

嫌気性下水処理における溶存メタン温室効果 ガスの放散防止とエネルギー回収

大橋 晶良¹

¹広島大学 大学院工学研究院社会基盤環境工学専攻 (〒739-8527 東広島市鏡山1丁目4番1号)

省エネ型の嫌気性処理を下水に適用する場合、溶存メタンの大気放散を防止しなければ、活性汚泥法よりもCO₂排出量が多くなり地球環境にやさしくはない。そこで、嫌気性処理装置の後段に2基の密閉型DHSを設けることで、溶存メタンの約70%を有用な自燃ガスとして回収でき、残存の溶存メタンは微生物分解して、メタンの大気放散を99%抑えることが可能である。また、活性汚泥法と同等の良好な処理水を得ることができる。環境にやさしい創エネ型の嫌気性処理法と密閉型DHSを組み合わせたシステムは下水などの低濃度排水処理に対して21世紀の途上国さらに世界の標準仕様になる資質を秘めている。

キーワード 下水処理, 嫌気性, 溶存メタン, 温室効果ガス, DHSリアクター

1. はじめに

低濃度の排水処理において、先進国では依然として活性汚泥法に頼っており、処理に莫大なエネルギー(主に曝気動力)が投入されている。さらに除去有機物の50%程度が最終的に廃棄物となる余剰汚泥に姿を変え、その処理コストに悲鳴を上げているのが実状である。一方、途上国ではお金とエネルギーを存分にかけようとする活性汚泥法は根付かず、低濃度の下水に対しては低コストでしかもメタンガスとしてエネルギー回収できる嫌気性処理法の一つである上向流嫌気性スラッジブランケット(UASB)法が採用され、これがコアの処理技術として普及しようとしている。この嫌気性処理法は非常に理想的な処理法であり、途上国に限らず先進国にも導入すべき活性汚泥法に代わる次世代の技術にする必要がある¹⁾。

しかし、低濃度の排水に対して嫌気性処理法が採用されない理由が2つある。一つは、嫌気性処理法では生成されたメタンの一部が処理水に溶存し、いずれは大気に揮散される²⁾。これではエネルギーとして利用可能なメタンの回収量が減少するだけでなく、環境負荷の低減を図れるとして期待される嫌気性廃水処理法が、皮肉なことに、二酸化炭素の21倍以上の温室効果があるとされる溶存メタンの放散により地球温暖化の促進要因になってしまう。ただし、溶存メタンを回収さえすれば、

CO₂排出量を減らせ、かつエネルギー生成量も大きく、魅力的で優れた処理方法である。2つ目の理由は、低濃度排水処理では嫌気性微生物を良好に処理装置内に保持することができなくて、処理速度は実用化に耐えられる性能を有するまでに至らず、良好な水質を得ることはできないと言われてきた。

すなわち、上述の2つの問題点を克服できる装置が開発されれば、環境にやさしくとは言えない活性汚泥法に代わる次世代を担う環境低負荷型の排水処理技術となり得る。

そこで、本研究の目的は、次項の次世代を担う環境低負荷型の排水処理技術を開発することであり、低濃度有機性の実下水を用い、新規に開発した嫌気性DHS(Downflow Hanging Sponge)リアクターと溶存メタン回収装置のパイロットプラントによる長期連続運転を実施して、冬季の常温下においても、良好な水質と溶存メタンが回収できることを実証する。

1) 新規嫌気性DHSリアクターによる低濃度有機性排水処理技術:

低濃度・低温の下水でも処理可能な嫌気性処理装置・嫌気DHSリアクターの性能を活性汚泥法と同等にする。

2) 溶存メタン温室効果ガスの放散防止とエネルギー回収:

