

(16) 循環自己造粒・セラミックス充填好気ろ床プロセスにおける細菌相と処理特性

Treatment Efficiency and Characteristic of Bacteria
in USB-Aerobic Biofilter Circulating Process

孔 海南*、稲森 悠平**、中西 弘*、須藤 隆一***

Hai Nan KONG*, Yuhei INAMORI**, Hiroshi NAKANISHI*, Ryuichi SUDO***

ABSTRACT; This study dealt with treatment efficiency, granulation property, property of bacteria and activity denitrification of circulating process, which consisted of self granulation process and aerobic biofilter filled with ceramics, under high loading of $5.25\text{kgTOC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$, $0.94\text{kgT-N}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ (HRT6.2h) for two years. The results obtained from this study were as follows:

(1) Stable treatment characteristics were observed and removal rates of TOC and T-N were nearly 97% and 70% respectively. (2) Compared with non-circulation process, the MLVSS of granule was higher in this process, and the average diameter of granule was bigger, and granulation property maintained in two years. (3) Stable treatment was performed when the loading fluctuation was changed within $\pm 20\%$, however, when the loading fluctuation reached to $\pm 40\%$, granulation property was effected and removal rates became lower. (4) When the operation temperature rose from 20°C to 30°C , the granulation property became better and removal rates became higher, on the contrary, when the operation temperature fell down to 10°C , the granule floated out and the removal rates of TOC and T-N became lower greatly. (5) The number and activity of denitrifying bacteria per unit volume of self granulation reactor were 20 and 40 times higher than those in Anoxic-oxic Activated Sludge Process.

KEY WORD; UASB, Aerobic biofilter, Circulating process, Granulation property, Advanced treatment.

1. はじめに

汚濁湖沼、内湾などの閉鎖性水域の水質改善を図る上では生活排水、産業排水などに含有される栄養塩類を削減することが必要である。なお、生活排水についてはその対策法は確立されつつあるが、産業排水の中でも高濃度排水については効果的な高度処理法が十分でなくその開発が要望されるようになってきている。そのため、窒素などの栄養塩類までも効率的に除去でき、発生汚泥量が少なく、コンパクトな高度処理プロセスを開発することが必要である¹⁾。このような観点に立ち、自己造粒プロセス^{2), 3), 4), 5), 6)}と好気生物膜法とを組み合わせる循環プロセスに着目した検討を行い、本プロセスにおいて自己造粒化は可能であり、MLVSSも $50,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度が維持でき、TOC除去率約98%以上、T-N除去率約70%の得られることが明らかとなってきた^{1,8)}。しかし、性能の安定化を図る上ではプロセスの長期間における処理特性、自己造粒グラニュー

* 山口大学工学部 (Faculty of Engineering, Yamaguchi University.)

** 国立環境研究所 (National Institute for Environmental Studies.)

*** 東北大学工学部 (Faculty of Engineering, Tohoku University.)

ールの細菌特性及び操作因子の変動が浄化能に及ぼす影響についての知見の集積が必要である。

本研究では上記の点を鑑み、循環自己造粒・セラミックス充填好気ろ床プロセスにおける $5.25\text{kgTOC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$, $0.94\text{kgT-N}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ (HRT6.2h)程度までの高負荷条件において約2年間の長期間にわたって有機物、窒素除去能、汚泥発生量、グラニュールの造粒特性、グラニュールの脱窒菌数と分布特性、脱窒活性及びこの高負荷条件における負荷、水温変動がプロセスの処理性能やグラニュールの造粒特性に及ぼす影響を明らかにすることを目的として実験的検討を行った。

2. 実験方法

2.1 実験装置

実験装置の概要はFig1に示しており、嫌気性自己造粒プロセスと好気性生物膜法のセラミックス充填好気ろ床から構成されている。自己造粒プロセスは、原水タンク、自己造粒反応タンク、ガス収集部分、原水流入ポンプ、攪拌部分から構成されている。自己造粒反応タンクは、内径60mm、高

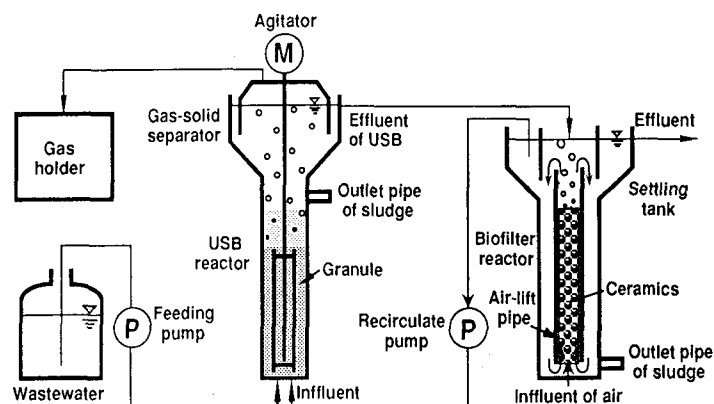


Fig1. Schematic diagram of treatment process

さ1m、実容積が2.8lの直胴部とその上の2.8lの固液気相分離部からなり、攪拌機に連結した羽根で自己造粒反応タンク内を緩速攪拌できるようになっている。なお、羽根の型式は二本の平行な棒状の羽根で1r.p.mで回転するように設定した。原水は、原水ポンプで自己造粒反応タンク下部から上向流で送られる。直胴部では、グラニュールが緩やかな流動状態で原水と接触し、固液気相分離部でグラニュールとガス、処理水に分離される。グラニュール汚泥は、処理開始時は直胴部において底部から上部までの間で循環が起こるが、グラニュールの濃度が高くなるにつれて上下の運動の範囲が狭くなって上部、中部、下部の間でそれぞれ行われるようになり微生物相の縦方向における違いがでてきたものと考えられる。発生ガスはガス収集部で収集され、処理水は固液気相分離部の上部の出口から流出する。

