

汚濁水の地下浸透に関する一考察

東京大学 (学) ヨーノス M.T.

1. はじめに

応用面では、汚濁水の地下浸透により、次のような目的が果たされる。

①地下水人工かん養；②汚濁水の地下循環再利用；③汚濁水の地下還元による地表水系の富栄養化防止。

地下に浸透する汚濁水の水質変動は、汚濁水と土壌の特性及び土壌と汚濁水の相互作用によると考えられるが、このプロセスの全体は、汚濁水に対する土壌のろ過機能にまとめて表現することができる。

一般には汚濁水に対するろ過機能として、次の項目があげられる。i)物理膜としての土壌のろ過機能；ii)化学的膜としての土壌のろ過機能；iii)生物膜としての土壌のろ過機能。

物理膜としての土壌の役割は、浸透水中の固形物、懸濁物を除去することであるが、結果として微生物、BODなどの除去につながると思われる。

化学的膜としての土壌のろ過機能は次のような反応に基づいている。④イオン交換反応；⑤吸着反応；⑥酸化還元反応；⑦沈殿反応。化学的膜の役割は特に無機性物質の除去に有効であると思われる。

生物膜としての土壌のろ過機能は、主に土壌中の微生物の働きによると思われるが、有機物質及び栄養塩類の分解除去に果たす役割は大きい。

この報告では、特に汚濁水の土壌浸透による有機物質及びN、Pの変動に関して考察している。

2. 実験の目的、方法と内容

下水処理水の浸透による生ずる水質変動の一般的傾向を把握することが実験の目的である。実験期間は約10ヶ月間で、その間に実験Ⅰ～Ⅲが行われた。図1は実験Ⅰ～Ⅲのプロセスを示す。

図2は実験装置の概要を示す。すべての実験は定水位法(水位=30cm)で行われた。表2と表3はそれぞれ土壌の特性と原水の水質を示す。表2を作成するに当り、水道水による浸透水量及び透水係数を標準状態としている。水質試験は下水試験法又土壌分析は土質試験法による。

実験Ⅰ～Ⅲのプロセスを図1で示したが、それぞれの実験の大小、ばい内容は次のとおりである。

実験Ⅰ-下水二次処理水(活性汚泥プラントの放流水)を原水として、土壌(ローム、砂、粘土質砂)浸透による有機物質の分解除去、リンの除去及びアンモニア形態の変動を調べた。

実験Ⅱ-実験Ⅰの結果を参考にして、実験Ⅱでは特に土壌浸透による $\text{NO}_3\text{-N}$ の変動を調べた。実験Ⅱの原水は下水二次処理水をさらに砂ろ過、塩素処理、ゼオライトろ過したもので、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は KNO_3 として人工的に注入した。ゼオライトろ過の目的は、原水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ を除去することである。

実験Ⅲ-原水は実験Ⅱと同様であるが、 KNO_3 の他にメタノール(CH_3OH)を人工的に注入して、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の除去率を調べた。

実験Ⅰ～Ⅲの結果、3種の土壌について、下水処理水中の有機物質の除去程度及びアンモニア形態の自然的変動と人工的脱窒素可能性が部分的に明らかになった。汚濁水の地下浸透の分野に関しては、これは予備的実験、研究にすぎない。今後さらに室内実験で多くの疑問点を究明する必要がある。

この実験の実行において、東京都水道局江東工業用水道事務所水質係の全員の御協力をいただいた。深く感謝の意を表わす。この研究を御指導、激励して下さいる東京大学都市工学科の石橋多聞、綾田出教両先生、及び衛生工学第一、第三研究室の皆様にも厚くお礼を申し上げます。

