様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９　(共通)

科研費 KAKENHI

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

令和　５ 年　６ 月　３ 日現在

機関番号：３３９１９

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：２０Ｋ０５１９０

研究課題名（和文）汚泥を固形燃料化する高度圧搾脱水プロセスの開発

研究課題名（英文）Development of advanced dewatering process of sludge for its conversion to solid fuel

研究代表者

片桐　誠之（Katagiri, Nobuyuki）

名城大学・理工学部・准教授

研究者番号：００３４５９１９

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　3,400,000円

研究成果の概要（和文）：下水処理施設から大量に排出される、高含水率の活性汚泥について、浸透圧を利用した脱水操作を試み、その効果を明らかにした。活性汚泥スラリーの濾過操作により作製した含水率80%程度の濾過ケークを高濃度の塩溶液に浸漬させると、活性汚泥を構成する微生物細胞の内と外の浸透圧差により細胞内の水分が排出され、低含水率の脱水ケークが得られた。浸透圧差が大きくなるほど、その効果は顕著となり、22 MPa程度の圧力を作用させた場合には、処理時間数分程度で含水率が60%程度まで減少した。低含水率の活性汚泥脱水ケークは自燃するものと推察され、固形燃料としての利用の可能性が期待できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義
難脱水性有機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現在急務とされている課題である。省エネルギー的な脱水操作として機械的固液分離が導入されているが、現在の技術ではその脱水度は充分なものではなく、その後に熱的操作を必要としている。本研究では、汚泥を構成する微生物細胞の内と外の浸透圧差を利用する浸透圧脱水法を確立し、汚泥の含水率を迅速に60%程度まで減少させることに成功しており、従来技術の70～80%を遥かに凌駕する成果が得られている。高い脱水速度と高い脱水度の両者を同時に満足し、汚泥の固形燃料化に繋がる省エネルギー的な脱水プロセスとして有用である。

研究成果の概要（英文）：We attempted a dewatering operation using the osmotic pressure of activated sludge with high moisture content, which is discharged in large quantities from a sewage treatment facility, and elucidated its dewatering effect. A filter cake with a moisture content of approximately 80 wt% prepared by filtration of activated sludge was immersed in a high-concentration salt solution. The intracellular water was discharged owing to the osmotic pressure difference between the inside and outside of the microbial cells constituting the activated sludge, whereby a low moisture-content dewatered cake was obtained. The higher the osmotic pressure, the greater was the dewatering effect. With an osmotic pressure of approximately 22 MPa, the moisture content of the cake decreased to approximately 60 wt% within a few minutes. The sludge cake dehydrated by osmotic pressure had an extremely low moisture content, suggesting the possibility of use as a solid fuel.

研究分野：水処理工学

キーワード：汚泥　圧搾脱水　浸透圧脱水　固形燃料化　破砕操作　超高圧圧搾　フロック崩壊　微生物細胞

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様　式　C－19、F－19－1、Z－19（共通）

１．研究開始当初の背景

産業廃棄物の中で最も大きな排出量割合を占める汚泥は、省エネルギー的な操作で高度に脱水することができれば､固形燃料としての利用の可能性がある。汚泥の脱水法については、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、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きた。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（ケーク含水率の低減化）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フロック内の水分の除去は困難で低含水率ケーク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、ケーク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、従来技術では汚泥の高効率な脱水は困難な状況にある。本研究は、両者の欠点を克服する革新的な技術として、破砕操作と超高圧圧搾を融合させた新たな手法を提案して、その有効性を検証し、脱水機構の解明に基づき最適な操作法を提示する。

２．研究の目的

本研究では、現在の機械的固液分離技術では高効率な減量化が困難な下水汚泥、消化汚泥、食品廃棄物汚泥、畜産汚泥などの難脱水性有機汚泥を対象に、汚泥の高速減量化を実現できる手法の提案を行い、その有効性を明らかにするとともに、操作の設計指針を得ることを目的とする。提案手法は、破砕操作と超高圧圧搾を融合させるものであり、破砕操作により強固なフロックの崩壊とフロックを構成する微生物細胞の表面に亀裂を生じさせることを狙う。この状態で高圧を作用させることで通常の圧搾操作では難しい微生物細胞内の水分、すなわち束縛水まで高速で排出させることができ、含水率は従来技術の 70～80%を遙かに凌駕する値まで高速で到達し、自燃可能な状態となることから固形燃料としての有効利用の可能性が期待できる。

