

(10) 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

— 実施設による窒素除去機能 —

大阪大学工学部

橋本 奨

〃

○古川 憲治

緒 言

本年6月13日に公布された「瀬戸内海環境保全臨時措置法及び水質汚濁防止法の一部を改正する法律」によれば、COD総量規制が54年6月から実施されることになっている。改正法案では、COD総量規制の他、富栄養化の一層の進行を防止する観点から、行政指導等により磷負荷量の削減を実施する措置がとられている。しかし、もう一つの重要な富栄養化因子である窒素については経済的な削減技術ができていないとして、今回の改正法では窒素負荷量の削減は見送られている。富栄養化防止策として磷削減のみをめざし窒素削減を除外した今回の改正案では不十分なので、経済的かつ効果的な窒素除去技術の開発が待たれる。

今のところ、窒素除去法として生物学的硝化－脱窒法が最も有望視され、この方法について種々の研究開発がなされている。我々は窒素除去法として、活性汚泥法の一変法である「biosorption法」と全く同一の流系図をもつ「嫌気－好気式高濃度活性汚泥法」を考案し、すでに本法が極めて有効な方法であることを認めている。⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾ 今回、本法実用化の第1歩として、容量2.27m³のFRP製の実プラントを建造し、分流式都市下水処理場の沈砂池流出水を用いて窒素除去実験を行い、若干の知見が得られたので以下その結果を報告する。

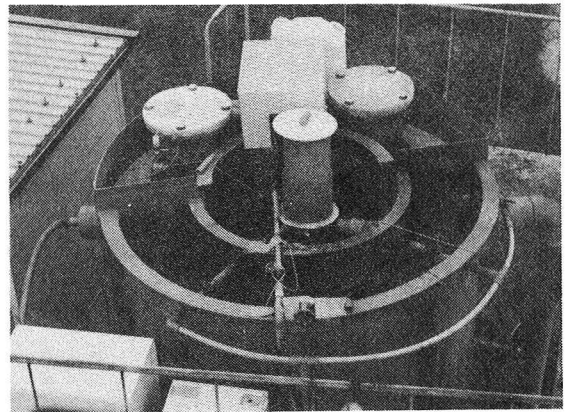
I. 実験装置および実験方法

建造したFRP製実プラントを写真－1に、ベンチスケールでの実験結果をもとに設計したプラントの容量表を表－1に示した。A－都市下水処理場（分流式）の沈砂池流出水を水中ポンプにて5分間隔でくみ上げ、スクリーン・クリートにて夾雑物を除去した後、容量0.17m³の貯留槽に送水した。貯留槽の廃水をダイヤフラム式定量ポンプで嫌気脱窒槽へ2.8m³/日～8.6m³/日の流量で供給した。下水中の有機物質をH－donorとして、硝化槽から脱窒槽に流入するNO₃－Nを活性汚泥中の脱窒細菌の働きでN₂に脱窒する。脱窒槽汚泥混合液は再曝気された後、沈降槽に移行する。沈殿汚泥はエアリフトポンプで流入下水量の3～4倍で好気硝化槽に返送循環される。脱窒槽の攪拌は、完全密べいされた脱窒槽上部のガスをエアリフトポンプで循環させることにより行った。硝化槽の曝気はサラン管を用い、100ℓ/minの風量で行った。

