

令和 3 年 6 月 8 日現在

機関番号：11301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23528

研究課題名（和文）下水汚泥消化施設に基づいた廃棄物エネルギー化システムの革新

研究課題名（英文）Innovation of waste-to-energy system by upgrading anaerobic digesters for sewage sludge

研究代表者

覃 宇 (Qin, Yu)

東北大学・工学研究科・助教

研究者番号：80853241

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000 円

研究成果の概要（和文）：本研究は既存下水汚泥嫌気性消化槽のポテンシャル拡大に着目し、混合発酵法と消化液後処理の導入による廃棄物エネルギー化システムの効率化について考察し、実用化に向けた技術システムの確立を目指す研究である。まず回分実験によって消化汚泥の熱的後処理効果を考察し、最適処理条件は80℃で60分であり、メタン収率は15%で向上できた。また連続実験によって下水汚泥と紙ごみの混合消化を行い、固形分が10%の条件で最適運転状況が得られ、異なるプロセスによるメカニズムの相違を把握した。なお、低コスト水素発酵システムの連続実験を行い、循環比によるプロセスの影響を把握し、分解活性と微生物群集の分布メカニズムを解明した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果は実用化できれば、従来の下水処理場に比べて、大幅なコストダウンが実現でき、下水処理場より余剰電力を売電することが可能となる。このような経済性の高い革新的な技術を普及することで、エネルギー消費を低減でき、環境負荷低減、地域の活性化、自然との共生や循環型社会の形成などの課題にも貢献可能となる。この効率的な廃棄物エネルギー化システムは日本社会の長期発展による脱炭素社会へ移行する際、今後の国際的な発展潮流を牽引していく技術の一つになると信じる。

研究成果の概要（英文）：This study focuses on expanding the potential of the existing anaerobic digester for sewage sludge, discussing the efficiency improvement of the waste-to-energy system by introducing the co-digestion method and post-treatment, and aiming at establishing a practical system. First, the effect of thermal post-treatment of digestate was examined by batch tests. The optimal condition was confirmed as 80 °C for 60 min, improving methane yield by about 15%. Then, co-digestion of sewage sludge and paper waste was conducted by the continuous experiment. The optimal condition was obtained when solid content was added to 10% and the difference of mechanism in different processes was investigated. Moreover, the low-cost hydrogen fermentation process was operated. The effect of recirculation ratio on the process was investigated and the distributions of degrading activity and microbial community were discussed.

研究分野：環境保全工学

キーワード：下水汚泥 嫌気性消化 水素発酵 メタン発酵 熱処理 後処理 循環式二相消化

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年の気候変動による自然環境・人間社会への悪影響が深刻化されつつある。日本はパリ協定の締約国として、平均気温上昇を 1.5°C まで抑える目標を目指して長期目標を策定する同時に、「脱炭素社会」に向けた再エネ源の低コスト化や水素社会の実現などの分野に積極的な取り組みを求めている。一方、現在の下水処理場に設けられた下水汚泥の嫌気性消化施設は低負荷で運転されるケースが多い。下水汚泥は含水率が高く、分解率が低いため、消化ガスによる下水処理場内のエネ自給率も低く留まっている。ゆえに、その嫌気性消化施設の最大ポテンシャルを發揮し、投入負荷の増加と有機物分解率の向上を図ると同時に、既往に開発された「低コスト水素発酵」技術と融合することで、「脱炭素社会」に向けた再エネ源の低コスト化は可能となる。

### 2. 研究の目的

本研究は「混合消化法」、「熱的後処理」と「低コスト水素発酵」などの要素技術を組合せ、回分実験と連続実験を行うことで、システム最適化、メカニズム解明とシステム評価を通して、近年に実用化可能な効率化技術システムの確立を目指す。課題の核心として、要素技術の融合・最適化により、既存下水汚泥消化槽の廃棄物処理と再エネ供給の上限条件を求めるうえ、システムの定量化評価による最大ポテンシャルについて実用化に向けて提案する。

