分流式下水道流入水の疎水性有機物に起因する毒性の流入源

広島大学　○住本　春輝
尾崎　則篤
大橋　晶良
金田一　智規

１．背景

下水中の有害物質は，土壌や水環境に拡散し人間の健康や生態系に影響を与える可能性がある [1]．本研究では，分流式下水道流入水の疎水性有機物に起因する毒性の流入源を探索することにした．流入源の可能性を都市的な生活排水か雨天時の分流式下水道流入水の二つに絞っている．都市的な生活排水に着目したのは，都市部からの下水汚泥では，農村部と比較して疎水性有機物の濃度と毒性が高かったためである [2]．これは，地域の都市化に合わせて、生活様式が都市化したためと捉えられる．一方、雨天時の流入水に着目したのは，採水場所によってPAHsに変化があったためである．PAHsとは多環芳香族炭化水素の略称で有機物の不完全燃焼によって発生する複数のベンゼン環を持ち，大気から路面堆積物に付着する(3)．また分流式下水道であっても雨水が混入していることが確認されているので，路面堆積物中のPAHsも混入していると推測した．本研究では雨天時の分流式下水道流入水に焦点を合わせ，晴天時と比較することで毒性に起因する有害物質の流入源である可能性を検討する．

２．調査方法

広島県内の分流式下水処理場(処理面積 153.33ha，処理人口 64.37 人，流入水量 135.2 万 m^3 年$^{-1}$，[2017年 度])から汲み取った下水道流入水約1Lを晴天時は週に1回を目安に採水した流入水とし，雨天時は気象庁が 0.5 mm $(30min)^{-1}$を観測されてから 2.3 時間後の流入水とした．採水時期は2019年6-11 月の平日昼間で，採水回数は15回(晴天時9回，雨天時6回)となった．試料はガラス繊維沪紙(孔径 0.7 μm; Whatman GF/F)でろ過し懸濁態と溶存態に分画した．懸濁態はろ紙を暗所でデシケーターを使用して1-2 日乾燥し，SS 重量を測定ののちdichloromethane(DCM)を溶媒として超音波抽出し，それを懸濁態の疎水性有機物質とした．ろ液は疎水性カラム(Sep-Pak Plus Short tC18 Cartridges)でトラップしたのちDCMで抽出し，溶存態の疎水性有機物質とした．それらを対象に海洋性発光細菌(*Aliivibrio fischeri*)に対する毒性とPAHs濃度を測定した．毒性試験に際しては当該成分をDMSOに溶媒転移し，菌体に対するDMSO最終濃度を0.98%となるように希釈し測定した．本研究では曝露15分後の発光量の変化を用い相当する原液濃度の濃縮倍率であるEC20を導出し，その逆数すなわち希釈倍率をTUとして指標化した．PAHsは人体や生態系に影響を及ぼすとされる16種類の合計値を対象とした．

３．結果と考察

① Figure．1は，採水日の時間的流量変化と採水時間、降雨量を示したグラフである．黒線は時間当たりの流入量，点線は採水日前後で1日を通して降水が確認されなかった日の2日分を表している．このうち，明確に降雨による流入水増加がみられたのは6月14日，10月14日，11月18日である．

