

# [19] 活性汚泥プロセスの新指標—亜酸化窒素の挙動

(株)日立製作所 日立研究所 斎藤幸雄 ○野北舜介  
久家利雄

## 1. はじめに

活性汚泥法は実用化されはじめてから 60 数年を経過し、2 次処理プロセスとして世界中に定着している。しかし、長い歴史を持ち、これについて多くの研究が積み重ねられているにもかかわらず、未だプロセスに未解明の部分が多く残されている。その原因是、(i)働き手である活性汚泥が多種類の微生物から成り立つ混合培養系であり、状況に応じて優先種が交替する微生物群として挙動すること、(ii)流入水量と水質の変動が大きく、かつ不規則であり、定常状態の解析だけでは現象を正確に把握できないこと、(iii)水質及び活性汚泥の計測がむずかしいこと、など多くが挙げられる。

本研究は、ガス側指標の計測により水処理プロセスの制御を行なうとの発想のもとに、従来気づかれていたことのない亜酸化窒素 ( $N_2O$ 、笑気ガス) を着目し、好気性に保たれた曝気槽の排ガス中にある亜酸化窒素の挙動を追跡したものである。実験の結果、亜酸化窒素は曝気槽の処理状況を表わす有力な指標であることを発見し、制御指標として有望であるとの結論に達した。

## 2. 実験装置及び実験方法

実験には卓上装置及び小規模装置の 2 つを用いた。

図 1 に卓上装置のフローシートを示す。曝気槽は内容積 25 ℥ の完全混合槽である。材質はアクリルで、空気のもれ込みを防止するため気密にされている。図 2 に小規模装置のフローシートを示す。曝気槽は、縦 1.5 m、横 1.2 m、深さ 40 cm の塩化ビニル製で、有効容積は 500 ℥ である。槽内は平面図に示したように 3 つの仕切板によって区分してあり、流入水の流れは実プラントのように押出し流れに近づくよう工夫されている。この装置による水処理量は最大で 170 ℥/h である。

実験は卓上装置の場合も小規模装置の場合もほぼ同じ手法で行なった。すなわち、所定の有機物濃度及び所定のアンモニア性窒素濃度に調整された原水を曝気槽に供給し、曝気槽からの排ガスをサンプリングして排ガス中の亜酸化窒素濃度を高感度赤外分析計により分析し、亜酸化窒素濃度又は亜酸化窒素生成速度と通気量、有機物負荷量等の運転条件との関係を調べた。なお、排ガスのサンプリングは卓上装置では 1 ケ所で、小規模装置では水の流れ方向に沿って数ヶ所で行なった。

表 1 に実験条件を、表 2 に流入水基質を示す。

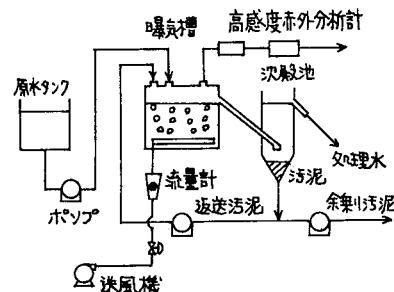


図 1 卓上実験装置フローシート

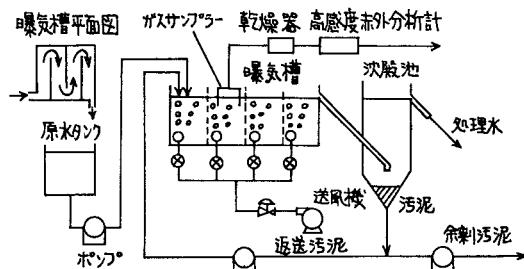


図 2 小規模実験装置フローシート

表 1 実験条件

項目	卓上装置	小規模装置
流入水量 (ℓ/h)	23	50~170
汚泥濃度 (mg/ℓ)	1150	950~1350
有機物負荷量 (mg/g-ss・h)	216	9~30
返送汚泥量 (ℓ/h)	20	50
曝気槽温度 (℃)	20	14

