

## (19) 完全混合型曝気槽による有機物と窒素の同時除去に関する研究

### STUDY ON SIMULTANEOUS REMOVALS OF ORGANIC MATERIAL AND NITROGEN IN A COMPLETE MIXING REACTOR

石川 宗孝<sup>\*</sup>, 中西 弘<sup>\*</sup>, 深川 勝之<sup>\*\*</sup>, 村上 定瞭<sup>\*\*</sup>

Munetaka ISHIKAWA<sup>\*</sup>, Hiroshi NAKANISHI<sup>\*</sup>, Mashashi FUKAGAWA<sup>\*\*</sup>, Sadaaki MURAKAMI<sup>\*\*</sup>

**ABSTRACT**; The simultaneous removals of organics and nitrogen by means of the activated sludge process with a single reactor under continuous aeration and completely mixing have been investigated. In this reactor, the complex multi-reactions proceed simultaneously and therefore the substrate removal efficiencies are affected by the various factors. pH and DO are proposed as the principal operating variables, and their effects on organic oxidation, nitrification and denitrification have been discussed on the basis of the experimental results using a laboratory scale reactor. 98% of BOD and 80% of nitrogen were removed from an artificial night soil under the optimum DO and pH conditions. This process requires accurate controls of pH and DO. However, pH and DO can be readily controlled with pH and DO controllers. This method may be useful in biological waste water treatment because of the capital and running cost savings.

**KEYWORDS**; Single reactor, BOD oxidation, nitrification, Denitrification, pH and DO control.

#### 1. はじめに

廃水の生物学的窒素除去プロセスは多種多様に開発されている。このプロセスは、当初、BOD酸化菌、硝化菌および脱窒菌の各菌体を十分に保持するために各菌を別々に培養する三相汚泥方式を開発したが、<sup>1)</sup>その後、次第にプロセスを単純化し、施設をコンパクト化する研究がすすめられ、二相汚泥方式、単相汚泥方式と開発されてきた。このうち、単相汚泥方式は高い除去率と経済性の面から最も多く採用されている。この単相汚泥方式では、BOD酸化菌、硝化菌および脱窒菌を混合微生物集団の中で保持させた上で、槽内の環境を変えること（硝化槽と脱窒槽を分離して設置あるいは単一槽では部分的嫌気部の設置）によって、各菌の持つ能力をそれぞれ発揮させようというものである。すなわち、好気的な環境では有機物除去（BOD酸化）と硝化反応をすすめ、嫌気的な環境では脱窒反応を行おうというものである。しかし、技術はさらに進み完全混合型曝気槽においても有機物と窒素の同時除去ができるようになった。とくに、し尿処理においては確立した技術となっている。

このプロセスは完全混合型曝気槽において、曝気供給量をBOD酸化、硝化反応に必要な量だけ与え、過剰な供給量を避けることにより、槽全体を低DO状態に保つことによって、脱窒反応を行おうとするものである。しかし、装置的には単純であっても、その最適操作条件や完全混合型曝気槽内での脱窒現象の機構は

<sup>\*</sup> 山口大学工学部 Faculty of Engineering Yamaguchi University,

<sup>\*\*</sup> 宇部高等専門学校 Ube Technical College

十分に明らかにされていない。そこで、本研究では各反応に大きな影響を及ぼすと考えられるDOとpHの両因子を同時に制御した実験を行い、これらの因子の変化が各成分の除去に与える影響と完全混合型曝気槽における有機物と窒素の除去機構について検討した。

## 2. 理論的根拠

BOD酸化、硝化および脱窒の3反応のうち、BOD酸化と硝化反応は好気的反応であり、脱窒反応は嫌氣的反応である。このため、これらの反応は、環境が均一となる完全混合型曝気槽内では両立できないものと考えられた。筆者等は押し出し流れ型の単一曝気槽あるいはオキシテーション・ディッチ法においてBOD、窒素の除去過程で反応する各因子のモデル化を行った。<sup>2), 3), 4)</sup> 同一槽内での硝化・脱窒反応を逐次反応としてとらえ、BODの除去、酸素消費等を含めた各物質の反応モデル式はTable 1に示すようになる。これは文献3)で示す生化学反応モデル式を基礎として、できるだけ汎用にかつ簡単に表わせるようにモデル化した反応速度式である。

