

(80) メタン発酵・無薬注脱水・窒素除去を組み合わせた乳牛ふん尿処理システムの実証研究

宇佐見 心¹・堆 洋平¹・李 玉友^{2*}・原田 秀樹¹・菅野 草平³・守山 寛³

¹東北大学大学院工学研究科 (〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉6-6-06)

²東北大学大学院環境科学研究科 (〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉6-6-06)

³株式会社ユアテック 技術開発センター (〒983-8622 仙台市宮城野区榴岡4丁目1番1号)

* E-mail: yyli@epl1.civil.tohoku.ac.jp

本研究では、乳牛ふん尿の低コスト・省エネルギー的簡易処理システムを確立するため「無希釈メタン発酵」+「無薬注脱水」+「高濃度縦型OD反応槽」で構成されるシステムを構築し、パイロットスケールで実証試験を行った。メタン発酵ユニットはHRT 25日、有機物負荷 7.2 kg-COD_C/m³/日の条件においてCOD_C除去率が 40.1%であった。縦型ODユニットはHRT 16.7日、BOD負荷 0.136 kg-BOD/m³/日、窒素負荷 0.121 kg-N/m³/日の条件においてBOD₅除去率 95.9%、T-N除去率 91.8%であった。システム全体で乳牛ふん尿中の有機物、窒素を96%以上除去することができ、無薬注での高効率処理が可能であった。

Key Words : cattle manure, methane fermentation, oxidation ditch with vertical circle, nitrogen removal, dewatering

1. はじめに

日本で発生するバイオマス量は平成 18 年度で約 2 億トンであり、その内家畜排せつ物は約 8,900 万トン占めている。その中で乳牛ふん尿は約 2,600 万トンである。平成 11 年度の「家畜排せつ物の管理の適正化と利用の促進に関する法律」(略称「家畜排せつ物法」)の施行(平成 16 年度完全施行)により、家畜排せつ物の野積み・素掘りが禁止されたため、処理または有効利用することが必要となっている。発生量の約 90%以上が堆肥化されているが、堆肥を散布する農地の確保が困難であり、水分含有量の多い乳牛ふん尿等の堆肥化処理には、おがくずなどの水分調整材が必要である。しかし、近年ではバイオマス利用の普及により木質系バイオマスとして見直され始め、水分調整剤の確保が困難な状況になっている。一方で、メタン発酵によるふん尿の処理が注目を集めている。

メタン発酵は、バイオガスが回収可能で発酵後の廃液は液肥として利用でき資源循環が可能である。しかし、散布する敷地、方法などに課題が残る。液肥として利用できない場合は、発酵廃液が高濃度であることから、高度な水処理設備が必要となり、処理コストが負担となることが多い。特に薬品添加はランニングコストの増大に

つながるが、薬品添加を行わないと脱離液処理設備の負担が大きくなり、無薬注処理はほとんど用いられていない。これらのことから、今後のバイオガスプラントの小規模分散型の畜産農家への普及拡大には、建設コストが低く、運転管理しやすいシステムの構築は不可欠である。

課題解決に向け、消化液の処理方法として縦型 OD 反応槽に着目した。単一槽で好気・無酸素プロセスが制御でき、硝化・脱窒反応による窒素除去が可能である¹⁾²⁾。縦型 OD 反応槽は、同能力を有する一般的な OD 法と比較して、設置面積を 50%、エネルギー消費量を 40%減少させるという報告もあり¹⁾、低コスト化が期待できる。

本研究では、乳牛ふん尿の低コスト・省エネルギー的簡易処理システムを確立するため、「無希釈メタン発酵」+「無薬注脱水」+「高濃度縦型 Oxidation Ditch (OD)反応槽」というシステムを構築した(図-1)。そして、乳牛 30 頭分のふん尿(2 m³/日)に対応したパイロットプラントを牧場内に建設して、223 日間の連続処理による実証試験を行い、各ユニットの流入水、流出水の性状を分析し、無処理・無希釈の高濃度乳牛ふん尿のメタン発酵、消化液の無薬注脱水、高濃度消化脱離液の有機物および窒素除去に重点を置いて、本システムを評価した。

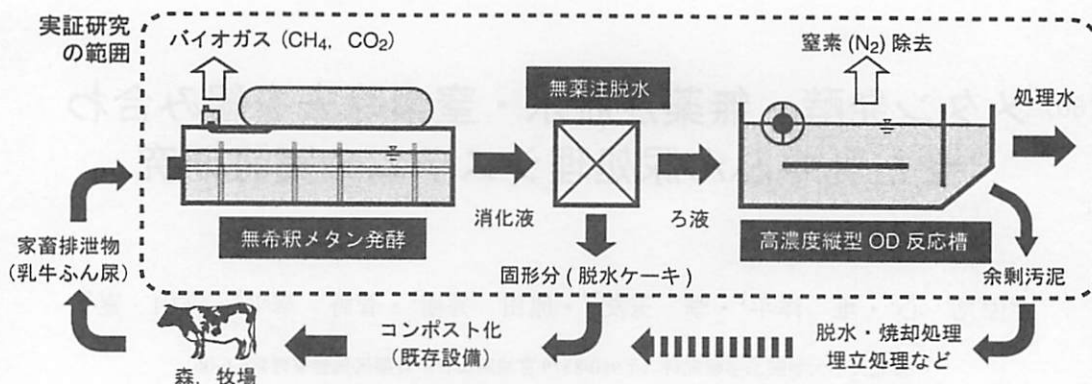


図-1 本研究で構築した乳牛ふん尿の処理システム

2. 実験方法

(1) 実験材料及び実験条件

実験材料は、宮城県内の牧場で発生する乳牛ふん尿を用いた。この牧場では、フリーストール牛舎によって乳牛60頭が飼育されており、1日約4 m³のふん尿が排出される。スラリー状のふん尿はスクレーパーで搬出し、原料貯留槽へ移送され、その後堆肥化処理が行われている。

