

2-1 ハイブリッド型リアクターの開発研究

青山 渉（(財)科学技術交流財団）

片桐誠之（(財)科学技術交流財団、現名古屋大学）

野口基治、富田美穂（日本ガイシ(株)）

1. 研究の目的と概要

廃水の高度処理、循環再利用システムを構築するためには、廃水に含有されている有機物および栄養塩類を高度に除去する技術が求められる。活性汚泥法は、廃水中の有機物を除去する生物学的廃水処理技術として広く普及しており、操作法の改良により栄養塩類の窒素の除去も可能であるが、この場合、処理に長時間を要し、大きな敷地面積が必要となるといった問題があるため、短時間で窒素の高度除去が可能な技術の開発が望まれている。こうした背景を踏まえ、本研究ではより負荷の大きいディスポーザー廃水を含む生活廃水にも対応可能な高速窒素除去法の確立に取り組み、処理時間の大幅な短縮を図ることによって小さな敷地面積で高い窒素除去率が得られる技術の開発を行う。

本研究では、微生物を用いた窒素除去法である生物学的脱窒素法の高性能化を試みる。生物学的脱窒素法は、硝化工程と脱窒工程の2工程により成り、硝化工程は、廃水中のアンモニア態窒素を亜硝酸菌および硝酸菌により硝酸態窒素まで酸化する工程、一方、脱窒工程は、硝酸態窒素を脱窒菌により窒素ガスまで還元し、大気中に放散する工程で、この際有機物の除去も行われる。このように窒素の除去は、亜硝酸菌、硝酸菌および脱窒菌により行われるため、処理時間を短くするためには、これらの微生物をそれぞれの反応槽内で高濃度に維持することが重要なポイントとなる。そこで、本研究で開発するバイオリアクターでは、反応槽内の微生物濃度を高めるために硝化および脱窒の両工程に微生物を高密度に付着・固定化できる担体を使用する。バイオリアクターでの使用に最適な担体の選定、担体の処理性能が最大となる使用法の確立、オンサイト実験によるバイオリアクターの操作条件の確立、窒素安定処理の実証を行い、活性汚泥を使用しない担体のみによる窒素の高度・高速除去技術を開発する。

なお、本開発技術により窒素および有機物を除去した処理水は、後工程の「難分解性物質の微生物処理」、「精密濾過・分離膜技術」へ送られ、さらに高度な処理が行われる。

2. フェーズ I の成果

2-1. 目的および目標

窒素の高度・高速除去を実現化するためには、処理槽内において窒素除去に関与する微生物群を高濃度に維持することが重要となるため、本研究では微生物を高密度に付着・固定化できる担体を使用することにより処理槽内の微生物濃度を高める方法を試みる。フェーズ I では、担体に関する過去の報告例を調査するとともに、バイオリアクターでの使用に適した担体の選定、担体の処理性能の把握および担体の使用形式の決定を行うことを目的とした。

2-2. 方法および結果

2-2-1. 微生物固定化担体の探索および選定

担体を使用した窒素除去技術に関する文献調査を行い、下記に示したような担体選定時の注意点を明らかにした。

- ・担体の処理能力は種類にはあまり依存せず担体の表面積によって決まる。

- ・高分子材料を使用する例が多く、大きさはスポンジ系を除いて3～5mmが多い。
 - ・担体の硝化能力は、水温15°C程度で60～175g-N/(m³担体・h)程度である。
- また、文献調査の結果から担体能力の目標値を以下のように設定した。

<目標担体能力>

硝化能力：水温15°Cで150g-N/(m³担体・h)以上

脱窒能力：水温15°Cで60g-N/(m³担体・h)以上

文献調査結果を参考に比重、材質、形状などの観点から担体の探索を行い、市販、あるいは開発段階の担体の中から比重および大きさがバイオリアクターでの使用に適しており、窒素除去に有用な微生物を高密度に固定化できる2種類の担体を選定した。

- ①ポリビニルアルコール(PVA)担体(粒子状) ②親水性ポリウレタン担体(中空円筒状)

2-2-2. 担体の性能評価および最適使用法の確立

一般に、処理時間が同じ場合、担体充填量が少ないと担体への負荷が高くなるため担体能力は高くなり効率的であるが処理水質は悪化する。一方、担体充填量が多いと処理水質が良くなるが担体への負荷が低下し効率が下がりコストアップにつながる。そこで、少ない担体充填量で良好な処理水質が得られる条件の確立を目標に検討を行った。

始めに、選定したPVA担体と親水性ポリウレタン担体の性能評価を図1、2に示した硝化能力および脱窒能力評価装置にて行った。硝化能力評価は好気条件下で行うため、ブローアを設置し、反応槽に空気が送り込めるようになっている。一方、脱窒能力評価は無酸素条件下で行うため、ブローアは設置せず、担体を攪拌できるように攪拌機を設置した。なお、両装置とも処理水温を一定に保つために反応槽を恒温水槽に浸漬してある。

