報 文

流動床式生物処理法による脱窒素

Biological Fluidized Bed Treatment for Denitrification

太田 洋*・吉田 高年**・鈴木 一如***

For the purpose of preventing eutrophication in the areas receiving effluent from sewage treatment plant, investigation was made the grasp of the performances of fluidized bed type denitrification process as the tertiary treatment of sewage.

It was found that; 1) the adhering and multiplying period for microorganisms was shortened by the addition of NH_4Cl as NH_4^+-N , NaNO_3 as NO_3^--N , 2) at the voluminal load of $3.2\text{kg}-\text{N}/\text{m}^3\cdot\text{d}$ and LV of 20 m/h , NO_3^--N was reduced to the level less than 0.5mg/l (the rate of removal was 97.2%), 3) the limiting addition ratio of CH_3OH was $2.0\text{ kg}-\text{CH}_3\text{OH}/\text{kg}-\text{NO}_3^--\text{N}$, 4) the decay coefficient K_d due to stopping the feeding of CH_3OH was 0.051 d^{-1} , and the process Which dose not produce sludge is possible, and 5) denitrification-process, the phenomenon of excess intake of phosphorous was observed ($\Delta\text{NO}_3^--\text{N}/\Delta\text{PO}_4^{3-}-\text{P}=0.74$, $\Delta\text{CH}_3\text{OH}/\Delta\text{PO}_4^{3-}-\text{P}=5.99$).

摘 要

下水処理水の受水水域の富栄養化防止の目的で、下水処理場の二次処理水に対して生物化学的流動床による脱窒素法を用いて、下水の三次処理方法としての性能把握を中心として実験を行った。

その結果、1) 原水の NH_4^+-N , NO_3^--N 濃度の調整により微生物の媒体への付着集殖期間を短縮し、2) 容積負荷 $3.2\text{ kg N}/\text{m}^3\cdot\text{d}$, LV 20 m/h で NO_3^--N を 0.5 mg/l 以下 (除去率 97.2%)、3) CH_3OH 限界注入比 $2.0\text{ kg}-\text{CH}_3\text{OH}/\text{kg}-\text{NO}_3^--\text{N}$ 、4) CH_3OH 注入停止による汚泥減少速度 $K_d=0.051\text{ d}^{-1}$ と汚泥のでないプロセスの可能、5) 脱窒素工程で COD 成分が汚泥に変換される際必要なリン要求量によりリンが除去される現象 ($\Delta\text{NO}_3^--\text{N}/\Delta\text{PO}_4^{3-}-\text{P}=0.74$, $\Delta\text{CH}_3\text{OH}/\Delta\text{PO}_4^{3-}-\text{P}=5.99$) がみられた。

1. 緒 言

閉鎖性水域における富栄養化にもとづく赤潮の問題は近年とみに増加してきており、一部の自治体では、その放流水域における窒素、リン濃度の規制実施の段階に入ってきている。一方、都市の下水道の普及による下水処理場では窒素、リンに対して十分に処理されないまま多量放流しているのが現状である。その解決

策の一つとして有害な海洋動植物の生育に必要な窒素、リン (独立栄養成分¹⁾) や有機性炭素 (従属性栄養性成分¹⁾) を排水処理の段階で可及的に除くことがあげられ、その方式 (装置) も都市下水の三次処理を考えた場合、少くとも①良好な処理水が安定して得られる、②二次処理工程に悪影響を及ぼさない、③既設処理場に容易に組み込める、④できるだけコンパクトで安価である、などの要件を満たすことが必要であろう。

本報告は下水処理水の受水水域の富栄養化防止の立場から下水の二次処理水 (生物処理水) 中に含まれる窒素成分の除去、併せてリンの挙動の把握を目的として実験を行い、下水の三次処理方法としての性能把握

* 愛知工業大学 環境工学研究所 Hiroshi OHTA,

** 名古屋工業大学 名誉教授 Takatoshi YOSHIDA,

*** 荏原インフィルコ ㈱ 中央研究所 Kazuyuki SUZUKI.

図-1 流動床式硝化脱窒素処理実験装置フローシート

を中心として行ったものである。

微生物付着媒体による流動床式硝化脱窒素法については、すでにいくつかの実験例²⁾がみられるが、本実験では、これらの結果も参考にしながら後述するいくつかの新しい項目、例えばノンクロックディフューザーの試用、流動層における三次処理時の汚泥減少速度 K_d の測定、脱窒装置における脱リンの問題について検討し、実験を次の4期に分けて行った。なお、温度による影響があるので、15℃前後に極力保持するようにし、気温が非常に低い場合でも14～18℃の範囲にあ

