

新規の多段型 UASB 廃水処理プロセスにおける基質分散供給 (マルチフィード)の有効性の評価

水圏土壌環境制御工学研究室 熊谷 祐介
指導教官 原田 秀樹 大橋 晶良

1. はじめに

UASB(上昇流嫌気性汚泥床)プロセスは、微生物の自己集塊化(グラニュール化)を巧みに利用した高負荷型メタン発酵バイオプロセスである。高負荷廃水処理の主体となるグラニュール汚泥の形成には、適度な上昇流環境および生成バイオガスによる緩やかな攪拌効果が必要とされていたため、UASB反応槽底部からの単一フィード(廃水単一供給方式)が主流となっていた。しかしながら、この方式を採用した従来型UASBプロセスでは、UASB反応槽下部における局所的なpH低下(酸敗化)が生じやすいため、さらなる高負荷処理にあたっては、酸生成の集中化の回避、適切なアルカリ度の確保といった対策を講じる必要がある。さらに、通常のUASBプロセスでは良好な処理を行なう上で $1.2\text{gCaCO}_3/\text{gCOD}$ 以上のアルカリ度が必要とされており、不足分は外部からのアルカリ剤添加によって補う必要がある。実規模プラントでのアルカリ度補給は大きな財政的負担となるため、アルカリ剤使用量を最小限に抑えるようなプロセスへの転換が望まれている。

本研究では、新規のマルチフィード(廃水分散供給方式)を導入した多段型UASB連続処理実験により、酸生成分散効果およびアルカリ度要求量低減(アルカリ剤使用量削減)効果について検討した。

2. 実験装置および方法

2-1 対象廃水およびアルカリ剤

清涼飲料廃水(COD_{Cr}濃度:約 $700,000\text{mgCOD}\cdot\text{L}^{-1}$)を供給廃水、5%-苛性ソーダ(NaOH)をアルカリ剤として選択した。清涼飲料廃水は、炭水化物を主体とする溶解性・易分解性の産業廃水である(糖含有率約80%、Table.1参照)。なお、廃

水中の栄養塩類(NおよびP)および微量元素(Ni、Co、Fe等)は不十分であったため、連続処理実験においては所定濃度で追加補充している。

2-2 パイロット多段型 UASB 廃水処理プロセス

パイロット多段型UASBプロセスの概要図をFig.1に示した。原廃水は、原水槽(有効容積: 0.5m^3)および原水混合槽(有効容積: 0.2m^3)の2箇所にて所定濃度まで前段希釈を行なった。さらに原水混合槽では、栄養塩類の補充、pH調整およびプレヒティング操作を施した。多段型UASB反応槽(水張り実容積: 0.39m^3 、全高 3.375m 、幅 2.075m)は、階段上に折れ曲がった特徴的な装置構造を有し、発生するバイオガスを原位置で速やかに排除する目的でGSS(Gas-solid separator:三相分離装置)が多段に配置されている。さらに、多段型UASB反応槽には基軸方向に3つの流入口(0m、0.83m、1.20m)が設けられており、タイマ制御による廃水分散供給(マルチフィード)が可能となっている。UASB反応槽からの処理水は、処理水タンク(有効容積: 0.1m^3)へと一時的に貯留し、必要に応じて循環併用運転に供した。反応槽内の温度は、ウォータージャケットの温水循環により 35°C に調節した。

*設定廃水分散供給(マルチフィード)条件の表記は以下の通りである。

例) 6min/4min/2min : UASB反応槽基軸方向に設けられた3箇所(Feed port.1、2、3)の廃水流入口から、各々6分、4分、2分の条件で供給する。タイマ制御により3つの電磁弁が自動開閉し、Feed port.1から6分間供給した後に、次のFeed port.2から4分間、さらに次のFeed port.3から2分間供給する。

