

報告

下水汚泥の分離処理システムによるリン回収の取組み

曽根 啓一 岩佐 行利 武藤 真
藤江 正樹 加藤 裕之

要 旨：下水からのリンの回収と資源化は従来から様々な取り組みが試みられている。例えば、下水からは凝集沈殿法、晶析法、選択的イオン吸着法、汚泥からはMAP法、HAP法、灰アルカリ抽出法などが一部で実施されている。しかしながら、これらのリン回収技術はコスト、操作性、回収率、製品化への品質要求等の課題が多く、広く採用されるには至っていない。一方、ここ数年、汚泥中のリン濃度は下水の高度処理化が進むに連れ経年的に上昇しており、特に焼却灰中のリン濃度はリン鉱石に匹敵するくらいに増加している。

筆者らは下水処理過程で発生する生汚泥と余剰汚泥の成分比率の違いに着目し、生汚泥と余剰汚泥を分離して処理、焼却することにより、リン含有量の少ない生汚泥系焼却灰は従来通りセメント原料等の建築資材として利用し、リン含有量が多く重金属含有量の少ない余剰汚泥焼却灰はリン鉱石代替物として供給する手法について検討を行った。

キーワード：下水汚泥、リン回収、分離処理、焼却灰、焼却灰成分の改質

1. はじめに

下水処理で発生する汚泥は、最初沈殿池で発生する生汚泥と、最終沈殿池で発生する余剰汚泥があり、通常、両方を混合して脱水、焼却を行っている。

生汚泥と余剰汚泥はその除去機構の違いにより成分比率に違いが見られる。生汚泥には有機物の他に沈降性物質として金属化合物が多く含まれ、余剰汚泥には生物処理に由来するリン、カリウム、マグネシウムが多く含まれ、鉄、アルミニウム、シリカ、鉛等の重金属類は少なくなっている。

日本のリン資源は全て海外からの輸入に依存せざるを得ない状況であるが、2008年のリンパニック時のリン鉱石価格の急騰を経て、リン資源の切迫感から、下水汚泥に含まれるリンを回収する気運が高まっている。

筆者らは、焼却灰中のリン濃度が経年的に上昇傾向にあること、特に余剰汚泥には高濃度のリンが集積していることに着目し、生汚泥と余剰汚泥を分離して脱水、焼却を行い、余剰汚泥焼却灰を直接リン鉱石代替品として提供すること、及びリン濃度の低い生汚泥焼却灰は従来通りセメント原料等に供給するシステムの構築を目指した。

一方で、汚泥中のリン濃度の上昇は、リンと他の重金属類とのバランスの崩れをもたらし、焼却時に低融点のリン化合物を形成して焼却炉廻りの閉塞現象を生起させ、焼却炉運転管理において大きな課題となっている¹⁾。

本研究においては、リン濃度の高い余剰汚泥を単独で脱水焼却すると閉塞現象が頻発することが想定されることから、何らかの閉塞防止対策が必要となること、また、リン資源化にあたっては、焼却灰をよりリン鉱石の組成に近づける必要があり、この両方の要件を満足させるために、カルシウム分として反応性の高い消石灰を添加し、焼却灰の品質向上を目指すことにした。

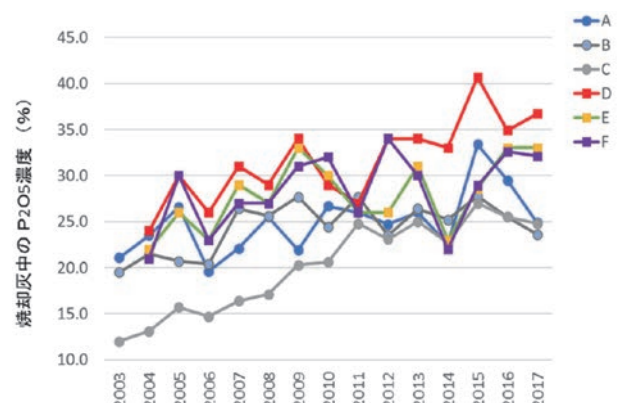


図-1 東京都水再生センターで発生する焼却灰中のリン濃度

2. 汚泥性状の経年変化

2-1 焼却灰中のリン濃度の上昇

図-1は2003年から2017年までの東京都の各水再生センターで発生する焼却灰中のリン濃度(P_2O_5)の年間平均値の変動を示している。これは最初沈殿池で発生する生汚泥と最終沈殿池で発生する余剰汚泥を混合して焼却した灰のデータである。

図-1のA, B, Cは合流式下水道を採用している区部水再生センターの焼却灰中のリン濃度を示し, D, E, Fは多摩地区の水再生センターの焼却灰で, 分流式下水道を採用し, 生活系排水が主体である。

図-1を見ると焼却灰中のリン濃度(P_2O_5)は分流式, 合流式ともに上昇している。特に, 多摩地区の水再生センターのリン濃度は30%を超えるようになり, これに伴い焼却炉廻りの閉塞現象が頻発している。区部においても冬期, 降雨量の少ない時期にリン濃度が上昇し, 閉塞が生じるようになっている。

