

回転円板脱窒槽の動力学的解析

KINETIC ANALYSIS OF DENITRIFICATION
BY ROTATING BIO DISK UNIT

渡辺 義公*・石黒 政儀**・西留 清***
By Yoshimasa WATANABE, Masayoshi ISHIGURO
and Kiyoshi NISHIDOME

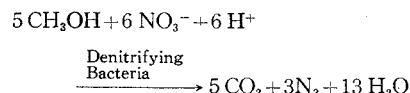
1. 序論

回転円板法は低速で回転する円板上に付着生育した微生物を利用する汚水処理法であり、西独シュツットガルト工科大学の F. Pöpel と H. Hartmann によって 1960 年に発表された^{1)~3)}。本法はおもにヨーロッパの中小規模の下水処理場で採用されてきたが、1970 年以降、米国をはじめ我が国でも急速に普及しつつあり研究開発も活発である。近年、本法が注目されるようになった要因として、汚泥返送が不要で維持管理が容易なうえに運転経費も低廉なことはもちろんあるが、本法が下廃水の高度処理にもきわめて有効であることがあげられる^{4)~7)}。すなわち、本法は下廃水中の低濃度有機物や窒素を容易に除去でき脱リン法^{8), 9)}としても有望視されている。

本法には好気性微生物を利用する方法と嫌気性もしくは通性嫌気性微生物を利用する方法がある。Pöpel と Hartmann が考案したのは前者であり、円板の約 50% を浸漬させて付着生物膜を空中と水中交互に循環させ大気中の酸素を吸収しつつ廃水の BOD を低下させる方法である。最近では生物学的硝化プロセスとしてもきわめて効果的なことが明らかにされており^{10)~13)}、今後の発展が期待される。一方、後者は円板の 100% を浸漬させる方法であり、生物学的脱窒法の 1 つとして開発された回転円板脱窒法がその応用例である^{14)~18)}。

生物学的脱窒法は廃水中の硝酸性あるいは亜硝酸性の窒素 ($\text{NO}_3\text{-N}, \text{NO}_2\text{-N}$) を微生物の作用によってガス状の窒素（おもに N_2 ）に変換し水中から放出する方法である。この方法は最終生成物が大気中の約 80% を占める無害な窒素ガスであることから廃水の脱窒法としてもっとも合理的と考えられる。ガス状窒素への変換は通

性嫌気性の従属栄養細菌である *Pseudomonas* sp., *Micrococcus* sp. らが嫌気的条件下で有機炭素を水素供与体、 $\text{NO}_3\text{-N}$ あるいは $\text{NO}_2\text{-N}$ を水素受容体として増殖する結果として生ずる。水素供与体としてメタノールを用いた場合の脱窒素反応は次式のようである。



回転円板脱窒法における脱窒効率は生物学的脱窒素反応そのものに影響する C_m/N 比（水素供与体濃度/水素受容体濃度）、水温、pH、DO、水素供与体の種類等の生物化学的影響因子と流入水素受容体濃度、装置の滞留時間等のプロセス操作条件により支配される。生物化学的影響因子については先に報告したとおり⁶⁾、浮遊性微生物を利用する方法に比べて C_m/N 比は小さく DO と水温の影響を受けにくい等の利点を持っている。

一方、回転円板法の設計は F. Pöpel¹²⁾ らが用いた単位円板表面積当たりの着目基質の負荷量（面積負荷と称し、単位は $\text{g/m}^2 \cdot \text{日}$ ）による方法、または、R. Antonie⁷⁾ らの提唱する単位円板表面積当たりの処理水量（水量負荷と称し、単位は $\text{m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{日}$ ）を用いる方法により行われてきたが、いずれも多分に経験的であり理論的根拠に乏しい。

本論文ではプロセス操作条件（処理水量、原水濃度、円板表面積等）と脱窒効率の関係を明らかにするための動力学モデルを提示し、実験によるモデルの検証と必要な諸定数の決定を行い本法の合理的な設計の一助としたい。なお、本論文で使用する記号は一括して末尾に記載する。

2. 理論的考察

生物膜による浄化機構を理論化する場合、① 生物膜厚を考慮するかどうか、② 生物膜と液相との間に基質

* 正会員 工博 宮崎大学助教授 工学部土木工学科

** 正会員 工博 宮崎大学教授 工学部土木工学科

*** 正会員 工修 鹿児島工業高等専門学校助手

の濃度勾配が大きい領域いわゆる拡散層を設定するかどうか、が問題となる。生物膜厚については Kornegay と Andrews¹⁹⁾、LaMotta²⁰⁾はグルコースを基質とした実験より、ある生物膜厚以下では単位生物膜表面積当たりの基質除去速度（以下、基質除去速度と称す）は生物膜厚とともに直線的に増加するが、ある生物膜厚以上では一定となり生物膜厚が浄化機構と密接に関連することを報告している。また、拡散層については LaMotta²¹⁾が一方を固定し他方を回転させる同心円筒の回転側に付着生育させた生物膜による実験により、グルコースの除去速度がある回転速度（周辺速度で 40 m/分）まではほぼ直線的に増加するがその後は一定となると報告している。Bungay²²⁾らは流れている培地内に浸された生物膜近傍の溶存酸素濃度を測定し、膜近傍の 100 μ 以内では顕著な濃度勾配が存在することを示した。さらに、Williamson と McCarty²³⁾は拡散層厚は液本体の攪拌強度が増加するとある値まで（彼らの実験では 56 μ）減少し、その後は一定であったと述べている。以上の諸知見は生物膜による浄化機構は生物膜厚および拡散層を無視して論じえないことを明示している。回転円板法では円板付着微生物のせん断はく離の防止と動力費節減等の見地から、円板周辺速度は 20 m/分以下とするのが通常であり、この周辺速度領域では有機物酸化や嫌気性脱窒においては生物膜厚は数 mm に達する。したがって、回転円板法の動力学的解析は生物膜厚と拡散層を考慮して行わねばならない。

以上の諸見より、回転円板法による脱窒機構は不均一反応 (Heterogeneous reaction) であり、汚水中の着目基質の減少速度は次の 3 つの過程により決定される。

