

# 生ごみと汚泥の高濃度混合メタン発酵に 及ぼす汚泥比率と発酵温度の影響

奥野芳男<sup>1</sup>・李玉友<sup>2</sup>・佐々木宏<sup>3</sup>・関廣二<sup>4</sup>・上垣内郁夫<sup>5</sup>

<sup>1</sup>アタカ工業株式会社 環境研究所 (〒619-0223 京都府相楽郡木津町相楽台9丁目1)

<sup>2</sup>工博 東北大学助教授 大学院工学研究科 (〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉06)

<sup>3</sup>アタカ工業株式会社・東京支店 (〒111-0041 東京都台東区元浅草2丁目6-6)

<sup>4</sup>アタカ工業株式会社 環境研究所 (〒619-0223 京都府相楽郡木津町相楽台9丁目1)

<sup>5</sup>アタカ工業株式会社・東京支店 (〒111-0041 東京都台東区元浅草2丁目6-6)

生ごみと汚泥の比率を0, 10, 25, 50%で変化させて投入TS濃度12~13%, HRT15日で高温および中温メタン発酵の連続実験を行った。TS分解率は汚泥比率の増加に伴って高温発酵で30~74%, 中温発酵で30~67%減少した。生ごみ, 汚泥の元素分析結果からし尿汚泥中に微量栄養塩(Fe, Ni, Co)が含有しており, 汚泥比率25, 50%では, 微量金属の添加無しでメタン発酵が可能であった。加水分解速度, 酸生成速度およびメタン生成速度は, 汚泥比率の増加とともにいずれも低下していた。高温発酵と中温発酵を比較すると, 加水分解, 酸生成速度では高温発酵の方が速いが, メタン生成速度では差がほとんどなく, ほぼ同等であった。高温発酵では $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度が2,700~2900mg/L, と比較的高く, アンモニアの部分的阻害によるVFA蓄積が見られた。

**Key Words:** methane fermentation, high-solids co-digestion, thermophilic, mesophilic, organic fraction of municipal solid waste

## 1. はじめに

高濃度メタン発酵法による有機性廃棄物の処理技術は, ①エネルギー消費が少なくLCA的評価が有利である, ②新エネルギー源の一つであるバイオガスを回収できる, ③発酵残渣の肥料価値が高い, 等の特徴がある。近年, メタン発酵法はその減量化・資源化効果が評価され, 生ごみ, 汚泥及びふん尿の循環型処理技術体系を構築する上で極めて重要な要素技術となっている<sup>1)</sup>。とりわけ, 我が国の廃棄物行政において1997年度からスタートした「汚泥再生処理センター」(し尿・浄化槽処理地域)では, 生ごみと汚泥の混合メタン発酵処理を推奨しており, 2000年度末現在, 全国ですでに11施設の建設が契約されている<sup>2)</sup>。また, 都市部生ごみリサイクル処理または食品リサイクル処理の方策としてもバイオガス利用が推進されている。2001年11月に開かれた地球温暖化防止会議(COP7)において京都議定書の運用ルールが合意され,  $\text{CO}_2$ をはじめとする温室効果ガスの排出抑制が今後本格化する中で, 廃棄バイオマスのメタン発酵によるバイオ

エネルギー生産がますます重要になると予想される。

生ごみ及び生物系汚泥は固形廃棄物であるため, エネルギー効率の観点からなるべく高濃度条件でメタン発酵を行うことが望ましいので, 従来, 下水汚泥消化で利用されている技術に比較して投入TS濃度が2~3倍以上高い高濃度メタン発酵技術が用いられている。生ごみとし尿汚泥を混合処理する「汚泥再生処理センター」向け高濃度メタン発酵技術として開発されてきた代表的技術にはメビウスシステム, REMシステム, リネッサシステムがあり, 投入TS濃度10~15%, HRT15日以上, 発酵温度は中温, 高温または両者兼用とされている<sup>3-5)</sup>。しかし, 技術開発においてヨーロッパからの技術導入が優先されたため, 試験プラントの建設, 実証試験及び実用化が先行し, 基礎的な研究及びデータ収集が不足しているのが現状である。特に, 生ごみの組成のみならず, 我が国で独自に開発, 発展させたし尿処理システム<sup>6)</sup>から発生するし尿汚泥にも特殊性があるので, その両者の混合処理についてはオリジナルデータを集積する必要がある。

著者らは我が国の社会システムと生活スタイルによる生ごみ性状の変化に注目して、生ごみのメタン発酵処理特性を解明することを目的として標準的組成を有する模擬生ごみを用いて一連の基礎的研究を進めてきた。1998年、生ごみの高温メタン発酵に及ぼす投入 TS 濃度の影響を報告し、高温メタン発酵における適切な投入濃度は10%程度であることを明らかにした<sup>7)</sup>。また1999年生ごみの高濃度発酵における中温および高温発酵の性能比較を行った結果、水理学的滞留時間 (HRT) が15日以上であれば、分解率とガス発生量において温度による影響は少ないが、HRT10日以下の高負荷条件では高温発酵の優位性が明確になり、投入 TS10%の条件では HRT7.5日の高負荷条件でも高い分解率を維持できるという結論が得られている<sup>8)・10)</sup>。一方、生ごみ単独処理する場合、微量栄養塩が不足する場合がある。汚泥と混合処理することで、汚泥からの微量栄養塩補給効果も期待できる。また「汚泥再生処理センター」では、ごみの収集状況により生ごみと汚泥の比率が幅広く変化することが予想され、混合比率の影響を把握しておく必要もある。

本研究は、生ごみと屎尿汚泥の複合メタン発酵特性を解明する研究の一環として、実用に近い高濃度メタン発酵条件において、生ごみと屎尿汚泥の混合比率を変化させて中温及び高温発酵の連続実験を行い、有機物の減量化率を始め、固形物の加水分解、揮発性脂肪酸 (VFA) 及びメタンガス生成量などに及ぼす汚泥比率の影響を把握した。また、微量栄養塩の必要性、有機酸蓄積とアンモニア阻害、中温発酵と高温発酵の比較についても考察した。

