

2015.2.6
化学物質の安全管理に
関するシンポジウム



下水道における化学物質の消長と その影響評価の取り組み

独立行政法人 土木研究所 水環境研究グループ
岡本 誠一郎

本日の話題

- 下水道内の化学物質の実態をどう把握するか
- PRTR情報からみた下水道内の化学物質の実態
- 水生生物への影響評価のケーススタディ
(沖縄再生水利用)
 - ◆ 個別化学物質の生態リスクの初期評価
 - ◆ 生物応答試験(WET)による評価
 - ◆ メダカ遺伝子発言による評価
- 下水処理水(再生水)に関する影響評価のフロー

下水道内の化学物質の実態を どう把握するか

- 下水道の普及に伴い、日常の活動で使用・廃棄された多くの物質は下水道に流入している
 - ◆ 下水道(処理人口)普及率 S63:40% ⇒ H25:77.0%
- 流入した物質は下水処理プロセスを経て放流先水域へ排出
 - ◆ 多くの物質は、下水処理場の処理対象物質ではない
 - ◆ しかしそれらの一部は大気・下水汚泥に移行または分解されることにより除去
 - ◆ 処理場で処理・除去されずに残った物質は水環境中へ

下水道内の化学物質の実態を どう把握するか

- 新たな化学物質の規制や管理手法が導入される際、先行して下水道内の化学物質の消長を把握する必要がある
- 一方でその実態把握調査は困難
 - ◆ どんな物質が流入してくるか不明
 - ◆ 分析方法に特別な配慮が必要（妨害物質の影響）
 - ◆ 全国の下水道管理者が対応可能な調査方法が必要

下水道内の化学物質の実態を どう把握するか

- 下水処理水中に残存する化学物質のリスク評価
 - ◆ 何が流入しているか、スクリーニングが必要

- PRTR情報による大まかな物質動態の把握
 - ◆ ある程度の物質のスクリーニングは可能
 - →但し、PRTR対象物質以外の状況は不明
 - ◆ データの入手が容易、特別な現地調査を要しない
 - ◆ →精度の問題は残る（流入量、排出量予測）
 - 初期リスク評価には活用可能
 - スクリーニング後、必要に応じて2次評価が必要

PRTR情報の活用

●PRTRの概要

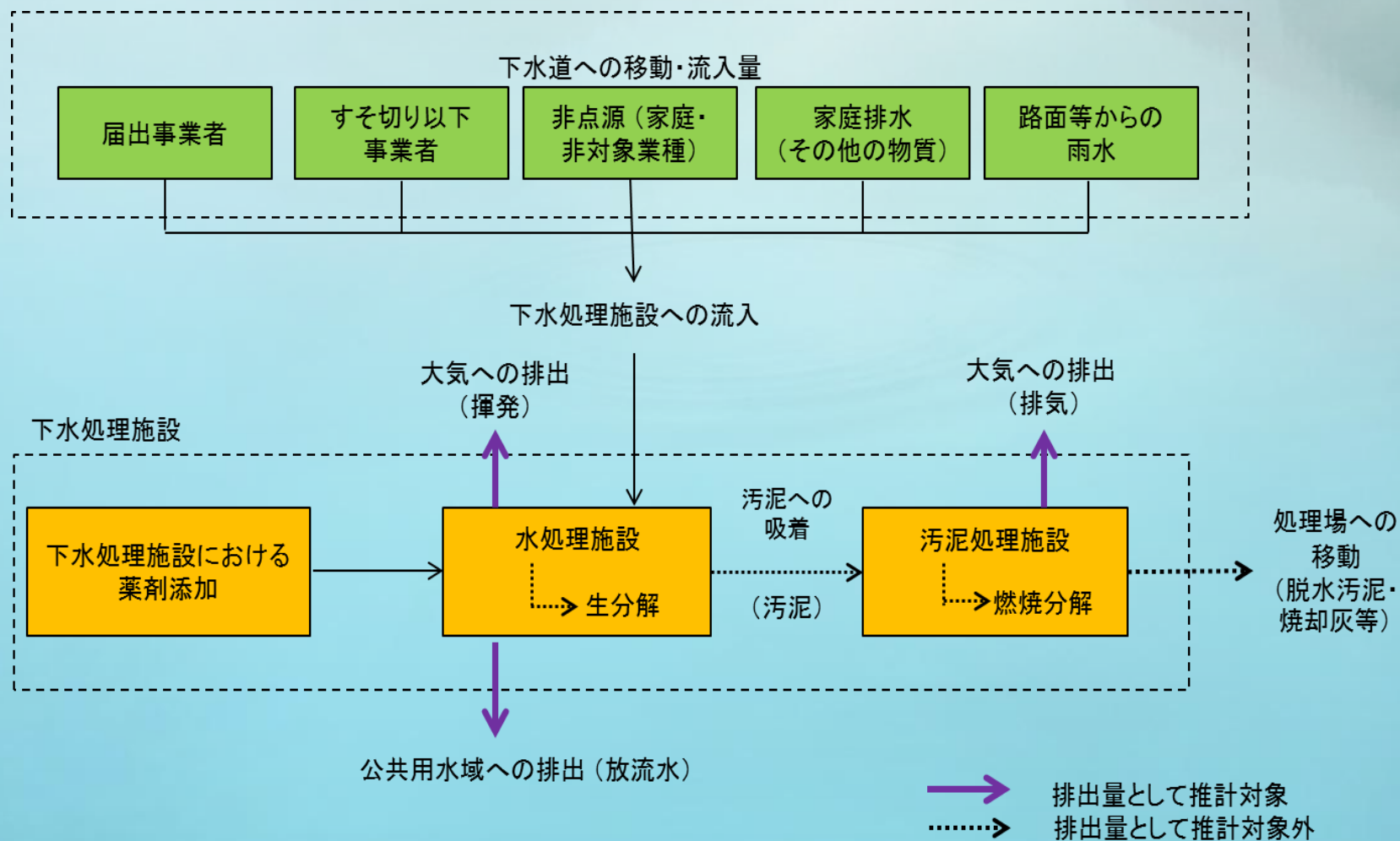
◆Pollutant Release and Transfer Register **化学物質排出移動量届出制度**

