

(34)

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

High-Rate Methanation of the Food Wastes and Garbage by a Two-Phase Process with Circulation of Digested Sludge

李玉友¹、水野修²、船石圭介²、山下耕司²

Yu-You LI¹, Osamu MIZUNO², Keisuke FUNAISHI², Koji YAMASHITA²

Abstract; This study developed a new high-rate biogas process for treating food wastes and garbage. This process is composed of three parts, mixing tank, thermophilic hydrolytic/acidogenic reactor (55°C), mesophilic methanogenic reactor (35°C). In this process, the shredded garbage is firstly mixed in the mixing tank with the digested sludge re-circulated from the methanogenic reactor by weight ratio of 1 to 1 for making fluid slurry. The slurry is then hydrolyzed in thermophilic acidogenic reactor to soluble organics such as acetate, propionate and lactate etc. Finally, the hydrolyzed slurry is converted to biogas in mesophilic methane fermentation reactor. In order to demonstrate the performance of the process mentioned above, a bench-scale continuous experiment was conducted with shredded garbage by changing the retention time of the process from 30 days to 10 days. By using this process, garbage with a moisture content of 80% (TS 20%) was effectively degraded to biogas at a short HRT of 12.5 days, corresponding to a COD_G loading rate of $30 \text{ kg-COD}_G \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$, without adding dilution water. The experimental results demonstrated that the organic degradation efficiency was high as 85%, and one ton of garbage produced biogas of 150 m^3 with methane content of around 60%.

Keywords; methane fermentation, two-phase process, mesophilic methanogenesis, thermophilic acidogenesis, organic fraction of MSW, food wastes, garbage.

1. はじめに

1999年度全国のごみ総排出量は5,145万トンに達し、1人1日当たりのごみ排出量は1,114gであった¹⁾。最近、埋め立て地の不足、焼却工場の建設の立地難やダイオキシン発生が大きな社会問題となり、ごみの減量化、資源化処理が強く求められている。生ごみは含水率が高く、腐敗しやすいので、最も取り扱い難く、処理が難しいと言われている。最近の調査によれば、一般的な世帯の生ごみ発生量は200-340g/人・日で、平均で250g/人・日程度である²⁾。また事業系ごみ中の生ごみ含有率は業種により15-70%の範囲で変化し、特に食品加工型小売業、飲食店、給食センターから出されたごみの5割以上が生ごみである^{3,4)}。

わが国のごみは1999年度においてその発生量の78%以上が焼却処理されている¹⁾。しかし、2000年に容器包装リサイクル法が施行されたことにより、紙やプラスチックのリサイクルが進み、残されたごみは水分の多い生ごみが主体となりつつある。生ごみには水分を75-85%程度含み^{3,5)}、単独では自然でできないばかりでなく、混合燃焼でも焼却炉内の温度上昇を妨げ、ダイオキシンの発生を引き起こす可能性がある。特に近年ごみ焼却の新技术として普及しつつあるガス化溶融炉では原料の発熱量を確保するため、生ごみの別途処理が望ましい。また、2001年には食品リサイクル法が施行され、食品廃棄物の年間排出量が100トン以上の事業者は飼料化、肥料化、油化及びメタン化のいずれかの方法により有機資源としてリサイクルを行うことが求められるようになった。

¹⁾ 東北大学大学院工学研究科・土木工学専攻 (Tel: 022-217-7464, Fax: 022-217-7465)

²⁾ アタカ工業(株)・環境研究所

現有の再利用技術は飼料化、コンポスト化に偏っているが、油分、塩分の問題の他に、組成が不安定なため、飼料または肥料として品質の保証が難しいと言われている。そのため、飼料化・肥料化の需要がいずれ飽和に達するので、量的拡張は難しいと予想される。こうした背景において、メタン発酵による生ごみの減量化、エネルギー回収、衛生化効果（病原菌を死滅させる）、発酵物肥料価値の向上が高く評価され、国内外で実用化されつつある⁷⁻¹²⁾。政府が平成14年12月27日に公表した「バイオマス・ニッポン総合戦略」においてもメタン発酵によるエネルギー資源化技術が取り上げられ、今後この技術の応用促進が活発になると考えられる。

これまで研究・報告された生ごみのメタン発酵システムを、投入濃度で分類すると、乾式（投入TS濃度25%以上）、湿式（投入TS濃度15%以下）に分けることができ¹⁵⁻¹⁸⁾、またメタン発酵の温度で分類すると、中温メタン発酵と高温メタン発酵がそれぞれ採用されている。都市ごみの厨芥分を用いた幾つかの研究¹⁹⁻²⁴⁾によれば、高温発酵は中温発酵に比較して、有機物の分解率が高く、メタンガス生成量も多い^{13, 24-26)}だけでなく、高温条件による病原性微生物の死滅効果も大きい²⁸⁾。しかし、我が国の生ごみや食品廃棄物に窒素成分が多く、 NH_4 阻害で高温メタン発酵のTS濃度を10%程度に制限する必要がある³⁰⁻³¹⁾、生ごみの濃度調整のため大量の希釈水を使用せざるを得ず、副産物として出てくる廃液処理の問題があるだけでなく、システムのエネルギー生産効率が低下する。そこで生ごみを希釈せずそのまま処理することが望ましい。

筆者らはより効率的な生ごみメタン発酵技術を開発するために、これまで室内実験で幅広い基礎実験的検討（濃度、温度、滞留時間の影響など）を行ってきた³⁰⁻³⁷⁾。この結果、廃棄物のメタン発酵に関して、高温発酵による可溶化効果が顕著であるほか、中温発酵によるアンモニア耐性が強いなどの知見を得た。そこで本研究では、高温酸発酵と中温メタン発酵からなる二相メタン発酵を採用し、またメタン発酵液を受入混合槽へ返送して原料廃棄物を希釈することで希釈水を不要とする無希釈の高速メタン発酵プロセス³⁷⁾を構築し、連続実験を行った。

