〈論 文〉

家庭から下水へ排出される重金属の原単位

The Amount of Heavy Metals Discharged from Domestic Sources to Sewage

森 忠 洋* 森 山 清** 荒屋敷 秀俊***
 Tadahiro MORI Kiyoshi MORIYAMA Hidetoshi ARAYASHIKI
 森 泰**** 斎 藤 寛***** 中 野 篤 浩*****
 Yasushi MORI Hiroshi SAITO Atsuhiko NAKANO
 茅 野 充 男*****
 Mitsuo CHINO

Abstract

The amounts of heavy metals discharged from various domestic sources (tap water, gray waters and feces etc.) were quantified at Yokosuka, Hachinohe and Hakodate cities using 4 or 5 monitors at each city.

The values of the heavy metals were Cd 72-192, Ni 405-1,661, Cr 230-775 $\mu\text{g} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$ and Pb 0.51-6.75, Mn 6.5-8.2, Cu 3.1-55.8, Zn 21.5-44.3, Fe 24.3-111.1 $\text{mg} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$.

The amounts of heavy metals derived from domestic sources were also determined from the budget of them in the sewage treatment plants which accepts only domestic sewage. They were Cd 54-252, Ni 450-1,876, Cr 396-1,430 $\mu\text{g} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$ and Pb 0.71-5.04, Mn 7.8-22.0, Cu 2.8-17.9, Zn 19.0-62.7, Fe 96-459 $\text{mg} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$.

Key words: heavy metals, tap water, gray water, feces, domestic sources.

1. 結 言

下水汚泥の緑農地利用は、有機物の循環利用として注目され、最近では30以上の自治体においてコンポスト化が行われている¹⁾。下水汚泥の緑農地利用に際して最も重要な課題は、汚泥中の重金属に対する対策である²⁾。1976年には肥料取締法において汚泥肥料中の水銀(Hg)、カドミウム(Cd)およびヒ素(As)に対する

基準値が設定され、1983年には表層土壌中の亜鉛(Zn)濃度が120mg/kg(乾重)をこえる農用地に下水汚泥を施用しないようにとの環境庁通達が出された³⁾。

流入下水中の重金属は汚泥中に濃縮することが知られているので⁴⁾⁵⁾、まず、重金属を下水に排出しないような対策を講じることが重要である。これまでは、主として工場や事業場排水に対して除害施設を設置する

* 島根大学農学部 〒690 松江市西川津町1060, Faculty of Agriculture, Shimane University, 1060 Nishikawazu, Matsue, Shimane 690 Japan

** 横須賀市下水道部 〒238 横須賀市三春町2-1, Sewage Works Division, Yokosuka city, 2-1 Miharu-cho, Yokosuka, Kanagawa 238 Japan

*** 八戸市下水道部 〒031 八戸市江陽3-1-111, Sewage Works Division, Hachinohe city, 3-1-111, Koyo, Hachinohe, Aomori 031 Japan

**** 函館市下水道部 〒040 函館市金堀町10-2, Sewage Works Division, Hakodate city 10-2 Kanabori-cho, Hakodate, Hokkaido 040 Japan

***** 長崎大学医学部 〒852 長崎市坂本町12-4, Faculty of Medicine, Nagasaki University, 12-4 Sakamoto-cho, Nagasaki-city, 852 Japan

***** 国立公害研究所環境保健部 〒305 茨城県筑波郡谷田部町, The National Institute for Environmental Studies, Yatabe, Tsukuba, Ibaragi 305 Japan

***** 東京大学農学部 〒113 東京都文京区弥生1-1, Faculty of Agriculture, The University of Tokyo, 1-1 Yayoi, Bunkyo, Tokyo 113 Japan

指導が行われ、Hg, Cd, As, 鉛(Pb), クロム(Cr)など、いわゆる生物にとっての有害重金属の除去には相当な効果があがっている。しかしながら、Znや銅(Cu)のような必須元素は食物や水に含まれ、生活排水中にもかなりの濃度で存在しているので下水に流入する。現在のところ必須重金属に対する有効な対策が無く、また、それが必要かどうかは議論の余地がある。

いずれにしても重金属に対する対策を考える上で重要なことは、重金属の発生源、由来およびその発生量を正確に把握し、どのような重金属をどんな方法で減少させることができるかを考える上での基礎資料を作っておくことである。工場および事業所などから排出される重金属についてはこれまでにいくつかの報告があり^{6),7)}、各自治体においても処理区域内の発生源や発生量が調査されている。

