デンプン含有排水を処理する 酸素供給型DHSリアクターの運転方法の検討

段下 剛志¹・角野 晴彦^{2*}・小島 誠貴³・川上 周司⁴
高石 有希子⁵・山口 隆司⁶・珠坪 一晃⁷

¹学生会員 長岡技術科学大学大学院 工学研究科 環境システム工学専攻

(〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町1603-1)

²正会員 岐阜工業高等専門学校 環境都市工学科 (〒501-0495 岐阜県本巣市上真桑2236-2)

³非会員 阿南工業高等専門学校 建設システム工学科 (〒774-0017 徳島県阿南市見能林町青木265)

⁴正会員 阿南工業高等専門学校 創造技術工学科 (建設コース)

(〒774-0017 徳島県阿南市見能林町青木265)

⁵非会員 株式会社トーエネック 技術開発室 (〒457-0819 愛知県名古屋南区滝春町1-79)

⁶正会員 長岡技術科学大学 環境・建設系 (〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町1603-1)

⁷正会員 独立行政法人国立環境研究所 地域環境研究センター

(〒305-8506 茨城県つくば市小野川16-2)

* E-mail: sumino@gifu-nct.ac.jp

DHSリアクターの気相部を高濃度酸素で維持するHigh dissolved oxygen DHSリアクターの排水種に関する知見の拡大と処理性能向上のための運転方法の検討を目的に、平均全BOD 565 mg/L, 平均全COD 1016 mg/Lのデンプン含有排水を処理温度20℃で461日間連続処理した。HRT 5 h, 容積負荷1.4 (2.5) kg-BOD (COD) /m³-reactor/dにおいて、処理水は溶解性BOD 50 mg/L以上, 溶解性COD 130 mg/L以上であった。処理水を向上させるために、ここで発生した短絡流とDO不足の改善をねらい処理水循環を試みた。その結果、循環比5における処理水は、溶解性BOD 25 mg/L程度, 溶解性COD 110 mg/L程度に向上した。処理水質の向上には生物膜の剥離が関係しており、この制御は処理水循環という簡単な運転方法で可能になることが示唆された。活性汚泥および高濃度酸素で馴致した保持汚泥の酸素利用速度を、DO 8 mg/LおよびDO 30 mg/Lに曝して測定した。保持汚泥における後者は前者の1.7倍となり、活性汚泥よりも後者と前者の差が大きくなった、これより、高濃度酸素で馴致したことによる効果的な影響が見られた。

Key Words : High dissolved oxygen DHS reactor, starch wastewater, effluent recirculation, oxygen uptake rate, microbial community

1. 研究の背景と目的

水質汚濁防止法上の全特定事業所263,175件の約89%を占める規制の対象とならない小規模処理場 (1日の排水量が50 m³未満) と届出不要な小規模な事業所が、有機物による水質汚濁の発生源となっている¹⁾。この有機物 (有機性排水) 処理を対象とした環境省の環境技術実証

(ETV) 事業において、求められている技術要素は“低コスト”, “コンパクト”, “メンテナンスが容易”などであり、この事業に採択された生物処理プロセスは膜分離活性汚泥法や浸漬型生物膜法などである¹⁾。ただし、膜分離活性汚泥法では膜の洗浄が²⁾、浸漬型生物膜法では生物膜の制御³⁾が必要であり、これらの処理プロセスは“メンテナンスが容易”という観点では不十分である

そこで、我々は、上述した有機性排水処理において、求められている技術要素を満たせる新規な処理プロセスとして、DHSリアクターの気相部を高濃度酸素で維持するHigh dissolved oxygen DHSリアクター（以降、Hi-DHSリアクターと表記）を開発した⁴⁾。DHS（Down-flow Hanging Sponge）リアクターは、汚泥保持にスポンジろ材を用いる散水ろ床法であり、“メンテナンスが容易”な処理プロセスである⁵⁾。この気相部を高濃度酸素で維持するHi-DHSリアクターは、飽和DOの上昇と酸素溶解速度の高速化によって“コンパクト”（高負荷）で、散水ろ床法の運転方法によって“メンテナンスが容易”な2つの条件を兼ね備える処理プロセスとなることを意図されている⁴⁾。

Hi-DHSリアクターによって、全COD_G（以降、CODと表記）1000 mg/Lの豆腐工場模擬排水を処理温度20℃、HRT 5 h、槽容積に対するスポンジの保水容積の割合を50%とした場合の槽容積基準の容積負荷 2.3 kg-COD/m³-reactor/d, 1.2 kg-BOD/m³-reactor/dの条件下で連続処理した⁴⁾。排水を一過型で流すだけの簡単な運転方法（ワンパス運転）であったが、BOD容積負荷はDHSリアクターの2~5倍、酸素活性汚泥法に近い値を達成した。その処理水は全COD 50 mg/L以下、全BOD 10 mg/L以下と良好であり、Hi-DHSリアクターが“コンパクト”で“メンテナンスが容易”な処理プロセスとして期待できることが示唆された。

一方で、Hi-DHSリアクターの生物膜が成長（肥大化）すると、最も厚いところで25 mmあるろ材において、生物膜表面から3 mm程度でDOが枯渇し、嫌気性細菌が優占している箇所があった⁴⁾。生物膜は、活性汚泥と比較して生物の多様性が大きい⁵⁾が、その生物膜の形成は負荷や排水種によって異なる⁶⁾。よって、この既報では、ワンパス運転による処理性能と、特定の排水種の生物膜性状に関する知見を収集するに留まっている。