焼却灰中のリン濃度の上昇は, 高度処理の導入が進んできたことと, 住民の生活様式の変化が要因として考えられる。

3. 日本のリン鉱石輸入量と輸入価格の推移

日本におけるリン資源はすべて海外からの輸入に依存している。図-2に日本のリン鉱石の輸入国, 輸入量, 及びリン鉱石価格の推移^{2), 3)}を示した。

リン資源の原料となるリン鉱石の産出国は遍在しており, 輸出を制限している国もある。

我国の輸入国は, 中国, 南アフリカ, ヨルダン, モロッコ等に限定されている。

リン鉱石価格は, 2008年のリーマンショック時のレアメタル等の資源価格の高騰に伴い跳ねあがった(リンパニック)。

リンパニック以後, 輸入量は減少の傾向にあり, 価格も落ち着いてきている。

しかし, 国内のリン資源の供給源として可能性のある下水汚泥からのリン回収は以前にも増して期待が高まっている。

4. 生汚泥と余剰汚泥の成分比較

4-1 下水処理における金属類, 栄養塩類の挙動

図-3は水処理施設における汚泥の発生状況と従来から考えられている物質の挙動を示した。最初沈殿池汚泥(生汚泥)は, 主に流入水中の粒子状の物質が沈降したものであり, 有機物の他に重金属類(Fe, Al, Ca, Si, Pb, Zn等)も沈降物の形態をとって生汚泥に多く移行する。

一方, 下水中の大部分のリンはリン酸イオンとして溶解しており, 最初沈殿池において沈降すること

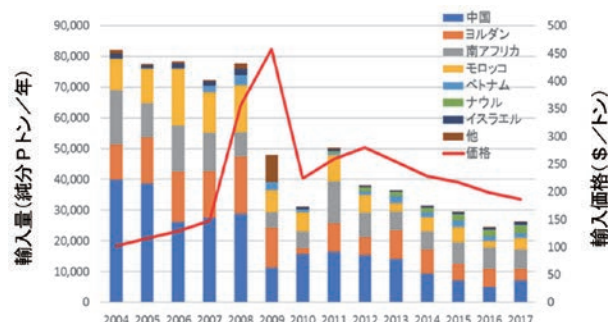


図-2 リン鉱石国別輸入量と輸入価格

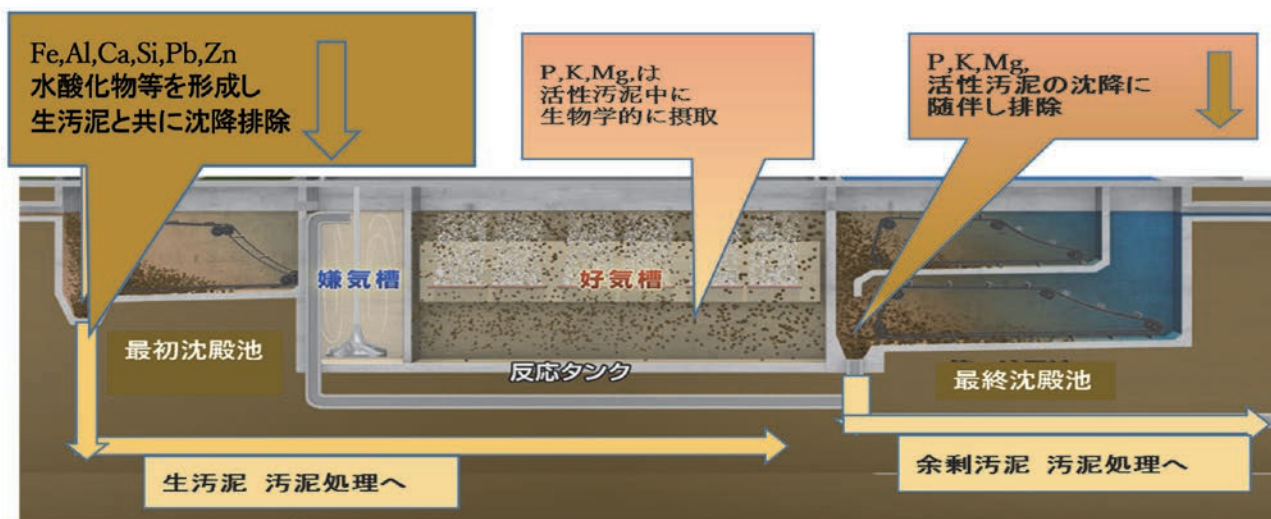


図-3 下水処理(AO法)における金属類、栄養塩類の挙動

なく、そのまま反応タンクに流入する。

反応槽に流入した溶解性リンはカリウム、マグネシウムと共に活性汚泥微生物の必須元素として菌体に取り込まれ、最終沈殿池において沈降し、余剰汚泥中に移行すると思われた。

このことを実証するため、区部と多摩地区の水再生センターで発生する生汚泥と余剰汚泥をそれぞれ採取し、試験室にて灰化した後、成分分析を実施した。

4-2 生汚泥と余剰汚泥焼却灰の成分分析調査

実施時期：2014年11月～2015年1月

実施場所：区部A水再生センター1カ所（合流式）
多摩地区、D、E、F、G 4カ所の水再生センター（いずれも分流式）

試料採取と前処理：

上記5カ所の水再生センターの生汚泥と余剰汚泥をそれぞれ6ℓ採取し、試験室において緩やかに加熱して水分を蒸発させたのち、105℃の乾燥機にて乾燥試料を得た。この乾燥試料を850℃の電気マッフル炉にて灰化試料を得た。