破砕操作として、汚泥に対して超音波の照射、高アルコール濃度水 [1]や高浸透圧水 [2]への浸漬を試み、また超高圧下の微生物細胞の挙動と脱水への影響 [3]を明らかにした。本報告では、最も効果が得られ、研究目的を達成する浸透圧脱水法について詳細を述べる。

３．研究の方法

試料には、パン酵母、培養汚泥および名古屋市内の水処理センターから採取した余剰汚泥を用いた。培養汚泥は、非滅菌のペプトン/グルコース系人工下水を、恒温振とう培養機で温度 30°C、回転速度 200 rpm の条件下に置き、自然発生的に増殖した微生物群を回収して得た [2]。水処理センターで採取した余剰汚泥は、デカンテーションにより濃縮し、固形分濃度を 5000 mg/L に調整して実験に供した。凝集汚泥は、ポリアクリル酸系の有機高分子凝集剤で、カチオン性のクリフィックス（CP-802, 栗田工業）を用いて、濃度比（汚泥スラリー中の固形分質量に対する凝集剤質量）0.0075 の条件で凝集処理を行って作製した。凝集操作は、汚泥スラリーに凝集剤を添加した後、150 rpm で 5 min の急速撹拌、続いて 50 rpm で 10 min の緩速撹拌を行って凝集フロックを形成させた。

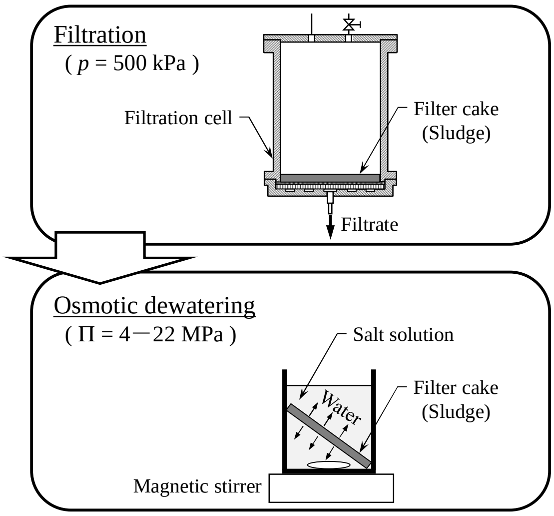

図１　浸透圧脱水プロセス

活性汚泥の浸透圧脱水のためのプロセスを図 1 に示す。浸透圧脱水に供する汚泥ケークは、濾過操作により調製した。固形分濃度 5000 mg/L の汚泥スラリーを、濾過面積が 19.16 cm^2 のデッドエンド濾過器を用いて、濾過システム [1]により窒素ガス圧を作用させ、$p = 500$ kPa の一定圧力で濾過して得た。濾材には、公称孔径 0.1 μm のセルロース混合エステル製精密濾過膜（ADVANTEC）を用い、濾液質量の経時変化を電子天秤で測定した。高浸透圧（$\Pi = 4-22$ MPa）の塩溶液による脱水操作は、汚泥の濾過ケーク 1 g を所定濃度 C の NaCl 水溶液 50 mL に浸漬し、50 rpm で水溶液を撹拌して溶液濃度を一定に保った。汚泥ケークからの脱水による溶液の濃度変化を確認するため導電率計で電気伝導度を測定した。脱水操作終了後のケーク含水率 R_w は、脱水ケークの全量を用いて赤外線式水分計（MOC-120H，島津製作所）で測定した。なお、比較のため、濾過器を用いた窒素加圧による濾過とそれに続く圧密による脱水操作も行った。