## 2. 実験装置および方法

### (1) 実験装置

実験装置の概略図を図-1に示す。発酵槽はガス攪拌方

表-1 実験条件

Run No.	汚泥比率 (%)	COD容積負荷 (g-COD/L・日)	VS 負荷 (g-VS/L・日)
1	0	13.5	7.0
2	10	12.7	7.2
3	25	11.3	7.1
4	50	10.2	6.7
発酵温度 (°C)		35 (中温消化)	
		55 (高温消化)	
HRT (日)		15	
発酵槽容量 (L)		5	

式とし、生成したバイオガスをガス循環ポンプで反応槽に吹き込むことにより混合攪拌した。発酵槽は全容量8Lで、有効容量を5Lとした。発酵槽への基質の投入は1日に4回、タイマー作動の投入ポンプにより行い、混合液は気液分離槽を経て貯留槽に排出した。発酵槽温度はウォータージャケットへの温水循環によりコントロールした。生成されるバイオガスは、ガスメーターにより計測した。また基質の変質を避けるため基質貯留タンクの温度は $4 \pm 1^\circ\text{C}$ に保持した。

### (2) 実験条件

実験条件を表-1に示す。著者ら<sup>10)・11)</sup>は、生ごみに関する文献調査に基づいて生ごみの標準的組成 (模擬生ごみ) を決定した。本研究に用いた投入基質には、この模擬生ごみを高速ブレンダーで粒径 3mm 以下に粉砕した後、H町し尿処理施設 (膜分離高負荷脱窒素処理プロセス) から採取した脱水汚泥 (含水率: 約 85%) と混合し、水道水で希釈し TS 濃度約 12~13% に調整したものを使用した。各条件での汚泥の混合比 (汚泥比率) を 0, 10, 25, 50% (対 TS 比) とし、水理学的滞留時間 (HRT) を 15日とした。発酵温度はそれぞれ高温発酵 ( $55 \pm 1^\circ\text{C}$ )、

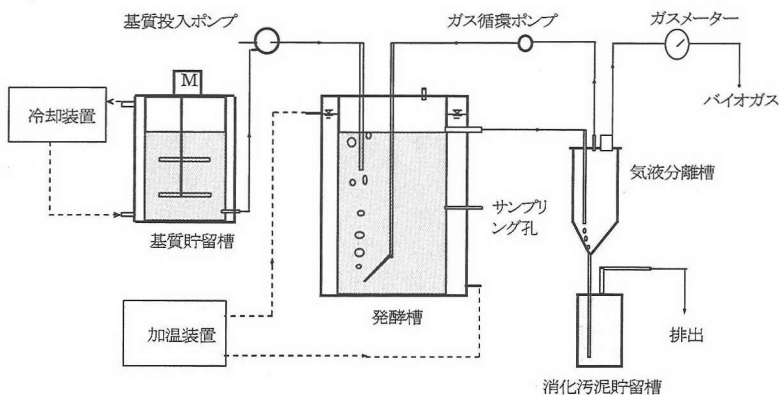


図-1 実験装置概要図

中温発酵 (35±1℃) とした。種汚泥には下水処理場の高温嫌気性消化汚泥と中温嫌気性消化汚泥を用い、生ごみのメタン発酵処理により馴致したものを使用した。

実験では、pH、アルカリ度、TS、VS などの管理指標とともにガス組成、揮発性脂肪酸 (VFA) 濃度および COD<sub>Cr</sub> 濃度などに関して 1 週間に 1~2 回分析し、各条件で約 2 カ月の連続運転を行い、定常状態における 3~4 回のデータを平均して代表値として採用した。

### (3) 測定項目と分析方法

pH、アルカリ度、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、TS、VS、SS、VSS の分析は下水試験方法に準拠して行った。COD<sub>Cr</sub> 濃度 (以下 COD) は米国の Standard Methods(1995) により測定した。炭水化物はアンスロン-硫酸法、タンパク質は Lowry 法、脂質は Bligh-Dyer 法によりそれぞれ分析を行った。混合液の溶解性成分は 3000rpm で遠心分離した上澄水について分析した。揮発性脂肪酸 (VFA) は FID ガスクロマトグラフ (HP-6890 型) 法により測定した。

FID ガスクロマトグラフのカラムには HP-INNOWAX Polyethylene Glycol キャピラリーカラムを用い、キャリアーガスにはヘリウム (圧力 98.1 kPa) を用いた。カラムオープンの設定温度は 50℃~170℃の範囲で段階的昇温操作を行った。検出器の温度は 280℃とした。

ガス生成量は容量式ガスカウンターで計量したデータを 0℃、1 気圧の乾燥ガス量に換算した。ガス組成 (N<sub>2</sub>、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>) の分析には TCD ガスクロマトグラフ (HITACHI-163 型) を用いた。TCD ガスクロマトグラフのカラムには、Umibeads C を充填した内径 3mm×長さ 3m のステンレスカラムを用いた。キャリアーガスにはヘリウム (圧力 490 kPa) を用いた。カラム温度と検出器温度はいずれも 140℃とした。

## 3. 実験結果

### (1) 投入基質の構成

各実験における投入基質の水質を表-2 に示す。投入基質の TS 濃度は 118~127g/L であり、汚泥比率が 0% から 50% に増加するに従い VS/TS は 89% から 78% に、COD 濃度は 202g/L から 150g/L に、また T-COD/TS 比は 1.71 から 1.18 に減少した。対応する COD 容積負荷は、汚泥比率の変化により 10~14 gCOD/L/d の範囲となった。

有機物の構成を炭水化物、脂肪、蛋白質およびこの 3 成分以外の物質 (その他) にみると、汚泥比率の増加に伴い、炭水化物の構成比は 62g/L から 23g/L に低くなり、逆にその他物質は 8.1% から 39.1% に高くなっていることがわかる。

元素分析の結果より、生ごみの C、H、O、N はそれぞれ 47.6、6.7、38.0、3.3 (dry%)、汚泥は 34.8、4.9、25.8、5.6 (dry%) であった。特に生ごみ中の Fe 含有率は 0.09 (dry%) で、汚泥中の Fe 含有率 10.3 (dry%) の 1/100 以下であった。汚泥中の Fe が高い理由は、塩化第二鉄を凝集剤とした凝集汚泥が含有するためである。また、メタン生成菌にとって重要な微量栄養塩であるニッケル、コバルトは生ごみ中に 1 mg/kg 以下でわずかであったのに対して、汚泥中にはニッケル、コバルトがそれぞれ 33mg/kg、4mg/kg 含有されていた。このように、汚泥比率を高めることで、混合物中の鉄、ニッケル、コバルトが増加した。

