

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25420557

研究課題名(和文) 分流式下水道に流入する多環芳香族炭化水素類の雨天時路面堆積負荷の可能性

研究課題名(英文) Road surface loading of polycyclic aromatic hydrocarbons flowing into separate sewer during rainfall

研究代表者

尾崎 則篤 (OZAKI, Noriatsu)

広島大学・工学研究院・准教授

研究者番号：50294541

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：分流式下水道システムでも直接的な雨の流入がしばしば見られるため、都市の地表面の汚染はシステムの主要なPAH源となりうる。本研究では、分流式下水道システムへのPAH降雨の流入を調査した。排水処理場の入口では、降雨時、無降雨時に水の流入量、SS、PAHの濃度を測定した。降水中の水とPAHの過剰流入を、その結果から推定した。比較から雨量と降雨期間の間に、降雨事象の間に相当量のPAH負荷が観察された。プラントへの年間水負荷量は約1%と評価された。測定と推計から、水の流入量は限られたが、分流式下水道システムであっても、一般にはPAHの降雨流入負荷は高くなる可能性があると考えられた。

研究成果の概要(英文)：Pollution on urban ground surface areas can be a major PAHs sources of the systems because direct rain inflow occasionally found even in separate sewer systems. In this study, the PAH rainfall inflow into a separate sewer system was investigated. The water influent loading, and their SS, PAHs concentration were measured for rainfall events (n=8), and no rainfall days (n=2; 24-h measurements) at the inlet of wastewater treatment plant. The excess inflow of water and PAHs during the rainfall were estimated from the results. From the comparison to rainfall and no rainfall periods, substantial PAHs loading during the rainfall events were observed. The yearly water loading contribution into the plant was evaluated up to only around 1%, while that of PAHs were evaluated up to five percent. From the measurements and the estimation, while the water inflow is limited, PAHs rain inflow loading can be higher even in separate combined sewer system.

研究分野：水環境工学

キーワード：PAHs 分流式下水道 雨水 市街地 流入

1. 研究開始当初の背景

社会活動によって非意図的に排出する微量環境汚染化学物質のひとつとして多環芳香族炭化水素類(PAHs)があり、自動車をはじめ広範な発生源を持ち、大気、水系汚染物質として環境リスクが懸念されている。PAHsの環境動態については様々な研究が行われているが、未だリスクマネジメントを行うにあたっての十分な情報を得ているとは言いがたい。われわれは大気・水環境の両方で環境中発生総量の包括的な把握を目指し研究を進めてきた。当初得られた測定結果から割り出すと処理場への流入負荷は大気降下の2~3割、下水処理場において半分程度分解されるが残りは放流水またはコンポスト利用を通して環境中に戻り(多くはコンポスト)、全体としてはPAHsの環境負荷全体の1割程度と見込まれることを示した。一般に下水汚泥の緑農地利用の割合は日本全体では1割程度であるが、これは京浜、京阪神、中京など大消費地で利用割合が低いためであり、それ以外では例えば広島県では汚泥の半分程度がコンポストとして農地還元されており、従って下水経由での土壌、沿岸域へのPAHsの負荷は相当程度のもことになる。こういった処理場を経由する負荷が小さくないという実態は明らかにしつつある一方、処理場自体への負荷源は十分検討できていない。

ところで福島原発事故にかかわる調査で分流式下水道でも大気降下由来と見込まれた放射性物質が検出されている。そこで筆者らはPAHsでも分流式下水道で路面堆積-雨天時流入の可能性があるのではないかと考え筆者らの過去の調査結果を改めて雨天時流入との関係で見たところ、流入PAHs全体の1/3程度は雨天時流入であるある可能性が示唆された。分流式下水道においてもPAHsについて雨天時流入負荷が高い可能性があり、検討する必要があると考えた。

以上よりまず区域内での管路の実態調査、また文献調査を行った。文献調査においてはこのような有害物質にかかわる先行研究は見いだされていない。実態調査とは、町に出てマンホールを見て回っただけであるが、いくつかの中小都市で見てわかったのは、いずれも相当数、相当割合のマンホールに雨水が流入できる孔が空いていることであった(写真1)。もともとはシールされていたが劣化してなくなっており、区域によっては殆どの孔があいていた。これらから雨天時に相当程度の路面堆積物の流入があり得ると考えている。