### 3. 実験結果及び考察

### 3.1 卓上装置による実験結果と考察

排ガス中の亜酸化窒素濃度と通気量との関係について実測した結果を図3に示す。排ガス中の亜酸化窒素濃度は、通気量が増加するにつれ低減する傾向にある。又、同じ通気量では、流入水中の窒素濃度が増加するにつれ増大する傾向にある。これらの結果をもとに亜酸化窒素の生成速度と通気量との関係について、整理すると図4が得られる。ここで、亜酸化窒素の生成速度とは、排ガス中の亜酸化窒素濃度と排ガス量との積として定義する。図より、亜酸化窒素の生成速度は汚泥濃度及び窒素負荷量が一定であれば曝気空気量に関係なくほぼ一定となることが明らかとなった。図4の結果をさらに亜酸化窒素の生成速度と窒素負荷量との関係で整理すると図5となる。この図より亜酸化窒素の生成速度は汚泥濃度が一定であれば窒素負荷量にほぼ正比例していることがわかる。この結果は亜酸化窒素の生成速度から窒素負荷量が予測できる可能性を示すものである。

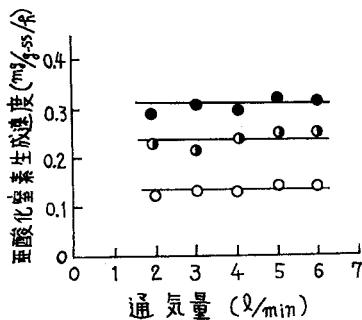


図4 通気量と亜酸化窒素生成速度の関係

表 2 流入水基質

項 目	卓上装置	小規 模 装 置
グルコース (mg/ $\ell$ )	200	50
ペプトン (mg/ $\ell$ )	40	50
リン酸ーカリウム(mg/ $\ell$ )	20	25
アンモニア態窒素(mg/ $\ell$ )	35, 25, 10	53
A.B.C.D液 (mg/ $\ell$ )	25	25
総窒素濃度 (mg/ $\ell$ )	40, 30, 15	11.6

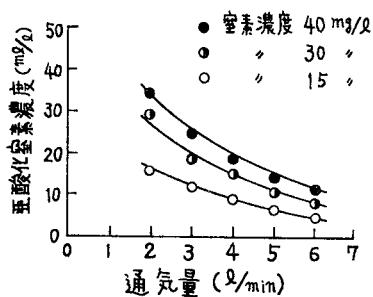


図3 通気量と亜酸化窒素濃度の関係

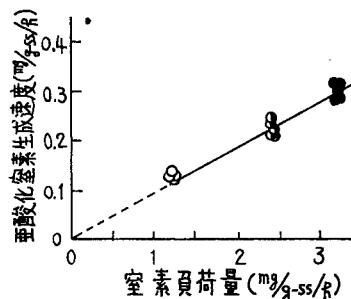


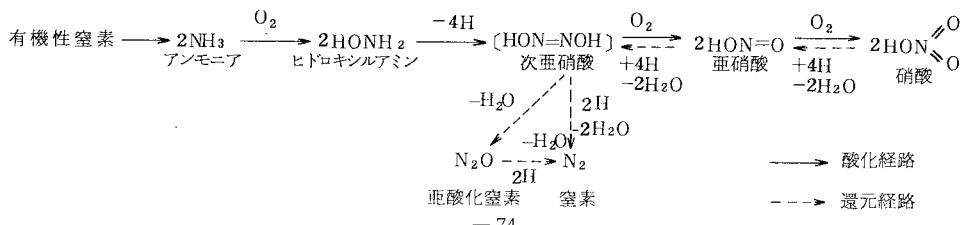
図 5 硝素負荷量と亜酸化窒素生成速度

### 3.2 小規模装置による実験結果と考察

### (1) 曝気槽流れ方向の亜酸化窒素生成速度分布

流入水量及び汚泥濃度一定条件下で、曝気槽流れ方向の亜酸化窒素生成速度分布について実測した結果を図6に示す。亜酸化窒素の生成速度は、曝気槽の流下距離 0.5 m 近傍で最も大きく、流下距離が長くなるにつれしてだいに低減し、出口近傍でほぼ一定になる傾向を示している。以下、このような亜酸化窒素生成速度の分布がどのような原因によるものか考察する。

