牛ふん尿バイオガス化プラントへの食品廃棄物投入による混合発酵の安定条件の実験的検討

大石　千博[1]・古市　徹[2]・石井　一英[3]・金　相烈[4]

[1]非会員　北海道大学修士　大学院工学研究科（〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目）
E-mail: ooishi@kanri-er.eng.hokudai.ac.jp
[2]正会員　北海道大学教授　大学院工学研究科（〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目）
E-mail: t-furu@eng.hokudai.ac.jp
[3]正会員　北海道大学准教授　大学院工学研究科（〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目）
E-mail: k-ishii@eng.hokudai.ac.jp
[4]非会員　北海道大学助教　大学院工学研究科（〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目）
E-mail: sykim@eng.hokudai.ac.jp

本研究では，牛ふん尿バイオガス化プラントへの食品廃棄物の投入による混合発酵の安定条件を調べるために，牛ふん尿と脂質を主成分とするバターを定常投入している中温発酵槽に，炭水化物を主成分とするホエーを一時的に大量投入する実験（ホエー一時大量投入実験）と定常的に投入する実験（ホエー定常投入実験）を行なった．ホエー一時大量投入実験では，繰り返し投入によりメタン生成細菌が馴養され発酵阻害の程度が軽度になるものの，不定期な一時大量投入は安定発酵のためには避けるべきであり，定常投入が望ましいことを示した．ホエー定常投入実験により安定発酵のためのホエーの投入量を示すことができた．また，ホエーの投入量に応じて消化液中の肥効成分である窒素量が増加することを明らかにした．

Key Words : *cofermentation, cow manure, food wastes, proper loading rate, inhibition*

1.　研究背景と目的

酪農業が盛んな北海道では，産業廃棄物のうち約55%が家畜排せつ物であることから，家畜ふん尿の適正処理と有効利用が求められている．その手段としてバイオガス化が注目されている．

しかし，バイオガス施設の運営と普及は必ずしも順調に進んでいない.バイオガス施設は，これまで道内で50基ほど建設されているものの，事業採算性に乏しい．その課題を克服できる方策として，牛ふん尿以外の食品廃棄物を有料受入し,混合発酵することが考えられている.食品廃棄物を有料受入することで，処理料収入が増大するとともに，牛ふん尿の単独発酵と比較して，メタンガス回収量が向上することが期待されるからである.

ところが,食品廃棄物の投入による有機物負荷の増大や食品廃棄物中のたんぱく質の分解によるアンモニア態窒素の蓄積により発酵が阻害され，メタンガス回収量の減少，更には発酵停止の危険性がある[1)]．また，混合発酵により，液肥である消化液中の窒素量が増加し，過剰な窒素散布による環境汚染が引き起こされる可能性も否定できない.

本研究で対象とする北海道の道東地域のA町プラントは，これまで北海道で多く建設されてきた農家個人の処理施設ではなく，スケールメリットの得られる複数農家で利用する集中型バイオガス化プラントである．また，混合発酵を導入し始めたプラントであり，積極的に地域で発生する食品廃棄物を受け入れて処理している.発酵容積1,500m^{3}で，中温発酵(37℃，処理量50m^3/日，滞留時間30日)での発酵処理が可能で，牛ふん尿は約50t/日，食品廃棄物は全投入量の約10%の約5t/日を目安として発酵槽に投入している．消化液は液肥として，ふん尿搬入農家の牧草地に施用される.A町プラントでは，年間を通して食品廃棄物の処理量は全体の約2割に留まるものの，食品廃棄物受入による収入が全体収益の約7割を占めている.

