

1. はじめに

公害による疾患の原因物質として水銀、カドミウムなどの重金属が確認され、また環境基準の検定により公共用水域への排出規制が行なわれ、重金属による環境汚染とその影響に關する問題が特に重要視されてきている。このような問題に対して下水処理場においても処理施設に流入した重金属の挙動についてその判断の条件を明らかにすることやきわめて重要であると同時に急を要する問題である。

本実験の目的は、重金属が活性汚泥に移行する第1段階としてろ過細菌群に対してCdなどの程度の影響を受けるかを細菌群の増殖速度を指標として検討すること、および下水処理施設への流入水中のCdを含む場合、活性汚泥へのCdの移行の程度、処理効率、処理水中の濃度、汚泥の発生量、汚泥の酸化速度などに対する影響度を知り、流入水中の重金属を測定することにより処理施設における重金属の行方を推定するための資料を得ることである。

今回は実際処理場における重金属の動態を、合成下水を用いた連続活性汚泥実験装置による結果とについて報告する。

表-1 流入水中の重金属 (mg/l)

区分	Cu	Cr	Cd	Pb	Zn	Ni	合計	
M	a	23.4	22.1	2.69	13.7	50.9	132	
	b	15.0	7.4	0.64	12.4	36.0	77	
	%a/b	64.1	33.5	23.9	90.5	70.7	58.0	
N	a	111	105	2.66	35.0	211	39.6	504
	b	607	42.9	2.17	9.42	34.8	25.5	176
	%a/b	54.7	41.0	81.6	26.9	16.5	64.4	34.8
O	a	145	267	2.90	64.6	763	759	2000
	b	80.6	116	1.9	18.7	302	571	1090
	%a/b	55.5	43.1	65.5	28.9	39.6	75.2	54.4

a: 全, b: 溶解性

2. 実際処理場における重金属の動態

現状では重金属がどの程度処理場に流入し、どのような形態で処理過程に影響するかは不明な点が多いけれども、下水の処理過程における重金属の問題を解決するための糸口をつかむために、対照として住居用地のM処理場、および工場排水の流入するN、Oの両処理場と動態調査を行った。

流入水中の重金属を表-1に示した。M処理場においては少ないものでCdの約3mg/l、多いものでZnの51mg/l程度が流入している。今回調査した6元素を合計すると約130mg/lとなり、この程度の重金属が家庭下水から流入することになる。一方、N、O処理場においてはCdが家庭下水に近い濃度で、その他の重金属は全体的に濃度が高い。この結果からCdについては排出量がかなり少なくなっていると考えられる。下水中の溶解性重金属は処理場によってかなり違い、Cu以外は明らか傾向は与えられなかった。

活性汚泥に蓄積した重金属を表-2のように、Cdの場合各処理場と同程度の濃度で流入しているにもかかわらず、汚泥の蓄積量は0.006mg/55gから0.03mg/55gと変化した。各処理場を6元素を合計すると、1.1mg/55gから16.3mg/55gの重金属が蓄積している。また、流入する重金属の濃度が高い程、活性汚泥への蓄積量が増加している。しかし、重金属は化合物によって性質が異なるけれども、一般には毒性があるので、ある程度活性汚泥に蓄積すると活性汚泥の機能が阻害され、活性汚泥中の蓄積量は限界が生ずるものと考えられる。活性汚泥の処理施設での滞留時間、生物の生存時間、生物の種類構成、環境条件などが関係するであろう。その他、ある程度重金属が流入した場合、その濃度に対して汚泥中の濃度が平衡状態になり、流入水中の濃度と汚泥中の濃度の間に一定の関係が成立することも考えられる。

表-2 活性汚泥中の重金属

処理場	M	N	O
Cd	0.006	0.02	0.03
Cu	0.271	1.04	1.7
Cr	0.017	0.67	4.6
Pb	0.092	0.17	0.6
Zn	0.711	1.60	7.8
Ni	0.015	0.16	1.6

単位: mg/55g

3. 予備実験

予備実験として流入水中の重金属の存在形態、活性汚泥中の重金属の特性、および細菌に対するCdの影響等を調査した^{2),3)}。細菌あるいは活性汚泥に対するCdの阻害については金子⁴⁾、P.S. Dawson⁵⁾、H. Haukelekiam⁶⁾などの研究がある。下水中の重金属の存在形態についても最近研究されてきている。今回はCdを含む下水の活性汚泥処理実験に用いる原木のCdの濃度(0.1, 1, 10 mg/l)に対して、活性汚泥中の細菌が阻害されるかどうかを検討するために行った実験結果を示す。