るようにより制御した。

第1期：微生物の付着集殖期および流動化の条件。

第2期：達成処理水質の検討——この期は本装置の脱窒素性能、メタノール要求量、流動層内の成分変化、負荷と除去率を検討した後、達成処理水質の検討。

第3期：内生呼吸型による脱窒素の可能性の検討。

第4期：流動床式生物的脱リンの可能性の検討。

さらに上記の実験を通じ、二次処理水の脱窒法としてメタノールを使用する意義についても検討した。

2. 実験の方法

2.1 装置と運転方法

実験装置は名古屋市千年下水処理場内に設置、同処理場のエアロアクセレーターによる下水の生物処理水を原水とした。実験原水は放流水井よりポンプで採水し、原水調整槽に流入する。原水はここで均質調整されるとともに、パイプヒーター、レギュレーターを用いて14～18℃の範囲になるように制御した。装置のフローシートを図-1に示す。

実験は24時間連続運転で行ったが、装置の流動制御およびサンプリング個所を図-2に示す。運転条件は通水量 $Q_1, Q_4 = 2.5 \text{ m}^3/\text{h}$ 、循環水量 $Q_3, Q_6 = 0 \text{ m}^3/\text{h}$ (硝化塔 LV 12.7 m/h, 脱窒素塔 LV 20 m/h)で行ったが、

図-2 流量、試料採取個所

メタノール要求量, 脱窒素性能実験については, 以上の条件の他に $Q_4 = 3.5 \text{ m}^3/\text{h}$, $Q_6 = 2.5 \text{ m}^3/\text{h}$ についても行った。生物的脱リンについては $Q_4 = 3.5 \text{ m}^3/\text{h}$, $Q_6 = 2.5 \text{ m}^3/\text{h}$ で行った。

水質分析は主として JIS K0102 1974 工場排水試験方法により行い, 微生物反応および物質収支を考慮して, 特に溶解性の水質項目に焦点をあてて行った。

2.2 充填媒体とその流動化特性

本実験では粒状媒体として硝化塔には粒状活性炭を脱窒素塔には砂を用いた。各々の粒度分布を図-3に, 流動化特性の1つである層膨張率を図-4に, 沈降曲線を図-5に, また各塔の原水分配器に使用したS社製ノンクロックディフューザーの圧損失を図-6に示す。図-6には砂についての流動層圧損失も併せて示す。

図-3 充填媒体の粒度分布

図-4 充填媒体の膨張率

図-5 流動層の沈降速度

図-6 分配器の圧損失

3. 実験結果と考察

3.1 流動化条件と微生物の付着集殖

流動床式生物処理プロセスでは充填媒体に微生物を付着集殖させるために微生物反応に適した環境条件を整えるとともに, 安定した流動状態を形成する生物を付着集殖させるために微生物反応に適した環境条件を整えるとともに, 安定した流動状態を形成することが必要となる。まず流動化条件のうちの充填媒体の粒径分布と付着集殖期の流動化速度について検討した。

水温を調整して, 15℃前後における脱窒素工程のス

表 1 NO_x⁻-N 除去率の推移

日付	NO _x ⁻ -N 濃度*		除去率 %
	原水	処理水	
11.28	14.3	13.4	6.3
12.5	9.7	9.4	3.1
.7	14.9	13.6	8.7
.12	11.7	10.4	11.1
.14	11.7	9.9	15.4

* mg as NO₂⁻-N + NO₃⁻-N / ℓ

タートアップの状況を表 1 に示す。

最初、砂 A (図-3の粒径分布) を用い、初期充填高 90cm, LV 24~31m/h, 循環率 50~55% で行ったが、この LV ではほぼ固定床の状態であったので約 2 週間の結果 (表 1) をみると硝酸性窒素、亜硝酸性窒素 (以後この 2 成分の合計を NO_x⁻-N で表わす) の除去はゆるやかに向上しているが、十分な処理機能を持つまでには至らなかった。このことは固定層であるため、脱窒素反応の進行に伴って増殖した微生物および流入水中の浮遊物質 (SS) により、層が部分的に閉塞し、それが偏流を助長して、微生物の付着に關与する有効容積を減少させたことが考えられる。これは媒体の粒径分布および LV が適切でなかったことが原因と考えられた。

そこで充填媒体の粒径を図-3に示す砂 B に変更し、初期充填高 45cm, LV 23.9m/h ($Q_1 = 3 \text{ m}^3/\text{h}$), 循環率 33% の設定条件で開始し、その後 LV を 3 段階に設定して実験を行った。その結果を表 2 に示す。

