

(40) ステップフィード嫌気好気活性汚泥法の最適ステップ率と 槽容量配分に関する実験および理論解析

Experiments and theoretical analysis on optimal step ratio and volume allocation for the step-feed anoxic-oxic activated sludge process

藤井 滋穂*, 常岡 信希**, 瀧本 敏之***

Shigeo FUJII*, Nobuki Tsuneoka** and Toshiyuki Takimoto***

Abstract; SBR experiments were conducted to find the optimal step ratio and volume allocation for the step-feed anoxic-oxic activated sludge process. The experimental results showed the proper step-ratio (influent allocation to the second) can produce better removal of nitrogen due to denitrification in the second anoxic phase, and that the oxic time required for nitrification can be estimated by MLSS and nitrogen treated. Then, a theoretical analysis based on stoichiometry was introduced to formulate concentrations of nitrogen species in the system with indices derived from influent quality and operational conditions. The availability of the analysis was verified by the agreement of theoretical estimations to experimental observations. Finally, the theoretical analysis suggested that the step ratios used in most of experiments are 10-20 % less than the optimal value, and that the proportions of first tanks in whole oxic tank volumes are also 10-20% less.

Key words; SBR experiments, theoretical analysis, step-feed, nitrogen removal, step ratio, volume allocation.

1. はじめに

ステップフィード嫌気好気法(以下、ステップ法)は、嫌気形成のための攪拌装置設置と反応槽中間での流入部を設けるだけで既存プロセスから変更可能であり、嫌気好気循環法(以下、AO 法と称す)と比べ既存施設での適用が容易である。栗林ら¹⁾は、本法の長所として①保持汚泥総量の増大によるSRT増加、②循環を必要としない第2脱窒槽での窒素除去、③脱リンに利用した場合、完全嫌気槽でのMLSS増加による安定的嫌気条件の確立、を示している。実プラントでの実験でT-N除去率は、標準法に比べ10~30% (渡辺²⁾) あるいは10~27% (伊與田ら³⁾)、同一返送率でのAO法との比較でも10~18%、ステップ法の方が高いとの報告がある³⁾。

ステップ法はAO法に比べ、両嫌気槽(以後無曝気槽)への流入水配分、各槽槽容量比など、変更可能な因子は多いが、過去の研究は現場サイドへの適用性に重点が置かれ、操作因子の影響を詳細に検討するものは、2,3にすぎない^{4,5)}。そこで本研究では、操作条件の変更容易な実験室規模の装置で、その操作条件の影響を検討するとともに、化学量論に基づく理論解析を展開し、実験結果の説明さらには最適操作・設計条件について考察した。

以下、実験方法、実験結果考察、理論解析、最適操作条件検討の順に論述する。なお、本研究は、連続型ステップ法を想定するが、前年度までの研究^{6,7)}で、実験室規模の連続装置では、スケール上の問題点が認められた。そこで、今回は連続式と等価の回分式の装置を用いて実験を行った。

2. 実験方法

上記目的のため、本研究ではFig. 1(b)に示す逐次回分式装置(SBR)を用いた。本装置は1回に10Lの下水処理が可能で、全設計滞留時間(Q/V)12時間、無曝気曝気槽(嫌気好気槽)容量比1:2:1:2の(a)の連続装置と等価(①~

*京都大学大学院工学研究科(Graduation School of Engineering, Kyoto University),

京都府 (Kyoto prefectural office) , * (株)大林組 (Obayashi Co. Ltd.)

⑨の番号は(a)(b) に対応、また(a)のDN1～N2各槽に相当する(b)での状態をDN1～N2相と称する) となるように、時間等を設定した。(a)でのDN1槽は、流入下水と返送汚泥が混合する槽であるが、SBRでは種汚泥と人工下水との混合(b)の②～③の間) で実施した。通常のSBRではある程度の時間(数十分以上) をかけて行われるが、本研究で

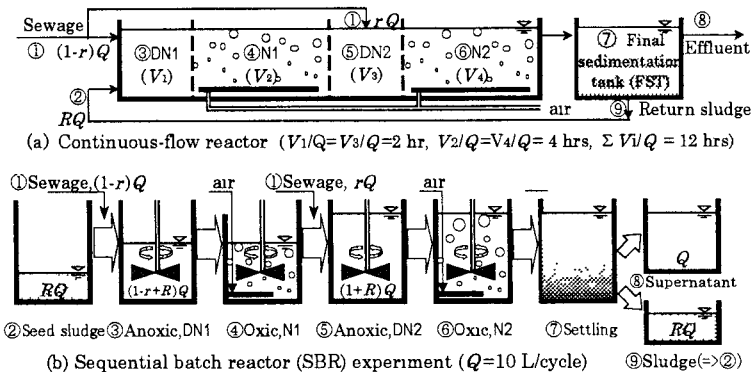


Fig. 1 Comparison of samples in SBR to those in continuous reactor

は完全押し出し型の状態を再現するため、混合で曝気されない範囲でできるだけ速やかに(通常1～2分)行った。引き続き、連続装置内を完全押し出して通過する時間分、攪拌して無酸素状態に保った(DN1相)。その後の固液分離まで操作すべて、連続装置での水の流れを想定して時間設定した。最終沈殿池に相当する⑦の沈殿操作は脱窒等の反応が生じないように15分の汚泥分離必要最小時間で実施した。

実験は、Table 1に示す返送率 R 、ステップ率 r (流入下水量中後段DN2に加えられる割合)で、計6回実施した。各実験とも水温は20℃に、MLSSは固液分離直前(連続装置で曝気槽末MLSSに相当)で3000mg/L程度となるように設定した。この一連のサイクルを3回繰り返し、最後の3回目(図(b)で⑦を除く①～⑨)のタイミングに採水を実施した。ただし、好気操作(④N1, ⑥N2)ではその操作時間の1/4, 1/2および終了時の3回、無曝気操作(③DN1, ⑤DN2)ではそれらに加え、流入水との混合後1～2分後の4回実施し、合計で18試料を各Runで得ている。分析は、ろ過試料でSS, VSS, DO, pH, 水温を、ろ過試料で $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$, T-Nの窒素各形態およびアルカリ度, BOD(流入水および処理水のみ), COD_{Mn} の測定を実施した。

流入水には、Table 2に示す組成の人工下水(Table 3はその測定水質値)を用いた。本流入水は、通常の下水に比べ、汚泥増殖による影響を小さくするため、BODと窒素濃度をやや低めに、一方アルカリ度の影響を完全に排除するため、アルカリ度はやや高めに設定した。なお、アルカリ度が不足気味となる場合、DOの影響を無視しても、その化学量論はきわめて複雑となる⁵⁾。また人工下水は、混合直前に、あらかじめ窒素曝気でDOをゼロとした水道水にその原液を希釈・攪拌して作成し、DOの流入水への影響が最小となるように努めた。一方、実験に用いた汚泥は、嫌気好気循環法を採用しているK流域下水道終末処理場より得たもので、それを2ヶ月以上培養したものを用いた。前培養方法は、Table 2の2倍濃度にその成分がなるように培養液に加えて好気条件とし、1日後、沈殿および水道水による洗浄の後同様の操作を実施した。したがって、無酸素条件は与えていないが、BOD-SS負荷としては、本実験と同一の条件である。汚泥の引き抜きは実験等でのサンプリングによって実施し、SRTを計算すると約30日程度と計算される。

