

令和 3 年 6 月 23 日現在

機関番号：33401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04412

研究課題名(和文) 資源・エネルギー回収を最大化する下水処理システムの開発

研究課題名(英文) Development of the sewage treatment system to maximize resource and energy recovery

研究代表者

高島 正信 (Takashima, Masanobu)

福井工業大学・工学部・教授

研究者番号：30257498

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、下水中の有機物、窒素およびリンを、それぞれメタン、アンモニア、リン酸として資源・エネルギー回収する処理システムの開発を目指した。下水については、ふるい過やAl系凝集剤を適用し、SSとリンの前濃縮に適切な条件や課題を明らかにした。下水汚泥からエネルギー回収する嫌気性消化においては、高濃度化や前加熱処理により汚泥分解率とガス発生率の改善が見られた。これにアンモニアストリッピングと水酸化鉄系リン酸吸着剤を組み合わせると、アンモニア阻害の緩和と約21%のN回収、約73%のP回収が可能であった。また、活性炭と鉄( )の添加は、微生物活性の向上と消化液の脱色に効果的であった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

国土交通省の下水道ビジョンは、『従来の下水を排除・処理する一過性のシステムから、集めた物質等を資源・エネルギーとして活用・再生する循環型システムへと転換する必要がある』としている。下水処理システムを資源・エネルギー回収型に転換し、有機物に窒素・リンを含めて総合的に検証するところに本研究の学術的および社会的意義がある。

研究成果の概要(英文)：This research aimed to develop a sewage treatment system that maximizes resource and energy recovery as methane, ammonia and phosphate. For sewage, sieving and aluminum coagulation were examined, and appropriate operating conditions and issues were clarified. Regarding anaerobic digestion of sewage sludge, high-solid digestion and thermal pre-treatment enhanced organic decomposition and biogas production. Ammonia stripping and phosphate adsorption with iron hydroxide, when combined with the anaerobic digestion, made it possible to alleviate ammonia inhibition and to recover about 21% of N and about 73% of P from sewage sludge. The addition of activated carbon to the digester and ferric iron to dewatering was effective in improving microbial activity and decolorization of digested sludge liquor.

研究分野：土木環境システム

キーワード：下水 下水汚泥 嫌気性消化 アンモニアストリッピング リン酸吸着 バイオガス 窒素リン回収

### 1. 研究開始当初の背景

わが国では下水道普及率が約 **80%**に達し、下水は **1人**あたり約 **0.5m<sup>3</sup>/日**、下水汚泥は合計約 **220万**乾燥トン/年排出されている。産業廃棄物である下水汚泥については、有機物はその約 **8割**を占め、バイオマスとしての再利用割合が約 **25%**にすぎない。国土交通省の下水道ビジョンは、『循環のみち下水道』というスローガンのもと、『従来の下水を排除・処理する一過性のシステムから、集めた物質等を資源・エネルギーとして活用・再生する循環型システムへと転換する必要がある』としている。しかしながら、活性汚泥法による従来型下水処理システムは、有機物を主対象に水処理系は良好な処理水を得ること、汚泥処理系は減量・安定化することが最優先であるため、資源・エネルギーの回収には向いていない。したがって、現在の処理レベルを維持しながら、不足しがちな資源・エネルギーを下水から回収するシステムを新たに構築する必要がある。

### 2. 研究の目的

本研究は、下水中の有機物、窒素およびリンについて、それぞれバイオガス(メタンを約 **60%**含む再生可能エネルギー)、アンモニア化合物、リン化合物として、資源・エネルギー回収を最大化する下水処理システムの開発を目指すものである。

具体的には、水処理系で効率的な一次処理法を採用して従来型の汚濁物質フローを変更するとともに、優れた回収プロセスを組み合わせることで除去・分解型から回収型へ転換する。また、二次処理へ移行する汚濁物質が減り、難分解性である余剰汚泥の生成が抑えられる結果、汚泥処理系ではより汚濁物質が集積し、バイオガス化が向上するとともに資源・エネルギー回収が行いやすくなる。一般に、高濃度にある方が、物質の回収は容易になる。また、最終処分される汚泥量が削減されるというメリットも出てくる。以上のように、一次処理をはじめとした単位プロセスの種類と組み合わせを工夫し、有機物に窒素・リンを含めて資源・エネルギー回収型に転換した下水処理システムについて実験的に検証する。

### 3. 研究の方法

#### (1) ふるい分離

実下水のふるい分離は、**53、106、250、500、1,000 μm**の金属ふるいと孔径 **11 μm**(Whatman No.1)および **22 μm**(Whatman No.5A)のろ紙を用いて実施した。ふるい分離後、ろ液の **SS**を測定した。

