

# 廃棄物からの人工リン資源回収

## RECOVERY OF ARTIFICIAL PHOSPHORUS RESOURCE FROM WASTES

松八重 一代<sup>1</sup>・久保 裕也<sup>2</sup>・大竹 久夫<sup>3</sup>・長坂 徹也<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Ph.D. (経済学) 東北大学大学院環境科学研究科助教 (E-mail:yokoyama@mail.kankyo.tohoku.ac.jp)

<sup>2</sup>Ph.D. (環境科学) 東北大学大学院環境科学研究科 (E-mail:fy04045@mail.kankyo.tohoku.ac.jp)

<sup>3</sup>Ph.D. (工学) 大阪大学大学院工学研究科教授 (E-mail: hohtake@bio.eng.osaka-u.ac.jp)

<sup>4</sup>Ph.D. (工学) 東北大学大学院環境科学研究科教授 (E-mail:nagasaka@mail.tains.tohoku.ac.jp)

現在工業的に利用されている高品質のリン鉱石は、現在のペースで消費が進むと 100 年以内に枯渇することが懸念されており、新たなリン資源の開発が強く望まれている。本研究では、詳細なリンの国内マテリアルフロー分析を行い、製鋼スラグと下水汚泥に濃縮されるリンは、質および量において輸入リン鉱石とほぼ同等であり、人工リン資源として極めて高いポテンシャルを有することを示した。また、これら廃棄物からのリン回収技術開発を行った。廃棄物産業連関モデルを用いて、これらの新技術が与える環境負荷および経済影響を定量的に示した。

**キーワード：**リン資源、製鋼スラグ、下水汚泥、磁気分離、バイオテクノロジー

### 1. はじめに

リンはクラーク数で 13 番目にランクされ、地殻中の平均濃度は 0.08% とされている原子番号 15 の元素である。自然界では呈する色彩によって白リン、黒リン、紫リン、赤リン、紅リン、黄リンと呼ばれる同素体の存在が知られているが、リンは極めて酸化しやすいために元素単体としての存在は希であり、大部分は無機、有機リン酸化合物の形態をとっているのが一般的である。有機リン酸は、生体内における重要な構成要素であり、体内のエネルギー源である ATP や遺伝情報の要である、DNA や RNA にとって重要な役割を演じている。また、無機リン酸は骨の主成分であり、有機、無機化合物のいずれにおいても、リンは動植物の成長、生命維持に必須の栄養元素である。一方、工業的なリンの利用は多岐にわたり、触媒、化成品、発火材、半導体材料、食品添加剤、消泡剤など、多数の用途があるが、動植物の必須栄養元素であることから、肥料としての用途が圧倒的に大きい<sup>1)</sup>。

このように、リンは自然界、人間経済活動圏の両者において重要な役割を担っているが、工業的には主要用途が食料生産を下支えする肥料成分であったり、最終製品を形作るポリリン酸等の素材成分であったり、従来は概して地味な存在であった。しかしながら、直近ではリンは戦略物質のひとつとして脚光を浴びており、リン資源を海外に全面依存している我が国においては、リンの安定確保は急務であるとされている。以下に、リン資源を巡る世界の動きを概観してみよう。

世界のリン鉱石年間採掘量は、2006 年の推定で約 1.45 億トンである<sup>2)</sup>。現在のコストで採掘しうるリン鉱石の

耐用年数(埋蔵量/採掘量)は、一般に 50~150 年程度であろうと言われている。リン鉱石の産出国は、中国、米国、モロッコ、ロシアなどに偏在しており、これらの国で世界の産出量の約 95% を占めている。中国を除けば、これらの産出国はいずれも我が国から遠方にあるため、鉱石輸送コストは大きな負担である。モロッコ、ヨルダンなどには品質の良いリン鉱石の鉱床があるが、輸送運賃の急騰の煽りを受けて、輸入価格が増大している。米国は自国での資源確保の点から、1996 年以降リン鉱石の輸出を事実上停止している。その後、米国に代わり中国が我が国の最大輸入相手国となっているが、中国自身も多量のリン肥料を必要としてきている。この国内需要の高まりと国内価格の上昇が相まって、中国からのリン資源買い付けは困難となりつつある。インドはその顕著な経済発展から、リン肥料の輸入が急増している。欧州はアルカリ性土壌が多く、酸性火山灰土壌の多いわが国に較べると、農作物によるリンの吸収効率が遥かに高い。また、輪作システムにより、畜産廃棄物の農業利用も進んでいる。加えて、ロシア、中東など高品質リン鉱石の産地が近いという地の利もある。にもかかわらず、欧州化学工業会議では、リンの回収リサイクルに関する研究支援を行っている組織がある。ドイツでは、2003 年にリンの回収リサイクル技術の開発を推進するための減税措置を示唆した。また、スウェーデンでは、リンを 60% までリサイクルするためのアクションプランを公表している。Fig. 1 は、世界におけるリン鉱石採掘量と消費量の需給マップである。アジア地域における旺盛な農業生産に中東、アフリカ、北米のリン資源が投入されており、アジアの土壌には、大量のリンが蓄積していると推定される。

このように、地球規模ではリン資源は極めて微妙な需給バランスにあるといえるが、更なる懸案事項が世界的なバイオエタノール生産ブームである。例えば米国では、「エタノール特需」によりトウモロコシの価格が急騰している。原料が何であれバイオマスの栽培には肥料が必要であり、原料であるリン鉱石の確保が、重要な戦略的課題となりつつある。バイオエタノール生産のため、全世界的に大豆からとうもろこしに作付けの転換がなされているが、とうもろこしは大豆よりリン肥料を大量に必要とする。ブラジルは世界第7位のリン鉱石産出国であるが、バイオエタノールの増産のためにリン肥料の需用が増大し、米国などからリン肥料を輸入するに至っている。これによって、リン肥料の需給バランスが益々危うくなりつつある<sup>34)</sup>。