好気性ろ床は、内径90mm、高さ0.88m、実容積5.6lの直胴部のセラミックス充填ろ床とそのうえの2.8lの沈殿槽から構成されている。直胴部の中にはエアリフト管が設置され、二重管構造となっており、エアリフト管内に、直径4~6mmのセラミックス担体が充填されている。なお、セラミックスの物性は、比表面積 $12\sim 50\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$ 、嵩密度 $0.2\sim 0.5\text{g}\cdot\text{ml}^{-1}$ 、見かけ密度 $0.4\sim 0.7\text{g}\cdot\text{ml}^{-1}$ であった。空気はエアリフト管下部から送られ、気泡の上昇流により、水がエアリフト管の内外に循環するようになっている。なお、吹き込み空気量は好気ろ床のDO約 $3\sim 4\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 間になるように調整した。自己造粒反応タンクの流出水は好気性ろ床の上部から流入し、セラミックス担体の表面の生物膜で硝化が行われ、沈殿槽で分離された後に、自己造粒反応タンクに循環し、最終処理水は好気性ろ床の沈殿槽から流出するようになっている。なお、実験装置は20℃の恒温室に設置した。

Table 1. Composition of medium

Constituent	$\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$
Glucose	2,800
Na-Glutamate	1,000
NH_4Cl	645
KCl	100
$\text{MgCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$	100
KH_2PO_4	100
$\text{FeSO}_4\cdot \text{H}_2\text{O}$	80
$\text{CaCl}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$	180
NaHCO_3	4,000
TMS	$2\text{ml}\cdot\text{l}^{-1}$
TOC	1,400
BOD	1,220
T-N	250
T-P	10

2.2 人工排水

人工排水の組成はTable1に示すとおりであり、グルコース、グルタミン酸などを主成分とし、TMS剤と無機塩類を含有している。なお、TMS剤の組成はTable2に示すとおりである。この濃縮人工排水を水道水でTOC約1,400mg・l⁻¹、T-N約250mg・l⁻¹になるように希釈し、pH約7.8に調整して用いた。

2.3 実験条件

(1)運転条件と物質収支

各RUNの実験条件はTable 3に示すとおりである。循環系と非循環系の自己造粒化が完了した後に、循環系、非循環系の各々MLVSS約50,000、40,000mg・l⁻¹の濃度のグラニュー

ルを別々に初期濃度がMLVSS40,000mg・l⁻¹によるように調整して循環系のRUN1,3と非循環系のRUN2,4の反応タンクに均一分けて植種した。負荷量は各反応器のカラム部分の容積基準として求めたが、RUN1,2は3.5kgTOC・m⁻³・day⁻¹、0.63kgT-N・m⁻³・day⁻¹(HRT9.3h)、RUN3,4は5.25kgTOC・m⁻³・day⁻¹、0.94kgT-N・m⁻³・day⁻¹(HRT6.2h)に設定した。

また、好気性ろ床には嫌気好気活性汚泥プロセスのMLVSS約4,000mg・l⁻¹の活性汚泥を0.5l接種したが、負荷量はエアリフト部を含んだ容積基準で求めた。RUN1,3は循環系とし、循環比1~4に設定し、ペリスタポンプで循環するようにし、RUN2,4は非循環系として運転するようにした。

物質収支については、各RUNの処理水質が安定したことを確認した上で、30日間を1サイクルとした。物質収支のとり方は、流入水と流出水のTOC、T-N、SS、ガス発生量、各種ガス含有率については実測値に基づき、SSについては(3)式より炭素と窒素に換算し、ガス発生量については(5)式により炭素と窒素に換算して求めた。汚泥生成量については(1)式より求め、(2)と(3)式より炭素と窒素に換算した。そして、流入水TOCとT-Nを100%として、流出水TOCとT-N、発生ガス、流出菌体量、汚泥転換量に対する炭素と窒素の比率について計算より求めた。

実験終了時の汚泥容積(1)×MLSS－実験開始時の汚泥容積(1)×MLSS

汚泥生成量＝
(mg・l⁻¹) 1日当たり原水量(1・日⁻¹)×実験期間(日)(1)

汚泥の炭素(窒素)(mg・l⁻¹)＝汚泥生成量(mg・l⁻¹)×菌体含量(MLVSS/MLSS)×菌体炭素(窒素)含量比 ..(2)

流出菌体の炭素(窒素)(mg・l⁻¹)＝物質収支期間の流出水平平均SS(mg・l⁻¹)×SS菌体含量(MLVSS/MLSS)×菌体炭素(窒素)含量比.....(3)

菌体炭素(窒素)含量比＝(菌体元素組成CH_{1.74}O_{0.52}N_{0.17}より)12/24.44＝0.49(2.38/24.44＝0.097)....(4)

発生ガスの炭素(窒素)(mg・l⁻¹)＝ガス発生量(1)×1mol/22.4(1)×C(N)原子量.....(5)

汚泥生成量の算定におけるMLSSの測定については、反応タンクのグラニュールをすべて取りだして均一に攪拌混合してから行った。

(2)負荷変動の影響

完全嫌気性の自己造粒法に対する負荷変動の処理特性に及ぼす影響についてはいくつかの報告がある^{3)・5)}が、ここでは嫌気好気循環法に対して負荷変動が及ぼす影響を及ぼすかに着目して検討を行った。すなわ

Table 2. Composition of TMS

Constituent	mg・l ⁻¹
H ₃ BO ₃	50
ZnCl ₂	50
CuCl ₂ ・2H ₂ O	40
MnCl ₂ ・4H ₂ O	500
(NH ₄) ₆ Mo ₇ O ₂₄	50
AlCl ₃	30
CoCl ₂ ・6H ₂ O	150
NiCl ₂ ・6H ₂ O	100
HCl	2ml
H ₂ O	1,000ml

Table 3. Operational conditions

RUN	Circulation	Rate of circulation	Concentration		Loading		HRT (h)	Temp. (°C)
			TOC (mg・l ⁻¹)	T-N (mg・l ⁻¹)	TOC (kg・m ⁻³ ・day ⁻¹)	T-N (kg・m ⁻³ ・day ⁻¹)		
1	with	4	1,400	250	3.5	0.63	9.3	20
2	without	—	1,400	250	3.5	0.63	9.3	20
3	with	4	1,400	250	5.25	0.94	6.2	20
4	without	—	1,400	250	5.25	0.94	6.2	20

