

(18) 回分式活性汚泥処理におけるリン除去過程のモデル解析

— 流入下水の有機物組成と攪拌工程に残存する硝酸性窒素の影響 —

Model Analysis for Biological Phosphorus Removal in SBR Activated Sludge Process: Effects of organic substrate composition and remaining nitrate at mixing phase

藤田 昌史*, 古米 弘明*, 中島 典之*

Masafumi FUJITA*, Hiroaki FURUMAI*, and Fumiyuki NAKAJIMA*

ABSTRACT; An anaerobic/aerobic sequencing batch activated sludge reactor was operated by using synthetic wastewater consisted of peptone and glucose as carbon sources. The response of phosphorus release and uptake to different carbon sources was investigated by conducting three different experiments. After achieving a good biological phosphorus removal, the organic substrates were changed solely to glucose, to peptone and to sodium acetate respectively. It was found out that the wastewater having sodium acetate yielded highest phosphorus release and that peptone gave the lowest. The difference in the phosphorus release and uptake was appeared to be strongly dependent on organic substrate composition in relation to hydrolysis and fermentation process.

Other sets of experiment were also performed to investigate the effect of remaining nitrate at mixing phase on phosphorus removal. Nitrate concentrations were adjusted to 10 and 20 mg-N/L at the initial mixing phase. It was found out that the nitrate addition suppressed phosphorus release during a whole mixing phase, the less phosphorus release with limited PHA storage seemed to increase effluent phosphorus concentration afterwards. Therefore in order to achieve reliable phosphorus removal, the nitrate at the beginning of initial feed/mixing phase should be as low as possible. A SBR model based on IAWQ ASM2 was applied to explain the phosphorus and nitrate dynamics in the response experiments that were carried out for continuous period of 28 days. The long-term simulation results well explain the dynamics of phosphorus and nitrogen during a cycle as well as effluent water quality, when denitrification process by Poly-phosphate Accumulating Organisms was considered and kinetic parameters were adjusted for the synthetic organic substrates.

KEYWORDS; biological phosphorus removal, organic substrate composition, remaining nitrate, SBR activated sludge model

1. はじめに

単一反応槽でありながら、嫌気好気状態などを適切に時間制御することで、有機物に加え、窒素・リンの同時除去が期待できる回分式活性汚泥法^{1), 2), 3)}は、他のプロセスに比べ維持管理が容易であり、低コストであることから、農業集落排水施設⁴⁾などで普及しつつあるプロセスである。しかし、高度技術者が不足する地域では、運転管理が重要な課題となっている。従って、再現性の高い処理モデルを用いて、安定した処理を行うための運転操作条件や維持管理のための知見を得ることは、非常に有用であると考えられる。

活性汚泥数学モデルの研究は、さまざまな研究者によって数多く行われてきたが、IAWPRC (現, IAWQ) タスクグループにより整理され、1986年にASM1 (Activated Sludge Model No.1)⁵⁾として公表された。1995年には、ASM1で対象とした有機物、窒素除去に加え、さらに生物学的リン除去を考慮したASM2⁶⁾が発表された。これらの概念はA₂O法^{7), 8)}、ステップ流入式多段硝化脱窒プロセス⁹⁾、オキシデーションディッチ法⁸⁾、回分式活性汚泥法^{10), 11)}などさまざまなプロセスに適用され、その有効性や限界点が議論されている。このように、数多くの処理モデルが提案されているが、長期的な処理水質予測や、流入条件や運転条件が変化する非定常処理過程におけるモデルの有効性について検討した例は限られている^{12), 13)}。

一方、生物学的リン除去機構が次第に明らかになり¹⁴⁾、嫌気好気法によるリン除去が検討されてきているが、安定したリン除去を継続的に行うことは難しいといわれている。生物学的リン除去において重要な役割を果た

* 東京大学大学院工学系研究科都市工学専攻 (Department of Urban Engineering, The University of Tokyo)

すポリリン酸蓄積細菌 (Poly-phosphate Accumulating Organisms, PAOs) の炭素源は、酢酸やプロピオン酸のような低級脂肪酸であるといわれているが¹⁴⁾、一般的な生活排水の有機物組成は、タンパク質 (40-60%)、炭水化物 (30-50%) および脂肪、油 (10%) である¹⁵⁾。従って、流入下水に含まれる有機物の組成や濃度は、生物学的リン除去に大きく影響すると考えられる。また、嫌気好気回分式活性汚泥法では、サイクル初期に高濃度に残存する硝酸性窒素が、生物学的リン除去に影響することも報告されている¹³⁾。例えば、流入下水の有機物濃度が低下することにより、従属栄養細菌による窒素同化が制限される一方で、硝化が通常より活発に行われる場合である。このような生物学的リン除去の悪化につながる原因として、流入下水の水質、水量などが時々刻々と変動していることが挙げられる。従って、パルスのな外乱を与えることにより、生物学的リン除去への応答を調べると同時に、そのような応答を適切に再現することが可能な処理モデルを開発することは、非常に重要であると考えられる。

本研究では、ペプトン／グルコース系の人工下水を用いて嫌気好気回分式活性汚泥運転を行い、リン除去が安定した後、1 サイクルだけ人工下水の有機物成分を、ペプトン、グルコース、酢酸ナトリウムのみに変更する3 ケースの応答実験を行った。ペプトン、グルコースはそれぞれ、タンパク質、炭水化物を想定している。流入下水の有機物成分が、一般的な生活排水に含まれるタンパク質および炭水化物から、1 サイクルだけ、タンパク質だけになった場合、炭水化物だけになった場合、さらにポリリン酸蓄積細菌が直接摂取可能な低級脂肪酸だけになった場合を想定して、生物学的リン除去への影響を実験的に調べた。また、攪拌工程に残存する硝酸性窒素が生物学的リン除去に与える影響を調べるために、通常運転が行われているサイクルの初期に、硝酸性窒素を強制添加する2 ケースの応答実験を行った。そして、合計5 ケースの応答実験を1 ヶ月に渡って行った。さらに、IAWQ ASM2[®]の概念を基礎に開発した回分式活性汚泥処理モデルを用いて、実験期間1 ヶ月間を、バイオマス濃度を調整することなしに連続的に解析した。そして、長期的な非定常処理過程におけるモデルの有効性及び限界点を検討した。