2 実験装置と方法

2.1 実験装置

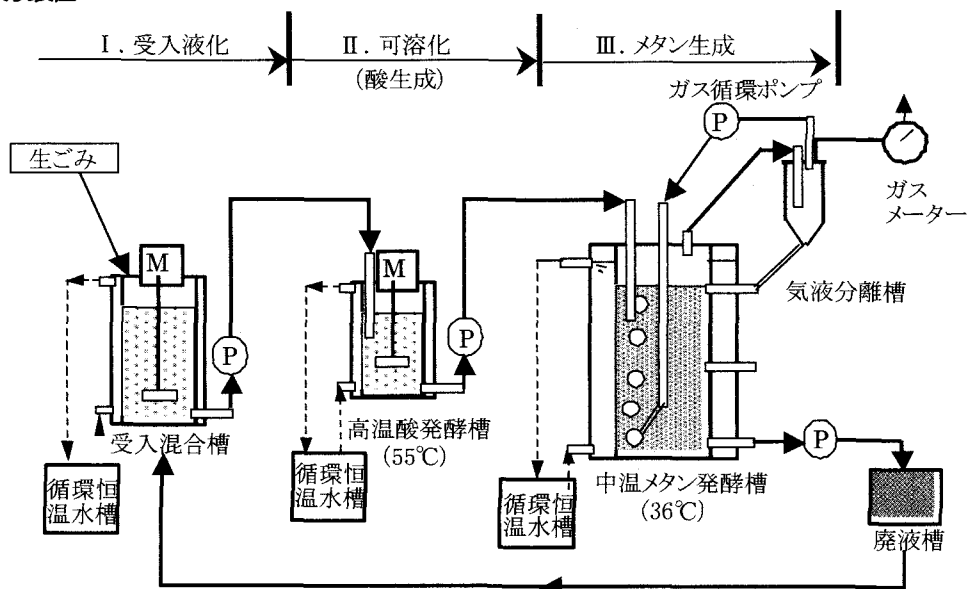


図1 本研究に用いた実験装置の概略

連続実験装置の概要図を図1に示す。装置は主に受入混合槽、有効容量3Lの高温酸発酵槽（55℃）、同12Lの中温メタン発酵槽（36℃）からなる。

受入混合槽への原料投入は間欠式で行った。この槽は投入物と発酵液を混合液化し、流動性の良い状態にする効果がある。ここから各槽への送液はタイマー制御された定量ポンプで2時間に一回行なった。高温発酵槽では可溶化・酸発酵を行い、投入物をメタン発酵しやすいものに変換する。メタン発酵槽ではアンモニア阻害を防止するため³⁶⁾アンモニア耐性の強い中温発酵条件でバイオガスを生産する。高温酸発酵槽は機械攪拌、中温メタン発酵槽はガス循環ポンプにより攪拌して槽内を均一にした。

実験に使用した種汚泥は、下水汚泥の中温発酵消化汚泥とし、2.2で述べる模擬生ごみを基質として3か月以上馴致したものであった。

2.2 実験材料の調製方法

代表的な条件でプロセスの性能評価を行うために、文献調査結果を基に模擬生ごみの構成を決定した³⁵⁾。その原料構成は表1の通り、果物類(30%)、野菜類(36%)、肉・魚・卵(14%)および残飯類(20%)であった。これらの食品を混合後、高速ブレンダーで粒径 3mm 以下に微破碎して実験の投入基質とした。破碎処理した生ごみとメタン発酵廃液とを湿重量比で 1:1 に混合後、ミキサーで破碎した後、受入混合槽に投入した。ここで生ごみと返送発酵廃液の比率を 1:1 にした理由はポンプで送れる高濃度のスラリーを調整するためである。本システムの基本的特徴の一つは生ごみに希釈水を加えず、高濃度のままで処理したいことにある。しかし、生ごみを希釈しないと、流動性がなく混合槽での混合が難しいだけでなく、スラリーポンプで送れないこともできない。そこで返送される発酵液(TS濃度約4%)で生ごみ(TS濃度は約20%)を流動性が比較よい高濃度スラリー(TS12-13 程度)に調整する必要がある、これらの条件を満足する循環量は投入生ごみに対して約 1:1 である。また元素分析の結果に基づき、微量栄養元素が不足することが予想されたので、揮発性有機酸(VFA)蓄積の防止とメタン発酵の促進のために、微量栄養塩として鉄、ニッケル、コバルトをそれぞれ塩化物として 100mg/L、10mg/L、10mg/L となるよう添加した³⁰⁻³²⁾。

表1 実験に用いた模擬生ごみの組成

本研究に用いた生ごみの組成			文献調査のデータ ³⁵⁾	
大分類 (湿重%)	組成	湿重含有率 (%)	家庭系	事業系
果物類 (30%)	リンゴ	10	平均 31% (15-45%)	4.4-29.7%
	グレープフルーツ (皮)	5		
	オレンジ (皮)	5		
	バナナ (皮)	10		
野菜類 (36%)	キャベツ	12	平均 36% (15-55%)	12.4-49.2%
	ジャガイモ	12		
	ニンジン	12		
肉・魚介・卵類 (14%)	挽肉	5	平均 14% (5-35%)	5.8-25.8%
	魚 (骨付き)	5		
	卵	4		
残飯類 (20%)	米飯	10	平均 19% (10-30%)	2.6-28%
	パン	5		
	うどん	2.5		
	中華麺	2.5		

2.3 実験条件

投入基質の平均組成を表2に示した。pH以外の濃度は、全て湿重量あたりで示した。この食品廃棄物の固形物濃度 (TS) は 232.8g/kg、COD_{Cr} 濃度は 294g/kg であった。発酵槽の水理学的滞留時間 (HRT) は表3のように、プロセス全体の HRT を 30 日、20 日、15 日、12.5、10 日と段階的に短縮して (高温酸発酵槽の HRT で 6~2 日、中温メタン発酵槽で 24~8 日)、各槽の効果を評価すると共に、処理性能を確認した。

