

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2011

課題番号：22656175

研究課題名（和文）

可逆凝集－多段超高压圧搾システムによる難脱水性汚泥の高速減量化プロセスの開発

研究課題名（英文）

Development of High-Speed and High-Level Reduction Process of Difficult-to-Dewatering Sludge by Combined Reversible Flocculation and Multistage Ultrahigh-Pressure Expression System

研究代表者

入谷 英司（IRITANI EIJI）

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：60144119

研究成果の概要（和文）：可逆凝集と多段超高压圧搾とを融合した脱水法により難脱水性汚泥の高速減量化を実現した。下水余剰汚泥を例にとり、多価イオンの無機電解質の添加による可逆凝集操作と15 MPaの超高压圧搾とを組み合わせた脱水操作により、ケーキ含水率は31%まで低減され、総脱水時間は51.6%短縮された。汚泥原液を基準とすると、99.83%もの減量化を高速で実現したこととなる。結果を総合し、本技術が脱水時間と脱水度の両面において、現存技術に比べ格段に優れていることを示し、研究目標を達成した。

研究成果の概要（英文）：High rate reduction in volume of difficult-to-dewatering sludge was achieved by step-up ultrahigh-pressure expression combined with reversible flocculation. Flocculation with inorganic electrolyte with multivalent cation such as poly aluminum chloride was extremely effective for the increase in the dewatering rate of excess activated sludge, and the water content of the compressed cake was finally reduced to 31 wt% by expression under action of ultrahigh-pressure of 15 MPa combined with reversible flocculation. This new method shortened the total dewatering time of activated sludge by 51.6% compared to the conventional method, and reduced the sludge volume by 99.83%. The results derived from a series of experiments attained the research goals from the viewpoint of both the rate in dewatering and the water content of the compressed cake.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,900,000	0	1,900,000
2011年度	1,300,000	390,000	1,690,000
総計	3,200,000	390,000	3,590,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：プロセス工学・化工物性・移動操作・単位操作

キーワード：可逆凝集，超高压圧搾，廃棄物，汚泥，減量化，pH，電解質，脱水

1. 研究開始当初の背景

平成20年に発表された平成18年度における産業廃棄物の排出量に関するデータによると、ほぼ半数にあたる44.3%を汚泥が占めている。したがって、難脱水性汚泥の高効率な脱水法の開発は、汚泥の減量化や脱水汚泥の資源としての有効利用の見地から急務とされている課題である。研究代表者が長年に

わたり研究を続けている濾過、圧搾等の機械的固液分離が最も省エネルギー的であることから、現在も国の内外で機械的分離に関して多くの研究や技術開発が行われている。これらのほとんどは、強固で粗大なフロックを形成する高性能な高分子凝集剤の開発による脱水速度の向上、あるいは圧搾における操作圧の増大による脱水度の向上（ケーキ含水

率の低減化)を目指すものである。しかし、高分子凝集剤を使用すると高圧を作用させても強固なブロック内の水分の除去は困難で低含水率ケーキは得られないという致命的な欠点をもつ。一方、凝集剤を使用せずに高圧を作用させると、ケーキの高い圧縮性のため脱水速度は低圧下より減少することもあり、現在の技術では難脱水性汚泥の高効率な脱水は困難な状況にある。

以上の背景に鑑み、本研究では、両者の欠点を克服する革新的な技術として可逆凝集と多段超高压圧搾を融合させた新たな手法を提案する。溶媒環境の変化による可逆凝集を利用して、緩い凝集ブロックを形成させ、比較的低い圧搾圧力で高速で粗分離を行った後、ブロックを崩壊させる。次いで圧力をステップ状に増加させ超高压を作用させて、ケーキ内に残存する束縛水を機械的圧力で可能な限界まで除去する。高い脱水速度と高い脱水度の両者を同時に満足する省エネルギー的な脱水プロセスの確立が期待できる。

