

氏名（本籍）	施 万勝 （ 中国 ）
学位の種類	博 士 （環境学）
学位記番号	博 甲 第 7120 号
学位授与年月日	平成26年 7月25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 Behavior of Heavy Metals in Sewage Sludge during Hydrothermal Treatment
(水熱処理における下水汚泥中の重金属の挙動)

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（工学）	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
副査	南京大学教授	博士（農学）	崔 益斌

論 文 の 要 旨

毎年下水処理場から発生する大量の余剰汚泥は主に埋立や焼却により処分されるが、地下水や土壤汚染などの問題や、埋立処分に利用可能なスペースにも限界があるため、世界共通の環境問題となっている。一方、余剰汚泥中の栄養分を回収する方法として、コンポストとしての利用があるが、微量の重金属の土壤汚染が問題となっている。したがって汚泥中の重金属が環境へ浸出しない安定的な前処理方法の研究開発が望まれている。水熱（HTT）前処理方法は、300℃以下の温度で、低コスト、操作方法も簡単で有望な処理法として多くの研究がなされているが、水熱処理した重金属の挙動や環境リスクの評価についての報告が殆どない。本研究は、水熱処理方法を用いて汚泥の前処理を行い、汚泥中の重金属の挙動やその環境リスクの評価を行ったものである。特に処理したあとの汚泥中の重金属の全濃度、形態分布や変遷、溶出テストによる重金属の環境リスクの評価を行った。主な結果は下記のとおりである。

1) HTT 処理温度は 170℃、200℃、280℃の場合、汚泥の水分が大きく減少し、容量がそれぞれ 42%、61%、74%に減容化した。また、脱水と脱カルボキシル反応により多くの有機物が分解し、汚泥の化学的安定性も増加した。HTT 法で処理した汚泥は重金属の吸着性に改善が見られ、土壤のメディエーションに使用できることが示唆された。

2) HTT 処理プロセスにおける重金属の挙動について、固体—液体間の再分布や形態の変遷を究明した結果、汚泥中の重金属の可動性と生物学的利用性が低下したことが分かった。280℃での HTT 処理では、弱い結合形態の Cr、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb がそれぞれ 68.48%、78.78%、91.10%、75.62%、98.93%、74.29%減少し、最も高い環境リスクの減少が観察された。さらに、処理した汚泥の浸出可能な Cu、Cd、Zn、Cr、Ni、Pb の量はそれぞれ 97.46%、93.91%、86.14%、73.33%、71.93%、10.71%減少したことから、HHT 処理法による重金属の固定効

果は、放出—沈殿というプロセスによる弱い結合形態の重金属を安定な形態へと変化させたことによるものであることが示唆された。

3) リグノセルロース系物質は HHT 処理プロセスにおいて汚泥中の重金属の挙動に大きな影響を及ぼした。本研究では籾殻をリグノセルロース系物質として汚泥に添加した。籾殻の添加による汚泥中の重金属挙動への影響は、重金属の種類或いは使用温度によって異なることが分かった。200 °C の HHT 処理の場合、籾殻の添加により Cr、Cu、Cd の弱い結合形態から最も安定な形態である F5 への変遷を促進したが、Zn 及び Pb は逆に不安定な形態に変遷したことが観察された。また、280 °C の HHT 処理の場合には、Pb を除いて実験に用いた全ての重金属において、F3 形態と F4 形態から最も安定な形態 F5 に変遷したが、弱い結合形態の F1 と F2 の増加も同じく観察されたことから、汚泥中の重金属が籾殻マトリックスに封鎖されたことや籾殻表面に吸着したことが示唆された。

4) リンは汚泥中の重金属の形態変遷に重要な役割を果たした。HHT 処理した結果、リンのすべての形態が完全にアパタイト・リン酸塩に変換したことが示された。ハイドロキシアパタイト (HAp) が汚泥に添加された場合、Cr、Cu、Zn、Cd の安定性が改善され、それらの浸出性もリンの添加量に伴い減少したことが分かった。特にリンの添加量が多い場合、Cd の浸出性及び生物学的利用性が減少することから、Cd の環境リスク減少に HHT プロセスとリンの相乗効果があることが示唆され、Cd に対する HHT 処理法の強い固定効果は、リンの強い結合能力に帰することが考えられる。

審 査 の 要 旨

本研究は水熱処理法による汚泥中の重金属の不溶化および環境リスクの減少機能を中心に研究を行った。HHT 水熱反応における汚泥中の重金属の挙動、特に固体—液体への再分布、F1—F5 の不安定な結合状態から安定な状態への変遷、およびそれらに影響を与えるリグノセルロース系物質、リン、水熱反応温度、反応時間などについて総合的に究明した。まず、HHT 処理法の汚泥の減容化や脱水化について実験を実施し、HHT の汚泥処理や重金属の安定化に有効であることを確認した。さらに、HHT プロセスにおける固体—液体間の再分布や形態の変遷などの現象を解析し、重金属の可移動性と生物学的利用性の低下メカニズムを解明した。また、リグノセルロース系物質である籾の籾殻の添加による HHT 処理プロセスにおける重金属の形態変遷や再分布を解析し、環境リスクの減少 (F1→F2→F3→F4→F5) および汚泥からの浸出性の低下効果を検討し、Cr、Cu、Cd 等 3 種の重金属の形態安定化に最も有効な方法を見出した。最後に、ハイドロキシアパタイト (HAp) を汚泥に添加した場合の Cr、Cu、Zn、Cd の結合形態の変遷と安定性の改善メカニズムを浸出テストや F1—F5 の形態分布の分析により解明し、汚泥中の重金属の安定化に最も重要であるリンの添加と HHT 処理の相乗効果を、本実験研究により検証した。本研究で得られた結果は、汚泥中の重金属の安定化法の研究開発に有用な情報を与えるものとして、また、余剰汚泥の再資源化の実用的な技術として期待される。

本研究で得られた貴重な実験データは、余剰汚泥の処分や再資源化浄化技術研究開発分野に科学的かつ技術的な知見を提供するオリジナリティに富むものとして高く評価される。

平成 26 年 5 月 27 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。