

嫌気性アンモニア酸化による エネルギー自給自足型下水処理技術

Bernhard Wett
 福崎康博 Yasuhiro Fukuzaki
 中村安宏 Yasuhiro Nakamura
 川久保祐貴 Yuki Kawakubo
 渡辺哲文 Tetsufumi Watanabe

キーワード エネルギー自給自足型下水処理、嫌気性アンモニア酸化、AB-process、バイオソープション

概要

「エネルギーの消費者」である下水処理施設を、下水汚泥を再生可能なバイオマスエネルギーとして活用し、「エネルギーの生産者」へと転換させることで、下水処理施設がエネルギー自給自足を達成できる次世代型下水処理技術が世界で注目されている。本技術は30年以上前から欧州で実用化されていたAB-processと呼ばれる下水処理技術に、近年下水処理分野でも適用されている嫌気性アンモニア酸化(anaerobic ammonium oxidation: 通称anammox)細菌を利用した窒素処理技術を応用することで実現される。汚泥消化槽に効率的に下水汚泥を供給し、メタンガスを可能な限り多く生み出し、そのガスを利用した発電によって得られた電力で下水処理場の全電力を賄う技術である。当社は本技術を国内下水分野に適用することを視野に、その要素技術である嫌気性アンモニア酸化を用いたアンモニア性窒素処理について、パイロットスケールでの下水消化汚泥脱水分離液処理の実証実験を実施し、その有効性を確認した。

1 まえがき

我が国における下水処理施設が消費する電力量は国内の総電力消費量の約0.8%を占めており、下水処理はエネルギー多消費型のインフラであるということが常識となっている。日本で広く普及している標準活性汚泥法では、下水に含まれる有機物を同じく下水に含まれる微生物に好氣的に分解させるために酸素が必要で、ブローを使用した空気供給のため膨大な電力を消費している。そして、その結果生じた微生物が膨大な量の汚泥となるため、それを処理するのに更に電力を消費している。活性汚泥法は、その提案から2013年で100年目を迎え、日本国内でも80年以上の実績のある信頼性の高い下水処理法であるが、次の世代を担う下水処理法として、高コストな性質を見直さざ

るを得ない時期を迎えている。

当社では、下水分野における省エネルギー技術開発の一環として、嫌気性アンモニア酸化(anaerobic ammonium oxidation: 通称anammox, 以下AX)を用いた窒素処理技術の開発を実施し、下水処理場での実証を行ってきた。そして現在、欧米で注目されているAXを応用したエネルギー自給自足型下水処理法について、日本とシンガポールでの適用可能性を検討している。この処理法は、1980年代にヨーロッパで適用の始まったAB-processと呼ばれる処理法に、1995年にオランダのDelft工科大学から発表された細菌の持つ特異な窒素代謝経路を応用することで実現した次世代型の下水処理法¹⁾である。AB-processは下水に含まれる有機物をA-stageで生汚泥として除去し、続いてB-stageで栄養塩除去する処理法である。これを

用いて除去された生汚泥を嫌気性汚泥消化槽でメタン発酵して、その発生ガスを消化ガス発電によってエネルギーとして変換する。消化槽で有機物を分解する際に残留する高濃度の窒素をAXで処理し、さらにAB-process後段でAXを使った窒素処理を併用することで、処理場全体で窒素処理の高効率化・低コスト化を図る。このようなコンセプトを持つ本処理法は、下水汚泥の持つバイオマスエネルギーとしてのポテンシャルを最大限に引き出すことができる方法である。

本稿では、エネルギー自給自足型下水処理の技術概要を記すとともに、その実現に不可欠なAXを用いた窒素処理の国内実証事例として、下水消化汚泥脱水分離液の処理結果を紹介する。