得られた灰について、表-1に示す分析項目及び分析方法により成分分析を行った。

本調査の前処理で得られた生汚泥と余剰汚泥の焼却灰9検体について、主要成分の濃度分布を図-4に、微量重金属類の濃度分布を図-5に示した。

また表-2に9検体の成分ごとの平均値、余剰汚泥への移行傾向、中国とモロッコの代表的なリン鉱石の含有量⁴⁾、及び焼却灰をリン資源として有効利用するにあたってのリン酸製造事業所からの品質要求基準を示した。

これらの図、表から生汚泥灰と余剰汚泥灰の成分の違いが明らかに認められた。

特に余剰汚泥焼却灰中のリン濃度は P_2O_5 で50%

表-1 調査水再生センター，検体数，分析項目及び

セン ター	合流式 分流式	検体数		分析項目及び分析方法
		生汚 泥	余剰 汚泥	
A	合流式	2	2	① P, Ca, Si, Al, Fe, Mg, Na, K, S : 蛍光X線分析法
D	分流式	2	2	② As, Se, Cd, Pb, Ni : 酸分解 ICP 質量分析法
E	分流式	3	3	③ Zn : 酸分解フレイム原子吸光法
F	分流式	1	1	④ Hg : 酸分解還元気化原子吸光法
G	分流式	1	1	⑤ Cr(III) : 全クロム、六価クロムからの計算法
				⑥ Cr(VI) : 水抽出ジフェニルカルバジド吸光光度法
検体合計		9	9	

近くに達しており、リン鉱石の P_2O_5 濃度35%前後よりも多くなっていることが注目される。

リンと同様にカリウム、マグネシウムも余剰汚泥灰に移行している。

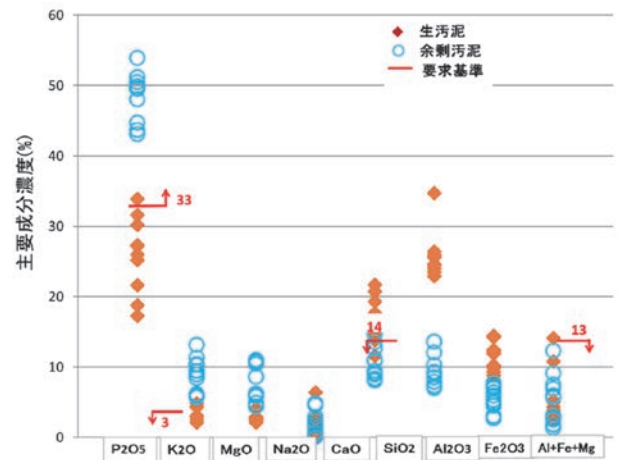


図-4 焼却灰中の主要成分の濃度分布

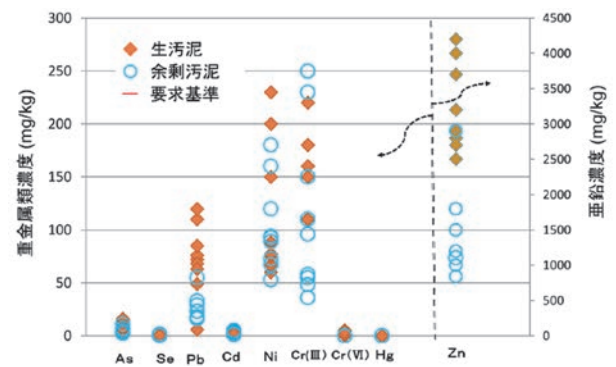


図-5 焼却灰中の重金属類の濃度分布

表-2 生汚泥と余剰汚泥焼却灰の成分比較とリン鉱石含有量及び品質要求基準

	生汚泥	余剰汚泥	余剰への 移行傾向	リン鉱石 含有量 ²⁾		品質要求 基準 ³⁾
試料/産出国	5センター各9試料 の平均			中国	モロッコ	
P_2O_5 (wt%)	26.7	48.9	→	34.4	36.8	33以上
CaO(wt%)	17.3	11.0	→	50.1	52.0	
SiO_2 (wt%)	25.7	9.3	→	3.3	1.5	14以下
Al_2O_3 (wt%)	11.0	4.9	→	1.1	0.3	Total 13 以下
Fe_2O_3 (wt%)	6.2	5.0	→	2.6	0.4	
MgO (wt%)	2.6	6.7	→	0.9	0.1	
Na_2O (wt%)	1.3	3.0	→	—	—	
K_2O (wt%)	2.3	9.7	→	—	—	3以下
SO_3 (wt%)	2.3	0.4	→	—	—	
F (wt%)	—	—	→	2.8	3.8	
As(mg/kg)	8.9	4.8	→			
Se(mg/kg)	0.9	1.2	→			
Pb(mg/kg)	72	27	→			30以下
Ni(mg/kg)	115	103	→			
Cr(III)(mg/kg)	212	115	→			
Cr(VI)(mg/kg)	1.9	ND	→			
Cd(mg/kg)	2.6	1.7	→			
Hg(mg/kg)	ND	ND	→			
Zn(mg/kg)	3200	1480	→			

・生汚泥と余剰汚泥焼却灰の成分濃度は2014年11月から2015年1月にかけて区部1センター、多摩地区4センターで採取・分析した全9試料の平均値
・品質要求基準はリン酸製造メーカーの下水汚泥焼却灰に対する品質要求基準

