

京都大学	博士（工学）	氏名	隋 鵬哲
論文題目	Behavior of Metals in the Advanced Sewage Treatment Process with Excess Sludge Reduction and Phosphorus Recovery (余剰汚泥の減容化およびリンの回収を組み込んだ下水高度処理プロセスにおける金属の挙動)		
(論文内容の要旨)			
本論文は、余剰汚泥の削減ならびにリンの回収を目指して開発された高度下水処理プロセス(advanced sewage treatment process with sludge reduction and phosphorus recovery: Advanced SRPR プロセス)の実排水処理への適用性と限界について着目し、金属類をはじめとする元素の、反応システム周りの挙動と、リンとの相互作用について研究したものであり、7つの章から構成されている。 第1章は序論であり、研究の位置づけ、背景および目的について説明するとともに、本論文の構成を示している。 第2章においては、Advanced SRPR プロセスや、関連する生物学的リン除去技術、リン回収技術、余剰汚泥削減技術、実処理場での金属類の挙動について整理し、関連する知見についての文献考察を行い、本研究の意義を明らかにしている。 第3章においては、汚泥のオゾン処理とリン回収についての回分式実験結果についてまとめ、考察を行っている。汚泥のオゾン処理では、汚泥中の鉄分濃度が 80～120mgFe/gSS のときに、汚泥の可溶化割合が約 50%に低下することを見い出し、汚泥のオゾン処理に及ぼす鉄の影響について考察している。実験結果と熱力学計算により、金属類と沈殿したリン酸の挙動も明らかにしている。すなわち、鉄やアルミニウムにより沈殿したリン酸は、pH が 7.0 から 5.0 に低下した条件においても溶出しにくいため再溶解することは困難であるが、これに対してリン酸カルシウムは再溶解することを明らかにしている。リン回収の回分式実験結果から、アモルファス態のリン酸カルシウム(ACP)やリン酸 2 カルシウム 2 水和物(DCPD)が主たる凝集沈殿物と予測し、これらリン酸カルシウム系の沈殿物生成をシミュレートしうる改良型の熱力学モデルを開発している。この沈殿物中の他の金属類(不純物)含有量は pH または Ca/P モル比が大きくなるにつれ高まることを示し、回収リン酸中の不純物含有を抑制しかつリン回収効率を維持するための凝集操作条件として、pH9.0 かつ Ca/P モル比を 3.0 とすることが適切であることを明らかにしている。 第4章では、嫌気好気法(AO 法)での連続処理実験を行い、処理安定性と金属類の挙動やシステム内での蓄積について考察している。実排水レベルの金属類を含有する人工排水を処理した場合には、金属類は汚泥中に蓄積し、約 28.5%のリン酸が金属との沈殿により活性汚泥中に蓄積され、また、生物学的リン除去に加えてそれにより安定したリン酸除去が行われた。AO 法での金属類の挙動としては、マグネシウムとカリウムがリン酸と同様に嫌気条件下で放出され好気条件下で摂取されること、アルミニウム、鉄、銅およびクロム濃度は嫌気好気の両条件において溶存態濃度が減少すること、一方でマンガンは嫌気条件で濃度上昇がみられ、好気条件で濃度が減少することを明らかにしている。			

る。また AO 法での処理結果をもとに物質収支解析を行い、流入水負荷のうち汚泥に移行する割合である金属蓄積レベルを定量化し、以下の結果を得ている。すなわち、マンガンは 73.6%、アルミニウムは 63.1%、鉄は 58.3%、クロムは 56.2%、銅は 55.6%、亜鉛は 47.7%、バリウムは 42.6%、ニッケルは 21.7%、カルシウムは 8.52%であった。一方でマグネシウムは 8.80%、カリウムは 16.0%であったが、それらはポリリン酸と関連し細胞内に蓄積されていることを明らかにしている。

第 5 章では、Advanced SRPR 法での連続処理実験についての結果と考察についてまとめている。流入水流量に対して、汚泥引抜流量を 0.22%、汚泥のオゾン処理流量を 0.93%とした条件では汚泥生成量は 48.0%削減され、引抜汚泥のみに注目した削減率は 71.2%に達した。またこのときのリン回収率は 52.3%であった。汚泥削減率を上昇させると、流出水中の金属濃度と生物反応槽での金属蓄積量は上昇した。しかしながら、汚泥の金属含有率(P-metal/MLSS)は、ほとんどの金属において、汚泥削減率を変化させてもほぼ同じであることを明らかにし、システム内での汚泥増加が生物反応槽での金属蓄積の要因であることを示している。

