

# 亜硝酸型硝化時及び栄養塩管理運転時の りん蓄積細菌の挙動調査

建設局下水道部計画課

## 1. 調査内容

一般的な生物学的りん除去では嫌気条件でりんの吐き出し、好気条件でりんの取り込みを行う好気性りん蓄積細菌(以下、好気性 PAOs)の働きを利用しているが、近年、硝酸存在下の無酸素条件でりんの取り込みを行う脱窒性りん蓄積細菌(以下、DN-PAOs)の存在が報告されている<sup>1)</sup>。DN-PAOs は代謝の過程で硝酸を利用するため、好気性 PAOs と比較して曝気量の低減等が期待されているが、その挙動は不明な点が多い。本調査は様々な処理状況の活性汚泥を用いてりん除去試験を行い、DN-PAOs 及び好気性 PAOs がどのような挙動を示すか調査することを目的としている。

まず、分場 1 系で亜硝酸型硝化が発生している東灘処理場にて、分場 3 系と比較することにより残留亜硝酸が PAOs に及ぼす影響を調査した。次に、栄養塩管理期にある垂水処理場で、脱窒抑制運転を行う 1 系と硝化抑制運転を行う 2 系に存在する PAOs の挙動を調査した。これら 2 回の調査結果を報告する。

## 2. 東灘処理場での調査

### 2-1. 調査概要

処理水に残留する亜硝酸が PAOs の活性に影響を及ぼすと言われている。また、その影響は好気性 PAOs と DN-PAOs で異なると言われている<sup>2)</sup>。そこで、亜硝酸型硝化が発生している東灘処理場分場 1 系の汚泥を用いて、残留亜硝酸が及ぼす影響を調査した。

### 2-2. 試験条件

東灘処理場の最初沈殿池の流出水(以下、東初沈流出水)を 4 つのポリビーカーにとり、それぞれに pH 緩衝剤として炭酸水素ナトリウムを 240 mg/L となるように加えた。また硝化による酸素消費を抑えるためアシルチオ尿素(ATU)を 4.0 mg/L となるように加えた。4 つの東初沈流出水のうち 2 つに亜硝酸型硝化が発生している分場 1 系の返送汚泥を加えた(条件①、②)。また比較として、残る 2 つの東初沈流出水に硝化が完全に進行している 3 系返送汚泥を加えた(条件③、④)。

混合直後から 60 分間攪拌して嫌気状態を保った。混合から t=0, 15, 30, 60 分に採取し、孔径 1 $\mu$ m のガラス繊維ろ紙でろ過した。その後、条件①、③には硝酸態窒素が 20 mg/L になるよう硝酸ソーダを添加し、そのまま攪拌した。また条件②、④は 60 分間の攪拌後、曝気を行なった。条件①-④の概略図を図 1 に示す。各操作後、t=75, 90, 120, 180 分に採取し、