一方、工場、事業所などを除いた重金属の由来に関して寺町ら⁴⁾は、下水汚泥中重金属のバックグラウンドとして分流式住宅団地下水処理場の汚泥や人工下水汚泥の濃度を用いた。また、岡田らは⁷⁾、浄化槽およびレストラン、給食センター排水中の重金属分析を行い、し尿および厨房排水由来の重金属量を推定した。このような調査方法は、おおよその発生量を得ることができるが、Fig. 1に示すような個々の生活排水からの重金属発生量を知ることができない。個々の生活排水由

来の重金属原単位を把握することは、重金属の発生源対策を考える上での基礎資料として重要である。生活排水由来の重金属発生量を厳密に定量化するためにはモニターを定め、彼らの生活排水中の重金属を求めることが最良の方法である。そして、理想的にはモニターが排出している下水処理場における重金属収支を家庭からの排出量と比較することである。

著者らは、このような考えから横須賀市において4名のモニターを定め、個々の生活排水中の重金属濃度を測定し、生活排水から排出される重金属量を求めた^{8),9)}。重金属発生量は地域によって大きく異なるので、複数の都市において同様な調査を行うことが重要である。したがって、本研究ではさらに八戸市と函館市において5名のモニターを定め、横須賀市と同様の調査を行い、生活由来の重金属発生量の原単位に関する正確な値を求めることを試みた。モニターが排出している下水処理場における重金属収支の検討はできなかったが、その地域の生活排水のみを処理している下水処理場の流入水および下水汚泥と処理水の両者からも生活由来の重金属発生量を求め、前述のモニターの生活排水から求めた原単位と比較した。

2. 方 法

2.1. 測定重金属

測定重金属項目としては、人体にとって有害といわ

Fig. 1 Various domestic sources of heavy metals.

れている Cd, Pb, Cr, 人体にとって必須重金属であるが植物に対して毒性の強い Ni, Cu および Zn, その他水系において多量に循環している Fe と Mn についても測定した。

2.2 モニター

横須賀市では4家族、八戸市と函館市ではそれぞれ5家族をモニターとした。平均的な家族構成のモニターを選択するため独身や夫婦2人の所帯ではなく家族4～5人の家庭を選んだ。

2.3 水道および生活雑排水

水道水中の重金属濃度の時間変化を検討するためには、水道水の流量を約 $150\text{ml} \cdot \text{sec}^{-1}$ として開栓直後、開栓後30秒、1、3および5分後の水を採用した。計算には開栓後1、3および5分後の水道水中の濃度の平均値を用いた。水道の使用量は各家庭に設置しているメータから読みとった。

風呂排水は、各家庭においてモニターの1人(男性)が浴槽の中で頭髮を含め体のすべてを洗った後、浴槽内の湯を十分に攪拌して試料を採用した。

洗濯排水は、洗濯機内の洗い水を1回、すすぎ水を1回採取してこれらを混合して試料とした。

台所排水は、食後の食器やボールなどを洗った後の水を1回、すすぎの水を1回採取し、これらを混合して試料とした。

それぞれの試料中の重金属濃度を求め、試料の容積を乗じ、それを家族構成人数で割ることによって、1日、1人当たりが排出する重金属量を求めた。風呂や洗濯排水のように必ずしも毎日排出されない場合は、重金属量をその頻度で割って1日当たりとした。

家庭排水中の重金属のうち、実際に風呂、洗濯および台所において排出された重金属を明確にするため、下の式を用いて水道水由来の重金属を除いた。

$$\text{生活排水からの重金属} = \frac{(C_g - C_i) \cdot V}{P \cdot F} \quad \dots\dots(1)$$

ここで C_g = 家庭排水中の重金属濃度 ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)

C_i = 水道水中の重金属濃度 ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)

V = 家庭排水の容積 (l)

P = 家族人数

F = 風呂または洗濯の頻度 (day^{-1})

試料の採取、重金属分析は日付を変えて3回行った(日本ジャーレルアッシュ、AA-708B, AA-8500)。

2.4 大 便

大便は重量既知の密閉フタ付ガラス容器に直接採取し、直ちに発泡スチロール製のコンテナに入れ密閉し、ドライアイス容器の外側に充てんして研究室に送った。研究室では秤量した後、硝酸を大便の全量に添加して有機物を分解した後、原子吸光分析によって

重金属濃度を求めた。この分析は各モニターともに3回行った。大便に比較して小便からの重金属の由来は小さいので小便は測定しなかった。

2.5 下水流入水、処理水および汚泥

流入水、処理水は2時間間隔のコンポジットサンプルを用いた。汚泥は脱水ケーキを採用して分析に供した。脱水助剤としてはすべての汚泥につきアクリルアミド系のポリマーを用いている。

