

(3) 回転円板硝化槽の動力学的解析

宮崎大学工学部 渡辺 義公
 " 石黒 政儀
 宮崎大学大学院 ○西留 清

I はじめに

回転円板法は生物学的硝化脱窒装置として多くの利点を有しており、その定性的諸特性については先に報告した^{1,2)}。本法のような生物膜利用の水処理法では生物膜内の生物化学的反應と生物膜への、および生物膜内での基質拡散の両方を考慮しなければならない。生物膜利用の水処理法の動力学的に関する既往の報告はいずれか一方を取扱ったものが多く、両方を考慮した報告は極めて少ない。本文ではアンモニア性窒素の生物膜への輸送過程と生物膜内での拡散および硝化過程を組こんだ回転円板硝化槽の動力学的モデルを提示し、合わせてモデルの実験による検証を行なう。

II 理論的考察

生物膜による汚水浄化機構を考えるに当っては、生物膜厚と生物膜表面に隣接する静止水膜の取扱い方によって理論的考察が異なる。回転円板法では円板の回転速度は数RPMであり円板表面に付着生育する生物膜にもかなりの凹凸がある。WilliamsonとMcCarty³⁾は液本体をいかに攪拌しようとも生物膜表面の凹凸によって約56μの静止水膜が存在すると述べている。また、生物膜厚は有機物の酸化や生物学的脱窒においては数mm、生物学的硝化では数百μ～数mmに達する。したがって、回転円板法の浄化機構を考える場合には生物膜厚と静止水膜の存在を考慮するのが妥当であろう。以上の理由により回転円板硝化槽の動力学的解析は図-1のようなシステム分割により行うのが最も合理的と考えられる。

液本体の $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度は一様であり、液本体から生物膜表面への $\text{NH}_3\text{-N}$ の移動は静止水膜内の分子拡散により生ずると仮定すると見かけの硝化速度($\text{NH}_3\text{-N}$ 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 $\text{NH}_3\text{-N}$ の移動過程
- (2) 生物膜内での $\text{NH}_3\text{-N}$ の拡散過程
- (3) 生物膜内での硝化反応による $\text{NH}_3\text{-N}$ の消滅過程

生物学的硝化反応では1)栄養源としての無機炭素(アルカリ度)、2)エネルギー源としての $\text{NH}_3\text{-N}$ 、3)好気的条件を形成するための溶存酸素を考慮しなければならない。ここでは理論展開にあたり、無機炭素は十分に存在するものとし、溶存酸素は生物膜内の好気性部の厚さを規定するものとして考慮する。今、液本体の $\text{NH}_3\text{-N}$ の減少速度すなわち見かけの硝化速度を考えると、単位浸漬円板面積あたりについて式-(1)をうる。

$$\frac{1}{A_w} \frac{d(VC_b)}{dt} = -\frac{D}{\delta} (C_b - C_s) \quad (1)$$

生物膜内の $\text{NH}_3\text{-N}$ については式-(2)のような物質収支式が得られ、定常状態では式-4によって生物膜内の $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度分布が与えられる。硝化反応は、 $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度が極端に低い場合を除けば零次反応であり、生物膜内の硝化菌分布を一様とする式-(3)が得られる。

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

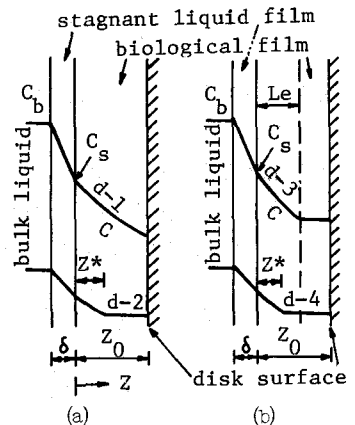


図-1 システム分割と $\text{NH}_3\text{-N}$ の濃度分布

表-1 生物膜内の $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度分布とKrの関係

濃度分布	F_s	K_r
d-1	$r\alpha Z_0 C_s$	$r\alpha Z_0$
d-2	$(2D_e r\alpha)^{\frac{1}{2}} C_s$	$(2D_e r\alpha)^{\frac{1}{2}}$
d-3	$r\alpha L_e C_s$	$r\alpha L_e$
d-4	$(2D_e r\alpha)^{\frac{1}{2}} C_s$	$(2D_e r\alpha)^{\frac{1}{2}}$

$$R = rX \quad (3)$$

$$D_e \frac{d^2 C}{dZ^2} = R \quad (4)$$

式-4を図-1の4通りの $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度分布について境界条件を設定して解くと式-(5), (6), (7)を得る。

