

令和 4 年 8 月 24 日現在

機関番号：25101

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K15126

研究課題名（和文）下水汚泥メタン発酵前処理としてのマイクロ波照射非熱的効果機構の解明と最適化

研究課題名（英文）Non-thermal effect mechanism of microwave irradiation as a pretreatment for anaerobic digestion of sewage sludge

研究代表者

戸苅 丈仁（Togari, Taketo）

公立鳥取環境大学・環境学部・准教授

研究者番号：60803830

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：マイクロ波照射によるメタン発酵でのエネルギー回収量の増加を試みた。回分式実験では余剰汚泥、消化汚泥へのマイクロ波照射で低温・低出力でもバイオガス発生量の増加が確認された。375日間の連続実験では、MWを照射した余剰汚泥からのバイオガス発生量は、10W、138J/g-wetの照射条件下で18.9%増加した。また、メタン発酵槽内の消化汚泥の10%にMWを50W、90J/g-wetで1日1回照射したところ、バイオガス生産量は12%増加した。これらの結果より、MW非熱的効果によるメタン発酵システムの可能性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

メタン発酵は地域で発生する有機性廃棄物からエネルギー回収可能な処理方式として有用な処理方法である。しかし、下水汚泥、特に水処理工程を経た余剰汚泥や、メタン発酵後の消化汚泥は、生ゴミなどに比べて生分解性が小さく、バイオガス生成量も小さい。本研究の成果により、下水汚泥の生分解性を上げるための前処理として、低温・低出力のマイクロ波照射による効果が示された。メタン発酵における加温と同時に生分解性の向上が可能になるシステムなど、下水汚泥処理におけるエネルギー収支の改善への貢献が期待される。

研究成果の概要（英文）：Microwave irradiation was applied to sewage sludge to improve its degradation and biogas production in anaerobic digestion. In the batch experiments, the biogas production increased with microwave irradiation of excess sludge and digested sludge, even at low temperatures and low power. In the 375-day continuous experiment, biogas production from MW-irradiated excess sludge increased by 18.9% under the 10 W, 138 J/g-wet irradiation condition. The irradiation of 10% of the digested sludge in the tank with MW at 50 W and 90 J/g-wet resulted in an 12% increase in biogas production. These results indicate the possibility of a anaerobic digestion system with MW non-thermal effects.

研究分野：水環境工学

キーワード：メタン発酵 マイクロ波 バイオガス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

下水汚泥の処理方式であるメタン発酵は、発酵汚泥の減容化とともにエネルギー回収可能な処理方法である。しかし、下水汚泥のうち余剰汚泥、オキシデーショディッチ汚泥(以下OD汚泥という)などは大半が微生物細胞で構成されており、生分解性が小さく、メタンガス回収率が小さい。これまでに、下水汚泥については生分解性を高めるため、熱処理、水熱処理、オゾン処理などの様々な処理方式が提案されているが、コストや設備適性の面から普及には至っていない。本研究ではメタン発酵における新しい前処理法として、マイクロ波(以下MW)照射を用いたシステムに着目した。MWとは電磁波の中で周波数が300MHz~300GHz程度の電磁波であり、家庭の電子レンジや有機合成などの工業分野で用いられており、極性分子に作用する。MW照射には、極性分子に作用(選択照射)、内部からの均一作用(均一照射)、水分子に直接作用するため効率的(直接加温)という3つの大きな特徴がある。これらMWの有する3つの特徴は、処理システムにより様々な性状を有し、比較的高粘度である下水汚泥に適しており、実用化・普及の可能性が非常に高い。また、MWは家庭の電子レンジや、有機成分分野での工業利用などが知られているが、対象物を加温する熱源としての効果に加え、MW照射による水分子の振動による非熱的効果の有無が議論となっている。MWがもたらす高周波電界によって、細胞内部の水分子が振動・回転等することにより細胞に何らかの影響をもたらす可能性があり、水処理分野以外においても様々な熱だけでは説明のつかない効果が報告されている。メタン発酵におけるMW照射前処理の既往研究では、いずれも細胞外に存在する水分の加熱に多くの投入エネルギーが奪われ、実質的にMWは熱処理の加熱熱源として用いられている。しかし、MWによる非熱的効果の機構解明を行い、最適な照射条件を検証し、その効果を最大限利用することで、メタン発酵におけるエネルギー収支の改善に大きく寄与できる。