2. 回分式活性汚泥処理モデルの概要

本処理モデルは、IAWQ ASM2[®]の概念を基礎に、反応工程だけでなく下水投入や排水による反応容積の変化や余剰汚泥の引抜きなどを含むすべての過程を考慮し、回分式活性汚泥法に対応するように改変した処理プロセスモデルである。Kazmi et al.^{16), 17)}により、回分式活性汚泥法の沈殿工程における汚泥濃度分布や脱窒速度の予測に関する研究も行われているが、本処理モデルでは沈殿工程を含むすべての工程で完全混合を仮定した。また、Mino et al.¹⁸⁾の報告にもとづいて、ポリリン酸蓄積細菌の脱窒能力の組み込みも行った¹¹⁾。

本処理モデルの概念図を図-1 に示す。本実験で使用したペプトン、グルコース、酢酸ナトリウムは、モデル計算上それぞれ、加水分解性有機物 X_S 、発酵性有機物 S_F 、発酵産物 S_A と想定した。反応速度式や物質収支式についての説明は文献6)を参照されたい。ただし、本研究では、水道水に含まれるのを除き Ca や Mg を含まない人工下水を対象としたため、リンの凝集・沈殿に関する反応速度式は省略した。

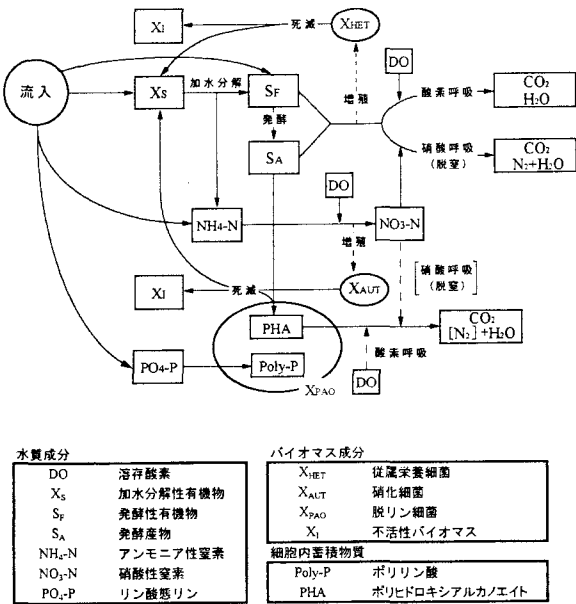


図-1 活性汚泥処理モデルの概念図

3. 実験方法

回分式実験装置として、有効容量 100L の角型反応槽¹⁹⁾を用い、原水には、表-1 に示すペプトン／グルコー

ス系の人工下水を用いた。運転条件を図-2に示す。原水 25L を、サイクル初期 1 時間で流入させた。この流入時間を含め攪拌工程 2 時間、曝気工程 3 時間、沈殿排水工程 1 時間、合計 6 時間の嫌気好気運転を行った。HRT は 24 時間である。曝気工程では、反応槽内の溶存酸素濃度を 2.5 mg/L に制御した。SRT を 20 日に設定して、曝気工程終了直前に余剰汚泥の引抜きを行った。ただし、サンプリングを考慮すると、実質的には 19 日である。また、サイクルを通じて水温を 20 °C に制御した。リン除去が安定した後、1 サイクルだけ人工下水の有機物成分を表-1 に示す組成から、ペプトン、グルコース、酢酸ナトリウムのみに更なる 3 ケースの応答実験を行い、生物学的リン除去への影響を調べた。また、攪拌工程で残存する硝酸性窒素の影響を調べるために、サイクル初期に硝酸性窒素を強制添加して、反応槽初期濃度をそれぞれ、約 10 mg-N/L、約 20 mg-N/L に調整した 2 ケースの応答実験も行った。応答実験を行ったサイクル以外は、表-1 に示す組成に戻して通常運転を行い、最低 2 日以上の間隔を開けて、次の実験を行った。そして、1 ヶ月に渡って 5 ケースの応答実験を行った (表-2)。

表-1 人工下水の組成

人工下水成分	濃度	水質	濃度
グルコース	140	COD _{cr}	329
ペプトン	140	TOC	127
KH ₂ PO ₄	25	T-N	34
NaCl	100	T-P	8
NaHCO ₃	150	NH ₄ -N	15
(NH ₄) ₂ SO ₄	70	PO ₄ -P	6

単位 mg/L

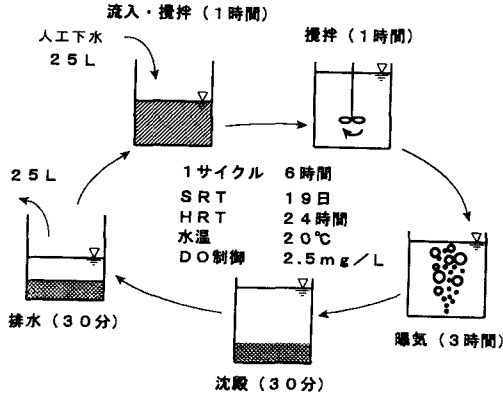


図-2 運転条件

表-2 応答実験条件

実験 ケース	経過日数 (日)	変更内容	変更前の条件と状態
1	8	グルコース (320 mg-COD/L)	ペプトン+グルコース
2	13	NO ₃ -N 添加 (10 mg-N/L に調整)	サイクル初期 NO ₃ -N = 2 mg-N/L
3	20	酢酸ナトリウム (328 mg-COD/L)	ペプトン+グルコース
4	22	ペプトン (350 mg-COD/L)	ペプトン+グルコース
5	27	NO ₃ -N 添加 (20 mg-N/L に調整)	サイクル初期 NO ₃ -N = 2 mg-N/L

4. 実験結果

4.1 有機物組成変更の影響

通常運転および人工下水の有機物成分を、グルコース、酢酸ナトリウム、ペプトンだけに変更した 1 サイクルのリン濃度変化を図-3 に示す。プロットが実験値である。また、流入攪拌工程において硝酸性窒素が残存していた時間帯も併せて矢印で記した。嫌気好気処理の特徴であるリンの放出や摂取過程がいずれのケースにも見られたが、ペプトン基質のケースでは相対的にリン放出が少なく、曝気工程直前におけるリン濃度は他のケースに比べいちばん低かった。逆に、酢酸ナトリウム基質のケースではいちばん高く、通常運転のケースの約 2.5 倍である 26 mg-P/L にも達していた。ポリリン酸蓄積細菌によるリン放出にともなう PHA 蓄積は、リン除去を良好に行うための最も重要なプロセスであるが²⁰⁾、酢酸ナトリウム基質のケースでは、PHA が十分に蓄えられたと予想されるものの、放出したリン量が多いため、3 時間の曝気工程では完全にリンを除去することができなかったものと思われる。

