水圏環境に流入する多環芳香族化合物の 下水処理過程における消長

任 恵峰, 菊地 純哉, 遠藤 英明, 林 哲仁

東京海洋大学海洋環境学科 生体機能利用学研究室 (〒108-8477 東京都港区港南4-5-7)

[平成20年9月9日受付, 平成21年5月11日受理]

Fluctuation in the Flow of Poly Aromatic Hydrocarbons (PAHs) into the Aquatic Environment through the City Sewage Treatment Process

Huifeng REN, Jun-ya KIKUCHI, Hideaki ENDO and Tetsuhito HAYASHI

Laboratory of Applied Biochemistry and Biotechnology,
Department of Ocean Sciences, Tokyo University of Marine Science and Technology
(4-5-7 Konan, Minato, Tokyo 108-8477)

[Received September 9, 2008; Accepted May 11, 2009]

Summary

The following three conclusions were reached, as a result of this study on the fluctuation in the amount of poly aromatic hydrocarbons (PAHs) flowing into the aquatic environment through the sewage treatment center in urban area. 1) More than 98 % of the PAHs found in influent water were eliminated from the water during the treatment process on fair weather days. 2) Due to primary treatment of influent water on rainy weather days, 20~30 % of the incoming PAHs were discharged to nearby public water environment. This situation seems to require administrative improvement by the local government in the near future. 3) After centrifugal separation, most of the PAHs transferred to sludge were eliminated by incineration at high temperature over 850 degree C. Only a small amount of the PAHs, remaining in the ash, was buried in a dump yard.

Key words: PAHs, environmental load, sewage treatment, primary effluent

1. はじめに

環境中に広く分布する難分解性の汚染物質としては、複素六員環を2~3個持つポリ塩化ビフェニル(以下PCB)やダイオキシン類などが、毒性の強さや化学的安定性から良く知られ、都市におけるごみ焼却処理問題とも関係して研究¹⁾が多い。また近年生態系に対する影響が懸念されている内分泌攪乱物質の下水処理工程における除去効率やその改善についての報告²⁾もいくつか見ら

れる。

これらと同様に環境中に分布する難分解性化合物である多環芳香族炭化水素(Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, 以下PAHs)は、主に人間の生産活動に伴う石油の消費など、化石燃料の不完全燃焼などにより発生するので、特に都市部で多量に放出されている可能性が考えられる。PAHsは複数の芳香環が縮合した化合物で、もっとも簡単な構造としてはナフタレンがある。3環以上からなるPAHsは水に対する親和性が低く、分

子量の増加とともに水への溶解度も蒸気圧も減少する。従って水や大気よりも水中堆積物や土壤中に多く分布するが、近年はディーゼル排ガスに由来する粒子状物質から検出されて、特に大都市では非特定汚染源として問題となっている。PAHsは分子量が増すにつれ急性毒性が減少する代わりに、発がん性は増大する⁹⁾ことが知られている。PAHsはその由来として石油以外にも、火事など建築物の燃焼や森林火災などに伴う煙中¹⁰⁾のほか、微量ながら強熱した食品中¹¹⁾などにも含まれ、食品加工に伴って発生する発がん物質としても注目されている。その一種ベンゾ[a]ピレン（以下 BaP）は通常環境中ばかりでなく、過熱を受けたタンパク質などの食品中からも見出されており、強力な発がん性を有し、タバコの煙に含まれる発がん物質としても知られている¹²⁾。しかし生物に対して有害性を有する化学物質の中では、単位重量当たりの毒性がより高いダイオキシン類やPCBなどに注目が集まり、PAHsはまだそれほど注目されているとはいえない。

アメリカ環境保護庁（USEPA）は主要な16種 PAHsを環境中の監視対象化合物としてリストし、またEUでも例えばスラッジ乾燥物を土壤改良剤¹³⁾として使用する際の許容量が6 mg/kgに規制されており、欧米ではかなり早い時期から研究や法整備が行われてきている。PAHsはその化学的特性上から反応性に乏しく、微生物によっても難分解性であるので、環境中に長く残留する特徴をもつ。しかも土壤などに物理化学的に吸着し、陸上だけでなく海洋・河川の底泥にも堆積物として蓄積する。燃焼によって発生したPAHsの多くは、微粒子と結合して大気中に浮遊後、地表に降下する。これらのうち、舗装道路（東京都23区では全面積の26%）および建造物の屋根（同じく27%）に沈降したものは雨天時には洗い流され、その多くは下水処理場を経て、最終的には河川・海洋などの水圏環境中に流入する。なおこれは、土壤に吸収されないPAHsの割合を推測するために、「東京の土地利用（平成18年東京都区部）」¹⁴⁾のデータを一例として引用したものであり、正確な割合を算出するのはかなり困難である。

首都圏のある自治体には十数か所以上の下水処理場があり、近年は合計で十数億 m³余の汚水を処理している。今回の研究で対象とした処理場はその内の一つで、年間約2.5億 m³を、経済活動の盛んな中心部の10市区町村から汚水を集めて処理している。この処理場は戦前の開設当初からのA系列（以下、A系）に加え、戦後の高度成長期にB系列（以下、B系）を増設拡張しているが、両系列は独立して一連の処理をしており、流入口、放流口とも別位置にある。同処理場は雨水合流方式であり、通常は最大処理能力の40～60%程度の汚水を処理しているが、雨天時には全流入量を処理することができなくな

る。このような場合には沈砂池+最初沈殿池で固形物を分離した後、臭素系薬品（プロモ・クロロジメチルヒダントイン）で消毒して直接隣接する公共水域に放流するが、このような簡易処理は平均して年間60日ほど行われている。本研究で試料を収集したB系に流入する下水は主に、鉄道駅周辺の超高層オフィスビル群および一般住宅群からなる地区からのものであり、同地域内にかつて多かった中小の製造工場は現在では少くなっている。

簡易放流時には汚水中の有機汚濁物質が全量公共水域に進入するので、これを軽減するために同処理場では高速ろ過施設を建設し、数年前から実機による試験運転を行ってきている。この施設は流入下水を上向流式ろ過池に通水し、空隙率が高く内部にも多数の突起をもつサイコロ状の浮上性ろ材で浮遊性物質（以下、SS）を捕捉除去しようとするものである。これだと砂ろ過のように表面だけのろ過と違い、ろ過装置のほぼ全層にわたってSSが捕捉可能とされている。晴天時には最大ろ過速度が400m³/m²/日、また雨天時には凝集剤を併用することにより最大1,000m³/m²/日の高速ろ過ができる。これにより簡易放流水中のSSを70～90%程度を低減させ、その結果BODの60～75%を除去できるので、合流式下水処理場の雨天時水質改善に有用とされる実機システムである。

