

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：27101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14059

研究課題名(和文)鉄還元細菌とフェントン反応を用いた難分解性汚泥の高度嫌気性消化・資源化プロセス

研究課題名(英文)Maximised anaerobic digestion with partial oxidation of digestate organics

研究代表者

安井 英斉 (Yasui, Hidenari)

北九州市立大学・国際環境工学部・教授

研究者番号：70515329

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：フェントン反応によって生成するヒドロキシラジカルを用いて消化汚泥を部分酸化し、これを原料としたメタン発酵の連続運転をおこなった。このフローによれば、消化汚泥中の非生物分解性COD成分の約31%をメタンに転換することが可能であった。これら一連の実験結果をもとに、国際水協会(IWA)の活性汚泥モデルと嫌気性消化モデルをプラットフォームとしてフェントン処理を組み入れた数学モデルを作成した。本モデルによって連続運転で得られたメタン生成のみならず、リアクタの汚泥濃度や処理水に出現する難分解性の溶解成分の濃度も精度良く計算することができた。

研究成果の概要(英文)：A partial oxidation of digestate using Fenton reaction was evaluated to maximise methane conversion efficiency of the anaerobic digestion process. The lab-scale continuous experiment for over 6 months demonstrated that the unbiodegradable COD fraction of the digestate could be converted biodegradable ones by about 31%, resulting in corresponding methane production from the system. Based on the experimental datasets and modifying IWA activated sludge models and anaerobic digestion model, a mathematical model to simulate the methane production, sludge concentration in the reactor and production of soluble inert which was the byproduct of the partial oxidation was developed.

研究分野：環境保全工学

キーワード：メタン発酵プロセス 部分酸化 フェントン処理 活性汚泥モデル シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

嫌気性消化プロセスに投入される原料(下水汚泥)には、リアクタ内の微生物によって分解されない不活性成分が含まれている。そのため、嫌気性消化プロセスのメタン転換率を高めるには、この成分を物理化学的に改質し、リアクタ内の微生物によって分解されるようにすればよい。この考えに基づき、不活性成分の含有比率が最も高い嫌気性消化汚泥を対象として、汚泥改質の研究を進めた。

2. 研究の目的

汚泥改質の度合いは、処理に用いる薬剤の種類で異なる。本研究ではフェントン試薬($Fe^{2+} + H_2O_2$)に用いるものの、将来の進捗によっては更に効果が高い薬剤が見いだされる可能性がある。このことを考慮し、研究においては汚泥改質・生物分解の反応を汎用的に表すための数学モデルの作成にも注力した。

3. 研究の方法

(1) 嫌気性消化汚泥成分のモデル構造

国際水協会(IWA)のタスクグループが開発した「活性汚泥モデル」をプラットフォームとすると、下水処理施設から排出される余剰汚泥には従属栄養細菌(X_B)と非生物分解性有機性固形物(X_U)が含まれていると見なすことができる。また、従属栄養細菌の嫌気性消化処理における自己消化によって、生物分解性有機性固形物(X_S)と X_U が生じる反応がある。これに着目し、別のタスクグループが開発した「嫌気性消化モデル」を組み入れ、 X_S が酸生成細菌(X_{APO})の働きによって加水分解され、メタン生成古細菌(X_{MPO})の基質(S_{ac})となる。同時に、 X_{APO} が増殖するモデルを考えた。これは、 X_{MPO} は S_{ac} を用いてメタン(S_{ch4})を生成するとともに増殖すると考えるものである。

余剰汚泥に含まれる X_U と酸生成細菌やメタン生成古細菌の自己消化によって発生する X_U は生物分解されないため消化汚泥として嫌気性消化槽から排出される。そのため、消化汚泥に含まれる有機物の大部分は X_U と見なすことができる。

(2) 改質処理のモデル構造

消化汚泥の部分酸化処理においては、 X_U から一定比率で X_S が生成することになる。一方、このときの処理条件次第で、 X_U の微生物(可溶化物)である溶解性の非生物分解性有機物(S_I)も一定比率で生成するはずである。また、この改質処理は酸化反応なので、原料あるいは試薬の COD 成分の一部は消失する。フェントン試薬を用いた場合、原料の Fe^{2+} が Fe^{3+} に酸化される反応がこれに相当する。

