

(18) 砂ろ過・接触曝気法による下水中の窒素除去に関する研究

STUDY ON NITROGEN REMOVAL BY FILTRATION - CONTACT AERATION PROCESS

滝沢 智^{*}・宮原 茂^{*}・高橋善人^{**}

Satoshi TAKIZAWA^{*}, Shigeru MIYAHARA^{*}, Yoshito TAKAHASHI^{**}

ABSTRACT: Factors affecting nitrogen removal by filtration - contact aeration process were investigated using a pilot plant which treated 4.1 m³/d of municipal wastewater. Hydraulic retention time was 12 hours and 100% volume of treated wastewater was recirculated to the inlet of contact aerator. Whereas effluent BOD and suspended solid (SS) were less than 20mg/L, nitrogen removal rate was about 30%. Temperature, dissolved oxygen (DO), oxidation-reduction potential (ORP), and BOD were shown to have effects on nitrification and the following operational guidelines of nitrifying vessels were proposed to meet an effluent nitrogen criteria of 10 mg/L; (1) temperature > 10 °C, (2) DO > 3 mg/L, (3) ORP > 80 mV, (4) BOD < 10 mg/L.

KEYWORDS: nitrogen removal, filtration, contact aeration, nitrification, denitrification

1. はじめに

接触曝気法は、浄化槽等では既に広く用いられているが、下水処理場での採用例はまだ少ない。しかし、今後は維持管理の容易な下水処理法として、中・小規模処理施設を中心に採用が期待されている。維持管理が容易であるということは、一方では下水水質の変動や、高度処理などへの応用のための操作因子が少なく、適用範囲が限られてしまうことになる。最近では、高度処理への移行が容易であるということが、下水処理方式の決定上、重要な因子であることを考慮すると、接触曝気法においても、高度処理への適用性を把握する必要がある。

既存の研究では、接触曝気法について窒素除去を目的としたものは少ないが、南部ら¹⁾は、漁網を接触材とした都市下水の脱窒実験を行い、循環率400%の条件で、水温×処理時間の積が400以上であれば窒素除去率80%を維持できるといっている。この処理条件を維持するには、冬場の水温が15°Cまで低下するとすると、処理時間は27時間である。

橋本ら²⁾は、接触曝気法で間欠曝気を取り入れることにより、接触曝気槽内の水理学的滞留時間18から24時間で80%の窒素除去率を得た。しかし、実際の運転上問題となる水温低下の影響や、低水温時の運転管理指標については明らかにされていない。

我々は、接触曝気槽の前段にろ過塔を設け、接触曝気槽への有機物負荷を低減させることにより、処理時間の短縮を図ることを目的とした下水の砂ろ過実験を行い、その研究成果については既に報告した^{3), 4)}。下

^{*} 建設省土木研究所 (Public Works Research Institute, Ministry of Construction)

^{**} 埼玉県下水道公社中川支社

水処理に砂ろ過を採用した場合には、逆洗汚泥の処理方法が問題となるため、特に小規模下水処理場における汚泥の処理処分について現在研究が進められつつある⁵⁾。本研究では、砂ろ過・接触曝気法に於いて好気処理水を接触曝気槽流入部へ循環させることにより、硝化-脱窒反応を進行させて窒素除去を行なった。このような方法で窒素除去を行う場合には、以下の事項について検討する必要がある。

①下水の脱窒反応は下水中の有機物濃度の影響を受けるので、ろ過処理水を接触曝気槽に供給する場合、脱窒反応が律速となる可能性がある。

②脱窒反応は、また溶存酸素濃度の影響を受けるので、反応槽内の溶存酸素を低くした場合、付着汚泥の嫌気化を招き易く、後段の硝化槽への影響も考えられる。このため、脱窒槽の溶存酸素濃度は、これらの因子を総合して決める必要がある。