2. 研究の目的

本研究では、以下の2点を目的に実験を行った。

非熱的効果を用いた省エネ型照射法の開発(各バイオマスの最適照射条件の解明)
省エネ型照射法を利用した消化汚泥の再消化循環システムの開発

3. 研究の方法

(1) [MW照射]

本研究ではOD汚泥、余剰汚泥および消化汚泥に対して様々な条件でMWを照射し、回分式実験を行うことにより効果的なMW照射条件を検討した。MW照射にはETHOS EASY(マイルストーン社)および μ Reactor EX(四国計測工業)を使用した。

(2) [OD汚泥回分式実験]

容積100mLのプラスチック製シリンジを用い、MW照射汚泥のバイオガス生成ポテンシャルを計測する回分式実験を行った。照射条件は未処理、1200J/g-wet(200W,36min,360g,密閉)、360J/g-wet(10W,30min,50g,開放)とした。消化汚泥30mL、基質3gをシリンジ内に投入し、恒温振とう水槽(55、120RPM)で20日間培養し、経日的に各基質からのバイオガス発生量を測定した。種汚泥には連続式実験から採取した未処理のOD汚泥に馴致した消化汚泥およびMW照射OD汚泥に馴致した消化汚泥を用いた。

(3) [OD汚泥連続式実験]

長期間の連続投入によるメタン発酵反応への影響を検討するため、101日の連続式実験を行った。実験には有効容積2Lの反応槽を使用し、37の中温条件、HRTを25日に設定し、1日1回引き抜きと基質(TS濃度を3%に調整)の投入を行った。反応槽は高温水槽サーモペット(東京理化学機械製NTT-20S)を用いて37に加熱した。Run1では未処理OD汚泥、Run2はMW照射汚泥を投入した。MW照射条件は期間では360J/g-wet(10W,30min,50g)、期間では720J/g-wet(10W,60min,50g)とし、MW照射には μ Reactor EX(四国計測工業)を使用した。また、pH、COD_{Cr}、溶解性COD_{Cr}、NH₄-N濃度、揮発性有機酸濃度、バイオガス発生量、メタン濃度の定期的な計測を行った。

(4) [余剰汚泥回分式実験]

余剰汚泥を対象とした回分式実験を2回行った。余剰汚泥を対象とした28日間の回分式実験を計2回行った。実験には鳥取県鳥取市秋里の秋里下水終末処理場から採取した余剰濃縮汚泥を使用し、MWの照射には μ Reactor EX(四国計測工業)を使用した。

実験では、種汚泥としてMW馴致消化汚泥を100g、MW照射余剰汚泥を30g投入し、スターラーで攪拌しつつ37の中温条件で回分式実験を行った。温度管理には恒温乾燥機を使用した。発生したガスによる圧力増加量を測定し、発生ガス量を計算した。

実験では、種汚泥30gに対して余剰汚泥3gを100mLのプラスチック製シリンジに投入し、恒温振盪水槽を用いて37の中温条件で回分式実験を行った。発生したバイオガスは、ガラスシリンジにより引き抜き、ガス量を測定した。いずれも回分式実験開始前に、MW照射前後のTS、VS、COD_{Cr}、S-COD_{Cr}、NH₄-N、色度の測定を行った。

(5) [余剰汚泥連続式実験]

長期間の連続投入によるメタン発酵反応への影響を検討するため、122日の連続式実験を行った。実験には有効容積2Lの反応槽を使用し、37℃の中温条件、HRTを50日に設定し、1日1回引き抜きと基質の投入を行った。Run1はMW未照射汚泥、Run2は低出力のMW照射汚泥を投入した。照射条件は期間1ではMWを138J/g-wet(10W,30min,130g)、期間2では277J/g-wet(20W,30min,130g)とした。また、TS、VS、pH、COD_{Cr}、溶解性COD_{Cr}、NH₄-N濃度、揮発性有機酸濃度、メタン濃度の定期的な計測を行った。

