

(19) 下水道系における重金属の挙動

— 重金属に関する都市環境質の総合的認識のために —

北海道大学工学部

〃

〃

○寺町 和宏

高桑 哲男

船水 尚行

1 はじめに

重金属をトレーサとして都市環境を論ずる場合、重金属にかかわる地域の自然環境を正しく認識した上で都市活動を評価することが必要である。又昨今の下水汚泥の処理処分問題を考えても合理的な下水道の計画や建設管理もまた土（系）を中心とした都市を包含する自然系に対する理解が重要である。有機汚濁としての雨天時下水に対する方策はほぼ明らかにされたが、下水道系全体における重金属に関する認識と意義づけは未だ充分とは言えない。なにがし〇の重金属を含む汚泥を土壤還元したらその危険性はどうかという発想が優占し、汚泥に重金属が含まれていることの意味が不明のまま取残されている傾向がある。そこで筆者らは下水道系における重金属の挙動の実態調査にとどまらず都市環境の質を総合的に認識するためのひとつの素材として下水道系の重金属を見直そうとするものである。したがってこの論文は現行都市に都市発生以前から内在する自然環境系の下水道系に及ぼす影きょうとしての鉄、マンガン、ヒ素の挙動を、さらに人間系を代表する環境汚染物質としての亜鉛、銅、鉛についての各種環境汚泥の中での下水汚泥の意味を明らかにすることを目的としている。

2 水(土)循環系における下水処理場の立地環境及び研究の対象とした下水処理場とその排水流域の地質特性

特に合流式下水処理場においては雨天時に土粒子が種々の部位より発生流出し下水汚泥の一部となるので、汚泥の重金属を論ずる場合には排水流域の都市活動の他に地域自然土壤の地質学的特性を把握しておかねばならない。又図-1に示すように都市下水汚泥の金属特性が下水道システム全体の立地環境を動的に表出していると考えることができるからでもある。札幌市には中心部を流れる豊平川をはさんで6つの下水処理場がある。厚別処理場が分流式の他は全て合流式で処理方式は標準活性汚泥法である。処理場の位置及び排水流域の地質特性の概略を図-2に示した。流域の南西部山地は第3紀中新世時代のグリーンタフ地域の東側に相当しており緑色凝灰岩地帯にはマンガン、亜鉛、鉛などの硫化鉱を産する豊羽鉱山（熱水成型鉱床）がある。そのことが豊平川流域の地質に鉄、マンガン、ヒ素が多いことの遠因と考えられる。地形は北部に泥炭粘土性の低湿地帯が広がっていること、豊平川扇状地には新旧2つの扇状地面があり西側と東側の間には0~15mの段丘崖があることなどが特徴となっている。