(a) 生物膜全体が好気性の場合(図-1のa)

(a-1) $\text{NH}_3\text{-N}$ が生物膜最深部に達している場合(図-1のd-1分布)

$$C = \frac{R}{2D_e} Z^2 - \frac{R}{D_e} Z_0 Z + C_s \quad (5)$$

(a-2) $\text{NH}_3\text{-N}$ が深さ Z^* までしか達していない場合(図-1のd-2分布)

$$C = \frac{R}{2D_e} Z^2 - \left(\frac{2RC_s}{D_e}\right)^{\frac{1}{2}} Z + C_s \quad (6)$$

(b) 生物膜の一部が好気性の場合(図-1のb)

(b-1) $\text{NH}_3\text{-N}$ が生物膜最深部に達している場合(図-1のd-3分布)

$$C = \frac{R}{2D_e} Z^2 - \frac{R}{D_e} L_e Z + C_s \quad \text{for } 0 \leq Z \leq L_e = \left(\frac{2D_e C'_s}{R'}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (7)$$

$$C = C_s - \left(\frac{D'_e}{D_e}\right) \left(\frac{R}{R'}\right) C'_s \quad \text{for } L_e \leq Z \leq Z_0 \quad (8)$$

(b-2) $\text{NH}_3\text{-N}$ が深さ Z^* までしか達していない場合(図-1のd-4分布)

$$C = \frac{R}{2D_e} Z^2 - \left(\frac{2RC_s}{D_e}\right)^{\frac{1}{2}} Z + C_s \quad (9)$$

ここで、式-10のようなパラメーター α を導入して R を C_s に関する1次反応として表示する。

$$\frac{X}{C_s} = \alpha \quad (10) \quad R = rX = r\alpha C_s \quad (11)$$

生物膜表面を通過するFluxは、

$$F_s = -D_e \left(\frac{dC}{dZ}\right)_{Z=0} \quad (12)$$

定常状態では図-1のいずれの $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度分布においても式-(5), (6), (7), (9)と式-12より、 $F_s = K_r C_s$ の形が得られる。係数 K_r はそれぞれの分布状態において表-1のようになる。定常状態では見かけの硝化速度は $-F_s$ に等しくなり、次のような関係が得られる。

$$\frac{1}{A_w} \frac{d(VC_b)}{dt} = -F_s \quad (13) \quad \frac{D}{\delta} (C_b - C_s) = K_r C_s \quad (14)$$

$$C_s = \left(\frac{D}{\delta}\right) \left/ \left(\frac{D}{\delta} + K_r\right) \right. C_b = \frac{K_d}{K_d + K_r} C_b \quad (15) \quad K_d = \frac{D}{\delta} \quad (16)$$

式-(15)を式-(1)に代入して C_s を消去すると式-(17)となる。

$$\frac{dC_b}{dt} = -\left(\frac{A_w}{V}\right) \left(\frac{1}{K_d} + \frac{1}{K_r}\right)^{-1} C_b \quad (17) \quad K^* = \left(\frac{1}{K_d} + \frac{1}{K_r}\right)^{-1} \quad (18)$$

ここで、 K^* 、 K_d および K_r はそれぞれ総括速度係数、拡散項および反応項である。式-(18)を用いると定常状態にある回転円板硝化槽における流入・流出 $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度の関係は式-(19)のようになる。

$$\frac{C_o}{C_e} = 1 + K^* \left(\frac{A_w}{Q}\right) \quad (19)$$

III 実験装置および実験方法

実験装置は図-2のような容量12ℓ ($A_w/A = 0.5$)の接触槽と発泡スチロール製の円板から構成される。円板直径は29.5cm, 円板枚数13枚, 円板厚1cm, 円板間隔2cm, 全円板表面積1.91m²である。流向は中心軸と直角方向であり, 円板浸漬率, 回転数, 槽内水温はそれぞれ50%と30%, 3RPMと75

