

生物膜による硝化・脱窒同時反応機構の解明とその下水処理への応用に関する研究

Mechanism of simultaneous nitrification and denitrification in biofilm, and its application to domestic sewage treatment

代表研究者 宮崎大学工学部教授 渡辺 義公

Prof., Dept. of Civil Engng., Miyazaki Univ.
Yoshimasa WATANABE

協同研究者 宮崎大学農学部助教授 小川 喜八郎

Assoc. Prof., Dept. of Agric. Chem., Miyazaki Univ.
Kihachiro OGAWA

宮崎大学工学部助手 増田 純雄

Res. Assoc., Dept. of Civil Engng. Miyazaki Univ.
Sumio MASUDA

The performance of a Rotating Biological Contactor (RBC) can be predicted if we know the thicknesses of the attached-water film and diffusion layer, and the intrinsic rates of the investigated substrates. In this study, the authors determined the diffusion layer thickness by analyzing the ammonia reduction rate obtained in a batch experiment. The following conclusions have been derived concerning diffusion layer thickness:

(1) The diffusion layer thickness is inversely proportional to the root of the disk rotating speed, but it is not a function of the disk size, if the flow near the disk surface is laminar.

(2) The diffusion layer in a partially submerged RBC is smaller than that in a partially submerged RBC, since hydrodynamic boundary layer may not fully develop in the former.

Determined values of the diffusion layer thickness and the intrinsic nitrification rate of biofilm were introduced into the biofilm kinetics derived by Watanabe to predict the RBC performance at a given operation condition, and the comparison was made between the predicted and observed fluxes. Based on the fundamental research explained above, the author proposed a new media, i.e., reticulated media with the surface protrusions to reduce the diffusion layer thickness, i.e., to promote the external diffusion rate. A rough surface changes the nature of the flow past that surface very materially and, consequently, changes the size of the diffusional flow to the surface. The authors evaluated the effect of the protrusions attached to the disk surface on the external diffusion. The height of protrusions was 5 mm. The diffusion layer thickness was determined as a function of the number of protrusion. For example, thickness of the diffusion layer with 8 protrusions at 2 rpm was about 100 μm , while it was around 200 μm without protrusion. The surface protrusion also increased the oxygen transfer rate and, consequently, the ammonia flux was larger even at oxygen limitation region compared with that obtained in the flat disk. In order to reduce the disk weight, a reticulated media was used and it was found that the biofilm was well developed on this type of media and the ammonia fluxes were the almost same in the solid and reticulated media.

In this study, the properties of a mixed cultured biofilm treating domestic sewage were also determined by cutting the biofilm into segments using a Micro-Slicer. The following results were obtained:

(1) A mixed cultured biofilm would be divided into surface, middle, and bottom layers depending on their densities.

(2) Intrinsic organic oxidation, nitrification, and denitrification rates of the biofilm per unit

biomass were almost the same in each layer.

Based on the measured biofilm properties, the authors have predicted that the simultaneous nitrification and denitrification occurs within the biofilm attached the RBC operating under a low oxygen pressure in the air phase. Because the penetration depth of oxygen into the biofilm changes with the rotation of the biofilm and the facultative denitrifying bacteria inhabiting the oxygen penetrating depth can convert the oxidized nitrogen into the gaseous forms if enough organic matter exists in such a depth. In order to reserve the organic source required for the denitrification reaction, oxygen supply to the biofilm should be lowered by reducing oxygen pressure at the air phase. Experimental verification of the predicted phenomenon was carried out by treating the domestic waste using a closed type RBC. Under the operating conditions with the BOD to ammonia concentration ratio of 3.5, oxygen pressure at the air phase of 0.07 atm., and TOC loading of 2.1 g/m² day, 75% of the total nitrogen contained in the influent was converted into the gaseous form.

研究の目的

水系への窒素の放出量を低減させる方法として、下流水処理プロセスへの生物学的硝化・脱窒法の導入が最も有望と考えられている。本研究では、半水没型回転板上に硝化細菌と脱窒細菌が共存する生物膜を形成させて、一つのリアクターにおいてアンモニア性窒素の硝酸性窒素への酸化(硝化)と、硝酸性窒素の窒素ガスへの変換を同時に行なう方法について検討する。本研究では、生物膜による硝化・脱窒反応を下水処理に適用するために重要と考えられる以下の2点について考察する。