表2 模擬生ごみの平均組成

TS	g/kg	232.8
VS	g/kg	220.2
T-COD	g/kg	294
T-N	g/kg	7.6
pH	-	5.19

表3 模擬生ごみに関する実験の条件

	HRT	COD 負荷	TS 負荷
	日	kg/m ³ /d	kg/m ³ /d
RUN.1	30	9.8	7.8
RUN.2	20	14.7	11.6
RUN.3	15	19.6	15.5
RUN.4	12.5	23.5	18.6
RUN.5	10	29.5	23.3

2.4 分析方法

pH、アルカリ度、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、TS、VS、SS、VSS の分析は下水試験方法に準拠して行った。COD_{Cr} 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ー硫酸法、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_2 、 CO_2 、 CH_4 ）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 Unibeads C を充填した内径 3 mm×長さ 3 m のステンレスカラムを用いた。キャリアガスにはヘリウム（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

3.1 HRT 短縮と負荷向上の可能性

プロセス全体の HRT を 30 日（RUN. 1）、20 日（RUN. 2）、15 日（RUN. 3）、12.5 日（RUN. 4）と段階的に短縮して嫌気性細菌を馴養しつつ、負荷を向上させて連続運転

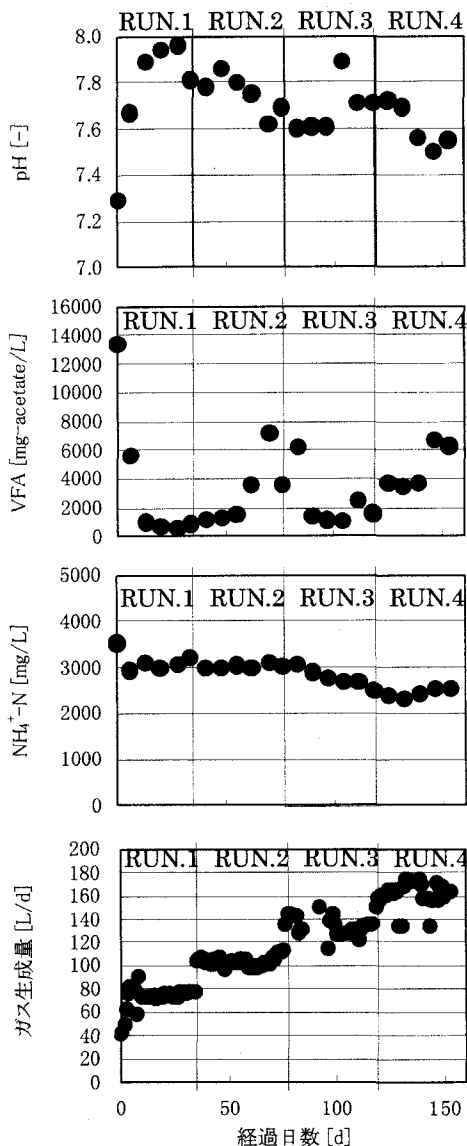


図2 中温メタン発酵槽の運転経過

を行った。対応する COD 負荷は 9.8 から 23.5 kg-COD/m³/d まで上昇した。図 2 に、中温メタン発酵槽内の pH、VFA 濃度、アンモニア性窒素濃度、ガス発生量の経日変化を示す。これによると、RUN.4 (HRT は 12.5 日、COD 負荷は 23.5 kg-COD/m³/d) まではガス生成量も段階的に増加し、pH は常に 7.5 以上を示した。VFA 濃度は一時的に約 7000mg/L まで上昇したが、メタン発酵を阻害する濃度 (約 10000mg/L) までには上昇しなかった。また、アンモニア性窒素濃度は約 3000mg/L であり、高温メタン発酵であれば VFA の蓄積や pH 低下などの阻害影響が生じる濃度であった^{30-31, 36)}が、中温メタン発酵を採用したため阻害影響がなく安定運転ができた。表 4～7 に各 RUN の条件における実験データの平均値を示す。またこの系列とは別に、HRT が 10 日、COD 負荷 29.5 kg-COD/m³/d まで上げた系列を行った。HRT10 日では VFA 濃度が 10000mg/L 以上にまで上昇し、pH が 7.1 にまで低下して酸敗の状態になり、処理ができなくなった。

この一連の実験より、本プロセスの安定運転の上限は、HRT12.5 日、COD 負荷 23.5 kg-COD/m³/d、TS 負荷 18.6 kg-COD/m³/d であることを確認できた。

表4 RUN.1実験データの平均値(HRT=30日)

		模擬食品 廃棄物	受入 混合槽	高温酸 発酵槽	中温メタン 発酵槽
pH	-	5.19	4.93	5.06	7.90
アルカリ度	mg/kg	205	525	995	15600
VFA(C2)	mg/kg	9058	11650	21275	1107
TS	g/kg	232.8	114.7	114.8	41.1
VS	g/kg	220.2	104.0	103.8	30.4
SS	g/kg	139.7	80.8	54.2	29.2
VSS	g/kg	135.6	76.4	51.5	24.0
T-COD	g/kg	294.0	146.5	169.5	51.6
S-COD	g/kg	105.7	61.3	99.2	14.1
NH ₄ ⁺ -N	mg/kg	96	1283	1443	3088
PO ₄ -P	mg/kg	342	315	419	64
ガス生成量	Nm ³ /t	—	—	—	152.8

表5 RUN.2実験データの平均値(HRT=20日)