本研究は、この無処理・無希釈の乳牛ふん尿をメタン発酵の流入基質として、滞留時間約2日の原料貯留槽からポンプ移送により、1日2回メタン発酵槽へ自動投入した。メタン発酵廃液である消化液は、消化液貯留槽へ排出後、固液分離装置による無薬注脱水を行い、脱離液（ろ液）と固形分（脱水ケーキ）に分離した。ろ液はろ液貯留槽、脱水ケーキは敷地内の堆肥化施設へ搬出した。ろ液貯留槽でろ液を水道水で2倍希釈にし、希釈ろ液を縦型OD反応槽の流入水として、1時間に1回自動投入した。全運転期間を通して各ユニットでのpH調整剤等、薬品の添加は行わなかった。各貯留槽での温度管理も行っていない。

(2) 投入基質の性状

本研究における乳牛ふん尿の組成を表-1に示す。乳牛ふん尿の初期性状はTS 13.6%、VS 11.6%であり、VS/TS比は85%であった。また敷料・粗飼料由来の難分解性成分を多く含有していたため、高濃度な廃棄物であった。

(3) 実験装置

a) メタン発酵ユニット

本研究で用いたメタン発酵槽の概要を図-2に示す。メタン発酵槽の有効容積は50 m³（L 11 m × H 2.5 m × Φ1.2 m）とした。目標とした1日あたりの原料投入量が2 m³であるため、メタン発酵槽の滞留時間は25日となる。

リアクターの形式は横型反応槽を用いた。発酵槽内の攪拌は、3枚1組の攪拌翼を4カ所に備えた横型パドル

表-1 乳牛ふん尿の性状

項目	単位	平均	標準偏差
pH	-	7.70	0.10
アルカリ度 (pH=4.8)	mgCaCO ₃ /L	6650	534
COD _{Cr} total	mgCOD/L	162000	33600
soluble	mgCOD/L	29500	3960
solid	mgCOD/L	137000	30000
タンパク質	mgCOD/L	43300	4840
炭水化物	mgCOD/L	49600	14800
脂質	mgCOD/L	32800	4840
TS	%	13.6	0.98
VS	%	11.6	0.93
SS	%	12.6	1.3
VSS	%	10.9	1.1
VFA total	mgCOD/L	7110	2430
酢酸	mgCOD/L	4420	1400
プロピオン酸	mgCOD/L	1400	540
酪酸	mgCOD/L	870	357
吉草酸	mgCOD/L	170	98
TN	mg/L	5350	508
NH ₄ ⁺ -N	mg/L	1480	158

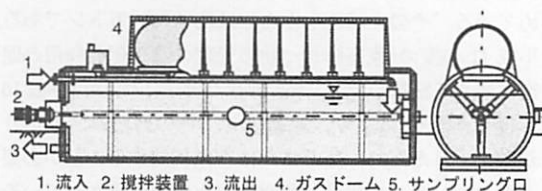


図-2 横型メタン発酵槽

方式を採用し、タイマー制御によって15分毎に5分間攪拌するように設定した。発酵槽内の温度制御は、運転の安定性を考慮して、発酵槽内に通した温水循環パイプに電気温水器から温水を循環させて行った。温度センサーによって下限33℃、上限37℃とし、中温条件に制御している。メタン発酵の植種源は、乳牛ふん尿を嫌気性自己分解させることで自己調達した。スタートアップの方法は、安田ら³⁾の方法に準じて行った。

b) 脱水ユニット

固液分離装置は、1 m³/hの消化液の脱離液処理に対応した、1 mmメッシュのローラープレス式固液分離装置(株式会社サンロイヤルファミリー製サフィテセパレーター SF-70E)を用いた。

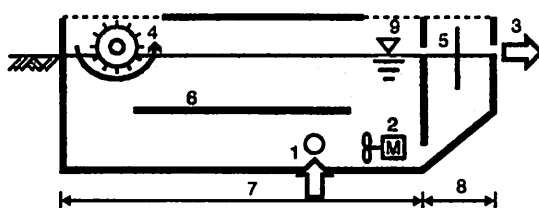
c) 縦型ODユニット

本研究で用いた縦型 OD 反応槽の概要を図-3 に示す。縦型 OD 反応槽は沈澱池一体型で、総容積は 60 m³ (L 11.8m × H 3.0 m × W 2.59 m) である。縦型 OD 反応槽が 50 m³、沈澱池が 10 m³ で沈降汚泥は槽内へ返送され、上澄水が流出する仕組みとなっている。高さ 1.5 m の位置に仕切り板を設けることで、上部に好気ゾーン (25 m³)、下部に無酸素ゾーン (25 m³) をそれぞれ形成させ、硝化・脱窒反応による窒素除去を目的としている。反応槽への酸素供給は回転ロータ方式による連続曝気とし、回転数はインバーター制御によって調整を行った。反応槽の攪拌は水中プロペラ (攪拌クリマン) によって行い、タイマー制御によって 15 分毎に 5 分間稼働するように設定した。運転期間中、温度調整は行わなかった。植種汚泥には、宮城県 A 浄化センターの OD 法活性汚泥を用いた。