#### (2) カラム吸着

吸着カラムとして、内径 **11 mm**、長さ **50 mm**のアクリル樹脂製カラムを用いた。アンモニア吸着剤としては、最も一般的なゼオライト(天然ゼオライト **5~10 mm**; (株)チエ)を採用し、粉碎して粒度 **0.6~2.0 mm**に調整後、カラム当たり **10 g**乾重投入した。リン酸吸着剤は、産業廃棄物のリサイクルとして福井市内浄水場から排出された浄水汚泥を採用した。この場合も粉碎して粒度 **0.6~2.0 mm**、投入量は **10 g**乾重(DW)とした。

#### (3) 下水汚泥および濃縮

供試下水汚泥は、福井市内下水処理場(標準活性汚泥法を採用)からおよそ **2**カ月毎に別々に採取し、冷蔵保存した生汚泥と余剰汚泥である。遠心濃縮によってそれぞれ濃縮し、全固形物質(TS)の量比が生汚泥:余剰汚泥 = **3:2**に混合して使用した。余剰汚泥に前加熱処理を施す場合には、ポリアクリル酸エステル系のカチオン性ポリマー(TS当たり添加率約 **0.5%**:ダイヤブロック **KP1200B**、三菱ケミカル)で調質し、容量 **1.0 L**の圧力容器(TEM-V1000、耐圧硝子工業)を用いて **150**、**1**時間の前加熱処理を施した。

#### (4) 嫌気性消化

用いた実験装置の概略を図1に示す。嫌気性消化槽はアクリル樹脂製、容量 **2.0 L**の完全混合型で、サーモスタット(**E5CSV**、オムロン)とシリコンベルトヒーター(**100W**、泉電熱)により温度を **55**、攪拌機(**Z-1300**、**EYELA**)により攪拌速度を **15 rpm**に制御した。攪拌羽根の外側には槽内壁に接するゴム板を高さ方向一杯に取り付け、高濃度汚泥に起因する槽内デットスペースを解消した。投入汚泥量は **100 mL/日**、水理学的滞留時間(HRT)は **20日**の一定とした。下水汚泥の投入と消化汚泥の引き抜きは **1日1回**マニュアルで行い、投入には消化槽横に付けた内径約 **3cm**のパイプ、引き抜きには中ぐらいの高さに設けたサンプリングコックを使用した。生成した消化ガスは、乾式脱硫カラムを経て湿式ガスメーター(**WS-1A**、シナガワ)で計量した。種汚泥は、下水汚泥の中温嫌気性消化汚泥を数カ月かけて高温に馴化させたものである。流入汚泥および消化汚泥は週 **1回**の頻度でサンプリングし、分析に供した。

#### (5) アンモニアストリッピング

用いたアンモニアストリッピング装置の概略を図2に示す。ここでは、容量 **1.3 L**の攪拌機付き加熱装置(TEM-V1000、耐圧硝子工業)をストリッピングカラムとして利用した。その後蒸発水の捕集びん(容量 **200 mL**)、炭酸の捕集びん(容量 **250 mL**、**4 mol/L**水酸化ナトリウム溶液 **100 mL**)とアンモニアの捕集びん(容量 **500 mL**、**2 mol/L**硫酸溶液 **100 mL**)を配置し、

エアポンプ (DTC-21、ULVAC) により密閉循環型で送気した。

運転は、排出された消化汚泥を保管しておき、その数百 mL に対してバッチ式で週 1 回実施した。まず、アンモニア捕集びんを外した状態で温度 70~100、送気量約 12 L/分、攪拌 800rpm で約 1 時間ガス循環し、脱炭酸するとともに pH を 9 付近まで上昇させた。次いで、炭酸捕集びんに代わりアンモニア捕集びんを付けて温度 70~100、送気量約 12 L/分、攪拌 800rpm で 2~3 時間ガス循環した。終了後、返送率 70~100%に相当する量で消化槽に毎日返送した。