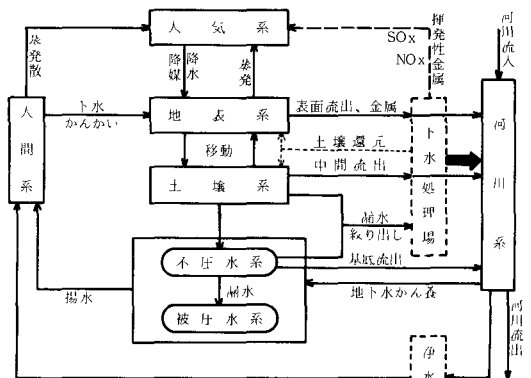


図-1 水(土)循環における下水処理場の位置

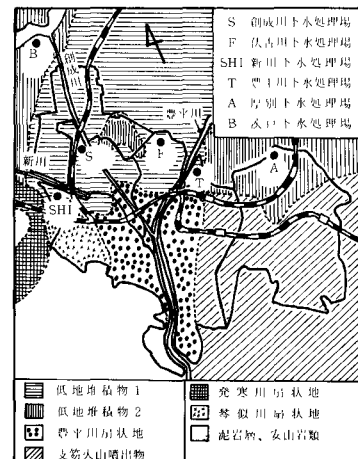


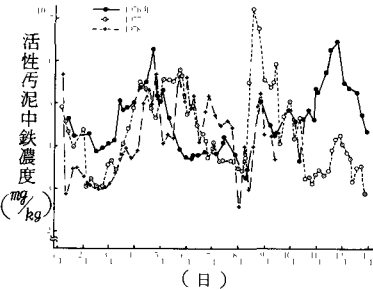
図-2 下水処理場流域と地質

3 活性汚泥中の鉄、マンガ ン、ヒ素の動向

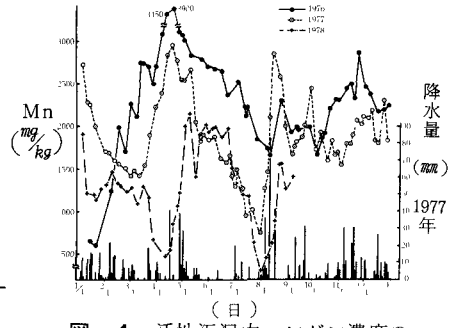
(1) 鉄、マンガンについて

札幌市中心部を排水流域とする創成川下水処理場の活性汚泥中鉄、マンガン濃度の通年変化を図一3、4に、鉄とマンガンの相関を図一5に示した。大まかには通年の季節性をもつ変動の類似性がうかがわれる。図一4には1977年の日降雨量を同時に示してあるが、降雨の後にマンガン濃度が大きく上昇していることが特徴的である。図一6、

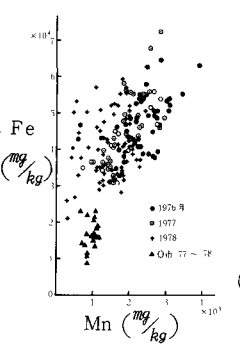
は鉄、マンガン供給の機序を明らかにするために行った通日調査の結果である。流入濃度は大きく変動しているが鉄、マンガンの関係は図一7に示すように極めて相関が良い。さらに図一6に示したように鉄、マンガンそれぞれの負荷量には大きな変動がみられない。これらのことより以下の説明がなされる。札幌市水道水の鉄、マンガン濃度はそれぞれ0.3 μ g/l、0.02 μ g/l以下であるから、流入下水中の鉄、マンガンは揚水されて利用されている地下水と下水管内への漏水（絞り出し）による地下水の2つの原因が考えられる。しかしながら用水化されている地下水は深井所（約100m以深）の比較的良好な水質のものが多く、夜半より濃度が増加し朝8時のピークに到るまで負荷量はほとんど変化していないことから後者の効果が大きいと考えられる。又鉄とマンガンの存在形態としてNa₅C₂O₄濾紙で濾別したものは0.2N-HCl可溶性濃度（全濃度の90%以上占める）に対しそれぞれ約60%、80%であったので鉄は第1鉄イオン（Fe²⁺）、マンガンはマンガニオン（Mn²⁺）として土壤中より溶出してきたものと考えられる。一方図一7に示してあるように傾きの切片が縦軸のマンガンにあることは、マンガンだけを含むような地下水の存在を示すもので比較的地表に近く酸化還元電位がFe³⁺/Fe²⁺ 0.77 volt以上MnO₂/Mn²⁺ 1.23 volt以下にある系からの溶出と考えられる。図一7中に示した浅井戸（北部低地、深度30m、ヒ素がおよそ0.045 μ g/l含まれてい



