

(5) 高温接触酸化処理法の下余剰汚泥処理への適用に関する研究

Application of Thermophilic Contact Oxidation Process for Treatment of Excess Sewage Sludge

栗栖 太*, 味埜 俊*, 松尾 友矩*

KURISU Futoshi*, MINO Takashi*, MATSUO Tomonori*

ABSTRACT ; Thermophilic Contact Oxidation Process is suited for the treatment of high concentration wastewater. The mechanism used here is as follows. Wastewater penetrates into wood chips, which are used as media. Air is supplied to ensure aerobic conditions. The system is operated at around 50°C for high performance of the microorganisms. Sludge decomposition was conducted using this process.

Operating conditions were as follows. The reactor was operated in the batch mode with 4% concentrated sludge being fed everyday. The loading was 0.9 kg as C/m³/d.

Approximately 90% of the carbon was released as CO₂ for 80 days. Thus, this process shows promise in the area of sludge treatment and disposal. Half of the nitrogen was released as NH₃, and 40% of nitrogen accumulated in the reactor was converted to NH₃.

Relationship between the moisture content of the chips and removal rate was also examined. It showed that higher moisture content reduced the lag time at start-up, and that it improved the removal rate.

KEYWORDS ; Excess Sludge Treatment, Mass Balance, Moisture Content, Thermophilic Contact Oxidation Process

1. はじめに

現在日本の下水汚泥は、濃縮・脱水・乾燥・焼却・消化・コンポスト化のいずれか、または組み合わせにより処理されている¹⁾。しかし、それぞれに長所と短所を持っており、最適の組み合わせがあるわけではない。立地条件や規模等にあわせてプロセスが選択されているのが現状であり、条件に柔軟に対応できるような新しい技術の開発が望まれている。

高温接触酸化処理法は、高濃度の有機性排水を処理する方法として近年開発された。高温接触酸化処理では担体となる木片に排水を吸収させ保持し、木片間の空隙に送気することにより酸素を供給する(Fig. 1)。微生物による有機物の酸化分解によって放出される熱により、反応槽は45-65°Cに保たれ分解反応が進行する。処理が高温で進行するので、適切な運転条件下では投入した水分をすべて水蒸気として系の外に排出させることができる。

高温接触酸化処理法では、有機分はほぼ完全にCO₂となって系外に排出される。この理由として、反応槽内に優占してくる好熱菌の基質摂取速度と自己分解速度が大きいことが挙げられる。たとえば好熱性*Bacillus*属細菌では、基質摂取速度及び自己分解速度が中温菌(20°C前後)に比べ1ケタ程度大きい²⁾。このことを排水処理の観点から見ると、有機物分解が速く、かつ自己分解が速やかなので汚泥の発生量が少ない、ということにな

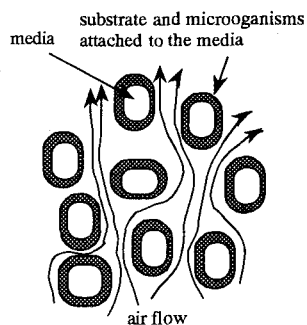


Fig.1 Image inside the Reactor

* 東京大学大学院工学系研究科都市工学専攻 (Dept. of Urban Engineering, The Univ. of Tokyo)

る。これまでの研究では、醸造排水や食品工業排水の処理実験が行われていて、投入有機分の9割以上がCO₂になると報告されている³⁾⁴⁾。

こうした高温接触酸化法の特性を汚泥処理に生かすことが可能だとすれば、水分の蒸発と有機物分解により、反応槽1つで脱水・焼却と同等の処理ができることになる。このことは、特に小規模施設では焼却処理の代替技術として有望である。またこの処理法を低温湿式酸化という観点から考えれば、有害物の発生が焼却に比べ少ないことも期待できる⁵⁾。

