

(17) 嫌気－好気式高濃度活性汚泥法による窒素除去に関する研究

大阪大学工学部 橋 本 奨
○古 川 憲 治

I. はじめに

水系の富栄養化（水の華、赤潮等）の防止と、下水処理水の再資源化の観点から、下水の三次処理が現在注目を集めている。その中でも特に、藻類の栄養因子として働く窒素、リンの除去についての研究が数多く報告されている。脱リンプロセスについては、まだまだ、汚泥処理の問題、コスト的な問題等未解決な点も多いが、凝集剤添加による脱リン法が一応我が国ではその主流を占める傾向にある。窒素除去法については、種々の物理化学的方法、生理学的方法があるが、プロセスの安定性、処理コストの面から、生物学的硝化－脱窒法が最も有望な方法として認められるようになってきた。生物学的硝化－脱窒法による下廃水中からの窒素除去法は、脱窒段階での水素供与物質を何に求めるかにより、次の3つに大別される。① 活性汚泥中の内生活性由来する有機炭素源を利用する方法（Wuhrmann プロセス）⁽¹⁾、②メタノール、酢酸等の安価な単純有機化合物を利用する方法⁽²⁾⁽³⁾（3段プロセス）③ 下廃水中の有機炭素源を利用する方法⁽⁴⁾⁽⁵⁾これら3つの方法のうち、処理コストが一番安価である③のプロセスが現在の生物学的硝化－脱窒法の研究の主流となっている。我々はこの③の方法に着目し、低コストで処理ができ、プラント設置面積が小さくてすむ新しい“嫌気－好気式高濃度活性汚泥法”の開発を行ったので、以下得られた知見を報告する。

II. 実験方法

1. 実験装置

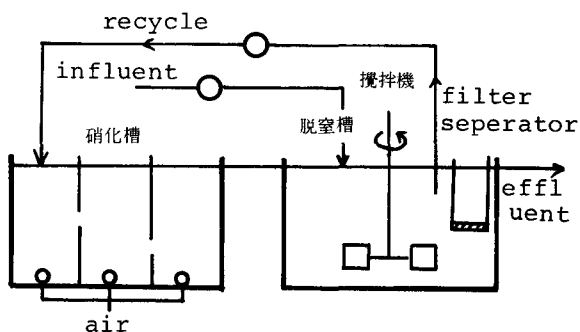
用いた実験装置を図－1に示す。流入下水を先ず緩速攪拌の嫌気脱窒槽（70ℓ）に導き、こゝで下廃水中の有機物をH－donorとして好気硝化槽（68ℓ）から流入するNO₂－N、NO₃－NをN₂に脱窒する。脱窒槽混合液は流入下廃水量の0.5～5.0倍の流速で好気硝化槽に循環される。硝化槽では生物学的硝化反応が酸素制限を受けないように、空気曝気でD.Oを3ppm以上に維持した。汚泥濃度が10,000ppmを越える本法では、従来の沈殿池による固液分離法は使えないので、図－1に示すような本研究室で開発したフィルター、セパレータ（0.21ℓ）を用いて行った。このフィルター・セパレータはアクリル製の円筒の先端にスコッチブライト印の工業用パッド（typeA, very fine）を取付けたものである。

2. 供試汚泥と合成下水組成

実験に用いた活性汚泥は、fill and draw方式で長期間（2ヶ月以上）合成下水に馴致させたものを使用した。馴致期間中のCOD－SS負荷は0.10～0.15kg/kg/日とした。使用した合成下水の組成を表－1に示す。

3. 分析方法

COD、ケルダール窒素、NO₂－N、NO₃－N、MLSS、SVIは全て下水試験法によった。NH₃－Nの測定はインドフェノール法、流出水の浮遊物濃度は1.0μのミリポアフィルターによる濾過法によった。