- (1) 液本体から生物膜表面への基質の輸送過程
- (2) 生物膜内の基質の拡散過程
- (3) 生物膜内での生物化学的脱窒反応による基質消費過程

通常、(2) と (3) は同時に進行するものとして解析しなければならない。なお、反応生成物はガス状窒素であり、すみやかに大気中へ放出されるので、生成物は上記 3 過程になんら影響しないと考える。以上の 3 過程は全

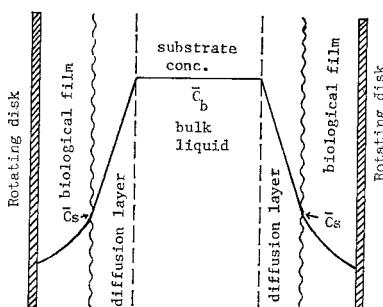


図-1 システム分割図

表-1 システム分割と諸特性

分割領域	輸送機構	生物化学反応	流体力学的特性
液本体 (Bulk liquid)	乱流拡散 濃度一様	なし	円板面との相対速度が大きく、粘性の影響は小さい。
拡散層 (Diffusion layer)	分子拡散	なし	円板面との相対速度が小さく、粘性の影響は大きい。
生物膜 (Biological film)	分子拡散	脱窒素反応	円板面との相対速度が零であり、粘性の影響は大きい。

システムを 図-1 のように液本体、生物膜および液本体と生物膜との間の拡散層の 3 つに分割することにより以下のように理論展開される。それぞれの特性は 表-1 のようである。なお、水素供与体が十分に存在する場合の脱窒反応では基質として水素受容体のみを考えればよく、以下の理論展開における着目基質は水素受容体である。図-1 より任意時間における単位生物膜表面積当たりの脱窒速度は式 (1) で与えられる。

$$\frac{1}{A} \frac{d(V\bar{C}_b)}{dt} = -\bar{K}_d(\bar{C}_b - \bar{C}_s) \quad \dots \dots \dots (1)$$

定常状態を考えると 図-2 のような 2 通りの濃度分布が存在する。図-2 の (a) では基質は生物膜最深部に到達しているが、(b) ではある深さ Z^* で微小濃度 C^* となりその後は一定となる。定常状態における単位生物膜表面積当たりの脱窒速度を V_r と書くと、 \bar{K}_d は D/δ に等しいと置けるので式 (2) を得る。

$$V_r = -\frac{D}{\delta} (C_b - C_s) \quad \dots \dots \dots (2)$$

生物膜内の基質については式 (3) のような物質収支式を得るが、定常状態では式 (5) となる。なお、生物膜内の脱窒反応は零次反応とし、生物膜内の脱窒菌濃度は一様と考える。

$$D_e \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} - \frac{\partial C}{\partial t} - R = 0 \quad \dots \dots \dots (3)$$

$$R = rX \quad \dots \dots \dots (4)$$

$$D_e \frac{d^2 C}{dZ^2} = R \quad \dots \dots \dots (5)$$

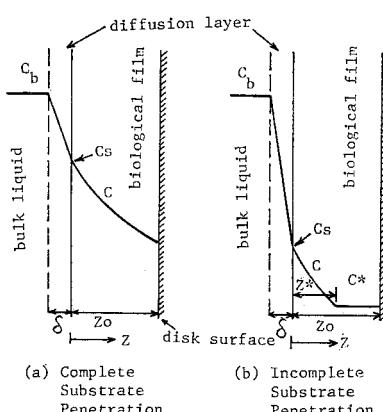


図-2 定常状態における基質濃度分布

式(4)を図-2の(a), (b)についての境界条件を用いて積分すると式(6), (8)を得る.

(i) 完全基質浸透(Complete substrate penetration)

境界条件: $C=C_s$ at $Z=0$, $dC/dZ=0$ at $Z=Z_0$

$$C = \frac{R}{2D_e} Z^2 - \frac{R}{D_e} Z_0 Z + C_s \quad \dots \dots \dots (6)$$

(ii) 不完全基質浸透Incomplete substrate penetration)

境界条件: $C=C_s$ at $Z=0$, $dC/dZ=0$ at $Z=Z^*$

$$Z^* = (2D_e C_s / R)^{1/2} = (2D_e C_s / rX)^{1/2} \quad \dots \dots \dots (7)$$

$$C = \frac{R}{2D_e} Z^2 - (2RC_s/D_e)^{1/2} Z + C_s \quad \dots \dots \dots (8)$$

いま, C_s とそれに対応する X の比をパラメーター α で表示し R を C_s に関する 1 次反応型として表現する.

$$\frac{X}{C_s} = \alpha \quad \dots \dots \dots (9)$$

$$R = rX = r\alpha C_s \quad \dots \dots \dots (10)$$

また、生物膜表面における Flux(F_s) は、

$$F_s = -D_e \left(\frac{dC}{dZ} \right)_{z=0} \quad \dots \dots \dots (11)$$

であり、定常状態では式(6), (8)より式(12), (13)を得る.

(i) 完全基質浸透

$$F_s = RZ_0 = r\alpha Z_0 C_s = K_r C_s \quad \dots \dots \dots (12)$$

$$K_r = r\alpha Z_0 r \times Z_0 C_s^{-1} \quad \dots \dots \dots (13)$$

(ii) 不完全基質浸透

$$F_s = 2(D_e R C_s)^{1/2} = (2D_e r \alpha)^{1/2} C_s = K_r C_s \quad \dots \dots \dots (14)$$

$$K_r = (2D_e r \alpha)^{1/2} = (2D_e r X)^{1/2} C_s^{-1/2} \quad \dots \dots \dots (15)$$

$$= (2D_e R / C_s)^{1/2}$$

さらに、定常状態であるから式(16)～(19)を得る.

$$V_r = -\frac{D}{\delta} (C_b - C_s) = -F_s \quad \dots \dots \dots (16)$$

$$\frac{D}{\delta} (C_b - C_s) = K_r C_s \quad \dots \dots \dots (17)$$

$$C_s = \frac{K_d}{K_d + K_r} C_b = \frac{1}{1 + (K_r / K_d)} C_b \quad \dots \dots \dots (18)$$

$$K_d = \frac{D}{\delta} \quad \dots \dots \dots (19)$$

ここで、 K_r は完全基質浸透と不完全基質浸透についてそれぞれ式(13), (15)で与えられる. 式(18)を式(2)に代入して C_s を消去すると、回転円板脱窒法の定常動力学式は式(20)のようになる.

$$V_r = -\frac{1}{1/K_d + 1/K_r} C_b = -K^* C_b \quad \dots \dots \dots (20)$$

$$K^* = (1/K_d + 1/K_r)^{-1} \quad \dots \dots \dots (21)$$

また、完全基質浸透と不完全基質浸透について K_d と K_r の大小関係から次のような単純化した諸式を得る.