本研究では、処理対象である濃縮汚泥の熱量が小さく、高温で処理を進行させることができないため、熱エネルギーを加えての汚泥処理実験を行った。本法の汚泥処理・処分法としての有効性を評価することを最終的な目的とし、汚泥の分解率について調べ、炭素・窒素・灰分について物質の収支をとった。また、運転条件の中から反応槽内部の含水率をとり上げ、含水率が汚泥の分解率に及ぼす影響について調べた。

2. 実験方法

物質収支を取ることを目的とした実験（実験1）と、担体である木片の含水率が汚泥の分解率に及ぼす影響を調べることを目的とした実験（実験2）の2種類の実験を行った。実験1では本法の実用可能性を含めて評価するため、10L程度と大きめの反応槽を用いて実験を行った。実験2は実験1の1/100スケールで、異なる含水率に制御された3つの系を同時に運転し、含水率の変化から時間の経過の影響を除いて考えることができるようにした。

2.1. 投入汚泥について

本実験で用いた汚泥は、東京都内の下水処理場の濃縮余剰汚泥を用いた。この下水処理場では、標準活性汚泥法で下水を処理しており、初沈汚泥と二沈汚泥を別々に脱水処理している。このうち余剰汚泥である二沈汚泥で、遠心濃縮された後のものを実験室に持ち帰り、2mmφのふるいで夾雑物を取り除いたあと冷蔵保存し、投入汚泥とした。投入前の汚泥の分析値はTable.1の通りである。

Table 1. Characteristics of the Excess Sludge

	average	range
TS(%)	3.94	3.74-4.12
VS(%)	77.6	76.0-78.9
C content(mgC/L)	15800	13900-17200
N content(mgN/L)	3120	2540-3350

2.2. 物質収支実験（実験1）

実験装置をFig.2に示す。担体には2-4mm大の木片（桜材・薫製用として市販されているもので、4mmφのふるいを通し2mmφのふるいで阻止されるもの）を用いた。

反応槽は有効容量13.5L（うち木片7.0L）である。運転は1日1回汚泥を投入するバッチ運転で、槽内が均一になるよう汚泥投入時に攪拌した。1日の投入量は400mLで、木片単位体積あたりの容積負荷は0.9kg asC/m³(chip)/dである。外気から反応槽への給気量は400mL/min（約60L/m³(chip)/min）とした。

反応槽は加温することによって常に50℃前後に保った。加温には、次の2通りの方法を併用した。1)反応槽外壁にビニールチューブを巻きつけて温水を循環させ、2)気体加温槽にはニクロム線ヒーターを入れて循環ガスを加温した。温度調節は、1)でおおよその目的温度に達するようにし、2)ではヒーターに温度調節器をつけ、温度センサーを反応槽内に入れて槽内の温度に応じて微調整した。加えて反応槽内2カ所に温度センサーをとりつけ、トラブルの有無の

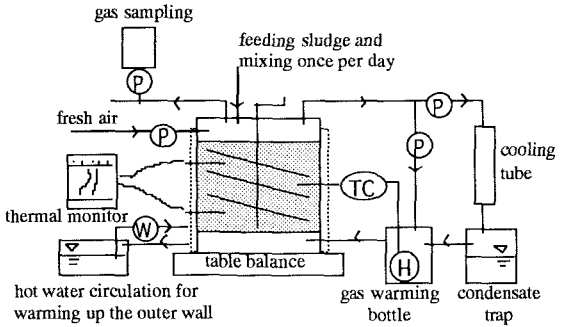


Fig.2 Experimental Set-up for Sludge Decomposition

確認や、反応槽内の温度分布の状況をモニターした。

また投入した水分を系外に出すために水分除去経路を付け、反応槽内部の空気を循環させ外部で冷却することによって凝集水を捕集した。これは給・排気量を減らし、排気中のCO₂濃度を上げることによって分析の精度を上げるために用いた実験上の手段である。この水分除去経路の流量は5L/min(約700L/m³(chip)/min)で運転した。日間平均排気濃度の測定用サンプルは、排気の一部をペリスタポンプにより連続的にサンプリングバッグに捕集して調整した。

