

## 揺動床による高速部分亜硝酸化処理

熊本大学 学生会員 松本典子 篠原健彦 正会員 古川憲治 非会員 喬森

### 1. はじめに

近年、環境基準や排水基準が設けられ、排水からの窒素除去の重要性が増している。物理化学的な窒素除去法として、MAP（リン酸マグネシウムアンモニウム）法やアンモニアストリッピング法がある。これらの方法で排水から除去される  $\text{NH}_3$  は一般に硫酸で捕集されるが、その捕集液の処理に問題が残っている。MAP 粒子の加熱処理やアンモニアストリッピング法によって発生する  $\text{NH}_3$  ガスを飽和炭酸ガス溶液で捕集すると、重炭酸アンモニウムが発生する。この重炭酸アンモニウム溶液を、経済的かつ効率的な窒素除去として注目されている、嫌気性アンモニア酸化（Anammox）プロセスを活用して処理できるかどうか検討を行っている。本研究では、重炭酸アンモニウムを窒素源とする無機排水を対象に、Anammox の前処理である部分亜硝酸化処理について検討した。

### 2. 実験装置および方法

#### 2-1 実験装置

実験装置の模式図を図 1 に示す。部分亜硝酸化リアクタの容積は 10.6L、リアクタの後に 3.0L の沈殿池を設けた。微生物付着担体として、良好な汚泥の沈降性を得ることができるアクリル繊維性の揺動床バイオフィリンジ (BF、NET 製) を 50cm 使用した。曝気量 8.0L/min、温度と pH の調整は行わなかった。供試汚泥には、実験室にて肉エキスとペプトンを主な基質とする合成下水を用いて fill and draw 法で長期間培養し、その後部分亜硝酸化に使用されていた硝化活性汚泥 (MLSS 3000mg/L) を用いた。また、流入水の組成は、 $\text{NH}_4\text{HCO}_3$  200~1,000mg/L、 $\text{KH}_2\text{PO}_4$  0.65~3.23mg/L、無機物 (Fe、Na、Zn、Co、Mn、Cu) 1.0mg/L とした。

供試汚泥投入後、基質の流入を行わずに 72 時間曝気によりをリアクタ内で巡回させて、汚泥を BF に付着させた。その後、連続試験を開始した。なお、返送汚泥は返送比 1.0 で返送した。

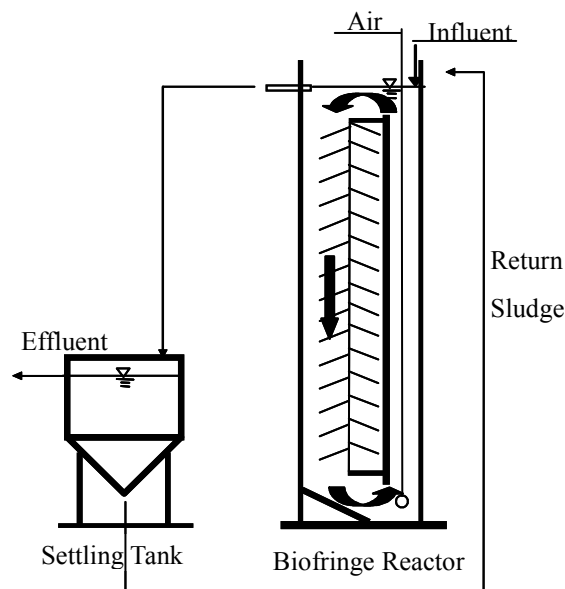


図 1. 部分亜硝酸化リアクタの模式図

#### 2-2 部分亜硝酸化の方法

部分亜硝酸化処理は、 $\text{NH}_4\text{-N}$  の約半量だけを  $\text{NO}_2\text{-N}$  に酸化するため、 $\text{NO}_2\text{-N}$  から  $\text{NO}_3\text{-N}$  への酸化を抑制し、かつ  $\text{NH}_4\text{-N}$  の酸化量も制御しなければならない。一般的には、アンモニア酸化細菌と亜硝酸酸化細菌の生理特性の差が利用されている。アンモニア酸化細菌は亜硝酸酸化細菌より、遊離アンモニア ( $\text{NH}_3$ ) 耐性、遊離亜硝酸 ( $\text{HNO}_2$ ) 耐性、溶存酸素の競合、 $25^\circ\text{C}$  以上での増殖速度において優れている。これらを単独または複数組み合わせることで部分亜硝酸化を達成できる。本研究では、制御が簡易で低コストな部分亜硝酸化処理を目指し、温度と pH の調整をせずに部分亜硝酸化処理を行った。

#### 2-3 回分試験

部分亜硝酸化における温度と反応速度の関係を、回分試験により調べた。リアクタ内の汚泥を用い、 $10^\circ\text{C}$ 、 $15^\circ\text{C}$ 、 $20^\circ\text{C}$ 、 $25^\circ\text{C}$ 、 $30^\circ\text{C}$ 、 $35^\circ\text{C}$  の温度の影響を確認した。容積 1L、MLSS 360mg/L、基質の  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度は 100mg/L とした。

