富栄養化に及ぼす下水および 生活排水処理水の影響

Effects of effluents of sewage and domestic water on eutrophication.

富士元 英 二 (株 明 電 舎)¹⁾
古 屋 昇 (")
稲 森 悠 平 (国立公害研究所)²⁾

Eiji FUJIMOTO, Noboru FURUYA¹⁾ and Yûhei INAMORI²⁾

Department of Water Treatment Engineering, Meidensha Electric Mfg. Co., Ltd.¹⁾

Section of Freshwater Environment, National Institute for Environmental Studies²⁾

1. はじめに

富栄養化は従来湖沼や人工湖の生物学的生産力が栄養物質の流入により増大し、陸学的環境がエントロピーの増大する方向に遷移する現象を意味していた。しかし現在では主に人間活動により水域に負荷された多量の栄養塩類が1次生産者を異常に増殖させる現象を意味するようになってきている。増殖した藻類は代謝産物を生産して水中に放出すると同時に藻類自身も分解するので、水質を悪化させ水資源としての価値を低下させる。したがって人間活動によって加速的に進行する富栄養化を極力防止するように努めることが必要である。ところで、須藤等(1975¹⁾, 1976²⁾)は水域における藻類増殖の潜在能力(AGP)について詳細な研究を行ないAGPを測定することにより富栄養化の評価が可能であることを指摘している。またわが国の水域には窒素およびリン以外の物質は1次生産者である藻類や水生植物などが増殖するのに必要としている十分量が存在していることが知られている(坂本1973)³⁾。そこで本研究では下水および生活排水処理水の窒素およびリンに着目し、AGP, TOCを測定することにより下水あるいは生活排水処理水が自然水域に放流された場合、藻類の増殖がどの程度刺激されるか、および富栄養化を抑制するためにはいかなる処理を施すことが必要であるかについて検討することを目的として実験を行なった。その結果いくつかの知見が

得られたので報告する。

2. 方 法

自然水域の富栄養化の現状とその水域の藻類生産の潜在能力を知るため、栄養塩添加試験に必要とされる湖水、河川水を採用するため、および処理水が自然水域にいかなる影響を及ぼすかについて検討するため霞ヶ浦、湯ノ湖、多摩川の調査を行なった。霞ヶ浦、湯ノ湖については湖心部から、多摩川については日野橋付近から1978年8月に採水を行なった。なお、水温、pH、DOについては現場で測定した。COD, SS, T-N(総窒素), (NO₂+NO₃)-N, NH₄⁺-N, T-P(総リン), O-P(オルトリン)およびAGPについては試料を氷冷下直ちに持ち帰り分析を行なった。分析は主に下水試験方法(1974)⁴⁾, JIS法⁵⁾に準じて行なった。AGPについては、Miller & Maloney(1971)⁶⁾, Skulberg(1966)⁷⁾, Srinath(1972)⁸⁾等により特定藻類を使った測定法が検討されているがここでは次のように須藤等(1977)⁹⁾の方法に従って測定した。まず試料中のSSの溶解と藻類の汚染を防ぐために試料を121°C, 15分間の蒸気滅菌を行なったのち、メンブレンフィルター(1.2μ)でろ過しこの試料の500mℓを1ℓのL型培養管にとり *Chlorella vulgaris* を1×10³/mℓ接種する。このL型培養管をモノ型振とう器上で温度20°C, 照度5,000luxの条件で20日間培養し、培養後試料をミリポアフィルター(1.2μ)でろ過し乾燥重量

(105°C, 1 hr) を求め、それを培養期間中の試料 1 ℓ あたりの増殖藻類の乾燥重量 (mg) に換算し AGP として評価した。なお接種生物としては理想的にはその水域でもっとも優占種になりうる生物を選択すべきであったが本実験では藻類の中でも扱いやすい *Chlorella vulgaris* を用いた。

