

国立環境研究所研究プロジェクト報告 第125号  
NIES Research Project Report, No.125

SR-125-2017

# 適切排水処理システムの実用的な展開に関する研究 (所内公募型提案研究)

Study on practical deployment of an appropriate wastewater treatment system

平成25～27年度  
FY2013～2015

NIES



国立研究開発法人 国立環境研究所  
NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES  
<http://www.nies.go.jp/>



国立環境研究所研究プロジェクト報告 第125号

NIES Research Project Report, No.125

SR-125-2017

# 適切排水処理システムの実用的な展開に関する研究 (所内公募型提案研究)

Study on practical deployment of an appropriate wastewater treatment system

平成25～27年度  
FY2013～2015

所内公募型提案研究「適切排水処理システムの実用的な展開に関する研究」  
(期間：平成 25 ～ 27 年度)

課題代表者：珠坪一晃

執 筆 者：珠坪一晃、小野寺崇

編 者：珠坪一晃

## 序

本報告書は、平成 25 ～ 27 年度の 3 年間にわたって実施した所内公募型提案研究「適切排水処理システムの実用的な展開に関する研究」（課題代表者：珠坪一晃）の研究成果をとりまとめたものです。現在、先進国・途上国を問わず人間活動の拡大に伴い、有機性排水が環境中に多量に排出されています。国内や先進国においては、水環境保全のため、これらの排水には活性汚泥法などの好気性処理が施されています。しかし、好気性処理では排水に酸素を供給するための電力消費が大きく、多量の余剰汚泥（産業廃棄物）が発生します。一方、水環境汚染が深刻な開発途上国では、排水処理に関わるエネルギー（コスト）を確保できない等の社会経済的な理由で技術普及が妨げられています。また、気候が温暖な東南アジア地域には資源作物とその加工品（砂糖、パーム油、バイオエタノール等）の生産が集中しており、製造・加工工程からは、有機物濃度の高い廃液が多量に排出されています。これらの廃液は安定化池などにより処理されていますが、処理性能が低いこと水環境汚染が深刻化し、さらに有機物の嫌気分解過程で生じる温室効果ガスであるメタンの大量放出の要因となっています。

このような背景を踏まえ、国立環境研究所では省エネルギー型の嫌気性排水処理技術であるメタン発酵の適用範囲拡大に関する研究を所内外の競争的資金により実施し、基礎技術の開発を行ってきました。本研究では、これらの技術の実用的な展開を図るために、民間企業、海外の研究機関との連携による性能実証評価を通じた技術の最適化や実用化上の問題点の抽出を行いました。1. 低濃度排水の無加温メタン発酵処理技術については、実産業排水を用いた性能実証処理試験による技術実現性の評価、また同技術の適用排水種の拡大を目指し、化学物質を含有する電子産業排水への適用性評価を実施しました。2. 糖蜜系バイオエタノール製造廃液処理システムの最適化については、技術展開を見据え、メタン発酵処理の安定化に関わる検討、適切な前処理技術の検討、処理水の循環利用に関する検討を行うことを目標としました。

その成果として、1. 本研究で開発を行ったグラニュール汚泥床は実産業排水（飲料製造排水）の無加温メタン発酵処理においても、十分に高い排水処理性能（処理水質、メタン回収率）を安定的に発揮できることが明らかになり、同技術の実現化の可能性が強く示唆されました。また、有機化学物質（2-propanol）を含む電子産業排水への技術展開の可能性が示されました。2. バイオエタノール製造廃液と製糖排水の混合供給、酸生成・硫酸塩還元槽（SR）とメタン生成槽（USSB）との組み合わせによる二槽発酵により、バイオエタノール製造廃液のメタン発酵処理を安定化できることが明らかになりました。また、処理水の利用法としてサトウキビの灌漑用水としての効果を確認し、土壌からの温室効果ガス放出への影響が低いことを確認しました。

今後、本研究の成果を有機性排水処理の省エネルギー化とそれに伴う温室効果ガスの削減、開発途上国における排水処理技術の普及などの施策に結びつけ、水環境および地球環境の保全に役立てていきたいと考えています。

本研究を推進する上で、研究所内外の多くの方々にご協力とご助言をいただきました。ここに深く感謝の意を表します。

平成 29 年 12 月

国立研究開発法人 国立環境研究所

理事長 渡 辺 知 保



# 目 次

1	研究の概要	1
1.1	研究の目的	1
1.2	研究の構成	1
2	研究の成果	4
2.1	無加温メタン発酵処理技術の性能実証と適用性評価	4
2.1.1	はじめに	4
2.1.2	実験方法	4
2.1.3	実産業排水を用いた無加温メタン発酵処理技術の性能実証	8
2.1.4	有機化学物質を含有する電子産業排水への無加温メタン発酵処理技術の適用性評価	12
2.1.5	まとめ	15
2.2	糖蜜系バイオ燃料製造廃液処理システムの最適化	17
2.2.1	はじめに	17
2.2.2	実験方法	18
2.2.3	バイオエタノール製造廃液と製糖排水の混合処理特性の評価	22
2.2.4	電気分解によるバイオエタノール製造廃液の前処理法の検討	24
2.2.5	処理水の農地還元についての効果と温室効果ガスの発生などの環境影響評価	25
2.2.6	糖蜜系バイオエタノール製造工場におけるメタン発酵処理設備の現状調査	27
2.2.7	まとめ	30
[資 料]		
1	研究の組織と研究課題の構成	35
1.1	研究の組織	35
1.2	研究課題と担当者	35
2	研究成果発表一覧	36
2.1	誌上発表	36
2.2	口頭発表	39
2.3	特許出願	42





# 1 研究の概要

## 1.1 研究の目的

我々の日常生活や産業活動の結果、有機物を含む排水、いわゆる“有機性排水”が多量に排出されている。例えば平成16年度における水使用量（≒有機性排水の排出量）は、生活用水162億m<sup>3</sup>/年、工業用水121億m<sup>3</sup>/年（国土交通省 土地・水資源局 水資源部資料）と莫大である。国内や先進国においては、水環境保全のため、有機性排水は工場あるいは下水処理場において、好気性微生物処理（活性汚泥法など）を施されている。好気性処理では良好な処理水質が確保できるが、排水に空気（酸素）を供給するための曝気電力消費は莫大（例えば都市下水処理では、国内総電力消費の0.6～0.7%の電力を消費）であり、また有機性排水の好気性処理の結果、多量の余剰汚泥（＝産業廃棄物）が発生している。それ故、既存の排水処理システムの運転維持の結果、多量の化石燃料由来CO<sub>2</sub>（概算で約800～1,500万tCO<sub>2</sub>/年）が排出されており、水処理に伴うエネルギー消費の削減は急務である。

嫌気性排水処理（メタン発酵）は、酸素の供給を必要としないメタン生成細菌などの嫌気性微生物を利用し、排水に含まれる有機物の分解とメタンへの転換を行う技術である。同技術は、曝気電力のゼロ化による省エネルギー、余剰汚泥の発生量が少ない、メタンエネルギー回収可能等の優れた特長から再注目されてきており、中・高有機物濃度（2～10gCOD/L）の産業排水処理への適用についての研究と技術の実用化が進行している。しかしながら、常温（20℃前後）で排出される比較的低有機物濃度の排水や、温室効果ガスの大量発生の原因となっている高有機物濃度の排水（例えば、下述の資源作物の加工に伴い排出される廃液）に適用可能な技術は確立しておらず、基礎技術開発を行う必要がある。

一方、開発途上国では、排水処理システムの普及が遅れており、不適切な排水処理あるいは未処理排水の排出の結果、深刻な水環境汚染が生じている。加えて、東南アジア地域の開発途上国では、温暖な気候と人件費が低廉であることなどから、資源作物（サトウキビ、ヘベア、アブラヤシ）の栽培やその加工製品（砂糖、バイオエタノール、天然ゴム、パーム油）の製造が活発に行われており、世界生産量の大部分を占めている。資源作物の加工工程からは、高有機物濃度の排水が多量に排出されており（例えば、糖蜜を原料としたバイオエタノールの製造工程からは回収されるエタノールの約10倍量の廃液が排出）、ラグーン（開放型の嫌気性池）による不適切処理の結果、メタン等の温室効果ガスの大量排出の要因となっている。

このような背景から、現在まで、省・創エネルギー型の排水処理技術であるメタン発酵の適用範囲拡大に関する研究を所内外の競争的資金（NEDO 産業技術研究助成、所内特別研究、民間共同研究など）により実施し、主に基礎技術の開発を行ってきたが、これらの技術システムの実用的な展開を図るためには、民間企業や海外の研究機関との連携による実証研究、技術の最適化・適地化を継続的に行う必要がある。

そこで本研究では、民間企業、海外の研究機関との連携による性能実証評価を通じた技術システムの最適化を行い、適切な有機性排水処理技術を実用的な展開に繋げるための基礎知見を収集する。具体的には、1. 低濃度排水の無加温メタン発酵処理技術については、実産業排水を用いた性能実証処理試験による技術実現性の評価、同技術の適用排水種の拡大を目指し、化学物質を含有する電子産業排水への適用性評価を実施した。2. 糖蜜系バイオエタノール製造廃液処理システムの最適化については、今後の技術展開を見据え、メタン発酵処理の安定化（他の排水との混合処理）に関わる検討、適切な前処理技術の検討、処理水の循環利用に関する検討、近年導入が進みつつある実規模メタン発酵処理設備の現状調査を行うことを目標とした。

## 1.2 研究の構成

本研究課題は、産業活動や人間活動の結果多量に排出され、嫌気性処理技術の適用がなされていない、低有機物濃度排水への技術展開を目指した「無加温メタン発酵処理技術の性能実証と適用性評価（サブテーマ1）」と温暖地域の開発途上国において水質汚染と多量の温室効果ガスの排出の要因となっている資源作物由来の廃液処理を対象とした「糖

## 適切排水処理システムの実用的な展開に関する研究

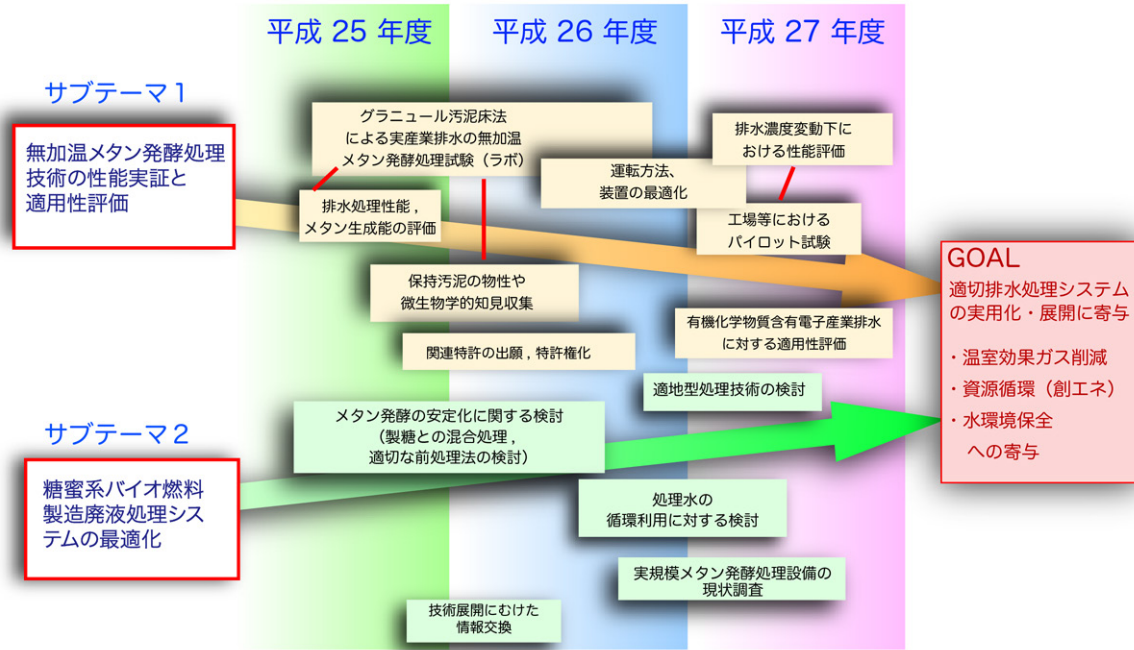


図1 研究のフローチャート

「糖蜜系バイオ燃料製造廃液処理システムの最適化（サブテーマ2）」によって構成される。図1には、サブテーマごとの実施内容を表す研究フローチャートを示した。以下に各サブテーマの具体的な実施内容を示す。

### サブテーマ1：無加温メタン発酵処理技術の性能実証と適用性評価

産業排水の無加温メタン発酵処理技術の実現化に向け、実排水の実証処理試験を実施し排水処理性能の評価を行うと共に技術の適用範囲拡大に関する検討を行う。

#### (1) 実産業排水を用いた無加温メタン発酵処理技術の性能実証

基礎技術の開発を行ってきたグラニュール汚泥床法（生物膜を利用するメタン発酵処理技術）による実産業排水（飲料製造排水）の無加温条件下（20℃未満）での処理試験を実施し、その排水処理性能（処理水質、メタン回収特性）の評価に基づいた技術の実用可能性についての検証を行う。

#### (2) 有機化学物質を含有する電子産業排水への無加温メタン発酵処理技術の適用性評価

無加温メタン発酵処理技術の適用範囲拡大を目指し、近年、排出量が増大している有機化学物質（2-propanol など）を含有する電子産業排水への技術適用性評価（分解性やメタン発酵特性、保持汚泥の特性評価）をラボスケール試験により行う。

### サブテーマ2：糖蜜系バイオ燃料製造廃液処理システムの最適化

水環境汚染とメタンの大気放散の原因となっている糖蜜系バイオ燃料製造廃液の開発途上国における適切処理手法を提示するために、処理システムの安定化、最適化に関する検討を行う。本研究は、タイのコンケン大学（Khon Kaen University）およびミットボンサトウキビ研究センター（株）（MitrPhol Sugarcane Research Center, Co., Ltd.）との連携により実施した。

#### (1) メタン発酵の安定化に関する検討

糖蜜系バイオ燃料製造廃液には、高濃度の有機物に加え、硫酸塩、カリウムなどのメタン生成細菌に対する阻害物質が高濃度に含まれており、処理が不安定化する要因となっている。そこで、処理の安定化を目指し、糖蜜系バイオ燃料製造廃液と製糖排水（比較的有機物濃度、塩濃度が低い）との混合処理特性の評価を行う。また電気分解を用いた前処

理法（有機物分解、無機物除去）についても検討を行った。

(2) 処理水の循環利用に対する検討

メタン発酵処理後の処理水には、難分解性の有機物、窒素、リンなどが残存している。そこで、処理水の農地還元についての効果および温室効果ガスの発生などの環境影響評価をサトウキビ栽培試験により明らかにした。

(3) 実規模メタン発酵処理設備の現状調査

近年、タイ国エネルギー省のバイオガス設備導入に関する補助事業などにより、糖蜜系バイオ燃料（バイオエタノール）製造工場にメタン発酵処理設備（カバードラグーンなど）が導入されてきている。これらの設備についての基本的な性能を現地調査により明らかにした。

## 2 研究の成果

### 2.1 無加温メタン発酵処理技術の性能実証と適用性評価

#### 2.1.1 はじめに

メタン発酵排水処理技術（嫌気性処理技術）による有機性排水の処理は、好気性処理技術と比較して曝気（排水への酸素供給）に関わる電力のゼロ化による省エネルギー、余剰汚泥の発生量が少ない、メタンエネルギー回収可能等の優れた特長から再注目されてきており、中・高有機物濃度（2～10 gCOD/L）の産業排水処理への適用についての研究と技術の実用化が進行している。有機物の嫌気分解反応を担うメタン生成細菌は、その大部分が中温度域（35～37℃）に至適温度を持つため、一般的には排水の温度を35℃前後に保つ必要がある。また、増殖速度が遅い（至適温度における菌体倍加時間3～4日）ことから、安定的なメタン発酵処理を行うためには、装置内に菌体（汚泥）を長時間保持することが必要である。現在、産業排水処理分野での技術普及が進行している上向流嫌気性汚泥床法（Upflow Anaerobic Sludge Blanket: UASB）は、35℃程度にまで加温した排水を上向流で装置内に通水させ、嫌気性細菌を適度な排水の流動条件の下で直径数ミリの顆粒状の膜（グラニュール汚泥）に生長させ、菌体を装置内に高濃度かつ長時間維持することで排水に含まれる有機物の分解除去とメタンへの転換を効率的に行う技術である。

しかしながら、有機性排水の大部分を占める低有機物濃度の食品製造排水や都市下水などに現状技術を適用することは、排水処理装置内への菌体高密度保持（生物膜の形成）等の観点から困難であった。また、熱帯を除く大部分の地域の気候条件では、処理を担う中温域（35～37℃）に至適温度をもつメタン生成細菌に対して排水の温度が低いため（10～25℃）処理性能を維持するのが困難である。さらに低濃度排水処理では排水を35℃付近にまで加熱するだけのメタンガスが得られないため、処理技術として選択されないのがこれまでの常識とされてきた。低水温、低有機物濃度という条件下では、有機物の嫌気分解を担うメタン生成細菌が不活性化してしまい、また菌体の倍加時間も至適条件と比較して長くなる。さらに、低温条件下では水の粘性が高まり排水（基質）と微生物との接触性が低下する、生成したバイオガスが生物膜（グラニュール汚泥）から分離しにくくなる（＝菌体流失の要因）などの問題がある。そのため、メタン生成細菌等の増殖や活性維持に不利な条件下では、如何にして十分な量の菌体を長時間排水装置内に保持できるかが安定した排水処理性能発揮の鍵となる。

このような背景から、排水処理に関わるエネルギー消費の大幅削減（既存好気性処理に対して6～7割削減）を目指し、今まで嫌気性処理が適用されてこなかった低有機物濃度排水の無加温処理に対応可能なメタン発酵処理技術の開発を所内特別研究や外部競争的資金プロジェクトにおいて実施してきた。その結果、増殖の遅いメタン生成細菌などが装置外に流失せず集積化できる“場”を与えるため、グラニュール汚泥を植種源として使用し、処理水の循環を適切に行って汚泥床（グラニュール汚泥が充填されている層を示す、図2、⑤参照）における排水の上昇線流速を高く維持することで、排水と微生物との接触性およびグラニュール汚泥からのガス分離性を向上させ、かつ微生物の活性を維持するための有機物濃度維持を実現するグラニュール汚泥床法（Anaerobic Granular Sludge Bed）を開発してきた<sup>1)</sup>。

本研究では、無加温メタン発酵処理技術（グラニュール汚泥床法）の実現化に向け、実産業排水の実証処理試験を通して排水処理性能の評価を行うとともに、同技術の性能発揮に必要な保持汚泥性状（グラニュール汚泥の粒子径、汚泥滞留時間、メタン生成活性など）の評価を実施した。また、無加温メタン発酵処理技術の適用範囲拡大を目指し、近年、排出量が増大している化学物質（イソプロパノール、以下、2-propanolと示す）を含有する電子産業排水への技術適用性評価（分解性やメタン発酵特性、保持汚泥の特性評価）をラボスケール試験により行った。

#### 2.1.2 実験方法

##### (1) 実産業排水を用いた無加温メタン発酵処理技術の性能実証

低濃度有機性排水の連続処理試験には、独自に設計・作製したグラニュール汚泥床リアクターを用いた。図2には、実産業排水を用いた無加温メタン発酵処理技術の性能実証において使用した装置の概要を示す。実験装置は酸生成槽



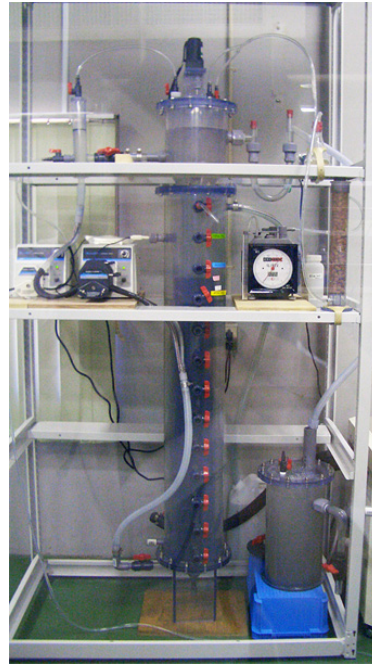
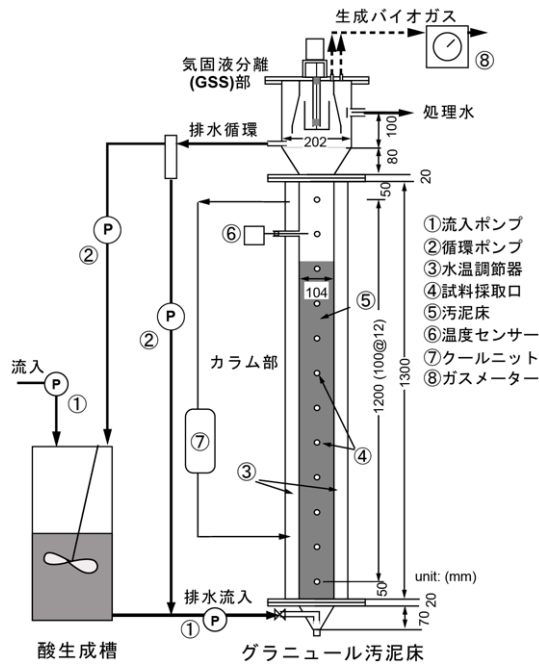


