

UASB 発酵法による乳牛糞尿搾汁液の処理効果*

梅津一孝*²・大山卓英*²・岸本 正*²・
高橋潤一*²・松本奈美*³・濱本 修*³

*¹2000 年度農業施設学会大会にて発表

*²帯広畜産大学畜産科学科, 〒080-8555 帯広市

*³三井造船株式会社, 〒104-8349 東京都

要 旨

本研究は UASB (Upflow Anaerobic Sludge Blanket) 発酵法による搾汁乳牛糞尿の処理についてグラニュール量の異なる有効容積 2000mL の発酵槽を 2 基用い、発酵温度を 35℃、水理学的平均滞留時間を 48 時間、投入 COD 負荷を 1.35～2.62 g/L/day の条件でバイオガス生成および COD 除去能力を検討した。バイオガス生成量は投入 COD 負荷の上昇に従い増加し、投入 COD 負荷とバイオガス生成量は直線的関係にあることが明らかとなった。COD 除去率は投入 COD 負荷を 1.35 g/L/day に設定した 1～12 日目で最も高い値で推移した。その後 COD 除去率は投入 COD 負荷を上昇させるに従い、徐々に減少した。グラニュール量を 500 mL とした発酵槽は 250 mL とした発酵槽に比べ、常に高い性能を有した。またこれらの関係を Oleszkiewicz (1981) のモデルと Sanchez (1994) のモデルを用いて検討した。

キーワード：UASB, 上向流嫌気発酵法, 乳牛糞尿, メタン発酵, COD 負荷

緒 言

近年、家畜飼養頭数の増加、高密度化に伴い、家畜糞尿処理が困難になっており、家畜糞尿による水質、土壌汚染は深刻な問題となっている。本研究は UASB 発酵法による畜舎排水処理の可能性について検討を行った。

UASB 発酵法とは、反応器内に接触材、充填材、流動粒子などの生物膜付着担体を用いなくて、汚泥生物自身の持つ凝集、集塊機能を利用して沈降性の優れたグラニュール状増殖集塊を形成させて高濃度の生物量を反応器内に保持しようとする、一種の自己固定化方式のメタン発酵バイオリクターである(原田, 1995)。

本報は、UASB 発酵法による搾汁乳牛糞尿処理の有効性について、グラニュール量、投入水濃度と COD 負荷さらに COD 除去率の関係を明らかにすることを目的とした。

実験方法

1. 実験装置

図 1 に実験装置の構造図を示す。UASB 発酵槽には内径 65 mm、有効高さ 700 mm、有効容積 2000 mL のアクリルライトの円柱容器を使用した。投入水供給装置にはローラーポンプを使用した。また、投入水を加温するために 35℃ に設定した恒温水槽にチューブを通し加温してから発酵槽内に注入した。恒温水槽の温度制御は保温器とサーモスタットで行った。以上のような発酵槽を 2 基用いた。発酵槽は室温を 35℃ に保った恒温室内に設置し、温度制御は恒温室内に設置した電気ヒーターとサーモスタットで行った。発酵槽内のグラニュールの量は 500 mL (A 発酵槽) と 250 mL (B 発酵槽) とし、グラニュールの高さは A 発酵槽で 280 mm、B 発酵槽で 140 mm であった。ローラーポンプにより供給される供試投入水の滞留時間を 48 時間とし、投入水 COD 濃度を調整し、COD 負荷を段階的に上昇させた。実験期間中の COD 負荷とその時の投入水 COD 濃度を表 1 に示す。

原稿受理 2003 年 9 月 9 日

照会先：umetsu@obihiro.ac.jp

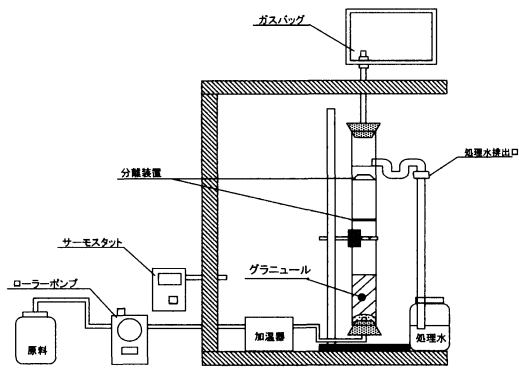


Fig. 1 Schematic diagram of experimental devices
図1 実験装置の構造図

2. 供試グラニューール

本実験では日本甜菜製糖株式会社芽室工場のピート廃液嫌気発酵処理プラントのグラニューールを使用した。グラニューールの固形分濃度は10.37%であった。また粒径は0.5～3.0 mmであった。

