

■ 論文 ■

廃棄物再利用による下水汚泥からの金属類溶出システムの開発

佐々木 久美子*
伊 藤 歩**

相 澤 治 郎***
海 田 輝 之****

要 旨： 本研究では、経済的な下水汚泥からの金属類の除去を目的とし、下水汚泥中に存在する硫黄酸化細菌と、嫌気性消化ガスの脱硫過程で生成する硫黄廃棄物の利用可能性について検討した。硫黄酸化細菌は、嫌気性消化汚泥を含む様々な性状の汚泥のいずれにも存在し、汚泥と元素硫黄を混合することにより容易に活性化し、分離できることが分かった。また、下水汚泥から分離した硫黄酸化細菌は嫌気性消化ガスの脱硫過程で生成する含硫黄廃棄物を基質として利用できることが明らかとなった。さらに、下水汚泥に硫黄廃棄物のみを添加することにより、汚泥中の硫黄酸化細菌の働きで硫酸が生成し、下水汚泥のpHが低下して金属類を溶出させることができた。これより、下水処理場内で必要な物質が全て供給される、新しい下水汚泥からの金属類の溶出システムを提案した。

キーワード： 硫黄酸化細菌、下水汚泥、重金属除去、硫黄廃棄物

1. はじめに

大量生産・消費・廃棄という悪循環から脱却し、環境負荷の少ない「循環型社会」を構築することは急務である。平成12年に制定された循環型社会形成推進基本法では、廃棄物の処理に関して、1. 発生抑制、2. 再使用、3. 再生利用、4. 熱回収、5. 適正処分という優先順位が初めて法定化された。平成12年度における下水汚泥の発生量は198万t（乾燥重量）であり、そのうち約60%が有効利用されているが、近年の有効利用割合の増加は、建設資材利用の増加に起因するものであり、緑農地利用は依然横ばい状態である¹⁾。下水汚泥の緑農地利用を促進するためには、①生産費及び輸送費の削減による商品の低価格化、②金属類含有量の低減による安全性の向上、③利用者に汚泥肥料の効果と利用の意義を伝える啓蒙活動、などが必要

不可欠である。

また、平成12年10月1日施行の改正肥料取締法により、下水汚泥肥料の許容金属類含有量は、従来の「下水汚泥肥料乾物1kg当り総水銀2mg以下、カドミウム5mg以下及びヒ素50mg以下」に加え、「鉛100mg以下、クロム500mg以下及びニッケル300mg以下」を遵守することとなった。また、下水汚泥を原料とした肥料等について、「乾物当りの銅及び亜鉛の含有率がそれぞれ600ppm、1800ppm以下であること」とする品質保全推進基準が提示されている²⁾。金属類の土壌への蓄積を考慮すると、法の許容量に係らず、汚泥中の金属含有量を減少させ、肥料としての安全性を維持する必要がある。

下水汚泥からの金属類の除去に関しては、国内外で様々な方法が提案されてきた。初期には、酸や酸化剤またはキレート剤を用いた、化学的な重金属の抽出方法が多く提案された^{3)~5)}。しかし、

これらの方法では、汚泥の発生量に対して使用する薬剤のコストが問題となり、近年ではより低コスト化を目指して、硫黄酸化細菌や鉄酸化細菌を用いる方法が検討されている^{6)~9)}。

日本では、横浜市下水道局が、硫黄酸化細菌による重金属除去について1995年度から継続して検討を重ねている^{10)~12)}。いずれも、汚泥に硫黄を添加し、硫黄酸化細菌の硫酸生成によって汚泥のpHを低下させ、重金属の溶出を図る方法であり、実験プラントを用いて、汚泥濃度、滞留時間、硫黄添加量などの運転条件を検討している。しかしながら、細菌の基質として元素硫黄を用い、細菌馴致のために初期に硫酸を添加して汚泥のpHを低下させるなど、依然多量の試薬を必要とし、コスト面の問題から実用化には至っていない。

一方、嫌気性消化ガスの湿式脱硫方式では、吸収された硫化水素は固体硫黄として除去された後、産業廃棄物として処分されている。本研究では、理論上はこの廃棄物が完全な硫黄であることに着目し、硫黄酸化細菌を利用した下水汚泥からの金属類の溶出において、この硫黄廃棄物を試薬硫黄の代替として用いる可能性を検討した。さらに、必要な物質を全て下水処理場内で賄うという考えに基づき、硫黄酸化細菌の種々の汚泥中での存在を調べると共に、予め汚泥のpHを硫酸で低下させる前馴致を行わずに、下水汚泥からの金属類の溶出除去を試みた。

2. 実験概要及び実験方法

(1) 下水汚泥中に存在する硫黄酸化細菌

a) 実験の目的

下水汚泥からの金属類の除去は、最も濃縮の進む最終処分形態で行われるのが望ましい。我国では処理場ごとに様々な汚泥処理方法がとられており、下水汚泥からの金属類の除去に硫黄酸化細菌を適用するに当たっては、どのような性状の汚泥からも容易に硫黄酸化細菌を抽出できることが一つの条件となる。本節では、様々な下水汚泥について硫黄酸化細菌が存在するかを調べた。なお、本研究では、硫黄酸化活性を持つ *Thiobacillus* 属細菌を硫黄酸化細菌と称する。