以上説明したように、本実験は現場のステップ法と一部異なる条件を変えて実施することで、ステップ法の基幹となる脱窒硝化反応の化学量論が把握しやすい

Table 1 Operation conditions for each run

Run	1	2	3	4	5	6
R (%)	50			150		
r (%)	20	50	80	20	50	80
DN1	1.54	2.00	2.86	0.87	1.00	1.18
N1	3.08	4.00	5.71	1.74	2.00	2.35
DN2	1.33	1.33	1.33	0.80	0.80	0.80
N2	2.67	2.67	2.67	1.60	1.60	1.60
Sum	8.62	10.00	12.57	5.01	5.40	5.93
FST	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25
MLSS	3330	4810	5710	3130	3785	4615
mg/L	2580	3075	2850	2770	3075	3110

Table 2 Synthetic sewage composition

Glucose	100
Ammonium acetate	50
Polypepton	60
Yeast extract	30
NaHCO_3	210
CaCl_2	5.5
K_2HPO_4	20
NH_4Cl	20
KH_2PO_4	20
FeCl_3	0.25
MgSO_4	4.5

(mg/L)

Table 3 Influent quality (mg/L)

T-N	17
$\text{NH}_4\text{-N}$	12
$\text{NO}_x\text{-N}$	0
BOD	140
Alkalinity	175
DO	0
TOC	62

by experimental measurement

ように設定した。また本流入および前培養条件は、硝化脱窒室にとって最適ではないが、汚泥活性は後述するように一般の汚泥の範囲内にあった。

3. 実験結果

3. 1 水質変化の概要

Fig. 2にステップ流入式SBR実験での水質変化の特徴を、Run 1を例として検討する。ただし、図でDN1,DN2相直後の水質（混合液）は、その前相水と流入水との混合比から求めた計算値である。

まずNH₄-N濃度に注目すると、流入水の大半が前半に加えられるRun 1 (*r*=20%)では、DN1では8mg/L程度と高くなっているが、N1相では一定速度で減少する。DN2相で再び増加するが3mg/Lにとどまり、その結果N2相では前半で硝化がほぼ完了している。NO_x-Nは、好気相ではほぼNH₄-Nの逆の変化をするが、無曝気相では脱窒による減少が認められる。その減少は無曝気初期の瞬時に生じ、混合による計算値とその1分後の測定値にギャップが認められる。このギャップはCOD_{Mn}で著しく、DN1,DN2相とも混合濃度の2/3が瞬時に消失し、無曝気初期に急速に有機物が分解あるいは取り込まれていることがわかる。アルカリ度の変化はこれらに対応し、無曝気相では上昇、好気相では減少のパターンをくりかえす。なお、DOは、図を省略するが、無曝気相では0mg/L、好気相では6mg/L程度に維持されていた。ただし好気相終了直前は曝気を絞り4mg/L前後として、続くDN相への持込みDOが少なくなるよう努めた。またpHは7、水温は20℃にほぼ保たれた。

つぎにステップ率に違いに伴う水質変化の相違を、*R*=50%のT-Nの時間変化で検討する（Fig. 3）。横軸は各相を同一の尺度で示したが、実際の経過時間は同じではない。図より、前半での流入の多いRun 1はDN1相で濃度が高くDN2相以降では変化が少ないこと、後半流入の多いRun 3ではDN2相混合直後に3つのRunでもっとも高くなるが、その減少も大きく最終的にRun1と同レベルとなることが示される。両者の中間のRun 2は、両無曝気相で減少し、最終的には三者のなかでもっとも低いT-N流出濃度となっている。

3. 2 物質収支

上記の点を物質収支より検討する。Fig. 4は、DN1から固液分離（FST相、最終沈殿池に相当）までの各相でNO_x-NとNH₄-Nがどのように変化したのかを、流入下水1L中の変化量で検討したものである。好気相では、前段、NO_x-Nの増大が認めらる。その量は、N1相ではRun 1〜3、N2相では逆にRun 3〜 1の順でともに流入が多いほ

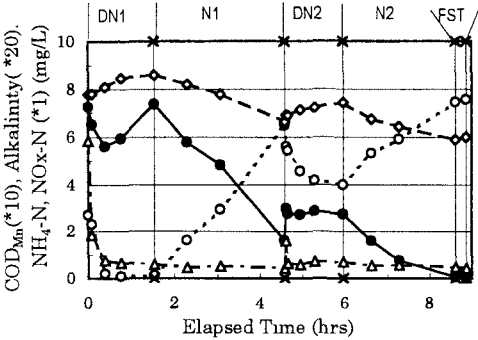


Fig.2 Water quality variations in Run 1

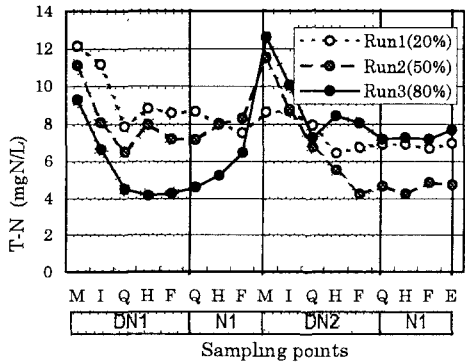


Fig. 3 Variations of T-N concentrations (*R*=50%)
(M: calculated mix., I: Immediately after mixing, Q 1/4 HRT, H:1/2 HRT, F:Full HRT, E:Effluent)

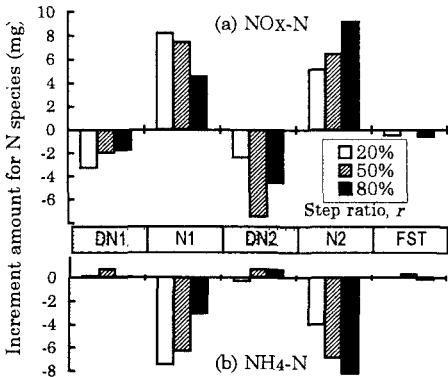


Fig. 4 Reaction amounts of nitrogen species for 1L of influent sewage in five phases

後段ともNH₄-Nの減少とそれにほぼ対応する量のNO_x-Nの増大が認めらる。その量は、N1相ではRun 1〜3、N2相では逆にRun 3〜 1の順でともに流入が多いほ

ど高くなっている。NO_x-Nでも前段のDN1では流入下水量の多い順に多く減少しているが、後段では下水量は対応せず、ステップ率が中間のRun 2でもっとも多く脱窒している。 $r=80\%$ のRun3では、もっとも多くの水素供与体がDN2相で供給されるが、前半の下水流入量が少ないため、脱窒対象となるNO_x-Nの生成量が少ないためと考えられる。一方、Run 1では、逆に脱窒対象のNO_x-Nは多いが、基質不足で脱窒が進行しなかったと思われる。結局、両者のバランスがもっともよかったRun2で最大の窒素除去率が得られた。ステップ法では、後段の無曝気相でその脱窒が十分に生じるようにステップ率を決めることが窒素除去効果を上げる上で肝要と思われる。

