

## 浄水汚泥乾燥物を用いた富栄養化の抑制

～浄水汚泥乾燥物の添加が窒素およびリンの濃度と微細藻類の増殖に与える影響～

加来伸夫\*・千田衣純\*・大瀧斉美\*・篠崎良司\*\*・遠藤 強\*\*・上木厚子\*・上木勝司\*

\*山形大学農学部

\*\*株式会社エコハイテックコーポレーション

(令和5年9月4日受付・令和5年12月1日受理)

Mitigation of eutrophication using dried water clarifier sludge: Effect of adding dried water clarifier sludge on nitrogen and phosphorus concentrations and microalgae growth

Nobuo KAKU\*, Izumi CHIDA\*, Yoshimi OTAKI\*, Ryoji SHINOZAKI\*\*,  
Tsuyoshi ENDO\*\*, Atsuko UEKI\* and Katsuji UEKI\*

\*Department of Food, Life, and Environmental Sciences,  
Faculty of Agriculture, Yamagata University

\*\*Ecohightech Corporation Co., LTD.

(Received September 4, 2023 · Accepted December 1, 2023)

### Summary

Utilizing water clarifier sludge, a waste product generated at water treatment plants, for the mitigation of aquatic eutrophication offers cost-saving advantages. In this study, it was shown that the addition of dried water clarifier sludge to microcosms simulating a closed aquatic system resulted in a reduction in nitrogen and phosphorus concentrations in the surface water, leading to the suppression of microalgae growth. However, the addition of an excessive amount of dried water clarifier sludge led to an increase in nitrogen concentrations in the surface water and rather promoted the proliferation of microalgae. In order to compare with other eutrophication control methods in terms of cost, it is necessary to know how long the addition of water clarifier sludge will continue to reduce eutrophication. However, this is currently unknown and remains a challenge to be addressed in the future.

**Key words** : aquatic ecosystem, eutrophication, microalgae, water clarifier sludge, nitrogen, phosphorus

### 緒 言

水圏（川、湖沼、海など）の富栄養化は、人間活動により排出された窒素やリンが水圏に流入して起こる。富栄養化が起こると、窒素やリンを栄養に藻類が異常発生して有害物質を作ったり、酸素不足を引き起こすなどして魚を含む水生生物を死滅させる。さらに、有機物分解を停滞させてヘドロが堆積して悪臭が発生するなどの問題が起きる。富栄養化の問題は日本全国で発生しており、

鶴岡市にあるラムサール条約登録湿地「大山上池・下池」でも進行しているとの報告がある（上山 2018）。

水圏の堆積物から溶出する窒素やリンの上層水中への放出を抑制することは、閉鎖性水域の富栄養化を抑制する上で重要である。堆積物から上層水中への汚染物質の放出を減少させるために、浚渫や深層への酸素供給、水底の被覆などの様々な改善策が開発されてきた（Hickey and Gibbs 2009）。これらの方法の中で、水底の被覆は費

用対効果の高い方法と考えられており、海砂が最も一般的な被覆材料である（Kim and Jung 2010）。海砂以外では、ゼオライト（Jacobs and Förstner 1999; Lin *et al.* 2011）、カルサイト（Berg *et al.* 2004; Hart *et al.* 2003）、鉄スラグ（伊藤ら1996; 三木ら2009; Yamada *et al.* 1986; Yamada *et al.* 1987）などが用いられてきている。さらに近年、浄水汚泥（浄水発生土）が、安価な材料として注目されるようになってきた（Ichihara and Nishio 2013; 海野ら 2003）。

浄水汚泥は、浄水場で発生する粘土鉱物を主成分とする廃棄物である。浄水汚泥の発生量は日本全国で毎年28万トン（乾燥重量）にも達するが、かつてはその多くが埋立処分場に廃棄されてきた。しかし、埋立処分場の残余年数が短くなってきたことから、厚生労働省は「水道ビジョン」を2004年に策定し、浄水汚泥の利用率を100%にすることを提案した（厚生労働省健康局 2004）。その結果、浄水汚泥のセメント原材料、園芸用土、グラウンド用土への循環利用が進められたが、その利用率は60%程度にとどまっておri（環境省 2010）、2013年に策定された「新水道ビジョン」では、さらなる利用の徹底に取り組む必要があるとされている（厚生労働省健康局 2013）。