栄養塩添加試験は増殖制限要因を明らかにするために行ったものであるが、自然水域から採取した水に微量の窒素およびリン、つまり NaNO_3 を N として 1 mg/ℓ, KH_2PO_4 を P として 0.1 mg/ℓ になるように添加し藻類増殖量の測定を行なうことにより制限要因が窒素およびリンのいずれであるかについて評価した。また処理水の AGP については都市下水を処理している処理場から採取した沈殿下水を次のような方法で処理したものについて測定を行なった。つまり、標準活性汚泥処理した処理水、凝集剤をエアレーションタンクに添加して生物化学的同時処理した処理水、硝化の進行した水を脱窒および脱リンした 3 次処理水を対象として行なった。なお上記処理水は次のようにして得た。エアレーションタンク (2ℓ) と沈殿槽 (1ℓ) を有する角型槽に $\text{MLSS } 2,000\text{mg}/\ell$ になるように活性汚泥を入れエアレーション時間を 4 時間としそこに連続的に下水を 12ℓ/日 で流入させて処理したのを標準活性汚泥処理水 (Ⅰ) とした。なお、流入下水の平均水質は $\text{BOD } 110\text{mg}/\ell$, $\text{COD } 37\text{mg}/\ell$, T-P 2.80 mg/ℓ, O-P 2.45 mg/ℓ, T-N 13.5 mg/ℓ, $\text{NH}_4\text{-N } 4.5\text{mg}/\ell$, $(\text{NO}_2 + \text{NO}_3)\text{-N } 0.72\text{mg}/\ell$ であった。そして (Ⅰ) において下水と同時に凝集剤として $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (塩化等 2 鉄) あるいは $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 17\text{H}_2\text{O}$ (硫酸アルミニウム) を 50 mg/ℓ になるように添加して処理した時の処理水を (Ⅱ) とした。 (Ⅰ) の装置において、滞留時間を 12 時間にして消化を十分に行なわせた処理水を (Ⅲ) とした。この処理水中の硝酸態 N の 3 倍量のメタノールを添加して脱窒した処理水を (Ⅳ) とし、これに硫酸アルミニウムを 50 mg/ℓ 添加して脱リンを行なわせた処理水を (Ⅴ) とした。 (Ⅰ) ~ (Ⅴ) の処理水の AGP の測定を行なった後、これらの処理水が湖水あるいは河川水の AGP の増加に及ぼす影響を及ぼすかについての検討を行なった。つまりこれら (Ⅰ) ~ (Ⅴ) の処理水を霞ヶ浦および多摩川から採取した水に対して 20% になるように添加して自然水の AGP がどの程度増加するかを測定した。

生活排水の富栄養化に及ぼす影響については次のような方法で実験を行なった。厨房排水を主とする生活排水を回転円板、加圧浮上、砂ろ過のフローにより処理を行ない、各ユニットごとの処理水が藻類増殖に及ぼす影響を及ぼすかについて、下水処理水で行なったのと同様

な方法で測定し評価を行なった。

なお AGP の測定と同時に *Chlorella vulgaris* の培養液の有機炭素量を TOC として赤外吸収法で測定した。そして AGP と TOC との相関を調べることにより、処理水が自然水域に放流されて藻類の増殖が刺激された場合、TOC として負荷される量はどの程度増加するかについての検討も行なった。

3. 結果および考察

1) 自然水域における富栄養化の現状

① 霞ヶ浦、湯ノ湖、多摩川の AGP

霞ヶ浦、湯ノ湖および多摩川は人間の活動に起因する汚染を受けている自然水域であることが知られているが、これらの水域における水質は表 1 に示した通りである。なお霞ヶ浦では、*Microcystis* が大量に増殖していたこと、多摩川では河床の礫の上に藻類がかなりの量付着していたことからこれ等の水域では富栄養化の進行が顕著であることが理解できた。自然水域における富栄養化の臨界濃度はリンで 0.02~0.03 mg/ℓ、窒素で 0.15~0.30 mg/ℓ といわれている (須藤 1977)⁹⁾ が霞ヶ浦、湯ノ湖、多摩川ともに T-P、T-N はこの値を越えていた。そのため AGP は各々 33, 25, 40 mg/ℓ という高い値を示し藻類の生産力の高い水域であることが明らかになった。

② 霞ヶ浦、湯ノ湖、多摩川の制限要因

霞ヶ浦、湯ノ湖、多摩川から採取した水にリンおよび窒素を添加して AGP を求めることにより各水域における藻類の増殖制限要因が、リンおよび窒素のいずれであるかについて実験的検討を行なった。結果は図 1 に示す

