

下水処理水を利用したアユの養殖における 臭気物質低減方法の評価

東京大学大学院工学系研究科都市工学専攻 下水道システムイノベーション研究室
○尾方瑛・加藤裕之 特任准教授・ファムビエットズン 特任助教

1. はじめに

日本では下水道の整備が進んだ結果、都市河川の水量の多くを下水処理水が占めている。下水処理水で高品質な魚を育てることができれば、その手法を都市河川の水生物の品質向上に利用できると考えられる。また、世界人口の増加に伴い、タンパク源である魚の消費量は増加している。水資源の不足が世界的な課題である中で、養殖における新たな水源の確保の需要がある。

一方で下水処理水には特有の臭いがあり、代表的なものとして、カビ臭をもつ2,4,6-トリクロロアニソール (TCA)、2-メチルイソボルネオール (MIB)、ジオスミン (GSM) が挙げられる¹⁾。また、香料に由来するガラクトリド、トナリドも検出されている²⁾。これらの臭気物質の除去においては、オゾン処理が有効であることが報告されている³⁾。また、オゾン処理速度を向上させる触媒の1つがゼオライトである。ゼオライトは吸着剤として働き、処理対象の物質を吸着させた状態でオゾン処理を行うと処理効率が向上する⁴⁾。

本研究では、二次下水処理水に対してゼオライトを触媒に用いたオゾン処理を行い、その水によってアユを養殖して臭気の改善状況を評価することを目的とする。そして、本研究が下水処理水を用いて養殖された魚の品質の向上に寄与すること、都市河川の水環境保全への応用に繋がることを期待する。

2. 方法

砂町水再生センター内にある、東京都下水道局下水道技術研究開発センターに設置した養殖設備にて、3つの系列を用意してアユの飼育を行った。実験装置のレイアウトを図-1に示す。下水処理水は、砂町水再生センターでA₂O法により処理された二次下水処理水を用いた。系列1ではオゾン処理を行うために図-2の処理装置を用いた。装置内には三角形の小孔が開けられたハニカム状の筒が設置されており、その表面にUSY型ゼオライトが添加されている。また、ゼオライトを添加したハニカムの上側には活性炭を添加したハニカムを設置した。各ハニカムは日本トーカンパッケージにより製作された。この装置内に下水処理水を流し、0.1~0.5mg/Lのオゾンを通気した。系列2では、処理方法の比較を行うために、二次処理水に対して紫外線流水式殺菌装置(フナテック製)を用いたUV処理を行った。系列3では二次処理水の影響について比較を行うために脱塩素処理を施した水道水で養殖を行った。飼育期間は2022年8月31日~11月28日とした。稚魚は岐阜県森養魚場より購入し、各系列に約120匹ずつ投入した。飼育開始時は二次処理水の水温が30℃と高かったため、すべてのアユを水道水で飼育し、10月7日から系列1・2の二次処理水の割合を100%とした。餌はすべての系列において人工餌を使用した。収穫時には、各系列のアユの一部を水道水の入った水槽に移し、餌を与えずに育てた後に収穫した。この水道水での浄化は、養殖において魚の異臭味を取り除くために用いられる一般的な手法の1つである。

カビ臭物質は水槽の水とアユの体内について、ヘッドスペース-ガスクロマトグラフ質量分析法(HS-GC/MS)により測定した。水槽の水の測定では、塩化ナトリウム4gが入った22mLバイアル(Perkin Elmer製)に水槽の水を注入した。アユの体内の測定については、同様に塩化ナトリウム4gが入ったバイアルにミンチ状にしたアユの肉を0.05±0.01g入れ、そこへ蒸留水10mLを添加した。内標準物質は2,4,6-トリクロロアニソール-d3(TCA-d3)を10ng/Lとなるよう添加した。測定では、ヘッドスペースサンプラー(JEOL製)を用い

