

平成22年6月14日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007～2009

課題番号：19560783

研究課題名（和文） 流動層バイオリアクターによる汚泥減容プロセスの開発

研究課題名（英文） Development of Sludge Digestion Process by a Fluidized Bed Bioreactor

研究代表者

畑中 千秋（HATANAKA CHIAKI）

北九州工業高等専門学校・物質化学工学科・教授

研究者番号：80180884

研究成果の概要（和文）：多孔性ポリビニルアルコール(PVA)ゲルの細孔径を約 $20\mu\text{m}$ に調節し、これに硝化菌、脱窒菌を固定化した。この菌体固定化ゲルビーズを用い、流動層型リアクターを構築した。脱窒槽では嫌気条件下において硝酸、亜硝酸を分子状窒素に還元し、硝化槽ではアンモニア性窒素を好気条件下において硝酸、亜硝酸へと酸化し、これらを連結して脱窒-硝化循環フローとした。このバイオリアクターにより BOD と窒素の同時除去と汚泥の全酸化による減容化が可能なことを実下水を用いたフィールドテストで実証した。

研究成果の概要（英文）：The process of simultaneous nitrogen removal and digestion of generated sludge by a fluidized bed-bioreactor using polyvinyl alcohol (PVA) gel as a biocarrier for immobilization of bacteria was investigated. In this research, the gel immobilized nitrifying and denitrifying bacteria that filled up to 10vol% of each acryl tank reactor, and the denitrification - nitrification circulating continuous flow was investigated. In the complete oxidation reactor connected to the nitrification reactor, the waste sludge generated in the nitrification and denitrification process was digested by autolysis of bacteria. As a result, it was shown that the reactor system could remove nitrogen and BOD simultaneously, and had the possibility of the digestion of waste sludge.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2008年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：プロセス工学・生物機能・バイオプロセス

キーワード：バイオリアクター、環境技術、水処理、生物・生体工学、バイオテクノロジー

1. 研究開始当初の背景

都市下水の活性汚泥法で発生する余剰汚泥は年間 3600 万トンに達し、汚泥の埋め立てスペースの枯渇、莫大なエネルギー消費と処理コストおよび悪臭の発生等々、様々な問題を抱えており、汚泥の減量化は緊急の課題となっている。一方、第5次総量規制によって排水中の BOD、窒素およびリンの高度処理の必要に迫られており、汚泥の減容化と併せてこれらの問題を同時に解決するための新しい排水処理プロセスの開発が求められている。汚泥の減容化については国内外において様々な方法が試みられてきたが、いずれの方法も膨大な量の下水を対象とした場合、大型の設備投資が必要なこと、電力、薬剤の消費量が大きいこと等コスト的に難しい問題を抱えており新しい視点からのアプローチが求められてきた。

そこで菌体と親和性の強いポリビニールアルコールゲルビーズ（以下 PVA ゲルビーズと略記）を固定化の担体として用い、これを流動層とするバイオリアクターを構築し、BOD、窒素を同時に除去する。更にこれらの栄養源を低レベルにコントロールし、十分な酸素と接触させることによって菌体を自己消化させる。これらの条件の最適化によって BOD と窒素の高速分解と発生する汚泥の減容化を効率的に行うプロセスが期待される。本プロセスによれば、重油、電力等の使用量の大幅な低減が可能となる。さらに、現有の曝気槽をそのままゲルの流動層として使用でき、設備投資の削減も可能である。

2. 研究の目的

PVA ゲルビーズは内部に 20 μm 程度の細孔を有する多孔質であり、この中に細菌が選択的に高密度で固定化され、増殖することが既に見いだされている。この固定化菌体ゲルビーズは BOD の酸化分解や窒素除去を高速で行う能力のあることも明らかにされている。

本研究では菌体固定化ゲルビーズを投入した流動層型反応槽を用い、脱窒～硝化循環フローにより BOD とアンモニア性窒素の同時除去を標準活性汚泥法の 10 倍以上の速度で実現する。また、脱窒・硝化により栄養源を低いレベルにコントロールして飢餓状態とし、増殖した余剰菌体は全酸化槽に導いて高濃度の菌体と酸素とを接触させることによって水と炭酸ガスへの自己酸化を促進し、汚泥の減容化を図る。BOD と窒素の除去率、除去速度ならびに汚泥減容率についてプロセス条件の最適化を図り、リアクターの性能を評価する。

