【 論 文 】

1 日 1 回給餌操作での生ごみの高温メタン発酵特性に関する研究

洪 鋒*・津 野 洋**・日 高 平**・千 智 勲**

【要 旨】 本研究では、生ごみを処理し、エネルギー源であるメタンガスを生産するために、55℃の条件での高温メタン発酵を適用した。人工生ごみを基質として完全混合型リアクターを用いて、1日1回給餌方式で連続実験を行った。安定なメタン発酵の状態である時には、pHは7.5～8.0の間に維持された。無希釈生ごみを処理対象として、有機物負荷率が16.2 kgCOD/(m³・d)という高負荷条件下で高温メタン発酵を実現できた。有機物負荷率変動が1.7倍以下であれば、系は良好に応答した。CODcrをベースにすると、生ごみの80%以上がメタンガスになり、生ごみの有機性部分1 gVSあたり0.4～0.5 Lのメタンガスが発生した。反応器混合液中のアンモニア性窒素濃度が2,000 mgN/Lを超えるとメタン発生への阻害が生じ始めた。

キーワード：高温メタン発酵、生ごみ処理、1日1回給餌操作、メタンガス生成速度、汚泥返送

1. は じ め に

戦後の日本では工業化の進展・急速な経済的成長によって大量生産・消費・廃棄社会システムが形成し、廃棄物による環境負荷が生活環境や自然環境に対して深刻なレベルまで増大してきた。生ごみのような有機性廃棄物の国内における年間発生量は1,940万 tonにもおよび、その内訳は、一般廃棄物では、事業系が600万 tonで、家庭系が1,000万 tonであり、また食品製造業から排出される産業廃棄物は340万 tonである。これらの処理では、91%が焼却埋立され、再生利用は9%にすぎない^{1,2)}。一方、最終処分場の残余容量の逼迫、ダイオキシン問題の深刻化等によって廃棄物の適正処理に対して発生抑制や資源の再生・循環利用がますます強く求められている。近年、「循環型社会形成推進基本法」、「食品循環資源の再生利用等の促進に関する法律」が制定され、循環型社会構築を目指した取り組みが各方面から進められている^{1,2)}。

生ごみを中心とする有機性廃棄物の再資源化の技術には原料化、飼料化、コンポスト化、エネルギー化等がある³⁾。これらの中で生物学的利用技術によるメタン発酵とコンポスト化が近年では注目を浴びている。この二つの生物処理方法では80%の有機物がCH₄とCO₂に転化されエネルギー創造型であることからメタン発酵が有利と考えられる⁴⁾。生ごみや食品廃棄物、家畜糞尿等の有機性固形廃棄物を処理対象とするメタン発酵は、エネルギーの回収（1 tonの生ごみから100～140 m³のバイオガスを生産できる⁵⁾）の他に、消化汚泥の肥料価値が高いこと、病原性細菌に対する疫学的安全性の面でも効果がある。

生ごみのメタン発酵システムをメタン発酵槽への投入濃度で分類すると、乾式（投入TS濃度25%以上）、湿式（投入TS濃度10%以下）および半乾式（投入TS濃度10～20%）に分けることができ、またメタン発酵の温度で分類すると、中温（30～38℃）メタン発酵と高温（50～55℃）メタン発酵がある⁶⁾。実際の嫌気性発酵処理装置で必要とされる熱や電気に費やされるバイオガス量は投入される原料1 tonあたり30～50 m³程度とされており、この値は汚泥であろうと生ごみであろうとさほど変わらない⁷⁾。したがって、乾式および半乾式の生ごみメタン発酵プロセスでは、発酵槽の加温および装置運転電力が賅えるだけではなく、系外へ余剰エネルギーが多く出せる。一方、高温メタン発酵は有機物分解

原稿受付 2003.12.8 原稿受理 2004.6.15

* 京都大学大学院工学研究科環境工学専攻, CREST of JST

** 京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻,

CREST of JST

連絡先：〒606-8501 京都市左京区吉田本町

京都大学大学院工学研究科環境工学専攻 洪 鋒

E-mail: hong@biwa.eqc.kyoto-u.ac.jp

率の向上, 高いガス化率, 高い有機負荷, 短い滞留時間等のメリットを持つため高濃度・高負荷の生ごみのメタン発酵が期待されており, その応用実績は近年では増えてきた⁸⁾。