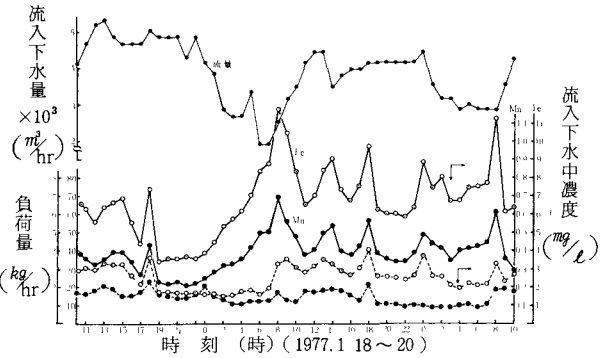
図一3 活性汚泥中铁濃度の通年変化



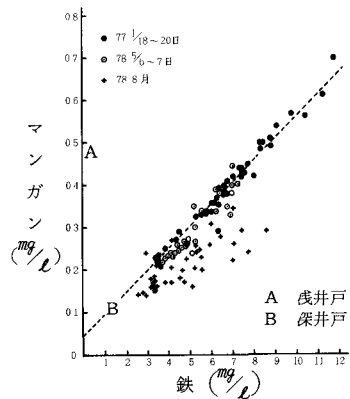
図一4 活性汚泥中マンガン濃度の通年変化



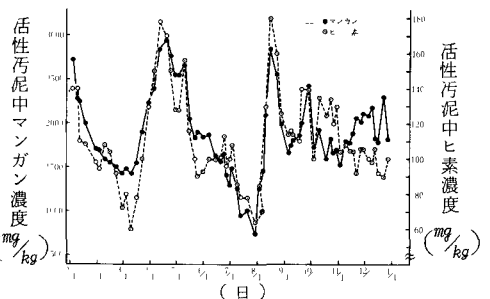
図一5 活性汚泥中铁・マンガンの関係



図一6 流入下水中铁・マンガ南通日測定例



図一7 流入下水中铁・マンガンの相関



図一8 活性汚泥中マンガン・ヒ素の通年変化

る)と深井戸(北海道大学工学部、深度 100 m)の濃度の違いからも言えることである。

又夏の渇水期に到っては図にみられるように相対的にマンガン濃度が低下するのは地下水位の低下によるものと思われる。火山灰土壌地帯に位置する帯広市下水処理場の活性泥中鉄マンガンを図-5に示してあるが相関は全くみられない。創成川処理場においても相関は良いとは言えず、その理由については後述する。

(2) ヒ素について

排水流域にヒ素を含むような特殊な工場廃水は無いのでヒ素は天然起源と考えられた。図-8、9に示すようにマンガンと良い相関を有していることから発生源は鉄、マンガンと同様と考えられる。鉄との相関が比較的に悪いのは(図省略)鉄が都市活動からの供給が多いことと、図-7 10に示したようにヒ素は鉄濃度が低くてもマンガン濃度が高い地下水に含まれていることによる。流入下水

中のヒ素とマンガンの関係は図-10に示す。同時に先に示した地下水、高濃度ヒ素を含有する北部地表土壌リーケイト(Leachate)(嫌氣的に約1ヶ月間放置した土壌より分離した清澄水)及び北部低地に位置し管内浸透地下水の割合が他の処理場に比べて高い茨戸下水処理場流入下水の値を示した。それら3種のデータがほぼ原点を通る直線上に在るのに対し、創成川下水処理場流入下水中の値は相対的にヒ素濃度が低い。このことはマンガンが含まれていてもヒ素が含まれない地下水の存在を示すものであり、図-11にみられるように他の流域の汚泥にはマンガンが多量に含まれてもヒ素がほとんど含有されていないものがあることから推察される。図-11、12において豊平、厚別系が他の処理場と大きく異なるのは地形、地質の違いによる地下水質の差によるものである。一方図-9に示した活性汚泥中のヒ素とマンガンの関係で、特に1978年のデータが他にくらべ原点を通る傾きから大きくはずれている。そこで長期データをもとに先の鉄、マンガンを含め下水処理場内での挙動に検討を加える。

(3) 下水処理系での鉄、マンガン、ヒ素の挙動

長期にわたる流入下水試料は自動サンプラーにより1日24時間のうち流入水は1、9、17じ、最初沈殿池流出水(以下沈後水)は3、11、19じにそれぞれ8日間継続採水した。24時間データをもとにそれらの時刻のデータが日平均値として妥当であることを確かめた。一例を図-13に示す。ヒ素については濃度が低く分析上の困難さのため長期データはとれていない。1978年1月より9月までの沈後水中鉄、マンガン濃度の変化を図-14に示した。活性汚泥中の濃度は図-3、4に示した通りである。これらのデータより沈後水の鉄、マンガン濃度と、活性汚泥中濃度の関係をプロットしたのが図-15である。(各プロットの添字A、B、Cはそれぞれ月の上、中、下旬を表す)。濃縮係数は鉄の方が大きく、マンガンにおいては変動が著しいと言える。マンガンの月別変化の様子をみると融雪に伴ない曝気槽水

