嫌気性流動層バイオリアクターシステムを用いた 汚泥返流水の高度処理

An Advanced Treatment of Sidestreams from a Sludge Treatment Process Using an Anaerobic Fluidized Pellet Bed Bioreactor System

中林 昭*、清水達雄**、工藤憲三**、角田明彦*

*月島機械株式会社／〒104-0051 東京都中央区佃2-17-15

**北海道大学大学院工学研究科環境資源工学専攻／〒060-0813 札幌市北区北十三条西八丁目

AKIRA NAKABAYASHI*, TATSUO SHIMIZU**, KENZO KUDO** and AKIHIKO KAKUTA*

*Tsukishima Kikai Co., Ltd., Environmental Plant Engineering Department
/17-15, Tsukuda, 2-Chome, Chuo-ku, Tokyo, 104-0051, Japan

**Division of Environment and Resources Engineering, Graduate School of Engineering, Hokkaido
University/Kita 12, Nishi 8, Kita-ku Sapporo 060-0813 Japan

Abstract

The filtrate generated from a sludge treatment process at a sewage disposal plant is generally returned to the primary clarifier through a sidestream. The concentration of nitrogen and phosphorus in the sidestream was approximately ten times higher than in the influent raw sewage. Therefore, the sidestream effluent contributed to the overall nitrogen and phosphorus loading of about 40% and 100% in the sewage disposal plant, respectively. However, BOD concentration in the sidestream effluent was notably low, and about 0.1 of $\text{BOD} \cdot \text{TN}^{-1}$ ratio was much lower than the value required for biological denitrification.

An anaerobic fluidized pellet bed bioreactor (AFPB bioreactor) system combined with a contact aerator was applied to remove effectively nitrogenous and phosphorus compounds from the sidestream. The principal advantage of this system is the effective use of solid waste such as the primary sludge as a carbon source for denitrification.

The sludge BOD required for sufficient denitrification was approximately $2.76 \text{ mg BOD} \cdot \text{mg NO}_3^- \cdot \text{N}^{-1}$. Even with the varied loading rate of $\text{NH}_4^+ \cdot \text{N}$ between 0.15 and $0.37 \text{ kgN} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$, almost complete nitrification and denitrification were achieved and the nitrogen removal efficiency was maintained over 75% in the sewage treatment system proposed in this study.

Key words : anaerobic fluidized bed bioreactor, contact aerator, nitrification and denitrification, sidestream

1. はじめに

現在、生物学的窒素・りん同時除去プロセスとして A_2/O 法、5段階バーデンフォプロセス、UCTプロセス、VIPプロセス等が開発され¹⁾、 A_2/O 法²⁾は我が国

でも実装置として運転されている³⁾。これらの方法は、窒素除去だけでなく、りん除去も可能であるが、いずれの除去方法においても有機炭素源を必要とするため、有機物濃度が低い時、特に雨水時には処理が安定せず、処理水水質が悪化する。また、これらの方法は浮遊汚泥方

式であり、脱窒と硝化を同一汚泥で行い、必ずしも効率的な処理方法とは言えない。著者らは新しい下水の高度処理方法として、嫌気性流動層バイオリアクターシステム¹⁻⁷（凝集剤を用いた嫌気性流動層と接触曝気槽の組み合わせによる循環変法）を開発し、提案している。

