

膜導入によるアナモックスプロセスの効率化

広島大学工学部工学研究科 学生会員 ○後藤由美子
 広島大学大学院工学研究科 正会員 栗田貴宣、金田一智規、尾崎則篤、大橋晶良

1. はじめに

アナモックス（嫌気性アンモニア酸化）は、嫌気条件下でアンモニウムと亜硝酸を同時に分解する微生物反応である。アナモックスプロセスは曝気及び有機物の添加を必要としないことから、現行の硝化脱窒法と比較しても効率的な窒素除去プロセスに成り得る。一方で、反応を担うアナモックス細菌の増殖速度は極めて遅く、アナモックスプロセスを適用するためには反応槽内に効率的にバイオマスを保持することが重要である。アナモックスプロセスのメリットの一つに高速窒素除去が可能であるという点があるが、基質の流入量によっては菌体が流出しやすいという問題がある。槽内からの菌体の流出を防ぐ方法の一つとして、固液分離膜の導入がある。固液分離膜の導入によって菌体と処理水を分離し、菌体の完全保持が可能であると考えられる。

先行研究においては、アナモックスリアクターに膜分離技術を導入したアナモックス membrane bioreactor (アナモックス MBR) についてファウリングに関する研究が行われ、アナモックス MBR の運転においてフラックスが 0.2~0.3 m/day のとき目詰まりを起こすことが明らかになっている⁽¹⁾。また、膜孔径 0.4 μm と 0.03 μm の膜を使用した比較実験の結果、膜孔径 0.03 μm の膜においてファウリングが進行しにくいことがわかっている。

そこで、本研究では膜の目詰まりが進行しないフラックス、かつ高窒素負荷でアナモックス MBR を運転して押し出し流れリアクターと比較を行い、リアクター当たり及び菌体当りの活性を指標としてリアクター立ち上げ時の膜導入の効果を評価した。

2. 実験概要

本実験では、図 1 に示すような 2 系列のリアクターを運転した。この 2 系列のリアクターは、固液分離膜を導入するか否かという点、膜を導入する系において膜面洗浄の目的でガス循環を行う点以外はほぼ同条件で運転を行った（以下、膜を導入した系を MBR 系、押し出し流れの系を Upflow 系とする）。

MBR 系において、膜はポリエチレン製の中空糸膜（三菱レイヨン社製）を使用した。膜孔径は 0.03 μm、膜モジュールの膜面積は 0.18 m² であった。膜透過フラックスは先行研究からファウリングが進行しにくい 0.05 m/day を採用した⁽¹⁾。膜透過フラックスからリアクターの流量は 9.0 L/day、HRT は 1.84 h と決定した。

Upflow 系においては、リアクター内の NO₂⁻イオンによる高濃度阻害の影響を考慮し、流量を 4.0 L/day から 10.0 L/day へと次第に増加させていくこととした。それに伴い、HRT は 3.71 h から 1.67 h へと短縮された。

本実験で使用するリアクターの有効容積は 690 mL、基質は表 1 に示すような人工無機培地を使用した。基質作成時、pH は 6.6-7.0 となるように調整を行った。リアクターの温度は 37℃ とした。植種源は、研究室内で別に稼働しているアナモックスリアクター内のグラニューク汚泥を用いた。このグラニューク汚泥を各リアクターに乾燥重量で 2.442 g ずつ植種して運転を開始した。水質の測定にはイオンクロマトグラフィーを使用した。リアクター通水前後の各態窒素濃度から窒素除去率および窒素除去速度を求めた。菌体の活性の評価には ¹⁵N をトレーサーとして用いたアナモックス比活性試験を用いた。また、膜を導入した系については、膜の透過性能を維持するために膜間差圧が 25 KPa を超えたときに MBR から膜を取り出し、次亜塩素酸ナトリウムで薬品洗浄を行うこととした。

