

B-1 メンブレンバイオリアクターを用いた硝化・硫黄脱窒同時処理

北海道大学大学院 O中村 公彦

木村 克輝

渡辺 義公

1.はじめに

現在、下 wastewater 処理における窒素除去方法としては、 A_2O 法に代表される嫌気・好気プロセスが用いられることが多い。これらの処理法は多くの実績をあげているものの、液循環に伴う用地・コストの増加、脱窒に必要な有機物の供給など、改善を要する問題も残されている。本研究では、有機物の代わりに単体硫黄を電子供与体として用いる硫黄脱窒細菌に着目した¹⁾²⁾。硫黄脱窒細菌による脱窒は有機物を用いる脱窒反応と同様に嫌気条件下で進行する。単体硫黄と活性汚泥を混合すれば、単体硫黄を中心とする微生物フロックが形成される。ここで、諸条件を整えば、フロック表層部におけるアンモニアの硝化と、フロック内部の嫌気ゾーンにおける単体硫黄を用いた硫黄脱窒とが同時に進行すると考えられる。ただし、硫黄脱窒は有機物を利用する脱窒に比べると著しく速度が遅いため、十分な量の硫黄脱窒細菌を反応槽内に保持することが重要となる。

一方、微生物を反応槽内において高濃度に保持できる処理法として膜分離活性汚泥法(Membrane bioreactor, MBR)が注目を集めている。単体硫黄を用いた脱窒と、MBRを組み合わせることで、反応槽内に硫黄脱窒細菌を高濃度に保持でき、同時に固体である単体硫黄も反応槽内に保持できる。

本報では、MBRを用いた硝化・硫黄脱窒の処理特性、この処理方法が膜透過性能の劣化に及ぼす影響について、基本的な検討を行った結果について述べる。

2.実験方法

実験には回転平膜モジュールを用いた(総膜面積 $0.3m^2$ 材質ポリスルホン、分画分子量75万のUF膜)。実験装置のフローを図-1に示す。ろ過原水として、水道水に塩化アンモニウム、無機炭素を主体とする基質を混合し、流入水中のアンモニア性窒素濃度を $10\sim30mg/l$ に調整したものを用い、連続ろ過実験を行った。槽内水位が膜分離槽内水位と常に等しくなる水量調節槽を通して原水を膜分離槽内に注入する事により、ろ過水量と全く同量の原水が膜分離槽に補充されるので、膜分離槽内からのオーバーフローは発生しない(全量ろ過運転)。膜透過水流量を $0.4m^3/m^2/d$ に固定した定流量運転を行い、膜回転数は $100rpm$ とした。膜閉塞を防ぐ目的で、吸引ポンプを30分間運転毎に3分間停止する間欠運転を行った。これらの結果、膜分離槽内における水理学的滞留時間は140分となった。また、膜分離槽内においてエアレーションを行い、曝気強度を変化させることで、槽内のDO濃度を $1mg/l$ 未満となるように制御した。硝化細菌、硫黄脱窒細菌は、下水処理場のエアレーションタンクより採取した活性汚泥を無機基質³⁾で集積培養した後、膜分離槽内に植種した。単体硫黄としては硫黄華(和光純薬製)を用いた。これらの細菌、単体硫黄粒子は、全量ろ過を行うことにより、膜分離槽内に確実に保持される。ただし、単体硫黄は徐々に消費されてゆくので、適宜膜分離槽内に投入・補充する事とした。

