

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：32675

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H04313

研究課題名（和文）有機系微粒子スラリーのケミカルフリーな固液分離技術の開発による廃棄物の資源化

研究課題名（英文）Development of chemical-free solid-liquid separation techniques for organic particles and its application to recycling of organic wastes

研究代表者

森 隆昌（Mori, Takamasa）

法政大学・生命科学部・教授

研究者番号：20345929

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,500,000円

研究成果の概要（和文）：多層傾斜板電極付きスラリー槽による粒子凝集・分離と旋回流濾過装置によるスラリー濃縮技術を用いて、有機系微粒子を含むスラリーからのケミカルフリーな粒子分離・回収技術の開発を行った。電極の配置や電場印加条件を工夫することで、沈降分離しにくい低密度の粒子やナノ粒子を含むスラリーも高効率に濃縮することができた。また旋回流濾過では特定のサイズを有する粒子を濃縮、回収できる可能性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

多層傾斜板電極付きスラリー槽による粒子凝集・分離技術が有機系微粒子を含むスラリーにも適用可能であることが示され、ケミカルフリーで有機系微粒子を効率よく回収し資源として有効利用できる可能性が高まった。旋回流濾過装置による濃縮技術についても有機系微粒子を含むスラリーに適用可能であることが示され、さらに、特定サイズの粒子のみを回収できる分級効果も示され、回収粒子の高付加価値化の可能性も示された。

研究成果の概要（英文）：We developed novel chemical-free techniques in which organic particles with lower density and smaller particle size can be collected by using our developed slurry treatment device with multi-inclined electrodes and filtration device with spiral flow pattern. It was demonstrated that several kind of slurries, in which particles hardly settle, can be effectively thickened by optimizing the electrode arrangement and the conditions of the applied DC electric field for the slurry treatment device with multi-inclined electrode. Besides, for filtration device with spiral flow pattern, it was found that the particles with a certain size range can be selectively collected and the concentrated slurry including only the particles with a certain size range can be obtained.

研究分野：化学工学、粉体工学

キーワード：直流電場 多層傾斜板電極 旋回流濾過 ケミカルフリー 固液分離

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 現在、生ゴミ、畜産糞尿、食品製造残渣など様々な有機系廃棄物が排出されている。持続可能な社会構築のためには、これら有機性廃棄物の有効利用方法を確立し、最終廃棄処分となる有機系廃棄物の量を削減することが必要不可欠である。例えば、有機系廃棄物をメタン発酵した後の残渣(汚泥)は、固形物を効率よく回収できれば肥料として有効利用することができる。しかしながら、有機汚泥のように有機物微粒子が懸濁しているスラリーから粒子を効率よく回収することは容易ではない。そのため、現状ではメタン発酵残渣のわずか3%程度が肥料として利用されるにとどまっている。

(2) このように有機系微粒子が懸濁しているスラリーから微粒子を効率よく回収できれば資源リサイクルの可能性が拓けるケースが多数存在するが、一般に有機系微粒子は比重が小さいため通常の固液分離では効率よく分離・回収することが難しい。凝集剤と呼ばれる薬剤を添加すれば粒子を凝集・粗大化させることができるので固液分離は容易となるが、先述の肥料として有効利用するためには凝集剤に含まれる成分(金属イオンや高分子)はコンタミ成分であり、作物の生長を阻害するおそれもあるなど、懸念が残る。したがって、有機系廃棄物のリサイクル促進のためには、液中に懸濁する有機系微粒子を、薬剤を添加することなく高効率に分離・回収する技術を確立することが求められている。

2. 研究の目的

(1) 本研究では液中に懸濁する有機系微粒子のような固液分離しにくい粒子を対象に、ケミカルフリーで粒子を高効率に回収できる装置・システムを構築することを目的とする。これまでに我々が開発した電場による粒子凝集効果とボイコット効果を併用した連続固液分離装置と旋回流濾過装置を中心に、比重が小さい、あるいは、粒子径が小さい固液分離しにくい粒子を高効率に回収できる装置の開発を行う。

3. 研究の方法

(1) まず、図1に示す電場による粒子凝集効果とボイコット効果を併用した連続固液分離装置(多層傾斜板電極付きスラリー槽)については、比重の小さい有機系粒子や、極めて沈降速度が遅いナノ粒子をモデル粒子として、高効率な沈降分離・回収が可能かを検討した。

