

多孔性担体充填型反応槽を用いた亜硝酸型硝化特性

群馬大学大学院 学生会員 ○久保田 さや香 群馬大学工学部 非会員 米田 翼
群馬大学工学部 非会員 伊藤 司 群馬大学工学部 正会員 渡邊 智秀

1. はじめに

排水中に含まれる窒素成分が閉鎖性水域の富栄養化や地下水汚染の原因となっており、経済的かつ効率的な窒素処理技術が求められている。亜硝酸経由の硝化から脱窒を行なうことで曝気動力や有機物添加コストを削減する方法が知られているが、亜硝酸型の硝化反応を維持するためには、密接な共生関係にあるアンモニア酸化細菌と亜硝酸酸化細菌から亜硝酸酸化細菌の活性のみを抑える必要がある。本研究では、亜硝酸型硝化の長期安定・高速化を目指し、微生物を培養槽内により多く保持するために多孔性担体を用い、最適運転条件を探索することを目的とした。

2. 実験方法

2.1 多孔性担体

研究室で活性汚泥を種汚泥として別途培養を行っている完全硝化型の硝化槽に多孔質担体（5 mm 角、気孔率 90%、気孔径 700 μm ）を投入し、担体表面積及び内部に硝化細菌を付着増殖させたものを用いた。

2.2 連続運転条件

60°Cで75分間加熱処理（以降加熱処理）¹⁾をした多孔性担体 1200 mL（担体約 6300 個）を反応容積 4 L の培養槽に充填した（充填率 30%）。槽内はプロペラにより完全に混合される。人工基質の組成は炭酸アンモニウム、無機塩類、炭酸水素ナトリウムである。滞留時間は培養開始時は 18 h で行い、12 h（80 日目）、8 h（100 日目）と短縮した。温度は 30°C、pH 7.6、溶存酸素（DO）0.3 mg/L に制御した。以上の条件で運転を行い、硝化細菌を担体に馴致させた。定期的に槽内の $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 、DO、pH を測定した。

2.3 活性試験

加熱処理前後の完全硝化型担体の硝化活性について、バイアル瓶を用いた活性試験により行った。 NH_4^+ 、 NO_2^- の2種類を電子供与体にした DO 5.3 mg/L、pH 7.3~7.4 の人工基質 100 mL に加熱処理前後の担体 40 個を入れ、水温 30°C、60 rpm の振とうにより活性試験を行った。経過時間ごとに $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 、DO、pH のを測定し、活性を評

価した。アンモニア濃度と溶存酸素濃度（DO）が亜硝酸生成速度に及ぼす影響については、DO・pH 制御の可能な反応容積 2 L の培養槽を用いて回分実験を行った。槽内に 4 L 培養槽で細菌を馴致させた多孔性担体 200 mL を充填し（充填率 10%）、水温は 30°C、pH 7.6 に制御した。DO 0.3 mg- O_2/L に制御し、初期アンモニア濃度を 20、100、500、1000 mg-N/L に設定した活性試験と溶存酸素濃度を 0.3、0.7、1.0、1.5、1.7、2.0、2.4、5.0 mg- O_2/L に制御したときの活性試験を行った。経過時間ごとに $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、を測定し、活性を評価した。

2.4 FISH 法

硝化細菌の定量及び優占種の解析には、FISH法を用いた。蛍光遺伝子プローブは Nso190（アンモニア酸化細菌）、Ntspa662（亜硝酸酸化細菌）を用いた。同時に DAPI 染色による全菌数を計数し、全菌に占める硝化細菌の割合を算出した。

3. 結果及び考察

3.1 亜硝酸型硝化担体の馴養

表 1 に加熱処理前後の完全硝化型担体の活性試験結果を示す。加熱処理後、硝酸生成速度はほとんど得られなかった、亜硝酸生成速度は 10 分の 1 に低下したが、0.07 mg-N/cm³-担体・d の活性が認められた。

この担体を用いて連続培養を行った。加熱処理後、DO 0.3 mg- O_2/L で運転を行ったところ、徐々に亜硝酸生成速度が上昇し、20 日目に定常状態に達した。その後アンモニア流入負荷を段階的に増加させ、アンモニア流入負荷が 1.5 mg-N/cm³-担体・d のとき亜硝酸生成速度は最大 0.78 mg-N/cm³-担体・d となった。培養開始から 100 日以上経過しても硝酸生成量はアンモニア消費量に対し 2~5%程度であった。連続培養槽では安定して亜硝酸型硝化が行われていることが確認された。

3.2 FISH の結果（加熱処理前後・馴養途中）

完全硝化型担体に FISH 法を用いたところ全菌に対してアンモニア酸化細菌と亜硝酸酸化細菌の存在割合は 20%と 19%であったが加熱処理を行うことでアンモニア酸化細菌

キーワード：生物学的窒素処理、亜硝酸型硝化、アンモニア酸化細菌、亜硝酸酸化細菌

連絡先：〒376-8515 群馬県桐生市天神町 1-5-1 群馬大学工学部建設工学科 TEL：0277-30-1631 E-mail：watanabe@ce.gunma-u.ac.jp

20%、亜硝酸酸化細菌 5%になった。この担体を用いて連続培養による馴養を行ったところ 22 日目～57 日目でアンモニア酸化細菌 70%、亜硝酸酸化細菌は 1～2%程度になった。活性試験を行った 134 日目以降の担体はアンモニア酸化細菌が 55%、亜硝酸酸化細菌は 20%であった。

