

## 12. 下水汚泥を活用した有機質廃材の資源化・リサイクル技術に関する調査

研究予算: 受託業務費

研究期間: 平 14~平 17

担当チーム: 材料地盤研究グループ(リサイクル)

研究担当者: 尾崎正明, 落修一, 庄司仁

### 【要旨】

本調査は、草木系のバイオマスと廃水処理から発生する下水汚泥の利活用を推進するために、双方の特性を活かした効果的な利活用技術を開発するものである。平成16年度は、草木廃材と下水汚泥を混合した有機酸発酵の特性を明らかにする実験を行った。その結果、草木廃材から酢酸を主成分とする有機酸の生産が可能であること、発酵を担う細菌群集は純粋セルロースの場合と近縁であること、といった特徴が分かった。さらに、下水汚泥などスラリー状有機質の液体コンポスト化手法を、常温から高温までの異なる温度の条件で調査した。液体コンポスト化には、高温条件による熱分解反応と、常温～中温条件での生物分解反応を組み合わせていることが適していた。

キーワード: バイオマス, 酸発酵, 木質廃棄物, コンポスト, 下水汚泥, 微生物群集解析

### 1. はじめに

土木工事をはじめ、道路や河川、海岸、空港、公園などの緑地管理からは、大量の廃木材や刈草が発生している。現状では、これらの草木系バイオマスの利活用手法は限られており、資源としての利用につながる技術開発が必要である。一方、下水処理の過程では多くのエネルギーや薬品を必要としているが、草木系バイオマスによって代替できる可能性がある。また、下水汚泥は多様な微生物群と豊富な無機分を含むことから、草木系バイオマスの生物学的な加工や改質に貢献できると思われる。

本調査は、草木系バイオマスを中心とした有機質廃材と下水汚泥との混合により資源化を行う技術、および有機質廃材を加工して下水処理に活用する技術を開発し、草木系バイオマスと下水汚泥の利活用の推進に寄与することを目的とする。

### 2. 調査方法

下水処理場では、下水汚泥を対象とした嫌気性消化法によりメタン発酵を行っている所が多い。平成14年度は、消化槽に下水汚泥と木質を混合投入して、メタンガスの増産を図る方法について調査した。その結果、木質に前処理(蒸煮・爆砕処理)を施せば、効率的なメタンガスの生産が可能となった。平成15年度は、木質を加えた消化過程における発酵液の流動性や、発酵残渣(消化汚泥)の処理性能などについて検討し、運転上大きな問題はないことを明らかとした。さらに、下水の高度処理に必要な有機酸を生産する嫌気性発酵の検討もを行い、純粋セルロースを基質とする場合のpHの影響などを明らかにした。

本年度は、昨年度に引き続いて嫌気性発酵による有機

酸生産に関して、蒸煮・爆砕処理した木質を用いた発酵実験を行った。また、発酵液残渣を有効利用に資するために、スラリー状の有機質に対して汎用的に適用できる液体コンポスト化法の開発に着手した。

### 3 調査結果

#### 3.1 草木廃材と下水汚泥による有機酸の生産

##### 3.1.1 実験の概要

10Lの密閉ガラス瓶に表1に示す培地等を投入して、攪拌しながら嫌気培養を行った。pH制御用のNaOH水溶液が消費されなくなった運転開始32日目で、実験を終了した。各系列の32日目の試料は、真正細菌(メタン細菌は含まない)の16S rRNA 遺伝子を標的とするPCR-DGGE法の解析に供した。DGGEで検出されたバンドは、塩基配列の解読までを行い、系統的な位置を整理した。

表1: 各系列の条件設定

	発酵基質	総投入量	培地*2	消化汚泥
A系	セルロース	240 gDS	9 L	75 mL
B系	蒸煮・爆砕物	194 gDS	9 L	75 mL
C系	Bの固形分*1	243 gDS	9 L	75 mL

共通な設定: pH 制御目標値 7.0, 温度 35°C(恒温室)

