

単一槽同時硝化・脱窒プロセスに用いる包括固定化担体の開発に関する研究

○日本大学大学院 学生会員 吉田征史
 日本大学理工学部 正会員 齋藤利晃
 日本大学理工学部 正会員 田中和博

1.はじめに

現在、閉鎖性水域における富栄養化の原因となる下水中の窒素・リンを高除去率で処理する高度処理技術が急務とされている。そこで我々は現在実用化されている包括固定化担体を用いた硝化促進型循環変法(二槽構造)よりも更に省スペース化かつ省エネルギーで維持管理も容易となるプロセスとして、図1に示すように担体表面の好気層で硝化、内部の無酸素層で脱窒を行う単一槽での同時硝化・脱窒プロセスの開発を試みた。これまでに実用化されているポリエチレングリコール(以下 PEG)担体を用いて実験を行った結果、必ずしも十分な窒素除去率は得られなかった¹⁾。その原因として使用した担体の物質透過性が低かったことが考えられた。そのため、実用化しているPEG担体とは多少作成法の異なる独自のPEG担体(担体作成時の阻害物質となるメチレンビスアクリルアミド(以下 MBA)の使用量を低減した)を作成し、さらにPEGにアルギン酸ソーダを混合することで物質透過性の改善を試みたPEG-アルギン酸複合担体を作成した。その後これらの担体の特性を調べ、さらに合成排水を用いた処理能力の検証を行った。

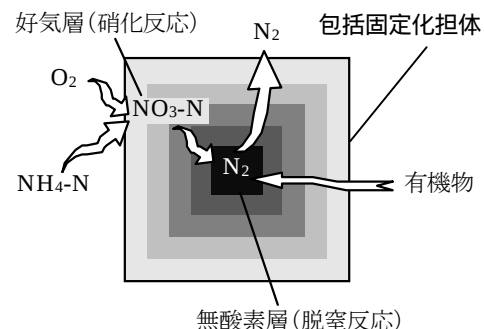


図1：同時硝化・脱窒の概念図

2.実験方法

作成した担体は、MLSS 約 70g/l の濃縮汚泥と純水を重量比 1:1 で混合し、PEG や MBA などの試薬（以下 PEG 溶液）を添加して包括固定化した PEG 担体と、MLSS 約 70g/l の濃縮汚泥と 0.1、0.25、0.5% のアルギン酸ソーダ溶液をそれぞれ重量比 1:1 で混合し、PEG 溶液を添加して包括固定化した PEG-アルギン酸複合担体の計 4 種である。

実験は、担体の（1）生物分解性のあるアルギン酸の分解前後で、物質透過性を評価する指標である空隙率と分配係数がどう変化するかを調べる。（2）固定化反応の阻害による微生物の失活の程度を評価する指標として活性残存率を調べる。また、その後担体を 1~2 ヶ月間馴養し、硝化および脱窒回分実験を行うことで馴養による処理能力の変動を調べるとともに同時硝化・脱窒処理の可能性を確認するため、DO3~5mg/l の好気条件下での脱窒回分実験も行う。

2-1.空隙率、分配係数

作成直後の担体を A 担体、約 1 週間好気条件下にさらしてアルギン酸成分を分解させた担体を B 担体と称し、それらを高圧滅菌処理して固定化した微生物を死滅させる。その後各担体と NH₄Cl 溶液（20mgN/l）をそれぞれ 5ml ずつバイアルに入れ 24 時間以上放置し濃度平衡させ、平衡前後の NH₄⁺-N 濃度から分配係数を求める。また、空隙率を求めるため担体の湿潤・乾燥重量を測定する。

2-2.活性残存率および硝化・脱窒回分実験

活性残存率を求めるため、有効容積 150ml の反応槽に各担体を体積比 10% で添加し、硝化および脱窒回分実験を行う。硝化回分では NH₄Cl 溶液(30mgN/l)の基質を、脱窒回分では KNO₃ と C₆H₁₂O₆ 溶液(30mgN/l、120mgC/l)の基質を用い、各々硝化および脱窒速度を求める。また、活性残存率を算出するため活性汚泥のみの系列も回分実験を行う。

馴養後の硝化および脱窒速度を求めるため、有効容積 800ml の反応槽に各担体を体積比 10% で添加し、硝化および脱窒回分実験を行う。各基質は上記の実験と同様である。また、脱窒回分実験は無酸素条件と好気条件の二通りを行う。