このA町プラントでは食品廃棄物の投入条件に課題があり，安定的なメタン発酵の維持が困難な場合がある．発酵槽に投入される食品廃棄物のうち，廃バターのような固形物は一時保管でき定常投入が可能であるが，液状物は，貯留槽が無いため搬入と同時に発酵槽に投入せざるを得ない．A町プラントでは，液状物の代表としてホ

エー（チーズ生成プロセスから排出される廃液）が搬入されるが，その搬入は極めて不定期であり月に約1度，30t程度搬入される．それが一度に発酵槽に投入されるため，発酵阻害が生じる可能性が考えられる．そのため，将来的には液状物の貯留タンクを設置して，定常的に液状物を発酵槽へ投入できるようにすることが考えられているが，安定的なメタン発酵を確保できる定常投入量は未だ明確ではない．また，消化液は液肥として全量農地還元するため，タンパク質も含むホエーの投入により窒素量が変化することも考えられ，その変化量も明らかにする必要がある．牛ふん尿と食品廃棄物の混合発酵に関しては，中久保ら[1,2]が行っているが，ホエーを用いた混合発酵特性，あるいは複数の食品廃棄物の組み合わせた場合の発酵特性に関する研究はまだ行われていない．

今後の牛ふん尿のバイオガス化プラントの普及のためには，このような現場での投入条件を踏まえた混合発酵の安定条件を明らかにする必要がある．

そこで本研究では以下3点を明らかにする．

①一時的にホエーを大量投入した場合の発酵阻害特性

②定常的にホエーを投入した場合の発酵特性と阻害が生じない投入量

③投入条件の異なる混合発酵における消化液中の窒素量への影響

2. ホエーのバイオガス発生特性の把握

(1) 実験目的と実験条件

食品廃棄物は主に炭水化物，脂質，たんぱく質から構成されており，それぞれからのメタンガス発生量や阻害要因について様々な研究がなされている．しかし，嫌気性発酵の新陳代謝システムが完全に解明されていないことや，発酵環境に発酵特性が大きく依存することから，食品廃棄物のガス発生量や阻害の影響を予測することは難しい[2]．そこで，まず本研究で対象原料とするホエーのバイオガス発生特性としての阻害影響を把握する．

種汚泥は札幌近郊で乳牛のみ飼育しているごく一般的なB牧場のバイオガスプラントから採取した．また，ホエーも一般的な製造工程から排出されるものとしてB牧場のものを使用した．**表-1**に示すように，ホエーは炭水化物を主成分としており，アンモニア態窒素に転換されるたんぱく質も11.7%含まれていた．

容量約200 mLのバイアル瓶に種汚泥100 mLとホエー（種汚泥に対して3，20，40%）を入れた後，ヘッドスペースを窒素で置換後，密栓して37℃の恒温槽で静置した．また，対照区として種汚泥のみの試料も作成した．なお，同じ試料を3つずつ作成した．

表-1 ホエーの成分

Total Solid (TS) (%)	Volatile Solid (VS) (%)	脂質 (%)	タンパク質 (%)	炭水化物 (%)
7.2	7.0	16.4	11.7	64.4

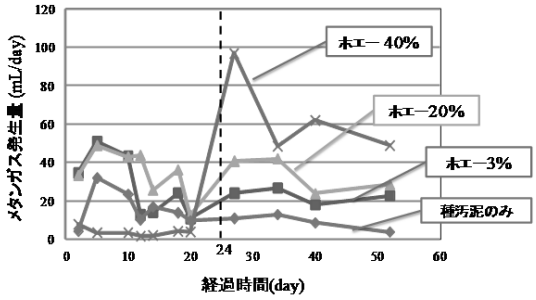

図-1 メタンガス発生量経日変化

表-2 汚泥の分析結果（24日目）

	種汚泥のみ	ホエー3%	ホエー20%	ホエー40%
pH	7.7	7.6	7.6	6.6
VFA 濃度 (mg/L)	-	1	1	7540
NH_4^+-N 濃度(mg/L)	20	1167	1762	2103

(2) 分析項目と分析方法

2～3日に一度，注射器にてバイアル内のガスを，バイアルの内圧が大気圧に等しくなるまで引き抜き体積を読み取りバイオガス発生量を求めた．またガスクロマトグラフィーを用いてメタンガス濃度，二酸化炭素濃度を測定した．

