

下水汚泥のメタン発酵に膜ろ過を導入するとメタン生成能は向上するのか？

Does membrane separation process coupled to anaerobic digestion enhance methane production from sewage sludge?

北海道大学大学院工学研究院環境工学部門 助教 羽深 昭

### (A) 【研究の目的】

現在、一般家庭や事業所からの汚水が集まる下水処理場の創エネルギー化が求められている。下水処理の結果として生じる下水汚泥はバイオマスとしてみなせ、メタン発酵を行うことで、メタンを含むバイオガスを生産できる。本研究では下水汚泥からのさらなるメタン生産を目指し、メタン発酵に膜ろ過を組み合わせた嫌気性膜分離法 (AnMBR) に関する研究を行った。AnMBR 法ではメタン発酵を担う嫌気性微生物を膜分離によりメタン発酵槽内に高濃度で保持できる。また、AnMBR 法の別の特徴として水理的滞留時間 (HRT) と汚泥滞留時間 (SRT) を分けて制御できることがある。HRT は水の入れ替わる時間を、SRT は固形物の入れ替わる時間を意味している。従来から用いられてきた完全混合式リアクター (CSTR) では HRT と SRT は等しく、どちらも 30 日程度であることが多い。AnMBR 法では HRT の短縮により有機物負荷量 (OLR) を増加させることで、より多くのバイオガスを得ることができる。また最近の研究において、SRT を 30 日から 50 日に延長した際に下水汚泥のメタン発酵効率上昇が報告されている。SRT のさらなる延長は発酵残差の低減にもつながるが、下水汚泥のメタン発酵効率がどのように変化するかは調べられていない。そこで本研究では HRT を 2 条件 (30 日または 15 日)、SRT を 3 条件 (30 日、60 日または 90 日) に設定し、AnMBR におけるメタン生成能 (バイオガス生成速度、バイオガス収率、メタン濃度) がどのように変化するか明らかにする事を目的とし研究を行った。

### (B) 【研究の内容, 成果】

有効体積 6.0 L のメタン発酵槽を用い、37°C の中温発酵を行った (図 1)。分離膜には PVDF 製の中空糸 MF 膜 (内径 2.6 mm、膜孔径 0.1  $\mu\text{m}$ 、有効膜面積 0.0049  $\text{m}^2$ ) を用いた。ポンプを用いて消化汚泥をメタン発酵槽と膜モジュール間で循環させた。消化汚泥は中空糸膜の中を通り、膜透過水が外側へ排出される。ろ過方式はクロスフローろ過であり、クロスフロー流速は 0.5 m/s とした。吸引ポンプにより膜ろ過フラックスを制御し、膜間差圧 (TMP) を求めるために圧力計を設置した。投入基質として札幌市内の下水処理場から入手した余剰汚泥を用い、週に 1~2 回、余剰汚泥を投入した。条件 1 では膜ろ過を行わず、CSTR として運転を行った (表 1)。条件 2 より膜ろ過を開始し、HRT および SRT の条件を変えて運転を行った。分析試料は投入汚泥、消化汚泥、膜透過水とし、分析項目は pH、酸化還元電位 (ORP)、蒸発残留物 (TS)、強熱減量 (VS)、化学的酸素要求量 (COD)、アンモニウムイオン ( $\text{NH}_4\text{-N}$ )、アルカリ度、揮発性有機酸 (VFA)、糖、タンパク質、脂質とした。また、バイオガス中のメタン ( $\text{CH}_4$ ) および二酸化炭素 ( $\text{CO}_2$ ) を測定した。

リアクター運転終了後に分離膜の物理洗浄と薬品洗浄を実施し、透水試験を行うことで膜ろ過抵抗を測定した。まず、分離膜内に平均流速 1 m/s で超純水を 5 分間循環させることで

物理洗浄を行い、その後膜ろ過抵抗を測定した。つづいて次亜塩素酸ナトリウムと水酸化ナトリウムを含む水溶液に 15 時間分離膜を浸漬し、その後膜ろ過抵抗を測定した。最後にクエン酸溶液に分離膜を 2 時間浸漬させた後、膜ろ過抵抗を測定した。