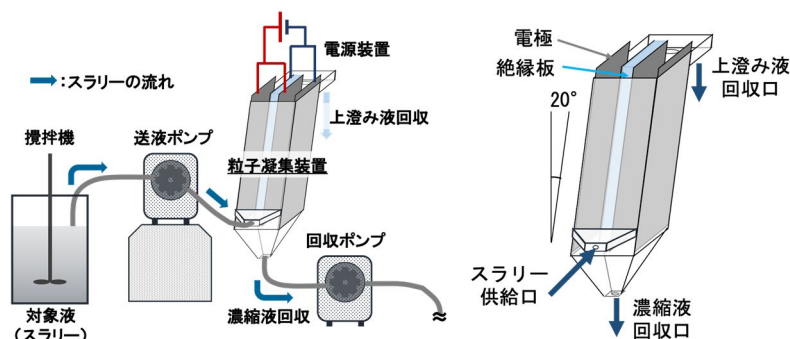


図1 電場による粒子凝集効果とボイコット効果を併用した連続固液分離装置の概要

(2) 沈降しにくい粒子に対して、沈降ではなく浮上分離で高効率に粒子を回収することも試みた。図2に示す電場援用型浮選装置を試作した。下部から空気を送り込み、気泡を含んだ凝集体を生成し、上部より回収される粒子量を測定した。

(3) 旋回流濾過装置については、フィルターの孔径よりも小さい粒子を含むスラリーを濾過濃縮し、濾液への粒子混入を抑えてどこまで高濃縮できるのかを検討した。合わせて、濾過性の悪い有機系微粒子を想定して、濾過方向(濾液の排出方向)と粒子の移動方向と反対になるよう設計した新しい濾過装置(求心式濾過装置)の開発も行った。

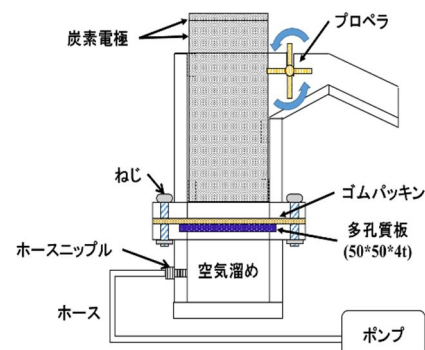


図2 電場援用型浮選装置の概要

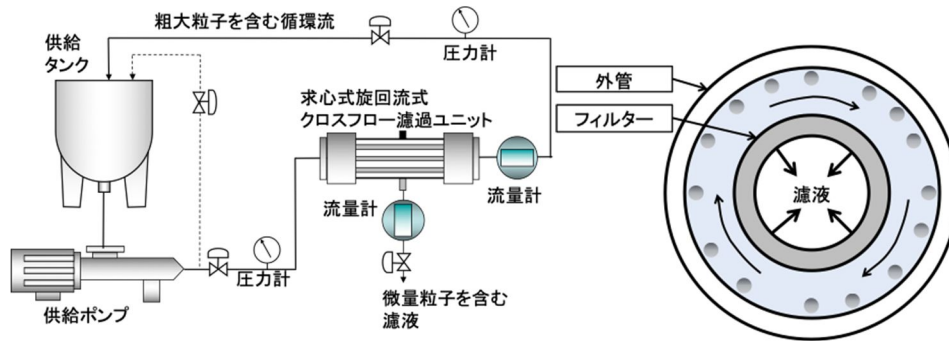


図3 旋回流濾過装置概要

(4) 一方で、メタン発酵残渣汚泥に関しては、関連研究(科研費基盤研究(b)特設 18KT0044)により固液分離せずに肥料として利用できる可能性も見出された。そこでメタン発酵残渣汚泥に関しては汚泥粒子を微細化することで液肥として利用することも検討した。液肥としてサンプルするためには通常 100 μm 程度以上の粒子は固液分離により取り除く必要があるが、様々な方法で汚泥を微細化し、100 μm 以下にすることで固液分離せず利用できる液肥とすることを検討した。