3. 供試投入水

本実験では一般的な搾乳農家から排出される乳牛糞尿を固液分離した搾汁液とパーラー排水などの混合液を想定し、乳牛糞尿1 kgに対して1.3倍の水道水を加えて希釈、攪拌したスラリーをオープニング3 mm、ワイヤー1 mmの金網で濾した。そのスラリーをさらに布で濾して乳牛糞尿に含まれている粗大固形物を取り除いたものを供試投入水とした。供試投入水のCOD濃度は平均8000 mg/Lであった。これを原料として水道水を加えCOD濃度を調節した。

4. 測定項目

1) バイオガス生成量

バイオガス生成量は発酵槽より生成したバイオガスをテトラガスバックに捕集し、湿式ガスメーターで毎日定時に計測した。

2) メタン濃度

テトラガスバックに捕集したバイオガスをガスタ

イトシリンジで5 mL抜き取り、ガスクロマトグラフ(SHIMAZU: GC-8A)を用い2日毎に測定した。分析条件は前報(梅津ら, 1998)に示した。

3) COD濃度

CODメーターHC-507型(セントラル科学)を用い、酸性法により2日毎に測定した。サンプルを測定可能範囲に入るように純水で希釈し、添付測定要領に従って分析を行った。

4) pH

デジタルpHメーターHV-30V(東亜電波工業)を用いて毎日測定した。

5) 揮発性有機酸量

有機酸分析は、高速液体クロマトグラフ有機酸分析システム(島津LC-10AD)を用いた。分析条件は前報(梅津ら, 1998)に示した。

結 果

1. バイオガス生成

(1) バイオガス生成

図2にバイオガス生成量の経日変化を示す。バイオガス生成量はCOD負荷を上げた直後、減少する傾向が見られたが、その後回復し、最大値はA発酵槽では52日目に1.36 L/L reactor/day、B発酵槽では57日目に1.29 L/L reactor/dayであった。バイオガス生成量は全体としてCOD負荷が上昇するに従って増加した。図3にCOD負荷とバイオガス生成量の関係を示す。COD負荷とバイオガス生成量は直線的関係にあり、バイオガス生成量はグラニューール量500 mLとしたA発酵槽の方がやや高くなった。

(2) メタン濃度

図4にメタン濃度の経日変化を示す。メタン濃度は、COD負荷1.59 g/L/dayで比較的高く、A発酵槽では41～69%、B発酵槽では47～67%の間で推移した。COD負荷を上昇させるに従い、やや減少する傾向が認められたものの、COD負荷1.98 g/L/dayではA発酵槽で57～63%、B発酵槽で52～56%、COD負荷2.62 g/L/dayではA発酵槽で60～64%、B発酵槽では55～62%の間で推移した。

表1 COD負荷と投入COD濃度
Table 1 COD loading rate and Influent COD

| Time (day) | 1～10 | 11～31 | 32～48 | 49～56 |
|----------------------------|------|-------|-------|-------|
| COD loading rate (g/L/day) | 1.35 | 1.59 | 1.98 | 2.26 |
| Influent COD (mg/L) | 5403 | 6357 | 7925 | 10474 |