一方、下水処理場の汚泥処理設備からの返流水は通常流入下水と混合された後、曝気槽で処理されている。返流水は高濃度の窒素・りんを含有する廃水であり、下水処理プロセスに対し無視できない負荷を与えていることが指摘されている^{10, 11}。特に、最近では下水の高度処理の必要性が強調されるにつれて、返流水の窒素・りん負荷が問題になっている。すなわち、下水処理プロセスに生物学的窒素・りん同時除去プロセスを採用した場合、余剰汚泥中に高濃度に蓄積されたりんが、濃縮槽や汚泥消化槽で嫌気条件になることによって放出される。また汚泥消化槽においては、汚泥中の蛋白質等が加水分解されて高濃度の窒素が溶出する。したがって、返流水は下水処理プロセスへの大きな汚濁排出源となっており、最終的な処理水質を低下させている。このようなことから、返流水の個別処理が課題となり、生物処理および凝集沈殿処理等が検討されてきた^{10, 11}。特に嫌気性消化槽の上澄液である消化槽脱離液や消化汚泥の脱 waters 液は高濃度のSS成分や窒素・りん化合物を含有しており、これらの成分の効率的な除去法の確立は重要な課題である。しかし、BOD成分が消化槽でほとんど分解されるため、生物学的脱窒・脱りんに必要な有機炭素源が少なく、窒素やりんの除去が困難である。これらのことから嫌気性消化プロセスを付設している下水処理場においては、汚泥処理設備から排出される返流水に高濃度に含有される窒素・りん化合物の効率的処理方法が求められてきた。返流水による曝気槽への窒素およびりん負荷量の削減は物質収支を考慮すると、最終処理水中の窒素およびりん濃度の減少を可能にすると考えられた。

著者らが提案している嫌気性流動層バイオリアクターシステムがSS、りん除去および生物脱窒による窒素除去を行う汚泥相と硝化を行う汚泥相が独立して制御のできる処理システムとなっていることに着目すると、高濃度の窒素およびりん含有廃水の高度処理技術として適用できることが期待された。すなわち、本処理システムにおける嫌気性流動層バイオリアクター（以下AFPBバイオリアクターと言う）は生物学的脱窒反応により、高濃度の窒素を除去するための炭素源として初沈汚泥などの下水汚泥を利用できること、および流動槽内に汚泥ペレットを形成させるために添加する無機凝集剤のポリ塩

化アルミニウム（PAC）の作用で安定したりん除去が可能であることなどの特性を有効に活用できる。さらにAFPBバイオリアクターからの流出液はSSおよびBOD濃度が低いので、後段の接触曝気槽においてSRTを長くできるので、安定した硝化が可能であると考えられた。本報では、以上のような観点に立って、下水処理場返流水を対象として、本処理システムがBOD濃度が低いが、高濃度の窒素やりんを含有する廃水の高度処理システムとして適用が可能であるか否かについて実験的検討を行った。

2. 実験方法

2.1 実験装置および操作方法

実験装置の概略図をFig. 1に示す。本処理システムはAFPBバイオリアクター（10l）と2段の接触曝気槽（10l, 10l）で構成されている。なお、接触曝気槽に使用したポリ塩化ビリニデン製の組み紐状担体は、直径45mm、表面積 $1.4\text{m}^2 \cdot \text{m}^{-1}$ であり、 1m^3 当たり350m充填した。本システムにおいてAFPBバイオリアクターは生物学的脱窒能を有しており、接触曝気槽は溶解性BODの分解と有機性窒素およびアンモニア性窒素の硝化を目的として設置した。

実験に供した返流水は消化槽脱離液と消化槽を含む汚泥処理設備から排出される排水（総合返流水；濃縮槽溢流水、消化槽脱離液および脱 waters 液などの混合液）を用いた（Table 1）。返流水を原水タンクに貯留し、腐敗防止のために投げ込みクーラーを用いて、5℃に冷却した。また水素供与体としてメタノールあるいは下水処理場の初沈汚泥もしくは混合生汚泥（初沈汚泥と余剰汚泥の混合汚泥）を原水タンクに添加した。さらにSS成分の造粒化およびりんを固定化するために、PAC、ドロマイトあるいは消石灰を原水タンクに添加した。さらに、りんを固定化すると同時に、造粒化するために、PAC系では弱アニオン系ポリマーを、ドロマイト、消石灰系ではカチオン系ポリマーをそれぞれ5～10 $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 添加した。AFPBバイオリアクター内に有機物を含有する造粒汚泥を高濃度に保持させ、循環水中の硝酸性窒素を効率的に窒素ガスに還元した。汚泥量は、汚泥界面をレーザーセンサーで監視し、自動的に排出することによってコントロールした。後段の接触曝気槽にはAFPBバイオリアクター上部から上澄液を供給し、残留するBODの酸化と硝化を行った。なお、水温の影響を検討する実験以外は、水温15～25℃に制御して連続処理実験を行った。

