

(11) 生物脱リン法—嫌気・好気法—のし尿および下水への適用

荏原インフィルコ(株) 松尾 吉高 北川 政美
○ 田中 俊博 宮 晶子

1. まえがき

廃水からのリン除去技術としては、これ迄は主として化学脱リン法の三次処理的適用が検討されてきた。しかし、近年、活性汚泥の特殊なリン代謝を利用し、BOD、窒素などと同時に二次処理工程内でリン除去をはかろうとする生物脱リン法が将来における有力な脱リン技術として注目されはじめている。

生物脱リン法には大別してフォストリップ法と嫌気—好気法の二流がある。フォストリップ法では、活性汚泥法の返送汚泥を嫌気状態下のストリップ槽に滞留させ、このことにより返送汚泥からリンを抽出し、このリン抽出済返送汚泥を曝気槽に導いて廃水中のリンを「過剰摂取」せしめる一方、ストリップ槽から排出される濃厚リン溶液は石灰凝集法で処理される。これに対し、最初に南ア連邦⁽¹⁾で、続いて米国⁽²⁾で提案された嫌気—好気法は、循環式硝化脱窒法ないし活性汚泥法の原水と返送汚泥の流入端にDOも NO_x^- も存在しない「嫌気槽」を付設するだけの技術で、この様な簡単な改変によってリン含率の高い汚性汚泥が選択的に生成され、化学脱リン法の補助を必要とせず、廃水中のリンの大部を増殖汚泥に固定して除去できるとしている。フォストリップ法がいわば生物—化学脱リン法であるのに対し、嫌気—好気法は純然たる生物脱リン法であり、その意味でこの技術は関心を集め、わが国でもすでに優れた研究⁽³⁾⁽⁴⁾が報告されている。

筆者らは、嫌気—好気法の実用性を検討するために「循環式硝化脱窒変法」による生し尿の処理実験と「活性汚泥変法」による団地下水の処理実験を並行して進めている。本報では、これらの実験結果を紹介するとともに、嫌気—好気法の特性と問題点について言及する。

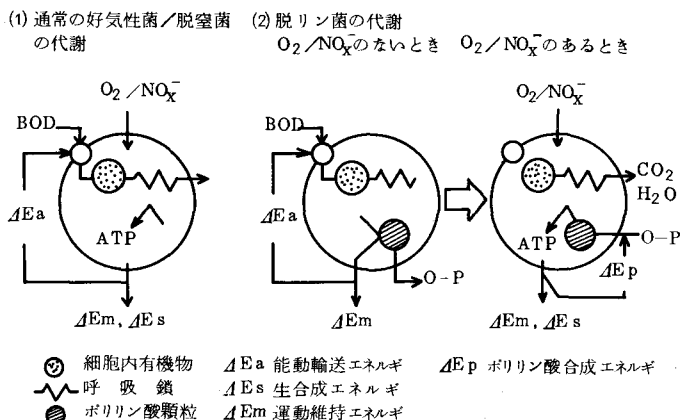
2. 嫌気—好気法の原理

現在のところ、嫌気—好気法の原理としては、液中にDOも NO_x^- も存在しない呼吸不能状態を有機物流入端に設けることにより、活性汚泥に「脱リン菌」ともいべきリン蓄積性の高い細菌が優占種として増殖するという説⁽²⁾が有力で、この種の細菌としてはAcinetobacterなどが同定されている。

図—1は、「脱リン菌」の生理を模式化したものである。この細菌は高分子P化合物グール(ポリリン酸顆粒?)