そこで、本研究ではHi-DHSリアクターにおける排水種による処理性能、生物膜性状の知見の拡大と、高負荷化のための運転方法の検討を調査する。

処理する排水種は、食品排水に含まれる代表的な有機源としてデンプンを選択し、その人工排水とした。運転方法は、ワンパス運転と処理水循環運転とし、前者では排水種に関する知見の拡大を、後者ではろ材内部の好気的な環境の維持、生物膜の肥大化の制御を行い、高負荷化を検討した。

実験は、連続処理実験を中軸にして、トレーサー試験、処理水の全COD分画およびろ床のDOを経時的に調査した。実験終了時には保持汚泥の酸素利用速度、好気性活性、微小動物相および細菌相を調査した。

図-1 Hi-DHS リアクターの概要

2. 実験方法

(1) 実験装置

図-1に本研究で用いたHi-DHSリアクターの概要を示す。ろ材は、幅20 cm、断面積5 cm²の三角柱スポンジとした。ろ床は、2枚のPVC製のシートにそれぞれろ材を19、20本貼付けた。これらの2枚ろ床を図-1のように密閉できる槽内に直列に懸垂した。ろ床全体の高さは158 cm、スポンジ容積は3.9 L、スポンジの保水（間隙）容積は3.1 Lであった。理論HRTは、後節(3)で求めた実HRTと比較するために、スポンジの保水容積（3.1 L）を用いて計算した。また、理論HRTは運転制御因子として取り扱った。容積負荷は、槽容積をスポンジ保水容積の2倍（6.2 L）と仮定して、槽容積基準で計算した。

2枚のろ床間には、流下水をサンプリングするため、流下方向に2 cmの間隔とサンプリング装置を設けた。槽は、ゴムシール付きで取り外しができる前面パネルと処理水の流出部と排気部の水封槽によって、密閉可能にした。

槽内への酸素供給には、山陽電子工業社製のPSA (Pressure Swing Adsorption) 式酸素濃縮装置 (SO-001B) を用いた。槽内の酸素濃度は、90%程度に維持した。

排水は、ろ床上部へポンプアップし、ろ床に滴下する。その後、排水は、ろ床表面および内部を流下し、その間に気相部から酸素を獲得し、汚泥と接触しながら処理さ

れる。

340日目以降、水封槽へ流出した処理水をろ床上部へポンプアップする循環ラインを設けた。

(2) 連続処理実験

a) 供給排水

排水は、水道水に予め少量の熱水で加熱溶解させたデンプン（溶性）、無機栄養塩および重曹を加えて作成した。排水は全COD 1000 mg/Lに調整した。栄養塩濃度は、既報⁷⁾を参照した。重曹は、pH 7～8を保つように、0.25～0.5 g/Lとなるように添加した。

排水は150 Lタンクで保管し、保管温度は25日目まで15～10℃、それ以降4～5℃とした。排水の交換頻度は、1週間に2～3回とした。

b) 運転条件

連続処理の開始前に植種した。植種汚泥は、岐阜高専の合併処理浄化槽から採取した活性汚泥を用いた。植種方法は、排水の流入～流出間を約24時間循環させた。植種直後の保持汚泥濃度は、0.3 g-SS/L-spongeとなった。植種終了後を0日目とし、連続処理を開始した。連続処理は、20℃に制御した恒温室内で実施した。

目標水質は、岐阜県が条例によって制定した代表的な規制値である全BOD 20 mg/L⁸⁾とした。運転開始時のHRTは8 hとし、処理状況に合わせて短縮あるいは延長した。

c) 分析項目と分析方法

分析する当日に排水と処理水をスポットサンプリングした。処理水は、HRTの1/2時間を目安に連続的にサンプリングし、分析に必要な量を貯留した。

分析項目は、pH、COD、BODとした。分析頻度は、週に1～3回とした。pH、BODの測定方法は下水試験方法に準じた⁹⁾。CODの測定には、HACH社製の吸光光度計（DR3900）を用いた。溶解性分の測定には、ADVANTEC社製のガラス繊維ろ紙（GB140、孔径0.45 μm）でろ過したサンプルを用いた。

d) 処理水の全COD分画

168～381日目の処理水において、処理水のデンプンおよびグルコース濃度を測定した。測定には、Megazyme社製の総澱粉量測定キット（K-TSTA）を用いた。

得られた結果は、COD換算した。デンプンのCOD換算には、実験値（980 mg-COD/g-デンプン）を用いた。全CODからデンプンCODとグルコースCODを引いたものを、その他CODとした。また、全CODから溶解性CODを引いたものを、固形性CODとした。

(3) トレーサー試験による実HRTの測定

115, 248, 314, 455日目において、トレーサー試験により、実HRTを測定した。測定方法は、下水試験方法の反応槽の混合特性試験うち、塩化ナトリウム添加法に準じた⁹⁾。本試験における実HRTは、電気伝導度が最大となった時間とした。

(4) 流下方向のDOプロファイル

309, 381, 429日目において、ろ床のDOを把握するため、原位置でDOを測定した。測定には、Unisense社製のニードルセンサー（OX-N、先端外径1.1 mm）を用いた。

流下長0 cm（流入水）、76 cm（中間処理水）、158 cm（処理水）において、流下水のDOを測定した。流下水とは、流下長0 cmは越流型排水分散器から、76, 158 cmはろ床端部から滴り降りる箇所の水を示す。ここではニードルセンサーと汚泥が接触していない。