(6) [消化汚泥回分式実験]

消化汚泥へのMW照射によるバイオガス生成ポテンシャルへの影響を検討するため、シリーズ1とシリーズ2の合計6回の回分式実験を実施した。反応容器には容積100mLのプラスチックシリンジ(1-1, 1-2, 1-3)、250mLのフラスコ(1-4)および500mLのフラスコ(2-1, 2-2)を用いた。バイオガス発生量の測定はガラスシリンジで引き抜いて測定(1-1, 1-2, 1-3) 圧力測定からの算出(1-4)およびガス流量計ミリガスカウンターによる測定(2-1, 2-2)の3種類を用いた。

シリーズ1ではMWを照射した消化汚泥を基質として反応容器に投入しバイオガス生成量を測定した。MW照射条件は照射強度50W~1000W、照射時間0.5min~15minとし、照射による下水汚泥1gあたりの投入エネルギーを変化させ、MW照射後の下水汚泥を用いて回分式実験でバイオガス生成ポテンシャルへの影響を調査した。シリーズ2では基質として初沈汚泥を投入した反応器全体をMW照射により加温し、その後通常加温(湯煎による加温)に戻してバイオガス生成量を測定した。比較のため通常加温のみで加温した系でもバイオガス生成量の測定を行った。

(7) [消化汚泥連続式実験]

消化汚泥へのMW照射汚泥を用いたメタン発酵における、長期間の連続投入による影響を確認するため、375日間のメタン発酵連続式実験を実施した。種汚泥として用いた消化汚泥および基質として用いた余剰汚泥は鳥取市秋里終末下水処理場からサンプリングしたものを用いた。実験には有効容積2Lの連続式反応器を2槽用い、槽内汚泥へのMW照射を行わない未照射系と平日1日1回200gの槽内消化汚泥を引抜き、MWを照射後に(期間1: 50W 6min, 期間2: 100W 3min)、槽内に戻す処理を行ったMW照射系の2系列で実験を実施した。HRTは50日とした。

4. 研究成果

(1) [OD汚泥回分式実験]

VS1gあたりのバイオガス発生量について、種汚泥に未処理OD汚泥で馴致した消化汚泥を用いたAの系列では、未処理に対してA2(200W36min(密閉))は約0.8倍、A3(10W30min(開放))は約1.1倍の増減が確認された。種汚泥にMW照射OD汚泥で馴致した消化汚泥を用いたBの系列では、未処理に対してB2(200W36min(密閉))は約0.9倍、B3(10W30min(開放))は約1倍という結果になった。実験結果から、種汚泥にMW馴致消化汚泥を使用の方がOD馴致消化汚泥を使用するものよりもバイオガスは多く発生した。また、200W36min(密閉)の条件ではバイオガス発生量の増加は見られず、10W30min(開放)の低出力でMWを照射した条件ではバイオガス発生量の増加が確認されたが、いずれの条件においても大きな差とは言えない結果となった。

(2) [OD汚泥連続式実験]

両系列ともに阻害等も見られず安定してバイオガスが発生していたが、未処理系とMW照射系との比較で、投入VS1gあたりのバイオガス発生量に大きな差は見られなかった。表1に連続式実験の結果を示す。本研究では脱水後のOD汚泥を用いたため、余剰汚泥や消化汚泥に比べて含水率が低く、水分量の違いが影響した可能性が考えられる。