図2 実排水のメタン発酵処理試験に用いたグラニュール汚泥床の概要

(有効容積：6.0 L) とメタン発酵を目的としたグラニュール汚泥床法 (有効容積：11.8 L、Gas Solid Separator, GSS 部：5.7 L) から構成される。グラニュール汚泥床法は底部の流入部分に整流のために直径 15 mm のガラスビーズを充填し、サンプリングポート (下部から port 1～13) を設けた。また、反応槽のカラム部分はウォータージャケットにより 17～19℃に制御した。酸生成槽は固形分が沈殿しないように緩やかに攪拌した。本装置では処理水の一部を酸生成槽に返送し循環させることで、グラニュール汚泥床法の汚泥床部での排水の上昇線速度 (LV) を制御している。これにより循環率 (反応槽流入水量 / 排水量) を 1.2 に制御した。この条件ではグラニュール汚泥床法の LV が 0.2～1.1 m/h 程度と不十分であるため、汚泥床の攪拌が不足するため汚泥と排水の接触効率の向上と汚泥とガスの分離をするために、1 時間毎に 10 分間内部循環を行った (間欠処理水循環、特許権 第 4982789 号)。このときのグラニュール汚泥床法における LV は 5.0 m/h である。

植種汚泥として、実排水処理プラントで中温運転 (平均 35℃) されていたメタン発酵槽より採取したグラニュール汚泥を用いた。供試排水は飲料製造工場の最初沈殿処理後の排水を週 1 回入手し、T-COD (Total Chemical Oxygen Demand、全 COD) で約 1,000 mg/L となるように水道水で希釈し、重炭酸ナトリウムを 0.5 g/g-COD、硫化ナトリウム九水和物を 14 mg/L になるように添加した。重炭酸ナトリウムは pH 調整 (アルカリ度供給)、硫化ナトリウム九水和物は ORP の低減を目的として添加した。有機物容積負荷は排水の供給量を増加させることにより段階的に 15 kgCOD/m<sup>3</sup>/day まで上昇させた。

経時的に排水、反応槽流入水、処理水の COD 濃度、VFA (揮発性脂肪酸) 濃度、TSS 濃度、硫酸塩濃度の分析を行った。また、バイオガス生成量、バイオガス組成の分析を行った。S-COD (Soluble Chemical Oxygen Demand、溶解性 COD) 濃度、VFA 濃度、硫酸塩濃度測定では予め 0.45 μm のフィルター 25CS045AN (ADVANTEC) を用いて、ろ過を行った。COD 及び、硫酸塩濃度は多項目迅速水質分析計 DR-3900 (HACH) を用いて測定した。なお、本論文では COD はすべて重クロム酸法による COD を示す。VFA 分析は FID を備えた GC-2014 (SHIMADZU)、ガス分析は TCD を備えた GC-8A (SHIMADZU) で行った。排水中に溶存しているメタンは、20℃の水へのメタンの溶解度 0.033 mL/mL (標準状態のメタンに換算) を用いて算出した。TSS、VSS 濃度の測定には 0.4 μm のガラス繊維ろ紙 GB-140 (ADVANTEC) を用いた。

低温条件下で効率的に嫌気性排水処理を行うためには汚泥床における基質濃度をメタン生成古細菌の基質親和性を考慮して適切に維持し、汚泥の活性化を促す必要がある<sup>1)</sup>。そのためグラニュール汚泥床の高さ方向での基質濃度分布を

調べるため、反応槽の6箇所（4箇所はグラニューール充填層の位置、2箇所はグラニューール充填層より高い位置）のサンプリングポートと流入口から排水サンプルを採取し、S-COD濃度、VFA濃度を測定した。基質濃度分布の測定は循環率1.2（LV1.1 m/hr）、及び循環率5.1（LV4.9 m/hr）の条件下で実施し比較した。

保持汚泥のグラニューールサンプル（port 2、高さ161 mmより採取）について、SVI（Sludge Volume Index、汚泥沈降指標）、粒径を測定した。粒径はサンプルをシャーレに載せて写真撮影し、画像解析ソフトを用いて各サンプル500個以上のグラニューールについて測定した。粒径の測定結果はグラニューールの個数基準（全個数100%）と体積基準（全グラニューール体積100%）の相対比率で示した。汚泥濃度（MLSS濃度、MLVSS濃度）はグラニューール充填層の4箇所からのサンプルを測定し、平均値を求めた。

低温での安定した排水処理を達成するためには十分量の汚泥を装置内に長時間保持する必要がある。すなわち、適度なSRT（Sludge Retention Time、汚泥滞留時間）の維持が不可欠である。そのため連続実験の保持汚泥量の増減を調べ、Syutsuboら<sup>2)</sup>の方法に準拠し、SRTを算出した。連続運転期間におけるSRTを算定するためには、ある測定日における装置内（グラニューール汚泥床）の保持汚泥量を求める必要がある。そこで、1日当たりの汚泥増殖量、菌体の死滅による損失量、保持汚泥の流出量を算出するために、保持汚泥の増殖収率（ $Y_g$ ）、及び菌体死滅定数（ $kd$ ）を算定した。SRTは流入水中に固形物を含まない場合、系外に流出する汚泥量とグラニューール汚泥床の全保持汚泥量から算出できる（式（1））。供試排水の固形物濃度は、流入COD濃度に対して低く（26～118 mg/L）、排水貯留タンクの上澄みを供給する形（固形物は貯留槽で沈殿）であったため、ほぼ浮遊固形物質（ここではVolatile Suspended Solid, VSSとして示した）を含まない排水が供給された。

$$\text{SRT}(\text{day}) = \frac{\text{Total retained VSS (g - VSS)}}{\text{VSS washout (g - VSS / day)}} \quad (1)$$

保持汚泥のメタン生成能の把握とメタン生成古細菌の低温条件への馴養状態を評価するために、Syutsuboら<sup>2)</sup>の方法に準拠し、メタン生成活性を測定した。メタン生成活性試験は、植種汚泥、実験開始後40日目の汚泥、89日目の汚泥について行った。活性測定は20℃及び35℃の異なる温度条件下で行い、基質に酢酸（液相50 mL、初期濃度：2,000 mgCOD/L）、水素及び炭酸ガス（液相40 mL、 $\text{H}_2/\text{CO}_2$ :80/20 (v/v)、1.4 atm）、プロピオン酸（液相50 mL、初期濃度：1,000 mgCOD/L）を使用した。活性測定は各条件を2系列で行い、平均値を求めた。サンプルはport 2（高さ161 mm）の汚泥を使用し、25 mMリン酸バッファーで洗浄を行った後、嫌気条件下でホモジナイズした。最終濃度25 mMとなるように調整した無機塩類を含むリン酸バッファーをバイアル瓶に分注した後、窒素パージにより嫌気状態にして、MLSS 1,000～10,000 mg/L程度になるように汚泥を分注した。分注した汚泥のMLSS濃度、MLVSS濃度を測定し、初期汚泥濃度を算出した。各実験温度で数時間往復振盪後、各基質を投入し、実験を開始した。バイアルの往復振盪はウォーターバスシェーカーにより120 rpmで行った。実験開始後、約1～2時間毎にバイアルからのメタン生成量を3～6回測定し、初期汚泥濃度から単位汚泥量当たりのメタン生成量を計算した。安定したメタンガス生成量が得られた3～4点から回帰直線を作成し、その傾きよりメタン生成活性を算出した。

## (2) 有機化学物質を含有する電子産業排水への無加温メタン発酵処理技術の適用性評価

情報化社会である現代では、ノートPC、スマートフォンなどの電子関連機器の生産量の増大が著しい。これらの電子関連機器の生産拠点は、アジア地域の新興国に移行しつつあり、2020年には、その生産量は30億台に到達すると見込まれる。

電子関連機器の生産では、半導体のフォトリソグラフィ（写真製版技術による微細パターン加工）工程や、エッチング工程から高濃度の有機化学物質を含む排水（廃液）が排出される。これらの排水の主成分として、2-propanol、水酸化テトラメチルアンモニウム（以下、TMAH）、モノエタノールアミン（以下、MEA）が知られており、現状は、他工程から排出される低濃度排水と混合した後、活性汚泥法（好気性処理）により処理されている<sup>3)</sup>（図3）。

しかしながら、排水の有機物濃度は比較的高く（1,300～5,300 mgCOD/L）、曝気処理にかかる多大な電力消費や余



図3 電子産業排水の排出状況と処理における問題点

剰汚泥の発生が大きな課題となっている。また、高リスクな有機化学物質を含む排水処理技術の開発は、途上国に生産拠点が移転されている現状を鑑みると重要な課題であると考えられる。以上のように、電子産業から排出される有機性排水の処理には多くの技術課題が残されており、省エネルギー型の排水処理技術であるメタン発酵の適用が期待されている。

そこで本研究では、生産工程（主に洗浄）での使用量が多い2-propanol含有排水のグラニューール汚泥床による低温条件（19℃）での処理性能評価と、保持汚泥の菌相構造解析を行い、2-propanolのメタン発酵特性を評価することを目的とした。化学物質を含有する電子産業排水への無加温メタン発酵処理技術の適用性評価については、有効容積2.0Lの小型のグラニューール汚泥床（ラボスケールの反応槽）を用いて行った。運転温度は19℃、流入排水のCOD濃度は1,000 mgCOD/Lとした。実験期間を通じて容積負荷は6 kgCOD/m<sup>3</sup>/day、水理的滞留時間（HRT）は4時間に制御した。なお処理水循環は行わず、UASB (Upflow Anaerobic Sludge Blanket) 法と同様の通水方式（ワンパス流入）での運転を行った。実験開始時は、スクロース、酢酸、プロピオン酸、酵母エキスを主成分とする排水（表1）を供給し、処理が安定した後に2-propanolを流入COD濃度の30%混合させ供給した。その後、2-propanolの混合比を流入COD濃度60%、90%と段階的に上昇させた。

連続処理試験による排水処理特性の評価と共に、保持汚泥の物性、メタン生成活性、菌相構造の解析を行った。なお水質分析や、保持汚泥の物性（SVI、粒径）、メタン生成活性の測定方法は、実産業排水を用いた無加温メタン発酵処理技術の性能実証の項において示した方法に準拠した。なお、基質のCOD濃度は酢酸が1,000 mgCOD/L、2-propanolが500 mgCOD/L（92日目、190日目）及び1,000 mgCOD/L（371日目）とした。

2-propanolの分解に関与する細菌を同定するために、Domain Archaea（古細菌）の16S rRNA遺伝子を標的としたクローン解析を行った。クローン解析用の汚泥試料はグラニューール汚泥床法の反応槽から運転開始後92日目（排水の2-propanol含量0%時）、190日目（60%時）、371日目（90%時）に採取し、Isoil beads beating kit（Nippon gene, Japan）

表1 連続排水処理試験における排水の有機物組成

排水の有機物組成	COD濃度 (mg/L)			
	2-propanol 0%	2-propanol 30%	2-propanol 60%	2-propanol 90%
2-propanol	0	300	600	900
スクロース	450	300	150	0
酢酸ナトリウム	225	150	75	0
プロピオン酸	225	150	75	0
酵母エキス	100	100	100	100
計	1,000	1,000	1,000	1,000



により DNA の抽出を行った。16S rDNA の PCR 増幅には、古細菌に特異的なプライマー A109f-m (5'-AM DgC TCA gTA ACA CgT-3') と ARC915R (5'-gTg CTC CCC CgC CAA TTC CT-3') および Order *Methanomicrobiales* に属するメタン生成古細菌に特異的なプライマー A109f-m と MG1200R-B (5'-TgT AgC CCg gATAATTC-3') を用いた。

増幅した rDNA 断片の単離には TOPO-TA cloning kit (Thermo Fisher Scientific Inc.) を用いた。単離した rDNA の塩基配列は 3130 genetic analyzer (Applied Biosystems Japan Ltd.) を用いて解析した。系統樹の作成には、ARB ソフトウェアを用いた。

また、2-propanol の嫌気分解経路を評価するために、クロロホルム (メタン生成細菌の特異的阻害剤) や水素ガス (Acetogenic 菌の特異的阻害剤) を用いた回分分解試験を行った。培地の組成や実験条件は、上記のメタン生成活性の測定方法に準拠した。

### 2.1.3 実産業排水を用いた無加温メタン発酵処理技術の性能実証

#### (1) 実排水の連続処理特性

実産業排水 (飲料製造排水) の連続処理実験におけるグラニューール汚泥床 (無加温メタン発酵処理技術) の運転条件を表 2 に、また容積負荷 [OLR] や HRT 及び排水処理性能 (水質)、メタン発酵性能の評価結果を図 4 に示した。

HRT を約 7 時間 (有機物容積負荷 3 ~ 3.4 kgCOD/m<sup>3</sup>/day) に設定して運転を開始し、その後は段階的な HRT の短縮により有機物負荷を上昇させた。なお、流入水の T-COD は約 1,000 mg/L であった。65 日目以降に有機物容積負荷 (Organic Loading Rate, OLR) は、15 kg-COD/m<sup>3</sup>/day (HRT 約 1.5 時間) に達した。この時の COD 除去率は 88 ~ 93% と高く維持され、また処理水の COD 濃度も 100 ~ 150 mgCOD/L と低く安定していた。このように、グラニューール汚泥床は低温度条件での実排水のメタン発酵処理においても高い有機物除去性能を発揮できることが明らかになった。

表 2 連続排水処理試験におけるグラニューール汚泥床の運転条件

経過日数 (days)	0~12	13~21	22~51	52~64	65~99
容積負荷 (kgCOD/m <sup>3</sup> /day)	2.1~3.2	4.6~7.0	4.2~13.0	11.3~15.1	12.9~16.8
HRT (hr)	8.2	3.9	2.7	2.1	1.6
LV (m/hr)	0.2	0.4	0.7	0.9	1.1

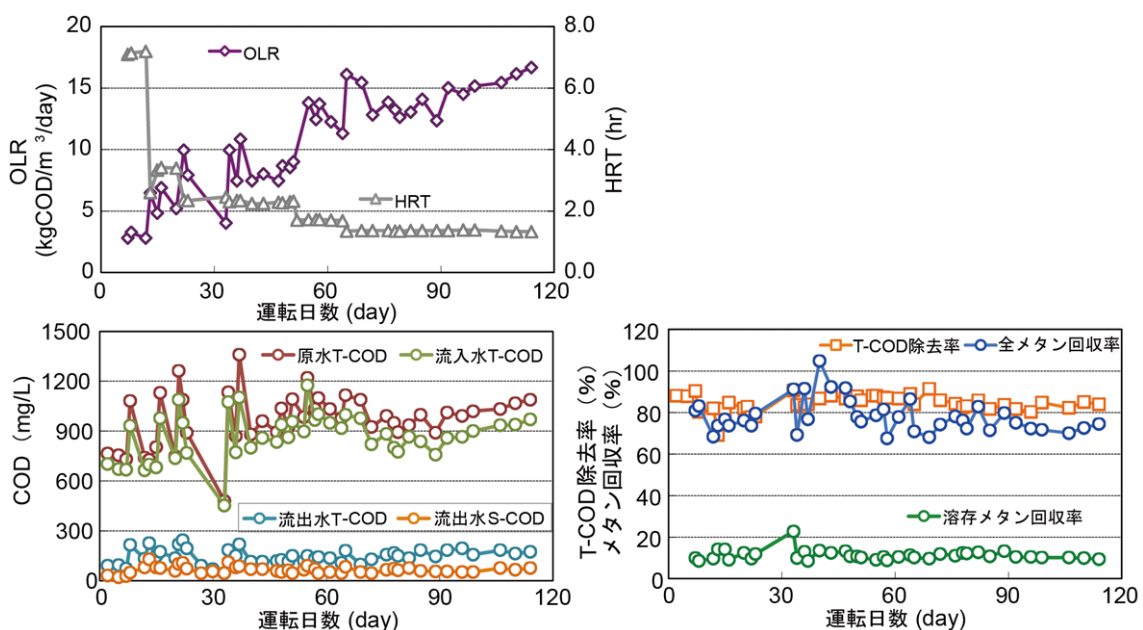


図 4 グラニューール汚泥床の排水処理性能 (容積負荷 [OLR]、HRT、COD 濃度、COD 除去率、メタン転換率)



連続排水処理試験におけるグラニューール汚泥床のメタン転換率、メタンガス転換率、溶存メタン転換率は下記の式(2)～(4)に従って算出した。

$$\text{メタン転換率 (\%)} = \text{メタンガス転換率 (\%)} + \text{溶存メタン転換率 (\%)} \quad (2)$$

$$\text{メタンガス転換率 (\%)} = \text{COD}(\text{CH}_4\text{gas}) / \Delta\text{COD} \times 100 \quad (3)$$

$$\text{溶存メタン転換率 (\%)} = \text{COD}(\text{CH}_4\text{sol}) / \Delta\text{COD} \times 100 \quad (4)$$

COD (CH<sub>4</sub>gas) は発生したメタンガスを COD 換算した値、COD (CH<sub>4</sub>sol) は排水中に溶存しているメタンを COD 換算した値、ΔCOD は除去された COD である。メタン転換率は 69～79% (平均 73%)、メタンガス転換率は 60～69% (平均 64%)、溶存メタン転換率は 8～10% (平均 9%) を示し、除去した有機物の効率的なメタン化 (メタンガスの生成) 及び回収が可能であった。また、処理水の平均 TSS 濃度は 77 mg/L、平均 VSS 濃度は 72 mg/L となった。平均 VFA 濃度は酢酸濃度 3 mg-COD/L、プロピオン酸濃度 13 mg-COD/L であり、高い有機物除去性能が得られた。排水の硫酸塩濃度は 0～22 mg-SO<sub>4</sub>/L に対して、処理水は 0～1 mg-SO<sub>4</sub>/L であり、ほぼ全量が硫酸塩還元反応により消費されていた。

循環率 1.2 と循環率 5.1 で運転した際の水質の比較を表 3 に、反応槽高さ方向での排水有機物濃度 (S-COD 濃度) 分布を図 5 に示した (反応槽高さ 0 mm の値は反応槽流入水の値を示す)。

表 3 異なる循環比条件下における水質の比較

循環比	LV (m/h)	反応槽流入水 S-COD (mg/L)	処理水 S-COD (mg/L)	処理水酢酸 (mgCOD/L)
1.2	1.1	668	60	3
5.1	4.9	215	51	47

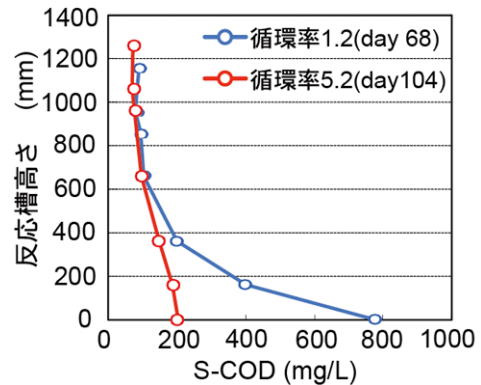


図 5 反応槽高さ方向の S-COD 濃度の変化

処理水の循環率を高くすることで、LV は 1.1 m/h から 4.9 m/h に上昇し、流入水の有機物濃度 (S-COD、溶解性 COD) 濃度は 668 mg/L から 215 mg/L と約 3 倍希釈されると共に、汚泥床部での有機物濃度勾配の低下が確認された。循環率 1.2 では流入有機物濃度が高く維持されるとともに、高さ 361 mm の位置まで S-COD 濃度が 200 mg/L 以上となった。

両者の比較において処理水中の S-COD 濃度は大きな変化は見られなかったものの、処理水の酢酸濃度は循環率 1.2 の場合の 3 mgCOD/L に比較し、循環率 5.1 の場合は 47 mgCOD/L と増加した。グラニューール汚泥床の有機物濃度が低レベルに維持されることにより、酢酸資化性メタン生成古細菌の不活性化が生じ、COD 除去性能の低下が起こることが報告されている<sup>4)</sup>。本実験系では、低循環率を維持する時間 (60 分) を高循環率時 (10 分) の 6 倍確保し、メタン生成細菌の不活性化が生じにくい条件を維持している。その結果、平均的に良好な水質を維持しつつ、かつ、高 LV 時に適切な物理的攪拌を与えることで、無加温メタン発酵処理において問題となる汚泥床からのバイオガスの分離とグラニューール汚泥の物理的な性状維持を実現している (図 6、7 参照)。

