

循環式硝化脱窒変法による生物学的脱リン

BIOLOGICAL PHOSPHORUS REMOVAL BY MEANS OF THE MODIFIED NITRIFIED LIQUOR RECYCLE PROCESS

西 村 孝*
By Takashi NISHIMURA

1. 緒 論

現在、活性汚泥法は二次処理施設として広く普及しているが、従来の活性汚泥法では除去 BOD 量に対応する以上の窒素、リンはとれず、これらの栄養物質は、特に放流先が閉鎖水域では富栄養化を引き起こす場合もある。したがって、富栄養化を防止するためには、さらに、付加的に窒素やリンを除去する必要がある。

ところで、窒素やリンの除去方法は現在、鋭意研究されているけれども、これまでは主として、二次処理のあとに別に三次処理工程を設けて、窒素やリンを除去しようという技術が検討されてきた。しかし、最近、し尿処理については二次処理工程で BOD と窒素をとる循環式硝化脱窒法が普及し、効果をあげ始めている。一方、リン除去法についていえば、化学的な方法が主体であり、当初より金属塩や石灰を使った凝集沈殿法が研究されてきた。最近では、もっと効率のよい接触脱リン法も研究されている。凝集沈殿法についていえば、生成される凝集汚泥は活性汚泥法の余剰汚泥に比べても脱水性が悪く、その発生量も多く、汚泥処理の面で多くの問題点を残している。接触脱リン法は、現在開発途上にあり、未知の部分が多い。報告されている研究内容¹⁾からみると、汚泥発生量は少ないが、脱炭酸処理などの前処理を必要とし、それに要する薬品代も決して少なくはない。

このような化学的リン除去法に対して、最近、生物学的なリン除去法が検討され始めた。この技術の発端は 1965 年に Levin と Shapiro²⁾ によって発表された活性汚泥による“リンの過剰摂取”という概念である。その後、いくつかの活性汚泥処理施設で、BOD 対応量以上のリンが除去されるという報告^{3)~5)}がなされたものの、その現象が化学的なものか、生物学的なものかははっきりしなかった。しかしながら、1972 年に Levin⁶⁾ が Phostrip

System を開発して、生物的作用によってリン除去が可能であるということを立証した。この Phostrip System は生物的作用を利用してはいるけれども、生物作用単独でリン除去を行っているのではなく、生物作用と化学作用を組み合わせるリン除去を図っている。すなわち、この技術では返送汚泥の工程で、返送汚泥を嫌氣的にすることによって、内性呼吸でリンを吐き出し、そのリンを化学的に凝集する。そして吐き出した汚泥を曝気槽に導くことによって、リンを再吸収させている。一方、これとは独立に、1975 年には南ア連邦の Barnard⁷⁾ が循環式硝化脱窒法において、時としてリン除去が非常によく行われるということを観察した。この技術は化学的なリン除去工程は含まず、純然たる生物的作用によってリンが除去されている。すなわち、非常に高濃度のリンを含む余剰汚泥が発生することによって、リン除去が行われる。この循環式硝化脱窒法のリン除去現象というのは、流入する BOD に比べて、第 1 脱窒素槽に硝化槽から戻される硝酸の量が少なくなるときに生じるという観察結果により、循環式硝化脱窒法で第 1 脱窒素槽の前に、酸素も硝酸も存在しない嫌気性槽を設けると、リンがよく除去されるのではないだろうかとの示唆がなされた。実際、この循環式硝化脱窒変法は McLaren⁸⁾ らによって実験され、きわめて優れた成績を収めた。実装置においても、Johannesburg の Olifantsvlei, Alexandra などの処理場において、いくつかの実験的運転⁹⁾がなされ、リン除去の効果を確認した。その後、この技術は米国の Palmetto 市で Stensel¹⁰⁾ らによっても試験されたが、完全ではないにしても、それなりの効果があることが確認された。

以上のように生物学的脱リン法は、現在開発段階にある新しい技術であり、その実用性を議論するためには数多くのデータを蓄積する必要がある。著者は循環式硝化脱窒法の実験施設において、連続処理実験を行っている過程でリンがよく除去されることを観察した。さらに、

* 正会員 工修 日本大学助教授 工学部土木工学科

この循環式硝化脱窒法の原水流入端を嫌気性槽に改造し、循環式硝化脱窒変法として運転したところ、高いリン除去率が安定して得られた。また、この連続実験施設で得られた活性汚泥を用いて回

分実験を行い、この汚泥のリン除去特性を調べた。本報告では、これらの実験データを紹介し、循環式硝化脱窒変法の処理特性を検討する。

2. 実験方法

連続処理実験に用いた実験施設の反応槽は、0.35 m³ のもの 10 室が連結された矩形槽（幅 1.2 m × 長さ 2.4 m × 有効水深 1.2 m）であり、各室は硝化、脱窒の双方に使用できる。各室間は気相部および液相部で径 80 mm 孔で連通している。脱窒素槽は水封され、気密構造になっている。脱窒素槽の攪拌は発生ガス（N₂ および CO₂）を利用したガス攪拌とし、余剰ガスは水封管を通して外部へ放出した。

沈殿池は円形で汚泥かき寄せ機を有し、水容積は 1.47 m³（直径 1.2 m × 有効水深 1.3 m）である。

この実験施設は郡山市終末処理場の用地内に設置されている。実験原水は最初沈殿池流出柵から水中ポンプにより原水中継槽に吸い上げられ、ここから原水供給ポンプで定量的に実験装置に送られた。

標準的な循環式硝化脱窒法の処理実験では、図-1 に示されるように、最初の 3 反応室（1.05 m³）を第 1 脱窒素槽、次の 4 反応室（1.40 m³）を硝化槽にし、さらに後続の 2 反応室（0.7 m³）を第 2 脱窒素槽、そして最後の 1 反応室（0.35 m³）を再曝気槽とした。循環液は返送汚泥と原水の流入する第 1 脱窒素槽の第 1 室に返送した。

リン除去効果を高める循環式硝化脱窒変法では、図-

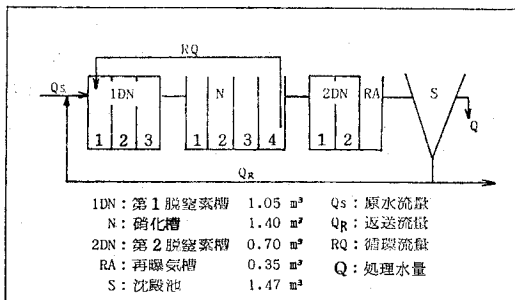


図-1 実験フロー

表-1 運転条件（総括）

Run	運転期間	Q _S (m ³ /d)	Q _R (m ³ /d)	RQ (m ³ /d)	DT (Hr)						MLSS (kg/m ³)	添加 CH ₃ OH (g/d)
					AN	1DN	N	2DN	RA	S		
1	S. 53.11.21~S. 54. 1.18	7.5	2.2	4 Q _S	—	3.4	4.5	2.3	1.1	4.7	7.0	256
2	S. 54. 1.19~S. 54. 6.22	5.6	1.6	4 Q _S	—	4.5	6.0	3.0	1.5	6.3	7.0	224
3	S. 54. 6.23~S. 54. 8.18	7.5	2.3	4 Q _S	—	3.4	4.5	2.3	1.1	4.7	7.0	147
4	S. 54. 8.19~S. 54.11.22	7.5	2.6	4 Q _S	1.1	2.3	4.5	2.3	1.1	4.7	7.0	147
5	S. 54.11.23~S. 55. 1.31	7.5	5.2	4 Q _S	1.1	2.3	4.5	2.3	1.1	4.7	10.0	147