４．研究成果

(1)　微生物細胞・培養汚泥への浸透圧効果

微生物細胞に対する浸透圧効果を確認するため、予備実験として、酵母を濃度 $C = 257$ g/L（4.4 M）の NaCl 水溶液および 10 mM クエン酸－20 mM Na_2HPO_4 緩衝液中にそれぞれ 1 時間程度静置した後、細胞の大きさを比較した。図 2 はレーザー回折式粒度分布測定装置（SALD2200，島津製作所）にて測定した酵母細胞の粒径分布を示しており、NaCl 水溶液中の酵母細胞は緩衝液中と比較してピーク値が左側にシフト、すなわち粒径 d_p が小さくなっている。これは、高濃度の NaCl 水溶液に浸したことで酵母細胞の内と外の浸透圧差が大きくなり、細胞内の水分が細胞外へと移動して細胞が萎んだことを示唆している。細胞内の浸透圧は、約 150 mM の NaCl 水溶液の浸透圧に相当し、$C = 257$ g/L（4.4 M）の NaCl 水溶液は、ファントホッフの法則により $\Pi = CRT$ から、25℃における浸透圧 Π は 21.8 MPa 程度となり、圧搾脱水の超高圧に匹敵する極めて大きな浸透圧を酵母細胞に作用させたことになる。ここで、R は気体定数、T は絶対温度である。

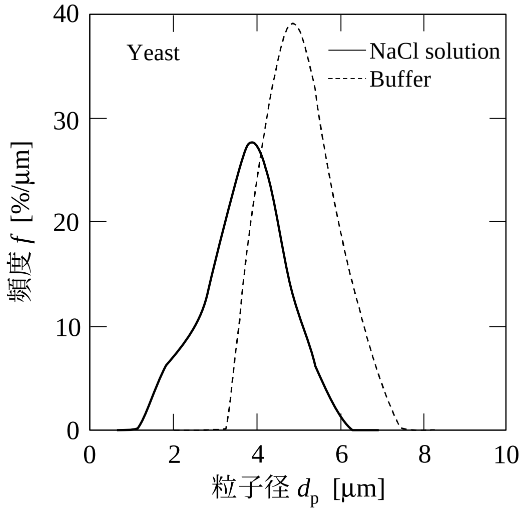

図 2　酵母細胞の粒径分布

酵母細胞は、細胞膜の外側に細胞強度に関わる厚いβグルカン層を有しており、様々な微生物で構成される活性汚泥の中でも圧力に対する耐性が強いと考えられる。したがって、酵母で脱水効果が認められる条件では、活性汚泥においても十分な効果が期待できる。そこで、人工下水により研究室で培養して得た活性汚泥（培養汚泥）について浸透圧の効果を確認した。汚泥スラリーを定圧濾過し、生成される濾過ケークを $C = 257$ g/L の NaCl 水溶液、すなわち高浸透圧液に浸漬させた。培養汚泥の濾過ケークは微生物の集合体であり、含水率が高くて非常に柔らかく粘着性もあるため、形状を保ったままケークを膜から剥離させることは極めて困難である。膜ごと高浸透圧液に浸漬させたところ、極わずかな時間でケークが膜から剥離する現象が確認された。浸透圧効果によりケーク内および膜とケークの界面から水分が除去され、固い緻密なケークとなって剥離したものと推察される。

高浸透圧液中の汚泥ケークの様子から、浸透圧脱水はかなり短時間で進行することが推察された。浸漬後に膜から剥離した汚泥ケークを一定時間ごとに回収して含水率を測定し、浸漬時間との関係を図 3 にプロットした。浸漬後 20 分までは時間の経過とともに含水率が減少し、その後ほぼ一定となった。高浸透圧液から取り出した際の汚泥ケーク周囲の水分が測定結果に影響をおよぼすものの、含水率はおよそ 61 wt%まで減少すると判断される。微生物細胞は、一般に