## (2) 保持汚泥の物性変化

グラニューール汚泥床における保持汚泥濃度 (MLSS 濃度)、及び沈降性 (汚泥沈降指標、SVI) の経日変化を図 6 に示した。実験開始直後に汚泥の流出に伴う MLSS 濃度減少が見られたが、その後、保持汚泥濃度は 23～25 gTSS/L で安定していた。SVI は実験期間を通じて、13～15 mL/gTSS を維持しており、グラニューール汚泥は、低濃度排水の無加温

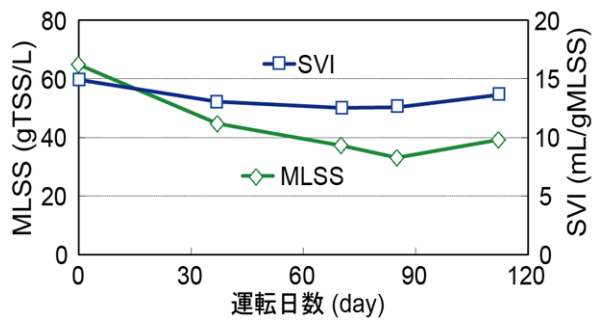


図6 MLSS 濃度及び SVI の経日変化

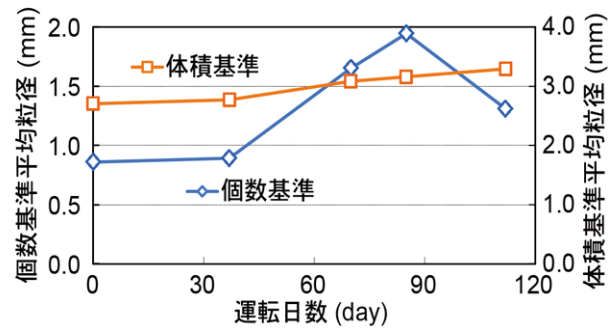


図7 平均粒径の経日変化 (個数基準、体積基準)

処理に関わらず、実験期間を通じて良好な沈降性を示した。保持汚泥濃度と有機物負荷より、69 日目以降の汚泥負荷は一般的な中温メタン発酵処理システムと同等の 0.63 kgCOD/kgTSS/day に達した。

グラニュール汚泥の粒径は 0 日目、37 日目 (容積負荷 4.2 ~ 13.0 kgCOD/m<sup>3</sup>/day)、85 日目 (容積負荷 12.9 ~ 16.8 kg-COD/m<sup>3</sup>/day) に測定した。個数基準の平均値 (平均粒径)、体積基準の平均値 (平均体積) の変化を図 7 に示した。個数基準の平均粒径は実験開始時には 0.86 mm であったが、その後、0.89 mm (37 日目)、1.95 mm (85 日目) に増加した。これは 1.5 mm 以下程度の小さい粒径の汚泥が LV 昇に伴って流出したと保持汚泥の粒径の増大したことが原因と考えられる。体積基準の平均粒径についても 2.70 mm (0 日目) から 2.77 mm (37 日目)、3.16 mm (85 日目) と徐々に増加していることが確認できた。また、85 日目では 4.5 mm 以上の肥大化したグラニュールが観察された。グラニュールの成長、肥大化と共に、グラニュール内部に空洞が生じ、ガスを内包することでグラニュールの浮上傾向が増大すること知られている。本実験の約 100 日間の目視による経過観察では浮上グラニュールの明らかな増加は見られなかったが、今後、長期間運転での確認は必要である。

### (3) 連続運転における汚泥滞留時間

グラニュール汚泥床における保持汚泥量の測定値 (実測値) と計算値、汚泥滞留時間 (Sludge Retention Time: SRT) の変化を図 8 に示した。

汚泥濃度プロファイルより求めた保持汚泥量の測定値と COD 除去量、流出 VSS の測定値から算出した保持汚泥量の計算値の比較から汚泥の増殖収率 ( $Y_g$ ) と死滅定数 ( $kd$ ) はそれぞれ  $Y_g=0.13$  (g-VSS/g-COD)、 $kd=0.04$  (1/day) となった。これらの値を用いて、各測定日の汚泥増殖量を計算し、保持汚泥量の経日変化 (計算値) を求めた。全保持汚泥量は実験開始後 0 ~ 21 日間 (容積負荷 2.1 ~ 7.0 kgCOD/m<sup>3</sup>/day、HRT 3.9 ~ 8.2 hr) は減少したが、22 ~ 51 日間 (容積負荷 4.2 ~ 13.0 kgCOD/m<sup>3</sup>/day、HRT 2.7 hr) は一定の汚泥量を維持した。この全保持汚泥量と流出 VSS 量から保持汚泥の SRT を求めた所、46 日目以降では増加傾向が確認でき、65 ~ 99 日間 (容積負荷 12.9 ~ 16.8 kgCOD/m<sup>3</sup>/day、HRT 1.6 hr) では平均 SRT 20 days の安定した値が維持された。グラニュール汚泥床の汚泥量と滞留時間を十分維持できたことで、

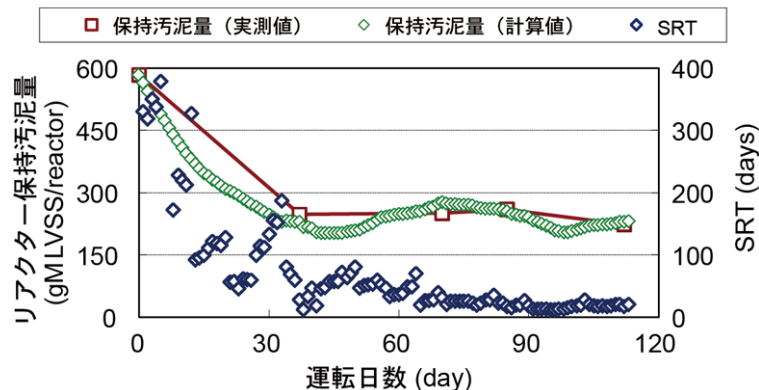


図8 グラニュール汚泥床における全保持汚泥量と SRT の経日変化

無加温条件においても汚泥の馴致（増殖の遅いメタン生成細菌の集積化）が進み、本研究での良好な排水処理性能の発揮につながったと考えられる。

#### (4) COD 物質収支

連続排水処理試験のデータより、容積負荷 15 kgCOD/m<sup>3</sup>/day 時の（実験装置全体における）COD 物質収支を算出した結果を表 4 に示した。なお、流出 COD は、硫化物を除去した試料の測定値を用いた。処理水とともに流出した VSS の COD 量については、T-COD と S-COD の差から算出した。流入 T-COD を 100%（169.3 gCOD/day）とした時の COD 量の内訳は、流出 S-COD 量 8.4%（14.2 gCOD/day）、流出 VSS として 8.7%（14.7 gCOD/day）、メタンガスとして 58.1%（98.3 gCOD/day）、溶存メタンとして 8.0%（13.5 gCOD/day）で合計は 83.2%（140.7 gCOD/day）であった。その他の 16.8% は実験誤差の他には保持汚泥増殖によるもの、酸生成槽における消費などが考えられる。

表 4 容積負荷 15 kgCOD/m<sup>3</sup>/day 時の COD 物質収支

項目	COD量(gCOD/day)	比率(%)
流出S-COD	14.2	8.4
流出VSS	14.7	8.7
メタンガス	98.8	58.0
溶存メタン	13.5	8.0

#### (5) 保持汚泥のメタン生成活性の経日変化

保持汚泥の各基質におけるメタン生成活性の経日変化（0、40、89 日目）を図 9 に示した。また汚泥の低温馴致の指標として 20℃ と 35℃ での活性の割合（20℃ 活性 / 35℃ 活性）も示した。なお、40 日目を含む 22～51 日間の容積負荷は 4.2～13.0 kgCOD/m<sup>3</sup>/day、89 日目を含む 65～99 日間の容積負荷は 12.9～16.8 kgCOD/m<sup>3</sup>/day であった。

H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 基質では 0 日目と 40 日目で、大きな変化は無かったが、89 日目には 20℃ 活性は 0.67 kgCOD/kgVSS/day から 1.31 kgCOD/kgVSS/day へと 2.0 倍、35℃ 活性は 3.86 kgCOD/kgVSS/day から 4.52 kgCOD/kgVSS/day へと 1.2 倍上昇し、その結果 20℃ / 35℃ 活性比は 0.17 から 0.29 に 1.7 倍増加した。このことから高容積負荷の条件下では酸生成に伴う水素生成反応の活発化から、水素資化性メタン生成古細菌の活性が上昇、低温への馴致が進んだことが示唆された。一方、酢酸基質についても 20℃ 活性、35℃ 活性は段階的に増加し、20℃ / 35℃ 活性比は 40 日目以降に 0.12 から 0.23 に 1.9 倍増加した。このことから約 40 日の低温運転で、低温条件への酢酸資化性メタン生成古細菌の馴致が進行したと推測さ

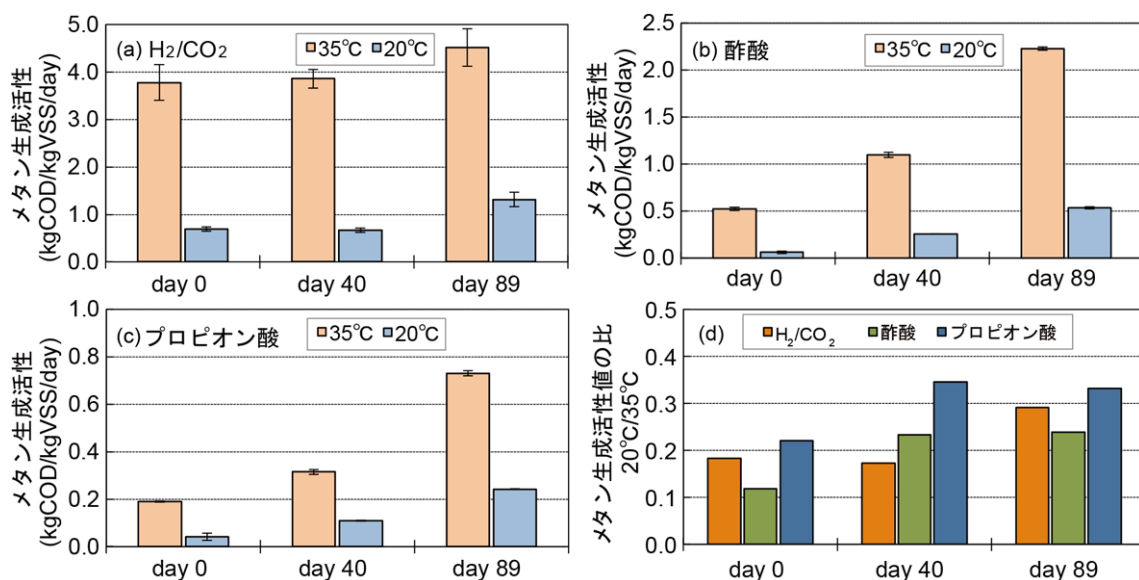


図 9 保持汚泥のメタン生成活性の変化 (a) H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 基質、(b) 酢酸基質、(c) プロピオン酸基質、(d) メタン生成活性の比（20℃ 活性 / 35℃ 活性）

れた。また、40日目と89日目の活性比は同等であるが、各活性自体は増加していることからメタン生成古細菌の保持汚泥中への集積化が進行したことが考えられた。プロピオン酸基質では酢酸基質と同様の傾向を示し、20℃/35℃活性比は40日目以降に0.22から0.35に1.6倍増加した。プロピオン酸基質は、嫌気分解反応で酢酸、水素に分解され、その後メタン生成古細菌に利用される。H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>基質、酢酸基質の活性はプロピオン酸基質の活性よりも高く、プロピオン酸が反応律速であることが推測される。しかしながら、実験期間を通じて、プロピオン酸からのメタン生成活性は増加する傾向にあり、また処理水中のプロピオン酸濃度は13 mgCOD/Lと低かったため、プロピオン酸の分解は連続処理実験において大きな問題とならなかった。

植種汚泥は平均35℃で運転している実メタン発酵排水プラントから採取したものであるため、20℃活性が低く、酢酸基質では35℃活性の1/9、プロピオン酸基質では1/5であった。しかし、89日間の低温馴養後の汚泥の20℃の活性は、酢酸基質では9倍に、プロピオン酸基質では6倍に増加した。このように89日目の低温馴養後の汚泥の20℃での活性は実排水処理プラントで中温運転（平均35℃）されていた植種汚泥の35℃での活性と同等以上を示すようになった。H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>基質については、植種汚泥を糖系排水処理反応槽より採取したため、水素生成能が低いと思われる今回の供試排水では活性増加が鈍かった。また運転期間全体を通して、保持汚泥の活性値は、20℃よりも35℃で高く、中温性のメタン生成古細菌が保持汚泥中に存在し、低温での運転による馴致（低温順応）や選択的な増殖あるいは集積化が生じることで良好なメタン生成能を発揮したと考えられる。

これらの結果より、反応槽内に十分量の汚泥を適切な滞留時間で維持し、適切な有機物負荷を与えつつ、低温で馴養することにより低温に耐性を持つ中温メタン生成古細菌の集積化が進行し、中温メタン発酵処理と同等の保持汚泥活性、処理性能を達成できることがわかった。

## (6) メタン発酵処理のエネルギー収支

無加温メタン発酵処理（20℃）と中温メタン発酵処理（35℃）のエネルギー収支を、放熱を考慮に入れずに簡易的に試算した結果を表5に示した。

表5 容積負荷 15 kgCOD/m<sup>3</sup>/day 時のエネルギー収支の比較

	無加温メタン発酵	中温メタン発酵
処理温度(℃)	20	35
回収メタンガスのエネルギー (MJ/day)	7,992	7,992
排水加温に要するエネルギー (MJ/day)	0	-63,000
合計 (MJ/day)	7,992	55,008

運転条件は容積負荷 15 kgCOD/m<sup>3</sup>/day の無加温メタン発酵（20℃）、中温メタン発酵（35℃）の条件で、排水量 1,000 m<sup>3</sup>/day、COD 濃度 1,000 mg/L の 20℃ の流入排水を処理水 COD 濃度 100 mg/L まで処理するものと仮定した。また、排水の比重、熱容量は水（1 g/cm<sup>3</sup>、4.2 J/（g・K））と同じとした。

低温メタン発酵の実験結果から除去 COD のメタンガスガス転換率は平均 64% であった。中温メタン発酵も同等のメタンガス転換率と仮定した。これより、除去 COD 量 900 kgCOD/day から 576 kgCOD/day（144 kgCH<sub>4</sub>/day）のメタンガスが得られることがわかる。そして、生成したメタンの燃焼熱（55.5 kJ/g）から算出すると 7,992 MJ/day のエネルギーが得られる。それに対して中温メタン発酵（35℃）では加温に 63,000 MJ/day のエネルギーが必要となり、エネルギー収支ではマイナスとなる。即ち、生成したメタンガスでは加熱に消費するエネルギーを補いきれない。これより、加温を必要としない低温メタン発酵は、既存の中温メタン発酵に対してエネルギー的に優位であり、メタン発酵排水処理の普及に寄与できる大きな可能性を秘めている。

### 2.1.4 有機化学物質を含有する電子産業排水への無加温メタン発酵処理技術の適用性評価

#### (1) イソプロパノール含有排水の連続処理特性

2-propanol 含有排水の連続処理試験では、実験開始時は、スクロース、酢酸、プロピオン酸、酵母エキスを主成分



表 6 連続排水処理試験における排水の有機物組成

	COD濃度 (mg/L)			
	2-propanol 0%	2-propanol 30%	2-propanol 60%	2-propanol 90%
2-propanol	0	300	600	900
スクロース	450	300	150	0
酢酸ナトリウム	225	150	75	0
プロピオン酸	225	150	75	0
酵母エキス	100	100	100	100
計	1,000	1,000	1,000	1,000

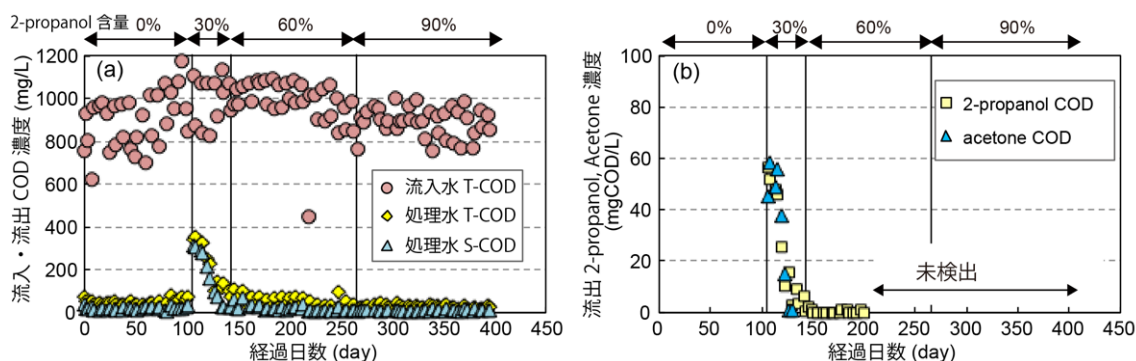


図 10 連続排水処理試験における流入、流出 COD 濃度 (a)、流出 2-propanol、Acetone 濃度 (b)

とする排水 (表 6) を供給し、処理が安定した後に 2-propanol を流入 COD 濃度の 30% 混合させ供給した。その後、2-propanol の濃度比を 60%、90% と段階的に上昇させることで、グラニュール汚泥の物性や嫌気微生物の活性を維持可能な環境 (低酸化還元電位) を保ちつつ、2-propanol 分解微生物群集の集積化を図った。

図 10 には、連続排水処理試験における流入、流出 COD 濃度及び流出 2-propanol、Acetone 濃度の経日変化を示した。流入水の COD 濃度は、約 800 ~ 1,100 mgCOD/L の間で推移した。2-propanol を全 COD 濃度の 30% 含む廃水に変更後、2-propanol 及び acetone が残存することで処理水の全 COD 濃度は増加したが、2-propanol 分解微生物の集積化により約 1 ヶ月で 2-propanol 混合前の水質 (24 mgCOD/L) と同程度にまで改善した。この時の COD 除去率は 95% 以上であった。その後、2-propanol の混合割合を全 COD 濃度の 60%、90% と段階的に増加させたが、処理水質は安定しており保持汚泥馴致 (2-propanol 分解微生物の集積化) の更なる進行が推測された。この時の容積負荷は 6 kgCOD/m<sup>3</sup>/day であり、有機化学物質を含む排水に対しても十分に高い処理能力を発揮した。

また、汚泥馴致後は処理水中の 2-propanol の濃度は常に検出限界以下 (3 mgCOD/L 未満) であった。以上の結果から、処理水質面からの 2-propanol を含有する排水への無加温メタン発酵処理技術 (グラニュール汚泥床法) の適用可能性が示された。また結果は示さないが、除去有機物の 8 割 (80%) 以上がメタンに転換していることを確認した。

## (2) 保持汚泥の物性変化

グラニュール汚泥床の性能発揮のためには、装置内に沈降性に優れたグラニュール汚泥を維持することが必要である。そこで、保持汚泥の汚泥沈降指標 (SVI)、平均粒径の測定を定期的に行った。図 11 に保持汚泥の SVI、平均粒径 (個数基準) の経日変化を示した。

SVI は 2-propanol 混合前は、約 18 mL/gTSS であったが、実験終了時には約 21 mL/gTSS と上昇し、僅かながら沈降性は低下した。また、保持汚泥は崩壊すること無く、運転の継続に伴って平均粒径は 1.7 mm から 2.3 mm 程度に増加した。一般的に、グラニュール汚泥床を安定的に運転するためには、SVI 30 mL/gTSS 以下程度の沈降性の汚泥を保持する必要があるが、本試験では、2-propanol の混合によっても沈降性の著しい低下や、保持汚泥の崩壊 (平均粒径の減少) は生じず、グラニュール汚泥床法が 2-propanol 含有廃水の無加温メタン発酵処理に適用できる可能性が示された。

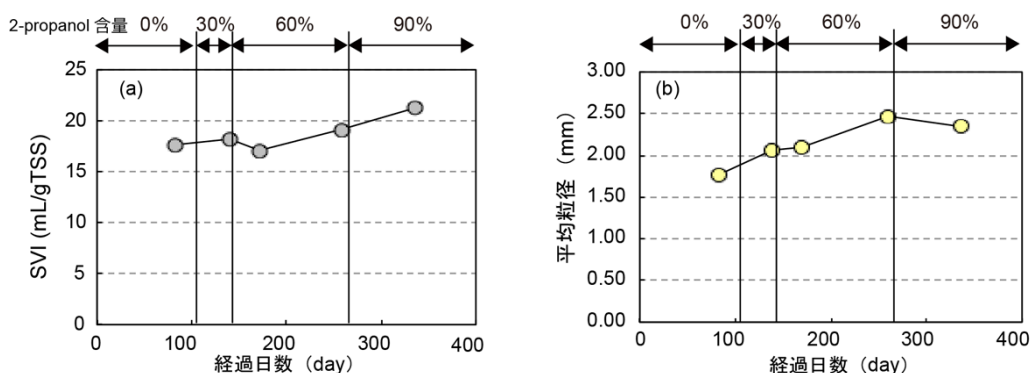


図 11 保持汚泥物性の経日変化、汚泥沈降指標 (a)、平均粒径 (b)

