

二重管型反応装置の硝化脱窒プロセスへの適用に関する研究

藤原 拓¹・宗宮 功²・津野 洋³・奥野芳男⁴

¹正会員 博士(工学) 高知大学助手 農学部生産環境工学科 (〒783-8502 南国市物部乙200)

²正会員 工博 京都大学教授 工学研究科環境工学専攻 (〒606-8501 京都市左京区吉田本町)

³フェロー会員 工博 京都大学教授 工学研究科附属環境質制御研究センター
(〒520-0811 大津市由美浜1-3)

⁴アタカ工業株式会社 研究第二部 (〒551-0022 大阪市大正区船町2-2-11)

二重管型反応装置の硝化脱窒プロセスへの適用を試み、パイロットプラントによる団地汚水の連続処理実験を行った。その結果、適切な設計・操作条件下で下水の連続処理を行うことにより、10.4hの水理学的滞留時間で、97%のBOD除去率、88%のアンモニア性窒素除去率および84%の全窒素除去率を達成可能であることを実証した。また、設計因子ではドラフトチューブ内径の反応装置内径に対する比 (D_i/D_o) および有効水深が、操作因子としてはBOD-SS負荷率、好気ゾーン比、無酸素ゾーン比、流入水C/N比が重要であることを明らかにし、適切な設計・操作条件を提示した。また、標準活性汚泥法と比較して発生汚泥量を28~56%削減可能であることも明らかにした。

Key Words : draft-tube-type reactor, air lift, domestic sewage, biological nitrogen removal, nitrification, denitrification

1. はじめに

閉鎖性水域の富栄養化防止あるいは水道水源保全の観点から、下水中の窒素およびリンの除去が重要となっている。また、これに対応した処理技術は省資源・省エネルギーの処理法が、さらには省コストおよび省スペースで可能な処理技術が求められている。

筆者らは、従来の生物学的窒素除去プロセスと比較して短い水理学的滞留時間(HRT)で高い有機物および窒素除去率を得ることが可能なプロセスの開発を目的として、二重管型反応装置の硝化脱窒プロセスへの適用を試みてきた。二重管型反応装置は、従来主に化学工学あるいは発酵工学の分野において、気液間の物質移動の促進を目的に用いられてきた¹⁾。一方、筆者らは適切な設計・操作条件下で二重管型反応装置の内管部において曝気を行うことにより、単一反応装置内に好気性ゾーンと無酸素ゾーンの双方を空間的に現出させ、その結果硝化および脱窒の双方が進行するという着想を得た。本反応装置を用いた窒素除去プロセスの利点および解決を要する問題点は以下の通りである。

利点：循環ポンプが不要、攪拌装置が不要、広い敷地面積が不要、高い循環率のため窒素除去率が循

環率に制限されることはない。

問題点：エアリフト循環のため循環流量の把握が困難、高い流入水炭素/窒素比(C/N比)が必要な可能性がある、無曝気部分への溶存酸素(DO)の持ち込みが大きく無酸素状態の作成が困難、DOの制御が困難。

そこで筆者らは、まず本反応装置における硝化・脱窒処理に大きく影響すると考えられる装置内液流動に関して理論的かつ実験的に検討を加えた結果、反応装置断面積当たりの空気流量 (U_{go}) が少なく、かつドラフトチューブ内径の反応装置内径に対する比 (D_i/D_o) が小さい条件下で適用が可能な液循環流速予測式を提示した²⁾。また、得られた予測式より、外管部における無酸素ゾーンの形成に重要と考えられる外管部下降時間は、 D_i/D_o に大きく影響されることが明らかになったため、本反応装置による下水の硝化脱窒処理に D_i/D_o が及ぼす影響を連続処理実験により検討した。その結果、 D_i/D_o は全窒素(TN)除去率および溶解性全窒素(DN)除去率に大きく影響し、実験条件の範囲では $D_i/D_o=0.19$ と小さくすることにより良好な処理が行われることを明らかにした³⁾。さらに、反応装置有効水深も外管部下降時間に影響すると考えられたため、これが窒素除去に及ぼす影響を検討した結果、有効水深の増加により高い TN 除去率を得ることが可能な D_i/D_o の範囲が増加する

ことを明らかにした⁴⁾。

以上の成果を踏まえ、本研究ではさらに連続処理実験を継続し、既発表のデータも含めた全データにより、二重管型反応装置による硝化脱窒プロセスの設計・操作因子について検討を加えるとともに、本プロセスの汚泥発生量削減効果を検討した。なお、従来の窒素除去プロセスに関する文献調査結果³⁾に基づき、10h 程度の HRT で 90%以上の生物化学的酸素要求量(BOD)除去率、80%以上のアンモニア性窒素除去率および 75%以上の TN 除去率を処理目標として設定した。なお、最初沈殿池を省略したプロセスを開発するため、合計処理時間ではさらに 1.5h 程度の短縮が見込まれる。

2. 実験方法

(1) 実験装置

図-1 に示す実験装置を大阪府下の団地汚水処理場に設置し、団地汚水の連続処理実験を行った。装置は、内径 29.8cm、有効水深 4.0m (系列 1) あるいは 6.0m (系列 2) の塔型反応装置内部に有効高さ 3.5m (系列 1) あるいは 5.5m (系列 2) のドラフトチューブ (以下 D.T.) を同心円状に挿入した構造をしている。また、いずれの系列においても、内径が異なる数種類のドラフトチューブを交換して使用することが可能となっている。D.T. 上端から水面までの距離は 0.4m、下端から装置底部までの距離は 0.1m とし、流入水は外管部水深 0.9m の位置から、また返送汚泥は同じく 0.7m の位置から流入させた。これらの条件は各系列で共通である。反応装置の流動特性に関しては、循環流自体は押し出し流れに近いが、極めて高い循環流量を有するため、装置全体では完全混合流れ反応器とみなせることがデルタ応答法⁶⁾により明らかになった。ただし、HRT と比較して極めて短時間で濃度変化が生じる DO に関しては、図-2 に例を示すように曝気を行う内管部では下部から上部にかけて濃度が増加し、外管部では上部から下部へと減少するような分布が生じる。したがって、適切な設計・操作条件で運転を行うことにより、内管部で好気性ゾーンを、外管部下部に無酸素ゾーンを作成しうる。本研究では、反応装置の水深 0.2m の位置に DO センサーを挿入し、その指示値が設定値以上の場合には低空気流量で、設定値以下の場合には高空気流量で曝気を行うことにより、反応装置上部の DO 濃度を一定値に制御した。

