

下水からのリン回収と高効率脱水処理 ～自立採算型リン回収プロセスを目指して～

萩野 隆生* 古賀 大輔** 築井 良治**

Phosphorus Recovery from Sewage and High Efficiency Sludge Dewatering - Toward the Development of a Self-supporting Phosphorus Recovery Process -

by Takao HAGINO, Daisuke KOGA, & Ryoji TSUKUI

Magnesium ammonium phosphate (MAP) particles are naturally produced in digested sewage sludge and typically discharged with dewatered sludge cakes during a sludge dewatering process. However, MAP can be reused as a fertilizer or a fertilizer ingredient if it can be separated and recovered directly from sludgebeing. In this study, two types of tests were conducted to verify the performance of a novel phosphorus removal process for MAP recovery. One was continuously conducted using a full-scale MAP separation plant equipped with a vibrating screen, a hydrocyclone, and a revolving cylindrical type flowing film separator. The other was conducted using a pilot-scale plant combining a MAP separation system and a sludge dewatering system. The test results have shown that the process can recover approximately 50% of phosphorus from sewage sludge and significantly improve sludge dewatering performance. It has also been found that the initial cost of the process may be covered by the reduction in maintenance costs.

Keywords: Phosphorus, Recovery, MAP, Sewage, Sludge, Dewatering, Fine particles, Hydrocyclone, Cost, Dewatered cake

1. はじめに

リンは生命活動に欠かせない必須元素でありながら、枯渇資源であり、我が国ではほぼ100%輸入にたよる物質である。リン鉱石は産出国上位5箇国で全体の約8割を占め、1, 2位の米中ともに戦略物資として輸出制限や関税の上乗せ等を行っている。リンは窒素、カリウムとともに肥料の三大要素であり、野菜、飼料、家畜等を経由して最終的に人間が摂取したリンはし尿として下水道に流れ下水処理場で処理される。リンは処理されずに河川等に放流されると環境に与える悪影響はBOD (Biochemical Oxygen Demand) の約100倍、窒素の約20倍のインパクトをもつ環境汚染物質であるため、下水処理場では「下水汚泥」という廃棄物の形態で下水から分離される。この「資源」であるとともに「廃棄物」であるリンを「除去する」から「回収する」への変換が循環型社会形成のためには重要となる。我が国において、

廃水や汚泥等からのリン回収技術の開発は40年以上前から行われているが、これまで提案されてきた多くの技術はほとんど普及していない。その大きな理由を2つ挙げると、一つはコスト面において [回収リンリサイクルコスト] > [リン資源輸入コスト] の関係から抜け出せない点、もう一つは「下水」のもつイメージ的なマイナス点である。このようなリン回収技術の課題¹⁾が残る中、国土交通省が推進するB-DASHプロジェクトでは、2012年から下水の嫌気性消化プロセスを利活用した複合バイオマス処理技術を革新的に見直すことによって、廃棄物からメタン等の再生可能エネルギーを創出し、同時にリン等の資源回収を実現する技術を確立、検証する試みがなされている。複合バイオマス処理技術とは廃棄物である下水汚泥、家畜糞尿、生ごみ、食品残渣、及び剪定廃材等の複合バイオマスを混合消化処理する方法であるが、消化プロセスに投入されるバイオマスの負荷が大きくなるほど消化汚泥中に残留するリン酸イオンの総量は増大する。このリン酸の多くは消化タンク内でリン酸マグネシウムアンモニウム (鉱物名: ストラバイト (Struvite), 通称名: MAP (Magnesium Ammonium Phosphate)) 粒子を形成し、この粒子状ストラバイトは汚泥の一部とし

* 水ing(株) 博士 (工学)