### (3) 保持汚泥の微生物学的性状の変化

表 7 には、保持汚泥のメタン生成活性の変化（試験温度 20℃）を示した。2-propanol の混合前（92 日目）のメタン生成活性は酢酸基質が 0.49 gCOD/gVSS/day、水素基質が 0.99 と高かったが 2-propanol 基質については対照系に対して有意なメタン生成を確認できなかった。運転開始後 190 日目（2-propanol 混合 60% 時）には、全ての基質でメタン生成活性が増加し、特に 2-propanol 基質の活性は大幅に増加した（0.10 gCOD/gVSS/day）。

表 7 保持汚泥のメタン性活性の変化（20℃）

	2-propanol 含量 (%)	メタン生成活性		
		酢酸	H <sub>2</sub> /CO <sub>2</sub>	2-propanol
92日目*	0	0.49	0.99	Not detected
190日目*	60	0.66	1.43	0.10
371日目**	90	0.48	1.43	0.15

これより、保持汚泥への 2-propanol 分解細菌群の集積化が確認された。2-propanol を全 COD の 90% 混合させ、長期運転を行った後の汚泥試料では、2-propanol 基質からのメタン生成活性は 0.15 gCOD/gVSS/day に達していた。

2-propanol の嫌気条件での分解では、中間代謝物として Acetone（アセトン）が生成することが知られている。Acetone は Acetogenic 菌（水素生成酢酸化細菌）の作用により、酢酸と水素にまで分解され、最終的に酢酸資化性メタン生成細菌および水素資化性メタン生成細菌の作用によりメタン生成が行われる。本研究で運転を行ったグラニューール汚泥床では、どのような細菌が直接 2-propanol の分解者として機能していたかを調査するために、2-propanol を基質としたメタン生成活性試験において、メタン生成細菌の特異的な阻害剤であるクロロホルム（CHCl<sub>3</sub>）の添加を行った。クロロホルムの添加を行った系では、2-propanol の分解とメタン生成が同時に停止しており、また中間代謝産物である Acetone の生成も生じなかったことから、グラニューール汚泥床では、メタン生成細菌が直接 2-propanol の分解と Acetone の生成に寄与していることが明らかになった。また別途行った Acetone を基質としたメタン生成活性試験では、Acetogenic 菌の阻害物質である水素ガスを注入したところ、Acetone の分解がほぼ停止したため、Acetone については Acetogenic 菌（水素生成酢酸化細菌）による分解が生じていたことがわかった。本試験の結果推定された代謝経路を図 12 に示した。

2-propanol の分解に関与する細菌を同定するために、Domain Archaea（古細菌）の 16S rRNA 遺伝子を標的としたクローン解析を行った。運転開始後 92 日目（排水の 2-propanol 含量 0% 時）、190 日目（60% 時）、371 日目（90% 時）のクローン解析結果（標的 Domain Archaea、古細菌）を図 13 に示した。2-propanol の流入開始前には、酢酸資化性メタン生成細菌として *Methanosaeta* 属に属するクローンが、水素資化性メタン生成細菌として *Methanobacterium* 属に属するクローンが優占化していた。2-propanol の分解開始後は、*Methanobacterium* 属細菌のクローンが減少し、*Methanospirillum* 属細菌のクローンの割合が明らかに増加した。グラニューール汚泥床の汚泥では、メタン生成細菌が直接 2-propanol の分解に寄与することが図 12 に示した通り確認された。そこで、2-propanol 分解性細菌の存在が報

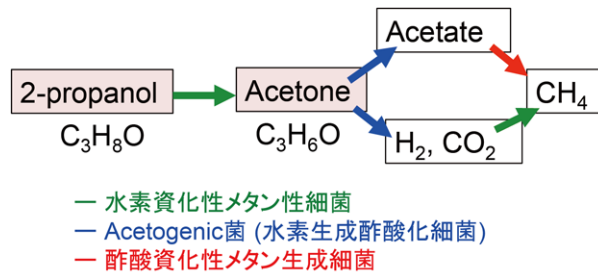


図 12 グラニュール汚泥床保持汚泥による 2-propanol の嫌気分解代謝経路

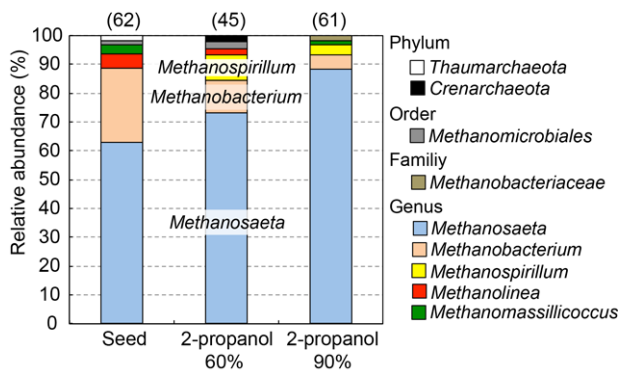


図 13 Domain Archaea (古細菌) のクローン解析結果

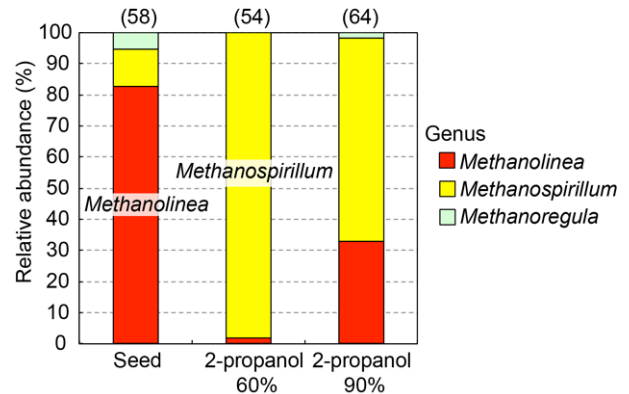


図 14 *Methanomicrobiales* 目細菌のクローン解析結果

告されている *Methanomicrobiales* 目に属するメタン生成細菌の 16S rRNA 遺伝子を標的としたクローン解析を行った (図 14)。

その結果、*Methanospirillum* 属に属するクローンの割合が 2-propanol の分解開始と共に大幅に増加しており、これらのメタン生成細菌が 2-propanol の分解に寄与していることが示唆された。また別途、得られた遺伝子配列データに基づき系統樹を作成したところ、優占化していたクローンは、自然環境中 (湿地土壌) から単離され低温性 (常温性) の *Methanospirillum psychrodurum* sp. strain X-18<sup>T5</sup> と比較的近縁であった。ただし、strain X-18<sup>T</sup> は水素 (H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>) の資化能は持つものの、ギ酸や、2-propanol を利用することはできないため、本研究で保持汚泥に集積化した *Methanospirillum* 属細菌は新種であると推定される。

## 2.1.5 まとめ

### (1) 実産業排水を用いた無加温メタン発酵処理技術の性能実証

グラニュール汚泥床法による低濃度飲料製造工場排水の無加温 (17 ~ 19℃) 処理試験の結果、以下の知見が得られた。

- ・実排水に対しても高い処理性能 (容積負荷 15 kg-COD/m<sup>3</sup>/day、汚泥負荷 0.63 kg-COD/kgMLSS/day、COD 除去率 88 ~ 93%) と、メタン生成能 (メタン転換率 60 ~ 69%) を示し、中温メタン発酵処理と同等の性能を達成することができた。
- ・性能発揮の鍵となる汚泥の物理的な性状については、体積基準平均粒径は 2.70 mm から 3.16 mm に若干増加し、SVI は 13 ~ 15 mL/gTSS で良好に維持され安定した沈降性 (物性) を示した。その結果、SRT 20 days とメタン生成細菌の集積化に十分な汚泥滞留時間を維持しつつ、23 ~ 25 gTSS/L の汚泥濃度を維持できた。
- ・保持汚泥のメタン生成活性から、保持汚泥の滞留時間と有機物負荷を適切に維持し、低温で馴養することにより低温耐性のある中温メタン生成古細菌の集積化が進行し、中温メタン発酵処理と同等の活性 (酢酸基質で 0.53 gCOD/gVSS/day) を低温下 (20℃未満) で達成できることがわかった。

(2) 有機化学物質を含有する電子産業排水への無加温メタン発酵処理技術の適用性評価

グラニュール汚泥床法による 2-propanol 含有排水処理の結果、以下の知見が得られた。

- ・ 2-propanol を排水に混合させた後、約 1 ヶ月で分解細菌の保持汚泥への集積化が進行し、2-propanol を流入 COD 濃度の 90% 含む排水に対して、容積負荷 6 kgCOD/m<sup>3</sup>/day 条件下で優れた処理性能（COD 除去率 95% 以上、メタン転換率 80%）を示した。
- ・ 保持汚泥の物性評価より、保持汚泥の沈降性は 21 mL/gTSS と良好に維持され、粒径の減少等も観察されなかった。以上の結果から、2-propanol の流入はグラニュール汚泥の形成・維持に悪影響を及ぼさないことが明らかになった。
- ・ 保持汚泥の微生物学的な性状評価の結果、2-propanol の供給に伴い 2-propanol からのメタン生成活性の明らかな上昇と共に、水素資化性のメタン生成細菌として知られている *Methanospirillum* 属細菌の集積化が確認された。また、メタン生成細菌の特異的阻害剤であるクロロホルムの添加により、メタン生成および 2-propanol 分解が同時に停止し、また中間代謝物であるアセトンの生成が確認されなかったことから、*Methanospirillum* 属の水素資化性メタン生成細菌等が 2-propanol の分解に直接関与していることが明らかになった。

以上の実験結果より、グラニュール汚泥床は実産業排水の無加温メタン発酵処理においても、十分に高い排水処理性能（処理水質、メタン回収率）を発揮できることが明らかになった。また結果は示さないが、水質の変化が生じる実工場におけるパイロット規模試験においてもラボ試験と同様の安定した処理性能を確認しており、グラニュール汚泥床による無加温メタン発酵処理の実現化の可能性が強く示唆された。また、有機化学物質を含む電子産業排水への技術展開の可能性が示された。

## 引用文献

- 1) 珠坪一晃 (2009) 省エネルギー型水・炭素循環処理システムの開発, 国立環境研究所特別研究報告, SR-86-2009
- 2) Syutsubo K., Harada H. and Ohashi A. (1998) Granulation and sludge retainment during start-up of a thermophilic UASB reactor. *Water Science and Technology*, 38(8-9), 349-357.
- 3) 石垣秀高 (2004) 半導体工場における有機廃液の削減事例 - バイオリサイクルシステムによる改善 -, 沖テクニカルレビュー第 199 号, 71 (5), 14-17
- 4) Yoochatchaval W., Nishiyama K., Okawara M., Ohashi A., Harada H., Syutsubo K. (2008) Influence of effluent-recirculation condition on the process performance of expanded granular sludge bed reactor for treating low strength wastewater. *Water Science and Technology*, 57 (6), 869-873
- 5) Zhou L, Liu X, Dong X. (2014) *Methanospirillum psychrodurum* sp. nov., isolated from wetland soil. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 64, 638-641.



## 2.2 糖蜜系バイオ燃料製造廃液処理システムの最適化

### 2.2.1 はじめに

近年、経済発展が著しい東南アジアの国々では、資源作物（天然ゴム、パーム油、バイオエタノール等）の生産が活発化している。これら資源作物の加工工程からは、有機物を高濃度に含む廃液が多量に排出される。しかし、適切な処理システムの普及は進んでおらず、排出された廃液のほとんどが安定化池に長時間貯留されているため、有機物や窒素の嫌氣的分解に伴って生成するメタンや亜酸化窒素などの強温室効果ガスの大気放出を招いている。また、安定化池における廃液の地下浸透や降雨等による水系への流出に伴い、水環境の悪化を招くことが懸念されている。そのため、開発途上国にも適用可能な経済性に優れた省・創エネルギー型の廃液処理技術の開発と導入が必要である。

このような背景から、資源作物由来の廃液の適切処理技術を開発するため、タイ、マレーシア、ベトナムなどの研究機関と連携し、共同研究（所内特別研究、環境研究総合推進費、地球規模課題対応国際科学技術協力）を推進してきた。本報告では、主に石油代替燃料としての需要の増加から、タイにおいて生産量が増大している糖蜜系バイオエタノール製造廃液の適切処理技術の開発に関する研究結果について記述する。

タイ政府は2003年12月、2006年までに1日当たりの生産量を100万リットル、2011年までに同300万リットルを目標とする国家エタノールプログラム「ガソホル戦略計画 (National Ethanol Program Gasohol Strategic Plan)」を公表し、エタノール生産を推進した（タイでは、バイオエタノールはガソリンに混合され、「ガソホル (Gasohol: gasoline と alcohol を組み合わせた合成語)」として利用されており、エタノールの混合割合に応じてE10（混合割合10%）、E20（同20%）、E85（同85%）の3種類が販売されている）。また、ガソホルの物品税を削減し、価格をレギュラーガソリン価格に比べ10～15%安く設定するなどにより消費拡大が図られた。その後、政府は「15年エタノール開発計画：2008-2022 (The 15 Year Ethanol Development Plan: 2008-2022)」を公表し、糖蜜およびキャッサバを原料とするエタノール生産目標を、2022年までに少なくとも1日当たり900万リットルとしている。タイでは、「再生可能・代替エネルギー開発計画2012-2021」の一環として、2013年1月1日からレギュラーガソリンの販売が停止された。レギュラーガソリンの販売停止決定を受け、レギュラーガソホルE10の販売量は2012年11月以降急増し、2013年6月には1日当たり918万リットル（エタノール換算で91.8万リットル）に達した。

タイにおけるエタノールの生産量は、増加傾向で推移しており、2012年の年間生産量は6億5554万リットル（1日当たり179.6万リットル）であった。2012年エタノール生産量のうち、糖蜜からの生産量は5億3180万リットル、キャッサバからの生産量は7469万リットル（11.4%）、ケーンジュースからの生産量は4905万リットル（7.5%）と、糖蜜からの生産量が全体の81.1%を占めた。

今後も、多くの工場が建設・稼働する予定であり、糖蜜系のバイオエタノール製造廃液の適切処理技術の開発と普及は急務であるといえる（独立行政法人農畜産業振興機構ホームページ：タイのエタノール政策と砂糖およびでん粉業界への影響、[http://www.alic.go.jp/joho-d/joho08\\_000346.html](http://www.alic.go.jp/joho-d/joho08_000346.html)）。

糖蜜からのエタノール製造工程は、まず糖蜜に約3倍量の水、栄養塩類（窒素、リンを含む）、アルコール発酵酵母（*Saccharomyces* 属など）を加えてエタノール発酵を行い、次いで、蒸留（通常2段階程度）、脱水工程を経て燃料エタノールを得る（図15参照）。この蒸留工程から多量（エタノール量の約9～10倍）の蒸留廃液（糖蜜系バイオエタノール製造廃液）が排出され、その有機物濃度は80,000～130,000 mgCOD/Lに達する。このような高有機物濃度廃液の処

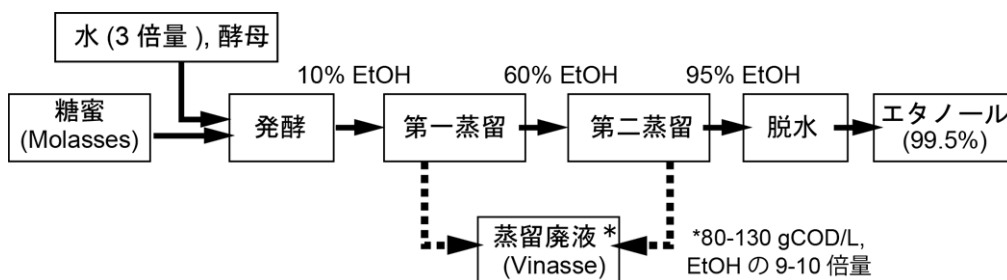


図15 バイオエタノールの製造工程と蒸留廃液の排出

理には嫌気性処理（メタン発酵）技術が適しているが、廃液にはサトウキビ由来の硫酸塩やカチオン（陽イオン）などの微生物活性の阻害物質も高濃度に含まれること、また高い有機物濃度ゆえメタン発酵処理過程で多量のバイオガスが生成し、装置内（メタン発酵槽）に嫌気生微生物（汚泥）を十分に保持するのが困難であることなどの原因により、高い処理能力を安定的に発揮する適切システムの実現は困難であった。

以上のような背景から、特別研究「資源作物由来液状廃棄物のコベネフィット型処理システムの開発、H21～H23年度」においては、国内（糖蜜を処理対象）およびタイ（実蒸留廃液を処理対象）において、保持汚泥の流失防止と装置内への高濃度保持を両立させるため、USSB（Upflow Staged Sludge Blanket）法による糖蜜系廃液のメタン発酵処理試験を行い、その性能評価と運転条件の最適化を実施した。USSB法は、装置高さ方向に気固液分離装置であるGSS（Gas Solid Separator）を数段配置することで、汚泥床部で有機物分解に伴い発生するバイオガスをすみやかに原位置から装置系外に排出し、過大なバイオガス発生による汚泥流失を抑制することを可能とした。加えて、硫酸塩還元反応に伴って生成する硫化水素（硫化物）を含むバイオガスを系外に速やかに排出することで、メタン生成細菌への硫化物阻害の低減を狙った。なお、USSBの前段には酸生成槽を設けて流入廃水の酸生成を行い、後段のメタン発酵工程の安定化を図った。さらに、バイオガスに含まれる水素をすみやかに系外に排出することで、水素分圧上昇による中間代謝脂肪酸（プロピオン酸、酪酸など）の蓄積抑制を図った。その結果、糖蜜系廃液への高負荷対応型のメタン発酵法であるUSSBの適用と、その運転条件の最適化により、11～43 kgCOD/m<sup>3</sup> dayの高負荷を許容できることが実証された<sup>1)</sup>。また、120,000 mgCOD/Lを超える高濃度廃液に対応可能な適切処理システムの開発に成功した。一方、廃液の濃度が増加した場合、カチオン阻害によりその許容負荷が低減すると共に、処理性能が不安定化すること、生物学的な処理のみでは、最終的な放流水質を確保できないことなどの問題点も明らかになった。

そこで本研究では、糖蜜系バイオエタノール製造廃液のメタン発酵処理の安定化を目指し、製糖排水との混合処理特性の評価を行った。また電気分解を用いた廃液の前処理法（有機物分解、無機物除去）についても検討を行った。メタン発酵処理後の処理水には、難分解性の有機物（COD成分）窒素、リンなどが残存している。そこで、処理水の農地還元についての効果と温室効果ガスの発生などの環境影響をサトウキビ栽培試験により明らかにした。また、タイ国エネルギー省のバイオガス設備導入に関する補助事業などにより、糖蜜系バイオ燃料（バイオエタノール）製造工場にメタン発酵処理設備（カバードラグーンなど）が導入されてきているため、これらの設備についての基本的な性能を現地調査により明らかにした。

## 2.2.2 実験方法

### (1) バイオエタノール製造廃液と製糖排水の混合処理特性の評価

バイオエタノール製造廃液と製糖排水の混合処理特性の評価を行うにあたり、タイ東北部のChaiyaphum地方における廃液、排水の排出量の調査を行った。2010年7月から2011年6月（11ヶ月分）の排水量を表8に示した。

これより、調査期間におけるバイオエタノール製造廃液および製糖排水の排出量は、それぞれ272,680 m<sup>3</sup>、570,318 m<sup>3</sup>であり、その体積比は約1:2となった。そこで、本研究ではバイオエタノール製造廃液および製糖排水を1:2の割合で混合させ、処理試験に供した。表9には、バイオエタノール製造廃液、製糖排水および混合排水の水質を示した。

表8 タイ Chaiyaphum 地方におけるバイオエタノール製造廃液と製糖排水の排出状況

年 月	2010					2011						合計
	Jul	Aug	Sep	Nov	Dec	Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	
糖蜜系バイオエタノール廃液, CMBP (m <sup>3</sup> )	34,364	30,231	23,461	16,093	0	26,585	26,519	27,428	26,144	30,112	22,865	272,680
製糖排水, CSM (m <sup>3</sup> )	40,129	40,066	41,767	43,062	40,278	52,675	47,362	62,981	51,382	67,198	56,244	570,318

表9 バイオエタノール製造廃液、製糖排水および混合排水の水質

項目	バイオエタノール製造廃液	製糖排水	混合排水
pH	4.2±0.19	3.8±0.09	4.0±0.16
COD (mg/L)	300,000±60,000	15,900±920	158,000±0
TSS (mg/L)	62,000±20,000	825±21.2	5,800±2,000
VSS (mg/L)	6,300±3,300	90±10	1,380±360
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/L)	7,940±135	490±2	3,830±1,110

