

論文審査報告書

氏名	金 俊
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博環第3号
学位授与日	令和元年9月26日
論文題目	生物応答試験を用いた下水道放流水の生態影響の評価
論文審査委員	(主査) 富山県立大学 教授 渡辺 幸一 教授 川上 智規 教授 畠 俊朗 准教授 坂本 正樹 元教授 楠井 隆史 金沢大学 教授 池本 良子

内容の要旨

日本では数万種の化学物質が日常的に使用されていると推測されており、大部分は下水とともに下水道に流入し、下水処理場で処理された後は下水処理水として水環境に放出される。また、早くから下水道が整備された都市では合流式下水道の整備地域が残っており、この地域では生下水の一部は未処理のまま雨天時越流水(CSOs: Combined Sewer Overflows)として水環境に排出されている。近年、下水道整備の進展に伴い、下水道からの放流水が都市河川に占める割合が増加しており、こうした放流水(下水処理水、雨天時越流水)の環境影響が懸念されている。しかし、現在の環境基準・排水基準は主に人の健康を保護する目的で設定されているため、水生生物の多様性、生息環境を保護するには不十分であり、下水道からの放流水について生態系への影響を適切に評価し、管理することが求められている。

一方、海外では北アメリカやヨーロッパなどを中心として1960年代頃から生物応答を利用した毒性評価による水環境管理手法が導入されてきた。この方法は水生生物を排水に曝露し、曝露後の個体群の生物応答(致死、遊泳障害、生長障害、繁殖障害等)を指標として排水中の化学物質総体の影響を評価する方法である。従来の物理化学的分析に基づく個別化学物質管理法と比較して、物質間の相互作用(相加作用、相乗作用、拮抗作用など)を含む複合的影響の把握が可能であり、未規制物質・非意図的生成物の影響を評価できるなど、多成分を含んだ水を総括的に評価できる利点がある。

日本では、環境省が2009年より生物応答を利用した排水管理手法について検討を開始し、2013年3月には生物応答を用いた排水の試験法(案)を公表するなどの動きがある。海外では下水処理場も生物応答試験による規制の対象となっていることから、日本でも、将来的には、下水道事業にも生物応答試験

が適用される可能性がある。これまで、提案された試験法を用いた国内の事業場排水、下水処理水や河川水等の生態影響の評価事例が報告されてきたが、CSOsの評価事例はない。したがって、今後の水環境の保全を検討するうえでも、下水道からの放流水についての生物応答試験の知見を蓄積することが求められている。

本論文は7つの章から構成されている。第1章では本研究の背景と目的、第2章では下水道整備の現状と課題、生物応答試験の適用事例、雨天時越流水の環境影響等に関する既往の知見について述べている。第3章では下水処理水の生態影響の評価、第4章ではPRTRデータを用いた下水処理水の生態影響予測、第5章では合流式下水道の雨天時越流水の生態影響の評価、第6章では大気降下物の雨天時越流水の生態毒性への寄与、第7章では主要な結果と今後の検討課題について述べている。主な内容は以下の通りである。

第3章では、下水処理水に含まれる化学物質が生態系に与える影響を総合的に評価することを目的として、生物応答試験と化学分析を適用した。生物応答試験としては、試験法(案)で提案されている三種の淡水生物(魚類ゼブラフィッシュ、甲殻類ニセネコゼミジンコ、緑藻類ムレミカヅキモ)を用いた短期慢性毒性試験を用いた。富山県内の7下水処理施設を対象として処理水を採取し、試験に供した。7処理水中、4処理水が生物影響を示し、この4試料とも藻類の生長阻害影響が認められた。最も大きな影響が認められた試料では慢性毒性単位TU_cが20であった。毒性原因物質を探索するために、処理水特有の成分である界面活性剤(直鎖アルキルベンゼンスルホン酸塩、LAS)と残留塩素との関連を検討した。LASは最大116μg/L検出されたが、文献の毒性値と比較した結果、毒性への寄与はないと判断された。一方、残留塩素は結合残留塩素として最大0.35mg/L程度検出されており、試料の還元処理(チオ硫酸ナトリウム添加)により阻害影響が消失したことから結合残留塩素の寄与が疑われた。結合残留塩素(モノクロラミン)を作成し、藻類試験を行った結果、最大無影響濃度(NOEC)は、0.0075 mg/L、50%影響濃度(EC₅₀)が0.018 mg/Lであった。以上の結果より結合残留塩素が藻類生長阻害の原因物質であることが確認されたが、共存する有機物や栄養塩の影響で毒性影響が緩和している可能性も認められた。さらに、元素分析の結果から、一部の処理水ではCuとZnも藻類の毒性に寄与している可能性があることが示唆された。

