

# 下水処理水への担体処理の適用によるエストロンの除去および藻類増殖能の低減に関する研究

## Research on removal of estrone and reduction of algal growth potential in sewage treatment plant effluent by aerobic suspended carrier biofilm process

岡安祐司

Yuji OKAYASU

### 1. はじめに

わが国の下水道は、平成 20 年度現在、し尿および生活雑排水を処理する類似の事業も含めると、汚水処理人口普及率は 84.8%に達しており、量の面では充足してきている。また、質の面では、汚水の収集・処理、雨水の排除、さらには処理の高度化など、時代の変化に伴う社会的なニーズに応じて機能の充実を図りながら、公衆衛生の向上、生活環境の改善、さらには都市の健全な発達、公共用水域の水質保全に貢献してきている。しかし、

- ・ 下水道の普及により人工系統の水量が増加することに伴って、河川本流の低水維持水量が減少し、水利権問題とも抵触する例が出ており、下水処理水の再利用を積極的に進める必要がある一方で、下水処理水が再生水として利用されている割合は、平成 17 年度現在 1.4%程度にとどまっている。
- ・ 公共用水域の水質環境基準達成率は、水質汚濁防止法で制定された 1970 年以来、BOD を指標とした河川環境の改善はみられるものの、COD を指標とした海域や湖沼の水質環境基準達成率は、1970 年代以降いっこうに改善がみられない。
- ・ 下水処理水には発ガン性物質や内分泌攪乱化学物質に代表される有害化学物質が存在しているが、これらの物質の評価・管理手法について確立されていない。

などの課題が、今日存在している。

本研究は、これらの問題のうち、下水処理水中に残存する内分泌攪乱化学物質の問題、下水処理水の再生水利用の妨げの一因となっている藻類増殖の問題を考察し、これらの問題に対する解決策を提示するものである。

### 2. 下水処理水中の内分泌攪乱化学物質に関する問題

#### 2. 1 内分泌攪乱化学物質問題

1962 年、Rachel Carson<sup>1)</sup>による著書 *Silent Spring* によって、化学物質の環境中における残留性

や、野生生物への影響がはじめて認識されて以降、数多くの調査研究が実施されている。これらの中で、多くの地域の多種類の野生生物種で性器異常、生殖異常が発見され、環境中に放出された化学物質の曝露を受けたことが原因ではないかと考えられるようになり、このような作用を示す一連の化学物質は、内分泌攪乱化学物質や環境ホルモンなどと呼ばれるようになった。下水道分野との関連では、1980 年代に英国の下水処理場放流先河川から、雌性化した雄のローチが頻繁に発見されたことを契機に、河川水中や下水処理水中の内分泌攪乱化学物質の実態把握が行われてきた。UK Environment Agency (英国環境庁) やわが国の環境省、国土交通省による調査結果を総合すると、一般環境中の濃度に比較的近い濃度で魚類に対して内分泌攪乱作用を有することが推察される物質は 6 物質あり、それらの物質の、わが国の下水処理場の放流水中の濃度は表-1 に示す範囲であった。わが国では、水質汚濁に係る環境基準のうち、人の健康の保護に関する環境基準が

表-1 魚類に対して、一般環境中の濃度に比較的近い濃度で内分泌攪乱作用を有することが推察される物質の存在実態

物質名	予測無影響濃度 PNEC * [ng/L]	下水処理水中の濃度 (最大値) MEC ** [ng/L]	MEC / PNEC [-]
ノニルフェノール	608 <sup>2)</sup>	2600 <sup>4)</sup>	4.3
4-t-オクチルフェノール	9923 <sup>2)</sup>	500 <sup>5)</sup>	0.05
ビスフェノール A	24700 <sup>2)</sup>	520 <sup>5)</sup>	0.02
17β-エストラジオール	1 <sup>3)</sup>	11 <sup>6)</sup>	11
エストロン	3 <sup>3)</sup>	180 <sup>6)</sup>	60
17α- エチニルエストラジオール	0.1 <sup>3)</sup>	0.28 <sup>7)</sup>	2.8

\* Predicted No Effect Concentration,

\*\* Measured Environmental Concentration

設定されている有害物質の一律排水基準は、環境基準値の 10 倍に設定されていることから、この排水基準値の設定の考え方に倣い、内分泌攪乱作用を有することが推察される物質の水環境中での予測無影響濃度の 10 倍を下水処理場の放流水の水質管理目標値と設定すると、17β-エストラジールについては、最大値がわずかに、エストロンについては最大値が大幅に水質管理目標値を超過しており、特にエストロンに関しては下水処理場放流水中の濃度を低減する必要があると考えられる。