2.6 重金属分析

汚泥試料には下水試験方法¹⁰⁾、硝酸・塩酸(王水)煮沸法の規定に従い王水を加え、30～60分ホットプレート上で加熱して重金属の煮沸溶出を行い、試料をメスフラスコに移し蒸留水で100mlにする。溶液を乾燥したNo.5 C濾紙で濾過した後、原子吸光光度法で重金属濃度を測定する。

生活雑排水は1,000mlをケルダールフラスコに入れ、塩酸を加えて5～10mlになるまで濃縮する。放冷後、王水を加えホットプレート上で有機物を分解し、No.5 C濾紙で濾過して50mlとする。Cd, Ni, Pbについては、このうち25mlを分取してジエチルジチオカルバミン酸ナトリウム溶液を添加し、生成した金属錯体を4-メチル-2-ペンタノンで抽出してフレイム原子吸光光度法によって重金属濃度を求めた。その他のCr, Cu, Zn, Mn, Feについては、一部の試料を除き残り25mlの酸性試料液を直接フレイム中に噴霧して原子吸光法により濃度を求めた。なお、Crの濃度が極めて低い試料については、フレイムレス原子吸光光度法を併用し、Cuの濃度が低い一部の試料については、Cd等を抽出した4-メチル-2-ペンタノン溶液を併用してフレイム原子吸光光度法により定量を行った。

3. 結 果

3.1 水道水中の重金属

Fig. 2は横須賀市におけるモニター4名の家庭における水道水中のCd, Zn, MnおよびFe濃度が水道開栓後、どのように変化しているかを示す。CdとZn濃度は開栓直後は高く流量約 $150\text{ml} \cdot \text{sec}^{-1}$ で水を流すと30秒程度までにその濃度は急速に低下し、1分以上経過すればほぼ一定となることがわかった。一方、Feは4例中2例はCd, Znと同様な傾向を示したが2例は反対に開栓後急激に上昇し30秒程度で一定になるかまたは5分後に低下した。他の重金属もおおむねCdやZnと同じ傾向で開栓直後、急激にその濃度が低下したがMnはFeと同じ挙動を示し、開栓後上昇することもあった。

水道水は開栓直後より、それ以後の水を利用することが多いので、本調査では開栓後の1、3、5分に採

Fig. 2 Changes in the concentration of heavy metals in tap water after opening of the valve (4 monitors)

取した水道水中の濃度の平均値を求めた後、重金属発生量を計算した。

このようにして求めた横須賀、八戸および函館市における水道水中の重金属濃度の平均値を Table 1 に示す。この表から Cd と Zn を除くすべての重金属に関して 3 都市の中では横須賀市の水道水中の濃度が高いことがわかった。八戸市と函館市の水道水中の重金属濃度はほぼ等しいが、函館市の水道水は Cr が低く Fe が比較的高いのが特徴である。有害重金属といわれる Cd および Cr の濃度は他の重金属に比較して低く、それぞれ $0.1 \sim 0.2$ および $\text{Trace} \sim 1.0 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。Pb の濃度は Cd や Cr より高く $1.7 \sim 15.5 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。必須元素である Cu, Zn および Fe の水道水中の濃度は他の重金属に比較して高く、それぞれ $1.7 \sim 38.7$, $13.0 \sim 21.0$ および $16 \sim 111 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。3 都市間における重金属濃度の相違は水道原水の重金属濃度、水道管の材質および水道管内の滞留時間などに依存していると考えられる。

それぞれの家庭における水道水中の重金属濃度に水道使用量を乗じて、水道由来の重金属量を求め、それぞれの都市ごとにまとめた (Table 2, 3, 4 の上段参照)。Zn と Cd は 3 都市間で大きな差がみられなかったが他の重金属は横須賀市の方が他の 2 都市よりかなり高い値となった。これは、水道の使用量は 3 都市間ではほぼ同程度 (1 人当たり $180 \sim 280 \text{l} \cdot \text{day}^{-1}$) なので、水道水中の濃度が高い横須賀市における排出量が増加する結果になったためである。

3.2 重金属排出量

発生源のうち大便由来の重金属排出量は Pb と Cr 以外の Cd, Ni, Mn, Cu, Zn および Fe は 3 市の間で極めてよい一致を示している。Pb と Cr に関しても函館と八戸市はほぼ同程度の値である。これは現在の日本では摂取する食物の種類や量はほとんど地域差がないためと考えられる。

水道由来の重金属は前項で述べたように Zn と Cd 以外は横須賀市は他の 2 都市より高い値を示した。また、風呂、洗濯、台所排水に関しても、横須賀市は他の 2 都市より高く、特に風呂排水由来の重金属発生量が高い傾向にあった。