(3) 改質成分の嫌気分解

改質処理によって生成した X_S の加水分解速度は、自己消化で生成する通常の X_S と同じ値を持たず、処理条件によってはかなり遅

いと考えられる。しかしながら、このような反応は、「その改質処理では X_U からあまり X_S に転換しない」とモデル化することで計算上は回避可能である。一方、フェントン試薬の反応によって生成した Fe^{3+} は、嫌気性消化槽内の鉄還元細菌(X_{IRO})によって還元される。この反応では、 X_{MPO} の基質である S_{ac} が使われるので、 X_{MPO} の基と X_{IRO} は S_{ac} を巡って競合することになる。そして、 X_{APO} 、 X_{MPO} 、 X_{IRO} は嫌気性消化槽の中で一定の自己消化反応で死滅し、 X_U と X_S に分解される。これら一連のプロセス反応を図1にまとめた。

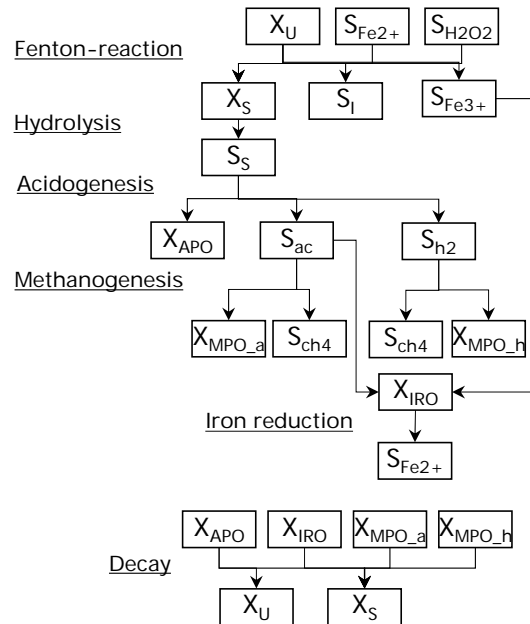


図1 フェントン処理試薬による部分酸化反応を起点としたメタン発酵プロセスマップ

4. 研究成果

(1) 連続実験による改質効果の検証

フェントン反応処理を投入消化汚泥のみに施した実験系(改質系 1)と反応槽内汚泥と投入消化汚泥の両方に施した実験系(改質系 2)の二つについて連続実験をおこない、上のプロセスマップに基づいて非定常シミュレーションを進めた。

メタン生成速度、槽内 VSS 濃度の推移および溶解性不活性有機物濃度の推移について、改質系 1 の結果を図 2~4、改質系 2 の結果を図 5~7 にそれぞれまとめるとともにそれぞれの速度式を表 1 に整理した。

(2) 改質処理条件の評価

槽内 VSS 濃度の上昇(蓄積)は改質系 2 の方が改質系 1 よりも緩やかであり、嫌気性消化槽に改質汚泥は多く分解されていると考えられた。しかしながら、改質系 2 のメタン生成速度は運転の継続とともに緩やかにしてあり、処理条件が最適化されていないようであった。メタン生成速度の継続的な低下は、嫌気性消化槽から引抜いた汚泥にフェントン処理を施した際に、汚泥中の微生物が 1 日

の微生物増殖量よりも多く失活してしまったことが原因に考えられる。

この最適化検討は、本研究で開発したモデルを用いれば容易に机上で実施可能である。

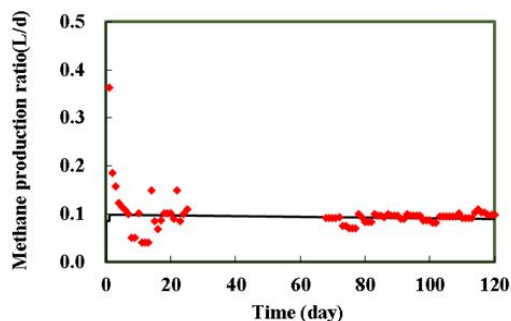


図2 メタン生成速度の推移
(改質系 1)

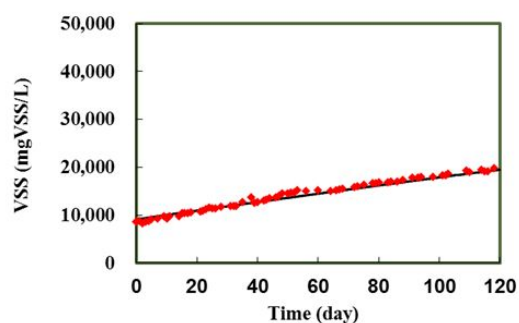


図3 VSS 濃度の推移
(改質系 1)

