

(9) 回転円板法における硝化プロセスのkinetics

東京工業大学資源化学研究所

" "

栗田工業(株)総合研究所

○久保田 宏

小田井恒吾

宮地 有正

I 緒 言

著者ら1, 2) は、先に、1 段および多段の活性汚泥法による硝化操作を数式モデルでシミュレーションし、処理水中のアンモニア態窒素（以下 $\text{NH}_4 - \text{N}$ と記す）濃度と操作条件の関係について定量的に検討し、次の諸結果を得ている。1) 完全混合流れ1 段のプロセスでは、処理水中の $\text{NH}_4 - \text{N}$ 濃度と溶解性BOD値との間に、操作条件には無関係に温度のみによって決定する一義的な関係が存在する。2) 完全混合流れ多段のプロセスにおいては、エアレーションタンク内の廃水の見掛けの総滞留時間が等しければ、処理水中の $\text{NH}_4 - \text{N}$ 濃度が 2 g/m^3 より小さいところを除いては、多段化の影響は顕著に現われない。3) 処理水中のBOD値がある限界値を超えなければ、硝化反応はほとんど進行しないという経験的な事実を、硝化菌の撰択的洗い出しによるものとして理論的に裏付けた。4) この洗い出しの条件に対して、エアレーションタンクの多段化の影響はほとんど現れてこない。5) エアレーションタンクの水量負荷、汚泥濃縮比、汚泥返送比などの操作条件の関数として、処理水中の $\text{NH}_4 - \text{N}$ 濃度を予知するための操作設計法について提案した。さらに、6) 負荷の日間変動のある場合について、1 日平均での操作条件が硝化菌をタンク内に保持できるものであれば、硝化菌の洗い出しは起らない。

本研究では、付着性微生物を利用した回転円板法廃水処理プロセスにおける硝化操作に対して、同様な操作の定量的な検討を行なった結果について報告する。

II 基本的仮定と操作の基礎式

回転円板法廃水処理装置を用いた硝化プロセスを模式的にFig. 1に示した。このプロセスにおける基本的仮定を次のように設定する。

- 1) 各段での液相内は完全混合流れである。
- 2) 炭素質基質（以下BOD成分と記す）の酸化反応はBOD酸化菌によって、また $\text{NH}_4 - \text{N}$ の酸化反応は硝化菌によって、それぞれ独立に進行する。
- 3) 円板表面に付着した微生物の保持量は定常値を保っている。即ち、剝離菌体は定常的に除去される。
- 4) 液相中懸濁微生物による反応は無視できる。

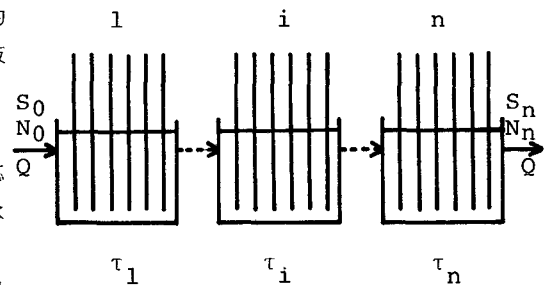


Fig.1 Schematic Diagram

n 段回転円板装置での定常操作を考えて、任意の段での物質収支から次の各式を得る。ただし添字 i は i 段目を表す。

$$\text{BOD成分} : S_{i0} - S_i + R_{Si} \cdot \bar{\tau}_i = 0 \quad (1)$$

$$\text{NH}_4 - \text{N} : N_{i0} - N_i + R_{Ni} \cdot \bar{\tau}_i - \alpha \cdot R_{xi} \cdot \bar{\tau}_i = 0 \quad (2)$$

$$\text{BOD酸化菌} : R_{xi} \cdot A_i = M_i \cdot f_{xi} \quad (3)$$

$$\text{硝化菌} : R_{zi} \cdot A_i = M_i \cdot f_{zi} \quad (4)$$

ここで、

$$\bar{\tau}_i = A_i / Q$$

で、 A_i は i 段目の円板表面積、 Q は廃水流量である。円板の全表面積を A とすると、 $Q/A = 1/\bar{\tau}$ は水面積負荷と呼ばれている。また、 M は単位時間当りに円板から剝離除去される菌体量で、 f_x 、 f_z は菌体