ち、嫌気自己造粒・好気循環法において負荷量 $5.25\text{kgTOC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$, $0.94\text{kgT-N}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ (HRT6.2h)の条件で運転しているRUN3で処理性能の安定したのを確認したあとに、Fig 2に示すように負荷の変動幅を $\pm 20\%$ に設定して2カ月間運転した後、変動幅を $\pm 40\%$ に変えて2カ月間運転を行った。

(3)水温変動の影響

完全嫌気自己造粒法において高負荷条件の下で常温(25℃)から10℃程度に温度が低下すると、急激に処理性能が劣化することが報告されているが⁶⁾、ここでは循環自己造粒・セラミックス充填好気ろ床プロセスに対する温度の影響に着目して検討を行った。温度変動実験は、20℃の恒温室において、自己造粒反応タンクと好気ろ

Table 4. Operational conditions of temperature

RUN No	Temp. (°C)	Rate of circulation	Concentration		Loading		HRT (h)
			TOC (mg·l ⁻¹)	T-N (mg·l ⁻¹)	TOC (kg·m ⁻³ ·day ⁻¹)	T-N (kg·m ⁻³ ·day ⁻¹)	
5	10	4	1,400	250	5.25	0.94	6.2
6	20	4	1,400	250	5.25	0.94	6.2
7	30	4	1,400	250	5.25	0.94	6.2

床と組み合わせた循環プロセスを用いて、上記の $5.25\text{kgTOC}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$, $0.94\text{kgT-N}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ (HRT6.2h)程度の負荷条件において、処理性能が安定したことを確認した後に、Table4に示すように、RUN3のグラニュールを均一に3等分して10℃(RUN5)、20℃(RUN6)、30℃(RUN7)を並行して各々の恒温室において、約2カ月間運転を行った。

自己造粒反応タンクのグラニュールの形態、脱窒菌の菌数、分布特性及び脱窒活性について対照として従来の浮遊式循環嫌気・好気活性汚泥プロセスと比較を行った。なお、この浮遊式嫌気好気活性汚泥プロセスは、原水BODとT-Nが各々 $200\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、 $50\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ で、BOD負荷が $0.6\text{kgBOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ 、HRT約8時間、循環比4に設定して約一年間の長期運転を経たベンチスケール規模の実験装置である。

2.4 分析方法

(1)TOC：ガラス濾紙(Whatman GF/C フィルター)でろ過した濾液について有機性炭素分析計(島津製作所TOC-500型)で分析した。

(2)T-N、NH₄-N、NO₃-N：上記の同じ濾液についてTECHNICON II型分析計で分析した。

(3)ガス成分分析：「下水試験方法」に準じ、ガスを採取し、ガス発生量を測定し、ガスクロマトグラフ法によりガスクロ分析計(島津製作所GC-7型)でCH₄、CO₂、N₂、N₂Oなどのガス成分を分析した。なお、N₂Oの分析は吸着剤にMolecular sieve 13Xを用いて、0℃に水冷してN₂Oを吸着させ、300℃に加熱して分析カラムに導入して分析した。

(4)グラニュールの分析、測定と観察：グラニュールの平均粒径については、反応器内の上部と底部の各々10カ所より試料5mlを採取し、よく混合してから、混合液各々3mlを試料として用いた。なお、グラニュールの観察は、光学顕微鏡と走査型電子顕微鏡写真(SEM像)により行った。

(5)脱窒菌数の測定：脱窒菌の脱窒菌数(MPN)は、下水試験方法のMPN法に準じ⁸⁾、試料を氷冷条件で超音波破碎し、細胞を分散させ、10倍希釈法で各種希釈段階の細胞懸濁液を調整し、各細胞懸濁液1mlを脱窒菌用Gilray培地9mlの入った試験管5本にそれぞれ接種し、30℃、10日間培養して評価した。培地の濃青色への変化より、硝酸還元菌の生育を、又、色の変化と同時にガス発生より、脱窒菌の生育を判定し、最確数法(5本法)より、脱窒菌数を算出した。なお、超音波破碎条件については、出力を20Wに設定し、グラニュールでは一分間超音波をかけ、一分間停止し、その後再度一分間超音波をかけるように行った。また、グラニュールに30秒間の超音波をかけ剥離した部分を表層部分、残った部分を中核部分とした。なお、中核部分の粒径はグラニュールの粒径の約1/3となった。嫌気・好気活性汚泥では一分間超音波処理を行った。

(6)脱窒活性の測定：脱窒活性は、100mlバイアルビンに、40mlのグラニュール、あるいは汚泥と40mlの原水を注入し、その後、瓶内の気相をヘリウムガスで置換し、20℃恒温室で、約30回·min⁻¹の往復振とうで培養し、一定時間ごとにバイアルビンを開封して、水溶液のNO₂+₃-N濃度を測定し、窒素濃度の経時変化曲線より

り、グラニューールと汚泥の脱窒活性を算出した。なお、脱窒用原水は、原水の窒素を硝酸性窒素とし、有機炭素源として硝酸性窒素の約3倍量のエタノール添加したものである。

3. 結果および考察

Table 5. TOC, T-N removal and property of gas production

RUN No	Circulation	Rate of circulation	TOC removal (%)	T-N removal (%)	Gas production $\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1} \text{TOC}$	N_2 (%)	CH_4 (%)	CO_2 (%)	N_2O (%)
1	with	4	98.2	71.2	1.42	7.8	56.5	35.7	0.0
2	without	—	97.8	24.2	1.26	2.6	67.0	30.4	0.0
3	with	4	98.0	73.3	1.32	8.2	53.6	38.1	0.0
4	without	—	96.3	20.0	1.14	1.8	60.8	37.3	0.0

3.1 プロセスの処理特性

(1) 有機物と窒素の除去特性

1990年9月から1992年9月までの約2年間の水質安定期における各 RUNの有機物、

窒素除去率の平均値はTable5に示すとおりである。平均値の標準偏差は、TOCとT-N除去率において、RUN1でそれぞれ2.87%, 8.41%, RUN2で1.72%, 2.64%, RUN3で2.63%, 7.21%, RUN4で1.93%, 3.15%であった。