第1図 嫌気・好気式高濃度活性汚泥法の模式図

第1表 合成下水組成

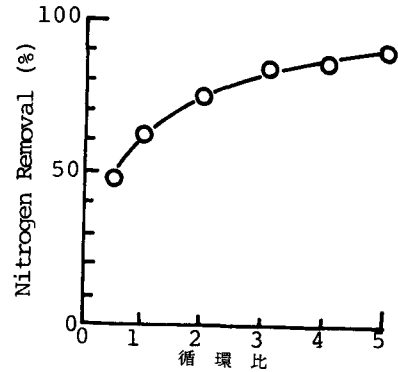
Component	g/l
Peptone	0.35
Meat Extract	0.23
Urea	0.059
NaCl	0.059
KCl	0.015
CaCl ₂	0.015
MgSO ₄	0.012
K ₂ HPO ₄	0.935
KH ₂ PO ₄	0.117
Tap Water	1.0 1
pH	6.7

COD(Cr)=550 ppm, TKN=86.5 ppm

III. 実験結果と考察

1. 脱窒挙動について

本プロセスにおける窒素除去率は、循環返送流量（ Q_r ）により大きく左右されることが判明した。循環比（ $C=Q_r/Q$ ）を大きくとることにより窒素除去率は向上する。（ Q は流入廃水量）プラントの汚泥濃度を平均活性汚泥滞留時間（ t_s ）を長くとることにより 10,000ppm と高濃度に維持し、 COD_{Cr} 、550ppm、Total-N、86ppm の水質を有する合成下水を滞留時間13.8時間で処理した。 $C=1.0$ では窒素除去率が62%であるのが、 $C=3.0$ では84%、 $C=5.0$ では90%と C の増加につれ窒素除去率が向上した。（図-2 参照）表-2に $Q_r = 4Q$ の場合の処理水質を示す。処理水中に含まれる COD も90%以上の効率で除去され、従来の炭素源添加硝化—脱窒プロセスに比して遜色のない処理結果が得られた。長期間連続運転を続けると、汚泥のSVIは僅かながら悪化する」しかしながら、この悪化



第2図 嫌気—好気式高濃度活性汚泥法における循環比と窒素除去率との関係

はフィルター、セパレータによる固液分離を困難にするものではなかった。 Q_r を可成り大きくとっている本プロセスでは、汚泥が連続して嫌気状態下におかれる時間が短い。それ故、脱窒槽における生物相は2次処理—硝化槽における生物相と相違なく、多数の有柄固着型の繊毛虫が観察された。

第2表 $Q_r = 4Q$ における処理水質

項目	Influent (ppm)	Effluent (ppm)	Removal (%)
COD (Cr)	560	36.1	93.7
COD (Mn)	150	12.0	92.0
TKN	89	12.0	86.5
NH ₃ -N	0.2	10.0	-
Org. N	88.8	2.0	98.8
NO ₂ -N	N.D	trace	-
NO ₃ -N	N.D	0.55	-
Total N	89.0	12.6	86.0
pH	6.7	6.6	
SS	-	5.9	

N. D : 検出されず

2. 物質収支からみた脱窒機作

異質の嫌気、好気両プロセスを高速度の汚泥混合液の循環で結合させ、 t_s を長くとることにより汚泥濃度を大巾に高めている本プロセスの脱窒反応が如何なる機作で行われているかを明らかにする目的で、脱窒槽における窒素物質収支を図-13に基きとってみた。

こゝで Q : 流入廃水量 ($m^3/日$)

Q_w : 引き抜き汚泥量 ($m^3/日$)

C : 循環比

V : 脱窒槽容量 (m^3)

S : 脱窒槽MLSS濃度 (ppm)

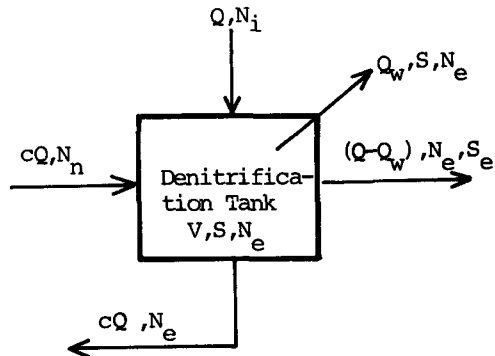
S_e : 流出水SS濃度 (ppm)