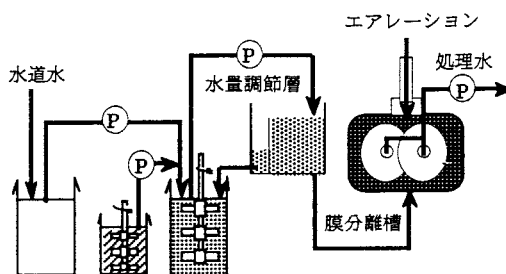


図-1：実験装置フロー

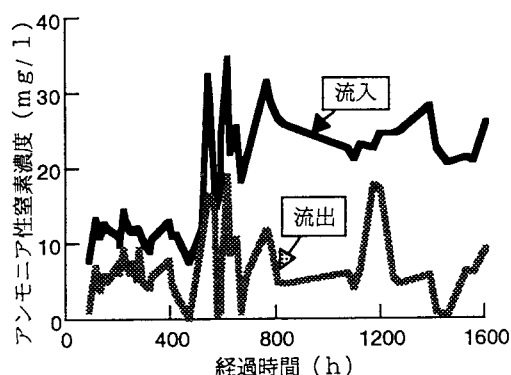


図-2：流入・流出アンモニア性窒素濃度の経時変化

3. 実験結果と考察

膜分離槽内に硝化細菌のみを植種（膜分離槽内におけるSS濃度換算で295mg/l）し、連続ろ過運転を開始した。図-2に流入・流出アンモニア性窒素濃度の経時変化、図-3にアンモニア性窒素濃度減少量と{1-（硝酸態窒素・亜硝酸態窒素濃度の増加量）/アンモニア性窒素濃度の減少量}で定義する脱窒率の経時変化を示す。運転開始から百数十時間経過時までは、アンモニア性窒素濃度は5mg/l程度減少したものの、脱窒はほとんど起こらなかった。脱窒率を上昇させる目的で、運転開始後145時間経過時において、膜分離槽内に硫黄脱窒細菌を植種（槽内におけるTOC濃度換算で8.5mg/l）すると同時に、槽内に単体硫黄を10g投入した。硫黄脱窒細菌・単体硫黄投入直後は脱窒率に変化はみられなかったが、投入後70時間経過時からアンモニアの硝化と同時に脱窒が起こるようになり、20-40%の脱窒率が観察されるようになった。硫黄脱窒細菌・単体硫黄投入前はほとんど脱窒が起こらなかったこと、脱窒率の上昇に伴って処理水中の硫酸塩濃度が上昇したことから、本実験で観察された脱窒率の上昇は、単体硫黄を用いた硫黄脱窒によるものであったといえる。

その後、適宜膜分離槽内に単体硫黄を10g添加しながら（図-3中矢印）運転をさらに継続した。槽内DO濃度が0.1mg/l前後と非常に低い場合においても、高い硝化活性が観察され、アンモニア性窒素濃度の減少量は、約600時間経過時からほぼ20mg/lで一定となった。

今回得られた実験結果のみから脱窒率が安定しなかった原因を特定するのは困難であるが、膜分離槽内DO濃度と脱窒率は密接な関係があったと考えられる。図-4に膜分離槽内DO濃度と脱窒率の関係を示す。図-4より、槽内DO濃度を0.3mg/l以下に制御することにより、脱窒率を高く保持できる可能性が示唆される。膜分離槽内DO濃度に影響を与える因子としては、エアレーション強度、槽内微生物濃度、流入アンモニア性窒素負荷などが挙げられるが、これらをさらに厳密に管理することで、膜分離槽内のDO濃度を0.3mg/l以下に保つことが可能である。また、他に脱窒率低下に関与が考えられる事項として、単体硫黄の投入が挙げられる。図-3より、単体硫黄投入直後は脱窒率が一時的に低下する傾向があることが認められる。

図-5に脱窒量と硫酸塩濃度増加量の関係を示す。図中の直線は、硫黄脱窒反応の化学量論式から予想される硫酸塩濃度の増加を示している。本実験では硫黄脱窒によって生成する量よりも多量の硫酸塩が処理水中

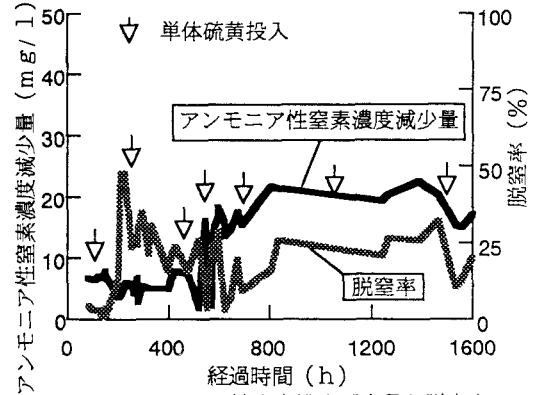


図-3：アンモニア性窒素濃度減少量と脱窒率の経時変化

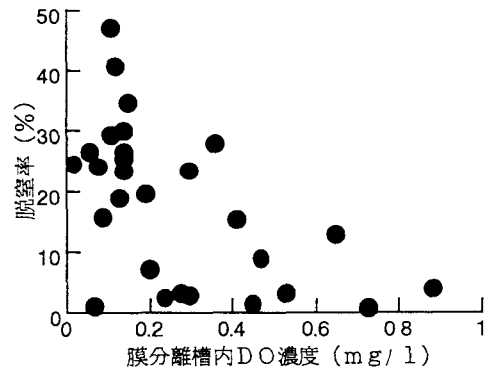


図-4：膜分離槽内DO濃度と脱窒率との相関

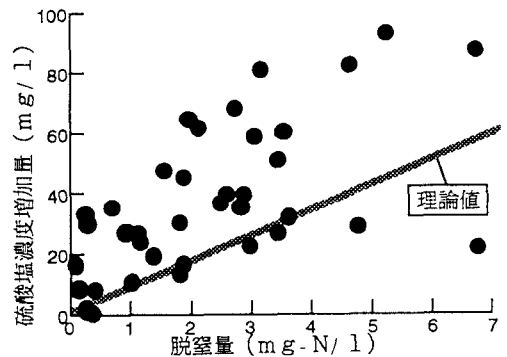
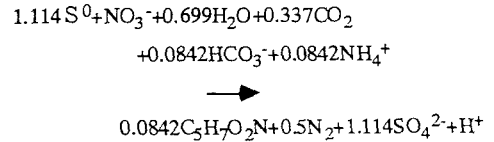


