

生物学的脱窒素プロセスの有機炭素源注入制御に関する一考察

㈩日立製作所日立研究所 ○渡辺 昭二 馬場 研二 野北 舜介

1. はじめに

生物学的脱窒素法では、脱窒反応過程で還元剤として有機炭素源が必要となる。都市下水を処理対象とする場合、流入水中に含まれる有機汚染質を脱窒素用の有機炭素源として利用できるが、完全脱窒を達成するには不十分で、新たな有機炭素源を注入する必要があるとされている。この有機炭素源注入量の適否は、処理水質および処理コストに直接影響を与えることから、有機炭素の適正注入がプラント管理上不可欠である。

有機炭素源注入制御に関して数多くの研究がなされているが、最近、ORP（酸化還元電位）を指標とする方式の有効性が報告されている¹⁾。筆者らも、脱窒反応が酸化還元反応であることに着目して、ORPによる有機炭素源注入制御を小規模実験装置に適用し、その制御効果を検証した。本報告は、硝化液循環方式を対象とした実験により得られた知見について述べる。

2. 実験装置およびその方法

用いた実験装置のフローを図-1に示す。この装置は25ℓの脱窒槽と硝化槽、10ℓの沈澱池、8ℓの放散槽、および原水供給装置、有機炭素源注入装置、アルカリ剤供給装置等から構成されている。脱窒槽は酸素遮断のため全体を覆蓋し、機械攪拌される。還元剤である有機炭素源にはメタノールを用い、ORP計（DKK製MG-7）と調節計によりオンオフ制御を可能とした。

硝化槽は酸素供給と攪拌のために空気で曝気し、PH計（MG-7）と調節計によりアルカリ剤である苛性ソーダをオンオフ制御した。一方、放散槽には、必要に応じて硝化液の一部と返送汚泥を導き、アルゴンガスで曝気することによりDOを放散させた混合液を脱窒槽に還流させた。流入水には塩化アンモニウム、グルコースを主体とした人工下水を用い、汚泥は終末処理場より入手した返送汚泥を1か月間馴致した後、実験に供試した。

実験は、硝化液および返送汚泥を図-1の放散槽を介さずに直接脱窒槽に導く方式において、i) 脱窒槽の管理指標にORPが適用できるか否かを検討する基礎実験、ii) 流入水を日変動させてORP/有機炭素源注入制御の有効性を検証する制御実験Iを実施した。さらに、iii) 放散槽を介在させた場合のORP/有機炭素源注入制御の効果について検討する制御実験IIを試みた。表-1にこれらの実験条件を示す。

3. 有機炭素源の消費内訳

脱窒槽に注入されるメタノールは、本来の目的であるNO_x-Nの還元だけでなく、DOにも消費される。そこで、硝化液循環方式を対象としてメタノール注入量Mを試算した。試算式は、MaCartyらの実験式²⁾を基本とし、完全硝化を仮定した次式を用いた。試算は、下記に示す条件で行い、循環比R_j {=(Q_j+Q_r)/Q_i}を変化させ、その結果を図-2に示す。

$$M = (2.47 \cdot C_n \frac{R_j}{1+R_j} - k \cdot C_o) Q_i + 0.87 (Q_j \cdot D + Q_r \cdot D') \quad (1)$$

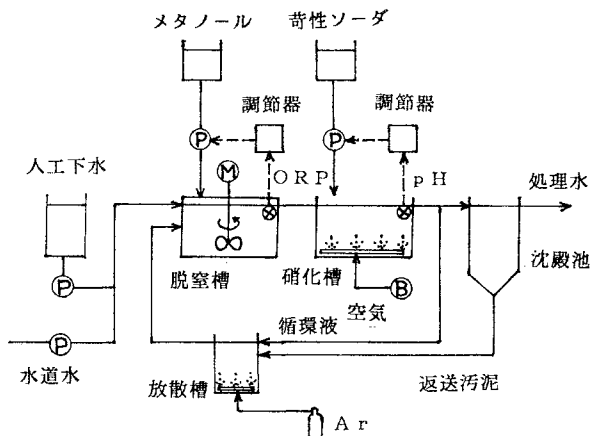


図-1 実験装置のフロー

表-1 実験条件

項目	ケース	単位	基礎実験 (ORP検討)	制御実験I (非放散)	制御実験II (放散)
ORP目標値	mV	---	---	-150	-150
pH目標値	-	7.0	7.0	7.0	7.0
流入水量	ℓ/h	3.0	日変動	日変動	日変動
循環液量	ℓ/h	6.0	9.0	9.0	9.0
返送汚泥量	ℓ/h	3.0	3.0	3.0	3.0
曝気空気量	m ³ /h	0.6	0.6	0.6	0.6
アルゴンガス量	m ³ /h	---	---	---	0.05
攪拌回転数	rpm	650	650	650	650
汚泥濃度	g/ℓ	1.3 ~ 1.5	1.3 ~ 1.5	1.3 ~ 1.5	1.3 ~ 1.5
水温	℃	19 ~ 22	19 ~ 22	19 ~ 22	22 ~ 24