表 2 より砂 B に対しても層が固定層ないし膨張層の条件下では微生物の付着集殖は不安定で好ましくない

表 2 NO_x⁻-N 除去率の推移

日付	NO _x ⁻ -N 濃度*		除去率 %	通水量 m ³ /h	循環水量 m ³ /h
	原水	処理水			
12.19	7.2	5.7	21.1	2.95	0.95
.21	11.6	10.8	7.0	3.10	1.10
1.9	8.5	6.1	28.2	4.00	2.00
.11	3.9	2.5	35.1	3.95	1.95
.16	5.7	6.2	—	3.90	2.02
.18	8.6	6.3	27.3	3.90	1.90
1.23	9.0	8.5	5.5	6.1	3.1
.25	8.3	7.3	12.0	6.0	3.0
.30	7.3	5.7	20.9	5.9	3.0

* mg as NO₂⁻-N + NO₃⁻-N / ℓ

とみることができる。この結果から推定した望ましいスタートアップ条件は水温が 15℃ 前後では有効径 0.67 mm, 均等係数 1.37 程度の砂を媒体に用いた場合, LV 48m/h 以上 (膨張率 12% 以上), 循環水量約 50% であろう。本実験ではこの結果をもとに引続きスタートアップ条件の検討を行った。

3.2 水質調整原水による付着集殖スタートアップ

二次処理水 (本実験の原水) の水温上昇によると考えられる原水中のアンモニア性窒素 (以後 NH₄⁺-N とする) の低下, 硝酸性窒素 (以後 NO₃⁻-N とする) の上昇の現象がみられ、各工程のスタートアップを併行して行うため、それぞれの原水 (流入水) に NH₄⁺-N および NO₃⁻-N を添加して各工程の集殖を早めるための原水の成分濃度の調整を行った。

(1) 硝化工程のスタートアップ

原水に NH₄⁺-N 源として NH₄Cl 溶液を添加して (図-2-②) $Q_1 = 3 \text{ m}^3/\text{h}$, $Q_3 = 2.7 \text{ m}^3/\text{h}$ で行った状態を図-7に示す。水温 15℃ 前後では除去率が向上しはじめるのに約 1 カ月を要しており、硝化菌の付着集殖期間としては、少なくともこの程度の期間を見積もっておく必要があろう。

3 月 23 日より定常運転に入ったが、原水中の NH₄⁺-N は次第に低下し、4 月 15 日以降は 1 mg/ℓ 以下にまでなった。処理水は安定して 0.5 mg/ℓ 以下を保持したが、このような低濃度レベルの実験は硝化工程の機能を十分発揮させるためには極めて不適切な

図-7 水質調整原水による硝化工程のスタートアップ (NH₄Cl 添加)

条件と結論し、従って今回は後工程のための必要水質の確保という役割のみを期待するだけで、硝化工程独自の機能把握は行い得なかった。

(2) 脱窒素工程のスタートアップ

硝化処理水に NO₃⁻-N 源として NaNO₃ 溶液を添加して (図-2-③) 脱窒素工程の付着集殖を開始し

た。最初は硝化塔からの溶存酸素 (DO) のリーク分が脱窒素工程で消費され、それにともなうメタノール (以後 CH_3OH とする) の消費によって処理水中の $\text{CH}_3\text{OH}/\text{NO}_3^--\text{N}$ 比のバランスがくずれ、脱窒素反応の進行が妨げられていた。そこで水温 15°C 前後で $Q_4 = 6 \text{ m}^3/\text{h}$, $Q_6 = 5.7 \text{ m}^3/\text{h}$ で行い、ついで Q_4 を図-8に示す条件によって行ったところ、pH、酸消費量 (pH5) の上昇、ORPの低下がみられる急速な脱窒素反応の進行がみられ、目視によっても系内汚泥量の増加 (集殖) がみられた。その状態を図-8に示し、処理水質の一例を表3に示す。表中COD値が高いのは、まだ集殖条件下であるため、

表3 脱窒素処理水の一例

項 目	原 水	硝化処理水	脱窒素処理水
p H	8.1	8.2	8.1
ORP mV	184	193	104
酸消費量 (pH5)	82	84	92
COD _{Mn}	11.1	11.9	157
COD _{Cr}	19.3	21.3	228
NH_4^+-N	5.2	6.8	1.6
NO_2^--N	1.1	1.4	0.0
NO_3^--N	16.6	17.2	0.1
$\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$	1.1	1.1	0.0
Total-P	1.4	1.3	0.1

