

亜臨界水処理による下水汚泥のメタン発酵特性

Study on Methane Fermentation Characteristics of Sewage Sludge in Sub-critical Water Treatment

三澤孝史* 小西正郎** 中木秀一***

要 旨

循環型社会構築が求められている社会情勢の下で、下水汚泥についても、資源化・エネルギー化が求められている。また、最終処分場の不足や処理コスト低減の観点からも下水汚泥の最終処分量の減量化が求められている。このような状況で、下水汚泥をメタン発酵させ、発生したメタンガスをガス発電によりエネルギーとして取り出す処理方法は、再生可能エネルギーとして大きな期待が寄せられている。

しかしながら、下水汚泥は食品廃棄物等と比べ、比較的難分解性であるため、メタン発酵に時間を要し、また大きな設備も必要となる。本研究では、メタン発酵の効率化のために、メタン発酵の前処理として、加水分解力に優れた亜臨界水処理の適用を検討している。本報では、実験室規模のメタン発酵実験により把握した亜臨界水処理による下水汚泥のメタン発酵特性について述べる。また、亜臨界水処理をメタン発酵に適用した場合の経済性を試算した結果についても述べる。

キーワード：下水汚泥、メタン発酵、亜臨界水、再資源化

1. まえがき

循環型社会構築が求められている社会情勢の下で、下水汚泥についても、資源化・エネルギー化が求められている。また、最終処分場の不足や処理コスト低減の観点からも下水汚泥の最終処分量の減量化が求められている。国のバイオマス・ニッポン総合戦略や地球温暖化対策推進の上でも、多様な下水汚泥の資源化・エネルギー化が課題となっている。そのため、国土交通省では下水処理に伴い必然的かつ永続的に発生する下水汚泥の資源化を進めるために、「下水汚泥資源化・先端技術誘導プロジェクト (LOTUS プロジェクト)」を推進している。この中で、下水汚泥と生ゴミ等のバイオマスの混合処理によるエネルギー回収を標榜している。

下水汚泥は、平成8年の下水道法改正で、発生汚泥等の脱水、焼却、再生利用等による減量化の努力義務規定が追加されたこともあり、埋立て処分量は以前よりも減少傾向であるが、それでも3割程度の下水汚泥が産業廃棄物として埋立て処分されている。再生利用としては、セメント化等の建設資材や肥料等の緑農地利用が中心であり、有機物を多く含み、再生エネルギー源として高いポテンシャルを持った下水汚泥の潜在能力を十分に活かしているとは言えない。

このような状況で、カーボンニュートラルな下水汚泥をメタン発酵させ、発生したメタンガスをガス発電によりエネルギーとして取り出す処理方法は、再生可能エネ

ルギーとして大きな期待が寄せられている。

しかしながら、下水汚泥は食品廃棄物等と比べ、比較的分解し難いため、メタン発酵に時間を要し、また大きな設備も必要となる。

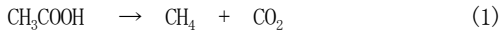
本研究では、メタン発酵の効率化のために、メタン発酵の前処理として、加水分解力に優れた亜臨界水処理の適用を検討している。本報では、実験室規模のメタン発酵実験により把握した亜臨界水処理による下水汚泥のメタン発酵特性について述べる。また、亜臨界水処理をメタン発酵に適用した場合の経済性を試算した結果についても述べる。

2. メタン発酵と亜臨界水処理

2.1 メタン発酵の原理

メタン発酵とは、嫌気状態において、多様な微生物の代謝作用により、有機物をメタンと二酸化炭素に分解する現象のことである。メタン発酵における有機物の分解過程は図-1に示すように、大きく分けて酸生成過程とメタン生成過程に分けられる。これらの分解過程には様々な微生物が関与している。発酵の最終段階では、古細菌(アーキア)と呼ばれる生物群に分類される偏性嫌気性菌であるメタン生成菌によりメタンと二酸化炭素に分解される。得られるメタンの70%は酢酸由来で、残り30%が二酸化炭素が水素により還元されて生成される。生成はそれぞれ、式(1)と式(2)で表される。

