

## 〈研究発表〉

## 消化汚泥脱水分離液の脱アンモニア処理における窒素処理特性の検討

酒井孝輔<sup>1)</sup>, 福崎康博<sup>1)</sup>, 渡辺哲文<sup>1)</sup>, 後藤浩之<sup>1)</sup>  
川久保祐貴<sup>1)</sup>, Lai Minh Quan<sup>1)</sup>, 横浜市環境創造局共同研究チーム<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> ㈱明電舎 水・環境システム事業部 膜・水処理プラント部  
(〒452-8602 愛知県清須市西枇杷島町一反五畝割496-1 E-mail: sakai-ko@mb.meidensha.co.jp)

<sup>2)</sup> 横浜市環境創造局 (〒231-0017 神奈川県横浜市中区港町1-1)

## 概要

嫌気性アンモニア酸化を用いた窒素排水処理は従来型の処理と比較して低コストで高効率な技術である。海外では既に本技術が実設備として導入が始まっており、国内においても技術評価が進んでいる。横浜市と明電舎は消化汚泥脱水分離液に含まれる高濃度アンモニア性窒素を効果的に除去するために嫌気性アンモニア酸化反応を利用した1槽型回分処理(脱アンモニア処理)の共同研究を行った。今回の報告では、長期実証試験中に得られた窒素処理特性に関する様々な知見について報告する。

キーワード：嫌気性アンモニア酸化, 脱アンモニア, 高濃度アンモニア性窒素, 脱水分離液, 窒素処理

原稿受付 2015.6.30

EICA: 20(2・3) 59-62

## 1. はじめに

閉鎖性水域における富栄養化防止の観点から水質総量規制が実施され、富栄養化現象の原因物質の一つである窒素の下水処理場から公共用水域への排出負荷低減が求められている。また、地球温暖化対策として省エネルギー化やCO<sub>2</sub>排出量削減も下水処理場では課題となっている。多大な曝気動力を要する窒素処理や、その処理において発生するN<sub>2</sub>Oが持つCO<sub>2</sub>の310倍にも達する温室効果については特に大きな課題となっており、排水中の窒素を効率的に除去する処理方式の開発が期待されている。

そこで近年、嫌気性アンモニア酸化(以下、「AMX」と称す)<sup>1)</sup>を利用した新しい窒素処理方式が注目を集めている。AMX反応を利用した窒素処理では従来型の硝化脱窒法と比べて以下のような利点がある。

- 1) アンモニア性窒素(以下、「NH<sub>4</sub>-N」と称す)の全量硝化が不要であるため、必要酸素量を大幅に削減できる。
- 2) 独立栄養性の反応のため、脱窒に必要な有機物が不要となる。
- 3) 汚泥収率小さいため、余剰汚泥発生量を削減できる。

以上の利点からAMX反応を利用した窒素処理は省エネルギー化、低コスト化を望める有望な技術であり、消化汚泥脱水分離液、畜産廃液、ごみ埋立地浸出水等の高濃度窒素含有排水処理の適用が期待されている。

NH<sub>4</sub>-Nを主たる処理対象とする排水にAMX処理を適用する場合、アンモニア酸化細菌(以下、「AOB」と称す)によりNH<sub>4</sub>-Nの約半量をNO<sub>2</sub>-Nへと変換する部分重硝酸化(以下、「PN」と称す)処理が必要となる。そこで、PN処理とAMX処理を別々の槽で行う2槽型連続処理や、担体等を用いてAOBとAMX細菌を1槽の中で共存させ、PN処理とAMX処理を1槽で行う1槽型連続処理などが日本国内で研究開発および実証されてきた。

明電舎においても、これまで2槽型連続処理、固定床1槽型連続処理、1槽型回分処理(以下、「脱アンモニア処理」)<sup>2)</sup>と称す)の各AMX処理方法の実証実験を行ってきており<sup>3)</sup>、その結果、脱アンモニア処理は2槽型連続式、1槽型連続式処理と比較して窒素除去速度は高くないが、低コスト化、運転管理の容易さ、汚泥の管理などの面で優れる方式であることがわかった。また、前回の発表では無機炭素を添加した運転で窒素容積負荷(以下、「NLR」と称す)0.98 kg-N/m<sup>3</sup>/日で窒素除去率87%と安定した処理が達成できることを報告した<sup>4)</sup>。