有機物の除去性能は運転開始約4週間後に安定した。この水質の安定した時期において、自己造粒反応タンクのTOC除去率は、非循環系のRUN2,4で各々約90.5%、88%、循環系のRUN1,3で各々約92.2%、91.1%であった。好気性ろ床処理までを含めた総TOC除去率は、非循環系のRUN2,4で各々約97.8%、96.3%、循環系のRUN1,3で各々約98.2%、98%であった。長期間において、循環比4で好気性処理水を循環することにより、流入水の濃度が非循環系の約1/5程度に希釈されるにもかかわらず、循環系では、TOC除去率は非循環系と大差のなかったことが観察された。また、循環系では、 CH_4 ガス転換率は非循環系より12.0~15.9%少ないことが観察された。この結果について、今後更に検討する必要があると考えられる。

窒素の除去性能は運転開始約9週間後に安定した。

この水質の安定した時期における自己造粒反応タンクのT-N除去率は、非循環系のRUN2,4で各々約17.8%、14.2%、循環系のRUN1,3で各々約63.3%、65.4%であった。なお、循環系のRUN1,3では、 $\text{NO}_{2+3}\text{-N}$ の形態の窒素はほとんど検出されなかった。好気性ろ床を含めた総T-N除去率は、非循環系のRUN2,4で各々24.2%、20%、循環系のRUN1,3で各々71.2%、73.3%であり、循環系の窒素除去能は非循環系に比べて著しく高まるこ

Table 6. Mass balance of carbon in self granulation reactor

RUN No	Circulation	Influent $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$	Effluent		Gas		Sludge $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$	Totals (%)
			SS $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$	Dissolved $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$	CH_4 $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$	CO_2 $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$		
1	with	372 (100%)	8.6 (2.3)	29.0 (7.8)	160.0 (43.0)	101.2 (27.2)	23.8 (6.4)	— (86.7)
2	without	1,380 (100%)	42.8 (3.1)	131.1 (9.5)	624.1 (45.2)	283.2 (20.5)	41.4 (3.0)	— (81.3)

Table 7. Mass balance of nitrogen in self granulation reactor

RUN No	Circulation	Influent $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$	Effluent		Gas N_2 $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$	Sludge $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$	Totals (%)
			SS $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$	Dissolved $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$			
1	with	102 (100)	2.6 (2.5)	35.3 (34.6)	77.9 (76.4)	7.1 (7.0)	— (120.5)
2	without	250 (100)	8.5 (3.4)	205.5 (82.2)	56.5 (22.6)	8.2 (3.3)	— (111.5)

とが確認された。また、好気性ろ床の出口では、非循環系と循環系ともに、 $\text{NO}_{2+3}\text{-N}$ としての窒素が9割以上を占め、好気性ろ床のHRTを嫌気性自己造粒反応タンクの2倍程度にし、かつ、セラミックス担体を用いることにより高濃度に硝化菌を保持できることがわかった。なお、窒素負荷 $0.63 \text{kg T-N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ では非循環系と

循環系ともにほとんどが $\text{NO}_{2+3}\text{-N}$ としての形態が認められたが、窒素負荷 $0.94\text{kgT-N}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ のRUN3,4では5~10%程度の $\text{NH}_4\text{-N}$ が残存するのが観察された。

これらのことより、循環系においては、有機物除去能と窒素除去能が高く保持されることがわかった。なお、窒素負荷 $0.94\text{kgT-N}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ においては窒素負荷 $0.63\text{kgT-N}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ と比べて、硝化率がやや低下したが、これは窒素負荷が高かったためと考えられる。

水質安定期における循環系RUN1と非循環系RUN2の自己造粒反応タンクの有機炭素に着目した物質収支は1サイクルを30日として3サイクル分から評価したが、その結果はTable 6に示すとおりである。流入水TOCを100%とすると、 CH_4 ガス、 CO_2 ガス、流出TOC、流出菌体、転換汚泥など各種形態の炭素をあわせて、循環系のRUN1では回収されたのは86.7%で、非循環系のRUN2では81.3%であった。なお、未回収分の炭素は、流出水中に溶存する生成ガス由来の重炭酸イオンと考えられる。

自己造粒反応タンクの窒素に着目した物質収支についてはTable 7に示すとおりである。流入水T-Nを100%とすると、 N_2 ガス、流出T-N、流出菌体、転換汚泥など形態の窒素をあわせて、循環系のRUN1では120.5%で、非循環系のRUN2では111.5%と高い値となったのは分析誤差以外に、窒素分圧等の影響も考えられることから、窒素分圧についての影響も推算したが、処理過程に水温と塩分濃度の上昇することが主な原因ではないかと考えられた。すなわち、水に溶解する窒素濃度は水温の変動と塩分濃度の変動により影響を受け、水温が 1°C 上昇すると、溶解する窒素ガス濃度は約1.8%低下し、塩分濃度が0.1%増加すると、溶解する窒素ガス濃度は0.58%低下するが、実測値に基づいて自己造粒反応タンクでは水温が約 1.5°C 、塩分濃度が約0.15%それぞれ上昇したことから計算すると、発生窒素ガスの窒素分は約5%程度増加し、本結果とおおむね一致するものと考えられる。なお、窒素分圧に係る影響は、流入水の窒素分圧を79%と仮定し、流出水の窒素分圧を循環系で7.8%、非循環系で2.6%として行ったところ、窒素収支に及ぼす影響は2%以下であると推算された。

物質収支からみると、循環系自己造粒反応タンクの流出菌体と転換汚泥の炭素をあわせた微生物菌体への汚泥転換率は、 MLVSS が $65,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度と高く、内生呼吸率も高く、ガス化率が70%程度と高かったことに由来するものと考えられるが、約8.7%と小さく、汚泥発生量は低かった。

(2) ガス発生量と組成

水質安定期における各 RUNのガス発生量、ガス成分の含有量についてはTable5に示すとおりである。循環系RUN1,3のガス発生量は非循環系のRUN2,4より約一割程度高く、また、循環系の発生ガス中の CH_4 含有率は非循環系より12.0~15.9%程度低く、かつ CO_2 含有率は高く、 N_2 含有率は約7~8%であり、非循環系より高かった。なお、非循環系において発生ガス中に N_2 が存在したことについては完全嫌気性条件においては流入原水中に硝酸が存在しないため、硝化脱窒が起こっていることは考えられないことから、流入水中に溶存する窒素に由来するものと考えられる。また、循環系と非循環系ともに、Table5に示すように、有機物と窒素の負荷量が高くなるにつれて、ガス発生量が低下し、 CH_4 ガス含有率は低下して CO_2 ガス含有率が上昇するのが観察された。