③接触曝気法に限らず、生物学的窒素処理を行なった場合、水温低下による窒素除去能の低下がみられる。生物膜法では、特に低水温時の増殖が遅い硝化細菌をも付着保持しうる一方で、生物膜内に硝化細菌と好気性従属栄養細菌が共存するため、最終反応槽においても有機性成分の残存量が増え、好気性従属栄養細菌の活動によって、硝化細菌の活動が抑えられることがある。

そこで本研究では上記の事項に注意しつつ、水温の低下する秋期から冬季をへて春期まで、実下水を用いて砂ろ過・接触曝気法による窒素除去運転を行うことにより問題点を整理し、細菌数の計測と反応速度影響因子についての考察を加えることにより、窒素除去を行なう場合の操作方法を提示した。

2. 実験方法

2.1 砂ろ過・接触曝気パイロットプラントによる硝化-脱窒実験

(1) 実験装置と運転条件

実験装置の概要を図-1に、同装置の主要形状を表-1に示す。実験装置は屋外に設置し、水温が上昇し反応槽内に藻類の増加が著しい5月以降は、接触曝気槽に黒色ビニルの覆蓋を設けた。

本研究に用いた接触曝気槽は、散気装置の下に汚泥沈澱部および引き抜き口を設け、定期的に堆積した汚泥を引き抜くことにより汚泥の嫌気化を防ぎ、処理水水質の悪化を防止するように設計されたものである。

実験に用いた原水は、分流式下水処理場の初沈流出水であり、ポンプによりろ過塔上部に揚水の後、自然流下によりろ過層をへて接触曝気槽の第1槽へ送られる。接触曝気槽は容積 0.5 m^3 の反応槽が4槽直列に接続されており、最終沈澱池は設けていない。

処理水量は $4.1\text{ m}^3/\text{d}$ で、実験期間を通じて一定であり、循環水量も流入水量に対して100%で一定とした。本実験開始以前には、窒素除去以外の目的

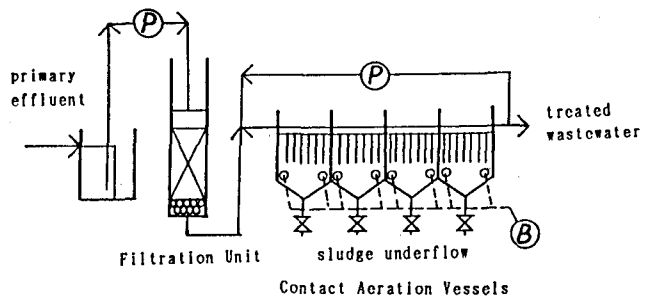


Fig.1 Schematic Diagram of Filtration - Contact Aeration Process

Table 1 Experimental Conditions

Filter	Size: 40*40*H3200 cm Media: anthracite $\phi 3.0\text{mm}$, H=40cm sand $\phi 1.2\text{mm}$, H=20cm
Contact Aerator	4 vessels Total Volume: 2.05 m^3 ($0.501\text{ m}^3 \times 4$) Packing Material: ring-lace ($80\text{cm} \times 182$)
Operating Conditions	Hydraulic Retention Time: 12hours Recirculation Ratio: 100% Aeration Rate: 1st vessel: 0-70 L/min other vessels: 70 L/min

で、処理水の循環をせずに6カ月以上運転しており、生物膜内の細菌相は安定した状態にあったと考えられる。

ろ過層の逆洗浄は、1日に1度定期的に行うようにタイマーをセットした。接触曝気槽内の水洗浄および汚泥の引き抜き操作は、1カ月に1回とし、その他に処理水水質が特に悪化した場合に実施した。洗浄方法は、はじめに接触曝気槽下部の汚泥引き抜き口をあけて槽内の水を除去した後、水道水を接触材の上部から散水し、余分な汚泥を除去する方法を取った。

