

東京大学大学院 新領域創成科学研究科
社会文化環境学専攻

2021 年度

修士論文

間欠接触酸化法を用いた汚泥減量装置の製作と性能評価

Production of a Sludge Reduction System Using

Intermittent Contact Oxidation Process and Its

Performance Evaluation

2022年 1 月 17 日提出

指導教員 佐藤 弘泰 教授

小野 圭哉

Ono,Keiya

目次

1. はじめに.....	4
1.1 背景.....	4
1.2 目的.....	5
1.3 論文の構成.....	5
2. 既往の知見.....	6
2.1 典型的な汚泥処理プロセス.....	6
2.2 小規模規模処理場における汚泥処理.....	9
2.3 下水道汚泥に関する国の方針について.....	10
2.4 間欠接触酸化法について.....	11
2.4.1 間欠接触酸化法の原理.....	11
2.4.2 間欠接触酸化法を用いた汚泥減量について.....	12
2.5 本研究の意図と位置づけ.....	13
3. 実験方法.....	14
3.2 共通する分析方法.....	15
3.2.1 SS（汚泥乾燥重量）、VS（強熱減量）.....	15
3.2.2 酸素消費速度（OCR：Oxygen Consumption Rate）.....	15
3.2.3 SV30（汚泥容積率）、SVI（汚泥容積指標）.....	16
4. 実験 1：立体型装置の試作と試運転.....	17
4.1 はじめに.....	17
4.2 研究目的.....	17
4.3 実験方法.....	18
4.4 実験結果と考察.....	21
4.5 まとめ.....	24
5. 実験 2：立体型装置の性能評価とチョウバエの影響について.....	25

5.1	研究目的.....	25
5.2	実験方法.....	26
5.3	実験結果と考察.....	30
5.4	実験 2 についてのまとめ.....	37
5.5	管路型との比較.....	38
5.6	今後の検討.....	40
6.	まとめ.....	41
	謝辞.....	42
	参考文献.....	43
	付録.....	46
	予備実験について.....	46
	予備実験の結果について.....	49
	管路型での高等生物について.....	50
	実験 1 でのスポンジへの汚泥吸着の様子.....	51

1. はじめに

1.1 背景

本研究は小規模下水処理場での汚泥処理にかかる費用が問題となっており、その問題を解決するため間欠接触酸化法を用いて汚泥を減量する技術を開発しようとしたものである。通常、下水を処理すると、汚泥が生成される。生成された汚泥は環境に対して無害な形にまで処理してから処分しなければならない。下水汚泥はほとんど水分で構成されており、そのため汚泥処理の主要な工程には濃縮や脱水といった水分を除去して汚泥の体積を減らす操作が含まれる。脱水された汚泥はさらに、焼却して体積を減らしたのちに経て埋め立て処分、あるいは、埋立処分場するかわりにセメント材料など再資源化するのが一般的である。以上のように、汚泥の処理は多くの工程を含むため、装置の点数が多くなる。小規模処理場にこれら装置を導入するのは初期投資も維持管理も負担となる。そのため、小規模処理場では濃縮や脱水など汚泥処理に必要な施設の一部しか所有せず、貯留施設しか所有していない場所も存在する。脱水設備を所有していない場合においては、バキュームカーや移動式脱水車を用いて汚泥処理を行うことが出来る施設まで輸送し、輸送先で処理を行っている。輸送距離が長くなってしまうと輸送コストが高くなってしまふ事が予想される。

そこで小規模処理場において発生する汚泥の輸送にかかるコストを削減するためには、貯留中の汚泥を減量する技術があると有効であると考えた。そのような技術が存在すれば、移動式脱水車やバキュームカーの稼働日数を削減が可能になり、移動式脱水車を使用しているところではより安価なバキュームカーに変更することなども可能になるのではないかと考えられる。

他にも、小規模処理場以外でも畜産排水処理などでは汚泥処理設備を軽視してしまい不十分な設備で運用している場所も存在するという報告が畜産汚水の処理マニュアル [1]でされている。そのような場所でも汚泥量を減らす技術としても需要があると考えられる。

上記のような問題を解決するために、本研究室で使用されている間欠接触酸化法が適応できるのではないかと考えた。間欠接触酸化法 (ICOP: Intermittent Contact Oxidation Process) は下水をスポンジ担体と空気に交互にさらすことでスポンジ担体上に微生物を付着させ、曝気を行わずに好氣的条件下で有機物を処理する技術である。これを用いて、小林 (2019) は間欠接触酸化法を用いた汚泥減量に関する研究を行い、間欠接触酸化法を用いて汚泥の減量化を行うことについて以下のことが分かっている [2]。

- 1). 間欠接触酸化法を用いて汚泥質量、容積共に減量を行う事が確認されている
- 2). 汚泥減量にはスポンジの見かけの表面積が重要である
- 3). 汚泥減量にはミミズやチョウバエ等の高等生物の影響が大きい可能性が高い

しかしながら、詳しくは 2.4.2 で記載するが上記の結果は管路内浄化の装置を転用して行った実験であるため、スポンジを平面的にしか使用していない。下水処理場に設置し汚泥を減量する装置とするためにはスポンジを立体的に配置し、設置単位面積当たりの処理効率を上げる必要があると考えられる。

1.2 目的

これまでの背景を踏まえ、間欠接触酸化法を用いた汚泥減量装置においてスポンジを立体的に配置し、設置面積当たりの効率性を重視した装置の作成を目的とする。

なお、小林の検討では装置内に水棲ミミズが発生したが、本研究の大部分では高等生物（水棲ミミズやチョウバエ）もまったく発生しなかった。そのため、検討の最終段階では高等生物としてチョウバエを導入し、その汚泥減量への影響についても検討することとした。

以上から、本研究では以下の検討を行った。

1. スポンジを立体的に配置した実験室規模の汚泥減量装置の作成
スポンジを立体的に配置し、安定的に動かすことが出来るかの確認を行う。
2. 汚泥質量、汚泥減量の確認
スポンジの配置を立体的に変更した場合における汚泥減量性能に関する確認を行う
3. 高等生物が汚泥減量に与えている影響の確認
高等生物が発生している場合と発生していない場合で運転を行い汚泥減量に対してどのような影響を及ぼすかの確認を行う
4. スケールアップを行う際の装置構造及び運転方法提案
得られた知見から、今後スケールアップを行っていくにあたって装置の構造及び運転方法の提案を試みる。

1.3 論文の構成

本論文の構成は、以下のようになっている。

1 章では本研究の背景及び目的をまとめた。2 章では、既往の知見として一般的な大規模、中規模の下水処理場での汚泥処理プロセス、小規模処理場での汚泥処理プロセス、間欠接触酸化法を用いた汚泥減量についてまとめた。3 章では、実験方法についてまとめた。4 章では、スポンジを立体的に配置した汚泥減量装置（以下「立体型装置」と呼ぶ）を作成し試運転を行った内容についてまとめた。5 章では、改良を行った立体型装置のチョウバエが存在しない場合と、存在する場合の汚泥減量能力の測定を行った結果についてと実験全体のまとめ及び今後の展望について整理した。6 章では、実験結果を踏まえて全体的なまとめについて述べた。

2. 既往の知見

本章では、下水汚泥に関する一般的な知識から間欠接触酸化法を用いた汚泥減量で分かっている事についての整理を行う。まず 2.1 で規模の大きな下水処理場で行われている典型的な下水汚泥発生プロセス及び処理方法について整理する。次に、2.2 では小規模処理場での汚泥処理プロセスについて整理する。ここにいう、小規模下水処理場は、その規模が小さいがゆえに脱水処理設備さえも持つことが出来ず、処理に伴って生成した汚泥をバキュームカーや移動式脱水車を用いて他の汚泥処理設備を有する処理場まで搬出しているものである。

2.3 では、代表的な汚泥減量を行うための技術について整理する。2.4 では、下水汚泥に関する国の方針について説明を行う。2.5 では、間欠接触酸化法に関する知見及び類似の技術との比較を行い特徴についての整理を行う。2.6 では、改めて本研究の位置づけについて整理を行う。

2.1 典型的な汚泥処理プロセス

本節では、典型的な下水処理場における下水汚泥処理のプロセスについて整理を行う。なお、本節で述べることは下廃水処理の教科書（「水環境工学」 [3]、「Wastewater Engineering Treatment and Reuse」 [4]、「明解 水環境工学」 [5]など）を参考に記載した。

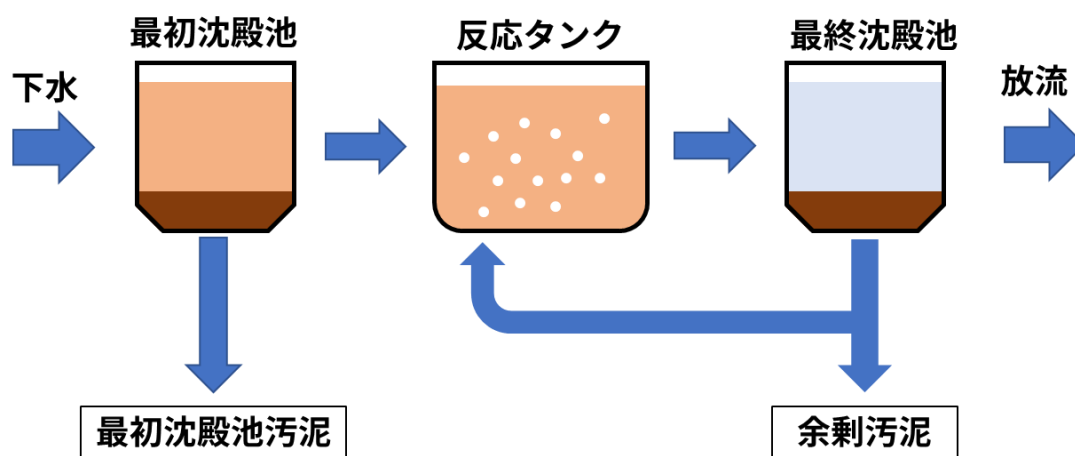


図 2-1 標準活性汚泥法での下水汚泥発生プロセス
（「福島県のホームページ」 [6]を元に作成）

標準活性汚泥で汚泥が発生するプロセスを図 2-1 に記載した。下水処理場で発生する汚泥は大きくは初沈汚泥と余剰汚泥に分けられる。下水処理場に流入した下水は、まず最初沈殿池で処理される。ここで下水から沈殿分離された固形分が初沈汚泥である。一方、最初沈殿池の上澄は微生物（活性汚泥）によってさらに浄化される。微生物によって下水が浄化されるのに伴い、微生物は増殖するので、増殖した微生物を間引く必要がある。その結果発生する汚泥が余剰汚泥である。一方、余剰汚泥は、微生物を主体とする汚泥であり有機分が約 80%と非常に多い。初沈汚泥も余剰汚泥も見た目は茶褐色の泥水だが、99%以上水分である。

下水処理は、水に含まれる不純物の多くを下水から除去する作業である。除去された成分の一部は水になり、あるいは二酸化炭素をはじめとするガス状成分になる。しかし、除去された成分の多くの部分は下水汚泥として固体とすることで水から除去される。下水汚泥は環境に放出すると酸素を消費し水中の環境を悪化させ、あるいは悪臭を発生させるなど、深刻な水質汚濁を招く。したがって、汚泥は適切に管理し処理処分する必要がある。先にも述べたように汚泥といってもその発生時には水が主体である。従って、汚泥処理は、まずは水分を除去して減量かすることからはじまる。また、汚泥が環境汚染を起こす大きな要因は、それに含まれる酸素要求量（有機物）によるので、有機分を分解し安定化させることも必要である。水分を除去し、有機分を除去しても、最後に無機塩類が残ってしまう。それは、埋め立て等処分するか、あるいは、埋め立てずに有効利用されることもある。有効利用の中には建設材料としての利用や、汚泥に含まれる栄養塩を肥料として活用するコンポスト化などもある。大まかな流れを図 2-2 に示す。

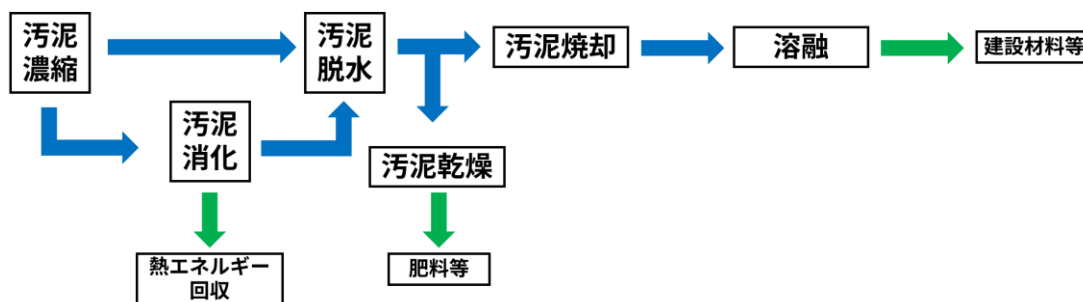


図 2-2 典型的な汚泥処理プロセス（「Sewage Works in Japan 2007」 [7]元に作成）

これから汚泥処理の各工程をのべる。

汚泥濃縮は汚泥処理において最初に行う工程であり、下水処理プロセスから発生した初沈汚泥や余剰汚泥をさらに濃縮することを目的とする。

濃縮は重力濃縮と遠心濃縮、浮上濃縮及び戸過濃縮がある。重力濃縮は沈殿池とほぼ同様の構造をした濃縮槽において重力によって濃縮する方法である。遠心濃縮とは、遠心力を利用して濃縮する方法であり、重力濃縮では濃縮しにくい汚泥にも適用しやすい。浮上濃縮は、水中の懸濁物に気泡を付着させ浮上させて汚泥を濃縮する方法であり、常圧浮上濃縮と加圧浮上濃縮に分けられる。

汚泥消化の目的は、汚泥の有機分を減少させることで汚泥の性状を安定させ、かつ減量化を行う事である。好気性消化と嫌気性消化が存在する。

嫌気性消化は、嫌気性条件下で汚泥を消化する。嫌気性消化では汚泥に含まれる有機物を、メタンに変換して除去する。嫌気性消化は曝気が不要なので省エネルギーであり、また、発生したメタンは可燃性のガスでありエネルギーを回収することができる。これらは大きな利点ではあるが、しかし、加温のためにエネルギーを要するので小規模の消化槽では回収可能なエネルギーを、多くの点数・規模の設備が必要であるといった欠点も有する。たとえば、下に嫌気性消化設備を利用して発電を行う際の設備の 1 例を記載する。

- ・消化設備（消化タンク、攪拌機、ガスホルダー、脱硫設備、余剰ガス燃焼装置等）
- ・消化ガス発電設備（前処理設備、発電機、排熱利用設備）

上記の建設費及び維持管理費が必要となる。

好気性消化は汚泥を長時間曝気することにより、微生物により有機分を分解し汚泥の安定化及び減量化を図る方法である。基本的に曝気を行うだけなので建設費が安く運転管理が容易であり、好気性なので消化にかかる時間が短く発生臭気が少ない。しかし、曝気を行うので消費エネルギーが多くなりバイオマスエネルギーの回収を行うことが出来ないといった問題も存在する。そのため、日本国内で好気性消化を採用している処理場は少ない。

脱水とは、汚泥中の水分量を減少させることにより汚泥量を減量させ、後段のプロセスでの処理効率を向上させるためのプロセスである。濃縮との違いは、濃縮では濃縮の前後ではスラリー状だが、脱水では流動性のあるスラリーが、流動性がないケーキになる。脱水は機械脱水が多いが、動力を使わない天日脱水も少数ではあるが行われている。天日脱水はエネルギー消費が少なくコスト面で安価ではあるが、面積が多く必要であり臭気なども発生する為周辺環境に配慮して行う必要がある。機械脱水は戸過式と遠心分離式が存在する。戸過式にはベルトプレス式や加圧式などが存在する。脱水方法により脱水ケーキの含水率は前後するがおおむね 80%前後になる。

