ツバル国海岸の重金属汚染の評価と既設の Septic Tank の活用を想定した除去手法の検討

王 峰宇¹・石渡 恭之²・藤田 昌史^{3*}

¹学生会員 茨城大学大学院理工学研究科博士前期課程 都市システム工学専攻
(〒316-8511 茨城県日立市中成沢町 4-12-1)

²正会員 茨城県工業技術センター主任 先端技術部門 (〒311-3195 茨城県東茨城郡茨城町長岡 3781-1)

³正会員 茨城大学准教授 工学部都市システム工学科 (〒316-8511 茨城県日立市中成沢町 4-12-1)

*E-mail: fujita@mx.ibaraki.ac.jp

ツバル国 Fongafale 島の高人口密度地域付近の海岸底質を対象に、重金属汚染状況を調べた。コアサンプルを採取したところ灰色層と白色層が見られ、灰色層からは相対的に高い酸揮発性硫化物 (AVS) が検出された。また、生活排水が潮汐に伴い地中を経て海岸に浸み出していることを考慮すると、灰色層は生活排水の流出経路であると考えられた。既存の底質重金属汚染度指標を用いて灰色層と白色層を判定した結果、いずれも重金属汚染があるとわかった。次に、現地の Septic tank を想定した排水処理装置で都市下水を用いて重金属除去能力を調べた。その結果、Pb, Zn, Cu は主に金属硫化物として除去されたと考えられ、それぞれ 68%, 85%, 87% の除去率が達成された。

Key Words: heavy metal, sediment, domestic wastewater, sulfate reduction, Pacific atoll

1. はじめに

太平洋には、約 400 の環礁が分布していると言われている¹⁾。この地域一帯の環礁州島では、砂の起源は主に有孔虫殻であるが、人為的な水質汚濁等の影響を受けて、有孔虫の存在量が低下している²⁾。例えば、中部太平洋に位置するツバルは 9 つの環礁からなる国であるが、標高 2~3m 程度の低平な地形である。そのため、将来の海面上昇を想定すると、このような水質汚濁に起因する砂生産力の劣化は、国土維持問題をさらに深刻化させる懸念がある。

ツバル国の高人口密度地域である首都 Fongafale 島 (8300 人/km²) 海岸における主な汚濁源は生活排水であると報告されている³⁾。衛生施設として、Septic tank や Pit toilet がそれぞれ 66%, 26% 普及している⁴⁾。しかし、Septic tank は底部が施工されていない。そのため、Septic tank 内の生活排水や土壌に浸透したし尿が、潮汐に伴い海岸へ浸出している³⁾。そして、ラグーン海岸では日本の環境基準値の 25 倍の大腸菌が検出されている³⁾。また、この地域の海岸底質は、同島の自然地域の底質よりも重金属が多く存在することも報告されている⁵⁾。このような海岸水質汚濁・汚染はツバル国に限らず、マーシャル

諸島やキリバス国などでも起こっていると考えられる。したがって、中部太平洋地域の環礁国の水質問題と捉えて、生活排水や重金属の問題に対して、早急に対策を講じる必要がある。

本研究では、まず、ツバル国の首都 Fongafale 島の海岸底質の重金属汚染状況を生活排水の流出経路に着目して調べた。次に、中部太平洋の環礁国で広く普及している Septic tank を利用することを想定した排水処理装置を用いて、都市下水中の重金属を除去する手法を検討した。

2. 方法

(1) 調査地点と底質の採取

ツバル国の首都 Fongafale 島の高人口地域付近の海岸 (Site-1, Site-2, Site-3) と無人島である Fualifeke 島の海岸 (Site-0) を調査対象とした (図-1)。

底質のコアサンプリングには、直径 50mm の塩ビ管を用いた。Site-1, Site-2 は水深 10cm の地点であり、Site-3 はこれらの地点よりもラグーン中央側にあり、水深 1m の地点であった。コアサンプルを採取すると、灰色層と白色層が見られたため、層ごと