中のBOD酸化菌および硝化菌の重量分率を表わす。

式(1)～(4)において、反応速度は円板上の微生物膜の単位表面積当りで定義された面積基準の反応速度で、以下式(6)～(9)で与えられる。

$$R_{s i} = R_{s t i} \cdot f_{x i} \quad (6)$$

$$R_{N i} = R_{N t i} \cdot f_{z i} \quad (7)$$

$$R_{x i} = Y_X (-R_{s i}) - b \cdot f_{x i} \quad (8)$$

$$R_{z i} = Y_Z (-R_{N i}) - b' \cdot f_{z i} \quad (9)$$

ただし、 $R_{s t}$ 、 $R_{N t}$ は、それぞれ円板表面の付着微生物がすべてBOD酸化菌、硝化菌によって占められたときのBOD酸化速度および硝化速度で、これらに対しては次式の近似を仮定した。

$$-R_{s t} = K_s \cdot S \quad (10)$$

$$-R_{N t} = K_N \cdot N / (K + N) \quad (11)$$

Ⅲ 処理水中の $NH_4 - N$ 濃度と硝化反応開始の条件

式(6)～(9)の関係を式(3)、(4)に代入して

$$\{ Y_X (-R_{s t i}) - b \} A_i = M_i \quad (12)$$

$$\{ Y_Z (-R_{N t i}) - b' \} A_i = M_i \quad (13)$$

したがって、

$$Y_X (-R_{s t i}) - b = Y_Z (-R_{N t i}) - b' \quad (14)$$

となる。式(14)は、活性汚泥法では反応速度が廃水の単位体積当りで定義されていたのに対して、ここでは、単位微生物膜表面当りで定義されている点を除けば、形式的には完全現合流れ1段操作の活性汚泥法での硝化プロセスに対して得られたもの¹⁾と、同じ式である。また、この回転円板n段操作では上記の各式はすべての段に対して適用することができるので、以下ではi段目の操作を示す添字iを外ずした。

式(10)、(11)の関係を式(14)に代入して、

$$Y_X \cdot K_s \cdot S - b = \frac{Y_Z \cdot K_N \cdot N}{K + N} - b' \quad (15)$$

したがって、SとNとの間には次式のような関係が得られる。

$$S = \frac{\beta \cdot N}{K + N} + r \quad (16)$$

ただし、

$$\beta = Y_Z \cdot K_N / Y_X \cdot K_s, \quad r = (b - b') / Y_X \cdot K_s \quad (17)$$

一般に、付着菌体の増殖に対する自己酸化水の寄与は、懸濁菌体における場合よりも大きいと考えられるが、後者における自己酸化係数の値が比較的近い値をとる¹⁾ことを考慮して、式(17)でのrは、 β に比べて無視できると考え、これを省略すると次の関係を得る。

$$S \doteq \frac{\beta \cdot N}{K + N} \quad (18) \quad \text{あるいは、} \quad N \doteq \frac{K \cdot S}{\beta - S} \quad (19)$$

式(18)を変形すると、

$$\frac{1}{S} = \frac{1}{\beta} + \frac{K}{\beta} \cdot \frac{1}{N} \quad (20)$$

となるから、処理水中のSとNの実測値より、式(20)の関係を利用して、定数 β 、Kを比較的容易に決定することができる。

式(18)で近似されるNとSとの関係は、装置内で硝化反応が進行している条件下でのみ成立するが、硝化反応が起らない場合には、式(2)で $R_{N i} = 0$ となって、

$$N_{i o} - N_i - \alpha \cdot R_{x i} \cdot \tau_i = 0 \quad (21)$$

式(21)に式(1)および(8)を代入し、さらに硝化菌が存在しないことより $f_{x i} = 1$ として、

$$N_i = N_{i o} - \alpha \cdot Y_X (S_{i o} - S_i) + \alpha \cdot b \cdot \tau_i \quad (22)$$

式(22)は、硝化反応が起っていない条件下でBOD酸化菌に資化されることにより、Sの変化に伴って変化する

るNの値を表わす。多段操作で、1段目まで硝化反応が起らないとすると、式(2)は次のように与えられる。

$$N_i = N_0 - \alpha \cdot Y \times (S_0 - S_i) + \alpha \cdot b \cdot \sum_{j=1}^i \tau_j \quad (23)$$

したがって式(23)で計算されるNの値と、式(19)で計算されるNの値が一致するSの値が、硝化反応開始の条件としてのSの値となり、この値を S_c とすると、 $S > S_c$ では式(23)から、 $S < S_c$ では式(19)からNの値が求められる。

