

(8) 下水汚泥からのヒ素の溶出に関する基礎的研究

Elution of Arsenic from Sewage Sludge

伊藤歩*, 高地敏幸**, 斎藤紀子***, 相澤治郎*, 海田輝之*

Ayumi ITO*, Toshiyuki TAKACHI**, Noriko SAITO***, Jiro AIZAWA* and Teruyuki UMITA*

ABSTRACT; Leaching tests of arsenic and coexistent substances (Al, Fe, Ca and organic matter) from sewage sludge were conducted at different pH values (1, 3, 5, 7, 9 and 11) using a batch reactor to clarify elution characteristics of arsenic from the sludge. Alkalization of sewage sludge to pH 11 eluted As more than 90 %, whereas the elution efficiency of As at pH 1 was about 50 %. The amount of As eluted was correlated with that of Al, Fe and TOC under the alkaline conditions.

Arsenic in the sludge liquid phase was classified into four forms (arsenic, arsenious, monomethylarsonic and dimethylarsinic acids) and each concentration was determined using a HPLC-ICP-MS. The major forms were As(III) at pH 1, both As(III) and As(V) at pH 3 and As(V) at $\text{pH} \geq 5$ through the leaching tests for 24 hours. These forms almost corresponded to those illustrated in the Eh-pH diagram of As at equilibrium state. On the other hand, through the leaching tests for 1 hour, the major forms were both As(III) and As(V) at pH 1 and As(V) at pH 9. Although As(III) was readily oxidized to As(V) in the region of As(V) at the equilibrium state, As(V) was insignificantly reduced to As(III) in that of As(III). These results suggested that arsenic existing as As(III) and As(V) in sewage sludge could be effectively eluted by adjusting sludge conditions to the pH and ORP in the region of As(V) at the equilibrium state.

KEY WORDS; Sewage sludge, arsenic elution, HPLC-ICP-MS, arsenic form, pH-Eh diagram

1.はじめに

ヒ素は高温水に溶けやすく、ヒ素を多く含む地帯の温泉排水を受け入れている下水処理場では高濃度のヒ素を含む汚泥が生じる場合があり、今後、下水道の普及にともない高濃度のヒ素を含む汚泥量の増加が考えられる。高濃度の有害物質を含む下水汚泥を処分する場合には、処分場等の周辺環境に悪影響を及ぼさないように予め有害物質を汚泥から分離する必要があると考えられる。下水汚泥からの重金属の除去については、酸、酸化剤あるいは微生物等を用いた方法が提案されている^{1)~3)}が、ヒ素に関してはほとんど検討されておらず、高濃度のヒ素を含有する汚泥を低ヒ素含有汚泥と混合して処分しているのが現状である。

液相および固相におけるヒ素の存在形態は様々であるが、水中のヒ素は一般にヒ酸 [As(V)] や亜ヒ酸 [As(III)] として存在し、水中に共存する金属イオン (Fe^{3+} や Al^{3+} 等) の水酸化物との共沈、硫化物とのヒ酸塩の形成あるいは活性炭等への吸着により除去されることが報告されている^{4), 5)}。また、生物学的な作用によるヒ素のメチル化も報告されている⁶⁾。下水中のヒ素も下水処理の過程において共存物質や処理条件等の影響により形態が変化し、汚泥に捕捉されると考えられる。ヒ素化合物の形態や溶解度は主に pH と酸化還

*岩手大学工学部建設環境工学科 (Department of Civil and Environmental Engineering, Iwate University)

**日本建設コンサルタント (NIKKEN Consultants Inc.)

***国土環境株式会社 (Metocean Environment Inc.)

元電位（ORP）に依存する^{7, 9)}ことから、下水汚泥中のヒ素を効率的に溶出させ除去するためには、汚泥からのヒ素の溶出特性を明らかにするとともに、溶出操作によるヒ素の形態変化を把握する必要があると考えられる。

水中におけるヒ素の形態は、高速液体クロマトグラフィーと ICP-MS を併用した方法（以下、HPLC-ICP-MS とする）により分画および微量分析が可能であり⁹⁾、著者らはこの方法を用いて下水汚泥の液相における種々のヒ素化合物についても分析できることを報告した¹⁰⁾。従って、HPLC-ICP-MS を用いることにより下水汚泥から溶出する際のヒ素の形態を特定するとともに、その後のヒ素の挙動を追跡できると考えられる。