** 水ing(株)

本原稿は、「CERAMICS JAPAN」2014年1月号に掲載した内容を一部加筆・修正して転載した。

て脱水ケーキを経て焼却灰まで残留し有用リンとして回収されることはほとんどない。また、ストラバイトは配管閉塞や脱水機等のスケールを引き起こす原因物質であることから、汚泥処理においては除去すべき対象であるが、一方でストラバイトは肥料三元素のリンと窒素を等モルずつ含有する遅効性の優良な肥料という側面も持っている。これまで筆者らはこの汚泥中のストラバイト粒子をリン資源として効率良く回収すべくリン回収プロセスの最適化を行ってきた。本稿では筆者らがこれまで改良を重ねてきたリン回収プロセスの開発経緯の概略を示すとともに、最新の自立採算型リン回収プロセスのパイロットスケール実証試験結果及びコスト試算結果に関して報告する。

2. 下水からのリン回収技術の開発経緯の概略

リンを「除去する」から「回収する」への変換は社会的ニーズとしては1980年頃から高まりを見せ、接触脱リン法（HAP法）、生物学的脱リン法、MAP法、等が順次開発されてきたが、いずれも回収対象とするのは二次処理水や脱水分離水等の低濁度、低リン濃度プロセス水が主であった。回収対象は低濁度であるほど回収物純度は高く、高リン濃度であるほど回収率は高くなる。執者らは2002年から高濁度、高リン濃度の「下水汚泥」を回収対象としたリン回収プロセス開発に従事した。Phase1では数々のベンチスケール、パイロットスケールの試験を経てリン回収プロセスの確立を行い、Phase2では実際の下水処理場に建設したフルスケール実証プラントを稼働させ²⁾、2006年3月には当該プラントで下水汚泥から回収したリン含有粒子を化成肥料として肥料登録した。肥料登録によって当該リン回収物は高濁度の汚泥から回収した物質であるが有害成分が化成肥料としての規制値以下の低レベルであること及び高純度のリン含有率を有していたことが証明されたと言える。Phase3ではリン回収プロセスをリン鉱石代替用リサイクル品獲得のための単なる回収装置と位置付けるのではなく、新たな低コスト型下水処理プロセスの基幹装置として位置付け、汚泥からリンを除去することによって得られる様々なメリットを最大化するためのシステム改良を行い、パイロット試験等を経てコスト重視型システムとして再構築した。これは、裏を返せば冒頭で述べたようにリン回収装置単体では「回収リンリサイクルコスト」>「リン資源輸入コスト」の関係から抜け出せなかったことによる止むを得ない改良ではあったが、結果的には自立採算性が期待できるコスト競争力の高い水処理全体のプロセス開発に

繋がったと考える。現在はPhase4でありPhase3で確立したプロセスのフルスケール実証プラントが稼働中である。以下の3章及び4章では本プロセスのキーとなる工程でありPhase1, 2において実証した「汚泥からの微粒子状リン化合物の分離プロセス」、及びPhase3において本プロセスを自立採算性が成立する領域まで昇華させた「高効率リン回収脱水プロセス」について紹介する。

3. 下水汚泥からの微粒子状リン化合物の分離プロセス

下水汚泥は下水処理において下水から分離される汚泥であり、その主成分は生物学的水処理工程を担う活性汚泥系微生物群であるが、その他にも髪の毛、ゴマや藁等の植物系粒子の未分解残渣、金属硫化物系微粒子の一部、発酵プロセスで発生したストラバイト系微粒子等が混在する。汚泥の粘度は70 mPa・s程度あり、回収対象物であるストラバイト系微粒子は密度1.7 g/cm³であることから、汚泥からストラバイト微粒子を分離できる回収限界粒子径は液体サイクロン等の物理選別機のスペック上10 μm程度（以後、粒径10 μm以上のストラバイト粒子を「粗MAP」と呼ぶ）となる。図1はPhase2のフルスケール実証試験において、汚泥1 ℓ当たり0.79 gの粗MAPを含有する下水汚泥を用いた粗MAP回収工程処理フロー、表1はMAP分離試験条件、表2はMAP分離試験結果である。振動ふるいで汚泥中の夾雑物を除去し、液体サイクロンにより粗MAPを濃縮し、微粒子用の比重選別機であるMulti Gravity Separator (MGS) で粗MAPとそれ以外の微粒子を分離することで、システム全体として粗MAP回収率：92.8%で粗MAPを回収することが実証