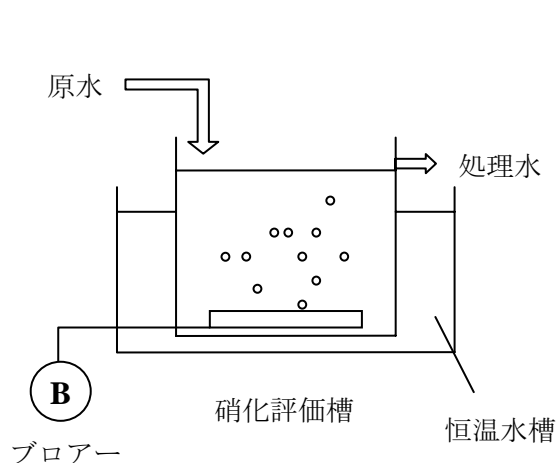


図1 担体硝化能力評価装置

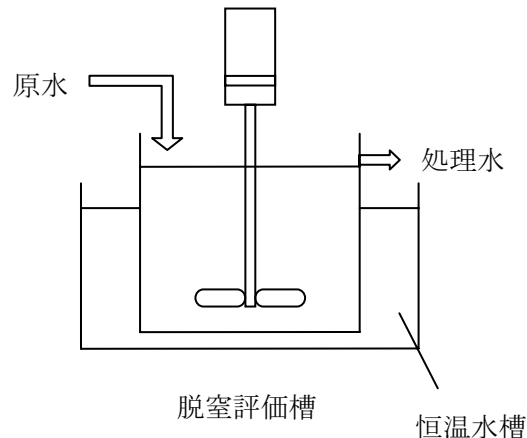


図2 担体脱窒能力評価装置

担体の能力評価には人工下水を用いた。表1に、硝化および脱窒能力評価に用いた濃縮人工下水の組成を示した。この濃縮人工下水を水道水で希釈することにより濃度調整を行い、硝化能力評価ではNH₄-N濃度が20 mg/Lおよび30mg/L、脱窒能力評価ではNO₃-N濃度が30mg/L(デイスポーター廃水窒素濃度予想値)のものを原水として用いた。担体の充填率を5、10、15、20%、水温を15および20°Cに設定し、原水の流入速度を調節して一定の窒素負荷条件下で人工下水の連続処理を行った。なお、一つの窒素負荷条件下における連続処理は1～1.5ヶ月間行い、担体能力と処理の安定性を確認した。また、連続処理終了時には回分処理を行い、回分処理でも連続処理で得られた速度と同程度の値が得られることを確認した。

表 1 濃縮人工下水の組成

a) 硝化能力評価用

成分	濃度 (mg/L)
NH ₄ Cl	2292
NaHCO ₃	7020
Na ₂ HPO ₄ ·12H ₂ O	693
NaCl	303
KCl	141
CaCl ₂	120
MgSO ₄ ·7H ₂ O	501

b) 脱窒能力評価用

成分	濃度 (mg/L)
KNO ₃	4326
CH ₃ COONa·3H ₂ O	10214
Na ₂ HPO ₄ ·12H ₂ O	75
NaCl	303
KCl	141
CaCl ₂	120
MgSO ₄ ·7H ₂ O	501

表 2 は親水性ポリウレタン担体を流動床および充填槽方式で、PVA担体を流動床方式で使用し、担体充填率を 10%に設定して硝化能力評価試験を行った場合の結果である。PVA担体は粒子状で形状が充填槽方式には向かないため、流動床方式のみ試験を行った。親水性ポリウレタン担体の場合、流動床方式では目標硝化速度を上回る硝化速度は得られず、硝化率も低い結果となったが、充填槽方式では目標硝化速度 150g-N/(m³担体・h)を上回る良好な値が得られた。また、PVA担体を流動床方式で使用した場合にも、目標硝化速度を上回る結果が得られた。両担体とも適切な使用方式を選択することにより高い硝化能力を発揮することが明らかとなったが、親水性ポリウレタン担体の充填槽方式は研究例がないということを考慮し、この場合での担体能力評価をさらに行うことにした。

表 2 各担体の処理方式と硝化速度

担体負荷 (g/m ³ ・h)		100	200
親水性 ポリウレタン	流動床方式	硝化速度(g/m ³ ・h)	68
		硝化率(%)	68.0
	充填槽方式	硝化速度(g/m ³ ・h)	100
		硝化率(%)	100
PVA	流動床方式	硝化速度(g/m ³ ・h)	99.1
		硝化率(%)	99.2

担体充填率 10%、水温 20℃

図3には、親水性ポリウレタン担体を充填槽方式で使用し、充填率や担体への負荷を変化させて硝化能力試験を行った場合の結果を示した。担体充填率が10および15%の場合に極めて良好な値が得られ、特に担体充填率10%の場合では、水温15℃、処理時間1hで、硝化速度300g-N/(m³担体・h)、硝化率100%という極めて良好な結果が得られた。

