

B-9 硫黄脱窒による下水二次処理水を硝化する DHSリアクターの後段処理

○大岩 勇太^{1*}・角野 晴彦²・原田 秀樹³・珠坪 一晃⁴・大橋 晶良⁵

¹岐阜工業高等専門学校 建設工学専攻 (〒501-0495 岐阜県本巣市上真桑2236-2)

²岐阜工業高等専門学校 環境都市工学科 (〒501-0495 岐阜県本巣市上真桑2236-2)

³東北大学大学院 工学研究科 土木工学専攻 (〒980-8579 宮城県仙台市荒巻字青葉6-6)

⁴(独) 国立環境研究所 土壌圏環境研究領域 (〒305-8506 茨城県つくば市小野川16-2)

⁵広島大学大学院 工学研究科 社会環境システム専攻 (〒739-8527 広島県東広島市鏡山1-4-1)

* E-mail: 2007k04@edu.gifu-nct.ac.jp

1. はじめに

高度処理を普及させるためには、活性汚泥法の後段に簡単で低コストなシステムを設けることが適当であると考えた。高度処理のなかでも、窒素除去は一般に、硝化のための曝気と脱窒のための電子供与体の添加・制御にコストを要する。

そこで、我々はDHS (Down-flow Hangong Sponge) リアクターと硫黄脱窒を組み合わせた新規窒素除去システムを開発した。DHSは曝気が不要、硫黄脱窒は電子供与体の制御が不要であり、両者を組み合わせれば、低コストな窒素除去が行える。本研究では、このシステムを用いて、模擬下水二次処理水の連続処理を行い、適用性を評価した。

2. 実験方法

(1) 実験装置

図1に実験装置の概要を示す。DHSのろ床は、三角柱スポンジ (断面積: 5 cm^2 、幅: 20 cm 、スポンジ孔 0.56 mm) を39本、図1のようにカーテン状に懸垂した (高さ: 165 cm)。スポンジの全間隙容積は 3.0 L となり、これをHRTの算定に用いた。硫黄脱窒は、円筒形カラム (直径: 10 cm 、高さ: 80 cm) を用い、内部に硫黄担体として新日鐵化学のパチルエース (硫黄カルシウム材) を見掛けで 4.6 L 充填した。硫黄担体の充填区間 ($19\text{ cm} \times 4$ 区間 = 76 cm) の空容積 6.0 L を処理容積とし、これをHRTの算定に用いた。硫黄脱窒には、流出部から流入部へ処理水循環の設備を設けた。植種汚泥は、両リアクターともに活性汚泥を用

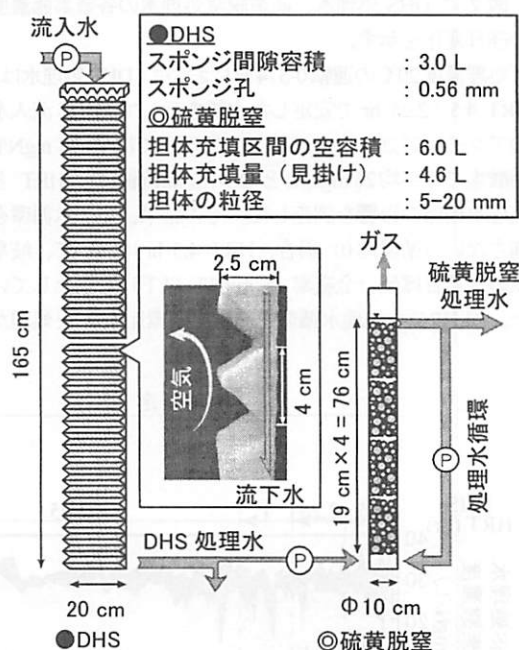


図1 実験装置の概要

い、別系統で馴養した後、連結させた。

(2) 連続処理

流入水は、下水二次処理水を模擬した。組成は、塩化アンモニウム 30 mgN/L (実測値 29 mgN/L)、スクロース 30 mgCOD/L (実測値 10 mgBOD/L)、その他無機塩類とした。

