

# 下水消化汚泥中重金属の溶出除去に及ぼす酸化剤の影響

岩手大学 学生会員 ○高橋健太 鈴木絢也 吉住年弘  
岩手大学 正会員 伊藤 歩 相澤治郎 海田輝之

## 1. はじめに

我が国における下水汚泥の排出量は、下水処理人口の増加や下水処理の高度化に伴って年々増加しているが、緑農地へ肥料や土壌改良剤として有効利用される汚泥量は、ここ数年は横ばい状態となっている。その要因の一つとして下水汚泥中の重金属類の存在が考えられる。今後も下水汚泥の円滑な緑農地利用を推進していくためには、汚泥の安全性や肥効性を向上する必要がある。

本研究では、下水汚泥中の重金属を効率的に溶出除去し、リンを汚泥中に保持する方法を開発するため、酸性条件下において過酸化水素と硫酸第二鉄の添加量を変化させた場合での下水汚泥からの重金属とリンの溶出特性を調査した。

## 2. 実験材料及び実験方法

本研究に用いた下水汚泥は、盛岡市内の下水処理場から採取した嫌気性消化汚泥である。表-1 に汚泥中の金属及びリンの含有量を示す。金属の分析は、下水汚泥を硝酸と塩酸による分解法で前処理した後、ICP-MS法によって行った。リンの分析は、硝酸と硫酸による分解法で前処理した後、モリブデン青吸光度法によって行った。

溶出実験では汚泥濃度を2%、pHを硫酸により2.5に調整した。酸化剤添加の条件は、過酸化水素(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)濃度を0, 0.01, 0.05, 0.1, 0.5, 1, 2%(v/v)とした場

表-1 汚泥中の金属及びリンの含有量 (mg/kg)

金属及びリンの含有量	Mg	Al	Cr	Mn	Ni	
	12000	25000	30	480	18	
	Cu	Zn	As	Cd	Pb	P
	290	810	4.4	1.1	31	33000

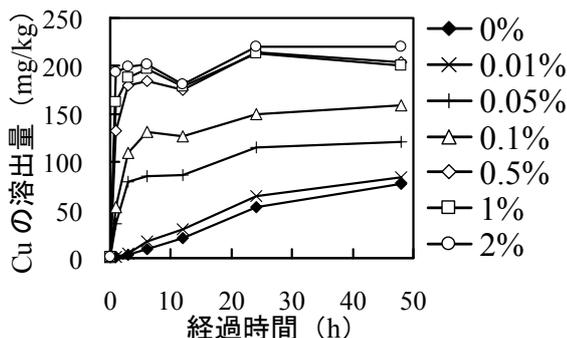


図-1 過酸化水素を添加した場合でのCuの溶出量の経時変化

合と、過酸化水素濃度を0.02%(v/v)として硫酸第二鉄濃度を0.1, 0.5, 1g/lとした場合の2通りとし、25℃の恒温室内において120rpmで振とうを行った。振とう開始後0, 1, 3, 6, 12, 24, 48時間目に汚泥を採取し、遠心分離(10000rpm, 10分間)後の上澄み液を孔径1μmのろ紙でろ過した。ろ液中の金属及びリンの分析は、金属を硝酸と塩酸による分解法、リンをペルオキシ二硫酸カリウムによる分解法で前処理し、前述の方法により測定した。なお、溶解性第一鉄については、前述のろ液について1,10フェナントロリン法により分析した。

## 3. 実験結果及び考察

### 3-1. 過酸化水素の添加量が下水汚泥から重金属の溶出特性に及ぼす影響

実験結果の例として、Cuの溶出量の経時変化を図-1に示す。なお、溶出量は初期汚泥濃度を元に換算した値であり、0時間目の初期値はpH調整や試薬の添加などを行う前の値で示している。

過酸化水素濃度が0, 0.01, 0.05, 0.1%の条件では時間の経過に伴って徐々にCuが溶出し、48時間目における溶出量はそれぞれ77, 84, 121, 159mg/kgとなった。過酸化水素濃度が0.5, 1, 2%の条件では、振とう開始1時間目から溶出量が大幅に増加し、その後は160~220mg/kgで推移した。

ZnやCdに関しては、過酸化水素濃度が0.05%であれば十分に溶出され、それ以上に添加しても溶出量は増加しなかった。

この結果より本実験条件では0.5%(v/v)以上の過酸化水素の添加は過剰であることが分かった。

### 3-2. 硫酸第二鉄の添加量が下水汚泥からの重金属及びリンの溶出特性に及ぼす影響

実験結果の例としてCuの溶出量の経時変化を図-2に示す。pH調整のみの条件では時間の経過に伴い徐々にCuの溶出量が増加し、過酸化水素のみを添加した場合は溶出量が大幅に高くなった。

第二鉄濃度が0.1g/lの2条件では、前述の硫酸第二鉄を添加しない2条件よりも溶出量が若干低くなった。

第二鉄濃度が0.5, 1g/lの条件に注目すると、実験開始後1時間目において、過酸化水素又は硫酸第二

鉄のみを添加した場合でのそれぞれの溶出量の和よりも、双方を添加した条件の方が高い溶出量となり、初期の溶出量の増加に効果的であることがわかった。

ZnやCd等の金属についても、過酸化水素を添加、あるいは過酸化水素と硫酸第二鉄の双方を添加することによって効果的に溶出されることが分かった。

図-3に溶解性第一鉄濃度の経時変化を示す。pH調整のみの条件では、第一鉄濃度は実験開始後1時間目に急激に増加したが、過酸化水素を添加した条件では、pH調整のみの条件より低くなった。これは添加した過酸化水素と汚泥から溶出した第一鉄とが