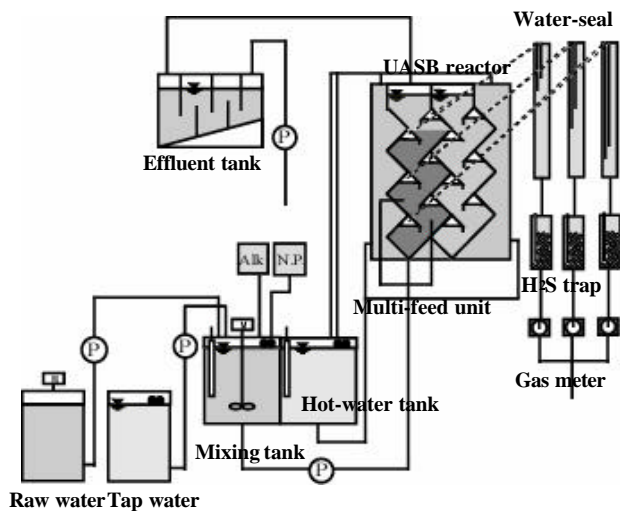


Fig.1 Flow diagram of multi-staged UASB process

植種汚泥には、長岡下水処理場からの中温消化汚泥を用いた。植種時の全汚泥量は 2.69kgMLVSS ($6,900\text{mgMLVSS}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{VSS}/\text{SS}^{-1} = 0.61$)、汚泥高は反応槽全高基準で 1.5m であった。後述のアルカリ剤過剰添加トラブル (運転開始後 50 日目) により、保持汚泥量が著しく減少したため、100 日目に同中温消化汚泥を約 3.5kgMLVSS 追加植種している (反応槽全汚泥量で約 $5\text{kgMLVSS}\cdot\text{reactor}^{-1}$)。

2-3 プロセス操作条件

UASB 連続運転期間を、Run1 および Run2 に大別した。Run1 においては、単一フィード条件下における廃水処理特性および反応槽内物質挙動の評価を行なった。Run2 では任意のマルチフィード条件を設定し、最適フィード条件を検討するとともに、アルカリ度要求量低減効果についての考察を行なった。

3. 実験結果および考察

3-1 多段型 UASB 廃水処理特性

Fig.2 に多段型 UASB 廃水処理状況を示した。Run1 (単一フィード運転) では、COD 容積負荷 $4\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ (COD 濃度 $1,000\text{mgCOD}\cdot\text{L}^{-1}$)、HRT 6.0hr 、流入 pH 7.0 の運転条件でスタートアップを行なった。運転開始 99 日目までは、1) 植

Analytical subject		Soft-drink wastewater
pH	-	2.7
CODcr	(mgCOD/L)	
	total	744,800
	sol.	736,000
SS	(mgSS/L)	4,620
Carbohydrate	(mgCOD/L)	
	total	678,879
	sol.	651,681
Protein	(mgCOD/L)	
	total	46,400
	sol.	39,150
Composition	(%)	
	Carbohydrate	91.1
	Protein	6.2

Table.1 Characteristics of soft-drink wastewater

種汚泥の低メタン生成活性、および 2) 運転開始 50 日目のアルカリ過剰添加トラブル (pH メータ - 故障) により COD 除去率は 20% 前後にとどまった。そこで 100 日目に同消化汚泥を追加植種したところ、約 20 日程度で COD 除去率 80% 程度まで処理性能は著しく向上した。その後は、COD 除去率 80% 以上、処理水 VFA 濃度 $200\text{mgCOD}\cdot\text{L}^{-1}$ 以下を安定的に許容していることを前提条件として、段階的に COD 容積負荷を増大させた。COD 容積負荷 $10\sim 30\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ の平均 COD 除去率は約 90%、処理水 VFA 濃度は $80\sim 120\text{mgCOD}\cdot\text{L}^{-1}$ 程度と非常に良好で、除去された COD は確実にメタンへと転換されていた (CH_4 転換率: $85\sim 90\%$)。従来型 UASB 反応槽が COD 容積負荷 $10\sim 15\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ 程度で運転されていることを考慮すると、本連続実験における多段型 UASB 反応槽は実に 2~3 倍程度の高負荷条件下での運転が可能であった。COD 容積負荷 $30\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ 時におけるメタン生成量は $3,500\text{L}\cdot\text{day}^{-1}$ と非常に高く、高負荷処理のみならず卓越したメタンガス回収ポテンシャルが実証された。