[注] 1) 分析値はすべて汚過水について行った
 2) 単位: mg/ℓ , 但しpH, ORPを除く
 3) 酸消費量 (pH5): $\text{mg as CaCO}_3/\ell$

図-8 水質調整原水による脱窒素工程のスタートアップ (NaNO_3 添加)

$\text{CH}_3\text{OH}/\text{NO}_3^--\text{N}$ 比が7.37 (NO_3^--N $4.68 \text{ mg}/\ell$, CH_3OH 注入濃度 $34.5 \text{ mg}/\ell$) と高くとっているための過剰の CH_3OH によるものが大部分と考えられる。

3.3 硝化脱窒素性能

(1) 脱窒素性能

水温 15°C 前後における CH_3OH の十分存在する定常運転時の NO_x-N の容積負荷と除去率の関係を図-9に示す。容積負荷は流動状態における砂層を含まない生物層のみの層高より求めた有効層量 V_e 当りの負荷量として表した。

本実験の最大負荷は $3.2 \text{ kg}-\text{N}/\text{m}^3 \cdot \text{d}$ であったが、この負荷でも良好な除去率 (99.1%) が得られ、こ

表4 処理水質の一例

項 目	原 水		硝化処理水		脱窒素処理水	
	全	溶解性	全	溶解性	全	溶解性
p H	6.5		6.4		6.7	
電気伝導率 $\mu\text{S}/\text{cm}$		1500		1500		1500
塩化物イオン mg/ℓ		369		369		369
酸消費量 (pH5) *		50		46		81
浮遊物質質量 mg/ℓ	14.8		19.1		17.7	
COD _{Mn} mg/ℓ	12.8	9.5	12.3	9.5	13.9	9.5
COD _{Cr} "	23.1	12.4	23.4	9.9	35.5	11.7
BOD ₅ "	12.4	3.0	10.2	1.5	10.4	0.8
NH_4^+-N mg/ℓ	1.2	1.0	0.7	0.6	0.5	0.4
NO_2^--N "		0.4		0.4		0.2
NO_3^--N "	10.8	10.3	11.2	10.5	0.3	0.1
Org _N "	2.5	2.0	1.9	1.8	3.0	0.6
$\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ mg/ℓ		1.4		1.6		0.4
Total-P "	2.8	2.4	3.5	1.7	6.4	0.9

* $\text{mg as CaCO}_3/\ell$ 図-9 脱窒素工程における NO_x-N 容積負荷と除去率

の結果は他の浸漬汙床生物膜タイプの脱窒素方式に比してかなり高い値である。これは後述するが本法は汚泥保有量が29.5 g/ℓと極めて大きいことによっていると考える。しかし本実験では下水処理水を原水としているために限界負荷は把握できなかった。

又、定常連続運転中における処理水の一例を表4に示す。この結果、各成分の溶解状態の濃度と懸濁状態の濃度（全濃度から溶解性濃度を差引いたもの）を比較すると有機物質（COD，BOD），N，Pのいずれも脱窒素処理水では溶存状態が少ない，即ち本装置のあとに汙過塔（槽）を設置すれば，これらの成分が充分除去された処理水が得られることがわかった。

(2) 脱窒素工程におけるCH₃OH添加比

他栄養性である脱窒素塔内の増殖細菌の物質代謝を行うためのエネルギー源は溶存する有機炭素の他にCH₃OHを添加した。このCH₃OHの添加量を変化させた時のNO_x-N除去率を図-10に示す。この結果CH₃OH添加比（kgCH₃OH/kgNO₃⁻-N）は2.0～2.5となった。これは本プロセスでは媒体に保持される微生物濃度が高いので（後述），また水温15℃前後で行ったために生物化学反応が充分進むことから他の方式より低くなったと考える。

又CH₃OH添加比の増減によるCOD，BODの増加量を図-11に示す。図中CH₃OH添加比が小さ

図-10 メタノール添加比とNO₃⁻-N除去率

い場合COD_{Mn}が多くなっているのは硝化処理水中の還元性をもつNO₂⁻-Nの存在によるためであろう。又添加比が大きい場合は余剰状態となり，COD，BODの値はCH₃OHの酸化に要する酸素消費量が加味されて表れてきていると考えられる。そしてこの図からもCH₃OH添加比の最適条件は2.5を示した。