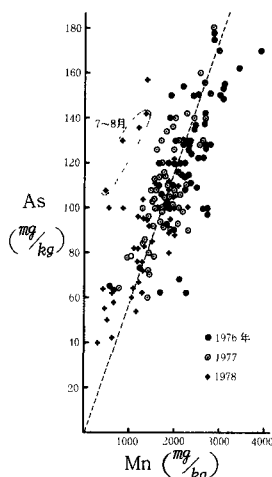


図-9 活性汚泥中マンガン・ヒ素の相関

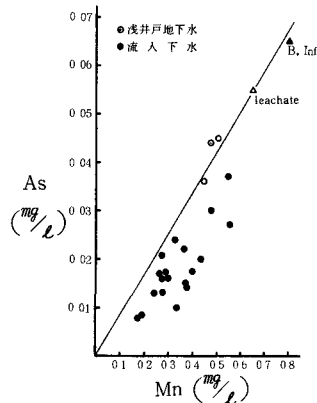


図-10 流入下水中のマンガン・ヒ素の関係

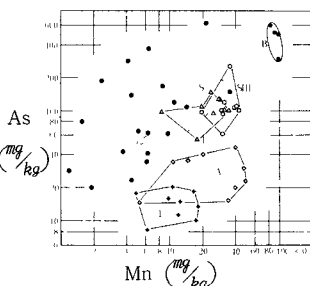


図-11 流域土壌及び活性汚泥中のマンガン・ヒ素

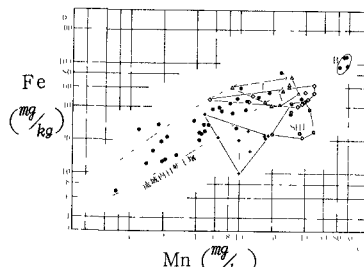


図-12 流域土壌及び活性汚泥中の鉄・マンガ

温が最も低下し（1～2月にくらべて2～3℃低い）、かつ高級処理水量が増大し平均滞留時間が低下する3～4月に濃縮率が下がり、水温の上昇とともに増加し、ふたたび高水温時7～8月上旬に低下していると言える。その変化パターンを裏づけるように処理水中の鉄マンガン濃度は図-16のようである。たとえば7月8月の処理水のマンガン濃度はおよそ0.1㎍/ℓとなっ

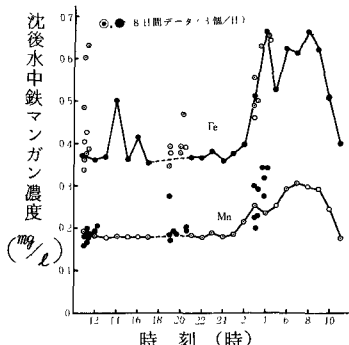


図-13 沈後水の24時間及び8日間測定例

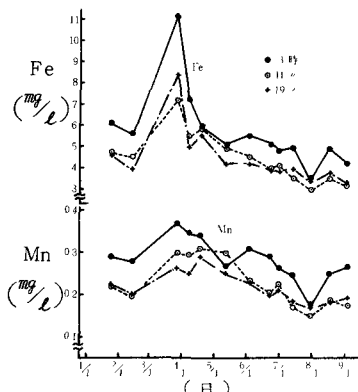


図-14 沈後水中の鉄・マンガン濃度

ており図-15中の破線の切片と良く一致している。このようなマンガンの除去率の低下の原因は3～4月においては水温の低下と反応時間が短いことであり、7～8月上旬においては曝気槽内溶存酸素濃度の低下が原因と考えられる。鉄に関しては通性化学無機独立栄養細菌である鉄バクテリアによる酸化速度が充分速いため除去率に大きな差が出ないものと考えられる。このことが図-9に示したように活性汚泥中マンガン濃度が低い、つまりマンガン除去率が低い時にもヒ素濃度が高い理由となる。鉄にヒ素は極めて吸着、共沈しやすいからである。

ヒ素の溶存状態にはヒ酸 (H_3AsO_4)、亜ヒ酸 (HASO_2) が考えられており、その解離分布曲線を図-17に示す。地下水のPHはほぼ中性であるからヒ素は HAsO_4^{2-} 、或いは AsO_4^{3-} の形で存在していることになる。又ヒ酸は次のように亜ヒ酸に変化する。

$\text{H}_3\text{AsO}_4 + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{HASO}_2 + \text{H}_2\text{O}$ 0.56 volt、いづれも水酸化鉄に容易に吸着し共沈することが知られており、ヒ酸鉄 (FeAsO_4)、亜ヒ酸鉄 (FeAsO_3) として共沈しているものと考えられる。しかしながら先に述べた浅井戸地下水中のヒ素はほとんどヒ酸として存在していること及び全鉄イオン濃度が0.1㎍/ℓ程度であることから、ヒ素を供給している土壌系の酸化還元電位は0.77 volt 以上1.23 volt 以下にあると言える。

次に最初沈殿池での鉄、マンガンの挙動を図-18に示した。溶解態のものが多いため除去率は悪く鉄33、マンガン18%となっている。又8月17日降雨の後に濃度が増加していることが明らかである。ヒ素に関して図-19は同時期の活性汚泥と薬注脱水ケーキの相関をみたもので、約50%を占める初沈汚泥と薬品の割合だけ希釈されており初沈汚泥のヒ素濃度は相当低いものと考えられる。