浄水場では凝集剤としてポリ塩化アルミニウムやポリ硫酸第二鉄が使われるため、浄水汚泥はアルミニウムや鉄を多く含む。これらはリン酸と反応して沈澱することから、富栄養化の原因であるリンの除去に有効であると考えられる。Ichihara and Nishio（2013）は、水底を浄水汚泥で被覆することで、富栄養化の原因物質であるリンの堆積物から上層水中への放出を抑制できることを報告した。また、海野ら（2003）は、リン除去施設に設置した浄水汚泥槽に河川水を連続通水することで、簡易な設備で安定したリン除去効果が得られることを実験により確認した。さらに、浄水汚泥の乾燥物はアンモニアを効率よく吸着することが分かっており、上層水中の窒素量を低下させることが期待される。本研究では、水底の被覆のような浄水汚泥の大規模な投入や、窒素やリンの除去施設の建設を行わない、より安価で簡便な方法を開発することを目的として、少量の浄水汚泥の散布により上層水中の窒素およびリンの濃度を低下させて、アオコの原因となる微細藻類の増殖を抑制できないか調べた。実験は微小生態系を用いて行った。

## 材料および方法

### 1. 浄水汚泥乾燥物

本研究では、浄水汚泥として、浄水汚泥乾燥物を使用した。これは、脱水後のケーキ状の浄水汚泥を150~250℃の比較的低い温度で且つ短い時間で乾燥して得られたもので、主要な構成成分は、 $Al_2O_3$ （47%）、 $SiO_2$ （38%）、 $Fe_2O_3$ （6%）および $MgO$ （4%）である。浄水場でアルミニウム系凝集剤が使われているため、アルミニウムを多く含んでいる。

### 2. 水試料と堆積物試料

実験に使用した水試料と堆積物試料は大山下池（面積は24.8 ha）から流出している小川から採取した。大山下池は、山形県鶴岡市大山西部に位置する高館山の裾野にある淡水池で、農業用のため池として400年前から使われてきた。水鳥の生息地として国際的に重要な湿地であると認められ、平成20年11月にラムサール条約に登録されている。

### 3. 浄水汚泥乾燥物のリン酸吸着能の確認

本研究で使用した浄水汚泥乾燥物がリン酸を吸着できるか確認するために、1 Lの1 mmol/Lリン酸バッファに浄水汚泥乾燥物を1 g、5 g、10 gおよび20 g入れてよく攪拌してから22日間静置した。この間のリン酸濃度の変化を、液相1 mLを採取してリン酸濃度を測定することにより追った。

### 4. 微小生態系を用いた実験

園芸肥料（微粉ハイポネックス,  $N:P_2O_5:K_2O = 6.5:6:19$  (wt%), 株式会社ハイポネックスジャパン）をリン酸濃度が0.2 mg/L上昇するように添加して富栄養化させた下池の水試料500 mLを500-mL容のメディウムビンに入れた。さらに、下池堆積物を厚さ1 cm（約100 g）となるようにビンの底に敷き詰めて微小生態系を構築した。各微小生態系に、浄水汚泥乾燥物を5 g、10 gおよび25 g入れたものを作成し、30℃の恒温室にて明暗周期12 h/12 hのLED照明下でおよそ1ヶ月間保温したときの水質（全リンおよび全窒素）や藻類の増殖（クロロフィル量）を、浄水汚泥乾燥物を入れなかったコントロールと比較した。実験は2連で行った。実験は園芸肥料を入れない条件でも行った。なお、使用した照明は10000 KのLED照明で、光の強度は水面の位置で8000 lxになるように調節した。

