

都市下水流入水および放流水に含まれるPAHsの負荷に関する調査

広島大学大学院 正会員 ○尾崎則篤

広島大学大学院 正会員 金田一智規

はじめに

多環芳香族炭化水素類(PAHs)はおもに化石燃料の燃焼によって生じる物質群であり、Benzo(a)pyreneをはじめ発ガン性を持つものも多い。PAHsは自動車、工業、家庭での燃焼など広範な発生源をもっており、とくにディーゼル粒子をはじめとする自動車交通起源については数多くの調査がおこなわれている。一方、都市下水もひとつの起源として考えられているが、大気汚染の調査と比べ、必ずしも多く調べられているとはいえない。本報では広島県内の複数の下水流入水、放流水中のPAHs濃度を調査し、それに基づき発生源としての寄与に関する考察をおこなった。

調査方法 広島県内の分流式下水道(S1, S2), コミュニティプラント(S3), 合流式下水道(C1)の計4箇所で2回(S3は1回)の調査をおこなった(表1)。S2, C1は大都市中心部、S1, S3は住宅地を中心とする中小都市に位置している。調査対象は流入、放流水(塩素消毒前)であり、採水はいずれも昼過ぎであった。いずれも採水時及びその前数日には降雨がなく、合流式下水道(C1)においても降雨の直接的な影響はないと考えられた。流入水SSは100~400, 流出水は1~34(mg L⁻¹)の範囲であった(本調査の採水時)。採水後、ガラス繊維ろ紙(Whatman GF/C 分画径 1.2μm)でろ過し、懸濁態、溶存態ごとの、15種類のPAHs濃度を測定した(対象物質は表2参照)。本報では懸濁、溶存態の合計で示す。

結果と考察

流入、放流濃度および除去率 表2に各PAHsの値を示す。合計値で見ると流入水は116~475, 放流水は24~77(μg L⁻¹)であった。除去率は42~92%であった。ただしS1

	S1処理場	S2処理場	S3処理場	C1処理場
合・分流の別	分流	分流	分流	合流
処理人口(人)	37000	22000	480	58000
処理水量(m ³ ・d ⁻¹)	17000	53000	120	58000
処理方式	標準活性汚泥法	標準活性汚泥法	エアレーション-沈殿処理	ステップエアレーション法
調査日	'04/08/24 '05/01/26	'00/08/22 '05/03/04	'00/10/17	'00/08/22 '00/11/14

*データは「下水道統計(H14年度版)」に基づく

処理場の'04/08/24の除去率のみが極端に低く(42%)、それ以外は8割以上の除去率を示していた(80~92%)。各物質で見ると(図1; 負の値は0とした)高分子(HMW; B(a)~Ind(123cdp))は良好な除去率であるが、低分子(LMW; Ace~Pyr)はやや低い。

夏期と冬季の濃度の変動 大気中濃度などと同様、下水流入負荷においても冬季がやや高くなるといわれているが³⁾、その差は大きいとは考えられておらず、本調査でも回数が少なかったこともあるが明確な濃度の違いは確認されていない。除去率の季節性に着目しS1, C1を見るとやや夏期の方が低いようである。これは夏期は溶存態の比率が高くそれらの多くが除去されぬまま流出していることを反映している。

流入濃度のパターンを見ると、全般にはばらつきが大きく一貫した特徴は見いだしにくい、個別に見たところB(a)a/Chrの比に特徴的な変動パターンが見られた(図2)。B(a)aの濃度は相対的に夏に低く冬に高い。大気中濃度でも同様の傾向が見られており、その原因としてはB(a)aはPAHsのなかでも光反応性が大きく夏の濃度低下が大きいことが考えられる^{2,3)}。下水中PAHsの変動の直接の要因が光反応であるとは考えにくい、なんらかの関連が示唆される。B(a)/Chrの存在比は何らかの有効な指標となる可能性がある。

負荷量の検討 一人一日あたりの合計の負荷量を、流入量と処理人口から計算したところ流入負荷量は53~682(平均344)(μg person⁻¹ d⁻¹)であった。値の幅の主な理由の一つに一人あたり水量原単位のばらつきが大きいことがある。S2, C1はその値が大きい処理場は大都市中心部に位置し工業・商業による発生量が大きいためである。結果としてPAHs負荷量も大きく算定された。個別の物質として、Benzo(a)pyreneに着目したところND~45(平均12)(μg person⁻¹ d⁻¹)であった。Benzo(a)pyreneについて過去の同様の調査結果を用い筆者らが推算したところ58(Montrial, Canada, 1997⁴⁾), 4.4(Thessaloniki, Greece, 1999¹⁾), 2.5(Paris, France, 2004⁵⁾)といった値が得られた。これらの値と比較すると筆者らも同程度の負荷量を得ている。