◆PRTRとは、有害性のある多種多様な化学物質が、どのような発生源から、どれくらい環境中に排出されたか、あるいは廃棄物に含まれて事業所の外に運び出されたかというデータを把握し、集計し、公表する仕組み

◆PRTR 第一種指定化学物質…462物質

(環境省HP, 「PRTRとは何?」)

PRTR対象化学物質排出量の推計 (下水処理施設)



(経産省・環境省(2014)を一部改変)

下水処理での挙動を決めるファクター

曝気槽から
排ガス



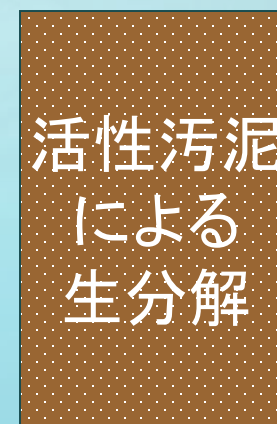
ヘンリー一定数
気相と液相の分配

汚泥への
吸着



オクタタール水分配係数
固相(有機物)と
液相の分配

曝気槽で
の分解



生分解速度係数

PRTR対象化学物質排出量の推計 (下水処理施設)

●放流水、大気、下水汚泥への移行率の簡易推計

◆気相への移行率

$$\text{大気への移行率} = (1 - 1/(1 + 5.149 Hc^{0.904})) \times 0.8898$$

Hc : 無次元化したヘンリー定数

◆汚泥への移行率

$$\text{汚泥への移行率} = 1 - (1 / (1 + 4.2162 \times 10^{-5} P_{ow}))$$

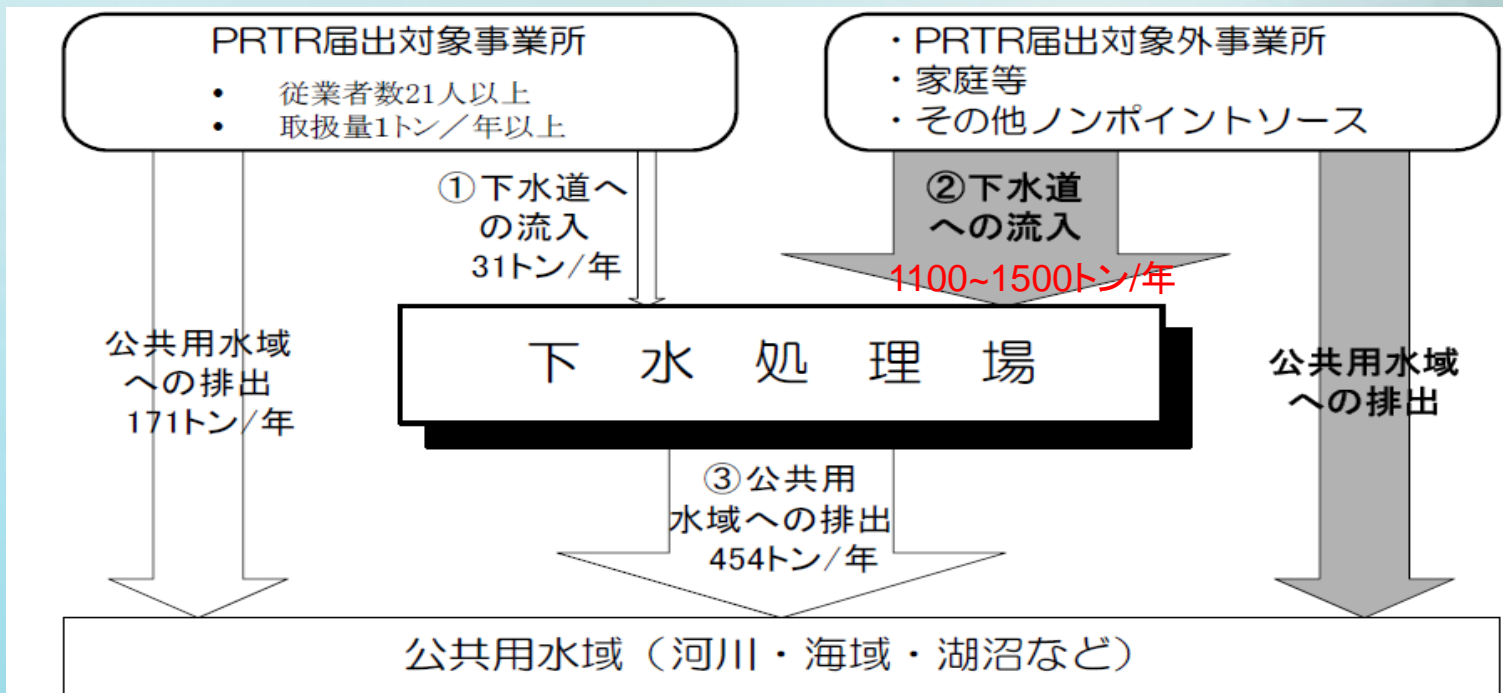
Pow : オクタノール/水分配係数

●処理プロセスでの生分解を考慮した補正

◆生分解度の情報

- (旧)国土交通省ガイドライン
- NITE「化学物質の初期リスク評価書」、環境省「化学物質の環境リスク評価」
- 生分解に関する情報の無い物質も多い(推計上、生分解は見込まない)

PRTR対象物質の下水道内の流れ (亜鉛の例)



- PRTR届出結果から把握できるデータ
- PRTR届出結果から把握できないデータ(PRTR届出対象外)

※数字は平成16年度届出結果(全国値、H15データ)