TABLE 1 Kinetic Model for BOD and Nitrogen Removal

|                           |                                                                                                                                                                             |     |
|---------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| BOD Removal               | $\frac{1}{X} \frac{dS}{dt} = -\frac{U_1 \cdot S}{K_1 + S} \cdot \frac{DO}{K_0 + DO} - \alpha \left( \frac{dC_1}{dt} \right)_B$                                              | (1) |
| NH <sub>4</sub> Removal   | $\frac{1}{X} \frac{dC_1}{dt} = -\frac{U_1 \cdot C_1}{K_1 + C_1} \cdot \frac{DO}{K_0 + DO} \cdot \frac{A}{K_A + A}$                                                          | (2) |
| NO <sub>x</sub> Formation | $\frac{1}{X} \frac{dC_2}{dt} = \frac{U_1 \cdot C_1}{K_1 + C_1} \cdot \frac{DO}{K_0 + DO} \cdot \frac{A}{K_A + A} - \frac{U_2 \cdot C_2}{K_2 + C_2} \cdot \frac{S}{K_S + S}$ | (3) |
| N <sub>2</sub> Formation  | $\frac{1}{X} \frac{dC_3}{dt} = -\frac{U_2 \cdot C_2}{K_2 + C_2} \cdot \frac{S}{K_S + S}$                                                                                    | (4) |
| Sludge Growth             | $\frac{dX}{dt} = a \left( \frac{dS}{dt} \right)_B + b \left( \frac{dC_1}{dt} \right)_B + c \left( \frac{dC_3}{dt} \right)_B - dX$                                           | (5) |
| Oxygen Consumption        | $\frac{dDO}{dt} = -a' \left( \frac{dS}{dt} \right)_B - b' \left( \frac{dC_1}{dt} \right)_B - d'X + k_{1a}(DO_s - DO)$                                                       | (6) |
| Alkalinity Consumption    | $\frac{dA}{dt} = -e \left( \frac{dC_1}{dt} \right)_B + f \left( \frac{dC_3}{dt} \right)_B$                                                                                  | (7) |

この反応モデル式が完全混合型曝気槽によるBOD、窒素の同時除去にも適用できるものと仮定した場合、次に示す因子や項目が重要となるものと考えられる。

- 1) BOD酸化菌、硝化菌および脱窒菌は混合微生物集団を形成して、各菌とも十分に保持されており、各菌がTable 1に示す反応をそれぞれ行うものとすれば、完全混合型曝気槽においてもBOD、窒素の同時除去が可能となる。ゆえに、本プロセスの前提条件として各菌を十分に保持できる汚泥滞留時間(SRT)を必要とする。
- 2) 単一槽内での硝化・脱窒反応がみかけ上逐次反応となる場合、硝酸性窒素の生成速度は次式で表すことができる。

$$(NO_x^- \text{ 生成速度}) = (\text{硝化速度}) - (\text{脱窒速度}) \dots\dots\dots (8)$$

これを具体的に数式化した一例が表1に示す(3)式である。本式は硝化された窒素は直ちに脱窒されることを示しており、完全混合型曝気槽における硝化・脱窒の基礎式となる。(3)式を効率的に運用する制御因子の1つにDO濃度がある。DOの制御は単一槽内の反応であるためBOD酸化、硝化反応に影響を与え、間接的に脱窒反応にも影響を与える。すなわち、DO濃度が高くなると硝化反応は進むが、脱窒反応は残存BOD濃度(S)が小さくなるため遅くなる。逆に、DO濃度が低くなると硝化

3) 硝化反応は水素イオンを増大させ、脱窒反応は水素イオンを減少させる。この意味で pH の役割は大きく、完全混合型曝気槽による硝化・脱窒反応を左右する因子となる。また、硝化反応ではアルカリ度が消費され、脱窒反応ではアルカリ度の供給があることが知られている。

pH の因子は 曝気槽の運転に対して、応答が非常に早い制御に役立つが、数学的モデルのパラメーターとして表わすにはその計算が非常に複雑なため、困難となる。なぜなら、 $H^+$  イオンの生成や消費の計算は液中に緩衝剤が多量に存在するため、複雑となる。そのため、pH の影響については、反応モデル式として、硝化反応には表-1 に示す(2)式のようにアルカリ度の項を加えた式を提示した。また、アルカリ度の消費と生成を示す式として(7)式をつけ加えた。本研究では、pH、アルカリ度の両因子について検討する必要がある。

以上のように、完全混合型曝気槽における BOD、窒素の同時除去は DO、pH（アルカリ度）が大きく影響する因子となるため、これらの因子を制御することにより、BOD、窒素の同時除去のための至適条件が得られるものと考えられる。