(3) 実験結果と考察

図-1にホエー投入区と対照区のメタンガス発生量の経日変化を示す．**表-2**に各実験区の実験開始後24日目における汚泥中のpH，VFA（Volatile Fatty Acid）濃度，及びアンモニア性窒素濃度の分析結果を示す．

既存研究[2,3]より，バイオガスプロセスに発酵阻害が発生すると，まず投入VSあたりメタンガス発生量やメタンガス濃度などの発酵性能の低下がみられ，最終的には発酵プロセスが完全に停止することもあることが報告されている．**図-1**よりホエー20%は経過日数10日までホエー3%と同程度のメタンガス発生量に留まっており，VSあたりのメタンガス発生量は低下していることが分かる．

さらに，ホエー40%は実験開始直後から経過日数20日までほぼメタンガスが発生しなかった．その後，急激にメタンガス発生量が向上した．**表-2**より，ホエー40%の場合，他実験区と比較してVFA濃度が7540mg/Lと高濃度であり（主たるVFAはプロピオン酸，以降同じ），pHが6.6と低い値であった．一般に，pH6.5以下になるとメタン発酵プロセスにおいて阻害が著しく発生すると言われている[3]．メタンガス発生が見られる直前の 24日時点でpHは6.6であったため，実験開始後の初期段階では，

さらにpH低下していたものと考えられ,メタン発酵が阻害されていたと推測される.

一方，アンモニア態窒素濃度は2103mg/Lであり，既存研究[3]で発酵阻害が生じると報告されている4500～5000mg/L以下で，問題が生じる濃度ではないことがわかった．このことから，ホエー40%区ではホエーが過剰に投入されたために，酸発酵菌群のよるVFA生成量が，増殖速度が比較的遅いメタン生成菌群の分解能力を超えて増加したために，VFAが蓄積し，結果としてpHが低下したために発酵阻害が生じたと考えられる.

3. ホエー混合バイオガス化連続実験による安定発酵条件の検討

(1) 実験方法

a) 実験装置

図-2に実験装置の概略図を示す．発酵槽は容積10Lのガラス円筒製の広口瓶を用いた．広口瓶の上部を塞ぐゴム栓に，発酵原料投入・汚泥引抜口とバイオガス捕集口を設け，プロペラ式攪拌機シャフトが通る様に加工した．発酵槽内スラリーはプロペラ式攪拌機により，攪拌回転数120 rpmとして連続攪拌を行なった．温度調節器により調節された温水で発酵液温度を中温発酵に適した37℃に保った．発酵資材の投入・汚泥の引抜量は200 g/日として，A町プラントの滞留時間30日と同様の条件とした.

b) 分析項目と分析方法

分析項目はバイオガス発生量，メタン濃度，二酸化炭素濃度，汚泥のpHを毎日測定し，Total Solid (TS)，Volatile Solid (VS)，VFA濃度，アンモニア態窒素(NH_4^+-N)濃度を週に2~3回測定した（下水試験方法[4]に従った）．メタン濃度，二酸化炭素濃度は2章と同様の分析方法を用いた．また，汚泥中の全窒素（T-N）の測定も，ホエー定常投入実験後に一度行った.

c) 発酵資材と実験前の馴養方法

表-3に発酵資材の成分を示す．牛ふん尿とホエー，種汚泥については2章の回分実験と同様の資材を利用した．また，バターはAプラントでは廃バターを投入しているものの，性状は市販品と差異がないため，市販品を使用した.

発酵環境が変化することでメタン生成細菌群の活動が不安定になることから，運転開始2週間は牛ふん尿のみ投入してバイオガス発生量の安定性を確認した．その後，約2週間牛ふん尿とバターを一定の割合で投入し，A町プラントの発酵槽に近い状態にした．牛ふん尿とバターの割合は質重量割合で98：2であり，A町プラントでは