2 AB-process

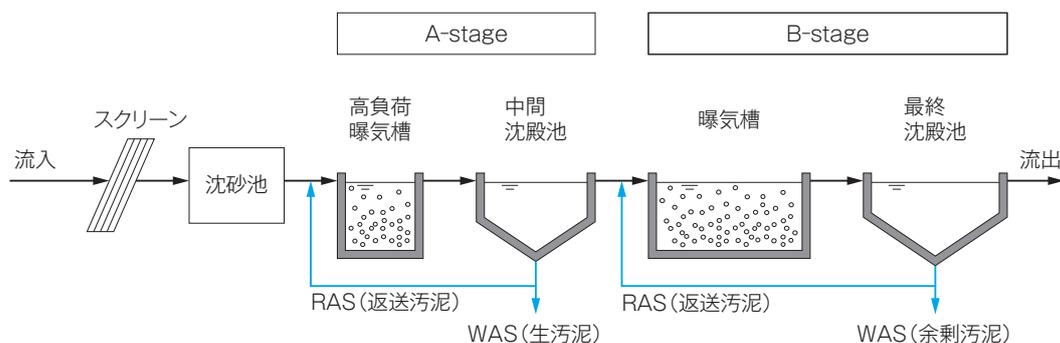
AB-processと呼ばれる排水処理方法は、有機物を高負荷量で除去するA-stageと、残留有機物及び窒素やリンなどの栄養塩を除去するB-stageから成る2段階処理であり、AはAdsorption、BはBio-oxidationのそれぞれ頭文字である。この方法は高負荷処理を実現できる処理方法であることから、水槽をコンパクトにすることができるため、敷地面積に制限のある場合に有利な方法でもある。第1図に処理フローを示す。

2.1 A-stage

A-stageは沈砂池の直後に配置され、曝気槽と

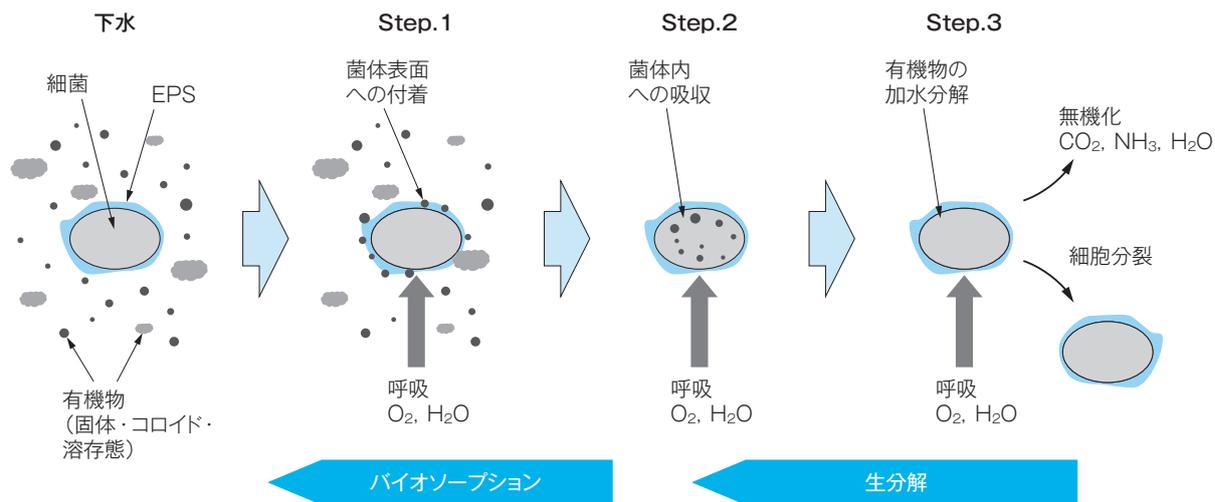
その後段の中間沈殿池で構成される。沈降性の汚泥を最初沈殿池で分離せずに、はじめから曝気するところが標準活性汚泥法と大きく異なるところである。下水中の有機物は、主に細菌によって分解される。曝気槽に流入した有機物は、細菌表面に存在する菌体外ポリマー（EPS）に短い時間で吸着され、その後、低分子はそのまま、高分子は菌体外酵素でゆっくりと分解され、菌体内に取り込まれ貯蔵される。ここで有機物が細菌表面に吸着して貯蔵されることをバイオソープション（Biosorption）と呼ぶ。その後、更に酸素を利用しながら有機物は加水分解酵素によって酸化されてエネルギーが取り出され、その結果、二酸化炭素と水が生成される。エネルギーは細胞分裂に利用され、新たな細菌が生まれる。つまり汚泥が増える。

ここで細菌による有機物の吸着及び貯蔵、そしてその後続く加水分解や細胞分裂について一連のプロセスを模式的に第2図に示す。A-stageでは、この吸着及び貯蔵までのプロセス、つまりバイオソープションの段階で反応を止め、そこから先の有機物の過剰な分解を抑制しながら生汚泥を引き抜くことで、より多くの有機物を取り出す。第2図に示すように、固形物だけでなくコロイドや溶存態有機物も細菌に吸着し生汚泥として取り出すことができる。下水の有機物組成は、固形物：コロイド：溶存態 = 45%：31%：24%という報告⁽²⁾があり、固形物以外の成分が占める割合は低くなく、これを生汚泥として取り出せることがA-stageの最大の特長である。



