

SNAP 法による高濃度 $\text{NH}_4\text{-N}$ 含有排水の窒素処理に関する研究

熊本大学工学部社会環境工学科 学生会員 武川 将士
 熊本大学大学院自然科学研究科 非会員 川久保 祐貴
 熊本大学大学院自然科学研究科 非会員 平 大輔
 熊本大学大学院自然科学研究科 正会員 古川 憲治

1 はじめに

近年、東京湾や有明海などの閉鎖性水域において、富栄養化が深刻な問題となっている。富栄養化は生物多様性を減少させるだけでなく、赤潮や青潮を引き起こすため、漁業など経済活動にも大きな被害を与えている。富栄養化の原因物質は窒素やリン等であり、下水や産業排水に起因している。そのため、これらの排水の処理時に窒素やリンを適切に除去することが望まれる。

現在、多くの下水処理施設では、排水処理時に発生する余剰汚泥に対して、減量化とエネルギー回収の目的から嫌気性消化処理を行っている。このとき発生する嫌気性消化脱離液は、排水処理系に回流水として戻されるが、高濃度のアンモニア性窒素を含有しているため、処理水の窒素濃度を上昇させる大きな要因になっている。

一般的に高濃度のアンモニア性窒素 ($\text{NH}_4\text{-N}$) 含有排水からの窒素除去には生物学的硝化・脱窒法が用いられている。この方法は非常に有効な方法であるが、一方で外部炭素源の添加が必要なことや硝化処理に膨大な曝気動力が必要であり、コスト面に問題を抱えている。このことから、排水中から効率のかつ経済的に窒素やリンを除去することができる排水処理プロセスの開発が必要とされている。

そこで本研究では、SNAP 法 (Single stage Nitrogen removal using Anammox and Partial nitrification) を都市下水処理時に発生する嫌気性消化脱離液からの窒素除去に適用することを検討した。SNAP 法とは、好気性アンモニア酸化細菌 (AOB) と独立栄養細菌である嫌気性アンモニア酸化 (Anammox) 細菌を同一槽内で共生させることで窒素除去をおこなう一槽型の $\text{NH}_4\text{-N}$ 除去プロセスである。硝化・脱窒法と比較して脱窒時における外部炭素源の添加不要、省スペース化、曝気動力が少ないという利点がある。

2 実験方法

2.1 実験装置

SNAP リアクタの模式図を図 1 に示す。反応槽には、有効容積 5.0L のアクリル製のカラム型リアクタを用いた。槽内には、微生物担体として、不着固定能力の高い網目状アクリル繊維製の Biofix (NET(株)) を内部に硝化汚泥、外部に Anammox 汚泥を付着させ 2 重構造にして充填した。槽内

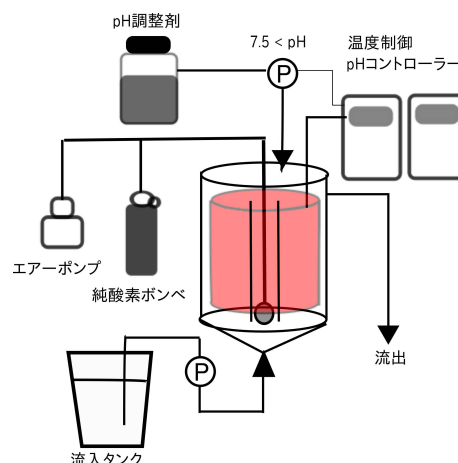


図1 SNAP リアクタの模式図

の温度をヒーターで 35°C に設定し、pH は pH コントローラーと pH 調整剤 (1M の重炭酸ナトリウム) を用いて常時 7.5 になるように制御して運転した。槽内はブローアにより曝気し、窒素負荷量の上昇に応じて風量を調整し、段階的に高めた。また、本研究で用いた嫌気性消化脱離液には懸濁物質 (SS) が $80\text{--}120\text{mgL}^{-1}$ 含まれており、流入口の先端にアクリル製の不織布を取り付けて除去した。

2.2 供試汚泥と供試排水

SNAP リアクタ立ち上げ時には、当研究室において人工排水を基質として長期間培養している Anammox 汚泥 (TSS/VSS, 71%) を 5g(DW) 投入した後、硝化汚泥 (TSS/VSS, 79%) を 2.5g(DW) を投入し、Biofix に付着固定させた後、連続運転を開始した。

供試排水は、A 市下水処理場の嫌気性消化脱離液を目的の濃度まで水道水で希釈して用いた。嫌気性消化脱離液の水質を表 1 に示す。また、連続運転を開始する前に嫌気性消化脱離液の微量元素測定をしたところ Fe がほぼ含まれていなかったため、 $\text{microFe/EDTA}(\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}=9\text{g/L}, \text{EDTA} \cdot 2\text{Na}=5\text{g/L})$ を 1ml/L 添加した。

3 結果と考察

SNAP リアクタの嫌気性消化脱離液における窒素除去の挙動を図 2 および図 3 に示す。SNAP リアクタは、立ち上げ後から 287 日間、嫌気性消化脱離液を流入水として処理を行った。SNAP リアクタ立ち上げ時は、窒素負荷量を 0.3kg-N

表 1 嫌気性消化脱離液の水質

成分	範囲
NH ₄ -N	700-800[mg/L]
NO ₂ -N	ND
NO ₃ -N	ND
BOD	100-150[mg/L]
COD	120-150[mg/L]
pH	8.0-8.5
SS	80-120[mg/L]