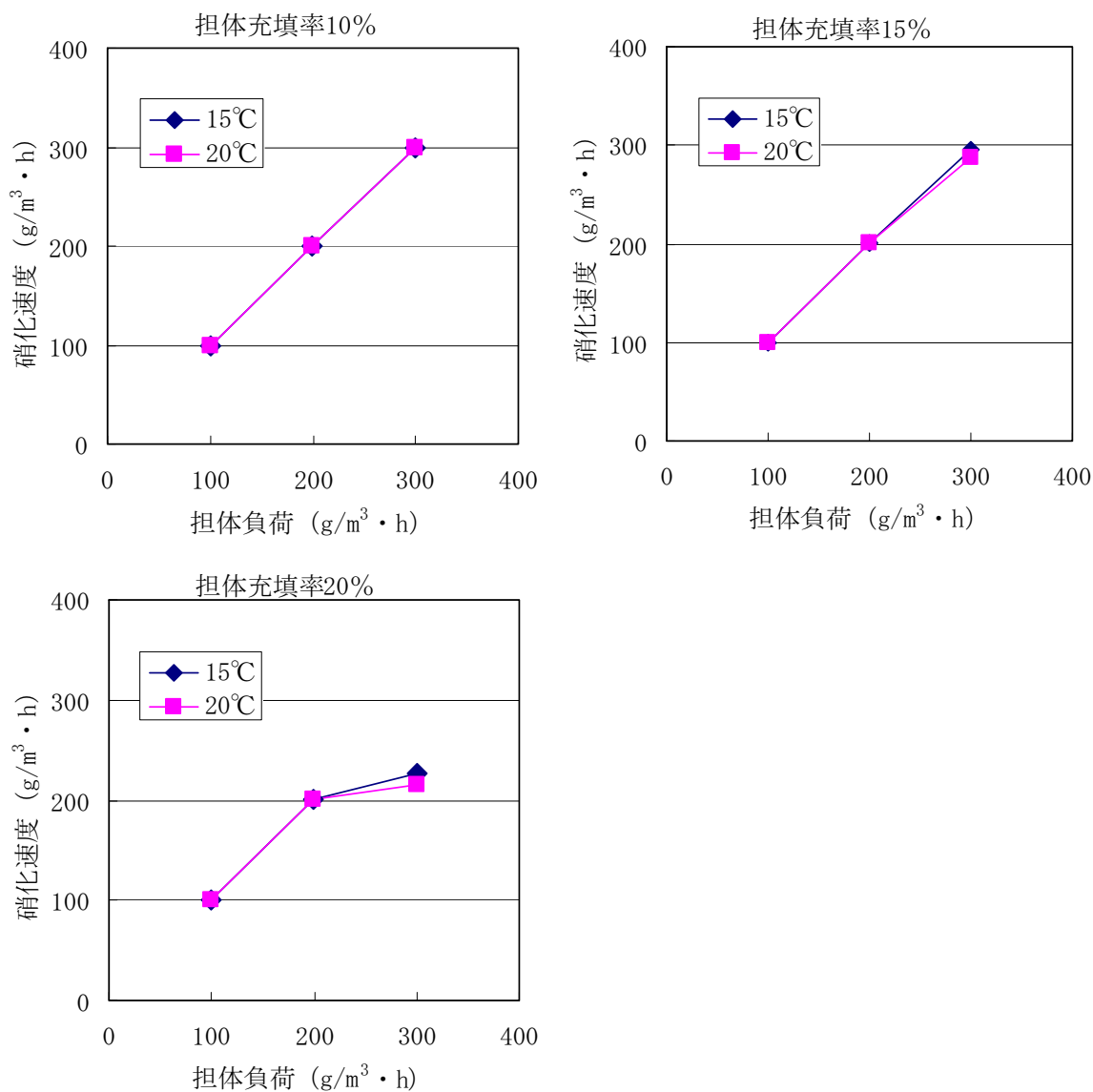


図3 親水性ポリウレタン担体による硝化

表3には、担体充填率を10%に設定し、親水性ポリウレタン担体を流動床および充填槽方式で、PVA担体を流動床方式で使用して脱窒能力評価試験を行った場合の結果を示した。いずれの場合でも、目標脱窒速度60g-N/(m³担体・h)を上回る結果が得られたが、先述したように研究例が少ないということから、親水性ポリウレタン担体の充填槽方式での担体能力評価をさらに行うことにした。

表 3 各担体の処理方式と脱窒速度

担体負荷 (g/m ³ ・h)			100
親水性 ポリウレタン	流動床方式	脱窒速度(g/m ³ ・h)	76
		脱窒率(%)	76
	充填槽方式	脱窒速度(g/m ³ ・h)	100
		脱窒率(%)	100
PVA	流動床方式	脱窒速度(g/m ³ ・h)	100
		脱窒率(%)	100

担体充填率 10%、水温 20℃

図 4 に 5~20%の担体充填率で親水性ポリウレタン担体を充填槽方式で使用して脱窒能力評価を行った場合の結果を示した。すべての充填率において目標脱窒速度の 60g-N/(m³担体・h)を上回る 200g-N/(m³担体・h)という極めて良好な値が得られ、脱窒率も 100%であったことから、親水性ポリウレタン担体を充填槽方式を使用することにより高速な脱窒ができることが明らかとなった。