余剰汚泥は活性汚泥微生物が主体となっているのでリン、カリウム、マグネシウムは微生物の必須元素として取り込まれていることを示していると思われる。

一方、余剰汚泥焼却灰中のカルシウム、ケイ素、アルミニウム、鉄などの重金属類は生汚泥焼却灰の約半分程度になっている。

次に微量重金属類の濃度分布について考察する。

焼却灰の有効利用にあたっては、これらの微量重金属類の一層の低減が求められている。図-5、表-2から余剰汚泥灰中のヒ素、鉛、クロム（Ⅲ）、カドミウム、亜鉛は生汚泥焼却灰の1/2から1/3に低減している。

このことから、余剰汚泥焼却灰はリン鉱石の組成により近づき、リン回収にあたって有利な物性を有していることが確認できた。

4-3 生汚泥と余剰汚泥へのリンの分配量

4-2の調査で得られた生汚泥と余剰汚泥中のリン含有割合から、それぞれのリン量を試算する。

東京都の汚泥返流水の影響の少ない水再生センターの運転実績⁵⁾から、センターで発生する全汚泥乾物量を W_D (kg/D) とすると最初沈殿池で発生する生汚泥乾物量は $0.58 W_D$ 、余剰汚泥乾物量は $0.42 W_D$ となった。

東京都の汚泥有機分は年々上昇の傾向にあるが、ここでは両者ともに85%と設定した。

4-2の調査から生汚泥焼却灰と余剰汚泥焼却灰中の P_2O_5 含有量はそれぞれ26.7%、48.9%なので生汚泥と余剰汚泥中のリン量は次のようになる。

①生汚泥焼却灰中の P_2O_5 量：

$$(0.15 \times 0.58 \times 0.267) W_D = 0.0232 W_D$$

②余剰汚泥焼却灰中の P_2O_5 量：

$$(0.15 \times 0.42 \times 0.489) W_D = 0.0308 W_D$$

これから下水処理で発生するリン（流入水リン量－放流水リン量）は生汚泥焼却灰に43%、余剰汚泥焼却灰に57%の割合で移行すると試算された。

今後、水再生センターの高度処理導入が進みリン除去率の向上と汚泥返流水の負荷削減が実施されれば余剰汚泥焼却灰中のリン量は増加するものと思われる。

5. リン酸製造工場におけるリン酸及び石膏ボードの製造工程⁶⁾

ここで、日本のリン酸製造工場において輸入リン鉱石からリン酸を製造する工程について概説する。

リン鉱石は、フッ素アパタイトが主体で、一般的に $Ca_5(PO_4)_3F$ で示され、 P_2O_5 42%、 CaO 55%、

F3%の組成となっている。

リン酸製造工場では図-6に示すようにリン鉱石に硫酸を加え、リンは溶液中にリン酸として取り出し、リン鉱石中のカルシウムは硫酸と反応して硫酸カルシウム2水物（2水石膏： $CaSO_4 \cdot 2H_2O$ ）を生成して沈殿する。

沈殿した純度の高い硫酸カルシウムは別途、石膏ボード製造工場にて製品化している。

石膏ボードは耐火性、遮音性に優れており、家屋の壁材や天井材などの建築資材として広く用いられている。その使用形態から人に触れることがあるので、より安全で、仕上がりの美しさが求められ、汚泥焼却灰をリン鉱石代替え原料として用いるにあたって、表-2に示した厳しい品質基準が設けられている。

例えば有害重金属の鉛は30mg/kg以下であること、また、石膏中の硫酸カルシウムの良好な結晶形成を阻害する二酸化ケイ素は14%以下であること、同じくアルミニウム、鉄、マグネシウム酸化物の含量が13%以下であること、さらには石膏ボードの表面の仕上がりムラを生起させるカリウムは3%以下であること等となっている。

このようにリン酸製造工場ではリン鉱石の大部分を利用し、製造に伴う廃棄物はほとんど発生しないゼロディスチャージの形態をとっている。

6. リン濃度上昇に伴う焼却炉の閉塞現象の生起と薬剤添加による閉塞防止

近年、焼却炉廻りで焼却灰の溶融固着現象が発生し、閉塞することが頻発している。

東京都ではこの閉塞の原因と対策について調査を実施し、焼却灰中のリン濃度の上昇によりリンと結合して高融点の化合物を形成する金属類（Fe, Al, Ca, Mg）が相対的に不足し、低融点のリン化合物を形成して焼却炉内で一部熔融し、これが煙道などで冷やされ、固着して閉塞現象が発生することを説明¹⁾している。

東京都ではこの閉塞現象の防止のため、焼却前の汚泥に鉄分（ポリ鉄）を加えてリン酸鉄の高融点化

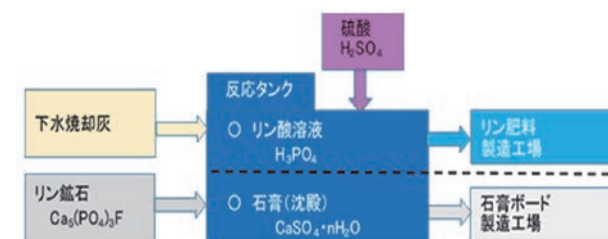


図-6 リン酸製造工場におけるリン肥料と石膏ボードの生産工程

合物を形成することにより、焼却炉廻りの閉塞を防止するようにしている。

この調査の中で、焼却炉の閉塞現象の生じ易さを判定するため①式に示す閉塞抑制指標 X の導入を行っている。

閉塞抑制指標 X はリンと高融点化合物を形成する Fe, Al, Ca, Mg の含量の比率を示し、X が 1 を下回るとリンに対する Fe, Al, Ca, Mg の含量が不足して、リンは K や Na 等との低融点化合物を形成して溶融と固結現象を発生し、焼却炉廻りの閉塞現象を生起している。

