

N-11 水族館の生物ろ過槽に組み込み可能な 脱窒装置の開発

一葛西臨海水族園における長期実証試験一

○庄司 仁¹・植本 弘明^{1*}・金原 功²・中村 浩司²・雨宮 健太郎²・木船 崇司²・荒井 寛²

¹一般財団法人電力中央研究所 環境科学研究所 応用生物学領域(〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子1646)

²公益財団法人東京動物園協会 葛西臨海水族園 飼育展示課(〒134-8587 東京都江戸川区臨海町6-2-3)

*E-mail: uemoto@criepi.denken.or.jp

1. はじめに

水棲生物の長期飼育にあたっては、飼育水中のアンモニア性窒素を速やかに硝化するとともに、硝酸性窒素の中長期的な蓄積を防ぐ必要がある。硝化には、飼育水を生物ろ過槽に循環させる手法(循環式飼育)が広く普及している。硝酸性窒素については、換水による対応が主流であるものの、脱窒の導入事例も報告されている¹⁾。原理的に言えば、既存の脱窒技術は水棲生物の飼育水にも有効である。ただし、飼育や硝化には好気条件が欠かせない一方、脱窒には無酸素条件が適している。そのため、独立した脱窒槽に加えて、有機物の供給や各種の計測・制御に関わる付帯設備も必要となる。

葛西臨海水族園(以下、当園)では、30 余りの展示水槽に個別の生物ろ過槽を設けて、循環式飼育を行っている。硝酸性窒素は部分的な換水で対応してきたが、海水の入手に相応の費用が掛かるため、脱窒の導入についても検討されていた。しかし、当園のバックヤードは手狭であり、主に設置場所の制約から、既存の脱窒技術の適用は難しい状況であった。

一方、著者ら(電力中央研究所)は、宇宙航空研究開発機構と共同で、国際宇宙ステーションにおけるメダカ飼育試験のための脱窒技術を開発している²⁾。本技術は Membrane biofilm reactor (MBfR) を応用したもので、

- ・ 生物膜が形成された膜状担体の裏側から有機物を供給することで、バルク側が好気条件でも、生物膜内の大部分を無酸素条件に保てる(MBfR の特徴)。
- ・ 有機物源のエタノールをポリエチレンの袋に封入して、濃度勾配を動力源とする拡散で緩やかに供給するため、供給ポンプや貯留タンクといった付帯設備が不要となる(本技術に固有の特徴)。

といった特徴を持つ^{2), 3)}。開発目標として、既存の水棲生物実験装置(Aquatic Habitat, AQH)の構成を大きく

変えないこと、すなわち、構成部品である硝化用の生物ろ過装置に組み込むことが求められた。その条件で 90 日間の飼育試験を行ったところ、硝化能力を妨げることなく、硝酸性窒素の蓄積を 5 mg-N/L 以下に抑えられた²⁾。この結果から、当園の既存の生物ろ過槽に対しても、同様の技術が適用できるものと期待された。しかし、実際の展示水槽で用いるためには、処理水量で 1000 倍以上に大型化することをはじめとして、年単位の耐用期間を持たせること、簡易な管理方法を確立することなど、実務的な課題の解決が求められる。

そこで本研究では、まず、宇宙ステーション用の装置に改良を施して、数 m³ 規模の水槽まで対応できるよう、水族館用「脱窒モジュール」を作製した。そして、当園の 4 種類の展示水槽(0.9~6.3 m³)の生物ろ過槽に設置して、実際の飼育水に対する処理性能や、長期使用の可能性を検証した。

2. 実験の方法

(1) 脱窒モジュールの作製および設置

宇宙ステーション用の装置は、エタノールを封入する 0.05 mm 厚のポリエチレンの内袋と、生物膜を担持する不織布 ECO-PAL(金星製紙)の外袋で、二重の袋状構造としていた²⁾。今回は大型化に対応するため、前述の不織布の片面に 0.07 mm 厚相当のポリエチレンを塗布して(金星製紙に特注)、ポリエチレンと不織布の一体化を図った。この素材を 30 cm 角(後述の水槽 A と B 用)もしくは 25 cm 角(同じく水槽 C と D 用)の正方形に裁断して、2 枚一組で、塗布面が内側となるように各辺を熱融着した。そのうちの 1 辺には、中身の出し入れができるように、蓋付きの注ぎ口を付けた(図 1)。

モジュールを使用する際には、まず 100 mL のエタノールを入れて、中の空気をできるだけ押し出した後、蓋

を閉じた。事前の検討から⁴⁾、取り分けた飼育水に浸漬させたモジュールを2週間ほど曝気することで、表面に生物膜を形成させて、脱窒機能を立ち上げた。これは、培養した細菌を不織布の表面に固定化していた宇宙ステーション用の装置に比べて、立ち上げが大幅に簡略化されたことを意味する。この作業の後、必要な枚数を枠で固定した上で、生物ろ過槽に設置した。なお、周囲の攪拌とモジュール表面の洗浄のため、設置場所の直下から少量の曝気を行った。