流下長30, 74, 108 cmにおいて、生物膜表面から深さ1 mm位置のDOを測定した。ここでは、ニードルセンサーの先端が生物膜表面に接触した状態で、マニピュレーターを用いてニードルセンサーを1 mm差し込んだ。さらに、流下長74, 108 cmにおいて、DOが0 mg/Lになるまで、ろ材深さ方向のDOを1 mm間隔で測定した。

(5) Hi-DHSリアクターの保持汚泥性状の調査

a) 酸素利用速度試験および好気性活性試験

連続運転終了後（461日目）の保持汚泥をサンプリング・搾汁し、酸素利用速度と好気性活性を測定した。

保持汚泥のサンプリング箇所は、流下長0～76 cmとした。両試験とも、試験開始前に基質洗浄を行った。液相中の汚泥濃度は2.5 g-VSS/L程度に調整した。比較系として、植種に用いた汚泥と同一箇所からサンプリングした活性汚泥を同試験に供した。

酸素利用速度試験では、基質を投入せず、内生呼吸による酸素利用速度を測定し、酸素利用速度係数を算出した。好気性活性試験では、デンプン溶液を、液相中の初期CODが300 mg/Lとなるように添加した。試験温度は20℃とした。その他詳細な実験方法は、下水試験方法に準じた⁹⁾。

酸素利用速度試験と好気性活性試験では、空気曝気する空気条件（DO 8 mg/L程度）と酸素濃縮装置で曝気する酸素条件（DO 30 mg/L程度）を準備し、高DOが両試験に与える影響を調査した。

b) 顕微鏡観察による微小動物の定量

連続運転終了後（461日目）の保持汚泥をサンプリング・搾汁し、顕微鏡観察により、微小動物を定量した。

保持汚泥のサンプリング箇所は、流下長0～76 cmとし

た。また、豆腐工場模擬排水を処理するHi-DHSリアクター保持汚泥においても微小動物を定量した。保持汚泥のサンプリング箇所は、流下長0～32 cmとした。

定量方法は、既報⁹および下水試験方法⁹を参照した。観察には、OLYMPUS社製の顕微鏡 (BX51) を用いた。

定量の対象は既報⁹に準じ、肉質虫類、繊毛虫類、輪虫類、線虫類、貧毛類およびミジンコとした。観察された微小動物の同定は、文献¹⁰を参照した。

c) 16S rRNA遺伝子を標的とした細菌相解析

162, 338, 457日目の保持汚泥において、16S rRNA遺伝子を標的としたクローニング解析を行い、細菌相を調査した。

保持汚泥のサンプリング箇所は、流下長36 cm付近 (上部) と流下長108 cm付近 (下部) とした。

採取した汚泥のDNAの抽出には、NIPPON GENE社製のISOIL DNA抽出キットを用いた。抽出したDNAは、Bac27f-1492rプライマーペアを用いたPCRに供し、16S rRNA遺伝子の増幅を行った。増幅させたPCR産物は、Life Technologies社製のTOPO TA Cloningキットによりクローニングされ、各サンプルとも96クローン程度ピックアップした。塩基配列の解読はTaKaRa社のドラゴンジェノミクスセンターに外注した。得られた塩基配列は、RDPのCLASSIFIERにより分類し、詳細な系統分類を決定した。その他詳細な実験、解析方法は、既報¹¹に準じた。

3. 実験結果と考察

(1) 連続処理実験

a) デンプン含有排水の処理性能

ワンパス運転の豆腐工場模擬排水の処理と比較して-

図-2 (a) に排水、(b) に処理水のCODおよびBODの経日変化を示す。また、表-1に115, 248, 314, 455日目における理論HRTと実HRTの比較を示す。運転開始当初、排水の保管温度を15～10℃したところ、時間経過に伴う排水の水質変動が顕著であった。保管温度を4℃とした25日目以降は、水質の変化を抑制できた。25日目以降の排水の全COD、溶解性CODの平均は、1016 (±77) mg/L、945 (±94) mg/Lであった。また、全BOD、溶解性BODの平均は、565 (±73) mg/L、526 (±81) mg/Lであった。運転開始後、酸素濃縮装置の不具合による槽内の酸素濃度の低下 (70%程度) や排水がろ床のない面を流下する短絡流等の実験装置上のトラブルが発生した。これらのトラブルを解消した後、63～87日目における処理水は、全COD 48～167 mg/Lと不安定であった。そこで、処理の安定化を目的に、88日目にHRTを8 h から12 hに延長した。

図-2 (a)排水、(b)処理水のCODおよびBODの経日変化

表-1 155, 248, 314, 455日目における理論HRTと実HRTの比較

運転日数 (d)	①理論HRT(h)	②実HRT(h)	②/①
115	12	11	0.92
248	7.8	6.8	0.87
314	4.9	0.6	0.12
455※	5.1	2.0	0.39

※循環比10で運転中、回分的に循環比0として測定

突発的な処理水の悪化 (105, 114, 161日目における処理水が全COD 150 mg/L以上) が見られたが、これらを除いたHRT 12 hにおける処理水の平均は、全COD 72 (±11) mg/Lであり、処理が安定したと判断した。

164日目にHRTを12 hから8 hへ短縮した。HRT短縮直後から、処理水は、HRT 12 hと同様に、突発的な悪化が何度か見られたものの、これを除くと全COD 90 mg/L程度であった。しかし203日目以降、処理水は、継続的に悪化し、全COD 90～225 mg/Lを変動した。

239, 248日目において、実HRT測定のため、排水の供給を停止し、代わりに水道水を48 h供給した。すると悪化した処理が改善し、245～262日目の処理水の平均は、

