

し尿中の無機成分に関する研究 (第2報)

東北地方のし尿中の Ca, Mg, Na, K, P, Cl, S, Mn,
Fe, Cd, Cu, Zn, Ni, Pb の含有量について

小林 純・森井ふじ・村本茂樹・中島 進

1. 緒 言

欧米では古くから下水道が発達し、し尿処理が普及しているが、わが国ではし尿が N, P, K を含有するので終戦の後まで農家の自給肥料として田畑に施され、農地の表面で自然に風化分解される場合が多かった。けれども、化学肥料がもっぱら使用される今日では、都市への人口の集中増加と相まって、陸水や海水の富栄養化や水質汚濁の主因の一つとして注目されるようになった。

し尿の物理、化学、生物学的な研究は、古くは肥料的な見地から、また近年は衛生工学的な面から幾多の研究がなされ、ことに汚染と関係の深い有機物、BOD(1~6)、食塩の濃度(7,8)などについては多くの報告がある。しかし食塩以外の無機成分(7,9)に関する詳細な研究報告は非常に少ない。我々は、し尿中の化学成分は人類活動によってもたらされる水質変化および汚濁と深い関係があるだけでなく、飲食物からの無機元素の摂取量が、日本と諸外国との食物の相違、都市と農村、あるいは季節的な変化などによってどの様な影響を受けるかなどを解明するための手段としても重要であることに着目し、各地のし尿処理場より汲み取りし尿を採取し、蒸発残留物量、灰量、主要無機元素 (Na, K, Ca, Mg, P, Cl, S) および微量元素 (Cd, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, Zn など) を、主として原子吸光分光光度法により定量を試みている。前報(10)で、1967年12月~1968年6月までの7ヶ月間、宮城、岩手、秋田3県下8ヶ所のし尿処理場で毎月1回ずつ集めた試料について蒸発残留物量、灰量、無機主要元素の分析結果を中間的に報告したが、本報では、その後1968年12月までの13ヶ月間を通じての蒸発残留物量、灰量、Ca, Mg, Na, K, P, Cl, S, Mn, Fe, Cd, Cu, Zn, Ni, Pb の定量結果を報告する。

本報告の内容の一部は第39回日本衛生学会総会 (1969年4月, 福岡)、第27回日本公衆衛生学会総会 (1969年10月, 岡山) および第42回日本衛生学会総会 (1972年4月, 広島) において発表したこと、試料採取場所の決定にあたり、東北大学医学部高橋英次教授より御助言を賜ったこと、東北地方8ヶ所のし尿処理場に試料採取を担当していただいたこと、および本研究の費用の一部を文部省科学研究費によったことを記し、厚く感謝の意を表します。

2. 試料および分析方法

2-1 試料

し尿の採取場所は第1表および第1図に示すように東北地方の8ヶ所の汲み取り式し尿処理場である。これらの処理場で1967年12月から1968年12月までの13ヶ月間、毎月1回ずつ、投入槽と第一消化槽から内容物をよく攪拌混合して試料を採取した。

第1表 試料を採取したし尿処理場一覧

処 理 場 名	所 在 地	処 理 方 式	施 行 者	消化能力 (ℓ/day)
宮城県黒川衛生処理場	宮城県黒川郡大和町 鶴巣大平新田60-7	嫌気性加温式 2段消化法	栗田工業 クリタバハ ーマ方式	22,000
宮城県古川市衛生処理場	宮城県古川市東浦 110-1	嫌気性分解後散布ろ床	西原環境衛 生研究所	36,000
宮城県気仙沼市 清掃センター	気仙沼市字田中 3番地	嫌気性分解後散布ろ床	荏原製作所	36,000
宮城県志津川歌津 衛生処理場	宮城県本吉郡志津川 町 戸倉字中元56-3	嫌気性加温 2段消化法	浦賀重工業	15,000
岩手県宮古市衛生処理場	岩手県宮古市	嫌気性加温 2段消化法 (散布ろ床)	新潟鉄工所	54,000
岩手県一関市衛生処理場	一関市孤禪寺字手負 沢 11 の 3	加温 2段消化方式	三菱化工機	45,000
秋田県湯沢市 清掃センター	湯沢市関口字川前34	嫌気性分解後散布ろ床 エハラ単段 2槽式 加温 30日 消化法	荏原製作所	36,000
秋田県横手衛生センター	横手市陸成字七間川 原	嫌気性ガス攪拌 曝気方式 C. R. P. 方式	安宅産業	65,000

2-2 分析方法

1) 蒸発残留物：し尿をミキサーで混合均一化し、その一定容を灼熱恒量にした磁製ルツボに入れ、熱風乾燥器で85℃で12時間乾燥後、さらに105℃で2時間乾燥して得られる固形物の重量を蒸発残留物とした。

2) 灰量：蒸発残留物を450℃で24時間灼熱した後の重量を灰量とした。

3) 無機元素の定量

し尿の一定量を硬質三角フラスコに入れ、硝酸および過塩素酸で湿式灰化した後、塩酸と水を加え加熱溶解後一定容とし、Ca, Mg, Na, K, P および微量元素などの分析用試料溶液とした。

3-1) Ca, Mg：試料溶液にランタン (Caの場合 5,000 ppm, Mgの場合 500 ppm) が共存するように、ランタン塩溶液を添加した後、原子吸光分析装置 (日本ジャーレル・アッシュ社製 AA-1型) により定量した。

3-2) Na, K：試料溶液を適宜希釈して炎光分析装置 (日本ジャーレル・アッシュ社製原子吸光分析装置 AA-1型、炎光分析と兼用) により定量した。

3-3) Cl：450℃で乾式灰化した上記2)の灰の一定量に水を加え加熱溶解後、放冷し



第1図 試料採取場所

て Mohr の銀 滴定を改良した方法 (11) により定量した。

3-4) P: 3) の項で調製した分析試料溶液の一部を用いてリンバナドモリブデン酸法による比色法 (12) により定量した。

3-5) S: 2) の項で得られた灰の一定量を希塩酸に溶解し、ろ過後 $BaSO_4$ として比濁法 (13) により定量した。

3-6) Fe: 湿式灰化した試料溶液を 6.5 N 塩酸酸性にして 1:1 メチルイソブチルケトン (MIBK) - 酢酸イソアミル溶液 (あらかじめ 6.5 N 塩酸で飽和したものを使用) で抽出し、その有機相を、同様に操作して得られた Fe 標準液と共に、原子吸光分析装置により定量した。

