

B-32 循環式USB-亜硝酸型硝化プロセスによる 含窒素有機性排水の処理特性

○植原 啓介¹・高嶋 真¹・伊藤 司¹・渡邊 智秀^{1*}

¹群馬大学大学院工学研究科社会環境デザイン工学専攻 (〒376-8515 群馬県桐生市天神町1-5-1)

* E-mail: watanabe@cc.gunma-u.ac.jp

1. はじめに

硝酸性窒素のような酸化態窒素が共存する系では、メタン生成古細菌のメタン生成活性は著しく阻害を受けることが知られている¹⁾。その一方で、メタン発酵汚泥が保持された担体や嫌気性グラニューールを充填した槽を脱窒条件にして馴致すると反応槽全体としては見かけ上、脱窒とメタン生成が併存した状態を形成可能である²⁾。また、このときグラニューール表層近傍ではメタン生成古細菌と脱窒細菌が存在していることが報告されている³⁾。このような槽の状態が安定的に維持できれば、メタン生成と脱窒の単一槽化による含窒素有機性排水処理システムの構成の単純化に加え、排水中の有機成分の脱窒への有効利用も容易になると考えられる。これに加えて、生物学的脱窒を行うための前段として組み合わせる硝化プロセスに亜硝酸型硝化を利用すれば、窒素/有機物比が大きな性状の排水へ処理システムの適用性が拡張されるとともにメタン回収量の増大が期待される。しかしながら、このようなシステムの特性は明らかになっているとはいえない。

本研究では、含窒素高濃度有機性排水の有機物ならびに窒素処理を念頭におき、脱窒能を有する嫌気性グラニューール充填槽と亜硝酸型硝化槽を組み合わせた循環式処理システムを構築して、種々の操作条件下で連続処理実験を行い、その基本的処理特性を把握した。

2. 実験

2-1 実験装置

実験装置の概略を図1に示す。本システムは、脱窒能を持つ嫌気性グラニューール充填槽と担体を投入した亜硝酸型硝化槽で構成されている。被処理水はグラニューール充填槽から亜硝酸型硝化槽を経由して排出されるが、亜硝酸型硝化槽の硝化液の一部はグラニューール充填槽へ循環されている。グラニューール充填槽は内径8cm、有効容積約5Lの円筒形で、見かけ容積基準で約30%のグラニューールが充填されている。また、約2m/hの上向きの

線速度となるように液循環して槽内を攪拌した。連続実験に先立ち、実産業排水を処理しているUASBから採取した嫌気性グラニューールを硝酸性窒素/COD_{Cr}=0.1（以降、COD_{Cr}はCODと表記する）の基質を連続通水して脱窒環境に約2ヶ月間馴致した。亜硝酸型硝化槽は、有効容積約3Lの円筒型槽に見かけ容積基準で約35%となるように約2.5mm角の多孔性担体が投入されている。実験に先立って、多孔性担体を研究室で運転している完全硝化型の硝化槽へ1ヶ月間浸漬して硝化細菌をよく付着させた後、pHや流入負荷に留意しながらアンモニア含有水を連続通水して亜硝酸型硝化へ移行させ、安定した状態になっていることを確認してから、グラニューール充填槽に接続した。

2-2 連続処理実験

主要な有機成分としてグルコースを用いた含窒素有機性人工排水（アンモニア性窒素濃度2.5~5g/L、COD濃度8~15g/L）をグラニューール充填槽へ連続通水し、流入濃度、流入N/COD比、滞留時間および硝化液循環比等の操作条件を徐々に変更した。各槽から採水してCOD、TN、形態別窒素および浮遊性固形物等の測定を

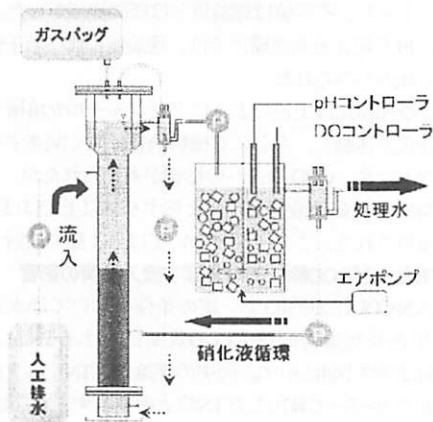


図1 実験装置の概略

行うとともに、定常状態におけるグラニュール充填槽からのガス生成量ならびにガス組成を測定した。なお、実験期間を通じて水温は30℃に制御し、硝化槽の液本体溶存酸素濃度は約3.5 mg/Lとなるように制御した。