図-5：脱窒量と硫酸塩濃度増加量との相関

に存在した。単体硫黄は、硫黄脱窒反応に用いられる他、好氣的条件において酸化されることで硫酸塩濃度を増加させる。このことが図-5において、実験で得られたデータのほとんどが直線上部に位置した理由である。しかしながら、処理コストの増大につながることで、処理水中における多量の硫酸塩の存在は好ましくないことから、本来硫黄脱窒に用いられべき硫黄が好氣的に酸化されることを抑制する方策について今後検討を加える必要がある。なお、処理水中にはチオ硫酸・亜硫酸は検出されなかった。

図-6に吸引圧力の経時変化を示す。図-6中の矢印の示す時点において、簡易な膜の物理洗浄を行った。洗浄時は吸引ポンプを一時停止し、通常100rpmの膜回転数を400rpmに上昇させ、この際に生じるせん断力によって膜の洗浄を試みた。洗浄時間は15分間とした。図-6より明らかなように、この簡易な物理洗浄を適宜繰り返すのみで、吸引圧力の過度な上昇は抑制され、安定したろ過運転の継続が極めて低圧力下において可能であった。

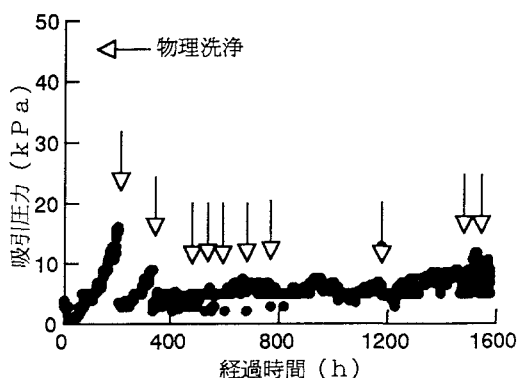


図-6：吸引圧力の経時変化

微生物の細胞外代謝産物（EPS）が、膜分離活性汚泥法における膜透過性能の劣化に深く関わっていることが報告されている⁴⁾。本実験で吸引圧力の上昇が緩やかであった原因としては、本処理法で利用したのがEPSの放出量が少なくと予想される硝化細菌・硫黄脱窒細菌などの独立栄養細菌であったことが考えられる。

4. 結論

本実験によって得られた結論は以下の通りである。

- (1) メンブレンバイオリアクターと単体硫黄を用いた硫黄脱窒を組み合わせることで、アンモニアの硝化と脱窒を単一反応槽内で同時に達成できた。水理学的滞留時間140分の条件下において、20mg/lのアンモニア性窒素の硝化と約30-40%の脱窒が同時に観察された。
- (2) 硫黄脱窒の効率は不安定であったが、反応槽内のDO濃度を0.3 mg/l以下に保つことで脱窒率を高く保持することが可能であることが示唆された。
- (3) 化学量論比よりも多量の硫酸塩が処理水中に存在した。これは本来硫黄脱窒に利用されるべき硫黄が好氣的に酸化されたためであるが、本処理法の効率化のためには何らかの対策が必要な点である。
- (4) 本処理法における吸引圧力の上昇は緩やかであり、簡易な物理洗浄を行うのみで、安定した膜ろ過運転の継続が可能であった。

【参考文献】

- 1) B. Batchelor and A. W. Lawrence: A KINETIC MODEL FOR AUTOTROPHIC DENITRIFICATION USING ELEMENTAL SULFUR, *Water Reserch*, Vol. 12, 1075-1084, 1978
- 2) B. Batchelor and A. W. Lawrence: Autotrophic denitrification using elemental Sulfur, *Journal WPCF*, Vol. 50, No. 6-9, 1986-2001, 1978
- 3) 橋本 奨・古川 憲治・塩山 昌彦：硫黄脱窒細菌の集積と単体硫黄への馴養, 水質汚濁研究, 第12巻, 第7号, 431-440, 1989
- 4) 柳 根勇・桃井 清至・小松 俊哉：膜分離活性汚泥法における膜透過性能に対する生物代謝成分の影響, 水環境学会誌, 第20巻, 第7号, 473-480, 1997