

# 土壌還元した家庭下水汚泥中の重金属の挙動（予報）

渡辺義人・山本満寿夫

近年、河川、湖沼等の水質保全対策の一環として、土壌による下水汚泥の処理法或いは処分法が研究されるようになり、欧米諸国ではすでに実施されている所も少ない。一方下水汚泥の農業利用の面からの農地還元については、利用しうるものは可能な限り再利用するという考え方と、土壌改良の見地と合わせて、特に米国で調査研究が積極的に行われている。しかし、農地に施用した場合、汚泥中にかなり高濃度に含まれている重金属などの微量元素が、長期的に見てどのような影響をおよぼすかを評価する研究はほとんどなされていない。これらの微量元素の土壌、作物に対する長期的な影響を評価予測するためには、先づ汚泥中の微量元素がどのぐらいの量、どのような形で存在しているかを明らかにするとともに、雨水によって又有機物の分解に伴って、どのように土壌中に分布、挙動するかを徹底的に追及する必要がある。

本研究は、この見地から家庭下水由来の沈降汚泥を用い、その汚泥の化学的性質や、汚泥および土壌中の重金属の溶解性など若干の基礎的検討を加えるとともに、予備試験として、枠取りした試験区内の土壌表面に汚泥を投入し、土壌中の重金属の分布状況を調査した結果である。

## 方 法

(1)試験区 試験区は住宅敷地内にある家庭菜園に、図1に示すようなA、Bの二区を設定した。即ちA区は表層より30cm掘り下げ、そこに直径3mmの篩で篩いわけした砂壤土を積み重ね、土壌硬度をほぼ一定にして木枠で囲んだものであり、B区は同様にして、中間にオガクズを積み重ねたものである。B区のオガクズを積み重ねた試みは、廃水と土壌中におけるオガクズとの混合コンポスト化を試験する目的で設定した。

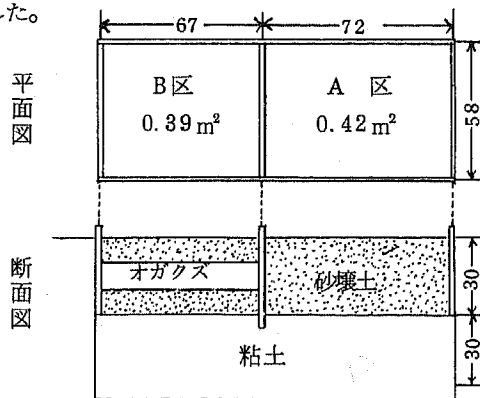


図1. 廃水投入試験区 (単位 cm)

(2) 汚泥の採取と投入法 本研究に用いた家庭下水汚泥は、台所廃水などの一般家庭雑廃水のほかに、降雨時、樋や周辺から流入する排水に由来するものであり、食物残渣や土砂などからなっている。汚泥を採取するためには、下水管の途中に設けられている二ヶ所のためますを利用し、プラスチック製の網で流出口をふさぎ、廃水中の懸濁物を出来るだけためます内に沈殿するようにした。汚泥の土壌投入は1976年5月から8月までの期間に5回にわたって行い、廃水と適宜混合希釈した汚泥を1回、10～20ℓづつ各試験区の土壌表面に、なるべく均一になるように投入した。各回の生汚泥の投入量および汚泥中の各成分の投入量を表1に示す。

表1 汚泥および汚泥中の各成分の投入量

投入日 月/月	生汚泥 投入量 (ℓ)	汚泥中の蒸発残留物、C、N、P投入量(%)				汚泥中の各重金属の投入量(mg)			
		蒸発残留物	C	N	P	Cd	Zn	Cu	Pb
5/29	10.0	56.8	14.2	1.68*	0.23*	0.06	82.3	7.9	4.7
6/21	16.8	10.2	31.0	3.11	0.42	0.32	260	79.8	13.1
7/6	16.8	15.4	45.9	4.37	0.61	0.94	479	310	20.3
7/21	22.4	13.9	44.6	4.11	0.51	0.47	324	81.3	22.4
7/29	9.8	13.4	41.2	4.54	0.64	0.46	367	10.9	30.6
投入量合計	75.8	585.3	176.9	17.81	2.42	2.25	1512	588	91.1

\*汚泥中のN、P平均含量から求めた推定値

(3) 採土法 土壌の柱状試料は採土器により、5cm毎に採取した。尚30cm以下の粘土層については粘着性のためにこの方法では採取しにくく、試験開始時および6ヶ月目は、上の砂壤土層を取り除いてから同様にして柱状試料を得た。柱状試料の採取法については今後の検討課題である。