(4) 分析方法

各ユニットの流入水と処理水をそれぞれ週 1 回採取して水質分析を行った。TS、VS、SS、VSS、アルカリ度及び BOD₅ の分析は下水試験方法⁴⁾に準じて測定した。COD_{Cr} の測定は Standard Methods⁹⁾に準じて測定した。炭水化物濃度はグルコースを標準物質としたフェノール硫酸法、タンパク質濃度はアルブミンを標準物質とした Lowry 法、脂質濃度は Bligh-Dyer 変法によって抽出し、重量法で測定した。溶解性の COD_{Cr}、炭水化物、タンパク質および脂質については、試料を遠心分離(3,000 rpm, 20 分間, 4℃)し、上澄液を 0.45 μm フィルターを用いてろ過したものを溶解性成分とし、蒸留水で適当な濃度に希釈して用いた。上記条件で、遠心分離が不十分な場合には 15,000 rpm, 5 分間, 4℃で行った。炭水化物、タンパク質、脂質濃度の COD 換算値はそれぞれ 1.067 mg-COD/mg-Carbohydrate, 1.24 mg-COD/mg-Protein, 2.88 mg-COD/mg-Lipid を用いた。

揮発性脂肪酸 (VFA) 濃度は酢酸、プロピオン酸、i-酪酸、n-酪酸、i-吉草酸、n-吉草酸を標準物質として、FID ガスクロマトグラフ (Agilent6890型) 法により定量した。DB-WAXer キャピラリーカラム (30 m×0.53 mmID, 1.0 μm) を使用し、キャリアガスはヘリウム (圧力 38.6 kPa, 流量 5.5 mL/分)、メイクアップガスもヘリウム (流量 45 mL/分) を用いた。カラムオーブンは 125℃ で 5 分, 125℃ から 180℃ まで 15℃/分, 180℃ で 12 分の段階的昇温操作を行った。検出器の温度は 280℃ とした。試料は遠心分離 (3,000 rpm, 20 分間, 4℃) し、millipore 社製の 0.45 μm



1. 流入 2. 攪拌装置 3. 流出 4. 回転ロータ曝気装置
5. スカム分離板 6. 板 7. 縦型OD反応槽 8. 沈澱池 9. 金網

図-3 縦型OD反応槽

LCR (Low Protein Binding Hydrophilic LCR Membrane) を用いてろ過し、0.1 N の HCl で 1 : 1 に混合し、pH を 2 以下にした試料を測定した。

アンモニア性窒素 (NH₄⁺-N)、硝酸性窒素 (NO₃⁻-N) 及び亜硝酸性窒素 (NO₂⁻-N) は試料の溶解性成分を対象として、下水試験方法⁴⁾に準じて測定した。アンモニア性窒素はインドフェノール青吸光度法、硝酸性窒素は銅・カドミウムカラム還元-ナフチルエチレンジアミン吸光度法、亜硝酸性窒素は N-(1-ナフチル)エチレンジアミン吸光度法でそれぞれ求めた。遊離アンモニア (NH₃-N) は Anthonisen ら⁹⁾の式に従って算出した。

バイオガス (CH₄, CO₂, N₂) の組成は TCD ガスクロマトグラフ (SHIMADZU, GC-8A) を用いて行った。He をキャリアガスとして流量は 30 mL/分に設定し、カラム温度 70℃, 検出器/注入孔温度 100℃, TCD 電流 80 mA, ATTENUATION64 の条件で分析した。H₂S は気体検知管 (GASTEC, No.4H) を用いて測定した。

3. 実験結果および考察

(1) メタン発酵ユニットの評価

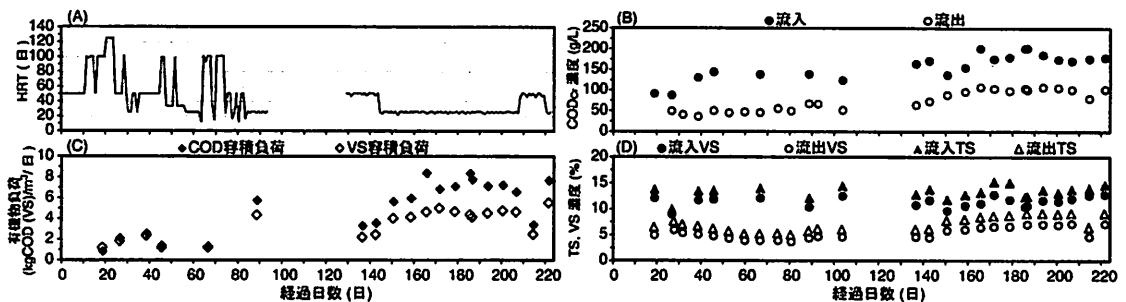
表-2 に各ユニットの定常状態における運転条件と水質分析の結果を示す。また図-4 にメタン発酵槽の HRT、有機物負荷、COD_{Cr}、TS・VS 濃度の経日変化を示す。

運転開始直後から原料ポンプの不調により、乳牛ふん尿の投入量が安定せず、HRT の長期的な制御は困難であった。95 日から 128 日までの約 1 ヶ月間は、原料ポンプの故障により、メタン発酵槽への乳牛ふん尿の投入ができなかった。ポンプ修理後、129 日よりメタン発酵槽の運転を再開した。HRT 50 日で 2 週間運転を行い、その後目標である HRT 25 日で運転を継続した。運転開始 185 日から 208 日において、発酵液の性状が安定したことから、この期間を定常状態におけるメタン発酵槽の処理性能として評価した。