通常運転、グルコース基質およびペプトン基質のケースでは、硝酸性窒素が残存していた流入攪拌工程初期の 30 分間において、リン放出は認められなかった。既に表-1 で示したように、人工下水には、約 6 mg-P/L のリン酸が含まれているため、流入攪拌工程 30 分では、ペプトンの加水分解による供給分を除いても、0.8 mg-P/L 程度はリン濃度が上昇するはずである。しかしながら、上述したいずれのケースでも、リン濃度は約 0.4 mg-P/L しか上昇していなかった。人工下水には、水道水に含まれるのを除き、Ca や Mg などの金属塩は含まれていな

いため、リンの凝集・沈殿の可能性は非常に低い。従って、硝酸性窒素が存在する無酸素状態で、ポリリン酸蓄積細菌がリンを摂取していたと思われる。つまり、脱窒能を有するポリリン酸蓄積細菌が活動していたと考えられる。しかし、酢酸ナトリウム基質のケースでは、さきほどの現象は見られず、硝酸性窒素が存在していたにもかかわらず、サイクル開始とともにリン放出が行われていた。

それぞれのケースの実験結果から算出した、1サイクルのリン放出量と摂取量の関係を図-4に示す。各ケースの左側の棒グラフが、流入により供給されたリンと流入撹拌工程（0～60分）および撹拌工程（60～120分）で放出されたリンの合計量を、右側の棒グラフが曝気工程（120～300分）で摂取されたリン量を示している。そして、両者の差が除去されなかったリン量である。通常運転のケースに比べ、グルコース基質、酢酸ナトリウム基質のケースでは、相対的にリン放出量が高く、逆に、ペプトン基質のケースでは低かった。また、放出量の内訳は、グルコース基質のケースでは通常運転のケースと同様に、流入撹拌工程と撹拌工程におけるリン放出量の割合がほぼ同じであったのに対し、酢酸ナトリウム基質のケースでは流入撹拌工程で高く、逆に、ペプトン基質のケースでは撹拌工程で高かった。

酢酸ナトリウム基質のケースにおける1サイクルの溶存態COD_{Cr}濃度変化を図-5に示す。プロットが実験値である。流入撹拌工程における溶存態COD_{Cr}濃度の増加は、酢酸ナトリウムの流入に対応している。このように、このケースではサイクル開始直後からポリリン酸蓄積細菌が直接摂取可能な基質である酢酸が存在していたため、流入撹拌工程において、他のケースよりリン放出が多く行われていたと考えられる。流入撹拌工程初期において硝酸性窒素が残存していた期間では、酢酸の取り込みにもなうリン放出のみが行われていたのか、あるいは、ポリリン酸蓄積細菌による脱窒によりリンが摂取されていたものの、それ以上にリン放出が行われていたのかは明らかではないが、見かけ上は図-3に示したようにサイクル開始直後からリン濃度が上昇していた。一方、ペプトンは、ポリリン酸蓄積細菌にPHA源として摂取されるまでに、従属栄養細菌による加水分解および発酵プロセスを経るため、これらが律速になり、リン放出がおもに撹拌工程で行われていたと考えられる。そのため、リン放出量も他のケースと比べていちばん低かったと思われる。

有機物組成を変更する直前と変更したサイクルおよび1日後（4サイクル後）の処理水のリン濃度を表-3に示す。ペプトン基質のケースでは、1日後にはさらにリン除去が悪化していた。逆に、グルコース基質のケースでは、処理水にリンが残存しているものの、リン除去は良好になっていた。酢酸ナトリウム基質のケースでは、そのサイクルの処理水リン濃度は増加したものの、1日後には処理水にリンが

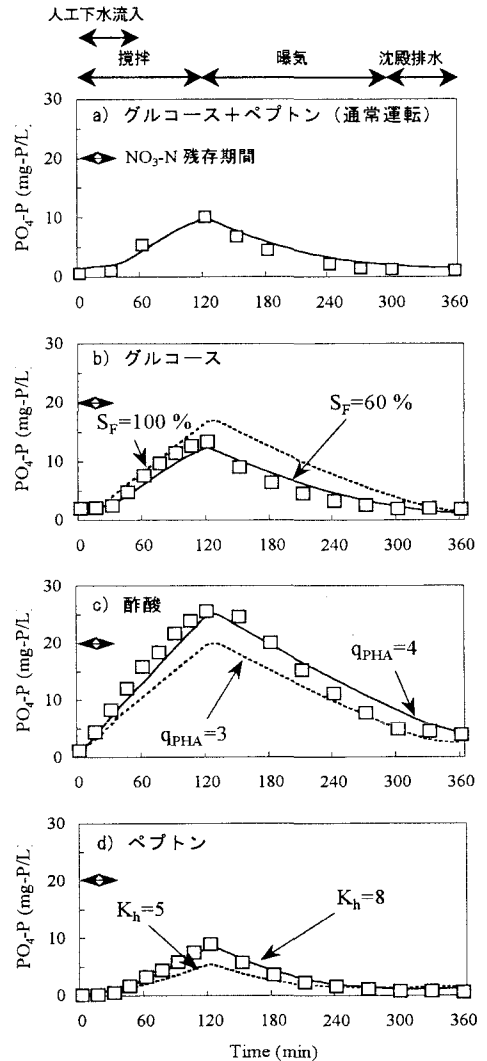


図-3 有機物組成を変更したサイクルのリン濃度変化（実験および解析結果）

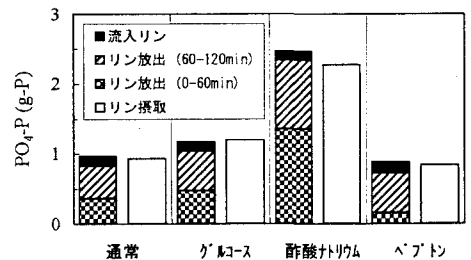


図-4 添加有機物組成の違いによるリン放出量とリン摂取量との関係

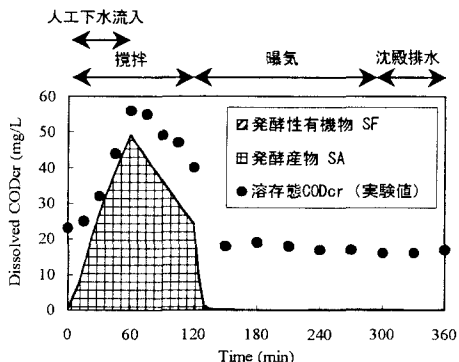


図-5 酢酸ナトリウム基質における1サイクルの溶存態CODcr 濃度変化(実験および解析結果)