		模擬食品 廃棄物	受入 混合槽	高温酸 発酵槽	中温メタン 発酵槽
pH	-	5.19	5.20	4.99	7.72
アルカリ度	mg/kg	205	919	594	14725
VFA(C2)	mg/kg	9058	17585	18775	7163
TS	g/kg	232.8	123.8	116.9	43.8
VS	g/kg	220.2	112.9	106.2	33.4
SS	g/kg	139.7	84.4	59.2	28.9
VSS	g/kg	135.6	78.9	55.6	24.8
T-COD	g/kg	294.0	138.7	145.3	62.4
S-COD	g/kg	105.7	83.5	103.0	22.1
NH ₄ ⁺ -N	mg/kg	96	1455	1550	3030
PO ₄ -P	mg/kg	342	283	369	58
ガス生成量	Nm ³ /t	—	—	—	150.1

表6 RUN.3実験データの平均値(HRT=15日)

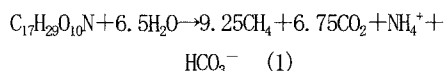
		模擬食品 廃棄物	受入 混合槽	高温酸 発酵槽	中温メタン 発酵槽
pH	-	5.19	5.00	5.01	7.73
アルカリ度	mg/kg	205	723	655	13875
VFA(C2)	mg/kg	9058	9818	14967	2483
TS	g/kg	232.8	119.3	113.3	47.9
VS	g/kg	220.2	108.3	102.7	37.2
SS	g/kg	139.7	73.1	45.3	26.0
VSS	g/kg	135.6	69.7	43.3	22.2
T-COD	g/kg	294.0	130.5	145.0	52.1
S-COD	g/kg	105.7	56.5	106.0	30.3
NH ₄ ⁺ -N	mg/kg	96	1255	1383	2663
PO ₄ -P	mg/kg	342	258	356	69
ガス生成量	Nm ³ /t	—	—	—	135.5

表7 RUN.4実験データの平均値(HRT=12.5日)

		模擬食品 廃棄物	受入 混合槽	高温酸 発酵槽	中温メタン 発酵槽
pH	-	5.19	4.84	5.03	7.58
アルカリ度	mg/kg	205	791	791	11725
VFA(C2)	mg/kg	9058	11403	13975	9398
TS	g/kg	232.8	122.0	117.3	51.8
VS	g/kg	220.2	113.7	108.3	42.0
SS	g/kg	139.7	72.2	48.3	27.5
VSS	g/kg	135.6	68.2	46.2	24.2
T-COD	g/kg	294.0	153.5	148.4	73.7
S-COD	g/kg	105.7	89.5	108.0	34.4
NH ₄ ⁺ -N	mg/kg	96	1198	1305	2448
PO ₄ -P	mg/kg	342	311	394	45
ガス生成量	Nm ³ /t	—	—	—	126.4

3.2 生ごみの分解率に及ぼすHRTの影響

各実験条件におけるメタン発酵の物質収支を、用いた模擬生ごみの疑似分子式 ${}^3\text{C}_{17}\text{H}_{29}\text{O}_{10}\text{N}$ (分子量 407) から以下の化学量論式で計算する。



CH_4 の分子量は 16、 CO_2 の分子量は 44 であるから、バイオガス化して系外に排出されるメタンと二酸化炭素は、分解 VS あたり以下の式で表すことができる。

$$(9.25 \times 16 + 6.75 \times 44) \div 407 = 1.09 \text{ g/g-VS}$$

例えば RUN. 4 の結果では、表 7 から模擬生ごみの VS 濃度 220.2 g/kg、メタン発酵後の VS 濃度 42.0 g/kg であり、重量変化が無いとした時の差し引き VS 分解量は $220.2 - 42.0 = 178.2 \text{ g/kg}$ である。この VS 分解量からメタンと二酸化炭素になる量は、 $178.2 \times 1.09 = 194 \text{ g/kg}$ であり、投入生ごみ重量の 19.4% がバイオガスに移行する。すなわち、メタン発酵槽からの流出液は投入量の約 81% しかないことになる。

従って、分解率の計算は単純な濃度の差し引きではなく、物質収支を基に算出した。

例えば RUN. 1 の結果では、表 5 から濃度の差し引きから求められる TS 分解率は、 $(232.8 \text{ g/kg} - 51.8 \text{ g/kg}) \div 232.8 = 77.7\%$ だが、発酵液の減量を考慮して以下の補正計算を行った。RUN. 4 の場合、VS 分解量から算出される減量が先述のように 194 g/kg であったので、発酵液量は基の投入物の $(1 - 0.194) \div 1 = 80.6\%$ であり、 $(232.8 \text{ g/kg} - 51.8 \text{ g/kg} \times 0.806) \div 232.8 = 82.1\%$ と算出できる。

有機物分解の指標として、以上のように物質収支を基に計算した TS、VS および COD 分解率と HRT の関係を図 3 に示す。これによると、安定した運転を行うことができた HRT 12.5 日までで、全ての指標について分解率は 80% を上回る結果が得られた。安全を見込んで、設計 HRT を 15~20 日とすると、COD 負荷としては $14.7 \sim 19.6 \text{ kg-COD/m}^3/\text{d}$ に相当する。

3.3 ガス生成量及びメタン比率

連続実験中のガス中のメタン比率は 58~60% であった。量論式 (1) より理論的なメタンガス含有率は、

$9.25 \div (9.25 + 6.75) = 57.8\%$ と計算されるが、実験値はこれとほぼ同じ値を示した。投入 TS あたりのバイオガス生成率は HRT 20 日でおおよそ $0.62 \text{ m}^3/\text{kg-TS}$ であり、除去 VS あたりでは約 $0.75 \text{ m}^3/\text{kg-VS}$ であった。量論式 (1) に