をもち、呼吸不能状態では、この高分子P化合物をO-Pに加水分解し、その際に放出されるエネルギーを利用して有機物を摂取する。次にDOと NO_x^- の存在する呼吸可能状態では、細胞内に摂取した有機物を酸化し、その際に得られるエネルギーの一部を利用して、溶液側に存在するO-Pを摂取して高分子P化合物を再合成する。しかして放出量以上のO-Pが摂取されればリン除去が可能となる。

この仮説が事実として確認されるには更に多くのデータを必要とするが、これ迄に嫌気—好気法で観察された事象はこの仮説と矛盾しない。ただし、種々の細菌の混入を前提とする廃水処理にあって、嫌気—好気法が実用技術として成り立つためには、必ず「脱リン菌」が優占種になるとの保証が必要である。



図—1 通常の呼吸性菌と「脱リン菌」—代謝モデルの比較

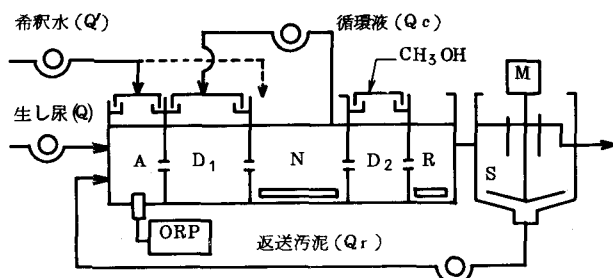
3. 循環式硝化脱窒変法による生し尿の処理実験

図-2に示される規模の実験施設を用い、生し尿を原水とした循環式硝化脱窒変法を2系列運転した。両系の主たる差異は種汚泥にある。A系は生物脱リン現象が観察されていた下水処理実験施設採取の活性汚泥を種汚泥とし、B系はし尿処理場の循環式硝化脱窒法実施設で採取した活性汚泥を種汚泥とした。図-3、4に示されるように希釈水注入位置を別とすれば、両系の運転条件は、ほとんど同一であった。

A系では、運転開始後約3ヶ月で完全なP除去が得られ、その後の成績も図-5に

示されるように安定していた。また、汚泥P含率も $4.0 \sim 4.6 \text{ mg/g-VSS}$ と高かった。図-3に示されるA系のO-P、COD_{Cr}の物質収支は嫌気-好気法の原理的特性を典型的に表わした。すなわち、嫌気槽では有機物摂取と並行して大量のPが放出され、後続の呼吸可能ゾーンでそのすべてが再吸収されていた。

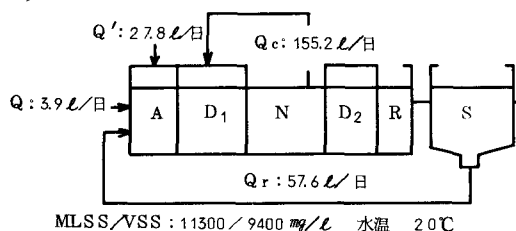
これに対し、B系の嫌気槽では運転開始後しばらくの間(約50日間)は顕著な生物反応は観察されず、Pの実質的除去も行われなかった。その後、有機物摂取量は次第に増大し、図-4にみるようにA系とほぼ同量となった。しかし、P放出はほとんど観察されず、P除去率は50%に、汚泥P含率は $2.0 \sim 2.7 \text{ mg/g-VSS}$ にとどまった。B系は約9ヶ月間運転を継続したが最後までA系と同等の処理成績を得ることはなかった。なお、両系とも第1脱窒槽でのみかけ有機物減少量が小さいにもかかわらず、そこで確実に脱窒が行われ、表-1に示されるようにPを除けば、その処理水質にはほとんど差がなかった。



A: 嫌気槽 (6L) D₁: 第1脱窒槽 (29L) N: 硝化槽 (30L)
D₂: 第2脱窒槽 (18L) R: 再曝気槽 (6L) S: 沈殿池 (8L)

図-2 生し尿処理 — 循環式硝化脱窒変法 — の実験施設

1) 運転条件



2) 水質分析データ

	生し尿	A	D ₁	N	D ₂	R	処理水
O-P	22.2	170.7	40.9	0.8	4.5	1.1	0.5
COD _{Cr}	1500	237	100	64	-	-	55

