

「廃棄物の適正処理・水処理に係る調査研究助成制度」
研究成果発表会
要旨集

令和3年7月

大阪湾広域臨海環境整備センター

目次

	ページ
1. 一般廃棄物処理施設の地域貢献(環境学習)とその運営改善へ向けた調査研究..... 1 京都大学大学院地球環境学堂	准教授 浅利 美鈴
2. 酸化鉄汚泥を用いた硫化水素放出抑制材としての実用化に関する研究開発..... 5 地方独立行政法人山口県産業技術センター 企業支援部	研究員 猪野 陽佳
3. 埋立処分場浸出水の超高効率かつ安定した窒素除去を実現するテーラーメイド型anammoxプロセスの開発..... 9 北海道大学大学院工学研究院環境創成工学部門	准教授 押木 守
4. 陸上残土に含まれる重金属類の長期溶出性に関する科学的知見の提供: 残土に含まれる二酸化チタンの重要性評価(その3)..... 13 山口大学大学院 創成科学研究科	准教授 鈴木 祐麻
5. 廃棄物埋立処分場の排水処理プロセスにおけるMicroplasticsの低減効果と周辺環境への影響調査(その3)..... 17 京都大学大学院地球環境学堂	准教授 田中 周平
6. 生ごみと浄化槽汚泥の地域内循環による資源・エネルギー回収手法の開発(その2)..... 21 京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻	講師 日高 平

一般廃棄物処理施設の地域貢献（環境学習）とその運営改善へ向けた調査研究

○浅利美鈴（京都大学大学院地球環境学堂）
鈴木榮一（国崎クリーンセンター啓発施設）

1. 調査研究の目的

一般廃棄物処理施設（以下、「施設」）を地域コミュニティの拠点施設として付加価値をつけようという動きは、文部科学省や環境省も動き出し、施設は各種地域活動や災害に強い地域づくりの拠点として認識されはじめている。そこで環境学習機能及びその運営改善をひとつの入り口に、施設の普遍的な可能性、そして地域拠点としての可能性をさぐることを目的に本調査研究を実施した。全国を対象とする本調査※1はその第一段階である。

2. 調査研究方法

2-1. 調査対象とする施設と施設数

調査対象は、廃棄物処理法に基づいて規定される、(1) 焼却処理施設で、処理能力が1時間あたり200kg以上、または火格子面積が2平方メートル以上のもの。(2) 選別施設、たい肥化施設、破碎施設などのごみ処理施設で処理能力が1日5t以上のもの。(3) くみ取りし尿や浄化槽汚泥を処理するし尿処理施設（浄化槽は除く）。(4) 一般廃棄物最終処分場とし、『廃棄物年鑑2021年版』（環境産業新聞社2020年10月発刊）より候補施設（休止施設は除く）を選定した。

(1) 熱回収施設（基幹改良事業（ごみ焼却施設）含む）	936 件
(2) 資源化等の施設（リサイクルセンター他）	1,192 件
(3) 基幹改良事業（し尿処理施設）、汚泥再生処理センター	853 件
(4) 一般廃棄物最終処分場	1,088 件

合計4,069件の施設数であるが、同一住所や隣接施設も少なからずあり、それらの統合選定作業を実施し、合計3,300施設（住所地）を調査票の送付対象とした。

2-2. 調査方法と調査内容

- (1) 調査依頼方法 郵送にて調査依頼（調査票及び返信用封筒）送付
- (2) 回答方法 郵送返送、メール返送、WEB回答（google フォーム）
- (3) 調査票（全8頁） 7頁分の質問内容（施設基本情報13問、運営基本情報19問）

2-3. 回答数（2020年12月27日現在）

(1) 郵送回答（〒）	979 件	
(2) メール回答（EM）	547 件	
(3) WEB 回答（WEB）	168 件	（回答総数は1,694件）

連絡先：浅利美鈴：〒606-8501 京都市左京区吉田本町 京都大学物理系校舎北棟7階 浅利美鈴研究室、
Tel:075-753-5922、E-mail:mezase530@gmail.com、鈴木榮一：〒666-0103 兵庫県川西市国崎字小路13番
地 国崎クリーンセンター啓発施設、Tel:072-735-7282、E-mail:e-suzuki@kunisakicc.jp

キーワード：廃棄物処理施設、環境学習施設・設備、運営改善、地域拠点、地域貢献

回答内容について精査したところ、重複や回答者ミスによる無効回答が24件（内訳：11, EM:5, WEB:8）検出できたので、差し引き**有効回答数は1,670件**である。

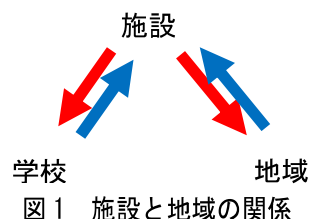
ただし、宛先不明（事務所・ポストなし等含む）346件、施設廃止、解体、回答不能等が45件あったので、**有効発送数は2,909件**（=3,300-346-45件）となり、**有効回答率は約57.41%**を得た。計画時の目標である60%には僅かに届かなかったが、回答数としては目的とする調査内容に応えうるデータ量であると考ええる。

2-4. 分析方法

本発表では、運営意識と運営事実（地域関係）についての設問と回答に注目し、運営者意識と地域関係に焦点を絞り、施設の地域貢献とその運営改善を分析する。なお、本調査研究結果の概要については、協力施設向けに公開^{*2}している。

- ① **【運営意識】** 運営者自身の意識についての設問で、「施設運営に自信とやりがいがある」（以下、「(1)自信とやりがい」）、「施設は地域の環境学習施設だ」（以下、「(2)地域の環境学習拠点」）、「施設は地域の人々の活動拠点だ」（以下、「(3)地域の活動拠点」）、「運営人材の育成や開発は順調である」（以下、「(4)人材の育成は順調」）の4種類の運営意識について、5択（1.当てはまらない、2.あまり当てはまらない、3.どちらとも言えない、4.やや当てはまる、5.当てはまる）から、あてはまる一択の回答を求めた。
- ② **【運営事実】** 図1のような「地域との関わり」について、次の項目の中から、どれをお持ちかの設問で複数選択回答を求めた。

1. 「学校が**施設**へ見学に来る」
2. 「**施設**が学校へ出前授業する」
3. 「地域が**施設**へ見学に来る」
4. 「**施設**が地域へ出張研修する」



- ③ つぎに①「運営の4意識」と②「運営事実（連携）」について、関係性をクロス分析した。



3. 研究結果と考察

3-1. 【運営意識】4種の意識

4種の運営意識についての結果を、図3に示す。運営意識の中でも、「自身とやりがい」が群を抜く、一方「地域の活動拠点」は他の運営意識より、一段と薄い。

施設運営において、地域とのつながりや関係性がそれほど容易でない傍証である。

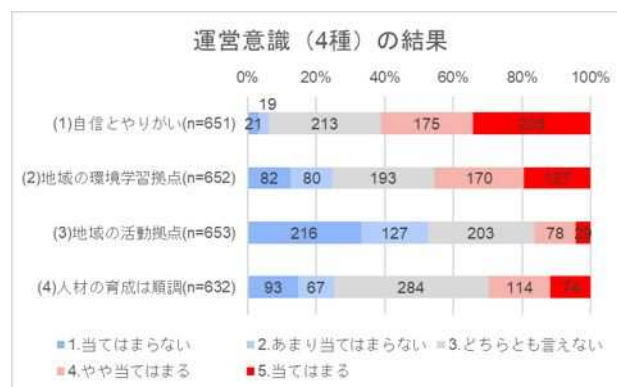


図3 運営者の4種の意識調査結果

3-2. 【運営事実】地域との関わり

表 1 に示すように、「地域との関わり」4 項目の回答選択の組合せは、無回答（施設見学未対応含む）の「なし」を加えて 16 種類の組合せがある。

関わりの方角性として、先方から来る受動姿勢の 1 や 3 が含まれる組合せの方が、能動姿勢の 2 や 4 を含む組合せよりも多い傾向が見てとれ、運営改善の課題のひとつと言える。さらに関係の組合せ数（一択、二択、三択、四択）毎に、関わりの深度を 5 つ（stage0～4）のレベルに分けた、分布を図 4 に示す。

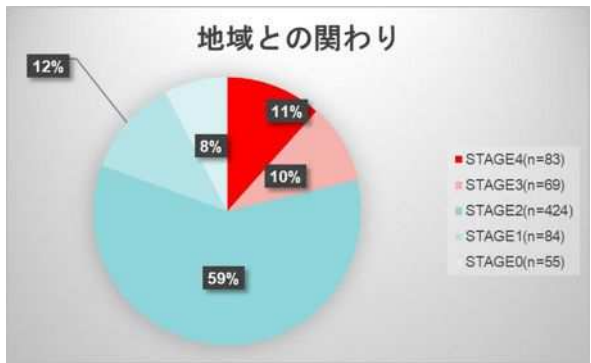


図 4 地域との関わり 5 段階

なし	55	55	stage0
1 ←学校	62	84	stage1
2 →学校	1		
3 ←地域	18		
4 →地域	3		
1. 2.	10	424	stage2
1. 3.	409		
1. 4.	2		
2. 3.	0		
2. 4.	1		
3. 4.	2		
1. 2. 3.	32	69	stage3
1. 2. 4.	2		
1. 3. 4.	35		
2. 3. 4.	0	83	stage4
1. 2. 3. 4.	83		
合計	715	715	

3-3. 運営（意識）と地域との関わり（事実）の関係

図 5（運営意識「(1) 自身とやりがい」のみ）に、運営意識における 5 段階意識と、地域との関わりの設問で得られた 5 つの stage の分布割合をクロス分析する。4 種の運営意識毎に、意識 1～5 レベルを横軸に、地域の関わり 5 stage 分布を棒グラフで積み上げ、それらの平均を折れ線グラフで示した。ここで、平均値（破線）では地域の関わりの特性が消えるので、地域との関わりが深い上位 2 種（stage4 と stage 3）の平均（実線）をとる。同様にして得た運営意識 4 種の各々の上位 2 種（stage4 と stage 3）の平均を、ひとつにまとめたグラフを図 6 に示す。

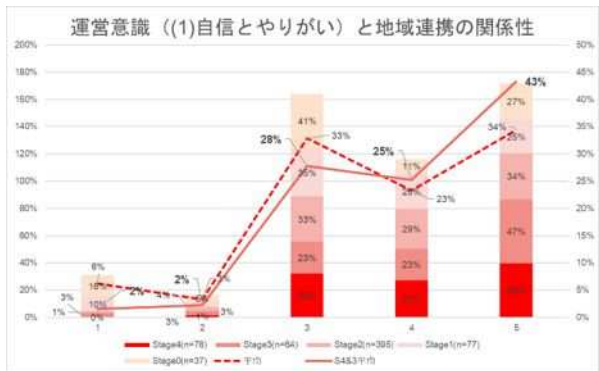


図 5 運営意識と地域連携の関係性

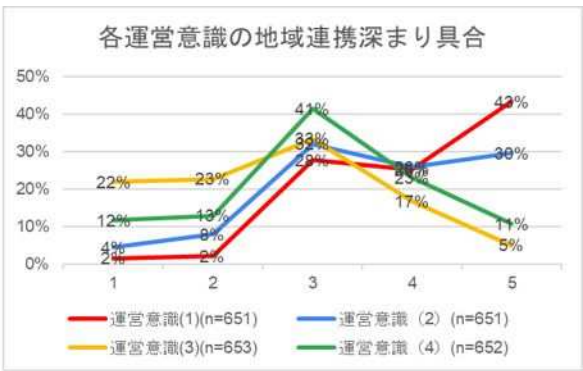


図 6 各運営意識の地域連携深まり具合

運営意識(1)「自信とやりがい」と運営意識(2)「地域の学習拠点」は、地域との関わりが深まるほど高いことが示された。一方、運営意識(3)「地域の活動拠点」と運営意識(4)「人材の育成は順調」は、意識が高い（当てはまる）段階で低くなる傾向が示された。これは、地域との関係性が深まるほど、地域との双方向的な関係性（地域の拠点化）及び地域に対応する運営人材が容易でないという意識（課題）がうかがえる。実際に、地域との双方向性を担保する信頼関係や連携活動を構築・継続するには、多くの時間と人材育成が必要であることを、発表者は経験している。

