

(29) 硝化・内生脱窒法における固定化微生物の応用

Application of Immobilized Bacteria to Nitrification-Denitrification Process Using Internal Carbon Source

滝沢智¹、鈴木穰²、高橋正宏²、波多野伸³、宮田純⁴
S.Takizawa, Y.Suzuki, M.Takahashi, S.Hatano, J.Miyata

[ABSTRACT] A serial Nitrification-Denitrification Process (O-AO-O Process) which utilizes organics incorporated into bacteria as the main carbon source for denitrification, has been recently developed as a nitrogen removal process from domestic wastewater. More than 80% of nitrogen can be removed from wastewater by the O-AO-O Process without nitrified-liquor recirculation, hence it can save enrgy. However, it requires comparatively long Hydraulic Retention Time(HRT), ca. 20 to 24 hours, in the biological reactors. The objective of this study is to develop a process which can cut required HRT of the present O-AO-O process by half. A 165L pilot plant was fabricated and experimental studies on nitrogen removal from domestic wastewater were carried out from June 1992 through May 1993. Polypropylene pellets were added up to 40vol.% of the oxic-tank in order to enhance nitrification, and effects of immobilizing pellet and ORP on denitrification were investigated. Whereas the water temperature in the reactors fell as low as 12.5°C, 65% of the influent nitrogen was removed within 13.2 hours of biological reaction time.

[KEYWORDS] wastewater treatment, nitrogen removal, immobilized bacteria, pellet, ORP control

1. はじめに

硝化・内生脱窒法は下水中の窒素除去法の一つであり、好気槽（硝化槽）－無酸素槽（脱窒槽）の順に下水を流通させることにより、有機物の添加や下水の循環をせずに80%以上の窒素除去率を達成できる処理法である¹⁾²⁾³⁾。しかし、脱窒に用いられる有機物が主に菌体内に蓄えられたものであることや、好気槽において有機物の好氣的な除去反応と硝化反応とが競合することから生物反応槽内の全滞留時間は20～24時間程度と長い処理時間を要する。このため、処理施設に余裕があり、処理水の窒素基準が厳しい場合には適した処理法であるが、一般的に多くの下水処理施設で採用されるには至っていない。

¹ 東京大学工学部附属総合試験所, Faculty of Engineering, University of Tokyo

² 建設省土木研究所下水道部, Water Quality Control Department, PWRI, Ministry of Construction

³ 建設省土木研究所下水道部, Water Quality Control Department, PWRI, Ministry of Construction

⁴ 浜松市下水道部, Sewage Works Department, Hamamatsu-City

⁴ 日本鋼管エンジニアリング研究所川崎第2研究部, Engineering Research Center No.2 Dept., NKK Corp.

硝化・内生脱窒法の処理時間を短縮する試みは森山ら⁴⁾によって行われ、活性汚泥濃度を4600mg/Lに高めることにより、処理時間12時間、水温12℃の条件で、窒素除去率70%を達成した。しかし汚泥濃度を極端に高めた場合には、生物反応槽自体は小規模化できても沈殿池を大型化しなくてはならない上に、実用上さまざまな運転障害も予測される。そこで本研究では硝化反応槽に結合固定化担体を投入することにより硝化細菌の濃度を高め、さらに担体内部にある微生物により脱窒反応が起こることを利用して、活性汚泥濃度は3000mg/Lのままで、硝化・内生脱窒法の処理時間を従来の1/2程度に短縮することを試みた。

これまでの研究によると¹⁾³⁾⁵⁾、硝化・内生脱窒法では、脱窒反応のうち40~50%が好気槽で起こっていることが明らかとなっている。従って硝化反応と脱窒反応のバランスをとるために好気槽の曝気量管理はきわめて重要である。原田¹⁾、森山ら⁵⁾はORPまたはDOに基づいた曝気量の制御方法を検討し、実処理装置への適用を行った。この場合、DOが溶存酸素という単一物質を測定しているのに対して、ORPは特定の物質もしくは反応のみに依存するものではなく溶液中に存在する複数の酸化・還元性物質の総合的指標である。これまでの研究ではどちらを指標としたほうがよいかは結論が出ていないが、小型の処理装置では低い溶存酸素濃度を安定して維持することが困難であるといわれている。そこで本研究においては好気槽の曝気量制御法としてORP制御を採用し、担体添加法における指標としての有効性も検討した。また、実際の下水処理施設では流入下水の流量変動の影響を避けることはできないが、本研究においても低水温期における流量変動が処理水水质に与える影響について検討した。

2. 実験方法

2. 1 パイロットプラント実験

反応装置に供給した原水は浜松市湖東処理場に流入する団地下水であり、滞留時間約4時間の流量調整槽から汲み上げた後、目開き1.5mmの自動掻き上げスクリーンを通して実験装置に供給した。

硝化・内生脱窒法パイロットプラントの構成を図-1に示す。反応槽の構成は好気槽-無酸素槽-再曝気槽-沈殿池の順であり、好気槽にはポリプロピレン製チューブ状担体（外径4mm、内径3mm、長さ5mm、比重1.001[g/cm³]）を0、20、40vol.%の割合で段階的に添加した。再曝気槽には、りん除去を目的としてPACを表-1に示す割合で添加した。返送汚泥量は流入水量に対して100%とし、流量変動実験時にも平均流量の100%で一定にした。

余剰汚泥は全実験を通じて反応槽内の汚泥濃度（MLSS）が

3,000mg/Lになるように、再曝気槽末端からポンプにより引き抜いた。

好気槽はアクリル製で容積50L、水深100cm、底部にはセラミック製の散気板を備えている。また微生物固定化担体を槽内に保持できるように反応槽流出部には目開き1.5mmのウェッジワイヤースクリーンが取り付けられている。散気板からの曝気量は、槽内が常に一

