

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 27 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656467

研究課題名(和文)可逆凝集・多段超高压脱水による有機汚泥の超減量化

研究課題名(英文) High-Level Reduction of Organic Sludge by Multistage Ultrahigh-Pressure Dewatering Combined with Reversible Flocculation

研究代表者

入谷 英司 (Iritani, Eiji)

名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：60144119

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：可逆凝集を取り入れた多段超高压圧搾脱水法により有機汚泥の超減量化を達成した。下水余剰汚泥を例に、多価イオンの無機電解質の添加による可逆凝集操作と50 MPaの超高压圧搾とを組み合わせた一連の操作により、ケーキ含水率は23%まで低減された。汚泥原液を基準とすると、99.87%もの減量化を達成したこととなる。脱水ケーキの平均空隙率と圧搾圧力との関係から、圧力を更に大きくすることで、より高度な脱水が可能となることが示唆された。また、超高压下における活性汚泥の圧搾挙動は、提案する多段クリープモデルで記述でき、様々な操作条件下におけるケーキ脱水挙動の評価に有用である。

研究成果の概要(英文)：Multistage ultrahigh-pressure expression combined with reversible flocculation accomplished high-level reduction in volume of organic sludge. The water content of the compressed cake produced from excess activated sludge was finally reduced to 23 wt% by ultrahigh-pressure expression conducted at 50 MPa combined with reversible flocculation using inorganic electrolyte with multivalent cation. This new method reduced the sludge volume by 99.87%. The relation between the average porosity of the compressed cake and the applied expression pressure suggests that the water content of activated sludge may be further reduced by greater expression pressure. It was shown that the complicated kinetics of expression of activated sludge under the ultrahigh-pressure condition was accurately described using the newly developed multistage creep model and that the model will be beneficial in evaluating the dewatering performance under various operating conditions.

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 超高压脱水 廃棄物 汚泥 減量化 圧搾 含水率 空隙率

### 1. 研究開始当初の背景

汚泥は、産業廃棄物の中で最も大きな排出割合を占めており、特に難脱水性を示す有機汚泥の減量化のための高効率な脱水法の開発が切望されている。濾過、圧搾等の機械的固液分離が最も省エネルギー的な操作であることから、国の内外で汚泥の機械的分離に関する多くの研究や技術開発が行われてきた。これまでの取り組みは、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)を目指すものがほとんどである。しかしながら、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キは得られないという致命的な欠点が明らかとなっている。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下することもあり、現在の技術では有機汚泥の高効率な脱水は困難な状況にある。そこで、本研究では、現状技術の欠点を克服する革新的な脱水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。

### 2. 研究の目的

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、難脱水性有機汚泥の超減量化の可能性を探究する。具体的には、溶媒環境の変化による可逆凝集を利用して、緩い凝集フロックを形成させ、比較的低い圧搾圧力で高速で粗分離を行った後、フ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。可逆凝集による脱水速度の向上と多段超高压圧搾による脱水度の向上が生じるそれぞれの機構を解明し、得られた成果に立脚して、両者を融合することによって初めて達成される最も効率的な脱水性能を得るための設計指針を提示することを目的とする。

### 3. 研究の方法

#### (1) 脱水システム

提案する脱水システムの概要を図1に示す。汚泥を緩く凝集させて粗大フロックを形成させ、0.1~0.5 MPaの低下での圧搾脱水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50 MPaまで及び超高压圧搾脱水操作による圧縮作用の両者によって、生成ケーキ内のフロックが崩壊し、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。凝集と低下脱水操作で脱水速度の向上を図り、透水と多段超高压脱水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。

