

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：82111

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K06305

研究課題名（和文）医薬品の環境リスクを考慮した集排汚泥と食品廃棄物の混合メタン発酵システムの開発

研究課題名（英文）Development of Anaerobic Co-digestion of Rural Sewage Sludge and Food Waste Considering Environmental Risk of Pharmaceuticals and Personal Care Products (PPCPs)

研究代表者

中村 真人（NAKAMURA, MASATO）

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・農村工学研究部門・上級研究員

研究者番号：60414463

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、集排汚泥と食品廃棄物等との混合メタン発酵試験により、安定的な発酵が可能な条件を明らかにするとともに、メタン発酵及び消化液の液肥利用過程での医薬品の分解特性を把握した。集排汚泥とC/N比が生ゴミよりも高い食品廃棄物を原料とした混合メタン発酵においては、pH、ガス発生量の減少などの発酵不良状態に陥った。それに対して、窒素源として尿素を添加したところ、発酵は順調に進行した。尿素の添加は、発酵の安定性向上だけでなく、消化液の肥料価値の向上につながる。医薬品の分解特性については、高温メタン発酵条件と消化液の貯留過程で医薬品の分解が進みやすいことが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

集排汚泥と食品廃棄物等の混合メタン発酵は、廃棄物から再生可能エネルギー源であるメタンを取り出せ、消化液（発酵残渣）を肥料として利用できる、農村地域に適した技術である。農村で発生する廃棄物を幅広く活用することが望ましいが、C/N比の高い食品廃棄物を原料とすると、発酵不良を引き起こす可能性があった。それに対して、本研究では、原料に尿素を添加することにより、発酵不良を起こさず、肥料利用に適する消化液が得られる条件を明らかにできた。また、メタン発酵及び消化液の液肥利用過程での医薬品の分解特性を把握できたことは、より安全・安心な消化液の肥料利用の推進につながる。

研究成果の概要（英文）：In this study, stable condition of anaerobic co-digestion of rural sewage sludge and food wastes and the degradation characteristics of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) during anaerobic digestion and the use of digestate as fertilizer were investigated. The results indicated that the pH and gas production rate gradually dropped, indicating process failure when co-digestion of rural sewage sludge and food waste with a C/N ratio higher than that of kitchen garbage. When urea was added to the feedstock material as nitrogen source, digestion proceeded stably. The addition of urea not only improves the stability of digestion, but also improves the fertilizer value of the digestate. Regarding the decomposition characteristics of PPCPs, it was clarified that the decomposition of PPCPs is likely to proceed under thermophilic digestion condition and in the process of storing digestate.

研究分野：地域環境工学

キーワード：農業集落排水施設 汚泥 作物残渣 C/N比 医薬品

1. 研究開始当初の背景

農業集落排水施設（以下、「集排施設」）では維持管理費削減が課題であり、その大部分を汚泥処理費（63%）が占める。一方、食品廃棄物や作物残さ（以下、「食品廃棄物等」）の利用率はそれぞれ 24%、32%と低く、利用率の向上が課題であるが、農村地域では事業者あたりの排出量が少なく、効率的な利用が困難なのが実情である。

集排汚泥と食品廃棄物等の混合メタン発酵は、再生可能エネルギー源であるメタンを取り出し、集排施設の維持管理費削減、地域の廃棄物削減を同時に実現できる有望な解決策である。食品廃棄物等を混合することにより、集排汚泥単独での発酵時に比較して、ガス発生量の大幅な増加が可能である。また、既存の集排施設内に整備することにより低コストで整備できる。さらに、消化液（発酵残渣）の肥料利用技術との組み合わせにより、農村地域における資源循環の実現に寄与する（図1）。