以上の背景から、本研究では下水汚泥に含まれるヒ素の除去技術の開発と溶出機構の解明を目的とし、酸またはアルカリを用いた下水汚泥からのヒ素の溶出実験を行い、下水汚泥からのヒ素の溶出に及ぼす pH や ORP の影響について検討した。さらに、下水汚泥から溶出したヒ素の形態を HPLC-ICP-MS により分析し、汚泥からのヒ素の溶出特性について考察した。なお、下水中からヒ素を凝集沈殿によって除去し、汚泥中へヒ素を蓄積させない方法等もあげられるが、下水中の SS も沈降すると考えられる。そこで、本研究では汚泥中に蓄積したヒ素を除去する手法を検討した。

2. 実験材料

本研究に用いた汚泥は、温泉水を受け入れている下水処理場の濃縮汚泥を用いた。この処理場はオキシデーションディッチ法により下水を処理し（汚泥滞留時間：30 日前後）、生じた汚泥は高分子系の凝集剤を添加し、重力濃縮した後、処分されている。流入下水中のヒ素濃度は、年平均で約 0.15mg/l であった。表-1 に実験に用いた下水汚泥中の金属類（As、Al、Ca、Fe）の含有量を示す。As の含有量は 500mg/kg と高濃度であり、温泉排水の影響を顕著に受けていることが分かる。なお、As の含有量は、汚泥を硫酸、硝酸と過塩素酸による分解法により前処理し（分解は全体で 7 時間程度を要し、開始後 3～4 時間で硫酸の白煙が生じ始めた）、分解液中の全ヒ素濃度を水素化物発生原子吸光法により測定して求めた^{11), 12)}。他の金属の含有量は、汚泥を王水煮沸法により前処理し、分解液中の金属濃度を誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS：HP4500）により測定して求めた^{11), 12)}。以下では水素化物発生原子吸光法によって分析された全ヒ素を As と記述する。実験に用いた時点での汚泥の ORP（飽和塩化銀電極法¹²⁾）は -200mV 程度であった。

表-1 下水汚泥中の金属類の含有量

金属	As	Al	Ca	Fe
含有量 (mg/kg)	500	28700	19700	8480

3. 実験方法および実験条件

3.1 下水汚泥からのヒ素の溶出に及ぼす pH の影響

下水汚泥からのヒ素の溶出に及ぼす pH の影響を明らかにするために、種々の pH で下水汚泥からのヒ素の溶出実験を行った。実験は固形物濃度 2%（採取時の汚泥濃度は約 2% であった）の汚泥 1 l を振とうフラスコに採取し、25℃、120rpm で 48 時間振とうする回分式で行った。汚泥の pH は、硫酸あるいは水酸化ナトリウムを用いて 1、3、5、7、9 および 11 に保持した。分析用の試料は経時的に採取した汚泥を 10,000rpm で 10 分間遠心分離をした後、上澄液を GS25 に通した濾液とし、As 濃度は前述の方法により測定した。また、下水汚泥中に多量に存在する金属（Al、Ca、Fe）とヒ素との溶出の相関をみるために溶出液中のこれらの金属と全有機炭素（TOC）¹²⁾の濃度も測定した。

3.2 下水汚泥からの形態別ヒ素の溶出特性

下水汚泥からのヒ素の溶出機構を明らかにするためには、汚泥中のヒ素の形態を知る必要があるが、現時

点ではそれを分析する手法がない。そこで、下水汚泥から溶出したヒ素の形態を HPLC-ICP-MS で分析し、ヒ素の存在形態に及ぼす pH と ORP の影響について検討した。

(1)種々の pH で下水汚泥から溶出したヒ素の形態分析

分析試料は3.1と同様の条件および方法で24時間の溶出実験を行って経時的に採取した溶出液の濾液とした。HPLC-ICP-MS による溶出液中のヒ素の形態分析は、pH を統一するためにリン酸緩衝液を最終濃度として 5mmol/l になるように加えるとともに、超純水で濾液を 100 倍に希釈し、これを HPLC-ICP-MS に導入して亜ヒ酸（以下、As(III)とする）、ヒ酸（以下、As(V)とする）、モノメチルアルソン酸（以下、MMAA とする）およびジメチルアルシン酸（以下、DMAA とする）について行った。LC は LC-10ATvp、カラムは Gelpack GL-IC-A15、溶離液は 0.2mmol/l EDTA-2Na を含む 2mmol/l リン酸緩衝液（pH6.0）とした。分析方法は酒井ら⁹⁾を参考にし、以下の実験も同様の方法を用いて行った。

