

(35) UASBの処理安定性に対する処理水循環の影響に関する実験的研究

EFFECT OF A RECYCLING ON OPERATING STABILITY OF UASB SYSTEM

郭 一令*, 黒田正和*

Yiling GUO*, Masao KURODA*

ABSTRACT; Effect of recycling of effluent on the performance of UASB reactor is investigated using glucose as organic substrate. The reactor was operated on recycling and no recycling mode. Effects of the operating parameters such as total organic carbon(TOC) loading rate, recycling ratio and upflow velocity on the performance of UASB reactor were evaluated. The result showed that recycling could increase upflow velocity and energy consumption; maintain uniform distribution of substrate, and reduce the rate of decomposition of glucose to organic acids. When the reactor was operated without recycling, organic acid accumulation was increased and pH was low at the bottom of the reactor. During no recycling mode of operation, the maximum loading rate was found to be 12.8kg-TOC/m³·d at 35 °C. When TOC loading rate was 7.6kg-TOC/m³·d, the effect of recycling on TOC removal efficiency was negligibly small.

At the low temperature shock, TOC removal efficiency dropped from 95% to 52.6%, when the reactor was operated with recirculation and the system appeared to return to its normal state, after five weeks of recovery period. However, when the system was operated without recycling, TOC removal efficiency dropped by 3.6%, and needed only forty-eight hours for recovery. Therefore, at the low temperature shock, the system without recycling showed better stability.

KEYWORDS; UASB process, operational failure, effluent recycle, low temperature shock, system recovery

1. はじめに

近年、地球環境問題がクローズアップされている中、有機排水の省資源、創エネルギー処理法として、嫌気性処理法の有用性が認識されている。UASB法は、溶解性で分解されやすい食品・飲料産業における中高濃度の有機性排水の処理に広く用いられている。最近、UASBプロセスの効率および安定性の向上を目指した研究が行われており、UASBの操作方式および構造などに対して、様々な工夫と改善が行われている^{1)~3)}。

UASBプロセスでは、環境条件の急激な変化で酸生成とメタン生成の二つのグループ細菌の代謝のバランスが崩れ、有機酸が蓄積し、メタン生成が阻害されることがある⁴⁾。UASBプロセスの機能を安定させるためには、pHの安定化は不可欠である。例えば、高濃度のアップルジュースの排水処理に対して、無循環のUASBリアクター内の最低pHを6.6以上に安定させるには、流入1gCODあたり1.2mg以上のアルカリ度(CaCO₃)が必要といわれる⁵⁾。これまで、処理水中のアルカリ度成分の有効利用に着眼し、処理水をUASBリアクターに循環させ、UASBリアクター内のpHを中性域に維持する運転方式が提案されている^{6)~8)}。しかしながら、処理水の循環は、装置運転におけるエネルギー消費量を増加させるほか、UASBリアクター内の基質濃度分布を変え、酸生成細菌およびメタン生成細菌の生息環境を変化させる。その結果、運転の安定性およびその効率に影響を及ぼすと考えられる。

本研究は、2基のUASB装置を同時に運転して、処理水循環と非循環の異なる操作方式で、UASBリアクターの有機物除去特性および急激な環境変化による処理水循環の処理安定性への影響について実験的検討を行った。

2. 実験装置および方法

2.1 実験装置

実験装置の概要をFig. 1に示す。UASBリアクターは反応部と三相分離器からなり、反応部は高さ140cm、内径10cm、容積11L、三相分離器は高さ45cm、内径19cmで、水の有効容積は4Lであった。人工排水は4℃の水槽に浸漬し、チューブポンプによりリアクター底部へ連続的に供給し、処理水は上部の三相分離器より流出させた。生成ガス量は、酸化鉄充填吸収塔で硫化水素を除去した後、湿式ガスメータで計った。リアクターの温度は35℃に

