

## 下水汚泥の嫌気性消化における前加熱処理と高濃度化の影響\*

高島 正信<sup>\*1</sup>

### Effects of Thermal Pretreatment and High-Solids on Anaerobic Digestion of Sewage Sludge

Masanobu TAKASHIMA <sup>\*1</sup>

<sup>\*1</sup> Faculty of Engineering, Department of Architecture and Civil Engineering

This study examined the effects of thermal pretreatment of excess sludge and high-solids influent on the anaerobic digestion of sewage sludge. The thermal pretreatment (130°C and 1 hour) improved VS destruction and gas production by several percent, but color intensity of digested sludge was enhanced. The performance of anaerobic digesters were depressed by the increased concentration of influent sewage sludge, especially at TS 9-10% influent. The ammonia concentration of the digested sludge was not very high so that physical accessibility of microorganisms to sewage sludge appears to be responsible. This is supported by a batch test, in which the coagulant for sludge thickening delayed the gas production.

**Key Words** : Anaerobic Digestion, High-Solids, Sewage Sludge, Thermal Pretreatment

#### 1. 緒 言

下水汚泥の嫌気性消化（メタン発酵，バイオガス化ともいう）は，有機物の嫌気性微生物分解により汚泥の減量化・安定化が可能で，メタンガスとしてのエネルギー回収もできる処理プロセスである．さらに，病原性微生物の死滅効果や悪臭の低減も期待できるため，消化汚泥を肥料等に再利用することも可能である．このような特徴から，有機性廃棄物の嫌気性消化は循環型社会構築に欠かせない環境保全技術として認識されている．

わが国の下水処理場においては，嫌気性消化への下水汚泥投入濃度は従来TS 3～4%であったが，機械濃縮機の導入によりTS 5%程度に濃縮して投入することで，消化槽容量を小さくできることはもちろんのこと，消化ガス発生量増加および加温用燃料の削減を実現することから，高濃度化は消化槽運転の効率化にもつながると考えられている<sup>(1)</sup>．また，汚泥の運搬については，含水率を減らして体積を減らすことで，輸送を効率的に行うことができるようになる．

しかしながら，高濃度化における最大の問題点は，下水汚泥にはタンパク質が豊富に含まれるため（～60%），その分解産物であるアンモニア性窒素による嫌気性微生物への阻害であると一般に想定される．米国EPAによる初期の文献<sup>(2)</sup>では，アンモニア性窒素による阻害は約3,000mg/L以上で生じると報告されているが，比較的最近ではアンモニア性窒素による安全濃度を中温消化では4,500～5,000mg/L以下，高温消化では2,500mg/L以下とみなす報告<sup>(3)</sup>もある．目安としては，中温消化ではTS10%程度までで4,000 mg/L程度，高温消化では2,000 mg/L程度までがガス発生に及ぼす影響が少ない濃度と思われる．また，汚泥粘度は濃度に対して指数関数的に増加すると言われているため，下水汚泥濃度の増加に伴う汚泥粘度の上昇も懸念される．混合汚泥を実験室での遠心分離操作によりTS 10%程度まで濃縮した場合の連続式中温嫌気性消化実験が行なわれ，通常の投入基質濃度の場合と同程度の負荷量に抑えれば，正常なメタン転換が可能であることがアンモニア性窒素や粘度への影響とあわせて示されている<sup>(4)</sup>．

一方，以前より，下水汚泥の嫌気性消化には余剰汚泥に関わる問題が介在する．下水汚泥は，下水由来の生汚

\* 原稿受付 2016年2月29日

<sup>\*1</sup> 工学部 建築土木工学科

E-mail: takasima@fukui-ut.ac.jp

泥（または初沈汚泥）と、下水を処理した活性汚泥由来の余剰汚泥（または終沈汚泥）の2種類の汚泥から成る。生汚泥は、トイレットペーパー、食物片など分解しやすい炭水化物系の成分が多く含まれ、分解率が80%近くに達することがある。一方、余剰汚泥は細菌の細胞膜・細胞壁に守られ分解しづらく、分解率は一般に50%を下回ることから長らく課題とされてきた。