AMX処理ではアルカリ剤としてNaOHを用いた事例もあり<sup>5)</sup>、また脱アンモニア処理では原水のアルカリ度によってはアルカリ剤を必要としない運転も可能となることが考えられることから、アルカリ剤の種類に応じた脱アンモニア処理の処理性能の把握が求められた。そこで今回、比較的安価なアルカリ剤であるNaOHを用いた「アルカリ剤NaOH運転」や、アル

カリ剤を添加しない「アルカリ剤無し運転」を行い、各運転での窒素処理性能を調査した。また、脱アンモニア処理の特性の評価のために、汚泥収率や  $N_2O$  排出量の調査を行った。

## 2. 実験装置および方法

### 2.1 原水水質

本実験では横浜市北部汚泥資源化センターの消化汚泥脱水分離液を原水として使用した。実験期間中の脱水分離液の主な水質の平均値を **Table 1** に示す。原水中の  $NH_4-N$  濃度が  $923 \text{ mg-N/L}$ 、BOD は  $27 \text{ mg/L}$  であり、C/N 比が  $0.029$  と非常に小さく、AMX 処理に適した排水であると考えられた。これらの水質は実験期間中安定して推移した。

**Table 1** Average water quality of dewatering centrate

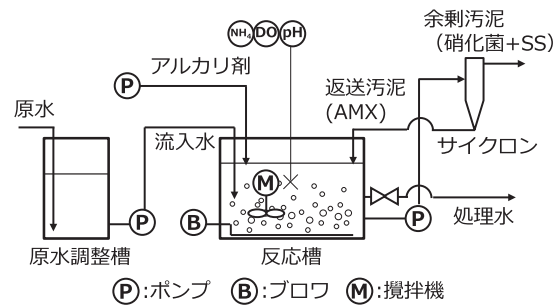
項目	平均値
全窒素	$924 \text{ mg-N/L}$
$NH_4-N$	$923 \text{ mg-N/L}$
BOD	$27 \text{ mg/L}$
$COD_{Cr}$	$280 \text{ mg/L}$
SS	$88 \text{ mg/L}$
全リン	$93 \text{ mg/L}$
アルカリ度	$3090 \text{ mg-CaCO}_3/\text{L}$
pH	7.6

### 2.2 実験装置

脱アンモニア処理の処理フローを **Fig. 1** に示す。本処理方式は回分型であり、原水調整槽、反応槽、汚泥処理用のサイクロンで構成される。反応槽は、有効容積  $6.6 \text{ m}^3$  の円筒形反応槽であり、満水時の水深は  $4.0 \text{ m}$  とした。反応槽では曝気と攪拌により好気状態と無酸素状態を交互に制御し、 $NH_4-N$  を亜硝酸性窒素（以下、「 $NO_2-N$ 」と称す）に酸化する硝化反応と、 $NH_4-N$  と  $NO_2-N$  から窒素ガスに変換する AMX 反応が同時に進行するように、低 DO 条件で脱アンモニア処理を制御した。満水位に到達し、1 サイクルの反応時間が終了した後、曝気と攪拌を停止して沈殿工程を設け、固液分離で生じた上澄みだけを処理水として排水した。そして、次のサイクルに進み同様に各工程を繰り返した。

処理に伴い、反応槽には硝化菌と AMX 細菌を主とした汚泥が増殖する。増殖速度の遅い AMX 細菌はグラニュールを形成する特性があり、より高密度な汚泥となる。一方、比較的増殖速度の速い硝化菌は軽いフロック状の汚泥を形成する。増殖速度の違いによる硝化と AMX の各活性のアンバランスを無くすため、増殖の遅い AMX 細菌を反応槽内に保持したま

ま、増殖の速い硝化菌は系外に引抜いてバランスを維持する必要がある。そこで **Fig. 1** に示すサイクロンを用い、汚泥の密度差を利用して反応槽汚泥の濃度、構成を調整し、各活性のバランスを調整した。サイクロンでは高速回転により、密度の高い AMX 汚泥はサイクロンアンダーフローから返送汚泥として反応槽内へ戻され、軽い硝化菌フロックはサイクロンのオーバーフローから余剰汚泥として排出された。