第1図 処理フロー

AB-processの概略フローを示す。2ステップあり、前段をA-stage、後段をB-stageと呼ぶ。



第 2 図 細菌による有機物の代謝

細菌による有機物（固体・コロイド・溶存態）の吸着と代謝の模式図を示す。EPSが重要な役割を果たしている。

嫌気性消化槽では、最初沈殿池で発生する生汚泥の方が最終沈殿池で発生する余剰汚泥（WAS：Waste Activated Sludge）よりも分解しやすく、消化ガスの発生量が多い⁽³⁾。したがって、ガスの収量を上げてより多くのエネルギーを取り出すには、より多くの生汚泥を消化槽に供給し余剰汚泥を減らすことが望ましい。

バイオソープションを制御する方法は、主に以下の2つの方法による⁽¹⁾。

- (1) 有機物の細菌への接触と吸着は30分程度の反応であり、A-stageの曝気槽の水理学的滞留時間（HRT）は30分程度に設定する。
- (2) 汚泥滞留時間（SRT）が長いと有機物の生分解が進むため、それを抑制する目的でSRTは0.5日程度に設定する。

中間沈殿池のHRTは1～2時間程度であり、標準活性汚泥法の最初沈殿池に比べ短い（中間沈殿池HRTが1.5時間の場合、曝気槽HRTと合わせても2時間）。このような運転方法で、A-stageでは有機物の除去率が約60%にまで達する。高い有機物除去率を達成するため、曝気と返送汚泥（RAS：Return Activated Sludge）及びWASが制御され、曝気は溶存酸素（DO）を指標として、RASとWASはSRTを指標として制御する。過剰な有機物酸化を抑制するため曝気量は少なめとし、1.0mg/L程度と低いDOで運転される。

2.2 B-stage

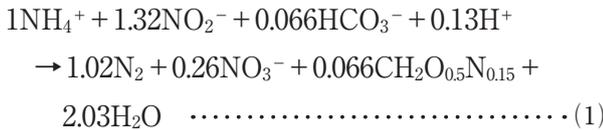
A-stageの後段に、低負荷な残留有機物除去及び窒素・リンを除去する目的で配置される活性汚泥処理がB-stageであり、曝気槽及び最終沈殿池から成る。曝気槽のHRTは2～5時間程度であり、最終沈殿池のHRTは3～4時間程度である。また、曝気槽の中に嫌気ゾーン・好気ゾーンが設定され、負荷変動に応じて散気面積を増減する場合もある。B-stageでは、前段のA-stageで有機物が多く除去されるため、脱窒のための有機物が不足し窒素除去率が制限を受ける。したがって、窒素除去率を高めるためには、脱窒に必要な有機物を残す必要がある。リンは生物学的方法によって汚泥に取り込まれ除去されるか、または物理化学的に薬剤を用いて凝結・凝集され、汚泥として除去される。B-stageでは、曝気とRAS及びWASが制御され、DOは2.0mg/L以下、SRTは10～20日程である。ここで生成される余剰汚泥は曝気槽内の滞留時間が長いため、後生動物などの高次の生物まで成長しており、結果として汚泥を構成する生物の細胞壁が厚くなり、消化槽で分解され難いものとなる。したがって、この余剰汚泥の発生を極力抑制することが消化槽の効率的な運転に寄与する。さらに汚泥可溶化などの技術によって余剰汚泥を消化しやすい形まで分解する方法もあるが、その処理のために大きなエネルギーが必要と