本実験装置では流入水の C/N 比を高く維持し、脱窒のための有機物を確保する目的で、最初沈殿池を設けず、団地汚水処理場沈砂池流出水を目幅 3mm

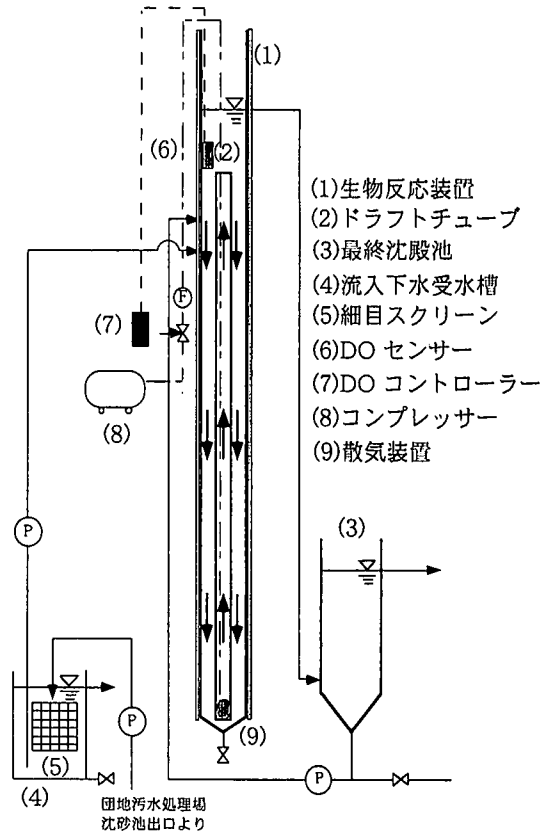


図-1 実験装置概念図

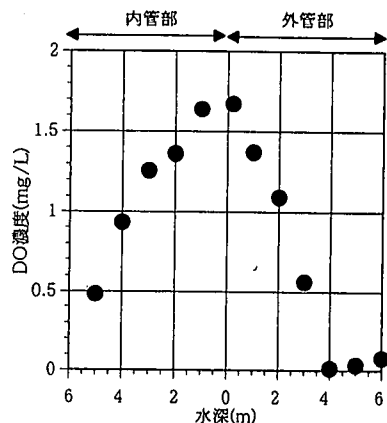


図-2 DO 分布例 (系列 2, Run2)

の細目スクリーンを通過させた後流入水として用いた。また、系列 1 においては最終沈殿池にライジングスラッジの流出防止装置を設けなかったため、沈殿池内で汚泥の浮上が生じた場合、浮上した汚泥は沈殿池内に保持されず流出する構造となっている。その結果、系列 1 では浮遊物質(SS)の流出に伴い処理水質が悪化したため、系列 2 においては最終沈殿池にトラフを設けるとともに、浮上した汚泥を再沈

表-1 実験条件 (平均値)

系列	1					2					
	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5	6
経過日数	1-68	104-166	177-211	212-297	298-314	1-25	26-82	83-99	100-145	164-208	209-275
有効水深(m)	4.0					6.0					
$D_i/D_o(-)$	0.36			0.19	0.26	0.19			0.26	0.19	
容積(L)	270			273	269	412			405	412	
曝気水深(m)	4.0			3.5	4.0	5.5			6.0	5.5	
HRT(h)	11.5	11.7	9.8	11.3	10.3	11.9	11.9	12.1	11.9	10.4	8.5
水温(°C)	29.6	15.9	26.9	19.1	19.0	19.5	18.3	19.8	19.1	24.0	29.8
MLSS濃度(mg/L)	2,080	3,000	2,840	3,730	3,480	2,980	3,200	3,690	2,890	3,130	2,770
DO制御値(mg/L)	0.9	0.9	0.9	1.3	0.9	2.3	1.7	1.5	0.9	1.8	2.6
空気流量*(L/min)	5.4	7.2	8.4	9.7	9.4	13.5	11.3	12.5	11.8	12.0	15.1
	0.0	2.6	3.5	3.6	3.3	5.0	4.9	5.0	4.5	4.5	4.0
BOD-SS負荷率(kg/(kg·d))	0.100	0.126	0.109	0.079	0.118	0.102	0.103	0.098	0.124	0.117	0.166
BOD容積負荷率(kg/(m ³ ·d))	0.200	0.387	0.304	0.298	0.409	0.301	0.330	0.360	0.358	0.360	0.451
TKN**SS負荷率(kg/(kg·d))	0.027	0.027	0.027	0.02	0.028	0.024	0.024	0.021	0.027	0.025	0.031
固形物滞留時間(SRT)(d)	21	16	20	43	12	21	13	18	16	12	6
最終沈殿池HRT(h)	3.0	3.0	2.5	2.9	2.7	3.6	3.6	3.6	3.7	3.2	2.6

* 空気流量の上段は水深0.2m位置のDO濃度が制御値以下の場合の流量, 下段は制御値以上の場合の流量

** 全ケルダール性窒素 (本研究では全窒素-酸化態窒素として計算により算出)

殿させるための水面攪乱装置を設けた。

なお、実験は1995年7月から1997年1月にかけて(系列1)、および1997年11月から1998年8月にかけて(系列2)行った。

(2) 実験条件

本研究の実験条件を表-1にまとめて示す。合計11条件の実験を行うことにより、種々の設計・操作因子が二重管型反応装置による下水からの窒素除去に及ぼす影響に関して検討した。なお、系列1のBOD負荷は実測値から計算される全有機性炭素(TOC)負荷を用いて以下の換算式⁷⁾により算出した。系列2のBOD負荷は実測値である。

$$\text{全BOD} = 1.78 \times \text{TOC} \quad (1)$$

系列1では、 D_i/D_o を0.19(Run4)、0.26(Run5)および0.36(Run1からRun3)と変化させることにより、設計因子である D_i/D_o の影響に関する考察を加えた。系列2ではRun1からRun3にかけて、DO制御値を変化させ、操作因子としてのDO制御値の影響を検討した。系列2のRun2、Run5およびRun6ではHRTを11.9h、10.4hおよび8.5hへと短縮することにより、本処理プロセスの限界負荷に関して考察した。さらに、系列1のRun4およびRun5と系列2のRun2およびRun4の処理特性を比較することにより、設計因子としての反応装置有効水深が窒素除去に及

ぼす影響を検討した。

HRTは限界負荷の影響を検討した系列2のRun6を除き、目標値として設定した10hから12hの範囲とした。設計・操作因子の検討時には各条件下でほぼ等しいBODおよび窒素負荷となるように留意した。汚泥返送率はいずれの条件においても約60%とした。活性汚泥浮遊物質(MLSS)濃度は約2,100mg/Lとした系列1のRun1を除き、2,800mg/L~3,700mg/Lとした。水深0.2mの位置におけるDO制御値は、その影響を検討した系列2のRun1からRun3を除けば、窒素除去に最適となるように各Runで適宜設定した。ただし、硝化反応を優先させるため0.9mg/L以上の値を設定することとした。

実験操作期間中、週に1日あるいは2日程度の頻度でパイロットプラント流入水、返送汚泥、生物反応装置(曝気槽)流出水、および最終沈殿池流出水よりサンプリングを行い、下水試験方法⁸⁾およびSTANDARD METHODS⁹⁾に準じて水温(TOKO DO METER TOX-90i)、pH(ガラス電極法;セントラル科学UC-23)、アルカリ度(総アルカリ度)、SS(ガラス繊維ろ紙法;Whatman GF/B)、T-BODおよびD-BOD(アリルチオ尿素添加)、TOCおよび溶解性全有機性炭素(DOC)(島津製作所TOC-5000)、アンモニア性窒素(インドフェノール青吸光度法)、亜硝酸態窒素(N-(1-ナフチル)エチレンジアミン

