

平成 21 年 5 月 7 日現在

研究種目：基盤研究（B）  
 研究期間：2005～2008  
 課題番号：17310053  
 研究課題名（和文） 微生物生態系を制御した  
 高性能窒素・リン同時除去型排水処理システムの開発  
 研究課題名（英文） Development of High-Performance Wastewater Treatment System  
 Capable of Simultaneous Nitrogen and Phosphorus Removal by  
 Controlling Microbial Ecology  
 研究代表者  
 常田 聡（TSUNEDA, Satoshi）  
 早稲田大学・理工学術院・教授  
 研究者番号：30281645

## 研究成果の概要：

本研究では、様々な産業から排出される排水中の窒素・リンを高効率に除去する高度処理システムの開発に取り組んだ。特に、小規模事業場へも導入可能な単一槽型栄養塩除去プロセスである嫌気/好気/無酸素（AOA）プロセスの開発を行い、長期間にわたる安定した除去性能維持の実現をめざした。また、AOA プロセスとメンブレンエアレーション法を組み合わせることにより、槽内の微生物生態系を制御し、外部から基質を添加せずに窒素・リン同時除去に成功した。

## 交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2005年度	9,500,000	0	9,500,000
2006年度	2,600,000	0	2,600,000
2007年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2008年度	1,700,000	510,000	2,210,000
年度			
総計	15,600,000	1,050,000	16,650,000

## 研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境技術・環境材料

キーワード：生物学的排水処理、高度処理、栄養塩除去、嫌気/好気/無酸素法、硝化細菌、脱窒性リン蓄積細菌、メンブレンエアレーション

## 1. 研究開始当初の背景

世界各地の湖沼・内湾等の閉鎖性水域における水質汚濁の主な原因物質は、様々な産業活動から排出される栄養塩（窒素およびリン）である。この問題解決には、様々な産業から排出される排水中の窒素・リンを高効率に除去する高度処理システムの普及が必要不可欠である。窒素・リンを排水から除去する場合、一般にコスト・安全性の面から微生物を用いた生物学的手法が有効である。しかしながら、高度処理技術を行うためには複数

の反応槽と沈降槽を必要とするため、大規模な事業場を除いては導入が困難であるのが現状である。これに対して、単一槽型栄養塩除去プロセスが構築できれば、装置のコンパクト化、イニシャルおよびランニングコストの低減が実現できるため、様々な産業分野からの環境負荷低減につながり、その意義は非常に大きい。一方、実作業現場においては排水組成に対する除去性能を前もって予測できることも強く望まれている。シミュレーションモデルの確立は、運転性能の制御に貢献

することから工学的意義は極めて大きい。

## 2. 研究の目的

本研究では、小規模事業場へも導入可能な単一槽型栄養塩除去プロセスである嫌気/好気/無酸素(anaerobic/aerobic/anoxic: AOA)プロセスの開発を行い、長期間にわたる安定した除去性能維持の実現をめざした。特に、外部から添加する基質の種類や添加条件の違いが本プロセスの窒素・リン除去率に及ぼす影響を調べ、適切な基質添加条件を探索した。また、活性汚泥モデルを拡張した AOA プロセスモデルを構築し、AOA プロセスの窒素・リン除去性能の予測に取り組んだ。さらに、単一槽内で微生物生態系を制御して棲み分けを行わせることで、外部から基質を添加せずに窒素・リン同時除去を可能にする新しい処理方法の開発にも取り組んだ。

## 3. 研究の方法

### (1) AOAプロセスの安定化条件の検討

嫌気/好気/無酸素(AOA)プロセスは、リン蓄積機能と脱窒機能を併せ持つ脱窒性リン蓄積細菌(DNPAO)を利用している。好気条件下での硝化によって生成した硝酸が、続く無酸素条件下でDNPAOによるリン取り込みのための電子受容体として利用されることにより、単一槽での窒素・リン同時除去が達成される。本研究では、DNPAOを高度に優占化させるため、好気条件初期に少量の炭素源添加を行うことで、好気条件下でのリン取り込みを一時的に阻害し、無酸素条件下でのDNPAOによる窒素・リン同時除去を効果的に行える制御手法を提案し、実験を行った。

半回分式反応槽(有効容積 2L)を用いて、嫌気/好気/無酸素条件下で1日3サイクル(1サイクル8時間、原水注入15分、汚泥沈降工程65分、処理水引抜き工程25分)の運転を行った。2系のRunに分け、それぞれの系における嫌気/好気/無酸素条件の運転時間および基質添加は、3種のTypeとした。