写真1 孔が露出しているマンホールの例

2. 研究の目的

本研究の目的は分流式下水道の污水管に多環芳香族炭化水素類(PAHs)の雨天時の路面からの流入が相当程度あるのかどうかを検討することである。それにより一般的に路面の堆積物等が下水処理場へどの程度流入しているのかを考察する。

本研究の特色は合流式ではなく分流式下水道の路面堆積負荷の可能性を検討することである。分流式下水道において処理場に流入する路面堆積物の影響に関する検討は筆者の知る限り存在しない。これは日本のような整備状況であればこのような寄与は僅かであると考えられているためであろう。確かに水量で言うと不明水または未収水は一般的に1割程度であり、一般的な汚濁負荷(BODなど)でも大きなものではないと考えられる。しかし個別の物質では物質によっては必ずしもそうとは言えず、そもそも路面排水にしか含まれていないような成分であればそれ自体の流入量がわずかであっても污水管の側から見た負荷の寄与は100%となる。そして先に述べたようにPAHsの路面負荷はかなり大きい可能性がある。本研究で得られる成果の意義は以下の点がある：

- ・PAHsの環境動態について、新たな大きなパスの可能性を提示すること
- ・分流式下水処理場に対して、路面堆積負荷があることの提示

本研究の成果を踏まえても直ちに対策すべきとは考えていない。しかし将来こういった様々な有害物質の負荷源が問題となりその主たる発生源を考える際には物質によっては分流式下水道においても路面堆積の寄与が相当大きくなりうる、という前提を新たに加えるということになると考えている。

3. 研究の方法

(1) 下水処理場での調査

一般的な分流式下水処理場を対象として調査を行った。対象とした下水処理場は対象人口5万人程度の分流式下水処理場であり本研究を推進する場として適切と考えられた(処理面積1300ha、人口50,480人、処理水量31,603(m³d⁻¹,日平均値)(2014年))。

・流入量の経時変化のデータとつきあわせて雨天時流入の観点からPAHs負荷原因の探索を行った。

・雨天時流入を焦点にした調査・実験を実施する。特定の雨天時に連続調査を実施し分流式下水道におけるPAHsの雨天時負荷を算定し、路面堆積の流出の可能性を検討した。

(2) 負荷源調査

路面堆積物調査：路面に堆積した粉塵のPAHsの含有量を調査した。幹線道路を中心に調査を実施した。下水処理場の処理区域内の道路を中心とし、また比較として全国各地の幹線道路の路面堆積物を収集し測定した。全国各地の調査については他機関の複数の研究者とも連携しすでに現時点で日本全国各地の

50 程度のサンプルを収集し分析・解析した。
(3) データ解析手法：

本研究では PAHs 負荷量全体を見る解析と、PAHs パターンをみる解析を行った。まず重要なのは降雨前後で負荷量または濃度の有意な上昇があるかを見た。加えて PAHs 内部でのパターンに特徴的な違いがあるかを見た。すなわち無降雨時は家庭排水に近く、降雨時は路面負荷に近い、というパターンが見られるかを検討する。手法としては主成分分析および Isomer ratio analysis を用いた。

4. 研究成果

(1) 路面堆積物調査

16PAHs の含有量は 3 桁ほどの拡がりがあり (57-6,030 ng g⁻¹) 幾何平均は 468 ng g⁻¹ であった (n=43)。IL は 0.8-17% (平均は 6%) であった。16PAHs のパターンを図 1 に示す。主要な種は Flu, Phe, Flt, Pyr, B(ghi)p などであった。

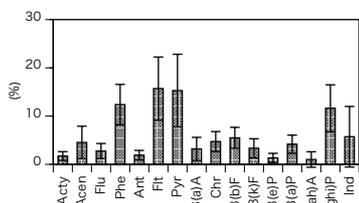


図 1 路面堆積物中の PAHs 含有量パターン

PAHs 含有量と IL とを比較すると相関が見られる (図 2)。それぞれの試料から有機物当たりの PAHs 量を出すと 1.66 (±1.15) × 10⁴ ngPAHs g⁻¹ 有機物 (平均値 ± 標準偏差) となった。

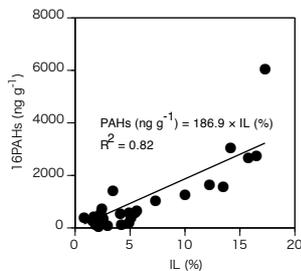


図 2 16PAHs の IL 依存性

PAHs 全量だけでなく各 PAH 濃度のパターンも路面堆積物ごとに異なる。そこでパターンを検討するために主成分分析とそれを踏まえたクラスター分析を行った。いずれも 16PAHs

