

下水処理場における PAHs の生物分解性の把握

日本工営(株) 正会員 ○高村 斎弘
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
広島大学大学院 正会員 大橋 晶良

1. はじめに

多環芳香族炭化水素類(PAHs)は、炭素と水素から成る物質群の総称であり、発がん性や変異原性を有することから人体への影響が懸念されている。PAHsに関する調査・研究はこれまで広く行われてきているが、大気環境等に比べ下水を対象としたものは少なく、下水中の PAHs の動態についての知見はあまり得られていない。加えて、下水は我々の生活雑排水であることから、我々が生活を送る中でどの程度 PAHs が発生しているのか把握することは、リスク評価を行う上でも重要な事項であると考えられる。そこで、下水処理場において実測調査を行い、下水中に存在する PAHs の年間挙動、発生源および、生物分解性の把握を行なうことを目的として研究を行った。

2. 調査および分析方法

本研究は、A 下水処理場(処理人口: 37,000 人、処理量 $24,000 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$)を対象に、2005 年 10 月から 2006 年 9 月の期間において、毎月 1 度、1 日 3 回(10 時、12 時、16 時)もしくは 2 回(10 時、16 時)のサンプリングを行なった。また、2005 年 10 月、2006 年 1 月、4 月、7 月には週間サンプリング(平日のみ)を実施した。サンプリング地点として、流入水をはじめ、図 1 に示す処理場内の 7 地点を選定した。サンプリング量は、処理水は 2 L 程度、脱水汚泥は 10 g 程度、その他は 1 L 程度とした。

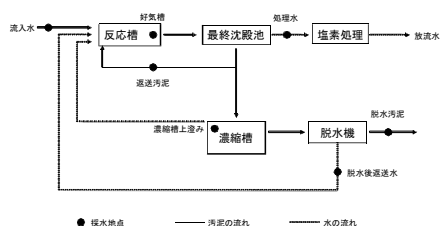


図1 処理場のフローと採水地点

採取したサンプルは、ガラス繊維濾紙 GF/F(孔径 $0.7 \mu\text{m}$)を用いて減圧濾過を行い、懸濁態と溶存態に分離し、ジクロロメタンを用いて、それぞれ超音波抽出、固相抽出を行った。その後、ガスクロマトグラフ質量

分析計 (Gas Chromatograph/Mass Spectrometer : GC-17A/MS-QP5050、島津製作所)で PAHs の分析を行った。測定対象としたのは代表的な 16 物質の PAHs である。

3. 結果

3.1 下水処理場における年変動

(1) PAHs 濃度

処理場内における PAHs 濃度は、流入水が $23.3 \sim 5577.2 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 、好気槽が $13.9 \sim 821.6 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 、返送汚泥が $177.0 \sim 11934.6 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 、脱水後返送水が $31.3 \sim 969.7 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 、濃縮槽上澄みが $38.1 \sim 353.2 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 、処理水が $2.9 \sim 104.4 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ であった。流入水の PAHs 濃度は、秋期や冬期に比べ春期や夏期に PAHs 濃度が高くなる傾向が見られ、夏期に比べ冬期に高くなるという大気環境の傾向とは異なる結果であった(図 2)。また、Indeno(123-cd)pyrene の濃度が高く検出され、大気等の他の環境とは異なる結果を得た(図 3)。他の地点については、濃縮槽の上澄みが冬期に PAHs 濃度が低くなっていたが、その他の地点ではほとんど変動は見られず、特に処理水については、年間を通して PAHs 濃度は一定であった。(表 1)

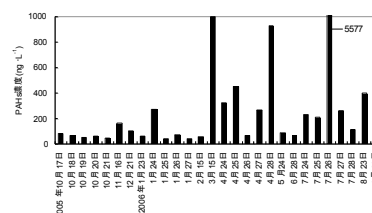


図2 流入水 16PAHs 濃度

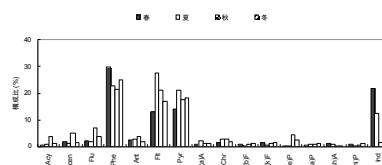


図3 流入水の濃度構成比

キーワード : PAHs, 下水処理場, 生物分解性

連絡先 : 〒739-8527 広島県東広島市鏡山 1-4-1 広島大学大学院工学研究科 TEL082-424-7822

表1 季節別の濃度(16PAHs 中央値)

	春期 (3月～5月)	夏期 (6月～8月)	秋期 (9月～11月)	冬期 (12月～2月)
流入水	268.0	211.4	72.3	66.0
好気槽	278.0	219.2	165.0	167.0
返送汚泥	278.0	219.2	165.0	167.0
脱水後返送水	63.7	94.8	135.2	38.3
濃縮槽上澄み	476.8	357.6	105.8	40.1
処理水	48.9	27.5	38.5	71.3

(単位: $\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$)

(2) PAHs 負荷量変化(処理場流入水と処理水)

