

電気透析法による余剰汚泥分離液からの肥料成分の濃縮回収

岩手大学理工学部 学生会員 ○佐々木滉太 下田渉

岩手大学理工学部 非会員 笹本誠 正会員 石川奈緒 伊藤歩

1. はじめに

食料生産に必要な肥料元素である P の埋蔵量は減少し、価格も高騰している。日本は P や K を輸入に依存しており、国内で P や K を再利用する技術が求められている。先行研究では嫌気好気活性汚泥法による下水処理から生成される余剰汚泥を嫌気化した後に機械濃縮することで P や K、Mg 濃度の高い分離液が得られることを明らかにしている。

本研究では分離液からの P、K、Mg および NH₄-N の濃縮回収技術の開発を目指し、基礎的知見を得るために模擬分離液を供給液、超純水を濃縮液とし、回分式の電気透析(ED)を繰り返して元素類の濃縮を試みた。

2. 実験方法

本研究では余剰濃縮分離液を電気透析することにより、P、K、NH₄-N などを濃縮した溶液を肥料原料化することを目指している。

電気透析は多価イオン交換膜（CSE/ASE、総有効面積：550 cm²）を装着した電気透析装置（サンアクティス、マイクロ・アシライザー-S3）を用いて行い、運転条件は、模擬分離液（1 L, pH 7.6）を供給液、超純水（0.5 L, pH 5.6）を濃縮液、5%硝酸ナトリウム（0.5 L）を電極液とし、電圧を 10 V に設定した。模擬分離液は岩手県都南浄化センターの余剰汚泥を嫌気化して、機械濃縮した際の分離液の成分濃度を基に作成した。表-1 に模擬分離液の成分濃度を示す。

模擬分離液をろ紙（定量ろ紙：No.5A、孔径：7 μm）でろ過し、沈殿物を除去し、そのろ液と濃縮液の pH を 10%塩酸で調整した。電気透析装置のカートリッジは電極で挟まれ、その内部は陽イオン交換膜と陰イオン交換膜が交互に配置され、脱塩室、濃縮室、電極室を構成し、小型ポンプで供給液、濃縮液、電極液が循環される。通電することで供給液が流入する脱塩室の陽イオンは陽イオン交換膜を透過し、一方、陰イオンは陰イオン交換膜を透過して濃縮室に移動する。それに

表 1 模擬分離液の成分濃度

試薬(mg/L)		成分(mg/L)				
種類	濃度	P	K	Mg	Ca	NH ₄ -N
KH ₂ PO ₄	177	206	50	50	50	100
MgHPO ₄ ·3H ₂ O	366					
Ca ₃ (PO ₄) ₂	270					
(NH ₄) ₃ PO ₄ ·3H ₂ O	481					

より供給液の元素類が濃縮液に濃縮される。電気透析開始後、一定の時間間隔で供給液と濃縮液を 10 mL ずつ採取し、試料の pH と電気伝導度、採取時の電流値を計測した。その後、試料に硝酸 20 μL を加え元素類の沈殿を防いで保存した。電気透析は回分式としたが、1 回のみ濃縮実験（濃縮液 pH：無調整と 3）と、ある時間間隔で供給液の交換を 9 または 10 回繰り返して濃縮液をそのまま維持して累積的に元素類を濃縮する実験（1 時間間隔（濃縮液 pH：無調整と 3）、0.5 時間間隔（濃縮液 pH：3））の 3 通りで行った。試料中の P、K、Mg、Ca、Na を ICP-OES（島津、ICPE-9000）、NH₄-N をオートアナライザー（ビーエルテック、AutoAnalyzer II）で分析（3 連）した。

電気透析の繰り返し実験における濃縮効率を下記の総回収率と総移動率の 2 つの指標で評価した。

$$\text{総回収率} [\%] = \frac{\text{元素 x の総濃縮量}}{\text{元素 x の装置への総供給量}} \times 100 \quad (1)$$

$$\text{総移動率} [\%] = \frac{\text{元素 x の総濃縮量}}{\text{元素 x の装置への総移動量}} \times 100 \quad (2)$$

ここで、総回収率は元素 x の装置への総供給量（供給液初期濃度×供給液体積（1 L）の総和）に対する総濃縮量（濃縮液の最終濃度×濃縮液体積（0.5 L））の割合、総移動率は元素 x の供給液から濃縮液への総移動量（1 回毎の電気透析前後での供給液濃度の差の総和）に対する総濃縮量の割合である。

3. 実験結果及び考察

図 1 に 1 回の電気透析での供給液と濃縮液の元素濃度の経時変化の例として P と NH₄-N の場合を示す。

キーワード：余剰汚泥分離液 肥料化 元素回収 電気透析 濃縮

連絡先：s0817030@iwate-u.ac.jp

- △供給液初期 pH=7, 濃縮液 pH 調整=3
- ◇供給液初期 pH=7, 濃縮液 pH 調整なし

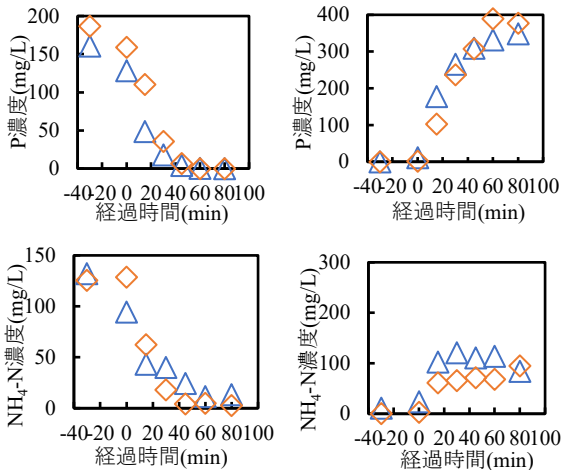


図-1 元素類濃度の経変化(左：供給液、右：濃縮液)