したがって、水道、生活排水および大便由来の重金属排出量の合計はすべての重金属に関して横須賀市が他の 2 都市より高くなった。

3 都市の重金属排出量のうち Cd, Pb, Cr および Zn の 4 重金属について全排出量に対する水道由来の割合を示すと、それぞれ $18 \sim 52$, $11 \sim 76$, $\text{Tr.} \sim 28$, $7 \sim 16\%$ であり、水道はかなりの割合を占めていることがわかる。また、食物由来とみなされる大便からはそれぞれ Cd $20 \sim 61\%$, Pb $1 \sim 7\%$, Cr $2 \sim 17\%$ および Zn $20 \sim 59\%$ となった。食物由来の重金属排出量は水道由来に比較して Cd は同程度で Pb は少なく Zn は多いことがわかった。また、Mn はほとんど大便由来であることがわかった。

3.3 下水処理場への流入および処理場から排出される重金属量

下水処理場における重金属の収支から生活由来重金属の原単位を求めるため、横須賀、八戸および函館において家庭下水のみを処理している処理場の調査を行った。まず、それぞれの処理場の流入水、処理水お

Table 1 Concentration of heavy metals in tap water ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)

	Cd	Ni	Pb	Cr	Mn	Cu	Zn	Fe
Yokosuka	0.2 ± 0	1.9 ± 0.2	15.5 ± 19.1	1.0 ± 0	7.4 ± 4.4	38.7 ± 17.2	13.0 ± 4.7	111 ± 82
Hachinohe	0.1 ± 0	0.6 ± 0.2	2.2 ± 0.9	0.5 ± 0	1.1 ± 0.4	3.4 ± 2.4	21.0 ± 20.5	16.4 ± 5.9
Hakodate	0.2 ± 0	0.5 ± 0.1	1.7 ± 0.4	trace	1.4 ± 0.8	1.7 ± 1.5	17.5 ± 6.8	59.0 ± 41.6

Average of the concentration in tap waters sampled from 4 or 5 monitors houses 3 times at different dates.

Table 2 Amounts of heavy metals through tap water, domestic wastes and feces. (Yokosuka)

	Cd	Ni	Pb	Cr	Mn	Cu	Zn	Fe
	$\mu\text{g} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$				$\text{mg} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$			
Tap water (%)	42±16 (22)	388±68 (23)	3,120±3,676 (47)	217±73 (28)	1.65±1.28 (20)	8.4±4.5 (15)	3.0±2.0 (7)	25.0±20.8 (23)
Bath (%)	73±14 (38)	676±268 (41)	2,979±1,810 (44)	196±37 (25)	0.37±0.30 (5)	43.4±33.9 (78)	27.6±19.1 (62)	49.1±42.4 (43)
Laundry (%)	27±15 (14)	243±105 (15)	465±260 (7)	284±228 (37)	0.69±0.52 (8)	1.7±1.2 (3)	3.0±2.0 (7)	24.6±22.3 (22)
Kitchen (%)	12±9 (6)	150±112 (9)	95±50 (1)	65±30 (8)	0.57±0.30 (7)	0.7±0.4 (1)	1.8±1.3 (4)	3.9±3.1 (4)
Feces (%)	38±17 (20)	204±60 (12)	94±55 (1)	13±6 (2)	4.91±1.91 (60)	1.6±0.8 (3)	8.9±2.7 (20)	8.5±3.7 (8)
Total	192	1,661	6,753	775	8.19	55.8	44.3	111.1

Table 3 Amounts of heavy metals through tap water, domestic wastes and feces. (Hachinohe)

Sources	Cd	Ni	Pb	Cr	Mn	Cu	Zn	Fe
	$\mu\text{g} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$				$\text{mg} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$			
Tap water (%)	13±3.9 (18)	85±44.1 (21)	296±198 (11)	65±23.4 (17)	0.13±0.05 (2)	0.47±0.44 (11)	2.85±3.42 (13)	2.11±1.05 (9)
Bath (%)	11±12 (15)	18.8 (5)	2,307±3,214 (82)	129±94.3 (33)	0.08 (1)	1.37 (33)	3.37 (16)	1.70 (7)
Laundry (%)	2±2.3 (3)	39±27 (10)	154±119 (5)	109±41 (28)	0.15±0.07 (2)	0.27±0.21 (7)	1.87±1.63 (9)	5.50±3.15 (23)
Kitchen (%)	2±2.3 (3)	15±16 (4)	40±23 (1)	33±8 (8)	0.11±0.04 (2)	0.15±0.11 (4)	0.65±0.60 (3)	1.41±0.97 (6)
Feces (%)	44±28 (61)	247±78 (60)	35±14 (1)	56±26 (14)	6.86±2.34 (93)	1.83±0.7 (45)	12.8±4.9 (59)	13.6±7.0 (55)
Total	72	405	2,832	392	7.33	4.09	21.5	24.32