しかしながら、COD 容積負荷を $40\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ に上昇させたところ (運転開始 199 日目)、処理性能は急激に悪化し (COD 除去率 20~30%)、最終的にプロセス破綻を誘引した。処理水中には約 $2,000\text{mgCOD}\cdot\text{L}^{-1}$ もの高濃度の VFA が残存し、

処理水 pH は 4.5 程度まで著しく低下した。基軸方向のプロファイル (Fig.3) によりプロセス破綻原因を調査したところ、UASB 反応槽下部におけるアルカリ度は完全に消費し尽くされ、メタン生成の好適 pH 範囲 (7.0 ~ 7.5) を完全に逸脱していることが明らかとなった。特に本実験における清涼飲料廃水のような炭水化物を主体とする廃水種は、アルカリ度生成が相対的に低いため、酢酸経由メタン生成に伴う重炭酸塩は非常に重要なアルカリ度源となる。ひとたびプロセス破綻による pH 低下が生起すれば、酢酸資化性メタン生成細菌の活動は次第に抑制されはじめ、処理状況は悪化の一途を辿ることになる。Fig.2 から明らかなように、 $30\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ 以降にメタン生成細菌の活性値が低下しはじめ、処理水 VFA 濃度は次第に増加していることがわかる。このような高負荷時における局所的な pH 低下の回避にあたっては、二相分離プロセスあるいは UASB 処理水循環といった適切なアルカリ度充足策を講じる必要がある。

Run2 初期では、処理の回復を目的として、3 つのプロセス改善策 (アルカリ度改善策) を適用した。

運転開始 200 日目からは、第 1 のプロセス回復策としてのマルチフィード運転を行なった。COD 容積負荷は $40\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ のまま一定とし、マルチフィード条件のみを 6min/4min/2min、8min/4min、5min/5min、30min/20min/10min に設定した。各条件で一週間程度ずつ運転を行なったものの、処理は悪化する一方で、アルカリ度の回復は達成できなかった。なお、この時点のメタン生成活性は、酢酸単一基質で $0.005\text{gCOD}\cdot\text{gVSS}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ 、清涼飲料廃水で $0.007\text{gCOD}\cdot\text{gVSS}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ と、ほぼ植種汚泥と同程度まで著しく低下していた。

COD 容積負荷 $40\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ (COD 濃度 $6,000\text{mgCOD}\cdot\text{L}^{-1}$) では、反応槽底部における酸生成は概して $3,000\text{mgCaCO}_3\cdot\text{L}^{-1}$ 程度にも達し、この中和に要するアルカリ度を確保することは非常に困難であったため、第 2 のアルカリ度改善策として、COD 容積負荷の減少 (最終設定負荷 $5\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ 程度) とアルカリ剤添加量の増