3.3 アンモニア濃度、溶存酸素濃度の亜硝酸生成速度への影響

図 1 にアンモニア濃度 20～1000 mg-N/L、DO 0.3 mg/L で回分実験を行ったときの、担体単位体積あたりの亜硝酸生成速度を示す。アンモニア性窒素 20～1000 mg-N/L では 0.38～0.44 kg-N/m³・d の亜硝酸生成速度であった。

DO 濃度を 0.3～5.0 mg/L で行ったときの担体単位体積あたりの亜硝酸生成速度を図 2 に示した。亜硝酸生成速度、硝酸生成速度は DO 0.3～5.0 mg/L の範囲では直線的に上昇した。また、DO が比較的高い条件でも硝酸生成はほとんど起こらないことを確認した。連続運転による処理においても DO を上げることで亜硝酸型を維持し、アンモニア処理速度を向上できることが予測される。FISH の結果より、使用した担体には全菌中の 20%を占める亜硝酸酸化細菌が存在していたが、硝酸生成はほとんど起こらなかった。菌の存在比がアンモニア酸化細菌に比べて亜硝酸酸化細菌は少ない為、酸素親和性の高いアンモニア酸化細菌が優先的に酸素を使ってしまっている為ではないかと予想される。

3.4 連続亜硝酸型硝化リアクターへの適応

図 3 は回分活性試験で求めた DO と担体単位体積あたりの亜硝酸生成速度から、連続亜硝酸型硝化リアクターについて、見かけの担体充填率の違いによる、反応槽液容積あたりの亜硝酸生成速度を予測したものである。担体充填率を上げることで亜硝酸生成速度を上昇させることが予測できる。3.3 の結果より亜硝酸生成速度は DO に依存すると予測できるが、DO 増加による曝気コストを考慮するならば、DO を高くするよりも担体充填率を高くすることが有効な手段であると考えられる。

4. まとめ

完全硝化型担体に 60℃で 75 分間加熱処理を行うことで亜硝酸酸化細菌の活性をほぼ完全に失活させることが確認された。加熱処理後の多孔質担体を溶存酸素濃度を制御した連続培養によりアンモニア酸化細菌を優占化させ、亜硝酸型硝化能力を持つ担体を作成することが出来た。本担体は DO 0.3～5.0 mg/L、アンモニア 20～1000 mg-N/L の条件下で安定して亜硝酸型硝化を行うことができると考えられた。

表 1 加熱処理前後の完全硝化型担体の亜硝酸・硝酸生成速度

	電子受容体	亜硝酸生成速度	硝酸生成速度
熱処理前	NH ₄ ⁺	0.61	0.61
	NO ₂ ⁻	—	9.82
熱処理後	NH ₄ ⁺	0.07	N.D.
	NO ₂ ⁻	—	N.D.

N.D.; Not detected

unit; mg-N/cm³・担体・d

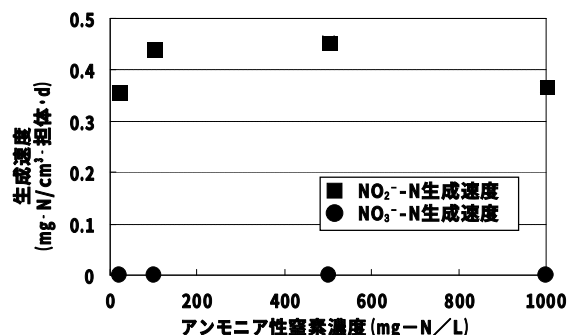


図 1 異なるアンモニア性窒素濃度条件下における亜硝酸・硝酸生成速度

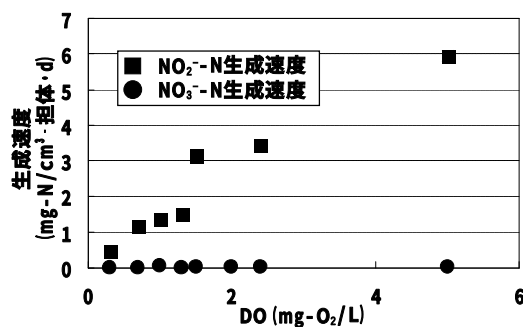


図 2 異なる溶存酸素濃度条件下における亜硝酸・硝酸生成速度

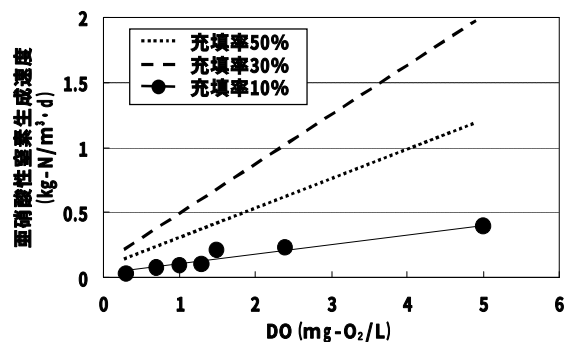


図 3 担体充填率の増加による亜硝酸生成速度上昇の予測

[参考文献]

- 井坂和一、嫌気性アンモニア酸化法の有効性と実用化に向けた課題と対策、水環境学会誌、27：p18-22 (2004)