(2)下水汚泥からのヒ素の溶出形態

下水汚泥から溶出したヒ素の形態が溶出時間の経過に伴い変化することが予想されるため、溶出直後のヒ素の形態を把握するために、短時間でのヒ素の溶出実験を行った。実験は遠沈管に汚泥 50ml を採取し、遠心分離により上澄液を除去した後、その上澄液と同体積の蒸留水を加え、pH を 1 と 9 にそれぞれ調整した。この pH 値は(1)の実験で溶出液中のヒ素の形態が顕著に異なっていたために選定した。1 時間振とう後、直ちに遠心分離し、上澄液を濾過して前述の方法により濾液中の各態ヒ素濃度を HPLC-ICP-MS により測定し、この操作を 3 回繰り返した。

(3)溶出液中のヒ素の形態変化に及ぼす pH と ORP の影響

3.1 と同様の溶出実験を pH1 と 9 で行い、24 時間振とう後の下水汚泥の濾液を直ちに表-2 に示した条件に調整し、再度 24 時間振とうを行い、各態ヒ素濃度を HPLC-ICP-MS により測定した。Run1 では後述する pH と ORP に対する平衡時でのヒ素の形態である As(III)の領域へ As(V)を添加し、Run2 では As(V)の領域へ As(III)を添加し、溶出液中のヒ素の形態変化に及ぼす pH と ORP の影響について検討した。各態ヒ素の添加にはそれぞれの標準試薬を用いた。

表-2 実験条件

Run No.	溶出実験		溶出後の濾液の操作				
	pH	As の存在領域	pH	As の存在領域	As の添加	ORP	
						初期	最終
1	1	As(III)	1	As(III)	1mg As(V)/l	550	445
2	9	As(V)	9	As(V)	2mg As(III)/l	90	240

4.実験結果および考察

4.1 下水汚泥からのヒ素の溶出に及ぼす pH の影響

種々の pH での As の溶出量の経時変化を図-1 に示す。溶出量は初期に汚泥の液相（3.1 で述べた遠心分離後の濾液）に含まれている量を差し引き、乾燥汚泥 1kg 当りに換算している。溶出量が負の値は、実験開始時の濃度よりも一時的に低くなったことを示している。As の溶出量は、pH1 以外の条件では時間の経過に伴い緩やかに増加し、実験開始後 24 時間目ではほぼ一定となり、これ以上溶出を続けても溶出量は増加しなかった。溶出量は、pH11 で約 450mg/kg（溶出率：90%）と最も高い値になったが、その他の pH

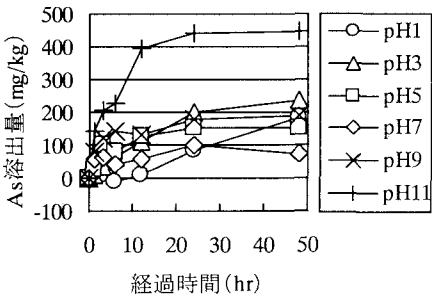


図-1 種々の pH での As 溶出量の経時変化

では 250mg/kg（溶出率：50%）以下であった。

ヒ素含有廃水の処理には一般に Fe^{3+} や Al^{3+} の水酸化物との共沈法が用いられており⁵⁾、この共沈を促進する共存物質として Ca 等がある¹³⁾。Fe、Al および Ca は表-1 に示したように下水汚泥中に多量に含まれている。また、pH9 および 11 での実験では、溶出液は黒褐色を呈しており、この着色は有機物質に由来すると思われた。そこで、これらの物質の溶出とヒ素の溶出の関係を検討した。図-2~5 に TOC、Al、Fe および Ca の溶出量の経時変化を示す。TOC の溶出量は、pH11 でゆるやかに増加し、約 120g/kg に達したが、他の pH では 20g/kg 以下であった。Al の溶出量は、pH1 で最も高く、約 25g/kg であり、次いで pH3 と 11 において 10~15g/kg であったが、他の pH では 2g/kg 以下であった。Fe の溶出量は、pH1 と 3 において 5~6g/kg であり、pH11 では 1g/kg 程度であった。他の pH では、pH5 において Fe 溶出量の一時的な増加がみられたが、その後は 0.6g/kg 以下であった。Ca は、pH の低下にともない溶出量が増加したが、アルカリ性領域では濃度が減少した。

