

学位論文概要

下水および下水汚泥処理におけるリンの除去回収に関する研究

中尾賢志

Study on Phosphorus Removal and Recovery in Sewage and Sewage Sludge Treatment

Satoshi NAKAO

I 緒言

リン鉱石とカリウム鉱石は世界的に偏在している。リン鉱石の産出国は中華人民共和国、米国、モロッコが主であり、中華人民共和国と米国で約 50%を占める。カリウム鉱石の産出国はカナダ、ロシア、ベラルーシが主であり、これも我が国では肥料用途として輸入に頼っている状況である。特に日本におけるリンのマスバランスにおいて、肥料として使用されるリンの約 20%は最終的に下水道に流入しており、下水処理場からの放流水中のリンは閉鎖性水域で赤潮や淡水赤潮の原因となる。

翻って日本における産業廃棄物全体の排出量は約 3 億 9 千万 t/年であり、うち「汚泥」は約 1 億 7 千万 t/年と種類別排出量で最も多く、このうち上水汚泥（以下、浄水発生土）の排出量は約 600 万 t/年（湿重量ベース：含水率 95%）であり、下水汚泥の排出量は約 7,800 万 t/年（濃縮汚泥量として算出）であった（平成 27 年度実績）。

下水道の分野では、ここ 10 年の間に、リンとアンモニウムを MAP (Magnesium Ammonium Phosphate:リン酸マグネシウムアンモニウム) の結晶として回収する技術が確立された。また、近年、リンと同様枯渇資源であるカリウムをリンと同時に MPP (Magnesium Potassium Phosphate:リン酸マグネシウムカリウム) として回収する方法が注目されている。MPP は MAP のアンモニウムがカリウムに置き換わった化合物であることから、カリウムを多く含む尿からの MPP 回収を目的として尿分離型トイレを想定した模擬実験が試みられている。下水汚泥分離液にはカリウムが 30~110 mg/L (0.77~2.8 mM) に濃縮されており、下水汚泥分離液からのリンとカリウムの回収を検討する余地はあると考えられる。ただ、リンとカリウムを肥料として再利用することを想定すると、できる限り不純物の少ない形で回収する必要がある。下水汚泥処理では濃縮や脱水の工程で鉄系やアルミニウム系の無機凝集剤が多用される。これらが MPP の結晶生成に与える影響は報告されていない。

本研究では、下水処理および下水汚泥処理工程においてリンといった栄養塩類を除去・回収する方法について新たな提案をおこなった。

II 下水汚泥処理工程からのリン除去

下水汚泥集約処理場におけるリンの挙動を明らかにし、リンの負荷を水処理系から汚泥処理系にシフトさせることによりリンの処理系内でのフローをコントロールすることを目的とした。無機凝集剤であるポリ硫酸第二鉄溶液による濃縮工程でのリン除去効果について、机上実験と実機実験により確認し、さらに長期運転による処理場全体のリン除去の効果を確認した。その結果、下水汚泥処理工程においてリンが処理できずに水処理系に移行させている工程は濃縮工程であることを明らかにした。これを防ぐには濃縮工程への無機凝集剤であるポリ硫酸第二鉄液の添加が有効であると結論付けた。また、本法によるリン除去に係るコストを、比較的高価であるポリアミジン含有脱水用高分子凝集剤の使用量の削減と、汚泥濃縮・脱水工程からの返流水処理に要する無機凝集剤の使用量の削減により補えることを確認した。

III 下水汚泥処理工程からのリン・カリウム同時回収技術の開発

下水汚泥分離液からリンとカリウムを MPP として同時回収する検討をおこなった。さらに、下水汚泥処理に使用される鉄塩やアルミニウム塩といった無機凝集剤が MPP の結晶生成に与える影響を定量的に把握することを目的とした。MPP 生成の最適 pH は 11.5 であり、MPP 生成には最低 3 mM のリンが必要で、K/P 比を 3 以上に保つ必要があることがわかった。また、電子顕微鏡およびエネルギー分散型 X 線分析、粉末 X 線回折により、鉄とアルミニウムによる MPP 結晶の生成阻害を確認し、鉄濃度が 0.2 mM 以上、アルミニウム濃度が 0.05 mM 以上で MPP 生成が減少することを見出した。さらに、リンとカリウムを下水汚泥分離液から MPP として回収できる可能性を示すことができた。加えて、無機凝集剤に含まれる鉄とアルミニウムが MPP 結晶生成の阻害要因となる可能性を示した。