たトラップ型 HS 法（試料加温温度 80℃）により揮発性物質を採取した．続いて，GC/MS（Agilent 製）を用いて測定を行なった．

ガラクソリド，トナリドはアユの体内について測定した．抽出には Phenomenex 製 roQ QuEChERS Kits を用いた．ミンチ状にしたアユの肉 2g に Milli-Q 水 10mL を加え，酢酸 1%を含むアセトニトリル 10mL，および roQ Extraction Kits の抽出塩（6.0g 硫酸マグネシウム，1.5g 酢酸ナトリウム）を添加した．これを遠心分離し，上澄み 7mL を roQ dSPE Kits（1200mg 硫酸マグネシウム，400mg PSA，400mg C18E を含む 15mL チューブ）に採取し，再び遠心分離を行った．上澄み 5mL を採取し，窒素を通気しながら水分を蒸発させ，残留物をジクロロメタンで溶解した．内標準物質としてアントラセン d-10 を 0.05mg/L となるよう添加し，測定サンプルとした．測定は GC/MS（島津製作所製）を使用した．

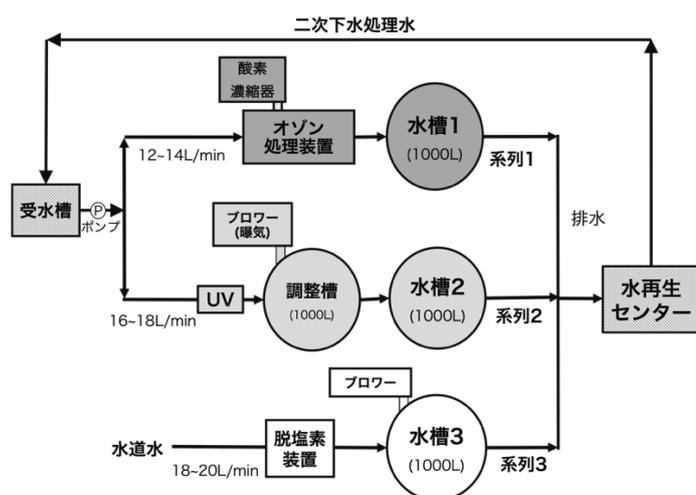


図 1 実験装置のレイアウト

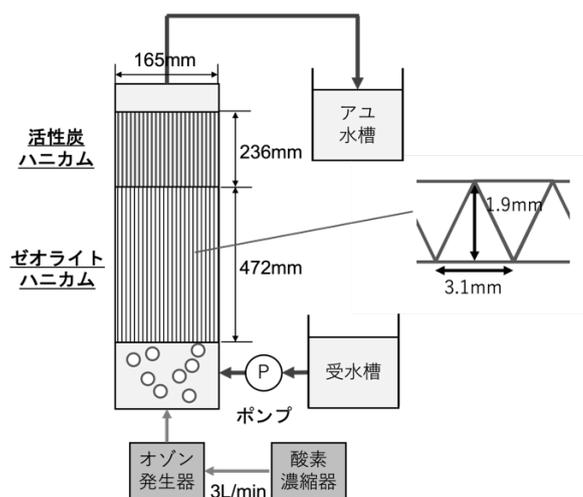


図 2 オゾン処理装置の概要

3. 結果と考察

飼育期間中の水槽中のカビ臭物質濃度の平均値を表 1 に示す．ここで，設備の受水槽の水質は各系列で処理を行う前の下水処理水の水質と同じと考えられる．3つの物質ともに系列 1（オゾン）の濃度は，受水槽，および系列 2 (UV) と比較して有意に低かった (Welch の t 検定，有意水準 5%)．

続いて，アユの肉から検出された臭気物質量を表 2 に示す．なお，カビ臭物質 (TCA, MIB, GSM) は 10 回測定，ガラクソリド，トナリドは 3 回測定による平均値を示している．水道水による浄化がない場合，系列 1 のアユからの各臭気物質の検出量は，系列 2 のアユと比較して有意に少なかった (Welch の t 検定，有意水準 5%)．また，水道水において 1 週間餌を与えずに飼育すると，臭気物質の低減が見られた．系列 1 では浄化により TCA 濃度が有意に減少した．また，系列 2 では TCA, MIB の濃度が有意に減少した．

