

既設処理施設の窒素・リン除去に関する研究(1)

—— 窒素除去の条件 ——

嶋 津 暉 之 志 村 真 理 井 上 互

1 はじめに

家庭下水や工場排水などに含まれる窒素やリンが、東京湾等の停滞水域の富栄養化を引き起こし、赤潮発生の主因となっていることは周知のとおりである。この窒素やリンを除去する技術については、すでに数多くの研究が行われ、確立した技術になりつつあるが、これまでの研究は新しい処理施設に適用する窒素・リン除去技術が中心となっており、既設の処理施設に導入することが容易な窒素・リン除去技術については未だ十分な研究がなされていない。

本研究は既設の処理施設に導入しやすい窒素除去技術の成立条件を明らかにすることを目的としたものである。昭和58年度から都営住宅三沢団地(日野市)の汚水処理施設を対象として、活性汚泥処理における窒素の除去実験を行ってきた。検討すべき課題が未だいくつか残されているが、既設処理施設における窒素除去の可能性について一応の知見が得られたので、その研究結果を報告する。

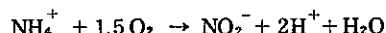
2 窒素の除去技術

窒素の除去技術としてはアンモニアストリッピング法、ゼオライト吸着法、不連続点塩素処理法、生物学的脱窒素法等があるが、前三者は二次公害や除去効果の面で問題があるため、現実に適用できる窒素除去技術は生物学的脱窒素法に限定されると考えてよい。生物学的脱窒素法は微生物の働きで窒素を除去する方法で、アンモニウム性窒素($\text{NH}_4\text{-N}$)を亜硝酸性窒素($\text{NO}_2\text{-N}$)や硝酸性窒素($\text{NO}_3\text{-N}$)に酸化する硝化工程と、その後、嫌気的条件下で $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ を窒素ガスに還元して窒素成分を大気中に放出する脱窒工程の二つから成っている。また、この方法を用いると、流入水中の有機性窒素も酸化分解されて $\text{NH}_4\text{-N}$ になり、その後、同様な工程を経

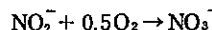
て窒素ガスとなる。

硝化工程

亜硝酸菌によるアンモニアの酸化(亜硝酸の生成)

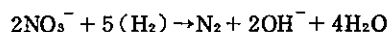


硝酸菌による亜硝酸の酸化(硝酸の生成)



脱窒工程

脱窒菌による硝酸の還元(窒素ガスの生成)



但し、(H_2)は有機物(水素供与体)から供与される水素を意味する。

生物学的脱窒素法は下水処理場ではまだほんの一部の施設にしか導入されていないが、汲取し尿の処理場には十数年前から導入され、数多くの実績がある。この処理法が開発された当初の処理方式は硝化槽と脱窒槽を直列に並べる順流式であったが、この順流式は硝化槽におけるpH低下を防ぐためにアルカリ剤の注入、更に脱窒槽に有機物を供与するためにメタノールの注入を必要とし、薬品代が嵩む。そこで、その後、改良が加えられて現在は図1に示す循環式が採用されている。

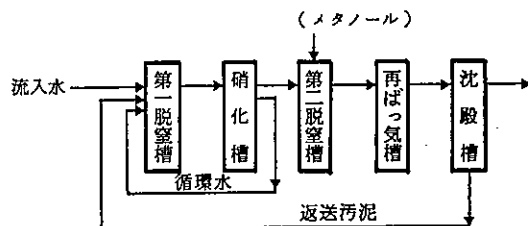
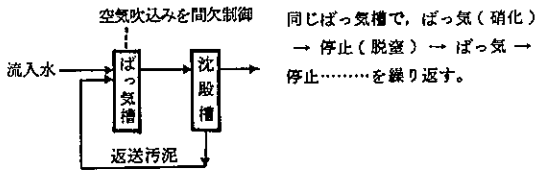


図1 循環式の生物学的脱窒素法

この循環式は循環水によってアルカリ剤が回収されるので、アルカリ剤の注入をほとんど必要としない。また流入水中の有機物を脱窒工程に利用できるため、メタノールの注入量を大幅に減らすことができる。この循環式

生物学的脱窒素法を導入すると、下水処理場で90%以上、し尿処理場で97~98%の窒素を除去することができる。しかし、この循環式を既設の処理施設にそのまま導入することは困難ことが多い。すなわち、第1脱窒槽、硝化槽、第2脱窒槽、再ばっ気槽それぞれの必要な容量を確保して、更に、第1、第2脱窒槽には嫌気状態に保ちつつ槽内を攪拌できる攪拌装置を取り付けなければならないので、大幅な改造を必要とする。

(1) 間欠ばっ気式



(2) 簡易循環式

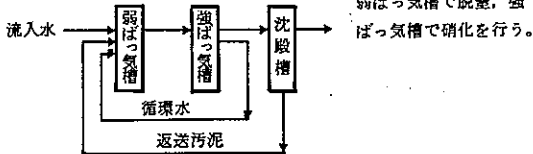


図2 間欠ばっ気式と簡易循環式

そこで、既設の処理施設への導入が可能な方式として本研究で取り上げたのは間欠ばっ気式と簡易循環式である(図2)。前者は、ばっ気を断続させ、ばっ気中に硝化、ばっ気停止中に脱窒を行う方式であり、後者は図1の循環式のうち、第2脱窒槽と再ばっ気槽とを省いたもので、既設ばっ気槽の前段のばっ気を弱めて脱窒槽に、後段のばっ気を強めて硝化槽とする方式である。追加設備としては間欠ばっ気式の場合は送風機に取り付けるタイムスイッチ、簡易循環式の場合は循環水循環のためのポンプと配管が必要である。また、間欠ばっ気式は既設処理施設のばっ気槽が単槽の施設にも適用できるが、簡易循環式は二槽以上のばっ気槽を必要とする。

3 三沢団地における窒素除去実験

本研究では三沢団地汚水処理施設に間欠ばっ気式を導入して、この方式における硝化と脱窒の条件を追求した。また、簡易循環式の基礎データを得るための測定を同施設で行った。

表1に三沢団地汚水処理施設の概要を示す。

表1 日野三沢団地汚水処理施設の概要

施設容量	原水ポンプピット	4 m ³
	ばっ気槽	162 m ³ (1槽のみ)
	沈殿槽	60 m ³ (表面積 24 m ²)
流入水量		125 m ³ /日 (110~140 m ³ /日)
流平入均水水の質	B O D	185 mg/l
	T - N	35 mg/l
	T - P	3.7 mg/l

表2 分析方法

項目	分析方法
T-N	ベルオキシ二硫酸カリウムのアルカリ性溶液を加えて加熱分解した後、フェノール法でNO ₃ -Nを分析。
NH ₄ -N	インドフェノール青吸光度法
NO ₂ -N	N-(1-ナフチル)エチレンジアミン吸光度法
NO ₃ -N	フェノール法でNO _x -Nを分析し、NO ₂ -Nを差し引く。
T-P	ベルオキシ二硫酸カリウムを加えて加熱分解した後、モリブデン青(アスコルビン酸)吸光度法でPO ₄ -Pを分析。
PO ₄ -P	モリブデン青(アスコルビン酸)吸光度法
BOD	一般希釈法

分析は表2の方法により行った。

流入水の水質は、調整槽を設けてある場合は平均化されるが、三沢団地は調整槽がなく、流入水の水質と水量の変動が大きい。図3は、流入水の水量、全窒素(T-N)、全リン(T-P)の一日の動きを調べた結果である。T-N、T-Pとも2.5倍前後の変動がある。朝の7~9時台のT-N、T-Pが最も高く、流入水量が多い。このため、流入水量によるT-N、T-Pの一日の加重平均をとると、昼間時に比べてかなり高め値となる。昼間時の調査だけでは低目の流入水質の値しか得られないことに注意する必要がある。間欠ばっ気条件をいろいろ変えて、窒素の除去効果を調べた結果を図4に示す。

