

循環回数による硝化型 DHS リアクターの硝化能力への影響

長岡技術科学大学 学生会員 ○中野 遼太, 古川 斐人
非会員 阿部 憲一 正会員 幡本 将史, 山口 隆司

1. はじめに

水生生物を飼育する水族博物館や水産養殖施設では、生物の生育環境である飼育水の水質管理が最も重要である。特に、排泄物や残餌から排出されるアンモニア態窒素 ($\text{NH}_4^+\text{-N}$, NH_3 : Total Ammonia Nitrogen (TAN)) や、硝化反応の中間生成物である亜硝酸態窒素 ($\text{NO}_2\text{-N}$) は低濃度でも魚体に対して毒性が強いため、速やかに除去される必要がある。また、硝化の最終反応物である硝酸態窒素 ($\text{NO}_3\text{-N}$) も比較的毒性は低いものの、高濃度 ($> 30 \text{ mg-N/L}$) では魚の免疫系に悪影響を及ぼすことが知られている。我々はこれまでに、硝化型 Down-flow Hanging Sponge (DHS) リアクターと脱窒型 Up-flow Sludge Blanket (USB) リアクターを組み合わせた水質維持管理システムを開発した¹⁾。水族博物館 (排出 TAN 濃度 $1.5 \text{ mg-N} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{L}^{-1}$) での実証実験では、飼育水中の TAN, $\text{NO}_2\text{-N}$ は $0.1 \text{ mg-N} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は $30 \text{ mg-N} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下と目標値を達成し、十分な水質維持性能を有することが示された²⁾。本システムは省スペース (水槽容積の 1%) で維持管理が容易 (逆洗浄不要) であるので、更なる適用範囲の拡大も期待できると考え、次なる標的を水産養殖施設に定めた。水産養殖での魚体密度は $0.5 \sim 25 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, 排出される TAN も $0.25 \sim 12.5 \text{ mg-N} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{L}^{-1}$ と水族博物館と比べて最大で 10 倍以上高い^{3,4)}。そこで本研究では、硝化性能の向上を図るために硝化型 DHS リアクターの循環回数による処理能力への影響を調査し、さらに、硝化能力の回復性能を調査することで、循環型窒素除去システムの水産養殖施設への適用可能性を評価した。

2. 実験方法と実験条件

図 1 に実験装置の概略、表 1 に実験条件を示す。実験装置は、水槽 60 L, 硝化型 DHS リアクター (容積: 0.6 L, スポンジ充填率: 47%) で構成した。DHS リアクター内スポンジへの植種源は、水族博物館の砂ろ過槽内のサンゴ砂に付着した生物膜を用いた。模擬飼育水には人工海水を、窒素源には NH_4Cl を用いた。同様な装置を 3 基用意し、それぞれの循環回数は、これまでの研究で行った実験と同様な $1 \text{ turn} \cdot \text{hr}^{-1}$ と比較するため、 $0.5, 1, 4 \text{ turn} \cdot \text{hr}^{-1}$ (流量: $30, 60, 240 \text{ L} \cdot \text{hr}^{-1}$) の 3 種とした。実験開始 0~46 日目では、水族博物館と同じ窒素負荷である $1.5 \text{ mg-N} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{L}^{-1}$ とし (RUN1), 続く 47~111 日目では、2 倍の窒素負荷 $3.0 \text{ mg-N} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{L}^{-1}$ とした (RUN2)。硝化能力の回復性能を調査するため、112~130 日目の 18 日間は、窒素添加を行わずに水槽水のみを循環させ (RUN3), 131~155 日目において、再び窒素負荷を $3.0 \text{ mg-N} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{L}^{-1}$ とした (RUN4)。また、RUN4 は、停電により運転が停止した期間を含む (停電期間は 135~136, 142~143 日目)。水温は、 $25 \pm 1 \text{ }^\circ\text{C}$ の室内で管理した。pH は、NaOH および NaHCO_3 を用いて NH_4Cl 溶液中で pH 調整を行い、 $\text{pH } 8.0 \pm 0.3$ で制御した。塩分濃度は実海水と同程度の 3.5% とした。また、模擬飼育水の DO は $5.00 \text{ mg-O} \cdot \text{L}^{-1}$ 以上とした。水質分析のためのサンプリングは、水槽で直接行った。硝化反応の最終生成物である $\text{NO}_3\text{-N}$ の過度な蓄積による予想外の影響を回避するために、水槽内の海水は適宜交換 (換水) を行った。