流入水量 $Q_i = 10^5 \text{ m}^3/\text{d}$, 循環液量 $Q_j = R_j \cdot Q_i - Q_r$

返送汚泥量 $Q_r = 0.5 Q_i$, 流入 COD (C_o) = $60 \text{ mg}/\ell$

流入 $\text{NH}_3 - \text{N}$ (C_n) = $30 \text{ mg}/\ell$, 硝化槽 DO (D) = $5 \text{ mg}/\ell$

沈澱池 DO (D') = $2 \text{ mg}/\ell$, メタノール換算係数 $K = 0.05$

硝化液循環方式では, 脱窒率 $\eta = \{100 R_j / (1 + R_j)\}$ は循環比に限
定され, 高脱窒率を得るには循環比を高くする必要がある。一方, 循環比
の増加は脱窒槽に流入する DO 量を増加させ, メタノールの DO 消費分を
大きくする。図から, 循環比と DO 消費割合は比例関係にあり, 脱窒率
80% が得られる循環比 4 では全体の 26% が DO に消費される。ところ
で, メタノールは DO に優先的に利用される³⁾ ことから, 脱窒処理前に
DO 放散させればその消費を防止できるものと予想されるが, そのために
は脱窒槽のメタノール注入を適正に行うことが前提条件となる。

4. 実験結果および考察

4.1 脱窒指標としての ORP の適用性

メタノールを定量注入し, 流入水の水質を種々変更させた場合, 脱窒槽
の ORP は大きく変化することが認められた。この変化は酸化還元反応で
ある脱窒反応が影響したものと考えられた。そこで, 脱窒槽の処理状態を
表わす $\text{NO}_x - \text{N}$ 濃度および COD 濃度と ORP について整理し, 図-3 に
示す結果が得られた。この図から, $\text{NO}_x - \text{N}$ が低濃度で, 残留 COD の増
加とともに ORP は低下し, COD が低濃度で, 残留 $\text{NO}_x - \text{N}$ の増加に
ORP は上昇する傾向にあり, 脱窒槽の処理状態と ORP との間には明確
な相関関係を有することがわかる。言い換えれば, この関係は残留 COD
の増加すなわちメタノールが過剰であれば ORP が低下し, 残留 $\text{NO}_x - \text{N}$
の増加すなわちメタノールが不足すると ORP が上昇することを表わして
いる。

ところで, ORP は酸化物質と還元物質の比に指数相関するとされている。そこで, 図-3 の横軸を対数表示した結果, COD
と ORP および $\text{NO}_x - \text{N}$ と ORP の関係とも直線関係にあり, ORP は定義式と同形の(2)式で近似された。ORP の影響要因とし
てこの他に PH や DO が考えられるが, これらの要因は -50 ないし -500 mV の範囲で ORP を変化させる主要因でないことが

$$\text{ORP} = -96 + 256 \log \frac{\text{NO}_x - \text{N}}{\text{COD}} \quad (2)$$

新たな実験から示された。これらの結果から, ORP は処理状態を良好に表わし, 脱窒槽の管理指標として有効であることが明らか
となった。特に, メタノール注入制御の指標に適用でき
る見通しが得られた。この場合, -100 ないし -200 mV
の範囲に ORP を維持すれば, 適正な処理状態を形成でき
ることが図-3 からわかる。

4.2 ORP / メタノール注入制御の有効性

(1) メタノール定量注入時との比較

流入水を図-4 に示すパターンで日変化させた状態で,
ORP を -150 mV に設定してメタノール注入制御を実施
した。また, 比較のために制御時の注入量を日間で均等注