3. 研究の方法

(1) PVA ゲルへの菌体の固定化

有効容積 5L の BOD 酸化槽、硝化槽、脱窒槽を準備し、各槽に 10vol% の PVA ゲルを投入後、下水処理場の返送汚泥より採取した濃縮スラッジを各槽に供給し、72 時間空気バブリングを継続して PVA ゲルの細孔に細菌を固定化した。その後、空気バブリングを行ないながらアンモニア性窒素濃度 50mg/L および TOC 濃度 50mg/L を含む人工排水を流量 1.25L/h で供給し、全槽を人工原水で置換し馴養を行なった。

(2) 窒素除去型汚泥減容システム

NH₄Cl を主成分とする人工下水を、有機炭素源であるメタノールとともに脱窒槽へ供給し、その処理水を硝化槽へ導き硝化を行なった。その後、硝酸・亜硝酸を含む硝化液は、循環比 R=3（脱窒槽への循環水量／全酸化槽への排出流量）に相当する水量を脱窒槽に循環して分子状窒素に還元し、残りは全酸化槽に流出させた。この過程で発生した余剰汚泥は全酸化槽において、微生物の自己酸化により減容される。

実験室での検討結果を踏まえて、北九州市日明浄化センター内に実排水を用いた 5m³/day 規模の実証試験装置を設置し、実証実験を行なった。脱窒槽、硝化槽および全酸化槽はいずれも 500L とし、各槽の平均滞留時間を 2.4h とした。沈澱槽は 900L で平均滞留時間は 4.3h とした。

(3) 汚泥減容率 (E)

硝化槽、全酸化槽および沈澱槽内液を一定量サンプリングし、孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターで吸引濾過を行なった後、フィルター上の SS 分を一昼夜真空乾燥機で乾燥させ、活性汚泥浮遊物質 (MLSS) [mg/L] を求めた。全酸化槽と沈澱槽で汚泥減容されると考え、槽内に流入した汚泥量に対する槽内で減容された汚泥量の比を減容率 (E) とした。

4. 研究成果

(1) 脱窒-硝化循環連続フローによる有機物ならびに窒素除去

図 1 はアンモニア性窒素濃度 50mg/L、TOC 濃度 50mg/L の条件で、原水流量を上昇させていき、本リアクターの性能限界を検討した場合の、原水、脱窒槽、硝化槽、処理水における全窒素濃度の経時変化を示したものである。図 1 より原水流量が 1.0~2.0L/h の間では安定して理論窒素除去率である 75% ($R/1+R=0.75$ R: 循環比) を達成している

ことが確認されたが、2.5L/h へと上昇させると著しく除去率が低下した。この時、処理水中にアンモニア性窒素の流出が確認され、硝化反応が十分に行なわれていないことがわかった。これより循環比 3 における本リアクターの能力の限界値は 2.0L/h であることが確認された。

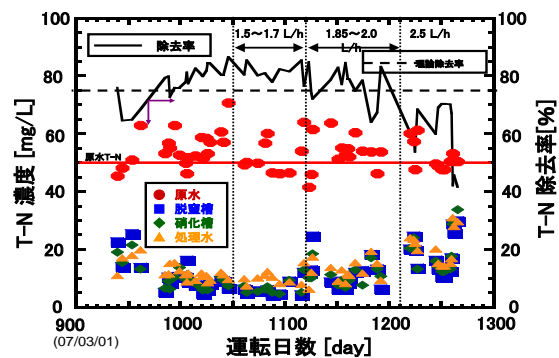


図 1 全窒素濃度の経時変化

図 2 に原水流量と全窒素除去速度 [mg-N/L・h] の関係を示した。図から明らかなように、原水流量の上昇と共に全窒素除去速度も比例して上昇し、2.0L/h で除去速度が最大で約 8.0mg-N/L・h を示した。しかし、2.5L/h では除去速度が著しく低下した。これは、流量の増大により脱窒に必要な水素供与体である BOD 負荷量が増え未反応 BOD が硝化槽に流入することによって、硝化活性が阻害されたためと考えられた。これより本リアクターの能力は原水流量が 2.0L/h で最大値