4. 結 論

本調査研究は、漸く分析の猪についたところであるが、これまで明らかにされなかった、一般廃棄物処理施設の環境学習施設・設備についての整備事実や運営事実から、運営者の意識や関心事等について詳細なデータを得ることができた。

本発表では触れなかったが、整備事実として、設備面の充実が良好な運営にとり有効であることも確認できた。反面、「環境学習機能の計画割合」が高くても、地域における環境学習や人材育成の運営意識の低下がある。その理由として、計画段階で見通せなかった運営課題がそれらの障害と考えられる。一方の運営事実として、「運営者属性」では、設置者直営と比較して専任組織の方が概ね運営意識が高く、専任組織での運営の方がより良好な運営であることが確認できた。 ※3, ※4

そして、本発表で論じたように、「地域との関わり」が深いにもかかわらず、地域の活動拠点や人材育成の運営意識が低下することが示され、地域との関係が深まるほど、地域活動や人材育成の現状に満足していない実情も見えてきた。

以上の本調査結果から、一般廃棄物処理施設の環境学習機能の運営においては、計画段階では設備面の充実を含めて運営段階を見越した計画が必要であり、運営段階では運営組織の見直しも含め、恒常的な運営内容の改善（保守）も必要であることがわかった。

今後も本調査研究を継続し、一般廃棄物処理施設における環境学習機能の改善や地域の活動拠点としての可能性を求めたい。そして成果として、施設計画段階から運営段階までの改善提言、及び施設運営に適した評価方法の開発等をめざす所存である。

引用・参考文献等

※1 令和2年度「廃棄物の適正処理・水処理に係る調査研究費助成制度」（大阪湾広域臨海環境整備センター）浅利美鈴「一般廃棄物処理施設の地域貢献（環境学習）とその運営改善へ向けた調査研究」

※2 ご協力者向け概要版 <https://www.kunisakicc.jp/data/gaiyo2020.pdf>（2021年6月23日確認）

※3 鈴木榮一，浅利美鈴「環境学習施設・設備に関する運営意識の一考察～全国一般廃棄物処理施設の調査結果より～」第40回日本展示学会研究大会 2021

※4 Eiichi Suzuki, A Study on Operational Consciousness of Environmental Learning Facilities from a National Survey in Japan, The 7th 3R International Scientific Conference on Material Cycles and Waste Management (3RINCs), 2021

酸化鉄汚泥を用いた硫化水素放出抑制材としての実用化に関する調査研究

地方独立行政法人山口県産業技術センター ○猪野陽佳、前英雄
福岡大学環境保全センター 柳瀬龍二

1.研究目的

産業廃棄物の安定型最終処分場において、硫化水素が発生し悪臭問題や硫化水素中毒と思われる事故が報告されてきた。硫化水素の発生は国立環境研究所によって、埋立処分された廃石膏ボードに起因することが報告されている¹⁾。これを受け、廃石膏ボードの安定型処分場への埋立を禁止し、廃石膏ボードから紙を除去した後に管理型最終処分場へ埋立処分する方法へ転換した。しかし、管理型最終処分場へ廃石膏ボードを埋立処分した場合においても、埋立廃棄物の種類や埋立環境次第では硫化水素が発生する可能性が十分にある。特に、海面埋立地では、埋立処分された海面部の廃棄物は常に滞水した嫌気的環境にあり、硫化水素が発生する環境に十分ある。一方、硫化水素の発生を抑制する材料の利用も進んでいる。硫化水素の放出抑制方法として、吸収剤を用いる方法²⁾や石灰とコンクリート混合物を覆土として利用する方法³⁾など多くの報告がなされているが、いずれの方法も新たに莫大な費用が発生するものである。そこで、コストをかけずに石膏ボードなどの硫化水素発生源となる廃棄物を最終処分場へ埋め立てることが可能になる方法を模索することが急務である。

本研究では、「廃棄物を廃棄物で制する」の考え方で、コストのかからない不要の産業廃棄物を硫化水素発生抑制材として活用し、埋立処分場からの硫化水素の発生を抑制させる方法に着目した。安定的に廃棄される酸化鉄を含む汚泥（以後、酸化鉄汚泥と表記）を利用し、埋め立てされる廃石膏ボードからの硫化水素発生に対する抑制効果について検討した。使用した酸化鉄汚泥は、主成分が Fe_2O_3 や Fe_3O_4 、その他微量成分として Ni や Ti を含んでいる。石膏ボード破砕物（以後、石膏と表記）と酸化鉄汚泥を、埋立処分場を模した埋立実験槽⁴⁾に充填し、硫化水素の発生状況をモニターすることで、酸化鉄汚泥の硫化水素の発生抑制効果を評価した。

2.調査研究方法

2.1 酸化鉄汚泥の物性

酸化鉄汚泥は湿った粘土状の状態で廃棄されるため、組成分析の際は、wet 状態、120℃乾燥、600℃焼成の 3 種の状態で測定を行った。測定は X 線回折法により結晶性化合物の同定を行った。また、酸化鉄汚泥の成分分析では、粉碎した試料を 0.4g 採取し、4g の四ホウ酸リチウム（無水）と混合し、1250℃で溶融することでガラスビードを作製して蛍光 X 線分析法にて分析を行った。その他、粒度分布測定、含水率測定、溶出試験を行った。粒度はレーザー回折式粒度分布測定器を用いた。含水率は、105℃の恒温状態に保持した試料を用いて計算した。溶出試験では、ICP とイオンクロマトグラフィーを用いて陽・陰イオンの分析を行った。

【連絡先】猪野陽佳 地方独立行政法人山口県産業技術センター 企業支援部 環境技術 G
〒755-0195 山口県宇部市あすとぴあ 4 丁目 1 番 1 号 TEL:0836-53-5050 FAX:0836-53-5070
Email: ino-haruka@iti-yamaguchi.or.jp 【キーワード】3R、廃棄物、硫化水素

2.2 酸化鉄汚泥による硫化水素抑制効果の検討

本実験で使用する実験槽は管理型処分場を想定した埋立実験槽⁴⁾を用いた。埋立実験槽(底辺 25cm×25cm、高さ 60cm の塩化ビニル製の直方体容器)は、埋立実験槽底部から 15cm を滞水させ、海面埋立地を想定した嫌気性埋立構造とした(図 1)。また、散水量は山口県の日平均降水量を週 1 回、埋立実験槽上部に設置した散水管より水道水を散水した。埋立実験槽上部には、散水時に水の流入を容易にするため三方コックを介して容量 2L のテドラーバックを取り付け、埋立実験槽上部空間の気体が一時的に流入する構造とした。培養温度は季節の温度変化の影響も調査すべく、温調を行わない室内にそのまま静置させた。試験期間は約 2 年間とし、サンプリングは週 1 回とし、検知管を用いてテドラーバック中の硫化水素を測定した。

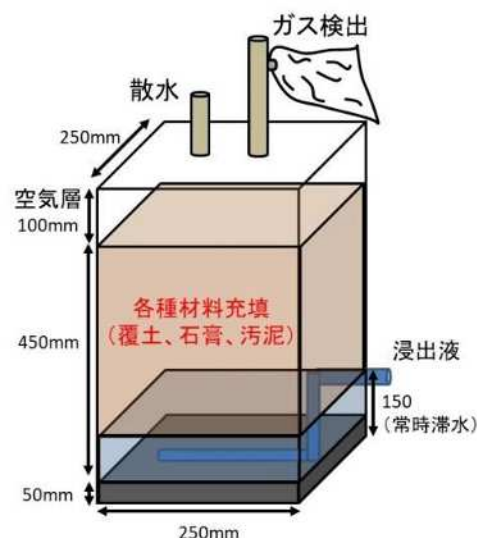


図 1. 埋立実験槽概要図

本実験での硫化水素発生源は石膏を使用し、図 2 に示すように酸化鉄汚泥との埋立条件は①基準となる石膏粉のみを高さ 50cm まで充填、②酸化鉄と石膏粉を 5:5 (重量比) で混合埋立、③酸化鉄と石膏粉を 3:7 (重量比) で混合埋立、④真砂土(覆土)と酸化鉄汚泥を 5:5 (重量比) で混合埋立、⑤真砂土(覆土)と酸化鉄汚泥を 7:3 (重量比) で混合埋立、合計で 5 つの実験槽を準備した。これら 5 つの実験槽を用いて①、②、③の実験槽を比較することで、酸化鉄汚泥による石膏からの硫化水素発生抑制効果の検討を行い、①、④、⑤の実験槽を比較することで、覆土に使用した酸化鉄汚泥による石膏から発生する硫化水素の吸着効果を検討した。分析項目は主に実験槽上部の気相中および浸出液から検出される硫化水素濃度、浸出液の pH、ORP、TOC 濃度、硫酸イオン濃度、その他、重金属の溶出試験、浸出液量の測定を実施した。

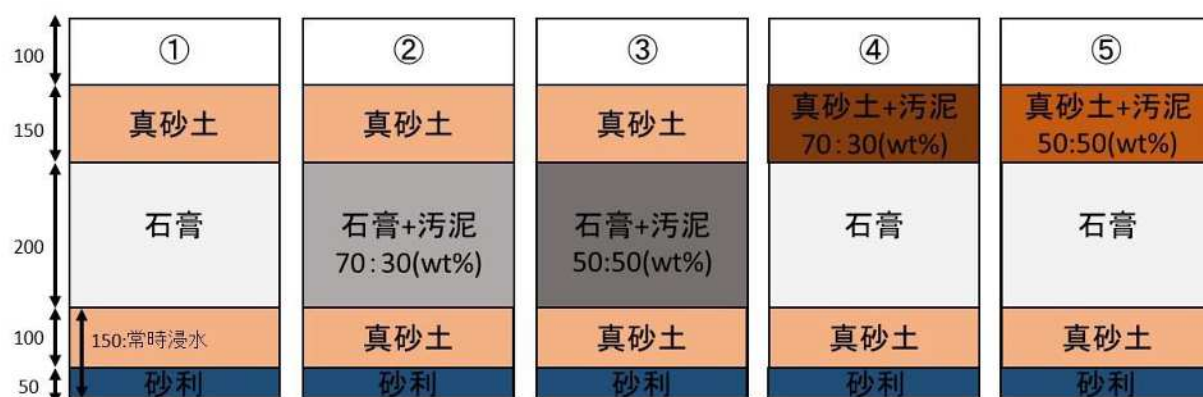


図 2. 各埋立実験槽の充填状態

3.研究結果および考察

3.1.酸化鉄汚泥の物性

酸化鉄汚泥の成分分析は蛍光 X 線分析法から、酸化鉄汚泥は約 50%の Fe、約 20%の Ba、約 8%の Ni 等の元素を含んでいることが明らかとなった。また酸化鉄汚泥の組成分析を行った結果を図 3 に示す。X 線回折パターンから酸化鉄汚泥は硫酸バリウム、ヘマタイト、マグネタイト、 LiNiO_2 等を含んでいることが明らかとなった。粒度分布測定から酸化鉄汚泥のメジアン径が $7\mu\text{m}$ 、含水量試験から含水比が 44%の値を示した。イオンクロマトグラフから約 1%の硫酸ナトリウムを含有することが確認された。