(i) 完全基質浸透で $K_d \ll K_r$ の場合(拡散層内の

拡散律速, $C_s/C_b \approx 0$)

$$V_r = -K_d C_b = -\frac{D}{\delta} C_b \quad (C_b \text{に関する1次反応}) \quad \dots \dots \dots (22)$$

(ii) 完全基質浸透で $K_d \gg K_r$ の場合(生物膜内の反応律速, $C_s/C_b \approx 1$)

$$V_r = -K_r C_b = -rZ_0 X \quad (0 \text{次反応}) \quad \dots \dots \dots (23)$$

(iii) 不完全基質浸透で $K_d \ll K_r$ の場合(拡散層内の拡散律速, $C_s/C_b \approx 0$)

$$V_r = -K_d C_b = -\frac{D}{\delta} C_b \quad (C_b \text{に関する1次反応}) \quad \dots \dots \dots (24)$$

(iv) 不完全基質浸透で $K_d \gg K_r$ の場合(生物膜内の反応・拡散律速, $C_s/C_b \approx 1$)

$$V_r = -K_r C_b = -(2D_e r X)^{1/2} C_b^{1/2}$$

$$(C_b \text{に関する1/2次反応}) \quad \dots \dots \dots (25)$$

一般に K_d と K_r はオーダー的に等しいと考えられ、式(22)～(25)の適用範囲は限定される.

式(20)を用いると定常状態における完全混合型脱窒槽の基質残存率は、

$$\frac{C_s}{C_i} = \frac{1}{1 + K^*(A/Q)} \quad \dots \dots \dots (26)$$

上式は完全混合型脱窒槽の脱窒率は槽容量とは直接的に関係せず、 K^* と A/Q によって決まることを意味する. 完全混合槽では $C_b = C_s$ であり、円板の寸法と回転速度、水温等の操作条件、すなわち、 δ , D , r , X が一定となる場合には、式(18), (21)より次の関係を得る.

$$K^* = f(C_s) = g(C_s) \quad \dots \dots \dots (27)$$

すなわち、 K^* は C_s のみの関数である.

3. 実験

前章で誘導した動力学式の検証および必要な諸定数の決定のために、硝酸性窒素を水素受容体、メタノールを水素供与体として完全混合型装置による実験を行った. 先に報告¹³したように回転円板脱窒法では C_m/N 比を 2.5 以上とすれば水素受容体が反応を律速する条件が得られるので、実験はすべて C_m/N 比を 3 として行った. 槽内水温は 20°C とし、槽内の pH は一部を除き 7.5～8.5 であり、これは回転円板脱窒法の最適 pH 領域である¹⁴. 硝酸性窒素と亜硝酸性窒素の測定はそれぞれブルシン法と GR 法により行った.

(1) 実験装置と実験方法

実験装置は図-3, 4 のような形状および諸元の異なる 2 装置である. 装置 1 は水封密閉の実容量 2.1 l の角型槽に図中の諸元の耐水ベニヤ製円板を 13 枚設けたものであり、円板回転速度は 7 rpm (周辺速度 2.2 m/min),

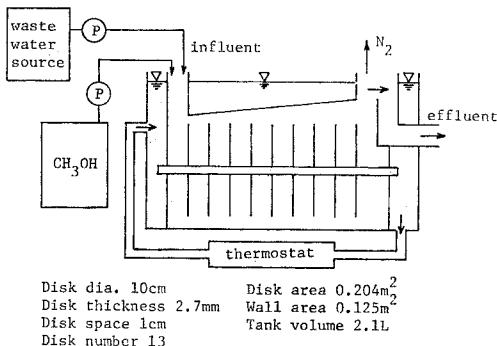


図-3 実験装置(1)

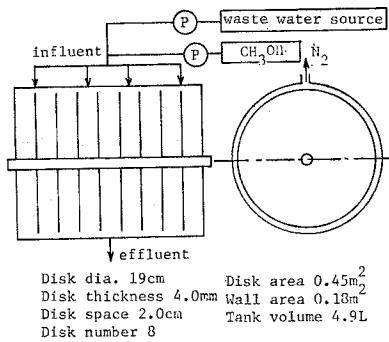


図-4 実験装置(2)

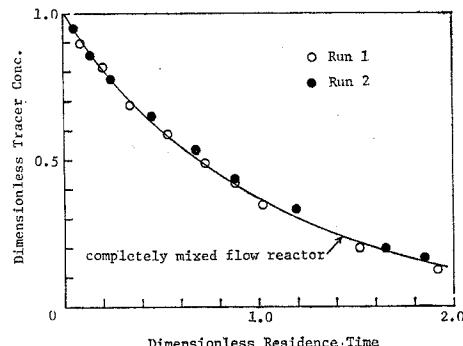


図-5 実験装置の残余濃度曲線

流向は中心軸方向である。装置2は実容量4.9lの内径19.5cm、長さ19cmの塩化ビニル管内に図中の諸元の耐水ペニヤ製円板を8枚設けたものであり、軸ごと円板群をとりはずすことができる。円板回転速度は15rpm(周辺速度9.0m/分)であり、流向は中心軸に垂直である。生物膜付着前にNaClをトレーサーとして求めた両装置の残余濃度曲線が図-5であり、完全混合単一槽の残余濃度曲線と一致した。

装置1による実験(以後、Run 1という)では、回転円板法三次処理水(硝酸性窒素を約30mg/l含む)とメタノールを供給し円板上および槽内壁面上に脱窒菌を付着生育させた後、水道水に所定濃度の硝酸カリウムを

添加した原水を供給し水質測定を行った。なお、脱窒菌に必要な微量元素を与えるために、夜間には回転円板三次処理水に所定濃度の硝酸カリウムを添加した原水を供給した。装置2による実験(以後、Run 2という)では、水道水に硝酸性窒素源としての硝酸カリウムと微量元素源としての地下水二次処理水を水道水の約1/10容積添加した原水を用いた。Run 2では所定の実験を終了した時点で、円板群を軸ごととりはずし生物膜厚と生物膜固体濃度を測定した。生物膜はゼラチン状で灰白色を呈し、円板面と壁面にほぼ一様な厚さで付着していた。付着生物膜厚は硝酸濃度、水量負荷等によって変わるが大略1~3mmであり、生物膜乾燥重量を生物膜体積で除して求めた生物膜固体濃度はすべての実験において約5×10⁴mg/lであった。

