HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	下水汚泥中内分泌かく乱物質の汚泥処理過程及び土壌環境中での挙動［論文内容及び審査の要旨］
Author(s)	南山, 瑞彦
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	乙第7066号
Issue Date	2018-12-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/72361
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Mizuhiko_Minamiyama_abstract.pdf, 論文内容の要旨

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称　博士（工学）　氏名　南山 瑞彦

学 位 論 文 題 名

下水汚泥中内分泌かく乱物質の汚泥処理過程及び土壌環境中での挙動
(Fates of endocrine disruptors in sewage sludge treatment process and land application of composted sewage sludge)

人々の社会経済活動を通じ、多種多様な化学物質、医薬品等が多く利用されており、豊かな社会の形成には不可欠な要素になっていると考えられる。これらの物質は、本来その機能を発揮することが期待される場で適切に管理され使用されている場合だけではなく、環境等、その存在を期待されていない場に存在する場合があり、人の健康や生態系に影響を与える可能性が懸念されている。一般家庭で日々使われている製品に含まれる物質や、医療、健康のために使われる化学物質、さらには、内分泌かく乱作用のように、人畜由来ホルモン等、人の生命活動そのものに関わる物質を含む物質群が生態系に影響を与える可能性が指摘されるようになっている一方で、これらの物質が環境に流出することを管理することには限界がある。下水道事業はその流域での社会活動や個々の生活様式と密接に関係するものであることからこれらの物質とも無縁ではなく、これらの物質の一部は排水とともに下水道に流入し、下水道施設等を経由して公共用水域に放流される。日本では、下水道整備の進展にともない、下水道システムが流域の水環境に占める位置づけも大きくなっていることから、これらの物質の水環境全体の移動の経路としても重要な位置を占めることとなっている。そのため、下水道の処理対象である汚濁物質や法令に基づき特定事業場から下水道への排除が制限されている有害物質、一般家庭から下水道に排出されるものも含めた広範な種類の物質の下水道における挙動と環境への排出の状況を把握し、その監視方法や制御方法の確立など、必要な対策につなげる努力が必要であると考えられる。

社会に関わる多くの物質の中で、人や野生生物の内分泌作用をかく乱し、生殖機能阻害等を引き起こす可能性があると疑われている物質等 (以下、内分泌かく乱物質) による環境汚染が各国で報告されており、日本でも環境中に広範囲にわたって存在していることが明らかとなっている。そのため、本研究では、1990 年代からその内分泌かく乱作用が疑われていたノニルフェノール類を中心に、下水道システムの中での内分泌かく乱物質の挙動、特に下水汚泥処理系での挙動、さらにコンポスト等の下水汚泥リサイクル製品として施用されたのちの挙動を明らかにすることを目的とし、下水汚泥試料中のノニルフェノール類の分析手法、下水汚泥処理系におけるノニルフェノール類の挙動、下水汚泥リサイクル製品の施用先における内分泌かく乱物質の挙動について検討し、基礎的知見を得た。

本研究は 5 章で構成されている。以下にその概要を示す。

第 1 章では、本研究の背景を整理するとともに、本研究の対象とする範囲を示した。内分泌かく乱物質のうち、1990 年代より影響を及ぼす可能性が指摘されていたエストロゲンとノニルフェノール (NP) 類に着目した。エストロゲンと NP 類の下水道内での挙動については、主に水処理系に注目した研究は進んでいるものの、汚泥処理系での挙動に関する知見は不十分である。これは、内分泌作用のかく乱が懸念されている対象が主に水環境中の生物やその生態系であり、人間社会から水環境に至る主要な負荷が下水処理水であることに加え、技術的に有機物が多く含まれる汚泥試料中の微量有機物の分析が困難であることによるものと考えられる。しかしながら、下水処理場全体としてのこれらの物質の挙動や、下水汚泥の排出先での挙動に関する知見を深めることは、環境全体の中での下水道システムの役割を理解するうえで必要である。エストロゲンについては、汚泥

処理系の嫌気環境下での分解が期待できない一方で、NP 類については NP とその前駆物質の挙動に関する知見が少なく、下水汚泥リサイクル製品の施用先でのこれらの物質の挙動についても知見が少ない。そこで、本研究は、下水汚泥試料中の NP 類の分析手法の提案、下水汚泥処理系における NP 類の挙動の解明、下水汚泥リサイクル製品の施用先における内分泌かく乱物質の挙動の解明を行うこととした。

第 2 章では、下水汚泥試料中のノニルフェノール類の分析手法を検討した。下水汚泥試料中の内分泌かく乱物質の分析手法を開発するため、下水汚泥からの内分泌かく乱物質の抽出方法の検討を行った。その結果、乾燥汚泥からの NP、その主な前駆物質であるノニルフェノールエトキシレート (NPnEO) の抽出に高速溶媒抽出 (PFE) 法を用いることで、一般的に用いられている加熱還流法による抽出と比較し、抽出時間が 1/4 以下で、1.03～1.3 倍の NP 類を抽出することが可能との結果を得たため、PFE 法を下水汚泥試料中の NP 類の抽出手法として提案した。一方、下水汚泥試料中の NP 前駆物質の一つであるノニルフェノールエトキシ酢酸 (NPnEC) の分析手法の検討を行ったところ、水試料中の NPnEC の分析に用いられる前処理方法では分析が困難であることが明らかとなった。

第 3 章では、下水汚泥処理系におけるノニルフェノール類の挙動を検討した。下水汚泥処理系における内分泌かく乱物質の挙動に関する当時の分析手法に基づいた先行調査では、嫌気性消化により内分泌かく乱物質含有量が多くなる結果が得られていたことから、本検討では、下水汚泥処理系における NP 類の挙動をより詳細に明らかにするため、前駆物質の消長を対象とした嫌気性消化室内実験を行った。実下水処理場より採取された濃縮汚泥を用い、滞留時間約 28 日、35 ℃で運転している嫌気性消化実験装置に NP の前駆物質である NP1EO を投入したところ、約 40% に相当する量が NP に変換されて消化汚泥中に存在することが明らかとなった。また、NP の前駆物質のある NP1EC、NP2EC を投入した。その結果、投入した NP1EC のほぼ全量が NP に変換されて消化汚泥中に存在することが確認された。一方、NP2EC に関しては、20 日程度までは NP の増加が認められなかった。これらにより、35 ℃の中温消化条件では、NPnEO や NPnEC からの NP 生成はほぼ避けられないことが示された。NP のエストロゲン様活性はこれらの前駆物質よりも高いとされていることから、汚泥処理過程で汚泥の安定化が進んでいるにもかかわらず、NP 類については反応が進み、エストロゲン様活性が高い物質が産生されているように見えていることが明らかとなった。

第 4 章では、下水汚泥リサイクル製品の施用先における内分泌かく乱物質の挙動を検討した。下水汚泥製品の施用先における内分泌かく乱物質の挙動を把握するため、ライシメータを用いたコンポスト施用土壌からの内分泌かく乱物質浸出実験を行った。約 2 年 10 ヶ月の実験の結果、降雨による NP の累積浸出率は初期存在量の 0.22～0.48% と少なく、土壌中で分解する傾向にあることが明らかとなった。また、コンポスト施用土壌中の内分泌かく乱物質の植物体への移動に関する検討を小松菜等を用いて行ったところ、分析が可能な濃度域での NP 類の植物体への移動は確認されなかった。

第 5 章では、本研究で得られた知見をとりまとめた。