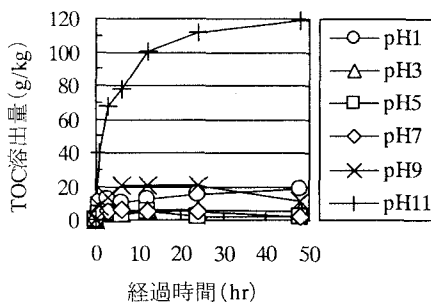


図-2 種々の pH での TOC 溶出量の経時変化

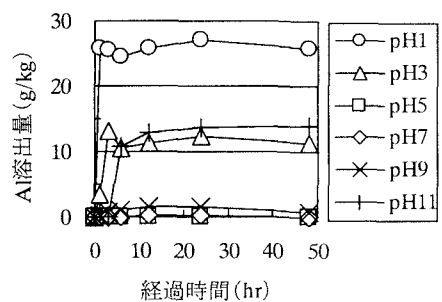


図-3 種々の pH での Al 溶出量の経時変化

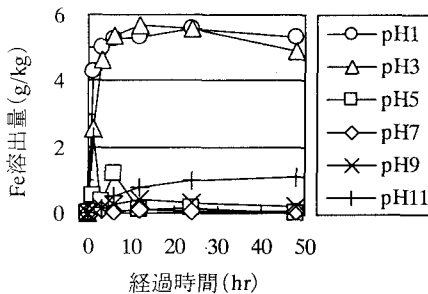


図-4 種々の pH での Fe 溶出量の経時変化

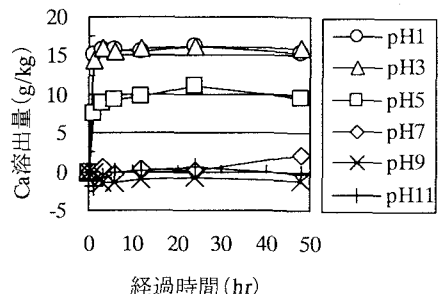


図-5 種々の pH での Ca 溶出量の経時変化

図-6、7 に酸性領域 (pH1、3、5) と中性～アルカリ性領域 (pH7、9、11) での As の溶出量と TOC、Al、Fe および Ca の溶出量との関係を示す。図から、酸性領域では pH1 で TOC、pH5 で Ca の溶出量と As の溶出量に比較的高い相関がみられたが、他の pH では TOC、Al、Fe および Ca の溶出量と相関は見られず、ヒ素と共存物質の溶出には明らかな関係は認められなかった。一方、中性～アルカリ性領域では、As と Ca の溶出量に相関は見られなかったが、TOC、Al および Fe で高い相関が見られた。このことは Al や Fe の水酸化物と共沈あるいは有機物質と結合した As が共存物質と共に溶出している可能性があることを示している。なお、アルカリ性領域での相関係数 (R^2) は、pH7、9 および 11 での全てのデータを用いて算出した。