\*1: 蒸煮・爆砕物を水洗したもの \*2: 詳細な組成は文献<sup>1)</sup>参照

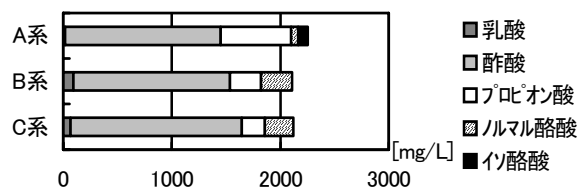


図1: 運転32日目の有機酸濃度

### 3. 1. 2 調査結果

#### (1) 有機酸生成に対する蒸煮・爆砕木質の影響

主な有機酸濃度の測定結果を図1に示した。どの基質を投入した場合も、32日時点での有機酸濃度は同程度で、その主成分は酢酸である。したがって、蒸煮・爆砕木質とセルロースは、有機酸生産という目的に対しては同等に活用できると考えられる。

一方、プロピオン酸と酪酸の濃度を個別に見ると、純粋セルロースを用いたA系と、蒸煮・爆砕木質を添加したB、C系で濃度の相違が見られる。このことから、酸発酵の反応経路として、セルロースを出発点とする場合にはプロピオン酸を経て、蒸煮・爆砕木質を出発点とする場合には酪酸を経て酢酸に至る反応が主に起きていたと考えられる。原因として、蒸煮・爆砕物に含まれるセルロース以外の成分の影響、あるいは、発酵を担う細菌群集が異なっていた可能性などを挙げられる。

また、累積ガス発生量は表2のとおりである。A系は、酢酸からのメタン生成( $\text{CH}_3\text{COOH} \rightarrow \text{CH}_4 + \text{CO}_2$ )が盛んであったと考えられる。結果として、発酵基質の分解量(表2の「合計」に相当)も最大だが、有機酸を多く回収するためには、B、C系のようにガス発生量の少ない方が望ましい。昨年度までの結果から分かるように、蒸煮・爆砕木質がメタン発酵を抑制するわけではないので、B、C系でも時間の経過とともにメタン発生量が増加する可能性が高い。したがって、有機酸生産に適した反応時間(滞留時間)の設定が重要である。

#### (2) 有機酸発酵を担う細菌群集の特徴

図2の DGGE 結果は、基質に応じてバンドパターン(細菌群集構造)が異なることを示している。つまり、それぞれの基質に応じて、異なる塩基配列を持つ(=異なる種類の)細菌が存在していることになる。しかし解読したバンドの塩基配列を既存のデータベースと照らし合わせると、大部分が *Clostridium* 属もしくは *Bacteroides* 属と近縁なものであった。これは、どの基質を与えた場合も、属としては同じような細菌によって群集が形成されていたことを意味する。また近縁種として名前の挙がった *Clostridium* 属や *Bacteroides* 属の細菌は、草食動物の腸内に存在するような、高い酸発酵能力(セルロースの嫌氣的分解能力)を持ち、そして非常に一般的なものである。これは、蒸煮・爆砕木質の分解には、通常発酵性細菌だけで十分であることを意味している。一方で、セルロース基質と蒸煮・爆砕物基質との反応経路の違いについて、原因が細菌種の違いによるのかどうかは、データベースで照会可能な範囲では、明確にならなかった。

表2:ガス発生量および溶解性有機物増加量

	CO <sub>2</sub> 発生	CH <sub>4</sub> 発生	DOC 増加	合計
A系	5.8 gC	10.7 gC	13.4 gC	29.9 gC
B系	1.7 gC	4.9 gC	6.2 gC	12.8 gC
C系	2.2 gC	3.8 gC	12.5 gC	18.5 gC

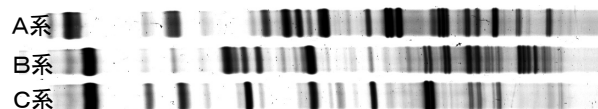


図2:運転32日目の PCR-DGGE 解析結果

### 3. 2 スラリー状有機質の液体コンポスト化

下水汚泥をはじめとする各種のスラリー状有機質を緑農地還元するためには、脱水により含水率を低減させてからコンポスト化することが一般的である。しかしながら、有機物を好気条件で安定化させるというコンポスト化の目的は、スラリーの状態でも達成できる。本調査は、好気性消化に改良を加えた新たな手法により、余剰汚泥および消化汚泥の液体コンポスト化を行ったものである。