表－1 汚泥の性状

汚泥名	県	性状
a	岩手	初沈汚泥＋余剰汚泥(未消化)
b	山形	嫌気・好気活性汚泥法の余剰汚泥
c	宮城	生汚泥＋消化汚泥
d	宮城	初沈汚泥＋消化汚泥
e	岩手	嫌気性消化汚泥

表－2 実験条件

Run No.	汚泥名	添加汚泥	培地	初期pH
1	a	湿潤50g	ONM培地 1L	7.0
2	b			
3	c			
4	d			
5	a	湿潤50g (滅菌)		
6	b			
7	c			
8	d			
9		無添加		
10	e	湿潤50g		
11		無添加		

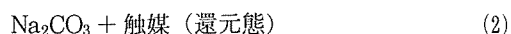
b) 実験方法

表－1に調査した汚泥の概要、表－2に実験条件をそれぞれ示す。汚泥はいずれも脱水したものである。ONM培地¹³⁾は硫黄酸化細菌の培養に用いられる一般的な培地である。乾熱滅菌した振とうフラスコを用いて培地とそれぞれの汚泥を混合し、25℃の恒温室内で通気を行い、経日的にpHを測定した。Run 1～Run 9は実験室で行い、対照系として、培地のみのRun 9及びそれぞれの滅菌汚泥を添加するRun 5～Run 8を設定した。また、Run10, 11については、実験室内でのコンタミネーションを避ける目的で、汚泥eを採取した処理場の水質分析室で実験を行った。

(2) 硫黄廃棄物の利用可能性

a) 実験の目的

下水汚泥の嫌気性消化ガスには硫化水素が含まれており、乾式または湿式の脱硫が行われる。湿式脱硫過程では、触媒が溶存するアルカリ吸収液を用いて次のような反応で脱硫を行う。



式(1)及び式(2)に表されるように、硫化水素は触媒存在下で炭酸ナトリウムと反応し、固体硫黄が生成する。式(2)において生成された炭酸ナトリウムは、式(1)に示すように循環利用され、固体硫黄は

系外に搬出され、廃棄物として処分されている。この廃棄物は殆どが元素硫黄であるが、ナトリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、チオ硫酸ナトリウム、硫酸ナトリウムなどを含んでいると考えられる。本節では、硫黄酸化細菌の基質として、この硫黄廃棄物の利用可能性を検討した。

b) 実験方法

本研究で用いた硫黄廃棄物は、Y市の下水処理場の脱硫塔より採取した。硫黄廃棄物は、含水率46.7%の乳白色粘土状物質で、蛍光X線分析装置（島津、TI-100）により硫黄含有量を測定したところ、95.2%（dry-solid）であった。また、硫黄廃棄物を王水煮沸法¹⁴⁾によって前処理した後、ICP-MS（横河アナリティカルシステムズ、HP-4500）により測定した金属類の含有量を表-3に示す¹⁵⁾。Naの含有量が他の金属に比べ非常に多いのは、前述のNa化合物に起因するものである。表-4に実験条件を示す。ONM培地の硫黄以外

表-3 硫黄廃棄物の金属類含有量
(mg/kg-dry solid)

金属	Na	Al	Ca	Cr	Mn	Fe
含有量	23800	3.81	48.9	15.3	0.80	347
金属	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb
含有量	57.7	3.60	8.00	0.19	0.02	0.07

表-4 実験条件

Run No.	溶液	硫黄廃棄物	硫黄酸化細菌	初期pH
1	ONM培地1L	20g	無接種	7.0
2	(硫黄を除く)	(湿潤)	接種	

表-5 消化脱水汚泥の金属類含有量
(mg/kg-dry solid)

金属	Na	Al	Ca	Cr	Mn	Fe
含有量	490	23900	26500	32.5	599	16100
金属	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb
含有量	33.7	369	1080	10.1	3.72	54.2

表-6 実験条件および実験10日目におけるpH

Run No.	汚泥濃度	硫黄廃棄物(g-wet solid)	全量	pH
1	2%	0	1L	6.10
2		1.0		5.13
3		2.0		3.15
4		3.0		2.46
5		4.0		2.10
6		5.0		2.15
7		10.0		1.25

表-7 金属類含有量 (mg/kg-dry solid)

金属	Na	Al	Ca	Cr	Mn	Fe
下水汚泥	647	21400	25600	37.7	546	16100
硫黄廃棄物	39600	16.6	52.3	34.4	2.23	434
金属	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb
下水汚泥	34.3	331	985	8.76	3.22	50.7
硫黄廃棄物	8.26	4.55	2.06	0.45	0.06	0.35

の栄養塩を含む溶液1lに硫黄廃棄物を湿潤で20g添加し、Run1には硫黄酸化細菌の阻害剤としてNEM（N-エチルマレイミド）を 10^{-3} M添加し¹⁶⁾、Run2には硫黄酸化細菌の培養液を20ml添加した。硫黄酸化細菌の培養液は、2, (1), b)のRun10で汚泥から分離し、実験室でONM培地を用いて継代培養し、対数増殖期に至ったものを用いた。位相差顕微鏡を用いて計数した培養液中の細菌数は 2.47×10^8 cell/mlであった。25℃の恒温室内で通気培養を行い、経日的にpHを測定した。