* 群馬大学工学部建設工学科, Department of civil Engineering, Gunma University

制御した。UASB内の水質分布を明らかにするため、反応部には10cm間隔でサンプリングコックを設置した。同様な仕様の反応器（リアクターAとリアクターB）を2基製作し、同時運転を行った。

2.2 実験条件と方法

(1) 人工排水の組成

本実験で使用した人工排水の組成をTable 1に示す。アルカリ剤は、既往のUASBの研究結果^{11,2),5)}を基に、 NaHCO_3 を4000mg/L、有機炭素源としてグルコースを用い、無機塩類を水道水に添加して、所定の濃度に調整した。

(2) 種汚泥

スタートアップには種汚泥として都市下水処理場の消化汚泥（VSS=12.6g/L）を使用し、リアクターAとリアクターBにそれぞれ4L植種した。

(3) 実験の操作条件および方法

空塔速度基準の液上昇流速 LV_0 、処理水循環率などの実験条件をTable 2に示す。スタートアップしてから約三ヶ月でグラニュールが形成され、運転処理が安定してから実験を開始した。UASBリアクターの運転に及ぼす有機物負荷の影響を調べるため、Run 1～Run 3では平均水学的滞留時間(HRT)を6.5hから、5.1h、3.6hと変化させ、TOC負荷を $6.7\text{kg}/\text{m}^3\cdot\text{d}$ から $12.8\text{kg}/\text{m}^3\cdot\text{d}$ まで増加させた。Run 4、Run 5ではUASBの処理性能に及ぼす処理水循環の影響を検討するために、TOC負荷を $7.8\text{kg}/\text{m}^3\cdot\text{d}$ ～ $7.6\text{kg}/\text{m}^3\cdot\text{d}$ とほぼ一定にし、Run 4では非循環とし、Run 5では2.5:1の循環比で循環させた。Run 6では、操作条件の急激な変化による処理安定性に及ぼす循環の影響を調べるために、TOC容積負荷 $7.4\text{kg}\cdot\text{TOC}/\text{m}^3\cdot\text{d}$ 、HRT6.3h、循環比2.5:1とし、急激な環境変化として、リアクターAでは温度を 35°C から 16.5°C まで急激に低下させ、21時間後その温度を 35°C に戻し、低温ショックの実験を行った。また対比実験としてリアクターAと同様の条件で、安定に操作しているリアクターBに対して、リアクターAと約同一のTOC容積負荷、HRTの条件を用い、非循環の操作方式で、リアクターAと同様な温度ショックを与えて、処理水質の変化について比較検討を行った。

2.3 水質分析方法

水質分析は「下水試験方法」⁹⁾の溶解性物質の測定方法に基づいて、第5種C類の化学分析濾紙を用い処理水をろ過したろ液について、溶解性全有機性炭素（TOC）は島津TOC-500型測定計を使用した。揮発性脂肪酸（VFA）はFIDガスクロマトグラフ法により測定し、全VFA濃度は酢酸に換算して記した。なお、VFAの測定では試料水のpHを3.0以下に調整し、充填剤Greensorb T KOCL-FM、キャリアガスはヘリウムを使用した。pHはガラス電極法、全アルカリ度は「下水試験

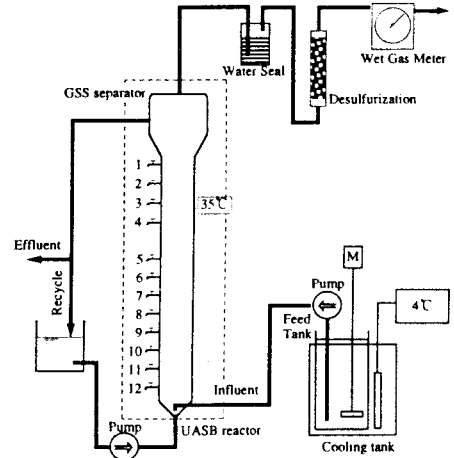


Fig.1 Schematic diagram of experimental apparatus

Table 1 Ingredient of synthetic wastewater

ingredient	concentration (mg/l)
glucose	1810~2140 (as TOC)
NH_4HCO_3	550
KH_2PO_4	250
$\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	400
NaHCO_3	4000

