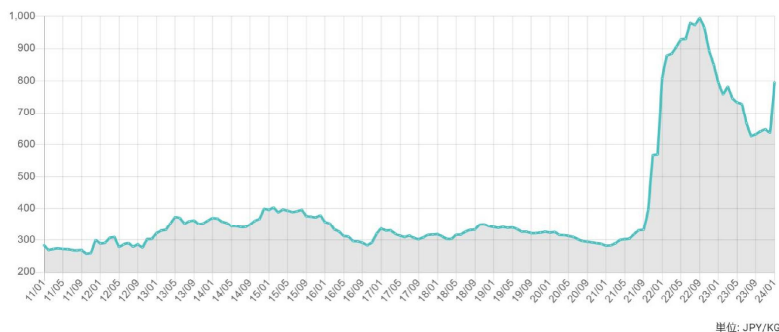


下水汚泥焼却灰からの新規リン回収システムの開発

福井工業大学建築土木工学科 教授 高島正信

1. はじめに

リンは生物にとって必須元素であると同時に、枯渇が懸念される元素でもある。わが国に輸入されるリンは食糧、肥料、飼料などとして年間約 56 万トンにのぼり、そのうち約 1 割が下水道に流入しているが、ほとんどが焼却灰として埋立処分されたり、公共用水域に放流されたりする¹⁾。リンの 100%を輸入に頼る日本にとって、リンを効率的にリサイクルできれば、資源の有効活用や環境汚染の防止に貢献できる。さらに昨今では、ウクライナ-ロシア戦争が開始されて以来、肥料の不足と高騰が問題となっている（図 1 参照）。

図 1 リン輸入 CIF 価格の推移²⁾

下水汚泥焼却灰は、10%近いリン (P) を含み、膨大な量が日々排出されていることから、リン回収の絶好の対象となりうる。下水汚泥焼却灰を対象とした場合、実用化された方法として灰アルカリ抽出法があり、岐阜市と鳥取市で稼働している。これに対し、国内に実施はないが灰酸抽出法も存在し、100% 近くのリン溶出が可能であるものの、リンと一緒に溶出する他金属の分離や副産物の処理などが課題である。一方で、焼却灰に含まれる鉄やアルミニウムは、下水処理においては無機凝集剤として有用である。

海外では、灰酸抽出法に基づく方法が下水汚泥焼却灰に適用され、複数の実基が建設されているということである³⁾。また、国内における実用化レベルのシステムとして新潟大学⁴⁾で開発された酸とアルカリを用いる二段階溶出などが発表されているが、詳細が不明な部分もある。

本研究の目的は、下水汚泥焼却灰に強酸を添加する灰酸抽出法に基づき、沈殿分離法、吸着法という酸抽出液からのリン回収方法について実験的に工程・条件を検討し、新規リン回収システムを構築することである。今回は、リンとともに鉄およびアルミニウムも回収の対象とした。

2. 主な下水汚泥からのリン回収技術

現在、国内で実用化されている汚泥処理系における主なリン回収技術を表 1 にまとめ、以下には MAP 晶析法と灰アルカリ抽出法について概説する。

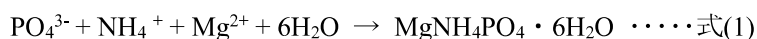
2.1 MAP 晶析法

晶析 (crystallization) とは、溶解度の濃度依存性、温度依存性などを利用して溶液から目的成分を結晶化させ、選択的に分離する操作のことで、純度の高い結晶が得られる。汚泥処理系における脱水ろ液や嫌気性消化汚泥からのリン除去・回収に MAP 法が適用されている。この方法は、リン酸 (PO_4^{3-}) をリン酸

表 1 汚泥処理系における主な実用化リン回収技術

種類	方法	設置場所
脱水ろ液	MAP 晶析法	島根県、福岡市
嫌気性消化汚泥	MAP 晶析法	神戸市
焼却灰	灰アルカリ抽出法	岐阜市、鳥取市

マグネシウムアンモニウム (Magnesium Ammonium Phosphate ; MAP) の結晶として回収し、処理対象から除去する技術である。回収された MAP 結晶は、肥料三大要素 (窒素、リン酸、カリ) のうちの窒素とリン酸を含むことから、化成肥料として肥料登録することで、資源としての有効利用が可能となる。本法の反応は、式(1)で表される。