2.3. 木片の含水率の影響をみるための実験（実験2）

実験装置をFig.3に示す。この実験装置は、Fig.2の系を1/100スケールに小型化し、さらに簡略化したものである。用いたチップ・容積負荷・温度はすべて実験1と同じになるように設定した。そして污泥投入直後の木片の含水率がそれぞれ30/40/50%前後となるように設定した3系列を同時に運転し、炭素の除去率と含水率の関係を調べた。

発生したCO₂は、出口側にアルカリトラップを設け、トラップされたCO₂を無機炭素濃度として測定した。給気量は投入した水分が排出できる量とし、30-50mL/min(約400-700L/m³(chip)/min)とした。木片の含水率は2.4.に述べるような方法で各系列モニターし、水分が足りない場合は水を加え、水分が多すぎる場合には給気量を上げて調整した。

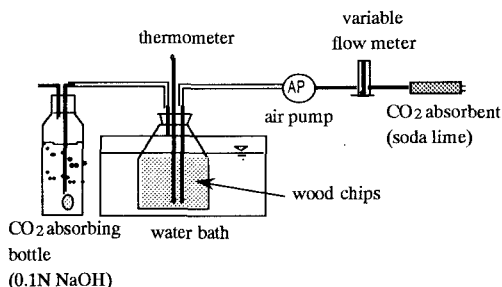


Fig.3 Experimental Set-up for Investigating the Effect of Moisture Content

2.4. 分析方法

污泥の炭素・窒素含量および木片の窒素含量は、馬尿酸を標準物質とする炭素窒素自動分析装置（柳本製作所製、MT-500）により定量した。実験1の凝集水、実験2のアルカリ水溶液中の無機炭素濃度はTOC測定機（島津製作所製、TOC-500）で測定し、NH₄⁺-N濃度は窒素計（セントラル科学社製、HC-707N）により測定した。NO₂⁻-N、NO₃⁻-Nについては高速液体クロマトグラフィー（島津製作所製、LC-6A）により測定した。排気中のCO₂・N₂Oについてはガスクロマトグラフィー（島津製作所製、GC-8A、活性炭カラム・TCD検出器）により、NH₃についてはガス検知管（ガステック社製）により定量した。木片のアンモニア濃度は、イオン交換水で1時間ずつ2回、振とう抽出した後測定した。投入污泥の含水率・灰分および木片の灰分については、下水試験法によった。

実験1の木片の含水率は、2週間に一度程度下水試験法に従って実測をした。残りの日は以下のような計算によって含水率を求めた。まず前後の実測日における乾燥重量を用いて、その間では乾燥重量は直線的に変化するものと仮定してその日の乾燥重量を計算する。そして反応槽内の湿潤重量のみ測定して含水率を求めた。

実験2の木片の含水率は、木片の量が少なく実測を行えないため、以下のような計算によった。反応槽内の湿潤重量をWwet、運転開始時の木片の乾燥重量をWini、反応槽内に蓄積される固形分をWacuとし、木片の分解は無視できるものとすれば、含水率mは、 $m = (Wwet - Wini - Wacu) / Wwet$ で表される。反応槽内の蓄積固形分Wacuは、有機分Worgと灰分Washに分けて考える。強熱減量（＝有機分）と炭素量の比が分解の前後で一定であると仮定すれば、炭素の除去率Rcを用いて、有機分は(1-Rc)の割合で蓄積することになる。また污泥中の灰分は全量蓄積すると仮定する。すなわち蓄積固形分量は、污泥の投入量Wslu、投入污泥の濃度TS、強熱減量VSをもちいて、 $Wacu = Worg + Wash = TS \{ (1 - VS) + (1 - Rc) VS \} Wslu$ となる。これら2式を用い、Wwet、Rcを毎回求めることによって含水率を計算した。

3. 結果

3.1. 物質収支実験（実験1）の結果

(1) 木片の重量と含水率

木片の湿潤重量・乾燥重量と含水率の経日変化を示したものがFig.4である。含水率は、1回のバッチ（24時間）のうち汚泥投入直後が最高で、次のバッチが始まる直前が最低となる。Fig.4における含水率は、このような日変動の中間値を取ってプロットしたものである。反応槽内の蓄積分により乾燥重量が増加している様子がこの図から分かる。なお、実験終了時に木片を水で洗浄し、付着分をのぞいた乾燥重量を測定したところ、木片自体の重量は実験開始時から変化していないことがわかった。