(4) 重金属溶出試験法 汚泥中の重金属の溶解性を見るために、乾燥汚泥を粉碎し、0.5mmの篩で篩いわけしたものを図2に示すようなカラムに充てんし、蒸留水および雨水を一定の速度(12ml/min)で流下させ、流下液中の重金属濃度を分析した。又同じ目的で、乾燥した汚泥および土壌、それぞれ5gを50mlの0.1N塩酸溶液で振とう抽出(30℃、1時間)し、抽出液中の重金属をしらべた。

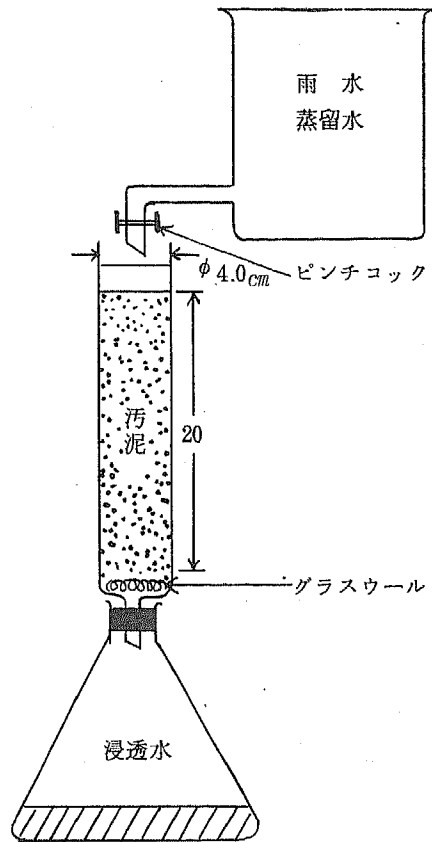


図 2. 溶出実験装置

(5) 分析法 重金属の分析は、全重金属量については王水一過塩素酸分解、ジチゾンー四塩化炭素抽出などの前処理をしたものを、その他については、直接原子吸光法で行った。又炭素は本田等の湿式燃焼法、窒素はキエルダール法、りんはバナドモリブデン酸法によった。

## 結果および考察

### 1. 供試土壌および汚泥の化学的性質

試験区内の土壌の化学的性質は表 2 の通りである。上層の砂壤土は  $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$  が 5.5 と低く、かなり酸性である。又陽イオン交換容量 (CEC) は下層の粘土層の方がやゝ高いものの、いずれも  $20 \text{ me}/100 \text{ g}$  以下で、比較的小さい。有機物は両層とも高く、特に上層は炭素量で 2% を越えている。それに対して全窒素量はそれ程大きくなく、それが C : N 比に反映して上層で 15 前後と高くなっている。このことから比較的未分解の有機物が多いと思われる。

表2 試験区内の土壌の化学的性質

土層 (土性)	試験区	pH		CEC me/100g	置換性%		Total C %	Total N %	Total P %	C/N
		H <sub>2</sub> O	KCl		Ca	Mg				
0-30cm (砂壤土)	A	5.5	4.5	15.6	0.053	0.015	2.11	0.15	0.08	14.1
	B	5.5	4.3	13.5	0.030	0.012	2.26	0.13	0.08	17.3
30-60cm (粘土)	A	6.5	5.5	18.6	0.267	0.055	1.10	0.10	0.06	11.0
	B	7.0	5.8	18.9	0.247	0.043	0.87	0.07	0.07	12.4

次に土壌に投入した汚泥の平均的な化学的性質を表3に示す。試料は、生汚泥を凍結脱水後、105℃で乾燥したものである。平均全炭素量が約30%、即ち50~60%が有機物である。又重金属はいずれも非常に多く、特に亜鉛、銅は平均1000mg/kgを越えている。前述したように、この汚泥源である廃水は台所廃水などの家庭内から排出されたものと、雨水を通して外部から流入したものととの混合廃水である。したがって、これら重金属の主要な排出源をどちらに求めるか速断出来ないが、これまでの知見から、家庭内廃水からの部分もかなり大きいと思われる。