嫌気性消化汚泥のように固形物を多量に含む場合にも適用可能であり、全リン回収率として 40%程度が報告されている⁵⁾。

2.2 灰アルカリ抽出法

灰アルカリ抽出法は、焼却灰に水酸化ナトリウム溶液を添加してリン酸イオンを溶出させるもので、リン酸は焼却灰中のリン酸鉄とリン酸アルミニウムから主に溶出すると推測される。抽出液と焼却灰の混合物は、その後脱水機などを用いて固液分離し、液体に消石灰を加えることによってリン酸カルシウムを主成分とするリン酸塩を得る。

回収リン酸塩は肥料として登録・販売することができる。例えば、最初に本設備が設置された岐阜市⁶⁾では、「岐阜の大地」という名称で JA を通じた販売が行われている。また、処理灰は建設資材として再利用することができ、トータルシステムでみたときの本法の長所となる。下水汚泥焼却灰からの全リン回収率として 50%程度が得られるようである。

3. 実験方法

実験はすべて室温で実施し、酸溶液には有害金属分析用、その他の薬品には試薬特級、希釈水などには蒸留水を使用し、容器類は事前に酸洗浄した。各液のpH調整には10 mol/L水酸化ナトリウムと10 mol/L塩酸を原則使用し、状況によってはそれらより低濃度のものも使用した。沈殿物と液体の分離には高速遠心を用い、その条件は10,000 rpm、5分間とした。また、沈殿物は一晚以上乾燥してその後の工程に供した。

3.1 供試焼却灰

下水汚泥焼却灰は、福井県北部にある下水汚泥焼却施設から採取し、乾燥後使用した。下水汚泥の由来は、福井市など近隣の下水処理施設が中心である。

3.2 灰酸抽出

塩酸の濃度と量の影響をみる実験では、焼却灰10 gと濃度1または2 mol/Lの塩酸25、50または100 mLをプラスチック容器に入れ、約1日間、80 rpmで振とうし、数時間静置した後の上澄み液を抽出液とした。大量に作成する場合は、ガラスビーカーと大型スターラーを使用した。

3.3 沈殿分離法

灰酸抽出液中のリン酸を、一旦主にリン酸鉄およびリン酸アルミニウムの沈殿として分離し、その後にリンはリン酸カルシウム (固体)、鉄は水酸化鉄 (固体)、アルミニウムはアルミン酸イオン (液体) として分別回収する方法である (図2)。リン酸鉄、リン酸アルミニウムとリン酸カルシウムの沈殿が優先するおおよそのpH範囲を表2に示す。本法は、表2などを参考に、一次沈殿pHを酸性側にしてできるだけ

リン酸カルシウムおよび重金属水酸化物の沈殿形成を排除することをねらいとしている。リン酸カルシウムに含まれるリンは、その後の工程では原理上回収できないものである。

原則、反応にはガラスビーカー、撹拌には速度約 300 rpm のスターラーを使用し、フィルムで覆って水分の蒸発を防いだ。実験の手順は、以下のようなものである。

1) 酸溶出液 75mL に 10 mol/L 水酸化ナトリウムを加え pH3.0、3.5、4.0 または 5.0 で約 5 時間、スターラー撹拌した。その後遠心分離によって上澄み液を分離し、一次沈殿物（リン酸鉄+リン酸アルミニウム分画）を得た。

2) 乾燥した沈殿物 0.3 g に 1 mol/L 水酸化ナトリウム 30 mL を加え、約 5 時間、80 rpm で振とうした。その後遠心分離によって二次沈殿物（水酸化鉄分画）を分離し、二次上澄み液を得た。

3) 二次上澄み液に塩化カルシウム二水和物をリンに対するモル比で約 1.8 倍加え（Ca/P=約 1.8）、約 5 時間、スターラー撹拌した。その後遠心分離によって三次沈殿物（リン酸カルシウム分画）と三次上澄み液（アルミニウム溶液分画）を分離した。