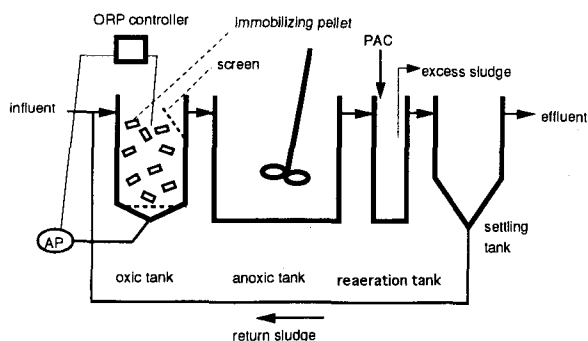


Fig.1 Schematic of Experimental Apparatus

定のORP値に保たれるように自動制御した。ORP測定装置は東亜電波HM-5S型、ORP電極はAUS-338型Au-AgCl電極であった。無酸素槽は鋼板製で容積100L、水深44cm、機械式の攪拌装置により反応槽内を攪拌した。再曝気槽は容積15Lで、定量曝気であった。

実験は表-1に示すRun-1～

Run-6に分けて行った。Run-2は凝集剤添加量を短期的に増加させた場合のりん除去効果と硝化反応の阻害の関係を調べたものであるが、本論文では割愛した。Run-3の実験開始前、即ちRun-2の後半50日間はPACの添加量を1molAl/molDPで一定にしており、反応槽内の活性汚泥はRun-3の実験開始前にこのPAC添加量で十分に馴致されていたものと考えられる。Run-3、Run-4では担体添加量をそれぞれ20vol.%、40vol.%に上昇させたが、ここで用いた担体は、あらかじめ実施好気槽内で2カ月以上馴養したものであった。Run-5では硝化-脱窒反応に対するORPの影響を調べるために、ORP目標値を160mVに上昇させた。また、Run-6では流量変動の影響を調べるために、3台の原水供給ポンプをタイマーによりON-OFF制御することにより、図-2に示す50～150%の変動パターンで流量変動をかけた。

水質分析方法および硝化、脱窒細菌数の計数方法は下水試験方法('84年版)に従い、DO、MLSS、溶解性窒素、溶解性りんは週2回、その他の項目は週1回行った。採水は、原水及び処理水は24時間コンポジットサンプル法で、反応槽内溶液については午前10時頃のクックサンプル法で行った。

2. 2 回分実験

(1) 硝化速度測定実験

- ①担体を含む硝化槽混合液を3L採取し、目幅1.5mmのスクリーンで担体を分離する。
- ②3L三角フラスコを2つ用意し、1つには①でスクリーンを透過した活性汚泥混合液を、もう一つには湖東浄化センター実施処理水3Lと①で分離した担体を入れる。
- ③基質(NH₄Cl 0.35g, NaHCO₃ 1.0g)を投入し、曝気開始後約1.0分で槽内水を採水し、5Cろ紙でろ過したものを窒素濃度の分析に供する。採水時には、槽内の水温、pH、DOを記録する。
- ④以後30分ごとに4時間まで採水し、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-Nの分析を行う。
- ⑤実験終了時には、三角フラスコ内のMLSSを測定する。

(2) 脱窒速度測定実験

- ①担体を含む硝化槽混合液を3L採取し、目幅1.5mmのスクリーンで担体を分離する。

Table 1 Experimental Conditions of Pilot Plant Study

	Run-1	Run-3	Run-4	Run-5	Run-6
Periods	6/25 ~ 7/21	10/16 ~ 11/24	11/25 ~ 1/17	1/18 ~ 2/17	2/18 ~ 3/25
Pellets [vol.%]	0	20	40		
ORP Objective [mV]	+110	+140		+160	
PAC Dose [molAl/molDP]	0	1.0			
MLSS [mg/L]	3000				
Return Sludge [vol.%]	100				
Flow Rate Fluctuation [%]	Equalized Flow Rate				50~150
HRT in Reactors [hours]	13.2				

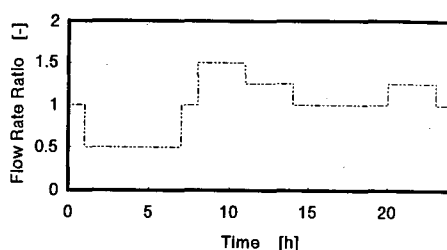


Fig.2 Hourly Fluctuation of Influent Flow Rate

②3L三角フラスコを2つ用意し、1つには①でスクリーンを透過した活性汚泥混合液1.5Lを、もう一つには湖東浄化センター施設処理水1.5Lと①で分離した担体を入れる。

③2つの三角フラスコのそれぞれにパイロットプラント流入下水1.5Lおよび基質 (NaNO_3 0.6g)を投入し、スターラーで攪拌しながらDOが0 mg/Lであることを確認して槽内水を採水し、5Cろ紙でろ過したものを窒素濃度の分析に供する。採水時には、槽内の水温、pH、DOを記録する。

④以後30分ごとに4時間まで採水し、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の分析を行う。

⑤実験終了時には、三角フラスコ内のMLSSを測定する。

3. パイロットプラント実験結果

3.1 処理装置の運転状況

表-2.1にRun-1から

Run-6の運転結果をまとめて示す。実験装置全体の運転状態はおおむね良好で、特に大きな故障はなかった。以下にパイロットプラントの維持管理結果を記す。

(1) 表-2.1より、処理水のpHは全実験を通じて6.5以上であった。しかし、下水中の窒素濃度が上昇する冬期に行ったRun-5、Run-6では、硝化を進めるため好気槽ORPを高く維持したことも原因して脱窒反応量が硝化反応量に比べて少なくなったために好気槽のpHは6.2にまで低下し、アルカリ度もRun-5では20mg/Lまで低下した。ただし、表-2.2に示した水質分析結果から、溶解性BOD濃度も他のRunと同程度であり、アンモニア性窒素もほぼ完全に硝化されていることから処理への障害はなかったものと考えられる。

Table 2.1 Summary of the Results of Pilot Plant Study (1)

