

N-3 活性汚泥法の好気槽に組み合わせ可能な 生物膜型脱窒装置

○庄司 仁^{1*}・植本 弘明¹・森田 仁彦¹

¹財団法人 電力中央研究所 環境科学研究所（〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子1646）

* E-mail: t-shoji@criepi.denken.or.jp

1. はじめに

廃水からの生物学的窒素除去は、好気条件における硝化反応と無酸素条件における脱窒反応を組み合わせている。活性汚泥法の場合、無酸素槽と好気槽をこの順で配置して、好気槽終端から無酸素槽先頭への循環を行う循環式硝化脱窒法が実用化されている。このように異なる条件の反応槽を個別に設けると、反応槽全体の容積が大きくなってしまふ。さらに、硝化を独立栄養な硝化細菌が担っていることから、菌体量を維持するための十分な滞留時間、すなわち大きな好気槽が必要となる。そのため、窒素除去に関して、処理能力を維持しながら反応槽を小さくすることが強く望まれている。これまでに、硝化細菌を維持する技術として、固定化¹⁾や膜分離活性汚泥法²⁾などが提案されている。これらは実用段階に達しているが、異なる条件の反応槽を必要とすることは変わっていない。また、同一の反応槽で窒素除去を完結させる技術として、嫌気性アンモニア酸化³⁾や好気脱窒⁴⁾が検討されている。しかしながら、廃水処理への適用にあたっては、有機物除去との両立や処理系内での維持方法など、未解決の問題が残されている。

このような状況をふまえて、生物膜を活用した窒素除去が注目されている。一定の厚みを持つ生物膜では、酸素や基質の条件が局所的に異なっており、それぞれの条件に適した生物反応が卓越する。そこで、生物膜を選択的な物質透過膜に付着させれば、特定の反応を局所的に促すことができる。たとえば、酸素透過膜に生物膜を付着させて、膜側で硝化を、液側で脱窒を行った例が報告されている⁵⁾。また、著者らの研究では、硝化細菌と脱窒細菌を混ぜて固定化した生物膜と、ポリエチレンフィルムを介した緩やかなアルコール供給との組み合わせによって、好気的な液中で硝化と脱窒が進むことを確認している^{6) 7)}。この手法を既存の活性汚泥法に適用できれば、反応槽の数や容積を増やすことなく、窒素除去

能力を向上させられる可能性がある。そこで本研究では、生物膜装置を活性汚泥に浸漬させて、好気条件とした際の窒素除去能力について検討した。

2. 実験の方法

(1) 活性汚泥リアクター

実験室において、好気槽（2.9 L）と沈殿池で構成される連続式の活性汚泥リアクターを運転した。種汚泥は、近隣の都市下水処理場（嫌気好気法）から採取した。一方の系列は後述する生物膜装置を加えた脱窒系、もう一方は活性汚泥のみの対照系とした。沈殿池を共通としたため、両系列の汚泥が持つ処理能力は同等である。主要な運転条件は、HRT：8.5時間、汚泥返送率：100%、SRT：11日である。水温とpHは制御しなかったが、それぞれ21～25℃、7.5～8.0で、大きな変動や処理水質への影響は見られなかった。溶存酸素濃度は、途中で曝気量の調整を行ったものの、常に4mg/L以上に保たれていた。

与えた基質の組成は、表1のとおりである。滅菌した約40倍の濃厚基質と、水道水（一部の無機塩類を加えたもの）とを別に供給した。両者を合わせると、供給量は8.2L/日、基質濃度としてTOC：120mg/L・COD：340mg/L・TN：36mg/Lに相当する。

表1：リアクターに与えた基質の組成

物質	希釈後濃度 [mg/L]
Bacto トリプトン	200
Bacto 酵母エキス	100
MgCl ₂	430
KCl	336
CaCl ₂ ・2H ₂ O	88
NaHCO ₃	387
NaH ₂ PO ₄	12

(2) 生物膜型脱窒装置

既報^{6) 7)} にならって、ポリエチレンの内袋と不織布の外袋による、二重袋の生物膜装置を作った (図1参照)。まず内袋には、0.1mm厚の低密度・非多孔性ポリエチレンフィルム (ミポロンフィルム, ミツワ) を用いた。約16cm×16cmに裁断・熱融着した袋内に、70mLの99.5%エタノールを入れた。このフィルムのエタノール透過速度は、25℃において0.8mgCOD/cm²/日である⁷⁾。