同処理場の曝気槽から引抜かれた余剰汚泥は隣接する別の下水処理場（以下、隣接処理場）を経由してスラッジ処理専門のプラント（以下、スラッジプラント）へ圧送され、隣接処理場からの余剰汚泥と区別することなく一括して処理されている。ただしスラッジプラントで脱水された返水はすべて隣接処理場へ送られており、今回研究対象とした処理場には戻されていない。これら2か所の処理場内、およびスラッジプラントを含めた3施設相互間における、設備の概要と物質の流れをFig. 1にまとめた。

首都圏の水圏に流入した汚染物質の最終到着地点となる東京湾は南北に細長い閉鎖性水域であり、最南端の開口部は8 km 足らずと狭く外洋海水との交換に極めて長い時間を要する。この海域は歴史的にも江戸前の漁場として沿岸住民に貴重な動物タンパク質を供給してきたが、近年の汚染進行に伴って食品安全性の観点から様々な問題が提起されて来ている。そこで本研究ではB系からサンプリングし、大気中から水圏に移行したPAHsが自治体の下水処理工程でどのような消長を示すか、また余剰汚泥と共に水圏からどの程度引抜き除去されるのかを試算したので、以下に報告する。

Fig. 1 Location map of eight sampling sites in a city sewage treatment center and a sludge plant located in the metropolitan area. Numbers in circle indicate the place where we collected samples (All these numbers correspond to sample numbers listed in the text.)

2. 実験方法

2. 1 下水処理場およびスラッジプラントで収集した試料

本研究は2002年から2004年の3年度にわたって実施したが、B系はA系と同じく雨水合流方式であるために、当日および前日の降雨量によっては路上に堆積した大気粉塵などが短時間で流入するなど、流入下水の水質に影響を受けやすい。そこで降雨条件がほぼ同じであった日のうちから、1) 晴天が10日間以上連続した晴天試料、

および2) 暦日当たりでまとまった降水量(50~85mm/day)が記録された翌日の雨天試料を、いずれもB系からサンプリングした。処理工程における各成分の消長を調べるために、以下に①~④で示す通りB系内の4か所で採水した。①流入水：沈砂池で採水、②曝気槽水：通過に6~8時間かかる一連の反応槽のほぼ中間地点で採水、③塩素処理前水：最終沈殿池を出て塩素接触槽に入る中間地点で採水、および④放流水：塩素接触槽を出て隣接する公共水域への放流口に至る中間地点で採

水。なお各年度で晴天試料および雨天試料を採取した日付は次の通りである。2002年6月4日（晴天試料）、同年7月11日（雨天試料）、2003年5月14日（晴天試料）、同年9月22日（雨天試料）、2004年6月18日（晴天試料）、同年9月28日（雨天試料）。

一方処理工程で余剰となった引抜き汚泥中のPAHsの挙動を調べるため、スラッジプラントでは以下に⑤～⑧で示す4種の試料を、いずれも2003年6月と2004年7月の2回採取した。⑤重力濃縮槽返水：重力濃縮槽を出て遠心脱水機へ送られる途中にあるベルトプレス脱水機での絞り水で、隣接処理場へ返送される、⑥遠心濃縮機分離液：スラッジとするために凝固剤を添加するが、混練前に高速遠心分離機で絞られた水で、隣接処理場へ返送される、⑦スラッジ：遠心濃縮後の脱水物で、焼却炉へ送る直前の高分子系凝固剤を添加混練した固体、および⑧スラッジ焼却灰：焼却炉を出て最終処分場へ送る直前の粉末。なおこれらのサンプリング位置は、Fig. 1の中に①～⑧で示した。

2. 2 収集試料からの HPLC 分析用検液の調製

2. 2. 1 PAHs 抽出に必要なブルーレイヨン (BR) 量の検討

BRは銅フタロシアニン環誘導体を担体である非晶性レイヨン繊維に共有結合させたもので、多環芳香族を特異的に吸着する特性を持つので、水中からのこれらの化合物の分離によく用いられる。抽出試料調製に先立ち、まず実試料を用いてBRの必要量を確認した。すなわち最も汚染物質濃度が高いと思われた乾季の下水流入水1ℓに対して、0.05、0.10、0.25、0.50、0.75、1.00gのBRをナイロンネットに入れてビーカー中に懸垂し、5℃の低温室内で48時間回転攪拌した。これを水洗、水絞り後、メタノール (MeOH) / アンモニア水 (50 : 1, v/v) 30mlで4回、合計120mlを用いて抽出した。溶媒をロータリーエバポレータで濃縮後、スピッツ管内を用い乾燥窒素の穏やかな気流下で乾固した。これをMeOH 4mlに溶解し、260nmでの吸光度をPAHsの総吸着量とし、下水試料からPAHsを吸着するのに必要な量を検討した。

2. 2. 2 溶媒抽出法による検液の調製

BRでは吸着しきれない化合物も捕捉する目的で、処理場内で採取した液体試料の①～⑥についてはまず各試料液5ℓをろ紙 (Toyo No.2) とプフナーロートを用いてろ過した。これをロータリーエバポレータ (水浴温度15～20℃) で約50mlに濃縮し、分液ロートを用いて約100mlのジクロロメタン (以下、DCM) で3回抽出 (以下、ろ液試料) した。一方、ろ過残渣はFig. 2の中央列におよその流れを示したように、ろ紙ごと室温で風乾後細切し、約50mlのMeOHと共にデュランびん内で20分

間往復振盪抽出し、デカンテーションで溶媒を回収する操作を3回行った。続いてMeOH抽出後の残渣にさらに50mlのDCMを加えて、同様に3回抽出を繰り返した。いずれの抽出試料も減圧下 (ロータリーエバポレータ、水浴温度25℃) で溶媒を留去し、最後はスピッツ管に移し替えて、乾燥窒素ガスの穏やかな気流下で乾固後、MeOHで5mlに定容 (以下それぞれ「残渣 MeOH 試料」および「残渣 DCM 試料」) し、これらをHPLC分析に供した。

スラッジプラントから収集した4種試料のうち、液体の⑤と⑥からはろ液試料のほかに、Fig. 2の中央に概要を示した通り、それぞれ残渣 MeOH 試料および残渣 DCM 試料を調製した。またほとんど流動性の無い⑦スラッジからはFig. 2の右列に概略を示したように、液体試料の①～⑥のろ過残渣と同様にまず約1.5倍のMeOHを加えて抽出、その残渣にさらにDCMを加えて同様に抽出した。これらを減圧下および乾燥窒素ガス気流下で濃縮乾固後、それぞれをMeOHで5mlに定容し、MeOHおよびDCM試料の2種検液を調製した。⑧焼却灰にも約1.5倍重量のMeOHを加えて振盪後、超音波処理を行い、遠心分離して抽出液を調製した。沈殿物には等量のDCMを加えてさらに抽出した。

2. 3 PAHs 標準品混合物の調製

本研究ではTable 1の一覧表に示したとおり、アメリカ環境保護庁 (USEPA) が水圏汚染物質として監視リストに挙げているPAHs16種を測定対象とした。これらの市販標準品 (いずれも和光純薬工業) をMeOHで溶解し個別に定容した後、それらを混合してTable 1に示す濃度の混合標準溶液を調製した。