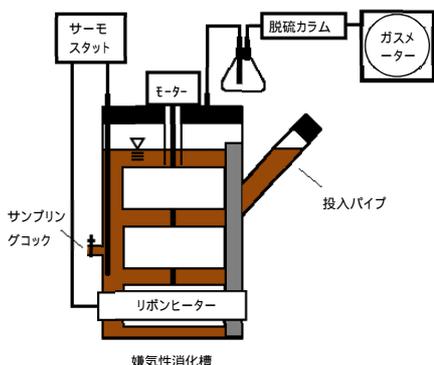


図 1 嫌気性消化の実験装置

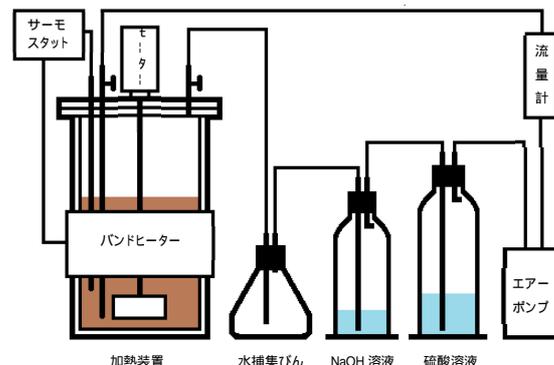


図 2 アンモニアストリッピングの実験装置

### (6) 消化汚泥からのリン酸回収

実験手順を図 3 に示す。吸着工程では、塩酸で pH2.5~3 または 4~5 に調整した消化汚泥 50 mL と吸着剤 6 または 4 gDW をプラスチック容器に入れ、100 rpm で 1 日間振とうした。次いで、サイクロンを模した低速遠心分離 (400 g、5 分) によって吸着剤を分離し、付着した消化汚泥を蒸留水で洗い流した後、10%NaOH 溶液 10 mL で吸着剤からリン酸を溶出した。再生はカラム内に吸着剤を入れ、流出 pH が約 2.5 で安定化するまで希 HCl 溶液を流すことで行った。

- |  |   |   |   |
|--|---|---|---|
| <b>材料</b>  | <b>吸着</b>   | <b>分離</b>   | <b>脱着</b>   |
| <ul style="list-style-type: none"> <li>消化汚泥: 50 mL</li> <li>吸着剤: 6 または 4 gDW</li> <li>pH: 塩酸で 2.5-3 または 4-5</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>振とう: 100 rpm</li> <li>温度: 室温</li> <li>時間: 24 時間</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>遠心: 400 g, 5 分</li> <li>洗浄: 蒸留水</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>10%NaOH: 10 mL</li> <li>温度: 室温</li> <li>時間: 24 時間</li> </ul> |



図 3 嫌気性消化汚泥からのリン酸回収実験の手順

### (7) 塩化鉄を用いた脱水・脱色

消化汚泥に対して、塩化鉄と両性ポリマー (ダイアフロック KA-405D; 三菱ケミカル) を用いる二液法によって調質し、その後に脱水性および脱水ろ液の色度を調べた。この際、塩化鉄の添加率を変化させ、両性ポリマーは約 1.0%TS に統一した。脱水性は、CST (Capillary suction time; 301B, Triton Electronics, UK) と、遠心脱水 (1,200 g、15 分) による到達含水率で測定した。色度は、脱水ろ液を 15,000 rpm で 15 分間高速遠心した上澄み液について測定した。

## 4. 研究成果

### (1) ふるいり過

実験結果を図 4 に示す。実下水を用いたふるいり過では、22 μm 以上の粒子が約 92% を占めることが分かり、これを満たすふるいり過装置の開発が求められた。

### (2) カラム吸着

表 1 に示すように、吸着平衡実験より、ゼオライトの飽和アンモニア吸着量 17 mg-N/g 乾重、浄水汚泥の飽和リン酸吸着量 0.89 mg-P/L 乾重が得られた。

カラム吸着実験を約 0.95、0.46 および 0.07 m/時の線速度で実施したところ、線速度の影響を強く受け、両方の吸着剤とも 0.1 m/時程度まで下げた方がよいことが分かった (表 2)。今後は、より吸着能力の優れた吸着剤や他の回収法について検討する必要がある。

次いで、無機凝集剤を用いる凝集法を下水の SS、リン等の除去に適用した。下水の前凝集処理に Al を適用した結果、Al 添加率 2.5~

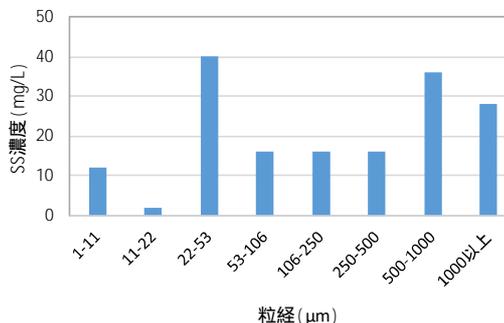


図 4 実下水のふるいり分離の結果

表 1 回分実験で求めたLangmuir 吸着平衡定数

	Qmax (mg/g 乾重)	K (-)	相関係数 R <sup>2</sup>
アンモニア - ゼオライト	17	0.18	0.96
リン酸 - 浄水汚泥	0.89	41	0.96