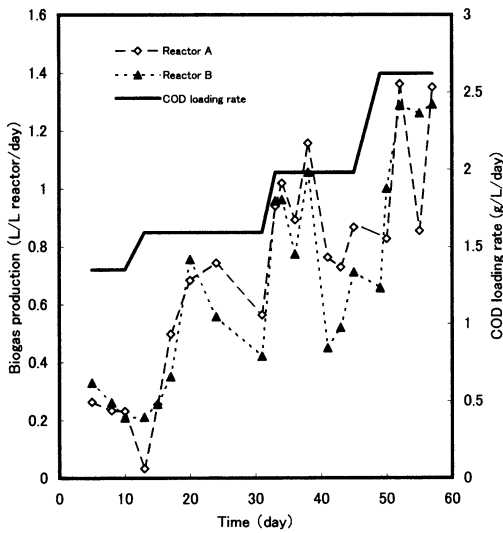


Fig. 2 Time course of biogas production
図2 バイオガス生成量の経日変化

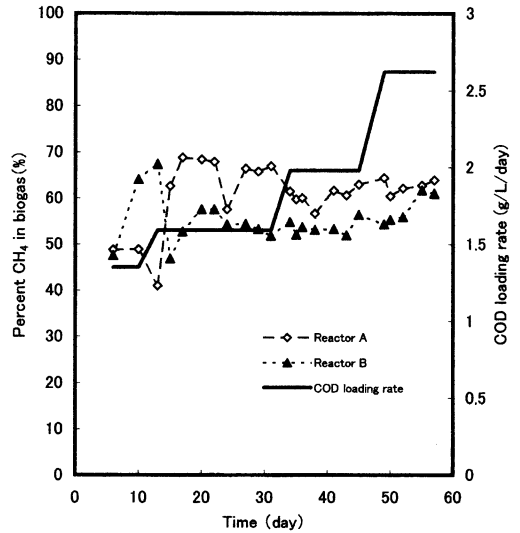


Fig. 4 Time course of percent CH₄ in biogas
図4 生成バイオガスのメタン濃度の経日変化

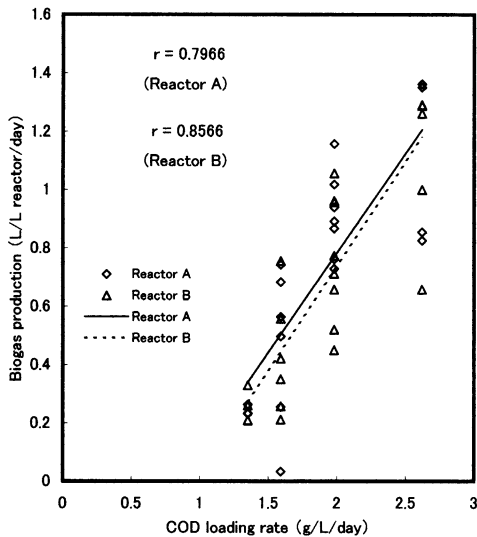


Fig. 3 Biogas production as a function of various COD loading rate
図3 COD 負荷とバイオガス生成量の関係

(3) メタン生成

バイオガス生成量とメタン濃度よりメタン生成量を算出した。表2にメタン生成量の平均値及び標準偏差を示す。メタン生成量はCOD負荷が上昇するに従って増減が激しくなるものの、増加する傾向が認められた。今回の結果は前処理としてろ過を行った豚糞排水を対象としたLoら(1994)の0.71 L/L reactor/day、屠殺場汚水を対象としたRuizら(1997)の0.32~0.60 L/L reactor/dayなどと比較するとほぼ同様の値であった。

全体的にバイオガス生成量の増減はみられるものの、メタン濃度は50%以上で推移しており、メタン発酵は順調に行われていたと考えられる。またバイオガス生成量、メタン濃度共にグラニュール量を500 mLとしたA発酵槽はB発酵槽に比べ、やや高い値で推移した。

2. 消化液の組成

(1) COD除去率

図5にCOD除去率の経日変化を示す。COD除去率は

表2 メタン生成量の平均値及び標準偏差

Table 2 Average and Standard Deviation of methane production (mL/L reactor/day)

| COD loading rate | (g/L/day) | 1.35 | 1.59 | 1.98 | 2.62 |
|------------------|-------------|--------------|---------------|---------------|---------------|
| Reactor A | Ave. ± S.D. | 122.1 ± 7.6 | 330.1 ± 159.5 | 539.3 ± 74.1 | 691.1 ± 175.9 |
| Reactor B | Ave. ± S.D. | 154.2 ± 12.1 | 245.9 ± 99.9 | 391.7 ± 115.8 | 696.4 ± 147.5 |

COD 負荷を 1.35 g/L/day に設定した 1～12 日目でも最も高く 90～95% の値を示した。COD 負荷を 1.59 g/L/day に設定した 13～32 日目も 90% 前後の高い数値で推移した。負荷を上昇させるに従い、除去率は減少し、COD 負荷を 1.98 g/L/day に設定した 33～50 日目では 75～80% の間で横這い傾向を示した。COD 負荷を 2.62 g/L/day に設定した 51～65 日目は、増減はみられるものの、比較的高い値で推移した。一般に目標 COD 除去率は対象排水によって異なる。高い除去能力の例としては高濃度の安息香酸塩を含む污水を対象とした Li ら (1995) の 97～99%，80℃ の UASB リアクターによる Lepisto ら (1996) の 97～99% などがあり、それらと比較するとやや低いものの、いずれの研究も合成排水を対象とした研究であり、畜産排水を対象とした Chen ら (1996) の 61～74%，Sanchez ら (1994) の 75% という報告と比較すると、極めて高効率な除去が行われたといえる。図 6 に COD 負荷と COD 除去率の関係を示す。COD 除去率は COD 負荷が上昇するに従い、減少することが明らかとなった。