Table 2 Experimental conditions

reactor	Run No.	LV_0 (cm/h)	Recycle ratio	HRT (h)
Reactor(A)	1	21.6	0:1	6.5
	2	27.7	0:1	5.1
	3	39.1	0:1	3.6
	4	23.4	0:1	6.0
	5	22.1	2.5:1	6.3
	6	22.1	2.5:1	6.3
Reactor(B)		21.3	0:1	6.6

$LV_0 = Q/A$; $LV_r = (Q+RQ)/A$ where Q is Waste flow rate; A is cross section area of reactor; R is recycle ratio.

は島津TOC-500型測定計を使用した。揮発性脂肪酸（VFA）はFIDガスクロマトグラフ法により測定し、全VFA濃度は酢酸に換算して記した。なお、VFAの測定では試料水のpHを3.0以下に調整し、充填剤Greensorb T KOCL-FM、キャリアガスはヘリウムを使用した。pHはガラス電極法、全アルカリ度は「下水試験

方法」⁹⁾にしたがって分析した。pHおよびVFA濃度分布はFig. 1に示したサンプリングコックを使用し、上から下へ順番に採水し測定した。

3. 実験結果と考察

3.1 UASBリアクターの限界負荷

Fig. 2に液空塔基準の上昇流速LVr, TOC容積負荷, TOC除去率および処理水VFA濃度の変化を示す。Run 1, Run 2, Run 3では処理水の循環を行わず, HRTを変化させて実験を行った。また処理水のpH, VFA, TOC除去率およびガス生成量の変化などをFig. 3に示す。

Fig. 3からわかるように, Run 1での平均TOC容積負荷は6.7kg-TOC/m³・dで, 平均TOC除去率は92.4%, 処理水の平均pHは7.38, 全VFA濃度は380mg/L, 全ガス生成量は112L/d, メタン含有率は62%であった。実験開始後15日目のRun 2では, 平均TOC容積負荷を8.5kg-TOC/m³・dに増加させたが, 平均TOC除去率は93.2%, 処理水のpH, VFAおよびメタン含有率はRun 1とほぼ同程度の値であった。ただし, TOC容積負荷上昇により, 全ガス生成量は137L/dに増加した。Run 3では, 平均HRTを3.6hに短縮し, 平均上昇流速LVoを39.1cm/h, 平均TOC容積負荷を12.8kg-TOC/m³・dまで増加させた。平均処理水のpHおよび全VFAは数日間7.31, 638mg/Lで, 全ガス生成量は186L/dとなり, TOC容積負荷とともに増加し, メタン含有率は53.1%となった。なお, 処理水の水質の観察より, 生成ガス量の増加に伴うグラニューールのウォッシュアウトは認められなかった(エアソフト反応器等の気液二相流の研究を基に, この場合の液流速を推算すると, 反応部トップで液空塔流速の1.3倍程度と推定される)。TOC除去率は90%以上であったが, 49日目にTOC負荷をわずかに増加させると, TOC除去率が急に95%から65.5%まで低下し, その後TOC除去率は80%前後であった(Fig. 2)。TOC除去率の低下に伴い, UASB