Table 4 Amounts of heavy metals through tap water, domestic wastes and feces. (Hakodate)

Sources	Cd	Ni	Pb	Cr	Mn	Cu	Zn	Fe
	$\mu\text{g} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$				$\text{mg} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$			
Tap water (%)	45±32 (52)	100±75 (23)	380±310 (76)	Trace	0.33±0.25 (5.1)	0.45±0.62 (14)	3.8±2.5 (16)	11.0±7.5 (36)
Bath (%)	5.6±1.4 (6)	63±75 (14)	39±20 (7)	136.3±77.7 (59)	0.02±0.02 (0.3)	0.33±0.31 (11)	5.2±7.4 (21)	2.4±3.6 (8)
Laundry (%)	2±0.9 (2)	37±33 (8)	42±32 (8)	40.6±36.0 (18)	0.07±0.04 (1.0)	0.21±0.19 (7)	2.6±3.2 (11)	3.8±1.9 (12)
Kitchen (%)	2±0.6 (2)	20±22 (5)	12±9.2 (2)	14.4±8.3 (6)	0.05±0.03 (0.8)	0.13±0.08 (4)	2.6±4.7 (11)	1.2±0.6 (4)
Feces (%)	34±16 (38)	224±160 (50)	33±21 (7)	39±16 (17)	5.98±2.78 (92.8)	2.00±1.23 (64)	10.2±4.5 (41)	12.1±8.2 (40)
Total	88.6	444	506	230.3	6.45	3.12	24.4	30.5

よび汚泥中の重金属濃度を求めた (Table 5 参照)。流入水中の Cd 濃度は他の重金属に比較して低く、3 処理場ともに $1 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ 以下であった。一方、流入水中の Mn、Cu は比較的高く、 $10 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ のオーダーであり、Zn および Fe はさらに高く、 $10^2 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ のオーダーにあった。

八戸市の流入水中の重金属濃度は横須賀市に比較してすべての重金属について低かった。また、函館市の流入水は横須賀市に比較して Mn と Fe の濃度のみが高く、他の重金属は低く比較的八戸市の重金属濃度に近い傾向にあった。処理場への流入水中の重金属濃度は

Table 5 Concentration* of heavy metals in influent, effluent and sludge at the domestic wastewater treatment plant

		Cd	Ni	Pb	Cr	Mn	Cu	Zn	Fe
Yokosuka	Infl. ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)	0.9	6.7	18.0	5.1	69.0	64.0	224	831
	Effl. ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)	0.4	4.3	7.3	2.0	51.0	14.0	67	360
	Sludge ($\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)	1.8	13.0	50.0	14.0	83.0	191	634	6,630
Hachinohe	Infl. ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)	0.3	2.77	9.17	3.3	43.5	15.6	149	535
	Effl. ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)	0.1	0.83	4.13	0.67	27.2	2.7	75	28.8
	Sludge ($\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)	1.0	15.5	27.4	17.1	101	69.2	494	3,332
Hakodate	Infl. ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)	0.4	1.90	3.0	2.2	96.0	14.2	100	2,200
	Effl. ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)	0.4	1.40	1.5	0.66	17.0	2.2	24	140
	Sludge ($\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)	1.0	6.70	16.3	6.1	420	78.7	340	10,900

* Average of 3 samples

Table 6 Amounts of sewage and sewage sludge daily produced by a person

	Waste water treatment plant			Daily production per person	
	Sewered population	Influent $\text{m}^3 \cdot \text{day}^{-1}$	Sludge production $\text{kg} \cdot \text{day}^{-1}$	Sewage $\text{l} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$	Sludge $\text{g} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$
Yokosuka	9,446	2,641	274	280	29
Hachinohe	4,195	755	160	180	38
Hakodate	4,600	1,100	179	239	39

Table 7 Amounts of heavy metals determined from wastewater treatment plants

Cities	Sources	Cd	Ni	Pb	Cr	Mn	Cu	Zn	Fe
		$\mu\text{g} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$					$\text{mg} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{person}^{-1}$		
Yokosuka	Influent	252	1,876	5,040	1,430	19.3	17.9	62.7	233
	Effluent	164	1,581	3,494	966	16.7	9.4	37.2	293
	+Sludge								
Hachinohe	Influent	54	498	1,650	599	7.8	2.8	26.8	96
	Effluent	56	740	1,788	773	8.7	3.1	32.3	132
	+Sludge								
Hakodate	Influent	100	450	710	526	22.0	3.3	23.0	520
	Effluent	127	590	980	396	20.0	3.6	19.0	459
	+Sludge								