### (2) 各条件における有機物分解率

定常状態における TS、VS、COD 分解率と汚泥比率の関係を図-2 に示す。いずれの指標も汚泥比率の増大に伴い減少する傾向が見られた。TS 分解率でみると汚泥比率 0~50% において高温発酵では 30~74%、中温発酵では 30~67% であった。同じ汚泥比率における中温発酵と高温発酵の結果を比較すると、全体は大差がないものの、高温条件での分解率は数%程度高いケースも見られた。

表-2 投入基質の性状

項目	単位	Run1	Run2	Run3	Run4
汚泥比率	(%)	0%	10%	25%	50%
pH	(-)	4.36	4.08	4.45	4.98
TS	(g/L)	118	127	128	127
VS/TS	(%)	89.0	85.0	82.0	78.0
SS	(g/L)	79.6	93.8	107	110
VSS	(g/L)	76.4	85.8	78.2	84.5
T-COD <sub>Cr</sub>	(g/L)	202	190	169	150
T-COD <sub>Cr</sub> /TS (-)		1.71	1.50	1.32	1.18
T-N	(mg/L)	4,650	4,590	4,830	5,900
T-P	(mg/L)	430	770	1,160	1,810
炭水化物	(g/L)	62.3	57.1	36.2	22.7
蛋白質	(g/L)	26.7	27	27	29.1
脂肪	(g/L)	7.9	9.2	8.4	8.1
その他	(g/L)	8.1	14.7	33.4	39.1
C	(dry %)	47.6	46.3	44.4	41.2
H	(dry %)	6.72	6.54	6.27	5.82
O	(dry %)	38.0	36.7	34.9	31.9
N	(dry %)	3.27	3.51	3.86	4.45
P	(dry %)	0.37	0.53	0.78	1.19
S	(dry %)	0.15	0.18	0.23	0.31
Fe	(dry %)	0.09	1.11	2.63	5.18
Ni	(mg/kg)	<1	3	8	17
Co	(mg/kg)	<1	0.4	1	2
C/N 比	(-)	14.6	13.2	11.5	9.3