#### 3. 2. 1 実験の概要

反応装置として、図3に示す密閉(耐圧)容器と攪拌装置、恒温水槽(恒温室では対応できない場合)を用意した。実験開始時に2気圧分の酸素を充填して、ガス組成を測定しながら必要に応じて酸素を追加した。温度条件として20、35、50、60、70、80℃の6系列を用意したが、80℃の装置で不具合が多発したため、本稿では主に70℃までの結果を報告する。

まず Pre-Run として、2種類の余剰汚泥と下水汚泥コンポストを混合して、各温度条件で馴致した。次に Run-1 として、余剰汚泥(基質)と Pre-Run で馴致した少量の汚泥(植種)による条件を設定した。最後に、消化汚泥(基質)と Run-1 で馴致した少量の汚泥(植種)で Run-2 を設定した。実験に用いた各汚泥の分析結果は表3に示した。

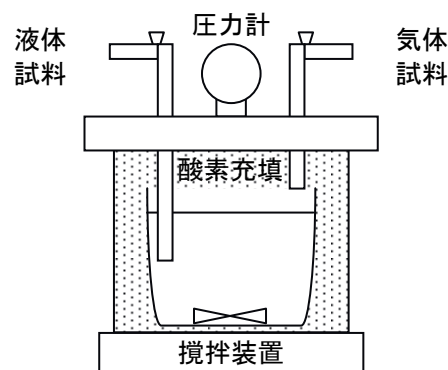


図3:液体コンポスト化の実験装置

表3: 液体コンポスト化に用いた汚泥

Pre-Run		固形分 (MLVSS)	溶解性 TOC
植種源	余剰汚泥A* <sup>1</sup>	混合物で 12 g/L	混合物で 0.60 g/L
	余剰汚泥B* <sup>2</sup>		
	コンポスト* <sup>3</sup>		
Run-1		固形分 (MLVSS)	溶解性 TOC
植種源	Pre-Run 200 mL	4~16 g/L	0.6~3.6 g/L
基質	余剰汚泥 A 600 mL	26 g/L	0.043 g/L
Run-2		固形分 (MLVSS)	溶解性 TOC
植種源	Run-1 100 mL	7~14 g/L	1.7~7.2 g/L
基質	消化汚泥* <sup>4</sup> 700 mL	6.9 g/L	0.43 g/L

\*1 余剰汚泥 A: 標準活性汚泥法の実処理場より採取

\*2 余剰汚泥 B: 長時間曝気法の実験施設より採取

\*3 コンポスト: 下水(脱水)汚泥を主原料とする市販のコンポスト

\*4 消化汚泥: 余剰汚泥 A と同じ施設の嫌気性消化槽より採取

### 3. 2. 2 調査結果

#### (1) 余剰汚泥の液体コンポスト化過程

コンポスト化の進行状況を評価するために、有機物の安定化(酸化分解)にともなう二酸化炭素の発生量を指標とした。今回の実験では、負荷の異なるRun1とRun2を比較できるように、投入MLVSSあたりの二酸化炭素発生量として図4に整理した。

既存の研究<sup>2)</sup>では、60℃の条件であれば、熱分解による汚泥の可溶化が数時間程度で進むとされている。一般的に、有機物の分解反応では固形分の可溶化が律速段階となっているので、高温条件は反応の高速化を促す要因の一つである。その一方で、今回の実験で用いた植種源(活性汚泥や安定化後のコンポスト)には、その馴致条件から考えて、超好熱性の細菌がほとんど含まれていないはずである。これらのことから、70℃で分解が進まないのは生物反応が起きないため、60℃以下の条件で温度順の分解速度となっているのは熱分解後に生物反応が起きているためと考えられる。なお、いずれの温度でも15日程度で二酸化炭素の発生が頭打ちとなっており、この時点でコンポスト化が完了しているとみなせる。