(2) pH

図 7 に各発酵槽の pH の経日変化を示す。一般的にメタン発酵の pH 値は 7.4 前後とされているが、pH の低い例では、合成排水を対象とした Kalyuzhnyi ら (1998) の 6.5，高い例としては下水処理排水を対象とした Behling ら (1997) の 8.4 という報告がある。本実験では pH の値は 7.9～8.8 の間で推移し、それらの報告と比較するとやや高い値を示した。これらは供給

原料の pH 値が比較的高かったことが理由として考えられる。乳牛糞尿を対象とした中温メタン発酵の pH 値は 8.0 に達すること (Umetsu ら, 1992)，pH が 8 以上でメタン生成菌が存在すること (Visser ら, 1993) が知られている。本実験においても同様の結果を示した。これらのことより、pH はやや高い値で推移したが、発酵阻害を生じることなく、順調なメタン発酵が行われていたと考えられる。

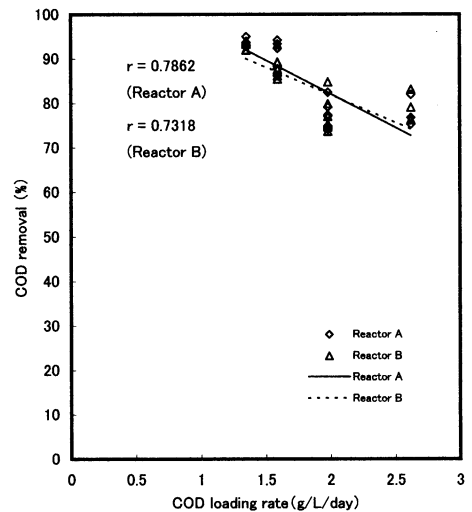


Fig. 6 COD removal as a function of various COD loading rate

図 6 COD 負荷と COD 除去率の関係

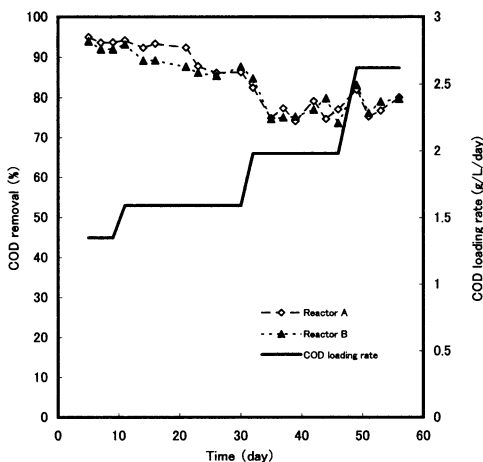


Fig. 5 Time course of COD removal

図 5 COD 除去率の経日変化

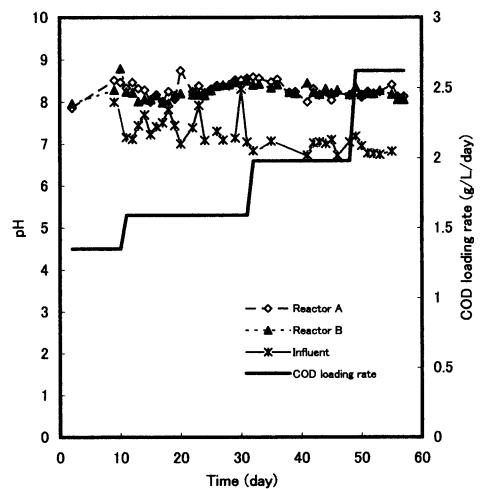


Fig. 7 Time course of pH

図 7 pH の経日変化

(3) 揮発性有機酸量

揮発性総有機酸量はメタン発酵におけるメタン濃度と共にメタン菌の活性や、発酵状態を判断する有効な要素である。図8に揮発性総有機酸量の経日変化を示す。COD負荷を1.35 g/L/dayからCOD負荷1.59 g/L/dayに設定した1～32日目までは有機酸の蓄積は認められず、揮発性総有機酸は順調に分解された。