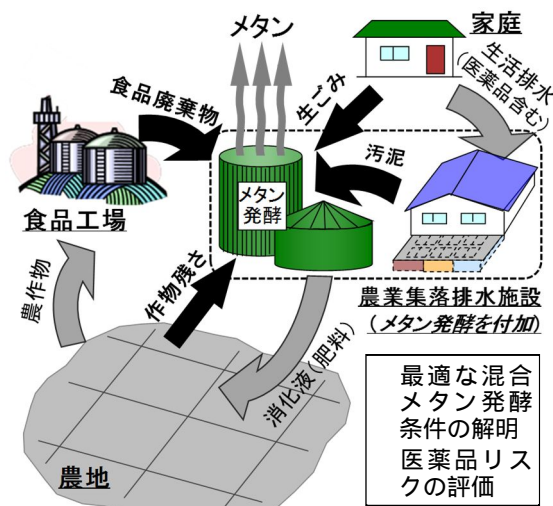


図1 本研究が目指すシステムと課題

しかしながら、上記システムの実現には、下記のような課題も残されている。

課題1 集排汚泥と食品廃棄物等の安定発酵条件の解明

メタン発酵は微生物を利用する技術であるため、微生物のエサとなる原料の元素バランス（栄養素、微量元素）が崩れると、微生物活性が低下し、発酵が不安定となる。例えば、食品廃棄物を原料とした場合にはコバルト等の不足（Qiang, 2012; Nakamura, 2019）原料の高C/N比（炭素と窒素の割合）（Chen, 2008）により、発酵不良が生じる。一方、消化液の肥料利用においては、原料中の窒素、リン酸等肥料成分濃度が低濃度だと肥料として利用しづらい。このように、図1のシステムを実現するためには、メタン発酵及び消化液の肥料利用を行う上で支障がない、集排汚泥と食品廃棄物等の安定発酵条件を明らかにする必要がある。

課題2 集排汚泥由来の医薬品に対する安全性の評価

汚泥を原料として、消化液を肥料利用するシステムを考える場合には、肥料効果だけでなく、安全性にも十分な配慮が必要である。病原菌や重金属についての安全性は対策が進んでいる一方で、生活排水由来の医薬品等の新興汚染物質については懸念が残っている。医薬品は、たとえ微量でも生態系や健康に悪影響を与える可能性がある物質として、近年、世界的に注目されており、生活排水由来の汚泥にも含まれていることが報告されている（McClellan, 2010）。汚泥中の医薬品は、堆肥化過程で微生物により分解されることが分かってきており（Malmborg, 2015）メタン発酵過程でも、適切な条件を整えれば、多くの医薬品を分解、無害化することができると考えられる。図1のシステムを安全・安心なものとするためには、メタン発酵、消化液の肥料利用（熱殺菌、貯留）の各過程での医薬品の分解特性を把握することは重要である。

2. 研究の目的

本研究では、集排汚泥と食品廃棄物の混合発酵試験を行い、安定的な発酵が可能な条件を明らかにする。さらに、温度、pH等が大きく変動するメタン発酵、消化液の殺菌・貯留過程における医薬品の分解特性を把握する。それにより、医薬品の環境リスクを低減し、エネルギー効率向上と効率的な消化液の肥料利用の実現が可能な集排汚泥と食品廃棄物の混合メタン発酵システムを開発することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 混合メタン発酵試験

メタン発酵試験は、容量 0.3L（有効容量 0.2L）の三角フラスコをメタン発酵槽として、中温（37℃）条件にて連続式試験を行った。ヘッドスペースを窒素で置換した上で、インキュベーターに設置し、振とう器を用いて、100 rpm で攪拌した。発生するバイオガスは、三角フラスコに接続したガスバッグ（AAK2; ジーエルサイエンス株式会社）で採取し、体積をガラスシリンジで測定した。不足しやすい微量栄養塩が十分な量供給されるように、Co と Ni をそれぞれ発酵槽内の濃度が 0.2、0.5 mg/L 程度になるように補給した。

メタン発酵試験 1

C/N 比が高めの原料のメタン発酵の安定性を確認するため、集排汚泥（濃縮汚泥、含水率 98%）

と C/N 比が生ゴミ (C/N 比 : 16.8) よりも高いコーヒーかす (同 23.6) サツマイモ (同 42.4) (VS が生ゴミと同等になるように水分調整) を重量比 1:1 で混合した原料を用いて、メタン発酵試験を行った。その際、窒素源として、発酵液の窒素濃度が 500mg/L 増加する量の尿素を添加することにより C/N 比を調整した試験区と添加しない試験区を設定した。滞留時間は 50 日から開始し、その後、段階的に短縮して最終的に 20 日とした。試験期間中、pH、ガス発生量、アンモニア態窒素濃度の測定を行った。

メタン発酵試験 2

窒素源である尿素の添加がメタン発酵の安定性に及ぼす影響を評価するため、集排汚泥 (濃縮汚泥、含水率 98%) と C/N 比が生ゴミよりも高いすだち搾りかす (C/N 比 : 36.1) を重量比 1:1 で混合した原料を用いて、メタン発酵試験を行った。その際、尿素添加により C/N 比を調整した試験区と添加しない試験区を設定した。尿素を添加する試験区では、その添加量を少しずつ増やし、その時の発酵の安定性を確認した。試験は発酵温度 37°C、滞留時間は 25 日、有機物負荷率 3.6 gVS/(L・d) の条件で行い、試験期間中、pH、ガス発生量、アンモニア態窒素濃度の測定を行った。