表3 汚泥の化学的性質

項目	生汚泥中の濃度		乾燥試料中の含量*	
	平均	変動幅	平均	変動幅
pH	6.03	5.48-6.60	-	-
伝導度 $\mu\text{r}/\text{cm}$	387.6	139-521	-	-
蒸発残留物	8.14(g/l)	5.6-13.7(g/l)	-	-
Total C	2.44(%)	1.42-4.20(%)	29.7(%)	25.2-32.1
Total N	0.25(%)	0.17-0.46(%)	3.05(%)	2.84-3.39
Total P	0.034(%)	0.022-0.065(%)	0.41(%)	0.37-0.47
C/N	9.68	-	9.74	-
Cd	0.030(mg/l)	0.006-0.056(mg/l)	3.40(mg/kg)	0.98-6.10(mg/kg)
Zn	20.8(%)	8.23-37.41(%)	1820(%)	1464-3109(%)
Cu	9.51(%)	3.67-11.2(%)	1050(%)	588-2011(%)
Pb	1.31(%)	0.47-1.21(%)	147(%)	84-228(%)

\*生汚泥を凍結、脱水したのち、105℃で乾燥した試料

## 2. 汚泥および土壌中の重金属の溶解性。

土壌に限らず、自然環境における重金属の挙動を明らかにするには、重金属の存在状態を知ることが重要である。存在状態を知る一つの方法として、種々の溶媒による溶出試験がある。表4は汚泥中

の重金属の溶出試験結果である。表のAは全重金属量、Bは0.1N塩酸溶液により振とう抽出されたもの、C、Dはカラム法によるもので、Cは蒸留水、Dは雨水によって溶出させた結果である。各重金属の全量に対する酸可溶性の重金属の割合は銅が小さいものの、他の重金属はかなり高く、特に亜鉛は65%に及んでいる。これに対して、蒸留水、雨水では、溶出法が異なるので単純に比較できないが、前者より非常に小さい。その溶出の割合はCd>Zu>(Cu, Pb)の順で大きい。特にカドミウムは、C、Dともに全量の5%を越えていることは、毒性が高いために注目すべきである。

表4 汚泥(乾燥状態)中の重金属の溶解性に関する試験結果

重金属 mg/kg	全重金属量 (A)	0.1NHC1抽出量 (B)	蒸留水による溶出量 (C)	雨水による溶出量 (D)	B/A %	C/A %	D/A %
Cd	3.26	0.72	0.27	0.21	22.1	8.30	6.44
Zn	1074	555	2.9	3.4	64.9	0.27	0.32
Cu	855	14.0	0.12	0.15	1.6	0.01	0.02
Pb	86.9	35.5	0.02	0.02	40.9	0.02	0.02

表5は汚泥投入開始後、75日目の土壌表面にかさぶた状に残った汚泥残渣中の重金属の酸抽出試験結果である。表4の投入時の生の汚泥の場合とくらべて全般に酸可溶性の割合が高くなっており、特に亜鉛、カドミウムは、それぞれ95%、80%と非常に大きい。このことは、汚泥中の有機物の分解過程において、一部の重金属が酸可溶性の状態に変化したことを示すものと云えよう。

表5 表面残渣汚泥中の酸可溶性重金属

重金属 mg/kg	A試験区 (0~5cm)			B試験区 (0~5cm)		
	全重金属量(T)	酸抽出量(E)	E/T(%)	全重金属量(T)	酸抽出量(E)	E/T(%)
Cd	347	2.74	79.0	—	—	—
Zn	1,519	1,455	95.8	1,319	1,248	94.6
Cu	1,229	171	13.9	789	102	12.9
Pb	264	118	44.5	213	105	49.3
Fe	23,300	512	2.2	22,400	380	1.7
Mn	290	110	40.3	389	121	31.1

表6は土壌中の酸可溶性重金属についてしらべたものである。汚泥投入試験開始時と75日目では各全重金属量も酸可溶性重金属量の割合も両者の差は殆んどなく、75日間での酸可溶性に関する質的变化は認められなかった。次に各重金属の酸可溶性について、汚泥の場合とくらべて見ると、かなり異った特徴が見られ、汚泥では酸可溶性の割合が高かった亜鉛が土壌では10%以下と非常に低く、明らかに存在状態のちがいを示した。又カドミウムは、50%前後で汚泥よりも2倍程高かった。

表6 土壌中の酸可溶性重金属

重 金 属 mg/kg	試験開始時の砂壤土層*			試験開始後75日目の砂壤土層*		
	全重金属量(T)	酸抽出量(E)	E/T(%)	全重金属量(T)	酸抽出量(E)	E/T(%)
Cd	0.24	0.14	58.3	0.27	0.12	44.4
Zn	80.8	6.3	7.8	65.3	5.2	7.9
Cu	22.5	1.6	7.0	18.2	1.4	7.4
Pb	13.7	3.7	26.7	11.9	3.5	29.7
Fe	86500	167	0.5	24400	155	0.6
Mn	599	58.8	9.8	422	54.8	13.0

