

低濃度アンモニア性窒素含有廃水への SNAP プロセスの適用

熊本大学工学部社会環境工学科 学生会員 江崎亮太
熊本大学工学部自然科学研究科 非会員 太田 哲
熊本大学工学部自然科学研究科 正会員 古川憲治

1.はじめに

近年、新窒素除去法として注目されている anammox プロセスは、前処理として $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ の約半量を $\text{NO}_2^- \cdot \text{N}$ へと酸化させる部分亜硝酸化反応と嫌気条件下で $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ を電子供与体、 $\text{NO}_2^- \cdot \text{N}$ を電子受容体として、 N_2 ガスに変換する anammox 反応を組み合わせた二槽型除去法である。このプロセスは、現在広く用いられている窒素除去法である生物学的硝化脱窒法と比較して、酸素供給量の半減が可能、外部炭素源の添加が不要及び温室効果ガスである N_2O の発生がないという利点がある。

現在本研究室では、部分亜硝酸化 - anammox 処理を単一槽内で行う SNAP(Single-stage Nitrogen removal using Anammox and Partial nitritation)プロセスの研究を行っている。このプロセスは従来の anammox プロセスと比較し、pH や溶存酸素(DO)などの操作項目の減少により運転の簡略化が可能である。

現在までの SNAP プロセスの研究は主に $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 窒素が高濃度域の廃水を対象として行われており、高い除去性能が示されている。一方で $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 窒素が低濃度域の廃水を対象とする研究は anammox プロセスでは不可能であると考えられ、結果の報告に至っていない。しかし SNAP プロセスであれば低濃度域への適用の可能性がある、それが確認されることで、都市下水流入水への直接的な利用を始めとした、SNAP プロセスのさらなる適用範囲の拡大を図ることができる。これによって多くの地域・環境で低コスト・低環境負荷での水質改善が可能となる。そこで本研究では有効容積 5 L のラボスケール型リアクタを用い $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 濃度が 40 mg/L という低濃度一定条件の下運転を行った。現在までに 178 日間の運転を行い操作因子の最適条件の検討を行い、安定運転を試みた。

2.実験方法

2.1 実験装置及び運転条件

図-1 に本実験に使用したリアクタの概略図を示す。リアクタは高さ 345mm、内径 150mm の有効容積 5L の上

向流カラム型である。微生物担体には、高効率な汚泥保持が可能な biofix(NET(株))を用いた。水温 $30\text{--}35^\circ\text{C}$ 、pH $7.8\text{--}8.2 \pm 0.1$ 、曝気量 $3.0 \cdot 0.1 \text{ L/min}$ 、水理学的滞留時間(HRT) 24-2 h の間で、除去量によって各数値を段階的に変化させて運転した。

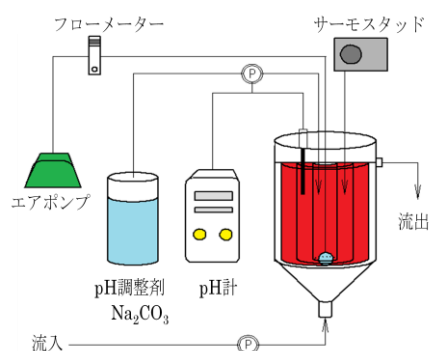


図 1-SNAP リアクタの概略図

2.2 供試汚泥及び供試廃水

SNAP リアクタの立ち上げには、本研究室で集積された SNAP 汚泥を 9.1 g-MLSS 投入し、空気曝気により 12 時間槽内を攪拌し、微生物担体に固定化させた。

供試廃水は $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ を $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 源とする人工無機廃水を用いた。表 1 に人工無機廃水組成を示す。

3.結果と考察

図 2 に各態窒素濃度の経日変化、図 3 に窒素容積負荷(NLR)、窒素除去速度(NRR)、HRT の経日変化を示す。

立ち上げは $\text{NLR } 0.04 \text{ kg-N/m}^3/\text{day}(\text{NH}_4^+ \cdot \text{N } 40 \text{ mg/L, HRT } 24 \text{ h})$ とし、HRT を段階的に短くしていくことで NLR を上昇させていった。

運転開始直後、亜硝酸化細菌(NO_B)による硝化反応が優先して生じ、除去率が得られなかった。NO_Bはアンモニア酸化細菌(AOB)との生理的特性の違いにより、FA 濃度が 0.1-1.0 mg/L、水温 25℃以上、低い DO 濃度で選択的阻害を受けることが知られている。しかし、この期間において FA 濃度が低く、DO 濃度が高かったため硝化反応が優先して生じたと考えられる。しかし、本実験では流入水の $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 濃度が低いため、FA 濃度を高く保つことによる NO_B の選択的な阻害が難しい。よって曝

表-1 人工無機排水組成表

$(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$	40 mg-N/L	NaCl	1 mg/L
KH_2PO_4	136.1 mg/L	KCl	1.4 mg/L
$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	9 mg/L	$\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	1.4 mg/L
$\text{EDTA} \cdot 2\text{Na}$	5 mg/L	$\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	1 mg/L

気量制御による DO 濃度の調整、水温の調整を行い NOB の阻害を試みた。曝気量を 0.5 L/min とした 11 日目以降、SNAP 反応による窒素除去が徐々に確認できた。その後 DO 濃度の減少に伴い、 $\text{NO}_3^- \cdot \text{N}$ の流出が減少し、開始 18 日目に NLR 0.4 kg-N/m³/day において NRR 0.23 kg-N/m³/day、除去率 59%を得た。