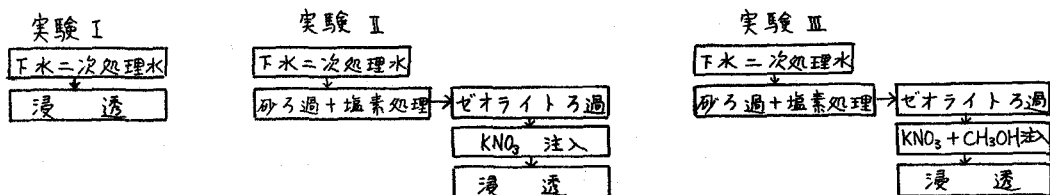


図1. 実験 I ~ III のプロセス

表1. 原水の平均水質

実験 No.	実験 I	実験 II	実験 III
原水	①	②	③
水質項目	下水二次処理水	①+砂ろ過+塩素処理+ゼオライトろ過+ KNO_3 注入	②+ CH_3OH 注入
BOD	19.5	9.4	—
COD (Gr法)	21.5	10.7	22
TOC	16.5	10	20
$\text{NH}_4\text{-N}$	9.5	0 (ゼオライト吸着による) ← →	0
$\text{NO}_3\text{-N}$	2.4	9.2 (KNO_3 の注入による) ← →	10
$\text{NO}_2\text{-N}$	1.3	0.2	0.4
有機-N	1.06	1.0	1.0
$\text{PO}_4\text{-P}$	2.46	4.01	2.4
S.S.	6~10	<2	<2
全硬度	121	140	140
一般細菌数/ml	19000	—	—
大腸菌数/100ml	680	—	—
PH	6.89	7.56	7.5
導電率 ($\mu\text{S/cm}$)	552	632	518
残留塩素	—	0.3	0.3
気温 ($^{\circ}\text{C}$)	16	12.3	22.6
水温 ($^{\circ}\text{C}$)	18	14.3	20.4

(注) PH, 導電率, 細菌数, 温度のほかすべての項目の単位は mg/l である。

表2. 土壌の特性

	$Q_0 (\text{m}^3/\text{m}^2/\text{日})$	$K (\text{cm}/\text{sec})$	$T (\text{hr})$	$d_{10} (\text{mm})$	d_{60}/d_{10}	G	$n (\%)$
ローム	5.60	0.0042	2.87	0.003	21.7	2.769	45
砂	7.53	0.0450	2.29	0.22	4.5	2.630	49
粘土質砂	0.7	0.0030	18.94	0.016	11.3	2.677	39

Q : 初期浸透水量
 K : 初期透水係数
 T : 初期滞留時間
 d_{10} : 有効径
 d_{60}/d_{10} : 均等係数
 G : 土粒子の比重
 n : 間隙率

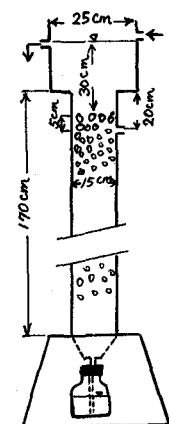


図2. 実験装置の概要

3. 実験の結果及び考察

1) 実験Iの結果と考察：先に述べたように実験Iでは、下水二次処理水（活性汚泥プラントの放流水）を原水とした。以下には実験結果に関して、指標項目別に述べたい。

a) PO_4-P の除去—下水二次処理水の PO_4-P の含有量は2.3~3.0 ppmであったが、ローム及び粘土質砂によるその除去率は85~90%であった。又砂によって PO_4-P の約60%が除去された。（図3参照）

一般には土壌によるリンの除去は吸着、同形置換と容積度に関連する分解反応によると報告されている⁹⁾。又酸性土壌の場合、リンと土壌中の鉄及びアルミとの反応の結果不溶性の化合物が形成されるため、リンが固定されるという報告もある⁹⁾。実験Iよりリン除去に関する要因は解明されないが、ローム及び粘土質砂のように微細な粒子が含まれている土壌の場合、粗砂に比べて除去率が高いことが明らかになる。又実験実行中（約2ヶ月）それぞれの土壌による PO_4-P の除去率は常に高かった。

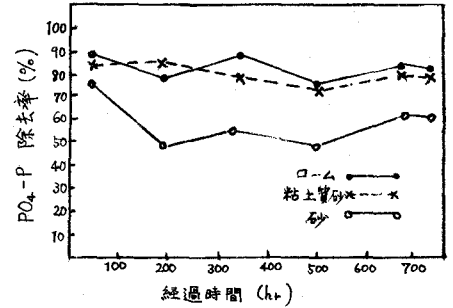


図3 土壌浸透による PO_4-P の除去率(%)

。土壌によるリンの長期的除去に関して他の研究者の室内及び現場実験の報告がある¹⁾。特にBouwerは、汚濁水の地下浸透の5年間継続実験では、 PO_4-P の負荷量が48000 kg/haにもかかわらず、リンに対する土壌の除去能力はほとんどえなかつたと報告している。

b) 有機性物質の分解、除去：表3で示すように下水処理水中の有機性物質は、溶解性、コロイド性及び不溶性の部分からなっている。下水二次処理水のBODは平均約20 ppmであったが、土壌によつてBODの95%以上が除去された。又これに対して下水二次処理水のTOCは平均16 ppmで、その除去率は60~70%であった。