- 注 1) Run 3 の運転から原水に KH₂PO₄ (6 月 26 日より) を添加した。
- 2) Run 4, 5 の運転は、嫌気性槽 (AN) を設けた。
- 3) Run 5 の運転は、MLSS を 10 kg/m³ にアップした。

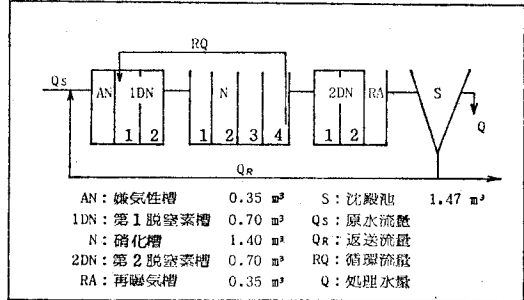


図-2 実験フロー

2 に示すように、第 1 脱窒素槽の第 1 室を嫌気性槽とし、第 1 脱窒素槽は後続の 2 室のみ（0.7 m³）とした。原水と返送汚泥は嫌気性槽に流下させたが、NO₃⁻を含む循環液は第 1 脱窒素槽に返送した。

昭和 53 年 10 月 17 日より郡山市終末処理場の返送汚泥を種汚泥として、馴養を開始した。設備の不備な点を改善しながら、完全硝化の達成された 11 月 21 日より処理実験を開始した。

この連続処理実験は大別すると、Run 1~Run 5 の 5 実験期に分けられる。おのおのの流量条件、設定 MLSS は表-1 に示される。

前半の Run 1, 2, 3 は、もっぱら標準的な循環式硝化脱窒法の処理特性を調べるために行った実験であり、後半の Run 4, 5 は、原水流入端に嫌気性槽を組み入れた循環式硝化脱窒変法のリン除去特性を調べるために行った実験である。

それぞれの実験では、原水、硝化混合液上澄水および処理水について、月曜日を除く毎日、pH, BOD, COD_{Cr}, COD_{Mn}, TK-N, NH₃-N, NO₂-N (N-エチレンジアミン・スルファニル酸法), NO₃-N (デバルダ合金法), SS, O-PO₄³⁻, T-PO₄³⁻ の測定を行った。測定法は JIS K 0102 に準じた。なお BOD 測定に際し、フランビン内の硝化を防ぐ処置は行っていない。各槽での窒素収支、リン収支などを調べるため、必要に応じて各槽混合液を遠心分離し、その上澄水について水質分析を行った。汚泥関係の分析項目として、混合液の SV, MLSS, MLVSS, 返送 MLSS および引抜汚泥量を測定した。原水お

よび処理水については、24 時間連続的に採水したコンポジットサンプルについて分析した。その他は午前 6~7 時頃のサンプルについて分析した。

3. 実験結果と考察

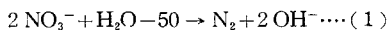
(1) 循環式硝化脱窒法の処理特性

処理実験を開始した当初 (Run 1) では、液温は 13°C ~15°C あり、硝化は遅滞なく進行した。12 月下旬になると、硝化槽の液温は 10°C を切るようになり、このために硝化が不十分になり、処理水に NH₃-N が残留するようになった。そこで、Run 2 の運転では原水流量を 7.5 m³/d から 5.6 m³/d に下げ、SRT を 20 日から 30 日に延長した。それでも硝化は不安定で、完全な硝化が達成できるようになったのは、液温が 10°C を越えるようになった 4 月上旬からである。

本実験では、各槽混合液の上澄み液についても水質分析を行っている。昭和 54 年 2 月中旬の平均水質から、各槽での窒素収支をとると、図-3 のようになる。各槽内の数字は正符号が増加量を、負符号が減少量を示し、その他の数字は移送量を示している。また、循環液および返送汚泥中の窒素濃度は、それぞれ硝化混合液の上澄み液、処理水に等しいとみなした。以上の窒素収支から、次のようなことがわかる。

- ① 系全体での窒素除去率は 74% である。
- ② 窒素除去の 65% は第 1 脱窒素槽で、35% は第 2 脱窒素槽で行われている。
- ③ 第 2 脱窒素槽の窒素除去は、ほとんどが脱窒素作用によるが、第 1 脱窒素槽での窒素除去は、脱窒素によるところが半分、その他汚泥同化によるところが半分である。

この時点での第 1 脱窒素槽での脱窒素は完全ではなかった。循環される NO_x-N 量 143.4 g/d の 20% しか脱窒素されていなかった。原因としては、低水温のために脱窒素活性が低いことも考えられるが、それよりも循環液に随伴して第 1 脱窒素槽に持込まれる DO に原水中の BOD が消費されることに起因している。第 1 脱窒素槽回りの BOD 収支を図-4 に示す。第 1 脱窒素槽で除去された BOD 量と持込み DO 量の差、251 g/d-146 g/d=105 g/d を脱窒素に利用可能な BOD 量とする。窒素 1 kg 脱窒素するのに必要な BOD 量は次式で示される。



脱窒素菌は有機物を単に呼吸基質としてばかりでなく、細胞合成の炭素源としても利用するので、式 (1) で求められる値の 25% 増しと考

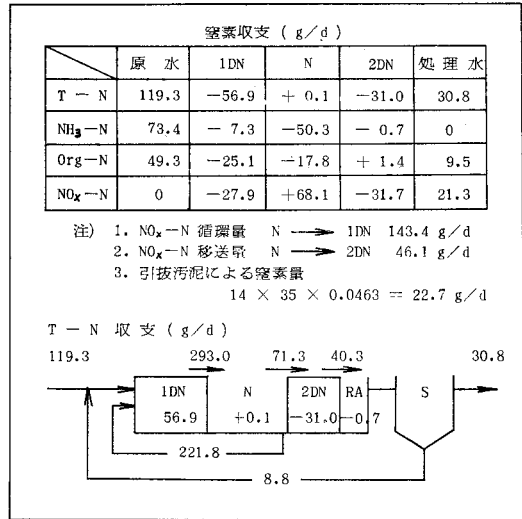


図-3 DO 濃度を制御しない場合の窒素収支

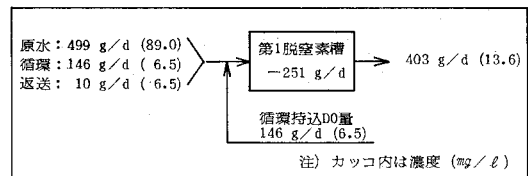


図-4 第 1 脱窒素槽の BOD 収支

て、窒素 1 kg 脱窒素するのに BOD 3.5 kg 必要とすると、第 1 脱窒素槽で脱窒素される NO_x-N 量は 30 g/d となる。この値は現実に脱窒素されている量にほぼ等しい。し尿と異なり下水のような希薄廃水では、原水 BOD 量に比して持込み DO 量が無視できず、硝化槽末端の DO 濃度を制御して持込み DO 量を最小限にする必要がある。