流入水および処理水中の PAHs 濃度から、下水処理場における PAHs の除去率を算出した(図4)。除去率は、以下の式で求めた。

$$\text{除去率} = 1 - \frac{\text{処理水中濃度}}{\text{流入水中濃度}}$$

PAHs の除去率は 16PAHs の合計平均値では、春期:71.6%、夏期:85.1%、秋期:74.8%、冬期:41.5%であり、冬期に除去率が低下するという結果を得た。また、どの季節においても共通して言えることは、低分子量の PAHs よりも、高分子量の PAHs の方が除去率は高いことである。これは、高分子量の PAHs は疎水性が強いために、汚泥に吸着して除去されるためであると考えられる。また、懸濁態と溶存態ごとにみると(図5)、懸濁態 PAHs の除去率は、どの物質も85%以上の高い除去率であった。一方、溶存態 PAHs の除去率は概ね40~70%程度であった。このことから、下水処理場における PAHs の除去は、汚泥への吸着が主なプロセスであり、河川への PAHs 排出負荷量の低減に繋がっていると考えられる。

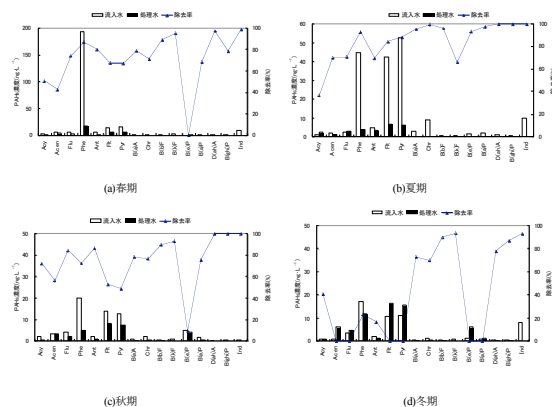


図4 流入水、処理水中各 PAH 濃度と除去率

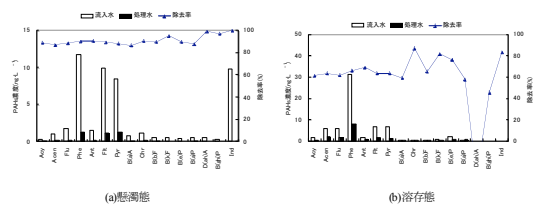


図5 懸濁態および溶存態各 PAH の流入水、処理水中濃度と除去率

(3) PAHs 負荷量変化(反応槽流入水と流出水)

反応槽における流入負荷量と流出負荷量の年平均値(幾何平均)はそれぞれ、 $20.7 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ 、 $11.3 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ であり、反応槽内で約45%の PAHs が減少していることがわかった。PAHs 負荷量の減少の要因としては、汚泥への吸着や生物分解、曝気による揮発が考えられる(図6)。

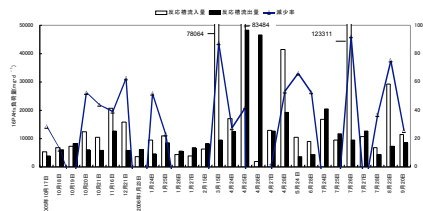


図6 反応槽における 16PAHs の流入負荷量と流出負荷量、および減少率

(4) PAHs 負荷量変化(下水処理場の系全体)

処理場全体における流入負荷量と流出負荷量の年平均値(幾何平均)はそれぞれ、 $11.9 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ 、 $2.3 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ であり、処理場全体で80%の PAHs が減少していることがわかった。冬期に減少率が小さくなる傾向が見られたが、全体的に約60%以上の割合で減少していた(図7)。この約60%の PAHs は処理場内で生物分解や揮発によって減少したと考えられる。

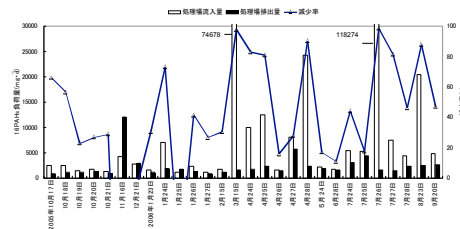


図7 処理場全体における 16PAHs の流入・流出負荷量、および減少率

(5) PAHs 発生源としての下水処理場の寄与

処理場内の各地点における PAHs 負荷量を基に、対象下水処理場の処理人口(37,000 人)と東広島市の人口密度 $3,415 \text{ person} \cdot \text{km}^{-2}$ を用いて、一人一日あたりの負荷量および単位面積当たりの負荷量を求め、他の地域における調査、あるいは大気降下負荷量との比較を行った。

一人一日あたりの流入負荷量、および放流負荷量は 16PAHs でそれぞれ、 $31.1 \sim 3212.7 \mu\text{g} \cdot \text{person}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ 、 $6.3 \sim 290.9 \mu\text{g} \cdot \text{person}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。また単位面積当たりの流入負荷量および放流負荷量はそれぞれ、 $106.3 \sim 10971.6 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 、 $21.4 \sim 993.5 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。一方、大気降下負荷に関する調査を見ると、本