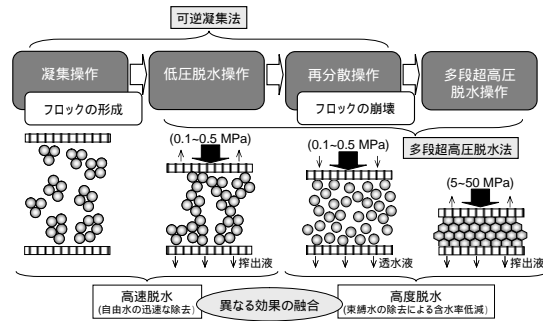


図1 脱水システムの概要

#### (2) 可逆凝集法の確立

下水余剰汚泥を例にとり、酸・アルカリ、無機電解質、アルコール、界面活性剤、バイオ凝集剤等を汚泥に添加して、凝集フロックの形成と崩壊に関する基礎特性を明らかにする。その後、種々の条件で調製した有機汚泥の凝集フロックを圧密試験セルにより0.1~0.5 MPaで低下脱水し、圧搾速度やケーキ含水率などの圧搾脱水特性を明らかにする。次いで、凝集脱水ケーキに水透過を行うことにより、ケーキ中のフロックを崩壊させる。得られた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。

#### (3) 超高压脱水操作法の確立

図2に示す超高压圧密試験セルと材料試験機を用いて、フロックを崩壊させた低下脱水ケーキを5~50 MPaで超高压脱水してケーキの低含水率化を行い、脱水速度と脱水度の両面から、本手法の有効性を検証する。特に、低下脱水におけるケーキ脱水度が多段超高压脱水における脱水速度に与える影響を検討することにより、低下脱水と超高压脱水の両者を総合した圧搾脱水プロセスの最適化を行う。

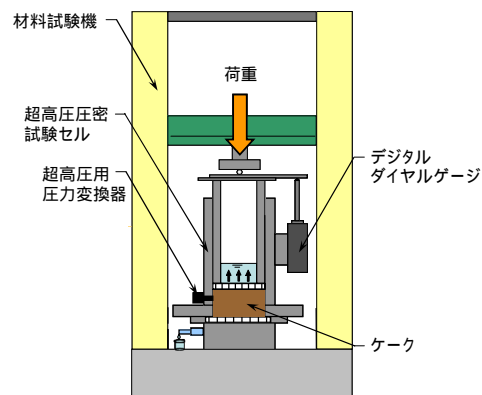


図2 超高压圧搾脱水試験装置

#### (4) 融合プロセスの最適操作法の確立

種々の性状の有機汚泥に対して、可逆凝集と多段超高压脱水の種々の組み合わせを検討する。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、低压脱水と多段超高压脱水における各圧搾圧力と脱水時間の最適条件を明らかにし、有機汚泥の超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) 低压脱水

下水余剰汚泥を用いて、種々の可逆凝集法を検討した結果、多価イオンの無機電解質であるポリ塩化アルミニウム(PACI X 250A, 多木化学)を用いた場合に顕著な効果が認められた。なお、最適な凝集剤添加量は、AIT比(アルミニウム量対濁質量比)  $R_f = 0.15$  であり、以降の実験はすべてこの添加量で行った。

汚泥をPACIで凝集処理した後、圧力  $p_f = 98$  kPa で低压圧搾脱水を実施した。また比較のため、凝集処理を施さず汚泥をそのまま、および有機高分子凝集剤でポリアクリル酸系、カチオン性のクリフィックス(CP-805, 栗田工業)で凝集処理して低压圧搾する実験も行い、実験結果を図3に示した。図には、単位濾材面積あたりの搾液量  $v$  が圧搾時間  $\theta$  に対してプロットされている。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、脱水速度が著しく大きくなり、凝集処理が脱水性能の向上に極めて有効なことがわかる。

