出量との関係(20℃)

3. 都市排水由来の化学物質の水環境中での挙動に関する研究

水循環研究グループ（水質） 上席研究員 鈴木 穰
主任研究員 小森 行也
主任研究員 津森ジュン
専門研究員 李 富生

【要旨】

本研究は、界面活性剤の分解物質や人畜由来のホルモンなど都市排水由来の内分泌攪乱物質に関し、河川水・底質中などにおける調査分析手法の開発、また水環境中での分解・生成といった変化現象の把握を目的としている。

平成 16 年度は、手賀沼におけるノニルフェノール類の実態調査と挙動シミュレーションモデルの構築、分析法が未確立であり排水・環境中での実態が未解明であるエストロゲン・グルクロン酸抱合体についての分析法の開発、湖沼におけるエストロゲン挙動を把握するために三春ダム前貯水池等の水・底泥試料についてエストロゲン分解速度を測定し、次のことが明らかになった。

- 1) ノニルフェノール（NP）類の手賀沼内水質濃度は流下方向に従って低減するが、底質濃度は逆の傾向を示した。また、NP 類の生分解速度や吸着平衡係数を別途実験により求め、挙動シミュレーションモデルを構築したが、これにより、湖水における NP 類濃度の構成および分布の傾向が再現できた。
- 2) エストロゲンのグルクロン酸抱合体の分析法において、前処理操作を簡易化して抱合体の分解を抑制することにより、添加回収率が二次処理水では 87～120%、流入下水では 60～110%と向上し、信頼性の高い方法が確立できた。
- 3) 17β エストラジオールの分解速度は、表層底泥の方が中層や下層底泥よりも大きく、また、好気条件下の方が嫌気条件下よりも大きかった。SS 量当たりの分解速度で見ると、水相は底泥相の 2 倍の大きさであった。

キーワード：ノニルフェノール類、エストロゲン、抱合体、湖沼、挙動、シミュレーションモデル

1. はじめに

生物の正常なホルモン作用に影響を与えることが疑われている外因性の物質（内分泌攪乱物質）による環境汚染問題が顕在化してきているなか、都市排水を由来とするエストロゲンとして 17β-エストラジオール（女性ホルモン、以下 E2）、その代謝生成物であるエストロン（E1）、エストリオール（E3）及び経口避妊薬の主成分であるエチニルエストラジオール（EE2）を挙げることができる。

また、環境中に存在している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環境に与える影響が大きいと考えられるノニルフェノール（NP）は、都市排水に含まれる非イオン界面活性剤であるノニルフェノールエトキシレート（NPEO）が、下水処理場や河川の中でノニルフェノキシ酢酸（NPEC）等の中間物質を経由して分解されることによって生成しているといわれている。

エストロゲンやノニルフェノール類（NP、NPEO、NPEC、以下 NPs）といった物質による環境リスクを正しく評価するためには、これらの物質の測定法を開発するとともに、水環境中における変化、生成、分解、蓄積、移動といったような挙動を把握することが必要である。

本研究では、環境水の中でのこれら物質の挙動を把握するため、手賀沼におけるノニルフェノール類の実態調査と挙動シミュレーションモデルの構築、昨年度報告したエストロゲン抱合体の分析方法の改良と水相と底泥相微生物によるエストロゲンの分解特性の把握を行った。

2. 研究の内容

2. 1 手賀沼における NP 類の挙動予測

都市排水・事業所排水に含まれている NP 類（界面活性剤のノニルフェノールポリエトキシレート（NPEO）及びその分解中間物質であるノニルフェノールエトキシ酢酸類（NPEC）、ノニルフェノール（NP））が国際的に注目されている^{1) 2) 3) 6) 7) 10) 12)}。NP 類の中、ノニルフェノールが最も高いエストロゲン活性を示すが、NP1EO、NP2EO、NP1EC、NP2EC にも多少のエストロゲン活性が認められる他、NPEC 類の生態毒性が知られている⁸⁾。これらの物質の環境リスクを正確に評価するため、及び、水質対策計画を確立するためには、NP 類の環境水、底質中における挙動に関するプロセス（反応、分解、吸着、揮発など）の定量的な把握が必要である⁹⁾。

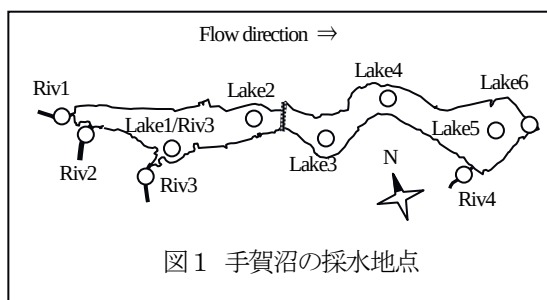
本研究では、手賀沼の実態調査（流入、流出河川、湖内）を行い、NP 類の水中、底泥中濃度を測定し、空間及び時間的な変化の特徴を把握するとともに、実態調査結果及び観測データに基づいて、NP 類の挙動シミュレーションモデルを構築し、予測シミュレーションを行った。

2. 1. 1 方法

（1）実態調査及び分析方法

水質及び底質調査は手賀沼の図 1 に示す調査地点において、今年度の 10 月に 2 回行った。比較のため、以下

昨年度3月に行った調査結果の一部も示す。手賀沼は極端に浅いため（平均水深約90cm）採水は水深約20cmにおいて行った。表層底泥の採泥は直径10cmのコアサンプラで行い、表層の厚さ10cmの試料を均一化し、試料の前処理及び分析を行った。各NP類の分析方法及び定量下限値を表1に示す。



調査地点の記号の説明：Riv1 大堀川ふるさと橋；Riv2 北千葉導水注入口；Riv3 大津川ひどり橋；Riv4 染井入落河口；Lake1/Riv3 大津川河口から約400m湖内。Lake2～Lake6 湖内地点（図1を参照）。

表1. NP類の分析方法及び定量下限値

Chemicals	Method	Water $\mu\text{g/L}$	Sediment $\mu\text{g/kg d.w.}$
NP	GC-MS	0.05	1
NP ₁ EO	LC-MS	0.1	1
NP ₂ EO～ NP ₁₅ EO	LC- MS/MS (HPLC)	0.01	1
NP ₁ EC～ NP ₁₀ EC	GC-MS	0.005	0.05

一般水質項目（SS, VSS, TOC, Chl-a など）及び底質項目（含水率、比重、TOC, 強熱減量など）の測定は公定法で行った。

(2) 室内実験

1) NP類の生分解実験

NP類の好気性生分解試験の目的は、NP類の図2に示す反応経路の反応速度係数の推定である。生分解試験は手賀沼水に規定のNP物質を添加し、室温、好気状態でいき、各NP化合物濃度の経時変化を求めた。

2) NP類の吸着実験

NP類の吸着実験の目的は、NP類の手賀沼の浮遊物及び底泥粒子への吸着における吸着平衡定数（以下、吸着係数）の固／液分配実験による測定である。

方法：手賀沼湖内調査地点の水質試料を室温で30分攪拌し、浮遊物を1 μm のガラスろ紙によってろ過分離し、各NP化合物の溶解性及び浮遊性濃度を測定した。NP類の吸着係数について、物性からの推定、及び本プ

ロジェクトでの過去のデータ解析からの推定を行った。物性からの推定はオクタノール／水分解係数を利用して、Namkungら¹⁰⁾の方法で、以下の計算式によって行った。

$$K_{ads}(\text{L/mg}) = 6.3 \times 10^{-7} f_{TOC} K_{OW} \quad (1)$$

ここで、 f_{TOC} はVSSの有機炭素比率（g/g）であり、微生物の場合一般的な値は0.53である。

(3) モデル開発

化学物質挙動シミュレーションモデル開発の目的は、これらの物質の水環境における挙動の理解を深めると共に、水質改善対策に活用可能なツールの構築である。

数理モデルの構造およびプロセスの特徴は以下の通りである。

- ① 空間的に1次元（流下方向、完全混合槽列）；
- ② 水柱と底泥間の物質移動を支配する要因は底泥の波による巻上げである（浅い湖沼）；
- ③ 生化学反応の速度は溶解性化学物質濃度及び有機性浮遊物濃度（VSS）に依存する；
- ④ 化学物質はVSS及び底泥の有機性固形物（強熱源量分）に吸着する。吸着平衡は線形的である。

モデルの水柱における一般的な物質収支式は以下の通りである。

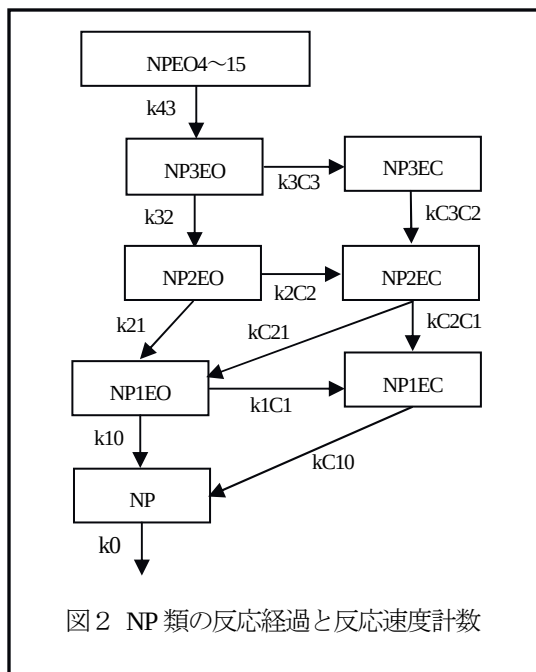
$$V(dC/dt) = \text{流入} - \text{流出} + \text{生成} - \text{分解} + \text{溶出} - \text{吸着} + \text{吸収} - \text{揮発}$$

このモデルで、各対象物質の図2に示す生成及び分解反応を考慮し、例としてNPの生化学反応を以下の式に示す。この式によると、NPはNP₁EO及びNP₁ECの分解により生成されるが、同時に分解もする。左側の変化の符号及び絶対値は各反応速度係数 k （L/mg/day）、物質全濃度 $[X]$ （nmol/L）、吸着係数 K_{ads} （L/mgVSS）及びバイオマス濃度 X_{bio} （mg/L）に依存する。本研究では、 $X_{bio} = \text{VSS}$ とした。

$$\begin{aligned} \frac{d[NP]}{dt} = & k_{10}[NP_1EO] \times \frac{X_{bio}}{1 + K_{ads1}X_{bio}} + k_{1c0}[NP_1EC] \times \\ & \times \frac{X_{bio}}{1 + K_{ads1c}X_{bio}} - k_0[NP] \times \frac{X_{bio}}{1 + K_{ads0}X_{bio}} \end{aligned} \quad (2)$$

以上の式（2）に示す様に、NP類の反応速度は溶解性濃度（ $= [\text{全濃度}] / (1 + K_{ads}X_{bio})$ ）に依存するので、吸着しやすいものの反応速度が低減される。

本モデルは120本の連立微分方程式からなるもので、設定パラメータ（定数、係数、初期値、物性など）の数は251である。数理モデルの計算プログラムは動的システム解析言語のStella Research Ver.7.0.2（HPS Inc.）で作成した。



2. 1. 2 研究結果

(1) 実態調査結果

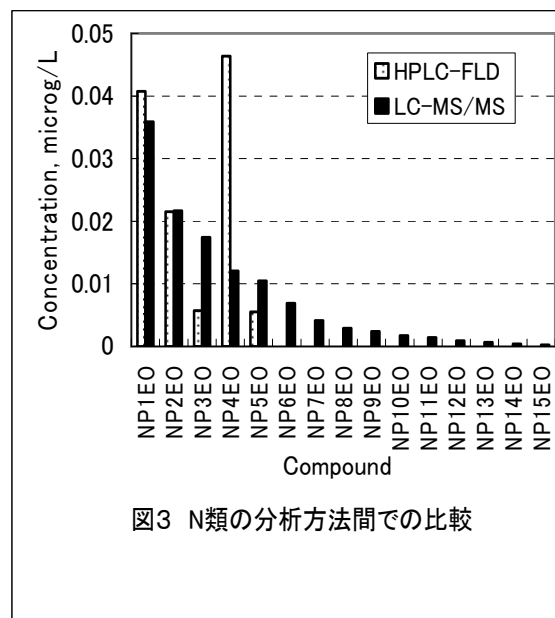
昨年度、NPEO類のHPLC（蛍光）による分析において、水質試料の一部で、NP4EO、NP6EO、NP9EO、底質試料の一部で、NP6EO、NP14EOの濃度が予想より高かったため、分析に対する妨害物質の存在が疑われたので、河川調査地点 Riv4（染井入落）において採水を行い、LC-MS/MS及びHPLC法の分析結果を比較した。採水時のNP類濃度が低かったため、物質の一部はHPLC法の定量下限値以下となっていたが、図3に示す様に、NP4EO分析に妨害する物質の存在を確認した（プラスエラー）。この結果、以降の分析は妨害問題のないLC-MS/MS法で行った。調査時の主な環境状況などを表2に示す。

表2.主な調査状況

Conditions	Survey 1	Survey 2	Survey 3
Month	October	October	March
Tw, °C	19.4	17	10.8
Rain, mm	227	175	8
Inflow, m ³ /s	10.2	3.1	11.5
Wind, m/s	0.7	0.4	1.5
SS Riv, mg/L	30	2	8
SS Lake, mg/L	20	23	20

Twは手賀沼下流における水温、Rainは調査日1週間前の期間の合計雨量（我孫子气象台）、Inflowは流入水量の合計である。Riv2 調査地点である北千葉導水第二機場注入口における流量は、Survey 1 及び2においてほぼゼロで

あったが、Survey 3においては9.5 m³/sであり、流入量の大半を占めた。Windは風速の1日平均値（我孫子气象台）、SS Rivは流入河川の浮遊物濃度の調査平均値、SS Lakeは湖内浮遊物濃度の調査平均値である。（備考：SS Riv及びSS Lakeの平成10年～14年の平均値はそれぞれ9.2及び40 mg/Lであった。）



Survey1～Survey3のNP類の水質調査結果を図4a～図4cに示す、また、Survey1及びSurvey3のNP類の底質調査結果を図5a～図5bに示す。図4a～図5bの右縦軸に示すA/All,%の意味は以下の通りである。

$A/All, \% = (\text{NP} + \text{NP1} \sim \text{3EO} + \text{NP1} \sim \text{3EC 濃度}) / (\text{全てのNP類の濃度}) \times 100$ 。

(2) 室内実験の結果

生分解実験結果から推定したNP類の生化学反応速度係数(k)を図6に示す。

(3) 吸着実験の結果

吸着実験の結果から求めた吸着係数(K)及びその他の方法で推定した吸着係数を表3に示す。

表3. 各NP化合物の吸着係数 (L/mg VSS)

Chemical	Teganuma Experiment	Calculated from K_{OW}	Act.Sludge Experiment
NP4~15EO	0.0257	0.0034	0.0026
NP3EO	0.0253	0.0358	0.0082
NP2EO	0.0109	0.0667	0.0112
NP1EO	0.0098	0.1272	0.0194
NP3EC	0.0064	0.0609	0.0134
NP2EC	0.0065	0.1133	0.0201
NP1EC	0.0063	0.2111	0.0112
NP	0.0890	0.1925	0.0185

表3に示すNP 4～15EOの値は平均値である。推定方法で利用した K_{ow} 値はNPにおいて文献実測値であるが、その他の化合物については、分子構造をもとにした推定値である¹¹⁾。Act. Sludge Exprimintは下水処理場活性汚泥における実測値である（2002年）。

（4）シミュレーション結果

各NP化合物濃度の実測値（Survey3）及びシミュレーション値を図7に示す（定常状態）。「Reach」は手賀沼の区間、「meas」は実測値、「sim」はシミュレーション値を表す。

また、Survey3の条件での定常状態シミュレーションにおける各NP化合物の手賀沼全体における運命予測結果を図8に示す。

2. 1. 3 考察

（1）実態調査結果について

NP類の水中濃度（図4a～図4c）が示す様に、流入河川水中のNP類濃度の合計値は湖内水中濃度より約2～3倍高い。これは、河川での滞留時間が短いため分解が進んでいないこと及び河川での浮遊物の沈殿は少ないことからであると思われる。（備考：図4cに示すRiv2調査地点は例外である。手賀沼浄化水として水質の比較的良好な利根川の水を大量に注入していたためと考えられる。）

湖内傾向として、流下方向に従って、NP類の濃度が減少する。その減少の程度はSurvey 2において最も著しい。その理由は、流入量が最も少ないため滞留時間が長くなり、分解反応及び沈降（物質の底質への移動）が進んだことによると考えられる。

内分泌かく乱物質として活性の最も高いNPについては、Survey1（図4a）における濃度が最も高かった。NPの浮遊物への吸着性が高いので、浮遊物濃度のやや高いSurvey 1において濃度が高くなったものと考えられる。

図4a～図4cに示す様に、NP+NP1～3EO+ NP1～3ECの濃度の合計は全てのNP類濃度の合計の約7～8割を占め、これらの物質の挙動を把握することにより、NP類の全体的な挙動も把握できると考えられる。

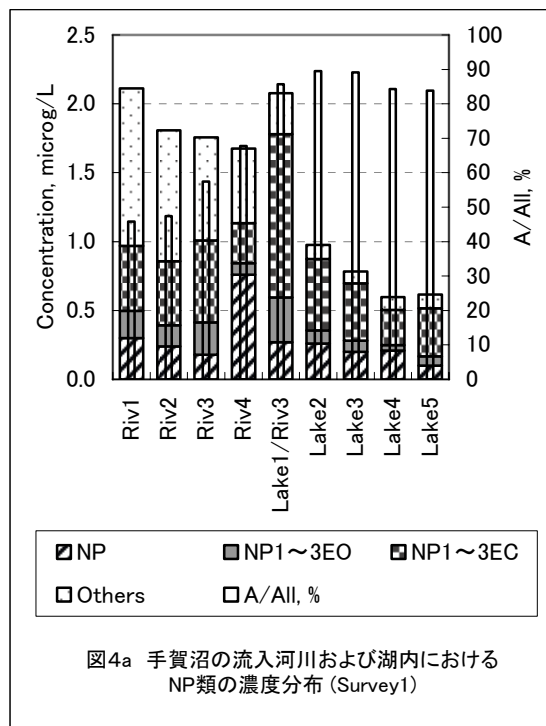


図4a 手賀沼の流入河川および湖内におけるNP類の濃度分布 (Survey1)

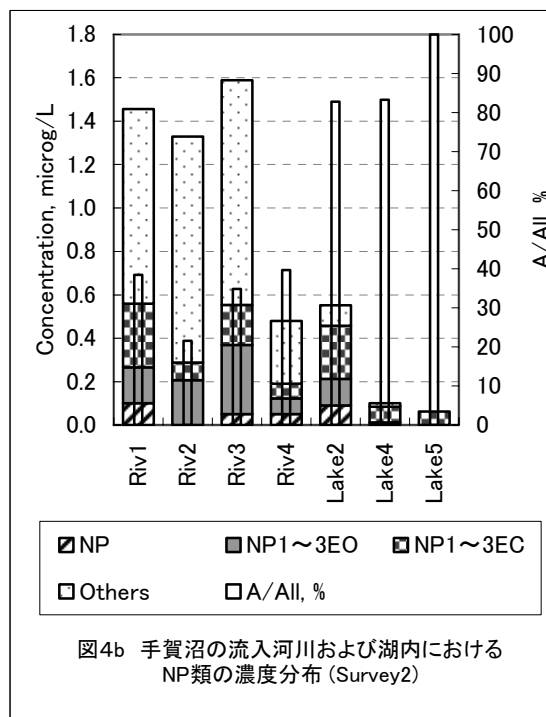
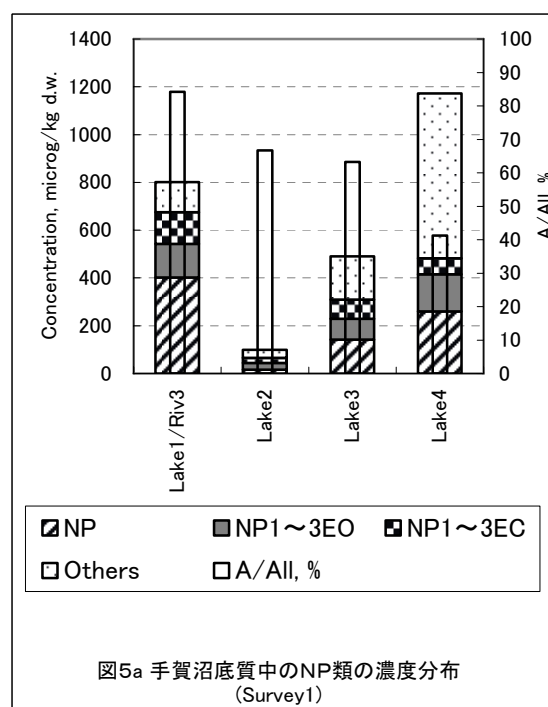
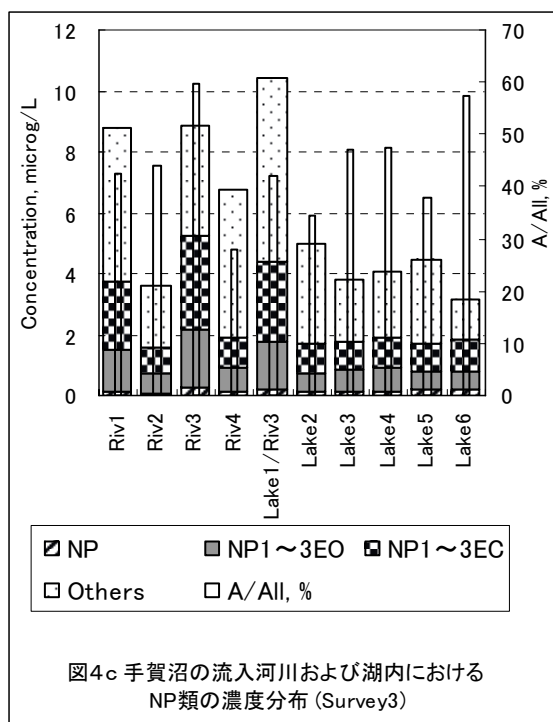


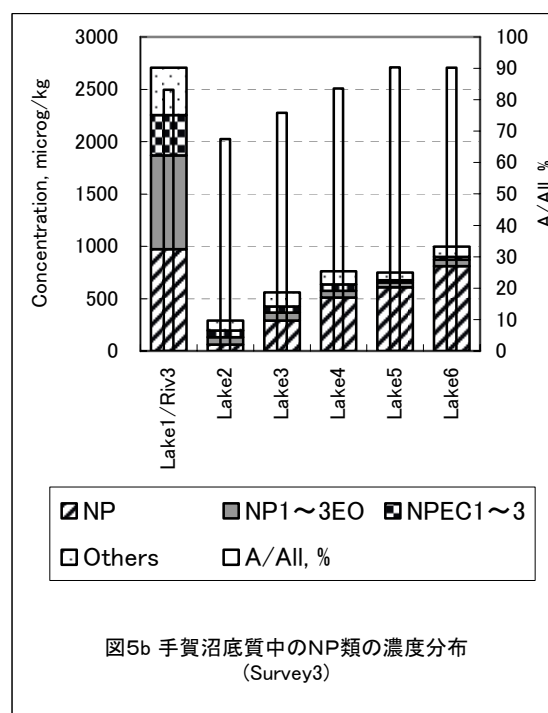
図4b 手賀沼の流入河川および湖内におけるNP類の濃度分布 (Survey2)



底質調査は、湖内調査地点において行った。
図5a及び図5bに示す様に、湖内流下方向に従って、表層底質のNP類含有量が増加する。一方、大津川河口付近のNP類含有量は、湖内のその他の調査地点と比較して著しく高い。この二つの現象について、以下の仮説が考えられる。河口付近の高い値は、直径が比較的大きく沈降しやすいSSへの吸着NP類による。一方、湖内流下方向で増加傾向を示すのは、流入する細かい粒子および藻類への吸着NP類による。手賀沼の内部生産の下流方向での増大傾向は過去から知られていて、下流側の生産量及び植物プランクトン濃度が高いといわれている¹²⁾。

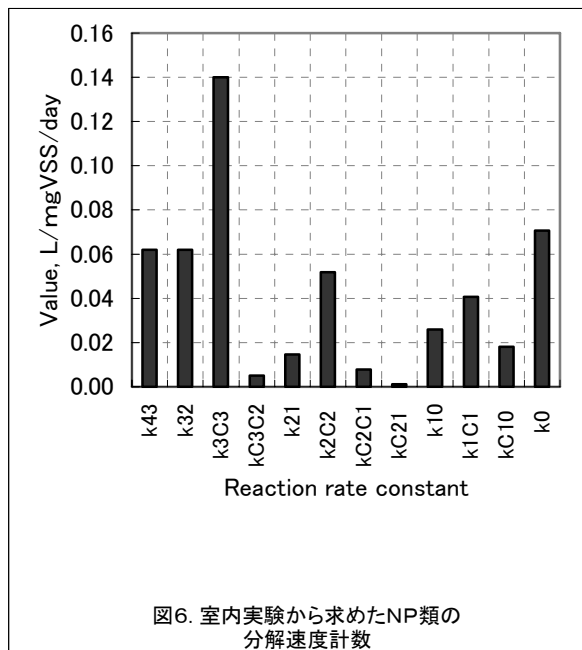
(2) 生分解実験

反応速度係数の値を求めるため、図2に示す反応経路に類似する経路を仮定し、動的反応数理モデルを作成した。そのモデルによって、バッチ生分解実験のシミュレーションを行い、実測値と計算値の誤差の最小化によって分解経路を決め、各k値を求めた。図6に示す様に、NPEO類 → NPEC類の反応、 $NP_{4-15}EO \rightarrow NP_3EO \rightarrow NP_2EO$ 、及びNPの分解反応速度が比較的大きい。反応速度の相対的な大きさから、 NP_1EO 、 NP_2EO 、 NP_1EC 、 NP_2EC の環境中の長期間の存在及び蓄積の説明は可能であるが、NPについて他の要因、例えば溶解性濃度の吸着による低減も考慮する必要がある。NP類の反応経路について様々な研究^{13)~16)}が行われたが、そのメカニズムは十分に解明されていないので、図2に示す経路とした。



(3) NP類の吸着

極性の低い有機化合物は水中・底泥中粒状有機物に吸着しやすい。吸着した物質については溶解性濃度が減少するため、生化学反応速度が低下する。



線形的な吸着平衡を仮定すると、ある化合物の溶解性濃度 (C_w) / 全濃度 (C_T) の比率は以下通り計算される。
(式3：水柱；式4：底泥。)

$$\frac{C_w}{C_T} = \frac{1}{1 + K_{ads} VSS} \quad (3)$$

$$\frac{C_w}{C_T} = \frac{\varepsilon}{\varepsilon + (1 - \varepsilon) K_{ads} \rho_{sed}} \quad (4)$$

ここで、 K_{ads} は吸着係数 L/mg、 VSS は有機性浮遊物濃度 (mg/L)、 ε は空隙率、 ρ_{sed} は底泥固形分の比重 (mg/L) である。吸着実験及び推定結果を表3に示す。手賀沼実験結果と K_{ow} から推定した結果を比べると、NP、NP3EO及びNP2EOについては満足できる程度一致しているが、他のNP類については大きく異なっている。手賀沼の VSS と活性汚泥 VSS への吸着結果を比較すると、オーダー的に近いものが多いがNPについては約5倍の相違が見られている。この結果から、各化合物の K_{ow} の実測値及び吸着係数の信頼性について更に研究する必要があると思われる。

本研究のシミュレーションにおいては、手賀沼実験によって得られた吸着係数値を使用した。

NP化合物の水柱及び底泥における吸着の影響を論証するために、表3に示す「Teganuma Experiment」欄の最小値 (NP1EC) と最大値 (NP) 及び手賀沼の平均的な VSS 濃度 (8 mg/L) 及び平均的な底質空隙率 (0.81) と比重 (2.33×10^6) を考慮し、式 (3) 及び式 (4) によって溶解性物質濃度の全濃度に対する比 ($C_w/C_T \times 100$) を算出した。その結果を以下の表4に示す。