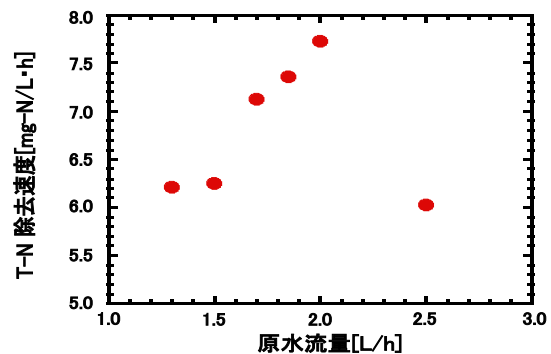


図 2. 原水流量と全窒素除去速度

に到達したことが確認できた。

脱窒－硝化循環における有機物(TOC)の除去について検討した結果、BOD 汚泥負荷を 0.05kg-BOD/kg-MLSS・day 以下にコントロールできることがわかった。

(2) 汚泥減容の評価

返送汚泥循環比 1.5 の一定条件で、原水流量を 1.5～2.0L/h まで上昇させたときの汚泥減容について表 1 に示した。全酸化槽 MLSS 濃度は汚泥の濃縮により 3000mg/L 程度と高濃度となっており、汚泥減容率は 90%以上の高い結果が安定して得られた。

表 1. 汚泥減容率

運転日数 [day]	1078	1106	1113	1148	1155	1190	1218
原水流量 [L/h]	1.5	1.7	1.7	1.85	1.85	2.0	2.0
流入するMLSS量 [mg/h]	197	166	115.2	135.8	125	100.0	94.0
全酸化槽MLSS濃度 [mg/L]	3324	2513	3923	3253	2075	2845	3286
沈殿槽MLSS濃度 [mg/L]	1731	733	2438	638	2158	879	3707
流出したMLSS量 [mg]	188	850	145	1773	829	2860	157
減容率 [%]	101	100	113	99.9	115	108	107

(3) 凝集剤が汚泥の沈降性に及ぼす影響

汚泥の沈降性及び凝集性が悪く処理水中に汚泥が流出した。沈降性の回復を図るため、凝集剤として PAC を 20mg-Al/g-MLSS 添加した。その後、経時的に採取した汚泥の ICP 分析を行ない、運転時間に対する汚泥中に含まれる Al イオンの経時変化を図 3 に示した。

図より沈降性が悪かった運転日数 1392 日近辺の Al イオンは 0.87mg-Al/g-MLSS 程度であり、著しく低下していた。新たに PAC を添加したことで Al イオンは 17mg-Al/g-MLSS となり、Al イオンの存在により沈降性が回復することが分かった。このときの汚泥の SVI は 240ml/g 程度であり、標準活性汚泥法における沈降性の良好な汚泥の値に一致することを確認した。図中の運転日数 1400～1480 日

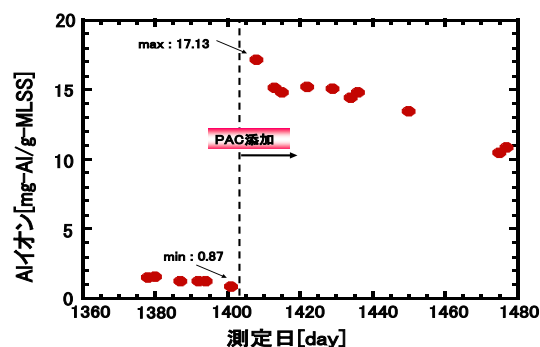


図 3. Al イオンの経時変化

までは PAC は添加せずに運転を継続しているが、Al イオンの減少は僅かであり、汚泥の流出も全く無かった。Al イオンが減少しない理由は細胞壁にイオンの吸着され、汚泥と一緒に挙動するためと推察された。