表 1 自然水域の水質および AGP

採水場所		霞ヶ浦	湯ノ湖	多摩川
項目				
水 温	°C	26.6	18.6	21.2
pH		9.5	7.4	7.6
DO	mg/ℓ	11.2	8.9	9.0
SS	mg/ℓ	7.7	3.0	22
T-N	mg/ℓ	1.66	2.6	2.30
$\text{NO}_2\text{-N}$	mg/ℓ	0.012	0.01	0.084
$\text{NO}_3\text{-N}$	mg/ℓ	0.025	0.02	0.116
$\text{NH}_4\text{-N}$	mg/ℓ	0.03	0.13	1.92
T-P	mg/ℓ	0.15	0.08	0.10
O-P	mg/ℓ	0.03	0.04	0.10
AGP	mg/ℓ	33	25	40

図1 自然水域のAGPに及ぼすリンおよび窒素添加の影響

表2 下水処理水の窒素およびリン濃度

処理水の種類			窒 素 mg/l			リン mg/l	
			T-N	NH ₄ ⁺ -N	(NO ₂ +NO ₃)-N	T-P	O-P
I	活性汚泥処理水		11.2	5.8	1.0	2.06	1.94
II	生物的理物同水化時学処	① 硫酸アルミニウム	12.7	7.3	0.5	0.25	0.22
		② 塩化第2鉄	13.0	8.4	0.3	0.15	0.12
III	硝化処理水		8.9	1.3	7.2	2.01	1.87
IV	脱窒処理水		2.8	2.0	0.7	1.88	1.65
V	脱窒+脱リン処理水		2.6	1.8	0.6	0.04	0.03

図2 下水処理水のAGPに及ぼす影響

通りである。特定の栄養塩類および増殖促進物質を添加した場合、藻類が対照と比較して刺激された時、その物質が増殖を制限している因子であると推定できることを須藤(1979)¹⁰⁾は指摘しているが、図1より富栄養化を制限している因子は霞ヶ浦、湯ノ湖では窒素、多摩川ではリンであることがわかった。これらのことから霞ヶ浦、湯ノ湖に流入する水は窒素が除去されていること、多摩川に流入する水はリンが除去されていることが富栄養化を防止する

上で最も重要なことであると推定することができる。このように各水域において藻類増殖の制限因子を判定することができる。以下においては制限因子が窒素である水域としては霞ヶ浦、リンである水域としては多摩川を選定し、まず処理水のAGPを測定した後これらの水域に及ぼす処理水の影響について実験的検討を行なった。

2) 下水および生活排水処理水のAGP

① 下水処理水のAGP

沈殿下水を通常の活性汚泥処理、生物化学的同時処理および3次処理して窒素およびリンを除去した場合AG

Pはいかように変化するかについて検討を行なった。水質およびAGPは表2、図2に示す通りである。

＜標準活性汚泥処理(Ⅰ)＞

処理水中のリンはT-Pで2.06mg/ℓ, O-Pで1.94mg/ℓ, T-Nで11.2mg/ℓ, $\text{NH}_4\text{-N}$, ($\text{NO}_2 + \text{NO}_3$)-Nで各々5.8, 1.0mg/ℓであり窒素もリンも藻類の増殖をおこすには十分量含有されている。このためAGPは250mg/ℓという非常に高い値を示した。このように生物学的2次処理は富栄養化を防止するには無力であり、そのため栄養塩類を除くような高度処理を行なわなければならないことがわかった。

＜生物化学的同時処理(Ⅱ)＞

高度処理の一つとしてまず現状の施設を大幅に変えることなく活性汚泥法のエアレーションタンク中に凝集剤を添加して栄養塩類を除く生物化学的同時処理法についての検討を試みた。なお生物に対して比較的影響が少なく脱リン効果のすぐれている凝集剤濃度は50mg/ℓであることを稲森等(1975)¹¹⁾は報告している。それ故、凝集剤濃度は50mg/ℓとして実験を行なった。この処理法は窒素の除去にはほとんど効果がなかったがリンの除去能はすぐれており、処理水のT-PおよびO-Pは塩化第2鉄の場合0.15, 0.12mg/ℓにまで低下した。なおこの場合T-Nは塩化等2鉄添加で13.0mg/ℓ, 硫酸アルミニウム添加で12.7mg/ℓであり過剰に存在していたため、生物化学的同時処理法の処理水はリンが制限要因になっていることを意味している。本処理法における処理水のAGPは塩化第2鉄および硫酸アルミニウム添加で各々34, 52mg/ℓであり、2次処理水に比較すると著

