

包括固定化微生物を用いた窒素除去リアクターの開発

江森弘祥¹・中村裕紀²・竹島 正³・田中和博⁴・中西 弘⁵

- ¹正会員 工修 日立プラント建設株式会社 水処理事業部 (〒170 東京都豊島区北大塚 1-13-2)
- ²正会員 日立プラント建設株式会社 松戸研究所 (〒271 千葉県松戸市上本郷字船付 537)
- ³工修 日本下水道事業団 技術開発部 (〒335 埼玉県戸田市下笹目 5141)
- ⁴正会員 工博 日本大学教授 理工学部 土木工学科 (〒101 東京都千代田区神田駿河台 1-8)
- ⁵正会員 工博 山口大学教授 工学部 社会建設工学科 (〒755 宇部市常盤台)

従来の生物学的処理技術で窒素の除去を行うためには、現在最も普及している有機物除去を対象とした標準活性汚泥法に比べ反応槽の拡張が必要である。都市地域では、標準活性汚泥法の処理施設を窒素除去施設に改修するには用地の確保が難しく、既設処理場の拡張には大幅な資本投下が必要となる。筆者らは、ポリエチレングリコールを主材料とし硝化細菌を高濃度に保持できる担体を開発した。この担体を活性汚泥循環変法の硝化槽に添加することにより反応槽のコンパクト化を図り、10°C 前後の低水温においても標準活性汚泥法と同等の滞留時間で、BOD と窒素の同時処理が可能な窒素除去リアクターを開発した。

Key Words : immobilized microorganisms, wastewater treatment, nitrifying bacteria, ammonium nitrogen, nitrogen removal, retro-fit

1. はじめに

日本では、人口 100 万人以上の都市地域の下水道普及率はほぼ 95% 以上に達しているが¹⁾、それらのほとんどでは有機物除去を対象とした標準活性汚泥法による処理が行われている。しかし都市が密集する地域に接する閉鎖性海域では環境保全の状況は満足すべきものではなく、環境庁は 93 年に、窒素、りん的环境基準を設定した²⁾。これを受けて、閉鎖性海域に流下する河川及びその海域に接する地域では、既設の下水処理場を、有機物 (BOD) 除去のみならず窒素、りんの除去に対応出来る高度処理施設へと改修、拡張する必要が高まりつつある。

下水の生物学的窒素除去プロセスとしては活性汚泥循環変法 (以下、循環変法と言う) が主流でありすでに富栄養化が進行している湖沼地域の下水処理場で用いられている¹⁾。しかし、このプロセスは、増殖速度が小さい硝化細菌を系内に保持する必要があり、BOD 除去を目的とした標準活性汚泥法の曝気槽の 2 倍程度の反応槽容量が必要である。このため、都市地域の処理場では標準活性汚泥法の曝気槽を循環変法に改修し BOD と窒素の同時除去を行うには敷地の制約などからその導入は困難であった。

筆者らは、硝化細菌を高濃度に包括固定化した担体 (以下、包括固定化担体という) を循環変法の硝化槽に添加し硝化を促進することにより、Fig.1 に示すように既存

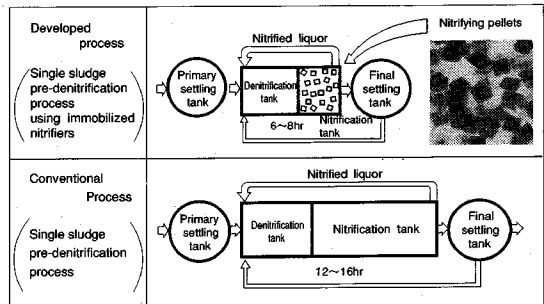


Fig.1 Developed process and conventional process.

施設の反応槽容量を拡張することなく、BOD と窒素の同時除去が可能なプロセスの開発を進めてきた。

このプロセスは従来の循環変法に対し硝化促進型循環変法と呼ぶこととする。

(1) 生物学的窒素除去の問題点

循環変法は Fig.1 に示すように下水を脱窒槽 (嫌気槽)、硝化槽 (好気槽) の順に通過させ、硝化槽内混合液の一定量を脱窒槽に循環させる方式であり、循環変法の窒素除去率は実用的に循環比を 2~3 程度に設定した場合には 70% 程度である。

循環変法では、生物反応槽の後段の硝化工程において、次式に示すように $\text{NH}_4\text{-N}$ が硝化細菌により、 $\text{NO}_2\text{-N}$ もしくは $\text{NO}_3\text{-N}$ まで酸化される。

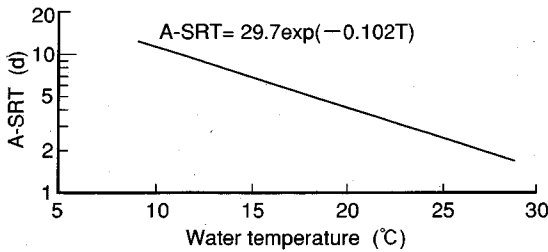
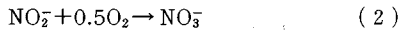
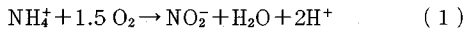
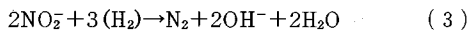


Fig.2 Relation between water temperature and aerobic solids retention time required for nitrification.



この NO_3^- -N を含む活性汚泥混合液の一定量が前段の脱窒工程に循環供給され、脱窒反応が進行する。脱窒工程では、溶存酸素が存在しない条件下で通性嫌気性細菌による呼吸が行われ、次式のように NO_3^- -N、 NO_2^- -N は N_2 ガスまで還元される。



循環変法において式 (1)、(2) の反応を進行させるため活性汚泥中に硝化細菌を保持することが必要であり、式 (5) で定義される硝化槽における好氣的固形物滞留時間 (以下 A-SRT という) を、式 (6) の関係が満足できるように保つ必要がある。

$$\text{A-SRT} = \text{SRT} \cdot \theta_n / \theta_t \quad (5)$$

$$\text{A-SRT} > 1 / \mu_m \quad (6)$$

ここで、

A-SRT : 好氣的固形物滞留時間 (d)

μ_m : 硝化細菌の最大比増殖速度 (1/d)

SRT : 固形物滞留時間 (d)

θ_n : 硝化槽滞留時間 (h)

θ_t : 反応槽 (脱窒槽+硝化槽) 滞留時間 (h)

いくつかの実施設における調査結果から、硝化に必要な A-SRT と水温の関係について、次式が示されている³⁾。

$$\text{A-SRT} = 29.7 \exp(-0.102T) \quad (7)$$

T : 水温 (°C)

Fig.2 に式 (7) で示される A-SRT と水温との関係を示す。低水温期では必要な A-SRT が長くなるため、反応槽容量を増加させるか MLSS を高濃度に維持する必要がある。MLSS 濃度を上げると活性汚泥の沈降性が悪化し最終沈殿池の水面積負荷を小さくし沈殿池容量を大きくする必要がある。系内に硝化細菌を保持し安定した硝化处理を行うためには、いずれにしても処理施設容量が増加する。

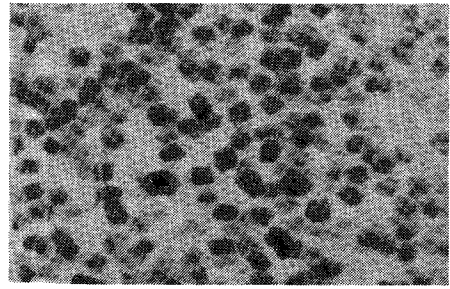


Fig.3 Nitrifying pellets.