3.3 硝化・脱窒反応の速度

つぎに、DN1, DN2相でのNO_x-NおよびN1, N2相でのNH₄-N濃度の変化をFig. 5に示し、反応速度について考察する。DN1相のNO_x-Nは、返送率50%のRun 1~3でほぼ完全に消失しているが、150%でかつ前相での供給量が多いRun 5, 6では反応が完了していない。DN2相は、実滞留時間がDN1相に比べ短いため、その影響が現れ、実際に脱窒が完了したのはRun 3だけであった。各Runとも、COD_{Mn}ほどではないが混合初期に1mg/Lまでの瞬時の減少があり、その後は減少速度が時間とともに小さくなるパターンを示した。一方NH₄-Nでは初期の急激な変化はなく、N1, N2ともほぼ一定の速度で減少している。両者の違いは、NO_x-Nが共存する有機物濃度に強く影響されたのに対して、NH₄-Nではアルカリ度が十分なため他因子の影響が少なかったためと考えられる。

このNH₄-Nの減少速度すなわち傾きは、N2相よりはN1相が、またN1相でもステップ率が大いほど速い傾向がある。ステップ法では、最終相汚泥濃度が同じでも、返送率とステップ率の違いでN1相でのMLSS濃度が大きく異なる。そこで、Fig. 6には、MLSSとNH₄-N減少速度との関係をプロットした。図では参考にNO_x-Nの減少速度も示した。NO_x-Nでは、減少速度とMLSS濃度とは関連性が乏しく、単位MLSSあたりの定数値は、0.4~1.6 mgN/gSS/hrの広い範囲となった。一方、NH₄-Nでは、その速度はMLSSに強く依存し、速度定数は0.56~0.82 mgN/gSS/hrの狭い範囲となった。なお、この速度定数値は、文献値⁹⁾0.6~1.6mgN/gSS/hrと比較するとやや低めながらその範囲内となっている。

3.4 ステップ率の影響

実験結果考察の最後に、最終的な窒素除去におけるステップ率および返送率の影響を検討する。Fig. 7はRun 1~6の結果について、ステップ率 r と放流水NO_x-Nとの関係を示した図で、黒プロットが実測のデータである。放流水ではT-N成分のほとんどがNO_x-Nによって構成されていたので、この図よりその影響が検討できる。

図より、返送率 $R=50\%$ のRun 1~3 (●、3点とも○プロットの

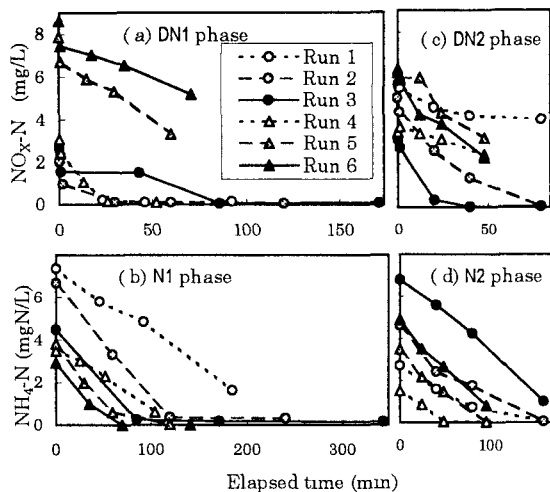


Fig. 5 Reduction rates of nitrogen species in each phase

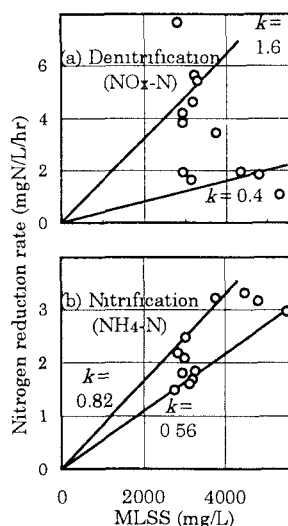


Fig. 6 Relationship between N reduction rate and MLSS (unit of k : mgN/gSS/hr)

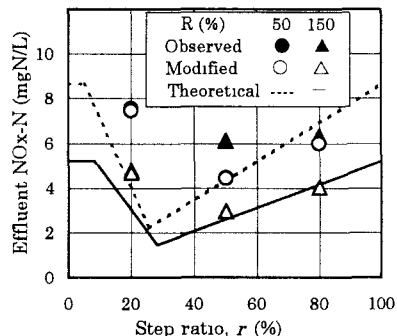


Fig. 7 Effects of r on effluent NO_x-N

影の位置)では、 $r=50\%$ で4 mg/Lのもっとも低い濃度となり、それより高くても低くても濃度は増加し、適切なステップ率の存在が示唆される。これに対し $R=150\%$ (▲)では、 $r=20\%$ (▲は△の影)以外は、同一ステップ率で $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度が $R=50\%$ の場合より劣っており、通常の返送率の効果と異なる結果となった。これらのRunでは、はじめの返送汚泥 (Fig. 1(b)の②) 中の $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度がその最終の返送汚泥 (⑨) より3~4mg/L高く、一致していなかった (他のRunはほぼ同一)。実験では前培養 (2倍濃度の人工下水を好気条件で) の影響を排除するため、本実験条件で2サイクル運転の後、3サイクル目で採水・分析を行ったが、繰り返し回数が不十分で、その影響が残存していた可能性がある。

そこで、初期の汚泥中に $\text{NO}_x\text{-N}$ が流入下水 $\text{NH}_4\text{-N}$ の2倍濃度で存在した場合、その影響がいつまで続くかを検討した。そのため、次節の理論解析での仮定と採用係数値を用い、無曝気相では返送(前相) $\text{NO}_x\text{-N}$ と流入BODが完全反応し、好気相では $\text{NH}_4\text{-N}$ が $\text{NO}_x\text{-N}$ に完全硝化されるとして計算した。結果をFig. 8に示す。 $R=50\%$ の場合は、1サイクル目の無曝気相で $\text{NO}_x\text{-N}$ がゼロとなっており、前培養での高 $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度の影響が断ち切れ、2サイクル目以降は、同一のパターンとなる。これに対し、 $R=150\%$ では、前培養の影響が3サイクル目でも残っており、とくに $r=50\%$ では $\text{NO}_x\text{-N}$ がゼロになるタイミングも生じていない。

以上の計算より、本実験でも定常状態になっていない可能性があるので、4サイクル目の放流 $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度を、3サイクル目と同じ反応量 (DN1,DN2相での脱窒 (減少)、ただし $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度が負とならない範囲、N1,N2相での硝化 (増加)) があると仮定して推定した。その結果はFig. 7中、白プロットで示す通りである。Run 1~4では、返送汚泥濃度が実験サイクルの初めと終わりでほとんど差がないため、プロットも重なるが、Run 5, 6では、2~3 mg/Lほど小さい値が予想される。なお、Run 5,6でのこの計算中、 $\text{NO}_x\text{-N}$ がゼロとなる時期が生じるので、5サイクル目以降では、放流水 $\text{NO}_x\text{-N}$ は変わらない。この白プロットの結果で再度 $R=150\%$ の場合についてステップ率の影響を考察すると、各ステップ率とも $R=50\%$ よりも流出濃度が小さいこと、この返送率でも $r=50\%$ が、もっとも放流水 $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度を低下しうが、 $R=50\%$ に比べれば、その効果が少ないことがわかる。なお、図中のラインは理論解析による推定値であり、次節で再び検討する。

