

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：13301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630245

研究課題名(和文) 低出力マイクロ波処理を利用した微生物細胞内部破壊による脱水污泥可溶化

研究課題名(英文) Solubilization of dewatered sludge by disruption of cells by microwave pretreatment

## 研究代表者

池本 良子 (Yamamoto-Ikemoto, Ryoko)

金沢大学・環境デザイン学系・教授

研究者番号：40159223

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)：小規模下水処理場に適用可能なメタン発酵前処理法として、低出力マイクロ波照射法を提案し、室内実験による効果の検討を行った。その結果、マイクロ波照射により、ガス発生量の少ないオキシデーションディッチ法から発生する脱水污泥でも、ガス発生量が1.8倍となり、標準活性污泥法の混合污泥と同程度まで増加した。ガス発生量の増加には、加熱による細胞外物質の可溶化効果とマイクロ波自身による懸濁態難分解性物質を易分解性懸濁態有機物に変換する効果の両者があり、後者の効果は300W以上の出力で起こることがわかった。さらに、連続メタン発酵実験によっても、マイクロ波の効果が確認された。

研究成果の概要(英文)：Effects of microwave pretreatment of dewatered sludge on anaerobic digestion was examined. Although biogas production potential of dewatered sludge from an oxidation process was low, that increased by 80% by microwave pretreatment. Effects of microwave was estimated to be both heat solubilization of EPS and improve of biodegradability of suspended organic matter. As a result of a continuous digestion experiment, it was demonstrated that gas yield improved by microwave pretreatment.

研究分野：環境工学

キーワード：嫌気性消化 污泥処理 マイクロ波

1. 研究開始当初の背景

下水汚泥の嫌気性消化は、汚泥の無害化や安定化だけでなく、エネルギーガスを回収できることから、近年再注目されている。嫌気性消化は比較的大規模な処理場において、採用されており、全国の下水処理場の9割を占める排水量1000m<sup>3</sup>/day以下の小規模処理場に導入された例は極めて少ない。これは、小規模処理場では、汚泥発生量が少なく、発生するガスも少ないためにコストメリットが低いことだけでなく、小規模処理場の多くで採用されているオキシデーションディッチ(OD)法で発生する汚泥からのガス発生量が少ないことが要因である。OD汚泥のガス発生量が少ないのは、OD法が、最初沈殿池を持たず、有機物が分解性の悪い微生物体に変換されてしまっていること、HRTが長い運転をしているために、細胞外吸着物質や細胞内貯蔵物質の分解が進んでいることなどが原因であると考えられる。

一方、小規模下水処理場では、汚泥処理施設を持たず、脱水した状態で産業廃棄物として搬出している場合が多いことから、汚泥の処分費が下水処理財政を圧迫しているところも少なくない。また、平成の合併により、市町で複数箇所の汚水処理施設を抱えているところも多い。このような背景から、OD汚泥のメタン生成量を増加できる前処理方式が開発できれば、複数の下水処理場から脱水状態で汚泥を集約しメタン発酵を行うことによりコストメリットがでることが期待される。

これまで、汚泥の分解促進のために、酸加熱処理、水熱処理、オゾン処理、超音波処理など、様々な前処理法が提案されてきたが、これらの方法は、濃度の高い脱水状態の汚泥に適用することが困難である。そこで、本研究ではマイクロ波処理に着目した。これまで、マイクロ波を汚泥の前処理に用いる研究がいくつか行われてきたが、いずれも、低濃度条件でのメタン発酵を想定し、3-5%程度の汚泥に照射したものであり、効果はあるものの、マイクロ波のエネルギーのほとんどが水の加熱のために消費されたと考えられる。本研究では、含水率の低い高濃度の脱水汚泥にマイクロ波を照射することにより、微生物細胞の内側から細胞に影響を与えることを想定した新規のマイクロ波処理を提案するものである。

2. 研究の目的

OD脱水汚泥に対するマイクロ波照射効果を明らかにするとともに、そのメタンガス生成量増加メカニズムについて検討することが本研究の目的である。そのために、まず、OD脱水汚泥に対し、マイクロ波照射オープンにより様々な条件でマイクロ波を照射し、そ