100 mg/L の範囲で T-P 除去率は 50%程度であった。添加率が高まると上澄み水の微細フロックが増加することが課題であった（図示なし）。

(3) 下水汚泥の高濃度・高温嫌気性消化連続実験の結果を表3にまとめる。下水汚泥9~10%の高濃度・高温嫌気性消化では、アンモニアストリッピングにより消化汚泥TANを平均1,760 mgN/Lに抑えたところ、一時的な溶解性有機物質の蓄積が観察されたものの、平均してVS分解率57.8%、ガス発生率0.522 NL/gVS、メタン発生率0.321 NL/gVSの処理結果が得られた。

アンモニアストリッピングの結果を表4に示す。消化汚泥のアンモニアストリッピングは脱炭酸後、薬品添加なしで温度70、初期pH約9、2時間のバッチ式で実施し、TAN除去率53.6%、流入汚泥T-Nに対するTAN回収率20.7%が得られた。

微生物叢解析より、細菌界はFirmicutes 門のCoprothermobacter属、古細菌界はEuryarchaeota 門のMethanothermobacter属が突出して検出され、高濃度・高温消化では微生物多様性の乏しいことが示唆された。

以上より、下水汚泥の高濃度・高温嫌気性消化とアンモニア・リン酸回収がシステムとして成り立つことが実験的に示された。

(4) 余剰汚泥の前加熱処理を組み合わせた下水汚泥の高濃度・高温嫌気性消化 流入 TS 濃度約 7.5%、温度 55、HRT20 日において、表5に示すようにVS 分解率 57.7~60.3%、ガス発生率0.480~0.500 NL/gVS、メタン発生率0.298~0.306 NL/gVS が得られた。添加した活性炭が VS として測定されることを考慮すると、コントロール槽と活性炭添加槽の間で処理結果はほぼ同等であったと考えられる。

総合的なパラメータに大差はなかったものの、消化槽内の溶解性物質には大きな違いがあり、特にコントロール槽で平均約 300 mg/L であったプロピオン酸が活性炭添加槽では約 10 mg/L まで低下した（表5）。また、消化汚泥ろ液の色度は約 3 割除去された。

嫌気性消化槽の微生物叢はおおまかには似通っていたが、活性炭添加槽では細菌の Synergistia 綱やアーキアの Methanosarcina 属が少なく検出され、活性炭の DIET 活性化や阻害物質の吸着、微生物集積の作用などにより代謝経路の変化が示唆された。また、これが上記した消化槽内有機酸の減少につながったと推測された。

消化汚泥の脱水と脱色を調べたところ、Fe 添加率として 6~10%TS 程度で両者を満たし、前加熱処理によって生成する色度を元々の約 1/4 まで低下させることが可能であった（図5）。

消化槽における活性炭の存在は中間代謝物質、特にプロピオン酸の除去に大いに貢献することが明らかとなったが、多量の活性炭の連続添加は経済的に成立しない。今後は、市販活性炭に代わる安価な炭化物などを探していく予定である。

(5) リン酸吸着  
消化汚泥に対して多孔質水酸化鉄吸着剤を室温、pH2.5~3またはpH4~5、24時間のバッチ式で適用した。実験結果を表6にまとめる。吸着剤の比重の高さと吸着時の酸性pHを活かすこと

表2 カラム吸着の破過時間

Run	線速度 (m/時)	破過時間 (日)	
		アンモニア吸着	リン酸吸着
1	0.95	0.7	1.3
2	0.46	2.3	1.8
3	0.07	20 以上	20 以上

表3 嫌気性消化の結果まとめ

VS 負荷率 (gVS/L-日)	3.96
VS 分解率 (%)	57.8
ガス発生率 (NL/gVS)	0.522
メタン発生率 (NL/gVS)	0.321
消化槽アンモニア (mgN/L)	1,760

表4 アンモニアストリッピングの結果まとめ

TAN 除去率 (%)	53.6
TAN 回収率 (%)	67.7
- 消化汚泥 TAN に対して	
TAN 回収率 (%)	25.0
- 消化汚泥 T-N に対して	
TAN 回収率 (%)	20.7
- 流入汚泥 T-N に対して	
VS 分解率 (%)	2.1

表5 処理成績（無処理流入汚泥を基準）

	コントロール	活性炭
VS 負荷率 (gVS/L-日)	3.16	3.16
VS 分解率 (%)	60.3	57.7
ガス発生率 (NL/gVS)	0.480	0.500
メタン発生率 (NL/gVS)	0.298	0.306
酢酸 (mg/L)	264±124	176±48
プロピオン酸 (mg/L)	301±182	11±15