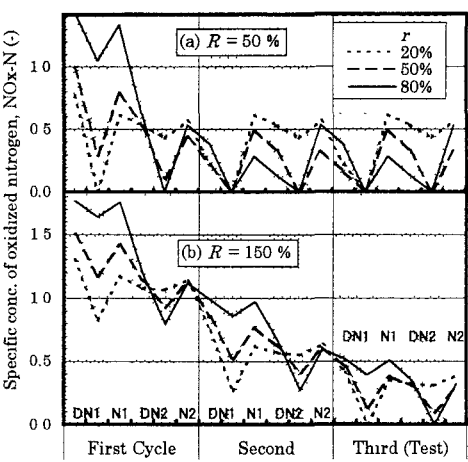


Fig. 8 Effects of pre-cultivation on SBR cycles
 [Dotted line] Anoxic Condition [Solid line] Oxie Condition

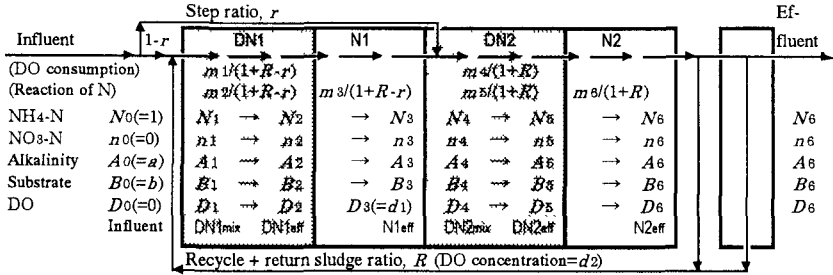


Fig. 9 Schematic layout of step-feed anoxic-oxic ASP and definition of symbols
 (DN1 First anoxic tank, N1:First oxie tank, DN2:Second anoxic tank, N2:Second oxie tank)

4 化学量論に基づく理論解析

4. 1 プロセスの設定と仮定条件

3により、適切なステップ率の設定でステップ法は同一返送率のAOより高い窒素除去率が得られることが示された。しかし、その効果は、返送率、流入水質に影響される。そこで、化学量論に基づき、流入水条件および操作条件の変数で、生物反応槽内での硝化脱窒などの反応量を表記し、各条件の放流水質への影響を把握することを試みる。このため、Fig. 9に示すプロセスおよび変数を想定し、以下の仮定を設定した。

- ① 生物反応は、基質COD、アンモニア、硝酸、アルカリ度、DOの5指標のみで表現する。
- ② 基質摂取に伴う活性汚泥増殖は基質の与え方で別途考慮し収率ゼロとして扱う。
- ③ 汚泥の内生呼吸によるDO消費と脱窒は考慮しない。
- ④ 基質COD、アンモニア、硝酸、アルカリ度、DOの濃度単位は、流入アンモニアに対する等量比（単位無次元）で与え、また各々 N, n, A, B, D の記号と槽番号0～6のサフィックスの組み合わせで変数を表示する。
- ⑤ 各槽の好気分解、脱窒、硝化反応量は、未知数 $m_1 \sim m_6$ による式（ $(1+R \cdot D)$ や $(1+R)$ による乗算は、最終式形を簡素化するため、単位は $N \sim D$ と同じ無次元）で与える。

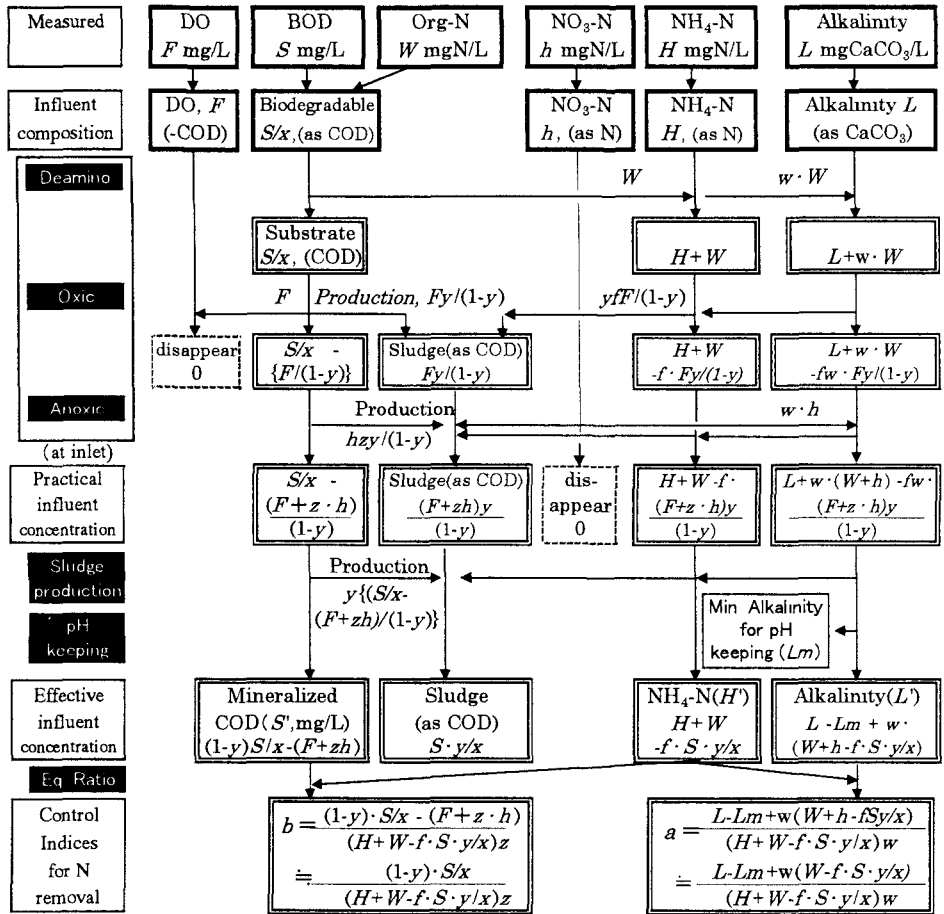
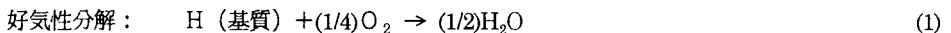
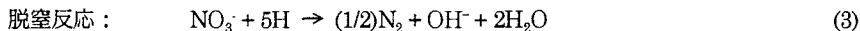
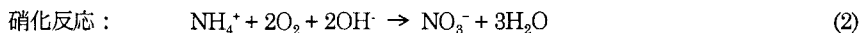