(2) 実験結果

Run 1の結果を表-2に示す。Run 1では水量負荷を約4.5×10⁻³m³/m²·hrに固定しC_iを12~125mg/lの範囲で変えてC_eとK*の関係を求めることが主目的とした。表-3と図-6にRun 2の実験結果を示す。Run 2ではC_iを約25mg/l(24.2~29.4mg/l)と約50mg/l(45.2~59.5mg/l)とし、それぞれについて水量負荷を2.5×10⁻³~2.5×10⁻²m³/m²·hrの範囲で変えてC_eとK*の関係を求めることが主目的とした。Run 1では水量負荷が小さいため亜硝酸性窒素はほとんど検出されなかったが、Run 2では水量負荷の増加に伴い徐々に亜硝酸性窒素が増加した。そこで、Run 2ではC_eを硝酸性窒素と亜硝酸性窒素の和とした。また、Run 2では微量元素源としての二次処理水の添加割合に多少の差があった等の原因によりC_iを正確に25, 50mg/lとしえなかつたため、図-6中の実線によってC_iの変動

表-2 Run 1 の実験データ

No.	水温(°C)	pH	A/Q(hr/m)	C _i (mg/l)	C _e (mg/l)	脱窒率(%)	K*(m/hr)	備考
1	20	7.7	224	12.7	0.9	93.0	0.059	
2	20	8.2	224	24.2	2.2	90.9	0.044	
3	20	8.2	224	22.7	2.2	90.3	0.042	
4	20	8.3	224	25.7	2.8	89.9	0.036	○
5	20	8.6	224	40.9	6.0	85.3	0.031	
6	20	8.2	224	42.7	6.2	85.5	0.026	
7	20	8.6	224	44.5	6.7	84.9	0.026	
8	20	8.1	224	45.9	6.7	85.4	0.026	
9	20	8.6	224	77.1	15.4	80.0	0.018	
10	20	8.9	224	72.3	12.1	83.3	0.022	●
11	20	9.0	224	81.8	14.7	82.0	0.021	
12	20	9.0	224	103.0	22.9	77.8	0.016	
13	20	9.1	224	125.0	27.9	77.8	0.016	
14	20	9.3	224	98.0	21.9	77.8	0.016	○
15	20	9.0	400	136.0	19.5	85.7	0.015	○
16	20	8.5	400	77.0	9.0	88.3	0.019	●
17	20	8.2	154	21.8	3.2	85.3	0.038	○

(注) Aは円板表面積(0.204m²)と内壁面積(0.125m²)の和である。

表-3 Run 2 の実験データ

No.	水温 (°C)	pH	A/Q (hr/m)	C _i (mg/l)	C _e (mg/l)	脱窒率 (%)	K* (m/hr)
1	19	8.2	115.0	28.0	7.1	74.6	0.026
2	20	7.6	77.5	24.7	8.2	66.8	0.026
3	20	8.2	63.7	24.2	10.5	56.6	0.020
4	21	7.7	40.3	24.5	11.9	51.4	0.026
5	21	7.7	40.3	26.0	13.4	48.5	0.023
6	20	7.8	417.0	24.9	0.8	96.8	0.072
7	20	7.9	196.0	26.9	2.6	90.3	0.048
8	20	7.9	196.0	29.4	3.5	88.1	0.038
9	21	7.9	53.8	47.3	25.5	46.1	0.016
10	21	7.9	53.8	45.2	28.2	37.6	0.011
11	19	8.5	189.0	52.0	9.3	82.1	0.024
12	20	8.6	250.0	48.3	5.4	88.8	0.032
13	21	8.6	435.0	50.8	2.8	94.5	0.039
14	21	8.2	125.0	59.5	21.1	64.5	0.015
15	21	8.4	141.0	51.6	13.2	74.4	0.021
16	21	8.6	141.0	45.5	11.4	74.9	0.021
17	20	7.7	75.2	52.5	26.7	49.1	0.013
18	20	7.8	81.3	56.9	30.0	47.3	0.011

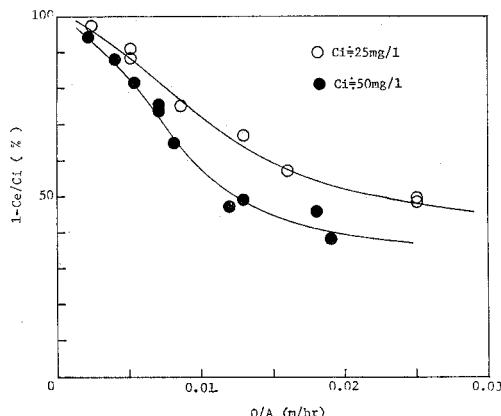
(注) A は円板表面積 (0.45 m^2) と内壁面積 (0.18 m^2) の和である。

図-6 Run 2 における水量負荷と脱窒率の関係

をならしデータ解析には実線から得られる数値を用いた。

4. 考 察

ここでは表-2 および表-3 と図-6 に示したデータにより動力学式を検証し、理論に従って K_d , K_r などの必要な諸定数を算定する。なお、解析に当たっては円板表面積と槽壁面積の和を生物膜表面積とした。装置1, 2 ではそれぞれ生物膜表面積の約 37%, 28% が槽壁面積である。

(1) 動力学式の検証

図-7 は表-2 中の C_e が約 3 mg/l (○印), 約 10 mg/l (●印), 約 20 mg/l (◎印) のデータを用いて C_i/C_e と A/Q の関係をプロットしたものである。いずれも $A/Q=0$ で $C_i/C_e=1$ を通る直線となった。また、

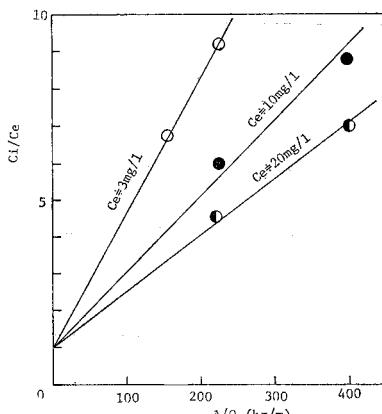


図-7 動力学式の検証図 (Run 1)