(3) 脱窒素工程における窒素除去量と酸消費量（pH 5）の関係

細胞合成を含めた脱窒素反応^{3) 4)}は

表5 硝化脱窒素工程における水質変化の検討

日付	硝 化 工 程					脱 窒 素 工 程				
	酸消費量(pH5)	NH ₄ ⁺ -N	酸消費量減少量	DO消費	DO消費量	酸消費量(pH5)	NO _x ⁻ -N	酸消費量増加量	ORP	pH
	減少量 mg/ℓ	減少量 mg/ℓ	NH ₄ ⁺ -N 減少量	量 mg/ℓ	NH ₄ ⁺ -N減少量	増加量 mg/ℓ	除去量 mg/ℓ	NO _x ⁻ -N除去量	変化量 mV	変化量
3.23	9	1.4	6.6	5.5	4.0	22	7.3	3.0	103	0.3
24	11	1.4	7.6	4.3	3.1	22	7.4	2.9	46	0
27	12	1.8	6.6	5.3	3.0	—	—	—	—	—
28	10	1.2	8.7	3.0	2.6	—	—	—	—	—
29	11	1.7	6.5	4.4	2.6	—	—	—	—	—
30	12	1.9	6.3	2.7	1.4	—	—	—	—	—
31	10	1.2	8.1	17.4	14.2	—	—	—	—	—
4.2	11	1.6	7.0	22.9	14.0	27	8.6	3.2	88	0.3
3	10	1.5	7.1	20.0	13.6	31	9.3	3.3	72	0.3
4	12	1.7	6.7	29.0	16.7	26	8.7	2.9	96	0.3
5	11	2.2	5.0	—	—	31	9.0	3.4	110	0.2
6	10	1.7	6.1	—	—	27	8.8	3.1	—	0.4
7	11	1.6	6.7	14.1	8.6	—	—	—	—	—
9	9	1.1	8.4	15.9	14.5	32	9.1	3.6	162	0.4
10	11	1.7	6.4	17.1	10.0	28	9.0	3.2	148	0.3
11	14	2.2	6.6	28.8	13.4	16	5.3	3.1	—	0.2
12	13	1.8	7.1	22.0	12.0	28	8.4	3.4	118	0.3
13	8	1.1	7.6	18.2	17.2	25	8.4	3.0	29	0.2
14	4	0.6	5.8	—	—	10	2.8	3.5	58	0.1
16	4	0.6	7.2	14.7	24.5	37	10.6	3.5	50	0.6
平均	10.2	1.50	6.80	14.4	9.6	25.9	8.05	3.22	90	0.3

で示され、脱窒素工程では NO_3^- -N 1 mgに対して HCO_3^- 1 mgを生じ、これを酸消費量 (pH 5) (mg CaCO_3/ℓ) に換算すると 3.57mg (化学量論値) となる。本実験 (水温 15°C 前後) における NO_3^- -N 除去量と酸消費量 (pH 5) の増加量の結果および pH,

ORP の変化量を表 5 に示す。この結果 NO_3^- -N 除去量当りの酸消費量 (pH 5) の増加量は平均 3.22 となり、化学量論値 3.57 よりやや低い値となった。理論式からのずれは温度による影響の他、上式が生物学的転換の非常に単純化されたものを示しており、酸消費量 (pH 5) 生成に影響をおよぼす全ての要素を含んでいないことが考えられる。

実際には酸消費量 (pH 5) の増加による pH 増加は 0.02~0.56 と比較的小さく、処理上 pH 調整を行う必要性はなかった。更に ORP も測定したが、酸消費量 (pH 5) の増加、 NO_3^- -N 除去量、pH 上昇との間には明白な相関は得られなかった。なお表 5 には硝化工程の変化も示した。

(4) 流動層内の成分の変化

脱窒素塔内の層内の水質分布を図-12 に示す。運転条件は LV 20m/h, $Q_4=2.5\text{m}^3/\text{h}$, 層膨張率 $H/H_0 = 1.79$, 微生物ペレット容積負荷 $L_v=3.8\text{kg-N}/\text{m}^3\text{d}$, 汚泥負荷 $L_s=0.16\text{kg-N}/\text{kg-SS}\cdot\text{d}$, MLSS 29500 mg/ ℓ , MLVSS 23600 mg/ ℓ (灰分 20.0%) 水温 16°C であった。

図より砂層を出た時点で NO_3^- -N の急激な減少がみられるのは原水の分配構造に図-13 の比較例 (LV 37.5 m/h, MLSS 26500mg/ ℓ) のように、一般的な支持床に砂利層を用いる構造の層内が比較的整流されて押し出し流れに近くなっていることに対して、本装置ではノンロックディフューザーを用いたため層内の流れ