図1 調査地点

に底質を分取した。Site-1, Site-2 では、上層 10cm ほどの白色層と下層 10cm ほどの灰色層が得られ、Site-3 では逆に、上層 10cm ほどの灰色層と下層 10cm ほどの白色層が得られた。したがって、高人口密度地域付近の海岸では合計 6 本のコアサンプルを得た。また、対照系として無人島海岸の Site-0 でも 1 本のコアサンプルを得た。このサンプルは白色層のみであり、灰色層は確認されなかった。

サンプリング直後に硫化物測定キット (Gastec, Model 201H, 210L) を用いて、酸揮発性硫化物 (AVS) を測定した。別途測定した底質の乾燥重量を用いて、単位底質重量あたりの酸揮発性硫化物量 (mg-S/g) として示した。いずれの地点でも、底質の組成は約 97% が砂、約 3% が粘土、シルトであった。

(2) 底質の重金属含有量

底質中の重金属含有量を測定するため、硝酸・塩酸を用いた前処理⁶⁾を行い、誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS, Agilent 7500cx) で Cr, Mn, Ni, Cu, Zn, Cd, Pb の濃度を測定した。別途測定した底質の乾燥重量を用いて、それぞれの重金属の含有量 ($\mu\text{g/g}$) を求めた。

重金属による汚染度を自然地域と比較するために、CF 指標 (Contamination factor index)⁷⁾ (式 (1)) と PLI 指標 (Pollution load index)⁸⁾ (式 (2)) を用いた。

$$CF = \frac{C}{C_{\text{Fualifeke}}} \quad (1)$$

ここで、 C : 重金属含有量, $C_{\text{Fualifeke}}$: Fualifeke 島 (対照系) の重金属含有量である。 $CF > 1$ ならば低度の汚染, $1 < CF < 3$ ならば中度の汚染, $3 < CF < 6$ ならば高度の汚染, $CF > 6$ ならば非常に高度の汚染があることを意味する⁷⁾。

図2 現地のボトムレス Septic tank を想定した排水処理装置の運転フロー

$$PLI = \left(\prod_i^n CF_i \right)^{\frac{1}{n}} \quad (2)$$

ここで、 n : 対象とした重金属の数である。本研究では、Cr, Mn, Ni, Zn, Pb を対象としたことから $n=5$ である。 $PLI > 1$ のときは重金属汚染がある、 $PLI < 1$ のときは重金属汚染がないと解釈する⁸⁾。

また、高人口密度地域付近と自然地域の海岸における底質中の重金属含有量の非類似性を評価するため、得られた重金属含有量のデータを用いて、主成分分析とクラスター解析を行った。計算には、PASW Statistic 18 (SPSS 社) を用いた。

(3) 現地のボトムレス Septic tank を想定した排水処理装置

現地のボトムレス Septic tank は、満ち潮時に海水が浸入することから、担体を利用するなどにより引き潮時の汚泥流出を抑制することができれば、海水中に 900mg-S/L 程度含まれる硫酸塩を利用することにより、硫酸塩還元による有機物除去が可能になる⁹⁾。ここでは、有機物除去過程で重金属も除去可能か検討することを目的とした。

