

処理水循環を伴った DHS リアクターにおける アンモニア性窒素とフェノールの同時除去

木更津高専 学生会員 ○池田直生 松林未理 正会員 大久保努 上村繁樹
長岡技術科学大学 学生会員 青木仁孝 正会員 山口隆司
東北大学 学生会員 名取哲平 正会員 原田秀樹

1. まえがき

本研究室では、有機物、アンモニア性窒素 (TAN) を大量に含んだ産業廃水 (鉄鋼廃水等) を対象とし、前段で DHS (下降流スポンジ懸垂) リアクターを用いた有機物除去とアンモニア酸化を行い、後段で従来の脱窒もしくは嫌気性アンモニア酸化等により窒素を除去する新しい廃水処理システムの開発を行っている。既報において、DHS の優れた有機物除去およびアンモニア酸化性能について報告したが、さらに流入の窒素量に対して処理水に未回収の窒素分が確認されたことから、本来、好気性処理である DHS において脱窒が起きていることが示唆された¹⁾。

本研究では、窒素酸化物 (NO_x-N) を多く含む処理水の一部を連続的に 1st 流入口に循環し、DHS の脱窒の促進を行い、最大の脱窒率が得られる循環比 (R) を求めた。また DHS 内の鉛直方向での硝化、脱窒活性試験およびクローニング解析を行い菌叢の分布を調査した。本研究では、人工廃水中の有機物源としてフェノールを用いている。フェノールは多くの菌種に阻害性を持っているため、窒素および有機物除去に対するフェノールの阻害性の検討を行った。

2. 実験方法

本研究で用いた DHS は、3 台の同形状のユニットから成り、廃水の流入順に 1st, 2nd および 3rd と称する (図-1)。無機炭素 (IC) とアルカリを補給するために 2nd と 3rd の上部から炭酸水素ナトリウムを添加した。人工基質の組成は、TAN ; 500 mg/L, フェノール ; 600 ~1800mg/L (1440~2880mg-COD/L), 炭酸水素ナトリウム ; 3600 mg/L とし、さらに人工海水を添加し塩分を 10.9g-Cl/L に設定した。表-1 に各 Phase における DHS の運転条件を示した。Phase 1 から Phase 5 にかけて、段階的に循環比を増加させ、脱窒の促進を試み、それ以降の Phase 6 から Phase 8 においては R=1.5 のもと、人

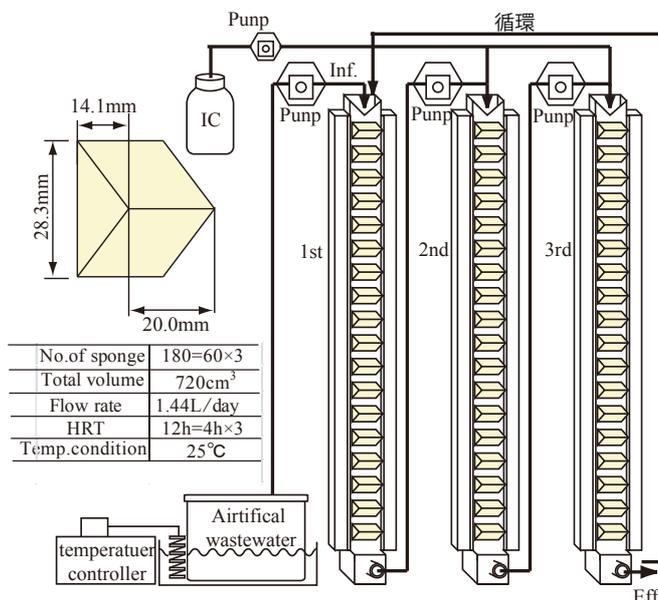


図-1 DHS リアクター概要

表-1 各 Phase の運転条件

Phase	期間 (day)	HRT (h)	流量 (L/day)	R (-)	TAN (mg-N/L)	Phenol (mg/L)	COD (mg/L)
1	0-175	12	1.44	0.0	500	600	1440
2	176-253	12	1.44	0.5	500	600	1440
3	254-303	12	1.44	1.0	500	600	1440
4	304-354	12	1.44	1.5	500	600	1440
5	355-550	12	1.44	2.0	500	600	1440
6	551-839	12	1.44	1.5	500	600	1440
7	840-941	12	1.44	1.5	500	1200	2160
8	978-1032	12	1.44	1.5	500	1800	2880

工廃水中のフェノール濃度を増加させ、フェノールの分解および DHS の窒素除去性能への影響性についての検討を行った。TAN, 硝酸性窒素 (NO₂-N), 硝酸性窒素 (NO₃-N), COD, フェノール, 塩化物, pH, および温度の測定を行った。なお本 DHS は、約 1100 日にわたり、既報¹⁾に示した連続処理実験を行った装置を継続して使用したものである。また R=1.5 において硝化および脱窒に関する活性試験を行うとともにクローニングによる菌叢解析を行い、DHS 内の流下方向への硝化、脱窒に関与する菌叢の分布を調査した。