全COD 48 mg/L, 全BOD 11 mg/Lと良好であった（データ数n=5）。

267日目以降、処理水は全COD 150 mg/L程度に悪化した。そこで、276日目に排水供給を停止し、替わりに水道水を48 h供給して、処理回復の再現性を調査した。その結果、処理は再び回復し、HRT短縮日（284日目）まで処理水は、全COD 50 mg/L以下、全BOD 10 mg/L以下となった（n=2）。これより、48 hの水道水の供給は、悪化した処理の回復に寄与したと言える。この理由は、次項b)で考察する。

284日目にHRTを8 hから5 hへ短縮した。HRT 5 hにおける容積負荷の平均は、2.5 kg-COD/m³-reactor/d（1.4 kg-BOD/m³-reactor/d）であり、豆腐工場模擬排水において全COD 50 mg/L以下、溶解性COD 40 mg/L以下の良好な処理水が得られた容積負荷と同程度である⁴⁾。

HRT変更直後の286日目における処理水は、全COD 74 mg/Lであった。しかし、それ以降の処理水は、全COD 160 mg/L以上、溶解性COD 130 mg/L以上、全BOD 60 mg/L以上、溶解性BOD 50 mg/L以上に悪化した。その後、引き続き同条件で連続処理したが、このままでは処理水質が向上する見込みはないと判断した。334日目に排水の供給を停止し、替わりに水道水を48 h供給した。337日目における処理水は、全COD 102 mg/L、溶解性COD 83 mg/Lまで一旦回復したが、339日目において全COD 343 mg/L、溶解性COD 196 mg/Lと直ちに悪化した。HRT 5 hでデンプン含有排水で処理すると、良好な処理水は得られなかった。

314日目において、実HRTを測定したところ、理論HRT 4.9 hに対して実HRT 0.6 h、実HRT/理論HRTは0.12であった。HRT 12, 8 hにおける実HRT/理論HRTは0.9程度を確保していたが、HRT 5 hでは極端な短絡流が発生した。これが処理水質の悪化の一因だと考えられる。豆腐工場模擬排水を処理するHi-DHSリアクターにおいて、理論HRT 5.5 hにおける実HRT/理論HRTは0.55であった⁴⁾。本Hi-DHSリアクターでは同程度の理論HRTでより顕著な短絡流が発生した。豆腐工場模擬排水を処理するHi-DHSリアクターにおいて、理論HRT 2.1 hにおける実HRT/理論HRTは0.08となった⁴⁾。この時点で処理プロセスは破綻し、この理由は生物膜の肥大化にあると考察している⁴⁾。既報と本研究のHi-DHSリアクターの両実験から、排水種によって生物膜の成長が違うことが分かった。この違いには細菌相の違いが寄与していると考えられた（後節(3)で考察）。

b) 処理水循環による処理性能の変化

HRT 5 hのワンパス運転の処理では、汚泥の肥大化によると考えられる短絡流の発生に加え、後節(2)で示す

表-2 HRT 5 h・循環比 0, 循環比 5
および循環比 10 における処理水質の比較

運転条件	溶解性BOD	溶解性COD	固形性COD
循環比0（284～339日目）	86（±12）	194（±59）	33（±34）
循環比5（340～416日目）	27（±10）	106（±19）	176（±111）
循環比10（417～461日目）	22（±9）	119（±16）	197（±79）
平均（標準偏差）mg/L			

ように、DOが生物膜表面から深さ1 mm位置で0 mg/Lとなった。そこで、340日目より処理水循環を循環比5で始めた。以降、HRT 5 hのワンパス運転を循環比0と表記する。表-2にHRT 5 h・循環比0, 循環比5および循環比10における処理水質の比較を示す。循環比5における処理水の溶解性分は、処理水循環を開始してから直ちに向上、安定し、溶解性BOD、溶解性CODは27（±10）mg/L、106（±19）mg/Lとなった。デンプン含有排水は、容積負荷1.4 kg-BOD/m³-reactor/d、2.5 kg-COD/m³-reactor/dの条件下において、処理水循環を循環比5で行うことで、溶解性BODで目標水質（20 mg/L）に近い処理水が得られた。後節(2)、図-5で示すように、循環比5の処理水循環によって、生物膜表面から2～3 mm位置までDOが検出されるようになった。これより、DOの供給能力が向上したことで、処理水の溶解性分が向上したと考えられた。ただし、365日目以降、固形性CODの増加に伴い、全CODは悪化する傾向であった。

さらに生物膜（ろ材）の深部までDOを供給するために、417日目以降、循環比を10とした。ここでの処理水は、循環比5と同程度であった。よって本Hi-DHSリアクターにおける最適な循環比は、10以下での詳細な検討が必要である。

HRT 5 hにおける処理機構を物質収支より考察する。循環比0では汚泥の肥大化による汚泥濃度の増加、循環比10では汚泥の剥離による汚泥濃度の減少があると考えられるため、物質収支を求めることは困難である。そこで、相対的に運転期間の長い循環比5を選択する。ただし、処理水中の固形性CODが循環比0の運転期間で肥大化した汚泥由来か、生物膜が安定し定期的に剥離している汚泥かを判断することが難しい。そのため物質収支の計算は、処理が比較的安定していた循環比5の運転期間の終盤である398～416日目における分析結果（n=5）を用いた。この期間では、保持汚泥量は変化しないと仮定した。

398～416日目において、流入CODは279 g（固形性COD 7 g, 溶解性COD 272 g）、流出CODは98 g（固形性COD 65 g, 溶解性COD 33 g）であった。処理水の固形性COD