Fig. 10 Calculation procedure for a and b , control indices for nitrogen removal

w : equivalent ratio of alkalinity to nitrogen (= gCaCO₃/gN = 50/14), x : BOD/COD ratio,
 y : apparent yield of sludge (including decomposition effects, COD/COD)
 z : equivalent ratio of O₂/NO₃-N (= (gO₂/4)/(gN/5) = 40/14), f : N content in sludge(N/COD)

これらのうち、仮定②③は通常成立しないが、Fig. 10のように、計算に用いる基質量を無機化に寄与する正味のCOD値で表し硝化脱窒に関わる窒素量を汚泥増殖による窒素摂取を考慮した量で表記することで(②)、さらに溶存酸素による内生呼吸はFig.10中に示す汚泥増殖率 y 値にその分を含めさせる(低くすること(③)で対処した。④は算出される式形を簡素化するための措置だが、そのため系内の反応はすべて以下の3つで表現可能と考えた。





上式より、アンモニア 1 モル(14gN)に対し硝酸は 1 モル (式(2), 14gN)、アルカリ度は 1 当量 (式(3), 50g CaCO_3) に対応する。一方基質は脱窒反応の化学量論をベースに置き、硝酸 1 モルが H で 5 モルに (式(3))、さらに H 1 モルが O_2 1/4 モルに対応する (式(1)) ことより、窒素 1 モルに対し酸素 5/4 分子 ($40=(5/4)*32$) gCOD、実験で測定した COD_{Mn} に相当するものではなく、ThODに近い概念) に相当させる。さらに、DOは、式(2)の硝化反応ではなく、式(1)の基質との好気分解反応をベースに換算する。以上より、本理論解析で用いる基質COD、 B 、アンモニア、 N 、硝酸、 n 、アルカリ度、 A 、DO、 d は、各々の通常の測定値(mg/L)をそれぞれ40,14,14,50,40で割り (meq/L)、さらに流入アンモニアとの比(無次元)で与えたものである。とくに流入水では、あらかじめDOや硝酸との反応も考慮し、アルカリ強度 a および基質強度 b の 2 変数 (ともに無次元) にその質を要約した。

プロセス内での水質変化は、DN1,DN2槽 (相) での流入水との混合、DN1, N1, DN2, N2各槽での反応だけであり、最終沈殿池(FST)では固液分離のみで上記 5 水質は変化しないと仮定した (⑤)。従ってプロセス放流水、返送汚泥とも、N2槽流出水と同一濃度で表現できる。さらにDN1~N2槽での反応を下記のように設定した。

- ⑥ 混合では流量比に応じた混合だけで、他の反応は起きない。
- ⑦ 好気槽では、基質 B は完全酸化されゼロとなり、DOはそれぞれの制御値 d_1, d_2 に保たれる。
- ⑧ 好気槽では、アンモニア(N) 1 とアルカリ度(A)2 がいずれかがゼロとなるまで反応し $\text{NO}_x(n)$ が 1 生成する。
- ⑨ 無曝気槽ではまず持込DOと流入水の基質との反応がいつれかがゼロとなるまで 1 : 1 で進行する。
- ⑩ 上記の反応終了後、基質が残存する場合のみ、硝酸と基質との反応が 1 : 1 の割合で生じ、アルカリ度が 1 生成。この反応も硝酸と基質のいずれかがなくなるまで進行する。なおDN1,DN2槽では硝化は起きない。

上記仮定を利用

すると、各槽の水質値は、その前槽の濃度とそこでの反応量 $m_1 \sim m_6$ による式で表現できる。さらに返送汚泥濃度がN2流出水濃度と等しい仮

Table 4 Tank concentrations expressed with influent and reaction amounts

Indices (Sb)	Sfx	$\text{NH}_4\text{-N}(N)$	$\text{NO}_3\text{-N}(n)$	Substrate(B)	DO(D)	Alkalinity (A)
Influent	0	1	0	b	0	a
Mixture for DN1	1	r_1/r_2	$(1-m_2-m_5)R/r_2$	$r_1 \cdot b/r_2$	$R \cdot d_2/r_2$	$a \cdot (2-m_2-m_5)R/r_2$
DN1 Effluent	2	$(=m_3)$	$(R-R_1m_3-Rm_5)/r_2$	$r_1 \cdot b \cdot m_1 \cdot m_2$	$(R \cdot d_2 \cdot m_3)/r_2$	$a \cdot (2R-Rm_5-R_2m_2)/r_2$
N1 Effluent	3	0	$(r_2-R_1m_2-Rm_5)/r_2$	0	d_1	$a \cdot 2 + (R_1m_2+m_5)/r_2$
Mixture for DN2	4	r/R_1	$(r_2-R_1m_2-Rm_5)/R_1$	$r \cdot b/R_1$	$r_2 \cdot d_1/R_1$	$a \cdot 2 + m_2 + (2r+Rm_5)/R_1$
DN2 Effluent	5	$(=m_6)$	$1-m_2-m_5-r/R_1$	$(r \cdot b \cdot m_3 \cdot m_5)/R_1$	$(r_2 \cdot d_1 \cdot m_4)/R_1$	$a \cdot 2 + m_2 + m_5 + 2r/R_1$
N2 Eff(=Final)	6	0	$1-m_2-m_5$	0	$d_2(\text{Recycle})$	$a \cdot 2 + m_2 + m_5$

Note 1) $r_1=1-r$, $R_1=1+R$, $r_2=1-r+R$, Note 2) d_1 and d_2 are the values controlled.

定を利用すると、各槽濃度が $a, b, R, r, m_1 \sim m_6$ の関数で表現できる (Table 4)。本表により反応量が把握されれば、各槽での水質値が推定可能なことがわかる。

4.2 ステップ率の変化にともなう反応パターン変化

つぎにステップ率 r が、反応パターンにどのように影響するかを検討する。ただし簡略化のため、流入水のアルカリ強度 a は十分で好気槽でアンモニアは完全硝化されること、および下水中の基質強度 b も高いと想定する。

まず $r=0$ 付近を考える

Table 5 Equations for reaction amounts expressed with influent and operation conditions

Step ratio r	Ca se	Conditions (Remaining)		Substrate consumption reaction				Effluent T-N ($=1-m_2-m_5$)	
		DN1	DN2	m_1, DO	m_2, NO_3	m_4, DO	m_5, NO_3		
				(DN1)	(DN1)	(DN2)	(DN2)		
small (0) $\updownarrow$ large (1)	I	Sub (=Sub- strate)	DO	Rd_2	R/R_1	rb	0	$1/R_1$	
	II		NO ₃		$(\frac{b_1+r_2d_1}{R_1})R$	$rb-r_2d_1$	$(\frac{b_1+r_2d_1}{R_1})$		
	III				Sub		rR/R_1	r_1	
	IV				(=Sub- strate)		r_1b-Rd_2	$r_2/R_1-r_1b+Rd_2$	
	V	DO	NO ₃	r_1b	0		r_2/R_1	r/R_1	