N_i : 流入窒素濃度 (ppm)

N_e : 流出窒素濃度 (ppm)

N_n : 硝化槽流出水窒素濃度 (ppm)

こゝで、硝化槽流出水窒素形態は全て NO_2-N 、 NO_3-N の形態であるとする。



第3図 完全混合脱窒槽での窒素物質収支

$$V \left(\frac{dN}{dt} \right) = QN_i + CQN_n - [\gamma CQN_n \uparrow + (Q - Q_w)N_e + Q_w N_e + CQN_e + \alpha VS + \beta (Q - Q_w) S_e] \dots\dots\dots(1)$$

- こ、で α : 活性汚泥の窒素吸着速度 (gN/kg MLSS/日)
- β : 活性汚泥の窒素含有量 (gN/ g MLSS)
- γ : 脱窒効率
- δ : 窒素増加率 (N_n/N_e)

定常状態では

$$N_e = \frac{QN_i - \alpha VS - \beta [Q_w S + (Q - Q_w) S_e]}{Q(1 + C - C\delta(1 - r))} \dots\dots\dots(2)$$

$Q_w \div 0 \text{ m}^3/\text{日}$ 、 $S_e \div 0 \text{ ppm}$ 、 $\gamma = 1$ (脱窒槽で十分なる水素共有物質が存在し、完全なる脱窒が起こる。) の場合(2)式は

$$N_e = \frac{QN_i - \alpha VS}{(1 + C)Q} = \frac{N_i - \alpha St_d}{1 + C} \dots\dots\dots(3)$$

こ、で、 $t_d = V/Q$ で脱窒槽滞留時間である。(3)式は処理水窒素濃度が、汚泥濃度、脱窒槽滞留時間、循環比により影響されることを示している。この(3)式が成立するか否か実験的に確めた。6.8ℓの硝化槽、7.0ℓの脱窒槽を用い、流入水 $COD_{cr} = 530 \text{ ppm}$ 、 $N_i = 82 \text{ ppm}$ の廃水を $S = 9.500 \text{ ppm}$ 、 $Q = 24 \text{ ℓ/日}$ の条件で循環比を種々変化させて窒素除去率を追い、(3)式から得られる理論値との比較を行った。(図-4) この理論値の計算の際に用いた α 一値は次のようにして決めた。(2)式で完全な脱窒を仮定し ($\gamma = 1$)、 α について解くと

$$\alpha = \frac{QN_i - (1 + C)QN_e - \beta(Q_w S + (Q - Q_w)S_e)}{VS} \dots\dots\dots(4)$$

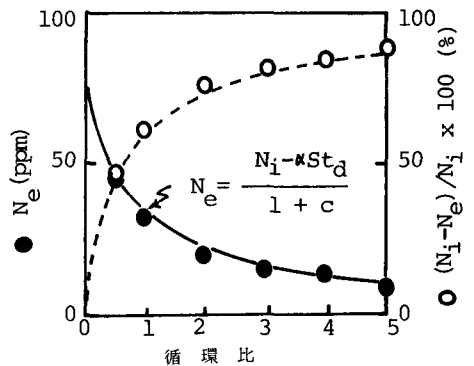
(4)式により、種々のケースにつき α 一値を算出し検討したところ、図-5に示すように α 一値はプロセスのCOD-SS負荷に関係することが明らかとなった。つまり、プロセスのCOD-SS負荷が低い程窒素吸着速度が大きくなり、窒素除去にとってその事が有利に働くことが判る。理論値計算では、図-5の関係から $\alpha = 6.0 \text{ mg N/g MLSS/日}$ の値を採用した。図-4に示すごとく、理論値と実験値とは良く一致し、(3)式による本プロセスの窒素除去効率の予測が十分可能なことが判明した。