(3) 負荷変動の処理特性に及ぼす影響

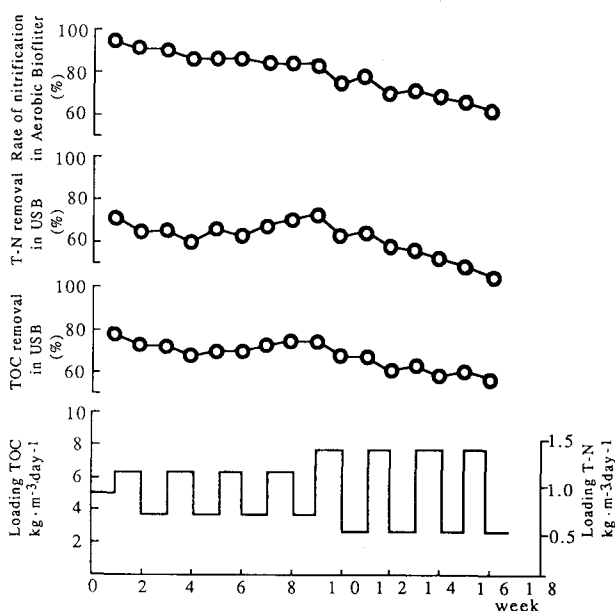


Fig 2. Influence of loading shock on TOC , T-N removal, rate of nitrification

負荷変動実験の結果はFig 2に示すとおりである。負荷の変動幅を約±20%程度にした場合においては、自己造粒反応槽のTOCとT-N除去率はともに当初若干低下し、その後処理性能は回復するのに対して、負荷の変動幅を約±40%程度にした場合においては、TOCとT-N除去率ともに徐々に低下するのが観察された。負荷変動時におけるT-N除去能の低下とセラムックス充填好気ろ床の硝化率の低下とは一致するのが観察された。また、負荷の変動幅を±20%程度にした場合においては、グラニューール平均粒径などの造粒特性、有機物、窒素除去特性には顕著な変化は認められなかったが、負荷の変動幅を±40%程度にした場合においては、グラニューールのMLVSSが2割程度低下し浄化能も低下するのが認められた。これらのことより、本プロセスにおいて、発生源の負荷が大幅に変動する場合は、流量調整を行うことが望ましいと考えられる。

(4) 温度変動の処理特性に及ぼす影響

温度変動の処理特性に及ぼす影響はFig 3に示すとおりである。自己造粒反応タンクの流出水のTOCとT-Nは30℃のRUN7では運転の初期段階においては若干低くなったが、約一カ月の後、処理性能が回復し、20℃のRUN6より高い処理性能で安定した。10℃のRUN5のTOCとT-Nは、運転開始後から大幅に低下して、徐々に回復したにもかかわらず処理性能は低かった。セラムックス充填好気ろ床の硝化率は30℃のRUN7では20℃のRUN6より高く維持されたが、10℃のRUN5では、初期段階に硝化率が約70%程度に低下し、その後に徐々に回復して約80%で安定し、低水温下でも高い硝化能の保持されることがわかった。

また、造粒特性については、各RUNとも同じ負荷量で運転しているにもかかわらず、グラニューールの平均粒径は、30℃のRUN7の2.6mm>20℃のRUN6の1.9mm>10℃のRUN5の1.5mm、グラニューールのMLVSSは、30℃のRUN7の73,000mg・l⁻¹>20℃のRUN6の64,000mg・l⁻¹>10℃のRUN5の61,000mg・l⁻¹の順となった。温度変動の実験開始時に、実験装置を20℃の恒温槽から30℃、10℃の恒温槽に移動した直後に、RUN5と7ともにグラニューール中核部分で細菌の自己消化が起こったものと考えられるが、グラニューールに中空部分が形成される現象が発生した。特に、10℃のRUN5では、顕著であり、このためグラニューールの浮上現象が観察された。このことより、本プロセスにおいて、急激な温度変動は処理性能に大きな影響と及ぼすことが明らかとなった。

3.2 グラニューールの造粒特性

(1) グラニューールの平均粒径

グラニューールの平均粒径は、非循環のRUN2,4では運転開始した後、各々約0.81mm, 0.98mmまでに成長した後、それ以上大きくなることはなく、2年間同じ大きさが保持されたが、循環系のRUN1,3は運転開始してから、持続的に成長し、約一年後に、各々約1.8mm, 2.5mm、2年後に各々約2.1mm, 2.8mmまでに達した。

非循環系自己造粒プロセスにおいて、Grotenhuisら(1991)および孔ら(1993)は、グラニューールの平均粒径は有機物濃度、負荷量と関係があり、有機物濃度、負荷量が高くなると大きくなる傾向にあることを報告しているが^{9), 16)}、循環系自己造粒プロセスのグラニューールの平均粒径についても有機物負荷量と関係が