Table 1 Average Concentration of Pollutants in Sidestreams from a Sludge Treatment Process ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$)

	Overflow of Thickener	Filtrate of Filter	Supernatant of Digester	Mixed Effluent from Sludge Treatment Process
SS	2,850	26	5,000	670
T-COD _{cr}	420	32	2,500	840
T-BOD	1,600	27	220	530
TN	200	260	580	260
Soluble TN	37	230	350	230
TP	72	120	140	45
$\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$	31	100	40	20

Fig. 1 Experimental apparatus

1. Feed tank 2. AFPB bioreactor 3. Contact aerator (1st stage)
 4. Contact aerator (2nd stage) 5. Reservoir of effluent from contact aerator 6. Pump
 7. Influent 8. Raw sewage sludge 9. Dosage of PAC 10. Dosage of anionic polymer
 11. Final effluent 12. Air 13. Waste sludge

2. 2 分析方法

COD_{Cr}, COD_{Mn}, T-P, T-N, SS, VSS は下水試験方法⁸⁾に従って行った。粗蛋白質、粗脂肪、炭水化物の分析は食品分析法⁹⁾に準拠した。NH₄⁺-N、NO₂⁻-N、NO₃⁻-N および PO₄³⁻-P はイオンクロマトアナライザー (YOKOGAWA model IC7000) により定量した。硝酸菌、亜硝酸菌数の測定は、下水試験方法⁸⁾の抗体法を用いて行った。

3. 実験結果および考察

3. 1 返流水の水質および窒素・りん負荷

下水処理場の汚泥処理プロセスより発生する返流水の水量および水質の実態調査結果が報告されており、返流水量は流入下水水量に対して平均4.2%であるが、返流水

の窒素およびりん負荷量は流入負荷量に近い下水処理場が多いことが明らかにされている¹⁰⁾。筆者らが行ったA下水処理場の窒素・りん収支を調査した結果でも、ほぼ同様の結果であった。すなわち、返流水量は流入下水水量の約6%程度であったが、返流水の窒素負荷およびりん負荷は、それぞれ流入下水の約40%、および100%以上であった。Table 1に嫌気性消化槽を有する数カ所の下水処理場から採取した各種返流水の水質分析結果の1例を示した。前述したように、本研究では消化槽脱離液と総合返流水を供試廃水として用いた。濃縮槽溢流水および消化槽脱離液には、SS成分が高濃度に含有されているとともに溶解性成分も多く含まれていた。典型的な返流水の1つである脱水ろ液は、SS成分はほぼ完全に除去されているが、全窒素濃度はBOD値に比して高く、BOD/N比は約0.1となり、生物脱窒に必要なBOD量が極めて低いことを示している。またりん濃度も非常に

高く、通常の生物処理では窒素とリンの同時除去は不可能な水質であることが判った。

3. 2 下水汚泥添加による返流水中のりん除去への影響

本処理プロセスでは返流水の窒素を除去するために水素供与体として、初沈汚泥あるいは混合生汚泥を添加した。汚泥の添加によるりん除去への影響が懸念されたので、代表的な返流水の1つである消化槽脱離液に混合生汚泥を容量比で10%添加した混合原水について凝集沈殿実験を行った。Fig. 2 に凝集剤として PAC を用いた場合の結果を示した。混合生汚泥を添加した系の溶解性りん濃度が消化槽脱離液のみの系よりも低くなった。すなわち、同じ薬注量では、混合生汚泥を添加した原水の方が、高いりん除去率が得られることが判った。通常の凝集沈殿においてりん除去率は Al/P モル比が大きい方が高い値を示す。他方、下水の混合生汚泥を添加したことによる、有機性固形物と Al の反応で Al が消費され、りん除去率が低下することが懸念された。しかし、汚泥添加による有機物の影響はなく、混合生汚泥を添加した原水の方が、Al/P モル比が高いために高除去率を示したと考えられる。