4 人間活動由来の亜鉛、銅、鉛の挙動

地下水由来の亜鉛、銅、鉛はいずれも極微量であるから自然系の土粒子に含まれるもの以外は全て人間活動由来である。1976年から2年9ヶ月にわたる活性汚泥中の亜鉛と銅の関係を示したのが図-20であ

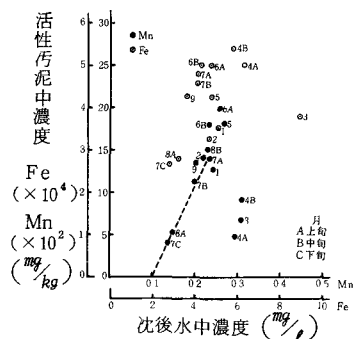


図-15 沈後水中 Fe・Mn 濃度と活性汚泥中 Fe・Mn 濃度

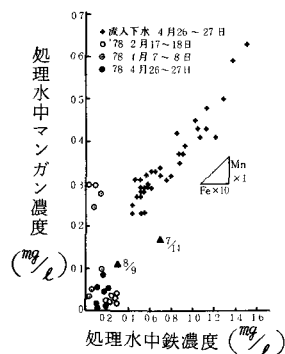


図-16 処理水中の鉄・マンガン濃度

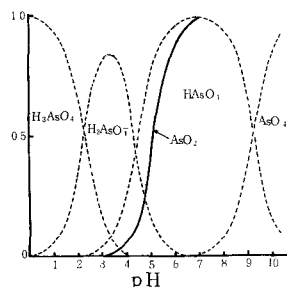


図-17 ヒ酸の解離分布曲線

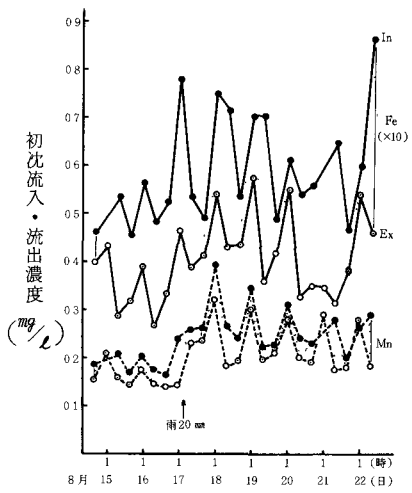
る。本来活性汚泥中の重金属濃度は既報¹⁾で展開したように量と質の関係で考察されなければならないものであるが、ここでは下水道系に内在する他系とのかかわりを統一的にみることに重点を置いているためにそのような検討はあらためて行う予定である。

図では亜鉛と銅におおよその相関がみられるが、特に銅においては変動が大きい。その原因の一部は既報で検討したが全て明らかにされたわけではない。今のところその原因として降雨があり、しかも降雨量だけではなく雨の降り方があるらしいことを指摘しておく。又、札幌市のような積雪寒冷地においては季節の変化にともなう道路やモータリゼーションの違いなどの因子の考慮が必要と思われる。図一20には創成川処理場及び住宅団地下水処理場の晴天時初沈汚泥の値を示してある。亜鉛、銅いずれも創成川処理場の方が高いことが注目される。図一21は他の下水処理場の活性汚泥中の亜鉛、銅及び創成川処理場における主要な範囲を示したものである。帯広市の銅は札幌市にくらべ明らかに濃度が高く、その原因については既報¹⁾で述べたが更に充分な検討が必要である。札幌市の各処理場間においても微妙な違いがあるがその理由は解っていない。更に長期間なデータとともに詳細な解析を必要とする。

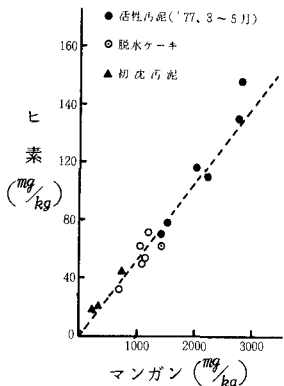
活性汚泥による亜鉛と銅の除去率に関して、図一22は沈後水中の銅、亜鉛の関係及び活性汚泥中のおおよその銅と亜鉛の関係を直線で示したものである。図より銅の方が濃縮率（除去率）が高いと言える。又最初沈殿池での除去率は図一23に示したが鉄、マンガンとは異なり亜鉛48%、銅50%と高い。したがって初沈汚泥における銅、亜鉛濃度は比較的高いものと予想される。初沈汚泥だけのデータが少ないが脱水ケーキの分析値より推定することができる²⁾。図一24は同じ日に採取した（76.1～12月）活性汚泥と脱水ケーキそれぞれにおける亜鉛と銅の関係を示した。亜鉛と銅のどちらも薬注率（塩化第2鉄5%、消石灰20～40%）以上に希釈されていることから初沈汚泥中の銅及び亜鉛は平均的には活性汚泥中の濃度よりやや低いものと考えられる。