実際 6 月以降、硝化槽の末端室の DO 濃度を制御したところ (図-5)、Run 2 の 6 月以降の実験に対しては第 1 脱窒素槽での脱窒素量 66.8 g/d と倍以上に増加させることができた (図-6)。これに伴って、第 2 脱窒素槽に添加する CH₃OH の使用量は 224 g/d から 102 g/d に低減することができた。この CH₃OH の使用量は硝化槽から流入する NO_x-N 量の約 3 倍に相当する。続

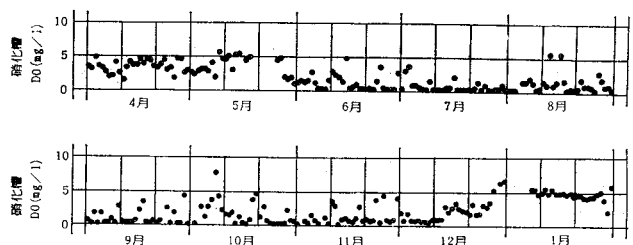


図-5 硝化槽末端の DO 濃度

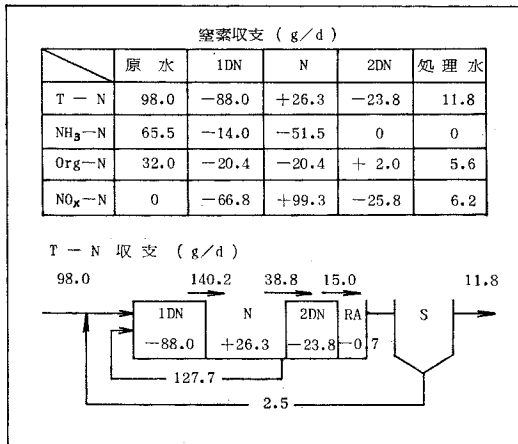


図-6 DO 濃度を制御した場合の窒素収支

く Run 3, 4, 5 でも硝化槽末端室の DO 濃度を制御した結果, CH₃OH の使用量は Run 1 の 256 g/d に対し, 147 g/d と約 57% に低減した。

図-6 の窒素収支より, 連続実験における第1脱窒素槽, 第2脱窒素槽の脱窒素速度を MLSS 7.0 kg/m³ (MLVSS/MLSS=0.51), 0 次反応に従うとして求めると, 次のようになる。

第1脱窒素槽 (水素供与体として下水 BOD)

$$K_{N1}(20^{\circ}\text{C}) = \Delta N_1 / V_{D1} \cdot X_S$$

$$= 0.379 \text{ mg/gSS} \cdot \text{Hr} \dots \dots \dots (2)$$

第2脱窒素槽 (水素供与体として CH₃OH)

$$K_{N2}(20^{\circ}\text{C}) = \Delta N_2 / V_{D2} \cdot X_S$$

$$= 0.219 \text{ mg/gSS} \cdot \text{Hr} \dots \dots \dots (3)$$

ここに,

$K_{N1}(20^{\circ}\text{C})$: 20°C における第1脱窒素槽の脱窒素速度恒数 (mg/gSS·Hr)

$K_{N2}(20^{\circ}\text{C})$: 20°C における第2脱窒素槽の脱窒素速度恒数 (mg/gSS·Hr)

ΔN_1 : 第1脱窒素槽の脱窒素量 (g/d)

ΔN_2 : 第2脱窒素槽の脱窒素量 (g/d)

V_{D1} : 第1脱窒素槽容積 (m³)

V_{D2} : 第2脱窒素槽容積 (m³)

X_S : MLSS 濃度 (kg/m³)

なお回分実験により求めた脱窒素速度恒数は $K_{N1}(20^{\circ}\text{C}) = 0.386 \text{ mg/gSS} \cdot \text{Hr}$, $K_{N2}(20^{\circ}\text{C}) = 0.478 \text{ mg/gSS} \cdot \text{Hr}$ であった。また連続実験で求められた第2脱窒素槽の脱窒素速度恒数が, 回分実験で得られたものよりはるかに小さい理由は, 第1脱窒素槽での脱窒効率の向上に伴い, 第2脱窒素槽の脱窒能力に余裕ができたものと思われる。

以上のごとく, 循環式硝化脱窒法は硝化槽末端の DO 濃度を制御すれば, 効率よく脱窒素でき, T-N で 2~3 mg/l の処理水が得られる。一般的処理成績を表-2 に示す。

(2) 循環式硝化脱窒法における脱リン現象と嫌気性槽付設の効果

硝化脱窒法により今まで除去されると考えられていた BOD, SS, T-N などの水質項目については, 満足すべき結果が得られた。特に気の付いた点は, O-PO₄³⁻ の除去が非常によいことである (図-7)。4月以降, 処理水 O-PO₄³⁻ は安定して 0.1 mg/l 程度に維持された。このリン除去現象が生物学的なものかどうかははっきりしなかった。なぜなら, 活性汚泥中の灰分が MLSS 中の 50% 近くにも達し, 灰分の測定過程にレンガ色の残留物が磁皿に常に付着していたことを考慮すると, 鉄分によるリン固定の部分もあると推定されたからである。

一般的な下水に比べ, この原水の O-PO₄³⁻ 濃度はやや低めであること, またこのリン除去現象には化学的な面も考えられるので, リン除去限界を確認するため, 6月26日から原水に O-PO₄³⁻ として 10 mg/l 程度になるように KH₂PO₄ を添加したところ, T-PO₄³⁻ では 15 mg/l 程度になり, 処理水に 1~4 mg/l の O-PO₄³⁻ が

残留するようになった。しかし, 日除去量としては大幅に増加し, このため汚泥中の T-PO₄³⁻ もそれに比例して増大した。これまでに得られた処理結果からは, 硝化脱窒法でのリン除去が生物作用によるものか, あるいは化学作用によるものか, はっきりしなかった。