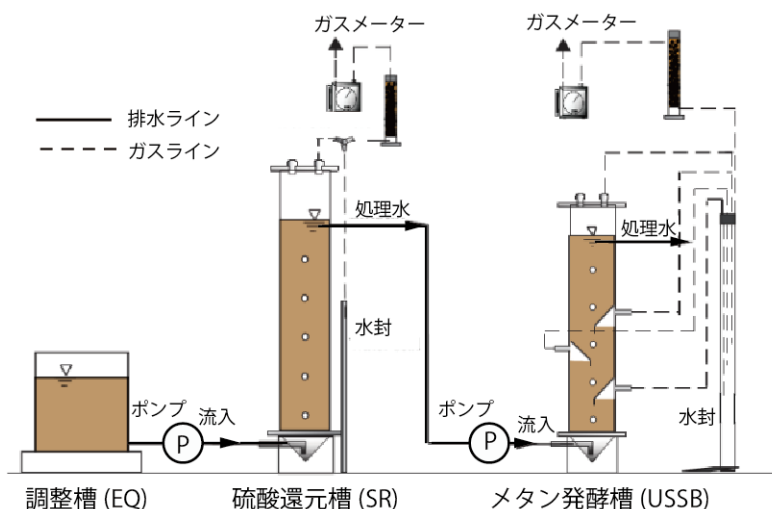


図16 混合排水の処理試験に用いた装置の概要図

図16には、混合排水の処理試験に用いた装置の概要図を示した。処理試験装置は、UASB型の酸生成・硫酸還元槽（SR、前段処理）と高さ方向に気固液分離装置であるGSSを複数配置したUSSB型のメタン発酵槽（USSB、後段処理）を組み合わせた形式とした。酸生成・硫酸還元槽（SR）とメタン生成槽（USSB）の有効容積は、それぞれ24Lと12.7Lとした。排水は貯留槽（EQ）から酸生成・硫酸還元槽、メタン発酵槽に順次流入させた。生成したバイオガスは、脱硫後に湿式ガスメーターでその生成量を測定した。

酸生成・硫酸還元槽とメタン生成槽には、実規模UASBより採取したグラニューク汚泥（61gVSS/L）をそれぞれ、9.6L（580.8gVSS/L）、4.8L（290.4gVSS/L）投入し、スタートアップ運転を開始した。スタートアップ運転期間における装置の運転条件を表10に示した。

運転開始0日目から25日目までは、汚泥の馴致を行うため、バイオエタノール製造廃液を希釈して、それぞれの装置に供給した。また26日目から40日目までは、酸生成・硫酸還元槽とメタン生成槽を直列に接続して、運転を行った。なお25日目以降は、pHの制御を目的として重炭酸ナトリウムの供給排水への添加（1,250mg/L）を行った。

処理が安定した41日目より、処理システムの性能評価運転を行った。表11に性能評価期間における装置の運転条件を示す。41日目から85日目は、バイオエタノール製造廃液を供給し基本的な性能評価を行った。105日目から145日目は、バイオエタノール製造廃液と製糖排水の混合排水（体積比で1:2で混合）を供給して性能評価を実施した。装置は、どちらの期間も無加温条件で運転を行い、流入水のCOD濃度を約15,000mgCOD/Lに調整した。なお、性能評価期間中のHRTは一定とし、酸生成・硫酸還元槽（SR）で24時間、メタン発酵槽（USSB）で12時間とした。装置

表10 スタートアップ運転期間における装置の運転条件

項目	硫酸還元槽(SR)	メタン発酵槽(USSB)
供給排水	バイオエタノール製造廃液	バイオエタノール製造廃液
流入COD, 0-25日目 (mgCOD/L)	6,800±1,420	3,890±1,090
流入COD, 26-40日目 (mgCOD/L)	10,500±1,300	7,250±790
pH	5.9±0.3	7.0±0.1
流量(L/day)	24	24
HRT(時間)	24	12

表 11 性能評価期間における装置の運転条件

項目	バイオエタノール製造廃液 (days 41-85)		混合排水 (days 105-145)	
	硫酸還元槽(SR)	メタン発酵槽(USSB)	硫酸還元槽(SR)	メタン発酵槽(USSB)
運転温度(°C)	28.6±1.8 (24.0 - 32.0)		25.8±1.6 (22.1 - 28.9)	
流入COD (mgCOD/L)	15,300±1,570	8,330±780	15,400±2,280	12,400±1,880
有機物容積負荷 (kgCOD/m <sup>3</sup> /day)	15.4	16.6	15.4	24.1
NaHCO <sub>3</sub> (mg/L)	1,250	-	1,250	-
pH	5.9±0.2	6.9±0.3	5.6±0.2	6.0±0.5
流量(L/day)	24	24	24	24
HRT(時間)	24	12	24	12

の運転は、無加温で行い、バイオエタノール製造廃液を供給した41日目から85日目は平均の水温は28.6℃、混合排水を供給した105日目から145日の平均水温は25.8℃であった。

経時的に排水、反応槽流入水、処理水のCOD濃度、VFA(揮発性脂肪酸)濃度、TSS濃度、硫酸塩濃度の分析を行った。また、バイオガス生成量、バイオガス組成の分析を行った。COD及び、硫酸塩濃度の測定には多項目迅速水質分析計DR-3900(HACH)を用い、標準プロトコルに従い、測定した。VFA分析はFIDを備えたGC-14A(SHIMADZU)、ガス組成分析はTCDを備えたGC-2014(SHIMADZU)で行った。

保持汚泥のメタン生成活性と、各排水の生分解性は、バイアル瓶を用いた回分試験により評価した。保持汚泥のメタン生成活性は15日目(種汚泥)、66日目(バイオエタノール製造廃液供給時)、145日目(混合排水供給時)のUSSB保持汚泥について35℃温度条件下で測定を行った。試験基質として、酢酸、H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>、スクロース、各排水を用い、各基質の初発濃度は2,000mgCOD/Lに設定した。

## (2) 電気分解によるバイオエタノール製造廃液の前処理法の検討

バイオエタノール製造廃液には、メタン発酵阻害物質であるカリウム(K<sup>+</sup>)、硫酸塩(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、塩素イオン(Cl<sup>-</sup>)等が高濃度に含まれる。そこで、メタン発酵処理の安定化を図るための前処理として、電気分解(Electrocoagulation, EC)の適用性評価を行った。

表12には、電気分解試験に用いた廃液の代表的な組成を示した。なお電気分解試験は、廃液を5倍、7倍、10倍に希釈し、初期濃度を約55,000mgCOD/L、39,000mgCOD/L、25,000mgCOD/Lに設定して行った。

表 12 電気分解試験に用いたバイオエタノール製造廃液の組成

項目	単位	平均値
pH	-	4.40-4.50
COD	mg/L	270,000±13,754
TSS	mg/L	9,800±492
硫酸塩(SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )	mg/L	7,500±460
塩素イオン(Cl <sup>-</sup> )	mg/L	6,600±950
カリウム(K <sup>+</sup> )	mg/L	12,000±706

図17には、電気分解試験に用いた装置の概要図を示した。アクリル製の容器(長さ20cm、奥行き15cm、高さ20cm)内に、鉄製の電極(厚さ2mm、長さ12.5cm、幅12.0cm)を10枚平行に配置した。また電極間の距離は2.5cmに調整した。電源装置は、電流、電圧をそれぞれ0~5A(アンペア)、0~50V(ボルト)の範囲で調整可能であり、ワイヤーで電極に接続した。電気分解試験では、電流密度を10A/m<sup>2</sup>(電流3A)に固定し、試験継続時間は20分に設定した。電気分解後、90分間放置した後の上清を処理水サンプルとして回収し、pH、電気伝導度、ORP、COD、TSS、カリウム、硫酸塩、塩素の濃度を測定した。

## (3) 処理水の農地還元についての効果と温室効果ガスの発生などの環境影響評価

本試験は、ミットボンサトウキビ研究センター(株)の試験圃場(Phukieo Chaiphum、タイ)にて行った。サトウキビの植え付けの概略を図18に示す。本実験では、高さ0.4m、直径0.9mのコンクリート性の円筒形のポット(底板



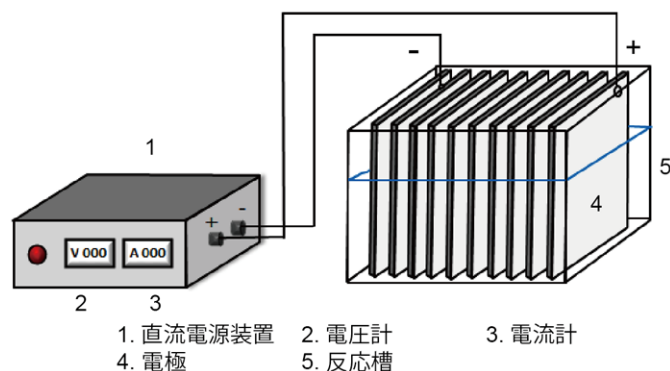


図 17 廃液の電気分解試験に用いた装置の概略図

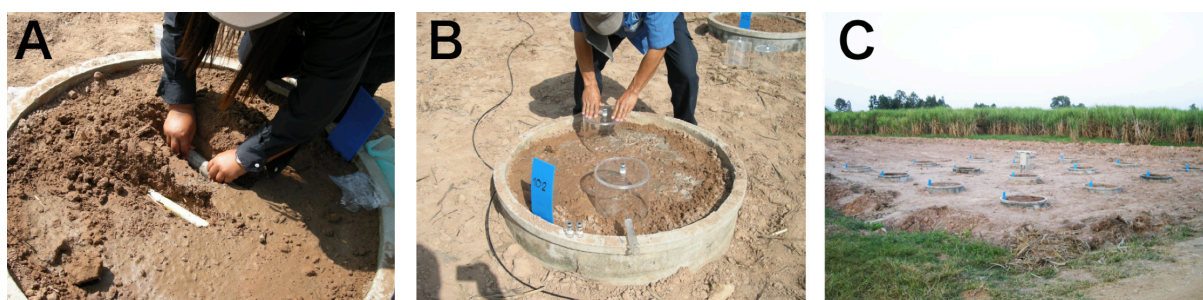


図 18 サトウキビの植え付けの概略図

(A) サトウキビの植え付け、(B) ガスチャンバーの設置、(C) 実験フィールド全景

無し)を農地に埋め込み、その中心にサトウキビを植生した。サトウキビは各コンクリートポットに対して2本植生した(図18)。

表13にサトウキビ栽培試験の各実験条件と、灌漑用水/処理水の添加、温室効果ガスの測定スケジュールを示した。実験系は、(T1)一般的に行われている水を灌漑用水として用いるコントロール、(T2)近年行われている未処理のバイオエタノール製造廃液の散布(灌漑用水無し)、(T3)未処理の廃液に加え水を灌漑用水として散布するケース(処理水散布の比較系)、(T4)処理水を灌漑用水として散布するケースとした。実験開始後10週目以降は、全ての実験系列で灌漑用水/処理水を添加する量を2倍に増加させ、土壌の水分量の増加が温室効果ガスの排出に及ぼす影響を評価した。

なお全ての実験条件について、4連で栽培試験を行った。化学肥料は、初期のサトウキビの生育を促すため全ての系列で50 kg/rai (20 g/pot)となるように、0日目に15-15-15 (N-P-K)の割合で基肥を与え、15週目に21-7-18の割合で追肥を与えた。T3において散布を行ったバイオエタノール製造廃液の全COD、全窒素、全リンの濃度はそれぞれ117,300 mg/L、210 mg/L、247 mg/Lであった。T4において農地に散布した処理水は、コンケン大学にて運転を行った

表 13 サトウキビ栽培試験の条件

条件 \ 週	0	Day 3	1	2	4	6	8	10	12	15	16
T 1, 灌漑のみ, コントロール	○✓	✓	✓	○✓	○✓	○	○✓	○○✓	○○	○○✓	✓
T 2, エタノール製造廃液のみ	●✓	✓	✓	✓	✓	-	○○○○ ○✓	○○✓	○○	○○✓	✓
T 3, 廃液+灌漑	●✓	✓	✓	○✓	○✓	○	○✓	○○✓	○○	○○✓	✓
T 4, 処理水	△✓	✓	✓	△✓	△✓	△	△✓	△△✓	△△	△△✓	✓

灌漑：水(○, 2 L/pot), 廃液(●, 2 L/pot), 処理水(△, 2 L/pot)  
サンプリング：✓ (ガス)

廃液処理装置（酸生成・硫酸還元槽、メタン発酵槽、好気性ろ床の組み合わせ）<sup>2)</sup>の最終処理水を用いた。処理水の全COD、全窒素、全リンの濃度は、それぞれ1,800 mg/L、130 mg/L、5 mg/Lであった。

土壌表面からの温室効果ガスの排出速度の測定は、チャンバー法により行った。ガスのサンプリングは、各実験条件のポット土壌の表面に、アクリル性の円筒形チャンバー（高さ19 cm、内径20 cm、容量1.99 L、上部にガス採取口を装備）を2個設置し、測定開始後0、1、2、3時間後に行った。チャンバーは測定時にポット内に土壌表面から1 cm程度埋め込むように設置した。採取したガスのメタンおよび亜酸化窒素濃度の測定は、それぞれFIDガスクロマトグラフ（GC-2014, Shimadzu, Japan）、ECDガスクロマトグラフ（Agilent 6890, USA）を用いて行った。経時的なメタン濃度、亜酸化窒素濃度の変化より、土壌からの温室効果ガス生成速度（フラックス）を算出した。

栽培を行ったサトウキビの生長を評価するために、定期的に茎の高さ、数、直径を測定した。また、約13箇月の栽培後、サトウキビの刈り取りを行い重量、CCS（Commercial Cane Sugar、可製糖率 [砂糖の回収率]）の測定を行った。

#### (4) 糖蜜系バイオエタノール製造工場におけるメタン発酵処理設備の現状調査

近年、タイ国エネルギー省のバイオガス設備導入に関する補助事業などにより、糖蜜系バイオエタノール製造工場にメタン発酵処理設備（カバードラグーンなど）が導入されてきている。しかしながら、当該装置は、エネルギー生産設備としての運用がなされているのみであり、廃液の処理状況（処理水質）やバイオガスの生成能などは明らかになっていない。そこで、タイの東北部および中央部における6つの工場（表14）において、メタン発酵処理設備の形式、処理フロー、運転条件（有機物容積負荷、HRT、処理量）、廃液の組成（有機物、およびメタン発酵阻害物質 [カリウム、硫酸塩、塩素イオン] の濃度）、基本的な性能（処理水質、メタン生成能など）について調査を行った。

加えて、得られたバイオガス（メタンの）利用状況についても調査を行った。詳細な分析項目を表15に示した。

表14 現地調査を行った工場の一覧

地区	工場	エタノール生産能力 (liters/day)
タイ東北部	工場A	150,000
	工場B	100,000
	工場C	130,000
タイ中央部	工場D	365,000
	工場E	120,000
	工場F	25,000

表15 分析項目の一覧

分析項目	単位	測定法
pH	-	電極
Temperature	°C	電極
ORP	mV	電極
TSS, VSS	mg/L	ガラス繊維濾紙法
COD	mg/L	HACH
BOD	mg/L	フラン瓶法
Sulfate	mg/L	HACH
Potassium	mg/L	原子吸光
Chloride	mg/L	イオンクロマト
VFA	mg/L	FIDガスクロ
Gas content	%	TCD ガスクロ

### 2.2.3 バイオエタノール製造廃液と製糖排水の混合処理特性の評価

#### (1) 回分試験による評価

メタン発酵排水処理試験を行う前に、バイオエタノール製造廃液、製糖排水と混合排水の生分解性、メタン生成活性を評価するために、セルムバイアル瓶を用いた回分試験を行った。表16に各試験基質と排水を用いたメタン生成活性の結果を示した。

製糖排水からのメタン生成活性は、酢酸からのメタン生成活性の半分程度（0.0014 gCOD/gVSS/day）を示しており、比較的分解性が高いことが明らかになった。製糖排水からのメタン生成活性は、バイオエタノール製造廃液からのメタ

表16 各試験基質および各廃液、排水からのメタン生成活性（35℃）

試験基質	H <sub>2</sub> /CO <sub>2</sub>	酢酸	スクロース	バイオエタノール 廃液	製糖排水	混合排水
活性値 (gCOD/gVSS/day)	0.0016	0.0026	0.0013	0.0006	0.0014	0.0007

ン生成活性に対して2.3倍高い活性を示した。また、混合排水においても、バイオエタノール製造廃液単体からの活性に対して1.2倍高い活性値を示す事が明らかになった。以上の結果から、バイオエタノール製造廃液と製糖排水を混合することでより高いメタン生成速度が得られる可能性が示された。

図19に各廃液、排水の嫌気条件下での生分解性評価の結果を示した。生分解性試験は、24日間継続して行い、試験後に各バイアル瓶から発生したメタン（COD換算値）と、バイアル液相部の残存COD濃度を測定し、それぞれの投入CODに対する割合をパーセンテージで示した。これより、対照系として実験を行ったスクロース基質では、24日の実験期間で投入したCODの74%がメタンへの転換し、バイアル内液相への残存CODは16%程度となった。一方、糖蜜系のバイオエタノール製造廃液の生分解性は明らかに低く、投入CODの約42%がメタンへ転換し、また約42%が液相部にCODとして残存した。一方、製糖排水については、対照系であるスクロースと同等以上の分解性を示し、投入CODの77%がメタンに転換され、液相部に15%程度のCODが残存するのみであった。混合排水では、バイオエタノール製造廃液単体と比べ、生分解性の向上とメタンCODの増加（4%程度）が確認された。

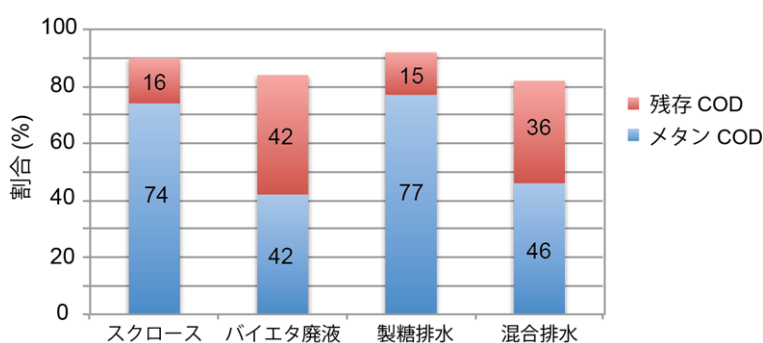


図19 各廃液、排水の嫌気条件下での生分解性評価の結果

## (2) 連続排水処理試験による評価

酸生成・硫酸還元槽（SR）とメタン生成槽（USSB）の組み合わせによる廃液、排水の処理特性の評価は、表11に示した運転条件で行った。SRとUSSBの有機物容積負荷は、バイオエタノール製造廃液供給時には、平均で15.4 kgCOD/m<sup>3</sup>/dayと16.6 kgCOD/m<sup>3</sup>/day、混合排水供給時には、平均で15.4 kgCOD/m<sup>3</sup>/dayと24.1 kgCOD/m<sup>3</sup>/dayであった。連続排水処理試験における流入・流出全COD濃度およびCOD除去率の経日変化を図20に示した。

全体システムでのCOD除去率は、バイオエタノール製造廃液単体では56.2 ± 7.32%にとどまったが、混合排水（バイオエタノール製造廃液と製糖排水を体積比で1:2で混合）では66.8 ± 15.7%にまで約10%上昇した。バイオエタノール製造廃液には、硫酸塩、カリウム、塩素イオンなどの阻害物質が含まれているが、製糖排水との混合により、それらの濃度が低減したことによりメタン発酵槽の安定運転が可能になったと考えられる。表9に各廃液、排水の水質を示したが、混合排水では硫酸塩濃度が半減している。

また本研究では、メタン発酵槽（USSB）の前段に酸生成・硫酸還元槽（SR）を設置した二槽発酵システムを混合排水の処理に適用した。一槽型のメタン発酵では、硫酸塩還元反応とメタン生成反応が同時に進行するため、硫酸塩還元により生成した硫化物によるメタン発酵阻害が生じやすい。本研究の処理システムでは、混合排水供給時の硫酸塩除去率はSRにおいて95%以上に達しており、かつ生成バイオガスによるストリップング効果によりメタン発酵槽（USSB）に流入する硫化物濃度が、メタン生成細菌の阻害濃度以下（約300 mgS/L以下）に低下していたことを確認している（データ未提示）。

表17にバイオエタノール製造廃液供給時（66日目）と混合排水供給時（145日目）のUSSB保持汚泥のメタン生成活性を示した。これより、混合排水供給時にはバイオエタノール製造廃液供給時と比較して、全ての試験基質でメタン生成活性が大幅に増加している。例えば、H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>基質では約3倍、酢酸基質では約11倍活性が増加している。また混合排水供給時にも、スクロース基質と同等の高いメタン生成活性（0.24 gCOD/gVSS/day）を示した。本研究では、排水の混合供給により阻害物質の濃度低減を図り、かつ、前段に酸生成・硫酸還元槽（SR）を接続することで、メタン