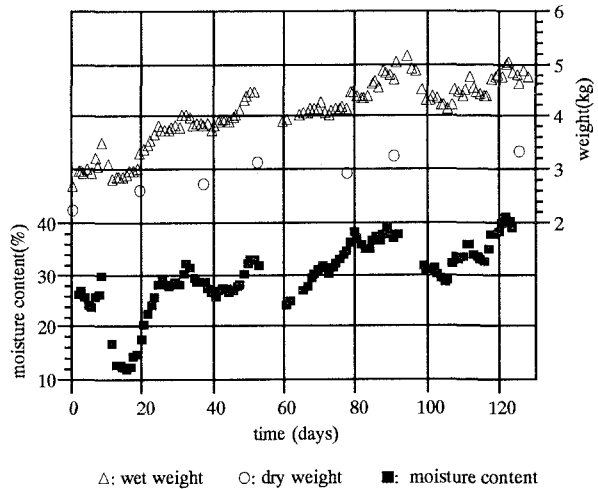


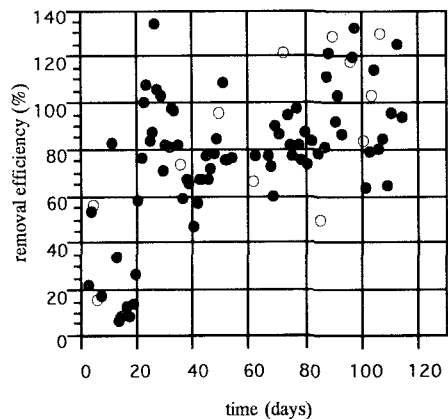
Fig.4 Variation of Weight and Moisture Content

(2) 炭素ベースで評価した汚泥の分解率

炭素の除去率（（排気中の CO_2 ＋凝集水中の無機炭素）／1日の投入量）の経日変化を示したものがFig.5である。なお、図中の白抜きの点は特異日、すなわち汚泥の投入がなかった日の翌日のものや、汚泥の投入時間が大きくずれて1回のバッチが24時間から大きくずれるものであることを示す。

Fig.5で、運転開始後20日目以降の除去率の平均をとると88%で、 CO_2 となって系外に除去されている。菌体、及び未分解分として蓄積するのは残りの12%だけである。

またFig.6は、運転開始後113日目における排出 CO_2 濃度の経時変化を示している。汚泥投入後すぐに濃度が上昇し、3時間程度で極大となり、6時間後以降は再び汚泥投入直後の値付近に戻った。除去される炭素のうち9割近くが排気中の CO_2 である（Fig.10参照）ことより、この図は分解・除去される炭素量の推移をも示している。



White dots (○) indicate unusually operated days.

Fig.5 Variation of Carbon Removal Efficiency

(3) 窒素の収支

Fig.7に窒素の除去率の経日変化を示す。ここで、窒素の除去率には（（排気中の $\text{NH}_3\text{-N}$ ＋凝集水中の $\text{NH}_4^+\text{-N}$ ）／1日の投入量）を用いた。窒素の他の排出形態としては、 N_2 ガス、 N_2O ガス、および凝集水中の $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が考えられる。しかし測定したところ N_2O ガス・ $\text{NO}_2\text{-N}$ ・ $\text{NO}_3\text{-N}$ は検出されず、かつ脱窒も起こっていなかった(4.1.参照)。

(2)の炭素の時と同様に図中の白抜きの点は特異日であることを示している。ただし窒素の収支の場合、凝集水量が標準の値（投入汚泥量－排気中に含まれる水分量）より2割以上異なる日、という条件も加えた。凝集水により排出されるアンモニアの量は凝集水量に大きく依存するため