3-7) Mn: 湿式灰化した試料溶液に 5,000 ppm のランタンが共存するようにランタン塩溶液を添加した後、原子吸光分析装置により定量した。

3-8) Cd, Cu, Zn, Ni, Pb: 湿式灰化した試料溶液の一定量を分液ロートに採り、クエン酸三アンモニウム溶液を加え、アンモニア水で pH を 9.3 に調整する。0.1% 精製ジチゾンクロロホルム溶液を加えてシェーカーでよく振り混ぜた後、クロロホルム層を分離し、さらにジチゾンクロロホルム層がまったく変色しなくなるまで数回抽出分離を行なう。分離したジチゾンクロロホルム溶液は合し、水浴上でクロロホルムを除去した後、硝酸と過塩素酸を加え砂浴上で加熱し、有機物を完全に分解した後、蒸発乾固する。これに塩酸を加えて加熱溶解し、一定容 (10 ml, 0.1 N 塩酸酸性) にする。この溶液を原子吸光分析装置によりそれぞれについて吸光度の測定を行ない、あらかじめ作成した検量線から試料中の定量値を求め、試薬ブランク値を差し引いて、Cd, Cu, Zn, Ni, Pb の含有量を決定する。

3. 結 果

東北地方の 8ヶ所のし尿処理場から 1967年12月～1968年12月の13ヶ月間に得られた生試料中の蒸発残留物量、灰量および無機諸成分含有量の、し尿処理場別、採取槽別の平均値を第2表と第3表に示す。さらに灰中の含有量に換算した無機諸成分の平均値は第4表と第5表に示すとおりである。

3-1 蒸発残留物量: 投入槽での平均値は第2表に示すように $15.4 \pm 5.5 \text{ g/l} \sim 33.2 \pm 10.3 \text{ g/l}$ で、それらの平均値は $25.0 \pm 8.7 \text{ g/l}$ である。消化槽では $11.4 \pm 2.8 \text{ g/l} \sim 24.0 \pm 7.3 \text{ g/l}$ 、その平均値は $18.0 \pm 4.5 \text{ g/l}$ で、投入槽の方が消化槽より高い値である。湯沢

第2表 東北地方のし尿中の蒸発残留物量、灰量およびCa, Mg, Na, K, Cl, P, S 含有量の平均値(生試料中)
(1967年12月~1968年12月採取)

し尿 処理場名	採取槽	蒸発残留物 (g/ℓ)	灰分 (g/ℓ)	Ca (mg/ℓ)	Mg (mg/ℓ)	Na (mg/ℓ)	K (mg/ℓ)	Cl (mg/ℓ)	P (mg/ℓ)	S (mg/ℓ)
黒川	投入槽(T)	17.2±4.2	8.9±1.7	290±130	110±90	2,300±530	830±200	3,600±890	360±140	170±69
	消化槽(S)	11.4±2.8	7.4±1.7	160±63	42±20	2,000±480	730±120	3,200±710	220±81	99±38
古川	T	26.7±10.4	11.6±3.3	360±160	150±87	2,900±740	1,000±260	4,500±1,100	470±180	190±86
	S	17.4±4.2	10.5±1.8	320±170	160±130	2,700±290	970±300	4,200±460	460±200	140±45
気仙沼	T	15.4±5.5	9.0±2.1	150±60	39±43	2,500±520	900±190	4,000±890	250±100	120±34
	S	15.0±2.2	9.2±0.77	160±77	36±34	2,600±220	920±63	4,100±360	270±63	100±40
志津川	T	26.7±13.4	9.2±2.5	500±290	220±140	2,000±610	770±230	3,000±1,000	560±260	180±83
	S	17.3±6.3	8.8±1.7	380±190	120±75	2,000±380	790±180	3,300±1,600	410±150	160±78
一関	T	26.5±6.8	12.2±2.5	370±120	140±43	3,100±580	1,100±350	4,700±980	490±120	250±68
	S	16.0±1.6	10.3±1.2	150±28	28±40	2,900±380	970±140	4,600±630	260±25	140±19
宮古	T	27.0±9.5	11.8±2.6	450±150	190±69	2,900±590	1,200±240	4,400±910	590±170	220±78
	S	19.0±7.2	9.5±1.8	390±180	150±90	2,300±350	910±180	3,500±880	480±190	170±78
湯沢	T	33.2±10.3	11.9±4.6	480±150	210±63	2,900±660	1,000±220	4,300±760	600±110	250±64
	S	23.7±4.5	10.8±0.48	450±170	200±69	2,700±160	920±72	4,100±290	550±140	210±46
横手	T	27.3±9.4	10.2±2.5	340±120	180±79	2,600±660	970±210	3,800±1,000	500±170	220±88
	S	24.0±7.3	9.9±1.4	410±160	180±87	2,400±280	870±130	3,700±460	520±180	170±33
平均	T	25.0±8.7	10.6±2.7	370±150	150±77	2,700±610	970±240	4,000±940	480±160	200±71
	S	18.0±4.5	9.6±1.4	300±130	110±68	2,500±320	890±150	3,800±670	400±130	150±52

第3表 東北地方のし尿中のCd, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, Zn含有量の平均値(生試料中)
(1967年12月~1968年12月採取)