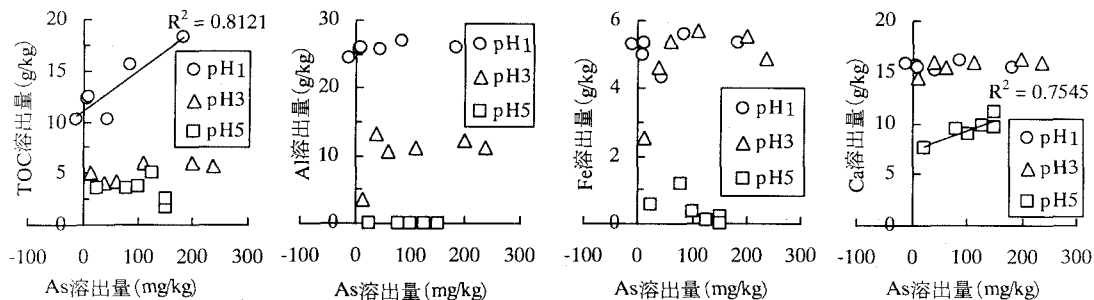


図-6 酸性領域での As の溶出量と共存物質 (TOC、Al、Fe、Ca) の溶出量との関係

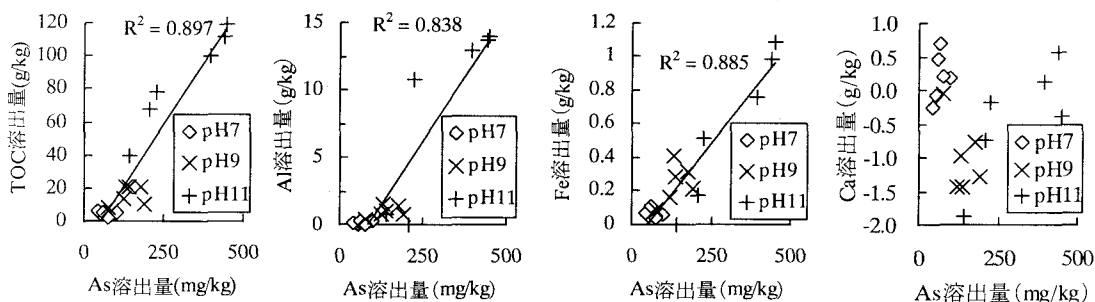


図-7 中性～アルカリ性領域での As の溶出量と共存物質 (TOC、Al、Fe、Ca) の溶出量との関係

4.2 下水汚泥からのヒ素の溶出特性

(1) 種々の pH で下水汚泥から溶出したヒ素の形態分析

図-8～11 は種々の pH での溶出液中の As(III)、As(V)、MMAA および DMAA の元素 As としての存在量の経時変化を示しており、存在量は乾燥汚泥 1kg 当たりに換算した。As(III)の存在量は、pH1 と pH3 で緩やかに増加し、24 時間目で約 95mg/kg に達したが、他の pH では 20mg/kg 以下であった。As(V)の存在量は、pH1 では実験期間を通して 30mg/kg 以下であったが、他の pH では実験開始直後あるいは数時間後に急激に増加し、24 時間目で 140～340mg/kg に達した。MMAA と DMAA の存在量は、全ての pH で 20mg/kg 以下であった。

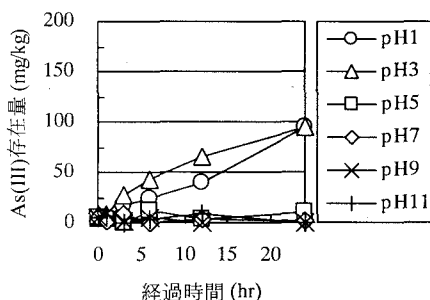


図-8 As(III)の存在量の経時変化

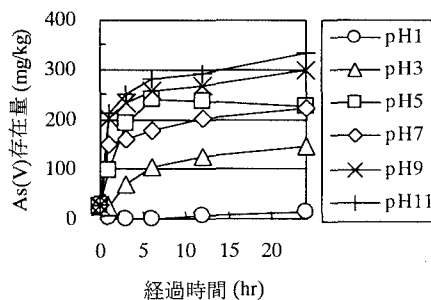


図-9 As(V)の存在量の経時変化

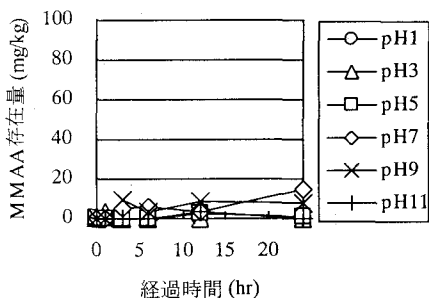


図-10 MMAA の存在量の経時変化

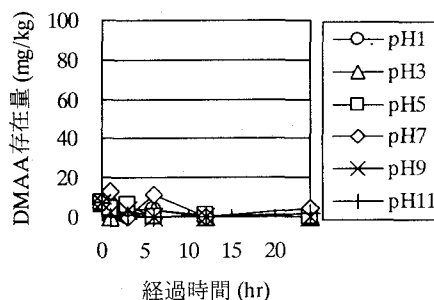


図-11 DMAA の存在量の経時変化

図-12に各pHでの振とう24時間目における溶出液中の各態Asの存在率(左軸)と各態Asの総存在量(Total, 右軸)を示す。ヒ素の形態は全てのpHでAs(III)あるいはAs(V)としての無機態が主であり、pH1ではAs(III)の存在率が高いが、pHが上昇するにつれてAs(III)の存在率は減少し、pH5以上ではAs(V)の存在率が90%を超えた。MMAAおよびDMAAの有機態Asは、pH7と9で若干見られるが、無機態に比べ非常に少なかった。また、水素化物発生原子吸光法で測定した溶出液中の全As量とHPLC-ICP-MSで測定した各態As存在量の合計量の比((各態ヒ素合計量/全ヒ素量)×100)は、pH1で75%、pH3で90%、pH5で95%、pH7で85%、pH9で84%、pH11で109%であり、pH3以上では本研究で検討した形態以外のヒ素は少ないと言える。100%を超えたものについては、全ヒ素量を原子吸光法、各態ヒ素量をICP-MS法により測定したため、両測定法の間で若干の誤差が生じたと考えられる。