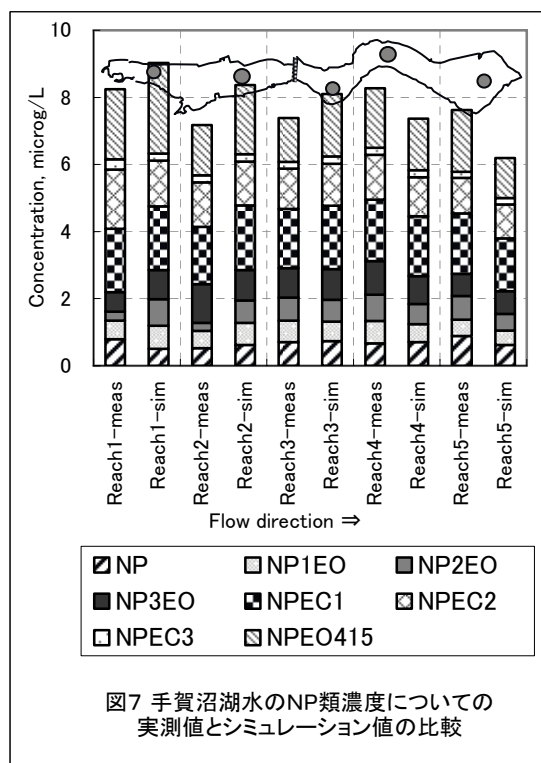
表4. NP類化合物の水中浮遊物及び底泥固形物への吸着の溶解状比率への影響

Medium	Compound	C_w/C_T (%)
Water column	NP1EC	95.2
	NP	58.4
Sediment surface	NP1EC	2.9
	NP	0.21

表4に示す値から、吸着がない場合と比較して、水中溶解性濃度は水溶性の比較的大きいNP1ECで5%、疎水性の強いNPで40%低下することが分かる。底泥においては、その低下程度は97~99.8%である。以上の値はNP類の底泥における蓄積を説明するものとなっている。

(4) 実測値とシミュレーション結果の比較

図7に示す様に、手賀沼の各区間において、NP類濃度の合計の実測値とシミュレーション値の一致は良好である (平均誤差は13.1%)。更に、各区間において、NP類の濃度分布パターンの実測値及びシミュレーション値が類似している。流下方向の濃度低下は小さいが、これは低水温及び大量の導水注入 (自然流量の約4倍) に伴う滞留時間の減少による。



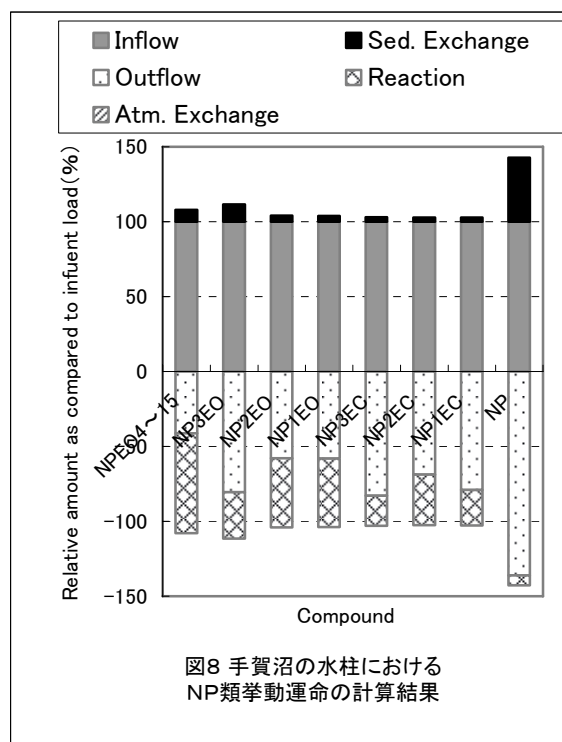
シミュレーションモデルを用いて Survey3 条件下でのNP類の手賀沼全体における挙動、運命の予測を行った (図8)。各NP類の気との交換は無視できる程度である。底質との交換はいずれの物質においても底泥→水柱の方向となっているが、特にNPの場合に著しく、その「内部負荷」は流入負荷の約30%を占める。この現象

は、それまでに底質に蓄積した高い濃度の NP 及び大きい導水量に伴う水相の低 NP 濃度が原因であると考えられる。各 NP 類の反応による変化においては、分解は生成を上回っている。その程度は NP の場合最も少ないが、この原因として NP の溶解性濃度が低いことが挙げられる。

2. 1. 4 まとめ

NP 類に関して手賀沼の実態調査を行うとともに、NP 類の挙動シミュレーションモデルを構築した。得られた成果は以下のとおりである。

- 1) NP 類の河川及び湖沼水、底泥における濃度及び濃度変化の傾向を把握した。
- 2) NP 類の生分解速度及び水中浮遊物への吸着係数を実験等により求めた。
- 3) NP 類の挙動を表すシミュレーションモデルを構築し、湖沼水における NP 類濃度の構成および分布の傾向が再現できることを確認した。



定常状態シミュレーションによる化学物質対策方法の事前検討・計画、実施中対策の評価・改善。

年中動的シミュレーションによる化学物質最大濃度予測及びその低減対策。

2. 2 エストロゲン抱合体の分析法改良

水試料を対象として河川、下水道におけるエストロゲンの実態把握についての調査¹⁷⁾¹⁸⁾が実施されているが、E1、E2 及び合成エストロゲンの EE2 の測定にとどまっている。河川、下水道等におけるエストロゲンの挙動解明の点から、これら遊離体の他、抱合体の測定は重要であ

るが、現時点において抱合体を含めた分析方法^{19) 20)}の報告例は少ない。本研究において、下水試料を対象とし抱合体を含むエストロゲンの分析法について LC/MS/MS による検討を行っており昨年度報告した。既報では下水試料を用いての添加回収試験結果は、硫酸抱合体では二次処理水 42~71%、流入下水 34~49%であったが、グルクロン酸抱合体では二次処理水 13~18%、流入下水 4~11%であり十分とはいえない状況にあった。本研究では回収率向上を目的とし前処理操作の改良を(独)土木研究所と帝人エコ・サイエンス(株)が「共同研究」として実施した。

2. 2. 1 検討項目

前処理操作、測定条件の設定に当たり以下の項目について検討を行った。

- ・ 固相抽出カートリッジの選択

逆相の固相抽出カートリッジとして一般にシリカ担体に C18 をコーティングした系が用いられており、エストロゲン遊離体のうち E1、E2 及び EE2 を測定対象とする場合に適用することができる。しかし、抱合体の回収率が低いため Oasis について検討した。

- ・ 固相抽出カートリッジの洗浄溶媒

固相抽出以降の精製処理を省略し、その代わりに固相抽出カートリッジに吸着する目的成分以外の物質を洗浄溶媒により除去する方法について検討した。洗浄溶媒は、酢酸エチルと n-ヘキサンの混合溶媒とし、5 通りの混合比 (100/0、70/30、50/50、30/70、1/100) について検討した。

- ・ 固相抽出カートリッジの溶出溶媒

固相抽出カートリッジからエストロゲン抱合体を溶出させる溶媒の検討を行った。溶出溶媒として酢酸エチルとメタノールの混合液をそれぞれの溶媒の混合比 (0/1~1/0) の範囲で 10~20% の間隔で変化させ、アンモニア (NH₃) : 0.02%、水 : 2.0% (v/v)、液量 6 ml でその回収率を求めた。

2. 2. 2 検討結果

(1) 検量線

E1-S、E2-S、E3-S、E1-G、E2-G、E3-G、E2-S&G の混合標準液を 5、10、20、30、50、80、100 µg/l の 7 段階の濃度に調製し、サロゲート (E2-17G-¹³C₄、E2-3S-d₄) を 50 µg/l 濃度で添加して、測定対象物 (I) とサロゲート (Is) の面積比 (I/Is) と標準液の濃度比の関係から検量線を作成する。0~100 µg/l の範囲で一回帰した直線の相関係数 (r) は 0.9934~0.9997 の範囲であり、良好な直線性が認められた。

(2) 検出下限値

装置の検出下限値は、検量線の最も低い濃度である 5 μ g/L (注入量、25pg) の標準液を 6 回繰り返し測定した結果から求めた。繰り返し測定結果の標準偏差 (s) の 3 倍値 (3 s) を検出下限値とした。その結果、硫酸抱合体では、0.9pg $\sim$ 1.8pg、グルクロン酸抱合体では 4.4pg $\sim$ 5.8pg であった。

(3) 固相抽出カートリッジの選択

遊離体の E3 及び抱合体を測定対象とした場合、C18 系では回収率が劣りポリマー共重合系カートリッジのほうが優れていることを確認した。そこで性能及び回収率が安定している点からジビニルベンゼン/ピロリドン共重合系の Oasis HLB を選択した。

(4) 固相抽出カートリッジの洗浄溶媒

精製水では洗浄液側への溶出はみられなかったが、二次処理水や流入下水では、酢酸エチルが 100% あるいは酢酸エチル/n-ヘキサンが 70/30 と酢酸エチルの比率が高い場合は、E1-S、E2-S が洗浄液側へ溶出することから、洗浄液として酢酸エチル/n-ヘキサン組成 50/50 を選択した。

(5) 固相抽出カートリッジの溶出溶媒

酢酸エチル 100% では、抱合体は溶出されず、回収率は 1% 以下であった。また、抱合体の種類により、若干、傾向の差があるものの、酢酸エチルとメタノールの混合比のメタノールの比率が 30 $\sim$ 40% を超えると抱合体の溶出がほぼ同程度になることが判明した。一方、メタノールの比率が高くなるほど、他の夾雑妨害成分の溶出も多くなることから溶出溶媒として弱塩基性の酢酸エチルとメタノール混合比 1 : 1 を選択した。

(6) 改良した前処理操作及び LC/MS/MS の測定条件

流入下水 200ml (二次処理水の場合は 300ml) をガラス繊維ろ紙 (孔径 1 μ m) でろ過し、ろ紙に残った浮遊物質 (SS) は、メタノール約 10ml で超音波を用いて 2 回抽出する。抽出液をろ液に合わせた後、精製水で約 500ml に希釈する。500ml としたろ液に各サロゲート物質 (E2-3S-d4, E2-17G-¹³C4) をそれぞれ 50ng 添加した後、IPC 試薬 (0.5mol/l) を 1ml, 20% 酢酸を 0.2ml 加える。予めメタノールと精製水でコンディショニングした Oasis HLB カートリッジに通水 (15ml/min) する。精製水で洗浄した後、カートリッジは遠心分離と窒素ガスパージにより脱水乾燥を行う。次に酢酸エチル/ヘキサン (1:1) 約 5ml で洗浄する。次に 2.5% NH₃ 水溶液 20ml を酢酸エチル/メタノール (1:1) 溶液 1000ml に加えて作製した溶出溶液約 6ml でエストロゲン抱合体を溶出させる。溶出液は窒素ガス吹き付けにより乾固直前まで濃縮する。次にアセトニトリル/水 (6:4) 1ml に溶解後、シリンジスパイクとして E1-3S-d

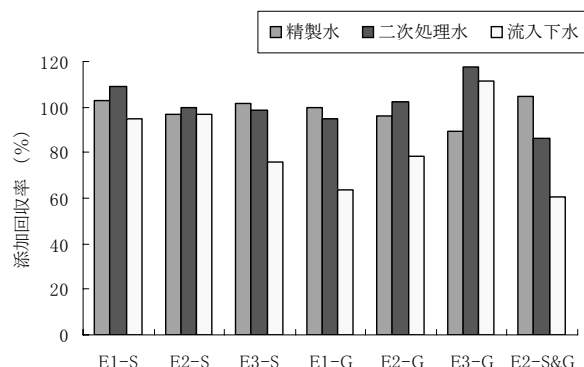
4 を添加し LC/MS/MS 表 5 で測定する。

表 5 LC/MS/MS の測定条件

HPLC	装置	Agilent 1100	
	分離カラム	Agilent Zorbax Extend-C18, 2.1 ϕ $\times$ 150mm, 40 $^{\circ}$ C	
	溶離液	A: 10mmol/l 酢酸, B: 10mmol/l 酢酸アセトニトリル	
		A/B: 80/20-10min-40/60(20min)-5min-80/20(5min)	
MS/MS		0.20ml/min	
	注入量	5-10 μ l	
	装置	TSQ API-2	
	イオン化	AP-ESI, Negative	
	コリジョンガス	アルゴン	
	測定イオン (コリジョンエネルギー)	E1-S	349, 269 (35eV)
		E2-S	351, 271 (35eV)
		E3-S	367, 287 (35eV)
		E1-G	445, 269 (35eV)
		E2-G	447, 271 (35eV)
		E3-G	463, 287 (35eV)
		E2-S&G	527, 351 (35eV)
		E2-3S-d4	355, 275 (35eV)
		E2-17G- ¹³ C4	451, 275 (35eV)

(7) 添加回収試験

試料として、純水 (500ml)、二次処理水 (300ml)、流入水 (200ml) にそれぞれ抱合体を各 50ng ずつ添加し、回収率を求めた。その結果、図 9 に示すように、精製水の添加回収試験では、ほぼ 100% に近い回収率が得られた。一方、下水試料では、二次処理水は精製水に近い回収率が得られたのに対し、流入下水は 60 $\sim$ 120% の範囲でばらつきが認められた。



2. 2. 3 まとめ

本研究では、昨年度報告したエストロゲン抱合体の分析で課題であったグルクロン酸抱合体の回収率の問題を解決する手法を検討した。前処理操作中におけるグルクロン酸抱合体の分解を軽減するために操作を簡易化することにより、回収率が向上しより信頼性の高い測定方法を確立できた。

改良法を用いた実試料 (流入下水及び二次処理水) への添加回収率は、二次処理水では 87 $\sim$ 120%、流入下水 60 $\sim$ 110%、であり、下水試料への適用が可能であると判断された。

2. 3 水相と底泥相微生物による E2 の分解特性

都市下水処理場や浄化槽などの排水処理施設から自然

水域に排出されるエストロゲン様物質のうち、 17β エストラジオール(E2)はエストロゲン活性が著しく強いと報告されている。同物質の自然水域における運命を把握するためには、水相と底泥相で生起する物理化学的・生物学的諸反応によるE2の移動・変換・分解などの諸挙動を的確に評価することが重要である。昨年度の報告では、実際の貯水池の底泥によるE2の分解経路と水温の影響について得た結果を示した。本報では、貯水池の水相と底泥の両相によるE2の分解特性の季節的依存性について、好気と嫌気の両条件下で得た結果を報告するとともに、異なる水域の底泥による分解速度の違いについて比較検討した結果を報告する。

2. 3. 1 実験方法

国土交通省東北地方整備局三春ダム牛縊前貯水池をフィールドとし、本ダムとの分離堰からそれぞれ50m, 150m, 230m離れたA, B, Cの3地点を対象に、2003/12, 2004/1, 2004/3, 2004/5, 2004/7及び2004/10に採水と直径4cmのコアサンプラーによる採泥をそれぞれ行った。採取した底泥を窒素雰囲気の中で2cmずつ切り出し、その表層(SL, 0~2cm), 中層(ML, 14~16cm)および下層(BL, 28~30)の遠心分離後に沈降した底泥(遠沈泥と称す)を回分式実験に供した。また、水中浮遊微生物による分解挙動を評価するため、採取した水相の表層水(SW), 中層水(MW), 底泥直上の下層水(BW)についても回分式実験を行った。

比較のため、牛縊前貯水池に流入直前の地点での流入河川水(Inflowと称す)、手賀沼の上流、中流及び下流に位置する3地点(それぞれT4, T7及びT10と称す)と牛久沼の中央に位置する1地点(U1と称す)で採取した底泥と直上水も回分式実験に供した。

実験は振盪培養器により、嫌気と好気/20°Cの条件下で行った。底泥を用いた実験の場合には、遠沈泥2gを300mlのpH調整済みのMilli-Q水(嫌気の場合には脱酸素も行

った)を入れた反応器(500mlの三角フラスコ)に加えたのち、E2濃度が約 $30\mu\text{g/l}$ になるように、一定量のE2原液(有機溶媒を使用せずにMilli-Q水に溶かしたもの)を素早く添加し、反応器を10秒程度激しく振り混ぜたのちに振盪培養器にセットし、光遮断下で回転培養(120rpm)を開始した。嫌気条件は反応器の混合液中に湿潤窒素を連続的に導入することにより維持した。一方、水相実験の場合には、曝気処理後の試料水300ml(好気実験の場合)、又は、脱酸素処理後の試料水300ml(嫌気実験の場合)に、E2を直接に添加する形で実験を行った。嫌気条件は上述の底泥実験の場合と同様に、湿潤窒素を連続的に導入することにより維持した。

E2とその副次生成物と考えられるE1及びE3は内部標準LC/MS/MS分析法により定量した。

2. 3. 2 実験結果

(1) E2の経時変化の動き

E2の分解挙動を牛縊前貯水池のA地点における底泥直上水(BW)と上層の底泥(SL)の場合を例にして図10に示す。水相と底泥相ともに、E2の分解は主に副次生成物E1の分解を経由して行われている。E2の分解過程におけるE3の形成は認められなかった。

(2) E2の分解速度

生分解の一次反応式に基づいて推定した底泥によるE2の消失速度係数(k)を図11に示す。 k の値は好気下では5月、嫌気下では5, 7及び10月の場合の方が小さく、E2の分解速度は底泥の季節によって変化することが明らかになった(図11aと図11b)。また、いずれの採泥時期の場合も、 k の値は上層の方が大きく、中層と下層の間では差が小さかった。また、全ての底泥層において、嫌気に比べて好気条件の方で大きな k 値を示している。

生物の全体的密度は下層にいくほど低く、また、上層と下層ではそれぞれ好気性と嫌気性の微生物群集が多数を占めることが考えられる。こうした推測を考慮すれば、

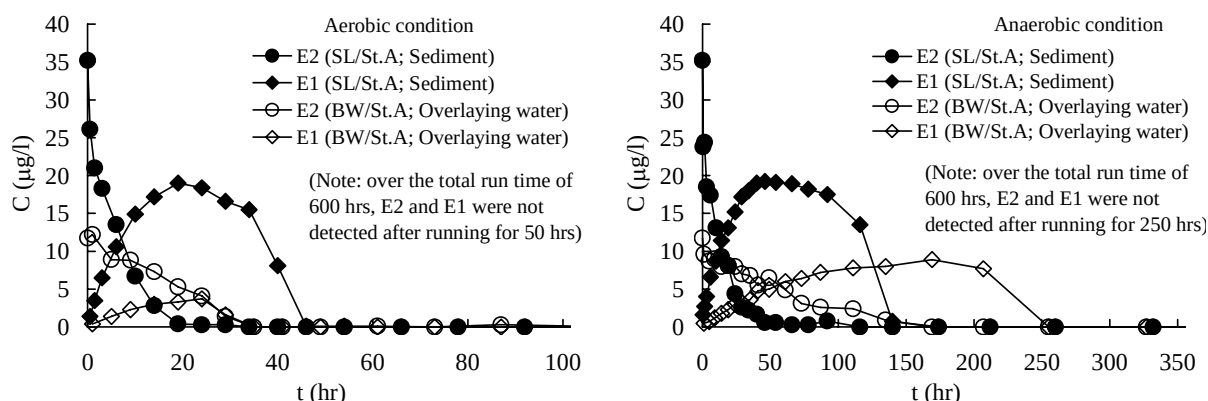


図10 好気と嫌気下におけるE2の分解挙動(20°C, 三春ダム牛縊前貯水池地点Aの直上水と底泥を使用)

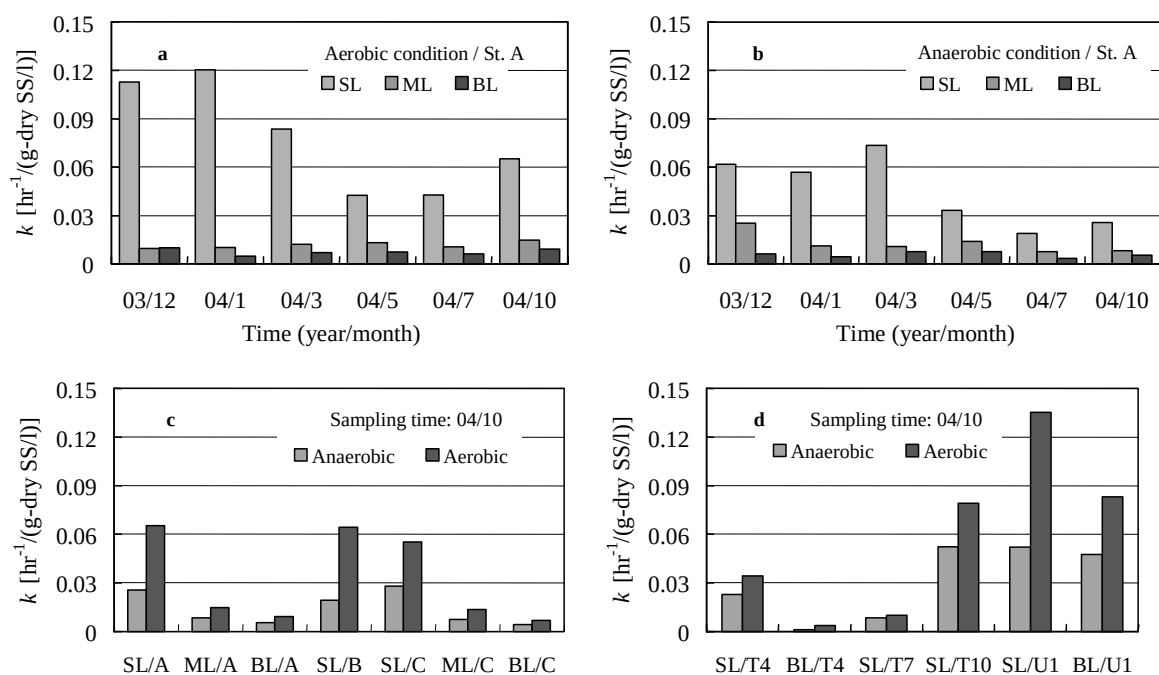


図11 底泥生息微生物によるE2の好気と嫌気下での分解速度係数(20℃)
 (使用底泥:a & bは三春ダム牛糞前貯水池地点A; cは同地点A, B & C; dは手賀沼上流T4, 中流T7, 下流T10, 牛久沼中央U1)

好気と嫌気下によるE2の分解速度の相違は、微生物そのものに帰着されるのみではなく、実際の底泥相内における好気性と嫌気性微生物の分布密度の違いが一因と考えられる。これを解明するためには、下水処理上の好気性の活性汚泥²¹⁾と嫌気性の消化汚泥を用いた対照実験や、長期にわたって直上水に酸素と窒素をそれぞれ連続的に供給することにより形成してきたほぼ完全な好気層と嫌気層からなる静止カラム実験が有効と考えられ、今後の対応が望まれる。

牛糞前貯水池の流下方向における分解速度を比較すると、図11cのように、いずれの底泥層の場合にも、上流・中流・下流の間における k 値の差が小さく、E2に対する分解速度は類似している。また、今回検討した3つの水域については、砂質が多く、VSSの含有量が少ない手賀沼

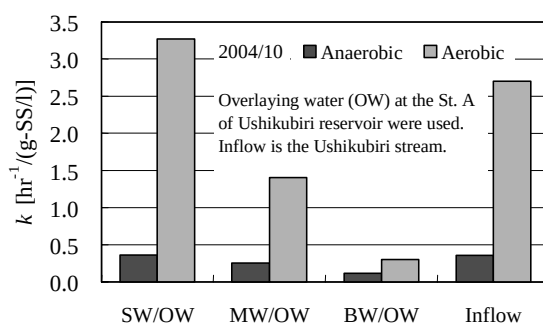


図12 水相浮遊微生物によるE2の分解速度係数(20℃)

の上流と中流の2地点(T4とT7)の方で分解速度が著しく遅いことが図11cと図11dからわかる。

底泥相に比べて、水相における微生物の個数が少ないので、E2の分解は図10のように遅いが、SS当たりの分解速度は2倍以上に速いことが明らかである(図12と図13)。

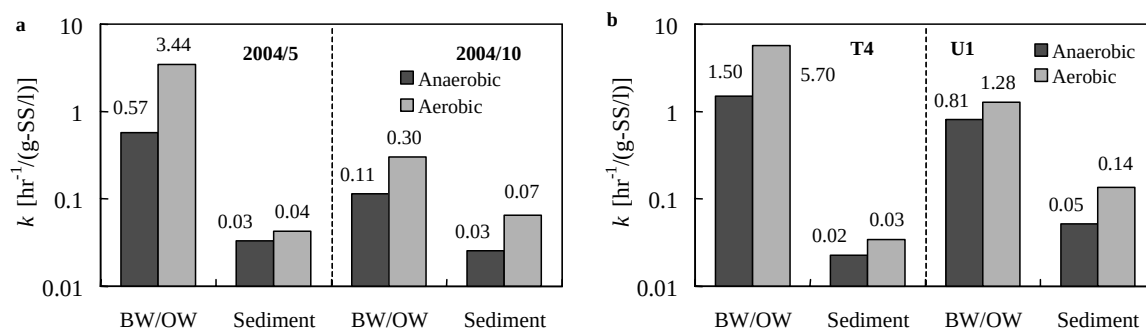


図13 E2の水相と底泥相での分解速度の比較(20℃, aは牛糞前貯水池地点A, bは手賀沼と牛久沼の場合)

また、水相微生物群には底泥相の場合と同様に、好気性と嫌気性の微生物が共存し、それを反映するように、嫌気下においてもE2は分解されている。

2. 3. 3 まとめ

湖沼におけるエストロゲン挙動を把握するために三春ダム前貯水池等の水・底泥試料についてエストロゲン分解速度を測定した。この結果、17 β エストラジオールの分解速度は、表層底泥の方が中層や下層底泥よりも大きく、好気条件下の方が嫌気条件下よりも大きいことが明らかになった。また、SS量当たりの分解速度で見ると、水相は底泥相の2倍の大きさであった。

3. まとめ

都市排水由来の内分泌攪乱物質に関し、調査分析手法の開発、また水環境中での分解・生成といった変化現象の把握を目的として研究を行い、以下の成果を得た。

- 1) 手賀沼におけるノニルフェノール(NP)類濃度の実態を調査したところ、水質濃度は流下方向に従って低減するが、底質濃度は逆の傾向を示した。また、NP類の生分解速度や吸着平衡係数を別途実験により求め、挙動シミュレーションモデルを構築した。これにより、湖水におけるNP類濃度の構成および分布の傾向が再現できた。
- 2) エストロゲンのグルクロン酸抱合体の分析法において、前処理操作を簡易化して抱合体の分解を抑制することにより、添加回収率が二次処理水では87~120%、流入下水では60~110%と向上し、信頼性の高い方法が確立できた。
- 3) 三春ダム前貯水池から水・底泥試料を採取し、17 β エストラジオールの分解速度を調査した。その結果、分解速度は、表層底泥の方が中層や下層底泥よりも大きく、また、好気条件下の方が嫌気条件下よりも大きかった。SS量当たりの分解速度で見ると、水相は底泥相の2倍の大きさであった。

なお、本研究は、運営費交付金（一般勘定）により実施されたものである。

4. 参考文献

- 1) Fauser P. et al.: Phthalates, Nonylphenols and LAS in Roskilde Wastewater Treatment Plant, NERI Technical Report, No. 354, Denmark, 2001.
- 2) Bennie, D.T.: Review of the Environmental Occurrence of Alkylphenols and Alkylphenol Ethoxylates, *Water Qual. Res. J. Canada*, 34 (1), pp. 79-122, 1999.
- 3) Birkett, J.W. & Leste, J.N.: Endocrine Disrupters in Wastewater and Sludge Treatment Processes, CRC Press, Boca Raton, 2003.
- 4) Tamamoto, H. et al.: Study for Characterization of Isolated Fractions of Estrogen-like Activity from River Water and Wastewater, Proc. 3rd IWA World Water Congress, Melbourne,

Australia, April 7-12, paper No. e21055a, 2002.