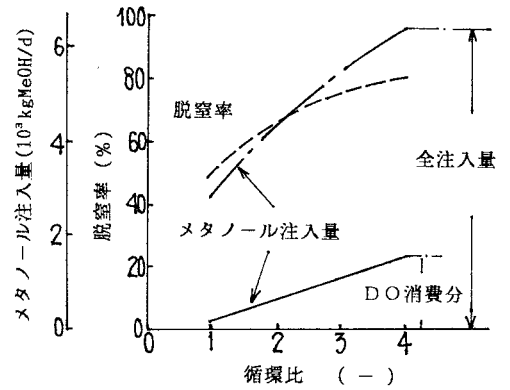


図-2 メタノールの消費状況

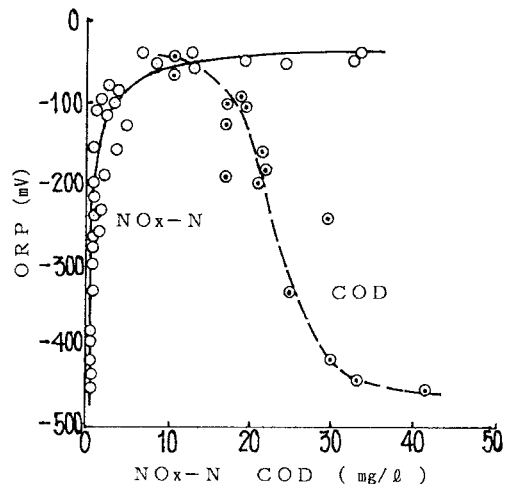


図-3 脱窒槽処理状態と ORP の関係

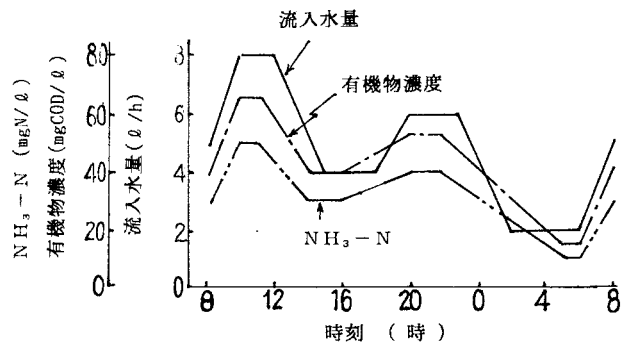


図-4 流入水の日変動パターン

入する定量注入方式も実施した。これらの実験では放散槽を經由しないで循環液および返送汚泥を直接脱窒槽に還流させた。

定量注入時における脱窒槽状態量の経時変化を図-5に示す。メタノールが常時定量注入されたのに対して、ORPは朝方-250mVと低値であるが、その後-80mVまで上昇し、大きく変動した。朝方の脱窒槽処理状態は、 $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度が $1\text{mg}\cdot\text{N}/\ell$ 以下と低いが、COD濃度が $20\text{mg}/\ell$ と比較的高く、メタノールがやや過剰となっている。その後、ORPが上昇する12時頃から $\text{NO}_x\text{-N}$ が残留し始め、最大 $12\text{mg}\cdot\text{N}/\ell$ まで増加した。この時間帯のCOD濃度は $5\text{mg}\cdot\text{COD}/\ell$ と低濃度であることから、メタノールが不足していたものと考えられる。これに対して、ORP/メタノール注入制御を実施した場合の結果を図-6に示す。ORPは目標値 $\pm 15\text{mV}$ に常時維持され、メタノール注入制御が予定通り行われたことがわかる。制御によりメタノール注入量は流入水と同傾向に変化し、 $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度が $1\text{mg}\cdot\text{N}/\ell$ 以下、COD濃度が 10 ないし $14\text{mg}\cdot\text{COD}/\ell$ の範囲内で安定しており、良好な処理状態が日間を通じて形成された。

制御時と定量注入時の処理水窒素濃度 ($\text{NO}_x\text{-N}$ と $\text{NH}_3\text{-N}$ の合計) および硝化槽の苛性ソーダ消費量を比較した結果を図-7に示す。処理水窒素濃度は、メタノール定量注入時に脱窒槽で $\text{NO}_x\text{-N}$ が残留し始める12時頃から制御時より高いレベルにあることがわかる。このことは、メタノール注入量が同一でも、注入方式により処理状態が変化したことを示している。一日単位での脱窒率を求めると、制御時には70%とほぼ理論脱窒率が得られたのに対して、定量注入時には60%であった。定量注入時の脱窒率を制御時のレベルに高めるには、メタノールを16%増加させる必要がある。この脱窒率の相違は硝化槽における苛性ソーダ消費量に影響を与えたものと予想される。これは、脱窒反応の結果生成される OH^- が脱窒素量に比例するためである。図には示していないが、硝化槽のPHは両者とも目標値 ± 0.1 に維持されていた。図-7から、苛性ソーダ消費量は流入水と同傾向で変化し、全体的に定量注入時の方が制御時より多くなっている。定量流入時の消費量が12時から14時の間一時的に低くなっているが、これはこの時間帯に $\text{NH}_3\text{-N}$ が制御時のほぼ0に対して定量注入時に $6\text{mg}\cdot\text{N}/\ell$ 程度残留し、硝化が十分でなかったためである。一日単位での苛性ソーダ消費量は制御時に硝化率が3%高いにもかかわらず約18%低減され、脱窒素量に対応してアルカリ剤を節約できるという硝化液循環方式の効果が表われた。