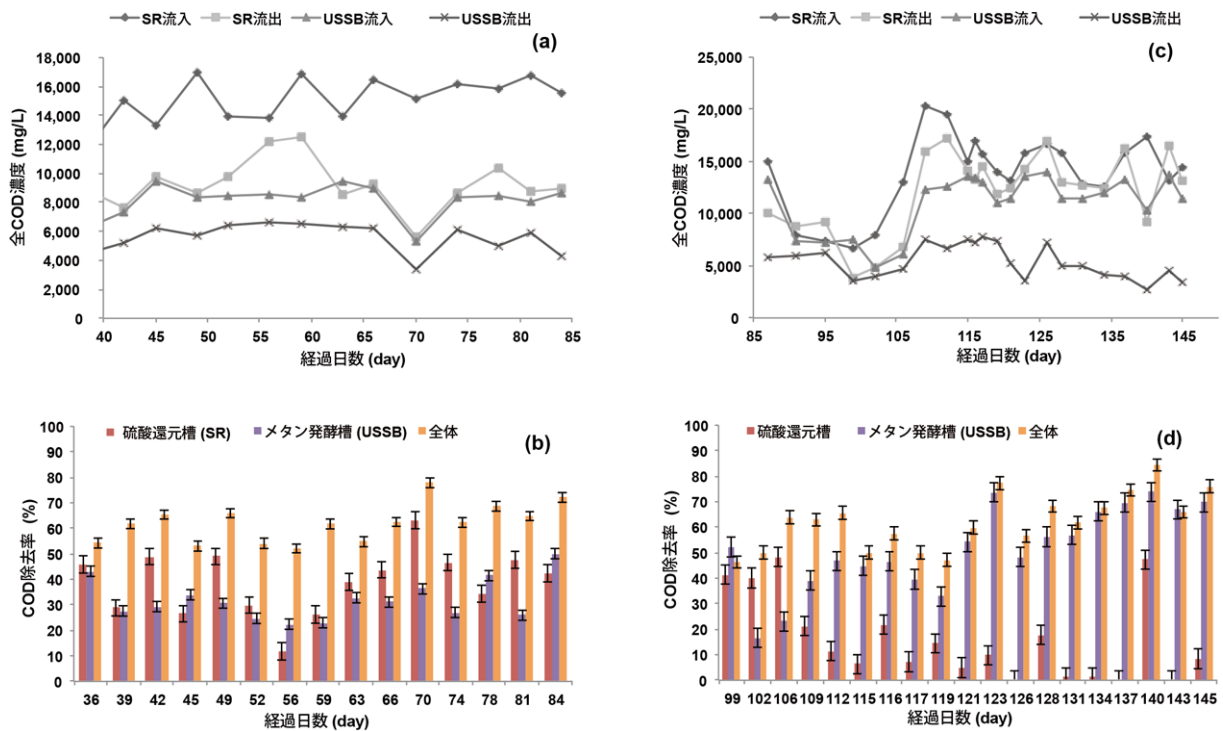


図 20 連続処理試験における流入・流出全 COD 濃度および COD 除去率の経日変化、バイオエタノール製造廃液供給時の全 COD 濃度の変化 (a)、COD 除去率の変化 (b)、混合排水供給時の全 COD 濃度の変化 (c)、COD 除去率の変化 (d)

表 17 USSB 保持汚泥のメタン生成活性 (35 °C)

供試汚泥	試験基質					
	H <sub>2</sub> /CO <sub>2</sub>	酢酸	スクロース	バイオエタノール 廃液	製糖排水	混合排水
バイオエタノール製造 廃液供給時 (day 66)	0.03	0.035	0.009	0.024	0.006	0.023
混合排水供給時 (day 145)	0.093	0.38	0.25	0.15	0.23	0.24

(メタン生成活性の単位: gCOD/gVSS/day)

生成細菌の集積化が図りやすい環境をメタン発酵槽 (USSB) で維持しており、メタン生成活性の測定結果からもその効果が確認された。

以上の結果から、バイオエタノール製造廃液と製糖排水の混合供給、酸生成・硫酸塩還元槽 (SR) とメタン生成槽 (USSB) との組み合わせによる二槽発酵により、バイオエタノール製造廃液のメタン発酵処理を安定化できることが明らかになった。

#### 2.2.4 電気分解によるバイオエタノール製造廃液の前処理法の検討

電気分解処理によるバイオエタノール製造廃液に含まれるメタン発酵阻害物質 (カリウム、硫酸塩、塩素イオン) の除去特性の評価を行った。予め、表 12 に示した廃液を規定濃度に希釈し、電気分解試験を行う前後の主要な水質の比較を行った (表 18)。

電気分解試験では、全ての希釈段階において電気分解前後で廃液の pH と電気伝導度が上昇することが明らかになった。以下の式 (5)、(6) に示すように、バイオエタノール製造廃液の酸性条件下 (低 pH) での電気分解による酸化還元反応は、水酸基 (OH<sup>-</sup>) の増加 (すなわち pH の上昇) と Fe(OH)<sub>3</sub> の沈殿をもたらす。





また式 (5) のように、鉄電極を用いた電気分解では、Fe イオンが電極から生成される。実際に、試験前後では明らかな Fe イオン濃度の上昇が、全ての系で確認された。また Fe イオン濃度の上昇が、電気伝導度の増加に寄与していると考えられる。

表 18 電気分解試験前後の廃液の水質

項目	希釈率	電気分解前			電気分解後			除去率 (%)		
		5	7	10	5	7	10	5	7	10
pH		4.41	4.43	4.44	4.69	4.78	4.88	-	-	-
電気伝導度, mS/cm		10.61	8.3	6.19	10.86	8.55	6.47	-	-	-
ORP, mV		105	121	135	-138	-184	-248	-	-	-
COD, mg/L		55,904	39,046	25,321	33,355	29,043	21,887	40.0	25.4	13.5
TSS, mg/L		2,013	1,317	1,008	950	875	763	52.8	33.4	24.1
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , mg/L		1,377	1,084	776	1,058	867	638	23.2	20.0	17.6
Cl <sup>-</sup> , mg/L		1,533	887	587	1,100	696	500	28.1	21.7	14.8
K <sup>+</sup> , mg/L		2,168	1,643	1,225	2,087	1,558	1,090	3.7	5.2	11.0
Fe, mg/L		106	58	38	261	243	196	-	-	-

また全ての実験系において、電気分解後は明らかに廃液の酸化還元電位 (ORP) が低下し、その傾向は高希釈倍率の試料で強く見られた。さらに電気分解を行うことで、全ての希釈段階において廃液の COD、TSS、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Cl<sup>-</sup> および K<sup>+</sup> 濃度を低減できることが明らかになった。希釈段階の最も低い、5 倍の条件で、COD、TSS、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Cl<sup>-</sup> の除去率が最大になった (COD 除去率 40.0%、TSS 除去率 52.8%、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 23.2%、Cl<sup>-</sup> 除去率 28.1%)。一方、K<sup>+</sup> (カリウム) については、逆に希釈率の高い条件 (10 倍) で最大 (11.0%) となり、希釈率の低下に伴い除去率が低下した。より高い希釈倍率での COD や TSS、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> などの除去率の低下は、廃液の電気伝導度や反応物質濃度の低下が原因と推測される。K<sup>+</sup> (カリウム) については、低希釈倍率で濃度が増加する傾向にあったが、メタン発酵を阻害する濃度には達していなかった。

廃液を希釈せずに電気分解反応を試みたが、その場合には発泡が生じ、電気分解反応が上手く進まない現象も観察された (データ示さず)。ある程度は、メタン発酵処理水や他の排水 (製糖排水など) を利用して、適切な希釈を行い、電気分解による前処理を行うことが必要だと考えられる。

今回の実験では、ラボスケールの試験装置を用いたため、電気分解処理に伴う電力消費は比較的大きく、約 0.5 kWh/m<sup>3</sup> となった。一方、バイオエタノール製造廃液のメタン発酵により得られるエネルギー (廃液 COD 濃度 30 gCOD/L、メタン転換率 40%、発電効率 25% と仮定) は、約 11 kWh/m<sup>3</sup> であり、他の排水処理に掛かるエネルギーを勘案しても十分に適用可能な技術の一つであると考えられる。

## 2.2.5 処理水の農地還元についての効果と温室効果ガスの発生などの環境影響評価

### (1) 温室効果ガス生成フラックスの測定

図 21 に各実験系における土壌からのメタン生成フラックスの経日変化を示す。

廃液散布直後 (0 日目)、バイオエタノール製造廃液を散布した系 (T2、T3) では、516 ~ 545 μgCH<sub>4</sub>/m<sup>2</sup> hr の比較的高いメタン生成フラックスを確認した。また、処理水を散布した系 (T4) においても 352 μgCH<sub>4</sub>/m<sup>2</sup> hr のメタン生成フラックスを示した。一方、水を散布したコントロール (T1) ではメタンの発生はほとんど生じなかった。このため、T2 ~ 4 では、散布した廃水 / 処理水に含まれる有機物が、土壌もしくは / および廃液や処理水に生息する嫌気性細菌によって分解され、メタン生成が生じたと推察される。この時、T2、T3 と T4 で散布した水の有機物濃度は大きく異なるが、メタン生成フラックスに大きな差がなかったことから、土壌における嫌氣的分解を担う細菌の存在数や活性がメタン生成フラックスに大きく関与していると推察される。また、T2、T3 で散布した廃液には、高濃度に硫酸塩やカチオン (カ

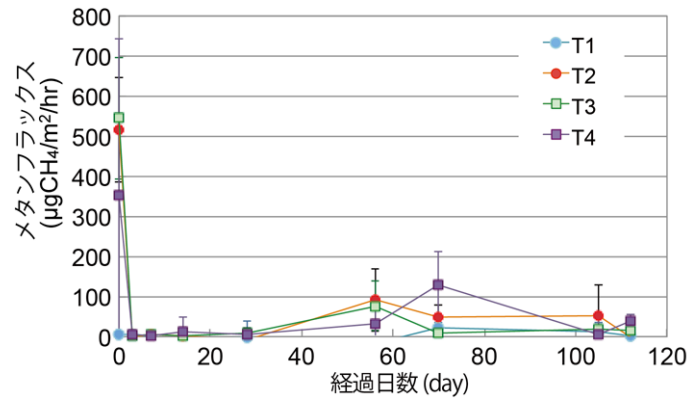


図 21 土壌表面からのメタン生成フラックスの経日変化

リウム等) が含まれるためメタン生成が抑制された可能性もある。

廃液あるいは処理水を散布した系では、測定期間を通じて最もメタン生成フラックスが高いのは散布直後であった。このメタン生成フラックスは、水田のメタン生成フラックスと比較すると 2～20% 程度であり<sup>3)</sup> 比較的低い値であった。また、散布 3 日以降にはメタン生成フラックスは 0 に近い値となった。これは土壌の水分量の減少に伴う細菌群の活性低下や土壌表面でのメタン酸化反応の進行などの影響が推測される。チャンバーを用いたメタン濃度の測定においても、長時間チャンバーを設置した場合 (3 時間以上)、メタン濃度の低下 (メタン酸化) が確認された。

散布 10 週間後、添加する灌漑用水と処理水の量を倍に増加させたところ、再びメタン生成フラックスは増加する傾向が確認された。つまり、土壌が湿潤状態となることによって、メタン生成が促進されるといえる。換言すると、土壌の水分が少ない乾燥状態では、メタンの生成が抑制されることが確認された。このとき、T2～4 のメタン生成フラックスは大きく変動する傾向が見られ、10 週目には T4 から排出されるメタン生成フラックスが他の条件のフラックスを上回る傾向があった。以上の測定結果より、廃液や処理水の土壌への散布は、一次的にメタン生成フラックスの増加をもたらすが、その影響は比較的少なく、かつ限定的であると言える。

図 22 に土壌からの亜酸化窒素生成フラックスの経日変化を示す。観測期間における最大フラックスは、0 日目の 52～94 µgN<sub>2</sub>O-N/m<sup>2</sup> hr であった。これらの値はタイの肥料散布を行った農地における亜酸化窒素生成フラックスと同程度であった<sup>4)</sup>。亜酸化窒素生成フラックスは、コントロール (T1) と他の条件の間で明確な差が確認できなかったことから、廃液および処理水由来の窒素よりも基肥 (化学肥料) 由来の窒素からの生成が大半を占めていると予測される。亜酸化窒素生成フラックスは栽培期間の経過と共に減少し、6 週経過後は 0.7～18 µgN<sub>2</sub>O-N/m<sup>2</sup> hr となった。また、メタン生成フラックスと異なり、土壌の水分量の影響は小さかった (10 週目以降も生成量が減少)。

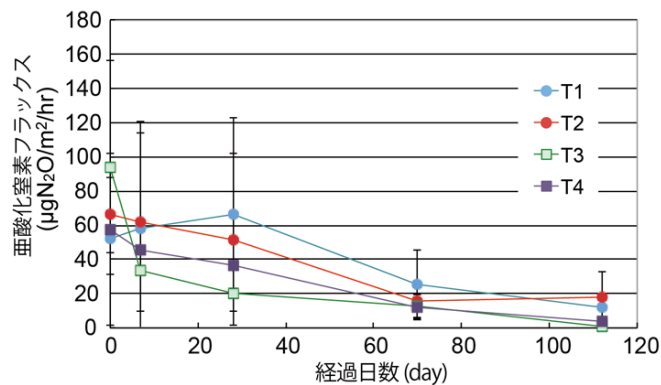


図 22 土壌表面からの亜酸化窒素生成フラックスの経日変化

## (2) 処理水の農地還元効果

表 19 にサトウキビの生育状況を示す。サトウキビの生育については、実験開始後定期的に茎の数、高さ、直径等を

表 19 各実験条件下におけるサトウキビの生育状況

条件	茎			平均重量 (kg/pot)	可製糖率, CCS. (%)	回収糖重量 (kg/pot)
	数 (no.)	高さ(cm)	直径(cm)			
T1	13	169.3	2.6	5.4	14.31	0.77
T2	12	173.4	2.8	4.7	14.02	0.66
T3	12	186.9	2.7	6.4	13.31	0.85
T4	15	170	2.6	5.8	13.17	0.76

計測した。2012年1月16日(栽培開始後約13ヶ月)に、生育したサトウキビを収穫して、茎の数、高さ、直径に加え、全重量、CCS(可製糖率:サトウキビからのスクロース回収率)等を測定した(表19)。サトウキビの生長具合は、茎の数では処理水を散布したT4がT1(コントロール)よりも多いが、太さや高さについては、蒸留廃液を散布したT2、T3よりも劣っていた。

最終的に得られた砂糖の重量で比較すると、T4はT1と同程度であり、処理水の散布は灌漑用水としての一定の効果認められた。しかし、処理水散布による生育の明確な促進は確認できなかった。この要因として、基肥や追肥に生育に十分な栄養素が含まれていたことや、今回用いた処理水が比較的低濃度(元の廃水濃度15,000 mgCOD/L)であったために、サトウキビの生長を促進させるだけの十分な栄養素を含んでいなかったことなどが挙げられる。

興味深いことに、共に蒸留廃液を供給したT2とT3において、サトウキビの生育が大きく異なる結果が得られた。T2(廃水のみ)では、生育状況がT1やT4と比べて悪く生育阻害が生じていたと考えられる。逆にT3では、水による灌漑を行ったため生育が促進され、得られた砂糖の量は最も多かった。このため、灌漑を行わない場合、蒸留廃液に高濃度に含まれるカリウムなどの無機塩類がサトウキビの生育に阻害を及ぼす可能性があることがわかった。

土壤に含まれる有機物、窒素、カリウムなどの無機元素の分析を定期的に行ったが、各条件下で明確な差が見られなかった。一方、リンの濃度は、T2およびT3の条件で明確に高く、廃水に含まれるリンが、サトウキビの生長に寄与した可能性も考えられる(データ省略)。

以上の実験結果より、処理水の灌漑用水としての循環利用は、サトウキビの成長に対して一定の効果が観察された。また、土壌からの温室効果ガス発生についても、既存の安定化池などに比べて大幅に抑制できることがわかった。

## 2.2.6 糖蜜系バイオエタノール製造工場におけるメタン発酵処理設備の現状調査

本研究では、タイの東北部および中央部における6つの工場(表14)において、メタン発酵処理設備の形式、処理フローや基本的な性能について調査を行った。表20には調査対象のA~Fの工場において、エタノールの生産量と、廃液の排出量の聞き取り調査を行った結果を示した。その結果、バイオエタノールの製造工程においては、エタノール生産量の約10.3倍量と多量の廃液が排出されていることが明らかになった。

図23に調査を行った工場における廃液処理設備の基本的なフローを示した。酵原料である糖蜜(製糖工場において砂糖生産の副産物として生成)や蒸留工程で利用されているバガス(サトウキビの絞りかす)の運搬を考慮して、殆どのバイオエタノール製造工場は、農地や製糖工場に隣接している。糖蜜発酵液の蒸留工程で生成するエタノール製造廃液は、一旦調整池に貯留され、嫌気性処理技術(メタン発酵処理設備)による処理とバイオガス(メタン)の回収が行われている。嫌気生処理(メタン発酵)としては、カバードラグーン(嫌気池にPE製のシートを貼り、バイオガスを

表 20 バイオエタノール製造工場における廃液の排出状況

工場	エタノール生産量 (m <sup>3</sup> /day)	廃液排出量 (m <sup>3</sup> /day)	廃液の排出率 (yield)
A	150	1,300	10 - 12
B	100	1,000	8 - 10
C	130	600	No data
D	365	3,500	10
E	120	1,400	10 - 12
F	25	250	10



図 23 バイオエタノール製造廃液の処理フロー

収集できる構造となっている)あるいはメタン発酵槽 (CSTR や UASB) が用いられている。技術の主な選定基準は、敷地面積と設置コストである。なお、カバードラグーンは、広い設置面積が必要になるが、建設コストはメタン発酵槽よりも安価である。嫌気性処理後の廃液は、処理液貯留槽に貯め置かれ、適宜、農地還元などに利用されている。実際には、一部、放流 (投棄) されている場合もある。

具体的な処理液の利用方法についての調査結果を表 21 に示した。メタン発酵処理後の処理液は、大規模な池での貯留、土壌改良材の製造、サトウキビ畑などへの還元 (液肥としての利用) が行われている。なお、処理液の農地還元量の平均値は  $7 \text{ m}^3/1600 \text{ m}^2$  (タイの面積単位で 1 ライに相当) となった。

仮にタイ全土で排出されている全てのバイオエタノール製造廃液をサトウキビ畑に還元すると、そのカバー率は 42.5% に達する。しかしながら、処理液には硫酸塩やカリウム等が高濃度に含まれており、継続的な農地への還元は、塩害や土壌の多孔性の減少等の農作物栽培への悪影響や地下水汚染をもたらすことも懸念されている。

糖蜜を原料としたエタノール製造工場で使用されている嫌気性廃液処理技術 (メタン発酵処理設備) の現状調査を行った。表 22 に調査を行った A ~ E の工場に導入されている嫌気性処理技術の概要を示した。また図 24 には、各工場に設置されているメタン発酵処理設備の写真を示す。

発生する廃液量はエタノール生産能力 (主にサトウキビの収穫が行われる秋期以降に生産量が拡大) に左右されるため、ほとんど処理設備には調整池 (Equalization pond) が前段に設置されている。工場に導入されているメタン発酵処理設備は 2 つのタイプに大別された。一つは反応器型の CSTR (Continuous flow Stirred Tank Reactor) であり、もう一つはラグーン型 (MCL: Modified Covered Lagoon, ADI-BVF®, UASB) である。これらのシステムは、再生可能エネルギー

表 21 バイオエタノール製造工場における廃液の排出状況

工場	処理液の水質	農地還元への使用の有無と量	他の利用
A	COD = 42,300 mg/L; BOD = 10,600 mg/L; ORP = -445 mV; pH = 7.9; $\text{Cl}^- = 2,250 \text{ mg/L}$ ; $\text{SO}_4^{2-} = 1,500 \text{ mg/L}$ ; $\text{K}^+ = 8,600 \text{ mg/L}$	使用無し	フィルターケーキと廃液を混合し、土壌改良剤を製造。
B	COD = 78,000 mg/L; BOD = 16,300 mg/L; ORP = -276 mV; pH = 7.8; $\text{Cl}^- = 2,800 \text{ mg/L}$ ; $\text{SO}_4^{2-} = 2,560 \text{ mg/L}$ ; $\text{K}^+ = 9,200 \text{ mg/L}$	$10 - 20 \text{ m}^3/1600 \text{ m}^2$	土壌改良剤の製造に利用。
C	COD = 43,000 mg/L; BOD = 10,600 mg/L; ORP = -275 mV; pH = 7.9; $\text{Cl}^- = 3,000 \text{ mg/L}$ ; $\text{SO}_4^{2-} = 2,600 \text{ mg/L}$ ; $\text{K}^+ = 8,600 \text{ mg/L}$	$4 \text{ m}^3/1600 \text{ m}^2$	-
D	COD = 77,800 mg/L; BOD = 10,900 mg/L; ORP = -800 mV; pH = 7.9; $\text{Cl}^- = 2,150 \text{ mg/L}$ ; $\text{SO}_4^{2-} = 2,700 \text{ mg/L}$ ; $\text{K}^+ = 9,500 \text{ mg/L}$	データ無し	ネピアグラスの肥料として利用。
E	COD = 59,000 mg/L; BOD = 10,600 mg/L; ORP = -370 mV; pH = 7.7; $\text{Cl}^- = 3,400 \text{ mg/L}$ ; $\text{SO}_4^{2-} = 2,000 \text{ mg/L}$ ; $\text{K}^+ = 9,600 \text{ mg/L}$	$2 \text{ m}^3/1600 \text{ m}^2$	-