*技術研究所 **技術本部環境プロジェクト部 ***関西支社環境プロジェクト部



2.2 メタンガスのエネルギー利用

メタン発酵により発生するバイオガスの一般的な組成は、メタンが約 60%、二酸化炭素が約 40%であり、その他は微量の硫化水素や窒素の混合気体である。このガスの 1m³ 当りの低位発熱量は約 21.5MJ と都市ガスと同等の高い熱量を持っている。このメタン発酵をプラント化したものがメタン発酵システムである。下水汚泥を基質とした場合のバイオガス化のフローを図-2に示す。メタン発酵により得られたメタンガスをコ・ジェネ発電機により電気、熱に変換し、場内設備に利用する。メタン発酵後に生じる消化汚泥は、固液分離し、固形分は焼却され、埋立て処分される。メタン発酵することにより、下水汚泥中の有機物（固形分）がバイオガスに転化されるので埋立て処分量は低減される。

下水汚泥は、メタン発酵の基質として考えた場合、人が生活する上で必ず発生し、その質・量とも比較的安定している。また、生ゴミ等と異なり収集の必要がない集約型のバイオマスである等、利活用に適している。さらに、下水処理場は下水汚泥から発生したエネルギーを利用できる既存施設を有しており、メタン発酵により生じる消化汚泥の処理も容易である。

2.3 亜臨界水処理

図-3に示すように、温度が 374℃、圧力が 22MPa 以上の条件下で存在する超臨界水は、難分解性のダイオキシン類等も瞬時に分解する強力な加水分解力を有している。臨界点よりも低い温度、圧力状態にある水は亜臨界水²⁾と呼ばれ、厳格な定義はないが下限温度が概ね 120~130℃とされている。この亜臨界水も高い加水分解力を有し、有機物等を速やかに分解する効果を発揮する。

メタン発酵における亜臨界水処理の適用は、この加水分解力を前処理として利用する方法で食品廃棄物等のメタン発酵原料を数分で酢酸等の有機酸に分解する効果を利用するものである（図-4）。

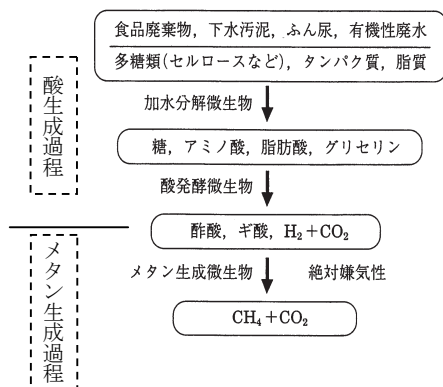


図-1 メタン発酵プロセスの概要¹⁾

この亜臨界水を利用することにより、下水汚泥のように比較的難分解性の有機物において、時間を要する酸生成過程の効率化を期待するものである。効率的になることによって小規模な設備にすることが可能になり、設置スペースが限られる既存の下水処理場内に、新たにメタン発酵システムを併設する場合等でも導入しやすいと考えられる。