Fig. 2 Effect of sewage sludge addition on Phosphorus removal
Symbols : ●, Raw supernatant from digester ; ■, Supernatant mixed with sewage sludge

ん濃度が消化槽脱離液のみの系よりも低くなった。すなわち、同じ薬注量では、混合生汚泥を添加した原水の方が、高いりん除去率が得られることが判った。通常の凝集沈殿においてりん除去率は Al/P モル比が大きい方が高い値を示す。他方、下水の混合生汚泥を添加したことによる、有機性固形物と Al の反応で Al が消費され、りん除去率が低下することが懸念された。しかし、汚泥添加による有機物の影響はなく、混合生汚泥を添加した原水の方が、Al/P モル比が高いために高除去率を示したと考えられる。

3. 3 脱窒の炭素源として用いた下水汚泥の性状

本実験で脱窒の炭素源として使用した混合生汚泥および初沈汚泥の性状を Table 2 に示す。混合生汚泥中の BOD 含有率は、固形物 (SS) 当たり約17%であり、初沈汚泥には固形物 (SS) 当たり約30%含有されており、水素供与体として使用するのに初沈汚泥のほうが添加量が少なくすむことが判った。分離濃縮された初沈汚泥は通常固形物濃度が3～5%であるが、今回使用した初沈汚泥は、最初沈殿池から直接採取した汚泥も含まれたため、平均 SS 濃度は約2%と混合生汚泥と同程度の濃度であった。また、初沈汚泥中のアンモニア性窒素濃度および溶解性りん濃度は低く、汚泥添加による、窒素・リンの負荷上昇は少ないと考えられた。以上の特性から初沈汚泥の方が混合生汚泥より水素供与体として優れていることが判った。

汚泥中の蛋白質含有率は初沈汚泥が平均18%であり、混合生汚泥は28%と初沈汚泥に比較して高い値であった。この理由は、混合生汚泥には微生物含量が多い余剰汚泥

Table 2 Chemical Characteristics of Primary Sewage Sludge and Mixed sludge (mg・l⁻¹)

	Mixed sludge		Primary sludge	
		Average		Average
pH (—)	5.5~6.7	6.0	4.9~6.3	5.8
TS	15,000~27,100	20,900	6,920~40,300	22,300
VSS (%)	64.7~78.4	70.5	72.7~85.3	76.7
SS	14,800~25,800	20,000	6,280~37,600	21,200
TN	750~1,260	1,000	186~1,660	600
NH ₄ ⁺ -N	84~158	120	45~73	57
TP	296~474	355	84~485	223
PO ₄ ³⁻ -P	34~95	50	156~30	22
Total-CODcr	12,300~31,500	19,100	8,020~51,300	25,700
Soluble-CODcr	775~3,010	1,660	739~6,630	2,300
Total-BOD	1,600~5,190	3,350	1,420~12,200	6,300
Soluble-BOD	338~2,020	990	330~3,640	1,200
Protein (%)	27.7~27.8	27.8	11.6~25.0	17.7
Lipid (%)	2.4~3.5	3.0	6.8~11.6	8.1
Carbohydrate (%)	17.5~27.4	22.4	7.7~21.3	14.6

が含まれるためと思われる。また易分解成分である粗脂肪は混合生汚泥が3%であるのに比較して、初沈汚泥は8.1%と高かった。しかし、炭水化物については今回採取した初沈汚泥は7.7~21%と濃度変動が大きく、平均値14.6%と混合生汚泥22.4%に比較し低い値であった。