- 5) Takahashi, A. et al.: Evaluating Bioaccumulation of Suspected Endocrine Disruptors into Peryphytons and Benthos in the Tama River, Proc. 3rd IWA World Water Congress, Melbourne, Australia, April 7-12, paper No. e21209a, 2002.
- 6) 磯部友彦 他: 水環境におけるノニルフェノールの挙動と環境影響、*水環境学会誌*、21(4), 1998.
- 7) Mibu, K. et al.: Distribution of Estrogen, Nonylphenol and Its Derivatives in the Sediments of a Shallow Lake, *Water Science and Technology*, 50(5), pp.173-179, 2004.
- 8) Argese E. et al.: Submitochondrial particle response to linear alkylbenzene sulfonates, nonylphenol polyethoxylates and their biodegradative derivatives. *Environ. Toxicol. and Chem.* 13(5), pp.737-742, 1994.
- 9) Yamamoto, H. et al.: Estimated Fate of the Selected Estrogenic Compounds in the Activated Sludge Process: Effects of Natural Organic Matter, Proc. IWA World Water Congress and Exhibition, Marrakech (Morocco), Sept. 19-24, poster paper No. 26539, 2004.
- 10) Namkung, E. and Rittmann, B.E.: Estimating volatile organic compound emission from publicly owned treatment works. *Journal of WPCF*, 59(7), 1987.
- 11) US-EPA: Estimations Programs Interface, EpiWin Ver.3.1, 2001.
- 12) 小林節子 他: 内部生産からみた印旛沼、手賀沼のCOD、窒素、リンの水質特性、千葉県水質保全研究所、水保研資料 No.51, pp. 87, 1989.
- 13) John, D.M. & White, G.F.: Mechanism for Biotransformation of Nonylphenol Polyethoxylates to Xenoestrogens in *Pseudomonas putida*, *Journal of Bacteriology*, Sept. pp. 4332-4338, 1998.
- 14) Ahel, M. et al.: Aerobic Transformation of Short-Chain Alkylphenol Polyethoxylates by Mixed Bacterial Cultures, *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 26, pp. 540-548, 1994.
- 15) Quiroga, J.M. et al.: Biodegradation of a Nonylphenol Polyethoxylate (NPEO) in River Water, Proc. 4th World Surfactant Congress, pp. 417-425, 1996.
- 16) 藤井克彦 他: ノニルフェノール分解微生物、*Journal of Tokyo University of Fisheries*, 87, pp.1-12, 2001.
- 17) 国土交通省(2002)平成13年度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、国土交通省河川局
- 18) 国土交通省(2001)平成12年度下水道における内分泌攪乱化学物質（環境ホルモン）に関する調査報告、国土交通省都市・地方整備局水道部
- 19) 辻村 他(2000)LC/MS/MSによる環境中エストラジオール及び類縁物質の同時分析法の開発、第9回環境化学討論会講演要旨集, pp. 58-59
- 20) 石井 他(2002)LC/MS/MSによるエストロゲン抱合体

の分析法について、第 11 回環境化学討論会講演要旨集,
pp. 514-515

21) Temes TA, Kreckel P, Mueller J: Behaviour and occurrence
of estrogens in municipal sewage treatment plants- II. Aerobic
batch experiments with activated sludge, Sci. Total. Environ.,
225, 91-99, 1999.

4. バイオアッセイによるエストロゲン様物質の指標に関する研究

水循環研究グループ水質チーム 上席研究員 鈴木 穰
主任研究員 宮島 潔
専門研究員 東谷 忠
専門研究員 中田 典秀

1. はじめに

下水処理水やその放流先河川において、雌性ホルモン（エストロゲン）様物質による魚類の雌性化が起きていると疑われている。わが国においては、下水処理水や河川水にエストロゲン様物質が存在することが明らかにされてきたが、下水処理水の比率が高い都市河川水中のエストロゲン様物質が魚類にどの程度影響を及ぼしているのか、その主要物質は何かについては依然として明らかになっていない。

本研究は、下水処理水やその放流先の都市河川において検出されたエストロゲン様物質を魚類に暴露し、その影響を評価する。また、水試料の分画手法と遺伝子組み換え酵母法によるエストロゲン様活性の測定手法（YES）とを組み合わせることにより、水試料のエストロゲン様作用について評価し、このエストロゲン様活性を魚類雌性化の簡便な評価指標へと確立させることを目指している。

平成 14 年度は、河川における魚類曝露試験について既往事例を整理して課題を選出し、現地魚類曝露試験法の開発およびその予備試験を実施した。さらに、下水処理水を分画抽出することによって、これに含まれるエストロゲン様物質の性状を把握する手法について検討した¹⁾。

平成 15 年度は、河川での魚類曝露試験を継続するとともに、その基礎情報を得るため、エストロゲンを用いた室内曝露試験を実施し、個々の化学物質による魚類影響を明らかにすることとした。また、水試料に対し、分解能の高い高速液体クロマトグラフィー（HPLC）による分画手法の検討を行った。さらに、現地魚類曝露試験を日本各地の河川で実施することを想定し、下水道整備率などの流域情報と、YESによる全国主要河川水中エストロゲン様活性の測定結果との関係について考察を行った²⁾。

平成 16 年度は、昨年度までの調査において、下水処理水のエストロゲン様活性に対して、寄与が高いと推察された人畜由来の 17 β -エストラジオール（E2）とエストロン（E1）について、その主な排出起点であると思われる下水処理場にて、各工程での挙動を冬期と夏期に調査した。また、同時に遺伝子組み換え酵母を用いたエストロゲン様活性の下水処理工程での消長についても調査を行った。

2. 調査方法

2. 1 調査概要

神奈川県内にある下水処理場にて、2004 年 1 月と 7 月に、処理場の定期調査日に合わせて調査を行った。同処理場は、標準活性汚泥法を採用しており、計画処理人口、処理能力はそれぞれ 28,000 人、30,600m³/日であり、現行処理人口、処理能力はそれぞれ 30,500 人、20,400m³/日である。

各調査日において、2 時間毎 24 時間、処理過程毎に試料を採取し（図-1）、流量比例 24 時間コンポジット試料を作成した。得られた試料は、最初沈殿池へ流入する流入下水（スクリーン通過済み）、最初沈殿池流出水、汚泥脱水排水である返流水、最初沈殿池汚泥、エアレーションタンク前段の表層水、同後段の表層水、最終沈殿池流出水、返送汚泥、塩素消毒後の法流水である。分析対象成分の分解を抑えるため、得られた試料にアスコルビン酸を添加し（1g/L）、氷冷しながら研究室に持ち帰った。

2. 2 試料前処理

持ち帰った試料は、GF/B フィルター（孔径 1.0 μ m）にてろ過し、あらかじめ mili-Q 水、メタノールでコンディショニングを行ったオクタデシルシリカゲル充填カートリッジ（tC18、900mg）により固相抽出、フィルター上の残渣は超音波抽出し、保持成分を抽出した（それぞれ溶存態試料、懸濁態試料）。

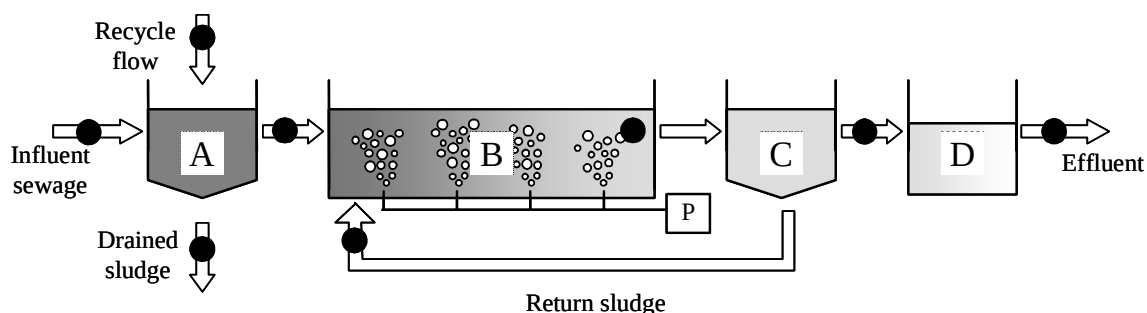


Figure 1. Sampling location (indicated with a closed circle) in a municipal sewage treatment plant.

A: Primary settling tank; B: Biological reaction tank; C: Final sedimentation tank
; D: Chlorination tank; P: Aeration pump

2. 3 化学分析

溶存態試料および懸濁態試料について、以下の分析を行った。エストロゲン様物質の分析項目は、全国実態調査の結果²⁾と、各物質のエストロゲン様活性のポテンシャルを考慮して、E1、E2、エストリオール (E3)、硫酸抱合体化E1 (E1-3S)、硫酸抱合体化E2 (E2-monoS)、経口避妊薬に含まれる人工エストロゲンであるエチニルエストラジオール (EE2)、ノニルフェノール (NP) とした。またノニルフェノールエトキシレート (NPnEO)、ノニルフェノールフェノキシ酢酸 (NPnEC) (以後、NP関連物質) についても測定を行った。

E1、E2、E1-3S、E2-monoSについては、小森らの方法³⁾に従いLC/MS/MSを用いて測定を行った。またNP、NPnEOについては下水試験法追補暫定版⁴⁾に従いHPLCを用いて測定を行った。NPnECについては八十島らの方法⁵⁾に従いLC/MS/MSを用いて測定を行った。

上述の微量物質の分析とともに、各試料について一般項目、つまり、浮遊粒子状物質 (SS および VSS)、溶存炭素量 (DOC)、各態無機窒素濃度、生化学的酸素要求量 (BOD)、化学的酸素要求量 (COD) の分析を、下水試験法に従い行った。

2. 4 バイオアッセイ

溶存態試料および懸濁態試料について、バイオアッセイを実施した。バイオアッセイは、イギリスBrunel大学のSumpter教授より譲渡された遺伝子組み換え酵母を用い実施した。この遺伝子組み換え酵母には、エストロゲン受容体が組み込まれており、エストロゲンやエストロゲン様物質が結合すると、その濃度に応じて β -ガラクトシダーゼが発現するように組み込まれている。この β -ガラクトシダーゼ量を計ることにより、エストロゲン様活性を定量する。伝子組み換え酵母法によるエストロゲン様活性の測定法についてはRoutledgeらの方法⁶⁾を改良した矢古宇らの方法⁷⁾に従った。

3 結果および考察

3. 1 処理工程での各成分の濃度変動

冬季 (2004 年 1 月) および夏季 (2004 年 8 月) に実施した 24 時間調査における、一般項目の分析結果を表-1 に示した。両調査における処理、および処理水の水質の大きな違いは、流入水温および硝化の進行程度である。つまり、夏季の流入水温は、冬季のそれに比べ約 10℃高い。また、夏季においては、処理の進行とともにアンモニア態窒素濃度が減少し、それに伴い若干の亜硝酸態窒素、硝酸態窒素濃度の増加が確認された。一方、冬季においては、アンモニア態窒素濃度の減少は小さく、また、亜硝酸および硝酸態窒素濃度の増加も確認されなかった。つまり、冬季においては硝化抑制的な運転が結果として行われたことが推察される。なお、SS、BOD および COD の除去率は、両調査ともに 90%以上であった。

NP 関連物質およびエストロゲン類の分析結果 (溶存態と懸濁態の合計) を、各成分の定量下限値とともに表-2 に示した。NP、NPEO については、両調査において高い除去が確認された。しかし、NPEC については、特に冬季において、処理の進行とともに濃度が増加し、処理の進行に伴う生成が示唆された (表-2)。一方、E1 については、

処理の進行、特に最初沈殿池の前後で濃度の増加が確認され、その傾向は冬期に強かった。返流水、最初沈殿池汚泥、返送汚泥中でも高濃度で検出されていることより、これらの寄与については次章で取り扱う。EE2 については、いずれの調査、試料中からも検出されなかった。1999 年 9 月に一般での使用が解禁されたが、同処理場では検出に至るほどの流入水中濃度ではなかった。E3 については、妨害物質の影響により、流入水中濃度が定量されなかったが、処理の進行に伴い、濃度の減少が伺われた。E1、E2 の硫酸抱合体化物については、処理の進行により濃度が変わらないか、夏期においては増加が確認された。この傾向は、冬期、処理の進行に伴い濃度が上昇する NPEC や E1 などとはことなり、他の抱合体化物からの脱抱合による生成機構が、NPEC や E1 などとは異なることが示唆された。

エストロゲン様活性は、E1 とほぼ同様の挙動を示した。そのため、次章ではその動態について考察を進める。

Table 1

Characterization of wastewater concerning samples along the treatment process.

Month	Sample	T _w (°C)	SS (mg/L)	VSS (mg/L)	DOC (mg/L)	NH ₄ -N (mg/L)	NO ₂ -N (mg/L)	NO ₃ -N (mg/L)	BOD (mg/L)	COD _{Mn} (mg/L)
January 2003 (Winter survey)	Influent	16.4	80.0	71	35.7	20.2	0.20	0.19	172	144
	Recycle flow	-	307	273	30.2	18.7	0.67	0.39	-	-
	Effluent of primary settling tank	-	72.0	64	30.3	21.6	0.00	N.D.	121	70
	Drained sludge	-	5230	4650	98.9	28.2	0.00	N.D.	-	-
	Return sludge	-	3980	3280	6.76	17.9	0.02	0.02	-	-
	Supernatant of aeration tank	-	1440	1200	6.98	19.2	0.13	0.07	-	-
	Supernatant of aeration tank	-	1340	1120	6.32	16.9	0.32	0.41	-	-
	Secondary effluent	-	4.5	3.7	6.79	17.2	0.46	0.45	8.7	8.6
	Finally effluent	-	2.0	2.0	5.98	15.0	1.09	1.25	1.8	10
July 2003 (Summer survey)	Influent	26.7	160	138	34.1	18.7	0.00	N.D.	169	112
	Recycle flow	-	200	172	31.6	11.6	0.89	0.86	-	-
	Effluent of primary settling tank	-	68	59	31.8	15.7	0.18	N.D.	114	62
	Drained sludge	-	3980	3480	91.8	23.9	0.03	N.D.	-	-
	Return sludge	-	3280	2700	8.58	6.37	0.02	0.05	-	-
	Supernatant of aeration tank	-	1160	965	8.33	10.8	0.38	0.42	-	-
	Supernatant of aeration tank	-	1260	1030	7.96	4.43	0.05	3.23	-	-
	Secondary effluent	-	3.0	2.0	7.07	4.72	0.33	5.88	9.0	11
	Finally effluent	-	3.0	2.0	7.38	7.53	0.83	2.69	0.9	10

N.D.: not detected; -: not measured

Table 2

Fates of nonylphenol (NP), total nonyl phenol ethoxylates (Σ NPhEO), total nonyl carboxylates (Σ NPhEC), 17 β -estradiol (E2), estrone (E1), estriol (E3), sulfated E1 (E1-3S) and sulfated E2 (E2-monoS) along the wastewater treatment process and limits of quantification (LOQ) of each compound.

Month	Sample	NP (μ g/L)	Σ NPhEO (μ g/L)	Σ NPhEC (μ g/L)	E2 (ng/L)	E1 (ng/L)	EE2 (ng/L)	E3 (ng/L)	E1-3S (ng/L)	E2-monoS (ng/L)
January 2003 (Winter survey)	Influent	3.4	106	11.1	23.4	18.2	N.D.	n.a.	2.9	6.4
	Recycle flow	2.2	14.6	14.7	17.2	133	N.D.	11.4	1.8	4.1
	Effluent of primary settling tank	2.6	68.9	10.0	5.5	65.3	N.D.	72.5	2.8	5.6
	Drained sludge	67	435	18.6	59.4	85.6	N.D.	80.2	2.1	4.5
	Return sludge	13	97.6	50.3	17.4	181	N.D.	4.4	2.1	4.4
	Supernatant of aeration tank	7.5	55.8	29.4	13.8	65.4	N.D.	5.2	2.4	3.8
	Supernatant of aeration tank	8.2	58.8	32.3	13.3	94.0	N.D.	N.D.	1.7	2.9
	Secondary effluent	0.4	3.7	11.9	11.5	192	N.D.	N.D.	1.9	3.5
	Finally effluent	0.4	3.0	12.7	7.0	154	N.D.	5.5	2.1	3.3
July 2003 (Summer survey)	Influent	1.7	48.3	19.3	3.9	15.1	N.D.	n.a.	1.1	2.5
	Recycle flow	0.5	4.3	10.8	2.7	49.1	N.D.	8.4	2.8	5.8
	Effluent of primary settling tank	1.0	36.7	18.1	3.8	19.3	N.D.	n.a.	1.8	4.5
	Drained sludge	24	197	33.3	17.2	20.3	N.D.	43.7	7.9	10.4
	Return sludge	4.2	56.1	45.6	31.1	257	N.D.	24.8	15.0	16.5
	Supernatant of aeration tank	2.4	37.8	25.3	8.1	26.6	N.D.	6.8	9.5	13.9
	Supernatant of aeration tank	1.2	27.5	24.6	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	7.9	18.0
	Secondary effluent	N.D.	1.6	10.7	N.D.	15.3	N.D.	5.8	2.6	6.8
	Finally effluent	0.2	1.4	11.7	N.D.	22.2	N.D.	5.6	2.6	6.6
LOQ		0.1	1	0.01	1	2	2	2	0.1	0.4

N.D.: not detected n.a.: not available

3. 2 処理工程での各成分の負荷量変動

各調査におけるエストロゲン様活性値、E1 濃度（表-2）と、処理場において計測された流量より、各成分のフラックスを算出した（図-2、3）。エストロゲン様活性値は、冬期においては最初沈殿池で負荷量が増加し、エアレーションタンクに流入した（図-2）。その際、辺流水、最初沈殿池汚泥の引き抜きによる負荷量増加、負荷量減少は無視できるほど小さいことが示唆された。エアレーションタンクでは、最終沈殿池からの返送汚泥によりさらに負荷量が増加し、除去されことなく最終沈殿池、塩素処理過程を経て放流されていることが明らかとなった。夏期においては、同様に返送汚泥としての負荷が確認されたが、エアレーションタンク内での除去が卓越していることが示唆された。その結果、最終沈殿池、塩素処理過程ではエストロゲン様活性が低下しないが、放流水中の値としては、冬期に比べ低い値で放流されていることが明らかとなった。一方、E1 についても同様の挙動が確認された（図-3）。

3. 3 放流水中にエストロゲン様活性に対する、各分析対象成分の寄与

放流水中に含まれるエストロゲン様活性に対し、本調査で分析対象成分とした各物質が、どの程度寄与しているのかについて考察を行った。理論活性値は各物質濃度に比活性値を乗じることによって算出した。比活性値については矢古宇らの文献⁵⁾に従いE1=0.3、E2=1.0、NP=0.001とした。また矢古宇らの文献に記載のないNPnEOやNPnECについては、文献に記載された試験方法に従い試験し、過年度に報告した¹⁾。その結果、冬期、夏期ともに、放流水中で検出されるエストロゲン様活性の約85%がE1によるものであり、残り約10%がE2であると算出された。他の成分（例えばNP）による寄与は多くても数%であると算出された。今回調査を行った処理場のように、冬期に処理効率が低下する場合、放流先の河川水量が減少する冬期には、処理水中のエストロゲン様活性の希釈が不十分となり、魚類への影響の増加が懸念される。このことより、水生生物保護のために放流水中のエストロゲン様活性を低減するためには、下水処理過程において効果的にE1を除去することが必要であることが明らかとなった。

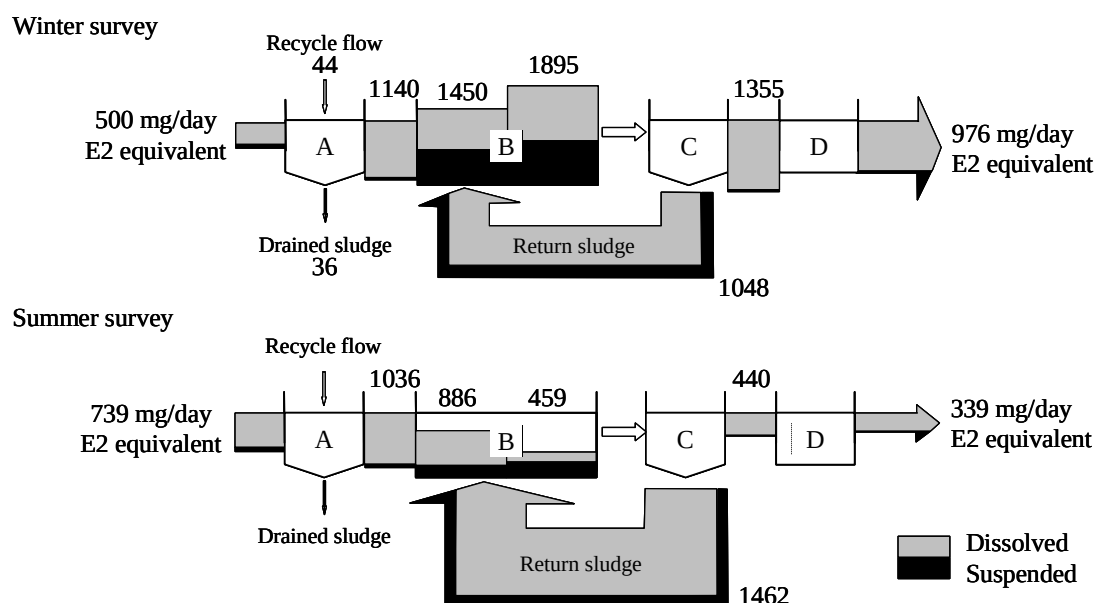


Figure 2. Mass balance of estrogenic activity (in mg/day, E2 equivalent) through physicochemical treatment (A and C), biological treatment (B), and chlorination process (D) during winter and summer in a municipal sewage treatment plant in Japan.
A: Primary settling tank; B: Aeration tank; C: Final sedimentation tank; D: Chlorination tank

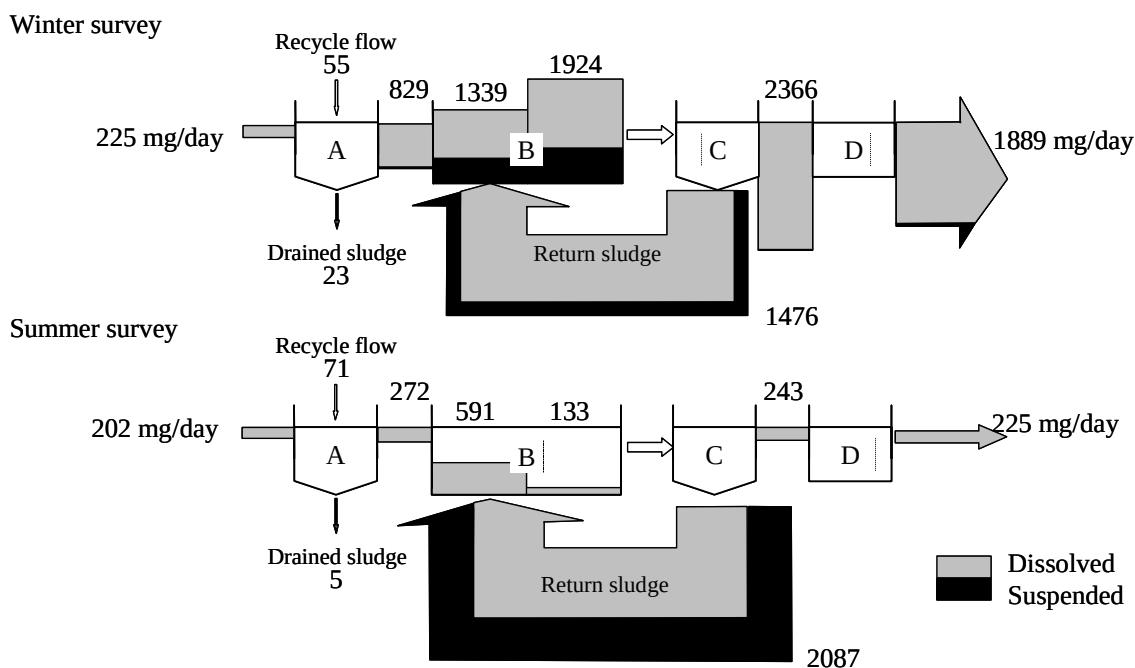


Figure 3. Mass balance of estrone (in mg/day) through physicochemical treatment (A and C), biological treatment (B), and chlorination process (D) during winter and summer in a municipal sewage treatment plant in Japan.

A: Primary settling tank; B: Aeration tank; C: Final sedimentation tank; D: Chlorination tank

4. まとめ

本年度の調査・研究により、下記の結果が得られた。

- 1) E2、E1、エストロゲン様活性ともに、冬期に比べ夏期に高い除去率が確認された。同時に測定を行ったSS、BOD、CODについては、両調査ともに良好な除去率（90%以上）が確認されたが、T-Nについては冬期に低い除去率が確認された（冬期：16%、夏期：41%）。
- 2) E2は両調査において高い除去率が確認された（冬期：70%、夏期：87%）のに対し、E1については処理工程が進むにつれ濃度が増加（冬期：740%増加、夏期：50%増加）し、その傾向は特に冬期に顕著であった。
- 3) エストロゲン様活性についてもE1同様に、冬期の調査においては処理工程が進むにつれ活性値の増加が確認された（除去率として冬期：-97%、夏期：39%）。機器分析により定量したE1、E2、ノニルフェノール濃度より、下水処理過程の各水試料中で検出されたエストロゲン様活性値の大部分はE1の寄与によることが再確認された。このことより、放流水中のエストロゲン様活性を低減するためには、下水処理過程において効果的にE1を除去することが必要であることが明らかとなった。

参考文献

- 1) 田中宏明他（2002）水生生態系から見た河川水質の評価に関する研究、平成 14 年度下水道関係調査研究年次報告書集
- 2) 田中宏明他（2003）水生生態系から見た河川水質の評価に関する研究、平成 15 年度下水道関係調査研究年次報告書集
- 3) 小森行也，八十島誠，高橋明宏，矢古宇靖子，田中宏明；下水試料中のエストロゲン及びノニルフェノキシ酢酸類の分析，土木技術資料，Vol. 43(11)，pp44-49(2001) .
- 4) 社団法人日本下水道協会編：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），(2002).
- 5) 八十島誠，小森行也，田中宏明；LC/MS によるノニルフェノキシ酢酸類の分析，第 4 回日本内分泌攪乱

化学物質学会研究発表会要旨集, pp171 (2001).

- 6) Routledge, E.J. and Sumpter, J.P. ; Estrogenic activity of surfactants and some of their degradation products assessed using a recombinant yeast screen, *Environmental Toxicology and Chemistry*, Vol. 15 (3), pp241-248 (1996).
- 7) 矢古宇靖子, 高橋明宏, 東谷忠, 田中宏明 : 組み換え酵母を用いた下水中のエストロゲン活性の測定, *環境工学研究論文集*, Vol. 36, pp199-204, (1999).