日本型生ごみの質は分別収集の廃棄物行政および飲食習慣に影響され, 生物学的に分解できる有機性成分の含有率が高い。家庭系あるいは事業系にも拘わらず構成として野菜, 果物, コーヒー・茶殻等生物学的に分解しやすいものが最も多く含まれており, 60% 以上を占める⁸⁾。その生ごみのメタン発酵プロセスにおいてアンモニア性窒素や高級脂肪酸等代謝生成物に起因する反応阻害がしばしば生じる。日本型生ごみ食品系有機ごみを対象とした高温メタン発酵に関連する研究は数件報告されている。李⁹⁾は, 人工生ごみの高温メタン発酵での最適生ごみ固形物濃度は 10% 程度と報告している。佐々木¹⁰⁾は, 有機物負荷率および滞留時間が生ごみの高温メタン発酵に与える影響について検討し, 最大有機物負荷率として 31.8 kgCOD/(m³・d) を達成できたが, 分解率と安定運転の確保の観点から HRT 7.5 日, 容積負荷 20 kgCOD/(m³・d) 程度が妥当であると報告している。緒¹¹⁾は, 生ごみの性状で重要である C/N 比がメタン発酵に及ぼす影響を把握するために, 生ごみの高濃度メタン発酵の回分式実験を行い, 高温の条件下での最適有機物負荷率は 0.33 gVS/gVSS で, 最大比メタン生成速度は 303 mLCH₄/gVSS・d であるが, 高温のほうがアンモニアによる阻害を受けやすく, メタン生成活性が 50% 減少した時の NH₄⁺-N 濃度 (MIC₅₀) は 4,940 mgN/L であったと報告した。

しかし, TS 濃度が 10% 以上あるいは無希釈の日本型生ごみを処理対象としての一槽式の完全混合型反応器で高濃度型・高温嫌気性消化についてはほとんど検討されていない。一方, 高温のメタン発酵プロセスでは, 微生物, 特にメタン生成菌の正味のバイオマス収率が低い (35℃ のわずか 50%) ことが有機酸が蓄積しやすいこと, アンモニア性窒素による阻害を受けやすいこと, システムの安定性が相対的に低いことの原因の 1 つと考えられる¹²⁾。これに対して, 汚泥の返送による反応器内の微生物濃度, 特にメタン生成菌濃度を高く維持することにより, 高い有機物負荷の条件下で阻害に対するシステムの順応性および安定性を高められると考えられる。また, 実プラントの操作においては, 管理性, 人件費等の点で高濃度生ごみを 1 日 1 回給餌する操作は大きなメリットがあるが, この方式による長期にわたる実験報告はほとんどない。

このような認識に基づき, 本研究では, 投入 TS 濃度が 15% および無希釈 (19%) の生ごみを処理対象とし

た 1 日 1 回の給餌操作での半乾式・高温嫌気性消化の適用性を検討することを目的として, 有機物負荷率および滞留時間 HRT (Hydraulic Retention Time) を変化させて 55℃ の高温条件下で 1 日 1 回の給餌方式で連続実験を行った。メタン発酵槽中の微生物濃度を高く維持するために, 一部の実験では汚泥返送方式で運転した。これらの運転において生ごみからバイオガスおよびメタンガスの生成能力を把握し, 有機物負荷率, NH₄⁺-N, pH 等の運転管理因子がメタン発酵に及ぼす影響を検討した。

2. 実験方法

本研究では, 京都市での生ごみバイオガス化実用化試験プラントにおける消化槽より採取した消化汚泥を種汚泥として用いた。また, 人工生ごみを対象に実験を行ったが, それは実際の生ごみの構成成分⁸⁾を参照し, Table 1 に示されるように多くの種類の食品を所定の重量構成比で混合し, 高速ミキサで微粉碎して, スラリー状にしたものである。この生ごみの成分分析結果は, Table 2 に示すとおりである。

本研究において用いた実験装置の概要を Fig. 1 に示す。リアクターは, 液有効容積が 4.5 L であり, 機械攪拌装置を有する完全混合型微生物反応装置である。発生

Table 1 Components of garbage
(Wet-weight content %)