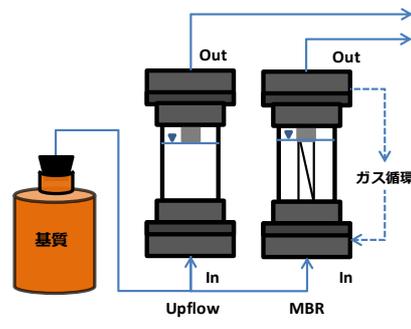


図 1 リアクター概略図

表 1 基質組成

(NH ₄) ₂ SO ₄	50~300	(mg-N/L)
NaNO ₂	50~300	(mg-N/L)
KHCO ₃	500	(mg/L)
KH ₂ PO ₄	27.2	(mg/L)
MgSO ₄ · 7H ₂ O	300	(mg/L)
CaCl ₂ · 2H ₂ O	180	(mg/L)
TE I	1	(mL/L)
EDTA · 2Na	5	(g/L)
FeSO ₄ · 7H ₂ O	9	(g/L)
TE II	1	(mL/L)
EDTA · 2Na	15	(g/L)
CuSO ₄ · 5H ₂ O	0.25	(g/L)
Na ₂ SeO ₄	0.11	(g/L)
NiCl ₂ · 6H ₂ O	0.19	(g/L)
CoCl ₂ · 6H ₂ O	0.24	(g/L)
NaMoO ₄ · 2H ₂ O	0.22	(g/L)
MnCl ₂ · 4H ₂ O	0.99	(g/L)
H ₃ BO ₃	0.014	(g/L)
ZnSO ₄ · 7H ₂ O	0.43	(g/L)

3. 結果と考察

図 2 に 2 系列のリアクターの窒素負荷及び窒素除去速度のグラフを示す。初めは 2 系列とも押し出し流れのリアクターとして運転を行い、両リアクターの水質が安定した運転 11 日目に MBR へ膜モジュールを取り付けた。MBR 系において、初期は流入基質の NH₄⁺ と NO₂⁻ の濃度を 200 mg-N/L とした。運転 20 日目に NO₂⁻ イオンの除去率が 100% に達したことを確認してから両イオン濃度を 300 mg-N/L に上げて運転を続けたところ、負荷を上げた後も安定したアナモックス反応がみられた。運転 30 日目頃、ポンプエラーにより一時的に窒素除去速度が大幅な低下を見せたが数日で回復した。運転 46 日目に膜間差圧が 28 kPa に達し、初めて膜の洗浄を実施したが、それから膜の洗浄頻度は急激に上がった。リアクターから膜を取り出す

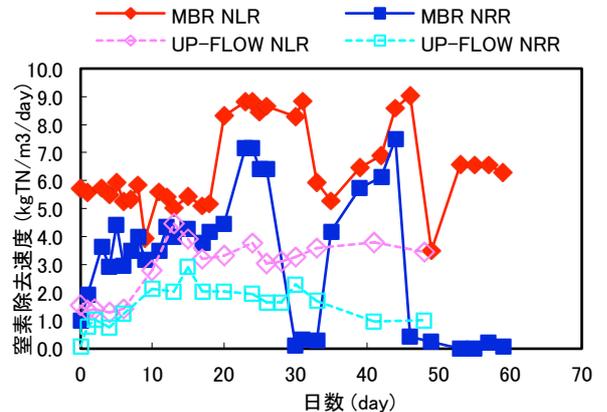


図 2 窒素除去性能

際に嫌気性のアナモックス細菌を空気に曝してしまったことが原因で窒素除去性能は一気に低下し、10 日ほど運転を続けた後も回復はみられなかった。一方、Upflow 系では、運転開始から 15 日目までは徐々に性能が向上していたが、それ以降一定値を維持した後に低下していった。

図 3 にリアクターからの累積菌体流出量のグラフを示す。なお、MBR 系 46~59 日目における増加は、膜の洗浄による菌体の損失量であり、この損失を除けば菌体の完全保持が達成されたことがわかる。一方、Upflow 系では常に一定量の菌体流出があり、MBR 系と Upflow 系の比較から膜の導入による効果があったことを示した。初期 SS、運転終了時の SS および累積菌体流出量を用いて増殖速度を計算したところ、MBR 系および Upflow 系でそれぞれ 21.7 日および 13.0 日であった。MBR 系においては、菌体とともに副産物も保持してしまうため増殖速度が遅かったことが示唆された。

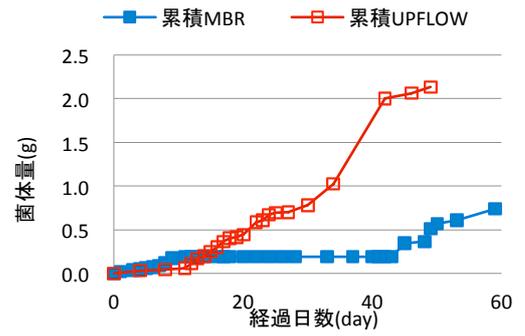


図 3 累積菌体流出量

図 4 に膜間差圧のグラフを示す。なお、グラフ中の赤い点において膜の洗浄を実施した。運転開始から 40 日目頃までは 0~3 kPa の間を推移した。それから徐々に差圧の上昇が見られ、上で記した通り運転 46 日目に差圧が 28 kPa に達したために次亜塩素酸ナトリウムを用いて浸漬洗浄を行った。しかしながら、その 3 日後には差圧が 60 kPa に達し、以降 1 日 1 回の頻度で洗浄を行わなくてはならなくなった。洗浄方法を改めて検討し直した結果、運転 40~50 日目に膜の洗浄頻度が急激に増加したのは薬品洗浄後のすすぎが不十分であったためであるとわかった。浸漬洗浄後に Milli-Q を通水して置換を行うことで洗浄頻度の増加を解消することができた。