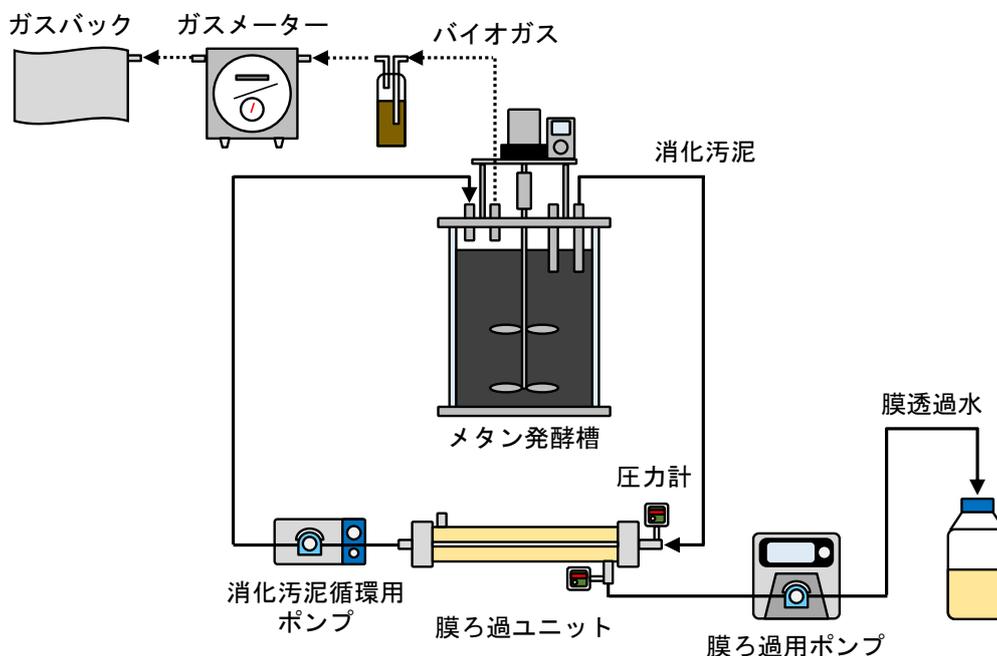


図 1. AnMBR 装置の概略図

表 1. AnMBR 装置の運転条件

条件	運転方式	HRT (日)	SRT (日)	OLR (g-VS/L/日)	膜ろ過フラックス (LMH)
1	CSTR	30	30	0.48	-
2	AnMBR	30	60	0.48	0.75
3	AnMBR	30	90	0.43	1.06
4	AnMBR	15	90	0.90	2.60
5	AnMBR	15	60	1.04	2.39
6	AnMBR	15	30	1.18	1.55

HRT が 30 日で等しい条件 1 から 3 において、糖、タンパク質、脂質すべての分解率は SRT が 90 日の時に最も高くなった (表 2)。余剰汚泥は活性汚泥法から生じる余剰の菌体であり、分解性が低いことが知られている。嫌気性 MBR における余剰汚泥のメタン発酵においては、膜分離により未分解の懸濁物質がメタン発酵槽内に保持され、SRT が長いことでより分解が進んだと考えられる。HRT を 30 日から 15 日に短縮した条件 4 では糖とタンパク質の分解率が低下した。本研究での有機物分解率は見かけの分解率であるが、条件 4 での運転期間中は膜分離によりメタン発酵槽内の固形物濃度が上昇し続けていたため (図 2)、分解率が低く算出されたと考えられる。つづいて SRT を 60 日にした条件 5 では糖とタンパク質の分解率が最大となり、SRT を 30 日に短縮した期間 7 ではすべての有機物分解率が条件 6

と比較して低下した。以上の結果から、HRT が 15 日で等しい条件においても、SRT が 30 日より 60 日と長い条件で有機物分解が促進されたといえる。

バイオガス生成速度は HRT を 30 日から 15 日に短縮したことで、条件 1~3 と比較して条件 4~6 で高い値となった。これは HRT が 2 分の 1 となったことで OLR は約 2 倍となったためである。各条件での糖、タンパク質、脂質の分解率には違いがみられたものの、バイオガス収率には大きな変化が見られなかった。この原因として、分解を経て微細化した有機物が分離膜を通過して膜透過水としてメタン発酵槽外に流出したこと、投入基質である余剰汚泥の性状変化などが考えられる。また、バイオガス中のメタン濃度は 68~74% で推移し、大きな変化は見られなかった。

表 2. 各運転条件での有機物分解率、バイオガス生成速度、バイオガス収率およびバイオガス中メタン濃度

条件	分解率 (%)			バイオガス 生成速度 (L/L/d)	バイオガス 収率 (L/g-VS)	メタン濃度 (%)
	糖	タンパク質	脂質			
1	37	45	26	0.200	0.39	72
2	48	44	45	0.146	0.39	73
3	61	75	61	0.154	0.34	74
4	34	27	61	0.316	0.37	71
5	63	68	39	0.410	0.35	69
6	49	50	22	0.415	0.36	70