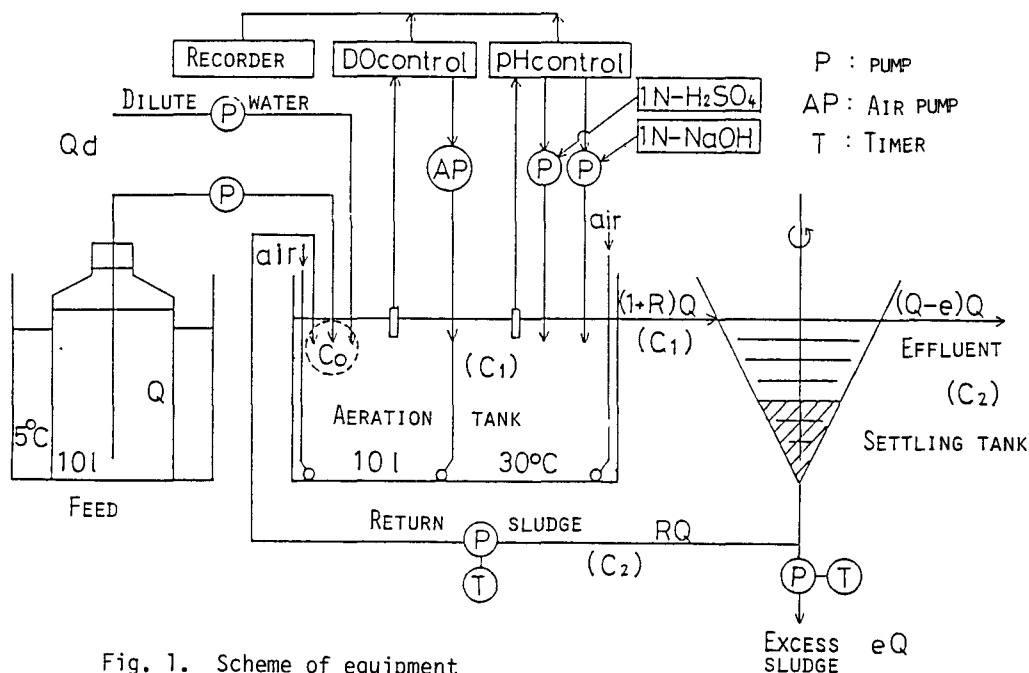


Fig. 1. Scheme of equipment

### 3. 実験装置と実験方法

### 3-1 實驗裝置

実験装置の概略を Fig. 1 に示す。曝気槽は円筒形の槽とし、槽の攪拌はラポスター（回転翼径 8 cm）を用い、300 rpm で十分に攪拌して完全混合型曝気槽とした。曝気方法は散気球を用い、2ヶ所で連続曝気し、1ヶ所で DO コントローラを用いて on-off 制御により曝気して DO をコントロールした。pH の制御は 1N・NaOH と 1N・H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> をチューブポンプで送入し、pH コントローラの on-off 制御によって調節した。Fig. 2 は pH および DO の制御の様子を示したものである。pH は最大 ±0.05、DO は最大 ±0.05 mg/l の幅で制御でき、良好な制御であるといえる。沈殿池はガラス製の円錐形状のものであり、槽容積は 1 l、

槽内の汚泥かき寄せ機は1 rpmで攪拌した。また、原水槽は約5℃で冷却、貯蔵できるようにしている。

### 3-2 実験方法

供試原水はTable2に示すように主成分にペプトン、肉エキスなど種々の無機塩類を含む模擬し尿を使用し、チューブポンプを用いて約1ℓ/day 曝気槽へ送入了。希釈水は約4ℓ/day とし、原水滞留時間10日、希釈水を含めた滞留時間は2日である。曝気槽内温度は30°±0.5℃に保ち、供試汚泥は下水処理場の返送汚泥をMLSSが約5000mg/ℓになるように投入した。返送汚泥量は1日8回(1回, 1時間)3ℓ/dayの割合で返送し、余剰汚泥は1日1回(1時間)0.1ℓ/dayの割合で引き抜いた。このとき汚泥滞留時間は40~50日となった。以上のよう

な設計条件を固定して、pH、DOの実験条件をpH5.0~8.0、DO0~3.0mg/ℓの範囲でそれぞれ条件設定し、各コントローラにより厳密に制御して、十分に馴致したところで各分析を行った。

各分析は大概下水道試験法に従って行った。NO<sub>x</sub>-Nについてはカドミウムカラム還元法によって行った。NO<sub>3</sub>-NはNO<sub>x</sub>-NからNO<sub>2</sub>-Nを減ずる