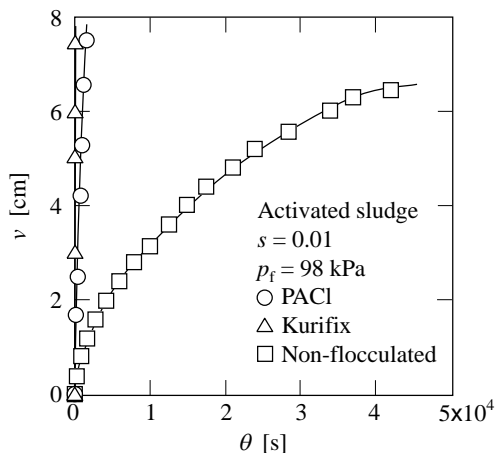


図3 低压脱水操作の結果

#### (2) 純水透過

下水余剰汚泥を低压圧搾脱水した後、低压圧搾圧力  $p_f$  と同一の圧力  $p_p (= p_f)$  で生成ケーキに純水を透過させ、透水前後のケーキの含水率  $R$  を比較し、図4に示した。図中には、透水を行わずに、同一圧力  $p_c (= p_f)$  で圧搾操作を続けた場合、また凝集操作を行わずに、そのまま汚泥原液を圧搾した場合の結果も、併せて示した。純水透過を行うと、PACI の場

合には、2190 sの透水時間で、ケーキの含水率は、95.1 wt%から93.8 wt%まで減少するのに対して、純水透過に代えて圧搾を行うと、ケーキ含水率は94.9 wt%までしか減少しない。これは、純水透過を行うと、可逆凝集の機構でケーキ中のフロックが崩壊し、粒子間隙の脱液が容易になるためと推察される。一方、クリフィックスの場合には、純水透過を行っても、ケーキ含水率は95.6 wt%から95.4 wt%までしか減少せず、圧搾操作と同様に、その脱液効果は小さい。架橋作用により生成した強固なフロックは純水透過では崩壊しないことを意味している。凝集剤を添加せずに、圧搾操作を続けた場合には、ケーキ含水率は95.8 wt%から94.0 wt%まで減少し、最終含水率は透水ケーキに匹敵するが、多大の圧搾時間を要する。凝集剤による凝集フロックが形成されていない分、粒子間隙の脱液が容易ではあるが、凝集フロックに比べて、より微細な粒子を含むため、圧搾速度は著しく小さい。以上より、PACIを用いた場合に、純水透過を行うと、脱水速度と脱水度の向上を図ることができた。

なお、PACIを用いた場合には、純水透過を行うことで、ケーキ内の凝集剤が洗い流されることがわかった。図5,6に示すように、汚泥フロックの顕微鏡写真および粒度分布から、純水透過によりケーキ中のフロックが小さくなっている様子が観察でき、可逆凝集の機構でフロックが崩壊することが確認された。