表1 OD汚泥連続式実験の結果

期間 (15~67日目,53日間)	未照射	MW照射	期間 (68~101日目,34日間)	未照射	MW照射
バイオガス発生量(NmL)	22631	21342	バイオガス発生量(NmL)	13733	13361
汚泥投入量(g)	705	695	汚泥投入量(g)	426	429
投入TS量(g)	131	132	投入TS量(g)	77	77
投入VS量(g)	121	121	投入VS量(g)	70	67
バイオガス発生量(NmL/g-TS)	173	162	バイオガス発生量(NmL/g-TS)	178	173
バイオガス発生量(NmL/g-VS)	187	176	バイオガス発生量(NmL/g-VS)	195	199
VS除去率	39±8	35±10	VS除去率	43±11	47±7
COD _{Cr} 除去率	56±9	88±5	COD _{Cr} 除去率	72±2	76±4
メタン濃度(%)	68±2	69±2	メタン濃度(%)	69±1	67±4
CH ₄ 発生率(NmL/g-TS)	117	112	CH ₄ 発生率(NmL/g-TS)	123	116
CH ₄ 発生率(NmL/g-VS)	127	122	CH ₄ 発生率(NmL/g-VS)	135	134
アンモニア性窒素濃度(g/L)	1.2±0.1	1.2±0.1	アンモニア性窒素濃度(g/L)	1.5±0.3	1.5±0.2
揮発性有機酸濃度(g/L)	0.4±0.4	0.2±0.3	揮発性有機酸濃度(g/L)	1.2±0.9	0.8±0.3

(3) [余剰汚泥回分式実験]

実験ではMW照射により溶解性COD_{Cr}と色度の増加が見られ、バイオガス発生量は減少した。実験では分析結果に大きな差は無く、温度上昇も小さいがバイオガス発生量が増加したことから、MWの非熱的効果による影響が考えられる。

表2 余剰汚泥回分式実験結果

実験No	Case	到達温度(℃)	平均出力(W)	照射時間(min)	TS(%)	COD _{Cr} (g/L)	S-COD _{Cr} (g/L)	色度(度)	バイオガス発生量(NmL/g-VS)
	1	--	--	--	4.1	60.4	10.4	1,927	374
	2	70	100.4	4.6	4.0	58.1	12.4	1,483	271
	3	100	100.5	13.8	4.0	63.5	15.3	2,341	309
	1	--	--	--	4.6	61.7	16.7	1,820	423
	2	19.8	10	30	4.3	60.4	17.3	1,818	523

(4) [余剰汚泥連続式実験]

Run1~3 全ての系列において、安定したメタン発酵が行われていた。VS1g 当たりのバイオガス発生量について、未処理に対して Run2 は、期間 1 では 18.9%、期間 2 では 12.2%の増加が確認された。Run3 は、期間 1 では 11%の減少、期間 2 では 11.4%の増加が確認された。表 3 に連続式実験の結果を示す。

(5) [消化汚泥回分式実験]

回分式実験シリーズ 1 の結果を図 1 に、回分式実験シリーズ 2 の結果を表 4 に示す。シリーズ 1 では、様々な照射条件で実施した 4 回の実験の結果から、MW 照射後の汚泥到達温度、MW 照射による投入エネルギー、および平均照射強度がそれぞれ大きくなるとバイオガス生成量の増加が大きくなるケースが確認された。しかし、一方で投入エネルギー500 J/g-Wet 以下、到達温度 50 °C 以下、照射強度 50W といった低温、低投入エネルギー条件においても一定のバイオガス生成量の増加が確認される結果となった。また、MW 照射により溶解性 COD の増加がみられたが、バイオガス生成量との相関は確認できなかった。MW 照射によるバイオガス生成量の増加は、消化汚泥中に残存する未分解の基質への影響、消化汚泥の一部再基質化、などによる可能性が考えられる。シリーズ 2 では、MW 照射による加温中はバイオガス発生量が顕著に減少した。MW 照射によって、メタン発酵を担う嫌気性微生物の活動に何らかの影響があり、バイオガス生成量の大きな低下が見られたと考えられる。実験開始から 113 h の MW 加温を行い、その後通常加温に戻した実験 2-2 では、最終的なバイオガス生成量が通常加温に比べて 0.54 倍であったが、実験開始から 52 h の MW 加温を行った実験 2-1 では 1.30 倍となった。MW 照射環境下にある時間の違いによって、最終的なバイオガス生成量に差が生じた。