\* 15~20cm層

### 3. 土壌中の重金属の垂直分布

図3, 4はそれぞれA, B両試験区内の土壌中の重金属の垂直分布を調査した結果であり、試験開始時、75日目、6ヶ月目(B区については試験開始時と75日目のみ)の場合について示されている。A区について見ると、上層(0-30cm)の砂壤土層と、下層(30-60cm)の粘土層ではその分布状況は明らかに異り、いずれの重金属も後者の方が前者よりも高く、特にカドミウム、亜鉛で懸著であった。又各調査時期の分布状況を相互に比較してみると、砂壤土層では試験開始時と汚泥投入後ではその分布にはっきりとしたちがいは認められなかったが、粘土層に入ると明らかに高くなる傾向を示し、特にカドミウムでは両者の差は大きかった。B区でも同様の傾向であった。これらの結果は、土壌表層で徐々に溶出した重金属が、粒度の細かい砂壤土層ではほとんど吸着されずに下層に到達し、粘土層で吸着され、蓄積したことを示すものである。又、粘土層で、カドミウムの蓄積量が他に比べて大きかったのは、溶出試験で、汚泥中のカドミウムが水に最も溶出しやすいという結果と関連があることを示唆するものである。

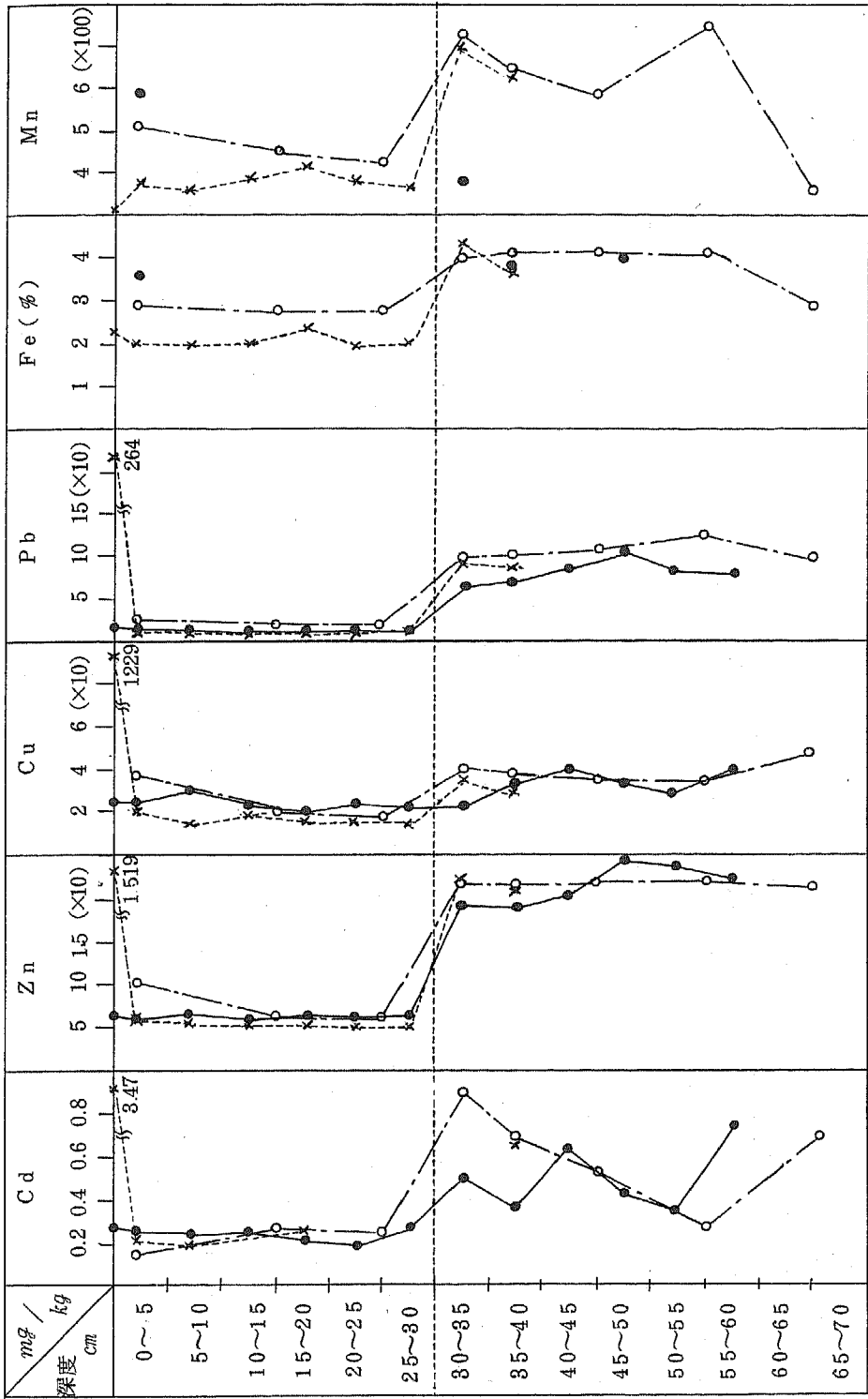


図3. A区における重金属の垂直分布  
 ● 試験開始時の土壌  
 × 後75日目の土壌  
 ○ 後6ヶ月目の土壌

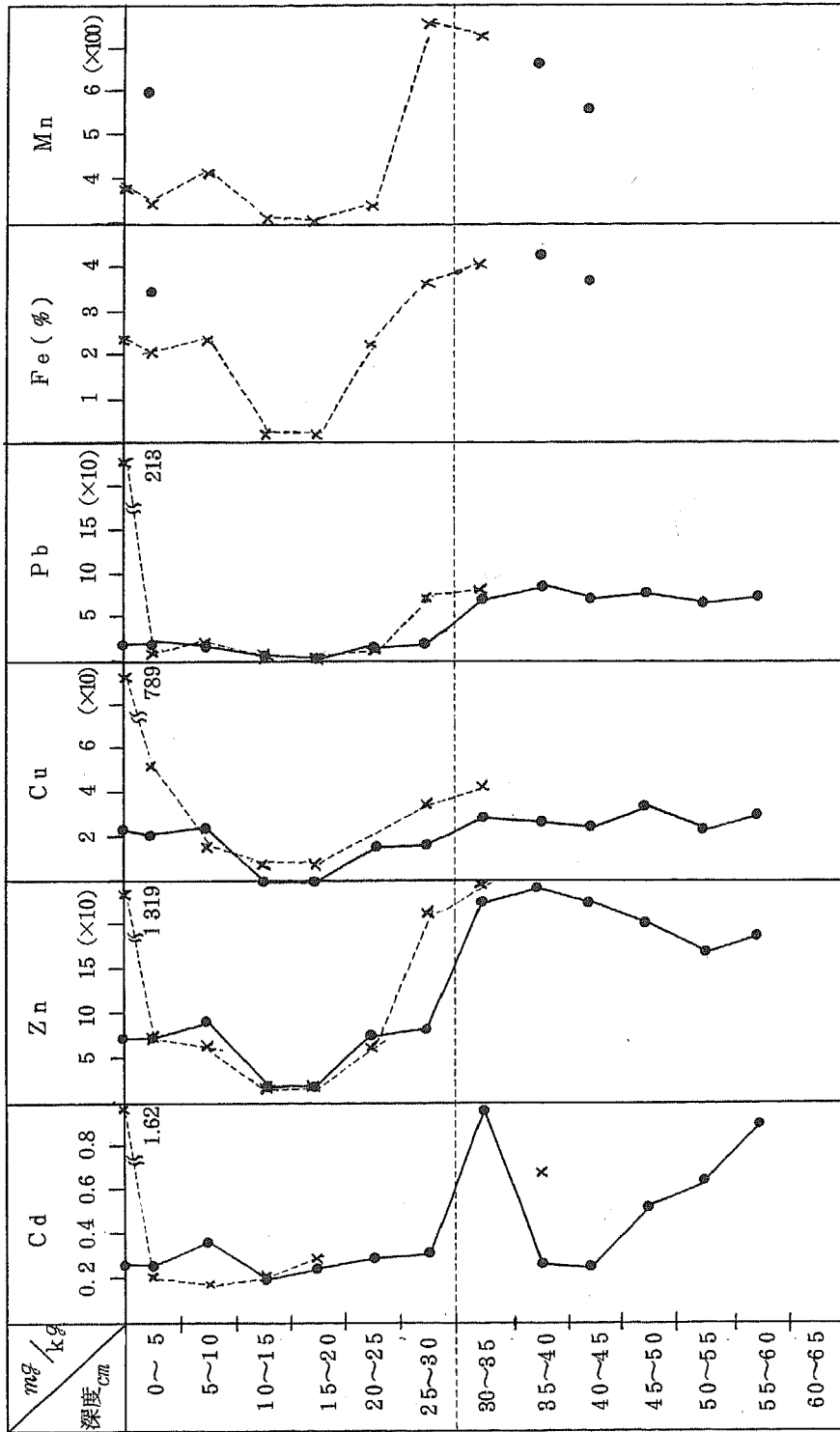


図4. B区における重金属の垂直分布

●——● 試験開始時の土壌

x.....x 後75日目の土壌



#### 4. 投入した汚泥中の各成分の全投入量と消失量

表7は試験期間中にA、B両試験区に投入した汚泥中の各成分の全投入量と、75日目までに、表層にかさぶた状に残った汚泥中の各成分の残存量から求めた消失量および消失率を示したものである。有機物は灼熱減量および炭素量からみて、約85%が75日間に分解、或いは下層へ溶出することによって消失したと思われる。窒素についてもほぼ同じことが云える。磷の消失率はこれらより小さく、75%程度であった。