し尿 処理場名	採取槽	Cd (mg/θ)	Cu (mg/θ)	Fe (mg/θ)	Mn (mg/θ)	Ni (mg/θ)	Pb (mg/θ)	Zn (mg/θ)
黒川	投入槽(T)	0.024±0.009	1.1 ±0.38	18 ± 9.0	2.4±0.85	0.15±0.10	0.25±0.14	7.5 ± 3.5
	消化槽(S)	0.015±0.009	1.5 ±1.7	11 ± 7.3	1.7±0.71	0.12±0.07	0.32±0.17	5.0 ± 2.5
古川	T	0.033±0.017	1.8 ±0.54	24 ±16	4.0±1.4	0.18±0.09	0.50±0.40	11 ± 4.4
	S	0.113±0.093	7.6 ±4.2	35 ±23	3.9±1.4	0.24±0.09	0.34±0.24	11 ± 5.4
氮仙沼	T	0.013±0.008	0.85±0.51	11 ± 6.4	1.4±0.51	0.15±0.06	0.20±0.18	4.6 ± 1.6
	S	0.011±0.009	0.68±0.53	12 ±11	1.4±0.80	0.16±0.05	0.15±0.16	4.0 ± 3.7
志津川歌津	T	0.052±0.027	4.0 ±2.2	57 ±40	4.9±2.7	0.22±0.15	0.58±0.71	18 ±11
	S	0.046±0.037	2.2 ±1.3	39 ±24	3.4±2.0	0.21±0.08	0.29±0.23	15 ± 6.5
一関	T	0.031±0.010	1.7 ±0.42	23 ± 6.3	3.2±0.86	0.23±0.11	0.22±0.17	10 ± 5.5
	S	0.012±0.004	0.80±0.18	12 ± 2.4	1.6±0.34	0.19±0.05	0.11±0.10	5.3 ± 1.2
宮古	T	0.040±0.017	2.2 ±0.96	20 ±10	4.0±1.4	0.15±0.05	0.28±0.17	8.7 ± 3.3
	S	0.059±0.047	2.2 ±1.3	21 ±17	4.3±3.9	0.17±0.05	0.23±0.14	9.6 ± 5.5
湯沢	T	0.053±0.025	3.4 ±1.1	54 ±34	6.9±3.4	0.21±0.06	0.42±0.26	11 ± 4.1
	S	0.052±0.015	3.5 ±1.3	46 ±28	5.8±2.5	0.18±0.05	0.34±0.22	12 ± 4.9
横手	T	0.039±0.016	3.1 ±2.3	25 ±14	3.7±2.2	0.20±0.06	0.16±0.15	8.9 ± 2.6
	S	0.107±0.053	3.0 ±1.6	42 ±36	5.3±2.6	0.21±0.05	0.41±0.37	14 ± 5.5
平均	T	0.036±0.016	2.3 ±1.1	29 ±17	3.8±1.7	0.19±0.09	0.33±0.27	10 ± 4.5
	S	0.052±0.033	2.7 ±1.5	27 ±19	3.4±1.8	0.19±0.06	0.27±0.20	9.5 ± 4.4

第4表 東北地方のし尿中のCa, Mg, Na, K, Cl, P, S含有量の平均値(尿中)
(1967年12月~1968年12月採取)

し尿 処理場名	採取槽	Ca (%)	Mg (%)	Na (%)	K (%)	Cl (%)	P (%)	S (%)
黒川	投入槽(T)	3.1±0.90	1.0±0.36	26.2±1.9	9.3±1.2	40.2±3.7	3.7±0.88	1.9±0.58
	消化槽(S)	2.1±0.36	0.55±0.15	27.2±0.95	10.2±0.96	43.8±1.8	3.0±0.44	1.3±0.28
古川	T	3.2±0.57	1.3±0.41	25.5±1.4	9.0±1.1	39.4±2.2	4.2±0.52	1.6±0.32
	S	2.8±1.1	1.3±0.86	26.2±2.1	9.3±1.9	41.1±4.4	4.2±1.2	1.3±0.28
気仙沼	T	1.6±0.47	0.41±0.31	28.2±0.79	10.0±0.65	44.7±1.6	2.7±0.50	1.3±0.29
	S	1.7±0.74	0.38±0.34	28.2±1.1	10.1±0.82	44.8±2.2	3.0±0.55	1.1±0.35
志津川歌津	T	5.5±3.1	2.2±1.2	21.7±4.1	8.5±1.6	32.9±7.5	6.0±2.3	1.9±0.56
	S	4.1±1.5	1.3±0.59	24.6±2.6	9.7±0.91	38.5±4.4	4.5±0.95	1.7±0.48
一関	T	3.0±0.79	1.1±0.31	25.8±1.6	8.7±0.65	38.3±2.4	4.0±0.67	2.1±0.26
	S	1.4±0.26	0.27±0.04	28.5±0.81	9.4±0.62	44.7±1.4	2.5±0.18	1.3±0.19
宮古	T	3.8±0.71	1.6±0.35	24.9±1.4	9.8±0.62	37.6±2.5	4.9±0.69	1.8±0.38
	S	4.0±1.5	1.5±0.75	24.4±2.9	9.7±1.2	37.2±7.0	4.9±1.6	1.8±0.99
湯沢	T	4.1±1.7	1.7±0.47	24.2±2.4	8.5±1.3	35.4±4.7	5.1±1.2	2.2±0.62
	S	4.1±1.4	1.8±0.54	25.3±2.1	8.6±0.74	37.8±3.8	5.1±1.1	2.0±0.33
横手	T	3.4±0.85	1.7±0.57	25.4±2.1	9.5±1.0	36.8±4.9	4.8±1.1	2.1±0.55
	S	4.2±1.2	1.9±0.77	24.5±1.9	8.7±1.2	37.4±4.6	5.3±1.3	1.7±0.51
平均	T	3.5±1.1	1.4±0.50	25.2±2.0	9.2±1.0	38.2±3.7	4.4±0.98	1.9±0.45
	S	3.1±1.0	1.1±0.51	26.1±1.8	9.5±1.0	40.7±3.7	4.1±0.92	1.5±0.43

第5表 東北地方のし尿中のCd, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, Zn含有量の平均値(尿中)
(1967年12月~1968年12月採取)

し尿 処理場名	採取槽	Cd (ppm)	Cu (ppm)	Fe (ppm)	Mn (ppm)	Ni (ppm)	Pb (ppm)	Zn (ppm)
黒川	投入槽(T)	2.8±1.1	130±50	2,100±1,200	280±110	19±13	30±18	890±440
	消化槽(S)	1.9±0.72	230±330	1,500±570	230±57	16±6.6	41±14	660±220
古川	T	2.8±0.95	160±27	2,100±910	330±82	16±5.6	41±24	980±210
	S	10±6.4	760±430	3,200±1,500	370±90	23±8.1	31±17	990±350
気仙沼	T	1.4±0.60	92±44	1,200±410	160±35	16±3.6	22±18	510±170
	S	1.2±0.81	72±49	1,200±1,100	150±74	17±4.8	16±15	420±340
志津川歌津	T	5.8±2.6	450±240	6,400±4,400	530±230	23±11	60±86	2,100±1,200
	S	4.9±2.7	240±88	4,300±1,800	380±140	25±7.9	38±32	1,600±530
一関	T	2.6±1.0	150±47	1,900±700	270±89	20±7.7	20±17	910±570
	S	1.2±0.43	79±17	1,200±280	150±32	19±5.3	11±9.1	530±150
宮古	T	3.4±1.2	190±98	1,600±510	340±110	13±3.6	24±16	730±210
	S	6.4±5.8	240±120	2,200±1,700	440±310	18±3.1	24±14	1,000±460
湯沢	T	4.8±2.8	300±120	4,800±3,200	600±330	17±7.6	38±28	990±470
	S	4.8±1.2	320±100	4,300±2,500	540±210	17±4.4	32±19	1,100±390
横手	T	4.0±1.5	290±220	2,700±1,800	350±150	20±5.4	15±10	930±460
	S	11±5.5	290±140	4,100±2,900	530±230	21±4.9	40±32	1,400±490
平均	T	3.5±1.5	220±110	2,900±1,600	360±140	18±7.2	31±27	1,000±470
	S	5.2±2.9	280±160	2,800±1,500	350±140	20±5.6	29±19	960±370