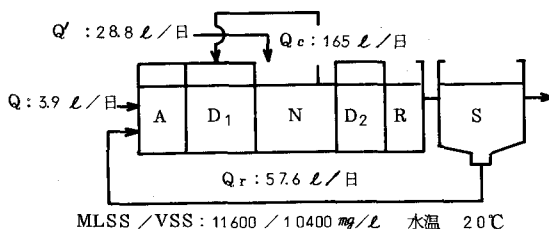
※ 生し尿は希釈後の数値

3) 物質収支 (単位: g/日)

	流入	A	D ₁	N	D ₂	R	流出
O-P	0.70	+13.50	-4.59	-9.56	+0.31	-0.28	0.02
COD _{Cr}	47.3	-30.9	-5.7	-8.6	-0.6		1.7

図-3 A系の運転条件とO-P, COD_{Cr}の収支

1) 運転条件



2) 水質分析データ

	生し尿	A	D ₁	N	D ₂	R	処理水
O-P	21.4	23.7	17.0	11.4	11.8	11.8	11.2
COD _{Cr}	1450	276	125	64	-	-	59

※ 生し尿は希釈水を換算した数値

3) 物質収支 (単位: g/日)

	流入	A	D ₁	N	D ₂	R	流出
O-P	0.70	+0.04	+0.51	-0.94	+0.04	0	0.36
COD _{Cr}	47.4	+34.3	+0.7	-12.0	-0.5		1.9

図-4 B系の運転条件とO-P, COD_{Cr}の収支

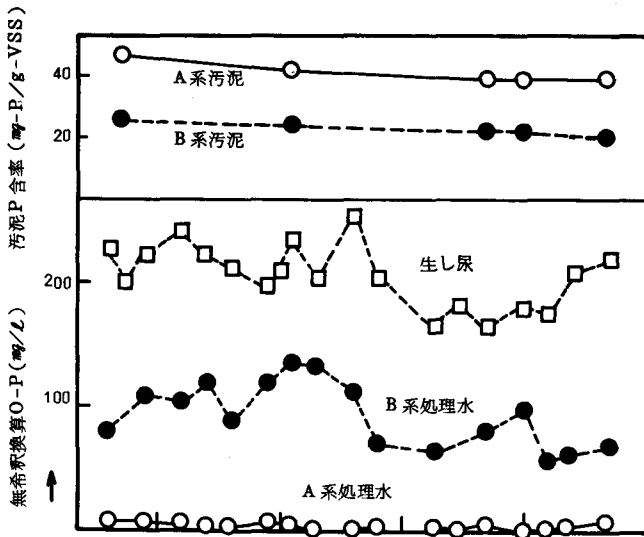


図-5 P除去成績と汚泥P含有率の経日変化

両系間の嫌気槽での生物反応の差異を確認するために、回分実験により両系汚泥の挙動を比較してみた。実験は三角フラスコに両系返送汚泥と生し尿を96:4で混合し、N₂ガスを吹込んで嫌気状態で封入し、定時間隔で採水する手法をとった。図-6はA、Bの両系の溶液側のO-P、COD_{Cr}、HA_c (GC法)の変化を示している。これで明かなように、A系汚泥は大量のP放出と並行して有機物摂取を行ったのに対し、B系汚泥はさしたる量のPを放出していないにもかかわらず、A系汚泥と同様の速度で有機物を摂取した。

この結果は連続実験での物質収支と一致しているが、筆者らは、このような両系汚泥の嫌気下における挙動の差異を、両系汚泥の細菌種構成の違いによると解釈している。すなわち、A系汚泥にはリン放出と共役して嫌氣的有機物摂取を行なういわゆる「脱リン菌」が優占していたのに対し、B系汚泥には、リン放出と共役しなくとも嫌氣的に有機物摂取を行ない得る unknown な「X菌」が優占していたと考えている。なお参考のために、標準循環式硝化脱窒法実施から採取した活性汚泥 (F市汚泥) とA系汚泥について同様の比較実験を行った結果を図-7に示す。F市汚泥は顕著な生物反応を示さなかった。

嫌気-好気法が実用技術として成り立つ前提としては必ずリン蓄積性汚泥が優制的に増殖する必要があるが、本実験結果は嫌気槽の付設だけでは必ずしもリン蓄積性汚泥が選択されないことを意味している。