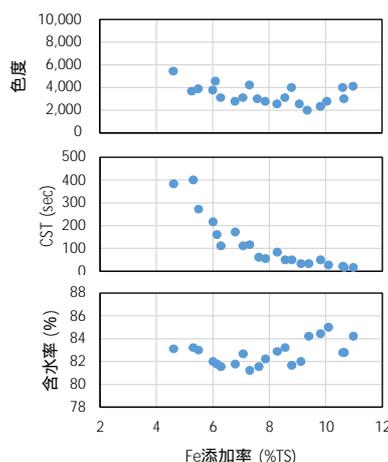


図5 塩化鉄による消化汚泥の脱水・脱色

表6 消化汚泥からのリン酸回収結果

	pH2.5~3	pH4~5
下水汚泥 T-P (mgP/L)	1,310	1,480
消化汚泥 PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> (mgP/L)	328	294
吸着後 PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> (mgP/L)	29	70
PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> 除去率 (%)	92.2	74.4
- 消化汚泥 PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> に対して		
PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> 回収率 (%)	73.3	54.7
- 下水汚泥 T-P に対して		

によって、下水汚泥全リンの**73.3%** (**pH2.5 ~ 3**) または**54.7%** (**pH4 ~ 5**) を回収でき、また、その後に強カチオンポリマー調質による消化汚泥の脱水が可能になったことが明らかになった。この実験より、懸濁物質存在下での直接的リン酸吸着と吸着剤の繰り返し利用の可能なことが実証された。

水酸化鉄をリン酸吸着剤として使用する既往研究は多くなく、特に下水汚泥への直接的な適用は過去にないと思われる。今後は、他の対象についても適用性を検討していきたい。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 高島正信、矢口淳一、奥畑博史	4. 巻 76
2. 論文標題 余剰汚泥の前加熱処理を施した下水汚泥嫌気性消化の活性化と脱色	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 土木学会論文集G（環境）	6. 最初と最後の頁 _77- _84
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 M. Takashima and J. Yaguchi	4. 巻 23
2. 論文標題 High-solids thermophilic anaerobic digestion of sewage sludge: effect of ammonia concentration	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Mater. Cycles Waste Manag.	6. 最初と最後の頁 205-213
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10163-020-0117-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 高島正信	4. 巻 19
2. 論文標題 下水汚泥の高濃度・高温嫌気性消化	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 環境浄化技術	6. 最初と最後の頁 348-352
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 高島正信、矢口淳一、中尾総一	4. 巻 57
2. 論文標題 アンモニアストリッピングを組み合わせた下水汚泥の高濃度嫌気性消化	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 下水道協会誌論文集	6. 最初と最後の頁 100-107
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 高島正信、矢口淳一、中尾総一	4. 巻 49
2. 論文標題 下水汚泥の嫌気性消化における余剰汚泥濃縮・加熱と微生物解析	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 福井工業大学紀要	6. 最初と最後の頁 41-47
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 高島正信、矢口淳一、中尾総一	4. 巻 75
2. 論文標題 窒素・リン回収を伴う下水汚泥の高濃度・高温嫌気性消化システム	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 土木学会論文集G (環境)	6. 最初と最後の頁 _435- _442
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 高島正信、矢口淳一、中尾総一	4. 巻 75
2. 論文標題 窒素・リン回収を伴う下水汚泥の高濃度・高温嫌気性消化システム	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 土木学会論文集G (環境)	6. 最初と最後の頁 _435- _442
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 高島正信、広川載泰
2. 発表標題 リン酸吸着剤を用いた嫌気性消化汚泥からの直接的リン回収
3. 学会等名 第57回下水道研究発表会講演集
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高島正信
2. 発表標題 下水汚泥の高濃度嫌気性消化と窒素・リン回収
3. 学会等名 第56回日本水処理生物学会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Takashima, J. Yaguchi, N. Nakao
2. 発表標題 High-Solid Anaerobic Digestion of Sewage Sludge Incorporating Pre-digestion Ammonia Stripping of Waste Activated Sludge
3. 学会等名 8th IWA-ASPIRE Conference and Exhibition（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Takashima, J. Yaguchi
2. 発表標題 High-solid Thermophilic Anaerobic Digestion with Ammonia and Phosphate Recovery
3. 学会等名 3rd IWA Resource Recovery Conference（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高島正信、矢口淳一、中尾総一
2. 発表標題 下水汚泥の高濃度・高温嫌気性消化
3. 学会等名 第56回下水道研究発表会講演集
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	矢口 淳一  (Yaguchi Junichi)  (80342450)	八戸工業高等専門学校・その他部局等・教授   (51101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------