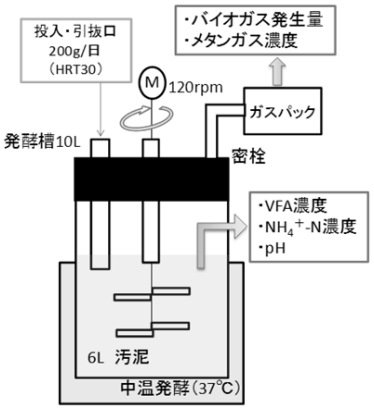

図-2 実験装置

表-3 発酵資材の成分

資材名	TS (%)	VS (%)	脂質(%)	タンパク質(%)	炭水化物(%)
牛ふん尿	8.6	5.1	–	–	–
バター	84.1	82.9	81	0.6	0.2
ホエー	7.2	7	16.4	11.7	64.4

平均して全投入量の約2%がバターであることを参考にした．バターは投入後分解が容易になるように，投入前に1cm角にカットしたものを使用した.

(2) ホエー一時大量投入実験

a) 実験目的と実験条件

本実験の目的は，A町バイオガス化プラントで実際に行われているホエー大量投入がメタン発酵プロセスに与える阻害影響を把握することである．そのため，投入条件としては，牛ふん尿とバターが定常的に投入されている状態の発酵槽に，一時的にホエーの割合が高い条件で発酵槽に投入する．また，一時大量投入したホエーによる一時的な温度低下が阻害を起こすことも考えられる．そのため，ホエーを室温程度にしてから発酵槽へ投入し，温度の低下を抑制した．**表-4**に投入条件を示す.

b) 実験結果と考察

図-3に対照区とrun1のメタンガス発生量とpHの経日変化，**図-4**にNH_4^+-N濃度とVFA濃度の経日変化を示す．図-3, 4より，メタンガス発生量が，1度目のホエー大量投入により0.1L/dayにまで低下し，その後5日間はメタンガスはほぼ発生しなかった．また同時にVFA濃度が急激に上昇し，pHが低下した．発酵状態が安定してきた27日目に，再度ホエー50%を投入した結果，再度メタンガス発生量は低下したが，一度目に見られたメタンガス発生量の低下や，NH_4^+-N濃度，VFA濃度の上昇とpHの低下は，1度目よりも顕著ではなかった．さらに，ホエー75%投入した後の36日目では，再度VFA濃度が一気に上昇しメタンガス発生量が1.2L/dayにまで減少した.

表-4　ホエー一時大量投入実験の投入条件

混合実験	対照区		run1							
	定常投入条件		定常投入条件		ホエー50%投入			ホエー75%投入		
	牛ふん尿	バター	牛ふん尿	バター	牛ふん尿	バター	ホエー	牛ふん尿	バター	ホエー
質重量混合割合(%)	98	2	98	2	48	2	50	23	2	75
投入VS負荷(gVS/day)	10	3.3	10	3.3	4.9	3.3	7	2.3	3.3	10.5
総VS負荷(gVS/day)	13.3		13.3		15.2			16.1		

