

バイオリアクターを用いた富栄養化水界からのリン資源回収

大橋 晶良

広島大学大学院工学研究院 社会基盤環境工学専攻



富栄養化している瀬戸内海、湖沼、ダムの水域の環境を保全する方法として、また枯渇資源であるリンを確保するために、リン濃度が高く富栄養化しているこれら水域から微生物を利用してリンを回収する新規な低コスト型生物学的リン回収技術を開発することを目的とし、DHSリアクターによる人工海水からのリン回収実験を行った。その結果、海水においても耐塩性ポリリン酸蓄積細菌をDHSリアクター内に集積させることができ、高濃度のリン含有液を回収することができた。

キーワード リン回収、資源、富栄養化、DHSリアクター、海水

1. はじめに

閉鎖性の瀬戸内海や湖沼・ダムの水質環境は、ここ数年は横ばい状態が続いていて改善が見られていない。このため未だに富栄養化している海域、淡水湖が後を絶たない。下水道の普及により、これら水界の環境は以前に比べれば大変良くなっている。しかし、下水道や産業廃水処理が整備されても、これら以外のノンポイントソースからの負荷の寄与率が高く、水質の改善が見込めないと考えられている。従って、水域の富栄養化を防止するには、水域から窒素あるいはリンを直接に除去して、窒素・リン濃度を下げる方法しか思い当たらない。

一方、リンは近代農業に欠かせない化学肥料の原料であり、現在の食料生産を続けて行く上で必要不可欠な物質である。枯渇資源であるリン鉱石は近年の新興国での農産物需要の拡大に加え、資源確保のために中国やアメリカが輸出制限を行ったため、世界的に供給が逼迫している。日本はリンを100%輸入に頼っている事から早急な対策が必要である。そのため、排水処理においても富栄養化防止の観点だけではなく資源として回収利用するため、排水中からのリン回収・資源化の研究が進められている。しかしながら、処理回収コストの高さなどから資源としてはまだあまり利用されていないのが現状である。

下・排水からのリン回収の試みはされているが、自然環境水からリンを回収するには、従来の余剰汚泥からリンを取り出す方法とは全く異なる考えが必要である。これまで生物学的手法による自然環境水からのリン回収の研究は皆無である。そこで本技術開発では、富栄養化している瀬戸内海、湖沼、ダムの水域の環境を保全する方法として、また枯渇資源であるリンを確保するために、

リン濃度が高く富栄養化しているこれら水域から微生物を利用してリンを回収する新規な低コスト型生物学的リン回収技術を開発することを目的としている。

下水処理水中のリンを高濃度化して回収する技術をリンが希薄な海水等に適用するためには、次のような課題を解決する必要がある。

- ① 塩濃度の高い海水に生物学的嫌気・好気法が適用できるか？
- ② 好塩性のポリリン蓄積細菌 (PAOs) の同定とキャラクター化把握
- ③ 低濃度のリンを速やかに摂取できるか？
- ④ 有機物の調達
- ⑤ 実海水の適用評価

そこで本研究では、DHS リアクターによる人工海水からのリン回収実験を通して上記の課題を検討した。

2. リン回収の原理とシステム

(1) 既往の方法と問題

下水のようなリン濃度が $5 \text{ mgP} \cdot \text{l}^{-1}$ 程度と低い排水から直接にリンを物理化学的な方法で回収しようとする、薬剤の使用量が膨大となってコストが高み実用的ではない。したがって何らかの方法でリン濃度を高濃度化して、処理水量を減らす方が極めて重要となる。そこで、生物学的に下水等の排水からリンを資源として回収する方法が提案され、一部の下水処理場にて実施されている。この方法は活性汚泥法の運転方法を変更することにより遂行できる。この活性汚泥法の変法である嫌気・好気法は、汚泥にリンを取り込ませて、排水を余剰汚泥という高濃度リン含有液（汚泥）にして、リン除去・回収する

