

経済産業省 産業技術環境局長賞

「下水高濃度返流水の省エネ型窒素除去装置」

大阪市/メタウォーター株式会社

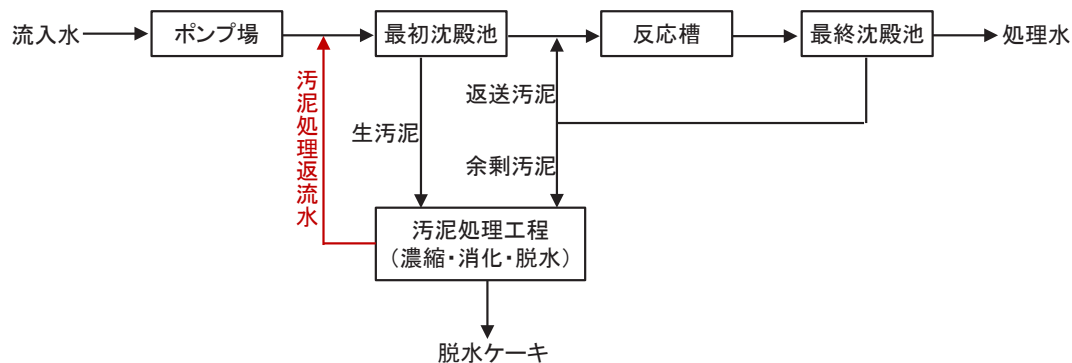
1. 装置の詳細説明

(1) はじめに

近年、下水処理には、低炭素化の推進の一環としてのエネルギー回収が求められるようになってきている。そのため、嫌気性汚泥消化プロセスが、エネルギー回収を図れる点で改めて注目され、その目的での活用が進みつつある。例えば、嫌気性汚泥消化プロセスで得られた消化ガスによる発電を行うことにより、処理場全体におけるエネルギー消費量の1.9倍のエネルギー生産量が得られるようになった事例¹⁾もある。

一方で、下水処理プロセスにおいては、閉鎖性水域の富栄養化防止を目的として、下水中の有機物除去に加えて、窒素・りんをも除去する高度処理が求められている。有機物除去のみでも曝気に多大なエネルギーを要するが、有機物に加えて窒素をも除去する生物学的窒素除去プロセスの採用は、エネルギー消費量を倍増させるものである。

ここで、反応槽に流入する窒素・りんは、処理場への流入水に含まれるのみならず、汚泥処理返流水(図表1参照)にも含まれる。水処理系から取り除かれた生汚泥や余剰汚泥に含まれる窒素やりんが、汚泥処理の工程を経るに際しアンモニア態窒素・りん酸態りんとして溶出し、再び水処理系に戻ってくる。特に、汚泥処理工程に前述の嫌気性汚泥消化プロセスが含まれる場合には、返流水由来の窒素負荷量及びりん負荷量は極めて高くなる。嫌気性汚泥消化プロセス採用時の返流水由来の窒素負荷量と流入水由来の窒素負荷量は同等レベルといわれている。りん負荷量も流入水由来のりん負荷量と概ね同等²⁾と報告されている。このように嫌気性汚泥消化プロセスを含む汚泥処理系返流水は窒素・りん負荷が高く、これが水処理における消費エネルギー増加の主要因になっている。



図表1 下水処理フローにおける汚泥処理返流水

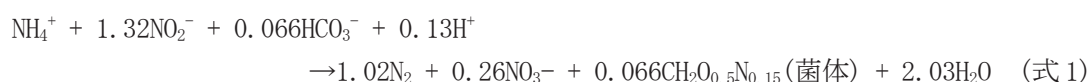
そこで、嫌気性汚泥消化プロセスを有する汚泥処理工程からの返流水中の窒素及びりんを水処理に混合する前に除去する低炭素型返流水処理プロセスの実用化が望まれていた。

以下に説明する「下水高濃度返流水の省エネ型窒素除去装置」（以下、本装置と呼ぶ）は、嫌気性汚泥消化プロセスを有する汚泥処理工程からの返流水中のアンモニアを、従来の硝化脱窒とは異なる原理（本原理はアナモックスプロセスという）により大幅に省エネ脱窒処理でき、リンについても除去が行える一連のシステム技術である。

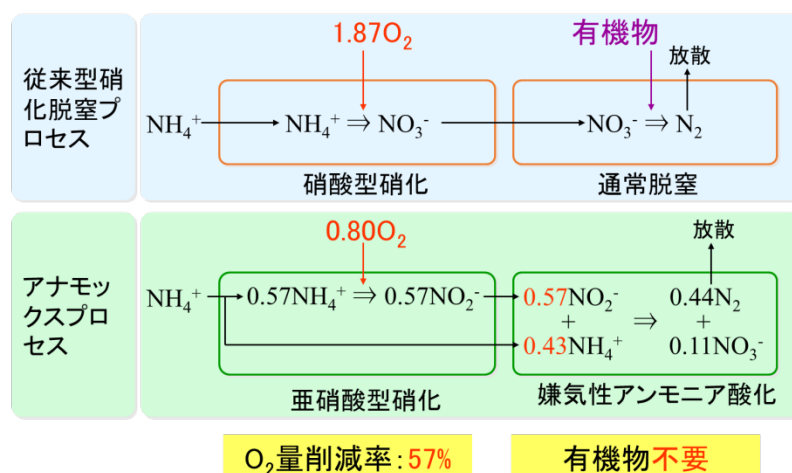
本装置は、下水処理分野において国内で初めて実用化に成功し、現在、順調に稼働している。