(3) 硫黄廃棄物を用いた下水汚泥からの金属類の除去

a) 硫黄廃棄物添加量の検討

下水汚泥からの金属類の除去における、硫黄廃棄物の添加量の影響を検討した。下水汚泥は表-1のeに示した嫌気性消化脱水汚泥を用いた。表-5に、嫌気性消化汚泥を王水煮沸法によって前処理した後、ICP-MSにより測定した金属類の含有量を示す。各金属類の含有量は肥料取締法の値を満たしているが、Cdは規制値の70%を超えており、Cu、Znの値も比較的高い。表-6に実験条件を示す。固形分濃度が2%（w/v）になるように蒸留水で希釈した汚泥1lに、表-6に示した量の硫黄廃棄物を混合し、25℃の恒温室内で振とうを行った。なお、初期pHは調整せず、硫黄酸化細菌及び栄養塩の添加も行っていない。経日的に採水し、pHを測定した後、遠心分離した上澄み液中の硫酸イオン濃度を測定した。また、この上澄み液を前処理した後、溶出した金属類の濃度をICP-MSにより測定した。

b) 半連続実験による汚泥滞留時間（SRT）の検討

これまでの回分実験で得られた結果をもとに、汚泥の連続処理の可能性を明らかにするため、半連続実験を行い、汚泥滞留時間（Sludge Retention Time）の影響を検討した。表-7に半連続実験に用いた嫌気性消化汚泥と硫黄廃棄物の金属類の含有量を示す。表-8に実験条件を示す。予め表-8の共通条件下において硫黄酸化細菌の馴致を2回行い、pHが低下した状態から半連続実験を開始した。実験は25℃の恒温室内で行い、振とうフラスコを用いて、共通条件を維持するように、

表-8 実験条件

Run No.	共通条件	SRT(day)
1	汚泥濃度:2% 全量:1L 硫黄廃棄物:3g/L	1
2		2
3		3
4		5

SRT毎に汚泥の引抜及び添加を行った。測定項目は引抜汚泥のpH、硫酸イオン濃度、溶出した金属類の濃度である。

3. 実験結果及び考察

(1) 下水汚泥中に存在する硫黄酸化細菌

図-1及び図-2に各RunにおけるpHの経日変化を示す。実験室で行ったRun1～Run9では、滅菌しない汚泥を添加したRun1～Run4でpHの低下がみられた。pH低下速度に差異があるものの、いずれも6日間でpH2以下まで低下した。滅菌汚泥添加のRun5～Run8及び汚泥を添加しないRun9ではpHの大幅な低下はみられなかった。表-9にRun1～Run4における硫酸イオンの生成量とpHを示す。Run1～Run4においては、汚泥中に存在する硫黄酸化細菌により硫酸が

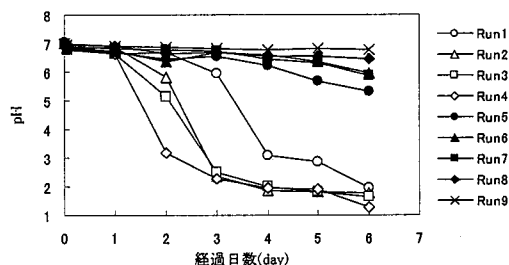


図-1 pHの経日変化

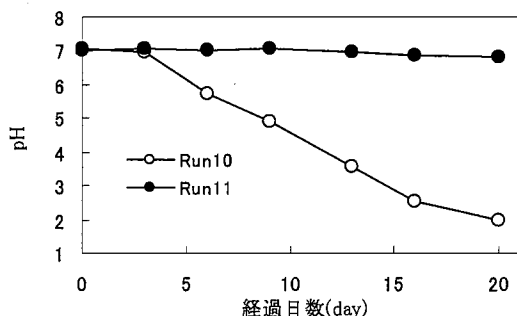


図-2 pHの経日変化

生成され、pHが低下したことが明らかである。実測pHが硫酸イオンの増加量から算出されるpHより高いのは、添加した汚泥の緩衝能のためであると考えられる。処理場で行ったRun10, 11についても同様に、汚泥を添加したRun10でpHの低下がみられた。Run10ではpH2以下まで低下するのに20日間を要したが、これは、汚泥が嫌気性消化されていることから、細菌の活性化に時間がかかったためと思われる。*Thiobacillus*属の細菌は一般に好気性であるが¹⁷⁾、嫌気条件下においても死滅せず、基質の供給と通気により容易に活性化することが明らかとなった。

また、Run10で増殖した硫黄酸化細菌は、実験室において、初期pHを7.0に調整したONM培地を用いて継代培養を行っている。継代培養におけるpHの変化を図-3に示す。増殖した細菌を新たな培地に植種した後、pHが7.0から5.5程度まで低下するのに1～2週間要し、その後は3日程でpHが急激に低下する。*Thiobacillus*属細菌は、至適pHが6～8にある*T. thioparus*や*T. novellas*、至適pHが2～4にある*T. thiooxidans*や*T. acidophilus*などが知られているが¹⁷⁾、下水汚泥中にはこれらが混在し¹⁸⁾、培地中で交互に増殖を繰り返すと考えられる。

図-4に、ONM培地での対数増殖期の硫黄酸化細菌を含む培養液のSEM写真を示す。細菌は

表-9 硫酸イオンの生成量とpH

Run No.	$\Delta[\text{SO}_4^{2-}](\text{mol/L})$	pH(理論値)	pH(実測値)
1	2.26×10^{-2}	1.34	1.96
2	2.97×10^{-2}	1.23	1.77
3	4.19×10^{-2}	1.08	1.65
4	6.74×10^{-2}	0.87	1.28