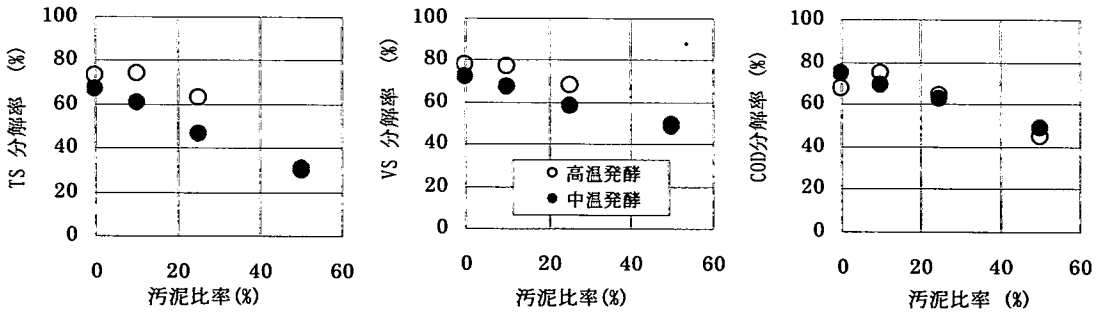


図-2 TS, VS, COD 分解率に及ぼす汚泥比率と発酵温度の影響

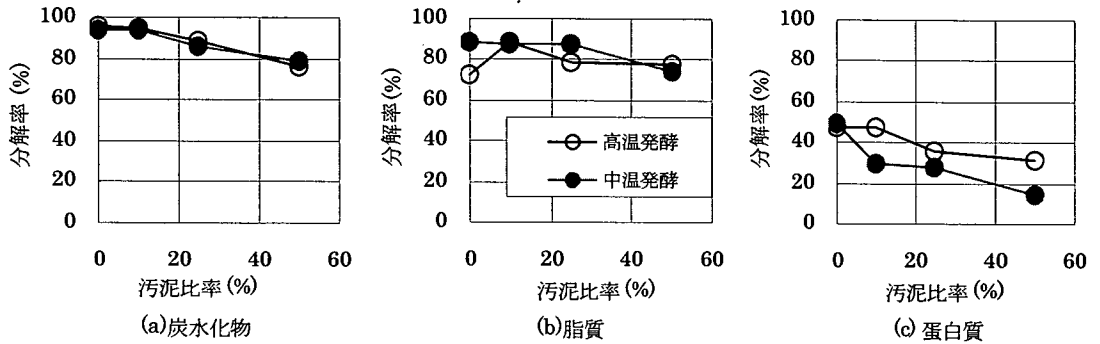


図-3 炭水化物、脂質、蛋白質分解率に及ぼす汚泥比率および発酵温度の影響

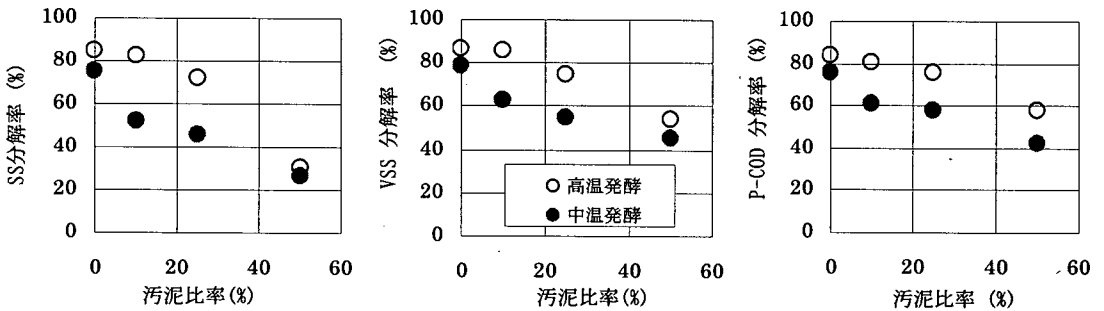


図-4 SS, VSS, P-COD 分解率に及ぼす汚泥比率と発酵温度の影響

また有機物の代表的成分である炭水化物、蛋白質および脂肪の分解状況を図-3 に示す。三成分の分解率の高さは高温および中温発酵ともに炭水化物>脂肪>蛋白質の順であった。この順番は、生ごみのみおよび下水汚泥嫌気性消化の結果と一致している<sup>10,12)</sup>。炭水化物及び脂肪の分解率は発酵温度による影響は少なく、同じ汚泥比率ではほぼ同程度の分解率が得られた。汚泥比率を0%から50%まで変化させても、炭水化物の分解率は96%から76%まで、脂肪の分解率は88%から72%までの範囲にあり、全体として高い分解率を維持できた。一方、蛋白質の分解率は全体として49%以下と低いだけでなく、中温条件ではより低くなっている。この差はし尿汚泥を含

有するケースで顕著に見られた。その原因として高温条件においてし尿汚泥に含まれる活性汚泥菌体が可溶化しやすいことが考えられる。

### (3) 加水分解率

加水分解による固形物の可溶化状況を表現する指標として、SS 分解率、VSS 分解率および固形物 COD (P-COD) 分解率が一般的に用いられる。本研究の各定常条件で得られた可溶化指標を図-4 に示す。全体の傾向として汚泥比率の増加に伴い、SS, VSS, P-COD 分解率がいずれも低くなっている。この結果は生ごみに比較してし尿汚泥は可溶化しにくいことを示唆している。李,

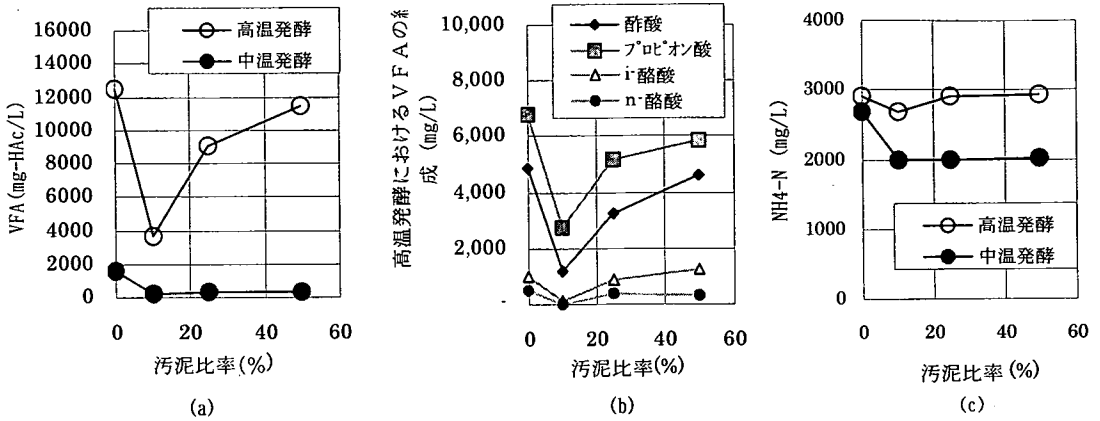


図-5 VFAとVFA組成および NH<sub>4</sub>+N濃度に及ぼす汚泥比率および発酵温度の影響

野池<sup>13)</sup>の研究によれば余剰活性汚泥の嫌気性分解において加水分解が律速段階であり分解率は約30%程度と低いので、汚泥比率が高くなると、汚泥成分が多く残存することが推察される。また、発酵温度の影響を見ると、高温条件におけるSS、VSS、P-COD分解率は中温条件におけるそれより明らかに高く、20%以上の差を開く場合もある。この傾向は図-3における蛋白質分解率とも関連しており、し尿汚泥は高温条件で可溶化しやすいことを示唆している。

#### (4) 揮発性脂肪酸 (VFA) 及びアンモニアの生成

中温および高温条件の各汚泥比率におけるVFAの酢酸換算値を図-5(a)に示す。中温条件におけるVFAは汚泥比率0%から50%で230~1600mgHAc/Lであった。一方、高温条件におけるVFAは3,000~12,500mgHAc/Lと高濃度であった。筆者ら<sup>14)</sup>は、生ごみおよび汚泥のメタン発酵において、中温発酵に比較して、高温発酵のVFAが蓄積しやすいことを報告しているが、汚泥比率を変化させた場合も同様な傾向を示した。

図-5(b)に高温条件におけるVFAの組成を示す。VFAの組成は、プロピオン酸が最も多く、ついで酢酸、酪酸

となっている。一般に有機物が正常に発酵している場合、消化汚泥中の酢酸、プロピオン酸、酪酸の順に量が多く、有機物負荷が増大すると消化汚泥中の酢酸の量が減少し、プロピオン酸、酪酸の量が相対的に増大することが知られている。汚泥比率25、50%では、VFAの蓄積とともにプロピオン酸が酢酸に比較して増加しており、発酵に部分的な阻害が生じている可能性があるかと推定される。

図-5(c)に発酵槽混合液のNH<sub>4</sub>+N濃度に及ぼす汚泥比率の影響を示す。表-2のC/N比に示したように汚泥中の窒素の影響により汚泥比率が高くなると投入TN濃度は上昇する。高温条件において遠心上澄水のNH<sub>4</sub>+N濃度は、2700~2900mg/Lで汚泥比率と関係なくほぼ一定な値を示した。また中温発酵においては、汚泥比率0%においてNH<sub>4</sub>+N濃度は2700mg/L程度であったが、汚泥10%以上ではいずれの条件でも2,000mg/L程度に低下している。投入TNの増加にもかかわらず、汚泥比率10%から50%でアンモニア性窒素濃度が大きく増えなかった理由としては、汚泥比率の増加に伴って蛋白質の分解率が減少したためである。NH<sub>4</sub>+N濃度は高温条件においてアンモニア阻害が生じると言われる2,500mg/L以上であり<sup>14-16)</sup>、アンモニアによる部分的阻害が生じていたこ