反応槽内分解率(図 11)は、16 物質の合計値で、春期 42.0%、夏期 36.7%、秋期 28.6%、冬期 0.0%であった。PAHs の反応槽内分解率は、春が最も高く、冬に向かうにつれて分解率が減少していた。一般的な知見として、生物利用性が高く、分解されやすいのは低分子量の物質であると考えられている。しかしながら、春期と夏期においては、低分子量の物質よりも高分子量の物質の方がむしろ分解率が高くなっていた。また、Indeno(123-cd)Pyrene は年間を通して分解率が高いのが特徴である。懸濁態と溶存態別に見ると(図 12)、懸濁態の分解率は、秋期を除いて高分子量の物質の方が分解率は高くなっていた。

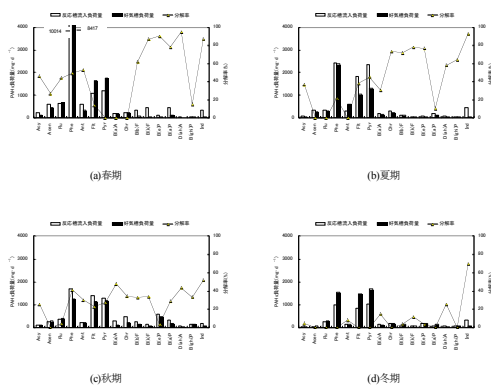


図 11 反応槽における流入、流出負荷量と分解率

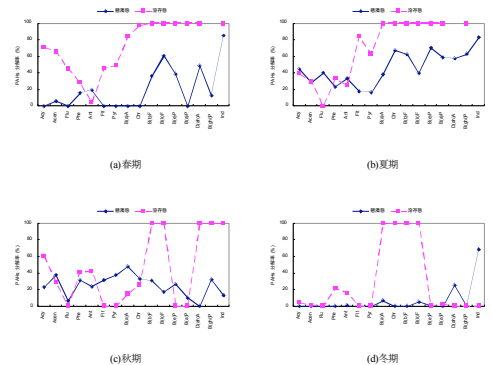


図 12 反応槽における懸濁態、溶存態の分解率

系全体分解率(図 13)は、16 物質の合計値で、春期 81.0%、夏期 46.1%、秋期 28.9%、冬期 30.6%であった。PAHs の系全体分解率は、反応槽内分解率と同様に春期に最も高く、冬期に向かうにつれて減少していた。どの季節においても、高分子量の物質に比べ、低分子量の物質の分解率が高い結果となった。このことから、処理場全体で除去されるのは低分子量の物質であり、これらの物質が生物分解を受けていると考えられる。また、この傾向は冬期において最も顕著であった。懸濁態と溶存態別に見ると(図 14)、懸濁態と溶存態の分解率を比較すると秋期の低分子量の物質を除き、溶存態の分解率のほうが高かった。懸濁態では、高分子量物質の分解率は低く、処理場内では生物分解されることはないと考えられた。一方低分子量の物質は、夏期に 60~80%分解率を得たが、その他の季節においては、約 40%程度の分解率であった。このことから、懸濁態においては低分子量の物質であれば、生物分解されるのではないかと考えられる。溶存態について見ると、春期と夏期では全体的に分解率が高かった。一方、秋期では低分子量、冬期では高分子量物質の分解率が低くなっていた。溶存態 PAHs においては、低分子量の物質の生物分解と揮発、高分子物質の懸濁態への移行と生物分解が考えられる。

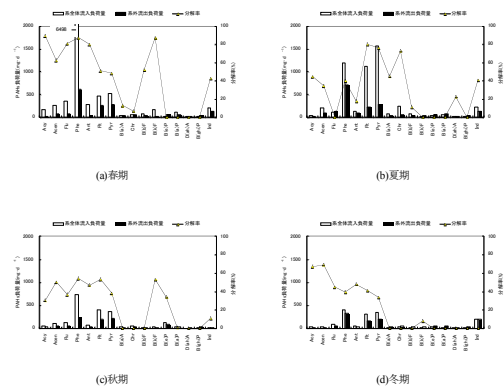


図 13 系全体における流入、流出負荷量と分解率

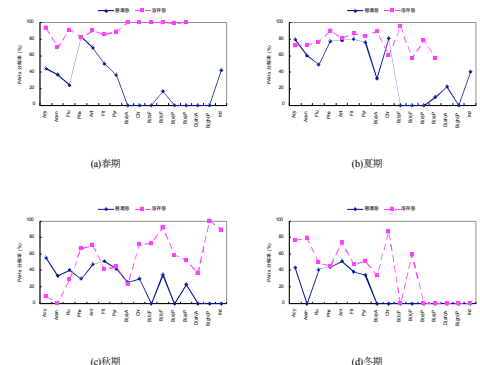


図 14 系全体における懸濁態、溶存態の分解率

5. 今後の課題

下水中 PAHs の発生源解析においては、生活排水の寄与が大きいとされたが、具体的な寄与率等は不明であり、コミュニティプラントにおける調査が必要と考える。生物分解性についても、PAHs の生物利用性を明らかにするため、PAHs を唯一の炭素源とし、標識元素を用いた添加実験が必要と考える。

参考文献

- 1) Ozaki et al. (2006) Wat. Sci. Technol., 53, 2, 215-224.