なる。下水処理場で使用されるエネルギーを極小化させる目的上、分解しづらい余剰汚泥を減らす努力をすることが肝要である。

3 嫌気性アンモニア酸化

3.1 嫌気性アンモニアの概要

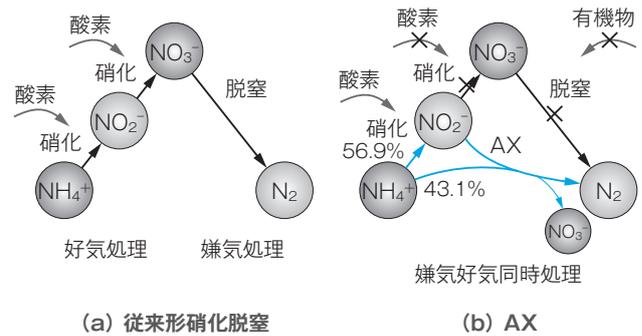
嫌気性アンモニア酸化と呼ばれる反応は、オランダDelft工科大学の研究グループによって、1995年に発表された微生物による全く新しい窒素の代謝経路である。AX反応はNH₄⁺を電子供与体、NO₂⁻を電子受容体とした嫌気性独立栄養細菌による脱窒反応であり、以下の化学量論式が提唱されている⁽⁴⁾。



(1)式から、アンモニウムイオン1molに対し亜硝酸イオンが1.32mol反応し、窒素ガス1.02molが生成されることが本反応の最も重要な特徴である。

第3図に従来形硝化脱窒とAXの代謝経路を示す。(a)では、アンモニア酸化細菌(AOB)及び亜硝酸酸化細菌(NO_B)の代謝を利用し、流入アンモニアの全量を硝酸まで硝化する必要がある。しかし、(b)のAXではAOBだけの代謝を利用し、(1)式からmol比56.9%の流入アンモニアを亜硝酸まで硝化(部分亜硝酸化, PN: Partial Nitritation)すれば生成した亜硝酸は残ったアンモニアとともにAX細菌の代謝によって除去されることが分かる。硝酸までの硝化を抑制する方法は、AOBとNO_Bの遊離アンモニアに対する阻害濃度の違いを利用して、NO_Bには阻害であってもAOBは活性を保てる状態に調整する。遊離アンモニアの濃度はアンモニウムイオン濃度、pHと水温によって影響を受ける⁽⁵⁾。

AX反応のもう1つの大きな特徴は、(1)式から分かる通り、反応した全窒素の約11.2%が硝酸イオンとして残留することである。そのため本反応による窒素除去では、約88.8%までの窒素除去



第3図 代謝経路

(a) 従来形硝化脱窒と(b) AXの反応を示す。AXでは硝酸までの硝化が不要となる。

率が最大値となることが分かる。したがって、より高度な窒素処理が望まれる場合には、硝酸を除去するための後処理が必要となる。しかし、AX反応は硝酸を残す難点がある一方で、以下の多くの利点を持つ。

- (1) 従属栄養性細菌を利用した従来形の脱窒に比べ窒素除去速度(NRR: Nitrogen Removal Rate)が速く、本反応を利用した反応槽は高い窒素容積負荷(NLR: Nitrogen Loading Rate)を許容できるため、反応槽の小形化を実現できる。
- (2) 硝酸型の脱窒ではなくPN処理をすることで、アンモニアと亜硝酸から脱窒するため、酸素供給量をおおよそ半減することができ、曝気に伴う電力コストを低減できる。
- (3) 従来形の脱窒では、窒素に対しBODなど水素供与体が不足する低C/N比の場合、メタノールなどの有機物の添加が必要であった。しかし、本反応は独立栄養性のため有機物が不要であり、薬剤添加無しに窒素処理できるため、ランニングコストを低減できる。
- (4) AX細菌は倍加時間が約11日と報告されており⁽⁶⁾、収率が小さく処理に伴う余剰汚泥の発生量が少ないため、汚泥処分コストを低減できる。

これら利点から、従来形の硝化・脱窒処理に比べAX反応を利用した窒素処理は、省スペース化及び省コスト化を望める有望な技術であると言える。本技術に適した廃水は、有機物が除去されC/N比が小さくなった嫌気性消化脱離液及び汚

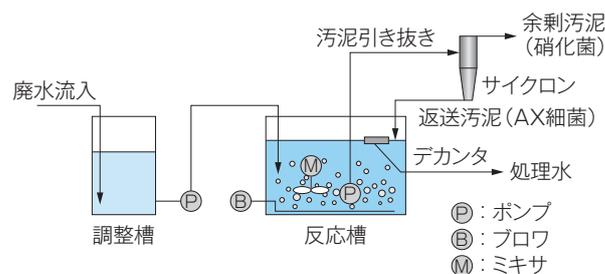
泥脱水ろ液や、畜産廃液・ごみ埋め立て浸出水・発電所脱硝廃水などの高濃度アンモニア性窒素含有廃水があり、多様な廃水を持つ施設ではそれらを総合排水として処理する前に、高濃度窒素廃水を個別処理するような場合に非常に有利となる。前述のとおり、AX処理にはアンモニアの一部を亜硝酸にする好気的なPN処理と、生成された亜硝酸とアンモニアを同時除去する無酸素槽によるAX処理の2つの処理があり、それぞれを別々の水槽で行う2槽型と、両プロセスを1つの水槽で実現する1槽型の2種類の処理方式がある。