そこで, 原水リン濃度が高い場合には, 通常フローの循環式硝化脱窒法では O-

表-2 平均水質

Run	1 (S.53.11/21~ S.54.1/18)			2 (1/19~3/31)			2 (4/1~6/22)			3 (6/23~8/18)		
	原水	硝化槽	処理水	原水	硝化槽	処理水	原水	硝化槽	処理水	原水	硝化槽	処理水
水温 (°C)	13.0~9.0			8.0~13.2			12.5~22.2			19.4~25.5		
pH	7.19	6.90	7.18	7.07	6.84	7.08	7.23	6.80	7.22	7.03	6.80	7.10
アルカリ度	91.5	48.0	50.6	93.5	40.9	44.2	96.9	37.6	51.1	84.3	48.6	49.7
BOD	116.2	3.3	6.1	92.0	5.8	5.2	94.2	3.5	3.2	70.4	3.7	2.9
COD _{Cr}	144.9	15.0	18.8	152.5	17.4	20.4	126.6	16.7	15.8	132.2	13.1	15.5
COD _{Mn}	42.3	5.8	7.8	43.3	6.1	7.4	39.9	6.9	7.3	35.3	6.8	7.0
SS	91.0	—	12.8	73.7	—	10.4	69.5	—	6.6	64.0	—	7.5
T-N	21.1	10.8	4.5	20.7	8.0	4.2	17.5	6.9	2.5	14.9	5.1	1.9
T-PO ₄ ³⁻	—	—	—	—	—	—	6.5	—	0.7	14.0	—	3.3
O-PO ₄ ³⁻	3.1	0.3	0.5	2.4	0.1	0.1	3.2	0.1	0.2	9.6	1.7	2.2

(単位: mg/l)

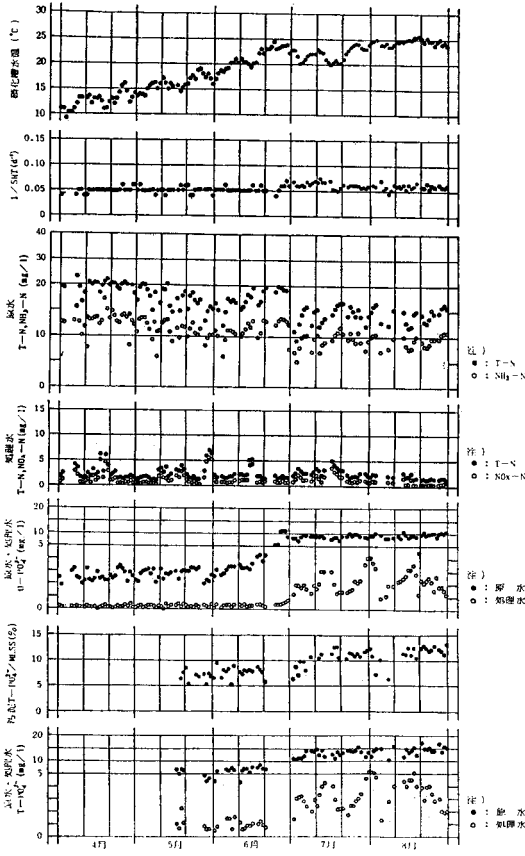


図-7 水温, SRT, T-N, O-PO₄³⁻, T-PO₄³⁻

PO₄³⁻, T-PO₄³⁻ 除去が不安定になることが確認されたので, 8月19日より第1脱窒素槽の第1室を嫌気性槽に変えて, 南ア連邦で実施されているような硝化脱窒変法に改造した. この嫌気性槽では, もっぱら返送汚泥と原水を接触混合させ, 循環液は後続の第1脱窒素槽に流下させたところ, しだいにリン除去は改善され, 2か月後には嫌気性槽からリンが放出し, 後段の槽でのリン除去が顕著になった(図-8). 化学的な凝集作用がリン除去機構の中にあるかどうかは不明であるが, 11月以降に顕著になった付加的なリン除去は, 明らかに非化学的なものであり, 生物的作用によるものと推定される. 汚泥中のリン含有率をみると, 原水のリンを増強したあとの7月, 8月は着実に上がっている. 嫌気性槽を設けてから1か月後の9月20日頃から, 余剰汚泥中のT-PO₄³⁻の値が13%程度であったものが, 15%程度に増加している. その差はあまり大きくないが, 処理水リン濃度の低下とともに余剰汚泥のリン含有率が増加している点は注目する. その後, 相次ぐ台風の影響で大雨に見舞われ, 流入原水の水質が乱れたため, 処理水質も不安定になっている. しかし, 11月以降は処理水質も安定し, O-PO₄³⁻は0.5mg/l程度, T-PO₄³⁻で1mg/l