2. 4 HPLC 分析

カラムにはWakosil-PAHs (4.6mm×250mm) を用いた。注入はレオダイナマニアルインジェクタを用い注入量は20μℓ (固定ループ使用)、移動相の送液速度は1.0ml/minで、MeOH : アセトニトリル : 水をTable 2に示した濃度勾配に従って送液し、254nmで検出した。分析には島津LC-9Aポンプ (低圧混合装置とヘリウムデガッサ付) と紫外部検出器SPD-6AおよびデータプロセッサはC-R6Aを用いてリニアグラジエント溶出を行った。同定には実試料のピークに対して最も保持時間 (RT) の近い標準化合物を添加し、添加後のピークRTの変化が±3%以内の場合、添加した化合物のピークであると判定した。化合物番号9～12の溶出する付近 (RT, 10.5～13.0分) には共存する汚染物質によりベースラインにドリフトが見られた。そこで、データプロセッサ上でドリフト処理を行い、11番の直前に現れる未同定のピークは、リーディング処理と垂直分割処理を併

Fig. 2 Flow chart for sample preparation. Influent sewage water, aerating tank water, final discharged water, and withdrawn surplus activated sludge, were obtained from the city sewage plants, and incinerated ash of the sludge was obtained from sludge plants in the same area

用し、11番に含まれないように処理した。すべての検体について HPLC 分析を 2 回繰り返して測定し、二つのデータの相対誤差が 3 % 未満であった場合には両者の平均値を採用し、それ以上であった場合にはさらに 1~2 回の追加分析を行い、疑わしい値を検定により除去し、残ったデータの平均値を最終データとした。多数ある分析クロマトグラムのうち、最も多くのピークを示した例

を、標準品 16 種の混合物のクロマトグラムの上に重ねて、1 枚の図として Fig. 3 に示した。

2. 5 スラッジと焼却灰の灰分量測定

スラッジ約 2 g を精秤し、るつぼの底部から内側に薬匙で薄く広げるようにして塗布した。電気式マッフル炉内に 100℃ で 2~3 時間保持し、スラッジ内の水分を

Table 1 Composition of standard mixture of 16 authentic PAHs for HPLC analysis

PAHs	(mg/ml)	PAHs	(mg/ml)
1. naphthalene	0.070	9. benz[<i>a</i>]anthracene	0.010
2. acenaphthylene	0.100	10. chrysene	0.010
3. acenaphthene	0.100	11. benzo[<i>b</i>]fluoranthene	0.010
4. fluorene	0.014	12. benzo[<i>k</i>]fluoranthene	0.010
5. phenanthrene	0.006	13. benzo[<i>a</i>]pyrene	0.010
6. anthracene	0.002	14. dibenz[<i>ah</i>]anthracene	0.020
7. fluoranthene	0.014	15. benzo[<i>ghi</i>]perylene	0.014
8. pyrene	0.016	16. indeno[1,2,3- <i>cd</i>]pyrene	0.006

Table 2 Linear gradient elution program of HPLC for separation of 16 PAHs using Wakosil-PAHs column (4.6 x 20 cm) and three mobile phases (%)

min	CH ₃ OH	CH ₃ CN	H ₂ O
0~4	72	10	18
4~7	72→0	10→100	18→0
7~25	0	100	0
25~50	72	10	18

Table 3 Comparison of total absorbed compounds with a different amount of Blue Rayon, specific absorbent for PAHs, measured by absorbance at 260nm from influent water to the city sewage treatment center

BR (g/l)	0.05	0.10	0.25	0.50	0.75	1.00
Abs ₂₆₀	0.495	0.583	0.571	0.574	0.573	0.571

徐々に蒸発させた。次に900℃でおよそ12時間保持して完全灰化後、デシケーター内で放冷し室温で秤量した。その後900℃で2時間加熱～放冷～秤量する操作を恒量(±0.2mg)に達するまで繰り返し、灰分量を求めた。

3. 結果

3. 1 下水試料からの PAHs 抽出に必要な BR 量の検討と実試料からの分析試料の調製

懸垂攪拌する BR 量を0.05～1.00g の6段階に変えて、流入下水から抽出できる紫外外部吸収物質の総量を比べたところ、Table 3 に示した通り0.10g/l の BR で十分であり、それ以上 BR の量を増やしても、抽出量は増えないことを確かめた。そこで以後、各液体試料①～④からの

Fig. 3 Chromatograms of 16 authentic PAHs mixture (lower) and of typical sewage water sample (upper) prepared by DCM, carried out with linear gradient elution program shown in Table 2. One analysis takes 60 min including washing and equilibrium for the next injection. Numbers indicated on the top of each peak show one of 16 authentic PAHs listed in Table 1

Fig. 4 Difference of the PAHs concentration in sewage water by four different extracting methods

*Abbreviated explanatory notes given in the figure indicate the samples prepared as follows.

BR; PAHs extracted by Blue Rayon (0.5 g) packed in nylon net and suspended in 5 l of sample water with rotation for 48 hours, Filtrate; PAHs extracted with dichloromethane from filtered sample water, MeOH; PAHs extracted with methanol from filtration residue on the filter paper, DCM; PAHs extracted with dichloromethane from filtration residue on the filter paper, which was already extracted with methanol.

BR抽出には、すべて試料水5ℓについてBR 0.5gをネットに入れて懸垂攪拌させた後、2. 2. 1に述べた方法でPAHsを抽出し、HPLC分析用の試料（以下、BR吸着試料）を調製した。

3. 2 PAHs抽出法としてのBR法と液々抽出法の比較

まずPAHsの抽出に適している方法を検討するために、ここでは2002年6月4日（晴）に処理場内の4か所で採取した試料水を、BR法と液々抽出法で処理した。その結果をFig. 4に示す。

BR吸着試料中のPAHs合計量は、同一試料からであるにも拘らず、液々抽出法で得られたる液試料、残渣MeOH試料、および残渣DCM試料のそれと比べて極めて僅かであり、また検出されたPAHsの種類も少なかった。この結果から、BR吸着法によって下水試料の経年変化や気象条件、場内における処理工程の違いによるPAHsの変動を調べる本研究には不向きであると判断されたので、以下の実験ではすべて液々抽出法を用いることにした。

3. 3 下水処理の各工程中のPAHs濃度

3. 3. 1 試料採取日前後の処理場の運転状況

下水処理場では流入水量、水温、高次処理水量、沈殿

処理水量、放流水量、簡易放水量、曝気槽の各タンクにおける溶存酸素量および活性汚泥浮遊物質量などを1時間ごとに記録している。これらのうちから2002年と2003年にわれわれが試料を採取した当日（および雨天日についてはその前日）のデータを開示してもらったのでTable 4にまとめて示す。各項目の上段は1時間ごとのデータの平均値であり、下段はそれらのうちの最小値と最大値を表している。例えば2002年7月10日の1日当たり合計簡易放水量は40,896m³（=1,704m³×24hr）なのに1時間当たりの最大簡易放水量が15,100m³と著しく多く、翌11日のデータとも併せてみると、10日の夜から採水当日の未明にかけて激しい雨が降ったことが分かる。