や横手では投入槽も消化槽もともに高い値であるが、気仙沼と黒川では反対に低い値を示している。月別変動の最も大きいのは志津川歌津であり、小さいのは黒川や気仙沼である。

3-2 灰量：投入槽における平均値は第2表のように $8.9 \pm 1.7 \text{ g/l} \sim 12.2 \pm 2.5 \text{ g/l}$ で、その平均値は $10.6 \pm 2.7 \text{ g/l}$ である。消化槽では $7.4 \pm 1.7 \text{ g/l} \sim 10.8 \pm 0.48 \text{ g/l}$ 、その平均は $9.6 \pm 1.4 \text{ g/l}$ である。投入槽での灰量が、蒸発残留物中40%以下(35~37%)の処理場は志津川歌津、湯沢、横手であるが、その他の場所では43~58%であった。これによって投入槽で蒸発残留物中に占める有機物の割合は42~65%であることが判明した。しかし前記3処理場では消化槽においてもなお蒸発残留物中の灰量の割合が51%以下(41~51%)で有機物よりも少ないことがわかった。投入槽における月別変動の大きい場所は湯沢であり、黒川、一関などでは小さい。また消化槽は投入槽よりも場所別、月別の変動が小さい。

3-3 Ca, Mg, Na, K, P, Cl, S 含有量：東北地方の8ヶ所のし尿処理場の投入槽中の無機主要元素の含有量の平均値は第2表に示すようであり、8地区の総平均値はCaが $370 \pm 150 \text{ mg/l}$ 、Mgが $150 \pm 77 \text{ mg/l}$ 、Naが $2,700 \pm 610 \text{ mg/l}$ 、Kが $970 \pm 240 \text{ mg/l}$ 、Clが $4,000 \pm 940 \text{ mg/l}$ 、Pが $480 \pm 160 \text{ mg/l}$ 、Sが $200 \pm 71 \text{ mg/l}$ であった。湯沢、宮古、志津川歌津などでは主要元素の含量が高く、気仙沼、黒川では低い値であった。月別変動の大きい元素はCa, Mg, P, S などであり、また各元素について変動の少ない場所は湯沢である。灰中の平均値は第4表のようで、投入槽の8ヶ所の総平均値はCaが $3.5 \pm 1.1\%$ 、Mgが $1.4 \pm 0.50\%$ 、Naが $25.2 \pm 2.0\%$ 、Kが $9.2 \pm 1.0\%$ 、Clが $38.2 \pm 3.7\%$ 、Pが $4.4 \pm 0.98\%$ 、Sが $1.9 \pm 0.45\%$ であり、NaとClの合量は $54.6 \sim 72.9\%$ で平均値は63.4%であった。各元素の平均値をみると志津川歌津ではCa, Mg, P が8ヶ所中最大値を示し、それらが最小値を示したのは気仙沼であった。しかしNa, K, Clについては気仙沼が最大値、志津川歌津が最小値であって、一般的傾向としてはCa, Mg, P 量の高い試料ではNa, K, Cl が低い値であった。

つぎに消化槽での平均値は第2表に示すようであるが、その総平均値はCaが $300 \pm 130 \text{ mg/l}$ 、Mgが $110 \pm 68 \text{ mg/l}$ 、Naが $2,500 \pm 320 \text{ mg/l}$ 、Kが $890 \pm 150 \text{ mg/l}$ 、Clが $3,800 \pm 670 \text{ mg/l}$ 、Pが $400 \pm 130 \text{ mg/l}$ 、Sが $150 \pm 52 \text{ mg/l}$ で、いずれの元素も投入槽より低い値である。湯沢では主要元素の含有量が高く、黒川では低い。月別変動の大きい元素はMgで、Ca, S がこれにつづく。一関ではCa, P, S の月別変動が8ヶ所中最低値を示しているが、Mg, Na, Cl の変動の最低値を示した場所は湯沢であった。消化槽中の主要元素の灰中の平均値は第4表のようで、その総平均値はCaが $3.1 \pm 1.0\%$ 、Mgが $1.1 \pm 0.51\%$ 、Naが $26.1 \pm 1.8\%$ 、Kが $9.5 \pm 1.0\%$ 、Clが $40.7 \pm 3.7\%$ 、Pが $4.1 \pm 0.92\%$ 、Sが $1.5 \pm 0.43\%$ である。NaとClの合量は $61.6 \sim 73.2\%$ で平均 66.8% であり、投入槽より高い値である。

3-4 Cd, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, Zn 量：投入槽でのし尿中の微量元素の含有量の平均値は第3表のようで、8ヶ所の総平均値はCdが $0.036 \pm 0.016 \text{ mg/l}$ 、Cuが $2.3 \pm 1.1 \text{ mg/l}$ 、Feが $29 \pm 17 \text{ mg/l}$ 、Mnが $3.8 \pm 1.7 \text{ mg/l}$ 、Niが $0.19 \pm 0.09 \text{ mg/l}$ 、Pbが $0.33 \pm 0.27 \text{ mg/l}$ 、Znが $10 \pm 4.5 \text{ mg/l}$ である。湯沢、志津川歌津では微量元素の含量が高く、黒川、気仙沼では低い。月別変動の大きい元素はPbでCu, Fe がこれにつづく。場所別の

変動の大きい元素は Fe であり, Ni は小さい。灰中の平均値は第 5 表のようであり, 8ヶ所の総平均値は Cd が 3.5 ± 1.5 ppm, Cu が 220 ± 110 ppm, Fe が $2,900 \pm 1,600$ ppm, Mn が 360 ± 140 ppm, Ni が 18 ± 7.2 ppm, Pb が 31 ± 27 ppm, Zn が $1,000 \pm 470$ ppm であって, Cd と Zn の含有量の割合は 1 : 286, Cd と Pb のそれは 1 : 8.9 であった。