【図の解説】

- ・公共用水域へ排出される亜鉛の水溶性化合物 625トン/年(=171+454)において、下水処理場から排出される割合は 72.6%(=454÷625)を占める。
- ・下水処理場から排出される亜鉛の水溶性化合物の量は、下水処理場へ流入する量に対して約15倍(=454÷31)となっている。

(国交省(2005))



個別化学物質の生態リスク初期評価 (PRTR対象物質)

PRTR第一種指定化学物質の生態リスクの評価 (全国)

下水処理水中の濃度推計

全国のPRTRデータから得られた年間推計排出量を利用して、PRTR第一種指定化学物質**157物質** (H20年度データ)、**209物質** (平成23年度データ) の濃度を推計

生態リスクの評価

$$\text{予測環境中濃度 (PEC)} = \frac{\text{下水処理施設からの年間推計排出量}}{\text{年間下水処理水量 (下水道統計)}}$$

→ 予測無影響濃度 (PNEC) と比較 **122物質** (H20年度), **144物質** (H23年度)

PEC / PNEC > 1 となる物質

環境省、NITEなどの
公表情報を活用

→ **9物質** (H20年度) : 界面活性剤 (AE、DDNO、NPE)、ヒドラジン、ヒドロキノン、ホルムアルデヒド、*o*-トルイジン、亜鉛の水溶性化合物、フェニトロチオン

18物質 (H23年度) : 界面活性剤 (AE、DDNO、LAS、NPE)、ヒドラジン、ヒドロキノン、ホルムアルデヒド、亜鉛とその化合物、コバルトとその化合物、ピリジン、2-アミノエタノール、N,N-ジシクロヘキシルアミン、セレンおよびその化合物、クロムおよびその化合物、鉛化合物、マンガンおよびその化合物、ジブロモクロロメタン、グルタルアルデヒド



個別化学物質の生態リスク初期評価 (医薬品類の評価)

医薬品類による生態リスクの 評価 (全国)