Run 1: 炭素源の添加時期を変更した系

Run 2: 好気条件初期時の基質添加を変更した系

Type 1: 嫌気90分、好気120分、無酸素165分とし、無酸素条件初期時にリアクターあたり12.5 mg-C/Lの炭素源を添加

Type 2: 嫌気90分、好気90分、無酸素195分とし、好気条件初期時にリアクターあたり12.5 mg-C/Lの炭素源を添加

Type 3: 嫌気90分、好気90分、無酸素195分とし、好気条件初期時にリアクターあたり2.5 mg-N/Lの亜硝酸を添加

流入水はTOC: 108 mg-C/L,  $\text{NH}_4^+\text{-N}$ : 20 mg-N/L,  $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ : 15 mg-P/Lを含み、pHは7.0-7.5を保ち、水理的滞留時間(HRT)は16時間、汚泥滞留時間(SRT)は20日に制御した。

各系の水質の経日変化を検証し、汚泥中のリン蓄積細菌(PAO)、グリコーゲン蓄積細菌(GAO)の優占率をFISH(Fluorescence in situ Hybridization)法により、またDNPAO優占率をリン取込み活性比により算出した。

### (2) AOAプロセスモデルの構築

AOAプロセスの現場導入を検討した場合、本プロセスに採用している炭素源添加による好気条件下でのリン取込み阻害を定量的に予測可能にすることが望ましい。そこで我々は、プログラムソフトAQUASIMを利用し、炭素源添加による好気条件下でのリン取込み阻害効果に焦点を当て、阻害モデルの構築を行った。リン取り込み阻害関数を定義するにあたり、AOAプロセスの嫌気条件終了時の汚泥をサンプリングし、それに炭素源濃度をCOD換算で0 mg-C/L(炭素源添加なし)、6.7 mg-C/L、13.4 mg-C/L、26.7 mg-C/L、40 mg-C/L、53.4 mg-C/L、106.8 mg-C/Lとなるように酢酸ナトリウムを添加し、各所定濃度における、添加開始時から15分間までに行われたリン放出ならびにリン取込み量からリン取込み阻害速度を決定した。また、汚泥中のアンモニア酸化細菌(AOB)、亜硝酸酸化細菌(NO<sub>2</sub><sup>-</sup>), PAOの存在比率をFISH法によるダイレクトカウントで算出した。

本研究で使用したモデルは、これまで様々なリン・窒素除去プロセスのシミュレーションに適用されているASM2dおよびASM3をもとにしている。我々は今回初めて、本モデルを単一槽で有機物・窒素・リンの除去が可能なAOAプロセスへ適用することを検討した。従来のモデルとの相違点として、有機物により好気条件下でのポリリン酸の貯蔵およびPAOの増殖が阻害されるという現象を新たに考慮した。リアクター体積、HRT、SRTは実リアクターと同一条件とした。また、有機物による好気条件下でのポリリン酸の貯蔵およびPAOの増殖阻害に係るパラメーター、速度式、成分、プロセス、量論比はRiegerらの数値を採用した。

### (3) AOAプロセスへのメンブレンエアレーション法の導入

外部からの炭素源の添加はコストの増大や操作の煩雑さなどの問題があるため、実用化を視野に入れた場合に障害となる。そこで、単一槽内で微生物生態系を制御して棲み分けを行わせることで、外部から基質を添加せずに窒素・リン同時除去を可能にする新しい処理方法の開発に取り組んだ。具体的には、ガス透過性メンブレン上にバイオフィームを形成させたメンブレンエアレーションバイオフィームを半回分式リアクター(SBR)に導入させた単一槽型窒素・リン除去リアクターシステム、SBMBfRの開発を試みた。本研究

では、流入有機物・窒素濃度比(C/N 比)を変化させ SBMBfR と従来法の窒素・リン除去能を比較し、特に低 C/N 比排水への適用性を調べた。

SBMBfRの装置概略図およびコンセプトを図1に示す。リアクター内は空間的制御により、硝化細菌バイオフィームが形成される繊維体を包埋したシリコンチューブ、脱窒性リン蓄積細菌(DNPAO)が浮遊するバルク、の2つの部位より構成される。1サイクルは12時間であり、原水流入10分、嫌気90分、エアレーション540分、汚泥沈降工程65分、処理水引き抜き15分に設定した。嫌気条件ではバルク部位にてDNPAOによる有機物取り込みとリン酸のバルク液への放出が行われる。エアレーション工程ではメンブレン表面に付着したバイオフィーム内の硝化細菌によりアンモニアが亜硝酸・硝酸に酸化される。一方で、バルク中に棲息するDNPAOにより亜硝酸・硝酸を用いたリン取り込みが行われ、単一槽内窒素・リン同時除去が可能となる(図1参照)。このリアクターをRun1, 2とし、対照系として通常のSBRによる嫌気/微好気条件の系をRun3とした。Run1では硝化細菌で馴化されたバイオフィームを優先的に形成させ、Run2ではそれが無い状態でスタートを行った。流入排水組成は T-N ( $\text{NH}_4^+-\text{N}$ ): 45 mg-N/L, T-P ( $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ ): 20 mg-P/Lであり、有機炭素(C)濃度を変えることでC/N比を変動させ(1.0-3.5), 3系におけるN・P除去率を比較し、SBMBfRの有用性を評価した(実験A)。また、SBMBfR (Run1)の長期運転を行い(汚泥滞留時間20日)、段階的にC/N比を下げて水質の経日変化を測定した(実験B)。