3. 結果および考察

3-1 各槽の COD および形態別窒素の状況

連続処理実験における各槽の COD および形態別窒素の存在状況の例を図2に示す。流入 COD 濃度が約12 g/L に対し、グラニュール充填槽の COD 濃度は100 mg/L 以下にまで低減されていることがわかる。硝化槽では更に若干の減少が見受けられたが、処理システム全体の COD 除去に対する硝化槽の寄与を算出すると図の条件では約2%であり、実験の範囲ではほとんどの場合、数%程度以下であった。このことから、COD はグラニュール充填槽内でほぼすべて除去されているといえる。一方、窒素成分の変化について、硝化槽では、グラニュール充填槽と硝化槽でのアンモニア性窒素濃度の差にほぼ相当する亜硝酸性窒素が蓄積しており、硝酸性窒素はほぼゼロであった。すなわち、硝化槽では安定した亜硝酸型硝化が維持されていたといえる。また、硝化槽で生成した亜硝酸性窒素は、そのほとんどがグラニュール充填槽で消費されており、脱窒の進行によるものと考えられる。このような傾向は、本研究で実施した実験範囲内においてほぼ同様であった。

3-2 除去率に及ぼす硝化液循環比の影響

流入負荷が一定の条件（流入 TN 負荷約 2.5 kg/(m³・d)、流入 COD 負荷約 8 kg/(m³・d)）における硝化液循環比に対する TN および COD 除去率の変化を図3に示す。図中の理論値（TN）とは、硝化槽へ流入したアンモニア性窒素の全量が硝化され、グラニュール充填槽へ流入した亜硝酸性窒素の全量が脱窒されると仮定して、処理システムの物質収支から算出された TN 除去率を表す。図からわかるように、TN 除去率は硝化液循環比の増大に伴って上昇し、その値は理論値とほぼ同様であった。ただし、10 を超える高循環比では、理論値に比べ若干低下する傾向がみられた。

硝化液循環比は上述のようにグラニュール充填槽での脱窒速度と連動し、さらに有機物消費に深く関連することになるため、COD 除去への影響が考えられたが、COD 除去率は硝化液循環比によらず 95% 以上でほぼ一定に維持された。この原因については 3-4 節で検討する。

3-3 TN および COD 除去率に及ぼす流入負荷の影響

流入 N/COD 比が約 0.3 で一定の条件において通水速度を変化させた場合の流入 COD 負荷に対する TN および COD 除去率を図4に示す。図中の理論値（TN）は上述した仮定に基づいて算出した TN 除去率を表す。TN 除去率は、流入 TN 負荷が約 4 kg/(m³・d)（流入 COD 負荷が約 13

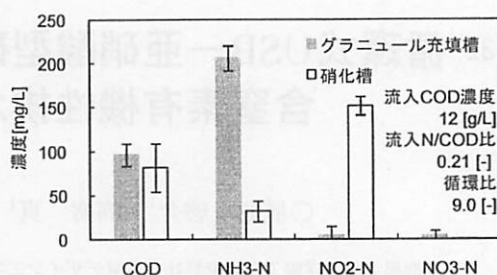


図2 各槽における COD および形態別窒素の存在状況の例

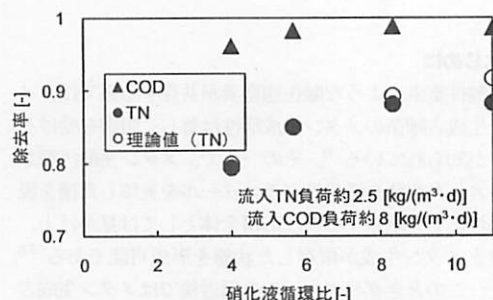


図3 硝化液循環比に対する TN および COD 除去率の変化

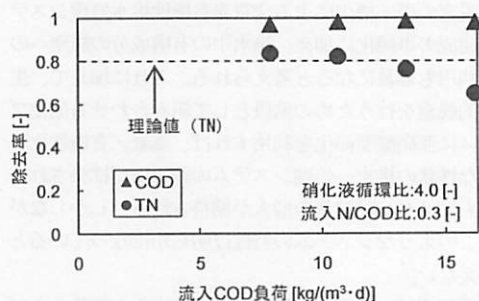


図4 流入 COD 負荷に対する TN および COD 除去率の変化

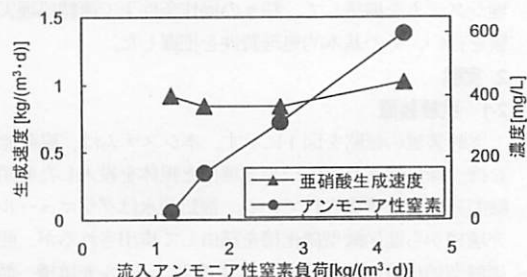


図5 硝化槽における流入アンモニア性窒素負荷に対する亜硝酸生成速度およびアンモニア性窒素濃度の関係

kg/(m³・d)の条件)までは理論値にほぼ等しかったが、約5 kg/(m³・d) (流入COD負荷が約16 kg/(m³・d)の条件)に達すると理論値の75%にまで低下した。この原因を明らかにするために、各槽の形態別窒素の状況について調べた。図4に示した実験における硝化槽での流入アンモニア性窒素負荷に対する亜硝酸生成速度と残留アンモニア性窒素濃度の関係を図5に示す。槽容積あたりの亜硝酸生成速度は、流入アンモニア性窒素負荷によらず約0.9 kg/(m³・d)でほぼ一定であることがわかる。そのため、硝化槽内での残留アンモニア性窒素濃度は流入負荷に対応して上昇していることがわかる。すなわち、TN除去率が高流入負荷条件において理論値に比べて低下傾向となったのは、硝化槽の亜硝酸生成速度が制約となっているためであると考えられた。なお、COD除去率は、実験を行ったグラニューール充填槽のHRTが8 hまでの流入COD負荷の範囲で常に95%以上であった (図4)