表3. 下水処理水中の有機性物質の内容

形態	活性汚泥法 (American)	散水ろ床法 (British)
溶解性	69 %	52 %
コロイド性	6 %	9 %
粗・不溶性	25 %	39 %

(注) 文献4による。

。BODの除去率に比べてTOCの除去率が低いということにより、浸透水中に有機性炭素が残留していることが明らかになった。表1および図4、5は原水のTOC、COD (Cr法)の濃度と土壌浸透によるそれらの減少率を示す。一般には土壌中における有機物質の分解は、微生物の働き及びC:Nの比によると報告されている¹⁰⁾。

実験Iの初期段階では、硝化作用が十分進行していなかったため、TOCの除去率は低いが、後に原水中の NH_4-N の大部分が NO_3-N に変化したので、これに対応してTOCの高い除去率が確認された。

c) pHの変動：実験Iで利用した下水二次処理水のpHは図6で示すように常に弱酸性であつたが、浸透水のpHはローム層の他はすべて7以上であつた。

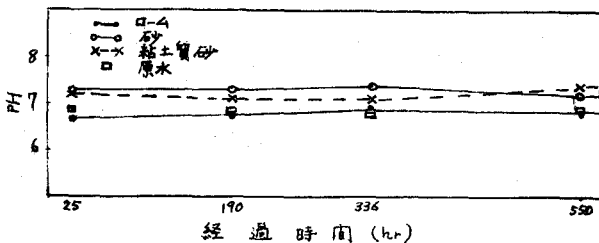


図6. pHの変動

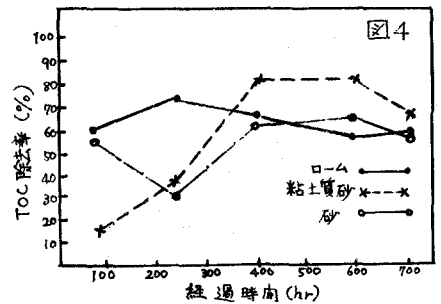


図4

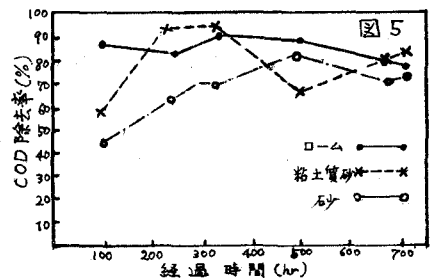


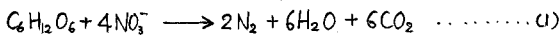
図5

図4,5. 土壌浸透による TOC 及び CODの除去率

d)窒素形態の変動：原水の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は平均 9.5 ppm である。実験 I の結果をみると、実験初期段階では、多量の $\text{NH}_4\text{-N}$ が土壤中に吸着あるいは固定化されていると思われる。そしてこの段階ではアンモニウムイオンのわずかな部分が $\text{NO}_3\text{-N}$ に変化している。しかし後に土壤は $\text{NH}_4\text{-N}$ の吸着に対して飽和したと同時に、硝化作用促進のために好ましい条件が得られたために $\text{NH}_4\text{-N}$ の大部分は $\text{NO}_3\text{-N}$ に変化しと考えられる。図 7(a,b,c) は種々の土壤における硝化作用の促進を示す。図 7(a,b,c) から、この現象はすべての土壤の場合共通しているといえる。なお図 8 で示すように、下水二次処理水の 24 時間の窒素形態にはかなりの変動が見られるため、窒素の負荷量に対する実験条件を固定することは困難である。他の汚濁指標の場合も同様である。実験 I では 24 時間の平均値を負荷量とした。この実験では表 1 及び図 8 で示したように $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の平均濃度はそれぞれ 9.5 ppm, 2.4 ppm, 1.3 ppm で、T-N としては平均約 13.2 ppm になる。この値を土壤浸透水の平均 T-N に比べるとローム、砂及び粘土質砂による T-N の平均減少率はそれぞれ 43%, 40%, 47% になっている。しかし浸透水に残留する窒素の大部分は $\text{NO}_3\text{-N}$ として出て来る。

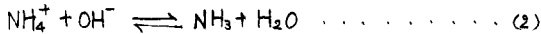
土壤中における窒素形態の変動は非常に複雑である。図 9 は土壤中における下水二次処理の窒素形態変動を想定したものである⁵⁾。一般には土壤中における窒素形態の変動に関しては次の要因が挙げられる。

