

担体にアンバーライトを用いた流動床による硝化に関する研究

岩手大学工学部土木工学科

○川村 潤 海田輝之
大村達夫 相沢治郎 大沼正郎

1. はじめに

下水中に含まれる窒素は受容水域における富栄養化現象の原因となり、かつ水生生物や農作物などへ様々な悪影響を及ぼすことが知られている。しかしながら、下水中に含まれる窒素は通常の二次処理では除去されず放流水中に多量に含まれている。そこで本研究においては三次処理を目的として、生物学的硝化に関してアンバーライトを担体に用いた流動床による実験を行なった。本実験においては、特に水理学的滞留時間(HRT)を変化させ、どの程度まで高速硝化を行なわせることが出来るかという点に注目して検討を行なっている。

2. 実験方法及び考察

実験に用いた流動床の概略を図-1に示す。カラムは内径5cm、高さ100cmの亚克力樹脂製であり、カラム上部には固液分離装置を有する。カラム内の温度はカラムの回りに恒温水を循環させ約20℃に保たれた。カラム下部からエアポンプでディフューザーを通して空気を送り、基質も定量ポンプで連続的に供給されている。従ってカラム内は気体、液体、固体の三相からなっている。

実験開始時には担体に充分硝化菌を付着させるためにアンバーライト(IRA 938)、表-1に示す培地及び下水処理場のエアレーションタンクから採取した活性汚泥を接種として入れ約10日間バッチ形式で通気培養を行なった。その後連続実験を開始し、表-1に示す基質を連続的に流入させた。

基質中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は通常二次処理水中に含まれている濃度にほぼ等しい約30mg/lであり、pHの低下を防ぐためにリン酸緩衝液を基質流量の1%の割合で注入した。実験は二系列行なわれ、HRTを10→4→1hr、5→2→0.5hrとそれぞれ定常状態になった後に変化させた。測定項目として、流出水の $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 及びDOのそれぞれの濃度及びpHの値が経時的に測定された。また定常状態における担体への付着菌数も測定された。付着菌数の測定は担体10mlをスターラーで破壊し均一化した後MPN法¹⁾により行なわれた。培養日数は亜硝酸菌が30日間、硝酸菌が40日間であり培養温度は28℃とした。

またHRTが0.5hrの実験において、定常状態後、カラム内の担体を選択しバッチ実験を行なった。このバッチ実験においては、500mlの三角フラスコ中に $\text{NH}_4\text{-N}$ のみ含まれる基質と $\text{NO}_2\text{-N}$ のみ含まれる基質をそれぞれ200ml入れ、カラムより採取した担体をそれぞれ適量入れ振とう培養を行なった。また $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度はそれぞれ適当に変化させた。バッチ実験開始後、フラスコ内の $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の経時変化が測定された。また、同様に担体をスターラーで破壊し均一化した試料においても同様な実験を行ない、分散状態とそうでない場合の硝化に及ぼす影響について検討した。

なお、バッチ実験に用いた担体の電顕写真を撮影することにより、硝化菌のアンバーライトへの付着状況も調べた。

3. 実験結果および考察

図-2に例としてHRTを5→2→0.5と変化させた場合の実験結果を示す。HRTが10hrから1hrまでにおいて、流入 $\text{NH}_4\text{-N}$ はほぼ100%が硝化された。HRTが0.5hrにおいても90%以上の硝化が観察された。また、流出水中DO濃度はHRTが0.5hrの場合でも6.5mg/l以上存在していた。

ここで硝化速度が最も速い、HRTが0.5hrの場合を考えると流入量が3.8l/hr、流入 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度約30mg/l、

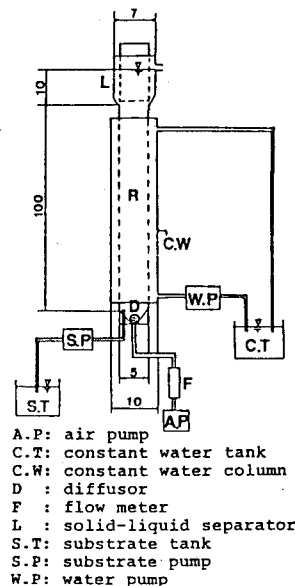


図-1 実験装置

表-1 連続実験の基質組成

$(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$	0.1415g
(30mg as N)	
NaCl	0.085g
K_2HPO_4	0.283g
$\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	0.085g
$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	0.0085g
水道水	1.0l