IV 在来データの解析

回転円板装置での硝化プロセスに注目したデータは、今までかなり多数発表されているが、式(18)あるいは(19)の適合性を直接確認し、さらに式中の定数 β 、Kの値を決定するのに役立つようなデータを示しているものは意外と少ないようである。Antonieは、回転円板での硝化プロセスについて広範に検討し、多段回転円板処理装置での硝化反応の結果を最終段処理水中のBOD値と流入水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 除去率とがほぼ一本の曲線と与えられることを示して以下のように総括している。1) 硝化反応は、処理水中のBOD値が 30 g/m^3 程度に達すると急速に進行しはじめ、BOD値が $8 \sim 10 \text{ g/m}^3$ まで減少すると $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は 1 g/m^3 以下達する。2) 処理水中のBOD値と $\text{NH}_4\text{-N}$ 除去率の間には一義的な関係が成立し、この関係は流入水中のBOD値、流入水が予備処理を受けたかどうかには無関係に与えられる。また円板の回転速度にも依存せず、段数が4段以上では段数にも、更には温度にも無関係である。

Antonieによって報告された処理水中のNとSの関係を直接与えたデータ、あるいは除去率の値から、その関係が推定可能なものについてNとSとの関係をFig. 2にまとめた。これらの関係は、処理水のBOD値が 20 g/m^3 以下で得られたもので、この条件下では硝化反応が急速に進行しNが著しく減少していることを示している。これらのデータに対して、式(20)に基づく $1/S$ 対 $1/N$ のプロットを試みたのがFig. 3である。この図より $\beta = 18.87 \text{ g/m}^3$ 、 $K = 0.75 \text{ g/m}^3$ と定数値を決定し、これらの β とKの値を用いて式(19)からNとの関係をFig. 2

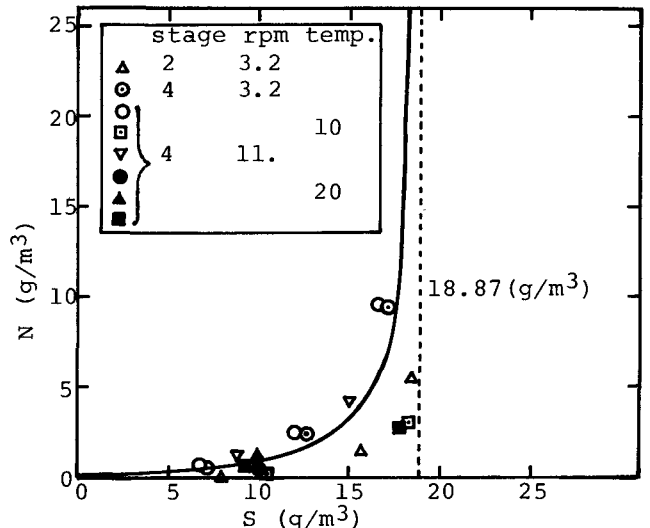


Fig. 2 N vs. S in effluent ; $S < 20 \text{ g/m}^3$

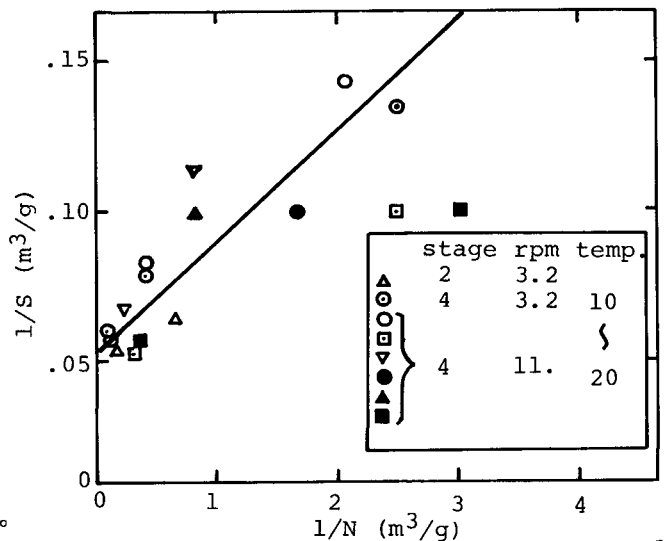


Fig. 3 $1/S$ vs. $1/N$ in effluent ; $S < 20 \text{ g/m}^3$

計算曲線で示した。次に、硝化反応の起っていないと考えられる条件、すなわち $S > 20 \text{ g/m}^3$ での S と N の関係を式(23)に基づいて計算を行った。ただし、BOD酸化菌の自己酸化に対応する式(23)の右辺の第3項は第2項に比べて小さいと考え、近似的にこれを無視し、さらに Fig. 4 に示した計算値と実測値とができるだけ一致するようにBOD酸化菌への $\text{NH}_4 - \text{N}$ の負荷係数を $\alpha = 0.06$ と与えた。