総重量の 2/3 以上の水を含むことから、ケーク含水率が 66 wt%以下となったのは、細胞内の水分が排出されたことを示している。ケーク内および微生物細胞内の水分が高浸透圧液に移動すると、細胞近傍の液が希釈され浸透圧効果が低下することが考えられる。そこで、撹拌による完全混合で高浸透圧液の濃度分布が生じないようにしたところ、図 3 の△プロットのように数分で脱水効果が得られ、含水率は 57 wt%程度まで減少した。以上の結果より、高濃度塩溶液による浸透圧脱水は培養汚泥に有効であり、数分程度の処理で高度な脱水が実現できることが明らかとなった。

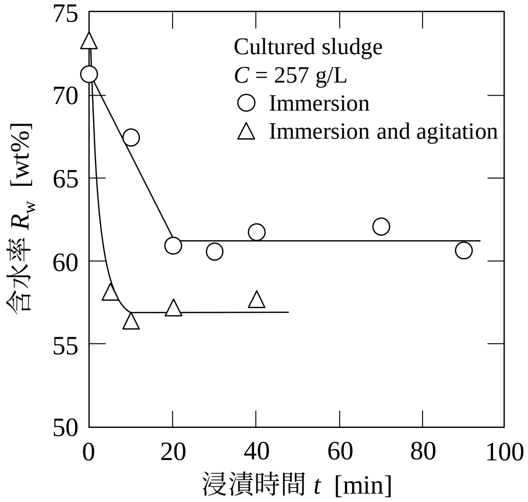

図 3　浸透圧脱水法による汚泥含水率の経時変化

(2)　活性汚泥の浸透圧脱水法

下水処理施設から大量に排出されている活性汚泥に対して、本手法の適用の可能性を検討した。はじめに、浸透圧効果による実汚泥の含水率低下の有無と初期含水率 R_{w0} が脱水効果におよぼす影響を調査した。初期含水率 R_{w0} が 90 wt%程度と 80 wt%程度の汚泥ケークに対して浸透圧脱水を行い、NaCl 水溶液の濃度 C と処理後の含水率との関係を図 4 にプロットした。NaCl 水溶液に汚泥ケークを浸漬させることで含水率の低下が生じたが、この際、初期含水率の影響が大きく、処理後の含水率に著しい差が生じることがわかった。1 g の汚泥ケークから 0.5 g の水分が除去されたと仮定すると、初期含水率 90 wt%では含水率 80 wt%に減少するのみであるが、初期含水率が 80 wt%だと 60 wt%まで減少することになる。また、汚泥ケークから排出された水分により塩溶液が希釈されるため、脱水の進行とともに浸透圧差は減少していく。これらより浸透圧脱水を効果的に行うためには、初期含水率を 80 wt%程度まで下げておくことが望ましいと判断される。現状の機械的脱水技術において、含水率 80 wt%程度の汚泥ケークは容易に得られることから、本研究で提案する浸透圧脱水法は汚泥の更なる減量化や固形燃料化を目的とした、機械的脱水操作後の汚泥の高度脱水に有用な技術に位置づけられると考える。

汚泥ケークを濃度 C が 100 g/L（図 5）と 260 g/L（図 6）の NaCl 水溶液に浸漬させた際の溶液の電気伝導度の変化を示している。いずれの条件においても時間の経過とともに電気伝導度が小さくなっており、汚泥ケークから排出された水分により希釈され NaCl 濃度が減少したことがわかる。C = 100 g/L では 25 分程度、C = 260 g/L では 5 分程度で電気伝導度が一定となり、浸透圧脱水がほぼ終了したと判断できる。高濃度で高浸透圧となる条件の方が脱水時間は短くなっている。なお、NaCl 水溶液の UV スペクトルから、浸透圧脱水後には波長 230〜300 nm に吸収が見られるようになり、汚泥ケークから微生物の代謝物等が水分とともに排出されるものと推察される。濾材を用いる汚泥の分離では、代謝物による濾材の閉塞が分離速度に多大な影響を及ぼすことから、処理時間の短縮という点における濾材を用いない本手法の優位性が確認された。