COD負荷を1.98 g/L/dayに設定した33～50日目では投入揮発性総有機酸濃度が急激に増加したため若干の蓄積が認められA発酵槽の蓄積がやや多かったが、これは測定誤差の範囲と考えられる。COD負荷を2.62 g/L/dayに設定した51～65日目では揮発性総有機酸量はA発酵槽、B発酵槽共に40.0 mg/L前後と低い値で推移した。また図9に揮発性総有機酸量分解率の経日変化を示す。揮発性総有機酸量分解率はA発酵槽では82～100%，B発酵槽では91～100%と非常に高い値で推移した。図10にCOD負荷と分解揮発性総有機酸量当たりのメタン生成量の関係を示す。分解揮発性総有機酸量当たりのメタン生成量は3～10 L/gVFA removed/dayで推移した。分解揮発性総有機酸量当たりのメタンガス生成量についてはA発酵槽がB発酵槽に比べ高い値となった。

考 察

1. メタン生成量

分解COD当たりのメタン生成量を①式より求めた。

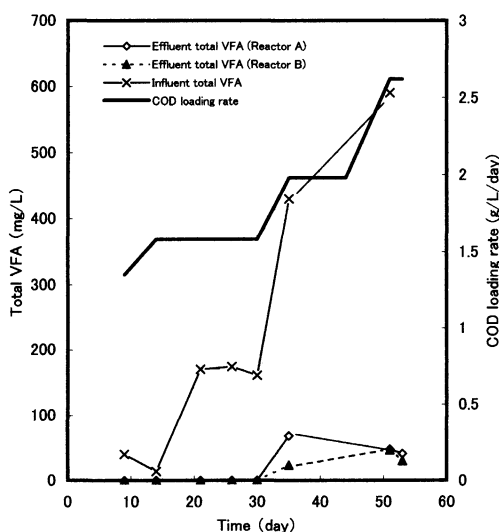


Fig. 8 Time course of total VFA
図8 揮発性総有機酸量の経日変化

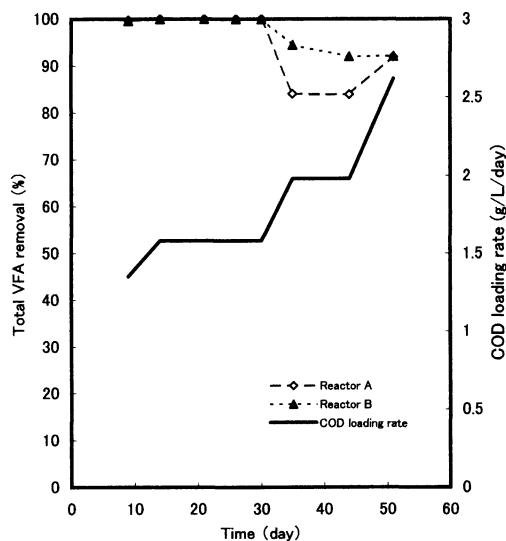


Fig. 9 Time course of total VFA removal
図9 揮発性総有機酸量分解率の経日変化

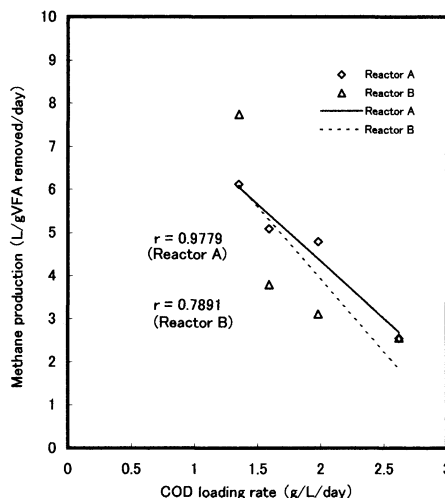


Fig. 10 Methan production per gram of total VFA removal as a function of COD loading rate
図10 COD負荷と分解揮発性総有機酸量当たりのメタン生成量の関係

$$Mo / (Sa - Se) = K_1 Bv \quad \text{.....①}$$

ここでMoはメタン生成量(L/L reactor/day), Saが投入COD濃度(g/L), Seは排出COD濃度(g/L), BvはCOD負荷(g/L/day), K₁は除去係数(g/L/day)とする。