表-1 一般水質データ (mg/L)

	生し尿	A系処理水	B系処理水
pH	—	7.33	7.59
BOD	7680	6.0	15.4
COD _{Cr}	13000	55	59
COD _{Mn}	2220	29	23
VFA	5950	—	—
SS	1870	14	6
T-N	1330	3	2.2
NH ₃ -N	1095	0	0
NO _x -N	—	0	0.3
O-P	180	0.5	11.2
Cl ⁻	1310	149	14.6

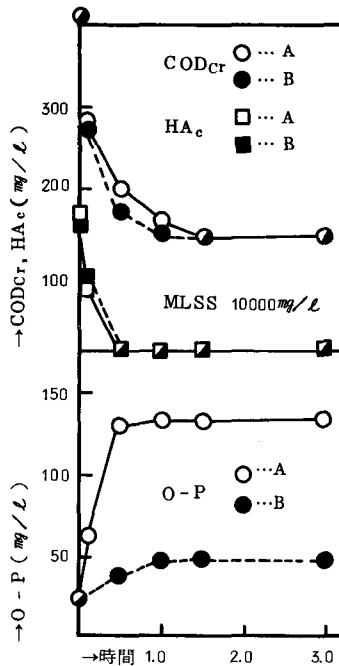


図-6 A系汚泥とB系汚泥の嫌気反応の比較実験

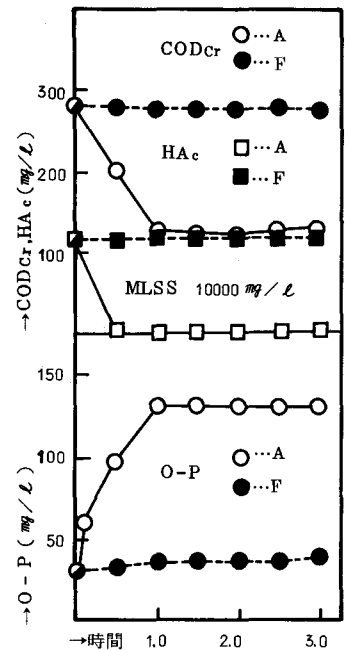


図-7 A系汚泥とF市汚泥の嫌気反応の比較実験

4. 活性汚泥変法による団地下水の処理実験

図-8に示される野外実験施設で活性汚泥変法による団地下水(社宅排水)の処理実験を行なった。この下水は水質変動が大きいので、原水や処理水だけでなく、嫌気槽と曝気槽の上澄液もコンポジット試料を分析した。本実験の種汚泥は同一の原水を処理していた標準活性汚泥法の実験施設から得られた余剰汚泥に、し尿処理実験から排出された余剰汚泥を加えたものである。

実験開始当初の運転条件は図-8に併記されており、その時のP除去成績は図-9に示されている。双方の図表には、比較参考のため、並行的に運転した標準活性汚泥法(曝気槽容積820ℓ)のデータも付記してある。

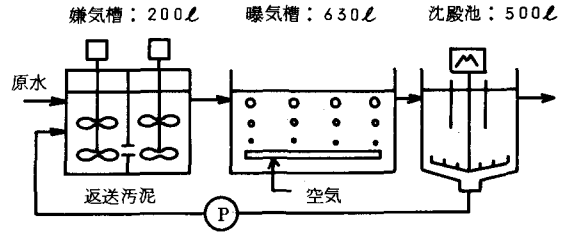
実験当初(実験-1)は低BOD負荷で運転したこと、種汚泥に多量の硝化菌が存在したことなどにより、曝気槽での硝化が著しく、沈殿池での脱窒による汚泥浮上が激しかったので、実験2、実験3では、チオ尿素を原水あたり0.6~0.9mg/ℓの割合で添加した。図-8に示されるようにその直後からP除去は