東京都では焼却灰の成分分析を行い、閉塞抑制指標値 X を計算し、指標値が 1 を下回り閉塞の発生が予測される場合は、指標値が 1 を超えるのに必要な鉄量を算定してポリ鉄の注入管理を行っている最近の焼却炉の運転管理においては、地球温暖化対策として焼却時に発生する一酸化二窒素を削減するため、高温焼却 (850℃) を採用するようになっている。これも閉塞発生の要因の一つ⁷⁾ になっている。

$$X = \left\{ \frac{Fe_2O_3}{M(Fe_2O_3)} \cdot 2 + \frac{Al_2O_3}{M(Al_2O_3)} \cdot 2 + \frac{CaO}{M(CaO)} \cdot 2 + \frac{MgO}{M(MgO)} \cdot 2 \right\} / \left\{ \frac{P_2O_5}{M(P_2O_5)} \cdot 2 \right\} \cdot \text{①式}$$

ここで、

- X [-] : 閉塞抑制指標値
 Fe_2O_3 [%] : 焼却灰の酸化鉄(Ⅲ)分析値
 Al_2O_3 [%] : 焼却灰の酸化アルミニウム分析値
 CaO [%] : 焼却灰の酸化カルシウム分析値
 MgO [%] : 焼却灰の酸化マグネシウム分析値
 P_2O_5 [%] : 焼却灰の五酸化二りん分析値
 $M_{(i)}$ [g/mol] : 化合物 i の分子量

7. 分離焼却における余剰汚泥焼却灰の品質改善と閉塞抑制手法の検討

表-2 に示したように、余剰汚泥焼却灰はリンが高濃度に含まれ、重金属類は少ないことを確認できたが、余剰汚泥焼却灰をリン鉱石代替品として用いる場合、①余剰汚泥専焼却炉廻りの閉塞防止、②焼却灰の品質の更なる改善を実現するために、汚泥処理施設のシステムの見直し及び手法を検討する必要がある。

筆者らは分離処理システムの構築にあたり、以下の課題に対応する調査を実施した、

7-1 システム構築の検討内容

1) 焼却炉の閉塞防止

現在、東京都では焼却炉の閉塞対策として焼却前の汚泥にポリ鉄を添加している。添加したポリ鉄の大部分は酸化鉄として焼却灰に残留する。焼却灰の有効利用にあたって、特にリン回収の観点から、鉄を用いることは難点があった。さらには、余剰汚泥を単独で焼却すると焼却炉は閉塞することが想定されるので、ポリ鉄に代わる閉塞抑制剤の使用を検討した。

2) 余剰汚泥焼却灰の品質改善

表-2 のリン鉱石と余剰汚泥焼却灰を比較すると余剰汚泥焼却灰は Ca 分が少なく、Si, Al, Fe, 分もまだ多く含まれ、Mg, K も集積している。

これをリン鉱石代替品として供給するには、Ca 分の補充とこれら重金属類の更なる削減が必要であった。

そのため、施設の改造が最小限度で済み、何らかの安価で手間のかからない薬剤を使用することにして、薬剤の選定と注入方式を検討した。

本文 6 で説明した焼却炉の閉塞抑制指標値 X を算定する①式から、閉塞抑制には Fe, Al, Ca, Mg

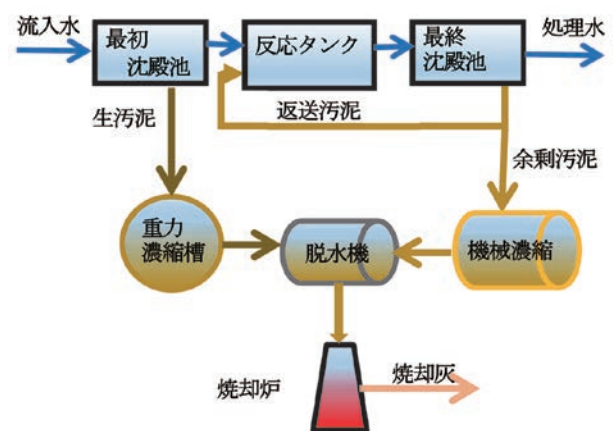


図-7 従来の汚泥処理フロー図

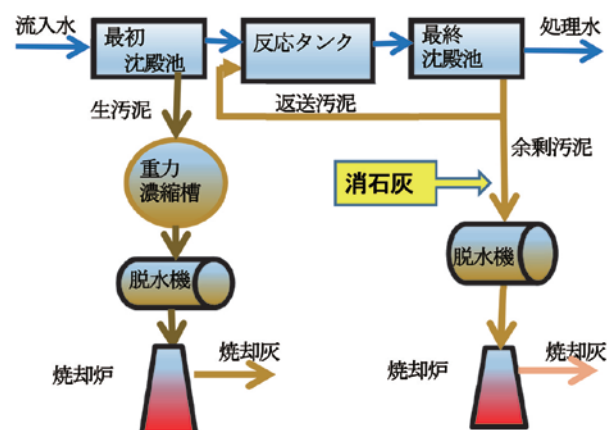


図-8 分離処理フロー図

の添加が有効であることを示しているの、焼却灰の品質改善手法としてカルシウムを用いることにした。

カルシウム剤としては消石灰、塩化カルシウム、炭酸カルシウム等が考えられたが、筆者らは反応性に富む消石灰が有効であると考え、脱水前の汚泥に消石灰を添加して焼却灰の品質改善効果を確認する調査を行った。

