SRT制御による下水中内分泌かく乱物質の除去

齋野 秀幸* 山縣 弘樹* 中島 英一郎*
重村 浩之** 鈴木 穰***

Removal of Endocrine Disrupters in Wastewater by SRT Control

Hideyuki SAINO*, Hiroki YAMAGATA*, Hideichiro NAKAJIMA*
Hiroyuki SHIGEMURA**, and Yutaka SUZUKI***

* National Institute for Land and Infrastructure Management, Asahi 1, Tsukuba, Ibaraki 305-0804 Japan

** Niigata National Highway Work Office, 2-1-6, Minami-Sasaguchi, Niigata, 950-0912 Japan

*** Public Works Research Institute, 1-6, Minamihara, Tsukuba, Ibaraki, 305-8516 Japan

Abstract

Recently, the effects of endocrine disrupters on human health and ecosystem have been of great concern. In this research, we investigated the fate of endocrine disrupters in the wastewater treatment process. Moreover, we studied how to reduce levels of endocrine disrupters by controlling SRT (solids retention time) which is one of the important factors in the wastewater treatment process. Finally, it was clarified that 17β -estradiol (E2) is decomposed by activated sludge, and nonylphenol is adsorbed and removed by activated sludge. Moreover, in the case of a longer SRT process, E2 is decomposed in the earlier stage of the process, and it is estimated that about 10 days or 12.5 days is required for microorganisms that decompose E2 or E1 to grow. In the case of a shorter SRT, E2 and estroene (E1) levels tended to increase in aerobic tanks. One of the reasons is that removal rates of the E2 conjugate, E2 and E1 were different in each SRT, that is, the E2 conjugate was decomposed more rapidly than E2 and E1 so E2 and E1 were increased.

Key words : 17β -estradiol, nonylphenol, SRT, wastewater treatment process

1. はじめに

近年、河川中に微量に存在する内分泌かく乱物質（環境ホルモン）による生態系への影響（河川中の水生生物のメス化等）が懸念されている。建設省の平成10～12年度の内分泌かく乱物質に関する実態調査¹⁾によれば、下水処理場の放流水中からも、ノニルフェノール（以下、NP）や 17β エストラジオール（以下、E2）等の内分泌かく乱物質が検出されているため、下水処理場でも内分泌かく乱物質を極力除去していくことが望まれる。また、平成13年8月には環境省も正式にNPが環境ホルモンであると断定し、内分泌かく乱物質の問題はさらに注目を浴びているところである。

そのため、これまでに下水処理による内分泌かく乱物質の除去に関して様々な知見が蓄積されているところである。

NPは生物処理工程において除去率90%以上と、概ね除去されている^{1～7)}。E2は研究によって異なるものの、生物処理工程において65～90%程度が除去されている^{1, 2, 4, 5, 8)}。また、個々の内分泌かく乱物質だけでなく、エストロゲン活性として見てみても、生物処理工程では90%程度の除去率が保たれている⁹⁾。さらに、一般の生物処理工程の後段に高度処理を施すことによって除去率を高められることもわかっており、凝集剤添加およびその後のろ過処理によってNPの、オゾン処理および活性炭処理によってE2およびNPの除去率を高められることが明らかとなっている^{4, 10)}。

しかし、多くの下水処理場では高度処理施設を備えていないため、それらの処理場で内分泌かく乱物質を除去するには生物処理工程を適切に運転管理することが重要となる。しかし、現在のところ、生物処理工程内における内分泌かく乱物質の挙動に関する知見はなく、明らかになって

* 国土技術政策総合研究所下水道研究部 〒305-0804 つくば市旭1

** 国土交通省北陸地方整備局新潟国道工事事務所 〒950-0912 新潟市南笹口2-1-65

*** 独立行政法人土木研究所材料地盤研究グループ 〒305-8516 つくば市南原1-6

いない。そこで本調査では、まず下水処理場での内分泌かく乱物質の挙動を調査した。

さらに、これまでの調査から、SRT（固形物滞留時間）を長めに確保することによって内分泌かく乱物質の除去率が高くなる傾向が示唆されている^{1)・5)}。また、E2に関しては固液二相数値シミュレーションから、MLSSを高く保持したときに除去率が高まること示されている¹⁾。そのため、本調査ではSRTに着目して、生物処理工程における内分泌かく乱物質の除去について調査したので報告する。