(2) 包括固定化担体とその適用

系内に硝化細菌を保持する技術として、筆者らは生体触媒の保持手法として用いられる包括固定化法に着目し、包括固定化担体を用いた生物処理法について研究を進めてきた。包括固定化法は、微生物を有機性高分子と混合した後、重合反応により成型し、これを反応槽に添加し連続反応を行いながら生体触媒の活性を高くと長時間維持する方法である。

包括固定化担体を用いた硝化促進型循環変法は Fig.1 に示すように、包括固定化担体を循環変法の硝化槽に添加し硝化能を上げ、硝化槽滞留時間を短縮することにより、標準活性汚泥法の滞留時間内で有機物除去と同時に窒素除去を行うものである。包括固定化担体を添加することにより浮遊性の活性汚泥の A-SRT とは無関係に硝化細菌の系内保持が可能となり、硝化处理の効率化を可能とする。

2. 実験方法

(1) 包括固定化担体

包括固定化担体として、担体材料にポリエチレングリコール系高分子材料を用いて、硝化能のある活性汚泥を包括固定化した後、3 mm 角の立方体に調整した担体^{4),5)}を使用した。Fig.3 に包括固定化担体外観を示す。

(2) 実証プラントによる実験

a) 性能調査

実証プラントのフローシートを Fig.4 に示す。実証プラントは、K 市 T 終末処理場の標準活性汚泥法の既設曝気槽を処理水量を減少することなく硝化促進型循環変法に改造した。Fig.5 に改造前の曝気槽を示す。曝気槽の形状は 5.5 mW × 5.0 mH × 29.0 mL で、容量は 750 m³ である。改造項目は以下の通りである。

- 1) 既設散気装置の撤去
- 2) 脱窒槽と硝化槽の間の仕切り板の設置
- 3) 脱窒槽用攪拌機、硝化槽用散気装置の設置
- 4) 水路 (流入水路, 循環水路, 流出水路), 循環水

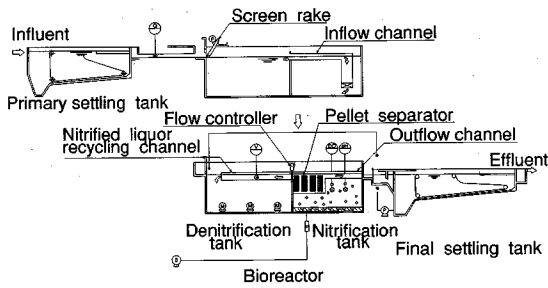


Fig.4 Flowchart of demonstration plant.

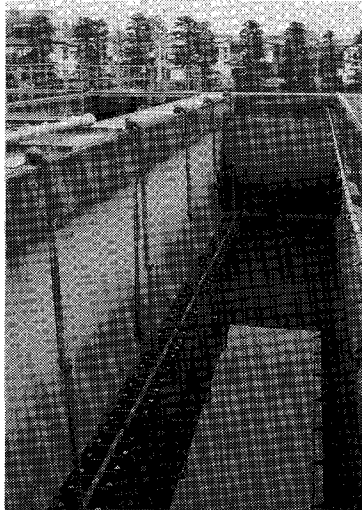


Fig.5 Aeration tank before retro-fit.

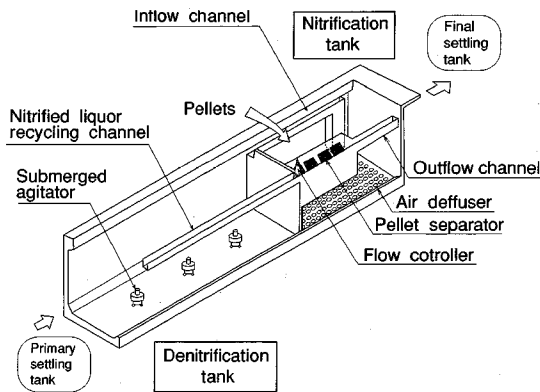


Fig.6 Bird's-eye view of reactor.

量調整装置及び包括固定化担体分離装置（ウェッジワイヤスクリーン）の設置

- 5) 自動除塵機の設置
- 6) 包括固定化担体の投入

改造後の反応槽構造を Fig.6 に、改造した反応槽の脱窒槽内部及び硝化槽内部を Fig.7, Fig.8 に示す。また、



Fig.7 Denitrification tank.

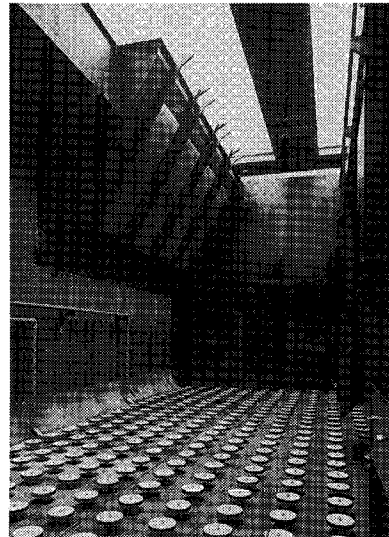


Fig.8 Nitrification tank.

Table 1 に実証プラント及び対照系とした標準活性汚泥法処理施設の諸元を示す。

脱窒槽には原水と返送汚泥及び硝化循環液を混合、攪拌するための水中攪拌機を設置した。脱窒槽の混合液は、硝化槽底部に流入開口部を設置した流入水路を經由して硝化槽に流入する。

硝化槽には、パイロットプラントの実験⁹⁾から得られた包括固定化担体の硝化速度を基に必要な担体容積を求め、硝化槽の容積比で7.5%の包括固定化担体を投入した。硝化槽底部には微細気泡型散気装置を全面に設置し、反応に必要な酸素の供給、包括固定化担体及び活性汚泥の混合・攪拌を行った。硝化槽上部には包括固定化担体

Table 1 Design specifications of demonstration plant.

Item	Demonstration plant			Control plant
	Total	Denitrification tank	Nitrification tank	
Treatment capacity	2,250 m ³ / d (Max. 3,000 m ³ / d)			7,250m ³ / d
Bioreactor	Total	Denitrification tank	Nitrification tank	-----
Volume	750 m ³	450m ³	300m ³	2,250m ³
Size	5.5mWx 5.0mH x 29.0mL	5.5mWx 5.0mH x 17.4mL	5.5mWx 5.0mH x 11.6mL	5.5mWx 5.0mH x 29.0mLx 3series
Retention time	8.0 h	4.8 h	3.2 h	8.0 h
Pellet dosing ratio	7.5% (Pellet volume / Nitrification tank volume)			-----
Final settling tank				
Volume	396 m ³			1,584 m ³
Size	4.0mWx 3.0mH x 33.0mL			4.0mWx 3.0mH x 33.0mLx 4series
Retention time	4.2 h			5.6 h

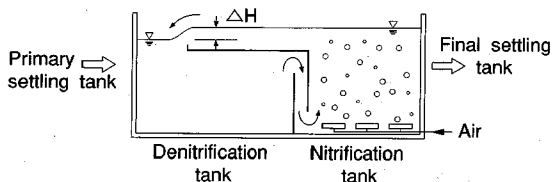


Fig.9 Principle of nitrifying liquor recycling using air-lift effect of nitrification tank.

の流出を防止する担体分離装置として、ウェッジワイヤスクリーンを設けてある。ウェッジワイヤスクリーンの目幅は、担体自体の目詰まりを防ぐため 1.5 mm とした。また、浮遊物の目詰まりを防止するため、担体分離装置は一定の傾斜（硝化槽壁面に対して 30 度程度）を持たせて設置し、エアレーションによる気泡と担体とがスクリーン面へ接触し、スクリーン表面の洗浄が行えるようにした。このウェッジワイヤスクリーンから流出した混合液は、硝化液循環水路を通り脱窒槽に循環される。硝化液の循環は、Fig.9 にその原理を示すように、硝化槽の散気によるエアリフト効果を利用して硝化液循環のための余分のエネルギーを必要としない循環方式を考案した⁷⁾。循環水路の脱窒槽入口には循環量を制御するための流量調整装置を設置してある。一方、原水流入水量相当量の混合液は流出水路を通り最終沈殿池に流入する。

実証プラントでは、滞留時間 8 h を基準とし年間を通して滞留時間を、6.2~13.6 h, MLSS 濃度 1 220~2 800 mg/L の範囲で運転を行い処理性能の安定性について確認すると共に、包括固定化担体及び活性汚泥の硝化速度、活性汚泥の脱窒速度を原則として月 2 回後述の方法で測定した。水質分析は原則として、週に二回、反応槽流入水及び最終沈殿池流出水について BOD、溶解性 BOD (s-BOD)、SS、T-N、NH₄⁺-N、NO₃⁻-N を測定した。採水は、流入水及び流出水は 24 時間のコンポジットサンプル法で、反応槽内溶液についてはグラブサンプル法で行った。分析は下水試験方法に準じた。

また、対照系として Table 1 に合わせて示す T 終末処理場の標準活性汚泥法の処理施設について、実証プラ

Table 2 Specifications of test plant.

Item	Pilot plant	Bench plant 1	Bench plant 2
Bioreactor			
Size	1.15mWx2.2mL x3.4mH	0.4mWx0.9mL x1.26mH	0.4mWx0.9mL x1.26mH
Total volume	8.60m ³	440L	440L
Denitrification tank volume	3.90m ³	280L	280L
Nitrification tank volume	4.70m ³	160L	160L
Nitrification tank volume ratio	5 : 6	7 : 4	7 : 4
Pellet dosing ratio	---	11.9%	17.5%
Final settling tank			
Volume	6.00m ³	500L	500L
Size	2.0mφ x2.8mH	0.7mφ x1.2mH	0.7mφ x1.2mH

* Nitrification tank volume / Total reactor volume

Table 3 Conditions of test plants.