しく低下していた。このことから富栄養化を抑制するために生物化学的同時処理法を用いて脱リンを行なうことは効果的であることが示唆された。

＜3次処理＞

窒素およびリンの両者を除去するようなプロセスにおいてAGPがどの程度にまで低下するかについて検討した。まず十分に硝化のおこった処理水(Ⅲ)を生物学的脱窒法により処理し、その処理水(Ⅳ)に凝集剤を50mg/ℓ添加して脱リン処理水(Ⅴ)を得た。

硝化処理水(Ⅱ)では窒素の形態が変化するだけでT-N量としてはあまり減少しなかったためAGPは2次処理水の場合とそれほど変化が認められず220mg/ℓと高い値を示した。

生物学的に脱窒した場合にはAGPは100mg/ℓにまで低下したが、脱リンした場合に比べると顕著な低下は認められなかった。しかし、脱窒した後脱リンを行なうとT-NおよびT-Pは各々2.6, 0.04mg/ℓを示し栄養塩類の除去が極めて高かったことからAGPは7mg/ℓにまで低下した。

これらの事実から脱窒および脱リンを行なうことにより水質的には中栄養湖程度にまで低下させることが可能ながわかった。

② 生活排水処理水のAGP

生活排水には様々の種類があるが、その中で社員食堂の厨房排水に着目して実験を行なった。厨房排水は回転円板で処理しその後凝集剤とポリマーを添加して加圧浮上処理し、最後に砂ろ過して放流するようなプロセスになっている(図3)が、各ユニットごとの処理水質およ

図3 生活排水処理フロー

表3 生活排水の処理水質およびAGP

処理水の種類	BOD mg/ℓ	COD mg/ℓ	窒 素 mg/ℓ			リ ン mg/ℓ		透視度 cm	AGP mg/ℓ
			T-N	(NO ₂ +NO ₃)-N	NH ₄ -N	T-P	O-P		
原 水	330.0	240.0	16.33	0.95	3.85	5.78	5.64	4	—
回転円板4段目処理水	18.2	23.6	4.39	1.20	1.00	2.33	2.00	75	320
加 圧 浮 上 処 理 水	6.6	14.0	3.75	1.22	1.07	0.25	0.22	100以上	48
砂 ろ 過 処 理 水	4.7	10.0	3.68	1.25	1.00	0.20	0.17	100以上	45

びAGPは表3に示した。表3はほぼ実験期間中の平均水質を表わしている。なお、回転円板流入水のBODは146~470mg/ℓ、COD 92~270mg/ℓ、T-N 12.13~22.53mg/ℓ、T-P 0.91~11.79mg/ℓの範囲であり日変動が大きかった。表3から回転円板を通過することにより窒素およびリンの各々約73、60%が除去されることがわかったがT-N 4.39mg/ℓ、T-P 2.33mg/ℓという多量の窒素およびリンが残存していたためAGPは320mg/ℓという高い値を示した。このことから下水の活性汚泥処理の場合と同様、回転円板による処理だけでは富栄養化の防止という観点からは全く役に立たないことがわかった。しかし、回転円板処理水に硫酸アルミニウム100mg/ℓ、ポリマー2ml/ℓを添加して加圧浮上処理するとT-Nは3.75mg/ℓとほとんど除去されなかったが、T-Pは高度に除去され0.25mg/ℓを示し、AGPは48mg/ℓにまで低下した。砂ろ過では、加圧浮上によってすでに微細SSがかなり除去され透視度が100

cm以上を示していたためか、AGPはほとんど低下せず45mg/ℓであった。なお、本実験は流入水のT-Nが16.33mg/ℓ、T-Pが5.78mg/ℓの時の処理成績であったが、T-N 22.53mg/ℓ、T-P 11.79mg/ℓを示す日もあったことから、このような場合生物処理のみでは藻類の増殖はさらに刺激されるものと予想される。一般に、浄化槽処理水を含め生活排水の処理水は下水処理水に比べて栄養塩濃度が高いため、処理にあたってはより一層栄養塩類を除去することに努めることが必要であろう。本実験で用いた加圧浮上処理装置は設置面積が小さくリンの除去も効果的に行なわれAGPもかなり低下したことから生活排水を対象とした小規模な処理施設における脱リン法の一つとして有効であると考えられる。なお加圧浮上法においては処理水のAGPを前述した生物化学的同時処理法における処理水のAGPとほぼ同程度にまで低下させ得ることが明らかになった。