方法であるとも言え、今日の有望で主流の技術となっている。一方、排水処理においては汚泥の処分が最も厄介な問題であり、このため余剰汚泥の排出が少ない処理プロセスが求められており、様々な余剰汚泥削減プロセスが研究・開発されている。しかし、余剰汚泥の発生が少ないということは、リンが除去・回収できないことを意味しており、余剰汚泥の少ない、リン回収プロセスを構築しようとすればジレンマに陥る。このため、余剰汚泥削減プロセスの処理水（リンが残存）からリンを除去・回収する排水処理システムの開発が今後の大きな課題となっている。この課題を解決しようとする生物学的な研究は皆無に近いが、リン除去されていないプロセスの処理水からリンを除去し、汚泥ではなくて高濃度のリン含有液として回収する方法が考案されている。すなわち、余剰汚泥の引き抜きに依存しない、生物学的なリン含有排水の高濃度化技術である。まだ実用化に至っていないが、新規に開発した原理は次の通りである。

(2) 新規リン回収方法

a) 微生物によるリン高濃度化の原理

低濃度リン含有の排水処理水の高濃度化には、ポリリン酸蓄積細菌（PAOs）を活用する嫌気・好気法と同様な原理を利用するが、従来法との大きな違いはリアクターのタイプである。散水ろ床法の一つである生物膜型のDHS（Down-flow Hanging Sponge）リアクターを用いて、その槽内を好気・嫌気に制御することで、リン除去およびリンの高濃度化が一槽のリアクターにより図れる。

嫌気性処理水の後段処理用に開発されたDHSリアクターは、微生物保持担体にスポンジ等が使用され、これに

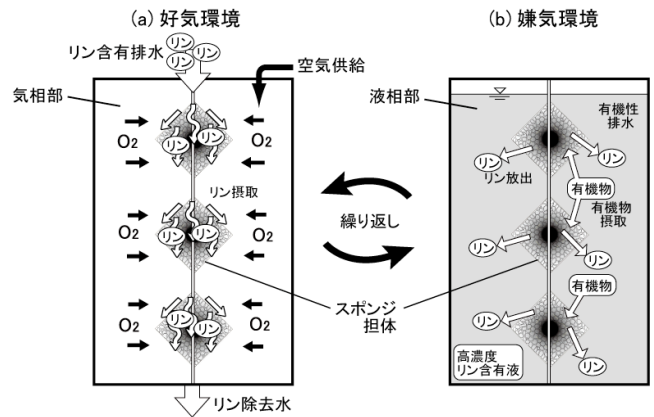


図-1 ポリリン酸蓄積細菌によるリン高濃度化の原理

より高濃度の微生物保持が可能である。また、スポンジ担体は空気中に吊さされていて、空気中の酸素が排水に溶け込み、その排水はスポンジ内部に重力で浸み込むため、スポンジ内部への酸素供給は拡散ではなく移流によって運ばれる。従って、エアレーションなしにスポンジ表面のみならず内部に生息する微生物にも十分に酸素が供給される好気的環境を形成できる特徴をDHSリアクターは有している。一方、DHSリアクター内を排水で満たすことで、容易に嫌気的環境を作ることも可能である。

DHSリアクター内にPAOsを高濃度に生息させて、好気環境下でリン含有排水を上部から散水すると、PAOsによってリンが摂取されて、リン除去された処理水が下部から排出される。除去されたリンは、ポリリン酸としてPAOsに蓄積される(図-1a)。次に有機物含有の排水でリアクターを満たしてスポンジ担体を浸漬させ、嫌気状態にして放置しておく、PAOsは有機物を取り込みな