Vegetables	50	Rice, bread, noodles	20
Cabbage	10	Rice	10
Potato	10	Bread	2.5
Carrot	10	Noodles	7.5
Radish	10	Meat, fish and eggs	10
Chinese cabbage	10	Fish	5
Fruits	20	Meat	2.5
Apple	2.5	Eggs	2.5
Orange (peel)	7.5		
Banana (peel)	10		

Table 2 Characteristics of artificial garbage

Indices	Total	Soluble
TS (g/L)	189	—
VTS (g/L)	179	—
SS (g/L)	120	—
VSS (g/L)	118	—
CODcr (g/L)	292	104
NH ₄ ⁺ -N (mgN/L)	—	71.7
T-N (mgN/L)	4,010	1,040
pH	4.76	58.8
Carbohydrate (gGlucose/L)	109	6.37
Protein (gAlbumin/L)	24.6	
Lipid (g/L)	18.8	

Fig. 1 Schematic diagram of the fermentation apparatus

したメタンガス、二酸化炭素等は連結したガスバックで捕集できる。またリアクターは温水保温ジャケット付きで、リアクター内の混合液を55℃の温度に保つようにジャケット内の温水を循環恒温水槽を用いて保温できるようにしてある。

生ごみ処理操作は基質である生ごみの所定量を注射器でリアクターに1日1回注入し、同時に同量の混合液を注射器で1日1回吸い出す方式で行った。本研究においては、反応槽を2系列（リアクターAおよびリアクターB）用意し、3つの実験（実験Ⅰ～Ⅲ）を行った。それぞれの操作条件はTable 3に示すとおりである。実験Ⅰにおいては、吸い出した混合液中の汚泥は全くリアクターに戻さないで無返送の完全混合式反応槽として運転した。このため水理学的滞留時間HRTは固形物滞留時間SRT（Solids Retention Time）に等しいことになる。実験Ⅱおよび実験Ⅲにおいては、リアクターの微生物の濃度を高く維持するために、吸い出した混合液を遠心分離し、固形性物質（汚泥）をリアクターに返送し

た。また、実験Ⅰおよび実験Ⅱでは投入TS濃度は19%とし、一方、実験Ⅲでは、調整した生ごみを水で希釈してTS濃度を15%に調節した。各々の実験では、投入生ごみの量を変えて徐々にHRTを短く、すなわち有機物負荷率（COD負荷率）を上げて運転した。

これらの連続実験において、吸い出した混合液について、pH、TS、VS、SS、VSS、COD_{Cr}（全および溶解性）、VFAs、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 等の水質項目の分析を行った。pH、TS、VS、SS、VSSおよびVFAsの分析は下水試験方法¹³⁾に準拠して行った。COD_{Cr}はアメリカのStandard Method¹⁴⁾により測定した。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度はAuto-analyzer 3（BRAN+LUEBBE社）で測定した。また発生ガスの生成量および組成についての分析を行ったが、これらの分析では赤外線式ガス濃度測定装置CGT-7000（島津製作所）を用いた。

3. 実験結果および考察

3.1 処理特性

実験ⅠでのリアクターAおよびリアクターBでの処理特性をFig. 2に示す。汚泥の無返送の状態での負荷変動特性を示している。初期の馴致期間では、酸発酵過程がメタン発酵過程に卓越し、有機酸の蓄積のためpHが低下し、メタンガスの生成が停止した。このため、1 mol/LのNaOH 25 mLを毎日添加しpH調整を図ることにより、メタンガスの発生を回復させた。pHが7以上になると、システムが正常になり、その後はアルカリ剤の添加なしで実験を続行できた。

リアクターAでは、当初3.9 kgCOD/($\text{m}^3 \cdot \text{d}$)の有機物負荷率で運転し、ガス発生速度が安定となった38日目に有機物負荷率を2倍に増加させた。この結果、有機酸が蓄積しpHが急激に6以下に低下し、ガスの発生も停止した。その後、アルカリ剤の添加により、pHが回復すると、7.8 kgCOD/($\text{m}^3 \cdot \text{d}$)でも継続運転が可能となった。

リアクターBでは、5.6 kgCOD/($\text{m}^3 \cdot \text{d}$)の有機物負荷率で運転し、ガス発生速度が安定となった38日目に有機物負荷率を1.7倍程度に増加させた。有機酸濃度が