以上のような背景から、本研究では下水汚泥の嫌気性消化において、1) 前処理として余剰汚泥に加熱処理を施したときの効果、2) 流入下水汚泥の濃度を高めたときの影響、および3) 汚泥濃縮に使用した高分子凝集剤の影響を検討することを目的とした。

## 2. 実験方法

### 2.1 連続実験

#### 2.1.1 実験装置と運転方法

実験装置を2系列用意し、そのうち1系列は前処理なしのコントロール系、もう1系列は流入余剰汚泥に前処理として加熱処理を施した系とした。嫌気性消化槽は有効容量2Lの完全混合型で、攪拌機（Z-1300, EYELA）と攪拌羽根3枚によって約100rpmで槽内を攪拌した。消化槽の温度はサーモスタット（E5CSV, オムロン）とリボンヒーター（100W, 野中理化工器）によって約35°Cに調節した。

下水汚泥の投入と消化汚泥の引き抜きは、流入汚泥濃度TS4~5%のときは4連の送液ポンプ（7553-80, Cole-Parmer）とタイマー（ツインタイマーPM4H-W, Panasonic）を用いて1時間ごとに行い、流入汚泥濃度TS6~7%以上のときはポンプ使用が困難だったため1日1回マニュアルで投入・引き抜きを行った。滞留時間（HRT）は一般的な15日または20日に設定した。生成した消化ガスは、各槽に接続した湿式ガスメーター（WS-1A, シナガワ）で計量した。

#### 2.1.2 下水汚泥と濃縮

供試下水汚泥は、福井市内下水処理場から別々に採取した生汚泥と余剰汚泥である。これらを実験室内で濃縮した後、下水処理場とほぼ同じ割合である約3:2で混合して用いた。

下水汚泥の濃縮は、生汚泥は重力沈殿または遠心濃縮、余剰汚泥は遠心濃縮で実施した。遠心濃縮は、濃縮したい濃度によって回転数が約3,000から5,000rpm、遠心時間が約5分から20分の間で調節した。ただし、余剰汚泥濃度9~10%は、カチオン系高分子凝集剤（ダイヤブロック KP1200B, 三菱レイヨン）をTS当り0.4~0.5%添加して遠心濃縮することによって実現した。

なお、種汚泥は、元々は同じ福井市内下水処理場から採取した中温消化汚泥であった。

#### 2.1.3 余剰汚泥の前加熱処理

前処理として余剰汚泥のみに対して加熱処理を施し、その条件は温度130°C、1時間、攪拌速度約120rpmとした。この加熱処理条件は、色度形成が著しくなる150°C以上よりも低く設定したものである。加熱処理は、簡易型オートクレーブ（TEM-V1000, 耐圧硝子工業（株）；容量1000mL, 最高使用温度180°C, 最高使用圧力1.5MPa, 攪拌100~1000rpm）を用い、加熱処理後自然放冷するやり方で行った。

## 2.2 回分実験

濃縮に用いた高分子凝集剤による阻害影響をみるために、バイアルびんを用いた回分実験を実施した。

手順は、高分子凝集剤が加えられた余剰汚泥30gと種汚泥30gを120mLのバイアル瓶に加え、ヘッドスペースをN<sub>2</sub>ガスで置換し、ブチルゴム栓とアルミシールで密閉した後、35°C、80rpmで恒温振とう機（MMS-1, EYELA）で振とう培養した。一条件当たりバイアル瓶を2本使用し、発生ガスの濃度と量を50日間にわたり数日間隔で測定した。ガス発生量の測定には、二酸化炭素の吸収を防ぐために酸性溶液をメスシリンダーに入れた装置による水上置換法<sup>6)</sup>を採用した。

凝集余剰汚泥は、ビーカーに余剰汚泥と高分子凝集剤を入れ、高分子凝集剤を溶解させるために数十分間スーター攪拌して作成した。種汚泥としては、流入濃度TS9~10%で運転していたときの連続実験後半におけるコ