Run No.		Run-1	Run-3	Run-4	Run-5	Run-6
Periods		6/25 ~ 7/21	10/16 ~ 11/24	11/25 ~ 1/17	1/18 ~ 2/17	2/18 ~ 3/25
Wastewater Flow Rate	[L/d]	284	290	304	294	296
Return Sludge	[L/d]	298	308	303	311	295
Excess Sludge	[L/d]	13.3	6.5	8.4	8.7	8.9
Sludge Return Ratio	[%]	105	106	100	106	100
HRT in Biological Reactors	[h]	14.0	13.6	13.0	13.5	13.4
HRT in Final Sedimentation Tank	[h]	4.7	4.6	4.4	4.6	4.5
BOD-SS Load	[t/d]	0.363	0.349	0.391	0.357	0.350
TN-SS Load	[t/d]	0.062	0.054	0.068	0.055	0.066
SRT	[d]	12.9	24.0	17.8	16.0	18.6
A-SRT	[d]	3.9	7.3	5.4	4.8	5.6
Total Nitrogen Removal Rate	[%]	88	63	64	65	63
Total Phosphorus Removal Rate	[%]	58	67	58	70	63
PAC Dose Ratio		0	1.2	0.7	1.2	1.1
Temperature	Influent	[C]	25.3	20.0	18.8	18.0
	oxic tank	[C]	25.8	19.2	15.3	12.5
	effluent	[C]	25.8	19.2	15.0	12.3
pH	Influent	[-]	6.9	7.0	7.0	7.1
	oxic tank	[-]	6.4	6.6	6.3	6.2
	effluent	[-]	6.8	6.8	6.6	6.5
Alkalinity	Influent	[mg/L]	115.0	110.8	126.7	122.5
	oxic tank	[mg/L]	40.0	48.5	43.7	20.3
	effluent	[mg/L]	58.5	50.3	46.2	32.3
MLDO	oxic tank	[mg/L]	0.4	0.5	4.1	5.6
ORP	oxic tank	[mV]	98	145	143	150
	anoxic tank	[mV]	-188	34	-31	-22
MLSS	oxic tank	[mg/L]	2740	2718	2923	3290
	pellets	[mg/L]	0	1607	3438	3790
	return sludge	[mg/L]	3929	5445	7838	7930
	excess sludge	[mg/L]	2625	2900	3233	3600
Nitrogen Content in Sludge	[%]	6.9	6.1	6.0	6.7	7.0
Phosphorus Content in Sludge	[%]	2.5	2.7	2.2	2.4	2.2
SV	[%]	34.3	35.2	50.8	92.5	47.6
SVI	[-]	115.8	128.2	165.7	271.0	201.6

(2) 好気槽の設定ORPと実測ORPを図-3に示す。高水温期では設定ORPよりも実測ORPが高くなっていることが多いが、水温が低下するにつれてRun-5やRun-6では設定値よりも反応槽内

のORPの方が低くなっている。特にRun-6では午前10時頃に最大負荷がかかっているの、設定ORPよりもかなり低いORPで運転されている。好気槽内の溶存酸素濃度はRun-1、Run-3では低く、Run-4～Run-6では高くなっている。ここに示した値は平均的な値であるが、実際には曝気量の変化にともなって好気槽内の溶存酸素濃度は大きく変動していた。これはDO計とORP計との応答時間の違い、測定対象の違いなどによるものであり、両者の関係とし

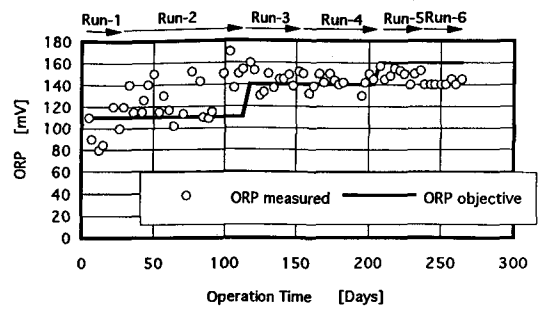


Fig.3 Time Course of ORP in the Oxidic Tank

ては、設定ORP値が高いほど好気槽DOも高くなるという一般的傾向が観察されたにとどまった。

(3) 反応槽内の活性汚泥濃度(MLSS)は好気槽から採取したサンプルについて測定したが、表-2.1のように、設定値の3000mg/Lに対して±10%の変動内に維持できた。担体付着汚泥濃度は反応槽容積当りに換算して表示した。表-2.1によると、Run-3では1600mg/L、Run-4では3400mg/Lとなり、Run-5で最大となるなど、担体の添加量および流入BOD濃度に比例する形で変動した。

(4) これまでの研究から、水温が15℃以下で硝化を進める際に必要とされる好気槽内汚泥滞留時間A-SRTは約10日とされている²⁾⁶⁾。また水温20℃で必要とされるA-SRTは約6.4日であるが⁷⁾、表-2.1よりRun-3では反応槽内水温が19.6℃と高いため硝化菌の保持に必要なA-SRTが保たれている。しかし、Run-4～Run-6ではA-SRTは5日程度であり、生物反応槽内からは硝化菌のウォッシュアウトが起こっていた。

3. 2 有機物、SSの除去

表-2.2にRun-1からRun-6の水質分析結果を示す。

(1) 同表および図-4からわかるとおり、流入下

Table 2.2 Summary of the Results of Pilot Plant Study (2)

