

ヒドロキシルアミンを用いた低濃度アンモニア含有排水を対象とした亜硝酸型硝化

広島大学 学生会員 ○渡邊 涼介

広島大学 正会員 金田一智規, 尾崎則篤, 大橋晶良

1. はじめに

亜硝酸型硝化とは、アナモックスプロセスを排水処理として適用する際に前段処理として必要な技術である。この技術を実現するためには、アンモニア酸化細菌(AOB)と亜硝酸酸化細菌(NO₂-B)の生理学的特性の差を利用し、pH、温度、溶存酸素濃度(DO)、遊離アンモニア等の制御要因を組み合わせ NOB の活性・増殖を抑制させる必要がある。現在、高濃度アンモニア含有排水(300 mg-N/L 以上)では遊離アンモニアによる亜硝酸型硝化の誘導が効果的であるが、低濃度アンモニア含有排水(50 mg-N/L 程度)では遊離アンモニア濃度が低くなり、他の制御要因を必要とする。一方、既往の研究ではアンモニア酸化反応の中間体であるヒドロキシルアミン(NH₂OH)を硝化細菌の生物膜へ添加することで NOB の活性・増殖を抑制し⁽¹⁾、アンモニア酸化速度が 1.4-13 倍増加した⁽²⁾と報告されている。これらの報告から NH₂OH を制御要因とすることで、低濃度のアンモニア含有排水においても NOB の活性・増殖を抑制でき、アンモニア酸化速度が向上し処理効率が上がると考えられる。そこで、本研究では低濃度のアンモニア含有排水を対象に NH₂OH 添加による長期安定的な亜硝酸型硝化の達成を目的とした。

2. 実験方法

2-1.リアクター運転

本実験では、NH₂OH を添加しない系(Run1)、添加する(Run2, phase1)の 2 系列の硝化 membrane bioreactor (MBR)の運転を行った(図 1)。その後は、NH₂OH の間欠添加、濃度変化を行い NH₂OH の効果の即効性、持続性等を検討し NH₂OH 添加の最適化を図った(Run2, phase2)。膜はポリエチレン製の中空糸膜(三菱レイヨン社製)、膜孔径 0.03 μm、膜面積 0.18 m²のものを使用した。膜透過フラックスはファウリングが進行しにくい 0.05 m/day を採用した。リアクターの有効体積は 640 mL であり、水理的滞留時間(HRT)は 1.69 h であった。リアクター運転温度は 25°C とした。模擬排水には人工無期培地を使用し、流入アンモニア濃度は 20 mg-N/L とし流量 8.0 L/day で供給した。基質作成時、窒素ページを行うとともに pH は硫酸により 7.5 前後に調整した。Run2 では、NH₂OH を槽内濃度 3.5 mg-N/L とし 1 L/day で連続供給した。Run1 では、対照系として NH₂OH のかわりに水道水を 1 L/day で連続供給した。植種源は、東広島市内の下水処理場の活性汚泥(1000 mg-SS/L)を用いた。槽内へは、空気を 800 mL/min で供給して溶存酸素濃度を 0.5 mg-O₂/L 以上に維持し、気泡による膜表面の物理洗浄を行うとともに槽内の混合状態を保った。

2-2.分析方法

各態窒素濃度の測定にはイオンクロマトグラフィーを用いた。サンプルは MBR 流入前の模擬排水および流出後の処理水を採取し、各態窒素濃度から流入窒素負荷、亜硝酸生成速度、硝酸生成速度を算出した。NH₂OH の測定には、Frear の測定方法⁽³⁾を参考に、吸光高度計 DR2800(HACK 社)で測定を行った。

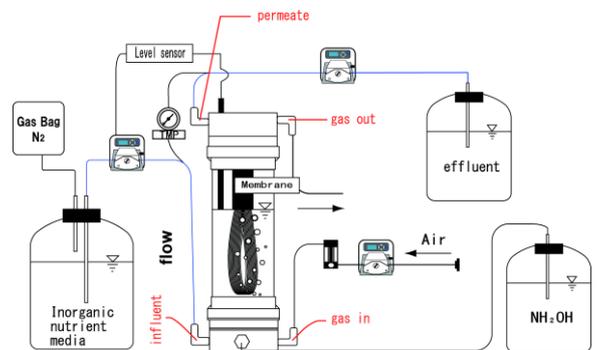


図 1 リアクター概要図

キーワード (亜硝酸型硝化, アンモニア酸化細菌, 亜硝酸酸化細菌, ヒドロキシルアミン)