ントロール系の消化汚泥を使用した。この連続実験では凝集された余剰汚泥を使用していたので、この種汚泥は高分子凝集剤に馴致していたと考えられるものである。

### 2.3 分析方法

汚泥濃度の指標である全固形物質 (TS)、浮遊物質 (SS)、揮発性物質 (VS) および揮発性浮遊物質 (VSS) の分析は Standard Methods<sup>(6)</sup>に従った。溶解性液は、10,000rpm で 10 分間高速遠心した後、0.45 $\mu$ m メンブレンフィルター (A045A047A, アドバンテック) でろ過して作成した。

アンモニア性窒素の分析には、アンモニア電極 (9512BNWP, Orion) とイオンメーター (720A, Orion) を用いたアンモニア電極法 (Standard Methods 5220D) を採用した。消化汚泥の粘度測定には、粘度計 (BL 形, TOKIMEC) を使用した。また、汚泥溶解性液の色度は、ADMI 法 (Standard Methods 2120E) により分光光度計 (DR/4000U, Hach) と 1 インチの試料セルを用いて測定した。ガス成分の分析は、TCD 検出器付きガスクロマトグラフ (GC-9A, 島津製作所) を用い、カラム Parapak Q, キャリアガス Ar, キャリアガス流量 40mL/min, カラム温度 40 $^{\circ}$ C, 注入口温度 120 $^{\circ}$ C, 検出器温度 120 $^{\circ}$ C で分析した。

## 3. 実験結果と考察

### 3.1 連続実験

採用した連続実験の運転条件を Table 1 に示す。流入汚泥濃度はおおむね TS4~5%, 6~7% および 9~10% の 3 段階に設定した。4~5% と 6~7% の場合は HRT を 15 日としたが、9~10% の場合は安全を見て 20 日と長くし、容積負荷量を 15 日より低くした。消化汚泥有機物濃度 (VS で表す) とガス発生量の経日変化をそれぞれ Fig. 1, Fig. 2 に、それらを Run ごとに平均値と標準偏差でまとめたものを Table 2 に示す。なお、発生ガス中のメタン濃度は常に約 60% であった。

Table 1 Experimental conditions.

Run	Influent concentration (%)	Pretreatment	HRT (day)	Operating duration (day)
1	4~5	130 $^{\circ}$ C, 1hr for waste activated sludge	15	63
2	6~7		15	63
3	9~10		20	77

まず、加熱処理による余剰汚泥前処理の影響は、VS で見る汚泥分解率については、コントロールより加熱処理の方が Run 1, 2 および 3 でそれぞれ 2.7, 5.8, 12.3% の上昇となった。ガス発生量についても、コントロールを基準にすると、前加熱処理によってそれぞれ 15.0, 7.1, 13.0% 向上した。したがって、余剰汚泥の前加熱処理は下水汚泥の嫌気性消化性を無処理コントロールに比べ改善したと言える。余剰汚泥は活性汚泥という好気性微生物から成り、強固な細胞膜・壁でおおわれているため難分解性であるが、加熱処理が可溶化することによって嫌気性微生物が基質として摂取しやすくなると考えられる。

次に、流入汚泥濃度の影響について無処理の結果を見ると、濃度の増加に伴って汚泥分解率は 53.2, 48.1, 37.8%, ガス発生量は 0.471, 0.462, 0.437L/gVS と両パラメーターとも徐々に低下した。特に流入濃度 TS9~10% では、一般の下水処理場で観察される値<sup>(7)</sup>よりも顕著に低下していたと考えられる。この結果は、流入 TS 約 10% までは従来型と同等の嫌気性消化が達成されたという最近の報告<sup>(4)</sup>よりもやや低めの濃度で嫌気性消化性が悪化したことになる。一方、加熱処理が前処理として施された場合、コントロールの場合と異なり、汚泥分解率とガス発生量への流入汚泥濃度の影響は小さくなった。