Cdを除けば**Table 1**に示した水道水中の濃度との相関がみられる。下水汚泥中の重金属濃度は流入水濃度にはほぼ対応しているが、流入水から汚泥への濃縮率によっても変化している。**Table 5**に示した汚泥中の重金属は生活由来のみである。3市の汚泥中の重金属濃度をまとめて範囲で示すと、Cd 1.0~1.8, Ni 6.7~15.5, Pb 16.3~50.0, Cr 6.1~17.1, Mn 83~420, Cu 69.2~191, Zn 340~634, Fe 3,332~10,900 $\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ であった。

下水処理場の流入水量および汚泥発生量を処理人口

で除して、それぞれの下水処理場における1人1日当たり発生する下水および汚泥量を求めた(**Table 6**)。

Table 5と**6**の値を乗ずれば下水処理場の流入水および処理水と汚泥から1日1人当たり家庭から下水処理場へ排出される重金属の原単位が求まる(**Table 7**)。

3都市ともに流入水から求めた重金属量と処理水と汚泥の和から求めた重金属は比較的良好一致しており、処理場における重金属の収支がとれているといえる。下水処理場において求めた1人当たりの重金属排出量に関しても、MnとFe以外の重金属排出量は横須賀市

が他の2都市より高い傾向にあった。処理場で求めた重金属排出量と水道、生活排水および大便から求めた排出量を比較すると一部の重金属以外は両者の値は極めて近い値である。すなわち、横須賀市ではMn、CuおよびFe、八戸市ではFe、函館市ではMn以外の重金属排出量は両者においてよい一致を示している。

4. 考 察

水道水中の重金属濃度は、Fig. 2に示したように開栓直後の濃度が高く、 $150\text{ml}\cdot\text{sec}^{-1}$ 程度の使用量であれば30秒後に一定になった。開栓直後の濃度が高い理由を検討するために朝、昼、夕の水道水中の重金属の変化を測定した。水道水中の重金属の濃度変化はFig. 3に示すように、朝だけ開栓直後の濃度が高く、昼、夜の濃度は開栓直後と1～5分経過後において差がみられなかった。これから、夜間に水道水が滞留した結果、水道管や蛇口などから重金属が溶出すると考えられる。ここではCd、Pb、Zn、Feの4金属の例を示したが、他の金属Ni、Cr、Mn、Cuも同様な傾向を示した。

本論文中の水道水中の重金属濃度は、開栓後1、3、5分の平均を用いている。開栓直後の重金属濃度が非

常に高い場合、その寄与が考えられる。水道由来の重金属量を厳密に求めるためには、水道の使用に応じた時間ごとのサンプルをとり、そのコンポジットサンプル中の濃度を測定し、重金属の排出量を求める必要がある。

水道水中のMnとFeは、ある場合には30秒内に急激に増加し、その後一定になる傾向にあった(Fig. 2)。その理由の解明のため、水道本管として長期間使用後、交換のため掘り出された直後の铸铁管内のサビコブをサンプリングし、サビコブ中の重金属濃度を測定したところ、Table 8に示すようにFeが最も高く60%、次にSiとAlの含有量が高かったが、その次にはMnの濃度が高く $307\sim 782\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ であった。これから、開栓直後FeとMnが高くなった理由は水道管内の流速が速くなるとサビコブの流出が生じたためと推定できる。

家庭から排出される重金属量のうち、3市ともに台所から排出される量は他の排水に比較して低かった。横須賀市では風呂と水道、八戸市では風呂、水道、大便、函館市では水道と大便の割合が高かった。3市ともに水道水中の濃度は比較的低いが、その使用量が1人当たり $180\sim 280\text{l}\cdot\text{day}^{-1}$ なので前述のように水道から相当量の重金属が排出されていることになる。

風呂由来の排水量も多いが、これは風呂釜などからの溶出が考えられるが詳細な点是不明である。ただし、横須賀市の4人のモニターのうち、1名が使っていたヘヤートリートメント中のZn濃度が極めて高い($1,360\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$)ことが確認された¹¹⁾。また、洗濯排水由来の重金属は服の汚れなどに依存するが、幼児がいる場合は泥や便などから由来する重金属が比較的多いことがわかった¹¹⁾。

Table 8 Heavy metal concentration of "Sabikobu" formed in tap water pipes

	pype A (ϕ 4 inch)	pype B (ϕ 6 inch)
Cd ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	0.50	0.56
Ni ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	10.7	14.0
Pb ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	3.8	3.4
Zn ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	61.6	83.4
Cu ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	79.4	27.8
Cr ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	17.5	15.4
Mn ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	307	782
Hg ($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	0.085	0.40
Fe (%)	58.2	56.6
Al ($\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$)	1.07	1.26
Si (%)	1.50	3.50

n=2

Fig. 3 Changes in the concentration of heavy metals in tap water in the morning (○), day time (△) and evening (□).