1) 土壤による生物的脱窒素：生物的脱窒素の場合、硝酸イオンは窒素がガスへ還元される。この反応は次の式で表現される。



一般には土壤中には、脱窒素細菌が豊富に存在しており、これらの細菌は、好気性条件のもとに酸素を消費するが、酸欠の場合には、硝酸塩を利用する。

2) アンモニアの揮散：アンモニアの非生物的揮散により、窒素は大気相へ移相する可能性がある。アンモニアとアンモニウムイオンの間には次の式のように、平衡状態が存在する。



窒素の大部分は pH 7 あるいは 7 以下では、アンモニウムイオンとして存在する。しかし pH が高くなると、(2) 式の平衡状態は右に移動して、窒素の大部分はアンモニアガスとして存在する。アンモニアの多量揮散には十分な空気-水の接触を必要とする。

3) アンモニウムイオンの吸着：下水処理水中のアンモニウムイオンは土壤の陰イオン及び土壤中の有機性コロイドに吸着される可能性がある。下水処理水中に、二価イオン物質（例えば Ca^{2+} , Mg^{2+} ）が存在する場合、土壤中ではこれらのイオン交換が行なわれるため NH_4^+ のイオン吸着はかなりの妨げられる。

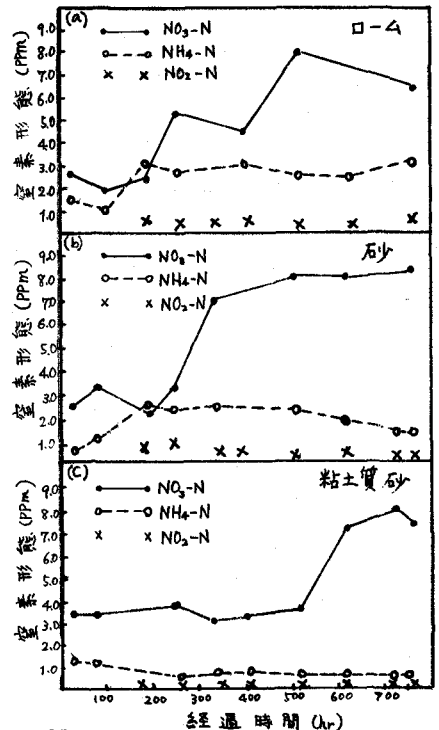


図 7. 土壤浸透による窒素形態の変動

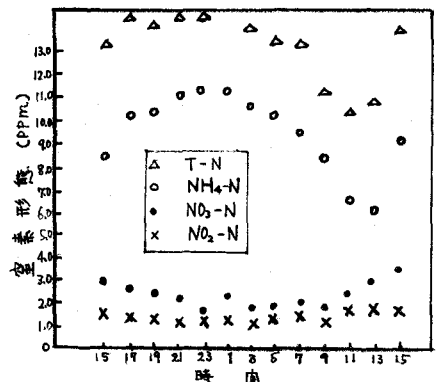


図 8. 下水処理水中の窒素形態の時間変動

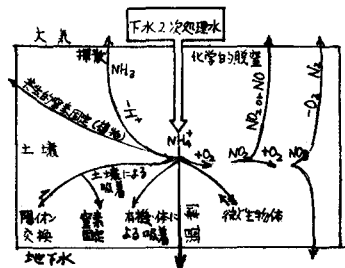


図 9. 下水処理水の土壤浸透による窒素形態の変化⁵⁾

4) 土壌によるアンモニウムイオンの固定化: アンモニウムイオンは土壌層の間隙間に抑留されることが可能である。このように固定された窒素は、硝化作用に対して抵抗力が大きく、十分安定であると思われる。

5) 有機成分によるアンモニアの固定化: 下水二次処理水中の窒素の大部分はアンモニウムイオン形で存在するので有機成分のアンモニウム固定により、処理水中の窒素除去は著しいと思われる。アンモニアは土壌中の有機成分と反応して、分解作用に対して抵抗力の大きい合成物を生成すると考えられる。

6) 化学的脱窒素 (Chemo-Denitrification): 硝化作用過程に生成された亜硝酸塩は分解あるいは土壌の有機成分との反応の結果がガスが発生して大気に放出される。これらの反応は生物学的でないため化学的脱窒素とよばれる。一般に土壌中では、亜硝酸は硝化細菌 (Nitrobacter) により、硝酸に酸化される。