連絡先 〒739-8527 東広島市鏡山 1-4-1 広島大学大学院工学研究科 社会基盤環境工学専攻
環境保全工学研究室 TEL : 082-424-5718

3. 実験結果と考察

Run1 では、運転 11 日目に硝酸生成量が流入窒素負荷 0.28 g-N/L/day と等しくなり完全硝化は達成された。Run2 での硝化 MBR の流入窒素(アンモニア及び NH₂OH の合計)、亜硝酸・硝酸生成速度の経日変化を図 1、リアクター槽内の NH₂OH 濃度を図 2 に示す。運転 0 日目から NH₂OH(3.5 mg-N/L)の連続供給を行った。Run1 では 0 日目に 2.0 mg-N/L の硝酸が生成されたことに対し、Run2 では 0.5 mg-N/L の硝酸が生成された。NH₂OH 供給により NOB の活性・増殖は低下し亜硝酸酸化が抑制されたと考えられる。溶存酸素濃度は 0.6 gmO₂-L 以上であった。その後運転 23 日目まで硝酸の生成は確認されず、NOB の活性・増殖は完全に抑制できた。なお、運転 9 日目の亜硝酸生成速度の低下はリアクタートラブルによる AOB の活性低下によるものであるがリアクター運転を継続することで活性は直ぐに回復した。また、アンモニア酸化率は運転 16 日目に 100%となり、亜硝酸生成速度は流入窒素負荷と等しい 0.33 g-N/L/day に達し亜硝酸型硝化は 7 日間程度安定した状態を維持できた。リアクター運転期間を通して、亜硝酸型硝化を引き起こす要因となる遊離アンモニア濃度は 0.6 mg/L 以下であった。NOB を抑制する有効遊離アンモニア濃度は 0.8 mg/L 以上とされており⁽⁴⁾、本実験系での NOB の活性・増殖抑制は NH₂OH による効果であると言える。Run1, Run2 ともリアクター運転期間において流入、流出での窒素損失は確認されなかった。その後運転 24 日目に NH₂OH の連続供給を止め、NOB の活性・増殖が回復されるか経日変化を観察した。NH₂OH の連続供給を止め 7 日間程度亜硝酸酸化細菌の抑制効果が持続され硝酸は生成されなかったが、運転 33 日目に硝酸が生成され始めた。運転 34 日目に NH₂OH を供給することで亜硝酸化細菌の活性は低下し、硝酸生成量は低下、亜硝酸生成量は増加した。リアクター槽内の NH₂OH 濃度が 0.1 mg-N/L 以上で亜硝酸化細菌の活性は抑制され、0.5 mg-N/L 以上の場合亜硝酸酸化細菌の活性を完全に抑制された。

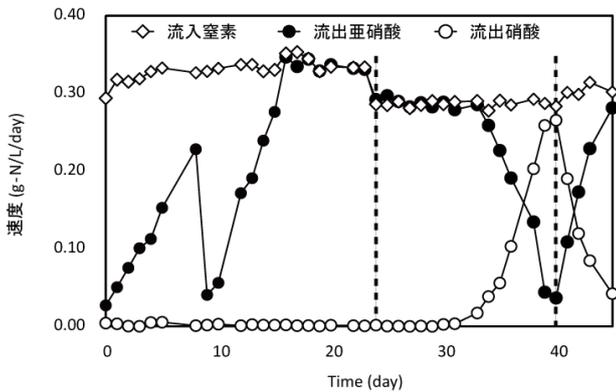


図 2 流入窒素負荷、亜硝酸・硝酸生成速度

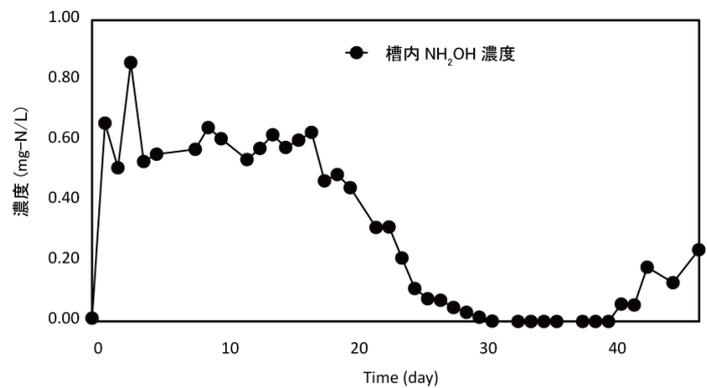


図 3 リアクター槽内 NH₂OH 濃度

4. まとめ

本研究では、低濃度アンモニア含有排水における亜硝酸型硝化の達成を目的とし、NOB の活性・増殖を抑制させる要因として NH₂OH を連続供給した結果、23 日間 NOB の活性・増殖抑制、亜硝酸蓄積を確認でき、流入窒素負荷 0.33 g-N/L/day での亜硝酸型硝化を達成した。リアクター槽内の NH₂OH 濃度 0.1 mg-N/L 以上で亜硝酸酸化細菌は抑制された。

参考文献

- (1) Kindaichi *et al.*, (2004) *Water Science and Technology*, 49, 61-68.
- (2) Harper *et al.*, (2008) *Biotechnology and Bioengineering*, 102, 714-724.
- (3) Frear *et al.*, (1955) *Analytical Chemistry*, 27, 1664-1665.
- (4) Anthonisen *et al.*, (1976) *Water Pollution Control Federation*, 48, 835-852.