重金属についてみると、消失率は相対的に亜鉛、カドミウムが大きく、銅、鉛が小さい。A区では亜鉛がB区ではカドミウムが最も大きかった。この結果は、前に述べた汚泥中の重金属の水溶出試験結果とはほぼ一致し、(Zn, Cd) > Cu > Pbの順で溶出しやすいことを示した。

表7 汚泥中の各成分の全投入量および消失量

成分 (g/m <sup>2</sup> )	A 試験区			B 試験区		
	投入量	消失量	消失率(%)	投入量	消失量	消失率(%)
蒸発残留物	1400	990	70.7	1501	1007	67.1
灼熱減量	878	745	84.9	941	790	84.0
Total C	423	363	85.8	455	398	86.4
Total N	42.6	34.9	81.9	45.8	38.6	84.3
Total P	5.79	4.35	75.1	6.22	4.24	68.2
Cd( $\times 10^{-8}$ )	5.88	3.96	73.6	7.79	7.40	95.0
Zn %	3617	2994	82.8	3887	3235	83.2
Cu %	1407	903	64.2	1512	1122	74.2
Pb %	219	111	50.7	235	126	53.6

#### 摘 要

土壌の表層に投入した家庭下水汚泥中の重金属の挙動について基礎的試験研究を行った。得られた知見を要約すると以下の様である。

- (1) 家庭下水汚泥は全炭素として25~30%の有機物を含み、又重金属濃度は非常に高く、カドミウムで平均3.4 mg/kg、銅、亜鉛はいずれも1000 mg/kg以上であった。