の含有量のパターン (16PAHs 全量を 100 とする) に対して行った (n=43, 未検出データはなし)。主成分分析を行った結果その第一主成分は人口密度と相関があり (図 3)、そのベクトル成分も Acen や Flu の低分子量と B(ghi)P と Ind の高分子量が同符号になるという特徴的なものであった。人口密度の大小でパターンが異なる可能性について検討するためにクラスター分析を行ったところ (図 4) グループ分けも人口密度に依存する傾向が得られた。

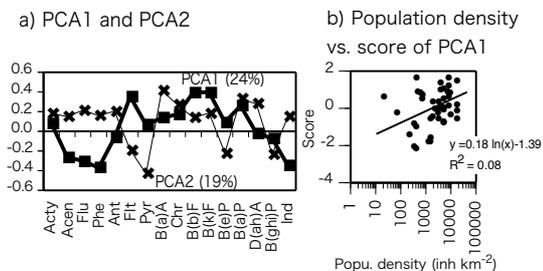


図 3 PCA 主成分 (PCA1, 2) と第一主成分の人口密度依存性

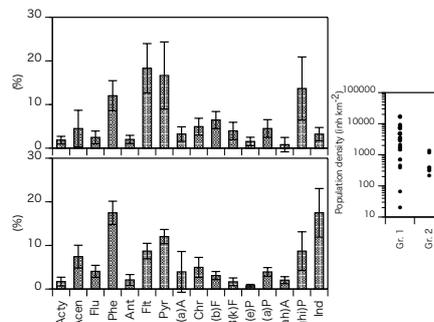


図 4 クラスター分析で分かれた II 成分それぞれの PAHs パターン

Gr. 1 と比較すると、Gr. 2 は Phe, B(ghi)P, Ind が高い傾向が見られる。Gr. 2 のパターンは PCA における PCA1 の特徴に近く、共通の数値的な傾向に起因していたと考えられる。前項の 16PAHs 全量の解析では PAHs 含有量は全有機物量に比例しており、PAHs 固有の特徴をもつことには否定的な傾向といえた。しかしクラスター解析によるグルーピングが人口密度との関連したことはこれら PAHs のパターンが単なる測定上のばらつきではなく社会的な状況の違いに起因する主要な特徴を捉えている可能性がある。

そこで筆者らがこれまで測定、または文献値

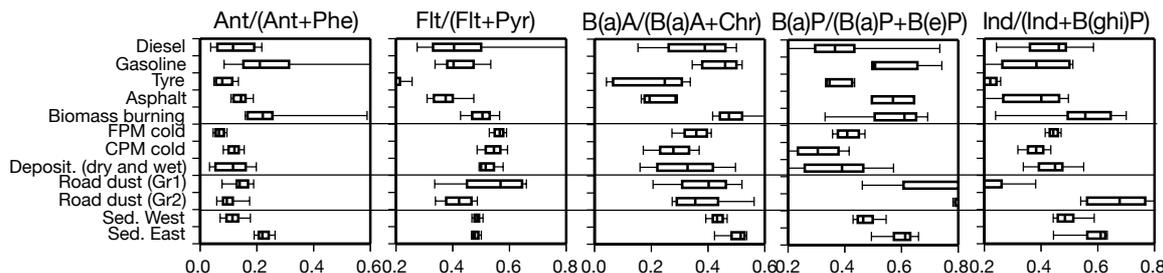


図 5 Isomer ratio analysis の結果

を収集した発生ステージや、他の環境ステージ(大気浮遊粉塵や大気降下物、沿岸域底質)と、本研究で得られたパターンをPAHsの主要な同族体分析により比較した(図5)。まず大気浮遊粉塵(FPM: 小径粉塵(<7 μm), と CPM: 大径粉塵(>7μm))-気降下物(Dry deposit.)-路面堆積物(Road dust)-沿岸域底質(広島湾; Sed. West と Sed. East)という流れで見ると、路面堆積物では Ant/(Ant+Phe), Flt/(Flt+Pyr), B(a)A/(B(a)A+Chr)では大気など発生ステージと底質に近い、あるいはその中間程度の比率であった。一方 BaP/(BaP+BeP)や Ind/(Ind+B(ghi)P)はそれから逸脱する傾向を得た。一方発生源(Diesel, Gasoline Tyre, Asphalt, Biomass burning)と比較するといずれもひとつパターンに単純に当てはまるものはなかった。特に BaP/(BaP+BeP)や Ind/(Ind+B(ghi)P)は特異な比率でありいずれともあてはまりにくい。路面堆積物は光分解の影響も大きいと考えると比率は発生源のまま維持されない可能性がある。Ant, B(a)A, B(a)Pは光分解を受けやすいと考えられるが、しかしそれによってこれらの特徴を統合的に説明することも困難であった。