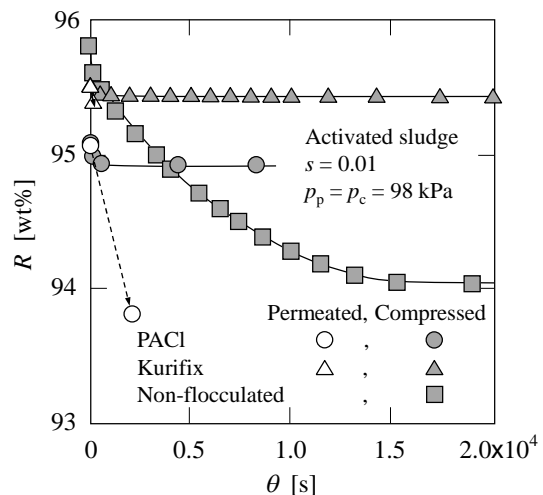


図4 透水操作の結果

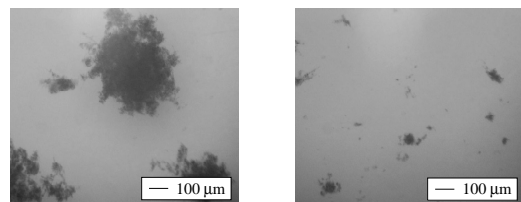


図5 汚泥フロックの顕微鏡写真

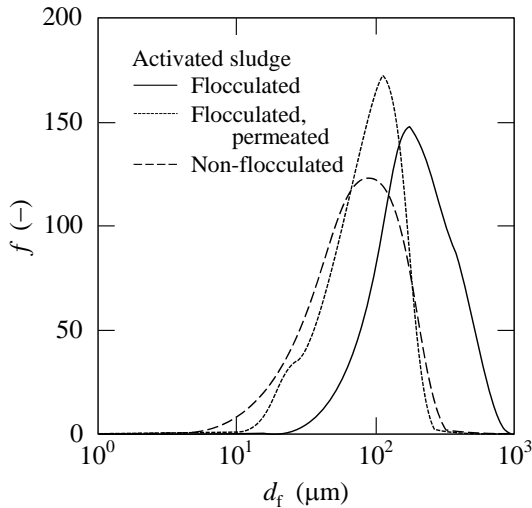


図6 汚泥フロックの粒度分布

(3) 多段超高压脱水  
圧搾圧増大の効果

純水透過を行った後に、圧力をさらに増大させて超高压圧搾脱水を行った場合の結果を図7に示した。図には、圧縮ケーキの含水率  $R$  が圧密時間  $\theta_c$  に対してプロットされている。いずれの凝集剤の場合にも、圧搾圧力  $p_c$  の増加とともに、ケーキ含水率は顕著に低下した。圧密の進行速度、すなわち含水率の低下速度は、クリフィックスに比べ PACI の方が著しく大きいことがわかる。これは、クリフィックスによる凝集フロックの方が、より強固に固体粒子に束縛された液を含み、圧搾圧の作用下で脱液しにくくなるためと推察される。また、0.5 MPa と圧搾圧が小さい場合には、凝集剤の違いによるケーキの最終含水率にほとんど差異は見られないが、圧搾圧が増加すると、PACI の方が、より低いケーキ含水率を示した。これもクリフィックスによる強固な凝集フロックの生成に起因するものと考えられる。PACI を用いると、15 MPa の圧搾圧で含水率は 31.4 wt% まで低下し、工業的には、通常 80 wt% の脱水ケーキが得られれば妥当とされていたことを考えると、この数値は驚異的であり、超高压圧搾により微生物細胞内の水分も一部脱液されていることを示している。これまで機械的な脱水操作では、こうした束縛水を除去するのは困難であると言われおり、本手法の有用性が明確となった。通常のプロセスで、後に続く乾燥や焼却などの熱的操作への負担を大きく軽減でき、その意義は大きい。

15 MPa 以上の圧力を作用させて圧搾操作を行おうとすると、圧搾セルのシリンダとピストンの隙間から濾過ケーキが漏れ出てきたため、段階的に圧力を上げて漏れを防ぎ、圧搾圧力とそれに対応した圧縮ケーキの最終含水率を求めた。図8には、このようにして求めたデータも加えて、超高压圧搾で得た圧