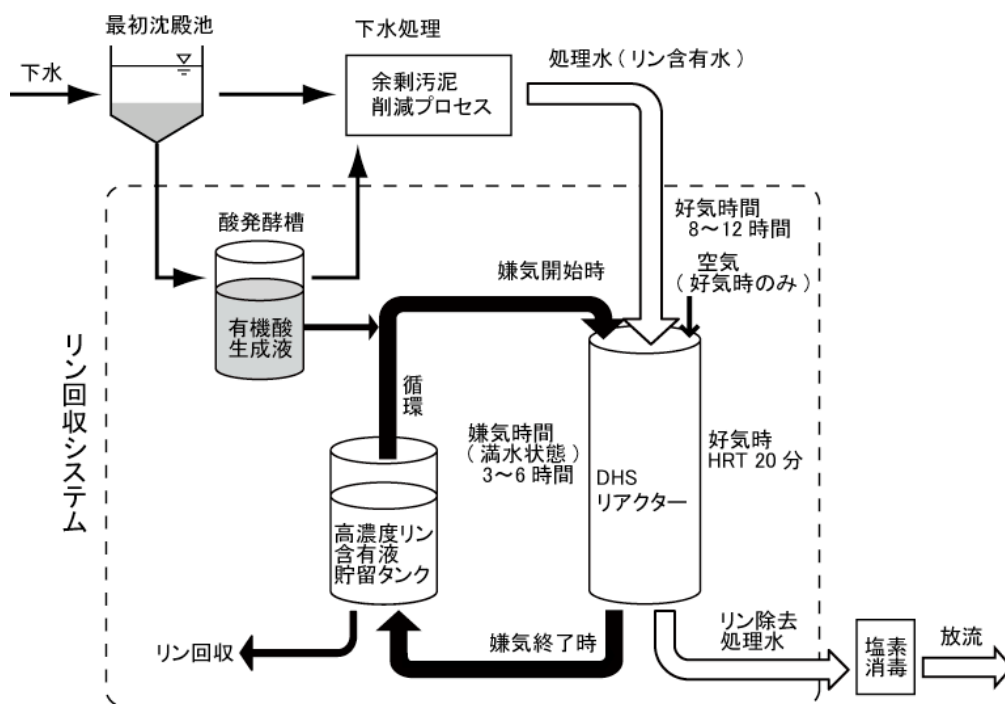


図-2 DHSリアクターによるリン除去・回収システム

がら蓄えていたポリリン酸をリン酸塩として排水中に放出する（図-1b）．リアクター内の排水のリン濃度はPAOsのリン放出量に依存し、PAOs濃度を高めることで、高濃度のリン含有液が作られ、この排水を回収する．この好気と嫌気環境を繰り返せば、継続的にリン含有排水は高濃度化される．なお、このような操作によってPAOsは自然にリアクター内に集積される．

(b) DHSリアクターによるリン回収システム

DHSリアクターを用いたリン回収の一例として、下水処理において処理水にリンが残存していて、その処理水からリンを除去・回収するシステムを図-2に示す．リン含有の下水処理水は好気状態のDHSリアクターへ導かれ、通過する間に残存のリンはリアクター内のPAOsに摂取されてリン除去処理水となり、塩素消毒して放流される．下水処理水のリン濃度が $5\text{mgP}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度であれば、下水処理水のDHSリアクターでの水学的滞留時間(HRT)は20分(スポンジ担体の体積基準)であり、通水時間は8~12hrである．その後、DHSリアクターに蓄積されたポリリン酸を放出させるために嫌気状態に切り換えられる．嫌気時では有機酸含有液が必要であり、最初沈澱池汚泥の酸生成物を利用する．そのため、初沈汚泥の酸発酵槽を設けて、発酵液の上澄みと高濃度リン含有液(循環液)とでDHSリアクターを満水にする．リアクター内は嫌気状態になり、3~6hr放置するとPAOsからのリン酸放出により、リアクター内の液のリンは高濃度化される．嫌気終了時にこの液を高濃度リン含有液貯留タンクに戻し、タンクから溢れ出る流入発酵液量分を回収する．好気と嫌気を交互に繰り返す連続バッチ運転操作をするため、DHSリアクターが1基では下水処理水を常時通水することはできない．しかし、好気時間と嫌

表-1 基質の組成成分

KH_2PO_4	$22\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
NH_4Cl	$19.1\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
人工海水	35mg
有機性排水のみ	
CH_3COONa	$730\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
$\text{C}_2\text{H}_5\text{COONa}$	$460\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
人工海水(シーライフ)の組成($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)	
Na 9.14	F 0.2 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
Mg 1.23 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	B 0.9 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
Ca 0.34 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	Li 0.16 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
K 0.35 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	V 0.003 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
Cl 16.89 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	Rb 0.11 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
SO_4 2.3 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	Mo 0.012 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
Sr 0.007 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	Ba 0.016 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
Br 0.055 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	