### 3. 研究の方法

#### (1) 回分実験による「熱的後処理」条件最適化

サンプルとされる消化汚泥を 50°C、60°C、70°C、80°C でそれぞれ 30 分間、60 分間加熱した。熱処理を行なった 8 サンプル、及び熱処理を行なわない 1 サンプルの計 9 サンプルについて、SS、VSS、COD<sub>Cr</sub>、炭水化物、タンパク質などの指標を測定した。熱処理がメタンガス生成に与える影響を調査するために回分実験を行なった。バイアル瓶への汚泥投入量は、種汚泥 60ml、基質汚泥 20ml とした。種汚泥は、嫌気性 MBR 槽内の汚泥を用いた。基質汚泥は、50°C-30 分、50°C-60 分、60°C-30 分、60°C-60 分、70°C-30 分、70°C-60 分、80°C-30 分、80°C-60 分で熱処理した余剰汚泥、及び熱処理なしの余剰汚泥を用いた。また、基質汚泥を投入せず、種汚泥のみを投入したサンプルも用いた。これらのサンプルをバイアル瓶に投入し、3 分間 N<sub>2</sub> パージを行い、瓶内を嫌気状態にした後、ブチルゴム栓をし、アルミシールでキャップをした。これらのサンプルを用いて回分実験を行い、ガス生成量とガス組成を記録した。培養環境として 35°C、100rpm の振とう速度とした。測定は最初 24 時間ごとに行い、ガス生成量が落ち着きはじめてから測定日数を減らしていった。ガラスシリンジをバイアル瓶に挿し、ガス生成量を記録する。次にバイアル瓶内のガスを 0.4ml 抜き取りガスクロマトグラフィーに通してガス組成を記録した。

#### (2) 「混合消化」によるバイオマスのメタン回収の向上

メタン発酵槽はアクリル製の完全混合型反応槽である。有効容積は 3L であり、ウォータージャケットを介して高温条件(55±1°C)を維持した。槽内は機械攪拌方式とした。混合基質は腐敗を防ぐため、4°C で保持された基質タンクに保存した。実験に用いられた基質は紙ごみと下水汚泥から混合して作られた。紙ごみは日本国内で年間廃紙発生量が上位三つのオフィス紙(コピー用紙)、ティッシュペーパーおよび新聞紙を 1:1:1(総重量)の比で混合し、シュレッダーで破碎して(2 mm×10 mm)貯蔵した。下水汚泥は S 浄化センターから毎月採取し、実際の汚泥発生量を参考し、初沈汚泥と余剰汚泥を 1:1(体積)を混合して作られた。基質として使う前に、下水汚泥は、規定された量に紙ごみを混合して破碎し、基質タンクに貯蔵した。HRT を 30 日に固定し、初沈汚泥と余剰汚泥が 1:1(体積)混合した TS=4%をはじめとして、紙ごみを TS として、2%、4%、6%、10%に添加し、紙ごみの混合率は 0%から 66.6%(乾燥重量)まで増加し、投入された基質の総 TS 濃度も 4%から 12%まで増加した。実際には、毎回採取された下水汚泥の TS 変動や貯蔵における自己分解によって、下水汚泥の TS が 4%以下になったことがある。接種汚泥は S 浄化センターの中温消化槽から採取され、実験室で高温条件で馴致された消化汚泥を用いた。

#### (3) 循環式二相消化プロセスによる「低コスト水素発酵」の実現

低コスト水素発酵は循環式二相消化プロセス(R-TPAD)を用いて実験を行った。このプロセスには、有効容積が 3L と 12L の 2 つの CSTR 反応器で構成され、それぞれ前段の AP と後段の MP とした。反応槽内もインペラーによって機械的に混合された。加水分解を促進するために、前段 AP は高温条件(55.0±1°C)と運転されたが、後段 MP は中温条件(37.5±1°C)で運転された。プロセス全体の滞留時間は 15 日であったが、各反応槽における滞留時間は循環比 R によって変化していた。

#### 4. 研究成果

##### (1) 回分実験による「熱的後処理」条件最適化

① 汚泥の熱処理による可溶化の効果は処理温度が高く、時間が長い条件であるものほど顕著であることがわかった。

② ガス生成ポテンシャルは 80℃で 60 分によるものが最も大きく、熱処理を行わない場合と比較してバイオガス生成ポテンシャルは約 12%、メタンガス生成ポテンシャルは約 15%増加した。