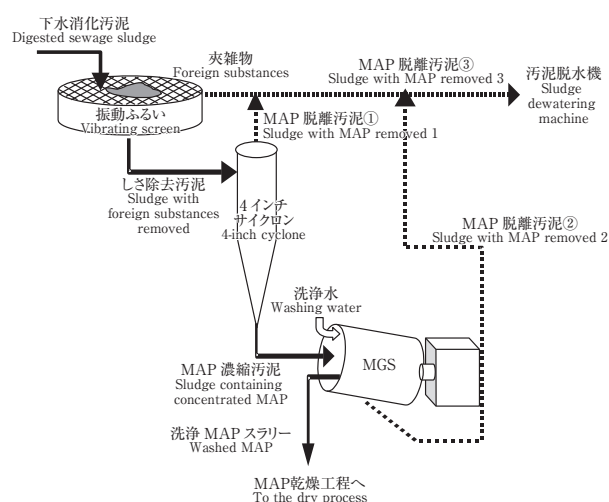


図1 フルスケールMAP回収プラントの処理フロー
Fig. 1 Flow sheet for the full-scale MAP recovery plant

表1 MAP分離試験条件（フルスケール試験）

Table 1 Conditions of the full-scale MAP separation test

汚泥種類 Sludge category	下水嫌気性消化汚泥 Anaerobic digested sewage sludge
粗MAP濃度 Coarse MAP concentration	0.79 g/L (汚泥1L当たり) (per liter of sludge)
汚泥処理流量 Feed flow rate	19.1 m ³ /h
振動ふるい装置 Vibrating screen	有効ろ過面積：0.8 m ² Effective filtration area
液体サイクロン Hydrocyclone	4インチ型 4-inch

表2 MAP分離試験結果

Table 2 Results of the full-scale MAP separation test

装置 Equipment	粗MAP回収率 Recovery rate of coarse MAP
振動ふるい Vibrating screen	98.5%
液体サイクロン Hydrocyclone	97.0%
MGS Multi gravity separator	97.1%
システム全体 Whole system	92.8%

できた²⁾。本実証試験の結果から、汚泥中のPO₄-P等の他のリン成分をできるだけ多く10 μm以上のストラバイト粒子に晶析させることで汚泥中リンからの回収量を増大させることが可能となることが立証できた。汚泥中のリン成分の粗MAP化技術に関しては次章で述べる。

4. 高効率リン回収脱水プロセス

下水処理において下水中のリンを回収・除去すること

によって得られる主なメリットとしては、リン除去用薬剤の軽減、スケール抑制、汚泥系廃棄物（脱水ケーキ）の減量化、汚泥系廃棄物のセメント原料化率向上等がある。Phase3ではリン除去・回収処理によって得られるこれらの効果の定量化を行い、それらを最大化することを目的とするシステム改造を行うことでシステム全体の費用対効果を高めた。具体的にはリン回収工程後の「汚泥脱水処理」に着目し、処理場から搬出される実際の廃棄物形態である脱水ケーキの減量化、言い換えれば廃棄物処分費の削減を目的として、「高効率リン回収」と「高効率脱水処理」を組み合わせた低コスト型システムを構築し、パイロットスケールの24 h連続試験を延べ11日間にわたり行い実証した。以下にパイロット試験結果に関して述べる。