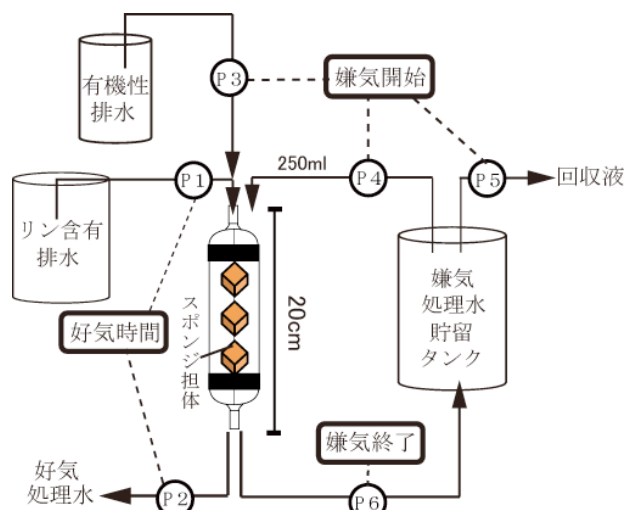


図-3 リン回収プロセス

気時間の整数比の数+1基のリアクターを設置すれば対応できる．また、リアクターが数基あれば、嫌気終了時に排出される高濃度リン含有液を嫌気が始まるリアクターに順次送ることで、循環用の高濃度リン含有液を貯留するタンクは設けなくてもよい．

3. 人工海水からのリン回収実験

(1) 実験装置及び実験条件

実験には、ガラス製カラム(全長200mm、内径48mm、容積300mL)の中に微生物保持担体として2cm辺のスポンジ3個(全容積36mL)を直列に吊るしたDHSリアクターを用いた(図-3)．スポンジ担体には有明海沿岸の干潟の泥を種植し(佐賀県東与賀町:緯度33.17°,経度130.27°),20°Cで運転を行った．リアクターは嫌気条件と好気条件を交互に制御し、好気条件9時間、嫌気条件3時間の1サイクル12時間で160日間運転を行った．

(2) 実験結果

本実験ではリンが含まれている海水からDHSリアクターを用いてリン回収出来るかどうか調査を行った．その結果、淡水の実験結果よりも処理性能は低いながらもリンを回収する菌が存在しており、回収出来る事が示された．しかし、スポンジ担体中の汚泥にはPAOsの集積が全くかかっておらず、6割が未分類の細菌であった．更に、R-PAOsが全く検出されなかった事から、新種のPAOsが存在している可能性が非常に高いといえる．