処理後の、放流負荷量を、低分子(LMW)と高分子(HMW)、懸濁態と溶存態ごとに図3に示した。放流負荷は7~77(平均40)(μg person⁻¹ d⁻¹)、うち低分子は36、高分子は3.3であった。低分子の除去率は86%、高分子は97%と低分子の除去率の方が低いが、更に低分子について懸濁、溶存態ごとにみていくと懸濁態は84%、溶存態は79%となる。

キーワード：都市下水、PAHs、多環芳香族炭化水素類

連絡先：〒739-8527 広島県東広島市鏡山1-4-1 (Tel & fax: 082-424-7822)

表2 流入水および放流水中PAHs濃度(ng L^{-1} ; 空欄は未検出)

表2-1 流入水質及び放流水質（FMS濃度（mg/L）；土留は未検出）															
		S1				S2			S3		C1				
		'04/08/24		'05/01/26		'00/08/22		'05/03/04	'00/10/17		'00/08/22		'00/11/14		
物質名	略称	流入	放流	流入	放流	流入	流入	放流	流入	放流	流入	放流	流入	放流	
Acenaphthylene	Ace	3.8	3.7	12.1	2.1	11.0	10.2	0.5	10.8	1.8	8.2	1.4	4.7	1.1	
Acenaphthene	Act	13.2	7.1	22.3	6.9	16.6	51.6	0.9	0.5	1.3	34.2	8.7	4.5	0.4	
Fluorene	Flu	7.9	4.9	11.9	4.2	7.4	8.9	2.7	11.0	0.0	30.8	6.6	8.3	2.0	
Phenanthrene	Phe	19.0	9.5	61.7	14.2	92.4	41.0	5.6	100.4	9.5	140.4	36.0	59.6	16.0	
Anthracene	Ant	10.4	5.9	18.0	8.6	3.9	7.6	6.4	3.8	0.4	5.0	1.5	4.5	1.3	
Fluoranthene	Flt	10.9	5.6	36.1	6.5	44.5	14.3	3.3	11.6	1.3	36.1	10.3	58.0	5.3	
Pyrene	Pyr	10.7	5.1	33.2	7.7	47.1	18.8	4.2	13.6	12.7	46.7	11.4	51.5	10.2	
Benzo(a)anthracene	B(a)a	2.4	1.0	12.1	1.4	3.6	8.7				11.6		30.0		
Chrysene	Chr	5.4	2.7	9.1	1.0	6.8	4.1				19.8	1.3	29.3		
Benzo(b)fluoranthene	B(b)f		0.9		0.8	7.0	0.6				33.7		52.7		
Benzo(k)fluoranthene	B(k)f	3.0	5.9	1.9	2.4	3.1	25.4				22.1		33.3		
Benzo(a)pyrene	B(a)p	18.0	15.3	3.7		2.6	6.0	1.3			17.9		44.8		
Dibenzo(ah)anthracene	D(ah)a			0.7		15.8	3.1								
Benzo(ghi)perylene	B(ghi)p	9.5		39.5	0.8		27.4								
Indeno(123-cd)pyrene	Ind(123cd)p	2.2		30.9	0.9	21.1	27.1				4.8		94.2		
合計		116.4	67.6	293.2	57.5	283.0	254.8	24.9	151.6	27.0	411.3	77.2	475.4	36.3	