- (1) 回転円板付着生物膜への物質移動速度を大きくする方法
- (2) 生物膜内の硝化細菌と脱窒細菌を最大に機能させる操作方法

研究成果

- (1) 回転円板上の微細突起による物質移動の促進

回転円板法による下水処理では、溶解性BODの除去速度が生物膜への基質の拡散過程に律速されることが知られている。既往の研究¹⁾によれば、通常の円板回転速度領域では円板表面近傍の流れは層流であり、基質の生物膜への移動抵抗は円板表面に存在する拡散層(濃度境界層)により生ずる。拡散層厚は理論的には円板回転速度の1/2乗に反比例するので、²⁾回転速度を上げれば円板付着生物膜への基質Fluxは大きくなる。しかし、層流領域では円板の駆動動力は円板回転速度の2

乗に比例するので、拡散層厚を半分にするには円板駆動動力を16倍にしなければならない。著者ら³⁾は円板回転速度を上げずに拡散層厚を減少させる方法として、円板表面に人工的微細突起を取り付けることを検討している。これは表面突起により円板近傍の流況が乱され渦が発生し、剥離した渦による攪拌作用による効果を期待する方法である。図1は円板上に硝化細菌を付着させて行なったアンモニア性窒素の減少過程である。同一の回転速度においても、突起(高さ0.5cm)の枚数の増加に伴ってアンモニア性窒素の減少速度が増加している。図の直線部の勾配から拡散層厚を計算し、拡散層厚(L_d)と円板回転速度及び突起枚数の関係を整理したのが図2である。

次に、同一回転速度における駆動動力を下げるために、従来のプラスチック制メディアの代わり

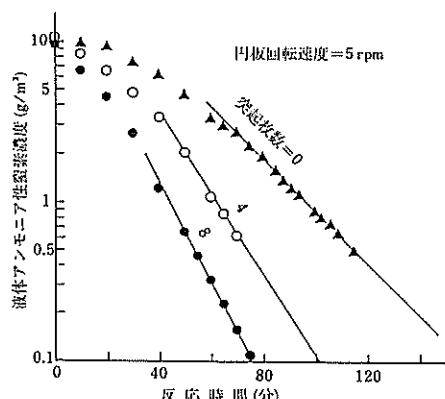


図1. 表面突起による硝化速度の促進。

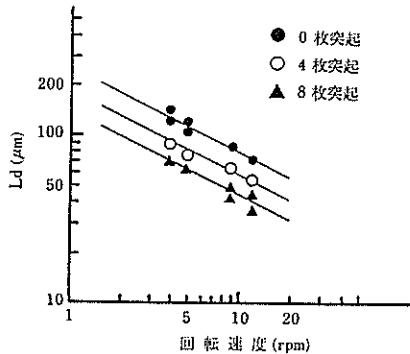


図2. 円板回転速度と拡散層厚の関係。

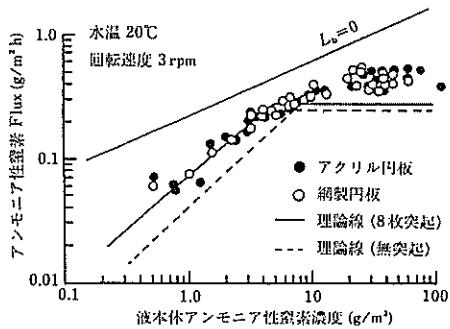


図3. 表面突起によるアンモニア性窒素 Flux の增加

に、メッシュ状のメディアを用いて円板を軽量化する方策を考えた。実験には60メッシュのステンレス製金網に高さ5mmの突起を8枚取り付けた円板を用いて、メディアの軽量化と微細突起による物質移動の促進といった二つの効果を確認した。図3は円板回転速度3rpmにおける突起の効果をアクリル製と網製の円板について比較したものである。理論線は図2に示した拡散層厚を用いて、渡辺の式⁵⁾によって計算したものである。 $L_d=0$ で示される直線は拡散層がない場合に得られる理論線であり、理想的な回転円板装置の性能である。図4は円板回転速度が10rpmにおいて同様の関係を示したものである。両図より以下のような結論が得られる。

a) アンモニア性窒素の生物膜への移動が硝化反応を律速する領域では、表面突起の効果によって拡散層が減少しアンモニア性窒素

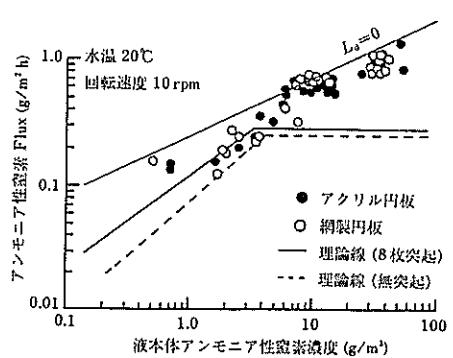


図4. 表面突起によるアンモニア性窒素 Flux の增加

Fluxは増加する。アンモニア性窒素 Fluxは渡辺の式によって予測できる。

b) 酸素の供給が硝化反応を律速している領域では、突起が水中に入る時の付加的曝気効果により、アンモニア性窒素 Fluxは渡辺の式による予測値より大きくなる。予測値と実測値の差は、円板回転速度が大きくなる程著しい。