3. 3. 2 流入水中のPAHsの種類と濃度

2002～2004年にかけての晴天および雨天日に採水した流入水から、溶媒抽出法により捕集したPAHsを抽出法別にHPLC分析し、検出されたPAHsの個別の量および総量を比較できるように積算棒グラフでFig. 5に示した。これら6検体の流入水中の、PAHs合計濃度は0.148～0.503 μg/lだった。また、採取年によって流入水中のPAHs濃度に差がみられたが、PAHs総量の低かった2003年は晴天雨天による違いが少なかったが、晴天日試料で総量が多くなる2002年、2004年の順に天候による総量の

Table 4 Several sewage treatment parameters on the days we sampled the water at the city sewage treatment center

sewage treatment parameters	ave (min-max)	2002			2003		
		fine day	rainy day		fine day	rainy day	
		6/4	7/10	7/11	5/14	9/21	9/22
temperature of influent water	°C	23.3 (22.7~23.9)	25.4 (24.2~25.9)	24.0 (23.5~24.8)	22.0 (21.8~22.2)	20.1 (18.9~22.9)	22.1 (19.8~23.7)
influent water	m ³ /hr	3703 (594~4,543)	8,773 (4,114~25,958)	8,344 (4,441~22292)	3,330 (273~4,446)	14,384 (7,211~20,714)	4,826 (3,318~9,864)
secondary (regularly)							
treated water	m ³ /hr	3570 (1,430~4290)	6,656 (3,590~11,310)	6,940 (3,870~10,680)	3,431 (1,410~4,460)	8,680 (6,340~9,750)	4,593 (3,270~9,660)
discharged water (total)	m ³ /hr	3225 (200~4,100)	8,279 (3,600~25,400)	7,846 (4,000~21,700)	3,013 (700~4,200)	13,996 (6,800~20,300)	4,475 (2,900~9,500)
primarily treated water	m ³ /hr	0	1704 (0~15100)	921 (0~11,100)	0	5,363 (0~11,300)	0
dissolved oxygen in aeration tank #2-D	mg/ ℓ	2.9 (2.6~3.2)	2.9 (2.5~3.4)	4.5 (2.6~6.4)	2.4 (1.9~2.8)	7.4 (2.8~9.2)	7.0 (2.8~9.7)
MLSS in aeration tank #2-D	mg/ ℓ	1,447 (1,381~1,578)	1,269 (987~1,471)	1,125 (962~1,318)	1,430 (1,334~1,571)	871 (768~984)	1,112 (806~1,262)
water from sedimentation tank	m ³ /hr	3,740 (627~4,575)	8,829 (4,158~26,102)	8,407 (4,488~22,418)	3,409 (328~4,597)	14,466 (7,276~20,826)	4,914 (3,358~9,905)

The value described in the upper row is a record every one hour and that in the lower row, shown in parentheses, is the lowest and the highest values on that day. The total amount of that day is obtained when averaged value is multiplied by 24.

Fig. 5 Concentration of individual PAHs detected in influent water to the city sewage treatment center on sunny and rainy days in 2002~2004

差は大きくなっていた。またフルオランテン、ピレン、クリセン、ベンゾ[b]フルオランテンなどのPAHsが量的に多く、かつ6検体の流入水のうち4検体以上から検出された。

3. 3. 3 曝気槽水中のPAHsの種類と濃度

曝気槽水試料のPAHs合計濃度はFig. 6に示したように0.50~0.395 $\mu\text{g}/\ell$ で、測定した4つの処理工程中で最も高かった。また2002~2004年のいずれの場合でも雨天のPAHs濃度は、晴天時の1/2~1/3に希釈されていることがわかった。個別のPAHsの分布について見ると、ピレン、クリセン、ベンゾ[b]フルオランテンなどのPAHsが多く検出された。

3. 3. 4 放流水中のPAHsの種類と濃度

放流水中のPAHs濃度をFig. 7に示した。放流水試料中の合計濃度は0.001~0.003 $\mu\text{g}/\ell$ で、2004年試料では検出限界以下であった。検出されたPAHsもその多くが検出限界前後であり、その種類に一定の傾向は見出されなかった。なお、塩素処理直前水と放流水との違いは塩素処理の有無のみであり、結果的にPAHs濃度に顕著な差は見られなかったもので、報告からは割愛した。

3. 4 下水処理水中のPAHs総量の試算

3. 4. 1 降雨による処理水量の変動と下水流入水および放流水中のPAHs総量の試算

下水を採取する直前24時間のB系への流入水、二次処理水（通常処理水）、簡易放流水、放流水（合計）、および降雨による増加割合の別に整理してTable 5に示した。またTable 6には採取した下水試料中のPAHsの合計濃度（ $\mu\text{g}/\ell$ ）を、流入水、曝気槽水、および放流水別にまとめて示した。採取日当日における各処理水中の24時間当たり推定PAHs総量は、この表にまとめた各採水地点での濃度に処理量を乗じて試算されるが、Table 7に示した通り2002年6月（晴天）は36.77gが流入し、放流水中で0.27gであった。一方、同年7月（雨天）の場合は同様に流入水中で約81.63g、放流水中に0.19gの他に、簡易放流水中に19.28gと試算された。

簡易放流は激しい降雨などによって処理能力を超える量の流入があった場合に、流入下水の一部に対して消毒のための薬品処理を行ったのみで、沈砂池+最初沈殿池から直接河川に放流するもので、この下水処理場の場合年間に60日ほど実施されている。この場合には曝気槽の活性汚泥処理のように、積極的な有機汚濁除去をせずに隣接する公共水域に放流されることから、簡易放流水

Fig. 6 Amount of individual PAHs detected in aerating tank water of the city sewage treatment center on sunny and rainy days in 2002~2004

Fig. 7 Amount of individual PAHs detected in final effluent water of the city sewage treatment center on sunny and rainy days in 2002~2004

中の PAHs 量算出には流入水中の PAHs 濃度を適用し、Table 7 に一括して示した。

3. 4. 2 B 系の曝気槽内に滞留する PAHs 総量の試算

曝気槽水は任意の時刻に滞留している水の総水量が、曝気槽の容積を越えることはなくほぼ一定であることから、測定した曝気槽内の PAHs 濃度に曝気槽の24時間当たり通過水量を乗じて求められる値は、下水処理場における PAHs 物質収支を考える上ではあまり意味を持たない。しかし試料水を採取した時刻において曝気槽内に滞留している PAHs の総量は、その平均的濃度に槽全体の容積を乗じて求めることが可能である。そこで試料水の採取は、活性汚泥による資化によって曝気槽内で PAHs が徐々に低減した場合のことを考慮し、その時には入り口側と出口側の平均的な数値が得られることを期待して、曝気槽内のちょうど中間地点に位置するタンクから行った。