2. 研究の目的

産業廃棄物の中で最も大きな排出量割合を占める汚泥を減量化するための革新的な脱水技術の開発が、現在ますます切望されている。本研究では、可逆凝集と多段超高压圧搾とを融合させた脱水技術を提案し、難脱水性汚泥の高速減量化の可能性を探究する。すなわち、汚泥を緩く凝集させて粗大ブロックを形成させ、0.1~0.5 MPa程度の低圧下で圧搾して自由水を迅速に除去し脱水ケーキを得た後、可逆凝集によりブロックを崩壊させ、さらに圧力のステップ増加により5~20 MPa程度の超高压を多段で作用させ束縛水を除去し極低含水率ケーキを得て、汚泥の高速減量化を図る。可逆凝集を行うための手法として、pH調整や無機電解質、バイオ凝集剤添加等を検討し、可逆凝集と多段超高压圧搾の機構の解明に基づき、それらの複合プロセスの最適操作のための指針を得る。

3. 研究の方法

(1) 可逆凝集法の確立

凝集操作により高速分離が可能な緩い凝集ブロックを形成し、低圧下で高速脱水を行った後、溶媒環境の変化によりケーキ中のブロックを崩壊させ、微粒子の凝集・分散状態の制御に基づく可逆凝集法を開発する。酸・アルカリ、無機電解質、バイオ凝集剤、アルコール、界面活性剤等を汚泥に添加して凝集ブロックを形成させ、0.1~0.5 MPaの低圧下で高速圧搾し、その圧搾特性を明らかにする。また、低圧圧搾で得た凝集脱水ケーキに水透過を行うことにより、ケーキ中のブロックを崩壊させる。得られた非凝集ケーキの特性を究明し、可逆凝集に最も適したpHやイオン

強度、イオン種、添加剤の種類や濃度などの制御条件を明らかにする。

(2) 超高压圧搾法の確立

材料試験機を用いて圧搾セルに5~50 MPaの超高压を作用させ、1)で得た非凝集ケーキの低含水率化を図り、超高压作用化で除去可能な水分量を明らかにし、本手法の有効性を検証する。粒径、表面電荷、束縛水量などの微粒子特性と圧搾脱水速度やケーキの最終脱水度(含水率)との関係を究明する。前段の低圧圧搾におけるケーキ脱水度が超高压圧搾における脱水速度に与える影響を検討し、低圧圧搾と超高压圧搾の両者を総合した圧搾プロセスの最適化を行う。

(3) 融合プロセスの最適操作法の確立

可逆凝集と多段超高压圧搾の融合プロセスとしての操作法を検討する。種々の性状の汚泥に対して、効果的な可逆凝集を実現させるための添加剤の種類や添加濃度、低圧圧搾と超高压圧搾における各圧搾圧力と圧搾時間について検討し、脱水度と脱水速度の両面から最適条件を明らかにし、汚泥の高速減量化法としての本手法の操作指針を確立する。

4. 研究成果

(1) システムの概要

提案するシステムの概要を図1に示す。無機凝集剤で汚泥を緩く凝集させて粗大ブロックを形成させ、98 kPaの低圧下での圧搾操作で迅速に汚泥中の多量の水分を除去した後、透水操作による溶媒環境の変化と引き続いて行う15 MPaまで及ぶ超高压圧搾操作による圧縮作用の両者によって、生成濾過ケーキ内のブロックが崩壊し、直ちにケーキの低含水率化が行われるというものである。凝集と低圧圧搾の操作で脱水速度の向上を図り、透水と超高压圧搾操作にケーキ含水率の低減化の役割を担わせ、これら一連のプロセスにより、総合的に脱水速度と脱水度の向上を実現しようとするものである。

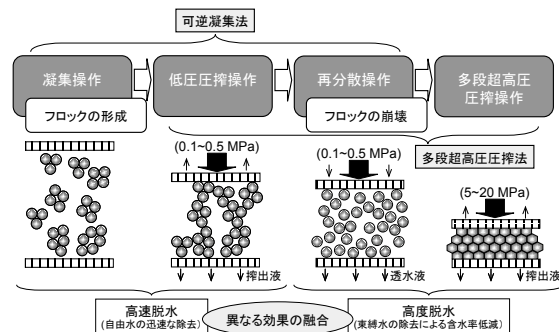


図1 システムの概要

(2) 凝集特性

汚泥スラリーにポリ塩化アルミニウム

(PACl)を種々のAlT比(アルミニウム量 対濁質量比)で添加し、本汚泥に最適な凝集剤添加量を検討するため、レーザ回折式粒度分布測定装置(SALD-300V、島津製作所製)で粒度分布を測定し、凝集効果を評価した。図2には、凝集フロックの面積平均径 d_s をAlT比 R_f に対してプロットした。はじめ R_f の増加とともに d_s は増大するが、過剰量添加すると、 d_s は減少し始める。本汚泥では $R_f = 0.15$ で、 d_s は最大となり、以降の実験はすべてこの添加量で行った。