Run No.			Run-1	Run-3	Run-4	Run-5	Run-6
Periods			6/25 ~ 7/21	10/16 ~ 11/24	11/25 ~ 1/17	1/18 ~ 2/17	2/18 ~ 3/25
Transparency	effluent	[cm]	30.0	18.0	15.3	13.8	9.6
	SS						
SS	influent	[mg/L]	113.0	136.7	158.3	150.0	152.0
	effluent	[mg/L]	4.3	14.0	14.7	15.8	23.6
COD Mn	influent	[mg/L]	47.3	45.7	48.7	44.5	50.2
	effluent	[mg/L]	7.4	10.2	13.5	11.5	15.2
D-COD	influent	[mg/L]	26.8	21.7	26.8	23.0	26.2
	effluent	[mg/L]	6.4	8.0	9.9	9.2	9.4
BOD	influent	[mg/L]	175.0	163.3	188.0	200.0	188.0
	effluent	[mg/L]	6.6	13.5	15.2	11.9	19.4
D-BOD	influent	[mg/L]	58.8	52.3	79.2	56.5	71.2
	effluent	[mg/L]	4.2	3.7	5.7	4.4	4.9
T-N	influent	[mg/L]	29.8	25.5	32.5	30.8	35.6
	effluent	[mg/L]	3.6	9.4	11.6	10.7	13.0
D-TN	influent	[mg/L]	18.8	18.3	22.7	24.3	27.0
	effluent	[mg/L]	3.0	6.6	10.7	9.3	10.9
NH ₄ -N	influent	[mg/L]	13.3	13.0	16.8	17.9	19.6
	effluent	[mg/L]	0.7	2.3	2.8	1.0	0.9
NO ₂ -N	influent	[mg/L]	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	effluent	[mg/L]	0.0	0.1	0.1	0.0	0.1
NO ₃ -N	influent	[mg/L]	0.1	0.2	0.2	0.2	0.2
	effluent	[mg/L]	1.5	4.0	5.2	7.6	7.5
Org-N	influent	[mg/L]	18.5	12.8	14.9	12.8	16.8
	effluent	[mg/L]	1.4	2.4	3.5	4.3	4.4
TP	influent	[mg/L]	3.7	3.3	3.9	3.8	4.0
	effluent	[mg/L]	1.6	1.1	1.6	1.2	1.5
D-TP	influent	[mg/L]	2.0	1.4	1.8	1.9	2.1
	PO ₄ -P						
PO ₄ -P	influent	[mg/L]	0.8	0.6	0.9	1.0	1.1
	effluent	[mg/L]	1.4	0.6	1.0	0.6	0.7

水中のBODは11月以後のRun-4～Run-6で高い値を示しているが、COD_{Mn}の値はあまり高くなかった。

処理水中のBODやCOD_{Mn}の濃度は、高水温期（Run-1）に10mg/L以下であったものが、低水温期（Run-3～Run-6）に10～20mg/L程度まで上昇した。しかし、処理水の溶解性BOD濃度は上昇していないことから、主にSS性の有機物が流出したものと考えられる。

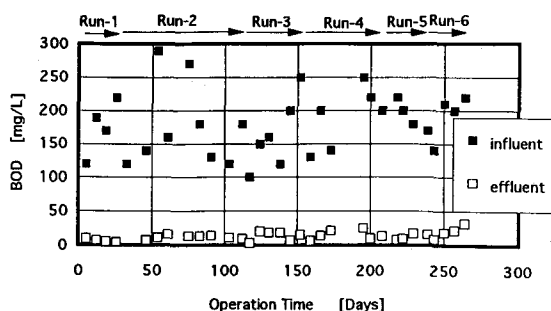


Fig.4 Time Course of BOD

（2）流入下水中のSSもBODと同様低水温期のRun-4～Run-6で高い値を示しているが、処理水のSSは流量変動をかけたRun-6では20mg/Lを超えた。このため処理水の透視度も水温低下とともに低くなり、Run-6では10cm以下となった。処理水SS上昇の原因としては、流入水SS濃度の上昇のほかに、流入水のSSが上昇する以前のRun-3においても処理水のSSは担体添加以前に比べて高くなっていることから、担体から剥離した微生物が処理水中のSSとなったことも考えられる。処理水中のSSが上昇したもう一つの原因に、汚泥のバルキングが挙げられる。表-2.1に示したように、SVIはRun-1で115mL/g程度であったものが、担体を投入したRun-3以後徐々に高くなり、Run-5では270mL/gと完全にバルキング状態になった。冬期に汚泥の沈降性が悪化する現象は担体を添加しない硝化・内生脱窒法においても報告されており⁴⁾、水温の低下、担体の添加率などの汚泥の沈降性悪化に対する寄与率は明らかでないが、水温低下時でも良好な処理水質を維持するために、バルキングとSSの流出の原因をさらに調査し、対策を講じる必要がある。

3. 3 窒素除去

表-2.1の窒素除去率から、担体を添加したRun-3～Run-6では窒素除去率は63～65%であり、高水温期のRun-1の窒素除去率88%には及ばないものの、好気槽HRT4時間、生物処理槽HRT13.2時間、水温12.5℃、流量変動率50%～150%の条件下でも安定した窒素除去率を維持することができた。表-2.2に示した各Runの窒素濃度の平均値から、Run-1を行った夏期は流入水中の粒子性窒素(PN)の割合が37%と高く、冬期には21～30%と低くなっていることがわかる。このため、冬期には沈殿により除去できる窒素の割合が低下し、窒素除去率を下げる一因となっている。

本研究では下水が直接流入する反応槽に担体を投入したが、このように担体当たりの基質負荷が高い条件では担体表面において細菌種間の競合が起こり、より増殖の早いものが優先となっていくことが知られている。従って、このようなプロセスでは担体上に従属栄養細菌が繁殖し、硝化が進まないことが危惧されていた。しかし、本研究の結果から、水温12.5℃の低水温条件下でも反応槽内のORP設定を十分に高くすれば、有機物の酸化と硝化反応が同時に進行することが証明された。

図-5に原水および処理水の窒素濃度の経日変化を示す。Run-3では担体を20vol.%投入したものの、好気槽でアンモニア性窒素が平均4.7mg/L、処理水中には2.3mg/L残留した。そこでRun-4で担体添加率を40vol.%に上げることで図-5に示すように一時的に完全硝化となったが、再び高い濃度のアンモニアが残留するようになり、平均ではRun-3と変わりがなかった。このようにRun-4の途中で処理が悪化した原因としては、流入下水中のBODおよび窒素濃度の上昇が考えられる。Run-4では流入水中のBODや窒素濃度が徐々に上昇し、それにとまってBOD-SS負荷も