孔径  $1\mu\text{m}$  のガラス繊維ろ紙でろ過した。

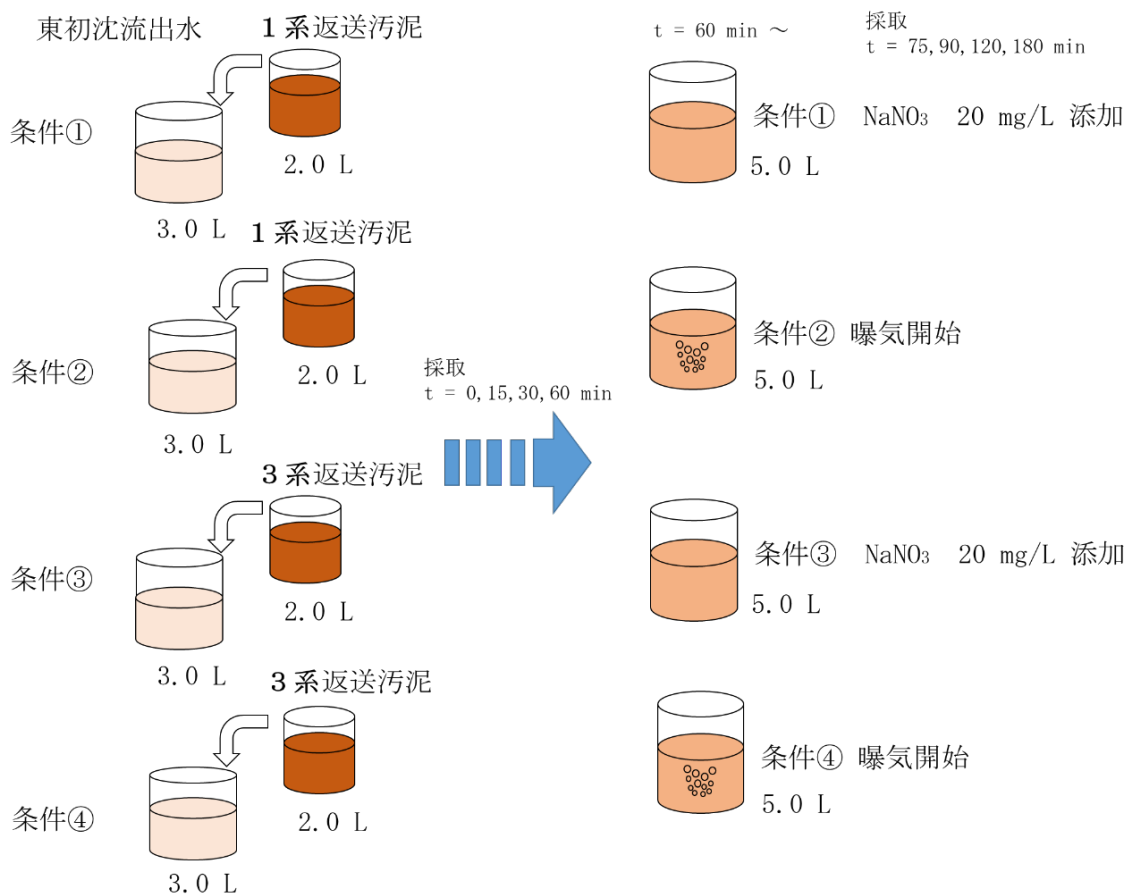


図1：試験概略図

## 2-3. 結果・考察

各条件のりん酸態りん、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素の経時変化を示したグラフを下の図2に示す。

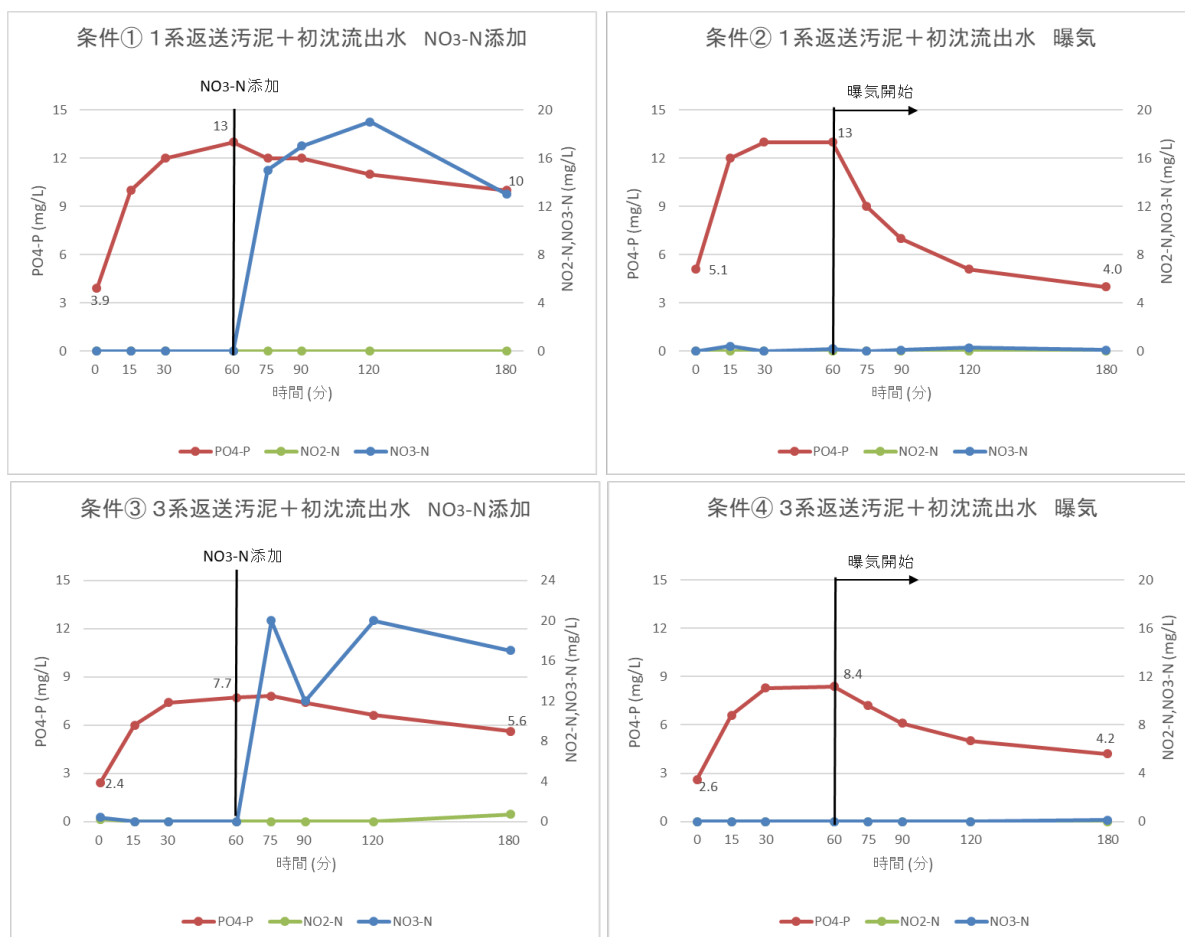


図2：各条件でのりん酸態りん、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素の経時変化

### (1) PAOsによるりんの放出・摂取について

条件①-④のいずれの条件でも、試験開始 60 分間の攪拌でりん酸態りんの濃度上昇が見られ、60 分時以降の各条件でりん酸態りんの減少が確認された。これは PAOs が嫌気条件でりんを放出し、それに続く無酸素条件や好気条件でりんを摂取したことを示している。

このうち、条件②、④の曝気後に見られたりん摂取は一般的な活性汚泥法のりん除去に用いられる好気性 PAOs によるものである。これに対し、条件①、③では硝酸存在下の無酸素条件でりんの摂取が起きている。これはりん摂取に硝酸を用いる DN-PAOs によるものであり、1系と3系ともに存在することが確認された。

(2)分場 1 系および 3 系の PAOs によるりん摂取速度の比較について

各系列の好気性 PAOs, DN-PAOs のりん摂取速度を比較するため、60 分時の各操作から 180 分時の試験終了までのりん酸態りんの減少量と各試料の MLSS からりんの摂取速度を算出した。算出結果を表 1 に示す。