2. 研究方法

2.1 生物処理工程での内分泌かく乱物質の挙動 (RUN1)

生物処理工程での内分泌かく乱物質の除去方法を検討するにあたり、生物処理工程における内分泌かく乱物質の挙動について調査した。

本調査では、嫌気-無酸素-好気法（以下、A₂O法）について、実下水を用いたパイロットプラントを用いて内分泌かく乱物質の挙動や除去性能を調べた。使用したパイロットプラントの概要をFig. 1に示す。なお、このパイロットプラントでは、脱窒促進のために可溶化された最初沈殿池汚泥の遠心脱水ろ液を無酸素槽に投入している。運転諸元をTable 1に示す。試料はスポットサンプルとし、最初沈殿池流出水、および生物反応槽流出水の遠心分離ろ液をサンプルとした。

対象とした内分泌かく乱物質は下水処理水からの検出率が高いE2、NPとした。また、NPは流入下水中に含まれるノニルフェノールエトキシレート（以下、NPEO類）が生物処理工程でNPに形態変化するとされていることから¹⁾NPEO類も測定し、酸化エチレン鎖の重合度によりnが4以下のもの（以下、NPEO）及び5以上のもの（以下、NPnEO）に分けて測定した。分析は「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」¹²⁾に基づき、E2はELISA法、NPはGC/MS法、NPEO類はHPLC法で行った。

2.2 SRTによる内分泌かく乱物質除去への影響 (RUN2)

国土交通省の実態調査¹⁾では、SRTと除去率との関係が示されており、SRTが長い場合は内分泌かく乱物質が除去されているものの、SRTが短い場合には除去率にばらつきが生じることが示唆されている。そこで、本調査ではRUN1

の結果から内分泌かく乱物質の処理機構を踏まえた上で、SRTと内分泌かく乱物質の関係について調査することとした。

本調査は実下水を用いた反応槽容量10m³の標準活性汚泥法の下水処理パイロットプラント（Fig. 2）を用い、同一流量（1.25m³・h⁻¹、HRT8h）のもとでSRTを8.3d、10d、12.5dと変えて、12月11日から翌年の3月8日にわたって行った。なお、本調査ではSRTを調整するにあたり、それぞれのSRTに設定してから1ヶ月強の馴致期間をおいた。運転条件及び一般水質項目をTable 2、3、4に示す。試料はFig. 2に四角囲いで示してある「Influent」、「Primary Effluent」、「Reactor 1」、「Reactor 2」、「Final Effluent」、「Return Sludge」から採取した。試料は4時間ごとの24時間混合試料とし、Reactor 1、Reactor 2、Return Sludgeは採水するたびに遠心分離し、それぞれを上澄水、濃縮汚泥に分離した上で、最終的には上澄水ごと、濃縮汚泥ごとに混合試料を作成した。

分析項目は「2.1 生物処理工程での内分泌かく乱物質の挙動 (RUN1)」と同様にNP、NPEO、NPnEO、E2としたが、ELISA法で測定したE2は類似の物質も合わせて測定するなどの問題があるために¹³⁾LC/MS/MSでも測定した。更にE2が分解してエストロン（以下、E1）となり、E1もホルモン活性を有することから^{1・14)}、E1も対象物質とした。

Fig. 2 Pilot Plant (Conventional Activated Sludge Process)

Table 2 Operating Conditions of Pilot Plant (RUN 2)

Reactor Volume	2m ³ × 5
Flow Rate (m ³ ・d ⁻¹)	30.0
HRT (h)	8.0
SRT (d)	8.3, 10, 12.5
Return Sludge Ratio	0.43
Water Temperature (°C)	11.0–14.2