（2）アナモックスプロセスについて

アナモックスプロセスは、アンモニア酸化細菌によるアンモニアの亜硝酸化反応と、アナモックス細菌によるアナモックス脱窒の2種類の反応からなる。アナモックス脱窒の反応式を式1に示す。アナモックス細菌は嫌気性独立栄養細菌であり、脱窒のための電子供与体にアンモニアを、電子受容体に亜硝酸を用いる。 $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_2\text{-N}$ は 1:1.32 の比率で反応し、1.02 の N_2 ガスとして放出される。



図表2に、アナモックスプロセスと従来型硝化脱窒プロセスの酸素消費量を比較する。従来型硝化脱窒プロセスは、全てのアンモニア態窒素を酸素と反応させて硝酸態窒素まで酸化（硝化）し、次いで、従属栄養脱窒細菌により脱窒し窒素ガス化するものである。これに対し、アナモックスプロセスは、アンモニア態窒素の一部（57%）を、中間体である亜硝酸態窒素まで酸化（亜硝酸化）し、生成した亜硝酸態窒素と未反応のアンモニア態窒素（43%）を式1の反応により窒素ガスにできるものである。これは、硝化のために必要な酸素量が従来型硝化脱窒プロセスの57%減となることに起因する。これにより、硝化のために必要な酸素量は従来型硝化脱窒プロセスの57%減となる。



図表2 アナモックスプロセスと従来型硝化脱窒プロセスの比較

アナモックスプロセスを省エネ型窒素除去プロセスとして実用化する試みは、最初期の研究³⁾が発表された1995年以来、世界中で活発に行われてきた。ここで、アナモックスプロセスは、高温でありかつ、アンモニアを高濃度に含有し、有機物を含有しない排水への適用に適している。それは第一に、高温かつ高濃度アンモニアという条件が、アンモニアの亜硝酸化反応の速度と、亜硝酸の硝酸化反応の速度との差を大きくする方向にはたらき、アナモックス脱窒に必要な亜硝酸を蓄積させるのに有利なためである。また、アナモックス細菌も比較的高温(30℃以上)で活性が高くなる特性を有するからである。さらには、アナモックス反応は通常脱窒と異なり、電子供与体として用いるのはアンモニアであり、有機物は不要なためである。それゆえ、アナモックス反応の排水処理への適用の試みは、工業で発生する高濃度アンモニア含有排水の処理や、下水処理場関連では嫌気性消化脱離液、脱水ろ液等を対象としてなされてきた。

(3) 本装置のフロー

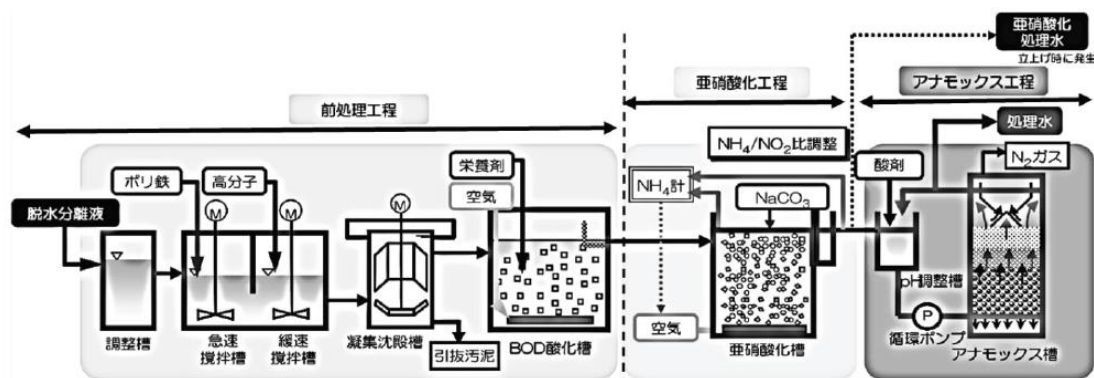
本装置のフローを図表3に示す。本装置は以下の3つの工程で構成される。うち前処理工程は具体的には、凝集沈殿と有機物酸化を行うものである。

- 1) 前処理工程
- 2) 亜硝酸化工程
- 3) アナモックス工程

1) 前処理工程

前処理工程は、急速・緩速攪拌槽、凝集沈殿槽、BOD酸化槽よりなる。前者二つでりん(SS (Suspended Solids の略称:水中に懸濁している不溶性物質))を除去し、BOD酸化槽でBOD (Biochemical Oxygen Demand[生物学的酸素要求量]の略称:有機物による水質汚濁の指標)を除去する。

りんを除去する目的は第一に、返流水由来のりん負荷量を削減することで、水処理系への負担を軽減することである。第二に、後段のBOD酸化槽でMAP(りん酸マグネシウムアンモニウム)が生成してスケールを形成し、配管の閉塞や、散気装置への付着による発泡不良を引き起こすことを抑止することである。MAPはりん酸・マグネシウム・アンモニウムの3種イオンが結合し生じるものであるため、その一つであるりん酸イオンを除去することで、MAPの生成を抑制できる。



