

キレート剤を用いた下水消化汚泥中の溶解性重金属の除去¹

岩手大学理工学部 学生会員 ○下道諒志 小川絵莉子
 岩手大学理工学部 正会員 石川奈緒 笹本誠 伊藤歩

1. 序論

近年、下水消化汚泥を肥料として再資源化し、それを農業などで有効利用することが求められている。しかしながら、下水消化汚泥を再資源化するためには下水消化汚泥中に含まれているカドミウムやヒ素などの重金属を低減する必要がある。

本研究では、模擬廃水を用いた実験を通じて繊維状キレート剤による溶解性重金属の吸着除去に及ぼす反応時間および pH の影響について検討した。また、下水消化汚泥を酸性にして溶出させた重金属を繊維状キレート剤によって吸着除去することを想定し、その際の反応時間についても検討した。

2. 実験方法

実験試料として模擬廃水については多元素混合標準液（Cd, Cr, Cu, Fe, Mn, Na, Pb, Zn）とヒ素標準液を超純水で希釈して各重金属濃度を 100 µg/L とし、pH は 1.9 であった。キレート剤はキレスト株式会社のキレストファイバー IRY-HW を用いた。反応時間による影響を把握するために、硝酸と水酸化ナトリウムを用いて pH を 3 に調整した後、キレート剤は 1 g/L となるように添加し、0, 0.5, 1, 3, 6 時間目に試料を採取した。また、pH の影響を把握するために pH を 2, 2.5, 3, 3.5, 4 に調整し、キレート剤を 1 g/L となるように添加した後、1 時間攪拌した後に試料を採取した。キレート剤無添加の条件についても検討した。採取した試料はメンブレンフィルター（0.45 µm）を用いてろ過した後、そのろ液を保管した。

次に、実験に用いた下水消化汚泥は岩手県の都南浄化センターより採取した。硫酸を用いて pH を 2 に調整して 48 時間振とうし、溶出濃度の変化を把握するための実験を行った。次に、溶出した重金属類を吸着除去する実験を行うために、pH を 2 に調整した消

化汚泥 1 L を振とうフラスコに入れ、48 時間振とうした後、水酸化ナトリウム溶液で pH を 3 に調整し、キレート剤を濃度が 10 g/L となるように添加し、0, 0.5, 1, 3, 6 時間目に消化汚泥を採取した。採取した消化汚泥は遠沈管に入れ、遠心分離（10,000 rpm、10 min）を行い、上澄み液をメンブレンフィルター（0.45 µm）でろ過した。次に、ろ液（25 mL）に硝酸と塩酸を加え、加熱分解を行った。分解液はメンブレンフィルター（0.45 µm）でろ過し、ポリ瓶に保存した。採取したサンプルは、ICP-OES（Shimadzu、ICPE-9000）と ICP-MS（Thermo Fisher、ICAP-Qc）を用いて重金属類の濃度を測定した。

3. 実験結果及び考察

模擬廃水（pH=3）を用いた実験での溶解性重金属濃度の経時変化を図-1 に示す。左側はキレート剤無添加、右側はキレート剤添加での結果を示している。キレート剤無添加では Cd 濃度が少々低下したものの大きく濃度が低下したものはなかった。一方、キレート剤を添加した条件では As を除いて程度に差はあるものの重金属濃度がキレート剤添加後 0.5 時間あるいは 1 時間で低下し、Zn を除いてほぼ一定になることを確認できた。特に Cr, Fe, Cd, Pb の濃度が

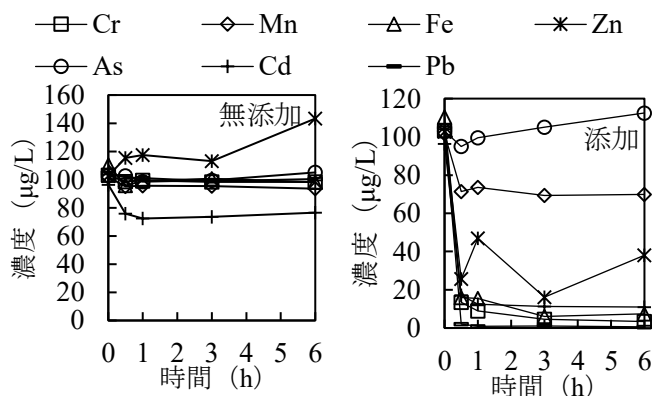


図-1 模擬廃水での溶解性重金属類濃度の経時変化 (pH=3)

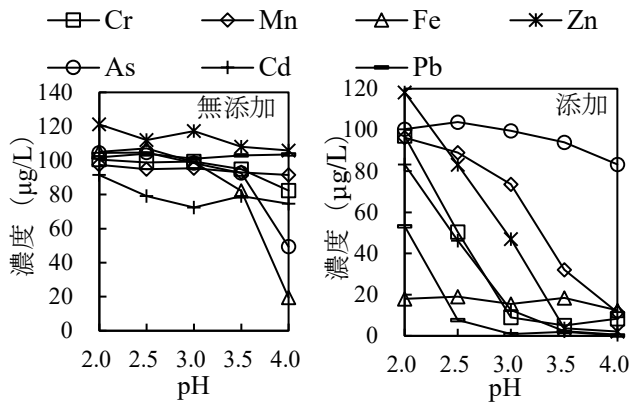


図-2 模擬廃水での pH と溶解性重金属類濃度の関係
きく低下した。この結果から、キレート剤添加後に約 1 時間で溶解性重金属が吸着されることが分かった。

次に、pH を変化させた際の各重金属濃度への影響について図-2 に示す。キレート剤無添加では pH が高くなると As と Fe の濃度が低下しているが、これは Fe の水酸化物と As が共沈したためであると考えられる。キレート剤添加の条件では As を除いて、pH 2 以上で Fe、pH 3 以上で Cr, Pb, Cd、pH 3.5 以上で Zn、pH 4 以上で Mn の濃度が顕著に低下することを確認できた。