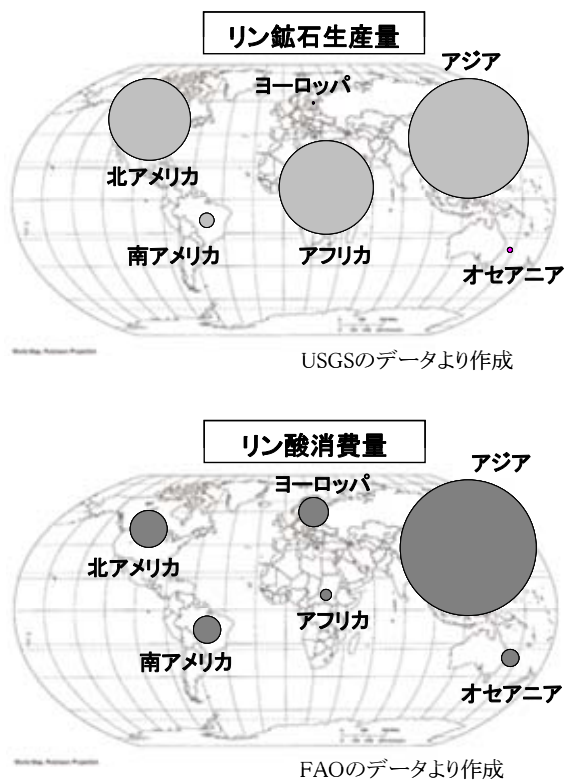


Fig. 1 リン鉱石生産量とリン酸消費量世界マップ (2005年)

リン資源を100%海外に依存している我が国では、リン鉱石の輸入が停止すれば、国内におけるリン肥料および工業用リン酸の製造産業は消滅する。特定の産業分野の消滅は、複雑に絡み合ったわが国の産業分野に、深刻な波及効果を及ぼしかねない。このことから、廃棄物からのリン資源回収が注目を集めている。

以上のような背景から、本稿では、著者らが開発している下水汚泥および製鋼スラグからのリン回収技術について述べると共に、これら人工リン資源製造法が及ぼす

経済影響、環境負荷低減効果について、廃棄物産業連関分析の視点から検討した結果について説明する。

## 2. 我が国におけるリンのマテリアルフロー

一般に、廃棄物や目的製品以外の副生物の有効利用法を図るにあたり重要なことは、現状の経済システム内の需給関係あるいは物質フローを定量的に把握しておくことである。しかしながら、前述のようにリンは元素単体ではほとんど存在せず、他の物質や製品に随伴して希薄な濃度で社会を流通するため、供給ルートは多岐にわたり、拡散性も強い元素である。そのため、一国に限定しても、リンの国内フローを正確に把握することは容易ではない。著者らは、リンの国内フローを精査し、供給ルートをリン鉱石・肥料、食飼料、鉄鋼とし、リンフローが介在する産業、消費、廃棄等の部門を約20のセクターに整理した。その上で、2002年度における各種統計を用いて国内のリンのマテリアルフロー分析を実施した<sup>57)</sup>。

得られたリンのマテリアルフローチャートを Fig.2 に示す。最も大きなリン資源の需要先は化学工業の肥料製造業セクターであり、海外からの輸入分15.1万トンと国内化学工業からの投入21.9万トンを経て、農地や牧場に約40万トンのリンを供給している。また、飼料や家畜系バイオマスを紹介して農業・畜産業セクターで一部のリンが循環しているが、大部分のリンは土壌、河川等の環境、および廃棄物に向かって流れていることがわかる。リンのマテリアルフローにおけるこれら最下流では、リン濃度は極めて低く、ppmオーダーである。工業原料としての鉱石中のリン濃度が約15%強であることを考えると、肥料としての用途が主であるリンは、極めて拡散性が強い元素であることが改めて認識される。

一方、鉄鋼業へのリンの流入量は9.4万トンで、そのほとんどの約9.3万トンが製鋼スラグに濃縮されると見積もられた。リンの資源としての有用性とは対照的に、リンは鉄鋼材料の低温靱性を阻害するなど、鋼にとって最も有害な不純物のひとつである。そのため、スクラップや鉄鉱石から製造された溶融鉄の精製プロセスである製鋼工程では、徹底的な脱リン処理がなされている。

Table 1 リンのマテリアルフロー分析のセクター分類

食料分野	家畜	農地/牧場	食飼料(作物、畜産・海産物・加工食品)	人間
産業分野	リン鉱石	肥料産業	その他の鉱物資源(鉄鉱石・石灰石・石炭類)	鉄鋼業(粗鋼・製鋼スラグ)
	化学産業	その他の産業	製品/副産物	
静脈分野	生活雑排水(し尿・下水・排水)		下水汚泥	廃棄物
	土壌蓄積	河川/海城	自然	