Table 3 Conditions of Each Reactor (RUN 2)

	Temperature (°C)	pH	DO (mg・l ⁻¹)	MLSS (mg・l ⁻¹)	MLVSS (mg・l ⁻¹)
SRT : 8.3 days (Dec. 11)	13.1	6.9	0.6		
		6.2	2.8	1,490	1,220
SRT : 10 days (Feb. 1)	11.0	6.6	2.3		
		6.7	5.0	1,800	1,520
SRT : 12.5 days (Mar. 8)	14.2	6.7	1.1		
		6.3	4.8	1,920	1,610

Fig. 1 Pilot Plant (A2O Process)

Table 1 Operating Conditions of Pilot Plant (RUN 1)

Process	A ₂ O Process
Reactor Volume	2.5m ³ × 4
Flow Rate (m ³ ・d ⁻¹)	24.1
HRT (h)	10.0
SRT (d)	12.4–17.4
Return Sludge Ratio	0.55
Internal Recycle Ratio	1.4
Water Temperature (°C)	11.6–17.0

Table 4 Water Qualities of Final Effluent (RUN 2)

	BOD (mg・l ⁻¹)	SS (mg・l ⁻¹)	T-N (mg・l ⁻¹)	T-P (mg・l ⁻¹)
SRT : 8.3 days (Dec. 11)	135	97	34	4.0
	9	10	18	1.8
SRT : 10 days (Feb. 1)	106	52	29	3.0
	7	7	17	1.8
SRT : 12.5 days (Mar. 8)	109	46	31	3.3
	14	7	12	1.8

Fig. 3 Removal Ratio of Endocrine Disruptors (RUN 1)

測定は下水試験方法¹⁵⁾に準じてGC/MS法, HPLC法, ELISA法で行い, E2はLC/MS/MS法でも測定した。E1はLC/MS/MS法でE2と同時に測定した。なお, LC/MS/MS法も下水試験方法¹⁵⁾に準じた。

3. 結果と考察

3.1 生物処理工程での内分泌かく乱物質の挙動 (RUN1)

内分泌かく乱物質の除去率をFig. 3に示す。この図では, 生物処理工程での内分泌かく乱物質の除去率, すなわち初沈流出水 (Primary Effluent) 中の内分泌かく乱物質濃度に対する, 生物反応槽流出水の遠心分離液中の内分泌かく乱物質濃度の割合を示している。また, 可溶化された最初沈殿池汚泥の遠心脱液水中の内分泌かく乱物質は初沈流出水中の内分泌かく乱物質と比べて移動量が1/10以下であったため, 計算の際考慮しなかった。なお, Fig. 3には調査を行った4回の平均値及び最大, 最小値を記載している。E2とNPEOは平均値で除去率90%以上と安定して除去されていたが, NPはやや低く88%となっていた。国土交通省の実態調査 (中央値でE2は77%, NPは97%) ¹⁾と比較すると, このプラントではNPの除去率が低いものの, E2の除去率は高いものであった。

Fig. 4, 5にはE2及びNP類 (以下, NPs) のプラント内の物質収支を示す。なお, NPsはNPとNPEO類のNP換算値の和とし, NPEOは全量がノニルフェノールモノエトキシレートであるとして, NPnEOは全量がノニルフェノールペンタエトキシレートであるとして計算した。ただし, NPsはノニルフェノキシ酢酸の形としても存在することが知られているが¹⁾, 本調査を行った時点では汚泥中ノニルフェノキシ酢酸の測定方法が確立していなかったため, 測定しなかった。単位は $\text{mg} \cdot \text{h}^{-1}$ で, 一定時間あたりに通過したE2, またはNPs量を示し, 以下の式によって算出した。

$$\text{水中移動量} = E2\text{濃度}(\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}) \times \text{水量}(\text{l} \cdot \text{hr}^{-1})$$

$$\begin{aligned} \text{汚泥中移動量} &= E2\text{濃度}(\text{mg} \cdot \text{mgSS}^{-1}) \\ &\times \text{MLSS濃度}(\text{mgSS} \cdot \text{l}^{-1}) \times \text{水量}(\text{l} \cdot \text{hr}^{-1}) \end{aligned}$$