表-2 硝化菌の特徴

	亜硝酸菌	硝酸菌
形	桿菌	桿菌
サイズ	1×1.5μm	0.5×1.0μm
運動性	あまりない	あまりない
重量 (g/cell)	(1.2~5.0)×10 ⁻¹³	—
グラムテスト	陰性	陰性
最大比増殖速度 (day ⁻¹)	0.46~2.2	0.28~1.44
世代時間 (hr)	8~36	12~59
栄養要求性	絶対独立栄養	任意独立栄養
酸素要求	好気性	好気性
収率 (g VSS/g · N)	0.03~0.13	0.02~0.08
飽和定数 (DO) (mg/l)	0.3~1.3	0.25~1.3
飽和定数 (基質) (mg/l)	0.06~5.6	0.06~8.4
至適pH	8.0~8.5	7.0~7.5
至適温度	28~36℃	28~36℃

平均流出 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度 2.5mg/l であるからこれより硝化速度は約 $1.2 \times 10^3 \text{mg/l} \cdot \text{d}$ となる。回転円板による実験からの報告²⁾では、硝化速度は約 $300 \text{mg/l} \cdot \text{d}$ であり、活性汚泥による実験では $\text{pH}7.0$ 、 20°C で約 $250 \text{mg/l} \cdot \text{d}$ とそれぞれ報告³⁾されており、これらの実験結果に較べてかなりの硝化速度が得られているのがわかる。

この差は明らかに担体としてのアンバーライトへの付着性の良さによるものと思われる。すなわち表-2⁴⁾に示されているように亜硝酸菌及び硝酸菌の世代時間はそれぞれ $8 \sim 36\text{hr}$ 、 $12 \sim 59\text{hr}$ であり、硝化菌がアンバーライトに付着していなければ流動床内に留まることはできない。この点については海田らの鉄バクテリアの研究による種々の担体への付着実験⁵⁾からも活性炭、シリカサンド及びガラスビーズなどよりアンバーライトが鉄バクテリアの付着に有効であることと同様の結果を示すものである。

図-3には定常状態における付着硝化菌数の測定結果が示されている。HRTが減少するにつれて菌数は増加している。HRT 0.5hr のときを見ると亜硝酸菌数は 10^8 オーダー、硝酸菌数は 10^9 オーダーになった。これはHRTが 10hr のときの 10^4 倍にもなっている。アンバーライトはMacro-porousな性質を持っており、その空隙の大きさは表-2に示されている亜硝酸菌及び硝酸菌のサイズの数十倍という点にも起因しており、菌数はまだ増加する余地が残っているものと思われる。またHRTが 2hr のときを除いて硝酸菌数の方が亜硝酸菌よりも多いという結果となった。従って硝酸菌の方が亜硝酸菌よりも多数担体内に保持されているものと思われる。しかしながら表-2より収率は亜硝酸菌の方が硝酸菌よりも大きく、かつ他の報告⁶⁾からも亜硝酸菌の収率は $0.147 \text{mg cell/mg NH}_4\text{-N}$ 、硝酸菌の収率は $0.020 \text{mg cell/mg NH}_4\text{-N}$ とされており亜硝酸菌の方が大きい。しかしながら

本実験結果はこれと逆の結果となっており、亜硝酸菌と硝酸菌のアンバーライトへの付着特性及び担体内での $\text{NH}_4\text{-N}$ から $\text{NO}_3\text{-N}$ への酸化過程が微妙に影響を及ぼしているものと思われる。