5. 水環境の評価に関する調査

水循環研究グループ水質チーム 上席研究員 鈴木 穰
主任研究員 津森 ジュン
宮島 潔
専門研究員 東谷 忠
山下 尚之

1. はじめに

本調査は、利根川、多摩川等の河川流域を対象に、流域条件と水量・水質の関係把握、栄養塩の実態と富栄養化ポテンシャルの評価、水質と生物影響の関係、特に一次生産に対する影響評価、都市排水が水生生物に与えるホルモン作用の把握を行い、河川における水環境の現状を把握するとともに、今後も良好な水環境を保全するために有用なデータの収集を行うものである。

平成 16 年度は、農薬に着目して中川の倉田橋等にて藻類の生長阻害試験及び水質調査を実施した。また、陸域から海域へ供給される物質として栄養塩類に注目し、利根川において栄養塩類の流下方向での分布について調査した。さらに、平成 15 年度に引き続き多摩川の石原、拝島の両水質自動監視所においてメダカを用いた現地での曝露評価試験の改良を行うとともに曝露評価試験を行った。

2. 水・物質循環機構理解のための実態調査

ゴルフ場農薬による環境汚染問題をきっかけに、環境基準や水質評価指針等の農薬規制が定められた。しかし、規制対象となっている農薬は限られていること、新たな農薬の開発も進められていることにより、水田に施用された農薬が河川水から検出されることが報告されている。本調査では、農薬の流出実態を把握することを目的とした。

2-1 藻類に対する影響調査

調査地点は、中川の倉田橋（中川基点から 17.7km）、および庄内橋（同 23.0km）の 2 地点とした。平成 16 年 4 月 30 日～7 月 6 日の間、各調査地点において採水を行った後、試料を実験室に持ち帰り藻類生長阻害試験を行った。

（1）試験方法

藻類生長阻害試験の供試藻類としては、緑藻類 *Pseudokirchneriella subcapitata*（NIES-35）を用いた。*P. subcapitata* は、藻類培養用の AAP 培地を用いて継代培養を行い、植え継ぎ後 3～5 日経過した対数増殖期のものを試験に用いた。試験では、継代培養を行っている *P. subcapitata* を滅菌した濃度 15mg/L の NaHCO_3 溶液で洗い、培地成分を除いた後に使用した。

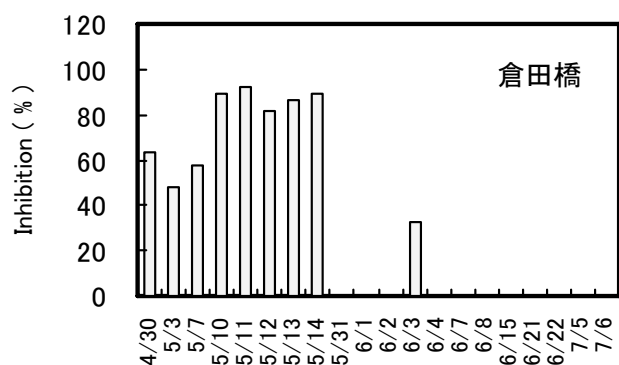
藻類生長阻害試験については、Blaise らの方法を参考にして、マイクロプレートを用いて実施した。マイクロプレートの各ウェルには、200 μL のサンプルと 20 μL の *P. subcapitata* 細胞懸濁液および 20 μL の培地を入れ、培養温度 24 $^{\circ}\text{C}$ 、120rpm の振とう条件で 96 時間培養を行った。光条件は、照度 4000Lux の連続照射とし、藻類の初期細胞濃度は 1×10^4 cells/mL とした。培養期間中、マイクロプレートリーダー（Wallac 社製、ARVO SX-1420）を用いて吸光度（波長 450nm）を測定し、藻類増殖量をモニタリングした。藻類生長曲線下の面積から、対照試料と比較した場合の藻類生長阻害率を算出した。

（2）調査結果

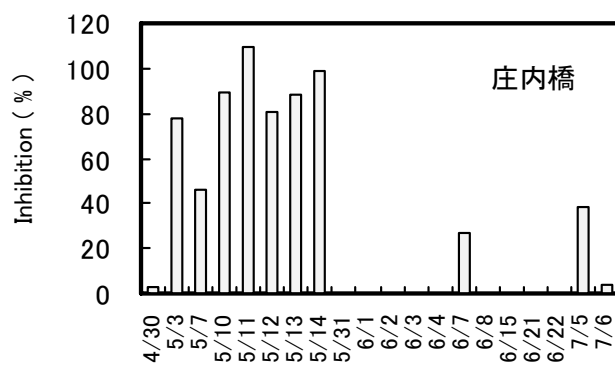
倉田橋および庄内橋で採水した試料についての藻類生長阻害試験の結果を図－1～図－2 に示す。倉田橋、

庄内橋いずれの地点においても、4月30日から5月14日に採水した試料では40%～80%以上の阻害率が認められた。

5月末以降に採水した試料では、阻害の認められるものは4試料と少なかった。また、その阻害率は5月前半の試料と比べると比較的小さく、同一採水日に両地点で阻害が認められることもなかった。このことから、5月の前半には、除草剤の散布により化学物質の河川への流出が継続して起こっていたという可能性が考えられた。



図－1 藻類生長阻害試験結果（倉田橋）



図－2 藻類生長阻害試験結果（庄内橋）

2-2 藻類生長阻害原因物質の検討

藻類の生長阻害の認められた試料の一部について、機器分析による原因物質の特定を試みた。調査地点間で阻害率が大きく異なっていた4月30日の試料、いずれの調査地点においても阻害率の大きかった5月10日の試料を選定し、代表的な除草剤について定法にしたがって分析を行った。

分析結果を表－1に示す。分析対象とした21物質は、4試料全てについて定量下限未満の値であった。この結果から、使用されている農薬が異なるのか、河川中で分解しているのかは不明であるが、物質を特定するためには、農薬の使用状況に関する情報収集が不可欠であると考えられた。一方で、藻類生長阻害試験などのバイオアッセイの適用が、毒性物質が不明な場合に有効であることが再認識された。

表－1 農薬分析結果

	4月30日 倉田橋	4月30日 庄内橋	5月10日 倉田橋	5月10日 庄内橋	定量下限値 (mg/L)	分析方法
MCC	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
ジチオビル	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
シマジン	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
テルブカルブ	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
ナプロバミド	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
ピリブチカルブ	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
ブタミホス	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
プロミザミド	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
ベンスリド	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ法(FID)
ペンディメタリン	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
ペンフルラリン	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
メチルタイムロン	<0.0002	<0.0002	<0.0002	<0.0002	0.0002	ガスクロマトグラフ質量分析法
MCPP	<0.0005	<0.0005	<0.0005	<0.0005	0.0005	高速液体クロマトグラフ法
2, 4-PA-Na	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	0.0001	高速液体クロマトグラフ法
トリクロピル	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	0.0001	高速液体クロマトグラフ法
アシュラム	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	0.0001	高速液体クロマトグラフ法
グルホシネート	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	0.0001	高速液体クロマトグラフ法
シデュロン	<0.0005	<0.0005	<0.0005	<0.0005	0.0005	高速液体クロマトグラフ法
ハロスルフロメチル	<0.0005	<0.0005	<0.0005	<0.0005	0.0005	高速液体クロマトグラフ法
フラザスルフロ	<0.0005	<0.0005	<0.0005	<0.0005	0.0005	高速液体クロマトグラフ法
グリホサート	<0.0005	<0.0005	<0.0005	<0.0005	0.0005	高速液体クロマトグラフ法

3. 水生生物への影響に関する調査

水域の富栄養化の程度を測定する方法としては、AGP (Algal Growth Potential) 試験がある。これは、検水に藻類を接種して一定の条件下で培養を行い、検水の藻類増殖能力を観察するものであり、窒素・リンなどの栄養塩類を含め、検水の総合的な藻類増殖能力を測定するものである。

本調査では、多数のサンプルを迅速に処理する手法として、マイクロプレートを用いた AGP 試験について検討を行うとともに、様々な排水が流入する利根川流域を対象として調査を行い、利根川流域における AGP の分布や栄養塩類との関係について検討した。また近年、藻類種の増殖バランスの観点から、水域におけるシリカの存在量が問題となっている。藻類の増殖には、窒素およびリンといった栄養塩類とともに、シリカも重要な元素であり、特に、河川等に多く生息している付着性の珪藻類にとっては、シリカは必須元素である。そこで、利根川流域におけるシリカの分布についても調査を実施した。

3-1 試験方法

AGP試験の供試藻類としては、藻類試験に一般的に用いられる緑藻類*Pseudokirchneriella subcapitata* (NIES-35)を用いた。*P.subcapitata*は藻類培養用のAAP培地を用いて継代培養を行い、植え継ぎ後4～7日経過した対数増殖期のものを試験に用いた。試験では、継代培養を行っている*P.subcapitata*を滅菌した15mg/LのNaHCO₃溶液で洗い、培地成分を除いた後に使用した。AGP試験は96穴のマイクロプレート (Falcon社製) を用いて行った。マイクロプレートの各ウェルには、200μLのサンプルと40μLの*P. subcapitata*の細胞懸濁液を入れ、培養温度24℃、120rpmの振とう条件で培養を行った。光条件は、照度4000Lux、12時間明暗周期とし、藻類の初期細胞濃度は 1×10^4 cells/mLとした。培養期間中、マイクロプレートリーダー (Wallac社、ARVO SX-1420) を用いて吸光度 (波長450nm) を測定し、藻類増殖量をモニタリングした。藻類量がほぼ一定になった時点での藻類増殖量をAGPとした。

調査は、2004年1月および2004年8月に実施した。採取したサンプルは、ガラスファイバーフィルター (GF/B、Whatman) およびメンブレンフィルター (0.2μm、Advantec) によりろ過を行った後、試験に供するまでの間、-30℃にて冷凍保存を行った。AGP試験は、凍結保存しているサンプルを融解した後、希釈系列を作成しマイクロプレートを用いて行った。また同時に、採取したサンプルについて、オートアナライザー (Bran Lubbe 社製、TRAACS800) により、窒素およびリン濃度についても測定を行った。さらに、2004年8月に採取したサンプルについては、モリブデン黄による吸光光度法によりシリカ濃度の測定を行った。

3-2 試験結果および考察

(1) 利根川流域における AGP の分布

図-3に利根川流域における2004年8月のAGPの分布を示す。利根川本川におけるAGPは、上流から下流部に行くに従ってその値が上昇するというわけではなく、本川においても値が上下するなど複雑な変化を示した。また、利根川本川の最下流部に位置している銚子大橋においては、AGPはかなり小さい値となった。一方、東京都心部を流れて東京湾へと注ぐ河川である江戸川や中川については、利根川本川と比較してAGPは高い値となった。

また、2004年1月と2004年8月のAGPデータを比較すると、全般的に2004年8月のAGPのほうが低い値となった。低温期である1月と比較して、8月の高温期のほうが河川内に存在する付着藻類や他の生物の活性が上昇する。このことから、冬期に比べて8月のほうが、水中の栄養塩類の消費が早くなると考えられる。また、河川流量については、冬期の1月のほうが少なくなる傾向があり、その結果冬期には河川水中の栄養塩類濃度が上昇することとなる。これらのことから、夏季である2004年8月のAGPは小さくなったと推察される。

(2) 利根川流域におけるシリカの分布

図-4に利根川流域におけるシリカ (SiO₂ mg/L) の分布を示す。利根川流域におけるシリカ濃度は、流域全

体に渡って比較的一様であり、あまり大きな変化は見られなかった。利根川本川におけるシリカ濃度は、12.5

～18.2mg/L の間で変化し、流下に伴う変化はあまり見られなかったが、利根川河口部の銚子大橋においてのみ低い値

(5.1mg/L) となった。一方、霞ヶ浦(西浦)におけるシリカ濃度は、10.5～17.1mg/L の間で

変化し、利根川本川と比較して大きな差は見られなかった。霞ヶ浦においては、夏期においても

Aulacoseira granulata や *Cyclotella spp.* という珪藻類が出現するため、湖水中のシリカが消費されることが予想されるが、霞ヶ浦において大きな濃度減少は観察されなかった。リンなどの元素と比較して、藻類が

利用可能なシリカの存在量が豊富であるためであろう。窒素およびリンといった栄養塩類の負荷が大きく AGP が高い値を示した江戸川については、シリカ濃度は13.8～18.8mg/L の間で変化し、他の地点と比較して大きな差は見られなかった。このことから、窒素・リンといった栄養塩類とシリカは、その負荷発生源が異なっていることが示唆される。

また、江戸川においても河川の河口部においてのみ、シリカ濃度は低い値(5.6mg/L) が示された。この江戸川河口部の地点においては、塩素イオン濃度も高い値が示されており、海水の影響が大きい場所であると考えられる。このことから、海水が流れ込む水域に

おいては、シリカ濃度は低下すると予想される。利根川流域において、シリカ濃度は10mg/L 以上と比較的高い値が示されていることから、シリカが藻類増殖の制限因子になることは少ないと推察された。

2004年8月3日

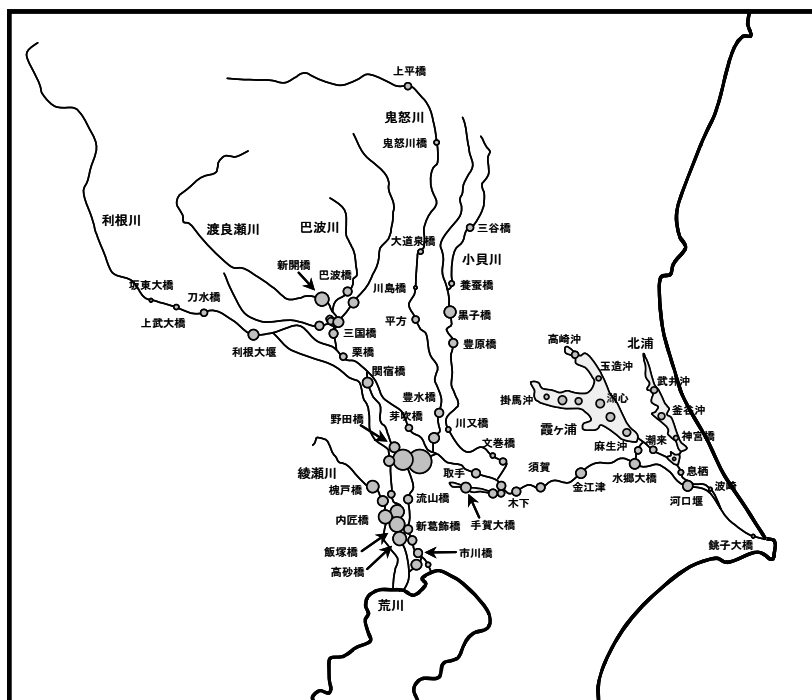


図-3 利根川流域におけるAGPの分布

(a) 2004年8月3日

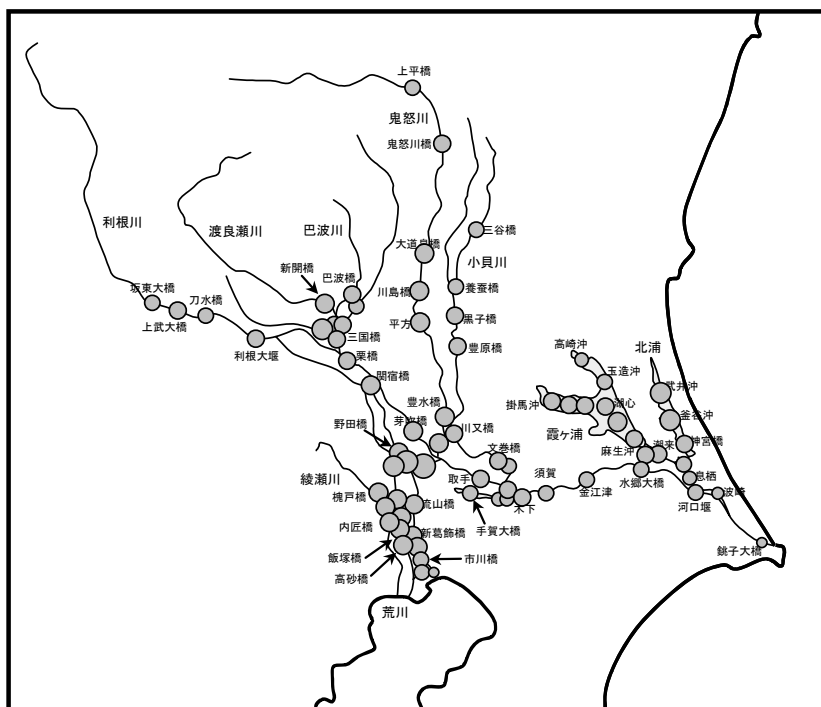


図-4 利根川流域におけるシリカの分布

4. メダカを用いた化学物質影響試験

化学物質による魚類への影響として、内分泌攪乱作用による雄魚の雌性化が問題となっている。河川における魚類の雌性化についてその影響要因を特定するには、性状変化の生じていない新鮮な河川水を用いて魚類曝露試験を行い、その河川水に含まれている雌性化の原因物質を特定することが重要である。

本調査では、新鮮な河川水を用いることのできる場所として水質自動監視所を選定し、開発した魚類曝露試験装置により試験を実施してきた。その結果、河川での魚類影響を検出するためには、水温の安定した制御など室内試験と同様に試験条件を制御する必要があると考えられた。そこで、平成16年度は、試験条件の制御を安定させるとともに、下水処理水の流入前後において曝露試験を実施して、魚類影響の有無および影響要因物質の探索を実施することとした。

4-1 調査方法

(1) 試験実施地点

雄魚の雌性化については、下水処理水に残存するエストロゲンおよびノニルフェノールなどのエストロゲン様物質が疑われている。そこで、下水処理水の流入する上下流に水質自動監視所が設置されている多摩川を試験対象河川と選定した。多摩川本川に設置されている監視所のうち、最上流に位置する拝島橋監視所は処理水の流入していない地点として試験実施に選定した。また、石原監視所は浅川合流点の下流に位置し、合計8処理場の処理水を受け入れている地点として選定した。

(2) 現地魚類曝露試験法

水質自動監視所では、河川から水をポンプアップして、一時間ごとに水温、pH、溶存酸素、電気伝導度、濁度を自動測定している。一時間ごとの測定のため、30分間河川水をポンプアップしており、測定に不要な余剰水は排水しているので、この余剰水をメダカ曝露試験に用いることとした。

メダカ曝露試験システムでは、河川水は最上部の第1槽に送られる。第1槽は貯水および流量調節を主目的としたステンレス水槽であり、内部に設けたステンレスメッシュによってゴミや砂泥の除去をおこなう構造である。流量は、第2槽へ滴下させるキャピラリーの内径および設置高さを調整することによって、システム全体の単位時間当たりの流量を制御することとした。第2槽は水温調節機に接続しており、河川水はこれらを循環して温度が保たれる構造とした。このようにして水温を一定にされた河川水は、サイフォンによって魚類曝露水槽へと滴下させる。ガラス製のメダカ曝露水槽では、排水口をステンレスメッシュで覆い、メダカが流されない構造とした。第2槽からの流入水は、フンやエサの食べ残しを押し流すことを期待してサイフォンから勢いよく流れ落ちてくるためである。

照明の点灯時間はプログラムタイマーを用いて16時間明8時間暗に調節し、エサは自動給餌器を用いて1日に4回、市販の粉末餌を給餌することとした。なお、今回の試験では、曝露水槽の水温を一定に保つことを確実にするため、鑑賞魚用のサーモスタット付投げ込みヒーターを使用した。

水温、日長時間、エサ、流量などの試験条件は、実験室内で行われる室内曝露試験と同条件に調節した。流量および水温はそれぞれ30L/hour、26℃とした。さらに、曝露期間は2週間および4週間とした。これらの曝露条件は環境省の化学物質影響試験の手法に沿って決定した。

(3) ビテロジェニンおよび水質の分析

雌性化の指標として、雄メダカの個体ごとに曝露後のビテロジェニン（VTG：卵黄タンパク前駆物質）濃度を測定することとした。測定は、肝臓抽出液を用いるメダカ VTG-ELISA キットを用いた。河川水に曝露したメダカは、体重、全長、体長を測定し、開腹して肝臓を取り出した。肝臓の重量を測定してサンプルバッファ内ですりつぶし、遠心分離によって肝臓抽出液を作製した。肝臓抽出サンプルは測定に供するまで、ディープフリーザーで保管した。

メダカ VTG-ELISA キットは、抗 VTG 抗体を固相化した 96 穴マイクロプレートや試薬など測定に要する試薬がキット化されており、添付のプロトコールどおりに測定を実施した。

4-2 試験結果

(1) 拝島橋監視所

拝島橋監視所における水質試験結果を表－2に示す。試験期間においてエストロンなどのエストロゲンは検出されなかった。エストロゲン活性は最高値で 0.35 ng/L-E2 であった。また、曝露試験を行った雄メダカに VTG の生成は認められなかった。

表-2 拝島橋監視所 エストロゲン類測定結果

	水槽	試験開始	第1週	第2週	第4週	検出下限値	定量下限値
エストロゲン活性 (ng/L-E2)	第2槽 曝露水槽	0.35	0.33 0.24	0.22 0.24	0.05 ND	0.05	0.08
E2	第2槽 曝露水槽	ND	ND	Tr (0.9) ND	ND ND	0.30	1.00
E1	第2槽 曝露水槽	ND	ND	ND	ND	0.20	0.60
EE2 (ng/L)	第2槽 曝露水槽	ND	ND	ND	ND	1.30	4.40

ND：検出下限値未満

Tr：検出下限値以上－定量下限値未満

(2) 石原監視所

石原監視所では、試験期間におけるエストロン（E1）の検出が顕著であり、エストロンがエストロゲン活性の大きな部分を占めていると考えられた。これらの測定結果を表－3に示す。2週間および4週間の曝露の結果、すべての雄メダカに VTG の生成が認められた。曝露開始から2週間および4週後の雄メダカ VTG の平均値は、それぞれ 19.1、11.3 ng/肝臓 mg であった。

表-3 石原監視所 雄メダカの VTG 測定結果

個体No. TM0403-	体重 mg	全長 mm	体長 mm	肝重量 mg	肝指数 %	VTG濃度 ng/mg liver
ISH-2W01	240.4	29.2	23.6	7.7	3.20	19.7
ISH-2W02	173.9	26.4	20.5	5.3	3.04	31.9
ISH-2W03	179.7	25.7	20.3	7.4	4.14	42.0
ISH-2W04	194.7	26.6	21.9	5.4	2.78	10.0
ISH-2W05	284.3	29.7	25.2	8.7	3.05	11.3
ISH-2W06	212.5	28.6	23.1	4.7	2.21	7.9
ISH-2W07	212.3	28.1	21.9	5.5	2.60	12.4
ISH-2W08	242.6	28.2	22.0	10.5	4.33	13.7
ISH-2W09	238.8	27.8	22.6	7.8	3.28	23.1
MAX	284.3	29.7	25.2	10.5	4.3	42.0
MIN	173.9	25.7	20.3	4.7	2.2	7.9
AVE	219.9	27.8	22.3	7.0	3.2	19.1
STD	35.2	1.3	1.5	1.9	0.7	11.4
ISH-4W01	237.1	31.0	25.6	4.9	2.07	4.3
ISH-4W02	258.7	31.2	25.6	5.0	1.94	11.6
ISH-4W03	247.2	30.2	24.7	2.4	0.99	12.4
ISH-4W04	239.0	30.5	24.5	3.6	1.49	13.8
ISH-4W05	198.0	27.9	23.1	2.9	1.44	4.8
ISH-4W06	213.7	29.7	24.5	6.9	3.22	21.6
ISH-4W07	230.4	28.5	23.4	5.2	2.27	6.0
ISH-4W08	239.0	30.5	25.2	4.4	1.85	5.9
ISH-4W09	237.3	29.7	24.4	3.4	1.45	18.9
ISH-4W10	245.1	30.4	25.9	4.5	1.82	13.7
MAX	258.7	31.2	25.9	6.9	3.2	21.6
MIN	198.0	27.9	23.1	2.4	1.0	4.3
AVE	234.5	29.9	24.7	4.3	1.9	11.3
STD	17.3	1.1	0.9	1.3	0.6	6.0

*ND <0.5 ng/mg liver

4-3 考 察

(1) 石原監視所での雄メダカ VTG の生成

下水処理場 8ヶ所の処理水が流下している石原監視所において、曝露開始後 2 週間および 4 週間のすべての雄メダカに肝臓ビテロジェニンが観察された。水質分析の結果、メダカ曝露水槽でのエストロンおよびエストロゲン活性はそれぞれ 6.7~33.1ng/L、および 5.3~27.9ng/L-E2 であり、エストロンが雄メダカの肝臓ビテロジェニンを生成させた要因と考えられた。

さらに、河川水のエストロゲン作用は、河川水に占める下水処理水の割合を反映する電気伝導度の推移に似ていた。降雨によって河川流量が上昇すると、河川に占める処理水割合が低下して電気伝導度が低下し、エストロゲン活性も低下していた。このため、雄メダカのビテロジェニン生成も河川のエストロゲン作用に比例して変動するらしく、曝露 4 週間後には、曝露期間は長いにもかかわらず雄メダカのビテロジェニン生成は、河川水のエストロゲン活性の低下にともない減少した。

これらの結果から、石原監視所のようにエストロゲン作用の認められる地点では、雄魚はビテロジェニンを生成するほどの影響を受けていると考えられるが、天候によりその作用も変動するものと考えられた。また、この地点での電気伝導度はエストロゲン活性やエストロンのよい指標になると考えられた。

環境省の報告ではノニルフェノールおよび 4-t オクチルフェノールがメダカの内分泌を攪乱すると物質であると認められている。10~20ng/mg-肝重量の肝臓ビテロジェニンを生成した石原監視所での結果は、環境省報告におけるノニルフェノール 20 μ g/L 曝露の結果に相当する。さらに、この濃度で孵化後のメダカを 60 日間曝露すると、雄から雌への性転換が起こると報告されている。このため、石原監視所で観測されたエストロゲン物質の影響は、孵化後の稚魚に性転換を引き起こすのに十分なレベルかもしれない。

拝島橋監視所では下水処理水を含まない河川水が流れているため、多摩川でのメダカ曝露試験の対照地点と位置づけられる。今回、ガラス水槽の水温を 26℃に保って試験を実施した結果、雄メダカのビテロジェニン生成は確認されなかった。エストロゲン活性は 0.05~0.35 ng/L-E2 (第 2 槽) であり、17 β -エストラジオールやエストロンはすべて ND であったことから、石原監視所での成果に対し比較検討が可能な試験ができた対照地点と位置づけられた。

5 まとめ

本研究の成果として、以下の事が示された。

- ① 4 月末から 5 月中旬に中川で採水した試料は、藻類生長阻害が認められた。生長阻害の原因として農薬を想定して、機器分析を行ったが検出されなかった。生長阻害要因の究明に向け、分析対象物質を絞り込むための情報収集や分析方法の検討が必要であると思われた。
- ② 利根川本川において、藻類増殖能力の夏季、冬季の実態を明らかにした。シリカを含めた栄養塩濃度と AGP 値との関係を検討するためには、今後のデータ蓄積が必要である。
- ③ メダカを用いた河川水質試験所における曝露試験によりビテロジェニン生成が確認された。水質分析の結果、下水処理水に含まれるエストロンが雄メダカのビテロジェニンを生成する要因と考えられた。

なお、本調査研究は、関東地方整備局からの受託業務費により実施されたものである。

参考文献

- 1) Blaise, C., Legault, R., Bermingham, N., Van Coillie, R., Vasseur, P. : A simple microplate algal assay technique for aquatic toxicity assessment, *Toxicity Assessment*, 1, 261-281, 1986
- 2) 日本下水道協会 (1997) AGP試験、下水試験方法 上巻 (1997年版)、554-562.

- 3) 日本水質汚濁研究協会 (1982) 藻類生産潜在力調査、湖沼環境調査指針、公害対策技術同友会、193-199.
- 4) 環境省 ; Medaka *Oryzias latipes*: Development of test methods and suitability of medaka as test organism for detection of endocrine disrupting chemicals. <http://www.env.go.jp/chemi/end/medaka.html>, 2003
- 5) 矢古宇靖子, 高橋明宏, 東谷忠, 田中宏明; 組み換え酵母を用いた下水中のエストロゲン活性の測定, 環境工学研究論文集, 36, pp.199-208, 1999

6. 都市排水に含まれるエストロゲン様物質が魚類に及ぼす影響と指標化に関する研究

国土交通省

(委託先) 独立行政法人土木研究所

水循環研究グループ水質チーム

鈴木 穰

小森 行也

宮島 潔

東谷 忠

中田 典秀

八十島 誠

研究期間

平成 14 年度～17 年度

平成 16 年度当初予算額

35,661 千円

Effects of Estrogen-Like Substances in Urban Wastewater on Fish and Their Indication
(FY2002 ~ 2005)

Yutaka Suzuki, Koya Komori, Kiyoshi Miyajima,
Tadashi Higashitani, Norihide Nakada, Makoto Yasojima

Water Quality Research Team, Water Environment Research Group
Independent Administrative Institution Public Works Research Institute

Estrogen-like substances have been suspected to cause the feminization of wild fish in some rivers in Japan. To elucidate the influence of estrogen-like substances on fish in the rivers, we have developed an on-site fish exposure system using medaka *Oryzias latipes*. Then, we placed three sets of the systems in three Water Quality Monitoring Stations (WQMSs) along the River Tama that is a representative urbanized river in Japan and whose water has been suspected to cause endocrine disruption in fish. Adult male medaka were exposed to the river water in a glass exposure tank. Flow rate and temperature of the water were controlled at 30L/hour and 26°C, respectively, and a light: dark cycle was maintained 16:8 hours in the system. A commercial diet free from phyto-estrogens was fed 4 times in a day using an automatic feeder. After 2-week exposure, hepatic vitellogenin concentration of each male medaka was measured. The exposure tests were repeatedly performed at both the upstream and the downstream locations of discharge from sewage treatment plants (STPs) along the river. At the reference site, Haijimabashi WQMS where no STP discharge is received, vitellogenin was not detected in any male medaka. On the other hand, at Ishihara WQMS that is located the most downstream in this study field and where eight STP discharges are received, all the male medaka were found to produce vitellogenin. Estrogenic activity derived from the STP discharge was thought to cause the feminization of the male medaka, which is supported by the following facts: the induction of vitellogenin of the male medaka coincided with the occurrence of the estrogenic activity of the river waters; the increase in estrogenic activity coincided with the increase in electric conductivity of the river water, which suggests the increase in the ratio of STP discharge to the river water.