この図では, 矢印の太さがE2またはNPの移動量に対応している。また, 矢印は遠心分離後の上澄水と濃縮汚泥の合計から成り立っており, 色の濃い部分が濃縮汚泥, 色の薄い部分が上澄水に対応している。ただし, Return SludgeおよびInternal recycleも分けて測定しているが, ここではす

Fig. 4 Mass Balance of E2 ($\text{mg} \cdot \text{h}^{-1}$) (RUN 1) Fig. 5 Mass Balance of NPs ($\text{mg} \cdot \text{h}^{-1}$) (RUN 1)

べて汚泥中にあるものとして描いている。

Fig. 4からは, E2は汚泥中にはあまり含まれず, 活性汚泥により速やかに分解除去されているものと考えられた。ただし, 嫌気槽, 無酸素槽ではE2は除去されず, 好気槽において除去されることがわかった。一方, NPsは生物反応槽に流入した直後から汚泥中に移行し, 水中から除去されていた。汚泥中に移行したNPsはほとんど分解されことなく反応槽を循環し, 余剰汚泥とともに系外に引き抜かれることで除去されていた。NPが汚泥に吸着されるという点では, 過去の知見と一致するものであった¹⁶⁾。また, E2のような嫌気槽と好気槽の違いは特に見られなかった。

これらのことから, E2は水中, 特に好気槽で好気的微生物反応により分解されるが, NPsは急速に汚泥に吸着され, その後余剰汚泥とともに引き抜かれるものと考えられた。

3.2 SRTの内分泌かく乱物質除去への影響 (RUN2)

各試料中の内分泌かく乱物質濃度をTable 5に示す。表中の「N.D.」は検出下限値未満, イタリック体は定量下限値未満の値を表す。最初沈殿池では内分泌かく乱物質の除去

Table 5 Concentrations of Endocrine Disruptors (RUN 2)

		($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)					
		NP	NPEO	NPnEO	E2 (ELISA)	E2 (LC/MS/MS)	E1
SRT 8.3 (Dec. 11)	Influent	9.09	43.91	100.11	0.0508	0.0088	0.0222
	Primary Effluent	6.96	32.69	96.55	0.0498	0.0062	0.0208
	Reactor 1	1.02	3.17	15.30	0.0454	0.0095	0.0750
	Reactor 2	0.64	1.31	1.04	0.0068	N.D.	0.0005
	Final Effluent	0.42	1.20	0.54	0.0069	N.D.	0.0048
SRT 10 (Feb. 1)	Influent	8.14	26.08	54.48	0.0498	0.0093	0.0246
	Primary Effluent	4.68	26.28	57.23	0.0423	0.0086	0.0244
	Reactor 1	0.69	3.66	6.04	0.0331	0.0075	0.0540
	Reactor 2	0.56	2.22	2.12	0.0061	N.D.	0.0056
	Final Effluent	1.64	3.57	1.95	0.0064	N.D.	0.0072
SRT 12.5 (Mar. 8)	Influent	7.78	7.29	20.48	0.0580	0.0147	0.0228
	Primary Effluent	7.53	7.53	18.75	0.0547	0.0204	0.0237
	Reactor 1	1.65	1.99	1.92	0.0141	0.0041	0.0131
	Reactor 2	0.36	0.39	0.37	0.0051	N.D.	N.D.
	Final Effluent	0.25	0.64	0.00	0.0045	0.0015	N.D.