3. 動力学的検討

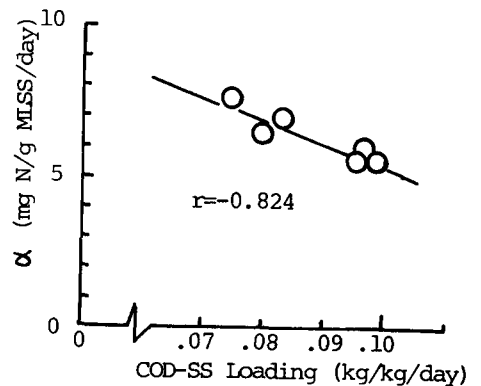
以上、嫌気-好気式高濃度活性汚泥法が、窒素の除去、CODの除去ですぐれた方法であること、その脱窒機作は(3)式でうまく説明可能なこと等を明らかにした。本節では、本プロセスの設計計算、運転制御に容易に用いることの出来る平均活性汚泥滞留時間 (t_s) の概念を含んだ動力学式を確立させる目的で行った結果を述べる。活性汚泥法の解析によく用いられる動力学基礎式として(5)式がある。

$$\mu = 1/t_s = YL_r - b \dots\dots\dots(5)$$

- こ、で μ : 活性汚泥の比増殖速度 (1/日)
- t_s : 平均活性汚泥滞留時間 (日)
- Y : 収率係数



第4図 処理水窒素濃度の理論値と実験値との比較



第5図 COD-SS 負荷と α との関係

b : 汚泥自己分解係数 (1/日)

L_r : 基質除去速度 (1/日)

(5)式で μ (又は $1/t_s$) と L_r とをプロットすることによりY、bを求めることができる。汚泥の引き抜きをほとんど行わず、 t_s を大きくとっている本プロセスでは、1つの定常値を得るのに時間がかかる。そこで非定常態下での μ を(6)式から予測した。

$$\mu = \frac{1}{t_s^*} + \frac{1}{S} \cdot \frac{dS}{dt} \quad \dots\dots\dots(6)$$

t_s^* : プラント運転時の t_s (日)

嫌気プロセスにおけるY、b値と好気プロセスにおけるそれとは異なるが、同一汚泥を用い、しかも高速度の汚泥混合液の液循環で両プロセスを結合させて窒素除去を行う本システムでは、この両プロセスの挙動を単独にとらえる事は困難である。そこで、巨視的に両プロセスを1つの反応プロセスとしてとらえ解析を行った。汚泥負荷と t_s を種々変化させた場合の汚泥量の変化と、COD除去率の変化を追い(5)式の μ と L_r との関係をプロットしたのが図-6である。このプロットをもとに直線回帰を行い、直線のスロープからYを、縦軸の切片からbを求めた。この結果、本システムの汚泥はペプトン、肉エキスを主体とする合成下水に対して0.543の収率係数と0.0291 (1/日) の自己分解係数を有することが判明した。嫌気-好気式高濃度活性汚泥法の全タンク容量を V_T とすると

$$L_r = \frac{Q(l_i - l_e)}{V_T \cdot S} \quad \dots\dots\dots(7)$$

ここで l_i : 流入基質濃度 (ppm)、 l_e : 流出基質濃度 (ppm)