流入水、処理水の水質は、24時間連続的にサンプリングしたコンポジットサンプルにより代表させた。分析は全て下水試験方法によった。

II. 実験結果と考察

1. 汚泥の馴養



写真－1. 建造プラント

表－1. 実プラントの容量表

名 称	有効容量
嫌気循環室	0.85m ³
好気循環室	0.85m ³
沈 殿 室	0.49m ³
再 曝 気 室	0.08m ³
	2.27m ³

A都市下水処理場の反送汚泥を種汚泥として実験プラントに投入し、意図的に汚泥の引き抜きを行わない全酸化処理方式にて汚泥の馴養を計った。プロセス滞留時間を約11時間、CODcr-SS負荷を約0.147 $\frac{1}{\text{日}}$ にとり馴養を行ったところ、約1ヶ月後に槽内汚泥濃度は、5,200 mg/ℓ に達し、馴養開始時の汚泥のSVI値200が100前後に低下した。硝化反応の進行は、馴養開始3週間後に認められ、1ヶ月後には硝化槽内残存 $\text{NH}_3\text{-N}$ が1.0 mg/ℓ 以下となり、硝化反応が完全となった。同時に、本プロセスの窒素除去率も60%を越え、馴養開始後約1ヶ月で「嫌気-好気式高濃度活性汚泥プロセス」の成立が確認された。

2. 夏季における処理成績

本プロセスの夏季における窒素除去挙動の一例を図-1に示した。この時期中のCODcr-SS負荷は0.083 $\frac{1}{\text{日}}$ 、流入廃水量4.3 $\text{m}^3/\text{日}$ 、全プロセス滞留時間2.6時間、処理温度27.3℃、循環比(循環流量/流入廃水量)4.0、槽内汚泥濃度4,700 mg/ℓ であった。平均26.7 mg/ℓ の流入全窒素が75.8%除去され、処理水中の全窒素は6.5 mg/ℓ となった。この実験期間中での平均流入CODcr濃度は200 mg/ℓ で、上記の実験条件下で82.3%除去された。合成下水を脱窒反応のH-donorとしたベンチスケールでの実験では、同様の実験条件下で80%以上の窒素除去率が達成されたが、都市下水を対象とした今回の実験では75.8%と若干低い除去率となってしまった。この原因として、次のような要因が考えられる。

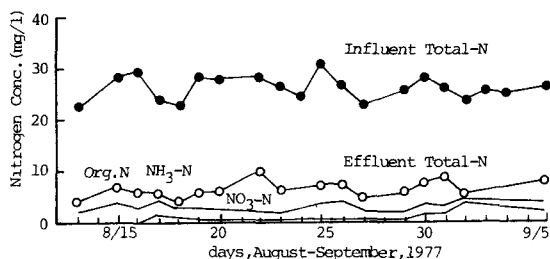


図-1. 夏季における窒素処理挙動

(1)脱窒反応に用いるH-donorの資化性の差異……資化性のいゝ、例えば酢酸ソーダを脱窒反応のH-donorとした場合には高い脱窒速度が得られるが、都市下水のような複合基質をH-donorとして用いた場合には、脱窒速度が低下する。

(2)H-donorの量的な問題……微生物脱窒反応は、H-donorが豊富にある環境下では0次反応で進行するが、H-donor量が少ない場合にはH-donor濃度により律速を受け、脱窒速度が低下する。(4)

(3)脱窒槽の環境状態……脱窒槽内の温度、pH、アルカリ度等が脱窒反応速度に大きく影響する。

(4)嫌気脱窒槽での気密性……本プロセスでは、脱窒槽上部気体をエアーポンプにて循環させることにより嫌気状態を維持している。それ故、何らかの要因で空気が混入すると、DOにより流入廃水中の有機物が消費されることになり、脱窒反応に回わる有機物量が減少し、脱窒速度が低下する。

以上のような要因の組み合わせにより、脱窒反応速度が低下し、窒素処理効率の低下に繋がっているものと推察される。

3. 冬季における処理成績

図-2に冬季における窒素処理挙動を示した。この実験期間中のCODcr-SS負荷は0.09 $\frac{1}{\text{日}}$ 、流入廃水量3.6 $\text{m}^3/\text{日}$ 、全プロセス滞留時間15.1時間、槽内汚泥濃度5,500 mg/ℓ で、循環比は12月8日に3から4に上げている。この期間中の処理水温は11~15℃の範囲内で変動した。冬季における流入全窒素濃度は夏季に比して約10 mg/ℓ 高い。それに伴い、流入CODcr濃度も平均330 mg/ℓ と高くなっている。12月8日に循環比を3.0から4.0に上げるにより、窒素除去率は67.1%から71.8%に向上した。この冬季における窒素処理効率の低下は、処理水中に理論希釈窒素濃度