Item	Pilot plant			Bench plant 1	Bench plant 2
	1	2	3		
RUN No.	1	2	3	---	---
Retention time (h)	Total	16	12	8	7.2
	Denitrification tank	7.3	5.5	3.6	4.6
	Nitrification tank	8.7	6.5	4.4	2.6
MLSS (mg / L)	2,230	2,830	2,020	2,370	2,120
BOD - SS Loading (kg / kg / d)	0.072	0.085	0.148	0.157	0.288
SRT (d)	29.8	27.9	16.3	13.0	8.7
A - SRT (d)	16.2	15.2	7.9	5.3	3.5
Nitrifying liquor recycling ratio	3.0			(Including return sludge)	
Water temperature (°C)	11.4	12.0	14.8	11.0	11.0

ントと並行して流入水及び流出水の分析を行い比較を行った。

b) 包括固定化担体に対する温度の影響

実証プラントの硝化槽より包括固定化担体を採用し、水温を 10, 15, 20, 25°C と設定して硝化速度を後述の方法で測定した。

c) 包括固定化担体に対する pH の影響

実証プラントの硝化槽より包括固定化担体を採用し、pH を KH₂PO₄(M/15) を用いて調整し硝化速度を後述の方法で測定した。

(3) パイロットプラント及びベンチプラントによる実験

循環変法及び硝化促進型循環変法における活性汚泥の脱窒速度について BOD-SS 負荷及び水温との関係を探るため、H 市 K 処理場内に Table 2 に示すパイロットプラント及びベンチプラントを建設し、Table 3 に示す条件で運転を行った。パイロットプラントは従来の循環変法とし、滞留時間を 16 h, 12 h, 8 h とした。ベンチプラントは硝化促進型循環変法とし滞留時間を各々 7.2 h, 4.8 h として運転を行った。分析項目及び分析方法は実証プラントに準じた。

(4) 測定方法

包括固定化担体及び活性汚泥の硝化速度、活性汚泥の

RUN No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Retention time (hr)	8.1	8.1	6.2	10.3	8.2	13.6	6.6	9.2	7.6	7.9	7.9	7.9
MLSS (mg/L)	1220	1740	2190	2510	2210	2690	2800	2200	1700	2190	1960	1840
Recycling ratio (-)	3	2	3	4	5	3	3	3	2	3	3	3
Temperature (°C)	14.1	15.0	16.2	18.2	20.5	22.4	23.5	23.6	18.3	14.6	14.6	14.0

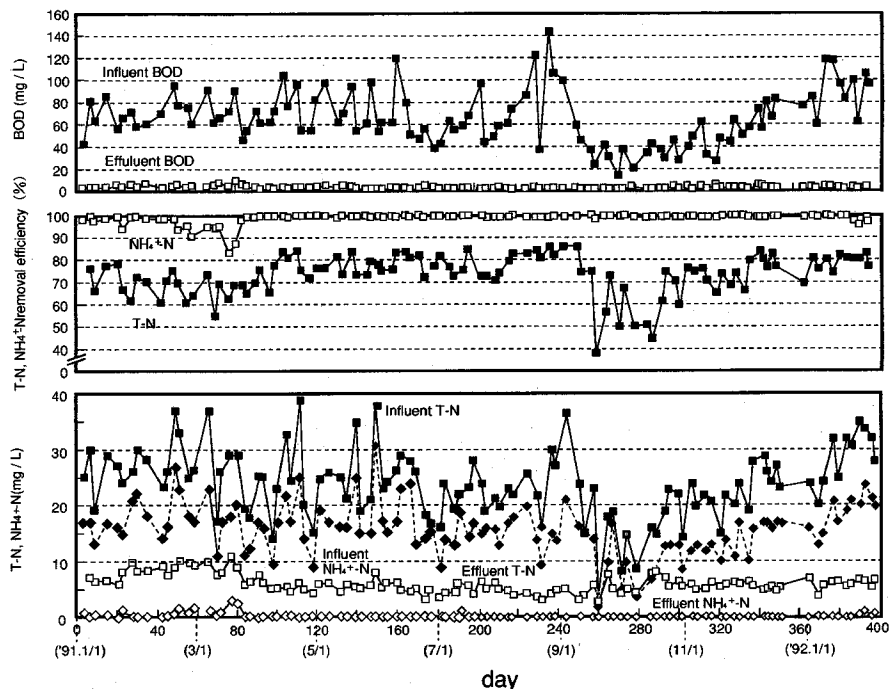


Fig.10 Treatment results throughout a year.

脱窒速度及び包括固定化担体内の菌体数を下記に示す方法により測定した。

a) 硝化速度の測定

真容積で 100 mL の包括固定化担体をメスシリンダー 1 L に採取し、初期 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度を 20 mg/L とするよう、 NH_4Cl で $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度 200 mg/L に調整した $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 合成無機廃水⁸⁾を希釈して添加し 1 L とし後、充分通気しながら経過時間ごとに包括固定化担体を含む溶液を採取し 5 A ろ紙のろ液について、その $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 濃度を測定した。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度の変化は、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度が非常に低い値、0.5 mg/L 程度まで直線的に減少したのでその傾きから硝化速度を求めた。

また、活性汚泥の硝化速度は返送汚泥 500 mL を採取し、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 合成無機廃水を添加して初期 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度を 20 mg/L に設定し、担体の場合と同様に求めた。

b) 硝化細菌数の測定

包括固定化担体を破砕した後、微生物を分散させ MPN 法⁹⁾で測定した。包括固定化担体の破砕にはホモジナイザー (池本理科製、PA 型) を用い、10 000 rpm で、10 分間の処理を行った。分散には超音波処理装置 (日本精機製、US 300 型) を用いた¹⁰⁾。

c) 脱窒速度の測定

脱窒速度は各プラントの運転の窒素の収支から求めた。原水、硝化循環液、脱窒槽 MLSS 混合液及び返送汚泥を 5 A ろ紙でろ過した後各 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 濃度を測定し、その収支と MLSS 濃度から脱窒槽における単位汚泥量当たりの脱窒速度として算出した。

3. 実証施設における処理結果

施設の改造後、90 年 11 月より反応槽に余剰汚泥を投入するとともに、硝化槽に硝化槽容積に対して 7.5% (22.5 m³) の包括固定化担体を投入し、馴養を開始した。硝化槽での $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の硝化率はほぼ 1 か月で 90% 以上となり、馴養がほぼ完了したと判断して 91 年 1 月から性能調査を実施した。Fig.10 に連続運転期間中の BOD 濃度、T-N 濃度、及び $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度の経日変化を示す。また、Table 4 に各 RUN の処理結果の平均値を示す。

RUN1, 6, 10, 11, 12 では滞留時間 8 h、循環比 3 とし、水温の影響を確認した。低水温期 (水温 14.1°C) の RUN 1 において、滞留時間 8.1 h で処理水 T-N 濃度は 6.6 mg/L (T-N 除去率 74.3%) が得られた。RUN 3, 7 では滞留時間 6 h、循環比 3 で運転を行った。特に低

Table 4 Operational conditions and treatment performance.