## 2.2 標準活性汚泥法における 17β-エストラジオールおよびエストロンの除去特性

2.1 では、下水道における内分泌攪乱化学物質への対応として、下水処理水中の 17β-エストラジオールおよびエストロンの低減の必要性が示されたことから、まず、わが国の下水処理場で最も一般的に下水処理方法として採用されている、反応タンクの水理的滞留時間 (HRT) を 8 時間に設定した標準活性汚泥法における 17β-エストラジオールおよびエストロンの除去特性を、実下水を用いた実験プラントを連続運転し把握した。また、その実験プラントで馴養された活性汚泥を用いて、反応タンクおよび最終沈殿池を再現する回分実験を行い、除去効率に影響する因子について検討を行った。その結果、

- (1) 連続実験の二次処理水中の溶解性 17β-エストラジオール (D-E2) 濃度は、N.D.~7.2ng/L の範囲であり、予測無影響濃度 1ng/L の 10 倍 (10ng/L) を超える値は観測されなかった。
- (2) 連続実験の二次処理水中の溶解性エストロン (D-E1) 濃度は、N.D.~152ng/L の範囲であり、予測無影響濃度 3ng/L の 10 倍 (30ng/L) を大きく超える値が観測された。運転条件と除去率との関係を見ると、固形物滞留時間 (SRT) が 4.5~10.1 日の範囲では、固形物滞留時間 (SRT) と除去率の間には、明確な関係は見出されなかった。一方、反応タンク流出液中の溶存酸素濃度が一定程度 (4mg/L 程度) 以上の場合には、二次処理水中の溶解性エストロン濃度が 30ng/L 以下に保たれており、反応タンク流出液中の溶存酸素 (DO) 濃度を高く維持することで、溶解性エストロン (D-E1) 濃度を低減できる可能性が示唆された。
- (3) 反応タンクの流下過程を再現した回分実験では、溶解性エストロン (D-E1) 濃度は、硝化の進行の有無に関わらず、易分解性有機物濃度が

減少し、酸素消費速度が低下した結果、溶存酸素 (DO) 濃度が上昇した時点ではじめて低下する傾向が見られた。

- (4) 最終沈殿池における無酸素条件、嫌気条件を再現した回分実験では、溶解性 17β-エストラジオール (D-E2)、溶解性エストロン (D-E1) の濃度が増加する傾向が見られた。特に溶解性エストロン (D-E1) に関しては、その傾向が著しく、易分解性有機物が分解された後に、活性汚泥が、溶存酸素 (DO) 濃度が制限された無酸素条件または嫌気条件下に置かれると、溶解性 17β-エストラジオール (D-E2)、溶解性エストロン (D-E1) が増加する何らかの機構 (活性汚泥からの脱着・放出、抱合体エストロゲンの脱抱合、代謝物の還元等) が存在する可能性が考えられた。

以上より、下水処理場で、処理水中の 17β-エストラジオールおよびエストロンの濃度の低減を図るためには、反応タンク末端部分や最終沈殿池における酸化還元条件の適切な管理が重要であると考えられる。

## 2.3 標準活性汚泥法の二次処理水への担体処理を適用によるエストロンの除去

2.2 で示したように、標準活性汚泥法では、最終沈殿池における無酸素あるいは嫌気条件下においてエストロンが生成してしまうため、通常の管理では、下水処理水 (二次処理水) 中のエストロン濃度を予測無影響濃度の 10 倍以内に安定して低減することは難しく、何らかの根本的な対策を実施する必要があると考えられる。本章では、標準活性汚泥法の後段に、図-2 に示すように急速砂ろ過法、および水理的滞留時間 (HRT) を 2 時間に設定した、好気性の微生物保持担体を用いた生物膜法 (担体処理) を適用し、エストロンの除去を試みた。

実験期間中に観測された溶解性エストロン (D-E1) 濃度の累積頻度分布を図-3 に示す。二次処理水に比べて、急速砂ろ過法を適用したろ過水では溶解性エストロン (D-E1) 濃度が低減されていた。さらに、担体処理を加えた担体処理水中の溶解性エストロン (D-E1) 濃度は、急速ろ過水より低減しており、Environment Agency (英国環境保護庁) によって提案されている予測無影響濃度と同等程度以下にまで低減されていた。本方式は、標準活性汚泥法の下水処理水中のエストロン濃度を低減する対策として有効であると考えられる。