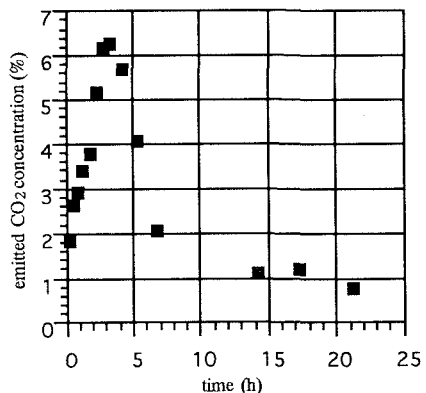


Fig.6 CO_2 Concentration versus Time for One Batch

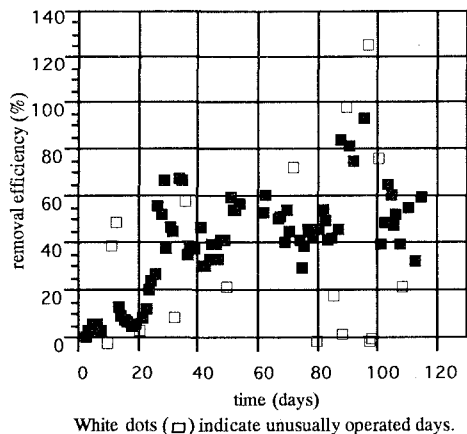


Fig. 7 Variation of Nitrogen Removal Efficiency

ある。このようにして特異日をのぞくと、一定した傾向が得られた(Fig.7)。

運転開始後25日目から83日目までの安定運転期の除去率の平均を取ると49%であった。残りは反応槽内に蓄積したと考えられる。

Fig.8は、運転終了時に木片の分析を行い、窒素の収支をとったものである。木片の水分中のアンモニア濃度は1.3%と非常に高く、蓄積された窒素分の40%は $\text{NH}_4^+\text{-N}$ で蓄積していることがわかった。 $\text{NO}_3^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^+\text{-N}$ は検出されず、残りの蓄積分60%はすべて有機態の窒素であった。

(4) 灰分の収支

測定日までに入れた灰分の累積量と、木片の灰分含有量から求めた反応槽内の蓄積分とを比較したものがFig.9である。灰分についてはほぼ全量が蓄積していることがわかる。

(5) 物質収支のまとめ

安定運転期の平均を取り、炭素・窒素の物質収支についてまとめたものがFig.10である。なお、この図では蓄積分は投入量と排出量の差で示してある。

3.2. 木片の含水率の影響をみるための実験 (実験2)

炭素の除去率の経日変化をFig.11に示す。またTable.2に、運転開始後35-66日目までを安定期とみなして算出した平均分解率を示す。ただしFig.11の図中、異常に高い分解率を示している含水率30%の系の55日目の値は、この平均から除外している。この図と表からいえることは、a)含水率が30%程度でも分解は進行するが、含水率が低いほど分解率が上がるまでに時間がかかる、b)含水率が高いものほど分解率も高い、という