乾燥とは、下水汚泥を脱水した後の脱水ケーキを熱風などでさらに水分を飛ばすプロセスである。後述する焼却も同様に水分を飛ばすプロセスではあるが乾燥汚泥は有機分を残しおりその他の物質と調整したのち農業用の肥料などとして用いる事が可能である。実際に鹿児島県鹿児島市 [8]や茨城県つくばみらい市 [9]などいくつかの自治体が乾燥汚泥を肥料として販売や無料配布を行っている。

焼却とは、脱水によって液体から脱水ケーキになった下水汚泥を焼却して灰の状態にするプロセスである。脱水ケーキに比べて体積を大幅に減量させることが出来、生成される灰はほとんど無機分で構成されている為腐敗などがなくなる。これにより、埋め立てを行う場合においては埋め立てのための土地を節約することが出来るようになり、臭気なども発生しなくなるので再利用も行いやすくなる。

熔融とは、焼却よりもより高温で焼却灰を融液の状態にするプロセスである。融液状態にされた汚泥を冷却することで融液スラグが出来る。この融液スラグはセメントの骨材など建設材料として再利用される。

下水汚泥を処理する技術とは別に、下水処理場で発生する下水汚泥そのものを減らすための可溶化と呼ばれる技術が存在する [10].可溶化とは一般的に下水汚泥を低分子化することである。下水汚泥は、細菌の集合体であり、細菌類の細胞壁を破壊することで細菌類に含まれているリンや有機物が溶液中に溶出することで低分子化され下水汚泥は減量化する。可溶化の方法は主に、化学的手法、生物学的手法及び物理学的手法が存在する。

化学的手法とは、熱やオゾン、アルカリ、酸などの薬物を添加することによって可溶化を行う技術である。化学的処理法は、効率的な可溶化が可能である一方で、化学物質の処理を

行うための施設が必要な場合や資源の回収を行うことが難しいといった欠点が存在する。

生物学的手法とは、可溶化に関わる細菌を用いる事によって汚泥を分解する方法である。しかし、可溶化を行う菌を優先的に増殖させることが容易ではないという特徴がある [10]。

物理学的処理法は湿式ビーズミルや超音波など物理学的な方法で汚泥を可溶化する技術である。他の手法にくらべ汚泥から資源を回収できる可能性が高いが実際に導入するには、コストが多くかかってしまう事が問題である [10]。

2.2 小規模規模処理場における汚泥処理

2.1 では、大規模・中規模処理場における汚泥処理プロセスについて述べた。本節では小規模処理場での汚泥処理についての整理を行う。

小規模処理場での典型的な汚泥処理のフローを図 2-2 に記載する。小規模処理場においては、脱水設備を所有していない場合も多く、汚泥を貯留・濃縮し処理施設まで輸送する。場合によっては貯留のみの場所も存在する。

下水処理場（公共下水道、流域下水道、特定環境保全下水道の下水処理場）において汚泥を車両により汚泥処理施設のある処理場まで輸送しているものは 151 ヶ所存在する（内 2 ヶ所は管路と車両を併用する二箇所を含む）（下水道統計 H30 年度版 [11]）。

2.1 でも述べたが汚泥はほとんど水で構成されている。それにもかかわらず、車両で輸送を行っている。ほとんど水を輸送しているので輸送効率が悪い。しかし、汚泥処理施設を処理場に導入する場合に比べると輸送を行った方が経済的に有利である為、輸送を行っている。実際に、現在汚泥処理の共同化・広域化の処理が行われるようになっている。例えば、愛媛県今治市では島エリアの汚泥処理施設が 3 つ存在したのを 1 つに集約し移動式脱水車で他の処理場から汚泥を輸送する場合のほうが経済的である為変更を行っている [12]。今治市と同県の新居浜市では将来的な人口減少に備えて尿・浄化槽汚泥の処理施設を統廃合し輸送で広域資源を有効活用しようと計画を進めている [13]。このように、今後人口減少に伴って今治市のような事例は増加してくることが予想される。

小規模処理場での、汚泥減量には以下のことが求められている。

- 1) 維持管理が容易であること
- 2) 処理施設増築にかかるコストが大幅に増大しないこと
- 3) 将来的なダウンサイジングも容易に行えること

B-DASH プロジェクト [14]などで小規模処理場を対象とした技術開発が無いわけではないが、基本的には大規模処理場向けの技術開発が多い。しかしながら、平成 30 年度下水道統計 [11]によると B-DASH プロジェクト（国土交通省による民間や自治体の下水道関連技術開発への補助事業） [14]で小規模と呼ばれている処理水量 10000 (m³/日) 以下の処理場の数は全体の約 76%を占める。そのため、小規模処理場を対象にした技術開発が求められている。

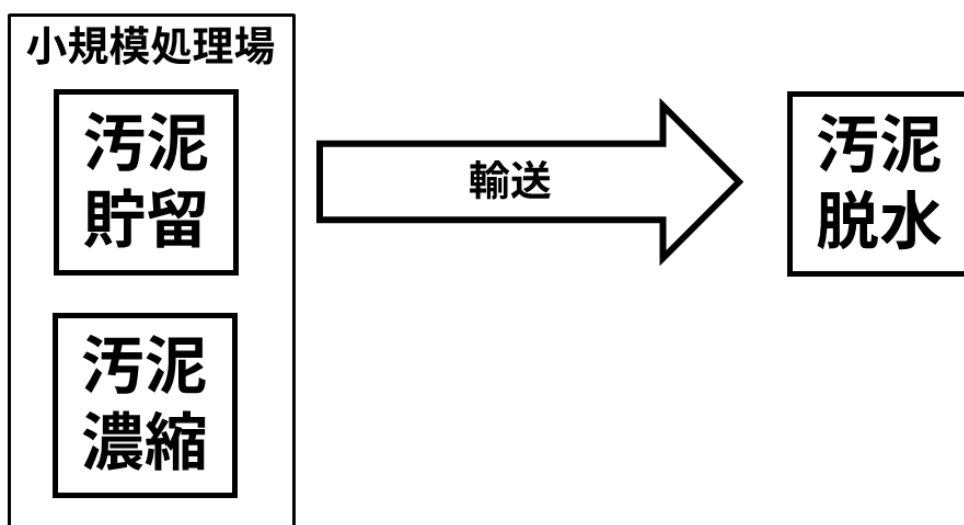


図 2-3 小規模処理場での汚泥処理プロセス

2.3 下水道汚泥に関する国の方針について

まず、下水道事業がどのような状況であるかについて日本政策投資銀行がまとめた「下水道事業の経営課題と将来予測」 [15]に基づいて簡単に整理を行う。下水道は現状人口減少や職員不足、下水道資源の有効活用などの課題を抱えている。その上、汚水処理費用を下水道使用料で賄っている自治体は 2 割にも満たない。このような中で下水汚泥をバイオマス資源として活用することで下水道の価値を高めようとする流れが出来ている。

平成 24 年以国土交通省が作成した「新下水道ビジョン」 [16]で水・資源・エネルギーの集約・自立・供給拠点化が目標に掲げられたことを皮切りに、持続的な下水道を維持するための国土交通省・農林水産省・環境省が公共下水道や農業集落排水など管轄を超えて施設ストックの長寿命化を測るための三省共同マニュアルの作成 [17]、平成 27 年の下水道法改定 [18]により下水汚泥の燃料・肥料としての再利用に関する努力義務が追加された。

また、下水汚泥はバイオガス資源としても社会に貢献できるポテンシャルを秘めている。農林水産省が平成 28 年に作成した「バイオマス活用推進基本計画」 [19]、環境省が平成 30 年に作成した「第四次循環型社会形成推進基本化計画」 [20]及び「廃棄物処理施設整備計画」 [21]、経済産業省が令和 3 年に作成した「第 6 次エネルギー基本計画」 [22]においても、下水汚泥からのバイオマス資源回収を推進していくことを記載している。国土交通省も下水汚泥のバイオマス資源化の推進を行うために平成 30 年に「下水道エネルギー化技術ガイドライン」 [23]を改訂し後押しをしている。

しかし、バイオマス資源の回収のために多く用いられている嫌気性消化は 2.1 で記述したように多くの設備投資が必要になるため、小規模下水処理場は下水汚泥をバイオマス資源として回収する事は容易ではない。そのため、各自治体の壁を越えて広域化を行い下水汚泥の再利用を行うための取り組みが行われている。取り組みを推進するために国土交通省は、平成 31 年に「下水汚泥広域利活用マニュアル」 [24]を制定した。広域化を行う事で、小規

模な処理場においてもスケールメリットを生かし下水汚泥をバイオマス資源として活用していくことが出来る可能性が高くなっていく。

2.4 間欠接触酸化法について

本節では本研究の元になっている間欠接触酸化法の原理及び間欠接触酸化法を用いた既往研究についての整理を行う。

2.4.1 間欠接触酸化法の原理

間欠接触酸化法とは本研究室において開発された技術であり、有機物を多く含んでいる g 下水などをスポンジのような多孔質な担体に空気と交互に接触させることで図 2-3 のようなプロセスを経て酸化分解が行われる。

- 1)担体が下水に接触している時に、微生物が有機物の貯蔵を行う。
- 2)担体が空気中に晒されている時に、微生物は空気中の酸素を用いて体内に貯蔵した有機物の酸化分解を行う。

上記のように浸漬・干出を繰り返すことで動力曝気を行うことなく微生物を用いて有機物の酸化分解を行う。間欠接触酸化法のような好気処理では酸素を供給することが重要になるが、微生物担体への酸素供給は主に以下の 3 つに整理することが出来る。

- 1)浸漬時における下水内の溶存酸素 (DO) からの供給
- 2)干出時の担体が空気に接している面からの溶解による供給
- 3)担体から水分が抜ける際に担体内部に空気が移流侵入することによる供給 (移流効果)

黒木(2016)によると水抜けが十分に起きる状況下においては移流効果が酸素供給の支配的要因であると報告している [25]。また、藤井 (2018) によると担体からの水抜けには担体の細孔の大きさに大きく依存しており、細孔密度が荒いほど水抜けがしやすい [26]。

間欠接触酸化法は主に、管路内浄化という技術で用いられている。管路の内部に担体を設置し、下水が間欠的に流れることで管路の内部で有機物を酸化分解することで下水を浄化するという技術である。実証実験に間欠接触酸化法を用いた管路内浄化の性能としては、管 1m あたり BOD を 13~20g/m・day という性能が報告されている [27]。

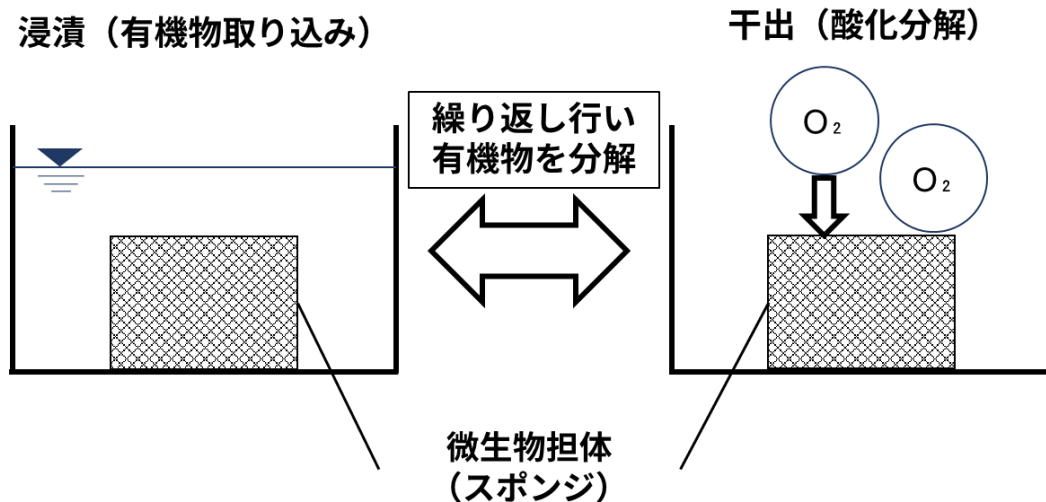


図 2-4 間欠接触酸化法の原理

2.4.2 間欠接触酸化法を用いた汚泥減量について

小林（2019）は間欠接触酸化法を用いた汚泥減量についての研究を行っている [2]。その際に使用していた汚泥減量装置の概要を図 2-4 に示す。図 2-4 の装置を用い菅野終末処理場の返送汚泥 3L を 2 倍希釈し、6L 入れ 6 時間に 1 回循環し汚泥減量を行った。

小林（2019）の研究結果では、間欠接触酸化法を用いた汚泥減量では以下の特徴があることが判明している。

- 1) 間欠接触酸化法において下水汚泥の質量・体積共に減少させることが出来る
- 2) 酸素消費速度で汚泥質量の減量を測定することが出来ることを確認した
- 3) 汚泥減量は好氣的に進行
- 4) スポンジ厚は汚泥減量に影響を与えず、見かけ上の表面積が重要である
- 5) 循環頻度は 1 日に 1 回でもよい
- 6) 処理時の温度が性能に大きな影響を与える
- 7) ミミズやチョウバエなどの高等生物が汚泥処理に影響を与えている可能性が高い
- 8) 実験期間中でのスポンジ閉塞による性能低下は無し

宋（2020）では、間欠接触酸化法を用いた汚泥減量にイトミミズがどれだけ汚泥減量に影響を与えるかについての検討を行っている [28]。明確にどれだけ与えているかの評価を行うまでには至らなかったがイトミミズの個体数を定量的に測るため手法を確立している。

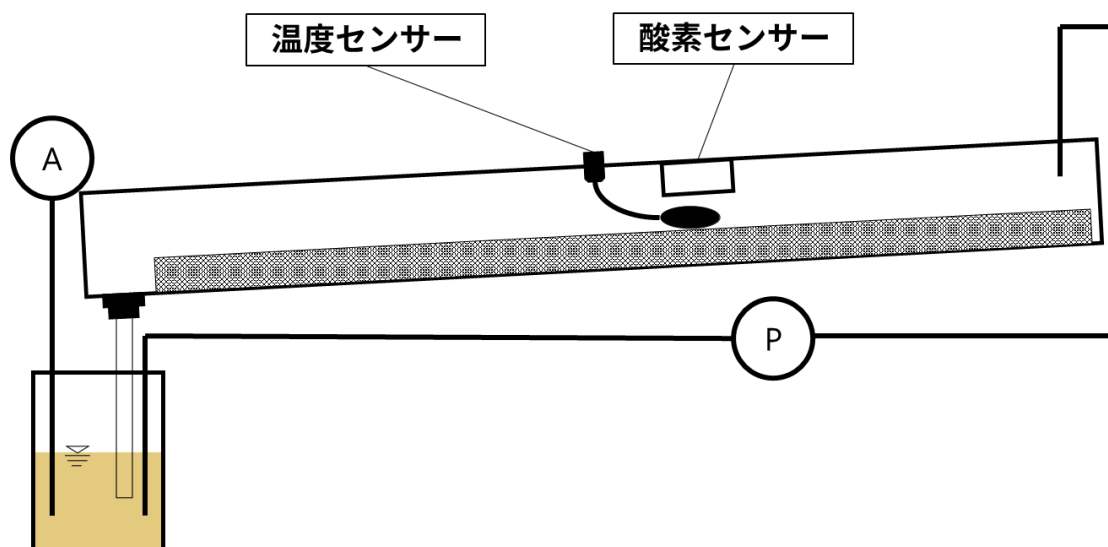


図 2-5 小林（2019）で使用していた汚泥減量装置（管路型）

2.5 本研究の意図と位置づけ

本章では、一般的な下水汚泥発生のプロセスから処分まで及び小規模下水処理場の下水汚泥処理プロセス、間欠接触酸化法についての整理を行った。間欠接触酸化法は汚泥減量を行う事が出来、小規模下水処理場への適応性も高いが管路型のままでは汚泥減量装置の設置面積が多く必要になってしまう。そのため、設置面積を縮小するためにスポンジを立体的に配置した装置を実験室規模で作成し、汚泥減量能力についての評価を行う。また、汚泥減量にチョウバエがどのような影響を与えているかの評価を行う。その結果を踏まえて今後実際に処理場に導入するためどのように研究を進めていくべきかの検討を行った。