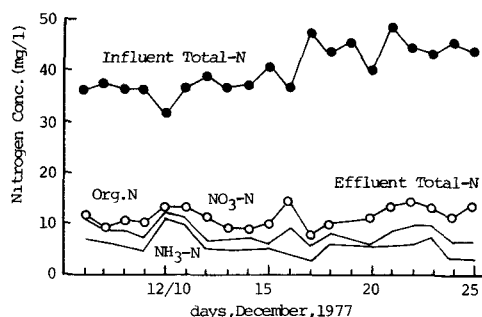


図-2. 冬季における窒素処理挙動

以上の $\text{NH}_3\text{-N}$ が検出されることから、処理水温の低下に伴う硝化効率の低下が主たる原因と考えられる。又、夏季と同様に、処理水中に未脱窒の $\text{NO}_3\text{-N}$ が平均 3.0 mg/l 残存することから、脱窒反応が前述の要因に基ずく律速を受けているものと推察される。なお、この期間中の COD_{Cr} 除去率については、 82.0% と夏季と遜色のない結果が得られた。

4. 窒素除去効率に影響する諸因子について

ベンチスケールの実験結果から、既に我々は「嫌気-好気式高濃度活性汚泥法」の窒素除去機能が①循環比② $\text{COD}_{\text{Cr}}\text{-SS}$ 負荷③処理温度等の因子によって影響されることを明らかにしている。都市下水を対象とした本実テストで、窒素除去効率がこれらの因子によって如何に影響されるか、以下に検討した。

図-3に、窒素除去効率に及ぼす $\text{COD}_{\text{Cr}}\text{-SS}$ 負荷と処理温度との関係を示した。この図から、試験負荷域では、処理温度が $27\sim 30^\circ\text{C}$ から $10\sim 12^\circ\text{C}$ に低下すると窒素除去効率が低下し、その低下の割合は、 $\text{COD}_{\text{Cr}}\text{-SS}$ 負荷が増大する程大きくなることが判る。しかしながら、 $\text{COD}_{\text{Cr}}\text{-SS}$ 負荷量を $0.05 \frac{1}{\text{日}}$ 程度の低い値にとると、処理温度の低下に伴う窒素除去効率の低下はあまりみられなくなる。つまり、水温の低下する冬季においては $\text{COD}_{\text{Cr}}\text{-SS}$ 負荷の選択が本プロセスの窒素除去効率を決定するので、その選択においては細心の注意が要求されることになる。一方、この試験負荷域内では COD_{Cr} 除去率は $\text{COD}_{\text{Cr}}\text{-SS}$ 負荷に影響されず、 $82\sim 83\%$ の安定した値を示した。

図-4には、冬季における NaOH の補填効果を示した。冬季において処理温度が 10°C まで低下すると、硝化槽で激しい発泡現象がみられるようになり、同時に窒素処理効率が大幅に低下した。この時の硝化槽におけるアルカリ度は 10 mg/l 以下で、 pH 値も 5.0 を切った。又、処理水中には多量の未脱窒の $\text{NO}_3\text{-N}$ が残存し、窒素除去効率低下の原因となっている。これは、硝化槽におけるアルカリ度不足が脱窒槽でのアルカリ度不足を誘発し、脱窒反応を阻害していることを示唆するものである。そこで、硝化槽に硝化槽内アルカリ度が 100 mg/l 前後となるように補填したところ、発泡現象が治まり、窒素除去効率が大幅に改善された。図-4は、水温の低下する冬季においては NaOH 等を補填し、硝化槽、脱窒槽内のアルカリ度を制御することが肝要であることを示している。つまり、冬季でもアルカリ度を補填すれば、大幅なる窒素除去効率の低下なしに本プロセスを運転することが可能であることが判明した。