以上のように，UV 処理を用いた系列 2 と比較して，オゾン処理装置を用いた系列 1 では水中のカビ臭物質濃度が減少した．また，飼育したアユの肉からの臭気物質検出量も低減した．ゼオライトを触媒に用いたオゾン処理によって，臭気物質の蓄積量が減少したことがわかる．また，水道水による浄化を行うことによっても蓄積量は改善する．一方で，オゾン処理装置により改善は見られたものの，依然として系列 1 のアユからは臭気物質が検出されている．さらなる臭気物質の低減に向けては，オゾン処理装置の改善が必要である．本実験で用いたオゾン処理装置はゼオライトに汚染物質を吸着させ，吸着表面上でオゾンによる酸化処理を行う仕組みである．ハニカムの小孔をもとに流れの状態を推定したところ，レイノルズ数が約 1.7 であり，層流となっていた．流れに乱れを生じさせてハニカムの壁面と臭気物質の接触効率を向上させるなどの改善が有効であると考えられる．

表1 水槽中のカビ臭物質濃度 (週1回, 合計8回測定した平均値)

	TCA (ng/L)	MIB (ng/L)	GSM (ng/L)
受水槽	5.33	5.97	21.87
系列1 (オゾン)	2.06	4.03	7.39
系列2 (UV)	3.72	5.79	18.39
系列3 (水道水)	<2.01*	<0.94*	<1.80*

*: 定量下限値

表2 アユの肉から検出された臭気物質質量

	TCA ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	MIB ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	GSM ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	ガラクソリド ($\mu\text{g}/\text{kg}$)	トナリド ($\mu\text{g}/\text{kg}$)
系列1 (オゾン) 浄化なし	1.39	0.45	0.81	3.97	0.65
系列1 (オゾン) 浄化あり*	0.93	0.44	0.94	1.33	0.14
系列2 (UV) 浄化なし	4.43	0.68	2.10	8.11	0.82
系列2 (UV) 浄化あり*	0.64	0.33	1.32	2.84	0.26
系列3 (水道水) 浄化なし	1.27	0.56	0.67	1.74	0.20
系列3 (水道水) 浄化あり*	0.50	0.46	1.18	定量下限以下	定量下限以下

*: 水道水で餌を与えずに1週間飼育してから収穫

4. 結論

本研究では下水処理水を用いた養殖における異臭味の原因物質として、カビ臭物質である TCA, MIB, GSM および香料であるガラクソリド, トナリドに注目した。二次下水処理水に対して、ゼオライトハニカムにオゾンを通気する処理装置を用いて処理を行い、アユの養殖を行なった。その結果、UV 処理を行った場合と比較して、オゾン処理装置を用いることにより二次下水処理水中のカビ臭物質濃度が減少することがわかった。また、オゾン処理装置や水道水を用いた浄化により、アユの肉からの臭気物質検出量は減少し、これらの方法の組み合わせが異臭味の低減に有効である可能性が示唆された。本研究では下水処理水で飼育した魚に蓄積する臭気の改善が示唆され、下水処理水による養殖の品質向上や水環境保全への貢献を期待できる結果が得られた。

参考文献

- 1) 浦瀬太郎, 筒井裕文, さまざまな下水処理場の処理水に含まれるカビ臭物質濃度, 土木学会論文集 G(環境), 2019, vol. 75, no. 7, p. III_25-III_33.
 - 2) 有野貴, 宮岡武志, 下水処理過程における臭気物質の挙動調査について, 東京都下水道局技術調査年報, 2019, no. 43, p. 107-117.
 - 3) Yuan, B., Xu, D., Li, F., Fu, M., Removal efficiency and possible pathway of odor compounds (2-methylisoborneol and geosmin) by ozonation. Separation and purification technology. 2013, vol. 117, p. 53-58.
 - 4) Ikhlaq, A., Brown, D. R., Kasprzyk-Hordern, B., Catalytic ozonation for the removal of organic contaminants in water on ZSM-5 zeolites, Applied Catalysis B: Environmental, 2014, vol. 154-155, p. 110-122.
- 問い合わせ先: 東京大学大学院工学系研究科都市工学専攻 下水道システムイノベーション研究室 尾方瑛
TEL: 03-5841-6248 E-mail: ogata-ei778@g.ecc.u-tokyo.ac.jp