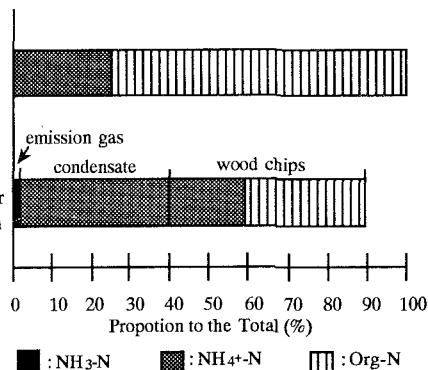


Fig. 8 Nitrogen Balance

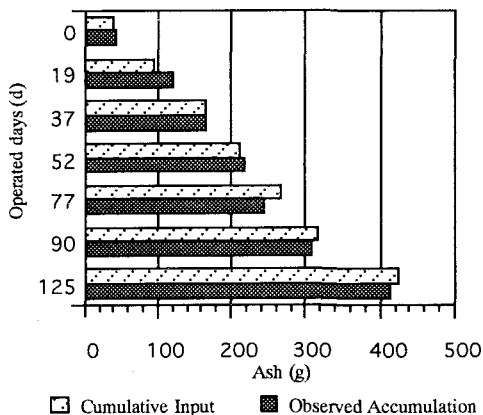


Fig.9 Accumulation of Ash

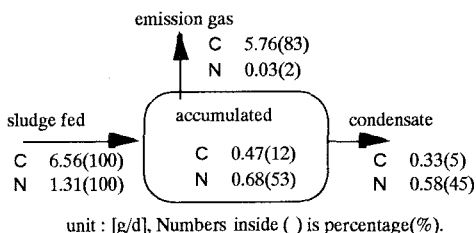


Fig.10 Mass Balance (Average)

Table.2 Average Removal Efficiency of Carbon in Stable State

set moisture content	30%	40%	50%
average removal efficiency (%)	67.5	72.1	78.3

ことである。

4. 考察

4.1. 各物質の除去率・収支について

この節では、除去率が100%を越える原因についてと、炭素・窒素・灰分の収支について考察する。

Fig.5に示したように、炭素の除去率が100%を超える日があった。その原因は、反応槽内の条件がその日以前よりよくなったことにより、蓄積されていた未分解分や菌体が分解されたためと考えることができる。

一方Fig.6に示したように、1サイクル内で、汚泥投入後6時間後以降の CO_2 濃度が1.2%で安定しているのは、当日もしくは1日以上前に投入されたもののうち分解されにくいものが緩やかに分解を受けているためと考えられる。1日単位でとった除去率が100%を越えるというのは、この分解されにくいものの緩やかな分解分が大きくなるところに現れてくると思われる。

炭素については、排出されたもののほとんどは CO_2 であった。その他、凝集水中に無機炭素の5%程度のTOCが常に出検された。全体の収支の上では無視できる量ながら、 CO_2 以外に少量ながら排気中に有機酸が含まれていた可能性がある。

窒素については、Fig.8にまとめたように排出されるもののほとんどは NH_3 または $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の形態をとっていた。硝化が起っていないのは硝化細菌が熱に弱い⁶⁾ためであると考えられる。硝酸態窒素の生成がなく、投入する汚泥中には硝酸態の窒素はほとんど存在しないため、脱窒は起こり得ない。また、木片に蓄積される窒素も4割がアンモニア態であった。これらの事柄をまとめ、窒素の分解・除去機構を検討すると以下のようになる；1)汚泥中の窒素含有物質がアンモニア態に分解されたのち、アンモニアの強い水溶性と吸着能力により木片に蓄積され、その一部が揮散により系外に排出されている、2)運転開始後20日目まで窒素の除去率が非常に低いのは、アンモニアがある一定の濃度になるまで木片に吸着し続け、その後破過が起こったためである。

木片中のアンモニア濃度は運転終了時には木片の水分中の1.3%と非常に高かった。アンモニアは高濃度で微生物活性に阻害を与える物質であり⁷⁾、運転終了時に反応槽内に生息していた細菌はアンモニア耐性が強いものであるということが出来る。

また灰分について考える。灰分が反応槽内に蓄積するのは処理法の性格上当然である。運転終了時には木片乾燥重量の13%が灰分として蓄積されていた。灰分は無機塩を表し、無機塩濃度が高いと微生物に阻害をもたらすことが知られている⁸⁾。さらに長期間の運転では無機塩の蓄積によって微生物活性が低下することも考えられる。

4.2. 含水率が分解率に与える影響

実験2の結果より、高温接触酸化処理において含水率が分解率に影響を与えていることが分かった。類似の処理法であるコンポスト化法においても、反応槽内部の含水率と微生物の代謝活性に関係があることが分かっている⁹⁾¹⁰⁾。

ここで、実験1における除去率と含水率の関係について考える。Fig.12は、1日の含水率の変動の中間値と、その日における炭素の除去率を示している。図中に示した含水率域では含水率が増加するに従って分解