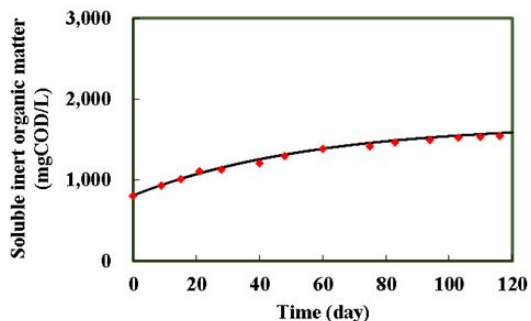


図4 溶解性不活性有機物濃度の推移
(改質系 1)

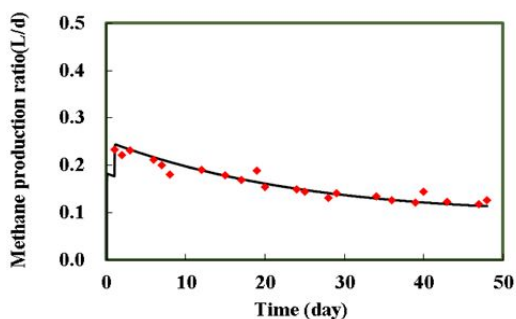


図5 メタン生成速度の推移
(改質系 2)

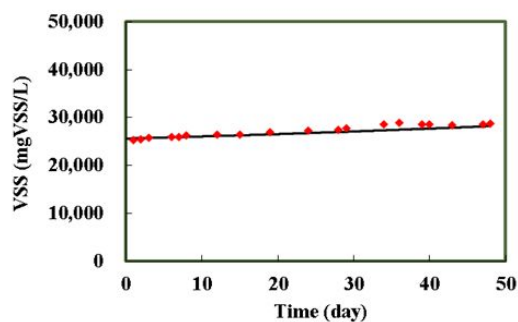


図6 VSS 濃度の推移
(改質系 2)

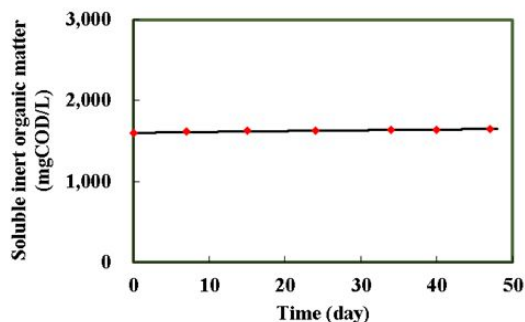


図7 溶解性不活性有機物濃度の推移
(改質系 2)

表 1 メタン発酵プロセスにおける各反応の速度式

| Reaction | Reaction rate (mg-COD/L/d) |
|------------------------------|---|
| Fenton reaction | $r = 3.0 \cdot X_U$ |
| Hydrolysis | $r = 0.1 \cdot \frac{X_S}{0.1 + X_S} \cdot X_{APO}$ |
| Acidogenesis | $r = 3.0 \cdot \frac{S_S}{0.1 + S_S} \cdot X_{APO}$ |
| Iron reduction | $r = 3.0 \cdot \frac{S_{ac}}{0.1 + S_{ac}} \cdot X_{IRO}$ |
| Methanogenesis from acetate | $r = 0.41 \cdot \frac{S_{ac}}{75 + S_{ac}} \cdot X_{MPO_a}$ |
| Methanogenesis from hydrogen | $r = 1.0 \cdot \frac{S_{h2}}{25 + S_{h2}} \cdot X_{MPO_h}$ |
| Biomass decay | $r = 0.03 \cdot X_{Microorganism}$ |

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0件)

[学会発表](計2件)

Hidenari Yasui (2016), Hydrogen production from Biogas in the municipal wastewater treatment plants, Biogas showcase and business matching in Thailand, Ministry of energy, Thailand, session I: Biogas Technology in Japan, 9-10/February/2017, Bangkok,

Thailand.

Hidenari Yasui (2016), Beneficial Use of Biomass in Japan, The 11th Asian Biohydrogen & Biogas Symposium (ABBS), 5-8/Oct/2016, Jeju Island, Korea.

〔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

<http://www.env.kitakyu-u.ac.jp/ja/kenkyuka/yasui/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

安井 英斉 (YASUI, Hidenari)

北九州市立大学・国際環境工学部・教授

研究者番号： 70515329

(2) 研究分担者

寺嶋 光春 (TERASHIMA, Mitsuharu)

北九州市立大学・国際環境工学部・准教授

研究者番号： 60706969