3.2 1槽型脱アンモニア処理

一方、欧米の下水処理場で消化汚泥の脱水ろ液など高濃度の窒素を含む返流水処理に適用が広がっている方式は1槽型である。その中でも最も普及している方式は、亜硝酸化とAXの両反応が一つの槽の中で完全混合状態の浮遊汚泥を利用して実現される方式で、DEMON社によって開発された脱アンモニア（Deammonification）処理であり、DEMONと呼ばれている⁽⁷⁾。第4図に処理フローを示す。

この方式は回分型（SBR）で、連続的に流入する原水は調整槽に一旦ためられ、間欠的に反応槽に供給される。反応槽では散気装置による曝気とかくはん機によるかくはんで好気条件と無酸素条件が制御され、硝化とAXが同時に進行し窒素が除去される。反応槽の水位がある決められた水位（満水）に達した時点で流入を停止し、曝気とかくはんも停止、完全混合状態であった汚泥は沈降し始め、一定時間後、汚泥が沈降分離され、その上澄みを処理水として反応槽からデカンタで排水する。そして再び原水を間欠的に供給し、曝気とかくはんも再開する。薬品によるpH調整や処理水循環による基質濃度の調整は不要である。槽内の汚泥濃度は1.0～3.0g/L程度、DOは0.3mg/L程度、pHは原水によって変わるが、6.8～7.4程度が典型的な数値である。

汚泥は、フロック状の硝化菌と微細な赤いグラニュール状のAX細菌で構成される。本技術の特



第4図 脱アンモニア処理DEMONフロー

DEMONのフローを示す。DEMONは1槽で行い、原水流入や曝気は間欠運転となる。サイクロンで汚泥を調整するのが特徴である。

微でもあるサイクロンを使うことで、この2つの汚泥が混合した引き抜き汚泥から比重の差を用いてグラニュールだけを分離することができる。サイクロンに流入した汚泥は高速で回転し、強い遠心力で重たい汚泥と軽い汚泥に分離される。硝化汚泥はフロック状であるため、より高密度のグラニュールを形成するAX細菌に比べて軽く、流入したSSとともにサイクロンのオーバフローから分離され余剰汚泥となる。サイクロンのアンダフローには重たいAX細菌が分離されるため、返送汚泥として反応槽に戻される。これによって、増殖の遅いAX細菌を槽内に高濃度に保つことができる。以下に1槽型脱アンモニア処理の特長をまとめる。

- (1) SBR方式は制御が単純で、水質及び水量の変動に合わせ自動的に処理が追従するため、非常にロバストなシステムとなる。
- (2) 水温は15～38℃と広く許容することができ、低水温での運転の前に十分馴養することで、25℃以下の水温でも処理できる。
- (3) 原水に含まれるアルカリ度を利用して反応が進むことから、アルカリ度が足りている限りpH調整剤を添加する必要がない。
- (4) 2槽型に比べて機器点数及び制御点数が少なく、建設コストが安価で、メンテナンスが容易であり、かつランニングコストが抑制できる。
- (5) 担体を使った処理では担体を有効に利用するため、曝気・かくはんによって強い流れを作る必要があり大きな動力を使うが、脱アンモニア処理

残留有機物の流入で従属栄養性脱窒も同時に進行し、AX反応の結果生じた硝酸も一部脱窒され、窒素除去率は更に高くなる。従来形の硝化脱窒と比べ、以下の利点がある。

- (1) 下水処理本流でもアンモニアの全量を硝酸まで硝化する必要がなく、流入アンモニアの約半分を亜硝酸まで硝化することで処理できるため、曝気風量が低減される。
- (2) 硝酸化した処理水の循環脱窒処理が不要となるため、処理水循環に必要であった動力が不要となる。
- (3) AX細菌は汚泥収率が低いため、余剰汚泥量が低減される。
- (4) 余剰汚泥の脱水性が3～5%程度向上し、脱水汚泥濃度が30%以上に達する。
- (5) A-stageで60%の有機物負荷が除去されるとB-stageには40%の負荷しか残留しない。したがって、標準活性汚泥法の曝気槽に比べて負荷が軽くなるため、必要となるブロウ容量・槽容量が小さくなる。