汚泥から溶出したヒ素を実際に除去する際には、汚泥と溶出液を分離した後、溶出液中のヒ素を共沈法で除去するのが適していると考えられる。共沈法ではAs(III)よりもAs(V)の方がFeやAlの水酸化物と共沈しやすいことが報告されている³⁾。従って、汚泥中のヒ素を酸性領域でAs(III)として溶出させるよりもアルカリ性領域でAs(V)として溶出させた方がその後の除去がしやすくなると考えられる。

図-13に平衡時でのヒ素の存在形態(ここではAs(III)とAs(V)だけを考慮した)を示すEh(ORP)-pH図に、振とう24時間目における汚泥のpHに対するORPをプロットしたものを示す。この図より、24時間目のORPは、pHの低下に伴い増加し、pH1でAs(III)の領域、pH7、9および11でAs(V)の領域、その他のpHではAs(III)とAs(V)の境界付近に位置することが分かる。この比較から、溶出液中における無機態のAs形態は、pHとORPに依存し、純水中での平衡時の形態とほぼ一致することが分かった。しかしながら、溶出液中のヒ素の存在形態がpHとORPに依存するならば、

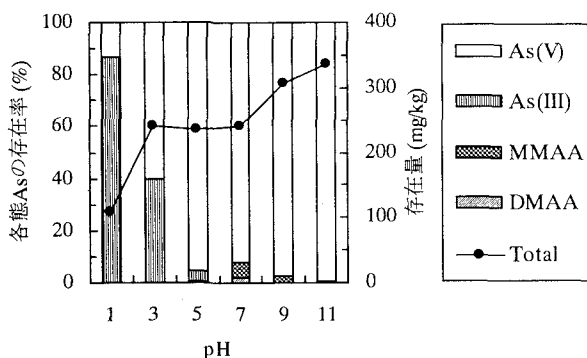


図-12 各態Asの存在率と各態ヒ素の総存在量

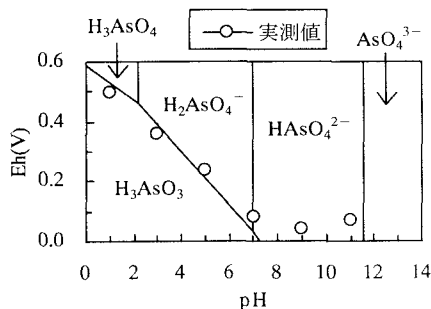


図-13 平衡時のAsの形態を示すpH-Eh図と汚泥のpHに対するORP

溶出後のヒ素の形態は実験期間中に pH と ORP によって変化する可能性があると考えられる。そこで、溶出直後におけるヒ素の形態について次に述べる。

(2) 下水汚泥からのヒ素の溶出形態

図-14 に pH11 での各態 As の溶出濃度を示す。溶出操作後の ORP は 1 回目～3 回目で 329～414mV の範囲内であり、pH と ORP は図-13 に示す As(III) の領域内であった。1 回目の溶出操作では、As(V) の濃度が約 0.6mg/l、As(III) の濃度が約 0.3mg/l であり、As(V) の濃度は As(III) の濃度よりも高い値を示し、下水汚泥中のヒ素の一部は、1 時間程度の溶出操作の場合には As(III) の領域でも As(V) として溶出することが分かった。しかしながら、2 回目以降の溶出操作では、As(V) の濃度は 0.15mg/l に低下し、As(III) の濃度よりも低い値になった。有機態 As の濃度は 0.05mg/l 以下であり、無機態 As の濃度に比べて非常に低かった。

図-15 に pH9 での各態 As の溶出濃度を示す。溶出操作後の ORP は 1 回目～3 回目で 54～104mV の範囲内であり、pH と ORP は As(V) の領域内であった。pH9 では有機態 As がわずかながら溶出したが、As(III) はほとんど溶出しなかった。As(V) の濃度は 1 回目で約 1.2mg/l であり、pH11 での濃度よりも高く、図-9 に示した結果と同様な傾向を示し、pH9 では汚泥中の As(V) が主に溶出したと考えられる。

(3) 溶出液中のヒ素の形態変化に及ぼす pH と ORP の影響

図-16 に実験初期と振とう 24 時間目（最終）における各条件での As(III) と As(V) の濃度変化を示す。ヒ素の還元反応を見るために、As(III) の領域の濾液に As(V) を添加した Run1 では、As(V) の濃度が顕著に減少し、As(III) の濃度がわずかながら増加した。図には示していないが、有機態 As(MMAA と DMAA) の濃度はほとんど変化しなかったため、減少した As(V) は若干ではあるが As(III) に還元されていると推察されるが、本条件では As(V) はイオン化していないので大部分はイオン性を有しない共存物質と共沈したと思われる。