本研究で求められた3都市における大便由来のCd, CuおよびZnはそれぞれ $34\sim 44\mu\text{g}\cdot\text{day}^{-1}\cdot\text{person}^{-1}$, $1.6\sim 2.0$ および $8.9\sim 12.8\text{mg}\cdot\text{day}^{-1}\cdot\text{person}^{-1}$ の範囲にあった。これまで報告された大便を通してのCdの排出量は, 1人当たり $51^{12)}$, 42 または $60^{13)}$, $22.1\pm 0.3^{14)}$ $\mu\text{g}\cdot\text{day}^{-1}$ である。岡田ら⁷⁾は, し尿浄化槽から1人当たりの原単位を求め $46.7\mu\text{g}\cdot\text{day}^{-1}$ と報告している。Znの1人当たりの便を通しての排出量は $11.8\pm 0.6^{14)}$ または $14.4^{7)}$, Cuは $1.16\pm 0.07^{14)}$, または, $2.4^{7)})\text{mg}\cdot\text{day}^{-1}$ であるが, これらの値と本報で得られた値はよい一致を示している。

5. ま と め

横須賀, 八戸および函館市の3市において4~5名のモニターを設定し, それぞれの家庭から下水へ排出されるいわゆる生活由来の重金属の原単位を求めた。本研究は, 工場や事業所のみならず, 家庭も含めた重金属の発生源対策が必要になった場合, それを実行する基礎資料として重要である。

重金属量を求める方法は, モニターの家庭個々の水道, 風呂, 洗濯ならびに台所排水, および大便からの重金属排出量を求めた後, それらを合計し, 1日1人当たり, 排出する重金属量を求めた。また, 3都市における家庭下水のみを処理している処理場の流入水, または汚泥と放流水の和からも重金属排出量を求め, 家庭から排出される重金属量と比較した。このように, 3都市において3つの方法で求めた1人当たりの重金属排出量をまとめて範囲で示すと
Cd $54\sim 252$, Ni $405\sim 1,876$, Pb $506\sim 6,753$, Cr $230\sim 775$ (以上 $\mu\text{g}\cdot\text{day}^{-1}$), Mn $6.5\sim 22.0$, Cu $2.8\sim 55.8$, Zn $19.0\sim 62.7$, Fe $24\sim 520$ (以上 $\text{mg}\cdot\text{day}^{-1}$)であった。

また, Cd, Pb, Cu, Znに関して3都市間で比較すると次のとおりである。

- 1) 横須賀市のモニターと家庭から排出される1日1人当たりの重金属量は, Cd $192\mu\text{g}$, Pb 6.75mg , Cu 55.8mg , Zn 44.3mg であった。一方, 下水処理場における収支から求めたところ, Cu以外は家庭由来から求めた量と比較的よく一致し, Cd $164\sim 252\mu\text{g}$, Pb $3.49\sim 5.04\text{mg}$, Cu $9.4\sim 17.9\text{mg}$, Zn $37.2\sim 62.7\text{mg}$ であった。
- 2) 八戸市のモニターの家庭から排出された1日1人当たりの重金属量は全般的に横須賀より低く, Cd $72\mu\text{g}$, Pb 2.83mg , Cu 4.09mg , Zn 21.5mg であった。下水処理場における収支から求めた値は, Cd $54\sim 56\mu\text{g}$, Pb $1.65\sim 1.79\text{mg}$, Cu $2.8\sim 3.1\text{mg}$, Zn $26.8\sim 32.3\text{mg}$ であり, モニター家庭から求めた量と比較的

よく一致した。

3) 函館市のモニターの家庭から排出された重金属量は, Pb以外は八戸市のそれと同程度でCd $89\mu\text{g}$, Pb 0.51mg , Cu 3.12mg , Zn 24.4mg であった。下水処理場から求めた値は, Cd $100\sim 127\mu\text{g}$, Pb $0.71\sim 0.98\text{mg}$, Cu $3.3\sim 3.5\text{mg}$, Zn $18\sim 23\text{mg}$ であり, モニターの家庭から求めた値と極めてよい一致を示した。

3都市における1日1人当たりの重金属排出量は, 大便以外はかなりばらついているがその理由は主として水道水中の重金属濃度, 給排水施設の材質および家族構成などに原因があると考えられる。

このような研究は生活由来金属原単位の実測例として今後, 重金属の循環を考える上で重要なデータとなる。

(原稿受理 昭和62年4月25日)