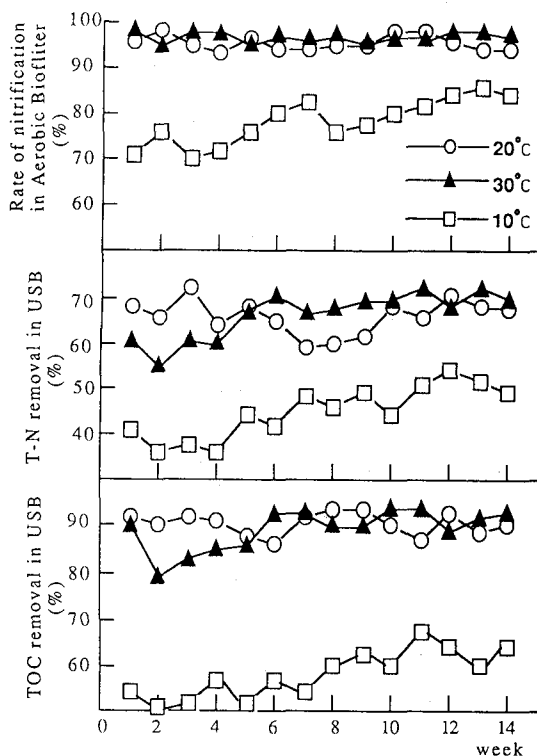


Fig 3. Influence of temperature on TOC, T-N removal and rate of nitrification

あり、有機物負荷量が高くなると大きくなる傾向が認められた。

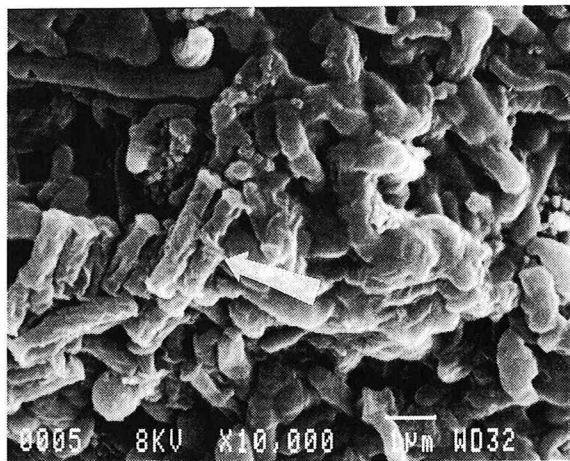
非循環系グラニュールの平均粒径はある大きさ以上に成長しなかったが、これはグラニュールがある一定の大きさ以上になると、内部への基質拡散がおこりにくくなり、グラニュールの内部で細菌の自己消化がおこり、中空部分の形成が生じて破壊するからではないかと報告されている⁹⁾。それに対して、循環系グラニュールの平均粒径が時間とともに大きくなるのは循環系自己造粒プロセスではグラニュールがいったん約100 μm ぐらいの小さい卵形のグラニュールに成長し、これらが粘着するという造粒機構と関係があるものと考えられる。

なお、2年間の運転後の反応タンクの底部のグラニュールのMLVSSは、非循環系で約50,000 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、循環系で約65,000 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、循環系の方がバイオマス量が高まることがわかった。

(2) グラニュールの細菌相

非循環系と循環系のグラニュールの表面の微生物相を比べると、循環系は、非循環系で認められる *Methanothrix* 属メタン菌を主とする球菌と短桿菌の2種類以外に、脱窒に関与する節状長桿菌から構成されているのが推定された¹⁹⁾。

Fig 4は2年間運転した後の循環系の RUN1の反応タンクの底部のグラニュールの表面の構成微生物の10,000倍の走査型電子顕微鏡写真である。推定された脱窒に関する節状長桿菌は本Fig中の白い矢で示すものである。この微生物相を自己造粒が安定的に認められるようになった



運転開始133日後のグラニュールの表面の微生物相と比べると、その種類と生息状態には顕著な変化は認められなかった。このことから、長期間運転しても、循環系のグラニュールの微生物相は変化することなく安定した状態が続くことがわかった。なお、循環系自己造粒の反応タンクにおいては下部の脱窒反応区域と上部のメタン発酵反応区域が分かれて存在しているものと考えられ、循環系におけるグラニュールの形成については反応タンクの底部の脱窒反応区域からその上部のメタン発酵区域の間においてグラニュール化の機構は異なり、底部においては脱窒菌が優占化し、上部に行くにつれて脱窒菌とメタン菌の比においてメタン菌が優占する方向になるものと考えられる。このことは、グラニュールの脱窒菌の占める割合が底部で高く、上部で低くなって行くことから裏づけられる。すなわち、グラニュール中に脱窒菌とメタン菌が共存するメカニズムとしては、おそらく硝酸性窒素の結合酸素が消費される過程で脱窒菌が増殖し、硝酸性窒素が消費した後ORPが低下する過程でメタン菌の増殖が起こり、この両者の反応が起こる境界区域において両菌の混在したグラニールが形成されるものと考えられる。

また、循環系のRUN1の反応タンクの底部のグラニュールの表層部分の平均脱窒菌数は $3.5 \times 10^{12} \text{N}\cdot\text{cm}^{-3}$ で、中核部分が $2.7 \times 10^{10} \text{N}\cdot\text{cm}^{-3}$ であり、表層部分は中核部分より、約100倍以上の脱窒菌が存在することがわかった。脱窒菌はグラニュールの表層に多く分布しているものの、グラニュールの中核部においても多数生息しており、グラニュールの中心部においても脱窒活性が高いことがわかったが、グラニュールの中核部に多数の脱窒菌が生息している理由は、造粒化の初期で反応槽底部においては溶存酸素、硝酸性窒素を含有する循環水中の分子状酸素と結合酸素を利用して増殖した脱窒菌と酸生成菌等からなるグラニュールの核が形成され、この核の表層で細菌が増殖し、グラニュールが成長して中心部に初期に増殖した脱窒菌が存在し、活性を有した状態で生残するものと考えられる。なお、反応槽内における脱窒反応はグラニュールの中心部よ

りも表層部で主として起きているものと考えられる。

(3) 反応タンクの脱窒菌のバイオマス量と分布特性

循環系のRUN1の反応タンクのグラニュールと嫌気・好気活性汚泥プロセスの活性汚泥の脱窒菌数および脱窒活性などについて比較した結果はTable8に示すとおりである。また、循環系のRUN1の反応タンクの縦方向における底面から10cmごとを一区域とした場合のTOC、T-N、MLVSS、脱窒菌数などの分布特性はFig5に示すとおりである。なお、反応タンクの入口のTOCとT-Nの濃度は循環をかけない場合に各々1,400、250 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、循環した場合に各々372、102 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ で、循環による希釈効果が認められた。

循環系自己造粒の反応タンクのMLVSS当たりの脱窒菌数は $1.4\times 10^{12}\text{N}\cdot\text{g}^{-1}$ グラニュールで、嫌気・好気活性汚泥プロセスの $1.1\times 10^{12}\text{N}\cdot\text{g}^{-1}$ 活性汚泥と同じ程度であり、グラニュール状態においてもフロック状態の活性汚泥と同様な細菌バイオマス量の保持されていることがわかった。さらに、循環自己造粒の反応タンクの容積当たりの脱窒菌数に換算すると、 $8.9\times 10^{10}\text{N}\cdot\text{ml}^{-1}$ で、嫌気・好気活性汚泥プロセスのベッド容積当たりの脱窒菌数の $4.8\times 10^9\text{N}\cdot\text{ml}^{-1}$ に比べると約20倍程度高まることがわかった。