のようにフェントン反応を引き起こし、第一鉄が消費されたためと考えられる。

硫酸第二鉄のみを添加した条件では、実験開始直後に第一鉄濃度が増加したが、過酸化水素と硫酸第二鉄の双方を添加した条件では、硫酸第二鉄のみを添加した条件と比べて第一鉄濃度は低くなった。これは、添加した第二鉄が汚泥の構成成分を酸化して第一鉄に還元され、その第一鉄が添加した過酸化水素とのフェントン反応によって酸化されたためだと

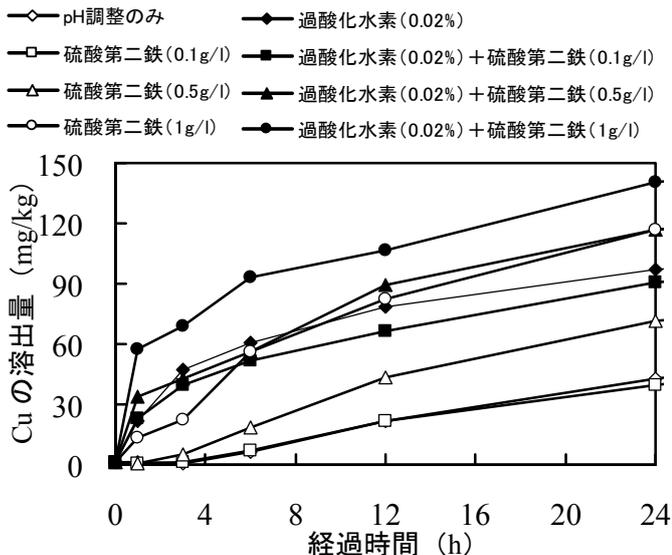


図-2 硫酸第二鉄と過酸化水素を添加した場合でのCuの溶出量の経時変化

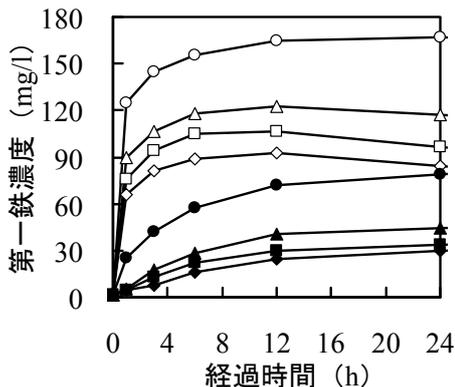


図-3 溶解性第一鉄濃度の経時変化

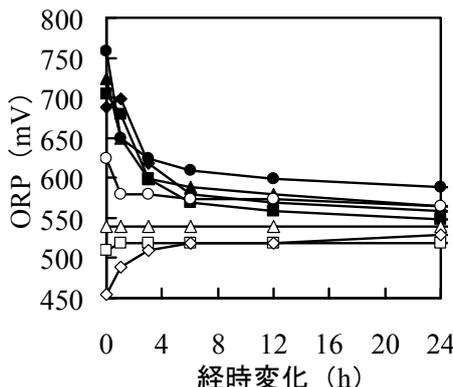


図-4 ORPの経時変化

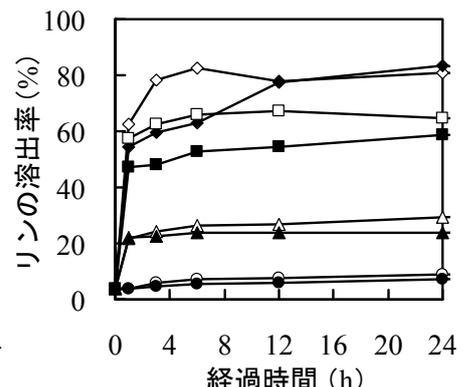


図-5 リンの溶出率の経時変化

推察される。

図-4にORPの経時変化について示す。なお、この実験における0時間目の初期値は、pHを調整し、酸化剤を添加した後の値である。

ORPが安定してくる実験開始後3時間目までに注目すると、過酸化水素を添加した条件でのORPが添加しなかった条件よりも高かった。0時間目では特にその様子が顕著であり、過酸化水素のみを添加した条件と比較しても、過酸化水素と硫酸第二鉄(0.5, 1g/l)の双方を添加した条件でORPが著しく高い値となった。このことから過酸化水素と硫酸第二鉄(0.5, 1g/l)の双方の添加によって、過酸化水素のみを添加するよりもフェントン反応が効率的に生じている可能性が示唆された。

図-5にリンの溶出率の経時変化について示す。pH調整のみと、過酸化水素を添加した2条件に注目すると実験開始後24時間目で80%と高い溶出率となった。第二鉄濃度が0.1, 0.5, 1g/lのそれぞれの条件では、溶出率が約60%, 20%, 10%と第二鉄濃度の増加に応じてリンの溶出が抑えられた。これは、pHの低下によって汚泥から溶出したリンが第二鉄と反応して不溶性のリン酸第二鉄として沈殿したためと考えられる。

#### 4. 結論

溶解性第一鉄濃度の変化から、過酸化水素の添加によってフェントン反応が生じている可能性が示唆された。さらに、過酸化水素(0.02%)と硫酸第二鉄(0.5, 1g/l)の双方を添加した条件では、実験開始1時間目にCuの溶出量が大幅に増加したことから、過酸化水素と硫酸第二鉄の双方の添加が汚泥中の重金属の溶出除去に効果的であることが示された。

さらに、過酸化水素の存在下であっても硫酸第二鉄濃度が1g/lであれば、ほとんどのリンを汚泥中に保持できることが分かった。