下水の活性汚泥処理に伴う窒素の動態は、Alexander<sup>1)</sup>によれば次式にしたがって進行する。



すなわち、下水中の有機性窒素及び無機性のアンモニア態窒素は、活性汚泥中の亜硝酸菌及び硝酸菌の作用により亜硝酸及び硝酸まで分解される。亜硝酸及び硝酸は好気的条件下では安定であるが嫌気的条件下になると活性汚泥中の脱窒素菌の作用により亜硝酸及び硝酸は還元されて窒素及び亜酸化窒素を生成する。

亜酸化窒素は上記したようにアンモニア態窒素の酸化及び還元によって生成するので、まず流入水の窒素態の変化について考えてみる。図6で、流入水には約 $5.3\text{mg/l}$ のアンモニア態窒素が含まれているが、流下するにしたがい減少し、3.5 m以降では $0.5\text{mg/l}$ になっている。これとは逆に硝酸態窒素は入口で検出されないが、流下距離が増すにしたがい増加し、流下距離2 mでほぼ $11\text{mg/l}$ となり、以後一定となっている。亜硝酸態窒素の濃度は硝酸態窒素の濃度に比べ小さく、入口では検出されないが2 m以降ほぼ $0.4\text{mg/l}$ で一定となっている。有機性窒素の変化については測定していないが、窒素収支からみて、アンモニア態窒素を経て硝酸態窒素まで分解しているものと推定される。さて、上記した亜酸化窒素の生成機構と硝酸又は亜硝酸態窒素の濃度分布から亜酸化窒素の生成速度分布を推定すると、流入水入口部で小さく、流下距離が増すにしたがい大きくなり、流下距離2 m以降で一定に達するような分布を考えられる。しかし、実測値は違った分布を示しており、窒素態濃度の分布だけでは説明できない。

亜酸化窒素の生成機構で、硝酸態窒素及び亜硝酸態窒素の還元には水素が必要で、本実験では水中のCOD(化学的酸素要求量)が水素供与体となっていると考えられる。水中のCODは図6に示したように、入口で最も大きく、流下距離が増すにつれ急激に減少し、出口近傍では一定になる分布を示している。亜酸化窒素の生成速度式として、CODと硝酸態窒素濃度の一次式を仮定して図6の実測値を整理すると図7が得られる。図7から、亜酸化窒素の生成速度はCODと硝酸態窒素濃度の積に比例することが示された。この結果は、亜酸化窒素の生成速度を測定することにより、流入水のCOD及び窒素負荷量を推定できる可能性を示すものである。

## (2) 流入水量の日間変動に伴う亜酸化窒素の生成速度変化

都市下水処理における最大の外乱は流入水量の日間変動である。そこで、流入水量の日間変動に伴う亜酸化窒素の生成速度の変化について測定した。図8に測定結果を示す。流入水量の変動は一般都市下水の流入水量の変動値をもとに設定した。排ガス中の亜酸化窒素の濃度及びMLSSの測定は流入水入口からの距離が0.5 m(流入水量 $100\text{L/h}$ で約30分の滞留時間)の点で行なった。