図 11 にこれらの関係を示す。さらに Oleszkiewicz (1981) のモデルを用い、メタン生成量の解析を行った。

$$(Sa - Se)Mo = \exp(-K_2/Bv) \quad \dots\dots\dots ②$$

ここで K_2 は除去係数 (g/L/day) とする。

図 12 に $-\ln[(Sa - Se)/Mo]$ と COD 負荷の逆数の関係を示す。これらは非常に高い相関を示した。分解 COD 当たりのメタン生成量について他の報告では、屠殺場排水を対象とした Borja ら (1998) の 0.29 ~ 0.35 L/gCOD/day, 合成排水を対象とした Shankar ら (1996) の 0.14 L/gCOD/day などがある。

以上のことより、A 発酵槽、B 発酵槽共に Bv が増加するに従い Mo は上昇し、COD 負荷の上昇はメタンガス生成量の上昇に密接に関係していることが明らかとなった。またメタン生成量について A 発酵槽は B 発酵槽に比べ高い性能を有し、メタン生成量のグラニュール量依存性は高いことが明らかとなった。

2. COD 除去率

Oleszkiewicz (1981) のモデルでは COD 除去率は COD 負荷に指数依存する。

$$Se/Sa = \exp(-K_3/Bv) \quad \dots\dots\dots ③$$

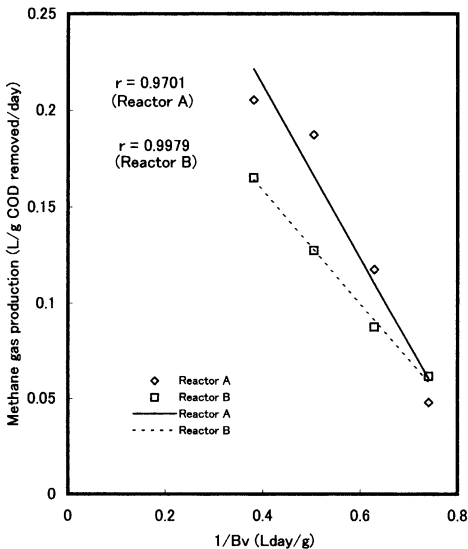


Fig. 11 Relationship between methane production per gram of COD removal and inverse of the COD loading rate

図 11 分解 COD 当たりのメタン生成量と COD 負荷の逆数の関係

K_3 (g/L/day) は除去係数とする。

図 13 に COD 負荷の逆数と $-\ln(S_e - S_a)$ の関係を示す。また、Sanchez ら (1994) のモデルでは COD 除去率は COD 負荷と投入 COD 濃度に依存する。

$$Se/Sa = 1/[1+K_4Sa/Bv] \quad \dots\dots\dots ④$$

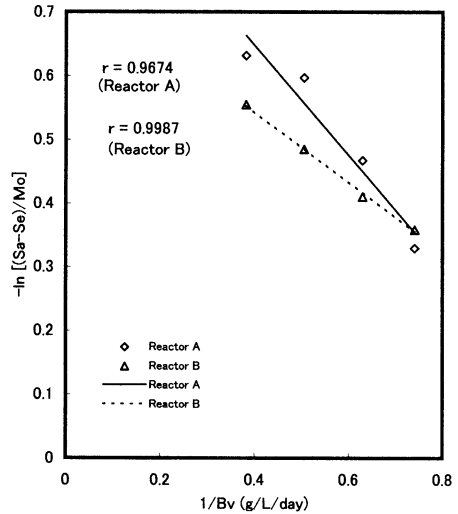


Fig. 12 Relationship between $-\ln[(Sa-Se)/Mo]$ and inverse of the COD loading rate