ことによって得た。C-CODはT-CODからN-CODを減ずることによって得た。各成分の濃度は塩素イオンを基準にして決定した。

## 4. 実験結果と考察

### 4-1 各水質の除去率とpH、DOの関係

Fig.3に各実験条件におけるBOD除去率とDO、pH、の関係を示した。図の上段はDOを考慮せずにpHとの関係をみたものであり、下段はpH値を考慮せずにDOとの関係をみたものである。pH、DOの変化にもかかわらずBOD除去率は高率の値を示した。なお、NO<sub>2</sub>-NによるBOD値への影響はあまりみられなかった。

C-COD除去率とpH、DOの関係をFig.4に示す。C-CODの関係をみたのはT-CODはNO<sub>2</sub><sup>-</sup>の影響が大きく現れるためである。C-COD除去率もpH、DO変化による影響がみられず、高率を示した。BOD、C-COD除去率に対してpH、DOの影響がみられなかったのは滞留時間が非常に長いことと、他の粗害因子が存在しないか微小だったためと考えられる。

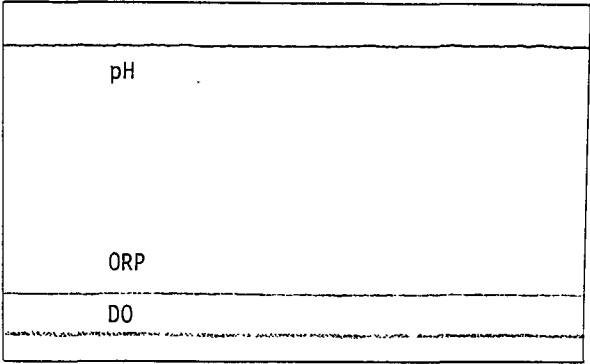


Fig. 2. Example of pH and DO control

TABLE 2 Composition and Characterization of Artificial Night Soil

| Component                                       | Concentration (mg/l) | Substrate         | Concentration (mg/l) |
|-------------------------------------------------|----------------------|-------------------|----------------------|
| Pepton                                          | 5,300                | BOD               | 9,700                |
| Meet Ex.                                        | 5,400                | COD               | 4,050                |
| Urea                                            | 1,000                | K <sub>j</sub> -N | 4,169                |
| NH <sub>4</sub> Cl                              | 2,200                | Alkalinity        | 7,673                |
| (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> | 4,700                | pH                | 8.5                  |
| NaCl                                            | 500                  | Cl <sup>-</sup>   | 4,170                |
| K <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub>                 | 1,400                | SS                | 2,400                |
| KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>                 | 1,100                |                   |                      |
| CaCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O            | 1,000                |                   |                      |
| KCl                                             | 3,200                |                   |                      |
| H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>                  | 2,600                |                   |                      |
| MgSO <sub>4</sub> ·7H <sub>2</sub> O            | 1,000                |                   |                      |

$K_j$ -N 除去率と pH, DO の関係を Fig. 5 に示した。DO に関係なく, pH 7 以上で 100% 近い除去率を得た。このことは硝化反応によって生じた水素イオンをアルカリの添加により中和されるために一層, 硝化反応が促進されると考えられる。また次項で述べる通り, pH 制御でアルカリが添加される状態にある場合にはアル

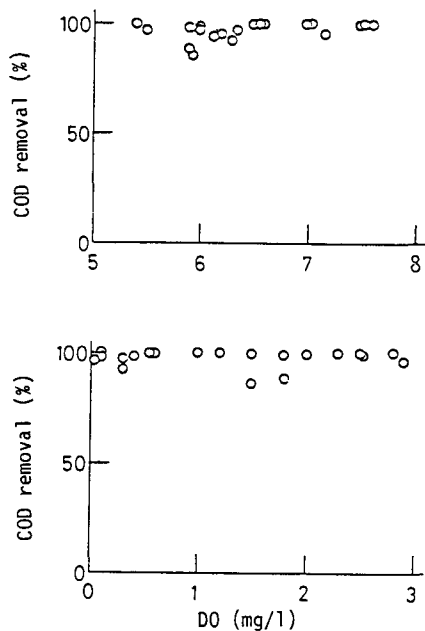
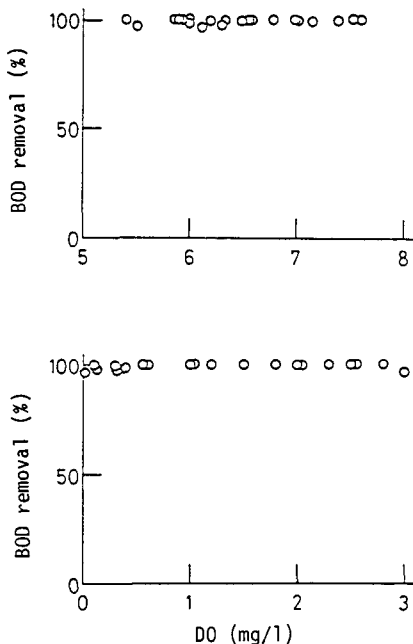