(2) 調査・分析項目

1) 定期分析

表-2に掲げる水質指標について、1週間に1度の定期分析を行った。分析サンプルは、すべて24時間のコンポジットサンプルであり、溶解性成分はWhatmanGF/Bろ紙にてろ過後に分析した。

2) 24時間分析

原水濃度の変化状況の把握、および処理水水質への影響を調べるため、通日採水分析を行った。午前10時から1時間毎に翌日10時まで、接触曝気槽流入水および処理水の採水を行い、採水時刻の隣合った2サンプルを混合して12検体としたのち、表-2に示す項目の分析を行なった。

3) 付着微生物量および細菌数の測定

細菌数の測定は、水温の最も低下する2月中旬に一度、また、水温の上昇した5月はじめに一度行なった。測定の方法は、反応槽からモールド接触材を1本採取し、水道水中でもみほぐすことにより全ての付着生物を剥離させた後、その一部をホモジナイズ(10000rpm、2分)および超音波分散(20W、2分)の後、細菌数測定サンプルとした。生物膜中の細菌数測定は、好気性従属栄養細菌、脱窒細菌、硝化細菌について行い、好気性従属栄養細菌は標準寒天培地をもちいて、25℃中で一週間培養後、コロニーの計数により、また、硝化細菌および脱窒細菌の計数方法については下水試験方法(1984年版)⁶⁾によった。

3. 実験結果と考察

3.1 水温、DOおよびORPの経日変化

(1) 水温の変化

実験期間中の水温の変化を、図-2に示す。実験開始当初、25℃程度であった水温は、経過日数とともに低下し、11月半ばに15℃以下となり、12月はじめには12℃を下回った。それ以後、3月いっぱいには12℃を越えることはなく、4月のはじめに急に18℃まで上昇した。そして、5月終わりには再び実験開始時と同じ25℃まで回復した。

Table 2 Analytical Methods

	routine analysis	24 hours sampling	Analytical Methods
BOD :total	○	○	Gesui-siken-hoho (1984)
:dissolved	○	○	Gesui-siken-hoho (1984)
DO	○	○	DO meter
ORP	○	○	ORP meter
SS	○	○	Gesui-siken-hoho (1984)
Transparency	○	○	Gesui-siken-hoho (1984)
Temperature	○	○	alcohol temp. meter
Kjeldal Nitrogen: total	○	○	Auto-analyzer (Technicon)
:dissolved	○	○	Auto-analyzer (Technicon)
Ammonia Nitrogen	○	○	Auto-analyzer (Technicon)
Nitrite Nitrogen	○	○	Auto-analyzer (Technicon)
Nitrate Nitrogen	○	○	Auto-analyzer (Technicon)

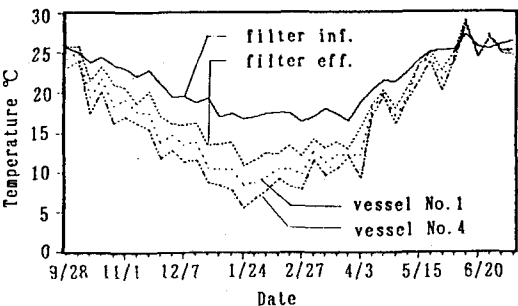


Fig.2 Time Course of Water Temperature

(2) 曝気量、DOおよびORPの経日変化

曝気量、DOおよびORPの経日変化を図-3に示す。

曝気量は、はじめ全槽とも70ℓ/minであったが、後に第1槽(脱窒槽)のみ25ℓ/minに減らした。しかし、第1槽から第4槽の各槽とも溶存酸素濃度の低下はみられなかったため、更に曝気量低下の影響をみるために、第1槽は曝気停止(水中ポンプ攪拌)、第2~4槽は15ℓ/minとした。この条件では溶存酸素濃度が全槽とも0.3[mg/L]程度に低下し、処理水中にSSが流出するなど、良好な処理水水質が保てなかったために、すぐに第2~4槽を70ℓ/minに戻したが、第1槽のみは曝気停止のままとした。2月末から3月いっぱい、この条件で運転しても、硝化反応槽である第3槽、第4槽の溶存酸素濃度は第1槽曝気停止以前とほぼ同じであったが、水温の急上昇した4月初頭以後は、第2、3、4槽とも溶存酸素濃度がそれ以前より低下し、十分な好気状態を保つことが困難になった。そこで、6月17日に第1槽の曝気量も70ℓ/minとすることで、好気条件を維持し、硝化反応の回復を待った。