(2) 実証試験を行った展示水槽

実証試験は、表1に示す4種類の展示水槽で行った。水槽Aは、硝酸性窒素の許容濃度が高かったことから、長期使用にともなう性能の変化を観察した。水槽BとCは、Aに比べて負荷は低いものの、硝酸性窒素をより低濃度に維持することが求められた。水槽Dは、低水温の影響を確認するために選ばれた。これらの水槽に対して、試験開始時には少なめの数のモジュールを設置して、硝酸性窒素の濃度が上昇しなくなるまで、モジュールの数を徐々に増やした。試験期間中は、特に記載のない限り、海水による換水は行わなかった。ただし、生物ろ過槽の逆洗にともなう少量の海水の補充と、蒸発分を補うための淡水（水道水）の添加は、必要に応じて行われた。

(3) 水質分析

飼育水をガラス繊維ろ紙でろ過して、硝酸性窒素はイオンクロマトグラフ分析器（ISC-1500、AS12Aカラム、Dionex）で測定した。亜硝酸性窒素とアンモニア性窒素については、比色分析（ナフチルエチレンジアミン法およびインドフェノール法）で測定して、 0.2 g-N/m^3 以下の低濃度であることを確認した（結果は省略）。

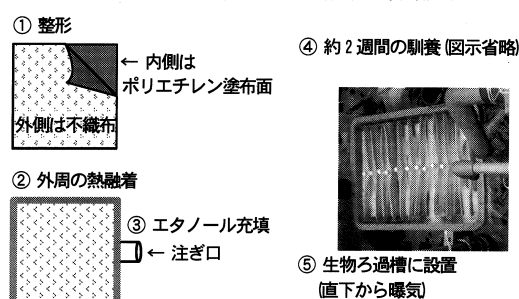


図1：脱窒モジュールの作製から設置まで

3. 結果と考察

(1) 脱窒性能の検証

図2は、水槽AとDにおける硝酸性窒素の推移を示したものである。水槽Aでは、6枚の脱窒モジュールで試験を始めて、17枚まで増やした90日目から、濃度の上昇を止めることができた。その後、260日目ごろを境に、濃度は再び上昇に転じた。このときの性能の低下と363日目以降の回復については、長期使用の課題として(3)節で改めて取り上げる。一方、水槽Dでは、8枚のモジュールで試験を始めて、12枚に増やした60日目に濃度の上昇が見られなくなった。しかしながら、目標濃度（ 4 g-N/m^3 ）よりも高かったため、116日目に18枚まで増やしたところ、目標濃度を下回るようになった。

ページ数が限られるため図示は省略するが、水槽BやCも概ね同様の推移を示して、前者では3枚で試験を始めた直後から、後者では1枚で始めて4枚に増やした時点から、必要な脱窒性能を発揮するようになった。したがって、いずれの展示水槽についても、生物ろ過槽に設置した脱窒モジュールによって、硝酸性窒素の蓄積を防げることが確かめられた。

(2) 使用条件の影響

本節では、モジュールの単位面積あたりの脱窒速度を比べることで、使用条件の影響について検討する。脱窒速度は、脱窒量と硝酸性窒素の負荷量（表1）が等しいと仮定して、モジュールの熱融着部分（各辺の1cm）を除いた有効面積から計算した。また、水温から推定されるエタノール（有機物）供給速度⁵⁾と、脱窒速度との比率（COD/N比）も計算して、合わせて表2に示した。

脱窒速度については、表1に示した水温（ $B>A=C>D$ ）と硝酸性窒素の負荷（ $A=D>B=C$ ）の影響が見られた。水温の影響は、物理的な拡散現象であるエタノールの透過速度、すなわち、有機物の供給速度が強い温度依存性を持つことから⁵⁾、事前に予想されていた。有機物の供給速度以外の影響を評価するために、COD/N比にもとづいて性能を比べると、効率の高かった水槽AとD、低かった水槽BとCに分類できる。この分類と対応する使用条件は、硝酸性窒素の容積負荷であった。これに対して、水温や硝酸性窒素濃度は、少なくとも本試験を行った範囲では、脱窒の効率に大きな影響を与えないと考えられた。

表1：実証試験を行った展示水槽の概要

	飼育生物	水温	DO	水量	硝酸性窒素・負荷量	同・目標濃度
A	大型エビ、小型魚類	21℃	7.5 g/m ³	6.8 m ³	2.7 g-N/d (0.40 g-N/m ³ ・d)	30 g-N/m ³
B	小型魚類	24℃	6.4 g/m ³	2.3 m ³	0.34 g-N/d (0.15 g-N/m ³ ・d)	10 g-N/m ³
C	クラゲ	21℃	—	0.9 m ³	0.11 g-N/d (0.12 g-N/m ³ ・d)	5 g-N/m ³
D	小型魚類、イソギンチャク	14℃	8.2 g/m ³	2.3 m ³	0.86 g-N/d (0.37 g-N/m ³ ・d)	5 g-N/m ³