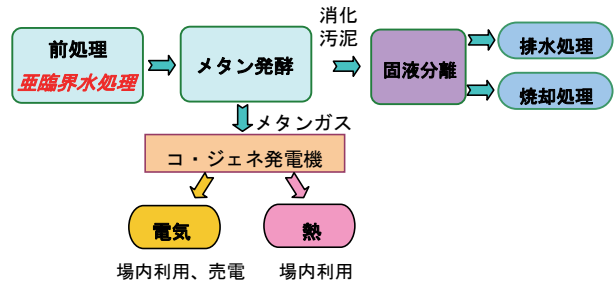


図-2 下水汚泥のバイオガス化のフロー

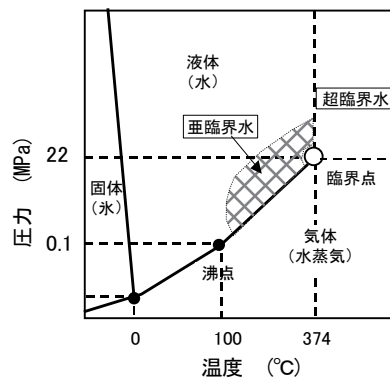


図-3 亜臨界水の状態

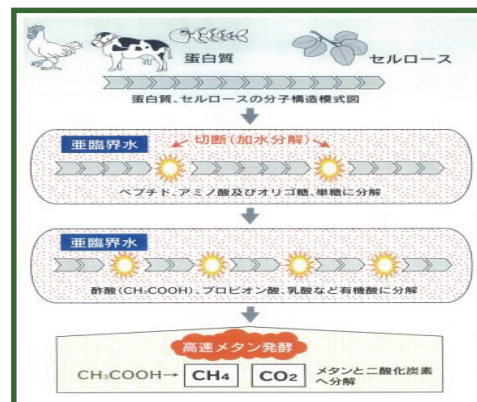


図-4 亜臨界水処理のメタン発酵への適用³⁾

3. 亜臨界水処理による下水汚泥のメタン発酵実験

3.1 亜臨界水処理した下水汚泥の性状

図-5 に、亜臨界水処理温度 120~200℃ (処理時間 10min) と処理物の液相中の TOC (全有機炭素) 濃度の関係を示す。実験に用いた下水汚泥は、堺市泉北下水処理場より採取した余剰汚泥を用いた。

実験における亜臨界水処理は、下水汚泥をステンレス製の反応管 (φ 16mm×150mm) に入れ、反応管の両端を密閉後、所定温度のオイルバスに所定時間投入することにより行った。写真-1 に亜臨界水処理状況を示す。

図-5 より、温度が高くなる程 TOC 濃度は大きくなり、可溶化が進むと考えられる。しかし 180℃以上では、あまり変化は見られない。

また、表-1 に、亜臨界水処理することによる下水汚泥の粘度の変化を示す。粘度は、下水汚泥 (TS (固形分) : 約 8%) を亜臨界水処理 (条件 : 160℃、10min) し、B型粘度計により測定した。表-1 より、亜臨界水処理すると下水汚泥の粘性が 1/5 程度に大きく低下することがわかる。これは、圧送性の向上に繋がり、設備計画上、有利な点と思われる。

図-6 に、亜臨界水処理温度 120~200℃ (処理時間 10min) と処理物における液相の有機酸濃度の関係を示す。有機酸濃度は、高速液体クロマトグラフにより測定した。

処理温度 180℃においてメタン発酵に利用される酢酸およびメタン発酵における中間生成物であるプロピオン酸の濃度が最も高くなっている。しかし処理温度が 200℃になると、180℃に比べ、酢酸の濃度変化はわずかであるが、プロピオン酸の濃度が低下している。また、図中には示していないが、200℃では低分子のギ酸の濃度が 180℃に比べ、増加しており、これからも 200℃において、加水分解反応により、低分子化が進んでいると考えられる。

これらより、亜臨界水処理温度が高いほど、下水汚泥の加水分解は進むと考えられる。しかし、加水分解が進み過ぎるとメタン発酵に利用できる有機物が減少することも考えられる。また、できるだけ処理温度が低い程、加温に必要なエネルギーが小さくなり、経済的である。そこで、以降に示すメタン発酵実験により下水汚泥に亜臨界水処理を適用した場合のメタン発酵特性を把握した。

3.2 回分実験

a. 回分実験概要

下水汚泥を対象としたメタン発酵の前処理として亜臨界水処理を適用するにあたり、回分実験により最適な亜臨界水処理条件を検討した。

実験方法は、三角フラスコ (50ml) に、種汚泥 29ml と亜臨界水処理した試料 1ml を入れ、窒素置換後、35℃ に保ったインキュベータ内で振とうさせながら嫌気性消