IV 浄水発生土を用いた 下水二次処理水からのリン除去

浄水発生土のリン吸着能を定量的に把握し、浄水発生土による下水二次処理水からのリンの除去性能の評価をおこなった。さらに、実設備に導入する際の浄水発生土の必要量を試算することを目的とした。今回用いた浄水発生土のリン酸吸着等温線は Freundlich 式でよく近似できることがわかった。また、リン吸着量に対する pH の影響は下水二次処理水の変動範囲である pH 6~7 では小さく、浄水発生土を下水二次処理水からのリン除去に適用することについて支障がないことを確認した。加えて、浄水発生土による下水二次処理水からのリン除去能は T-P で約 90%に達し、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ についても 0.0001 mM 以下まで除去でき、本法による下水二次処理水からのリン除去の有効性を示した。ただ、本法で用いた浄水発生土を下水二次処理水の急速ろ過の機能強化として用いることは現時点では難しく、リン除去能を強化する工夫が必要であることがわかった。

V 総括

下水処理場は、本論文で検討したように栄養塩類を除去するだけでなく、回収することができる施設である。その他、下水汚泥を消化する工程で発生するメタンガスを回収する技術や、栄養塩類を多く含む下水処理水を利用してある種の微細藻類を培養し、その藻類からバイオ燃料を抽出する研究もなされている。上記のように、下水処理場は栄養塩類といった資源回収のみならずエネルギーを回収する施設として社会に大いに役立つ可能性を秘めている。

本研究で検討した下水汚泥処理工程からのリン除去やカリウムとの同時回収技術、下水二次処理水からの浄水発生土を用いたリン除去技術は、下水処理場を中心とした次世代のまちづくりにとって基礎となる技術である。今後も下水や下水汚泥からの資源やエネルギー回収技術の研究は盛んになると考えられ、特に急速な人口増加により公衆衛生技術を必要としている新興国においては下水道整備といった公衆衛生改善技術の普及とともに、資源やエネルギー回収技術の導入も進むと考えられる。

我が国の下水・下水汚泥処理技術は世界的にみて完成の域に達しており、今後は新興国への技術およびノウハウの輸出、新たな技術開発を盛んにおこなっていく必要がある。しかしながら、アジアの国々においても新たな下水道技術の開発が進んできており、我が国の技術的優位性は相対的に低くなりつつある。そうしたなかで、本論文で検討した技術が世界的な下水道技術開発競争において一助となれば望外の喜びである。

謝辞 本研究の遂行および本論文の執筆にあたり、終始一貫して御指導と御鞭撻を賜りました大阪市立大学大学院工学研究科貫上佳則教授に深く感謝申し上げます。また、本研究の大部分の共同研究者として5年間にわたり御教示賜りました現 地方独立行政法人 大阪健康安全基盤研究所(元 大阪市立環境科学研究所)の西尾孝之博士には厚く御礼申し上げます。

大阪市立大学大学院工学研究科相馬明郎教授、ならびに大阪市立大学大学院工学研究科山田裕介教授には、本論文の関連分野について今後留意すべき事柄について御教示いただきました。ここに深謝申し上げます。

大阪市立環境科学研究センター所長である増田淳二博士には、大阪市立大学大学院工学研究科後期博士課程に社会人学生として入学することについて、ご理解をお示しいただきました。ここに記して心より感謝申し上げます。また、本研究の遂行と本論文の作成にあたりまして、現所属の大阪市立環境科学研究センターの諸先輩方には有益なご助言および議論、ご指導を賜りました。謹んで御礼申し上げます。

付記 本稿は、著者が大阪市立大学において令和元年 9 月 30 日に博士(工学)の学位を授与された際の論文の概要であり、その詳細は以下に掲載されている。

参考文献

- 1) 中尾賢志, 佐川泰一, 藤岡祐子, 貫上佳則, 下水汚泥集約処理場におけるリンの収支と除去率の改善, 下水道協会誌, 49(599), 123-130, 2012.
- 2) Nakao, S., Nishio, T., Kanjo, Y., Simultaneous recovery of phosphorus and potassium as magnesium potassium phosphate from synthetic sewage sludge effluent, Environmental Technology, 38(19), 2416-2426, 2017.
- 3) 中尾賢志, 西尾孝之, 改質浄水発生土を用いた海面埋立処分場内水のリン除去および回収, 用水と廃水, 55(9), 675-685, 2013.
- 4) 大阪市立大学学術機関リポジトリ, https://dlisv03.media.osaka-cu.ac.jp/il/meta_pub/G0000438repository_111TDA3835 (2020 年 4 月 23 日確認)