間欠ばっ気条件によって、放流水のT-Nは大きく変動する。最大21mg/lに対して最小1mg/lである。T-Nが増加する現象には二通りあることがわかる。一つは、NH₄-Nの

NO_x-N (NO₂-NとNO₃-Nの和, ただし, ほとんどはNO₃-N) への酸化(硝化)が不十分なため, NH₄-Nが残存する場合であり, もう一つはNO_x-Nへの酸化は進行したが, そのNO_x-NのN₂ガスへの還元(脱窒)が十分でない場合である。したがって, 硝化と脱窒の各々の条件を明確にし, その条件に合うよう処理施設を運転管理すれば, 窒素は十分に除去され, 処理水のT-Nを数mg/ℓ以下に保つことができる。以下, 硝化と脱窒の各々を支配する因子について検討した結果を述べる。

なお, 硝化・脱窒による窒素除去の他に, 流入水の窒素成分の一部は活性汚泥に取り込まれて余剰汚泥として除去される。三沢団地における測定では, 汚泥引抜きによる窒素除去濃度は6~8mg/ℓであり, 流入窒素の17~23%が汚泥取込みによって除去されている。

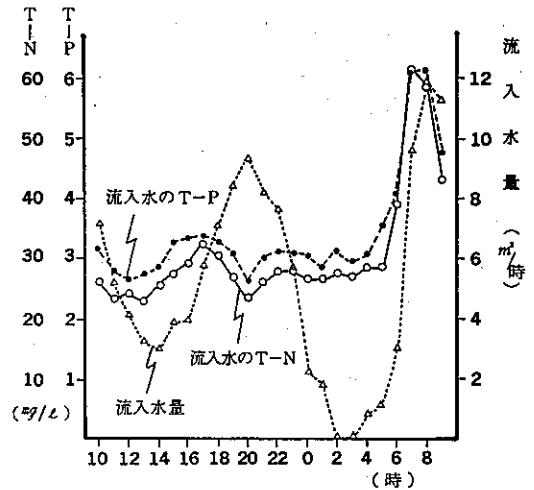


図3 流入水の水量と水質の変動(三沢団地)

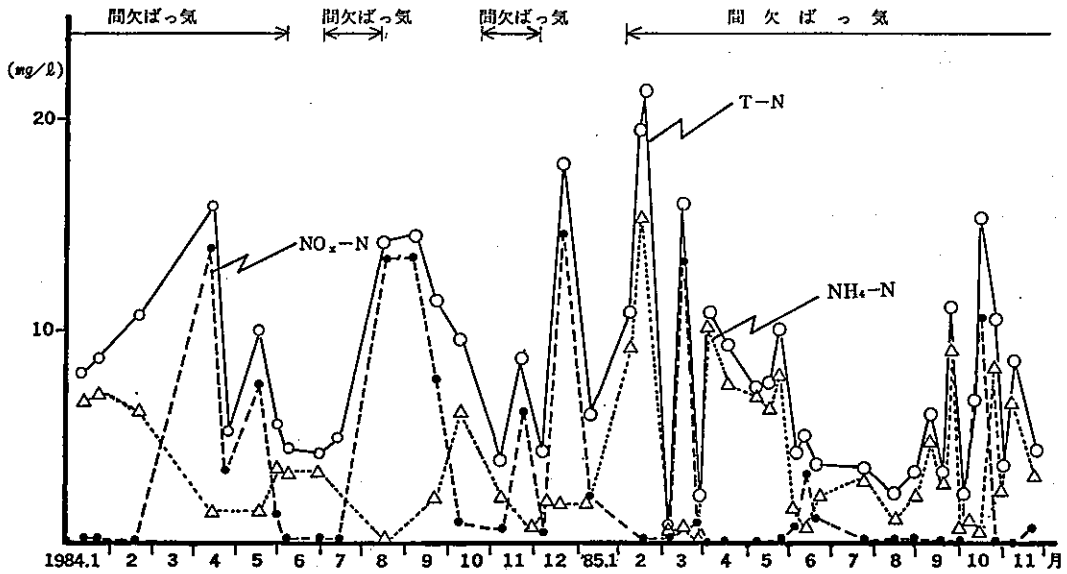


図4 放流水の窒素濃度の経時変化(三沢団地)

4 硝化を制限する因子

(1) 硝化菌の増殖

活性汚泥法等の生物学的処理において浄化の基礎をなすのは, 下水・排水中の有機物を分解する細菌類(BOD酸化菌)である。BOD酸化菌は従属栄養性細菌で, 有機物を炭素源として有機物の分解で得たエネルギーで細胞合成を行うが, 一方, 活性汚泥には亜硝酸菌, 硝酸菌という独立栄養性細菌(有機物を必要としない細菌類)も生息している。亜硝酸菌(代表種としてNitrosomonas)はアンモニアを亜硝酸に, 硝酸菌(代表種として

Nitrobacter)は亜硝酸を硝酸に酸化して, その酸化反応から得たエネルギーで水中の二酸化炭素を炭素源として細胞合成を行う。

下水・排水処理において硝化を完了させるためには, 硝化菌(亜硝酸菌と硝酸菌)が十分生息していなければならない。ところが, 硝化菌の増殖速度は小さく, BOD酸化菌の1/10程度であるから, 硝化菌の増殖をはかするためには一定の条件を充たす必要がある。

硝化菌は付着性が強く, そのほとんどが活性汚泥に付着しているので, 余剰汚泥の引抜きによって硝化菌が系

外に引き出される。その減少割合は汚泥令の逆数、すなわち、 $[\text{余剰汚泥の固形物量}] / [\text{ばっ気槽内の汚泥の固形物量}]$ で示されるから、硝化菌の増加割合(比増殖速度)より汚泥令の逆数が大きいと、硝化菌の流出が増殖を上回って硝化が停止するが、比増殖速度より汚泥令の逆数が小さければ、硝化菌が増殖して硝化が進行する。

また、硝化菌も他の細菌と同様、温度によって増殖速度が大きく変化し、冬場は夏場に比べかなり小さくなる。硝化菌の比増殖速度 μ (硝化菌の菌数を N とすると μ (1/日) $=1/N \cdot dN/dt$)と水温 $T(^{\circ}C)$ の関係については室内実験や現場実験で測定が行われている。それによると、亜硝酸菌の最大比増殖速度は概ね、次式で示すことができる^{1),2)}(ただし、pH 7付近)。

$$\mu_{\max} = 0.17(1.08)^{T-15} \dots\dots\dots (1)$$

なお、比増殖速度は(2)で述べるように槽内の NH_4-N 濃度によって変化し、 NH_4-N が高くなると一定の最大値に近づく。上式は μ の最大値を示す式であるが、槽内の NH_4-N が $2mg/l$ の時の μ は μ_{\max} の $2/3$ 位の値になる。

三沢団地の処理施設に硝化菌が十分に生息しているかどうか確認するため、(1)式にばっ気槽の水温を代入して得た値に一日延ばっ気時間(時)/24(時)を乗じて、月別の一日比増殖速度 μ を計算し、その逆数と汚泥令を比較した(ただし、 $\mu = 2/3 \mu_{\max}$)。その結果を図5に示す。なお、汚泥令の計算に必要な余剰汚泥固形物