本研究で用いた排水処理装置は、前述した底部が施工されていない Septic tank に海水が浸入することを考慮して、図-2 に示したように海水を投入・排水した。また、投入した海水中的重金属を調べたところ、Cr, Mn, Ni, Cu, Zn, Cd, Pb の含有量は、それぞれ $4.73 \pm 1.59\mu\text{g/L}$, $17.7 \pm 9.76\mu\text{g/L}$, $2.30 \pm 0.44\mu\text{g/L}$, $4.92 \pm 2.35\mu\text{g/L}$, $7.16 \pm 5.93\mu\text{g/L}$, $0.23 \pm 0.01\mu\text{g/L}$, $2.31 \pm 1.59\mu\text{g/L}$ (各 $n=6$) であった。1 サイクル 24 時間の運転工程は、流入・攪拌工程 (21.75 時間)、沈殿・排水工程 (1.25 時間)、海水投入・沈殿・排水 (1 時間) とした。流入水として、分流式の公共下水処理施設の最初沈殿池越流水を用いた。水理学的滞留時間は 1.5 日、余剰汚泥の引抜きは行わず、水温は現地を模擬して 30°C とした。本装置は 916 日間にわたり運転しているが、後述の検討を行う直前の MLVSS は $1.2 \pm 0.2\text{g/L}$ 、1 サイクルの TOC ベースの有機物除去率は $82.4\% \sim 91.1\%$ 、

硫酸塩の消費は最大で約 7mg-S/L/d であった。

(4) 排水処理装置内での硫化金属の沈殿生成の可能性評価

本処理装置内で、流入水中の重金属が硫化金属として沈殿生成する可能性を検討した。判定には式(3)¹⁰⁾を用いた。

$$\gamma^2[M^{2+}][S^{2-}] > K_{sp} \quad (3)$$

ここで、 γ ：難溶性電解質の平均活量係数、 $[M^{2+}]$ ：各種の重金属イオンのモル濃度、 $[S^{2-}]$ ：硫黄イオンのモル濃度、 K_{sp} ：溶解度積を表す。 γ は処理水の塩分濃度から計算したイオン強度を用いて求めた^{11),12)}。 $[M^{2+}]$ は、後述する処理水中の重金属濃度を与えた。 $[S^{2-}]$ は、処理水中の硫黄イオンを硫化物測定キット(HACH)で分析し、その値を与えた。 K_{sp} は、本処理装置の水温 30℃の重金属硫化物の溶解度積を、想定した硫化金属(MnS, NiS, CuS, ZnS, CdS, PbS)の標準生成 Gibbs エネルギーから算出した¹³⁾(CrS は関連データが見当たらなかったため、計算しなかった)。

(5) 排水処理装置の重金属除去率の算出

排水処理装置の運転開始後 726~740 日の間のサイクルで、流入水、処理水、活性汚泥混合液を採取した(n=6)。そして、硝酸・塩酸による煮沸溶出法¹⁴⁾による前処理を行い、前述した底質と同様の方法で重金属濃度を測定した。

本装置の重金属除去率 η を式(4)により求めた。

$$\eta = \left(1 - \frac{C_{Effluent}}{C_{Influent}}\right) \times 100 \quad (\%) \quad (4)$$

ここで、 $C_{Influent}$ ：流入水中の重金属濃度、 $C_{Effluent}$ ：処理水中の重金属濃度である。本装置は海水を投入・排水しているが、ここでは流入水中の重金属の除去に着眼することと、海水中の重金属濃度が流入水より低く、海水の投入・排水・流入水の投入というフローでさらに 4.5 倍希釈されるため、海水中の重金属は考慮しないこととした。

(6) バッチ試験による pH と重金属除去能力の関係の評価

本排水処理装置における pH の変動が、重金属除去率に及ぼす影響を調べるために、活性汚泥混合液を採取してバッチ試験を行った。pH を 6.4, 6.6, 6.8, 7.0, 7.2, 7.4 に制御して、攪拌混合した。30 分後に採水してろ過し、前述と同様の方法で溶存態の重金属濃度を測定した。バッチ試験に用いた活性

汚泥混合液を採取したときの排水処理装置内の pH は 6.9 であった。

3. 結果および考察

(1) ツバル国海岸の底質の重金属汚染の評価

(a) 底質の重金属含有量

Fongafale 島 (Site-1, Site-2, Site-3) と Fualifeke 島 (Site-0) で採取した底質の AVS の結果を表-1 に示す。無人島である Site-0 では AVS は検出されなかった。Site-1, Site-2, Site-3 では、灰色層の底質は 0.102~0.111mg-S/g であったのに対し、白色層では 1/10 以下であった。このように灰色層では、相対的に高い AVS が、有効虫砂が灰色化していたことに関係したと考えられる。