一次沈殿物からのアルカリ添加によるリン酸溶出をみる実験では、一次沈殿物0.3 gと濃度0.25、0.5、1、2または5 mol/Lの水酸化ナトリウム溶液15または30 mLをプラスチック容器に入れ、約1日間、80 rpmで振とうし、遠心後の上澄み液を溶出液とした。

3.4 吸着法

リン酸吸着剤には多孔質水酸化鉄（高橋金属㈱、滋賀県長浜市）を用いた。その写真を図3に示す。手順は酸溶出→吸着→脱着→再生であり、概略は次のようである。まず酸溶出液にリン酸吸着剤を加えて pH 約 2.5 に調整し、80 rpm で振とうしながら約 1 日間吸着させた。次いで、水を切ったリン酸吸着剤に 10%水酸化ナトリウム溶液を加えて 80 rpm で約 1 日間反応させ、吸着したリン酸を脱着した。なお、リン酸吸着剤の再生には塩酸を使用し、pH が約 2.5 で安定すると再生完了とした。

鉄とアルミニウムの回収は、pH 調整による沈殿分離を利用した。リン酸吸着後の酸溶出液に水酸化ナトリウム溶液を加えて pH 約 6 とし、形成した沈殿物を遠心分離によって分離した後、その沈殿物を塩酸で溶解したものを鉄+アルミニウムの回収溶液とした。

3.5 分析方法

pH 測定には、複合ガラス電極（9625-10D、HORIBA）を接続した pH 計（F-53、HORIBA）を用いた。酸性側の pH 校正には校正液 1.68 を使用した。PO₄³⁻-P は、アスコルビン酸法（Standard Methods⁸⁾ 4500E）により分光光度計（DR3900、Hach）を用いて測定した。金属濃度は、原子吸光光度計（Z-5010、日立ハイテクノロジーズ）によるフレイム法で定量した。また、焼却灰元素含有量の分析には、硝酸-塩酸湿式分解法（Standard Methods 3030F）を採用した。なお、沈殿物は乾燥後、希薄酸溶液に溶解して分析に供した。

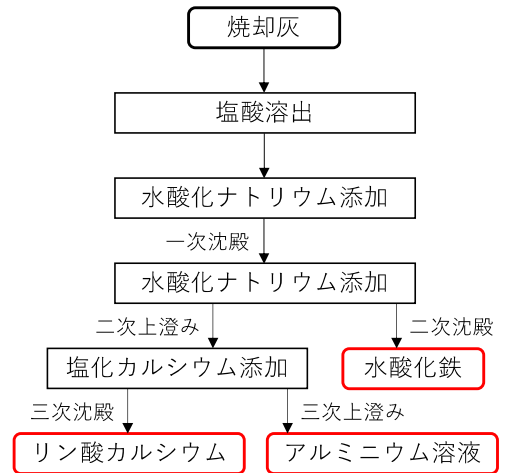


図2 沈殿分離法の手順

表2 リン酸沈殿物の pH に対する優先種⁷⁾

pH	優先種
～約 3	リン酸鉄
約 3～6	リン酸アルミニウム
約 6～	ヒドロキシアパタイト



図3 リン酸吸着剤の写真

4. 実験結果および考察

4.1 灰酸抽出

塩酸を通じて添加された焼却灰 1 g 当たりの水素イオン量とリン酸溶出率を図 4 に示す。また、分析した元素について酸溶出液の平均濃度を表 3 に示す。肥料の品質評価では数種類の重金属類が規制されるが（後出の表 7 参照）、ここではそのうち Cd、Ni、Cr および Pb を測定対象とした。

図 4 からわかるように、水素イオン添加量が増すにつれリン酸溶出率は上昇し、水素イオン添加量 0.010 mol/g 以上でリン酸溶出率がほぼ 100%に達した。これは焼却灰からのリン酸溶出は酸の種類によらずリン量当たりの水素イオン添加量で決定されるという大下ら⁹⁾の報告と一致する。この結果に基づき、その後の実験では 1 mol/L 塩酸溶液を L/S 比 10 で適用した。後述するように、後段のアルカリ工程を経ることで一次沈殿物からの重金属類排除が期待できるので、この工程に廃酸を利用して薬品費用を節約できる可能性がある。