第4章では、「特定化学物質の環境への排出量の把握等及び管理の改善の促進に関する法律」(化管法)における化学物質排出移動量届出制度(Pollutant Release and Transfer Register、PRTR)に基づき公開されている下水処理場毎の化学物質排出量のデータを用いて処理水の生態影響の予測を行い、生物応答試験と水質分析の結果との関連性を考察し、予測手法の可能性と限界について議論した。各化学物質の処理水中平均濃度は、PRTRデータ(年間排出量)に基づき算出し、その化学物質の毒性値(NOEC)はデータベースや文献を参照し推定した。処理水毎に、HQ値(=推定平均濃度/無影響濃度)の総和を算出したところ、HQ値は甲殻類と魚類について毒性を過大評価する可能性があることが明らかであった。また、不一致の原因として共存成分による金属毒性の緩和効果があると推論した。藻類については、毒性を過小評価した要因としてモノクロラミンのようなPRTR対象外物質の影響と考えられ、下水処理場の場合、HQ値による予測の精度には限界があると考えられた。予測精度の向上のためには、生物応答試験の生物種に対応した慢性毒性データの充実、化学物質間の相互作用の把握、PRTR対象外物質の寄与の評価等の課題を指摘した。

第5章では、合流式下水道における雨天時越流水(CSOs)の生態影響の評価を目的として、生物応答試験法と化学分析法を用いて富山県高岡市におけるCSOsと関連する生下水、河川水の生態影響の評

価を行った。生物応答試験の結果、CSOs 7 試料のうち、3 試料が藻類、5 試料が甲殻類に生長や繁殖へ有意な影響を与えていた。河川水 7 試料では、甲殻類にのみ 6 試料が有意な繁殖阻害影響が確認された。また、経時的に採取した越流水試料では甲殻類の毒性影響及び大腸菌群数等の経時的減少が認められた。さらに、毒性が認められた試料について、毒性同定評価 (TIE) を行い毒性物質の特徴化を試み、陽イオン、陰イオン、有機物や重金属などの寄与が推察された。T-N、T-P、TOC、Fe、Cu、Zn 及び大腸菌群数に対する各試料の平均値は生下水>越流水>河川水の順で検出された。重金属の実測値から毒性への寄与を検討したところ、ニッケルなど重金属の寄与が推察された一方、共存物質による毒性緩和効果も認められた。

第 6 章では、大気降水物が CSOs の水質に与える影響を明らかにすることを目的として、合流式下水道整備地域にある河川近傍の湿式・乾式降水物を含む雨水を採取して水質を測定した。大気降水物中の SO_4^{2-} と Ca^{2+} は主に人為的由来の可能性が高いと考えられ、最も沈着量の多い陽イオンは Na^+ と NH_4^+ 、陽イオンは Cl^- であった。元素の由来を検討した結果、Al、Cu、Se、Sr、Sn は主に湿式沈下、V、Rb、Mo、Ag、Cd は乾式沈下由来である可能性が高いことが明らかにした。毒性に寄与する可能性の高い金属 (Fe、Ni、Cu、Zn) は、CSOs の毒性を説明するほどの濃度に達していなかった。以上の考察の結果、CSOs の毒性原因物質と考えられた重金属は主に生下水由来と推定され、CSOs の生態影響を予測するには大気降水物を含む雨水は生下水を希釈する役割があると考えられた。2015-2017 年度の降雨強度データに基づき越流水の発生日数を予測した結果、年間の CSOs 発生日数は 80 日前後であった。さらに、降雨強度データから生下水の希釈率を算出し、CSOs の甲殻類への毒性影響を予測したところ、生物応答試験の実測値に近い値が得られ予測の有効性が示された。