Table 3 Operation parameters and experimental condition

		TS of garbage (%)	COD _{Cr} volumetric loading rate (kgCOD/($\text{m}^3 \cdot \text{d}$))	HRT (d)	SRT (d)	Returning of solid materials
Experiment I	ReactorA	19	3.89, 7.78	75, 37.5	75, 37.5	No
	ReactorB	19	5.64, 9.4	50, 30	50, 30	No
Experiment II	ReactorA	19	0.97 ~ 9.73	300 ~ 30	1330 ~ 108	Yes
	ReactorB	19	0.97 ~ 16.2	300 ~ 18	1130 ~ 97	Yes
Experiment III	ReactorA	15	3.24 ~ 13.0	71 ~ 17.8	383 ~ 97	Yes
	ReactorB	15	3.24 ~ 13.0	71 ~ 17.8	394 ~ 71	Yes

○ Reactor A   △ Reactor B
● The day when the alkali agent was put into the reactor A
▲ The day when the alkali agent was put into the reactor B
Fig. 2 Treatment performance (Experiment I)

◆: The day when the alkali agent was put into the reactor
Fig. 3 Treatment performance (Experiment II, Reactor B)

一時的に上昇したが、pH を 7 以下に低下させるには至らず、システムは良好に応答し、アルカリ剤の添加なしに $9.7 \text{ kgCOD}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ での負荷率の運転に移行できた。このことから、以後の実験では、負荷の上昇は 1.7 倍以下として行うこととした。

汚泥の返送を行う条件下で徐々に負荷率を上昇させた実験Ⅱおよび実験Ⅲでの処理特性の例として最も高い負荷率に到達させた実験Ⅱでのリアクター B の結果を Fig. 3 に示す。運転開始時には、pH が 7 以下であったので、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ をリアクターに入れ、pH 調整を行った。リアクター内の pH が 7 以上に維持されるようになると、メタンガスが発生し始めた。その後、アルカリ剤を入れないままで、有機物負荷率を $0.97 \text{ kgCOD}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ とした生ごみの高温高濃度メタン発酵実験を行った。176 日目から 225 日目までの間に有機物負荷率を 0.97 から $9.73 \text{ kgCOD}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ まで段階的に増加させた。ガス発生速度は有機物負荷率の増加とともに、 $5.83 \text{ L}/(\text{L}\cdot\text{reactor} \cdot \text{d})$ まで増加し、この間 pH は 7.7 ~ 8.1 の範囲に維持された。226 日目から 251 日まで有機物負荷率を $12.97 \text{ kgCOD}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 、HRT を 22.5 日に設定し、運転した。ガスの発生速度は平均して $7.22 \text{ L}/(\text{L}\cdot\text{reactor} \cdot \text{d})$ になり、pH は 7.5 以上に維持された。252 日目から 273 日目まで、有機物負荷率をさらに増加させ、 $16.2 \text{ kgCOD}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ および HRT を 18 日に設定して運転した。ガスの発生速度は平均して $8.56 \text{ L}/(\text{L}\cdot\text{reactor} \cdot \text{d})$ に上昇し、発生したメタンガスの含有率はほぼ 50% 以上が維持された。

この実験を通じて、メタンガスの発生速度およびメタンガスの組成はシステムの pH が 7.5 ~ 8.0 の間では、安定な状態が維持された。これは、メタン生成菌の最適な生存環境が pH 7.5 ~ 8.0 の間にあることを示している。有機酸濃度の経時変化では、負荷の増加直後は上昇し、その後低下して安定するという傾向を示した。また、アンモニア性窒素濃度が $2,000 \text{ mgN}/\text{L}$ を超えるとともに、有機酸濃度は上昇した。MLSS は $25,000 \text{ mg}/\text{L}$ 程度に維持され、そのうち VSS は 80% 程度であった。ア