以下に、流入下水汚泥の高濃度化における影響因子について考察する。上記のように、前加熱処理が施されると流入汚泥濃度が増加しても処理成績の低下はわずかであり、無処理コントロールの系列のみ高濃度化に伴い悪化していた。Table 3 には、消化汚泥のアンモニア濃度、粘度および色度がまとめられている。前述したように、中温嫌気性消化におけるアンモニア性窒素は約 4,000mg/L から障害を引き起こすのに対し、今回の測定結果はど

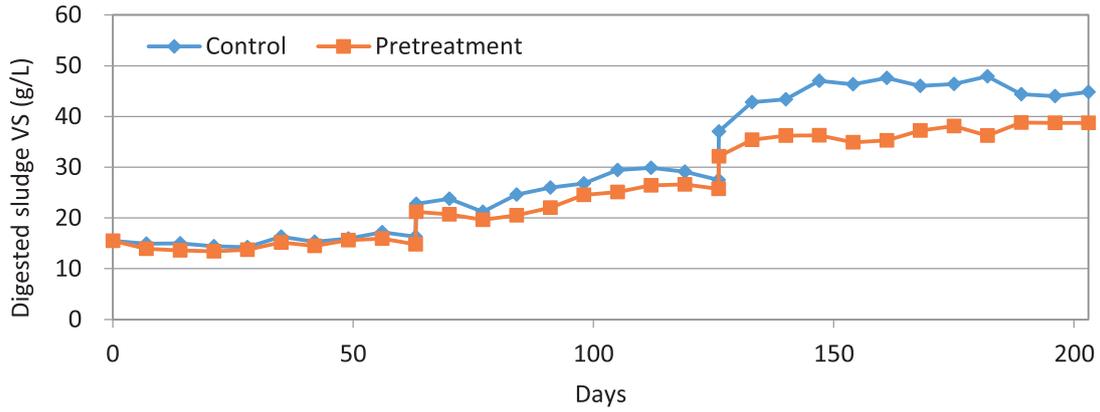


Fig. 1 Time course of VS concentration of digested sludge.

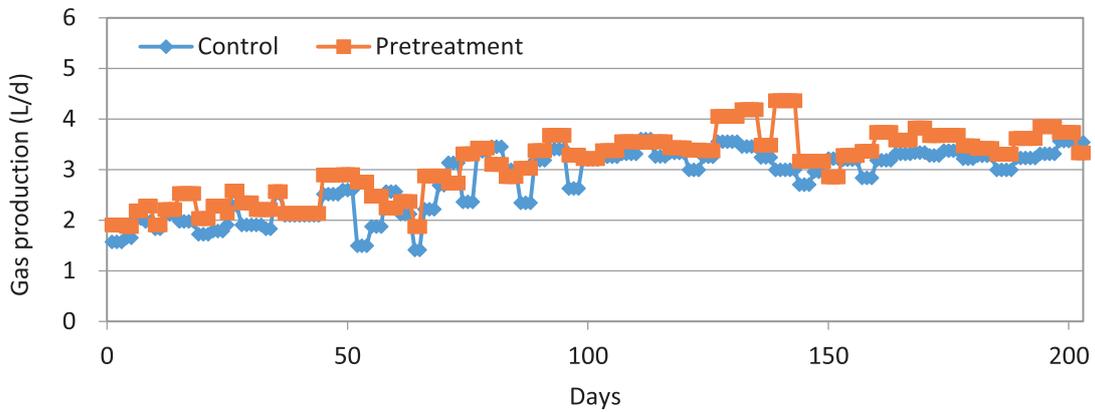


Fig. 2 Time course of gas production.

Table 2 Summary of VS destruction and gas production (average±standard deviation).