4-1 実験方法

図2に脱水ろ液返送方式－汚泥型MAP回収システムの処理フロー、図3に実験装置の概観写真を示す。本システムは、消化汚泥から直接リン成分を回収する汚泥型MAP回収装置と、スクリープレス脱水機を組み合わせた汚泥処理システムである。汚泥型MAP回収装置は、完全混合型晶析リアクタと汚泥とMAPを分離するMAP分離装置で構成されており、消化槽内で自然発生したMAP粒子と該リアクタ内で結晶化したMAPを同時に回収することが可能な装置である。本装置はPhase2の処理規模50 m³/d × 780 dのフルスケール実証試験において消化汚泥中リンの約3割を安定的に回収できることを実証済み³⁾である。本パイロット実験での処理流量は5.4 m³/dで24 h連続運転とした。添加剤はMg源として

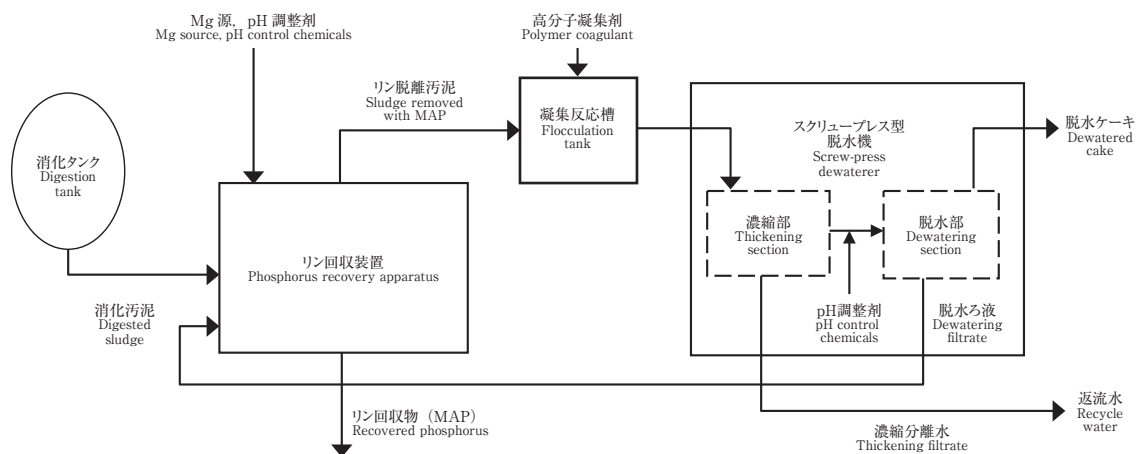


図2 脱水ろ液返送方式－汚泥型MAP回収システムの処理フロー

Fig. 2 Flow sheet for recovery of MAP from digested sludge through the circulation of dewatering filtrate