第 7 章では、第 1 章から第 6 章の結果を踏まえて、主要な結果と今後の検討課題について述べている。

審査の結果の要旨

本論文は社会基盤である下水道からの放流水に含まれる化学物質の水環境、特に生態系への影響を評価するために、生物応答試験と化学分析を併用して、水生生物への影響とその影響因子について論じており、全7章で構成されている。

第1章では本研究の背景と目的について述べている。下水道整備が進行するに従い、下水道放流水(処理水や雨天時越流水)が都市の水循環に占める割合が大きくなり、水環境の保全のためにその生態系への影響を評価する必要があることを説明している。

第2章では下水道整備の現状と課題、生物応答試験の適用事例、雨天時越流水の環境影響等に関する既往の知見について述べている。日本での下水道普及率が80%弱(2016年度末)と増加する一方、合流式下水道が188都市で採用されており、水環境の保全上、課題が残っていることを示した。さらに現行の水質基準や排水基準の整備が生態系保全の観点では立遅れており、また、未規制の医薬品等の新規化学物質の影響が懸念されることから、従来の水質管理手法を補完する手法としての生物応答試験の意義を明らかとした。水質の懸念される雨天時越流水の影響評価に生物応答試験を適用した海外の事例を紹介しその有用性と日本での適用の必要性を指摘している。

第3章では下水処理水に生物応答試験を適用し、主に藻類への生長阻害が認められることを明らかにした。その原因物質の候補として、界面活性剤、残留塩素、金属などについて、実測値と比較しながら考察し、残留塩素や金属などが関与する可能性があるという示唆を得ている。さらに、調整した結合残留塩素を用いて藻類への影響を検討した結果、最大無影響濃度が0.01 mg/Lで、低濃度でも影響を与えることを明らかにし、還元処理(脱塩素)した試料では藻類への毒性影響が認められないことから、結合残留塩素が藻類への影響因子であることを明らかとした。

第4章では下水処理場から水環境中に排出された化学物質排出量(PRTRデータ)を活用して処理水の生態影響を予測し、実測した生物応答試験との関連について論じている。予測のために、物質毎の生物への毒性値を過去の文献等から探索し、また、欠落するデータに関しては規則を定めて近似値を求め、簡易な毒性値のデータベースを作成している。PRTRデータに基づく予測値(HQ値)は毒性を過大評価する可能性があり、両方の方法の結果は一致しなかった。特に、金属による毒性は予測よりも低くなる傾向が認められ、PRTRデータの算出方法の問題点、共存物質による毒性緩和効果を指摘している。また、精度向上の課題を明らかにした。

第5章では雨天時越流水とその関連試料に生物応答試験を適用し、雨天時越流水の生態影響について検討している。一定量の降雨時しか採水できないという調査の制約があるなか、7試料を採取し、おもに甲殻類の繁殖を阻害することを明らかとした。さらに、初期越流水から経時的に採水し、水質、生物影響の経時変化を明らかにするなど成果を挙げている。最終的な毒性物質の同定には至らなかったが、毒性同定手法を適用し、毒性の原因となる物質群の特性を明らかにしている。本研究はCSOsへの生物応答試験の適用の有効性をはじめて示したものといえる。

第6章では大気降下物を含む雨水中の成分と総降雨量、先行無降雨期間等との関連を求め、各成分の由来(湿式降下物、乾式降下物)について考察した。重金属の実測値から大気降下物は雨天時越流水の生態影響への寄与がないことを示した。この結果に基づき、雨天時越流水の生態毒性が、雨水により希釈された生下水の毒性値として予測できること示した。

第7章では主要な結果と今後の検討課題について述べている。

本論文は、研究の方法論・研究手法、得られた結果とその解釈が適切であり、的確な文章表現が与え

られている。また、その研究の手法・結果には新規性が認められる。研究成果は、下水道からの放流水の生態影響を評価・管理し、より高度な水環境を実現する下水道整備に寄与するものである。本論文に関連する発表論文は2編である。

令和元年8月19日に博士論文の審査及び最終試験を実施し、申請者は当該分野および周辺分野に関して博士としての十分な全般的知識を持ち、学術研究にふさわしい討論ができ、独立して研究を遂行する能力を有するものと判定し、博士（工学）の学位論文として合格であると認められた。