3. 実験方法

本章では、実験を行うにあたって汚泥減量能力を評価するための手法についてまとめる。

3.1 では、実験で共通する装置の概要及び運転方法についてまとめる。3.2 では汚泥減量能力把握のための共通する分析方法についてまとめる。

3.1 実験概要

本研究ではスポンジを立体的に配置した間欠接触酸化法を用いた汚泥減量装置で下水汚泥を減量することが出来るかを調査することを目的としている。この装置を用いて汚泥減量の実験を実施した。装置作成にあたっては試作機を作成し予備実験を行い装置構成及び運転方法の決定を行った。予備実験の詳しい内容については付録で述べる。

装置の概要を図 3-1 に示す。装置は主に、汚泥を貯留するための貯泥槽、汚泥減量するためのスポンジを設置したスポンジ槽、および、貯泥槽とスポンジ槽の間の汚泥を行き来させるための 2 系統のポンプとチューブからなる。

スポンジ槽は、汚泥の分解に伴う内部の酸素の減少を定量的に把握することができるように、気相が外界から隔離された構造になっている。すなわち、蓋にはシリコンゴム製のパッキンが装着されており、大きめのクリップで蓋と容器の鏝を挟むようになっている。二つの槽をつなぐチューブをはじめとするチューブのスポンジ槽蓋の貫通部は、蓋に短めの塩ビ管(VP16 または VP25、長さ 1cm 程度) を塩ビ溶接で装着させること、およびそこにチューブを貫通させたゴム栓を差し込むこと、さらにゴム栓とチューブの隙間はシリコンシーラントで塞ぐことで気密にした。また、スポンジ槽内の汚泥の出し入れの際の内圧の変化を軽減するために、内部のガスを抜くための水封(図 3-1 の右端)をもうけた。なお、スポンジ槽内の汚泥を引き抜いて貯泥槽に送る際にはエアポンプを用いて装置ないが負圧になり水封の水がスポンジ槽に入らないようにした。さらに、スポンジ槽には酸素センサーにつながる 2 本のチューブを挿入した。2 本のうち 1 本はスポンジ槽内のガスを酸素センサーに送るチューブであり、もう一本は酸素センサーからスポンジ槽に酸素濃度測定後のガスを戻すためである。なお、酸素センサーは水滴弱いので、ガスを酸素センサーに送るチューブの途中に除湿のためにシリカゲルが入ったトラップを設置した。

装置の運転方法は、概ね次の通りである。まず、運転開始にあたって貯泥槽に所定量の汚泥を入れる。その後、貯泥槽からスポンジ槽に汚泥を全量輸送し汚泥をスポンジと接触させ、短時間の接触ののちに貯泥槽に戻す操作を、数時間ごとに繰り返した。汚泥が貯泥槽側にあるときに、体積としてその 1/10 量を毎日新たな汚泥と入れ替えた。ただし、諸般の事情で装置の管理をできない場合は、その前の日に汚泥の入れ替え量を増やすことで、平均すると 1 日あたり 1/10 量が入れ替わるようにした。

測定項目は、貯泥槽内で SS (汚泥乾燥重量)、VS (強熱減量)、SV30 及び SVI、スポンジ槽では酸素消費速度の測定を行った。SS (汚泥乾燥重量)、VS (強熱減量) は汚泥濃度を示す値であり貯泥槽内の汚泥濃度の推移を把握するために測定を行った。SV30、SVI は貯泥

槽内の汚泥の沈降性を示すものであり、主に SVI が指標として用いられることが多く 1g の汚泥が占める容積を ml で表したものである。酸素消費速度は、スポンジ槽内の 1 日当たりの酸素消費量を示すものである。汚泥内に含まれる有機物を微生物が分解する際酸素を必要とするため 1 日当たりの酸素消費量を測定することで間接的に減少した汚泥量を推定することが出来る。

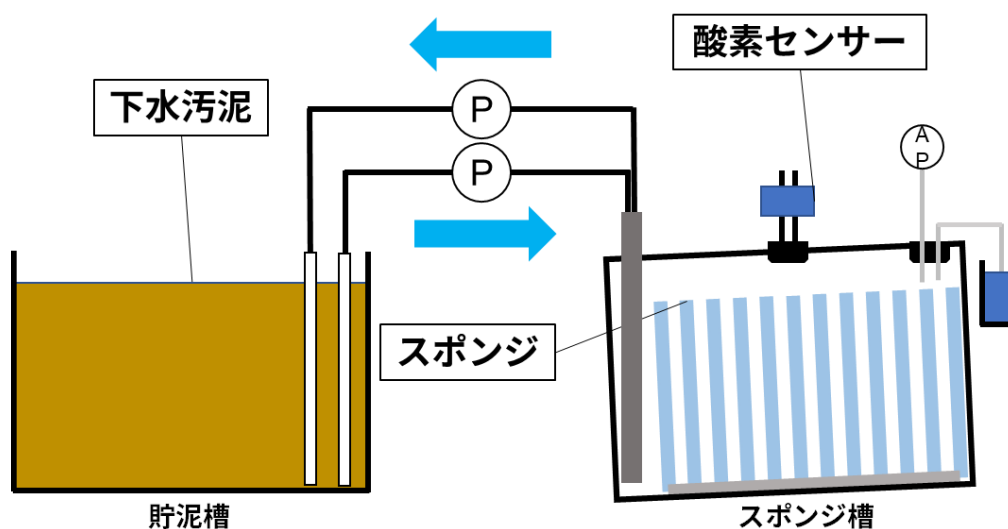


図 3-1 共通する装置概要図

3.2 共通する分析方法

3.2.1 SS (汚泥乾燥重量)、VS (強熱減量)

SS 及び VS の測定は下水道試験方法 [29]の遠心分離法を元に行った。

- 1). 貯泥槽の汚泥 50ml をチューブに入れ、回転数約 3000rpm で 10 分間遠心分離を行い、上澄み液を捨てた後、沈殿物をあらかじめ恒量を測定した蒸発皿に入れる。
- 2). 沈殿物を入れた蒸発皿を 105℃の乾燥炉で乾燥させる。乾燥させたのちにデシケーターで放冷させた後乾燥前後の質量差 (a) を求める。ここに、50 は貯泥槽から採取した汚泥の量 (mL) である。

$$SS(mg/L) = a \times \frac{1000}{50}$$

- 3). 2 での試料を 600℃で 30 分間強熱灰化を行った後、デシケーターで放冷する。
- 4). 強熱灰化前後の蒸発皿の質量差 (b) を求める。ここに、50 は貯泥槽から採取した汚泥の量 (mL) である。

$$VS(mg/L) = (a - b) \times \left(\frac{1000}{50l}\right)$$

3.2.2 酸素消費速度 (OCR : Oxygen Consumption Rate)

3.1 に述べたように、本実験ではスポンジ槽の気相を外部と隔離し、その酸素濃度を酸素

センサーで経時的に測定した。センサーが返す酸素濃度は酸素の分圧である。そこで、装置内の酸素の量（モル量）は気体方程式を用いて以下のように求めた。

$$n = \frac{RT}{PV}$$

P：気圧 [Pa] V：スポンジ槽体積 [L] n：物質量 [mol] T：温度 [K]

R：気体定数 (8.31×10^3) [Pa・L/(K・mol)]

上記の気体方程式でモル量を求めた後酸素分子量をかけて酸素量を求めた。1気圧での酸素の分圧 21000hPa を大気中の放置した時のセンサーの値で割ったものと酸素センサーの値を掛け合わせることで酸素量を求めている。求めた酸素量の1日の減少量を酸素消費速度とした。

3.2.3 SV30（汚泥容積率）、SVI（汚泥容積指標）

V30、SVI の測定方法は下水道試験方法 [29] をもとに行った。

・SV30

容量 1L のメスシリンダーに汚泥を入れ、30分静置した時の沈降汚泥の容積を100分率で表したものである。本研究では、以下の方法で測定した。

- 1). 試料 1L をメスシリンダーに入れ、緩やかに攪拌を行う
- 2). 30分間静置し、沈降汚泥の体積 (a) を読み取り、以下の式で計算を行う

$$SV30 = \frac{a}{1000} \times 100 = \frac{a}{10}$$

- 3). SV30 の値が 30 以上の場合は希釈を行って再測定を行う。結果に希釈倍率をかけて数値を求める。

・SVI（汚泥容量指標）

貯泥槽内の汚泥用容積測定するためにSVIの測定を行った。SVIは汚泥の沈降性を表す指標で、1gの汚泥浮遊物質が占める容積をmlで示したものであり数値が小さいほど沈降性が高い。以下の式を用いて求める。

$$SVI = \frac{SV30(\text{活性汚泥容量率})[\%] \times 10000}{SS(mg/L)}$$

4. 実験 1：立体型装置の試作と試運転

4.1 はじめに

本章では、実験 1 の結果について報告する。実験 1 は、スポンジを立体的に配置し、単位面積当たりのスポンジ設置量を増やした立体型装置を試作し試運転したものである。なお、本章で述べる実験 1 の結果から、性能を評価するためには装置を改良しなければならなかった。改良した装置で行った実験結果は、次の 5 章に述べる。

4.2 研究目的

実験 1 においては実際に立体型汚泥減量装置を作成し汚泥減量をおこなうことが出来るか検証することを目的とする。立体型装置は、予備実験の結果を受けてスポンジを縦置きで配置した装置を作成し、装置を安定して動かすため改良した。改良内容は以下に示す。

- 1). スポンジ同士の間には 1cm 角の細いスポンジ (CFH-13) をスペーサーとして挟み込みステンレスの針金を用いてスポンジ同士を一体化する製造法を採用した。塩ビ製の薄板を用いるよりは、横向きの力に対して強くした。
- 2). リアクター底部とスポンジを隔てる空間を確保するために、スポンジの下に 5mm 程度の足があるプラスチック製のすのこ (人工芝と同様のサイズ・規格のもの、足を含めた高さは 10mm 程度) を装置に適合する大きさに切断し設置した。
- 3). 装置の動作状況を観察しやすいように、設置場所を市川市の菅野終末処理場内から東京大学柏キャンパスの実験室内に変更した。

上記の変更を行い、汚泥減量の評価を行うために、まず装置を安定的に運用することが出来るかの確認を行った。

4.3 実験方法

・実験装置及び運転条件

貯泥槽及びスポンジ槽に使用している容器、ポンプなどの周辺機器は、予備実験で使用したものと同一である（図 4-1）。予備実験の装置からの変更点としてスポンジ下部とリアクター底部を隔てるスペーサーを足が 5mm あるもの（図 4-2）に変更し、また、スポンジ槽に酸素センサー（LuminOx O2 Sensors SST Sensing、スコットランド）を設置した。また、スポンジは予備実験ではアキレス社のものをもちいたが、ここではイノアックコーポレーション社製のポリエーテル系ウレタンフォーム（CFH-13）を用いた（図 4-3）。また、1 枚当たりのスポンジサイズを 1×15×16（cm）から 1×14×15（cm）に変更した。設置枚数に関しては 14 枚と変更はないがスポンジの設置方法が塩ビ製の 1mm ほどの薄板で支える方法からステンレスの針金でスポンジを一体化して固定する方法に変更した。スポンジの塊の表面積は 5880cm²、体積は 3330cm³である。表面積の算出にあたっては、各スポンジシートの表面積の一部がスペーサーによって隠されてしまうが、一方、スペーサー自体空気に接する面を持っている。隠されている面積と新たにスペーサーによって生じる空気との接触面積は同じなので、表面積は 14cm×15cm×14 枚×2（表と裏）=0.588m²となる。一方、体積はスペーサーの分増えてしまう為 1×14×15×14+1×1×15×26=3330cm³となる。しかし、全ての面が汚泥に接触しているわけではないので実際に運転を行い汚泥に接触している部分を測定した。その結果、表面積は 4203cm²、体積 2463cm³であった。

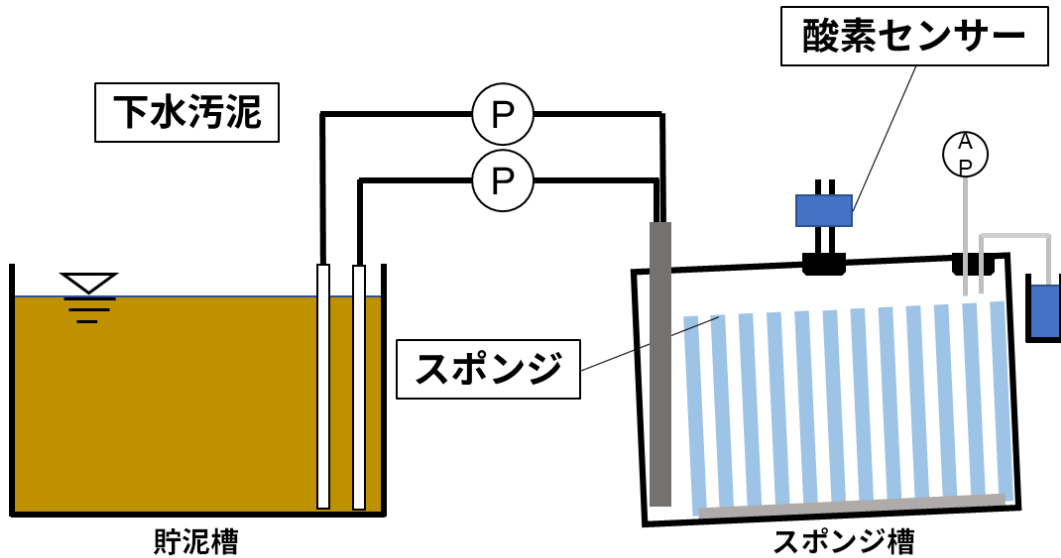


図 4-1 実験 1 の実験装置概要図

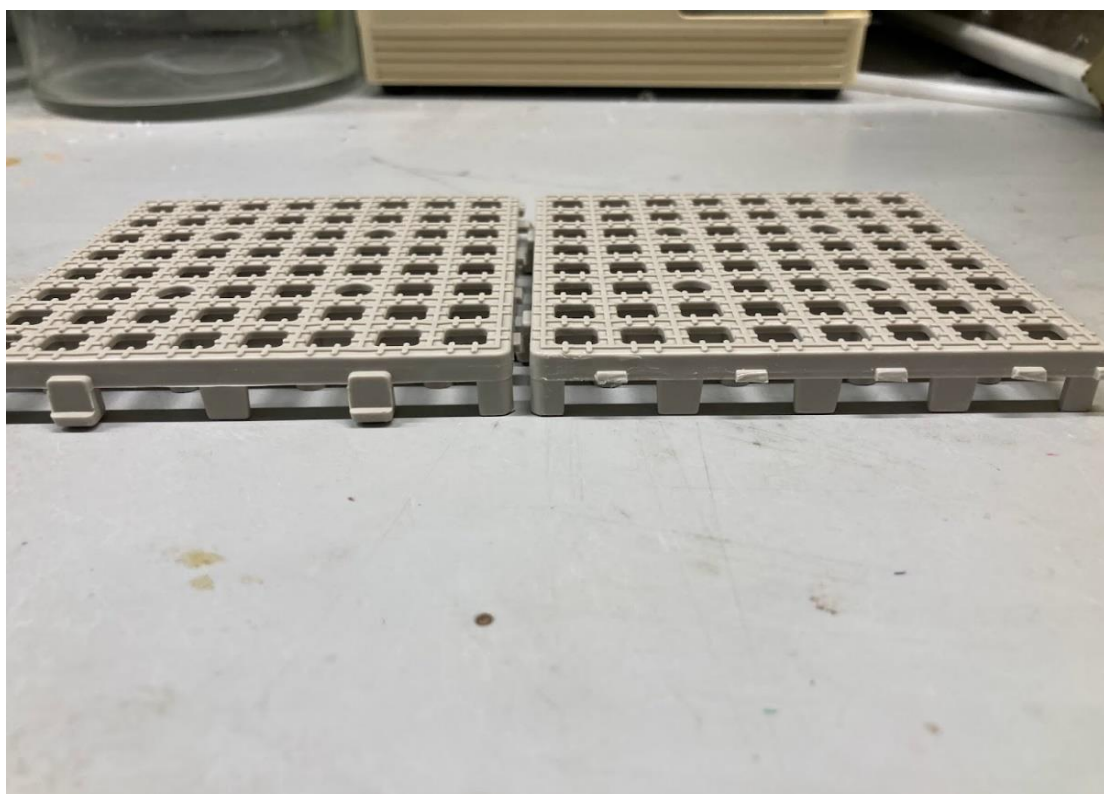


図 4-2 実験 2 にスポンジ槽底部のスペーサー



図 4-3 実験 2 におけるスポンジの一体化後の写真

実験期間は2021年8月2日から9月15日である。処理対象の汚泥は菅野終末処理場の返送汚泥を用いた。運転開始時、汚泥貯留槽SS濃度は5000mg/lの返送汚泥4.5L入れ実験を開始した。実験室内の温度を25℃とした。