$m_3=r_1/r_2$, $m_6=r/R_1$, $r_1=1-r$, $R_1=1+R$, $r_2=1-r+R$, $b_1=1-rb$

と、後段への供給が少ないため、DN2で基質は持込DOとの好気反応ですべて消費され、脱窒は生じない($B_5=m_5=0$)が、DN1槽では十分な基質流入により、返送汚泥中のDO、硝酸とも消失させ基質が残存する($n_2=D_2=0$)。この反応パターンをケースIと称する。これより r が増大すると、DN2でDOが消失し脱窒が生じ始めるが、基質が十二分ではないため硝酸は残存するパターン($D_5=B_5=0$ 、ケースII)を経て、DN2への基質供給が十分で完全に脱窒ようになる($D_5=n_5=0$ 、ケースIII)。 r がさらに増大すると、DN1槽で基質流入量の減少により、脱窒が不完全となり($D_2=B_2=0$ 、ケースIV)、さらに $r=1$ 付近となると、無酸素状態にするのにも基質が不足する($D_2=B_2=0$ 、ケースIV)。なおN1,N2槽流出水は、各ケースとも流入水のアルカリ度が十分の仮定よりアンモニアはゼロとなる($N_3=N_6=0$)。Table 5にはこれらの反応パターンの変化をまとめる。

以上各ケースでは、各無曝気槽で2つ、各好気槽で1つ、合計6つの等式が成立する。未知数は $m_1\sim m_6$ の6つであるので、これらについて解く(a, b, r, R で表す)ことができる。各ケースごとに連立方程式を解き、その解をまとめたものがTable 5である。ケースの遷移点では、両ケースの条件を満たす形となる。たとえばケースIIからIIIへの遷移点では、DN2流出水のDO、硝酸、基質ともゼロとなる($D_5=B_5=n_5=0$)。その結果、等式が一つ増え、 r の値をその他の制御因子である R, a, b, d_1, d_2 の関数で表現でき、そのときの除去率も定式化される(Table 6)。これらTable 5, 6でステップ率等が変化した場合に窒素除去がどう影響するかが把握可能となる。

4. 3 検証

前項までの1連の仮定と最終的な式が有効であるかを検討するため、3の実験結果に本式を適用する。このため実験結果を参考にTable 7の水質値を用いて a, b, d_1, d_2 を計算した。なお、実際はRunごとにMLSS, DOなどが若干異なるが、ここではすべて表中の値で固定して検討した。

検証結果の例として、Fig. 11にRun 1~3($R=50\%$)の硝酸性窒素の濃度変化を示す。検証値算出では、まずTable 7中の a, b, d_1, d_2 および返送率 $R=0.5$ で、Table 6によりケース遷移時のステップ率 r を算出する。この r から各Runの反応ケースを判断し、それに応じた式(Table 5)で $m_1\sim m_6$ を推定する。これらをTable 4に代入すれば各水質濃度(流入有効アンモニア H に対する値)が得られるので、それに H をかけて NOx-N 濃度とした。なお、 $R=50\%$ の場合、ステップ率20%はケースIIに、50%と80%はケースIIIの反応パターンとなった。

実験値と理論値とは若干のずれはあるが、ステップ率による NOx-N 濃度増減パターンの特徴が明確に表れている。特にDN1,DN2およびN2槽(相)流出はほぼ実測値通りの結果となっている。DN1, DN2両混合液は、理論にくらべ、実測値が低いが、これは理論計算(Th)では単純混合濃度を与えたのに対し、実験値は混合1分後の測定値で混合直後の反応の影響と考えられる。実際、無曝気相混合直後には一部 NOx-N は急速に除去されている。

Table 6 r value for case transitions and T-N removal efficiencies

Case trans	r value	T-N removal efficiency
I $\rightarrow$ II	$\frac{R_1 \cdot d_1}{d_1 + b}$	$\frac{R_1 b^2 - R(b + d_1)(b + d_2)}{d_1 + b}$
II $\rightarrow$ III	$\frac{R_1 \cdot d_1 + 1}{d_1 + b + 1}$	$\frac{R_1 \cdot b + R}{R_1(d_1 + b + 1)}$
III $\rightarrow$ IV	$\frac{R_1(b - R \cdot d_2)}{R_1 \cdot b + R}$	$\frac{R(d_2 + b + 1)}{R_1 \cdot b + R}$
IV $\rightarrow$ V	$1 - R \cdot d_2 / b$	$\frac{R(d_2 + b)}{R_1 \cdot b}$

$$r_1 = 1 - r, R_1 = 1 + R, r_2 = 1 - r + R,$$

Table 7 Parameter values for validation of theoretical analysis

Parameter	S.	Value	Unit
Sewage	DO	F	0.0 mg/L
	BOD	S	120 mg/L
	Alkalinity	L	175 mg/L
	Org-N	W	9.0 mg/L
	$\text{NH}_4\text{-N}$	H	11.0 mg/L
	NOx-N	n	0.0 mg/L
DO in N1	F_1	4.5	mg/L
DO in RS	F_2	2.0	mg/L
MLSS	M	3000	mg/L
RS ratio	R	50, 150	%
Step ratio	r	20, 50, 80	%
Effective Alk.	L'	162	mg/L
Effective BOD	S'	607.1	mg/L
Effective N	H'	13.0	mg/L
Indices	Alkalinity	a	3.49 (-)
	Substrate	b	1.92 (-)
	DO	d_1	0.121 (-)
	Intensity	d_2	0.054 (-)
BOD/COD	x	0.840	(-)
Min. Alkalinity	Lm	20.0	mg/L
N in sludge	f	0.098	gN/gCOD
Yield	y	0.500	g/g
Nitrification rate const.	k	0.660	mgN/gSS·hr

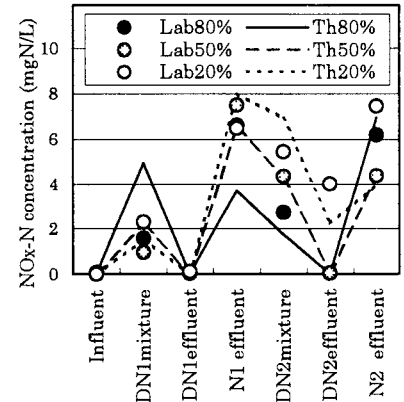


Fig. 11 Comparison of experimental data and theoretical values

さらに、放流NOx-NでRun1~6の全ての実験結果と、理論値とを比較してみる。結果はすでにFig. 7に示されている。理論値は、与条件の a, b, R, d_1, d_2 値を用い、Table 6, 5の流出T-N濃度に代入して得た(流出T-NはNOx-Nに等しい)。結果を見ると、 $R=50\%$ ではほぼ実測の濃度と等しくなっている。 $R=150\%$ ではステップ率 $r=50\%, 80\%$ で実測値がかなり理論値を上回っているが、本実験ではまだ定常になっておらず、定常になった時の値に推定修正した値では、ほぼ一致している。これより、 $R=150\%$ では前培養の影響が残っていたこと、および適切な補正による流入条件 (Fig.10) 設定でステップ法の処理水質は予測可能であることが検証された。