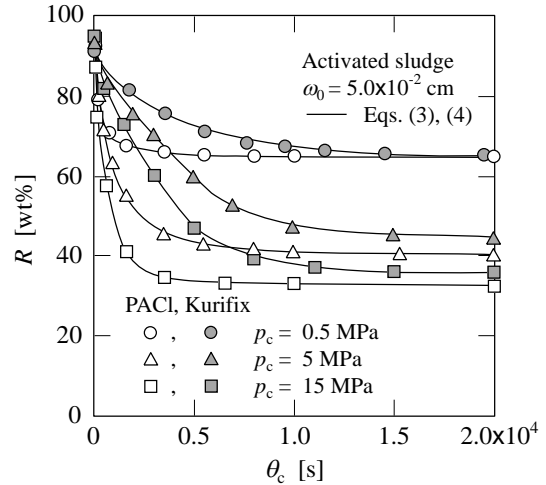


図7 超高压脱水操作の結果

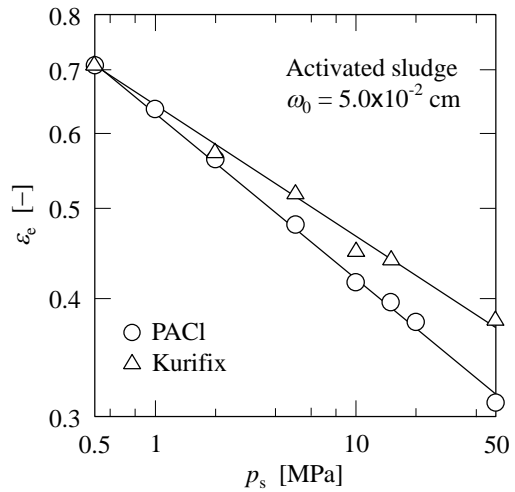


図8 ケーキ空隙率と圧搾圧力の関係

縮ケーキの最終空隙率  $\epsilon_c$  と固体圧縮圧力  $p_s$  の関係を両対数プロットで示した。なお、ケーキの最終空隙率  $\epsilon_c$  と最終含水率  $R_c$  との間には、次式で示される関係がある。

$$\epsilon_c = \frac{\rho_s R_c}{\rho_s R_c + \rho(100 - R_c)} \quad (1)$$

ここで、 $\rho_s$  は固体粒子の密度、 $\rho$  は濾液の密度である。また、側壁摩擦が無視できるという仮定の下で、圧搾終了時では固体圧縮圧力  $p_s$  はケーキ内のどの部分でも圧搾圧力  $p_c$  に等しいとして求められる。プロットは、いずれの凝集剤を用いた場合にも、ほぼ直線関係を示し、次式で表された。

$$\epsilon_c = \epsilon_1 p_s^{-\lambda} \quad (2)$$

ここで、 $\epsilon_1$ 、 $\lambda$  は実験定数である。直線勾配は PACI とクリフィックスの場合では異なり、0.5 MPa の低い圧縮圧力では、両者のプロットはほぼ一致するが、圧力の増加とともに、同一圧力での空隙率は、PACI の場合の方が、より小さくなる傾向を示した。本研究で行っ

た最大圧縮圧の 50 MPa では、クリフィックスの場合の空隙率が 0.380 であったのに対して、PACI では 0.312 の値を示し、式 (1) を用いて含水率の値に換算すると、23.7 wt% と驚異的に低い値を示した。圧縮圧力を増加させると、クリフィックスの場合の空隙率が PACI の場合ほど低下しなくなる現象は興味深く、この結果は、有機高分子凝集剤を利用すると、高い圧力を作用させても脱液できない強固な束縛水の割合が増加することを示唆している。

#### 圧密過程のモデル化

超高压圧搾過程における圧密の動的挙動の解析を行った。一般的に、固液混合物の圧密挙動は、修正 Terzaghi モデル、あるいは修正 Terzaghi-Voigt モデルで解析されるが、有機汚泥については、これらのモデルが適用できないことが明らかとなった。そこで、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、圧密の進行程度を表す平均圧密比  $U_c (= (L_1 - L) / (L_1 - L))$  の経時変化は次式で表される。

$$U_c = \left( 1 - \sum_{k=1}^K B_k \right) \left\{ 1 - \exp \left( - \frac{\pi^2 \cdot i^2 C_e \theta_c}{4 \omega_0^2} \right) \right\} + \sum_{k=1}^K B_k \{ 1 - \exp(-\eta_k \theta_c) \} \quad (3)$$

ここで、 $L_1$ 、 $L$ 、 $L$  はそれぞれ圧密初期、時間  $\theta_c$ 、圧密平衡時のケーキ厚さ、 $i$  は排水面の数、 $C_e$  は修正圧密係数、 $\omega_0$  は単位断面あたりでの固液体積、 $B_k$  は全圧密量に対する各クリープ量の割合、 $\eta_k$  は各クリープの進行速度を表す定数（遅延時間の逆数）である。