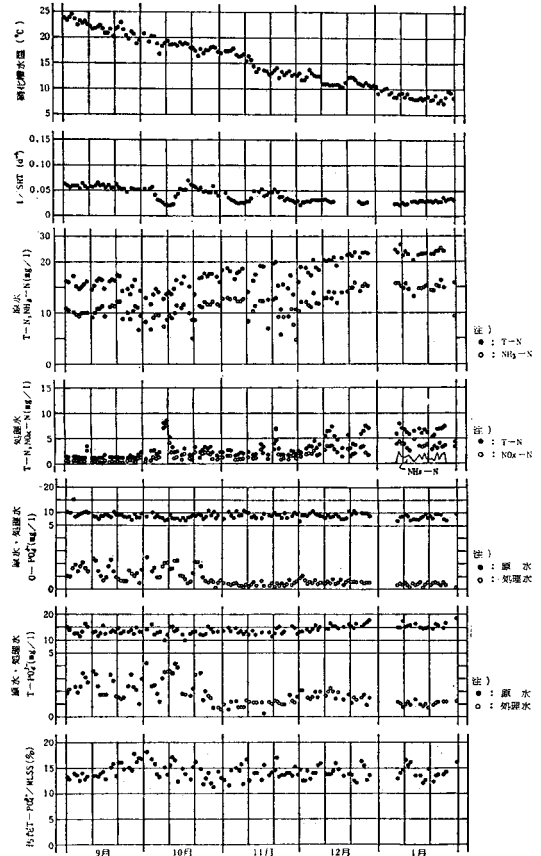


図-8 水温, SRT, T-N, O-PO₄³⁻, T-PO₄³⁻

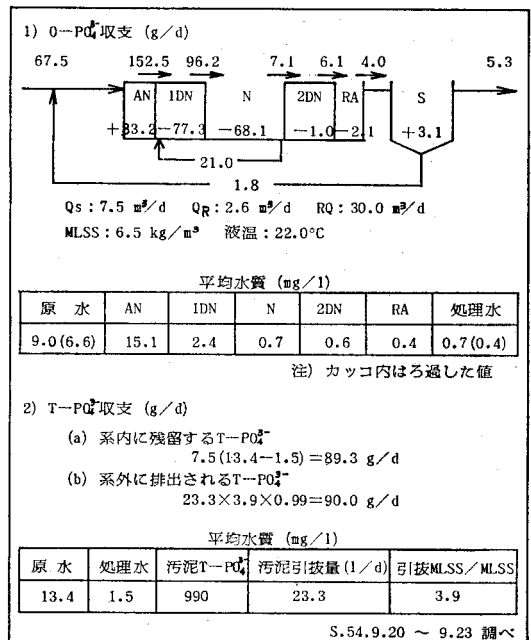


図-9 リン取支

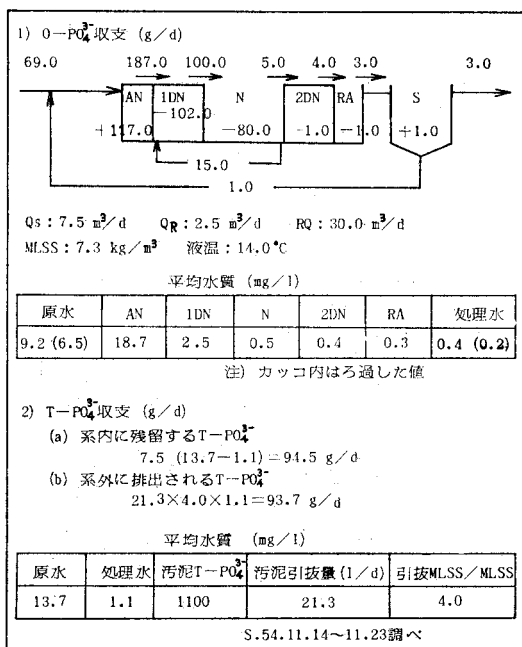


図-10 リン収支

程度の処理水が安定して得られた。

リン除去が顕著になりだした9月20日から23日までのリン収支を 図-9 に、安定してリン除去が行われた11月14日からのリン収支を 図-10 に示す。このリン収支から次のようなことがわかる。

- ① 嫌気性槽では流入 $O-PO_4^{3-}$ 以上の $O-PO_4^{3-}$ が汚泥から吐出される。
- ② しかし、第1脱窒素槽、硝化槽で吐出し $O-PO_4^{3-}$ と原水 $O-PO_4^{3-}$ の大部分が除去される。
- ③ 第2脱窒素槽、再曝気槽では取込みも吐出しもほとんど行われぬ。
- ④ 沈殿池ではその底部が嫌気的であるにもかかわらず、 $O-PO_4^{3-}$ の放出はほとんど行われぬ。

という知見が得られた。なお、このようにリン除去が行われても、BOD 除去や硝化脱窒素にはまったく影響がなく、良好であった。表-3 に原水、硝化槽上澄液および処理水の平均水質を示す。なお Run 5 の実験では再び液温が低下してきたため、MLSS を 7000 mg/l からしだいに 10000 mg/l に上げ、SRT を20日から30日に延長して運転した。それでも硝化槽の液温が 10°C を切るようになった1月からは硝化が不十分になり、処理水に NH_3-N が残留するようになった。しかしながら、リン除去は悪化しなかった。

図-10 のリン収支より、連続実験における嫌気性槽のリン吐出し速度および第1脱窒素槽、硝化槽のリン取込み速度を MLSS $7.3 \text{ kg}/\text{m}^3$ ($MLVSS/MLSS=0.45$)、0次反応に従うとして求めると、次のようになる。

嫌気性槽のリン吐出し速度

$$K_{P1}(14^\circ\text{C}) = \Delta P_1 / V_{AN} \cdot X_S$$

$$= 1.908 \text{ mgPO}_4/\text{gSS} \cdot \text{Hr} \dots\dots\dots (4)$$

第1脱窒素槽のリン取込み速度

$$K_{P2}(14^\circ\text{C}) = \Delta P_2 / V_{D1} \cdot X_S$$

$$= 0.832 \text{ mgPO}_4/\text{gSS} \cdot \text{Hr} \dots\dots\dots (5)$$

硝化槽のリン取込み速度

$$K_{P3}(14^\circ\text{C}) = \Delta P_3 / V_N \cdot X_S$$

$$= 0.725 \text{ mgPO}_4/\text{gSS} \cdot \text{Hr} \dots\dots\dots (6)$$

ここに、

$K_{P1}(14^\circ\text{C})$: 14°C における嫌気性槽のリン吐出し速度 ($\text{mgPO}_4/\text{gSS} \cdot \text{Hr}$)

$K_{P2}(14^\circ\text{C})$: 14°C における第1脱窒素槽のリン取込み速度 ($\text{mgPO}_4/\text{gSS} \cdot \text{Hr}$)

$K_{P3}(14^\circ\text{C})$: 14°C における硝化槽のリン取込み速度 ($\text{mgPO}_4/\text{gSS} \cdot \text{Hr}$)

ΔP_1 : 嫌気性槽のリン吐出し量 (g/d)

ΔP_2 : 第1脱窒素槽のリン取込み量 (g/d)

ΔP_3 : 硝化槽のリン取込み量 (g/d)

V_{AN} : 嫌気性槽容積 (m^3)

V_{D1} : 第1脱窒素槽容積 (m^3)

V_N : 硝化槽容積 (m^3)

X_S : MLSS 濃度 (kg/m^3)

リン吐出し速度およびリン取込み速度は液温に影響を受けることが推定されるが、図-8の結果をみる限り、液温 10°C 付近でも良好なリン処理水が得られている。返送汚泥と原水を嫌気性槽で接触混合する循環式硝化脱窒変法は、低水温時にも安定してリン除去できる方式であるといえ

表-3 平均水質 (mg/l)

	原水	硝化槽	処理水
pH	7.24	6.96	7.31
アルカリ度	97.3	61.1	55.9
BOD	89.1	2.6	3.5
COD_{Cr}	170.2	18.5	16.3
COD_{Mn}	40.8	6.6	5.9
SS	89.3	—	5.3
T-N	18.6	8.3	3.8
NH_3-N	11.9	0.6	0
$Org-N$	6.7	2.8	1.3
NO_2-N	0	0.4	0.2
NO_3-N	0	4.6	2.3
$O-PO_4^{3-}$	9.2	0.5	0.4
$T-PO_4^{3-}$	13.7	—	1.1

S.54.11.14~11.23調べ

よう。リン吐出し速度およびリン取込み速度の水温に対する検討は今後の研究課題としたい。

(3) 回分実験における $O-PO_4^{3-}$ の挙動

本処理実験でのリン除去現象が生物作用によるものかどうかを検討するために、いくつかの回分実験を行った。

最初に連続実験で生育した汚泥とステップエアレーション法で運転されている郡山市終末処理場施設の活性汚泥の $O-PO_4^{3-}$ に対する挙動を比較した。実験方法は双方の返送汚泥 230 ml 、原水 770 ml の割合で混合した