5. 理論解析による最適操作条件の検討

5. 1 ステップ率

前節の解析で理論解析の有効性が示されたので、ここではそれを用いて最適な操作条件を検討する。そこで、各種の返送率 R 、好気槽DO値での、窒素除去率に対するステップ率の影響を考察する。ただし、基質強度 b が低い場合、 r の増加でDN2槽で完全な脱窒が生じる前にDN1槽で基質が不足する。ケースがI→II→III→IV→Vの順に遷移するためには、Table 6でII→IIIになる r 値が、III→IVになる r 値より小さいことが必要である。この関係を整理すると、 $b > (d_1 + d_2) + \sqrt{[(d_1 + d_2)^2 + 4R\{d_1 d_2 + d_1 + d_2 + 1/(R+1)\}]}$ の条件が見い出せる。Fig. 12に示すように、 b の下限値は好気槽DOの増大で増加し、しかも返送率が高いほどその勾配はきつくなる。たとえば、 $R=150\%$ の場合、 b 下限値は $d_1=0$ で0.8だが、 $d_1=2$ で1.2に増大する。これは、好気槽DOが増大すると、脱窒槽で脱窒以外に使われる酸化態窒素量が増えることの影響で、返送率の増大でDOの無曝気槽流入負荷が増加するためそれはさらに加速される。

つぎにTable 5,6を用い、各種の返送率・好気槽DO値でのステップ率のT-N除去率への影響を検討する。なお、流入水条件はTable 7と同じとした。Fig. 13に示されるように、T-N除去率は、 r がある値まで一定でそれを越えると除去率も増大しピークとなったのち、一定の傾きで減少するパターンをすべて示す。除去率が一定の期間はケースIに相当し、その値は $1/(1+R)$ で従来のAO法の理論式と同じである。このケースでは、DN2で脱窒がまったく生じず、ステップの効果が表れていない。その後、 r が15~25%以上となると、DN1槽での脱窒も完全に進行するまま後段のDN2でも脱窒が生じるようになり、除去率は向上する。ケースII→IIIの遷移点($r=(R+1)d_1+1/\{d_1+b+1\}$)で、除去率は $\{(R+1)b+R\}/\{(R+1)(d_1+b+1)\}$ の最大となる。その後III→IV→Vと推移するが、除去率は $(1+R \cdot r)/(R+1)$ と同じであり、最終的には再び $1/(1+R)$ となる。以上より、ステップ法で最大除去率を上げる条件が、DN2槽で最大の脱窒が生じるように、基質不足とならない範囲でN1槽での硝化量を増大させる、すなわちDN2流出水の基質、NOx-Nともゼロとなるステップ率を適用することが重要である。

返送率 R が増大すると除去率は増加するが、それが大きいほどステップ流入の効果が小さく、また最適ステップ率が大きい方に若干シフトする。同一 R では、基質強度 b が高いと、ケースIIにおける除去率の傾きが増大し(他ケースでは影響なし)、結果として最大除去率は上昇し、それに必要なステップ率は小さくなる。なお、最適ステップ率は返送率および流入水質で若干変動するが、ほとんどのケース40~60%の範囲に含まれる。もちろん実際の運転でこのよう

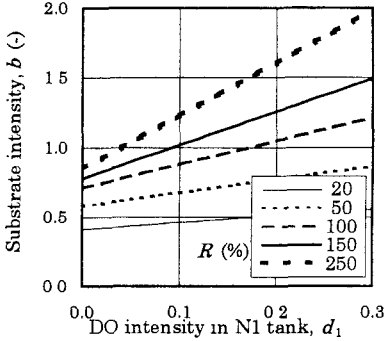


Fig.12 Relationship between min. Substrate and DO in oxic tanks (DO intensity in N2 tank, $d_2 (-) = 0.4d_1$)

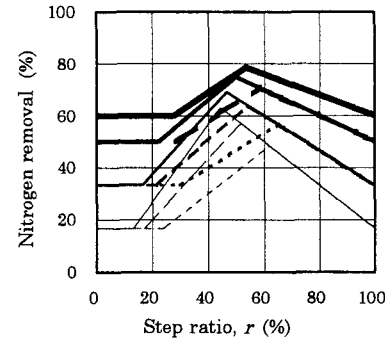


Fig.13 Theoretical effect of step ratio on nitrogen removal
($R(\%)/b(-), d_1 = 0.2, d_2 = 0.08$)

に r , R , b が影響するためには、硝化菌・脱窒菌の保持が前提である。

本解析から得られた最適ステップ率を、従来での実験条件と比較してみる (Fig. 14)。このため、下水道協会発表会等からステップ法に関する14文献、49ケースの実験例を収集し、関連情報を得た。理論計算は40~60%を最適と予想しているが、多くの実験例は10~30%のステップ率で実施されており、最適条件に比べ小さすぎると推測される。Fig.13によると20%付近以下はステップ流入の効果が現れない領域となっており、従来の条件ではステップの特性を生かしきれていない可能性が強い。これら報告の多くが、既存の施設を用いたものであるため、通常の活性汚泥運転 (ステップ率 $r=0$) に近い条件で実施したためと予想される。

5. 2 好気槽容量配分

最後に各槽の容量配分について検討する。先に示したように硝化では反応速度がMLSS濃度に比例するので、反応過程を把握できるが、脱窒では瞬時の減少、時間的に変化する減少速度等定式化が困難である。今回は両好気槽の容量配分のみに注目する。

このため、まずN1、N2各槽で完全な硝化に必要な実滞留時間の推定を行う。いま、返送率が $R(-)$ 、ステップ率が $r(-)$ 、曝気槽終端MLSSが $M(\text{mg/L})$ で運転されているステップ嫌気好気法装置に、濃度 $H(\text{mg/L})$ の $\text{NH}_4\text{-N}$ を含む下水が流入する場合を想定する。MLSSのシステム内での増減および流入水中のSSが無視可能で、かつ最終沈殿池では完全な固液分離が生じると仮定すると、DN1,N1槽のMLSSは $(1+R\cdot r)M/(1+R)$ となる (DN2,N2は M)。一方、N1,N2槽に入った後の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度も希釈計算で、それぞれ $(1-r)H/(1+R-r)$ 、 $rH/(1+R)$ で与えることができる。したがって、硝化反応がMLSS濃度の1次反応 (硝化速度定数を $k(\text{mgN/gMLSS/hr})$ とする) で、他の因子が全く影響しないとすると、N1,N2各槽で硝化に必要な時間 t_1, t_2 はそれぞれ以下の式で与えることができる。

$$t_1 = \{(1-r) H/(1+R-r)\} / \{k \cdot (1+R\cdot r)M/(1+R)\} = \{(1-r)(1+R)/(1+R-r)^2\} (H/kM) \quad (4)$$

$$t_2 = \{rH/(1+R)\} / \{kM\} = \{r/(1+R)\} (H/kM) \quad (5)$$

Fig. 15は、Run1~6の実験結果に上式を適用した結果 (係数値はTable7の値利用) であり、実滞留時間、実測硝化時間 (Fig. 5で、 $\text{NH}_4\text{-N}$ が直線的に減少している区間の回帰直線がX切片より算定) と比較して示した。実験のHRTは、ほぼ硝化必要時間と等しい場合もあるが、右端の点のように必要量の2倍以上も適用されている場合もある (左の図)。これに対し、上式を用いて滞留時間の計算すると、相関係数が0.933となり理論値と実測値とが一致している (右の図)。若干のばらつきは、Runによって差があるMLSS濃度を、3000mg/Lで固定して計算したためと考えられる。以上より、ステップ法での好気槽容量は、ステップにともなうMLSSおよび硝化対象 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の変化を考慮して案分することが効率的と判断される。連続式装置の場合、N1,N2槽それぞれの槽容量を V_1, V_2 とし

