

鉄（VI）酸塩と浄水汚泥を併用して不溶化したヒ素の再溶出性の評価

岩手大学理工学部 学生会員 ○山西啓太 小笠原慶乃

岩手大学理工学部 非会員 笹本誠 正会員 石川奈緒 伊藤歩

1. はじめに

現在、様々な国で、As による土壌や地下水の汚染が発生している。日本でも、建設工事に伴い掘削した土壌において環境基準値を上回る As が検出されることがあり、そのような土地は改変することが困難となる。その対策の一つとして、汚染土壌を掘削し、As を不溶化して埋め戻すという方法がとられている。

水および土壌環境中の As は主に亜ヒ酸(As(III))およびヒ酸(As(V))とそれらの塩など（以下、亜ヒ酸化合物とヒ酸化合物とする）の形態で存在しており、還元状態では亜ヒ酸化合物の存在量が増加すると考えられる。中性付近の pH では As(III)は As(V)に比べて土壌に共存する Fe や Al の酸化物に吸着されにくい。そのため、土壌中の亜ヒ酸化合物は地下水と接触した場合、As(III)として、溶出すると考えられる。

先行研究では、鉄（VI）酸カリウム (K_2FeO_4) による水試料中の As(III)の As(V)への酸化作用と、浄水汚泥に含まれる Al の水酸化物による共沈作用を利用して As を不溶化できることを示した。しかしながら、不溶化された As(V)が、処分後の pH が変化した場合や還元状態に曝された場合に、再溶出してしまう可能性が考えられる。

以上より、本研究では、 K_2FeO_4 と浄水汚泥を併用して不溶化された As(V)が、Fe または Al 単独で不溶化する場合と比較して再溶出しにくい状態で存在しているかを検討した。

2. 実験方法

2.1 K_2FeO_4 と浄水汚泥を用いた不溶化実験(1) K_2FeO_4 のみを用いた不溶化実験

As 濃度が 500 $\mu\text{g/L}$ の As(III)溶液(As_2O_3 を使用)を 500 mL 作成した。 K_2FeO_4 溶液(200~1000 mg-Fe(VI)/L)を 1 または 5 mg-Fe(VI)/L となるように添加した。6 M の HCl 溶液または 7 M の NaOH 溶液を用いて pH を 4, 7 に調整し、恒温室(25 $^{\circ}\text{C}$)で振とう機を利用して 1 時間攪拌した。pH 調整前、pH 調整直後と pH 調整 1 時間後に試料を採取した。

(2) 浄水汚泥のみを用いた共沈実験

$Na_2HAsO_4 \cdot H_2O$ を利用して As(V)水溶液(500 $\mu\text{g/L}$)を作成し、塩酸を添加し 24 時間振とうした浄水汚泥 (pH 3)を 0.1 g/L になるように添加した。pH を 7 に調整した後、恒温室で 2 時間攪拌し、試料を採取した。

(3) K_2FeO_4 と浄水汚泥を併用した実験

まず、2.1(1)で述べたように K_2FeO_4 による As(III)の酸化処理を行った後、2.1(2)で述べた塩酸による浄水汚泥溶解物を用いた As の不溶化処理を行った。pH を 7 に調整した後、恒温室で 2 時間攪拌し、試料を採取した。

2.2 再溶出・還元実験

(1) pH 変化による再溶出実験

不溶化実験後の試料を 200 mL 採取し、pH を 3, 4, 7, 10, 12 に調整した。24 時間攪拌し、攪拌終了後の pH を測定して、試料を採取した。

(2) 還元実験

不溶化後の試料を等分し、還元剤である $HONH_2HCl$ を 0.01, 0.1, 0.5, 1 g/L となるように添加した。6 時間攪拌し、攪拌終了後の 0, 0.5, 3, 6 時間目に試料を採取した。

以上の実験で採取した試料は、孔径 0.22 μm のメンブレンフィルターでろ過し、そのろ液について ICP 質量分析装置(ICP-MS, Thermo, iCAP Qc)を用いて溶解性 As 濃度を測定した。

3. 実験結果

図 1 に K_2FeO_4 を使用した As(III)の不溶化実験における溶解性 As 濃度の変化を示す。pH 7 で K_2FeO_4 のみを使用して不溶化した場合は溶解性 As 濃度を環境基準値 (10 $\mu\text{g/L}$)以下まで低減できなかった。pH 4 で K_2FeO_4 のみを使用して不溶化した場合は、溶解性 As 濃度を環境基準値以下まで低減できた。

図 2 に浄水汚泥を使用した場合での溶解性 As 濃度の変化を示す。Al を溶出させた浄水汚泥を使用して不溶化することで溶解性 As 濃度を環境基準値(10 $\mu\text{g/L}$)以下まで低減できた。