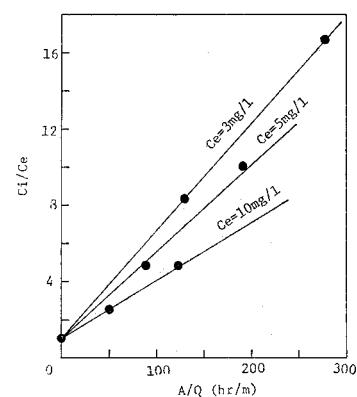


図-8 動力学式の検証図 (Run 2)

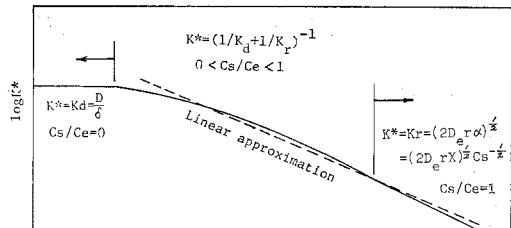
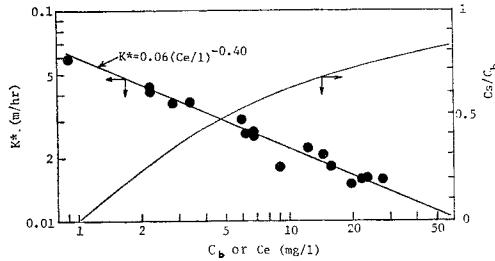
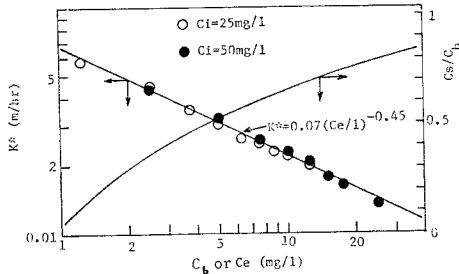
図-9 K^* と C_b の関係 (定性的傾向)

図-6 の実線から C_i が 25, 50 mg/l において C_e が 3, 5, 10 mg/l となる A/Q を求め、 C_i/C_e と A/Q の関係に書き換えると図-8を得る。両図より、式(26)すなわち、式(20)の妥当性が証明される。直線の勾配が K^* であり、 K^* は C_e の増加に伴い減少する。また、4. (2) で述べるように Run 1, 2 ともすべて不完全基質浸透であったと考えられるので、 C_b と K^* の関係を両対数紙上で示すと図-9 のようになる。図-9において拡散層内の拡散律速領域 ($C_s/C_b=0$) では、 $K^*=K_d=D/\delta$ 、となり横軸に水平な直線が得られ、生物膜内拡散・反応律速領域 ($C_s/C_b=1$) では、

$$K^*=K_r=(2D_e r X)^{1/2} C_s^{-1/2}=(2D_e r X)^{1/2} C_e^{-1/2}$$

図-10 K^* と C_b or C_e の関係 (Run 1)図-11 K^* と C_b or C_e の関係 (Run 2)

となり勾配が $-1/2$ の直線が得られる。中間領域 ($0 < C_s/C_b < 1$) では K_d と K_r がオーダー的に等しくなり図中の曲線関係が存在すると推察される。本文では取り扱いを簡単化するために図中の破線のような直線近似により C_e と K^* の関係を整理可能かどうかを検討する。

図-10, 11 は表-2 および図-6 から得られる C_e と K^* の両対数プロットである。いずれも C_e と K^* は両対数紙上で近似的直線関係があり、Run 1, 2 について中間領域における近似式として式 (28), (29) を得る。

$$K^* = 0.06(C_e/1)^{-0.40} \quad \dots \dots \dots (28)$$

$$K^* = 0.07(C_e/1)^{-0.45} \quad \dots \dots \dots (29)$$

上式において C_e を単位濃度 $1(\text{mg/l})$ で除し次元上矛盾のないようにしたが、数値としては 1 は無関係である。

さらに、拡散項 (K_d) と拡散層厚 (δ) は 図-10, 11 より次のようにして推算可能である。 C_e が 1 mg/l 付近では、 $K_d \ll K_r$ となり、 $K^* \approx K_d = D/\delta$ とみなしうるので Run 1, 2 において K^* と δ はそれぞれ次のようになる。

Run 1 における K_d と δ

$$K_d = D/\delta \approx 6 \times 10^{-2} \text{ m/hr}$$

$$\delta = D/K_d \approx 6 \times 10^{-6}/6 \times 10^{-2} \approx 100 \mu$$

Run 2 における K_d と δ

$$K_d = D/\delta \approx 7 \times 10^{-2} \text{ m hr}$$

$$\delta = D/\delta \approx 6 \times 10^{-6}/7 \times 10^{-2} \approx 85 \mu$$

ここで、硝酸イオン (NO_3^-) の水中での拡散係数 D は水温 20°C で $6 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{hr}$ とした。

(2) 反応項 (K_r) の評価

硝酸イオンの生物膜内での拡散係数 D_e 、脱窒反応速度係数 r および脱窒菌濃度 X がわかれば、式 (7) より基質侵入深さ Z^* が求められる。 D_e については Williamson と McCarty²⁴⁾、栗谷と山崎²⁵⁾らが水中での拡散係数とほぼ等しいと報告しているので、 $D_e = 6 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{hr}$ とし、 r については Moore と Schroeder²⁶⁾の求めた値 ($0.013 \text{ l}/\text{hr}$) を採用する。Moore らの r は脱窒菌濃度を MLSS 濃度に換算して求められたと考えられる(文献に詳細な記述がない)ので、 X として 3.(1) で述べた値 ($5 \times 10^4 \text{ mg/l}$) を用いる。以上の諸定数を式 (7) に代入して $C_s = 20 \text{ mg/l}$ における Z^* を求めると、

$$Z^* = \left(\frac{2 D_e C_s}{r X} \right)^{1/2} = \left(\frac{2 \times 6 \times 10^{-6} \times 20}{0.013 \times 5 \times 10^4} \right)^{1/2} \approx 600 \mu$$