ンモニア性窒素は 3,000 mgN/L 以下に維持され、アルカリ度は 10,000 mgCaCO₃/L 程度で維持された。

3.2 メタンガスの生成特性

生ごみの投入 VS 容積負荷とメタンガスの容積発生速度との関係を Fig. 4 に示す。図によると、高温メタン発酵では、生ごみのメタンガス生成率が 0.45 ~ 0.50 L-methane gas/gVS-garbage の範囲にあった。実験 I においては設定した有機物負荷率が 10 kgCOD/(m³・d) 以下と低いのでメタンガスの生成率が最も高いが、実験 II, III ではメタンガス生成率は 0.45 L-methane gas/gVS-garbage である。都市分別有機ごみ (OFMSW-Organic Fraction of Municipal Solid Waste) の高温メタン発酵の研究例で、バイオガスの生成率は 0.30 ~ 0.60 L-biogas/gVS-substrates, メタンガスの生成率が 0.16 ~ 0.33 L-methane gas/gVS-substrates と報告されている¹⁵⁾。本研究では、調製した基質の組成成分が日本型生ごみを模擬しており、性状として VS/TS の比が 95% で、VS の中で 3 成分 (炭水化物, 蛋白質, 脂質) が 85% を占めているため、全体として易分解性有機性基質と考えられる。このため紙, 剪定ごみ等難分解性成分を多く含む都市分別有機ごみのメタンガス生成率より 1.5 ~ 2 倍高くなったと考えられる。

一方, 李¹⁶⁾は食品系有機ごみの成分の疑似分子式を C₁₇H₂₉O₁₀N と定義しており、これによって理論的ガス生成率および理論メタンガス生成率を計算すると各々 0.88 L-biogas/gVS-substrates, および 0.51 L-methane gas/gVS-substrates となり、本研究にはほぼ一致する結果となる。有機性廃棄物を嫌気性消化した場合、

メタンガスの組成は基質の中の炭水化物, 蛋白質および脂質の 3 主成分の割合によって支配される。それぞれの物質のメタン発酵で発生するメタンの割合は、炭水化物で 50%, 脂質で 68%, および蛋白質で 71% である¹⁷⁾。本研究の結果では、メタンガスの割合が 50 ~ 55% の範囲にあり、他の研究で得られた 55 ~ 65% の結果と比較すると低い、それは基質の中に炭水化物が 61% と高い割合と占めているためと考えられる。生ごみのような固形性廃棄物を嫌気性処理する場合、基質の COD に対する発生するメタンガスの COD 当量の比は、基質のメタン発酵処理の生物分解性やプロセスの処理能力を評価する上で有用な評価指標である。なお、メタンガスの COD 換算当量については、以下の式から理論的にメタン 1 mol は 64 gCOD (酸素の必要量) に相当することとなる。

このため、1 L のメタンガスの COD は、1 L/(22.4 L/mol) × 64 gCOD/mol = 2.857 gCOD となる。本研究における COD 容積負荷とメタンガス容積あたりの生成 COD 当量との関係を Fig. 5 に示す。COD をベースとして生ごみの 80% 程度がメタンに転化されたことがわかる。

3.3 メタン発酵に及ぼすアンモニア性窒素の影響

食品系廃棄物のリサイクル技術として高濃度メタン発酵法はできるだけ希釈せずに、ウォーターレスな処理が望ましいが、基質中の蛋白質の分解により生成するアンモニア性窒素がプロセスを阻害する要因となる。アンモニアによる阻害機構は、遊離態アンモニアが微生物の細

Experiment I : $y = 0.496 x$

Experiment II : $y = 0.449 x$

Experiment III : $y = 0.448 x$

Fig. 4 Relationship between methane gas production rate per reactor volume and VS volumetric loading rate of garbage

Experiment I : $y = 0.88 x$

Experiment II : $y = 0.80 x$

Experiment III : $y = 0.80 x$

Fig. 5 Relationship between COD equivalent of methane gas production rate per reactor volume and COD volumetric loading rate

胞内に入り、細胞内 pH が変化し、活性が低下するとされている^{18,19)}。メタン発酵槽内でのアンモニアの存在形態はイオン態アンモニア ($\text{NH}_4^+\text{-N}$) と遊離態アンモニア (分子状アンモニア, $\text{NH}_3\text{-N}$) であり、これらの存在比は温度、pH、およびトータルアンモニア ($\text{NH}_4^+\text{-N} + \text{NH}_3\text{-N}$) 濃度の 3 要素で決定され、 $\text{NH}_3\text{-N}$ から $\text{NH}_4^+\text{-N}$ への解離反応により支配される。たとえば、同じ pH = 7.5 の条件下でもトータルアンモニアに占める $\text{NH}_3\text{-N}$ の割合は中温より高温のほうが 6 倍高い²⁰⁾。アンモニア性窒素の蓄積がメタン発酵に与える影響は、微生物、特にメタン生成菌の活性を阻害することである。すなわち有機酸からメタンガスへの発生速度が低下することにより、有機酸が蓄積し、その結果リアクター中の pH が低下するなどの影響が連鎖的に生じる。