図表3 本装置のフロー

SS を除去する目的は、高濃度 SS の流入が、アナモックス槽でのアナモックス細菌のウォッシュアウトを引き起こすおそれを解消することである。

BOD を除去する目的は、アンモニアと同じく被酸化物である BOD を、亜硝酸化槽へ流入させないことで、亜硝酸化槽における曝気風量制御を安定的に行わせるためである。すなわち、アナモックス反応は前述のとおり、 $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_2\text{-N}$ が一定の比率で反応するため、亜硝酸化槽における亜硝酸化率をその比率に見合ったものに安定化するためである。

①調整槽

流入水を一定時間貯留することで、水量と水質の時間変動幅を緩和する。

②急速・緩速攪拌槽

急速攪拌槽にて、無機凝集剤であるポリ硫酸第二鉄を添加し混合させることで、りんと SS を凝結反応によって微細フロックとして析出させる。次いで、緩速攪拌槽にて高分子凝集剤を添加し、微細フロックを粗大フロック化し、沈殿しやすくする。

③凝集沈殿槽

凝集フロックを沈殿させ分離する。

④BOD 酸化槽

BOD 酸化槽では、活性汚泥を用いることなく、結合固定化担体を投入し、その表面に付着した生物膜により BOD を除去する。すなわち、槽内を曝気することにより、生物膜中の BOD 酸化細菌のはたらきにより、BOD を酸化分解する。

なお、本槽では、生物反応に必要な微量金属を補給するために栄養剤を添加する。

2) 亜硝酸化工程

亜硝酸化槽は、BOD 酸化槽と同様に、活性汚泥を用いることなく、結合固定化担体を投入し、その表面に付着した生物膜によりアンモニアを亜硝酸化する。

亜硝酸化に必要な酸素供給と担体流動のための散気装置としては、下水処理場の反応槽での稼働実績が豊富で、酸素供給能力の高いセラミック製散気装置を用いている。

後段のアナモックス槽では、 $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_2\text{-N}$ が 1:1.32 の比率で反応するため、アンモニアの 57%を亜硝酸化し、43%は未反応のままアナモックス槽に供給すべく、曝気風量を制御する。風量制御は、連続測定される亜硝酸化槽流入 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度と流出 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度に基づいて行う。

亜硝酸化槽では、生成した亜硝酸がさらに硝酸化されることを抑止せねばならないが、まず前述のとおり、原水性状自体が高温かつ高濃度アンモニアという点で、硝酸生成抑止に有効にはたらく。さらには、亜硝酸生成により低下する pH を回復させるためにアルカリ剤を注入する

3) アナモックス工程

アナモックス槽では、亜硝酸化槽から送られるアンモニア態窒素と亜硝酸態窒素が、式 1 に示した反応により窒素ガス化され、大気放散される。計算上、アナモックス槽に流入するアンモニア態窒素と亜硝酸態窒素を合わせた窒素分の 87%が窒素ガス化され、11%が硝酸態窒素として処理水中に残留する。

アナモックス細菌は、無数の細胞が集結し凝塊(グラニュール)化(図表 7 参照)する習性を有する。そこで、アナモックス槽としては、アナモックス細菌をグラニュールとして高密度に保持できる UASB(上向流式嫌気性汚泥床)法を採用している。アナモックス槽底部より、亜硝酸化

槽流出水に加えて、アナモックス槽自身の流出水(処理水)の一部をも流入させて、適切な上向流速を与えることで、沈降性に優れるグラニュールを上方向に展開させ、反応効率を高める。なお、アナモックス槽内の亜硝酸濃度が一定レベルを超えると、アナモックス細菌の活性が損なわれるが、処理水の循環は亜硝酸濃度を適正レベルに希釈する役割も担っている。