その後、さらに NLR を上昇させ、運転開始から 82 日目に NLR 0.5 kg-N/m³/day で NRR 0.38 kg-N/m³/day を達成した。その後、除去率は安定せず $\text{NO}_3^- \cdot \text{N}$ の流出を抑えられなかったため、114 日目に曝気量を 0.3 L/min に下げたところ除去率が 67%付近で安定した。

運転開始から 125 日目以降、さらなる除去率の向上に最も DO 濃度が関与していると考え、曝気量を調整することで DO 濃度による除去能力の検討を行った。図-4 は曝気量による平均の各態窒素濃度、窒素除去率及び DO 濃度を示している。曝気量が 0.3 L/min の時に最も高い窒素除去率が得られ、この時の平均 DO は約 2.2 mg/L であった。SNAP プロセスではこれまでの研究で DO 濃度の適正值が 2.0-3.0 mg/L とされるが、本実験では DO 濃度 2.5 mg/L 以上において硝化反応が優先的に生じ除去率が低下した。これは FA 濃度による NOB の阻害が無い分、低い DO 濃度で硝化反応が優先的に生じたと推察される。また DO 濃度が 1.5 mg/L 以下では、 $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 酸化への酸素量が十分ではなく、 $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ の残存が見られ除去率が低下した。このように、DO 濃度による除去能力の傾向が顕著に現れ、DO 濃度の適切な調整を行うことが、安定運転及び高い除去率を得るのに最も効果的であると推測される。DO 濃度検討期間中に SNAP リアクタの立ち上げに有効とされる、FA 濃度が 3 mg/L 以上となった期間も存在したが、最低でも硝酸生成率が 15 %であり、Strous が提唱する anammox 反応比(11%)よりも高く、NOB の完全な阻害は難しいと考えられる。

本実験で、低濃度 $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 含有廃水への SNAP プロセスの適用の可能性が示された。これは非常に大きな知見と成りうる結果である。しかし高濃度 $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 含有廃水

を対象とした SNAP プロセスに比べると、不安定で窒素除去率も低い。この原因には $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 濃度が低いこと、HRT が非常に短いことの 2 つによる anammox 細菌への基質の供給が十分でないことが考えられる。今後の実験においてこれら 2 つの検討を行い、不安定で窒素除去率が低い原因の解明を行っていく予定である。

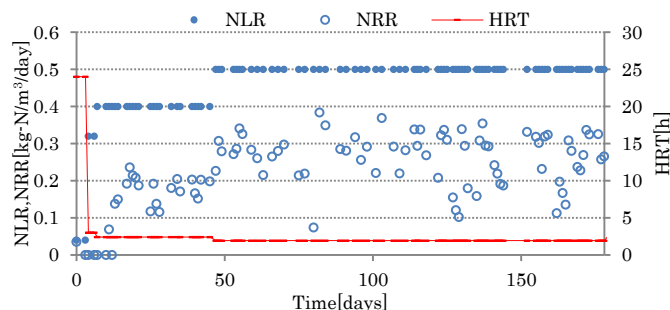


図-2 NLR、HRT、HRT の経日変化

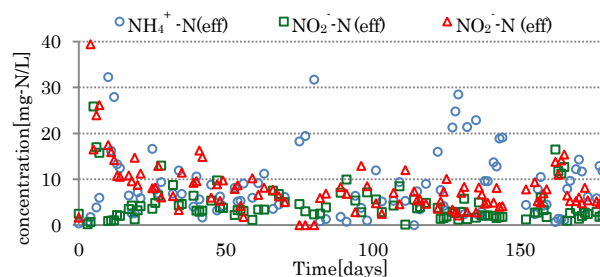


図-3 各態窒素濃度の経日変化

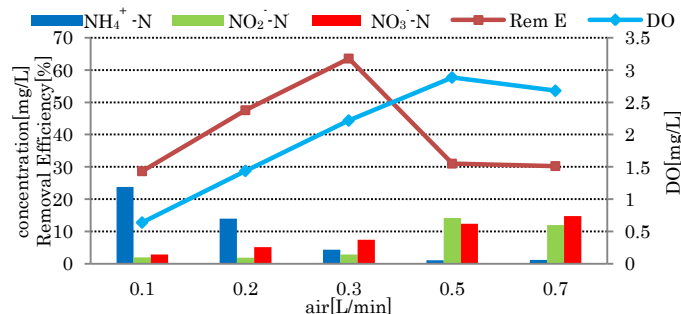


図-4 曝気量による各態窒素濃度、除去率及び DO 濃度の変化

4. 結論

- NLR 0.5 kg-N/m³/day の時 NRR 0.38kg-N/m³/day 窒素除去率 76%が得られ、 $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 低濃度域への SNAP プロセスの適用可能性が示された。
- DO 濃度の適切な制御が、除去率の向上と安定運転を行うことに最も有効であると推測される。
- $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ 低濃度域では NOB の阻害が難しく、常に anammox 反応比以上の $\text{NO}_3^- \cdot \text{N}$ の流出が見られる。

5. 謝辞

本実験は平成 23 年度 NEDO(新エネルギー・産業技術総合開発機構)の助成金により実施したものである。