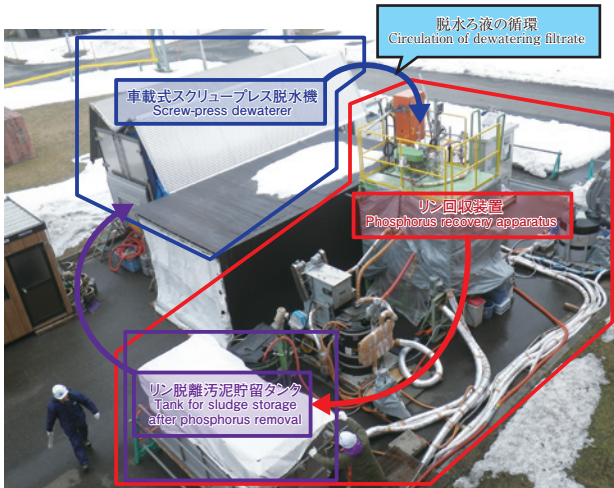


図3 パイロット実験装置の概観
Fig. 3 Pilot-scale MAP recovery test plant

Mg(OH)₂溶液, pH調整剤としてH₂SO₄溶液を使用し, 設定pHを8.1として運転した。脱水機は, リン回収後のリン脱離汚泥に対して高分子凝集剤によって調質し, 濃縮部において濃縮した濃縮分離水を返流水として系外に排出し濃縮汚泥を脱水部に導入した。脱水部ではスクリープレス機内に投入される直前の該濃縮汚泥に対してpH調整剤を添加混合した。スクリープレス機内で脱水された脱水ケーキは系外に排出し脱水ろ液は前段の汚泥型MAP回収装置に返送するシステム構成とした。スクリープレスは直径300 mmの軸摺動型, ポリマ添加率は1.7% (to TS), pH調整剤としては希硫酸を主成分とする薬剤を使用し脱水ろ液のpHが基準値として5.0となるように調整した。本プロセスの評価方法はリン回収率 (%)で行い, 本プロセスに導入される消化汚泥のリン負荷量に対してプロセスの系外に排出される脱水ケーキ及び返流水中のリン排出量を差し引いた値を本プロセスによるリン回収量と考え, リン回収率Rrを以下の式1.1に示す式で表されるものとした。本実験は2012/2/23～3/22の期間にA下水処理場内において行った。図4にA下水処理場汚泥のリン分画を示す。本プロセスによって, 汚泥中のPO₄-Pは汚泥型MAP回収装置においてMAP粒子に晶析し, 粒径10 μm以上の粗MAP粒子は該装置のMAP分離装置によって回収され, 粒径10 μm未満の微細なMAP粒子を含む汚泥は脱水機投入前の希硫酸添加によって酸溶解してPO₄-Pの形態で汚泥型MAP回収装置に返流しMAP粒子化される。すなわち本プロセスによってA下水処理場汚泥中全リンの62%に相当するリン成分が回収対象リンとなり, 回収されたリン成分は従来脱水

ケーキ中物質として排出されていた物質であることからその分ケーキ中固形物量は減少することが見込まれた。
…式1.1

$$\text{回収率 } R_r (\%) = \left(1 - \frac{([T-TP] \times [T-Q]) - ([AF-TP] \times [AF-Q])}{([R-TP] \times [R-Q])} \right) \times 100$$

リン回収率: Rr [%]

原汚泥 Total P: R-TP [mg/L]

原汚泥流量: R-Q [m³/h]

処理汚泥 Total P: T-TP [mg/L]

処理汚泥流量: T-Q [m³/h]

酸溶解脱水ろ液 Total P: AF-TP [mg/L]

酸溶解脱水ろ液流量: AF-Q [m³/h]

4.2 実験結果

表3にパイロット実験結果のまとめを示す。本プロセスによって消化汚泥中のリンを平均値として47.7%, 最大値として55.5%回収することが可能であった。脱水プロセスにおいて, 図5の濃縮汚泥pHと各種溶解性成分濃度の関係に示すように濃縮汚泥のpHを8→5に低下させて微細粒子状のMAPを溶解させ前段の汚泥型MAP回収装置に返送し粒径の大きいMAP粒子として再合成する方式を採用することによって汚泥型MAP回収装置の回収率を従来までの約30%から約50%に大幅に向上することが可能となった。図6に本パイロット試験でのリンの物質収支を示す。また, 本実験期間におけるスクリープレス脱水機としての脱水性能は, ポリマ添加率1.7%, 硫酸成分添加率3.7%, 処理速度26.2 kg/hの運転条件においてケーキ含水率77.4%であった。写真に脱水ケーキの概観写真を示す。

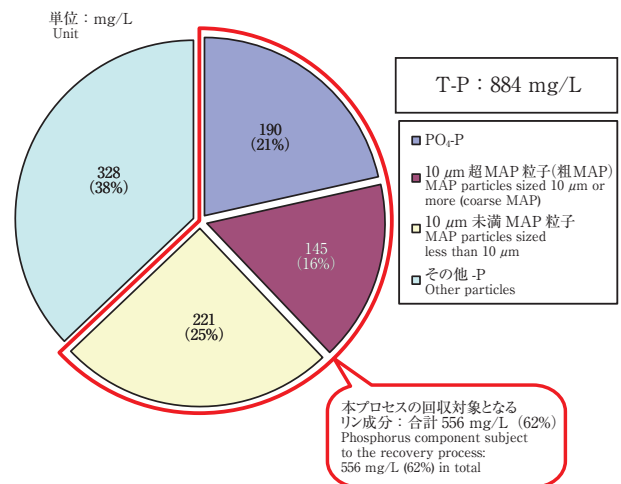


図4 A下水処理場汚泥のリン分画
Fig. 4 Phosphorus component in sewage sludge at the treatment plant A