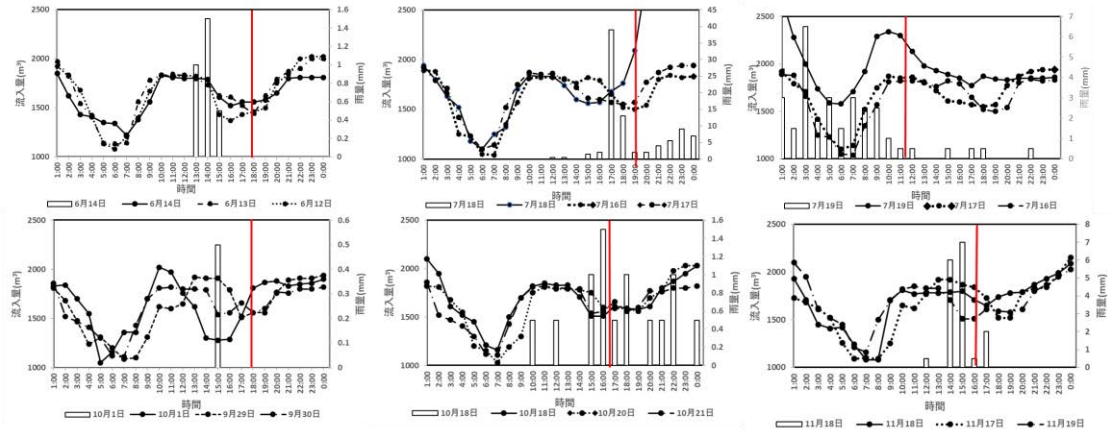

Figure. 1 Temporal flow change and precipitation during rainfall

② 経日変化の各数値結果は Table. 1 となる．-は抽出過程で測定不可となった部分である．7 月 25 日，8 月 26 日，9 月 19 日ではクリセンの数値が異常に高くなったため 16PAHs 濃度が他の数値の 10 倍以上となった．

Table. 1 Measured sample

採水日時	天候	SS濃度	SS抽出濃度	合計抽出濃度	16PAHs(P)	16PAHs(D)	合計16 PAHs	EC20(P)	EC20(D)	TU_{20}(P)	TU_{20}(D)	TU20(合計値)
		mg L^{-1}	mg L^{-1}	mg L^{-1}	ng L^{-1}	ng L^{-1}	ng L^{-1}	濃縮倍率	濃縮倍率	濃縮倍率$^{-1}$	濃縮倍率$^{-1}$	濃縮倍率$^{-1}$
2019/06/11 16:30	晴れ	203	6.7	6.7	79	-	-	17.5	-	0.057	-	-
2019/06/14 15:00	雨	190	11.8	13.2	393	16.8	410	4.8	-	0.209	-	-
2019/06/21 15:30	晴れ	192	9.8	11.8	191	28.6	219	4.1	-	0.244	-	-
2019/07/18 16:30	雨	169	18.0	22.4	544	10.9	555	33.6	33.4	0.030	0.030	0.060
2019/07/19 11:00	雨	147	9.4	15.8	71	9.8	81	156.7	12.85	0.006	0.078	0.084
2019/07/25 11:00	晴れ	207	10.0	14.0	3,159	29.4	3188	1.6	18.12	0.631	0.055	0.686
2019/08/26 10:30	晴れ	217	8.8	11.1	3,000	48.0	3048	3.2	5.03	0.310	0.199	0.509
2019/09/05 13:30	晴れ	200	6.0	12.0	310	11.4	322	25.1	10.50	0.040	0.095	0.135
2019/09/19 16:00	晴れ	171	9.0	11.4	18,646	84.4	18731	24.3	3.57	0.041	0.280	0.321
2019/09/27 13:45	晴れ	167	5.5	8.7	457	12.6	470	8.6	16.13	0.116	0.062	0.178
2019/10/01 17:15	雨	98	2.6	4.6	382	10.3	393	11.0	7.76	0.091	0.129	0.220
2019/10/19 16:30	雨	164	0.0	2.5	687	19.7	707	5.5	3.83	0.183	0.261	0.445
2019/10/25 15:30	晴れ	192	2.7	5.4	216	29.7	246	1.3	11.36	0.745	0.088	0.833
2019/11/07 15:15	晴れ	175	15.7	18.6	687	49.5	737	7.0	3.86	0.143	0.259	0.402
2019/11/18 15:45	雨	236	10.0	15.5	342	47.8	389	4.7	6.13	0.214	0.163	0.378

③ Figure.2 と Figure. 3 は各 16PAH s の種類と濃度平均である．Figure. 2 はクリセンが異常に高くなったものを含んでいない．質量数は左側ほど少ない．懸濁態溶存態ともにクリセンが最も高く，懸濁態ではクリセンよりも質量数の大きい物質が下水流入水中に多く存在しており，逆に溶存態ではクリセンよりも質量数の小さい物質が多く存在していることを示している．