(3) 低圧圧搾特性

下水余剰汚泥にAlT比 R_f が0.15となるようにPACl添加による凝集処理を行った後、圧力 $p_f = 98$ kPaで低圧圧搾を実施した。また比較のため、凝集処理を施さず下水余剰汚泥をそのまま低圧圧搾する実験も行い、両実験結果を、単位濾材面積あたりの搾液量 v 対圧搾時間 θ として、図3に示した。凝集操作を行った場合には粗大な汚泥フロックが形成され、汚泥ケーキの抵抗が著しく低下するため、未凝集の場合に比べて、圧搾速度が著しく大きくなった。例えば $v = 6$ cmの搾液量を得るのに、総濾過時間は93%短縮され、凝集処理が濾過性能の向上に極めて有効なことがわかる。

(4) 純水透過特性

生成ケーキ中のフロックを崩壊させ、フロック中に含まれる水を除去し、ケーキの低含水率化を図るため、ケーキ中に純水を透過させてPAClを洗い流した。図4には、濾過終了後に諸操作を行った場合の乾燥固体粒子のwt%として示したケーキ含水率 R と操作時間 θ との関係を示した。透水操作を行うと比較的短時間にケーキの含水率が低下したの

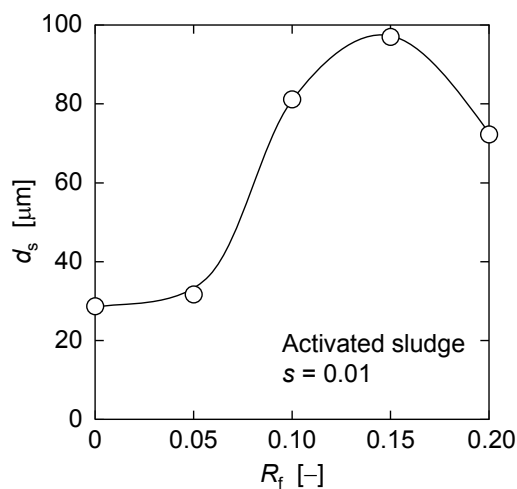


図2 汚泥の凝集特性

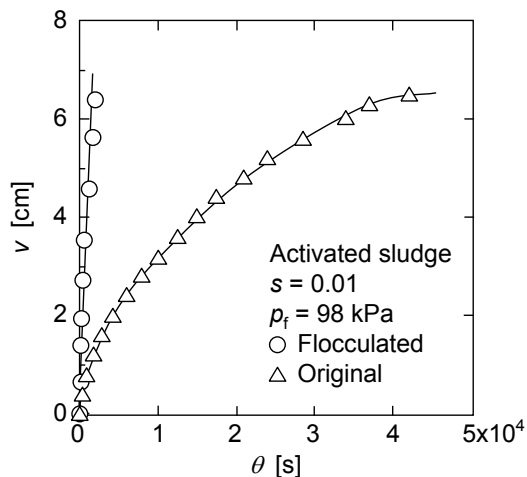


図3 低圧圧搾操作の結果

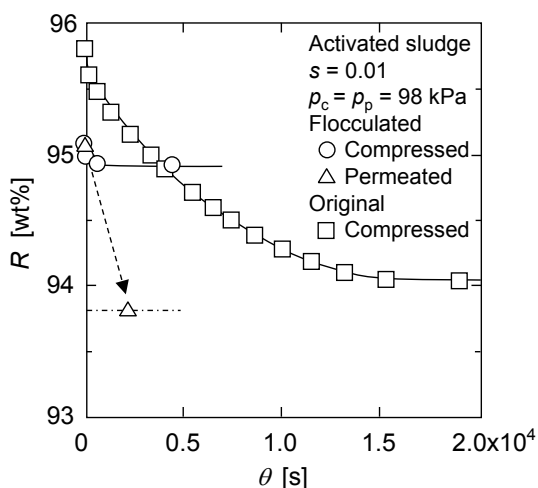


図4 透水操作の結果

に対して、生成ケーキを低圧圧搾の場合と同一圧力で圧密しても含水率はほとんど減少しなかった。また、未凝集スラリーを圧搾して得たケーキをさらに圧密すると、ケーキ含水率は、徐々に減少し、長時間を要するが、次第に透水操作で得た含水率に漸近していくことがわかる。以上のことから、透水操作を行うと、フロックが崩壊してケーキ中の粒子間の水分が抜けやすくなり、速やかにケーキの低含水率化が進行するものと考えられる。