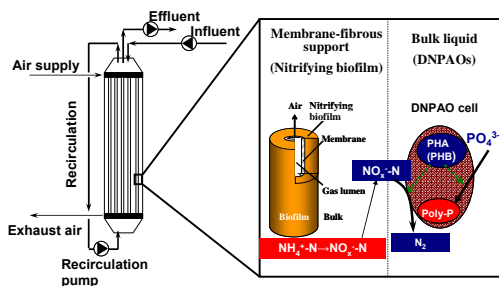


図1 SBMBfR 概略図とN・P同時除去のコンセプト

#### 4. 研究成果

##### (1) AOAプロセスの安定化条件の検討

各系における処理水中のTOC除去率は試験期間を通じ95%以上を維持した(データ省略)。プロセス終了時の窒素・リン平均除去率を図2に示す。本結果から、現行のAOAプロセスであるRun 2- Type 2と比較して、無酸素条件初期時に炭素源を添加したRun 1- Type 1では窒素除去率が増加したが、無酸素条件時

のリン再放出によるリン除去率の減少が示された。本系のリン除去率は、好気条件初期時に炭素源を添加したRun 1- Type 2で回復した。一方、好気条件初期時に亜硝酸を添加したRun 2- Type 3では、無酸素終了時の $\text{NO}_x^-$ -N残存による窒素除去率低下が示された。本系は、リン除去率についても、好気条件終了時のリン取り込み阻止が一定しない結果、リン除去率が不安定となることが示された。

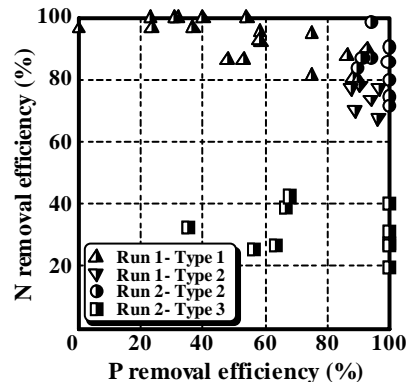


図2 異なる基質添加条件下での窒素・リン除去率

FISH法からRun 2- Type 3でPAOの優占率低下が示された。また、炭素源添加時期の相違による、優占率の変動は見られなかった。さらに、試験系の全てのAOAプロセスでGAOの優占化が起きなかった。一方、リン取り込み活性試験から、Run 1- Type 1においても無酸素条件時のP取り込みが確認できた。また、Run 2- Type 3では好気条件時のP取り込み速度の減少が示され、Run 2- Type 2での運転は、無酸素条件時のP取り込み速度を高める効果があることがわかった。

##### (2) AOAプロセスモデルの構築

FISHによるダイレクトカウントの結果、AOAプロセスにおけるAOB, NOB, PAOの割合はそれぞれ29%, 3%, 30%となり、本数値をシミュレーションに採用した。また、好気条件下において所定の炭素源を添加した場合のリン取り込み速度(炭素源添加なしのリン取り込み速度を1にした場合の相対値)を図3に示す。「好気条件下でのPAOによるリン取り込み相対速度は炭素源添加濃度に依存する」と定義した阻害式は、図3より $y = a + b \cdot \exp(-x/c)$  ( $x$ : 炭素源濃度)で表され、 $a, b, c$ の値はそれぞれ-0.43, 1.43, 8.69となった。この結果から、炭素源添加濃度とリン取り込み相対速度の両者で高い相関が示された。さらに、この阻害式を組み込んだモデルを用いて、好気条件初期時の炭素源添加濃度をそれぞれ0 mg-C/L, 28 mg-C/L, 68 mg-C/Lに振り分けた系で1サイクルの水質シミュレーションを行った結果、実測の水質測定結果とほ