3-1. 実験方法

実験に用いた細菌群は住居団地の処理場の活性汚泥より分離し、炭素源としてグルコースだけを含有培地に培養をくり返し、培地に適応した細菌群を増殖したものである。

方法は先の培地を用い、実験期間中好気性に保つために炭素源としてのグルコースを13 mg/lとし、先に増殖した細菌群を接種して、表-3の実験条件に合せ、CdをCdSO₄の形で添加し、容量約200 mlの酸基ビンに分注してから20°Cで培養した。分析は所定の時間と酸基ビンを恒温室から取り出して行なった。なお、Cdに対する細菌群の馴致はこれとこれの実験条件で14日から15日間20°Cで培養した。分析は細菌試験を20°C、48時間平板培養により、グルコースをアンスロン法によった。その他は下水試験方法(1967)によった。

3-2. 結果および考察

細菌の増殖曲線はA-1(対照)で一般的な傾向を示したが、Cdを添加した場合誘導期と細菌数の減少がみられた。また、Cdと細菌を馴致した場合も細菌数が減少したが、誘導期がかなり短くなった。細菌群の増殖期における増殖速度にはほとんど影響がみられず対照と同様の傾向を示し、細菌群の最大収量も各実験条件ではほぼ一定であった。したがって、細菌群の最大収量はCdに阻害されることなく基質の量によることばかりである。基質やDO消費なども細菌群の増殖期と密接な関係がみられ、細菌群の増殖期と各成分が急激に変化した。しかし、Cdの変化は認められなかった。HgCl₂を添加したA-4では細菌が検出されグルコースもDOも変化はなかった。

DO消費の傾向を示したのが表-4である。BOD₅で比較するとCdの影響はみられないが、Cdの濃度按比例してDO消費の活発化する時期が遅くなる傾向がみられた。

表-5に細菌群の増殖期における世代時間と比増殖速度を示した。Cdを添加した場合、A-1(対照)に比較した場合増殖速度が大きくなっていくが、これは細菌群の増殖開始の時期が予測できなかったために、細菌群の測定時間とずれが出たことによる。DO消費やグルコースの経時変化からみた場合には細菌群の比増殖速度に有意差はなかったものと考ええる。

以上の結果から、10 mg/l以下のCdの濃度であれば、活性汚泥中の細菌群の基質除去能、増殖力などはほとんど影響はないといえる。一方、原生動物に対する阻害は須藤ら⁷⁾によればCdで0.1から1.6 mg/lで増殖が抑制される。したがって、活性汚泥に対してはCdが10 mg/l以下でも何らか

表-3 実験条件

区分	Cd(mg/l)	備 考
A-1	0	A-4のみ HgCl ₂ 50 mg/l 添加
2	1	
3	10	
4	10	
B-1	1	Cd 1 mg/l で馴致
2	10	
C-1	0	Cd 10 mg/l で馴致
2	10	

表-4 CdとDO消費の実係

経過日数 (日)	A-1 (Cd 0 mg/l)	A-2 (1)	A-3 (10)	A-4 (10, HgCl ₂)
1	81.2	8.0	1.5	0
1.5	85.5	24.1	2.2	—
2	88.5	49.8	9.6	—
2.5	95.6	98.5	10.4	2.5
3	—	98.8	11.5	2.7
5	100	109	103.0	2.1

A-1(対照)のBOD₅を100とした比率。

表-5 細菌の増殖とCdの関係

実験条件	世代時間 (h)	μ(1/日)
A-1	4.82	3.44
2	1.29	12.80
3	3.77	4.32
4	0	0
B-1	4.71	3.52
2	2.95	5.61
C-1	2.65	6.30
2	3.45	4.80

μ: 比増殖速度

の阻害が予想される。

4. Cdを含む下水の活性汚泥処理実験

合成下水にCdをCdSO₄の形で添加し、連続活性汚泥処理装置を用い、活性汚泥処理におけるCdの挙動、汚泥の生成、汚泥の酸化速度、処理効率への影響、および実際処理場の結果で予想された重金属の活性汚泥の蓄積等を検討した。実験に用いたCdの濃度は最大10 mg/l、1 mg/l、および水質汚濁防止法の排出基準である80.1 mg/lの3段階とした。