(5) 超高压圧搾特性

① 脱水性能

濾過操作で形成された汚泥ケーキに透水操作を行った後、種々の圧力 p_c で超高压圧搾した場合のケーキ含水率 R の経時変化を図5に示した。圧搾圧力 p_c が大きいほど、脱水速度、脱水度は共に大きくなり、15 MPaで超高压圧搾した場合には、ケーキ含水率は最終的

に31%まで低減できた。この結果は、現存技術の最高水準である60~70%を遙かに凌いでおり、併せて脱水速度の観点からも満足のいくものであった。減量化の程度で数値化すると、汚泥スラリーに対して99.83%の減量化が達成されている。微生物細胞内の水分量が70~80%であることを考え合わせると、この31%という低い含水率は、単にフロックの崩壊による汚泥粒子間の自由水や粒子表面の付着水だけでなく、細胞内に含まれる束縛水も除去されていることを示唆している。なお、未凝集スラリーの低圧圧搾から得たケーキや透水操作を経ない凝集ケーキの超高压圧搾は不可能であった。

図6には、種々の圧搾圧力 p_c を作用させた場合の汚泥ケーキの平衡空隙率 ε を、 ε 対 p_c の両対数プロットとして示した。圧搾圧力 p_c の増加とともに空隙率 ε はほぼ直線的に減少し、次の実験式で整理できた。

$$\varepsilon = \varepsilon_1 p_c^{-\lambda} \quad (1)$$

ここで、 ε_1 、 λ は実験定数である。したがって、圧力をさらに大きくして超高压圧搾を行うことにより、脱水度のさらなる向上も期待される。

②圧密モデルによる整理

これまで、固液混合物の圧密挙動は、修正 Terzaghi モデル、または修正 Terzaghi-Voigt モデルで解析され、無機物の圧搾過程をよく記述することができた。圧密の進行程度を表す平均圧密比 $U_c = (L_1 - L)/(L_1 - L_\infty)$ と圧密時間 θ_c との関係は、修正 Terzaghi モデル、修正 Terzaghi-Voigt モデルに対して、それぞれ次式で表される。

$$U_c = 1 - \exp\left(-\frac{\pi^2}{4} \cdot \frac{i^2 C_c \theta_c}{\omega_0^2}\right) \quad (2)$$

$$U_c = (1-B) \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{\pi^2}{4} \cdot \frac{i^2 C_c \theta_c}{\omega_0^2}\right) \right\} + B \{ 1 - \exp(-\eta \theta_c) \} \quad (3)$$

ここで、 L_1 、 L 、 L_∞ はそれぞれ圧密初期、時間 θ_c 、圧密平衡時のケーキ厚さ、 i は排水面の数、 C_c は修正圧密係数、 ω_0 は単位断面あたりでの固固体積、 B は全圧密量に対する二次圧密量の割合、 η はクリープの進行速度を表す定数（遅延時間の逆数）である。

近年、有機物を対象に新たなモデル式がいくつか提案されている。本研究では、豆腐やおからの圧搾過程の記述に提案された修正 Terzaghi モデルに Voigt モデルを複数個直列に接続して、多段クリープ効果を表現する修正 Terzaghi-一般化 Voigt モデルを、下水汚泥の超高压圧搾過程の解析に適用する。本モデルでは、 U_c の経時変化は次式で表される。