Run No.	1		2		3		4		5		6		7		8	
Period	Jan.1~30.'91		Jan.31~Mar.14		Mar.15~Apr.16		Apr.17~May.7		May.8~23		May.24~Jun.30		Jul.1~Jul.19		Jul.20~Sep.30	
Retention time (h)	8.1		8.1		6.2		10.3		13.6		8.2		6.6		9.2	
Temperature (°C)	14.1		15.0		16.2		17.7		24.0		20.7		14.6		8.4	
M L S S (mg/l)	1220		1740		2190		2510		2210		2690		2800		2200	
S R T (d)	20.7		14.1		16.6		17.7		24.0		20.7		14.6		8.4	
Recycling ratio (-)	3.0		2.1		2.9		4.0		5.1		3.1		2.8		3.3	
	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.
BOD (mg/l)	66.1	3.7	71.2	4.6	70.3	3.8	76.6	3.0	69.5	3.3	68.9	2.0	54.3	1.6	67.5	1.5
s-BOD (mg/l)	32.5	2.3	34.3	2.6	38.2	3.3	34.6	2.1	37.2	2.1	34.9	1.7	32.2	1.4	37.5	1.4
SS (mg/l)	60.3	3.7	69.1	5.8	53.7	3.9	63.3	2.9	47.3	2.5	47.8	1.5	47.6	1.0	63.4	1.3
T-N (mg/l)	25.7	6.6	28.0	8.8	23.9	6.8	24.8	5.4	25.0	5.2	25.0	5.3	22.0	4.7	21.7	4.7
NH4-N (mg/l)	16.6	0.3	18.7	0.7	15.8	0.7	16.9	<0.1	18.0	0.1	18.4	<0.1	14.3	<0.1	14.5	<0.1
NO3-N (mg/l)	0.8	5.4	0.6	6.3	0.5	4.4	0.5	4.3	0.4	4.3	0.4	4.3	0.3	3.8	0.5	4.0

Run No.	9		10		11		12		13		14		15		16	
Period	Oct.1~ Dec.5		Dec15~Jan9.'92		Jan.10~23		Jan.24~Feb.4		Feb.12~Mar.2		Mar.3~17		Mar.18~24		Mar.25~Apr.2	
Retention time (h)	7.6		7.9		7.9		7.9		5.7~13.3		6.2~11.4		5.7~13.3		5.0~7.5	
Temperature (°C)	18.3		14.6		14.6		14.0		14.2		15.0		14.4		15.5	
M L S S (mg/l)	1700		2190		1960		1840		1870		2090		1930		2000	
S R T (d)	17.2		11.4		9.0		9.0		8.8		9.1		8.8		6.2	
Recycling ratio (-)	2.1		2.9		3.0		2.7		2.0~7.0		1.8~4.4		1.8~5.6		1.7~3.1	
	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.
BOD (mg/l)	40.0	2.4	74.0	2.0	104.0	2.7	90.4	2.6	118.0	3.7	96.6	3.7	84.1	3.2	77.1	4.2
s-BOD (mg/l)	15.3	1.2	28.4	1.5	47.1	2.6	49.4	1.4	61.1	2.5	50.8	1.0	25.3	1.2	38.0	1.9
SS (mg/l)	37.1	3.2	67.8	2.3	61.3	2.2	65.7	2.4	70.6	3.0	78.4	3.3	68.6	2.4	55.7	3.0
T-N (mg/l)	18.7	5.9	23.6	5.3	30.0	6.0	32.3	6.3	28.2	7.8	25.2	7.2	21.8	6.5	20.4	6.2
NH4-N (mg/l)	11.0	<0.1	15.6	<0.1	19.5	<0.1	21.3	0.6	17.6	1.4	16.5	1.3	13.4	0.4	12.8	0.3
NO3-N (mg/l)	1.4	5.1	0.8	4.4	0.5	5.0	0.5	4.9	0.6	5.1	0.5	4.6	0.5	4.8	0.4	5.0

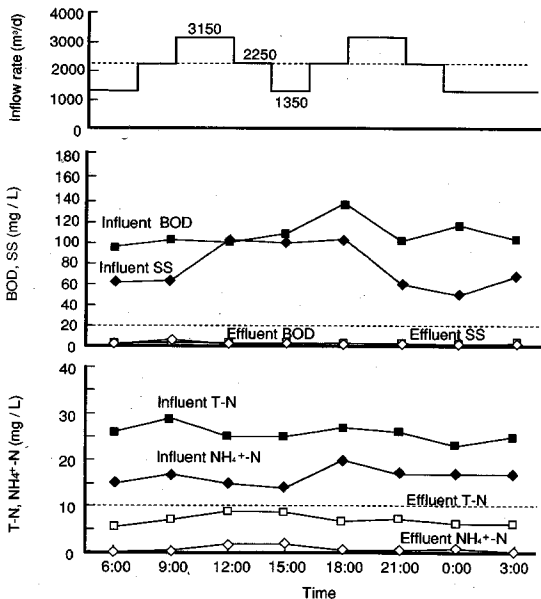


Fig.11 Treatment results of influent flow fluctuation test.

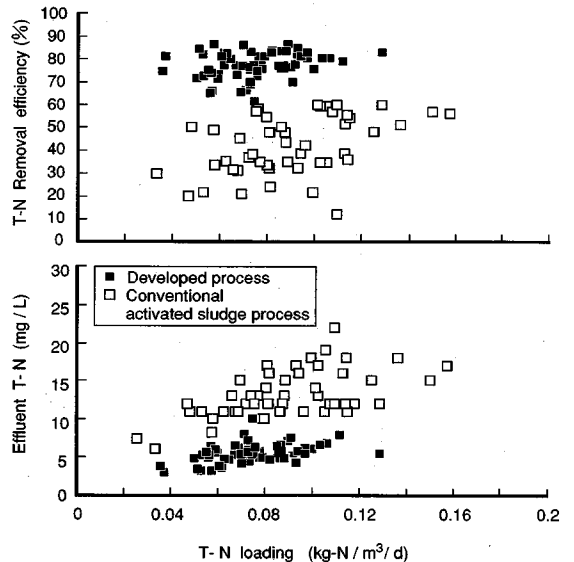


Fig.12 Influence of T-N loading rate on effluent T-N concentration and removal efficiency.

水温期のRUN 3においては、水温 16.2°C、滞留時間 6.2h で処理水 T-N 濃度は 6.8 mg/L (T-N 除去率 71.5%) と安定した結果を得ることができ、滞留時間 6

h 程度でも 70% 程度の T-N 除去率が得られることを確認した。また、Fig.10 より、年間を通して処理水 NH4+-N 濃度は 1 mg/L 以下、処理水 T-N 濃度は 10 mg/L 以

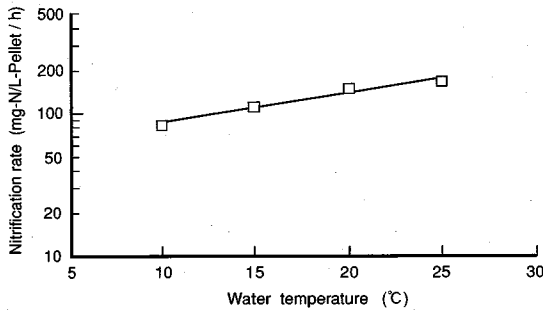


Fig.13 Influence of water temperature on nitrification rate.

下であった。

RUN 13, 14, 15 では滞留時間 8 h に対し ±30% から ±40% の流入水量変動を与え, RUN 16 では滞留時間 6 h に対し ±20% の水量変動を与えた。Fig.11 に RUN 13 の処理結果を示す。この程度の水量変動の変動幅であれば, 特に循環比等の制御を行わなくても安定した処理が可能であることが確認できた。

Fig.12 に T-N 容積負荷と処理水 T-N 濃度及び除去率との関係, 並びに対照系列として並行して運転されている標準活性汚泥法の処理結果を示す。Fig.12 より T-N 容積負荷 $0.13 \text{ kg-N/m}^3/\text{d}$ 以下で, 処理水 T-N 濃度は 10 mg/L 以下と安定した処理が可能であることが分かる。対照系列の標準活性汚泥法処理施設は, 滞留時間 $5.1 \sim 8.2 \text{ h}$, MLSS 濃度 $1,150 \sim 2,660 \text{ mg/L}$, SRT $5 \sim 13 \text{ d}$ で運転されており, 年間を通した T-N 除去率は平均 43% であり, また, 時期によって大幅に変動している。一方, 開発プロセスでは概ね 70% 程度の T-N 除去率が得られており, 安定した窒素除去が可能であった。

4. 包括固定化担体及び活性汚泥の硝化, 脱窒速度

(1) 包括固定化担体に対する温度の影響

実証プラント運転の RUN 9 の包括固定化担体を採取し水温を変化させて硝化速度を測定した。Fig.13 にその結果を示す。このように硝化速度は水温に依存するので式 (8) で表すことができる。

$$K_{NP} = a \cdot \exp(b \cdot T) \quad (8)$$

ここで, K_{NP} : 包括固定化担体の硝化速度 (mg-N/L-担体/h)

a, b : 係数

Fig.13 から, 包括固定化担体の硝化速度と水温との関係として次式が得られ, 水温 20°C で 140 mg-N/L-担体/h 程度の硝化活性が得られた。

$$K_{NP} = 55.5 \exp(0.0452T) \quad (9)$$

Table 5 Coefficient of water temperature on nitrification rate.