3) 汚泥の分離処理システムを構築

従来の汚泥処理システムは図-7に示すように生汚泥は重力濃縮、余剰汚泥は機械濃縮と別途濃縮し、脱水工程以降は両者を混合して処理するのが一般的である。

分離処理システムは図-8に示すように脱水工程以降も別途処理し、脱水前の余剰汚泥に消石灰を加えて脱水・焼却し、生汚泥焼却灰と余剰汚泥焼却灰を別々に焼却して資源化を図るものである。

7-2 消石灰添加調査⁸⁾

2016年6月から8月にかけて多摩地区のF水再生センターにおいて、処理能力15～60m³/h・台に対応する高効率遠心脱水機を設置し、F水再生センターの余剰汚泥を用いて消石灰添加試験を実施した。

表-3に試験に供する余剰汚泥の性状、及び脱水の目標性能を示す。

余剰汚泥の性状は、固形物濃度0.3～1.0%、有機分比は85%以下と設定し、高カチオン系高分子凝集剤を用い、注入率2.0%以下とした。

消石灰の添加は閉塞抑制指標が1を超える程度を想定し、脱水汚泥含水率は82%以下とした。

消石灰の添加量は、リンとカルシウム、鉄、アルミニウム、マグネシウム含量の比率が変化して閉塞抑制指標Xが1を超える程度を想定し、余剰汚泥に対し

Ca(OH)₂として0、300、450、600mg/Lの注入量で行った。

表-3 汚泥性状及び目標性能条件

汚泥性状	対象汚泥		余剰汚泥
	汚泥濃度 (%)		0.3～1.0
	有機分比 (%)		85 以下
目標性能条件	凝集剤	種別	カチオン系 (アミジン、非架橋系)
		形状	粉体
		注入率 (%)	2.0 以下
	品質改善薬剤		消石灰
	脱水汚泥含水率 (%)		82 以下
	処理能力 (m ³ /h・台)		15～60 m ³ /h・台

余剰汚泥、脱水汚泥の性状分析は下水試験方法により実施し、焼却灰の成分分析は4-2に示したように採取した脱水汚泥を試験室にて乾燥、灰化して得られた灰を表-1で示した分析方法で実施した。

7-3 消石灰の添加による焼却灰の品質向上

表-4は余剰汚泥に消石灰の添加量を変えた時の成分割合と閉塞抑制指標値のデータを、図-9に主要物質、図-10に微量重金属類の濃度変化を図示した。

表-4から余剰汚泥のpHは消石灰添加前の6.5から600mg/Lの8.0まで段階的に上昇した。同様に脱水汚泥の含水率は添加前の81.8%から79.4%まで減少し、有機分は86.0%から78.3%まで減少した。

焼却灰中の個々の成分の変化について見てみると、消石灰を添加する前の焼却灰中のP₂O₅濃度は49%であったが消石灰添加量を300、450、600mg/Lと増加するにつれ見かけ上41、39、35%と低下した。

CaOは消石灰添加前で9.6%だったものが、添加量を増やすにつれ当然のことながら含有量も増加し、600mg/L添加で39%まで増加した。

一方、SiO₂、Al₂O₃、Fe₂O₃はCaOの希釈効果等により減少している。

K₂Oは特異的に7.0%から1.3%まで大きく減少

表-4 消石灰添加率と汚泥性状、成分含有量の変化

消石灰添加率(mg/L)		0	300	450	600
余剰汚泥	pH(—)	6.5	7.3	7.6	8.0
	MLSS(mg/L)	5600	6580	4870	4900
脱水汚泥	含水率(%)	81.8	81.8	80.0	79.4
	有機分(%)	86.0	83.6	81.2	78.3
消石灰添加による焼却灰中の成分含有量の変化	P ₂ O ₅ (%)	49	41	39	35
	CaO(%)	9.6	26	33	39
	SiO ₂ (%)	12	10	8.4	6.9
	Al ₂ O ₃ (%)	7.1	6.4	4.4	3.8
	Fe ₂ O ₃ (%)	5.3	4.8	3.9	3.4
	MgO(%)	7.6	5.8	5.9	6.2
	Na ₂ O(%)	1	0.9	0.9	1
	K ₂ O(%)	7.0	3.4	2.6	1.3
	SO ₃ (%)	—	—	0.7	2.3
	Pb(mg/kg)	48	41	32	30
	As(mg/kg)	4.7	5.5	4.9	4.5
	Se(mg/kg)	—	—	—	2.9
	Cd(mg/kg)	3	3	1	1
	Hg(mg/kg)	ND	ND	ND	ND
	Ni(mg/kg)	130	110	88	73
	Zn(mg/kg)	2200	1900	1500	1400
	CrⅢ(mg/kg)	57	53	44	36
閉塞抑制指標(—)		0.65	1.02	1.14	1.39