図 3 に K_2FeO_4 と浄水汚泥を併用した場合での溶解性

キーワード : ヒ素汚染、鉄（VI）酸カリウム、浄水汚泥、不溶化、ヒ素再溶出

連絡先 : 岩手大学 岩手県盛岡市上田 4-3-5、TEL : 019-621-6448

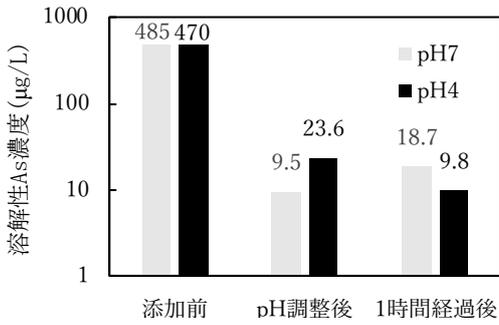


図1 K₂FeO₄ を添加した場合での溶解性 As 濃度の変化

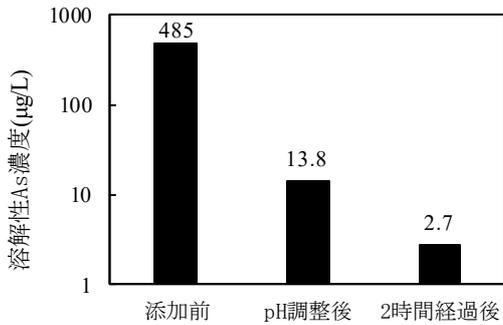


図2 浄水汚泥を添加した場合での溶解性 As 濃度の変化

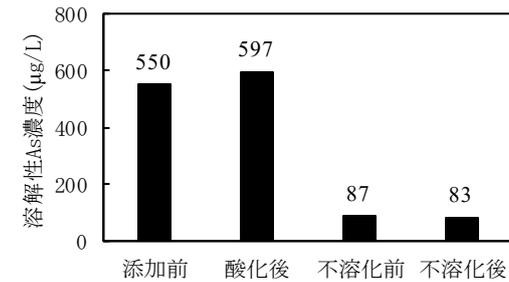
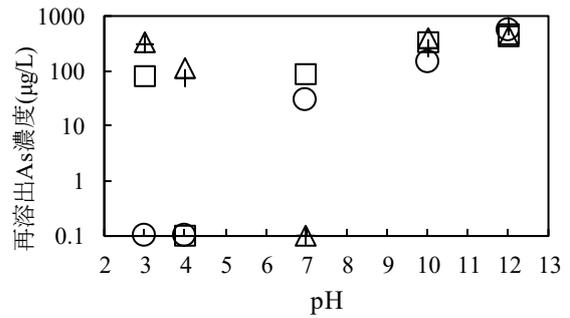


図3 K₂FeO₄ と浄水汚泥を併用した場合での溶解性 As 濃度の変化

As 濃度の変化を示す。併用実験では溶解性 As 濃度は 83 µg/L までしか低下せず、環境基準値(10 µg/L)以下まで低減できなかった。

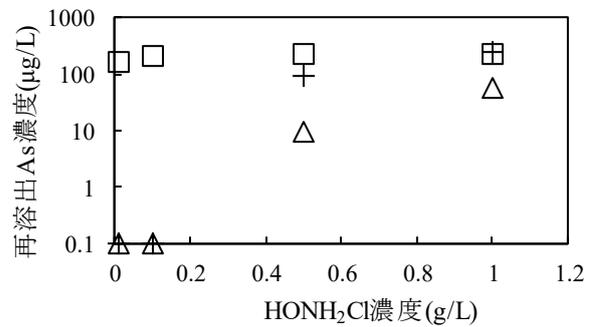
図4に不溶化処理した As 溶液を酸性またはアルカリ性状態に変化させた場合での再溶出 As 濃度(=再溶出実験後の溶解性 As 濃度 (24 時間経過後) - 不溶化後の溶解性濃度)の比較を示す。なお、再溶出しなかった場合は 0.1 µg/L として図中にプロットした。

再溶出実験において pH7 に調整した場合は、浄水汚泥を添加した場合と K₂FeO₄ 及び浄水汚泥を併用した場合において溶解性 As 濃度が最も低く、環境基準値を満たしていた。K₂FeO₄ を添加した場合において pH4 と pH7 に調整した2条件を比較すると、pH4 で不溶化した条件は pH3, 7, 10 で再溶出する As 濃度が高くなる傾向



○①K₂FeO₄(不溶化時pH7) □①K₂FeO₄(不溶化時pH4)
△②浄水汚泥 + ③K₂FeO₄と浄水汚泥

図4 不溶化処理した As 溶液を酸性またはアルカリ性状態に変化させた場合での再溶出 As 濃度(24 時間経過時)の比較



□①K₂FeO₄(不溶化時pH4) △②浄水汚泥
+ ③K₂FeO₄と浄水汚泥

図5 不溶化処理した As 溶液を HONH₂Cl で還元状態に曝した場合での再溶出 As 濃度(最大濃度時)の比較

があった。

図5に不溶化処理した As 溶液の HONH₂Cl で還元状態に曝した場合での再溶出 As 濃度(最大濃度時)の比較を示す。HONH₂Cl を添加した結果、浄水汚泥を用いて不溶化した場合には、HONH₂Cl 添加量 0.5g/L までは再溶出濃度を環境基準値以下(10µg/L)に抑えることができた。

4. まとめ

K₂FeO₄ を添加した場合において pH4 と pH7 に調整した2条件を比較すると、pH4 で不溶化した条件は pH 3, 7, 10 で再溶出する As 濃度が高くなる傾向があり、pH7 付近では浄水汚泥を用いて不溶化した場合が最も As の再溶出量を抑えられることが分かった。浄水汚泥を用いて不溶化した場合、HONH₂Cl 添加量 0.5g/L までは還元状態での再溶出濃度を環境基準値以下(10µg/L)に抑えることができた。