図-5、図-6には、夏季と冬季における循環比と COD_{Cr} 除去率、窒素除去率との関係を示した。 COD_{Cr} 除去率は、夏季、冬季とも循環比に左右されず一定の値を示す。一方、窒素除去率は、夏季、冬季とも循環比の増加につれ増加するが、その度合いは冬季の方が著しい。夏季 70% の窒素除去率を得るには、循環比を 3.0 にとればよいが、冬季では 5.0 にとらなければいけない。これは冬季処理水温の低下により硝化反応が阻害を受け、硝化槽中に未硝化の $\text{NH}_3\text{-N}$ が残存することに起因する。又、冬季循環比を 7.5 に上げた

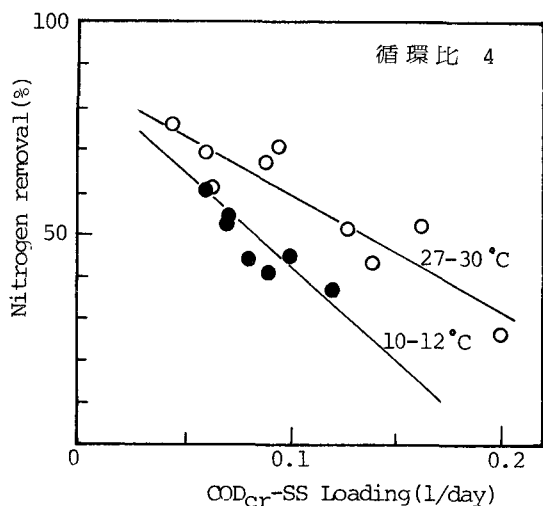


図-3. 窒素除去率に及ぼす $\text{COD}_{\text{Cr}}\text{-SS}$ 負荷の影響

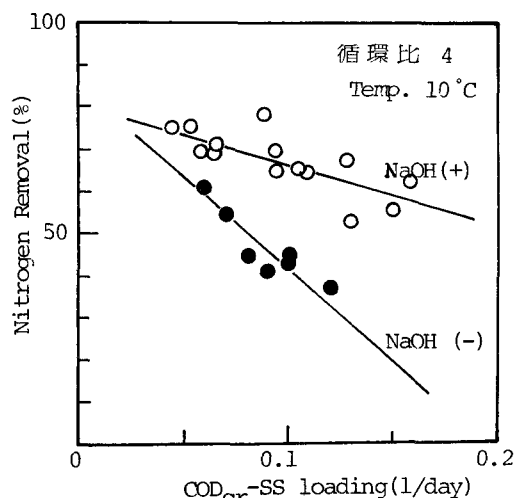


図-4. 低温域における NaOH 補填効果

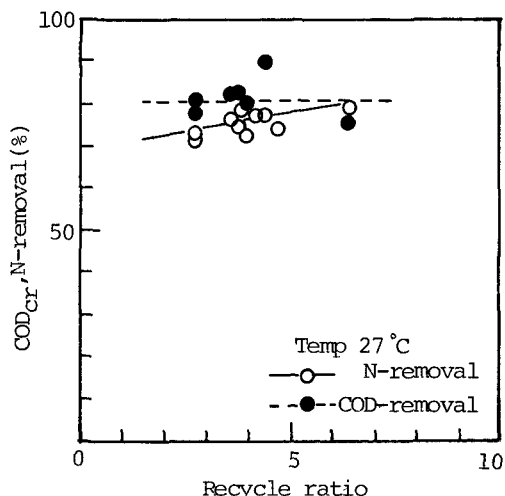


図-5. COD_{Cr},窒素除去率に及ぼす循環比の影響
(COD-ss 負荷 0.10 1/日)

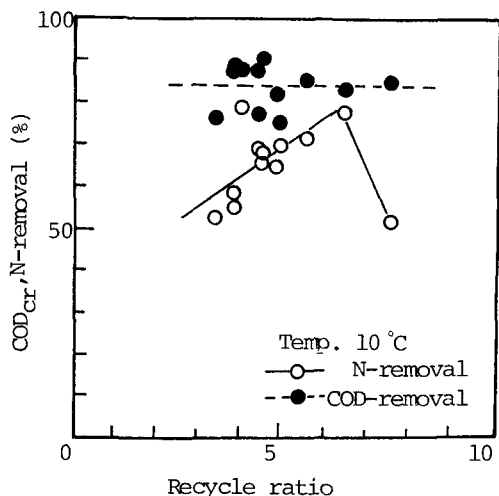


図-6. COD_{Cr},窒素除去率に及ぼす循環比の影響
(COD-ss 負荷 0.10 1/日, NaOH 添加時)