RPM, 23.5℃と28.5℃とした。装置の混合特性を調べるために生物膜付着前にNaClをトレーサーとして求めた残余濃度曲線が図-3である。円板回転数は3RPMであり、このような低速回転においても混合特性は完全混合となった。硝化菌の培養のために稼動中の硝化用回転円板装置に生育して

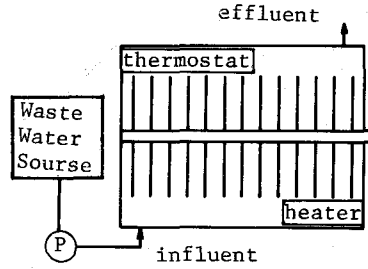


図-2 実験装置

いる生物膜を槽内に混入し表-2のような組成の人工廃水を供給し約1ヵ月ならし運転を行った。円板上に十分硝化菌が付着育成した時点で、所定の条件で実験を開始し定常状態における諸水質を測定した。流入水のアルカリ度は流入NH₃-N濃度の7.5倍となるようにNaHCO₃を添加して調整し、無機炭素が硝化作用の律速とならない条件をつかった。槽内のpHは7~8であり、硝化率が50%以下の場合を除くとNO₂-Nの蓄積は認められず硝化型式は完全なNO₃-N型であった。

IV 実験結果とその考察

IV-1 動力学式の検証 それぞれの実験条件で流入NH₃-N濃度(C₀)を25, 50, 100, 200mg/lの4通りについてAw/Qと流出NH₃-N濃度(C_e)の関係を求めた。図-4は実験データの一部であり図中の実験条件におけるAw/QとC₀/C_eの関係を示した。図-5は図-4のデータからC_eが5, 10, 20, 40mg/lにおけるAw/QとC₀/C_eの関係をプロットしたものであり、C_eが等しければC₀や硝化率とは無関係に式-(19)が成立することが示されている。すべての実験条件において図-5のような関係が成立した。このことから、円板の径や回転速度、円板浸漬率、水温などの操作条件が決まれば総括速度係数K*はC_e、すなわち平衡NH₃-N濃度のみの関数となり、C_eが低いほどK*は大きくなることがわかる。図-5の直線の勾配がK*であり、円板回転数が3RPMで水温が23.5℃, 28.5℃の場合のK*とC_eの関係が図-6である。C_eが高い所では後述するよう見かけの硝化速度は生物膜内の硝化反応に律速されるため水温が高い方がK*は大きくなっている。しかし、C_eが5mg/l付近では静止水膜内のNH₄⁺の拡散が見かけの硝化速度を律速するためK*はほぼ拡散項K_dに等しくなり、水温が23.5℃と28.5℃では余り差が生じない。図-6のC_s/C_bは後述する方法で推定した静止水膜厚δとNH₄⁺の分子散拡係数Dから拡散項K_dを求め、K*とK_dより式-(18)によってK_rを計算しK_rとK_dを式-(19)に代入して求めた。C_s/C_bが1に近い程見かけの硝化速度は生物膜内の

表-2 人工廃水の組成
(NH₃-N 100mg/lの場合)

成分	濃度(mg/l)
NH ₄ Cl	382
NaHCO ₃	1200
NaCl	146
MgSO ₄ ·7H ₂ O	123
KH ₂ PO ₄	68

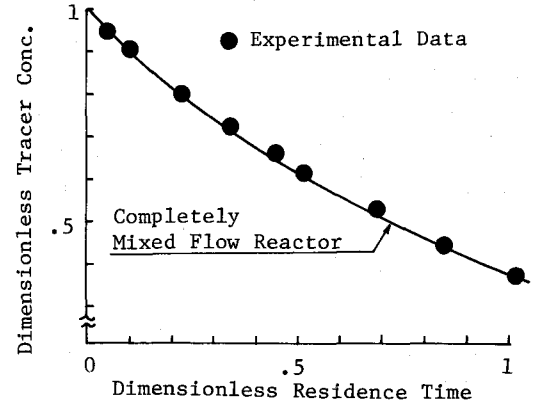


図-3 装置混合特性

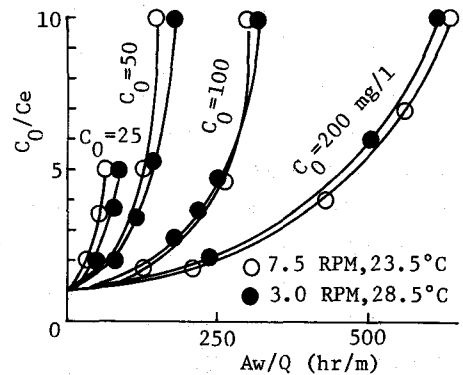


図-4 Aw/QとC₀/C_eの関係(Aw/A=0.5)