次に、0.6mm厚のPET樹脂不織布 (G2260-1S, 東レ) を用いて、内袋よりわずかに大きな外袋を作った。外袋の表面には、光硬化性樹脂 (PVA-SbQ, SPP-H-13, 東洋合成工業) と、培養・集菌してリン酸緩衝液に懸濁させたアンモニア酸化細菌 (*Nitrosomonas europaea* NBRC14298)、亜硝酸酸化細菌 (*Nitrobacter winogradskyi* NBRC14297)、脱窒細菌 (*Paracoccus pantotrophus* JCM6892) とを混ぜて、1mm厚で塗布した。その後、メタルハライドランプを片面あたり20分ほど照射して、硬化させた。この外袋にアルコール入りの内袋を詰めると、生物膜型脱窒装置となる。本実験では、脱窒系の反応槽に2つの生物膜装置を入れたため、ポリエチレンフィルムの面積 (≒生物膜の有効面積) の合計は約1000cm²であった。

(3) 分析方法

有機物指標として、遠心分離ならびにろ過 (孔系0.2 μm) の後、TOC を測定した。また、インドフェノール法によりアンモニア性窒素を、イオンクロマトグラフ法により亜硝酸性窒素と硝酸性窒素を測定した。汚泥濃度の測定には遠心分離法を用いた。

3. 結果

(1) 有機物除去能力および硝化能力

図2～4に、代表的な処理水質 (反応槽内の水質) と汚泥濃度の推移を示す。なお、アンモニア性窒素と亜硝酸性窒素はおおむね0.3mgN/L以下であったので、図示は省いた。有機物除去に関しては、生物膜型脱窒装置の導入にともなう負荷の増加 (約100mgCOD/Lの流入負荷に相当) があっても、処理水質には影響が見られない。一方、有機物基質であるトリプトンと酵母エキスは、分解にもなっており、窒素分がアンモニア性窒素に変換されているはずである。にもかかわらず、反応槽内でアンモニア性窒素と亜硝酸性窒素が極めて低い濃度だったことから、どちらの系列も硝化が十分に進んでいたと判断できる。したがって本実験では、活性汚泥中に十分な硝化細菌が維持されており、硝化細菌を生物膜装置に固定した効果は表れなかった。これは、長めに設定したSRT (11日) と高い溶存酸素濃度の結果だと推察される。

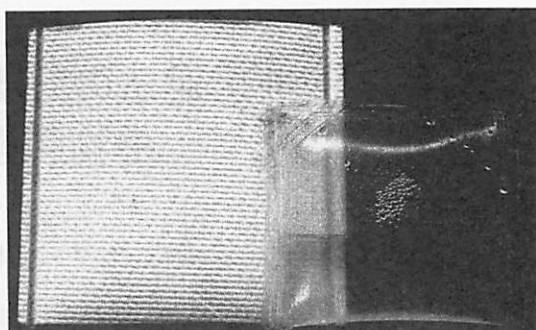


図1：不織布の外袋 (固定化前) とポリエチレンの内袋
(注：実際に使用した内袋は、エタノールでほぼ満たされており、また外袋と同程度の大きさである。)

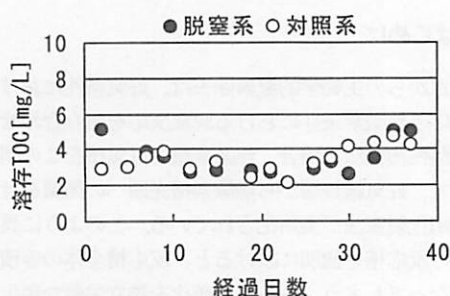


図2：溶存有機物濃度の推移

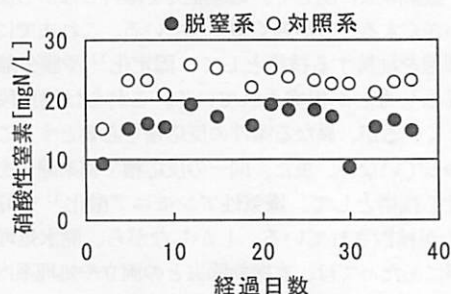


図3：硝酸性窒素濃度の推移

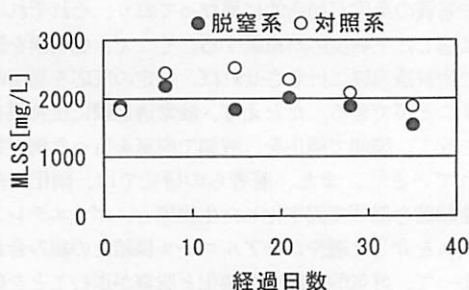


図4：汚泥濃度の推移

(2) 脱窒能力

図3に示したとおり、脱窒系の硝酸性窒素は対照系よりも常に低濃度だった。開始直後の3日目と不具合のあった30日目を除くと、差の平均は6.5mgN/L(標準偏差1.2mgN/L)であった。沈殿池からの返送(100%)が共通であることを考慮すると、反応槽での濃度差は処理能力の差を2倍希釈したものである。つまり、生物膜装置によって低減された硝酸性窒素濃度は13mgN/Lと計算される。このとき、生物膜の面積あたりの脱窒速度は、約1gN/m²/日となる。これは、清澄な硝酸塩水溶液での実験で得られた速度:1.15 gN/m²/日⁷⁾とほぼ同等である。