表 1 : 各条件での MLSS 及びりん摂取速度

(単位 MLSS, PO<sub>4</sub>-P 減少量 : mg/L, りん摂取速度 : mg-PO<sub>4</sub>-P/(g-MLSS・h))

	条件①	条件②	条件③	条件④
MLSS	1800	1900	1700	1800
PO <sub>4</sub> -P 減少量	3.0	9.0	2.1	4.2
りん摂取速度	0.84	2.4	0.62	1.2

りん摂取速度 = (60 分時 ~ 180 分時の PO<sub>4</sub>-P 減少量)/(MLSS 濃度・時間)

DN-PAOs によるりん摂取速度を比較すると、条件①(0.84 mg-PO<sub>4</sub>-P/(g-MLSS・h))の方が、条件③(0.62 mg-PO<sub>4</sub>-P/(g-MLSS・h))よりも大きかった。これは、完全に硝化が進行している分場 3 系よりも、亜硝酸型硝化が発生している分場 1 系に存在する DN-PAOs のりん摂取速度が大きいことを意味する。

次に、好気性 PAOs によるりん摂取速度を比較すると、条件②(2.4 mg-PO<sub>4</sub>-P/(g-MLSS・h))の方が、条件④(1.2 mg-PO<sub>4</sub>-P/(g-MLSS・h))よりも大きかった。好気性 PAOs についても、DN-PAOs と同様、分場 3 系よりも、分場 1 系のりん摂取速度が大きかった。

DN-PAOs、好気性 PAOs とともに分場 1 系の方が分場 3 系より、りん摂取速度が大きくなった。この結果は亜硝酸型硝化が PAOs に悪影響を及ぼすという既報と異なる。これは、実施設では分場 1 系の亜硝酸は速やかに脱窒されることにより、PAOs への悪影響が少なかったものと考えられる。

これに対し、完全硝化している分場 3 系では、返送汚泥由来の硝酸により反応タンク第 1 区画の嫌気性が保たれず、脱窒と PAOs によるりんの吐出が有機物の摂取で競合する不利な条件であったと考えられる。

尚、今回の調査では条件②、④は最終的にりん酸態りんの濃度が同程度であったが、曝気時間を延長していた場合、りん摂取速度が大きかった 1 系の方が、より低い濃度になったと考えられる。

### (3)各系列の DN-PAOs の存在割合について

好気条件でのりん摂取速度と無酸素条件でのりん摂取速度の比が PAOs 全体(好気性 PAOs と DN-PAOs の合計)に占める DN-PAOs の割合をよく反映しているという報告がある<sup>3)</sup>。これに基づき、各系列の DN-PAOs, 好気性 PAOs の存在割合を算出すると表 2 のとおりとなった。

表 2 : 各系列での DN-PAOs、好気性 PAOs の存在割合

	分場 1 系	分場 3 系
DN-PAOs	35%	53%
好気性 PAOs	65%	47%

(2)の結果より、3系の方が PAOs にとって不利な条件であるにもかかわらず、DN-PAOs 割合を算出すると、1系が 35%、3系が 53%と 3系の方が大きい結果となった。この結果を既報と関連付けて以下のように考察する。

亜硝酸型硝化が PAOs に悪影響を及ぼすという報告<sup>2)</sup>において、好気性 PAOs に比べて DN-PAOs に対して亜硝酸存在下での悪影響が少ないという記述がある。同様に、返送汚泥由来の硝酸で嫌気性が確保されていない 3 系の悪条件は、DN-PAOs より好気性 PAOs に多くの悪影響を与えているのではないかと考えられる。

## 3. 垂水処理場での調査

### 3-1. 調査概要

垂水処理場本場では 10 月から 4 月に栄養塩管理運転を行っており、1系で脱窒抑制運転、2系で硝化抑制運転をそれぞれ実施している。今回、運転状況の異なるこれら 2 つの系に存在する好気性 PAOs や DN-PAOs について、りん吐出・摂取の挙動を調査したので報告する。

### 3-2. 試験方法

垂水処理場本場 1 系と 2 系の初沈流出水を等量混合した混合初沈流出水に各返送汚泥を加えた混合試料(1系: I、2系: II)で試験を行った。混合試料にはあらかじめ pH 緩衝剤として炭酸水素ナトリウムを加え 240 mg/L とし、硝化による酸素消費を抑制するためアシルチオ尿素(ATU)を加え 2.0 mg/L とした。

混合直後より試料を攪拌して嫌気状態を保った。混合から t=0, 15, 30, 60, 90 分に採取し、孔径 1 μm のガラス繊維ろ紙でろ過した。90 分間の攪拌後、混合試料をそれぞれ 3 つに分割した。分割後、それぞれの試料に 1)硝酸ナトリウム 20 mg/L 添加(条件①、④) 2)亜硝酸ナトリウム 20 mg/L 添加(条件②、⑤) 3)曝気(条件③、⑥)を行った。各操作後、t=105, 120, 150, 210, 270 分に採取し、孔径 1 μm のガラス繊維ろ紙でろ過した。試験の概略