引 用 文 献

- 1) 森忠洋 (1984) 下水汚泥コンポスト化の動向, 下水道協会誌, **21**, 67-77.
- 2) 森忠洋 (1986) 有機質汚泥の有効利用, 水質汚濁研究, **19**, 252-259.
- 3) 環境庁水質保全局通達 (1983) 環水土第127号, 汚泥等の農用地等への還元問題について.
- 4) 寺町和宏, 神山桂一 (1974) 活性汚泥による重金属の濃縮に関する研究—家庭下水汚泥の重金属バックグラウンド, 下水道協会誌, **11**, 32-38.
- 5) 小堀和夫 (1974) 活性汚泥と重金属, 第10回衛生工学討論会講演集, 19-24.
- 6) Förstner U. and Wittmann, G.T.W. (1983) Metal pollution in the aquatic environment, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo.
- 7) 岡田昌四郎, 石沢肇, 高橋理之, 川田賢治 (1985) 流入下水中の重金属類等の由来と特性に関する調査, 下水道協会誌, **22**, 51-69.
- 8) 森忠洋, 森山清, 茅野充男 (1983) 生活廃水中の重金属, 環境科学研究報告書, B199-R12-6, 53-68.
- 9) 森忠洋, 森山清, 茅野充男 (1984) 生活廃水中の重金属について, 再生と利用, 10-15.
- 10) 下水試験方法, 下水道協会 (1984).
- 11) 森山清 (1985) 私信.
- 12) 児島三郎, 芳賀義昭, 栗原正, 山脇徳美 (1976) 秋田県現地報告, 環境保健レポート, **36**, 114-123.
- 13) 土屋健三郎, 岩尾総一郎 (1978) 秋田, 石川, 長崎三県のCd環境汚染地域住民のCd摂取量調査の結果と評価, 環境保健レポート, **44**, 86-115.
- 14) Spencer, H., C.R. Asmussen, R.B. Holtzman and L. Kramer (1979) Metabolic balances of cadmium, copper, manganese and zinc in man, *The American Journal of Clinical Nutrition*, **32**, 1867-1875.

論文要旨

家庭から下水へ排出される重金属の原単位

森 忠洋* 森山 清** 荒屋敷秀俊*** 森 泰**** 斎藤 寛***** 中野 篤浩***** 茅野 充男*****

* 島根大学 ** 横須賀市 *** 八戸市 **** 函館市 ***** 長崎大学 *****
国立公害研 ***** 東京大学

〈水質汚濁研究 Vol.10 No.7 (1987) pp.415~422〉

横須賀、八戸および函館市においてそれぞれ4~5名のモニターを選択し、それぞれの家庭から下水へ排出される、いわゆる生活由来の重金属の原単位を求めた。その結果、横須賀市においては1日1人当たり、Cd 192 μ g, Ni 1.66, Pb 6.75, Cr 0.78, Mn 8.19, Cu 55.8, Zn 44.3 および Fe 111.1mg であった。家庭下水のみの処理場における重金属収支から求めた原単位は Fe と Cu 以外の重金属は家庭排水から求めた重金属量とほぼ一致した。八戸市および函館市において求めた生活由来の重金属原単位は、2市間では Pb 以外の重金属はほとんど同程度の値であった。全般的に横須賀市の原単位より低かった。その値は、それぞれ Cd 72, 88.6 μ g $\cdot$ day⁻¹ $\cdot$ person⁻¹, Ni 405, 444, Pb 2,832, 506, Cr 392, 230, Mn 7.33, 6.45, Cu 4.09, 3.12, Zn 21.5, 24.4 および Fe 24.3, 30.5 mg $\cdot$ day⁻¹ $\cdot$ person⁻¹であった。八戸市、函館市の家庭下水のみの処理場から得られた重金属量は、生活排水から求めた値とよい一致を示した。

酸化池による生活雑排水の処理

川島 博之* 河田 孝雄** 岡田 光正*** 鈴木 基之*

* 東京大学生産技術研究所 ** 日経マグローヒル社 *** 東京農工大学工学部

〈水質汚濁研究 Vol.10 No.7 (1987) pp.423~430〉

屋外に作成した幅4m長さ8m深さ0.92mの実験池を用い、小型酸化池における藻類による酸素供給について検討を加えた。供給水としては実際の雑排水に代わって、人工下水を用いた。平均滞留時間を4.4, 8.9, 13.4, 18.0日まで4段階に変えて、実験を行い、結果を定常状態を仮定した数値モデルにより解析し、次の結論を得た。

- 1) 藻類による酸素供給は水深、滞留時間にはあまり影響されず、単位面積当りの栄養塩供給量により決定される。
- 2) 藻類による酸素供給は面積当たり最大10~15 [g/(m²day)] 程度と推定される。
- 3) 雑排水を水深1mの酸化池で処理しようとした場合、10日程度の滞留時間が適当と考えられた。