

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 26 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26820219

研究課題名(和文) 無曝気廃水処理システムの窒素除去メカニズム解明と高効率制御方法の構築

研究課題名(英文) Development of the high performance control techniques and elucidation of the nitrogen removal mechanism of a novel wastewater treatment system without external aeration

研究代表者

高橋 優信 (Takahashi, Masanobu)

東北大学・未来科学技術共同研究センター・助教

研究者番号：30573688

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、人工下水を処理するDHSリアクターの担体に対して、5-20℃の温度条件で酸素利用速度(OUR)試験を実施した。その結果、OUR値は試験温度の低下に伴い低値を示すが、有機物酸化および硝化活性は失われず保持し、低温域においてDHSリアクターを適用するためには、常温域計画時の4倍程度の有効容積が必要であった。また、有機物除去と部分硝化を可能とする制御方法を検討するために、高窒素濃度のメタン発酵脱水液をいくつかの流入方式でDHSリアクターに供給した。その結果、DHSリアクターは、pH低下を防ぎながらステップ供給することで、アンモニア態窒素の90%程度を亜硝酸態窒素に部分硝化し蓄積できた。

研究成果の概要(英文)：The first experiment conducted OUR test in temperature condition of 5-20 degrees Celsius for the carrier of a DHS reactor treating artificial sewage. The OUR became the low value with a temperature fall, but the microbial activity for the organic matter oxidation and the nitrification reaction functioned under the low temperature condition of 5 degrees Celsius. And, for safety design of the design of the normal temperature condition, effective volume of around 4 times of the design of the normal temperature condition was necessary. The next experiment fed an actual methane fermentation digestion liquid of the high nitrogen concentration to a DHS reactor by several feeding methods to examine the control techniques which enabled the organic matter removal and partial nitrification. As a result, around 90% of ammonia nitrogen was able to accumulate in treated water as nitrite nitrogen when flow into the DHS by step-feeding while preventing the pH fall.

研究分野：環境保全工学

キーワード：DHSリアクター アンモニア硝化

### 1. 研究開始当初の背景

DHS (Downflow Hanging Sponge : 下降流懸垂型スポンジ) 法における窒素除去のためには、硝化・脱窒に寄与する微生物を十分保持できる長い汚泥滞留時間 SRT と硝化反応を阻害しない低い BOD 汚泥負荷、そして脱窒については担体内部での有機物 / 窒素バランスが 3 程度を有した通性嫌気環境が求められる。これらの条件を充たし、硝化・脱窒をワンパスで実現できるリアクターの特徴としては、保持微生物濃度が高濃度であることが必要となる。DHS は、微生物濃度を 2 万~4 万 mgSS/L と極めて高く保つことが可能であり (活性汚泥法の汚泥濃度の 15~25 倍、BOD 汚泥負荷は 0.05 ~ 0.025 kgBOD/kgSS/日と超低レベル)、窒素除去のための反応槽としては、有機物および窒素の流入負荷およびそれぞれのバランスと水温との関係性の把握が求められる。さらに本課題では、DHS 担体内部の物理化学的・生物学的反応を解析し、マイクロレベルでの微生物生態の空間的構造・生育環境を明らかにすることができ、DHS 法において初めて窒素除去に着目した高効率制御モデルを構築できる。蓄積した成果を活かしながら本課題を遂行することで、今日、排出規制が求められる窒素態の削減を早期に図ることと、有機物除去のみならず高度処理に適した省エネ次世代型の水処理技術を創成できる。

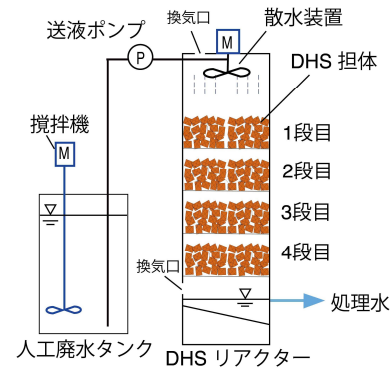
### 2. 研究の目的

本研究の目的は、無曝気・省エネルギー型の好気性廃水処理技術である DHS リアクター技術を基とし、窒素に着目した栄養塩除去の制御技術を高度化するために基礎データを収集・解析し、運転因子を最適化することにより、次世代型の高効率廃水処理技術を創成することにある。加えて、本 DHS リアクターの適用拡大のために、廃水種に応じたパッケージとしての DHS リアクターシステムを開発し、多用に展開できる提案モデルを構築することにある。