は全て汚泥とすると、除去CODは246 gとなる。文献¹²⁾より、炭水化物における汚泥のCOD収率を0.7 g-汚泥COD/g-除去CODとすると、汚泥生成量は172 g-汚泥CODとなる。汚泥の流出量が汚泥の生成量を下回っており、その差(107 g-汚泥COD)は自己分解に起因する。これより、Hi-DHSリアクターは、余剰汚泥が少ない処理プロセスだと考えられる。

25日目以降の排水の固形性CODの平均は、66(±54) mg/Lであった(データ不提示)。これに対して循環比5および10における固形性CODの平均は排水を上回った。処理水循環を行った期間では、生物膜が剥離したと言える。循環比10で運転した455日目において、回分的に循環比0として実HRTを測定したところ、実HRT/理論HRTは0.39であった。314日目(実HRT/理論HRT=0.12)と比較すると、実HRTは約3倍に延長されていた。これより、生物膜の剥離は、短絡流の改善に寄与していると考えられる。Hi-DHSリアクターは、生物膜の制御が処理水循環のみで可能で“メンテナンスが容易”な処理プロセスであることが示唆された。

散水ろ床では、処理水循環によって生物膜の肥大化の改善に効果を発揮している¹³⁾。生物膜の剥離現象は、主に線流速が与えるせん断応力という外的因子であり、微生物の死滅や細胞外ポリマーの減少等という内的因子も寄与している¹⁴⁾。処理水循環を行ったHi-DHSリアクターでは、線流速の増加と有機物負荷がろ床全体に分散したことにより、この2つの因子が両方影響し、生物膜の肥大化が改善したと考えられる。ここで、実HRTが延長するには、生物膜の肥大化の改善によって、ろ材内に水が浸透しにくい状態から、浸透しやすい状態に変化したと考えられるが、その機構を考察するには至らなかった。

c) 処理水の全COD分画

図-3に168～381日目における処理水の全COD分画を示す。HRT 8 hにおいて、処理が継続的に悪化した期間(203～238日目)におけるデンプンCODの平均は54 mg/L、グルコースCODの平均は17 mg/Lであった。全CODのうち、デンプンCODが占める割合が30%程度と比較的高いことから、排水の一部は短絡し未処理で流出していたと考えられる。水道水供給によって処理が向上した期間(245～284日目、267～269日目を除く)におけるデンプンCODは20 mg/L以下、グルコースCODは3 mg/L以下まで減少した。ここで処理が向上した理由は、活性が増加した、実HRTが増加した、という2つが挙げられる。活性が増加した理由は言及し難い。一方で、水道水供給後、それ以前に短絡流によって流出したと考えられるデンプンCODが少なくなった、実HRT/理論HRT=0.87と高かったということから、水道水供給によって実HRTが延長さ

図-3 168～381 日目における処理水の全 COD 分画

れたことが考えられる。水道水供給中は、内生呼吸等の内的因子が影響し、上述した生物膜の剥離に近い現象、すなわち生物膜の肥大化の改善によってろ材内へ排水が浸透しやすい状態に変化したと考えられる。

HRT 5 h・循環比0(水道水供給後を除く)において、デンプンCODの平均は80 mg/L、グルコースCODの平均は29 mg/Lであった。デンプンCODが、HRT 8 hより増加している。この理由は、前項a)で示した通り、極端な短絡流にあると考えられる。また、グルコースCODもHRT 8 hより増加している。この理由は、後節(2)で示すようにろ材の大部分でDOが検出されなかったことより、嫌気性処理が進行していたと考えられる。

HRT 5 h・循環比5において、デンプンCODの平均は25 mg/L、グルコースCODの平均は8 mg/Lとなった。循環比5は、循環比0と比較するとデンプンCOD、グルコースCODいずれも減少した。この理由は、処理水循環による実HRTの延長とDOの供給効率を改善することが寄与したと考えられる。その他CODは固形性CODの増加に伴いながら上昇した。これは、剥離した生物膜由来と言える。

(2) 流下方向のDOプロファイル

図-4にHRT 5 hにおける(a)流下水、(b)生物膜表面から深さ1 mm位置のDOを示す。図-5にHRT 5 hにおける(a)流下長76 cm、(b)流下長108 cmのろ材深さ方向のDOを示す。流下水のDOは、循環比に比例して増加した。流下長158 cmにおけるDOは20～30 mg/Lであった。

循環比0では、流下長30、74、108 cmにおいて、生物膜表面から深さ1 mm位置のDOが0、0、1 mg/Lであった。ここでは、ろ材内部の大部分にDOが供給されず、嫌気性処理が進んでいたと考えられる。ここで、生物膜表面から深さ1 mm位置のDOが1 mg/Lであった流下長74 cmのわずか2 cm下の流下水(流下長76 cm)において、DOは

図-4 HRT 5hにおける(a)流下水、
(b)生物膜表面から深さ 1 mm 位置の DO

図-5 HRT 5hにおける(a)流下長 74 cm、
(b)流下長 108 cm のろ材深さ方向の DO

25 mg/Lまで増加しており、高いDO供給能力が見られた。循環比5において、生物膜表面から深さ1 mm位置のDOは、流下長34 cmで0 mg/Lであったが、流下長74 cmおよび108 cmで20 mg/L程度であった。また、流下長74 cmでは深さ2 mm位置まで、流下長108 cmでは深さ3 mm位置までDOが残存していた。前節(1)で示したように、循環比5における処理水の溶解性分は、循環比0と比較して向上した。この理由はDO供給の改善が寄与しているということを実験的に明らかにした。