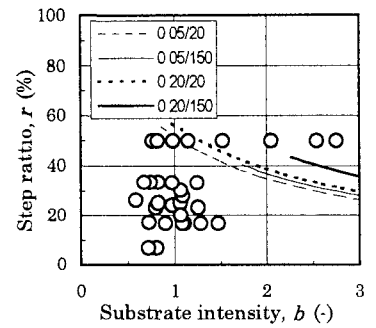


Fig. 14 Comparison of experimental values and theoretical ones for r (● this study, ○ literature, $d_1/R(\%)$)

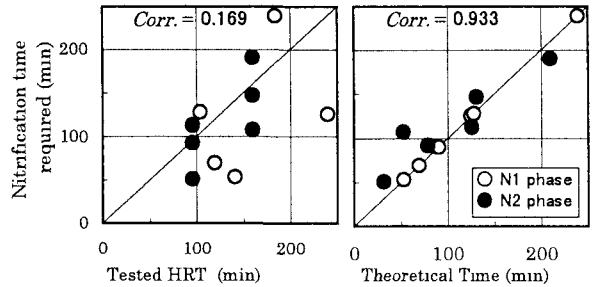


Fig. 15 Estimation of reactor HRT required for nitrification

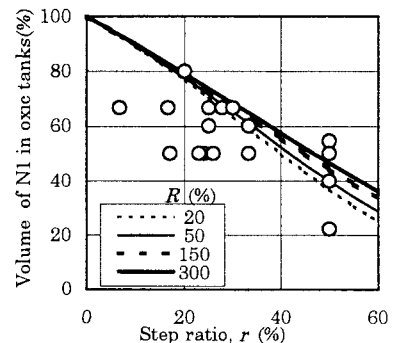


Fig. 16 Optimal volume allocation experimental values

てその割合を検討する。全流入量 $Q(\text{m}^3/\text{hr})$ とすると、実滞留時間は $t_1 = V_1 / \{(1+R \cdot r) Q\}$ 、 $t_2 = V_2 / \{(1+R) Q\}$ で算出できる。これらの式に(4),(5)それぞれを代入すると、 V_1 、 V_2 はそれぞれ以下の式で表せる。

$$V_1 = \{(1-r)(1+R)/(1+R \cdot r)\} (H' Q / kM) \quad (6)$$

$$V_2 = r (H' Q / kM) \quad (7)$$

Fig. 16には、文献における実際の好気槽中N1の容積割合と、上式を適用して計算した割合 ($= V_1 / (V_1 + V_2) = (1-r)(1+R)/(1+R \cdot r)$) とを比較した。図のようにいくつかは、理論計算に近い槽容量配分であるが、全般的にN1槽の割合が理論値に比べ小さめとなっている。たとえば、 r が20～30%の範囲では、理論計算ではN1の割合を60～80%にすべきと判断されるが、実績値は50～70%と10～20%低めである。これは、N1槽で硝化が完了しなかった場合の補完用にN2槽に余裕を持たせた結果とも解釈できる。しかし、N1で硝化未了となるとDN2槽での脱窒が低下する可能性も否定できない。実験による詳細な検証が必要であるが、一般論として現在の多くの実験では、現在の適用値に比べ、前段好気槽の割合を10～20%ほど高める方が効率的であると提言できる。

6. 結論

以上、本研究では、SBRによる実験と化学量論に基づく理論解析により、ステップフィード嫌気好気活性汚泥法における最適操作条件を検討した。以下にその成果を要約する。

- (1) ステップ法で、前段、後段の硝化および前段の脱窒では流入量に比例するが、後段の脱窒は、前段での硝化量が影響するため、ステップ率50%が、20,80%の場合より高いT-N除去となる。
- (2) 脱窒は、初期吸着その後の指数的な変化を示し定式化で困難であるが、硝化は反応速度定数0.56～0.82 mgN/gSS/hrでMLSSに比例して一定速度で減少する。
- (3) 生物学的窒素除去プロセスを、化学量論に基づき基質COD、アンモニア、硝酸、アルカリ度、DOの5指標関連で把握する理論解析を展開し、その有効性を実験値との適合性から検証した。
- (4) ステップ法で最大除去率は、DN2槽で最大の脱窒が生じるようにステップ率を設定すべきで、アルカリ強度 a 、基質強度 b とも高い場合には、その最適ステップ率 r は $\{(R+1)d_1+1\} / \{d_1+b+1\}$ で与えられ、その最大T-N除去率は $\{(R+1)b+R\} / \{(R+1)(d_1+b+1)\}$ となる。
- (5) ステップ法に関する既報告例の多くは、ステップ率が10～30%、好気槽中前段の容積割合は50～70%で運転されているが、これは理論解析から予測される最適値に比べ、ともに10～20%程度低い値であり、ステップの特性を生かしきれていない可能性がある。

なお、本研究での実験遂行では、小俣健二氏（現立命館大学）、田畑洋輔氏（現立命館大学）、福田恵太氏（現運輸省第3港湾建設局）の助力を得たことを記し、謝意を表す。

参考文献

- 1) 栗林, 村上, 石田(1986)ステップ式流入による生物学的リン・窒素同時除去法の処理効率の改善について, 下水道協誌, 23, No. 266, 16-26.
- 2) 渡辺浩基(1994)実施設におけるステップ流入と嫌気好気法による脱窒, 脱リンについて, 下水道協誌, 31, No. 368, 16-22.
- 3) 伊奥田, 広浜, 村田(1990)実施設におけるステップ式硝化脱窒法に関する研究(1), 下水道協会誌, 27, No. 309, 27-37.
- 4) Gorgun et al (1996), Evaluation of nitrogen removal by step feeding in large treatment plants, 18th IAQW Conf., 1, 223-230.
- 5) FUJII(1997) Theoretical analysis on nitrogen of the step-feed anoxic-oxic activated sludge process and its application for the optimal operation, *Water Science and Technology*, 34, No. 1, 2, 459-466.
- 6) 藤井, 中西, 常岡(1997)ステップフィード嫌気好気活性汚泥法におけるステップ率の窒素除去率に対する影響, 環境技術, 26, No. 7, 444-450.
- 7) 藤井, 奥村ら(1997)ステップフィード嫌気好気活性汚泥法の操作条件の影響に関する実験的検討, 土木関西講, VII-7-1-VII-7-2.
- 8) 日本下水道協会(1994)高度処理施設設計マニュアル(案)。