ND:検出されず

$\text{m}^{-3}\text{day}^{-1}$ (HRT, 6h) に設定し段階的に窒素負荷量を高めた。

立上げから 90 日後、窒素除去速度が急激に低下し亜硝酸の蓄積が見られた。流入窒素負荷量の上昇に伴い NH₄-N 酸化率が低下したので、酸素分圧を高めるために純酸素を導入した。これにより槽内の溶存酸素量が急激に上昇し、Anammox 細菌の活性を阻害したため、AOB によるアンモニア酸化のみが進み、槽内に亜硝酸が蓄積したものと考えられる。FNA(遊離の NO₂-N) 濃度が高くなると Anammox 細菌の活性が阻害を受けることが報告されている。そこで、窒素負荷量を下げて (HRT 変動なし) 対応し、窒素除去速度は徐々に回復したので継続して窒素負荷を上昇させた。

その結果、運転開始時から 126 日後、窒素負荷量 $1.8\text{kg-N m}^{-3}\text{day}^{-1}$ のとき最大窒素除去速度 $1.6\text{kg-N m}^{-3}\text{day}^{-1}$ が得られた。

運転開始 129 日後、窒素負荷量 $2.3\text{kg-N m}^{-3}\text{day}^{-1}$ (NH₄-N=600mg/L, HRT=8h) に達したところで、Anammox 細菌の急激な活性低下と NO₂-N の蓄積 (NO₂-N=230mg/L) が見られた。その後、窒素負荷量を下げる (HRT 変動なし) ことで窒素除去速度は回復した。しかし、再度、窒素負荷量が $2.0\text{kg-N m}^{-3}\text{day}^{-1}$ に達したところで Anammox 細菌の活性の低下と NO₂-N の蓄積が見られた。これは、FNA の影響及び容積負荷量あたりの菌量の不足が SNAP 処理低下の原因であると推察される。

運転開始から 231 日後から、嫌気性消化脱離液を希釈せず、原液の状態で SNAP リアクタに供給した。原液の供給以降は、HRT を調整することで窒素負荷 $1.3\text{kg-N m}^{-3}\text{day}^{-1}$ を維持して処理を行い長期の安定した処理が可能であるか検討をした。その結果、平均窒素除去速度 $1.0\text{kg-N m}^{-3}\text{day}^{-1}$ で 17 日間安定した処理を達成することができた。

運転開始から 245 日目の SNAP 汚泥を採取し、16S rDNA のクローニングとその塩基配列決定により菌叢解析を行った。全 31 クローンを解析したところ、合計 11 クローンが既知の Anammox 細菌である KSU-1 株もしくは KSU-1 に近縁であり、約 3 分の 1 を占めていた。次に多く確認されたの

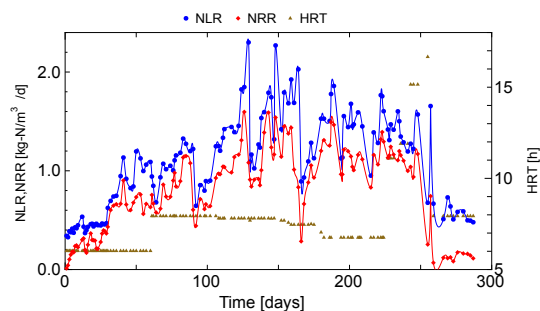


図 2 窒素負荷と窒素除去速度の経日変化

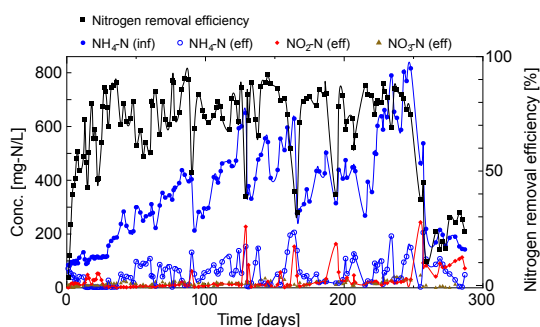


図 3 各態窒素濃度の経日変化

は *Nitrosomonas* 属のアンモニア酸化細菌で、合計 7 クローンが確認された。解析した SNAP リアクタでは、Anammox 細菌とアンモニア酸化細菌が優占となる菌叢が形勢されており、確認された *Nitrosomonas* 属細菌による部分亜硝酸化と、KUS-1 による Anammox 反応によって高効率の脱窒が達成されていると推察された。

4 結論

- 窒素負荷率 $1.8\text{kg-N m}^{-3}\text{day}^{-1}$ のとき最大窒素除去速度 $1.6\text{kg-N m}^{-3}\text{day}^{-1}$ が得られた。
- 無希釈の嫌気性消化脱離液を窒素負荷量 $1.3\text{kg-N m}^{-3}\text{day}^{-1}$ で運転したところ、平均窒素除去速度 $1.0\text{kg-N m}^{-3}\text{day}^{-1}$ で安定した処理が可能であることが分かった。
- 菌叢解析の結果、全 31 クローンのうち 11 クローンが Anammox 細菌 (KSU-1) であることがわかった。次に多く確認されたのが *Nitrosomonas* 属のアンモニア酸化細菌で、KSU-1 株と *Nitrosomonas* 属の細菌で全クローンの約 6 割を占めていた。これらの細菌により高効率の脱窒が達成されると推察された。

参考文献

- [1] K. Furukawa, P. K. Lieu, H. Tokitoh, and T. Fujii. Development of single-stage nitrogen removal using anammox and partial nitrification (snap) and its treatment performances. *Water Sci Technol*, Vol. 53, No. 6, pp. 83–90, 2006.