表-3 有機物組成を変更した応答実験前後と1日後の処理水リン濃度

		処理水リン濃度 (mg-P/L)		
		変更前	変更後	1日後
実験	グルコース	2.0	1.8	1.1
	酢酸ナトリウム	1.2	3.9	0.0
	ペプトン	0.0	0.6	2.2
解析	グルコース	2.0	1.1	0.7
	酢酸ナトリウム	1.2	4.1	0.1
	ペプトン	0.0	1.2	1.9

全く残存せず、完全にリン除去が行われていた。ポリリン酸蓄積細菌が直接摂取し PHA として蓄積できる基質と、従属栄養細菌による加水分解や発酵プロセスを経なければ利用できない基質の差が現れたと考えられる。つまり、グルコース基質や酢酸ナトリウム基質のケースでは、応答実験日の1サイクルの組成変更だけでも、通常より PHA が多く蓄えられていたと予想されるため、1日後でも流入下水に含まれるリンに加え、もともと残存していたリンまでも除去する能力があったと考えられる。逆に、リン放出量がいちばん少なかったペプトン基質のケースでは、PHA 蓄積量が通常より少なかったと予想されるため、1日後にさらにリン除去が悪化していたと考えられる。

酢酸ナトリウム基質のケースで見られたように、酢酸ナトリウムの添加は、そのサイクルの処理水リン濃度は上昇するものの、曝気時間を通常より長めに設定するなどの工夫をすることで、リン除去を回復させるための有効な手段に成り得ると考えられる。

4.2 攪拌工程に残存する硝酸性窒素の影響

攪拌工程に残存する硝酸性窒素の生物学的リン除去への影響を調べるために、サイクル初期に存在していた硝酸性窒素濃度を考慮して、新たに硝酸性窒素を添加することにより、反応槽初期濃度をそれぞれ、約 10 mg-N/L、約 20mg-N/L に調整した2ケースの応答実験を行った。それぞれのケースにおける、1サイクルのリン濃度と硝酸性窒素濃度変化を図-6 に示す。プロットが実験値である。流入下水 25L にはリン酸が約 6mg-P/L 含まれるため、流入攪拌工程終了時には、反応槽内リン濃度が初期濃度から約 1.5 mg-P/L 上昇するはずである。しかし、いずれのケースでも、この増加量には達していなかった。従って、前節で述べたように、これらのケースでも、ポリリン酸蓄積細菌が脱窒によりリンを摂取していたものと考えられる。サイクル初期の硝酸性窒素濃度を約 10 mg-N/L に調整したケースでは、攪拌工程の後半で脱窒が終了したあと、リン濃度がわずかに増加していたが、サイクル初期の硝酸性窒素濃度を約 20 mg-N/L に調整したケースは、攪拌工程終了時までで硝酸性窒素が残存していたため、流入による増加以上には、リン濃度は上昇していなかった。しかしながら、い

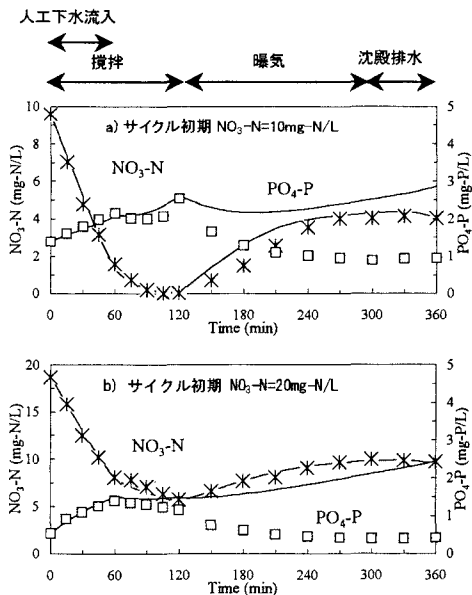


図-6 サイクル初期に硝酸性窒素を添加したケースのリン濃度および硝酸性窒素濃度変化(実験および解析結果)

ずれのケースでも PHA 蓄積に重要な嫌気状態が十分に確保されなかったにもかかわらず、曝気工程ではわずかながらリン摂取が行われていた。

硝酸性窒素を強制添加する直前と強制添加したサイクルおよび 1 日後（4 サイクル後）の処理水のリン濃度を表-4 に示す。いずれのケースでも、応答実験日における処理水リン濃度は、わずかながら低下する傾向が見られた

ものの、1 日後の処理水リン濃度は上昇していた。応答実験日では、硝酸性窒素を強制添加したことにより、嫌気状態が十分に確保されなかったために、PHA 蓄積はほとんど行わなかったと考えられるが、もともと持っていた PHA を使ってリン摂取を行ったものと予想される。しかしながら、次のサイクル以降では、もともと持っていた PHA を消費したことにより、リン摂取に必要な PHA が不足していたものと予想される。そして、この PHA 不足の影響は、1 日経った処理水リン濃度に明確に現れたと推測される。

表-4 サイクル初期に硝酸性窒素を添加した前後と 1 日後の処理水リン濃度変化

		処理水リン濃度 (mg-P/L)		
		変更前	変更後	1 日後
実験	10 mg-NO ₃ -N/L	1.4	0.9	2.0
	20 mg-NO ₃ -N/L	0.5	0.4	3.1
解析	10 mg-NO ₃ -N/L	1.4	2.9	1.6
	20 mg-NO ₃ -N/L	0.5	2.4	2.3

5. 処理モデルによる解析

5.1 計算条件の設定

計算に必要な数値データは、応答実験を行ったサイクルを含む、実験期間 1 ヶ月間における流入下水の成分濃度、運転操作条件（サイクル時間、各工程の配分時間、下水投入時間、曝気工程での溶存酸素濃度、液交換率、SRT、水温など）、動力学定数、化学量論係数および 13 成分の反応槽初期濃度である。流入下水の成分濃度および運転操作条件については、本実験条件を与えた。動力学定数、化学量論係数については、原則として実下水を対象に提案されている文献値⁹⁾を用いたが、一部人工下水の組成にあわせて変更した値¹³⁾を使用した（表-5）。

表-5 動力学定数の変更

動力学定数		IAWQ ASM2	本解析	単位
加水分解速度定数	K_h	3	5, 8 ^{*)}	day ⁻¹
最大発酵速度定数	q_{fe}	3	5	mg-COD/mg-COD _{PAO} ·day
酸素の飽和定数（従属栄養細菌）	K_{O_2}	0.2	0.2 ^{**)}	mg-O ₂ /L
死滅係数（従属栄養細菌）	b_H	0.4	0.2	day ⁻¹
死滅係数（硝化細菌）	b_{AUT}	0.15	0.1	day ⁻¹
最大PHA蓄積速度定数	q_{PHA}	3	3, 4 ^{***)}	mg-COD _{PHA} /mg-COD _{PAO} ·day
酸素の飽和定数（ポリリン酸蓄積細菌）	K_{O_2}	0.2	0.2 ^{**)}	mg-O ₂ /L
PHAの飽和定数	K_{PHA}	0.01	0.05	mg-COD/mg-COD _{PAO}
PHA蓄積に必要なポリリン酸要求量	Y_{PO_4}	0.4	0.6	mg-P/mg-COD _{PHA}
死滅係数（ポリリン酸蓄積細菌）	b_{PAO}	0.2	0.15	day ⁻¹
Poly-Pの分解定数	b_{PP}	0.2	0.15	day ⁻¹
PHAの分解定数	b_{PHA}	0.2	0.15	day ⁻¹