表 22 バイオエタノール製造廃液のメタン発酵処理設備の概要

工場	嫌気処理システム	容量 ( $\text{m}^3$ )	流量 ( $\text{m}^3/\text{d}$ )	流入COD濃度 (mg/L)	HRT (day)	有機物負荷 ( $\text{kgCOD}/\text{m}^3/\text{day}$ )
A	CSTR	23,000	600 - 700	103,000	20	2.7
B	CSTR 1*	14,500	500	159,000	24	4 - 5
	CSTR 2*	14,500	500			
C	ADI-BVF®	27,000	450	108,500	23	2.5
	UASB*	30,000	400			
D	MCL 1*	60,000	1,000	168,700	40 - 45	2.2 - 2.7
	MCL 2*	50,000	1,500			
	MCL 3*	30,000	500 - 700			
E	MCL 1*	60,000	700	149,000	43	1.4 - 1.8
	MCL 2*	60,000	700			
F	ADI-BVF®	14,000	250	120,000	47	1.25 - 2.5



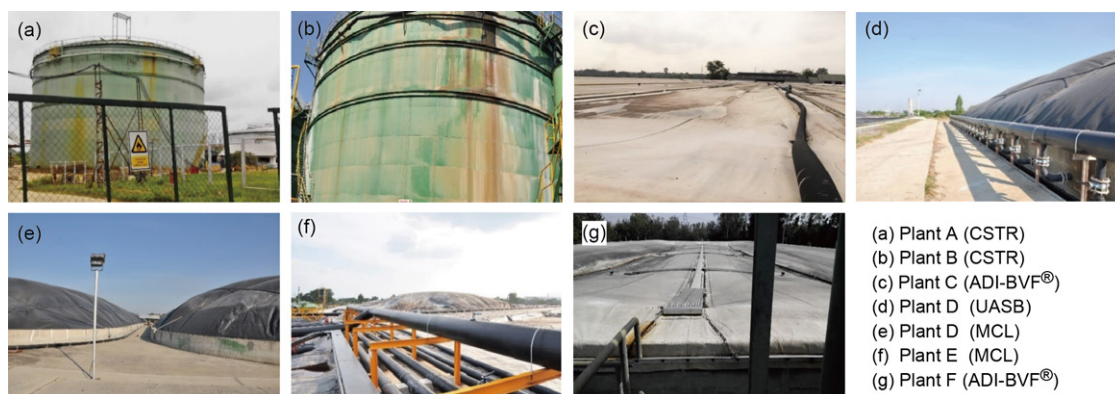


図 24 各工場に設置されている廃液のメタン発酵処理設備

ギーの回収という目的で、タイ国エネルギー省の支援（補助金）を受けて導入された。全ての処理システムは常温下（28～38℃）で運転されている。処理システム選定の基準は、敷地面積と導入コストであった。設置面積が限られている場合には、反応器型の CSTR（工場 A、B）、コストを重視する場合には、ラグーン型（工場 C～F）が選定されている。B 工場における CSTR は、他の処理システムに対して、高い有機物負荷（約 4～5 kgCOD/m<sup>3</sup>/day）で運転されており、同技術の特徴を表している。

最も普及しているのは、設置コストの安いラグーン型のメタン発酵処理システムであり、有機物負荷は比較的低い（1.7～2.7 kgCOD/m<sup>3</sup>/day）。この主な原因は、処理時間が約 40～47 日と長いことであり、CSTR の約 2 倍の設置面積が必要になる。ラグーン（嫌気池）にポリエチレン製のシートを被せただけの構造であり、建設コストが安いのが特徴である。殆どのバイオエタノール製造構造は、十分な敷地を持っているため、ラグーン型が主に選定されている。ラグーン型の処理システムは、密閉が不完全なこともあり、硫化水素の排出による悪臭や設備の腐食などが観察された。今後、対策が必要である。

表 23 には、排出されるバイオエタノール製造廃液の性状を示した。バイオエタノール製造廃液の性状は、各工場でのばらつきは多少あるものの、似かよっていた。廃液の pH は 3.9～4.5 と低かった。廃液の COD 濃度は、約 100,000 mgCOD/L から 170,000 mgCOD/L と高く、一方 BOD 濃度は低く、平均の BOD/COD 比は 0.33 であった。また、糖蜜系のバイオエタノール製造廃液の特徴である無機塩（硫酸塩 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]、塩素 [Cl<sup>-</sup>]、カリウム [K<sup>+</sup>]）の濃度も高かった。これらの無機塩はメタン生成細菌に阻害を及ぼすことが知られており、廃液の処理効率が低い原因となっている。

表 24 には、バイオエタノール製造工場に設置されたメタン発酵処理設備の性能の一覧を示した。A、B 工場で使用されている CSTR における COD 除去率は約 48.5～59% であり、有機物負荷の低い A 工場の CSTR で一番高かった（59%）。一方、BOD 除去率は 3 つの CSTR で大きな差はなく、68～73% となった。バイオガス中のメタン濃度についても、各 CSTR で差が無く 50～56% であった。メタン回収率については、有機物負荷の高い工場 B の CSTR で明らかに高かった。

比較的処理時間が長く、低い有機物負荷で運転されているラグーン型の処理システム（C、D、E、F の 4 工場：UASB、MCL、ADI-BVF®）についても CSTR と同等の COD 除去率（約 40～62%）を示した。BOD 除去率についても同様の傾向であったが、特に D 工場の UASB、MCL では 78～83% の高い除去率が得られた。メタン回収率につい

表 23 排出されるバイオエタノール製造廃液の性状

水質項目	工場					
	A	B	C	D	E	F
pH	4.3	3.9	4.6	4.5	4.4	-
COD	103,200	159,000	108,500	168,700	149,000	-
BOD	33,130	55,000	34,400	57,500	42,500	-
SS	17,000	34,300	25,000	26,300	14,600	-
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1,700	2,700	3,000	2,960	2,460	-
Cl <sup>-</sup>	3,800	5,500	3,500	2,550	4,750	-
K <sup>+</sup>	9,200	9,600	9,550	10,150	10,080	-

表 24 バイオエタノール製造工場に設置されたメタン発酵処理設備の性能

工場	嫌気処理システム	COD除去率 (%)	BOD除去率 (%)	バイオガス生産量 (m <sup>3</sup> /d)	メタン回収率 (%)	硫化水素 (ppm)	メタン回収率 (%)
A	CSTR	59	68	31,700	50 – 55.8	16,000	53
B	CSTR 1*	53.5	72.7	43,200	50 – 55	8,000 – 10,000	67
	CSTR 2*	48.5	68.2		50 – 55		73
C	ADI-BVF <sup>®</sup>	60.3	69.2	18,000	45 – 51	No data	58
D	UASB*	54.4	80.4	19,200	50 – 55.5	9,000 – 10,000	69
	MCL 1*	54.4	82.6	48,000	50 – 55.5		69
	MCL 2*	56.3	83	84,000	50 – 55.5		78
	MCL 3*	50.5	78.3	36,000	50 – 55.5		93
E	MCL 1*	61.5	76.5	54,000	45 – 55	12,000 – 13,000	54
	MCL 2*	59.3	73.5		45 – 55		56
F	ADI - BVF <sup>®</sup>	40 – 60	No data	12,500	40 – 60	No data	77

ても、D工場のUASB、MCLでは69～93%と高かった。以上の結果より、バイオエタノール製造工場に導入されている嫌気廃液処理技術（メタン発酵処理設備）については、一定以上のメタン生成能を発揮していることがわかった。一方、処理水のCODは40,000～67,000 mgCOD/Lと高く、なんらかの後処理もしくは循環利用が必要な状況であった。

得られたバイオガスは、全ての工場において何らかの利用がなされていた。利用方法については、工場内のボイラーの燃料としての利用もしくは発電であった。また調査を行った全ての工場では、バイオガス中の硫化水素除去に湿式の脱硫システム（生物脱硫）を利用していたが、容量不足もしくは運用が不適切なことから、硫化水素を含んだバイオガスがボイラー等での燃焼に使用されており、二酸化硫黄等の大気排出が懸念された。

## 2.2.7 まとめ

### (1) バイオエタノール製造廃液と製糖排水の混合処理特性の評価

- ・ 回分試験によるバイオエタノール製造廃液、製糖排水と混合排水の生分解性、メタン生成活性の評価を行った結果、バイオエタノール製造廃液単独と比べ、生分解性の向上とメタン生成量の増加が可能であることが明らかになった。
- ・ 硫酸塩還元槽（SR）とメタン生成槽（USSB）の組み合わせによるバイオエタノール製造廃液および混合排水の連続処理試験の結果、COD（有機物）除去性能は、バイオエタノール製造廃液単独では56.2 ± 7.32%にとどまったが、混合排水（バイオエタノール製造廃液と製糖排水を体積比で1:2で混合）では66.8 ± 15.7%にまで約10%上昇した。
- ・ 混合排水の供給により阻害物質の濃度低減を図り、かつ、前段に硫酸還元槽（SR）を接続することで、メタン生成細菌の集積化を図りやすい環境をメタン発酵槽（USSB）で維持したことで、USSB保持汚泥のメタン生成活性が大幅に増加した（H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>基質では約3倍、酢酸基質では約11倍）。

以上の結果から、バイオエタノール製造廃液と製糖排水の混合供給、硫酸塩還元槽（SR）とメタン生成槽（USSB）との組み合わせによる二槽発酵により、バイオエタノール製造廃液のメタン発酵処理を安定化できることが明らかになった。

### (2) 電気分解によるバイオエタノール製造廃液の前処理法の検討

- ・ 電気分解処理によるバイオエタノール製造廃液に含まれるメタン発酵阻害物質（カリウム、硫酸塩、塩素イオン）の除去特性の評価を行った。複数の希釈段階での電気分解試験の結果、最も低い希釈条件（5倍）でCOD、TSS、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Cl<sup>-</sup>の除去率が最大になった（COD除去率40.0%、TSS除去率52.8%、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 23.2%、Cl<sup>-</sup>除去率28.1%）。一方、K<sup>+</sup>（カリウム）については、逆に希釈率の高い条件（10倍）で最大（11.0%）となり、希釈率の低下に伴い除去率が低下した。また必要な電力は約0.5 kWh/m<sup>3</sup>であった。

### (3) 処理水の農地還元についての効果と温室効果ガスの発生などの環境影響評価

- ・ 廃液や処理水の土壌への散布は、一次的にメタン生成フラックスの増加をもたらすが、水田のメタン生成フラックスと比較すると2～20%程度であり、その影響は比較的少なく、かつ限定的である。

- ・ 廃液や処理水の土壌散布時の亜酸化窒素生成フラックスは、タイの肥料散布を行った農地における亜酸化窒素生成フラックスと同程度であった。
- ・ 処理水の農地への散布（灌漑用水としての利用）はサトウキビの生長に対して一定の効果が認められた。

#### (4) 糖蜜系バイオエタノール製造工場におけるメタン発酵処理設備の現状調査

- ・ 工場に導入されている廃液のメタン発酵処理設備は、反応器型のCSTR(Continuous flow Stirred Tank Reactor)と、ラグーン型 (MCL: Modified Covered Lagoon, ADI-BVF®, UASB) に大別された。最も普及しているのは、設置コストの安いラグーン型のメタン発酵処理システムであり、有機物負荷はCSTRの半分程度であった(1.7～2.7kgCOD/m<sup>3</sup>/day)。
- ・ 廃液の処理特性(COD除去特性)は、全ての処理システムで大きな差異は無く、40～60%であった。処理水のCOD濃度は40,000～67,000mgCOD/Lと高く、なんらかの後処理もしくは循環利用が必要な状況であった。
- ・ メタン発酵処理設備のメタン回収率については、多少ばらつきがあるものの、53～93%であり、また回収したバイオガスは、ボイラーの燃料や発電に利用されていた。

以上の結果より、バイオエタノール製造廃液と製糖排水の混合供給、酸生成・硫酸塩還元槽(SR)とメタン生成槽(USSB)との組み合わせによる二槽発酵により、バイオエタノール製造廃液のメタン発酵処理を安定化できることが明らかになった。また廃液の前処理として電気分解の可能性評価を行い、一定の水質改善効果(有機物や塩類の除去)を確認することができた。処理水の利用法としてサトウキビの灌漑用水としての効果を確認し、土壌からの温室効果ガス放出への影響が低いことを確認した。タイにおいて普及しているバイオエタノール製造廃液処理システムは、ラグーン型であり廃液の処理特性(COD除去特性)は、40～60%であった。処理水のCOD濃度は40,000～67,000mgCOD/Lと高く、なんらかの後処理もしくは循環利用が必要な状況であった。

#### 引用文献

- 1) Syutsubo K., Onodera T., Choeisai P., Khodphuvieng J., Prammanee P., Kaewpradit W., Kubota, K. (2013) Development of appropriate technology for treatment of molasses-based wastewater. *Journal of Environmental Science and Health: Part A.*, 48, 1114-1121.
- 2) Choeisai P., Jitkam N., Silapanoraset K., Yubolsai C., Yoochatchaval W., Yamaguchi T., Onodera T., Syutsubo K. (2014) Sugarcane molasses-based bio-ethanol wastewater treatment by two-phase multi-staged up-flow anaerobic sludge blanket(UASB) combination with up-flow UASB and down-flow hanging sponge. *Water Science and Technology*, 69 (6), 1174-1180.
- 3) Yagi K., Chairaj P., Tsuruta H., Cholitkul, W. and Minami, K. (1994) Methane emission from rice paddy fields in the central plain of Thailand. *Soil Science and Plant Nutrition*. 40(I), 29-37.
- 4) Watanabe T., Chairaj, P., Tsuruta, H., Masarngsan, W., Wongwiwatchai C., Wonprasaid S., Cholitkul, W., and Minami, K. (2000) *Nutrient Cycling in Agroecosystems*. 57, 55-65.





[資 料]



## 1 研究の組織と研究課題の構成

### 1.1 研究の組織

#### [A 研究担当者]

地域環境研究センター

環境技術システム研究室

珠坪一晃

小野寺崇

#### [B 客員研究員]

山口隆司（長岡技術科学大学）（平成 25 ～ 27 年度）

角野晴彦（岐阜工業高等専門学校）（平成 25 ～ 27 年度）

Pairaya Choeraisai（Khon Kaen University, Thailand）（平成 25 ～ 27 年度）

Wilasinee Yoochatchaval（King Mongkut's University of Technology Thonburi, Thailand）

（平成 25 ～ 27 年度）

#### [C 協力研究者]

Preecha Prammanee（MitrPhol Sugarcane Research Center Co., Ltd., Thailand）

（平成 25 年度）

藤本典之（住友重機械工業株式会社技術研究所）（平成 25 年度）

#### [D 研究生、リサーチアシスタント]

高橋省悟（長岡技術科学大学）（平成 25 年度）

向島誠貴（豊橋技術科学大学）（平成 26 年度）

吉田悠亮（長岡技術科学大学）（平成 26 年度）

石田孝弥（長岡技術科学大学）（平成 27 年度）

宮岡佑馬（長岡技術科学大学）（平成 25 ～ 27 年度）

（注）所属・役職は年度終了時点のもの。

### 1.2 研究課題と担当者

サブテーマ 1 無加温メタン発酵処理技術の性能実証と適用性評価

珠坪一晃・Wilasinee Yoochatchaval\*・角野晴彦\*・藤本典之\*\*・宮岡佑馬\*\*

サブテーマ 2 糖蜜系バイオ燃料製造廃液処理システムの最適化

珠坪一晃・小野寺崇・Pairaya Choeraisai\*・Wilasinee Yoochatchaval\*・山口隆司\*・Preecha Prammanee\*\*

（注）\*客員研究員、\*\*協力研究者および研究生

## 2 研究成果発表一覧

### 2.1 誌上発表

<雑誌>

---

発表者・(刊年)・題目・掲載誌・巻(号)・頁

---

【査読あり】

Choeisai P., Jitkam N., Silapanoraset K., Yubolsai C., Yoochatchaval W., Yamaguchi T., Onodera T., Syutsubo K. (2014) Sugarcane molasses-based bio-ethanol wastewater treatment by two-phase multi-staged up-flow anaerobic sludge blanket (UASB) combination with up-flow UASB and down-flow hanging sponge. *Water Science and Technology*, 69 (6), 1174-1180

段下剛志, 角野晴彦, 小島誠貴, 川上周司, 高石有希子, 山口隆司, 珠坪一晃 (2014) デンプン含有排水を処理する酸素供給型 DHS リアクターの運転方法の検討. *土木学会論文集 G (環境)*, 70 (7), III\_141-III\_150

藤本典之, 稲葉英樹, 窪田恵一, 珠坪一晃 (2013) EGSB 法による飲料系工場排水の無加温メタン発酵処理技術の開発. *土木学会論文集 G (環境)*, 69 (7), 623-630

Kubota K., Watanabe T., Yamaguchi T., Syutsubo K. (2015) Characterization of wastewater treatment by two microbial fuel cells in continuous flow operation. *Environmental Technology*

Kuroda K., Chosei T., Nakahara N., Hatamoto M., Wakabayashi T., Kawai T., Araki N., Syutsubo K., Yamaguchi T. (2015) High organic loading treatment for industrial molasses wastewater and microbial community shifts corresponding to system development. *Bioresource Technology*, 196, 225-234

Matsuura N., Hatamoto M., Sumino H., Syutsubo K., Yamaguchi T., Ohashi A. (2015) Recovery and biological oxidation of dissolved methane in effluent from UASB treatment of municipal sewage using a two-stage closed downflow hanging sponge system. *Journal of Environmental Management*, 151, 200-209

宮岡佑馬, 幡本将史, 珠坪一晃, 小野寺崇, 多川 正, 上村繁樹, 荒木信夫, 山口隆司 (2013) 下水処理 UASB 後段の DHS リアクターにおける排水処理特性と真核生物群集構造の季節変動. *土木学会論文集 G (環境)*, 69 (7), 257-264

Okubo T., Onodera T., Uemura S., Yamaguchi T., Ohashi A., Harada H. (2015) On-site evaluation of the performance of a full-scale down-flow hanging sponge reactor as a post-treatment process of an up-flow anaerobic sludge blanket reactor for treating sewage in India. *Bioresource Technology*, 194, 156-164

Onodera T., Tandukar M., Sugiyana D., Uemura S., Ohashi A., Harada H. (2014) Development of a sixth-generation down-flow hanging sponge (DHS) reactor using rigid sponge media for post-treatment of UASB treating municipal sewage. *Bioresource Technology*, 152, 93-100

Onodera T., Yoochatchaval W., Sumino H., Mizuochi M., Okadera T., Fujita T., Banjongproo P., Syutsubo K. (2014) Pilot-scale experiment of down-flow hanging sponge for direct treatment of low-strength municipal wastewater in Bangkok, Thailand. *Bioprocess and Biosystems Engineering*, 37 (11), 2281-2287

Onodera T., Kanaya G., Syutsubo K., Miyaoka Y., Hatamoto M., Yamaguchi T. (2015) Spatial changes in carbon and nitrogen stable isotope ratios of sludge and associated organisms in a biological sewage treatment system. *Water Research*, 68, 387-393

Onodera T., Syutsubo K., Yoochatchaval W., Sumino H., Mizuochi M., Harada H. (2015) Protection of biomass from snail overgrazing in a trickling filter using sponge media as a biomass carrier: down-flow hanging sponge system. *Water Science and Technology*, 71 (4), 518-523

Onodera T., Okubo T., Uemura S., Yamaguchi T., Ohashi A., Harada H. (2016) Long-term performance evaluation of down-flow hanging sponge reactor regarding nitrification in a full-scale experiment in India. *Bioresource Technology*, 204, 177-184

Onodera T., Takayama D., Ohashi A., Yamaguchi T., Uemura S., Harada H. (2016) Evaluation of the resilience of a full-scale down-flow hanging sponge reactor to long-term outages at a sewage treatment plant in India. *Journal of Environmental Management*, 181, 832-837

---

Pattananuwat N., Aoki M., Hatamoto M., Nakamura A., Yamazaki S., Syutsubo K., Araki N., Takahashi M., Harada H., Yamaguchi T. (2013) Performance and Microbial Community Analysis of a full-scale Hybrid Anaerobic-Aerobic Membrane System for Treating Molasses-Based Bioethanol Wastewater. *International Journal of Environmental Research*, 7 (4), 979-988

