

氏名	黄 文力(Wenli HUANG)		
学位の種類	博 士 (環境学)		
学位記番号	博 甲 第 7539 号		
学位授与年月日	平成 27 年 7 月 24 日		
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当		
審査研究科	生命環境科学研究科		
学位論文題目	Phosphorus Species, Distribution and Bio-availability in Sewage Sludge and Aerobic Granular Sludge (下水汚泥および好気性汚泥顆粒中におけるリンの種類、分布及びその生物学的利用性)		
主査	筑波大学教授	博士 (農学)	張 振亜
副査	筑波大学准教授	博士 (農学)	山路 恵子
副査	筑波大学准教授	博士 (理学)	内海 真生
副査	筑波大学准教授	工学博士	雷 中方

論 文 の 要 旨

リンは生き物、特に植物の成長にとって不可欠かつ最も基本的な元素の一つである。しかしながらリン鉱石は植物のリン肥料として再生不可能な資源であるため、持続可能な農業の発展のためのリン資源の回収や再生に関する研究開発のグローバルな展開が必要である。一方、廃水処理場から発生する下水汚泥の量は莫大であり、リンの含有量も高いため、潜在的なリンの貯蔵庫として考えられる。また、好気性汚泥顆粒技術は高いリンの排水処理に有効な技術として位置付けられているが、汚泥顆粒中のリンの形態によって異なる移動性や生物学的利用性を示すため、好気性汚泥顆粒を肥料として使用する場合の活性汚泥や汚泥顆粒中のリンの分布、リンの形態に関する詳細な情報を得ることが重要である。一般的には全リン (TP) は無機リン (IP)、有機リン (OP)、無燐灰石無機リン (NAIP)、燐灰石リン(AP)に分けることが出来る。OPおよび NAIP は高い移動性や生物学的利用性があると考えられている。さらに、汚泥中のリンの種の同定はそれぞれのリンの種の特徴や機能の解明に重要であり、生物学的なリン除去のメカニズムの解明にも役に立つ。近年、³¹P 核磁気共鳴法(³¹P NMR)の応用によって、複雑な物質間の複数の P 化合物を区別することが可能になり、堆積物や土壌や活性汚泥中の無機リン (正リン酸塩、ピロリン酸塩、およびポリリン酸塩)及び有機リン (モノエステルリン酸塩、ジエステルリン酸塩、およびホスホン酸塩)の分析が可能となった。本研究は、一次汚泥、二次汚泥、消化汚泥、好気性硝化汚泥顆粒、リン除去機能強化した好気性汚泥顆粒中のリンの形態を細分し、それらのリンの生物学的利用性を評価し、汚泥中の有機リンと無機リンについても解析したものである。それらの結果は以下の通りである。

1) IP は二次汚泥や消化汚泥において主要なリンのフラクションであることに対し、一次汚泥において OP は主要なリンの成分である。一次汚泥、二次汚泥および消化汚泥中の可移動性と生物学的利用性を持つリンの全リン (TP) に対する割合はそれぞれ 87.7%、94.8%、76.2%であることが明確された。また、一次汚泥と消化汚泥中の主要なリン種はそれぞれモノエステルリン酸塩と正リン酸塩であり、二次汚泥中にはポリリン酸種は主要なリン成分であることが明確された。

2) 好気性汚泥顆粒 (AGS) 中のリン種は主に IP であり、無燐灰石無機リン (NAIP) が TP に対する占める割合は 62-70%である。また、好気性汚泥顆粒中の TP に対する 8 割のリンは高い生物利用性を示した。硝化好気性汚泥顆粒中の IP 種は主にヒドロキシアパタイト[Ca₅(PO₄)₃(OH)]と鉄リン酸塩[Fe₇(PO₄)₆]である。好気性汚泥顆粒中 (AGS) の OP は主にモノエステルリン酸塩であり、少量なポリリン酸塩が検出されたことから、フリーアンモニアによるリン蓄積微生物 (PAOs) の阻害によるものと考えられる。

3) リン除去機能強化した好気性汚泥顆粒中 (EBPR-AGS) の TP の 92.4-96.4%は高い移動性や生物学的利用性を示し、その中、微生物、細胞外高分子物 (EPS)、沈殿した鉱物塩に分布したリンの TP に対する割合はそれぞれ 73.7%、17.6%、5.2-6.4%である。好気性汚泥顆粒 (AGS) 中においては、ポリリン酸塩は主なリン種で、TP の 59.2-64.1 に示した。好気性汚泥顆粒 (AGS) 中及び細胞中の有機リン (OP) 種は主にモノエステルとジエステルリン酸塩からなることが明らかにされた。さらに、汚泥顆粒の各部分に分布した鉱物リンは主にヒドロキシアパタイト $[Ca_5(PO_4)_3(OH)]$ とリン酸カルシウム $[Ca_2(PO_4)_2]$ であることが分かった。細胞及びポリリン酸塩は主に汚泥顆粒の外層に、EPS は顆粒の全体に分布することが明らかにされた。

本研究の結果から、好気性汚泥顆粒における IP 及び OP の分布は明確にされた。これらの研究成果は、下水汚泥や好気性汚泥からリンの再生利用、リン資源の回収などに有用な情報として考えられ、汚泥中のリンの形態や分布の究明によって、廃水処理分野においてリンの除去や回収技術の研究開発にも役に立つと考えられる。

審 査 の 要 旨

好気性汚泥顆粒や下水汚泥を肥料として使用する場合における活性汚泥や汚泥顆粒のリンの分布、リンの形態に関する詳細な情報を得るため、本研究は、一次汚泥、二次汚泥、消化汚泥、好気性硝化汚泥顆粒、リン除去機能強化した好気性汚泥顆粒中のリンの形態を細分し、それらのリンの生物学的利用性を評価したものであり、さらにそれらの汚泥中の有機リンと無機リンについて解析した。下水汚泥や好気性汚泥からリンの再生利用、リン資源の回収などに有用な情報として考えられ、汚泥中のリンの形態や分布の究明によって、廃水処理分野においてリンの除去や回収技術の研究開発に有効であることを明らかにした。

本研究から得られた貴重な実験データはオリジナリティに富む研究として高く評価でき、下水汚泥からリン資源の回収や再生化に重要な研究成果として考えられる。リン資源の確保や環境浄化技術研究開発分野への応用に科学的かつ技術的な助言が提供できた。

平成 27 年 5 月 26 日、学位論文審査委員会において、審査委員全員出席のもとに論文の審査および最終試験を行い、本論文について著者に説明を求め、関連事項について質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって合格と判断された。

よって、著者は博士 (環境学) の学位を受けるのに十分な資格を有するものとして認める。