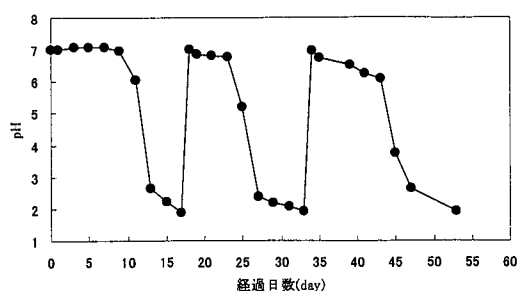


図-3 継代培養におけるpHの変化

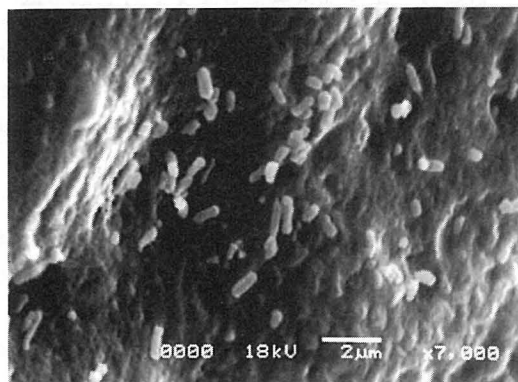


図-4 硫黄酸化細菌のSEM写真

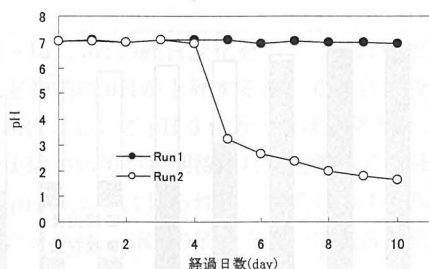


図-5 pHの経日変化

幅約 $0.5\mu\text{m}$ 、長さ約 $1\mu\text{m}$ の桿菌で、ONM培地中では元素硫黄粒子に付着している。

さらに、表-1のeに示した嫌気性消化汚泥中に存在する硫黄酸化細菌について硫黄培地¹⁹⁾を用いたMPN法により計数したところ、その菌数は $2.6 \times 10^6 \text{ MPN/g-dry sludge}$ であった。

(2)硫黄廃棄物の利用可能性

図-5にpHの経日変化を示す。硫黄酸化細菌を植種しなかったRun 1ではpHは低下せず、細菌を植種したRun 2では実験開始後4日目以降にpHが低下した。このことから、硫黄酸化細菌が硫黄廃棄物を基質として利用できることが明らかとなった。特に、試薬元素硫黄を用いた通常のONM培地による継代培養では、pHの低下が始まるまでに1～2週間のラグが見られるが、硫黄廃棄物を用いた場合では4日であった。ONM培地の栄養塩溶液に試薬の元素硫黄粉末を加えた場合、硫黄粉末の殆どは沈殿するが、硫黄廃棄物の場合は、粒子が非常に細かく、コロイド状に分散する。このため、硫黄廃棄物の場合は、植種した細菌が硫黄粒子表面に吸着しやすく、ラグが短く

なったと考えられる。また、1節のように、試薬元素硫黄のONM培地に汚泥を混合した場合は、硫黄粉末が汚泥粒子に吸着して十分に分散するため、同様にラグが短くなると考えられる。

(3)硫黄廃棄物を用いた下水汚泥からの重金属の除去

a) 硫黄廃棄物添加量の検討

図-6にpHの経日変化、図-7に硫酸イオン濃度の経日変化をそれぞれ示す。また、各Runの実験開始後10日目におけるpHを表-6に示す。添加した硫黄廃棄物の量が多いほどpHが低下する傾向が見られ、各RunにおけるpHの低下は硫酸イオン濃度の増加と対応している。このことは、下水汚泥に硫黄廃棄物を添加することにより、汚泥中に存在する硫黄酸化細菌が活性化して硫酸を生成し、pHを低下させたことを示している。

図-8～15に、実験前後の金属類含有量の変化をそれぞれ示す。残存量は、実験10日目における金属類の溶出濃度の測定値より、[下水汚泥+硫黄廃棄物]の固形分中に残存する量を算出したものであり、横軸左端の「Sludge」は実験前の汚泥中の金属類含有量を示している。図-8にNaの含有量の変化を示す。硫黄廃棄物中に含まれるNaの量が多いために、硫黄廃棄物の添加量が多