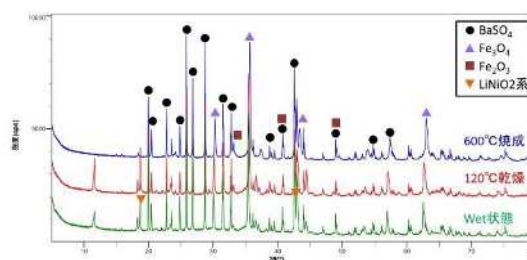


図 3.酸化鉄汚泥の XRD 測定結果

3.2.埋立実験槽上部における硫化水素濃度の経時変化

対照実験である①石膏のみを埋め立てた埋立実験槽からは 40 日を経過した後、埋立実験槽上部において 1~10ppm の硫化水素が検出された(図 4)。しかし、石膏と汚泥を混合した場合(②、③)、および真砂土と汚泥を混合した場合(④、⑤)、埋立実験槽上部の空間部において硫化水素は検出されなかった。この結果から、発生した硫化水素は酸化鉄汚泥中の鉄分により捕捉され、硫化水素の発生が抑制されている可能性が想定された。従って、真砂土を覆土材として使用した場合は硫化水素の発生を抑制できなかったが、酸化鉄汚泥を混合埋立または覆土材として再利用することで、石膏から発生した硫化水素の発生を抑制する手段として効果的であることが確認できた。また、①石膏のみの埋立実験で、硫化水素が約 3 週間検出されたが、その後は気温が低下したためか硫化水素が発生しにくいことも確認できた。

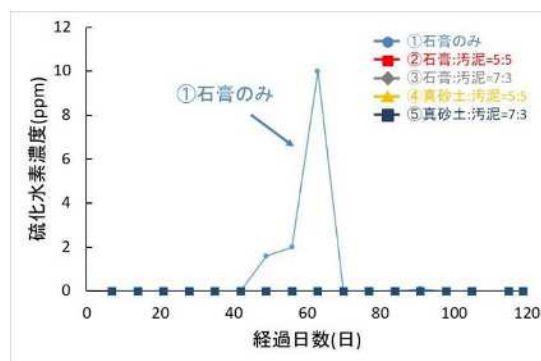


図 4.埋立実験槽上部空間部の硫化水素濃度の経時変化

3.3.埋立実験槽下部から流出される浸出液における硫化水素濃度の経時変化

酸化鉄汚泥を覆土材として使用した埋め立て実験(①、④、⑤)から流出した浸出液の曝気に伴い発生した硫化水素は 10ppm 以上の濃度で発生した(図 5)。一方で、石膏と酸化鉄汚泥を混合した(②、③)の浸出液から発生した硫化水素濃度は最大で 6ppm であった。特に③石膏+汚泥(70:30)においては、硫化水素濃度は最大で 0.3ppm であり、酸素欠乏症等防止規則の管理濃度の 1ppm 以下まで低減できることが確認された。以上のことから、酸化鉄汚泥と石膏を混合して埋め立てること手法は、浸出液への硫化水素の流出を抑制し、浸出液処理

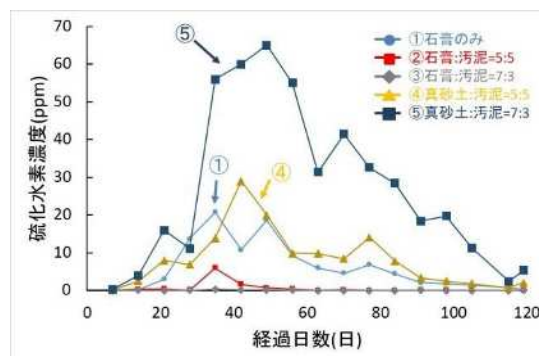


図 5.浸出液から発生した硫化水素濃度の経時変化

施設における水処理工程での硫化水素発生を抑制することが可能であると確認できた。②、③の埋め立て条件において硫化水素濃度に差が出た原因は、酸化鉄汚泥は粘土状であるため攪拌が難しく、石膏と酸化鉄汚泥の混ざり具合に差があったためと推測される。

3.4.TOC と浸出液の硫化水素濃度の関係

硫化水素の発生と有機物の関係を既存の調査研究¹⁾と比較すると、本実験では①および④、⑤の条件では、TOC の大小に関係なく硫化水素の発生が確認された（図 6）。②、③の条件では TOC が 50mg/L を超える高い値であるにもかかわらず、硫化水素の発生を抑制していることが確認できた。この結果、石膏に酸化鉄汚泥を混ぜ込むことで、有機物量の影響も若干緩和され、硫化水素の発生を抑制できることが推察される。

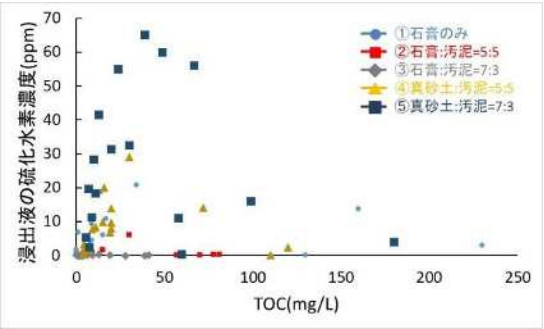


図 6.TOC と浸出液の硫化水素濃度の関係

4.結論

本実験で用いた最終処分場を模した小型の埋立実験槽において、得られた結果を以下に示す。
(1)酸化鉄汚泥を混合埋立、または覆土材として使用することで、気相中への硫化水素放出は抑制可能であった。
(2)浸出液の曝気に伴い発生した硫化水素は、酸化鉄汚泥を覆土材として使用した場合は放出されることを確認した。しかし、酸化鉄汚泥を混合埋立することで硫化水素の放出は抑制可能であった。
(3)酸化鉄汚泥を混合埋立てすることで、有機物の量に関係なく硫化水素の放出抑制ができることを確認した。

以上のことから、現在廃棄物として埋立処分されている酸化鉄汚泥を最終処分場における硫化水素発生抑制材として有効活用できることが確認できた。

表 1.埋立実験槽を用いた硫化水素放出状況

	①	②	③	④	⑤
硫化水素（地表）	×	○	○	○	○
硫化水素（浸出液）	×	△	○	×	×

硫化水素抑制濃度 ○：1ppm 未満、△：1～10ppm、×：10ppm 以上

5.参考文献

1)井上雄三,国立環境研究所研究活動報告,第 188 号.
2)武下俊宏,樋口壯郎,花嶋正孝,廃棄物学会研究発表講演論文集,1224-1226,2004
3) C. Plaza, Q. Xu, T. Townsend, G. Bitton and M. Booth,Journal of Environmental Management, Vol.84, No.3,314-322,2007
4)正本博士,松清敦史,重松幹二,松藤康司,柳瀬龍二,廃棄物資源循環学会論文集,Vol.23,No.3,pp.144-153,2012.

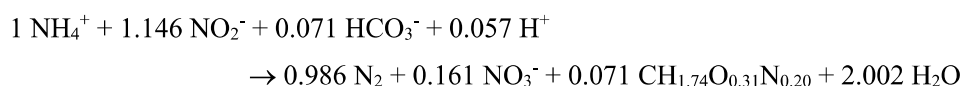
埋立処分場浸出水の超高効率かつ安定した窒素除去を実現するテーラーメイド型 anammox プロセスの開発

○押木 守、上藺 亮達、岡部 聡（国立大学法人 北海道大学）

1. 研究背景および目的

管理型最終処分地から発生する浸出水は、生物易分解性有機物濃度が低い(BOD <200 mg/L)一方、高濃度のアンモニア性窒素(250 mg/L)、無機塩類（例えば、Ca 2,000 mg/L, Cl⁻ 10,000 mg/L）を含有している。従って、浸出水の適切な処理は閉鎖性水域における富栄養化現象の防止、ひいては流域の水環境保全のために不可欠である。浸出水処理として生物処理（硝化・脱窒法）が従来適用されてきたが、メタノール添加を伴うこと、余剰汚泥発生量が多いこと、温室効果の強い N₂O ガスを発生することが問題視されている。管理型最終処分地の埋立てが終了した後も省令にて定められる廃止基準に適合するまでの長期間にわたり浸出水処理は継続されるため、省コストかつ温室効果ガス排出量に配慮した浸出水処理技術が強く求められている。

嫌気性アンモニウム酸化(anaerobic ammonium oxidation, anammox)プロセスは以下のような量論反応で進行する微生物反応であり、1990年代に下水処理場から発見された比較的新規な生物プロセスである。



Anammox反応は、従来の硝化・脱窒法と比べて、1) 省エネルギー(曝気動力を6割削減)、2) 余剰汚泥発生量が少ない(7割削減)、3) 脱窒反応のための電子供与体の投与が不要、4) 温室効果ガス(N₂O)発生量が少ないという特徴を有し、次世代型窒素除去技術としてその普及が海外、特に中国において急速に進められている。埋立地浸出水のような比較的高濃度に窒素化合物を含む排水へanammoxプロセスを導入することは国際的なトレンドであり、我が国の埋立地浸出水処理もこの潮流に乗り遅れることがないよう、anammoxプロセスの導入について本格的に検討すべき段階にある。一方、anammoxプロセスは省エネ型窒素除去プロセスとして嫌気性消化汚泥脱水ろ液処理などへ応用されているが、浸出水処理への適用は一向に進んでいない。これは、浸出水に含まれる高濃度の無機塩類がanammox 反応を著しく阻害してしまうためであり、高塩濃度で活性を発揮する好塩anammox汚泥が必要不可欠である。また、浸出水は、廃棄物および立地条件(例: 海面埋立管理型廃棄物処分場)に応じて浸出水の組成(例: BOD、アンモニウム、塩分濃度)が異なることから、anammoxプロセスを高効率かつ安定して運転するためには浸出水に応じて最適なanammox細菌を選定・利用する運用が望まれる。Anammox細菌は系統分類学的に5属に分類され、それぞれがユニークな生理学的特性を持っていることを著者らはこれまでに明らかにしている。例えば、*Scalindua*属細菌は生育に塩分濃度を要求すること、*Brocadia*属細菌はアンモニウムに対する親和性は低いものの増殖速度が極めて高い細菌種であることなどを明らかにしてきた。浸出水の組成に応じて最適なanammox細菌を植菌することができれば、運転開始に要するスタートアップ期間を短期間に抑えることができ、これは増殖速度が低い(倍加時間が1～2 week)anammox細菌では極めて重要な検討要素である。また、浸出水の組成に最適なanammox細菌を用いることで、anammoxリアクターの高効率