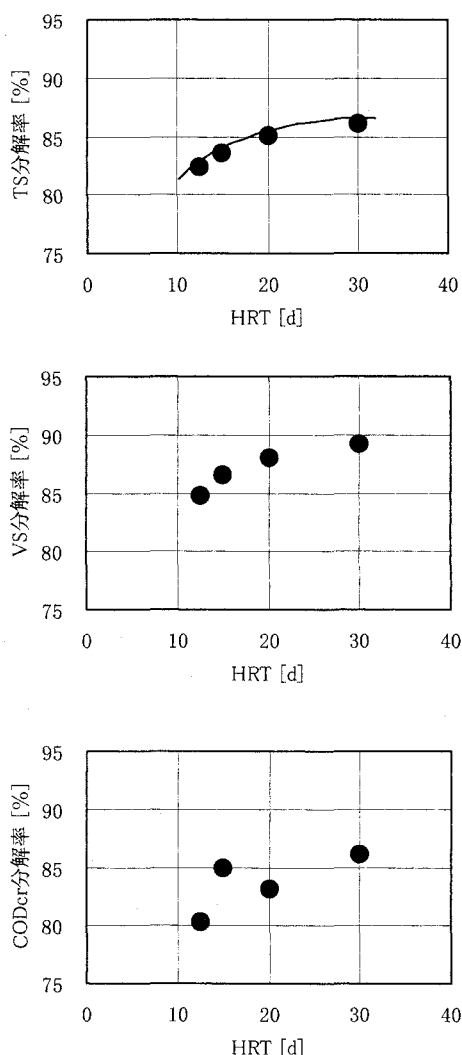


図3 本プロセスによる生ごみの分解率

基について計算した理論的バイオガス生成率は、 $(9.25+6.75) \times 22.4 \div 407 = 0.88 \text{ m}^3/\text{kg-VS}$ であり、実験値はこれとほぼ一致する。

なお、メタンガスの COD 換算当量から計算すると、 $\text{CH}_4 + 2\text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$ から理論的にはメタン 1 モル (22.4 L) は 64g の酸素に相当する (ThOD) ので、1kg の ThOD が全部メタンになるとすると $22.4/64 = 0.35 \text{ m}^3$ のメタンが生成する。もし COD で ThOD を近似できるとすると、1kg の COD を除去すると、 0.35 m^3 のメタンガスが生成される計算になる。今回のメタンガス生成率は除去 COD あたり約 $0.35 \text{ m}^3/\text{kg-COD}$ となっており、この換算係数とほぼ一致する値が得られた。

3.4 メタン発酵廃液の処理

HRT20 日の連続実験での引き抜き発酵廃液を用いて、脱水試験を行い、ろ液と汚泥の性状を分析した。脱水には 0.5% のポリアミジン (高カチオン性脱水用ポリマー) 溶液を添加し (発酵廃液: ポリアミジン溶液 = 1:0.32)、フロック形成後不織布でろ過を行った。脱水汚泥は C/N 比が 6.1 と低く、肥効成分の含有量も、有機質肥料等推奨基準に係わる認証要領に記載されている推奨値に近い値であった。また、メタン発酵における有機物の分解により脱水汚泥中の重金属含有量は数倍ほど濃縮されると考えられるので、肥料取締法で規定している重金属類について分析したところ、すべての項目に問題がないことを確認できた。従って、メタン発酵後の脱水汚泥を乾燥するだけで良質な堆肥となることが考えられる。

脱水ろ液の水質は表 8 に示す。比較参考のため既存システムの報告値も同じ表にまとめた。ここでメビウスシステム、REM システム及びリネッサシステムはいずれも生ごみと汚泥の混合物 (TS 濃度 10-13%) を処理する場合の実験結果である³⁸⁻⁴²⁾。水質の特徴は BOD 濃度が低いのにに対して窒素濃度が比較的高い。他の排水処理システムへの放流や下水道放流などによって対処できる場合を除いて、このろ液は排水としての処理が必要である。処理方法としては窒素濃度が高いため、生物学的硝化脱窒やアンモニアストリッピングなどにより窒素除去を適用する事が適切と思われる。本技術では希釈水を加えていないため脱水ろ液の発生量が少なく、アンモニア濃度も比較的高いので、アンモニアストリッピング法がより効果的と考えられる。

表 8 メタン発酵廃液脱水処理後のろ液水質

項目 (単位)	本研究(RUN. 2)	メビウスシステム ³⁸⁻³⁹⁾	REM システム ⁴⁰⁻⁴¹⁾	リネッサシステム ⁴²⁾
pH (-)	8.18	-	-	8.7
BOD (mg/L)	1,600	1,310-5,440	1,150-2,720	4,000
COD (mg/L)	3,100	-	-	-
T-N (mg/L)	2,410	-	1,450-1,800	2,500
NH ₄ ⁺ -N (mg/L)	2,220	1,090-2,480	1,340-1,710	-
T-P (mg/L)	43	-	15-62	70
PO ₄ ³⁻ -N (mg/L)	39	17-26	-	-

4. 考察

4.1 標準条件での物質収支の試算

実験結果に基づき、模擬生ごみ処理に関する標準的設計試算 (プロセス HRT を 15 日~20 日として) を行った。生ごみを 1 t/日で処理する場合のフローと物質収支を図 4 に示す。破碎分別装置でビニールや金属片などの発酵不適物を取り除き、受入混合槽で発酵液と混合を行う。3~4m³ の高温酸発酵槽で酸発酵を行い、12~16m³ の中温メタン発酵槽でバイオガスを生成させる。含水率 75% の生ごみから、発生バイオガス量は 155m³/日、メタン含有率約 60% であり、これからガスエンジンやマイクロガスタービン、燃料電池などにより発電と熱利用を行い、

エネルギー回収を行うことが可能である。ガスエンジンでは発電効率を25%とすると約230kwhが、燃料電池発電では、発電効率を35%とすると約324kwhを発電することができると試算された。またメタン発酵廃液の発生量は投入した生ごみ湿重量の約80%程度と少ない。これは本システムの最大の特徴の一つである。この廃液にポリアミジンを添加して脱水し、含水率80%の脱水污泥が0.2t得られるが、前述の通りそれを乾燥して堆肥化することが可能である。脱水ろ液は投入した生ごみ湿重量の約85%程度であり、その水質から生物学的硝化脱窒法などによる窒素除去法で処理することが考えられる。