ORPについては、2月末から6月はじめまでは、第1槽曝気停止のため、各槽とも低下し、第3槽で50mV以下、第4槽でも80mV以下であった。森山ら⁷⁾は活性汚泥法について、硝化反応の維持には120mV以上のORPが必要であるといっているが、今回の実験条件ではこのORPを維持することはできなかった。

3. 2 処理水水質の経時変化

(1) BOD

図-4に実験期間中のBODの変化を示す。実験期間を通じてのBOD除去率は92%であった。原水として用いた下水処理場初沈流出水のBODは 140 ± 20 [mg/L]であり、季節による変動はみられなかったが、処理水のBODは水温の低下とともに上昇し、4月をはじめから5月にかけては水温が上昇したにも関わらず最も高い値となった。これは、水温上昇とともにDO濃度の低下が、微生物活性の上昇効果よりも大きく影響したためと考えられる。しかし、全実験期間を通じて、処

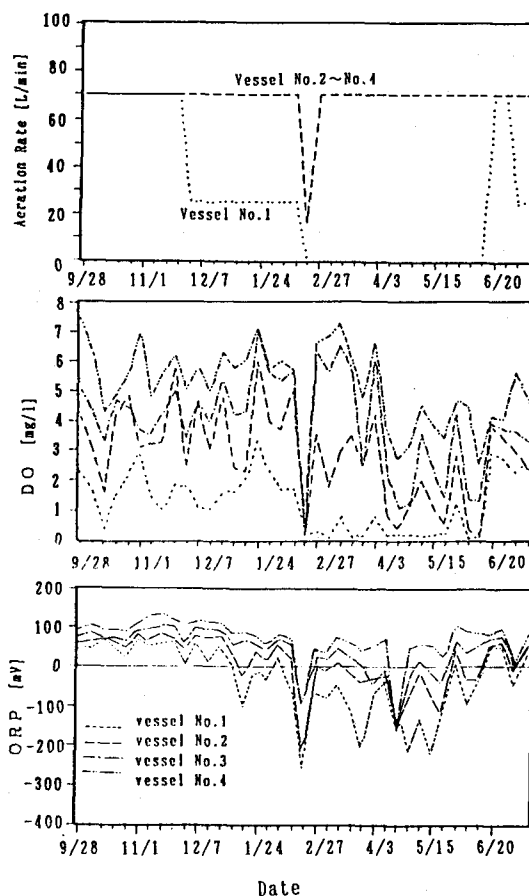


Fig.3 Time Course of DO, ORP and Aeration Rate

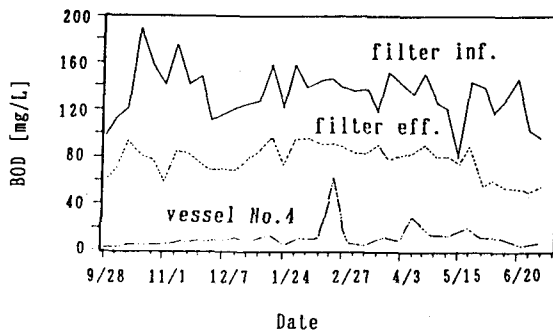


Fig.4 Time Course of BOD in Filtration - Contact Aeration Process

理水BODが20 [mg/L]を越えたのは、極端に曝気量をしばった2月22日と、水温が急上昇した4月12日のみであり、今回の条件（HRT12時間）でもほぼ良好な水質を保てることがわかった。