本研究における反応器中のアンモニア性窒素と揮発性有機酸濃度およびメタンガス収率 (生ごみ添加量あたりのメタンガス発生量) との関係を図 6 に示す。この図により、アンモニア性窒素濃度が 2,000 mgN/L を超えると揮発性有機酸濃度が 5,000 mgHAc/L 以上蓄積し、メタンガス収率も低下し、メタン発酵への阻害が生じはじめることが示されている。遊離態アンモニア性窒素と VFAs の関係を見ると、遊離態アンモニア性窒素の濃度が 100 mgN/L ほどでも、VFAs が 20 g/L 以上蓄積している。これは VFAs の蓄積によりリアクター中の pH が低下し、続いてトータルアンモニア中の遊離態アンモニア性窒素の存在比が pH の変化により変化した結果であり、実際に分析するトータルアンモニア性窒素濃度が維持管理上使いやすいと考えられる。一方、船石ら²¹⁾は、模擬生ごみと屎処理汚泥 (余剰汚泥) を混合した基質のメタン発酵の研究において、アンモニアの阻害が次の三つの濃度範囲に分けられていると報告して

いる：すなわち、安全濃度範囲；2,000 mgN/L 以下、部分阻害濃度範囲；2,000 ~ 3,500 mgN/L、運転不可能濃度；3,500 mgN/L 以上である。糖蜜に炭酸アンモニウムを添加した高温メタン発酵の半連続実験では、pH 7.7 で、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度が 2,000 mgN/L 前後からメタン生成阻害が始まると報告されている²²⁾。したがって、基質は違っても高温メタン発酵に及ぼす $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度としてはほぼ同じレベルの 2,000 mgN/L 程度であると考えることができる。

本研究における、リアクター内の混合液中の全窒素濃度に占めるアンモニア性窒素濃度の関係を Fig. 7 に示す。アンモニア性窒素濃度は全窒素の約 50% 程度である、すなわち添加生ごみ中の全窒素の約半分がアンモニア性窒素となることが示されている。生ごみのメタン発酵プロセスにおける窒素の収支を考慮すれば、次のように大まかな計算ができる。本研究に用いた生ごみの CODcr 濃度は 292 g/L、T-N 濃度は 4.00 g 窒素/L であり、仮に 100% が微生物により分解されて、そのうち 10% が微生物の増殖 (微生物の収率が 0.1) に利用されれば、29.2 gCODcr/L の微生物が増殖する。微生物の分子式を $\text{C}_5\text{H}_7\text{O}_2\text{N}$ とすれば、微生物の CODcr を計算する $\text{C}_5\text{H}_7\text{O}_2\text{N} + 5\text{O}_2 \Rightarrow 5\text{CO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} + \text{NH}_3$ という式から、20.6 g/L の微生物が増殖し、(20.6 g 微生物/L) $\times$ (14g 窒素/L) / (113g 微生物/L) = 2.555 g 窒素/L の窒素が微生物の菌体内へ転換することになる。生ごみの分解率、微生物の収率および自己分解などを考慮すれば、生ごみ中の窒素の約半分 (2.00 g 窒素/L) がアンモニア性窒素に分解されることが考えられる。また、高温メタン発酵において生ごみ中の窒素濃度とリアクターに生成したアンモニア性窒素の濃度との関係を考察する時、基質-生ごみ中の TN に占めるリアクター内のアンモニア性窒素の割合もほぼ 50% 前後と報告されてい

Fig. 6 Influence of ammonia on the methane fermentation

Experiment I : $y = 0.472x + 80.6$

Experiment II : $y = 0.461x + 161$

Fig. 7 Relationship between TN and ammonium nitrogen

る^{9, 21)}。

一方、阻害発現アンモニア性窒素濃度を 2,000 mgN/L とすると、添加生ごみ中の全窒素濃度は 4,000 mgN/L 以下である必要がある。Table 2 から判断すると、本研究で用いた人工生ごみの全窒素濃度は無希釈で処理を行った場合、阻害が生じる限界濃度に近い値になると考えられる。対象生ごみの全窒素濃度の調整はきわめて重要である。