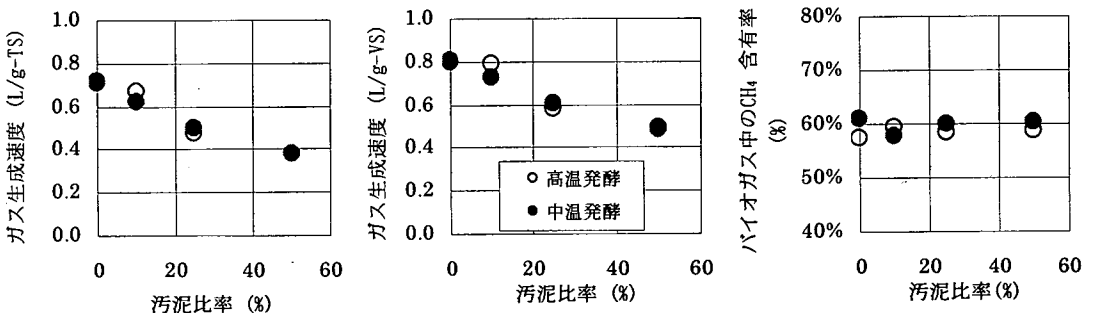


図-6 ガス生成速度とCH<sub>4</sub>含有率に及ぼす汚泥比率と発酵温度の影響

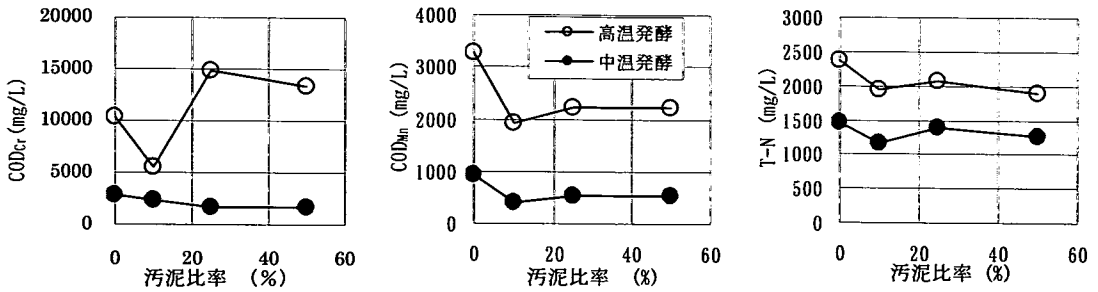


図-7 脱水ろ液のCOD<sub>Cr</sub>, COD<sub>Mn</sub>, T-N 濃度におよぼす汚泥比率と発酵温度の影響

とが推定される。

### (5) ガス生成量およびメタン含有率

投入TSおよび投入VSあたりのバイオガス生成量およびメタン(CH<sub>4</sub>)含有率と汚泥比率の関係を図-6に示す。投入VSあたりのバイオガス生成量は、高温条件で0.49~0.80 Nm<sup>3</sup>/kg-VS、中温条件では0.49~0.81 Nm<sup>3</sup>/kg-VSで高温条件と中温条件で顕著な差はみられなかった。

バイオガス中のメタン含有率は、高温条件、中温条件でそれぞれ58~59%、58~61%であり、高温発酵と中温発酵で同程度であった。

### (6) 脱水ろ液の性状

連続実験における定常状態の消化汚泥を用いて脱水試験を行い、脱水ろ液(以下、ろ液という。)の性状を分析した。脱水操作では0.5%ポリアミジン溶液を添加し、フロック形成させた後、60meshのブフナーロードで重力ろ過した。ろ液性状の代表としてCOD<sub>Cr</sub>, COD<sub>Mn</sub>, T-Nと汚泥比率の関係を図-7に示す。図に示したように全ての条件において高温発酵のろ液は中温条件のそれよりも高かった。脱水ろ液の処理に生物学的硝化脱窒法を用いる場合、COD<sub>Cr</sub>/T-Nの比率から判断して高温発酵では脱窒に要する有機炭素源が残留しているのに対して、中温

発酵では有機炭素源は明らかに不足している。

なお、図-5において消化汚泥のNH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N濃度が高温発酵で3,000mg/L、中温発酵で2,000mg/Lに対して、図-7では脱水ろ液のT-N濃度は高温発酵、中温発酵で2,000mg/L、1,300mg/L程度となっている。これは、脱水操作で、消化汚泥1Lに対して0.5%ポリアミジン溶液を約0.3L投入する必要があるため、脱水ろ液において凝集剤溶液による希釈効果があったためである。これに加え遠心分離だけでは分離できないコロイド成分が、凝集効果により脱水ろ液からほとんど除去されたためと考えられる。

### (7) COD物質収支

有機物の存在形態を固形物、溶解性物質およびメタンガスに大別し、化学量論式から求めたCOD換算係数により各条件でのCOD物質収支を算出し<sup>13)</sup>、その結果を表-3に示す。投入基質、高温発酵、中温発酵の固形成分CODの割合は、57.7~72.1%、9.3~30.3%、14.0~41.9%であり、汚泥比率が増加するに従って高くなり、全体として投入基質>中温発酵>高温発酵の順であった。一方、溶解成分CODにおいて、溶解性炭水化物、溶解性蛋白質、溶解性脂質の合計(SVS)は、高温発酵で6.2~10.2%、中温発酵では3.8~6.1%であり、揮発性脂肪酸(VFA)は高温発酵が3.2~10.9%、中温発酵では0.1~0.9%であり、

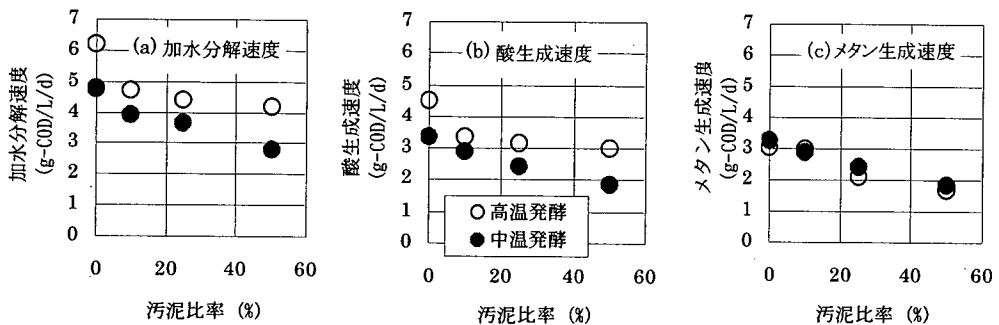


図-8 加水分解速度、酸生成速度、メタン生成速度に及ぼす汚泥比率と発酵温度の影響

表-3 COD物質収支 (単位:%)