吸光度法；ブランルーベ社 オートアナライザーⅡ），硝酸性窒素（Automated Cadmium Reduction Method；ブランルーベ社 オートアナライザーⅡ）TNおよび溶解性全窒素（DN）（アルカリ性ペルオキソ二硫酸カリウム分解法）について分析した。また、反応装置内のDO濃度分布と処理成績との関連を考察する目的で、内管部および外管部の双方において水深1m毎にDOメーター（TOKO DO METER TOX-90i）を用いてDO濃度を測定した。サンプリングは流入水および最終沈殿池流出水に関しては2時間毎の24時間コンポジット試料として、返送汚泥および生物反応装置流出水に関しては午後2時頃のスポット試料として行った。また、24h連続採水実験を行い、その結果を物質収支解析に用いた。なお、24h連続採水実験は系列1のRun2およびRun4、系列2のRun2、Run4およびRun5の合計5回にわたりに行った。これらはいずれも良好な有機物および窒素除去が行われた時期に相当する。

水温は、系列1および2の双方とも15℃程度から30℃程度まで変化しており、一年を通じた処理特性の把握が可能であった。

3. 処理機能

図-3および図-4にpHおよびSSの経日変化を示す。流入水のpHは7~8程度であり、処理水は流入水より0.5~1程度低い値であった。SS平均除去率は系列1のRun1、Run2およびRun5で各々40%、52%および5.9%と低かったが、これは最終沈殿池にライジングスラッジ流出防止設備を設けなかったために、浮上汚泥が直接流出したことによる。一方、系列2においてはこの点を改善した結果、各Runの平均流入水濃度が147~197mg/Lであったのに対して、平均流出水濃度は5.55~23.6mg/Lとなり、平均除去率が85~96%と系列1と比較して大幅に向上した。

有機性炭素およびBODの経日変化を図-5および図-6に示す。SS除去率が低かった系列1のRun1、Run2およびRun5を除けば、各Runの平均流入水TOC濃度が66.3~131mgC/Lであるのに対して、平均流出水TOC濃度は9.39~14.7mgC/Lであり、平均TOC除去率は82~91%と安定して高い値を得た。また、T-BODに関しては、系列2の各Runにおける平均流入水濃度が150~181mg/Lであったのに対して、平均流出水濃度は3.2~8.6mg/Lであり、95~98%と高いT-BOD除去率を得た。以上より、本反応装置において8.5~12.1hのHRTで生下水を処理した場合、ライジングスラッジ流出防止設備の設置により、82%以上のTOC除去率および95%以上のT-BOD除

去率を安定して得ることが可能であることが実証された。

アンモニア性窒素、酸化態窒素（硝酸性窒素+亜硝酸性窒素）および全窒素の経日変化を図-7、図-8および図-9に示す。各Runの平均流入水TN濃度は28.2~42.7mgN/Lの範囲であり、そのうちアンモニア性窒素が18.6~30.7mgN/Lを占めていた。

アンモニア性窒素に関しては、硝化を優先したDO制御条件とした系列2のRun1、ならびに硝化脱窒のバランスを考慮した条件とした系列1（Run2およびRun3は再培養後安定期の値、以下の解析も同じ）、および系列2のRun2、Run4、Run5では、各Runの平均流入水濃度が18.6~30.7mgN/Lであったのに対して、平均流出水濃度は0.37~4.92mgN/Lであり、84~98%と高い平均除去率を得た。これに対して、好気部分を少なく設定した系列2のRun3およびBOD-SS負荷率を0.17kg/(kg·d)と高く設定した系列2のRun6では、平均流入水濃度が28.0mgN/Lおよび21.0mgN/Lであったのに対して、平均流出水濃度は12.3mgN/Lおよび9.36mgN/Lであり、56%および55%の除去率にとどまった。以上より、DO制御値およびBOD-SS負荷率は硝化効率に大きく影響することが明らかになった。

酸化態窒素に関しては、系列1では D/D_0 が0.36であったRun1およびRun3、また D/D_0 が0.26であったRun5の酸化態窒素の平均流出水濃度は10mgN/L程度と高く、これらの条件下では脱窒が不十分であった。一方、 D/D_0 は0.36であるがBOD負荷率が高かったRun2、および D/D_0 が0.19であったRun4では平均流出水濃度は各々3.77mgN/Lおよび4.59mgN/Lであり、アンモニア性窒素の処理結果も併せて考えると、これらのRunにおいては硝化および脱窒の双方が良好に進行したといえる。これらのRunにおいては外管部下部に無酸素条件を確実に作成できており、これが脱窒が良好に進行した理由であると考えられる。以上により、設計因子である D/D_0 は本反応装置による窒素除去に大きく影響することが示唆された。系列2においては、DO制御値を平均1.7mg/LとしたRun2において、酸化態窒素の平均流出水濃度が4.78mgN/Lと良好な硝化・脱窒が観察されたのに対して、DO制御値を2.3mg/LとしたRun1では平均8.93mgN/Lと大量の酸化態窒素が流出した。また、DO制御値を1.4mg/LとしたRun3では、硝化は不十分であったものの酸化態窒素はほとんど残存せず、脱窒はほぼ完全に進行した。したがって、硝化・脱窒双方をバランス良く進行させる最適DO制御値が存在することが明らかになった。この結果を系列1のRun4と比較すると、窒素除去が良好に行