Pattananuwat N., Kawai T., Hatamoto M., Syutsubo K., Takahashi M., Harada H., Yamaguchi T. (2013) Development of Combined Anaerobic-Aerobic System for Treating Industrial Molasses Wastewater. *Journal of Water and Environment Technology*, 11 (6), 519-528

角野晴彦, 馬島孝治, 川上周司, 高石有希子, 加藤勇治, 珠坪一晃 (2013) 酸素供給型 DHS リアクターによる豆腐工場模擬排水の連続処理. *用水と廃水*, 55 (11), 836-845

角野晴彦, 森 夏希, 小野寺崇, 水落元之, 珠坪一晃 (2014) 無酸素 DHS・好気 DHS リアクターを用いた循環式硝化脱窒法による下水の連続処理. *用水と廃水*, 56 (11), 801-809

Syutsubo K., Onodera T., Choeisai P., Khodphuvieng J., Prammanee P., Yoochatchaval W., Kaewpradit W., Kubota K. (2013) Development of appropriate technology for treatment of molasses-based wastewater. *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 48, 1114-1121

谷川大輔, 久保田健吾, 佐瀬信哉, 珠坪一晃, Chen Sau Soon, Yunus Mohammed Faisal Mohammed, 山口隆司, 原田英樹 (2013) パームオイル工場廃液を処理するラグーンシステムからのメタンガス放出量の測定. *土木学会論文集 G (環境)*, 69 (4), 157-165

Tanikawa D., Syutsubo K., Watari T., Miyaoka Y., Hatamoto M., Iijima S., Fukuda M., Nguyen N.B., Yamaguchi T. (2016) Greenhouse gas emissions from open-type anaerobic wastewater treatment system in natural rubber processing factory. *Journal of Cleaner Production*, 119 (2016), 32-37

Tanikawa D., Syutsubo K., Hatamoto M., Fukuda M., Takahashi M., Choeisai P.K., Yamaguchi T. (2016) Treatment of natural rubber processing wastewater using a combination system of a two-stage up-flow anaerobic sludge blanket and down-flow hanging sponge system. *Water Science & Technology*, 73 (8), 1777-1784

Watari T., Thanh N.T., Tsuruoka N., Tanikawa D., Kuroda K., Huong N.L., Tan N.M., Hai H.T., Hatamoto M., Syutsubo K., Fukuda M., Yamaguchi T. (2016) Development of a BR-UASB-DHS system for natural rubber processing wastewater treatment. *Environmental Technology*, 37 (4), 459-465

Yodhor P., Choeisai P., Choeisai K., Syutsubo K. (2017) Effect of pH on electrochemical treatment using platinum coated titanium mesh electrodes for post treatment of anaerobically treated sugarcane vinasses. *Engineering and Applied Science Research*, 44 (1), 39-42

Yoochatchaval W., Onodera T., Sumino H., Yamaguchi T., Mizuochi M., Okadera T., Syutsubo K. (2014) Development of a down-flow hanging sponge reactor for the treatment of low strength sewage. *Water science and technology*, 70 (4), 656-663

Yubolsai C., Choeisai P., Visedkaew P., Yamaguchi T., Onodera T., Syutsubo K. (2015) Anaerobic Treatability of Cane Molasses Based Bio-Ethanol Distillery Wastewater Mixed with Cane Sugar Mill Wastewater by Two Phase Multi-Stage Upflow Anaerobic Sludge Blanket Reactor. *Journal of Sustainable Energy & Environment*, 6, 75-79

【査読無し】

Faisal, Machdar I., Muhammad S., Onodera T., Syutsubo K. (2015) Use of G3-DHS Bioreactor for Secondary Treatment of Septic Tank Desludging Wastewater. *Proceedings of The 5th Annual International Conference Syiah Kuala University (AIC Unsyiah) 2015 In conjunction with The 8th International Conference of Chemical Engineering on Science and Applications (ChESA) 2015*, 74-80

小野寺崇 (2014) 第 50 回下水道研究発表会 ポスター発表論文・優秀賞を受賞して. *下水道協会誌*, 51 (616), 76-77

Onodera T., Syutsubo K. (2015) Development of simple and cost-effective treatment system for municipal wastewater. *Proceedings of The 5th Annual International Conference Syiah Kuala University (AIC Unsyiah) 2015 In conjunction with The 8th International Conference of Chemical Engineering on Science and Applications (ChESA) 2015*, 107-111



---

発表者・(刊年)・題目・掲載誌・巻(号)・頁

---

珠坪一晃 (2013) 有機性排水の無加温メタン発酵処理技術. 用水と廃水, 55 (10), 53-61

珠坪一晃, 宮岡佑馬, 山口隆司, 角野晴彦 (2015) バンコクにおける好気性ろ床/硫黄脱窒システムによる下水処理. 環境技術, 44 (11), 605-610

Tanikawa D., Abdul Rauf A., Kubota K., Yamaguchi T., Syutsubo K., Sekiguchi Y., Yunus M.F.M., Chen S.S., Harada H. (2014) Development of High-rate Treatment System of Palm Oil Mill Effluent (POME). 9th IWA International Symposium on Waste Management Problems in Agro-Industries Proceedings, 2, 301-308

Yoochatchaval W., Onodera T., Sumino H., Yamaguchi T., Mizuochi M., Okadera T., Syutsubo K. (2013) Development of Down-flow Hanging Sponge Reactor for the low strength sewage treatment. 7th IWA International Conference on Efficient Use and Management of Water,

---

<書籍等 (分担執筆)>

---

発表者・(刊年)・題目・編著者名・書名・出版社・頁

---

珠坪一晃 (2014) バイオガス生産. 日本微生物生態学会編, 環境と微生物の事典, 株式会社 朝倉書店, 354-355

---

## 2.2 口頭発表

発表者・(暦年)・題目・学会等名称・予稿集名・頁

Choeisai P., Jitkam N., Silapanoraset K., Yubolsai C., Syutsubo K., Onodera T., Yoochatchaval W., Yamaguchi T. (2013) Sugarcane Molasses based Bio-Ethanol Wastewater Treatment by two-phase multi-staged UASB combination with UASB&DHS. 13th World Congress on Anaerobic Digestion, Abstracts

段下剛志, 角野晴彦, 川上周司, 高石有希子, 珠坪一晃 (2014) デンプン含有排水を処理する Hi-DHS リアクターの運転方法の検討. 土木学会中部支部平成 25 年度研究発表会, 同講演概要集, 491-492

段下剛志, 角野晴彦, 川上周司, 珠坪一晃, 高石有希子 (2014) 酸素供給型 DHS リアクターにおける処理性能向上のための運転方法の検討. 日本水環境学会第 48 回年会, 同講演集, 392

Faisal, Machdar I., Muhammad S., Onodera T., Syutsubo K. (2015) Use of G3-DHS Bioreactor for Secondary Treatment of Septic Tank Desludging Wastewater. The 5th Annual International Conference Syiah Kuala University (AIC Unsyiah) 2015 In conjunction with The 8th International Conference of Chemical Engineering on Science and Applications (ChESA) 2015, Abstract, 74-80

Kotchaoen W., Choeisai P., Onodera T., Syutsubo K. (2013) Evaluation of an Appropriate Vinasses Concentration for Using an Electrocoagulation Process as an Alternative Pre-Treatment Method in Combination with a UASB. 2nd International Conference on Environmental Engineering, Science and Management, Proceedings of the 2nd International Conference on Environmental Engineering, Science and Management, (28R7-05)

Kubota K., Watanabe T., Yamaguchi T., Syutsubo K. (2014) Characterization of wastewater treatment by two microbial fuel cells in continuous flow operation. 9th IWA International Symposium on Waste Management Problems in Agro-Industries, Proceedings, 2, 58-65

Mawangnutoon N., Choeisai P., Syutsubo K. (2016) Anaerobic Wastewater treatment system applied for sugarcane molasses ethanol plants in thailand. Tha National and international graduate research conference 2016, Abstracts NIGRC 2016, 96-101 <In Thai>

宮岡佑馬, 幡本将史, 山口隆司, 土橋郁恵, 小野寺崇, 珠坪一晃 (2014) 排水処理汚泥中に生息する原生動物・後生動物の群集構造解析手法の検討. 日本水環境学会第 48 回年会, 同講演集, 410

宮岡佑馬, 幡本将史, 山口隆司, 珠坪一晃 (2015) 下水処理好気性ろ床における真核生物群集構造の評価. 第 49 回日本水環境学会年会, 同講演集, 324

Miyaoka Y., Hatamoto M., Yamaguchi T., Syutsubo K. (2015) Evaluation of the eukaryotic community structure in an aerobic trickling filter for treatment of municipal sewage. The 6th IWA-ASPIRE Conference and Exhibition, Abstracts, 653

宮岡佑馬, 幡本将史, 山口隆司, 珠坪一晃 (2016) 能動的な負荷変動が好気性ろ床の保持汚泥性状に及ぼす影響評価. 第 50 回日本水環境学会年会, 同講演要旨集, 63

森 夏希, 角野晴彦, 水落元之, 小野寺崇, 珠坪一晃 (2014) AnDHS/DHS システムによる下水からの有機物・窒素除去. 土木学会中部支部平成 25 年度研究発表会, 同講演概要集

森 夏希, 角野晴彦, 珠坪一晃, 小野寺崇, 水落元之 (2014) DHS リアクターを用いた循環式硝化脱窒法による下水処理. 日本水環境学会第 48 回年会, 同講演集, 506

太田優輝, 宮岡佑馬, 幡本将史, 山口隆司, Wilasinee Yoochatchaval, 角野晴彦, 珠坪一晃 (2015) タイ王国バンコク都における DHS/ 硫黄脱窒システムによる下水処理特性の評価. 第 49 回日本水環境学会年会, 同講演集, 241

小野寺崇, 珠坪一晃, 水落元之, 岡寺智大, 藤田 壮, 角野晴彦, Yoochatchaval Wilasinee (2013) タイ・バンコクにおける開発途上国向け下水処理技術の実証試験. 下水道研究発表会第 50 回, 同予稿集, 25-27 <ポスター発表セッション優秀賞受賞>

小野寺崇, 水落元之, 岡寺智大, 藤田 壮, 珠坪一晃, ユーチャッチャヴン ウィラシニー, 角野晴彦 (2014) タイ国バンコク都における DHS リアクターの処理性能評価. 日本水環境学会第 48 回年会, 同講演集, 437

Onodera T., Kanaya G., Syutsubo K., Miyaoka Y., Hatamoto M., Yamaguchi T. (2014) Evaluation of microbial characteristics in a sewage treatment system based on stable isotope ratios. 2014 IWA World Water Congress & Exhibition

Onodera T., Syutsubo K. (2015) Development of simple and cost-effective treatment system for municipal wastewater. The 5th Annual International Conference Syiah Kuala University (AIC Unsyiah) 2015 In conjunction with The 8th International Conference of Chemical Engineering on Science and Applications (ChESA) 2015, Abstracts, 105-111

惣中英章, 珠坪一晃, 山口隆司, 福田雅夫, 谷川大輔 (2016) ラテックス廃水を対象とした低コスト型アンモニア除去システムの開発. 第 50 回日本水環境学会年会, 同講演要旨集, 676

Sumino H., Majima K., Danshita T., Kojima S., Kawakami S., Takaishi-Konda Y., Syutsubo K. (2015) A Food Industrial Wastewater Treatment in a DHS (Down-flow Hanging Sponge) Reactor. The Second Joint Seminar of Japan and Indonesia Environmental Sustainability and Disaster Prevention (ESDP-2015), Proceedings, 103-110

Sumino H., Majima K., Danshita T., Kawakami S., Takaishi-Konda Y., Syutsubo K. (2017) Treatment of food industrial wastewater by a DHS reactor and a Hi(high DO)-DHS reactor. International conference of "Science of Technology Innovation" 2017, Abstracts, 75

鈴木香奈子, 小島誠貴, 川上周司, 段下剛志, 角野晴彦, 高石有希子, 珠坪一晃 (2014) デンプン含有排水を高速処理する酸素供給型 DHS リアクター内の微生物群集構造解析. 日本水環境学会第 48 回年会, 同講演集, 413

珠坪一晃, 小野寺崇, 窪田恵一, 小林智裕, 中野遼太, 山口隆司, 谷川大輔 (2014) ギ酸の流入が UASB 保持汚泥性状に与える影響評価. 日本水環境学会第 17 回シンポジウム, 同講演集, 158-159

Syutsubo K., Onodera T., Choeisai P., Yoochatchaval W., Prammanee P. (2015) HIGH RATE ANAEROBIC TREATMENT OF MOLASSES-BASED WASTEWATER. ADTech 2015 International Conference on Anaerobic Digestion AD Technology and Microbial Ecology for Sustainable Development, Abstracts, 106 <Excellent Poster Award, Goldawarded>

Syutsubo K., Tanikawa D., Hatamoto M., Yamaguchi T., Onodera T., Miyaoka Y., Choeisai P., Yoochatchaval W., Fukuda M. (2015) INFLUENCE OF INFLOW OF FORMIC ACID ON THE MICROBIAL CHARACTERISTICS OF THE UASB SLUDGE. ADTech 2015 International Conference on Anaerobic Digestion AD Technology and Microbial Ecology for Sustainable Development, Proceedings, 198-205

珠坪一晃, 小野寺崇, 水落元之, 岡寺智大, 藤田 壮, 角野晴彦, Wilasinee Yoochatchaval, 宮岡佑馬, 太田優輝 (2015) 省エネルギー型下水処理システムのバンコクにおける性能実証. 第 49 回日本水環境学会年会, 同講演集, 438

珠坪一晃 (2015) 「水環境保全と省エネルギーに貢献する嫌気性排水処理に関するレビューと無加温メタン発酵技術の開発について」. 造水シンポジウム 2014 <最先端の省エネ型造水技術の現状と展望>, 同予稿集, 1-8

Syutsubo K., Tanikawa D., Watari T., Fukuda M., Bich N.N., Yamaguchi T. (2015) Survey of process performance and greenhouse gases emission of waste water treatment system in natural rubber processing factories. International Rubber Conference 2015, Proceedings, 498-505

Syutsubo K. (2015) Development of advanced biological wastewater treatment technology. The 5th Annual International Conference Syiah Kuala University (AIC Unsyiah) 2015 In conjunction with The 8th International Conference of Chemical Engineering on Science and Applications (ChESA) 2015, Abstracts

珠坪一晃, 宮岡佑馬, 角野晴彦 (2016) 2-propanol 含有廃水の低温メタン発酵処理特性. 第 50 回日本水環境学会年会, 同講演要旨集, 244

Tanikawa D., Watari T., Tsuruoka N., Kuroda K., Hatamoto M., Fukuda M., Syutsubo K., Nguyen T.T., Nguyen L.H., Nguyen M.T., Huynh T.H., Yamaguchi T. (2014) Development of Appropriate Wastewater Treatment System for Natural Rubber processing Factory in Vietnam. 48th Annual Conference of Japan Society on Water Environment, Abstracts, 287

Tanikawa D., Roaf A.A., Kubota K., Yamaguchi T., Syutsubo K., Sekiguchi Y., Yunus M.F.M., Chen S.S., Harada H. (2014) Development of High-rate Treatment System of Palm Oil Mill Effluent (POME). 9th IWA International Symposium on Waste Management Problems in Agro-Industries, Proceedings, 2, 301-308

Tanikawa D., Syutsubo K., Watari T., Fukuda M., Bich N.N., Yamaguchi T. (2015) Pilot study of wastewater treatment in natural rubber processing factory. International Rubber Conference 2015, Proceedings, 506-514

谷川大輔, 渡利高大, 幡本将史, 福田雅夫, 山口隆司, 珠坪一晃, Nguyen N.B. (2016) パイロット規模の 2 槽式 UASB-DHS システムによる天然ゴム製造工場廃水処理. 第 50 回日本水環境学会年会, 同講演要旨集, 70

Urasaki K., Kimura M., Sumino H., Yamaguchi T., Danshita T., Syutsubo K. (2017) Treatment of TMAH and MEA Containing Wastewater by UASB(Up-flow Anaerobic Sludge Blanket) Reactor. International conference of "Science of Technology Innovation" 2017, Abstracts, 76

Watari T., Thanh N.T., Tsuruoka N., Tanikawa D., Kuroda K., Huong N.L., Tan N.M., Hai H.T., Hatamoto M., Syutsubo K., Fukuda M., Yamaguchi T. (2014) Development of BR-UASB-DHS system for natural rubber processing wastewater. 9th IWA International Symposium on Waste Management Problems in Agro-Industries, Proceedings, 2, 66-73

渡利高大, 武笠巨堯, 黒田恭平, 幡本将史, 福田雅夫, 山口隆司, Nguyen Thi Thanh, Nguyen Lan Huong, Nguyen Minh Tan, Huynh Trung Hai, 谷川大輔, 珠坪一晃 (2015) 前段処理 baffled reactor と UASB-DHS システムによる天然ゴム製造工程廃水の処理特性. 第 49 回日本水環境学会年会, 同講演集, 51

Watari T., Mukasa K., Hoang N.M., Thanh N.T., Tanikawa D., Kuroda K., Hatamoto M., Huong N.L., Tan N.M., Hai H.T., Syutsubo K., Fukuda M., Yamaguchi T. (2015) Treatment of Natural Rubber Processing Wastewater using BR-UASB-DHS system. The 6th IWA-ASPIRE Conference and Exhibition, Abstracts, 157

渡利高大, 谷川大輔, 珠坪一晃, 山口隆司 (2016) DHS による天然ゴム製造工程廃水処理を行う嫌気性タンク処理水を対象とした後段処理. 第 50 回日本水環境学会年会, 同講演要旨集, 410

渡利高大, 鶴岡夏海, 黒田恭平, 幡本将史, 福田雅夫, 山口隆司, Thanh N.T., Huong N.L., Tan N.M., Hai H.T., 谷川大輔, 珠坪一晃 (2014) ベトナムにおける天然ゴム製造工場廃水を対象とした処理システムの開発. 日本水環境学会第 17 回シンポジウム, 同講演集, 164-165

Yubolsai C., Visedkaew P., Choeisai P., Onodera T., Syutsubo K. (2013) Anaerobic Digestion of a Mixed Wastewater Consisting of Vinasses and Cane Sugar Factory Wastewater. 2nd International Conference on Environmental Engineering, Science and Management, Proceedings of the 2nd International Conference on Environmental Engineering, Science and Management, (28R7-02)

Yubolsai C., Choeisai P., Visedkaew P., Yamaguchi T., Onodera T., Syutsubo K. (2015) Anaerobic treatability of cane molasses based bio-ethanol distillery wastewater mixed with cane sugar mill wastewater by two phase multi-stage UASB. ADTech 2015 International Conference on Anaerobic Digestion AD Technology and Microbial Ecology for Sustainable Development, Abstracts, 83

---

## 2.3 特許出願

---

発明者・出願番号・題目・その他

---

宍戸美子, 珠坪一晃・特願 2013-068572 (特開 2014-188485)・嫌気性処理方法・特許第 6029011 号 (平 28.10.28)

末広文一, 稲葉英樹, 珠坪一晃・特願 2014-117338 号・嫌気性処理装置, 嫌気性処理方法及び嫌気性処理装置の表示装置

角野晴彦, 珠坪一晃・特願 2015-179197 号・排水処理方法及び排水処理装置

藤本典之, 稲葉英樹, 珠坪一晃・特願 2013-060573・嫌気性処理システム及び嫌気性処理方法

藤本典之, 稲葉英樹, 珠坪一晃・特願 2013-060363 (特開 2014-184382)・嫌気性処理システム及び嫌気性処理方法・特許第 6019333 号 (平 28.10.14)

藤本典之, 珠坪一晃・特願 2014-050620 号・嫌気性処理システム及び嫌気性処理方法

FUJIMOTO N., INABA H., SYUTSUBO K.・PCT/JP2014/057577・ANAEROBIC TREATMENT SYSTEM AND ANAEROBIC TREATMENT METHOD, 25.09.2014

---



国立環境研究所研究プロジェクト報告 第125号  
NIES Research Project Report, No.125

(SR - 125 - 2017)

適切排水処理システムの実用的な展開に関する研究  
(所内公募型提案研究)  
平成25～27年度

Study on practical deployment of an appropriate wastewater treatment system  
FY2013～2015

---

平成29年12月20日発行

編集 国立環境研究所 編集分科会

発行 国立研究開発法人 国立環境研究所

〒305-8506 茨城県つくば市小野川16番2

E-mail: pub@nies.go.jp

Published by the National Institute for Environmental Studies

16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan

December 2017

---

組版 株式会社 イセブ

〒305-0005 茨城県つくば市天久保2丁目11-20

---

無断転載を禁じます

国立環境研究所の刊行物は以下の URL からご覧いただけます。  
<http://www.nies.go.jp/kanko/index.html>