次に、種々の濃度の NaCl 水溶液で汚泥ケークの浸透圧脱水を行い、濃度 C、それに対応する浸透圧Πと処理後の汚泥含水率の関係を図 7 にプロットした。図中の○プロットを見ると、濃度の増大により汚泥に作用させる浸透圧が大きくなり、汚泥の含水率が低下していくことがわかる。特に C = 50 g/L から 100 g/L で含水率が顕著に低下しており、5 MPa 以上の圧力を作用させることで大きな脱水効果が得られている。これは、酵母など厚いβグルカン層をもつ菌類の機械的圧搾脱水において確認される現象である [3)]。NaCl の飽和濃度に近い C = 260 g/L では浸透圧Πが 22 MPa 程度となり、含水率は 60.3 wt%まで減少した。含水率 80 wt%程度の汚泥ケークを調製するために行った圧力 p = 500 kPa での濾過では、圧力を作用し続けてケークを圧密しても含水率は 70 wt%程度までしか下がらず、80 wt%から 70 wt%に低下するのに処理時間 370 分程度を要した。浸透圧脱水は、脱水速度と脱水度の両指標を大幅に向上できることが明らかである。

一般的な汚泥処理工程において、脱水速度の向上のために高分子凝集剤が使用されている。高

分子凝集剤は、汚泥スラリーの濾過速度の向上という観点では著しい効果を発揮するが、ケークの圧密速度の向上には繋がらず、最終的に得られる脱水ケークの含水率も下がりにくい。高分子凝集剤クリフィックスにより平均粒径を 4.7 mm 程度にした凝集汚泥に対して浸透圧脱水を試みた。図 7 に△プロットで示すように、未凝集汚泥（○プロット）と比較すると含水率が低下しにくくなる傾向にはあるものの顕著な脱水効果が認められ、C = 260 g/L では 66 wt%程度まで含水率が減少し、凝集汚泥に対しても本手法の有効性が確認できた。なお、塩溶液の電気伝導度の変化から凝集汚泥と未凝集汚泥の脱水速度に大きな差がないことを確認している。塩溶液は、溶質を $CaCl_2$ などに変えることでさらに高い浸透圧を作用させることができ、今後、イオン種の影響なども検討することで、より効果的な浸透圧脱水技術の確立に繋がるものと考える。