Run-3からRun-4で25%ほど高まった。

さらに水温低下により担体上の硝化細菌の増殖が従属栄養細菌の増殖に比べて相対的に定価したものと考えられる⁸⁾。Run-5ではRun-4よりもさらに水温が低下したにもかかわらず、好気槽の設定ORPを160mVとすることで、処理水中のアモニア濃度は1.0mg/Lまで低下した。

このように第1槽に担体を投入すると、担体上の硝化細菌が原水水質変化の影響を直接に受けやすく、原水水質の変動に応じた反応槽の管理が要求される。

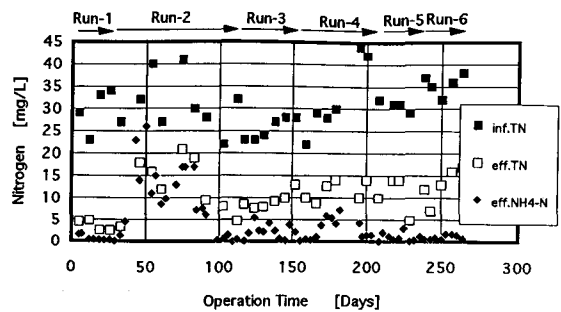


Fig.5 Time Course of Nitrogen

4. 考察

4. 1 固定化微生物による硝化・内生脱窒法の処理時間の短縮効果

(1) 硝化・脱窒速度測定結果による担体添加効果の解析

表-3に示した回分実験による硝化・脱窒速度の測定結果から、以下のことが明らかとなった。

Table 3 Results of Batch Experiments

			Run-1	Run-3	Run-5	Run-6
Nitrification Rate	temperature	[°C]	25°C	18-22°C	12-14°C	12-15°C
	activated sludge	[mgN/gSS/h]	2.13	0.74	0.44	0.44
	pellet	[mgN/gSS/h]	---	4.46	2.27	2.45
Denitrification Rate	temperature	[mgN/gSS/h]	---	21-24°C	13-15°C	13-16°C
	activated sludge	[mgN/gSS/h]	---	0.89	0.84	0.70
	pellet	[mgN/gSS/h]	---	0.94	0.29	0.20
Estimated Nitrification Potential	a) activated sludge	[°C]	23.3	8.2	5.8	5.6
	b) pellet	[mgN/l/4h]	---	27.4	34.4	38.2
	a)+b)	[mgN/l/4h]	---	35.6	40.2	43.8
Estimated Denitrification Potential	c) activated sludge	[mgN/l/8h]	---	19.7	22.1	17.8
	pellet	[mgN/l/4h]	---	5.8	4.4	3.1

c) used in Table 4

1) 活性汚泥の硝化速度 担体投入以前のRun-1では活性汚泥の硝化活性が2.13[mgN/gSS/h]と高いが、Run-3では約1/3に低下した。Run-3では水温が20℃程度はあり、A-SRTも十分と考えられることから、硝化菌のワッシュアウトではなく、担体添加により硝化反応の80%近くが担体上の硝化菌によって担われた結果、活性汚泥への窒素負荷が低減されたためと考えられる。

2) 担体汚泥の硝化速度 担体汚泥の硝化活性は、水温20℃で4.5mgN/gSS/h、13℃で2.3mgN/gSS/hであった。担体汚泥と活性汚泥の硝化活性の比は、水温にかかわらず担体汚泥が活性汚泥のおよそ5～6倍であった。これは担体上の硝化菌も、活性汚泥中の硝化菌も同様に水温低下の影響を受けることを示している。筆者らの過去の実験では、人工下水と実し尿を用いた嫌気-無酸素-好気法の好気槽に担体を投入して実験した結果、水温20℃における担体硝化活性は浮遊汚泥の硝化活性の7倍で4.9mg/gSS/hであり⁸⁾、今回の実験結果はこの値とはほぼ一致した。

3) 最大硝化可能量 表-3下段の硝化・脱窒量は、好気槽および無酸素槽での汚泥濃度および滞留時間から計算した値であるが、これによると硝化可能量は、Run-1からRun-6へと

水温の低下にもかかわらず窒素負荷が高まるに連れて高くなっている。この間に汚泥あたりの活性は約1/2に低下していることから、これは主に担体添加量の増加にともなう汚泥量の増加による効果と考えられる。また、Run-3における活性汚泥+担体汚泥の硝化活性は流入水中の全窒素量よりも高いので、Run-3でアンモニアの硝化が不完全であった原因は、運転条件すなわち溶存酸素の不足によると考えられる。

4) 本法における必要担体量の推定 担体上の付着生物量は基質負荷により異なるが、物理的に担体上に保持可能な微生物の最大量は、およそ10g VSS/担体-L程度である。このような汚泥濃度を得るために必要な高負荷運転条件下では硝化機能を維持することがきわめて難しいが⁸⁾、この値を本実験に当てはめて見ると、平均VSS/SS比が0.79であり、担体充填率が20%の場合で最大付着微生物量は2500mg/Lとなる。表-2.1より本実験では担体添加率20vol.%で付着汚泥量が1600mg/Lであったことから、負荷の上昇により付着汚泥量が増える可能性はあるが、ここでは汚泥量1600mg/Lを用いて担体添加量と硝化能力について考察してみる。この汚泥量に水温低下時のRun-5の硝化活性と好気槽滞留時間4時間をかけると、 $1.6\text{g/L} \times 2.27\text{mg/gSS/h} \times 4\text{h} = 14.5\text{mg/L}$ の窒素を硝化することができる。さらに活性汚泥による硝化可能量5.8mg/Lを加えると、担体添加率20vol.%での最大硝化可能量は20.3mg/Lとなる。一方、Run-5の流入窒素から汚泥転化量を引いた濃度は、 $30.8 \times (1 - 0.23) = 23.7\text{mg/L}$ であり、担体添加率20vol.%では硝化できなかったことになる。このような考察から、本処理方式における担体添加率は安全率を考慮して30~40vol.%程度必要である。