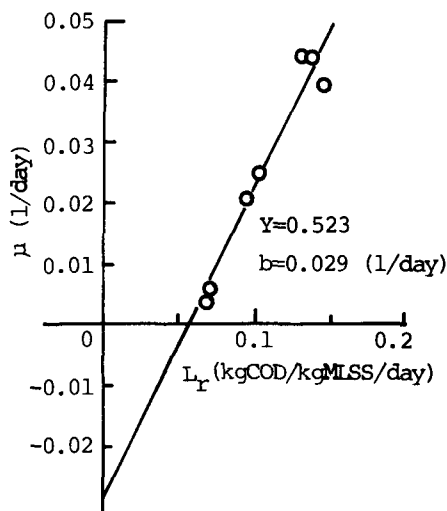
(7)式と(5)式に代入すると

$$\frac{1}{t_s} = \frac{Y}{S} \frac{Q(l_i - l_e)}{V_T} - b$$

全プロセス滞留時間 ($t_{d'}$) は V_T/Q であるから

$$\therefore S = \left(\frac{t_s}{t_{d'}} \right) \frac{Y(l_i - l_e)}{1 + bt_s} \quad \dots\dots\dots(8)$$

先に求めたY、b値より、流入COD濃度、全プロセス滞留時間 ($t_{d'}$)、平均活性汚泥滞留時間 (t_s) が判ればシステム内の汚泥濃度を(8)式より予測出来る。COD除去をそれぞれ70、80、90%とそれぞれ仮定した場合の t_s とSとの関係を図-7に示す。 t_s を大きくとる程、又COD除去率の高い程、プロセスの汚泥濃度が上がることが判る。



第6図 嫌気-好気式高濃度活性汚泥法における μ と L_r との関係

橋本⁽⁶⁾は活性汚泥法によく適合する基質除去速度式として(9)式を提案している。

$$Lr = \frac{1}{S} \frac{dl_r}{dt} = \frac{k \left(\frac{l_e}{S} \right)^n}{K + \left(\frac{l_e}{S} \right)^n} \dots\dots\dots (9)$$

こゝで l_r : 除去基質濃度 (ppm)
 l_e : 流出基質濃度 (ppm)
 k : 最大基質除去速度 (1/日)
 K : 修正 Michaelis 恒数
 n : 恒数

(9)式は、活性汚泥による基質の酸化分解反応が $\left(\frac{l_e}{S} \right)$

つまり、基質と活性汚泥との比で示される活性汚泥微生物の活性部位における基質の飽和度に依存するとしたものである。

平均活性汚泥滞留時間 (t_s)を100 日近くにとることにより活性汚泥濃度を 10,000 ppm の高濃度にもってきている。

嫌気—好気高濃度活性汚泥法では $K \left(\frac{l_e}{S} \right)$ とみなせるから(9)式は

$$\frac{1}{S} \frac{dl_r}{dt} = \frac{k \left(\frac{l_e}{S} \right)^n}{K} \dots\dots\dots (10)$$

つまり、本法における基質除去速度は $\left(\frac{l_e}{S} \right)$ に

より一義的に決まることが判る。(10)式の $\frac{1}{S} \frac{dl_r}{dt}$ と $\left(\frac{l_e}{S} \right)$ を両対数グラフにプロットすることにより k/K と n が求まる。(図—8)

以上の結果から

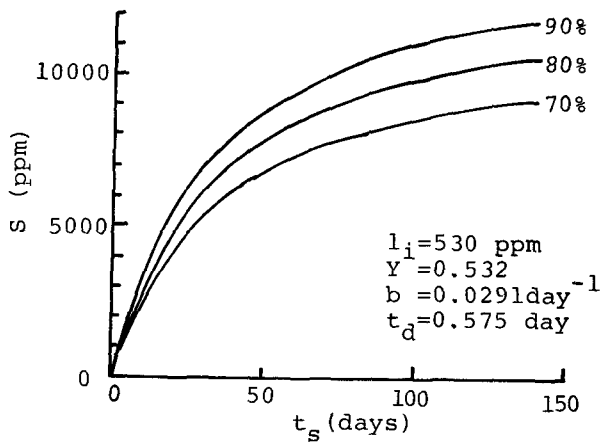
$$\mu = \frac{1}{t_s} = 0.523L_r - 0.0291 \dots\dots\dots (11)$$

$$L_r = \frac{1}{S} \frac{dl_r}{dt} = 3.71 \left(\frac{l_e}{S} \right)^{0.681} \dots\dots\dots (12)$$