嫌気性処理水中に溶存しているメタンを密閉DHS型回

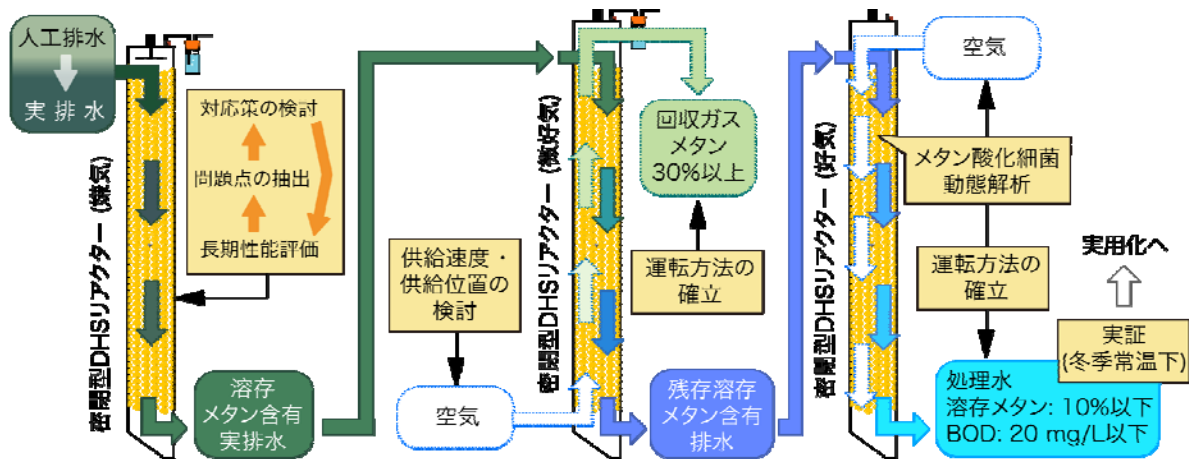


図-1 新規に開発する排水処理のシステム構成と各プロセスでの機能

収装置で自然できるメタン濃度 30%以上となるガスとして回収する操作方法を確立する。

3) 残存溶存メタンのメタン酸化細菌による分解除去:

密閉 DHS 型メタン回収装置で回収できなかった残存溶存メタンを好気性 DHS リアクターで微生物分解し、メタン放散量を 90%以上低減する。また、嫌気性処理水のポリッシュアップとしての機能を持たせ、BOD20mg/l 以下の処理性能を達成する。

本研究で新規に開発する排水処理のシステムは嫌気性 DHS リアクター、溶存メタン回収装置と処理水のポリッシュアップリアクターから構成され、図-1 のようなフローである。

力（流速増加、攪拌など）を要さずとも、表-1 に示すように約 50~70 mgCODcr/l の高い処理水質が得られた。すなわち嫌気性処理のみでも我が国の下水の放流基準をクリアできる可能性が示唆された。また、極低温の 10℃においても微生物を高濃度に保持できたことから、メタン発酵処理によるエネルギー回収は可能であった。そこで次のステップとして、同一の嫌気性 DHS リアクターを用いて実下水での適用を試みた。実下水では人工排水とは異なり、固形性の有機物が混入していて、長期連続処理において実下水ならではの問題が懸念されたが、温度 20℃において良好に処理できることが明らかとなった（表 2）。

2. 嫌気性DHSリアクターによる低濃度排水処理

低濃度有機性排水（下水と同程度）に適用可能な嫌気性処理として開発した嫌気 DHS リアクターの有効性を明らかにするため、人工排水を用いた連続処理実験を実施した。その結果、既存法で必要とされている物理的な外

3. 溶存メタンのガス化回収

(1) ガス化回収原理

密閉型 DHS による溶存メタンのガス化回収の原理は次の通りである。嫌気性処理水を密閉型 DHS リアクターの上部から散水すると、溶存メタンは液相からリアクターの気相へ気液平衡に向かって物理的に放散される。その気相部のメタンをリアクター下部から送風する少量の空気と共に上部から回収する。気相部は高さ方向にメタン濃度勾配が生じ、上部ほどメタン濃度が高くなっている。従って、上部から排出されるガスを自然する有用なガスとして回収することができる（図-2）。回収ガスのメタン濃度は、空気送風量などに依存するが、理論的に送風量を無限に小さくすれば、嫌気性処理槽から発生するバイオガスのメタン濃度まで高められる。ただし、メタン濃度の高いガスを回収しようとする、溶存メタンの回収率は低下することが予測される。バイオガスが自然するメタン濃度を実験で調べたところ、自然にはメタン濃度 30%以上が必要である。

表-1 嫌気性DHSリアクターでの人工低濃度排水処理性能

温度 (°C)	処理時間 (時間)	COD除去率 (%)	処理水質 (mgCOD/L)
20	2	78 (12)	68 (43)
10	10	86 (7)	48 (30)