3. 実験結果および考察

3.1. 運転環境

全期間で室温は $24.3 \pm 1.0 \text{ }^\circ\text{C}$, 循環回数 $0.5, 1, 4 \text{ turn} \cdot \text{hr}^{-1}$ で、水温はそれぞれ $22.2 \pm 1.2, 23.8 \pm 1.2, 24.0 \pm 1.1 \text{ }^\circ\text{C}$ であった。DO はそれぞれ $6.38 \pm 1.86, 5.80 \pm 0.50, 6.30 \pm 0.35 \text{ mg-O} \cdot \text{L}^{-1}$ であった。循環回数を多くすることに伴い増加する傾向を示した。これは、循環回数の増加によって空気との接触回数が増加するためであると考えられる。ORP はそれぞれ $248 \pm 25, 222 \pm 26, 219 \pm 39 \text{ mV}$ であり、各循環回数ともに酸化的環境下を維持した。pH はそれぞれ $7.60 \pm 0.28, 7.59 \pm 0.37, 7.78 \pm 0.30$ であった。硝化および NH_4Cl 添加での低下により、魚体の正常な生育環境を維持出来ていなかった。塩分濃度は全循環回数で $3.5 \pm 0.1 \%$ であった。各循環回数で水の蒸発や NH_4Cl の添加により濃度変化が生じたが問題の無い値であった。

3.2. 硝化性能

TAN および $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の経日変化を図 2 に、装置安定時の TAN および $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度を表 2 に示す。RUN1 において、TAN 濃度は装置立ち上げ後 1 週間後の実験開始 7~46 日目の期間、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度は、実験開始 36~46 日目の期間で平均値を算出した ($4 \text{ turn} \cdot \text{hr}^{-1}$ の $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度が安定しなかったため)。RUN1 では、循環回数 $0.5, 1, 4 \text{ turn} \cdot \text{hr}^{-1}$ で、TAN 濃度の平均値は、それぞれ $0.08 \pm 0.04, 0.07 \pm$

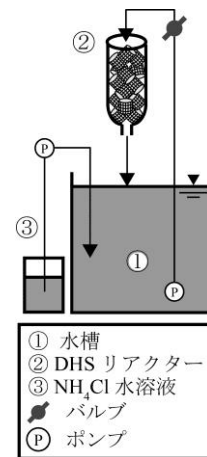


図 1. 実験装置概略

表 1. 実験条件

水槽容量 (L)	60			
DHS リアクター容量 (L)	0.6			
担体充填率 (%)	47			
植種汚泥	砂ろ過槽の硝化汚泥			
室温 ($^\circ\text{C}$)	25 ± 1			
DO ($\text{mg-O} \cdot \text{L}^{-1}$)	5.00 以上			
pH (-)	8.0 ± 0.3			
塩分濃度 (%)	3.4 ± 0.2			
RUN	1	2	3	4
経過日数 (日目)	0~46	47~111	112~130	131~155
窒素負荷量 ($\text{mg-N} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{L}^{-1}$)	1.5	3.0	0	3.0

キーワード 水産養殖, 硝化 DHS, 循環回数

連絡先 〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町 1603-1 環境システム棟 5 階 TEL. 0258-47-1611 (内線 6646) E-mail: s113343@stn.nagaokaut.ac.jp

0.02, 0.06±0.01 mg-N・L⁻¹, NO₂-N 濃度の平均値は, 0.057±0.054, 0.027±0.032, 0.041±0.020 mg-N・L⁻¹であった. TAN および NO₂-N 濃度の平均値は各循環回数で, 維持目標値以下であったが, 0.5 turn・hr⁻¹は TAN および NO₂-N 濃度が維持目標値を超えることがあった. TAN 濃度は循環回数が多いほど低濃度に維持されているようにみられた. NO₂-N 濃度は 1 turn・hr⁻¹が最も低濃度に維持された.