図を下の図3に示す。

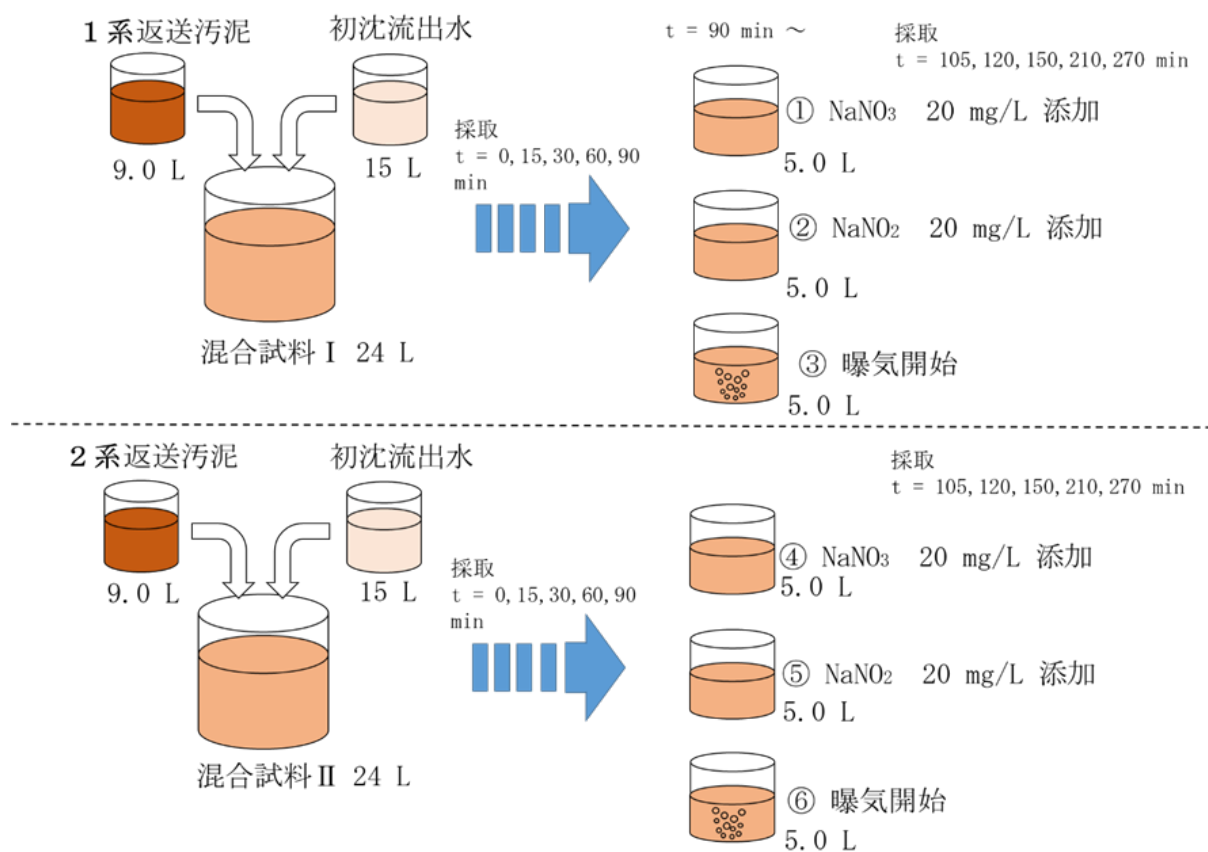


図3：試験概略図

### 3-3. 結果・考察

#### (1) 返送汚泥の比較について

試験に供した1系、2系の返送汚泥の各種項目の分析結果を表3に示す。脱窒抑制運転を行っている1系ではアンモニア態窒素や亜硝酸態窒素がほとんど存在しておらず、硝酸態窒素が残留している。また硝化抑制運転を行っている2系ではアンモニア態窒素が残留しており、亜硝酸態窒素や硝酸態窒素がほとんど存在していないことから、硝化が起きていないことを確認した。

表3：返送汚泥の分析結果

分析項目	MLSS	NH <sub>4</sub> -N	NO <sub>2</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	PO <sub>4</sub> -P
1系返送汚泥	6000	0.7	<0.1	2.6	3.0
2系返送汚泥	4100	29	0.2	<0.1	4.4

## (2) 混合試料 I と II の比較について

嫌気状態とした混合試料 I と II のりん酸態りんの経時変化を図 4 に示す。この結果からりんの吐出速度を算出すると、I が  $0.63 \text{ mg-P04-P}/(\text{g-MLSS} \cdot \text{h})$ 、II が  $1.7 \text{ mg-P04-P}/(\text{g-MLSS} \cdot \text{h})$  であり、II の方がりんがよく吐き出されていた。また、I が 90 分に至るまでにりんの上昇が頭打ちになり吐き出しが終了しているのに対し、II は 90 分で増加傾向であった。これらの結果は 1 系に対して 2 系の方が PAOs の菌体数が多いことを示唆している。