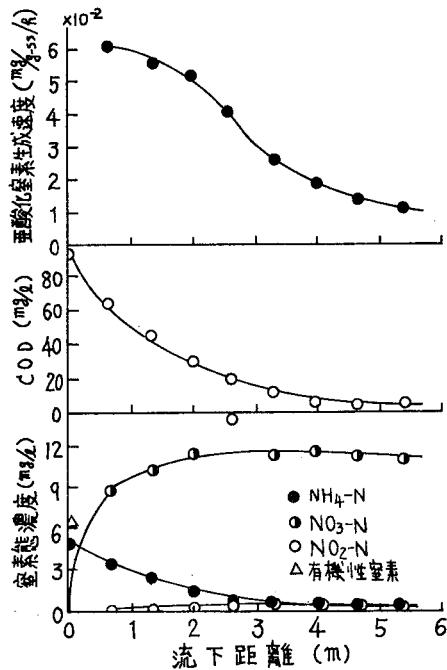


図6 曝気槽流れ方向の亜酸化窒素生成速度

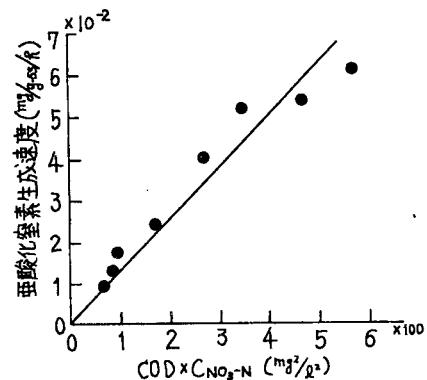


図7 COD $\times$ C<sub>NO<sub>3</sub>-N</sub>と亜酸化窒素生成速度との関係

図8から、亜酸化窒素の生成速度の変化と流入水量の変化との間には相関関係のあることがわかる。時刻9時から15時にかけては3時間ないし4時間の時間遅れが認められる。これは、有機物及び窒素負荷量一定の運転から負荷変動運転への切換えに対する汚泥の順応に要した時間遅れが主因であると考える。しかし、時刻18時以降ではガスサンプリング位置までの時間遅れを含めて約1時間程度の時間遅れで、流入水量の変化によく追従している。なお、汚泥濃度(MLSS)は950mg/lないし1350mg/lの変動幅で、流入水量変化と逆の変化パターンを示し、処理水のCODは2mg/lないし6mg/lで滞留時間の遅れを伴って流入水量変化と類似の変化パターンを示している。

以上により、汚泥に対する有機物及び窒素の負荷量は亜酸化窒素の生成速度を測定することにより、約1時間の時間遅れで検出可能であり、亜酸化窒素は有機物及び窒素負荷量制御などの指標として用い得る可能性のあることが明らかになつた。

なお、曝気槽の好気的条件下において亜酸化窒素が生成する機構について、筆者らは活性汚泥フロック内部の嫌気的部分で脱窒素菌が活動しているためと解釈している。

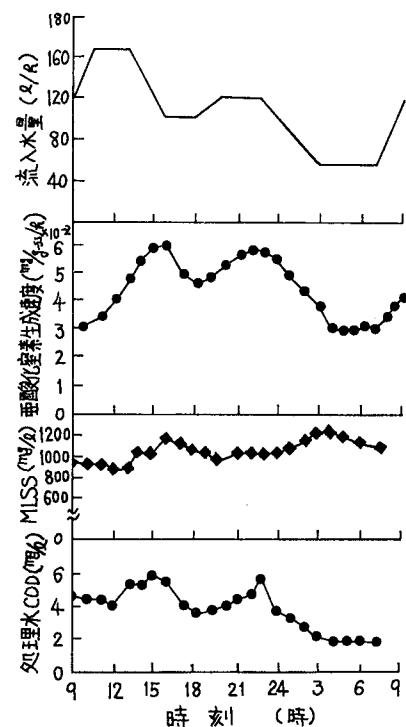


図8 日間変動に伴う亜酸化窒素の生成速度変化

#### 4. 結 言

完全混合型の卓上装置及び押出し流れ型の小規模装置を用いて、曝気槽の好気的条件下における亜酸化窒素の生成特性について検討し、以下の事項を明らかにした。

- (1) 曝気槽の好気的条件下でも、排ガス中に数mg/lないし数10mg/lの亜酸化窒素の生成が確認され、高感度赤外分析計を用いれば連続測定が可能である。
- (2) 亜酸化窒素の生成速度は、通気量にあまり影響されず、汚泥濃度及び有機物負荷量が一定であれば、窒素負荷量にほぼ正比例する。
- (3) 亜酸化窒素の生成速度は、汚泥濃度が一定であれば、水のCODと硝酸態窒素濃度との積にほぼ正比例する。
- (4) 負荷変動に伴う亜酸化窒素の生成速度の時間遅れはサンプリング位置までの流入水の時間遅れを含めて約1時間程度である。

#### 5. 参考文献

- 1) Alexander, M., *Introduction to Soil Microbiology*, P273~308, John Wiley & Sons, Inc., New York; London (1961)