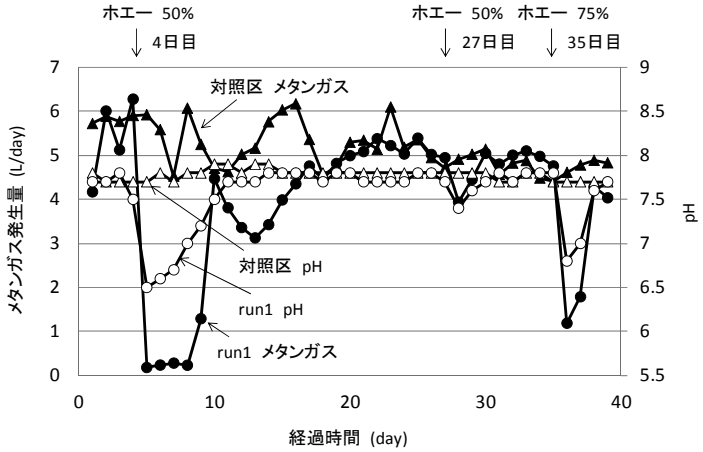

図-3　メタンガス発生量とpHの経日変化

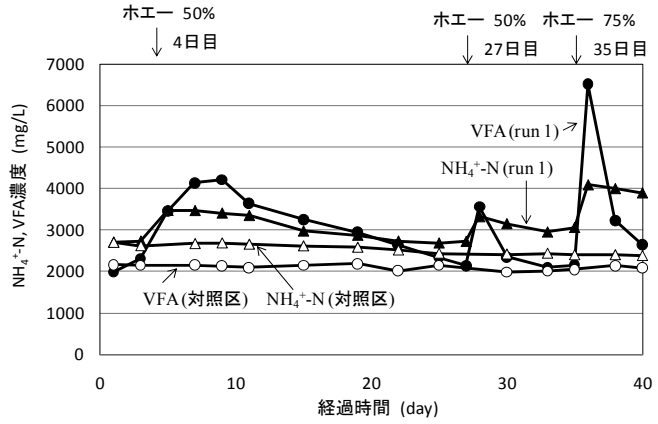

図-4　NH_4^+-N濃度とVFA濃度の経日変化

以上のように，ホエーの大量投入により，一時的に発酵阻害は生じるものの，阻害の程度は軽度になる傾向にあることが観察された．これは，ホエー発酵特性の把握で行った回分実験においても，メタン生成細菌の馴養により，メタン発酵プロセスの回復が観察されていることから，ホエーを大量投入することで，一時的にメタン生成細菌の活動が弱まるものの，環境の変化に対応するメタン生成細菌が馴養され，阻害の程度が軽度になったと考えられる．

しかし，実プラントでは，極めて不定期に，しかも大量のホエーが受け入れされることから，いつもメタン生成菌の馴養が期待される訳ではない．よって，ホエーの大量投入はできるだけ避ける方が望ましく，貯留タンクで一時貯留し，定常条件で投入すべきであることが示唆された．

表-5　ホエー定常投入実験の投入条件

実験条件	run2			run3			run4		
	牛ふん尿	バター	ホエー	牛ふん尿	バター	ホエー	牛ふん尿	バター	ホエー
質重量混合割合(%)	90	2	8	85	2	13	80	2	18
投入VS負荷(gVS/day)	9.2	3.3	1.1	8.8	3.3	1.8	8.2	3.3	2.5
総VS負荷(gVS/day)	13.6			13.9			14		

表-6　安定期のメタンガス合計発生量と実験終了時の各データ

	実験区名	対照区	run2(ホエー8%)	run3(ホエー13%)	run4(ホエー18%)
メタンガス	安定期から20日間のメタンガス合計発生量(L)	99	104	107	111
	ホエーVSあたりメタンガス発生量(L/gVS)	—	0.33	0.36	0.39
汚泥	VFA濃度(mg/L)	2087	2153	2760	3105
	NH_4^+-N濃度(mg/L)	2378	3200	3711	4201
	pH	7.7	7.8	8	8.2
	全窒素(mg/L)	5600	5600	6300	7000