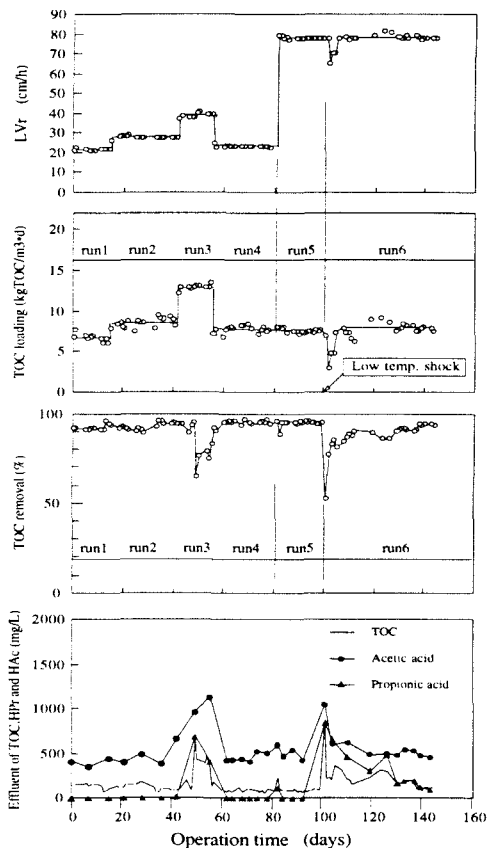


Fig.2 Fluctuation of some operation parameters of the UASB reactor (A)

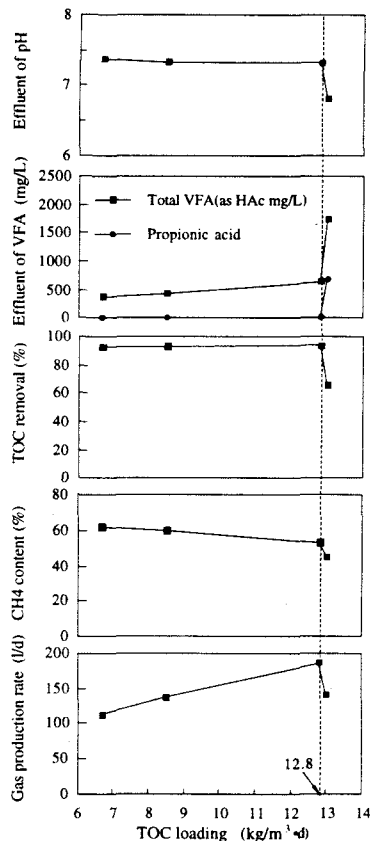


Fig.3 Performance of the UASB reactor(A) without recycling at various TOC loading rate

処理水中の全VFAは約1735mg/L、プロピオン酸濃度は690mg/L、pHは6.8で、全ガス生成量は141L/dに、メタン含有率は45%に減少した。これは酸生成細菌とメタン生成細菌の間のバランスが崩れたためと考えられ、これらの結果により、本実験ではTOC容積負荷の限界は約12.8kg-TOC/m³・dと考えられる。

UASBリアクターで安定に処理できる容積負荷の上限は、その処理能力および安定性を示し、運転操作上極めて重要な因子である。Table 3に限界負荷についての既報の研究結果を示す。この限界負荷は基質により若干異なるが、高くても30kg-TOC/m³・d程度である。本研究の限界TOC容積負荷をCOD容積負荷に換算すると、34.2kg-TOC/m³・dとなり、これらの結果と一致している。

3.2 処理水循環のUASBリアクター処理への影響

Fig.2に示したように、UASBリアクターAにおいて非循環操作のRun 4では、TOC平均容積負荷を12.8kg-TOC/m³・dから7.8kg-TOC/m³・dに低下させると、24時間後にはTOC除去率は92.4%になった。Run 5では、LVr78.1cm/h、HRT6.3h、循環比2.5:1として、TOC容積負荷を限界負荷以下の7.6kg-TOC/m³・dとすると、図からわかるように、平均TOC除去率は95.2%で、Run 4の結果と概ね等しかった。これは、限界負荷以下での操作条件では、処理水循環のTOC除去への影響はほとんどないことを示唆している。

