

## 〈研究発表〉

### 二相循環式嫌気性消化法を用いた下水汚泥のエネルギー資源化

北 條 俊 昌<sup>1)</sup>, 呉 麗 杰<sup>2)</sup>, 覃 宇<sup>3)</sup>, 李 玉 友<sup>4)</sup>

<sup>1)</sup> 東北大学大学院環境科学研究科 (〒 980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-20 E-mail: hojo@ep11.civil.tohoku.ac.jp)

<sup>2)</sup> 東北大学大学院工学研究科 (〒 980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-06 E-mail: wulj@ep11.civil.tohoku.ac.jp)

<sup>3)</sup> 東北大学大学院環境科学研究科 (〒 980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-20 E-mail: qinyu@ep11.civil.tohoku.ac.jp)

<sup>4)</sup> 東北大学大学院工学研究科 (〒 980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-06 E-mail: yyli@ep11.civil.tohoku.ac.jp)

#### 概 要

嫌気性消化による下水汚泥のバイオガス化を促進させる技術として二相循環式嫌気性消化法を提案し、その運転性能を評価することを目的として初沈汚泥と余剰汚泥をそれぞれ用いて二相循環プロセスと単槽消化の室内連続実験を行い、バイオガス生成および汚泥の分解特性を比較検討した。その結果、初沈汚泥および余剰汚泥のいずれを用いた場合においても、二相循環プロセスでは単槽消化に比べて汚泥の分解率が約 2 割向上し、大幅にバイオガス生成量が増加することが明らかとなった。

キーワード：嫌気性消化、下水汚泥、バイオガス、二相、消化液循環

## 1. はじめに

嫌気性消化技術は下水汚泥の減量化が図れるだけでなく、生成したバイオガスのエネルギー利用が可能であるため、持続可能な社会に向けた取り組みの中で循環型社会および低炭素社会の構築の面で大きく貢献可能な環境保全技術として期待されている。しかし平成 20 年度におけるバイオガスの有効利用率は約 76% であり、発生したバイオガス全体の約 4 分の 1 は有効利用されていないのが現状である<sup>1)</sup>。その理由として下水汚泥エネルギー利用調査委員会の行った調査によれば、有効利用するための余剰ガス量が少なく、経済的なメリットが小さいことが指摘されている<sup>2)</sup>。更なる汚泥分解率の向上を目指すことで、上記の嫌気性消化の利点をより活かすことが可能になると考えられるが、固形有機物を多く含む下水汚泥の嫌気性消化では加水分解段階が律速であり、固形物の可溶化を促進させることが嫌気性消化全体の効率化には欠かせない。消化プロセスの改良によって有機物分解率の向上を目指す試みとして二相消化に関する研究は以前から行われている<sup>3,4)</sup>が、近年では高温消化と中温消化の長所を組み合わせた TPAD (Temperature-Phased Anaerobic Digestion) が注目されている。この TPAD では 1 段階の一般的な嫌気性消化に比べて処理速度や固形物分解率の向上が可能であると報告されている<sup>5,6)</sup>。著者らは下水汚泥の有機物分解率を向上させ、より多くのバイオガスを回収可能な技術として二相消化の後段発酵槽の消化液の一部を前段発酵槽に返送する循環式プロセスに着目した。この二相循環式嫌気性消化では後段発酵

槽から前段発酵槽への嫌気性消化を担う微生物群の連続的な供給が可能となり、前段発酵槽のみならずプロセス全体の処理パフォーマンスが向上すると考えられる。

これまでも循環プロセスを用いた嫌気性消化の研究はなされている<sup>7-9)</sup>が、固形物の加水分解が促進されるという TPAD の利点を活かした温度フェーズ型の二相循環式嫌気性消化に関して、下水汚泥を対象とした検討は見られない。

そこで本研究では、前段発酵槽を高温条件、後段発酵槽を中温条件で運転した温度フェーズ型の二相循環式嫌気性消化の運転性能を評価することを目的として、初沈汚泥と余剰汚泥をそれぞれ用いて、二相循環式嫌気性消化と従来手法である単槽消化の室内連続実験を行い、バイオガス生成および汚泥の分解特性の比較を行った。

## 2. 実験方法

### 2.1 実験材料

基質には S 浄化センターより採取した最初沈澱池汚泥 (初沈汚泥) および濃縮余剰活性汚泥 (余剰汚泥) を用いた。汚泥は月に 1 度の頻度で浄化センターから採取し、基質の変質を避けるため実験室内で 4℃ 以下にして保管した。初沈汚泥および余剰汚泥の性状は **Table 1** に示した通りである。