押木 守 〒060-8628 北海道札幌市北区北十三条西 8 丁目 北海道大学工学部 A 棟 A3-12 号室
011-706-7597/oshiki@eng.hokudai.ac.jp [キーワード: 浸出水, 排水処理, 窒素除去, anammox]

かつ安定した浸出水処理が期待できる。

本研究の目的は、埋立処分場浸出水への嫌気性アンモニウム酸化(anammox)プロセスの適用を念頭にanammox細菌の増殖・競合に及ぼす塩濃度、アンモニウム、BOD濃度の影響を明らかにすることであり、塩濃度がanammox細菌の増殖・競合に及ぼす影響を中心に調査を進めた。具体的には、1) 4属のanammox細菌のanammox活性に及ぼす塩濃度の影響をバッチ試験で評価する試験、2) 異なる塩濃度で運転する膜分離型anammoxリアクター内でのanammox細菌の競合をモニタリングする試験を実施した。これらの試験により、塩濃度がanammox細菌の競合を決定づける環境要因であることを明らかにし、埋立処分場浸出水の塩濃度に応じたanammox細菌種の選定が必要不可欠であることを示した。

2. 実験方法

2.1 Anammox細菌の培養

本研究ではanammox細菌 *Candidatus Brocadia sinica* (*Brocadia*属), *Ca. Kuenenia stuttgartiensis* (*Kuenenia*属), *Ca. Jettenia caeni* (*Jettenia*属), *Ca. Scalindua sp. husus a-7* (*Scalindua*属)を調査に用いた。各anammox細菌は都市下水処理場活性汚泥、湾内沈積物等から集積培養されたバイオマスであり、研究室で2年以上連続培養を続けたものである。

Anammox細菌の培養には2L容積の膜分離型リアクター(MBR)を用いた。MBRへ供給した基質は以下の組成である: CaCl_2 (86 mg L^{-1}), $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (99 mg L^{-1}), KHCO_3 (500 mg L^{-1}), KH_2PO_4 (24.4 mg L^{-1}), 0.5 mL trace element solution I, 0.5 mL trace element solution II。ここへ等モル量の $\text{NH}_4(\text{SO}_4)_2$ および NaNO_2 を添加し、窒素負荷を調整した。塩濃度の調整は人工海水 SEALIFE (マリンテック)の添加によって行った。本MBRを用いて各anammox細菌が全菌の9割以上を占めるような高度集積物を得ることができ、本バイオマスを以下の試験へ供した。

2.2 異なる塩濃度におけるanammox活性の測定

異なる塩濃度の培地へ各anammox細菌を植種し、anammox活性を $^{29}\text{N}_2$ ガス生成速度として測定した。上述のMBRから採取したanammoxバイオマスを嫌気グローブボックス内(O_2 , <1 ppm)で培地洗浄した後、5 mLの菌体懸濁液を12.5 mL容ガラスバイアルへ分注した。菌体懸濁液の塩濃度はSEALIFEの添加量によって調整し、塩濃度は0から12%(w/v)とした。基質として、 $^{14}\text{N-NH}_4\text{Cl}$ および $^{15}\text{N-NaNO}_2$ を嫌気的に添加し、室温(25°C)・暗所で培養し、ヘッドスペース中でのガス生成をGC/MSでモニタリングした。バイアル内でanammox反応が生じた場合には、 $^{14}\text{N-NH}_4^+$ および $^{15}\text{N-NO}_2^-$ から $^{14-15}\text{N}_2$ ($m/z = 29$)ガスが生成し、大気中の N_2 ガス($^{14-14}\text{N}_2$, $m/z = 28$)および脱窒反応を経由して生成する N_2 ガス($^{15-15}\text{N}_2$, $m/z = 30$)と区別して検出・定量することが可能である。各試験は2ないしは3バイアルを用いて行い、各試験を2回独立して繰り返し試験を行った。

2.3 異なる塩濃度におけるanammox細菌の競合: MBRを用いた長期競合試験

2種類以上のanammox細菌を1個のMBR内で連続培養し、各anammox細菌の存在量の変動を遺伝子定量によってモニタリングした。定期的にバイオマス懸濁液1 mLを採取し、抽出ゲノムDNAを鋳型として、抽出DNA中の*B. sinica*, *K. stuttgartiensis*, *Scalindua sp.*の16S rRNA遺伝子コピー数を定量PCR法(TaqMan probe法)で定量した。PCR反応はABI prism7500 sequence detection system (Applied Biosystems)を用いて行い、以下のようなPCR条件とした; 30 sec at 95°C, [5 sec at 95°C, 34

sec at 60°C] × 40 cycles. 検量線は各anammox細菌の16S rRNA遺伝子を含むプラスミドDNAを $10^5 \sim 10^8$ copies/ μ Lとなるように段階希釈して調整した. 定量値に対して, 各anammox細菌のゲノム上の *rrn* オペロンのコピー数を考慮して, 定量値とした.

3. 結果および考察

3.1 塩濃度がanammox活性へ短期的に及ぼす影響

Anammox細菌4種を異なる塩濃度条件下で培養し, anammox活性として $^{29}\text{N}_2$ ガス生成活性を比較した. 最も高いanammox活性を100%として相対割合で比較した結果を図1に示す. 4種のanammox細菌は塩濃度に対して異なる応答を示した. *B. sinica*および*J. caeni*は塩濃度0%の条件で最も活性が高く, 0.5%以上の塩濃度では, 塩濃度の上昇に伴って活性は低下し, 3%以上で活性が消失した. *K. stuttgartiensis*について, 最も高い活性が認められたのは塩濃度0.25~1.5%の条件で, 塩濃度が2%より高くなると, 活性は著しく低下した. 一方, *Scalindua* sp.は塩濃度2.5%で最も活性が高く, 2.5%を前後に塩濃度の減少あるいは増加に伴って活性は減少した. 図3の結果から, anammox細菌の塩濃度への応答は細菌種によって大きくことなることは明らかである. *Scalindua* sp.は4種類の中で最も高い塩濃度域を好み, 海水程度の塩濃度がなければむしろ活性は低下した. このような結果は, 塩濃度がanammox細菌の競合を左右する強い環境因子になることを明瞭に示しており, anammox細菌の環境分布を理解する上でも極めて重要な知見である. 浸出水処理の実務を考えた場合, 例えば, 塩濃度が高い浸出水を受け入れる処理装置には植種バイオマスとして, *Scalindua*または*Kuenenia*を用いるべきであり, *Brocadia*や*Jettenia*の植菌は不適切であることが明らかとなった.

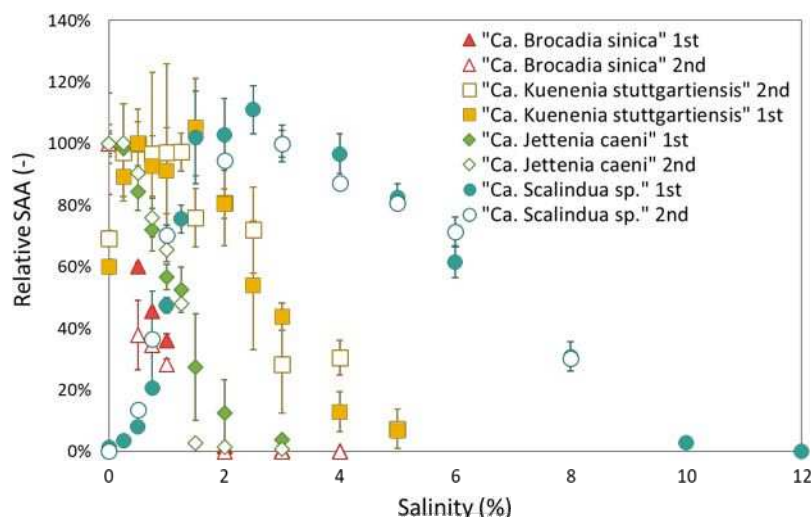


図 1. 培地中の塩濃度が各種 anammox 細菌の比活性に及ぼす影響

3.2 塩濃度がanammox細菌の競合へ及ぼす影響

2種類以上のanammox細菌を単一MBR内で連続培養し, 両者の存在量を定量PCR法でモニタリングした. *B. sinica*と*K. stuttgartiensis*の競合を調査した結果を図2に示す. 本試験は塩濃度0%, 1.25%, 3%の条件でそれぞれMBR1基を運転し, それぞれ系列1, 系列2, 系列3として図示している. 塩濃度0%の条件では運転開始当初は*K. stuttgartiensis*が70%程度を占めていたが, 運転開始後か

ら徐々にその割合は減少し、40日以降ではほぼ同等となり、70日以降では*B. sinica*が優勢となって安定した。塩濃度1.25%の条件では、運転開始10日後から*K. stuttgartiensis*の存在割合が増大に、*B. sinica*の存在割合は減少に転じた。運転開始15日で両者の存在割合はほぼ等しくなり、最終的には*K. stuttgartiensis*が優勢の状態に安定した。塩濃度3%の条件では、*K. stuttgartiensis*が6割、*B. sinica*が4割程度を示す状態で運転を開始したが、こちらでは*K. stuttgartiensis*が常に優占化し、*B. sinica*は最終的にほぼ検出されない程度まで存在量が減少した。Anammox細菌間の競合に及ぼす塩濃度の影響を長期培養試験で調査したところ、塩濃度で優占するanammox細菌種が明瞭に異なることが明らかとなった。上述の図1では塩濃度が短期間でanammox活性に及ぼす影響を明らかにしたが、本試験の結果は先の短期間の暴露試験の結果とおおよそ一致するものだった。図3の短期暴露試験の結果では*B. sinica*は塩濃度0%の条件で最も活性が高く、一方、*K. stuttgartiensis*の活性は若干の塩濃度(0.25~1.5%)存在下で最も高い。従って、図2の塩濃度0、1.25%、3%の条件ではそれぞれ*B. sinica*、*K. stuttgartiensis*、*K. stuttgartiensis*が競合に勝ち、優占すると予想される。本試験によって、anammox細菌間の競合において塩濃度が強い影響をもつことが改めて実証され、排水処理装置立ち上げ時の適切なanammoxバイオマスの選定およびanammox細菌の環境分布を理解するために有益な知見が得られた。なお、anammoxバイオマスの選定においては塩濃度への耐性のみならず、バイオマス量の確保が容易であることも重要な判断材料になりうる。この点について、*Scalindua*は最も強い塩耐性を示すものの、増殖速度が他のanammox細菌よりも低く、植種バイオマスを確保するための大量培養ではボトルネックとなりかねず、anammox細菌のより効率的な培養方法の開発も課題である。