4.2 沈殿分離法

1) 一次工程

今回、酸溶出液からの一次沈殿（リン酸鉄+リン酸アルミニウム画分）の pH として、3.0、3.5、4.0 および 5.0 を検討した。主な反応は式(2)および(3)のように考えられ、pH 上昇につれてリン酸鉄とリン酸アルミニウムの沈殿物が形成する。



両式におけるモル比より、本法が成り立つには酸溶出液中 Fe と Al の合計モル数が PO₄-P のモル数を超えていなければならない。表 3 から (Fe+Al)/P モル比は平均 1.1 と、わずかながら 1 を上回っていた。

一次沈殿後の上澄み液中における残存濃度を、主要元素について図 5 にプロットする。図より、PO₄-P は pH4.0 以上で陽イオンとの沈殿によってほぼ消失している。陽イオンについては、pH の上昇につれ Fe と Ca が徐々に低下していたのに対し、Al は pH3.0 の時点ですでにかなり低くなっていた。一般にこれら陽イオンとリン酸の沈殿は pH とともに増加し（残存濃度は低下し）、また、表 2 に示すように、低めの pH ではリン酸鉄の形成がリン酸アルミニウムより優先すると予想された。しかし、今回の結果はリン酸アルミニウム沈殿が優先していたことが示唆される。筆者による以前の研究¹⁰⁾では予想通りであったので、この理由は不明である。また、今回は沈殿物と上澄み液の固液分離として高速遠心分離を採用したが、pH3.0~3.5 では固液分離性が良くなく、その影響も少々あると思われた。実規模になった場合を含め、固

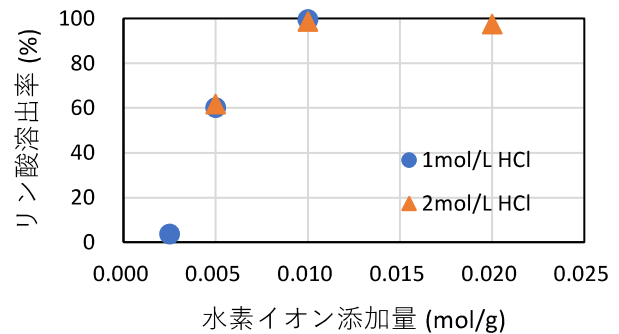


図 4 塩酸溶液による下水汚泥焼却灰からのリン酸溶出率

表 3 酸溶出液の平均組成

成分	濃度
PO ₄ -P (mg/L)	5,320 ± 270
Fe (mg/L)	4,300 ± 280
Al (mg/L)	2,980 ± 150
Ca (mg/L)	5,190 ± 450
Cd (mg/L)	0.042 ± 0.003
Ni (mg/L)	4.9 ± 0.5
Cr (mg/L)	9.3 ± 0.2
Pb (mg/L)	44 ± 1

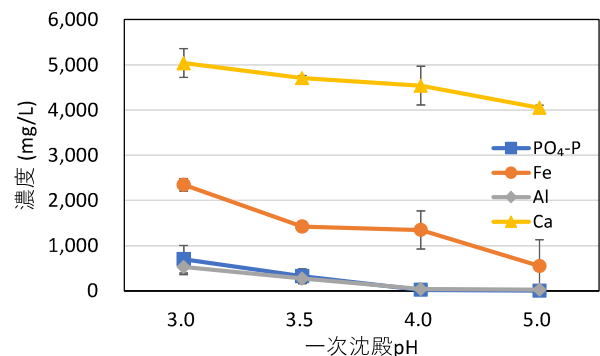


図 5 一次工程における主要元素の上澄み液中残存濃度

液分離法については検討課題である。

2) 二次工程およびアルカリリン酸溶出

得られた一次沈殿物に強いアルカリ溶液を加えると、鉄は水酸化物として沈殿し、アルミニウムはアルミン酸イオンとして溶解し、リン酸はどちらの場合も放出され溶解すると推定される (式(4)、(5))。