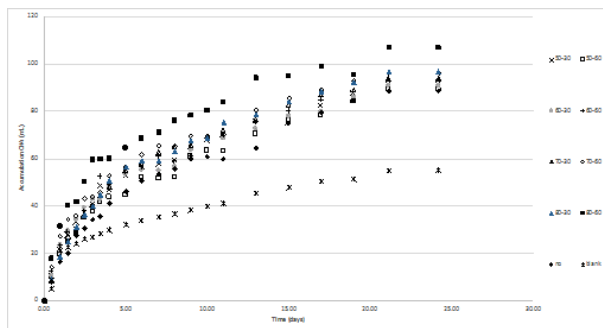


図-1 回分実験におけるメタン生成量

##### (2) 「混合消化」によるバイオマスのメタン回収の向上

① 滞留時間が 30 日の条件で、いずれの条件でも安定した結果が得られ。紙ごみの最大混合率は 66.6% (投入 TS=10%)、最大処理負荷は 3.45 kg-VS/L/d まで達成できた。

② 高温条件では投入された 1 g の VS あたりのバイオガス生成量は 438~594 mL であり、メタンガス含有量は 51.19~61.55%であった。紙ごみの混合率と有機負荷が増加に伴い、TS, VS, COD および炭水化物の除去率が上昇し、PW-60%の条件で、TS, VS および COD の最大分解率が得られ、それぞれ  $64.93 \pm 1.82\%$ 、 $72.43 \pm 1.66\%$ 、 $72.92 \pm 0.08\%$ であった。炭水化物の分解率とタンパク質の分解率は競争な関係で、紙ごみの混合率の上昇によって、炭水化物の分解率が促進され、タンパク質の分解率が抑えられ、それぞれ最大分解率は  $90.66 \pm 4.19\%$ 、 $47.42 \pm 5.62\%$ であった。

表-1 高温発酵条件における有機物分解率 (%) の平均値

(投入 TS 条件)	4%	6%	8%	10%	12%
TS 分解率	48.51±1.54	54.78±2.22	62.03±0.62	64.93±1.82	62.76±1.62
VS 分解率	54.31±1.71	64.02±1.67	71.80±4.53	72.43±1.66	70.30±1.19
COD <sub>Cr</sub> 分解率	58.34±5.90	64.81±10.96	70.61±4.62	72.92±0.08	69.84±3.15
炭水化物分解率	66.70±6.69	83.87±2.67	86.83±3.63	90.66±4.19	89.41±3.27
タンパク質分解率	47.42±5.62	27.45±10.54	26.49±3.71	10.31±9.97	(-5.25±15.62)

③ 高温消化、中温消化、高温-中温型二相消化と循環式二相消化の四つのプロセスを比較すると、投入 TS が 8%以下の条件で大きな違いは見られなかった。投入 TS が 10%以上の条件では、中温消化は顕著に低下され、そのほかのプロセスは依然として近い結果が得られた。高温条件において、2%ごとの紙ごみを投入するとともにメタン収率は 5.61 L-CH<sub>4</sub>/L-汚泥で増加した。

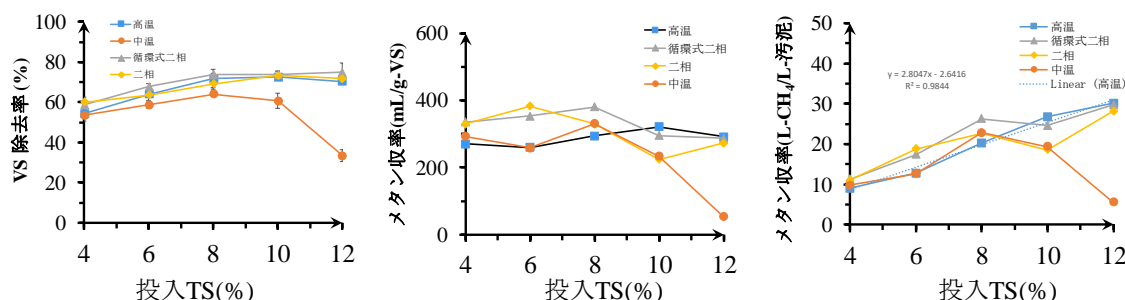


図-2 混合消化の連続実験におけるプロセスによる消化効率の影響

④ 紙ごみと下水汚泥の混合メタン発酵の各段階の反応速度と反応転化率を計算した。紙ごみを添加した条件で、加水分解が律速段階であったことが分かった。また加水分解率は有機負荷の増加の伴い低下した。