1. はじめに

下水処理水やその放流先河川において、エストロゲン様物質による魚類の雌性化が起こっていると疑われている。わが国においては、下水処理水や河川水にエストロゲン様物質が存在することが明らかにされてきたが、これらが魚類の雌性化を起しているのかは依然として明らかになっていない。下水道の急速な普及によって下水処理水等の都市排水が都市河川に占める割合は急速に大きくなりつつある。よって、下水処理水の比率が高い都市河川に存在するエストロゲン様物質が、魚類にどの程度影響を及ぼしているのか明確にする必要があり、状況によって下水道や都市排水の対策をとる必要がある。

本研究は、下水処理水やその放流先の都市河川において魚類を曝露飼育することによって、エストロゲン様物質が魚類の雌性化に及ぼす影響を評価する。さらに、水試料の分画法と遺伝子組み換え酵母法によるエストロゲン活性を組み合わせることによって、水試料のエストロゲン作用について評価し、このエストロゲン活性を魚類の雌性化を表すことのできる簡便な評価指標へと完成させることをめざすものである。加えて、下水処理水と放流先河川に存在するエストロゲン様物質の由来を推定し、雌性化を抑制するために必要な都市排水由来の要因を明らかにすることをめざすものである。

平成 14 年度は、河川における魚類曝露試験について既往事例を整理して課題を抽出し、現地魚類曝露試験法の開発およびその予備試験を実施した。さらに、下水処理水を分画抽出することによって、これに含まれるエストロゲン様物質の性状を把握する手法について検討した。

平成 15 年度は、河川での魚類曝露試験を継続するとともに、その基礎情報を得るため、エストロゲンをを用いた室内曝露試験を実施して、個々の化学物質による魚類影響を明らかにすることとした。また、水試料の分画抽出について、より分解能の高い高速液体クロマトグラフィー (HPLC) による手法の検討を行った。

平成 16 年度は、下水処理水流入の有無によって生じる魚類影響について、より詳細に観察しその影響の程度を把握するため、河川および下水処理場での魚類曝露試験を実施し、水試料に含まれる影響要因を分画抽出によって探索した。

2. 方法

2.1 現地魚類曝露試験装置

水質に起因する魚類への影響を検出するためには、影響要因である水質を除いて、その他の試験条件を一定に保つ曝露試験装置が必要である。さらに、用いる試験水は新鮮であることが望ましい。そこで、河川での試験では、国土交通省が河川水質をモニタリングしている水質自動監視所にて流水式魚類曝露試験を実施することとした。また、下水処理場での試験では、放流水および二次処理水を対象として同じく流水式魚類曝露試験を実施することとした。

水質自動監視所では、河川から水をポンプアップして、一時間ごとに水温、pH、溶存酸素、電気伝導度、濁度を自動測定している。この測定では、河川水は 30 分間大量にポンプアップされ、ヘッドタンクを経て自動測定機へと導水されており、余剰水はヘッドタンクの上部から直接排水される仕組みとなっている。そこで、この余剰水を魚類曝露試験に適用することとした。

魚類試験装置への導水は、監視所のヘッドタンクにフロートセンサーを取り付け、水がタンクに流入してきたら魚類試験装置へ吸引する自吸式ポンプが作動する仕組みとした。この仕組みによって、監視所ヘッドタンクが空の時間帯には自吸式ポンプは停止している。自吸式ポンプで導水した河川水は、曝露試験装置の最上部に設けたステンレス製第 1 槽に送られる。

下水処理場での試験では、処理工程の配管から分岐することによって、魚類試験装置の第 1 槽へ定期的に導水される仕組みとした。

魚類試験装置の第1槽は、貯水およびごみや砂泥の除去を目的とするとともに、第2槽へ滴下させるキャピラリーの内径と水位を調整することによって、システム全体の単位時間当たりの流量を制御することとした。

ステンレス製第2槽は水温調節機に接続しており、河川水はこれらを循環して温度が保たれる仕組みとした。このようにして水温を一定にした河川水は、サイフォンによって魚類曝露水槽へと滴下させる。サイフォンを用いたのは、ガラス製の魚類曝露水槽で生じる排泄物や食べ残された餌が、第2槽から勢いよく流れ落ちてくる河川水で巻き上げられ、排水口から押し流されることを期待した構造である。

なお、第1槽および第2槽の余剰水、および曝露水槽の排水は、排水管にまとめて排出した。

さらに、曝露水槽の水温を一定に保つことを確実にするため、鑑賞魚用のサーモスタット付投げ込みヒーターを使用した。

試験魚はメダカを選定した。メダカは内分泌攪乱作用を検出するための実験魚として多く用いられており、既存の試験データと比較するうえで好都合と考えられた。また、生理学、生態学など、一般的な生物学の情報も多い魚種である。曝露試験には、土木研究所の実験室で継体飼育している3ヶ月齢のメダカ d-rR 系統の雄を用いた。

照明の点灯時間はプログラムタイマーで調節し、餌は自動給餌器を用いて1日に4回、市販の粉末餌を給餌することとした。なお、この餌は、植物エストロゲンを含まない商品を選択した。

水温、日長時間、エサ、流量などの試験条件は、室内曝露試験と同条件に調節した。流量および水温はそれぞれ 30L/hour、26℃とした。さらに、曝露期間は2週間および4週間とした。これらの曝露条件は環境省の化学物質影響試験の手法に沿って決定した。

写真1に、魚類曝露試験装置を示す。



写真1 現地魚類曝露試験装置

2.2 河川におけるメダカ曝露試験

本研究では、わが国を代表する都市河川であり、下水処理水を受け入れている多摩川で実施した。試験実施地点の模式図を図1に示す。

試験実施範囲の最上流部に位置する拝島橋監視所は、下水処理水は流入していないため、本研究での対照地点と位置づけた。日野橋監視所は3ヶ所の下水処理水を受け入れた後の測定地点であり、さらにその下流に位置する石原監視所は、支川の2つの処理場を含め、合計8ヶ所の下水処理水を受け入れた地点である。

現地曝露試験の実施状況を表 1 に示す。なお、平成 15 年度に実施した 2 回の試験についても一覧に記載した。

平成 16 年度の河川曝露試験は、春期に拝島橋および石原監視所の 2 ヶ所で実施し（通算第 3 回試験）、冬期に日野橋監視所を加えた 3 ヶ所で実施した（同第 4 回試験）。

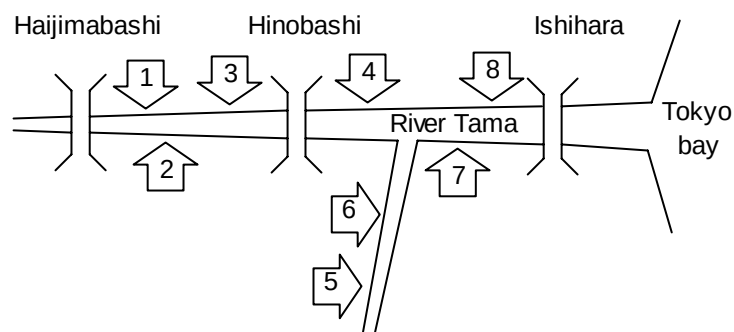


図 1 多摩川 メダカ曝露試験 実施地点模式図

表 1 多摩川 メダカ曝露試験 実施概要

Test series		Duration of exposure	Period of exposure	Medaka	
				No. of male fish	Age (months)
Test 1	Haijimbashi	2 weeks	27 Feb. - 13 Mar. 2003	20	7
	Hinobashi	2 weeks	17-31 Jan. 2003	20	7
Test 2	Ishihara	2 weeks	14-28 Aug. 2003	20	7
Test 3	Haijimbashi	2 weeks	16-29 Mar. 2004	8	3
		4 weeks	16 Mar. - 13 Apr. 2004	7	3
	Ishihara	2 weeks	16-29 Mar. 2004	9	3
Test 4		4 weeks	16 Mar. - 13 Apr. 2004	10	3
	Haijimbashi	2 weeks	26 Jan. - 8 Feb. 2005	10	3
		4 weeks	26 Jan. - 22 Feb. 2005	10	3
		6 weeks	26 Jan. - 8 Mar. 2005	10	3
		8 weeks	26 Jan. - 22 Mar. 2005	10	3
	Hinobashi	2 weeks	26 Jan. - 8 Feb. 2005	10	3
		4 weeks	26 Jan. - 22 Feb. 2005	10	3
		6 weeks	26 Jan. - 8 Mar. 2005	10	3
		8 weeks	26 Jan. - 22 Mar. 2005	10	3
	Ishihara	2 weeks	26 Jan. - 8 Feb. 2005	10	3
		4 weeks	26 Jan. - 22 Feb. 2005	10	3
		6 weeks	26 Jan. - 8 Mar. 2005	10	3
		8 weeks	26 Jan. - 22 Mar. 2005	10	3

2.3 下水処理場におけるメダカ曝露試験

本研究では、過年度にコイ曝露試験を実施した下水処理場 1 ヶ所において、放流水および二次処理水を対象にメダカ曝露試験を実施した。この放流水は、コイ曝露試験に用いた処理水であり、塩素滅菌した後に砂ろ過処理が行われたものである。

曝露試験の実施状況を表 2 に示す。

第 1 回の試験（Test A）は、二次処理水でのメダカ飼育の可能性を探るため、予備試験と位置づけて 2 週間の曝露試験を実施した。

また、二次処理水でのメダカ飼育を確認できたため、第 2 回試験（Test B）は、河川での試験と同じく 8 週間の曝露試験を実施し、2 週間ごとに水質およびメダカへの影響を観察することとした。

表 2 下水処理場 メダカ曝露試験 実施概要

Test series	Duration of exposure	Period of exposure	Medaka	
			No. of male fish	Age (months)
Test A Secondary T.W. Effluent	2 weeks	13 Dec.- 27 Dec. 2004	30	3
	2 weeks	13 Dec.- 27 Dec. 2004	30	3
Test B Secondary T.W. Effluent	2 weeks	18 Jan.- 2 Feb. 2005	10	3
	4 weeks	18 Jan.- 15 Feb. 2005	10	3
	6 weeks	18 Jan.- 1 Mar. 2005	10	3
	8 weeks	18 Jan.- 15 Mar. 2005	10	3
	2 weeks	18 Jan.- 2 Feb. 2005	10	3
	4 weeks	18 Jan.- 15 Feb. 2005	10	3
	6 weeks	18 Jan.- 1 Mar. 2005	10	3
	8 weeks	18 Jan.- 15 Mar. 2005	10	3

2.4 ビテロジェニンおよび水質の分析

雌性化の指標として、雄魚の個体ごとに曝露後のビテロジェニン濃度を測定した。測定は、肝臓抽出液を用いるメダカビテロジェニン ELISA キット（エンバイオティックラボラトリーズ社製造）を用いた。曝露後のメダカは、体重、全長、体長を測定し、開腹して肝臓を取り出した。肝臓の重量を測定した後、キット付属のサンプルバッファー内ですりつぶし、遠心分離によって肝臓抽出液を作製した。肝臓抽出サンプルは測定に供するまで、ディープフリーザーで保管した。

メダカビテロジェニン ELISA キットは、抗ビテロジェニン抗体を固相化した 96 穴マイクロプレートや試薬など測定に要する試薬がキット化されており、プロトコールどおりに測定を実施した。

エストロゲン活性は、ブルーネル大学から分与された遺伝子組換え酵母を用い、定法に沿って測定した。また、エストロン、エストラジオールおよびエチニルエストラジオールは、LC/MS/MSを用いて定法に沿って測定した。

さらに、分画手法を導入して、エストロゲン作用をもつ成分を特定することとした。

3. 結果および考察

3.1 河川におけるメダカ曝露試験結果

平成 16 年春期に実施したテスト 3 では、本研究の試験実施範囲の最下流に位置する石原監視所において、曝露開始後 2 週間および 4 週間のすべての雄メダカに肝臓ビテロジェニンが検出された。しかしながら、冬期に実施したテスト 4 の 8 週間の曝露試験では、2 週間ごとにメダカビテロジェニンを確認したところ、これを生成している個体はいずれの地点および曝露期間においても確認されなかった。雄メダカのビテロジェニン測定結果を表 3 に示す。

また、雄メダカのビテロジェニン生成が検出されたテスト 3 では、石原監視所河川水のエストロンおよびエストロゲン活性はそれぞれ 6.7~33.1ng/L および 5.3~27.9ng/L-E2 であった。水質測定結果を表 4 に示す。また、テスト 3 での石原監視所での雄メダカビテロジェニン生成とエストロゲン活性の推移を図 2 に示す。

テスト 3 では、石原監視所河川水のエストロゲン活性は試験開始時 27.9ng/L-E2、第 2 週で 18.7ng/L-E2 と高く、このエストロゲン作用が雄メダカのビテロジェニン生成に作用したものと考えられた。さらに、曝露 4 週間後では、雄メダカのビテロジェニン生成は、河川水のエストロゲン作用の低下にともない減少したと考えられた。なお、石原監視所河川水のエストロゲン作用の主成分は、エストロゲン活性に比例して推移したエストロンであると考えられた。

表3 多摩川 メダカ曝露試験結果 (メダカに関するデータ)

Test series	Duration of exposure	Medaka				Vitellogenin		
		No. of male fish	Body length (mm)	Body wet weight (mg)	Liver wet weight (mg)	No. of positive	Average (ng/mg-liver)	Range [min - max] (ng/mg-liver)
Test 1								
Hajimabashi	2 weeks	20	29.0 ± 1.7	479.8 ± 89.6	13.9 ± 4.1	0	-	-
Hinobashi	2 weeks	20	28.0 ± 1.0	356.5 ± 40.4	5.7 ± 1.4	0	-	-
Test 2								
Ishihara	2 weeks	20	29.7 ± 1.5	468.6 ± 61.1	9.1 ± 1.9	2	2.6	1.7 - 3.5
Test 3								
Hajimabashi	2 weeks	8	22.0 ± 1.6	220.5 ± 41.9	6.6 ± 2.3	0	-	-
	4 weeks	7	24.6 ± 0.7	230.6 ± 24.5	3.7 ± 0.8	0	-	-
Ishihara	2 weeks	9	22.3 ± 1.5	219.9 ± 35.2	7.0 ± 1.9	9	19.1 ± 11.4	7.9 - 42.0
	4 weeks	10	24.7 ± 0.9	234.5 ± 17.3	4.3 ± 1.3	10	11.3 ± 6.0	4.3 - 21.6
Test 4								
Hajimabashi	2 weeks	10	21.5 ± 1.3	192.1 ± 33.0	3.2 ± 1.3	0	-	-
	4 weeks	10	24.2 ± 1.1	303.1 ± 42.9	5.9 ± 2.4	0	-	-
	6 weeks	10	26.7 ± 1.3	401.3 ± 35.9	13.0 ± 4.2	0	-	-
	8 weeks	9	28.1 ± 1.7	453.6 ± 97.3	9.7 ± 7.3	0	-	-
Hinobashi	2 weeks	10	23.0 ± 1.1	220.8 ± 23.8	3.5 ± 1.6	0	-	-
	4 weeks	10	24.2 ± 1.2	304.4 ± 40.0	6.3 ± 2.8	0	-	-
	6 weeks	10	27.9 ± 1.2	428.4 ± 50.2	10.8 ± 3.6	0	-	-
	8 weeks	10	27.2 ± 0.9	373.0 ± 43.2	6.7 ± 4.7	0	-	-
Ishihara	2 weeks	10	23.2 ± 1.1	227.3 ± 27.5	3.5 ± 1.7	0	-	-
	4 weeks	10	23.6 ± 1.0	256.2 ± 23.0	3.8 ± 1.2	0	-	-
	6 weeks	10	26.7 ± 1.3	443.1 ± 52.4	15.6 ± 5.2	0	-	-
	8 weeks	10	27.6 ± 1.3	437.3 ± 53.2	9.1 ± 3.6	0	-	-

表4 多摩川 メダカ曝露試験 水質測定結果

Test series			Start of test	1st week	2nd week	4th week	6th week	8th week
Test 1	Hajimabashi	EA (ng/L-E2)	0.16	0.16	0.12	-	-	-
		E2 (ng/L)	ND	ND	ND	-	-	-
		E1 (ng/L)	ND	ND	ND	-	-	-
		EE2 (ng/L)	ND	ND	ND	-	-	-
	Hinobashi	EA (ng/L-E2)	12.54	6.59	10.62	-	-	-
		E2 (ng/L)	1.5	Tr (1.0)	1.7	-	-	-
		E1 (ng/L)	21.9	12.2	15.2	-	-	-
		EE2 (ng/L)	ND	ND	ND	-	-	-
Test 2	Ishihara	EA (ng/L-E2)	6.31	8.29	6.56	-	-	-
		E2 (ng/L)	ND	Tr (0.4)	ND	-	-	-
		E1 (ng/L)	5.8	8.1	4.4	-	-	-
		EE2 (ng/L)	ND	ND	ND	-	-	-
Test 3	Hajimabashi	EA (ng/L-E2)	0.35	0.24	0.24	Tr (0.05)	-	-
		E2 (ng/L)	ND	ND	ND	ND	-	-
		E1 (ng/L)	ND	ND	ND	ND	-	-
		EE2 (ng/L)	ND	ND	ND	ND	-	-
	Ishihara	EA (ng/L-E2)	27.94	5.34	18.65	6.37	-	-
		E2 (ng/L)	2.7	Tr (0.8)	4.6	ND	-	-
		E1 (ng/L)	33.1	6.7	24.3	7.0	-	-
		EE2 (ng/L)	ND	ND	ND	ND	-	-
Test 4	Hajimabashi	EA (ng/L-E2)	0.17	-	0.20	0.24	0.19	0.35
		E2 (ng/L)	ND	-	ND	ND	ND	ND
		E1 (ng/L)	ND	-	ND	ND	ND	ND
		EE2 (ng/L)	ND	-	ND	Tr (0.6)	ND	ND
	Hinobashi	EA (ng/L-E2)	3.86	-	2.98	1.91	1.84	1.85
		E2 (ng/L)	ND	-	ND	ND	ND	ND
		E1 (ng/L)	4.9	-	1.4	1.9	2.5	2.6
		EE2 (ng/L)	ND	-	ND	ND	ND	ND
	Ishihara	EA (ng/L-E2)	14.77	-	8.38	11.20	9.45	5.49
		E2 (ng/L)	ND	-	Tr (2.3)	ND	ND	ND
		E1 (ng/L)	14.8	-	9.3	13.3	12.3	7.5
		EE2 (ng/L)	ND	-	ND	ND	ND	ND

ND : under the minimum limit of detection

Tr : above the minimum limit of detection, under the minimum limit of quantifying

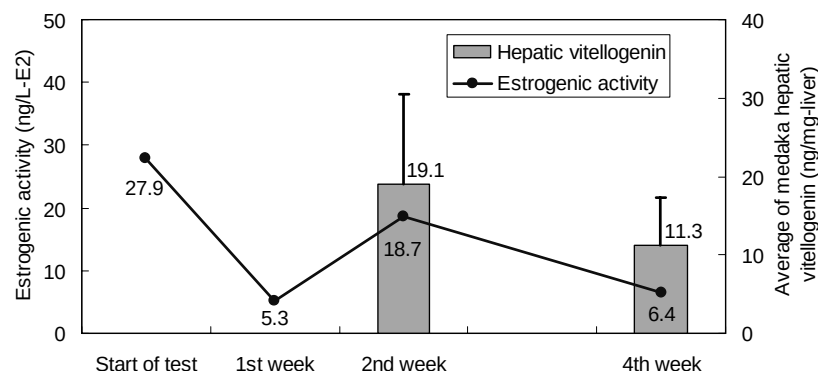


図2 多摩川 メダカ曝露試験結果 Test3 メダカビテロジェニンとエストロゲン活性の推移

テスト3での拝島橋および石原監視所でのエストロゲン活性、電気伝導度の推移を図3に示す。石原監視所では水位の観測も行われているので合わせて図示した。

石原監視所でのエストロゲン活性の推移は電気伝導度の推移に似ていると考えられる。電気伝導度は河川水に占める下水処理水の割合を反映するものであるため、石原監視所河川水のエストロゲン作用は、河川に占める下水処理水の比率が変化したことによって変動したものと考えられ、このエストロゲン作用つまりエストロンの発生原因は下水処理水であると考えられた。

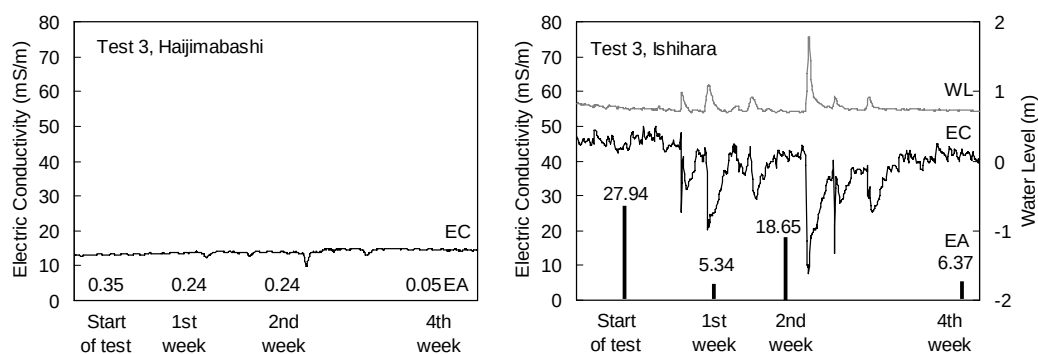


図3 多摩川 メダカ曝露試験結果 Test3 河川水の電気伝導度とエストロゲン活性の推移

3.2 下水処理場におけるメダカ曝露試験結果

予備試験と位置づけて実施した2週間曝露試験では、二次処理水に曝露した雄メダカのうち、7匹でビテロジェニンの生成が確認された。この試験では、放流水に曝露したメダカではビテロジェニンの生成は認められなかったため、二次処理水のエストロゲン作用がメダカに影響を及ぼしたものと考えられた。二次処理水のエストロゲン活性およびエストロンの濃度は、それぞれ12.7～18.9ng/L-E2および18.6～33.9 ng/Lであり、これらの濃度は、河川での曝露試験でビテロジェニン生成が確認されたテスト3での石原監視所河川水と同程度のエストロゲン作用であったと考えられた。

しかしながら、8週間曝露試験として実施したテストBでは、放流水に曝露した雄メダカが高濃度のビテロジェニンを生成している現象が認められた。

雄メダカのビテロジェニン測定結果を表5に示す。また、水質測定結果を表6に示す。

表5 下水処理場 メダカ曝露試験結果（メダカに関するデータ）

Test series	Duration of exposure	Medaka				Vitellogenin		
		No. of male fish	Body length (mm)	Body wet weight (mg)	Liver wet weight (mg)	No. of positive	Average (ng/mg-liver)	Range [min - max] (ng/mg-liver)
Test A								
Secondary T.W.	2 weeks	29	26.6 ± 1.4	370.0 ± 46.6	6.1 ± 2.2	7	3.2	1.4 - 10.8
Effluent	2 weeks	29	27.2 ± 1.5	401.6 ± 65.4	5.9 ± 2.2	0	-	-
Test B								
Secondary T.W.	2 weeks	10	30.0 ± 0.7	467.7 ± 45.7	6.8 ± 1.4	10	94.6 ± 59.0	10.1 - 201.1
	4 weeks	10	30.2 ± 1.3	584.0 ± 64.1	15.5 ± 3.6	10	50.7 ± 34.0	8.5 - 126.5
	6 weeks	10	29.9 ± 0.7	574.9 ± 55.1	10.5 ± 4.9	10	18.3 ± 14.9	7.1 - 48.2
	8 weeks	10	30.4 ± 1.4	580.3 ± 76.7	9.3 ± 4.5	8	11.6 ± 10.8	2.2 - 31.5
Effluent	2 weeks	10	29.4 ± 1.3	452.9 ± 38.1	8.1 ± 3.4	3	2.6	2.2 - 3.3
	4 weeks	10	28.8 ± 1.4	451.7 ± 67.1	9.3 ± 2.6	9	57.2 ± 44.9	15.5 - 160.0
	6 weeks	10	30.5 ± 1.1	570.1 ± 63.8	11.3 ± 3.4	10	33.7 ± 35.8	3.3 - 103.3
	8 weeks	10	29.2 ± 1.4	505.7 ± 81.8	9.7 ± 2.5	10	620.3 ± 258.6	250.9 - 1002.2

表6 下水処理場 メダカ曝露試験 水質測定結果

Test series				Start of test	1st week	2nd week	4th week	6th week	8th week
Test A	Secondary T.W.	EA	(ng/L-E2)	18.72	18.89	12.70	-	-	-
		E2	(ng/L)	ND	Tr (3.1)	Tr (2.7)	-	-	-
		E1	(ng/L)	25.3	33.9	18.6	-	-	-
		EE2	(ng/L)	ND	ND	ND	-	-	-
	Effluent	EA	(ng/L-E2)	8.08	2.66	2.59	-	-	-
		E2	(ng/L)	ND	ND	ND	-	-	-
		E1	(ng/L)	7.2	2.4	2.5	-	-	-
		EE2	(ng/L)	ND	ND	ND	-	-	-
Test B	Secondary T.W.	EA	(ng/L-E2)	3.70	-	5.52	7.81	9.90	2.55
		E2	(ng/L)	ND	-	ND	ND	ND	Tr (2.7)
		E1	(ng/L)	5.4	-	5.7	11.2	8.9	2.2
		EE2	(ng/L)	ND	-	ND	ND	ND	ND
	Effluent	EA	(ng/L-E2)	0.63	-	2.09	19.54	99.89	18.64
		E2	(ng/L)	ND	-	ND	Tr (3.4)	10.8	Tr (2.4)
		E1	(ng/L)	6.9	-	Tr (0.7)	21.0	77.7	21.5
		EE2	(ng/L)	ND	-	ND	ND	ND	ND

ND : under the minimum limit of detection

Tr : above the minimum limit of detection, under the minimum limit of quantifying

テスト B では、放流水のエストロゲン活性およびエストロンの濃度は、それぞれ 0.63～99.9ng/L-E2 および 0.7～77.7 ng/L であった。エストロゲン作用が極端に上昇したことによって、雄メダカのビテロジェニンも最高値 1000ng/mg-liver を超えることとなった。この試験の実施中、放流水取水地点で補修工事が行われていたため、何らかの理由で放流水のエストロゲン作用が上昇したものと考えられる。下水処理場での工事にあたっては、誤って高濃度のエストロゲン作用を有する処理水を流してしまう可能性があると考えられる。

また、テスト B の二次処理水の試験結果に着目すると、雄メダカのビテロジェニンは曝露直後に上昇し、その後減少したものと考えられる。しかし、この水のエストロゲン作用をみると、曝露開始によってビテロジェニンが急上昇するような要因はみられない。これらの水質測定項目のほかに、何らかの影響要因がはたらいた可能性が考えられる。

3.3 エストロゲン作用の特定（分画手法の適用）

本研究では、メダカにエストロゲン作用を及ぼす成分を特定するため、試験水を分画するとともに、それぞれの画分でのエストロゲン活性を測定する分画手法を取り入れた。

テスト4での石原監視所河川水の分画手法適用結果を表7に示す。

表7 分画手法適用結果（Test4 石原監視所）

標準溶液を用いた HPLC 分画手法では、19 画分に E2、21 画分に EE2、22 画分に E1、27 画分に NP が分取される。テスト4での石原監視所河川水の結果では、エストロン（E1）の作用が最も大きいことが明らかとなった。しかし、エストロゲン作用を有するその他の画分も多数みられることから、不明な物質も多数あることも判明した。

4. まとめ

(1) 河川における魚類へのエストロゲン様物質の影響を調べるため、メダカを用いた現地魚類曝露試験システムを開発した。多摩川において3ヶ所の河川水質自動監視所にそれぞれ1セットずつシステムを設置し、曝露試験を実施した。

(2) 春期に実施したテスト3の結果、8ヶ所の下水処理場の放流水が流下する石原監視所での試験では、すべての雄メダカが2週間および4週間の曝露でビテロジェニンを生成していた。さらに、雄メダカに影響を及ぼした要因は、下水処理水に由来するエストロゲン作用であり、その主成分はエストロンである可能性が示された。さらに、河川水のエストロゲン作用の変動にともなって、メダカのビテロジェニン生成も変動する可能性のあることが示された。

(3) 下水処理場での曝露試験の結果、放流水のエストロゲン作用が極端に上昇し、雄メダカのビテロジェニンが高濃度に生成される場合のあることが明らかとなった、処理場での工事によって何らかの原因が発生したものと考えられ、誤って高濃度のエストロゲン作用を有する処理水を流してしまう可能性があると考えられた。

(4) 分画手法によって河川水のエストロゲン作用を詳細にみたところ、エストロンの作用が最も大きいことが確認された。しかしながら、エストロゲン作用を有する不明な物質の存在も明らかとなった。これらの物質を特定することも重要と考えられた。

Test series	Fraction	Start of test	2nd week
Test 4 Ishihara	F1 (ng/L-E2)	n.d.	n.d.
	F2	n.d.	n.d.
	F3	n.d.	n.d.
	F4	n.d.	n.d.
	F5	n.d.	n.d.
	F6	n.d.	0.115
	F7	n.d.	n.d.
	F8	n.d.	n.d.
	F9	n.d.	n.d.
	F10	n.d.	n.d.
	F11	n.d.	0.09
	F12	n.d.	n.d.
	F13	n.d.	0.095
	F14	n.d.	n.d.
	F15	n.d.	n.d.
	F16	n.d.	n.d.
	F17	n.d.	n.d.
	F18	n.d.	n.d.
	F19	0.645	0.89
	F20	0.1475	0.1
	F21	n.d.	n.d.
	F22	7.375	4.76
	F23	0.305	0.175
	F24	n.d.	n.d.
	F25	n.d.	0.085
	F26	n.d.	0.07
	F27	n.d.	n.d.
	F28	n.d.	n.d.
	F29	n.d.	n.d.
	F30	n.d.	n.d.
	F31	n.d.	n.d.
	F32	n.d.	n.d.
	F33	n.d.	n.d.
	F34	n.d.	n.d.
	F35	n.d.	n.d.
	F36	n.d.	n.d.
	F37	n.d.	n.d.
	F38	n.d.	n.d.
	F39	n.d.	n.d.