アナモックスグラニュールは沈降速度が速いため、槽上部の気固液分離装置にて容易に処理水から分離されるため、固液分離槽を別途設ける必要がない。

アナモックス反応は pH を上げるため、pH 調整槽にて酸剤を注入し、pH を調整する。

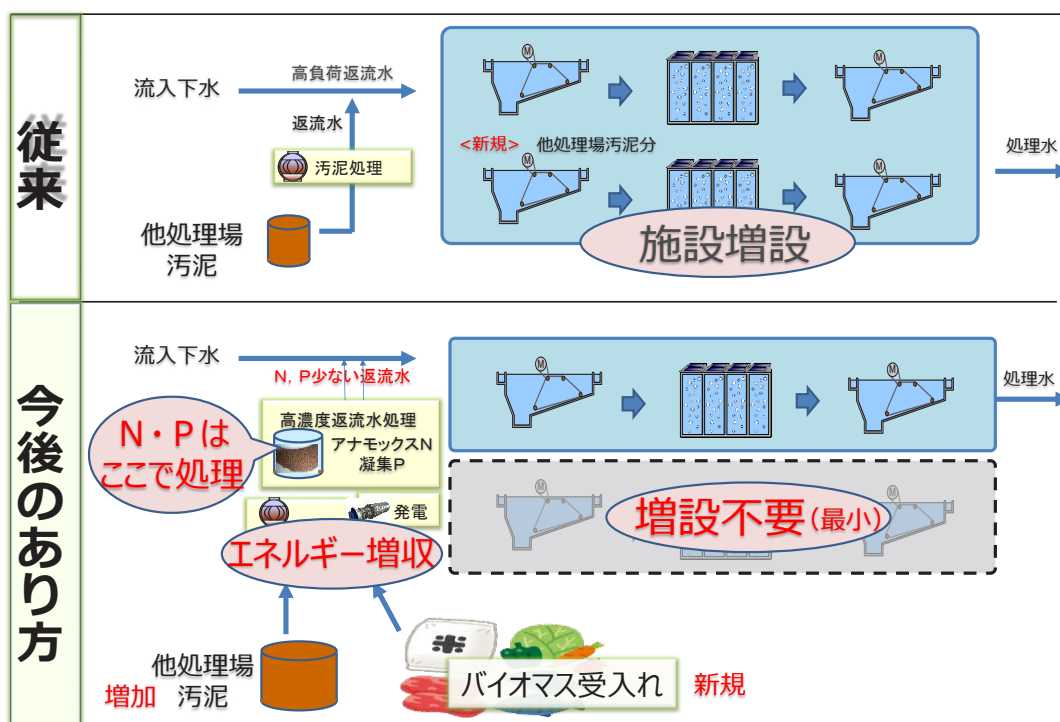
(4) 本装置導入による水処理施設系列削減効果

近年、複数処理場から排出される汚泥を一処理場で集中処理することがなされることが多い。汚泥の集中処理を行う処理場で問題となるのは、水処理施設への窒素・りん負荷の増大にともない、水処理施設を増設せねばならないことである。そこで、汚泥処理返流水の窒素・りん処理装置として本装置を導入すれば、図表 4 に示すように、水処理施設への窒素・りん負荷が軽減されるため、増設が不要となる。

2. 開発経緯

(1) 開発経緯

開発経緯の概要を以下に示す。



図表 4 本装置導入による水処理施設系列削減のイメージ

2007年6月～2008年3月	<p>ベンチスケール開発研究</p> <p>研究名称：高温高濃度消化汚泥の脱水分離液から窒素を除去する技術に関する共同研究</p> <p>実験場所：中浜下水処理場</p> <p>実験規模：原水量 74 L/日</p> <p>高温高濃度消化汚泥の脱水分離液(平均 NH₄-N 930mg/L、平均 SS 220mg/L、平均 S-BOD 310mg/L)を原水として、アナモックスプロセスのベンチスケール実証実験を行った。</p>
2014年3月～2014年10月	<p>実施設計</p> <p>施設納所：平野下水処理場</p> <p>施設規模：原水量 1350m³/日</p> <p>性能安定性維持のために必要な機器の選定、低ランニングコスト実現のための制御方法、短期間で建設可能となるようなコンパクトな設備配置の検討等を行った。</p>
2014年11月～2017年3月	<p>実施建設</p>
2017年4月	<p>第1号機納入</p>
2017年4月～2019年3月	<p>運転技術の確立と性能評価</p>
2019年4月～	<p>実運転稼働中</p>

1) ベンチスケール開発研究

高温高濃度消化汚泥の脱水分離液(平均 NH₄-N930mg/L, 平均 SS220mg/L, 平均 S-BOD310mg/L)を原水として、アナモックスプロセスのベンチスケール実証実験を行った。実証実験により、以下の成果が得られた。

- ①初期立上げ運転方法を確立し、2ヶ月程度で立上げが完了できることが確認された。
- ②立上げ完了後には、十分な窒素除去性能を有することが確認された。
- ③安定的な窒素除去性能を維持するには、下記前処理が不可欠であることが確認された。(これらについては、「3. 独創性」の章で詳述する。)
 - ・溶解性 BOD の分解
 - ・SS の沈殿除去
 - ・りん酸の凝集除去

2) 実施設計～建設

ベンチスケール開発研究の成果に基づき、実施設計に必要となる各種検討を重ねた。具体的には、性能安定性維持のために必要な機器の選定、低ランニングコスト実現のための制御方法、短期間で建設可能となるようなコンパクトな設備配置の検討等を行った。以降、実施設計した本装置を「本施設」と呼ぶ。

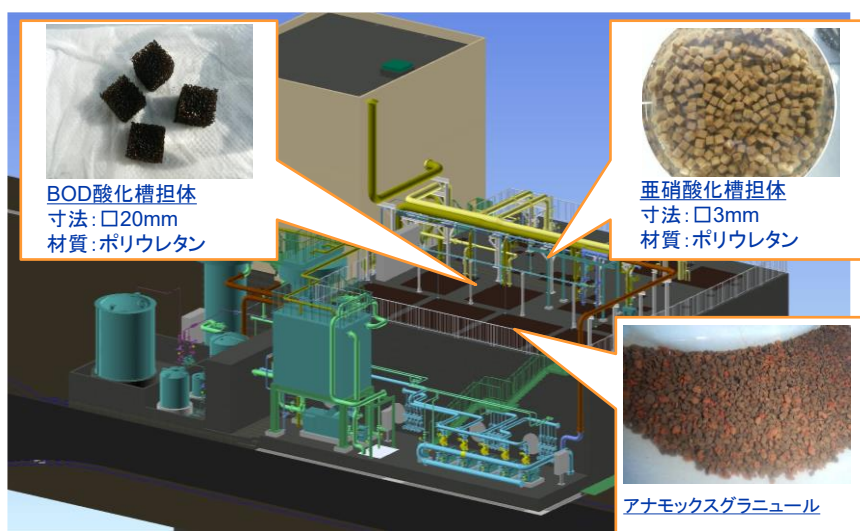
本施設は、アナモックスプロセスを用いた汚泥処理返流水処理施設として下水処理場に建設した国内初の施設である。図表 5 に施設全景写真を示す。また、図表 6 に用いた担体等の写真を示す。