本実験における生物膜厚は $1 \sim 3 \text{ mm}$ ($1000 \sim 3000 \mu$) であり、すべての実験は不完全基質浸透で行われたと考えてよい。不完全基質浸透では式 (15) より $\log K_r$ と $\log C_s$ は勾配が $-1/2$ の直線関係を有し、 $C_s = 1(\text{mg/l})$ における K_r の値が $(2 D_e r X)^{1/2}$ となる。

表-4, 5 は K^* を式 (28), (29) で表わした場合の Run 1, 2 における C_e , K^* , K_r , K_d , C_s の関係である。 C_e と K_r および C_s と K_r の関係を両対数紙上にプロットすると図-12 となり、勾配が $-1/2$ の直線関係が得られる。すなわち、

$$K_r = (2 D_e r X)^{1/2} = (2 D_e r X)^{1/2} C_s^{-1/2} \approx 0.1 C_s^{-1/2} \dots \dots \dots (30)$$

表-4 Run 1 のデータによる K_r と C_s の計算

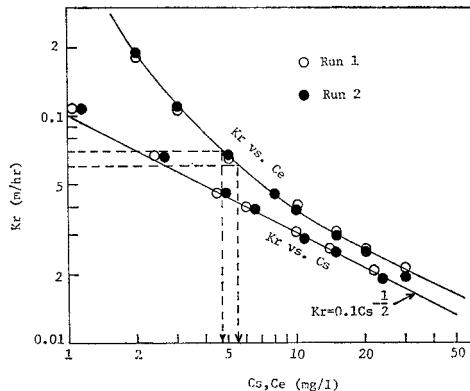
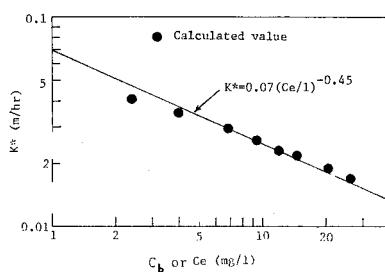
C_e	K^*	$1/K_r = 1/K^* - 1/K_d$	K_r	$C_s = (1 + K_r/K_d)^{-1} \cdot C_e$	$1/K_d = \delta/D$
2	0.045	5.52	0.180	0.5	16.7
3	0.039	9.16	0.110	1.1	16.7
5	0.032	15.02	0.067	2.4	16.7
8	0.026	21.59	0.046	4.5	16.7
10	0.024	25.16	0.040	6.0	16.7
15	0.020	32.54	0.031	9.9	16.7
20	0.018	38.54	0.026	14.0	16.7
30	0.015	48.27	0.021	22.3	16.7

$$K^* = 0.06(C_e/1)^{-0.40}$$

表-5 Run 2 のデータによる K_r と C_s の計算

C_e	K^*	$1/K_r = 1/K^* - 1/K_d$	K_r	$C_s = (1 + K_r/K_d)^{-1} \cdot C_e$	$1/K_d = \delta/D$
2	0.051	5.31	0.190	0.5	14.3
3	0.043	9.12	0.110	1.2	14.3
5	0.034	15.11	0.066	2.6	14.3
8	0.027	22.12	0.045	4.9	14.3
10	0.025	25.96	0.039	6.5	14.3
15	0.021	34.02	0.029	10.6	14.3
20	0.018	40.70	0.025	14.8	14.3
30	0.015	51.71	0.019	23.5	14.3

$$K^* = 0.07(C_e/1)^{-0.45}$$

図-12 K_r と C_e, C_s の関係図-13 K^* の計算値と近似値との比較表-6 K^* の計算値と近似値の比較

C_s	$K_r = 0.1 C_s^{-0.5}$	$1/K_r$	$1/K_d$	K_1^*	K_2^*	C_e	K_2^*/K_1^*
1	0.100	10.0	14.3	0.041	0.047	2.4	1.14
2	0.071	14.1	14.3	0.035	0.038	4.0	1.08
4	0.050	20.0	14.3	0.029	0.029	6.8	1.00
6	0.040	24.5	14.3	0.026	0.026	9.4	1.00
8	0.035	28.6	14.3	0.023	0.023	12.0	1.00
10	0.032	31.3	14.3	0.022	0.021	14.6	0.95
15	0.026	38.5	14.3	0.019	0.018	20.6	0.95
20	0.022	45.5	14.3	0.017	0.016	26.2	0.94

$$K_1^* = (1/K_d + 1/K_r)^{-1}, \quad K_2^* = 0.07(C_e/1)^{-0.45}, \quad C_e = (1+K_r/K_d)C_s$$

$$X = 0.01/2 D_e r \quad \dots \dots \dots \quad (31)$$

上式より D_e と r が一定ならば X は C_s に無関係に一定値となることがわかる。 $D_e = 6 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{hr}$, $r = 0.0131/\text{hr}$ を式(31)に代入して X を計算すると約 $6 \times 10^4 \text{ mg/l}$ となり実測した値とほぼ等しくなった。以上より理論の妥当性と実験の正確さが証明された。

次に、式(30)によって求めた K_r と先に推定した K_d から K^* と C_e を計算し、式(29)から得られる値と比較する。表-6、図-13 が計算結果であり、計算値 K_1^* と式(29)による近似値 K_2^* はよく一致している。上に凸の曲線を直線近似したため、 C_e が小さいところでは K_2^* が K_1^* より若干大きく、 C_e が大きいところでは K_2^* が K_1^* よりわずかに小さくなっているが、实用上は直線近似により十分な精度が得られる。

また、 K_d と K_r が等しくなる C_e (これを臨界濃度

と称する)を図-12 の点線のようにして求めると、Run 1 では 5.4 mg/l , Run 2 では 4.6 mg/l となる。

(3) 脱窒槽の多段操作

一般に完全混合型反応槽は多段操作によって、所定の転換率(脱窒反応では脱窒率)を得るに要する反応槽容積(回転円板脱窒法では円板表面積)を減少させることができる。回転円板脱窒槽の完全混合槽直列モデルでは、第 $(j-1)$ 段と第 j 段の流出基質濃度 C_{j-1} , C_j の間で次式が成立する。

$$\frac{C_{j-1}}{C_j} = 1 + K_j * \frac{A_j}{Q} \quad \dots \dots \dots \quad (32)$$