⑤ リアクターに投入された TS(あるいは C/N 比)と各指標の反応速度は相関性高い線型性関係を得られた。TS が 8%の条件で、微生物処理負荷の最大値が得られた。

### (3) 循環式二相消化プロセスによる「低コスト水素発酵」の実現

① 既往型二相消化に基づいて、AP の pH が酸性の初期条件から循環率を調整することで、 $H_2$  と  $CH_4$  の共発酵が実現できた。

② R-TPAD プロセスにおいて、前段 AP で水素発酵の達成する初期条件は、高い pH は低い pH より速いことが分かった。

③ 循環比を調整するによって、前段 AP におけるセルロースの加水分解に関する細菌と水素生成細菌が優占になり、その微生物群集は循環比の変化に対して記憶性を持つことが示唆された。一方、後段 MP の運転状況は循環比の変化による影響は大きくなかった。

④ 最終に得られた低コスト水素発酵プロセスでは、滞留時間が 15 日の条件で燃料ガスの収率は  $57.6 \text{ NL-}H_2/\text{g-VS}_{\text{fed}}$ 、 $368 \text{ NL-}CH_4/\text{g-VS}_{\text{fed}}$  であり、VS 除去率は 79.4%であった。

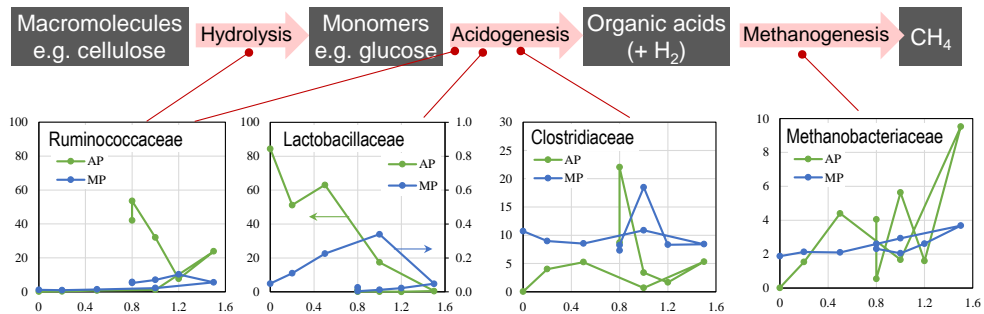


図-3 循環比の調整による主要な微生物群集の変動

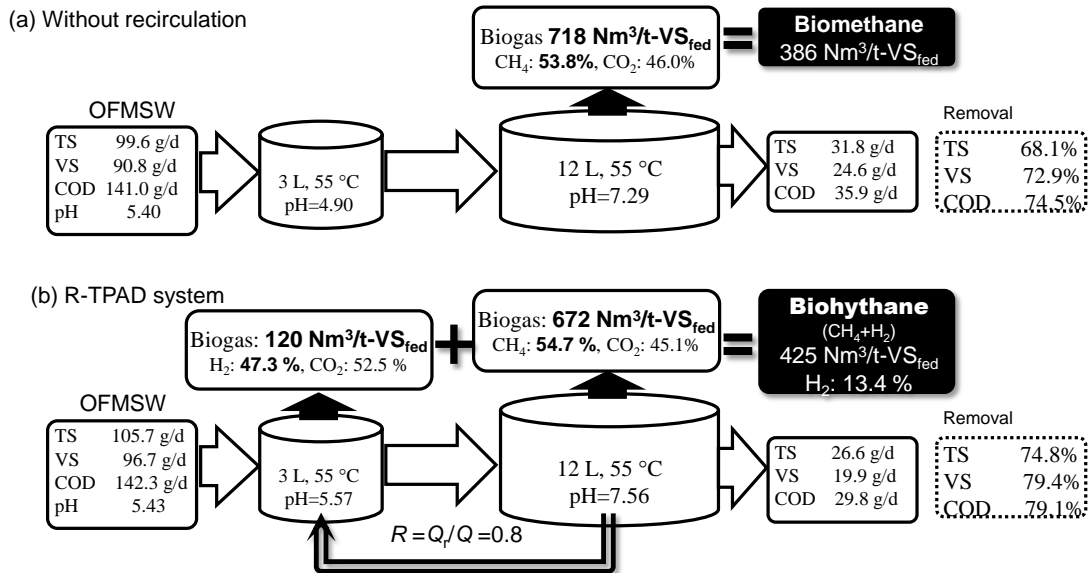


図-4 既往型二相消化と循環型二相消化による低コスト水素発酵の物質収支

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Li Yemei, Cheng Hui, Guo Guangze, Zhang Tao, Qin Yu, Li Yu-You	4. 巻 310
2. 論文標題 High solid mono-digestion and co-digestion performance of food waste and sewage sludge by a thermophilic anaerobic membrane bioreactor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Bioresource Technology	6. 最初と最後の頁 123433 ~ 123433
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.biortech.2020.123433	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 朱 愛軍、覃 宇、吳 競、李 玉友	4. 巻 62
2. 論文標題 生ごみと紙ごみの中温メタン発酵に及ぼす紙比率と水理的滞留時間の影響	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 用水と廃水	6. 最初と最後の頁 425-434
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Zhu Aijun, Qin Yu, Wu Jing, Ye Min, Li Yu-You	4. 巻 (印刷中)
2. 論文標題 Characterization of biogas production and microbial community in thermophilic anaerobic co-digestion of sewage sludge and paper waste	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Bioresource Technology	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Zhang Tao, Tonouchi Kazuki, Kong Zhe, Li Yemei, Cheng Hui, Qin Yu, Li Yu-You	4. 巻 765