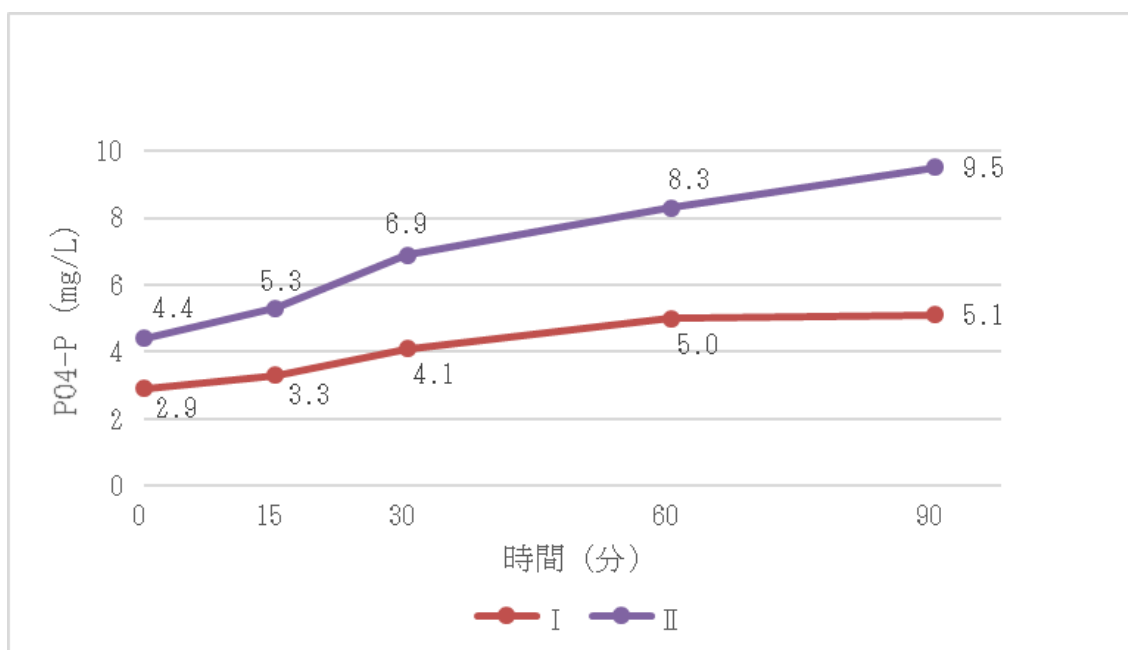


図 4 : I と II のりん酸態りんの経時変化

## (3) 条件①と④の比較について

嫌気状態の後、硝酸ナトリウムを添加した条件①と④のりん酸態りんの経時変化を図 5 に示す。条件①, ④の無酸素状態でりんの摂取が確認された。これは硝酸を用いてりん摂取を行う DN-PAOs によるものと考えられる。本結果よりりん摂取速度を算出すると条件①が  $0.14 \text{ mg-P04-P}/(\text{g-MLSS} \cdot \text{h})$  (りんの摂取が始まる 105 分以降で算出)、条件④が  $0.43 \text{ mg-P04-P}/(\text{g-MLSS} \cdot \text{h})$  と条件④の方が速かった。この結果は試験結果(2)で 2 系でのりんの吐き出しが多かったことと一致しており、りんの吐き出しが多い程、より多くのりんを摂取する結果となった。

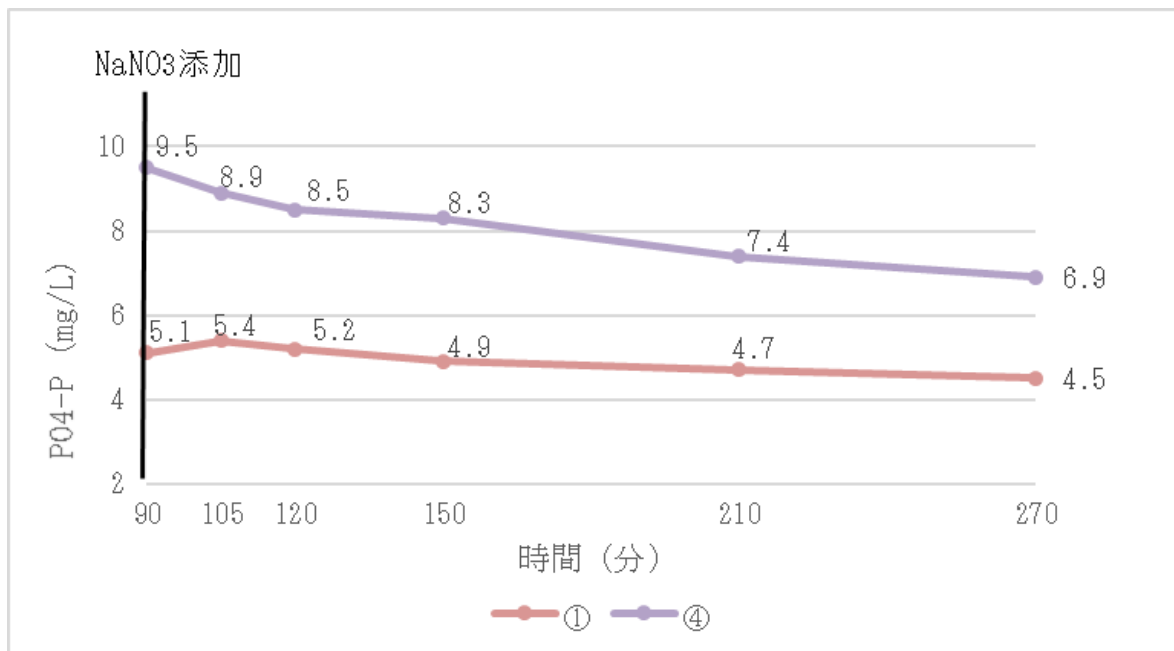


図5：条件①と④のりん酸態りんの経時変化

#### (4) 条件②と⑤の比較について

嫌気状態の後、亜硝酸ナトリウムを添加した条件②と⑤のりん酸態りんの経時変化を図6に示す。条件②と⑤ともりにんの吐き出しが起きた。これは亜硝酸による悪影響によるものと考えられる。図6の結果から、条件②でりんの吐き出しが抑えられており、亜硝酸による影響が比較的少なかった。亜硝酸態窒素の経時変化を示した図7を見ると、条件②でより亜硝酸が消費されていることが確認された。また硝酸態窒素の経時変化を示した図8では、無酸素条件下ではあるものの、条件②で硝酸の上昇が見られた。この現象については試料を曝気していないため原因不明であるが、条件②で亜硝酸の消費、硝酸の上昇が見られることから、硝化及び脱窒が起きたと考えられる。尚、本試験ではATUを加えているが、ATUはAOBを抑制し、NOBの抑制効果はないため、亜硝酸から硝酸への硝化反応が生じていると考えられる。