B 系曝気槽の総容量は39,300m³であり、これに曝気槽水試料中の PAHs 濃度を掛けて試算したところ晴天日では60.7~72.7g となり、流入水量が通常の2倍を超えていた2002~2004年の雨天日では2倍以上希釈されて19.5~33.8g になっていた。つまり平常運転をしている晴天日には、再利用のために最終沈殿池で回収・返戻された活性汚泥に吸着されている PAHs と、新たな流入水と共

に槽内に加わった PAHs とを合わせて、少なくとも数十g 以上が曝気槽内全体に常時滞留しているものと推定された。

3. 5 B 系最終沈殿池からの返送および余剰汚泥中の PAHs 濃度の試算

下水処理工程中における曝気槽での活性汚泥処理は、微生物のエネルギー源として資化することによって、通常の流入水中に含まれる有機物の大半を除去している。一方で PAHs のような難分解性有害物質に対しては資化分解よりも、微生物群と浮遊性汚濁物 (SS) が混合して形成したフロックが、それらの吸着除去に大きな役割を担っていると考えられる。このフロックは最終沈殿池で沈殿分離され、一般的に余剰汚泥の発生量は $Q_w \times X_w = (a \times C_{S-BOD} + b \times C_{SS}) \times Q_{in} - c \times X \times V$ 式によって計算される⁹⁾が、同処理場によれば、B 系では通常運転時には平均して1日に4.7~5.3%の割合で活性汚泥が増加しているとのことであった。すなわち沈殿汚泥 (52,500m³/日) のうち約95%は種汚泥 (50,000m³/日) として曝気槽に返送再利用されるが、増加した約2,500m³は余剰汚泥として引抜かれ、スラッジプラントへ圧送・処理されていることになる。

ここでB系の各工程におけるSS濃度を調べてみると、

Table 5 Amount of influent water, discharged waters treated secondary (regularly) or primarily, total final effluent water, and multiplying power of increase after rainfall (times) on one day, in 24 hours preceding our water sampling (cubic meter/24 hr), and the rate of primary treatment water (times) at the the city sewage treatment center

year	date of sampling weather	influent water	secondary (regularly) treated water (a)	primarily treated water (b)	discharged water (total) (c)* ⁴	rate of primary treatment water (b/c, %)
2002	06/04-fine* ¹	93,077	88,500	N/A* ³	81,100	0
	07/11-rainy* ²	266,758	192,810	63,000	254,400	24.8
	multiplying power after rain (times)	2.87	2.18	—	3.14	—
2003	05/14-fine	74,400	77,530	N/A	66,800	0
	09/22-rainy	242,963	170,700	66,300	234,600	28.3
	multiplying power after rain (times)	3.27	2.20	—	3.51	—
2004	06/18-fine	97,159	96,147	N/A	88,400	0
	09/28-rainy	185,270	161,292	23,200	153,100	15.2
	multiplying power after rain (times)	1.91	1.68	—	1.73	—

*¹ No rain was recorded on this day and 7 successive days before sampling.

*² Samples were corrected on the first rainy day after more than 7 successive fine days.

*³ N/A: Primary treatment was carried out only on rainy days.

*⁴ The total amount of final effluent water(c) was not exactly the same as the sum of discharged waters treated secondary (regularly) (a) or primarily (b), due to time lags which occurred both through the transfer between tanks and through biological, physical, and chemical reactions in each piece of equipment.

Table 6 Concentration of total PAHs in influent water, aerating tank water, and final effluent water determined by HPLC, on sunny and rainy days in 2002~2004, at the city sewage treatment center ($\mu\text{g}/\ell$)

year	date of sampling — weather	influent water	aerating tank water	final effluent water
2002	06/04-fine* ¹	0.395	1.850	0.003
	07/11-rainy* ²	0.306	0.728	0.001
2003	05/14-fine	0.185	1.694	0.002
	09/22-rainy	0.193	0.859	0.003
2004	06/18-fine	0.160	1.544	-* ³
	09/28-rainy	0.148	0.495	-

*¹ No rain was recorded on this day and 7 successive days before sampling.

*² Samples were collected on the first rainy day after more than 7 successive fine days.

*³ - : Each compound was below detection limit.

Table 7 Estimated amount of total PAHs (g/24hrs) in influent water, final effluent waters with secondary or primary treatments, discharged water (total), and the rate of PAHs removed from influent water (%) on sunny and rainy days in 2002~2004 at the city sewage treatment center

year	date of sampling - weather	influent water (a)	water with		discharged water (total) (b+c)	rate of PAHs removed [a-(b+c)]/a, (%)
			secondary treatment (b)	primary treatment (c)*3		
2002	06/04-fine*1	36.77	0.27	0	0.27	99.3
	07/11-rainy*2	81.63	0.19	19.28	19.47	76.1
2003	05/14-fine	13.76	0.16	0	0.16	98.8
	09/22-rainy	46.89	0.51	12.80	13.31	71.6
2004	06/18-fine	20.21	0	0	0	100.0
	09/28-rainy	27.42	0	3.43	3.43	87.5

*1 No rain was recorded on this day and 7 successive days before sampling.

*2 Samples were collected on the first rainy day after more than 7 successive fine days.

*3 Total PAHs amount (g) per 24 hours in primary treated water was estimated by the concentration of total PAHs in influent water multiplied by the volume of primarily treated water.

曝気槽中では1,400~1,500mg/lであったのに対して、放流水中のSSは1桁台にまで低下していた。この両者の差から、曝気槽中の活性汚泥などの懸濁物質の約99.8%は、最終沈殿池において沈殿しているものと判断された。つまり上記(3.4.2)で述べたように、曝気槽内に常時滞留するPAHs総量(60.7~72.7g)の99%までが返送汚泥とともに曝気槽入口側に戻され、そのうちの5%(3.0~3.6g)が引抜かれてプラントに圧送されていることになる。下水は通常、曝気槽内での処理を5~6時間で終えることから、丸1日の間には少なくともこの数倍以上のPAHs(15~20g)が下水処理の工程から引抜かれていると試算される。しかしこれだけでは24時間の間に流入水によって、B系に持ち込まれたPAHs総量の1/4程度しか説明できない。本研究と時を同じくして導入した高速ろ過装置も当初の2~3年は常時運転を行っていたわけではないので、これによる減少が反映されていたとは考えにくい。また数回のサンプリングにおいて、曝気槽内に滞留するPAHs総量が大きく変化していないことを考慮すれば、残りの部分は流入水を採取した沈砂池と曝気槽水を採取した活性汚泥処理の中間にある最初沈殿池内で、沈殿物とともに引抜かれて除去されたか、または活性汚泥槽内で微生物により徐々に資化分解されているものと推定された。

3.6 スラッジプラントにおけるPAHsの消長

3.6.1 返水試料に含まれる残滓の乾燥重量(固形分量)