3.4 メタン発酵に及ぼす pH の影響

高温・高濃度型の生ごみのメタン発酵では、中間代謝産物である揮発性有機酸がしばしば蓄積して、pH の低下を招く。メタン生成菌はほぼ中性付近の pH 領域を好み、一般に認められているその至適範囲は 6.5～8.2 の間である。低 pH では重炭酸塩アルカリ度が十分な緩衝能力を果たさず、プロセス全体が非常に不安定になる傾向があり、pH 8.0 以上では、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ が毒性をもつ $\text{NH}_3\text{-N}$ に形態変化し、メタン生成菌の活性は急激に減少する²³⁾。pH は測定が容易で毎日の管理指標として重要である。本研究における pH とメタンガス収率（生ごみ添加量あたりのメタンガス発生量）との関係を Fig. 8 に示す。図より、pH が 7.5 以下になるとメタン発生速度への影響が生じ始めていることがわかる。李ら⁹⁾は生ごみの高濃度消化における中温と高温処理の比較の研究において、安定的に運転されている時は、高温消化の場合の pH は 7.5～7.8 の範囲にあると報告されている。このことから高温・高濃度型の生ごみのメタン発酵では pH は 7.5～8.0 に維持することが重要である。

Fig. 8 Relationship between pH and methane gas yield

4. 結 論

本研究では高濃度の人工生ごみを基質として、高温での嫌気性消化における生ごみの分解特性を把握することを目的として、連続処理実験を行った。得られた主な結果を以下に示す。

- 1) 有機物負荷率変動では、1.7 倍以下であれば良好に応答しうる。
- 2) 生ごみの高温メタン発酵プロセスの各実験で、メタンガスの発生速度およびメタンガスの組成はシステムの pH が 7.5～8.0 の間にある限り、安定な状態であった。
- 3) pH が 7.5 以下になるとメタン発生速度への影響が生じ始めた。pH は 7.5～8.0 の間に維持することが重要である。
- 4) リアクターから発生したガス中のメタン量は 50% 以上である。
- 5) TS 濃度が 19% である生ごみを処理対象として、HRT 18 日、有機物負荷率が 16 kgCOD/(m³・d)、また汚泥の返送を行う条件下で高温メタン発酵を実現でき、平均のガス発生速度は 5.86 L/(L-reactor・d) であった。
- 6) 有機物負荷率と発生メタンガスの COD 当量との関係に基づくと、リアクターに投入した生ごみの約 80～87% がメタンガスになった。
- 7) 生ごみの有機性部分 1 gVS あたりの 0.4～0.5 L のメタンガスが発生する。
- 8) 反応器混合液中のアンモニア性窒素濃度が 2,000 mgN/L を超えるとメタン発生への阻害が生じ始める。
- 9) 添加生ごみ中の全窒素の約半分がアンモニア性窒素となる。このため、添加生ごみ中の全窒素濃度は 4,000 mgN/L 以下である必要がある。

参 考 文 献

- 1) 高梨太志：食品循環資源の再生利用等の促進に関する法律について、廃棄物学会誌、第 11 巻、第 5 号、pp. 332～343 (2000)
- 2) 影山岩夫：食品産業の環境対策について——食品循環資源の再生利用等の促進に関する法律の解説を中心に——、食品産業環境保全技術研究組合、食品エコ・プロセス技術研究組合主催 平成 12 年度講演会資料、pp. 1～31 (2000)
- 3) 中村一夫：厨芥類を中心とする今後のごみ処理システムと資源循環システムの方向性について、環境技術、第 29 巻、第 9 号、pp. 662～668 (2000)
- 4) S. Gabriele: One and Two-stage Digestion of Solid Organic Waste, Wat. Res., Vol. 33, No. 3, pp. 854～860 (1998)