一方、ヒ素の酸化反応を見るために、As(V) の領域の濾液に As(III) を添加した Run2 では、As(III) の濃度が約 2.5mg/l からほぼ 0mg/l に減少し、As(V) の濃度が約 2.3mg/l から約 4.6mg/l まで増加し、As(V) の領域では As(III) が比較的容易に酸化されることが分かった。

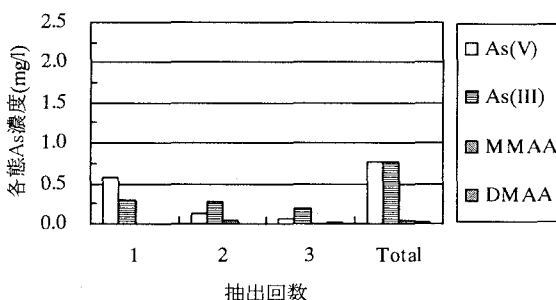


図-14 各態 As の溶出濃度 (pH11)

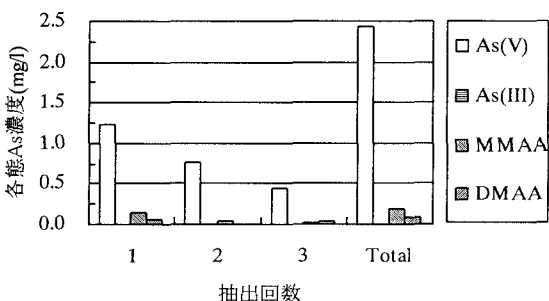


図-15 各態 As の溶出濃度 (pH9)

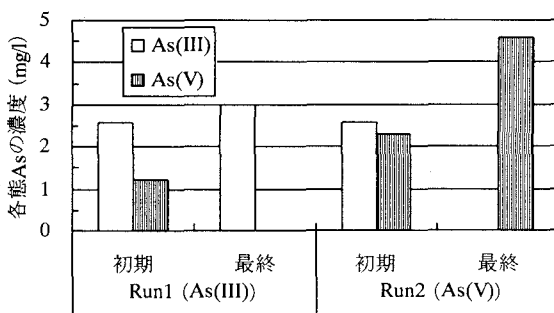
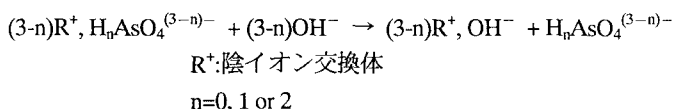


図-16 振とう前後での各態 As の濃度変化

(4)考察

下水中のヒ素は、As(III)、As(V)あるいはFeやAlの水酸化物との共沈物等の形態で存在すると考えられる。下水のpHはほぼ中性であるので、図-13からAs(V)はイオン性を有するが、As(III)はその性質を有していないことが分かる。従って、下水中のAs(V)は主に化学的作用により汚泥に捕捉されるが、As(III)や共沈物は主に物理的作用によって捕捉されると考えられる。また、汚泥に捕捉されたヒ素は、ORPの条件次第では硫化物や単体として存在することも予想される⁷⁾。この推論と実験結果を考慮すると、低pHでのAs(III)の溶出は、物理的作用により汚泥に捕捉されたAs(III)の脱着や、汚泥に吸着したAs(V)の緩やかな還元あるいはAs₂S₃のような硫化物や単体ヒ素の酸化によるAs(III)の生成によるものと考えられる。また、図-14に示したAs(V)の溶出は、共存物質と結合したり、共沈したものがpHの低下により溶解したことも一因と考えられる。一方、高pHでのヒ素の溶出は、



のように汚泥中の有機物や金属と結合したAs(V)とOH⁻との陰イオン交換、AlやFeの水酸化物との共沈物の溶解あるいはAs(III)や硫化物、単体等の酸化によるAs(V)の生成によるものと考えられる。

下水汚泥中のヒ素の主な形態がAs(V)である場合、低pHでは高pHに比べてAs(V)の溶出量は低く、As(III)の領域では図-16に示したようにAs(V)の還元によるAs(III)の生成はわずかであることから、低pHではAs(V)の領域までORPを十分に増加させることにより汚泥中のヒ素が効果的に溶出すると考えられ、低pHでの鉄酸化細菌や第二鉄を用いた方法が有用であると考えられる。