装置の運転は次のように行った。3時間に1回汚泥をスポンジ槽に5分かけて汚泥を送泥し、送泥終了直後に5分かけてスポンジ槽から貯泥槽に返泥を行った。週に5日間装置の系内に存在する汚泥の1/10とSS7000mg/lの新たな汚泥を入れ替を行った。40日目から汚泥濃度を上げるために入れ替える汚泥のSSを14000mg/lに変更した。汚泥質量減量の評価を行うためにSS、VS、酸素消費速度を測定、汚泥容積減量を評価するためにSV30、SVIの測定を行った。SS及びVSは貯泥槽の汚泥を入れ替える直前に貯泥槽の汚泥を50ml採取して測定を行った。SV30も同様に貯泥槽の汚泥を入れ替える直前に測定を行った。

4.4 実験結果と考察

SS は最初スポンジに吸着する為初日は大幅に下がるがそれ以降はある程度安定してくると考えていた。しかし、わずかに増加してきているように見えるが全体的には大幅に上下する形になった (図 4-4)。これは汚泥の分解による減少を把握できると期待していたが、むしろ装置が安定して運転できていなかったことを示している。スポンジ槽からの汚泥返送がうまくいっているとすれば、貯泥槽内の SS 濃度は安定するはずである。スポンジ槽を開けて確認したところ、実際にスポンジ槽底部には汚泥が堆積 (図 4-5) していた。貯泥槽の SS 濃度が極端に低くなってしまう原因は汚泥が装置底部に堆積してしまったためである。

貯泥槽内の酸素消費速度 (図 4-6) は、徐々に増加していることが分かる。なおスポンジの単位面積あたりで示されており、平均で $2.8\text{g/m}^2/\text{day}$ で最大 $4.7\text{g/m}^2/\text{day}$ であった。小林 (2019) [2]の結果では同じ気温 25°C では $11.5\text{g/m}^2/\text{day}$ なので、数値的には下回ってしまっている。40 日目に投入する汚泥の SS 濃度を $7,000\text{mg/l}$ から $14,000\text{mg/l}$ に変更した後酸素消費速度が上昇している。SS 濃度を上げることでスポンジに供給される有機物量が増え、分解するために必要な酸素消費速度が上昇した可能性が高い。

SVI (図 4-7) に関しては装置の運転に伴う明確な傾向は見られなかった。

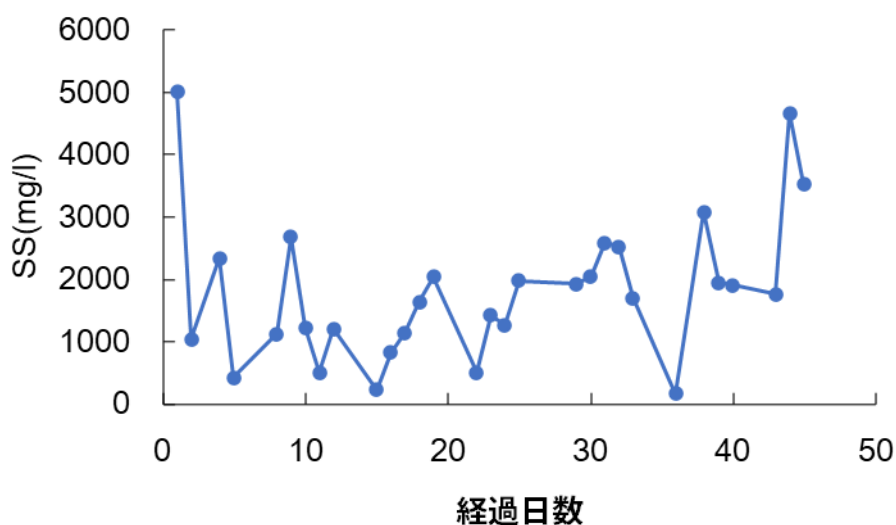


図 4-4 実験 1 貯泥槽の SS 推移



図 4-5 スポンジ槽底部に汚泥が堆積している様子

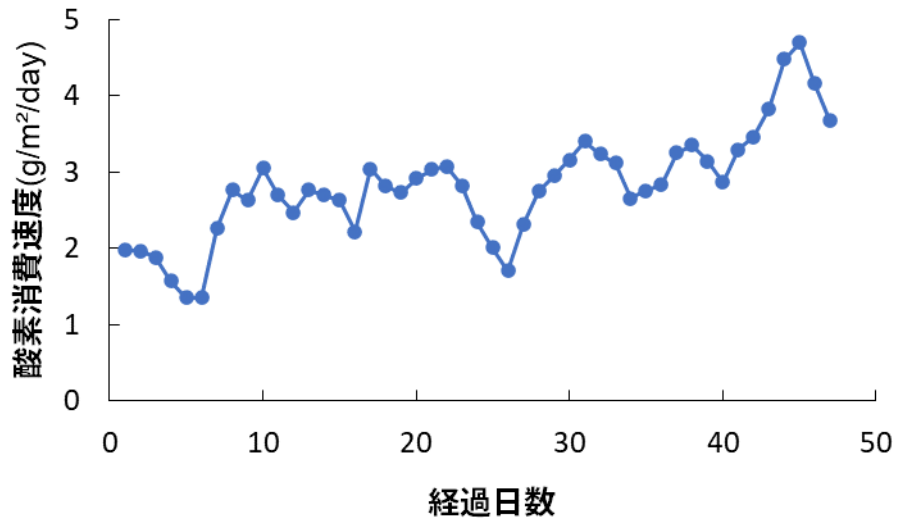


図 4-6 実験 1 スポンジ槽内の酸素消費速度推移

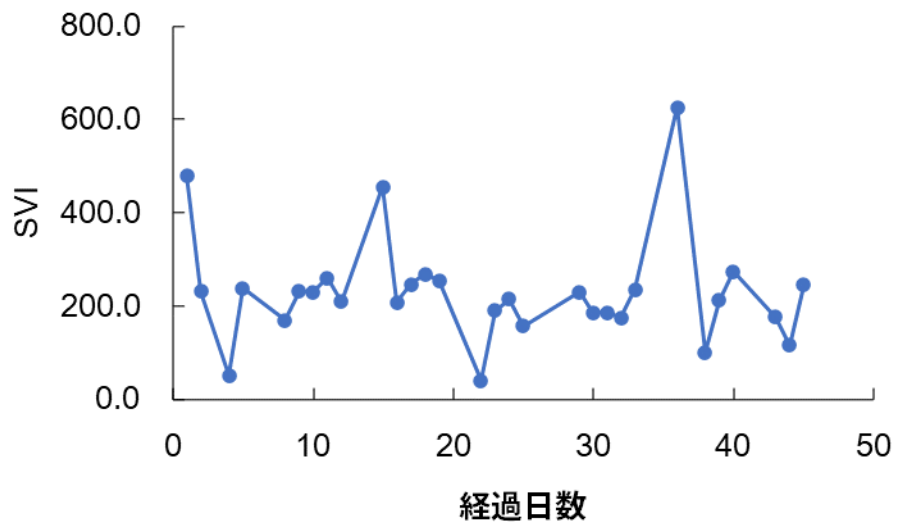


図 4-7 実験 1 貯泥槽 SVI 推移

4.5 まとめ

実験 1 では縦置きに設置したスポンジが倒れることなく運転を行うことが出来、酸素消費速度を測定することも可能になった。一方で、貯泥槽 SS 濃度は安定せず、スポンジ槽内の壁面や底に汚泥が溜まってしまったことがわかった。酸素消費速度についても小林 (2019) の結果を下回ってしまった。汚泥容積に関する指標 SVI に関しては効果を確認することが出来なかった。

SS、酸素消費速度、SVI の結果よりうまく処理を行うことが出来ていなかった原因は以下のことが考えられる。

- 1). スポンジ槽内部に汚泥が堆積してしまい貯泥槽に汚泥返送がうまく出来ていないことで装置を安定的に運転することが出来ていない。
- 2). 投入する汚泥濃度が 7000mg/l と低いことで酸素消費速度が低くなっている可能性が高い。
- 3). イトミミズやチョウバエなどの高等生物が発生していないことで酸素消費速度が低くなっている可能性が高い。

上記の問題に関して対策し実験 2 を行った。

5. 実験 2：立体型装置の性能評価とチョウバエの影響について

本章では、実験 1 の結果を受けて改良を行った立体型装置を用いて汚泥減量能力の評価を行った。改良の結果、スポンジ槽内の堆積は軽減され、実験 1 よりも安定して装置を運転することが出来た。なお、実験期間の前半では装置内にチョウバエは出現しなかった。そこで、後半ではチョウバエが繁殖しているスポンジ片を装置内に設置し、チョウバエの汚泥減量への寄与を確認しようとした。

5.1 研究目的

実験 1 で作成した立体型装置で発生した問題に対して改良を行った装置を用いて汚泥減量能力の評価及びチョウバエが汚泥減量に与える影響について評価することを目的とした。汚泥減量能力を把握するために行った装置改良の内容は以下のようになる。

- 1). スポンジ槽底部及びスポンジと容器の間に汚泥が堆積してしまい、スポンジ槽への汚泥返送がうまく出来ていなかった。そこで、スポンジのサイズを実験 1 の 1/3 サイズに変更し、底のスペーサーの高さを 0.5cm から 1cm の物に変更を行った。
- 2). 酸素消費速度が予想していた値の約半分程度しか観測できなかった。そこで、貯泥槽内に投入する汚泥の濃度を SS で 7000mg/l から 10000mg/l の汚泥に変更を行った。

また、実験前半では高等生物が発生しなかった。そこで、前半は高等生物がいない状態での立体型装置の汚泥減量能力の測定を行い、後半は人工的にチョウバエを移植し汚泥減量能力の評価を行った。

5.2 実験方法

1) 実験 2 での実験装置

装置の構成は、スポンジ及びスポンジ槽の底のスペーサー以外は実験 1 と基本的に同じである（図 5-1）。実験 1 においてスポンジと容器の間に汚泥が閉塞してしまう問題が発生していた。そこでスポンジサイズを $14 \times 15 \times 1$ (cm) から $10 \times 10 \times 1$ (cm) に変更をした（図 5-2）。枚数も 14 枚から 7 枚に変更し、スポンジ塊全体の表面積は 1400cm^2 で体積は 780cm^3 である。スポンジ同士の固定はステンレスの針金を用いて一体化させた。また、リアクター底部の汚泥の体積を軽減するために、足の高さが 1cm の物に変更した（図 5-3）。

装置は 25°C に設定された実験室内に設置した（図 5-4）。ただし、実験結果に置いて述べるように実験開始後 2 週間程度、室温の調節に不備があり、 25°C よりも低い温度（おそらく 20°C あるいはそれを下回るくらい）とばっていた時期がある。