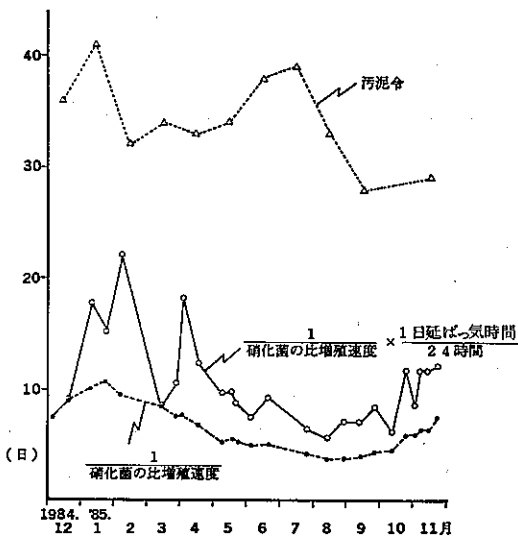


図5 硝化菌の比増殖速度の逆数と汚泥令 (三沢団地)

量はリンの収支から求めた。処理施設の運転月報に記載されている汚泥引抜量は正しく計量された数字とは言えず、引抜き時の汚泥濃度にもバラツキがあるため、これらの数字から余剰汚泥固形物量を求めることはむずかしい。リンは窒素と異なり、気相に移行することがないので、次式から余剰汚泥の固形物量を計算した。

$$\text{余剰汚泥固形物量 (kg/日)} = \text{処理水量 (m}^3/\text{日)} \times \{ \text{流入水全リン (kg/m}^3) - \text{放流水全リン (kg/m}^3) \} \div \text{汚泥中リン濃度 (kg/kg)} \dots\dots\dots (2)$$

また、汚泥令は次式から求めた。

$$\text{汚泥令 (日)} = \text{ばっ気槽容量 (m}^3) \times \text{ばっ気槽汚泥濃度 (kg/m}^3) \div \text{余剰汚泥固形物量 (kg/日)} \dots\dots\dots (3)$$

図5をみると、三沢団地では硝化菌の活性が低下する冬場においても汚泥令が硝化菌の比増殖速度の逆数を大幅に上回っており、硝化菌が十分に増殖できる状態にある。硝化菌増殖の可否が硝化の制限因子になっていないことがわかる。三沢団地はばっ気槽の滞留時間が約30時間もあるので、間欠ばっ気によってばっ気時間を多少短縮しても硝化菌の増殖に支障をきたすことはなかったが、ばっ気槽の容量がそれほど大きくない場合は硝化菌の増殖が可能かどうかが生学的脱窒素法導入の最も基本的な条件となる。特に冬場は水温が $12^{\circ}C$ になると、硝化菌の比増殖速度が連続ばっ気でも $0.09(1/\text{日})$ 位まで低下するから、その逆数を上回る汚泥令を維持できないことが少なくない。この問題については7で検討する。

(2) 硝化速度

硝化の制限因子として次に考えられるのは、硝化速度

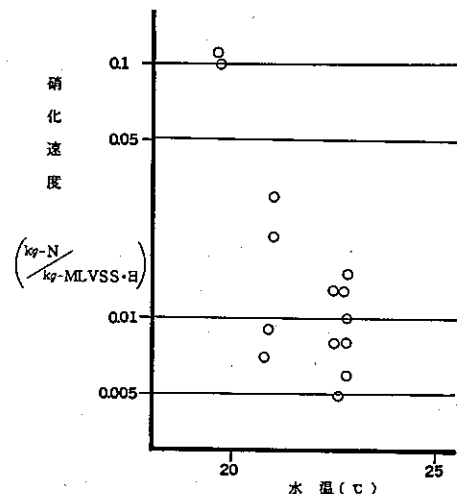


図6 硝化速度の変動(三沢団地)

である。硝化速度は一般にばっ気槽内のMLVSS 1 kgあたりの1日硝化量として示され、その係数を用いて硝化槽の必要容量を計算することがある。しかし、三沢団地における硝化速度を測定すると、図6に示すとおり、大きなバラツキがみられる。このバラツキの原因を知るため、硝化速度の理論的な意味を検討してみる。

硝化が進むと、その硝化で得たエネルギーによって硝化菌が増殖する。したがって、硝化速度から求められる増殖量と硝化菌の比増殖速度から求められる増殖量とは等しく、次式が得られる。

$$\alpha' Vn = \mu Nn \dots\dots\dots (4)$$

但し、 α' : 1 kgのNH₄-Nの硝化で増殖する硝化菌の菌体量 (kg/kg)

Vn : 硝化速度 (kg/m³・日)

μ : 硝化菌の比増殖速度 (1/日)

Nn : 硝化菌の菌体量 (kg/m³)

硝化速度は、硝化菌の比増殖速度と菌体量によって変化する。このうち、比増殖速度は水温だけでなく、槽内のNH₄-N濃度の影響も受ける。比増殖速度 μ (1/日)とNH₄-N濃度 Ne (mg/l)の関係は次式で示される。³⁾

$$\mu = \mu \max \cdot Ne / (Ne + Kn) \dots\dots\dots (5)$$

但し、 $\mu \max$ (1/日) : 最大比増殖速度 0.17 (1.08)^{T-15}

Kn (mg/l) : μ が $\mu \max$ の1/2を示す時のNH₄-N濃度 (mg/l)で、通常 1 mg/l程度

この式はMichaelis-Mentenの酵素反応式を用いたもので、 Kn に比べて Ne が小さければ、 μ は Ne と比例的な関係になるが、 Ne が Kn に対して十分に大きくなれば、 μ は $\mu \max$ と近い値となる。したがって、槽内のNH₄-N濃度が比較的低い状態では、NH₄-N濃度が高いほど比増殖速度すなわち硝化速度が大きくなる。

もう一方の硝化菌の菌体量については次の収支式を立てることができる(ただし、硝化菌の自己酸化量は無視するものとする)。

硝化菌の排出量 硝化菌の増殖量

$$Y(1+Q/R)Nn = \alpha' Q n_0 r_N \dots\dots\dots (6)$$

但し、 Y : 余剰汚泥引抜量 (m³/日)

Q : 処理水量 (m³/日)

R : 返送汚泥量 (m³/日)

$1 + Q/R$: 沈殿槽での汚泥濃縮度

n_0 : 流入水のNH₄-N + 有機性N (kg/m³)

r_N : 硝化率

この式を展開すると、

$$Nn = \alpha' Q n_0 r_N / Y (1 + Q/R)$$

となり、硝化菌の菌体量は1日に硝化される窒素量に比例することがわかる。

以上の理論的考察から硝化速度がどのような動きを示すかを推測することができる。1日当りの窒素流入量が大きく、且つ、硝化率が高い条件下では硝化菌の菌体量が増大する。この状態で大量の生下水が短時間に流入して槽内のNH₄-N濃度が急に高まると、硝化がすみやかに進む。この時の硝化速度は大きい。逆に1日当りの窒素流入量が小さい場合は、生下水が短時間に集中的に流入しても、硝化速度はそれほど大きくはならない。そして、生下水が少量づつ流入し、槽内NH₄-N濃度があまり高まらない場合は、硝化速度はもっと小さくなる。図6のバラツキはこのような硝化速度の変化を表わしている。

以上のように、1日に硝化される窒素量に比例して硝化菌の菌体量が増加し、その結果として硝化速度が大きくなることを考えれば、硝化速度が硝化の制限因子にならないことは明らかである。硝化菌の増殖が可能な汚泥令が保たれ、且つ、その増殖を妨げる要因がなければ、硝化は遅滞なく進行する。

(3) pHの影響

硝化菌の活性がpHの影響を受けることはよく知られている。長時間ばっ気の処理施設でばっ気量を強め、連続ばっ気を行うと、NH₄-NがNO₃-Nに変わり、pHが低下していく。この場合、アンモニアは弱塩基、硝酸は