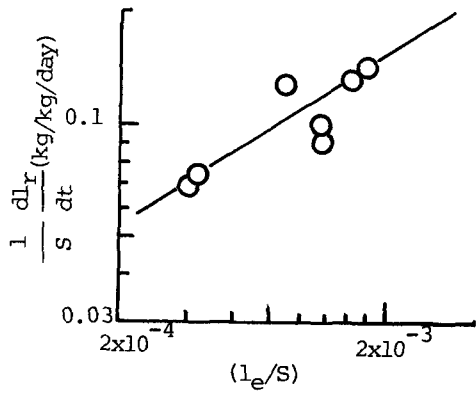
(12)より

$$\frac{1}{t_s} = 1.94 \left(\frac{l_e}{S} \right)^{0.681} - 0.0291 \dots\dots\dots (13)$$

(13)式は、 t_s と S を知るにより、処理水 COD 濃度 (l_e) を予測できることを示唆している。



第7図 t_s と S との関係



第8図 嫌気—好気式高濃度活性汚泥法による COD 除去機能

4. 嫌気－好気式高濃度活性汚泥の特長

新しく開発した本プロセスは従来の窒素除去法に比して、次のような利点を有する。

- (イ) 高汚泥濃度を採用しているため、処理速度の向上が可能である。
- (ロ) プラントの小型化が可能である。
- (ハ) 汚泥の引抜きをほとんど行わない全酸化処理方式であるため、余剰汚泥が発生しない。
- (ニ) 汚泥濃度が高いので、水質変動に対応できる。
- (ホ) 平均活性汚泥滞留時間 (t_s) を大きくとることにより、汚泥濃度を上げている本プロセスは冬場の低温時における効率の低下を最小にすることが出来る。
- (ヘ) 汚泥混合液の内部循環を考慮することにより、脱窒槽に炭素源を補填することなしに廃水中の窒素、CODを90%以上の効率で除去できる。

IV. まとめ

t_s を長くとることにより汚泥濃度を高め、脱窒槽から硝化槽への汚泥混合液の内部循環を考慮した“嫌気－好気式高濃度活性汚泥法”につきベンチ、スケールの実験装置で長期間検討の結果、Total-N、CODを90%以上の効率で除去可能なことが判明した。処理水窒素濃度は、脱窒槽における物質収支式から派生した(3)式で十分予測が出来ることを実験的に確認した。本プロセスの汚泥は合成下水に対し、0.523の収率係数と0.0291(1/日)の自己分解係数を有することが、動力学の検討の結果明らかとなった。

おわりに、本研究は昭和49年度文部省科学研究所費補助金により行ったものであることを付記しておく。

参考文献

- (1) Wuhrmann, K. : Stickstoff und Phosphorelimination Ergebnisse von Versuchen im Technischen Maßstab, Schweiz, Z Hydrol, **26**, 520 – 558 (1954)
- (2) Barth, E F., Brenner, R.C. and Lewis, R F. : Chemical – Biological Control of Nitrogen and Phosphorus in Wastewater Effluent, Jr.WPCF, **40**, No 12, 2040 (1968)
- (3) Dodd, D.J.R. and Bone, D.H. : Nitrate Reduction by Denitrifying Bacteria in Single and Two Stage Continuous Flow Reactor, Water Research, **9**, 323 – 328 (1975)
- (4) Barnard, J.L. : Biological Denitrification, Water Pollution Control, **72**, 705 – 717 (1973)
- (5) Bishop, D F, Heidman, J.A. and Stamberg, J B. : Single – Stage Nitrification – Denitrification, Jr WPCF, **48**, No.3, 520 – 532 (1976)
- (6) 橋本奨、藤田正憲：活性汚泥法の浄化反応理論に関する研究、下水道協会誌、**5**、No.50、2 – 15 (1968)