第 6 章では、Advanced SRPR 法での有機物、リン、金属類の挙動を表現できる平衡モデルを構築している。まず、活性汚泥への金属の吸着はラングミュアの等温吸着式で表現できることを明らかにし、汚泥への最大吸着量が存在することを示すとともに、関連する係数を、実験データを用いた回帰式近似により得ている。その上で、構築した平衡モデルにより、主となる因子は、金属の汚泥への吸着量と、嫌気条件における生物学的なリン放出量であることを明らかにしている。また、実験結果やモデルを用いた計算結果により、Advanced SRPR 法では最大金属含有率が存在し、この最大量に達すると、それ以上の金属類は流出水として系から排出されることになるものの、金属蓄積は Advanced SRPR 法での安定には影響しないと結論付けている。

第 7 章は結論であり、本論文で得られた成果について要約するとともに、今後の研究課題を提示している。

(論文審査結果の要旨)

本論文は、余剰汚泥の削減ならびにリンの回収を目指して開発された高度下水処理プロセス(advanced sewage treatment process with sludge reduction and phosphorus recovery: Advanced SRPR プロセス)の実排水処理への適用と限界について着目し、金属類をはじめとする元素の、反応システム周りの挙動とリンとの相互作用について研究したものである。本研究で得られた主な成果は以下のとおりである。

1)汚泥のオゾン処理では、可溶化割合は含有される鉄分の影響を受けることを明らかにした。また実験結果と熱力学計算により、pH が 7.0 から 5.0 に低下した条件においては、鉄やアルミニウムによるリン酸沈殿物の挙動と異なり、リン酸カルシウムは再溶解することを明らかにし、汚泥のオゾン処理時でのリン酸の金属沈殿物の挙動は、共存金属種で異なることを明示した。

2)リン回収プロセスでは、アモルファス態のリン酸カルシウム (ACP)やリン酸 2 カルシウム 2 水和物(DCPD)が主たる凝集沈殿物であり、これらリン酸カルシウム系の沈殿物生成をシミュレートしうる改良型の熱力学モデルを開発した。沈殿物中の他の金属類(不純物)含有量は pH または Ca/P モル比が大きくなるにつれ高まり、回収リン酸中の不純物含有を抑制しかつリン回収効率を維持するための凝集操作条件として pH9.0 かつ Ca/P モル比を 3.0 とすることが適切であることを示した。

3) AO 法での金属類の挙動としては、マグネシウムとカリウムがリン酸と同様に嫌気条件下で放出され好気条件下で摂取されること、アルミニウム、鉄、銅およびクロム濃度は嫌気好気の両条件において溶存態濃度が減少すること、一方でマンガンは嫌気条件で濃度上昇がみられ、好気条件で濃度が減少することを明らかにした。また AO 法での処理結果をもとに物質収支解析を行い、金属蓄積レベルを定量化した。

4)Advanced SRPR 法は、流入水流量に対して、汚泥引抜流量を 0.22%、汚泥のオゾン処理流量を 0.93%とした条件では汚泥生成量は 48.0%削減され、引抜汚泥のみに注目した削減率は 71.2%に達し、リン回収率は 52.3%となることを示した。汚泥削減率を上昇させると、流出水中の金属濃度と生物反応槽での金属蓄積量は上昇するものの、汚泥の金属含有率(P-metal/MLSS)は、ほとんどの金属において、汚泥削減率を変化させてもほぼ同じであることを明らかにした。

5)Advanced SRPR 法での有機物、リン、金属類の挙動を表現できる平衡モデルを構築した。活性汚泥への金属の吸着はラングミュアーの等温吸着式で表現できることを明らかにし、汚泥への最大金属吸着量が存在することを示すとともに、関連する係数値を、実験データを用いた回帰式近似により算出した。またシステム内で金属類は最大蓄積量に達すると、それ以上の金属類は流出水として系外に排出され、金属蓄積による Advanced SRPR 法の安定性への影響は小さいことを明らかにした。

以上、本論文は、Advanced SRPR プロセスの実排水処理への適用と限界について着目し、金属類をはじめとする元素の、反応システム周りの挙動とリンとの相互作用について研究したものであり、システム内での物質の挙動と、安定したシステム運転に必要な操作指標や手法を明らかにしたものである。

本論文で得られた成果は、下廃水処理および資源の有効利用・再利用の実用化に貢献しうるものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 22 年 9 月 27 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。