No.	a	b	Reference
1	0.1197	0.1295	Demonstration plant ⁽¹¹⁾
2	0.1591	0.0906	Existing plant and Batch test ⁽¹¹⁾
3	0.369	0.0788	Batch test ⁽¹¹⁾
4	0.2887	0.0762	Batch test ⁽¹²⁾
5	0.607	0.0714	Batch test ⁽¹²⁾
6	0.451	0.0733	Batch test ⁽¹²⁾
7	0.377	0.0788	Batch test ⁽¹²⁾
8	0.380	0.065	Existing plant and Batch test ⁽¹³⁾
9	--	0.0315	Immobilized, Batch test ⁽⁶⁾

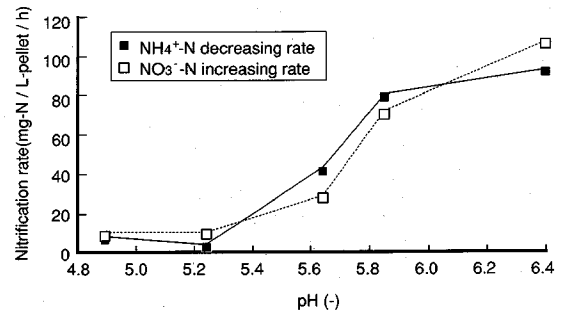


Fig.14 Effect of pH on nitrification rate.

Table 5 に活性汚泥の硝化速度の係数のデータ例を示すが^{(11), (12), (13), (6)}, 温度係数 b の値は, 活性汚泥が $0.065 \sim 0.1295$ であるのに対し, 包括固定化担体では $0.0315 \sim 0.0452$ と小さく, 包括固定化担体の方が水温の影響を受けにくいことが認められた。

(2) 包括固定化担体に対する pH の影響

硝化細菌の最適 pH はおおよそ 8.5 前後であると言われている^{(14), (15)}。包括固定化担体内の硝化細菌に対する pH の影響を見るため, 硝化槽内の pH より低い pH 条件での硝化速度を測定し, Fig.14 に示した。これより, 硝化槽の定常運転時における pH 6.4 では, 包括固定化担体の硝化速度はおおよそ 100 mg-N/L-担体/h が得られるが, pH 5.8 程度を境として硝化速度は著しく低下することが認められた。循環変法では, 硝化槽での pH の低下を原水中のアルカリ度と脱窒反応により回収されるアルカリ度で補うため, アルカリを添加しない場合が多い。したがって, 硝化槽内の pH は中性より低くなる傾向にあり, pH の調整をしていない実証施設の硝化槽内 pH も 6.2 から 6.9 であった。

(3) 担体内の菌体数

実証プラント運転の RUN 9 の包括固定化担体内の細

Table 6 Number of nitrifying bacteria.

Item	Pellet		Activated sludge
	(Cells / mL - Reactor)*	(Cells / mL - Pellets)	(Cells / mL - Reactor)
Ammonia oxidizing bacteria	10^6 to 10^7	10^7 to 10^8	10^5 to 10^6
Nitrite oxidizing bacteria	10^5 to 10^6	10^6 to 10^7	10^4 to 10^5

* In the case of pellets dosing ratio at 7.5% in reactor

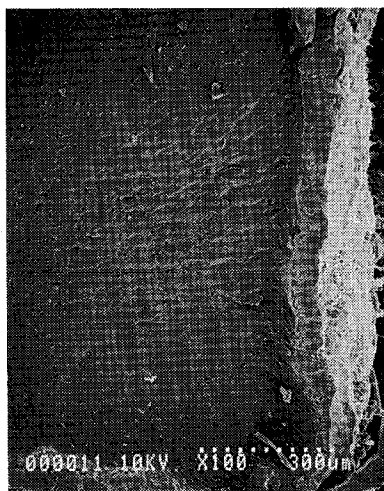


Fig.15 Cross section of pellet.

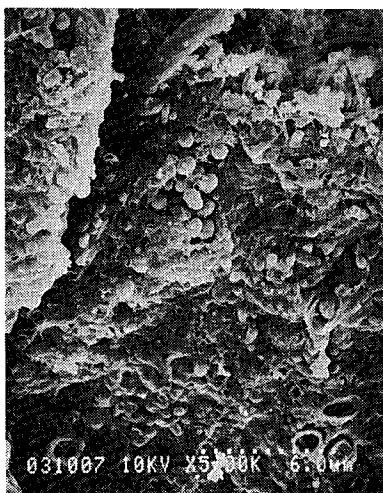


Fig.16 Bacteria in colony.

菌数の計測を行った結果を **Table 6** に示す。比較のためにA-SRTを保持し硝化が充分行われている活性汚泥の硝化細菌数を合わせて示す¹⁶⁾。包括固定化担体単位容量当たりの硝化細菌数は $10^7 \sim 10^8$ cells/mL-pelletsである。反応槽に包括固定化担体を7.5%程度添加した場合、反応槽容積当たりの硝化細菌数を比較すると系内には活性汚泥法の10倍以上の硝化細菌が保持できることが認

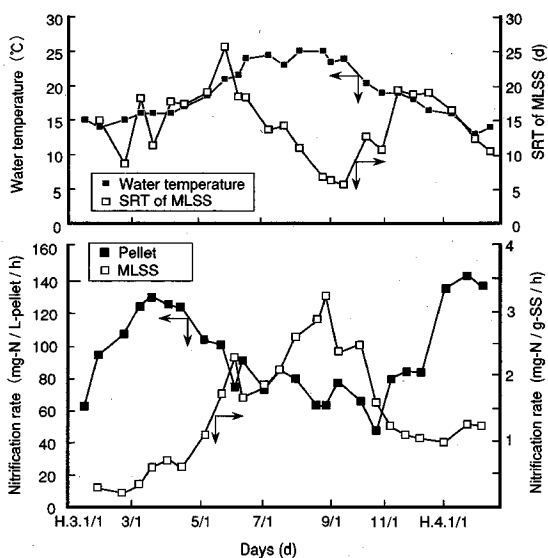


Fig.17 Nitrification rate changing of pellet and MLSS throughout a year.

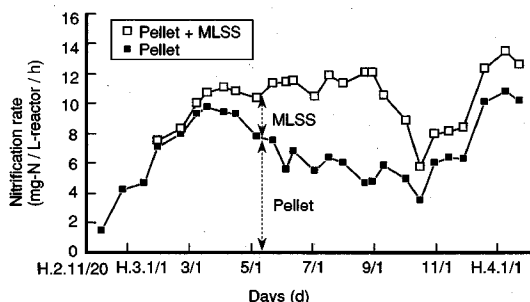


Fig.18 Nitrification rate per reactor volume changing of pellet and MLSS throughout a year.

められた。同時期に採取した包括固定化担体の電子顕微鏡写真を **Fig.15**, **Fig.16** に示す。 **Fig.15** より包括固定化担体ゲルの表層から内部約60ミクロンの厚さに細菌がコロニー層を形成していることが観察された。細菌数の測定結果及びこの電子顕微鏡の観察から、高分子ゲルの中で棲息する硝化細菌の密度は活性汚泥中のそれに比べ高いことが認められた。

(4) 包括固定化担体と活性汚泥の硝化能分担

Fig.17 に実証施設における年間の包括固定化担体及び浮遊汚泥の硝化速度の変化を示す。包括固定化担体の硝化速度は冬期に最大値(146 mg-N/L-担体/h)を示し、夏期に低下する傾向がみられる。一方、硝化槽に共存する活性汚泥の硝化速度は夏期に最大(3 mg-N/g-SS/h)となる。

この結果を硝化槽単位容積当たりの硝化速度に換算し

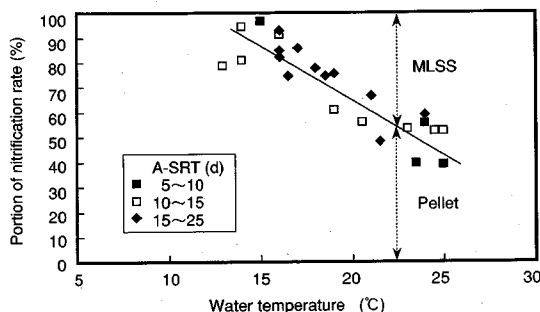


Fig.19 Portion of nitrification rate between pellet and MLSS on water temperature.