*) ペプトン基質のケースのみ 8 day⁻¹

**) 活性汚泥フロックの分散を考慮してグルコース／ペプトン系人工下水の基準値である 0.5 mg-O₂/L から変更

***) 酢酸ナトリウム基質のケースのみ 4 mg-COD_{PHA}/mg-COD_{PAO}·day

ただし、実験期間中は SVI が 400 程度であり、活性汚泥フロックが分散していたことを考慮して、酸素の飽和定数 K_{O_2} をペプトン／グルコース系人工下水の基準値として用いた 0.5 mg-O₂/L から 0.2 mg-O₂/L へと低めに変更して計算を試みた。また、次節で詳しく述べるが、酢酸ナトリウム基質およびペプトン基質に変更した応答実験日の解析では、変更した有機物組成にあわせて一部の動力学定数を変更した。反応槽内初期濃度は、水質成分については実験開始日およびそれぞれの応答実験日の分析値を与えた。バイオマス成分については、まず実験開始日において定常解が得られるまで数サイクル計算し、得られた定常バイオマス濃度を初期条件として用いた。そして、その後の実験期間 1 ヶ月間を、各バイオマス濃度を調整することなしに連続的に解析した。

5.2 モデル解析結果

(1) 実験期間 1ヶ月間の解析結果

実験期間 1ヶ月間における処理水リン濃度、処理水硝酸性窒素濃度および MLVSS の変化を解析結果とともに図-7 に示す。流入条件を変更した実験を行ったため、処理水濃度が変動していたが、傾向を再現することができた。MLVSS については、平均的な濃度レベルは再現することができた。実験期間中、各バイオマス成分の存在量は大きい方から、従属栄養細菌 X_{HET} 、不活性バイオマス X_i 、ポリリン酸蓄積細菌 X_{PAO} 、硝化細菌 X_{AUT} の順番で表現されていた。計算では、バイオマス濃度は COD ベースで表現されているため、COD と MLVSS との換算係数 1.416 mg-COD/mg-VSS を用いて単位の変換を行っている。このように全体的な処理水濃度の傾向を再現することができたので、以後、有機物組成を変更したケースおよびサイクル初期に硝酸性窒素を強制添加したケースにおける 1 サイクルの濃度変化の再現性について議論する。

(2) 有機物組成を変更したケースの 1 サイクルの解析結果

有機物組成を変更した 1 サイクルのリン濃度の解析結果を、既に実験値を示してある図-3 のなかに実線で示した。グルコース基質のケースでは、流入攪拌工程におけるリン放出が過大評価される結果となった ($S_F=100\%$ と表記)。また、図-8 に示されているように、サイクル初期における脱窒速度も実験より速く表現されていた ($S_F=100\%$ と表記)。動力学定数が正しいとするならば、計算では、脱窒速度を規定するパラメータのひとつである混合液中の有機物濃度が、実験より高く見積もられていたと考えられる。つまり、実験ではグルコースが脱窒以外にも使われていたと推測される。Cech et al.²¹⁾は、グルコース基質で嫌気好気運転を行った場合、嫌気工程でグルコースを細胞内にグリコーゲンとして蓄積するグリコーゲン蓄積細菌(Glycogen Accumulating Organisms, GAOs) が存在することを報告している。本実験でも、通常運転に用いた人工下水には、グルコースが含まれていたことから、グリコーゲン蓄積細菌が存在していたと思われる。従って、グルコース基質のケースでは、グリコーゲン蓄積が行われたために、流入したグルコースの一部は発酵プロセスを経なかったと考えられる。しかし、本処理モデルでは、ポリリン酸蓄積細菌以外のバイオマスの有機物貯蔵については考慮されていない。そこで、貯蔵を仮定して、実際のグルコース投入量より減少させて計算を試みた。つまり、投入しないグルコース量は、脱リンに無関係な微生物の細胞内に蓄積されるため、発酵プロセスを経ないと仮定した。その結果、計算における投入量を、実際の投入量の 60%に設定した場合、嫌気工程におけるリン放出過程(図-3)やサイクル初期における脱窒過程(図-8)をより実験値に近く再現することができた ($S_F=60\%$ と表記)。

酢酸ナトリウム基質のケースでは、グルコース基質のケースとは反対に、流入攪拌工程におけるリン放出速度が過小評価される結果となった。そこで、この原因について調べるために、次式で表現されているポリリン

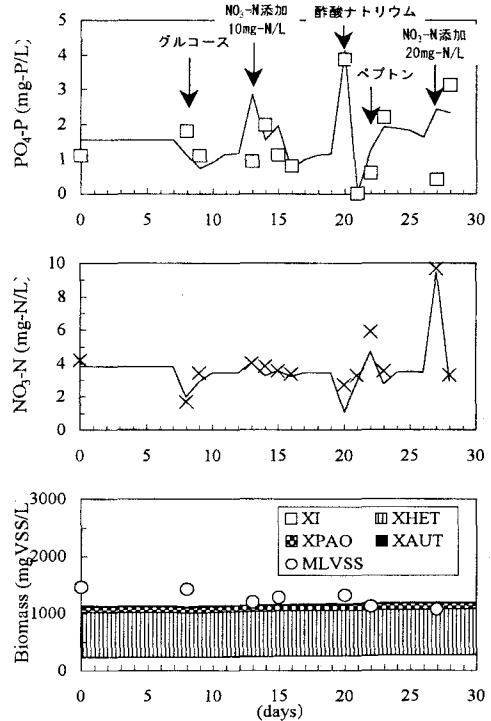


図-7 実験期間における処理水のリン濃度、硝酸性窒素濃度の変化および MLVSS の変化
(実験および解析結果)

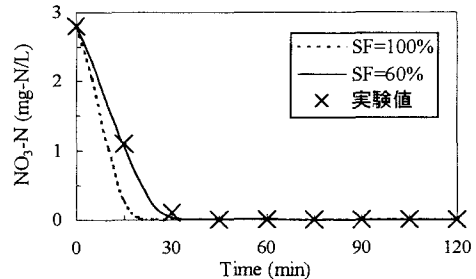


図-8 グルコース基質における流入攪拌工程での脱窒過程(実験および解析結果)