図 9(a) には、比較的圧搾圧  $p_c$  が低い 0.5 MPa、図 9 (b) には高い圧搾圧の 15 MPa での平均圧密比  $U_c$  の経時変化を  $U_c$  対  $\sqrt{\theta_c}$  としてプロットし、PACI とクリフィックスの両者の圧密速度を比較した。いずれの圧搾圧においても、PACI の場合の方が、より早く圧密が進行するが、低い圧搾圧の 0.5 MPa の場合の方が、その差異は、より顕著となる。また 0.5 MPa では全期間を通して差異が見られるが、15 MPa では圧密後期での差異が大きくなるのが特徴的である。このことから、クリフィックスに比べ、PACI の場合の方が、脱水しやすい、より緩いフロックが形成されるが、高い圧搾圧を作用させると、フロックの崩壊はフロック強度にはそれほど依存しなくなるものと考えられる。しかしながら、高い圧搾圧での圧密後期における両者の挙動の差異は、クリフィックスの場合の方が、強固な束縛水の割合が多いことに起因すると推察される。図中の実線は、式(3)のモデル式に基づき、実験データにフィッティングさせて得た計算値であり、本モデルにより良好に圧密挙動を記述できることがわかった。

ケーキ含水率  $R$  とケーキ厚さ  $L$  との間には、次の関係がある。

$$R = \frac{100(L - \omega_0)\rho}{(L - \omega_0)\rho + \omega_0\rho_s} \quad (4)$$

したがって、 $\omega_0$  が既知なら、式 (3), (4) を用いて含水率  $R$  の経時変化を計算することができる。図 7 の実線はこのようにして得た計算値であり、圧搾圧力や凝集剤の種類によらず、実験データを良好に記述できた。

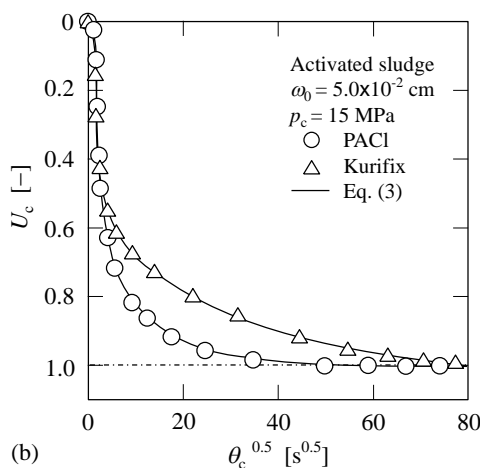
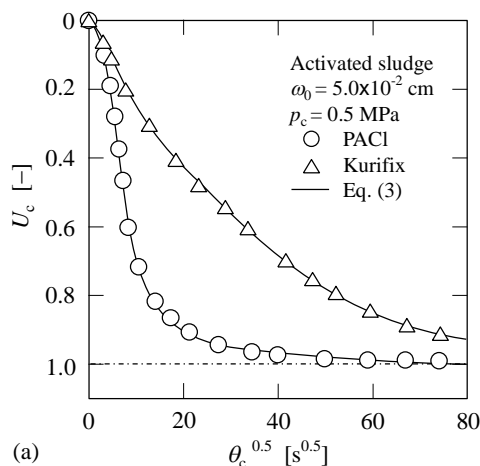


図 9 平均圧密比の経時変化

#### (4) まとめ

可逆凝集とステップ超高压圧搾とを融合した高効率の高速脱水法を提案し、脱水時間と脱水度の両面から、現存技術に比べ格段に優れていることを実証した。難脱水性有機汚泥として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 50 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 23% まで低減された。汚泥原液を基準とすると、99.87% の減量化を実現したこととなる。可逆凝集の方法により差があるものの、脱水ケーキの含水率と圧搾圧力との関係から、圧搾圧力を

更に大きくすることで、より高度な脱水が可能となることも示唆された。また、超高压圧搾におけるケーキ脱水挙動のモデル化も可能となった。以上より、本法による難脱水性有機汚泥の高速減量化が実現できることが明らかとなり、今後、スケールアップ等、実用化に向けた取組みを行うことで、現在の汚泥処理問題への貢献が期待できる。