3.3 UASBリアクターの運転安定性に対する処理水循環の影響

UASBリアクターの性能失調後の機能回復には長時間を要し、これは排水処理をする上で大きな問題である⁹⁾。UASBによる嫌気性処理において、処理を安定させるには、酸生成細菌、メタン生成細菌の活性および微生物量を十分に保持する必要がある。しかし、これらの微生物の活性はpHおよび温度等の変化に影響されやすい^{19),20)}。特にメタン生成細菌の活性は低温では低下することが知られている。ここでは、UASBリアクターに急激な温度変化を与えた場合の処理の安定性に及ぼす処理水循環の影響を調べるために、UASBリアクターA、BともにTOC容積負荷を7.4kg-TOC/m³・dとし、リアクターAでは循環比2.5:1で循環を行い、またリアクターBでは非循環とし、UASBリアクターA、Bに同じ温度ショックを与え、各操作方式の違いによる処理水質の変化について実験的検討を行った。

Table 3 Comparison of loading rate in UASB reactors using various substrates

Substrate or Wastewater	Maximum loading (KgCOD/m ³ ・d)	Reference
Protein	32	(10)
Benzoate	30.6	(11)
Methanolic	21	(12)
Wood stillage	16	(13)
Bean blanching	30	(14)
Mixed VFA	30	(15)
Alcohol	14-22	(16)
Sucrose	28.7	(17)
Acetate	29.1	(17)
Ice cream	29.4	(17)
Paper and board	20	(18)
Glucose	34.2	This study

The following conversion factor was used in this study:
1g-glucose/TOC = 2.67 g-COD

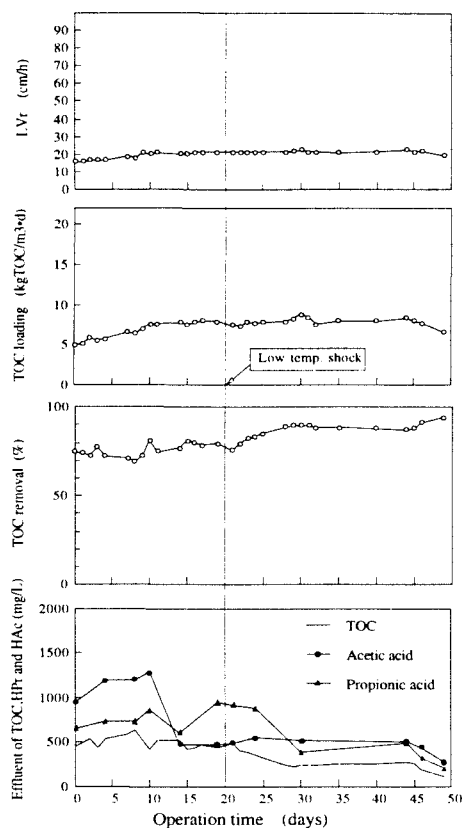


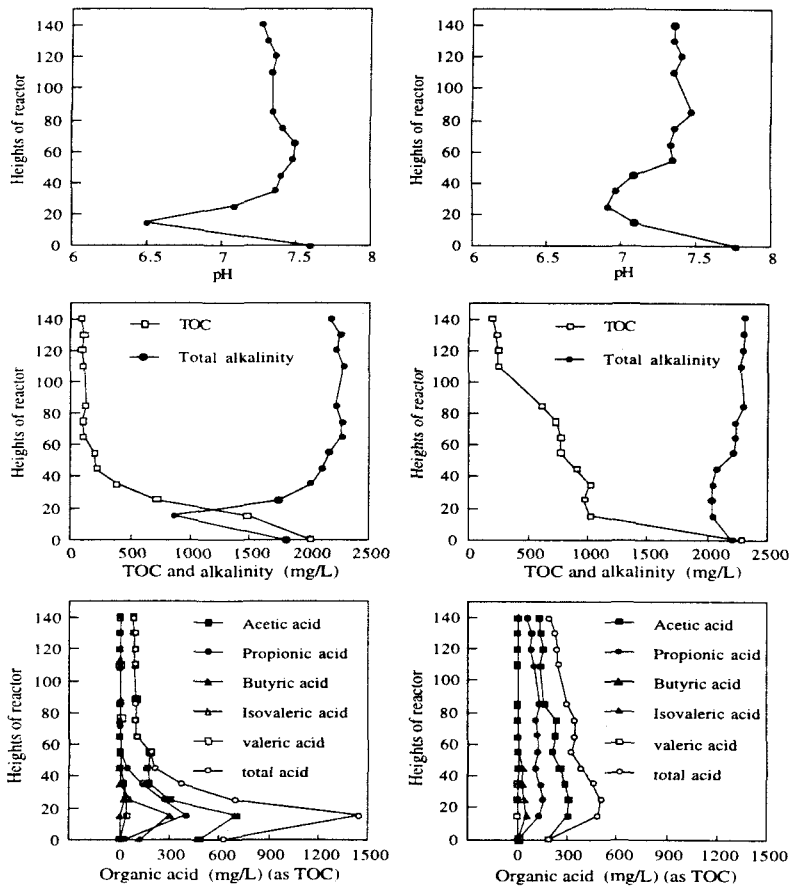
Fig.4 Fluctuation of some operation parameters of the UASB reactor (B)