酸蓄積細菌によるリン放出速度式中の各項の速度への影響を検討する。

$$r_{P\text{-release}} = Y_{PO4} \cdot q_{PHA} \cdot \frac{S_A}{K_A + S_A} \cdot \frac{X_{PP}/X_{PAO}}{K_{PP} + X_{PP}/X_{PAO}} \cdot X_{PAO} \quad (1)$$

ここに、 Y_{PO4} ：PHA 蓄積に必要なポリリン酸要求量 (mg-P/mg-COD_{PHA})、 q_{PHA} ：PHA 蓄積速度定数 (mg-COD_{PHA}/mg-COD_{PAO}・day)、 S_A ：発酵産物濃度 (mg-COD/L)、 K_A ：発酵産物の飽和定数 (mg-COD/L)、 X_{PP} ：ポリリン酸濃度 (mg-P/L)、 X_{PAO} ：ポリリン酸蓄積細菌濃度 (mg-COD_{PAO}/L)、 K_{PP} ：ポリリン酸の飽和定数 (mg-P/L) である。

まず、PHA 蓄積に必要なポリリン酸要求量 Y_{PO4} については、既に表-5 で示されているように、文献値である 0.4 mg-P/mg-COD_{PHA} から 0.6 mg-P/mg-COD_{PHA} へと高めに變更されているため、過小評価の要因とはならない。 $S_A/(K_A + S_A)$ の項については、図-5 で示されているように、攪拌工程における発酵産物 S_A の計算値は、発酵産物の飽和定数 K_A の設定値である 4 mg-COD/L に比べて大きいので、この項の影響は考えられない。 $X_{PP}/X_{PAO}/(K_{PP} + X_{PP}/X_{PAO})$ の項については、ポリリン酸の飽和定数 K_{PP} の設定値が 0.01 mg-P/ mg-COD_{PAO} であるのに対し、攪拌工程終了時のポリリン酸蓄積細菌のポリリン酸含有率 (X_{PP}/X_{PAO}) は 0.105 mg-P/ mg-COD_{PAO} と計算されているため、この項の影響もほとんど受けていない。従って、残っている PHA 蓄積速度定数 q_{PHA} またはポリリン酸蓄積細菌 X_{PAO} が、過小評価されている可能性が考えられる。計算上、単に、ポリリン酸蓄積細菌濃度を高く設定することで、リン放出速度が再現可能であると予想されるが、本解析では、バイオマス濃度を調整することなく、一連の応答実験における水質変動の計算を行っているため、バイオマス濃度を変化させず、このサイクルだけ PHA 蓄積速度定数 q_{PHA} を高めに變更して計算を試みた。その結果、ペプトン/グルコース系人工下水の基準値である 3 mg-COD/mg-COD_{PAO}・day から 4 mg-COD/mg-COD_{PAO}・day に變更することで、この現象を再現することができた。この 1 サイクルでは、酢酸ナトリウム単独の基質による処理に變更しており、モデル上、PHA 蓄積速度定数 q_{PHA} を高く見積もる必要性が生じたとも解釈できる。

ペプトン基質のケースも、酢酸ナトリウム基質のケースと同様に、流入攪拌工程におけるリン放出が過小評価される結果となった (図-3)。ペプトンは、実下水に含まれる懸濁態有機物より速く加水分解が進むと考えられるため、表-5 に示したように、ペプトン/グルコース系人工下水のケースでは、加水分解速度定数 K_h を 3 day⁻¹ から 5 day⁻¹ へと高めに變更していた。モデルでは、懸濁態有機物成分である加水分解性有機物 X_s は、流入人工下水の成分であるペプトンと菌体死滅に由来する成分が含まれるため、ペプトンだけにあわせて加水分解速度定数を設定することはできず 5 day⁻¹ にとどめてある。しかしながら、本実験ではすべての投入有機物がペプトンであるため、加水分解速度定数 K_h を 5 day⁻¹ から 8 day⁻¹ に變更したところ、流入攪拌工程におけるリン放出過程を精度良く再現することができた。また、表-3 で示したように、1 日後の処理水リン濃度も再現することができた。

最後に、本処理モデルの有機物挙動の再現性について、酢酸ナトリウム基質のケースについてのみ議論する。既に溶解性 COD_{Cr} の実験値を示してある図-5 のなかに、発酵産物 S_A と発酵性有機物 S_F の計算結果を示した。これらの合計量は、実験値における溶解性 COD_{Cr} に相当する。ただし、発酵性有機物 S_F は、サイクルを通じて 0.1 mg-COD/L 程度にししか見積もられていなかった。実験では、サイクル初期に 23 mg-COD/L の有機物が存在していたが、溶解性微生物代謝産物 (Soluble Microbial Products, SMP)²²⁾ である可能性が高い。有機物、窒素除去を対象とした回分式活性汚泥処理モデル^{10), 23)} では、溶解性微生物代謝産物を導入することにより、有機物挙動を正確に再現できることが既に報告されているが、本処理モデルでは、バイオマスから生成される代謝産物を一切考慮していないため、実験で見られたようなサイクル初期に残存する有機物濃度を表現することはできなかった。しかしながら、発酵産物 S_A 濃度の流入攪拌工程における増加過程や曝気工程における減少過程の傾向は、再現することができた。

(3) 攪拌工程に硝酸性窒素が残存するケースの 1 サイクルの解析結果

サイクル初期に硝酸性窒素を強制添加したケースの解析結果を、既に実験値を示してある図-6 のなかに実線で示した。本処理モデルでは、ポリリン酸蓄積細菌の脱窒能の組み込みを行っているため、攪拌工程終了時までのリン濃度変化は再現することができた。ポリリン酸蓄積細菌の脱窒能の組み込みを行わない場合には、攪拌工程終了時 120 分におけるリン濃度は、いずれのケースでも約 0.5 mg-P/L 高く見積もられていた。実験では

いずれのケースでも、曝気工程においてわずかではあるがリン摂取が行われていたが、計算で再現することはできなかった。ポリリン酸蓄積細菌によるリン摂取速度式⁹⁾は、次式で表現されている。反応槽初期硝酸性窒素濃度を 20 mg-N/L に調整したケースを例にとりて、リン摂取速度が過小評価された原因について調べるために、式中の各項の速度への影響を検討する。

$$r_{P\text{-uptake}} = q_{PP} \cdot \frac{DO}{K_{O_2} + DO} \cdot \frac{PO_4 - P}{K_{P_5} + PO_4 - P} \cdot \frac{X_{PHA}/X_{PAO}}{K_{PHA} + X_{PHA}/X_{PAO}} \cdot \frac{(K_{MAX} - X_{PP}/X_{PAO})}{K_{IPP} + (K_{MAX} - X_{PP}/X_{PAO})} X_{PAO} \quad (2)$$