運転期間中、pH は 7.8±0.1 で安定しメタン生成古細菌に最適な範囲⁷⁾にあった。流出水の COD_{Cr}、TS、VS 濃度は、負荷の上昇に伴い増加したが、徐々に安定し定常

表2 各ユニットの定常状態における運転条件と水質分析結果

	メタン発酵ユニット	脱水ユニット	縦型ODユニット
運転条件			
HRT (日)	25	消化液を	16.7
温度 (°C)	36 ± 0.6	ローラープレス式	28 ± 3.7
pH	7.8 ± 0.1	固液分離装置で	7.9 ± 0.1
MLSS (mg/L)	-	1 m ³ /hでろ過	11300 ± 1300
COD容積負荷 (kg-COD/m ³ /日)	7.2 ± 0.5		1.5 ± 0.4
BOD容積負荷 (kg-BOD/m ³ /日)	-		0.136 ± 0.032
T-N容積負荷 (kg-N/m ³ /日)	-		0.121 ± 0.025
各プロセスの流入水及び流出水			
	乳牛ふん尿 流入	消化液 流出・流入	生ろ液 流出
pH	7.70 ± 0.10	7.80 ± 0.10	7.85 ± 0.01
BOD ₅ (mg/L)	-	-	4900 ± 504
COD _{Cr} (mg/L)	162000 ± 33600	106000 ± 3460	62100 ± 3080
TS (%)	13.6 ± 0.98	9.2 ± 0.1	6.15 ± 0.78
VS (%)	11.6 ± 0.93	7.2 ± 0.1	3.75 ± 0.07
SS (mg/L)	126000 ± 13000	79700 ± 3330	44900 ± 7960
VSS (mg/L)	109000 ± 10900	63700 ± 2790	26900 ± 755
T-N (mg/L)	5350 ± 508	5400 ± 349	4910 ± 660
除去率 (%)			
COD _{Cr}	40.1 ± 1.3	44.5 ± 5.1	90.4 ± 0.7
BOD ₅	-	-	95.9 ± 1.0
TS	31.4 ± 3.1	38.8 ± 2.9	79.1 ± 2.5
VS	37.7 ± 2.9	47.6 ± 2.8	89.2 ± 1.1
SS	35.6 ± 8.5	48.9 ± 4.1	98.0 ± 0.3
VSS	40.6 ± 7.0	57.3 ± 3.6	98.4 ± 0.4
T-N	1.6 ± 1.7	7.7 ± 2.1	91.8 ± 3.3

図-4 経日変化(A)HRT, (B)COD_{Cr}濃度, (C)有機物負荷, (D)TS・VS濃度

状態となった。VFA、NH₄⁺-N、NH₃-N濃度はそれぞれ109mg-HAc/L、2,320mg-N/L、208mg-N/Lであり、メタン発酵反応への阻害は見られなかった。

有機物負荷 72 kg-COD_{Cr}/m³/日において、COD_{Cr}、TS、VS および SS 除去率はそれぞれ 40.1%、31.4%、37.7%および 35.6%であった。このパイロットスケールの実験結果は、櫻井ら⁹⁾が行った無希釈乳牛ふん尿のラボスケール実験と同程度の処理能力を有していることが分かった。最適な牛ふん尿の中温メタン発酵の運転条件は、HRT 20-30 日、VS 負荷量 5 kg-VS/m³/日であると報告しており、本研究の横型メタン発酵においても HRT 25 日、VS 負荷量 4.5 kg-VS/m³/日で定常状態となったため、同等の処理条件での安定した処理が実現できた。

メタン発酵で発生するバイオガスのメタン、二酸化炭

素および硫化水素含有率はそれぞれ 60.1%、39.6%、0.145%であった。バイオガス生成量はガスドームにガス漏れが生じ、正確に把握することが困難であった。そのため COD_{Cr}除去量 1g あたり 0.35 L のメタンガスが生成するとして、COD 物質収支より算出した。その結果、基質 1 m³あたりのバイオガス生成量 (以下、ガス生成倍率)は 33.7±7.6 m³/m³-ふん尿と換算できる。ガス生成倍率の約 20%の変動理由として、基質である乳牛ふん尿の COD_{Cr}の標準偏差が表-1 で示すように約 20%であることに由来する。これは飼料や牛舎使用水量の季節変動が大きいことに起因している。また牛ふんを対象としたメタン発酵処理におけるガス生成倍率は、他の報告⁹⁾と比較して高い傾向にあった。流入基質 VS 濃度の増大に伴い、ガス生成倍率が增大すると報告されており^{9) 10)}、本研究

の投入基質 VS 濃度が他の報告と比較して高かったことに由来すると考えられる。

(2) 脱水ユニットの評価

メタン発酵が定常状態時に行った消化液の固液分離の結果を表-2 に示す。無薬注で行った固液分離では、 COD_G 、TS、VS および SS の除去率はそれぞれ 44.5%、38.8%、47.6%および 48.9%であった。脱水ケーキは主にワラや穀物かすで占められていたため、消化液に含まれる飼料由来の未分解粗繊維が固液分離装置によって除外された事に除去率が起因すると考えられる。図-5 にメタン発酵槽の定常状態時における COD 構成成分別の濃度の推移を示す。メタン発酵によって、乳牛ふん尿の炭水化物、タンパク質、脂質はそれぞれ 25.6%、46.2%、41.9%除去され、構成成分比も処理前と後ではほとんど差はみられなかった。消化液を固液分離することで炭水化物、タンパク質、脂質はそれぞれ 29.3%、64.9%、2.3% 除去された。固液分離装置によって脂質成分はほとんど除去されず、炭水化物が COD_G 除去の大半を占めていることが確認できた。この結果は、未分解粗繊維の除去にも関係していると考えられる。