(2) 消化液の医薬品濃度

集排汚泥と生ゴミを重量比で 1:1 の混合メタン発酵の消化液について、集排施設の汚泥を対象とした研究で検出実績のある医薬品を対象として濃度を測定した。有機溶媒による抽出と固相カートリッジによるクリーンアップ、濃縮を行った後、LC/MS/MS を用いて医薬品の分析を行った。発酵温度の影響を把握するため、中温 (37°C) 及び高温 (55°C) メタン発酵前後の医薬品濃度の測定を行い、両過程での医薬品の除去率を評価した。また、消化液の液肥利用時の処理の影響を把握するため、貯留 (20°C 3 ヶ月) 殺菌 (55°C 8 時間、70°C 1 時間) 処理後の消化液について、医薬品濃度を測定した。

4. 研究成果

(1) メタン発酵試験

メタン発酵試験 1

メタン発酵試験 1 における pH と NH₄-N の推移を図 2 に示す。尿素無添加の場合、コーヒーかすは滞留時間 25 日 (有機物負荷率 3.0 gVS/(L・d))、サツマイモは同 20 日 (有機物負荷率 3.8 gVS/(L・d)) において、pH、ガス発生量の減少などの発酵不良状態に陥った。その時の、アンモニア態窒素濃度はそれぞれ 150、250mg/L であり、発酵不良が発生するアンモニア態窒素の濃度帯を把握できた。また、尿素を添加した場合には発酵不良が起こらず、尿素の添加が発酵安定に有効であることが示された。さらに、尿素の添加は消化液のアンモニア態窒素濃度を上昇させるため、消化液の効率的な肥料利用のためにも有効であることが示された。

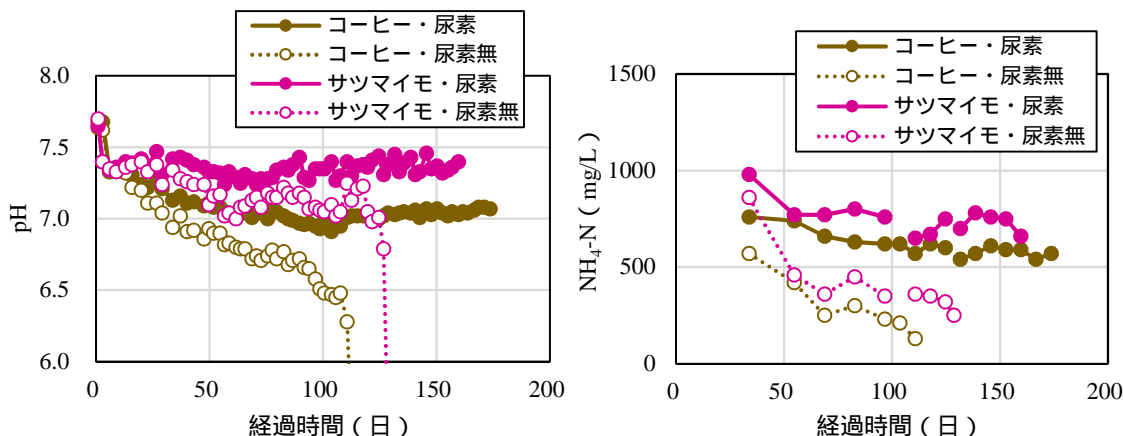


図 2 メタン発酵試験期間における pH と NH₄-N の推移 (メタン発酵試験 1)

メタン発酵試験 2

メタン発酵試験 2 における pH と NH₄-N の推移を図 3 に示す。尿素無添加の場合、pH、ガス発生量の減少などの発酵不良状態に陥った。その時の、アンモニア態窒素濃度は 285mg/L であった。また、尿素を添加した場合、添加量が少ない場合には発酵不良が起こらなかったが、アンモニア態窒素濃度が 3000mg/L を超えた時に発酵不良状態に陥った。高 C/N 比原料への尿素の添加は、消化液の効率的な肥料利用のためにも有効であるが、添加量の上限はアンモニア態窒素濃度が 3000mg/L 程度であることが示された。

高 C/N 比原料に起因する発酵不良への対応としては、C/N 比が低い原料との混合が一般的である。しかしながら、メタン発酵施設は、処理を行う廃棄物を収集しやすい場所に設置することが基本であり、遠方から新たに廃棄物を収集することは、その収集・運搬に手間とコストがかかる

る。また、新たに収集した廃棄物の分だけ大きな発酵槽を設置する必要があり、建設コストの増加につながる。それに対して、窒素源として化学肥料を添加して C/N 比を改善する方法は、化学肥料の窒素濃度が高い(尿素の場合 46%) ため、原料の総量がほとんど増加せず、発酵槽容量を大きくする必要がない。また、肥料を添加した分コストが増加することになるが、消化液の液肥利用を前提にすると、添加した肥料は、最終的には農地に施用されるので、その分肥料代の削減が可能で、一連のシステムで考えるとコストの増加にはつながらないと言える。