消化槽での平均値は第 3 表のようで, 8ヶ所の総平均値は Cd が 0.052 ± 0.033 mg/l, Cu が 2.7 ± 1.5 mg/l, Fe が 27 ± 19 mg/l, Mn が 3.4 ± 1.8 mg/l, Ni が 0.19 ± 0.06 mg/l, Pb が 0.27 ± 0.20 mg/l, Zn が 9.5 ± 4.4 mg/l である。消化槽での微量元素の含有量の高い地点は横手, 湯沢, 古川であり, 低い地点は一関, 気仙沼である。月別変動の大きい元素は Cu で, Pb, Zn がこれにつぐ。場所別, 月別変動の最も少ない元素は Ni である。灰中の含有量は第 5 表のようであり, 8ヶ所の総平均値は Cd が 5.2 ± 2.9 ppm, Cu が 280 ± 160 ppm, Fe が $2,800 \pm 1,500$ ppm, Mn が 350 ± 140 ppm, Ni が 20 ± 5.6 ppm, Pb が 29 ± 19 ppm, Zn が 960 ± 370 ppm であって, 消化槽中の Cd, Cu, Ni の平均値は投入槽より高く, そのうち最も高い元素は Cd であった。

4. 考 察

4-1 東北地方の住民の無機成分の排泄量

住民 1 人 1 日当りのし尿の汲み取り量を $1.0 \sim 1.2$ l として計算すると, 前述の分析結果から 1 日当りの排泄固形物量(蒸発残留物量)は 27.5 g であり, 灰量すなわち排泄無機物質の量は 11.7 g (投入槽の平均)であった。無機排泄物のうち, NaCl が約 7.4g で無機物の約 2/3 を占めている。すなわち Na 3.0g, Cl 4.4g のほか, Ca 0.41g, Mg 0.17g, K 1.1g, P 0.53g, S 0.22g などである。また微量元素は Fe 32 mg, Zn 11 mg, Mn 4.2 mg, Cu 2.5 mg, Pb 0.36 mg, Ni 0.21 mg, Cd 0.040 mg であった。住民 1 人 1 日当りの NaCl の排泄量 7.4g より, 1 人当り年間の量を求めると約 2.7 kg となる。日本人の食料としての食塩の消費量は日本専売公社の調査では 1 人当り年間 11.5 kg (1964年) とされているが, これは家庭で直接調味料として使用されるもののほかに, しょう油, 漬け物, みそなどの製造用や魚の塩蔵用および食品加工(めん類, バター, チーズ, かんづめ等)や家畜の飼料用などに用いられる量をも含めての平均値であるので, 実際上の摂取量はし尿や汗からの排泄量を合せても, 食用塩の消費量をかなり下廻るものと推定される。なおまた 1 人当りの年間 NaCl 排泄量約 2.7 kg より, 日本の全人口の排泄量を求めると約 27 万トンとなる。このし尿を通じての排泄量は, 日本の 1 年間の消費食塩量 114 万トン (1964年) の約 24% に相当する。

4-2 し尿中の無機主要成分の化学当量

8ヶ所のし尿処理場におけるし尿中の無機主要成分量をミリ当量に換算して第 6 表に示す。この表の中で, 特に注目される点は各採取場所の投入槽と消化槽における Na と Cl の各ミリ当量数がきわめて接近した値を示していることである。また, 同表に陽イオン (Ca, Mg, Na, K) ならびに陰イオン (P, Cl, S) のミリ当量の和を示したが, 表から明瞭なごとく, 各場所の投入槽と消化槽において, 陽および陰イオンのミリ当量の和は非常に接近した値を示している。この結果は, 前報(10)で 1967年12月から 1968年6月までの

第6表 東北地方のし尿中の主要無機成分の平均値のミリ当量 (meq) および陽、陰イオンのミリ当量の和

し尿 処理場名	採取槽	Ca (meq)	Mg (meq)	Na (meq)	K (mep)	Cl (meq)	P (meq)	S (meq)	陽イオンの ミリ当量の和 (meq)	陰イオンの ミリ当量の和 (meq)
黒川	投入槽(T)	14.5	9.1	100	21	101	35	10.6	145	147
	消化槽(S)	8.0	3.5	87	19	90	21	6.2	118	117
古川	T	18.0	12.4	126	26	127	46	11.9	182	185
	S	16.0	13.2	117	25	118	45	8.9	171	172
気仙沼	T	7.5	3.2	109	23	113	24	7.5	143	145
	S	8.5	3.0	113	24	116	26	6.3	148	148
志津川 歌津	T	25.0	18.1	87	20	85	54	11.3	150	150
	S	19.0	9.9	87	20	93	40	10.0	136	143
一関	T	18.5	11.5	135	28	133	47	15.6	193	196
	S	7.5	2.3	126	25	130	25	8.8	161	164
宮古	T	22.5	15.6	126	31	124	57	13.8	195	195
	S	19.5	12.3	100	23	99	46	10.6	155	156
湯沢	T	24.0	17.3	126	26	121	58	15.6	193	195
	S	22.5	16.5	117	24	116	53	13.1	180	182
横手	T	17.0	14.8	113	25	107	48	13.8	170	169
	S	20.5	14.8	104	22	104	50	10.6	161	165
平均	T	18.5	12.3	117	25	113	46	12.5	174	172
	S	15.0	9.1	109	23	109	39	9.4	157	155

試料について述べた傾向と一致するだけでなく、生し尿中のアンモニアは計算上遊離または炭酸と結合して存在することを示すと考えられる。

4-3 し尿中の無機主要成分間の化学当量比

8ヶ所のし尿中の Ca, Mg, Na, K, P, Cl, S などの分析結果から、それぞれのミリ当量を算出し、Na/Cl, K/Cl, Ca/Cl, Mg/Cl, P/Cl, S/Cl, Na/Ca, Mg/Ca, K/Ca, P/Ca, S/Ca, Na/K, P/S などの当量比を求めると第7表のようになる。それらの投入槽では Na/Cl は 0.96~1.1 で平均 1.0, K/Cl は 0.20~0.25 で平均 0.22 であり、Mg/Ca は 0.43~0.87 で平均 0.66 であり、P/Ca は 2.2~3.2 で平均 2.5 であり、Na/K は 4.1~4.8 で平均 4.7 であり、P/S は 3.0~4.8 で平均 3.7 であった。これらのうち特に Na/Cl については各採取場所別、各槽の別なく、ほぼ 1.0 を示しているのは興味深い。つぎに Ca/Cl は 0.07~0.29 で平均 0.16, Mg/Cl は 0.03~0.21 で平均 0.11, P/Cl は 0.21~0.64 で平均 0.41, S/Cl は 0.07~0.13 で平均 0.11, Na/Ca は 3.5~15 で平均 6.3, K/Ca は 0.8~3.1 で平均 1.4, S/Ca は 0.45~1.0 で平均 0.68 であった。以上 Ca/Cl など 7 つの当量比は採取場所によりかなりの差があり、気仙沼では Ca/Cl, Mg/Cl, P/Cl, S/Cl の比が低く、Na/Ca, K/Ca, S/Ca の比が高い。志津川歌津、湯沢ではその逆の傾向を示した。