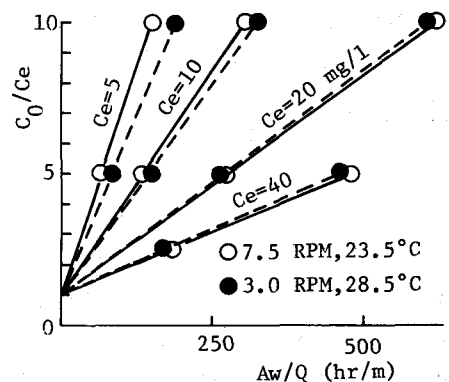


図-5 操作方程式(式-19)の検証

硝化反応に律速され、 C_s/C_b が0に近い程静止水膜内の分子拡散に律速される。図-7は浸漬率を変えた実験データを用いて K^* と C_e の関係を求めたものである。浸漬率が小さい程、生物膜の空中滞留時間：水中滞留時間比が大きくなり、生物膜内へのDO浸入深さが増加し、同一の C_e に対する K^* は大きい。しかし、 C_e が 5 mg/l 付近では見かけの硝化速度は拡散律速となり浸漬率による差はない。単位浸漬面積当りの見かけの硝化速度は浸漬率が小さい程大きくなるが、全円板面積当りでは図-8のように浸漬率を大きくした方が見かけの硝化速度は大きい。一般には、与えられた C_e に対する最適の浸漬率が存在すると思われる。図-9は円板回転速度と K^* の関係である。以上のようにいずれの操作条件においても式-19によって完全混合回転円板硝化槽の機能を評価することができる。

Ⅳ-2 拡散項の評価 拡散項 K_d は式-15により定義され、 NH_4^+ の拡散係数 D は物理定数であることから静止水膜厚 δ を求めれば K_d を定量的に評価できる。 δ は円板径、円板回転速度、水温などにより決まると考えられるが、その厚さを直接測定するのはむずかしいので本文では次の2つの方法によって δ を間接的に推定した。

a) 回分実験による推定 図-10は $C_o \div 20\text{ mg/l}$ 、 $C_e \div 5\text{ mg/l}$ で操作されている装置を用いて行った回分実験の結果である。接触1時間付近で勾配が異なる2本の直線によって硝化速度を近似できる。槽内の $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度が 4 mg/l となった時点で硝化速度は静止水膜内の拡散律速となると考えて良いので直線ABは拡散律速における硝化速度であり、単位浸漬面積当りの硝化速度は次式により表示しうる。

$$\frac{1}{A_w} \frac{d(V C_b)}{dt} = -\frac{D}{\delta} (C_b - C_s) \div -\frac{D}{\delta} C_b \dots\dots\dots (20)$$

$$\ln \frac{C_b}{C_{b0}} = -\frac{A_w D}{V \delta} t \quad \delta = \frac{A_w D t}{\ln(C_{b0}/C_b) V} \dots\dots\dots (21)$$

図-10の直線ABより $\ln(C_{b0}/C_b)/t$ を求めて式-21によって δ を計算すると、円板回転速度が3RPMでは δ は約 100μ となった。

b) 総括速度係数からの推定 図-6、7において C_e が 4 mg/l 程度で、 $1/K_d \gg 1/K_r$ となってい

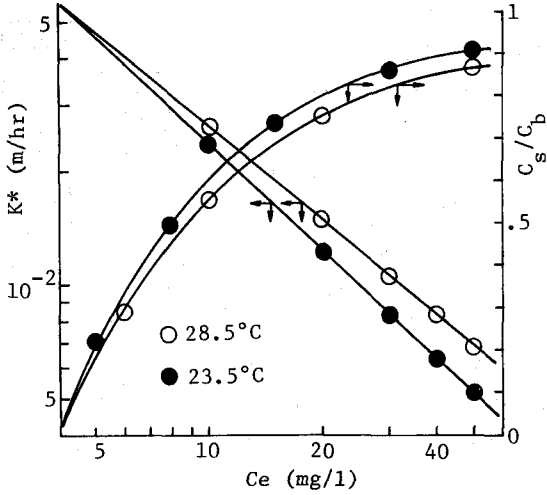


図-6 K^* と C_e の関係 (3RPM, $A_w/A=0.5$)