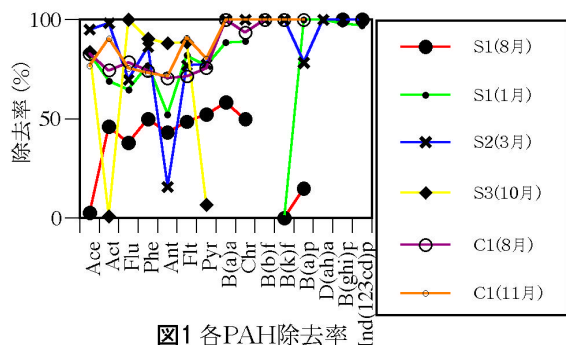


図1 各PAH除去率

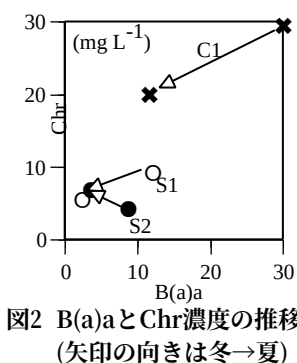
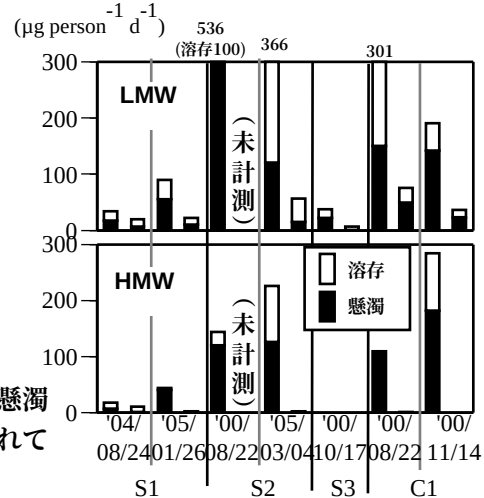
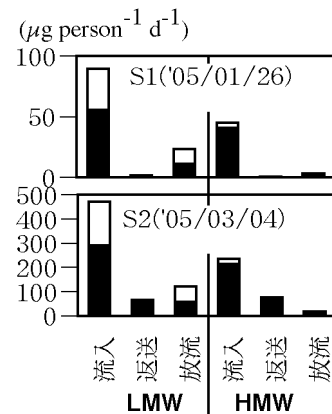
図2 B(a)aとChr濃度の推移
(矢印の向きは冬→夏)図3 流入と放流負荷量
(各段左側が流入, 右側が放流)

図4 流入・返送・放流負荷量

一般に懸濁態の除去率が高いと考えられているが、低分子に関しては懸濁態も溶存態も同程度の除去率であり、必ずしも懸濁態も高い除去率は得られていない(高分子の懸濁態の除去率(97%)と比較しても有意に低い)。

S1, S2についてはそれぞれ返送汚泥中PAHs濃度についても同様に濃度を調べた。引き抜き率を考慮して同じ原単位($\mu\text{g person}^{-1} \text{d}^{-1}$)となるように引き抜き量を計算した(図4)。物質収支の観点から見ると、(流入 - 流出)と(返送 + 引抜)の差分は最初沈殿池からの引き抜き量と、反応槽内の生物分解による減少量とが考えられる。最初沈殿池からの引き抜き量は小さいと考えると(特にS1では初沈による沈殿操作は行っていないそうである)、その差分は生物分解である可能性があり、少なからず生物分解が生じていることが示唆される。今後は詳細なサンプリングや、室内実験を行い実態を把握していきたい。

大気降下負荷との比較 調査結果に基づき年間あたり、単位面積あたりの負荷に換算し、大気降下との比較を行った。大気降下は筆者らが広島県内の郊外部での観測に基づき乾性28, 湿性52, 合計して80 ($\mu\text{g m}^{-2} \text{yr}^{-1}$)という結果を得た⁶⁾。下水の流入(平均344 ($\mu\text{g person}^{-1} \text{d}^{-1}$)), 放流負荷(平均40 ($\mu\text{g person}^{-1} \text{d}^{-1}$))を単位面積あたりの原単位に換算するには、人口密度をかける必要がある。その際比較の対象となる大気降下の値がどの程度の面積の代表性をもつかが重要であるが、ある程度の広域性をもつものと見なし、広島県全体の人口密度340(person km^{-2})を用いた。計算の結果、流入負荷は42.7 ($\mu\text{g m}^{-2} \text{yr}^{-1}$), 放流負荷は5.0 ($\mu\text{g m}^{-2} \text{yr}^{-1}$)となった。いずれも降下負荷を上回る値ではないが、無視出来ない値である。今後、更なる検討により、水域への負荷を評価していく必要がある。おわりに

本調査結果は都市下水のPAHsの負荷は、大気経由の負荷などと比較し、小さいながらも無視し得ないことを示している。今後詳細な調査を行い、より正確な評価を行っていきたいと考えている。

参考文献

- 1) Manoli, E. and Samara, C., J. Environ. Qual., 28: 176-187, 1999.
- 2) 奥川ら, 第40回環境工学研究フォーラム講演集, 112-114, 2003.
- 3) 尾崎ら, 大気環境学会誌, 2005. (印刷中)
- 4) Pham, T. and Proulx, S., Wat. Res., 31: 1887-1896, 1997.
- 5) Blanchard, M., et al., Environ. Res., 95: 184-197, 2004.
- 6) Ozaki, N. et al., Proceedings of 8th International conference on Diffuse/Nonpoint Pollution, A145, 2004.