流入TN濃度を一定として流入COD濃度を変更 (つまり、流入N/COD比を変更) した場合における流入N/COD比に対するTNおよびCOD除去率の関係を図6に示す。実験の範囲において、TN除去率は、上述した仮定に基づいた理論値にほぼ等しい約90%であり、COD除去率は95%以上に維持され、安定的な操作が可能であった。

3.4 COD除去の特性

図3、図4および図6に示したように本研究で行った16 kg/(m³・d)の流入COD負荷までの範囲の実験において、COD除去率は常に95%以上に維持された。また、図2に示した各槽の濃度変化の典型例からわかるように、有機物除去は、ほとんどグラニューール充填槽において進行しており、硝化槽のCOD除去への寄与は、実験の範囲では最大でも数%であった。このことを踏まえて、グラニューール充填槽でのCOD除去の特性を検討した。COD除去に対する脱窒の影響を推定するために、下記の異化的脱窒の総括化学反応式を仮定し、その化学量論関係に基づいて亜硝酸性窒素除去速度の実測値から有機物消費量をCOD換算して算出した。



さらに、COD除去速度の実測値との差をメタン発酵によるCOD除去の寄与とした。このような計算によるCOD除去に対するメタン発酵の寄与とグラニューール充填槽への流入亜硝酸性窒素/COD比の関係を図7に示す。図から、亜硝酸性窒素/COD比が増大するにつれてCOD除去に対するメタン発酵の寄与が低下していることがわかる。例えば、亜硝酸性窒素/COD比が約0.2の際にCOD除去に対して約60%がメタン生成によるものになる。すなわち、本実験でCOD除去率が常に非常に高く維持されたのは、グラニューールとして保持されているメタン発酵微生物が脱窒環境下でも活性を有し、メタン生成をし

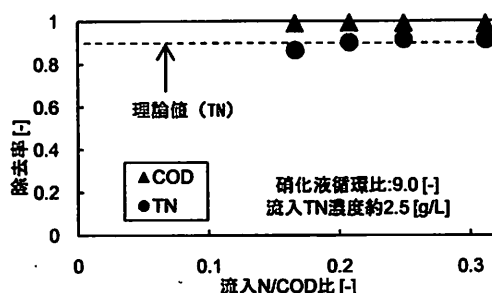


図6 流入N/COD比に対するTNおよびCOD除去率の変化

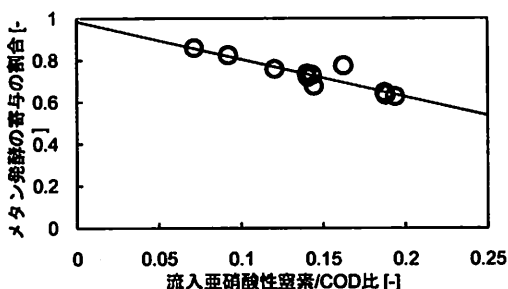


図7 グラニューール充填槽におけるCOD除去に対するメタン発酵の寄与と流入亜硝酸性窒素/COD比の関係

ていることによるものと考えられた。なお、グラニューール充填槽からのメタン生成量の実測値は、概ねこの傾向と一致していた。

4. まとめ

脱窒能を有する嫌気性グラニューール充填槽と亜硝酸型硝化槽の循環式処理システムにおいて、流入COD負荷13 kg/(m³・d)で流入N/COD比0.33、硝化液循環比11までの操作条件範囲で、硝化液循環比に概ね対応したTN除去率ならびにCOD除去率約95%以上が安定的に達成可能であることがわかった。有機成分のほとんどはグラニューール充填槽で除去され、グラニューール充填槽への流入N/COD比条件に応じた脱窒とメタン生成の両方がそれに寄与した。また、硝化槽では亜硝酸型硝化が良好に維持されたものの、生成速度の制約により、高TN負荷ではTN除去率が影響を受けた。

参考文献

- 1) Tuglas A.E. *et al.*: Inhibitory effects of nitrogen oxides on a mixed methanogenic culture, *Biotech Bioeng*, Vol. 96, No. 3, 444-455 (2007)
- 2) 山崎慎一ら: 2槽式UASB-接触酸化処理システムにおける有機物と窒素の除去特性, 土木学会論文集, No. 811/VII-38, 87-94 (2006)
- 3) 丸尾ら: 第42回日本水環境学会年会講演集, p289 (2008)
- 4) 渡邊智秀ら: 無酸素条件下のメタン発酵グラニューール充填槽における有機物除去・脱窒特性, 環境工学研究論文集, Vol.46, (2009) (印刷中)