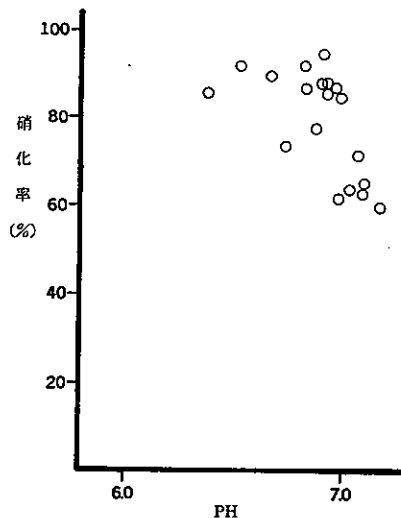


図7 ばっ気槽のpHと硝化率(三沢団地)

強酸であるから、弱塩基と強酸の中和曲線にしたがってNH₄-Nの約半分がNO₃-Nに変ると、その後は急速にpHが低下し、硝化そのものが中断される。これはpHの低下で硝化菌の活性が阻害されるからである。

図7に、三沢団地処理施設におけるばっ気槽pHと硝化率の関係を示す。三沢団地ではpHの変化はあまり大きくなく、pHの低下が硝化率に及ぼす影響はみられない。pHの変化が少ないのは、主として間欠ばっ気の効果である。硝化工程では(NH₄)₂CO₃ + 4O₂ → 2H⁺ + 2NO₃⁻ + CO₂ + 3H₂Oの反応式で示されるように1モルのNH₄-Nの硝化で1モルのH⁺が生じるが、一方、脱窒工程では2NO₃⁻ + 5(H₂) → N₂ + 2OH⁻ + 4H₂Oのとおり、1モルのNO₃-Nの還元で1モルのOH⁻が生成される。間欠ばっ気式の場合、この硝化と脱窒が同一槽内で行われるため、pHの低下は生じにくい。したがって、増殖速度と同様、pHも三沢団地の硝化率を制限する因子になっていない。

(4) 空気吹込量

ばっ気槽への1日の延空気吹込量と硝化率の関係をみたのが図8である。1日延空気吹込量が概ね2,600 m³/日(流入水量1 m³あたり2 l)以上になると、硝化率が90%前後になり、酸素の供給量が三沢の硝化率を支配していることがわかる。

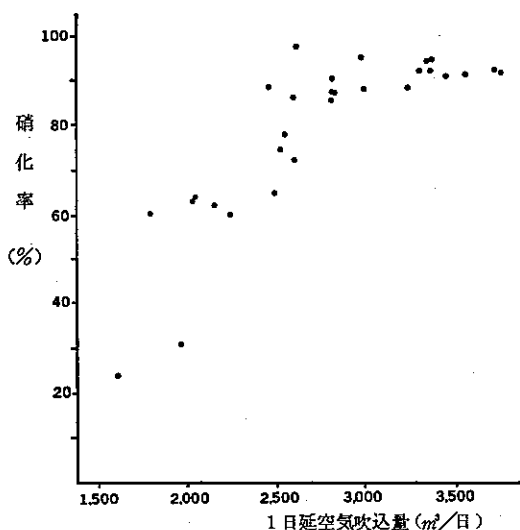


図8 1日延空気吹込量と硝化率(三沢団地)

それでは、硝化の完了に必要な酸素量はどのように求められるのか。ばっ気槽に送られた酸素は、①有機物の酸化分解、②アンモニアの硝化、③活性汚泥の内生呼吸の三つに利用される。まず、①の酸素必要量は一般に除去BOD 1 kgあたり0.5~1 kgとされているが、三沢団地のばっ気槽混合液に人工下水を注入して酸素吸収速度を測定したところ、0.5 kg程度であった(後出の図11参照)。次に、②の酸素必要量は化学式から理論的に求められる。硝酸まで酸化されるとすれば、N 1 kgあたり4.6 kgのO₂が必要である。また、③は汚泥中の微生物の呼吸による酸素消費であるので、MLVSS 1 kgあたりの数字で表わすと、(注1) 後出の図9に示すとおり、水温と一定の関係が得られる。三沢のMLVSS 1 kgあたり酸素消費量は水温15℃の場合、0.06 kg/日である。

以上の①、②、③を合計すると、ばっ気槽の酸素必要量が求められる。BODの除去率98%、流入Nの汚泥移行率20%、汚泥へ移行しないNの硝化率95%、ばっ気槽のMLVSS 3,200 mg/l、1日延ばっ気時間を12時間とすると、三沢団地の酸素必要量は次のように求められる。(注2)

$$\begin{aligned} & \text{有機物の酸化} \\ \text{三沢団地の酸素必要量} &= 125 \text{ m}^3/\text{日} \times 0.2 \text{ kg/m}^3 \times 0.98 \\ & \quad (\text{水温 } 15^\circ\text{C}) \quad (\text{流入水量})(\text{流入水BOD})(\text{除去率}) \\ & \quad \text{硝化} \\ & \times 0.5 \text{ kg/kg} + 125 \text{ m}^3/\text{日} \times 0.035 \text{ kg/m}^3 \times (1-0.2) \times 0.95 \\ & \quad (\text{流入水量}) \quad (\text{流入水T-N})(\text{非汚泥移行率})(\text{硝化率}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \text{内生呼吸} \\ & \times 4.6 \text{ kg/kg} + 160 \text{ m}^3 \times 3.2 \text{ kg/m}^3 \times 0.06 \text{ kg/kg} \cdot \text{日} \\ & \quad (\text{ばっ気槽容量})(\text{MLVSS}) \\ & \times 12 \text{ 時} / 24 \text{ 時} = 42.9 \text{ kg/日} \dots\dots\dots (7) \end{aligned}$$

散気装置の酸素吸収効率を6%とすれば、この酸素必要量から空気吹込必要量が計算される。

$$\begin{aligned} \text{空気吹込必要量} &= \frac{\text{酸素必要量(kg/日)}}{(\text{空気中の酸素割合}) \times \text{酸素ガス密度}} \\ &= \frac{42.9 \text{ kg/日}}{(0.21 \times 1.3 \text{ kg/m}^3) \times 0.06} \\ &= 2,620 \text{ m}^3/\text{日} \dots\dots\dots (8) \end{aligned}$$

この計算値は図8から得られた2,600 m³/日以上という値に近い。したがって、各処理施設において硝化をほぼ完了するのに要する空気吹込量は上の理論式から求めることができると考えてよい。

以上の検討で、三沢団地処理施設の硝化率を制限して

いるのは空気吹込量で、1日の延吹込量を2,600 m³/日（流入水量1 m³につき21 m³）以上に維持すれば、放流水のNH₄-Nを十分に小さくすることができる。ただし、空気吹込量を必要量よりあまり過大にしてはならない。1日の延空気吹込量を3,500 m³/日（流入水量1 m³につき28 m³）にして運転を続けたところ、活性汚泥が解体して、処理水質が著しく悪化したところがある。必要量より多少大き目の空気量にとどめるべきである。

（注1） ばっ気槽中の微生物量を表わす指標として、一般にMLVSSが用いられている。MLVSSはMLSS中の強熱減量で、概ね有機物量を示すが、中には微生物の死骸や流入水から持ち込まれる不活性の浮遊性有機物などもかなり含まれており、微生物はその一部にすぎない。なお、三沢団地の場合、MLVSSはMLSSの8割弱である。

（注2） (7)式の第一項は有機物の酸化がすべてばっ気中（硝化工程）に行われるとしているが、有機物の一部がばっ気停止中（脱窒工程）に酸化分解される場合はその分を差し引いて酸素必要量を求める必要がある。

5 脱窒を制限する因子

(1) 脱窒菌とBOD酸化菌

脱窒を制限する因子を検討するためにはまず脱窒菌の性状を把握しておく必要がある。4で生物学的処理施設にはBOD酸化菌の他に、独立栄養性の硝化菌が息していることを述べたが、この脱窒菌はBOD酸化菌と別の細菌ではなく、BOD酸化菌の一部の細菌である。