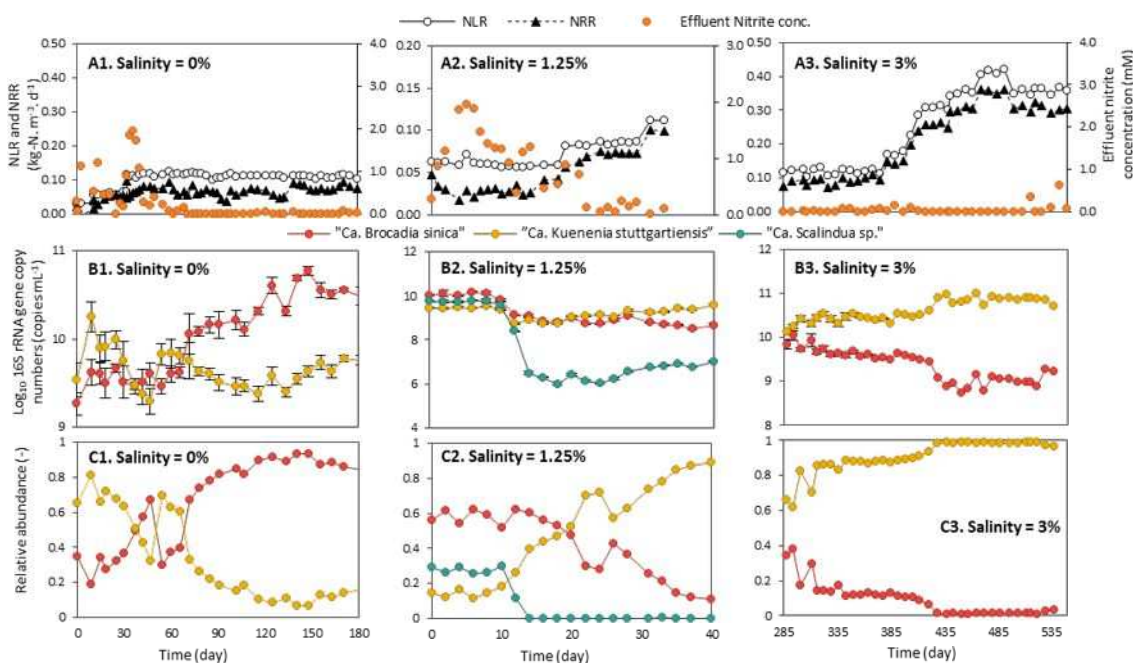


図2. 培地中の塩濃度が anammox 細菌の競合へ及ぼす影響

謝辞: 本研究は令和2年度「廃棄物の適正処理・水処理に係る調査研究助成制度」(課題番号020003)の助成を受けて実施した。ここに記し、深く感謝の意を表する。

陸上残土に含まれる重金属類の長期溶出性に関する科学的知見の提供
：残土に含まれる二酸化チタンの重要性評価（その3）

○鈴木 祐麻（山口大学大学院創成科学研究科・准教授）

1. はじめに

土壌・底質に含まれる金属酸化物が効果的に重金属を収着し、その結果、重金属類の環境内挙動に影響を与えることは幅広く知られた知見である。しかし、二酸化チタンが重金属を効果的に収着することは知られているものの、土壌科学分野のほとんどの報告は酸化鉄あるいは酸化マンガンに着目している。その結果、重金属による土壌汚染における二酸化チタンの重要性を議論した研究例は、筆者の過去の研究を含む数少ない報告のみ[1-3]である。例えば、Payne ら[1]はジョージアカオリナイトへの U(VI)の収着を調べ、U(VI)がジョージアカオリナイトに不純物として含まれているアナターゼ（二酸化チタンの化学形態の一種）に選択的に収着していることを報告している。また、筆者ら[3]はデキシーカオリナイトへの Pb(II)の収着を詳細に調べ、Pb(II)が不純物として含まれているアナターゼに選択的に収着していることを報告した。そして、逐次抽出法を用いた分析を行い、デキシークレー中においては、酸化鉄に収着している Pb(II)よりアナターゼに収着している Pb(II)の方が多いことを明らかにしている。これらの研究は、アナターゼが土壌・底質中において重金属の挙動に大きな影響を与えることを示唆しているものの、知見は不十分であるのが現状である。

これらの背景を踏まえ、研究一年目および二年目では、1) デキシーカオリナイトと試薬のアナターゼへのプロトンとカドミウムの吸着現象を内圏錯体と外圏錯体を組み合わせたモデルを用いてモデリングし、2) 得られた錯体定数を用いてカドミウムの溶出濃度を予測した。また、3) 塩分濃度がカドミウムの溶出性に与える影響を定量的に評価した。そしてこれらの課題に対して実験を行った結果、塩分はカオリナイトからのカドミウムの溶出に大きな影響を与えるが、アナターゼを多く含む土壌からは溶出量が大幅に低減されることが明らかになった。さらには、カオリナイトと並び代表的な粘土鉱物に挙げられるモンモリロナイトを対象として、プロトンおよびカドミウムの吸着現象をモデリングし、得られた錯体定数から雨水に含まれるバックグラウンドイオンがモンモリロナイトからのカドミウムの溶出に与える影響およびアナターゼの影響を評価

代表連絡者：鈴木祐麻

連絡先：〒755-8611 山口県宇部市常盤台 2-16-1

電話番号：0835-85-9690(直通)

Email：tsuzuki@yamaguchi-u.ac.jp

キーワード：陸上残土、重金属、溶出、微量金属酸化物、アナターゼ

した。その結果、モンモリロナイトはカオリナイトに比べて高い陽イオン交換容量を有するためにアナターゼの影響は比較的小さいこと、そして雨水に含まれるバックグラウンドイオンにより溶出するカドミウムイオンが最大2倍程度増加することが明らかとなった。これらの結果を踏まえて、研究三年目となる今年度は、1) 結晶面が露出したアナターゼ結晶を合成し、結晶面ごとに異なることが予想される重金属との親和性を評価すること、そして2) マンガンにより汚染されたモンモリロナイト海水に曝された際のマンガンの溶出挙動を評価すること を目的として実験を行った。

2. 調査研究方法

本研究で使用したモンモリロナイトは山形県の月布鉱山から採掘した天然ベントナイトを精製することで得たナトリウム型モンモリロナイトであり、クニミネ工業（株）から購入した。このモンモリロナイトの BET 比表面積は $13.4 \text{ m}^2/\text{g}$ である。特に明記しない限り、他の試薬は Sigma-Aldrich、ナカライテスク、あるいは富士フィルム和光の特級グレードの試薬を用いた。

2. 1 結晶面が露出したアナターゼ結晶を合成および鉛吸着実験

結晶面が露出したアナターゼ結晶を合成は、Yang ら[4]が用いた方法を参考にした。具体的には、(001)面と(101)面がきれいに露出した結晶を得られた合成条件である“3mmol/L となるようにフッ化チタン(IV)を10%のフッ化水素水溶液に入れて180度で24時間反応”でアナターゼを合成した。得られたアナターゼを用いた鉛吸着実験は、50 mg のアナターゼを測り取り、2.0 mmol/L の鉛（硝酸鉛で供給）を含む50 ml の水溶液と混合した。そして、水酸化ナトリウムを用いて pH を6付近に調節した後に、振とうしながら1時間の吸着実験を行った。24時間後、孔径 $0.2 \mu\text{m}$ のメンブレンフィルターでろ過することで得られたろ液に含まれる鉛濃度を原子吸光光度計を用いたフレーム法により測定して、鉛が水中には存在せずにアナターゼに収着していることを確認した。

2. 2 マンガンのモンモリロナイトへの吸着および溶出実験

56 mg のモンモリロナイトを測り取り、0.5 mmol/L あるいは2.0 mmol/L のマンガン（塩化マンガンを供給）を含む30 ml の水溶液と混合した。なお、この水溶液は、バックグラウンドイオンとして塩化ナトリウムを0.001 mol/L、0.05 mol/L、あるいは0.5 mol/L 含む。塩酸あるいは水酸化ナトリウムを用いて pH を調節した後に振とうしながら24時間の吸着実験を行い、24時間後の pH を測定した。そして、孔径 $0.2 \mu\text{m}$ のメンブレンフィルターでろ過することで得られたろ液に含まれるマンガンの濃度を原子吸光光度計 AA-6200 (Shimadzu Corp., Kyoto, Japan)を用いたフレーム法により測定した。

溶出試験は環境省告示第18号をベースに、固液比および溶出液を本研究の目的に応じて変更して行った。固液比は環境省告示第18号で定められている1:10ではなく1:1000として行った。また、溶出液は、pH 調節に用いた微量の硫酸イオンあるいはナトリウムイオン以外のイオンを含まない溶出液“DDI water”に加えて、人工海水マリンアート SF-1 を10倍

に薄めた“Seawater(10 times dilution)”および希釈を行わない“Seawater”の 3 種類で実験を行った。6 時間の浸とうを行った後に水相の pH と溶出したマンガン濃度を原子吸光光度計 AA-6200 (Shimadzu Corp., Kyoto, Japan)を用いたフレイム法により測定した。

3. 結果と考察

3. 1 結晶面が露出したアナターゼ結晶を合成および鉛吸着実験

本研究では“3mmol/L となるようにフッ化チタン (IV) を 10%のフッ化水素水溶液に入れて 180 度で 24 時間反応”を初期条件とし、種々の条件でアナターゼの合成を行った。SEM 画像の例を Fig.1 に示す。Fig. 1 から分かるように、左上の画像では期待したような (001)面と(101)面が露出したアナターゼが得られていることが分かるが、複数の異なる形のアナターゼも含まれており、単一の形状を有するアナターゼは得られなかった。また、

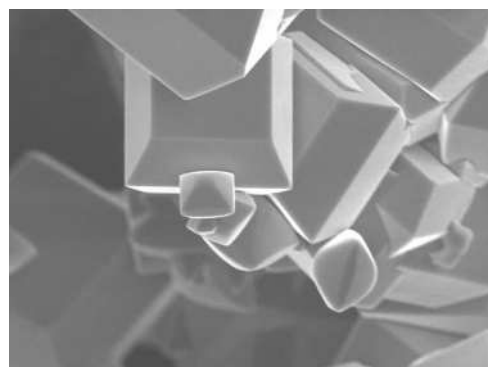


Fig.1 Representative SEM images of anatase synthesized in this study

同条件で複数回繰り返しても毎回得られるアナターゼの大きさや形状は異なり、再現性が得られなかった。次に得たアナターゼを用いて鉛吸着実験を行い、実験後のアナターゼの SEM-EDX 分析を行った。しかし、鉛は(101)面および(001)面の両方を覆うように収着しており、どちらかに特異的にアナターゼが収着している様子は観察できなかった。

3. 2 マンガンのモンモリロナイトへの吸着および溶出実験

pH と塩化ナトリウムの濃度がマンガンの吸着率に与える影響を評価した結果を Fig. 2 に示す。まず、初期マンガン濃度がマンガンの吸着率に与える影響を考察すると、全ての塩化ナトリウム濃度において、初期マンガンを高くすることでマンガンの吸着率は低下した。次に pH がマンガンの吸着率に与える影響を考察すると、pH が 6.5 以下では pH の増加に伴いマンガンの吸着率が徐々に増加するのに対して、pH7 付近からマンガンの吸着率は急激に増加し、pH8 では 100%に近い吸着率を示していることが分かる。そして最後に塩化ナトリウム濃度がマンガンの吸着率に与える影響を考察すると、塩化ナトリウム濃度が高くなるにつれて pH が 6.5 以下ではマンガンの吸着率が低下し、海水に含まれるおおよそのナトリウム濃度である 0.5 mol/L ではマンガンの吸着率は 10%以下の非常に低い値となった。ただし、pH7 より高い領域では塩化ナトリウム濃度の影響は比較的小さかった。つまり、マンガンの吸着率が塩化ナトリウム濃度に強く依存した pH6.5 以下ではマンガンの主な吸着メカニズムは $\equiv X^-$ へのイオン交換反応であり、pH7 以上では $\equiv SOH$ における内圏錯体の形成が主な吸着メカニズムであると考えられる。

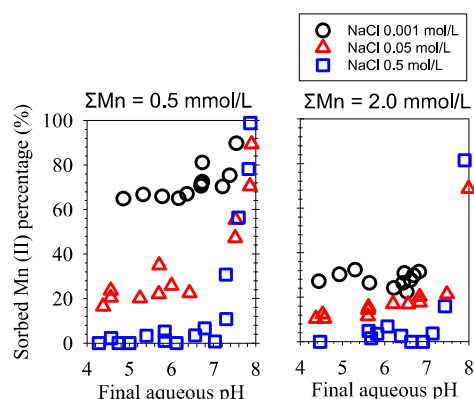


Fig. 2 Mn(II) sorbed on montmorillonite as a function of the initial Mn(II) concentration and the NaCl concentration.