りへ6)で述べたほかに微生物の細胞により、窒素の吸収が行なわれる場合もあると考えられる。

実験Ⅰの場合窒素除去に関する上述の要因のうち、特にアンモニアイオンの吸着と有機成分による窒素の固定化が主であると思われる。又浸透水と空気の接触時間がかなりあり、たのでアンモニアの揮散も生じたと考えられる。更に原水と空気の接触により、酸素供給が十分であり、たため $\text{NH}_4\text{-N}$ の $\text{NO}_3\text{-N}$ への変換は容易に行なわれたと思われる。又酸化-還元電位の測定により浸透水は常に好気性であったことが確認された。 $\text{NO}_3\text{-N}$ の大部分は硝化細菌によって $\text{NO}_3\text{-N}$ に酸化されたと思われる。この実験ではPHの低下が見られなかつたので有機酸、及び CO_2 は発生しなかつたと考えてよい。この実験の結果、好気性条件のもとに、土壌により、窒素が部分的に除去されることが判明した。

実験Ⅱの結果と考察: 実験Ⅰでは $\text{PO}_4\text{-P}$, TOC , COD , BOD などの除去程度はかなり明確になったが、窒素形態の変動特に $\text{NO}_3\text{-N}$ の実態は十分把握できない。実験Ⅱは $\text{NO}_3\text{-N}$ 変動の実態解明を目的とする。実験Ⅰでは目づまりの発生がはげしかつたので、実験Ⅱでは下水二次処理水をさらに砂ろ過+塩素処理して原水とした。又アンモニアイオンを除去するためにゼオライトろ過を行ない、原水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は 10 PPM 程度になるように KNO_3 を注入した。この原水にはアンモニアイオンが存在しなかつたため $\text{NO}_3\text{-N}$ の変化だけが調べられた。この実験の結果ローム、砂及び粘土質砂層の浸透による $\text{NO}_3\text{-N}$ の減少率はそれぞれ 15%, 25%, 50% であった。したがって

表4. 土壌浸透による汚濁物質の除去率 (%)

実験Ⅱの結果により、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は部分的に減少することが明らかになった。これにより実験Ⅰの結果を再検討すると、実験Ⅰの原水には多量の $\text{NH}_4\text{-N}$ が含まれているので、硝化作用による $\text{NO}_3\text{-N}$ の生産量はその除去量を常に上まわっていると理解できる。実験Ⅱの原水には炭素源が不十分であるため、大部分の $\text{NO}_3\text{-N}$ は浸透水と流出することになる。

実験Ⅱの結果と考察: この実験の条件は実験Ⅱと同様であるが、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の除去率をさらに上げるために、ゼオライトろ過水に KNO_3 を注入すると同時に C:N が約1になるように炭素源としてメタノールを注入した。この実験の結果ローム、砂、粘土質砂による $\text{NO}_3\text{-N}$ の除去率はそれぞれ 58%, 42%, 73% に達した。 COD , TOC の除去率も以前と高く 70%~80% であった。実験Ⅲの結果、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度が高い場合、有機性炭素源を加えると窒素除去の増加が実現可能であることが明らかになった。

		ローム	砂	粘土質砂
実験Ⅰ	BOD	95	95	95
	TOC	60	55	70
	COD	85	60	85
	$\text{PO}_4\text{-P}$	90	60	90
	一般細菌	88~99	94~98	70~98
	大腸菌	100	99	70~100
	$\text{NH}_4\text{-N}$	70	80	80
	$\text{NO}_2\text{-N}$	85	85	85
実験Ⅱ	有機N	—	—	—
	$\text{NO}_3\text{-N}$ (メタノールを注入しない)	12.2	27.3	51.4
実験Ⅲ	$\text{NO}_3\text{-N}$ (メタノールを注入した)	58.1	42.3	73.7