5) 脱窒速度 汚泥あたりの脱窒速度は、活性汚泥に比べて担体汚泥が水温の低下により著しく低下している。これはRun-5,6では、好気槽のORP、DOを高めにして運転したため、脱窒菌の生育が妨げられたためであろう。

6) 硝化能力と脱窒能力の比較 表-3下段の硝化可能量と脱窒可能量を比較すると、脱窒可能量は硝化可能量の40~60%程度であり、汚泥の潜在的な能力も脱窒反応が劣っていることから、全体の窒素除去プロセスを脱窒反応が律速しやすいことが示された。

7) 細菌数からの検討 図-6はRun-3とRun-5での硝化菌および脱窒菌数の測定結果を示したものである。Run-3からRun-5の間で担体付着生物膜中の脱窒細菌は低下しており、脱窒活性が1/5程度に落ちていた結果と一致した。しかしその他の計数結果については違いがわずかであり、MPN法の測定精度から考えて、有意な差は認められない。Run-5においてはA-SRTが4.8日と短く水温も12.5℃と低いことから、硝化菌のウォッシュアウトが起こっているものと考えられたが、活性試験の結果からも、細菌数の測定結果からもウォッシュアウトによる極端な活性低下や細菌数の減少を検出することはできなかった。これは本方式では硝化菌のウォッシュアウトと同時に担体から剥離した硝化菌が供給されているためであるとも考えられる。

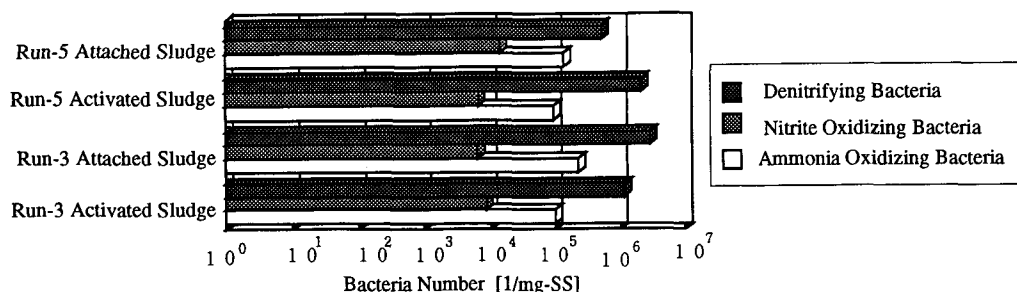


Fig.6 Results of Bacteria Counting

(2) 窒素収支

表-4に各Runごとの窒素の収支を示す。表中の各項目は、以下の計算式によって算出した。

汚泥転化量 = 引き抜き汚泥量

× 窒素含有率

脱窒量 = (流入窒素量 -

流出窒素量) - 汚泥転化量

表-4からは以下のことがわかる。

Table 4 Nitrogen Balance

		Run-1	Run-3	Run-4	Run-5	Run-6
TN-Balance [gN/d]	Inf.	8.45	7.41	9.88	9.04	10.55
	1) denitrification	5.01	3.54	4.74	3.80	4.71
	2) sludge	2.42	1.14	1.62	2.10	1.98
	Eff.	1.02	2.73	3.52	3.14	3.85
	1) + 2)	7.43	4.68	6.36	5.90	6.70
TN-Balance [%]	Inf.	100	100	100	100	100
	1) denitrification	59	48	48	42	45
	2) sludge yield	29	15	16	23	19
	Eff.	12	37	36	35	37
	1) + 2)	88	63	64	65	63
3) Batch / Pilot Plant Denitrification Rate [%]		---	61	81	57	88

3) calculated from Table 3 a)

1) 担体を投入した場合、

担体なしのRun-1に比べて汚泥転化率が低く、流入水中の全窒素の15～23%であった。特に担体を新しく加えたRun-3、Run-4では低く、Run-5、Run-6では比較的高かった。担体添加により汚泥転化率が減少した理由としては、担体汚泥の存在により実質的な汚泥滞留時間が長くなったこと、同じ理由によりBOD-SS負荷が減少したこと、流入下水中の溶解性窒素濃度が上昇したことなどが考えられる。

2) 流入水中の全窒素に対する脱窒の割合は、担体添加実験では42～48%であり、Run-5で最も低かった。

3) 脱窒による窒素除去の絶対量はRun-3、Run-5で低いが、これは表-3で求めた活性汚泥の脱窒速度と一致しない。従って、表-4の脱窒量の差は運転条件の違いによるものと考えられる。これについてさらに考察を進めるため、回分速度から計算した脱窒量に対する各Runの実際の脱窒量の割合[%]を表-4の最下段に示した。これは、潜在的な脱窒能力に対するパイロットプラントの運転条件下での脱窒速度の比を示しており、同表から各Runについて比較すると以下のことがわかる。

a) Run-3～Run-4 好気槽のORPが同じ場合、原水BODが高いほうが活性汚泥のもつ潜在的な脱窒能力を発揮しやすい。 b) Run-4～Run-5 好気槽のORPを上昇させることで、脱窒能力が抑えられる。 c) Run-5～Run-6 流量変動があったほうが脱窒能力が発揮される。

(3) 好気槽脱窒反応に対する担体添加効果

各反応槽における窒素除去量を求めることは反応装置の解析を行う上で重要なデータとなるが、連続運転中の反応装置において各槽の脱窒量を求めるにはいくつかの仮定が必要である。ここでは各槽における脱窒速度を、以下の仮定のもとに図-7に示す方法で溶解性窒素濃度(DN)の差から計算した。

a) 反応槽内のサンプルは午前10時頃のグラブサンプルであるが、流量変動がない場合には一日の代表的な水質であると考えられる⁴⁾。

b) 汚泥転化は粒子性窒素(PN)からのみ起こるものとし、流入PNのうち汚泥転化量と処理水流出分を除いたものが脱窒に使われる。ただし、汚泥生成量が流入PNよりも多い場合(Run-5)には、溶解性窒素(DN)からも汚泥の生成が起きると考える。また、脱窒に使われるPNの分解は好気槽のみでおこる。