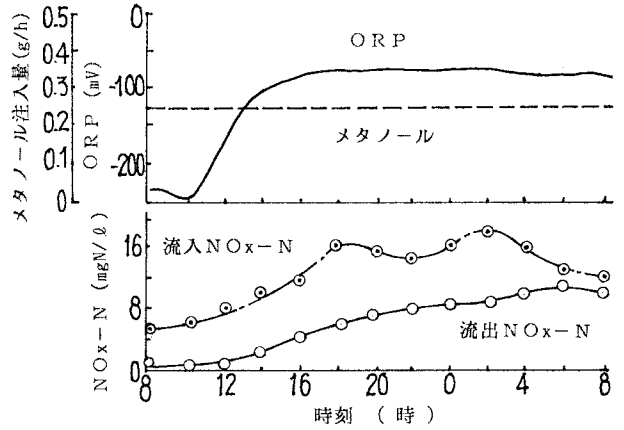


図-5 定量注入時における脱窒槽状態量の経時変化

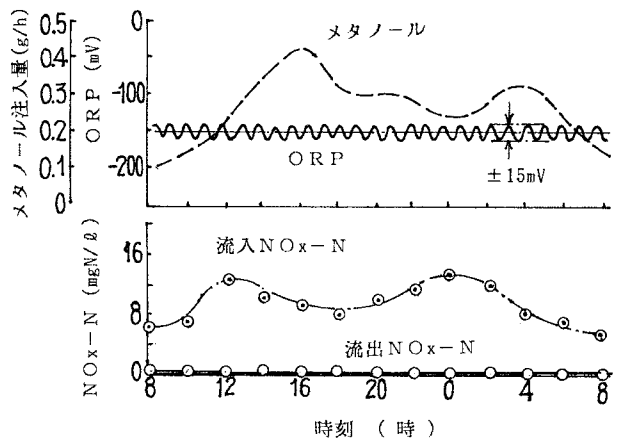


図-6 制御時における脱窒槽状態量の経時変化

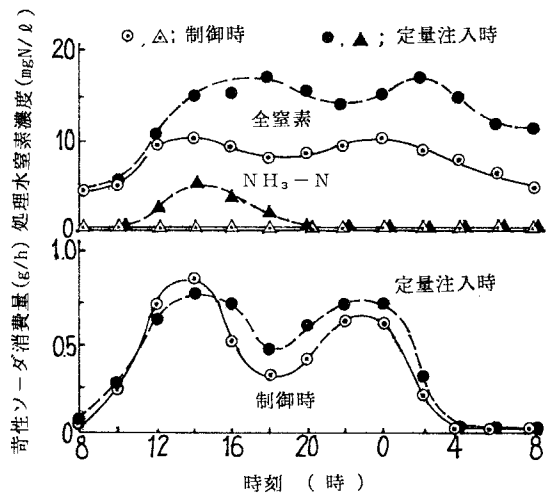


図-7 制御時と定量注入時の比較

(2) DO放散によるメタノール低減効果

ORP目標値を-150 mVに設定してメタノール注入制御をかけた状態で、放散槽を経由して脱窒槽に循環液と返送汚泥を環流させる場合と、直接脱窒槽に導く方式について実験した。このとき、流入水には図-4に示す変化を与えた。DO放散によるメタノール低減効果を評価するには脱窒槽の処理状態が同一であることが必要である。図-8に処理状態を比較した結果を示す。DO放散時および非放散時とも、ORPは目標値±15 mVに維持され、脱窒槽のNO_x-Nが1 mg・N/ℓ以下となっている。また、放散槽NO_x-Nと非放散時の硝化槽NO_x-Nは変化傾向および値とも一致しており、脱窒槽に流入したNO_x-N量が同一であったことがわかる。脱窒率は両者とも7.8%で、循環比4の理論脱窒率8.0%がほぼ達成された。また、図示していないが、脱窒槽のCODもほぼ同値を示していた。一方、DOの比較結果を図-9に示す。平均5 mg/ℓである硝化槽DOに対して、放散時には放散槽でほぼ完全除去され、脱窒槽流入DOが殆んどなかったが、非放散時には脱窒槽で除去されたことがわかる。