循環比10では、循環比5と比べてさらに深い位置にまでDOを供給できた。ただし、循環比5と循環比10における処理水は同程度であった。循環比10では、保持汚泥の有機物分解速度に対して排水の線流速が早くなり、処理水循環の効果が得られなかったと考えられる。

表-3 Hi-DHS リアクター保持汚泥と活性汚泥に
おける酸素利用速度係数と好気性活性

測定項目	測定対象	①空気条件	②酸素条件	②/①
酸素利用速度係数 (kg-O ₂ /kg-VSS/d)	保持汚泥	0.083	0.137	1.65
	活性汚泥	0.033	0.039	1.18
好気性活性 (kg-COD/kg-VSS/d)	保持汚泥	0.396	0.382	0.97
	活性汚泥	0.145	0.145	1.00

DHSリアクターでは、処理水循環によってDOの獲得増加に効果を発揮している¹⁵⁾。酸素消費がない場合、反応槽の単位容積に単位時間に溶け込む酸素量 Q_{O_2} (mg/L/s) は、次式で表せる¹⁶⁾。

$$Q_{O_2} = K_L \cdot a (C^* - C) \quad (1)$$

ここに、 K_L ：総括物質移動係数 (m/s)、 a ：反応槽単位容積当たりの気液境界の面積 (m²/m³)、 C^* ：飽和DO (mg/L)、 C ：液本体DO (mg/L) である。

DHSリアクターおよびHi-DHSリアクターでは、処理水循環によって、排水と気相部が接触する回数が増加する、すなわち a が増えることになる。それに伴い、 Q_{O_2} が大きくなり、処理水の溶解性分も向上していると考えられる。特にHi-DHSリアクターでは、 C^* を高くできることから、DHSリアクターよりも処理水循環が Q_{O_2} に与える効果は大きいと考えられる。

(3) Hi-DHSリアクター保持汚泥の性状の調査

a) 酸素利用速度試験および好気性活性試験

表-3にHi-DHSリアクター保持汚泥と活性汚泥の酸素利用速度係数、好気性活性を示す。両者は異なる負荷で馴致されたため、ここでは両者の絶対値の比較はしない。

保持汚泥の酸素利用速度係数は、高酸素条件 (DO 30 mg/L) が空気条件 (DO 8 mg/L) の1.7倍となった。活性汚泥の酸素利用速度係数は、高酸素条件が空気条件の1.2倍となった。酸素利用速度係数は、両汚泥について高酸素条件が空気条件より増加した。高DOはHi-DHSリアクターで馴致される前から酸素利用速度係数に効果的な影響があり、Hi-DHSリアクターで馴致されるとその効果は大きくなった。

保持汚泥の好気性活性は、高酸素条件と空気条件で同程度であった。活性汚泥においても両条件の好気性活性は同じ値であった。高DOは、Hi-DHSリアクターでの馴致の有無に関わらず、好気性活性に効果的にも逆効果的にも影響はなかった。

図-6 Hi-DHS リアクターおよび DHS リアクター
保持汚泥における門レベルで見た微小動物相

b) 顕微鏡観察による微小動物の定量

図-6に本Hi-DHSリアクター、豆腐工場模擬排水を処理するHi-DHSリアクターおよび下水を処理するDHSリアクターの保持汚泥⁵⁾における門レベルで見た微小動物相を示す。ここではmg-SSあたりの個体数を個体密度と表記する。本Hi-DHSリアクターにおいて、肉質虫類、繊毛虫類が $10^3 \sim 10^4$ 個体/mg-SSオーダーで、輪虫類、線虫類が 10^2 個体/mg-SSオーダーで検出された。貧毛類、ミジンコは検出されなかった。本Hi-DHSリアクターの門レベルで見た微小動物相は、豆腐工場模擬排水を処理するHi-DHSリアクターの保持汚泥（HRT 4 h・循環比0で運転）と類似した。

酸素濃度が20, 50, 70, 90%の条件下で、それぞれのチョウバエの羽化数を測定したところ、酸素濃度の増加に比例して羽化数は減少し、酸素濃度90%では、完全に羽化が抑制された⁴⁾。これより、Hi-DHSリアクターとDHSリアクターでは、微小動物相が異なると予想した。そこで2基のHi-DHSリアクターと下水を処理するDHSリアクターを比較すると、後生動物（輪虫類、線虫類、貧毛類、ミジンコの個体密度の総数）の個体密度は、前者が 10^2 個体/mg-SSオーダー、後者が 10^1 個体/mg-SSオーダーであり、前者が後者より 10^1 個体/mg-SSオーダー多かった。本Hi-DHSリアクター、豆腐工場模擬排水を処理するHi-DHSリアクターおよび下水を処理するDHSリアクターにおいて、汚泥を搾汁した箇所の部分的な汚泥負荷は、それぞれ0.55, 0.65 および0.26 kg-COD/kg-VSS/dであった。後生動物は、原生動物よりも有機物負荷が高い環境で生息しやすいとの既報があり⁹⁾、本結果はこれと同様の傾