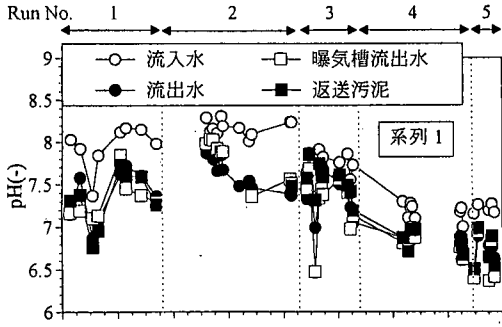


図-3 pH 経日変化

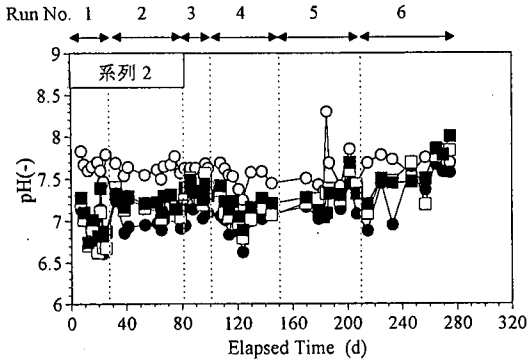


図-4 SS 経日変化

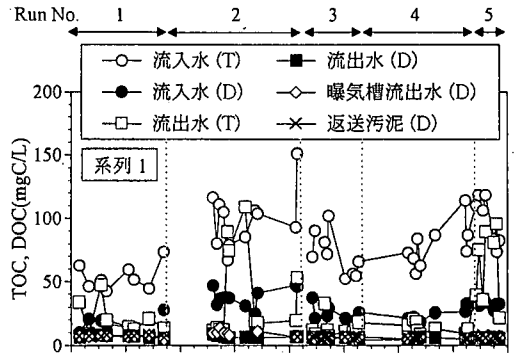


図-5 有機性炭素経日変化

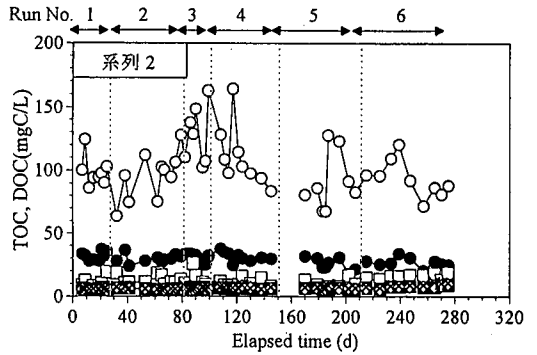
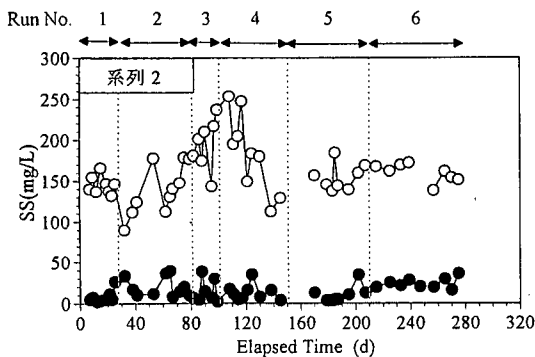


図-6 BOD 経日変化

(注 T: Total, D: Dissolved)



われる DO 制御値が反応装置有効水深により異なる
ことがわかる。したがって、DO 制御値ではなく、無
次元の好気ゾーン比および無酸素ゾーン比を定義し、
これらと硝化・脱窒率の関係について考察する必要
がある。系列 2 の Run4 における平均流出水濃度は
5.32mgN/L と、同じく $D/D_0=0.26$ の条件で実験を行
った系列 1 の Run5 と比較して格段に低くなった。し
たがって、反応装置水深の増加により良好な硝化・
脱窒処理が可能な D/D_0 の範囲が広がることが示

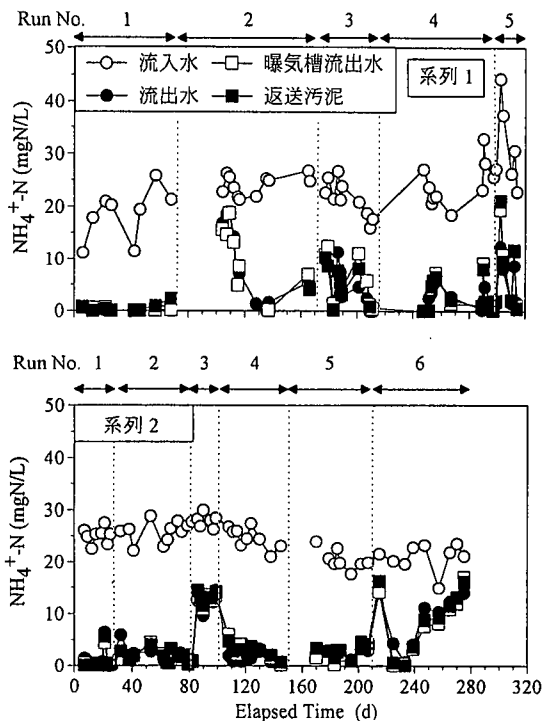


図-7 アンモニア性窒素経日変化

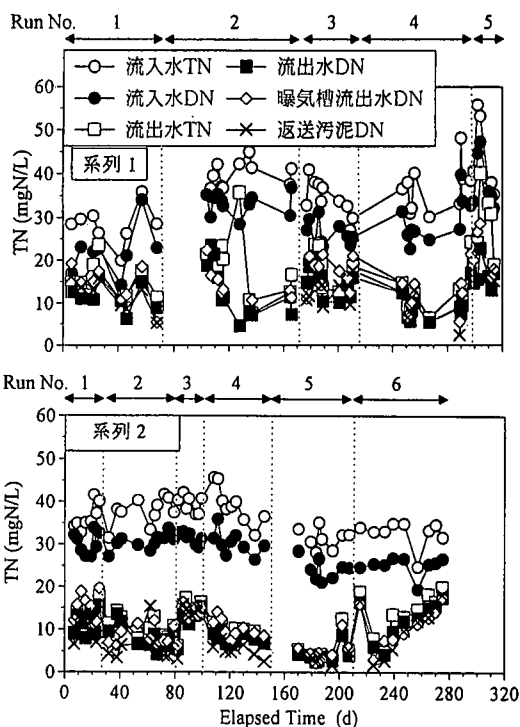


図-9 全窒素経日変化

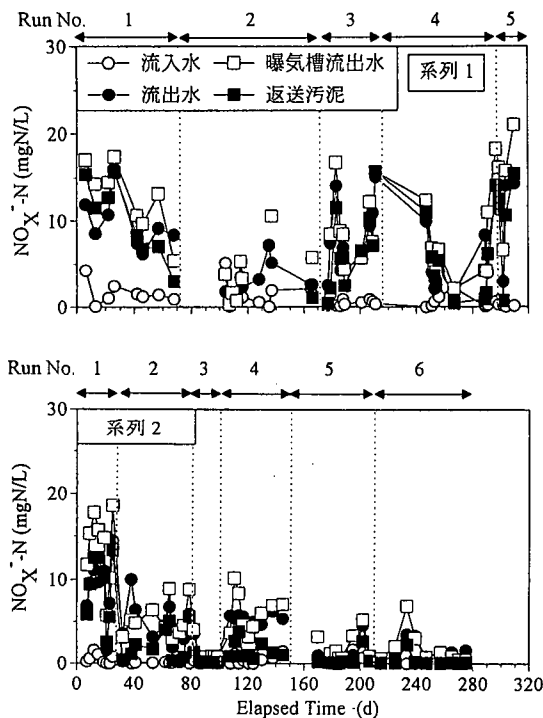


図-8 酸化態窒素経日変化

酸化態窒素濃度は 1.28mgN/L と低かった。以上より、操作因子として DO 制御値および BOD-SS 負荷率を、また設計因子としては D_i/D_o および反応装置有効水深を適切に設定することにより、本反応装置で硝化および脱窒の双方を良好に進行させることが可能であることが明らかになった。

TN に関しては、平均流入水濃度が系列 1 の Run4 で 36.5mgN/L、系列 2 の Run2、Run4 および Run5 で各々 38.0mgN/L、39.3mgN/L、31.6mgN/L であったのに対して、平均流出水濃度は 10.2mgN/L、9.80mgN/L、9.33mgN/L および 5.11mgN/L であり、各々 72%、74%、76% および 84% と高い平均除去率を得た。これらの Run においては、上述したように硝化および脱窒の双方が良好に進行した結果高い除去率を得た。