(): 標準偏差

表-2 実下水処理性能 (20℃)

処理時間 (時間)	全BOD除去率 (%)	処理水質 (mg/L)	
		全BOD	溶解性BOD
6	67	32	18
10	72	27	17
18	49	40	9

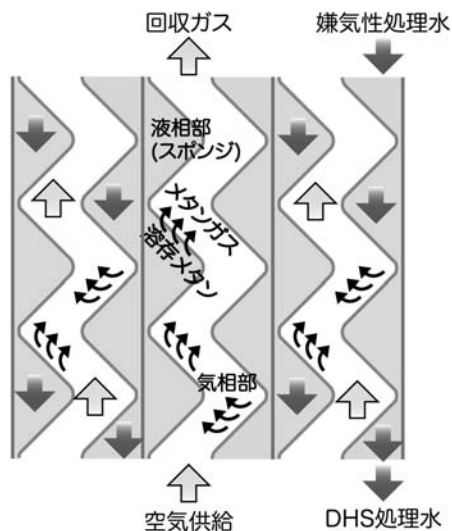


図-2 密閉型DHSリアクターによる溶存メタンのガス化回収の原理

(2) 溶存メタンのガス化回収性能

密閉型DHS装置を用いた溶存メタンのガス化回収を行った。その結果、回収メタンガス濃度と溶存メタン回収率はトレードオフの関係にあり、自然可能なガスとして回収しようとする、溶存メタン回収率は低下してしまい、おおよそ25%の溶存メタンは回収しきれずに大気放出された（実験結果提示せず）。

(3) 溶存メタンのガス化回収シミュレーション

メタン濃度30%以上のガスとして溶存メタンを回収しようとする、溶存メタン回収率は75%を切ってしまう実験結果であったが、DHSリアクターの高さやHRTによって回収率は変わると考えられる。そこで、溶存メタンがガス化回収される現象をモデル化し、シミュレーションから回収率への影響を検討した。

構築した数学的モデル（割愛）を用いて、回収ガスのメタン濃度が30%になる条件を検討するために、一例としてDHSリアクター高さ4, 8, 12mを想定したシミュレーションを行った（図-3）。HRTを長くする、またはリアクターを高くすれば、溶存メタン回収率を上げることができる。しかし、例えば、回収ガスメタン濃度30%で溶存メタン回収率90%を達成しようとする、高さ4mのリアクターではHRTが10h、HRTを短く4hにすれば高さ12mのリアクターになり、溶存メタンの大気放散を防止し、且つ高い回収率を得ようとするDHSリアクターのサイズは巨大になる。

4. 溶存メタンの回収およびメタン酸化の実証実験

密閉DHS型メタン回収装置を極端に高くすれば、メタン濃度30%以上のガス回収と共にメタン回収率90%以上が可能であるが、このような装置の高さは実用的とは言えず、密閉DHS型メタン回収装置で回収できなかった残

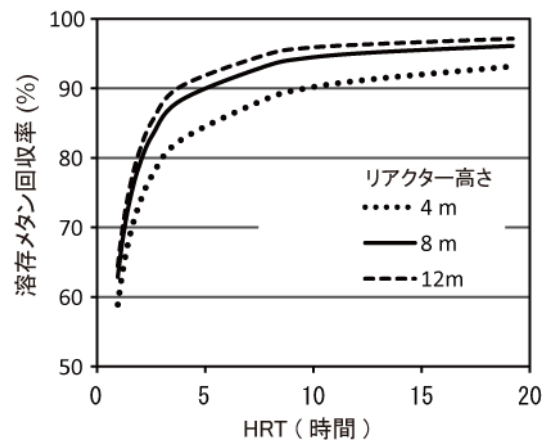


図-3 回収ガスメタン濃度30%を達成するためのHRTと回収率の関係

存溶存メタンを後段の好気性DHSリアクターで微生物分解する方法を採用した方が適切と考えられる。そこで、密閉DHS型メタン回収装置からの処理水を好気性DHSリアクターに通水して、残存溶存メタンの微生物酸化の性能を調べ、メタン放散量を90%以上低減できるような運転方法を検討した。

