# ナトリウム法による下水汚泥焼却灰からのリン回収の効率化に関する実験的検討

大同大学大学院　学生会員　○　葉　妹燦
大同大学　正会員　堀内　将人

## 1. はじめに

現在、リン鉱石は戦略物質と位置づけられており、国際価格は上昇を続けている。日本はリン鉱石をすべて輸入しており、2010 年のリン鉱石輸入量は約 31 万トンである。一方、下水及び下水汚泥中には約 5 万トンのリンが含まれ、その多くは回収されず処分されている。それらを効率的に回収し再利用することができれば、国内でのリンの安定供給への寄与は非常に大きい。本稿では、N 市内の S 下水汚泥処理場から排出された汚泥焼却灰（以下、焼却灰）に宇城 [1]が提案した「ナトリウム法」を適用し、リン回収率を向上させるために、リン溶出時の撹拌条件およびリン回収時の NaOH 添加量等について検討した結果を報告する。

## 2. ナトリウム法とは

ナトリウム法はアルカリ溶液で焼却灰からリンとアルミニウムを選択的に溶出させ、溶出液に NaOH を添加して放冷することでリンを $Na_3PO_4$ として結晶化させて回収する。

## 3. 溶出工程における効率的撹拌

### 3-1 実験方法

100mL 容のポリビンに液固比 5L/kg(焼却灰 10g)、NaOH 添加率が 9%の試料を 4 組、250mL 容のポリビンに液固比 5L/kg(焼却灰 20g)、NaOH 添加率が 9%の試料を 1 組つくる。合計 5 組の試料に、各々以下の撹拌操作を行う：①水平振とうのみ（50℃、1 時間)、②エアー曝気（20 分）→水平振とう（50℃、1 時間)、③回転撹拌（20 分）→水平振とう（50℃、1 時間)、④回転撹拌（10 分）→エアー曝気（10 分）→水平振とう 50℃、1 時間)、⑤回転撹拌+エアー曝気（20 分）→水平振とう(50℃、1 時間)。撹拌を終えた試料は、0.45μm のメンブレンフィルターで吸引ろ過を行い、ろ液をポリビンに採取する。ろ紙上に残留した焼却灰は精製水で洗浄し、洗浄水もろ液に加える。ろ液中のリン濃度をイオンクロマトグラフ分析器で測定する。なお、同一条件の実験は 2 セット同時に行った。

### 3-2 結果および考察

実験結果を**図–1** に示す。溶出率は平均値である。水平振とうのみによる溶出より、曝気操作を加えた方が溶出率は約 2%上昇した。回転撹拌を施した場合は、さらに溶出率が約 2%向上した。溶出率が最も高いのは回転撹拌+曝気→水平振とうの場合であり、溶出率は 75.8%であった。回転撹拌後に曝気した場合も 75.4%の高い溶出率を示した。以上の結果から、最も効率的な溶出操作は回転撹拌+曝気→水平振とうだと言える。

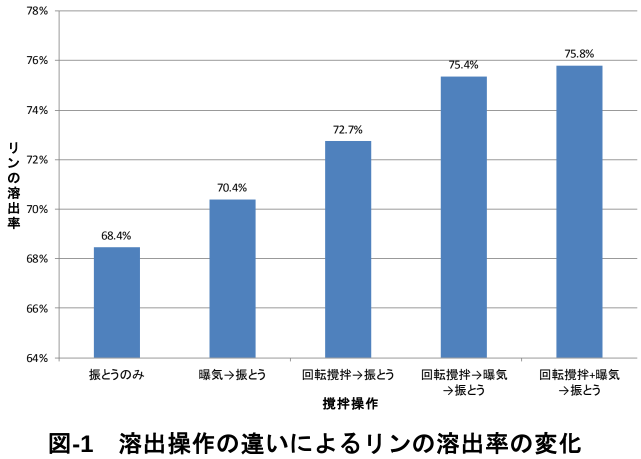


**図-1　溶出操作の違いによるリンの溶出率の変化**

回転子による回転撹拌によって、焼却灰はポリビンの底から浮上するとともに、エアーポンプから放出する泡によって分散し、アルカリ溶液との接触面積が大きくなる。そのため、他の撹拌方法より、回転撹拌+曝気→水平振とうが最も撹拌効果がよく、溶出率が高くなったと考えられる。

## 4.　ナトリウム法によるリン回収の効率化

### 4-1 実験方法

キーワード　下水汚泥焼却灰、リン回収、ナトリウム法、効率化実験
連絡先　〒457-8532　愛知県名古屋市南区白水町 40 大同大学　TEL 052-612-5571

ナトリウム法によるリン回収操作をフローチャートにして、図-2 に示す。フローチャート中で操作に太枠を付した箇所が、効率化のために本研究で新たに実施した操作である。従来の方法と大きく異なる点は，①室温（5℃～10℃）でリン溶出液を放冷し、温度による溶解度の違いを利用した回収を 1 段目に実施したこと、②リン回収後に NaOH を添加し、アルミン酸ナトリウム溶液のアルカリ濃度を 2.25mol/L に調整したこと、の 2 点である。フローチャートに示す回収操作を 3 回繰り返した。