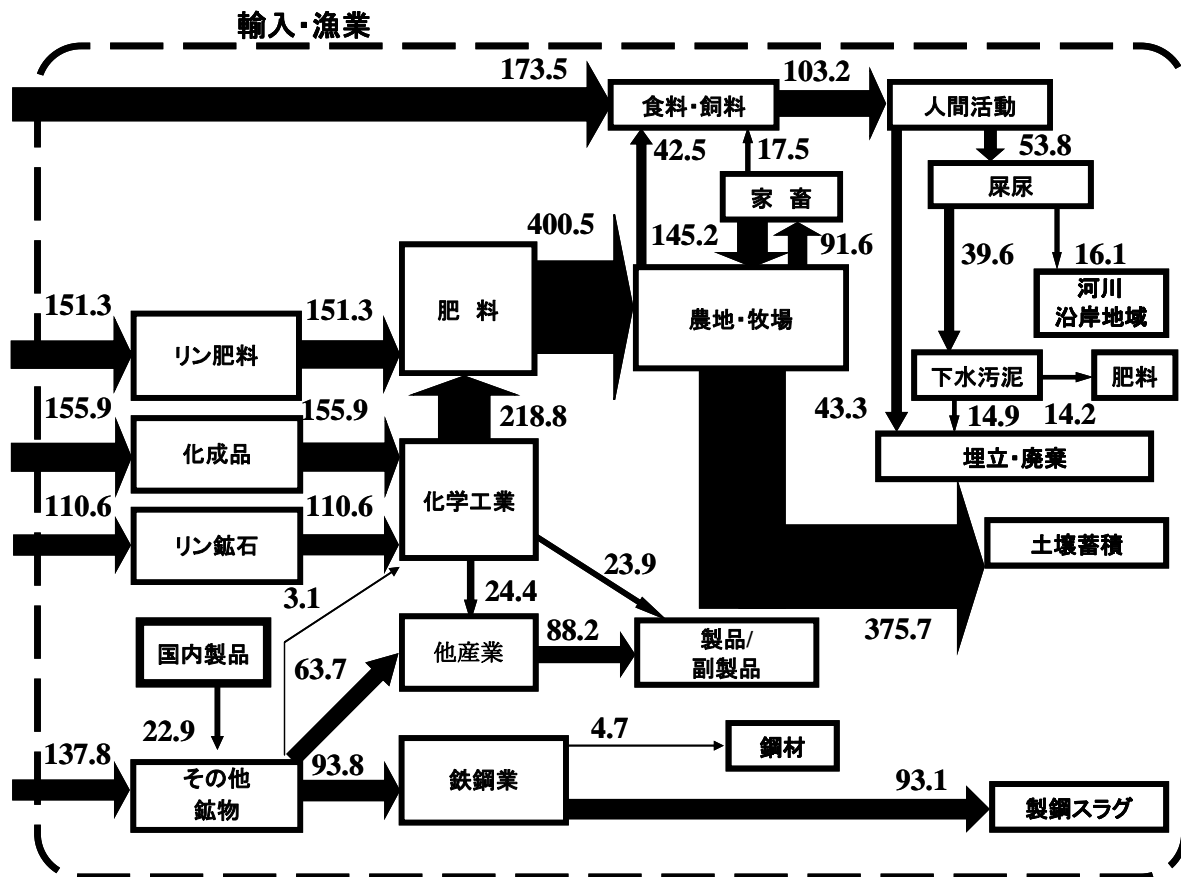


Fig.2 我が国におけるリンのマテリアルフロー (2000年) (単位: 1000トン-P)

通常、製鉄用溶鉱炉（高炉）において鉄鉱石を還元・溶融して製造される銑鉄（溶銑）はリンを 0.2~0.1%含むが、製鋼工程においてリンは溶銑表面に添加されるスラグ中に分配除去され、鋼中の最終的リン濃度は 0.01% レベルとなる。すなわち、このような溶銑からのリンの除去プロセスは、鉄鉱石やコークス等の原料中に微量に存在するリンを製鋼スラグ中に濃縮するプロセスでもある。また、下水汚泥に濃縮されるリンは 4.0 万トンと計算され、製鋼スラグと合わせた 13.4 万トンは、輸入リン鉱石中のリンの総量 11.1 万トンを上回る計算になる。

以上のように、産業分野におけるリン流通の起源は、鉱石など原料の輸入であり、その終着は河川、土壌等の環境、製品、副産物、および廃棄物である。リン鉱石以外の鉱物資源に起因するリンのフローや廃棄物系へのフローはこれまで十分考慮されていなかったが、上述の推計結果より、下水汚泥および製鋼スラグへのフロー量は、リン鉱石によるリンの国内インプットと量的にはほぼ同等であることが明らかにされた。多くの場合、リンは製品、副産物において希薄に存在し、最終的に環境中へ拡散する傾向が強いが、鉄鋼業や人間活動に投入されるリンについては製鋼スラグおよび下水汚泥への濃縮が保証されており、リンの所在を明確にすることが可能である。ただし、両者には、水分含有量、排出時の温度レベル、ミ

クロ構造、平均リン濃度、均一性など、性状に大きな違いがあり、それぞれに即した回収技術を開発する必要がある。

### 3. 廃棄物からのリン分離・回収法の開発

#### 3.1. 製鋼脱リンスラグ

スラグとは、溶融金属の製錬時に用いられる酸化物を主体とした溶融物であり、水（溶融金属）と油（スラグ）のように、相互溶解度がほとんどなく、通常は洗濯時の洗剤による泡のごとく、溶融金属の上に別相として保持され、不純物を吸収する製錬副産物である。鉄鋼製造プロセスでは、高炉における製銑工程、および転炉、電気炉による製鋼工程が 2 大スラグ排出源であるが、両者の組成はかなり異なる。また、製鋼スラグは精錬方法に対応して更に脱硫スラグ、脱リンスラグ、脱珪スラグ、脱炭スラグ等に細分される。製鋼脱リンスラグの基本は  $\text{CaO-SiO}_2\text{-FeO-P}_2\text{O}_5$  系である。電気炉製鋼における原料は基本的にリン濃度が低い鉄スクラップであり、製鋼スラグに分配除去されるリンの量は少ない。鉄鉱石中のリンはほとんど高炉スラグには分配されず、大部分が後続プロセスでの製鋼スラグ中に吸収される。脱リン処理は、