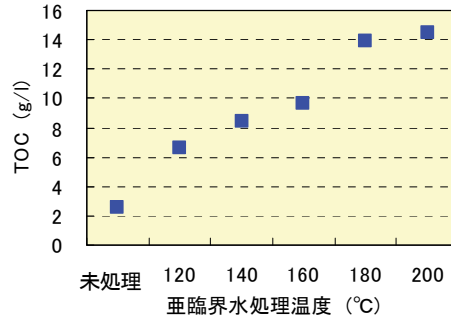


図-5 亜臨界水処理温度と TOC の関係

表-1 亜臨界水処理による下水汚泥の粘度

試料	粘度 (mPa·s)
未処理	15250
亜臨界水処理 160℃, 10min	3100



写真-1 亜臨界水処理状況

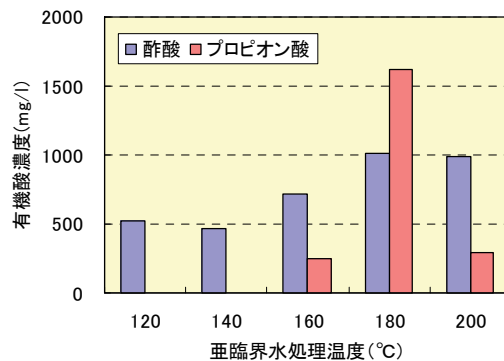


図-6 亜臨界水処理温度と有機酸濃度の関係

表-2 回分実験ケース

No.	亜臨界水処理条件	
	温度 (°C)	時間 (min)
1	未処理 (亜臨界水処理なし)	
2	140	10
3	160	10
4	180	10

化を行った。種汚泥は、下水汚泥により長期間馴養したものを用了。発生したバイオガスの成分は、ガスクロマトグラフにより分析した。

回分実験の実験ケースを表-2に示す。亜臨界水処理条件は、処理温度を 140~180℃とした。処理時間については、別途、処理時間をパラメータとした回分実験を実施しており、その結果より 10min と設定した。

この実験に用いた亜臨界水処理前の下水汚泥の物性は、TS : 7.3%、VS (有機物量) : 6.4%、COD_{c,r} : 10g/kg、T-N (全窒素) : 5.2g/kg であった。

b. 回分実験結果

図-7に、投入試料の VS 当りのメタンガス発生量を示す。亜臨界水処理温度 140℃では、メタンガス発生量は、未処理のケースに比べ若干低減しており、亜臨界水処理による効果が見られない。これに対し、亜臨界水処理温度 160、180℃のケースでは、未処理に比べ3倍程度のメタン発生量を示し、亜臨界水処理によりメタンガス発生量が増加することがわかる。

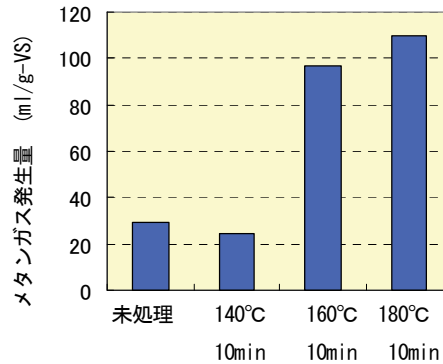


図-7 メタン発生量(回分実験)

3.3 連続実験

a. 連続実験概要

試料の連続投与によるメタン発酵実験を行った。実験装置の概略図を図-8に示す。

培養槽 (容量 2000ml) に、種汚泥 1500ml を入れ、HRT(水理的滞留時間)を下水汚泥のメタン発酵として一般的な 30 日として実験を開始した。実験中の培養槽は 35℃に保った。実験期間は、バイオガス量が 20 日間程度、比較的安定して発生するまでを目安とした。