脱水ユニットの物質収支として、 2 m^3 (100%)の消化液を処理すると、 1.6 m^3 (1.63 t)のろ液と 0.69 m^3 (0.37 t)の脱水ケーキに分離される。重量比 (w/w)で、ろ液 81%、脱水ケーキ 19%であった。また脱水ケーキの含水率は約 78%であった。

(3) 縦型ODユニットの評価

a) 余剰汚泥発生率の把握

活性汚泥法の短所として、大量の余剰汚泥が発生する。そのためOD槽内の汚泥濃度を一定に維持するためには、余剰汚泥発生率の把握が必要不可欠である。そこでOD槽累積ろ液投入量に対する槽内総汚泥量の比から余剰汚泥量の算出を試みた。算出にあたり槽内総汚泥量を式(a)と定義した。

$$\begin{aligned} \text{槽内総汚泥量 (kg)} &= [\text{反応槽内 MLSS 濃度 (kg/m}^3\text{)}] \\ &\times [\text{反応槽容量 (50 m}^3\text{)}] + \sum [\text{汚泥引抜量 (kg)}] \quad (\text{a}) \end{aligned}$$

図-6 に OD 槽における余剰汚泥発生量の解析結果を示す。近似直線より、投入希釈ろ液 1 m^3 に対して約 3.6 kg ($R^2=0.97$)の余剰汚泥が発生すると算出された。データ解析時の投入量が $3\text{ m}^3/\text{日}$ であるため、 $10.8\text{ kg}/\text{日}$ の汚泥が発生すると計算できた。解析したデータに基づいて余剰汚泥を引き抜いた結果、運転開始 74 日から 93 日において OD 槽内の MLSS 濃度を一定に維持することが可能であった (図-7 (D))。また下水を対象とした OD 法の除去 SS 量当たりの汚泥発生率が 75%であると報告されて

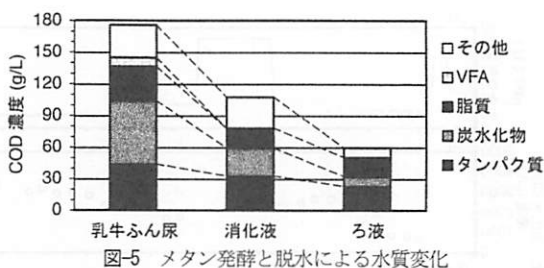


図-5 メタン発酵と脱水による水質変化

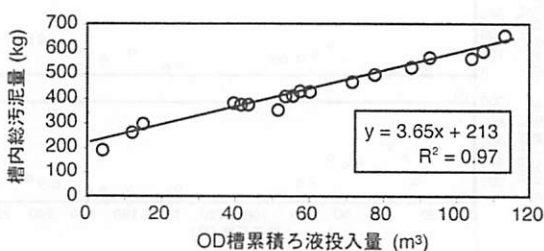


図-6 OD槽における余剰汚泥発生量の解析

いる¹¹⁾。本研究の結果から汚泥発生率を算出すると $52\pm 5\%$ となった。上述の下水処理 OD 法と比較すると約 20%汚泥発生率が低い値となった。この理由として、本研究が既往の OD 法と比較して長い HRT であること、そして基質が下水ではなくろ液であることが挙げられる。

以上の結果から、廃水処理方法として縦型 OD 反応槽を選択することで余剰汚泥発生量の低減が期待できる。

b) 連続運転の水質結果

図-7 に縦型 OD 反応槽の HRT、温度、槽内汚泥濃度、流出水 COD_G 、流出水 BOD_5 、流出水窒素、流出水 T-N、DO 濃度の経日変化を示す。運転 120 日目あたり (9 月上旬)から、冬期に近づくにつれ気温の低下がみられた。しかし、外気温の低下に伴う反応槽の水温に顕著な温度低下は見られず、 20°C 以上を維持することが可能であった。これは反応槽の 2/3 を地中に埋設したことによる保温効果と、MLSS を高濃度 ($11,000\text{ mg/L}$)に保持したことによる、微生物代謝の活性化に伴う発熱量の増大が考えられる。

運転開始 74 日から 93 日において、流出水の水質及び汚泥濃度が安定したことから、この期間を定常状態における縦型 OD 反応槽の処理性能として評価した。95 日から 128 日までの約 1 ヶ月間は、メタン発酵槽のトラブルにより基質確保が難しく、低負荷運転を行った。

HRT 16.7 日 、 COD_G 、 BOD_5 、T-N 容積負荷が $1.5\text{ kg-COD}_G/\text{m}^3/\text{日}$ 、 $0.136\text{ kg-BOD}_5/\text{m}^3/\text{日}$ 、 $0.121\text{ kg-N}/\text{m}^3/\text{日}$ の時、 COD_G 、 BOD_5 、TS、SS、T-N の除去率はそれぞれ 90.4%、95.9%、79.1%、98.0%、91.8%であった。窒素除去においてアンモニア性窒素、硝酸性窒素、亜硝酸性窒素の処理