一方鉛に関しては図一25に示すように上述のような希釈効果はみられない。脱水用薬品からの鉛の寄与はそれ程大きくはないので初沈汚泥自体にかなり濃度の高い鉛を含むようなものが存在することを示している。

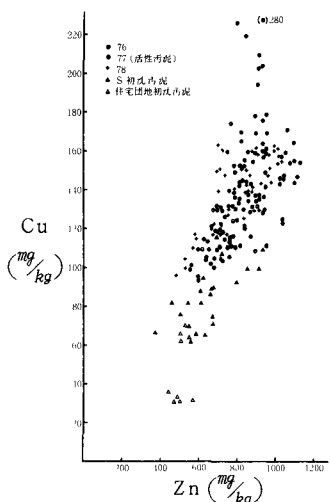
筆者らによる既報論文^{1),7)}において雨天時流出土壌粒子の重金属について言及したが、さらに雨水ますに存在する土粒子も含めて亜鉛、銅、鉛の相互関係を示したのが図一26、27である。雨天時流出汚泥は比較的高いVSS%の高い（30～45）ほこり状繊維質部分と土粒子部分に分けてある。



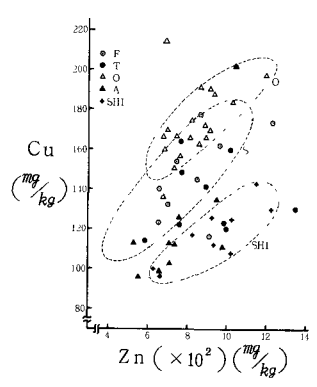
図一18 最初沈殿池での鉄・マンガンの挙動



図一19 活性汚泥及び脱水ケーキ中のヒ素



図一20 活性汚泥中の亜鉛と銅の関係



図一21 各下水処理場における亜鉛と銅の関係

亜鉛-銅の濃度に関しては路上から雨水ます、雨天時流出汚泥に向って濃度が高くなる傾向がみられる。それに対して鉛は路上及び雨水ますにおいてすでに高いレベルにあると言える。このことは鉛の汚染が主に地表路面で行なわれているのに対し、亜鉛、銅の場合は、それに加えて下水管内において濃縮反応が大きいと言えよう。鉛は蓄電池、鉛管板、はんだ、ガソリンなど多くの用途に使われ発生源の多様さは他の有害金属にくらべて大きいものがある。図一28は処理場別の活性汚泥中鉛濃度を対数目盛でプロットしたものである。T処理場以外は特定の鉛を出す事業所は無いと言われているが、いずれも住宅団地の活性汚泥にくらべて高く、又処理場別に明らかに差があると言える。同時に示した大阪市の脱水汚泥は10ヶ所の処理場からのデータ（昭和48～50年）であり、いずれの処理場においても高い値を示しているのが特徴的である。他の有害重

金属についても言えることであるが、重金属が各排水区域、或いは地域において日、月、年にわたる経時的変化（反応）過程にあるのかを明らかにしてゆくことは都市の反応ポテンシャルという観点からも最も重要な今後の課題である。

5 土-水-気系を通した下水汚泥の位置

銅、鉛、亜鉛を例に土系として自然地表土壌及び都市路面土粒子、水系として雨天時流出土粒子及び活性汚泥、気系として降下媒塵を選びそれぞれを両対数紙上にプロットしたのが図一29、30である。札幌市の降下媒塵は市の平均的な位置を占めるとされる札幌駅より北へ約 600 m のビル7階屋上にて1ヶ月毎に採取したものである（77.4～78.9）。各試料種を示す亜鉛-銅においてはほぼ正の相関を保ちながら自然土壌から路面土粒子、降下媒塵、活性汚泥へという自然系から人間系への推移をみることができる。又降下媒塵と路面土粒子の濃度の高い部分において類似性がみられる。一方、鉛においては亜鉛-銅とは異なり雨天時流出土粒子が活性汚泥系とやや異なっていると言える。札幌市以外のものとして京都市降下媒塵³⁾、東京都路面土粒子⁴⁾、及び下水処理場（8箇所）⁵⁾、大阪市路面⁶⁾及び脱水汚泥の範囲を示したが、これらのデータからも札幌市の場合と同様な路面土粒子と降下媒塵系の類似性がうかがわれる。これらの関係より活性汚泥の重金属濃度がその都市環境の平均的な質を具体化していると抽象することが出来る可能性があるとえよう。一方、積雪寒冷地である札幌市における春先の道路は