改善され、その後は硝化が生じて安定した除去成績が得られた。表-2には、嫌気-好気法と標準活性汚泥法の処理水質が比較してある。これにみるように嫌気-好気法では、SS濃度がやや高いがBODはむしろ低くなっている。

実験1~実験4までは団地下水そのものを原水として水理負荷を高めていったが、実験6と実験7では団地下水に KH_2PO_4 を添加し、原水のP/BOD比を高くしてその影響を調べた。結果は運転条件ともども次頁の表-3に示してある。

原水P/BOD比を0.05程度にした実験では、一応満足すべきP除去が得られている。しかし、この実験期間は3週間足らずであったので確実な現象とは言えない。原水P/BOD比を0.06に設定した実験6は約6週間運転した。その結果P除去率は60%程度に低下した。

一方、汚泥P含率は実験6の前半までは増加していったが、実験



	期 間	流量($\text{m}^3/\text{日}$)		MLSS/VSS (mg/ℓ)
		原 水	返 送	
実験 1	3/1~3/18	2.8	0.94	3960 / 2810
2	3/20~4/20	3.4	0.48	3260 / 2430
3	4/20~4/30	5.0	0.62	3550 / 2750
標準法	3/1~4/30	3.4	0.70	2040 / 1710

図-8 下水処理 — 活性汚泥変法 — 実験の施設と初期運転条件

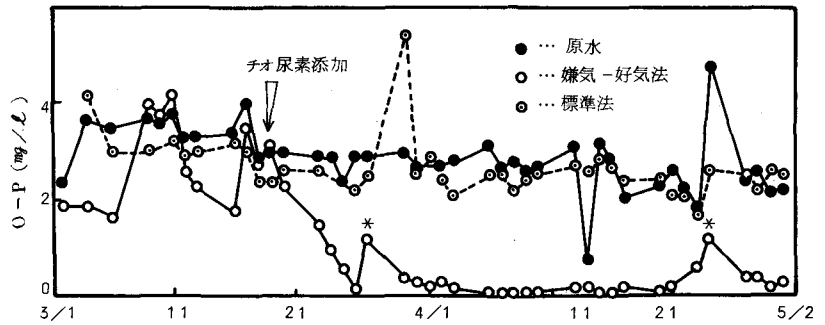


図-9 運転開始当初のP除去成績 (※…事故のため)

表-2 嫌気-好気法と標準活性汚泥法の処理水質比較(mg/ℓ)

	原 水	嫌気-好気法		標準法
		嫌気槽	処理水	
pH	7.49	7.60	7.88	6.68
SS	90	—	16	7
BOD	13.8	5.5	4.7	11.6
COD_{Mn}	50	9.8	10.2	8.7
O-P	2.7	13.0	0.1	2.3
T-P	4.5	—	0.5	—

註) 嫌気槽は汚泥沈降濃縮コンポジット試料をGF/Bでろ過して分析

6の後半では、60～65mg/g—

VSS前後で安定し、この値が団地下水水質に対応する限界汚泥P含率と推定された。従前の研究では、100mg/g—VSS以上の汚泥P含率が得られた例も報告されているが、本実験での限界汚泥P含率がそれに比べるとかなり低い値である点は注目される。

汚泥P含率に上限がある以上、嫌気—好気法でもその量的差違はあるにせよ、通常の活性汚泥法と同様に最大可能なP除去量は系の汚泥増殖量に律される。したが

って、P/BOD比の高い廃水を処理する場合にはP除去率に限界があり、P/BOD比の低い廃水でも汚泥含を長くして運転するならば、P除去率は低下する。これは、Pの除去を増殖汚泥のP固定だけに依存している嫌気—好気法の宿命であり、フォストリップ法に比してその適用範囲が制約される難点でもある。

筆者らは、このような嫌気—好気法の欠点を解消する方法として図—10に示されるような化学的P固定を包含した「改良嫌気—好気法」を考案し、その模擬実験を行った。この改良では、嫌気槽で生成される溶解性Pを濃厚に含む混合液の一部を中間沈殿池で固液分離し、P濃度の高い溢流液は化学脱リン法で処理したのちに曝気槽に導かれ、P含率が低下してP摂取能力が大きい沈殿汚泥は曝気槽にもどされて主流混合液が含むPの再摂取に参画する。このような特徴によって、