Fongafale 島では、前述したように衛生施設として Septic tank や Pit toilet が合計約 92% 普及している⁴⁾。しかし、Septic tank は底部が施工されておらず、いわゆるボトムレスである。この島は主に有効虫砂で形成されていることから透水性が高い¹⁵⁾。それゆえ、満ち潮時には海水が地中を通して Septic tank や Pit toilet の内部に浸入する。そして、引き潮時には内部の生活排水が海水とともに地中を経て海岸に浸み出しており、これが主要な海岸水質汚濁の原因であることが報告されている³⁾。上述したように、AVS が相対的に高い灰色層 (Site-1, Site-2 の下層と Site-3 の上層) では、生活排水に含まれる有機物と、海水に 900mg-S/L 程度含まれる硫酸イオンにより、硫酸塩還元反応が起こっていたものと考えられる。したがって、灰色層は生活排水の流出経路であると考えられる。

次に、灰色層と白色層の底質の重金属含有量を Fualifeke 島の結果とあわせて表-2 に示す。灰色層の重金属含有量は Fualifeke 島より高かった。特に Cu は、灰色層では 3.70μg/g であったのに対し、Fualifeke 島の底質からは検出されなかった。Cd は、逆に Fualifeke 島でのみ検出されたが (0.0185μg/g)、同島で検出された他の重金属よりも含有量が少なかった。Cu と Cd 以外の重金属の含有量は、灰色層の底質の方が高かった。特に、Pb は 2 オーダーも高かった。既報では、台所排水や洗濯排水にも Cr, Mn, Cu, Zn, Cd, Pb が含まれることが報告されている¹⁶⁾。また、前述したように、灰色層は生活排水の流出経路になっていると考えられることから、灰色層から検出された相対的に高い濃度の重金属は、生活排水に由来するものと考えられる。一方、白色層の重金属含有量も灰色層とほぼ同程度であった。

図3 主成分分析とクラスター解析の結果

表1 採取した底質コアサンプルの AVS

	位置	色	AVS(mg-S/L)
Site-0	上層	白色	N.D.
Site-1	上層	白色	0.011
	下層	灰色	0.102
Site-2	上層	白色	0.006
	下層	灰色	0.111
Site-3	上層	灰色	0.108
	下層	白色	N.D.

灰色層や白色層の底質と Fualifeke 島の底質の重金属組成の非類似性を調べるために、主成分分析とクラスター解析を行った(図-3)。第一主成分の寄与率は78.4%、第二主成分の寄与率は10.8%、第二主成分までの累積寄与率は89.2%であった。重金属含有量が大きく異なった灰色層と Fualifeke 島は、離れて付置された。白色層も Fualifeke 島からは離れていたが、灰色層の周りに付置された。クラスター解析の結果、灰色層と白色層は、Fualifeke 島との距離の20%以内でクラスタリングされていたことから、灰色層と白色層の重金属組成の類似性は相対的に高いといえる。この地域には、他の環礁で見られるような難破船など、重金属の供給源が付近にはないことから、底質の表層から重金属が混入した可能性は考えにくい。一方、ツバルの最大潮位差は約2m あることから¹⁷⁾、白色層から重金属が検出されたのは、生活排水の流出経路である灰色層に存在する重金属が、潮汐にともない鉛直方向に分布したものと考えられる。

前述したように、灰色層では硫酸塩還元反応が起こっていることから、生成した H_2S と重金属が反応して硫化金属として存在した可能性が考えられる。一方、表-1に示したように、白色層で AVS が検出されていない地点もあった。灰色層における金属化合