第7表 東北地方のし尿中の主要無機成分の当量比

し尿処理場名	採取槽	Na Cl	K Cl	Ca Cl	Mg Cl	P Cl	S Cl	Mg Ca	Na Ca	K Ca	P Ca	S Ca	Na K	P S
黒川	投入槽(T)	0.99	0.21	0.14	0.09	0.35	0.10	0.63	6.9	1.4	2.4	0.73	4.8	3.3
	消化槽(S)	0.97	0.21	0.09	0.04	0.23	0.07	0.44	11	2.4	2.6	0.78	4.6	3.4
古川	T	0.99	0.20	0.14	0.10	0.36	0.09	0.68	7.0	1.4	2.6	0.66	4.8	3.9
	S	0.99	0.21	0.14	0.11	0.38	0.08	0.83	7.3	1.6	2.8	0.56	4.7	5.1
気仙沼	T	0.96	0.20	0.07	0.03	0.21	0.07	0.43	15	3.1	3.2	1.0	4.7	3.2
	S	0.97	0.21	0.07	0.03	0.22	0.05	0.38	14	3.0	3.3	0.79	4.7	4.1
志津川 歌津	T	1.0	0.24	0.29	0.21	0.64	0.13	0.72	3.5	0.8	2.2	0.45	4.4	4.8
	S	0.94	0.22	0.20	0.11	0.43	0.11	0.52	4.6	1.1	2.1	0.53	4.4	4.0
一関	T	1.0	0.21	0.14	0.09	0.35	0.12	0.62	7.3	1.5	2.5	0.84	4.8	3.0
	S	0.97	0.19	0.06	0.02	0.19	0.07	0.31	5.1	3.3	3.3	1.2	5.0	2.8
宮古	T	1.0	0.25	0.18	0.13	0.46	0.11	0.69	5.6	1.4	2.5	0.61	4.1	4.1
	S	1.0	0.23	0.20	0.12	0.46	0.11	0.63	5.1	1.2	2.4	0.54	4.3	4.3
湯沢	T	1.0	0.21	0.20	0.14	0.48	0.13	0.72	5.3	1.1	2.4	0.65	4.8	3.7
	S	1.0	0.21	0.19	0.14	0.46	0.11	0.73	5.2	1.1	2.4	0.58	4.9	4.0
横手	T	1.1	0.23	0.16	0.14	0.45	0.13	0.87	6.6	1.5	2.8	0.81	4.5	3.5
	S	1.0	0.21	0.20	0.14	0.48	0.10	0.72	5.1	1.1	2.4	0.52	4.7	4.7
平均	T	1.0	0.22	0.16	0.11	0.41	0.11	0.66	6.3	1.4	2.5	0.68	4.7	3.7
	S	1.0	0.21	0.14	0.09	0.36	0.09	0.61	7.3	1.5	2.6	0.63	4.7	4.1

4-4 し尿中の無機成分濃度間の相関係数

し尿の投入槽中における無機成分間の相関を検討した結果、第8表に示すようにCa-Mg, Cl-Na, Cl-K, Na-K, P-Ca, Mg-Mn, Ca-Zn, Ca-Mn, P-Mn, Fe-Mn, Zn-Cu, Mn-Cd, Zn-Cd の間に高度に有意(1%水準)な相関が認められた。なお各相関の1次回帰項は次に示すCa-Mgの分散分析結果と同様に有意水準1%で有意と認められた。

第8表 東北地方のし尿中の無機成分濃度間の相関

成分	回帰直線	相関係数
Ca-Mg	[Ca] = 1.7 [Mg] + 110	0.88
Cl-Na	[Cl] = 1.5 [Na] + 16	0.98
Cl-K	[Cl] = 3.7 [K] + 440	0.89
Na-K	[Na] = 2.4 [K] + 380	0.88
P-Ca	[P] = 0.98 [Ca] + 120	0.93
Mg-Mn	[Mg] = 41 [Mn] + 0.2	0.89
Ca-Zn	[Ca] = 29 [Zn] + 87	0.73
Ca-Mn	[Ca] = 77 [Mn] + 82	0.83
P-Mn	[P] = 85 [Mn] + 160	0.85
Fe-Mn	[Fe] = 6.6 [Mn] + 1.3	0.79
Zn-Cu	[Zn] = 2.4 [Cu] + 4.0	0.71
Mn-Cd	[Mn] = 99 [Cd] + 0.2	0.89
Zn-Cd	[Zn] = 220 [Cd] + 2.1	0.75

[] 内は mg/l

分散分析表 (Ca-Mg)

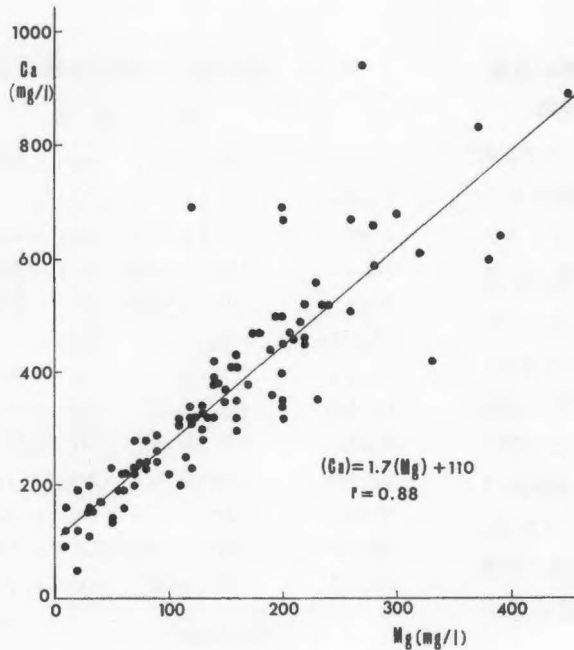
要因	平方和	自由度	不偏分散	F_0
回帰	2.3997×10^6	1	2.3997×10^6	317.8
残渣	7.0981×10^5	94	7.5512×10^3	
計	3.1095×10^6			