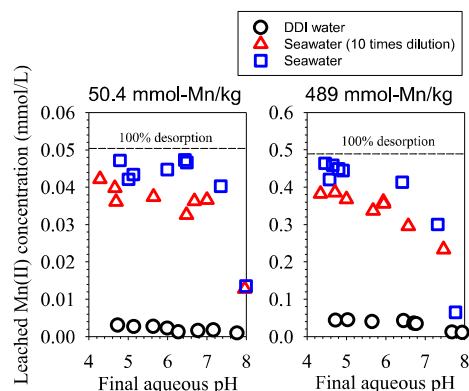


Fig. 3 Concentration of Mn(II) in the leaching solution as a function of the Mn(II) content in montmorillonite.

3種類の溶出液がマンガンの溶出に与える影響を評価した結果を Fig. 3 に示す。pH が 4-6.5 の領域では pH が低下するにつれて少しずつ溶出量が増加する傾向が得られたが、顕著な違いはなかった。また、イオンが含まれていない“DDI water”を溶出液として使った場合はマンガンの溶出濃度が低く抑えられているものの、“Seawater (10 times dilution)”を用いた場合はマンガンの溶出濃度が大きく増加し、“Seawater”を用いた場合はさらに溶出濃度が増加した。つまり、本研究で使用したモンモリロナイトの場合、海水に含まれるプロトンよりもナトリウムイオンやマグネシウムイオンなどにより、イオン交換態としてモンモリロナイトに吸着しているマンガンが容易に溶出することが分かった。

参考文献

- [1] T. E. Payne, J. A. Davis, G. R. Lumpkin, R. Chisari, T. D. Waite, Surface complexation model of uranyl sorption on Georgia kaolinite, *Appl. Clay Sci.* 26 (2004) 151-162.
- [2] J. Zhang, C. Li, D. Wang, C. Zhang, L. Liang, X. Zhou, The effect of different TiO_2 nanoparticles on the release and transformation of mercury in sediment, *J Soils Sediments*. 17 (2017) 536-542.
- [3] T. Suzuki, M. Okita, S. Kakoyama, M. Niinae, H. Nakata, H. Fujii, Y. Tasaka, Preferential adsorption and surface precipitation of lead(II) ions onto anatase in artificially contaminated Dixie clay, *J. Hazard. Mater.* 338 (2017) 482-490.
- [4] H.G. Yang, C.H. Sun, S.Z. Qiao, J. Zou, G. Liu, S.C. Smith, H.M. Cheng, G.Q. Lu, Anatase TiO_2 single crystals with a large percentage of reactive facets, *Nature*. 453 (2008) 638-641.

廃棄物埋立処分場の排水処理プロセスにおける Microplastics の

低減効果と周辺環境への影響調査（その3）

○田中周平 京都大学大学院地球環境学堂

1. 研究の背景と目的

5 mm未満のプラスチック（Microplastics, 以下MPs）による水環境汚染が問題となっている。本研究では、廃棄物埋立処分場の排水処理プロセスにおけるMPsの低減効果を把握することを主目的とし、これまで測定が困難であった1~100 μm のMPsの採取、測定、同定方法を開発することで、さらに周辺環境の生物への濃縮過程を含めた議論が可能となる。廃棄物の特徴の異なる埋立処分場を対象とし、各処理プロセス別のMPs量、成分、大きさを調査し、低減効果をプロセス別に把握した。

（1年目の研究内容と成果）

廃棄物埋立処分場の浸出水、排水処理施設の原水、曝気槽流出水、放流水について、100 μm 以上のMPsを対象に挙動調査を実施した結果、以下の主な知見を得た。廃棄物埋立処分場の浸出水、排水処理施設の原水、曝気槽流出水、放流水、浸出水から検出されたMPsは、それぞれ2.9個/ m^3 、2.8個/ m^3 、958個/ m^3 、22.4個/ m^3 であった。曝気槽流出水のMPsの内、98.7%はポリエチレンであり、曝気槽で使用されているプラスチック担体と同じであった。放流水のMPsの内、92.6%がポリエチレンであり、曝気槽内で生成したプラスチック担体由来であることが推測された。上記の結果から、本埋立処分場では、曝気槽内のプラスチック担体が劣化し、一部がMPsとして放流水にも混ざっていることが示唆された。

（2年目の研究内容と成果）

廃棄物埋立処分場の浸出水および排水処理施設の原水、曝気槽流出水、放流水について、100 μm 以上のMPsを対象に挙動調査を実施した結果、浸出水、排水処理施設の原水、曝気槽流出水、放流水から検出されたMPsは、それぞれ4.8個/ m^3 、22.7個/ m^3 、147個/ m^3 、8.0個/ m^3 であった。曝気槽流出水および放流水から検出されたMPsの内、それぞれ100%、81.1%がポリエチレンであり、本埋立処分場では曝気槽内のプラスチック担体が劣化し、一部がMPsとして放流水にも混ざっていることが示唆された。さらに、10~100 μm の微小なMPsを対象に挙動調査を実施した結果、浸出水、排水処理施設の原水、曝気槽流出水、放流水から、それぞれ22,200個/ m^3 、17,700個/ m^3 、20,460個/ m^3 、9,600個/ m^3 のMPsが検出された。放流水から検出された主な成分はポリエチレンであり、次いで、ポリプロピレン、エチレン／プロピレンという構成であった。

（3年目の研究内容）

2018年度、2019年度と同様に、廃棄物埋立処分場の浸出水および排水処理施設の原水、曝気槽流出水、放流水について、粒径100 μm 以上、粒径10~100 μm のMPsを対象に挙動調査を実施した。また、プラスチック担体のFTIRスペクトルと曝気槽流出水中のMPsのFTIRスペクトルを比較した。また、実用されていたプラスチック担体、未使用のプラスチック担体入手し、紫外線を照射して劣化指標の検討を行った。さらに微小なMPsの挙動やプラスチック担体の成分とその微細化に及ぼす影響因子を検討した。

2. 調査および分析の方法

2.1. 調査場所、採水地点および採取方法

田中周平

京都大学大学院地球環境学堂

京都府京都市左京区吉田本町

Tel: 075-753-5171 E-mail: tanaka.shuhei.3u@kyoto-u.ac.jp

キーワード：埋立処分場、排水処理プロセス、マイクロプラスチック、プラスチック担体

関係者の方々と相談し、埋立処分場で2020年11月2日に採水と試料採取を行った。粒径100 μm 以上のMPsを測定は以下の方法で行った。埋立処分場よりポンプアップされ、排水調整池にホースで導入している流出部にて浸出水を採水した。浸出水の採水では流量を測定し、その後、排水部分に直接プランクトンネットを固定し、0.90 m^3 水をろ過した。排水処理施設の調査では、排水調整池からポンプアップされた水が汚水計量槽に導入されており、汚水計量槽に水中ポンプを設置し採水した（貯水池後原水）。水中ポンプホースの流出部に直接プランクトンネットを固定し0.84 m^3 の水をろ過した。また、曝気槽の流出部にも水中ポンプを設置し採水した（曝気槽流出水）。水中ポンプホースの流出部に直接プランクトンネットを固定し0.84 m^3 の水をろ過した。最後に、放流設備内の放流ポンプから直接採水を行った（放流水）。ポンプの流出部に直接プランクトンネットを固定し1.69 m^3 の水をろ過した。なお、近年、放流水質が良好であるため、試料採取日当時は排水処理装置を稼働させていなかった。

粒径10～100 μm のMPsを測定するために、別途、2 Lのペットボトルの底面部分を切り取り漏斗状にし、ねじ口の部分には巾着状にした目開き10 μm のプランクトンネットを輪ゴムで巻き付けて固定し、上部の開放部分には目開き100 μm のプランクトンネットをクリップで固定した。各採水地点で手つきビーカーにより採水した試料水を、プランクトンネットの目開き100 μm 、10 μm の順に通水し、採取した。浸出水、貯水池後原水、曝気槽流出水、放流水の各採水地点における通水量は、それぞれ9 L、21 L、21 L、22 Lであった。

粒径1～10 μm のMPsを測定するために、各地点において試料を10 Lのバロンボックス2個に直接採取し、実験室に持ち帰った。担体は、未使用のものと、酸化・硝化槽および硝化槽から直接を採取したものを供していただいた。

2.2. 試料の前処理方法

実験室に持ち帰った目開き100 μm プランクトンネットは、洗浄瓶に入れた30%過酸化水素水を吹き付けて表面を洗い出した。洗い出した試料は1 Lのふた付きガラス瓶に受け、有機物分解を目的としたフェントン処理を行った（5 mM FeSO_4 を5 mL添加）。アルミ箔で覆い、室温下で14日間静置した。清浄な100 μm プランクトンネット上に吸引ろ過後、超純水で十分に洗浄し、室温（25℃）において1日乾燥後、プランクトンネット上の試料をガラス製ペトリ皿（直径 65 mm）に移した。

実験室に持ち帰った目開き10 μm のプランクトンネットは、洗瓶に入れた30%過酸化水素を吹き付けて表面を洗い出した。洗い出した試料はふた付きガラス瓶に受け、有機物分解を目的としたフェントン処理を行い、アルミ箔で覆い12日間静置した。フェントン反応後の試料を清浄な目開き10 μm プランクトンネットで吸引ろ過し、NaI（5.3 M）で洗い出し、比重分離を行った後、*Milli-Q*で洗浄後、100 mLのエタノールに置換した。

粒径1～10 μm 測定用の試料は、実験室で清浄な目開き10 μm のプランクトンネットでろ過後、さらに清浄な1 μm のプランクトンネットに10 Lずつ通水した。乾燥後、20 mLのエタノールでふた付きガラス保存瓶（100 mL）に洗い出し、分析に供した。

曝気槽から採取したプラスチック担体は表面に多量の有機物が付着していたため、これらの除去を目的として30% 過酸化水素およびフェントン試薬により処理を行い、洗浄、乾燥後、成分分析に供した。また、プラスチック担体に対する紫外線の影響を把握するため、未使用担体を1/4の大きさに裁断し、紫外線照射器により紫外線（UV-B）を0～1,440時間の間で照射し、その変化を調べた。