V $\text{NH}_4 - \text{N}$ 除去率の推算法

回転円板廃水処理プロセスの $\text{NH}_4 - \text{N}$ 除去率の推算は、以下に示すような手順により容易に進めることができる。

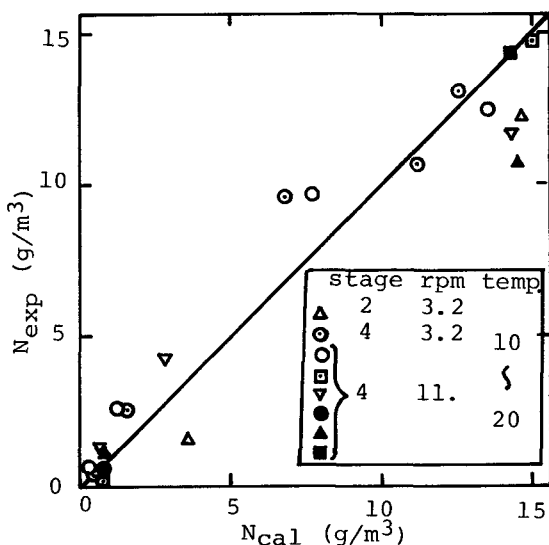


Fig. 4 N_{exp} vs. N_{cal} in effluent

1) 各段での流出BOD値を推算する。まずBOD酸化反応速度を式(1)の擬一次反応の式で表わす。次に、円板上の付着菌体中のBOD酸化菌の存在割合 f_x であるが、これは著者ら¹⁾の懸濁菌体による硝化操作において、硝化反応の進行している条件下でも全菌体中に占める硝化菌の存在割合はたかだか数%と非常に小さい値を与えることを知ったので、全段を通して $f_x = 1$ と仮定して計算を行なう。したがって n 段操作での処理水中のBOD濃度 S_n は、次式によって求められる。

$$S_n = \frac{S_o}{\prod_{i=1}^n \{ 1 + k_s (A_i / Q) \}} \quad (24)$$

ここで、各段での円板有効表面積 A_i が等しければ、 S_n は次式で与えられる。

$$S_n = \frac{S_o}{\{ 1 + k_s (A_i / Q) \}^n} \quad (25)$$

2) 得られた S_n の値を式(19)あるいは(23) ($S_n = S_i$ として)に代入して求められる N の値の小さい方の値を採用する。大体の目安として、先に見たように $S < 15 \text{ g/m}^3$ であれば式(19)の、 $S > 20 \text{ g/m}^3$ であれば式(23)の適用を考えれば良いであろう。

3) 式(17)の第1式から与えられた K_s の値に対応する K_N の値を次式を用いて算出する。

$$K_N = \beta \cdot Y_x \cdot K_s / Y_z$$

β としては上記で得られた値を用い、 Y_x 、 Y_z は活性汚泥法での値 $Y_x = 0.5$ 、 $Y_z = 0.07$ を用いて良いであろう。得られた N の値を用いて、硝化反応が起っている段での N_i の計算値から式(1)により反応速度 $-R_{Nfi}$ を求める。一方、式(2)から $-R_{Nfi}$ が算出されるから、式(7)によって菌体中の硝化菌の重量分率 f_{zi} を求めることができる。したがって、 $f_{xi} = 1 - f_{zi}$ となる。

いま m 段目で硝化反応が起り始めるとしてこの段での S の値を、式(24)を变形した

$$S_m = \frac{S_o}{\prod_{i=1}^m \{ 1 + K_s (A_i / Q) \} \{ 1 + K_s \cdot f_x (A_m / Q) \}} \quad (26)$$