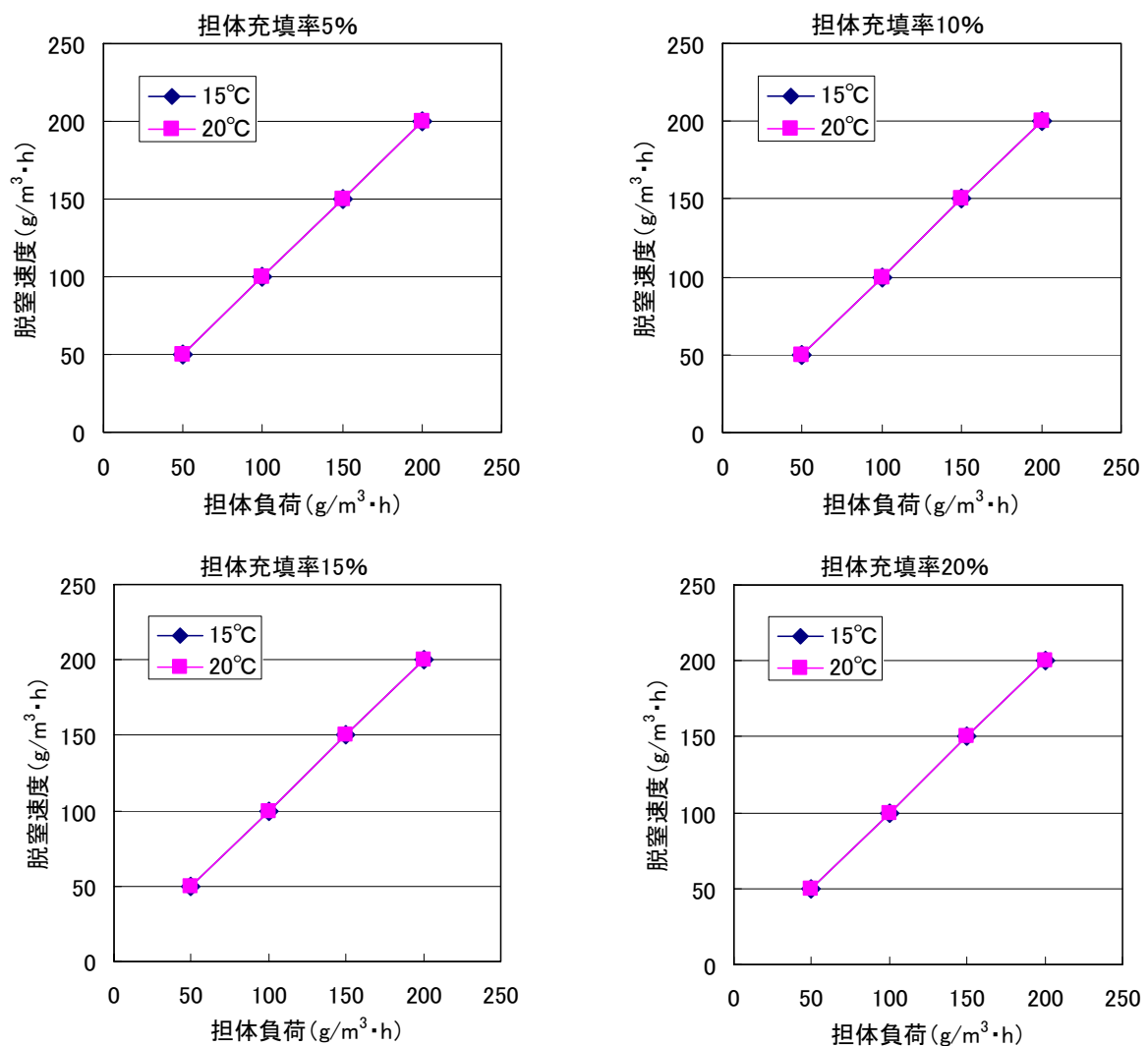


図 4 親水性ポリウレタン担体による脱窒

2-2-3. リアクター構造の設計

以上の取り組みから、親水性ポリウレタン担体を充填槽方式で使用することで極めて良好な窒素除去能力が発揮されることが明らかとなった。また、親水性ポリウレタン担体は中空円筒状であるため、充填槽方式で使用すると固形性BODが担体に捕捉され、脱窒を行う際の有機物源として有効利用できるというメリットがあることもわかったため、親水性ポリウレタン担体を充填槽で用いる方式のオンサイト実験装置を設計・製作し、下水処理場に設置して実下水の処理実験へと展開することにした。

図5にはオンサイト実験装置（以下ハイブリッド型リアクターとする）の構造を示した。処理効果をもとめるために二段ステップ流入方式を採用し、硝化槽と脱窒槽をそれぞれ2槽ずつ設け、原水を第1脱窒槽、第2脱窒槽に分配供給する仕組みとした。硝化槽よりも先に脱窒槽を配置しているのは、廃水中の汚濁成分を脱窒の際の有機物源として利用するためであり、このため硝化後の液を脱窒槽へ循環させている。また、処理水の流れは、脱窒槽で上向流、硝化槽で下降流とした。さらに、ポリスチレン製で3mmの球状担体を敷きつめて生物膜を形成させ、上向流で濾過する方式の生物膜濾過装置を4つの反応槽の後ろに配置することで窒素およびSSをより高度に除去することを可能にした。