#### 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9件)

- (1) Iritani, E., N. Katagiri, T. Washizu and K.J. Hwang; High-Level Deliquoring of Activated Sludge by Ultrahigh-Pressure Expression Combined with Flocculation, *Chem. Eng. Sci.*, 査読有, **112**, 2014, 1-9, DOI: 10.1016/j.ces.2014.03.008
- (2) Iritani, E., N. Katagiri, Y. Ishikawa and D.Q. Cao; Cake Formation and Particle Rejection in Microfiltration of Binary Mixtures of Particles with Two Different Sizes, *Sep. Purif. Technol.*, 査読有, **123**, 2014, 214-220, DOI:10.1016/j.seppur.2013.12.033
- (3) Iritani, E., N. Katagiri, M. Tsukamoto and K.J. Hwang; Determination of Cake Properties in Ultrafiltration of Nano-colloids Based on Single Step-up Pressure Filtration Test, *AIChE J.*, 査読有, **60**, 2014, 289-299, DOI: 10.1002/aic.14262
- (4) Iritani, E.; A Review on Modeling of Pore-Blocking Behaviors of Membranes during Pressurized Membrane Filtration, *Drying Technol.*, 査読有, **31**, 2013, 146-162 DOI: 10.1080/07373937.2012.683123
- (5) Iritani, E., N. Katagiri and S. Kanetake; Determination of Cake Filtration Characteristics of Dilute Suspension of Bentonite from Various Filtration Tests, *Sep. Purif. Technol.*, 査読有, **92**, 2012, 143-151, DOI: 10.1016/j.seppur.2011.05.011

〔学会発表〕(計31件)

- (1) 山田将大, 入谷英司; 破碎・凝結プロセスを導入した下水余剰汚泥の超高压圧搾脱水, 化学工学会第45回秋季大会, 2013年9月16日~9月18日, 岡山大学(岡山県)
- (2) 山内一也, 片桐誠之, 入谷英司; 嫌気活性汚泥の膜濾過特性に及ぼす廃水組成の影響, 化学工学会第45回秋季大会, 2013年9月16日~9月18日, 岡山大学(岡山県)

- (3) 河原広隆, 片桐誠之, 入谷英司; 精密濾過試験に基づく微生物ケーキの圧縮透過特性の評価, 化学工学会第45回秋季大会, 2013年9月16日~9月18日, 岡山大学(岡山県)
- (4) Katagiri, N., T. Washizu and E. Iritani; High-Level Sludge Dewatering by Step-up Ultrahigh-Pressure Expression Combined with Reversible Flocculation, 1st International IWA Conference on Holistic Sludge Management (HSM2013), 2013年5月6日~5月8日, Västerås (Sweden)
- (5) 片桐誠之, 鷲津拓也, 入谷英司; 下水汚泥のステップ超高压圧搾における無機・有機系凝集剤の作用効果, 化学工学会第78年会, 2013年3月17日~3月19日, 大阪大学(大阪府)
- (6) 若松祐太, 入谷英司; 野菜試料の圧搾脱液特性に及ぼす前処理効果, 化学工学会第78年会, 2013年3月17日~3月19日, 大阪大学(大阪府)
- (7) Iritani, E., N. Katagiri and T. Washizu; High-Level Deliquoring of Activated Sludge by Step-Up Ultrahigh-Pressure Expression Combined with Reversible Flocculation, 11th World Filtration Congress (WFC11), 2012年4月16日~4月20日, Graz (Austria)

〔図書〕(計2件)

- (1) 入谷英司, 朝倉書店, “粉体工学ハンドブック(ろ過・圧搾(第3章 粉体を扱う単位操作, 3.9))”, 2014, 776(417-427)
- (2) 入谷英司, 技術情報協会, “製造プロセスのスケールアップ 正しい進め方とトラブル対策 事例集(濾過・圧搾(第4章 分離操作設備のスケールアップファクターとその活用ノウハウ, 5))”, 2012, 898(167-173)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.nuce.nagoya-u.ac.jp/L5/>

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

入谷 英司 (IRITANI, Eiji)

名古屋大学・大学院工学研究科・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