処理温度は、運転0-374日で 20°C 、運転375-670日で制御フリーとした。

運転期間：DHS HRT：硫黄脱室HRTは、運転0-39日：4.5 hr：9 hr、運転40-78日：2.25 hr：4.5 hr、運転79-117日：1 hr：2 hr、運転118-374日：2.25 hr：4.5 hr、運転375-420日：1 hr：6 hr、運転421-670日：1 hr：9 hrとした。

硫黄脱室は、運転130-374日に処理水循環（循環比15）を行った。運転463日に硫黄脱室において、硫黄担体の汚泥を剥離した。汚泥剥離の方法は、各区間で硫黄担体を取り出し、硫黄担体の搅拌・すすぎを2回行った。

(3) 硫黄担体付着汚泥の汚泥濃度と脱室活性

運転0、75、372、457、670日に硫黄脱室の基軸方向19-38 cm、57-76 cm区間の硫黄担体を試験に供した。汚泥濃度は、タンパク質濃度を指標とし、Lowly法で測定した。脱室活性は、a) 硝酸塩、チオ硫酸塩、b) 硝酸塩、c) 硝酸塩、有機物の3種の培地に汚泥が付着した硫黄担体を入れ、温度27.5℃で常時振とうし、硝酸塩の消費速度を脱室活性とした。

3. 実験結果および考察

(1) 連続処理性能

図2にDHS処理水、硫黄脱室処理水の各窒素態濃度の経日変化を示す。

処理温度20℃の運転0-374日において、DHS処理水は、HRT 4.5、2.25 hrで安定した水質を示しており、流入水のアンモニア29 mgN/Lが、DHS処理水では平均1 mgN/L、硝酸塩では平均26 mgN/Lとなった。硫黄脱室は、HRTと処理水循環の影響を調査した。その結果、処理水循環を施さない（循環比0）場合、HRT 4.5 hrにおいて、岐阜県の水質目標値（全窒素15 mgN/L以下）を満たしていた。同HRTで処理水循環を施す（循環比15）と処理が

向上し、処理が安定した運転174-260日では全窒素11（±1）mgN/Lであった。しかし、運転270日付近より処理水の硝酸塩、全窒素は徐々に増加した。

運転375-670日（10-7月）は温度制御フリーとした。DHS処理水温は28-7℃であった。この期間でDHS処理水は、HRT 1 hrでアンモニアは平均1 mgN/Lで硝酸塩は平均26 mgN/Lであった。運転日数の経過に伴い、DHSの保持汚泥が増殖したためか、高速、低温の条件でも十分な硝化ができた。また、670日間の運転で汚泥管理が一切不要であった。

硫黄脱室処理水は運転375-421日のHRT 6 hrにおいて、全窒素が15-24 mgN/L、硝酸塩が10-21 mgN/Lと増加傾向を示した。この原因は、温度低下と運転270日付近からの除去能の悪化の継続が挙げられる。運転422日よりHRT 9 hrとしたが、処理水質に改善は認められなかった。これより、除去能の悪化は、温度低下による微生物活性の低下より、他の原因の影響が大きいことを示している。そこで、運転463日に硫黄担体の付着汚泥を剥離した。直後から、亜硝酸塩が検出された。運転520日付近より、硫黄脱室処理水における硝酸塩、亜硝酸塩は減少傾向を示し、それに伴い、全窒素も減少傾向を示した。運転630日には全窒素6 mgN/Lとなった。

全運転期間（670日間）における生成硫酸塩/除去硝酸性窒素は2.40であった（データ不提示）。これは、Koenig & Liuによって提示されている硫黄脱室反応式¹⁾（生成硫酸塩/除去硝酸性窒素 = 2.39 mgS/mgN）に近い。また、DHS処理水中の有機物濃度は、平均全BOD 1 mg/Lと低かった。よって、硫黄脱室内の反応は、ほとんどが硫黄による独立栄養脱室であるといえる。