図6は製作したハイブリッド型リアクターの写真である。このリアクターは名古屋市植田下水処理場に設置した。

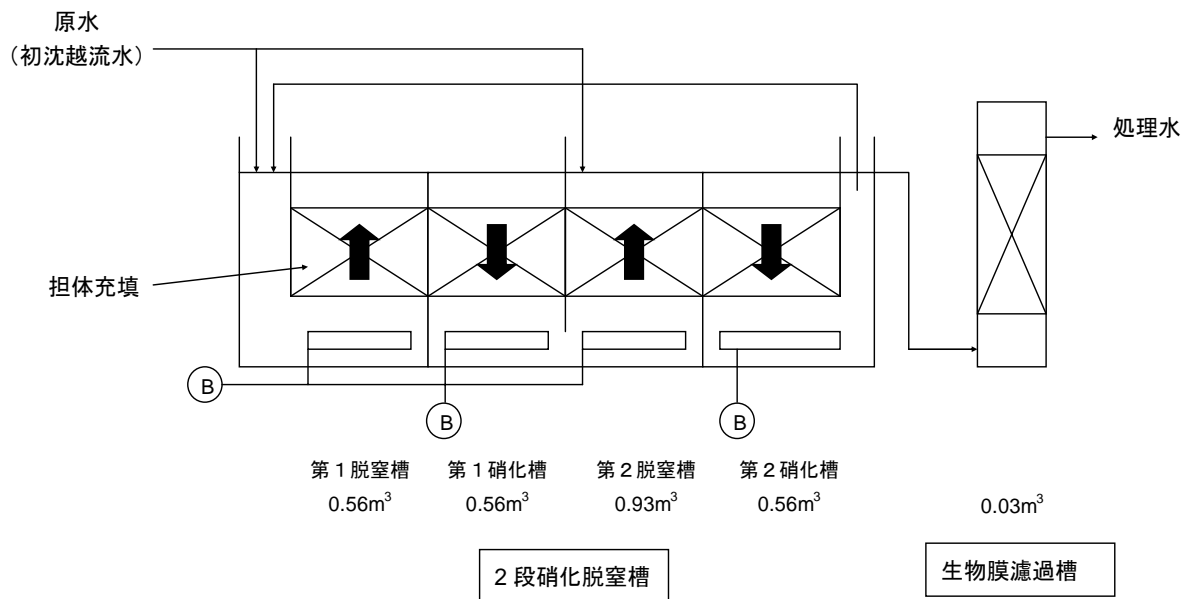


図5 ハイブリッド型リアクターのフロー



図6 ハイブリッド型リアクター

2-3. 考察およびフェーズⅠのまとめ

フェーズⅠでは、窒素の高度・高速除去技術を確立するため、窒素除去に関与する硝化菌および脱窒菌を高密度に付着・固定化できる担体の選定およびその処理能力の把握を行った。リアクターに使用する担体の候補として、親水性ポリウレタン担体とPVA担体を選定し、その性能評価を行った。その結果、極めて良好な処理能力に加え、通常は利用することが困難な固形性BODを脱窒を行う際の有機物源として有効利用できるというメリットを有していた親水性ポリウレタン担体の充填槽方式を、ハイブリッド型リアクターに採用することとした。なお、親水性ポリウレタン担体の充填槽方式では、硝化反応速度 $300 \text{ g-N}/(\text{m}^3 \text{ 担体} \cdot \text{h})$ 、硝化率 100% (担体充填率 10%、水温 15°C)、脱窒反応速度 $200 \text{ g-N}/(\text{m}^3 \text{ 担体} \cdot \text{h})$ 、脱窒率 100% (担体充填率 10%、水温 15°C) といった目標値を大きく上回る極めて良好な値が得られた。

また、ハイブリッド型リアクターに用いる担体とその使用形式が決定し、予定よりも早く研究を進行することできたため、当初フェーズⅡで行う予定であったオンサイト実験装置の設計・作製も行い、装置を名古屋市植田下水処理場に設置した。

3. フェーズⅡの成果

3-1. 目的および目標

フェーズⅠでは人工下水を用いて研究を進めてきたが、実用化を目指す段階で実下水を用いた処理を実践することが重要である。そこで、フェーズⅡでは、名古屋市植田下水処理場でのオンサイト実験へ展開し、リアクターの操作条件の確立、安定した窒素除去能力の実証を行い、窒素の高度・高速除去を可能にする微生物担体を使用した処理技術の確立を目的とした。従来技術ではおよそ13時間の処理で窒素濃度が約20 mg/L程度であるが、本研究では、通常の半分以下、6時間の処理で生活廃水の窒素濃度を5mg/L以下とすることを目標にした。具体的な目標値を以下に記す。

<目標水質>

処理水質：T-N：5mg/L以下、BOD：10mg/L以下、SS：25mg/L以下

処理時間：6時間以内

3-2. 方法および結果

3-2-1. リアクター構造の設計・特性評価

フェーズⅠでの人工下水を用いた親水性ポリウレタン担体の硝化・脱窒能力評価の結果、担体充填率は10~15%程度にするのが良いという結果が得られたため、硝化槽・脱窒槽ともに担体充填率を15%に設定して実下水の連続処理を開始した。

処理時間12時間で運転を開始し、約1ヶ月間の馴養の後、硝化・脱窒能力が発揮され始めたため（T-N：10mg/L）、処理時間を8時間、6時間と縮めて担体負荷を段階的に大きくした。その際、脱窒槽で汚泥が閉塞を起こすトラブルが頻繁に発生したが、脱窒槽の曝気洗浄を定期的に行うことにより解決した。処理時間6時間の処理が安定した後、表4に示したRun1の条件で連続運転を行った。

実下水は人工下水とは異なり水質変動があり、様々なファクターが存在するため、Run1の条件ではT-N：5mg/L以下の目標値を満たすことができなかった。そこで、硝化液循環量、担体充填率、曝気量および曝気洗浄回数などを種々の条件に設定して処理を行った。

表4 ハイブリッド型リアクターによるオンサイト実験処理

装置		運転条件	Run1	Run2	Run3
		水温(°C)	14~32	18~32	14~17
2段硝化脱窒槽	処理時間	h	6	6	6
	処理水量	m ³ /d	11.2	11.2	11.2
	硝化液循環率	%	150	150	170
	担体充填率 %	硝化槽	15	17	20
脱窒槽		15	17	20	
生物膜濾過槽	処理時間	h	—	2	2
	LV	m/d	—	150	100
	処理水量	t/d	—	4.7	3.1