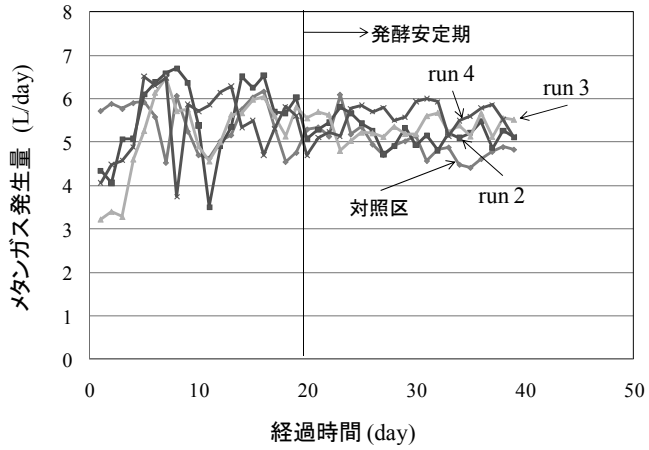

図-5　メタンガス発生量経日変化

(3) ホエー定常投入実験

a) 実験目的と実験条件

本実験は，A町バイオガス化プラントにおいて液状物の貯留タンクが設置されたと想定し，ホエーを定常的に発酵槽に投入するホエー定常投入実験にて，発酵特性を把握する．

実験条件としては，ホエーの投入割合が異なる投入区を3つ（run2，run3，run4）用意し中温発酵実験を行なった．投入割合はA町バイオガス化プラントの投入条件（食品廃棄物は総投入量の10%程度）を参考に，run2ではバターとホエーの合計投入割合が10%，run3ではバターとホエーの合計投入割合が15%，run4ではバターとホエーの合計投入割合が20%となる様に設定した．対照区に関してはホエー一時大量投入実験と同様である．実験の投入条件を表-5に示す．

b) 実験結果と考察

各実験区のメタンガス発生量経日変化を図-5に示す．メタン発酵が比較的安定している20日目以降を発酵安定期とみなして，20日～39日の間の各実験区のメタンガス合計発生量と39日目のVFA濃度とNH_4^+-N濃度，pH，およびT-Nの分析結果を表-6に示す．表-6のホエーVSあたりのメタンガス発生量の算出方法を示す．まず，馴養期間の牛ふん尿のみを投入していた時の合計メタンガス発生量をその間に投入した全牛ふん尿VS負荷量で除することで，牛ふん尿VSあたりのメタンガス発生量（①とする）を算出した．次に同様の馴養期間に，牛ふん尿とバターを投入していた時の合計メタンガス発生量をその間に投入した全牛ふん尿とバターの合計VS負荷で除し，①を考慮し，バターVSあたりのメタンガス発生量（②とする）を算出した．このようにして，20日～39日の間

の合計メタンガス発生量をその間に投入した合計VS負荷量で除し，①と②を考慮し，ホエーVSあたりのメタンガス発生量を算出した．なお，本実験では，牛ふん尿とバターのVSあたりのメタンガス発生量は0.25L/gVS，0.86L/gVSであり，既存研究[2]と近い値を得た．

図-5 より，実験開始から20日まではメタンガス発生量は変動しているものの，20日以降は安定していることが分かる．**表-6** より安定期のメタンガス合計発生量が対照区＜run2＜run3＜run4であり，ホエーの投入割合増加に伴ってメタンガス発生量は増加する傾向が分かった．ホエーは11%のたんぱく質を含むため，**表-6** のようにホエーの投入割合増加に伴い，NH_4^+-Nも増加することが分かる．

回分実験や一時大量投入実験では，一時的なVFA蓄積によるpH低下による阻害が見られたが，連続実験の場合は，発酵が安定してしまえば，VFAの蓄積はそれほど問題になっていないことが分かる．むしろ，連続的に投入されるホエーの影響で，アンモニア蓄積に注意する必要があると考えられる．アンモニアは，汚泥の引き抜きでのみしか，濃度低下はしない．従って，長期の連続投入の場合は，VFAよりもアンモニア蓄積に注意を払う必要があると考えられる．

そのような点で，run3と4の場合は，既にアンモニア態窒素濃度がそれぞれ3711 mg\Lと4201 mg/Lと高く，pHも8を超えているので，run2のホエー8%（バター2%投入条件下）が，安定発酵を維持するための投入量と言える．

(4) 発酵残渣中の肥効成分としての窒素量

表-6に実験開始39日目のT-Nの分析結果を示す．肥効成分である全窒素濃度は対照区≦run2＜run3＜run4であり，run4が最も高いことが分かった．つまり，ホエー投入割合が高い方が液肥としての価値が高いといえる．また，全窒素に対するアンモニア態窒素量がホエー投入割合の増加に比例して増加することが分かった．アンモニア態窒素は即効性の肥料である無機態窒素であるため，液肥の質という観点でも，ホエーの投入割合を増加させると価値が上がることが分かる．