**Fig. 1** Schematic diagram of deammonification pilot plant

### 2.3 実験方法

種汚泥を植種後、窒素除去率を確認しながら、脱水分離液の通水量を段階的に増やして NLR を高めた後、目標とした NLR で一定通水量の運転を行った。1 日あたりの回分処理回数は 3 回（各  $8.0$  時間）とした。反応槽内の汚泥はサイクロンを用いて濃度、構成を適宜調整した。目標 NLR は  $0.7 \text{ kg-N/m}^3/\text{日}$ 、目標窒素除去率は  $80\%$  とした。反応槽水温は加温設備を用い  $30^\circ\text{C}$  以上を維持した。定期的に原水、流入水と処理水を採水し、**Table 1** に示す水質項目の分析を行った。

**Table 1** に示した原水中のアルカリ度は、流入  $NH_4-N$  の約半量を  $NO_2-N$  に硝化するのに不足しており、不足分を補うため、無機炭素を含むアルカリ剤を添加して運転を行う「高負荷運転」<sup>4)</sup>を行った。その後、 $8.0 \text{ M}$  の  $NaOH$  溶液を使用した「アルカリ剤  $NaOH$  運転」および、アルカリ剤を添加しない「アルカリ剤無し運転」を行い、窒素処理性に関わるアルカリ剤の影響を調査した。

また高負荷運転およびアルカリ剤無し運転期間に、各処理段階での固形物収支を取ることで汚泥収率を算出した。

$N_2O$  発生量の調査は高負荷運転期間に行い、反応槽におけるガス態  $N_2O$  および処理水の溶存態  $N_2O$  を測定して算出した。ガス態  $N_2O$  発生量は回分処理 1 サイクル中に複数回測定し、曝気中、無曝気中の  $N_2O$  濃度の最大値と曝気量、発生ガス量から算出した。溶存態  $N_2O$  発生量は処理水の溶存態  $N_2O$  濃度と通水量から算出した。

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 アルカリ剤 NaOH 運転

アルカリ剤 NaOH 運転における平均の窒素処理性能を **Table 2** に示す。運転期間平均で NLR は 0.74 kg-N/m<sup>3</sup>/日、窒素除去率は 80% と、目標 NLR, 窒素除去率ともに達成したが、前回報告の高負荷運転のような 80% を上回る高い窒素除去率は見込めなかった。独立栄養細菌である AOB は無機炭素を資化するが、それにより反応槽内無機炭素の減少、pH の低下が起こる。そこで、高負荷運転では無機炭素を含むアルカリ剤を使用することで、無機炭素の供給、槽内 pH の維持を行っていた。一方、今回用いた NaOH では槽内 pH を上昇させることはできるが、無機炭素を供給する役割を果たすことはできない。そのためアルカリ剤 NaOH 運転では窒素除去率が 80% を超えて上げていくことができなかったと考えられる。

しかしながら、安価なアルカリ剤である NaOH を用いても目標 NLR, 窒素除去率を確保できることが明らかとなった。

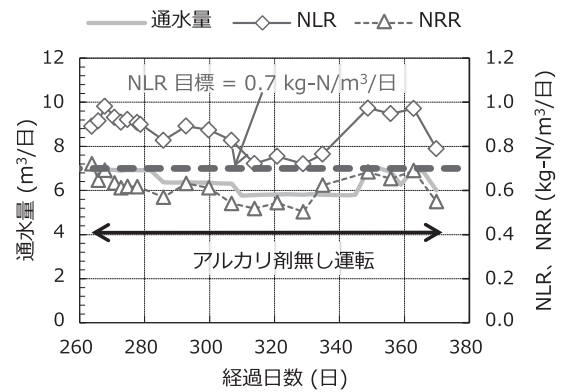
**Table 2** Nitrogen removal performance of each period

	高負荷運転 30 日間	アルカリ剤 NaOH 運転 14 日間	アルカリ剤 無し運転 106 日間
流入水全窒素 (mg-N/L)	933	866	855
処理水全窒素 (mg-N/L)	122	176	259
NLR (kg-N/m <sup>3</sup> /日)	0.98	0.74	0.87
窒素除去率 (%)	87	80	71