図-7 16S rRNA 遺伝子の塩基配列に基づく
網および門レベルで分類した細菌相

向であった。前節(2)で示したDOプロファイルより、循環比10においても、空気条件の飽和DOよりも高いDO（10 mg/L以上）を供給されていた保持汚泥は、生物膜表面から深さ1～2 mm程度と一部であった。このことから、微小動物相は、Hi-DHSリアクターに特有点が見られなかったと考えられる。

c) 16S rRNA遺伝子を標的とした細菌相解析

図-7に16S rRNA遺伝子の塩基配列に基づく網および門レベルで分類した細菌相を示す。処理が良好であったHRT 12 h・循環比0（162日目）において、上部ではGammaproteobacteria網が、下部ではGammaproteobacteria網に加え、Sphingobacteria網も同程度の割合で優占した。Sphingobacteria網では、デンプンを加水分解する好気性細菌が多数存在することが知られている¹⁷⁾。また、Gammaproteobacteria網の中には、酸生成を行う通性嫌気性細菌である*Raoultella*属¹⁸⁾が見られた。これより、HRT 12 h・循環比0では、デンプン含有排水に対して、好氣的な加水分解を経て低分子化された糖などを好氣的あるいは嫌氣的な代謝があったと考えられる。

処理が悪化したHRT 5 h・循環比0（338日目）において、門レベルで見ると、Bacteroidetes門の検出率が50%以上を占めた。上部、下部ともにこれまで見られた好気性細菌は減少し、Bacteroidia網が優占した。Bacteroidia網では、*Bacteroides rodentium*属に近縁なクローンをはじめ酸生成を行う偏性嫌気性細菌¹⁹⁾が多く見られた。HRT 5 h・循環

比0では前節(1), (2)で示した通り, 極端な短絡流の発生やろ床のDOが生物膜表面から深さ1 mm位置で枯渇していることが確認された。Bacteroidia綱は, 上述のHRT 12 h・循環比0の運転条件下においては検出されておらず, DOの供給が低下したことによって, Hi-DHSリアクターで優占する細菌相が嫌気性細菌に大きく変化したと考えられる。また, これら細菌相の変化により, 上述したHRT 12 h・循環比0で成り立っていた好気性処理が低下し, 処理水質が悪化したと考えられる。

生物処理が向上したHRT 5 h・循環比10 (457日目)において, 上部では, HRT 5 h・循環比0と比較すると, 好気性のSphingobacteria綱やFlavobacteria綱が増加し, 嫌気性のBacteroidia綱が減少した。また, HRT 12 h・循環比0と類似した好気性細菌が優占する細菌相に変化した。前節(2)で示した通り, HRT 5 h・循環比10では, 循環比0と比較して, ろ材の内部までDOが供給された。これに伴い, HRT 5 h・循環比0で低下した好気性処理が回復し, 処理水の溶解性分が向上したと考えられる。

豆腐工場模擬排水を処理するHi-DHSリアクターにおいて, 440日目 (HRT 4 h・循環比0で運転) の流下長6 cm (全高158 cm) における保持汚泥は, Firmicutes門が優占し, 多くは嫌気性細菌であった⁴⁾。細菌相の変化から排水の分解経路を流下方向で推測しており, リアクター上部では加水分解, 酸生成が行われ, リアクター下部では低分子化された糖などを代謝しているとして述べている⁴⁾。本Hi-DHSリアクターにおけるFirmicutes門の検出率は, 最も運転条件が類似しているHRT 5 h・循環比0で5%以下であり, 全期間においても優占しなかった。これより, 細菌相の違いは, 前節(1)で述べた生物膜の成長 (肥大化) に影響を与えていることが考えられた。

4. まとめ

DHSリアクターの気相部を高濃度酸素で維持するHigh dissolved oxygen DHS (Hi-DHS) リアクターによって全COD 1000 mg/Lのデンプン含有排水を連続処理し, 豆腐工場模擬排水との処理性能, 生物膜性状を比較した。また, 処理性能を向上させる運転方法として, 処理水循環を検討した。

HRT 5 h・循環比0, 容積負荷1.4 kg-BOD/m³-reactor/d, 2.5 kg-COD/m³-reactor/dにおいて, 処理水は溶解性BOD 50 mg/L, 溶解性COD 130 mg/L以上であった。豆腐工場模擬排水を同負荷で処理したHi-DHSリアクターの処理水は, 全COD 50 mg/L以下, 溶解性COD 40 mg/L以下であった。本Hi-DHSリアクターが豆腐工場模擬排水を処理したHi-DHSリアクターよりも処理水質が劣った理由は, 実

HRT/理論HRTが前者は0.12に対して後者は0.55であり, 実HRTが確保できていないことが一因であった。豆腐工場模擬排水とデンプン含有排水を処理するHi-DHSリアクターの細菌相を比較すると, 前者はFirmicutes門が, 後者はBacteroidetes門が優占しており, 門レベルで細菌相は異なった。

HRT 5 hにおいて処理水循環を循環比5, 10で試みた。処理水は, 溶解性BOD 25 mg/L, 溶解性COD 110 mg/L程度に向上した。処理水循環による処理水の溶解性分の向上には, 生物膜が剥離し, DO供給効率の増加, 実HRTの延長 (実HRT/理論HRT=0.39) に寄与していることが実験的に分かった。

実験終了時 (461日目) に, 保持汚泥の酸素利用速度, 好気性活性, 微小動物相および細菌相を調査した。DO 30 mg/Lに曝した場合における酸素利用速度係数はDO 8 mg/Lに曝した場合の1.7倍程度となり, その差は活性汚泥 (1.2倍) よりも大きくなったことから, 高DOで馴致したことによる効果的な影響が見られた。しかし, 好気性活性, 微小動物相, 細菌相においては, 特異的な点が見られなかった。