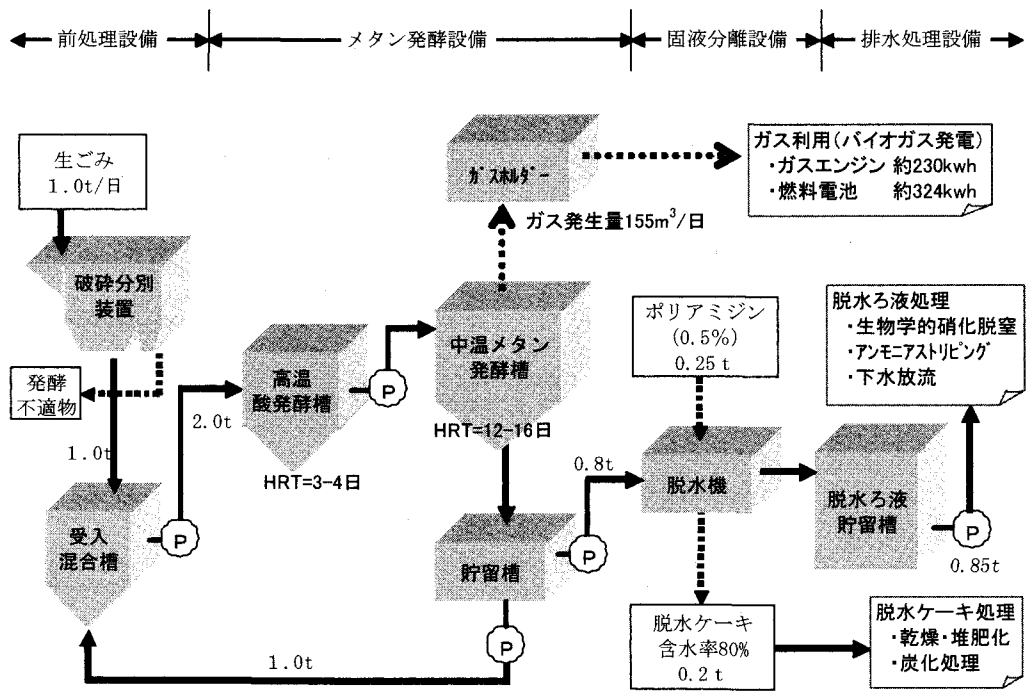


図4 本二相循環方式高濃度メタン発酵プロセスを用いた生ごみの高速メタン処理の標準フローと物質収支

4.2 プロセス評価

本研究で提案した二相循環方式高濃度メタン発酵プロセスの利点を明らかにするために、TS 負荷や COD 負荷、分解率及び投入生ごみ重量に対するメタン発酵廃液の発生倍率などの重要な設計パラメータについて既存技術と本研究の技術を比較したデータを表9にまとめた。従来の有機性廃棄物のメタン発酵法における標準的な設計条

表9 重要な設計パラメータに関する既存技術と本研究の二相循環方式技術の比較

比較項目	既存技術 ⁽³⁸⁻⁴³⁾			本研究の技術
発酵方式	1 段高温発酵	1 段中温発酵	中温・高温 2 段メタン発酵	高温・中温 2 相循環方式
投入 TS 濃度 (%)	10-13	8-13	10	20-25
HRT	>15	>15	>15	15
TS 負荷(kg/m³/d)	<8.7	<8.7	<6.7	18.6
COD 負荷(kg/m³/d)	<10	<10	<10	23.5
COD 分解率 (%)	70-75	70-75	67-73	80-85
投入生ごみに対するメタン廃液発生倍率	1.8 倍	1.8 倍	1.8 倍	0.8 倍

件は HRT 15 日、COD 負荷は 10kgCOD/m³/d であり、しかも TS 濃度の高い食品廃棄物などの場合、10%前後に調整のために希釈水を用いる必要があり、最終的に水処理をしなければならない脱水ろ液の量はもとの廃棄物量のおよそ 1.8 倍になる。本技術では処理負荷をおよそ倍ぐらい上げることができるほか、希釈水を使用しないので排水の発生量が従来のおよそ半分と非常に少なく、排水処理も含めた全体の設備もコンパクトになることが可能である。また、本二相循環方式は高温酸発酵+中温メタン発酵の温度フェーズを採用し、しかも中温メタン発酵廃液をもう一度高温酸発酵槽へ戻して処理しているので、有機物の分解が促進され、結果として COD 分解率は既存技術より 10%程度高くなっていると考えられる。このように、本研究によりここで提案した二相循環方式高濃度メタン発酵プロセスは既存技術に比較して明らかな利点がある。

特に高温酸発酵槽の役割について今回の連続実験において、表 4~7 の酸発酵槽の前後の SS および VSS 濃度を見ると、酸発酵槽のみで投入 SS、VSS の 30%以上が分解されており、溶解性 COD が約 20~80%増加していることから、高温酸発酵槽による可溶性効果が確認できたと言える。また、別途行った中温メタン発酵液の高温発酵処理の回分実験³⁷⁾によれば、高温発酵において返送された中温メタン発酵廃液 SS の可溶性率は約 36%で、ThOD 換算の VFA 濃度が 15000mg/L となっている。これを COD ベースの酸生成率に換算すると、高温発酵による返送汚泥の VFA 生成率は約 30%となる。即ち、図 1 及び図 4 における発酵液の返送循環は、投入物の希釈のみならず、再分解の効果も大きい。その温度フェーズの詳しい反応機構については今後の研究課題としたい。