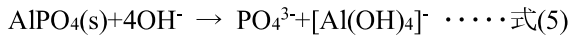
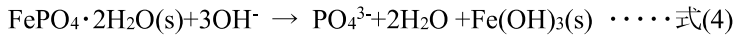
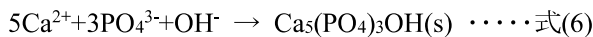


図 6 には、一次沈殿物からのアルカリリン酸溶出の結果を示す。一次沈殿物重さ当たりの水酸化物イオン量が 0.10 mol/g においてリン酸溶出率が最大となった。この結果に基づき、本研究では一次沈殿物に対し 1 mol/L 水酸化ナトリウムを水酸化物イオン量 0.10 mol/g になるように添加した。

3) 三次工程および回収率

二次沈殿後の上澄み液にカルシウム塩を加えると、リン酸カルシウム (ヒドロキシアパタイト) が沈殿し (式(6))、遠心分離によってリンを含む沈殿物とアルミン酸イオンが溶解した上澄み液に分離できる。



リン酸カルシウム、水酸化鉄、アルミニウム溶液の各画分でそれぞれ回収されたリン、鉄およびアルミニウムの回収率を図 7 に示す。式(2)~(6)などの反応は pH 値で重なる部分もあるため、完全に分別回収するのは困難である。図 7 より、酸溶出液からの平均リン回収率は一次沈殿 pH3.5~4.0 で 80%前後と高くなり、最大は pH4.0 において 82%に達した。国内で唯一実用化された灰アルカリ抽出法のリン回収率は 50%付近なので⁶⁾、それを上回っていた。

この結果には一次沈殿 pH が大きく影響していると考えられ、pH 4.0 は初期の灰酸抽出法に関する研究である高橋ら¹¹⁾と同じ最適 pH 値である。一次沈殿後の残存濃度 (図 5) と水質化学の理論を考慮すると、pH が上がるとリン酸鉄+リン酸アルミニウムの沈殿が増加し、リン回収率が高まるはずである。その一方で、一次沈殿 pH の上昇はリン酸カルシウム沈殿を増加させ、この分はリン回収されない (水酸化鉄分画に移行)、リン回収率が低下すると推測される。一次沈殿 pH 5.0 でのリン回収率の低下は、この影響が出たものと考えられる。

水酸化鉄画分の鉄については回収率 55~90%、アルミニウム溶液画分のアルミニウムについては回収率 75~82%と、一部を除きまずまずの回収率が得られている。この場合も一次沈殿 pH が影響し、特に鉄については一次沈殿後の上澄み残存濃度が高