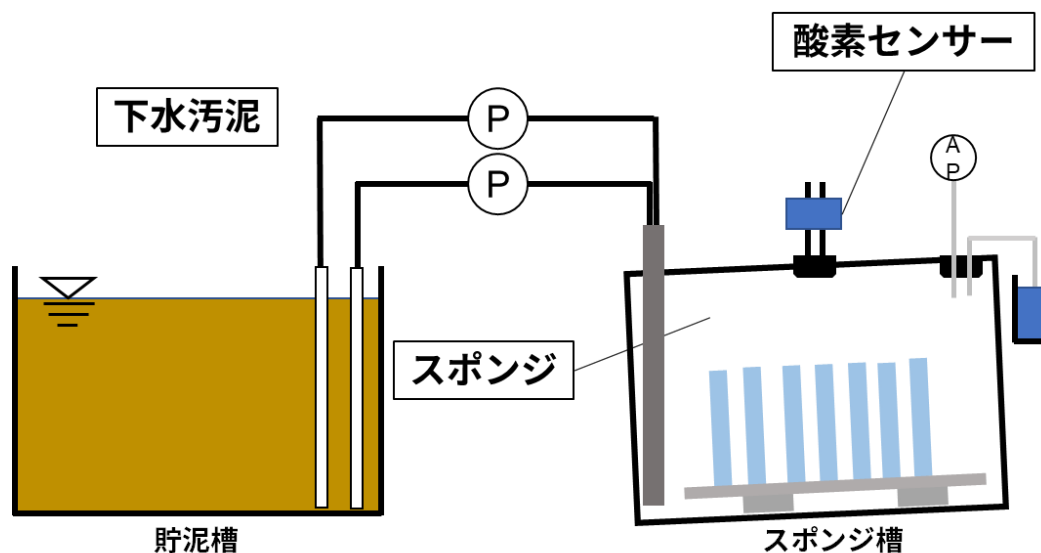


図 5-1 実験 2 の実験装置概要図



図 5-2 実験 2 で変更を行ったスポンジ

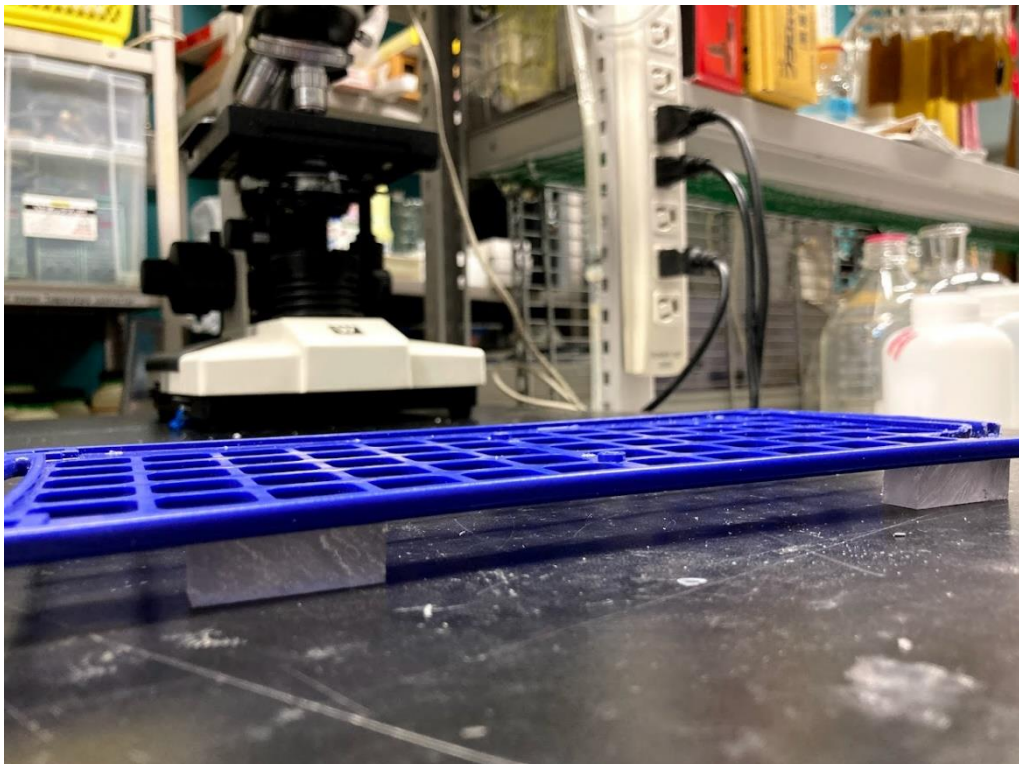


図 5-3 実験 2 で変更を行ったスポンジ槽底部のスペーサー

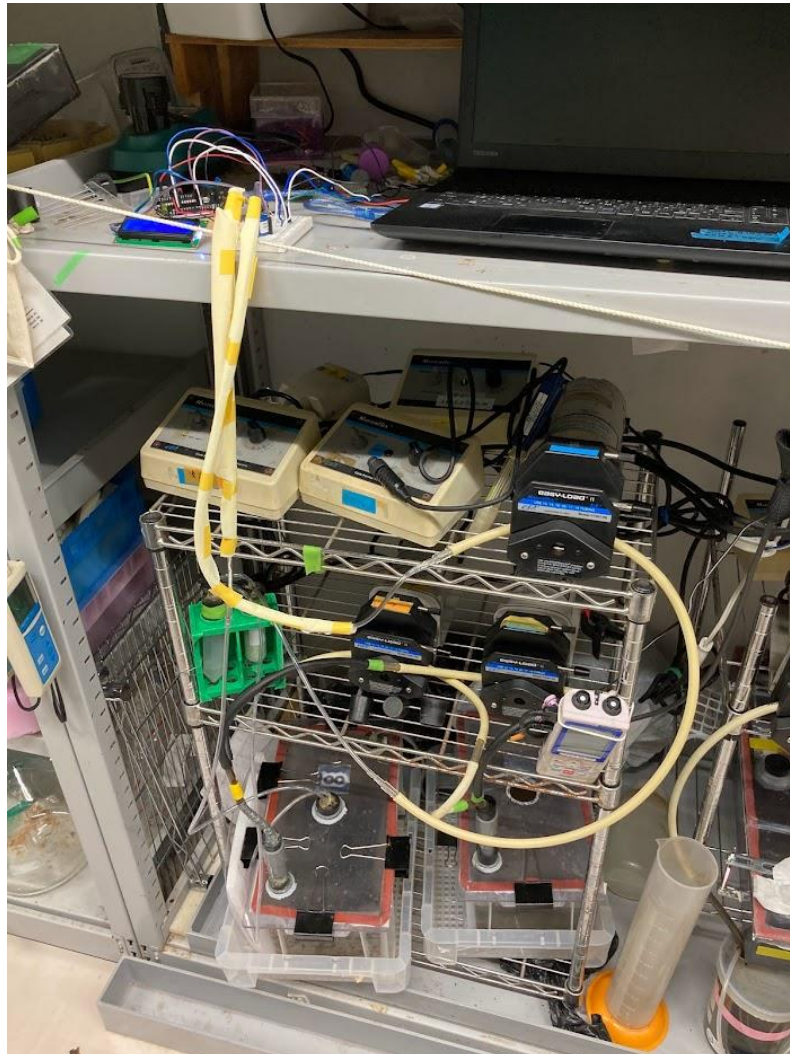


図 5-4 実験 2 で使用している実験装置

2) 実験条件および運転方法

実験は、2021年10月12日から開始した。運転開始時にSS10000mg/lの汚泥4Lを入れて運転を開始した。また、汚泥は実験1と同様菅野終末処理場の返送汚泥を使用した。平日毎日1/10の汚泥をSS10,000mg/lの汚泥と入れ替え、月曜日は土日分も含めて入れ替えを行った。貯泥槽からスポンジ槽に汚泥を送泥する頻度は、最初の2週間は3時間に1回で、それ以降は1時間に1回に汚泥輸送時間合計10分間で行う方法に変更を行った。変更を行った理由に関しては4.3.3で後述する。SS,VS,SV30,SVIは汚泥の投入前後の貯泥槽の汚泥を用いて測定を行い、10月18日と11月9日に24時間ずつORP(Oxidation-Reduction Potential:酸化還元電位)の測定を行った。なお、ORPは溶液の酸化性、還元性を示す指標であり、好気性で正電位、嫌気性では負電位を示す。ORP計(WN-32EP 東亜ディーケーケー株式会社)を用いて測定した。

また、スポンジ槽内部に汚泥が完全に堆積しなくなることを防ぐことは難しいため 10 日間程度の間隔でスポンジ槽内部の清掃を行った。清掃は、貯泥槽の汚泥を全量スポンジ槽に入れよく攪拌し、その後全ての混合液を貯泥槽に再び戻す方法で行った。

実験開始から 34 日目にスポンジ槽にチョウバエを移植し 38 日間実験を行った。チョウバエは、もともとは市川市の菅野終末処理場で研究室の佐藤弘泰教授が運転している間欠接触酸化法による管路内浄化の実験装置内のチョウバエが定着したスポンジ片に由来するものである。そのスポンジ片を本論文の付録に述べる管路型汚泥減量装置内に設置しチョウバエが定着したスポンジ片を増やし、その一部を切断して本実験のスポンジ槽内部に設置した。

また、本研究室で検討している間欠接触酸化法による汚泥減量の汚泥容積減量への効果を評価するために、間欠接触酸化法による処理を行わずに未処理のまま汚泥を補完することで容積への影響を検討した。その際、汚泥は円形の 500ml のプラスチック製の容器に入れ上部をキムワイプで覆い実験室に 10 日間放置した。それから、未処理の場合どのように汚泥容積 (SVI) が変化するかを調べるために、汚泥を何もせず実験室に 10 日間放置した。10 日に設定した理由としては、本実験での装置内の汚泥が理論上 10 日で全て入れ替わるためである。

5.3 実験結果と考察

SS (図 5-5) はばらつきがある時も存在するが実験 1 に比べると安定していた。スポンジと装置の間の汚泥堆積を防ぐためにスポンジサイズを 1/3 サイズに縮小し枚数を半分にすることでスポンジと装置底部を隔てるスペーサーの足の高さを 2 倍にしたことでスポンジ槽内の汚泥堆積を軽減することが出来た。大幅に上昇するときがあるがスポンジ槽内部を洗浄した際にスポンジが保持している汚泥も貯泥槽に返送されてしまう事が原因だと思われる。後半ふれ幅が大きくなった理由としては定かではない。運転を続けていくにつれスポンジの疎水性が弱くなり保持できる汚泥量が多くなったためかもしれない。また、チョウバエ移植の前後で SS が変化したような様子は見られない。

酸素消費速度 (図 5-6) は、20 日目ごろから大幅に上昇している。上昇している原因としては、実験室内の室温が冷房から暖房に切り替わったことにより水温が上がったためだと思われる。また、室温が上がっただけでなく、循環頻度を 3 時間に 1 回から 1 時間に 1 回に増やしたことによる影響も大きいと思われる。運転上の変更を行った後のチョウバエ移植前の平均酸素消費速度は、 $5.9\text{g/m}^2/\text{day}$ であった。汚泥濃度を上げたこと、循環頻度を上げたことが実験 1 の $2.7\text{g/m}^2/\text{day}$ に比べて上昇した大きな理由だと思われる。

チョウバエを移植して実験を行った 38 日間の酸素消費速度の平均は $6.6\text{g/m}^2/\text{day}$ であった。チョウバエを移植した後はすぐに酸素消費速度が上昇していることが見受けられる。やはり、酸素消費速度に対してチョウバエが与える影響は大きい後半にかけてわずかに減少傾向で、チョウバエの個体数が減少したことによるものか汚泥の性状に何らかの変化が起きた可能性などが考えられるが明確な理由は不明である。また、チョウバエは基本的にスポンジ槽に汚泥を入れたときの水面付近に集中していた。fill&draw 方式ではスポンジ槽の大半が汚泥で水没してしまうため、水面付近に集中していたと思われる。幼虫は成虫ほど自由に動けないため汚泥を貯泥槽に戻す際に一緒に貯泥槽まで流されてしまっていたため成虫の繁殖が遅くなってしまっていた可能性が高い。今後は、チョウバエの計測方法及びチョウバエが全体的に生息しやすいスポンジ形状、汚泥供給方法を検討する必要がある。

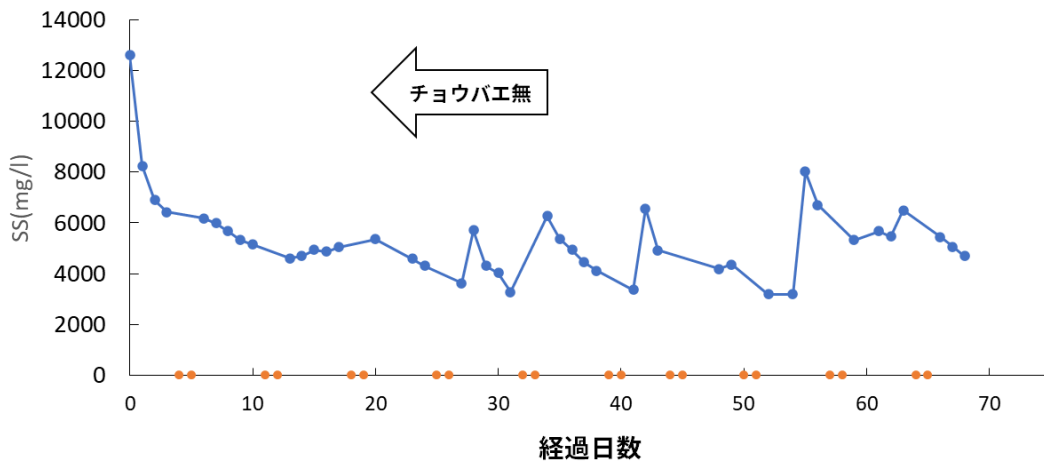


図 5-5 実験 2 貯泥槽 SS 濃度推移

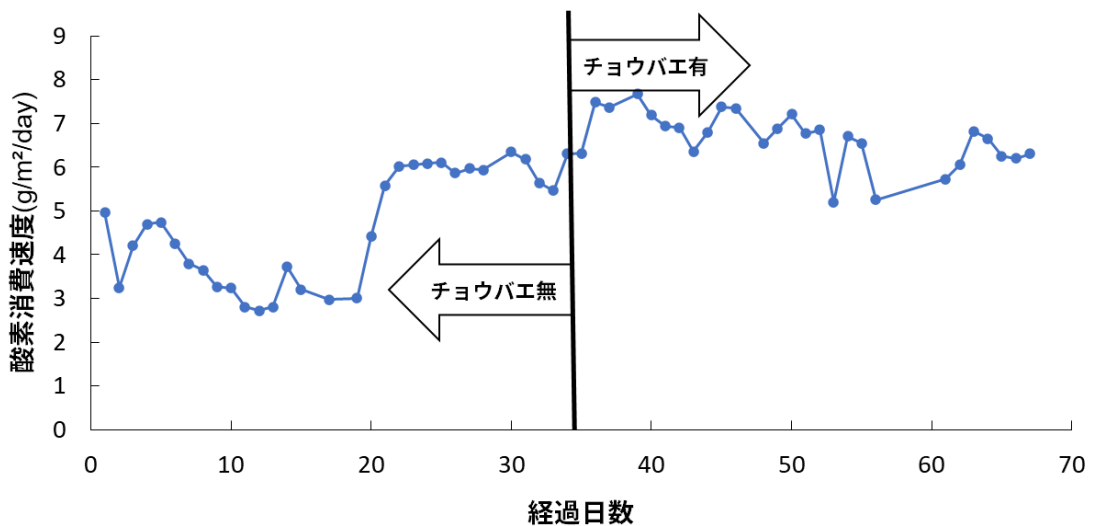


図 5-6 実験 2 貯泥槽酸素消費速度推移

循環頻度の影響を比べるにあたって ORP を循環頻度が 3 時間に 1 回の時と 1 時間に 1 回の時にそれぞれ 24 時間ずつ測定を行った。その ORP の結果 (図 5-7) を見ると循環頻度が 3 時間に 1 回の時は徐々に ORP が低下している事が分かる。実際に、SV30 の測定時、上澄みが増すごとに赤茶色に濁っていく様子が確認された (図 5-8、5-9)。しかし、循環頻度を上げたことにより ORP の最小値がマイナス 370mV からマイナス 250mV まで上昇しわずかであるが右肩上がりに処理が行えるように変化した。計測回数がそれぞれ 1 回のみであるため常に右肩上がりであるかは不明である。

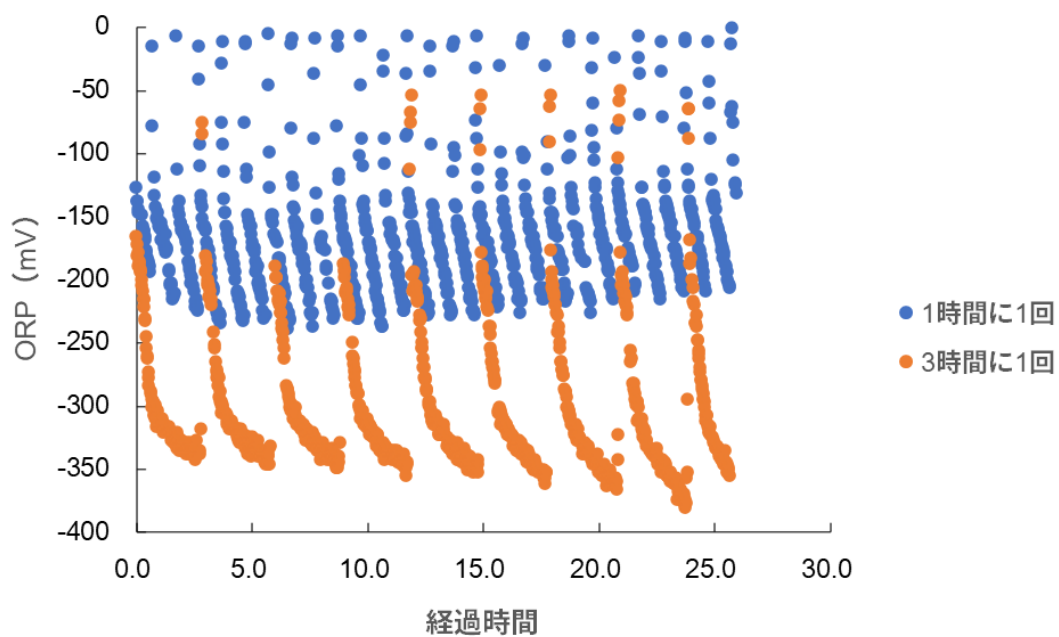


図 5-7 実験 2 貯泥槽 ORP 推移 (24 時間)



図 5-8 実験 2 の上澄みがきれいなときの SV30



図 5-9 実験 2 の上澄みが濁ったときの SV30

SVIの結果(図 5-10)の棒グラフは汚泥投入直後と 24 時間後の貯泥槽の SVI の値を示し、折れ線グラフは SVI が汚泥投入後 24 時間でどれだけ変化したかを示している。SVI は、チョウバエを入れる前の 30 日目ごろまでは変化率が大きくぶれることが多くなってしまっているが、チョウバエを入れる直前の 30 日目以降安定している。