Fig. 2 に示したように、リアクターAはRun 5 とほぼ同じ運転条件で操作し、100日目にリアクターの恒温装置の電源を切って、約16℃の室温環境においてリアクターの水温を35℃から16.5℃まで急激に低下させ、21時間経過後にリアクターの水温を35℃にした。処理水のTOC除去率は温度低下により95%から53%まで低下した。温度ショック後3日目には、TOC容積負荷を3.0kg-TOC/m³・d、4日目、5日目には、TOC容積負荷を4.8kg-TOC/m³・dに調整すると、処理水のTOC除去率は85%まで回復したが、ショック前のTOC除去率に戻るには26日以上を要した。また温度ショックにより流出水のプロピオン酸および酢酸の濃度は急激に増加し約1000mg/Lとなった。プロピオン酸を分解し得る細菌が系内に十分に存在する場合を除いて、このようなプロピオン酸の蓄積は嫌気性処理の進行にとって望ましいものではないと考えられる。

また比較検討のため、Fig. 4 に示すようにリアクターAと同じ負荷条件で非循環操作のリアクターBについても、20日目に温度以外の操作条件を維持し、同様な温度ショックを与えた。この低温ショックにより、処理水のTOC除去率は79.4%から75.8%とわずかに低下したが、TOC容積負荷を低下させなくても、3日後には処理水TOC除去率は79.6%まで回復し、その後TOC除去率は徐々に増加して、低温ショックの影響はほとんど見られなかった。リアクターAにおいて非循環操作のRun 3 では、TOC過負荷による性能失調後、Run 4 では早く回復し、TOC容積負荷の変動によるTOC除去率の低下に対しても、より高い安定性を持っていることがわかる。これらの結果は、処理水非循環操作方式のほうが循環方式より安定していることを示唆している。

3.4 処理水循環のUASBリアクター内の基質濃度分布への影響

処理水非循環では、リアクターAのRun 4 において（74日目）、TOC容積負荷7.2kg-TOC/m³・d、処理水の



(a) Reactor(A) without recycle at 74th day (b) Reactor(A) with recycle (2.5:1) at 130th day

Fig. 5 The profile of TOC, PH, Alkalinity and Organic acid at stable state

TOC除去率95%で、リアクターが安定している状態で槽内の基質濃度分布を測定した。処理水の循環では、リアクターAの低温ショック後、処理効率が回復し安定したRun 6において(130日目)、循環率2.5:1、TOC容積負荷7.6kg-TOC/m³・d、処理水のTOC除去率92%で、処理水非循環とほぼ同様な運転状態の下で、リアクター内の濃度分布を測定した。測定結果をFig. 5に示す。