4. 研究成果

(1) 低密度有機系微粒子としてアクリル樹脂(綜研化学, MR-2G ($d_{50} = 0.95 \mu\text{m}$, 密度 $1.2 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$), MX-80H3wT, $d_{50} = 0.75 \mu\text{m}$, 密度 $1.2 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$) を使用して、粒子濃度 0.1 vol% の水系スラリーを調製、電場による凝集・濃縮試験を行った結果、図 4 に示したように、沈降速度の上昇及び粒子濃度の増加を確認した。一方で電場を印加せずに自然沈降させた場合は、今回の試験時間内には明確な沈降界面の形成・下降は観測されず、したがって、全く濃縮されないという結果であった。以上のことから、低密度(溶媒との密度差が小さい)の有機系微粒子であっても電場による凝集・濃縮が有効であることが示唆された。

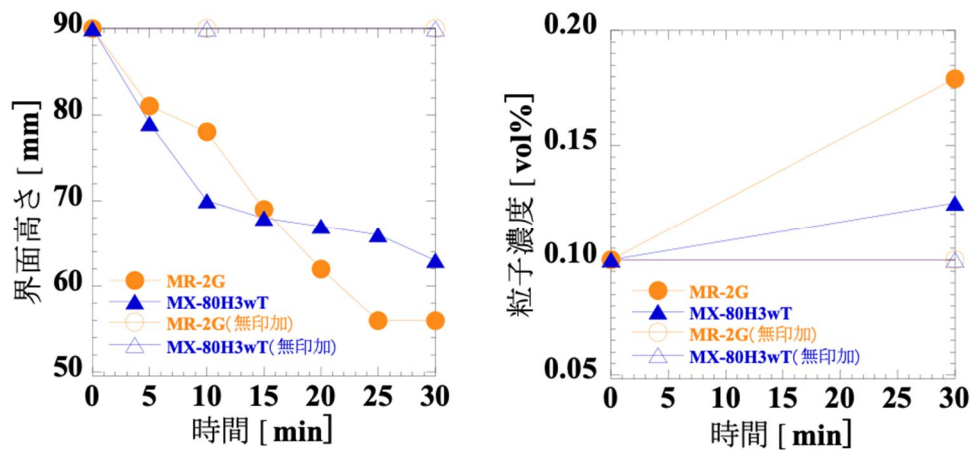


図4 スラリー層界面位置及び粒子濃度の変化

(2) 極めて沈降しにくい粒子としてアルミナナノ粒子を取り上げ、電場による凝集・濃縮試験を行った結果、最大で約 3 倍まで濃縮することができた。このとき、スラリー中の粒子径分布には大きな変化はなく、ナノ粒子のまま粒子が分散した濃縮スラリーを回収することができた。この結果は、ナノ粒子スラリーを単にケミカルフリーで沈降濃縮できるということにとどまらず、良分散ナノ粒子スラリーを簡便に、かつ短時間で効率よく調製できることを意味している。したがって、本技術によって液相合成で得られたナノ粒子(ナノ粒子スラリーの状態)を簡便に濃縮することが可能で、これまでよりも濃厚なスラリーが得られることで様々な材料プロセスへの適用可能性が拓ける。

(3) 電場援用型浮選装置による上部からの粒子回収の可能性を水中に懸濁したアクリル樹脂粒子で検討した。その結果、初期粒子濃度よりも高い濃度でアクリル樹脂粒子を上部から回収することができたが、電場による凝集効果によって粒子の回収率が上昇する可能性が示された。一般に気泡表面は負に帯電していると言われていたため、水中では電気二重層を形成し分散している。同様にアクリル樹脂粒子も負に帯電している。したがって、電場印加によって粒子周りの電気二重層が変形し、その結果、粒子同士あるいは粒子と気泡とが凝集し、密度の低い凝集体が形成されたために上部から回収されたと考えられる。この実験は小規模な装置で行ったものであ