によって再計算し、更に式(19)で対応する N の値を求める。この N の値を用いて、上記により改めて、 $f_z f_x$ を計算し、収斂値が得られるまで同様の計算を繰り返す。

VI 多段化の効果

回転円板廃水処理装置は、通常多段で用いられる。装置全体の水面積負荷を同一にした場合、多段化が硝化反応に対してどれだけ有効であるかを以下に計算例として示した。

計算に使用した操作条件および諸定数値（20℃）をTable. 1に一括した。

計算結果を、水面積負荷の逆数 $\bar{\tau}$ と処理水のNの関係としてFig. 5に示した。さらに、 $\bar{\tau}=200$ hr/mとしたとき、 $n=1, 2, 4, 8$ 段操作での各段のNの分布をFig. 6に示した。活性汚泥法の場合²⁾と比較して、段数の増加に伴う硝化反応の促進がかなり顕著に現われている。また、上記の計算例より、8段操作において、各段での硝化菌の重量分布が水面積負荷の値によってどのように変化するかをFig. 7に例示した。水面積負荷が小さくなると、比較的前の方の段で硝化反応が進行し、そのため廃水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ が消費されてしまうので、それよりも後の段への流入 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が低下して硝化菌が増殖せず、再びその重量分率が低下するという興味ある結果が示されている。

S_0	150	(g/m^3)
N_0	20	(g/m^3)
k_s	0.016	(m/hr)
k_N	2.16	($\text{g/m}^2\cdot\text{hr}$)
Y_x	0.5	(-)
Y_z	0.07	(-)
α	0.06	(-)
β	18.87	(g/m^3)
K	0.75	(g/m^3)

VII 流入負荷変動の影響⁵⁾

回転円板法は、活性汚泥法に比べてより小規模な廃水処理に適した装置として多用されているが、その使用条件として流入負荷にかなり大きな日間変動がある場合が多い。

上記の硝化反応に関する考察では、定常操作を前提として理論的な諸関係が導かれており、これをそのまま非定常操作に対して適用することはできない。しかしながら、著者ら²⁾が先に行なった活性汚泥法における負荷変動の影響を検討した結果より、回転円板法での操作に対して次のような推論が導かれる。すなわち、回転円板法においても活性汚泥法同様、菌体の装置内平均滞留時間は廃水のそれに比べて十分大きいと考えられるから、硝 Fig.5 N_n vs. τ_i

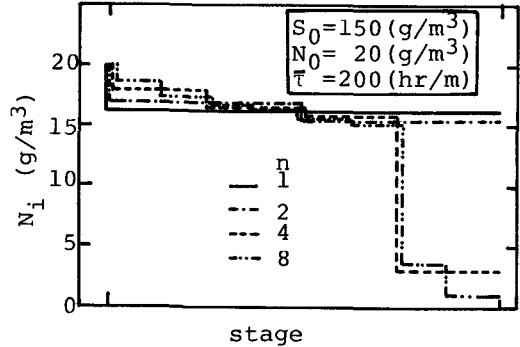
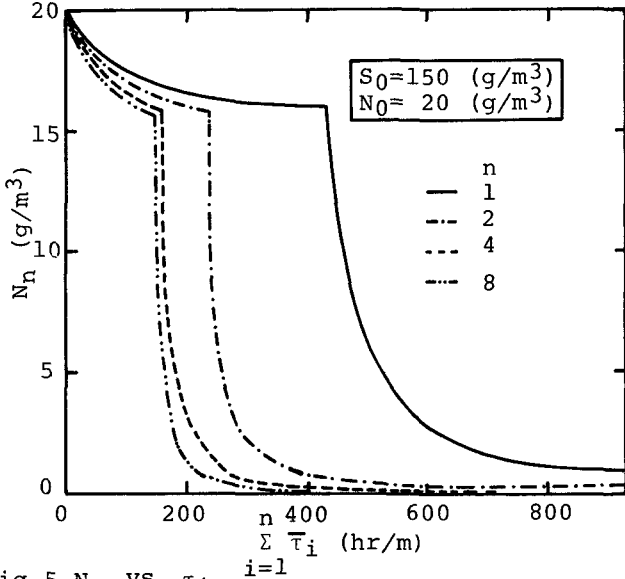