て整理すると、Fig.18 のようになる。活性汚泥の硝化能は温度係数の比較でも明らかなように包括固定化担体に比べ温度の影響を受けやすく、A-SRT と水温により変化する。Fig.18 より、包括固定化担体の硝化能が活性汚泥の硝化能の変化を補完するかたちで、全体の流入負荷に対応する硝化性能が得られていることが認められる。活性汚泥と包括固定化担体の硝化細菌の棲息条件を比較すると、NH₄-N の透過性ならびに溶存酸素の拡散の観点からは活性汚泥中の棲息条件の方が有利であり、水温が高く A-SRT が充分保持できる条件では活性汚泥中の硝化細菌の方が先に硝化を進めると考えられる。水温が下がり活性汚泥中に硝化細菌の保持ができなくなると、包括固定化担体内の硝化細菌が硝化を受けもつことになる。Fig.18 に示す活性汚泥と包括固定化担体の硝化速度の合計を 100% としたときの、各々の硝化速度の比率と水温との関係を、A-SRT を大別して各 A-SRT の範囲ごとに Fig.19 に示す。これより実証施設で A-SRT が 5 d から 25 d の範囲で、水温 13°C 付近では包括固定化担体が全体の硝化能の大部分を担い、水温の上昇とともに浮遊汚泥の活性が増加し、25°C 付近で各々がほぼ同程度の硝化能を分担している。

(5) 脱窒速度

包括固定化担体を用いた硝化促進型循環変法では、従来の循環変法に比べ単位汚泥量当たりの脱窒速度が上昇することが認められている^{17),18)}。一方、循環変法¹⁹⁾、内生脱窒法²⁰⁾においても脱窒速度が BOD-SS 負荷の増加とともに高まることが報告されている。

負荷条件を変化させた各プラントについて、平均水温が 15°C (13~17°C) の条件における脱窒速度と反応槽の BOD-SS 負荷との関係を Fig.20 に示す。実証プラント、パイロットプラント及びベンチプラント運転の結果では BOD-SS 負荷は 0.05~0.28 kg/kg-SS/d の範囲にあり、この範囲では BOD-SS 負荷が高くなるほど脱窒速度が比例的に大きくなる傾向が認められた。ここ

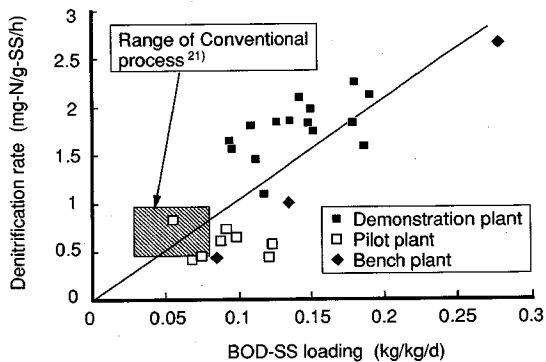


Fig.20 Relation between denitrification rate and BOD-SS loading.

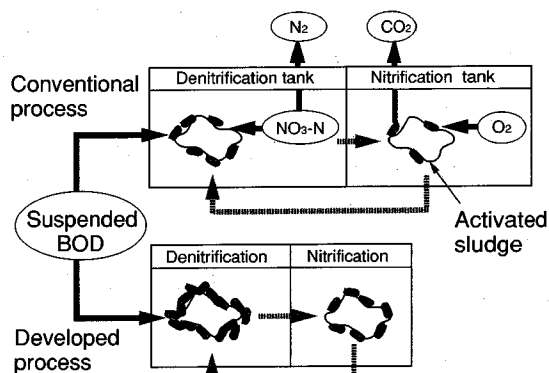


Fig.21 Recirculation of absorbed BOD with activated sludge.

で、連続測定した脱窒速度は、脱窒槽出口（または脱窒槽内）の NO₃-N 濃度が 0.2 mg/L 以上残存し、NO₃-N の不足による見掛け上の脱窒速度の低下がない範囲で測定したものである。

循環変法と硝化促進型循環変法の脱窒速度の違いは、脱窒槽の BOD 負荷の違いによると考えられる。脱窒に利用されやすいのは s-BOD であるが、Table 4 に示すように流入水 BOD のほぼ半分が SS 性 BOD であり、SS 性 BOD の挙動が脱窒速度に大きく影響することが推測された。森山ら²⁰⁾は内生脱窒法における活性汚泥の蓄積有機物量の増加が脱窒速度の高速化の要因となることを示している。

有機物の代謝速度を一次反応で表現できると仮定すると次式が成り立つ。

$$1/X \cdot dC/dt = 1/\alpha \cdot (dS/dt + dA/dt) \quad (10)$$

ここに、C: 硝酸性窒素濃度 (mg/L)

X: MLSS (mg/L)

α: 比例定数 (-)

S: 脱窒反応に関与する溶解性有機物量 (mg/g-MLSS)

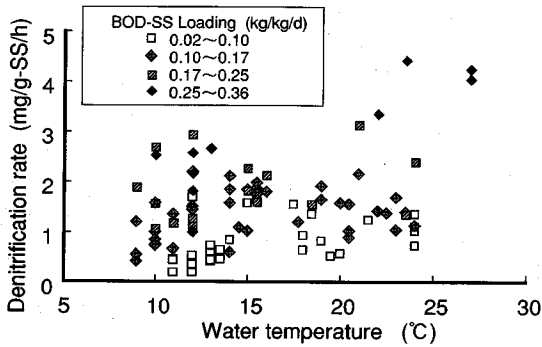


Fig. 22 Effect of BOD-SS loading and water temperature on denitrification rate.

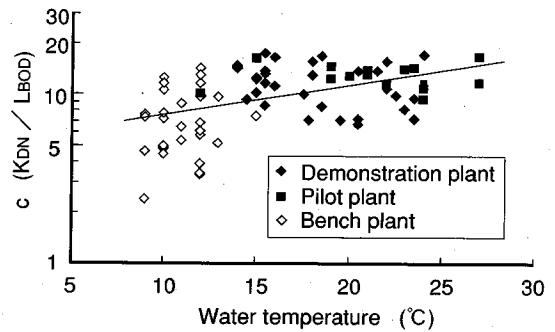


Fig. 23 Relationship between coefficient c and water temperature.

A: 脱窒反応に関する蓄積有機物量
(mg/g-MLSS)

$$dA/dt = K_1 A, \quad dS/dt = K_2 S \quad (11)$$

K_1, K_2 : 各有機物の代謝速度定数 (1/h)

式 (10) 式より溶解性有機物 (S) ならびに蓄積有機物 (A) の増加は脱窒速度の高速化を意味する。Fig. 21 に循環変法及び硝化促進型循環変法のシステムの SS 性 BOD の挙動を模式的に示す。脱窒槽に流入した SS 性 BOD は、脱窒槽混合液を 5 A ろ紙でろ過したろ液がほとんど数 mg/L 程度であることから、速やかに活性汚泥に吸着されると考えられる。活性汚泥に吸着された SS 性 BOD は、汚泥の蓄積有機物としてその一部は脱窒槽で分解され脱窒に利用された後、硝化槽でさらに酸化され、硝化槽から混合循環液及び返送汚泥として脱窒槽に循環される。したがって、式 (10) より、SS 性 BOD を含む下水処理の循環変法及び硝化促進型循環変法のシステムでは、脱窒槽で脱窒に利用される BOD は、厳密には脱窒槽に流入し主に脱窒槽で分解されると考えられる s-BOD、並びに汚泥に吸着された SS 性 BOD のうち硝化槽で酸化された後脱窒槽に循環される蓄積有機物による BOD の合計として表す必要がある。

従来の循環変法では硝化槽の A-SRT を確保するため、滞留時間が標準活性汚泥法以上の 10 時間程度を必要とし、蓄積有機物の相当の部分が硝化槽で酸化されていたと考えられる。これに対し、硝化促進型循環変法では包括固定化担体を添加することにより硝化槽の滞留時間が 3 h 程度に短縮され、これに伴い脱窒槽に循環される蓄積有機物量が従来の循環変法より多くなる。このことより、脱窒槽に循環される蓄積有機物は硝化槽の BOD-SS 負荷により決定されるといえる。これらのことから、脱窒速度は脱窒槽及び硝化槽の全体 BOD-SS 負荷との関係で論じることが妥当と考えられる。

Fig. 22 に水温と BOD-SS 負荷を大別し各負荷範囲ごとの脱窒速度を示す。Fig. 22 より、従来の循環変法に

比べ BOD-SS 負荷の高い範囲に準じて高い脱窒速度が、また、水温についても高いほど脱窒速度の上昇が大きくなる傾向が認められた。Fig. 20 に示したように BOD-SS 負荷と脱窒速度はほぼ比例関係にあることが認められたことから、脱窒速度と BOD-SS 負荷との関係、及び水温との関係をそれぞれ式 (12)、(13) として表わすこととした。

$$K_{DN} = c \cdot L_{BOD} \quad (12)$$

ここに、 K_{DN} : 脱窒速度 (mg-N/g-SS/h)

c : 係数 (= K_{DN}/L_{BOD})

