

下水汚泥焼却灰より抽出したリン資材による鉛の不溶化効果とその改良

岐阜大学大学院工学研究科社会基盤工学専攻 学生会員 ○松岡秀明

岐阜大学 正会員 加藤雅彦 佐藤健

1. 背景

鉛汚染土壌の不溶化処理には、水酸アパタイト($\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{OH}$)の添加による緑鉛鉱($\text{Pb}_5(\text{PO}_4)_3\text{OH}$)の生成が効果的だと報告されている¹⁾。しかし近年、原料となるリン鉱石の価格が上昇傾向にあり、新たなリン資材の供給源の開発が必要と考えられる。本研究ではリン供給源として下水汚泥に注目し、下水汚泥焼却灰より抽出したリン化合物「汚泥アパタイト」の鉛汚染土壌への適用に向けて、溶液中における鉛不溶化能を検証した。

2. 供試資材及び実験方法

不溶化資材(以下、資材)として、岐阜市上下水道事業部北部プラントで採取した下水汚泥焼却灰(汚泥灰)、汚泥アパタイトを供試した(図1)。汚泥アパタイトの対照として、既に不溶化能が確認されている廃石膏アパタイトを石膏廃棄物とリン肥料より合成し、供試した。以上3種の資材を0.425mm以下に篩別したものを使用した(表1)。

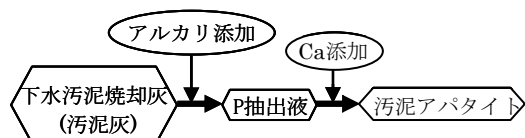


図1 リン抽出フロー

表1 各資材の化学特性

資材	pH※	元素含有量 (mg/g-DW)				
		Al	Ca	Fe	Mg	P
汚泥灰	7.2	82	41	25	26	101
汚泥アパタイト	12.7	20	312	1	5	122
廃石膏アパタイト	6.6	3	315	4	3	151

※固液比1:10, 24h振とう後測定

3. 資材添加による鉛濃度の時間変化

1) 方法

1000 mg-Pb/L の5mmol/L 硝酸カリウム溶液と各資材を固液比1:400で5-180分間振とうした。振とう後、ICP発光分光法によって溶液中のCa, Pb濃度を測定した。

2) 結果及び考察

図2に各資材添加による鉛濃度の時間変化を示した。汚泥灰、汚泥アパタイトは、振とう開始30分以

降、それぞれ約930mg/L, 700mg/Lで平衡濃度に達し、汚泥灰からリンを抽出することで鉛不溶化能が高くなったと考えられた。廃石膏アパタイトの鉛濃度は、振とう180分後で100mg/Lであり、汚泥アパタイトの鉛濃度より低く推移した。このことから汚泥アパタイトは、廃石膏アパタイトよりも鉛の不溶化能が低いと考えられた。

図3にカルシウム濃度の時間変化を示した。資材からのカルシウムの溶出は、汚泥アパタイトよりも廃石膏アパタイトで多かった。以上の結果より、鉛濃度の減少とカルシウム溶出濃度の増加は深く関係しており、水酸アパタイトの溶解による緑鉛鉱の生成が推察された。汚泥アパタイトの鉛不溶化能が廃石膏アパタイトを下回ったのは、汚泥アパタイトのpHが高いために鉛との反応が抑制されたためだと考えられた。したがって、汚泥アパタイトの溶解を促進させることにより、鉛不溶化効果を向上できると考えた。そこで次項において汚泥アパタイトに処理を施し、鉛不溶化効果の改善を試みた。

4. 汚泥アパタイトによる鉛不溶化の改善

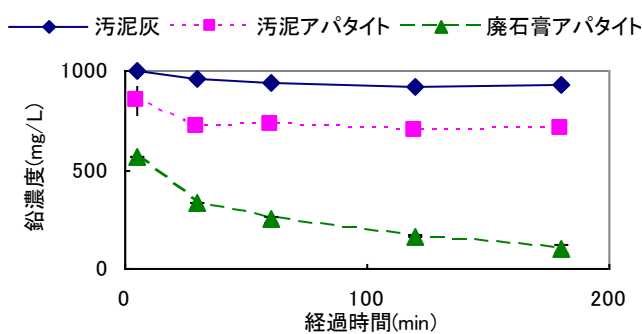


図2 鉛濃度の時間変化

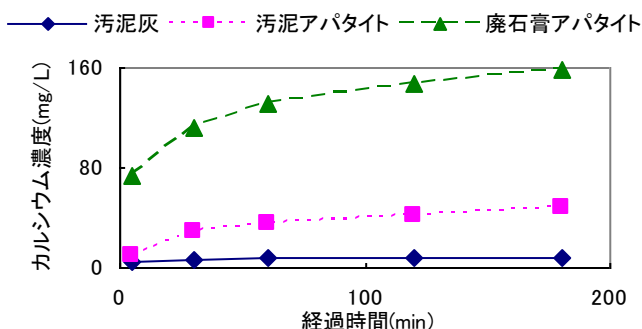


図3 カルシウム濃度の時間変化

1) 供試資材

汚泥アパタイトを 1M 塩酸で溶解させた後に, 1M 水酸化ナトリウムで pH6.5 に調整し再結晶させたサンプル(処理 a), 超純水に添加後 1M 塩酸で pH6.5 に調整したサンプル(処理 b)を供試した.