3) 運転技術の確立と性能評価

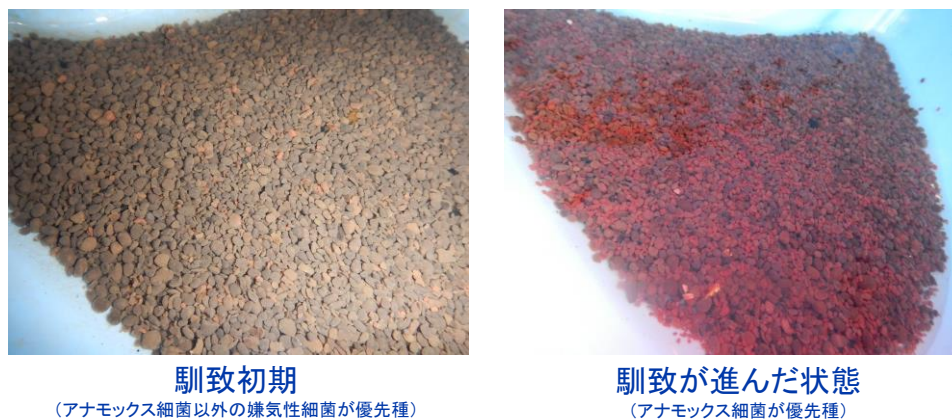
2年間の運転管理を実施し、性能評価を行うとともに、運転管理マニュアルを作成した。
図表7にアナモックスグラニュールの馴致開始時と馴致完了後の写真を示す。



図表5 施設全景写真



図表6 担体・グラニュール写真



図表7 グラニュール馴致前後の写真

(2) 共同開発

本装置は、大阪市、メタウォーター株式会社が共同で開発を行った。それぞれが担当した開発の内容は、次のとおりである。

- ・大阪市：
実証実験による消化汚泥脱水分離液（返流水）でのアナモックスプロセス技術の確立、及び実施設の性能評価
- ・メタウォーター株式会社：
実証実験による消化汚泥脱水分離液（返流水）でのアナモックスプロセス技術の確立及び実施設の設計・建設・運転管理（運転技術の確立）

(3) 技術導入

2007年、メタウォーター株式会社（当時：株式会社 NGK 水環境システムズ）が Paques Technology B.V. と栗田工業株式会社から、アナモックスプロセスに関する技術導入を行った。本技術は導入段階において工場排水処理における実績はあるものの、生活排水を含む下水分野における処理実績はなかった。

申請者（大阪市、メタウォーター株式会社）は、新たに下水分野において消化汚泥脱水分離液からの窒素除去に同技術を適用し、独自のりん、有機物除去技術と組み合わせて、国内初の返流水処理一体システムとして実用化し、実施設として稼働させるに至った。

3. 独創性

(1) 好気槽を BOD 酸化槽と亜硝酸化槽に完全分離

BOD 酸化とアンモニアの亜硝酸化は別々の槽で順次行うこととした。

高温高濃度消化汚泥の脱水分離液は BOD を含む。そして、BOD 酸化とアンモニアの亜硝酸化を同一槽で行うことも可能ではあるが、まずは BOD のみを酸化した後、亜硝酸化反応を行う方が、亜硝酸化率を目標値（アナモックス反応式より決まる 1.32/2.32）により近い値に安定的に保つことが容易となることがわかり、その方式を採用した。

また、ベンチスケール開発研究において、亜硝酸化槽で亜硝酸が通常脱窒反応をうけることが一酸化二窒素生成を誘引している可能性が示唆された。そこで、亜硝酸化槽の前段に BOD 酸化槽を設けることで、BOD と亜硝酸を共存させないようにすることが、一酸化二窒素生成の抑止に寄与すると考えられた。

(2) 前処理としてのりん酸除去

ベンチスケール開発研究において、特に BOD 酸化槽において MAP スケールが生成され、散気装置の目詰まりを引き起こす（図表 8 参照）等のトラブルが頻発した。本問題への対応策として、BOD 酸化槽前段で鉄系凝集剤による凝集沈殿を施し、 $PO_4\text{-P}$ 低減による MAP 生成抑制を図った。MAP 生成抑制効果は確認され、凝集剤注入量として $Fe/PO_4\text{-P}$ モル比を 1.5 以上とすればよいことがわかった。

なお、本プロセスにおけるりん除去は、返流水処理として水処理系への流入負荷を減らすためにも重要である。



図表 8 MAP スケールによる散気装置目詰まり状況

(3) 二槽式のアナモックスプロセスの採用

アンモニアの亜硝酸化とアナモックス脱窒よりなるアナモックスプロセスは、両反応を一槽で同時進行させる一槽式プロセスが、世界での主流となっている。一槽式プロセスには、滞留時間が短い、アルカリ剤・酸剤の薬品費が少なく済む、などの利点があるからである。しかし、消化汚泥の脱水分離液を処理対象とする場合には、アンモニアの亜硝酸化とアナモックス脱窒を各々別の槽で順次行う二槽式プロセスを採用するのがより良いと考える。それはまず、流入水が停止したときへの対応が容易だからである。また、流入水質変動や阻害物質混入の影響を比較的受けやすいアナモックス槽を、最後段に配置することで、影響を緩和できるからである。