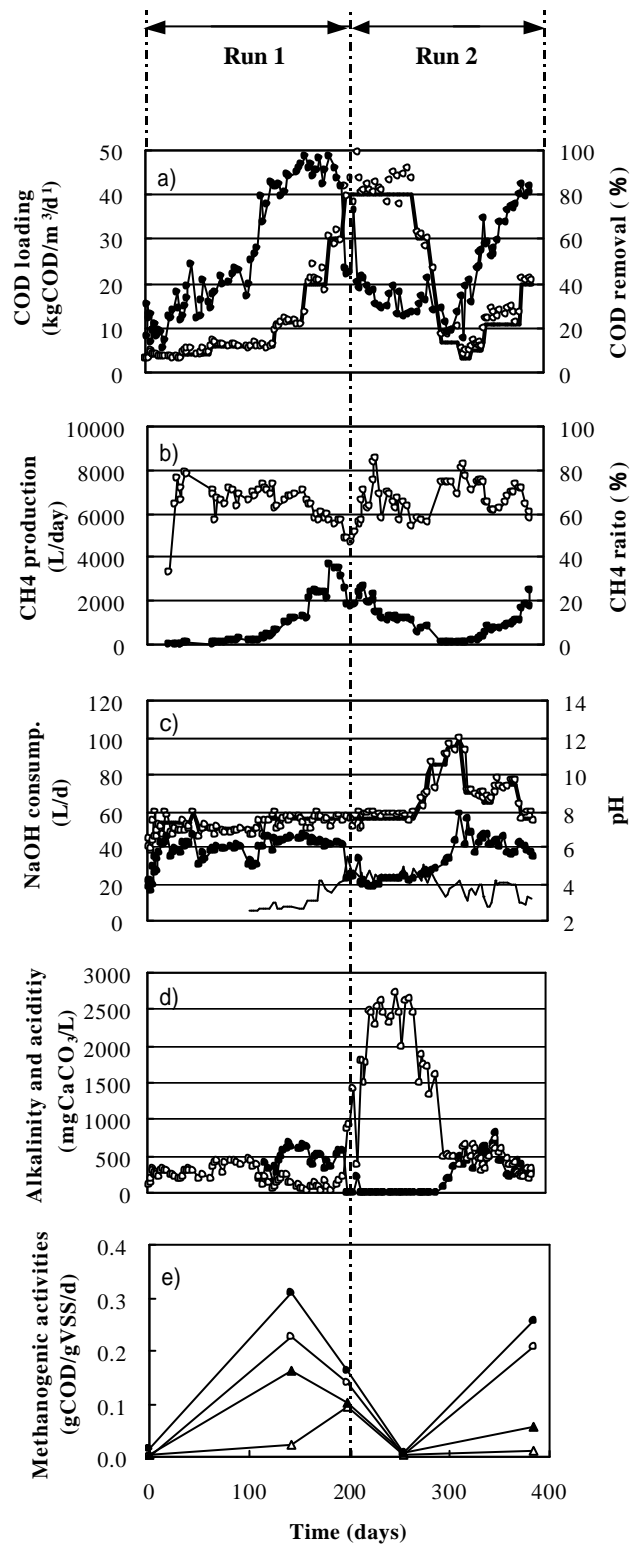


Fig.2 Process performance of UASB reactor

- a) COD-V loading CODs removal
- b) Methane production Methane ratio
- c) Inf-pH Eff-pH NaOH consumption
- d) Eff-alkalinity Eff-VFA acidity
- e) Soft-drink Acetate Butyrate Propionate

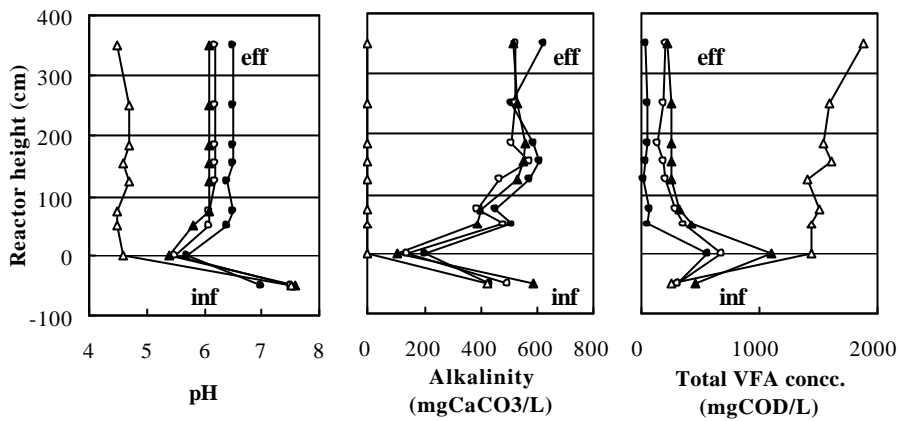


Fig.3 Reactor profile on single-feed operation
 10kgCOD/m³/d 20kgCOD/m³/d 30kgCOD/m³/d 40kgCOD/m³/d