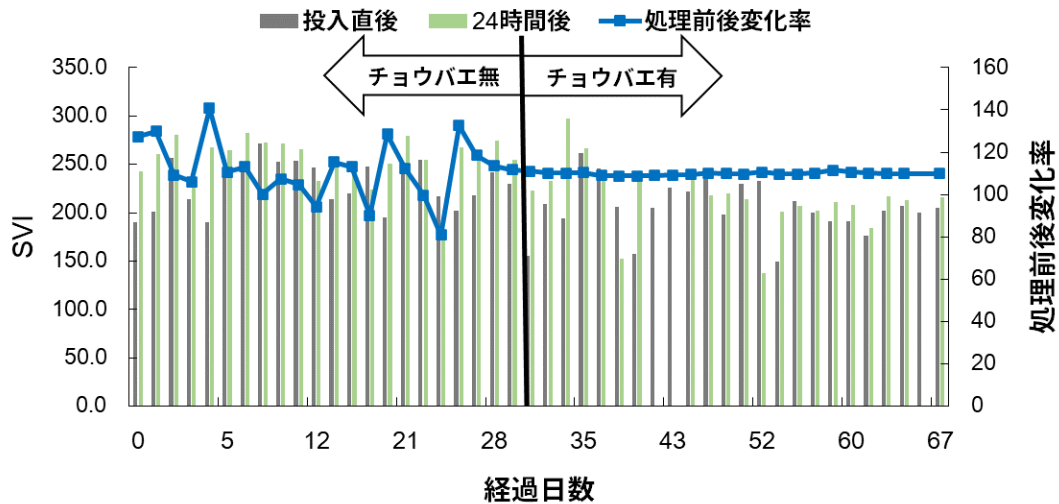


図 5-10 実験 2 貯泥槽 SVI 推移

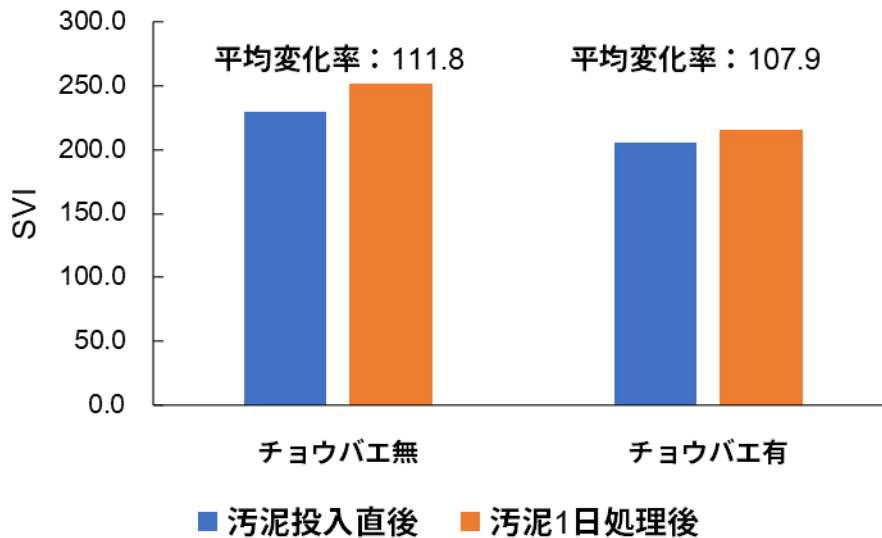


図 5-11 実験 2 のチョウバエがいる場合といない場合の貯泥槽 SVI 平均

最後に、立体型装置で汚泥処理を行った場合の SVI と全く処理を行わなかった場合の汚泥の SVI の悪化度合いを比較するために実験室に汚泥を 10 日間放置し SVI が初日に対してどのように変化するかを検証した(図 5-13)。結果(図 5-12)は、未処理汚泥と 10 日放置後の汚泥の SVI はそれぞれ 126.7 と 140.6 であり SVI が 11%悪化した。しかし、間欠接触酸

化法で処理を行った汚泥のデータは週末を除き汚泥を毎日 1/10 入れ替えるという条件で 24 時間処理したものであり、装置内部に元々存在する汚泥の影響を受けるため比較には適していない条件で実験を行ってしまった。最初の汚泥は同じにし、未処理の汚泥も 1/10 ずつ入れ替え毎日 SVI を測定するなどの方法を検討するべきであった。今後は、未処理汚泥の SVI 変化率を調べる方法についても検討を行う必要がある。

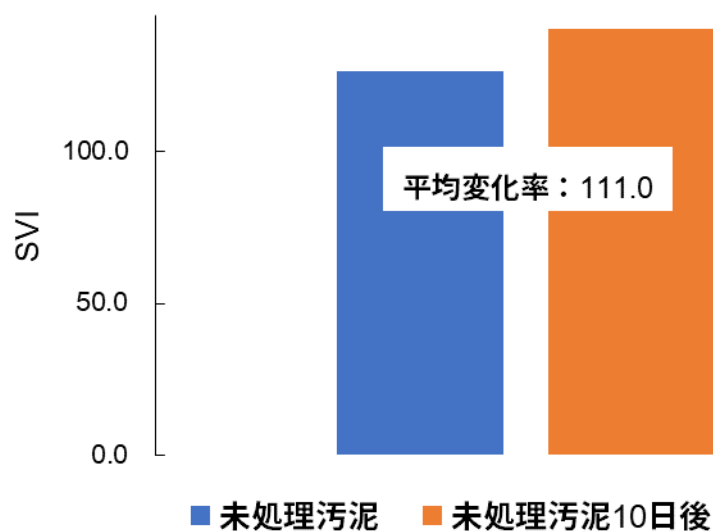


図 5-12 未処理汚泥の SVI の変化



図 5-13 未処理汚泥の様子

5.4 実験2についてのまとめ

装置を安定的に動かすことが出来るようになり、汚泥減量能力に関しての評価を行った。汚泥減量能力の評価方法についてここで改めて整理を行う。汚泥減量は、汚泥質量に関する指標と汚泥容積に関する指標の2つが存在する。汚泥質量は、間欠接触酸化法は好気的な処理なので汚泥を分解する際には酸素を必要とするためスポンジ槽を密閉し酸素消費速度を測定することで評価した。汚泥容積は、汚泥容積指標である SVI を貯泥槽の汚泥を用いて評価を行った。

・汚泥質量減量に関して

酸素消費速度は、汚泥濃度及び汚泥循環頻度を上げたことにより実験1より好気的に処理が行えるようになり平均で $5.9\text{g/m}^2/\text{day}$ までよって上昇した。またチョウバエを移植後は $6.6\text{g/m}^2/\text{day}$ となり、チョウバエが影響を及ぼしていることが分かった。

また、汚泥容積減量に関しては SVI は1日装置内で処理を行うと11%ほど悪化してしまう結果となったが、チョウバエを移植することで SVI の悪化が7.9%程度となり、チョウバエは汚泥容積を減量する能力を持っている可能性があることが分かった。そのため、チョウバエが汚泥減量を行いやすいスポンジへの汚泥供給方法や、チョウバエの汚泥減量能力を定量的に示す為の手法の開発が今後必要になってくると考えられる。また、チョウバエは飛翔能力を持っており、あまり好ましくない。実際に使用することを想定した場合、チョウバエを汚泥減量装置内にとどめることはある程度可能だろうが、多少外部に飛散し、周辺住民の迷惑になることもあるかもしれない。また、作業環境上も好ましいとは言い難い。一方、小林(2019) [2]はイトミミズが汚泥減量に大きく影響を与えている可能性が高いことを示唆している。イトミミズは飛翔する心配はないので、イトミミズでも同様の検証を行っていくとよいだろう。

5.5 管路型との比較

汚泥質量減量による酸素消費速度に関しては、小林（2019）の結果によると 25°Cの条件下では管路型が 11.5g/m²/day であったのに対して、本研究で使用した立体型ではチョウバエが存在する条件下で最大 7.7 g/m²/day であった。約 0.67 倍の性能であった。

酸素消費速度と関係が高いパラメータの一つとして、汚泥の SS 濃度があげられる。そこで、汚泥の SS 濃度について本研究と小林の研究を比較していきたい。小林の管路型において投入していた汚泥の SS 濃度はおよそ 7,500~8,000mg/l であった。本研究で使用していた汚泥の SS 濃度は 10000mg/l であったため 1.3 倍ほど本研究で使用していた汚泥のほうが濃度が高い。間欠接触酸化法において管路内浄化ではあるがスポンジから下水が抜ける時の移流効果による酸素供給が大きいことが黒木（2016） [25]によって報告されている。これを踏まえると汚泥濃度が高いことで微生物に有機分の供給はされるがスポンジ内部から汚泥がわずかに抜けにくくなり酸素供給が少なくなってしまっていた可能性があるのではないだろうか。間欠接触酸化法においては酸素消費速度が最大になる汚泥濃度が存在する可能性が高いので汚泥濃度との関係性を今後詳しく検討を行っていく必要があると考えられる。

運転方法の違いによる可能性も高い。管路型では、汚泥は 1 週間に 1 度のみ投入し、1 週間後には汚泥を全て新たなものに入れ替えていた。立体型では 1/10 ずつ入れ替えており、毎日 SS 濃度の高い汚泥が供給されるという形になっていた。この運転方法が酸素消費速度にどのような影響を及ぼすかについては不明であるため今後検討が必要であると考えられる。また、チョウバエの幼虫を定着させるのに本研究で用いた fill&draw 方式では幼虫が流されてしまい困難であった。そのため、幼虫が流されてしまわない汚泥供給の方法を調べる必要がある。そして、イトミミズがいるかどうかの影響も大きい可能性が高い。チョウバエも酸素消費速度に大きく影響を与えているのでイトミミズも同様であると考えられる。イトミミズのみの影響とチョウバエとイトミミズが共存している場合の愛嬌についても今後検討していく必要があると考えられる。

汚泥容積に関する SVI については管路型では、45~67%程度改善したとの報告がある [2]。一方で、本研究で使用した立体型では約 8%悪化している。酸素消費速度の差でも述べたが汚泥の SS 濃度及び運転方法の違いによる可能性が高い。そして、チョウバエによって SVI の悪化は低下したので酸素消費速度同様にイトミミズの影響についても検討していく必要があると考えられる。

ここまでは、スポンジの単位面積当たりの性能に関する比較を行ってきたがここからは装置の設置面積当たりの性能の比較を行っていく。小林（2019）は、管路型の装置の水深を 1m にした場合の性能について計算を行っている [2]。管路型の勾配を 2%としスポンジを 1000×1000×10 のスポンジを使用して 33 段重ねることで汚泥を処理する装置を提案している。管路型を 1m にした場合の処理性能は、気温 25°Cでは最大 400.7 g-O/day となる。一方で、立体型は水深 1m 装置にスポンジの充填率を 50%とした場合、25°Cで最大 662.5g-O/day となる。つまり汚泥を貯留しているタンクから 1 時間に 1 回 10 分間スポンジに汚泥

を触れさせるだけで一日約 30 人分の汚泥量に相当する汚泥を分解することができ、装置の設置面積当たりの汚泥減量性能は fill&draw 方式で汚泥をスポンジに投入する方法では一体型のほうが有利になる。スポンジを立体的に配置すればスポンジの面積当たりの性能は低くなってしまいが装置の設置面積当たりの性能は上げることが出来るということが分かった。スポンジの充填方法次第ではさらに向上することが見込める。

5.6 今後の検討

これまでの実験結果を踏まえ今後汚泥減量に関してどのような検討を行っていくべきかについて整理を行っていきたいと思う。検討が必要な項目としては以下の項目があげられる。

1). スポンジへの汚泥供給方法の検討

本研究においては、スポンジに対する汚泥の供給方法は fill&draw 方式で行った。しかし、fill&draw 方式ではスポンジが完全に汚泥に浸漬してしまう時間が発生してしまい高等生物が酸素を取り込むことが困難になってしまっている可能性が高い。そこで、散水ろ床のようにスポンジに上から汚泥を間欠的に巻くことで高等生物が発生しやすくなる可能性がある。逆に高等生物の発生を抑える方法も検証を行うことが出来る可能性も秘めている。本研究では、汚泥減量を行う事を目的としていたためチョウバエなどの高等生物の発生を望んでいたが、街中に存在する処理場などでは周辺住民に配慮して発生を抑えるような取り組みを行っている自治体も存在する。そのような場所でも、高等生物の発生を抑えながら汚泥減量を行うことが出来ると考えられる。

2). 投入する汚泥濃度と循環頻度の関係性について

間欠接触酸化法を用いた汚泥減量には添加する汚泥濃度が大きく影響を与えている可能性が高い。スポンジ内部への酸素供給の度合いの変化や微生物に与える有機物の量などが変わることによってスポンジに発生する微生物の種類が変わってくる可能性が高い。また、好氣的に処理を行うための汚泥濃度ごとの最適な循環頻度が分かれば実際に処理場に設置を行った際により省エネルギーで動かすことが可能になると考えられる。

3). 臭気に関する検討

本研究では臭気に関しては対象としていなかった為検討は行っていないためこれまでの章に記載は行っていない。しかしながら、実験を行っていてポンプが停止するなどのトラブルが発生した場合を除いて汚泥から異臭を感じなかった。臭気を抑えることが出来るのであれば、小規模処理場で貯留のみしており嫌気化して汚泥から悪臭が発生するような状況を間欠接触酸化法で防ぐことが出来ると考えられる。今後、臭気に関する検討を今後行っていくことは間欠接触酸化法を用いた汚泥減量装置の付加価値を示すうえでよいと考えられる。

上記に示した課題以外にも対象地域へのヒアリングなどを行っていく必要もあると考えられる。

6. まとめ

本研究では、スポンジを立体的に配置した汚泥減量装置の汚泥減量の評価を行ってきた。最初にそれぞれの実験同士の関係性について整理を行う。実験 1 ではスポンジを立体的に配置した立体型装置の試作し試運転を行った。実験 2 では、実験 1 で発生した装置の問題を改善し、チョウバエが存在しない状態とチョウバエが存在する状態での汚泥減量能力の評価を行った。これらを踏まえて全ての実験の結果をまとめると以下ようになる。

- 1). スポンジを立体的に配置した汚泥減量装置を実験室規模で作成し汚泥減量能力の評価を行うことが出来た。汚泥減量能力に関しては酸素消費速度が一日最大 $7.7\text{g/m}^2/\text{day}$ (25°C) であり汚泥質量を減少させることが出来るが汚泥容積の減量については SVI が 8%悪化する結果になり減量は出来なかった。
- 2). チョウバエを装置内に移植することで酸素消費速度の平均は $5.9\text{g/m}^2/\text{day}$ から $6.6\text{g/m}^2/\text{day}$ まで上昇した。酸素消費速度が上昇したということはチョウバエは酸素消費速度に影響を与えており汚泥質量減量にはチョウバエは存在した方が良い効果があると考えられる。また、汚泥容積に関しても SVI の悪化がチョウバエ移植前の 11.8%から 7.9%まで改善しているため汚泥容積にも重要な存在である可能性が示唆された。
- 3). 立体型の汚泥減量装置に循環頻度が 3 時間に 1 回では ORP はマイナス 380mV ほどまで低下したが 1 時間に 1 回に変更した後はマイナス 250mV まで上昇したため循環頻度は好氣的に処理を行うために重要な指標である。
- 4). 装置の水深を 1m、装置スポンジ充填率 50%としたとき fill&draw 方式の立体型汚泥処理装置の処理性能は 25°C で最大 662.5g-O/day となった。

謝辞

2年半修士論文を作成するにあたり、多くの方に支えていただきました。この場を借りて感謝いたします。

特に指導教官である佐藤弘泰教授には入学時からたくさんお世話になりました。入学当初は下水道に関しては専門外であったにも関わらず様々な書籍や論文を勧めていただき、貴重なお話も聞かせてくださいました。回りくどい表現を多く使ってしまう私にわかりやすい文章の作成の仕方や説明文の書き方など自分の物覚えが悪く忘れてしまっても何回でも教えていただきました。実験においても装置がうまく動かすことが出来ない時は問題を解決するために夜中近くまで一緒に対策を考えてくださり、ここには書ききれないほど多くの指導をしていただきました。うまくいかなくなると投げ出たくなる性格の自分が修士論文をまとめることが出来たのはお忙しい中でも指導をしていただいた佐藤先生のおかげです。本当にありがとうございました。

副指導の佐々木先生には2回も指導をしていただきました。近いようで以外に遠い水質分野の佐々木先生からの質問は自分の元々の専門でもあったということもありますが非常に面白く感じていました。その他、社会文化環境学専攻の先生方には講義などで非常にお世話になりました。

味埜俊特任教授（現 東京大学東京カレッジ副カレッジ長）には、半年程度ではありましたが味埜先生の人生観などのお話を聞く機会が何度かあり非常にためになりました。退官講義で聞いた「しなやかに生きる」という言葉は素敵な響きだと感じたことは未だに覚えています。また、退官して東京カレッジに移られた後も一度研究についてお話を聞いていただきありがとうございました。