(6) [消化汚泥連続式実験]

連続式実験の結果を表 5 に示す。槽内消化汚泥 200 g に対し、平日毎日 50 W 6 min(90 J/g-Wet)の条件で MW 照射を行った期間 1 では、投入 VS1g 当たりのバイオガス生成量が 0.33 NL/g-VS (未照射系) から 0.37 NL/g-VS (MW 照射系) となり、未照射系に比べて MW 照射系では 12% の増加が確認された。一方、100 W 3 min (90 J/g-Wet) の照射を行った期間 2 では、未照射系と MW 照射系の間にはバイオガス生成量に大きな差は見られなかった。期間 1 の条照射条件でも期

表 3 余剰汚泥連続式実験結果

期間 I (1~46日目,46日間)	未照射	MW照射
バイオガス発生量(NmL)	13698	16189
汚泥投入量(g)	1280	1320
投入TS量(g)	60.2	60.3
投入VS量(g)	50.7	50.4
バイオガス発生量(NmL/g-TS)	227	268
バイオガス発生量(NmL/g-VS)	270	321
VS除去率	60±6	60±4
COD _{Cr} 除去率	57±3	63±1
メタン濃度(%)	62±3	64±1
CH ₄ 発生率(NmL/g-TS)	141	172
CH ₄ 発生率(NmL/g-VS)	168	205
アンモニア性窒素濃度(g/L)	1.7±0.1	1.6±0.2
揮発性有機酸濃度(g/L)	0.1±0.2	0.1±0.2
期間 II (47~122日目,76日間)	未照射	MW照射
バイオガス発生量(NmL)	27012	28335
汚泥投入量(g)	2120	2080
投入TS量(g)	97.5	93.8
投入VS量(g)	78.2	73.3
バイオガス発生量(NmL/g-TS)	277	302
バイオガス発生量(NmL/g-VS)	345	387
VS除去率	59±4	57±3
COD _{Cr} 除去率	50±4	56±5
メタン濃度(%)	63±1	65±1
CH ₄ 発生率(NmL/g-TS)	175	196
CH ₄ 発生率(NmL/g-VS)	218	251
アンモニア性窒素濃度(g/L)	2.2±0.2	2.2±0.2
揮発性有機酸濃度(g/L)	0	0