### 3. 実験結果および考察

#### 3-1 連続試験

図 2 に各態窒素濃度と窒素容積負荷 (NLR) の経時変化を示す。NH<sub>4</sub>-N 濃度 200mg/L、HRT 24 時間で連続運転を開始したところ、すぐに部分亜硝酸化を確認し、運転開始 100 日目に NLR 2.0kg-N/m<sup>3</sup>/day で部分亜硝酸化を達成することができた。その後 NLR 2.7 kg-N/m<sup>3</sup>/day に上げたが、NH<sub>4</sub>-N 酸化率 35%、処理水の NO<sub>2</sub>-N/NH<sub>4</sub>-N 比は約 0.5 となった。リアクタの壁面に付着していた汚泥を落とし浮遊汚泥を増加させたところ、120 日目に処理水の NO<sub>2</sub>-N/NH<sub>4</sub>-N 比が 1.0 となり、部分亜硝酸化が回復した。181 日目から 190 日目には、流入水の NH<sub>4</sub>-N 濃度 1,000mg/L、HRT 4.4 時間、NLR 5.4 kg-N/m<sup>3</sup>/day で部分亜硝酸化を達成した。ところが、191 日目にリアクタトラブルにより負荷が大きく変動し発泡現象が起こり、NH<sub>4</sub>-N 酸化率 10%、処理水の NO<sub>2</sub>-N/NH<sub>4</sub>-N 比は約 0.1 となった。そこで、一時的に pH を 7.5 付近に調整したが、部分亜硝酸化は確認されなかった。214 日目以降、部分亜硝酸化は確認できたものの、NLR 1.1 kg-N/m<sup>3</sup>/day であった。これまでに、HNO<sub>2</sub> 濃度 0.2~2.6 mg/L、NH<sub>3</sub> 濃度 0.1~10mg/L において亜硝酸酸化細菌は選択的に阻害を受けるとされている<sup>(1)</sup>。本研究では、亜硝酸酸化細菌は、部分亜硝酸化が達成された期間において HNO<sub>2</sub> 濃度と NH<sub>3</sub> 濃度による阻害を受けたと考えられる (図 3 参照)。

#### 3-2 回分試験

図 4 に亜硝酸生成速度と温度の関係を示す。温度 10℃では、亜硝酸生成速度が著しく低下した。温度が 15℃を下回った 203 日目以降は (図 5 参照)、温度の低下による影響も受けていると考えられた。

#### 4. まとめ

温度・pH を調整せずに、HRT 4.4 時間、NLR 5.4 kg-N/m<sup>3</sup>/day の高負荷域で部分亜硝酸化を達成できた。この要因は、亜硝酸酸化細菌が NH<sub>3</sub> と HNO<sub>2</sub> による阻害を受けたことにある。また、温度 15℃以下の低温でも NLR 1.1kg-N/m<sup>3</sup>/day で処理できた。

参考文献 (1)Anthonisen A. et al.: J Water Pollut Control Fed,48(5),pp.835-852(1976)

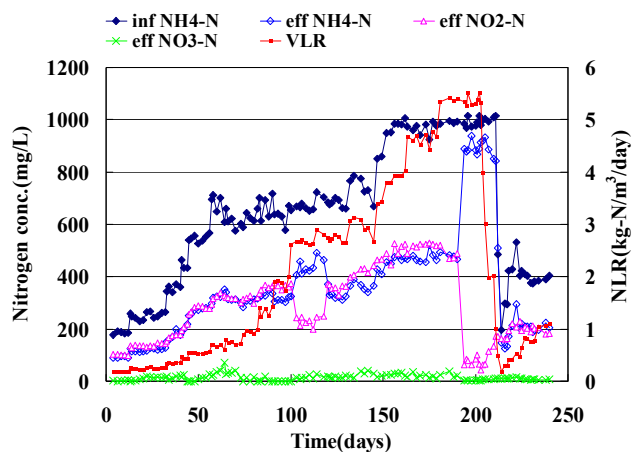


図 2. 各態窒素濃度と窒素容積負荷の経時変化

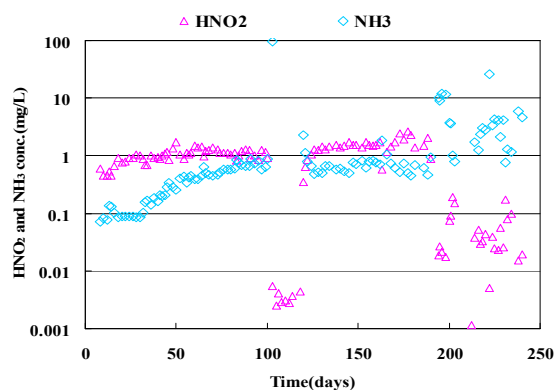


図 3. HNO<sub>2</sub> 濃度と NH<sub>3</sub> 濃度の経時変化

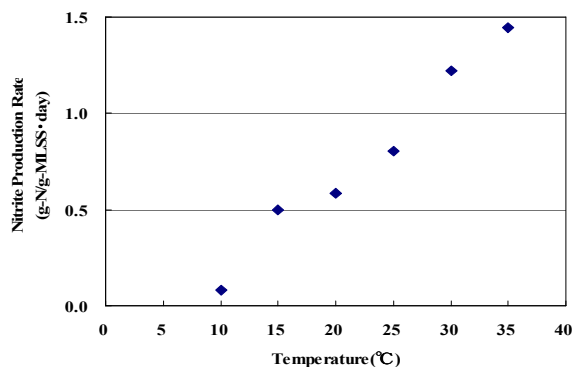


図 4. 亜硝酸生成速度と温度

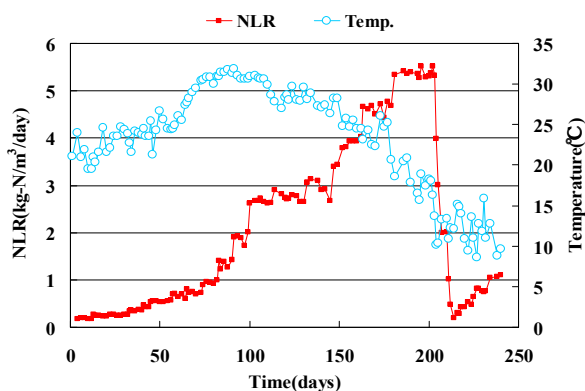


図 5. 窒素容積負荷と温度の経時変化