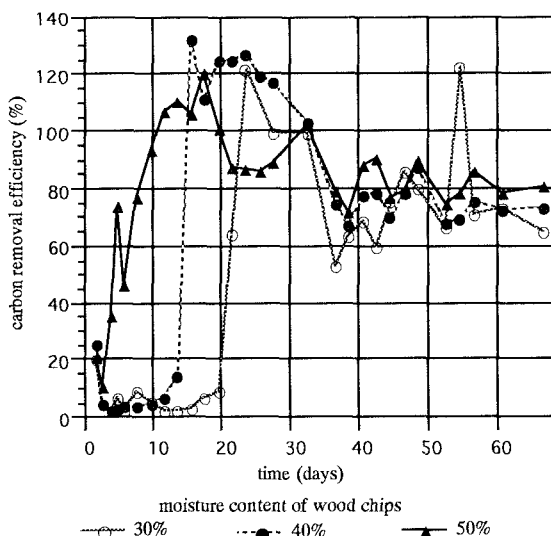


Fig.11 Removal Efficiency under Three Different Moisture Contents

率も上昇している。図中の白丸は運転開始後19日目までのもので、低い分解率にとどまっている。この実験では、含水率の変化には時間の経過という要因も含まれるものの、3.2.で述べたa)およびb)の両方を支持する結果といえる。

ここでa)の、含水率が低いほど分解率が上がるまでに時間がかかる原因について考える。反応槽内の微生物はもともと汚泥に由来する。汚泥中に存在していた微生物は、反応槽に投入されることによってそれまでの含水率の高い環境（96%前後）から低い環境（30-50%前後）への適応を強いられた。反応槽内の環境が以前の環境から遠い方が、すなわち含水率が低い反応槽の方が、環境への適応は困難なはずである。すなわち分解率が上がるまでに時間がかかった原因といえる。

この「環境への適応」は、それぞれの含水率域で異なる微生物相を形成することによって行われたのか、微生物相は同一で単に代謝活性が大きくなるまでの時間に影響したのか、両方の可能性がある。より細部に視点を置いた研究により、このような固形物の系において微生物活性がどのような仕組みで変化するのか突き止める必要がある。こうした研究は、高温接触酸化法のみならず、コンポスト化法など他の処理法にとっても大きな意味を持つであろう¹¹⁾。

4.3. 汚泥処理としての実用性

90日間にわたって9割弱の分解率が得られたことより、脱水-焼却という現行の汚泥処分法に代わる技術として適用の可能性が十分にあることがわかった。ここで本処理法が汚泥処理に適用できるかどうかは、どのくらいの期間木片が担体として使用可能か、にかかっている。110日間運転した実験結果により、乾燥重量で比較して木片の重量と等量程度の汚泥までは使用可能であることはわかった。もしそれ以上のある期間の運転で、汚泥の分解除去率が悪化し木片が使用不能となった場合、木片は焼却などの方法により処分しなければならない。この処分量は小さければ小さい程良く、すなわち木片に対して何倍量まで分解できるかが重要となってくる。今後より長期間の運転を行い、木片の使用可能期間を調べる必要がある。

木片が使用不能になる原因としては、1)アンモニア及び無機塩の蓄積により微生物活性に阻害が起こる、2)固形分が木片に付着することにより微生物の生息環境が悪くなる、の2つが考えられる。1)については前述の通りである。2)については、運転期間終了後の木片を走査型電子顕微鏡(SEM)で観察したところ、木片に層状に汚泥が付着した状態でも多くの微生物が生息し得ていることがわかった。この期間でも分解除去率の低下はみられていないことより、2)は原因として適切でなからう。

また高温接触酸化処理を汚泥処理に用いる場合、他の処理対象に比べ熱量が不足することも実用化の障害となりうる。汚泥自身が持っている発熱量で、汚泥自身が持っている水分を蒸発させるためには、汚泥の含水率は84%以下でなければならない（汚泥の熱量を13000J/g dsとした場合）。それ以上の含水率の場合、本研究のようにエネルギーを加える必要がある。本研究では汚泥自体の分解率を見るためにエネルギーを熱で加えたが、廃食用油を混ぜ入れることで熱源とすることもできる¹²⁾。また、熱エネルギーであっても必要な温度が50℃程度と低温であるため、熱源として工場廃熱など未利用エネルギーの利用も可能である。これらのような省エネルギーとなる方策は、実用化に向けての今後の検討課題となろう。