Run	Sludge	VS concentration (VS g/L)	VS destruction (VS%)	Gas production (L/d)	Gas production rate (L/gVS)
1	Influent	33.1±2.5	—	—	—
	Digested sludge - control	15.5±0.9	53.2	2.03±0.31	0.471
	Digested sludge - pretreatment	14.6±0.9	55.9	2.33±0.29	0.542
2	Influent	50.3±2.3	—	—	—
	Digested sludge - control	26.1±2.1	48.1	3.02±0.48	0.462
	Digested sludge - pretreatment	23.2±2.7	53.9	3.24±0.36	0.495
3	Influent	73.3±2.8	—	—	—
	Digested sludge - control	45.6±1.8	37.8	3.20±0.20	0.437
	Digested sludge - pretreatment	36.7±1.4	50.1	3.62±0.37	0.494

Table 3 Ammonia, viscosity and color of digested sludge (average).

Run	Ammonia nitrogen (mg/L)		Viscosity (mPa·s)		Color (ADMI)	
	Control	Pretreatment	Control	Pretreatment	Control	Pretreatment
1	1,090	1,340	127	48	1,180	1,360
2	1,360	1,730	299	133	1,330	1,910
3	1,960	1,880	1,640	697	3,140	4,150

の条件でも平均値で 2,000mg/L 以下であった。したがって、アンモニア性窒素による阻害は、本実験の場合想定しにくいと思われる。

消化汚泥の粘度については、加熱処理により無処理の 38~44%と著しく減少していることがわかる。これから推測されるのは、無処理コントロールの場合、流入汚泥濃度の上昇に伴って消化汚泥の粘度が増し、基質である下水汚泥と嫌気性微生物の流動性やそれに伴う接触効率が低下したか、あるいは消化槽内の死水域が増加したことである。加熱処理系の場合は、粘度の上昇が抑えられ、流動性が保たれていた結果、流入汚泥濃度の影響がわずかしか出なかった可能性がある。したがって、無処理の場合は、消化槽の攪拌効率または接触効率を高める工夫が必要と推測される。

下水または汚泥の着色は美観を損なう要因となるが、Table 3 には消化汚泥ろ液の色度もまとめられている。加熱処理温度 130℃は汚泥分解に最適といわれる 150~180℃<sup>(8)</sup>より低く抑えたものの、それでもやはり無処理の 1.15~1.44 倍の色度が生成している。これが加熱処理の欠点であり、色度の観点からこれ以上の温度には設定しづらいと思われる。しかし、筆者の既往研究<sup>(9)</sup>では加熱処理温度 170℃で今回の数倍もの色度があつたことを勘案すると、色度形成の度合いは改善されたと言える。

### 3.2 回分実験

50 日間実施した回分実験における累積メタン発生量を Fig. 3 に示す。用いた余剰汚泥と種汚泥の濃度はそれぞれ TS が 4.5, 3.7%, VS が 3.6, 2.3%で、連続実験における TS4~5% (Run 1) にほぼ相当するものであつた。また、ここで言う高分子凝集剤の添加量 5 および 10% (凝集剤の質量濃度としてそれぞれ 2.26, 4.51g/L) は余剰汚泥 TS に対する添加量のことであるので、同量の種汚泥が加えられると、バイアル内の全汚泥に対する添加量は最終的に 1/2 となり、それぞれ 2.5, 5% (凝集剤の質量濃度としてそれぞれ 1.13, 2.26g/L) となる。

図より、高分子凝集剤の添加があつても凝集剤無添加であるコントロールとメタンガス発生量はほぼ同じであり、高分子凝集剤による阻害は添加量 10%までは見られなかったと結論付けてよいと思われる。むしろ、実験初期では凝集剤が添加されていた方がメタン発生量が高く、馴致済みの種汚泥を用いたことにより高分子凝集剤が嫌気性微生物にとって基質として利用されたと推測される。連続実験における凝集剤添加量は余剰汚泥 TS に対して 0.4~0.5% (余剰汚泥濃度 100g/L=10%を仮定すると、凝集剤の質量濃度として 0.4~0.5g/L) であつたので、生汚泥と混合されると、流入汚泥全体とした凝集剤濃度は 0.16~0.20% (凝集剤の質量濃度として 0.16~0.2g/L) 程度と計算される。したがって、余剰汚泥の高濃度化のために高分子凝集剤による凝集処理を施しても、最適凝集より相当高い添加量まで阻害はないと考えられる。