- ① 嫌気—好気法の改良法としては、汚泥のリン含率を制御することにより、高P/BOD比の原水でも迅速かつ確実なP除去が行ない得る。

- ② 凝集沈殿法、接触（晶析）脱リン法な

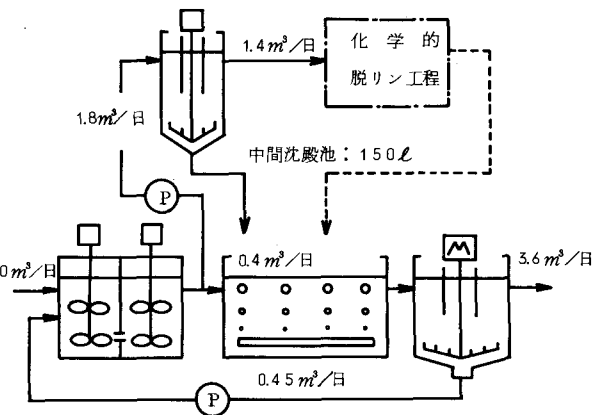
どを中間沈殿池溢流水の化学的脱リン処理に適用する場合には、被処理液のP濃度が高く、しかも完全なP除去を必要としないので、除去されたP量あたりの使用薬品量は、これらの技術を三次処理として適用する場合に比べて大幅に節減できる。

などの利点がある。

この改良法の実験結果は表—3に実験7として記載されている。また、その際の流量条件は図—10に付記されている。この実験は、規模の都合上、化学脱リン工程の実験を省略して中間沈殿池溢流水はそのまま系外に排除したので完全な実証実験にはなっていないが、嫌気—好気法における汚泥P含率の制御効果を見るには十分なものと考えられる。結果は予期した通りで、汚泥P含率は48mg/g—VSSにまで低下し、P/BOD比0.08の原水であっても、90%以上のP除去率が得られた。

表—3 実験4～7の運転条件と平均処理成績

	実験4	実験5	実験6	実験7
実験期間	4/30～5/20	5/20～6/7	6/7～7/10	7/10～7/30
原水/返送(m ³ /日)	5.0/0.62	5.0/0.62	5.0/0.62	図10参照
MLSS/VSS(mg/L)	2990/2270	3260/2640	2940/2210	2520/1890
原水P/BOD比	0.03	0.05	0.06	0.08
平均水質データ(mg/L)	原 処	原 処	原 処	原 処
BOD	180 4	160 10	149 6	107 3
COD _{Mn}	53 8	64 12	54 8	43 8
SS	123 12	127 10	137 17	122 4
T-P	5.2 0.3	7.9 0.8	9.1 5.0	8.5 0.5
O-P	3.1 0.1	4.5 0.4	5.6 2.2	5.0 0.2
嫌気槽出口O-P	14.0	17.8	19.8	12.4
汚泥P含率mg/gVSS	40～47	42～50	53～65	56～48



図—10 化学脱リン法と結合した改良嫌気—好気法と実験7の流量条件

次に筆者らは、良好なリン除去が行なわれている嫌気－好気法の汚泥と標準法の汚泥を、汚泥中のリン形態に着目して比較した。リンの分画には核酸の分離・定量法として一般的なSTS法⁽⁵⁾を適用した(図-11)。ここで冷酸抽出画分には比較的低分子のポリリン酸が含まれ、熱酸抽出画分にはDNA、RNAとともに縮合度の高いポリリン酸が抽出される⁽⁶⁾と考えられている。

図-12 に結果の一例を示す。数値は mg-P/g-VSS で示されている。嫌気槽流出汚泥と曝気槽末端汚泥の分画組成を比較すると、曝気槽汚泥は嫌気槽汚泥に比べて冷酸抽出画分が増加し、その差はほぼ摂取したP量に対応している。また曝気槽汚泥と標準法汚泥とを比較した場合も、この嫌気槽画分に著しい差があり、放出一摂取に関わるP化合物は主として冷酸抽出画分に存在すると推定される。この画分を更に詳しく検討することにより放出一摂取に関わるP化合物を固定できると考えられる。