3. 4 下水汚泥添加量と NO_3^- -N 除去量との関係

AFPB バイオリアクターに Table 1 に示す消化槽脱離液あるいは総合返流水を原水として供給し、水素供与体としてメタノールあるいは下水汚泥を添加して連続処理実験を行った。Fig. 3 に水素供与体を添加した後の原水 BOD と NO_3^- -N 除去量との関係を示した。メタノール添加と同様、下水汚泥の添加によっても良好な脱窒を示した。原水 BOD と NO_3^- -N 除去量は高い相関性（相関係数0.92）を示しており、除去 NO_3^- -N 当たり2.76倍の BOD が必要ことが判った。グルコースが脱窒の炭素源として利用されるとき化学量論式は $5\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6 + 24\text{NO}_3^- + 24\text{H}^+ \rightarrow 12\text{N}_2 + 30\text{CO}_2 + 42\text{H}_2\text{O}$ で示される。したがって、化学量論的に求められる $\Delta\text{BOD} / \Delta\text{NO}_3^-$ -N は2.86となる。上述の実験値2.76はほぼ等しい値であり、分析誤差を考慮すると妥当な値と考えられる。

しかし下水汚泥の過剰添加は、硝化槽への窒素負荷量を増加させるので T-N の除去率が低下し、処理水の T-N 濃度が増加することが懸念された。そこで汚泥添加量と T-N 除去率の関係を検討した。Fig. 4 に循環比を3に設定して行ったときの実験結果を示す。初沈汚泥

添加率を0%から2%まで増加させると T-N 除去率は増加し、2%で除去率80%が得られた。しかし、3%あるいは4%と添加率をさらに増加すると T-N 除去率は74%および72%と低下し、最適添加率が存在することが明らかとなった。汚泥の最適添加率は処理水中のアンモニア性窒素濃度と硝酸性窒素濃度の和が最小となる添加率であると考えられる。そこで、汚泥添加率と処理水のアンモニア性窒素濃度および硝酸性窒素濃度との関係を検討した。その結果を Fig. 5 に示す。初沈汚泥添加率が1.5%までは処理水中のアンモニア性窒素濃度は $0 \sim 2.6\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と非常に低いが、水素供与体が不足し、 NO_2^- -N + NO_3^- -N 濃度は $57 \sim 147\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と高濃度で残留した。しかし、初沈汚泥添加率が2%以上になると、 NO_2^- -N + NO_3^- -N 濃度は約 $20\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と非常に低濃度となるが、逆にアンモニア性窒素濃度が $29 \sim 45\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と増加した。この原因は、初沈汚泥の添加量が増加するにつれて、初沈汚泥に含まれる溶解性窒素成分および AFBP バイオリアクター内で加水分解により溶出する窒素成分の増加に起因して、硝化槽へのアンモニア性窒素負荷が増加したことによって硝化反応が不充分となり、処理水にアンモニア性窒素が残留したものと考えられる。

つぎに最大の T-N 除去率が達成される汚泥添加率2%の条件で、脱窒速度に及ぼす温度の影響を検討した。Fig. 6 に AFBP リアクターで生成された造粒汚泥の比脱窒速度を示す。10~20℃の温度範囲ではほぼ $1 \sim 2\text{mgN} \cdot \text{gSS}^{-1} \cdot \text{hr}^{-1}$ であった。この値は硝化・脱窒プロセスを

Fig. 3 Influent BOD vs. nitrogen removal
Feed wastewater : Supernatant of digester
Symbol : ■, Primary sludge ; ▲, Mixed sludge ; ●, Methanol as hydrogen donor

Fig. 4 Effect of primary sludge addition on T-N removal
Symbol : ■, Effluent T-N concentration from contact aerator ; ●, T-N removal efficiency

Fig. 5 Effect of primary sludge addition on effluent $\text{NH}_4\text{-N}$ and $\text{NO}_2\text{-N}+\text{NO}_3\text{-N}$ concentration
Symbol : ■, $\text{NH}_4\text{-N}$ concentration ; ●, $\text{NO}_2\text{-N}+\text{NO}_3\text{-N}$ concentration

採用している下水処理場で得られている値 $0.3\sim 1.5\text{mgN}\cdot\text{gSS}^{-1}\cdot\text{hr}^{-1}$ (水温 $10\sim 20^\circ\text{C}$)¹²⁾ より高い値であった。また、筆者らが本研究と同様の嫌気性流動層バイオリアクターシステムを用いて下水の高度処理実験を行い、比脱窒速度 $2\sim 4\text{mgN}\cdot\text{gSS}^{-1}\cdot\text{hr}^{-1}$ を得ているが⁶⁾、本研究で得られた値はこの値に比して低かった。この理由は、生下水の平均 BOD および T-N が、それぞれ約 $160\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ および $33\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ で、水素供与体が充分量存在したのに比較し、本研究では水素供与体量が除去 $\text{NO}_3^{-}\text{-N}$ 当たり 2.76 倍の BOD 量とほぼ化学量論量に等しい値であり (Fig. 3)、水素供与体の供給量が律速因子となり、低くなったものと考えられる。