味埜・佐藤研究室のメンバーには、大学院生活の様々なところで助けていただきました。入学時お世話になった服部さん、卒業した後も研究についての相談に乗っていただける岩坪さん（現 有限会社有田産業代表取締役）、小林駿さん（現 日水コン株式会社）、横山さん（現 清水建設株式会社）、宋さん（現 ヴェオリアジェネッツ株式会社）、小林風太さん（現 日水コン株式会社）にも非常に感謝しています。また、佐藤弘泰研究室のメンバー川田さん、長山さん、Tip、Gina、Tumy、Chen、中林君のおかげで楽しい大学院生活を送ることが出来たので感謝しています。

また、研究を行うにあたって欠かせない汚泥の提供をしていただいた菅野終末処理場の皆さんにも感謝しております。新型コロナウイルスで最後の1年間は何うことが出来ませんでした。本当にありがとうございました。

最後にここまで支えてくれた家族にも深く感謝を記し、本論文の結びとさせていただきます。

参考文献

1. 一般財団法人 畜産環境整備機構. 畜産汚水の処理技術マニュアル -処理の基本から高度処理まで-. 2018.<http://www.chikusan-kankyo.jp/osuikoudo/osuikoudo.pdf>, (参照 2022-01-10)
2. 小林 駿. 間欠接触酸化法を利用した汚泥減量技術の開発と小規模下処理施設への適用可能性 東京大学大学院新領域創成科学研究科修士論文 2019.
3. 松尾友矩, 田中修三, 神子直之, 斎藤利晃, 長岡裕. ほか. 大学土木 水環境工学 (改訂 3 版) : オーム社, 2014.
4. Metcalf & Eddy, Inc. Wastewater Engineering Treatment and Reuse. Mc Graw Hill. 2002
5. 浦瀬太郎. 明解 水環境工学. プレアデス出版, 2011.
6. 福島県. 下水の処理方法. <https://www.pref.fukushima.lg.jp/sec/41055c/gesuido5.html>. , (参照 2022-01-10)
7. 日本下水道協会. Sewage Works in Japan 2007. 2007.
8. 鹿児島市水道局下水道部下水処理課. 鹿児島市の汚泥発酵肥料への取り組み. 2020.
9. つくばみらい市 . 乾燥汚泥肥料の配布・申し込み . <https://www.city.tsukubamirai.lg.jp/page/page000598.html>. , (参照 2022-01-10)
10. 今井剛, 荒金光弘, 樋口隆哉, 関根雅彦, 村上定瞭, 竹内正美. 可溶化技術を用いた汚泥処理に関する研究展望: 廃棄物学会論文誌, Vol 19, No1, pp 1-8, 2008. https://www.jstage.jst.go.jp/article/jswe/19/1/19_1_1/_pdf, (参照 2022-01-10)
11. 公益社団法人 日本下水道協会. 平成 30 年度版 下水道統計 第 75 号. 2021.
12. 今治市上下水道部下水道工務課下水道管理事務所. 今治市複数小規模施設による下水道施設の共同化. 2014.
13. 新居浜市. 新居浜市公共下水道事業 経営戦略【令和 3 年度～令和 12 年度】. 新居浜市 : 新居浜市. 2021. https://www.city.niihama.lg.jp/uploaded/life/90881_362325_misc.pdf, (参照 2022-01-10)
14. 国土交通省. 下水道革新的技術実証事業 (B-DASH プロジェクト) . <http://www.nilim.go.jp/lab/ecg/bdash/bdash.htm>. , (参照 2022-01-03)
15. 株式会社 日本政策投資銀行. 下水道事業の経営課題と将来予測～広域化・共同化と官民連携 (PPP/PFI) の運動に向けて～ . 2019. https://www.dbj.jp/topics/region/industry/files/0000033790_file2.pdf, (参照 2022-01-10)
16. 国土交通省下水道政策研究委員会. 新下水道ビジョン . 2014. https://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewage/mizukokudo_sewage_tk_000307.html, (参照 2022-01-10)
17. 国土交通省. 農林水産省、環境省. 持続的な汚水処理システム構築に向けた都道府県構想 策 定 マ ニ ュ ア ル . 2014. https://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewage/mizukokudo_sewage_tk_000277.html, (参照

2022-12-27)

18. 国土交通省. 改正下水道法. 2015 年.
19. 農林水産省. バイオマス活用推進基本計画. 2016. <https://www.maff.go.jp/j/shokusan/biomass/attach/pdf/index-4.pdf>, (参照 2022-01-10)
20. 環境省. 第四次循環型社会形成推進基本計画. 2018. <https://www.env.go.jp/recycle/circul/keikaku.html>, (参照 2022-01-04)
21. 環境省. 廃棄物処理施設整備計画. 2018. https://www.env.go.jp/recycle/waste/kihonhousin_index.html, (参照 2022-01-05)
22. 経済産業省 資源エネルギー庁. 第 6 次エネルギー基本計画. 2021 年. https://www.enecho.meti.go.jp/category/others/basic_plan/pdf/20211022_01.pdf, (参照 2022-01-10)
23. 国土交通省. 下水汚泥エネルギー化技術ガイドライン 平成 29 年度版. 2017. <https://www.mlit.go.jp/common/001217263.pdf>, (参照 2022-01-10)
24. 国土交通省. 下水汚泥広域利活用検討マニュアル. 2019. <https://www.mlit.go.jp/common/001286384.pdf>, (参照 2022-01-10)
25. 黒木 雄介. 下水の間欠接触酸化処理におけるスポンジ担体の干出による酸素供給効果の検討 東京大学大学院新領域創成科学研究科修士論文. 2016.
26. 藤井 元貴. 間欠接触酸化法に用いるスポンジ担体の酸素供給ポテンシャルの検討 東京大学大学院新領域創成科学研究科修士論文. 2018.
27. 管路内での間欠接触酸化法による下水処理技術の開発 (第 2 報). 松坂勝雄, 松原善治, 玉木聡史, 佐藤弘泰, 庄司仁. 2015 年, 第 52 回下水道研究発表会講演集, 第 52 巻 巻, ページ: 566-568.
28. 翰祥宋. 間欠接触酸化法による汚泥減量へのイトミミズの寄与の評 東京大学大学院新領域創成科学研究科修士論文. 2020.
29. 日本下水道協会. 下水道試験方法 2012 年度版 上巻. 2012.
30. 公益社団法人 日本下水道協会. 平成 22 年度硝化プロセス導入の可能性調査. 2010. https://www.jswa.jp/wp2/wp-content/uploads/pdf/digestion_process_research_20111101.pdf, (参照 2022-01-08)
31. 公益社団法人 日本下水道協会. 消化プロセス導入に伴うメリット・デメリット. 2009. https://www.jswa.jp/wp2/wp-content/uploads/pdf/digestion_process_merit_demerit.pdf, (参照 2022-01-08)
32. 塩村隆信, 田島政弘, 永田善明, 井上敬介, 柴田均, 三島和貴, 安部裕巳. 高温好気法による畜糞の発酵分解処理: 島根県産業技術センター研究報告 第 44 号, 2008.
33. 正宏高橋. 中小下水道の現状と未来 令和元年度全道下水道事業担当者会議. <https://media.toriaez.jp/m0999/7.pdf>, (参照 2022-01-10)
34. 張祖恩, 野池達也, 松本順一郎. 嫌気性消化のメタン生成相に及ぼす pH の影響. 1983.

35. 横浜市 . F I T を活用した消化ガス発電設備 .
2019. <https://www.city.yokohama.lg.jp/kurashi/machizukuri-kankyo/kasengesuido/gesuido/torikumi/happyo/R01happyokai.files/ronbun2019-25.pdf>, (参照 2022-01-10)

付録

予備実験について

ここでは予備実験を行った内容についてまとめた。

1). 予備実験の実験装置

プラスチック製のコンテナ (27.8×15.3×16.5 (cm)、容量 7L) を 4 つ用意し、そのうちの二つをリアクター 1 (図 3-1)、残る二つをリアクター 2 と (図 3-2) して用いた。各リアクターについて、二つのコンテナのそれぞれをスポンジ槽および貯泥槽として用いた。また、貯泥槽からスポンジ槽に汚泥を供給するためのポンプ、スポンジ槽から貯泥槽に返送するためのポンプ、スポンジ槽内部に空気を供給するためのエアポンプ、空気を逃がすための水封のための水槽が存在する。スポンジ (BCD-2 アキレス株式会社) は連続気泡のポリエーテル系の特殊ポリウレタンフォームのものを使用した。スポンジの設置方法がリアクター 1 では縦置きとリアクター 2 では横置きに設置した。リアクター 1 では 1×15×16 (cm) のスポンジを 14 枚入れ、塩ビ製のプレート (厚さ 1mm 程度) を楕型に加工したものをを用いて自立させ配置した。リアクター 2 では 24×14×1 (cm) のスポンジを 9 枚入れ、プラスチック製のチューブをスペーサーとして重なっているスポンジの間に挟み込みスポンジ間の空間を確保した。縦置きのスポンジ表面積は 6720cm²、体積は 3360cm³ (図 3-3) である。なおここに、表面積はスポンジの表面と裏面を別々に計算している。すなわち、例えば 15×16cm のスポンジの表面積は 240cm² ではなく 480cm² となる。また、スポンジ側面の表面積は無視した。また、横置きの場合の表面積は 6480cm²、体積は 3024cm³ (図 3-5) である。スポンジ槽は、上面を塩ビ製の板で覆い (図 3-4)、クリップで固定することで密閉した。底のスペーサーは予備実験では足が存在しないが当時研究室で使用していた酸素センサーが装置内部に取り付ける使用だった為、スポンジ槽上部の空間を確保するために足がないものを採用していた。しかし、予備実験では酸素センサーは用いなかった。不用意に水没させて破損させるのを避ける為である。

この装置は千葉県市川市にある菅野終末処理場内の実験棟内に設置し、2020 年 10 月 1 日から 2020 年 12 月 16 日まで運転した。

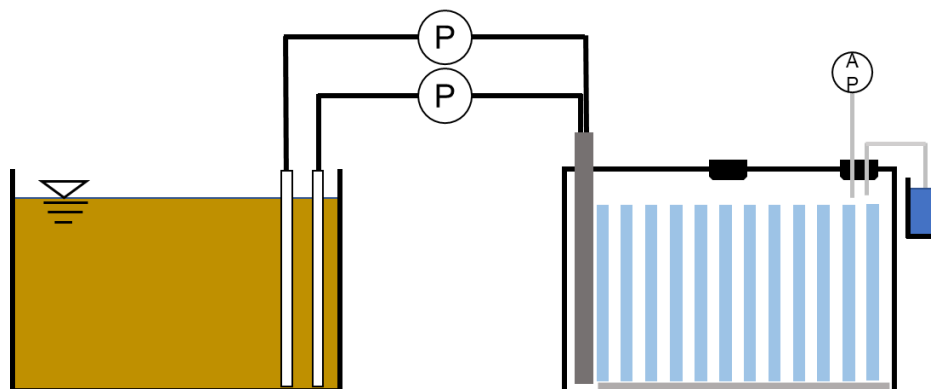


図 予備実験での実験装置 (縦置き) の概要図

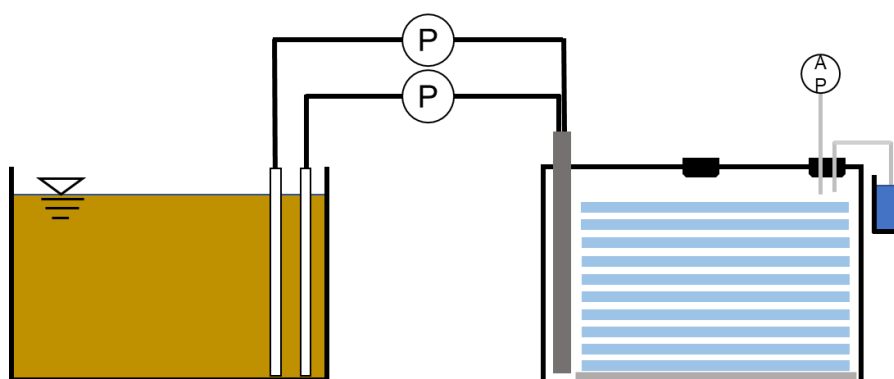


図 予備実験での実験装置（横置き）の概要図



図 スポンジ槽の外観（縦置きの場合）

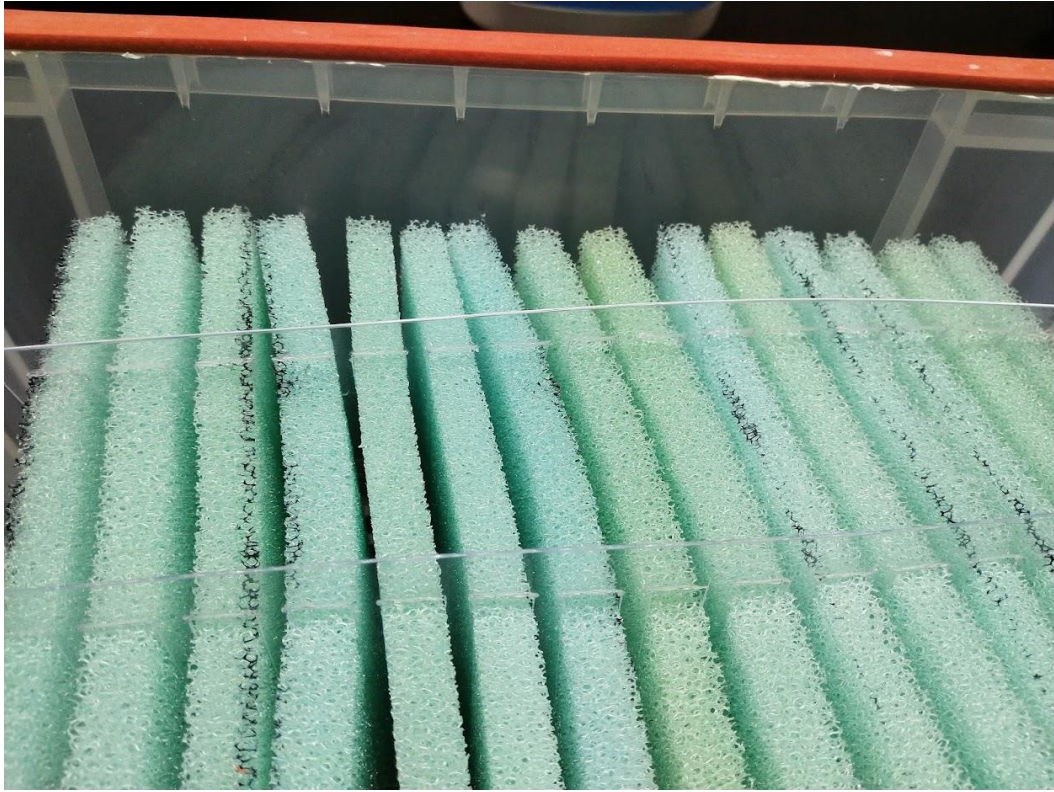


図 縦置きスポンジの設置に用いたスペーサー



図 横置きスポンジの設置方法

2). 運転条件

運転は以下のように行った。

1. 菅野終末処理場の返送汚泥を貯泥槽に 3L 入れ、6 時間に 1 回スポンジ槽に 5 分かけて汚泥を輸送し、輸送終了直後から 5 分かけてスポンジ槽から貯泥槽に汚泥を返送する。
2. 1 週間運転を行った後、SV30 測定を行い汚泥 50ml 採取したのち貯泥槽内の汚泥を全量入れ替えた。
3. 研究室に汚泥を持ち帰り、持ち帰った汚泥を用いて汚泥減量能力の評価を行った。