4. 特許の有無

次のとおり、特許 3 件を取得済み。

特許番号：第 5100529 号 / 名称：スケール防止を織り込んだ有機性原水の脱窒方法
/ 特許権者：大阪市、メタウォーター株式会社

特許番号：第 5006845 号 / 名称：一酸化二窒素の発生抑制方法
/ 特許権者：大阪市、メタウォーター株式会社

特許番号：第 5006849 号 / 名称：亜硝酸型硝化の制御による有機性原水の脱窒方法
/ 特許権者：メタウォーター株式会社

5. 性能

本施設稼働開始から 2 年経過後である 2019 年 4 月以降の 1 年間の運転データを基に、本施設の性能を評価する。

(1) 実施設化した本装置の仕様

大阪市平野下水処理場内に実施設として建設した本施設の仕様を図表 9 に示す。

(2) 本施設の稼働により実証した性能

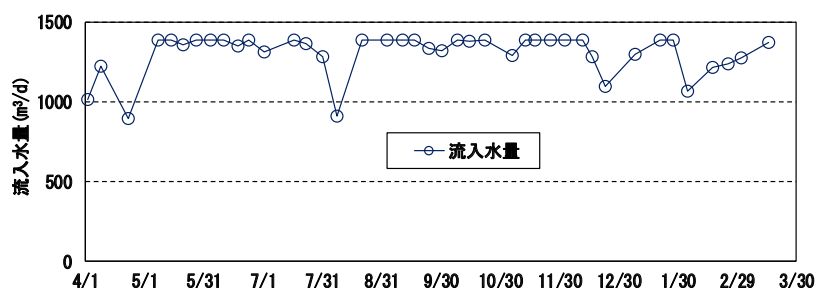
1) 窒素除去性能

図表 10～12 に、T-N 濃度と T-N 除去率の経日変化を、流入水量及び水温とともに示す。流入水量、水温、流入 T-N 濃度は大きく時間変動したが、T-N 除去率は目標どおり、ほぼ安定的に 80%以上が得られている。

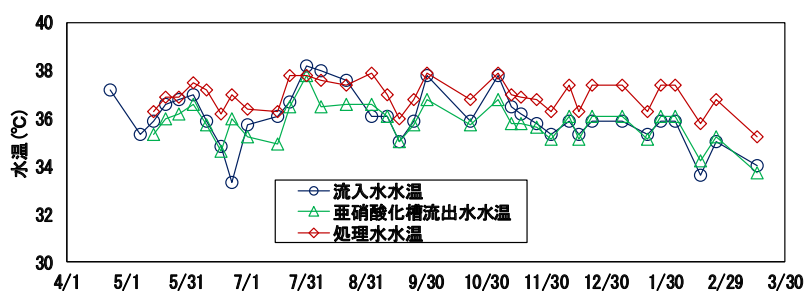
なお、アナモックス細菌は 40℃程度より高い水温にさらされると、不可逆的に失活する。そこで、本施設では、流入水温が高すぎる時に、処理場内再利用水と熱交換することで、流入水を冷却している。(冷却に必要な費用は再利用水の送水ポンプ動力費のみで、それは図表 17 に示す電力費のうち 6%程度を占める。)

図表 9 本施設の仕様

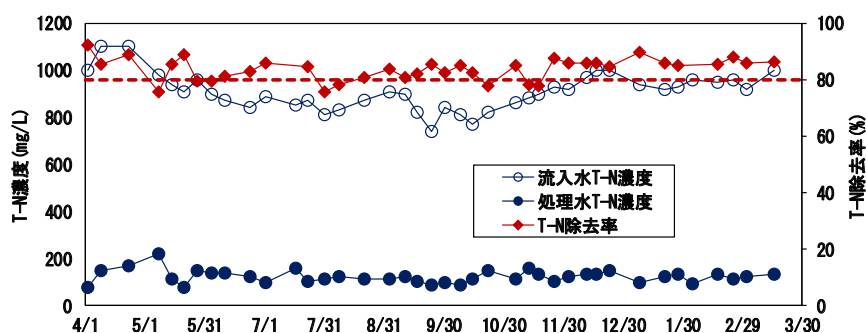
処理能力	1350m ³ /日
対象水	高温高濃度消化汚泥の脱水分離液
設置スペース	605m ² (27.5m×22.0m)
凝集沈殿槽仕様	高速傾斜板式沈殿装置 φ2000 処理水量675m ³ /日×2基
BOD酸化槽仕様	準全面曝気式散気装置 槽容量68.4m ³ ×2槽
亜硝化槽仕様	全面曝気式散気装置 槽容量162m ³ ×4槽
アナモックス槽仕様	上向流式嫌気性汚泥床 槽容量98.4m ³ ×4槽



図表 10 流入水量の経日変化 (2019年度)



図表 11 水温の経日変化 (2019年度)