の条件を検討した。次に、連続消化実験によりマイクロ波照射効果を明らかにした。

3. 研究の方法

3.1 マイクロ波照射によるメタン生成量増加効果

オキシデーションディッチ法を採用している石川県中能登町鹿島中部クリーンセンターの脱水汚泥(OD脱水汚泥)を2週間に1回保冷条件で運搬し、実験に供した。本汚泥のTS濃度は12-15%であった。

マイクロ波照射オープン(四国計測,  $\mu$  Reactor Ex)を用いて、OD脱水汚泥に対し、表-1に示すような種々の条件でマイクロ波照射を行った。比較のために、低温恒温乾燥器(東京理科器械 NDO-420)による加温も同時に行った。マイクロ波照射オープンは、最大出力と照射温度、照射時間を設定することが可能である。シリーズIでは最大出力を固定して、制御温度を変化させた実験を行った。シリーズII, IIIでは、最大出力で照射される時間を確保するために、汚泥量を増量するとともに、容器の外側から冷却する条件

表-1 OD汚泥の処理条件

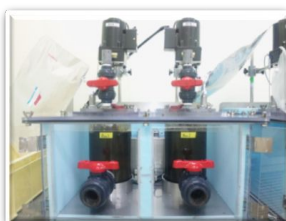
実験シリーズ	実験ケース	前処理方法	最大出力(W)	制御温度(°C)	照射時間(min)	汚泥質量(g)	汚泥厚み(mm)	容器と条件			
I	1	マイクロ波	300	60	10	50	10	90mmシャーレ			
	2				20						
	3				60						
	4				10						
	5				20						
	6				60						
	7				10						
	8				20						
	9				60						
	10	加温	-	-	60	50	10				
	11				80						
	12				95						
	13	未処理	-	-	-	-	-	-			
II	1	マイクロ波	300	60	60	50	10	90mmシャーレ			
	2					500	90	500mLビーカー			
	3					500	90	500mLビーカー冷却			
	4	加温				-	-	50	10	90mmシャーレ	
	5	マイクロ波				-	-	-	500	90	500mLビーカー繰返し
	6	未処理				-	-	-	-	-	-
III	1	マイクロ波	300	80	60	500	10	500mLビーカー			
	2	マイクロ波	-	-	-	-	45	150mmシャーレ			
	3	未処理	-	-	-	-	-	-			
IV	1	マイクロ波	300	80	制御温度到達時点で終了	500	90	500mLビーカー冷却			
	2				同上			500mLビーカー			
	3		1000		制御温度到達時点で終了			500mLビーカー冷却			
	4		同上		500mLビーカー						
	5	加温	-	-	60	50	10	90mmシャーレ			
	6	未処理	-	-	-	-	-	-			

と、制御温度に到達した時点で、いったん取り出して冷却し、再度照射する条件を設定した。さらにシリーズ IV では、最大出力を 1000W まであげて、制御温度に到達した時点でマイクロ波照射を終了した。

マイクロ波照射前後の含水率を測定した後に、TS 3% に調整し、遠心上澄み液について、溶存態有機炭素 (DOC) および溶存態窒素 (DTN) の測定を行った。さらに、以下に示す回分実験によりメタン生成ポテンシャルの測定を行った。回分実験は、100mL のシリンジを用い、下水処理場から採取した中温消化汚泥を 30mL 採り、試験汚泥 0.5g (dry weight) を添加した後、35 °C で 30 日間振とう培養を行うことにより、ガス発生量を評価した。

### 3.2 メタン発酵連続処理実験

図-1 に示す有効容積 3L の連続メタン発酵実験装置を 2 系列用いて、35 °C の中温条件、HRT 25 日の条件で連続メタン発酵試験を行った。種汚泥は、回分実験で用いたものと同じ下水処理場中温消化汚泥を用いて、Run 1 には TS7% に調整した OD 脱水汚泥を、Run 2 には、マイクロ波で前処理 (制御温度 80 °C、最大出力 100W、照射時間 60min) を行った OD 脱水汚泥を同様に TS7% に調整して添加した。原則、平日 1 日に 1 回槽内から汚泥を抜き取り、試験汚泥を添加することを繰り返した。引き抜いた汚泥は、週に 1 回、TS、VS、上澄み液の組成分析を行った。