蒸発により水が減少した場合には水を添加して水面の位置を維持した。保温終了後、水試料を5～10 mL採取して遠心分離（10,000 x g, 4℃, 20分間）にかけ、上清は全リンおよび全窒素の測定に供し、沈殿はクロロフィルの定量に供した。微小生態系の見たとクロロフィル量の比較により、浄水汚泥乾燥物の藻類発生への影響を判定した。各測定値は、2連で行った実験の平均値を示した。

## 5. 分析方法

藻類の増殖状況は、目視とクロロフィルaおよびbの濃度を測定することにより調べた。クロロフィルaおよびbの定量はPorra *et al.* (1989)の方法に従って行った。クロロフィルの抽出は80%アセトンで行った。全窒素ならびに全リンの測定は、それぞれナフチルエチレンジアミン吸光光度法およびモリブデン青吸光光度法を利用した全窒素・全りん測定セット（共立理化学研究所）で行った。

## 結果

本研究では全て2反復で実験を行なったが、同様の結果が得られたため、数値はその平均値を示した。

### 1. 浄水汚泥乾燥物のリン酸吸着能の確認

本研究で使用した浄水汚泥乾燥物がリン酸を吸着できるか確認した結果を図1に示した。浄水汚泥乾燥物の添加量が多いほど、リン酸除去のスピードが速く、除去できる量も多かった。以上の結果から、本研究で使用した浄水汚泥乾燥物はリン酸を吸着できることが確認できた。

### 2. 微小生態系を用いた実験

#### 1) 微細藻類の増殖

各条件で約1ヶ月間保温した微小生態系の様子を図2に示した。園芸肥料添加の有無にかかわらず、浄水汚泥乾燥物を5gまたは10g添加した微小生態系では、浄水

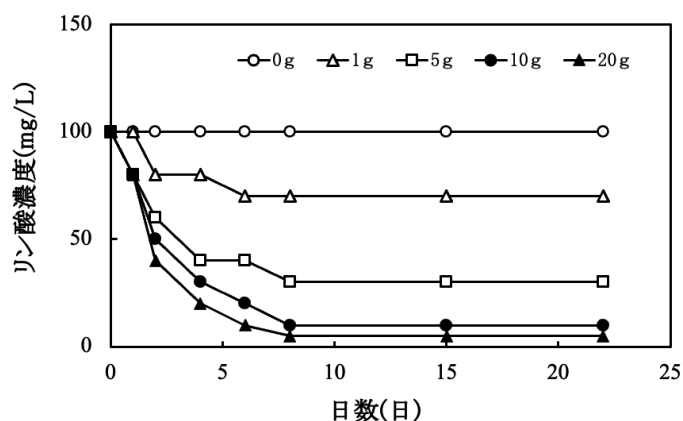


図1 浄水汚泥乾燥物の添加量とリン酸濃度の変化

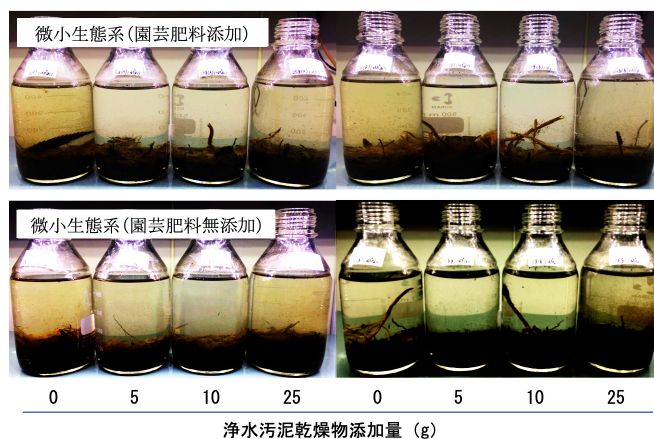


図2 各条件で1ヶ月保温した微小生態系の様子

2反復で行った実験の保温後の様子を示した。上段は園芸肥料添加条件、下段は園芸肥料無添加条件の結果である。

汚泥乾燥物無添加の微小生態系よりも緑色の濁りが薄くなる傾向があり、藻類の増殖が抑制されたように見えたが、25gの添加ではあまり抑制されておらず、藻類が増殖して緑色に濁って見えた。この時の各微小生態系におけるクロロフィル濃度を調べた結果を図3に示した。クロロフィル濃度は藻類発生量の指標であり、クロロフィル濃度が高いことは藻類の発生量が多いことを示す。園芸肥料の添加の有無に関わらず、浄水汚泥乾燥物5gおよび10g添加では浄水汚泥乾燥物無添加よりもクロロフィル濃度が低くなる傾向があった（藻類の増殖が抑制