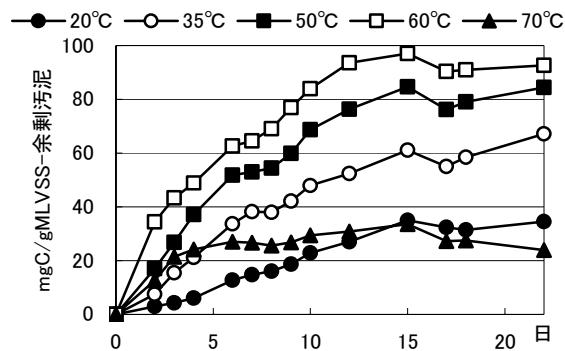


図4: 投入基質量あたりの累積CO<sub>2</sub>発生量

表4: 余剰汚泥液体コンポストの分析結果

	pH	MLSS g/L	MLVSS g/L	溶解性成分		
				TOC g/L	NH <sub>4</sub> -N* <sup>1</sup> g/L	PO <sub>4</sub> -P mg/L
20℃	6.7	18.1	14.1	1.9	0.9	220
35℃	7.1	16.1	11.8	1.7	1.3	220
50℃	7.0	13.7	9.5	2.4	1.5	190
60℃	7.1	12.8	7.8	3.4	1.2	180
70℃	6.1	9.8	6.9	7.2	0.5	200

\*1: 無機の溶解性窒素のほぼ全量に相当

#### (2) 生産された余剰汚泥液体コンポストの特徴

本来ならば、植物への影響からコンポストの特徴を評価すべきであるが、そのための実験は継続中である。理化学的分析結果の一部を表4に示したが、主要な有効成分である有機物(腐植質など)の各成分を定量的に確認することは難しい。そこで本稿では、定性的ではあるが、外観的な特徴を箇条書きで述べる。

- 色: 色の変化は少なく、余剰汚泥と同じ好気的な汚泥の色を呈している。ただし高温では、若干の白色化が見られる。遠心分離後の上澄み液は、どの温度でも腐植質のような茶褐色となっている。
- 粘性: MLSSとして10g/L程度が残存していても、粘度はかなり低下する。原因としては、細胞外高分子物質のような粘性物質が分解された可能性と、MLSSの減少(ほぼ半減)による効果などを挙げられる。
- 臭気: 70~80℃では、高圧蒸気滅菌器のような熱分解にともなう臭気が強。それ以下の温度では、高温ほど通常のコンポスト臭が、低温ほど汚泥臭が強いものの、両者を混合したような臭気である。
- 保存性: 冷蔵状態で20日ほど保管しても、硫化水素臭や黒変は見られず、安定した性状を保っていた。