図 12 $-\ln[(Sa-Se)/Mo]$ と COD 負荷の逆数の関係

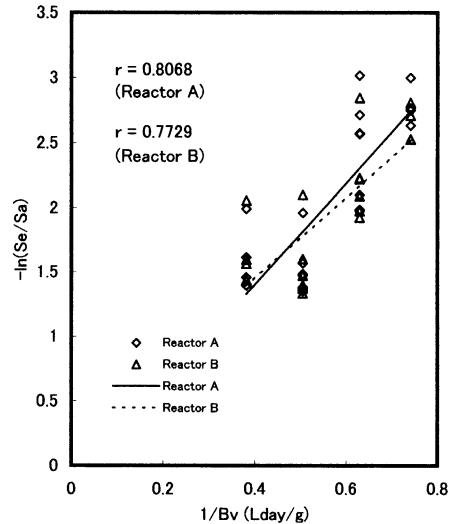


Fig. 13 Inverse of the COD loading rate versus $-\ln(Se/Sa)$

図 13 COD 負荷の逆数と $-\ln(Se/Sa)$ 関係

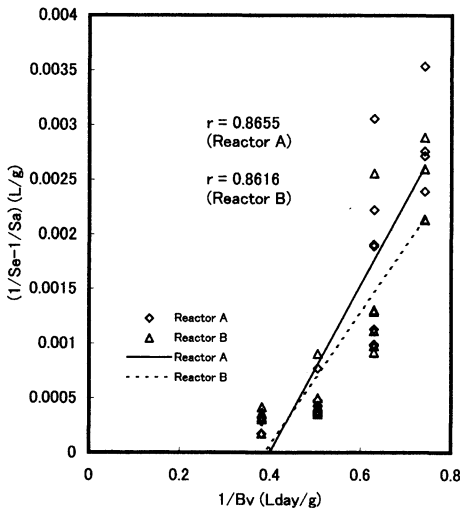


Fig. 14 Inverse of the COD loading rate versus [1/Se-1/Sa]

図 14 COD 負荷の逆数と 1/Se-1/Sa の関係

この等式は以下の式に変形することができる。

$$1/Se - 1/Sa = K_4/Bv \quad \dots\dots\dots ⑤$$

ここで K_4 は除去係数 (g/L/day) とする。

図 14 に COD 負荷の逆数と $1/Se - 1/Sa$ の関係を示す。④式から得られた相関係数は、③式より得られたそれに比べ、高い値を示した。すなわち本実験結果の解析においては Sanchez ら (1994) のモデルが有効であることが明らかとなった。

以上の結果より A 発酵槽, B 発酵槽共に COD 負荷が上昇するにつれて COD 除去率が減少することがより明らかとなった。またこれらの式から, A 発酵槽は B 発酵槽に比べ高い COD 除去性能を有していることが, 明らかとなった。すなわち UASB 発酵法による COD 除去率はグラニュール量の依存性が高く, Cronin ら (1996) の報告を裏付ける結果となった。

要 約

本研究は UASB 発酵法による乳牛糞尿搾汁液の処理についてグラニュール量の異なる内径 65 mm, 有効高さ 700 mm, 有効容積 2000 mL の UASB 発酵槽 2 基を用い, 発酵温度を 35℃, 水理学的平均滞留時間を 48 時間, 投入 COD 負荷を 1.35 ~ 2.62 g/L/day の条件でバイオガス生成および COD 除去能力を検討し, 以下の知見を得た。

1. 投入 COD 負荷とメタンガス生成ならびに COD 除去率の関係

投入 COD 負荷の上昇に従い, バイオガス生成量は上昇し, 投入 COD 負荷とバイオガス生成量は直線的関係にあることが明らかとなった。分解 COD 当たりのメタンガス生成量は 0.048 ~ 0.205L/gCOD/day であった。COD 除去率は A 発酵槽, B 発酵槽共に 5 日目に最高値 95%, 94% を示し, 投入 COD 負荷を 1.35g/L/day に設定した 1 ~ 12 日目で最も高い値で推移した。その後 COD 除去率は投入 COD 負荷を上昇させるに従い, 徐々に減少した。またこれらの関係を Oleszkiewicz (1981) のモデルと Sanchez (1994) のモデルを用い検討した。

2. 投入グラニュール量依存性

グラニュール量を 500mL とした A 発酵槽は 250mL とした B 発酵槽に比べ, 常に高い性能を有した。以上のことより UASB 発酵法におけるグラニュール量依存性が明らかとなった。

参考文献

Behling, E., Diaz, A., Colina, G., Herrera, M., Gutierrez, E., Chacin, E., Fernandez, N, Forster, C. F. (1997): Domestic wastewater treatment using UASB reactors, *Bioresource Technology*, 61, 239-245.

Borja, R. C., Banks, H. J., Wang, Z., Mancha, A. (1998): Anaerobic digestion of slaughterhouse wastewater using a combination sludge blanket and filter arrangement in a single reactor, *Bioresource Technology*, 65, 125-133.