るため、今後より大きなスケールで実験を行い、本研究の有用性についてさらに検証していく必要がある。

(4) 多層傾斜板電極付きスラリー槽による粒子の凝集・沈降濃縮実験を行ってきたが、電極配置を工夫することで更なる高効率化が実現できる可能性を見出した。図 5 に示す小型の傾斜板電極付きスラリー槽でアルミナスラリーの電場による凝集・沈降濃縮実験を行った。中央の電極を電極板 2 枚で絶縁体を挟んだ板にすることで、それぞれの区画の電場の方向を任意に変え、沈降・濃縮現象に及ぼす影響を調査した。その結果、従来の交互にプラス、マイナス極を配置した場合は、左右の区画で沈降挙動が異なり、片側の区画だけが素早く沈降し、もう片側の区画はゆっくりとしか沈降しなかったのに対して、電場の方向を粒子の沈降方向と揃えた場合は、両方の区画で粒子が速く沈降し、最も清澄な上澄みが最も短時間で得られた。この結果は、これまで取り組んできた電極間距離や印加電圧といった操作パラメータの変更によるプロセスの高効率化とは異なる次元でプロセスの高効率化を実現する成果であり、本装置の実用化に向けて極めて重要な成果である。

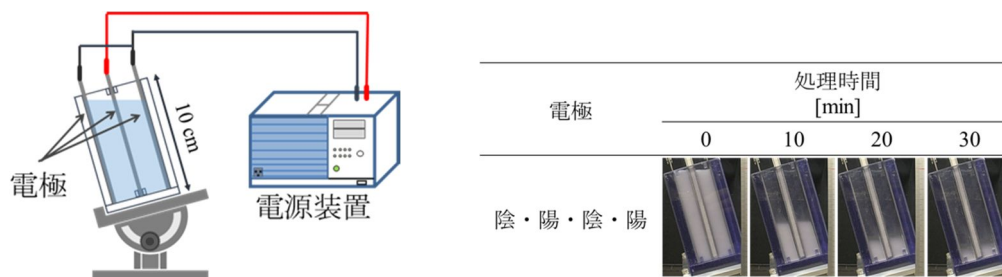


図 5 傾斜スラリー槽を用いた電場印加実験の概要

(5) 下水汚泥に関して電場による凝集・濃縮試験を行った。実験環境の問題で少量を矩形スラリー槽に入れ電場を印加し、粒子の分散・凝集状態がどのように変化するかを目視観察した。その結果、図 6 に示すように、電場を印加した方がより大きな汚泥粒子の塊が見られ、汚泥に対しても電場の効果を確認できた。汚泥に関しては臭気の問題があり実験環境が整備されれば徐々に試験規模を大きくしながら本技術の有効性を検証していく必要がある。

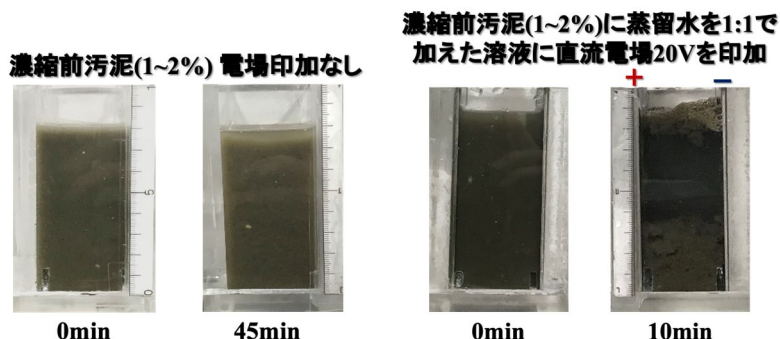


図 6 下水汚泥に電場を印加した場合の外観の変化

(6) 微生物スラリー濃縮試験における濾過速度の経時変化、及び、スラリー濃度が濾過速度に及ぼす影響を図 7 にそれぞれ示す。濾過圧力は 0.2 MPa で実施した。