(1) 実験方法

実下水を処理しているミニパイロットUASBの後段に2基の密閉型DHSを直列に配置した（図-4）。UASBは高さ4m、内径0.2mであり、リアクター上部にGSSを兼ね備えた円筒構造となっている。リアクター容量はGSSを含み155Lである。植種に用いた汚泥は数年間下水を基質として供給した汚泥を用いた。1st DHSおよび2nd DHSは高さ2.0m、縦横0.2mの直方体構造で、リアクター容積は80L、内部のスポンジの充填率は44%である。充填してあるスポンジ担体は、断面二等辺三角形の三角柱スポンジ（30mm×30mm×200mm）を46列均等に塩化ビニール板の両面に貼り合わせた、DHS-G2型のスポンジシートである³⁾。スポンジシートを4列並べ、装置の内面にもスポンジシートを貼り付けた構造である。1st DHSは下部から空気を供給し上部でガスを回収する仕組みである。その空気供給量はPhase 1では375 L/(m³・day)、Phase 2では250 L/(m³・day)で供給した。2nd DHSは、上部から空気を供給し下部から空気が排出されるようになっており、保持された汚泥による微生物酸化を狙ったものである。空気供給量は2500 L/(m³・day)である。全ての装置は屋内常温下（21～28℃）で運転した。下水の供給流量は2710 L/(m³・day) または420 L/dayであり、滞留時間は12.8時間（UASB：8.8時間、各DHS：2時間）となる。