ND : under the minimum limit of detection

Tr : above the minimum limit of detection, under the minimum limit of quantifying

なお、本調査研究は、環境省からの受託業務費により実施されたものである。

参考文献

- 1) 国土交通省;平成13年度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について,
http://www.mlit.go.jp/river/press/200207_12/021212/siry01.pdf, 2002
- 2) Tanaka H., Higashitani T., Miyamoto N., Tamamoto H., Komori K., Tsujihara K. and Ohnishi Y.; Estrogenic activity of river water and feminization of wild carp in Japan. In CD-ROM of WEFTEC'03 Conference Proceedings, 76th Annual Technical Exhibition and Conference, 2003
- 3) Higashitani T., Tamamoto H., Miyamoto N., Yasojima M. and Tanaka H.; Feminization of wild carp and carp exposure tests using sewage treatment plant effluents. In Proc. of the 4th IWA Specialized Conference on Assessment and Control of Hazardous Substances in Water –ECOHAZARD 2003-, Aachen, 14-17 September, 2003
- 4) 東谷忠, 玉本博之, 宮本宣博, 八十島誠, 田中宏明; 下水処理水に曝露した雄コイのビテロジェニン誘導に関する研究, 環境工学研究論文集, 39, pp.97-108, 2002
- 5) Takahashi A., Higashitani T., Yakou Y., Saitou M., Tamamoto H. and Tanaka H.; Evaluating bioaccumulation of suspected endocrine disruptors into periphytons and benthos in the Tama river, Wat. Sci. Tech., 47(9), pp.73-76, 2003
- 6) 環境省; Medaka *Oryzias latipes*: Development of test methods and suitability of medaka as test organism for detection of endocrine disrupting chemicals. <http://www.env.go.jp/chemi/end/medaka.html>, 2003
- 7) 矢古宇靖子, 高橋明宏, 東谷忠, 田中宏明; 組み換え酵母を用いた下水中のエストロゲン活性の測定, 環境工学研究論文集, 36, pp.199-208, 1999
- 8) Tanaka H., Yakou Y., Takahashi A., Higashitani T. and Komori, K.; Comparison between estrogenicities estimated from DNA recombinant yeast assay and from chemical analyses of endocrine disruptors during sewage treatment. Wat. Sci. Tech., 43(2), pp125-132, 2001
- 9) Miyamoto N., Tanaka H., Tamamoto H. and Komori, K.; Fractionation method for estimating the cause of estrogen-like activity in sewage. In CD-ROM of proceedings of WEFTEC'2002, 2002
- 10) Komori K., Tanaka H., Okayasu Y., Yasojima M. and Sato, C.; Analysis and occurrence of estrogen in wastewater in Japan, In Proc. of the 4th IWA Specialized Conference on Assessment and Control of Hazardous Substances in Water –ECOHAZARD 2003-, Aachen, 14-17 September, 2003
- 11) 社団法人日本下水道協会; 下水道における内分泌攪乱化学物質水質調査マニュアル, 2001
- 12) 岩松鷹司; メダカ学全書, 大学教育出版, 1997
- 13) Desbrow C., Routledge E.J., Brighty G.C., Sumpter J.P. and Waldock M.; Identification of estrogenic chemicals in STW effluent. 1. Chemical fractionation and in vitro biological screening. Environ. Sci. Technol. 32(11), pp.1549-1558, 1998
- 14) Harries J.E., Shehan D.A., Jobling S., Matthiessen P., Neall P., Sumpter J.P., Tylir T. and Zaman N.; Estrogenic activity in five United Kingdom rivers detected by measurement of vitellogenesis in caged male trout. Environ. Toxicol. Chem. 16(3), pp.534-542, 1997
- 15) Tanaka H., Sato C., Komori K., Yakou Y., Tamamoto H., Miyamoto N. and Higashitani T.; Occurrence of endocrine disruptors in sewage and their behavior in sewage treatment plants in Japan, Environ. Sci. 10(1), pp.1-24, 2003

7. 遺伝子解析手法を用いた環境ストレスの検出技術に関する基礎的研究

水循環研究グループ水質チーム

上席研究員	鈴木 穰
主任研究員	宮島 潔
専門研究員	山下尚之
専門研究員	東谷 忠

1. はじめに

近年、産業活動の拡大発展に伴い、様々な化学物質が広範囲に使用されている。我々の日常生活で消費される医薬品類や合成洗剤などの化学物質は、使用された後に下水道に流れ込むことから、下水処理水からも医薬品類など様々な化学物質の存在が報告されている¹⁻⁴⁾。そのため、下水処理水の放流先河川では、化学物質による水生生物への環境ストレスを生み出している可能性があり、その生物への影響が懸念される。水生生物におけるさまざまな環境ストレスを評価する手法として、生物の応答によってその程度を検出するバイオアッセイが行われているが、従来のバイオアッセイでは、生体における微妙な変化を検出することは困難である。一方、医学分野では、遺伝病の疾病因子を明らかにする研究が進んでおり、近年では、疾病遺伝子の発現状況をもとにした遺伝子診断が行われている。最近になって、この遺伝子解析手法を環境分野に適用して、生物個体への環境ストレスを遺伝子レベルで検出しようとする試みが進められている⁵⁻⁸⁾。

生体における遺伝子発現は、免疫反応に代表される生体防御や、生体の恒常性の維持など、外部環境の変化に対し速やかに起こるものと考えられる。遺伝子レベルで環境ストレスを検出し、その影響の程度を評価する手法を確立することは、今後の新たなバイオアッセイとして期待される。

本研究は、環境ストレスを遺伝子レベルで検出することを目的として、DNAマイクロアレイを用いた化学物質の影響評価について検討した。解析に用いたDNAチップとしては、ラン藻類*Synechocystis*属の遺伝子を搭載したCyano Chipを用い、医薬品類や界面活性剤等の化学物質による生物への影響について、遺伝子レベルで検出することを試みた。

2. 試験方法

2.1 藻類に対する曝露試験

曝露試験の供試藻類としては、ラン藻類*Synechocystis* sp. (PCC6803) を用いた。*Synechocystis* sp.は、ATCC (American Type Culture Collection) より購入し、BG-11 培地により継代培養を行った。培養を行っている*Synechocystis* sp.に対して、除草剤DCMU、抗生物質クラリスロマイシン (CAM)、陰イオン界面活性剤LAS、重金属Znおよび下水処理水 (STPサンプル) に関して、それぞれ曝露試験を実施した。曝露濃度としては、標準物質 (DCMU, CAM, LAS, Zn) については 1mg/Lと設定した。また、STPサンプルには、下水処理水を固相抽出カートリッジGL-Pak PLS-2 (GL-Sciences) を用いて濃縮したものをを用いた。カートリッジに捕集された成分はメタノールで溶出させ、メタノールをDMSOに置換した後に、*Synechocystis* sp.に曝露させた。STPサンプルの曝露濃度は、下水処理水原水の 10 倍濃縮の濃度とした。曝露試験には 50mLの三角フラスコを用い、曝露時間は2時間とした。曝露後は、速やかに濃度 15mg/LのNaHCO₃溶液により藻類の洗浄を行って曝露成分を取り除き、その後凍結保存を行った。また、化学物質による曝露と並行して、化学物質非曝露系のコントロールも同様な処理を行った。

2.2 DNA マイクロアレイを用いた発現遺伝子の解析

化学物質への曝露系および非曝露系の *Synechocystis sp.* 細胞より RNA の抽出を行った。抽出した全 RNA を鋳型として、逆転写反応により Cy3-dUTP (Amersham Bioscience) および Cy5-dUTP (Amersham Bioscience) で標識した蛍光標識 cDNA プローブを作成した。得られた cDNA プローブを精製した後、IntelliGene Cyano CHIP Ver. 2.0 (タカラバイオ) にハイブリダイゼーションを行った。この DNA チップには、*Synechocystis sp.* (PCC6803) のゲノム上に推測されているタンパク質コード領域のうち、ほぼ 95% に相当する約 2950 種類の DNA 断片がスライドガラス上に固定化されている。DNA チップのスポットは、Affymetrix 428 Array Scanner (Affymetrix 社) を用いてスキャニングを行った。Array Scanner によって得られた画像データは、ImaGene ver.4.2 (BioDiscovery 社) によって画像解析を行い、化学物質の曝露による遺伝子発現の解析を行った。

3. 結果および考察

3.1 抽出 RNA の分析

DNA マイクロアレイによる遺伝子発現解析に先立ち、*Synechocystis sp.* 細胞より抽出された RNA の品質をチェックするため、Agilent 2100 Bioanalyzer (Agilent Technologies 社) によりキャピラリー電気泳動を実施して RNA の測定を行った。Agilent 2100 Bioanalyzer は、約 5cm 画の小型チップ上で核酸の電気泳動と検出を同時に行うことが可能な装置である。状態実施されてきたアガロースゲル電気泳動と比較して、必要な RNA が少量で済むことや分析の作業が大幅に簡略化できるという利点がある。*Synechocystis sp.* 細胞から抽出された RNA の分析結果を図-1 に示す。図-1 には、非曝露系のコントロールと抗生物質 CAM、重金属 Zn で曝露した場合の RNA 測定結果をそれぞれ示す。

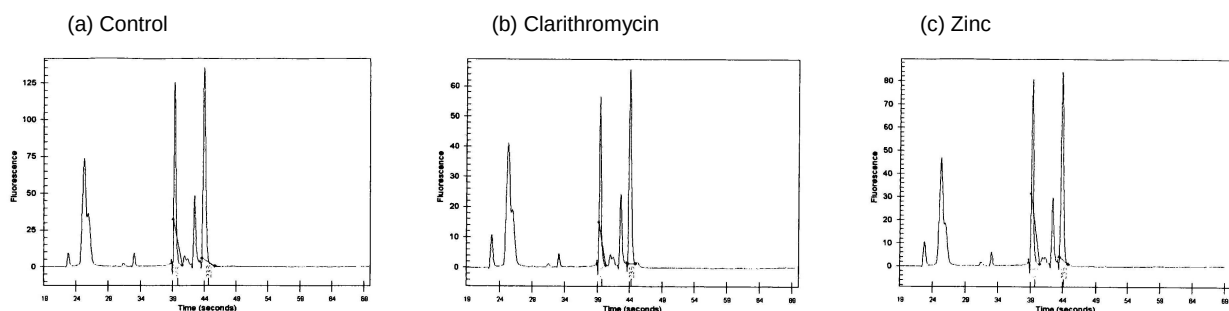


図-1 *Synechocystis sp.* 細胞から抽出された RNA の分析結果

図-1 より、*Synechocystis sp.* 細胞から抽出された RNA に関する分析の結果、原核生物の 16s および 23s リボソーム RNA のピークが検出されており、RNA の分解はあまり進んでいないことが分かる。抽出された RNA の分解が進んでいた場合には、分解物に由来したバックグラウンドが大きくなるが、図-1 では 2 本の明瞭なピークが検出されている。このことから、本試験で得られた RNA について、DNA マイクロアレイによる解析が可能であるものと考えられた。

3.2 Cyano CHIP を用いた遺伝子発現解析

ラン藻類 *Synechocystis sp.* に対して、除草剤 DCMU、抗生物質クラリスロマイシン、陰イオン界面活性剤 LAS、重金属 Zn および下水処理水 (STP サンプル) をそれぞれ曝露した場合における Cyano CHIP を用いた遺伝子発現解析の結果を図-2 に示す。図-2 において、X 軸の Cy3 シグナルは対照群 (コントロー

ル), Y 軸の Cy5 シグナルは実験群の強度をそれぞれ示している。また, 図中には, Cy3 と Cy5 のシグナル比が 1 : 1 のラインと, 2 : 1 もしくは 1 : 2 の場合の理論値をラインとして示している。

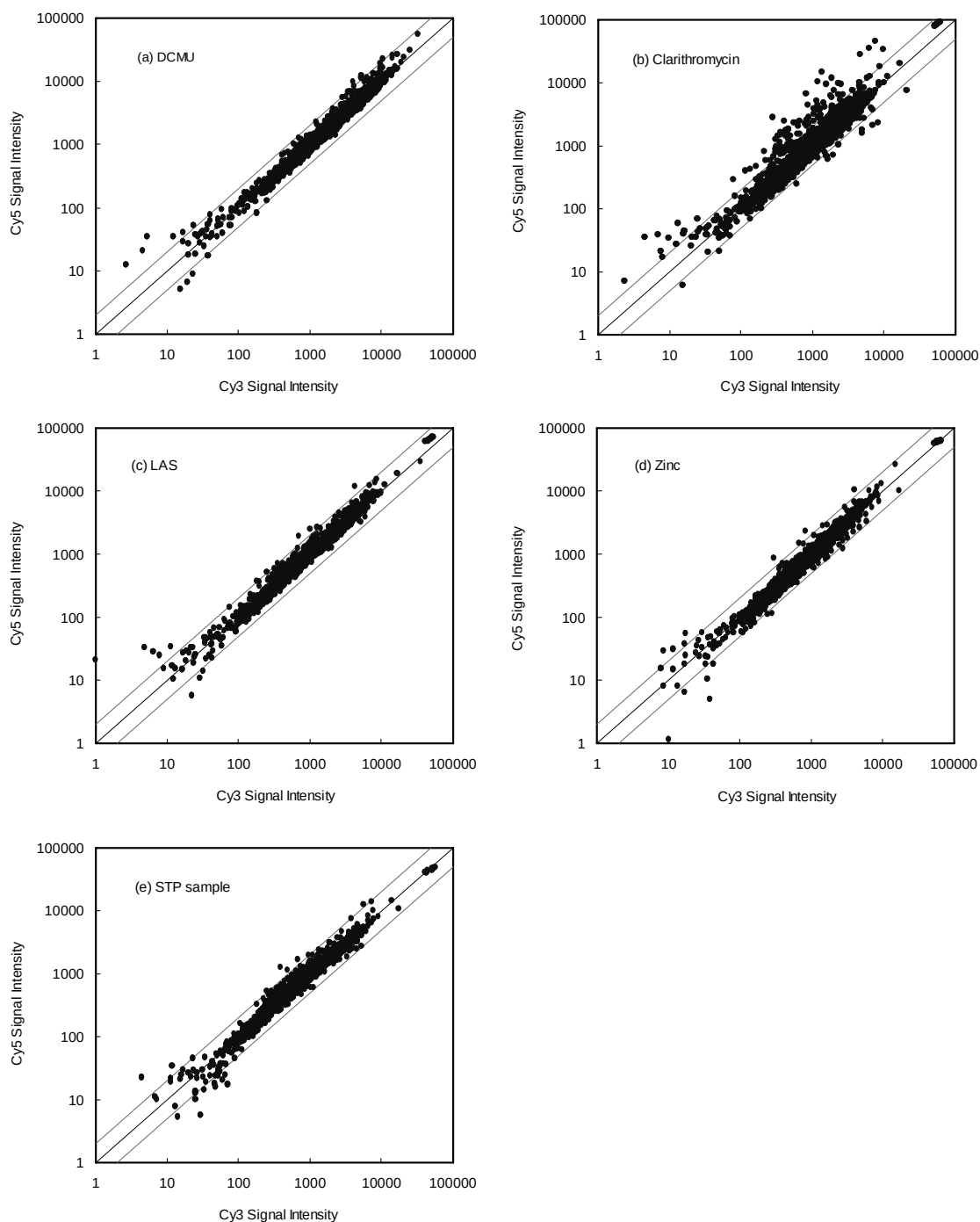


図-2 DNAチップを用いた *Synechocystis sp.* の遺伝子発現解析

本実験において, 対照群と実験群の遺伝子発現が同じである場合には, 1 : 1 のライン上に収束分布するはずであり, 図-2 において多くのプロットが 1 : 1 のライン付近に分布している。2 : 1 と 1 : 2 のライン間の領域には, 99%の確率でシグナルのバラツキ範囲と見なすことができ, 対照群と実験群のシグナルのプロットがこの範囲外にある場合には, 有意な発現差であると見なすことができる。図-2 において, DCMU, LAS, Zn, STP サンプルに関しては, 蛍光シグナルが小さいプロットを除いて, ほとんどのプ

ロットが 2 : 1 と 1 : 2 のライン間領域に入るという結果が得られた。このことから、これらの化学物質について本研究で行った条件では、遺伝子レベルで見た場合、ラン藻類 *Synechocystis sp.* に対して影響を与えないものと推察される。一方、抗生物質であるクラリスロマイシンに関しては、2 : 1 と 1 : 2 のライン間領域外のプロットも多く見られた。図-2 より Cy5 シグナル（実験群）の値が大きくなっているプロットが多いことから、クラリスロマイシンの曝露によって、いくつかの遺伝子発現が高まったと考えられる。クラリスロマイシンの曝露によって発現量に差が見られた遺伝子については、遺伝子の種類等について今後検討する必要があると考えられる。

4. まとめ

本研究は、環境ストレスを遺伝子レベルで検出することを目的として、DNA マイクロアレイを用いた化学物質の影響評価について検討した。解析に用いた DNA チップとしては、ラン藻類 *Synechocystis* 属の遺伝子を搭載した Cyano Chip を用い、医薬品類や界面活性剤等の化学物質による生物への影響について、遺伝子レベルで検出することを試みた。

Synechocystis sp. 細胞から抽出された RNA について分析を行った結果、原核生物の 16s および 23s リボソーム RNA の 2 本の明瞭なピークが検出され、DNA マイクロアレイに必要な RNA が分解されずに抽出されていることが確認された。また、ラン藻類 *Synechocystis sp.* に対して、除草剤 DCMU、抗生物質クラリスロマイシン、陰イオン界面活性剤 LAS、重金属 Zn および下水処理水（STP サンプル）を曝露し、DNA チップを用いて発現遺伝子の解析を行ったところ、DCMU、LAS、Zn、STP サンプルに関しては、あまり発現遺伝子の変動は見られなかった。一方、抗生物質クラリスロマイシンに関しては、実験群のサンプルに関して蛍光シグナルが大きくなるプロットが多く観察され、クラリスロマイシンの曝露によって、ラン藻類 *Synechocystis sp.* の遺伝子発現が高まることが推察された。

＜参考文献＞

- 1) Desbrow, C., Routledge, E.J., Brighty, G.C., Sumpter, J.P., Waldock, M.: Identification of estrogenic chemicals in STW effluent. 1. Chemical fractionation and in vitro biological screening, *Environ. Sci. Technol.*, 32, 1549-1558, 1998
- 2) Boyd, G.R., Reemtsma, H., Grimm, D.A., Mitra, S.: Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in surface and treated waters of Louisiana, USA and Ontario, Canada, *Sci. Total Environ.*, 311, 135-149, 2003
- 3) Andreozzi, R., Raffaele, M., Nicklas, P.: Pharmaceuticals in STP effluents and their solar photodegradation in aquatic environment, *Chemosphere*, 50, 1319-1330, 2003
- 4) Zuehlke, S., Duennbier, U., Heberer, T.: Determination of polar drug residues in sewage and surface water applying liquid chromatography-tandem mass spectrometry, *Anal. Chem.*, 76, 6548-6554, 2004
- 5) Momose, Y., Iwahashi, H.: Bioassay of cadmium using a DNA microarray: genome-wide expression patterns of *Saccharomyces cerevisiae* response to cadmium, *Environ. Toxicol. Chem.*, 20, 2353-2360, 2001
- 6) Kitagawa, E., Momose, Y., Iwahashi, H.: Correlation of the structures of agricultural fungicides to gene expression in *Saccharomyces cerevisiae* upon exposure to toxic doses, *Environ. Sci. Technol.*, 37, 2788-2793, 2003
- 7) Sirisattha, S., Momose, Y., Kitagawa, E., Iwahashi, H.: Toxicity of anionic detergents determined by *Saccharomyces cerevisiae* microarray analysis, *Water Res.*, 38, 61-70, 2004
- 8) Sirisattha, S., Momose, Y., Kitagawa, E., Iwahashi, H.: Genomic profile of roundup treatment of yeast using DNA microarray analysis, *Environ. Sci.*, 11, 313-323, 2004

8. 河川水質浄化事業の評価と改善に関する調査

水質チーム 上席研究員 鈴木 穰
主任研究員 小森行也
研 究 員 岡安祐司

1. はじめに

河川環境管理の水質目標を達成するため、河川直接浄化施設等による河川浄化事業が実施されている。しかし、どのような水質改善の事業効果がみられるのか、また、河川直接浄化施設の機能が維持されているか情報が必ずしも十分ではない。また、直接浄化施設の適正な機能を維持するために必要な設計や維持管理の方法が必ずしも十分研究されていない。このため、行政や現場からこれらを解明する研究が求められている。

本調査は、土木研究所が河川浄化事業に関する評価と改善を国土交通省水質連絡会の共通テーマとし指導するとともに、河川直接浄化施設での微量汚染物質（エストロゲン様活性等）の除去およびアンモニア除去（水道原水と生-態系保全に削減が重要）に焦点を当て、除去機構の理解を深めるとともに、設計や維持管理の改善の提言を行うことを目標としている。平成 16 年度は、ひも状接触酸化法の河川直接浄化施設においてエストロゲン様活性（Yeast Estrogen Screen assay : Y E S）の除去特性調査を実施するとともに河川直接浄化施設の実験模型を用いたアンモニア除去実験を行った。

2. 調査方法

2. 1 河川浄化施設における Y E S の除去特性調査

表－1 に示す S 浄化施設において調査を行った。処理方式はひも状接触酸化方式、処理水量 8,640m³/日、水理学的滞留時間 1 時間の施設である。調査は平成 16 年 11 月と平成 17 年 2 月の 2 回行った。水質調査項目は、エストロゲン様活性¹⁾とし、この他水温、p H 等の水質データを S 浄化施設の管理者より提供を受けた。

表－1 S 浄化施設の主要諸元

項目		諸元	備考
浄化方式		ひも状接触酸化法	
構造	取水方式	ゴム布引製起伏堰	
	通水方式	自然流下	
	槽数	浄化槽（2 反応槽）× 2	第 1 反応槽と第 2 反応槽は管（φ 600mm）で接続
浄化槽形状	槽寸法	[28.4m(L)×2.5m(W)×2.0m(D)] × 2 反応槽 × 2 系列	接触材充填槽 1 槽の寸法 : 23m(L)×2.5m(W)×2.0m(D)
	有効水深	1.8m	
	充填剤形状	塩化ビニリデン（サラ）の細い糸をモール状に編んだもの	
浄化水量		8,640m ³ /日	
滞留時間		1.0 hr	
曝気方法		接触材充填槽の床面に散気管を配管し、フロアにて送気	

2. 2 河川浄化施設の実験模型を用いたアンモニア除去実験

図－1 に示す河川浄化施設の実験模型を用いアンモニア除去実験を行った。30L の反応槽に砕石

を充填（有効容積 15L）した装置であり、No.1 をエアレーション有、No.2 をエアレーション無とした。処理水量は 144L／日、反応槽での水理学的滞留時間は約 2 時間である。実験装置の流入水は、下水を脱塩素した水道水で希釈し塩化アンモニウムを加えたものとした。

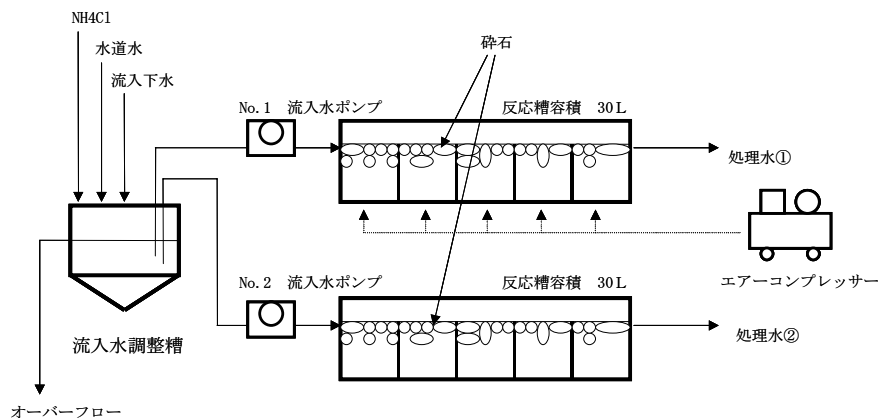


図-1 実験装置

3. 調査結果

3. 1 河川浄化施設における Y E S の除去特性調査

調査結果を表-2 に示した。ひも状接触酸化方式の浄化施設での Y E S 除去率は、平成 16 年 11 月の調査が 63%、平成 17 年 2 月の調査が 47% であった。2 回の調査とも Y E S 除去率は B O D 除去率（11 月：2.9%、2 月：17.4%）、T O C 除去率（11 月：9.1%、2 月：3.4%）に比べ高い値を示した。これらの結果は平成 15 年度に調査したバッキ付礫間接触酸化方式の浄化施設での調査結果と同様であった。

表-2 河川浄化施設における Y E S 除去特性調査結果

項目	単位	平成16年11月		平成17年2月	
		流入水	処理水	流入水	処理水
Y E S	ng/l	0.46	0.17	0.74	0.39
水温	℃	13.7	14.0	8.0	7.6
p H	—	7.7	7.7	7.5	7.5
D O	mg/l	7.5	8.3	8.5	8.3
S S	mg/l	9.6	26	2.6	1.4
B O D	mg/l	3.4	3.3	2.3	1.9
T O C	mg/l	2.2	2.0	2.9	2.8

3. 2 河川浄化施設の実験模型を用いたアンモニア除去実験

平成 16 年 6 月 30 日から 12 月 22 日の約半年間にわたり実験を行った。実験期間の水質分析結果を表-3 に、処理水①、②の N H 4 - N の水質変化を図-2 に示した。流入水質は中央値でみると D O が 1.2mg/l、B O D が 9.3mg/l、D - T O C が 5.3mg/l、N H 4 - N が 7.5mg/l、N O x - N が 0.2mg/l であった。

表-3 河川浄化施設の実験模型を用いたアンモニア除去実験における水質分析結果

項目	試料	データ数	最小値	25%値	中央値	75%値	最大値
水温 (℃)	流入水	112	11.9	18.1	25.6	28.5	32
	処理水①		9.1	16.5	23.4	27.5	31.2
	処理水②		9	16.7	24.1	27.8	33.5
pH (—)	流入水	112	6.5	6.7	6.9	7.1	7.8
	処理水①		4.4	5.9	6.8	7.1	8.3
	処理水②		5.3	6.6	6.8	7.1	7.9
D O (mg/l)	流入水	112	0.2	0.7	1.2	1.8	5.3
	処理水①		3.5	5.8	6.6	7.3	9.2
	処理水②		1	1.6	2.1	2.6	4.1
B O D (mg/l)	流入水	24	1.4	5	9.3	17.6	63.5
	処理水①		0.2	0.7	1.1	1.3	1.9
	処理水②		2.1	5.2	7.1	10.8	23.7
D-TOC (mg/l)	流入水	116	2	4.1	5.3	6.6	22.8
	処理水①		2	3.1	3.6	4.1	9.6
	処理水②		1.6	3.9	4.7	6	22.4
N H 4 - N (mg/l)	流入水	116	0.9	6.5	7.5	8.6	12.7
	処理水①		0.1	0.4	0.6	1.3	6.6
	処理水②		1	6.4	7.4	8.4	17.4
N O x - N (mg/l)	流入水	116	0.1	0.1	0.2	0.6	1.3
	処理水①		1.6	6.5	7.4	8.1	13.7
	処理水②		0.1	0.1	0.1	0.4	2.3