L_{BOD} : BOD-SS 負荷 (kg/kg-SS/d)

$$c = m \cdot \exp(n \cdot T) \quad (13)$$

m, n : 係数

Fig. 23 に水温と係数 c との関係を示す。Fig. 23 より式 (12) が成立するとして m, n を求めると式 (14) として表される。

$$c = 5.36 \exp(0.0370T) \quad (14)$$

従来の循環変法では硝化活性を保つために充分な A-SRT を確保する必要から硝化槽容量が大きくなり、結果的に反応槽全体として BOD-SS 負荷が 0.025~0.08 kg/kg-SS/d と比較的低い範囲で運転されており、脱窒速度も 0.5~1.0 mg-N/g-SS/h であった²¹⁾。これに対し、包括固定化担体を添加した硝化促進型循環変法では、循環変法の硝化槽の滞留時間を短縮し脱窒に利用される汚泥に吸着された BOD 量の増加により脱窒速度が上昇すると考えられる。今後、汚泥に吸着された有機物量の定量化と脱窒速度との関係についてさらに検討を進めていく予定である。

この脱窒速度の上昇により、包括固定化担体を添加し硝化槽滞留時間が短縮できたのと同時に、脱窒槽滞留時間も短縮することが可能となり、反応槽全体として循環変法の 1/2 程度、すなわち標準活性汚泥法と同等の滞留時間で BOD と窒素の同時除去が可能となった。

5. 結 論

筆者らは、硝化細菌を高濃度に保持できる包括固定化担体を硝化槽に添加するコンパクトな下水処理プロセス、硝化促進型循環変法を開発した。このプロセスを用いれば、既存施設の反応槽容量を拡張することなく、BODと窒素の同時除去が可能となる。

硝化促進型循環変法について、包括固定化担体及び活性汚泥の硝化及び脱窒特性について以下にまとめる。

a) 包括固定化担体の硝化速度は一般的な下水を用いた場合、活性汚泥に比べ温度の影響を受けにくく水温20°Cで140 mg-N/L-担体/h程度の硝化活性が得られた。

b) 包括固定化担体内の菌体数は、担体当たりでは、 $10^7 \sim 10^8$ cells/L-担体となり、これは反応槽に担体を7.5%添加した場合、硝化細菌を充分保持した活性汚泥中の硝化細菌数の10倍以上を保持できることになる。

c) 活性汚泥の硝化能は包括固定化担体に比べて温度の影響を受けやすく、季節的水温の変化に対応して変化し、包括固定化担体の硝化能がそれを補完するかたちで全体の流入負荷に対応する硝化性能が得られていることが認められた。

d) 脱窒速度は、 $\text{NH}_4\text{-N}$ が硝化される範囲で好気時間の短縮を図りBOD-SS負荷を高く保つことにより大きくなることが認められ、従来の循環変法に比べ包括固定化担体を添加することにより硝化槽のみならず脱窒槽の滞留時間を短縮することができた。

e) 以上の結果、硝化促進型循環変法は循環変法の1/2程度、すなわち標準活性汚泥法と同等の滞留時間でBODと窒素の同時除去が可能である。

なお、本研究の一部は建設省総合開発プロジェクト「バイオフォーカスWT」により実施されたものである。

参考文献

- 1) 建設省都市局下水道部：日本の下水道，平成6年度，1994。
- 2) 朝日新聞：海の窒素とリン環境基準を設定，平成5年6月11日朝刊，1993。
- 3) 堺 好男，酒井憲司，見上博：硝化の促進と嫌気，好気併用をコンセプトとした水処理施設的设计，月刊下水道，Vol.13, No.7, pp.67-72, 1990。
- 4) 江森弘祥，中村裕紀，多田 実，川口幸男：固定化硝化細菌を用いた浮遊循環型窒素除去プロセスの検討，第25回下水道研究発表会講演集，pp.412-414, 1988。
- 5) T. Sumino, H. Nakamura, N. Mori and Y. Kawaguchi :

Immobilized of Nitrifying Bacteria by Polyethylene Glycol Prepolymer, Jr. of *Fermentation and Bioengineering*, Vol.73, No.1, pp.37-42, 1992.

- 6) 江森弘祥，森 直道，斉藤克夫，多田 実：固定化硝化細菌を用いた硝化促進型循環変法の検討，第28回下水道研究発表会講演集，pp.94-96, 1990。
- 7) 江森弘祥，中村裕紀，斉藤克夫，藤井裕子：硝化促進型循環変法における反応槽構造の検討，第28回下水道研究発表会講演集，pp.496-498, 1991。
- 8) 田中和博，糸川直樹，角野立夫，糸川直樹：硝化細菌の固定化担体内における増殖特性，第49回土木学会年次学術講演会講演概要集，pp.1126-1127, 1994。
- 9) 鈴木達彦編：土壤微生物実験法，養賢堂，pp.21-41, 1978。
- 10) 江森弘祥，中村裕紀，角野立夫，森直道，茂木勝三：包括固定化微生物とペレット内の菌の挙動，第27回日本水環境学会年次講演集，pp.530-531, 1993。
- 11) 日本下水道事業団技術評価委員会：微生物を利用した窒素及びリン除去プロセスの評価に関する第一次報告書，活性汚泥による循環変法，1986。
- 12) 小越真佐司，佐藤和明，野村克巳：循環式硝化脱窒法に付加するりん除去用凝集剤の検討，衛生工学研究論文集24, pp.105-116, 1988。
- 13) 森山克美，佐藤和明，原田良誠，北村武之：硝化内生脱窒素に関する研究，衛生工学研究論文集24, pp.65-74, 1988。
- 14) Meyerhof, O., Untersuchungen über den atmungsvorgang Nitrifizierenden Bakterien. *Pflügers Archges Physiol.*, 166, pp.240-280, 1917.
- 15) Sawyer, C.N., Wild, H.E., Jr., and T.C. McMahon, Nitrification and Denitrification Facilities, Wastewater Treatment. Prepared for the EPA Technology Transfer Program, August, 1973.
- 16) 関根孝夫，松永旭，新井喜明，稲森悠平，砂原広志：活性汚泥法のSRT制御下における硝化特性と細菌相，下水道協会誌，Vol.25, No.289, pp.29-37, 1988。
- 17) 江森弘祥，中村裕紀，竹島正，茂木勝三：硝化促進型循環変法における脱窒速度の検討，第30回下水道研究発表会講演集，pp.530-532, 1993。
- 18) 江森弘祥，中村裕紀，美川一洋，浜谷素子：包括固定化担体を用いた硝化循環変法における浮遊汚泥の脱窒速度について，第48回土木学会年次学術講演会講演概要集，pp.1262-1263, 1993。
- 19) 建設省高度処理会議：高度処理施設設計資料，pp.172, 1994年。
- 20) 森山克美，高橋正宏，原田良誠，北村武之：硝化・内生脱窒法における脱窒反応速度に関する研究，下水道協会論文集，Vol.29, No.339, pp.65-73, 1993。
- 21) 活性汚泥循環変法研究会：循環式窒素除去プロセスの運転管理に関する技術調査，1982。

(1994.4.20 受付)

DEVELOPMENT OF NITROGEN REMOVAL BIOREACTOR USING IMMOBILIZED MICROORGANISMS

Hiro Yoshi EMORI, Hiroki NAKAMURA, Tadashi TAKESHIMA,
Kazuhiro TANAKA and Hiroshi NAKANISHI

Conventional biological nitrogen removal processes require large reactor volume as compared with conventional activated sludge process and need large space for facilities. When required to retro-fit conventional activated sludge facility to biological nitrogen removal facility, it is very difficult to secure a site for expansion and also expansion requires large capital investment especially in crowded metropolitan area. To cope with these problems, we have developed new nitrogen bioreactor using immobilized nitrifying bacteria which are concentrated in polyethylene glycol pellet. Keeping these pellets in the nitrification tank of single-sludge pre-denitrification process, simultaneous high-rate nitrogen and BOD removal has been realized without further expansion of conventional activated sludge process facility; the retention time of the reactor is the same of conventional activated sludge process even at a low water temperature as well as 10 degrees centigrade.