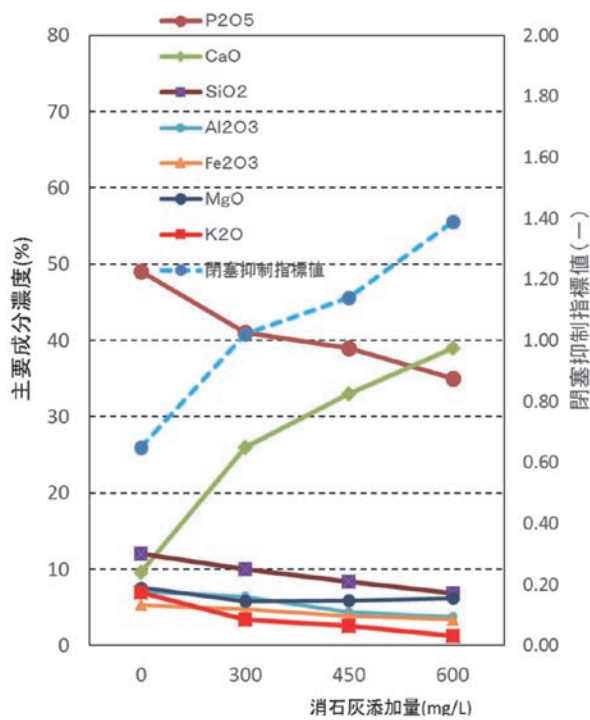


図-9 石灰添加による焼却灰中主要物質の濃度変化

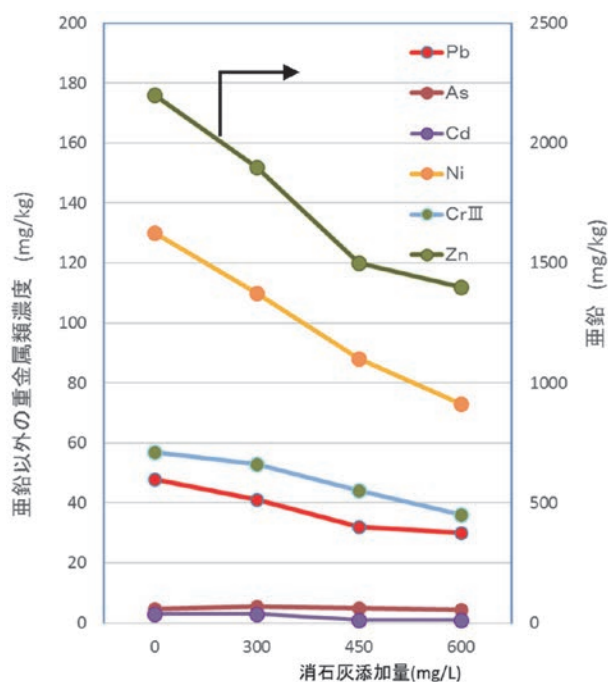


図-10 石灰添加による焼却灰中の重金属類の濃度変化

しているのが認められた。

微量重金属類で見ると Pb, Zn, Cr^Ⅲ, Ni の減少が認められ、消石灰による希釈効果等が確認できた。

閉塞抑制指標を見ると消石灰添加前は 0.65 だったものが消石灰添加量 300, 450, 600mg/L で 1.02, 1.14, 1.39 と増加し、消石灰添加量 300mg/L を超えると焼却炉の閉塞を防止することが可能であると推測された。

次に余剰汚泥に消石灰を添加して脱水、焼却した

時の焼却灰中の各成分の含有濃度の見かけ上の変化について考察する。

図-11 に本調査の結果において消石灰添加前の各成分濃度を 1 とした時の消石灰添加による見かけ濃度比（残存率）を示した。

計算残存率は、添加した消石灰 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ は全て CaO として焼却灰中に残存するものとし、余剰汚泥に消石灰を加えた時に各成分が液相中の溶解性基質の捕捉や固形分からの溶解が無ければ CaO によって単に希釈され、計算上の焼却灰中の各成分の残存率は消石灰添加量 300, 450, 600mg/L に対してそれぞれ 0.77, 0.69, 0.62 となる。

汚泥処理過程において消石灰添加による各元素の挙動として次の 4 群が考えられた。

- I 群：元々汚泥の固形分中に含まれ、 CaO によってそのまま希釈され、焼却灰中に残存するもの
- II 群：固形分中の元素が CaO によって完全に固定されるのではなく、若干、脱水ろ液側に移行するもの
- III 群：汚泥の固形分と液相中に分布している元素が Ca によって捕捉され焼却灰中に移行するもの
- IV 群：汚泥中に何らかの形で存在する元素が Ca と置換してろ液側に移行するもの

図-11 に示した各成分の実際の残存率は消石灰添加量を増やすにつれ I 群～IV 群に分散して減少している。添加量 600mg/L でみると、I 群としての Fe_2O_3 , $\text{Cr}^{\text{Ⅲ}}$, Pb, Zn は計算残存率とほぼ一致している。II 群としての Ni, SiO_2 , Al_2O_3 の残存率は 0.54 ~ 0.57 とやや低く、III 群としての P_2O_5 , MgO は 0.71, 0.82 と高い残存率を示した。IV 群の K_2O の場合、残存率 0.18 と特に低かった。