2.3. Microplasticsの成分同定の方法

粒径100 μm 以上のMPsは、前処理を行った試料を対象に、粒径測定・成分同定に供した。MPsと予想される粒子を手選別により分離し、実体顕微鏡（STZ-161-TLED, 島津理化製）と専用デジタルカメラ（MoticamU, 島津理化製）を用いて撮影し、デジタル画像をもとに、MPsの長軸径、短軸径を計測後、フーリエ変換赤外分光光度計（FT-IR, Agilent Cary 630）を用い分析を行った。粒径10～100 μm のMPsは、顕微FTIR（Cary660, Agilent製）を用いて、粒径測定・成分同定を行った。測定には非接触型で操作の簡易な正反射法を用い、試料は金属板上に設置した。分析の波数の範囲は4,000～650 cm^{-1} とした。MPsの定性は、Agilent Resolution Pro ソフトウェアのライブラリを用いて行った。1～10 μm の分析はマ

ルチショット・パイロライザー (EGA/PY-3030D, フロンティア・ラボ製) を GC (GC6890N, Agilent 製) 注入口に直結した Py-GC/MS システムを用いた。

3. 結果および考察

3.1. 粒径100 μm 以上のMicroplasticsの挙動

浸出水から6.7個/ m^3 、排水処理施設の原水から9.5個/ m^3 、曝気槽流出水から150個/ m^3 のMPsが検出された。MPsのほとんどが白色または白色透明の粒子で、96.9 %はポリエチレンであり、曝気槽で使用されているプラスチック担体と同じであった。放流水から0.6個/ m^3 のMPsが検出された。内、50%はポリエチレンであり、50%はエチレン/プロピレンであった。上記の結果から、本埋立処分場では、曝気槽内のプラスチック担体が劣化し、一部がMPsとして放流水にも混ざっていることが2018年度、2019年度に引き続き示唆された。

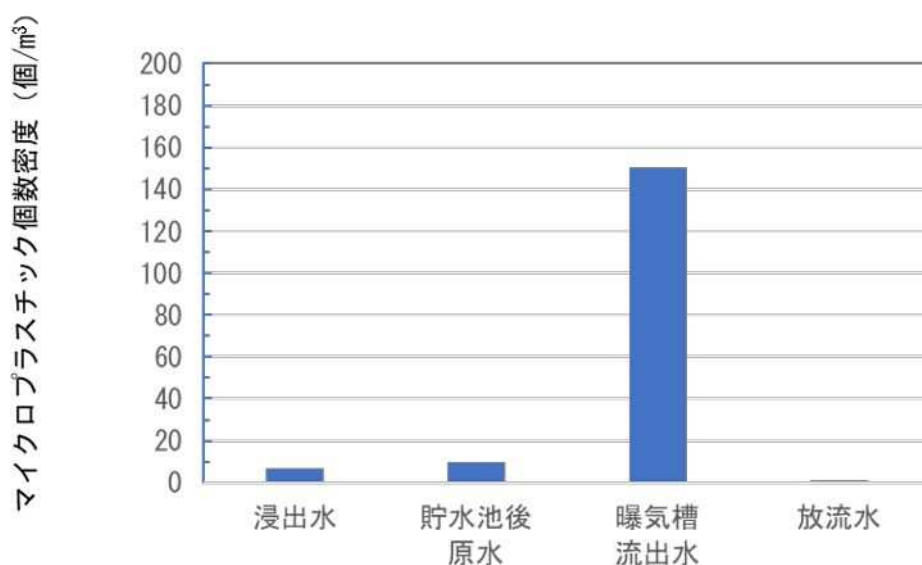


図1 埋立処分場の浸出水と水処理施設における Microplastics の挙動

(100 μm 以上)

3.2. 粒径10～100 μm のMicroplasticsの挙動

浸出水から2,420個/ m^3 、排水処理施設の原水から27,200個/ m^3 、曝気槽流出水から7,770個/ m^3 のMPsが検出された。検出されたMPsはポリエチレン42.9 %、エチレン/プロピレン4.8 %、塩素化ポリエチレン14.3 %、エチレン/プロピレン/ジエン19.0 %、エチレン/酢酸ビニル19.0 %であった。放流水からは4,900個/ m^3 のMPsが検出された。検出された成分はポリエチレン26.7 %、エチレン/プロピレン6.7 %、エチレン/プロピレン/ジエン20.0 %、ポリプロピレン13.3 %、エチレン/酢酸ビニル20.0 %、ポリスチレン6.7 %、塩化ビニル/酢酸ビニル6.7 % であった。

3.3. 曝気槽内のプラスチック担体に関する検討

曝気槽 (酸化・硝化槽) 内から採取された担体について成分分析を行ったところ、粒径100 μm 以上の粒子は、ポリエチレンと同定された。曝気槽流出水中のMPsとしてポリエチレンと同定された粒子 (P3-7) と比較すると、類似したスペクトルが得られた。また、粒径10～100 μm の粒子は、エチレン/酢酸ビニルと同定された。曝気槽流出水中のMPsとしてエチレン/酢酸ビニルと同定された粒子 (P3-247) と比較すると、類似したスペクトルが得られた。曝気槽流出水から検出されたMPsの一部が担体由来であることが示唆された。

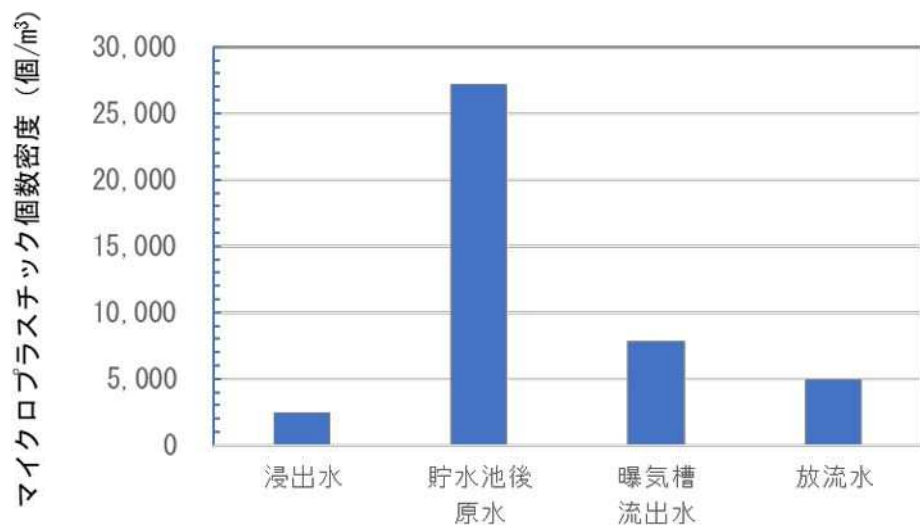


図2 埋立処分場の浸出水と水処理施設における Microplastics の挙動

(10 ~ 100 μm)

紫外線 (UV-B) の影響を調べたところ、経過とともに黄変し容易に落片することが示された。また、曝気槽内担体の UV-B 照射時間は、粒径 100 μm 以上で 315 時間、粒径 10~100 μm で 153 時間と算出された。著者らの既往の研究¹⁾より、紫外線照射器による UV-B 放射強度は京都市における UV-B 放射強度の約 108 倍であると仮定すると、粒径 100 μm 以上で 3.9 年、粒径 10~100 μm で 1.9 年に相当すると算出された。さらに担体の紫外線照射時間を詳細に調べることで、経年劣化や交換時期の予測が可能になると考えられた。

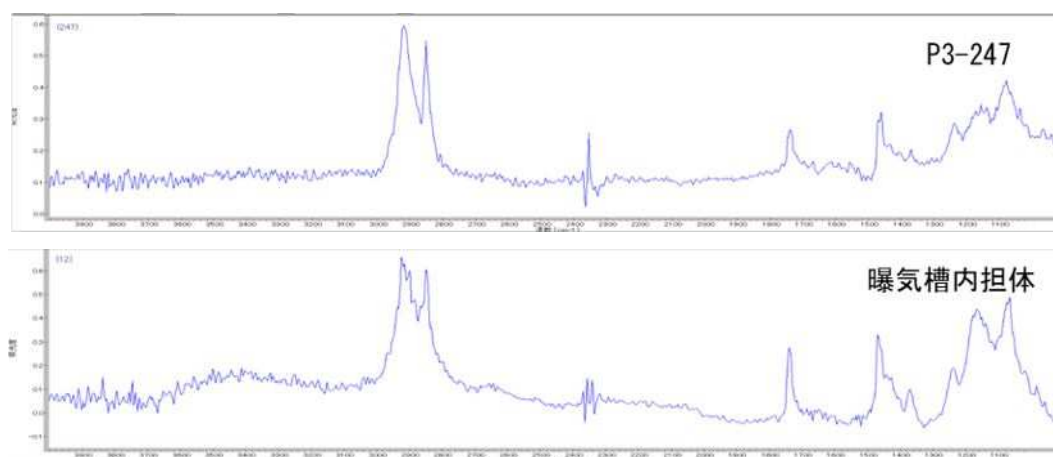


図3 埋立処分場の曝気槽内のプラスチック担体の FTIR スペクトル

謝辞：本調査研究では、京都大学の大下和徹先生、片岡弘貴さん、井上暁子さんら多くの方々の補助を受けました。また廃棄物の適正処理・水処理に係る調査研究助成制度の補助を受けたことを記し、謝意を表します。

参考文献 1) 片岡弘貴, 田中周平, 岡本萌巴美, 雪岡聖, 生田久美子, 高田秀重, 路上におけるプラスチック製品からのマイクロプラスチックの生成挙動の検討, 土木学会論文集 G (環境), 2021 (投稿中)

生ゴミと浄化槽汚泥の地域内循環による資源・エネルギー回収手法の開発（その2）

○日高 平（京都大学大学院工学研究科）

戸荻丈仁（公立鳥取環境大学環境学部）

1. 調査研究目的

今後の人口減少時代に向けて、生活排水および生ゴミなど廃棄物の処理システムの仕組みを抜本的に見直し、ごみ収集も含めた排水・廃棄物管理を最適化し、これまでのエネルギー消費型処理システムではなく、エネルギー回収型システムへ転換することが求められている。本研究では、メタン発酵および肥料利用を組み合わせることで、地域内の資源・エネルギー循環を確立し、遠方への埋立処分削減に貢献するシステムを提案する（図1）。本年度は、①浄化槽汚泥と生ゴミをまとめて回収することを想定した乳酸発酵による生ゴミの貯蔵技術の可能性、および②メタン発酵汚泥の光合成細菌による肥料としての高品質化技術の可能性を検討することを目的とした。そのために、浄化槽での貯蔵を想定して乳酸菌を植種した模擬生ゴミの分解実験、および消化汚泥の肥料価値向上を目的とした光合成細菌の培養実験を行った。