加（流入 pH 10 以上）を併用した。この手法により、処理状況は若干回復傾向に向かったものの、高 pH 運転による菌体への阻害影響が確認されたため、運転開始 313 日目以降は、流入 pH の希釈とアルカリ度の確保を目的として、処理水の一部を循環させる方法に変更した（循環比 0.5、流入 pH 9.0 程度）。処理水循環併用後は、2 週間程度で COD 容積負荷 20kgCOD・m⁻³・d⁻¹ で COD 除去率 80% まで処理性能は向上し、処理水 pH も 6.0~6.5 程度で安定した。

Run2 後期においては、いくつかのマルチフィード条件を設定し、アルカリ削減に向けた最適マルチフィード条件の選定を行なった。詳細は 3.3 を参照されたい。

3-2 多段化配置 GSS による高濃度生物保持効果

Fig.4 にメタン生成量およびメタン含有率、Fig.5 に上昇線流速の推移を示した。前述の通り、反応槽からのメタンガス生成量は 30kgCOD・m⁻³・day⁻¹ 時で 3,500L・day⁻¹（反応槽容積基準で 25kgCOD-CH₄・m⁻³・day⁻¹）と非常に高く、発生バイオガス中のメタン分圧は 60~70% で推移していた。一方、反応槽内における上昇線流速は 30kgCOD・m⁻³・day⁻¹ 時で約 2.0m・hr⁻¹ と非常に高く、発生バイオガスに起因する線速（約 1.4m・L⁻¹）の方が流入水起因の線速（約 0.6m・L⁻¹）よりも数倍高い。従来型 UASB プロセスでの高線速運転は、著しい菌体流出を引き起こすばかりでなく、プロセス破綻を誘発する危険性をも孕んでいる。Fig.6 に各 COD 容積負荷における反応槽基軸方向におけるガス生成量の回収状況を示した。

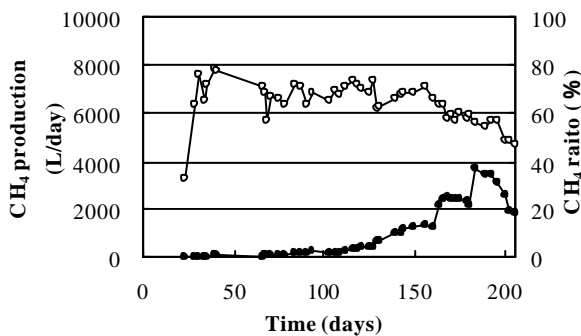


Fig.4 Methane production and methane ratio
 Methane production methane ratio

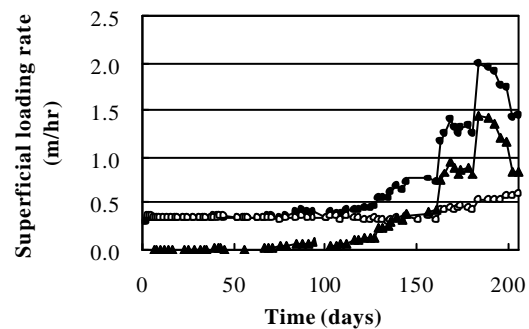


Fig.5 Change of superficial loading rate
 Total velocity liquid velocity Gas velocity