また、定常状態では式(33)が成立する。

$$-V_r = \frac{Q}{A} (C_i - C_e) = K^* C_e \quad \dots \dots \dots \quad (33)$$

ゆえに、Run 1 のデータから第 j 段について次式を得る。

$$-V_{r,j} = \frac{Q}{A_j} (C_{j-1} - C_j) = K_j * C_j = 0.06 C_j^{0.6} \quad \dots \dots \dots \quad (34)$$

図-14 が式(34)で与えられる $-V_r$ と C_j の関係であり図中の●印は実測値である。図中の斜線の勾配は Q/A_j であり、

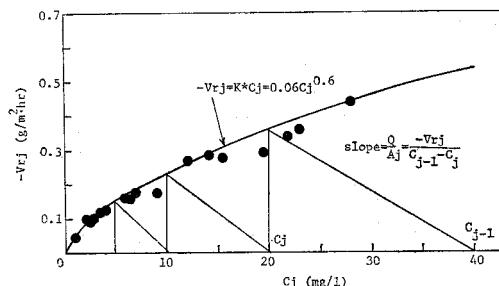


図-14 完全混合脱窒槽の多段操作図

表-7 脱窒槽の多段操作

段数	操 作 方 法	$\sum_{j=1}^i A_j (\text{m}^2)$	$\sum A_j / A_i$
1	$80 \rightarrow 5$ ($C_i = C_e$)	$476 Q$	1.00
2	$80 \rightarrow 10 \rightarrow 5$ (C_i) ($C_2 = C_e$)	$325 Q$	0.68
2	$80 \rightarrow 40 \rightarrow 5$ (C_i) (C_2) (C_e)	$295 Q$	0.62
2	$80 \rightarrow 20 \rightarrow 5$ (C_i) (C_2) (C_e)	$261 Q$	0.55
3	$80 \rightarrow 20 \rightarrow 10 \rightarrow 5$ (C_i) (C_1) (C_2) (C_e)	$231 Q$	0.48
3	$80 \rightarrow 20 \rightarrow 10 \rightarrow 5$ (C_i) (C_1) (C_2) ($C_3 = C_e$)	$226 Q$	0.47
3	$80 \rightarrow 40 \rightarrow 10 \rightarrow 5$ (C_i) (C_1) (C_2) ($C_3 = C_e$)	$223 Q$	0.47
4	$80 \rightarrow 40 \rightarrow 20 \rightarrow 10 \rightarrow 5$ (C_i) (C_1) (C_2) (C_3) ($C_4 = C_e$)	$188 Q$	0.39

$$\frac{Q}{A_j} = \frac{-V_{rj}}{C_{j-1} - C_j} = \frac{0.06 C_j^{0.6}}{C_{j-1} - C_j} \quad \dots\dots\dots(35)$$

したがって、図解法によりただちに多段操作で必要な円板表面積を算出できる。

図-14 により硝酸性窒素濃度を 80 mg/l から 5 mg/l まで減少させる場合の多段操作効果を計算したのが表-7 である。多段操作は流入硝酸性窒素濃度が高いほど有効である。

5. 結 論

本論文では回転円板脱窒法の定常動力学モデルを提示し、実験によるモデルの検証と動力学式に含まれる諸定数の定量化を行った。本研究の結論は次のように要約される。

(1) 全システムを液本体、生物膜および生物膜と液本体の間の拡散層に分割して拡散層内の分子拡散過程と生物膜内の分子拡散・脱窒反応過程を考慮することにより、定常状態における単位円板面積（生物膜表面積）当たりの脱窒速度式として次式を得た。

$$V_r = -(1/K_d + 1/K_r)^{-1} C_b = -K^* C_b$$

(2) 定常状態における完全混合型回転円板脱窒槽では、流入、流出基質濃度の間に次式が成立し脱窒効率は槽容量と直接的には無関係である。

$$\frac{C_i}{C_e} = 1 + K^* \frac{A}{Q}$$

(3) 円板の寸法や回転速度等の操作条件と水温等の環境条件が決まれば、総括脱窒速度係数 K^* は平衡基質濃度 C_e のみの関数となる。拡散層内の分子拡散律速領域、生物膜内の分子拡散・脱窒反応律速領域では K^* はそれぞれ K_d , K_r に等しくなるが、その中間領域においては近似的に次式で算出できる。

$$K^* = K_d (C_e/1)^{-r}$$

本研究では r として 0.4, 0.45 を得た。

(4) 拡散項 K_d は基質の分子拡散係数を拡散層厚で除したものであり、主として円板の寸法や回転速度および水温によって決定される。一方、反応項 K_r は通常の操作条件では基質が生物膜最深部にまで達しない不完全基質浸透であることから、生物膜内での基質の分子拡散係数 D_e 、脱窒菌濃度 X 、脱窒反応速度係数 r および生物膜表面の基質濃度 C_s の関数であり次式で定義される。

$$K_r = (2 D_e r X)^{1/2} C_s^{-1/2}$$

(5) 完全混合型回転円板脱窒槽の多段操作により所定の脱窒率を得るに要する円板面積を減少させることができる。多段操作の基本式を第 j 段について示すと次式となる。

$$\frac{Q}{A_j} = \frac{-V_{rj}}{C_{j-1} - C_j} = \frac{K_j^* C_j}{C_{j-1} - C_j}$$

本研究では誘導した動力学モデルの妥当性を一応検証できたと考えているが、生物膜内の情報 (D_e , r , X) の定量化と拡散層厚のより正確な測定が今後の課題である。