表2 底質の重金属含有量

	Fualifeke	灰色層	白色層
Cr (μg/g)	2.26±0.00	5.41±1.01	4.93±0.88
Mn (μg/g)	2.32±0.00	3.23±0.39	3.57±1.09
Ni (μg/g)	0.0649±0.0013	1.46±0.14	1.52±0.21
Cu (μg/g)	N. D.	3.70±1.15	2.10±0.67
Zn (μg/g)	6.21±0.02	25.1±0.7	22.2±2.6
Cd (μg/g)	0.0185±0.0001	N. D.	N. D.
Pb (μg/g)	0.369±0.001	18.2±2.9	17.4±1.4

表3 既存の重金属汚染度指標による評価

	CF							PLI
	Cr	Mn	Ni	Cu	Zn	Cd	Pb	
灰色層	2.4	1.4	2.3	-	4.0	-	49.2	4.3
白色層	2.2	1.5	2.3	-	3.6	-	47.1	4.2

物は潮汐により白色層に分布すると、白色層は灰色層のような嫌気状態ではないため、硫化金属は酸化された可能性がある。そのため、金属イオンは硫化金属ではない他の形態で存在していると考えられる。例えば、有機酸と有機金属錯体⁵⁾を形成していた可能性や微生物の細胞外高分子¹⁸⁾に吸着されていた可能性が挙げられる。

(b) 底質の重金属汚染度

表-2に示した Fongafale 島の海岸底質の重金属含有量は、環礁以外の環境、例えば海岸や河川の底質の重金属含有量^{19), 20), 21)}よりも著しく低かった。前述したように、中部太平洋に位置する環礁の砂の起源は主に有孔虫殻であり、自然の岩石由来の底質¹⁸⁾に比べると重金属含有量は極めて低い。したがって、有孔虫やサンゴなどは、自然状態ではバックグラウンドの重金属含有量が低いなかで生息している。それゆえ、ここでは自然状態に近い Fuarifeke 島の底質の重金属含有量と比較して、Fongafale 島海岸の底質の重金属汚染度を算出した(表-3)。

Cu と Cd 以外の重金属について、CF 指標を適用したところ、灰色層やその上下にある白色層でも Cr, Mn, Ni については中度の汚染、Zn については高度の汚染、Pb については非常に高度の汚染と判定された。また、PLI 指標を適用したところ、灰色層と白色層の値は1を上回った。以上の結果から、ツバル国首都 Fongafale 島の高人口密度地域付近の海岸の底質は、重金属汚染があると判断される。

表4 溶解度積を用いた排水処理装置内で硫化金属の沈殿生成の可能性評価

	S^{2-} (mg/L)	M^{2+} (μg/L)	$V^2[S^{2-}][M^{2+}]$	K_{sp}
MnS	0.015	30.9	8.7×10^{-11}	7.7×10^{-14}
NiS		46.8	1.4×10^{-10}	2.4×10^{-21}
CuS		2.3	7.6×10^{-12}	5.0×10^{-36}
ZnS		12.1	4.0×10^{-11}	7.5×10^{-25}
CdS		0.0	0.0	4.2×10^{-29}
PbS		0.3	2.9×10^{-12}	2.6×10^{-28}

(c) 現地のボトムレス Septic tank を想定した排水処理装置による重金属除去

前述したように、本処理装置内では硫酸塩の消費が認められたことから、硫酸塩還元反応が起こっていると考えられる。したがって、硫酸塩還元反応で発生する硫化水素 (H_2S) と流入水中の重金属が反応して、中性域で溶解性が極めて低い硫化金属が沈殿生成することにより^{22), 23)}、重金属が除去できる可能性がある。

そこで、式 (3)¹⁰⁾を用いて、本処理装置内で、流入水中の重金属が硫化金属として沈殿生成する可能性を検討した。その結果を表-4に示す。想定したCdS以外のすべての硫化金属について、式 (3) が成り立った。つまり、本処理装置内で重金属は硫化金属になり沈殿生成することにより除去される可能性があると判定された。