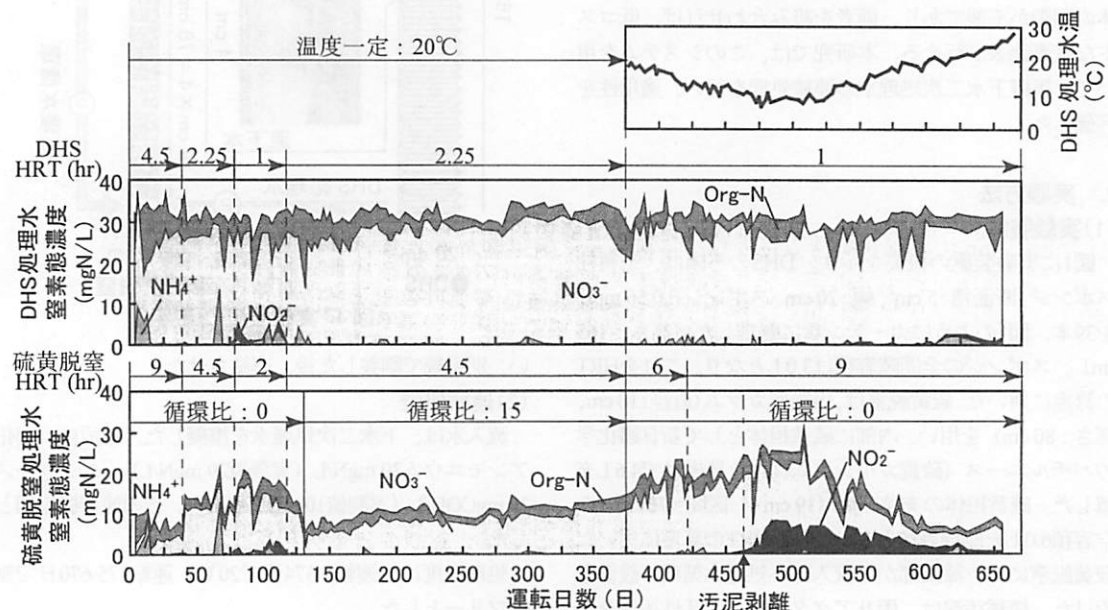


図2 各窒素態濃度の経日変化

(2) 硫黄担体付着汚泥の汚泥濃度と脱窒活性

表 1 に汚泥性状調査時における硫黄脱窒の運転条件、図 3 に硫黄脱窒の 19-38、57-76 cm 区間における硫黄担体付着汚泥の汚泥濃度と脱窒活性を示す。汚泥濃度は硫黄担体の見掛け容積当たりで評価した。脱窒活性は単位タンパク質量当たりで評価した。

汚泥濃度は、運転 0 日から運転 75 日にかけて、19-38、57-76 cm 区間で 1.8、1.1 倍となった。運転 463 日（汚泥剥離直後）から運転 670 日にかけて、19-38、57-76 cm 区間で 3.8、1.5 倍となった。この両期間では処理水循環なしであったため、流入部に近く、硝酸塩の除去量が多い（データ不提示）19-38 cm 区間で、汚泥濃度の増加割合が大きかった。

運転 372 日の汚泥濃度は、19-38、57-76 cm 区間で、6.8、6.9 g-protein/L-担体と同程度であった。この理由は、処理水循環によりカラム内が完全混合に近づいた、あるいは汚泥濃度が飽和に達したと考えられる。

運転 375 日から HRT 6 hr、温度制御フリー、処理水循環なしに運転条件を変更した。運転 457 日では運転 372 日と比べ、汚泥濃度は 19-38、57-76 cm 区間で 0.6、0.5 倍となった。

脱窒活性は、リアクターの基軸方向、HRT、処理水循環の有無、すなわち硝酸塩の除去量と関係はなかった。一つの理由として、生物膜の硫黄酸化細菌の K_s 値（半速基質濃度）が $0.398 \text{ mgNO}_3\text{-N/L}^2$ と本リアクター内の硝酸塩濃度に比べて十分に小さいことが挙げられる。