4.3 アンモニア阻害の問題について

生ごみを生希釈で処理する場合、最も懸念される問題はタンパク質の分解に伴い生成するアンモニア阻害である。著者らのこれまでの研究^{30,36)}によれば、生ごみや汚泥の高濃度メタン発酵における NH₄⁺-N 阻害濃度は高温発酵では 2000-2500mg/L に対して、中温発酵では 4000-5000mg/L と耐性が強くなる。本研究の表 4~7 に示すように、高温酸発酵槽及び中温メタン発酵槽における NH₄⁺-N 濃度はそれぞれ 1500mg/L 以下及び 3100mg/L 以下であったので、アンモニア阻害の心配はなかった。有機物の分解率が 80-85%と高く、しかも生ごみの窒素含有量が 7600mg/L と高かったのに、NH₄⁺-N 濃度が 3000mg/L 程度にとどまっている原因は菌体合成の影響にある。本研究のケースでは、メタン発酵後に残存している VS はほとんど嫌気性細菌の菌体(C₅H₇O₂N)と仮定して RUN.2 (表 5 を参照) で計算すると、33g/L の VS に固定されている N 濃度は 33.4×(14/113)=4140 mg-N/L となり、投入原料窒素濃度の約 54.5%に相当する。この計算により得られる NH₄⁺-N 濃度(7600-4140=3460mg-N/L)は本研究の実験データに近い値であった。従ってメタン発酵槽内の NH₄⁺-N 濃度を予測する場合、嫌気性細菌の増殖による固定分も考慮することが重要と言える。またより一般的な生ごみ処理のケースを考えるため、表 10 に生ごみ性状の調査データをまとめた。これより分かるように、生ごみ中の窒素含有濃度は 3000-7750mg/L の範囲にあり、本研究に用いたものは比較的窒素濃度が高かった。魚介類や豆腐類がリッチな特別なケースを除いて、一般的な混合生ごみに対して本プロセスを適用してもアンモニア阻害の問題がないと考えられる。

表 10 本研究に用いた生ごみの性状と文献値との比較

項目	本実験	日本環境衛生センター測定 ⁴⁴⁾					著者らの調査 (実証試験)		
分析例の番号	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	(6)	(7)	(8)	(9)
水分 (%)	76.7	75.0	85	68	77	78	77.1	79	82.2
TS 濃度 (%)	23.3	25.0	15.0	32.0	23.0	22.0	22.9	21	17.8
VS/TS (%)	94.6	88.0	86.7	87.5	91.3	86.4	93.9	95.7	95.5
T-CODcr (%)	29.4	24.0	13.0	25.0	23.0	19.0	33.5	33.1	30.5
T-N (mg/kg)	7600	4800	3000	9700	5100	6200	6280	7750	6450
T-N/TS (%)	3.56	1.92	2.00	3.03	2.22	2.82	2.74	3.69	3.62

5. まとめ

本研究で提案した二相循環方式高濃度メタン発酵プロセスでは、有機物負荷を従来技術に比較しておよそ倍ぐらい上げることができるほか、希釈水を使用しないので排水の発生量が従来のおよそ半分と非常に少なく、排水処理も含めた全体の設備もコンパクトになるメリットがある。同システムに関する連続実験を行った結果、生ごみに対して次の機能を有することが分かった。

- ① 本プロセスを用いることで、生ごみに希釈水を添加しない条件で有機物を 80～90%減量化できた。本プロセスは一般的な混合生ごみの処理に適用できると考えられる。
- ② 設計指標として酸発酵槽の HRT は 3～4 日、液温 55℃、メタン発酵槽の HRT は 12～16 日、液温 36℃である。プロセスの COD 容積負荷 15～20kg/m³/日で高速メタン発酵を行うことができた。
- ③ 1t の生ごみから約メタン含有率が約 60%のバイオガスを 155m³生産でき、もしガスエンジンで発電するなら約 230kwh、燃料電池発電なら約 324kwh の電力を回収できると試算された。
- ④ 本プロセスではメタン発酵の廃液は投入生ごみ湿重量の約 80%程度となり、脱水処理して得られる脱水ろ液は窒素リッチな排水であった。

参考文献：

- 1) 廃棄物年鑑、2003 年版、環境産業新聞社、pp71。
- 2) 高橋俊和、三上佳秀、寺岡泰浩 (1998) 横浜市ごみ質の推移について、都市清掃、Vol.51、No.223、140-145。
- 3) 森田明博、木村洋 (1990) ちゅう房系の廃棄物、空気調和・衛生工学、Vol.64、No.2、103-109。
- 4) 谷川昇、武本敏男、大木秀男、川崎照夫 (1997) 生ごみの細組成、都市清掃、Vol.50、No.217、116-11。
- 5) 大迫政浩、田中勝、光田恵 (1992) 厨芥類の臭気防止と処理について、第 3 回廃棄物学会研究発表会講演論文集、91-94。
- 6) 川本克也 (1994) 機器を用いた家庭ごみ処理の現状と課題、第 15 回全国都市清掃研究発表会講演論文集、pp50-52。
- 7) 武田信生 (1997) 循環型社会における資源化処理技術体系、都市清掃、50、533-539。
- 8) 松野正隆 (1997) 資源化処理システムのための収集・運搬・処理技術、都市清掃、50、574-582。
- 9) 李玉友 (1998) 高濃度・高負荷メタン発酵エネルギー回収システム、ISS 産業科学システムズ主催『有機性廃棄物のメタン発酵エネルギー回収技術』講習会テキスト、pp43-69。
- 10) 久芳良則 (1998) BIMA システムと実証プラント運転状況、ISS 産業科学システムズ主催『有機性廃棄物のメタン発酵エネルギー回収技術』講習会テキスト、pp70-93。
- 11) Mata-Alvarez, J. (1996) Biological household waste treatment in Europe: second Aalborg international conference. Resources, Conservation and Recycling, 17, 67-73.
- 12) Riggle, D. (1996) Anaerobic digestion for MSW and industrial wastewater. Biocycle, November 1996, 78-82.
- 13) Pfeffer, J. T. (1974) Temperature effects on anaerobic fermentation of domestic refuse. Biotechnology and Bioengineering, 16, 771-787.
- 14) Wise, D.L., Kispert, R. G. and Langton, E.W. (1981) A review of bioconversion systems for energy recovery from municipal solid waste, Part II: fuel gas production, Resources and Conservation, 6, 117-136.
- 15) Haveau, H. (1984) Anaerobic digestion in the EEC., Anaerobic Digestion and Carbohydrate Hydrolysis of Waste, pp182-194.
- 16) De Baere, L. and Verstrate W. (1984) Anaerobic fermentation of semi-solid and solid substrates, Anaerobic Digestion and Carbohydrate Hydrolysis of Waste, pp195-208..
- 17) Gupta, B. and Shepherd P. (1992) Data summary of municipal solid waste management alternatives, Volume X: Appendix H: Anaerobic digestion of MSW. NREL/TP-431-4988J.
- 18) Cecchi, F. and Traverso P. G. (1988) State of the art of R & D in the anaerobic digestion process of municipal solid waste in Europe, Biomass, 16, 259-284.