N.D. : not detected

Italic : more than detection limit, less than determination limit

は認められず、逆に上昇している場合もあった。SRT8.3dのReactor 1ではLC/MS/MS法によるE2、E1の濃度が上昇しており、特にE1の上昇は著しかった。ELISA法によるE2濃度は減少しているため、この原因は明らかでないが、E1に関しては小森ら¹⁷⁾も同様に、最初沈殿池から反応槽に入る際にE1が急に増加する傾向を見出している。

次に、各採水箇所での除去率をFig. 6～8に示す。これは流入水（Influent）に対する除去率を示しており、検出下限値未満は100%除去されているものとし、定量下限値未満は棒グラフの上に★印を付けた上で参考値として記載した。

NPでは、SRT12.5dのReactor 1におけるNP及びNPEOの除去率が低かった。これはSRT12.5dの場合（3月8日）の流入水中のNP及びNPEO濃度が低かったため、SRT10d、8.3dの場合と同程度の濃度まで除去されていたにも関わらず、見かけ上除去率が低くなってしまったものと考えられる。したがって、事実上SRTの違いによるNP及びNPEOの除去効率の差はみられず、いずれの場合でもReactor 1の段階で高い除去率が得られたと言える。NPnEOはSRTの違いによる顕著な差は見られなかった。

一方、E2（ELISA）はSRTに関わらず最終的にはほぼ除去されているものの、Reactor 1での濃度はSRTの長さによって差が生じ、SRTが短いほどReactor 1におけるE2濃度は高くなった。LC/MS/MS法によるE2分析では定量下限値未

Fig. 6 NPs Removal Ratio in the Different SRT Reactor (RUN 2)

Fig. 7 E2 Removal Ratio in the Different SRT Reactor (ELISA) (RUN 2)

★: more than detection limit, less than determination limit

Fig. 8 E2 & E1 Removal Ratio in the Different SRT Reactor (LC/MS/MS) (RUN 2)

満が多く、はっきりした結果は見られなかったが、ELISA法による分析と同様の傾向が出ており、Reactor 2では良好に除去されているものの、Reactor 1では除去率に差が生じた。これらのことから、SRTが長い方がE2は速やかに除去されるものと考えられる。また、SRTに関わらず反応槽2ではNP、E2ともにほとんどが除去されていた。

Fig. 9には、Fig. 4、5と同様の方法で、生物処理工程でのE2（LC/MS/MS）の物質収支を示す。この図からは、Reactor 2からの水中にはE2はほとんど含まれない点、及びReactor 1からの水中E2の移動量はSRT8.3dの場合で $0.017\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$ 、SRT12.5dの場合で $0.007\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$ となっており、SRTが長くなるにしたがってReactor 1からの水中のE2濃度が小さくなっている点がわかった。

この理由の一つとして、抱合体の影響が考えられる。すなわち、本調査では測定していないが、抱合体で存在するE2があるといわれており^{8), 13)}、本調査においても流入してきたグルクロン酸抱合体や硫酸抱合体がReactor 1内で活性汚泥へ吸着し分解され、分解生成物のE2が汚泥中に検出されたことが考えられる。また、SRTが長くなるにつれて汚泥中のE2移動量は減少しているが、これはSRTを長く取ると抱合体の分解とそれに続くE2の分解までがReactor 1の段階で行われるためであると考えられる。

Fig. 10には、E1に関してFig. 9と同様に物質収支を示す（ただし、スケールはFig. 9とは異なる。）。E1もE2と同様に、SRTが短いほどReactor 1でのE1の生成量が多い結果となったが、E2では汚泥中において増加しているのに対し、E1では特に水中（Water）においてその増加が見られた場合もあった。

前述したように小森らもこの傾向を見出しているが、この原因は明らかでない。なお、E1はE2に比べて分解速度が遅いという報告や¹⁸⁾、E1はE2に比べて生物処理工程での除去率が安定せず、低くなる可能性があるという報告¹⁹⁾があ

Fig. 9 Mass Balance of E2 ($\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$) (RUN 2)

Fig. 10 Mass Balance of E1 (mg·h⁻¹) (RUN 2)