以上の実験結果より、有効水深が 4.0m、 D_i/D_o が 0.19、あるいは有効水深が 6.0m、 D_i/D_o が 0.19 または 0.26 の反応装置を用いて、BOD-SS 負荷率が 0.08~0.12kg/(kg·d)、HRT が 10.4~11.9h、MLSS 濃度が 2,900~3,700 mg/L の条件下で適切な DO 制御下で下水の連続処理を行うことにより、82~91% の平均 TOC 除去率、88~94% の平均アンモニア性窒素除去率、および 72~84% の平均 TN 除去率を達成しうることが明らかになった。また、有効水深が 6.0m、 D_i/D_o が 0.19 の反応装置を用いた場合には、BOD-SS

唆された。系列 2 の Run5 では平均流出水濃度が 1.00mgN/L と極めて低く、良好な硝化・脱窒処理が行われた。Run6 では、硝化不足のため、平均流出水

負荷率が 0.12kg/(kg·d), HRT が 10.4h, MLSS が 3,100mg/L の条件下で適切な DO 制御を行うことにより 97% の BOD 除去率, 88% のアンモニア性窒素除去率および 84% の TN 除去率を得ることが可能であった。すなわち, HRT が 10h 程度で 75% 以上の TN 除去率を得ることの可能な反応装置の開発という目標を達成できた。

4. 設計・操作因子の検討

(1) 好気ゾーン比および無酸素ゾーン比

各設計・操作因子が硝化および脱窒率に及ぼす影響に関して検討する目的で, 見かけの硝化率および脱窒率を近似的に次式で定義する。

$$\text{見かけ硝化率(\%)} = \frac{\text{流入水 DKN} - \text{流出水 DKN}}{\text{流入水 DKN}} \times 100 \quad (2)$$

$$\text{見かけ脱窒率(\%)} = \frac{\text{流入水 DN} - \text{流出水 DN}}{(\text{流入水 DKN} - \text{流出水 DKN}) \times 100} \quad (3)$$

ここで, DKN は溶解性ケルダール窒素 (DN-酸化態窒素により算出) 濃度を表している。本研究では, SS 濃度が高い沈砂池流出水を流入下水として用いているが, SS 中の窒素含有率は低いいため, 流入 TN 量のうち固形性窒素が占める割合は 17.6%~30.9% (平均 21.6%) と低いことが, 合計 5 回にわたる物質収支試験の結果明らかになっている⁹⁾。一方, 流出あるいは余剰汚泥として系外に排出された固形性窒素は流入 TN 量の 28.0~33.6% (平均 29.9%) であり, 流入した固形性窒素の比率よりやや高かった。すなわち, 巨視的に見れば流入した固形性窒素は可溶化後に硝化・脱窒されるよりも菌体として再合成され, 余剰汚泥として主に排出されるとみなしうる。それゆえ, 本研究では硝化率および脱窒率の議論は溶解性窒素を対象として行うことにする。また, 本プロセスでは単一槽内で硝化および脱窒の双方が生じるため, 除去された溶解性ケルダール性窒素量に占める除去 DN 量として見かけ脱窒率を定義した。

前述のように, 設計・操作条件により, 良好な窒素除去が行われる DO 制御値は異なるため, 無次元の好気ゾーン比および無酸素ゾーン比を定義し, これらと見かけの硝化率および脱窒率の関係について以下考察する。ここで, 硝化反応における DO に関する半飽和定数は, アンモニア酸化細菌で 0.5mg/L¹⁰⁾, 0.3mg/L¹¹⁾, 2.0mg/L¹²⁾, 亜硝酸酸化細菌で 0.5mg/L¹⁰⁾, 0.7mg/L¹¹⁾, 0.25~1.3mg/L¹²⁾, 双方を合わせた値として 0.4mg/L¹³⁾等が示されていることから, 本研究では好気ゾーン比を「DO が 0.5mg/L 以上である部分の容積が生物反応装置全容積中に占める割合」として定義することにした。また, 脱窒反応に

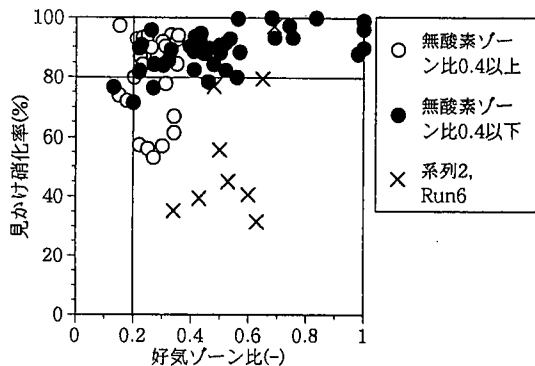


図-10 好気ゾーン比と見かけ硝化率

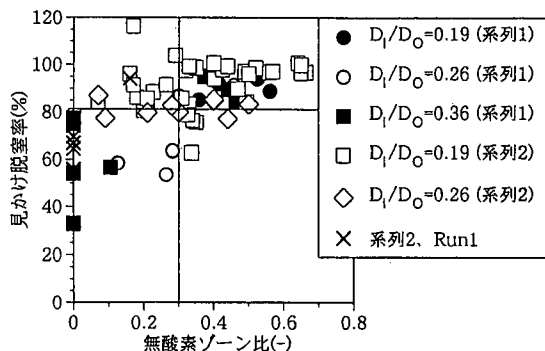


図-11 無酸素ゾーン比と見かけ脱窒率

おける DO に関する半飽和定数 (阻害関数) は, 0.1mg/L¹⁰⁾, 0.3mg/L¹¹⁾, 0.2mg/L¹³⁾等が示されていることから, 無酸素ゾーン比を「DO が 0.1mg/L 以下の部分の容積が生物反応装置全容積中に占める割合」として定義することにした。

図-10 に好気ゾーン比と見かけ硝化率の関係, 図-11 に無酸素ゾーン比と見かけ脱窒率の関係を示す。図-10 に示すように, SRT が短かったために硝化細菌を反応装置内に保持できなかった系列 2 の Run6 のデータ (×印) を除けば, 好気ゾーン比を 0.2 以上に維持することで 80% 以上の見かけ硝化率を得ることが可能である。ただし, 無酸素ゾーン比が 0.4 以上 (○印) と大きい場合には硝化率が低下する場合があります。一方, 図-11 より, 無酸素ゾーン比を 0.3 以上に設定することにより, 80% 以上の見かけ脱窒率を得ることが可能であることが明らかである。無酸素ゾーン比に関しては設計因子が影響し, 系列 1 の $D_1/D_0=0.26$ (○印) あるいは 0.36 (■印) の条件では, 硝化を優先させる目的で DO 制御値を 0.9mg/L 以上に設定した場合はこの必要無酸素ゾーン比を確保できないことが, 図に示されている。なお, 系列 2 の Run1 (×印) は DO 制御値を最適値より高く設定した条件であり, この条件でも必要無酸素ゾーンを確保できていない。

(2) BOD-SS 負荷率

BOD-SS 負荷率と見かけ硝化率の関係を図-12に示す。ここで、系列2のRun1およびRun3のデータは除外し、DO制御値が窒素除去に適した条件のデータのみを用いて解析を行った。図より、BOD-SS負荷率が0.12 kg/(kg·d)以上になると、見かけ硝化率が急激に低下していることが見て取れる。したがって、80%以上の見かけ硝化率を得るにはBOD-SS負荷率を0.12 kg/(kg·d)以下となるように運転を行う必要があることが明らかになった。