- 5) 李 玉友: 生ごみ・有機性廃棄物の高濃度メタン発酵処理技術, 技術情報センター主催「生ごみ・有機性廃棄物の最新処理・リサイクル技術」講習会テキスト, pp. 43-69 (1998)
- 6) 李 玉友, 佐々木宏, 鳥居久倫, 奥野芳南, 関 廣二, 上垣内郁夫: 生ごみの高濃度消化における中温と高温処理の比較, 環境工学研究論文集, 第36巻, pp. 413-421 (1999)
- 7) 益田光信: KOMPOGAS システム (メタンガス化), 環境技術, 第29巻, 第9号, pp. 669-675 (2000)
- 8) 谷山 昇, 武本敏男, 大木秀男, 川崎照夫: 生ごみの細組成, 都市清掃, 第50巻, 第217号, pp. 116-11 (1997)
- 9) 李 玉友, 佐々木宏, 奥野芳南, 関 廣二, 上垣内郁夫: 生ごみの高濃度消化に及ぼす投入濃度の影響, 環境工学研究論文集, 第35巻, pp. 29-39 (1998)
- 10) 佐々木宏, 李玉友, 関 廣二, 上垣内郁夫: 生ごみの高温・高濃度メタン発酵に及ぼす滞留時間と負荷の影響, 水環境学会誌, 第22巻, 第12号, pp. 983-989 (1999)
- 11) 楮 春鳳, 片岡直明, 宮 晶子, 鈴木隆行: 生ごみの中温及び高温メタン発酵における生ごみ組成の影響と動力学的解析, 用水と廃水, 第43巻, 第3号, pp. 202-209 (2001)
- 12) 松井三郎, 高島正信監訳: 嫌気性バイオテクノロジー, 技報堂出版, 東京, pp. 87-88 (1999)
- 13) 財団法人下水道協会: 下水試験方法——1984年版—— (1985)
- 14) Standard Methods 19th Edition, APHA AWWA WEF, USA (1995)
- 15) J. Mata-Alvarez: Semi-dry thermophilic anaerobic digestion of fresh and pre-composted organic fraction of municipal solid waste digestion performance, Wat. Sci. Tech, Vol. 27, No. 2, pp. 87-96 (1993)
- 16) 李 玉友: 汚泥・生ごみ等の有機廃棄物の高温メタン発酵, 水環境学会誌, 第21巻, 第10号, pp. 644-649 (1998)
- 17) 申 丘澈, 名取 真: 下・廃水汚泥の処理, コロナ社, pp. 65-66 (1968)
- 18) G.D. Sprott: Ammonia/potassium exchange in methanogenic bacteria, The Journal of Biological Chemistry, Vol. 259, No. 20, pp. 12602-12608 (1984)
- 19) G.D. Sprott: Ammonia toxicity in pure cultures of methanogenic bacteria, System. Appl. Microbiol, Vol. 7, pp. 358-363 (1986)
- 20) 松井三郎, 高島正信監訳: 嫌気性バイオテクノロジー, 技報堂出版, pp. 295-297 (1999)
- 21) 船石圭介, 山下耕司, 佐々木宏, 李 玉友: 有機性廃棄物の高濃度メタン発酵に及ぼすアンモニアの影響, 第36回日本水環境学会年会講演集, pp. 416-417 (2002)
- 22) 加藤明德, 野池達也: 農畜産業廃棄物の嫌気性消化処理——pH制御によるアンモニアの消化対策——, 工業用水, 第490号, pp. 18-32 (1999)
- 23) 松井三郎, 高島正信監訳: 嫌気性バイオテクノロジー, 技報堂出版, pp. 33-34 (1999)

Study on the Performance of Thermophilic Methane Fermentation of Garbage under Once-a-day Feeding conditions

Feng Hong*, Hiroshi Tsuno**, Taira Hidaka** and Jihoon Cheon**

* Department, of Environ. Eng., Graduate School of Eng.,
Kyoto Univ., CREST of JST

** Department, of Urban and Environ. Eng., Graduate School of Eng.,
Kyoto Univ., CREST of JST

† Correspondence should be addressed to Feng Hong:
Department, of Environ. Eng., Graduate School of Eng.,
Kyoto Univ., CREST of JST
(Yoshida-honmachi, Sakyo-ku, Kyoto, 606-8501 Japan)

Abstract

Thermophilic methane fermentation at 55°C was applied to garbage treatment. Continuous feed-and-draw operation was conducted in a complete-mixing type reactor with artificially prepared garbage. Based on calculations of COD, more than 80% of the garbage was transformed to methane, with 0.4 to 0.5 L of methane gas being produced from 1 g VS of garbage. Inhibition of methanogenesis by ammonium nitrogen was initiated when its concentration exceeded 2,000 mgN/L. Total nitrogen concentration in the garbage treated should be less than 4,000 mgN/L, as about half of the total nitrogen was transformed to ammonium nitrogen by anaerobic methane production processes.

Key words: thermophilic methane fermentation, garbage treatment, once-a-day feeding, methane gas production rate, returning solids