ば一致したことから阻害関数およびモデルの妥当性が立証された。

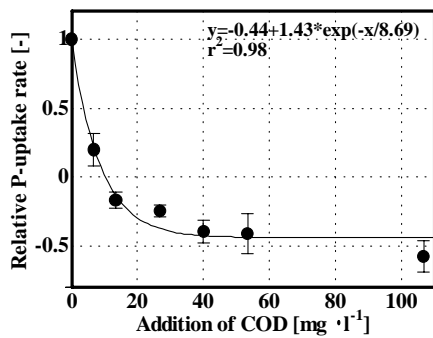


図3 炭素源添加量とリン取込相対速度との関係

### (3) AOAプロセスへのメンブレンエアレーション法の導入

各流入C/N比に対する窒素・リンの平均除去率を図4に示す。リン除去率はどの系においてもほぼ同じであった。一方、窒素除去率は低C/N比においてRun1がRun2,3と比較して高い値を示した。これはRun1ではシリコンチューブから供給された酸素がバイオフィーム中の硝化反応に優先的に消費され、生成したNO<sub>x</sub>がDNPAOにより脱窒されるため、効率的な窒素除去が得られたと推察される。一方、Run2,3では硝化細菌とDNPAOの酸素をめぐる競争による硝化・脱窒効率の低下が起こったことが推察される。以上よりSBMBfRは従来法よりも低C/N比においても高い窒素除去率が達成できることが示唆された。また、SBMBfRのスタートアップにおいて、硝化細菌のバイオフィーム形成を優先的に行うことが高いN・P除去率を維持させるために必要であることがわかった。

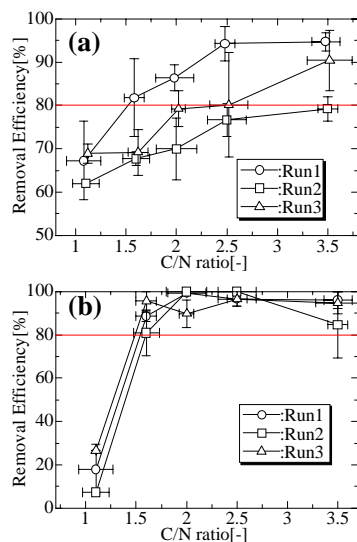


図4 各C/N比における(a)窒素、(b)リン除去率

SBMBfRの各流入C/N比における定常時の平

均水質結果および窒素・リン平均除去率(60日間)を評価した結果、流入C/N比2以上で80%以上の窒素・リン除去率を達成した。また、1サイクルのプロファイルを確認した結果、嫌気条件下でのリン放出、エアレーション後の硝化・脱窒・脱リンがコンセプト通り進行していることが確認された(データ省略)。一方で、C/N比2.0未満の排水の際は、窒素およびリンの処理能の悪化が観察された。以上よりSBMBfRにおける窒素・リン同時除去の長期的な有用性が流入C/N比2.0以上の排水において確かめられた。

### 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3件)

- 1) K. Soejima, S. Matsumoto, S. Ogushi, K. Naraki, A. Terada, S. Tsuneda, A. Hirata, "Modeling and Experimental Study on the Anaerobic/Aerobic/Anoxic Process for Simultaneous Nitrogen and Phosphorus Removal: The Effect of Acetate Addition", Process Biochem. (査読有り), 43 [6], 605-614 (2008).
- 2) A. Terada, S. Lackner, S. Tsuneda, B. F. Smets, "Redox-Stratification Controlled Biofilm (ReSCoBi) for Completely Autotrophic Nitrogen Removal: The Effect of Co- versus Counter-Diffusion on Reactor Performance", Biotechnol. Bioeng. (査読有り), 97 [1], 40-51 (2007).
- 3) A. Terada, T. Yamamoto, S. Tsuneda, A. Hirata, "Sequencing Batch Membrane Biofilm Reactor for Simultaneous Nitrogen and Phosphorus Removal: Novel Application of Membrane-Aerated Biofilm", Biotechnol. Bioeng. (査読有り), 94 [4], 730-739 (2006).

[学会発表](計1件)

- 1) 常田 聡, 伊藤潤平, 松本慎也, 副島孝一, 寺田昭彦, 「半回分式メンブレンバイオフィームリアクタによる窒素・リン同時除去: 低C/N比排水への適用」, 第43回日本水環境学会年会, 平成21年3月16日, 山口大学

[図書](計0件)

[産業財産権]  
出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

[その他]

6 . 研究組織

(1)研究代表者

常田 聡 (TSUNEDA SATOSHI)  
早稲田大学・理工学術院・教授  
研究者番号：30281645

(2)研究分担者

青井 謙輝 (AOI YOSHITERU)  
早稲田大学・高等研究所・助教  
研究者番号：40386636

星野 辰彦 (HOSHINO TATSUHIKO)  
早稲田大学・理工学術院・助手  
研究者番号：30386619

(3)連携研究者

なし