このような処理状態におけるメタノール注入比を比較した結果を図-10に示す。注入比は、注入量の最大値を基準とし、その基準値に対する割合で表わした。この図から、メタノール注入比は全期間を通じて放散時に低かったことがわかる。この差は、脱窒率および残留CODが同一であることから、DOによる影響と考えられる。一日単位での注入量を比較すると、放散時には非放散時に対して2.3%低減され、図-2の試算値に近い低減率が得られた。

5. おわりに

以上の結果、

- i) ORPはメタノール注入制御の指標として有効である。
- ii) 制御系は順調に作動し、良好な脱窒処理状態が常時得られた。
- iii) このため、DO放散によるメタノール低減効果を評価することができた、

などを明らかにすることができた。

[参考文献]

1) 田中他；酸化還元電位による生物学的脱窒素処理工程の自動制御，23, 8 (1982), 2) MaCarty P.L. et al: Proc. 24th, Ind. Waste Conf. Purdue Univ. (1964)
 3) 遠矢他；生物学的脱窒素法の歴史的考察，用水と廃水, 13, 12 (1971)

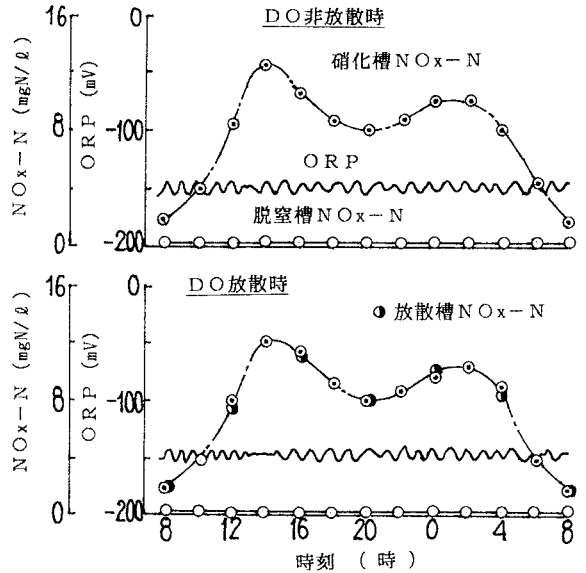


図-8 DO放散時と非放散時の脱窒槽状態量の比較

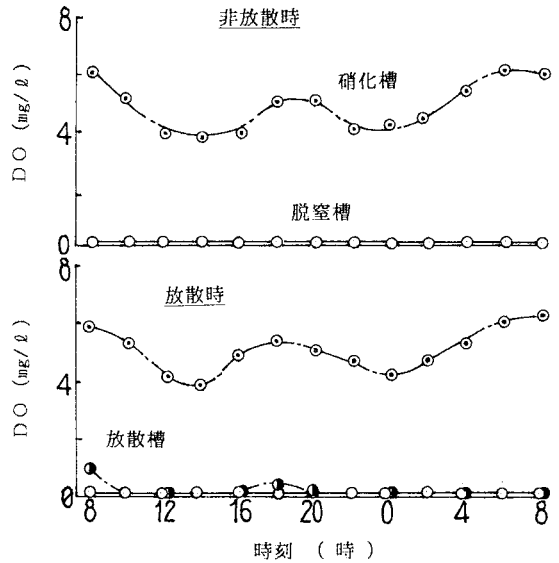


図-9 放散時と非放散時のDO除去比較

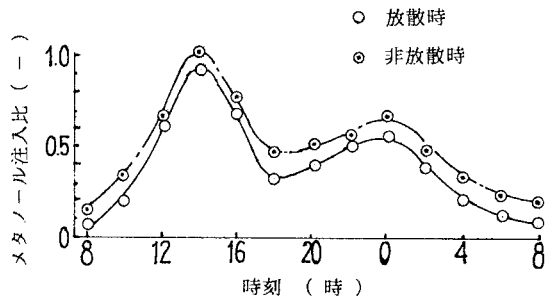


図-10 メタノール注入量の比較