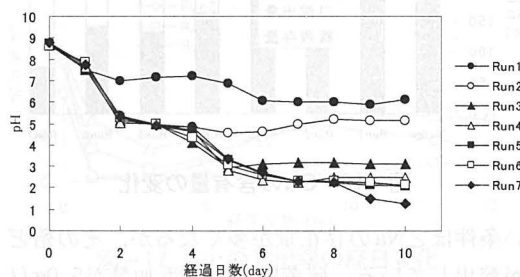


図-6 pHの経日変化

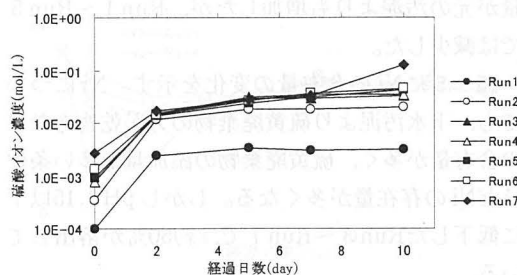


図-7 硫酸イオン濃度の経日変化

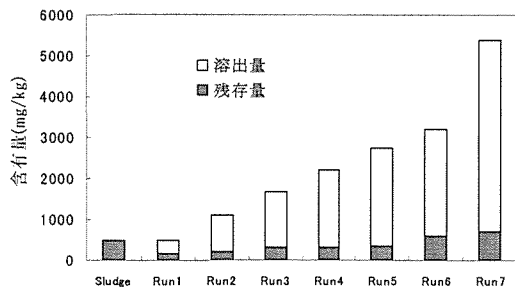


図-8 Naの含有量の変化

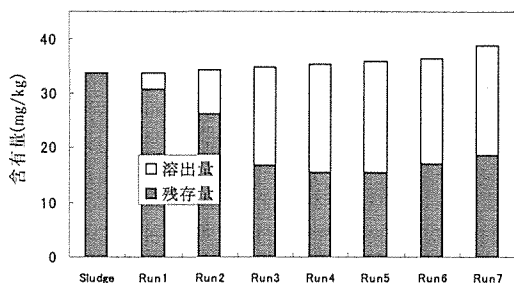


図-9 Niの含有量の変化

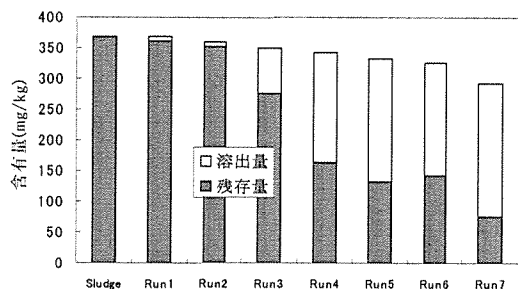


図-10 Cuの含有量の変化

い条件ほどNaの存在量が多くなるが、その殆どが溶出している。硫黄廃棄物の添加量が5.0g/l以上であるRun 6及びRun 7では、実験後の残存量が元の汚泥よりも増加したが、Run 1～Run 5では減少した。

図-9にNiの含有量の変化を示す。Niについても、下水汚泥より硫黄廃棄物の方が乾物あたりの含有量が多く、硫黄廃棄物の添加量が多い条件ほどNiの存在量が多くなる。しかしpH3.15以下に低下したRun 3～Run 7で、約50%が溶出している。

図-10、図-11にCu及びCdの含有量の変化

を示す。Cu及びCdの溶出はpHの低下と対応しており、pH3.15まで低下したRun 3ではCuで約20%、Cdで約30%の溶出率であったが、pHが2.5以下に低下したRun 4～Run 7では50%以上の溶出率が得られ、特にpH1.25まで低下したRun 7ではCuで70%以上溶出した。また、Al及びFeはCuと同様の溶出傾向であった。

図-12にZnの含有量の変化を示す。Znでは、Run 3～Run 7で70%以上の溶出率が得られた。Ca及びMnはZnと同様の溶出傾向を示し、これらの金属では、pHを3程度まで低下させることにより、高い溶出率が得られる。

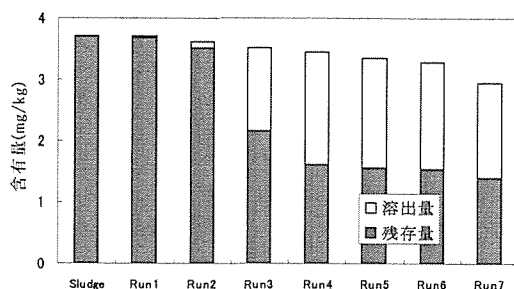


図-11 Cdの含有量の変化

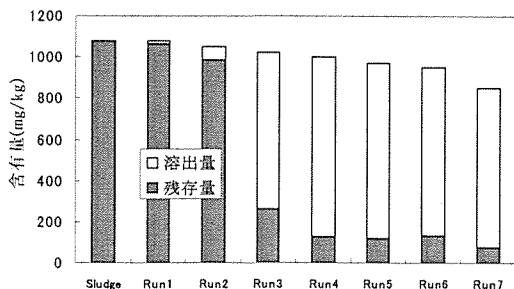


図-12 Znの含有量の変化

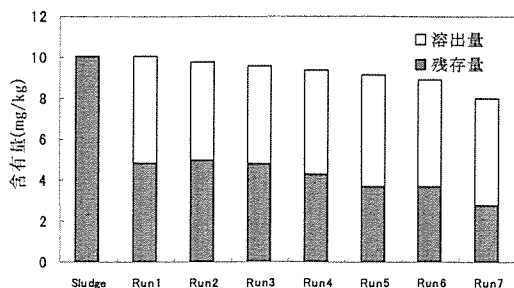


図-13 Asの含有量の変化

図-13にAsの含有量の変化を示す。Asでは、全ての条件で50%以上の溶出率が得られたが、pH5.13以下におけるpHの差異によって溶出率に顕著な差は見られなかった。

図-14、図-15にPb及びCrの含有量の変化を示す。Pb及びCrではpHが1.25まで低下したRun7で30%程度溶出したものの、それ以外の条件では高い溶出率は得られなかった。