Fig. 3. Effects of pH and DO on BOD removal Fig. 4. Effects of pH and DO on COD removal

カリ度が補給されるため, 硝化速度が増大すると考えられる。これに対して pH の低い領域で除去率が低下しているのは, アルカリ添加が少ないか, ないために, 硝化反応が抑制されるものと考えられる。

一方, pH 6.5 以上の条件下では DO 濃度が高い程硝化は促進されているが, DO が 0 に近い状態においても高い硝化率を示している。pH 6.5 以下では DO 濃度が高い程硝化反応は抑制される傾向にあり, このことは DO 濃度が高い程アルカリ度が不足するため, アルカリ度 (pH) との非拮抗的關係が成立しているものと考えられる。

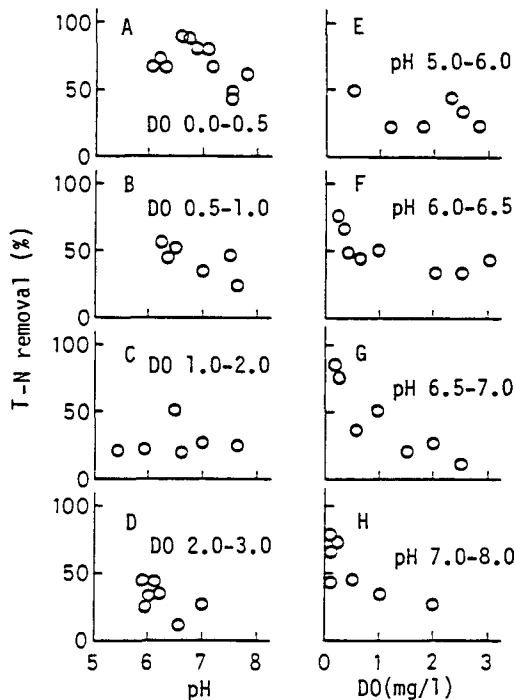
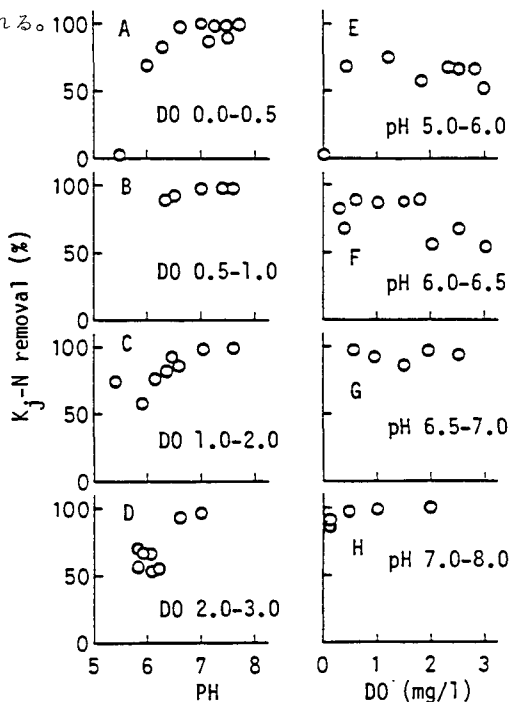


Fig. 5. Effects of pH and DO on  $K_j$ -N removal Fig. 6. Effects of pH and DO on T-N removal

T.N 除去率と pH, DO の関係を Fig. 6 に示した。除去率と pH の関係は, DO 全領域において pH によって除去率が変化する傾向は見当らず, pH の変化が脱窒反応に影響を及ぼしているとは言えない。一方, T.N 除去率と DO の関係は DO 濃度が低くなるほど T.N 除去率は上昇しており, pH 6.5 以上では明確にその傾向が出ている。これは DO 濃度が十分ある場合, 脱窒反応を抑制しており, DO が脱窒反応を阻害する要因であることを示している。本実験条件下では DO 濃度が  $0.5 \text{ mg/l}$  以下の条件下で 50% 以上の T.N 除去率が得られた。また, pH 6.5 以上の条件においては DO 濃度が  $0.1 \sim 0.3 \text{ mg/l}$  付近で約 80% 以上の除去率が得られており, 完全混合型曝気槽における硝化・脱窒反応が高度に行われることを証明している。