中温消化用の種汚泥には S 浄化センターの中温嫌気性消化槽から採取した消化汚泥を用いた。高温消化用の種汚泥には M 汚泥再生処理センターの生ごみと

し尿の混合物を処理する高温メタン発酵槽より採取した消化汚泥を用いた。

**Table 1:** Characteristics of Primary Sludge and Waste Activated Sludge

項目	単位	初沈汚泥	余剰汚泥
pH		5.07±0.13	5.88±0.08
TS	%	3.77±0.13	4.62±0.07
VS	%	3.28±0.10	3.62±0.07
全COD	g/L	51.2±5.7	57.0±3.1
溶解性COD	g/L	12.1±2.4	6.5±2.6
タンパク質	g/L	7.3±1.1	20.1±1.4
炭水化物	g/L	12.3±3.9	6.4±0.4
脂質	g/L	5.8±0.8	2.3±0.3

## 2.2 実験条件

本研究に用いた実験装置の概略を Fig. 1 に示す。発酵槽はいずれもアクリル製の完全混合型反応槽であり、槽内の攪拌はモーターに攪拌翼を付けた機械攪拌方式とした。二相循環式嫌気性消化は前段発酵槽（有効容積 2.5 L または 3 L）と後段発酵槽（有効容積 10 L または 12 L）からなり、後段発酵槽の排出液の一部を前段発酵槽に返送する循環プロセスである。返送量は投入基質と等量（返送比=1:1）とし、前段発酵槽と後段発酵槽の容積比を 1:4、プロセス全体の水理的滞留時間（HRT）を 30 日とした。前段発酵槽の運転温度は高温（55±1℃）、後段発酵槽の運転温度は中温（35±1℃）とした。単槽消化は有効容積 4 L および 5 L の発酵槽を用いて、HRT 30 日、中温（35±1℃）条件で連続運転を行った。発酵槽の温度は発酵槽外周のウォータージャケット内を循環する温水によりコントロールした。発酵槽への基質の投入、発酵液の排出および循環はタイマーで制御したローラーポンプにより 1 日数回に分けて行った。

## 2.3 分析方法

バイオガスの生成量は湿式ガスメーターにより計測し、標準状態に換算した。生成ガス中のメタンおよび二酸化炭素濃度は TCD ガスクロマトグラフにより測定した。

pH は pH メーターを用いて測定した。TS、VS の測定は下水試験方法に基づいて行った。COD<sub>Cr</sub>（以下 COD とする）は米国の APHA Standard methods に従って測定した。炭水化物はグルコースを標準物質としたフェノール硫酸法、タンパク質は牛血清アルブミンを標準物質とした Lowry 法、脂質は Bligh-Dyer 法により測定した。

試料中の溶解性成分は試料を遠心分離（3000 rpm、20 分）した上澄液について分析を行った。揮発性脂肪酸（以下 VFA とする）は、溶解性成分測定用の試料を孔径 0.45 μm のフィルターを用いてろ過した後、0.1 規定の塩酸を用いて 1:1 に混合し pH を 2 以下にしたものを FID ガスクロマトグラフにより測定した。

## 3. 実験結果と考察

### 3.1 各発酵槽の運転状況

Table 2 に定常状態の各発酵槽における運転指標の分析データとバイオガス生成状況の平均値をまとめた。HRT 100 日で運転を開始して段階的に HRT を短縮し、HRT 30 日の条件でそれぞれ 80~110 日程度運転した。各期間の最後の約 30 日間を定常状態と見なして、ガス生成速度の平均を取った。またその間に発酵液のサンプリングを 4 回行い、それらの分析値を平均した値を代表値として使用した。

各発酵槽の pH は 7.24~7.60 で嫌気性消化に適した pH 範囲<sup>10)</sup>内の値であった。初沈汚泥の二相循環プロセスでは前段発酵槽においてプロピオン酸が 890 mg/L、酢酸、酪酸、吉草酸の各 VFA がそれぞれ約 300 mg/L 見られた。後段発酵槽ではプロピオン酸（930 mg/L）の残存が見られたが、安定したバイオガスの生成が継続された。その他の発酵槽において VFA の蓄積はほとんど見られなかった。これらの結果から、各発酵槽においてはいずれも良好な嫌気性消化が行われていたと考えられる。

