

# 博 士 論 文 概 要

## 論 文 題 目

新規生物学的栄養塩除去プロセスの開発および  
制御手法に関する研究

Design and control of a new biological nutrient removal process

申 請 者

副島	孝一
Koichi	Soejima

応用化学専攻 化学工学研究

2008 年 2 月

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、さまざま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。そのため我が国も、窒素・リンの排出に関して水質総量規制などの厳しい基準が設けられている。これらの問題解決には、さまざまな産業から排水中の窒素・リンを除去する技術、すなわち高度処理技術の普及が必要不可欠である。しかしながら、高度処理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、大規模の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、さまざま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。上記プロセス開発およびシミュレーションモデル構築のためには、単一処理槽内で複数の微生物を制御できるリアクターの開発および既存活性汚泥モデルの応用の2点が挙げられる。

以上の背景を踏まえ、本論文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、長期間に渡る安定した除去性能維持の実現をめざした。また、外部添加基質の違いや添加条件の違いが本プロセスの窒素・リン除去率におよぼす影響を調べ、適切な基質と添加時期を探索した。さらに、栄養塩除去を担う微生物群の群集構造を追跡し、処理性能との関係について考察した。一方、活性汚泥モデルを拡張した AOA プロセスモデルを構築し、その窒素・リン除去性能の予測に取り組んだ。

本論文は6章より構成されている。以下に各章の概要について述べる。

第1章では、栄養塩除去の必要性、および生物学的栄養塩除去プロセスに関する既往の知見および問題点を概説し、本研究の目的と意義を明らかにした。

第2章では、AOA プロセスを1年以上に渡り長期間運転した際の窒素・リン除去率変動を測定し、本プロセスの安定性と有用性の高さについて検討を行った。本プロセスは、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（denitrifying polyphosphate-accumulating organisms: DNPAOs）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脱窒性リン蓄積細菌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、単一処理槽での窒素・リン同時除去が達成される。本研究では、脱窒性リン蓄積細菌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、無酸素条件下での脱窒性リン

蓄積細菌による窒素・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。その結果、本手法による窒素・リン除去率はそれぞれ 83%, 92%となった。また、本プロセス稼動中のリン蓄積細菌 (PAOs) に対する脱窒性リン蓄積細菌の割合をリン取り込み活性比により算出した結果、既存の高度処理プロセスである嫌気/無酸素/好気 ( $A_2O$ ) プロセスならびに嫌気/好気 (A/O) プロセスよりも、本プロセスの脱窒性リン蓄積細菌の優占率が高められることが明らかとなった。

第3章では、第2章の成果を基に AOA プロセスの良好な窒素・リン除去性能を維持するために必要な制御手法の検証を行った。良好な脱窒性リン蓄積細菌 (DNPAOs) 活性を維持するために必要な外部添加基質ならびに添加条件を検証するため、①好気条件初期に炭素源添加を行う現行の AOA プロセス、②脱窒を主に従属栄養性脱窒菌に担わせるため、無酸素条件初期に炭素源を添加したプロセス、③好気条件でのリン取り込み阻害を起こすため、好気条件初期に亜硝酸の添加を行った各プロセスについて、窒素・リン除去率の比較検証を行った。その結果、現行の AOA プロセスと比較して、無酸素条件初期に炭素源の添加を行うことでリン除去率が低下し、好気条件初期に亜硝酸を添加することで窒素除去率が低下した。また、各プロセスにおける微生物叢変化を *Fluorescence in situ hybridization* (FISH) 法によって検証した。その結果、亜硝酸の添加によってリン蓄積細菌の優占率が低下することがわかった。さらに、本プロセスでは、リン除去性能に悪影響をおよぼすことが確認されているグリコーゲン蓄積細菌 (GAOs) がほとんど出現しないことも明らかとなった。また、リン取り込み活性試験から、好気条件初期に炭素源添加を行う現行の AOA プロセスは、無酸素条件でのリン取り込み量を高めることもわかった。これらの結果より、好気条件初期に炭素源添加を行う現行の AOA プロセスは、脱窒性リン蓄積細菌の優占率を高めることで効率的な窒素・リン除去を達成することが立証された。

第4章では、実作業現場で AOA プロセスを良好に稼動させるために必要なシミュレーションモデルの構築を行った。従属栄養細菌、硝化細菌、リン蓄積細菌を対象細菌とし、 $COD$ ,  $NH_4^+-N$ ,  $NO_x^- -N$ ,  $PO_4^{3-}-P$  を対象基質とした。国際水協会 (IWA) が推奨している Activated Sludge Model No.2d (ASM2d) および Activated Sludge Model No.3 (ASM3) を拡張して AOA プロセスモデルを構築した。なお、シミュレーションソフトは AQUASIM を利用した。このモデルの構築にあたり、「炭素源の添加による好気条件下でのリン蓄積細菌のリン取り込み阻害」を、リン蓄積細菌によるリン取り込みを阻害関数 ( $\eta_c$ ) として新たに定義した。また、リン取り込み速度の実験結果から、炭素源添加濃度とリン取り込み阻害比の間で高い相関を示すことがわかった。その結果、阻害関数は簡略化でき、シンプルな数式で表されることが明らかになった。本モデルを、好気条件初期時の炭素源添加濃度をそれぞれ  $0.0 \text{ mg-C} \cdot l^{-1}$ ,  $28.0 \text{ mg-C} \cdot l^{-1}$ ,  $68.0 \text{ mg-C} \cdot l^{-1}$  に振り分けた系で、本モデルによるワン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