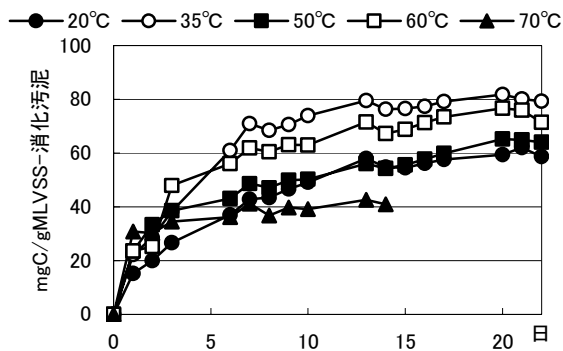


図5: 投入基質量あたりの累積CO<sub>2</sub>発生量

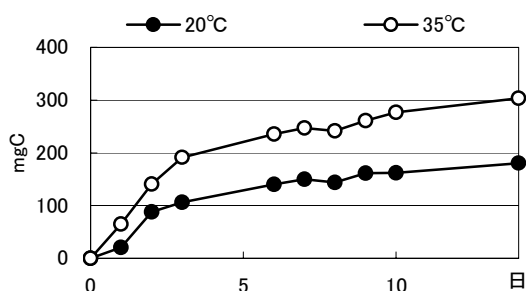


図6: 追加実験での累積CO<sub>2</sub>発生量

表5: 消化汚泥液体コンポストの分析結果

	pH	MLSS g/L	MLVSS g/L	溶解性成分		
				TOC g/L	NH <sub>4</sub> -N* <sup>1</sup> g/L	PO <sub>4</sub> -P mg/L
20°C	7.1	9.6	6.4	1.3	0.9	150
35°C	6.9	8.8	5.7	0.9	1.0	130
50°C	7.2	7.9	4.9	1.2	0.9	100
60°C	7.1	5.7	3.2	1.7	0.9	110
70°C* <sup>2</sup>	7.6	5.3	2.8	3.1	0.7	90
→20°C	7.4	6.9	2.7	2.0	0.9	120
→35°C	7.4	5.4	2.7	1.6	0.9	100

\*1: 無機の溶解性窒素のほぼ全量に相当 \*2: 14日目の分析結果

### (3) 消化汚泥の液体コンポスト化過程

消化汚泥の液体コンポスト化についても、余剰汚泥の場合と同様に、投入 MLVSS あたりの二酸化炭素発生量として整理した(図5)。なお、生物分解の寄与が小さいと予想された70°Cについては、二酸化炭素発生頭打ちを確認した14日目で実験を打ち切り、追加実験の基質とした。追加実験は、70°Cでの可溶性-常温での生物分解という手法を念頭に、それぞれの温度で馴致した汚泥を植種して、20°Cおよび35°Cでコンポスト化実験に供した。こ

らの結果は、溶解成分であるTOCの負荷が無視できないほど高いため、図4や図5とは異なり、二酸化炭素発生量の推移として図6にまとめた。

消化汚泥を基質とする場合では、温度条件が異なっても、分解速度や量の差があまり大きくない。また、70°Cを除いて考えても、高温条件から順に分解速度や量が並んでいるわけではない。この原因としては、原料汚泥の馴致過程と本プロセスとの「条件の近さ」が考えられる。たとえば好気条件かつ常温で馴致された活性汚泥は、同様の条件(Run1の20°C)を続けても分解が遅い。しかし、熱分解や異なる細菌群集(好熱細菌)の生物反応となる条件(Run1の60°C)では分解が速い。これに対して消化汚泥は、嫌気的な環境での生物分解を経ている。したがって、好気的な液体コンポスト化過程では、温度によらず別の細菌群集(好気性細菌)の生物反応となるため、分解は常温でも速い(Run2の20°C)。実際、嫌気/好気条件の繰り返しによって、常温で汚泥の可溶化が促進されるという研究事例も報告されている<sup>3)</sup>。

以上の結果は、本手法を他のスラリー状有機質に適用する際の留意点を示唆している。すなわち、

- し尿や畜産廃水のように主に嫌気的な環境(動物の消化管)を経ているものは、容易に安定化が進む。
- 活性汚泥(余剰汚泥)のように好気的な環境を経ているものは、高温条件による熱分解が必要となる。

といったことが推察される。高温条件を前処理として用いる効果に関しては、追加実験で検討する。

### (4) 高温条件の前処理としての効果

追加実験の結果は、70°Cで分解した後でも、常温~中温で生物分解される有機物が多量に残存していたことを示している。測定された二酸化炭素の発生量は、溶解性TOCの減少量とほぼ等しかつたので、熱分解によって可溶化された成分が生物分解されたものと考えられる。また二酸化炭素の発生で評価すると、70°Cでの熱分解には3日程度、その後の生物分解には10日弱しか必要ないことが分かる。この数字を合計しても、単一の温度条件で安定化までに要した日数(約15日、Run1と2でほぼ等しい)より短い。したがって、加温の費用を抑えつつ安定化を促すためには、熱分解のための高温条件と、生物分解のための常温~中温条件を組み合わせることが有効である。