図-7(a)に示すように、流入水DNとPNの一部(汚泥転化分と処理水流出分を引いたもの)、さらに返送汚泥中のDNが好気槽への流入DNと考え、これと好気槽から流出するDNとの差が好気槽で

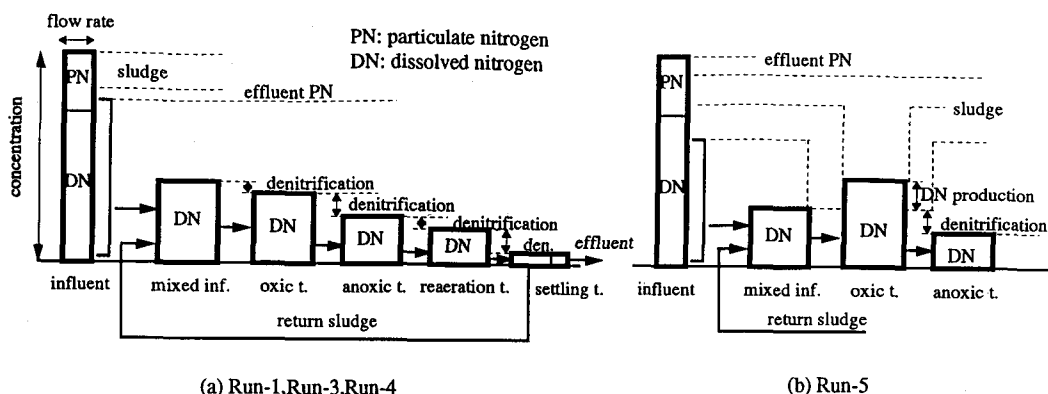


Fig.7 Calculating Method of Denitrification Rate in Each Reactor

の脱窒分であるとして計算を進めた。無酸素槽以下各槽での脱窒量は、好気槽と同様、流入DNと流出DNとの差から求めた。しかしながらRun-5では図-7(b)のように好気槽への流入DNよりも好気槽内のDN濃度のほうが高く、好気槽内で粒子性窒素の可溶化が進んでいた。Run-5では好気槽内で粒子性窒素の可溶化がいったん起こり、その後無酸素槽内でも溶解性窒素からの汚泥生成が起きていると考えなくてはならない。

Table 5 Estimated Denitrification Rate in Each Reactor

		Run-1	Run-3	Run-4	Run-5
Denitrification [gN/d]	oxic tank	0.57	1.19	0.42	-0.89
	anoxic tank	4.00	1.88	3.63	4.21 *
	re-aeration tank	0.13	0.33	-0.21	-0.23
	sedimentaion tank	0.30	0.15	0.90	0.71
	total	5.01	3.54	4.74	3.80
Denitrification [%]	oxic tank	11	34	9	-23
	anoxic tank	80	53	77	111 *
	re-aeration tank	3	9	-5	-6
	sedimentaion tank	6	4	19	19
	total	100	100	100	100

* including sludge production

** sludge production subtraced

表-5に示したRun-5、好気槽での脱窒量計算結果（上段）はDNからの汚泥転化分を含んでおり、汚泥転化分を差し引いた脱窒量を下段に示した。表-5から、全体の脱窒量に対する好気槽脱窒量の割合は最大で34%程度であり、森山らの実処理施設における推定値47%よりも少なかった。⁵⁾ Run-3とRun-1との比較から、好気槽脱窒は担体投入によりわずかながら促進されるといえる。しかし、Run-4では好気槽のDOが4.1mg/Lと上昇したために好気槽脱窒量は抑えられてしまった。さらに好気槽の設定ORPを160mVと高めたRun-5では、図-8に示した流入水のPNよりも汚泥転化量が多かったために、好気槽に流入するDNよりも槽内のDNの方が高く、好気槽での脱窒量は計算上はマイナスとなってしまった。この計算はDNベースで行っているの、Run-5の好気槽では脱窒よりもむしろPNの分解による溶解性窒素(DN)の生成量が上回っていたことになる。また、Run-5では全体での脱窒量（表-4）よりも無酸素槽での窒素除去量が多く、好気槽で溶解した窒素を用いて無酸素槽内でDNからの汚泥転化が行われていた。この結果から、Run-5のように好気槽のORPを高めに運転した場合、もともと粒子状であった窒素成分の分解を促進しDNを生成するため、脱窒反応槽により大きなDN負荷がかかっていることが示された。

しかし無酸素槽内での脱窒量は、Run-4、Run-5ともRun-3よりも高く、表-2.1に示した無酸素槽内ORPの測定値が低いほど脱窒活性が高かった。

4. 2 好気槽ORP値に基づいた窒素除去率の制御法

既に述べたように、ORPを160mVに設定することによって、水温12.5℃、担体添加率40vol%、流量変動率50%～150%の条件でも、完全硝化を安定して維持することができた。図-8は好気槽ORPと処理水中のアンモニア性窒素および硝酸性窒素濃度を示したものである。同図からは好気槽のORPが155mV以上であれば完全硝化されていることがわかる。しかし、ORPを高めに設定した場合、処理水中に硝酸性窒素が残留し、窒素除去率の上昇にはつながらなかった。硝化・内生脱窒法はもともと硝化反応より