このことは図-4と5のアンバーライトへの硝化菌の付着特性を示す電顕写真からも明らかである。図-4はアンバーライト表層の部分の写真であり、図-5は内部の写

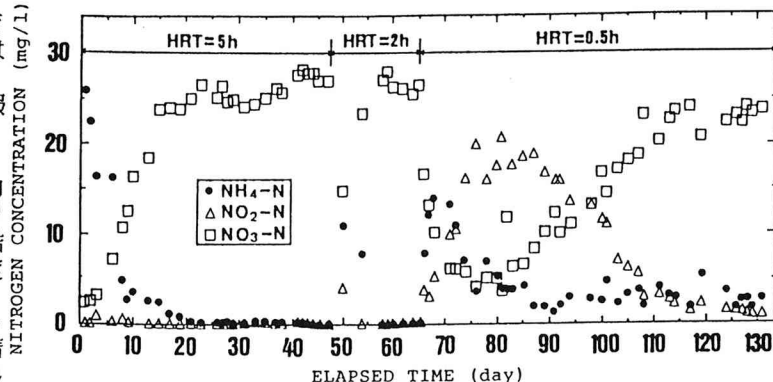


図-2 流出濃度の経日変化

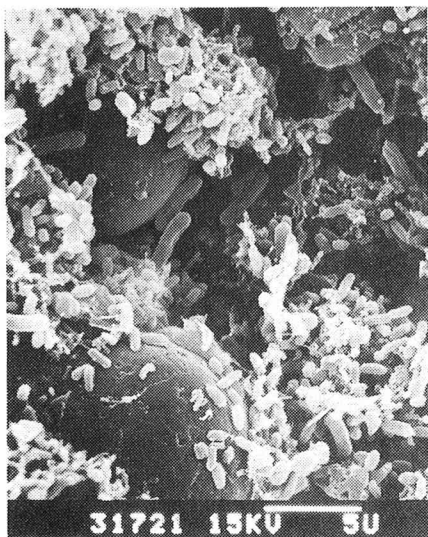
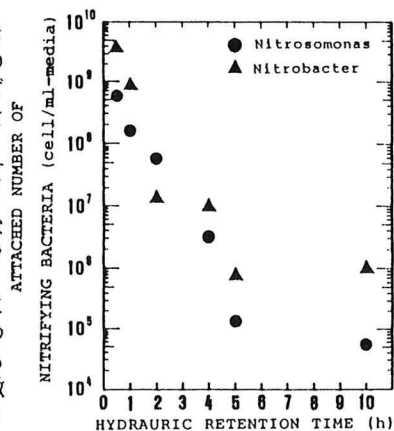


図-4 アンバーライト表層の電顕写真

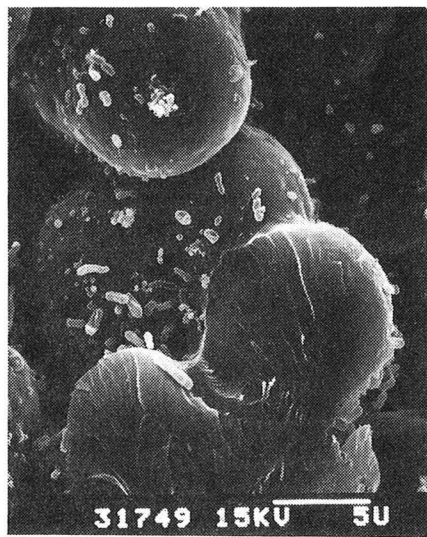


図-5 アンバーライト内部の電顕写真

真である。図-5の内部の写真には図-4の表層部分の写真に較べてサイズの小さな硝化菌が観察された。表-2より亜硝酸菌のサイズは硝酸菌よりも大きいことからアンバーライト表層には主に亜硝酸菌が付着し、内部では硝酸菌の付着増殖が優先すると思われる。この結果は回転円板において人工下水を用いた実験による生物膜内部の硝化菌の分布結果²⁾と逆になっている。しかし基質の $\text{NH}_4\text{-N}$ がアンバーライト表層で $\text{NO}_2\text{-N}$ に硝化され内部へ浸透するに従い $\text{NO}_3\text{-N}$ に酸化されるものとなれば内部で硝酸菌が増殖すると考えるのは妥当なことと思われる。

図-6にバッチ実験によって得られた単位担体当りの $\text{NH}_4\text{-N}$ 酸化速度と $\text{NO}_2\text{-N}$ 酸化速度を担体を破壊したものとそうでないものについてそれぞれ示している。この図より、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{NO}_2\text{-N}$ の単位担体当りの酸化速度はMonod型によって表されることが明らかになった。これらの実験結果にIlanes-Woolfプロット⁷⁾をあてはめ飽和定数(K_m)と単位担体当りの最大酸化速度($\nu_{\max}$)の値を求めた結果を表-3に示す。