c) メッシュ状と固体状円板は同一の生物膜量を付着させてるので、メッシュ状の円板を用いてメディアを軽量化できる。

(2) 回転円板法による下水の微妙気性処理
回転円板法では、生物膜が半水没状態でゆっくり回転するので、生物膜が空中を回転する間に膜内へ酸素が供給される。さらに、生物膜の回転に伴って生物膜への酸素侵入深さは変化し、生物膜が空中へ出る瞬間に最小、水中に入る瞬間に最大となる。したがって、生物膜内には好気的・嫌気的環境が周期的に繰り返される部分が存在する。そこには、好気性の他栄養細菌と硝化細菌および通性嫌気性の脱窒細菌が十分に高い活性度を維持しつつ共存し、有機物酸化・硝化・脱窒といった多彩な反応が生ずる。生物膜が大気中を回転する通常の操作では、都市下水のような低濃度有機廃水を処理した場合、原水中の有機物のほとんどは生物膜表層部で好気的に酸化され、膜内の硝化反応によって生成する亜硝酸性または硝酸性窒素を窒素ガスに変換するための脱窒反応の有機源とは

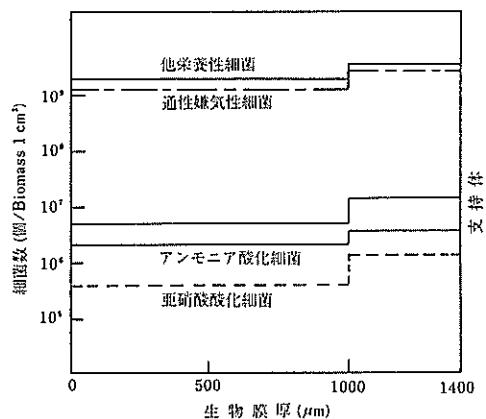


図 5. 生物膜内の細菌分布。

表 1. 生物膜内の細菌活性度。
(単位: g 基質/g biomass. 日)

	表層部	中層部	底層部
硝化活性	0.097	0.084	0.091
有機物酸化活性	0.32	0.28	0.26
脱窒活性	0.084	0.078	0.091

ならない。しかし、気相の酸素分圧を下げて生物膜内を微好気状態にすると、有機物の一部は好気に酸化されずに脱窒の有機源として利用され、生物膜内で硝化と脱窒が同時に生ずる。本研究ではこの硝化・脱窒同時反応に及ぼす、有機物負荷、アンモニア性窒素負荷、気相酸素分圧、流入水の有機物とアンモニア窒素の濃度比 (C/N 比と称する) の影響について検討した。

都市下水を処理している回転円板上に付着している生物膜内の各種細菌の深さ方向の分布状態を調べ、膜内の硝化・脱窒活性を知るために、マイクロスライサーにより生物膜を厚さ 50 μm のスライス状に切断した。切断した生物膜をその外観によって、表層部（搔き取られた状態で膜状とはならない表層の凹凸部）、中層部（膜状になり全體が均一な密度となっている膜片）および底層部（膜状となり全體が均一な密度となっている膜片）に大別した。運転を開始してから 4 週間を経過した生物膜について、各種細菌の生物膜の深さ方向の個数濃度分布を示したのが、図 5

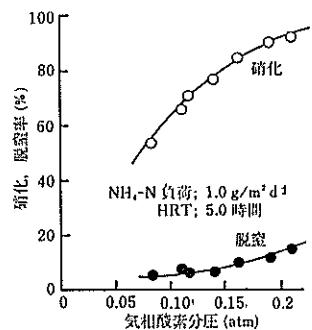


図 6. 気相酸素分圧と硝化、脱窒率の関係。
(酢酸無添加)

である。切断した生物膜を各層毎にホモジナイザーで破碎した後、都市下水に対する各層の細菌活性度を測定した結果が表 1 である。図 5 と表 1 より明らかなように、都市下水を処理している回転円板に付着している生物膜内には、脱窒能力を持つ他栄養細菌と硝化細菌が膜全体に混在している。