BOD酸化菌の一部は水中のDO（溶存酸素）が欠乏してくると、DOの代りに、NO₂、NO₃を還元して有機物を酸化し、生体エネルギーを得る。いわば、DOの代りにNO₂、NO₃中の酸素を利用するということである。この場合、DOを利用する場合と比べて細菌のエネルギー獲得量が少ないから、DOがある状態でNO₂、NO₃が還元されることはない。

それでは、この脱窒菌はBOD酸化菌の中でどれ位の割合を占めているのか。流入有機物の分解がほぼ終わって内生呼吸のみの状態にある活性汚泥について酸素吸収速度と脱窒速度を測定して水温との関係を示したのが図9と図10である。前者はばっ気槽混合液を一定時間ばっ気した後、三角フラスコに入れて、DOメーターの電極を差し込み、密閉・攪拌してDOの変化を測定したも

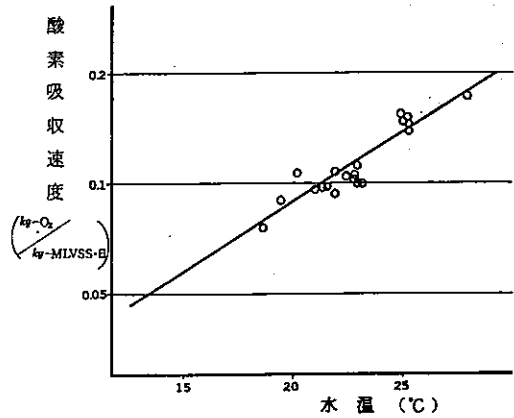


図9 酸素吸収速度と水温の関係（三沢団地）

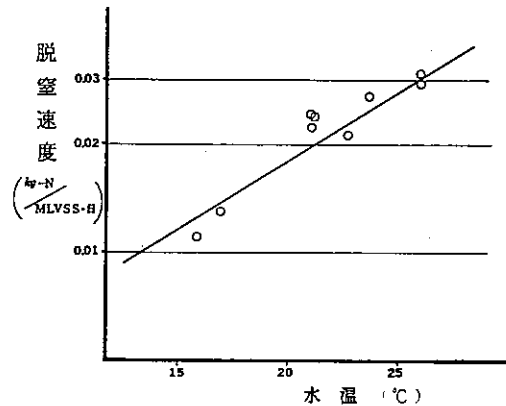


図10 脱窒速度と水温の関係（三沢団地）

のである。また、後者はばっ気槽のばっ気を停止して、30分～1時間おきに混合液を採水し、そのろ液のNO_x-Nの変化を調べたものである。

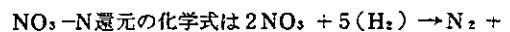
図9、10とも水温との関係が明瞭で、水温をT(°C)とすると、酸素吸収速度O_Rについては、

$$O_R = 0.089(1.09)^{T-20} \text{ kg-O}_2 / \text{kg-MLVSS} \cdot \text{日} \quad \dots \dots \dots (9)$$

脱窒速度D_Nについては、

$$D_N = 0.018(1.09)^{T-20} \text{ kg-N} / \text{kg-MLVSS} \cdot \text{日} \quad \dots \dots \dots (10)$$

の関係式が得られた。



2OH + 4H₂Oであるから、2モルのNO₃から5モルの(H₂)に酸素が供給される計算になる。すなわち、1 kgのNO₃-Nの還元で5O/2N = (16 × 5) / (14 × 2) = 20/7 kgの酸素が供給されることになる。それゆえ、上記の脱窒速度の(10)式を酸素量の式に直すと、 $(20/7) \times 0.018 (1.09)^{T-20} = 0.051 (1.09)^{T-20}$ kg-O₂/kg-MLVSS・日となる。この式と酸素吸収速度の(9)式を比較すると、前者は後者の約6割の値を示している。この数字だけで判断すれば、BOD酸化菌の約6割が脱窒の機能を有していることになる。

(注3) 内生呼吸では体内の栄養物質の酸化分解にO₂やNO_xが消費される。なお、この酸素吸収速度の測定に用いたばっ気槽混合液は硝化がほぼ完了した混合液であるので、硝化による酸素消費は酸素吸収速度の測定値に含まれていないと考えられる。

(2) ばっ気停止中の脱窒速度

BOD酸化菌の大半が脱窒の機能を持っているとすれば、酸素吸収速度によって脱窒速度の動きを推測することができる。図11は空ばっ気を続けて内生呼吸のみの状態にある活性汚泥に人工下水を注入して、酸素吸収速度の変化を測定したものである。活性汚泥処理においてばっ気槽に流入した有機物はすみやかに活性汚泥に吸着される。吸着された有機物がどの程度の速度で酸化分解されるかを図11が示している。人工下水注入直後のBODは1回目が43 mg/ℓ、2回目が22 mg/ℓであるが、

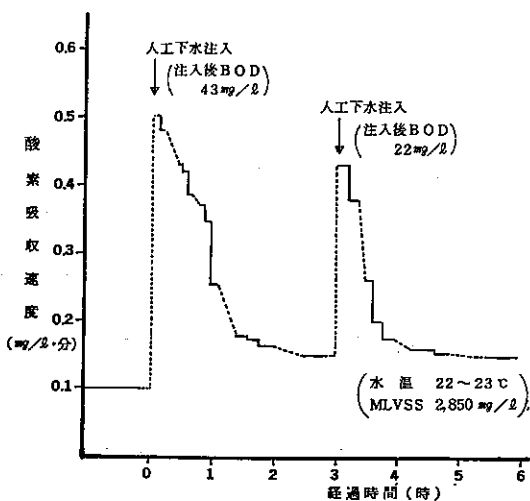


図11 人工下水注入による酸素吸収速度の変化 (三沢団地の汚泥)

いずれも急速に分解され、1回目は60分間で、2回目は40分間でそのほとんどが酸化分解されている。そのため、注入直後の酸素吸収速度ははやく、内生呼吸の酸素吸収速度の3~5倍の大きさになっている。このように、ばっ気槽に加えられた有機物を瞬時に吸着して急速に分解するのがBOD酸化菌の性質である。

なお、硝化菌と同様、BOD酸化菌の増殖もMichaelis-Mentenの式があてはまり、比増殖速度 μ は $\mu_{max} \cdot le / (le + Kb)$ で示される。ここで le はばっ気槽のBOD濃度(mg/ℓ)を示し、 Kb は定数で20 mg/ℓ位とされている。それゆえ、或る範囲内ではBODが高いほど、BOD酸化菌の比増殖速度が高まり、BODの酸化分解速度が大きくなる。図11はそのような酸化分解速度の変化を示している。

間欠ばっ気式の処理施設ではばっ気中も停止中も生下水が流入するが、停止中はばっ気槽の混合液とほとんど混ざらない。流入下水の水温がばっ気槽の水温より低い時は、ばっ気停止中の流入下水はばっ気槽の底の方へ降り込み、逆に高い時はばっ気槽の表面に浮く。そして、ばっ気中に流入した下水の有機物はすみやかに分解されるから、その次の停止時間帯まで残留する有機物はわずかなものである。したがって、ばっ気停止中の脱窒は主に内生呼吸によって行なわれると考えられる。前出の図10は内生呼吸のみの脱窒速度を示しているので、この図から脱窒に必要なばっ気停止時間の概数が求められる。例えば、水温15℃の脱窒速度は0.012 kg-N/kg-MLVSS・日であるから、三沢団地の場合(処理水量125 m³/日、ばっ気槽容量162 m³、MLVSS 3,200 mg/ℓ)、24時間で0.012 kg/kg・日 × 3.2 kg/m³ × 162 m³ ÷ 125 m³/日 = 0.050 kg/m³ = 50 mg/ℓのNO₃-Nが還元される。流入水のT-Nのうち、25 mg/ℓを硝化して還元するとすれば、必要停止時間は24時間/日 × 25 mg/ℓ / 50 mg/ℓ = 12時間/日となる。