表3 パイロット試験結果

Table 3 Results of the pilot-scale MAP separation test

試験期間 Test period	2012/2/23 ~ 3/22	
運転日数 Days of operation	11 d	
運転時間 Operation hours per day	24 h/d	
処理量 Feed flow rate	5.4 m ³ /d	
処理汚泥 pH pH of treated sludge	8.2	
T-P	消化汚泥 Digested sludge	769 mg/L
	MAP処理汚泥 Sludge with MAP removed	466 mg/L
	脱水ろ液 Dewatering filtrate	1125 mg/L
	処理水 Treated filtrate	14.2 mg/L
リン回収率 Phosphorus recovery rate	47.7%	



14-01 01/243

写真 脱水ケーキの概観

Photo Dewatered sludge cake

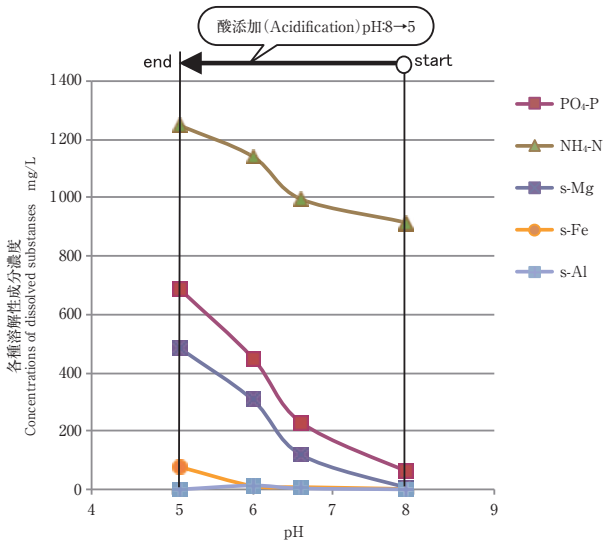


図5 濃縮汚泥 pH と各種溶解性成分濃度の関係

Fig. 5 pH of thickened sludge vs. concentrations of dissolved substances

5. コスト評価

前章でのパイロット実験結果の結果を基に、流入下水：10万 t/d 規模の A 下水処理場を例として本プロセス導入によるコスト削減試算を行った。本コスト試算は、汚泥性状、ケーキ処分費、薬剤単価等によって試算結果が異なるが本報告では A 下水処理場での実績値を参考にした。コスト試算結果を表4に示す。汚泥脱水ケーキ処分費は、リン回収によって汚泥固形物発生量が約10%減少し、脱水ケーキ含水率が80.5%から77.4%に減少したことによって、ケーキ発生量が約23%削減しコスト削減額は3370万円/年に達した。その他、水処理系リン除去用薬剤費削減額として1650万円/年、脱水機スケール対策費削減額として110万円/年となった。このコスト削減合計推定額：5130万円/年は、本リン回収プラント全体を15年償却、建設費補助金1/2として算出した場合の総