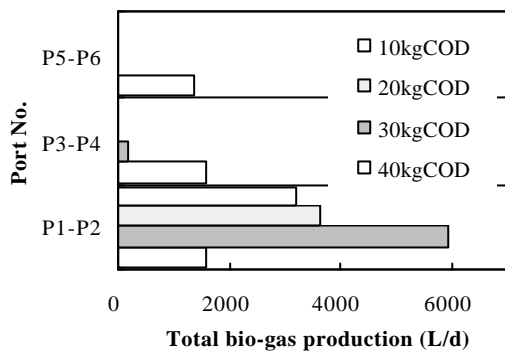


Fig.6 Biogas recovery from each compartments

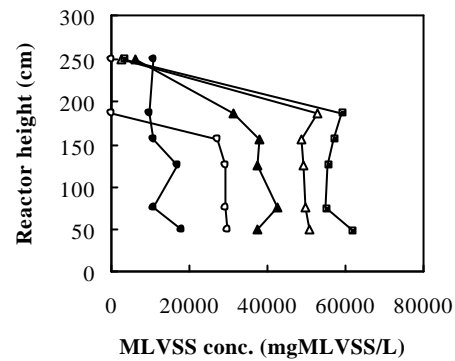


Fig.7 Retained biomass conc. (MLVSS) in UASB reactor

COD 容積負荷 $10 \sim 30 \text{kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ における UASB 反応槽からのバイオガス回収は、基軸方向 0.65m (Port.1 および Port.2) でほぼ 95% 以上が完了していることがわかる。多段に配置された特徴的な GSS 構造は、高負荷時の過剰な生成ガスを原位置にて速やかに放出することにより、上昇線速の低減および菌体流出の防止 (連続実験期間を通じて流出 VSS 濃度 $200 \text{mgVSS} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下、デ - タ省略) に非常に有効的に作用していることが示された。

Fig.7 に反応槽基軸方向における保持汚泥濃度の推移 (プロファイル) を示した。 $5 \text{kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ (運転開始 100 日目) における汚泥濃度は高さ方向にほぼ均一で、 $10,000 \sim 20,000 \text{mgMLVSS} \cdot \text{L}^{-1}$ 程度であった。その後は、COD 容積負荷の上昇に伴って保持汚泥のグラニュレ - ションが徐々に進行し、 $10 \sim 40 \text{kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ では約 $10,000 \text{mgMLVSS} \cdot \text{L}^{-1}$ 程度の割合で汚泥濃度が段階的に増加している。 $40 \text{kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ (202 日目) においては約 $60,000 \text{mgMLVSS} \cdot \text{L}^{-1}$ もの高濃度汚泥保持が可能となり、UASB 反応槽内は完全に緻密なグラニュ - ル状汚泥で占められていた。

これらの結果より、多段型 UASB プロセスにおける多段化 GSS 構造は、上昇線流速の低減化により、沈降性に優れるグラニュ - ル汚泥を高濃度かつ高密度に蓄積保持することが可能であることが立証された。UASB 反応槽への高濃度生物保持

5kgCOD/m³/d 10kgCOD/m³/d 20kgCOD/m³/d
30kgCOD/m³/d 40kgCOD/m³/d

は高負荷処理を行なう上で非常に重要なポイントであり、本連続実験においても多段化配置 GSS の卓越した汚泥抑留効果により、COD 容積負荷 $30 \text{kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ 程度の高負荷運転が可能であった。

3-3 マルチフィ - ドによるアルカリ度削減効果

プロセスの回復後、供給方式の違いによる酸生成分散効果およびアルカリ度要求量の削減効果を検討した (Run2 後期)。なお、COD 容積負荷は $20 \text{kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ (COD 濃度 $4,000 \text{mgCOD} \cdot \text{L}^{-1}$ 、HRT 4.8hr) で一定とし、供給条件のみを変更した。

Fig.8 に、単一フィ - ド運転時およびマルチフィ - ド運転時における UASB 反応槽基軸方向の酸度 - アルカリ度挙動を示した。単一フィ - ドにおいては、前述の通り UASB 反応槽底部の局所的な VFA 生成により、アルカリ度は $50 \text{mgCaCO}_3 \cdot \text{L}^{-1}$ 程度まで著しく低下している。

一方、マルチフィ - ド運転時 (反応槽下部より $6 \text{min}/4 \text{min}/2 \text{min}$) においては、廃水分散供給により VFA 化は基軸方向 2.0m 程度まで適度に分散化しており、局所的なアルカリ度消費も緩和されていた (基軸方向 0.5m までで $150 \text{mgCaCO}_3 \cdot \text{L}^{-1}$ 程度)。本区間においてはプロセス破綻の影響が依然として残ったままであったため (プロピオン酸分解の律速) 相対するアルカリ度は若干低めになっている。

