

脱気膜を導入したアナモックスリアクターの開発

広島大学大学院 学生会員 ○松永 耕介

広島大学大学院 正会員 金田一 智規

広島大学大学院 正会員 尾崎 則篤

広島大学大学院 正会員 大橋 晶良

三菱レイヨン・エンジニアリング(株) 非会員 中原 禎仁

三菱レイヨン・エンジニアリング(株) 非会員 笹川 学

1.はじめに

嫌気性アンモニア酸化(ANAMMOX)は 1995 年に発表された比較的新しい微生物反応であり、アンモニアを亜硝酸によって酸化して窒素ガスを生成するというものである ($\text{NH}_4^+ + \text{NO}_2^- \rightarrow \text{N}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$)。従来排水中の窒素除去法としては硝化・脱窒法が広く採用されてきたが、ANAMMOX 反応を窒素除去システムに適用すると硝化・脱窒法に比べ反応経路を大幅に短縮でき、その分エネルギーやコストの面で有利なプロセスの構築が期待できる。しかし、このプロセスは反応を担う ANAMMOX 細菌の増殖速度が非常に遅いことから菌体の集積培養が困難であるという問題を抱えている。また ANAMMOX リアクターを構築する際に、ANAMMOX 反応により生成された窒素ガスが菌体とうまく分離できないと菌体は浮上し、リアクター外へ流出してしまうという問題がある。これは増殖速度が遅い ANAMMOX 細菌を利用したリアクターにとって非常に不利な現象である。この問題を踏まえ、本研究では菌体と窒素ガスの分離を促進させる手段として脱気膜に着目した。脱気膜は液中に存在するガスを吸引・除去するため、ANAMMOX リアクターに導入することで生成された窒素ガスはリアクターから速やかに排除され、菌体の浮上・流出の抑制が期待できる。また、ギブス自由エネルギーの理論から、脱気により反応生成物である窒素の濃度を低下させることは ANAMMOX 活性の増大に寄与すると考えられる。さらに、本研究で使用する膜は亜酸化窒素の透過性が高く、亜酸化窒素の透過速度は ANAMMOX 反応生成物である窒素ガスの約 30 倍であることが予備実験により確認できている。ANAMMOX プロセスにおいて温室効果ガスである亜酸化窒素が発生するという事例が報告されているが¹⁾、ANAMMOX リアクターに脱気膜を導入することでリアクターから発生した亜酸化窒素を回収し、流出を抑制できると考えられる。

本研究では脱気膜導入型 ANAMMOX リアクターの運転を行い、窒素除去性能および菌体保持性能の向上、そして亜酸化窒素流出量の抑制について効果の有無を検討した。

2.実験方法

実験で使用する脱気膜は三菱レイヨン・エンジニアリング製の三層複合中空糸膜である。真空ポンプを用いて中空糸膜内部を負圧にすることで膜内外に濃度差を生じさせ、それをドライビングフォースとして窒素ガスを取り込み、リアクター外へ排除することができる。実験は真空ポンプにより吸引を行う脱気運転リアクターと、対照系として吸引を行わない通常運転リアクターを設置し、吸引の有無以外は同条件で運転させて両者の窒素除去性能および菌体保持性能を比較した。リアクター容積は 1.34 L であり、運転条件として温度を 37℃、培地供給流量を 4.6 mL/min、HRT を 5.1 h とした。植種源として別に稼働していた ANAMMOX リアクター内のグラニュールを乾燥重量で 1.37 g ずつ使用した。担体は使用せず、グラニュールの沈降性により菌体を保持した。窒素除去性能はイオンクロマトグラフィーによりリアクター通水前後の各態窒素濃度を測定し、それらから求められる窒素除去速度で評価した。菌体保持性能はリアクター流出液を回収後、SS 量の累積を求めることで評価した。また、それぞれのリアクターから発生したガスと脱気運転リアクターから吸引したガスを回収し、各ガスの体積と組成を調べた。

3.結果と考察

リアクター内の ANAMMOX 細菌の馴養のため、運転開始後しばらくは両リアクターとも吸引を行わず、24 日目に脱気運転側の吸引を開始した。また流出菌体量の測定は 12 日目以降行い、SS 量の累積を求めた。両リアクターの窒素除去速度と流出菌体量の測定結果をそれぞれ図 1、図 2 に示す。

窒素除去性能に関して、運転を通して両リアクターに大きな差は見られず、脱気による活性の増加は確認されなかった。脱気を行うことでギブス自由エネルギーが低下し、ANAMMOX 反応が促進されると予想されたが、このときのリアクター内の窒素ガス発生量は脱気膜による回収量を超えており、回収されなかった窒素ガスが液相に再溶解したために窒素を低濃度に維持できなかったと考えられる。よってリアクター内窒素濃度を低濃度に維持するには、運転条件に見合った膜量を選定することが重要であ

と考えられる。

窒素除去性能には向上が見られなかった一方で、菌体保持性能には向上が見られた。両リアクターからの流出量を比較すると、通常運転リアクターからの菌体流出量の方が多く、吸引開始後 50 日間の菌体流出量は脱気運転リアクターでは 1.55 g、通常運転リアクターでは 2.22 g と約 30% の抑制が確認できた。脱気運転リアクターの菌体保持性能が向上したのは、脱気により菌体とガスの分離が促進されたためであると考えられる。