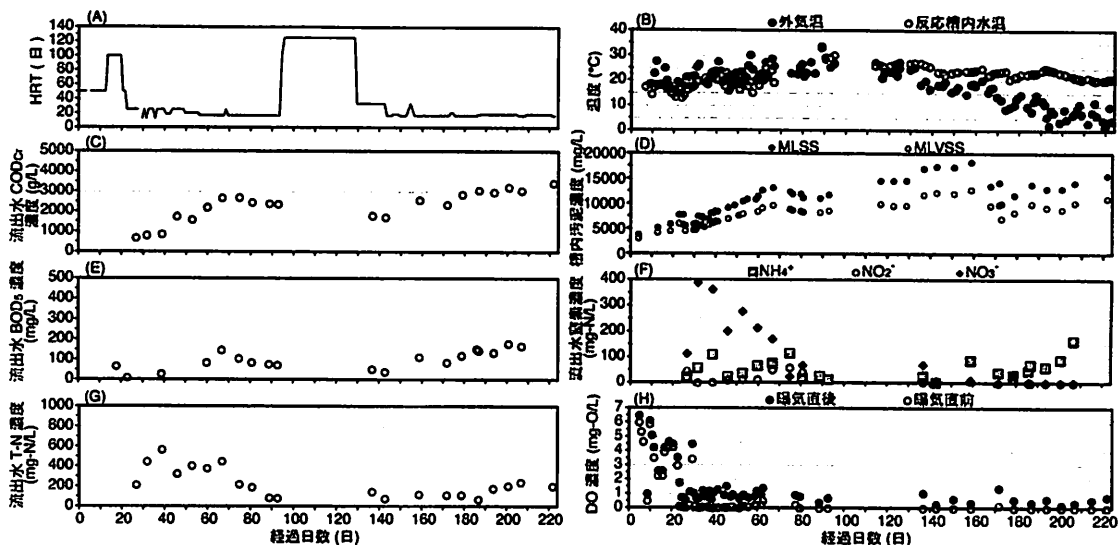


図-7 経日変化(A)HRT, (B)温度, (C)流出水 COD_{Cr} , (D)槽内汚泥濃度, (E)流出水 BOD_5 , (F)流出水窒素, (G)流出水 T-N, (H)DO

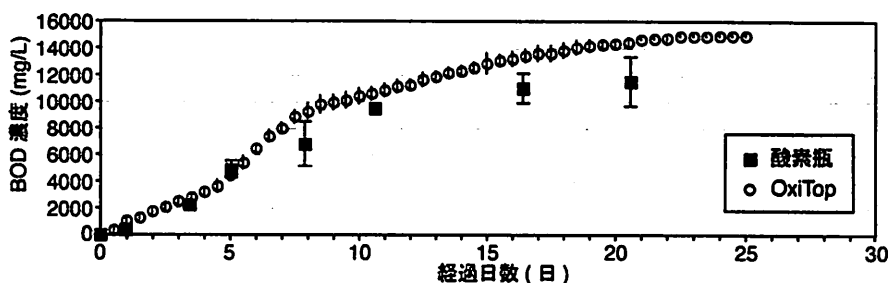


図-8 ろ液のUBOD濃度測定結果

水中の濃度はそれぞれ 20.1 mg-N/L, 38.0 mg-N/L, 49.7 mg-N/L であった。DO 濃度は、曝気直後で 0.77 ± 0.27 mg/O/L, 曝気直前で 0.06 ± 0.10 mg/O/L であった。この結果から OD 槽の下部では無酸素状態になっていると考えられる。一般的に DO 濃度が 0.1 mg/O/L 以下になると脱窒が進行し¹²⁾, OD 法においては DO 濃度が 0.1-0.5 mg/O/L のとき硝化と脱窒が同時に進行するという報告があり^{13) 14) 15)}, 本研究でも DO 濃度がこれに近い値であり良好な硝化・脱窒反応が行われていたと示唆された。

家畜ふん尿の消化液の浄化処理の研究報告はほとんどない。片岡ら¹⁶⁾は豚ふん尿を対象としたメタン発酵と OD 法の実証試験を行っている。消化脱離液の処理において本研究と同等の除去率を示しているが、メタン発酵の前に豚糞の前処理、OD 法の前に流入ろ液の沈殿分離処理を必要とする。本研究の流入基質濃度は片岡ら¹⁶⁾の倍以上であり、このような高濃度流入基質を対象としても良好な処理結果が得られた。

c) 消化脱離液(ろ液)の BOD_5 :N の評価

脱窒反応に最適な BOD_5 :N はメタノールを水素供与体とした場合 2.86:1 と計算できる。また Narkis ら¹⁷⁾はメタノール、酢酸ナトリウム、凝集沈殿後の下水を水素供与体とした場合 BOD_5 :N は 2.36-2.38:1 と報告している。本研究のろ液について分析したところ、 BOD_5 :N が 1:1 で上記の BOD_5 :N の条件に当てはまらない。しかし本研究では良好な窒素除去能を示した。そこでろ液の Ultimate BOD (UBOD)を測定した。UBOD の測定には、下水試験方法の BOD 測定の条件に準じて希釈倍率を段階的に変えて酸素瓶で測定する方法⁹⁾と圧力センサー方式 BOD 測定器である OxiTop®Control (OxiTop®OC100, OxiTop®C, WTW, Weilheim, Germany)を用いた。UBOD の測定結果を図-8 に示す。図から、 BOD_5 は 4,500-5,000 mg/L, UBOD は酸素瓶法で $11,500 \pm 1850$ mg/L, OxiTop では $14,970 \pm 70$ mg/L となり、両測定法に多少の差が生じたが、メタン発酵ろ液において BOD_5 では UBOD の 30-40%しか評価できないことが分かった。OxiTop のデータから UBOD:N を計算したところ、 2.98 ± 0.02 :1 となった。縦型 OD 反応槽の HRT が 16.7 日と長く、遅分解