熱力学的に温度が低い方が有利であることが知られている。このことから、自動車用鋼板や高靱性・高強度鋼等の高級鋼ニーズの高まりに応えるために、高炉と転炉の間、すなわち 1300~1400°C の溶銑段階で、酸化材である酸素もしくは酸化鉄と、脱リン材である石灰を添加して脱リン処理が行われている。これを溶銑脱リン処理という。このような温度領域では、CaO-SiO<sub>2</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 系スラグは一部のみが溶融しており、液体中に固体が懸濁した泥のような状態（固液共存状態）である。

著者の一人は、上記のような溶銑脱リンスラグ中のリンの存在形態について調査することを目的に、冷却後の現場スラグの EPMA によるマイクロ組織分析を行った<sup>8)</sup>。その結果スラグの構成相は、Fig.3 に示すように、①リンが 10% 程度に濃縮された CaO-SiO<sub>2</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 系であり、鉄をほとんど含まない相（リン濃縮相）、および②リンをほとんど含まない CaO-SiO<sub>2</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系（鉄濃縮相）、の 2 種類に大別できることを示した。前者は、脱リン反応の生成物で脱リン処理時において固体であった相と予想され、SiO<sub>2</sub> が若干含まれるものの、脱リン処理条件によっては、リン鉱石の主成分と組成的にほぼ同等の結晶相が存在することもある。スラグ構成相のうち後者は、脱リン処理時に液体であり、反応時にリンの移動媒体として機能したと思われる相である。重要なことは、スラグ中でリンと鉄が全く異なる相に存在しており、リンに富んだ相はリン鉱石とほぼ同等の結晶相であるということである。このことから、強磁場を利用することによって、冷却後のスラグから両者を磁氣的に分離でき、人工リン資源が回収できる可能性が高いことが示唆された。

Table 2 磁気分離実験に用いた模擬スラグ組成 (重量%)

	FeO	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	CaO	SiO <sub>2</sub>	MnO	MgO	計
平均組成	19.29	6.61	45.88	20.26	2.50	5.46	100
リン濃縮相①	0.57	11.77	60.45	26.70	0.24	0.26	100
鉄濃縮相②	83.31	0	1.12	0.16	7.38	8.04	100

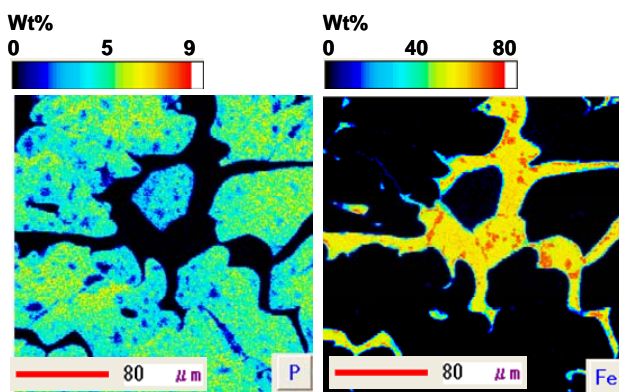


Fig.3 模擬スラグの EPMA ミクロ組成分析図

以上のような結果に基づき、両結晶相の磁氣的性質を調べた結果、①の相は反磁性体、②の相は強磁性体または常磁性体であることが明らかになった。詳細な磁気力解析の結果、永久磁石レベルの弱い磁場では困難であるが、数テスラの強磁場を印加することにより、後者は容易に磁着できることがわかった<sup>7)</sup>。

強磁場によるスラグからのリン回収が実際に可能かどうかを検証するために、実際に超伝導バルク磁石式強磁場発生装置を用い、磁気分離実験を行った。バルク磁石表面での磁場強度は最大 3T である。実験では、後述する模擬スラグ粉末を蒸留水と共にプラスチックセルに入れ、空気をバブリングさせながらバルク磁石表面の磁場勾配中に所定時間保持した。スラグ粉末を蒸留水に懸濁させたのは、リン濃縮相と鉄濃縮相の凝集を防止するためであるが、水を用いない乾式での分離実験も一部実施した。実験終了後、容器底部の非磁着物を回収し、磁着物と共にそれぞれ高周波結合プラズマ発光分光分析法による組成分析に供した。

模擬スラグは、試薬を Table1 の平均組成に調合した後、リン濃縮相の結晶粒径を粗大化するために MgO りつぽ中アルゴン雰囲気下で 1400°C に昇温後、1°C/min で室温まで徐冷して作成した。その結果、Fig.3 に組織観察結果を示すように、熱処理後のスラグは多くの現場スラグの観察結果と同様に、大略リン濃縮相（前述の①の相）および鉄濃縮相（同②）で構成されており、両相の平均粒径は約 100 μm であった。このスラグをメノウ乳鉢で破碎して実験に供した。試料は粒径に応じて 30 μm 以下、50~70 μm、10~100 μm（粗粉碎）の粒度範囲を持つ 3 種類を用意した。

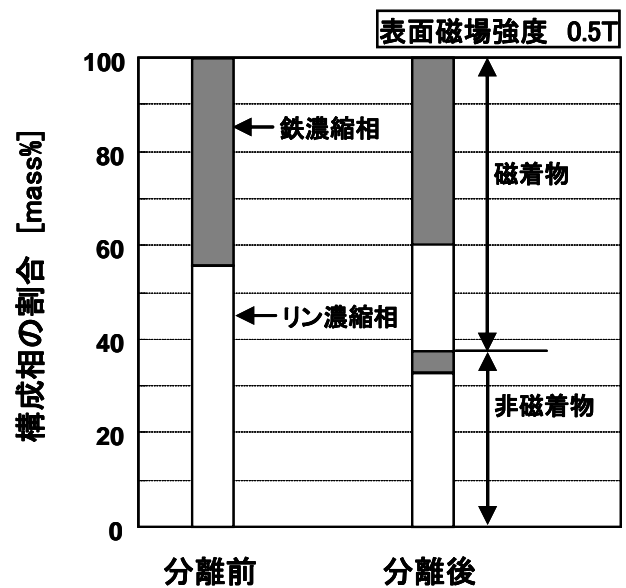


Fig.4 模擬スラグの磁気分離実験結果 (粉碎後の平均粒子径 < 35 μm)