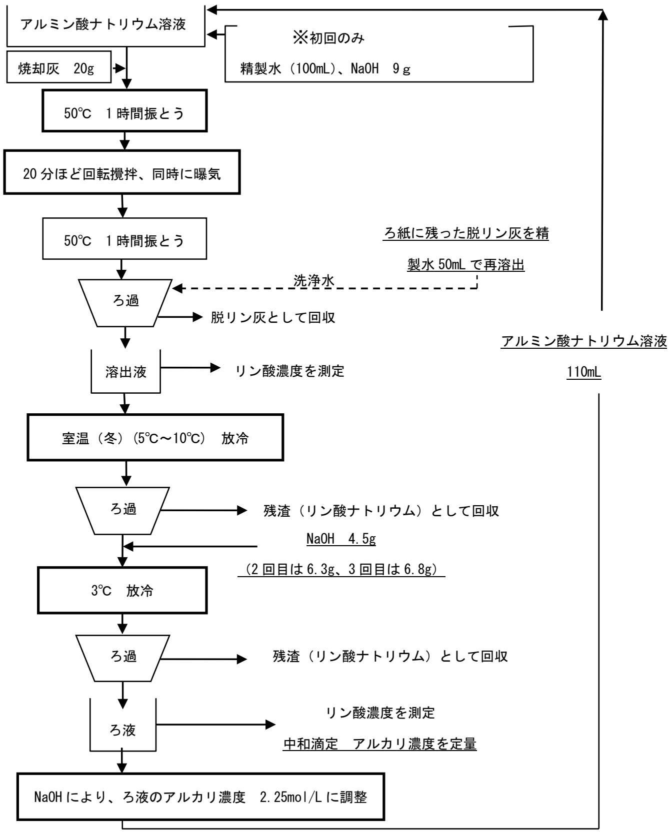


**図-2　ナトリウム法のリン回収フローチャート**

### 4-2 結果および考察

実験結果をリン溶出工程と回収工程に分けて、表-1、表-2 に示す。2 回目と 3 回目のリン溶出液には、前回の回収工程で回収されず溶液中に残留したリンが含まれている。そのため、2 回目、3 回目に投入した焼却灰からのリンの溶出量は、溶出液中のリンの量から前回からの残留分を差し引いて補正している。本研究では上記の効率化を実施したことにより、前報 2)での溶出率（約 40%）よりも約 1.7 倍高い溶出率を得た。また、3 回繰り返しにおけるリンの溶出率は、67%付近で安定している。ただしリンの溶出率は、2 章の効率化実験での最高溶出率 75.8%よりも約 9%低い。このような結果は，前報 2)でも同じであった。2 回目と 3 回目の溶出率（補正後）が 65%と 67%であるのに対して､焼却灰からのリン回収率（残留分を含む）は 64%、65%と溶出率にかなり近い。2 回目以降、焼却灰からのリン回収率を 65%付近で安定させることができれば、繰り返し回数を増やすことによって平均回収率も 65%に近づくことが期待できる。その場合、溶出液からの平均リン回収率は 97%という高い数値に達する。

**表-1　リン溶出工程の実験結果**

| 回数 | リンの溶出量(mg) 前回残留補正前 | 前回残留補正後 | 全量濃度(mg) | 溶出率 前回残留補正前 | 前回残留補正後 |
|---|---|---|---|---|---|
| 1回目 | / | 967 | 1434 | / | 67% |
| 2回目 | 1133 | 937 | 1434 | 79% | 65% |
| 3回目 | 1129 | 968 | 1434 | 79% | 67% |
| 平均 | / | 957 | / | / | 67% |

**表-2　リン回収工程の実験結果**

| 回数 | 固形物中のリン総量(mg) 放冷回収 | 薬品回収 | 合計(mg) | 溶出液中のリン総量(mg) | 溶出液からの回収率 放冷回収 | 薬品回収 | 合計 | 焼却灰からの回収率 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 1回目 | 353 | 374 | 727 | 967 | 37% | 39% | 75% | 51% |
| 2回目 | 484 | 436 | 920 | 1133 | 43% | 38% | 81% | 64% |
| 3回目 | 443 | 484 | 927 | 1129 | 39% | 43% | 82% | 65% |
| 平均 | 427 | 431 | 858 | 1076 | 39% | 40% | 79% | 60% |

### 5. おわりに

2章の実験は秋（9月～10月）、3章の実験は冬（11月～12月）に実施した。したがって、室温条件が5℃～10℃程度異なる。3章の実験では、溶出工程において初めに50℃で1時間水平振とうを、回収工程では室温放冷を操作に加えた。これらの操作により、リン溶出率と回収率を高い値に保つことができた。言い換えると、ナトリウム法によるリン回収では、温度制御が重要であることがわかる。今後は温度管理をどのように位置づけ、どのように一般化するかが課題として挙げられる。また、効率的な回転攪拌・曝気時間や、回収したリン酸化合物の具体的な用途についても検討していく予定である。

### 参考文献

1) 宇城硯弥：川崎市における下水汚泥からのリン回収の現状と課題、再生と利用、Vol.26、No.98、pp.52-57、2003
2) 葉妹燦他：ナトリウム法による下水汚泥焼却灰からのリン回収に関する実験的検討、土木学会第 66 回年次学術講演会、pp.291-292、2011