図7には水温が20℃を上回る時期の連続処理の結果を示した。この実験は表4のRun2に相当し、硝化・脱窒効果をさらに向上させるため、硝化・脱窒槽の担体量を増加した。また、生物膜濾過装置の運転を開始し、窒素除去率の向上を試みた。その結果、原水中の全窒素濃度（T-N）は25~60mg/Lの幅で変化したが、処理水のT-Nは5~8mg/L程度、生物膜濾過処理水ではほぼ5mg/L以下（除去率80%以上）と安定した窒素除去が可能であった。原水中のアンモニア態窒素は15~45mg/Lまで幅広く変動したが、処理水にはほとんど残留しておらず、安定して完全硝化ができた。処理水中に残存する窒素分はほとんどが硝酸態窒素であった。

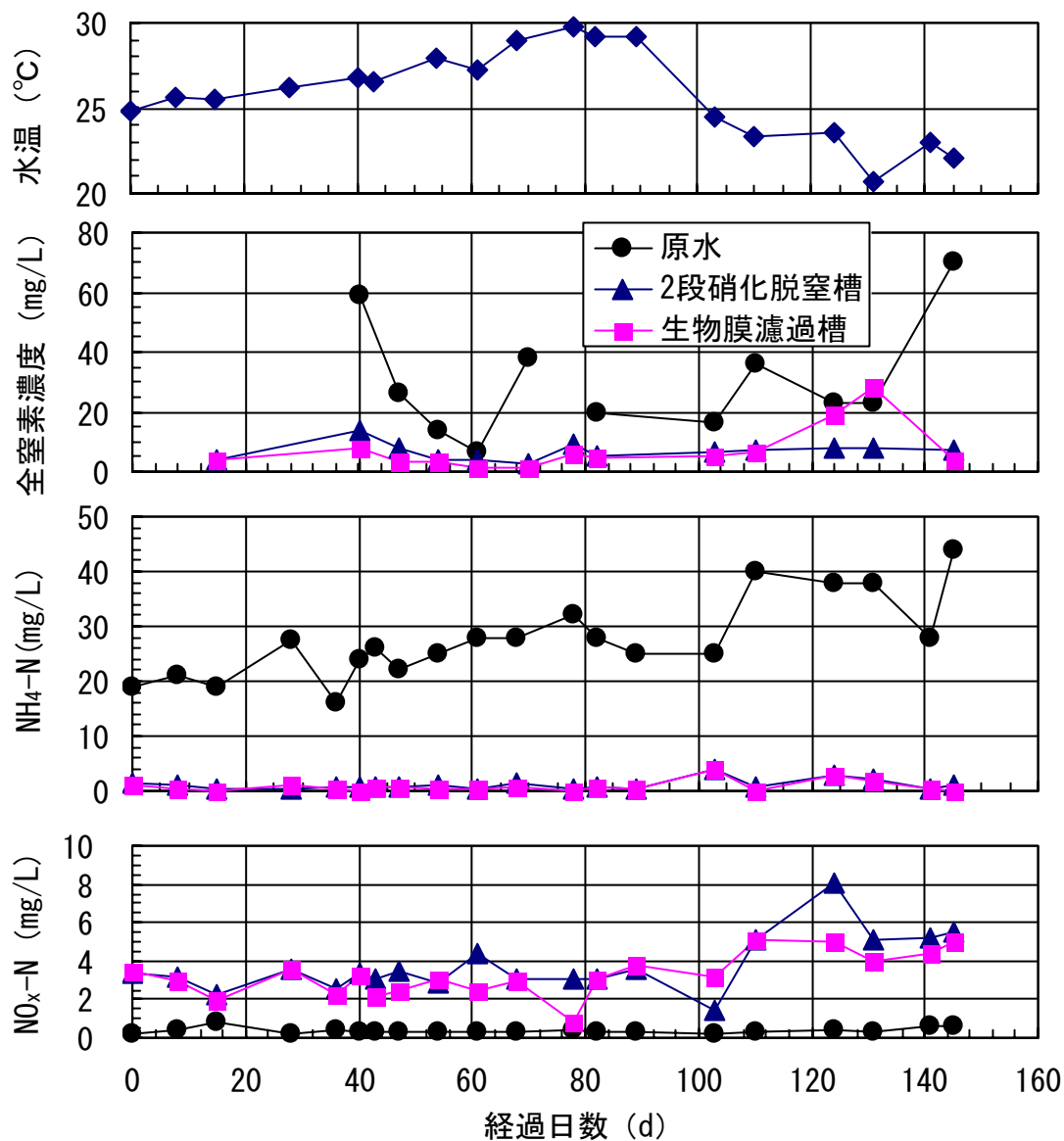


図7 ハイブリッド型リアクター処理水の窒素濃度（水温20℃以上）

水温が低くなると微生物の活動が弱まり除去効率が低下することが予想されたため、処理能力を補う目的で、担体の充填量をさらに増加して槽内の菌体量を増加し、また硝化液循環率を増加して窒素除去効率の向上を図った(表4, Run3)。図8に水温が18℃を下回る時期の連続処理の結果を示した。処理経過日数200日頃、トラブルによって全窒素濃度(T-N)が15mg/L程となったが、その後徐々に回復し、処理水T-Nが8mg/L程度まで低下し、安定除去が可能となった。目標水質(T-N:5mg/L以下)を達成するまでには至らなかったが、原水中の窒素濃度がリアクターを設計する際に想定した窒素濃度(30mg/L)より1.3倍程度高く、負荷が高かったにもかかわらず、窒素除去率は約80%を維持し、システム上ほぼ限界まで除去することができた。原水が想定濃度範囲内であれば、ほぼ目標水質程度まで除去できると思われる。

