

博士論文審査報告書

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、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。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、様々な排水中の窒素・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、様々な産業分野での環境負荷低減につながり、その意義は非常に大きいといえる。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。特にシミュレーションモデルの確立は、運転の制御に役立つことから工学的意義は極めて大きいといえる。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拡張の2点が挙げられる。

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、長期間にわたる安定した除去性能維持を実証している。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・リン除去率に及ぼす影響を調べ、適切な基質と添加時期を探索している。一方で、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ている。さらに、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でいる。

本論文は 6 章より構成されている。以下に各章の審査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ている。

第 2 章では、AOA プロセスを長期間運転した際の窒素・リン除去率変動を示し、本プロセスの安定した除去性能と有用性の高さを実証している。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、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 DNPAOs 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で、単一槽での窒素・リン同時除去が達成される。本研究では、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 DNPAOs による窒素・リン同時除去を促進させる制御手法の開発に成功している。そして、本手法による窒素・リン除去率がそれぞれ 83%、92%となることを明らかにしている。さらに、本プロセス稼働中の

リン蓄積細菌 (PAOs) に対する DNPAOs の割合をリン取り込み活性比により算出した結果, 既存の栄養塩除去プロセスである嫌気/無酸素/好気 (A₂O) 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 DNPAOs 占有率の方が高いことを見出している。

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討を行っている。良好な 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通常の AOA プロセス, ②主に従属栄養性脱窒菌に脱窒を担わせるため, 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ている。その結果, 通常の 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することを明らかにしている。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, 亜硝酸の添加によって PAO 占有率が低下することを明らかにしている。さらに, 本プロセスでは, リン除去性能に悪影響を及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示している。これらの結果は, 好気条件初期に炭素源添加を行う AOA プロセスが, DNPAOs の占有率を高め効率的な窒素・リン除去を達成することを実証している。本プロセスが DNPAOs を優占化させるプロセスであることを微生物生態学的に証明した点は, 今後のリン除去プロセスの開発を進める上で極めて意義深い。

第 4 章では, 実作業現場で AOA プロセスを良好に稼働させるために国際水協会 (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ている。従属栄養細菌, 硝化細菌, PAO を対象細菌とし, COD, NH₄⁺-N, NO_x⁻-N, PO₄³⁻-P を対象基質としている。なお, シミュレーションソフトは AQUASIM を利用している。ここで特筆すべきは, 本モデルの構築にあたり, 従来モデルだけでは考慮できない「炭素源添加による好気条件下の PAOs のリン取り込み阻害」を, 阻害関数 (η_c) として新たに定義し, その阻害現象の簡略化に成功している点である。つぎに, 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, 本モデルによる 1 サイクルの水質シミュレーションを行った結果, 実測値とほぼ一致することを示し, 阻害関数およびモデルの妥当性を立証している。好気条件下でのリン取り込み阻害という AOA プロセス独自の制御手法を考慮した独創的な水質シミュレーションモデルを構築できたことにより, 様々な排水組成に応じた適切な炭素源添加濃度の予測が可能となり, 実現場への導入がさらに加速されるものと考えられる。

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倍の期間運転している。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ている。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 PAOs の占有率が高く、PAOs と競合すると言われている GAOs はほとんど出現しないことを明らかにしている。さらに、リン取り込み活性試験から、DNPAOs 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ている。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 DNPAOs を優占化させる制御手法の開発に成功した点は、実用的観点から極めて意義深い。

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、単一槽型の AOA プロセスの開発に取り組んだ結果をまとめている。この新しい栄養塩除去プロセスの開発に成功した点は、排水処理工学分野を含めたバイオエンジニアリング分野全体に対しての波及効果が大きく、今後様々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。さらに、本プロセスを導入した際の実作業環境下における安定化制御と稼動状況の正確な把握のためにシミュレーションモデルを採り入れた予測制御手法を提唱している点は独創的である。以上の研究成果は、水環境工学および環境微生物学の発展に大いに寄与することが期待される。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。

2008年2月

審査員（主査）	早稲田大学教授	博士（工学）東京大学	常田 聡
	早稲田大学教授	工学博士（早稲田大学）	酒井清孝
	早稲田大学教授	工学博士（早稲田大学）	平沢 泉