項目	汚泥比率 (%)	発酵汚泥COD					小計 ⑥ ①+⑤	ガス CH <sub>4</sub> ⑦	収支 ⑥+⑦
		固形成分 ①	溶解成分			小計 ⑤ ②+③+④			
			SVS ②	VFA ③	その他 ④				
投入基質	0	57.7	13.7	0.0	28.6	42.3	100.0	—	100.0
	10	58.6	15.4	1.4	24.6	41.4	100.0	—	100.0
	25	61.8	13.6	2.6	22.0	38.2	100.0	—	100.0
	50	72.1	9.9	2.9	15.2	27.9	100.0	—	100.0
高温発酵	0	9.3	8.2	10.9	4.2	23.2	32.5	68.1	100.6
	10	11.3	6.2	3.2	4.3	13.7	25.0	75.6	100.7
	25	15.3	8.2	9.6	2.6	20.4	35.7	60.1	95.9
	50	30.3	10.2	13.4	1.2	24.8	55.1	54.3	109.4
中温発酵	0	14.0	5.1	0.9	5.1	11.1	25.1	73.0	98.1
	10	22.9	3.8	0.1	4.3	8.2	31.1	68.1	99.2
	25	26.1	6.1	0.2	4.6	10.9	37.0	64.6	101.6
	50	41.9	5.5	0.3	3.7	9.5	51.4	55.1	106.5

いずれも高温発酵の方が中温発酵に比べて高かった。また、メタンのCOD転換率は、高温発酵、中温発酵でそれぞれ54.3~75.7%, 55.1~73.0%と同程度であった。

このことから高温発酵の加水分解率は中温より高いが、加水分解生成物である溶解成分CODは十分メタンへガス化できず、SVSあるいはVFAとして液中に残存することが伺える。

#### 4. 考察

##### (1) 汚泥比率の影響

生ごみ単独の高濃度メタン発酵において微量栄養塩の不足に起因するVFA蓄積問題が知られている。著者らの一連の研究においてFe, Co, Niの微量栄養塩を適量添加することで、高効率メタン発酵を実現できることを明らかにしてきた<sup>10)</sup>。また、Kayhanian and Rich<sup>14)</sup>は、高濃度嫌気性消化における都市固形廃棄物の生分解性有機成分を評価するためのパイロット実験を実施し、その結果米国における都市固形廃棄物の生分解性有機成分(BOF/MSW)では、安定的な消化に要する多量および微量栄養素が不足していることを示し、他の排水処理施設汚泥と酪農廃棄物を添加することによってガス発生量が大幅に増大し、嫌気性消化の安定性が大きく改善されたことを報告している。本研究において表-2の元素分析結果で示すように、Run1, Run2ではFe, Co, Niの微量栄養塩が十分でない心配もあったので、これまでの研究と同様、微量栄養塩を添加して実験を行った。しかし汚泥比率25%, 50%の実験においては、表-2に示したように汚泥中の微量栄養塩(Fe, Co, Ni)の存在が確認されたため、微量栄養塩を添加しないで運転を行い、微量栄養塩の添加が無くても高温発酵、中温発酵の運転が可能であることを確認した。従って生ごみと尿汚泥の混

合処理メリットの一つとして、汚泥による微量栄養塩調整効果が上げられる。

また、実験結果より明らかのように、汚泥比率が小さく生ごみの割合が高い場合、バイオガス生成量が多だけでなく、有機物の分解率が高く、メタン発酵槽内のTS濃度が低いので、槽内攪拌がしやすいという利点がある。

##### (2) 中温と高温発酵の比較

固形物のメタン発酵反応は大きく分けて加水分解、酸生成、メタン生成の三つの段階に分けられる。本研究ではそれぞれの反応段階に及ぼす温度と汚泥比率の影響を検討するために、各条件における加水分解速度、酸生成速度およびメタン生成速度を計算して図-8にまとめた。汚泥比率の増加とともに、加水分解速度、酸生成速度及びメタン生成速度のいずれも低下しているが、高温発酵と中温発酵を比較すると図-8(a), 図-8(b)に示す加水分解、酸生成の面では高温発酵の方は速度が高い。この結果は、中温発酵に比較して高温発酵による加水分解と酸生成速度が速いことを明確に示唆している。一方図-8(c)に示すメタン生成速度では、高温と中温の差がほとんどなく、ほぼ同等であった。その原因は図-5のVFAデータに示されたように、高温条件で生成したVFAの一部は何らかの阻害因子で蓄積し、メタン生成まで行かなかったためと考えられる。次の節で討論するように、この阻害因子はアンモニアであると推察される。

##### (3) 高温条件におけるVFA蓄積とアンモニア阻害

図-5に示すように、中温発酵においてVFAの蓄積が余り見られなかったのに対して、高温条件においてVFAの蓄積が顕著であった。本研究において微量栄養塩を十分確保しており、しかも容積負荷もそれほど高い訳ではない。従って高温条件におけるVFA蓄積は過負荷または微量栄養塩不足に起因しているものではなく、アンモニ