他方、AFPB リアクターの HRT が 20 時間の時、平均汚泥濃度は $6,000\sim 11,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ となり、SRT は $2.7\sim 12.2$ 日となった。嫌気性条件下での脱窒菌の最大比増殖速度、 $\mu_m \approx 0.2\sim 0.4\text{h}^{-1}$ であること⁵⁾ から、脱窒菌の増殖に十分な滞留時間であり、脱窒菌は高濃度に維持できるものと考えられた。

3. 5 連続処理系における凝集剤の相違によるりん除去率

凝集剤として PAC、ドロマイトおよび消石灰を添加した連続実験での原水、処理水の溶解性りん濃度の経日変化を Fig. 7 に示す。ジャーテストの結果と同様に、りん除去率は PAC が一番高く、かつ除去率も安定しており処理水中の溶解性りん濃度は $1\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下を達成できた。他方ドロマイトおよび消石灰では今回の添加率 (ドロマイト $0.5\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, 消石灰 $0.7\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$) では $5\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$

Fig. 6 Relationship between temperature and denitrification rate

以上残留しており、除去率を上げるにはさらに添加率を増加させる必要があった。

3. 6 接触曝気槽における硝化特性

3. 6. 1 アンモニア性窒素容積負荷と硝化率との関係

接触曝気槽における窒素容積負荷の限界を明らかにするために、原水供給量あるいは接触曝気槽容積を変えて連続処理実験を行った。その結果を Fig. 8 に示した。今回の接触曝気槽の運転条件、すなわちポリ塩化ビリニデン製の組み紐状担体を用い (1 m³ 当たり 350 m 充填)、返流水を原水として供給し、 $15\sim 25^\circ\text{C}$ で運転した結果、約 $0.3\text{kgN}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ までは 95% 以上の硝化率が得られたが、それ以上負荷を上げると硝化率が低下し $65\sim 85\%$ (平均 80%) となった。したがってさらに容積負荷を増加させて運転するには、担体の形状変更あるいは単位表面積の大きい担体の使用等の検討が必要と思われる。

3. 6. 2 水温と比硝化速度との関係

20°C で運転していた接触曝気槽における付着微生物の比硝化速度への水温の影響を Fig. 9 に示す。水温は投げ込みクーラーで調整し、硝化速度は原水および循環液を停止した後、アンモニア添加後のアンモニア減少曲線から求めた。菌体量は実験終了後担体を取り出し、付着菌体を剥離、捕集した後測定し、さらに接触曝気槽に浮遊していた SS を加算し、比硝化速度を算出した。

本処理システムは、低水温での硝化に優れていることを既に報告しているが⁶⁾、本実験でも 20°C で運転してい

Fig. 7 Daily variation of soluble-P concentration
Symbol : ◆, Influent soluble-P conc ; ▲, Effluent soluble-P conc. from PAC addition AFPB reactor ; ■, Effluent soluble-P conc. from $\text{Ca}(\text{OH})_2$ addition AFPB reactor

Fig. 8 $\text{NH}_4\text{-N}$ loading rate vs. nitrification efficiency

Fig. 9 Effect of temperature on nitrification rate
Symbol : ■, Nitrification rate of contact aerator from PAC addition AFPB reactor ; ●, Nitrification rate of contact aerator from $\text{Ca}(\text{OH})_2$ addition AFPB reactor