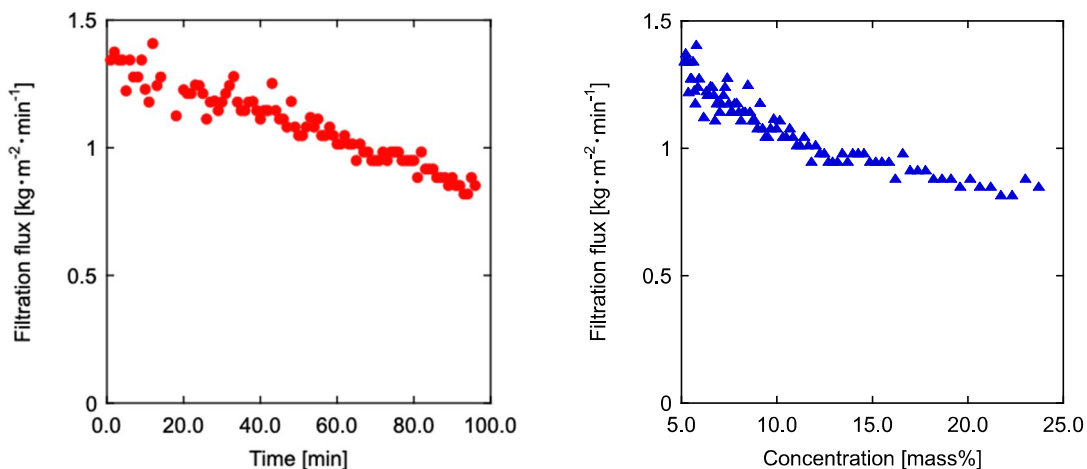


図7 微生物スラリーの旋回流濾過装置による濾過試験結果

濃縮試験は目標値 15 mass% を大きく上回る約 25 mass% までの濃縮に成功した。なお、最終的な濃度でもスラリーは十分な流動性を保持しており、さらにスラリーを追加することで高濃度までの濃縮が可能と推測される。濾過速度は濃度の上昇とともに低下したが、急激な目詰まりなどは発生せず濃縮試験終了直前でおよそ $0.9 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{min}^{-1}$ の濾過速度となった。この濾過速度の低下は粒子濃度の上昇に伴うスラリー中の粒子の占有体積上昇の影響と考えられる。スラリー温度は濃縮操作終了直前でおよそ 40°C までの上昇に留まった。スラリーに含まれる微生物は濃縮後も一切性能低下しておらず、本システムが有機系スラリーの濃縮に使用可能であることを確認できた。

(7) 求心式濾過装置を用いた分級・濃縮試験結果の一例として、供給スラリーおよび濾液の粒子径分布を図8に示す。粒子径分布はレーザー回折・散乱式粒子径分布測定装置 (Microtrac FRA) を用いて測定した。分級試験では最大カット径が $3.0 \mu\text{m}$ となるように運転条件を設定した。システムに組み込んだフィルターの孔径は $10 \mu\text{m}$ であり、事前の調査でスラリーに含まれる全ての粒子が透過することが確認されている。

本操作で目的としていた粗大粒子の除去について、カット径付近で積算率は 100% に達しており、開発したシステムでの粗大粒子の除去が可能であることが示唆された。50% 粒子径だけを比較すると分級前後で値が微小側にシフトしていた。また、微小粒子側の立ち上がりはほぼ変化しておらず、本システムが粗大粒子除去に適していることが確認できた。本技術は媒液と粒子の間に密度差があれば材料を選ばず適用可能であることから、有機系スラリーにも問題なく適用可能と考えられる。