以上, 各水質の除去率からみると完全混合型曝気槽による BOD, 窒素の同時除去は十分に可能であり, 本模擬廃水では BOD 除去率 98%, 硝化率 100%, 脱窒率 80% 以上が pH 6.8 ~ 7.1, PO  $0.1 \sim 0.3 \text{ mg/l}$  付近に制御することによって達成できることがわかった。

#### 4-2 各反応速度について

各反応速度に対する環境因子 (pH, DO) の影響についてみた。併せて, 2章で提示した反応速度モデル式との関係についても検討した。

BOD, C-COD 除去速度と pH, DO の関係については変化がみられなかった。これは滞留時間が長いので, 環境因子に対する依存性がないことによると思われる。

$K_J$ -N 除去速度と DO の関係については Fig. 7 に示す。これは pH 低下による影響がないと考えられる pH 7.0 以上のところで DO 濃度に対する依存性をみたものである。 $K_J$ -N 除去速度は DO 濃度が上昇するとほぼ一定値となりその値は約  $0.22 \times 10^{-2} (\text{hr}^{-1})$  である。また, 低 DO 濃度でも十分な除去速度が得られており, 飽和定数  $K_o$  値を試算すると  $0.05 \text{ mg/l}$  となった。一方, DO 濃度が硝化反応を不足なく促進させるのに十分あると思われる  $1 \text{ mg/l}$  以上の条件下での  $K_J$ -N 除去速度とアルカリ度の関係を Fig. 8 に示した。 $K_J$ -N 除去速度とアルカリ度が高くなるにつれて上昇しており,  $200 \text{ mg/l}$  ( $\text{CaCO}_3$  として) で最大値を示した。これは 2章で述べた表 1 に示す(2)式とも一致した傾向を示している。硝化速度に対するアルカリ度の飽和定数值  $K_A$  は  $70 \text{ mg/l}$

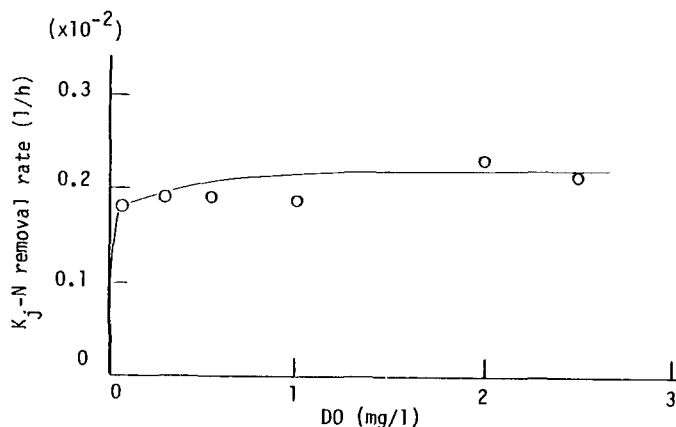


Fig. 7. Effect of DO on  $K_J$ -N removal rate in the pH range beyond 7.0

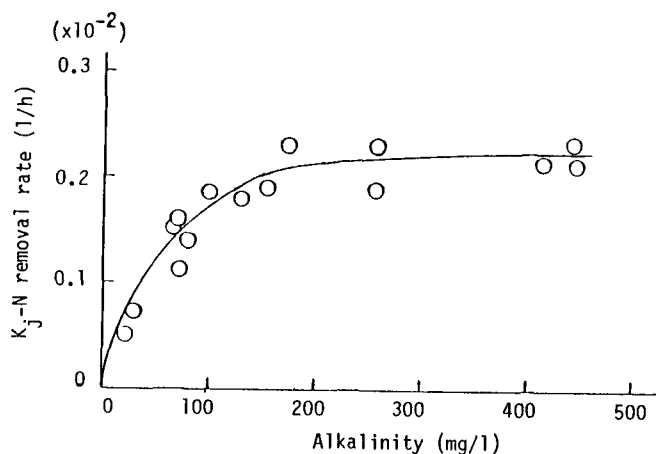


Fig. 8. Effect of alkalinity on  $K_J$ -N removal rate in the DO range beyond  $1 \text{ mg/l}$