図-11 メタノール添加比と BOD, COD 増加量

図-12 脱窒素塔内における NO_3^- -N 除去パターン

図-13 脱窒素塔内における $\text{NO}_3\text{-N}$ 除去パターン
(F市下水による実験例)

状態が偏流→逆混合の影響が大きくあらわれて完全混合系に近い流れとなっているためと考えられる。

また、脱窒菌はまず硝化処理水(脱窒塔入口)中のDOを摂取し、有機炭素および添加した CH_3OH をエネルギー源として消費して呼吸作用が行われる。そして同化作用は殆んど行われないので汚泥の発生量は少く、層内では微生物付着の殆んどない砂層の展開層が存在する。その後過剰の CH_3OH のためにCOD値が流入原水より高くなり、DO消費後 CH_3OH をエネルギー源として $\text{NO}_3\text{-N}$ の分解が進み、おくれでCOD値の低下が始まっている。 $\text{NO}_3\text{-N}$ は水温 $12\sim 17^\circ\text{C}$ では接触時間約2分、流動層高75cmで殆んど除去されていることがわかる。

酸消費量(pH5)は $\text{NO}_3\text{-N}$ とはほぼ同じパターンであり、この間のpH上昇は6.60から7.64に上昇したにすぎず、処理後のpH調整の必要はなかった。

3.4 本装置の流動層理論による整理の可能性

流動層においては流動状態にある粒子は

$$\text{粒子に働く浮力} + \text{流体抵抗力} = \text{粒子の重力} \quad (1)$$

のような釣合いの関係を保っているため、いま粒状媒体に微生物が付着した球形モデル(微生物ペレット)

(図-14)を考えると、流動層理論に従い次式のような数学的関係が成立する。

$$C \left(\frac{\rho_f U_r^2}{2 g_c} \right) \left(\frac{\pi}{4} D^2 \right) \phi(\epsilon) = \frac{\pi}{6} D^3 (\rho_a - \rho_f) \left(\frac{g}{g_c} \right) \quad (2)$$

$$\rho_a = \left(\frac{d}{D} \right)^3 (\rho_s - \rho_o) + \rho_o \quad (3)$$

$$\rho_o = (1 - W) \rho_b + W \rho_f \quad (4)$$

図-14 微生物ペレットの球形モデル

$$C = f(R_e) \quad (5) \quad R_e = \frac{D U_r \rho_f}{\mu f} \quad (6)$$

$$U_r = \frac{U_t}{\phi(\epsilon)} \quad (7) \quad U_f = U_r \epsilon = \frac{U_t}{F(\epsilon)} \quad (8)$$

但し、C:抵抗数、d:媒体径、D:微生物ペレット径、 ϵ :空間率、 ρ_b :微生物体真密度、 ρ_f :流体密度、 ρ_o :微生物相密度、 ρ_a :微生物ペレットみかけ密度、 U_r :相対速度、 U_t :終端速度、 U_f :流体粘度、 $F(\epsilon)$:空間率関数、 R_e :レイノルズ数、W:微生物ペレット含水率

ここで(2)式は(1)式に示す釣合いの式、(3)式は図-14に示す微生物ペレットのみかけ密度を示す式、(4)式は微生物ペレットの微生物相の密度を示す式、(5)~(8)式は流動層の流動状態を表わす関係式である。

従って微生物の付着成長(Dの増加)にともなう ρ_a の低下を考慮して、(2)~(8)式を解けば流動床式生物処理をシミュレートすることができ、この計算結果を図

図-15 流動層の膨張率

-15に示す。又図-15には脱窒素工程における微生物ペレット流動層の膨張率の測定結果(水温 15°C)を併せて示す。この計算結果は、計算に必要な定数として $\rho_o = 1.0055 \text{ g/cm}^3$ 、 $\rho_f = 1.000 \text{ g/cm}^3$ 、 $W = 0.957$ を用

い、球形を仮定した計算値である点、微生物ペレットの見掛密度、空間率、 H/H_0 などの計算過程に混入してくる誤差、また H_0 を通水停止後 63.8 cm とした点などを勘案すれば、比較的良好に一致しているといえる。即ち、本装置が流動層理論を用いて整理可能なことを示している。

3.5 内性呼吸型脱窒素の検討

CH_3OH の注入停止後の層内汚泥量の減少による内生呼吸型の脱窒素の可能性について水温 15°C 前後の条件下で検討した結果を図-16 に示す。

CH_3OH 注入停止後 5 日間で脱窒素塔内の汚泥量は層高の減少としてあらわれ、初期汚泥量の 77.2% (H_1 133.5 cm, 5 日後 H_5 103 cm) にまで減少した。これは菌体の自家呼吸による汚泥の減少を示すもので、その減少速度 K_d は 0.051^* となり、この値は純粹成分系における値⁵⁾ とほぼ一致している。この減少係数は原水中の BOD 成分を有機炭素源としている汚泥一相式の