2. 論文標題 Improvement of coffee grounds high solid thermophilic methane fermentation by co-digestion with in-situ produced waste activated sludge: Performance and stability	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 142551-142551
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2020.142551	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Yu Qin, Lu Li, Jing Wu, Benyi Xiao, Toshimasa Hojo, Kengo Kubota, and Yu-You Li
2. 発表標題 BioH <sub>2</sub> and bioCH <sub>4</sub> recovery by recirculated temperature-phased anaerobic co-digestion of food waste and paper waste
3. 学会等名 The 16th IWA World Conference on Anaerobic Digestion (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Aijun Zhu, Yu Qin, Jing Wu, Yu-You Li
2. 発表標題 Anaerobic Co-Digestion of Paper Waste and Sewage Sludge: the Effects of Paper Waste Ratio
3. 学会等名 The 7th International Symposium on Water Environment Systems (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 佐々木萌波, 李玉友, 覃宇
2. 発表標題 熱処理を導入した下水汚泥の嫌気性膜分離法処理における効率化に関する研究
3. 学会等名 第12回廃棄物資源循環学会東北支部 & 第7回日本水環境学会東北支部合同研究発表会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 佐々木萌波, 李玉友, 覃宇
2. 発表標題 汚泥の熱処理を取り入れた嫌気性MBR法処理の効率化研究
3. 学会等名 土木学会東北支部技術研究発表会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 佐々木萌波, 李玉友, 覃宇
2. 発表標題 後熟処理を導入した下水汚泥の嫌気性膜分離法処理における効率化
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Yu Qin, Aijun Zhu, Yu-You Li
2. 発表標題 Adjusting Recirculation Ratio in a Two-Phase Anaerobic Process for the Co-Production of Hydrogen and Methane
3. 学会等名 The 6th International Conference on Low Carbon Asia & Beyond (国際学会)
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 田付春凧、朱愛軍、覃宇、李玉友
2. 発表標題 回分実験に基づいた食品廃棄物によるバイオガス発電施設の評価
3. 学会等名 第55回日本水環境学会年会
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 田付春凧、朱愛軍、覃宇、李玉友
2. 発表標題 メタン生成ポテンシャルに基づくバイオガス発電施設の評価
3. 学会等名 令和2年度土木学会東北支部技術研究発表会
4. 発表年 2020年～2021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
---------	---------