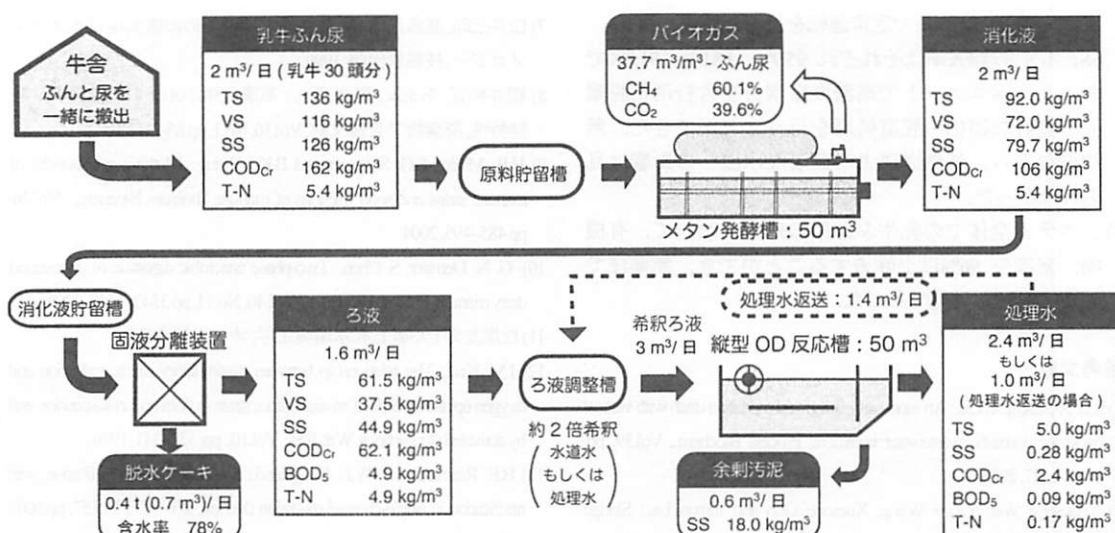


図-9 システム全体の物質収支

性有機物も分解反応が進むため脱窒反応に十分適した基質であると判断できた。

さらに UBOD/COD_{Cr} が 0.24 と低いことから、メタン発酵で易分解性の有機物のほとんどが除去され、消化液のろ液成分には難分解性および遅分解性有機物で構成されていると示唆された。

(4) 物質収支によるシステム全体での評価

牛舎から排出される乳牛ふん尿 2 m³ (乳牛 30 頭分)に対応した、本研究で構築したシステム全体での物質収支を図-9 に示す。物質収支に用いたデータは、各ユニットの定常状態における結果を使用した。

乳牛ふん尿 2 m³ は、メタン発酵ユニットによって 33.7 m³/m³-ふん尿のバイオガス、消化液は脱水ユニットによって 1.6 m³ のろ液と 0.4 t (0.7 m³, 含水率 78%) の脱水ケーキ、希釈ろ液は縦型 OD ユニットによって 2.4 m³ の処理水と 0.6 m³ の余剰汚泥に転換された。

本実証試験においてろ液の希釈には水道水を用いたが、処理水を希釈水として利用する返送機能を備えた場合、処理水の流出量は 1 m³ になると試算された。高濃度で廃液が処理できると、希釈のための水の確保や発生流出水量を少なくすることが出来る。本研究では高濃度ろ液を 2 倍希釈で処理可能で、その水源を処理水で代用可能であると示唆された。そのため本ユニットは乳牛ふん尿 1 m³ あたりの発生流出水量を低減させる可能性がある。

窒素収支において、乳牛ふん尿 2 m³/日に含まれる 10.8 kg-N の窒素は、脱水ユニットで 27%、縦型 OD ユニットで 69%それぞれ除去され、処理水として 0.4 kg-N/日排出される。乳牛ふん尿を本システムで処理した場合、COD_{Cr}、TS、VS、SS、VSS、T-N の除去率はそれぞれ

98.5%、96.3%、98.5%、99.8%、99.8%、96.7%であり高い除去が可能であった。

本システムでは投入廃棄物の 50%が固形分と余剰汚泥として排出される。脱水ケーキは、乳牛ふん尿と比較して含水率が低く、コンポストとして有効利用する際に水分調整剤の使用量の低減が期待できる。また余剰汚泥発生率は従来法と比較して約 20%低減可能であり、より小規模な余剰汚泥の脱水処理が可能であると示唆された。

4. まとめ

パイロットスケールの「無希釈メタン発酵」+「無薬注脱液」+「高濃度縦型 OD 反応槽」システムによる連続処理実験を 223 日間行った結果、牛 30 頭分の乳牛ふん尿に対応した高効率処理が可能であった。得られた知見を以下に記す。

- 1) 無希釈乳牛ふん尿に対してメタン発酵は、HRT 25 日、COD_{Cr} 容積負荷 7.2 kg-COD_{Cr}/m³/日で定常運転を行った結果、COD_{Cr}、TS、VS、SS の除去率は、それぞれ 40.1%、31.4%、37.7%、35.6%であった。バイオガスの組成は、メタン 60.1%、二酸化炭素 39.6%、硫化水素 0.145%で、ガス生成倍率は 33.7±7.6 m³/m³-ふん尿であった。
- 2) 消化液に対して無薬注脱液を行った結果、消化液から 81% (w/w) のろ液と 19% (w/w) の脱水ケーキに分離できた。COD_{Cr}、TS、VS、SS の除去率はそれぞれ 44.5%、38.8%、47.6%、48.9%であった。
- 3) 高濃度縦型 OD 反応槽において、HRT 16.7 日、BOD 容積負荷、T-N 容積負荷がそれぞれ 0.136 kg-BOD/m³/