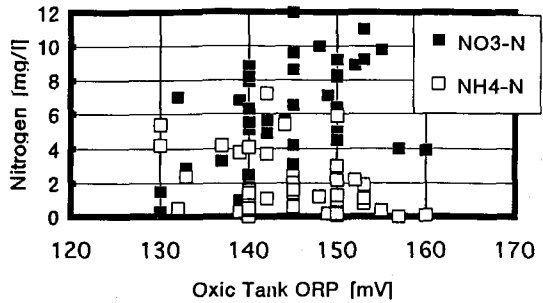


Fig.8 Oxic Tank ORP and Effluent Nitrogen Concentration

も脱窒反応が律速となる処理方式であり、脱窒反応槽においては脱窒速度は有機物濃度の1次式で表わされるといわれている⁴⁾。従って、硝化反応が律速とならない程度に好気槽滞留時間を短くし、未分解の有機物を積極的に脱窒槽に流してやれば窒素除去率が向上する⁴⁾。

担体添加法は担体内部に付着した細菌により脱窒反応が期待できる一方で、多くの有機物が担体上の従属栄養細菌により好氣的に分解される。そのため活性汚泥に付着または吸収された形で脱窒槽に持ち込まれる有機物の割合は小さくなり、脱窒速度が低下する。従って、本処理法で脱窒速度を高めるには、好気槽の前に小さな嫌気槽を設置し、脱窒反応を進めると同時に、担体汚泥よりも活性汚泥に有機物を取り込まれるようにする。さらに脱窒反応が有機物濃度の1次反応であることを考慮して無酸素槽での押し出し流れ状態を維持する必要がある。

4. 3 流量変動の窒素除去率への影響

以上の考察から、流量変動をかけたRun-6での窒素除去率が、定流量で実験をおこなったRun-3～Run-5と同じであった理由をまとめると次のようになる。

① 回分実験から求めた最大硝化可能量は表-3より43.8mg/L/4hであり、硝化すべき窒素量は(流入全窒素濃度) × (1 - 汚泥転化率) = 28.8mg/Lである。最大負荷時には処理水量が通常時よりも2.5/2=1.25倍になるため好気槽HRTが3.2時間になることを考慮しても、 $43.8 \times (3.2/4) = 35.0$ mg/Lの窒素を硝化する能力がある。このように担体の硝化能力は負荷変動に対するゆとりがあったためRun-6で完全硝化が達成された。

② また本処理法による窒素除去は脱窒反応律速であり、Run-6では流量変動により好気槽滞留時間が短縮され、未分解の有機物が脱窒槽に流れ込んだため、表-4のようにRun-5よりも脱窒反応量が増加した。

以上の考察から、本処理法は流量変動に対して安定な窒素除去が行える処理方式であると結論づけられる。

5. まとめ

生物反応槽全容積165L、同水理学的滞留時間(HRT)13.2時間とし、団地下水を原水として硝化・内生脱窒法パイロットプラントを運転した結果以下の知見を得た。

(1) 水温12.5℃、担体添加率40vol.%の条件で窒素除去率は約65%であった。さらに平均流入

処理法は流量変動に対しても安定した窒素除去を行える処理方式であることがわかった。

(2) 本法では好気槽ORPを+160mVに設定することにより、担体添加率40vol.%、好気槽滞留時間4時間、流量変動率50～150%の場合でも完全硝化を行うことができた。これにより本処理法に用いた固定化微生物はBOD除去と硝化の同時反応を行えることが証明された。

(3) しかし、この条件では脱窒反応律速となり、窒素除去率をさらに上げるには何らかの脱窒促進策が必要である。脱窒による窒素除去量は、好気槽の設定ORPが低く、原水BODが高く、流量変動のある場合に高まった。

(4) 担体汚泥の硝化活性は、水温20℃で4.5mgN/gSS/h、13℃で2.3mgN/gSS/hであった。担体汚泥と活性汚泥の硝化活性の比は、水温にかかわらず担体汚泥が活性汚泥のおよそ5～6倍であった。担体投入により反応槽内の汚泥量が増えたため、水温低下時でも負荷の増大に応じて硝化活性が高まった。さらに硝化活性からの考察によると、本処理法での担体添加量は30～40vol.%程度が適していた。

(5) 好気槽での脱窒量は、最大で全脱窒量の34%程度であり、担体を添加した場合のほうが、活性汚泥のみの場合よりも高かった。しかし、完全硝化のため好気槽ORPを高めると、好気部での脱窒は抑制されるだけでなく、粒子性窒素の分解を促進し、無酸素槽での窒素負荷を高めることとなった。

(6) 担体投入時にはSSの流出が見られ、そのため処理水のBODも最大で20mg/L近くまで悪化した。この原因には水温の低下と流入水負荷の上昇に加えて、汚泥のバルキング、担体からの剥離SSの流出などが考えられるため、今後さらに現象を解明する必要がある。

<参考文献>

- 1) 原田良誠：下水の高度処理を目的とした長時間エアレーション法施設の機能改善に関する研究、日本大学博士論文、1990.10
- 2) 森山克美、佐藤和明、原田良誠、北村武之：硝化・内生脱窒法に関する研究、衛生工学研究論文集、第24巻、pp.65～73、1988
- 3) 浜松市下水道部：浜名湖の自然環境を守る浜松市の下水の高度処理、1992
- 4) 森山克美、高橋正宏、原田良誠、北村武之：硝化・内生脱窒法における脱窒反応速度に関する研究、下水道協会誌論文集、第29巻、第339号、pp.65～73、1992
- 5) 森山克美、北村武之、鷲山和男、北村裕一：硝化脱窒同時反応法に関する研究、土木学会第45回年次学術講演集、pp.1060～1061、1990
- 6) 森山克美、高橋正宏：高負荷条件下における生物学的栄養塩除去プロセスの制御、衛生工学研究論文集、第29巻、pp.163～169、1992
- 7) 建設省高度処理会議：りん・窒素除去法設計資料－Ⅳ硝化・内生脱窒法設計資料、1987
- 8) 滝沢智、珠坪一見、高橋正宏：生し尿受け入れ下水中の難分解性有機物除去に関する研究、衛生工学研究論文集、第29巻、pp.59～66、1992