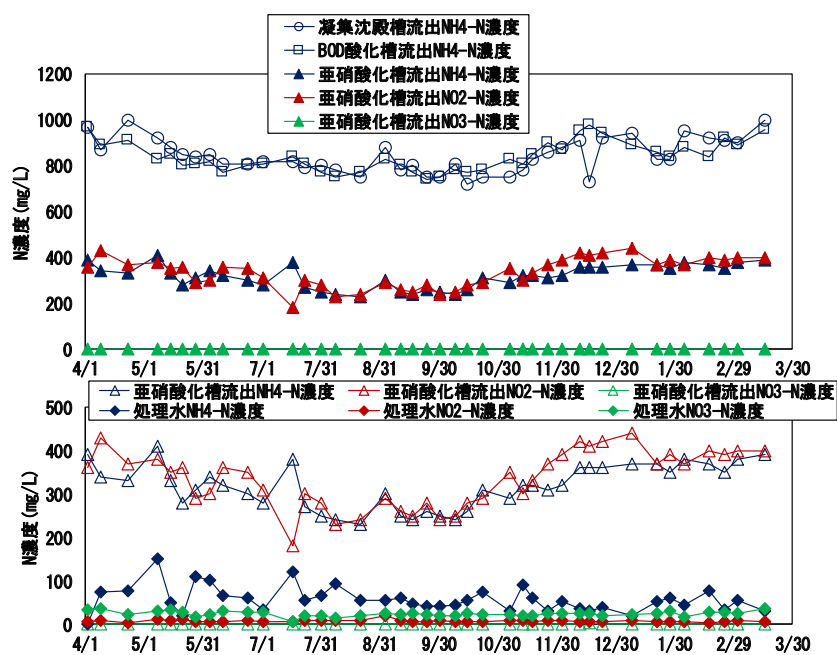
図表 12 T-N濃度とT-N除去率の経日変化 (2019年度)

2) 各態窒素の挙動

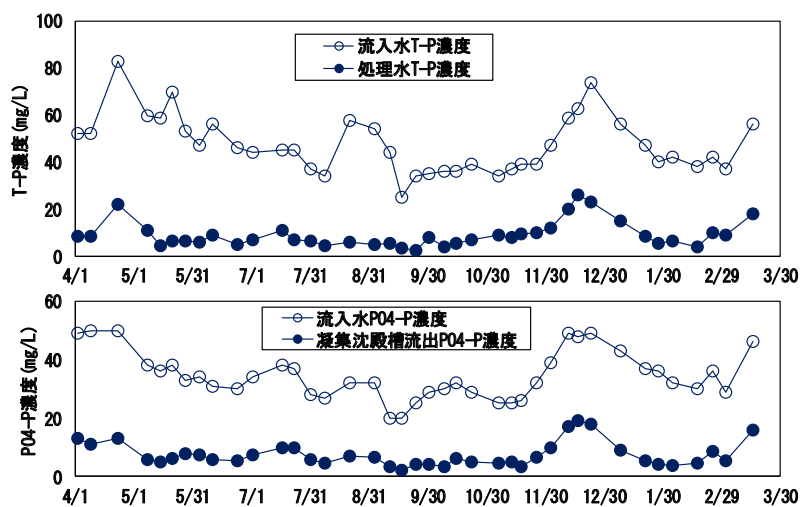
図表 13 に各態窒素の挙動を示す。NH₄-N は BOD 酸化槽では酸化されず、専ら亜硝酸化槽で酸化されている。亜硝酸化槽では、曝気風量制御が順調に機能しており、生成した NO₂-N と酸化されずに残留した NH₄-N がみられる。亜硝酸化槽ではまた、NO₃-N 生成の抑制がなされていることがみてとれる。

3) りん除去性能

図表 14 にりん濃度の経日変化を示す。本施設が凝集沈殿槽を有することにより、水処理系への T-P 負荷が大きく低減されているといえる。



図表 13 各態窒素の挙動 (2019 年度)



図表 14 りん濃度の経日変化 (2019 年度)

4) SS 除去性能

図表 15 に SS 濃度の経日変化を示す。SS は凝集沈殿槽でほぼ完全に除去され、後段の生物処理への SS 流入が抑えられている。

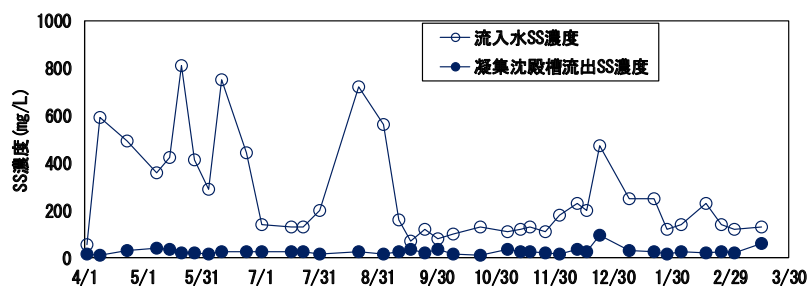
5) BOD 除去性能

図表 16 に S-BOD 濃度の経日変化を示す。BOD 酸化槽により、後段の生物処理への S-BOD 負荷が大きく低減されている。

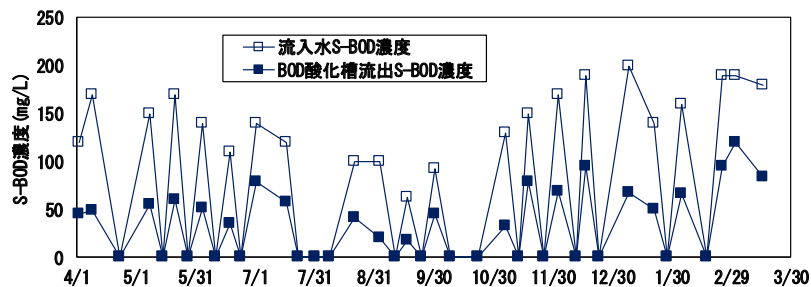
6. 経済性

高温高濃度消化汚泥の脱水分離液を水処理系に返流し水処理系で処理する場合、並びに、本施設で処理する場合それぞれのランニングコストを試算した。その結果を図表 17 に示す。本施設で処理する場合は薬品費がかさむものの、電力費が非常に安価であるため、トータルランニングコストとしては、水処理系で処理する場合の 4 割程度に抑えられることがわかった。