される傾向があった）が、25g添加ではあまり低くならず、藻類の発生はほとんど抑制されなかった。この結果は概ね目視による観察と一致していた。園芸肥料の有無で比較すると、無添加条件の方が添加条件よりもわずかにクロロフィル濃度が高くなる傾向があった。

2) 微小生態系の水中の全リン濃度および全窒素濃度に対する浄水汚泥乾燥物添加の影響

各条件で約1ヶ月間保温した微小生態系の水中における全リンおよび全窒素濃度を測定した（図4）。下池から

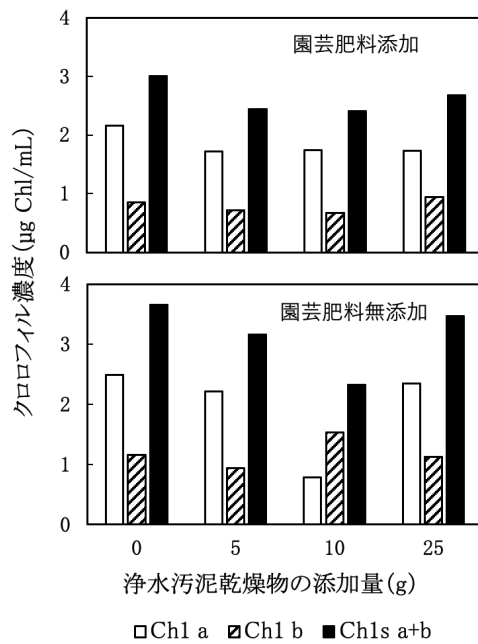


図3 浄水汚泥乾燥物の添加がクロロフィル濃度を与える影響

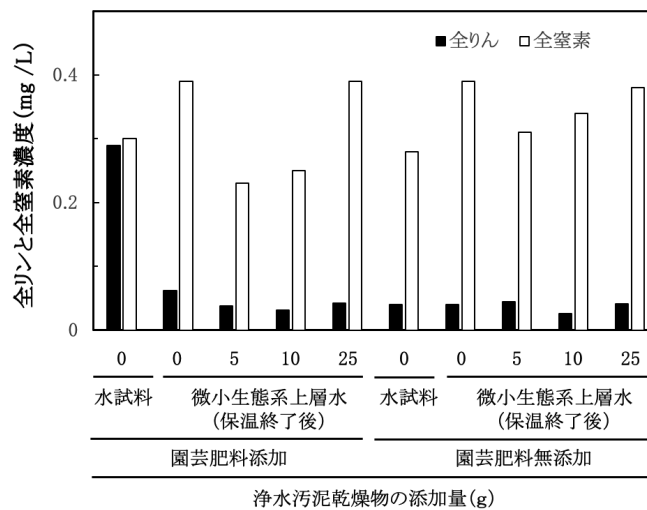


図4 浄水汚泥の添加が水質(全リン、全窒素濃度) に対する影響

流出する小川から採取した水試料中における全リン濃度と全窒素濃度は、それぞれ0.04 mg/L程度と0.3 mg/Lで、両者ともに富栄養化の基準である0.02 mg/Lと0.2 mg/Lをわずかに上回っていた。これを用いて構築した微小生態系の保温終了後の上層水中における全リン濃度は、浄水汚泥乾燥物の添加量を変えてもほとんど差が生じなかった。一方、全窒素濃度は5 gおよび10 g添加で無添加よりもわずかに低くなったが、25 g添加では無添加とあまり変わらない濃度だった。