(4) 日明浄化センターでの実排水による実証試験

実験室において流動層型バイオリアクターの有用性が示されたため、北九州市日明浄化センター内に設置した実証プラントにて最初沈殿池の流出水を原水とする実排水を用いた実証試験により実験室データの再現性について検討した。実験は 2007 年 10 月から 2008 年 3 月までの約 500 日間行なった。

実証プラントの能力は 5 m³/day であり、最初沈殿池の流出水中の BOD を硝酸還元の水素供与体として利用することにより、排水中のアンモニアだけでなく BOD も同時に低減することができる。

表 2. 実験室リアクターと実証リアクターの仕様の比較

リアクター	実験室リアクター	実証プラント
各リアクター体積 [L]	5.0	500
ゲルビーズ量 [L]	0.5	50
ゲル充填率 [%]	10	10
原水全窒素濃度 [mg/L]	50	18
原水 TOC 濃度 [mg/L]	50	24
原水流量 [L/h]	1.50	200

表 2 に実験室のリアクターと実証プラントにおける実証リアクターの仕様を比較した。

図 4 に実証プラントにおける TOC 濃度の経時変化について示した。各槽及び処理水の TOC 濃度は 10mg/L 以下と低い値を示し、TOC の分解除去が可能であることが確認された。

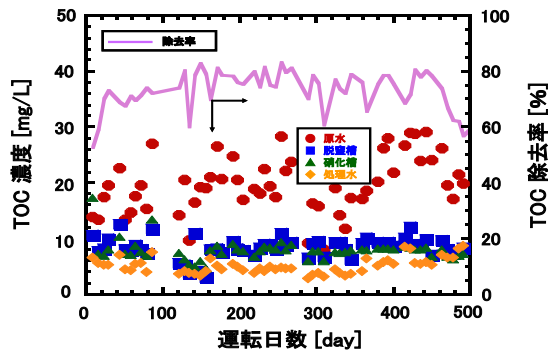


図 4. 実証プラントでの TOC 濃度の経時変化

図 5 に実証プラントにおける全窒素濃度の経時変化を示した。実排水の TOC 濃度は平均的に 24mg/L 程度と低いため、循環比 3 での運転の場合(運転日数 150 日まで)、硝化液による原水 TOC の希釈により脱窒槽における TOC/N 比が理論値の 0.71 を確保できないため、原水に対する脱窒槽の全窒素除去率が理論窒素除去率である 75% を達成できなかった。

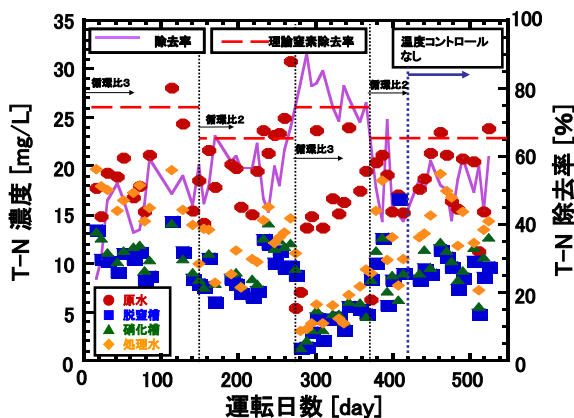


図 5. 実証プラントでの T-N 濃度の経時変化

これに対して、150~278 日において循環比 2 に低下させ原水の希釈を抑制し TOC/N 比が

0.71 以上を維持した場合、理論窒素除去率である 67% が達成されることが明らかとなった。

実際の下水处理においては、TOC が不足し脱窒槽における TOC/N 比が 0.71 以下となることが想定され、この場合は TOC の供給が必要であることがわかった。

図 6 に実証プラントにおける汚泥減容について検討した結果を示した。全酸化槽と沈殿槽内に存在する汚泥の合計量と全酸化槽に流入する汚泥の積算値の経時変化を示した。図から明らかなように、汚泥量と流入汚泥の積算値の差が汚泥減容量となり、90% 付近の汚泥減容がされていることが確認できた。