測定試験値とほぼ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。

第5章では、異なる排水組成に対して良好な窒素・リン除去を達成するために必要とされる外部添加炭素源の最適濃度の検証を行っている。全窒素濃度（TN）が 20.0mg-N/l, 40.0mg-N/l であるような C/N 比の異なる排水を用いて、好気条件初期の炭素源の添加濃度をそれぞれ 0.0 mg-C/l, 11.0 mg-C/l, 22.5 mg-C/l, 45.0 mg-C/l と段階的に振り分け、各 AOA プロセスを汚泥滞留時間の 3 倍の期間運転を行った。その結果、所望の有機物・窒素・リン除去率を得るために必要な炭素源添加濃度は流入 C/N 比に依存し、TN: 20 mg-N/l では 22.5 mg/l, TN: 40 mg-N/l では 45.0 mg/l となること明らかにした。

また、各段階の微生物叢を FISH 法によって検証した結果、すべての炭素源添加条件下においてリン蓄積細菌の占有率が高く、リン蓄積細菌と競合するといわれているグリコーゲン蓄積細菌はほとんど出現しないことを明らかにした。さらにリン取り込み活性試験から、脱窒性リン蓄積細菌の占有率が高い AOA プロセスほど窒素・リン除去能が高いことを明らかにした。本結果より、流入水の C/N 比に応じて好気条件初期時の炭素源添加濃度を変化させ、リアクター内の脱窒性リン蓄積細菌を優占化させる制御手法の開発に成功した。

第6章では、本論文の総括および展望を記述している。

以上、本論文では単一槽型栄養塩除去プロセスの低コスト化およびコンパクト化を達成するための手段として、AOA プロセスの開発と制御手法の検討を行った。そして、長期間に渡る安定した窒素・リン除去率の除去性能を維持することに成功した。また、AOA プロセスのシミュレーションモデルを構築し、実作業現場における除去性能の予測を可能にした。本研究で開発された AOA プロセスならびにシミュレーションモデルは、さまざまな産業分野において生物学的栄養塩除去プロセスの普及を促すと期待される。

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

氏名 副島 孝一 印

(2008 年 2 月 現在)

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
論文 ○	<p>(1) （報文） <u>Koichi Soejima</u>, Shinya Matsumoto, Satoshi Ohgushi, Kensuke Naraki, Akihiko Terada, Satoshi Tsuneda, Akira Hirata Modeling and experimental study on the anaerobic/aerobic/anoxic process for simultaneous nitrogen and phosphorus removal: The effect of acetate addition <i>Process Biochemistry (accepted)</i></p>
○	<p>(2) （報文） <u>Koichi Soejima</u>, Kazuma Oki, Akihiko Terada, Satoshi Tsuneda, Akira Hirata Effects of acetate and nitrite addition on fraction of denitrifying phosphate-accumulating organisms and nutrient removal efficiency in an anaerobic/aerobic/anoxic process <i>Bioprocess and Biosystems Engineering</i>, 29, 305-313 (2006)</p>
	<p>(3) （報文） Satoshi Tsuneda, Takashi Ohno, <u>Koichi Soejima</u>, Akira Hirata Simultaneous nitrogen and phosphorus removal using denitrifying phosphate-accumulating organisms in a sequencing batch reactor <i>Biochemical Engineering Journal</i>, 27, 191-196 (2006)</p>
	<p>(4) （報文） 常田聡, 大野高史, <u>副島孝一</u>, 平田彰 ステップ流入式嫌気/好気/無酸素プロセスによる窒素・リン同時除去 用水と廃水, 47 (3), 56-62 (2005)</p>
総説	<p>(1) 常田聡, 大野高史, <u>副島孝一</u>, 平田彰 脱窒性リン蓄積細菌を利用した下水処理技術およびリン資源回収の可能性 環境バイオテクノロジー学会誌, 4 (2), 95-99 (2005)</p>

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
講演 (国際会議)	<p>(1) <u>Koichi Soejima</u>, Kazuma Oki, Satoshi Tsuneda, Akira Hirata  Effects of composition and injection stage of additional substances on nutrient removal efficiency of the anaerobic/aerobic/anoxic process  <i>International Symposium on Environmental Biotechnology</i>, Leipzig, Germany (July, 2006)</p>
講演 (国内)	<p>(1) <u>副島孝一</u>, 松本慎也, 常田聡, 平田彰  脱窒性リン蓄積細菌を利用した AOA プロセスにおける炭素源添加によるリン取込み阻害モデルの確立  第 41 回日本水環境学会年会, 大阪 (2007 年 3 月発表)</p> <p>(2) <u>副島孝一</u>, 常田聡, 平田彰  脱窒性リン蓄積細菌を利用した AOA プロセスにおける添加基質と添加条件変化による挙動解析  第 40 回日本水環境学会年会, 仙台 (2006 年 3 月発表)</p> <p>(3) <u>副島孝一</u>, 常田聡, 平田彰  脱窒性リン蓄積細菌を利用した有機物・窒素・リン同時除去プロセスの開発  ー添加炭素源濃度と除去率との関係解析ー  第 39 回日本水環境学会年会, 千葉 (2005 年 3 月発表)</p>