運転条件	
容量 (L)	3
温度 (°C)	37
SRT (日)	25
投入汚泥	脱水 OD 汚泥
投入量 (mL)	168
TS (%)	7

図-1 連続処理装置と運転条件

## 4. 研究成果

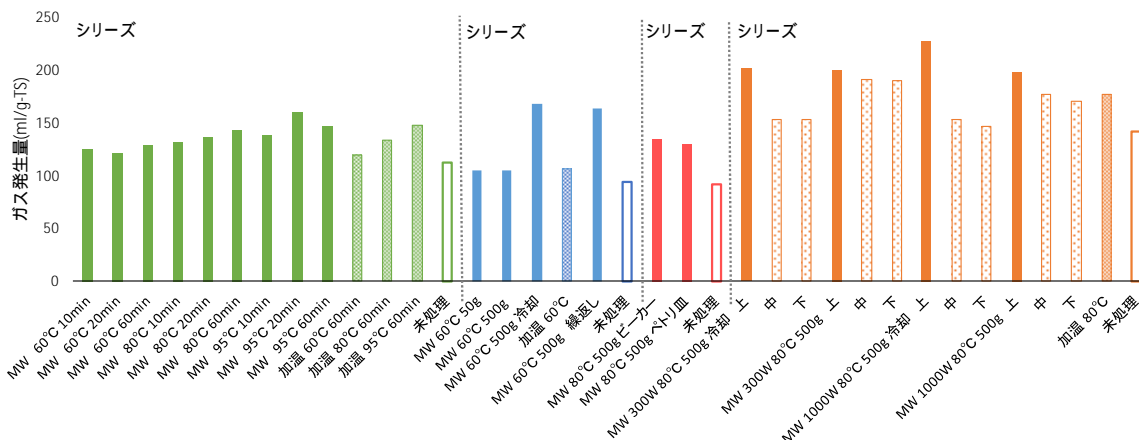


図-2 各前処理条件におけるメタンガス発生量

### 4.1 マイクロ波照射条件とメタンガス発生量増加効果

図-2 に、回分実験で得られたメタンガス発生量をまとめて示す。シリーズ I では、設定温度を上げると溶存態有機物および窒素濃度が増加し、ガス発生量が増加する傾向が認められた。しかし、加温でも同様な傾向がみられたことから、この効果は加温によるものであると推定できる。図-3(a)に、この時の出力および温度ログを示す。最大出力 300W に設定していたが、1 分以内で設定温度に上昇し、そのあと保温のために 100W 以下の弱いマイクロ波が照射されていたことがわかる。このような条件ではマイクロ波自身の効果はほとんど発揮できていないものと推定される。

そこで、シリーズ II では、ピーカーを用いて汚泥量を増加するとともに、ピーカーの周りを水冷した条件と、設定温度に達したら取り出して冷却し、再度照射する条件を 3 回繰り返し、300W の出力で照射する時間を延長した。その時の出力および温度ログを図-3(b)、(c) に示す。どちらの条件も 300W で照射される時間が長くなっていることがわかる。その結果、ガス発生量は水冷の条件で未処理の 1.8 倍、繰り返しの条件で 1.7 倍にまで増加し、明らかに加温以外の効果があることが分かった。明らかに 300W で照射されている時間が長いことがわかる。

シリーズ III では、設定温度を 80 °C に上昇し、汚泥の厚みを変化させたところ、温度を上げるとややガス発生量が増加したが、それほど大きな効果は得られなかった。

最後にシリーズ IV では、設定温度に到達した時点で照射を中止し、100W 以下の保温のための照射の影響をなくすとともに、最大出力を 1000W にまで増加させた。シリーズ IV で用いた OD 汚泥のガス発生ポテンシャルが通常よりもかなり高かったために、ガス発生倍率としては 1.6 倍程度であったものの、ガス発生量自身は 227ml/g-TS と標準法の混合汚泥と同程度まで増加した。これらの結果から、300W 以上の出力で一定時間照射すれば

