# マイクロ波照射非熱的作用によるメタン発酵への影響

環境学部環境学科 戸苅 丈仁 上田 竜之介

#### 1.はじめに

地域で発生する有機性廃棄物からエネルギー回収が可能な処理方式としてメタン発酵が注目を集めている。メタン発酵は有機物が嫌気状態でメタン生成菌を主体とする微生物の作用によって分解され、メタンと二酸化炭素を主成分とするバイオガスを発生するプロセスである。従来は、発生する下水汚泥量の低減を目的として下水汚泥の処理過程に組み込まれてきたが、メタン発酵の過程で発生するメタンは可燃性であり、発電利用や熱利用が可能であるため、エネルギー回収の可能な汚泥処理法として再注目されている。

一方、廃棄物系バイオマスの中でも下水汚泥は、均質で安定的に発生することから有用なバイオマスとして注目を集めている。下水汚泥は年間2,341千DS-t発生し(2019年度)、そのリサイクル率は75%となっているが、下水汚泥中に含まれる有機分の有効利用率であるバイオマス利用率は35%であり、利用の余地は多く残されている<sup>1)</sup>。メタン発酵による有機物のバイオガス化、エネルギー化のさらなる普及により下水汚泥のバイオマス利用率を高めることができるが、下水汚泥、特に余剰汚泥やオキシデーションディッチ汚泥は水処理にて好気性分解過程を経た汚泥であり、生ゴミなどの廃棄物系バイオマスに比べて生分解性、バイオガス生成量が小さい。

これまでに、下水汚泥の生分解性向上を目的として、熱処理 $^{2}$ 、水熱処理 $^{3}$ 、オゾン処理 $^{4}$  および超音波処理 $^{5}$  などの様々な前処理が検討されてきたが、全国に普及する状況には至っていない。

本研究ではマイクロ波に着目した。マイクロ波は周波数が300MHz~300GHzの電磁波であり、家庭用電子レンジなどで加温熱源として広く利用されている。マイクロ波は極性分子などに作用し、通常の熱源による加温に比べ、内部加熱、急速加熱、精密な温度制御および選択加熱が可能という特徴を持っている。マイクロ波照射のメタン発酵への適用としては、これまでに、基質への照射によるバイオガス発生量の50%増加<sup>6)</sup> や、同じ制御温度での熱処理との比較でマイクロ波処理汚泥からのガス発生量の増加<sup>7)</sup>、および、96.6%~99.59%まで含水率を変化させてマイクロ波照射させた下水汚泥を用いた嫌気性消化実験では含水率が低い方がより効率的な処理が可能<sup>8)</sup>といった報告がある。

また、マイクロ波については、加熱熱源としての効果の他に、マイクロ波がもたらす高周波電界での、分子の振動、回転、衝突による作用(非熱的作用)が議論されている。この非熱的作用について、化学合成促進効果、酵素活性向上効果、植物有効育成、細胞熱凝固壊死過程の変化など様々な分野での報告がある<sup>9)</sup>が、いずれもその機構解明までには至っていない。著者らは、これまでに、メタン発酵の基質となる下水汚泥(余剰汚泥)へマイクロ波非熱的作用を前処理として用いることにより、バイオガス生成量が増加することを確認した<sup>10)</sup>。マイクロ波非熱的作用を水処理を含めた様々な分野で活用するためにも、その微生物や細胞に対する作用機構の解明が求められている。

本研究ではメタン発酵槽内消化汚泥へのマイクロ波照射による、メタン発酵反応への影響検討を

行った。槽内消化汚泥の大半はメタン発酵を担う嫌気性微生物で構成されており、嫌気性微生物へのマイクロ波照射によるメタン発酵の影響が明らかになれば、マイクロ波の加温効果と非熱的作用効果により、加温と同時に生分解性向上を可能とするMW循環加温システムなどの実用化につながる。

# 2.実験方法

### 2.1 マイクロ波照射

マイクロ波照射にはマグネトロン式マイクロ波照射機の $\mu$  Reactor-EX(四国計測工業、 $10W\sim 1000W$ )と、半導体式マイクロ波照射機のHPA-100W STD System(クロニクス、 $0W\sim 100W$ )を用いた。図1、図2にマイクロ波照射機の外観を示す。