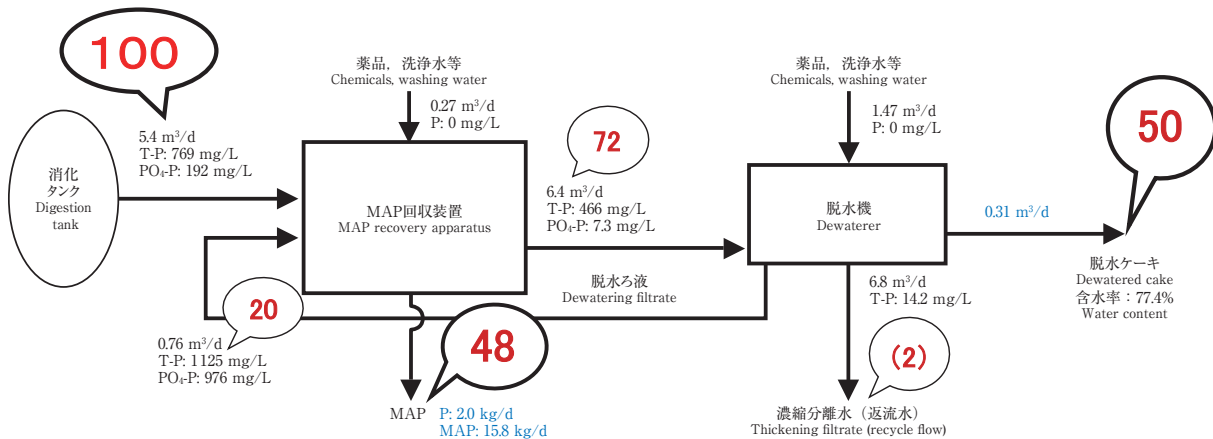


図6 リンの物質収支

Fig. 6 Mass balance of phosphorus

表4 リン回収システム導入によるコスト評価
(流入下水：10万 t/d規模)

Table 4 Estimation of the cost reduction by using the phosphorus recovery system
(Sewage influent: 100000 t/d scale)

項目 Item	コスト削減率 Rate of cost reduction	コスト削減額 Amount of cost reduction
①汚泥脱水ケーキ処分費 Cake disposal costs	20%	33700千円/y
②水処理系リン除去用薬剤費 Chemicals costs for phosphorus removal	75%	16500千円/y
③脱水機スケール対策費 Costs for dewaterer scale removal	65%	1100千円/y
合計 Total	-	51300千円/y

単価：汚泥処分費：16千円/t, 高分子凝集剤：700円/kg, 電気代：12円/kWh, 水酸化マグネシウム35%：32円/kg
【Unit cost】 Cake disposal cost: ¥16000/t, polymer coagulant: ¥700/kg, power cost: ¥12/kWh, Mg (OH)₂ (35%): ¥32/kg

費用（イニシャルコスト+ランニングコスト）を大幅に上回っており、15年の費用対効果がプラスとなる予測となっている。また、回収したリンに関しては引き取り価格の設定方法が確定していないことから本試算では暫定的に回収リン売却益を含めていないが、リン鉱石相応等の有価での買い取りが実現すれば更にその分を含めた費用対効果が高まることは言うまでもない。以上の結果から、本リン回収システムは自立採算性が見込めるシステムとなる可能性が高いことが推測された。

6. おわりに

本稿では筆者らがこれまで改良を重ねてきたリン回収プロセスの開発経緯の概略を示すとともに、最新の自立採算型リン回収プロセスのパイロットスケール実証試験結果及びコスト試算結果に関して報告した。著者らは、実際の下処理場に建設したフルスケール実証プラントを稼働させ、下水汚泥から物理選別によって回収したリン含有粒子（MAP）を肥料登録し、回収したMAPは有害成分が化成肥料としての規制以下の低レベルであること及び高純度のリン含有率であることを示すとともに、脱水ろ液返送方式-汚泥型MAP回収システムを構築し、リン回収率を大幅に向上できることを明らかにした。本リン回収システムは自立採算性が見込めるシステムとなる可能性が高く、現在進行中のフルスケール実証試験によって詳細なFeasibility Study（FS評価）を行う予定である。

参考文献

- 1) 国土交通省都市・地域整備局下水道部 / 「下水道におけるリン資源化の手引き（2010）」
- 2) 萩野隆生, 平島剛, 環境資源工学, 52, 172-182 (2005).
- 3) 島村ら, 化学工学論文集, 第35巻, 第1号, pp.127-132, 2009.