表-1 に消化汚泥中の重金属類の全濃度、pH を 2 に

表-1 消化汚泥中の重金属濃度と溶出率

	全量(μg/L)	48h後(μg/L)	溶出率(%)
Cr	436	70.3	16.1
Mn	2.01×10^2	2.73×10^3	136
Fe	101×10^5	1.56×10^5	154
Cu	5.35×10^3	426	7.97
Zn	5.37×10^3	5.39×10^3	100
As	127	37.2	29.2
Cd	11.6	5.79	49.9
Pb	264	64.4	24.4

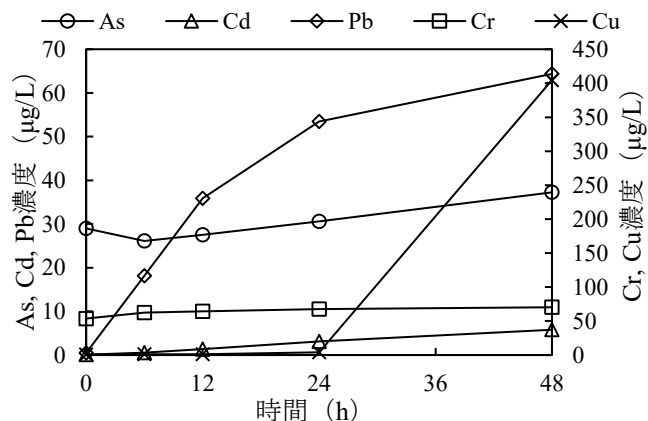


図-3 下水消化汚泥中の溶解性重金属濃度の経時変化 (pH=2)

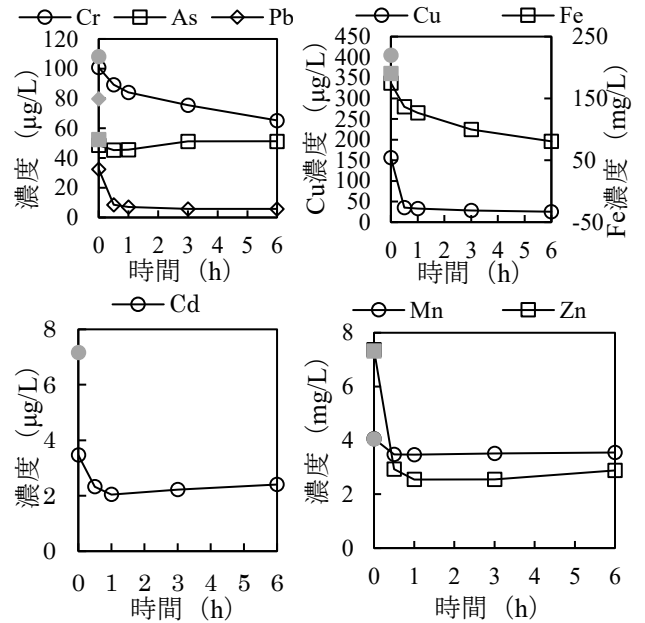


図-4 キレート材を添加した消化汚泥中の溶解性重金属類濃度の経時変化

調整した 48 時間後の溶解性濃度及びその溶出率（＝溶解性濃度÷全濃度×100[%]）を示し、図-3 に下水消化汚泥を pH2 に調整した際の重金属類の溶出濃度の経時変化を示す。消化汚泥を pH2 で振とうさせたことで溶解性重金属濃度が増加し、汚泥浮遊物から重金属類が溶出したことが分かる。Mn, Fe, Zn がよく溶出している一方で、Cr や Cu の溶出率は低かった。

図-4 にキレート剤を添加した消化汚泥の溶解性重金属類濃度の経時変化を示す。なお、0 時間でのグレーのマーカーは pH 2 で 48 時間振とうした時点での濃度を示している。Cu, Pb, Cd は pH を 2 から 3 に上昇することで濃度が低下し、再沈殿することが分かった。キレート剤を添加した後は As を除いて程度に差はあるものの重金属濃度が低下した。特に Cu と Pb の濃度が大きく低下した。一方で、Cd 濃度は模擬廃水を用いた実験の結果と比べて十分に低下しなかった。これは下水消化汚泥から Na や Ca なども溶出し、それらの共存イオンがキレート剤への Cd の吸着を阻害した可能性が考えられる。

4. まとめ

酸によって下水消化汚泥から溶出した重金属の一部をキレート剤によって吸着除去できた。今後は、pH やキレート剤添加量を変化させた場合での重金属の除去特性についても検討する必要がある。