4. 海洋性PAOsの特性

(1) 実験の目的

上述の実験より、海水からのリン回収の可能性を示唆

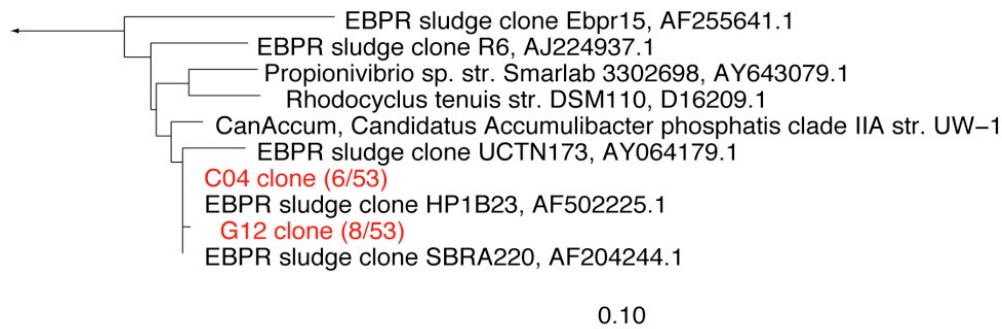


図-4 Accumulibacter に関する系統樹

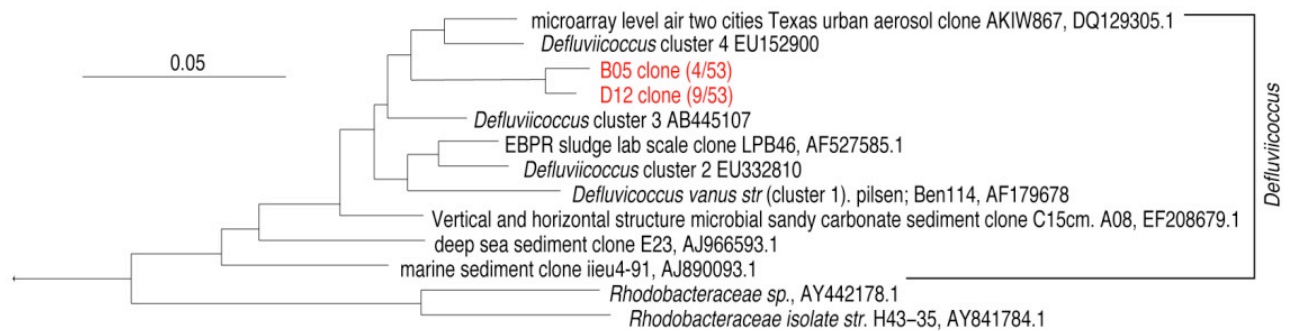


図-5 Defluviococcus に関する系統樹

すことができたが、実用化に向けた高速・高効率のリン回収を実施するには、高濃度塩分下に生息する PAOs の特性を明らかにする必要がある、本実験では生物保持能力に優れた DHS リアクターを用いて集積培養実験を行った。

(2) 実験方法

有明海沿岸の干潟（佐賀県東与賀町：緯度 33.17°，経度 130.27°）の泥を植種源に用いた。本実験では、内径 5 cm，高さ 120cm，全容積約 2.2 L の円筒形の密閉容器に 2cm 角のスポンジ担体 25 個（全容積 200 cm³）を吊るした DHS リアクターを用いた。リアクターは嫌気条件と好気条件を繰り返すように制御し、嫌気条件 3 時間，好気条件 9 時間の 1 サイクル 12 時間で運転を行った。

(3) クローニング解析結果

運転 199 日目にスポンジ表面から採取した汚泥，運転 162 日目に採取した嫌気条件時に見られる SS のクローニング結果を以下にまとめる。

解析された 53 クローンのうち， β -proteobacteria の *Accumulibacter* が 14 クローン， α -proteobacteria の *Rhodospirillaceae* が 13 クローン検出され，この 2 種類の微生物群がスポンジ表面部で優占化していることが確認された。*Accumulibacter* は有力な PAOs 候補と知られており，この菌が本実験でのリンの摂取・放出に関与し

ていると考えられる。

図-4 の *Accumulibacter* に関する系統樹を見ると，今回検出された菌は，これまでの研究で EBPR 汚泥から採取された菌と非常に近縁であることが分かった。よって，これらが耐塩性を持っており，本実験でもこれらと同じ菌が検出されたのかもしれない。また，今回検出された菌は，塩基配列は近いが高濃度塩分下でしか生息できない，今まで発見された菌とは別物の菌である可能性もある。

また，図-5 の *Defluviococcus* に関する系統樹を見ると，*Rhodospirillaceae* は，PAOs の競合細菌であるグリコーゲン蓄積細菌（GAOs）として知られている *Defluviococcus* に近縁な種であることが分かった。*Defluviococcus* は *vanus* (cluster 1)，cluster 2，cluster 3，cluster 4 と 4 つのグループに分けることができるが，そのうち今回検出された菌と，最も近縁なグループであった cluster 3 との相同性は 96%であり，このグループに属しているとは明確には言えず，新しいグループの菌の可能性もある。

5. おわりに

本実験ではリンが含まれている海水から DHS リアクターを用いてリン回収出来るかどうか調査を行った。その

結果、淡水の実験結果よりも処理性能は低いがリンを回収する菌が存在しており、海水からでもリンを回収することができる事が示された。スポンジ担体中の汚泥には増殖速度は遅いが、高濃度塩分下でも淡水性 PAOs と同様に、リンの摂取・放出を行う菌が存在していた。スポンジ表面部の汚泥のクローニング解析の結果、有力なP

AOs 候補としては *Accumulibacter* 属 (53 クローン中 14 クローン) であり、これまでの研究で EBPR 汚泥から採取された菌と非常に近縁な種で、耐塩性を持っていた。

今後の課題として、実海水を用いてリン回収が適用できるかどうかの実証実験が残されている。