(3) 流入水 C/N 比

二重管型反応装置では、装置内で好氣的有機物分解、硝化および脱窒が並行して生じるため、流入した有機性炭素の二酸化炭素への変換は好氣的分解と脱窒の両者によって生じる。したがって、本反応装置で脱窒反応を良好に進行させるには、脱窒反応の化学量論式により与えられるC/N比よりも高い流入水C/N比が必要となる可能性がある。一方、BODで評価される微生物への資化性には、有機物の粒径はあまり影響しないことが知られている¹⁴⁾。そこで、本研究では高濃度で固形性有機物を含有する団地排水処理場の沈砂池流出水をパイロットプラントの流入下水として使用することにより、流入水のC/N比を高く維持することを試みている。

24h連続実験の結果に基づく物質収支解析の結果⁵⁾を用いて良好な脱窒処理を行うために必要な流入水C/N比(TOC/TN比)について考察を加えた。ここで、脱窒に伴う無機化炭素量は、単純化のため脱窒反応に利用される有機物がグルコースで代表できると仮定し、化学量論計算を行うことにより算出している。なお、実際の下水中には高級脂肪酸などグルコースよりも還元状態にある有機物が多く含まれていると考えられるため¹⁵⁾、本計算結果は実際よりも幾分過大評価している可能性がある。

図-13に無機化された炭素のうち脱窒に起因する割合と流入水C/N比の関係を示す。図より、脱窒に起因する割合は流入水C/N比の増加に伴い減少していることが見て取れる。一方、流入した全窒素(TN)のうち脱窒された割合はいずれの条件でも50~60%程度とほぼ一定である。また、脱窒された窒素に固形物へ移行した窒素を加えるといずれの条件でも80~90%と高い値となっており、流入水C/N比が2.3~2.9であれば80%以上の窒素除去が可能であることも図より明らかである。また、この範囲では流入水C/N比が増加しても好氣的分解の割合が増加するだけであり、脱窒率には影響しないことが明らかになった。福永・茂木¹⁶⁾は、本プロセスと同様に流れ

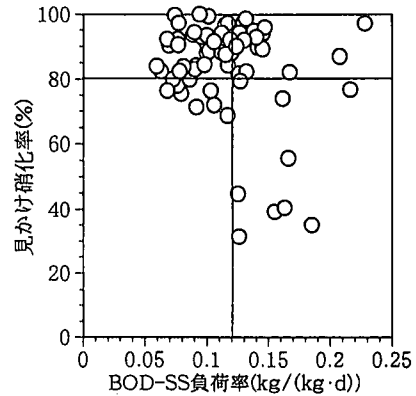


図-12 BOD-SS負荷率と見かけ硝化率

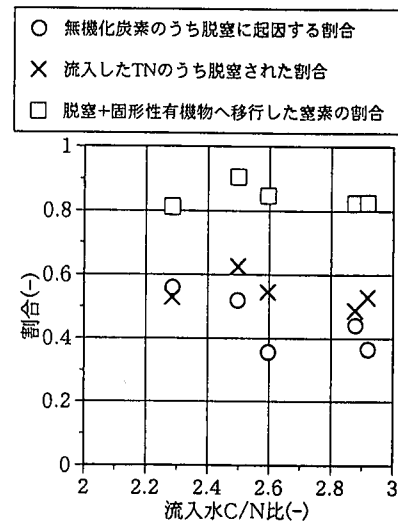


図-13 無機化された炭素のうち脱窒に起因する割合と流入水C/N比の関係

方向にDO勾配を生じさせ、好氣性ゾーンと無酸素ゾーンの間を高い循環率で循環させることにより窒素除去を行うオキシデーションディッチ法(O.D.法)において、人工下水中の尿素の量を変えたモデル実験を行うことにより、流入水BOD/N比が3.8~5.3の範囲で70%以上のTN除去率が得られることを示している。本研究の結果をBOD/N比で表すと3.4~5.2となり(系列1のデータについては式(1)により換算して算出)、ほぼ一致した結果を得ている。したがって、この結果は通常の窒素除去プロセスより高いC/N比が必要になると考えられる、流れ方向にDO勾配を生じさせる窒素除去プロセスに共通して適用が可能であると判断される。ただし、C/N比(BOD/N比)の上限値については、いずれも提示した値が実験範囲の上限値であるため、今後さらなる検討が必要である。なお、本研究では沈砂池流出水をパイロットプラント流入下水として使用すること

により、流入水の TOC/TN 比は DOC/DN 比の 2~3 倍に相当する 1.9~3.3 となり、必要値と同等の C/N 比を確保できた。すなわち、無薬注での運転が可能であった。

(4) D_i/D_o

表-1 に示されるように、本研究では系列 1 の Run2 から Run5 は水深 0.2m の位置の平均 DO を 0.9~1.3mg/L、平均 BOD-SS 負荷率を 0.08~0.13kg/(kg·d)、平均 BOD 容積負荷率を 0.30~0.41kg/(m³·d) とほぼ同条件に設定して実験を行い、 D_i/D_o のみを 0.19 (Run4)、0.26 (Run5)、0.36 (Run2 および Run3) と変化させた。そこで、 D_i/D_o と硝化・脱窒性能の関係を把握する目的で、図-14 に D_i/D_o と DN 除去率の関係を示している。なお、これらの条件の中には SS 除去率が低く、TN 除去率が直接硝化・脱窒性能を表さない場合があるため、DN 除去率で評価を行った。図より、 $D_i/D_o=0.19$ 、0.26 および 0.36 の各条件下における DN 除去率の平均値 (●印) は各々 71%、56% および 53% であり、 $D_i/D_o=0.19$ の条件下のみ DN が良好に除去された。系列 1 ではいずれの条件でも硝化反応は良好に進行したため、これらは見かけ脱窒率の差による。図-11 に示すように、 $D_i/D_o=0.19$ の条件 (●印) 下のみ安定して 80% 以上の見かけ脱窒率を得ている。したがって、有効水深 4.0m の二重管型反応装置を使用し、これらの設定条件下で窒素除去を試みる場合には、 D_i/D_o が小さいほど窒素除去は良好に行われ、実験範囲では $D_i/D_o=0.19$ が最も良いことが明らかになった。これは、外管部下降時間 (t_o) は外管部断面積の内管部断面積に対する比 (A_o/A_i) にほぼ比例することから、 D_i/D_o を小さく設定することにより無酸素ゾーンの作成が容易になったためであると考えられる。

(5) 反応装置有効水深

系列 1 の Run4 および Run5 の結果と、系列 2 の Run2 および Run4 の結果を比較することにより、本反応装置の有効水深が窒素除去に及ぼす影響に関して検討した。 $D_i/D_o=0.19$ の条件で比較すれば、系列 1 の Run4 では平均 TN 除去率が 72% であったのに対して、系列 2 の Run2 では 74% と有効水深の増加に伴いわずかながら TN 除去率が増加した。一方、 $D_i/D_o=0.26$ の条件では、系列 1 の Run5 では平均 TN 除去率および DN 除去率が各々 36% および 56% と低かったのに対して、系列 2 の Run4 では各々 76% および 74% と著しい改善がなされた。ここで、系列 1 の Run5 では SS の流出に伴い TN 除去率が大幅に悪化したのが、DN 除去率で判断しても 56% と低い値しか得