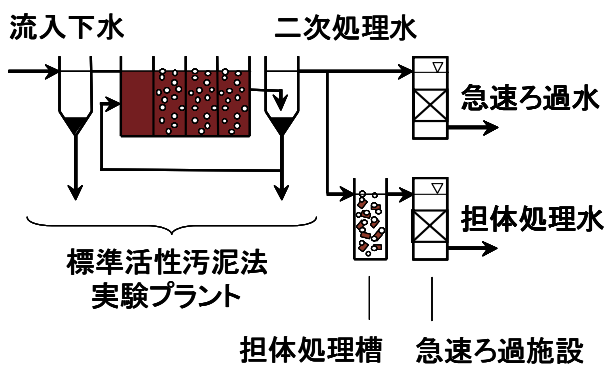


図-2 連続実験の概要

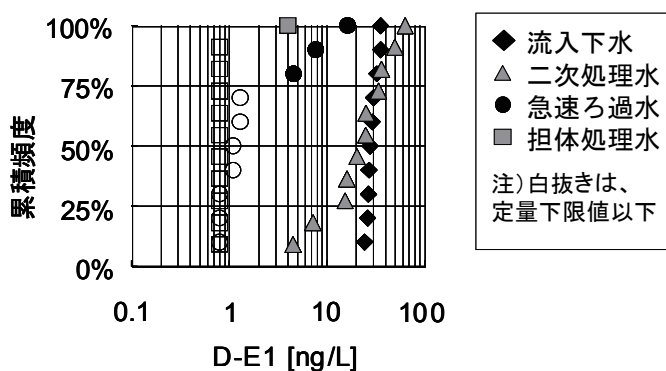


図-3 溶解性エストロン(D-E1)濃度の頻度

また、急速ろ過水、担体処理水を用いた魚類曝露実験では、担体処理水を用いた場合のみ、水槽壁面上の藻類発生が抑制されていた。この現象を応用した藻類発生抑制技術の開発に関して、次章にて扱うこととする。

### 3. 下水処理水再利用における藻類増殖の問題

#### 3.1 下水処理水再利用の状況

わが国では、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生水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再生水が利用されるようになってきている。

平成17年度現在、全国2,068箇所の下水処理場から年間約137億 $m^3$ の下水処理水が放流されているが、このうち241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 $m^3$ 、その割合は放流量の1.4%に満たない状況である。都市内における貴重な水資源確保の観点、さらには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、再生水の重要性は今後ますます高

まっていくことが予想されるが、調査研究すべき課題が多く残されており、その一つとして、「再生水が藻類等の水生生物に与える影響、特に再生水の水質や修景・親水用水施設の構造と藻類発生状況の関係、また、発生藻類の種や発生量と不快感の関係、さらには効果的な藻類発生抑制方法等についての定量的な評価」が挙げられている。そこで、本研究では、下水処理水への担体処理の適用による藻類発生抑制手法の開発を目的とした。

#### 3.2 標準活性汚泥法の二次処理水への担体処理の適用による藻類発生抑制

2.3の検討で用いた図-2の実験装置を用いて、擬似嫌気好気運転を実施し、二次処理水中の全窒素濃度を15mg/L程度、全りん(T-P)濃度を0.4mg/Lにまで低減した標準活性汚泥法の後段に好気条件の微生物担体槽と急速ろ過装置を追加することにより、処理水の藻類増殖能を低減することを試みた。なお、窒素、りんに加えて、自然湖沼において藻類増殖の制限因子となっている事例が報告されている鉄<sup>8)</sup>、マンガ<sup>9)</sup>についても水質分析を実施した。

急速ろ過水および担体処理水を、夏季に水理学的滞留時間(HRT)を14日に設定した屋外の模擬修景池に通水し藻類発生状況を比較したところ、担体処理水を通水した模擬修景池では、急速ろ過水を通水した模擬修景池と比較すると、顕著に浮遊物質濃度、クロロフィル $a$ 濃度が低減される結果となった。

また、急速ろ過水および担体処理水を、夏季に、屋外の簡易な模擬せせらぎ水路へ通水する実験も実施し、担体処理水を通水した模擬せせらぎ水路では、急速ろ過水を通水した模擬せせらぎ水路と比較すると、顕著に壁面に付着した固形物密度、クロロフィル $a$ 密度が低減される結果となった。担体処理水中の窒素、りん、鉄濃度は、急速ろ過水中の濃度と同程度であったが、マンガ<sup>9)</sup>濃度は顕著に低下しており、マンガ<sup>9)</sup>が藻類の生長を制限する因子となっている可能性が考えられた。