PEC とPNEC : 既往の国内調査結果
(文献値) から推定

二次処理水に直接
曝露と仮定

PEC / PNEC > 1 となる物質を調査

9物質 : クラリスロマイシン、アジスロマイシン、レボフロキサシン、
トリクロサン、ケトプロフェン、エリスロマイシン、ロキシスロマイシ
ン、プロプラノロール

(Mano et al. (2013))

生態リスク評価のケーススタディ (沖縄再生水利用)

- 沖縄における下水処理再利用をケーススタディ
- 沖縄県・那覇浄化センターの二次処理水を有機膜により高度処理して再生水利用する際の評価
- 水生生物への影響の評価例

沖縄・那覇浄化
センター
下水処理水
(二次処理水)

再生水処理
有機膜
(UF,NF,RO
等)

河川維持用水として利用
《水生生物への影響を評価》

農業利用
(畑地灌漑)

浸透流出

作物に付着、
作業員曝露

散水・水洗用水・農業用水
《ヒトへの影響を評価》

生態リスク評価のケーススタディ (沖縄再生水利用)



個別化学物質の生態リスクの初期評価 (沖縄)

下水処理水中の 濃度推計

沖縄県のPRTRデータから得られた年間推計排出量を利用して、PRTR第一種指定化学物質**121物質**の濃度を推計
(H23年度データ)

$$\text{予測環境中濃度 (PEC)} = \frac{\text{下水処理施設からの年間推計排出量 (H23年度)}}{\text{年間下水処理水量 (下水道統計) (H23年度)}}$$

$$\text{HQ} = \frac{\text{PEC}}{\text{PNEC}} \quad \bigcirc : \text{HQ} < 1 \quad \times : 1 \leq \text{HQ}$$

生態リスクの評価

シナリオ：二次処理水に直接曝露

水質基準の検討方法に従って、高温水域に生息する魚類と餌生物の毒性値からPNECを推定し、リスク初期評価を実施

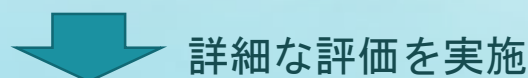
93物質のうち ○ (89) 、 × **(4)** ヒドロキノン、AE、LAS、ニッケル化合物

生態リスク評価のケーススタディ (沖縄再生水利用)

スクリーニングされた物質について、より詳細に生態リスクを評価 (沖縄)

二次処理水に直接曝露のシナリオ

93物質 : ○ (89) 、 × (4) ヒドロキノン、AE、LAS、ニッケル化合物

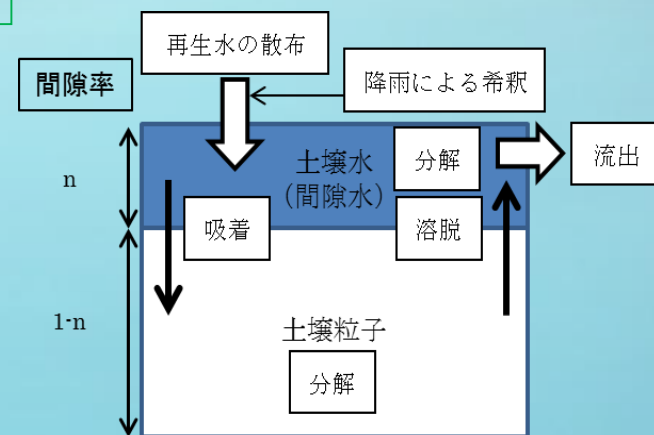


モニタリングデータを用いたリスク評価

二次処理水 (那覇) の実測値を用いた評価の結果、ヒドロキノン、LAS、ニッケル化合物は **HQ < 1** となった (AEは分析困難)

曝露シナリオを想定した評価

農業利用 : 畑地での土壌吸着後に降雨時に浸透流出
→コンパートメントモデルにより4物質の安全性を確認
都市利用 (河川維持、修景) : 河川水による希釈
→HQ = 1 となる希釈率を推計 (1.2倍~4倍程度)



コンパートメントモデルの概要図

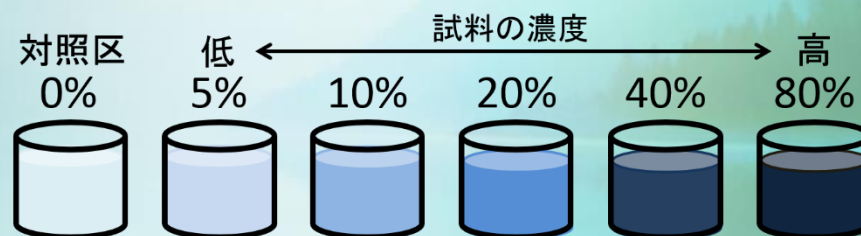
水生生物に対する影響評価



- 個別化学物質による評価が困難な場合の対応
 - スクリーニングしても対象物質が多い
 - 分析手法が確立していない、機器分析がうまくいかない



- ① 生物応答による総毒性試験 (WET)による評価 (*in vivo*)
- 希釈段階を設定した曝露試験により、毒性影響を評価



- ② メダカ遺伝子発現による評価 (*in vitro*)