図-16 CH_3OH 注入停止後の微生物ペレット流動層高の減少状況

脱窒素活性汚泥プロセスの実測値 ($0.008 \sim 0.01$) の約 5 倍と大きく、本プロセスが 3 次処理という性格上、環境条件が比較的純粹成分系に近い点からこの値のような結果が得られたものと考えられる。

一方 NO_3^--N の除去率は CH_3OH 注入を停止した途端に低下し、その後は $3.4 \sim 4.2\%$, NO_3^--N 除去量 $0.34 \sim 0.38 \text{ mg}-\text{N}/\ell$ と極めて低いものであった。

以上の結果は内生呼吸による脱窒素能力という点よりもむしろ、汚泥の減少速度が大きいことから脱窒素塔内の微生物ペレットを塔外に排出することなく、汚泥処理を行うことができることを示唆している。

$$*(1 - K_d)^5 = \frac{103.0}{133.5}$$

3.6 流動床生物処理法における生物的脱リンの可能性

一般にリンは好気性状態で生物に取り込まれ、嫌気性状態で放出するといわれているが、水温 15°C 前後で行った本プロセスにおける各処理水のリン成分の挙動についてみると表 6 のごとく脱窒素処理水中には溶解性リンの形では少く、ほとんどが懸濁性成分中に存在していることがわかる。

表 6 リンの挙動 $\text{mg as P}/\ell$

日付	処理水	溶解性リン酸		全リン	$\text{CH}_3\text{OH}/\text{N}$
		$\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$	全 P		
4 ・ 16	原水	1.4	2.4	2.8	
	硝化処理水	1.6	1.7	3.5	
	脱窒素処理水	0.4	0.9	6.4	2.6
2 ・ 20	原水	1.1	1.4	1.7	
	硝化処理水	1.1	1.3	1.8	
	脱窒素処理水	0.0	0.1	2.3	7.4

このことからオルトリン酸イオン ($\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$) の形で添加して行った結果を表 7 に示す。その除去量 ($\Delta \text{PO}_4^{3-}-\text{P}$) を NO_3^--N 除去量 ($\Delta \text{NO}_3^--\text{N}$)、 CH_3OH 減少量 ($\Delta \text{CH}_3\text{OH}$) と比較してみると

$$\Delta \text{NO}_3^--\text{N} / \Delta \text{PO}_4^{3-}-\text{P} = 0.74,$$

$$\Delta \text{CH}_3\text{OH} / \Delta \text{PO}_4^{3-}-\text{P} = 5.99$$

となり、これは例えば Helmevs による活性汚泥の組成式である $\text{C}_{118} \text{H}_{170} \text{O}_{51} \text{N}_{17} \text{P}$ による C, N, P, の構成比 $46:8:1$ に比べて、本実験結果はリン除去は COD が汚泥に変換される際、必要なリン要求量の型で行われていると考えられる。

さらに、このリンをポリリン酸 (トリポリリン酸ナトリウム) の形で添加した場合は全く減少せずに通過してくる状態から脱窒素塔におけるリンの挙動はポリリン酸態は加水分解してリン酸態 ($\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$) の形になって取り込まれると推察される。しかしその生物的機構は更にデータの集積を待って、改めて検討することとしたい。

3.7 有機炭素源として BOD 成分利用による脱窒素の検討

近時、原水中の BOD 成分を使用して脱窒素を経済的に行う試みが実験され成功しているが、現在の二次処理水の脱窒素には内生呼吸型脱窒素の実験を検討しても明らかに CH_3OH による方法の方が無難なように考えられる。

表 7 脱窒素工程における溶解性リン酸イオンの除去

日付	硝化処理水 mg P/ℓ	脱窒素工程		mg P/ℓ	$\Delta \text{NO}_3^- - \text{N}$		$\Delta \text{Me OH}$	$\Delta \text{Me OH}$
		入口 D	出口 F	$\Delta \text{PO}_4^{3-} - \text{P}$	mg/ℓ	ΔP	mg/ℓ	ΔP
5. 15	0.3	8.7	5.9	2.8	2.4	0.8	15.0	5.3
17	0.2	7.6	4.3	3.4	2.9	0.8	10.6	3.2
19	0.3	7.3	2.8	4.5	3.7	0.8	20.4	4.5
22	0.4	8.8	5.0	3.8	2.8	0.8	25.2	6.7
24	0.4	9.5	5.3	4.2	1.1	0.3	24.3	5.7
26	0.6	8.4	6.0	2.4	2.1	0.9	25.7	10.5
平均				3.5	2.5	0.7	20.2	6.0