続く RUN2 では, TAN 濃度は実験開始 54~111 日目の期間, NO₂-N 濃度は実験開始 62~111 日目の期間で平均値を算出した. 循環回数 0.5, 1, 4 turn・hr⁻¹で, TAN 濃度の平均値は, それぞれ 0.11±0.07, 0.08±0.05, 0.08±0.06 mg-N・L⁻¹であった. RUN1 と同様に TAN 濃度は循環回数が多いほど低濃度に維持される傾向にあった. NO₂-N 濃度は実験開始 62~76 日目においては, 維持目標値以下の NO₂-N 濃度を維持していたが, 78 日目以降 NO₂-N 濃度は, 維持目標値を超える値であった. 原因として, 77 日目に換水を行ったために, 水温が低がり, 亜硝酸酸化細菌の活性が低下したことが考えられる.

以上より, 循環回数を多くすることでアンモニア酸化能力の向上を図ることが可能であったが, 亜硝酸酸化能力の向上を図ることは出来なかった.

3.3. 硝化能力回復性能

RUN3は窒素添加を行わずに18日間, 水槽水のみを循環させた. RUN4では窒素添加を再開し, 硝化能力の回復能力を調査した. TAN 濃度および NO₂-N 濃度の平均値は, 窒素添加再開1週間後の実験開始139~155日目の期間で算出した. TAN 濃度は, 133日目には全装置で0.1 mg-N・L⁻¹以下であったが, 137日目に0.1 mg-N・L⁻¹を超える値となった. 原因として, 137日目の水温が, 循環回数0.5, 1, 4 turn・hr⁻¹で, それぞれ12.8, 14.1, 14.3℃と, 運転期間の平均値より10℃程度低かったことから, 水温低下によりアンモニア酸化細菌の活性が一時的に低下したと考えられる⁵⁾. 139日目以降は0.1 mg-N・L⁻¹以下を維持し, 循環回数0.5, 1, 4 turn・hr⁻¹における TAN 濃度の平均値は, それぞれ0.03±0.04, 0.03±0.03, 0.04±0.01 mg-N・L⁻¹であった. 本装置は18日間の窒素未添加期間を経ても, 迅速なアンモニア酸化能力の回復を示し, アンモニア酸化能力の低下は見られなかった.

しかし一方, NO₂-N 濃度においては, RUN4の開始直後から高濃度に蓄積し, 全循環回数で, RUN2で得られた結果を大きく超える値となり, 亜硝酸酸化能力を回復するには至らなかった. 原因として, RUN3の期間が窒素未添加であったことから亜硝酸酸化細菌が飢餓状態となったことや, 停電による水温低下により亜硝酸酸化細菌の活性が著しく低下したことが考えられ, 亜硝酸酸化細菌は飢餓状態や水温低下に脆弱であることが示唆された.

4. まとめ

NH₄Cl を 3.0 mg-N・day⁻¹・L⁻¹で添加し運転を行った RUN2 において, 1 turn・hr⁻¹では達成出来なかった TAN 濃度の維持目標値 0.1 mg-N・L⁻¹以下の濃度を, 4 turn・hr⁻¹で維持した. そのことから, 循環回数の増加はアンモニア酸化能力に影響し, 硝化能力の向上が可能であると示唆された. NO₂-N 濃度は全循環回数で維持目標値以下の濃度に維持出来ず, 亜硝酸酸化能力の向上は図れなかった.