### 3.2 ガス生成状況の比較

各発酵槽におけるバイオガス生成速度と生成したバイオガス中のメタンガス含有率は Table 2 に示した通りである。二相循環プロセスの前段発酵槽と後段発酵槽を比較すると、初沈汚泥を用いた場合ではそれぞれ 0.64 L/L/day、0.69 L/L/day と同程度の値であったのに対して、余剰汚泥を用いた場合ではそれぞれ 2.03 L/L/day および 0.24 L/L/day と後段発酵槽に比

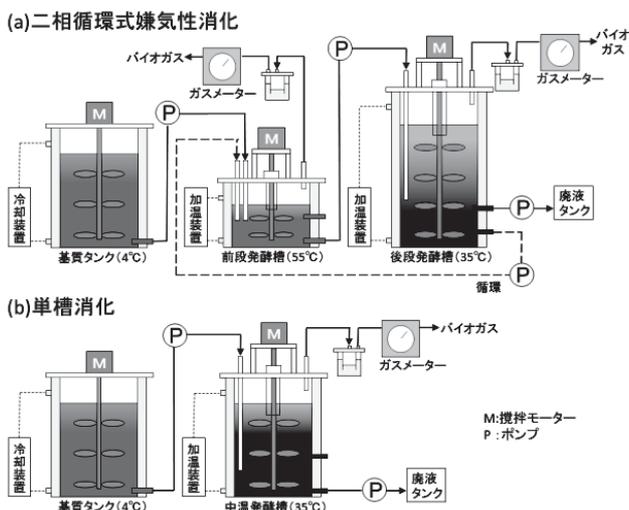


Fig.1: Schematics of Experimental Setups

Table 2: Average performance and Gas Production in the Steady States

		単位	初沈汚泥			余剰汚泥				
			二相循環			単槽 消化	二相循環			単槽 消化
			前段	後段	全体		前段	後段	全体	
pH			7.24	7.40	-	7.60	7.61	7.57	-	7.33
VFA	酢酸	mg/L	300	n.d.	-	n.d.	170	n.d.	-	n.d.
	プロピオン酸	mg/L	890	930	-	n.d.	40	n.d.	-	n.d.
	酪酸	mg/L	270	n.d.	-	n.d.	n.d.	n.d.	-	n.d.
	吉草酸	mg/L	310	n.d.	-	n.d.	n.d.	n.d.	-	n.d.
TS		%	2.22	1.35	-	1.89	3.08	2.74	-	3.01
VS		%	1.69	0.90	-	1.26	2.10	1.82	-	2.13
COD		g/L	19.8	12.4	-	20.4	32.6	27.0	-	32.4
バイオガス 生成状況	ガス生成速度	L/L/day	0.64	0.69	0.68	0.52	2.03	0.24	0.60	0.39
	ガス生成量	L/g-投入VS	0.09	0.49	0.66	0.48	0.22	0.13	0.49	0.33
		L/g-分解VS	0.59	1.06	0.92	0.78	0.65	0.88	0.99	0.80
	CH <sub>4</sub> 含有率	%	57.6	60.1	59.6	61.3	58.7	69.1	62.0	62.3
	CO <sub>2</sub> 含有率	%	43.3	40.0	40.6	36.3	40.7	30.2	37.4	36.8

n.d. = 20mg/L以下

べて前段発酵槽で大きな値となり、初沈汚泥と余剰汚泥を用いた場合で異なる傾向を示した。また生成したバイオガス中のメタンガス含有率は前段発酵槽に比べ後段発酵槽で高くなる傾向が見られた。特に余剰汚泥を用いた場合では前段発酵槽では58.7%であったのに対し後段発酵槽では69.1%となり、その傾向が顕著に表れた。一方で二相循環プロセス全体と単槽消化を比較すると、生成したバイオガス中のメタンガス含有率は近い値であった。

二相循環プロセスと単槽消化におけるバイオガス生成倍率を比較した結果を Fig. 2 に示した。二相循環プロセスでは投入余剰汚泥1Lあたり17.9L、投入初沈汚泥1Lあたり20.5Lのバイオガスが生成した。単槽消化と比較すると余剰汚泥では1.52倍、初沈汚泥では1.31倍と大幅なバイオガス生成量の増加が見られた。また余剰汚泥を用いた場合では全体の約7割のバイオガスが前段発酵槽から生成したのに対して、

初沈汚泥を用いた場合では全体の約8割が後段発酵槽から生成していた。以上の結果から二相循環式嫌気性消化は、初沈汚泥および余剰汚泥いずれに対しても、バイオガス生成促進の面で有効なプロセスであることが示された。