一部の同族体比に特異な傾向が見られ他のステージと似ない傾向が出たことになるが、その特異な傾向は、ほかの路面堆積物の研究結果とも共通性があるかを見るために最近のいくつかの測定事例と比較した。まず B(a)P/(B(a)P+B(e)P)が高いことについてだが、B(e)Pの測定事例はなかったが Chr と比を取って検討する限り東京、上海で類似の、B(a)Pが高いという傾向が見いだされた。一方北京は低かった。Gr. 2では Indが高いという特徴がある。上海では一部に高いデータが、北京でも高いデータが多い。Gr. 1では逆に Indは低い。その傾向は北京の一部のデータでみられた。しかしほかは東京、上海では見いだしていない。これらからほかの環境ステージと比較して特異に見られた比率も含め路面堆積物の測定としてはしばしば見られる傾向であったと言える。

最後に大都市を中心に多くの測定が属した Gr. 1に対してその発生源の内訳の導出を試みた。個別に内訳を算定せずその平均的なパターンを対象とすることにした。まず Diesel, Gasoline, Tyre Asphalt, Biomass burning(それぞれ D, G, T, A, BB と称する)の16PAHsのパターンを導出し、それと Gr. 1のパターンと相関を取ったところ D, G, Tとの相関が大きかった(相関係数は0.7程度、一方 A, BBは0.2程度)。そこでこれら3つが発生源としてありうる考え、内訳の算定を試みた。全体的に一致するように相関係数が最大となる混合比を算定する方法が考えられるが、ここでは同族体比が近くなるように定めた。Flt/(Flt+Pyr), B(a)A/(B(a)A+Chr)が一致する比率を定めた。この二つの比を採用したのは測定が安定し分解等の影響を受けにくいと

考えたためである。結果として D: 33%, G: 60%, T: 7%と算定された。その混合比での相関係数は0.76と個別の相関よりも改善された。解析の信頼度のチェックのために本研究と別に測定した大型ショッピングセンターの駐車場で採取した堆積物に同様の解析を行った。すると Gがほぼ100%の寄与となり解析法には一定程度の信頼性があると考えた。

(2) 降雨時の下水処理場への過剰な負荷

無降雨時採水の概要を表1に、結果の例を図6に示す。無降雨時採水では、日ごとに濃度レベルは大きく異なったが日内ではほぼ一定であった(図7)。

表1 無降雨時採水概要

採水日	採水時間	前3日間降雨量 (mm)	SS (mg L ⁻¹)	平均PAHs濃度 (ng L ⁻¹)
第1回採水	'14/ 6/13(金) 0:00 - 24:00	2.0	131±6	510±95
第2回採水	'15/ 2/ 3(火) 0:00 - 24:00	0.0	195±64	1060±96

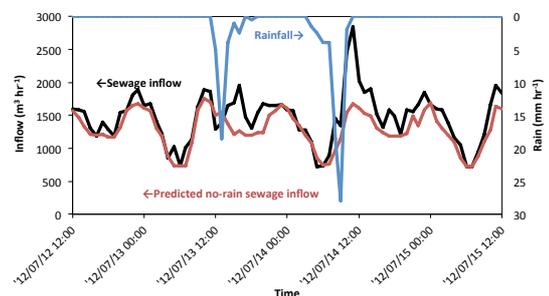


図6 降雨時流入の結果例

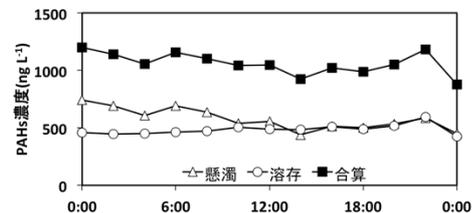


図7 無降雨時 PAHs 濃度推移 (第2回採水 `15/02/03)