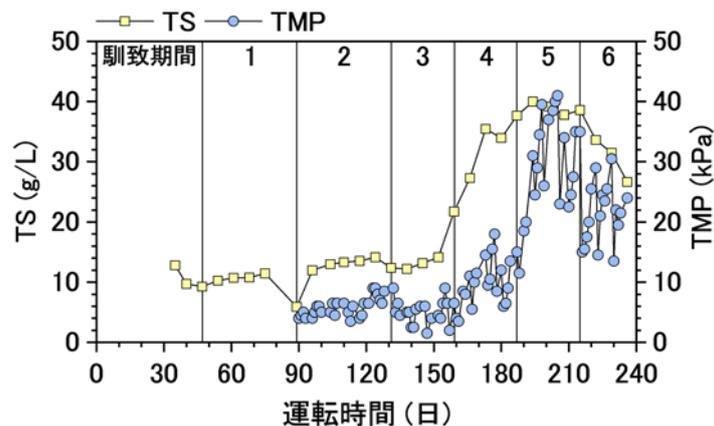


図 2. メタン発酵槽内の TS 濃度と膜ろ過ユニットの TMP の経時変化

膜ろ過プロセスの課題は膜の目詰まりによる膜ろ過性能の悪化である。本研究では、膜の目詰まりの指標である TMP は条件 5 において約 40 kPa まで上昇した (図 2)。しかしながら膜ろ過フラックスは維持され、約 5 か月間にわたり膜洗浄や膜交換をすることなく連続膜ろ過を行うことに成功した。これは消化汚泥のクロスフローろ過により膜表面にせん断応力が働き、深刻な膜表面の汚染を防いだことによるものと考えられる。膜分離により条件 5 では TS 濃度を約 40 g/L に維持することができ、高い菌体濃度を維持できたと考えられる。

リアクター運転終了後に分離膜の洗浄を段階的に実施し、どのような洗浄が膜汚染の除去に有効かを調べた（図 3）。新膜の膜ろ過抵抗（ $4.7 \times 10^{11} \text{ m}^{-1}$ ）と比較して、リアクター運転終了後の膜ろ過抵抗は  $8.6 \times 10^{11} \text{ m}^{-1}$  まで増加しており、膜の汚染が進行していた。膜の物理洗浄を実施した結果、膜ろ過抵抗は  $7.6 \times 10^{11} \text{ m}^{-1}$  まで減少した。実施した物理洗浄は膜表面の汚れを除去するためのものであり、一定の効果がみられた。つづいて実施した次亜塩素酸ナトリウムと水酸化ナトリウム溶液による薬品洗浄には効果がみられず、膜ろ過抵抗は減少しなかった。一般的に次亜塩素酸ナトリウムと水酸化ナトリウム溶液による洗浄は、有機物による膜汚染の除去に効果があると知られている。よって、本研究では有機物による膜汚染の程度は小さかったと考えられる。つづいて実施したクエン酸溶液による膜洗浄後には膜ろ過抵抗が  $5.3 \times 10^{11} \text{ m}^{-1}$  まで減少した。クエン酸洗浄は無機物による膜汚染の除去に効果があると言われており、本研究では無機物による膜汚染の程度が大きかったことが示唆された。

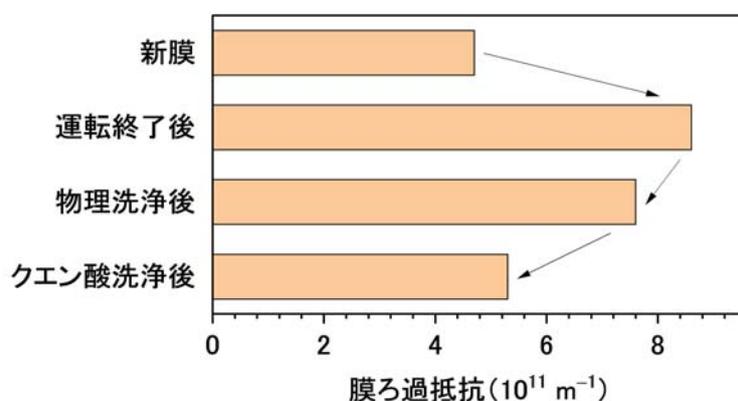


図 3. 新膜、リアクター運転終了後および膜洗浄実施後の膜ろ過抵抗

本研究の結果から、HRT を従来の 30 日から 15 日に短縮することで、有機物負荷を大きくでき、バイオガス生成速度が増加した。このとき、SRT を延長してもバイオガス収率とメタン濃度は維持された。SRT の延長は消化残差の低減につながるものである。HRT を従来法より短縮し、SRT を従来法より長くすることのできる AnMBR 法の利点が示された。

### (C) 【今後の研究方向、課題】

AnMBR 法を用いた下水汚泥のメタン発酵に関し、現在は低い膜ろ過フラックスでの運転を行っているため、膜ろ過フラックスの向上を目指す。これにあわせて長期連続運転を達成するための膜のインライン洗浄方法を検討する。また、下水汚泥バイオマスからより多くのバイオガスを得るため、メタン発酵促進剤の探索と評価、生ごみとの混合メタン発酵を行う予定である。

### (D) 【成果の発表、論文等】

- 1) 鹿沼俊介, 藤野創太, 羽深昭, 木村克輝, “下水汚泥の嫌気性 MBR 処理における糖・タンパク質・脂質の分解性能の評価”, 第 56 回日本水環境学会年会, 講演集 p476 富山大学 (オンライン) 2022 年 3 月 (口頭発表)
- 2) 土木学会・環境工学委員会が主催する第 59 回環境工学研究フォーラム (2022 年 11 月) の査読付き論文セッションにおいて成果を発表予定