Chen, T. H., Shyu, W. (1996): Performance of four types of anaerobic reactors in treating very dilute dairy wastewater, *Biomass and Bioenergy*, 11(5), 431-440.

Cronin, C. K., Lo, K. V. (1998): Anaerobic treatment of brewery wastewater using UASB reactors seeded with activated sludge, *Bioresource Technology*, 64, 33-38.

原田秀樹 (1995) : スラッジブランケット (UASB) 法微生物固定化法による排水処理, 第 3 版 (須藤隆一編) 産業用水調査会, 220-280.

Kalyuzhnyi, S., Santos L. E., Martinez, J. R. (1998) : Anaerobic treatment of raw and preclarified potato-maize wastewater in a UASB reactor, *Bioresource Technology*, 66, 195-199.

Lepisto, R., Rintala, J. (1996): Conversion of volatile

- fatty acid in as extreme thermophilic (76-80 °C) upflow anaerobic sludge blanket reactor, *Bioresource Technology*, 56, 221-227.
- Li, Y., Fang, H. P., Chen, T., Chui, H. (1995): UASB Treatment of wastewater containing concentrated benzoate, *Journal of Environment Engineering*, 121(10), 748-751.
- Lo, K. V., Liao, P. H., Gao, Y. C. (1994): Anaerobic treatment of swine wastewater using hybrid UASB reactors, *Bioresource Technology*, 47, 153-157.
- Oleszkiewicz, J. A. (1981): Anaerobic and aerobic biofiltration of agricultural effluents, *Agric Wastes*, 3, 285-96.
- Ruiz, I., Veiga, M. C., Santiago, P., Blazquez, R. (1997): Treatment of slaughterhouse wastewater in a UASB reactor and an anaerobic filter, *Bioresource Technology*, 60, 251-258.
- Sanchez, E. P., Weiland, P., Travieso, L. (1994): Effects of the organic volumetric loading rate on soluble COD removal in down-flow anaerobic fixed-bed reactors, *Bioresource Technology*, 47, 173-176.
- Shankar, K. S., Harada, H., Viraraghavan, T. (1996): Low-strength wastewater treatment by a UASB reactor, *Bioresource Technology*, 55, 187-194.
- 梅津一孝・牛 雨・干場秀雄・高畑英彦 (1998) : 高濃度乳牛糞尿固液分離スラリーの中温メタン発酵における担体の効果, *農業施設*, 29(2), 57-67.
- Umetsu, K., Takahata, H., Kawamoto, T. (1992) : Biogas production from cow slurry using a two-phase process. *Journal of the Society of Agricultural Structures, Japan*, 23 (2): 61-66.
- Visser, A., Gao, Y., Lettinga, G. (1993) : Effects of pH on methanogenesis and sulphate reduction in thermophilic (55 °C) UASB reactors, *Bioresource Technology*, 44, 113-121.

The Performance of UASB Reactor Treatment of Squeezed Dairy Manure*

Kazutaka UMETSU^{*2}, Takahide OHYAMA^{*2}, Tadashi KISHIMOTO^{*2}, Junichi TAKAHASHI^{*2},
Nami MATSUMOTO^{*3} and Osamu HAMAMOTO^{*3}

^{*1} Presented at the SASJ Annual Meeting in 2000

^{*2} Obihiro University of Agriculture and Veterinary Medicine, Obihiro, 080-8555

^{*3} Mitsui Engineering & Shipbuilding Co, Ltd, Tokyo, 104-8439

Abstract

The specific objective of this study is to evaluate the performance of UASB reactor in dairy manure wastewater. The experiment was conducted at four COD loading rates, and with two amount of granule seeded. Based on statistical analysis of data from this experiment the following conclusions were given:

The increase of biogas and methane gas production were observed with the increase of the COD loading rate, the results appeared to show a linear relationship between the COD loading rate and the biogas and methane gas production.

At a COD loading rate of 1.35 g/L/day, the UASB reactors effectively removed 94 ~ 95 % of COD from the dairy wastewater, then the COD removal capacity of the UASB reactors gradually declined with the increase of the COD loading rate.

The performance of Reactor A, seeded with 500 mL of granule was able to achieve higher COD removal and higher methane gas production at all COD loading rates than Reactor B, which was seeded with 250 mL of granule. The amount of seed granule used is an important parameter in reactor performance of UASB reactors.

Keywords: UASB, Upflow anaerobic sludge blanket, dairy manure, Methane, Biogas