磁気分離実験の結果を、平均粒径 35 $\mu$ m 以下、表面磁場 0.5T の場合を例として Fig.4 に示す。Table 1 の物質収支より、磁気分離に供する前のスラグは、リン濃縮相と鉄濃縮相が 56:44 の混合物である。Fig.4 の結果より、リン濃縮相の約 60% が非磁着物として回収され、リンと鉄の比率は 80% 程度まで向上している。この結果より、本法の基本原理は確立できたと結論づけられ、GPS (Get Phosphorus from Slag) 法と命名した。

本法は開発途上にあり、Fig.4 程度の結果ではリン鉱石代替物には未だなりえない。GPS 法では、原理的にスラグ中に存在しているリン濃縮相の組成以上にリン濃度を上げることができない。しかしながら、著者らの研究によれば、脱リン処理時の石灰添加量を制御することによって、リン濃縮相のリン濃度を更に高めつつ、SiO<sub>2</sub> 濃度を低下できることがわかってきた。鉄鋼製品の需要が旺盛な現状では、鉄鋼業は高品質鋼を高効率で製造するのが最も重要なことであって、スラグを製造するという意識は非常に希薄なのが実態であるが、製鋼スラグ中のリンの価値が高まれば、スラグを重要な製品として捉え、その性状まで制御しようという機運が高まるものと思われる。GPS 法を実用化レベルに到達せしめるためのもうひとつの課題は、スラグ中の析出結晶相をいかに粗大化させ、かつ独立の粒子に粉碎するかであり、今後はスラグ粒子の粒径分布に及ぼす冷却条件の影響、また磁場勾配、磁場強度などの影響を詳細に調査する必要がある。

また、次章で述べるように、回収されたリンを肥料製造用人工リン資源として利用するためには、磁気分離の後に何らかの精製プロセスが必要であると考えられる。ただし、GPS 法のメリットは、人工リン資源ソースとしての可能性のみならず、鋼にとっての有害不純物であるリンを分離することで、スラグの残物(磁着物)を製鋼工程に容易にリサイクルできることである。製鋼スラグは年間 1000 万トン以上発生しており、鉄鋼メーカーはその処理に頭を悩ませているのが実態であるが、GPS 法によって大幅にその発生量を減らすことが可能である。これについては後述する。

### 3.2. 下水汚泥

Fig.2 に示したように、我が国にはリン鉱石、肥料原料、食料、家畜飼料等の形で大量のリンを国内に投入している一方、リンを資源としてリサイクルするシステムは、未だに確立されていない。そのため、国内に持ち込まれたリンが閉鎖性の強い水域に流れ込んで、厄介な富栄養化問題を引き起こすに至っている。最大のリン負荷源は下水であり、前述のように、下水汚泥は大きなシンクのひとつになっている。従って、ここからリンを回収して再利用に回すことができれば、リン資源枯渇リスクを低減できるのみならず、富栄養化による環境破壊の防止

にも一石二鳥の効果が期待できる。

下水汚泥からのリンの分離回収に関しては、多くの技術開発がなされているが、下水汚泥からの回収物に Al、Fe、Mg、Na や K などの金属成分が多く含まれていると、リン酸の製造が難しくなるという問題がある。すなわち人工リン資源を天然リン鉱石の代替物として利用しようとするならば、リン酸の再生が可能な品質を保証して回収する必要がある。

活性汚泥微生物は、下水からリンを取込みポリリン酸として細胞内に蓄積する。ポリリン酸を蓄積した活性汚泥は最終沈澱池で処理水と分離され、余剰汚泥として系外に引き抜かれる。筆者の一人は、下水汚泥を加熱すると、70 $^{\circ}$ C では約 60 分、90 $^{\circ}$ C ではわずか 10 分ほどで汚泥中からポリリン酸のほぼ全量がポリリン酸またはリン酸イオンとして水中に溶出することを見出した (Fig.5)<sup>9)</sup>。溶出のメカニズムを調べるため、ポリリン酸を蓄積した組換え大腸菌を加熱処理して走査型電子顕微鏡で観察した。その結果、Fig.6 に示すように、細胞から内容物が噴出して成長したと思われる突起物が数多く認められた。ポリリン酸は、細胞膜が外に膨らんでできたと思われるこの突起物先端の細孔から細胞外に溶出したと推定された。加熱処理により細胞そのものは破壊されず、活性汚泥フロックも殆ど壊れないので、汚泥の沈降性も損なわれないものと予想される。加熱により汚泥から分離されたリンは、カルシウムの添加により容易に凝集沈澱することができた。この沈澱物を乾燥することにより、リン含有率の高い人工リン鉱石 (16%-P、18%Ca) を得ることに成功した。本法を HeatPhos 法と名づけ、回収した人工リン鉱石を「バイオリン鉱石」と命名した。