流入水、処理水の重金属濃度を分析した結果を図-4に示す。除去率を求めると、Cu、Zn、Pbはそれぞれ87%、85%、68%であった。つまり、前述したツバル国 Fongafale 島の高人口密度地域付近の海岸底質のCF値が最も高かったPbとZn及び、無人島のFualifeke島では検出されず、この地域のみで検出されたCuに対する除去率が高かった。一方、Niは逆に処理水中の濃度が流入水より3.8倍も高かった。

活性汚泥中の重金属を分析したところ、Niの含有量は $1.03 \pm 0.115 \text{ mg/g}$ であり、活性汚泥中に最も多く蓄積されている重金属であった。この多く蓄積したNiが主にNiSで存在したとすると、硫化金属は弱酸塩であり、沈殿生成はpHの影響を受けやすい。したがって、処理水中のNi濃度が高かった原因は、

図4 排水処理装置の重金属除去率

処理装置内のpHが関係した可能性が考えられる。

そこで、パッチ試験により各pHの条件での活性汚泥混合水中の重金属濃度を調べた結果を図-5に示す。Cr、Mn、Cu、Zn、Cd、Pbの濃度は、変化がほとんど見られなかった。一方、NiはpHが高いほど濃度が低くなった。pH7.4のときには、pH6.4のときより18μg/L低下した。活性汚泥混合液中のpHが高くなると、溶存態Niは不溶存状態になり、沈殿したと考えられる。このことは、Niの硫化では、pHを5.5以上に上げると溶存態のNiの濃度はほぼ直線的に減少するという報告²⁴⁾と一致した。しかし、pH7.4でも図-4に示した流入水の濃度を上回っていた。

この結果を踏まえると、前述した処理水のNi濃度が流入水よりも高かった理由として、硫酸塩還元反応にともなう処理装置内のpH変動が考えられる。本研究は、前述したように排水処理装置の流入水として、都市下水を用いている。そのため、気温が高い時期には、下水が下水管を流下する過程で、硫酸塩還元細菌のエネルギー源となる乳酸などの低級脂肪酸が生成されやすい。この時期の下水を流入水として用いると、処理装置内の硫酸塩還元細菌の活性が高くなり、硫酸塩がより消費されることにより処理装置内のpHが高くなる。そして、NiSは沈殿し処理装置内に蓄積していく。一方、気温が低い時期には、逆に硫酸塩還元反応は起こりにくくなり、処理装置内のpHは高くならず、沈殿したNiSが徐々に溶出すると考えられる。排水処理装置の重金属除去能力を検討した726~740日目は10月にあたるため、このような理由が関係したと考えられた。現地に適用する際には、現在の処理装置では行っていない汚泥引抜きを実施して、汚泥内のNi含有量を適切なレベルに保つことで、処理水中のNiが沿岸生態系に影響を及ぼさないか検討する必要がある。

以上の実験結果や溶解度積の試算から、NiとCd

図5 pHが重金属の除去に与える影響（バッチ試験）

以外の5種類の重金属は硫化金属としておおむね除去できる可能性が示された。ただし、前述したように、バッチ試験でpHを上昇させてもCr, Mn, Cu, Zn, Cd, Pbの濃度がほとんど変化していなかったことから、活性汚泥表面への吸着¹⁸⁾や有機酸との錯体形成¹⁹⁾などによる除去も複合的に起こっていた可能性がある。

4. 結論

ツバル国 Fongafale 島の高人口密度地域付近の海岸底質中のCr, Mn, Ni, Cu, Zn, Cd, Pbを分析し、既存の底質重金属汚染指標CFとPLIを用いて評価した結果、生活排水の流出経路である灰色底質層でも、その上下層の白色底質層でも重金属汚染があると判定された。特にPbとZnの汚染が著しかった。底質中の重金属は潮汐に伴い海水中に流出している可能性も考えられるため、砂生産者である有孔虫の生息に影響を与えている可能性が考えられる。