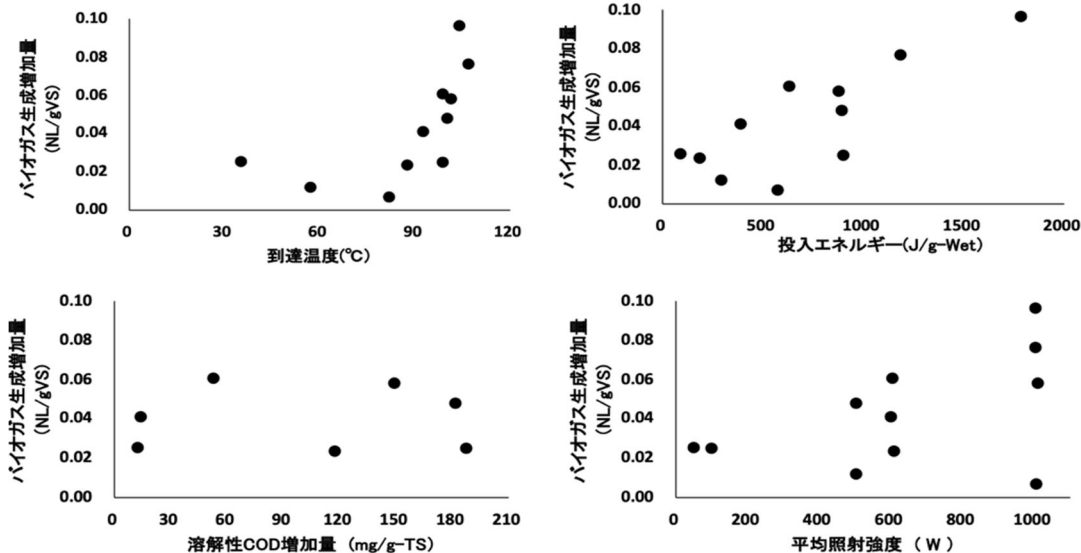


図 1 消化汚泥回分式実験シリーズ 1 の結果

表 4 消化汚泥回分式実験シリーズ 2 の結果

	温度 (°C)	MW照射加温時間 (h)	制御方法	通常加温に対するバイオガス生成量の比 (MW照射中)	通常加温に対するバイオガス生成量の比 (最終)	通常加温に対するバイオガス生成増加量 (NL/gVS)
2-1	55	52	55 保温 100W以下	0.06	1.30	0.15
2-2	55	113	55 保温 100W以下	0.32	0.54	-0.35

間 2 の照射条件でも投入エネルギーは同等であったが、バイオガス生成量の増加効果に違いが生じた。両系列ともアンモニア性窒素や揮発性有機酸の大きな蓄積は確認されず、pH、生成バイオガス中のメタン濃度ともに大きな違いはなかった。いずれの系も順調にメタン発酵反応が進行した。

(7) まとめ

- ・OD 汚泥回分式実験の結果から、低出力で MW を照射した条件ではバイオガス発生量が増加することが確認されたが、大きな差とはならなかった。OD 脱水汚泥は余剰汚泥や消化汚泥に比べ含水率が高く、水分量の違いが影響した可能性が考えられる。
- ・同様に OD 脱水汚泥での連続式実験では、バイオガス発生量に大きな差は見られなかった。
- ・余剰汚泥回分式実験の結果から、MW 照射により 100 ℃ まで温度が上昇した条件では、溶解性 COD_{Cr} と色度の増加が確認されたが、バイオガス発生量の増加は見られなかった。
- ・余剰汚泥回分式および連続式実験の結果から、10W 程度の低出力の MW 照射で、到達温度が 30 ℃ に満たなくても、バイオガス発生量の増加が見られた。MW 非熱的作用による効果と考えられる結果となった。
- ・消化汚泥回分式実験の結果より、MW 照射後の到達温度が 40 ℃ 以下であっても、バイオガス生成量が増加した。
- ・MW 照射中はバイオガス生成が抑制され、菌体活動に影響があることが確認された。
- ・消化汚泥連続式実験の結果から、槽容量の 1/10 の消化汚泥に毎日 MW 照射を行っても阻害等は生じず、MW の照射条件によってはバイオガス生成量の増加が確認された。これらの結果より、到達温度 40 ℃ 以下での低エネルギー照射を一部の槽内汚泥に行うことで、加温と生分解性向上を同時に可能とするシステムの可能性が示された。

以上より、MW 照射による到達温度が 40 ℃ 以下となる低出力照射においても、MW 照射によるバイオガス生成量の増加することが確認された。これにより、消化槽の循環加温に MW を用いるなどにより、加温と同時にバイオガス生成量の 10%~20% 程度の増加が可能となれば、新たなメタン発酵システムによるエネルギー収支の改善が可能となる。今後は更なる実験により、最適水分量、最適照射強度、MW 照射による菌体への影響などについての解明に取り組む。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 戸苅丈仁, 日高平, 田川忠晴, 池本良子
2. 発表標題 マイクロ波を用いたメタン発酵におけるエネルギー回収システムの検討
3. 学会等名 第22回 日本水環境学会シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 戸苅丈仁, 上田竜之介, 下出貴智, 日高平, 池本良子
2. 発表標題 マイクロ波照射を利用したメタン発酵システム
3. 学会等名 第56回水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 前田仁也, 戸苅丈仁
2. 発表標題 マイクロ波照射汚泥を用いたメタン発酵システムによるエネルギー回収
3. 学会等名 第57回環境工学研究フォーラム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 戸苅丈仁, 日高平, 田川忠晴, 池本良子
2. 発表標題 嫌気性消化前処理としての下水汚泥へのマイクロ波照射効果
3. 学会等名 第54回水環境学会年会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------