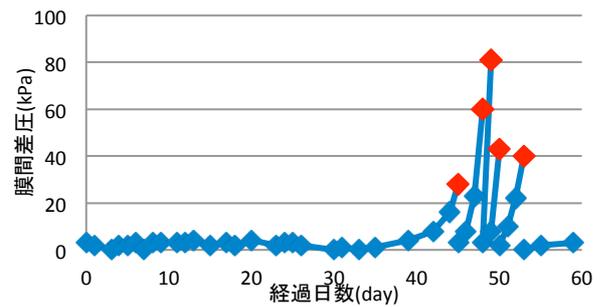
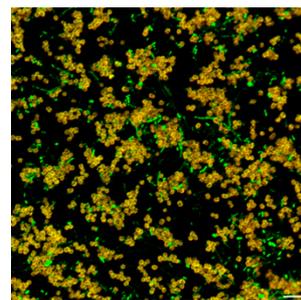


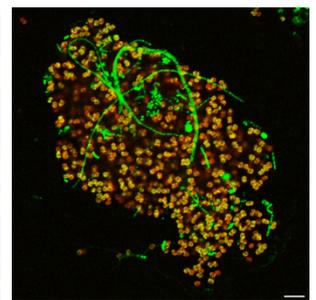
図 4 膜間差圧の推移

リアクター運転終了時に菌体をサンプリングし、FISH 法を用いた菌相解析を行った。MBR 系および Upflow 系の FISH 写真を図 5、図 6 にそれぞれ示し、写真の下に Image-J ソフトを用いて算出したアナモックス細菌の構成比を示す。2 枚の FISH 写真から、MBR 系は細菌が分散状に存在しているのに対し、Upflow 系では菌体が凝集化していることを確認した。MBR 系においては、膜面洗浄の目的でアナモックス反応によって生成される N₂ ガスをリアクター槽内で循環させており、菌体が次第に細かく分散状になっていったと考えられる。また、MBR 系の菌体の構成比をみると全細菌に対するアナモックス細菌の割合が大きいことから、MBR 系の方が処理を効率的に行えたと考えられる。



(76.3 ± 7.9%)

図 5 MBR 槽内菌体



(59.1 ± 12.4%)

図 6 Upflow 槽内菌体

図 7 には、16S rRNA を用いた系統解析から得た系統樹を示す。この系統樹から、MBR 系槽内には *Candidate division WS6* などの未培養微生物が多く検出されたことがわかる。また、Upflow 系槽内には *Proteobacteria* および *Bacteroidetes* が多く検出されたことから、MBR 系と Upflow 系では菌相が変化することが示唆された。

4. まとめ

MBR 系では、リアクター内の窒素ガス循環により槽内が完全混合状態に保たれ、菌体が分散状に存在したことから基質との接触効率が大きかった。したがって運転初期から高窒素除去率を達成し、負荷を上げて運転を続けてもすぐに対応できる能力があったと考えられる。一方の Upflow 系では、亜硝酸阻害が出ないように運転を行うと、性能向上には時間を要することが示された。以上の結果から、リアクターを高負荷で運転する場合には、短期間で立ち上がり、かつ窒素除去効率の高い MBR 系が適していることが示された。

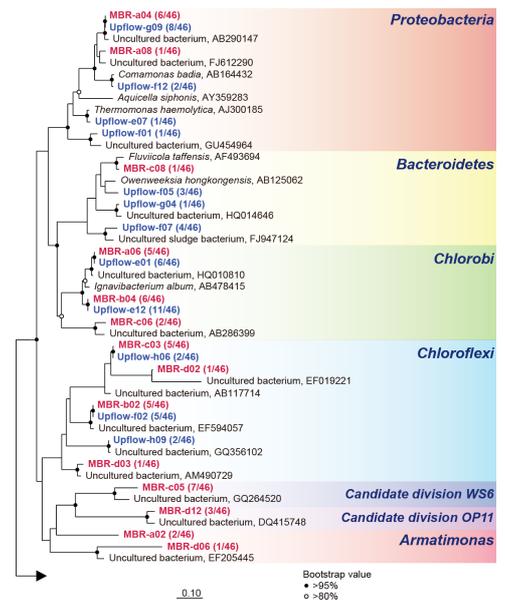


図 7 系統樹

参考文献

(1)松永ら, 第 46 回 日本水環境学会 講演集, P.146.