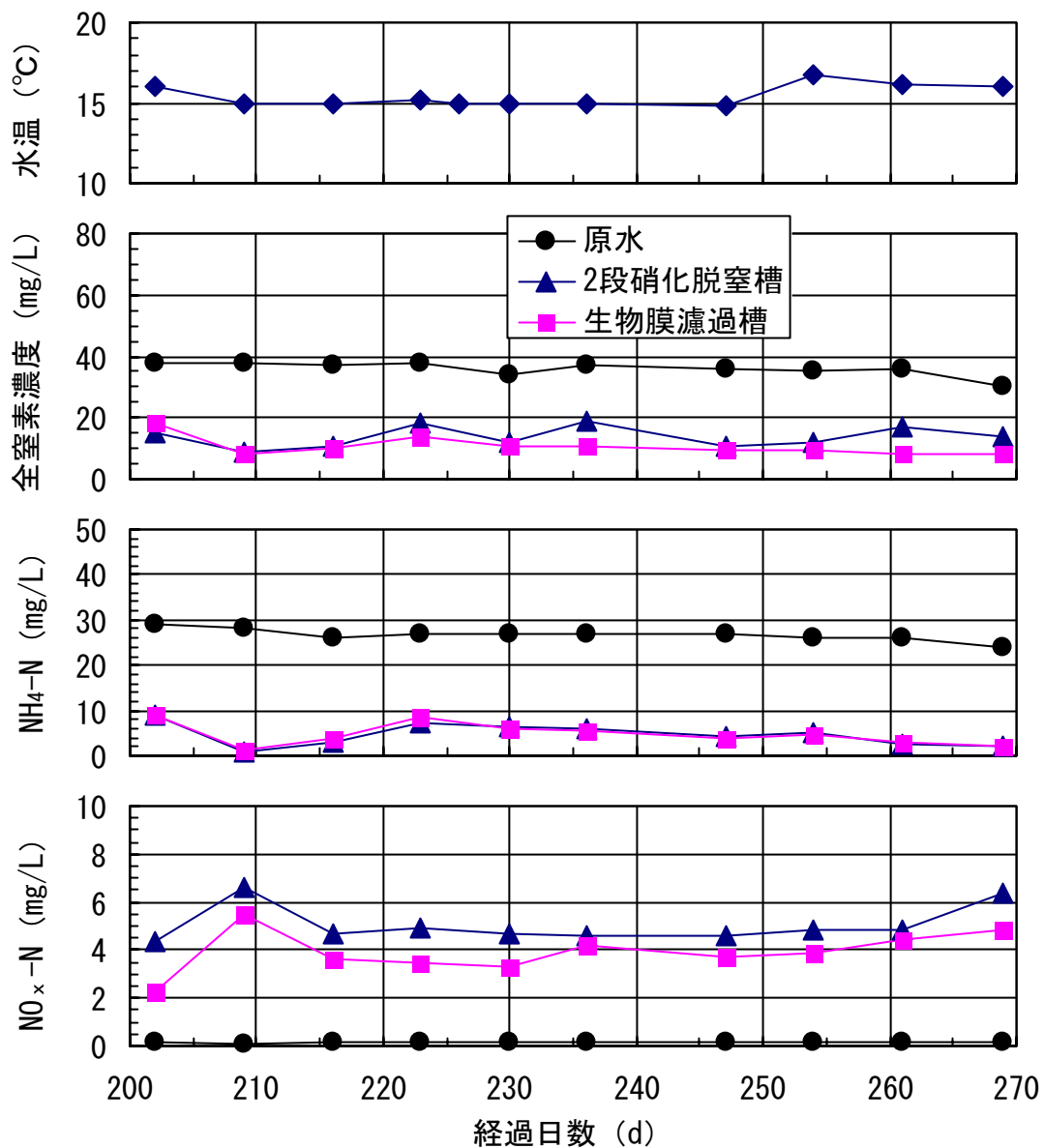


図8 ハイブリッド型リアクター処理水の窒素濃度 (水温18℃以下)

図9には、ハイブリッド型リアクター処理水の有機物濃度および浮遊懸濁物質量を示した。溶解性BOD (S-BOD) の場合、原水では30~90mg/Lの広い範囲の値を示したが、処理水は5mg/L以下であった。これは、廃水に含まれている溶解性有機物が2段硝化脱窒槽による処理で安定して除去されていることを示している。一方、SS、BODの場合、2段硝化脱窒槽と生物膜濾過槽の処理液に大きな差が認められたが、これは、2段硝化脱窒槽単独では固形性有機物の除去が不完全であり、生物膜濾過装置で補うことによって安定除去が可能となることを示している。生物膜濾過装置の処理水のSSは2mg/L以下(除去率95%以上)、BODはほぼ10mg/L以下(目標値)(除去率90%以上)を達成できた。