このようにAB-processの欠点だった窒素の問題はAXの導入によって解決でき、消化しやすい生汚泥の引き抜きをA-stageで増加させながら、B-stageでは消化しづらい余剰汚泥を減らし、消化ガスの発生を増量することができる。B-stageで残留窒素を除去するための有機物に配慮する必要がなくなったため、A-stageでは可能な限り多くの有機物を生汚泥として回収して良いことになる。そこで更なる有機物除去率を達成する方法として、A-stageの反応槽に凝集剤を添加する方法がある。この場合、有機物除去率は75%以上に達し、消化槽に送られる生汚泥量が更に増大することになる。

この1槽型脱アンモニア処理DEMONを用いて開発されたエネルギー自給自足型下水処理場は、EssDe (Energy Self Sufficient by DEMON) と呼ばれている。エネルギー自給自足型下水処理場とは、前項のシステムを利用し、A-stageからできるだけ多くの有機物を生汚泥として取り出して、それを消化槽へ送ることで消化ガスの発生量を増

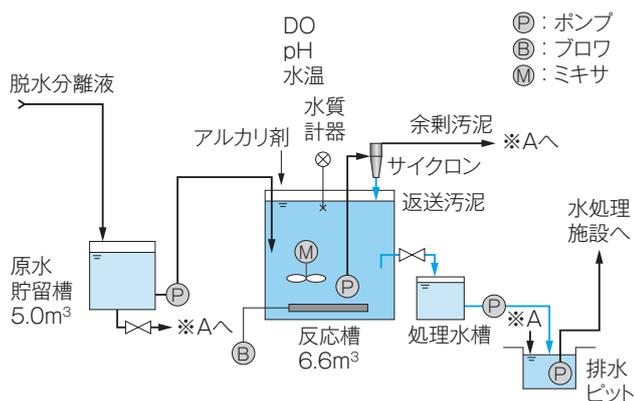
やし（生成メタン重量比で標準法の2倍を超える）、増えた消化ガスによって発電することで、処理場の全電力を賄おうというものである。通常消化槽は特に改造を必要としないが、ガスの発生量が増大するため消化ガス発電設備は増強される必要がある。発生ガス量が増大することから、発電電力量が増大し処理場の電力自給率が上昇する。また余剰電力が発生した場合は電力会社に売電し、地域に配電する発電所となることもできる。

5 日本におけるDEMON実証試験

当社は、EssDeの要素技術である1槽型脱アンモニア処理DEMONが日本国内で適用可能かどうかを確認するため、横浜市と共同で同市北部汚泥資源化センターの嫌気性消化汚泥脱水分離液に含まれるアンモニア性窒素のパイロットスケール処理実験を実施した。

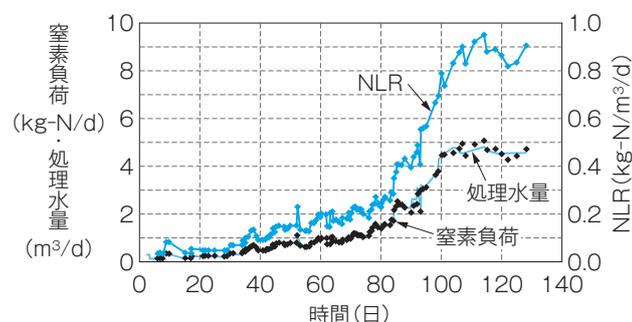
DEMON反応槽は、有効容積6.6m³の水槽を使用した。脱水分離液中に含まれるアンモニア性窒素濃度は、約1000mg-N/Lと高濃度であり、回分処理1回あたりの処理時間を8時間とし、1日3回の処理を実施した。窒素処理の目標値は欧米の実施例と同等の性能に設定、窒素容積負荷 (NLR)：0.7kgN/m³/d、処理水量：4.6m³/d、窒素負荷4.6kgN/dとした。AX細菌をメインに構成されるDEMON汚泥を種汚泥として反応槽に投入し、低負荷から運転を立ち上げた。第6図にDEMONパイロットプラント処理フローを示す。