約5℃の低温乾燥室内での非加熱風乾で恒量を求めた

ところ、重力濃縮槽返水では80.2±0.4g/l、遠心脱水機分離返水では356.6±0.9g/lであった。この重力濃縮槽の返水中に含まれる残滓重量は、別途調べた下水流入水のそれとほぼ等しかった。

3.6.2 返水中のPAHs濃度

研究対象とした処理場から隣接処理場を経由してスラッジプラントへパイプで圧送された余剰引抜き汚泥は、同プラント内で濃縮後、高分子凝集剤を加えて遠心脱水されるが、ここで絞られた水は隣接処理場へ返戻される。この返水におけるPAHsの分布を、ろ液試料、残渣MeOH試料、および残渣DCM試料のそれぞれについてHPLC分析したが、ここではそれらの3種試料のデータを積算してFig.8にまとめた。重力濃縮槽返水中のPAHs総量は2003年と2004年とも約0.3μg/lでそれほど違いがなかった。しかし、遠心脱水機分離返水のPAHs総量は約0.24~0.55μg/lで、2004年の試料では前年の約半分以下であった。

重力濃縮槽返水および遠心脱水機分離返水からは、測定対象とした16種PAHsのうち14種が検出されたが、量的に多かったものとしてはナフタレン、アセナフテン、フルオランテン、ベンズ(a)アントラセン、ベンゾ(a)ピレンなどが挙げられる。しかし同じ日に採取した重力濃縮槽分離返水と遠心脱水機分離返水を比べても、PAHsの種類と濃度に特定の傾向は見られなかった。また採取年の異なる重力濃縮槽分離返水同士、および採取年の異なる遠心脱水機分離返水を比較しても、採取場所に共通する分布割合は見出せなかった。しかし一般に汚泥濃縮

Fig. 8 Amount of individual PAHs detected in squeezed water from the gravity thickener and the centrifugal thickener of the sludge treatment center on specified day in 2003 and 2004 ($\mu\text{g}/\ell$)

槽又は汚泥脱水機からの返水は有機物を多く含み分析を妨害する成分も多いと考えられるので、本研究で用いた有機溶媒抽出による試料調製法の他に、適切な前処理カラムを用いて PAHs のみを精製したのちに HPLC 分析することが今後必要かもしれない。

3. 6. 3 スラッジ中の PAHs 量

最終的に遠心脱水分離機で水絞りされた後のスラッジは水分が約75%で、生汚泥に比べると体積ではおよそ1/40程度に圧縮されていた。これは非常に粘稠性の高い固体試料であるため、MeOH および DCM の2種の抽出液試料を個別に HPLC 分析し、得られた結果を積算して Fig.9 にまとめた。量的に多い PAHs としてはアセナフテン、フルオランテン、ピレンなどが挙げられ、アセナフテン、フルオランテンは返水中でも多かった点で共通していた。スラッジ中の総 PAHs 濃度は2003年に採取した試料で0.56mg/kg、2004年採取のもので0.88mg/kg と、前年比の約1.5倍であった。僅か2組のデータなので確かなこととは言えないが、返水中の PAHs 総量が多い場合は脱水後におけるスラッジ中への移行量が低く、逆に返水中の PAHs 総量が少ない場合にはスラッジ中への移行量が多くなる傾向があるのではないかと考えられた。これについては今後さらに、試料を増やして継続調査する必要がある。なお研究対象とした下水処理場よりスラッジプラントまで圧送された余剰汚泥は、濃縮層を経て消化槽内で半月以上かけて発酵する。その後重力遠心分

離機および遠心分離濃縮機によって、下水処理場への返水とスラッジに分けられ、最終的には燃焼処分されるが、この一連の工程を経るには Table 8 にまとめたように、およそ3週間を要する。つまり今日採取したスラッジの元になっている余剰汚泥は、約3週間前に同処理場から送り出されたものであるため、両者のデータを相互に関連付けるのはかなり難しいことが分かった。

3. 6. 4 スラッジ焼却灰中の PAHs 量

脱水後のスラッジは減容を主な目的として最終的に800~850℃前後の焼却炉内で焼却処分されるが、スラッジ2gから得られた焼却灰は6検体の平均で0.120g±0.0161gであった。この結果からスラッジの固形分重量は5.2~6.8%となり、重量比で焼却前の約1/17、体積比では約1/45程度にまで圧縮されていることが分かった。

焼却灰からの MeOH および DCM 両抽出液を個別に HPLC 分析し、得られた結果を合わせて Fig.10 にまとめた。焼却灰抽出液中から検出された PAHs は数種類以下で、その合計量も0.015mg/kgと少なかった。2004年の場合にはスラッジと比べると、重量比で PAHs の98.5%程度が焼却中に分解除去されているものと思われたが、実際には完全に二酸化炭素と水にまで分解されているかどうかの確認は本研究では行っていないため、排ガスを経て一部の PAHs が大気環境中に散逸している可能性については今後の検討が必要であろう。いずれにせよ同プラ

Fig. 9 Amount of individual PAHs extracted from sludge discharged from the centrifugal thickener of the city sludge treatment center on specified day in 2003 and 2004

Table 8 Maximum residence time of surplus sludge at each process

	processing time (h)	cumulative time (day)
Transfer from the city sewage plant to the sludge plant	1.5	0.1
Concentration tank	12.9	0.6
Digestion tank	444.0	19.1
Gravity thickener	9.5	19.5
Centrifugal thickener	1.1	19.6
Incinerator	16.8	20.2

ントで発生する1日当たり焼却灰重量が最大50トンであることから、最終処分場には連日1g前後のPAHsが搬入されているものと推定された。

4. 考察

BRは河川水や海水など、希薄な水溶液中に分布している多環芳香族化合物を吸着するのに優れた吸着剤とされ、環境水中の変異原性物質の評価などに広く用いられてきている。特に長時間にわたって環境水中に放置しても、その吸着容量以内であれば特段の支障を来さないことから、低濃度に分布する化合物の捕捉に有効とされて

きた。今回は最も汚染物質濃度が高かったと思われる流入水にBRを適用し、試料水1ℓ当たり0.10gで十分であることを確かめた上で、2002～2004年の晴天日および雨天日に採取した流入水、曝気槽水、放流直前塩素処理水、放流水にこれを適用した。この方法で得られた試料水中のPAHs量を、溶媒抽出法により得られた試料と比較したところ、同一試料中であるにも拘らずBR吸着試料からは、PAHsが有機溶媒抽出試料の数%程度しか検出されず、また検出されたPAHsの種類も著しく少なかった。このためBR吸着試料を用いて下水試料採取年、気象条件、処理工程の違いなどへの影響を推測することは困難だった。BRによる環境試料中からのPAHs吸着について

Fig. 10 Amount of individual PAHs extracted from incinerated sludge ash of the city sludge treatment center on specified day in 2003 and 2004