⇒ 環境水のバイオモニタリング結果との相対的な評価

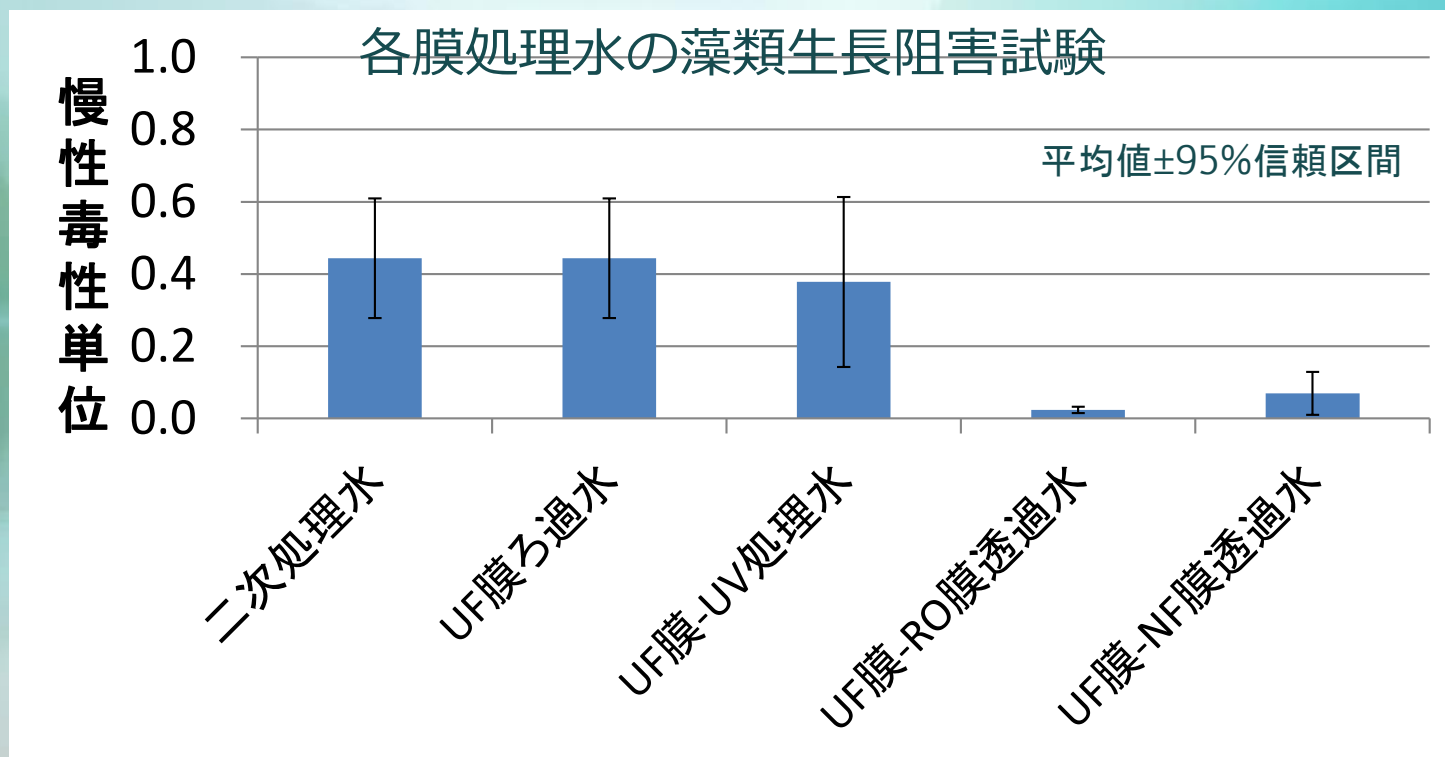
- 無希釈試料への曝露試験を実施

→ 全国の河川水による評価値をReferenceとして、
対象水を相対的に評価する手法を新たに開発

①生物応答による総毒性試験(WET)による評価

藻類生長阻害試験

- 医薬品類への高い感受性を示すといわれている
- 下水試料の慢性毒性単位 (TUc = 1/NOEC) を推計し、毒性の有無を評価
- TUc < 1ならば毒性影響は無いと判定