また、高温高濃度消化汚泥の脱水分離液を、既設水処理施設に返流し窒素除去を行う場合に、増設せねばならない水処理施設の面積を試算した。既設水処理施設としては、流入水量が 30000m³/日であり、反応槽流入 T-N 濃度 30mg/L を 10mg/L に減じて放流する施設を想定した。本施設に流入している消化汚泥脱水分離液をその施設に流入させて、放流 T-N 濃度 10mg/L を維持せねばならない場合の反応槽増設分の面積を、単純な比例計算で算出した結果を図表 18 に示す。本施設の設置面積はそれの 1/13 程度に相当し非常にコンパクトであることがわかる。



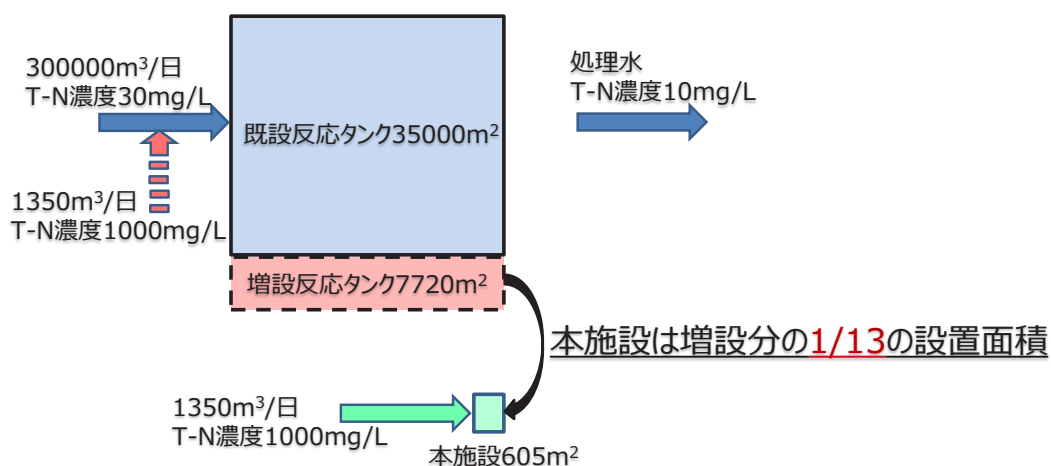
図表 15 SS 濃度の経日変化 (2019 年度)



図表 16 S-BOD の経日変化 (2019 年度)

図表 17 ランニングコスト比較表

	返流水を水処理系で処理する場合	本施設で処理する場合
電力費(円/kgN)	300	44
薬品費(円/kgN)	26	95
計(円/kgN)	326	139



図表 18 本施設がなかった場合の水処理施設の規模イメージ

7. 将来性

国際社会においては、「産業革命後の気温上昇を2℃以内に抑える」という目標を掲げた「パリ協定」が採択され、平成28年に発効した。その実現のためには、CO₂など温室効果ガスの排出量をできるだけ減らす「低炭素化」の取り組みが必要である。

下水道事業では多くのエネルギーを使用するとともに多量の温室効果ガスを排出しており、下水汚泥をエネルギー資源として捉えた取り組みが必要となっている。下水道統計要覧によれば、下水汚泥の発生量は下水道の普及の成熟化とともに、2000年度に年間4.0億m³を越え、その後は4.2億m³前後で横ばいとなっている。下水汚泥よりエネルギーを回収する有効な手段として、汚泥の嫌気性消化プロセスを導入し消化ガスを製造することがあげられる。しかし、嫌気性消化プロセスを導入すると、汚泥処理系から水処理系への返流水中の窒素やりんが高濃度となり、水処理系への影響が大きいいため、その導入が見送られるケースも多い。

下水道事業において低炭素化を大きく推進するには、高濃度返流水を低エネルギーにて処理ができる装置の実用化が不可欠である。本装置の実用化は、下水道分野での初めての実現であり、非常に意義深い。今後、本装置の普及とともに、嫌気性消化プロセス導入による下水汚泥からのエネルギー回収量の増加、つまり低炭素化やカーボンニュートラルが進展していくことが期待される。

参考文献

- 1) <https://www.thesourcemagazine.org/the-case-of-vcs-denmark-progress-beyond-net-energy-production/>
- 2) 村上孝雄、小池秀三、谷口尚弘、江角比出郎、岡田光正、1987、実施設による生物学的脱リンプロセスのリン収支の検討、衛生工学研究論文集、23、p.301-313
- 3) A. Mulder, A. A. van de Graaf, L. A. Robertson, J. G. Kuenen, 1995; Anaerobic ammonium oxidation discovered in a denitrifying fluidized bed reactor, FEMS Microbiology Ecology, 16 (3), p.177-183