### 3. 研究の方法

#### (1) 人工下水処理 DHS リアクター

図 1 は、DHS リアクターの概要図を示す。DHS リアクターは、円筒型プラスチック製カラム (直径 0.24m、高さ 1.5m、空塔容積 0.068 m<sup>3</sup>) で、これに一次沈殿通過後の下水を想定した人工廃水 (COD: 100 mg/L、NH<sub>4</sub>-N: 50 mg/L、ミネラル類) を DHS リアクター上部にポンプアップし、散水装置により均一に散水した。DHS リアクターに充填した担体は、直径 32 mm、高さ 32 mm の円柱形ポリウレタンの外側にポリエチレン製ネットリングを被覆した G3.3 仕様を用いた。



HRT : 2 hr
流量 : 319.3 L/day
リアクター高さ : 1.50 m
スポンジ個数 : 1034個
有効容積 (スポンジ体積基準) : 26.6 L
接種汚泥 : 既存下水処理場の活性汚泥

図 1 DHS リアクターの概要図

#### (2) DHS 担体の OUR

一般的に用いられている OUR 試験は、適当な濃度に調整した活性汚泥と基質を容器に密閉し、その汚泥混合液の溶存酸素濃度変化をモニタリングすることで求めることができる。しかしながら、DHS は気相中に配置されたスポンジ担体付着汚泥が周囲の気相から液相に移動した酸素を利用して流入廃水中の有機物・窒素態を酸化分解することを原理としているため、本研究では DHS の OUR をより in situ に近い条件で測定・評価するために、DHS リアクターから取り出した担体そのまま密閉容器内に封入し、容器気相の酸素濃度変化をモニタリングする、という方法をとった。図 2 は装置の概要図、表 1 は基質組成を示す。

DHS から採取された担体は、汚泥と共に持ち込みの基質を含有する。持ち込み基質の濃度は、DHS 槽内での空間分布により、それぞれの担体で異なる。OUR 測定にあたり測定条件を整えるために持ち込み基質を予め除去することが求められるが、本実験では、DHS 流下高さ 500 mm (図 1 2 段目)、1300 mm (図 1 4 段目) から微生物汚泥が捕捉された担体採取し、表 1 から炭素源を除いた有機物基質を含まない溶液を一定流量で一定時間 (HRT 以上) 通水した。そして持ち込み基質を除去したサンプルを、酢酸ナトリウムで 150 mg-COD/L に調整した人工基質 60mL (ATU 2mg/L 添加) とともに直ちに密閉容器に封入した。密閉容器は、容器天板部から酸素濃度センサーおよび散水管を挿入し、容器底部にはドレン管設けた。担体は、容器底部から 20mm の高さに設置された金網製の床上に静置し、担体下面も気相に暴露されるようにした。容器底部に溜められた人工基質はチューブポンプにより循環滴下することで DHS リアクターでの散水を表現し、その間の酸素濃度変化を酸素濃度計で計測した。OUR 試験は、酢酸ナトリウ

ムで基質とした有機物資化 OUR の他に、硝化 OUR (基質: 塩化アンモニウムで 50 mg-N/L、有機物無し) および内生呼吸 OUR (基質: ミネラル成分のみ) についても行った。

本試験では、計測した容器中の気相の酸素濃度と容器の有効気相容積 485mL から酸素量を求め、酸素濃度変化測定直後のスポンジ担体から汚泥を搾取してその VSS を定量し、単位 VSS あたりの OUR を算出した。測定は、恒温器内 (暗所) で、5、15、25、35 の条件について行った。

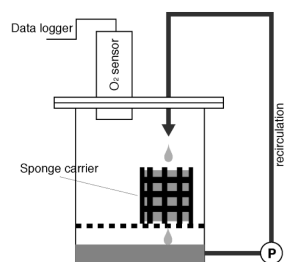


図2 OUR 測定装置の概要図

表1 有機物資化 OUR 測定に用いた人工下水組成

CH <sub>3</sub> COO·Na	150 mg/L (ThCOD)
K <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub>	21.75 mg/L
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	8.5 mg/L
Na <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub> ·12H <sub>2</sub> O	44.6 mg/L
MgSO <sub>4</sub> ·7H <sub>2</sub> O	22.5 mg/L
CaCl <sub>2</sub>	27.5 mg/L
FeCl <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	0.25 mg/L
pH	7.2