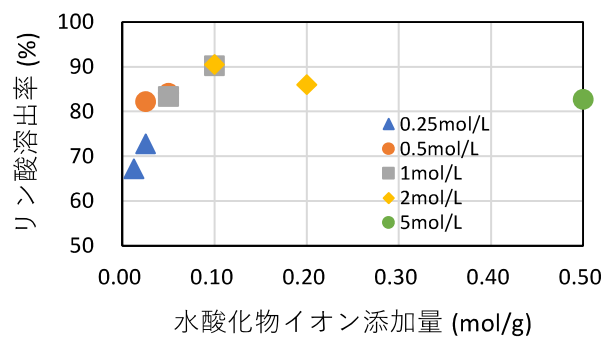


図 6 水酸化ナトリウム溶液による一次沈殿物からのリン酸溶出率

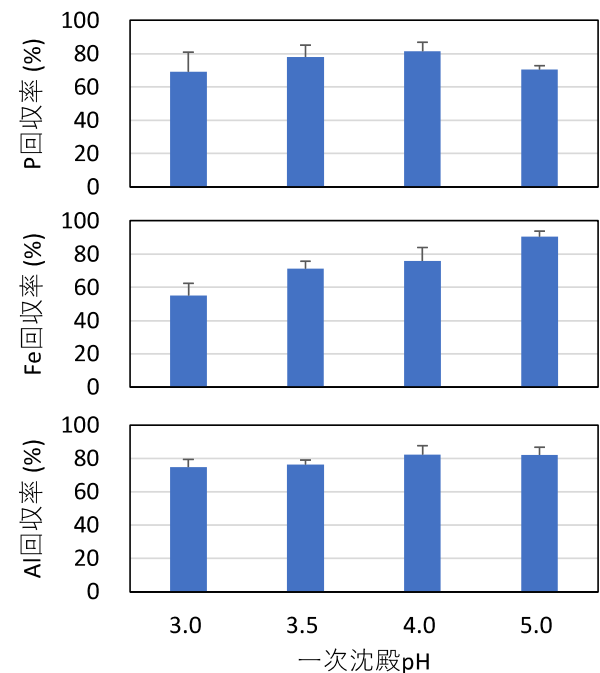


図 7 各画分で得られたリン、鉄およびアルミニウムの回収率 (上からリン酸カルシウム画分中のリン、水酸化鉄画分中の鉄、アルミニウム溶液画分中のアルミニウム)

いと回収率が低くなる傾向が顕著であった。一方、アルミニウムについては、一次沈殿上澄み液において87%以上も除去されていたことから、一次沈殿 pH の回収率への影響が小さかったと考えられる。

なお、全工程を通じたリン、鉄およびアルミニウムの回収率を、一次沈殿後の上澄み液と各画分に存在する量を合計することにより表 4 に示す。算出された全工程回収率の平均はおよそ 95%から 101%の範囲にあり良好であった。

表 5 には得られたリン酸カルシウム沈殿物の平均組成、表 6 には水酸化鉄沈殿物とアルミニウム溶液の平均組成をまとめる。また、表 7 には参考資料として、農林水産省告示¹²⁾において副産肥料に対して広く適用される有害成分の許容値を示す。測定成分について、リン酸カルシウム沈殿中の有害重金属類は許容値よりおよそ 20~300 倍以上低く、肥料利用が可能になると思われる。また、鉄およびアルミニウムについてみると、一次沈殿 pH の上昇とともに含有率が高まっており、一次沈殿物により多く取り込まれたことが原因となっていると思われる。

表 6 より、水酸化鉄沈殿とアルミニウム溶液については、それぞれの画分に鉄、アルミニウムが濃縮されているのがわかる。その一方で、特に水酸化鉄画分では、他成分も多く含有されており、純度としては低いものであった。重金属を含む金属の多くは、アルカリ pH で水酸化物として沈殿しやすく、本法においては一次沈殿工程で沈殿物に含有されたものはその後の水酸化鉄画分に集約されることになる。この水酸化鉄画分を含めすべての画分において重金属類やカルシウムを徹底的に減少させるには、手順が複雑化

表 4 全工程におけるリン、鉄およびアルミニウムの回収率

	一次沈殿 pH			
	3.0	3.5	4.0	5.0
P (%)	98 ± 5	100 ± 10	99 ± 4	101 ± 3
Fe (%)	95 ± 10	99 ± 10	98 ± 10	101 ± 6
Al (%)	99 ± 10	95 ± 5	97 ± 5	99 ± 4

表 5 得られたリン酸カルシウム沈殿物の平均組成

	一次沈殿 pH			
	3.0	3.5	4.0	5.0
P (%)	11 ± 1	10 ± 1	10 ± 1	9.5 ± 1.8
Fe (%)	0.094 ± 0.022	0.12 ± 0.02	0.13 ± 0.01	0.16 ± 0.04
Al (%)	0.66 ± 0.43	0.93 ± 0.53	0.84 ± 0.34	1.8 ± 0.6
Ca (%)	28 ± 2	25 ± 2	24 ± 2	23 ± 4
Cd (%)	<0.0002			
Ni (%)	<0.003			
Cr (%)	<0.008			
Pb (%)	<0.004			