$$F_0 = 317.8 > F(1, 94; 0.01) = 6.9$$

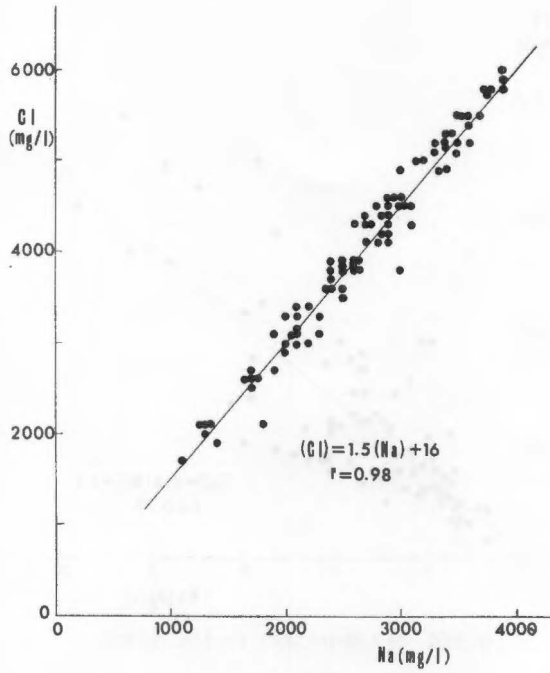
これらの相関関係のうち Ca-Mg, Cl-Na, P-Ca, Fe-Mn, Zn-Cd の各相関図をそれぞれ第2図～第6図に示す。

4-5 投入槽と消化槽における無機成分含有量の比較

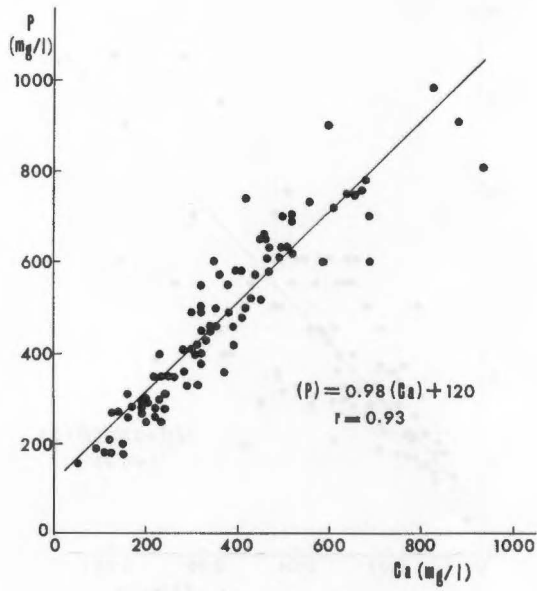
無機成分量を投入槽と消化槽について比較すると, Na, K, Cl の消化槽における減少率は少なく (5~9%) また月別, 場所別の変動値も低い。それに対し S, Mg, Ca, P のそれは17~25%と大きく, 月別, 場所別の変動値も高い。これは Na, K, Cl などは消化槽での沈殿減少が少ないのに対し, Ca, Mg, P, S はそれが大きいと推察される。つぎに微量元素についてみると, Cd と Cu は消化槽では投入槽より高い値を示し, 場所別, 月別の変動値が高い。Ni は両槽 ほぼ等しい値で変動値も8ヶ所中最少である。その他はいずれも消化槽が低い値 (5~19%) である。これらの原因は主要成分の場合と同一であると考えられる。



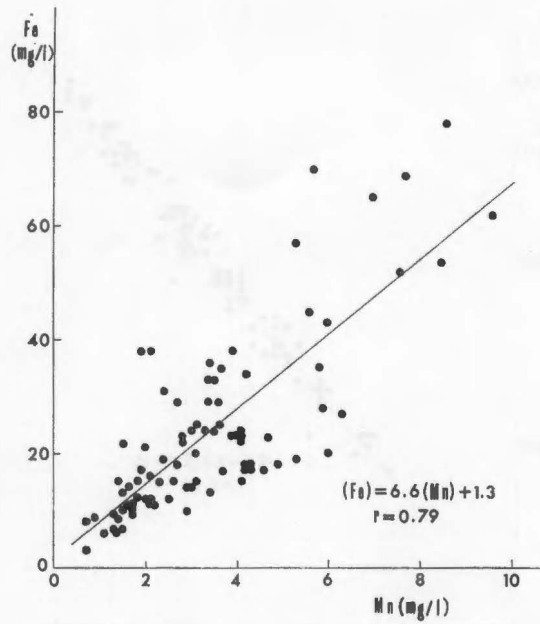
第2図 投入槽中し尿の Ca-Mg 相関図



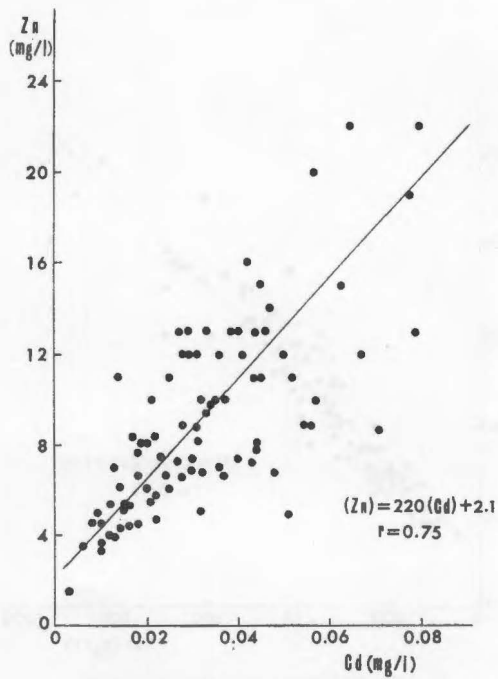
第3図 投入槽中し尿の Cl-Na 相関図



第4図 投入槽中し尿の P-Ca 相関図



第5図 投入槽中し尿の Fe-Mn 相関図



第6図 投入槽中し尿の Zn-Cd 相関図

4-6 重金属汚染地区住民のし尿中重金属量との比較

し尿中の Cd と Zn 量について東北地方 8ヶ所のし尿処理場から得られた約 150 試料中の平均値は前記のとおり Cd が 0.036 ± 0.016 mg/l, Zn が 10 ± 4.5 mg/l, Cd:Zn は 1:278 であった。これに対し 1969 年 6 月と 10 月の 2 回にわたり, Cd 汚染地区として知られる富山県婦中町および群馬県安中市の岩井, 野殿両地区において農家の便槽よりし尿を採取し Cd と Zn 量を測定した結果(14, 15)を記すと, 婦中町のし尿 (10 世帯 51 人) では Cd が 0.28 ± 0.12 mg/l, Zn が 15 ± 5.9 mg/l で, Cd:Zn は 1:54 であり, 安中市岩井のし尿 (9 世帯 40 人) では Cd が 0.91 ± 0.70 mg/l, Zn が 58 ± 47 mg/l で Cd:Zn は 1:64 であり, 安中市野殿 (12 世帯 62 人) では Cd が 0.67 ± 0.66 mg/l, Zn が 52 ± 46 mg/l で Cd:Zn は 1:78 であった。また対照として行った倉敷市し尿処理場 (1968 年 1 月~12 月) の値は Cd 0.032 ± 0.016 mg/l, Zn 5.4 ± 0.77 mg/l で Cd:Zn は 1:169, 岡山県真庭郡のし尿処理場 (1969 年 6 月採取) の試料では Cd が 0.02 mg/l, Zn が 7.2 mg/l で Cd:Zn は 1:360 であった。このように東北地方および岡山県の対照地区の住民のし尿中の Cd, Zn 量は重金属汚染地区の住民のそれらに比べ低い値であった。