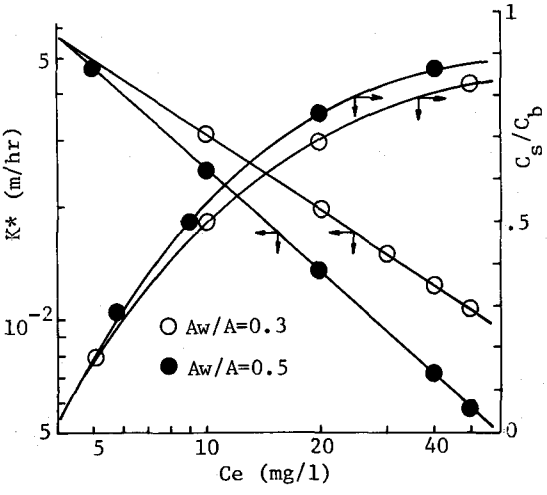


図-7 K^* と浸漬率の関係 (3RPM, 28.5°C)

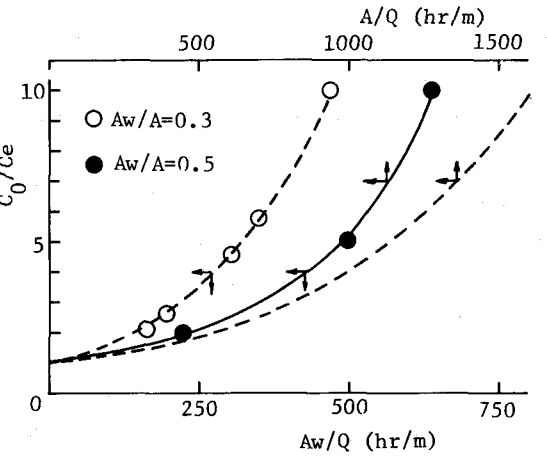


図-8 C_o/C_e と浸漬率の関係 (3RPM, 28.5°C)

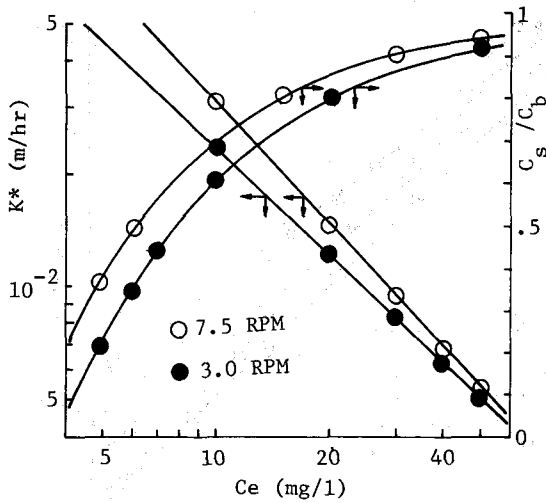
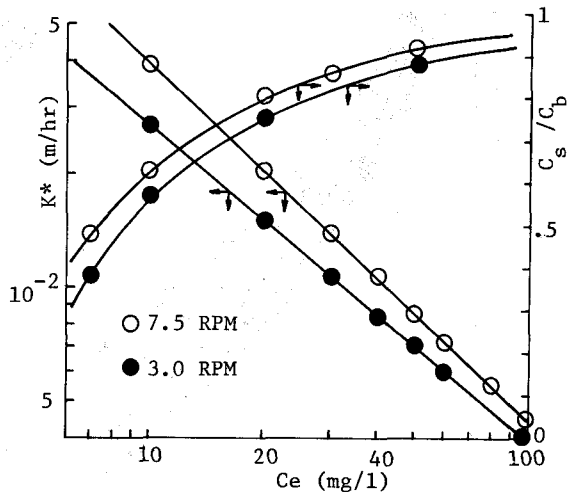


図-9 回転速度と K^* の関係 (23.5°C)



(28.5°C)