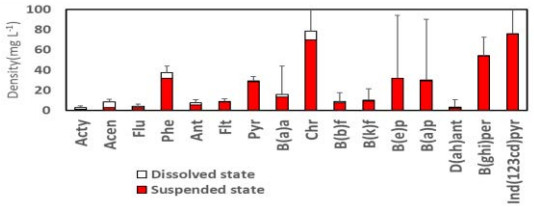

Figure. 2 PAHs density(not in 07/25, 08/26, 09/19)

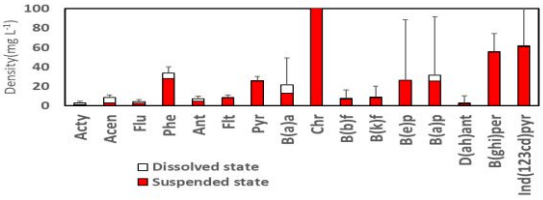

Figure. 3 PAHs density(All)

④ Figure. 4 は SS 濃度と SS からの抽出した有機物濃度の経日変化が示されている．SS 濃度はろ過前後の沪紙の重量差から，抽出した有機物濃度は DCM 抽出前後の重量差から求めている．SS 濃度は 10 月 1 日以外基本的に 150 mg L^{-1}～200 mg L^{-1} で安定している．また，雨天時のほうが晴天時よりも全体的に値が小さくなっている．一方、抽出した濃度は大きなばらつきがみられ，SS 濃度と関係性を持たないことが示された．

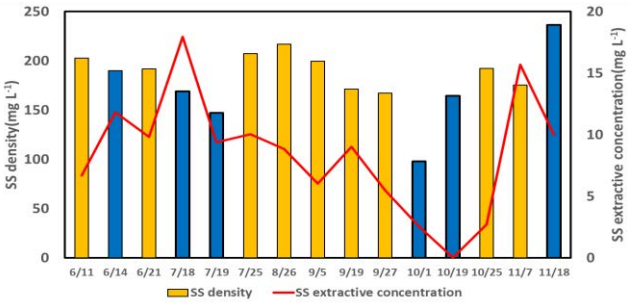

Figure. 4 Daily SS density and SS extractive concentration

⑤ Figure. 5 は合計 TU 値の経日変化, Figure. 6 は合計 16PAHs 濃度の経日変化のグラフである. TU 値, PAHs 濃度とも経日的なばらつきが見えられたが，TU 値の大小と PAHs 濃度の大小の経日変化は相対的に類似している.

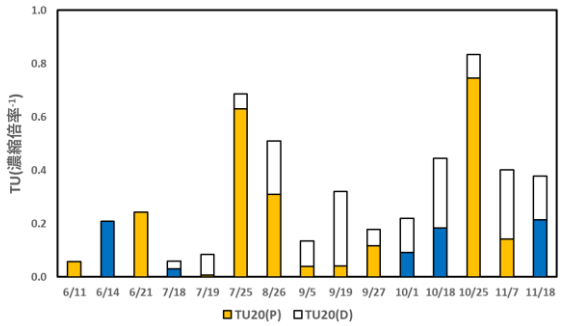

Figure. 5 Daily TU

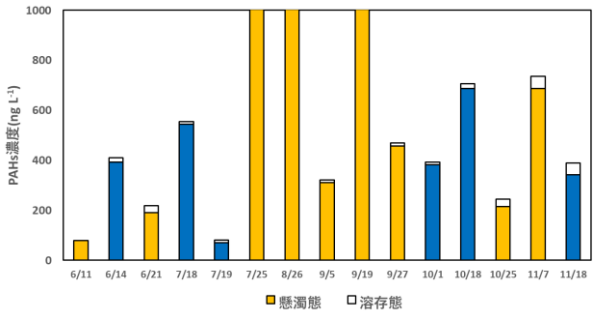

Figure. 6 Daily PAHs density

次に，SS 濃度，有機物の抽出した濃度，PAHs 濃度，TU 値を雨天時・晴天時でそれぞれ平均を取り，雨水の混入による全体的な数値変化を示していく(薄い色:晴天時，濃い色:雨天時).