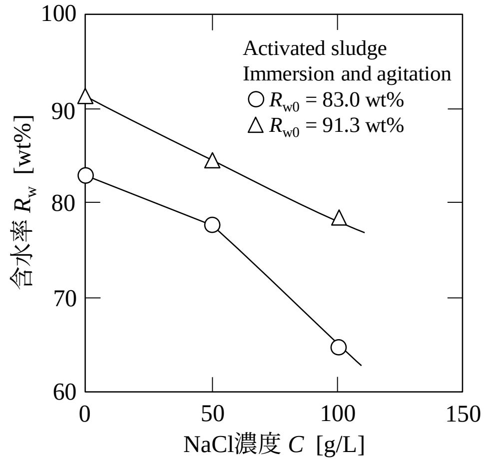

図 4　脱水に及ぼす初期含水率の影響

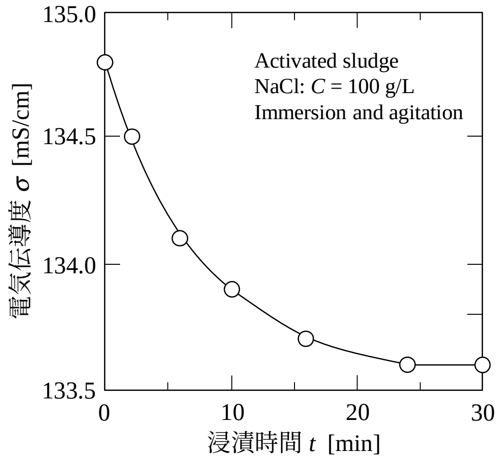

図 5　電気伝導度の経時変化（C = 100 mg/L）

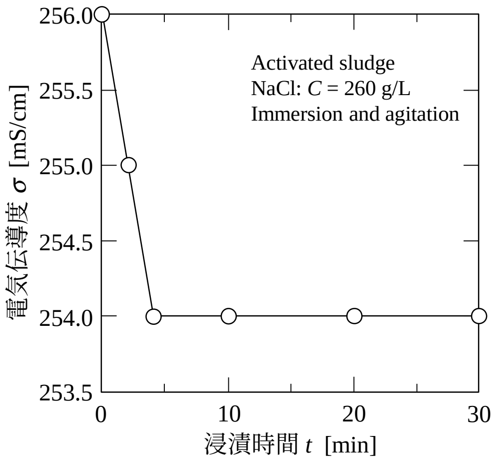

図 6　電気伝導度の経時変化（C = 260 mg/L）

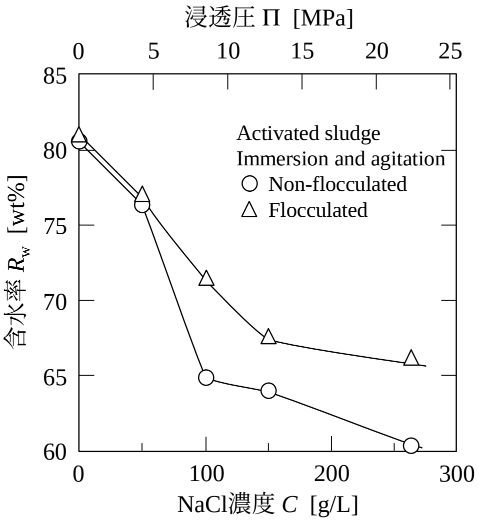

図 7　脱水に及ぼす浸透圧の影響

＜引用文献＞

1) N. Katagiri, K. Tomimatsu, K. Date, E. Iritani, Yeast Cell Cake Characterization in Alcohol Solution for Efficient Microfiltration, Membranes, 11(2), 2021, 89

2) 片桐誠之, 中島健人, 小幡浩樹, 浸透圧を利用した活性汚泥の高度脱水, 化学工学論文集, 48(5), 2022, 161-166

3) N. Katagiri, Y. Kuwajima, H. Kawahara, R. Yamashita, E. Iritani, Special Features of Microbial Cake under High Pressure Conditions in Microfiltration, Sep. Purif. Technol., 303, 2022, 122234

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕　計7件（うち査読付論文　7件／うち国際共著　1件／うちオープンアクセス　3件）

１．著者名 Katagiri Nobuyuki、Nakashima Kento、Obata Hiroki	４．巻 48
２．論文標題 High-Level Dewatering of Activated Sludge Using Osmotic Pressure	５．発行年 2022年
３．雑誌名 KAGAKU KOGAKU RONBUNSHU	６．最初と最後の頁 161～166
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1252/kakoronbunshu.48.161	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 Katagiri Nobuyuki、Kuwajima Yuya、Kawahara Hirotaka、Yamashita Reina、Iritani Eiji	４．巻 303
２．論文標題 Special Features of Microbial Cake under High Pressure Conditions in Microfiltration	５．発行年 2022年
３．雑誌名 Separation and Purification Technology	６．最初と最後の頁 122234～122234
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.seppur.2022.122234	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 Cao Da-Qi、Liu Xiao-Dan、Han Jia-Lin、Zhang Wen-Yu、Hao Xiao-Di、Iritani Eiji、Katagiri Nobuyuki	４．巻 13
２．論文標題 Recovery of Extracellular Polymeric Substances from Excess Sludge Using High-Flux Electrospun Nanofiber Membranes	５．発行年 2023年
３．雑誌名 Membranes	６．最初と最後の頁 74～74
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/membranes13010074	査読の有無 有
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 該当する