現地のボトムレス Septic tank の活用を想定した排水処理装置で都市下水を用いて重金属除去能力を調べたところ、前述のPbとZn及び、無人島のFualifeke島では検出されず、Fongafale島でのみで検出されたCuの除去率は、それぞれ68%, 85%, 87%を達成できた。しかし、pHの影響を受けて、処理装置内に沈殿したNiSが溶出して、Niの多く含む処理水を排出してしまう可能性があることから、汚泥引抜きを実施しない運転ではNiの除去が難しいことがわかった。処理水中のNiが沿岸生態系に及ぼす影響を明らかにして、処理目標を設定するとともにNiの除去方法を検討していく必要があるが、有機物除去過程で重金属除去もおおむね可能になることが示されたことから、今後、現地の排水や実施設で検討を進めることが課題になる。

謝辞

本研究は、JST/JICA SATREPS (0808918), JSPS KAKENHI (24560658)の支援を受けた。ここに記し、深甚なる謝意を表する。

参考文献

- 1) 茅根創：環礁州島の地形形成維持に関わる生態プロセス, 水環境学会誌 33(8), pp. 245-248, 2010.
- 2) Osawa, Y., Fujita, K., Umezawa, Y., Kayanne, H., Ide, Y., Nagaoka, T., Miyajima, T., Yamano, H. : Human impacts on large benthic foraminifers near a densely populated area of Majuro Atoll, Marshall Islands, Mar Pollut Bull 60, pp. 1279-1287, 2010.
- 3) Fujita, M., Suzuki, J., Sato, D., Kuwahara, Y., Yokoki, H., Kayanne, H. : Anthropogenic impacts on water quality of the lagoonal coast of Fongafale Islet, Funafuti Atoll, Tuvalu, Sustainability Science 8, pp. 381-390, 2013.
- 4) Secretariat of the Pacific Community : Tuvalu 2002 Population and Housing Census, Volume 1 Analytical Report, Secretariat of the Pacific Community, Noumea, 2005.
- 5) Fujita, M., Ide Y., Sato, D., Kench, P., Kuwahara, Y., Yokoki, H., Kayanne, H. : Heavy metal contamination of coastal lagoon sediments : Fongafale Islet, Funafuti Atoll, Tuvalu, Chemosphere 95, pp. 628-334, 2014.
- 6) Urase, T., Nadaoka, K., Yagi, H., Iwasa, T., Suzuki, Y., Siringan, F., Garcia, t. p., Thao, T. T. : Effect of urban emissions on the horizontal distribution of metal concentration in sediments in the vicinity of Asian large cities, Journal of Water and Environment Technology 4(1), pp. 61-71, 2006.
- 7) Hakanson, L. : An ecological risk index for aquatic pollution control. a sedimentological approach, Water Research 14, pp. 975-1001, 1980.
- 8) Tomlinson, D. L., Wilson, J. G., Harris, C. R., Jeffrey, D. W. : Problems in the assessment of heavy-metal levels in estuaries and the formation of a pollution index, Helgolander Meeresunters 33, pp. 566-575, 1980.
- 9) Fujita, M., Inoue, R., Suzuki, J., Nittami, T. : Possibility of biological wastewater treatment using seawater, IWA-ASPIRE Regional Conference and Exhibition, oral-10F2-5, 2013.
- 10) 萩中淳：分析化学第2版, 化学同人, pp. 123-124, 2011.
- 11) Liu, X., Millero, F. J. : The solubility of iron in seawater, Marine Chemistry 77, pp. 43-54, 2002.
- 12) 前田昌子, 今井一洋：コアカリ対応 分析化学 第3版, 丸善出版, pp. 49-50, 2011.