Hi-DHSリアクターは, 生物膜の制御が処理水循環のみで可能で“メンテナンスが容易”な処理プロセスとなることが示唆された。

謝辞: 本研究の一部は (公社) 小川科学技術財団の助成を受けて実施しました。関係各位に感謝致します。

参考文献

- 1) 西本俊幸: 環境技術実証事業における小規模処理場等での有機性排水処理技術分野について, 用水と廃水, Vol.55, No.1, pp.69-74, 2013.
- 2) Lemer, M., Stahl, N., Galil, N.I.: Comparative study of MBR and activated sludge in the treatment of paper mill wastewater, *Water Science & Technology*, Vol. 55, No. 6, pp. 23-29, 2007.
- 3) 小島 昭: 排水・汚水処理技術集成, エヌ・ティー・エス, 2007.
- 4) 角野晴彦, 馬島孝治, 川上周司, 高石有希子, 加藤勇治, 珠坪一晃: 酸素供給型 DHS リアクターによる豆腐工場模擬排水の連続処理, 用水と廃水, Vol.55, No.11, pp.836-845, 2013.
- 5) 松永健吾, 小野寺崇, 上村繁樹, 山田真義, 山内正仁, 高橋優信, 久保田健吾, 原田秀樹, 山口隆司: 下水処理 UASB 後段の DHS における余剰汚泥量の抑制要因の評価, 環境工学研究論文集, Vol.46, pp.623-638, 2009.
- 6) 須藤隆一: 微生物固定化法による排水処理, 産業用水調査会, 1988.

- 7) 田中淳一：高度廃水処理用担体に付着する硝化細菌群の解明, *塗料の研究*, Vol.39, pp.2-11, 2002.
- 8) 岐阜県：岐阜県庁ホームページ，環境（法令条例等，水士環境の保全）<http://www.pref.gifu.lg.jp/kankyo/>, 2014.5 閲覧.
- 9) (社) 日本下水道協会：下水試験方法上巻, 1997.
- 10) 須藤隆一，稲森悠平：図説生物相から見た処理機能の診断，産業用水調査会，2006.
- 11) Hatamoto, M., Miyauchi, T., Kindaichi, T., Ozaki, N., Ohashi, A., : Dissolved methane oxidation and competition for oxygen in down-flow hanging sponge reactor for post-treatment of anaerobic wastewater treatment, *Bioresource Technology*, Vol. 102, pp. 10299-10304, 2011.
- 12) (社) 土木学会環境工学委員会：環境工学公式・モデル・数値集，土木学会，2003
- 13) Daigger, G.T., Boltz, J.P. : Trickling Filter and Trickling Filter - Suspended Growth Process Design and Operation : A State-of-the-Art Review, *Water Environment Research*, Vol. 83, No. 5, pp. 388-404, 2011.
- 14) 大橋晶良，原田秀樹，桃井清至：生物膜の成長過程と剥離に関する実験的研究，衛生工学研究論文集，Vol. 25, pp.209-220, 1989.
- 15) 大久保 努，久保田健吾，原田秀樹，山口隆司：無曝気方式の新規下水処理技術の開発－第三世代型担体を適用した実規模 DHS リアクターの処理性能評価－，土木学会論文集 G, Vol.66, No.3, pp.149-158, 2010.
- 16) 北尾高嶺：生物学的排水処理工学，コロナ社，2003
- 17) Krieg, N. R., Ludwig, W., Whitman, W. B., Hedlund, B. P., Paster, B. J., Staley, J. T., Ward, N., Brown, D., Parte, A.: The Bacteroidetes, Spirochaetes, Tenericutes (Mollicutes), Acidobacteria, Fibrobacteres, Fusobacteria, Dictyoglomi, Gemmatimonadetes, Lentisphaerae, Verrucomicrobia, Chlamydiae, and Planctomycetes, *Bergey's manual of systematic bacteriology*, Vol. 4. Springer, New York, NY, 2010.
- 18) Drancourt, M., Bollet, C., Carta, A., Rousselier, P. : Phylogenetic analyses of *Klebsiella* species delineate *Klebsiella* and *Raoultella* gen. nov., with description of *Raoultella omithinolytica* comb. nov., *Raoultella terrigena* comb. nov. and *Raoultella planticola* comb. nov., *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, Vol. 51, pp. 925-932, 2001.
- 19) Kitahara, M., Tsuchida, S., Kawasumi, K., Amao, H., Sakamoto, M., Benno, Y., Ohkuma, M. : *Bacteroides chinchillae* sp. nov. and *Bacteroides rodentium* sp. nov., isolated from chinchilla (*Chinchilla lanigera*) faeces, *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, Vol. 61, pp. 877-881, 2011.

(2014. 5. 23 受付)

STUDY OF OPERATING METHOD FOR IMPROVEMENT PERFORMANCE IN A DHS REACTOR WITH PURE OXYGEN SUPPLY TREATING STARCH WASTEWATER

Tsuyoshi DANSHITA, Haruhiko SUMINO, Seiki KOJIMA, Shuji KAWAKAMI,
Yukiko TAKAISHI, Takashi YAMAGUCHI and Kazuaki SYUTSUBO

A high dissolved oxygen Down-flow Hanging Sponge (Hi-DHS) reactor was applied as a treatment of starch wastewater. The purpose of this study was to evaluate a difference in performance of Hi-DHS reactor due to wastewater component, and to investigate an operating method for improvement performance of Hi-DHS reactor. Total COD and total BOD of starch wastewater was 1016 and 565 mg/L respectively. At an HRT of 5 h, organic loading rate was 1.4 kg-BOD/m³-reactor/d, effluent soluble BOD was over 50 mg/L. This was due to a short cut flow and a shortage of DO supply. Then effluent recirculation was applied to improve these phenomenons. Then effluent soluble BOD was around 25 mg/L. Effluent recirculation suggested that this was a easy method to control biofilm thickness.