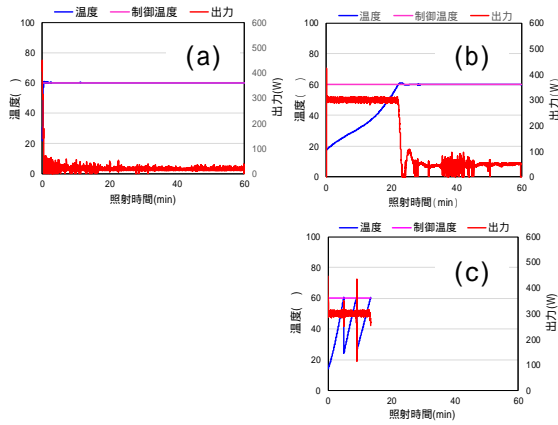


図-3 マイクロ波照射ログ  
(a) I-3 (b) II-3 (c) II-5

ば、加温以外の効果により汚泥からのガス発生量が増加することが明らかとなった。

そこで、制御因子について検討をした。

図-4 は照射ログから求めた照射エネルギーとガス発生量の関係を示したものである。両者の間には関連性は認められなかった。図-5 は、保温のための 100W 以下の照射時間帯は無視し、300W 以上で照射された時間帯のみで、照射エネルギーを計算したものであるが、両者に間に関連性が認められた。すなわち、300W 以上の出力で一定時間照射をすれば、マイクロ波自身の効果でガス発生量が増加するものと推定された。

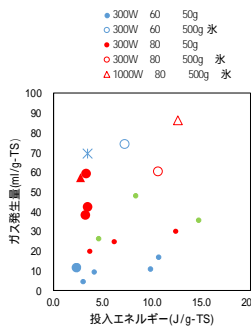


図-4 マイクロ波照射エネルギーとガス発生量増加量の関係

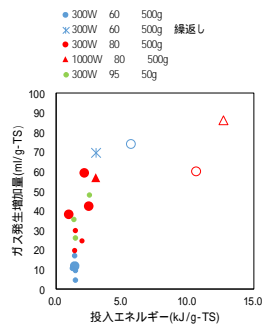


図-5 300W以上のマイクロ波照射時の照射エネルギーとガス発生量増加量の関係

図-6 は、ガス発生量の増加量と、溶存態有機物および窒素の増加量の関係を示したものである。氷冷や繰り返し照射の条件以外では、溶存態有機物、窒素が増加すると、ガス発生量が増加する傾向が認められた。加温のみでも同様の範囲に並ぶことから、加温の効果は、EPS や細胞外吸着物質の可溶性によるガス発生量の増加に起因すると推定できる。それに対して、氷冷や繰り返し条件では、溶存有機物、窒素が増加しないにもかかわらず、ガス発生量が大幅に増加している。これは、マイクロ波自身の効果が、細胞の可溶性ではなく、細胞固形分の易分解性懸濁物質への性

状変化によるものであることを示している  
と推定できる。

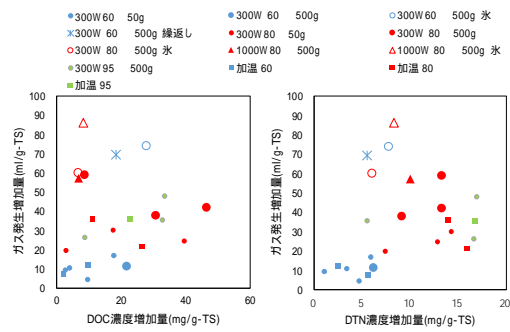


図-6 前処理による溶存態有機物および窒素濃度増加とガス発生量の増加の関係

#### 4.2 連続メタン発酵試験によるマイクロ波照射効果

本連続試験では、前処理条件として、制御温度 80 最大出力 100W、照射時間 60min の条件で熱処理のみの効果を検討した。回分実験による効果を確認したところ、未処理の下種発生量の 1.3 倍のガスが発生することが分かった。図-7 は、連続メタン発酵試験における累積ガス発生量の推移を示したものである。どちらの系列も安定したメタンガス発生が認められた。マイクロ波前処理を行った汚泥を添加した Run 2 の方が、未処理の汚泥を添加した Run 1 と比較して、明らかにガス発生量が多いことがわかる。