図4 自然水のAGPに及ぼす処理水の影響 (処理水20%添加)

4. 自然水域のAGPに及ぼす下水および生活排水処理水の影響

下水および生活排水処理水が湖沼あるいは河川に流入した場合、閉鎖水域ならば少量の処理水が多量の影響を与えるが、一般的に自然水により希釈されることが多いと考えられる。ここでは自然水域に下水および生活排水処理水が流入した場合、藻類の増殖がどの程度刺激されるかをみるために自然水に対して処理水を20%添加して実験的検討を行なった。結果は図4に示した。多摩川および霞ヶ浦のAGPは前述したように40および33mg/ℓであったが、2次処理水および硝化処理水が20%入っただけでAGPは極めて高くなり100mg/ℓ前後を示した。このことから下水および生活排水を問わずその2次処理水が自然水域に流入すると藻類の増殖は急激に増大するであろうことが十分理解できた。また脱リン処理あるいは脱窒処理した処理水の場合においては、AGPは2次処理水に比べて低下するのが認められたが、試料の採取水域の違いによりAGPに差が生じるという興味ある事実が得られた。つまり脱リン処理水を多摩川の水に添加した系ではAGPの増加は小さく硫酸アルミニウム添加で50mg/ℓ、塩化第2鉄添加で48mg/ℓであったのに対し、霞ヶ浦の水に添加した系ではAGPの増加が顕著に認められ硫酸アルミニウム添加で78mg/ℓ、塩化第2鉄添加で70mg/ℓを示した。逆に脱窒処理水を多摩川の水に添加した系ではAGPの増加が顕著に認められ75mg/ℓであったのに対し、霞ヶ浦の水に添加した系ではAGPの増加は小さく53mg/ℓを示した。

このことは、高度処理水であってもその処理水を自然水域に放流する場合対象とする水域によって処理の形態を変化させることが効果的であることを示唆している。つまり、放流水域にあわせた脱リンあるいは脱窒といった高度処理が行なわれなければ藻類の増殖を抑制することはできない。そこで窒素、リンのいずれを除去した方が効果的か対象水域ごとに十分調査しなければならないと考えられる。しかし人為的富栄養化を防止するためには窒素もリンも除去することが望ましいことはいうまでもないことである。

5. 下水および生活排水処理水の自然水域における有機炭素の再生産

藻類は窒素およびリンの栄養塩類といくつかの微量物質の存在下において光エネルギーおよびCO₂を利用して増殖可能であることは周知の事実である。ところで藻類がCO₂を固定するということは自然水域に放流され

図5 *Chlorella vulgaris* によるAGPと培養液のTOCとの関係

た処理水が再び有機炭素を生産していることを意味している。そこで、前述した藻類の増殖によりどの程度の有機炭素が生産されたことになるかを知らるために*Chlorella vulgaris*によるAGPと培養液の有機炭素との関係を求めた。なお有機炭素はTOCを測定することにより評価した。下水、生活排水および処理水に*Chlorella vulgaris*を接種して得られた種々の*Chlorella vulgaris*によるAGPと培養液のTOCとの関係を図5に示したが、両者の関係は完全に一致しなかった。これは培養液中にもともと存在していた可溶性有機物および藻類の代謝により細胞外に排泄された可溶性有機物などがTOCとして測定される場合のあることを意味している。このように、若干のバラツキは認められたが両者の間には $TOC (mg/ℓ) = 0.55 \times \text{Chlorella vulgaris による AGP} (mg/ℓ)$ という関係の得られることがわかった。これらのことから水域における真の有機物生産能を評価するためには藻類培養液の固形物の乾燥重量をAGPとして表わすよりも培養液そのもののTOCを測定する方が適しているものと考えられる。いずれにしろ処理水に含有される窒素およびリンに刺激されて藻類が増殖することは、いったん下水中のC源が生物学的あるいは物理化学的に除去されたとしても窒素およびリンが除去されていない限り、再び自然水域に有機炭素源が増加することを意味してい