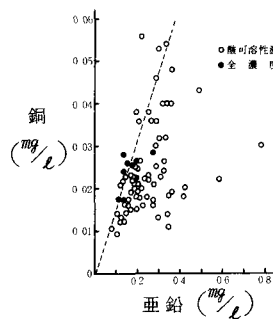


図-22 沈後水中の亜鉛と銅

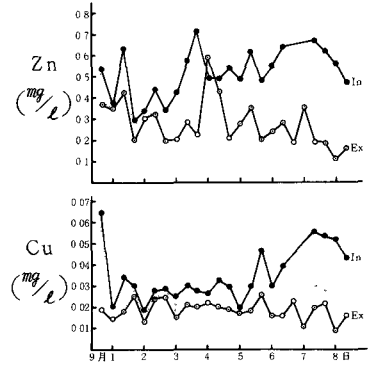


図-23 最初沈殿池での亜鉛と銅の挙動

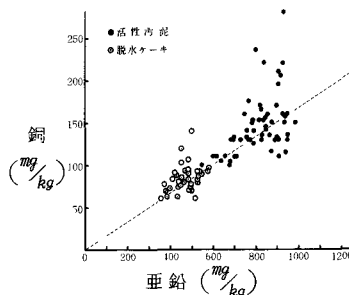


図-24 活性汚泥及び脱水ケーキ中亜鉛と銅の関係

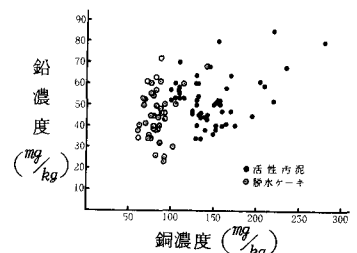


図-25 活性汚泥及び脱水ケーキ中銅と鉛の関係

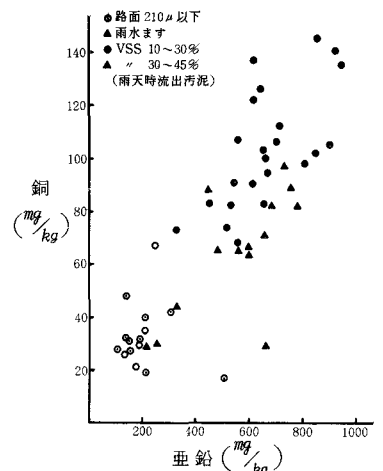


図-26 路面-雨水ます一雨天時流出汚泥中の亜鉛と銅

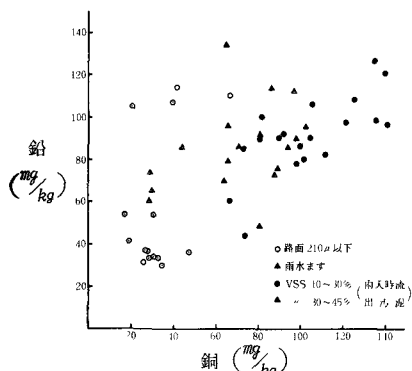


図-27 路面一雨水ます一雨天時流出汚泥中の銅と鉛

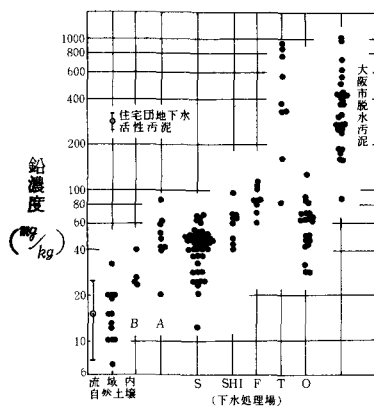


図-28 各処理場別活性汚泥中の鉛濃度

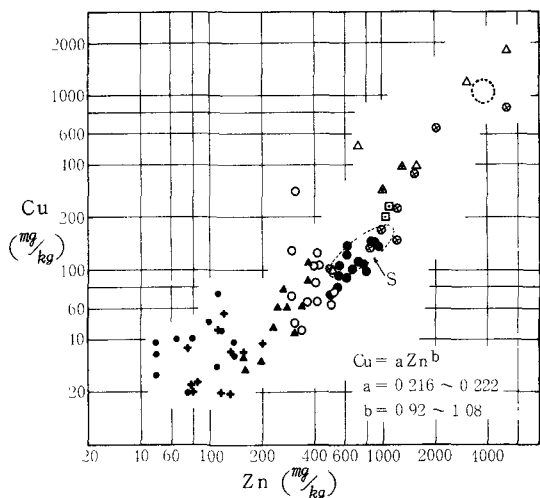


図-29 下水道系における亜鉛-銅の位置

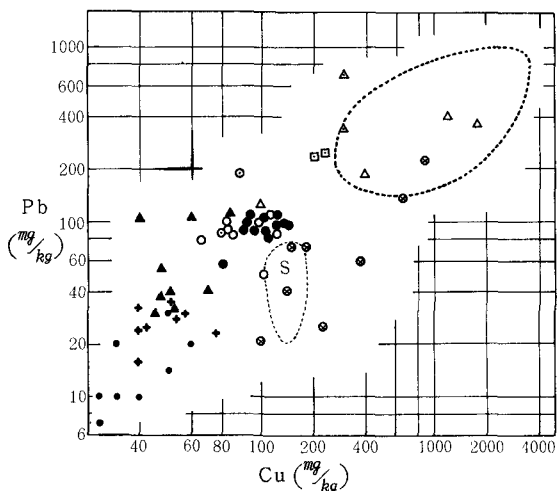


図-30 下水道系における銅-鉛の位置

スパイクタイヤなどにより多量の路面摩耗粒子を発生する。よって図に示してあるように春先の路面粒子の重金属濃度はかなり低いものである。それに対し他の札幌市路面粒子は6～10月に採取したものであり、汚染の進行と希釈（拡散）が繰返されていると言える。これらはほとんどモータリゼーションに帰因すると思われるが他の非積雪寒冷地での状況とは大きく異なるものであろう。

6 おわりに

下水処理場においてカットされるものの量と質はおさえることが可能であるが、雨水吐、風送、表面流出などを通じて外環境に流出するものの量と質は底泥を含めた河川系などでの検討を通じて明らかにされなければならない。そこで活性汚泥は種々の情報を人間（系）にフィードバックしているものである。先にも若干述べたが降下媒塵や活性汚泥に具体される環境質のレベルを決めるような都市内の汚濁ポテンシャルは如何にして構成されてゆくものか decade scale のデータをとることの他に地域ごとの都市代謝の特徴をおさえたデータをとることが望まれる。筆者は下水汚泥は全て土壌還元へという考えを持っているわけではな