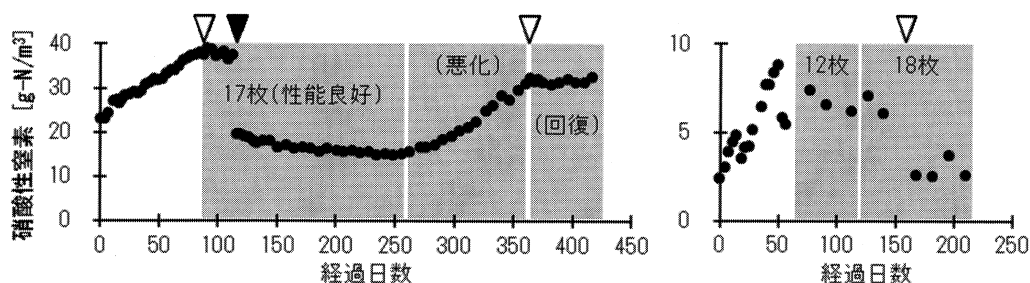


図2：硝酸性窒素濃度の推移（左：水槽A、右：水槽D）

▽はエタノールの交換を、▼は一部換水を示すが、モジュールの数が不十分な時期に行われた場合は省略した

表2：脱窒速度の比較

	脱窒速度	有機物供給速度	COD/N比
A	0.94 g-N/m ² d	6.6 g-COD/m ² d	7.0
B	0.67 g-N/m ² d	9.4 g-COD/m ² d	14.0
C	0.24 g-N/m ² d	6.6 g-COD/m ² d	27.5
D	0.41 g-N/m ² d	2.9 g-COD/m ² d	7.1

（3）長期使用における課題と対応

本技術の原理的な特徴は、平膜上に形成させた生物膜を利用していることと、封入したエタノールを拡散で供給していることである。長期的な使用にあたっては、前者に由来する課題として、生物膜の厚さの適切な管理が挙げられる。また、後者に由来する課題として、封入したエタノールの枯渇への対応と、外部から内部への拡散で侵入する空気への対応が挙げられる。本節では、これら水槽Aで検討した結果について記す。

生物膜に関しては、モジュールの表面が黄褐色になり、滑りを感じるようになったものの、不織布の繊維が十分に目視できる程度にとどまった。これは、曝気の洗浄効果に加えて、モジュール周囲で観察された小型の節足動物類による捕食の効果だと推察される。このように、物理的な閉塞や剥離した生物膜による問題は生じなかったが、性能の観点から適切な生物膜を維持できていたかどうかは、外観から判断することができない。

エタノールの枯渇は、前述した260日目以降の性能悪化の主因だったと考えられる。すなわち、水槽Aでは100 mLの充填で使用できる期間が約半年であったと言える。363日目の交換に合わせて内部のエタノールを確認したところ、量が減っただけでなく、濃度も20%台となっていた。したがって、ある時点でエタノールが枯渇したというよりも、水蒸気の侵入によるエタノールの希釈に対応して、脱窒性能が徐々に低下したと考えられる。そして、エタノール交換を行うだけで、すぐに性能が回復したことから、モジュール自体や生物膜に関しては、1年以上の長期使用が可能だったと結論付けられる。

なお、モジュールに空気が侵入して膨らむ現象に対しては、月1回の頻度で、注ぎ口から中の空気を押し出し

た。ただし、モジュール同士の間隔を広くして、浮上への対策を施せば、頻度を下げることも可能である。

4. まとめ

葛西臨海水族園において、水族館用の脱窒モジュールの実証試験を行ったところ、生物ろ過槽に組み込んだ状態で脱窒性能を発揮した。性能に影響する使用条件として、水温と硝酸性窒素の容積負荷が推定された。長期使用の際には、充填したエタノールの減少および希釈にともなう性能の低下が見られるものの、半年程度の間隔で交換すれば対応可能であった。以上の結果から、本モジュールは、水族館の飼育水に対する新たな脱窒技術として、実用的かつ有望なものだと考えられる。

謝辞：葛西臨海水族園における試験では、西源二郎園長と飼育展示課関係者の協力を得た。モジュールの作製に際しては、佐々木桂成氏（タイセイ化工株式会社）および宮本壮史氏（東伸産業株式会社）の協力を得た。水質分析については、小林奈穂氏と富田雪絵氏（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) van Rijn J *et al.*: Denitrification in recirculating systems: Theory and applications, *Aquacult Eng* 34:364-376, 2006.
- 2) 庄司仁ら：宇宙におけるメダカ飼育実験のための硝化・脱窒手法の開発、第48回環境工学研究フォーラム講演集, 119-121, 2011.
- 3) Uemoto H *et al.*: Nitrogen removal with a dual bag system capable of simultaneous nitrification and denitrification, *Biochem Eng J*, 52:104-109, 2010.
- 4) Shoji T *et al.*: Long-term demonstration of a novel ethanol-packed membrane biofilm reactor for denitrification at the Tokyo Sea Life Park, *Aquacult Eng*, submitted.
- 5) 庄司仁ら：ポリエチレンフィルムの選択的透過性を利用した脱窒装置の活性汚泥反応槽への適用, *水環境学会誌*, 33(7):81-86, 2010.