運転日数の経過に伴う脱窒活性の変化はあったが、傾向はなかった。そこで、汚泥濃度と脱窒活性の関係を調べた。汚泥濃度が $3.9 \text{ g-protein/L-担体}$ を上回ると、培地 a) の活性値は極端に低下した。その活性値は、汚泥濃度が $1.6\text{-}3.6 \text{ g-protein/L-担体}$ の活性値の $3/5$ 以下となった。これより、生物膜が肥大化すると脱窒活性の低下を招くことが示唆された。

培地 b)、c) の脱窒活性の経日変化を比べると運転 75 日、57-76 cm 区間を除き、培地 c) は培地 b) の脱窒活性に比べて高い傾向にある。培地 c) の試験では除去硝酸塩に対して、除去 COD と生成硫酸塩のバランスがとれなかった。連続処理では、従属栄養脱窒の寄与は極めて少なかった。したがって、有機物を添加することで硫黄を利用する脱窒の活性が上昇したと推測される。

4. まとめ

DHS リアクターと硫黄脱窒を組み合わせたシステムによって、模擬下水二次処理水（アンモニア 29 mgN/L 、有機物 10 mgBOD/L ）を 670 日間連続処理した。前段の DHS は、670 日間、曝気と汚泥管理を必要とせず、HRT 1 hr、 7°C の条件でもほぼ完全に硝化が行われた。硫黄脱窒は、処理温度 20°C 、HRT $9\text{--}4.5 \text{ hr}$ で、処理水の全窒素 15

表 1 硫黄担体付着汚泥の性状調査時の運転状況

調査日 (日)	0	75	372	457	670
HRT (hr)	-		4.5	6	9
温度 ($^\circ\text{C}$)	-		20	14	28
循環比	-	0	15		0
その他	運転 463 日 硫黄担体付着汚泥の剥離を実施				

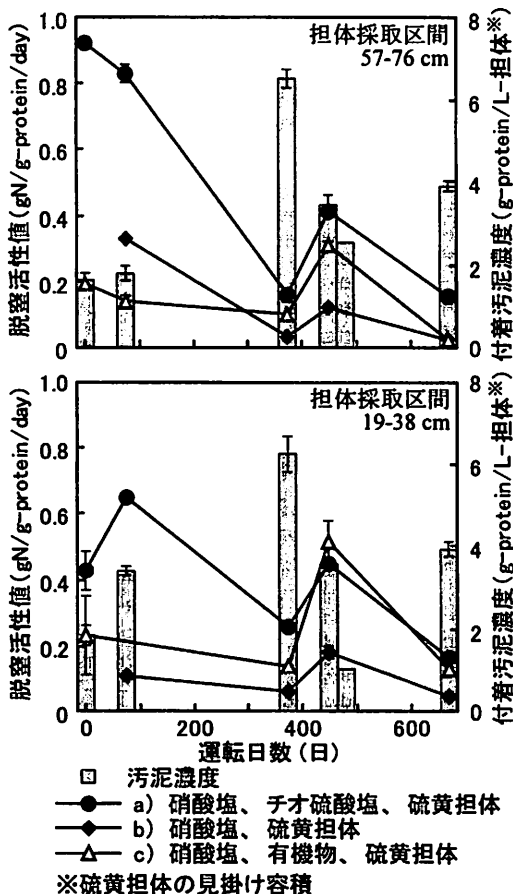


図 3 硫黄担体付着汚泥の汚泥濃度と脱窒活性

mgN/L 以下にできる。処理温度が 20°C 以下の処理性能は、適切な汚泥管理ができなかったため、明らかにできなかった。

硫黄脱窒における脱窒活性は、試験担体の汚泥濃度に関係があった。脱窒活性は、生物膜が肥大化（汚泥濃度で $3.9 \text{ g-protein/L-担体}$ 以上）すると、それまでの $3/5$ 以下に低下した。

参考文献

- 1) Koenig, A., Liu, L.H.: *Journal of Biotechnology* 99, pp.161-171, 2002
- 2) Zeng, H., Zhang, T.C.: *Water Research* 39, pp.4941-4952, 2005