### 3.3 有機物の分解状況の比較

Fig. 3 に二相循環プロセスと単槽消化におけるTS、VSおよびCODの分解率を示した。二相循環プロセスにおけるVSおよびCODの分解率は初沈汚泥の場合はそれぞれ71.2%と76.6%、余剰汚泥の場合は49.6%と52.7%であった。初沈汚泥に比べて難分解性有機物を多く含む余剰汚泥における有機物分解率は低い傾向を示したが、単槽消化と比較すると初沈汚泥および余剰汚泥のいずれの場合においてもTS、VSおよびCODの分解率は1.16~1.24倍に増加し、二相循環プロセスでは単槽消化に比べて有機物分解率が2割

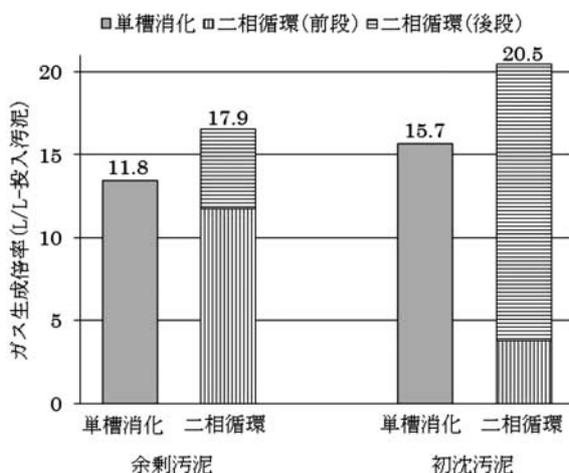


Fig.2: Biogas Production of each process

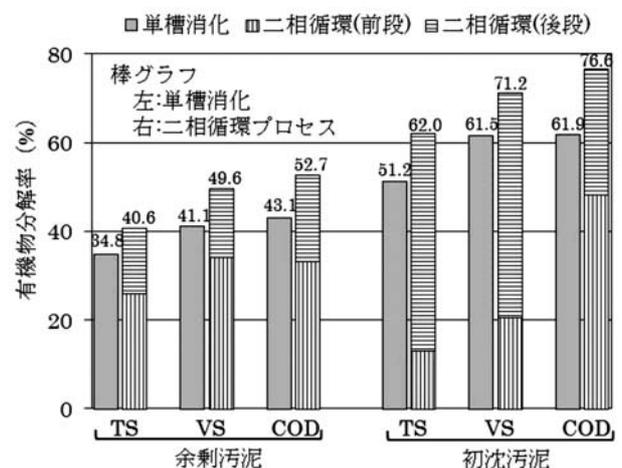


Fig.3: Removal Rates of Organic Matters

程度向上することが明らかとなった。

また前段発酵槽と後段発酵槽における TS と VS の分解率を比較すると、余剰汚泥を用いた場合は全体の約 64~69% が前段発酵槽で分解されていたのに対して、初沈汚泥を用いた場合には前段発酵槽で分解した TS と VS は約 21~29% であり汚泥の種類により異なる傾向を示した。一般的に余剰汚泥は好気性微生物が主体であり難分解なタンパク質を多く含んでいるのに対して、初沈汚泥は比較的分解しやすい炭水化物を多く含んでいる。また著者らがこれまでに行った前段発酵槽を中温条件で運転した二相循環プロセス<sup>9)</sup>では、初沈汚泥に対しても前段発酵槽において全体の 8 割以上の TS および VS が分解されたという結果を得ている。本研究において初沈汚泥と余剰汚泥の間で前段発酵槽における有機物分解率に差異が生じた理由に関して、今後は温度フェーズおよび消化液循環が前段発酵槽における有機物分解に及ぼす影響を検討するとともに、炭水化物やタンパク質、脂質といった汚泥の各成分の分解挙動を詳細に検討する必要があると考えられる。

### 3.4 COD 物質収支によるプロセス評価

嫌気性消化における物質分解の挙動を把握するために COD 物質収支を算出し、その結果を Fig. 4 に示した。二相循環プロセスにより余剰汚泥の固形物は 35.6%、初沈汚泥の固形物は 11.8% にまで減少し、単槽消化に比べて固形物の可溶化が進んだ。二相循環プロセスにおける投入 COD のメタンガスへの転換率は余剰汚泥の場合は 55.5%、初沈汚泥の場合は 65.8% と単槽消化に比べて大幅に高い値となった。以上の結果から、二相循環プロセスは初沈汚泥および余剰汚泥のいずれの下水汚泥を用いた場合においても固形物の可