2-1) 鉛不溶化量

前項の実験と同様な手順で 3000 mg-Pb/L の鉛溶液中における 24 時間後の不溶化量を求めた.

2-2) X 線回折による結晶構造解析

鉛不溶化前後の資材の結晶構造を X 線回折により確認した.

3) 結果及び考察

図 4 に各資材乾物 1g あたりの鉛不溶化量を示した. 処理 a によって汚泥アパタイトの鉛不溶化量はおよそ 4 倍に増加し, 廃石膏アパタイト添加による鉛不溶化量を 41% 上回った. 一方で, 処理 b による

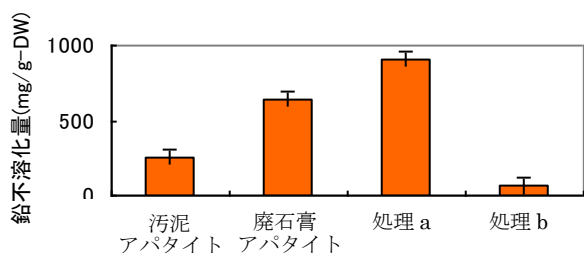


図 4 鉛不溶化量

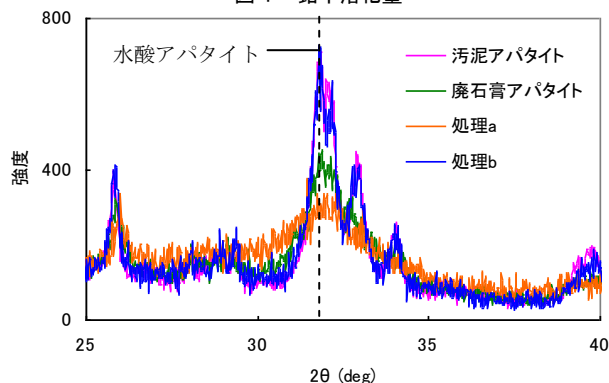


図 5-a 鉛不溶化前の X 線回折結果

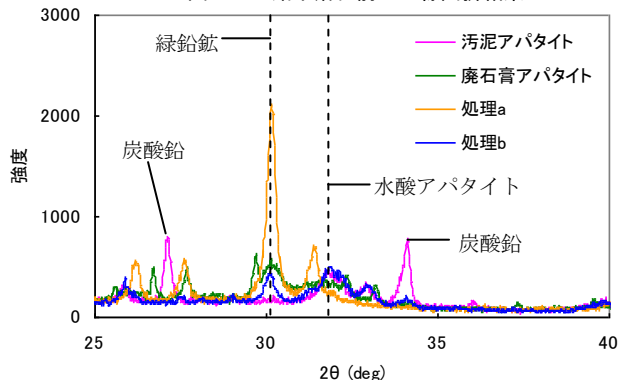


図 5-b 鉛不溶化後の X 線回折結果

鉛不溶化量は無処理の汚泥アパタイトの鉛不溶化量を下回った.

図 5-a, b に X 線回折の結果を示した. 鉛不溶化前(図 5-a)では, いずれのサンプルも水酸アパタイトのピークが確認されたが, ピーク強度はそれぞれ異なっており, 鉛不溶化量が最も多かった処理 a のピーク強度が最も低かった. 不溶化後(図 5-b)では, 処理 a, 処理 b, 廃石膏アパタイトで緑鉛鉱が確認されたのに対し, 汚泥アパタイトでは炭酸鉛が確認された. また, 汚泥アパタイト, 処理 b において水酸アパタイトのピークが残存していた.

処理 b において鉛不溶化量が未処理の汚泥アパタイトより低下したのは, pH の調整のみでは水酸アパタイトのピーク強度が変化しなかった(図 5-a)ことに加え, 炭酸塩が消失したためと考えられた. 処理 a の鉛不溶化量が廃石膏アパタイトを上回ったのは, 再結晶させることで水酸アパタイトのピーク強度が低下したことで, 水酸アパタイトの溶解度が増加し, 鉛との反応が促進されたためだと考えられた. 以上のことから, 汚泥アパタイトに含まれる水酸アパタイトのピーク強度を低下させることで, 鉛不溶化能が大きく高まることが明らかとなった.

結論

「汚泥アパタイト」の鉛汚染土壌への添加に向けて, 溶液中での鉛不溶化能について検討を行い, 以下の知見を得た.

- 1) 汚泥灰よりリンを抽出することで, 鉛不溶化能が高まるが, その不溶化機構は, 炭酸鉛の生成であった.
- 2) 汚泥アパタイトを酸に溶解させ再結晶させることで水酸アパタイトのピーク強度を低下させることができ, それにより鉛不溶化能が大きく高まることが明らかになった.

汚染土壌への添加に向けて, 今後は土壌添加時の鉛の不溶化挙動, 汚泥アパタイトに微量に含まれている有害重金属の挙動, 他不溶化資材とのコスト比較を検討する必要がある.

参考文献

- 1) X. Cao, L. Q. Ma, S. Singh, and Q. Zhou: Phosphate-induced lead immobilization from different lead minerals in soils under varying pH conditions, *Environmental Pollution*, 152, pp.184-192, 2008.