### (5) 生産された消化汚泥液体コンポストの特徴

余剰汚泥の Run1と同様に、理化学的な分析結果の一部(表5)と、外観的な特徴を述べる。

- 色: 好気的な汚泥の色を呈しているが、高温では若干の白色化が見られる。遠心分離後の上澄み液は、どの温度でも腐植質のような茶褐色となっている。

- 粘性:元の粘性が低かったので、変化は少ない。
- 臭気:70~80℃では、高圧蒸気滅菌器のような熱分解にともなう臭気が強。それ以下の温度では、高温だと通常のコンポスト臭が、低温だと腐葉土に近い臭気がある。追加実験のものは、腐葉土の臭いへと変化している。
- 保存性:冷蔵状態で20日ほど保管しても、硫化水素臭や黒変は見られず、安定した性状を保っていた。

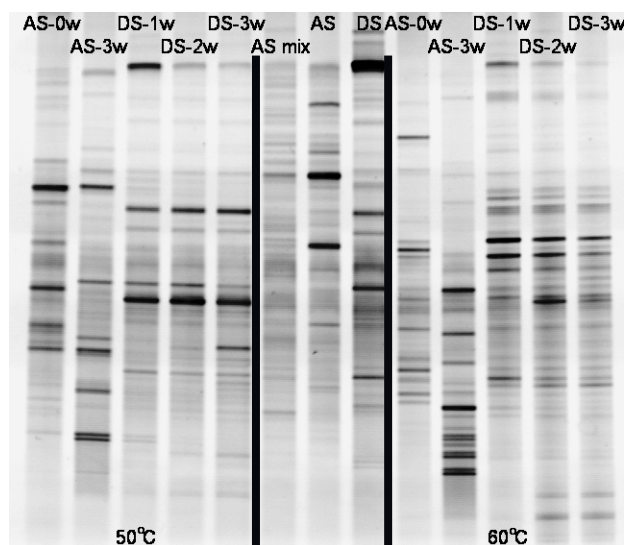
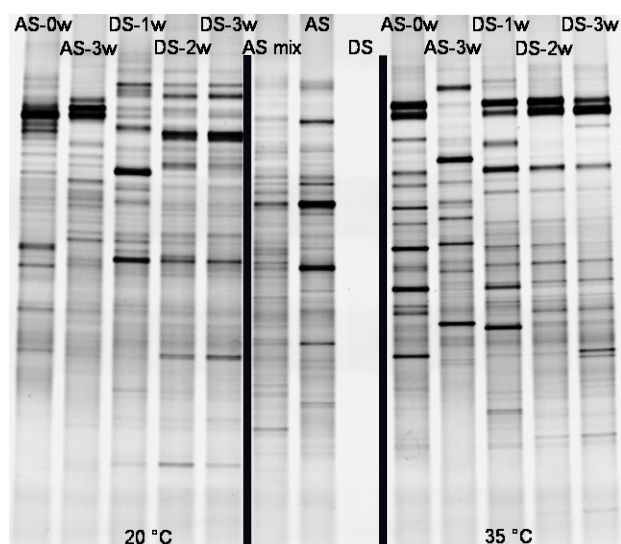


図7:液体コンポストのPCR-DGGE解析結果

AS-0w:Run1への植種汚泥

AS-3w:Run1の22日目かつRun2の植種汚泥

DS-1,2,3w:Run2の7日, 14日, 22日目

AS mix:Pre-Runの植種汚泥

AS:Run1の基質(余剰汚泥)

DS:Run2の基質(消化汚泥)

<上図DSはバンドが検出できていないが、下図DSと同じものである。>

## (6)液体コンポスト化プロセスにおける細菌群集構造

これまでの議論では、温度条件や基質に応じて、反応を担う細菌群集構造が異なることを想定してきた。この点は、PCR-DGGE法のバンドパターンから、視覚的にも確認することができる。各Runで用いた基質および植種の汚泥と、60℃までの条件における経時変化の解析結果を図7に示した。全体的な傾向として、温度や基質によってバンドパターンがまったく異なる。バンドパターンにこれほどの違いが見られるならば、実際の細菌群集構造も異なっている。また、コンポスト化の進行した22日目のバンドパターンが、植種源および基質のどちらも異なっていた。しかし、Run2(消化汚泥)の50℃だけは、例外的に基質(消化汚泥)の主要なバンドが多く残っていた。消化プロセスが50℃で運転されていたことと関連するならば、嫌気/好気を問わず汚泥の分解を行える高温細菌の可能性もあり、実用的な面から興味深い細菌である。