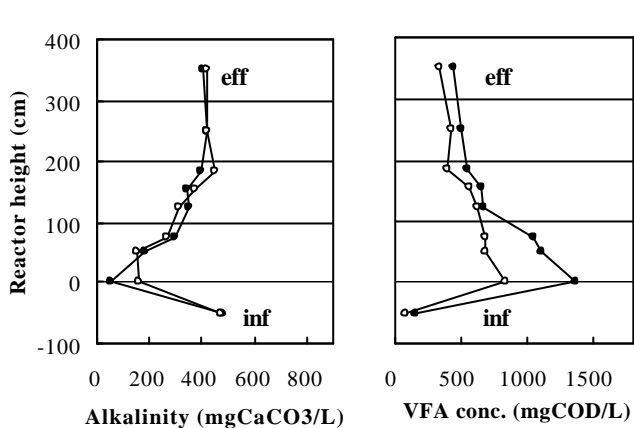


Fig.8 Acidity and alkalinity performance on Single and multi-feed mode operation

Single-feed Multi-feed (6.4.2)

酸度 (VFA および H_2CO_3) の中和のためのアルカリ度要求量は、以下の式より量論的に算出することができる。

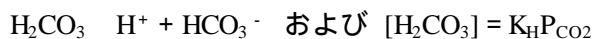


Fig.9 に、UASB 反応槽底部におけるアルカリ度要求量を示した。なお、マルチフィードにおけるアルカリ度要求量は基軸方向の VFA 分散を考慮して、1.0m までの積分値より求めた。単一フィードにおいては、反応槽底部の局所的な VFA 中和に $900mgCaCO_3 \cdot L^{-1}$ 程度のアルカリ度が必要となっているのに対して、マルチフィードにおいては $520mgCaCO_3 \cdot L^{-1}$ 程度まで減少している。すなわち、同アルカリ剤添加条件下において、約 40% 程度のアルカリ度要求量の削減が可能であった。

さらに、マルチフィードによる分散効果は、従来型 UASB 反応槽にみられるようなアルカリ度不足による制約を回避し、さらなる高負荷処理への足掛かりとなることが示唆された。

4. まとめ

本研究で得られた知見をまとめる。

1. 多段型 UASB 連続実験 (35) の結果、COD 容積負荷 $30kgCOD \cdot m^{-3} \cdot day^{-1}$ 、COD 除去率

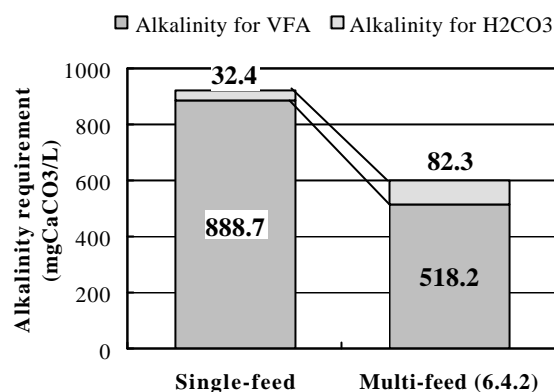


Fig.9 Reduction of alkalinity requirement by multi-feed mode operation

90%以上、メタン転換率 85%程度の高負荷処理および高効率メタン回収が可能であった。これは、従来型 UASB と比較しても 2~3 倍の処理に相当し、多段化 GSS の有効性が立証された。

2. プロセス破綻時におけるアルカリ度改善に 3 つの対策を講じたが、処理水の一部循環が最も有効であった。
3. マルチフィード (廃水分散供給) により、アルカリ度要求量として約 40% の削減が可能であった。本ユニットは、UASB 反応槽底部におけるアルカリ度の確保に非常に有効であり、さらなる高負荷処理の可能性が示唆された。

5. 参考文献

1. 本間康弘、田中俊博、安達晋、磯崎裕一 (2002): 高負荷 EGSB での有機性廃水処理、エバラ時報、No. 194
2. T. Tagawa, H. Takahashi, Y. Sekiguchi, A. Ohashi and H. Harada (2001): Pilot Plant Study on Anaerobic Treatment of a Lipid- and Protein-rich Food Industrial Wastewater by a Thermophilic Multi-staged UASB Reactor, 9th World Congress on Anaerobic Digestion, Antwerpen (in press of Wat. Sci.)