以上の結果から、汚泥濃度が2%の場合、硫黄廃棄物の添加量3.0g/l以上でpHは2.5以下に低下し、金属類が効果的に溶出することが示された。b) 半連続実験による汚泥滞留時間(SRT)の検討

図-16にpHの経日変化を示す。SRTの短い条件ほど初期にpHが上昇するが、6日目以降は全てのSRTにおいてpH3付近ではほぼ定常となった。回分実験の結果から期待された定常期でのSRTによるpHの差異は見られず、さらにpHを低下させるためには、SRTの延長あるいは硫黄廃棄物の増量が必要であると考えられる。

図-17～21に半連続実験における金属類の溶出率の経日変化を示す。溶出率は、「溶出濃度/[汚

泥+添加硫黄廃棄物]の金属濃度×100」より算出した。図-17にCuの溶出率の経日変化を示す。実験後半期における溶出率はSRT1日(Run1)で約5%, SRT2日(Run2)で15~20%, SRT3日(Run3)及びSRT5日(Run4)では約30%となり、SRTの影響が見られた。この4条件では実験後半期におけるpHに大きな差異がないことから、これらの溶出率の違いはCuの溶出反応時間のみに依存していると考えられる。また、SRT3日(Run3)とSRT5日(Run4)では溶出率がほぼ等しいことから、硫黄廃棄物のみ添加した場合のCuの溶出にはSRT3日(Run3)が

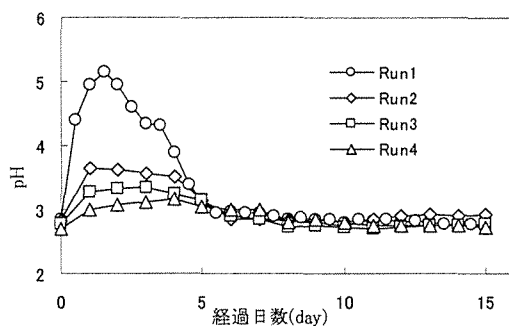


図-16 pHの経日変化

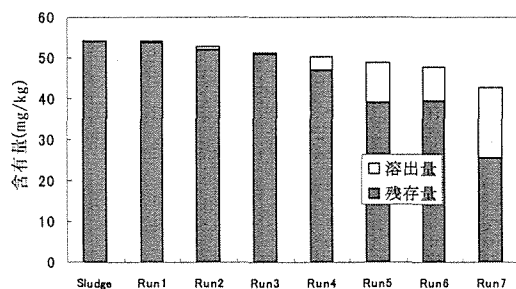


図-14 Pbの含有量の変化

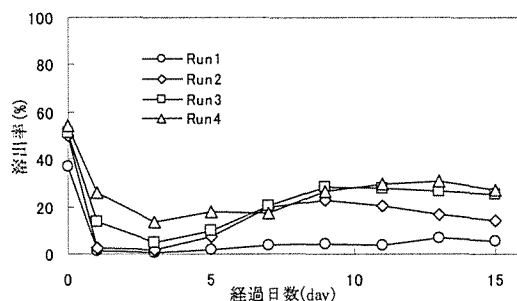


図-17 Cuの溶出率の経日変化

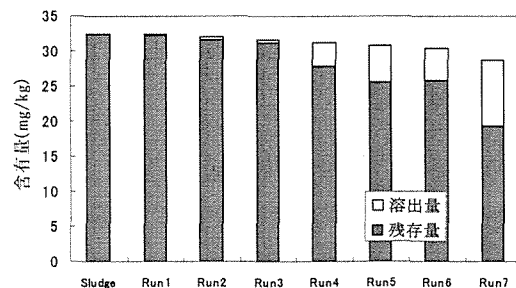


図-15 Crの含有量の変化

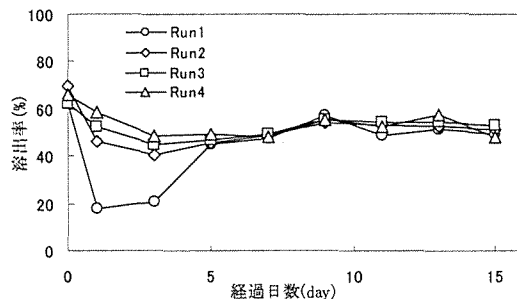


図-18 Niの溶出率の経日変化

適当であることが明らかになった。

図-18～21にNi, Cd, Zn, Asの溶出率の経日変化をそれぞれ示す。Znの溶出にやや強いpH依存性が見られたが、定常期における溶出率に対するSRTの影響は見られなかった。また、Cr及びPb(図省略)は、実験期間中全ての条件で殆ど溶出しなかった。

以上の結果から、汚泥濃度2%, 硫黄廃棄物の添加量が3.0g/lの半連続条件下では、溶出に対するSRTの影響が最も大きいのはCuであり、その場合SRT 3日が適当であることが明らかとなった。しかしながら、回分実験の結果から得られた、