園芸肥料を添加した水試料の全リン濃度は0.3 mg/Lと非常に高かった。これを用いて構築した微小生態系の保温終了後の上層水中における全リン濃度は、浄水汚泥乾燥物無添加で0.06 mg/Lとなり、添加した系ではいずれも0.03~0.04 mg/Lとさらに低くなった。全窒素は、園芸肥料無添加と同様に、園芸肥料を添加した系でも浄水汚泥乾燥物を5 gまたは10 g加えた場合に無添加よりも低くなる傾向があった。

なお、園芸肥料の有無で比較すると、浄水汚泥乾燥物5 gおよび10 g添加においては、園芸肥料無添加条件の方が添加条件よりもわずかに窒素濃度が高くなる傾向があった。

## 考 察

ここで測定された微小生態系の上層水中における窒素およびリンの濃度は、堆積物からの溶出、微細藻類による利用、浄水汚泥乾燥物による吸着の差引の結果である。各微小生態系におけるクロロフィル濃度の測定結果も考慮すると、浄水汚泥無添加では、微細藻類の増殖によってリンが消費され、窒素は微細藻類の利用速度を超える速度で堆積物から溶出したと考えられた。浄水汚泥乾燥物を5 gおよび10 g添加した系では、窒素やリンが浄水汚泥に吸着されたため、その分だけ無添加の系に比べて微細藻類が増殖できなかったものと推察された。このことは、園芸肥料の添加の有無に関わらず同じ結果だった。浄水汚泥乾燥物を25 g添加すると、上層水中の窒素濃度が浄水汚泥無添加と近い濃度上昇した。Ichihara and Nishio (2013) は、浄水汚泥による水底被覆の際に、浄水汚泥からの窒素が放出されるという本研究において観察された現象と似た現象を観察した。本研究において浄水汚泥乾燥物を最も多く入れた条件で窒素濃度が高く測定されたことは、浄水汚泥の添加量と窒素濃度の間に何らかの関係があることを示しているのかも知れないが、

詳細は不明であり、その解明は今後の課題である。

なお、園芸肥料添加の有無で比較すると、クロロフィル濃度は添加条件より無添加条件でむしろわずかに高くなり、窒素濃度も浄水汚泥乾燥物を5 gおよび10 g添加した微小生態系において添加条件よりも無添加条件でわずかに高くなった。この理由についても不明であるが、バイオレメディエーションの現場では、栄養塩の添加といった行為により、はしばしば生態系が攪乱され、多様性の消失や思わぬ微生物の増殖を引き起こすことが知られている(渡辺・萩原, 2001)。園芸用肥料の添加により生態系が攪乱され、ある種の栄養素をめぐって藻類と競合する微生物が増殖するなどして、藻類の増殖と窒素の除去が抑制された可能性も否定できない。この点について明らかにするためには、各種栄養素の分析や微生物群集構造の解析などを行う必要があり、今後の課題である。

以上のように、浄水汚泥乾燥物を25 g添加した場合には藻類の増殖を抑制できなかったが、5 gおよび10 g添加した場合には上層水中の窒素やリンの濃度を下げて、微細藻類の増殖を抑制できることが分かった。今回の浄水汚泥の添加量は、堆積物表面にまばらに散布する程度の量であったが、それでも富栄養化の軽減に効果があった。以前報告されたように、浄水汚泥での水底の完全な被覆(Ichihara and Nishio, 2013)や除去施設における吸着槽への充填(海野ら, 2003)(将来的には大型プール規模での吸着槽が考えられる)に比べると、より少ない量での活用が可能と考えられ、コスト面からみてアドバンテージがある。ただし、富栄養化を抑制する効果がどれくらいの期間持続するのかについては不明であるため、今後はそれを考慮したコストを算出して比較をする必要がある。

## 謝 辞

本研究は山形大学農学部地域産学官連携協議会の地域産学官連携プロジェクト事業による助成を受けて実施した。記して謝意を表す。また、本研究の一部はYU-COE形成支援拠点(山形大学カーボンニュートラル研究センター)における活動として実施された。本研究で使用した水試料ならびに堆積物試料の採取にご協力頂いた鶴岡市自然学習交流館ほとりあの上山剛司様、そして貴重なご助言を頂いた山形大学農学部の梶原晶彦様に心より感謝申し上げます。