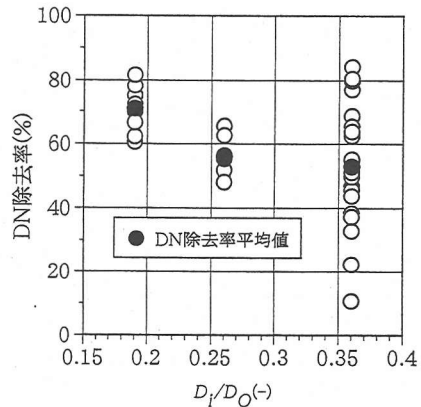


図-14 D_i/D_o が DN 除去率に及ぼす影響

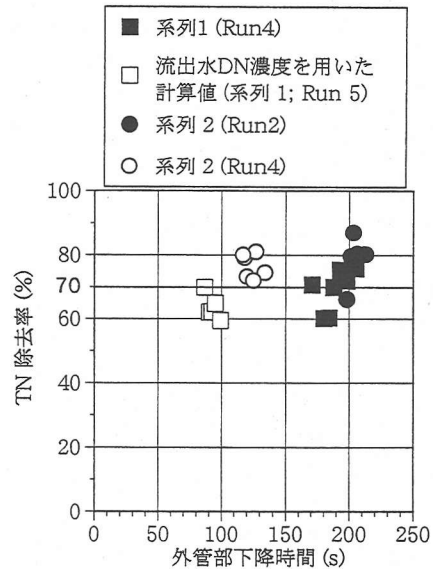


図-15 外管部下降時間と TN 除去率

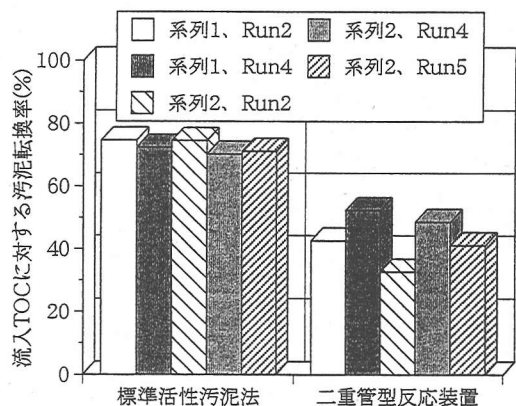


図-16 流入 TOC に対する汚泥転換率

ていないことから、有効水深の増加に伴い硝化・脱窒性能も大幅に改善されたと判断される。

空気流量一日平均値を用いて、筆者らが提示した循環流速予測式²⁾により外管部下降時間(t_d)を算出した。計算された下降時間と TN 除去率の関係を図-15に示す。なお、系列 1, Run5 では SS 除去率が低く TN 除去率が硝化・脱窒性能を直接表さないため、100%の SS 除去が行われたとした場合の TN 除去率計算値(すなわち流出水 TN 濃度=流出水 DN 濃度として除去率を計算)を参考のためにプロットしている。図より、外管部下降時間が 100s 以下の場合には 70%以上の TN 除去率を得ることが不可能であるのに対して、120s 以上の外管部下降時間を確保することにより、概ね 70%以上の TN 除去率を得ていることが示されている。必要下降時間 120s は、同様の窒素除去機構を有する O.D.法における必要循環時間 9.6~14.4min (循環回数 100~150 回/d)¹⁾と比較して短い、流入負荷が 2~4 倍程度と高いことに起因すると判断される。ここで、外管部下降時間の平均値は系列 1 の Run4 および Run5 で各々 188 s および 93 s であり、系列 2 の Run2 および Run4 では各々 204 s および 124 s であった。すなわち、反応装置有効水深を 4.0m から 6.0m へと 1.5 倍とすることにより、 $D_i/D_o=0.19$ の条件では t_d は 1.1 倍に、 $D_i/D_o=0.26$ の条件では t_d は 1.3 倍となった。この結果外管部に無酸素ゾーンを作成しやすくなり、TN 除去率が高くなったと考えられる。一方、反応装置水深が一定の場合には D_i/D_o を 0.19 から 0.26 へと 1.4 倍に増加させることにより、水深 4.0m の反応装置では t_d は 0.5 倍に、水深 6.0m の反応装置では t_d は 0.6 倍となった。以上より、反応装置水深の増加は外管部下降時間の増加に有効であるが、 D_i/D_o と比較すればその影響は小さいことが明らかになった。

5. 本プロセスの発生汚泥量削減効果

本プロセスを用いて硝化・脱窒処理を行った際の発生汚泥量を、標準活性汚泥法と比較することを試みた。金¹⁸⁾は標準活性汚泥法における COD_{Cr} 収支を計算し、最初沈殿池に 133.6t/d の T-COD_{Cr} (76.8t/d が固形性 (P-)COD_{Cr}) が流入し、54.8t/d の T-COD_{Cr} (53.7t/d が P-COD_{Cr}) が沈殿除去されたことを明らかにしている。すなわち、最初沈殿池における P-COD_{Cr} 除去率は 69.9%であった。また、その結果曝気槽に 78.8t/d の T-COD_{Cr} (23.1t/d が P-COD_{Cr}) が流入し、32.5t/d が無機化するとともに、33.4t/d (33.3t/d が P-COD_{Cr}) が余剰汚泥に移行し、最終的に 12.9t/d (3.6t/d が P-COD_{Cr}) が流出したことを示している。

すなわち、曝気槽流入 T-COD_{Cr} に対する無機化率は 41.2%であった。そこで、上述した最初沈殿池における P-COD_{Cr} 除去率および曝気槽での無機化率を用いることにより、物質収支解析を行った当日の流入水に標準活性汚泥処理を行った場合の汚泥発生量の試算を行った。なお、本研究では COD_{Cr} ではなく TOC の測定を行ったが、同等の除去率および無機化率であるとして計算を行った。また、標準活性汚泥処理を行った場合の流出水 DOC 濃度は本研究の結果と等しいとした。発生汚泥量は、生汚泥と余剰汚泥(流出水中固形物を含む)を合計することにより計算した。結果を図-16に示す。流入水 TOC に対する汚泥中炭素への転換率は標準活性汚泥法では 70~75%であるのに対して、二重管型反応装置を用いて硝化・脱窒処理を行った場合には 33~52%となり、発生汚泥量が 28~56%減少した。この理由として、本プロセスは最初沈殿池を省略したプロセスであるため、生汚泥の発生がないこと、および脱窒を組み合わせているため曝気槽での無機化率が平均 50.5% (5 回の物質収支解析時の平均値)と標準活性汚泥法より高いこと、などが考えられる。以上より、本処理プロセスが発生汚泥の削減にも有効であることが明らかになった。