水処理システムによる藻類への毒性影響はみられなかった



②メダカ遺伝子発現による評価

メダカ遺伝子発現によるバイオアッセイ手法の開発

(北村他(2014))

- 試験を**短期間**で実施可能
- **網羅的な遺伝子発現解析**により**多面的な評価**が可能

試験生物:	メダカ (<i>Oryzias latipes</i>)	
試験水の交換:	半止水	
曝露期間:	96時間	
水温:	24 °C	
光周期:	16hr light, 8hr dark	
採餌:	なし	

①曝露




②解剖



肝臓とエラの摘出

③RNAの抽出と遺伝子発現強度の測定



One-color DNAマイクロアレイ
(60,000 遺伝子 (Agilent社))

評価のためのデータ解析手法を検討18

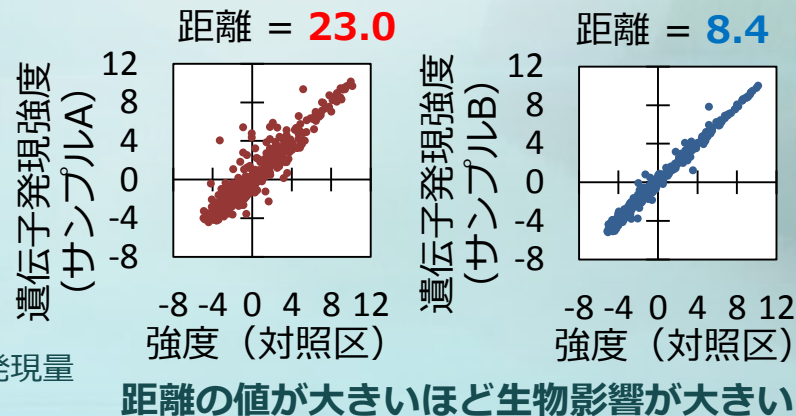


メダカ遺伝子発現によるバイオアッセイ手法の開発

様々な遺伝子機能に着目した生物影響評価手法の検討

$$\text{対照区・曝露区間の距離} = \sqrt{\sum_{i=1}^n (y_i - x_i)^2}$$

i~n : 遺伝子、 x_i : 対照区の遺伝子iの発現量、 y_i : 処理区の遺伝子iの発現量



肝臓で高い遺伝子応答性

- ・ 生殖機能
- ・ DNA修復
- ・ 輸送

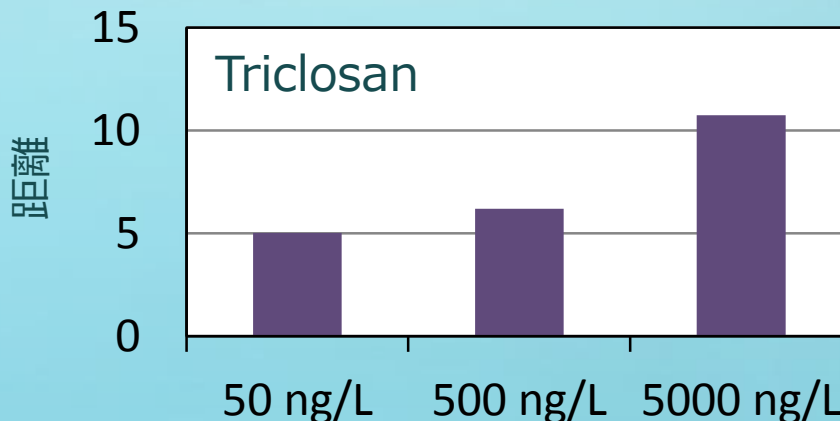
エラで高い遺伝子応答性

- ・ 薬・毒物への応答
- ・ 金属イオンへの応答
- ・ 酸化ストレス応答
- ・ 非生物刺激への応答
- ・ 他生物への応答
- ・ 筋肉系の活動
- ・ プログラム細胞死
- ・ 免疫機能