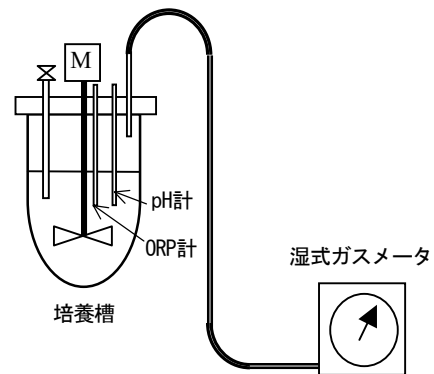


図-8 連続実験の実験装置概略図

培養槽内の汚泥は、嫌気性に保たれていることを ORP (酸化還元電位) 計により確認し、pH 計により pH を計測した。発生したバイオガス量は、湿式ガスメータにより測定した。

投入する試料は、VS を 5%に設定し、毎日 1 回、消化汚泥を引き抜いた後、投与した。亜臨界水処理条件は、回分実験の結果より、亜臨界水処理時間 10min、処理温度は 160℃および 180℃とした。投入した試料の平均的な性状を表-3に示す。

表-3 連続実験に用いた試料の平均的な性状

		未処理	亜臨界水処理 160℃, 10min	亜臨界水処理 180℃, 10min
亜臨界前				
TS (%)		6.2	8.7	9.2
投入試料	TS (%)	6.2	6.1	6.3
	VS (%)	5.1	5.1	5.2
	VS/TS	0.82	0.84	0.83

(備考) 亜臨界前とは亜臨界水処理を行う前の試料の特性値。投入試料は連続実験培養槽に投入した試料の特性値。

b. 連続実験結果

図-9に亜臨界水処理後の投入試料の VS 当りのバイオガス発生量を示す。図示したデータは、ガス発生量が安定してからの平均値である。処理温度 160、180℃で亜臨界水処理することにより、未処理に比べ2倍近くのバイオガス量が発生している。

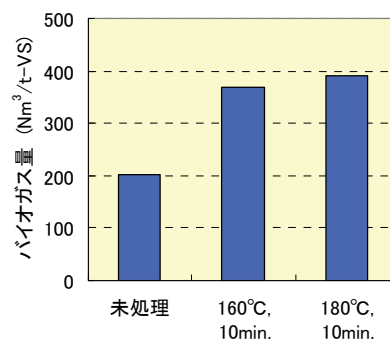


図-9 連続実験におけるバイオガス発生量(平均値)

図-10に亜臨界水処理温度 160℃および 180℃における発生バイオガス量および亜臨界処理後の試料の VS 当りのバイオガス量の経時変化を示す。160℃および 180℃のケースとも、比較的、安定してバイオガスが発生している。

培養槽内の pH は、実験開始前は 6.5 以下に低下する等、大きく変動するようであれば pH 調整をする計画で

あった。しかし、実験中は、亜臨界水処理温度 160℃および 180℃とも、pH7.5~7.8 で変動したため、pH 調整は行わなかった。実験期間中の pH の平均値は、亜臨界水処理温度 160℃および 180℃とも 7.6 であった。これからは有機酸が蓄積することなくメタン発酵が進んだことがわかる。また、メタン発酵の阻害要因となるアンモニア態窒素 NH₄-N は、亜臨界水処理温度 160℃のケースは 2.86g/l、180℃のケースは 2.75g/l と、問題の無い濃度であった。

図-11 に亜臨界水処理後の投入試料の VS および TS の分解率を示す。バイオガス量の増加に伴い、VS、TS の分解率とも亜臨界水処理することにより増加していることがわかる。これは、メタン発酵残渣が減り、最終処分量の低減に有効であることを示している。

4. 経済性について

下水汚泥処理事業においては、活性汚泥処理した後の残渣分を処理処分する費用が占める割合は比較的大きく、その費用削減対策として、消化処理を行うための消化槽を設けて処分量を減容化し、費用削減を図っている事例も多く存在する。また、中間処理等として焼却処理を行っている事業所も多く、1,000 円/t 程度の焼却費用を費やしている例もある⁴⁾。