た2つの接触曝気槽で、20℃の比硝化速度に比較し15℃では比硝化速度は低下したが、10℃においては15℃とほぼ等しい比硝化速度を示し、約 $1 \text{ mgN} \cdot \text{gSS}^{-1} \cdot \text{hr}^{-1}$ を維持することが判った。その理由は、接触曝気槽の生物膜のMLSS換算濃度が約 $15,000 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であり、浮遊汚泥法に比較して、MLSS濃度を高濃度が維持できる。さらに、AFPBリアクターでSS、BODが除去されるため、接触曝気槽へのこれらの汚濁負荷を軽減できる。これらのことより、SRTが大きくなり高濃度の硝化菌が維持できるために水温の低下による硝化活性の減少を抑制できたと考えられる。

3. 6. 3 付着汚泥中の亜硝酸菌および硝酸菌の菌数

種々のアンモニア性窒素容積負荷における組み紐状担体に付着固定化されている汚泥を洗浄剥離し、MLSS濃度と亜硝酸菌および硝酸菌の菌数を調べた。汚泥濃度が約 $15,000 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と非常に高濃度に付着している状態では、使用した担体はほぼ棒状になっており、内部が嫌気的になっていること懸念された。そこで、担体引き上げ時に剥離した表面付着SS中の亜硝酸菌および硝酸菌菌数と、強制的に完全に剥離した内部付着SS中の亜硝酸菌および硝酸菌の菌数を抗体法により測定し比較検討した。その結果をTable 3に示す。SS中の亜硝酸菌および硝酸菌の菌数は、ともに生物膜表面部分と内部とでほとんど等しい結果が得られた。付着汚泥によっては棒状になった担体の内部も黒色をしておらず活性汚泥色をしており、好気状態が保たれていることが示唆され、亜硝酸菌および硝酸菌が十分増殖できたものと考えられた。抗体法の菌数測定法は、生菌だけの測定ではなく、死滅菌や不活性菌も測定する可能性はあり、検出された菌が全て活性を有するものとは言えないが、接触曝気槽の組み紐担体に非常に高濃度で硝化菌が保持されることが示唆された。

Table 3 Ammonia Oxidizing Nitrifier and Nitrite Oxidizing Nitrifier Population Contact Aerator Film

	Surface parts of sludge film	Interior parts of sludge film
Ammonia oxidizing nitrifier (number of bacteria/ml)	$2.2 \sim 4.1 \times 10^7$	$4.3 \sim 4.4 \times 10^7$
Nitrite oxidizing nitrifier (number of bacteria/ml)	$1.1 \sim 2.0 \times 10^6$	2.2×10^6

4. 本処理法の高度処理プロセスとしての特徴

返流水のような窒素やりん化合物を高濃度に含有し、炭素源が不足する廃水から、これらの化合物を効率よく除去する高度処理プロセスにはメタノールなどの溶解性炭素源を添加する必要がある。上述の実験結果から、本研究で提案した嫌気性流動層バイオリアクター・接触曝気槽プロセスでは、初沈汚泥のようなSS成分を脱窒の炭素源として有効に利用できる、高濃度窒素・りん含有廃水からも経済的で安定した窒素除去が可能であることが判った。またAFPBバイオリアクター内で汚泥ペレットを生成させるために無機凝集剤としてPACを添加しているので、りんの再溶出が起こらない安定したりん除去が可能であった。さらに、AFPBバイオリアクターによりSS成分およびBOD成分を低濃度にまで除去できるので、後段の接触曝気槽において十分な硝化反応が起こることが判った。

以上のように、AFPBバイオリアクターと接触曝気槽の特性⁶⁾を有効に活用することによって、本処理システムが返流水のような窒素・りん化合物を高濃度に含有する廃水の高度処理技術として適用できることが判った。

5. まとめ

著者らが下水の高効率な窒素・りん同時除去システムとして提案している嫌気性流動層バイオリアクターシステムを汚泥処理設備から発生する高汚濁排水である返流水の処理に適用して、窒素およびりんの除去に関して実験的検討を行い、以下の結論を得た。