3.実験結果および考察

3-1.空隙率、分配係数

作成担体の湿潤・乾燥重量から算出した各担体の空隙率と、測定した平衡前後の NH₄⁺-N 濃度を用いて式²⁾から算出した各担体の分配係数を図2に示す。PEG 担体と PEG-アルギン酸複合担体とは異なった傾向が見られ、PEG-アルギン酸複合担体においてはアルギン酸含有濃度の影響が認められた。このことから、PEG 担体はアルギン酸含有濃度が 0% の担体ではあるが、複合したものとは違ったものとは違う特性を持っている可能性が示唆された。PEG-アルギン酸複合担体において、A 担体ではアルギン酸含有濃度が高くなるほど空隙率が低下しているが B 担体ではやや異なった傾向を示した。

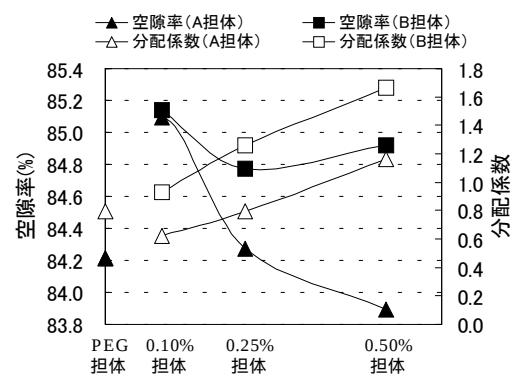


図2：各担体の空隙率、分配係数

キーワード：包括固定化担体、窒素除去、同時硝化・脱窒、アルギン酸ナトリウム、物質透過性
 連絡先：〒101-0062 千代田区神田駿河台 1-8-14 TEL 03-3259-0875 FAX 03-3259-0875

また、A 担体と B 担体を比べると全ての担体において B 担体の方が空隙率が高くなっており、さらにアルギン酸含有濃度が高いものほど、その増加率が高い。このことから、アルギン酸が分解されたことにより空隙率が高くなったと考えられる。分配係数と合わせて見ると、A 担体では空隙率が低くなるほど（アルギン酸含有濃度が高くなるほど）分配係数が高くなるのに対し、B 担体では A 担体よりも空隙率が高くなっているにも係わらず分配係数も高くなっている。このことから A 担体ではアルギン酸の吸着能力により分配係数が高くなっていたが、B 担体では吸着効果のあるアルギン酸が分解されてしまっても、その分物質の浸透容量（空隙率）が増加するため、さらに分配係数が高くなることが明らかとなった。

$$K_p = \frac{V_0}{V_p} \times \frac{C_0 - C_f}{C_f} \quad \left(\begin{array}{ll} V_0 : \text{溶液量(ml)} & C_0 : \text{初期基質濃度(mg/l)} \\ V_p : \text{担体量(ml)} & C_f : \text{基質平衡濃度(mg/l)} \end{array} \right) \cdots \text{式}$$

3-2-1. 活性残存率

回分実験より得られた硝化および脱窒速度を用いて、式より算出した活性残存率を表 1 に示す。硝化細菌は固定化反応による失活が著しく、アルギン酸含有濃度が高いほど残存率が高くなる傾向が見られた。一方、脱窒細菌はアルギン酸含有濃度による影響はあまり見られなかったが、独立栄養細菌である硝化細菌と比較すると、従属栄養細菌である脱窒細菌は固定化反応による阻害の影響を受け難いことが確認された。

$$\text{活性残存率 (\%)} = \frac{\text{担体の硝化(脱窒)速度}}{\text{活性汚泥のみの硝化(脱窒)速度}} \times 100 \cdots \text{式}$$

表 1：硝化細菌、脱窒細菌の活性残存率

担体名	活性残存率 (%)	
	硝化細菌	脱窒細菌
PEG担体	7.7	39.8
0.10%担体	3.6	45.4
0.25%担体	4.4	45.0
0.50%担体	8.3	35.6