となった。

pH6.5以上の条件下でのT.N除去速度とDOの関係をFig. 9に示す。これはDO濃度が低くなる程、脱窒反応が増すことを示している。さらに、曝気槽に残留しているC-COD濃度と脱窒速度の関係を比較したものがFig. 10である。残存C-COD濃度が高くなると脱窒速度が増加する傾向が確認できた。以上より、脱窒速度はDO濃度や残存有機物濃度に依存していると考えられる。

#### 4-3 DO 0.0 mg/l 付近の制御方法について

DO 0.0 mg/l 付近はDOコントローラのみによる制御ではDOセンサーの精度からみてもやや不十分な点がある。そのため付属実験としてORPコントローラとエアポンプを連結して、ORPの制御を行なったが、精度のよいORP制御が行えた。本実験条件下でのORPとDOの関係をFig. 11に示した。DO濃度が0であるという意味は嫌気的条件を意味するものではなくORPがかなり高い所でDOが0になっていることを示すものである。この意味からDO濃度が0付近での挙動を調べるためにはORPによる曝気制御も必要となると考えられる。今後の検討課題である。

#### 5. ま と め

完全混合型曝気槽における連続流入・連続曝気方式においても、槽内の環境因子となるDO, pHを制御して、至適条件にすることにより効率のよい有機物と窒素の同時除去ができることを実

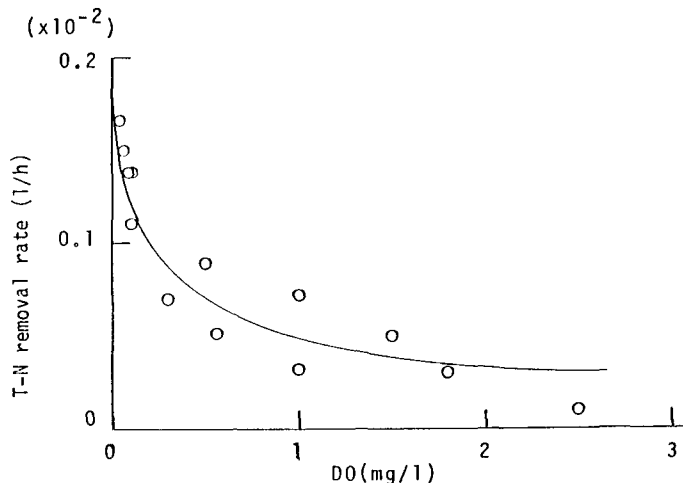


Fig. 9. Effect of DO on T-N removal rate in the pH range beyond 6.5

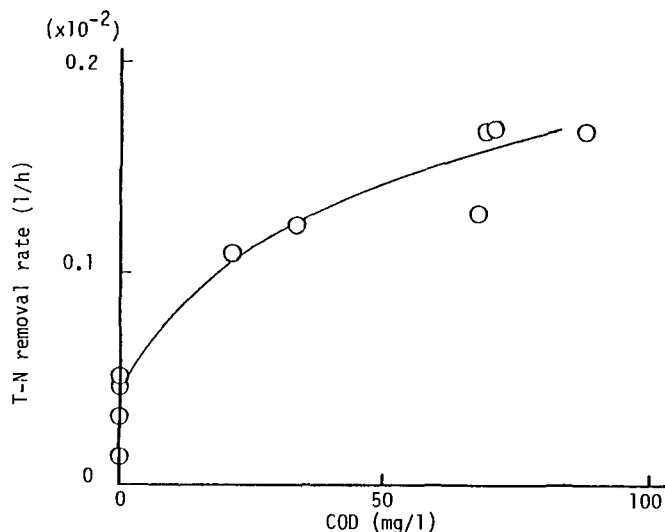


Fig. 10. Relation of T-N removal rate with COD remaining in aeration tank

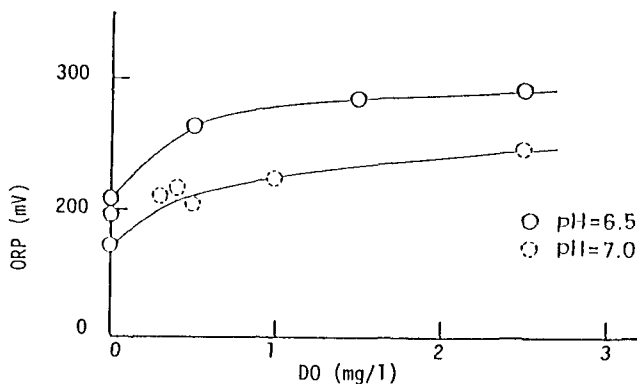


Fig. 11. Correlation between DO and ORP

験的にも確認した。すなわち、本模擬廃水では pH 6.8~7.1, DO 0.1~0.3 mg/ℓ 付近で制御することにより、BOD 98%, 窒素 80% 除去が可能となった。