り、また、E2抱合体およびE2の分解も影響して増加した可能性もあり、今後更に詳細な調査が必要である。

また、総じてE1はE2に比べて分解速度が遅く、活性汚泥（返送汚泥も含む。）に残留している傾向があったが、これは、E1はE2の分解生成物であるため^{11) 14)}、E2分解によるE1の生成があったものと考えられた。また、E1の分解速度はE2の分解速度よりも遅いといわれていること¹⁷⁾とも一致する結果となった。

Fig. 11には、NPsに関してFig. 9, 10と同様に物質収支を示す。NPsはFig. 5と同様にほぼすべてが汚泥中に存在していた。NPsでは汚泥中の移動量はほぼMLSSに比例していた。また、それ以外はNPs量とSRTとの関係については、顕著な影響は見られなかった。これは、前述の通り、NPは活性汚泥に速やかに吸着されて、その後引き抜かれると予想されたが、活性汚泥にはNPを吸着できる容量がまだ十分にあるため、SRTを変えても（すなわちMLSS濃度が変わっても）、吸着速度や吸着量について有意な差が見られなかったためと考えられる。今後はその吸着容量についての調査が必要と考えられる。なお、RUN2ではNPの流入量よりも引き抜き汚泥中のNP量の方が少ないため、NPもE2、E1と同様に活性汚泥により分解されている可能性がある。

ただし、NP関連物質は、水中ではその多くがノニルフェノキシ酢酸の形として存在することが言われているが⁷⁾、本調査ではこれを測定していないため、この影響を受けている可能性があり、今後の調査が必要であると考えられる。

4. E2, E1の挙動に関する微生物反応モデルによる解析

RUN2「SRTの内分泌かく乱物質除去への影響」では、E2, E1はReactor 2ではSRTによる除去率の差はないものの、Reactor 1ではその挙動に差が出ることとなった。このことを以下に示す簡易な微生物反応モデルにより考察した。

まず、E2抱合体の存在を仮定し、E2抱合体がE2に、E2がE1に、E1が他の物質に0次反応で分解されるものとした。

Fig. 11 Mass Balance of NPs (mg·h⁻¹) (RUN 2)

E2抱合体、E2、E1、及びその分解生成物のReactor 1における濃度をそれぞれC、E2、E1、O、それぞれを分解する微生物濃度をX_n、反応速度係数をk_nとすると、それぞれの物質のReactor 1における収支は式(1)~(3)のように表される。

$$\frac{dC}{dt} = \frac{Q}{V} C_{in} - k_1 X_1 - \frac{Q}{V} C = 0 \quad (1)$$

$$\frac{dE2}{dt} = \frac{Q}{V} E2_{in} + k_1 X_1 - k_2 X_2 - \frac{Q}{V} E2 = 0 \quad (2)$$

$$\frac{dE1}{dt} = \frac{Q}{V} E1_{in} + k_2 X_2 - k_3 X_3 - \frac{Q}{V} E1 = 0 \quad (3)$$

t: 時間 (T), Q: 流量 (L³T⁻¹), V: Reactor 1の容量(L³),
k_n: 反応速度係数 (MM⁻¹T⁻¹), X_n: 微生物濃度 (ML⁻³)
C_{in}, E2_{in}, E1_{in}: Reactor 1への流入濃度 (ML⁻³)

Reactor 1内でのE2, E1の増加量をそれぞれΔE2, ΔE1とすると、式(2), (3)より

$$\Delta E2 = \frac{Q}{V} (E2 - E2_{in}) = k_1 X_1 - k_2 X_2 \quad (4)$$

$$\Delta E1 = \frac{Q}{V} (E1 - E1_{in}) = k_2 X_2 - k_3 X_3 \quad (5)$$

と表すことができる。

一方、Fig. 9, 10から各SRTでのΔE2, ΔE1はTable 6のとおりである。なお、Table 6中の「+」はReactor 1を経るこ

Table 6 The Variation of $\Delta E2$ and $\Delta E1$ in Reactor 1

SRT(d)	$\Delta E2$	$\Delta E1$
8.3	++	++
10	± 0	+
12.5	-	± 0

Table 7 The Relationships among $k_n X_n$ in each SRT

SRT(d)	
8.3	$k_1 X_1 \gg k_2 X_2 \gg k_3 X_3$
10	$k_1 X_1 \approx k_2 X_2 > k_3 X_3$
12.5	$k_1 X_1 < k_2 X_2 \approx k_3 X_3$