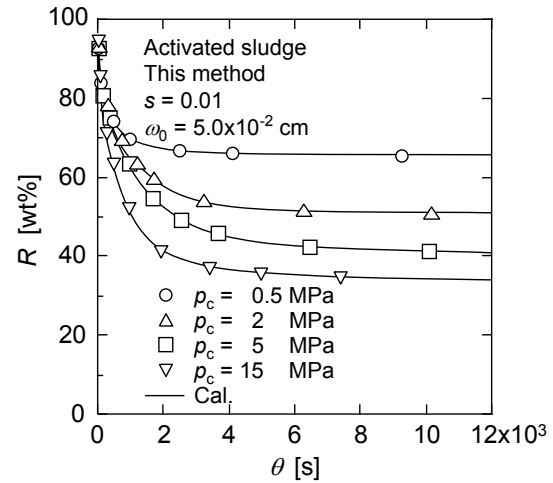


図5 超高压圧搾操作の結果

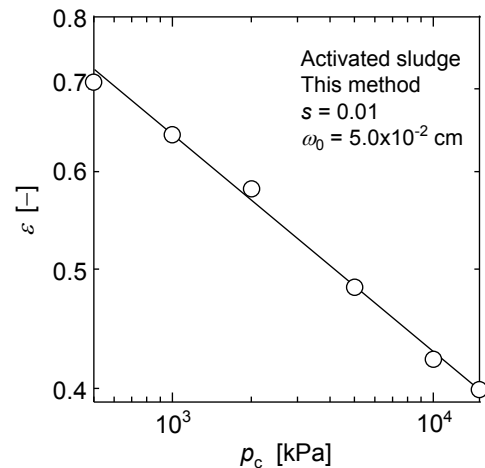


図6 ケーキ空隙率と圧搾圧力の関係

$$U_c = \left(1 - \sum_{k=1}^K B_k \right) \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{\pi^2}{4} \cdot \frac{i^2 C_c \theta_c}{\omega_0^2}\right) \right\} + \sum_{k=1}^K B_k \{ 1 - \exp(-\eta_k \theta_c) \} \quad (4)$$

ここで、 B_k は全圧密量に対する各クリープ量の割合、 η_k は各クリープの進行速度を表す定数である。

図7には、圧搾圧力 $p_c = 15$ MPaの場合の汚泥ケーキの圧縮挙動を、平均圧密比 U_c の経時変化として示した。実線は、Eq. (4)で四次圧密($k=3$)まで考慮し、フィッティングにより決定した修正圧密係数、各クリープ定数を用いて得た計算値であり、実験値を精度良く表せた。なお、Eq. (2)やEq. (3)による計算値は、実験結果と一致させることはできなかった。

ケーキ含水率 R の経時変化は、Eq. (4)で計算される U_c の経時変化を用いると、次式から算出できる。

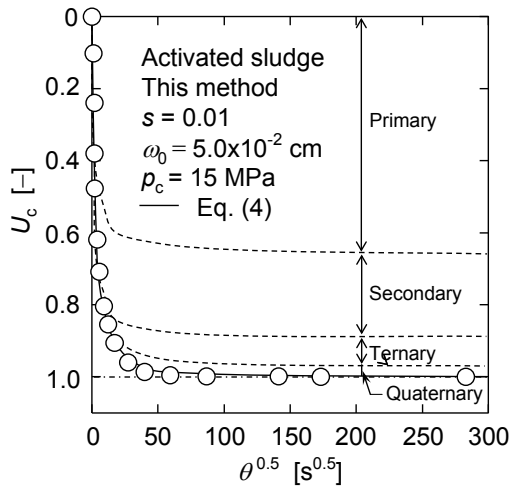


図7 平均圧密比の経時変化

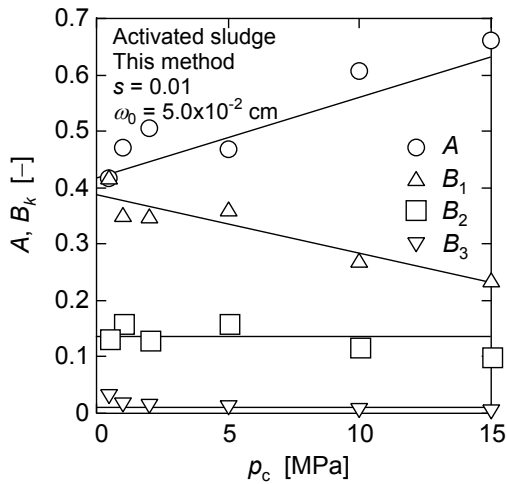


図8 各圧密量の比較

$$R = \frac{\varepsilon_{av} \rho}{\varepsilon_{av} \rho + (1 - \varepsilon_{av}) \rho_s} \quad (5)$$

$$\varepsilon_{av} = 1 - \frac{\omega_0}{L_1 - U_c(L_1 - L_\infty)} \quad (6)$$

ここで、 ε_{av} はケーキの平均空隙率、 ρ は搾出液密度、 ρ_s は固体密度である。図5の実線は、Eqs. (4)–(6)に基づく計算値であり、超高压圧搾過程を精度良くモデル化できることがわかる。