それに対し、条件⑤では亜硝酸による影響が大きかった。また亜硝酸の消費が条件②より弱いことから、2系の活性汚泥の硝化・脱窒能が1系のものより劣っていると考えられる。



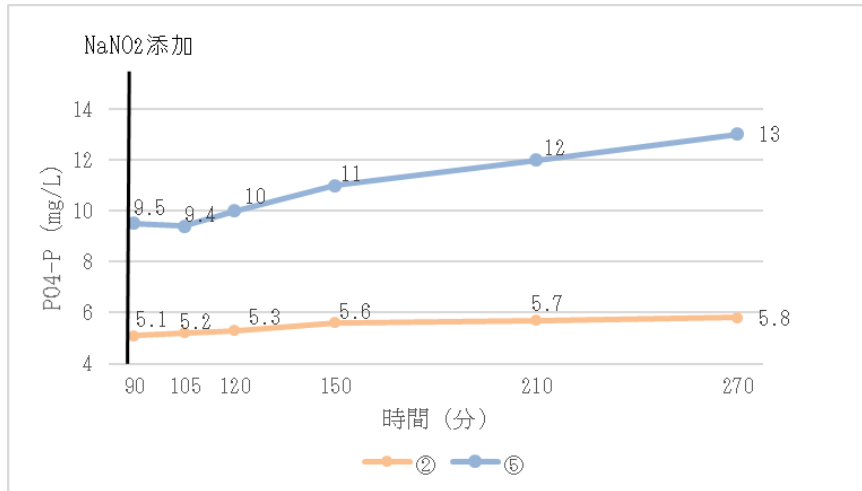


図 6 : 条件②と⑤のりん酸態りんの経時変化

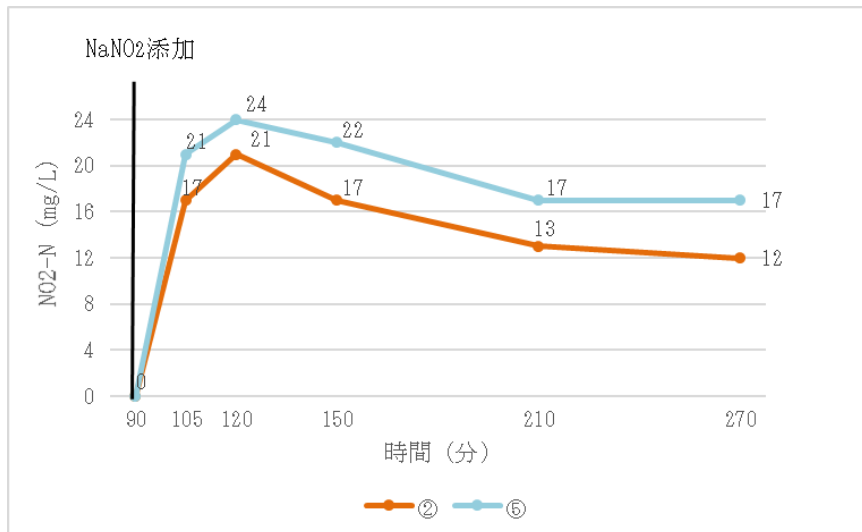


図 7 : 条件②と⑤の亜硝酸態窒素の経時変化

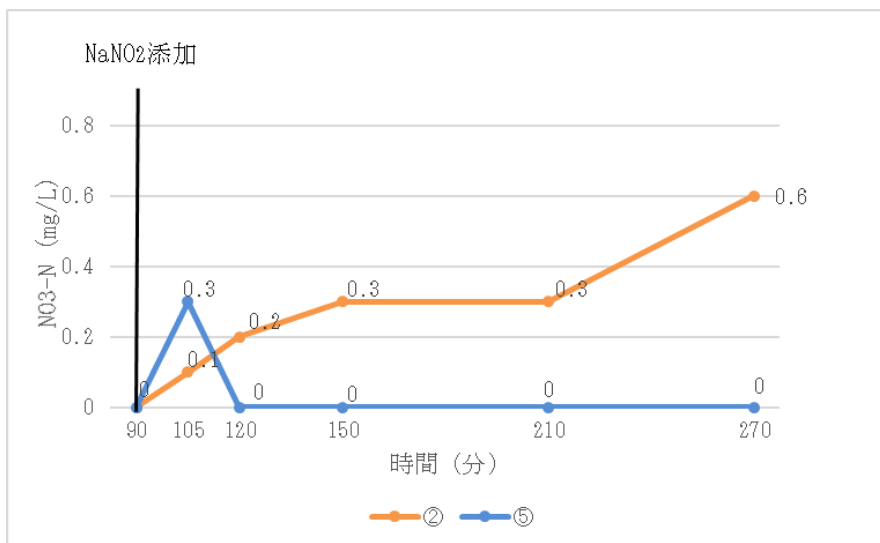


図 8 : 条件②と⑤の硝酸態窒素の経時変化

(5) 条件③と⑥の比較について

嫌気状態の後、曝気による好気状態とした条件③と⑥のりん酸態りんの経時変化を図9に示す。条件③、⑥ともりんの摂取が確認された。このりん摂取は好気性 PAOs によるものである。本結果からりん摂取速度を算出すると条件③が  $0.22 \text{ mg-P04-P}/(\text{g-MLSS} \cdot \text{h})$  で、条件⑥が  $6.9 \text{ mg-P04-P}/(\text{g-MLSS} \cdot \text{h})$  (120 分以降は飽和していると考え、90-120 分の直線部分で算出) であった。(3) の結果と同様、嫌気状態で吐き出しが多かった 2 系でりんの摂取が速くなる結果となった。