ここに、 q_{PP} ：ポリリン酸蓄積速度定数 (mg-P/mg-COD_{PAO}·day)、DO：溶存酸素濃度 (mg-O₂/L)、 K_{O_2} ：酸素の飽和定数 (mg-O₂/L)、 $PO_4 - P$ ：リン酸濃度 (mg-P/L)、 K_{P_5} ：リン酸の飽和定数 (mg-P/L)、 X_{PHA} ：PHA 濃度 (mg-COD_{PHA}/L)、 X_{PAO} ：ポリリン酸蓄積細菌濃度 (mg-COD_{PAO}/L)、 K_{PHA} ：PHA の飽和定数 (mg-COD_{PHA}/L)、 K_{MAX} ：ポリリン酸蓄積細菌の最大ポリリン酸含有率 (mg-P/mg-COD_{PAO})、 X_{PP} ：ポリリン酸濃度 (mg-P/L)、 K_{IPP} ：ポリリン酸蓄積の飽和定数 (mg-P/mg-COD_{PAO})である。

まず、DO/($K_{O_2} + DO$)の項については、実験では曝気工程において、溶存酸素濃度が 2.5 mg/L に制御されており、計算でも溶存酸素 DO 濃度は適切に再現されていることから、この項の影響は考えられない。 $PO_4 - P/(K_{P_5} + PO_4 - P)$ および $(K_{MAX} - X_{PP}/X_{PAO})/(K_{IPP} + K_{MAX} - X_{PP}/X_{PAO})$ の項については、曝気工程開始直前におけるリン酸 $PO_4 - P$ 濃度およびポリリン酸蓄積細菌のポリリン酸貯蔵可能残率 ($K_{MAX} - X_{PP}/X_{PAO}$)の計算値が、それぞれ 1.48 mg-P/L、0.11 mg-P/mg-COD_{PAO}であり、リン酸の飽和定数 K_{P_5} やポリリン酸蓄積の飽和定数 K_{IPP} の設定値である 0.2 mg-P/L、0.02 mg-P/mg-COD_{PAO}に比べて大きい、これらの項の影響も考えられない。ところが、 $(X_{PHA}/X_{PAO})/(K_{PHA} + X_{PHA}/X_{PAO})$ の項については、曝気工程開始直前におけるポリリン酸蓄積細菌の PHA 含有率 (X_{PHA}/X_{PAO})の計算値は 0.001 mg-COD_{PHA}/mg-COD_{PAO}であり、PHA の飽和定数 K_{PHA} の設定値である 0.05 mg-COD_{PHA}/mg-COD_{PAO}に比べて非常に小さかった(図-9)。従って、この項がリン摂取速度の過小評価に大きく影響していたと考えられる。

本実験においては、攪拌工程終了時まで硝酸性窒素が高濃度に残留していたことから、従属栄養細菌による発酵は起こらず、ポリリン酸蓄積細菌による PHA 蓄積もなかったものと判断される。本計算でも、この過程は再現されている。従って、実験で観察された曝気工程でのリン摂取は、攪拌工程で通常蓄積されるべき PHA ではなく、サイクル初期において貯蔵済みの PHA 量に依存していると考えられる。言い換えれば、計算上、サイクル初期の PHA 含有率は、より高い値をとる必要がある。そこで、サイクル初期におけるポリリン酸蓄積細菌の PHA 含有率を試行錯誤的に変化させて計算したところ、0.03 mg-COD_{PHA}/mg-COD_{PAO}のとき、曝気工程におけるリン摂取過程を再現することができた。しかしながら、図

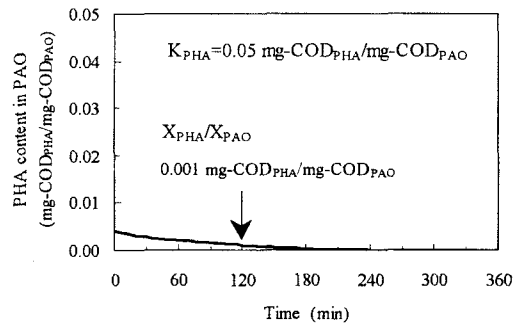


図-9 ポリリン酸蓄積細菌の PHA 含有率の計算値
(NO₃-N 20mg-N/L 添加実験)

-9 に示されるように、サイクル初期の PHA 含有率計算値は 0.004 mg-COD_{PHA}/mg-COD_{PAO} 程度であり、試行錯誤で求めた値に比べ非常に低い。この低い PHA 含有率は、ポリリン酸蓄積細菌への脱窒能組み込みに伴い、脱窒由来の PHA 消費が追加されることに起因しているとも考えられた。そこで、ポリリン酸蓄積細菌の脱窒能組み込みを行わずに、通常運転のケースの定常解を計算した。その結果、サイクル初期における PHA 含有率は 0.012 mg-COD_{PHA}/mg-COD_{PAO} と計算され、脱窒能組み込みを考慮した場合に比べ相対的に高く見積もられたものの、曝気工程におけるリン摂取を再現可能な 0.03 mg-COD_{PHA}/mg-COD_{PAO}には到達せず、曝気工程でのリン摂取を再現するまでには至らなかった。従って、リン摂取の過小評価は、脱窒能の組み込みだけではなく、PHA 濃度レベル自体の再現性に問題があり、この濃度レベルに深く関与する PHA の飽和定数 K_{PHA} の値の設定に検討の余地があることが示唆された。今後、PHA の実験値を得て、PHA 挙動のモデル計算での再現性を検証していく必要がある。

6. まとめ

ペプトン／グルコース系の人工下水を用いて、嫌気好気回分式活性汚泥処理実験を行い、リン除去が比較的安定した状態から1サイクルだけ人工下水の有機物組成を、それぞれグルコース、酢酸ナトリウム、ペプトンに変更する3ケースの実験とサイクル初期における硝酸性窒素濃度を、それぞれ10mg-N/L、20mg-N/Lに設定した2ケースの実験、合計5ケースの応答実験を1ヶ月間に渡って行い、生物学的リン除去に与える影響を調べた。その結果、応答実験日の1サイクルの有機物組成変更だけでも、ポリリン酸蓄積細菌のPHA蓄積に関わるリン放出過程に大きく影響していた。そして、さらに1日後の処理水リン濃度にも影響していた。ポリリン酸蓄積細菌が直接利用できる基質と、従属栄養細菌による加水分解や発酵プロセスを経なければ利用できない基質との間で、PHA蓄積量に差が現れたものと予想される。サイクル初期に硝酸性窒素を強制添加したケースでは、攪拌工程に硝酸性窒素が残存したため、嫌気状態が十分に確保されなかったにも関わらず、曝気工程ではリン摂取が見られた。しかし、いずれのケースでも、1日後の処理水リン濃度は上昇していた。