4-1. 実験装置および方法

実験装置は図-1に示したもので、装置の特性を測定した結果、押し出し流れに近いものである。⁹⁾ 装置は透明アクリル樹脂で、散気装置は実際の散気板より作ったものである。送水方法は図-1に示したように濃厚な合成下水とCdの溶液を調製しておいて、エアレーションタンク流入部で所定の水質になるように水道水と混ぜて注入した。流入水は定量ポンプにより連続注入し、返送汚泥はダイヤフラムポンプを用いタイマーにより間歇運転を行なった。なお、流量は毎日調整した。エアレーションタンク内の攪拌は散気装置によりエアレーションを行なうと同時に、タンクの底部は活性汚泥が沈殿するのを防ぐためにマグネチックスターラーの底部を攪拌し、さらに混合をよくするためにタンク内の隔壁をもうけた。合成下水の成分(表-6)は家庭下水の成分分析を行なった結果⁹⁾蛋白質の成分が多かったので、合成下水中の蛋白質の成分を多くするように工夫した。余剰汚泥は沈殿池において、その濃度計量して適時引抜きを行なった。なお、合成下水は2日ほど回復期製した。実験装置の運転条件は標準活性汚泥法の操作条件に合わせるようにした。

分析はCdの場合硝酸と過塩素酸による酸化処理後、原子吸光光度法により、その他は下水試験方法(1967)により行なった。溶解性成分はミリポアフィルター-0.45 μmにより分別した汚液より求めた。

実験装置は4台使用し、A、B、C、DはそれぞれCdを0(対照)、0.1、1、10 mg/l注入した。活性汚泥は住居団地の処理場より採取し、各装置に分注した。

実験期間は1972.6.29から8.27まで合成下水に馴致させ、8.28から所定の濃度でCdを注入し、水質分析の結果、処理水および活性汚泥中のCdが一応安定した9.13より10.2まで定常状態であったとして、本報告ではこの期間の値を用いた。

活性汚泥の酸化速度は各装置からの余剰汚泥をそれぞれ別の容器にとり、MLSSを約2,000 mg/lにして、エアレーションを行ない、MLSSの経時変化を測定して求めた。

4-2 結果および考察

流入水量、水質を表-7に示す。流入水量、BOD等は各実験装置で同程度となり、Cdもほぼ所定の濃度となり、流入水の条件は12ヶ一応満足すべきものであった。

4-2-1 処理効率

処理水の水質は表-8のとおりであった。PHは流入水のPHを8程度にして実験装置内のPHの低下を防止しようとしたが、A、B、Cは若干低い値になった。この原因については現在検討中である。透視度、SS、BOD

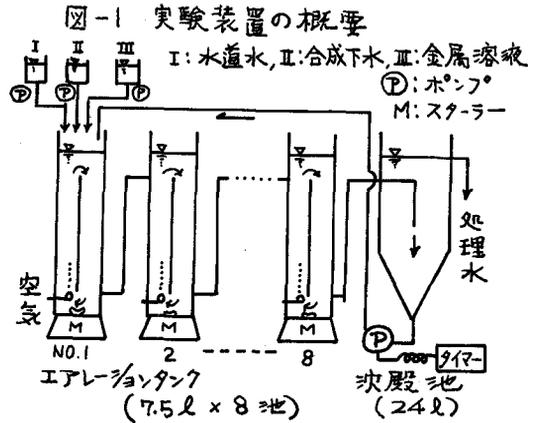


表-6 合成下水 (mg/l)

基質	濃度	基質	濃度
グルコース	17.6	尿素	37.0
デキストリン	17.6	KCl	8.1
肉エキス	80.0	NaCl	8.1
ペプトン	80.0	MgSO ₄	5.4
酵母エキス	90.0	KH ₂ PO ₄	24.5

BOD ≒ 180 mg/l

などはCd 1 mg/l と 10 mg/l の間に変化がみられず、BODは溶解性BODが各実験装置で同程度であるのに対し、SSはより考えられず溶解性のBODがCd 1 mg/l と 10 mg/l の間2倍近く増加した。このことは活性汚泥の流出によるBODの増加であろう。BODの除去率はいずれも90%以上であったが、Cd 1 mg/l と 10 mg/l では約4%低下した。

処理水中のCdは流入水中のCdの濃度と比例して増加する傾向がみられる。とくに全Cdに対する溶解性Cdの比率は処理水中のCdの濃度が高くなるにつれて低下し、SS中には含まれて流出する量が増加している。Cdの除去率はCd 1 mg/l と 10 mg/l ではかなり低下した。