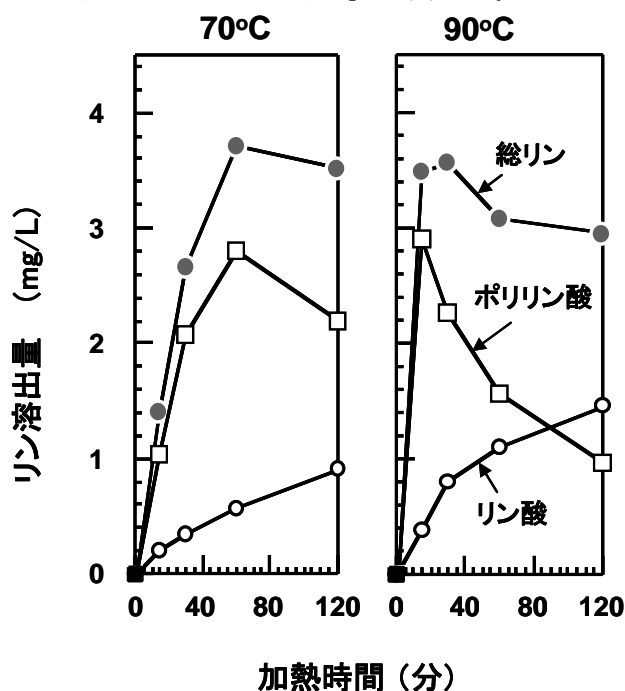


Fig.5 加熱による活性汚泥からのリンの溶出量変化

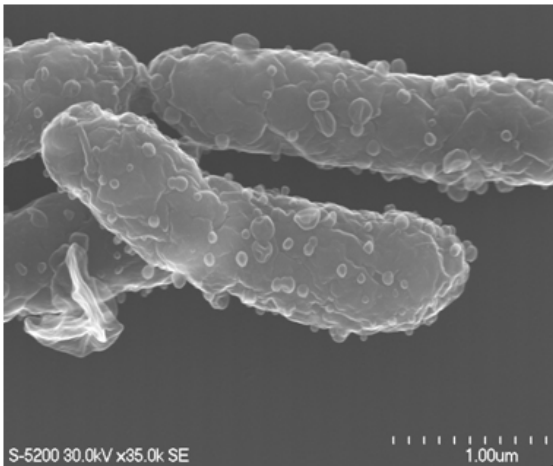


Fig.6 加熱によりポリリン酸を放出した大腸菌の電顕写真

バイオリン鉱石製造プロセスの実証試験を行うために、神戸市東灘下水処理場にパイロットプラントを設置して実験を行った。このパイロットプラントは、嫌気好気活性汚泥法による下水からのリン除去プロセスと、余剰汚泥からのリン回収プロセスとからなる。嫌気槽へのインプットは、下水処理場の最初沈澱池からの流出水であり、流量は約  $100\text{m}^3/\text{日}$  とした。余剰汚泥の発生量は1日当たり  $10\sim 20\text{kg}$  であり、1日分の余剰汚泥を回分的に一括加熱処理した。加熱された余剰汚泥は、冷却後に浮上分離機で濃縮分離され、脱水ケーキとして系外に取出した。浮上分離機からリンを多く含んだ液を凝集沈澱槽に導き、塩化カルシウムを添加することによってリンをバイオリン鉱石として回収した。種汚泥を投入し約半月間の馴養期間を経た後、パイロットプラントの通年運転を行なった。操業が安定した以降の流入下水中の総リン濃度は  $4.6\sim 4.9\text{mg/L}$ 、処理水の総リン濃度は  $0.4\text{mg/L}$  以下であり、90%以上のリン除去率が安定して達成された。汚泥の乾燥重量当たりのリン含有率は、嫌気槽において  $3\sim 3.7\%$ 、好気槽で  $3.5\sim 4.5\%$  に達した。好気槽汚泥の全リン量に占めるポリリン酸の割合は  $60\sim 70\%$  であり、鉄などの金属イオンと結合して汚泥表面に沈着したと思われるリン酸が  $10\sim 15\%$  を占めていた。残りの多くは、核酸や細胞膜などに含まれるリンと考えられた。余剰汚泥を  $70^\circ\text{C}$  で1時間加熱すると、約  $50\sim 70\%$  のリンが汚泥から分離できた。活性汚泥には、核酸や細胞膜などに含まれ加熱しても溶出しないリンが、もともと乾燥重量の  $1\%$  近くある。従って、汚泥のリン含有率が  $4\%$  程度の場合、加熱により溶出が可能なリンの割合は、最大  $75\%$  程度と推定される。この点を考慮すると、 $50\sim 70\%$  の溶出率は、十分満足のいく結果であると言える。パイロットプラントの通年運転の結果、都市下水に含まれるリンの約  $50\%$  をバイオリン鉱石として回収することができた。このようなパイロット実証試験は、引き続き広島県福山市芦田川浄化センターにおいても実施され、 $90\text{m}^3/\text{日}$  の汚泥を、

$70^\circ\text{C}$  で約1時間の滞留時間で連続的に熱処理した。通年運転の結果、実機規模においても季節によらず下水中のリンを約  $35\sim 40\%$  回収できることがわかった。この実証プラントをフル稼働させれば、1日当たり約  $10\text{kg}$  のリン(リン酸換算約  $30\text{kg}$ 、リン含有率  $14\%$  のリン鉱石換算約  $71\text{kg}$ ) がバイオリン鉱石として回収できることもわかった。また、HeatPhos法が消化槽等でのストラバイト生成による配管閉塞障害の低減や汚泥の減量化などにも副次的な効果を持つことも明らかになった。