表 6 得られた水酸化鉄沈殿およびアルミニウム溶液の平均組成

		一次沈殿 pH			
		3.0	3.5	4.0	5.0
水酸化鉄沈殿	P (%)	5.5 ± 0.2	4.8 ± 0.6	4.6 ± 0.1	6.7 ± 2.2
	Fe (%)	19 ± 3	18 ± 1	19 ± 2	17 ± 2
	Al (%)	2.1 ± 0.1	2.2 ± 0.1	2.4 ± 0.1	2.3 ± 0.4
	Ca (%)	7.3 ± 2.1	5.8 ± 2.9	6.4 ± 2.2	5.6 ± 1.8
アルミニウム溶液	P (mg/L)	170 ± 30	86 ± 86	81 ± 67	110 ± 60
	Fe (mg/L)	1.0 ± 0.4	0.73 ± 0.09	1.5 ± 0.6	1.1 ± 0.5
	Al (mg/L)	2,100 ± 100	2,300 ± 100	2,500 ± 200	2,200 ± 400
	Ca (mg/L)	7.6 ± 3.8	21 ± 17	21 ± 18	48 ± 59

するが、別途それらを除去する工程などを組み込む必要があると思われる（例えば、カルシウムの石こうとしての除去）。

汚泥処理などでの凝集剤は通常数%の濃度で利用され、得られたアルミニウム溶液中のアルミニウム濃度は 0.2%強と低いものであった。今回、アルミニウムは溶液のまま回収したが、pH 中性に調整などすれば沈殿乾燥物として回収でき、用途が広がる可能性がある。

下水汚泥などからのリンの分離回収はコストのかかることが問題視されている。しかしながら、岩手県¹³⁾による精力的な研究では、灰酸・灰アルカリ抽出法での使用に適当な廃酸および廃アルカリが見出されており、それらを利用すれば少なくとも薬品コストの削減は見込められると思われる。

4.3 吸着法

図 8 に、吸着剤によるリン酸吸着速度を示す。1 時間で大半が吸着され、その後緩やかになった。この結果を基に、吸着時間約 24 時間（1 日）を採用した。

今回は酸溶出液を希釈し、リン酸濃度約 1400 と 2900 mg/L を用いた。本法においては、リン、鉄およびアルミニウムは液体の状態で回収され、さらに鉄とアルミニウムは混合されたままである。得られた回収率を図 9 に示す。リン回収率は初期リン酸濃度約 1400 mg/L で約 83%と良好であったが、同約 2900 mg/L で約 71%に低下した。鉄は 70%前後、アルミニウム 90%前後と、吸着法では両元素とも比較的良好な回収率が得られた。製造会社¹⁴⁾によると、 $PO_4^{3-}\text{-P}$ が数千 mg/L 程度まで適用可能なようであるが、リン酸濃度が上がると妨害物質の濃度も上がるためその悪影響が考えられる。初期リン酸濃度に比例して吸着剤の必要量が増えるうえ、リン回収率も低下するため、適用できるリン酸濃度に限界があると思われる。

5. 結論

本研究では、下水汚泥焼却灰の酸溶出液に対して沈殿分離法と吸着法を適用し、新規のリン回収システムの構築を試みた。また、副産物として鉄とアルミニウムの回収についても検討を行った。得られた結果を整理すると、以下のようなものである。

1) 沈殿分離法

- ・下水汚泥焼却灰への塩酸および水酸化ナトリウムの添加と沈殿物の遠心分離を組み合わせ、三段階から

表 7 農林水産省告示による普通肥料の許容含有量の例（副産肥料のリン酸 P_2O_5 含有率 25%を仮定した場合¹²⁾）

成分	許容値
As (%)	0.10
Cd (%)	0.00375
Ni (%)	0.25
Cr (%)	2.5
Ti (%)	1.0
Hg (%)	0.0025
Pb (%)	0.15