生物処理に影響するCdの濃度は鈴木¹⁰⁾によると、5 mg/l 程度の流入で阻害が現れ始めるが、本実験においては5 mg/l 以下の実験を行ったというわけでも、同様の傾向がみられると考えられる。

Cd 1 mg/l 程度以下の流入に対する処理効率、特に有機物除去の差からみればほとんど影響はない。しかし、流入水中のCdが1 mg/l では処理水中のCdが平均で約0.3 mg/l となり、水質汚濁防止法の排出基準の約三分の二の濃度で流出することが予想される。

4-2-2. 活性汚泥に対するCdの影響

活性汚泥の性状を表-9に示した。エアレーションタンク内のMLSS濃度は実験開始時に予定した濃度より高濃度であった。SVIはCdを注入した場合に若干高くついているが有意差があるという程ではない。

生物相は定性的に時々変動した程度であるが、A、Bの装置で普遍的な活性汚泥に近い原生動物群集が確認できたが、C、Dの装置では原生動物が皆無に近い、大部分がスズダレ様のフロックで構成されており、Cd 1 mg/l 以上の流入があると原生動物は生存が困難な状態がみられる。

MLSS中のMLVSSの比率は、対照のAで0.9であったものがCdの流入濃度が高くなるにつれて低下し、Dでは0.55となり約5%無機成分の割合が増加した。

表-7 流入水の状況

装置番号	流入水量 (l/d)	BOD (mg/l)	Cd		
			負荷 (kg/㎡日)	(mg/l)	負荷 (g/㎡日)
A (対照)	357 343~389	149 136~155	0.89	—	—
B	360 358~362	144 122~167	0.86	0.11 0.10~0.14	0.66
C	360 357~363	145 127~167	0.87	1.04 0.98~1.1	6.2
D	360 356~362	144 129~157	0.86	12.4 9.87~20	74

表-8 処理水質

区分	A	B	C	D	
透視度	30以上	13~30以上	11~30以上	21 15~25	
PH	(6.5) 5.8~6.9	(6.4) 5.6~6.6	(6.7) 5.6~7.0	(7.0) 6.8~7.3	
SS (mg/l)	36.3 16~104	50.7 2~140	51.0 10~108	82.4 34~144	
AOD	a (mg/l)	8.68 2.57~36.8	6.96 2.45~9.18	6.94 1.48~12.2	12.4 6.38~24.0
	b (mg/l)	7.72 1.59~35.3	5.87 2.25~7.93	6.37 1.10~11.4	11.5 5.07~22.0
	b/a	0.89 0.6~0.96	0.84 0.48~0.92	0.92 0.67~0.98	0.92 0.79~0.96
	c (mg/l)	0.96 0.39~1.60	1.09 0.20~2.79	0.57 0.1~1.86	0.99 0.53~1.97
	c/a	0.11 0.04~0.40	0.16 0.08~0.52	0.1 0.02~0.33	0.1 0.04~0.21
	c/b	—	0.22 0.010~0.036	0.30 0.03~1.59	6.91 4.3~8.5
D	a (mg/l)	—	0.022 0.005~0.018	0.251 0.026~1.46	5.87 0.19~9.4
	b (mg/l)	—	0.41 0.19~0.66	0.76 0.34~0.95	0.85 0.72~0.91
	b/a	—	0.013 0.006~0.023	0.049 0.004~0.152	1.04 0.71~2.05
	c (mg/l)	—	0.59 0.34~0.81	0.24 0.05~0.66	0.15 0.09~0.28
	c/a	—	—	—	—
	c/b	—	—	—	—
BOD除去率 (%)	94.2	95.2	95.2	91.4	
Cd除去率 (%)	—	80.0	71.1	44.2	

a: 全, b: 非溶解性, c: 溶解性

流入水中のCdと汚泥の生成量、および汚泥の酸化速度の関係を図-2に示した。汚泥の生成量は装置内の汚泥の増加分に処理水として流出するSSを加えて1日当りの汚泥生成量を求めた。図-2から流入水中のCdの濃度が増加すると、汚泥の生成量が増加した。この値から除去率ODの汚泥への転換率を求めると、流入水中のCdが1mg/lの場合0.6(0.5)で一般的な値に近かった。しかし、10mg/lでは0.8(0.7)とかなり高い。装置内の値はVSSとしての転換率である。

汚泥の酸化速度は一般に $10^{-10} \sim 10^{-3}$ /hr・SS ppm といわれているが、この実験では 10^{-7} 程度であった。また、流入水中のCdの濃度が高くなるほど小さくなる傾向がみられた。