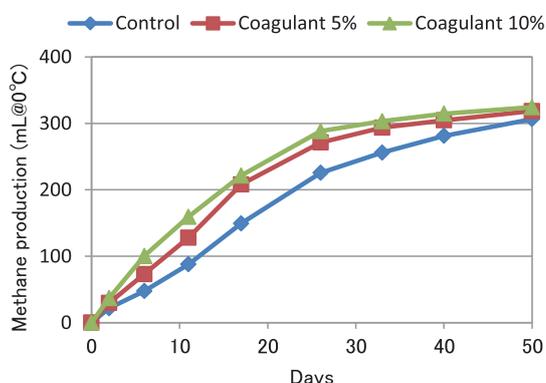


Fig. 3 Methane production of the vial test.

## 4. 結 言

- 1) 余剰汚泥に前加熱処理を組み込むと、汚泥分解率、ガス発生量とも数%程度改善され、下水汚泥の嫌気性消化に対する効果が見られた。また、前加熱処理は消化汚泥の粘度を低下させたが、色度の生成を促した。
- 2) 流入汚泥濃度が増すにつれ、汚泥分解率とガス発生量は低下した。その理由として、一般に原因とされるアンモニア性窒素や容積負荷量の上昇は、本実験では主要な影響因子ではないと推定された。その一方で、消化汚泥の粘度や消化槽内の死水域が増加し、下水汚泥と嫌気性微生物の接触効率が低下した可能性があり、この点、前加熱処理が組み込まれたときは粘度が抑制されたことによってその影響が緩和されたと推定された。
- 3) 回分式バイアル実験により高分子凝集剤の影響を調べたところ、余剰汚泥への TS 当り添加量 10% (種汚泥を含めた汚泥全体としては 5%に相当) までは悪影響を及ぼさないことが確認された。

文 献

- (1) 宮崎好弘, “大胆な汚泥処理プロセス変更による汚泥減量化の取り組み”, 下水道協会誌, Vol.51, No.617 (2014), pp. 21-24.
- (2) U.S. Environmental Protection Agency, *Process Design manual for Sludge Treatment and Disposal* (1979), EPA625/1-79-011, 6-37, Cincinnati.
- (3) Y. Y. Li et al., “Comparison of Ammonia Inhibition between the Methophilic and Thermophilic Anaerobic Digestion of Municipal Solid Wastes”, *Proc. 10th World Congress on Anaerobic Digestion*, Vol.1 (2004), pp. 507-514, Montreal.
- (4) 日高平, 津森ジュン, “都市下水処理場の脱水汚泥の中温嫌気性消化に及ぼす固形物濃度の影響”, 土木学会論文集 G, Vol.70, No.7 (2014), pp. III\_433-III\_440.
- (5) N. H. Tang, D. J. W. Blum and R. E. Speece, “Comparison of Serum Bottle Toxicity Test with OECD Method”, *J. Environ. Eng. ASCE*, Vol. 116 (1990), pp. 1076-1084.
- (6) APHA, AWWA and WEF, *Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater* (2000).
- (7) (社) 日本下水道協会, *下水道施設計画・設計指針と解説* (2009).
- (8) H. Carrère, C. Dumas, A. Battimelli, D. J. Batstone, J. P. Delegènes, J. P. Steyer and I. Ferrer, “Pretreatment Methods to Improve Sludge Anaerobic Degradability: A Review”, *J. Hazard. Mater.*, Vol. 183 (2010), pp. 1-15.
- (9) 高島正信, 中木原江利, 池本良子, “下水汚泥の高負荷高温嫌気性消化における余剰汚泥加熱処理と微量金属の効果”, 土木学会論文集 G (環境), Vol. 68, No.7 (2012), pp. III\_307 ~ III\_315.

(平成 28 年 3 月 31 日受理)