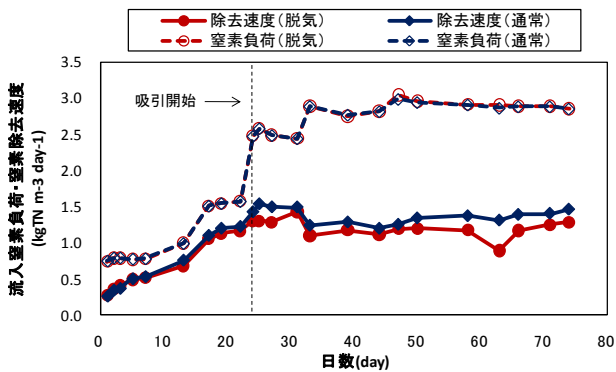


図 1 流入窒素負荷と窒素除去性能

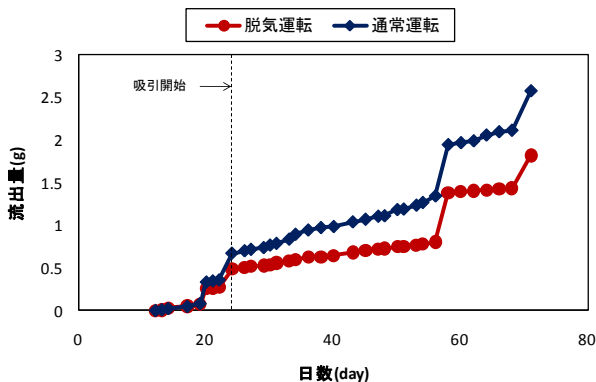


図 2 流出液中 SS の累積

図 3 に各回収ガスの組成を示す。ガスの発生量は脱気運転リアクターが 1.52 L/day、通常運転リアクターが 1.65 L/day であり、吸引により脱気運転リアクターから発生したガスの約 48% に当たる 0.73 L/day が回収できた。回収率については今後膜面積を増加することにより、100% 近くを達成できる可能性がある。また両リアクターの発生ガスからは温室効果ガスである亜酸化窒素が検出された。亜酸化窒素の発生・流出は温暖化の観点から好ましくないが、吸引ガス中からも亜酸化窒素が検出されたことから、脱気膜による回収が可能であるということが示された。吸引ガス中の亜酸化窒素濃度は他に比べて若干高いが、これについては予備実験により亜酸化窒素の透過性が窒素より高いことが確認されたことから、亜酸化窒素を選択的に透過しているためであると考

えられる。

図 4 は両リアクターから生成された亜酸化窒素について、1 日当たりのリアクターからの流出量および脱気膜による回収量を算出し、比較をしたものである。流出亜酸化窒素についてはガスとして流出する分と処理水に溶存して流出する分を区別している。これより脱気を行うことでガスとして流出する亜酸化窒素は大幅に削減できているが、処理水に溶存して流出する亜酸化窒素はそれほど削減できていないということが示された。この理由としては、窒素ガスと同様に、脱気膜により回収しきれなかった亜酸化窒素が液相へ溶解して流出しているということが考えられる。亜酸化窒素の液相への溶解は、膜面積を大きくして発生ガスの回収率を向上させることで抑制できると考えられる。

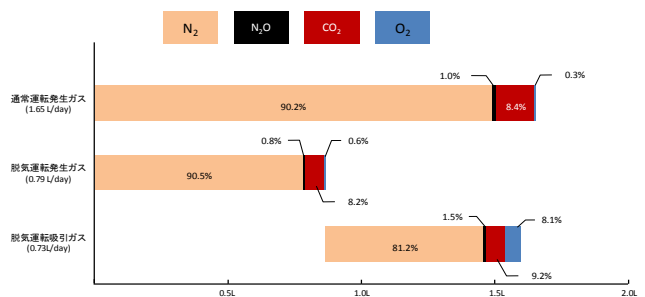


図 3 各ガスの組成

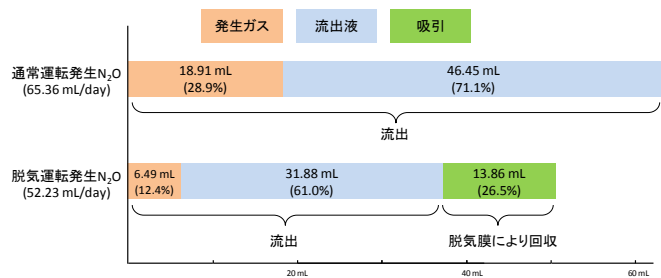


図 4 流出亜酸化窒素の比較

4.まとめ

今回の実験では窒素除去性能については向上が見られなかったが、菌体保持性能には向上が見られた。また、温室効果ガスである亜酸化窒素の流出抑制が確認できた。しかし今回の運転条件および膜量では発生ガスの回収率は約 48% と全量回収は達成できなかった。回収率は膜面積を大きくすることで増大可能であり、それにより菌体保持性能や窒素除去性能の向上、また亜酸化窒素の回収率の更なる上昇が可能であると考えられる。

参考文献

- 1) Kartal et al.,(2007) Environmental Microbiology, 9(3),635-642.