ところかえって窒素処理効率が低下しているが、これは循環比増加に伴う脱窒槽中への流入溶存酸素量の増大に起因する現象である。

5. 「嫌気-好気式高濃度活性汚泥法」の窒素除去速度について

廃水処理プロセスの設計において、除去速度の設定がそのプロセスの除去特性と経済性を決定する。微生物酸化反応を利用する廃水処理では、反応（除去）速度は基質としての有機物濃度（例えばBOD）により律速を受けるので基質濃度が高い程反応速度は高くなる。しかしながら、反応速度を上げる目的で必要以上に基質濃度を上げるような運転操作を行うと、除去率の低下に結がる。それ故、廃水処理プロセスの設計では、除去率が低下しなくてもしかも高い反応速度が得られるような適切な負荷量の設定が要求される。本プロセスの窒素除去速度は、主としてCOD_{Cr}-SS負荷量と処理温度により影響を受ける。図-7には、窒素除去速度におよぼすCOD_{Cr}-SS負荷と処理水温の影響を示した。ここで、窒素除去速度（R_N）は次式にて算出した。

$$R_N = \frac{Q_s (N_s - N_e)}{V_T S} \quad \dots\dots\dots(1)$$

ここで、Q_s は流入廃水量（m³/日）、V_T は全反応槽容量（m³）、Sは平均活性汚泥濃度（mg/ℓ）、N_s は流入全窒素濃度（mg/ℓ）を示す。図-7から、COD_{Cr}-SS負荷量の増加に伴い窒素除去速度が増大することが判る。しかしながらCOD_{Cr}-SS負荷量が増大すると、図-3に示すごとく窒素除去率が低下するので、負荷量の設定には図-3と図-7との参照が要求される。一方、同一負荷でも処理水温が低下すると窒素除去速度は低下することが図から判る。27～30℃と13～15℃との間にはさしたる窒素除去速度の差はみられないが、処理温度が10℃に低下すると窒素除去速度は大巾に低下すると同時に、それ以上の温度域でみられたような負荷量の増大に伴う窒素除去速度の向上がみられなくなる。しかしながら、NaOHの補填を行うと、処理温度が10℃に低下しても大巾な窒素除去速度の低下はみられず、その補填効果の大きいことが判る。

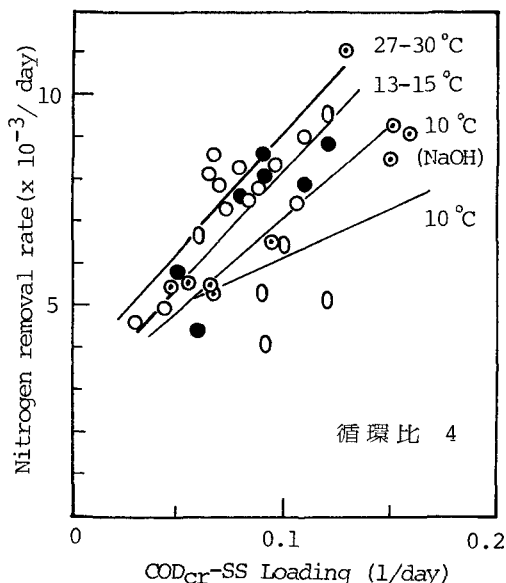


図-7 N除去速度に及ぼす負荷と処理水温の影響
(循環比 4)