(3) DHS リアクターによるメタン発酵脱離液の有機物除去および部分硝化

本研究では、高濃度窒素を含有する廃水としてメタン発酵脱液を用い、部分硝化の達成を目的として 515 日間にわたり連続処理運転を行った。実験期間中、これまで DHS リアクターに対しては前例の少ない廃水のステップ流入を適用し、廃水の供給方法の変更による処理性能の応答を連続処理実験、流下方向の水質プロファイル、微生物群集構造から評価した。運転終了時に保持汚泥濃度と保持汚泥の脱窒活性を調査した。

実験に用いた DHS リアクターは、104 個の三角柱スポンジ (断面積 5 cm<sup>2</sup>、幅 3 cm) を PVC シートに貼付けた形状とした。ろ床は 4 ユニット (1 ユニットあたりスポンジ 26 個、高さ 1.1 m) に分割した。リアクターの全高は 4.4 m、スポンジ容積は 1.56 L とした (図 3)。

供給廃水は生ゴミをメタン発酵処理した後の脱液とした。廃水の pH は 8.5 程度であった。廃水の供給方法は通常のワンポイント流入 (~133 日) 2 段階ステップ流入 (134 ~324 日) および 4 段階ステップ流入 (325 日 ~) とし、流入水量はスタートアップ期間を除き 4.7 L/day とした。ステップ流入では、図 3 に示すように、2 箇所または 4 箇所へ同

量ずつ供給した。連続処理実験は 25~30 に維持した室内で約 500 日間継続した。

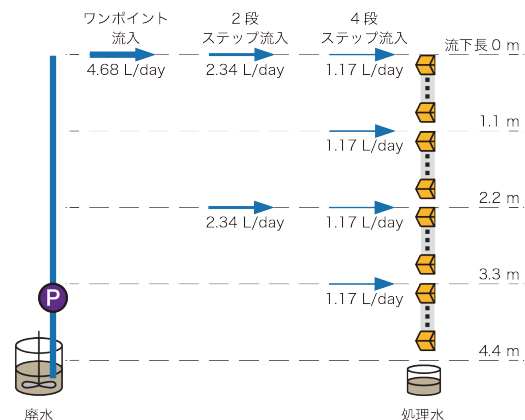


図3 実験装置および廃水の流入方法

#### 4. 研究成果

##### (1) DHS リアクターの連続処理性能

連続運転中の水温は 15~20 の常温域で変動した。微生物汚泥が担体に捕捉された後の各水質の除去率は、全 COD<sub>Cr</sub> 除去率 73%、全 BOD 除去率 69%であった。硝化反応は、有機物除去と同時に進行しており、アンモニア性窒素除去率は 42%であった。連続運転 1 年後の平均保持汚泥濃度は、VSS 基準で 6~9 g-VSS/L-sponge であり、実下水を処理する DHS リアクターと比べ 1/5 程度の保持汚泥濃度であった。

図 4 は、連続運転 2 ヶ月後の DHS 基軸方向の水質プロファイルを示す。上部で有機物酸化反応・下部で硝化反応が顕著であるといった、実下水を処理する DHS と同等の挙動がみられた。その時の保持汚泥濃度は 4~8 g-VSS/L-sponge であったが、微生物汚泥 VSS が低くともその程度あれば処理が十分可能であることが分かった。その VSS 濃度の低い原因としては、廃水中に SS 成分を含有していないことに寄るが、実下水を扱う場合は、その下水由来 SS の担体蓄積によって微生物汚泥と流入水との接触が妨げられないよう前段で汚泥管理することが重要特に重要である。一方で、DHS そのものの汚泥減容能力・減容メカニズム解明についても DHS を制御する上で重要なファクターであり、今後の課題となった。

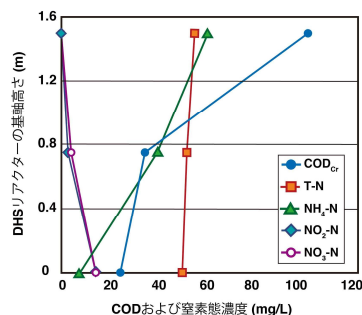


図4 DHS 基軸方向の水質プロファイル (運転開始 2 ヶ月後)