硝化・脱窒反応と DO, pH の関係が明らかになった。硝化反応は、本実験条件範囲内では DO の影響が小さく pH の影響がより大きいことが判った。脱窒反応には、pH の影響は顕著でなく、DO の影響が大きいことが明らかとなった。また、硝化に対する pH の影響は pH コントロールという意味だけでなく、アルカリ度を補充する意味がある。また、pH の影響をアルカリ度で表示することにより、シミュレーション計算に応用できることを確認した。

先に提示した水質反応モデル式が若干、修正することにより完全混合型曝気槽にも適用できることが確認できた。これは、BOD 酸化菌、硝化菌および脱窒菌を含む生物集合体が環境因子の変化によって、各環境にあった反応を持たらすことを意味している。とくに、硝化・脱窒反応は完全混合槽においてもみかけ上、逐次反応として表現できる。

DO 濃度が小さいとき、とくに 0 mg/ℓ 付近では ORP 制御が便利であり、今後、検討する必要がある。

#### 記号説明

|                                                                                                              |                                                 |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------|
| X : 活性汚泥濃度 (mg/ℓ)                                                                                            | U <sub>2</sub> : 脱窒最大反応速度定数 (hr <sup>-1</sup> ) |
| S : BOD 濃度 (mg/ℓ)                                                                                            | K <sub>2</sub> : 脱窒飽和定数 (mg/ℓ)                  |
| U <sub>s</sub> : BOD 最大反応速度定数 (hr <sup>-1</sup> )                                                            | a : 除去 BOD の汚泥転換率                               |
| K <sub>s</sub> : BOD 飽和定数 (mg/ℓ)                                                                             | b : 硝化による汚泥転換率                                  |
| K <sub>O</sub> : DO 飽和定数 (mg/ℓ)                                                                              | c : 脱窒による汚泥転換率                                  |
| DO : 溶存酸素濃度 (mg/ℓ)                                                                                           | d : 内生呼吸による汚泥の自己酸化率 (hr <sup>-1</sup> )         |
| α : 脱窒作用時に消費される BOD の換算係数                                                                                    | a' : BOD 除去に必要な酸素利用率                            |
| C <sub>1</sub> : NH <sub>4</sub> -N 濃度 (mg/ℓ)                                                                | b' : 硝化に必要な酸素利用率                                |
| C <sub>2</sub> : NO <sub>x</sub> -N (NO <sub>2</sub> -N + NO <sub>3</sub> -N = NO <sub>x</sub> -N) 濃度 (mg/ℓ) | d' : 汚泥の自己酸化に必要な酸素利用率 (hr <sup>-1</sup> )       |
| C <sub>3</sub> : N <sub>2</sub> -N (液体換算) 濃度 (mg/ℓ)                                                          | k <sub>La</sub> : 総括酸素容量係数 (hr <sup>-1</sup> )  |
| U <sub>1</sub> : 硝化最大反応速度定数 (hr <sup>-1</sup> )                                                              | DO <sub>s</sub> : 液中の酸素飽和濃度 (mg/ℓ)              |
| K <sub>1</sub> : 硝化飽和定数 (mg/ℓ)                                                                               | e : 硝化に必要なアルカリ度の換算係数                            |
| A : アルカリ度 (mg/ℓ)                                                                                             | f : 脱窒により生成するアルカリ度の換算係数                         |
| K <sub>A</sub> : アルカリ度飽和定数 (mg/ℓ)                                                                            |                                                 |

#### 引用文献

- 1) 建設省都市局下水道部：「第 2 回日米下水処理技術委員会会議録」, (1973)
- 2) 石川宗孝, 中西弘, 水船清司：「好気性脱窒現象のモデル化に関する研究」衛生工学研究論文集, Vol. 19, (1983)
- 3) 村上定暲, 石川宗孝, 中西弘「生物学的脱窒素反応の高効率化に関する研究 —— 生化学反応のモデル化と動力学的取り扱い (その 1), (その 2) ——」環境技術 Vol. 13, No 4, No 6 (1984)
- 4) Y. Terashima & M. Ishikawa "The kinetic Analysis of BOD and Nitrogen Removal in an Oxidation Ditch" Wat. Sci. Tech. Vol. 17, Amsterdam, (1984)