バッキ付礫間接触酸化方式の処理水 DO は 6.6mg/l であり酸素供給は十分であった。また、バッキ無し礫間接触酸化方式の処理水 DO は 2.1mg/l であり、流入水の DO より高い値を示したが装置内での再バッキによるものと考えられる。本実験での BOD 除去率はバッキ付礫間接触酸化方式で 88%、バッキ無し礫間接触酸化方式で 24%、溶解性有機物の D-TOC 除去率は、バッキ付礫間接触酸化方式で 32%、バッキ無し礫間接触酸化方式で 17% であった。

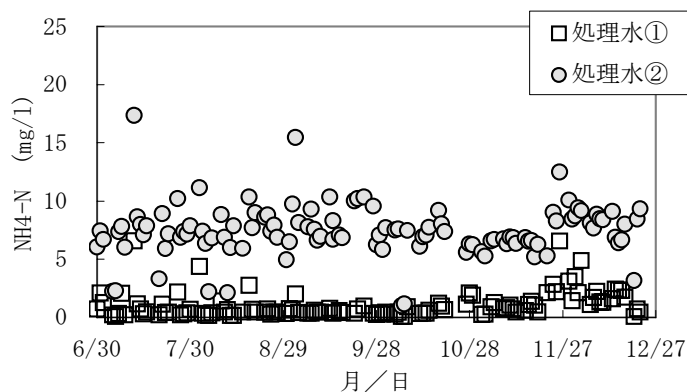


図-2 NH₄-N の変化（処理水①、処理水②）

また、バッキ付礫間接触酸化方式処理水の NH₄-N は十分 NO_x-N まで酸化されており処理水中に残存する濃度は 0.6mg/l であったが、水温が低下した 11 月以降は数 mg/l (1.1~2.3mg/l) の濃度で処理水中に残存した。一方、バッキ無し礫間接触酸化方式処理水の NH₄-N は調査期間全体を通じ 7.4mg/l でありほとんど酸化されることなく NH₄-N のまま処理水中に残存していた。

4. まとめ

本調査の成果として、以下のことが明らかとなった。

- 1) ひも状接触酸化方式の S 浄化施設においてエストロゲン様活性 (YES) の除去特性の調査を 2 回実施した。YES 除去率の平均は 55% であり、BOD 除去率 (10%)、TOC 除去率 (6%) に比べ高い値を示した。
- 2) 水理学的滞留時間を約 2 時間とした礫間接触酸化方式の実験模型を用い、約 6 ヶ月間 NH₄-N の除去特性調査を実施した。バッキ付礫間接触酸化方式では、流入水中の NH₄-N のほとんどが NO_x-N まで酸化されていたのに対し、バッキ無しの礫間接触酸化方式ではほとんど酸化されることなく NH₄-N のまま処理水中に残存していた。

なお、本研究は、運営費交付金（治水勘定）により実施したものである。

5. 参考文献

- 1) 矢古宇靖子、高橋明宏、東谷忠、田中宏明「組み換え酵母を用いた下水中のエストロゲン活性の測定」環境工学研究論文集、第 36 巻、pp. 199-208、平成 11 年

9. 河川底質のダイオキシン類対策におけるモニタリング技術の実用化研究

水質チーム 上席研究員 鈴木 穰
主任研究員 小森行也

1. はじめに

平成 14 年 7 月 22 日に環境省告示第 46 号によりダイオキシン類 (DXNs) に関する「水底の底質」の環境基準 (基準値:150 pg-TEQ/g以下) が示された。DXNsの定期モニタリング調査等により基準値を超える高濃度汚染が判明したところにあつては対策の実施が必要であるが、どこが最も汚染されていて優先的に対策を講じる必要があるかを見極めることが重要である。現在、底質のDXNs分析は、「ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル」¹⁾ (公定法) に準拠して行われている。公定法では高度な前処理技術と高分解能GC/MSという高価な分析装置を要し、分析結果を得るまでに 1 ヶ月程度の期間を要する場合が多い。高濃度汚染の汚染範囲を詳細に調査する場合、公定法では、より正確な結果が得られる反面、結果を得るまでに時間が掛かる等課題も多い。そこで、迅速にDXNs濃度を知る方法があれば、これらの方法を用いて対策を講じる範囲を容易に知ることが可能になる。

平成 16 年 7 月に「河川、湖沼底質中のダイオキシン類簡易測定マニュアル (案)」²⁾ (簡易測定マニュアル) が示された。簡易測定マニュアルで示されている測定方法のうちGC/MS法は、試料前処理後、四重極GC/MS等を用い毒性等価係数 (TEF) を持つDXNs異性体 (29 化合物) を個別に定量し、それぞれの定量値にTEFを乗じ毒性等量 (TEQ) を求める方法である。高価な高分解能GC/MSを使用することなくDXNsの定量が可能となったものの、その分析操作は未だかなり繁雑である。

平成 16 年度は、より簡易な測定方法として特定の 1 異性体を汎用的な GC/MS である四重極GC/MSにより定量し、その定量値からTEQを求める方法の現場適用可能性について検討した結果を報告する。

2. 方法

2. 1 検討試料

検討試料は、都市域の小河川 (川幅約 36m) の約 1,000m の区間において、等間隔を基本としながら、過去の調査により高濃度汚染が明らかな地点にあつては密に 25 試料を採取した。エクマンバージ型採泥器を用いて表層 10~20cm を採泥した。採取した 25 試料について公定法による測定を行った。25 試料の DXNs 濃度は、81~19,000pg-TEQ/g (中央値:210pg-TEQ/g)、total TEQ に占める PCDDs の割合は 0.5~34.4%、PCDFs が 34.4~99.2%、Co-PCBs が 0.3~34.6%であり、PCDFs の割合が高い試料であった。

2. 2 測定方法

四重極GC/MSによる方法は、高速溶媒抽出法³⁾により抽出し、濃縮・精製した試料をガスクロマトグラフ (6890N series GC system, Hewlett Packard) を用い、TEFを有するPCDDsの7異性体とPCDFsの10異性体を同一の分離カラム (BPX-DXN(SGE))により分析、Co-PCBsの12異性体を分離カラムRH-12ms (INVENTX)により分析する方法とした。前処理試料 1 μ lをスプリットレス方式により

導入し、昇温（130℃(1min) → 15℃/min → 210℃(0min) → 3℃/min → 290℃(0min) → 10℃/min → 330℃(hold)）分析した。各異性体の定量は、質量分析計（5973N MSD, Hewlett Packard）を用い、SIMにより行った。

2. 3 特定異性体の定量値による TEQ の推定

(1) 簡易測定に用いる特定異性体の選定手順

公定法による測定を行った 25 試料の分析結果を用い以下の手順で特定異性体の選定を行った。

1) TEQ との相関が高い異性体を選定。公定法で測定する全異性体 32 化合物について、各異性体と TEQ の相関を求め、べき乗回帰の相関係数（ r ）が高い異性体を選定。

2) 四重極 GC/MS で測定する異性体を選定。TEF を持たない異性体 1, 2, 7, 8-TeCDF を除いた。

3) 四重極 GC/MS により安定して測定が可能な高濃度に存在する異性体を選定。25 試料の測定において検出下限値以下の定量結果があった異性体 2, 3, 4, 7, 8-PeCDF、1, 2, 3, 7, 8-PeCDF を除いた。

4) 以上の結果、2, 3, 7, 8-TeCDF、2, 3, 4, 6, 7, 8-HxCDF を簡易測定に用いる特定異性体候補とし、以下の検討では 2, 3, 7, 8-TeCDF を特定異性体とした。

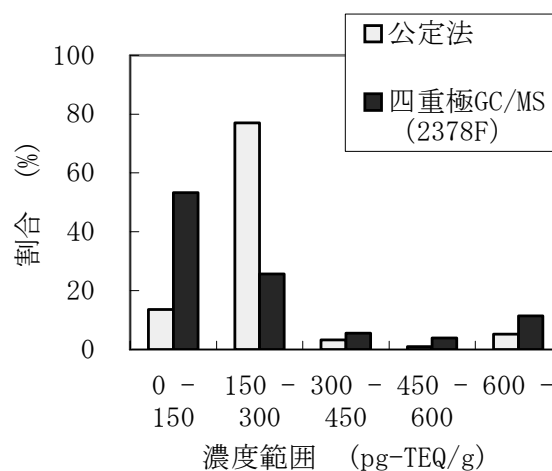
(2) 特定異性体（2378-TeCDF）の定量値による TEQ の推定

1) 5 点検量線による方法

実際に四重極 GC/MS による 2, 3, 7, 8-TeCDF の定量値（以下、四重極 GC/MS(2378F)）から TEQ を推定する場合は、複数の試料について公定法での測定も行い、四重極 GC/MS(2378F)と公定法による TEQ の関係式から TEQ を推定することになる。本検討では、25 試料の中から四重極 GC/MS(2378F)の定量値を基に、最大値、最小値、中央値及びまたその中間値から 5 試料を選出した。選出した 5 試料の公定法と四重極 GC/MS(2378F)の関係（5 点検量線）を用い 25 試料の TEQ を推定した。

3. 結果と考察

本検討に供した試料を採取した小河川（川幅約 36m、調査区間約 1,000m）の底質 DXNs の濃度分布を図－1 に示した。また、各測定法による結果を基に推定した濃度分布から調査区間の濃度分布割合を求め図－2 に示した。公定法と四重極 GC/MS(2378F)の結果を比較すると、150pg-TEQ/g 以下の占める割合が大きく、150-300pg-TEQ/g の占める割合が小さい結果となったが、300pg-TEQ/g 以上の占める割合は同等であった。公定法の結果と異なる結果となったものの、容易に濃度分布の傾向を知ることが可能であり、DXNs の高濃度汚染範囲の予測に用いる簡易分析手法として現場への適用可能性が確認された。



図－2 調査区間のDXNs濃度分布

4. まとめ

四重極 GC/MS(2378F)の方法により小河川の DXNs 汚染調査を行った結果、公定法の値と比較し 150pg-TEQ/g 以下の占める割合が大きく、150-300pg-TEQ/g の占める割合が小さい結果となったが、300pg-TEQ/g 以上の占める割合は同等であり DXNs の高濃度汚染範囲予測に用いる簡易分析手法としての適用可能性が確認された。

本検討では限られた試料を用い、限られた分析手法について検討を行ったものであり、このデータのみから一般的な結論を導くことはできないため、今後は、他の汚染地域での確認調査を行うとともに、2,3,7,8-TeCDD、2,3,7,8-TeCDF 以外の異性体についても検討を行う必要がある。

なお、本研究は、運営費交付金（一般勘定）により実施されたものである。

5. 参考文献

- 1) 環境庁, ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル (2000)
- 2) 国土交通省, 河川、湖沼底質中のダイオキシン類簡易測定マニュアル(案) (2004)
- 3) 南山瑞彦, 落修一, 鈴木穰, 底質中のダイオキシン類の抽出手法, 土木技術資料, 44 (7), 40-45 (2002)

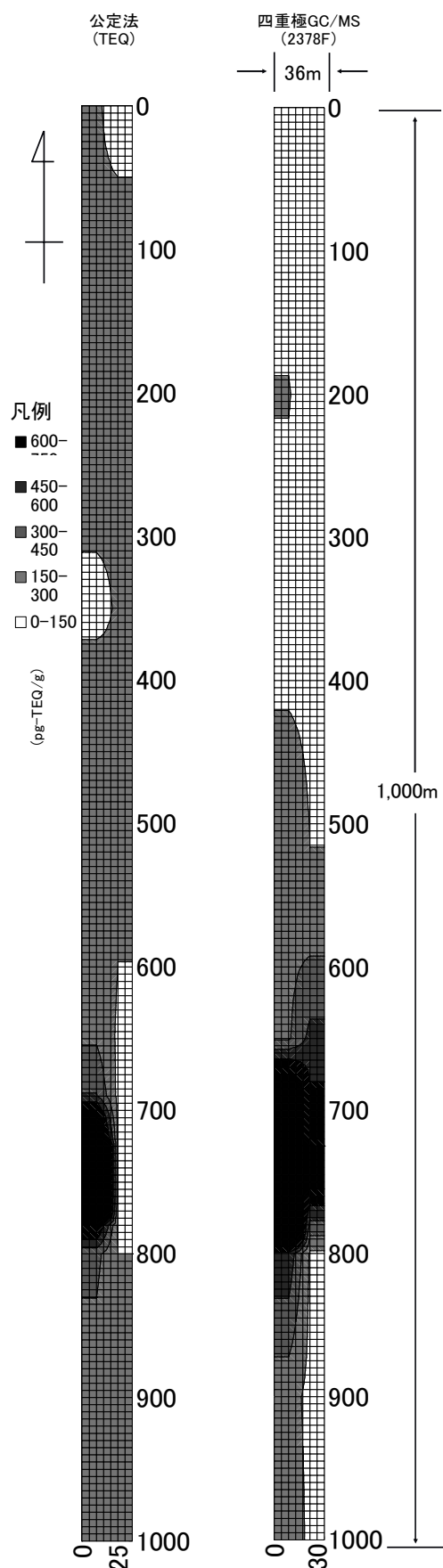


図-1 小河川におけるDXNs汚染調査結果

10. 水環境中の化学物質が及ぼす生態影響に関する研究

水循環研究グループ水質チーム

上席研究員	鈴木 穰
主任研究員	小森行也
主任研究員	宮島 潔
専門研究員	山下尚之

1. はじめに

近年、産業活動の拡大発展に伴い、様々な化学物質が広範囲に使用されており、排水や河川水中にも多種多様な化学物質が存在することが明らかになっている。下水処理水からも環境ホルモン様物質等に代表される様々な化学物質の存在が報告されており^{1,2)}、その生物への影響が懸念される。このことから、水環境中に放出された化学物質が、水域に生息する生物にどのような影響を与えるかを明らかにすることは重要である。

化学物質による生態系への影響を調べる学問分野としては、生態毒性学 (Ecotoxicology) がある。これは、生態学 (Ecology) と毒性学 (Toxicology) を組み合わせた造語であり、一般的には、「生態系における毒性のある物質の運命と生態系への影響に関する研究」と定義されている³⁾。欧米では、生態毒性関連の研究は盛んに行われており、研究者の数も多く層も厚い。我が国において、生態毒性の研究者は少数ではあるが、農村地帯の河川水、下水、廃棄物浸出水等に関していくつかの報告がなされている⁴⁻⁹⁾。畠山らは、つくば市とその周辺を流れる農村地帯の河川水について、水生生物への影響を調べている^{4,5)}。採取した河川水について、藻類および甲殻類の試験を実施した結果、試験水中の *Selenastrum capricornutum* の増殖阻害は5月初旬から始まり、5月中旬にはほぼ完全に増殖が阻害されたこと、阻害の原因は除草剤の影響であったことを報告している。また、その河川水をヌカエビ (*Paratya compressa improvisa*) に曝露した結果、ヌカエビの死亡率は、5月中旬から6月上旬にかけて高く、この原因はこの時期に散布された殺菌剤、殺虫剤の影響であることを報告している。また、松原らは、マイクロトックス、藻類、カエル胚を用いて、下水および環境水について毒性試験を実施している⁷⁾。その結果、マイクロトックス、藻類、カエル胚試験とも、流入下水からは毒性を検出しているが、その毒性は、下水の生物処理後には検出されなくなったことを報告している。一方、下水処理において、生物処理後の塩素添加量が多い処理場については、マイクロトックスおよび藻類による試験で毒性が上昇する場合があることを報告している。

本調査は、水環境中の化学物質が及ぼす生態影響について明らかにすることを目的としている。本年度は、環境中に放出された医薬品類が及ぼす生態影響を明らかにすることを目的としてバイオアッセイを実施した。医薬品類としては、抗生物質のレボフロキサシンおよびクラリスロマイシンを取り上げた。抗生物質は、その利用上細菌を殺すようにデザインされているため、抗生物質が河川などの水域に放流された場合には、放流水域に生息する水生生物に影響を及ぼす可能性がある。本調査では、日本において販売量の多い抗生物質であるレボフロキサシンおよびクラリスロマイシンを取り上げて藻類生長阻害試験を実施し、抗生物質の水生生態系への影響に関して考察を加えた。

2. 試験方法

2.1 藻類生長阻害試験

藻類生長阻害試験の供試藻類としては、緑藻類 *Pseudokirchneriella subcapitata* (NIES-35) を用いた。*P. subcapitata* は、藻類培養用の AAP 培地¹⁰⁾ を用いて継代培養を行い、植え継ぎ後 3～5 日経過した対数増殖期のものを試験に用いた。試験では、継代培養を行っている *P. subcapitata* を滅菌した濃度 15mg/L の

NaHCO₃溶液で洗い、培地成分を除いた後に使用した。

藻類生長阻害試験については、Blaiseらの方法^{11,12)}を参考にして、マイクロプレートを用いて実施した。マイクロプレートの各ウェルには、200 μ Lのサンプルと20 μ Lの*P. subcapitata*細胞懸濁液および20 μ Lの培地を入れ、培養温度24 $^{\circ}$ C、120rpmの振とう条件で96時間培養を行った。光条件は、照度4000Luxの連続照射とし、藻類の初期細胞濃度は 1×10^4 cells/mLとした。培養期間中、マイクロプレートリーダー（Wallac社製、ARVO SX-1420）を用いて吸光度（波長450nm）を測定し、藻類増殖量をモニタリングした。藻類生長曲線下の面積から、コントロールと比較した場合の藻類生長阻害率を算出した。

2.2 試薬等

藻類生長阻害試験については、抗生物質のレボフロキサシン（LVFX）およびクラリスロマイシン（CAM）について実施した。それぞれの化学構造式を図-1に示す。試験用の試薬としては、LVFX（Laboratories INC、純度90.2%）については精製水、CAM（和光純薬、純度90%以上）についてはジメチルスルホキシド（和光純薬製生化学用、DMSO）に溶かして標準溶液を作成した。LVFXは水に比較的良好に溶けるが、CAMを精製水に溶かしたところ、ほとんど溶解しなかったため、標準物質をDMSOに溶解させた。LVFX、CAMそれぞれについて、2倍希釈の希釈系列を作成し、藻類生長阻害試験を実施した。

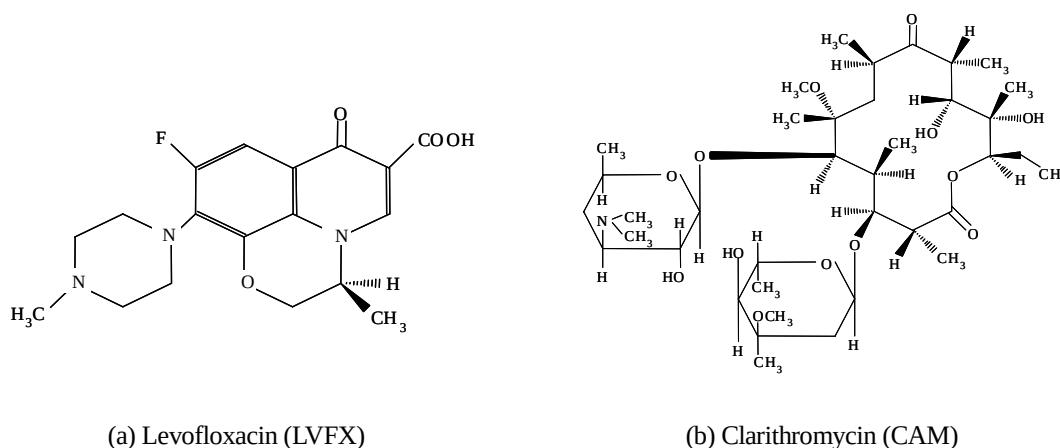


図-1 レボフロキサシン(LVFX)およびクラリスロマイシン(CAM)の化学構造式

3. 結果および考察

3.1 LVFX および CAM に関する藻類生長阻害試験

図-2にLVFXおよびCAMに関する藻類生長阻害試験の結果を示す。LVFXについては、630 μ g/L以上の濃度で藻類の生長阻害が観察され、2,500 μ g/L以上の濃度ではほぼ100%の阻害率となった。一方、CAMでは6.3 μ g/L以上の濃度で阻害が見られ、25 μ g/L以上の濃度ではほぼ100%の阻害率となり、藻類の増殖が観察されなかった。LVFXのEC₅₀、LOECおよびNOECは、それぞれ1,200 μ g/L、630 μ g/L、310 μ g/Lであった。同様にCAMのEC₅₀、LOECおよびNOECは、それぞれ11 μ g/L、6.3 μ g/L、3.1 μ g/Lであった（表-1）。両者のEC₅₀を比較するとCAMはLVFXの100倍程度であり、CAMはLVFXに比べて毒性が高かった。

ウキクサ毒性試験によるLVFXの湿重量から見た生長阻害およびChl.aから見た光合成阻害のEC₅₀は、それぞれ185 μ g/L、942 μ g/Lと報告されている¹³⁾。これらのEC₅₀は、本研究の藻類生長阻害のEC₅₀と比較

して低濃度で毒性が認められているが、その原因としては、藻類とウキクサの感受性の違いなどが考えられる。また、両者のEC50に差があることは、異なった種での生態影響試験の必要性を示唆している。

また、オクタノール水分配係数とEC50の間には関連があり、両者の間には負の相関があることが知られている¹⁴⁾。即ち、オクタノール水分配係数の値が大きいものほど、その毒性が高くなる傾向がある。これは、化学物質の細胞膜への透過性が毒性の発現に大きく関わっていることを示している。LVFX, CAMのオクタノール水分配係数はそれぞれ0.553, 7.18であり¹⁵⁾、この性質の違いから、物質の細胞膜への透過性が大きく異なってくることになり、両者の毒性に差が出た可能性が考えられる。

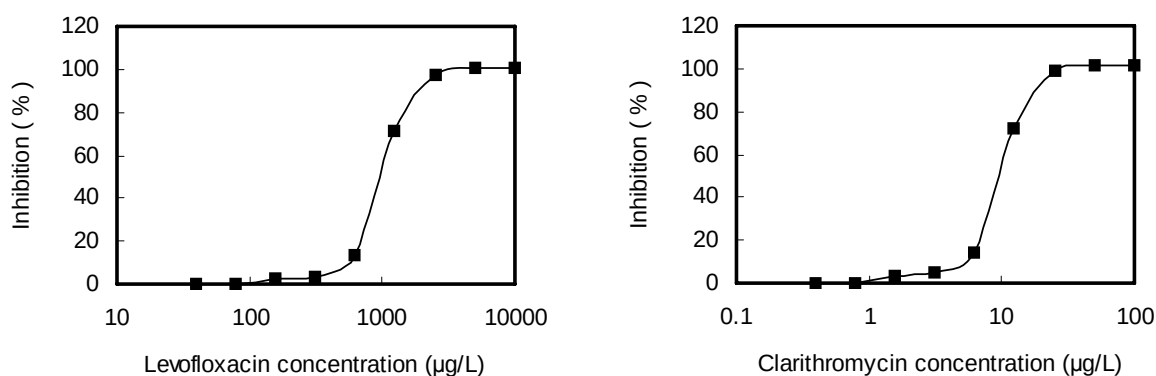


図-2 レボフロキサシン(LVFX)およびクラリスロマイシン(CAM)に関する藻類生長阻害試験結果

表-1 レボフロキサシン(LVFX)およびクラリスロマイシン(CAM)に関するEC50, LOEC, NOEC

Substance	(µg/L)		
	EC50	LOEC	NOEC
Levofloxacin	1,200	630	310
Clarithromycin	11.0	6.3	3.1

3.2 LVFX および CAM による水生生物への影響評価

下水道には、生活排水が流れ込むことから、各家庭から排出された抗生物質が流入すると推察される。流入した抗生物質が下水道で十分に処理できずに河川等に放流された場合、水環境の汚染が懸念される。日本国内にある5ヶ所の下水処理場を対象として2次処理水の分析を行ったところ、処理水からLVFXおよびCAMが検出された¹⁶⁾。図-3にその分析結果を示す。分析の結果、LVFXは152～323 ng/L, CAMは303～567 ng/Lの濃度範囲で検出された(図-3)。

検出されたLVFXおよびCAMの濃度レベルが、放流先河川の水生生態系に与える影響について、藻類生長阻害試験の結果より評価を行った。まず、*P. subcapitata* に対する2次処理水で検出されたLVFX, CAMの影響を把握するために、NOECとLOECの幾何平均により求めた無影響濃度(No-Effect Concentration: NEC)と検出濃度を比較した。LVFX, CAMのNECはそれぞれ440 µg/L, 4.4 µg/Lであり、検出濃度に比べて十分に高いことからLVFX, CAMともに影響無しと判断される。また、NOECを藻類の種間の安全係数10で除して藻類への影響を評価すると、LVFXは影響無し、CAMは希釈倍率2倍以下で影響有りとな

断される。

さらに、生態リスクの初期評価¹⁷⁾を行った。予測無影響濃度 (Predicted No-Effect Concentration: PNEC) については、藻類、甲殻類、魚類のうち 1~2 種の生物群の結果しか得られていないため、安全係数は 100¹⁷⁾ を用いた。安全係数 100 で NOEC を除すると LVFX、CAM の PNEC はそれぞれ 3,100 ng/L、31 ng/L となる。予測環境中濃度 (Predicted Environmental Concentration: PEC) については、実測値をあてはめることができないため、調査した下水処理場の放流先での希釈倍率を考慮した PEC を考えた。その結果、最大濃度の LVFX (323 ng/L) については希釈倍率に関わらず PEC は PNEC より小さくなった。また、最大濃度の CAM (567 ng/L) については、希釈倍率 20 倍以上でなければ PEC が PNEC より大きくなる。ハザード比 PEC/PNEC を考えると、LVFX についてはリスク無し、CAM については放流先河川での希釈倍率によってはリスク有りと判定される。一方、CAM のオクタノール-水分配係数は 7.18 であり、生物濃縮の可能性もあることから、水生生物への影響を考慮した場合、CAM は注目すべき物質であると考えられる。

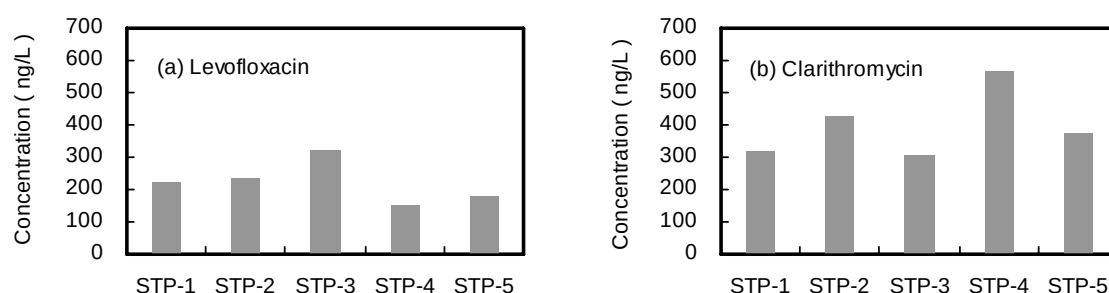


図-3 下水2次処理水中のレボフロキサシン(LVFX)およびクラリスロマイシン(CAM)濃度¹⁶⁾

4. まとめ

本調査は、環境中に放出された医薬品類が及ぼす生態影響を明らかにすることを目的としてバイオアッセイを実施した。医薬品類としては、抗生物質 LVFX および CAM を取り上げて藻類生長阻害試験を実施し、抗生物質の水生生態系への影響に関して考察を加えた。

その結果、LVFX の EC50、LOEC および NOEC は、それぞれ 1,200 $\mu\text{g/L}$ 、630 $\mu\text{g/L}$ 、310 $\mu\text{g/L}$ となり、CAM の EC50、LOEC および NOEC は、それぞれ 11 $\mu\text{g/L}$ 、6.3 $\mu\text{g/L}$ 、3.1 $\mu\text{g/L}$ となった。両者の EC50 を比較すると CAM は LVFX の 100 倍程度であり、CAM は LVFX に比べて毒性が高かった。また、LVFX および CAM に関して生態リスク評価を行ったところ、LVFX についてはリスク無し、CAM については放流先河川での希釈倍率によってはリスク有りと判定された。これらの結果から、水生生物への影響を考慮した場合、CAM は注目すべき物質であると考えられた。