全圧密量に対する一次圧密量の割合を表す $A (= 1 - B_1 - B_2 - B_3)$ 、二～四次圧密量の割合を表す B_1 、 B_2 、 B_3 と圧搾圧力 p_c の関係を図8に示した。圧搾圧が小さい場合には、一次圧密量と二次圧密量は共に 40 %程度と全圧密量に対して最も大きな割合を占めるが、圧搾圧の増大とともに一次圧密量の占める割合が増加し 15 MPa では一次圧密量が 60 %を上回った。

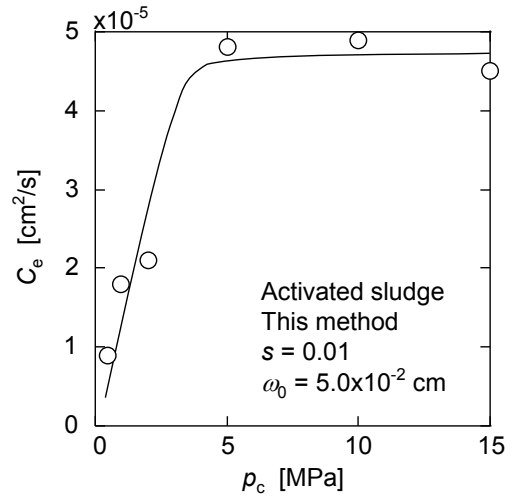


図9 修正圧密係数

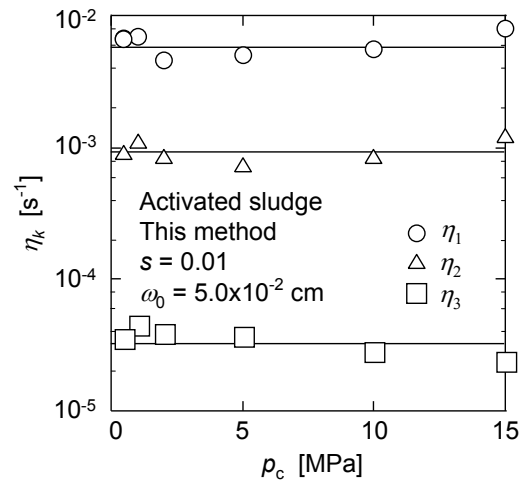


図10 クリープ定数

図9, 10には、各圧密過程での圧密速度の指標となる修正圧密係数 C_e および各クリープ定数 η_k と圧搾圧力 p_c との関係を示した。修正圧密係数 C_e は、圧力 p_c の増大とともに大きくなるが、5 MPa 以上では、ほぼ一定値となった。このことは、 C_e の定義に基づく、圧力の増加によりケーキ圧縮性（汚泥粒子変形能）が急激に増大したことを意味する。一方、 η_k の圧力による変化はあまり見られないが、各 η_k に1オーダー以上の顕著な差があり、クリープ現象が段階的に生じていることがわかる。

(6) まとめ

本研究で提案する凝集操作を併用した超高压圧搾プロセスにより、従来の機械的脱水法を遙かに凌ぐ高速かつ高度な汚泥減量化が実現できることを示した。また、提案した修正 Terzaghi-一般化 Voigt モデルにより圧密

脱水特性が評価できることを明らかにした。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 7 件)