以上のことから、三沢団地処理施設で脱窒率が変動する理由が明らかとなった。脱窒に必要な停止時間が確保されていれば、脱窒がほぼ完了するが、停止時間が不足すると、不足分の脱窒は進まない。そして、脱窒のための必要停止時間は水温によって変化する。

しかし、内生呼吸による脱窒速度は遅い。三沢団地はばっ気槽の容量に余裕があるから、冬場でも必要停止時間が十数時間にとどまるが、槽容量が小さければ、必要

停止時間がもっと長くなる。その場合は脱窒速度を高める方法を導入しなければならない。停止中の脱窒速度を高める方法として、ばっ気を停止する少し前に下水を大量に流入させ、ばっ気攪拌して槽内の隅々まで有機物を供給した後、直ちにばっ気を停止する方法が考えられる。図12はこの考え方で、人工下水を注入し、よく混合してから静止状態の酸素吸収速度を測定したものである。(注4)

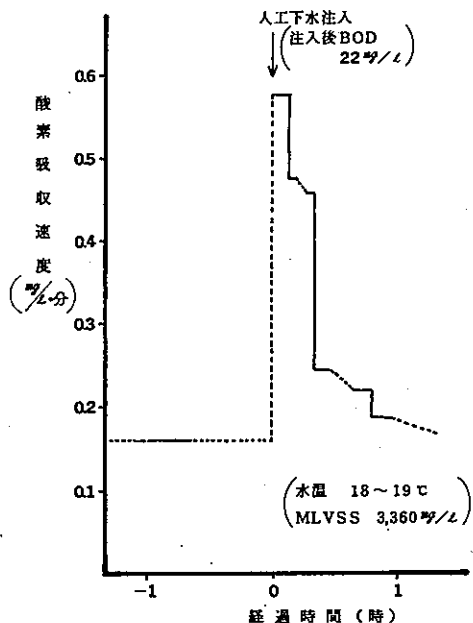


図12 静止状態の酸素吸収速度 (三沢団地の汚泥)

同図をみると、静止状態に入る前に人工下水を注入すると、静止中の酸素吸収速度も大幅に上昇する。図11と同じ位の上昇幅であり、有機物が隅々まで供給されていれば、静止状態であっても攪拌中の吸収速度とほとんど変わらない。このことから推測すると、污水处理施設で生下水のポンプピット(原水槽)の容量に多少の余裕がある場合は、タイムスイッチで下水をばっ気停止の直前に集中的に流入させるよう改良すれば、停止中の脱窒速度を大幅に高めることができる。

(注4) 酸素吸収速度は通常、スターラーで攪拌しながら測定する。図9も図11も攪拌状態での吸収速度であるが、図12では攪拌せずに吸収速度を測定した。ただし、攪拌を停止すると、DOメーターの電極へのDO供給が滞り、DOメーターはフラスコ内のDOより低い値を示す。そこで、時折、数分

間攪拌してフラスコ内のDOを測り、その攪拌時のDO値を結んで静止状態の酸素吸収速度を求めた。

(3) 弱ばっ気中の脱窒速度

間欠ばっ気式はばっ気を停止して、その間に脱窒を進める方法であるが、一方、簡易循環式は前段のばっ気槽のばっ気を弱めて、そこで脱窒を行う。三沢団地処理施設では、弱ばっ気による脱窒の速度も測定した。その測定結果を図13に示す。内生呼吸のみの脱窒速度は水温20~26℃で0.004~0.019 kg-N/kg-MLVSS・日であり、停止中の脱窒速度より小さく、また、バラツキが大きい。そして、下水が流入すると、脱窒速度は飛躍的に高まり、同一水温で0.05~0.07 kg-N/kg-MLVSS・日に上昇している。

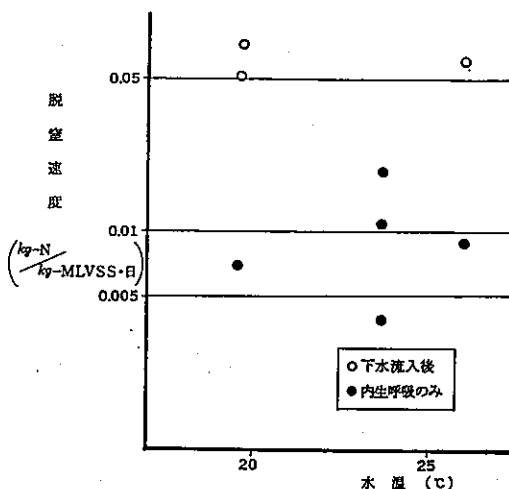


図13 弱ばっ気中の脱窒速度 (三沢団地)

この脱窒速度の意味を検討するため、弱ばっ気による脱窒の機構を考察してみる。弱ばっ気によって酸素が多少供給されている状態で、NOx-Nの還元が行われるのは一見矛盾するようであるが、この場合の脱窒は活性汚泥フロック(細菌類のかたまり)の内側で行われる。よく発達した活性汚泥フロックは最大直径が500μ以上になっているから、フロック外側のDO濃度が低くなると、酸素が中心まで届かず、フロックの中心部付近は嫌気性となる(図14)。

中心部の嫌気部分は外側のDOが低いほど大きくなる。

図13で内生呼吸

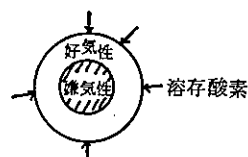


図14 活性汚泥フロック

のみの脱窒速度がばらつくのは、フロック中心部の嫌気部分の大きさがその都度、変っていたからであると推測される。実際に、内生呼吸のみの状態で弱ばっ気にすると、脱窒の現象が観測されることが度々あった。これは中心部の嫌気部分が消失したからであろう。もっと空気吹込量を小さくすれば、中心部を嫌気性にできるはずであるが、空気吹込量を絞すぎると、槽内の攪拌が損なわれてしまう。このように、内生呼吸のみの状態で弱ばっ気によって脱窒を進めるのは安定性と速度の点で現実的ではない。

しかし、有機物を加えると、細菌の酸素消費速度が高まって、活性汚泥フロックの嫌気部分が増大し、その嫌気部分で有機物酸化による脱窒が進行する。その結果として、図13のように脱窒速度が急上昇する。この脱窒速度は図10に示した停止中の脱窒速度（内生呼吸のみ）の約3倍である。簡易循環式は前段のばっ気槽を脱窒槽とするので、このように下水の流入によって脱窒速度が上昇するものと考えられる。

6 窒素除去効果

(1) 間欠ばっ気式

以上の検討で、三沢団地処理施設において硝化と脱窒を制限している因子が明らかとなった。硝化の制限因子は1日の延空気吹込量、脱窒の制限因子は1日の延停止時間であった。この二つの因子を適切な値に制御すれば、放流水の $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_x\text{-N}$ を十分に小さくできることが実験で確かめられた。そして、ばっ気槽の容量に余裕のない場合は、適切な汚泥令を維持できるかどうかも重要であることが明らかとなった。

それでは、硝化と脱窒の条件が充たされたとして、間欠ばっ気のばっ気・停止をどのような時間に設定するのがよいのか。ばっ気・停止の1サイクルの時間と窒素除去率の関係を理論的に検討してみよう。まず、窒素の挙動を次のように単純化して考える。

(記号) V : ばっ気槽の容量 (m^3)