- 1) 下水汚泥（初沈汚泥および混合生汚泥）は脱窒のための良好な水素供与体として利用できた。特に初沈汚泥にはBODがSSの約30%含有され、混合生汚泥の約2倍の含有率であり、SS濃度も3~5%と高いので水素供与体として適していることが判った。
- 2) 脱窒に必要な汚泥添加量は、含有されるBODに相関性があり、除去 NO_3^- -N当たり2.76倍のBODが必要であることが判った。また、過剰の汚泥添加は窒素負荷を上げ、処理システムの窒素除去率を低下させることから、最適添加率が存在することが判り、初沈汚泥では約2%であった。
- 3) りん固定剤として、PAC、ドロマイトおよび消石灰の添加について比較検討したが、PACのりん除去率が一番優れていた。

- 4) 組み紐状担体を硝化槽担体として 1 m^3 当たり350m充填した接触曝気槽において、アンモニア性窒素容積負荷約 $0.3\text{ kgN}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ まで増加させても95%の硝化率が達成された。
- 5) 15、10℃の低水温時においても比硝化速度の低下はほとんど認められず、約 $1\text{ mgN}\cdot\text{gSS}^{-1}\cdot\text{hr}^{-1}$ を維持し、硝化が可能であった。
- 6) 組み紐状担体を担体として用いた接触曝気槽は 1 m^3 当たり3.28~17.5kg(3,280~17,500 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$)の高濃度MLSSが保持出来、付着汚泥中の亜硝酸菌および硝酸菌の菌数は、汚泥表面、内部ともほぼ一定であった。
- 7) アンモニア性窒素容積負荷量が $0.3\text{ kgN}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$ 以下では、硝化・脱窒はほぼ完全に達成され、処理プロセスの窒素除去率は75%以上であった。
- 8) 本処理システムが高濃度の窒素およびりんを含有する廃水への高度処理システムとして適用できることが明らかになった。

本研究は科学技術振興事業団の戦略的基礎研究推進事業（CREST）より、援助を受けたものである。ここに記して謝意を表します。

参考文献

- 1) Sedlak R. : Phosphorus and nitrogen removal from municipal wastewater (2nd ed.), Lewis Publishers, 167-201, USA(1991)
- 2) Nicholls, H. A. and Osborn, D. W. : Bacterial stress : prerequisite for biological removal of phosphorus, Journal of Water Pollution Control Federation, 51, 557-569(1979)
- 3) 高木敏夫 : A_2O 法による窒素・りんの同時除去について、月刊下水道、16, 35-40(1993)
- 4) Shimizu T., Tambo N., Kudo K., Ozawa G., and Hamaguchi T. : An anaerobic fluidized pellet bed bioreactor process for simultaneous removal of Organic, nitrogenous and phosphorus substances, Water Research, 28, 1943-1952(1994)
- 5) 清水達雄、丹保憲仁、工藤憲三、中林昭、濱口利男、須賀雄一 : 化学凝集嫌気性流動層バイオリアクターと好気性生物処理プロセスから構成された下水の高度処理システム、環境工学研究論文集、30, 187-196(1993)
- 6) 清水達雄、丹保憲仁、工藤憲三、濱口利男、中林昭 : 流動層造粒バイオリアクターシステムによるSS、COD、窒素およびりん除去、水環境学会誌、18, 138-147(1995)

-
- 7) 清水達雄、丹保憲仁、工藤憲三、濱口利男、中林昭：流動層造粒分離・好気性生物処理槽と嫌気性消化槽から構成された下水処理システムー下水造粒汚泥の生成と嫌気性消化ー、用水と廃水、35, 425-432(1993)
- 8) 日本下水道協会編：下水試験方法（1997年度版）
- 9) 日本食品工業学会編：食品分析法
- 10) 栗林宗人、村上忠弘：汚泥処理プロセスよりの返流水の実態と処理性、下水道協会誌、22、26- 41 (1985)
- 11) 栗林宗人、村上忠弘：返流水処理の有効性の評価Ⅰ物質収支モデルによる解析、下水道協会誌、22、41-50(1985)
- 12) 村田恒雄編著：下水の高度処理、理工図書、209-210(1992)
- (受付 1999. 11. 4)
- (受理 2000. 5. 2)