処理水非循環の場合には、Fig. 5(a)に示すように、基質がリアクターAの底部から流入すると、まず有機酸になり、それによって全アルカリ度は大幅に消費され、pHは7.6から6.5まで低下した。またVFA濃度は急激に増加し、流入から15cmのところで最大濃度1446mg-TOC/Lに達した。その後、酸分解速度は酸生成速度より大きく、VFA濃度は徐々に減少し、最終的にアルカリ度は約2200mg(CaCO₃)/L、pHは7.27~7.34の範囲でそれぞれ安定した。また流入から45cmまでのTOC除去量は反応槽の全除去量の93%を占めていた。一方、処理水を循環した場合には、Fig. 5(b)に示すように、流入した有機物の濃度は返送処理水により希釈されるため、流入から15cmまでのTOC濃度は、流入濃度の2280mg/Lから1020mg/Lまで減少し、流入から85cmまでのTOC除去量は全除去量の80%で、非循環操作のTOCの除去速度より小さかった。なお、pHは7.76から6.91まで低下し、その後7.35程度まで上昇し安定した。またVFAは流入から25cmで最大値501mg-TOC/Lになり、非循環より全VFA濃度の最大位置は上へ移動し、酢酸とプロピオン酸の濃度はリアクター内でほぼ同様であった。したがって処理水を循環した場合、流入基質は希釈されpHおよび溶質濃度が均一化されるのに対して、非循環の場合、底部で基質濃度が高く、VFAが多量に蓄積し、pHが低くなっており、酸生成速度がより速いことがわかる。

Zoetemeijer²¹⁾はグルコースを基質とする酸生成相でのpHの影響について、pHの違いにより生成する有機酸の組成が異なり、またVFAを生成する最適pHは5.0~6.5で、酸生成菌の成長率の最も高いpHは5.5~6.5と指摘している。一方、メタン生成細菌の最適pH範囲は6.8~7.4であり、pHが6.5まで低下すると、メタン生成細菌活性の減少も考えられる。したがって処理水の循環により、pHおよび基質の分布などが変化するため、有機酸の組成、酸生成菌およびメタン生成菌の菌種、増殖速度と代謝活性、さらに有機酸の発酵経路が変化していると考えられる。

4. まとめ

UASBリアクターの処理特性および処理安定性に及ぼす処理水循環の影響について実験的検討を行い、次の知見が得られた。

1) 非循環操作ではリアクター底部の基質濃度は高く、有機物が効率的に酢酸に転換され、VFAが多量に蓄積し、pHも低くなっている。一方、処理水を循環させた場合には、流入基質が処理水により希釈され、高さ方向のpHおよびアルカリ度の変動幅は小さかった。

2) 本実験の非循環操作のUASBリアクターでは、TOC容積負荷の上限約12.8kg-TOC/m³・dであり、低負荷条件(7.6kg-TOC/m³・d)では、TOC除去への処理水循環の影響はほとんど認められなかった。

3) 処理水非循環方式は、温度変化ショックに対する処理安定性が処理水循環方式より高かった。

参考文献

- 1) 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の有機物負荷量と造粒特性との関係, 水環境学会誌, Vol.16, pp.46-54, 1993.
- 2) 張 振家, 深川勝之, 浮田正夫, 中西 弘: 上向流式嫌気性ハイブリッドブランケットリアクターの特性, 土木学会論文集, No.515/II-31, pp.103-113, 1995.
- 3) 張 振家, 中西 弘, 浮田正夫, 深川勝之: メタンガス循環式ガスリフト型リアクターの混合特性と操作因子の関係, 環境工学研究論文集, Vol.30, pp.9-15, 1993.
- 4) Fongsattikul, P.; Mavinic, D.S.; Lo, K.V.: A two-phase anaerobic digestion process (UASB-UASB): Induced failure and system recovery using a step loading reduction approach and modified recycle ratio (RR), *Environmental Technology*, Vol.16, No.2, pp.137-146, 1995.
- 5) Sam-Soon, PALNS.; Loewenthal, RE.; Wentzel, MC.; Moosbrugger, RE.; Marais, GR.: Effects of a Recycle in Upflow Anaerobic Sludge Bed (UASB) Systems, *Water SA*, Vol.17, No.1, pp.37-46, 1991.
- 6) Alphenaar, P.A.; Visser, A.; Lettinga, G.: The effect of liquid upward velocity and hydraulic retention time on granulation in UASB reactors treating wastewater with a high sulphate content, *Bioresour. Technology*, Vol.43, No.3, pp.249-25

8, 1993.