消石灰添加実験の結果から下水汚泥処理過程にお

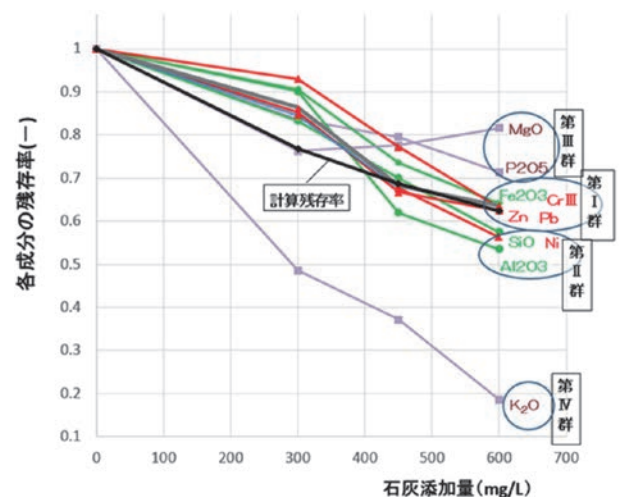


図-11 石灰添加時の成分残存率

いて消石灰を加えることにより、各成分はそれぞれ固有の反応形態を経て焼却灰の組成を示していることが想定された。

ともあれ、余剰汚泥に消石灰を添加することにより、焼却灰の品質向上をもたらし、リン資源としての有効利用へ有利に働くとともに、焼却炉まわりの閉塞防止に寄与することが確認できた。

8. 結論

- ①日本では資源としてのリンをすべて輸入に頼っていることから、国内で安定したリン資源の確保を図るため、下水からの積極的なリン回収は急務となっている。
- ②焼却灰中のリン濃度は経年的に上昇しており、焼却灰をリン資源として利用しやすくなっている。
- ③下水処理工程において発生する汚泥は、生汚泥と余剰汚泥があるが、その除去機構の違いから生汚泥には重金属類が集積し、余剰汚泥にはリン、カリウム、マグネシウムが集積している。
- ④今回の分離焼却の調査結果から水再生センターに流入するリンの43%は生汚泥に移行し、57%は余剰汚泥に移行するものと試算された。今後、高度処理の導入が進み、汚泥処理返流水の水質改善が図られ、リン除去効率がさらに改善されれば余剰汚泥に移行するリン量は、さらに増加することが想定される。
- ⑤近年の汚泥中リン濃度の上昇は、焼却炉廻りの閉塞現象を生起するようになっている。筆者らはこの現象を逆にとらえ、汚泥処理フローを見直し、生汚泥と余剰汚泥を分離して、余剰汚泥には消石灰を添加して焼却することにより、改質した余剰汚泥焼却灰をリン鉱石代替品として提供する手法を提案した。
- ⑥分離処理システムにより発生する生汚泥焼却灰は、リン濃度が少なく、従来通りのセメント原料、コンクリート二次製品原料として供給するメリットがより高まることが想定された。
- ⑦今回提案した分離処理システムは複数の焼却炉を必要とするが、余剰汚泥専焼却炉を設置できれば、従来の汚泥処理技術の範囲内で手間のかからない手法で余剰汚泥焼却灰を国産のリン資源とする道が開かれ、今後頻発する焼却炉の閉塞を防止し、さらに、生汚泥焼却灰のセメント原料化、コンクリート二次製品への適用が拡大できる等の利点を有している。

9. おわりに

下水汚泥の有効利用、特にリン回収については従来から様々な方式で取り組まれている。

下水道事業者が下水汚泥を資源有価物として活用する場合、既存施設の活用の範囲内でできるだけコストをかけないで、利用者の扱いやすい形態、品質で提供することが求められる。

世界的に見るとヨーロッパ、特にドイツでは、EU指令に基づく下水汚泥令を改正し、一定の猶予期間を設けて、下水汚泥または下水汚泥焼却灰からのリン回収を義務付け、下水汚泥の土壤利用を厳しく制限しようとしている⁹⁾。

わが国でもリン資源の確保は急務であり、下水汚泥からのリン回収事業は実施すべき段階にきている。今回提案した汚泥の分離処理によるリン回収技術は、実用化可能な技術の一つとして有望であることを確認した。

〈参考文献〉

- 1) 黒住光浩：「下水汚泥焼却炉の閉塞危険性評価方法及び閉塞防止方法」下水道協会誌実務論文、Vol.53 No.647.2016/09
- 2) 財務省貿易統計 <https://www.customs.go.jp/toukei/info/index.htm>
- 3) JOGMEC 鉱物資源マテリアルフロー 2018.33. リン
- 4) 大竹久夫：「リン資源の回収と有効利用」S & T 出版社、2009.11、pp.249 ~ 250
- 5) 東京都下水道局ホームページ「事業年報第2章区部下水道5維持管理 pp166 ~ pp188 https://www.gesui.metro.tokyo.lg.jp/business/pdf/H30_nenpo2.pdf
- 6) 用山徳美：「肥料用磷酸製造原料としての下水回収リンへの期待と要望」“再生と利用” Vol.34.No.127.2010/3、pp.171-177
- 7) 小泉僚平：「示差熱分析及び成分分析から見た焼却炉施設の閉塞についての一考察」第57回下水道研究発表会 pp1036-1038、2020
- 8) 冠城敏之、曾根啓一：「分離処理システム」による焼却灰の資源化技術の開発 “再生と利用” Vol.41 No.154.2017/1、pp.64
- 9) 山下喬子：「ドイツにおける汚泥処理の現状」“下水道協会誌” Vol.54 No.653 2017/03

(R2.8.31 受付)



そ ね けいいち
曾根 啓一
東京都下水道サービス(株)
技術部技術開発課 専門役



いわ さ ゆきとし
岩佐 行利
東京都下水道サービス(株)
技術部 顧問



む とう まこと
武藤 真
東京都下水道局 計画調整部
計画課長



ふじ え まさ き
藤江 正樹
東京都下水道局 計画調整部
技術開発課 統括課長代理



か とう ひろゆき
加藤 裕之
東京大学工学系研究科
都市工学専攻 特任准教授