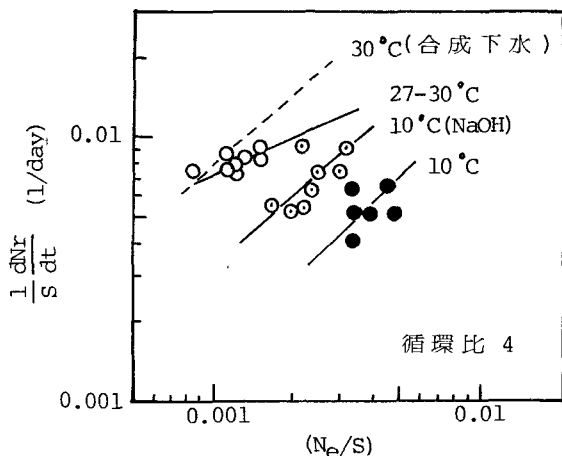
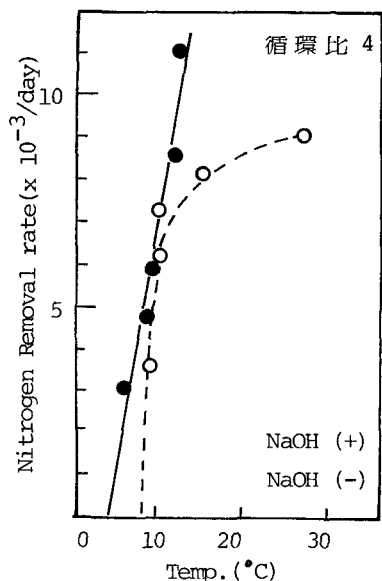


図-8 窒素除去速度に及ぼす温度の影響

図-9 嫌気-好気式高濃度活性汚泥法による窒素除去機能(合成下水を基質とする実験での循環比は3.0である)

NaOH を補填した場合と、補填しなかった場合における窒素除去速度におよぼす温度影響を検討したのが図-8である。この図から明らかなように、NaOH 無添加時には10℃を境として窒素除去速度が大巾に低下し、7～8℃前後で本窒素除去プロセスが成立しなくなることが判る。しかし、低温域でNaOH を補填すると無添加時に比して窒素除去速度が向上し、プロセスの成立しなくなる最低温度も4℃となり、プラントの運転操作面で有利になる。又、この図から高温域においてもNaOH 添加により窒素除去速度が向上することが予測されるが、この点については現在検討中である。

6. 「嫌気-好気式濃度活性汚泥法」による窒素除去の動力学

ベンチスケールでの合成下水の窒素除去実験成績から、「嫌気-好気式高濃度活性汚泥法」による窒素除去速度が、 (Ne/S) つまり窒素と活性汚泥の比で示される活性汚泥微生物の活性部位における窒素の飽和度により一義的に決まることを明らかにした。⁽¹⁾

$$\frac{1}{S} \frac{dNr}{dt} = \nu' \left(\frac{Ne}{S} \right)^{n'} \dots\dots\dots(2)$$

表-2. 種々の実験条件下における動力学恒数の比較

温 度	実 験 条 件		対象廃水	ν'	n'
	循環比	NaOH			
27～30℃	4.0	(-)	都市下水	0.192	0.473
10℃	4.0	(+)	"	1.80	0.918
10℃	4.0	(-)	"	1.61	1.02
20℃	3.0	(-)	合成下水	4.39	0.915

ここで、Nr は除去窒素濃度(mg/l) ν' , n' は恒数である。(2)式によって都市下水を対象とした実験成績を整理したのが図-9である。破線は参考のため、ベンチスケールの実験で合成下水を処理対象廃水とした際のデータを示している。表-2には、動力学恒数 ν' , n' を一覧表にして示した。この結果から、処理温度を高め、NaOH を補填して槽内のアルカリ度を高めた方が、低窒素濃度まで窒素除去速度を余り低下させることなく本プラントの運転が可能ことが判った。つまり、処理温度を高め、NaOH を補填することによりプロセス滞留時間を短くとることができる。参考の為、ベンチスケールでの合成下水の脱窒試験成績を示したが、循環比が3.0と低いにもかかわらず高い窒素除去速度が得られている。このことは、脱窒反応のH-donor として都市下水よりも合成下水の方が資化性の点で優れていることを示している。