１．著者名 Katagiri Nobuyuki、Shimokawa Daisuke、Suzuki Takayuki、Kousai Masahito、Iritani Eiji	４．巻 13
２．論文標題 Separation Properties of Plasmid DNA Using a Two-Stage Particle Adsorption-Microfiltration Process	５．発行年 2023年
３．雑誌名 Membranes	６．最初と最後の頁 168～168
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/membranes13020168	査読の有無 有
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 Katagiri Nobuyuki, Shinoda Taisei, Yamashita Reina, Fukuchi Shoya	4．巻 44
2．論文標題 Estimation of Filtration Behavior Based on Simplified Evaluation of Membrane Fouling Characteristics	5．発行年 2021年
3．雑誌名 Journal of Japan Society on Water Environment	6．最初と最後の頁 149～155
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2965/jswe.44.149	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 Katagiri Nobuyuki, Kohori Kazuma, Takahashi Hiroto, Iritani Eiji	4．巻 48
2．論文標題 Effect of Viruses on Filtration of Polluted Water	5．発行年 2022年
3．雑誌名 Kagaku Kogaku Ronbunshu	6．最初と最後の頁 7～13
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1252/kakoronbunshu.48.7	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 N. Katagiri, K. Tomimatsu, K. Date and E. Iritani	4．巻 11
2．論文標題 Yeast Cell Cake Characterization in Alcohol Solution for Efficient Microfiltration	5．発行年 2021年
3．雑誌名 Membranes	6．最初と最後の頁 89
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/membranes11020089	査読の有無 有
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 －

〔学会発表〕　計10件（うち招待講演　1件／うち国際学会　0件）

1．発表者名 高橋寛斗，福地翔哉，中本莉緒，片桐誠之
2．発表標題 食品廃棄物由来浄水剤の凝集・殺菌・ウイルス除去性能
3．学会等名 化学工学会第53回秋季大会
4．発表年 2022年

１．発表者名
太田成美，片桐誠之

２．発表標題
白色腐朽菌の培養液を用いたメンブレンリアクターによる難分解性物質の分解

３．学会等名
化学工学会第53回秋季大会

４．発表年
2022年

１．発表者名
片桐誠之，中島健人，小幡浩樹

２．発表標題
浸透圧を利用した余剰汚泥の高度脱水

３．学会等名
化学工学会第53回秋季大会

４．発表年
2022年

１．発表者名
高橋寛斗，福地翔哉，中本莉緒，片桐誠之

２．発表標題
カニ殻由来凝集剤と貝殻焼成粉末の併用による凝集・殺菌・ウイルス不活化効果

３．学会等名
分離技術会年会2022

４．発表年
2022年

１．発表者名
太田成美，片桐誠之

２．発表標題
白色腐朽菌の培養上澄液を用いた膜利用型リアクターによる難分解性廃水の浄化

３．学会等名
分離技術会年会2022

４．発表年
2022年

１．発表者名 高橋寛斗，福地翔哉，浅野史子，片桐誠之
２．発表標題 汚染水浄化に活用する天然由来物質の凝集・殺菌性能
３．学会等名 化学工学会第52回秋季大会
４．発表年 2021年

１．発表者名 太田成美，片桐誠之
２．発表標題 ラッカーゼ・メディエーター系酵素メンブレンリアクターによる抗生物質の分解
３．学会等名 化学工学会第52回秋季大会
４．発表年 2021年

１．発表者名 片桐誠之，水野由貴，北畑智志，入谷英司
２．発表標題 高圧圧搾操作による白色腐朽菌の高度脱水と生理活性物質の搾出
３．学会等名 化学工学会第52回秋季大会（招待講演）
４．発表年 2021年

１．発表者名 太田成美，片桐誠之
２．発表標題 難分解性廃水の膜利用型処理プロセスの開発
３．学会等名 分離技術会年会2021
４．発表年 2021年

１．発表者名 高橋寛斗，福地翔哉，浅野史子，片桐誠之
２．発表標題 カニ殻・貝殻由来浄化剤の凝集・殺菌効果
３．学会等名 分離技術会年会2021
４．発表年 2021年

〔図書〕　計0件

〔出願〕　計1件

産業財産権の名称	発明者	権利者
高度脱水汚泥ケークの作製方法	片桐誠之	学校法人名城大学
産業財産権の種類、番号	**出願年**	**国内・外国の別**
特許、特願2021-094876号	2021年	国内

〔取得〕　計0件

〔その他〕

名城大学理工学部環境創造工学科エネルギー・資源循環分野片桐研究室
https://www1.meijo-u.ac.jp/~katagiri/index.html

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

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			
中国	北京建築大学			