そこで降雨時の無降雨負荷算定にあたり無降雨負荷分の濃度は、降雨直前の濃度が継続すると仮定し、流入水量は前後近日の無降雨時の流入経日水量パターンから導出した。

降雨時採水の概要を表2に、結果の例を図8に示す。

表2 降雨時採水概要

採水日時	SS (mg L ⁻¹)	PAHs 負荷量 (g)	PAHs 過剰負荷量 (g)	ベースライン PAHs濃度 (ng L ⁻¹)	降雨強度 (mm)	時間最大降雨強度 (mm h ⁻¹)
'13/10/ 5 15:00 - '13/10/ 6 3:00	104±12	1.8	0.3	82	48	10
'13/10/11 7:00 - '13/10/11 13:00	61±12	0.5	0.0	48	15	7.5
'13/10/24 4:00 - '13/10/26 22:00	155±47	34.0	6.2	509	74	11.5
'13/11/27 12:00 - '13/11/27 20:00	140±27	2.6	0.1	209	6	3
'14/ 1/ 8 13:15 - '14/ 1/ 8 22:00	175±13	2.7	0.6	151	18	4.5
'15/ 6/17 18:00 - '15/ 6/19 08:00	161±83	4.2	1.5	69	20	2.5
'15/ 7/13 21:00 - '15/ 7/14 18:00	136±85	2.1	0.3	106	23	15
'15/ 8/25 0:00 - '15/ 8/26 0:00	161±80	4.1	2.5	83	49	12

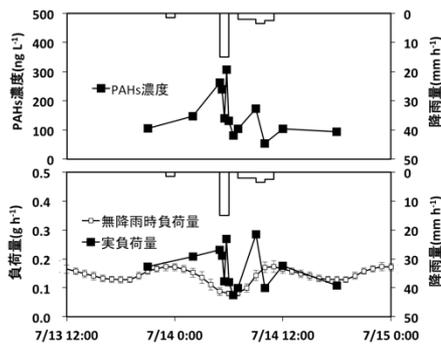


図 8 降雨時 PAHs 濃度と負荷量推移の例

降雨初期に PAHs 濃度が高く、また負荷量も推定された無降雨負荷量より増加した(図 9)。

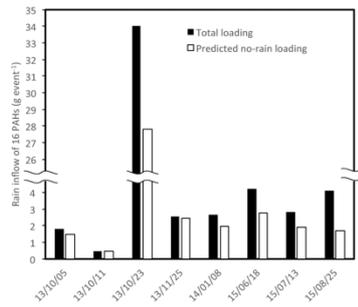


図 9 各測定における PAHs の流入

そこで各降雨について実負荷量と推定された無降雨負荷量との差として、降雨に起因する PAHs 過剰負荷量を算定し推定過剰雨水流入量と相関を取った(図 10)。あわせて PAHs の測定によらずすべての降雨による流入負荷を算定した(図 11)。