化学物質の曝露試験による遺伝子応答性の確認

筋肉系の活動 (エラ) 165遺伝子

抗菌剤トリクロサンで濃度とともに対照区との発現距離が増加



・ 多様な生物影響の機能別評価が必要な場合に適用 19

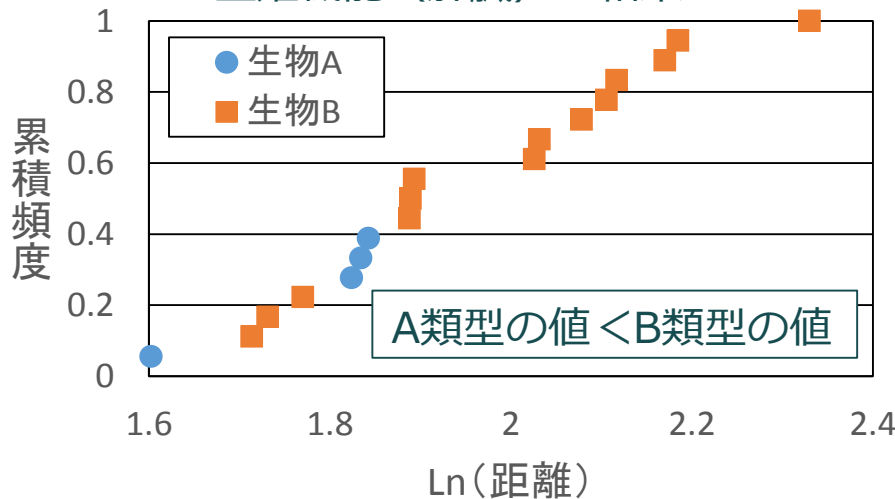
メダカ遺伝子発現によるバイオアッセイ 手法の開発



様々な遺伝子機能に着目した生物影響評価手法の検討

河川水の曝露試験による遺伝子応答性の確認

水域類型と遺伝子応答性の関係
生殖機能（肝臓）の結果



水域類型による応答性の違いがみられた
遺伝子機能

肝臓

- 生殖機能、受精機能
- DNA修復
- 輸送（イオン輸送、分泌機能）

エラ

- 薬・毒物への応答
- 他生物への応答
（細菌由来の分子への応答）

水生生物保全に係る環境基準の水域類型により
遺伝子応答性に違いがみられるかを調査

- 河川水の結果をReferenceとして用いて、水生生物に対する処理水、再生水の影響を相対的に評価して判断

環境水のバイオモニタリング結果との 相対的な評価



バイオアッセイによる再生水の評価方法の概要

①利用用途に応じた評価対象の生物種と評価指標値を決定
(マイクロアレイならば、f-factorや機能ごとの遺伝子発現、
藻類ならばTUc、メダカ胚仔魚ならば生存指標など)



②水処理システムの比較対象となる環境水を決定



③評価に使用した環境水の特徴に基づいて、グレードを定義



④グレードを特徴づける評価値を推定する



⑤水処理システムのグレードを判定する

環境水のバイオモニタリング結果との相対的な評価

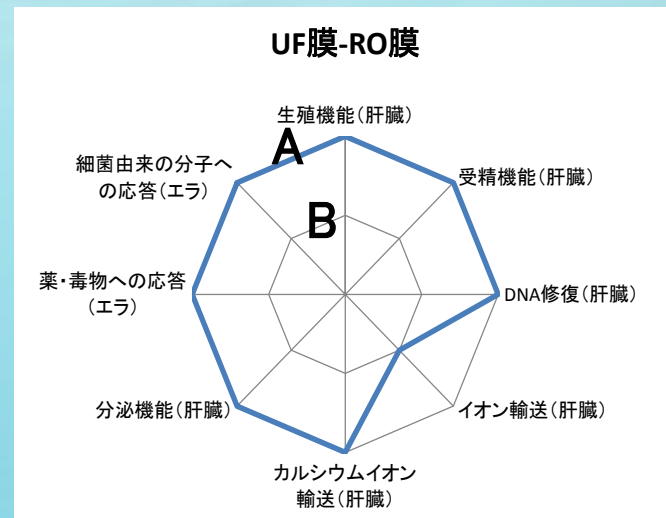
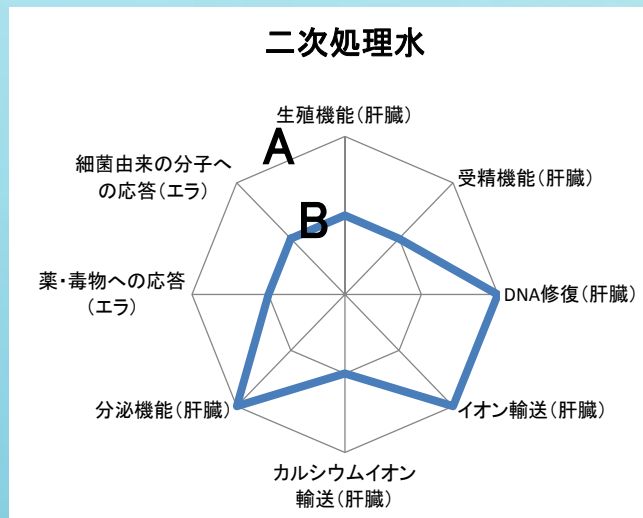