(2) 実験結果

a) 密閉型DHSによる溶存メタン回収および酸化

溶存メタン回収を目的とする1st DHSでは、自然可能濃度のメタンガスを得ることを目的としている。そのDHSリアクターにおいて、運転開始直後は流入メタン濃

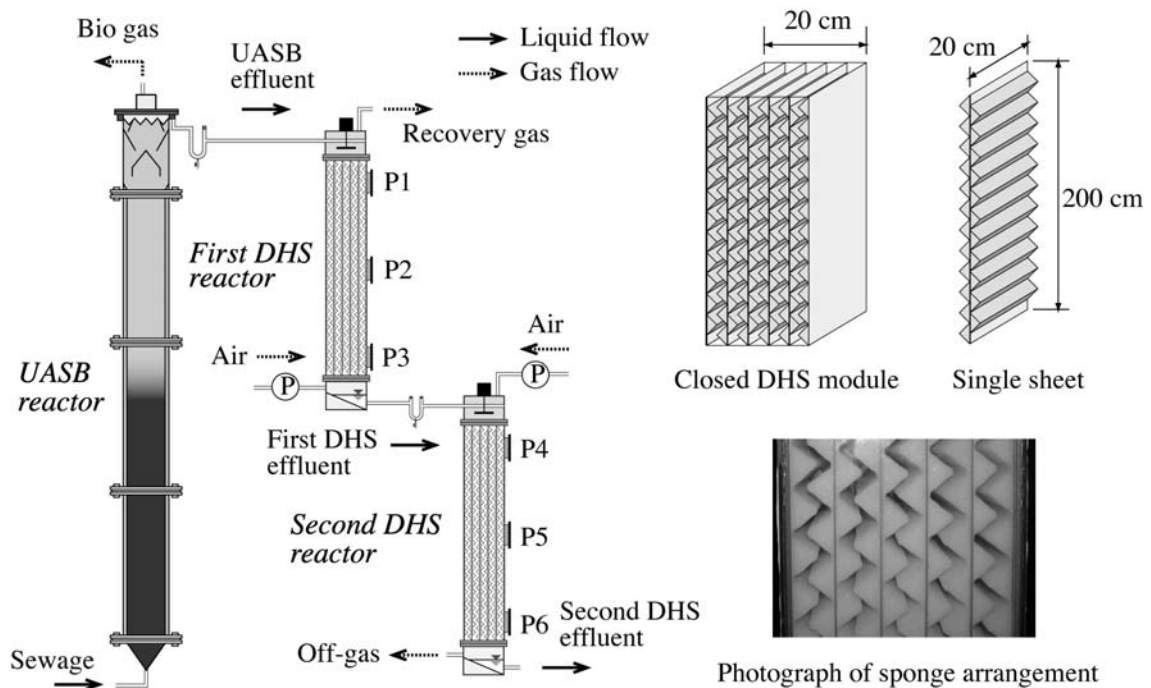


図4 新規に開発する排水処理のシステム構成

度は定常に達していなかったため、回収メタン濃度30%を下回っていた(図-5)。しかし、溶存メタン濃度が上昇するまで運転を継続したところ、溶存メタン濃度が70 mg COD/Lを超えた所で、回収濃度30%を達成した。その後、流入溶存メタンの低下に伴い、回収メタン濃度も徐々に低下し、運転開始89日目で回収メタン濃度30%を下回った。この要因として、気温上昇による溶存メタンの溶解度の低下が考えられた。本装置は常温環境下で制御しているため、温度の調節は困難である。そこで、メタン濃度30%を維持するために、89日目に空気供給量を375から250 L/(m³・day)に減らして運転を試みた。その結果、再びメタン濃度30%以上を維持した。このことから、空気供給量を調節することで、回収メタン濃度は上昇することが判明した。1st DHSに流入する溶存メタン(UASB eff.)の増減に対して、流出する溶存メタン濃度も増減する傾向を示している(図-5)。夏の溶存メタンの除去率(回収率)は約75%であり、冬では約60%であった。なお、運転期間中の回収ガス組成はメタン37%、二酸化炭素6%、窒素58%であった。酸素濃度は検出限界以下であった。以上の結果を基に、図-7にUASB処理水の溶存メタンを100%とした時の密閉型DHSのメタンバランスを図化した。溶存メタンは1st DHSにて65.8%が回収され、未回収の溶存メタンは34.2%であった。

2nd DHSでは、主に1st DHSで処理しきれなかった溶存メタンと有機物を処理する。流入する溶存メタンは平均18.5 mgCOD/Lであり、流入溶存メタン濃度にほとんど左右されることなく運転期間を通して、安定した溶存メタンの酸化処理が行われた(図-5)。流出した溶存メタン濃度は平均0.1 mgCOD/Lであった。また、ガス体として

流出するメタン量は処理水1L当たり0.22±0.1 mgCOD/Lであった。UASB処理水の溶存メタンに対し、2nd DHSにて流出した溶存メタンの割合はわずか0.7%である(図-5)。

b) 排水処理性能

本処理プロセスでは、下水処理を対象にしているため、排水処理としての機能も果たさなければならない。そこで、有機物処理性の評価のために、BOD、COD、アンモニアの経日変化を図-6に示す。下水を除去平均337±87 mgCOD/Lの濃度で流入する下水をUASBにて処理すると、平均処理水質は126±43 mgCOD/Lとなった。分解されたCOD成分の内訳を見ると、メタンガスが70 mgCOD/L、溶存メタンが75 mgCOD/L、硫酸塩還元が23 mgCOD/Lであった。残りは蓄積や微量重金属の酸化などに利用されたと考えられる。冬から気温が上昇する春にかけては、UASBからの汚泥ウォッシュアウトが頻繁に観測され、UASB処理水は悪化した。

溶存メタンを回収する1st DHSの有機物処理性能は、運転期間通してUASB処理水をほとんどポリリッシュアップすることが出来ず、処理水質は112 mgCOD/Lである。一方、溶存メタン酸化型DHSでは、有機物分解が可能であり、処理水質は58 mgCOD/Lであり、1st DHSで除去できなかった有機物の多くを除去することが可能であった。DHS処理水質は、流入するUASB処理水質に依存していると考えられたため、UASB処理水に対するDHSの処理水の