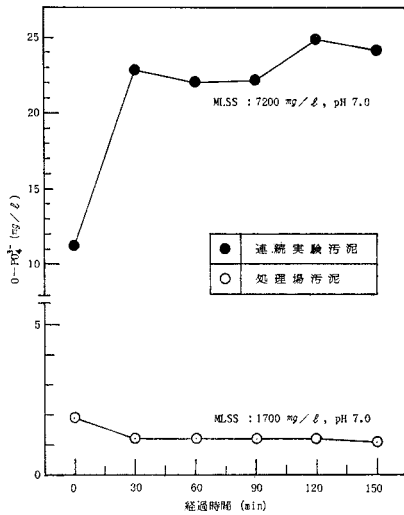


図-11 リンの吐出し実験

表-4 リンの吐出し実験

経過時間 (min)	サンプル 1			サンプル 2		
	pH	O-PO ₄ ³⁻ (mg/l)	COD _{Mn} (mg/l)	pH	O-PO ₄ ³⁻ (mg/l)	COD _{Mn} (mg/l)
0	7.40	11.9	14.8	7.47	13.4	12.8
30	7.29	25.1	14.5	7.35	14.1	18.5
60	7.24	25.5	14.4	7.32	15.9	18.6
90	7.23	26.2	15.3	7.22	15.7	20.0
120	7.20	25.5	13.3	7.29	16.7	20.1

注) MLSS : 5700 mg/l (サンプル 1), 液温 : 25°C
MLSS : 14200 mg/l (サンプル 2) S.54.9.14 調べ

ものを用意し、静かにマグネチックスターラーで緩速攪拌した。その上澄液の O-PO₄³⁻ 変化を測定した。図-11 に示すごとく、本連続実験で得られた活性汚泥の場合には、嫌気性下にあつては原水と接触すると、ただちに O-PO₄³⁻ が放出されたのに対し、実施設の活性汚泥ではそのような現象は観察されなかった。このことから循環式硝化脱窒変法では、嫌気性状態で O-PO₄³⁻ を放出しやすい活性汚泥が生育していたものと推定される。

次に連続実験の返送汚泥と原水との接触混合割合を調べた。サンプル 1 は返送汚泥 200 ml, 原水 800 ml の割合で混合したもの、サンプル 2 は返送汚泥 500 ml, 原水 500 ml の割合で混合したものを、静かにマグネチックスターラーで緩速攪拌し、嫌気性状態にした。表-4 に示されるように、O-PO₄³⁻ の吐出しはサンプル 1 の方

表-5 リンの吐出し実験

経過時間 (min)	pH	O-PO ₄ ³⁻ (mg/l)	COD _{Mn} (mg/l)
0	7.16	2.3	95.3
30	7.15	2.7	98.7
60	7.18	2.9	102.7
90	7.16	2.5	112.0
120	7.03	2.3	101.3

注) MLSS : 7400 mg/l, 液温 : 24°C
S.54.9.9 調べ

が大きく、汚泥量よりも原水量に比例していることが示された。このことは、O-PO₄³⁻ の吐出しには原水中の有機物が関与していることを示唆している。

そこで、原水の代わ

りにメタノールを添加して、吐出し現象が生じるかどうか検討した。連続実験の返送汚泥 230 ml, メタノール (濃度 430 mg/l) 770 ml の割合で混合し、マグネチックスターラーで緩速攪拌して嫌気状態にした。表-5 に示されるように、メタノールが全然資化されない。連続実験施設の方にはメタノールを常時添加して、メタノールを資化する細菌がたくさんいるにもかかわらず、リンの吐出しに無関係ということは、メタノールを資化して脱窒素する細菌は生物学的脱リンには無関係であることを意味している。このことは、第 2 脱窒素槽でメタノールを加えすぎたりしても、余剰メタノールそのものはリンの吐出しの刺激にはならず、処理水の O-PO₄³⁻ を低濃度に維持する目的にとっては、循環式硝化脱窒変法の第 2 脱窒素槽への水素供与体としてメタノールが非常に好ましいといえる。

同様に、リン吐出しを促進させる下水中の成分を酢酸と推定し、酢酸を添加して吐出し実験を行った。完全に嫌気状態を維持できる脱窒素速度測定用の装置を用い、連続実験の返送汚泥 280 ml, 処理水 717 ml, 10% 酢酸溶液 3 ml を加え、全量を 1000 ml にした。実験開始時に容器内の酸素を窒素ガスで置換した。図-12 に示されるように、酢酸添加により高速かつ大量にリン吐出し現象が生じた。リンの吐出しは嫌気性にしてから 2 時間程度で飽和状態になり、それ以上はあまり吐き出さない。飽和吐出し量から、汚泥中の 10% 程度のリンが吐出し、取込みに関与していることが推定される。また、

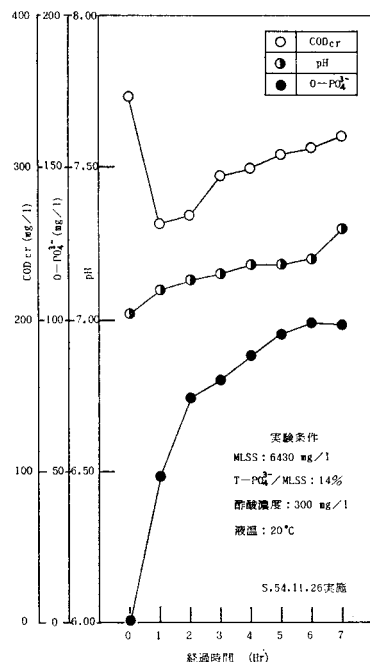
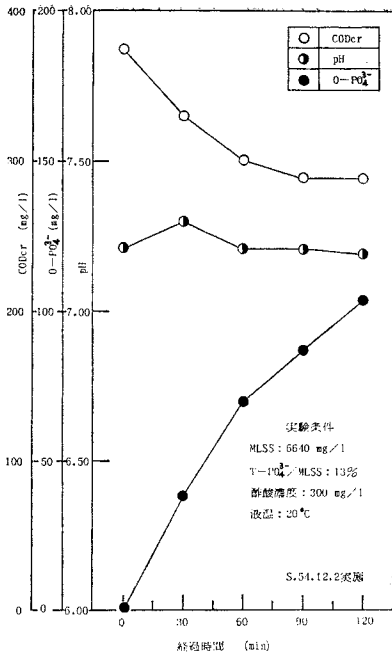
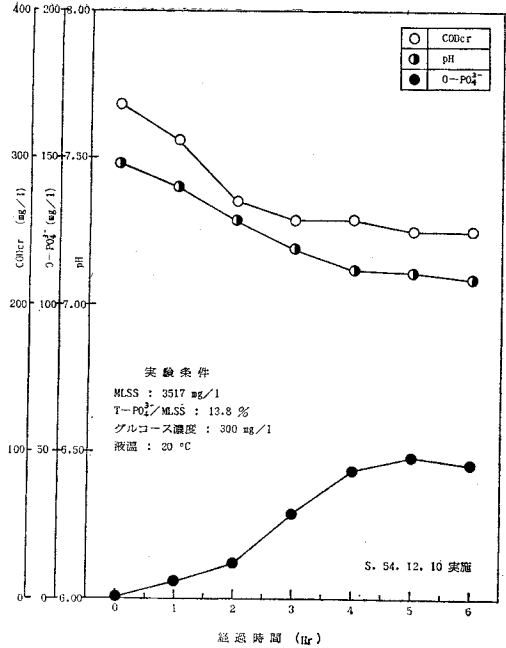