- ①利用用途に応じた評価対象の生物種と評価指標値を決定
 - ・ 評価対象として魚類を設定、メダカ遺伝子発現（機能ごとの遺伝子発現）、メダカ胚仔魚試験（孵化生存仔魚の割合）を実施
- ②水処理システムの比較対象となる環境水を決定
 - ・ 沖縄河川では比較的高温域の生物が生息するため、水生生物保全に係る生物B類型の代表的な都市内河川を比較対象に設定
- ③評価に使用した環境水の特徴に基づいて、グレードを定義

グレード	判定基準	都市利用（河川維持）
A	環境水の非超過確率75% 値よりも評価値が良い	高温域の生物が生息・維持されている河川水と同程度の質を有する
B	環境水の非超過確率75% 値よりも評価値が悪い	生物の生息を脅かすレベルではないが、A以外の状態良好な生息環境を確保するために希釈等の検討が必要

沖縄再生水利用の評価結果の例 (メダカマイクロアレイ)

- 二次処理水に比べて、膜処理によりグレードAを示す遺伝子機能の数は徐々に増加
- UF膜-RO膜透過水でイオン輸送のグレードが低下
→不純物が少ないため、浸透圧により遺伝子が発現した可能性がある



下水処理水(再生水)に関する 影響評価のフロー

◆ 今後、ISO/TC282(水の再利用)等への反映を検討

1 次評価

(統計データ、PRTR情報等から、予測環境中濃度(PEC)、
予測無影響濃度(PNEC)を予測して、PEC/PNEC比より評価)

2 次評価

(1次評価でPEC,PNEC情報が不十分または
PEC/PNEC比が0.1以上の場合)

現地調査等 ・ 評価対象生物、評価手法を選定 ・ 曝露シナリオの設定等

生態影響の分析

個別化学物質のリスク評価

・ 実測値や曝露シナリオを考慮して評価

and / or

生物応答試験による評価 *in vivo*

・ Stressorを特定せず 全影響を評価

【適用ケース】

- ・ 影響原因物質等のスクリーニング
- ・ 生物への機能障害部位の明確化の必要
- ・ 将来的には個体群影響評価への適用を検討

メダカ遺伝子発現による評価
in vitro ・ 遺伝子機能別の影響把握

【適用ケース】

- ・ ハザード比の高い物質の複合影響が懸念される場合
- ・ 個別化学物質のモニタリングデータ入手が困難な場合 等

●参考文献

- Takeda, F. et al., Initial environmental risk assessment of Japanese PRTR substances in treated wastewater, Journal of Water and Environment Technology, accepted.
- Mano, H. et al. (2013) Initial ecological risk assessment of chemicals contained in treated wastewater by using PRTR data in Japan, Micropol & Ecohazard 2013 Programme and Abstract Book, IWA
- 環境省HP,「PRTRとは何?」,PRTRインフォメーション広場,
<http://www.env.go.jp/chemi/prtr/risk0.html>
- 北村友一 他 (2014) NF,RO膜によるメダカ性特異遺伝子発現の変動抑制効果, 土木学会論文集 G(環境), 70, 7, III_73-III_80
- 経済産業省製造産業局化学物質管理課, 環境省環境保健部環境安全課 (2014) 平成24年度 PRTR届出外排出量の推計方法等の概要,
http://www.env.go.jp/chemi/prtr/result/todokedegai_siryo.html
- 国土交通省都市・地域整備局下水道部 (2005) 下水道における化学物質排出量の把握と化学物質管理計画の策定等に関するガイドライン(案)
- 鈴木穰 他 (2012) 水の衛生学的評価とバイオモニタリング, 第2回21世紀型都市水循環系構築のための水再生技術の開発と評価に関するシンポジウム
- (独) 土木研究所 水質チーム (2015) メダカ遺伝子発現によるバイオアッセイ手法の開発とバイオモニタリングによる水処理システムの評価, CREST「持続的な水利用を実現する革新的な技術とシステム」研究領域 第3回公開シンポジウム
- 真野浩行 他 (2013) PRTR情報等を活用した下水処理水中に含まれる化学物質の環境リスク初期評価, 下水道協会誌論文集, 50, 612, 85-93

●謝辞

- ◆ 本研究は独立行政法人科学技術振興機,CREST戦略的創造研究推進事業「21世紀型都市水循環系の構築のための水再生技術の開発と評価」の助成を受けて実施したものです。

下水道における化学物質の消長と その影響評価の取り組み



- ご清聴ありがとうございました。