⑥ Figure. 7 の左側の SS 濃度平均値から，晴天時のほうが雨天時よりも 20 mg L^{-1} ほど濃度が高い．しかし，t 検定を行うと共分散時，非共分散時ともに 0.005 を超えるため，有意差があるとは言えない.

⑦ Figure. 7 の右側の抽出した有機物濃度平均値から，溶存態と懸濁態の抽出濃度では懸濁態のほうが高い．そして，晴天時・雨天時ともにほぼ同じ値になっているため，有意差があるとは言えない.

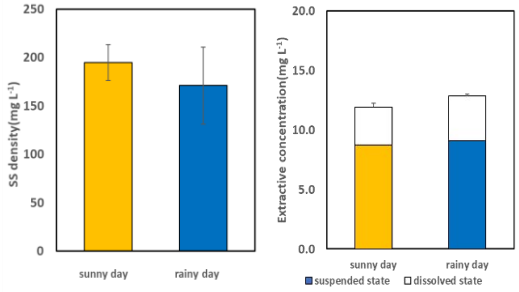

Figure. 7 SS density average and Extractive concentration average

⑧ Figure. 8 の左側にある 16PAHs 濃度平均値より，高濃度のクリセンのデータを含む(考慮する)場合と含まない(考慮しない)場合で考えると，考慮ありのほうが考慮なしの約 9 倍となっている．懸濁態は溶存態よりもかなり大きいため，全体の PAHs 濃度では懸濁態の影響が占めている．雨天時との比較では，考慮し

ない場合では差がみられないが考慮する場合では約 9 倍の差が生まれた.

⑨ Figure. 8 の右側にある TU 値の平均値から，高濃度のクリセンのデータを含む(考慮あり)場合と含んでいない(考慮していない)場合ともにほぼ同値を取り，雨天時と比較してもほとんど変化しないことが示された.

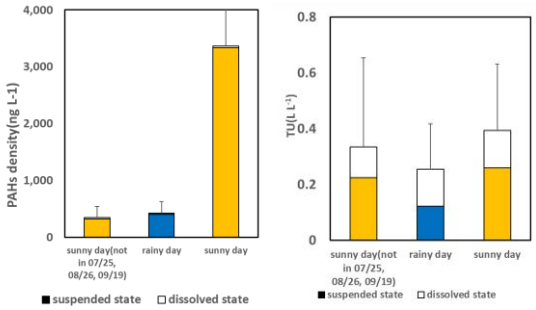

Figure. 8 PAHs density average and TU average

４．考察・結論

経日変化の結果から, SS 濃度は安定性があったが, PAHs 濃度, TU 値, SS 中の疎水性有機物の抽出した濃度は経日ごとにばらつきがあり，それらにはそれぞれ比例関係がみられなかった．雨天時と晴天時でのそれぞれの平均値を比較すると，PAHs 濃度の考慮あり以外で数値の変化がみられなかった．これらの結果から，雨天時流入水による毒性の変化がないこと，下水流入水中の PAHs 濃度(特にクリセン)によって毒性が変化するとは言えないことが示される．よって，疎水性有機物による毒性の流入源は雨天時の流入水である可能性は低いと考えられる．

５．今後の課題

雨天時による分流式下水道流入水が疎水性有機物の流入源となる可能性が低いとみなせるので，今後は背景に述べたように都市的な生活排水を毒性の流入源として着目し，新たな疎水性有機物の比較方法やサンプルなどを定義づけ，最終的に毒性の流入源を検討するのが目下の課題である．

６．参考文献

(1) Heberer, *Toxicology Letters* 131, 5-17, (2002).

(2) Ozaki et al, *Sci. Total Environ.* 605-606,860-866, (2017).

(3) Ravindra et al, *Atmos. Environ.* 42, 2895-2921, (2008).