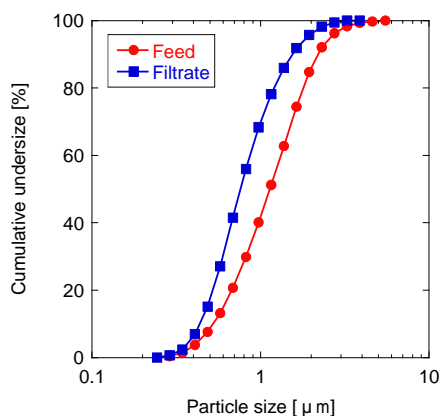


図8 濾過前後の粒子径分布の変化

(8) メタン発酵残渣汚泥について、固液分離を行うことなく液肥として利用可能かどうかを検討した。汚泥に超音波照射を行うことで粒子を微細化できることが示された。ボールミルによる機械的な粉碎にまでは及ばないが、超音波照射では一部非常に細かい粒子が生成されていることが特徴として見られた。また汚泥の超音波処理ではボールミル処理とは異なり、汚泥の臭気が残った。そこで曝気しながら超音波照射したところやや微細化効率は悪くなったものの、汚泥の臭気は抑えられることが分かった。よって、例えばまず曝気無しで超音波処理をすることで汚泥を微細化し、その後、曝気処理 (超音波処理と合わせて行う) によって、臭気も抑えられるものと期待できる。さらに、超音波照射した後の汚泥中には多くのリン酸イオンが溶出していることが分かった。このことから、汚泥中の粒子を微細化することに長けたボールミル処理とリン酸イオン濃度増加の効果がある超音波照射を組み合わせることで、目的に応じた特性を持つ液肥を調製可能であると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Hiroshi Satone, Kenji Iimura, Michitaka Suzuki	4. 巻 22(3)
2. 論文標題 Effect of Impact Angle on Particle Fracture Phenomenon	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Aerosol and Air Quality Research	6. 最初と最後の頁 220022
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.4209/aaqr.220022	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 Takamasa Mori, Kotaro Murakami, Mitsuyasu Yabe	4. 巻 1
2. 論文標題 Investigation of the direct utilization possibility of methane fermentation residue sludge as liquid fertilizer by micronization	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Environmental Technology	6. 最初と最後の頁 1
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/09593330.2021.2020908	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16件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 佐藤根大士, 飯村健次
2. 発表標題 求心式クロスフローろ過による高精度湿式分級技術の開発
3. 学会等名 粉体工学会第55回技術討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤根大士, 今井田直樹, 毛利奈緒, 飯村健次, 那須昭夫
2. 発表標題 非水溶媒中粒子の可逆的分散状態制御
3. 学会等名 第58回粉体に関する討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hiroshi Satone, Kenji Iimura
2. 発表標題 Development of a high-precision classification system using cross-flow filtration and centrifugal field
3. 学会等名 8th Asian Particle Technology Symposium (APT2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤根大士
2. 発表標題 スラリーの可逆的分散凝集状態制御
3. 学会等名 粉体工学会2021年度秋期研究発表会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤根大士、今井田直樹、毛利奈緒、飯村健次
2. 発表標題 非水溶媒中粒子の可逆的分散状態制御を利用したシート成形プロセス
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会2021年度秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤根大士
2. 発表標題 液中微粒子の分散状態制御とその応用
3. 学会等名 2021年度色材講演会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 北村 研太, 伊関 奈津美, 森 隆昌
2. 発表標題 直流電場を利用したナノ粒子スラリーの沈降分離
3. 学会等名 分離技術会年会2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小池風輝、伊藤優、北村研太、森隆昌
2. 発表標題 直流電場による粒子凝集効果とボイコット効果を併用した連続式固液分離装置の開発
3. 学会等名 化学工学会第87年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小宮優衣、北村研太、森隆昌、矢部光保
2. 発表標題 汚泥の液肥化における超音波照射条件が汚泥の粒子径およびリン酸イオン溶出挙動に及ぼす影響
3. 学会等名 化学工学会第87年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐藤根大士
2. 発表標題 クロスフローろ過と遠心場を併用した高精度湿式分級技術の開発
3. 学会等名 2020年度粉体工学会春期研究発表会, 姫路
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤根大士
2. 発表標題 可逆的な微粒子凝集技術で粉が沈めない
3. 学会等名 日本粉体工業技術協会第4回ベストシーズ講演会，京都（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤根大士
2. 発表標題 フレキシブルシートのバインダーレス成形
3. 学会等名 国際粉体工業展東京2020アカデミックコーナー，東京
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤根大士
2. 発表標題 可逆的分散凝集技術を用いたフレキシブルシートのバインダーレス成形
3. 学会等名 令和2年度 第1回粒子積層技術分科会，zoomオンライン（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤根大士
2. 発表標題 高効率低消費エネルギーを両立した革新的濾過濃縮技術
3. 学会等名 イノベーション・ジャパン2020，K-12，東京（オンライン開催）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 森隆昌、伊藤優、上田哲也、北村研太
2. 発表標題 多層傾斜板電極を用いた水中の微粒子凝集技術の開発
3. 学会等名 化学工学会第86年会（オンライン開催）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 今井田直樹，佐藤根大士，飯村健次
2. 発表標題 非水系における高分子の希薄濃度の定量測定
3. 学会等名 化学工学会姫路大会2019
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	佐藤根 大士 (Satone Hiroshi) (00583709)	兵庫県立大学・工学研究科・准教授 (24506)	
研究 分担者	椿 淳一郎 (Tsubaki JunIchiro) (50109295)	公益財団法人名古屋産業科学研究所・研究部・上席研究員 (73905)	

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
---------	---------