第7図に、実験期間中の窒素負荷、処理水量、NLRの経時変化を示す。本試験は加温無しで運転したため、立上当初、外気温低下から反応槽内の水温も25℃以下と低いまま推移し、微生物の活性上昇が緩やかで窒素処理能力が上昇しない期間が続いた。運転開始後80日目頃から、外気温の上昇とともに反応槽水温が30℃程度まで高まり微生物活性が上昇し、これによって処理水量を増加させ窒素負荷を高めていった。窒素負荷の上昇とともに、汚泥濃度も90日目に1500mg/L、104日目に2500mg/Lまで高まり、NLRが目標値の



第6図 DEMONパイロットプラント処理フロー

パイロットプラントの処理フローを示す。



第7図 実験期間中の窒素負荷・処理水量・NLRの経時変化

パイロットテスト期間中の窒素処理の結果を示しており、104日目に定格負荷に到達した。

0.7kg-N/m³/dに到達した。目標負荷到達後、約3週間にわたり平均窒素除去率80.6%を達成し、安定した窒素処理性能を確認した。

以上、欧米で普及している本プロセスが国内下水分野でも欧米と同等の性能を出せることを実証した。

6 むすび

ヨーロッパでは、下水は廃棄物ではなく再生可能なエネルギー資源という考え方にに基づき、現在数箇所の処理場でこのエネルギー自給自足を目指した取り組みが行われており、成功している処理場がある。

今回、当社はエネルギー自給自足型下水処理に不可欠な1槽型脱アンモニア処理DEMONの有効性を国内下水分野で実証した。これを足掛かりに、日本と欧米とでは下水水質の違いはあるが、エネルギー自給自足型下水処理についても国内で実現可能であることを実証していく所存である。

次世代の下水処理は、エネルギー多消費型下水処理から下水エネルギー利用自立型下水処理へと変わっていくべきであることを提言して本稿を締めくくりたい。

最後に下水消化汚泥脱水分離液のアンモニア性窒素処理実験に際し、多大なご協力をいただいた横浜市環境創造局に深く感謝する次第である。

・本論文に記載されている会社名・製品名などは、それぞれの会社の商標又は登録商標である。

《参考文献》

- (1) Wett B., Buchauer K. and Fimml C. : "Energy self-sufficiency as a feasible concept for wastewater treatment systems," Proc. IWA Leading Edge Technology Conference, Singapore, Asian Water, pp.21-24, 2007. 9
- (2) A. Guellil, F.Thomas, J.C.Block, J.L.Bersillon and P. Ginestet : "Transfer of organic matter between wastewater and activated sludge flocs," Water research Vol.35, No.1, pp.143-150, 2001
- (3) B.Wett, A.Eladawy and M.Ogurek : "Description of nitrogen incorporation and release in ADM1," Water Science & Technology Vol.54, No 4, pp.67-76, 2006
- (4) M.Strous, J.J.Heijnen, J.G.Kuenen and M.S.M.Jetten : "The sequencing batch reactor as a powerful tool for the study of slowly growing anaerobic ammonium-oxidizing microorganisms," Appl Microbiol Biotechnol Vol.50, pp.589-596, 1998
- (5) Anthonisen A.C., Loehr R.C., Prakasam T.B.S. and Srinath E.G. : "Inhibition of nitrification by ammonia and nitrous acid.," J.Water Pollut. Control Fed. 48 (5), pp.835-852, 1976
- (6) M.S.M.Jetten, M.Strous, K.T.van de Pas-Schoonen, J.Schalk, U.G.J.M. van Dongen, A.A.van de Graaf, S. Logemann, G.Muyzer, M.C.M. van Loosdrecht and J.G.Kuenen : "The anaerobic oxidation of ammonium," FEMS Microbiology Rev. Vol.22, pp.421-437, 1999
- (7) B. Wett : "Solved upscaling problems for implementing deammonification of rejection water," Water Science & Technology, Vol.53 pp.121-128, 2006

《執筆者紹介》



Bernhard Wett
ARAconsult



川久保祐貴
Yuki Kawakubo
膜・水処理プラント部
水処理技術の研究開発に従事



福崎康博
Yasuhiro Fukuzaki
膜・水処理プラント部
水処理技術の研究開発に従事



渡辺哲文
Tetsufumi Watanabe
膜・水処理プラント部
水処理技術の研究開発に従事



中村安宏
Yasuhiro Nakamura
膜・水処理プラント部
水処理技術の研究開発に従事