- ① E. Iritani, N. Katagiri and D. Nakano, Flux Decline Behaviors in Inclined Dead-End Ultrafiltration of BSA Solutions, *Chem. Eng. J.*, 査読有, **184**, 2012, 98-105, DOI: 10.1016/j.cej.2012.01.007
- ② 入谷英司, 片桐誠之, 杉山悠生, 希薄コロイドの定速および定圧精密濾過における膜閉塞特性, 化学工学論文集, 査読有, **37**(4), 2011, 323-326, DOI: 10.1252/kakoronbunshu.37.323
- ③ 入谷英司, 片桐誠之, 佐野泰之, PACI で凝集処理したフミン酸溶液の精密濾過特性, 化学工学論文集, 査読有, **37**(3), 2011, 246-250, DOI: 10.1252/kakoronbunshu.37.246
- ④ N. Katagiri, T. Hashimoto and E. Iritani, Evaluation of Consolidation-Sedimentation Properties for the Batch Gravity Sedimentation of Concentrated Suspension, *Filtration*, 査読有, **11**(2), 2011, 123-128
- ⑤ E. Iritani, Y. Takaishi and N. Katagiri, Two-Stage Process of Single-Pass Inclined Ultrafiltration for Affinity Chiral Separation, *Filtration*, 査読有, **10**(3), 2010, 211-218
- ⑥ K.J. Hwang, Y.T. Wang, E. Iritani and N. Katagiri, Effect of Gel Particle Softness on the Performance of Cross-Flow Microfiltration, *J. Membrane Sci.*, 査読有, **365**(1-2), 2010, 130-137, DOI: 10.1016/j.memsci.2010.08.043
- ⑦ E. Iritani, N. Katagiri, T. Tadama and H. Sumi, Analysis of Clogging Behaviors of Diatomaceous Ceramic Membranes During Membrane Filtration Based upon Specific Deposit, *AIChE J.*, 査読有, **56**(7), 2010, 1748-1758, DOI: 10.1002/aic.12111

[学会発表] (計 22 件)

- ① E. Iritani, T. Washizu and N. Katagiri, Developments of High-Speed and High-Level Deliquoring Process of Sewage Sludge by Ultrahigh-Pressure Expression Combined with Flocculation, Filtration and Separation Symposium 2011, 2011.11.17, Tokyo (Japan)
- ② T. Washizu, N. Katagiri and E. Iritani, Volume Reduction of Activated Sludge at High Rate by Step-Up Ultrahigh-Pressure Expression Combined with Reversible Flocculation, 9th International Conference

on Separation Science and Technology, 2011.11.4, Jeju (Korea)

- ③ 鷺津拓也, 入谷英司, 凝集・ステップ超高压圧搾の複合プロセスによる難脱水性スラッジの高速減量化, 化学工学会第 43 回秋季大会, 2011.9.15, 名古屋工業大学 (愛知県)
- ④ 鷺津拓也, 入谷英司, ステップ超高压圧搾による余剰汚泥の高速減量化プロセスの開発, 分離技術年会 2011, 2011.6.3, 明治大学 (神奈川県)
- ⑤ 入谷英司, 片桐誠之, 鷺津拓也, 可逆凝集を用いたステップ超高压圧搾による難脱水性有機汚泥の高速減量化技術の開発, 第 21 回廃棄物資源循環学会研究発表会, 2010.11.4, 金沢市文化ホール (石川県)
- ⑥ 鷺津拓也, 入谷英司, 可逆凝集-多段超高压圧搾システムによる下水汚泥の高速減量化プロセスの開発, 化学工学会第 42 回秋季大会, 2010.9.6, 同志社大学 (京都府)

[図書] (計 7 件)

- ① 入谷英司, 片桐誠之, サイエンス&テクノロジー, 水処理膜の製膜技術と材料評価, 2012, 21-47
- ② 入谷英司, 森北出版, 初歩から学ぶ粉体技術, 2011, 109-116
- ③ 入谷英司, 三恵社, 最新 装置内の移動現象の解析と可視化, 2011, 107-126
- ④ 入谷英司, 日刊工業新聞社, 絵とき 濾過技術 基礎のきそ, 2011, 180
- ⑤ 入谷英司, 日本冷凍空調学会, 冷凍空調便覧 基礎編 -第 6 版-, 2010, 266-272
- ⑥ 入谷英司, 分離技術会, 分離技術ハンドブック, 2010, 897-903

6. 研究組織

(1) 研究代表者

入谷 英司 (IRITANI EIJI)
名古屋大学・工学研究科・教授
研究者番号: 60144119

(2) 研究分担者

片桐 誠之 (KATAGIRI NOBUYUKI)
名古屋大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 00345919

(3) 連携研究者なし