<参考文献>

- 1) 田中宏明：水環境における内分泌攪乱化学物質の実態調査，水環境学会誌，22，629-632，1999
- 2) 田中宏明，小森行也，岡安祐司：下水道における微量化学物質の評価に関する調査，平成 14 年度下水道関係調査研究年次報告書集，129-132，2002
- 3) 若林明子：化学物質と生態影響，p.1，丸善，2003
- 4) 畠山成久，白石寛明，浜田篤信：霞ヶ浦水系河川のヌカエビ (*Paratya compressa improvisa*) 生物試験による農薬毒性の季節変動，水質汚濁研究，14，460-468，1991

- 5) 畠山成久, 福嶋悟, 笠井文絵, 白石寛明 : 河川の藻類生産に及ぼす除草剤の影響評価, 陸水学雑誌, 53, 327-340, 1992
- 6) Okamura, H., Omori, M., Luo, R., Aoyama, I., Liu, D. : Application of short-term bioassay guided chemical analysis for water quality of agricultural land runoff, *Sci. Total Environ.*, 234, 223-231, 1999
- 7) 松原正明, 原田新, 田中宏明 : 藻類増殖阻害試験およびカエル胚催奇形性試験の基礎的検討と下水試験への適用, 水環境学会誌, 20, 768-775, 1997
- 8) 岡村秀雄, 青山勲, 羅榮, D. Liu, G. Persoone : 産業廃棄物埋立地浸出水の生態毒性評価および毒性のキャラクター化, 環境毒性学会誌, 1, 43-50, 1998
- 9) 岡村秀美, 豊田智子, 市川大介, 吉本祥子, 岡村秀雄, 井上雄三, 毛利紫乃, 山田正人, 国本学 : 藻類増殖阻害試験の簡易化と埋立処分場浸出水の有害性評価への適用, 水環境学会誌, 765-768, 26, 2003
- 10) 日本下水道協会 : AGP 試験, 下水試験方法 上巻 (1997 年版), 554-562, 1997
- 11) Blaise, C., Legault, R., Bermingham, N., Van Coillie, R., Vasseur, P. : A simple microplate algal assay technique for aquatic toxicity assessment, *Toxicity Assessment*, 1, 261-281, 1986
- 12) St-laurent, D., Blaise, C., Macquarrie, P., Scroggins, R., Trottier, B. : Comparative assessment of herbicide phytotoxicity to *Selenastrum capricornutum* using microplate and flask bioassay procedure, *Environ. Toxicol. Wat. Qual.*, 7, 35-48, 1992
- 13) Brain, R.A., Johnson, D.J., Richards, S.M., Sanderson, H., Sibley, P.K., Solomon, K.R.: Effects of 25 pharmaceutical compounds to *Lemna gibba* using a seven-day static-renewal test, *Environ. Toxicol. Chem.*, 23, 371-382, 2004
- 14) 菊池幹夫 : 藻類生長阻害試験によるいくつかのゴルフ場農薬の毒性評価, 水環境学会誌, 16, 704-710, 1993
- 15) 医療薬学研究会 : 2004 年版薬剤師のための常用医薬品情報集, 1253pp, 廣川書店, 東京, 2003
- 16) 八十島誠, 山下尚之, 中田典秀, 小森行也, 鈴木穰, 田中宏明 : 下水処理水中に含まれるレボフロキサシン, クラリスロマイシンの分析と藻類生長への影響, 水環境学会誌, 11, 707-714, 2004
- 17) 日本環境毒性学会 : 生態影響試験ハンドブックー化学物質の環境リスク評価ー, pp.318, 朝倉書店, 東京, 2003

11. 都市部からの栄養塩移動による沿岸海域環境への影響検討業務

(独) 土木研究所水循環研究グループ水質チーム 上席研究員 鈴木 穰
主任研究員 津森 ジュン

1. はじめに

ダム開発，森林荒廃や都市化の進展など流域の変化，また水利用の高度化等に伴い，流域から河川を經由し海域へ供給される栄養塩の物質収支が変化し，沿岸海域生物に影響を与えているとの指摘がある。本研究では，都市域から海域に供給される下水処理水中に含まれる栄養塩が，ノリの生長に与える影響について調査した。下水処理水中の残留塩素によるノリの生長阻害に関する調査は数多くあるものの，処理水中の栄養塩の効用に関する研究事例は見あたらない。このため，2つの異なる処理場からの処理水を用いてノリの室内培養実験を行い，下水処理水に含まれる栄養塩がその生長にどのように影響するか調査した結果を報告する。

2. 調査方法

2.1 実験材料

1) 対象下水処理場と処理水

A処理場（日最大流入量 97,800 m³/日，標準活性汚泥法）及びB処理場（日最大流入量 52,000 m³/日，標準活性汚泥法）の2処理場を対象とした。このうちA処理場では塩素消毒前の二次処理水を，B処理場では消毒処理前の二次処理水とオゾン消毒後処理水について，平成 17 年 1 月 20 日から 21 日にかけて 2 時間間隔で 24 時間に計 13 回採水した。

2) 現地海水，人工海水

現地海水は，処理水の影響が直接ないと考えられる近傍の海岸（A処理場放流口から約 3km，B処理場放流口から約 4kmそれぞれ離れた海岸）において表層水を採水した。人工海水はASP₁₂培地を用いた。ASP₁₂培地の組成を表 1 に示す。

3) 供試ノリ

ノリは一般に養殖に用いられるスサビノリ品種を用い，A処理場は収穫された生ノリを，B処理場は冷凍網に着生していた葉体を用いた。

2.2 培養実験

1) 試験区設定と培養液の作成

A処理場の試料は，24 時間分の処理水を流量比により混合して用いた。B処理場については，管路圧送を一部区間で採用していることを勘案して等量混合して用いた。

表 1-(1) ASP₁₂培地の組成

蒸留水	100 ml
NaCl	2.8 g
MgSO ₄ ・7H ₂ O	0.7 g
MgCl ₂ ・6H ₂ O	0.4 g
KCl	0.07 g
Ca (as Cl ⁻)	40 mg
Na ₂ SiO ₃ ・9H ₂ O	15 mg
ビタミンB ₁₂	0.02 μg
ビオチン	0.1 μg
チアミン	10 μg
P II 金属混液	1 ml
S2金属混液	1 ml
TRIS	0.1 g

表 1-(2) P II 金属混液の組成

蒸留水	100 ml
Na ₂ -EDTA	100 mg
Fe (as Cl ⁻)	1 mg
B (H ₃ BO ₃)	20 mg
Mn (as Cl ⁻)	4 mg
Zn (as Cl ⁻)	500 μg
Co (as Cl ⁻)	100 μg

表 1-(3) S2 金属混液の組成

蒸留水	100 ml
Mo (Na ₂ MoO ₄)	5 mg
Br (as K ⁺)	100 mg
Sr (as Cl ⁻)	20 mg
Rb (as Cl ⁻)	2 mg
Li (as Cl ⁻)	2 mg
I (as Cl ⁻)	100 μg
Va (as Cl ⁻)	10 μg

表-2 実験の条件設定

表 2 に実験条件の設定を示す。人工海水および現地海水に処理水を 3% 添加する実験区を設定し，対照区として人工海水のみ及び現地海水のみで培養する実験区も設定した。なお，どちらの処理場とも処理水には無機態りんがほとんど含

		no.	二次処理水	海水
A処理場	実験区	A-1	塩素添加処理水	人工海水
		A-2	塩素添加処理水	現地海水
	対照区	A-cont1	—	人工海水
		A-cont2	—	現地海水
B処理場	実験区	B-1	塩素添加処理水	人工海水
		B-2	塩素添加処理水	現地海水
		B-3	オゾン消毒後処理水	人工海水
	対照区	B-cont1	—	人工海水
		B-cont2	—	現地海水

まれず、また、現地海水中の無機態りん濃度も非常に低かった。このため、A及びB処理場近傍海域のノリ漁期(1992～2002年の10月～2月)における最高濃度0.09mg/Lとなるよう人工海水、現地海水ともに K_2HPO_4 を添加し培養液として用いた。また、処理水には実験室内で次亜塩素酸ナトリウム(有効塩素濃度3.14mgCl/L)を添加後15分間攪拌した後、培養液に添加した。

2) 実験方法

各条件とも培養液は500mL栓付き三角フラスコに400mLずつ入れたものを3連用意し、エアレーション攪拌を施した状態で、全長5cm程度以下のノリ葉体を8日間培養した。その期間中には2日に1回の頻度で培養液を交換するとともに、ノリ葉体表面の余分な水分を除去した湿重量を測定した。培養条件は、水温 $14\pm1^{\circ}C$ 、塩分 $30\pm3psu$ 、照度 $3,000\pm300\text{ lx}$ (蛍光灯による人工照明)、光周期10時間明期14時間暗期(午前7時点灯、午後5時消灯)に設定した。

全試験区の実験開始時と培養液交換時、実験終了時及び下水処理水原液、現場海水を対象として有機物量(COD, TOC, DOC)、各態窒素、各態りん、SS、VSSを分析した。なお試験水は、ミリポア社メンブレンフィルター($\phi=0.45\mu\text{m}$)でろ過した後、溶存態のみ分析した。また、ノリの窒素、炭素含有量を、開始時及び終了時の個体について、CHNコーダを用いて測定した。

3. 調査結果と考察

3.1 培養実験

実験終了時の生長比を図1に示す。湿重量の増加率(開始時重量に対する比)を生長比として算出したところ、全ての試験区でノリの生長がみられ、8日間培養後の湿重量は開始時の3.0倍～5.3倍となった。各ケース間を比較してもほとんどで生長に差がみられなかった。 t 検定の結果、統計的に有意な差がみられたのは、次の条件の比較においてであった。

- ① A処理場の処理水に塩素を添加し、人工海水で希釈した実験区では、現地海水で希釈した実験区よりも生長が大きくなった。
- ② B処理場の処理水に塩素を添加し、人工海水で希釈した実験区では、現地海水で希釈した実験区よりも生長が大きくなった。
- ③ B処理場の処理水について、塩素添加処理水とオゾン消毒を比較すると、塩素消毒の方がノリの生長が大きかった。
- ④ B処理場の処理水に塩素を添加し、人工海水で希釈した実験区では、人工海水だけの実験区よりも生長が大きくなった。
- ⑤ B処理場の処理水に塩素を添加し、人工海水で希釈した実験区では、現地海水で培養した実験区よりも生長が大きくなった。

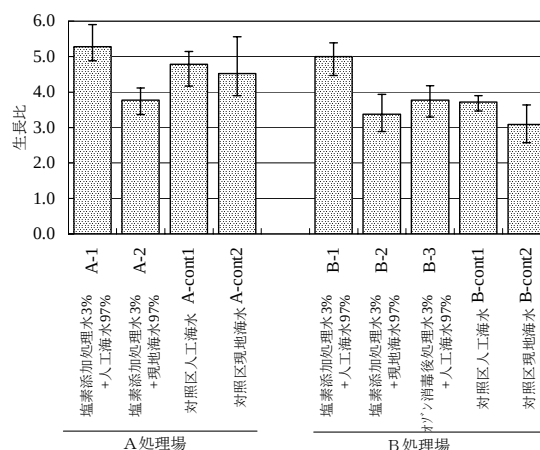


図-1 実験開始時と終了時の生長比
(実験8日目の生長比の比較)

表-3 培養液の水質 (mg/L)

	D-IN	NH4-N	PO4-P	D-SiO2	D-Fe
A-1	0.79	0.75	0.085	2.4	0.008
A-2	1.13	0.86	0.092	4.5	0.013
A-cont1	0.26	0.00	0.088	1.2	0.003
A-cont2	0.22	0.04	0.035	3.5	0.021
B-1	0.30	0.00	0.084	2.2	0.005
B-2	0.49	0.17	0.093	4.5	0.009
B-3	0.55	0.52	0.087	2.3	0.008
B-cont1	0.26	0.00	0.088	1.2	0.003
B-cont2	0.04	0.01	0.012	3.2	0.019

これらから、処理水に含まれる栄養塩がノリの生長に寄与していることが示唆されたが、処理水を添加したケース間に生長比に差がみられ、栄養塩濃度だけで生長が左右されるものではないと考えられた。

3.2 水質分析結果

分析の結果によると、培養液中の窒素、りん濃度は実験中に濃度が著しく低下し、生長したノリに吸収されたと考えられた。培養液の水質を表3に、実験開始時から終了時までのノリによる栄養塩吸収量を図2に示す。

3.3 考察

本調査は、下水処理水に含まれる栄養塩類がノリの生長にどのように利用されるかどうかを検証する目的で実施したものであるが、処理水中、現地海水中のりん濃度が低かったため、実際には栄養塩類としては窒素の利用についての検証となった。

このような前提条件・状況の下

であるが、処理水を海水に添加してもノリの生長が低下するというのではなく、順調な生長が観察され、人工海水の結果からは、処理水の添加により生長が大きくなることが示唆された。本調査においてノリの生長比と窒素、りんの吸収速度の関係を検討した結果では、高い栄養塩類の吸収速度を示したのは実験開始時の2.5～3.0倍に生長した時点のものであり、これより大きく生長したケースでは栄養塩類の吸収速度が低下している状況がうかがえた。この原因については不明であるが、ある程度、生長が進んだ個体は栄養塩の吸収速度が低下する可能性や、生長が進みすぎ、実験容器の中で栄養塩の枯渇が生じたためにこのような現象になった可能性が考えられる。

なお、実験中の目視観察の結果、A及びB処理場ともに窒素の濃度が高いケースと低いケースではノリ葉体の色調に差がみられ、窒素濃度が高いケースでは、葉体がより紫がかって観察された。ノリの品質については、より濃い紫がかった色合いが高品質であるといわれ、これは窒素類の含有量に比例するという報告がある。今回の色調の違いの結果も栄養塩類の多寡によって発生したものと考えられた。

4. まとめと今後の課題

本調査の結果から、下水処理場から放流される処理水の栄養塩は有効にノリの生長に寄与すると考えられる。しかし、統計的な相違はなかったものの、塩素を添加したケースとオゾン消毒のケースで生長に差が観察されたことなどもあることから、残留塩素も含め他の微量化学物質などの処理水に含まれる栄養塩類以外の物質による影響を検討する必要があると考えられた。

参考文献

- 1) 西澤一俊，千原光雄編，藻類研究法，共立出版株式会社，1979
- 2) 山本民次，高尾允英，スサビノリ *Porphyra yezoensis* 葉体のアンモニア態及び硝酸態窒素の取り込みに及ぼす温度の影響，藻類 Jpn. J. Phycol. 36 : 37-42, March 10, 1988
- 3) 徳田廣，大野正夫，小河久朗著，海藻資源養殖学，株式会社緑書房，1987
- 4) 丸山俊朗，三浦昭雄，養殖ノリを指標とした下水処理水のモニタリング，環境技術，Vol. 17, No. 10, 1988

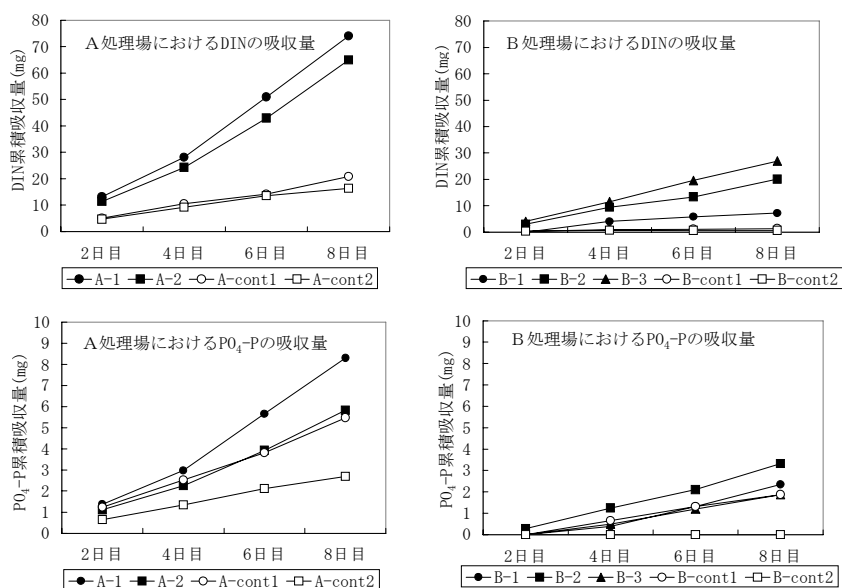


図-2

実験ケース別観察期日別栄養塩の累積吸収量

注) 栄養塩吸収量は、各観察期日における栄養塩減少量をノリ 1g 当たり換算し累積した。

付 録

付録 1. 平成 16 年度 下水道関係刊行報告書一覧

デスポーザー導入による影響評価に関する研究報告 —デスポーザー導入時の影響判定の考え方—

国土技術政策研究所資料 No.222 2005 年 7 月
国土技術政策研究所下水道研究部
国土交通省都市・地域整備局下水道部

要旨

本報告は、デスポーザー導入時の影響、すなわち下水道処理区域内の家庭等から発生する厨芥(生ごみ)をデスポーザーで粉砕したデスポーザー排水が直接下水道に排出される際の影響について、これまでの調査研究を基に、下水道管理者がデスポーザー導入の可否を検討する上での技術的資料としてとりまとめた。また、デスポーザーの導入による下水道施設等への影響を判定する手法を示すとともに、住民の利便性向上の評価手法、ごみ収集・処理システムと下水道システム双方のエネルギー収支や温室効果ガス発生量に関する評価手法などを示し、地方自治体においてデスポーザー導入時の影響、効果を判定する考え方について提示した。

キーワード：デスポーザー、下水道、ごみ処理、市民生活、費用便益分析、LCA

デスポーザー導入社会実験に関する調査報告書

国土技術政策研究所資料 第 226 号 2005 年 7 月
国土技術政策研究所下水道研究部
国土交通省都市・地域整備局下水道部
北海道建設部公園下水道課
歌登町

要旨

本書は、直投型デスポーザーを導入した北海道歌登町をモデル地域として実施した「デスポーザー導入社会実験」で得られた知見を取りまとめたものである。本社会実験は、国土交通省、北海道、歌登町が共同で平成 12 年度から平成 15 年度までの 4 年間（平成 16 年度に追加実験）実施し、デスポーザー導入が下水道システムやごみ処理システム、地域全体の経済、環境等へ与える影響を現地調査や費用効果分析、LCA 等を用いて総合的に評価したものである。

キーワード：デスポーザー、下水道、ごみ処理、市民生活、歌登町

平成 15 年（2003 年）十勝沖地震被害に係わる現地調査報告書

国土技術政策総合研究所資料 第 233 号 平成 17 年 2 月
国土交通省国土技術政策総合研究所
独立行政法人土木研究所
独立行政法人建築研究所
独立行政法人港湾空港技術研究所

要旨

本報告は、平成 15 年（2003 年）十勝沖地震直後の調査として、国土交通省国土技術政策総合研究所、独立行政法人土木研究所、独立行政法人建築研究所、独立行政法人港湾空港技術研究所が共同で実施した調査結果を報告書としてとりまとめているが、本報告書は同資料の保存および活用機会の充実を目的として 4 機関連名の報告書を国総研資料として印刷したものである。

キーワード：国土技術政策総合研究所、土木研究所、建築研究所、港湾空港技術研究所、地震、津波、被害、十勝沖

都市域氾濫解析モデル活用ガイドライン（案）－都市浸水－

国土技術政策総合研究所資料 第 202 号 2004 年 11 月
国土技術政策総合研究所水害研究室長 中村 徹立
主任研究員 佐々木淑充
研究官 水草 浩一

要旨

本ガイドラインは、都市浸水想定区域の検討、都市浸水想定区域図の作成等において必要とされる氾濫解析モデルの利活用に関する標準的な技術事項を示すものである。

キーワード：下水道管路網モデル，内水氾濫解析

下水汚泥焼却灰の建設資材利用高度化のための焼却灰改質方法 と安全性評価に関する共同研究報告書

共同研究報告書 第311号 2004年3月
独立行政法人土木研究所 材料地盤研究グループ（リサイクル） 上席研究員 鈴木 譲*
主任研究員 南山瑞彦*
研究補助員 宮本綾子
株式会社クボタ 古北 克
武内晴彦
野邑尚史
テイヒュー株式会社 瀬戸 博
新田智博
(*前任者)

要旨

下水汚泥焼却灰の有効利用推進を目的に、下水汚泥を溶融・球状化させて得られる球形灰を耐酸性コンクリートの材料に適用する検討を行った。テストプラントによる球形灰の製造及び特性分析、さらに耐酸性コンクリートの作成及び特性の検証実験を実施し、実用化に向けた評価を行った。球状化処理により焼却灰は低吸水性で流動性の高い球形灰へ改質され、またその重金属溶出は「鉄粉添加＋高温捕集」により土壤環境基準以下に抑制できた。また、耐酸性コンクリートは製品として求められる強度及び耐酸性を有していた。今後は、耐酸性コンクリートとして利用した場合のRC構造としての設計方法や力学的特性について把握することが必要である。

キーワード： 下水汚泥焼却灰、建設資材利用、球形灰、耐酸性コンクリート、重金属

下水汚泥焼却灰の建設資材利用高度化のための焼却灰改質方法 と安全性評価に関する共同研究（2）報告書

共同研究報告書 第312号 2004年3月
独立行政法人土木研究所 材料地盤研究グループ（リサイクル） 上席研究員 鈴木 譲*
主任研究員 南山瑞彦*
研究補助員 宮本綾子
栗田工業株式会社 江川由修
宮原健一
(*前任者)

要旨

下水汚泥焼却灰を多量に配合したコンクリート製品を開発することを目的として、灰の前処理方法と成型方法の最適化、灰および灰硬化体の物性調査と環境安全性に関する検討を実施した。灰硬化体の強度は原料となる灰により異なったが、灰から溶出する硫酸イオンが影響している可能性があり、二水石膏等の薬品を配合することにより強度が向上することがわかった。灰硬化体のからの六価クロムの溶出は、硫酸カルシウム等の添加により防止できた。灰硬化体の圧縮強度向上のためには加圧振動成型が有効であったが、この方法を用いた場合、耐久性を改善するために混和剤等の配合について検討することが必要であることが示された。

キーワード： 下水汚泥焼却灰、建設資材利用、コンクリート製品、重金属溶出

草木廃材の爆破装置の開発に関する共同研究報告書

共同研究報告書 第 305 号 2004 年 7 月
独立行政法人土木研究所 材料地盤研究グループ（リサイクル） 上席研究員 鈴木 譲
主任研究員 落 修一
月島機械株式会社 参事 杉浦 実
参事 釜谷武志*
主任 越智 崇
(*前任者)

要旨

土木研究所は、これまでに草木廃材に蒸煮・爆破を施すことにより下水汚泥との嫌気性発酵からメタンガスを回収できることや緑化・吹付け材として良好な性状を示すことを明らかとしてきた。これらの技術を実用化していくためには蒸煮・爆破装置主要機器の開発と設計図書の整備および設置使用に係る法令・基準、運転操作などに関する研究成果をとりまとめたものである。

キーワード： 爆破、蒸煮、バイオマス、木質、草木、廃材

有機性排出物保有熱量の高度電力変換技術に関する調査・共同研究報告書

共同研究報告書 第 308 号 2004 年 10 月
独立行政法人土木研究所
株式会社クボタ
月島機械株式会社
石川島播磨重工業株式会社
独立行政法人産業技術総合研究所

要旨

廃棄物の資源化・リサイクルの推進は社会の強い要請であり、また、エネルギー問題は地球温暖化に直結する重要な課題である。

下水処理場では、汚水の処理や汚泥の処理、資源化のために大量の電力、燃料を必要としている。本共同研究は、下水処理場におけるエネルギーの生産・利用を推進すべく、下水汚泥が有する有機物としてのエネルギーを電力に代表される利用可能なエネルギーへ高効率で変換できるシステムの開発を行ったものである。研究では、既存の焼却プロセスに替わる新たなエネルギー生産型の燃焼技術を開発することを目的に、燃焼・エネルギー抽出システムに関する F S 調査、燃焼技術および燃焼ガス精製技術等からなるプロセス技術開発、プラントの試設計およびシステムの評価を行った。本報告書は、これらの成果を取りまとめたものである。

キーワード： 下水汚泥、バイオマス、エネルギー、加圧流動床炉、焼却、地球温暖化

付録2. 平成17年度 下水道関係調査研究課題表(国土技術政策総合研究所)

担当研究室	調査研究課題名	期間 (年度)
下水道研究部 下水道研究室	1. 最適都市雨水対策確立手法に関する調査 2. 雨天時における路面排水負荷対策に関する調査 3. ディスポーザー対応型下水道の技術基準策定に関する調査 4. 管路施設の長寿命化に関する調査 5. 社会資本形成における下水道投資戦略に関する調査 6. G I Sを活用した流域汚濁負荷情報データベースの構築に関する調査 7. 道路陥没を予防するための下水道管路の適正管理手法に関する研究	16-18 16-18 16-18 17-19 14-17 16-18 17-19
下水処理研究室	8. 下水再生水利用の衛生学的安全性評価手法に関する調査 9. N2O等温室効果ガス排出の観点から見た下水処理のL C Aに関する調査 10. 再生水利用施設の計画および維持管理に関する調査 11. 下水処理場における重金属類等の除去に関する調査 12. 生態系の観点から見た下水再生システムのあり方に関する研究 13. 河川等環境中における化学物質リスクの評価に関する研究 14. 土壌・地下水汚染が水域に及ぼす影響に関する研究 15. 新たな衛生指標の下水処理への適用性の評価	17-19 17-19 17-19 17-19 13-17 15-17 16-18 17-19
総合技術政策研究センター 建設システム課	16. 下水道事業の設計積算の効率化のための体系化に関する調査	14-17
危機管理技術研究センター 水害研究室	17. 都市域における流出・氾濫モデルの開発に関する調査	14-17

付録3. 平成17年度 下水道関係調査研究課題表(土木研究所)

担当研究チーム	調査研究課題名	期間 (年度)
材料地盤研究グループ リサイクルチーム	- 下水汚泥中内分泌かく乱物質の汚泥処理過程および土壌環境中での挙動に関する調査 - 下水汚泥を活用した有機質廃材の資源化・リサイクル技術に関する調査 - 下水汚泥焼却灰の無機質特性に着目した有効利用方法に関する調査 - 病原性微生物の同定方法および挙動に関する研究 - 底泥中の有機性有害物質の実態および挙動に関する研究 - 下水処理水再利用のための残存物質の高度除去手法に関する研究 - 草木廃材の緑化資材としての有効利用技術に関する研究 - アジアモンスーン地域の下処理施設における病原微生物の消長に関する研究 - 水環境中における薬剤耐性菌の実態に関する研究	14-17 14-17 16-19 11-17 14-17 14-17 15-17 15-18 16-18
水循環研究グループ 水質チーム	- 下水道における微量化学物質の評価に関する調査 - 下水道による水環境への影響に関する調査 - 水生生態系からみた河川水質の評価に関する調査 - 底泥－水間の物質移動に関する調査 - 都市排水由来の化学物質の水環境中での挙動に関する研究 - バイオアッセイによるエストロゲン様物質の指標に関する研究 - 水環境の評価に関する調査 - 都市排水に含まれるエストロゲン様物質が魚類に及ぼす影響と指標化に関する研究 - 遺伝子解析手法を用いた環境ストレスの検出技術に関する基礎的研究 - 河川水質浄化施設の評価と改善に関する調査 - 河川底質のダイオキシン類対策に置けるモニタリング技術の実用化研究 - 水環境中の化学物質が及ぼす生態影響に関する研究 - リスク管理型都市水循環系の構造と機能の定量化 - 難分解性溶存有機物の由来と水域挙動に関する研究 - 公共用水域の人畜由来汚染による健康影響リスクの解明と規制影響分析に関する研究	13-17 13-17 12-17 12-17 13-17 13-17 13-17 14-17 14-18 15-17 15-17 15-19 14-18 17-19 17-19
材料地盤研究グループ 土質チーム	下水道管渠の合理的維持・補修のための作用土圧の評価に関する調査	16-18
耐振研究グループ 振動チーム	下水道施設の変形量を考慮した液状化対策工の設計法に関する試験調査	16-18

国土技術政策総合研究所資料
TECHNICAL NOTE of NILIM
No.263 July 2005

土 木 研 究 所 資 料
TECHNICAL NOTE of PWRI
No.3976 July 2005

編集・発行 © 国土技術政策総合研究所
 © 独立行政法人 土木研究所

本資料の転載・複写の問い合わせは

国土技術政策総合研究所 企画部 研究評価・推進課
〒305-0804 茨城県つくば市旭1番地 電話 029-864-2675

独立行政法人 土木研究所 企画部 業務課
〒305-8516 茨城県つくば市南原1-6 電話 029-879-6754