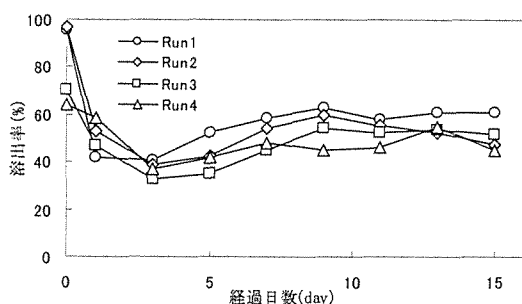


図-19 Cdの溶出率の経日変化

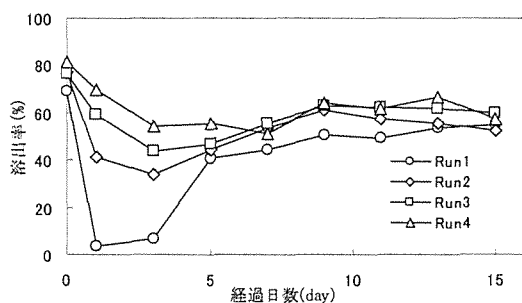


図-20 Znの溶出率の経日変化

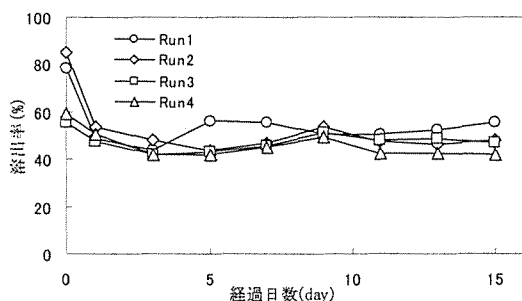


図-21 Asの溶出率の経日変化

効果的な金属類の溶出が期待される目標値、「pH2.5以下」を連続的に維持するためには、滞留時間の延長あるいは硫黄廃棄物の増量が必要であると考えられる。

4. システムの構築に関する考察

3章の結果より、硫黄廃棄物利用による処理可能な汚泥量は、硫黄廃棄物(湿潤-g):脱水汚泥(T.S.-g) = 3:20となる。平成11年度におけるY市の硫黄廃棄物発生量は19.06 t/年であり、この硫黄廃棄物で処理可能な脱水汚泥は固形分量で127 tとなる。しかし、同年のY市における脱水汚泥の発生量は固形分量で19,868 tとなっており、単純計算では、硫黄廃棄物のみで処理可能な脱水汚泥の量は、発生量の1割にも満たない。しかしながら、この比率は回分実験の結果から得られたものであり、汚泥及び硫黄廃棄物の連続的な投入-引き抜きと、その運転条件を吟味することによって、処理効率の向上が期待される。

また、汚泥のpHを、硫酸を用いて化学的に低下させた場合の硫酸の必要量を試算したところ、汚泥乾物1tのpHを2まで低下させるには、約265kgの硫酸が必要であることが分かっている。電子工業用の試薬硫酸を用いたとして、処理費用は、汚泥乾物1t当たり約97,000円にもなる。

下水汚泥広域処理事業に代表されるように、下水汚泥の集約処理の拡充により、嫌気性消化の増

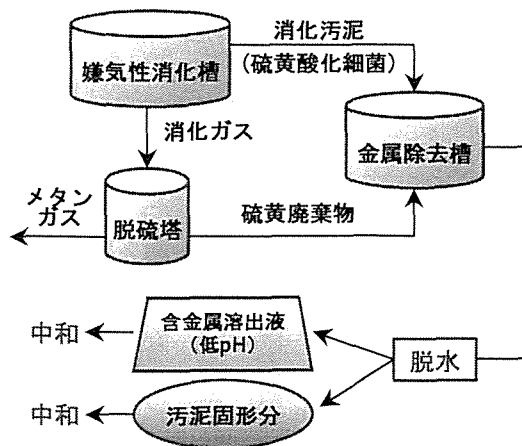


図-22 下水汚泥からの金属類除去システム

加と、それに伴う湿式脱硫方式の普及が予想される。現在湿式脱硫を採用している処理場では、利用方法のない硫黄廃棄物を持て余しており、これを下水汚泥からの金属類の溶出に利用することは、物質循環の観点からも望ましいと考えられる。

以上の結果から、図-22に示すような、下水汚泥からの金属類の除去システムを提案する。このシステムでは、必要な物質は全て下水処理場内で供給され、従来法よりも経済的に金属類を溶出することが可能であると考えられる。

5. 結 論

本研究で得られた結果を次にまとめる。

- ① 硫黄酸化細菌は、中性及び嫌気性条件下においても死滅せず、様々な性状の下水汚泥中に存在し、基質の供給と通気により容易に活性化し、増殖する。
- ② 下水汚泥から分離した硫黄酸化細菌は、嫌気性消化ガスの脱硫過程で発生する硫黄廃棄物を基質として利用することができる。硫黄廃棄物は試薬元素硫黄と比較して培地中での分散性がよいため、細菌の活性が速やかに発現する。
- ③ 下水汚泥に硫黄廃棄物を添加することにより、汚泥中の硫黄酸化細菌が硫酸を生成して汚泥のpHを低下させ、金属類が溶出する。回分実験では、汚泥固形分濃度が2%の場合、硫黄廃棄物の添加量3.0g/l以上でpHが2.5以下に低下した。この条件下では、Na, Al, Ca, Mn, Ni, Cu, Zn, As, Cdの50%以上が溶出した。
- ④ 半連続実験より、汚泥固形分濃度2%、硫黄廃棄物の添加量3.0g/lの場合の最適な汚泥滞留時間は3日であった。この条件下では、汚泥のpHは2.7付近で定常となり、Na, Ca, Mn, Ni, Zn, As, Cdは50%以上、Cuは約30%溶出した。

〈参 考 文 献〉

- 1) 松原誠, 高橋一彰: 下水汚泥有効利用の現状と課題について, 再生と利用, Vol.26, No.99, pp.17-27, 2003.
- 2) 下水汚泥資源利用協議会: 下水汚泥の農地・

緑地利用マニュアル, 1996.