Q' : 1時間あたり汚水流入量 ($\text{m}^3/\text{時}$)

t_a : 1サイクルのばっ気時間 (時)

t_s : 1サイクルの停止時間 (時)

n_0 : 流入水の Kj-N (kg/m^3)

q : 流入 Kj-N のうち、汚泥に取り込まれる割合

i 停止中に流入した汚水は水温の関係でばっ気槽の底に沈むか又は表面に浮くため、その汚水に含まれる T-N は停止中は流失しないと考える。停止中の Kj-N (ケルダール $\text{N} = \text{有機性N} + \text{NH}_4\text{-N}$)の流入量は $Q' t_s n_0$ である。

ii ばっ気中に $Q' t_a n_0$ の Kj-N が流入する。停止中の流入分も合わせた $Q' (t_s + t_a) n_0$ の Kj-N のうち、汚泥取込み分を除く全量がばっ気中に $\text{NO}_x\text{-N}$ に酸化されるものとする。ばっ気槽流出水の T-N 濃度 (MLSS中の T-N を除く) はばっ気開始時 $Q' t_s n_0 (1-q)/V$ 、終了時 $Q' (t_s + t_a) n_0 (1-q)/V$ である。

iii ばっ気中に生成された $\text{NO}_x\text{-N}$ の全量が次の停止中に徐々に還元されるものとする。停止終了時のばっ気槽流出水の T-N は $0 \text{ kg}/\text{m}^3$ 。

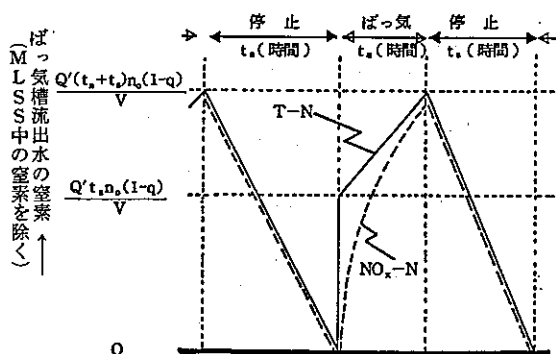


図15 間欠ばっ気式の窒素除去の模式図

以上の考え方でばっ気槽流出水の T-N の変化を描いたのが図15である。沈殿槽で $\text{NO}_x\text{-N}$ の還元が行なわれないとすれば、図15の平均的な水質が沈殿槽から放流される。沈殿槽放流水の T-N 濃度は $(t_s^2 + 3 t_s t_a + t_a^2) n_0 (1-q) Q' / 2V (t_s + t_a)$ で示され、窒素除去率 r_N は

$$r_N = 1 - \frac{(t_s^2 + 3 t_s t_a + t_a^2) (1-q) Q'}{2V (t_s + t_a)} \quad (11)$$

となる。例えば、 $Q' = 6 \text{ m}^3/\text{時}$ 、 $V = 144 \text{ m}^3$ 、 $t_a = t_s$ 、 $q = 0.15$ とすれば、窒素除去率は次のように求められる。

- ① $t_a + t_s = 1$ 時間の場合 98%
- ② $t_a + t_s = 2$ 時間の場合 96%

- ③ $t_a + t_s = 4$ 時間の場合 91%
- ④ $t_a + t_s = 6$ 時間の場合 87%

実際には未硝化の K_j-N が若干残るし、また沈殿槽での脱窒が少し進むため、この計算値から多少ずれるが、1 サイクルの時間と窒素除去率の間には概ね上記のような関係がある。

このように、間欠ばっ気式は1 サイクルの時間を短かくするほど、窒素除去率が高くなる。そして、SV(30 分後の活性汚泥沈殿率) が小さい処理場では停止時間が長すぎると、その間に活性汚泥がばっ気槽の底へ沈んで脱窒がその部分でしか行われなくなる。更に、沈殿槽へ上澄液だけが送られて沈殿槽での活性汚泥の沈降に支障をきたすようになる。以上の点で、ばっ気・停止の1 サイクルの時間をなるべく短くすることが望ましい。ただし、送風機の寿命の面では起動・停止の回数が少ない方がよい。

(2) 簡易循環式

次に、簡易循環式を導入した場合の窒素除去率を求め

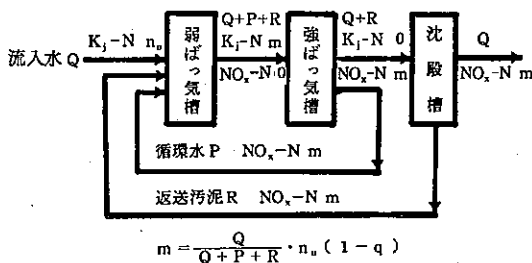


図16 簡易循環式の窒素除去の模式図

てみる(図16)。まず次の仮定をおく。

(記号)処理水量 $Q(m^3/日)$

循環水量 $P(m^3/日)$

返送汚泥量 $R(m^3/日)$ その他の記号は(1)と同じ。

i 脱窒槽に流入した K_j-N はそのまま、硝化槽へ送られる。

ii 硝化槽では脱窒槽から送られた K_j-N の全量が硝化されて、 NO_x-N に変化する。

iii 硝化槽で生成した NO_x-N の一部は循環水によって脱窒槽へ、一部は沈殿槽を経てから返送汚泥によって脱窒槽へ送られる。そして、残りは沈殿槽を経て放流される(沈殿槽での脱窒はないものとする)。それぞれの水量配分は $P : R : Q$ である。

iv 脱窒槽では硝化槽と沈殿槽から送られてきた NO_x-N の全量が還元される。

以上のように考えると、放流水の $T-N$ は $n_0(1-q)Q / (Q + R + P)$ となり、窒素除去率 r_N は

$$r_N = 1 - (1-q)Q / (Q + R + P) \dots\dots\dots (12)$$

で示される。簡易循環式の場合は循環水量と返送汚泥量が多いほど、窒素除去率が高くなる。

G 乳業の処理施設は数年前から簡易循環式の運転を行っている。この処理施設を2週間だけ、間欠ばっ気式に切り替えて、両方式の窒素除去効果を比較してみた。その結果を表3に示す。窒素除去率の実測値と上記の計算値を比較すると、概ね計算値に近い実測値が得られている。ただし、間欠ばっ気式の除去率の実測値は計算値より多少小さく、簡易循環式は逆に大きくなる傾向がある。

表3 間欠ばっ気式と簡易循環式の実験結果(G乳業)

	流入水 T-N	処理水 T-N	窒素除去率 (実測値)	窒素除去率 (計算値)
簡易循環式 (返送汚泥量 960 $m^3/日$) (循環水量 0 $m^3/日$)	40 mg/l	('85.6.13) 10.4 mg/l	74 %	71 %
間欠ばっ気式 (ばっ気 1.5時間) (停止 0.5時間)	40 mg/l	('85.7.24) 2.8 mg/l	93 %	96 %

(処理水量 670 $m^3/日$, ばっ気槽容量 650 m^3 , 流入 T-N の汚泥移行率 30%)

表4 処理水量400 m³/日の汚水処理施設に生物学的脱窒素法を導入する際の条件

	槽の必要容量			送風機の能力	循環ポンプの能力
	硝化工程	脱窒工程	計		
間欠ばっ気式	144 m ³	A 346 m ³ B 汚水の流入を制御すると115 m ³	A 490 m ³ B 259 m ³	9,000 m ³ /日 A 1,270 m ³ /時 B 670 m ³ /時	/
簡易循環式	144 m ³	115 m ³	259 m ³	9,000 m ³ /日 380 m ³ /時	

(計算の前提) 処理水量 400 m³/日, 余剰汚泥発生率 0.13 kg/m³, MLSS 4,000 mg/l, MLVSS 3,200 mg/l, 流入水BOD 200 mg/l, 流入水T-N 35 mg/l, 流入T-Nの汚泥移行率 20%, 窒素除去率90%, 水温12℃, 硝化菌の比増殖速度 0.09(1/日) 脱窒速度 0.009 kg/kg・日 又は 0.027 kg/kg・日(汚水流入時)
 なお, 送風機の計算は水温25℃を前提とし, 脱窒工程でのBODの減少を考慮していない。