● 流域内自然土壌	◆ 春先の路面土粒子
▲ 札幌市路面土粒子	● 雨天時流出土粒子
△ 東京都路面土粒子	△ 大阪市路面土粒子
○ 札幌市降下媒塵	□ 京都市降下媒塵
◎ 東京都活性汚泥	○ 大阪市脱水土泥

く、都市下水処理場より発生する汚泥の重金属が農業利用出来るものであることの意味が人間系の環境にとって充分大きいことを強調しているのである。

最後に札幌市下水処理場の皆様には多大な便宜をいただき厚く謝意を表す。

1) 寺町、高桑；下水汚泥の量と質に関する研究、第14回衛生工学研究討論会講演論文 P 97～102
1978年1月

2) 寺町；下水脱水汚泥の重金属濃度は如何にして決まるか、下水道協会誌 vol 14 No 153、昭(52)

3) 寺島、他；京都市南部工業地帯における大気降下物中重金属ならびに土壌中重金属について、文部省科学研究報告書、「環境における重金属の循環と蓄積過程の解析に関する研究」研究代表者 平岡正勝
昭和53年2月

4) 寺町、神山；下水汚泥重金属濃度の評価に関する研究、第12回衛生工学研究討論会講演論文集
1976年1月

5) 松重、他；下水処理における重金属の濃縮に関する一考察 第14回下水道研究発表会講演概要集
昭52年

6) 末石、他；都市生活系の雨天時汚濁流出に関する研究；第31回土木学会年講集 昭(51)

7) 寺町、高桑；合流式下水道システムにおける重金属流出と下水汚泥重金属濃度 第13回衛生工学研究討論会論文 1977年1月

(他の参考になった文献)

- 寺島泰；都市環境における重金属の移行と蓄積；(同上)
- 末石富太郎；都市の制御と水質汚濁研究 第10回水質汚濁研究に関するシンポジウム講演集、日本水質汚濁研究会 1976年2月
- 盛岡通、他；現存特性からみた汚泥環境に関する基礎的研究 水処理技術 vol.16, No.9 (1975)