表-4 疑似分子式から求めた理論値と測定値の比較

汚泥比率		0%		10%		25%		50%	
疑似化学式		C <sub>17</sub> H <sub>29</sub> O <sub>10</sub> N		C <sub>15</sub> H <sub>26</sub> O <sub>9</sub> N		C <sub>13</sub> H <sub>23</sub> O <sub>8</sub> N		C <sub>11</sub> H <sub>18</sub> O <sub>6</sub> N	
項目	単位	理論値	高温発酵	理論値	高温発酵	理論値	高温発酵	理論値	高温発酵
			中温発酵		中温発酵		中温発酵		中温発酵
ガス生成量	(L/g-VS <sub>recovered</sub> )	0.88	1.03	0.86	1.02	0.84	0.85	0.86	1.00
			1.12		1.08		1.05		1.00
CH <sub>4</sub> 含有率	(-)	0.58	0.58	0.58	0.59	0.58	0.59	0.59	0.59
			0.61		0.58		0.60		0.60
アルカリ度	(g-CaCO <sub>3</sub> /g-VS <sub>recovered</sub> )	0.123	0.118	0.137	0.139	0.156	0.167	0.192	0.274
			0.144		0.135		0.173		0.277
アンモニア濃度	(g-N/g- VS <sub>recovered</sub> )	0.034	0.036	0.038	0.032	0.0436	0.041	0.0538	0.060
			0.035		0.028		0.033		0.042

ア阻害による可能性が一番高いと考えられる。図-5(C)に示すように、中温発酵における NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 濃度は 2,000mg/L 程度であったのに対して、高温条件における NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 濃度は 2700~2900mg/L と比較的高かった。

中温メタン発酵に関する文献によれば、十分馴致した中温発酵では NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 濃度は 3000mg/L までは阻害しない<sup>16)</sup>。藤島ら<sup>17)</sup>は嫌気性汚泥に及ぼす固形物濃度の影響を調査し、脱水汚泥を基質とした連続実験を行った結果、投入汚泥濃度の増加に伴ってアンモニア性窒素濃度が上昇し、TS 濃度が 11.0% で 3,000mg/L の高いアンモニア性窒素濃度になったが、メタン生成量は減少傾向を示したもののメタン生成は順調に進んでいたことを報告している。

高温メタン発酵の場合、アンモニア阻害は NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 濃度は 2,000~2,500mg/L 程度から始まり、その特徴は VFA がまず NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 濃度に比例して蓄積し、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 濃度は 3,500mg/L 以上になると、メタン生成速度も急激に低下して発酵は困難になると報告されている<sup>15),16)</sup>。

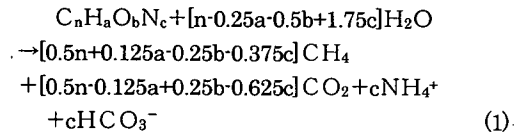
本研究の高温条件では NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 濃度が 2,700~2,900mg/L と比較的高く、部分阻害の範囲にあったので、VFA の蓄積を招いたと考えられる。この点からアンモニア性窒素による阻害を回避するためには、汚泥比率による投入窒素濃度と TS 濃度が重要な因子となり、高温発酵においては NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 濃度を 2,500mg/L 以下にするため TS 濃度を 11% 程度に調整する必要があったことを示唆している。

#### (4) 元素組成に基づくガス生成量と組成

前述したように本研究に用いた生ごみの元素組成は、炭素 47.8%、水素 6.7%、酸素 38.0%、窒素 3.3% であり、汚泥のそれは炭素 34.8%、水素 4.9%、酸素 25.8%、窒素 5.6% であった。この結果に基づき生ごみと汚泥の疑似分子式はそれぞれ C<sub>17</sub>H<sub>29</sub>O<sub>10</sub>N、C<sub>7</sub>H<sub>12</sub>O<sub>4</sub>N と計算され

る。同様に、汚泥比率 10%、25%、50% はそれぞれ C<sub>15</sub>H<sub>26</sub>O<sub>9</sub>N、C<sub>13</sub>H<sub>23</sub>O<sub>8</sub>N、C<sub>11</sub>H<sub>18</sub>O<sub>6</sub>N と計算される。

一般に、メタン発酵による有機物の分解する現象を化学量論式で次のように表すことができる<sup>19)</sup>。



式(1)により、除去 VS 当たりのガス生成量、CH<sub>4</sub> 含有率、アルカリ度および NH<sub>4</sub><sup>+</sup> の理論値を求め、本実験における実測値を併せて表-3 に示した。表-3 によると除去 VS 当たりのガス生成量の実測値は理論値の 100~127% であり、同様に CH<sub>4</sub> 含有率は 99~106%、除去 VS 当たりのアルカリ度は 96~144%、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N は、73~112% となっている。このように、メタン発酵運転における重要な指標であるガス生成、アルカリ度生成、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 生成状況は、疑似分子式および式(1)により、おおよその推定ができることを示唆している。

## 5. まとめ

- (1) 生ごみと汚泥の比率を 0, 10, 25, 50% で変化させてメタン発酵の連続実験を行った結果、汚泥比率 0~50%、投入 TS 濃度 12~13%、HRT15 日での高温および中温発酵が可能であり、TS 分解率は高温発酵で 30~74%、中温発酵で 30~67% 汚泥比率の増加に伴って減少した。また投入 VS 当たりのバイオガス生成量は、高温発酵で 0.49~0.80L/gVS、中温発酵で 0.49~0.81L/gVS であり中温発酵と高温発酵で顕著な差は見られなかった。
- (2) 汚泥比率が増加すると VS 中の炭水化物の構成比が小さくなる一方で炭水化物、脂肪、蛋白質以外の物質



(その他物質)が増加し、発酵汚泥にもその残存量が多く、汚泥が可溶化しにくい原因となっていた。一方、生ごみ、汚泥の元素分析結果からし尿汚泥中に微量栄養塩(Fe, Ni, Co)が含有しており、汚泥比率 25, 50%では、微量金属の添加無しでメタン発酵が可能であった。

- (3) 汚泥比率の増加とともに、加水分解速度、酸生成速度およびメタン生成速度はいずれも低下していた。高温発酵と中温発酵を比較すると、加水分解、酸生成速度では高温発酵の方が速いが、メタン生成速度では差がほとんどなく、ほぼ同等であった。また本研究では投入 TS 濃度が 12~13%と高かったため、高温発酵では  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度が 2,700~2900mg/L と高く、アンモニアの部分阻害による VFA 蓄積が見られた。アンモニア阻害を避けるため高温発酵の場合には、投入 TS 濃度を 11%以下に調整する必要があると考えられる。
- (4) 生ごみとし尿汚泥の疑似分子式はそれぞれ  $\text{C}_{17}\text{H}_{29}\text{O}_{10}\text{N}$ ,  $\text{C}_7\text{H}_{12}\text{O}_4\text{N}$  と計算される。同様に、汚泥比率 10%, 25%, 50%はそれぞれ  $\text{C}_{15}\text{H}_{26}\text{O}_{10}\text{N}$ ,  $\text{C}_{13}\text{H}_{23}\text{O}_8\text{N}$ ,  $\text{C}_{11}\text{H}_{18}\text{O}_6\text{N}$  と計算される。この疑似分子式を用いた除去 VS 当たりのガス生成量,  $\text{CH}_4$  含有率, アルカリ度および  $\text{NH}_4\text{-N}$  の理論値と実測値とがおおよそ一致し、メタン発酵運転において重要な指標となるこの様な値が疑似分子式によりおおよそ推定できることが確認された。