4. 今後の展望

(1) 有機物の供給と脱窒能力

本研究で用いた生物膜型脱窒装置では、脱窒の電子供与体として、またフィルム近傍で無酸素条件を実現するために、有機物の供給が必須である。フィルム等の材料費や製造費用は少ないと予想されるため、継続的な有機物供給にともなう費用が、処理費用全体を左右することになるだろう。現段階では、有機物源として安価とはいえないエタノールを用いていること、供給エタノール量(800mgCOD/日)に対して、脱窒量(100mgN/日)が不十分なことなど、改善の余地が残されている。

本装置の改良を行うにあたっては、3つの方向性が考えられる。第一に、フィルムの特性をさらに活用することである。たとえばポリエチレンフィルムは、固形分はもちろん、極性の大きい水などを通さない一方で、エタノール以外にもメタノール、酢酸、各種の気体などを緩やかに通す。したがって、脱窒細菌が利用できる電子供与体であれば、多様な有機物を使うことができる。

第二に、フィルムを介した有機物の供給は、物理的な拡散現象の一種であるため、速度の予測や制御を行いやすいことが注目に値する。ポリエチレンの場合、0.05~0.5mm厚の範囲で、厚みとエタノール透過速度が反比例する⁷⁾。したがって、厚いフィルムで脱窒速度に応じた供給量まで絞り込むことや、薄いフィルムで単位面積あたりの処理性能を高めることなど、適用場面や用途に応じた工夫が考えられる。

第三に、生物膜の最適化である。今回の生物膜では、硝化細菌と脱窒細菌を混ぜて固定化することで、液側で硝化にともなう酸素消費が盛んになり、フィルム側の脱窒に適した環境(無酸素条件)が広がると期待された。実際には硝化を活性汚泥が担っていたため、生物膜中の硝化細菌の効果は確認できなかった。しかしながら、条件に応じて適切な細菌を選ぶことは、窒素除去能力の向上や新たな機能の付与につながる可能性がある。

(2) 装置の適用の場

本研究のもっとも直接的な意義は、好気槽のみを持つ廃水処理施設、たとえば標準活性汚泥法に対して、投入するだけで使える脱窒装置を提案したことにある。反応槽の増設が不要なので、既存施設(標準活性汚泥法)の高度化や更新の際に有効な選択肢となるだろう。

一方、活性汚泥法の好気槽で使用できたことは、高い溶存酸素濃度や、活性汚泥(すなわち他の雑多な細菌)との共存のような条件にまで、本装置の適用範囲を広げられたことを意味する。活性汚泥法への適用に加えて、著者らは、水域の直接浄化⁷⁾や、魚類飼育水の浄化⁸⁾などを試みている。装置の特徴を生かして、さまざまな用途を検討していきたい。

謝辞: 種汚泥の採取にあたって、千葉県手賀沼下水道事務所および手賀沼終末処理場の協力を、実験にあたって、北澤奈穂氏(株式会社セレス)の協力を得た。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- 1) Sumino T *et al.*: Immobilization of nitrifying bacteria by polyethylene glycol prepolymer, *J. Ferment. Bioeng.*, Vol.73, pp.37-42, 1992.
- 2) 新田見匡ら: 浸漬型膜分離活性汚泥法における亜硝酸イオン経由の硝化脱窒, 第45回環境工学研究フォーラム講演集, pp.29-31, 2008.
- 3) 三宅英成ら: 亜硝酸化・脱窒一槽型反応装置に関する基礎的研究, 第41回日本水環境学会年会講演集, pp.307, 2007.
- 4) Otani Y *et al.*: Comparison of aerobic denitrifying activity among three cultural species with various carbon sources, *Water Sci. Technol.*, Vol.50, pp.15-22, 2004.
- 5) 友野正信ら: 酸素透過膜による消化汚泥脱水ろ液の処理, 第41回日本水環境学会年会講演集, pp.540, 2007.
- 6) Uemoto H *et al.*: Simplified denitrification system using ethanol released from non-porous polyethylene-film bag, *Biochem. Eng. J.*, Vol.45, pp.35-40, 2009.
- 7) 植本弘明ら: 窒素除去能を有する水域直接浄化用ろ材の開発—硝化と脱窒を行う二重構造の袋状ろ材—, 電力中央研究所研究報告 V08041, 2009.
- 8) Shoji T *et al.*: Compact bio-filter system for Aquatic Habitat on the International Space Station, 日本宇宙生物科学会第23回大会(投稿中).