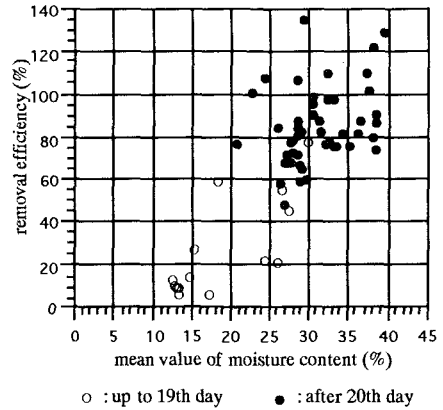


Fig.12 Correlation of Removal Efficiency of Carbon with Mean Value of Diurnal Fluctuation of Moisture Content (Sludge Decomposition Experiment)

5. 結論

本研究において、以下のことが明らかになった。

- 1) 高温接触酸化処理法を用いて下水余剰汚泥の処理を行った。汚泥の濃度 4%、容積負荷 $0.9[\text{kgC}/\text{m}^3/\text{d}]$ で運転したところ、90日間にわたって平均して炭素ベースで9割の除去率が得られた。
- 2) 窒素の物質収支をとったところ、投入量の5割がアンモニアとして排出され、残りは反応槽内に蓄積された。また蓄積分のうち4割がアンモニアであった。硝化・脱窒が起こっていないことも分かった。
- 3) 本処理法において、含水率が分解率について与える影響について調べた。実験結果から、含水率30%から50%までの範囲において、運転開始後分解率が上昇するまでの期間は含水率が低いほど長くなること、含水率が高いほど平均分解率は高くなることが分かった。

6. 参考文献

- 1) (社)日本下水道協会編：下水道統計 要覧，第50の3，pp. 69-76，1993.
- 2) Couillard, D., Garipey, S., Tran, F.T. : Slaughterhouse Effluent Treatment by Thermophilic Aerobic Process, *Wat. Res.*, **23**, pp. 573-579, 1989.
- 3) Liu, B.G., Mori, T. : Complete Treatment of Shochu Processed Wastewater by Thermophilic Oxidic Process, 環境工学研究論文集, **30**, pp. 165-174, 1993.
- 4) Liu, B.G., Noda, S., Mori, T. : Complete Decomposition of Organic Matter in High BOD Wastewater by Thermophilic Oxidic Process, 環境工学研究論文集, **29**, pp. 77-84, 1992.
- 5) 福本勤：廃棄物処理工学，朝倉書店，pp. 159-161, 1980.
- 6) Jones, R. D., Hood, M. A. : Effects of Temperature, pH, Salinity, and Inorganic Nitrogen on the Rate of Ammonium Oxidation by Nitrifiers Isolated from Wetland Environments, *Microb. Ecol.*, **6**, pp. 339-347, 1980.
- 7) 井出哲夫：水処理工学，技報堂出版，pp. 368-370, 1976.
- 8) 高原義昌：排水の生物処理，地球社，pp. 25-30, 1980.
- 9) 金子栄廣・藤田賢二：堆肥化反応における水分の限界に関する研究，土木学会論文集，**369**，II-5，pp. 303-309, 1986.
- 10) Bach, P. D., Shoda, M., Kubota, H. : Rate of Composting of Dewatered Sewage Sludge in Continuously Mixed Isothermal Reactor, *J. Ferment. Technol.*, **62**, pp. 285-292, 1984.
- 11) 金子栄廣・藤田賢二：堆肥化過程と細菌の挙動，環境微生物工学研究法，土木学会衛生工学委員会編，技報堂出版，pp. 207-210, 1993.
- 12) Cai, H., Mori, T. : Treatment of Thickened Excess Sewage Sludge by Thermophilic Oxidic Process, 環境工学研究論文集, **32**, pp. 371-378, 1995.