は、河川や海洋中の水流の強さと PAHs 濃度に依存するとの報告¹⁰⁾がある。今回はナイロンネットに収容した BR を錘と共に試料水中に吊り下げ、48時間激しく回転攪拌したので、BR 繊維内通過流量が不足していたとは考え難かった。むしろ下水中の PAHs の多くが懸濁物表面に吸着保持されており、その結果、BR に化学架橋された銅フタロシアン環と反応しにくかったために、検出量が低くなったのではないかと推測された。つまり、下水のように微細な懸濁物が多い試料水からの PAHs 抽出には、BR 懸垂法は適さないと思われる。

下水処理の各工程中の PAHs 濃度について考察する。まず流入水を見ると2002年および2004年の雨期試料では、同じ年の晴天日試料と比較して PAHs 濃度が低かったが、これは前日の降雨（2002年：54mm, 2004年：43mm）により希釈されて、流入したためと考えられた。これに対して2003年試料では、逆に晴天日の方が雨天日試料より僅かに低かった。この原因としては、晴天日試料を採取した日の5日前以降の降水記録を調べてみると、2003年の場合5日間の間に計6mmの降雨が記録されているのに対して、2002年および2004年では採取前5日間の降雨量が0mmであったことが影響していると推定された。個別の PAHs について見るとピレン、クリセン、フルオランテン、ベンズ[a]アントラセンなどが量的に多く、かつ6検体のうち3検体以上に共通してい

た。これらはいずれも4環からなる PAHs であった。我々が日本近海から南極海に至る表層海水中の PAHs を連続測定した未公表データではアセナフチレン、ナフタレン、ベンズ[a]アントラセンの3種が最も多くの区間で検出されたが、それらのうちでも特に2環のナフタレンは人口の多い地域に近い海域でかなり高濃度に分布しており、3環のアセナフチレンがそれに次いでいた。このことから公海上の海水のように汚染の程度が低い環境水と、都市下水ではその構成 PAHs の主要な種類が相当に異なることが分かった。雨水合流方式の下水道では、環境汚染物質が下水処理場に流入する割合は、降雨直後から数時間以内に最も高くなることが予想される。路上や屋根に沈降した PAHs などは降雨により洗い流されて一か所に集約されることから、合流方式の下水試料は、都市の大気中に放出された粉塵に含まれる汚染物質の実態調査にも適していると考えられた。

次に、曝気槽水試料の PAHs 濃度は晴天日試料が1.54～1.85 $\mu\text{g}/\ell$ で、調査年度を追って少しずつ低くなる傾向が見られた。雨天日試料では0.50～0.86 $\mu\text{g}/\ell$ で、同じ年の晴天日試料に比べておよそ半分程度であった。曝気槽水は処理工程から収集した4段階の試料中で最も高く、流入水の3倍以上高い値を示した。本研究の対象としたB系の曝気槽水総容量は39,300 m^3 であり、これに PAHs 濃度を掛けて得られる19.45～72.71gの値から、最終沈

殿池で回収された活性汚泥の再利用により、少なくとも数十 g 以上の PAHs が曝気槽内に汚泥とともに常時滞留していると推定された。ただし曝気槽をはじめとする下水の処理工程中で、一部の PAHs が空气中に揮散する可能性も考えられるが、今回の研究ではこの点は全く考慮に入れていないので、今後さらに検討する必要がある。汚水と活性汚泥を混合した場合、懸濁物やコロイド粒子が活性汚泥と凝集し、ごく短時間のうちに汚水からは、かなりの部分が除去される¹⁰⁾。しかし排水を栄養源として増加する活性汚泥量は全体の 5 % に過ぎず、最終沈殿池で分離された汚泥の 95 % は、そのまま曝気槽に返送されて再利用される。これが、全下水処理工程中で曝気槽水が最も高い PAHs 濃度を示す主要因である。これと似た消長を示す環境汚染物質の一つとして、ノニルフェノールは好気性汚泥処理槽で一旦濃度が上昇するが、放流水ではほとんど分解していたと報告¹²⁾されている。農業国であるフランスやスペインでは下水汚泥の農地への利用が盛んで、汚泥中に含有される PAHs についての知見も多いが、下水処理場内における PAHs の消長は気象条件により相当異なることが指摘¹³⁾されている。

これに対して高度処理後の放流水中 PAHs 濃度は、2002～2003年試料では約 0.001～0.003 $\mu\text{g}/\ell$ 、2004年試料ではいずれの PAHs も検出限界以下で、流入水の約 1/100 にまで減少していた。今回研究対象とした下水処理場では最も歴史の古い A 系に加えて、戦後の高度成長期に B 系を増設し、さらに余剰引抜き汚泥は全量を専門のスラッジ処理プラントに送泥する他、高度処理施設の導入など順次設備を拡張して処理能力の向上を図ってきている。また数年前には雨天時の合流改善施設として、高速ろ過設備を稼働した。放流水中の PAHs は調査を実施した 3 年間の間では、徐々に低下傾向を見せ 2004 年には検出限界を下回ったが、その原因がこの施設導入によるものか否かは、検証する材料を持ち合わせていないので明らかでない。いずれにしても、水環境中の PAHs 除去には下水処理場の工程が大きく貢献していることが、具体的な数値で示された。

しかし雨天日の高度処理能力を超える流入下水の一部に対して行っている簡易放流については、別途議論する必要がある。これは流入水量が処理能力を超える場合に、臭素系薬品（プロモ・クロロジメチルヒダントイン）で病原性細菌の消毒¹⁴⁾後に河川などに放流するものであり、曝気槽における通常の有機化合物除去工程を経ないため、放流先の水圏環境に対して流入水と同等の負荷を与える。試料採取時の直前の 24 時間における簡易放流量は Table 5 の通り 23,200～66,300 m^3 であるが、これは全放水量の約 15～30 % を占めていた。この中に含まれる PAHs はそれぞれ 3.4～19.5 g と試算され、晴天時には 98.8～100 % 除去されていた放流水中の PAHs も、雨

天時にはその除去率が 71.6～87.5 % 程度にまで減少することが明らかになった。これは比較的古い時代に先行して建設された、雨水合流方式下水処理場の持つ特性と言える。

国土交通省が 192 都市を対象に行った調査結果¹⁵⁾によれば、簡易放流を行った日数が 60 日以上処理場が全体の 2/3 を占めていたが、今回研究対象とした首都圏の自治体の場合この日数は平均して年間 60 日程度とされている。これに対して部分的ではあるが分流方式に改修を進めると並行して、より速やかな降雨対策に取り組んでいる。その一つとして数年前に、現存する合流方式施設の沈砂池 + 最初沈殿池を代替する高速ろ過施設を導入し、実機による試験研究も開始した。その概要は攪拌機付きのフロック形成池と、それに続く高速ろ過池から成っている。ろ過池内ではろ材層だけでなく、ろ材下部に生成する汚泥懸濁界面（スラッジブランケット）において、SS を上向流で捕捉・除去し、従来の沈砂池 + 最初沈殿池よりも高速で処理しようとしたものである。晴天時は最大ろ過速度 400 $\text{m}/\text{日}$ でそのまま処理を行い、降雨後に流入水量が増加した時点で凝集剤を注入して、強固なフロックを形成させて処理（最大 1,000 $\text{m}/\text{日}$ ）する。ろ材の洗浄は晴天時には 2～3 回/日、雨天時は 8 回程度流入水を用いて行っている。この方式では沈砂池 + 最初沈殿池内の水に消毒処理を施したのみで直接河川に放流する場合に比べて、流入水 SS 濃度は 120～340 mg/ℓ で変動が大きかったが、処理水 SS 濃度は約 10 mg/ℓ と一定値を示した。除去率は流入 SS が低い時には 60～80 % であったが、流入水 SS 濃度が高いときには 80 % 以上が除去されていた。このことから代替高速ろ過施設は、簡易放流による環境水への負荷を軽減する点で、有用な施設であるといえよう。