さらに、IAWQ ASM2の概念を基礎に開発した回分式活性汚泥処理モデルで、動力学定数には人工下水用の基準値を用いて、一切バイオマス濃度を調整することなしで連続計算を行った結果、応答実験日における1サイクルのリン濃度変化に加え、実験期間における処理水リン濃度も再現することができた。ポリリン酸蓄積細菌のPHA蓄積や本処理モデルでは考慮していないポリリン酸蓄積細菌以外の微生物の有機物貯蔵を考慮することにより、さらに正確にリン挙動が再現できるものと考えられる。

謝辞

本研究は、(株)富士電機総合研究所との共同研究である。本論文をまとめるにあたり、同社の古屋勇治氏、佐々木康成氏からは貴重なご意見をいただいた。ここに記し、謝意を表する。

参考文献

- 1) Irvine, R. L., Fox, T. P. and Richter, R. O.: Investigation of fill and batch periods of sequencing batch biological reactors, *Water Research*, Vol. 11, pp. 713-717, 1977.
- 2) 早川登, 稲見茂, 楠敏明, 辻穰治, 浜本洋一: 連続流入回分式活性汚泥法による排水処理—運転実施例—, 用水と廃水, 第24巻, pp. 28-38, 1982.
- 3) 岡田光正, 須藤隆一, 寺園克博: 回分式活性汚泥法による窒素, リンおよび有機物の同時除去に関する研究, 水質汚濁研究, 第8巻, 第11号, pp. 729-736, 1985.
- 4) 公共投資ジャーナル社: 農業集落排水事業ハンドブック (平成7年度版), 1995.
- 5) Henze, M., Grady, C. P. L., Gujer, W., Marais, G. v. R. and Matsuo, T.: Activated Sludge Model No.1, *Scientific and Technical Report No. 1*, International Association on Water Pollution Control and Research, 1986.
- 6) Henze, M., Gujer, W., Mino, T., Matsuo, T., Wentzel, M. C. and Marais, G. v. R.: Activated Sludge Model No.2, *Scientific and Technical Report No. 3*, International Association on Water Quality, 1995.
- 7) 原直樹, 木村文智, 渡辺昭二, 圓佛伊智朗: A_2O 法シミュレーションの実プラントへの適用, 第35回下水道研究発表会講演集, pp. 552-554, 1998.
- 8) Cinar, O., Daigger, G. T. and Graef, S. P.: Evaluation of IAWQ Activated Sludge Model No.2 using steady-state data from four full-scale wastewater treatment plants, *Water Environment Research*, Vol. 70, No. 6, pp. 1216-1224, 1998.
- 9) 船水尚行, 工藤佐佐子, 高桑哲男: ステップ流入式多段硝化脱窒プロセスの段数効果に関する研究, 下水道協会誌, Vol. 35, No. 434, pp. 119-130, 1998.
- 10) 古米弘明: 回分式活性汚泥法における処理過程の非定常モデル, 用水と廃水, Vol. 36, No. 6, pp. 11-18, 1994.
- 11) 藤田昌史, 古米弘明: 生物学的リン除去を考慮した回分式活性汚泥法の数値モデルの検討, 土木学会第51回年次学術講演会概要集第7部門, pp. 58-59, 1996.
- 12) 古屋勇治, 佐々木康成, 古米弘明, 藤田昌史: 回分式活性汚泥法におけるリン除去機能の獲得過程のシミュレーション評価, 第34回下水道研究発表会講演集, pp. 473-475, 1997.
- 13) Furumai, H., Kazmi, A. A., Fujita, M., Furuya, Y. and Sasaki, K.: Modeling long term nutrient removal in a sequencing batch reactor, *Water Research*, Vol. 33, No. 11, pp. 2708-2714, 1999.
- 14) Mino, T., Arun, V., Tsuzuki, Y. and Matsuo, T.: Effect of phosphorus accumulation on acetate metabolism in the

- biological phosphorus removal process, *Biological Phosphate Removal from Wastewaters. Advances in Water Pollution Control*, Vol. 4, R. Ramadori ed., Pergamon Press, Oxford, pp. 27-38, 1987.
- 15) 松尾友矩, 大垣眞一郎, 浅野孝, 宗宮功, 丹保憲仁, 村上健: 水質環境工学 ー下水の処理・処分・再利用ー, 技報堂出版, p. 54, 1993.
 - 16) Kazmi, A. A., Furumai, H.: Nitrate disappearance during batch settling in sequencing batch reactor activated sludge process, *Environmental Engineering Research*, Vol. 35, pp. 387-394, 1998.
 - 17) Kazmi, A. A., Furumai, H.: Field investigations on reactive settling in an intermittent aeration SBR activated sludge process, *Water Science and Technology*, in print.
 - 18) Mino, T., Liu, W. T., Kurisu, F., Matsuo, T.: Modeling glycogen storage and denitrification capability of microorganisms in enhanced biological phosphate removal processes, *Water Science and Technology*, Vol. 31, No. 2, pp. 25-34, 1995.
 - 19) 古屋勇治, 佐々木康成, 初又繁, 古米弘明: 回分式活性汚泥による活性汚泥シミュレーション技術の研究, *Journal of EICA*, Vol. 1, No. 1, pp. 98-101, 1996.
 - 20) 藤田昌史, 古米弘明: 回分式活性汚泥モデルにおける動力学パラメータの生物学的リン除去に関する感度解析, 第33回日本水環境学会年会講演集, p. 133, 1999.
 - 21) Cech, J. S. and Hartman, P.: Glucose induced breakdown of enhanced biological phosphate removal, *Environmental Technology*, Vol. 11, pp. 651-656, 1990.
 - 22) Furumai, H., Rittmann, B. E.: Advanced modeling of mixed populations of heterotrophs and nitrifiers considering the formation and exchange of soluble microbial products, *Water Science and Technology*, Vol. 26, No. 3-4, pp. 493-502, 1992.
 - 23) Furumai, H., Nagasaka, M., Sato, Y.: Modeling of nitrogen removal in sequencing batch reactors treating domestic sewage, *Indian Journal of Engineering & Materials Science*, Vol. 5, pp. 173-181, 1998.