- 19) 大磯義和 (1980) スターダスト'80の現状、省エネルギー、Vol.32、No.11、65-73。
- 20) 石田昌彦、芳賀良一、下條哲男、石塚俊明 (1984) 都市ごみのメタン発酵技術、日立評論、Vol.66、No.2、67-72。
- 21) 洞沢勇 (1955) 厨芥のし尿合併消化によるガス発生に関する研究1、水道協会誌、No.251,30-36
- 22) 伊藤勝康、広畑和幸、占部武生、秋山薫、西沢千恵子 (1979) ちょう芥のメタン発酵について、東京都清掃研究所研究報告、1979、pp119-137。
- 23) 広畑和幸、伊藤勝康、西沢千恵子、占部武生、秋山薫、(1979) ちょう芥のメタン発酵について (その2)、東京都清掃研究所研究報告、1980、pp.57-81。
- 24) Cecchi, F., Pavan, P., Musacco, Mata-Alvarez, J. and Vallini, G. (1993) Digesting the organic fraction of municipal solid waste: moving from mesophilic (37 oC) to thermophilic (55oC) conditions. Waste Management & Research, 11, 403-414.
- 25) Cecchi, F., Pavan, P., Musacco, Mata-Alvarez, J., Bassetti, A. and Cozzolino, C. (1991) Anaerobic digestion of municipal solid waste: thermophilic vs. mesophilic performance at high solids. Waste Management & Research, 9, 305-315.
- 26) 東郷芳孝、横田長雄 (1996) 高温メタン発酵による有機性廃棄物処理と燃料利用、クリーンエネルギー、'96.12、45-49。
- 27) 東郷芳孝、多田羅昌浩、佐藤進、雨森司瑞利、田中俊樹 (1997) 生ごみの高温メタン発酵による処理、第8回廃棄物学会研究発表会講演論文集、pp302-304。
- 28) 佐々木宏、李玉友、奥野芳男、関廣二、上垣内郁夫 (1997) 生ごみの高濃度メタン発酵特性、第8回廃棄物学会研究発表会講演論文集、pp153-155。
- 29) 李玉友：汚泥・生ごみなどの有機廃棄物の高温メタン発酵、水環境学会誌、Vol.21、No.10、644-649 (1998)
- 30) 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回日本水環境学会年会講演集、pp.189 (2000)。
- 31) 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)。
- 32) 佐々木宏、李玉友、関廣二、上垣内郁夫：生ゴミの高温・高濃度メタン発酵における滞留時間と負荷の検討、水環境学会誌、Vol.22、No.12、pp.983-989 (1999)。
- 33) 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、413-421 (1999)
- 34) 李玉友、佐々木宏、奥野芳男、関廣二、上垣内郁夫：生ごみ・し尿汚泥の高効率メタン発酵技術に関する基礎的検討、環境技術、Vol.27、No.12、213-220 (1998)
- 35) 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、pp141-150 (2001)
- 36) 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、第36回日本水環境学会年会講演集、pp.416 (2002)。
- 37) 李玉友、船石圭介、山下耕司、関廣二：食品廃棄物の無希釈高速メタン発酵技術の構築、第12回廃棄物学会研究発表講演論文集、pp.302-304 (2001)。
- 38) 岩尾充：メビウスシステムについて、環境技術、Vol.27、No.12、7-14 (1998)。
- 39) 財団法人廃棄物研究財団、廃棄物処理技術評価第8号、混合槽とメタン発酵槽を組合わせた方式、平成10年7月。
- 40) 久芳良則：REMシステムについて、環境技術、Vol.27、No.12、15-21 (1998)。
- 41) 財団法人廃棄物研究財団、廃棄物処理技術評価第14号、し尿処理汚泥等の廃水処理汚泥及びその他有機性廃棄物の混合メタン発酵処理技術—湿式粉碎選別機とメタン発酵槽を組合わせた方式、平成11年6月。
- 42) 財団法人廃棄物研究財団、廃棄物処理技術評価第23号、し尿処理汚泥等の廃水処理汚泥及びその他有機性廃棄物の混合メタン発酵処理技術—二段メタン発酵方式、平成12年1月。
- 43) 李玉友、佐々木宏、鳥居久倫、奥野芳男：高温・高濃度消化による生ごみと汚泥の高負荷処理、第3回日本水環境学会シンポジウム(2000)。
- 44) (財)日本環境衛生センター：し尿汚泥、ちゅう芥類等有機性廃棄物の地域総合リサイクルシステム (エコランド計画) 構想に関する委員会最終報告書、pp.35 (2000)。