- 7) Dudley, B.T.; Howgrave Graham, A.R.; Isherwood, H.; Senior, E.: Laboratory-scale UASB digesters (with/without conditioning tank and recycle): Efficacy to treat increased hydraulic loads. *Water SA*, Vol.19, No.4, pp.313-318, 1993.
- 8) Moosbrugger, R. E.; Wentzel, M. C.; Ekama, G. A.; Marais, G. R.: Grape Wine Distillery Waste in UASB Systems Feasibility, Alkalinity Requirements and pH Control., *Water SA*, Vol.19, No.1, pp.53-68, 1993.
- 9) 日本下水道協会編：下水試験方法, 1984.
- 10) H.H.P., Fang; H.K., Chui; Y.Y., Li; T., Chen: Performance and granule characteristics of UASB process treating wastewater with hydrolyzed proteins. *Wat. Sci. Tech.*, Vol.30, No.8, pp.55-63, 1994.
- 11) Y.Y., Li; H.H.P., Fang; T., Chen; H.K., Chui : UASB treatment of wastewater containing concentrated benzoate, *J. Envir. Engrg.*, Vol.121, No.10, pp.748-751, 1995.
- 12) Zafar Iqbal Bhatti, Kenji Furukawa and Masanori Fujita: Feasibility of methanolic waste treatment in UASB reactors. *Water Research*, Vol.30, No.11, pp.2559-2568, 1996.
- 13) Callander, I.J.; Clark, T.A.; McFarlane, P.N.: Anaerobic Digestion of Wood Ethanol Stillage Using Upflow Anaerobic Sludge Blanket Reactor. *Biotechnology and Bioengineering BIBIAU*, Vol.30, No.7, pp.896-908, 1987.
- 14) Hamoda, M.F.; van den Berg, L.: Effect of Settling on Performance of the Upflow Anaerobic Sludge Bed Reactors, *Water Research*, Vol.18, No.12, pp.1561-1567, 1984.
- 15) H.H.P., Fang; Yu You, Li; Ho Kwong, Chui: UASB treatment of wastewater with concentrated mixed VFA, *J. Envir. Engrg.*, Vol.121, No.2, pp.153-160, 1995.
- 16) Lettinga, G.; de Zeeuw, W.; Ouborg, E.: Anaerobic Treatment of Wastes Containing Methanol and Higher Alcohols. *Water Research*, Vol.15, No.2, pp.171-182, 1981.
- 17) Yang, G.; Anderson, G.K.: Effects of wastewater and composition on stability of UASB. *J. Envir. Engrg.*, Vol.119, No.5, pp.958-979, 1993.
- 18) Habets, L.H.A.; Knelissen, J.H.: Application of the UASB-Reactor for Anaerobic Treatment of Paper and Board Mill Effluent. *Wat. Sci. Tech.*, Vol.17, No.1, pp.61-75, 1985.
- 19) Pretorius, W.A.: pH-controlled feed-on-demand for high-rate anaerobic systems, *Water Quality International '94*. Part 8. Anaerobic. Part 8., pp.1-8, 1994.
- 20) Tian Cheng Zhang; Tatsuya Noike: Comparison of one-phase and two-phase anaerobic digestion processes in characteristics of substrate degradation and bacterial population levels. *Wat. Sci. Tech.*, Vol.23, No.7/9, pp.1157-1166, 1991.
- 21) R.j.Zoetemeyer, J.C.van den Heuvel and A.Cohen: pH influence on acidogenic dissimilation of glucose in an anaerobic digester, *Water Res.*, Vol.16, No.3, pp.303-311, 1982.