条件は濃縮液の pH を調整しない場合と 3 に調整した場合を示す。グラフ横軸のマイナスの部分は通電せずに供給液と濃縮液を電気透析装置に循環させた時間帯である。供給液 1L に含まれる元素類が 0.5L の濃縮液に濃縮されるので、濃縮液の最終濃度が供給液の初期濃度の 2 倍となれば 100% 回収されたといえる。P は条件による差がほとんどなく、濃縮液の最終濃度が供給液の初期濃度の約 2 倍となり、いずれもほぼ 100% 回収された。NH₄-N 濃度は供給液で 30 分で降も減少したが、濃縮液では増加せず、回収率は 50% 程度であった。しかしながら、濃縮液の pH を 3 に調整した方が濃縮液での濃度が高くなった。グラフは示さないが、K の回収率は 60% 程度、Mg では 40% 程度、Ca で 20% 程度であった。K, Mg, Ca, NH₄-N は 30 分程度で濃縮液での濃度がピークに達し、それ以降は濃度が低下する傾向が見られた。

図 2 に電気透析の繰り返し実験の結果を示す。供給液のグラフにおいて供給液を入れ替える毎に初期濃度がプロットされるが、ほとんど同じ値のため最初の濃度だけを示している。表 2 に繰り返し実験での各元素の総回収率と総移動率を示す。1 回毎の電気透析時間を 1 時間、濃縮液の pH 調整無しの場合ほどの元素も総移動率および回収率が低い、pH を 3 に調整すると P, K, NH₄-N で改善された。また、電気透析を 0.5 時間に短縮すると、P と K は元素の移動が不十分のために総回収率が低下するが、Mg の総回収率および移動率

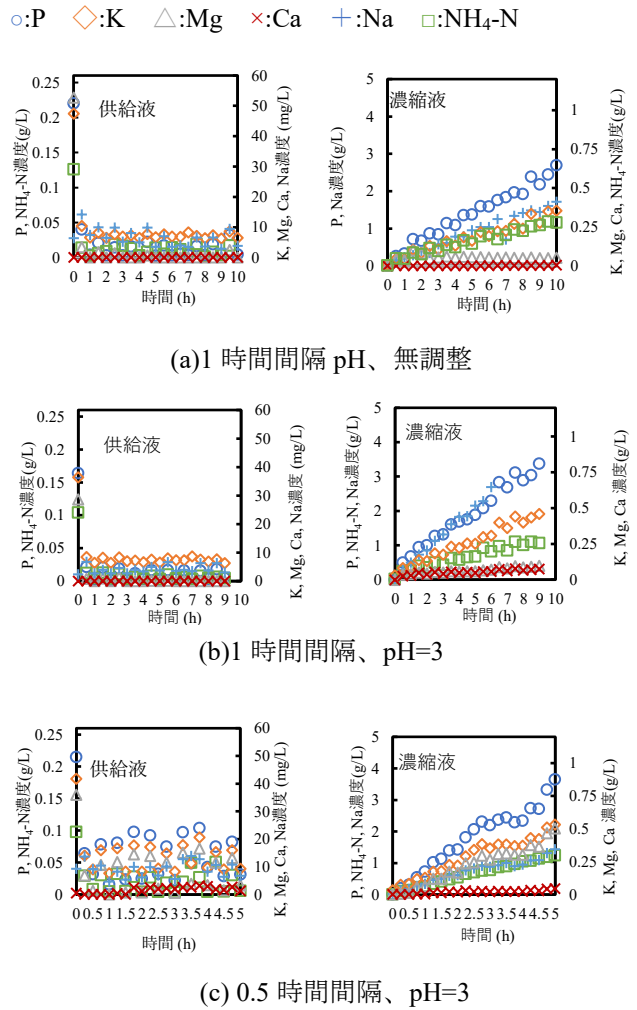


図 2 繰り返し実験における元素類濃度の変化

表 2 繰り返し実験での各元素の総回収率と総移動率

(単位：%)

元素類	P		K		Mg		NH ₄ -N		Ca	
	総移動率	総回収率	総移動率	総回収率	総移動率	総回収率	総移動率	総回収率	総移動率	総回収率
1 時間/回 pH 無調整	61.9	61.1	43.8	37.3	5	5	11.3	11	2.8	2.8
1 時間/回 pH=3	115.7	114.3	86.4	70.7	14.6	14.6	59.3	56.8	53.5	53.5
0.5 時間/回 pH=3	98.4	84.6	98.5	63.3	71.8	69.8	66.1	63.4	34.1	28.3

が改善された。

4. まとめ

模擬分離液について電気透析を繰り返し行った場合、元素類の最大回収率は、P が約 100%、K が約 71%、NH₄-N が約 63%、Mg が約 70% であった。濃縮液の pH を下げて 3 に調整することで P, K, NH₄-N, Ca の総回収率と総移動率を改善できた。また、電気透析時間を調整することで Mg のように総回収率と総移動率を増加できた。今後は余剰汚泥分離液を使用して電気透析実験を行い、回収率を調べる。また、K と NH₄-N について回収率が低くなる原因を明らかにし、長時間電気透析を行った際の回収率の改善を試みる。