図1 マグネトロン式マイクロ波照射機 (μReactor-EX、四国計測工業)



図2 半導体式マイクロ波照射機 (HPA-100W STD System、クロニクス)

### 2.2 実験に用いた下水汚泥

実験には鳥取市秋里終末下水処理場(水処理方式:標準活性汚泥法)からサンプリングした余剰汚泥、 消化汚泥を用いた。実験に用いた下水汚泥の外観を図3に示す。

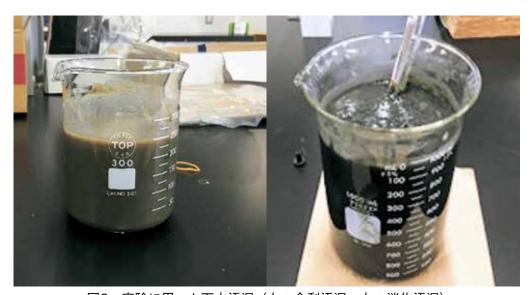


図3 実験に用いた下水汚泥(左:余剰汚泥、右:消化汚泥)

# 2.3 回分式実験

マイクロ波照射によるバイオガス生成ポテンシャルへの影響を検討するため、シリーズ1とシリーズ2の合計6回の回分式実験を実施した。回分式実験の実験条件を表1に示す。反応容器には容積100mLのプラスチックシリンジ(1-1、1-2、1-3)、250mLのフラスコ(1-4)および500mLのフラスコ(2-1、2-2)を用いた。バイオガス発生量の測定はガラスシリンジで引き抜いて測定(1-1、1-2、1-3)、圧力測定からの算出(1-4)およびガス流量計ミリガスカウンターによる測定(2-1、2-2)の3種類を用いた。シリーズ1ではマイクロ波を照射した消化汚泥を基質として反応容器に投入しバイオガス生成量を測定した。マイクロ波照射条件は照射強度50W~1000W、照射時間0.5min~15minとし、照射による下水汚泥1gあたりの投入エネルギーを変化させ、マイクロ波照射後の下水汚泥を用いて回分式実験でバイオガス生成ポテンシャルへの影響を調査した。シリーズ2では基質として初沈汚泥を投入した反応器全体をマイクロ波照射により加温し、その後通常加温(湯煎による加温)に戻してバイオガス生成量を測定した。比較のため通常加温のみで加温した系でもバイオガス生成量の測定を行った。100mLシリンジでのバイオガス生成の様子を図4に、および実験2-1でのマイクロ波照射による加温の様子を図5に示す。

実験種類		基質	温度	反応器	ガス量測定	基質投入量	消化汚泥量	照射条件	
Series 1	1-1	MW照射消化汚泥	55°C	100mLシリンジ	ガラスシリンジ	10	30	570∼1780 J/g-wet	
	1-2	MW照射消化汚泥	55°C	100mLシリンジ	ガラスシリンジ	10	30	178~633 J/g-wet	
	1-3	MW照射消化汚泥	37°C	100mLシリンジ	ガラスシリンジ	10	30	290~900 J/g-wet	
	1-4	MW照射消化汚泥	37°C	250mLフラスコ	圧力	10	50	90 J/g-wet	
Series 2	2-1	初沈汚泥	55°C	500mLフラスコ	流量計	25	450	開始後52hをMW加温(上限100W, 55℃維持)	
	2-2	初沈汚泥	55°C	500mLフラスコ	流量計	50	500	開始後113hをMW加温(上限100W, 55°C維持)	

表1 回分式実験の実験条件



図4 バイオガス生成の様子



図5 マイクロ波による加温の様子

# 2.4 連続式実験

マイクロ波照射汚泥を用いたメタン発酵における、長期間の連続投入による影響を確認するため、 375日間のメタン発酵連続式実験を実施した。種汚泥として用いた消化汚泥および基質として用いた 余剰汚泥は鳥取市秋里終末下水処理場からサンプリングしたものを用いた。