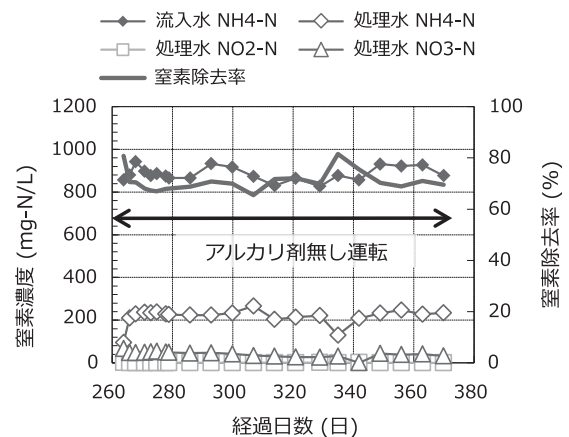
#### 3.2 アルカリ剤無し運転

アルカリ剤無し運転での平均の窒素処理性能を **Table 2** に、通水量, NLR, 窒素除去速度 (以下、「NRR」と称す) の推移を **Fig. 2** に、工程水の窒素濃度, 窒素除去率の推移を **Fig. 3** に示す。アルカリ剤を添加しないため、反応槽内の pH の上昇は、流入水の供給や AMX 反応によってしか行われず、流入水中に含まれるアルカリ度に見合う量しか硝化が進まない。その結果処理水に NH<sub>4</sub>-N が残留し、処理水の全窒素濃度は平均で 260 mg-N/L 程度となった。運転期間平均の窒素処理特性は NLR 0.87 kg-N/m<sup>3</sup>/日、窒素除去率 71% となった。

既報<sup>3)</sup>の2槽型連続処理では、PN 処理にアルカリ剤、AMX 処理に酸剤の2液が必要となる。1槽型連続処理では、PN 処理で消費したアルカリ度が AMX 処理で半量ほど回復するため、アルカリ剤のみが必要となるが、pH の一定目標値制御が必要であったため、残留するアルカリ度が高く、アルカリ剤の消費が多い。



**Fig. 2** Time courses of influent flow, NLR and NRR under no alkali dosing period



**Fig. 3** Time courses of nitrogen concentrations and removal efficiency under no alkali dosing period

これに対し、脱アンモニア処理では、アルカリ剤の添加無しの運転においても 70% 程度の窒素除去が可能となることが明らかとなった。アルカリ剤添加なしでの運転を許容できれば、薬剤コストの大幅な削減が可能となることに加え、アルカリ剤の添加設備が不要となる。

以上の結果から、窒素除去率が 70% と若干低下するが薬剤コストを大幅に抑えることができるアルカリ剤無し運転、安価なアルカリ剤 NaOH を用いることで目標の窒素除去率 80% を達成することができるアルカリ剤 NaOH 運転、ランニングコストが高くなるが 87% の高い窒素除去率を達成できる既報の高負荷運転と、3つの運転方式を確立することができた。

#### 3.3 汚泥収率

AMX 細菌は倍加時間が遅いため、従来型の硝化脱窒法と比べて汚泥発生量が少ないことが AMX 処理の利点として挙げられている。脱アンモニア処理の海外の事例では除去窒素当たりの汚泥収率が 0.12 kg-SS/kg-N と報告されているが<sup>2)</sup>、日本国内の消化汚泥脱水分離液において脱アンモニア処理の汚泥収率を調査した事例は無い。そこで固形物収支を取り、汚泥収

率を算出した。

その結果、汚泥収率は高負荷運転期間で  $0.12 \text{ kg-SS/kg-N}$ 、アルカリ剤無し運転期間で  $0.13 \text{ kg-SS/kg-N}$  と算出された。これは海外の事例とも近い値となっており、脱アンモニア処理の汚泥発生量の低さが確認できた。

### 3.4 窒素収支

脱アンモニア処理により除去される窒素の動態を評価し、汚泥や  $\text{N}_2$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  ガス等への転換率を把握するため、プロセス全体の窒素収支の調査を行った。