図-3に流入水中のCdの濃度と汚泥の蓄積、および処理水中のCdの濃度との関係を示した。図-3からCdの活性汚泥の蓄積量は流入水中の濃度におおむね比例することがわかる。Cdの汚泥への蓄積係数はついでに孝財¹¹⁾、金子¹²⁾の所見があるが、処理場調査におけるCdでは 1.5×10^3 から 10×10^3 、本実験においては流入水中のCdの濃度が0.1と

1mg/lの場合それぞれ 2.8×10^3 、 10 mg/l の場合 9×10^3 となり、 10 mg/l で蓄積係数が低下した。これは、蓄積は多くなる原因が菌と有るが、一応図-3の関係よりある程度蓄積量を推定することはできるとであろう。

流入水中のCdの濃度と処理水中の濃度との関係は蓄積の場合と違い、流入水中の濃度が増加すると流出する量が急激に増加する傾向がみられた。流入水中のCdの濃度が、水質汚濁防止法の種出基準である 0.1 mg/l 以下で処理場へ流入したとすると、汚泥中の濃度は 3 mg/SS 程度が予測される。ただし、流入水中の濃度が 0.1 mg/l というのは下水処理場へ流入する最大の濃度で、実際処理場調査結果にも示したように、さらに低濃度は存在する。重金属が低濃度で流入したとしても汚泥に蓄積することは事実であり、汚泥処分においては重金属の問題は十分考慮する必要がある。

4-2-3 Cdの収支

結果は表-10に示したようにCdの流入量が増加すると流出量も比例して増加する。余剰汚泥と汚泥生成量より、処理水として流出するSSを差し引いて求め、この値と汚泥中の濃度より余剰汚泥中のCdを全流入量に対する割合

表-9 活性汚泥の性状

区分	A	B	C	D	
MLSS (mg/l)	3814	2818	2957	2702	
MLVSS (mg/l)	3443	2519	2567	2294	
MLVSS/MLSS	0.90	0.89	0.87	0.85	
SVI	214	289	239	283	
BOD負荷 (kg/SS・kg/a)	0.23	0.31	0.30	0.32	
Cd負荷 (g/SS・kg/a)	0	0.17	2.1	27.5	
汚泥炭素 (g/a)	SS として	19.4	24.6	27.9	38.7
	VSS として	17.5	21.9	24.3	32.9
Cdの蓄積 (mg/SS・g)	—	3.08	29.6	113.3	

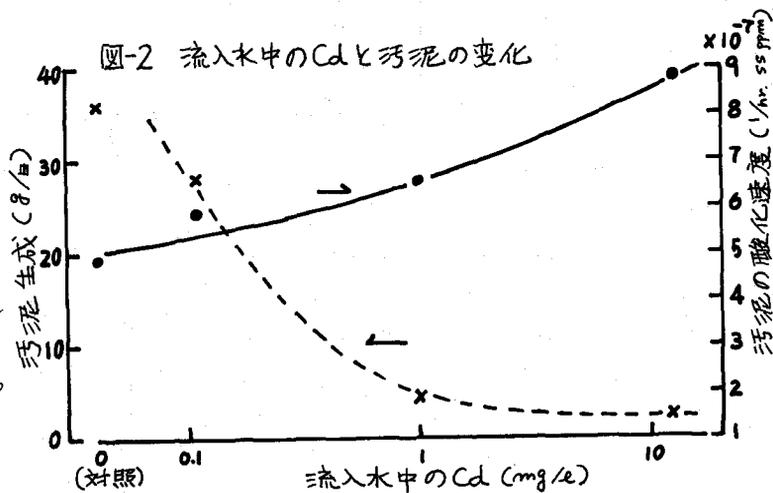
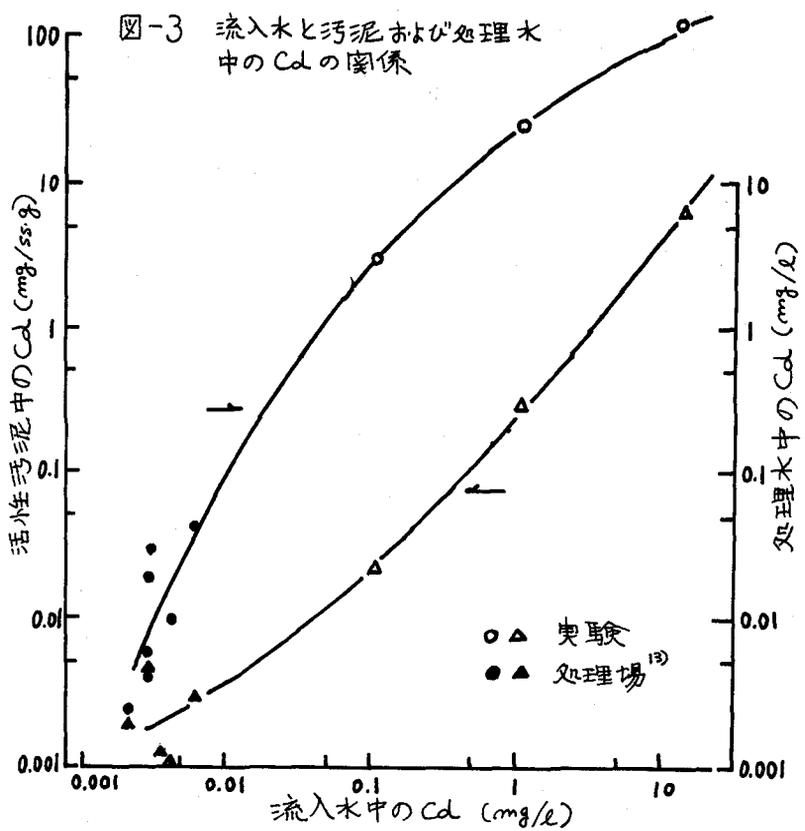