世界をリードする 夢の土木構造解析システム

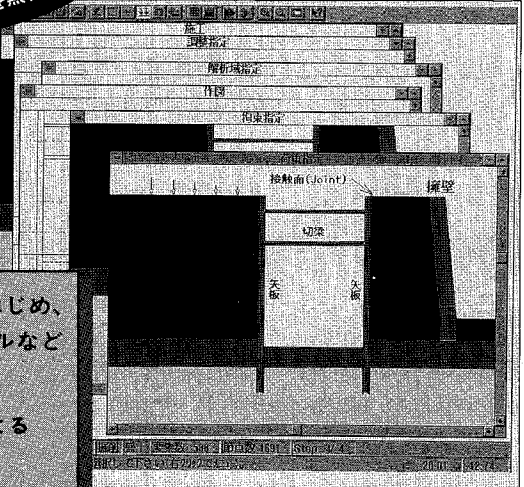
体験システムを無料提供



お確かめ下さい。うわさを。
ツーカー シグマ

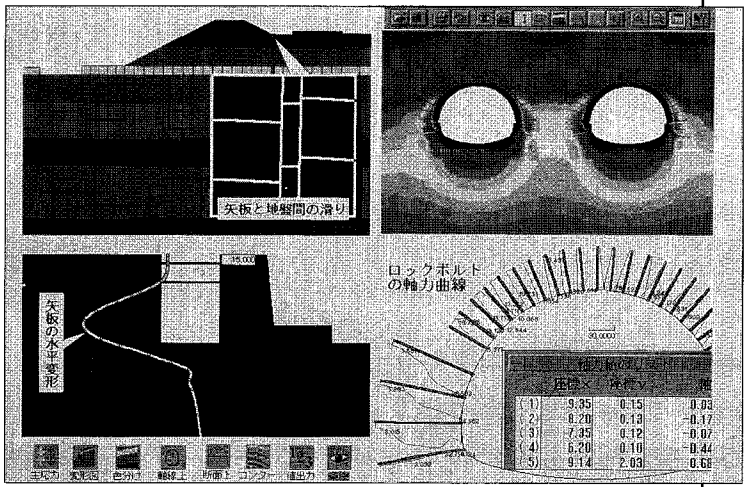
2D-σ
for Windows
Copyright © ソフトブレーン株式会社

- 建設省・通産省の研究機関をはじめ、道路公団、ゼネコン、コンサルなどのユーザーは既に数百社
- 学会での受賞、メディアによる特集記事など、評価が抜群



斬新なコンセプトと驚異の自動化・高速化・大容量。
大型機で数日間かかった解析がパソコンでわずか数十分間で / 有限要素を意識せず、誰でも、どこでも、低コストで簡単に / 一般技術者のノートPCによる現場解析も楽々 /

- 有限要素の概念は一切表に出ない。解析の条件とプロセスを内蔵の高性能CADで作成した図面へ直感的に与えるのみ。
土木構造解析特有の面倒な解析に特に有効(ステップ施工、掘削、盛土、支保・近接・拡幅、接触問題など)
- 膨大な解析容量(1万節点以上)と驚異の演算速度(たとえば5000節点前後の解析は66MhzのPCでも2、3分間で完了。)
- 豊富な入出力画面に編集を加え、説明文やキャプションを付けた上、ワンタッチで高品質の最終成果物が得られる。ワープロや表計算などの他のソフトにも図面と数値を転送できるので設計技術者が夢見る調査・設計・評価の一括自動化を実現。
- 土木解析に必要な機能のほとんどに対応(非線形、弾塑性、接触面・弱面、熱応力、地震慣性力、自動ステップ解析、掘削、盛土)



土木業界で大好評
詳細資料提供

開発・販売



ソフトブレーン(株)

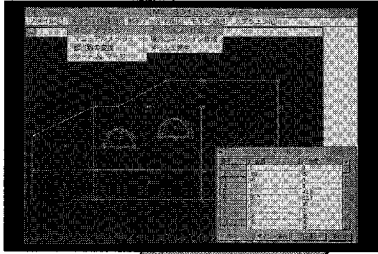
お問合せは 03-3592-7659

本社:〒001 札幌市北区北37条西4丁目 王陽ビル

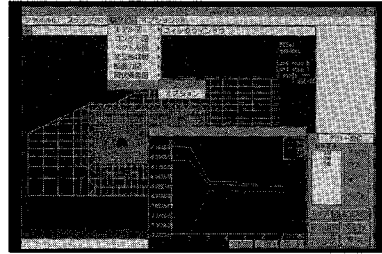
Tel 011-736-7009 Fax 011-736-7449

業界すべてのエンジニアへ 優れた機能を 抜群のコストパフォーマンスで

内蔵簡易CADによるメッシュエリア作成



応力、変位着目点はより詳細に

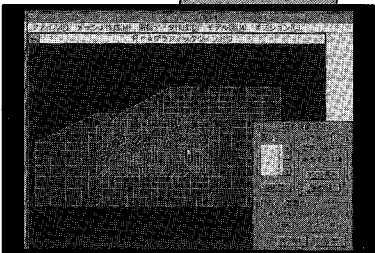


オートメッシュで簡単に
メッシュデータ作成

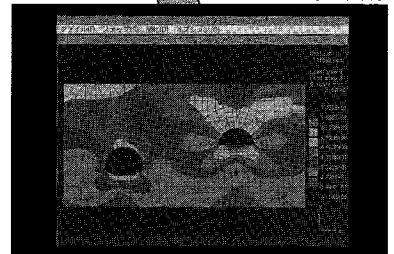
さらに詳細検討へ

充実したポスト処理機能

境界、荷重条件、掘削指定もすべてマウスで

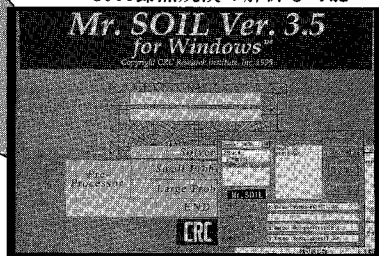


**Our Concept
Real Easy!
Real Speedy!**



高速、高精度ソルバーへ

3000節点規模の解析も可能



各種ポスト処理へ

Windowsは、米国マイクロソフト社の商標です。

画面構成は変更する場合があります。

Mr. SOILは地盤の応力、変形特性、土木構造物との相互作用を
総合的に解析可能な強力なCAEツールです。

詳細資料のご請求は下記の担当までお問い合わせ下さい。

Mr. SOIL Ver.3.5 for Windows™

開発/販売元

株式会社 **CRC総合研**

日本技術開発総資料室

業部 科学システム営業部 担当/村中
大阪市久太郎町4-1-3
241-4121 FAX 06-241-4136

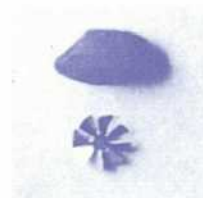
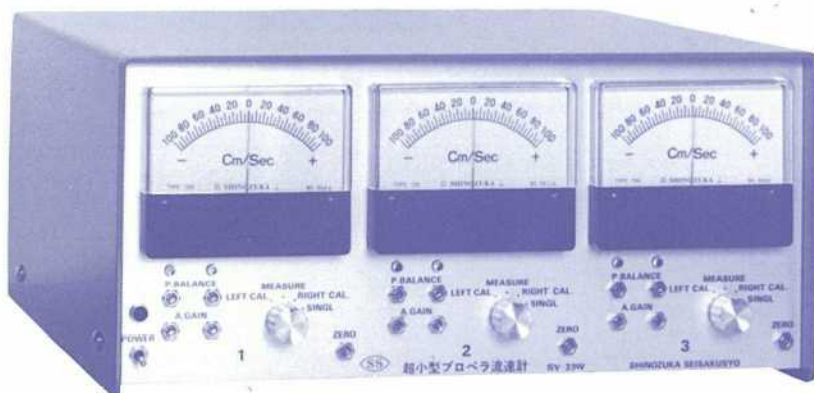


* 8 0 1 0 3 2 2 *

直径3ミリ

水理実験用に理想的

超小型プロペラ流速計 3チャンネル SV-33W型



米粒とプロペラ

- プロペラ検出器軸長
30~50cm, 軸の曲ったものも製作致します。

特 徴

- ◎ 赤外線回転検出で水温や水質に影響されません。
- ◎ 往復流の正逆判別は高感度で確実です。
- ◎ 正逆判別のないシングルのプロペラも使用出来ます。
- ◎ 独自の楕円軸に依り流れを乱すことが非常に小さくて済みます。
- ◎ プロペラが小さいので流速100cm/secで800~900パルスと高い分解能です。

水理実験用測定器専門



篠塚製作所

〒196 東京都昭島市玉川町2-8-21 電話 0425-44-1731