公共下水道に侵入した PAHs の挙動に関する研究報告はそれほど多く見られないが、EC 圏では下水余剰汚泥をコンポジット化した堆肥として利用することが多いためか、汚泥を水絞りのスラッジ中の PAHs に関する研究が盛ん¹⁶⁾である。汚泥は排泄物に由来する窒素成分やリンに富むので、農業用の土壌改良補助材としての利用が可能であるが、生活排水ばかりでなく工業排水も含む都市下水の場合、有害重金属による汚染の問題が生じる。また建設年代が新しい大都市の雨水分流式下水道では雨水中の大気汚染物質は直接河川等に流入するが、分流式でも多量降雨時には、非特定汚染源に由来する排ガス中の粉塵降下物などが、降雨時に一気に路面から洗い流されて下水道に流入する。これらの中には有害な難分解性化合物も多く含まれ¹⁶⁾ており、これらも汚泥を堆肥化して農業用に利用する際に問題になる可能性が高い。今回の報告ではスラッジプラントからの試料分析データ数が十分ではなかったために、一定の結論は得られな

かったが、脱水後の焼却過程で、余剰汚泥とともに下水処理の工程から引抜かれたPAHsの大半は分解除去され、焼却灰中に残存する量はきわめて僅かしかないと明らかに出来た。今後、さらに試料採取と分析を継続して、都市環境汚染物質のひとつとしてのPAHsの挙動を追究していきたい。

謝 辞

本研究の遂行に当たってはその経費の一部を、文部科学省平成13～14年度科学研究費基盤研究(c)(2)「水産環境汚染源としての下水処理場からの総変異原性の実体把握とその改善に関する研究(課題番号:13660181)」に拠ったので、ここに記して深謝する。また天候を見定めながらの試料採集という面倒なお願ひにも拘らず、終始変わらず熱心にご協力下さった下水処理場、およびスラッジプラントの職員の皆様に心からの感謝を申し上げます。

要 約

首都圏のある下水処理場に流入する下水に含まれる多環芳香族化合物(PAHs)が、処理工程でどのような消長を示すか調べた結果、次の3点を明らかにできた。1)晴天が続いている時に流入したPAHsは、放流水中では98%程度が除かれていた。2)雨天時に急に流入水量が増加し簡易放流が行われたときには、流入したPAHs量の20～30%が処理場から隣接する公共水域に放流されて、環境に対する負荷となっていた。現行の規定上は何ら問題無いが、PAHsの有害性を考えれば今後改善を要する問題である。3)スラッジに移行したPAHsは800℃以上の高温燃焼の結果、焼却灰中にはほとんど残存せず、最終処分場には極めて微量しか移行しないことが分かった。

文 献

- McKay, G.: Dioxin characterization, formation and minimization during municipal solid waste (MSW) incineration: review. *Chemical Engineering Journal*, **86**, 343-368 (2002)
- 斎藤 剛, 大塚知泰, 庄司成敬, 井上 寛, 安部 明: 環境ホルモンなどの下水処理工程における除去効果, 水環境学会誌, **25**, 97-103 (2002)
- 森本晴之: 油濁事故の海洋生態系への影響—ナホトカ号事故から見て, 油濁基金だより, **78**, 17-21 (2005)
- Gabosa, S., Ikononoub, M.G., Schopflochera, D., Fowlerc, B.R., Whited, J., Prepasd, E., Princee, D. and Chen, W.: Characteristics of PAHs, PCDD/Fs and PCBs in sediment following forest fires in northern Alberta. *Chemosphere*, **43**, 709-719 (2001)
- Abad, E., Llerena, J.J., Sauló, J., Caixach, J. and Rivera, J.: Study on PCDDs/PCDFs and co-PCBs content in food samples from Catalonia (Spain). *Chemosphere*, **46**, 1435-1441 (2002)
- Culea, M., Cozar, O. and Culea E.: PAHs in cigarette smoke by Gas Chromatography-Mass Spectrometry. *Indoor and Built Environment*, **14**, 83-292 (2005)
- Perex, S., Farre, M., Garcia, M.J. and Barcelo D.: Occurrence of polycyclic aromatic hydrocarbons in sewage sludge and their contribution to its toxicity in the ToxAlert® 100 bioassay. *Chemosphere*, **45**, 705-712 (2001)
- 東京都都市整備局編都市づくり政策部土地利用計画課編: 東京の土地利用 (平成18年東京都区部), 1-57 (2008)
- 社団法人日本下水道協会: 下水道維持管理指針 後編, §6.3.2【解説】(5) 余剰汚泥の発生量について, p15 (2003)
- Kira, S., Nogami, Y., Ito, T. and Hayatsu, H.: Measurement of a time-weighted average concentration of polycyclic aromatic hydrocarbons in seawater: An improved procedure of blue rayon hanging technique for monitoring benzo(a)pyrene. *Marine Environmental Research*, **46**, 67-271 (1998)
- 斎藤 剛, 大塚知泰, 庄司成敬, 井上 充, 安部明美: 化学物質の下水処理工程における除去効果の改善, 水環境学会誌, **25**, 97-103 (2002)
- 永光弘明, 加藤康伸, 熊谷 哲, 中野 武: 下水処理過程におけるノニルフェノールエトキシレート関連物質の分解過程の検討, 第4回日本水環境学会シンポジウム論文集, <http://ee-net.ne.jp/ms/sympo01/nagamitsu.PDF>, 17-18 (2001)
- Randall, C.W.: Activated sludge: Latest developments and a look into the future. *Water and Environment Journal*, **12**, 375-383 (1998)
- 特許庁: 臭素系殺菌剤による下水の簡易消毒, 平成17年度 標準技術集, 水処理技術, 119-120 (2005)
- 国土交通省: 簡易放流の割合, 合流式下水道の改善対策に関する調査報告書 (平成14年5月29日), 第3章合流式下水道の実態調査, 2節合流式下水道に関するアンケート結果, 61-75 (2002)
- 新矢将尚: ノンポイント汚染—雨天時水質汚濁の現状と対策, 生活衛生, **52**, 87-97 (2008)