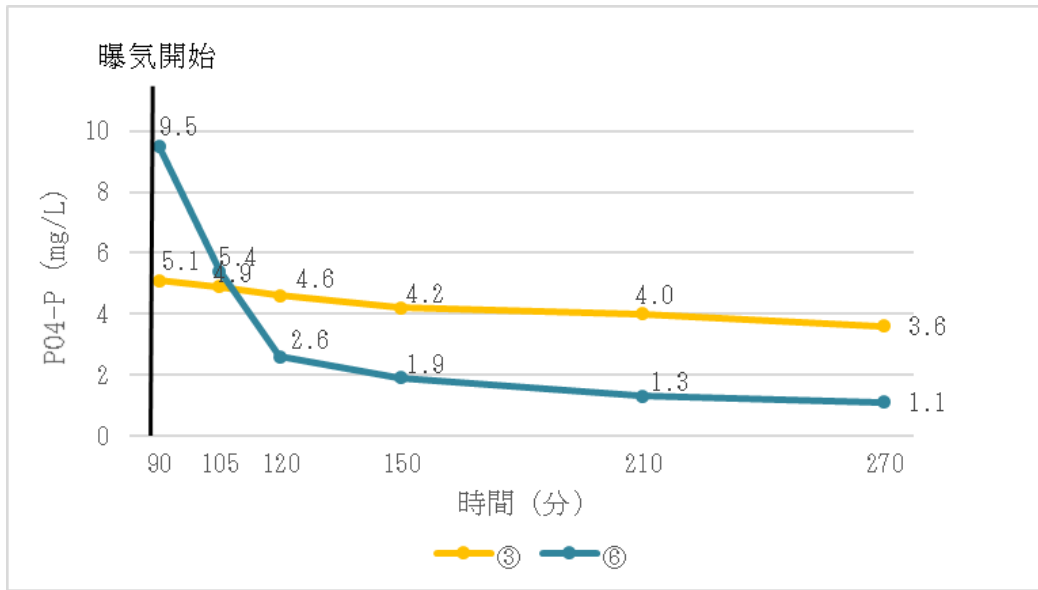


図9：条件③と⑥のりん酸態りんの経時変化

(6) 1系と2系のDN-PAOsの割合について

東灘処理場での調査と同様、好気条件でのりん摂取速度と無酸素条件でのりん摂取速度の比が PAOs 全体に対する DN-PAOs の割合をよく反映するとの既報<sup>(3)</sup>に基づき、試験結果(3)、(5)で得られたりん摂取速度から DN-PAOs 割合を算出した。その結果を表4に示す。

表4：各系列での DN-PAOs、好気性 PAOs の存在割合

	1系	2系
DN-PAOs	63.6%	6.2%
好気性 PAOs	32.4%	93.8%

算出の結果、1系のDN-PAOs割合が63.6%と2系の6.2%に比べて大きくなった。このような結果となった理由は以下の1)～3)が考えられる。

1)以下の表5では、調査結果(3)、(5)で算出された各PAOsによるりん摂取速度を示している。この結果をみると、硝酸が残存する1系でりん摂取速度が遅くなる結果となった。このことから硝酸の残留はりん摂取にとって好ましくない条件であると思われる。

表5：DN-PAOs、好気性PAOsによるりん摂取速度  
(単位：mg-PO<sub>4</sub>-P/(g-MLSS・h))

	1系	2系
DN-PAOsによる りん摂取速度	0.14	0.43
好気性PAOsによる りん摂取速度	0.22	6.9

2)表5の結果から好気性PAOsによるりん摂取速度は、硝酸が存在していない2系が6.9だったのに対し、1系では0.22とかなり遅くなった。対してDN-PAOsによるりん摂取速度は、2系の0.43に対し、1系では0.14とさほど遅くならなかった。このことから、硝酸残留は好気性PAOsに大きく影響し、DN-PAOsには影響が比較的小さいと考えられる。

3)好気性PAOsが硝酸による影響を受けた結果、DN-PAOsが好気性PAOsとの競合で有利になり、1系でのDN-PAOs割合が高くなった。

#### 4. まとめ

亜硝酸型硝化が発生している東灘処理場や、栄養塩管理運転を行っている垂水処理場の活性汚泥を用いてりん除去試験を実施した結果、以下のことが分かった。

- ・東灘処理場、垂水処理場ともに硝酸が残留している系列ではりん摂取速度が小さくなった。硝酸が残留すると脱窒と競合するため、PAOsにとって不利な条件であったと考えられる。
- ・各系列のDN-PAOs割合を算出したところ、硝酸が残留している系列でDN-PAOs割合が大きくなった。好気性PAOsが硝酸残留の影響を大きく受ける一方で、DN-PAOsは影響が少なかったことから、DN-PAOsは悪条件への耐性を持つことが示唆された。

5. 参考文献

- 1) 微生物を利用した窒素・リン同時除去に関する高度排水処理プロセス技術調査報告書  
財団法人造水促進センター, 第5章脱窒性リン蓄積細菌
- 2) 亜硝酸による好気性リン摂取阻害を緩和する脱リン細菌の脱窒能力  
環境工学研究論文集, 第42巻, 2005
- 3) Wachtmeister, A., Kuba, T., van Loosdrecht, M.C.M. and Heijnen, J.J. (1997) A sludge characterization assay for aerobic and denitrifying phosphorus removing sludge.