図-12 リンの吐出し実験



図一13 リンの吐出し実験



図一14 リンの吐出し実験

このリンの吐出しと並行して COD_{Cr} の値が減少している。2時間以降では遠心分離後の上澄液ににごりがみられ、汚泥の分解が生じている様子が観察された。そのため COD_{Cr} 濃度とリン酸濃度が正の相関にあるものと思われる。変化の激しい2時間までを30分ごとに調べてみたが、同様な結果が示された(図一13)。このことから、リンの吐出しは有機物除去と連動していると推定される。

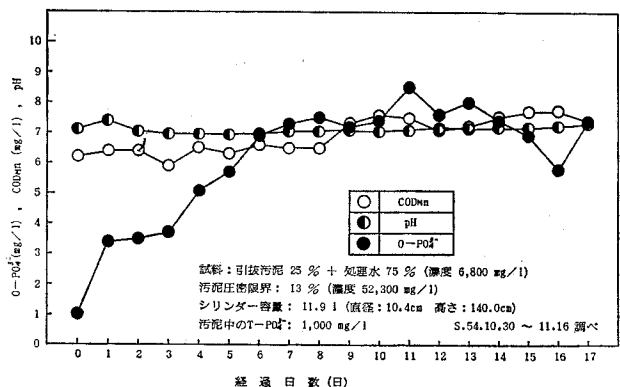
次に、グルコースを用い、酢酸の場合と同様な手法により吐出し実験を行った。連続実験の返送汚泥 330 ml、処理水 667 ml、10% グルコース 3 ml を加え、全量を 1000 ml にした。図一14 に示されるように、酢酸は非常によく吐出したけれども、グルコースについてはあまり吐出しを行っていない。深瀬ら¹¹⁾はグルコースが非常にリンの吐出し、取込みに大きく影響を与え、酢酸の効果は小さいと発表している。しかしながら、本実験ではまったく逆の現象になった。この相違の原因としては、下水処理場へ実際に流入してくる下水には、グルコースなどよりもむしろ有機酸の方が多く、そのためグルコースよりも酢酸をより速く摂取し、リン吐出しもそれに伴って酢酸の方が速かったと思われる。

最後に、有機物が存在しない場合のリン吐出し量を、大型のシリンダー(容量: 11.9 l, 直径: 10.4 cm, 高さ: 140 cm)を用いて検討し

た。連続実験の引抜汚泥と処理水を1対3の割合で混合し、混合液濃度を 6800 mg/l にした。緩速攪拌しながら、溶液中の $O-PO_4^{3-}$ 変化を調べた。図一15 に示されるように、まる1日経過しても、たかだか $O-PO_4^{3-}$ で 2.4 mg/l の吐出しであり、有機物が存在しなくて静置した場合の吐出し量は、ごくわずかであることがわかる。硝化脱窒素法のように、低負荷で汚泥が安定化されている場合には、沈殿池でのリン吐出しは無視できると思われる。

(4) 生物学的脱リン機構の推定

生物学的脱リンの原理は、まだほとんど解明されていないといってもよい。本実験に示されるように、嫌気性



図一15 経過日数によるリンの吐出し実験

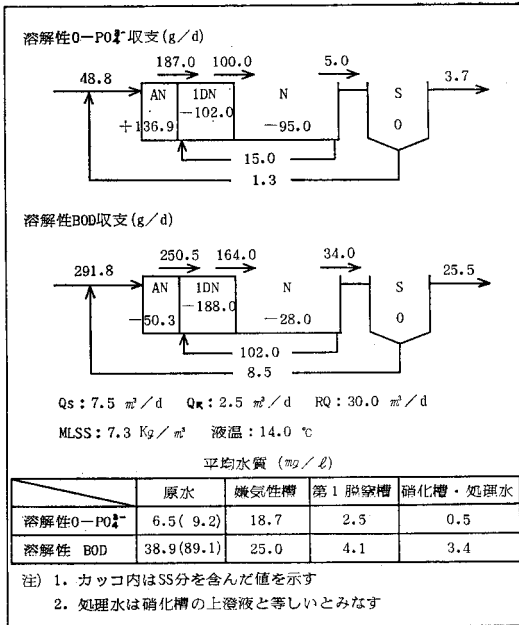


図-16 溶解性 O-PO₄³⁻ と溶解性 BOD 収支

槽を設けても、その効果が顕著になるまで 1~2 か月を要していることは、このようなプロセス構成をとることによって、脱リン機能をもつ特殊な微生物（以下、脱リン菌という）が活性汚泥に卓越してくるものと考えられる。

郡山市終末処理場の流入原水には、鉄分を多く含んでいる可能性があるという点で、この連続実験施設で除去されたリンのすべてが生物学的リン除去によるものであるという点はいい切れない。しかしながら、非呼吸ゾーン（または嫌気性槽）でリンの吐出しが生じ、しかもそのあとの呼吸ゾーン（または第1脱窒素槽および硝化槽）でリンの取込みが行われているということは、南ア連邦で報告されている実験結果と帰一するものであり、生物学的なリン除去が加わっていることには間違いない。

回分実験で有機物を添加した場合と、無添加の場合では、まったく吐出しのパターンが異なる。しかも、同じ有機物であっても、酢酸とグルコースとの違い、あるいはもっと顕著には酢酸とメタノールは非常に大きな違いがある。このように添加有機物によって、吐出し速度がまったく違うということからみても、生物学的な因子が加わっていることは確実だと思われる。

一方、連続実験での溶解性 O-PO₄³⁻ と溶解性 BOD 収支（図-16）を調べると、嫌気性槽においてはリンの吐出しと有機物の除去が、同時に行われており、リンの吐出しは有機物の除去と共役していると推定される。また、リンの取込みは第1脱窒素槽と硝化槽の両方で起き

ている。第1脱窒素槽で起きているのは脱窒素反応であるが、これは言い換えれば、硝酸呼吸である。硝化槽では酸素呼吸が行われている。このような呼吸とリン取込みとが共役しているといえる。

生物学的なリン除去にとって、なぜ嫌気性部分が必要かという点はまだ未解明である。現在、考えられている最も妥当な説明は、ポリリン酸顆粒を蓄積する特殊な微生物¹²⁾（脱リン菌）が存在し、この細菌はポリリン酸を加水分解することにより、有機物摂取に必要な能動輸送エネルギーを獲得できるというモデルであろう。すなわち、基質を含む原水が流入するゾーンを非呼吸（または嫌氣的）ゾーンにすることにより、脱リン菌だけが基質摂取可能になり、このために脱リン菌が活性汚泥中に卓越してくる。