るので式(18)から $K^* \div \frac{D}{\delta} = K_d$ となる。 $C_e = 4 \text{ mg/l}$ では $K^* \div 0.06 \text{ m/hr}$ であり、25°C前後では $D \div 6 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{hr}$ である。したがって回転円板速度が3 RPMでは δ は約100 μ となる。円板回転速度が7.5 RPMでは図-11から同様にして δ は約60 μ となる。以上より3 RPMと7.5 RPMにおける拡散項は温度差による相違は微小であると考え次のように評価した。

$$(K_d)_{3\text{RPM}} \div 6 \times 10^{-4} \text{ m/hr} \quad (K_d)_{7.5\text{RPM}} \div 10^{-3} \text{ m/hr}$$

V-3 反応項 K_r の評価 拡散項の値がわかると総括速度係数 K^* と拡散項 K_d を用いて式(18)によって反応項 K_r を評価することができる。図-12は図中の実験における流出 $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度 C_e と K_r の関係でありいずれの実験条件においても C_e の増加に伴って K_r は減少している。また、式(15)によって C_e を C_s に変換し C_s と K_r の関係を求めると図-13のようになる。反応項を構成する因子の中で D_e と r についてはいくつか報告されている³⁾。したがって、現状での未知量はパラメータ α 、すなわち、生物膜表面の $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度 (C_s) と硝化菌 (*Nitrosomonas* sp.) 濃度の関係だけと考えると良い。もし生物膜内の $\text{NH}_3\text{-N}$ 濃度の定常分布が明らかにされれば、表-1の K_r を与える式を用いて α を推定することもできる。 α と C_s の関係等も含めて反応項についての詳細な研究を継続中であり、次の機会に報告させて頂く予定である。

V おわりに

本文では回転円板硝化槽における硝化過程を記述する動力学式を提示し、その動力学式の実験による検証を行った。動力学式の誘導に当たって、先ず全システムを液本体、生物膜および液本体と生

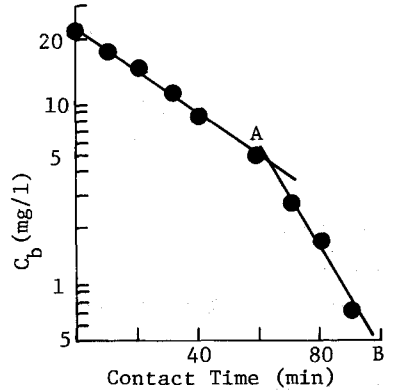


図-10 回分実験の結果

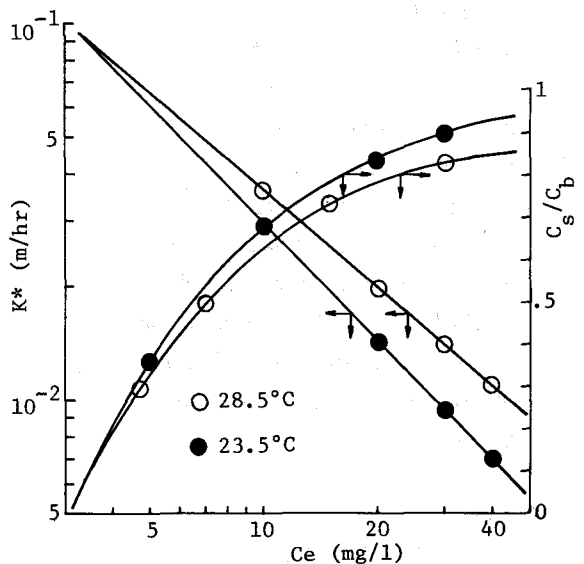


図-11 水温と K^* の関係 (7.5 RPM, $A_w/A = 0.5$)