予備実験の結果について

3 章でも少し述べたが 3 ヶ月ほどの実験は、いくつかの要因から十分信頼のおける結果を得ることは出来なかった。

一つ目は、スポンジの設置方法の問題である。縦置きではスペーサーの強度が十分ではなかったためにスポンジが倒れてしまった。一方横置きでは、汚泥の付着に伴ってスポンジが重くなり、そのためにスペーサーが十分に機能せず、スポンジ同士の隙間が確保できなくなってしまう問題が発生した。また、共通の問題として、装置底部とスポンジの間に空間を確保するためのスペーサーの足がないために装置底部に汚泥が堆積してしまい、スポンジ槽から貯泥槽に返送できなくなった。さらに、冬期は実験施設の空調調節がされていないため、12 月以降は装置を加温する必要が生じたが、その準備が間に合わなかった。これらの運転上の要因により、測定されたデータ（図 予備実験の貯泥槽 SS 推移、予備実験貯泥槽 SVI 推移）からはスポンジの置き方による性能の違いを判別することは出来なかった。

そのため運転を行っている中で目視や運転管理において観察された事項からそれぞれの特徴をまとめ、それからどちらの装置が良いか判断することとした。

〈縦置きでの予想される特徴〉

汚泥の保持力は横置きより小さいが汚泥によるスポンジの閉塞は起きにくく、酸素が安定的に供給されると考えられる。

〈横置きでの予想される特徴〉

汚泥の保持力は縦置きに比べ高いが、汚泥がスポンジ内部に溜まりやすく装置内に堆積してしまい安定して動かすことは難しいと考えられる。

予測される特徴から縦置きを改良して実験を行っていくこととした。また、装置の保温が難しいため実験場所を菅野終末処理場から柏キャンパスに変更することにした。

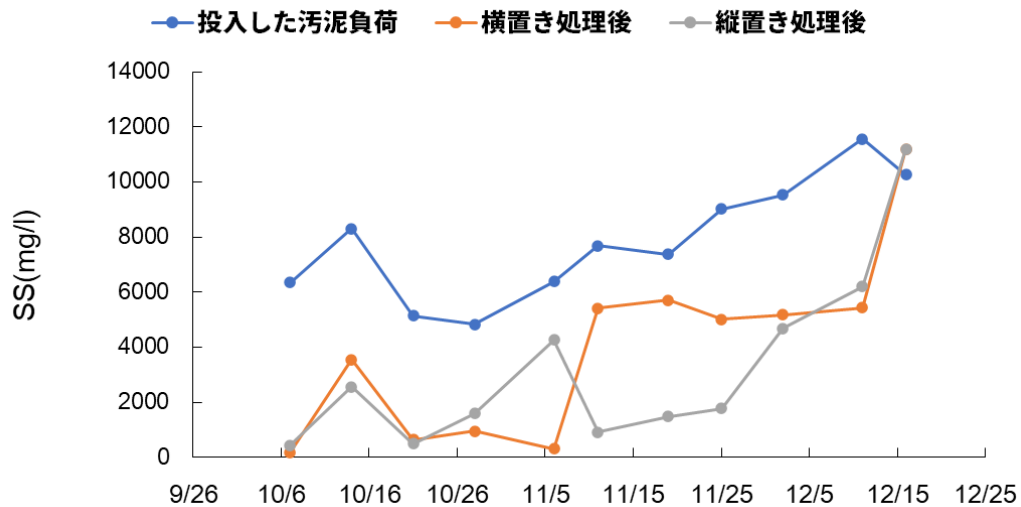


図 予備実験の貯泥槽 SS 推移

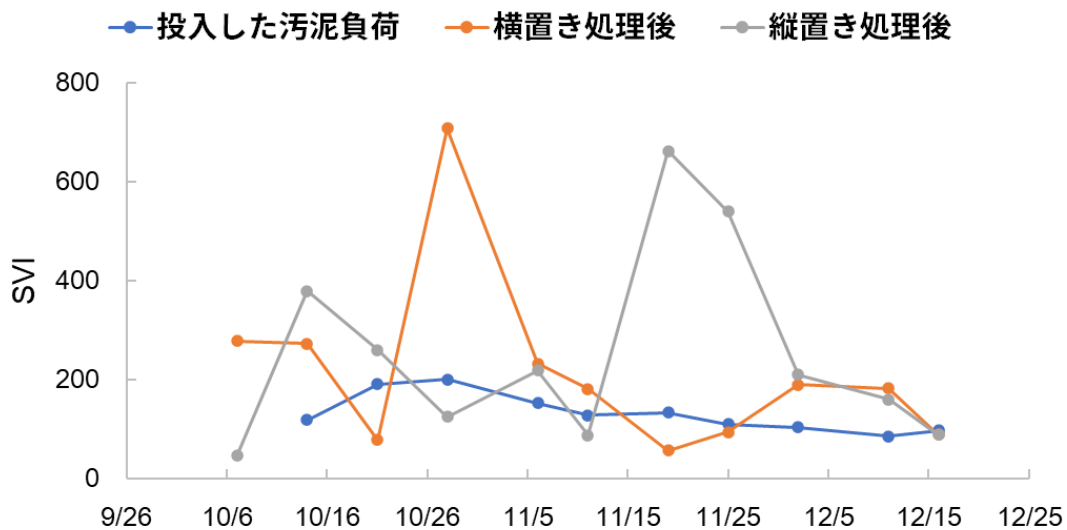


図 3-7 予備実験貯泥槽 SVI 推移

管路型での高等生物について

立体型で高等生物の発生が確認できなかったため、小林（2019）で使用していた装置と同様の管路型を用意し高等生物が発生するかを本研究で使用した汚泥を用いて検証を行った。運転条件としては汚泥を 1L ほど入れ、3 時間に 1 回、10 分間循環を 1 ヶ月ほど行った。しかし、結果として、高等生物の発生を確認することは出来なかった。そこで、チョウバエを人工的に移植し増殖するかを検証を 1 ヶ月ほど行った。結果としてチョウバエの増殖を確認することが出来た。そして、チョウバエが増殖する前にスポンジの上に堆積していた汚泥が減りスポンジ表面が確認できるようになった。

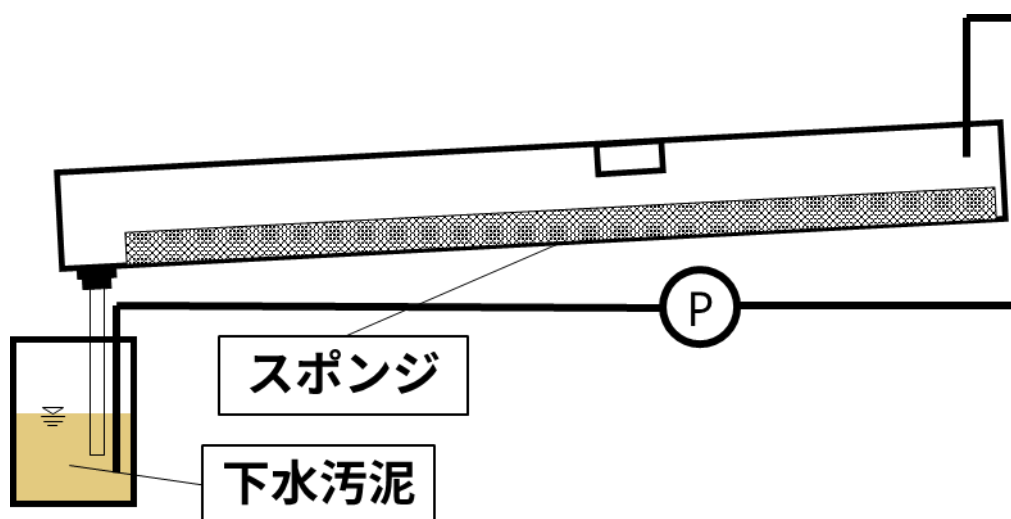


図 高等生物が発生するかの確認に使用した管路型装置

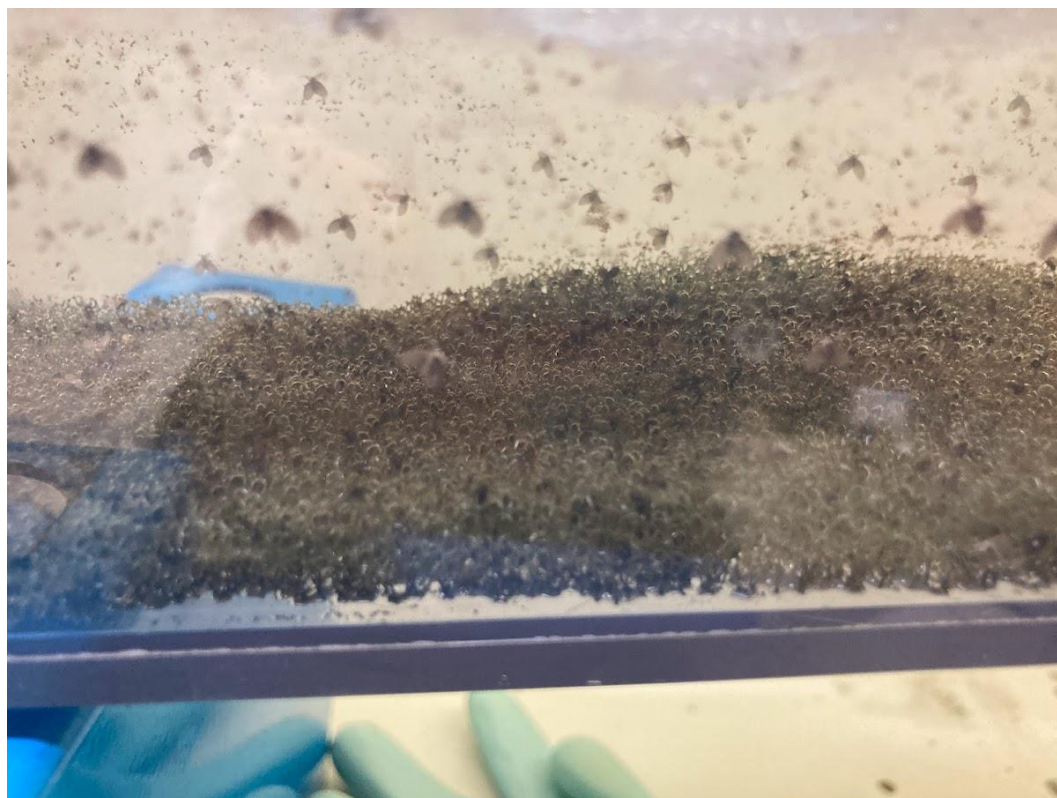
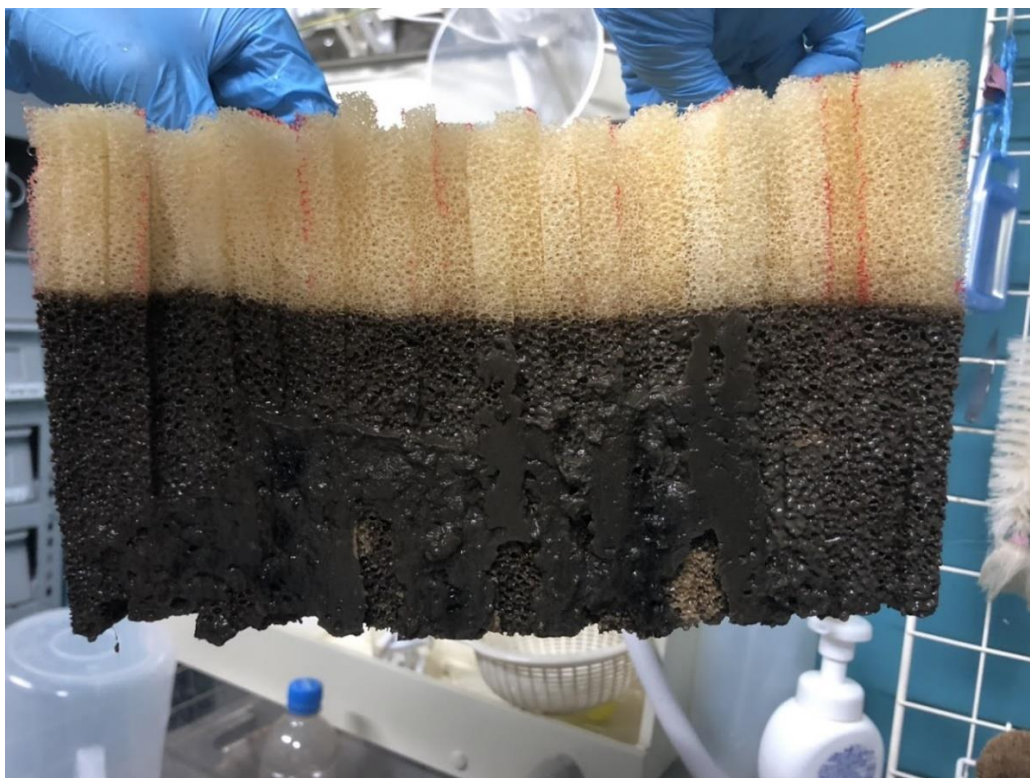


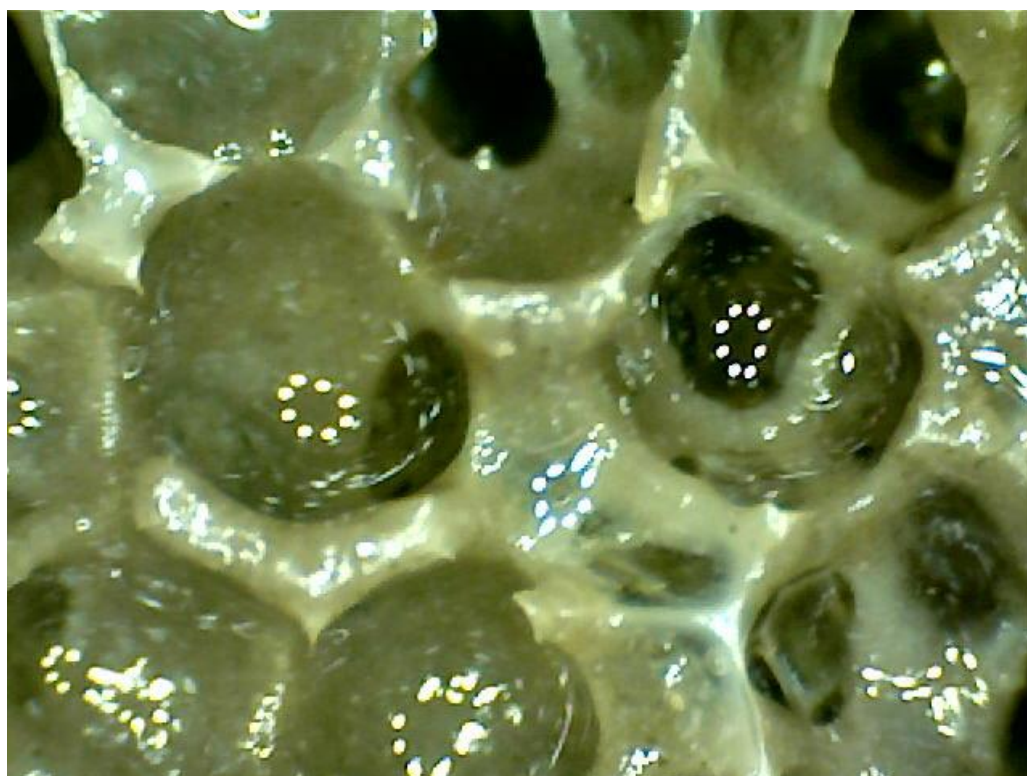
図 チョウバエ増殖後のスポンジ表面

実験 1 でのスポンジへの汚泥吸着の様子

スポンジを縦置きに配置しても汚泥を保持することが出来るかは不明であった。そこで、顕微鏡 (3R-WM401WIFI スリーアールシステム株式会社) を用いて 60 倍に拡大して実験 1 で使用したスポンジの表面の観察を行った。その結果、縦置きにしてもスポンジは汚泥を保持し出来ることが確認できた。



実験 1 で使用したスポンジ



汚泥付着部の拡大図