#### 3.3 超高度処理水への担体処理の適用による藻類発生抑制

凝集剤添加硝化脱窒法により全窒素(T-N)濃度が6mg/L以下、全りん(T-P)濃度が0.2mg/L以下程度にまで低減された下水処理水に対して、さらに結合法微生物固定化担体を添加した反応槽における好気処理および急速ろ過を行うことにより、有機物や微量金属の酸化・不溶化除去を行い、下水処理水放流先の池や水路付着藻類増殖を低減することを試

みた。下水処理水および担体処理を付加した処理水を、夏季に、屋外模擬池および模擬水路に連続的に通水した結果、表-2、表-3 に示すように、担体処理を付加することにより、藻類発生が抑制されることが確認された。また、担体処理水を通水した模擬修景池および模擬せせらぎ水路において、藻類発生が抑制される制限因子は、表-2 に示すように、下水処理水に担体処理を加えることにより効率的に除去されるマンガンであると考えられた。

表-2 担体処理実験における水質測定結果

項目	単位	下水処理水	担体処理水
水温	℃	26.4~27.3	25.7~28.1
pH	—	7.1~7.2	8.0~8.2
溶存酸素 (DO)	mg/L	2.7~3.4	4.0~6.8
浮遊物質 (SS)	mg/L	1.2	1.0
溶解性有機炭素 (DOC)	mg/L	3.6	3.7
全窒素 (T-N)	mg/L	5.8	6.0
全りん (T-P)	mg/L	0.19	0.19
総鉄 (T-Fe)	μg/L	24.1	20.0
総マンガン (T-Mn)	μg/L	7.2	0.4

表-3 模擬修景池実験における水質測定結果

項目	単位	下水処理水を通水した模擬修景池	担体処理水を通水した模擬修景池
水温	℃	24.6~33.0	25.0~33.3
pH	—	9.2~10.5	9.7~10.5
溶存酸素 (DO)	mg/L	8.2~20.0	8.8~18.4
浮遊物質 (SS)	mg/L	810	24
クロロフィル <i>a</i>	μg/L	9784	156

表-4 模擬水路実験における水質測定結果

項目	単位	下水処理水を通水した模擬修景池	担体処理水を通水した模擬修景池
水温	℃	27.7~35.1	28.1~35.2
pH	—	7.6~9.7	8.3~10.0
溶存酸素(DO)	mg/L	5.5~8.1	7.0~8.5
固形物(TS)	g/m <sup>2</sup>	76.6	37.6
クロロフィル <i>a</i>	mg/m <sup>2</sup>	505	298

#### 4. 総括と結論

##### 4. 1 下水処理水中の内分泌攪乱化学物質に関する問題

UK Environment Agency (英国環境庁) が提案している予測無影響濃度を大きく超える濃度で下水処理水中に残存するエストロンは、標準活性汚泥法の後段に、水理的滞留時間を 2 時間に設定した微生物保持担体を投入した好気槽および急速砂ろ過装置を設置することにより、予測無影響濃度と同程度以下に低減できることがわかった。

##### 4. 2 下水処理水再利用における藻類増殖の問題

標準活性汚泥法の後段に、水理的滞留時間を 2 時間に設定した微生物保持担体を投入した好気槽および急速砂ろ過装置を設置することにより、下水処理水の藻類増殖能を低下できることがわかった。藻類増殖を抑制する因子は、微生物保持担体を投入した好気槽で酸化・不溶化され、急速砂ろ過装置でろ過により除去されるマンガンであると考えられる。今後は、本技術の実下水処理施設への適用、エストロンやマンガンの除去、藻類発生抑制機構の解明を行う予定である。

#### 参考文献

- 1) Rachel Carson: *Silent Spring*, 1962
- 2) 環境省: 化学物質の内分泌かく乱作用に関する環境省の今後の対応方針について—ExTEND2005—, 2005
- 3) Environment Agency (UK): *Research and Development Technical Report P2-T04/1*, 2002
- 4) K. Komori *et. al.*; *Water Science and Technology*, **53 (11)**, 27-33, 2006
- 5) 国土交通省: 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) に関する調査の結果について, 2001
- 6) K. Komori *et. al.*; *Water Science and Technology*, **50 (5)**, 93-100, 2004.
- 7) 小森ほか: 下水試料中の合成ホルモンの測定, 下水道研究発表会年会講演集, **42**, 61-63, 2005
- 8) 矢木ほか: 霞ヶ浦における藻類増殖の制限物質, 水質汚濁研究, **10**, 115-122, 1987
- 9) 多田千佳: 富栄養化湖沼の藻類の遷移に及ぼす底泥の影響とその環境因子, 筑波大学大学院農学研究科博士論文, 2002