#### 4. 人工リン資源の利用技術

我が国は、食の安全を考慮し肥料や飼料の重金属含有量に厳しい制限を課しており、カドミウムなどの有害重金属を多く含むリン鉱石を輸入していない。しかしながら、これまで日本向けに高品質リン鉱石を選別し精製して輸出していた産出国も、世界的なリン鉱石需要の高まりの中で、日本向け輸出を目的とした高品質リン鉱石の生産を取り止めるようになってきている。一方、ほとんど制約がないアジア諸国は、リン鉱石中の重金属含有量は障害にはなっていない。その結果、アジア諸国における農地の土壤汚染の広がりが懸念される一方で、リン鉱石やリン肥料の品質に厳しい我が国が、世界的なリン資源不足の影響を最も受けやすい状況にあることを認識する必要がある。

上記のような観点からも、人工リン資源の品質保証は、リンリサイクルを安定に進める上で不可欠な課題であり、特に重金属類含有量の制御はボトルネックのひとつである。この点において GPS 法は未だ開発途上であるが、他方 HeatPhos 法は上述のように実用的技術レベルに到達している。

穀物や野菜などの栽培に良質のリン酸質肥料が必要となる時期は、種子が発芽して植物体が根を十分に張るまでである。この時期には即効性のリン酸質肥料が必要であり、根が十分に伸展してしまえば緩効性のリン酸質肥料でも有効である。従って、街路樹や観賞用樹木などの維持には緩効性のリン酸質肥料でよいが、米作りなどの農業生産にはある程度即効性をもつリン酸質肥料が求められる。一方、工業用リン酸の製造に人工リン資源を使用する場合には、肥料原料よりもさらに高い品質が求められ、Al、Fe、Mg、Na や K などの金属成分の総含有率が一定値を越えると、代替原料にならない。すなわち、枯渇しつつある良質の天然リン鉱石の代替物として人工リン資源を利用するには、溶出性や随伴不純物レベル等、製造段階で再利用の目的に合致した品質を確保することが重要である。

リン酸質肥料については、肥料取締法により肥料原料

が定められており、人工リン資源が「加工リン酸肥料」の原料として認められるためには、公定規格を満たす品質を持たなければならない。例えば、汚泥屑が混ざる様であれば、「副産リン酸肥料」として登録できず、「加工リン酸肥料」の原料にはならない。また、窒素を1%以上含有すると「複合肥料」になるので、この場合も「加工リン酸肥料」の原料にはならない。著者の一人が進めている、下水汚泥からのバイオリン鉱石回収技術開発においては、製造工程において汚泥屑が分離でき、窒素含有率が1%未満であれば、バイオリン鉱石そのものを「副産リン酸肥料」として登録可能であることが明らかとなっている。「副産リン酸肥料」として登録できれば「加工リン酸肥料」の原料とすることができる。重金属類の混入にも注意が必要であるが、十数か所の下水処理場から余剰汚泥を採取して調べたところ、とくに重金属類を多く含む返送汚泥を使用しない限り問題のないことが分かった。なお、カルシウム添加により凝集沈殿させただけのバイオリン鉱石には有機物が混入しやすいので、品質確保のための改質技術開発を今後も継続して行く必要がある。現在、リン酸質肥料製造メーカーがバイオリン鉱石を原料とした加工リン酸肥料を試作中であり、肥効とその発現機構も並行して調査中である。

## 5. 人工リン資源活用の環境及び経済への影響

GPS法、HeatPhos法によって廃棄物からの人工リン資源の回収とその利用が可能となった場合には、前述のように、化学工業や農業はもとより、鉄鋼業、鋳業、廃棄物業など、他産業部門の活動に広く影響し、その波及効果は小さくないと予想される。そこで、人工リン資源の活用が実際に行われる場合を想定し、その時の経済波及効果と環境負荷低減効果について、廃棄物産業連関表(Waste Input Output Table: WIO)<sup>10)</sup>を用いてシナリオ分析を行った。データベースおよび分析方法については、文献11)を参照されたいが、国内において一年間に発生する製鋼脱リンスラグおよび下水汚泥中に含まれるリンの50%が回収、利用されたとして解析を行った。天然リン鉱石を人工リン資源で代替した場合、国内リン需要が一定ならば、リン鉱石の輸入量は減少し、製鋼スラグ発生量、汚泥最終処分量、石灰等副原料投入量、ひいては鋳工業活動、雇用等に次々に影響が波及するはずである。WIOモデルは国内におけるほぼ全ての産業活動を網羅しているので、これらの波及効果を一括して推定することができる特徴がある。なお、計算にあたり、第一近似として以下の仮定をおいた。

- a) 廃棄物から回収される人工リン資源は、その組成および価格を天然リン鉱石と同等とみなす

Table 2 廃棄物産業連関モデルによる人工リン鉱石の代替使用が国内経済活動および環境に及ぼす影響

産業セクター	国内変化率 (%)
非鉄金属鉱石	-5.998
無機化学製品	-0.047
石炭および化成品	-0.005
セメントおよびセメント製品	-0.010
磁器、陶器	-0.008
その他のセラミック製品	-0.005
銑鉄および粗鋼	-0.005
鉄鋼製品	-0.005
鋳鉄、鍛造鉄鋼製品	-0.019
建造物用金属製品	-0.010
一般機械工業	-0.007
輸送機器の製造、維持、修理	-0.020
その他の土木工業	-0.027
自家用車による輸送	-0.005
自動車、機械の修繕	-0.005
単位：100万円あたり	
環境影響ほか	国内変化率 (%)
炭酸ガス排出量 (ton-CO <sub>2</sub> )	-0.014
埋立容積 (m <sup>3</sup> )	-1.680

- b) 人工リン鉱石の国内輸送は、リン鉱石輸入量の削減による輸送量低下分と相殺され、輸送負荷は変化しない
- c) リン資源からのリン酸再生工程は、人工リン資源の導入によっても変化しない
- d) 人工リン資源製造プロセスのインフラ設備建設による負荷は無視する