日, 0.121 kg-N/m³/日で定常運転を行った結果, BOD₅, SS, T-N の除去率はそれぞれ 95.9%, 98.0%, 91.8%であった。本ユニットで高濃度窒素分を含む消化脱離液の良好な硝化・脱窒処理を行うことができた。無加温ながら, 外気温による顕著な水温への影響は見られなかった。

- 4) システム全体での乳牛ふん尿の処理において, 有機物, 窒素を 96%以上除去することができ, 無薬注での安定処理が可能であった。

参考文献

- 1) S.B. Xia and J.X. Liu.: An innovative integrated oxidation ditch with vertical circle for domestic wastewater treatment, *Process Biochem.*, Vol.39, pp. 1111-1117, 2004.
- 2) Yuansong Wei, Yawei Wang, Xuesong Guo and Junxin Liu.: Sludge reduction potential of the activated sludge process by integrating an oligochaete reactor, *J Hazard Mater.*, Vol.163, No.1, pp.87-91, 2009.
- 3) 安田大介, 小林拓朗, 李玉友, 原田秀樹, 岡庭良安: 乳牛ふん尿の嫌気性自己分解によるメタン発酵スタートアップ方法およびその過程における微生物群集構造の変化, *廃棄物学会論文誌*, Vol.19, No.6, pp.373-381, 2008.
- 4) 日本下水道協会: 下水試験方法, 1997.
- 5) A.P.H.A.: Standard methods for the examination of water wastewater, 18th ed, American public health association, Washington, D.C, 1992.
- 6) A.C. Anthonisen, R.C. Loehr, T.B.S. Prakasam and E.G. Srinath.: Inhibition of nitrification by ammonia and nitrous acid, *J. Water Pollut. Control Fed.*, Vol.48, No.5, pp.835-852, 1976.
- 7) 松井三郎, 高島正信: 産業廃処理のための嫌気性バイオテクノロジー, 技報堂出版, 1999.
- 8) 櫻井邦宜, 李玉友, 野池達也: 高濃度牛ふん尿の中温メタン発酵特性, *廃棄物学会論文誌*, Vol.16, No.1, pp.65-73, 2005.
- 9) H.B. Moller, S.G. Sommer and B.K. Ahiring.: Methane productivity of manure, straw and solid fractions of manure, *Biomass Bioenergy*, Vol.26, pp.485-495, 2004.
- 10) G. N. Demirer, S. Chen.: Two-phase anaerobic digestion of unscreened dairy manure, *Process Biochem.*, Vol.40, No.11, pp.3542-3549, 2005.
- 11) 松尾友矩: 大学土木水環境工学, オーム社, 2004.
- 12) J.M. Kruil.: The relationship between dissimilatory nitrate reduction and oxygen uptake by cells of an alcaligenes strain in flocs and in suspension and by activated sludge flocs, *Wat. Res.*, Vol.10, pp. 337-341, 1976.
- 13) B.E. Rittmann and W.E. Langeland.: Simultaneous denitrification with nitrification in single-channel oxidation ditches, *J. WPCF*, Vol.57, pp.300-308, 1985.
- 14) C.S. Applegate, B. Wilder and J.R. Deshaw.: Total nitrogen removal in a multi-channel oxidation system, *J. WPCF*, Vol.52, pp. 568-577, 1980.
- 15) Y. Argaman.: Single sludge nitrogen removal in an oxidation ditch, *Wat. Res.*, Vol.18, pp.1493-1500, 1984.
- 16) 片岡直明, 鈴木隆幸, 鈴木芳郎, 石田健一, 山田紀夫, 本田勝男: 家畜糞尿のメタン発酵処理システムの実証試験, *環境工学研究論文集*, Vol.36, pp.443-453, 1999.
- 17) N. Narkis, M. Rebhun, and Ch. Sheindorf.: Denitrification at various carbon to nitrogen ratio, *Water Res.*, Vol.13, pp.93- 98, 1979.

(2009. 5. 22 受付)

A Pilot Study on Cattle Manure Treatment System Combining Methane Fermentation, Dewatering without Chemicals and Nitrogen Removal

Shin USAMI¹, Yohei AKUTSU¹, Yu-You Li², Hideki HARADA¹, Souhei KANNO³ and Hiroshi MORIYAMA³

¹Dept. of Civil & Environmental Engineering, Tohoku University

²Graduate School of Environmental Studies, Tohoku University

³Yurtec Corporation

In order to develop a energy saving, low-cost system for treating dairy cattle manure, a pilot plant combining methane fermentation, dewatering without chemicals and nitrogen removal was continuously operated for 223 days. The methane fermentation unit was operated at a HRT of 25 days, corresponding to a COD_{Cr} loading rate of 7.2 kg-COD_{Cr}/m³/day, and COD_{Cr} removal was 40.1%. The OD unit was operated at a HRT of 16.7 days, corresponding to a BOD loading rate of 0.136 kg-BOD/m³/day and nitrogen loading rate of 0.121 kg-N/m³/day. BOD removal of 95.9% and T-N removal of 91.8% were obtained in the OD unit. In the whole system, the removal efficiency of organic matter and nitrogen were as high as over 96%.