表-2 は、ガス発生量および汚泥分解率をまとめたものである。ガス発生量は 1.32 倍に増加しており、回分実験で得られた効果と同程度であった。汚泥分解率は 12% から 19% に増加し、前処理による分解率向上効果も明らかとなった。前処理によって増加した溶存態有機物は、メタン発酵によりほぼ消失し、脱離液の有機物濃度の増加はわずかであった。また、汚泥の分解率の向上に伴い、アンモニア濃度が増加したが、メタン発酵に影響を与えることはなかった。

以上のことより、マイクロ波を用いた熱処理によって、メタンガス発生量が優位に増加することが明らかとなった。現在、マイクロ波による直接的効果が認められた条件での連続試験を実施し、その効果を検討しているところである。

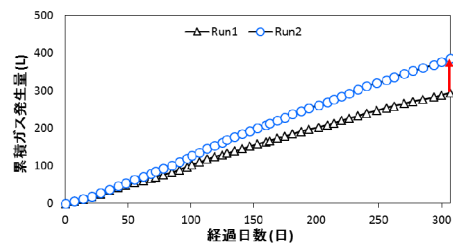


図-7 連続メタン発酵試験における累積ガス発生量の推移

表-2 連続メタン発酵試験の結果のまとめ

	ガス発生量 (L/day)	ガス発生量 (L/g-TS)	VS分解率 (%)
Run1	0.96	0.12	12
Run2	1.26	0.16	19

#### 4.3 まとめ

本研究では、高濃度の脱水 OD 汚泥のマイクロ波照射による分解性向上を目指し、基礎的実験を行った。その結果、低出力の照射においては、加温の効果により細胞外物質が可溶化し、ガス発生量が増加すること、照射エネルギーを増加すると、加温に加えて汚泥自身の分解性が向上することにより、ガス発生量がさらに増加することが示された。本実験は、マイクロ波出力に対して汚泥量が少なく汚泥温度がすぐに上昇し乾燥するため、氷冷や繰り返し照射の条件を設定したが、実際には大量の汚泥に直接マイクロ波を照射することにより、沸騰温度以下での照射が可能であることから、本実験で得られた成果は、実装置の最適化に有用な知見を与えるものである。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

##### 〔雑誌論文〕(計 1 件)

Taketo Togari, Ryoko Yamamoto-Ikemoto, Hiroshi Ono, Kengo Takashima, Ryo Honda, Kojiro Tanaka, Effects of microwave pretreatment of dewatered sludge from an oxidation-ditch process on the biogas yield in mesophilic anaerobic digestion. *Journal of Water and Environment Technology*, 2016, 掲載決定

##### 〔学会発表〕(計 3 件)

小野 紘, 池本良子, 戸苅丈仁, 古 婷婷, 田中孝二郎, 本多 了, 低温マイクロ波前処理による脱水汚泥へのメタン発酵促進, 第 51 回環境工学研究フォーラム, 2014.12 (山梨)

高嶋健伍, 戸苅丈仁, 池本良子, 小野 紘, 低出力マイクロ波処理による脱水汚泥の分解性向上効果, 第 49 回日本水環境学会年会, 2015.3 (金沢)

高嶋健伍, 戸苅丈仁, 池本良子, 低出力マイクロ波処理による脱水汚泥のメタン発酵促進, 土木学会環境工学研究フォーラム, 2015.12 (郡山)

##### 〔図書〕(計 0 件)

##### 〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕  
ホームページ等

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

池本良子 (Ryoko Yamamoto-Ikemoto)  
金沢大学・環境デザイン学系・教授  
研究者番号: 40159223

##### (2) 研究分担者

本多 了 (Ryo Honda)  
金沢大学・サステナブルエネルギー研究センター・助教  
研究者番号: 40422456