- 13) David R. Lide (Ed.) : Handbook of Chemistry and physics 1999-2000, CRC Press, Boca Raton London New York Washington, D. C., pp. 5-10 ~ 5-24, pp. 5-85 ~5-86, pp. 8-111, 1999.
- 14) 日本下水道協会：下水道試験方法（下巻），日本下水道協会, pp. 192-216, 1997.
- 15) Nakada S, Umezawa Y, Taniguchi M, Yamano H : Ground-water dynamics of Fongafale islet, Funafuti atoll Tuvalu, GroundWater 50, pp. 639-644, 2012.
- 16) Eriksson, E., Auffarth, K., Henze, M., Ledin, A. : Characteristics of grey wastewater, Urban Water 4 (1), pp. 85-104, 2002.
- 17) National Tidal Centre (2013) Hourly sea level and meteorological data : 2013, south pacific sea level and climate monitoring project. Bureau of Meteorology, Australian Government. http://www.bom.gov.au/ntc/IDO70006/IDO70006_2013.csv
- 18) Antsuki, T., Sano, D., Omura, T. : Functional metal-binding proteins by metal-stimulated bacteria for the development of an innovative metal removal technology, Water Science and Technology 47 (10), pp. 109-115, 2003.
- 19) Amin, B., Ismail, A., Arshad, A., Yap, C., Kamarudin, M. : Anthropogenic impacts on heavy metal concentrations in the coastal sediments of Dumai, Indonesia, Environmental Monitoring and Assessment 148, pp. 291-305, 2009.
- 20) Varol, M. : Assessment of heavy metal contamination in sediments of the Tigris River (Turkey) using pollution indices and multivariate statistical techniques, Journal of Hazardous Materials 195, pp. 355-364, 2011.
- 21) Urase, T., Nadaoka, K., Yagi, H., Iwasa, T., Suzuki, Y., Siringan, F., Garcia, T., Thao, T. : Effect of urban emissions on the horizontal distribution of metal concentration in sediments in the vicinity of Asian large cities, Journal of Water and Environment Technology 4, pp. 61-71, 2006.
- 22) 田崎雅晴, 小川恵道：金属が硫酸還元活性に与える影響と硫酸塩還元菌を利用した金属除去試験, 水環境学会誌 2 1(2), pp. 98-103, 1998.
- 23) Jong, T., Parry, DL. : Removal of sulfate and heavy metals by sulfate reducing bacteria in short-term bench scale upflow anaerobic packed bed reactor runs, Water Research 37 (14), pp. 3379-3389, 2003.
- 24) 野村記生, 阿部裕士, 福田正, 柳下幸一：硫化反応を利用しためっき廃液からの選択的金属回収, 表面技術 62 (11), pp. 9-13, 2011.

(2014. 5. 23 受付)

ASSESSMENT OF HEAVY METAL CONTAMINATION OF COASTAL SEDIMENTS IN TUVALU AND INVESTIGATION OF THEIR REMOVAL METHOD USING AN EXISTING SEPTIC TANK SYSTEM

Fengyu WANG, Yoshiyuki ISHIWATARI, and Masafumi FUJITA

To evaluate the contamination of coastal sediments along the Fongafale Islet, Tuvalu, Central Pacific, a field survey was conducted along the lagoon-side coast, near a densely populated area. Gray and white layers were obtained in the sediment core samples, whereas relatively high acid-volatile sulfide was detected in the gray layer. Considering that the leakage of domestic wastewater from poorly constructed sanitary facilities flows into the coastal lagoon through groundwater during ebb tides, the gray layer was considered to be the runoff pathway of the leaked domestic wastewater. Sediment contamination indices were applied to estimate the contamination level of the sediments. The result shows that heavy metal pollution exists in both colored sediment samples. Then, assuming that an existing septic tank system is used, heavy metal removal method was investigated by operating a 6-L-scale sequencing batch reactor with domestic wastewater as the feed. By this treatment, over 68% removal rate of Pb, Zn, and Cu was achieved, largely owing to the formation of metal-sulfide.