次に、宮崎市郊外の住宅団地下水処理場の最初沈殿池流出水を原水として、C/N 比と気相酸素分圧の硝化・脱窒率に及ぼす影響を明らかにするために行なった実験結果について説明する。実験はカバー付の完全混合型回転円板装置により行なった。原水の全 TOC と溶解性 TOC の濃度はそれぞれ 30~60 mg/l, 15~30 mg/l であった。原水のアンモニア性窒素濃度は 15~25 mg/l, 実験時の水温は 21~22°C であった。図 6 は図中の実験条件における気相酸素分圧と硝化、脱窒率の関係である。この程度の原水有機物濃度では、有機物はほとんど好気に酸化され、脱窒反応は有機物が不足していてほとんど生じていない。そこで、原水に酢酸を添加して原水の C/N 比を高めて同様の実験を行なった。酢酸は TOC 換算で 20, 40, 80 mg/l の濃度で添加した。実験結果を図 7 に示す。C/N 比の増加と気相酸素分圧の低下に伴って脱窒率は高くなり、C/N 比が 3.56, 気相酸素分圧が約 0.7 atm. の条件で 75% 程度の脱窒率を得た。この時、生物膜内に取り込まれた酢酸濃度を BOD 値に換算すると 104 mg/l となり、原水のアンモニア性窒素濃度は 18 mg/l で

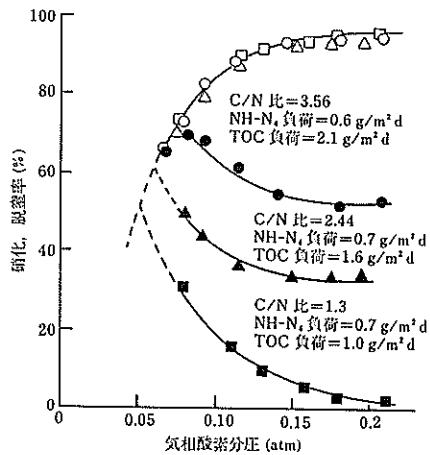


図7. 気相酸素分圧と硝化、脱窒率の関係（酢酸無添加）

だったので、硝化・脱窒反応に関与したBODとアンモニア性窒素の濃度比は5.7であった。我国の都市下水のアンモニア性窒素濃度は20~30mg/lであるので、硝化・脱窒反応が良好に生ずるには原水中の溶解性BODは150mg/l程度必要となる。我国の都市下水のBODは150~200mg/lで、その50%以上は懸濁性有機物に由来している。したがって、もし、懸濁性有機物を生物処理工程の前で凝縮沈殿処理などにより分離し、分離汚泥を嫌気性処理して酢酸に変換するプロセスを導入すれば、回転円板法による微好気処理によって、都市下水中の有機物と窒素を同時に除去することも可能と考えられる。

参考文献

- 1) Fujie, K. et al.: Operational Design and Power Economy of a Rotating Biological Contactor, *Water Res.*, 17, No. 9, (1983).
- 2) Levich V.G.: *Physicochemical Hydrodynamics*, Prentice Hall (1962).
- 3) 渡辺義公, 他: 微細突起による回転円板への物質移動の促進, 土木学会第40回年次学術講演会概要集, (1986).
- 4) Watanabe Y.: Mathematical Modelling of Nitrification and Denitrification in Rotating Biological Contactors, A chapter of the book entitled "Mathematical Models in Biological Wastewater Treatment", Elsevier (1985).

発表論文

- 1) Watanabe, Y.: Modelling and Rotational Design of Rotating Biological Contactors, Proc. of Inter. Conf. on Modelling and Computer Application in Environmental Technology at Hamburg (Feb. 1988).
- 2) 季哲熙, 渡辺義公: 回転円板法の動力学理論とそのスケールアップへの適用, 環境技術, 17, No. 2 (1988).
- 3) 渡辺義公: 生物膜への物質移動の促進, 土木学会西部支部研究発表会講演概要集 (1988年3月).
- 4) 増田純雄, 渡辺義公: 回転円板法による低濃度有機廃水の硝化・脱同時反応に関する研究, 土木学会第43回年次学術講演会概要集, (1988年10月).
- 5) 渡辺義公: 回転円板法による下水の微好気性及び嫌気性処理, 月刊下水道, 1988年10月号.
- 6) 渡辺義公, 西留 清: 物質移動モデルに基づく回転円板法の合理的設計, 下水道協会誌 (掲載決定).
- 7) 増田純雄, 渡辺義公: 回転円板法による下水の微好気性処理機構, 下水道協会誌 (投稿予定).