る。例えば標準活性汚泥法による下水の2次処理水および回転円板法による生活排水の2次処理水のAGPは各々250, 320mg/ℓであったが、これをTOC換算すると138, 176mg/ℓとなる。TOCで138, 176mg/ℓという値は沈殿下水に相当する値であるから窒素およびリンの除去を行わない限り、自然水域に新たに大量の下水が負荷されたことになる。なお、脱窒・脱リン処理した場合には処理水のAGPは7mg/ℓつまりTOCで3.9mg/ℓという非常に低い値が得られることがわかった。これらのことから窒素およびリンの除去が富栄養化を防止するうえでいかに重要であるかということを理解することができる。

6. 要約

霞ヶ浦、湯ノ湖、多摩川の富栄養化の現状を調査し、これらの水域から採取した試料を用いて栄養塩添加試験、下水処理水および生活排水処理水の自然水域に及ぼす影響についてAGP, TOCを測定することにより実験的検討を行なったが、結果は次のように要約することができる。

- ① 藻類の増殖を刺激する制限要因は霞ヶ浦、湯ノ湖では窒素、多摩川ではリンであることがわかった。
- ② 下水を活性汚泥処理した場合でも生活排水を回転円板処理した場合でも2次処理水のAGPは各々250, 320mg/ℓと非常に高く富栄養化を防止するためには3次あるいは高度処理が必要ことがわかった。
- ③ 下水の2次処理水を生物化学的同時処理した場合と生活排水の2次処理水を加圧浮上処理した場合とではAGPは50mg/ℓ程度と同じ位の処理が行なわれ両処理法は藻類の増殖を抑制するために効果的であることがわかった。
- ④ 2次処理水を脱窒、脱リン処理するとAGPは7mg/ℓにまで低下したことおよび霞ヶ浦と多摩川の水に脱窒、脱リン処理した水を入れてもAGPの増加は10%以下でほとんど影響なかったことから、窒素およびリンを除去することにより富栄養化の防止が可能ことがわかった。
- ⑤ 窒素が藻類増殖の制限要因となっている霞ヶ浦の水に脱リンした水を入れてもAGPはほとんど低下

しなかったし、リンが制限要因となっている多摩川の水に脱窒した水を入れてもAGPはほとんど低下しなかったことから、放流水域に見合った高度処理を行なうことが必要であることがわかった。

以上から自然水域の人為的富栄養化を防止するためには下水および生活排水などに含まれる窒素およびリンの両者を除去することが必要であることがわかった。なお、今後 *Chlorella vulgaris* のみでなく他の藻類を使って下水および生活排水処理水のAGPに及ぼす影響を実験的に検討することが必要であると考えられる。

6. 参考文献

- 1) 須藤隆一：放流水域の富栄養化に及ぼす下水処理水の影響，環境創造，5，7，52，1975
- 2) 須藤隆一，岡田光正，森 忠洋：富栄養化を評価するための藻類培養試験，第13回下水道研究発表会講演集，518，1976
- 3) 坂本 充：「淡水域の富栄養化」水圏の富栄養化と水産増養殖，日本水産学会編，恒社厚生閣
- 4) 日本下水道協会：下水試験方法（1974）
- 5) 工場廃水試験方法：JIS K0102
- 6) Miller, W. E. and T. E. Maloney : Effects of secondary and tertiary waste water effluents on algal growth in a lake-river system. Jour. WPCF 43, 2361 (1971)
- 7) Skulberg, O. M. : Algal cultures as a means to assess the fertilizing influence of pollution. Proc. 3rd Int. Conf. Water Pollution Research 1, 113 (1966)
- 8) Srinath, E. G. and S. C. Pillai : Phosphorous in waste water effluents and algal growth. Jour. WPCF 44, 1623 (1972)
- 9) 須藤隆一：廃水処理の生物学，産業用水調査会（1977）
- 10) 須藤隆一：水域の富栄養化とその防止対策，発酵と工業，37，1，41（1979）
- 11) 稲森悠平，高橋満治，富士元英二，古屋 昇：生物・化学的同時処理法によるリン除去，下水道協会誌，12，135，9（1975）