しかしながら、この卓越機構を確定するためには、さらに研究が必要である。

4. 総 括

循環式硝化脱窒法について、都市下水を対象として、1年以上の長期にわたり連続実験を行った。この実験的研究によって、生物学的脱窒素・脱リン法について、次のような事項を明らかにすることができた。

(1) 標準的な循環式硝化脱窒法の第1脱窒素槽の前に嫌気性槽を設ける循環式硝化脱窒法によって、BOD と窒素と同時にリンを除去することが可能である。処理水 T-N で 2~3 mg/l、処理水 T-PO₄³⁻ で 1~2 mg/l のものが安定して得られる。

(2) 循環式硝化脱窒法においては、嫌気性槽で汚泥から多量のリンが吐出され、第1脱窒素槽および硝化槽において、この吐出されたリンと同時に原水中のリンが除去される。また、リンの吐出しは有機物の摂取と共役している。

(3) 回分実験の結果、酢酸およびグルコースはリン吐出し促進剤として有効であったが、メタノールではリンの吐出し現象が生じない。したがって、リン除去のうえから第2脱窒素槽に添加する水素供与体としては、メタノールが非常に好ましい。

(4) 循環式硝化脱窒法で生成される汚泥は非常に安定化されていて、そのために沈殿池からリンが再放出されるという可能性は非常に少ない。酢酸やグルコース、あるいは原水の有機物の添加なしでは、リンの吐出し速度は非常に小さい。そのために、沈殿池における沈殿汚泥からのリン吐出しによる障害は無視できるほど小さい。

以上のように、生物作用による脱リンは技術的には可能であることが、本実験によって証明された。多くの生

物学的処理技術は、ある程度、基礎微生物学の知識を土台にして成立している。しかしながら、この生物学的脱リン技術に対しては、微生物学的知識が欠如しており、生化学的な機構もほとんどわかっていない。今後、本技術の合理的設計方法を確立するためには、このような基礎的機構を解明する必要がある。

最後に、本研究を進めるにあたり、本学大学院生、鈴木雅行、吉見重則、中田尚行、平松良文諸氏の長期間にわたる協力を得た。ここに厚く謝意を表します。さらに、場所の提供その他で多大なご協力をいただいた郡山市都市計画部下水道課に感謝申し上げます。

記 号

Q_S : 原水流量 (m³/日)
 Q_R : 返送流量 (m³/日)
 RQ : 循環流量 (m³/日)
 AN : 嫌気性槽
 1 DN : 第1脱窒素槽
 N : 硝化槽
 2 DN : 第2脱窒素槽
 RA : 再曝気槽
 S : 沈殿池
 T-N : 全窒素 (mg/l)
 TK-N : Total Kjeldahl 窒素 (mg/l)
 NH₃-N : アンモニニア性窒素 (mg/l)
 Org-N : 有機性窒素 (mg/l)
 NO₂-N : 亜硝酸性窒素 (mg/l)
 NO₃-N : 硝酸性窒素 (mg/l)
 NO_x-N : (NO₂-N) + (NO₃-N)
 O-PO₄³⁻ : 正リン酸塩 (mg/l)
 T-PO₄³⁻ : 全リン酸塩 (mg/l)
 DO : 溶存酸素 (mg/l)
 SRT : 汚泥日令 (日)
 DT : 滞留時間 (Hr)
 $K_{N1}(20^{\circ}\text{C})$: 20°C における 第1脱窒素槽の脱窒素速度恒数 (mg/gSS·Hr)
 $K_{N2}(20^{\circ}\text{C})$: 20°C における 第2脱窒素槽の脱窒素速度恒数 (mg/gSS·Hr)
 ΔN_1 : 第1脱窒素槽の脱窒素量 (g/d)
 ΔN_2 : 第2脱窒素槽の脱窒素量 (g/d)
 V_{D1} : 第1脱窒素槽容積 (m³)
 V_{D2} : 第2脱窒素槽容積 (m³)

X_S : MLSS 濃度 (kg/m³)

$K_{P1}(14^{\circ}\text{C})$: 14°C における 嫌気性槽のリン吐出し速度 (mgPO₄/gSS·Hr)

$K_{P2}(14^{\circ}\text{C})$: 14°C における 第1脱窒素槽のリン取込み速度 (mgPO₄/gSS·Hr)

$K_{P3}(14^{\circ}\text{C})$: 14°C における 硝化槽のリン取込み速度 (mgPO₄/gSS·Hr)

ΔP_1 : 嫌気性槽のリン吐出し量 (g/d)

ΔP_2 : 第1脱窒素槽のリン取込み量 (g/d)

ΔP_3 : 硝化槽のリン取込み量 (g/d)

V_{AN} : 嫌気性槽容積 (m³)

V_N : 硝化槽容積 (m³)

参 考 文 献

- 岡田和男ほか：接触脱リン法による下水中のリン除去に関する研究 (I), (II), (III), 下水道協会誌, Vol. 18, No. 203, 204, 205, 1981.
- Levin, G.V., et al. : Metabolic uptake of phosphorus by wastewater organisms, Jour. WPCF, Vol. 37, No. 6, pp. 800~821, Jun., 1965.
- Vacker, D., et al. : Phosphate removal through municipal wastewater treatment at San Antonio, Texas, Jour. WPCF, Vol. 39, No. 5, pp. 750~771, May, 1967.
- Bargman, R.D., et al. : Nitrogen-Phosphate relationships and removals obtained by treatment processes at the Hyperion treatment plant, Proc. 5th Int. Conf. Water Pollution Research, pp. 1~14, 1971.
- Ferguson, J.F., et al. : Discussion/Communication, Jour. WPCF, Vol. 45, No. 3, pp. 552~555, Mar., 1973.
- Levin, G.V., et al. : Pilot-plant test of a phosphate removal process, Jour. WPCF, Vol. 44, No. 10, pp. 1940~1954, Oct., 1972.
- Barnard, J.L. : Cut P and N without chemicals, Water and Water Engineering, Vol. 11, No. 1, pp. 33~36, July, 1974.
- McLaren, A.R., et al. : Effective phosphorus removal from sewage by biological means, Water SA, Vol. 47, No. 1, pp. 47~50, Jan., 1976.
- Nicholls, H.A. : Full scale experimentation on the new Johannesburg extended aeration plants, Water SA, Vol. 1, No. 3, pp. 121~132, Oct., 1975.
- Stensel, H.D., et al. : Performance of the first U.S. full scale Bardenpho facility, EIMCO PMD Divison ENVIROTECH CORP., pp. 1~40, May, 1980.
- 深瀬哲朗ほか：生物学的リン除去法の操作因子について, 第18回下水道研究発表会講演集, pp. 283~285, 1981.
- Futts, G.W., et al. : Microbiological basis of phosphate removal in the activated sludge process for the treatment of wastewater, Microbial Ecology, Vol. 2, pp. 119~138, 1975.

(1981.9.11・受付)