6. 結論

本研究では、二重管反応装置を硝化脱窒プロセスに適用し、その設計・操作因子の実験的検討を行うとともに、汚泥発生量削減効果を検討した。得られた主要な知見を以下にまとめる。

- (1) 有効水深が 4.0m、 D_i/D_o が 0.19、あるいは有効水深が 6.0m、 D_i/D_o が 0.19 または 0.26 の二重管型反応装置を用いて、BOD-SS 負荷率が 0.08~0.12kg/(kg·d)、HRT が 10.4~11.9h、MLSS 濃度が 2,900~3,700 mg/L の条件下で、(3)に示す好気・無酸素ゾーン比を満足させる DO 制御下で生下水の連続処理を行うことにより、82~91%の平均 TOC 除去率、88~94%の平均アンモニア性窒素除去率、および 72~84%の平均 TN 除去率を得ることが可能である。
- (2) 有効水深が 6.0m、 D_i/D_o が 0.19 の反応装置を用いた場合には、BOD-SS 負荷率が 0.12kg/(kg·d)、HRT が 10.4h、MLSS が 3,100mg/L の条件下で(3)に示す好気・無酸素ゾーン比を満足させる適切な DO 制御を行うことにより 97%の BOD 除去率、88%のアンモニア性窒素除去率および 84%の TN 除去率を得ることが可能である。すなわち、HRT が 10h 程度で 75%以上の TN 除去率を得ることの可能な

反応装置の開発という目標を達成できた。

- (3) 本反応装置の操作因子に関しては、80%以上の見かけ硝化率を得るためには、BOD-SS 負荷率を 0.12kg/(kg·d)以下に設定し、好気ゾーン比を 0.2 以上に維持する必要がある。ただし、無酸素ゾーン比が 0.4 以上と大きい場合には硝化率が低下する場合があります。一方、80%以上の見かけ脱窒率を得るには無酸素ゾーン比を 0.3 以上に維持する必要がある。また、流入水 C/N 比は 2.3~2.9 であれば 80%以上の窒素除去が可能であることを明らかにした。
- (4) 設計因子に関しては、 D_1/D_0 を小さく設定することにより無酸素ゾーンの作成が容易になり、その結果 DN 除去率が向上することを明らかにした。また、反応装置水深を増加させることにより、高い TN 除去率を得ることが可能な D_1/D_0 の範囲が広がることを明らかにした。さらに、これら設計因子は外管部下降時間に影響し、70%以上の TN 除去率を得るには 120 s 程度の外管部下降時間が必要であることを明らかにした。
- (5) 二重管型反応装置を用いて硝化・脱窒処理を行った場合には、標準活性汚泥法で処理した場合と比較して発生汚泥量が 28~56%減少すると判断された。したがって、本処理プロセスが発生汚泥の削減にも有効であることが明らかになった。

最後に本研究は文部省科学研究費(07455210)の補助、ならびに一部廃棄物研究財団からの研究費補助を受けて行ったものであることを付記する。

参考文献

- 1) 例えば, Teranishi,S., Kamihira,M., Ogawa,T., Ohno,M., Iijima,S., and Kobayashi,T.: Continuous Production of Human Erythropoietin by Immobilized Recombinant L-929 Cells, *Jour. of Fermentation and Bioengineering*, Vol.77, No.1, pp.52-56, 1994.
- 2) 藤原 拓, 宗宮 功, 津野 洋, 奥野芳男: エアリフト

- 二重管縦型下水処理反応器における液流動に関する研究, 土木学会論文集, No.608/VII-9, pp.49-59, 1998.11.
- 3) Fujiwara,T., Somiya,I., Tsuno,H., and Okuno,Y.: Effect of Draft Tube Diameter on Nitrogen Removal from Domestic Sewage in a Draft Tube Type Reactor, *Water Science and Technology*, Vol.38, No.1, pp.319-326, 1998.
- 4) 藤原 拓, 宗宮 功, 津野 洋, 奥野芳男: 二重管型反応器による下水からの窒素除去に及ぼす有効水深の影響に関する研究, 環境工学研究論文集, 第 35 巻, pp.379-386, 1998.
- 5) 藤原 拓: 二重管型反応装置の硝化脱窒プロセスへの適用に関する研究, 京都大学博士学位論文, 1999.
- 6) 橋本健治: 改訂版反応工学, 培風館, pp.181-183, 1993.
- 7) 藤原 拓, 宗宮 功, 津野 洋, 奥野芳男: 二重管型反応装置による下水からの効率的窒素除去法の操作因子に関する研究, 下水道協会誌論文集, Vol.34, No.419, pp.63-75, 1997.
- 8) 日本下水道協会: 下水試験方法-1984年版, 1985.
- 9) APHA: STANDARD METHODS, 18TH EDITION, 1992.
- 10) 古米弘明: 回分式活性汚泥法における処理過程の非常モデル, 用水と廃水, Vol.36, No.6, pp.11-18, 1994.
- 11) 西村文武: 生物活性炭・生物ゼオライト結合型反応器による窒素除去に関する研究, 京都大学博士学位論文, pp.91, 1996.
- 12) Bhavender, S. and Ahlert R. C.: Nitrification and nitrogen removal, *Water Research*, Vol.11, pp.897-925, 1977.
- 13) IAWPRC: Activated Sludge Model No.1, pp.20, 1987.
- 14) 合田 健, 宗宮 功, 河村清史: 都市下水のエネルギー評価と有機物指標, 下水道協会誌, Vol.11, No.127, pp.1-11, 1974/12.
- 15) 宗宮 功, 河村清史: 都市下水中の有機物質について, 水処理技術, Vol.21, No.1, pp.3-12, 1980.
- 16) 福永 栄, 茂木浩一: オキシデーションディッチにおける窒素除去, 下水道協会誌, Vol. 21, No.238, pp.35-43, 1984/3.
- 17) 中村 豊, 木原 敏, 川島 普: 1 点酸素供給型オキシデーションディッチ法における硝化, 脱窒の動力学解析, 水処理技術, Vol.31, No.8, pp.409-418, 1990.
- 18) 金 東夏: 下水の新高度処理システムにおける膜分離を用いた有機酸発酵に関する研究, 京都大学博士学位論文, pp.106, 1995.

(1999.7.1 受付)

APPLICATION STUDY OF A DRAFT-TUBE-TYPE REACTOR TO NITRIFICATION-DENITRIFICATION PROCESS

Taku FUJIWARA, Isao SOMIYA, Hiroshi TSUNO and Yoshio OKUNO

A draft-tube-type reactor was applied to a nitrification-denitrification process. The data obtained through the continuous treatment of domestic sewage demonstrated that 97% of BOD, 88% of ammonia nitrogen, and 84% of total nitrogen in influent could be removed under the condition that HRT was kept around 10.4h. Appropriate values of design parameters (the ratio of draft tube diameter to reactor diameter and effective height of the reactor) and operational parameters (BOD-SS loading rate, aerobic zone ratio, anoxic zone ratio and C/N ratio) were also clarified. In addition, sludge produced through the treatment was from 28% to 56% less than that produced through the treatment by conventional activated sludge processes.