人工リン資源回収に伴う、国内生産額および環境負荷発生の変化のモデル計算結果を要約して Table 2 に示す。国内の産業間相互依存を記述する産業連関モデルの当然の特徴ではあるが、製鋼スラグおよび下水汚泥からリンを回収することによる波及効果は、ほぼ全ての産業部門に及んだ。Table 2 には、変化量が大きな部門のみを示したが、窯業原料鋳物部門および化学肥料部門での生産活動が大幅に減少しており、その波及効果が顕著であることがわかる。また、リン鉱石のかなりの部分を廃棄物からの回収物で代替することにより、製鋼、化学工業、石炭製品、一般機械器具製造業等に大きな影響が認められる。一方、Table 2 の下段に示されるように、炭酸ガス発生量および埋め立て処分量の削減効果がかなり大きいことが示されており、人工リン資源の活用は、環境負荷を大幅に減少させることが明らかとなった。

## 6. まとめ

リン資源を海外に依存しながら国内に大量のリンを拡散させている我が国においては、リン資源のリサイクルを志向することは当然の流れと思われる。しかしながら、

下水汚泥のような廃棄物や製鋼スラグのような副生物をソースにする場合には、製品の量的・質的保証、既存他産業との相互依存関係と波及効果を十分に考慮しなくてはならない。すなわち、工学的努力のみで解決される問題ではなく、制度、法規、社会的コンセンサスまで含む社会技術的課題の方がむしろ大きい事例である。リンのような戦略的資源のリサイクルについては、まさに国家的規模で実現されなければ大きな効果を期待することはできない重要な課題である。国民にリン資源枯渇の危機について周知することが重要であり、それと同時に著者らは国や行政、関係機関の協力を得るための努力を継続していきたいと考えている。

## 参考文献

- 1) Trade Statistics of Japan, Ministry of Finance (2004). <http://www.customs.go.jp/toukei/info/index.htm>
- 2) Web site of the USGS, <http://minerals.usgs.gov/minerals/>
- 3) Abelson, P.H. (1999) A Potential Phosphate Crisis. *Science*, 283(5410), 2015.
- 4) Christen, K. (2007) Closing the phosphorus loop. *Environmental Science and Technology*, 41(7), 2078.
- 5) 2000 Input Output Tables (2004) Ministry of Internal Affairs and Communications, Japan
- 6) Web site of Statistic Bureau, Ministry of Internal Affairs and Communications <http://www.stat.go.jp/english/index.htm>
- 7) 横山一代、久保裕也、森 一広、岡田秀彦、竹内秀次、長坂徹也 (2006.11) 「強磁場を利用した製鋼スラグからのリンの分離回収」『鉄と鋼』, 92 (11), No.11, 683-689.
- 8) 二塚貴之、桑田清輝、三木貴博、長坂徹也、日野光元(2003. 4)「製鋼スラグから人工海水への成分溶出挙動」『鉄と鋼』, 89 (4), 382-387
- 9) Kuroda, A., Takiguchi, N., Gotanda, T., Nomura, K., Kato, J., Ikeda, T., H. Ohtake (2002) A Simple Method to Release Polyphosphate from Activated Sludge for Phosphorus Reuse and Recycling, *Biotechnology and Bioengineering*, 78(3), 333-338
- 10) Nakamura, S., Kondo, Y: (2002) Input-output analysis of waste management, *Journal of Industrial Ecology*, 6 (1), 39-63
- 11) 横山一代、長坂徹也、中村慎一郎 (2005.11) 「廃棄物産業連関モデルに基づくハイブリッド LCA」『ふえらむ』, 10(11), 862-867

## 謝辞

本研究の一部は、JST-RISTEX の戦略的創造研究推進事業（循環型社会）、(独)農業・生物系特定産業技術研究機構の生物系産業創出のための異分野融合研究支援事業、文部科学省科学研究費補助金（基盤B）のご援助を受けた。付記して謝意を表すると共に、研究遂行にご協力を賜った関係者各位に感謝いたします。

---

## RECOVERY OF ARTIFICIAL PHOSPHORUS RESOURCES FROM WASTES

Kazuyo Yokoyama MATSUBAE<sup>1</sup>, Hironari KUBO<sup>2</sup>, Hisao Ohtake<sup>3</sup>, and Tetsuya NAGASAKA<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Ph.D. (Economics) Assistant Professor, Tohoku University, Graduate School of Environmental Studies  
(E-mail: yokoyama@mail.kankyo.tohoku.ac.jp)

<sup>2</sup>Ph.D. (Environmental Studies) Tohoku University, Graduate School of Environmental Studies  
(E-mail: fy04045@mail.kankyo.tohoku.ac.jp)

<sup>3</sup>Ph.D. (Engineering), Professor, Osaka University, Graduate School of Engineering  
(E-mail: hohtake@bio.eng.osaka-u.ac.jp)

<sup>4</sup>Ph.D. (Engineering), Professor, Tohoku University, Graduate School of Environmental Studies  
(E-mail: nagasaka@mail.tains.tohoku.ac.jp)

It is concerned that the sources of high-grade phosphate ore deposits could disappear within the next 100 years at current use rates. Detail review on the domestic phosphorus material flow in Japan revealed by the authors shows that phosphorus in steelmaking slag and sewage sludge is almost equivalent with that in the imported phosphate rock in the view points of the amount and the concentration, and thus they have great potential as a new artificial phosphorus resource. Recovery technologies from them which are being developed by the authors are introduced. Environmental and economical benefits given by the proposed new process are also quantitatively evaluated by the Waste Input-Output model.

**Key Words:** phosphorus resource, steelmaking slag, sewage sludge, magnetic separation, biotechnology