実験には有効容積2Lの連続式反応器を2槽用い、槽内汚泥へのマイクロ波照射を行わない未照射系と平日1日1回200gの槽内消化汚泥を引抜き、MWを照射後に(期間1:50 W 6 min、期間2:100W 3min)、槽内に戻す処理を行ったMW照射系の2系列での実験を実施した。HRTは50日とした。図6に連続式反応器を示す。

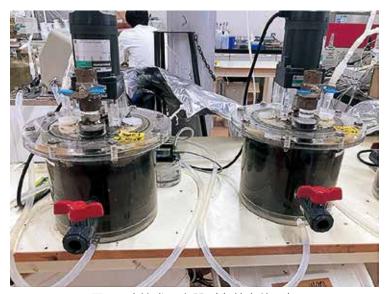


図6 連続式反応器(有効容積2L)

#### 3.結果と考察

#### 3.1 回分式実験

回分式実験シリーズ1の結果を図1に、回分式実験シリーズ2の結果を表2に示す。シリーズ1では、様々な照射条件で実施した4回の実験の結果から、マイクロ波照射後の汚泥到達温度、マイクロ波照射による投入エネルギー、および平均照射強度がそれぞれ大きくなるとバイオガス生成量の増加が大きくなるケースが確認された。しかし、一方で投入エネルギー 500J/g-Wet以下、到達温度50℃以下、照射強度50Wといった低温、低投入エネルギー条件においても一定のバイオガス生成量の増加が確認される結果となった。また、マイクロ波照射により溶解性CODの増加がみられたが、バイオガス生成量との相関は確認できなかった。マイクロ波照射によるバイオガス生成量の増加は、消化汚泥中に残存する未分解の基質への影響、消化汚泥の一部再基質化、などによる可能性が考えられる。シリーズ2では、マイクロ波照射による加温中はバイオガス発生量が顕著に減少した。マイクロ波照射によって、メタン発酵を担う嫌気性微生物の活動に何らかの影響があり、バイオガス生成量の大きな低下が見られたと考えられる。実験開始から113hのマイクロ波加温を行い、その後通常加温に戻した実験2-2では、最終的なバイオガス生成量が通常加温に比べて0.54倍であったが、実験開始から52hのマイクロ波加温を行った実験2-1では1.30倍となった。マイクロ波照射環境下にある時間の違いによって、最終的な

バイオガス生成量に差が生じた。

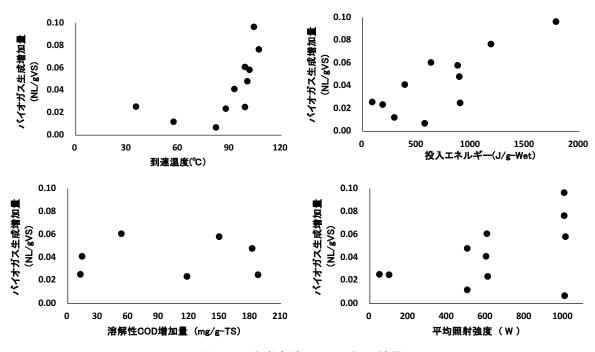


図7 回分式実験シリーズ1の結果

MW照射 通常加温に対する 通常加温に対する 通常加温に対する 温度 加温時間 制御方法 バイオガス生成量の比 バイオガス生成量の比 バイオガス生成増加量 (°C) (MW照射中) (最終) (NL/gVS) (h) 55℃保温 52 1.30 2-1 55 0.06 0.15 100W以下 55℃保温 2-2 55 113 0.32 0.54 -0.35100W以下

表2 回分式実験2の結果

#### 3.2 連続式実験

連続式実験の結果を表3に示す。槽内消化汚泥200gに対し、平日毎日50W6min(90J/g-Wet)の条件でMW照射を行った期間1では、投入VS1gあたりのバイオガス生成量が0.33NL/g-VS(未照射系)から0.37NL/g-VS(MW照射系)となり、未照射系に比べてMW照射系では12%の増加が確認された。一方、100W3min(90J/g-Wet)の照射を行った期間2では、未照射系とMW照射系の間にはバイオガス生成量に大きな差は見られなかった。期間1の条照射件でも期間2の照射条件でも投入エネルギーは同等であったが、バイオガス生成量の増加効果に違いが生じた。両系列ともアンモニア性窒素や揮発性有機酸の大きな蓄積は確認されず、pH、生成バイオガス中のメタン濃度ともに大きな違いはなかった。いずれの系も順調にメタン発酵反応が進行した。