図-2 流入水中のCdと汚泥の変化

合を求めた。表-10 に示した値のうち、実測値は流入量と流出量であるので、処理水として流出しないCdは装置内に残るが、余剰汚泥として処分されるか、いずれかである。この場合は汚泥中のCdが比較的安定している時期に調査しているため、不明分も余剰汚泥として棄外に出たことを考えておこう。処理水中のSSは活性汚泥の一部と考えるのが一般的であるが、SS中のCdを活性汚泥の蓄積量から算出するに含む。一方、活性汚泥中のCdは生物体は採取されず、非溶解性の化合物になっているものと考へられ、その割合は生物体中の量が非常に少ないようである。② 処理水中のSSは活性汚



泥より比重の軽い生物体あるいはその破片が主なものであろう。B, Dの装置には、多少Cdと考へられ、橙黄色の付着物が比較的多く確認されたこと、および汚生成量の算出の誤差などにより不明分の割合が増したものと考へられ、これらの不明分も棄外に出たことを、Cd 1mg/l以下の流入では約80%、10mg/lでは約40%が余剰汚泥として汚泥処理委託に移ると考へる。

表-10 Cdの収支

区分	B (Cd 0.1mg/l)	C (1)	D (10)	
流入量 (mg/日)	39.6	374	4,460	
流出量 (mg/日)	7.96	108	2,488	
余剰汚泥 (mg/日)	20.3	293	1,031	
Cdの 行方 (%)	流出	20.1	28.8	55.8
	余剰汚泥	51.3	78.3	23.1
	不明	28.6	—	21.1

5. まとめ

- ① Cd 10mg/l以下では細菌群の比増殖速度にはほとんど影響がなかった。
- ② 流入水中のCdが1と10mg/lの間では活性汚泥処理の効率に影響がなかった。
- ③ 活性汚泥処理施設は

あり、流入水中のCdを測定することにより、汚泥中のCdの濃度が多いは処理水中の濃度をある程度推定できる可能性があることがわかった。④ 流入水中のCdが1mg/l以下では流入量の約80%が汚泥系に移行すると思へる。なお、重金類の蓄積については、さらに実態面を考慮して研究する必要がある。

最後に、本実験に当り御指導頂いた相模、若藤両室長および田中氏、分析等隊の御協力頂いた各位の他の諸氏に感謝の意を表します。

参考文献 1) 土木研究所調査報告(1972), 2) 小堀他, 下水道処理発表会講演集(1973), 4) 金子他, 下水協誌, 10, 107, 1973, 5) P.S. Dawson 他, SIW, 22, 4, 1950(4), 6) H. Heukalekian 他, SIW, 27, 1, 1955(1), 7) 須藤他, 日本環境衛生学会講演集(1972), 8) 河野他, 下水道研究発表会講演集(1973), 9) 小堀他, 土木学会年次講演会講演集(1970), 10) 横浜下水道局, 工場排水処理に関する研究(1972), 11) 寺町, 衛生工学討論会論文集(1972), 12) 金子他, 下水協誌, 10, 109, 1973, 13) 土木研究所資料 (77刷中)。