3-2-2. 合成排水を用いた処理能力調査

硝化回分実験より得られた作成直後と馴養後の各担体の硝化速度を図 3 に示す。実験の初期において馴養装置に基質投入ポンプのトラブルがあり、PEG 担体、0.5%担体では作成直後よりも硝化活性を失ってしまった。また、0.1%担体、0.25%担体では作成直後と比較して各々約 2 倍、約 8 倍の硝化速度が得られたが、硝化促進型循環変法に用いられている包括固定化担体は約 1 ヶ月の馴養で、水温 13 の低水温でも硝化速度が概ね 100mgN/(l-pellet・h)となる³⁾ことから考えると小さい値であった。

脱窒回分実験より得られた作成直後と馴養後の各担体の脱窒速度を図 4 に示す。全ての担体において作成直後より脱窒速度は 2～3 倍増加している。アルギン酸含有濃度による影響は明確ではないが、馴養により脱窒細菌は活性を取り戻していた。同じトラブルを受けながらも硝化細菌と脱窒細菌に回復の差が生じたのは増殖速度の違いが顕著に表れた結果だと考えられる。好気条件下での脱窒速度は無酸素条件下と比較して、全ての担体において 6～8 割と高い値が得られた。また、PEG - アルギン酸複合担体においてはアルギン酸含有濃度が高くなるほどこの割合が低くなっている。これは、アルギン酸成分の分解に伴い空隙率が高くなり担体表面積が拡大したため、担体内部無酸素層の形成に影響を与えていると考えられる。

4. まとめ

アルギン酸を複合した担体は、アルギン酸成分の分解に伴い空隙率、分配係数などの物理化学的性質が向上する。さらに、A 担体ではアルギン酸の吸着能力により分配係数が高くなっていたが、B 担体では吸着効果のあるアルギン酸成分の分解に伴い、浸透容量（空隙率）が増加するため、さらに分配係数が高くなることが明らかとなった。硝化細菌（独立栄養細菌）に比べ、脱窒細菌（従属栄養細菌）は固定化反応による阻害を受け難いことが確認された。馴養初期のトラブルにより硝化細菌は活性を著しく失ってしまったが、同じトラブルを受けている脱窒細菌は作成直後よりも馴養後に 2～3 倍の脱窒速度が得られた。また、好気条件下での脱窒速度が無酸素条件時の 6～8 割と高い値が得られた。アルギン酸含有濃度が高くなるほどこの割合が低くなることから、アルギン酸成分の分解に伴い空隙率が高くなり担体表面積が拡大したため、担体内部無酸素層の形成に影響を与えていると考えられる。

今回作成した担体は通常無酸素条件下で行われる脱窒反応を、馴養中にトラブルがあったにも係わらず DO3～5mg/l の好気条件下でも脱窒速度 34.1～42.2mgN/(l-pellet・h)が得られた。

参考文献 1) T.Kikuchi et.al 『STUDY ON SIMULTANEOUS NITRIFICATION AND DENITRIFICATION USING IMMOBILIZED PELLETS』ASIAN WATERQUAL '99 P.505～510 1999 年 2) 角野 立夫 『包括固定化微生物による排水処理の研究』 - 活性汚泥の包括化による硝化効率の向上 - 1992 年 3) 下水道事業団、日立プラント建設 『包括固定化担体を用いた硝化促進型循環変法「ペガサス」の評価に関する報告書』平成 5 年 3 月

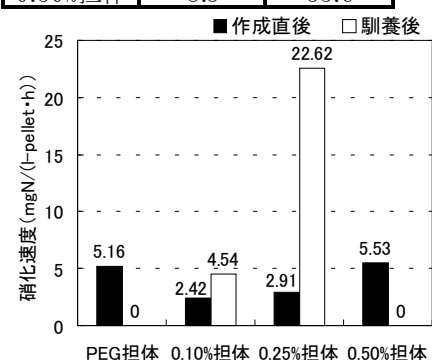


図 3：作成直後と馴養後での硝化速度

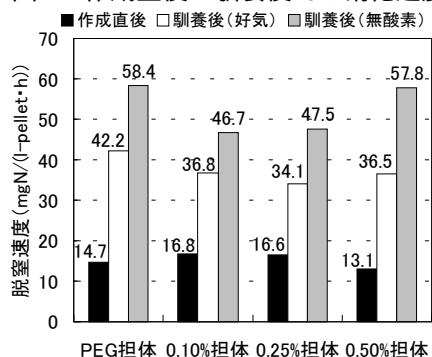


図 4：作成直後と馴養後での脱窒速度