7 生物学的脱窒素法の導入の条件

以上の実験と考察によって, 間欠ばっ気式又は簡易循環式の生物学的脱窒素法を既設処理施設に導入する際の条件とその窒素除去効果が明らかとなった。表4は処理水量400 m³/日の汚水処理施設を例にとって, その条件を整理したものである。

既設処理施設に生物学的脱窒素法を導入できるか否かはばっ気槽の容量と送風機の能力にかかっている。このうち, 送風機の方は余裕があることが多いので, 最も問題となるのはばっ気槽容量である。表4に示した間欠ばっ気式のばっ気槽必要容量は処理水量の1.6~2.9時間分で, このうち, 硝化工程分が9時間分, 脱窒工程分が7~2.0時間分である。脱窒工程分の小さい方の容量は下水の流入をばっ気停止直前に集中するよう制御した場合である。既設処理施設のばっ気槽にこれだけの容量がない場合はどうすればよいのか。とりあえず実施できる対策は次の二つであろう。

- ① 汚泥引抜き量を少なくしてMLSS濃度を高める — 汚泥引抜き量を減らしてMLSSを上昇させると, 汚泥令が長くなり, 硝化の必要容量が減少する。また, MLSSの上昇は脱窒の必要容量も小さくする。このMLSSをどこまで高くできるかは沈殿槽の能力(表面積)にかかっており, あまり高くすることはできない。沈殿槽の能力を超えてMLSSを上昇させると, 沈殿槽の汚泥界面が上昇して汚泥が流出するようになる。
- ② 少なくとも冬期以外は脱窒素を進める —

硝化菌の比増殖速度, 脱窒速度は水温の影響が大きく, 水温が5℃高くなると, 1.5~1.6倍になり, ばっ気槽の必要容量は大幅に減少する。表4は水温12℃を想定したものであるが, 水温15℃を想定すると, 間欠ばっ気式のばっ気槽の必要容量は硝化工程分が7時間分, 脱窒工程分が5時間~1.6時間分となる。図17に示すとおり, ばっ気槽の水温が15℃を下回るのは冬場の3カ月位だけである。このようにばっ気槽の容量が足りない場合は暫定的な措置として少なくとも冬場以外は脱窒素を進めることも考えるべきである。

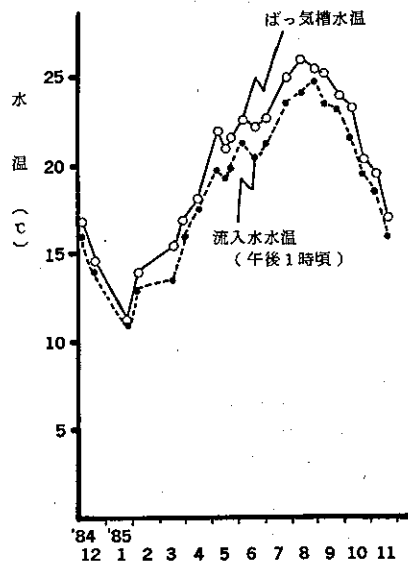


図17 ばっ気槽水温の変動(三沢団地)

その他に、硝化菌を保持するため、回転円板をばっ気槽に取り付ける方法もあるが、これは大幅な施設改善を伴う。

硝化工程と脱窒工程を比べると、後者は有機物を流入させて脱窒速度を高めれば、槽容量を小さくすることができる。それに対して、前者は硝化菌の遅い増殖速度に制約され、槽容量を小さくする方法が見当らない。

しかし、超音波処理で原生動物を死滅させた汚泥を用いて硝化菌を培養し、その菌数の増加を測定すると、比増殖速度はそれほど遅くなく、水温 20℃ で 1.28 (1/日) であるという実験報告がある。⁴⁾ (1)式から計算される水温 20℃ の最大比増殖速度は 0.16 (1/日) であるから、その約 8 倍である。(1)式は実際の処理施設や実験施設で概ね確認されているものである。とすれば、処理施設において硝化菌の増殖速度を小さくする要因は一体何であろうか。硝化菌増殖の制限因子については次年度以降の研究課題としておきたい。

8 おわりに

既設の活性汚泥処理施設に生物学的脱窒素法を導入するための諸条件について研究を進めてきた。その研究結果の要点は次のとおりである。

- ① 既設処理施設に導入可能な脱窒素法の方式は間欠ばっ気式かまたは簡易循環式である。いずれの方法を用いるにせよ、窒素を効率よく除去するためには、アンモニアを硝酸に変える硝化工程と硝酸を窒素ガスに還元する脱窒工程の各々の条件が充たされなければならない。
- ② 硝化を完了するためには、硝化菌の増殖が可能な汚泥令を保ち、硝化に必要な酸素を供給しなければならない。MLSS 4,000 mg/ℓ の汚水処理施設の場合、硝化菌を増殖させるのに必要なばっ気槽容量は流入水量の 9 時間分である (水温 12℃ を想定)。ただし、このばっ気槽容量は間欠ばっ気式の場合は槽容量にばっ気時間比率を乗じたもの、簡易循環式の場合は強ばっ気槽のみの容量を意味する。また、流入水量 1 m³ あたり 2.1 m³ 以上の空気を吹き込めば、硝化に必要な酸素が供給される。
- ③ 脱窒を終わらせるためには、脱窒速度に見合う脱窒槽の容量と MLSS 濃度が必要である。間欠ばっ気式ではばっ気停止時の脱窒が汚泥の内生呼吸だけで行われるため、脱窒速度が小さく、簡易循環式では汚水が流入する前段の弱ばっ気槽で有機物酸化による脱窒が行なわれ

るため、脱窒速度が大きい。ただし、間欠ばっ気式もばっ気停止直前に汚水を流入させるように改善すれば、脱窒速度がはやまる。必要容量は MLSS 4,000 mg/ℓ、水温 12℃ の場合、内生呼吸だけの脱窒であれば、流入水量の 2.0 時間分、汚水中の有機物が脱窒に利用されれば、7 時間分である。

④ 間欠ばっ気式の場合、ばっ気・停止の 1 サイクルの時間が 4 時間以内であれば、概ね 90% の窒素除去率が得られる。簡易循環式の場合は返送汚泥量 + 循環水量を流入水量の 6 倍以上にすれば、流入窒素の 90% 程度が除去される。

⑤ 硝化と脱窒を完了させるのに必要な容量がない場合は、沈殿槽の能力がゆるす範囲で MLSS 濃度を極力高めるべきである。また、水温が上昇すると、必要な槽容量が減少するので、少なくとも冬期以外は窒素除去を進めることも考えるべきである。

既設処理施設への生物学的脱窒素法の導入で最も問題となるのは硝化・脱窒に必要な槽容量を確保できるかどうかであるが、硝化工程の方は硝化菌の遅い増殖速度に制約されて、その必要容量を小さくする方法が見当らない。しかし、硝化菌の培養試験では処理施設での測定値よりはるかに大きい増殖速度が確認されているので、次年度以降はこの硝化菌増殖の制限因子に重点をおいて研究を進めていくことにしたい。

参考文献

- 1) H.A.Painter, et al.: Effect of Temperature and Value on the Growth-Rate Constants of Nitrifying Bacteria in the Activated-Sludge Process, Water Research, 17(3), 243 (1983)
- 2) 井出哲夫他: 水処理工学, 284 (1976)
- 3) 建設省土木研究所: 生物学的硝化脱窒処理による窒素の除去, 11 (1981)
- 4) 同上, 19 (1981)