4 実験Ⅰ～Ⅲのまとめ

表4は実験Ⅰ～Ⅲの全体的な水質試験結果を示す。実験Ⅰ～Ⅲにより、次のような結論が得られた。

- 1) 下水処理水を原水とする場合、土壌浸透はリン及び細菌類の除去には非常に効果的である。
- 2) 下水処理水の土壌浸透によ、て BOD はほとんど除去されるが、TOC の測定により、浸透水中にはある程度の有機性炭素の残留が確認された。
- 3) 土壌中における窒素形態の変動は最も複雑である。土壌浸透によ、て 下水処理水中の大部分の $\text{NH}_4\text{-N}$ は $\text{NO}_3\text{-N}$ に変換される。下水二次処理水の T-N に比べて浸透水の T-N は減少傾向を示すため、土壌による $\text{NH}_4\text{-N}$ の部分的吸着と固定が行なわれると考えられる。又 $\text{NO}_3\text{-N}$ も部分的に除去されるが、硝化作用による $\text{NH}_4\text{-N}$ の $\text{NO}_3\text{-N}$ への変換はその除去量を常に上まわっている。したが、て窒素の大部分は $\text{NO}_3\text{-N}$ として浸透水中に流出する。有機窒素の変化は見られなかつたが、 $\text{NO}_2\text{-N}$ は常に $\text{NO}_3\text{-N}$ に変換したと思われる。 $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度が高い場合、有機性炭素源を加えると、脱窒素の実現が可能であることが明らかになった。
- 4) この実験では水温の影響は調べられなかつた。土壌中における硝化作用は $2^\circ\text{C} \sim 35^\circ\text{C}$ の範囲内で行なわれ、特に $7^\circ\text{C} \sim 15^\circ\text{C}$ の範囲で硝化作用が促進されることに關して報告がある³⁾。この実験の水温は $15^\circ\text{C} \sim 20^\circ\text{C}$ の範囲にあるので、硝化作用は理想的な状態にあると考えてよい。
- 5) 下水二次処理水の地下浸透の賛否は特に窒素形態の変動による。下水二次処理水の窒素形態の大部分は $\text{NH}_4\text{-N}$ として存在するのでこれを何らかの方法で $\text{NO}_3\text{-N}$ に変換させ十分な炭素源を加えた後に浸透させる必要がある。
- 6) 下水二次処理水の浸透に關する技術的な問題の一つは目づまり発生である。目づまりを防止するためには、下水二次処理水の砂ろ過と塩素処理が望ましい。

5 参考資料

1. Bouwer et al "High-rate land treatment II: Water quality and economic aspects flushing Meadows Project"
Jour. WPCF. vol. 46, No. 5, PP. 845~859, May 1974 (下水道協会雑誌 No. 484 PP. 64 50年10月ヨ-ス版)
2. Burge W.D. and Broadbent F.E "Fixation of ammonia by Organisms soils"
Soil Sci. Soc. Amer. Proc. PP. 199~204 1961
3. Frederick L.R. "The formation of Nitrate from Ammonium Nitrogen in soils; I. effect of Temperature."
Soil Sci. Soc. Amer. Proc. 20 PP. 496~500 1956
4. Hunter J.V. and Kotalik T.A "Chemical and Biological quality of treated sewage effluents"
Recycling treated Municipal wastewater and sludge through Forest and Cropland
Edited by Sopper W.E and Kardos L.T. Penn. State University press 1973
5. Lance J.C. "Nitrogen Removal by Soil Mechanisms"
Jour. WPCF. Vol. 44, No. 7 PP. 1352~1356 1972 (下水道協会雑誌 No. 486 PP. 61 50年3月ヨ-ス版)
6. Preul H.C and Schroepfer G.J. "Travel of Nitrogen in Soils"
Jour. WPCF. Vol. 40, No. 1 PP. 30~48 1968
7. Silver W.S. "Studies on Nitrite Oxidizing Microorganisms; I Nitrite Oxidation by Nitro bacter"
Soil Sci Soc. Amer. Proc. PP. 197~199 1961
8. Sohn, J.B. and Peech Michael "Retention and Fixation of ammonia by soils"
Soil Sci. Vol. 85, No. 7 PP. 1~9 Jan. 1958.
9. Tilstra J.R et al "Removal of phosphorus and Nitrogen from Wastewater effluents by induced Soil percolation"
Jour. WPCF Vol. 44, No. 5 PP. 769~805 May 1972
10. 高橋 一三 "土壌の汚染と浄化作用 - 有機排水による汚染 -"
水処理技術 Vol. 13, No. 10, PP. 1~12 1972
11. 高橋 一三 "土壌の汚染と浄化作用 - 土壌の浄化作用を利用した事例"
水処理技術 Vol. 14, No. 3, PP. 231~244 1973
12. 合田 健 "富栄養化の防止を目的とした下水処理水"
用水と廃水 Vol. 15, No. 1 PP. 95~106 1975
13. ヨ-ス M.T. "地下水人工かんよう"
水道協会雑誌 No. 483, 49年12月
14. ヨ-ス M.T. "高汚濁水の地下浸透に關する研究"
第26回全国水道研究発表会講演集 50年5月
15. ヨ-ス M.T. "浸透池の目づまりに關する二、三の考察"
土木学会第30回年次學術講演会講演概要集 50年10月