表3 連続式実験の結果

	期間 I (5	0W6min)	期間 II (100W3min)	
 条件	未照射	MW照射	未照射	MW照射
pН	7. 6	7. 7	7. 6	7. 6
バイオガス発生量(NL/g-VS)	0. 33	0. 37	0. 35	0. 35
メタン濃度(%)	63	64	65	65
VS除去率(%)	54	56	54	55
平均アンモニア性窒素濃度(g/L)	2. 3	2. 0	2. 7	2. 6
平均揮発性有機酸濃度(g/L)	0. 0	0. 0	0. 2	0. 0

## 4.結論

回分式実験の結果より、マイクロ波照射後の到達温度が40℃以下であっても、バイオガス生成量が増加した。非熱的作用による可能性が考えられる結果となった。また、MW照射中はバイオガス生成が抑制され、菌体活動に影響があることを確認した。連続式実験の結果から、槽容量の1/10の消化汚泥に毎日マイクロ波照射を行っても阻害等は生じず、マイクロ波の照射条件によってはバイオガス生成量の増加が確認された。これらの結果より、到達温度40℃以下での低エネルギー照射を一部の槽内汚泥に行うことで、加温と生分解性向上を同時に可能とするシステムの可能性が示された。

## 5.謝辞

本研究の実施にあたり、鳥取市環境下水道部下水道管理室および鳥取市環境事業公社の皆様には実験試料の提供等において多大なるご理解とご協力を賜りました。また、本研究の一部は公立鳥取環境大学特別研究費により実施いたしました。ここに記して謝意を表します。

### 参考文献

- 1) 国土交通省:国土交通省水管理·国土保全局下水道HP
- 2) Val del Rio, A., Morales, N., Isanta, E., Mosquera-Corral, V., Campos, V, J., Steyer, V., Carrere, H. (2011) Thermal pre-treatment of aerobic granular sludge: impact on anaerobic biodegradability, Water Res. 45, 6011-6020
- 3) Qiao, W., Yan, X., Ye, J., Sun, Y., Wang, W., Zhang, Z. (2011) Evaluation of biogas production from different biomass wastes with/without hydrothermal pretreatment, Renewable Energy 36, 3313-3318
- 4) Weemaes, M., Grootaerd, H., simoens, F., Verstraete, W. (2000) Anaerobic digestion of ozonized biosolids, Water Res. 34, 2330-2336
- 5) Bougrier, C., Albasi, C., Delgenes, J.P., Carrere, H (2005) Effect of ultrasonic, thermal and ozone pretreatments on waste activated sludge solubilisation and anaerobic biodegradability. Chemical Engineering and Processing 45, 711-718
- 6) Appels, L., Houtmeyers, S., Degreve, J., Impe, J.V., Dewil, R. (2013) Influence of microwave pretreatment on sludge solubilization and pilot scale semi-continuous anaerobic digestion, Bioresource Technology

# 128, 598-603

- 7) Eskicioglu, C., Terzian, N., Kennedy, K.J., Droste, R.L., Hamoda, M. (2007), Athermal microwave effects for enhancing digestibility of waste activated sludge, Water Res. 41, 2457-2466
- 8) Tang, B., Yu, L., Huang, S., Luo, J., Zhuo, Y. (2010), Energy efficiency of pre-treting excess sewage sludge with microwave irradiation, Bioresource Technology 101, 5092-5097
- 9) 堀越智、NTS、生物・生体・医療のためのマイクロ波利用、2020
- 10) Taketo Togari, Ryoko Yamamoto-Ikemoto, Hiroshi Ono, Kengo Takashima, Ryo Honda, Kojiro Tanaka(2016), Effects of microwave pretreatment of dewatered sludge from an oxidation-ditch process on the biogas yield in mesophilic anaerobic digestion, Journal of Water and Environment Technology Vol.14(No.3) 158-165