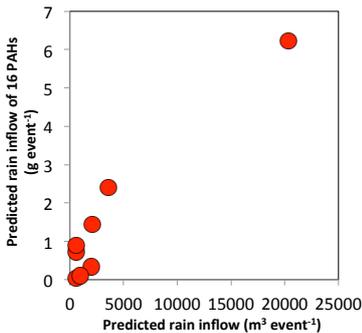


図 10 推定過剰雨水流入量と推定過剰 PAHs 流入量

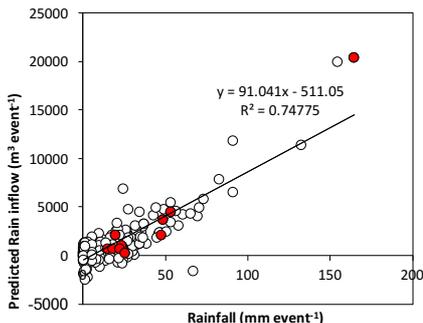


図 11 降雨量と過剰流入水量

得られたデータを用いて、下水道と PAH の年間 (2011 年度) の下水流入量と降雨量の合計を導出した。下水の総流入量は $1.16 \times 10^7 \text{ m}^3 \text{ yr}^{-1}$ であり、降雨イベントごとに降雨の流入量を合計して総雨量を合計し、総和は $7.68 \times 10^3 \text{ m}^3 / \text{yr}$ であった。従って、雨流入の寄与は 0.7% であった。下水流出量と平均濃度の積として、PAH の総下水流入量を推定した。平均濃度については、同じ処理場の以前の研究で推定された年間平均値を計算に使用した ($219 \pm 81 \text{ ng L}^{-1}$ 、平均 $\pm 95\% \text{ CI}$)。PAHs の総下水流入量は、 2544 g / yr と計算された。PAHs の雨流入量の計算には、降雨による過剰下水流入と余剰 PAH 流入の関係と、降雨事象ごとの過剰下水流入とを用いて、降雨事象ごとの余剰 PAH 流入量を予測し、合計は 26.5 g / 年 であった。従って、降水量による寄与は 1.04% であった。上記の計算から、プラントへの PAH の降雨の寄与は非常に低く、プラント内の PAH の主要な供給源とはみなされないといえる。我々の以前の研究では、このプラント内に存在する可能性のある主要な PAH 源は、国内、工業、および非地点の都市流入であると推定された。本研究より都市表面流入が PAHs の主要な原因ではないことを示すことができたが一方、先に述べたように、この地域の雨の流入は非常に低レベルで抑制されているが、雨の流入は、一般的には少なくとも 5~10% の水準であると考えられ、もしそうならば、分流式下水道システムであっても、主要な発生源となる可能性がある。さらに、路面は、都市化された地域では前節の成果よりより汚染されていると考えられ、そういった地域では汚染の流入はさらに高くなり得る。より市街化された地域では主要道路を含む都市部からの雨の流入の可能性を排除することはできない。汚水処理場に流入する PAH は実質的に分解されず、残留 PAH は排水と余剰汚泥に移動し、下水中の PAH の代謝生成物の一部はオキシ PAH などの有毒物質となりうる。これらはさらなる水の環境リスクを引き起こす可能性があり、下水汚泥から発生する堆肥もまた土壌環境に対するリスクになる。そのためさらなる検討が必要と考えられる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

1. Noriatsu Ozaki, Yuma Akagi, Tomonori Kindaichi, Akiyoshi Ohashi. PAH contents in road dust on principal roads collected nationwide in Japan and their influential factors. *Water Science & Technology*, Vol. 72, No. 7, pp. 1062-1071. (2015), 査読付 DOI: 10.2166/wst.2015.283

[学会発表] (計 6 件)

1. 尾崎 全, 尾崎 則篤, 大橋 晶良, 金田一智規. 大気・環境中の粒子状物質に含まれる有機物の特性評価による底質中の PAHs の起源

解明. 第53回環境工学研究フォーラム, B-28, pp. 24. (2016/12/07), 北九州市

2. Tamotsu Osaki, Noriatsu Ozaki, Akiyoshi Ohashi, Tomonori Kindaichi. Consideration origin of PAHs in sediments by the characterization of the organic matter contained in the particulate matter in the atmosphere and water in the environment. International Conference on Civil and Environmental Engineering ICCEE 2016, pp. 106-107. (2016/11/18), 東広島市

3. Noriatsu Ozaki, Takahiro Yamauchi, Tomonori Kindaichi, Akiyoshi Ohashi. Rain inflow loading of PAHs into urban domestic wastewater treatment plant in separate sewer system. 17th IWA International Conference on Diffuse Pollution and Eutrophication, P51. (2015/09/15), Berlin, GERMANY

4. Noriatsu Ozaki, Yuma Akagi, Tomonori Kindaichi, Akiyoshi Ohashi. PAHs contents in road dusts on principal roads collected nationwide in Japan and their influential factors. DIPCON Asian Regional Conference in 2014 (DIPCON/ARC-2014), pp. 1-5. (2014/11/03), 京都市

5. 山内 貴裕, 金田一 智規, 尾崎 則篤, 大橋 晶良. 分流式下水処理場における PAHs の流入負荷経路. 第 48 回日本水環境学会年会, L-89. (2014/03/18), 仙台市

6. 尾崎 則篤, 赤木 勇磨, 金田一 智規, 大橋 晶良. 日本全国の幹線道路の路面堆積物に含まれる PAHs とその影響因子. 第 16 回日本水環境学会シンポジウム, pp. 196-197. (2013/11/10), 沖縄県中頭郡

6. 研究組織

(1) 研究代表者

尾崎 則篤 (Noriatsu OZAKI)

広島大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：50294541

(2) 研究分担者

金田一 智規 (Tomonori KINDAICHI)

広島大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号：10379901

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

なし