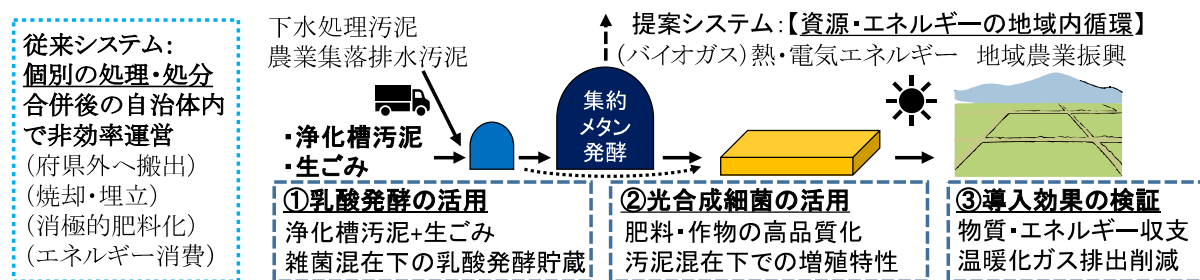


図1 本研究の全体概要

2. 調査研究方法

(1) 浄化槽での貯蔵を想定した模擬生ゴミの分解実験

1.1. 生ゴミの貯蔵実験

反応器にはオートクレーブで滅菌処理した有効容積 0.2 L のガラス製容器を用い、ゴム栓で密栓した。バイオガス採集器具としてプラスチック製シリンジおよびガスバッグをゴム栓に接続し、バイオガスを採集した。模擬生ゴミにはスーパーマーケットで一般的に販売されている弁当を使用し、フードプロセッサー（MK-K48P-W, Panasonic）で破碎して作成し、小分けにして冷凍保存した。毎回 10 品目程度のおかずが入っており、ご飯、サケの塩焼き、卵焼き、天ぷら、かき揚げ

日高 平

京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻水環境工学分野

〒615-8540 京都市西京区京都大学桂 C1-223

TEL (075)383-3350, FAX (075)383-3351, hidaka.taira.4e@kyoto-u.ac.jp

キーワード：廃棄物系バイオマス、混合嫌気性消化、乳酸発酵、メタン発酵、光合成細菌

げ、おひたし、漬物は必ず含まれていた。実験期間を通して、性状の変動は確認されなかった。模擬生ごみを元に pH や温度を制御することで事前に乳酸菌を培養し、それを植種した貯蔵実験を行った。

1.2. 嫌気性消化実験

反応器には有効容積 0.2 L のガラス製容器を用い、消化温度はウォーターバスにより 35°C に制御した。基質の投入量は有機物量で種汚泥に対して 10% 程度となるようにした。なお、基質として用いた貯蔵生ごみの pH が低く、嫌気性消化に伴う酸生成により急激に消化汚泥の pH が低下することを避けるために、2 回に分けて基質を投入した。種汚泥の自己分解によるバイオガス発生の影響を差し引くために、ブランク系による実験も同時に行った。

(2) 嫌気性消化汚泥を用いた光合成細菌の培養

2.1. 光合成細菌の培養

下水汚泥から集積培養した光合成細菌培養液を植種して、消化汚泥および消化汚泥脱離液に酢酸を添加して、人工気象器内で振盪させながら培養した。光合成細菌の挙動について、カロテノイドの測定から考察した。

2.2. コマツナ栽培試験

肥料効果の検証は、肥料取締法に基づく栽培試験に準じ、ノイバイエルポットにバーミキュライトを充填し、コマツナ“浜美 2 号”を 3 週間栽培して行った。

3. 結果と考察

(1) 浄化槽での貯蔵を想定した模擬生ごみの分解実験

1.1. 生ごみの貯蔵実験

温度が生ごみの貯蔵に及ぼす影響を比較した実験では、13°C、20°C および 25°C として、4 週間後に比較した。その結果、貯蔵温度 13°C の条件での終了時 pH は、貯蔵温度 20°C および 25°C の条件に比べて高くなる傾向がみられた。次に、貯蔵温度 30°C での pH 変化例について 1~4 週間後に測定して経時変化を把握した。その結果の例を図 2 に示す。初期の pH 4~5 程度に対して、貯蔵温度 30°C で貯蔵期間を変化させた場合、貯蔵期間 1 週間で pH が大きく低下し、その後 2 週間から 4 週間にかけて pH にあまり変化が生じないという傾向がみられた。そして、貯蔵合の pH は 3~4 程度まで低下していた。

貯蔵温度が 13°C では、*Leuconostocaceae* 科の乳酸菌が最も多く検出された。*Leuconostocaceae* 科の乳酸菌のうち 96% は *Leuconostoc* 属の乳酸菌であった。貯蔵温度が 30°C では、*Lactobacillaceae* 科の乳酸菌が最も多く検出された。*Lactobacillaceae* 科の乳酸菌のうち 77% は *Lactobacillus zeae* という種の乳酸菌であり、それ以外の乳酸菌の属種は不明であった。

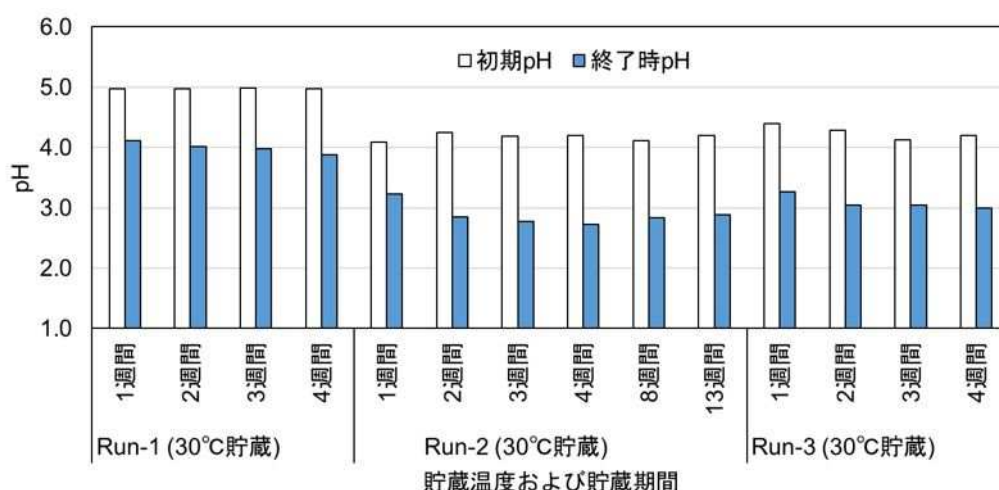


図2 生ごみの貯蔵実験における pH の変化例

1.2. 嫌気性消化実験

貯蔵生ごみのバイオガス生成ポテンシャルは元の生ごみに対して 0.73~0.89 倍の値であった。昨年度の SS の分解が抑制されていた条件での値と同等であり、バイオガス生成ポテンシャルの損失が抑制されていることが確認された。また、生ごみの貯蔵期間の差がバイオガス生成ポテンシャルに与える影響は確認されなかった。貯蔵温度が 13~30°C の範囲内であれば、貯蔵温度によらずバイオガス生成ポテンシャルの差はほとんどないと考えられる。

以上により、本研究での生ごみの貯蔵実験で対象とした、貯蔵温度が 13~30°C の範囲内および貯蔵期間が 1~4 週間の範囲内では、貯蔵温度や期間の条件によらず、生ごみ貯蔵時に起こる乳酸発酵により、有機物の分解が抑制され、バイオガス生成ポテンシャルの低下が抑制されることが示された。

(2) 嫌気性消化汚泥を用いた光合成細菌の培養

2.1. 光合成細菌の培養

消化脱離液を基質とした培養で酢酸 400 mg/L を 4 回に分けて投入した SA4 およびそのブランク系である SB4 では、翌日には添加した酢酸がすべて消費された。酢酸をまとめて 1600 mg/L 投入した SA3 および SB3 では、酢酸濃度が徐々に減少し、4 日後にはほぼ消費された。カロテノイドの経時変化例を図 3 に示す。カロテノイド濃度は、SA4 が最も高く 2.2 mg/L で、酢酸を添加しない SA1 および 400 mg/L 添加した SA2 が低かった。酢酸の投入方法の違いでは、SA4 が SA3 よりも高いことから、初期に酢酸を添加するより、段階的に酢酸を添加するほうが、カロテノイド濃度が増加しやすい結果となった。これらのことから、光合成細菌が酢酸を基質として利用したことが考えられる。また、ブランク系においては、SB2 以外は 2 日後に増加し、その後減少し、全体的に大きな変化は見られなかった。本実験での培養期間では、消化脱離液中のカロテノイド色素を含む微生物が大きく増殖することはなかったと考えられた。

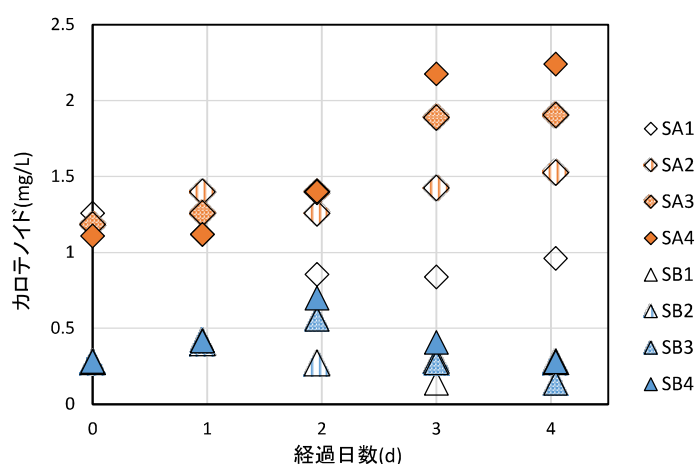


図 3 消化脱離液を基質とした培養によるカロテノイドの経日変化

2.2. コマツナ栽培試験

栽培試験結果例を図 4 に示す。最大葉長は、SA4 および SB4 との間に有意差が見られた。新鮮重量は、SA4 および SB4 との間に有意差が見られた。また、消化汚泥区および消化脱離液区は無機肥料区（as-②）よりも有意に高い結果となった。

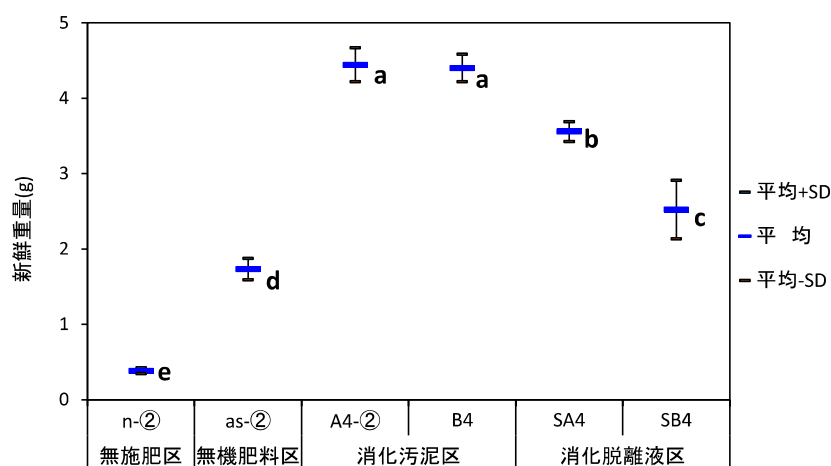


図 4 栽培試験における新鮮重量の平均値および標準偏差

4. 結論

以上のように、浄化槽での生ごみ貯蔵および光合成細菌による消化汚泥の高品質化に関する基礎的知見が得られ、提案システムの実現可能性が示された。今後それぞれについて現場を想定した条件下での実験を行い、導入効果を評価する予定である。

謝辞

本研究を行うにあたり、実験試料採取では、地方公共団体関係各位の協力を得ております。実験にあたっては、研究室の関係者にお世話になりました。ここに記して、謝意を表します。