表-3及び図-6より担体を破壊した場合の K_m の値はそうでないものより小さくなり、特に $\text{NO}_2\text{-N}$ の場合には約1/2となった。このことは前述した電顕写真の結果である表層で亜硝酸菌が優占であり、内部で硝酸菌が優占となっていることと大きく係わっているものと考えられる。すなわち、Bulk中の $\text{NH}_4\text{-N}$ は担体表層で亜硝酸菌により $\text{NO}_2\text{-N}$ に酸化されその後内部へ拡散し硝酸菌によって $\text{NO}_3\text{-N}$ へと酸化されるため、担体を破壊したときすなわち、分散状態の場合の K_m より小さくなり、担体内への $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{NO}_2\text{-N}$ の拡散が K_m の値に大きく影響を及ぼしていると考えられる。このことは、図-6より担体を破壊した場合とそうでない場合では $\text{NH}_4\text{-N}$ の酸化速度にはほとんど影響がなく、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の酸化速度が大きく影響を及ぼされているという点からも容易に推測される。

4. 結論

(1) HRTが10~1hrの場合において流入 $\text{NH}_4\text{-N}$ はほぼ100%が硝化された。HRTが0.5hrにおいてさえも90%に達し、このときの硝化速度は約 $1.2 \times 10^3 \text{ mg/l} \cdot \text{d}$ となり、回転円板や活性汚泥に較べて大きいものとなっている。

(2) 担体への付着菌数はHRTが小さくなるほど多くなった。HRT0.5hrのときには亜硝酸菌数は 10^8 オーダー、硝酸菌数は 10^9 オーダーとなりHRTが10hrのときに較べて 10^4 倍にもなった。

(3) 電顕写真による形態学的な観察によりアンバーライト表層部には亜硝酸菌、また内部には硝酸菌が優占的に付着していることが観察された。

(4) バッチ実験により、担体を破壊した場合とそうでない場合において、それぞれ求められた K_m と $\nu_{\max}$ の値の差は $\text{NH}_4\text{-N}$ の酸化よりも $\text{NO}_2\text{-N}$ の酸化の方が大きかった。これは担体内において亜硝酸菌数よりも硝酸菌数の方が多いということを裏付けるものであるとともに、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の酸化は、担体内への $\text{NO}_2\text{-N}$ 拡散が制限になっていることを示している。

参考文献

- 1) 土壤微生物実験法 土壤微生物研究会編
- 2) 増田純夫ら 回転円板付着微生物膜内の細菌に関する研究, 下水道協会誌, Vol.24, No.278, 7(1987)
- 3) Nazih Kh. Shammam Interaction of temperature, pH, and biomass on the nitrification process, JWPFC, Vol. 58, pp52~59 (1986)
- 4) B. Sharma and R.C. Ahlert Nitrification and nitrogen removal Wat. Res., Vol.11, pp897~925 (1976)
- 5) 海田輝之 流動床による強酸性含鉄排水の処理に関する研究 水質汚濁研究, Vol.12, NO.5, pp897~925 (1989)
- 6) 森山克巳, 活性汚泥法の浄化機構に関する基礎的研究, 九州大学博士論文 (1986)
- 7) シーゲル生化学計算法 永井裕 石倉久之 林利彦 共訳

謝辞

本研究を行なうに当り御協力戴きました協和技建 菅谷浩一君, 岩手大学 工学部 土木工学科4年生 小田切敢君, 玉山祐司君に感謝致します。

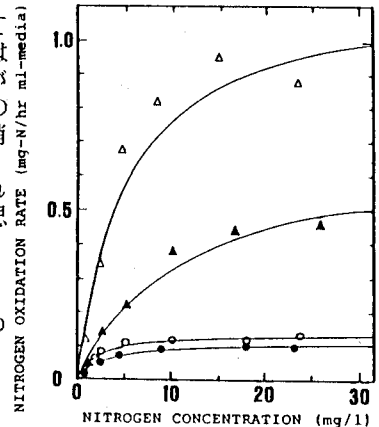


図-6 窒素濃度の窒素酸化速度に及ぼす影響

表-3 バッチ実験からの結果

		K_m mg/l	$\nu_{\max}$ mg-N/hr ml-media
$\text{NH}_4\text{-N}$ の酸化	担体そのままの場合	3.161	0.123
	担体を破壊した場合	2.234	0.149
$\text{NO}_2\text{-N}$ の酸化	担体そのままの場合	11.780	0.713
	担体を破壊した場合	5.399	1.164