一方、先に示した連続実験において、亜臨界水処理を行うと残渣量が低減する結果が得られている。その効果とメタンガス発酵施設設置によるエネルギー回収効果（施設への所要電力供給と熱利用を行う等）を考慮して、メタン発酵処理のみを行うケース（従来方式と称する）と、受入下水汚泥に対して 180℃、10min で亜臨界水処理を行ってメタン発酵を行うケース（亜臨界方式と称する）についての経済性試算を行った。両方式を適用する施設の主要条件を表-4 に示す。対象施設の規模は、受入下水汚泥量が 1,000t/日規模のものとし、試算は、従来方式の設備初期費用を 100 ポイント（その内国庫補助 50%を仮定）とした場合で、その施設を 15 年間操業した累計収支について相対的に算出した。

その結果を図-12 に示す。図の Y 軸プラス側は収入、マイナス側は支出を表す。収入費目は、処理施設に処理費として受け入れる受入下水汚泥収入と売電費（施設内の所要電力を賄った後の余剰分）であり、支出は、施設の建設費用等やメタン発酵後の汚泥残渣処分費用ほかである。15 年間の収支を見れば、従来方式では-54 ポイントの赤字となり、亜臨界方式は 22 ポイントの黒字となっている。支出の大きな割合を占めている汚泥残渣処分費については、従来方式で-172 ポイントであるのに対し、亜臨界方式では-86 ポイントと大きく低減していることが分かる。これは、亜臨界水処理で TS の一部が

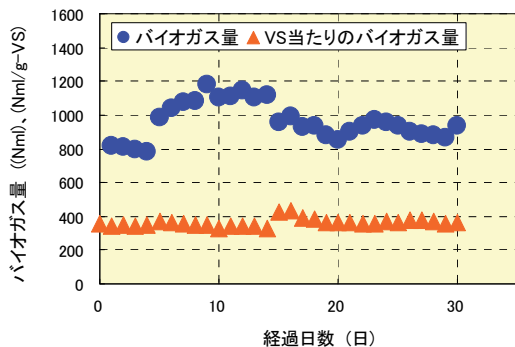


図-10(a) バイオガスの経時変化
(亜臨界水処理 160℃、10min)

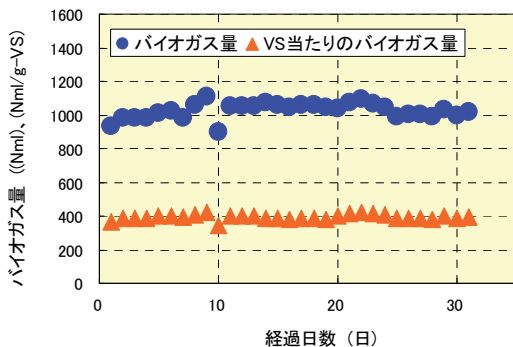


図-10(b) バイオガスの経時変化
(亜臨界水処理 180℃、10min)

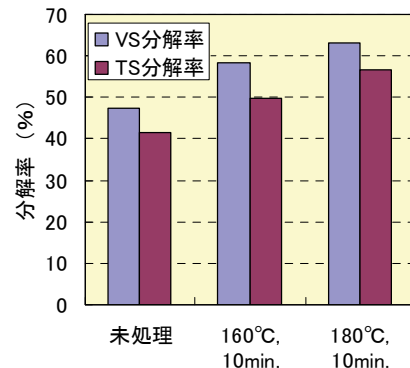


図-11 VS、TS の分解率

表-4 従来および亜臨界方式の経済性試算条件

項目	従来方式	亜臨界方式
受入下水汚泥の処理量 TS1%換算 (t/d)	1,000	1,000
利用下水 TS (%)	1	10 ^{*1}
消化期間 (d)	30	30
バイオガス発生量 (Nm ³ /TS・t)	320 ^{*2}	228 ^{*3}
汚泥残渣処分量 (t/d)	629	314
コジェネ発生電力 (kWh/d)	5,408	1,141
熱回収量 (MJ/d)	29,303	24,738