## (2) DHS 担体の OUR

図5は、試験温度ごとのOURを示す。2段目(流下高さ500mm)の担体の温度依存性について着目すると、有機物資化OURは20から15の範囲で大きく減少し、OURは1/3程度となった。人工廃水を処理するDHSリアクターの連続運転温度は15~20の範囲であったが、処理性能がばらついてきた理由もそれと考えられる。試験温度5では20の際の1/4程度まで低下した。硝化OURについては、15から10の範囲で大きく減少し、試験温度5では20の際の1/10程度まで低下した。内生呼吸OURにおいては、試験温度5で失活したためこの条件での汚泥削減は期待できない。

4段目(流下高さ1,300mm)の担体のOURについては、2段目OURと比較して20から15の範囲で大きく低下した。DHSリアクターの上部と下部とにおいては存在する微生物をはじめとする生物群が同一ではないことは既存の知見として知られており、前述、水質プロファイル測定でもそのような挙動を確認している。試験温度5、10については2段目、4段目で殆ど変化がなかった。

以上により、試験温度の低下に伴いOURは低い値を示すものの、有機物資化・硝化に対する微生物活性は失われず機能するため、低温域での処理にDHSリアクターを適用するためには、同じ汚泥保持量ならば4倍程度の有効容積が必要である。

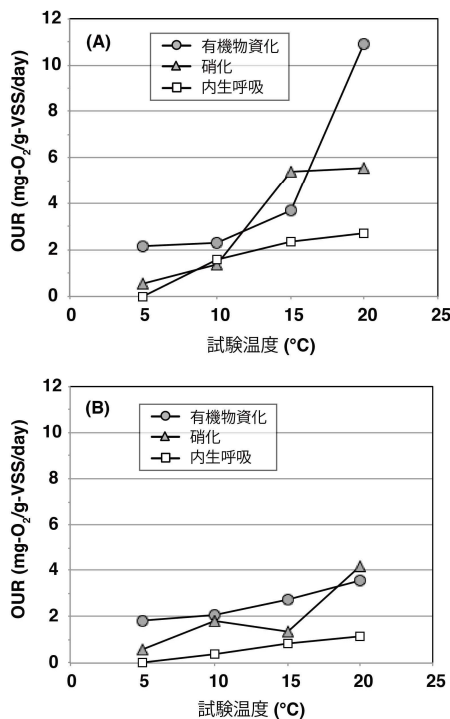


図5 DHS担体OURの温度依存性  
(A) 流下高さ500mmの担体、(B) 流下高さ1,300mmの担体)

## (3) 廃水のステップ流入式DHSリアクターによるメタン発酵脱離液の有機物除去および部分硝化

廃水の全窒素は $538 \pm 61$  mgN/Lであり、約80%はアンモニア態窒素であった。また、亜硝酸態窒素と硝酸態窒素は、ほぼ検出されなかった。窒素負荷を計算すると $1.7 \pm 0.2$  kgN m<sup>-3</sup>sponge d<sup>-1</sup>となった。

ワンポイント流入時および2段ステップ流入時の処理水は、約30日間にわたって亜硝酸態窒素の蓄積が見られたが、時間経過に伴い亜硝酸態窒素にかわり硝酸態窒素が蓄積した。一方で4段ステップ流入時は、150日間以上にわたって継続的に亜硝酸態窒素が蓄積した。特に、430日目以降、処理水の亜硝酸態窒素は60~200 mgN/Lと変動したが、生成した亜硝酸・硝酸態窒素のうち、亜硝酸態窒素が占める割合は $90 \pm 3\%$ で安定しており、亜硝酸酸化が抑制されていた。ただし、4段ステップ流入時は、ワンポイント流入時より処理水の溶解性BODが悪化しており、ステップ流入の適用は有機物除去に対して逆効果であった。

図6に118日目(ワンポイント流入時)、252日目(2段ステップ流入適用から119日間経過)および450日目(4段ステップ流入適用から125日間経過)における水質比較を示す。118日目および251日目では流下長3.3~4.4 mにかけてpHが6.0程度まで低下し、硝酸態窒素のみが増加していた。一方で、450日目では流下水のpHが7.5以上で推移しており、pHの低下を抑制することが亜硝酸態窒素の蓄積に寄与していることが明らかとなった。

また、運転終了時における保持汚泥の脱窒活性を評価したところ、1.1~2.2 mおよび2.2~3.3 mの保持汚泥において50 mg-N/g-VSS/day程度となり、0~1.1 mにおける保持汚泥の約2倍となった。