5. 要 旨

し尿は水質汚濁の一原因物質であるだけでなく, その中に含有される無機成分の量は食物の相違, たとえば都市と農村, 日本と外国, 季節の変化などによる無機元素の 1 日当りの摂取量の差異を反映すると考えられる。

著者らは宮城, 岩手, 秋田 3 県の汲取り式し尿処理場 8ヶ所を選び, 各処理場の投入槽と第一消化槽とから毎月 1 回ずつ満 1 年 1 ヶ月間 (1967 年 12 月~1968 年 12 月) にわたり 13 回の試料を採取し, 蒸発残留物, 灰量, 無機主要元素および微量元素の分析を行った。住民 1 人 1 日当りのし尿の汲み取り量は $1.0 \sim 1.2$ l であるから, 1 人 1 日当りの排泄される灰量, すなわち無機物量を分析結果から計算してみると 11.7 g (投入槽の平均) である。そのうち主な無機元素は Na 3.0g, Ca 0.41 g, Mg 0.17 g, K 1.1 g, Cl 4.4 g, P 0.53 g, S 0.22 g であって, NaCl が約 7.4g で無機物の 2/3 を占めており, 微量元素は Fe 32 mg, Zn 11 mg, Mn 4.2 mg, Cu 2.5 mg, Pb 0.36 mg, Ni 0.21 mg, Cd 0.040 mg であることが判明した。また各処理場における無機主要元素の当量比を求めた結果, Na/Cl, K/Cl, Na/K は場所, 投入槽, 消化槽などによる変動が少ない。特に注目すべき点は, Na/Cl の当量比が各場所とも 1 を示していることである。また各場所の投入槽と消化槽において, 陽イオン (Ca, Mg, Na, K) と陰イオン (P, Cl, S) のミリ当量の和はよく一致した値を示した。投入槽中し尿の無機成分間の相関を検討した結果, Ca-Mg, Cl-Na, Cl-K, Na-K, P-Ca, Mg-Mn, Ca-Zn, Ca-Mn, P-Mn, Fe-Mn などの間に高度に有意な相関が認められた。次に投入槽と消化槽を比べた場合, Na, K, Cl は両槽ともほぼ同じ値を示すのに対して, Ca, Mg, P, S は投入槽に比べ, 消化槽において著しく減少しており, 処理過程での沈殿による減少が大きいことを示した。

東北地方のし尿処理場より得られた無機元素の排泄量を欧米人のそれ(16, 17)と比較してみると, 日本人は Ca, K, P などが著しく少量であり, Mg, Na も約 60% 位である。この原因の一つは日本人の食事が無機物量の少ないデンプン質 (白米) に偏重しているため

と考えられる。微量元素についてみると日本人は Fe がほぼ 2 倍, Mn や Cu は約 1.4 倍であるが, Zn や Ni などは低い値であって, 主要成分とは異なる傾向を示した。これは日本の地質その他の環境要因によるものと考えられる。

なお, 試料の採集当時, 東北地方の農村ではし尿がいまだに肥料として使用されるためか, し尿処理場には市街地のし尿のみが集まる傾向があって, 都市と農村間の地域差を求めることが出来なかった。

文 献

1. 橋本 奨. 1959. 尿尿の消化処理に関する研究 (第 1 報). 尿尿の揮発性有機酸と BOD. 発酵工学雑誌 37: 425—430.
2. 橋本 奨. 1962. し尿の消化処理に関する研究—好気性消化 (I). 用水と廃水 4: 439—448.
3. 矢込堅太郎・堀 謙治・塚原次雄. 1963. 希釈し尿の活性汚泥法処理. 用水と廃水 5: 546—554.
4. 本多淳裕. 1960. 尿尿処理の必要条件と現行処理法の問題点. 生活衛生 4: 309—320.
5. 本多淳裕. 1961. 尿尿の分層現象と分層方法. 生活衛生 5: 247—255.
6. 本多淳裕・中土井隆・井上善介・渡辺 弘. 1959. 水蒸気蒸留法並びにエリューションクロマトグラフ法による尿尿中有機酸の分析. 水道協会雑誌 301号 67—74.
7. 本多淳裕. 1958. 尿尿浄化槽に関する諸問題. 生活衛生 2: 21—31.
8. 洞沢 勇. 1952. 水槽便所の放流水水質とその取締基準について. 水道協会雑誌 211号 35—42.
9. 三須英雄. 1949. 肥料学, 下巻. 朝倉書店, 東京.
10. 小林 純・森井ふじ・村本茂樹・中島 進. 1970. し尿中の無機成分に関する研究 (第 1 報). 用水と廃水 12: 635—642.
11. 陸水生物生産測定方法論研究会編. 1969. 陸水生物生産研究法, p. 488. 講談社, 東京.
12. Boltz, D. F. 1958. Chemical Analysis, Vol. VIII. Colorimetric Determination of Non-metals, p. 36. Interscience Publishers, Inc. New York.
13. APHA. AWWA. FSIWA. 1955. Standard Methods for the Examination of Water, Sewage, and Industrial Wastes, Tenth Edition, p. 197. American Public Health Association, Inc. New York.
14. 小林 純・村本茂樹. 1970. カドミウム汚染地区住民 (富山県婦中町, 群馬県安中市) のし尿中に含まれる重金属量について. 日本衛生学雑誌 25: 80
15. Kobayashi, J. 1972. Air and water pollution by cadmium, lead, and zinc attributed to the largest zinc refinery in Japan. Trace Substances in Environmental Health-V pp. 117—128.
16. Tipton, I. H., Stewart, P. L. and Martin, P. G. 1966. Trace elements in diets and excreta. Health Physics 12: 1683—1689.
17. Tipton, I. H. and Stewart, P. L. 1970. Analytical methods for the determination of trace elements-standard man studies. Trace Substances in Environmental Health-III pp. 305—330.