(5) ホエーの混合投入に関する総合的考察

a) 発酵阻害の視点

まず，ホエー一時大量投入実験では，メタン生成細菌は大量投入をくり返されることで馴養することが分かったものの，大量投入後は必ず発酵阻害を生じて，メタンガス回収量の低下や発酵阻害物質であるVFA濃度が上昇するなど，安定発酵をしていたとは考えられない．

ホエー定常投入実験では，A町プラントでの現状の投入条件である，全投入量に対して10%というルールより2倍のホエーを投入しても発酵阻害が発生せず，安定的な発酵が可能だった．しかし，長期的に投入を続けることで発酵阻害が生じる可能性が高いため，プラントの安定発酵を実現するためには，バター2%投入条件下では，定常的にホエーを8%投入すべきであることが分かった．

b) 事業採算性の視点

A町プラントの収益比率を鑑みると，メタンガスのエネルギー収入よりも処理収入の方が現状では有利である．ホエー大量投入実験と定常投入実験ともに発酵停止には至らなかったものの，不定期に多様な液状物が投入される条件下では，他の食品廃棄物の安定受入が困難になる可能性がある．一方，貯留タンクを設置してホエーを定常的に投入できれば，他の廃棄物の受入も計画的に実施できるようになる．つまり，排出事業者と大口契約をして安定的に食品廃棄物を確保することが可能であり，処理収入も向上する可能性がある．そのため，事業採算性の視点からも，ホエーを定常的に投入すべきであることが言える．

c) 液肥利用の視点

本研究の範囲内では，ホエーの投入量に応じて肥効成分である窒素量の増加，さらに即効性肥料である無機態窒素量も増加することがわかった．しかし，安定的な発酵を維持するためにはホエー投入量を8%（バター2%投入下）で投入すべきである．全窒素量は対照区と変わらないものの，即効性肥料のアンモニア態窒素の含有量が増加しており，対照区より優れた液肥となっている．

5. 結論

①ホエー一時大量投入はVFAが一時大量に蓄積されpHが低下するためメタンガス発生量が低減し，発酵が不安定になることから，ホエーの大量投入は避け，貯留タンクを設置し，定常投入すべきである．

②本研究の範囲では，ホエー定常投入の際は総投入量に対してバター2%，ホエー8%であれば，長期的に安定的なメタン発酵を運転できることが分かった．

③汚泥中の肥効成分である窒素量は，ホエーの投入量に比例して増加することが分かった．

謝辞

A町バイオガス化プラント，B牧場の関係各位には実験資材と各種データ・情報の収集にご協力頂いた．ここに記して感謝の意を表する．本研究の一部はH23年度環境省環境研究総合推進費補助金により行われた．

参考文献

1) 中久保亮・石田哲也・松田従三・近江谷和彦：牛ふん尿の共メタン発酵における副資材過剰投入による発酵阻害，廃棄物資源循環学会論文誌，Vol. 20, No. 4, pp. 268-277, 2009
2) 中久保亮・石田哲也・松田従三・近江谷和彦：牛ふん尿のメタン発酵における食品廃棄物投入の効果，廃棄物資源循環学会論文誌，Vol. 19, No. 6, pp. 392-299, 2008
3) 野池達也：メタン発酵，技報堂出版, 2009
4) 社団法人日本下水道協会：下水試験方法　下巻,1997

(2012. 7. 18 受付)

EXPERIMENTAL STUDY ON STABLE CONDITIONS OF COFERMENTATION FOR FEEDING FOOD WASTES INTO A COW MANURE BIOGAS PLANT

Yukihiro OISHI, Toru FURUICHI, Kazuei ISHII and SangYul KIM

This study clarified characteristics of cofermentation, when too much whey was injected at one time and when constant amount of whey was injected to continuous bioreactor treating cow manure and butter, to investigate stable conditions in cofermentation of food wastes and cow manure. When too much whey was injected, although the inhibition degree was reduced by repeated injection, injection of too much whey has to be avoided. The proper constant loading rate of whey for stable cofermentation was clarified. In addition, the amount of nitrogen, which is a fertilizer component, increased with the increase in the amount of whey injected.