- (2) 汚泥中の重金属の酸に対する溶解性はZn > Pb > Cd > Cuの順であり、特に亜鉛は全量の65%が酸可溶性であった。又水に対する溶解性はCd > Zn > (Cu, Pb)の順で、カドミウムが最も大きく、全量の5%以上が溶出した。
- (3) 汚泥中の有機物の分解に伴って、汚泥中の酸可溶性重金属の割合が高まることを示した。

(4) 土壌中の重金属の酸に対する溶解性は  $Cd > Pb > (Zn, Cu)$  の順であり、なかでも酸可溶性亜鉛は全量の 10 % 以下と小さく、汚泥とは異った形態で存在していることを示した。

(5) 土壌中の重金属の垂直分布の調査から、汚泥から溶出した重金属は、砂壌土層ではほとんど吸着されず、粘土層で吸着、蓄積することが認められた。

(6) 土壌表層に投入した汚泥中の有機物は、75 日目までに、約 85 % が分解、溶出などにより消失した。又重金属はこの期間に鉛の 50 % から、亜鉛、カドミウムの 70 ~ 95 % が汚泥から消失した。

#### 参 考 文 献

1. 高橋一三 (1972) : 水処理技術 13(2), 1-18
2. J. Van Loon(1973) : Water and Sewage Works. 120(7), 50-52
3. A. L. Page (1974) : EPA Program Element № 1 B 2043 (下水道協会誌 12(1), 61-72, 1975)
4. 早川 登 (1975) : 水道公論 11(4), 31-38
5. Henry C. Hyde(1976) : JWPCF 48(1), 77-90
6. 矢木 博他 (1976) : 公害と対策 12(9), 40-46
7. 矢木 博他 (1976) : 公害と対策 12(10), 58-61
8. 矢木 博 (1976) : 用水と廃水 18(3), 31-36