7. 汚泥生物相

全酸化処理方式にて運転した本プロセスの原生動物数は12,000～34,000個体/ ml と多く、かつ多様な種類構成を示した。写真-2に本実験プラントの汚泥顕微鏡写真を示した。優占原生動物は *Vorticella* sp., *Carchesium* sp., *Epistylis* sp., *Arcella* sp., *Aspidisca* sp., 等で、その他 *Nais variabilis*, *Chaetognathus nodicandus*, *Trichocerca tenuior*, *Tardigrada* sp., 等の低負荷汚泥に特異的な原生動物が数多く観察された。又、硝化槽と脱窒槽の原生動物相には相違がみられず、脱窒槽汚泥中でも硝化槽汚泥中と同様な活発なる原生動物の活動が観察された。

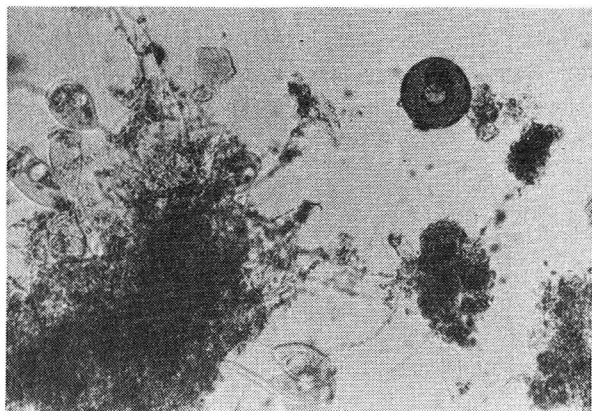


写真-2 汚泥顕微鏡写真

Prakasam等⁽⁵⁾の方法で計数した汚泥懸濁液中の活性バクテリア数は $10^8/ml$ 、MPN法⁽⁶⁾で計数したアンモニア酸化菌数、亜硝酸酸化菌数、脱窒菌数はそれぞれ、 $10^3/ml$ 、 $10^5/ml$ であった。

要 約

嫌気-好気式高濃度活性汚泥法の実用化への第1歩として、容量 $2.27m^3$ のFRP製の実プラントを建造し、分流式都市下水処理場の沈砂池流出水を処理対象下水として、その窒素除去特性につき検討を加え、以下の結論を得た。

1 循環比4.0で夏季(27～30℃)平均75.8%、冬季(11～15℃)平均71.8%の窒素除去率を達成することが出来た。

2 夏季、冬季ともに処理水中に未脱窒の NO_3-N が残存することから、脱窒反応が種々の要因による阻害を受けて脱窒速度が低下し、窒素除去効率の低下に結びついているものと推察された。

3 本法の窒素除去機能に及ぼす循環比、 $COD_{cr}-SS$ 負荷、処理温度の影響につき検討した。循環比を3～5、 $COD_{cr}-SS$ 負荷を $0.05 \sim 0.08 \frac{1}{日}$ 程度にとれば、70%以上の窒素除去率が得られることが判明した。又、処理水温の低下する冬季に、 $NaOH$ を補填することによって槽内のアルカリ度を高めれば、処理水温低下に伴う除去効率の低下を最小限に押えることができた。

4 本法による窒素除去速度は、(2)式で示される活性汚泥の活性部位における窒素の飽和度を考慮した動力学式でうまく説明できる。

参 考 文 献

- (1)橋本奨、古川憲治、下水道協会誌、Vol. 14, No. 152, 16～23(1977)
- (2)橋本奨、古川憲治、下水道協会誌、Vol. 14, No. 153, 21～25(1977)
- (3)橋本奨、古川憲治、下水道協会誌、Vol. 14, No. 156, 30～35(1977)
- (4)橋本奨、古川憲治、下水道協会誌投稿中
- (5)Prakasam, T.B.S., et. al.; Applied Microbiol, Vol. 15, No. 3, 461～467(1967)
- (6)土壤微生物実験法、192～199, 養賢堂(1977)