6. 分析データ

表6：東灘処理場調査時の分析データ

分析項目	RSSS,MLSS	NH <sub>4</sub> -N	NO <sub>2</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	T-N	PO <sub>4</sub> -P	T-P	BOD	COD	SS
1系返送汚泥	3800									
3系返送汚泥	4300									
初沈流出水		20			23	2.0	3.0	60	40	40
条件①	t0(混合直後)	1800		<0.1	<0.1	3.9				
	t1(15分経過)			<0.1	<0.1	10				
	t2(30分経過)		12	<0.1	<0.1	12				
	t3(60分経過, NO3-N添加)			<0.1	<0.1	13				
	t4(75分経過)			<0.1	15	12				
	t5(90分経過)			<0.1	17	12				
	t6(120分経過)			<0.1	19	11				
	t7(180分経過)		12	<0.1	13	26	10		5.5	14
条件②	t0	1900		<0.1	<0.1	5.1				
	t1			<0.1	0.4	12				
	t2			<0.1	<0.1	13				
	t3(曝気開始)			<0.1	0.2	13				
	t4		12	<0.1	<0.1	9.0				
	t5			<0.1	0.1	7.0				
	t6			<0.1	0.3	5.1				
	t7		11	<0.1	0.1	15	4.0		3.2	15
条件③	t0	1700		0.2	0.4	2.4				
	t1			<0.1	<0.1	6.0				
	t2		12	<0.1	<0.1	7.4				
	t3(NO3-N添加)		12	<0.1	<0.1	7.7				
	t4		12	0.2	20	7.8				
	t5		12	0.3	12	7.4				
	t6		12	0.5	20	6.6				
	t7		13	0.7	17	33	5.6		5.1	14
条件④	t0	1800		<0.1	<0.1	2.6				
	t1		12	<0.1	<0.1	6.6				
	t2		13	<0.1	<0.1	8.3				
	t3(曝気開始)		13	<0.1	<0.1	8.4				
	t4			<0.1	<0.1	7.2				
	t5			<0.1	<0.1	6.1				
	t6			<0.1	<0.1	5.0				
	t7		12	<0.1	0.1	14	4.2		5.5	14

表 7 : 垂水処理場調査時の分析データ

分析項目	MLSS	NH <sub>4</sub> -N	NO <sub>2</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	T-N	PO <sub>4</sub> -P	T-P	BOD	COD	SS	VFAs
1系返送汚泥	6000	0.7	<0.1	2.6		3.0					
2系返送汚泥	4100	29	0.2	<0.1		4.4					
初沈流出		36			46	2.6	3.8	83	47	43	<5.0
I	t0	2300	22	<0.1	0.7		2.9				<5.0
	t1		21	<0.1	<0.1		3.3				<5.0
	t2		21	<0.1	<0.1		4.1				<5.0
	t3		21	<0.1	<0.1		5.0				<5.0
	t4		22	<0.1	<0.1		5.1				<5.0
II	t0	2000	31	<0.1	<0.1		4.4				<5.0
	t1		32	<0.1	<0.1		5.3				<5.0
	t2		30	<0.1	<0.1		6.9				<5.0
	t3		31	<0.1	<0.1		8.3				<5.0
	t4		33	<0.1	<0.1		9.5				<5.0
条件①	t5		22	<0.1	19		5.4				
	t6		23	<0.1	19		5.2				
	t7		22	<0.1	18		4.9				
	t8		23	<0.1	14		4.7				
	t9		23	<0.1	12	36	4.5	3.9	12		
条件②	t5		23	17	0.1		5.2				
	t6		23	21	0.2		5.3				
	t7		24	17	0.3		5.6				
	t8		23	13	0.3		5.7				
	t9		24	12	0.6	41	5.8	32	29		
条件③	t5		22	<0.1	0.2		4.9				
	t6		22	<0.1	<0.1		4.6				
	t7		21	<0.1	<0.1		4.2				
	t8		21	<0.1	<0.1		4.0				
	t9		21	<0.1	0.2	26	3.6	4.8	16		
条件④	t5		32	0.2	21		8.9				
	t6		32	<0.1	18		8.5				
	t7		31	<0.1	15		8.3				
	t8		31	<0.1	14		7.4				
	t9		34	<0.1	11	48	6.9	7.0	16		
条件⑤	t5		33	21	0.3		9.4				
	t6		33	24	<0.1		10				
	t7		32	22	<0.1		11				
	t8		32	17	<0.1		12				
	t9		34	17	<0.1	51	13	11	36		
条件⑥	t5		33	0.5	<0.1		5.4				
	t6		31	<0.1	<0.1		2.6				
	t7		30	0.3	<0.1		1.9				
	t8		30	<0.1	<0.1		1.3				
	t9		30	<0.1	<0.1	36	1.1	6.1	15		