溶化が進み、汚泥の減容化を図ることが可能であり、その分より多くのバイオガスの回収が期待できるため、下水汚泥のエネルギー資源化の面で有効なプロセスであると考えられる。

## 4. 結 論

初沈汚泥と余剰汚泥を用いて二相循環式嫌気性消化の室内連続実験を行った結果、以下の結論が得られた。

- 1) 単槽消化と比較して二相循環式嫌気性消化では有機物分解率は約 2 割向上し、バイオガス生成量は余剰汚泥の場合に 1.52 倍、初沈汚泥の場合に 1.31 倍と大幅な増加が見られた。
- 2) 二相循環式嫌気性消化は安定した運転が行われ、下水汚泥のエネルギー資源化技術としての有用性が示されたが、汚泥の種類によって各発酵槽における運転特性に差が見られた。

### 参考文献

- 1) 下水汚泥エネルギー利用調査委員会：平成 22 年度消化プロセス導入の可能性調査（下水道協会ホームページ、[http://www.jswa.jp/wp/wp-content/uploads/2011/09/digestion\\_process\\_research\\_20111101.pdf](http://www.jswa.jp/wp/wp-content/uploads/2011/09/digestion_process_research_20111101.pdf)）
- 2) 下水汚泥エネルギー利用調査委員会：消化プロセス導入にともなうメリット・デメリット（下水道協会ホームページ、[http://www.jswa.jp/wp/wp-content/uploads/2011/11/digestion\\_process\\_merit\\_demerit\\_20111109.pdf](http://www.jswa.jp/wp/wp-content/uploads/2011/11/digestion_process_merit_demerit_20111109.pdf)）
- 3) S. Ghosh, J. R. Conrad and D. L. Klass : Anaerobic acidogenesis of wastewater sludge, *Journal of WPCF*, Vol. 47, No. 1, pp. 30-45 (1975)
- 4) B. Demirel and O. Yenigun : Two-phase anaerobic digestion process, *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, Vol. 77, pp. 743-755 (2002)
- 5) Y. Han and R.R. Dague : Laboratory studies on the temperature-phased anaerobic digestion of domestic primary sludge, *Water Environment Research*, Vol. 69, No. 6, pp. 1139-1143 (1997)
- 6) H. Ge, P. D. Jensen and D. J. Batstone : Pre-treatment mechanisms during thermophilic-mesophilic temperature phased anaerobic digestion of primary sludge, *Water Research*, Vol. 44, pp. 123-130 (2010)
- 7) M. Romli, P. F. Greenfield and P. L. Lee : Effect of recycle on a two-phase high-rate anaerobic wastewater treatment system, *Water Research*, Vol. 28, No. 2, pp. 475-482 (1994)
- 8) 李玉友, 水野 修, 船石圭介, 山下耕司 : 二相循環方式高濃度メタン発酵プロセスを用いた生ごみの高速メタン化処理, *環境工学研究論文集*, Vol. 40, pp. 321-331 (2003)
- 9) 北條俊昌, 李玉友, 西村 修 : 循環式二段階嫌気性消化による初沈汚泥からのバイオエネルギー回収, *下水道協会誌*, Vol. 49, No. 597, pp.97-105 (2012)
- 10) 李玉友, 張 岩, 野池達也 : メタン発酵を用いた下水汚泥の減量化・エネルギー回収システム, *月刊 ECO INDUSTRY*, Vol. 9, No. 9, pp. 15-29 (2004)

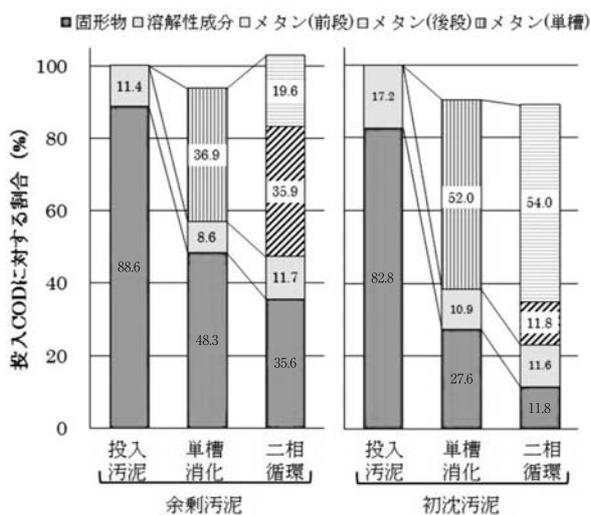


Fig.4: COD Mass Balance