**謝辞:** 本研究にあたって、当時、当社環境研究所に在籍の森本加寿子様、中村奈々絵様に実験分析などを手伝っていただきました。ここに記して感謝致します。

#### 参考文献

- 1) 李玉友: 生ごみ・有機性廃棄物の高濃度メタン発酵処理技術, 技術情報センター主催「生ごみ・有機性廃棄物の最新処理・リサイクル技術」講習会テキスト, pp. 43-69, 1998.
- 2) 編集委員会: 動き出した汚泥再生処理センター, 都市清掃, Vol. 54, No. 244, pp. 543, 2001.
- 3) 岩尾充: メビウスシステムについて, 環境技術, Vol. 27, pp. 845-852, 1998.
- 4) 久芳良則: REMシステムについて, 環境技術, Vol. 27, pp. 853-859, 1998.
- 5) 坂上正美: リネッサシステムについて, 環境技術, Vol. 27, pp. 860-866, 1998.
- 6) 李玉友, 佐々木宏, 奥野芳男, 関廣二, 上垣内郁夫: 生ごみの高濃度メタン発酵に及ぼす投入濃度の影響, 環境工学

研究論文集, Vol. 35, pp. 29-39, 1998.

- 7) 李玉友, 佐々木宏, 鳥居久倫, 奥野芳男, 関廣二, 上垣内郁夫: 生ごみの高濃度消化における中温と高温処理の比較, 環境工学研究論文集, Vol. 36, pp. 413-421, 1999.
- 8) 奥野芳男, 李玉友, 佐々木宏, 関廣二, 上垣内郁夫: 生ごみとし尿汚泥の高濃度メタン発酵に及ぼす滞留時間と発酵温度の影響, 環境工学研究論文集, Vol. 38, pp. 141-150, 2001.
- 9) 奥野芳男, 李玉友, 佐々木宏, 関廣二, 上垣内郁夫: 生ごみと汚泥の高濃度メタン発酵処理特性, 廃棄物学会第 8 回研究発表講演論文集, pp. 308-310, 1997.
- 10) 佐々木宏, 李玉友, 関廣二, 上垣内郁夫: 生ごみの高温・高濃度メタン発酵に及ぼす滞留時間と負荷の影響, 水環境学会誌, Vol. 22, No. 12, pp. 983-989, 1999.
- 11) 佐々木宏, 李玉友, 奥野芳男, 関廣二, 上垣内郁夫: 生ごみの高濃度メタン発酵処理特性, 廃棄物学会第 8 回研究発表講演論文集, pp. 305-307, 1997.
- 12) Li, Y. Y., Mizuno, O., Miyahara, T., Noike, T. and Katsumata, K.: Ecological analysis of the bacterial system in a full-scale egg-shaped digester treating sewage sludge, *Proc. 8th International Conf. on Anaerobic Digestion*, pp. 247-254, 1997.
- 13) 李玉友, 野池達也: 嫌気性消化の酸生成相における余剰活性汚泥の分解特性, 水質汚濁研究, Vol. 10, pp. 729-740, 1987.
- 14) Kayhanian, M. and Rich, D.: Pilot-Scale High Solids Thermophilic Anaerobic Digestion of Municipal Solid Waste With An Emphasis On Nutrient Requirements, *Biomass and Bioenergy*, Vol. 8, No. 6, pp. 433-444, 1995.
- 15) 李玉友, 佐々木宏, 関廣二, 上垣内郁夫: 有機性廃棄物の高濃度メタン発酵におけるアンモニア阻害の解析, 第 34 回水環境学会年会講演集, pp. 189, 2000.
- 16) 船石圭介, 山下耕司, 佐々木宏, 李玉友: 有機性廃棄物の高濃度メタン発酵に及ぼすアンモニアの影響, 日本水環境学会年会講演集, pp. 416, 2002.
- 17) 藤島繁樹, 宮原高志, 水野修, 野池達也: 脱水汚泥の嫌気性消化に及ぼす固形物濃度の変化, 土木学会論文集, No. 622/VII-11, pp. 73-80, 1999.
- 18) Hansen, K. H., Angelidaki, I. and Ahring, B. K.: Anaerobic digestion of swine manure inhibition by ammonia, *Water Research*, 32, pp. 5-12, 1998.
- 19) 社団法人 全国都市清掃会議: 汚泥再生処理センター等施設整備の計画・設計要領, pp. 266-270, 2001.

(2002.6.19 受付)

# INFLUENCE OF SLUDGE RATIO AND TEMPERATURE ON THE INTEGRATED METHANE FERMENTATION OF ORGANIC FRACTION OF MUNICIPAL SOLID WASTE AND BIOSLUDGE

Yoshio OKUNO, Yu-You LI, Hiroshi SASAKI, Koji SEKI and Ikuo KAMIGOCHI

Influence of sludge ratio and temperature on the integrated methane fermentation of organic fraction of municipal solid waste (MSW) and bio-sludge was investigated by using a semi-continuous flow completely mixed reactor. As the sludge ratio in the influent total solid (TS) increased from 0% to 50%, the degradation efficiency of TS decreased from 74% to 30% under thermophilic condition(55°C), and decreased from 67% to 30% under mesophilic condition(35°C). For maintaining high rate methane fermentation, addition of minerals to the feed was necessary for the MSW-rich cases when the sludge ratio in the influent TS was lower than 10%, although successful operation was possible without mineral addition when the sludge ratio was higher than 25%.