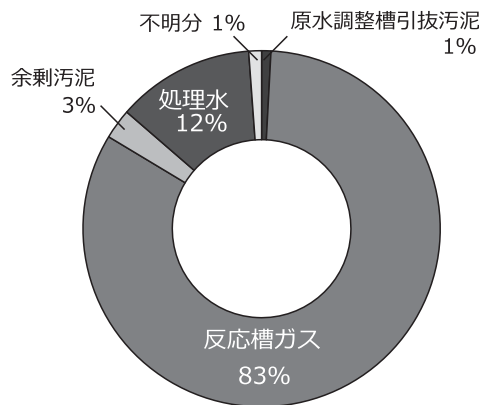


Fig. 4 Portion of nitrogen in deammonification process

原水中の窒素濃度に対する窒素の転換先の内訳を Fig. 4 に示す。原水中の窒素の 1% は原水調整槽からの引抜汚泥として排出され、98% は反応槽に流入した。反応槽に流入した 98% の窒素は 3% が汚泥へと転換され、12% が処理水として排出された。そして残りの 83% は  $\text{N}_2$  や  $\text{N}_2\text{O}$  としてガスへと転換され ( $\text{N}_2$ : 82%,  $\text{N}_2\text{O}$ : 0.47%), 除去窒素当たりの  $\text{N}_2\text{O}$  転換率は 0.61% となった。この  $\text{N}_2\text{O}$  転換率の結果は、明電舎が実施した 2 槽型連続処理、1 槽型連続処理における  $\text{N}_2\text{O}$  転換率 (いずれも 3.0%) と比較しても低い値であった。反応槽内の  $\text{NO}_2\text{-N}$  が高い場合に  $\text{N}_2\text{O}$  が多く発生するという報告<sup>6)</sup>があるが、脱アンモニア処理では AOB により生成された  $\text{NO}_2\text{-N}$  が速やかに AMX 細菌に利用され、反応槽内で  $\text{NO}_2\text{-N}$  が高濃度に蓄積しないように PN 反応を制御するため、 $\text{N}_2\text{O}$  転換率が低くなったものと推測された。

以上の結果より除去窒素の多くはガスに転換され、汚泥として固定される分は少ないこと、また脱アンモニア処理は  $\text{N}_2\text{O}$  発生量が低い処理方式であることが

明らかとなった。

## 4. ま と め

脱アンモニア処理による消化汚泥脱水分離液のパイロット処理実験を行った結果、以下のことが明らかとなった。

- 1) 比較的安価なアルカリ剤 NaOH を添加した運転においても  $\text{NLR } 0.74 \text{ kg-N/m}^3/\text{日}$ 、窒素除去率 80% を達成できることが示された。
- 2) アルカリ剤の添加無しの運転においては  $\text{NLR } 0.87 \text{ kg-N/m}^3/\text{日}$ 、窒素除去率 71% となり、原水のアルカリ度によっては、薬剤コストを大幅に削減でき、薬剤供給設備の不要な運転が可能となることが示された。
- 3) 脱アンモニア処理での除去窒素当たりの汚泥収率は  $0.12\text{--}0.13 \text{ kg-N/m}^3/\text{日}$  となり、汚泥発生量が非常に少ないことが確認された。
- 4)  $\text{N}_2\text{O}$  排出量の調査から、 $\text{N}_2\text{O}$  転換率は 0.61% であり、脱アンモニア処理は  $\text{N}_2\text{O}$  発生量が非常に低い処理方式であることが明らかとなった。

## 参考文献

- 1) A. Mulder, A. A. van de Graaf, L. A. Robertson and J. G. Kuenen : Anaerobic ammonium oxidation discovered in a denitrifying fluidized bed reactor, *FEMS Microbiol. Ecol.*, Vol. 16, No. 3, pp. 177-183 (1995)
- 2) B. Wett: Solved upscaling problems for implementing deammonification of rejection water, *Water Sci. Technol.*, Vol. 53, No. 12, pp. 121-128 (2006)
- 3) 渡辺哲文, 中村安宏, 福崎康博, 川久保祐貴, Lai Minh Quan, 高瀬長武, 末永敦士, 中村永秀, 小松弘明, 望月ゆか: 嫌気性アンモニア酸化反応を利用した窒素除去における処理方式の比較検討, 第 50 回下水道研究発表会講演集, pp. 853-855 (2013)
- 4) 渡辺哲文, 川久保祐貴, Lai Minh Quan, 福崎康博, 中村安宏, 後藤浩之, 中村永秀, 石田隆二, 望月ゆか: 脱アンモニア処理による下水消化汚泥脱水分離液の高濃度窒素処理の検討, 第 26 回環境システム計測制御学会 (EICA) (2014)
- 5) 地方共同法人 日本下水道協会: アナモックス反応を利用した窒素除去技術の評価に関する報告書 (2010)
- 6) M. J. Kampschreur, W. R. L. van der Star, H. A. Wielders, J. W. Mulder, M. S. M. Jetten and M. C. M. van Loosdrecht : Dynamics of nitric oxide and nitrous oxide emission during full-scale reject water treatment, *Water Res.*, Vol. 42, No. 3, pp. 812-826 (2008)