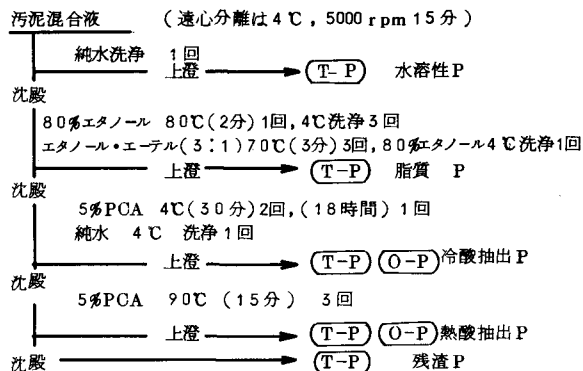


図-11 汚泥中のリン分画法

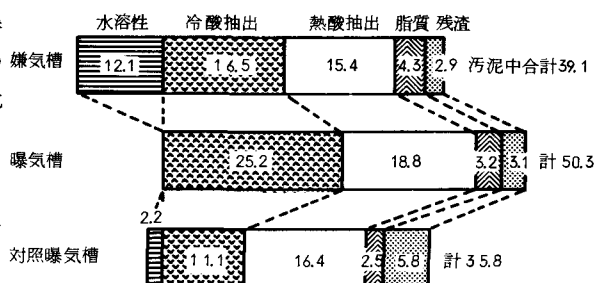


図-12 汚泥中のリン分布 (mg-P/g-VSS)

5. まとめ

嫌気－好気法の2つの型式、すなわち循環式硝化脱窒変法と活性汚泥変法をそれぞれし尿処理と下水処理へ適用すべく実験研究を行った。実験結果のまとめとして次の4点をあげる。

- ① リン蓄積性の高い汚泥さえ増殖すれば、嫌気－好気法の(処理水リン濃度からみた)リン除去成績は、化学脱リン法と同等のものになり得る。
- ② 嫌気槽を付設するだけでは、必ずしもリン蓄積性の高い汚泥が優占的に増殖するとは限らず、嫌気－好気法が実用技術となるためには、なお多くの基本的研究を必要とする。
- ③ 増殖汚泥のP固定を余剰汚泥の排出だけにP除去を依存している現行の嫌気－好気法はその適用範囲と運転法に制約がある。この改善方法としては、嫌気槽混合液の一部を固液分離し、その分離液を化学脱リン法で処理することが考えられる。
- ④ STS分画法に従えば、嫌気－好気法の放出一摂取に関わるリン化合物は冷酸抽出画分の物質であると推定される。

おわりに、本研究に対し終始有益な助言をいただき、当論文の発表を快く許可して下さった荏原インフィルコ(株)取締役中央研究所長遠矢泰典博士に感謝の意を表す。

- 参考文献 (1) A. R. McLaren, R. J. Wood; Effective Phosphorus Removal from Sewage by Biological Means, *Water Science & Technology*, Vol 2, No 1 (1976)
- (2) S. N. Hong, K. S. Kisenbauer, R. W. Fernandez; Design Operation of a Full Scale Biological Phosphorus Removal System, *Proceedings of 52nd Annual Conference*, (1979)
- (3) 西村, 鈴木, 中田, 平松; 循環式硝化脱窒法における脱窒素, 脱リンの研究, 第17回衛生工学研究討論会(1981)
- (4) 深瀬, 柴田, 宮地; 生物的リン除去法の基礎的検討, 第15回水質汚濁研究発表会(1981)
- (5) 水野; 核酸の一般的分離・定量法, 東大出版会(1969)
- (6) 吉田; ポリリン酸の生化学, 蛋白質 核酸 酵素, Vol. 4, No 1, PP-39-48(1959)