連続処理実験では廃水中の有機物が少なかった(溶解性BOD/全窒素比: $0.17 \pm 0.09$ )のため、2段および4段ステップ流入を適用しても、ワンポイント流入時と比較して明確な脱窒率の向上は確認できなかった。しかし、十分な有機物が供給された活性試験では、連続処理実験において廃水とアンモニア酸化が行われた流下水の混合があった1.1~4.4 mの保持汚泥の脱窒活性が、混合がなかった0~1.1 mの保持汚泥よりも高い値であったことから、ステップ流入によって脱窒を促進できることを示した。既報のDHSリアクターでは処理水循環によって脱窒を促進できることを明らかにしているが、本DHSリアクターではステップ流入によって部分硝化と脱窒の促進を同時に実現できる可能性を示した。

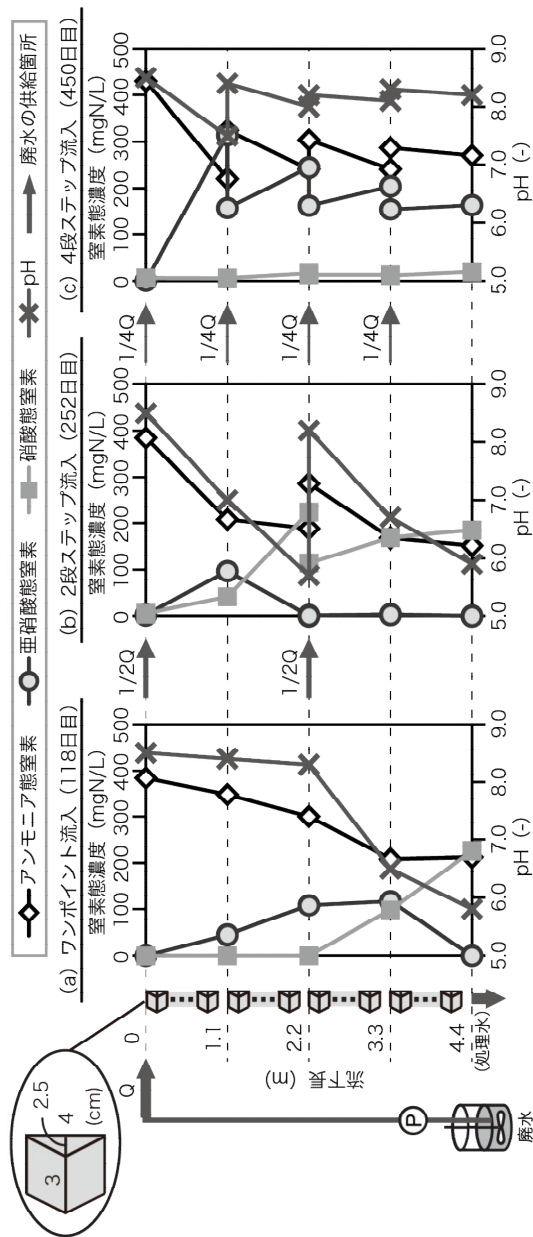


図6 廃水の供給方法の違いによる水質比較

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計1件)

大久保努、高橋優信、久保田健吾、原田秀樹、時田政輝、上村繁樹、前野一夫、途上国のための新規下水処理装置“DHS”におけるスポンジ担体の水の流れと酸素の取込特性の評価、実験力学、査読有、Vol.15(1)、2015年、30-37

DOI: <http://doi.org/10.11395/jjsem.15.30>

〔学会発表〕(計3件)

段下剛志、DAO THI NGOC HOANG、幡本将史、

牧慎也、山口隆司、高橋優信、廃水のステップ流入式 DHS リアクターによるメタン発酵脱離液の有機物除去および部分硝化、第50回水環境学会年会、2016年3月16日、アステイトくしま(徳島)

段下剛志、DAO THI NGOC HOANG、幡本将史、山口隆司、高橋優信、廃水のステップ流入が DHS リアクターを用いた部分硝化に与える効果、土木学会東北支部平成27年度技術研究発表会、2016年3月5日、岩手大学(岩手)

下河辺友貴、高橋優信、原田秀樹、人工下水処理 DHS リアクターの低温時における処理特性評価、土木学会東北支部平成26年度技術研究発表会、2015年3月7日、東北学院大学(宮城)

〔図書〕(計0件)  
なし

〔産業財産権〕  
出願状況(計0件)  
なし

取得状況(計0件)  
なし

〔その他〕  
なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

高橋 優信 (TAKAHASHI, Masanobu)  
東北大学・未来科学技術開発共同研究センター・助教  
研究者番号: 30573688

(2)研究分担者  
なし

(3)連携研究者  
なし