また、循環系自己造粒の反応タンクのMLVSSは $65,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ で、嫌気・好気活性汚泥プロセスの $4,300\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に比べると、約15倍程度高いことがわかった。

Fig 5より循環系のRUN1の反応タンクの縦方向のMLVSSの分布は底部の $65,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ から上部の $29,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ まで徐々に低くなる傾向にあったが、TOCの分布は、入口では原水約 $1,400\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、循環水約 $30\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、混合水約 $372\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であったが、20cmの区域において $271\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に低下し、60cmの区域で $101\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ までに低下した。T-Nの分布は、入口では原水約 $250\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、循環水約 $70\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、混合水約 $102\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であったが、20cmの区域において $74\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ までに低下した。また、脱窒菌数の分布は、底部の区域で $1.6\times 10^{11}\text{N}\cdot\text{g}^{-1}$ グラニュールであったのが、10cmの区域で $1.4\times 10^{12}\text{N}\cdot\text{g}^{-1}$ グラニュールと約10倍程度上昇し、30cmの区域で $2.8\times 10^{10}\text{N}\cdot\text{g}^{-1}$ グラニュールに低下するのが認められた。循環系自己造粒反応タンクの下部で循環された硝酸性窒素の結合酸素は脱窒菌の呼吸で消費され、また同時に有機物が水素供与体として消費されてまず除去され、その後酸化還元電位が低下し、残った有機物はメタン発酵により除去されるものと考えられる。これらのTOC、T-N、脱窒菌数の分布特性をみると、循環系自己造粒反応タンクにおける脱窒は主として底部から20cmの区域で行われ、メタン発酵反応は主として20cm以上の区域で行われるものと推定された。このことについては、Fig 5からも分かるのとおり、底部から20cmの区域までにおいてT-N $28\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ が脱窒反応で除去され、同時にT-Nのおおむね3倍のTOC $101\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ が消費され、残った有機物のTOC $170\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ が60cmまでの区域でメタン発酵により除去されたものと考えられる。

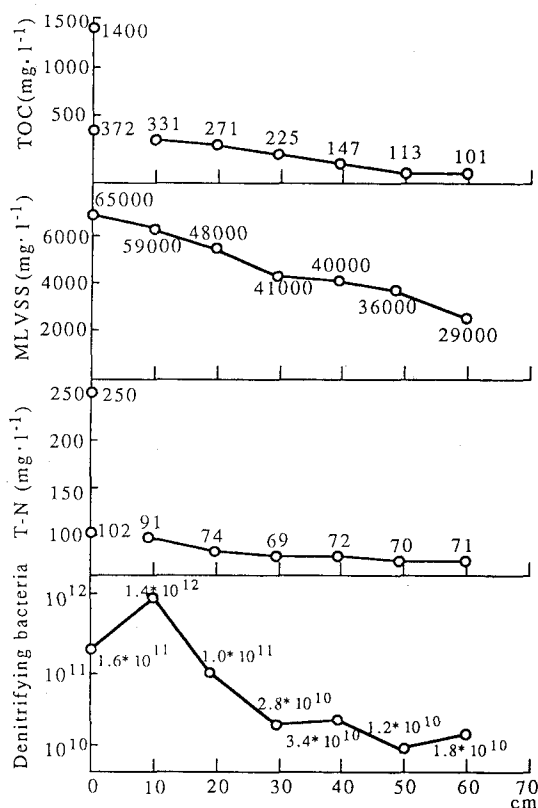


Fig 5. Profile analysis of TOC, MLVSS, T-N and number of denitrifying bacteria

グラニュールの脱窒活性はTable 8に示したとおり、循環系のRUN1の底部から約10cmまでの区域で、 $5.01\text{mg NO}_3\text{-N}\cdot\text{g}^{-1}\text{グラニュール}\cdot\text{h}^{-1}$ 、20cmから30cmまでの区域で $2.40\text{mg NO}_3\text{-N}\cdot\text{g}^{-1}\text{グラニュール}\cdot\text{h}^{-1}$ 、60cmから70cmまでの区域で $2.49\text{mg NO}_3\text{-N}\cdot\text{g}^{-1}\text{グラニュール}\cdot\text{h}^{-1}$ であり、嫌気・好気活性汚泥プロセスの脱窒活性の $1.94\text{mg NO}_3\text{-N}\cdot\text{g}^{-1}\text{活性汚泥}\cdot\text{h}^{-1}$ に比べて高かった。さらに、反応槽容積当たりの循環自己造粒の脱窒活性は底部から約10cmまでの区域において $0.33\text{mg NO}_3\text{-N}\cdot\text{ml}^{-1}\text{グラニュール}\cdot\text{h}^{-1}$ であったが、嫌気・好気活性汚泥プロセスの汚泥の脱窒活性は $0.0083\text{mg NO}_3\text{-N}\cdot\text{ml}^{-1}\text{活性汚泥}\cdot\text{h}^{-1}$ であり、浮遊法に比べて自己造粒法では約40倍程度高まることがわかった。

これより、循環系自己造粒プロセスのグラニュールの脱窒菌数、脱窒活性は浮遊式のプロック状態の汚泥

Table 8. Comparison of number of denitrifying bacteria, activity of denitrification, MLVSS of sludge between USB-Aerobic Biofilter Circulating Process and Anoxic-oxic Activated Sludge Process

Item	USB-Aerobic Biofilter Circulating Process (A)	Anoxic-oxic Activated Sludge Process (B)	(A)/(B)
Number of denitrifying bacteria in reactor	$8.9\times 10^{10}\cdot\text{ml}^{-1}$ $1.4\times 10^{12}\cdot\text{g}^{-1}\text{MLVSS}$	$4.8\times 10^9\cdot\text{ml}^{-1}$ $1.1\times 10^{12}\cdot\text{g}^{-1}\text{MLVSS}$	18.5 1.27
Activity of denitrification	$0.33\text{mg NO}_3\text{-N}\cdot\text{ml}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}$ $5.01\text{mg NO}_3\text{-N}\cdot\text{g}^{-1}\text{MLVSS}\cdot\text{h}^{-1}$	$0.0083\text{mg NO}_3\text{-N}\cdot\text{ml}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}$ $1.94\text{mg NO}_3\text{-N}\cdot\text{g}^{-1}\text{MLVSS}\cdot\text{h}^{-1}$	39.8 2.58
MLVSS $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$	$65,000\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$	$4,320\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$	15.0