キーワード DHS, アンモニア, フェノール, 硝化, 脱窒

連絡先 〒292-0041 千葉県木更津市清見台東 2-11-1 木更津高専 上村 繁樹 TEL 0438-30-4152

3. 結果および考察

3.1 処理水循環による脱窒の促進

図-2(a)に Phase 1~5 の処理水中の各無機態窒素の割合を示した。なお図中の未回収の無機態窒素の割合を脱窒率とした。Phase 1 から Phase 4 まで段階的に循環比を増加したことにより、Phase 1 では $19.1 \pm 14.7\%$ であった脱窒率は R=1.5 の Phase 4 では $58.6 \pm 6.2\%$ まで増加した。しかしながら、Phase 5 (R=2.0) では脱窒率は $50.9 \pm 9.3\%$ に減少した。これは循環水が DO を多く含んでいるため、循環率を上げたことにより生物膜内の DO が増加したためと考えられる。また R=1.5 で行われた硝化および脱窒の活性試験により、DHS の 1st 上部にて、脱窒活性が高く、それ以降で硝化活性が高いことが確認された。これは廃水中のフェノール濃度の影響であると考えられた。またクローニングによる菌叢解析でも、1st で脱窒細菌が、2nd, 3rd からは硝化細菌が多く検出された²⁾。特に 1st からフェノールを含む芳香族化合物を電子供与体を利用可能な脱窒細菌である *Azoarcus*³⁾ が検出された。1st において *Azoarcus* によるフェノールを直接電子供与体を利用した脱窒が行われている可能性が示唆された。

3.2 フェノールの分解と窒素除去への阻害性

Phase 7 では Phase 6 対して廃水中のフェノールを増加させたことにより、脱窒率は $71.6 \pm 4.7\%$ まで増加した (図-2(b))。しかしながら、Phase 8 においては脱窒率が $69.2 \pm 5.3\%$ となり、窒素除去性能の向上は確認されなかった。また Phase 8 では処理水中に $23.6 \pm 4.9\%$ の TAN の蓄積し、さらに循環水中の $\text{NO}_x\text{-N}$ の減少が確認された。これより、硝化細菌がフェノールにより阻害を受け、DHS 内における脱窒性能にも影響を与えたものと推測された。

図-3 に Phase 6~8 における流入および各ユニットの処理水中の COD 濃度と、フェノール濃度を COD 換算した結果を示す。すべての Phase において最終処理水の COD 除去率は 90% 以上であり、フェノールは完全に除去されていた。特に Phase 6, Phase 7 においては 1st 処理水において既にフェノールは完全に除去され、人工廃水中のフェノール濃度が最も高い Phase 8 においても 2nd 処理水において完全に除去されていた。

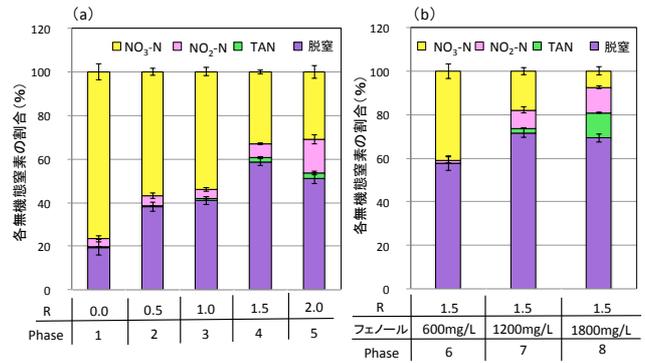


図-2 各 Phase における各無機態窒素濃度の割合

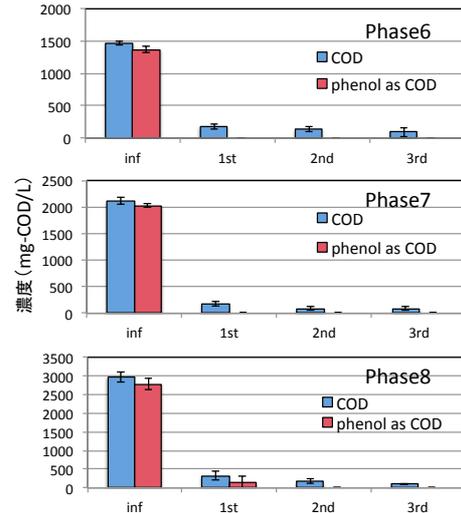


図-3 各ユニットにおける COD およびフェノール濃度

4. まとめ

循環比の増加による DHS 内における脱窒の促進では R=1.5 の条件で、約 60% の脱窒率が得られた。同条件のもと行われた活性試験により 1st 上部にて脱窒活性が高く、それ以降硝化活性が高いことが確認された。この脱窒はフェノールを電子供与体に直接利用する脱窒細菌 *Azorcus* が寄与している割合が大きいことが考えられる。

R=1.5 で人工廃水中のフェノール濃度を増加させたところ、フェノール 1200mg/L では脱窒率の向上が確認されたが、1800mg/L では窒素除去に対するフェノールの阻害が確認された。またいずれも COD 除去率は 90% 以上の高い性能を維持し、フェノールは 1st あるいは 2nd の段階で既に除去されていた。

参考文献

- 1) 鈴木他 (2008) 土木学会論文集 G, 64, 4, 327-335,
- 2) 千田他 (2010) 第 38 回土木学会関東支部技術研究発表会
- 3) Y. Shinoda (2000) Appl. Environ. Microbiol, 66, 4, 1286-1291