Fig.6 Effluent N from each stage

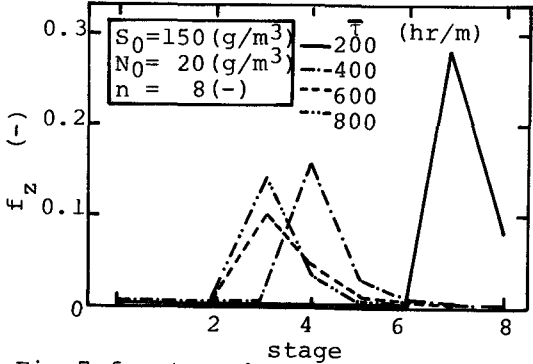


Fig.7 f_z at each stage

化菌の存否は日間平均負荷に対する定常操作の解析から大よその判断が下せるであろう。したがって、いま日間平均負荷に対して硝化菌が存在し得る条件下では、負荷の大きな時間帯で処理水中のSが 20 g/m^3 を超えるようなことがあっても硝化反応は進行することになる。逆に、日間平均負荷に対して硝化菌が存在しない場合には、負荷の小さな時間帯でSが 15 g/m^3 以下になっても硝化反応は進行しないであろう。このような負荷変動のある場合の硝化反応について定量的に取り扱うためには、円板上での菌体の滞留時間に関する定量的な知見が必要であり、今後の検討課題としたい。

VIII 結言

多段回転円板法廃水処理プロセスにおける硝化反応に関して定量的な検討を行い、次の諸結果を得た。

1) 硝化反応の進行している定常操作の条件下では、処理水中の $\text{NH}_4 - \text{N}$ 濃度NとBOD成分濃度Sとの間には、他の操作条件には左右されない一義的な関係があることを明らかにされた。

2) Antonieの実測データ⁴⁾にもとづいて、NとSの近似的関係

$$S = \frac{\beta N}{K + N}$$

における定数値を $\beta = 18.87\text{ g/m}^3$, $K = 0.75\text{ g/m}^3$ (20°C)と決定した。

3) 硝化反応の進行していない条件下で $\text{NH}_4 - \text{N}$ の除去は、BOD酸化菌への $\text{NH}_4 - \text{N}$ の資化によるとして、硝化反応開始の条件を明らかにした。

4) $\text{NH}_4 - \text{N}$ 除去率の推算方法を具体的に提案した。

5) $\text{NH}_4 - \text{N}$ の除去に対して、段数の増加は顕著に効果を現わすことが明らかにされた。

6) 流入負荷変動の影響について、定性的に考察した。

〔使用記号〕

A: 回転円板全表面積 [m^2], b, b': BOD酸化菌及び硝化菌の自己酸化定数 [$\text{g/m}^3 \cdot \text{hr}$], f_x , f_z : 菌体中のBOD酸化菌及び硝化菌の重量分率 [—], K: $\text{NH}_4 - \text{N}$ 消費反応の飽和定数 [g/m^3], k_N : $\text{NH}_4 - \text{N}$ 消費反応の速度定数 [$\text{g/m}^3 \cdot \text{gr}$], K_S : BOD成分の消費反応の速度定数 [m/hr], N, N_0 : 処理水中及び原廃水中の $\text{NH}_4 - \text{N}$ 濃度 [g/m^3], n: 段数 [—], Q: 流入廃水流量 [m^3/hr], $-R_s$, $-R_N$: BOD成分及び $\text{NH}_4 - \text{N}$ の消費反応速度 [$\text{g/m}^3 \cdot \text{hr}$], R_x , R_z : BOD酸化菌及び硝化菌の増殖速度 [$\text{g/m}^3 \cdot \text{hr}$], S, S_i : 処理水中及び原廃水中のBOD成分濃度 [g/m^3], Y_x , Y_z : BOD酸化菌及び硝化菌の増殖収率 [—], α : BOD酸化菌への $\text{NH}_4 - \text{N}$ の資化係数 [—], $\bar{\tau} = A/Q$: 水再積負荷の逆数 [hr/m], 添字 i: i 段目

〔参考文献〕

- 1) 久保田宏, 宮地有正: 下水道協会誌, 14, 159 (1977/8)
- 2) 久保田宏, 小田井恒吾, 宮地有正: 下水道協会誌, 15, 169 (1978/6)
- 3) 星野定司, 久保田宏: 水処理技術, 18, 1 (1977/1)
- 4) R. L. Antonie: "Fixed Biological Surfaces-Wastewater Treatment" CRC Press.
- 5) 久保田宏, 高稲正美: 未発表