と比べて菌体当たり、また、容積当たりのいずれからみても高く、自己造粒プロセスにおいては極めて効率的な反応が起こることが示唆された。

4. まとめ

本研究は循環自己造粒・セラミックス充填好気ろ床プロセスにおける高負荷条件において2年間にわたって造粒、処理性能、細菌相および脱窒活性などについて検討を加えたものであるが、得られた成果は以下にまとめるとおりである。

- (1)循環自己造粒・セラミックス充填好気ろ床プロセスのTOC除去率は約98%、T-N除去率は約70%で、長期間安定して得られることがわかった。
- (2)非循環自己造粒プロセスより循環自己造粒プロセスの方がMLVSSが高まり、平均粒径の大きいグラニュールが長期間安定して維持できることがわかった。
- (3)負荷変動の幅を定常系の±20%に変動させた場合は、造粒特性、有機物、窒素除去特性は影響を受けなかったが、±40%に変動させると、影響が生じ始めることがわかった。
- (4)温度を10, 20, 30℃に変えた場合、造粒特性、有機物、窒素除去特性は温度が高まるほど良好であったが、10℃の低温条件下では、グラニュールの浮上と除去能の低下が顕著に生じることがわかった。
- (5)循環自己造粒プロセスの反応タンクの容積当たりの脱窒菌数とグラニュールの脱窒活性は嫌気・好気活性汚泥プロセスより各々約20、40倍程度高まることがわかった。

5. おわりに

公共水域の富栄養化防止を図るうえでは、発生源対策としての高度処理技術の開発と普及が重要であることはいうまでもない。本研究で検討を加えた循環自己造粒・セラミックス充填好気ろ床プロセスは、高濃度の

有機性排水に対して、省エネ的で、コンパクトで、高負荷運転が可能で、高度な水質を得ることができるという特性を有していることがわかった。今後は実排水を用いた応用研究を行い実処理システムとしての確立を急ぐ必要があると考えられる。

本研究は財団法人イオングループ環境財団の助成を受けて行ったものである。

参考文献

- 1)稲森悠平、須藤隆一：生活・産業系排水対策の現状と窒素・リン削減を目指した高度処理技術の動向、公害と対策、27,(9), pp25-31, 1991.
- 2)須藤隆一：微生物固定化法による排水処理、産業用水調査会、東京、1988.
- 3)原田秀樹：嫌気性スラッジブランケット (UASB) 法による下・廃水処理、下水道協会誌、22, pp67-75, 1985.
- 4)岡田光正、大久保卓也：自己固定化法の浄化特性に及ぼす基質の影響、用水と廃水、31,(1), pp12-27, 1989.
- 5)明賀春樹、熊谷清己：UASB法による高濃度有機性排水の処理、用水と廃水、31,(1), pp42-48, 1989.
- 6)原田秀樹、桃井清至、藤井伸夫、帆秋利洋：上昇流スラッジブランケット反応器 (UASB) による高速メタン発酵特性、衛生工学研究論文集、23, pp227-237, 1987.
- 7)N.Kosaric, R.Blaszczyk, L.Orphan and J.Valladres: The characteristics of granules from upflow anaerobic sludge blanket reactors. Water Research, 24,12, pp1473-1477, 1990.
- 8)日本下水道協会：下水試験方法、日本下水道協会、東京、1984.
- 9)J.T.C.Grotenhuis, J.C.Kissel, C.M.Plugge, A.J.M.Stams and A.J.B.Zehnder: Role of substrate concentration in particle size distribution of methanogenic granular sludge in UASB reactor. Water Research, 25,1, pp21~27, 1991.
- 10)稲森悠平、孔海南、須藤隆一、大野茂：自己造粒プロセスにおける有機物、窒素の除去と造粒及び発生ガスの特性、水処理生物学会第27回大会講演要旨集、1990.
- 11)Hai Nan Kong, Yuhei Inamori, Ryuichi Sudo: Relationship between granulation property and removals of organic substances and nitrogen in the UASB and USB process, 3RD IAWPRC regional conference on development and water pollution control, ASIAN WATERQUAL '91, SHANGHAI, 1991.
- 12)孔海南、稲森悠平、中西弘、須藤隆一：UASB・セラミック充填好気ろ床循環プロセスにおける有機物、窒素の除去特性、第25回日本水環境学会年会講演論文集、1991.
- 13)孔海南、稲森悠平、中西弘、須藤隆一：UASB・生物膜プロセスにおける循環の有無と造粒特性、日本水処理生物学会第28回大会講演要旨集、1991.
- 14)孔海南、稲森悠平、中西弘、須藤隆一：循環自己造粒・生物膜プロセスにおける造粒および処理性能、第26回日本水環境学会年会講演論文集、1992.
- 15)孔海南、稲森悠平、中西弘、須藤隆一：自己造粒プロセスによる高度処理、用水と廃水、34,(10), pp25-31, 1992.
- 16)孔海南、稲森悠平、中西弘、須藤隆一：循環UASB・生物膜法のグラニューールの脱窒活性と菌分布、日本水処理生物学会第29回大会講演要旨集、1992.
- 17)孔海南、稲森悠平、中西弘、須藤隆一：UASBプロセスにおける常温下有機物負荷量と造粒特性との関係、日本水環境学会誌、16,(1), pp46-54, 1993.
- 18)孔海南、稲森悠平、中西弘、須藤隆一：循環式嫌気好気自己造粒生物膜固定法における細菌相と脱窒活性、第27回日本水環境学会年会講演論文集、1993.
- 19)稲森悠平、孔海南、中西弘、須藤隆一：循環自己造粒・生物膜プロセスにおけるグラニューール化特性、土木学会論文集へ投稿中、1993.