*1: 亜臨界方式では 10%に濃縮したものを用いる

*2: 平成 13 年度の全国下水処理場の嫌気性消化によるバイオガス発生量データを平均して求めた数値

*3: 本報の亜臨界水処理 180℃、10min で得られた数値で亜臨界水処理前の TS で除したもの

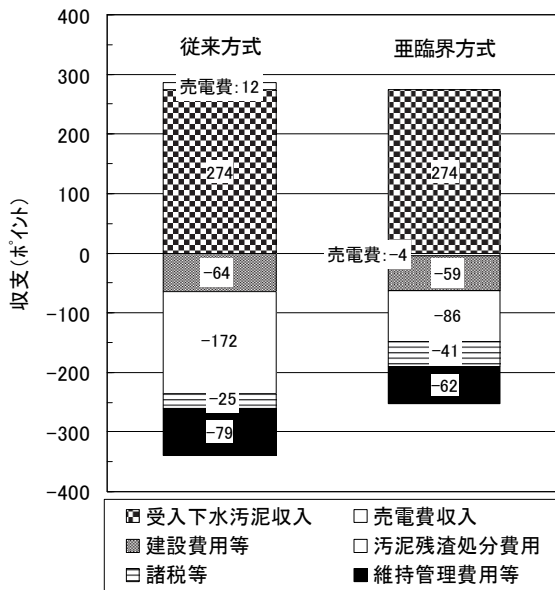


図-12 従来方式および亜臨界方式のメタン発酵施設の経済性試算結果（施設を15年間操業した場合で、従来方式の設備初期費用を100ポイントとした場合の相対収支）

分解したことによる効果であり、トレードオフとしてメタン発酵資質分低減とバイオガス発生量の低下も生じている。このバイオガス発生量の低減による売電費収入への影響も大きく、従来方式では12ポイントの売電収入が得られるのに対し、亜臨界方式では-4ポイントと電力を購入する必要が生じる結果にもなっている。

これらのことから、亜臨界水処理はその設備費や加熱エネルギーが必要になる点では負の経済性を示すが、残渣低減面では正の経済性を示す。エネルギー収支と残渣低減効果の最適化を図るシステム構築は今後の課題であるが、最適化を図ることにより未利用資源活用と新規エ

ネルギー利用と言う社会経済面でのバランスが図れるものと期待できる。

5. あとがき

下水汚泥のメタン発酵実験を実験室規模で行い、前処理として亜臨界水処理した結果、分解率が向上し、バイオガス量が増加した。これより亜臨界水処理を適用することの有効性を確認した。しかしながら、負荷を上げた場合や発酵時間を変化させた場合の特性等、今後、把握していく必要があると考える。

また、将来、本技術を実際に適用していくには、実証規模の実験装置による、ある程度長期間の実験を行い、経済性、運転・維持管理上の問題点の有無などに関する検討が必要と考える。

本研究を進めるにあたっては、大阪府立大学大学院工学研究科・吉田弘之教授の指導を賜った。堺市泉北下水処理場の関係者の方々には、実験に用いる下水汚泥をご提供頂くとともに貴重な助言を頂戴した。ここに改めて深謝する。

【参考文献】

- 1) (社)日本エネルギー学会編、「バイオマスハンドブック」、オーム社、p.153、2002 一部加筆
- 2) 吉田弘之、寺嶋正明、高橋洋平、「亜臨界水加水分解法による魚肉の有機酸・アミノ酸への有価物化におよぼす反応条件の影響」、廃棄物学会論文誌、Vol.12、No.4、pp.163-167、2001
- 3) 三菱長崎機工(株) パンフレット
- 4) 吉田弘之、「亜臨界水処理技術を用いた下水汚泥等有機性廃棄物によるメタン・水素製造所業に係わる事業化可能性調査」、大阪府立大学大学院工学研究科、p.63、2006.3