## 参考文献

- Berg U, Neumann T, Donnert D, Nüesch R, Stüben D (2004) Sediment capping in eutrophic lakes: efficiency of undisturbed calcite barriers to immobilize phosphorus. *Applied Geochemistry*. 19: 1759-1771
- Hart BT, Roberts S, James R, O'Donohue M, Taylor J, Donnert D, Furrer R (2003) Active barriers to reduce phosphorus release from sediments: effectiveness of three forms of CaCO<sub>3</sub>. *Australian Journal of Chemistry*. 56: 207-217
- Hickey CW, Gibbs MM (2009) Lake sediment phosphorus release management: decision support and risk assessment framework. *NZ J Marine Freshwater Res*. 43: 819-856
- Ichihara M, Nishio T (2013) Suppression of phosphorus release from sediments using water clarifier sludge as capping material. *Environmental Technology*. 34: 2291-2299
- 伊藤一明, 西嶋 渉, 正藤英司, 岡田光正 (1996) 鉄鋼スラグ散布による沿岸海域でのリン除去の基礎的研究—室内実験と長期現場実験—. *水環境学会誌*. 32: 33-39
- Jacobs PH, Förstner U (1999) Concept of subaqueous capping of contaminated sediments with active barrier systems (ABS) using natural and modified zeolites. *Water Research*. 33: 2083-2087
- Kim G, Jung W (2010) Role of sand capping in phosphorus release from sediment. *KSCE Journal of Civil Engineering*. 14: 815-821
- 環境省 (2010) 浄水汚泥 (浄水発生土) の循環利用について (厚生労働省健康局水道課), 第58回循環型社会計画部会配布資料.  
<https://www.env.go.jp/council/former2013/04recycle/y040-58/mat04.pdf> [2023年9月1日閲覧]
- 厚生労働省健康局 (2004) 水道ビジョン.  
<https://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/kenkou/suido/vision2/dl/vision.pdf> [2023年9月1日閲覧]
- 厚生労働省健康局 (2013) 新水道ビジョン.  
<https://www.mhlw.go.jp/seisakunitsuite/bunya/topics/bukyoku/kenkou/suido/newvision/newvision/newvision-all.pdf> [2023年9月1日閲覧]
- Lin J, Zhan Y, Zhu Z (2011) Evaluation of sediment capping with active barrier system (ABS) using calcite/zeolite mixtures to simultaneously manage phosphorus and ammonium release. *Science of The Total Environment*. 409: 638-646
- 三木 理, 加藤敏朗, 堤 直人 (2009) 炭酸化製鋼スラグを活用した海域底質からのリンの溶出防止. *水環境学会誌*. 32: 33-39
- Porra RJ, Thompson WA, Kriedemann PE (1989) Determination of Accurate Extinction Coefficients and Simultaneous Equations for Assaying Chlorophylls a and b Extracted with Four Different Solvents: Verification of the Concentration of Chlorophyll Standards by Atomic Absorption Spectroscopy. *Biochimica et Biophysica Acta*. 975: 384-394
- 上山剛司 (2018) ラムサール条約登録湿地 大山上池・下池～時代とともに変わる湿地と人のかかわり～. *湿地研究*. 8: 189-192
- 海野修司, 岡本正美, 永渕正夫 (2003) 浄水汚泥を用いたリン除去技術. *土木学会論文集*. 741: 111-121
- 渡辺一哉, 萩原 清司 (2001) 石油汚染のバイオレメディエーションの安全性. *環境技術*. 30: 420-425
- Yamada H, Kayama M, Saito K, Hara M (1986) A fundamental research on phosphate removal by using slag. *Water Research*. 20: 547-557
- Yamada H, Kayama M, Saito K, Hara M (1987) Suppression of phosphate liberation from sediment by using iron slag. *Water Research*. 21: 325-333