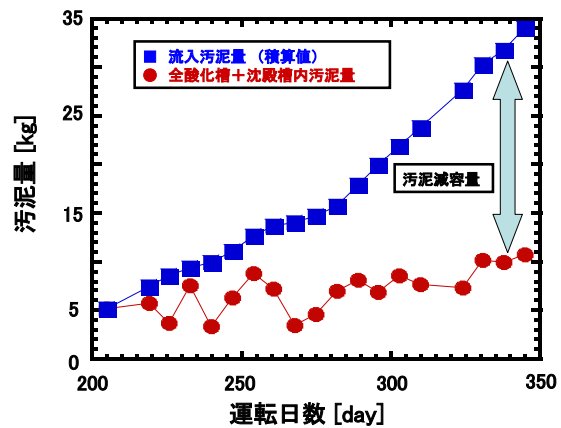


図 6 実証プラントでの発生汚泥量の積算値と汚泥減容量

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 8 件)

① 畑中千秋、熊田清、小林悟朗、窒素除去型汚泥減容システムの実証、北九州工業高等専門学校研究報告、査読有、43 号、2010、69-74

② 前田良輔、清水雄一、畑中千秋、小麦粉タンパク質の酵素分解と生理活性を有するべぼうちどの探索、北九州工業高等専門学校研究報告、査読有、43 号、2010、87-91

③ 畑中千秋、小林悟朗、藤井弘明、PVA ゲル固定化菌体を用いた流動層リアクターによ

る窒素除去プロセスの開発、下水道協会誌論文集、査読有、46巻、No.555、2009、81-90

- ④畑中千秋、藤井弘明、馬場泰弘、小林悟朗、流動層バイオリアクターを用いた窒素除去型汚泥減容システムの開発、北九州工業高等専門学校研究報告、査読有、42号、2009、77-82
- ⑤畑中千秋、有機排水の高度処理を行うための中空糸型バイオリアクターの開発、北九州工業高等専門学校研究報告、査読有、41号、2008、75-80

⑥Kouhei Mizuno, Kazumasa Fukuda, Ayuko Fujii, Aiko Shiraishi, Koji Takahashi, and Hatsumi Taniguchi *Bacillus* species predominated in an incineration ash layer at a landfill *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, **72** (2), 531-539 (2008)

⑦畑中千秋、中空糸型バイオリアクターを使用した連続硝化脱窒、化学工学、査読有、2007、373-378

⑧畑中千秋、中空糸型バイオリアクターによる有機排水の高度処理、環境浄化技術、査読有、52巻、2007、35-39

[学会発表] (計5件)

①畑中千秋、吉田昌弘、幡手泰雄、中空糸型バイオリアクターによる高濃度硝酸排水の脱窒処理、化学工学会 第75年会、2010年3月20日、鹿児島大学

②Takahiro Sada, Yui Morishita, Kouhei Mizuno, Diversity Analysis of Sulfate-Reducing Bacterial Communities in a Wastewater Treatment Plant Using Dissimilatory Sulfite Reductase Gene (*dsrB*) as a Molecular Marker, The Second Japan-Korea Joint Symposium on Bio-microsensing Technology, 2nd JKBT 2009年11月13日、北九州市

③畑中千秋、吉田昌弘、幡手泰雄、藤井弘明、馬場泰弘、小林悟朗、流動層バイオリアクターによる汚泥減容プロセス、化学工学会 第40回秋季大会、2008年9月24日、東北大学

④Kouhei Mizuno, Akiko Andou, and Kenji Tanaka Biomarkers for Bacterial Nitrification in Wastewater Treatment *The*

first Japan-Korea joint symposium on bio-microsensing technology、2008年5月23日、北九州市

⑤畑中千秋、吉田昌弘、幡手泰雄、水素酸化バクテリアによる排水中の硝酸窒素除去、化学工学会 第73年会、2007年3月17日、静岡大学

[その他]

ホームページ；

<http://www.kct.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

畑中 千秋 (HATANAKA CHIAKI)

北九州工業高等専門学校・物質化学工学科・教授

研究者番号：80180884

(3) 連携研究者

水野 康平 (MIZUNO KOUHEI)

北九州工業高等専門学校・物質化学工学科・准教授

研究者番号：80342583

前田 良輔 (MAEDA RYOUSUKE)

北九州工業高等専門学校・物質化学工学科・准教授

研究者番号：00360248