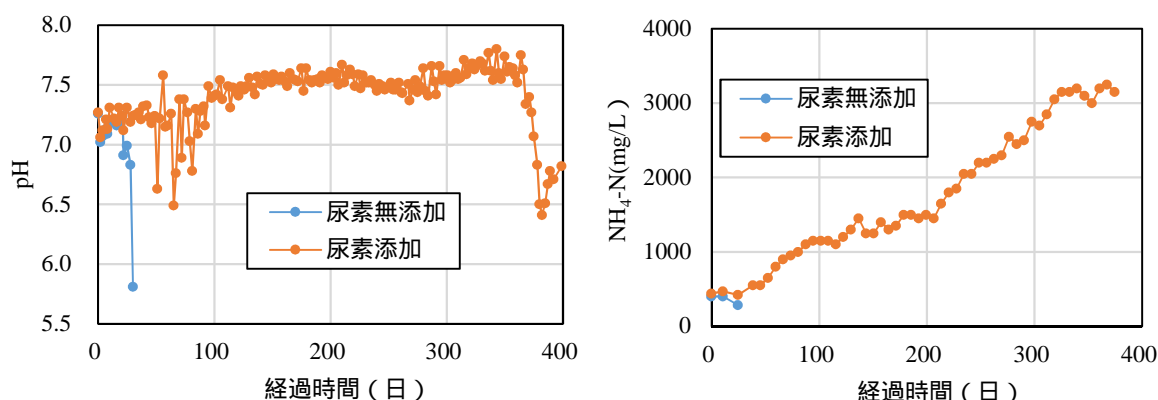


図3 メタン発酵試験期間における pH と NH₄-N の推移 (メタン発酵試験 2)

(2) 消化液の医薬品濃度

中温メタン発酵では、研究対象とした 15 成分の PPCPs のうちで、90% 以上の高率で除去される成分(Benzophenone3, Naproxen)があることが明らかとなった。また、別の 5 成分は 50% ~ 80%、5 成分は 20% ~ 40% の除去率であり、除去率 20% 以下の成分は 3 成分であった。高温メタン発酵では、中温メタン発酵と比べて約 10% ~ 40% 高い除去率が得られた成分が 6 成分あった。その一方で、メタン発酵後の消化液の殺菌工程と貯留工程では、特に貯留工程で PPCPs が除去されることが明らかとなった。

以上より、集排汚泥と生ゴミの混合メタン発酵技術では、メタン発酵過程での PPCPs 除去効果が期待でき、更に貯留過程でも除去が行われることが分かった。また、中温メタン発酵よりも、高温メタン発酵での PPCPs 除去効果が高いことが明らかとなった。従って、集排汚泥と生ゴミの混合メタン発酵技術における PPCPs に対する安全性への懸念を小さくするためには、高温メタン発酵を導入することが一つの方法と考えられた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 中村真人、柴田浩彦、折立文子、蒲地紀幸、山岡賢	4. 巻 90(1)
2. 論文標題 集排汚泥、生ごみ、すだち搾りかすの混合メタン発酵における搾りかすの割合が発酵の安定性に及ぼす影響	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 農業農村工学会論文集	6. 最初と最後の頁 _43- _51
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11408/jsidre.90.11_43	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 中村真人	4. 巻 127
2. 論文標題 集落排水施設のグリーン化に向けた可能性	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 季刊JARUS	6. 最初と最後の頁 8-12
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 無
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 中村真人、折立文子、柴田浩彦、蒲地紀幸、日高平、柚山義人、北川巖	4. 巻 90(9)
2. 論文標題 みどりの食料システム戦略におけるメタン発酵の貢献	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 農業農村工学会誌	6. 最初と最後の頁 11-15
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 中村真人	4. 巻 46 (170)
2. 論文標題 農業集落排水汚泥と食品廃棄物を原料とするメタン発酵消化液の肥料利用	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 再生と利用	6. 最初と最後の頁 41-46
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 無
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2件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 中村真人、柴田浩彦、折立文子、蒲地紀幸、山岡賢
2. 発表標題 農業集落排水汚泥、生ゴミ、すだち搾りかすの混合メタン発酵
3. 学会等名 農業農村工学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村真人
2. 発表標題 農村地域におけるバイオガス発電を中核とした資源循環システムの構築
3. 学会等名 産総研北海道センターシンポジウム「分散型地域エネルギーの最新動向と地産地消・普及に向けた研究開発」（招待講演）
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 芋生憲司、中村真人他	4. 発行年 2023年
2. 出版社 環境新聞社	5. 総ページ数 430
3. 書名 メタン発酵システム－基礎から実務まで知り尽くす－	

〔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
研究分担者	治多 伸介 (Haruta Shinsuke) (60218659)	愛媛大学・農学研究科・教授 (16301)	

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
---------	---------