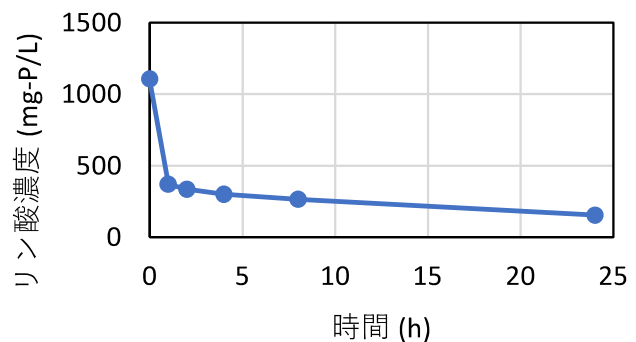


図 8 吸着法におけるリン酸濃度の変化

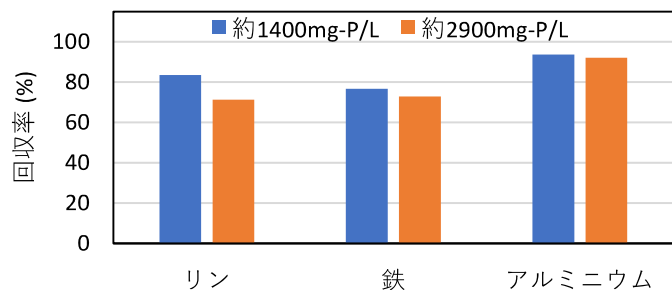


図 9 吸着法による回収率まとめ

なるリン、鉄およびアルミニウムの回収システムを考案した。

- ・リン回収率は最大 82%に達することが確認され、このときの一次沈殿 pH は 4.0 であった。
- ・得られたリン酸カルシウム沈殿は重金属類に関して含有量が十分に低いものであった。
- ・鉄とアルミニウムについては 80%前後の回収率が得られたが、他成分の混合が多かった。

2) 吸着法

- ・主対象のリンについて 80%以上の回収率が得られる条件が見出された。
- ・酸溶出液のリン酸濃度が上昇すると、本法は不利になることが認められた。

今後は経済性の検討が必要であり、特に水酸化ナトリウムをはじめとする薬品、沈殿物と上澄み液を分ける固液分離などの費用が課題となる。薬品については、廃酸・廃アルカリなどの再利用が有力な候補の一つになる。また、リン回収後の残液（一次上澄み液）の処理処分や処理灰などのリサイクルについても検討を要する。

参考文献

- 1) 国土交通省：下水道におけるリン資源化の手引き、2010.
- 2) 財務省：貿易統計リン輸入 CIF 価格の推移、2024.
- 3) Cohen, Y., Enfält, P. and Kabbe, C.: Production of clean phosphorus products from sewage sludge ash using the ash2phos process, International Fertiliser Society Conference, Brussels, Belgium, 5th June, 2019.
- 4) 金熙濬：下水汚泥灰からリン系肥料製造と残渣の資源化、新潟大学地域創生推進機構、2018.
- 5) 古賀大輔、荻野隆生：下水消化汚泥からのリン回収技術、エバラ時報、No. 249、8-13、2015.
- 6) 中川博：岐阜市における下水汚泥焼却灰からのリン回収事業、水環境学会誌、Vol. 34(A)、16-20、2011.
- 7) Stumm, W. and Morgan, J. J.: *Aquatic chemistry*, 3rd ed., John Wiley and Sons, New York, 1996.
- 8) APHA, AWWA and WEF: *Standard methods*, 2000.
- 9) 大下和徹、岩下真理、高岡昌輝、武田信生：下水汚泥焼却灰からの湿式リン抽出方法の体系化、環境工学研究論文集、Vol. 40、395-404、2003.
- 10) 高島正信：下水汚泥焼却灰からのリン酸鉄を介したリン回収の基礎検討、第 49 回日本水環境学会年会、493、2015.
- 11) 高橋正昭、加藤進、男成妥夫、田城寺英夫：各種焼却灰からのリン、金属等資源回収技術開発研究 (V) - 下水汚泥焼却灰からのリン酸塩回収方法、三重県環年報、No.4、27-31、2002.
- 12) 農林水産省：肥料の品質の確保等に関する法律に基づき普通肥料の公定規格を定める等の件、第 1053 号、2023.
- 13) (地独) 岩手県工業技術センター：いわて発戦略的地産地消型リン資源循環システムの研究、環境研究総合推進費補助金研究 事業総合研究報告書、2013.
- 14) 高橋金属株式会社：多孔質リン・フッ素吸着材エコリッジパンフレット、2011.