5.結論

本研究では、下水汚泥からのヒ素の溶出に及ぼすpHと共存物質の影響について検討するとともに、下水汚泥から溶出したヒ素の形態をHPLC-ICP-MSにより分析し、汚泥からのヒ素の溶出特性について考察した。以下に得られた結論を示す。

- (1)下水汚泥中のヒ素は、pHの上昇により効果的に溶出することが分かった。酸性領域では、AsとAlおよびFeの溶出量に明らかな相関はみられなかったが、中性～アルカリ性領域では、TOC、AlおよびFeで高い相関がみられた。
- (2)HPLC-ICP-MSを用いたヒ素の形態分析より、溶出後のヒ素の形態は、主に低pHでAs(III)、高pHでAs(V)であり、純水中でのpHとORPに対する平衡時でのヒ素の形態とはほぼ一致することが分かった。
- (3)溶出直後のヒ素はpH1ではAs(III)とAs(V)の双方の形態で存在したが、溶出操作を繰り返すにつれてAs(V)の濃度はAs(III)の濃度よりも顕著に低くなった。一方、pH9では3回の溶出操作においてAs(V)が主な形態であった。
- (4)下水汚泥から溶出した後のヒ素の形態は、pHとORPの影響を受け、As(V)の領域ではAs(III)が容易に酸化されるが、As(III)の領域ではAs(V)の還元はわずかであることが分かった。
- (5)低pHにおけるAs(III)の領域でのヒ素の溶出は、As(III)の物理的な脱着、汚泥に吸着したAs(V)の緩やかな還元あるいは硫化ヒ素や単体ヒ素の酸化によるAs(III)の生成によるものと考えられる。一方、高pHにおけるAs(V)の領域でのヒ素の溶出は、汚泥中の有機物や金属と結合したAs(V)とOH⁻との陰イオン交換、AlやFeの水酸化物との共沈物の溶解あるいはAs(III)の酸化によるAs(V)の生成によるものと考えられる。

本研究の一部は、科学技術振興事業団戦略的基礎研究推進事業および文部省科学研究費基盤研究(C)の補助を受けた。ここに感謝の意を表します。

<参考文献>

- 1) D. J. Wozniak and J. Y. C. Huang : Variables affecting metal removal from sludge. J. WPCF, Vol.54, No.12, pp.1574-1580, 1982
- 2) A. Ito, T. Umita, J. Aizawa, T. Takachi and K. Morinaga : Removal of heavy metals from anaerobically digested sewage sludge by a new chemical method using ferric sulfate, Wat. Res., Vol.34, No.3, pp.751-758, 2000
- 3) R. D. Tyagi, D. Couillard and F. Tran : Heavy metals removal from anaerobically digested sludge by chemical and microbiological methods, Environ. Pollut., Vol.50, pp.295-316, 1988
- 4) 湊秀雄 監修：砒素をめぐる環境問題, 東海大学出版会, 1998
- 5) 徳永修三：水中からのヒ素の除去技術, 水環境学会誌, Vol.20, No.7, pp.452-454, 1997
- 6) A. A. Carbonell-Barrachina, A. Jugsujinda, F. Burlo, R. D. Delaune and W. H. Patrick, Jr. : Arsenic chemistry in municipal sewage sludge as affected by redox potential and pH, Wat. Res., Vol.34, No.1, pp.216-224, 2000
- 7) J. F. Ferguson and J. Gavis : A review of the arsenic cycle in natural waters, Wat. Res., Vol.6, pp.1259-1274, 1972
- 8) 曾根興三, 田中元治 訳：定性分析化学 II, 共立出版, 1974
- 9) 酒井徹志, 井上嘉則：LC-ICP-MS による陰イオン性ヒ素の化学別定量における分離条件の最適化, 工業用水, 第 481 号, pp.14-20, 1998
- 10) 高地敏幸, 伊藤歩, 北田久美子, 小野寺洋敏, 相澤治郎, 海田輝之：高濃度砒素含有下水汚泥からのヒ素の溶出除去に関する研究, 第 9 回ヒ素シンポジウム講演要旨集, pp.64-65, 1999
- 11) 日本下水道協会：下水試験方法－1984 年版－, 1984
- 12) 日本下水道協会：下水試験方法－1997 年版－, 1997
- 13) 後藤克己, 田口 茂, 坂本哲夫：水酸化鉄(III)によるヒ素(V)の共沈捕集に及ぼす共存物の影響, 水処理技術, Vol.23, No.4, p.287-293, 1982