終りに、本研究の遂行にご協力いただいた増田純雄助手はじめ各位に衷心より謝意を表する次第である。

記 号

- A : 円板表面積 (m²)
- C : 生物膜内の基質濃度 (mg/l)
- \bar{C}_b : 液本体の基質濃度 (mg/l)
- C_b : 液本体の定常基質濃度 (mg/l)
- C_e : 流出水の基質濃度 (mg/l)
- C_i : 流入水の基質濃度 (mg/l)
- C_m : 流入水のメタノール濃度 (mg/l)
- \bar{C}_s : 生物膜表面の基質濃度 (mg/l)
- C_s : 生物膜表面の定常基質濃度 (mg/l)
- D : 水中での基質の分子拡散係数 (m²/hr)
- D_e : 生物膜内での基質の分子拡散係数 (m²/hr)
- K_d : 物質移動係数 (m/hr)
- K_d : 拡散項 (D/δ) (m/hr)
- K_r : 反応項 ($r a Z_0$, $(2 D_e r a)^{1/2}$) (m/hr)
- K^* : 総括脱窒速度係数 (m/hr)
- N : 流入水の水素受容体濃度 (mg/l)
- F_s : 生物膜表面における Flux (g/m²·hr)
- Q : 流入水量 (m³/hr)
- R : 生物膜内での脱窒速度 (g/m³·hr)
- r : 脱窒速度係数 (1/hr)
- t : 時間 (hr)
- V : 生物膜体積を除いた接触槽実容量 (m³)
- V_r : 単位生物膜表面積当たりの定常脱窒速度 (g/m²·hr)
- X : 生物膜内の脱窒菌濃度 (mg/l)
- Z : 生物膜の深さ方向への距離 (m)
- Z_0 : 生物膜厚 (m)
- Z^* : 基質侵入深さ (m)
- α : パラメーター (X/C_s) (—)
- δ : 拡散層厚 (m)
- r : 定数 (—)

参 考 文 献

- 1) H. Hartmann : Untersuchungen über die Biologische Reinigung von Abwasser mit Hilf von Tauchtropf Körpern, Stuttgart Berichte zur Siedlungs wasserwirtschaft, 1960.9.

- 2) F. Pöpel : Leistung, Berechnung und Gestaltung von Tauchtropf Körperanlagen, Stuttgart Berichte zur Siedlungs wasserwirtschaft, 1964.11.
- 3) 石黒政儀 : 回転円板接触体による汚水処理法, 下水道協会誌, Vol. 10, No. 111, pp. 18~29, 1972.8.
- 4) 石黒政儀・渡辺義公・増田純雄・山口幸一 : 回転円板法による下水高度処理に関する研究(Ⅰ), 下水道協会誌, Vol. 12, No. 129, pp. 46~54, 1975.2.
- 5) 石黒政儀・渡辺義公・増田純雄 : 回転円板法による下水高度処理に関する研究(Ⅱ), 下水道協会誌, Vol. 14, No. 152, pp. 32~41, 1977.1.
- 6) 石黒政儀・渡辺義公・増田純雄 : 回転円板法による下水高度処理に関する研究(Ⅲ), 下水道協会誌, Vol. 14, No. 161, pp. 53~59, 1977.10.
- 7) R.L.Antonie : Fixed Biological Surface-Wastewater Treatment, CRC Press, 1976.
- 8) U. Bretscher : Die Phosphat-Elimination mit Tauchtropfkörpern, GWF, Das Gas-und Wasserfach, 110, 20, pp. 538~542, 1969.
- 9) 石黒政儀・渡辺義公・福元一政 : 回転円板法によるリンの除去, 土木学会西部支部研究発表会概要集, pp. 159~160, 1977.2.
- 10) Oliver Has et al. : Rotating Biological Reactors Remove Nutrients, Water and Sewage Works, Vol. 122, No. 10, No. 11, pp. 70~73, pp. 48~50, Oct., Nov. 1975.
- 11) C. Lue-Hing and B.M. Sawyer : Biological Nitrification of Sludge Supernatant by Rotating Disks, J. Water Pollution Control Federation, Vol. 48, No. 1, pp. 25~46 Jan. 1976.
- 12) 石黒政儀・渡辺義公・増田純雄 : 回転円板法による下水高度処理に関する研究, 土木学会第11回衛生工学研究討論会論文集, pp. 109~104, 1975.1.
- 13) 渡辺義公・石黒政儀・増田純雄 : 回転円板法の浄化モデルに関する基礎的考察, 土木学会第13回衛生工学研究討論会論文集, pp. 101~106, 1977.1.
- 14) T.R. Davies and W.A. Pretorius : Denitrification with a Bacterial Disc Unit, Water Research, Vol. 9, No. 10, pp. 459~463, Oct., 1975.
- 15) 石黒政儀・増田純雄・財津靖史・是沢毅 : 回転円板法による下水三次処理に関する研究(第8報), 土木学会西部支部研究発表会概要集, pp. 155~156, 1976.2.
- 16) 石黒政儀・増田純雄・西留清 : 回転円板法による廃水の三次処理, 土木学会第31回年次学術講演会概要集, 第II部, pp. 493~494, 1976.10.
- 17) 石黒政儀・渡辺義公・宮内章夫 : 回転円板法による脱窒に関する研究(第2報), 土木学会西部支部研究発表会概要集, pp. 153~154, 1977.2.
- 18) 石黒政儀・渡辺義公・西留清・森山克美 : 回転円板法による脱窒に関する研究(第3報), 土木学会西部支部研究発表会概要集, pp. 155~156, 1977.2.
- 19) B.H. Kornegay, J.F. Andrews : Kinetics Fixed Film Biological Reactor, J. Water Pollution Control Federation, Vol. 40, No. 11, part 2, pp. R 460~R 468, Nov. 1968.
- 20) E.I. LaMotta : Internal Diffusion and Reaction in Biological Films, Environmental Science & Technology, Vol. 10, No. 8, pp. 765~769, Aug. 1976.
- 21) E.J. LaMotta : External Mass Transfer in a Biological Film Reactor, Biotechnology and Bioengineering, Vol. 18, pp. 1359~1370, 1976.
- 22) H.R. Bungay, W.J. Whalen and W.M. Saunders : Microprobe Techniques for Determining Diffusivity and Respiration Rates in Microbial Slime Systems, Biotechnology and Bioengineering, Vol. 11, 765, 1969.
- 23) K. Williamson and P.L. McCarty : A Model of Substrate Utilization by Bacterial Films, J. Water Pollution Control Federation, Vol. 18, No. 1, pp. 9~24, Jan. 1976.
- 24) K. Williamson and P.L. McCarty : Verification Study of the Biofilm Model for Bacterial Substrate Utilization, J. Water Pollution Control Federation, Vol. 48, No. 2, pp. 281~296, Feb. 1976.
- 25) 粟谷陽一・山崎惟義 : 固定生物層への酸素の供給に関する基礎的研究, 下水道協会誌, Vol. 14, No. 159, pp. 21~26, 1977.8.
- 26) S.F. Moore and E.D. Schroeder : The Effect of Nitrate Feed Rate on Denitrification, Water Research, Vol. 5, No. 7, pp. 445~452, July 1971.

(1977.5.21・受付)