- 3) Hayes, T.D., Jewell, W.J. and Kabrick, R.M.: Heavy metals removal from sludge using combined biological/chemical treatment, Proc. 34th Ind. Waste Conf., Purdue Univ., pp.529-543, 1979.
- 4) Jenkins, R.L., Scheybeler, B.J., Smith, M.L., Baird, R., Lo, M.P. and Haug, R.T.: Metals removal and recovery from municipal sludge, J. of WPCF, Vol.53, No.1, pp.25-32, 1981.
- 5) Wozniak, D.J. and Huang, T.Y.C.: Variables affecting metal removal from sludge, J. of WPCF, Vol.54, No.12, pp.1574-1580, 1982.
- 6) Blais, J.F., Tyagi, R.D. and Auclair, J.C.: Bioleaching of metals from sewage sludge: Microorganisms and growth kinetics, Wat. Res., Vol.27, No.1, pp.101-110, 1993.
- 7) Tyagi, R.D., Blais, J.F. and Auclair, J.C.: Bacterial leaching of metals from sewage sludge by indigenous iron-oxidizing bacteria, Environ. Pollut., Vol.82, pp.9-12, 1993.
- 8) Shooner, F. and Tyagi, R.D.: Thermophilic microbial leaching of heavy metals from municipal sludge using indigenous sulphur-oxidizing microbiota, Appl. Microbiol. Biotechnol., Vol.45, pp.440-446, 1996.
- 9) Ito, A., Umita, T., Aizawa, J. and Kitada, K.: Effect of inoculation of iron oxidizing bacteria on elution of copper from anaerobically digested sewage sludge, Wat. Sci. Tech., Vol.38, No.2, pp.63-70, 1998.
- 10) 伊藤秀明, 伊藤健彦, 本橋孝行: バクテリアリーチングによる汚泥中の重金属除去, 第32回下水道研究発表会講演集, pp.709-711, 1995
- 11) 中村英治, 吉岡直樹, 本橋孝行: バクテリアリーチングによる汚泥中の重金属除去 (第二報), 第33回下水道研究発表会講演集, pp.988-990,

- 1996
- 12) 中村英治, 高橋克人, 鈴木孝: バクテリアリーチングによる汚泥中の重金属除去 (第三報), 第34回下水道研究発表会講演集, pp.980-982, 1997
- 13) 今井和民: 独立栄養細菌, 化学同人, 1984.
- 14) 日本下水道協会: 下水試験方法 1984年版, 1984.
- 15) 北田久美子, 伊藤歩, 相澤治郎, 海田輝之: 誘導結合プラズマ質量分析法による下水汚泥中の重金属の分析, 下水道協会誌論文集, Vol. 35, No.432, pp.143-156, 1998.
- 16) Duncan, D.W., Landesman, J. and Walden, C.C.: Role of *Thiobacillus ferrooxidans* in the oxidation of sulfide minerals, *Canadian Journal of Microbiology*, Vol.13, pp.397-403, 1967.
- 17) 千田 侑: 微生物資源工学, コロナ社, 1996.
- 18) Jain, D.K. and Tyagi, R.D.: Leaching of heavy metals from anaerobic sewage sludge by sulfur-oxidizing bacteria, *Enzyme Microb. Technol.*, Vol.14, pp.376-383, 1992.
- 19) APHA, AWWA, WEF: Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, 20th ed., American Public Health Association, 1998

(15.7.25 受付)

* (ささき くみこ)
岩手大学大学院工学研究科博士後
期課程
平成11年岩手大学大学院工学研究
科博士前期課程修了

*** (あいざわ じろう)
岩手大学工学部技官
昭和43年岩手県立一関第二高等学
校土木科卒業

** (いとう あゆみ)
岩手大学工学部助教授 (工学博士)
平成11年岩手大学大学院工学研究
科博士後期課程修了

**** (うみた てるゆき)
岩手大学工学部教授 (工学博士)
東北大学大学院工学研究科修士課
程修了

A b s t r a c t**Development of a New Metal Leaching System from Sewage Sludge
Using Sulfur Waste**

Kumiko SASAKI, Ayumi ITO, Jiro AIZAWA, Teruyuki UMITA

The availability of indigenous sulfur-oxidizing bacteria and sulfur waste produced by desulfurization of digester gas was studied in order to achieve economical metal leaching from anaerobically digested sewage sludge. Indigenous sulfur-oxidizing bacteria were confirmed to exist in the various sewage sludge and activation and isolation were carried out by adding elemental sulfur. The utilization of sulfur waste as a substrate for indigenous sulfur-oxidizing bacteria was investigated in batch experiments. It was found that the addition of sulfur waste caused the production of sulfuric acid by bacteria and a decrease in pH, resulting in effective elution of heavy metals. Then, elution of the metals in sewage sludge using indigenous sulfur-oxidizing bacteria and sulfur waste was carried out in semi-batch experiments. The optimum sludge retention time was found to be 3 days, when the sludge concentration was 2% and the amount of sulfur waste was 5g/l. It was shown that the biological leaching of heavy metals from sewage sludge can be carried out in a closed system, where all required materials are obtained in a sewage treatment plant.