とにより増加したこと, 「-」は減少したことを表している。

Table 6および式(4), (5)から $k_n X_n$ の大小はTable 7のように表すことができる。E2抱合体の分解速度に比べてE2分解速度はSRT8.3dの時に小さく, E2の分解速度に比べてE1分解速度はSRT8.3dおよび10dの時に小さい結果となった。この速度差がReactor 1においてE2あるいはE1が生成された原因であると考えられる。

一方, SRTが増加するにつれて $k_1 X_1$ が減少することはないものと仮定すれば, $k_2 X_2$ および $k_3 X_3$ はSRTの増加方向(Table 7における縦方向)で見ると, ともに増加していると見なせる。すなわち, SRTを長くすればReactor 1におけるE2, E1の分解量は増加するものと考えられる。

また, 反応速度係数 k_n はSRTが異なっても一定であるとすると, 反応速度の増加は分解微生物量の増加によると考えられる。ところで, E2またはE1 (以下, Es) 分解微生物の比増殖速度を μ (d^{-1})とし, $SRT^* = 1/\mu$ とすると, Es負荷量一定の完全混合反応槽においては, SRTと X_n , Esとの間にはFig. 12の関係が概ね成立すると考えられる。すなわち, SRT*付近で X_n は急上昇し, SRTをSRT*以上に確保すればSRTに応じて X_n は増加する。また, SRT*より大きいSRTにおいて, Esは低い値をとるようになる^{20, 21)}。

Table 7の X_n に関する大小関係からすると, X_2 はSRTが8.3dから10dに増加する際に大きく増加し, X_3 はSRT12.5dまで増加の幅が大きいと考えられる。また, E2ではSRT8.3dの場合, E1ではSRT8.3dおよび10dの場合に, 汚泥中にE2またはE1がある程度残存している。以上のことから, E2に関してはSRT10dが, またE1に関してはSRT12.5dが, SRT*に概ね相当しているものと考えられる。したがって, 汚泥中も含めた確実な除去は, E2ではSRT10d以上, E1で

Fig. 12 Effect of SRT on X_n and Es in a completely mixed reactor

はSRT12.5d以上が必要であると考えられる。

5. まとめ

1) 生物処理工程で, E2, NPは90%程度除去されることがわかった。

2) E2は好気槽での活性汚泥による好氣的生物分解により除去されることがわかった。また, NPは活性汚泥へ吸着し, その後汚泥とともに引き抜かれているか, もしくは活性汚泥により分解されているものと考えられた。

3) 下水処理パイロットプラントにおいて, 実際にSRTを変えて内分泌かく乱物質の除去状況を調査した結果, E2はSRTの違いにより除去速度に差があることが確認され, SRTが長い方が除去速度は速かった。一方, NPではSRTの違いによる除去速度の差は確認できなかった。

4) SRTが短い場合に, E2およびE1が好気槽で生成される傾向が見られた。この原因としてE2抱合体の存在を仮定すると, E2抱合体, E2, E1の分解速度の差によること, およびSRTが短い場合にはE2およびE1分解速度が十分でないことが考えられた。

5) 本調査では, 最終的にはSRTに関係なくE2, E1が除去されていたが, E2およびE1を生物反応槽の初期段階で速やかに分解する微生物が十分に増殖するために必要なSRTは, それぞれ10d, 12.5d程度であることが推定された。

(原稿受付2003年 1月10日)

(原稿受理2003年11月12日)