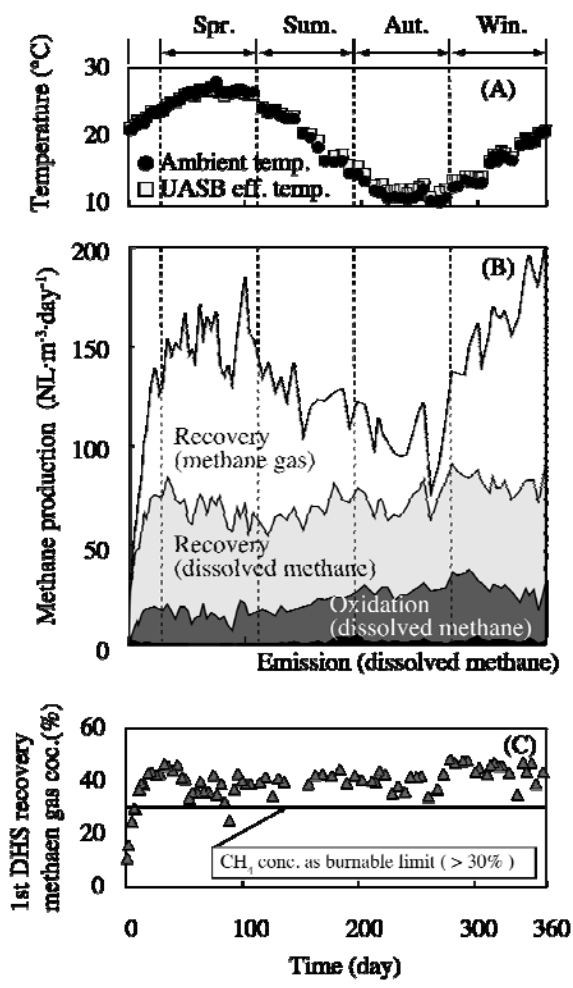


図5 連続運転結果 (温度, メタンの挙動, 溶存メタン回収濃度)

関係を図化したところ, 正比例の関係が見られた (図示せず)。1st DHS は $y=0.88x$ の関係があり, 除去率は 12% であった。また 2nd DHS では, $y=0.35x$ であった。これは, 流入する UASB 流入水の COD を溶存メタン回収型 DHS と酸化型 DHS にて 65%除去できることを意味している。また, 流入下水に対する最終処理水の除去率は 83%であった。BOD についても COD と同様の傾向を示しており, 平均処理水質は 15 mg/L であった。DHS における硝化 (アンモニア酸化) 反応は, 夏期で最も高く, 硝化率は 33%であった。しかし, 季節が温暖な夏から冬に進につれ, 硝化率は低下する傾向が見られた。冬期での硝化率は 13%であった。

c) 考察とまとめ

溶存メタン回収型 DHS リアクターと溶存メタン酸化型 DHS リアクターは, 溶存メタンをエネルギー源として回収でき, 微生物酸化を組み合わせることで溶存メタンの