本装置は, 窒素未添加期間や, 停電等による運転停止期間が生じても, アンモニア酸化能力が迅速に回復し, 短期間で水槽中の TAN 濃度を 0.1 mg-N・L⁻¹以下の低濃度に維持出来た. しかし, 亜硝酸酸化細菌は飢餓状態や水温低下に脆弱であることが示唆され, 亜硝酸酸化能力を回復するには至らず, 水槽中の NO₂-N 濃度を 0.1 mg-N・L⁻¹以下の低濃度に維持出来なかった.

今後, 条件変更を行った時点での担体から得た汚泥サンプルをもとに, 循環回数の担体保持汚泥量への影響, およびアンモニア酸化細菌と亜硝酸酸化細菌の存在割合への影響を調査する. また, 本実験では, 亜硝酸酸化能力の向上が図れなかったため, 硝化型 DHS リアクターと脱窒型 USB リアクターを組み合わせることで, 硝化と脱窒による NO₂-N 除去を検討する.

参考文献

- 1) 浜口威真, 山口隆司, (他 8 名). 海洋生物飼育を対象とした循環型窒素除去システムの開発. 環境工学研究論文集, vol.47, 2010
- 2) 古川斐人, 山口隆司, (他 5 名). 海洋生物飼育水における新規補給水低減型循環システムの水質維持性能評価. 土木学会関東支部技術研究発表会, 2014
- 3) 熊井 英水, 2000. 新装版 海産魚の養殖. 109-127.
- 4) 熊井 英水, 2005. 水産増養殖システム 1 海水魚. 83-106.
- 5) Yamamoto, T., Takaki, K., Koyama, T. and Furukawa, K. (2006) Novel Partial Nitritation Treatment for Anaerobic Digestion Liquor of Swine Wastewater Using Swim-Bed Technology. Vol. 120 pp.497-503

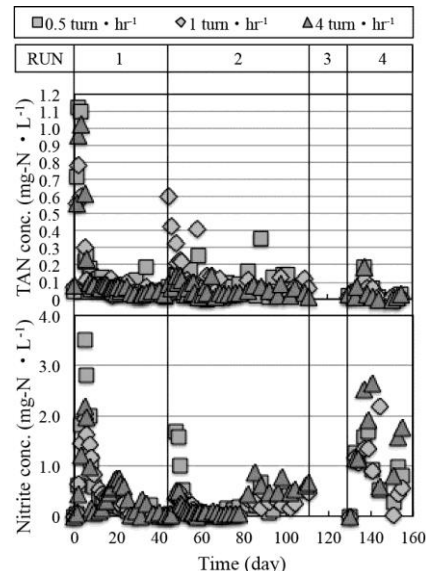


図 2. TAN および NO₂-N 濃度の経日変化

表 2. 装置安定時の TAN および NO₂-N 濃度 (平均値)

RUN	NH ₄ Cl 添加量 (mg-N・day ⁻¹ ・L ⁻¹)	維持目標値	循環回数 (turn・hr ⁻¹)		
			0.5	1	4
1	1.5	TAN (mg-N・L ⁻¹)	0.08 (±0.04)	0.07 (±0.02)	0.06 (±0.01)
		NO ₂ -N (mg-N・L ⁻¹)	0.057 (±0.054)	0.027 (±0.032)	0.041 (±0.020)
2	3.0	TAN (mg-N・L ⁻¹)	0.11 (±0.07)	0.08 (±0.05)	0.08 (±0.06)
		NO ₂ -N (mg-N・L ⁻¹)	0.176 (±0.114)	0.164 (±0.136)	0.367 (±0.262)
4	3.0	TAN (mg-N・L ⁻¹)	0.03 (±0.04)	0.03 (±0.03)	0.04 (±0.01)
		NO ₂ -N (mg-N・L ⁻¹)	0.866 (±0.348)	0.908 (±0.563)	1.547 (±0.598)