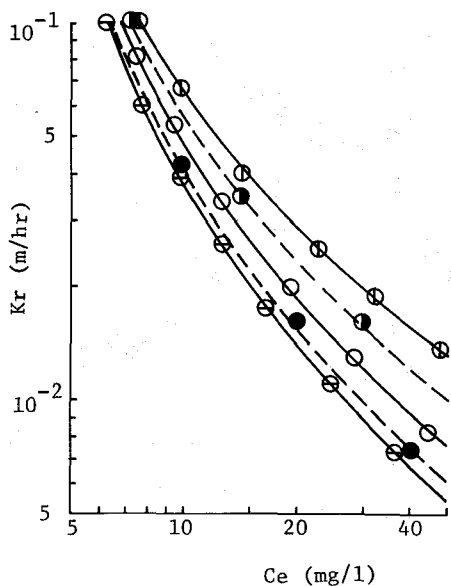


図-12 C_e と K_r の関係

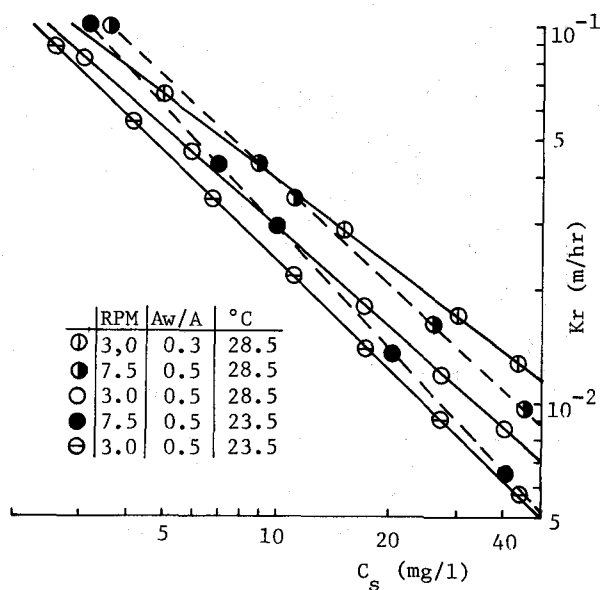


図-13 C_s と K_r の関係

物膜の間の静止水膜の3つに分割し、次に静止水膜内の NH_3-N の分子拡散過程と生物膜内の NH_3-N の拡散・硝化反応過程を考察した。誘導した動力学式を用いると定常状態における完全混合硝化槽の硝化率は水量負荷と総括速度係数によって決定できる。円板の径と回転速度、円板浸漬率等の操作条件が決まれば、総括速度係数は流出 NH_3-N 濃度のみの関数となり、流出 NH_3-N 濃度が低い程大きな値となる。総括速度係数は反応項と拡散項により構成され、流出 NH_3-N 濃度が $5mg/l$ 以下では、拡散項 $\ll$ 反応項となり、見かけの硝化速度は静止水膜内の NH_3-N の拡散速度により律速される。

記号表

A: 全円板表面積 (m^2)

A_w : 円板浸漬面積 (m^2)

C: 生物膜内の NH_3-N 濃度 (mg/l)

C_b : 液本体の NH_3-N 濃度 (mg/l)

C_e : 流出 NH_3-N 濃度 (mg/l)

C_o : 流入 NH_3-N 濃度 (mg/l)

C_s : 生物膜表面の NH_3-N 濃度 (mg/l)

C'_s : 生物膜表面の溶存酸素濃度 (mg/l)

D: 水中での NH_4^+ の分子拡散係数 (m^2/hr)

D_e : 生物膜内での NH_4^+ の分子拡散係数 (m^2/hr)

D'_e : 生物膜内での O_2 の分子拡散係数 (m^2/hr)

F_s : 生物膜表面での NH_4^+ の Flux ($g/m^2 \cdot hr$)

K_d : 拡散項 (m/hr)

α : パラメーター (-)

K_r : 反応項 (m/hr)

K^* : 総括速度係数 (m/hr)

L_e : 生物膜内酸素侵入深さ (m)

Q : 流入水量 (m^3/hr)

R : 生物膜内での NH_3-N の硝化速度 ($g/m^3 \cdot hr$)

R' : 生物膜内での酸素消費速度 ($g/m^3 \cdot hr$)

r : 単位生物膜体積当りの硝化速度 (l/hr)

t : 時間 (hr)

V : 液本体容量 (m^3)

X : Nitrosomonas sp. の濃度 (mg/l)

Z : 生物膜の深さ方向への距離 (m)

Z_o : 生物膜厚 (m)

Z^* : NH_3-N の生物膜内侵入深さ (m)

δ : 付着水膜厚 (m)

参考文献

- 1) 石黒, 渡辺, 増田; 下水道協会誌, vol12, No129, PP.46~54(1975.2).
- 2) 石黒, 渡辺, 増田; 下水道協会誌, vol14, No160, PP.1~6(1977.10).
- 3) Williamson and McCarty: JWWPCF, vol48, No1, PP.9~24(1976.1)