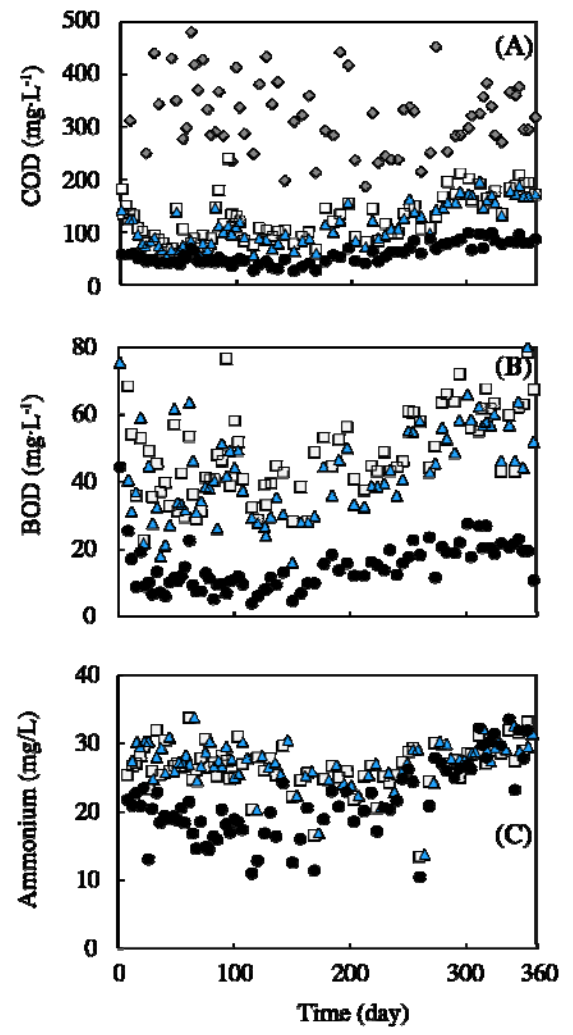


図6 連続運転での処理性能

揮散による温室効果ガスを大幅に削減できるため, 嫌気性処理法の後段として必要不可欠な有望な技術である。溶存メタンの排出防止を考慮した後段処理装置は, BOD 濃度 15mg/L と活性汚泥に匹敵する処理水質を得ることが可能であった。しかし, 冬期や UASB 処理水の悪化は, 最終処理水質の低下を引き起こすため, 本プロセスの本格的適用には, 季節に応じた適切な空気供給量や HRT 等のパラメーターを把握する必要がある。UASB から発生する溶存メタン濃度は季節変化によって, 溶解度やバイオガス中のメタン濃度が変化するが相殺されるため, ほとんど変化しないことが明らかとなった。溶存メタン回収リアクターは一定量の空気を供給することで自然可能濃度のメタンガスを回収できるが, 季節変動によって溶存メタンの回収率は低下する。しかしながら, 溶存メタンの回収率が低下しても, 後段に付加したメタン酸化型リアクターによって微生物酸化が可能であり, 冬期でも活性は低下することはない。メタン酸化型リアクターの微

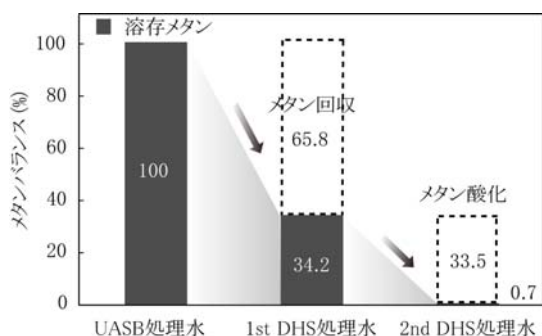


図-7 処理システム内でのメタンバランス

生物叢は、気温に適応したメタン酸化細菌が増殖することで、高いメタン酸化性能が維持されることも判明した。

5. 嫌気DHS/2DHS装置による実下水処理実験

上述したように本研究結果では、嫌気DHSによる人工及び実下水の処理性能が実証できた。また嫌気性処理装置（UASB）から排出される溶存メタンを自然可能なガスとして回収することができた。そこで前段処理のUASBに代えて嫌気性DHSリアクターを用いることで、より効率的な処理を期待して、嫌気性DHSリアクターに後段に密閉DHSをつなげて上述と同様に実下水の長期連続処理実験を実施した。その結果、残念ながら、嫌気性DHSリアクターはSSを含む実下水に対しては嫌気性微生物の保持速度が遅く、処理性能が安定するまでのスタートアップ期間が長いことが分かった（処理結果は提示せず）。

6. 結論

次世代を担う環境低負荷型の排水処理システム技術開発を目的に、低濃度有機性の実下水を用い、新規に開発した嫌気性DHSリアクターと溶存メタン回収装置のパイロットプラントによる長期連続運転を実施した。その結果、年間を通して溶存メタンは自然可能なガス（メタン分圧30%）として回収することが可能であった。溶存メタンの回収率は70%程度であるが、2nd DHSでの残存溶存メタンの微生物酸化によりDHS全体での溶存メタン除去率（回収+微生物酸化）は99%以上であり、大気中に放出されるメタン量を1/100以下に低減することが可能であった。溶存メタンを回収する1st DHSの有機物処理性能は、不安定でBODの除去率は10%程度であるが、2nd DHSで有機物の処理が行われており、処理水のBOD濃度は15 mg/L程度と年間を通して良好な処理が行えることが実証された。

参考文献

- 1) 原田秀樹：途上国に適用可能な下水処理技術の国際共同研究開発—インドでの実規模プラントによる実証試験—，水環境学会誌，Vol.28 No.7, p.429-433, 2005.
- 2) 5) 江口拓，大橋晶良，原田秀樹，UASB 下水処理水の後段処理 DHS リアクター内での溶存メタンの微生物酸化と物理的消散，日本水環境学会年会講演集, 37, p.189, 2003
- 3) Machdar I., Sekiguchi Y., Sumino H., Ohashi A. and Harada H., Combination of a UASB reactor and a curtain type DHS (downflow hanging sponge) reactor as a cost-effective sewage treatment system for developing countries. Water Science and Technology, 42(3-4), 83-88, 2000