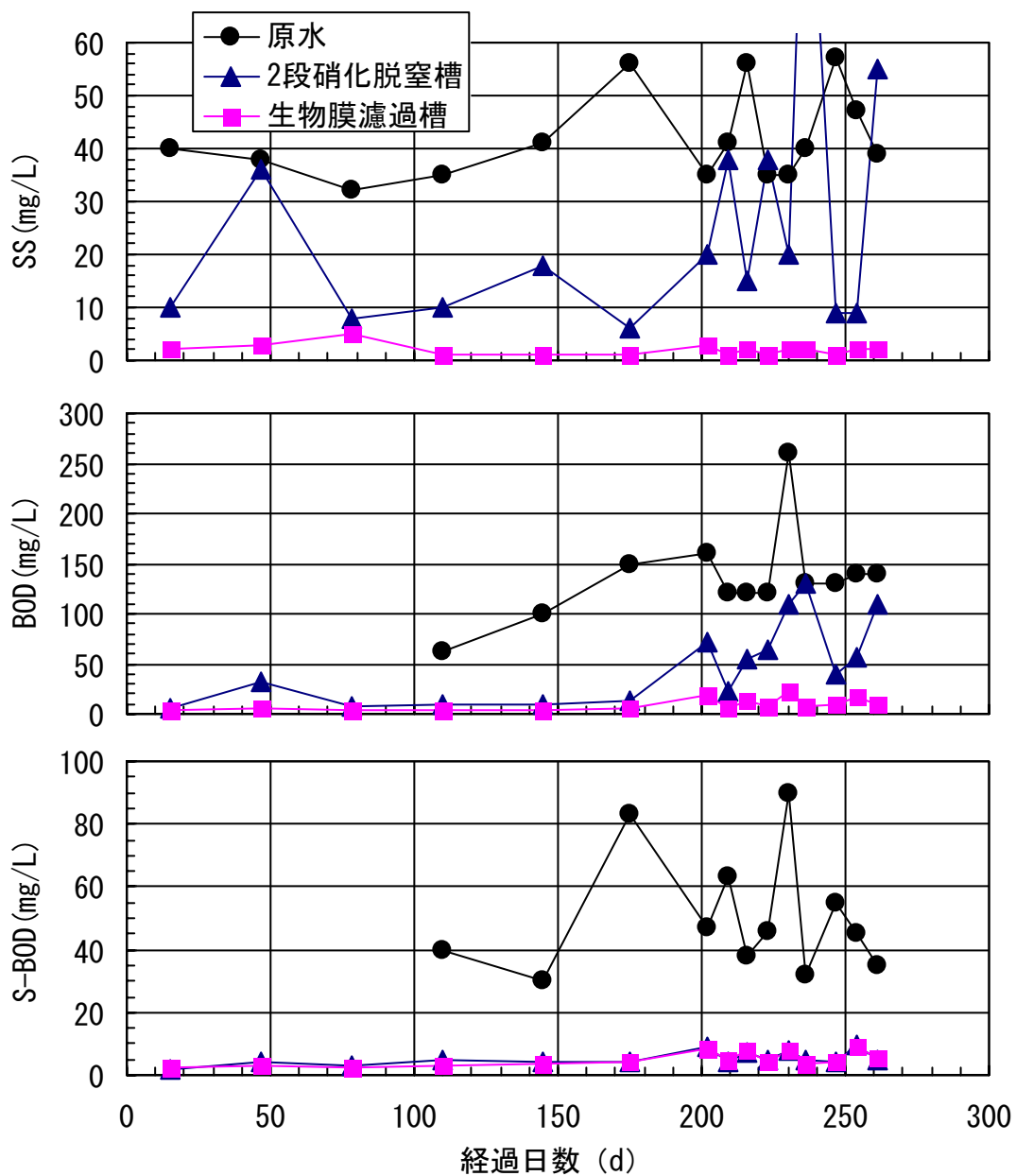


図9 ハイブリッド型リアクター処理水の有機物濃度および浮遊懸濁物質量

3-3. 考察およびフェーズⅡのまとめ

フェーズⅡでは、フェーズⅠで得られた研究成果を実用化に繋げるため、名古屋市植田下水処理場にてハイブリッド型リアクターによる実下水の連続処理実験を行った。

オンサイト実験を開始してから約1ヶ月間の馴養で窒素除去能力が発揮されるようになり、その後段階的に担体負荷を増加することで、処理時間を6時間とした連続処理が可能となった。さらに、種々の処理条件を検討して、水温が20℃を超える場合とそれ以下の場合のそれぞれに適した装置運転条件を見出し、リアクターの安定した処理能力を実証した。なお、水温が18℃以下の場合、処理水の窒素濃度を安定して5mg/L以下にすることができなかったが、原水に含まれる窒素濃度が想定した値の1.3倍量だったにも関わらず、ほぼ80%除去できたことから、低水温期でも原水窒素濃度が予想値の30mg/L程度であれば、本技術によりほぼ目標濃度にまで窒素を除去することができると推測する。

4. 成果の達成度

親水性ポリウレタン担体を充填槽方式で用いるオンサイト実験装置を設計・製作し、実下水の連続処理実験を行って、目標水質をほぼ満足する処理条件を確立した。水温が18℃以下のときの正確な処理能力が未確認ではあるが、年間を通しておおむね目標とした処理水質を安定して達成しうる装置の開発ができたと判断する。

また、下水道事業の多様なニーズに対応できるように、リアクターの標準設計にも着手した。

5. 今後の課題

今後は、実用化に向けて、ニーズに合わせたリアクターの設計を行い、実機の作製およびその性能評価を行っていくことが必要となる。