〔注〕 $\Delta \text{PO}_4^{3-} - \text{P}$, $\Delta \text{NO}_3^- - \text{N}$, $\Delta \text{Me OH}$ はいずれもワンスルーでの除去量を示す

4. 結 論

下水処理水の受水水域の富栄養化防止の目的で下水処理現場の二次処理水に対して生物化学的流動床による脱窒素法を用いて下水の三次処理方法としての性能把握を中心として水温14～18℃の条件下で実験を行い、次の結果を得た。

- (1) 原水中の $\text{NH}_4^+ - \text{N}$, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の濃度の不安定な結果による微生物の付着集殖条件が整わず、極めて困難なものとなったが、硝化塔へ NH_4Cl , 脱窒素塔へ NaNO_3 の添加によって媒体への微生物の集殖の期間を短縮することができた。
- (2) 流動床の充填媒体の物性は硝化塔では活性炭（有効径0.82 mm, 均等係数1.33）で十分であったが、脱窒素塔では砂A（有効径0.93 mm, 均等係数1.61）は通水速度（LV）を相当大きくとらないと流動化しなかったのに対し、砂B（有効径0.67 mm, 均等係数1.37）は十分流動化した。この場合、集殖条件はLV 48m/h以上（層膨張率12%以上）、循環水量約50%であった。
- (3) 層内の微生物ペレットのMLSSは29.5 g/ℓ, MLVSS 23.6 g/ℓと極めて大きく、これに $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 容積負荷 $3.2 \text{ kg-N/m}^3 \cdot \text{d}$, 滞留時間4分, CH_3OH 注入比 $2.5 \text{ kg-CH}_3\text{OH/kg NO}_3^- - \text{N}$, LV 20m/h（水温16℃）で $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 濃度を0.5 mg/ℓ以下（除去率97.2%）を得た。その際の酸消費量（pH 5）の増加は3.22で化学量論値3.57よりやや低い値となったが、pH上昇は0.02～0.56と比較的小さく処理上の問題はない。
- (4) 脱窒素工程における $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 除去のための CH_3OH の限界注入比は $2.0 \text{ kg CH}_3\text{OH/kg NO}_3^- - \text{N}$ であった。

- (5) CH_3OH 注入停止後の内生呼吸による脱窒素レベルは $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 除去率が3.5～4.2%と低いが、汚泥の減少速度 K_d は0.051と極めて高く、汚泥の出ないプロセスを計画することができる。
- (6) 脱窒素工程でCOD成分が汚泥に変換される際に必要なリン要求量と考えられるリン除去現象（ $\Delta \text{NO}_3^- - \text{N} / \Delta \text{PO}_4^{3-} - \text{P} = 0.74$, $\Delta \text{CH}_3\text{OH} / \Delta \text{PO}_4^{3-} - \text{P} = 5.99$ ）がみられたが、その生物的機構は更に検討する必要がある。
- (7) 本方式は下水の三次処理プロセスとしての硝化脱窒素プロセスとして極めて高い性能を有している。終りにのぞみ、本研究を行うにあたり、実験の場を提供された名古屋市水道局、装置を貸して戴いた荏原インフィルコ社、又実験に協力された名工大山本君、愛工大大竹、金森、越、高田の諸君に深く謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) M. W. Tenney et al; Advances in Water Pollution Research 2 p III-21 pergamon press (1970)
- 2) 例えば Banard J. L et al; Wat. Pollut. Control 705 (1973)
Jeris. J. S et al; JWPCF 46 2118 (1974),
47 2043 (1975),
49 816 (1977)
角田省吾ら; 化学工学 40 420 (1976)
中野雄介ら; 用水と廃水 18 1331 (1976)
小島卓男ら; 用水と廃水 20 24 (1978)
森 顕; 下水道協会誌 15 37 (1978)
三輪慎治ら; 用水と廃水 20 1056 (1978)
がある
- 3) U. S. EPA; Technology Transfer, Process Design Manual for Nitrogen Control p 3～4 (1975)
- 4) U. S. EPA; ibid p 3～33 (1975)
- 5) 窒素除去技術集大編集委員会編; 窒素除去技術集大成 I—3—40 CMCセンター (1976)