参考文献

- 1) 国土交通省都市・地域整備局下水道部 (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。
- 2) 西村孝彦, 那須基, 岡本達也, 後藤雅子 (2000) 下水道における内分泌攪乱化学物質の実態調査, 日本水環境学会年会講演集, 34, 306。
- 3) 磯部友彦, 佐藤剛志, 高田秀重 (2001) ノニルフェノールエトキシレートの分解産物 (NP, NP1EO, NPEC) の水環境中における挙動, 日本水環境学会年会講演集, 35, 30。
- 4) 後藤雅子, 岡本達也, 栗林栄 (2001) 下水道における内分泌攪乱化学物質の挙動, 日本水環境学会年会講演集, 35, 98。
- 5) 橋本敏一, 市川栄治, 中沢均 (2002) 中小規模の下水処理場における内分泌かく乱物質の挙動, 下水道研究発表会講演集, 39, 56-58。
- 6) 石川智弘, 須田浩, 町田秀之 (2002) 下水環境における内分泌攪乱物質の実態について, 下水道研究発表会講演集, 39, 68-70。
- 7) 八十島誠, 小森行也, 田中宏明 (2002) 下水処理過程におけるノニルフェノール関連物質の挙動, 下水道研究発表会講演集, 39, 95-97。
- 8) 勢川利治, 伊藤秀樹, 住山淳 (2001) 下水処理過程における内分泌攪乱化学物質およびエストロゲン様活性の挙動に関する研究, 下水道研究発表会講演集, 38, 157-159。
- 9) 矢古宇靖子, 高橋明宏, 東谷忠, 田中宏明 (2000) 下水処理場内でのエストロゲン様活性の挙動, 日本水環境学会年会講演集, 34, 419。
- 10) 北中敦, 鈴木稔 (2001) 下水生物処理水中内分泌攪乱物質の物理化学的手法による除去効果, 環境工学研究論文集, 38, 275-283。
- 11) 菊田友弥, 浦瀬太郎 (2002) 活性汚泥法による内分泌かく乱物質除去に関する固液二相数値シミュレーション, 環境工学研究論文集, 39, 87-96。
- 12) 建設省都市局下水道部監修 (1999) 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, (社)日本下水道協会.
- 1 3) 小森行也, 高橋明宏, 矢古宇靖子, 田中宏明 (2001) LC/MS/MS による下水試料中のエストロゲンの測定, 世界湖沼会議, 9, 225-228.
- 1 4) 恩田建介, 中村由美子, 宮晶子, 葛甬生 (2001) 生物処理工程における女性ホルモン様物質の挙動, 下水道研究発表会講演集, 38, 160-162.
- 1 5) (社)日本下水道協会 (2002) 下水試験方法 (追補暫定版).
- 1 6) 小川明宏, 田中修三 (2001) 下水処理場におけるアルキルフェノールの挙動, 日本水環境学会年会講演集, 35, 30.
- 1 7) 小森行也, 八十島誠, 田中宏明 (2002) 下水処理プロセスにおけるエストロゲンの挙動, 下水道研究発表会講演集, 39, 47-49.
- 1 8) 田中美奈子, 栗栖太, 矢木修身, 松尾友矩 (2002) エストラジオールおよび類縁物質の活性汚泥による分解とその経路, 日本水環境学会年会講演集, 36, 160.
- 1 9) 恩田建介, 中村由美子, 宮晶子, 葛甬生 (2002) 生物処理工程における天然女性ホルモンの処理特性, 下水道研究発表会講演集, 39, 50-52.
- 2 0) 例えば, 松尾友矩, 大垣眞一郎, 浅野孝, 宗宮功, 丹保憲仁, 村上健 (1993) 水質環境工学—下水の処理・処分・再利用—, pp. 279-286, 技報堂, 東京.
- 2 1) 例えば, 合葉修一, 永井史郎 (1975) 生物化学工学—反応速度論—, pp. 153-182, 科学技術社, 東京.