群集解析は、単に生物学的な知見を得るためではなく、コンポスト化を評価するためにも必要な解析である。というのは、コンポスト化の進捗状況(maturity=腐熟度)を表すために、一般的な理化学分析だけでは限界があるためである。現状では、コンポストを構成する非常に多様な各成分ではなく、炭素や窒素といった元素レベルの分析結果、あるいは温度変化や二酸化炭素の発生量が指標となっている。これに加えて、腐熟度やコンポストの有効性と対応するような細菌の指標が見つければ、生物学的な裏付けを有するプロセスの評価が可能となる。近年の生物学的な手法の発展にともない、細菌群集解析をコンポストの評価に活かすという視点からの研究は重要である<sup>4)</sup>。

## 4. まとめ

有機酸発酵に関して以下が得られた。

- (1) 蒸煮・爆砕処理した木質廃材は、純粋なセルロースと同様に、酢酸を主成分とする有機酸発酵の原料として使用可能であった。ただし副成分には相違があり、セルロース基質に比べてプロピオン酸が少なく、酪酸が多かった。
- (2) 有機酸の回収率を高めるためには、メタン発酵まで進行させないような運転管理手法、具体的には反応時間の設定が重要である。
- (3) いずれの基質を用いた場合でも、反応系内に存在していたのは *Clostridium* 属と *Bacteroides* 属に近い種類の細菌であった。ただしPCR-DGGE法で検出されたバンドパターンは異なっており、種で見れば群集構造に違いがあった。

液体コンポスト化法に関して以下が得られた。

- (4) 余剰(濃縮)汚泥, 消化汚泥とも, 酸素を加圧充填した液体コンポスト化手法によって, 2週間程度で安定化させることができた。70℃以上では熱分解が, 60℃以下では生物分解が主要な反応であった。
- (5) 高温での熱分解は, 主に固形分の可溶化反応であった。可溶化された成分は生物に利用されるので, 短期間の高温条件の後に常温～中温条件を設定すれば, 熱分解と生物分解を効率よく組み合わせられる。
- (6) 液体コンポストには, 温度や基質に応じた多様な細菌群集が形成されていた。汚泥を分解・安定化する有用細菌の探索という観点に加えて, コンポスト評価手法の確立という観点から, 群集解析の結果を活用することが重要である。

#### 参考文献

- 1) 長沢英和, 落修一, 鈴木穰: 下水汚泥を活用した有機質廃材の資源化・リサイクル技術に関する調査, (独)土木研究所 平成15年重点プロジェクト研究報告書, p522-527, 2004
- 2) 長谷川進, 三浦雅彦, 桂健治: 好熱性微生物による有機性汚泥の可溶化, 下水道協会誌, Vol.34, No.408, p76-82, 1997
- 3) 宮永一彦, 高野俊, 丹治保典, 海野肇: 繰り返し嫌気-好気反応における汚泥中の生菌率評価, 第39回日本水環境学会年会講演集, p79, 2005
- 4) C. Mondini, H. Insam: Community level physiological profiling as a tool to evaluate compost maturity: a kinetic approach, *European Journal of Soil Biology*, Vol.39, p141-148, 2003

## RECYCLING OF ORGANIC WASTES IN SEWAGE TREATMENT SYSTEM

**Abstract** To develop the recycling process of organic waste, especially wood waste, combined with sewage treatment, the anaerobic fermentation with sewage sludge was examined. The lab-scale experiment indicated that wood waste could be the source of acetate production by fermentation. Moreover, the liquid composting process was applied for sewage sludge. It was found that efficient composting was achieved when the temperature was appropriate. From the microbiological point of view, the population dynamics as well as the treatment ability was important to estimate and optimize the processes.

**Key words:** biomass, fermentation, wood waste, composting, bio-solid