(2) SS

図-5に、SS濃度の経時変化を示す。SS濃度の変化は、BODとほぼ同様であり、原水濃度が約140 [mg/L]であったのに対し、処理水SSは12月から上昇し始め、溶存酸素濃度の最も低かった4月に最高となった。

(3) 透視度

処理水透視度は、実験開始時には100 cm以上あったものが、水温の低下する12月はじめから徐々に低下し、4月のはじめに最も低い値（45 cm）となった。図-6の中で、2月の中ごろに処理水透視度が10 cm以下となっているのは、第2～第4槽の曝気量を一時的に70 [L/min]から15 [L/min]に落としたためである。4月以降は、溶存酸素濃度が低下したにも関わらず、水温上昇による微生物活性の上昇により透視度が上昇した。これは、BODが4月以降も高い値であったのに比べると、異なった挙動であった。

(4) 溶存態窒素

ろ過塔流入水、生物処理槽流入水、および処理水中の溶存態窒素濃度の変化を図-7に示す。後に通日試験結果の項で述べるように、ろ過塔流出水中にはSS性の窒素成分はほとんど含まれなかったため、本実験における窒素除去率の計算は、溶存態の窒素について行えばよい。接触曝気槽に流入する窒素の濃度は、高水温時に約23 [mgN/l]、水温の低下した冬季は最大で32 [mgN/l]となった。この間、処理の悪化した4月から5月を除いては窒素除去量は10 [mgN/l]程度で一定あり、冬季には原水窒素濃度の上昇により処理水窒素濃度も8～9 [mgN/l]上昇した。また、実験期間を通じての平均窒素除去率は30%であった。

接触曝気槽、第1槽から第4槽までの硝酸性窒素濃度の変化を図-8に示す。第1、2槽は、実験

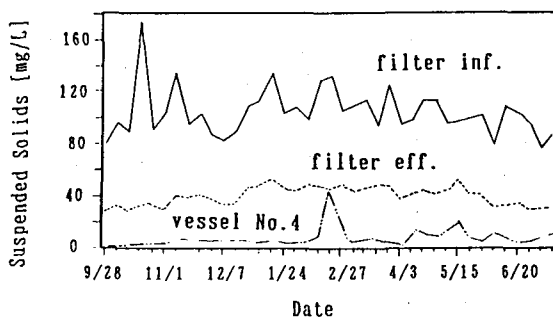


Fig.5 Time Course of Suspended Solids Concentration

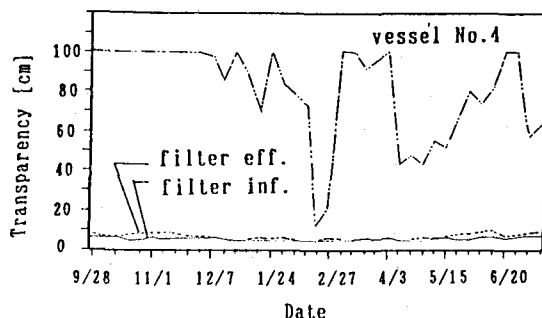


Fig.6 Time Course of Transparency

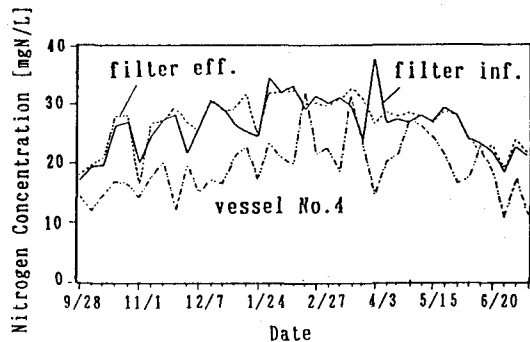


Fig.7 Time Course of Total Dissolved Nitrogen

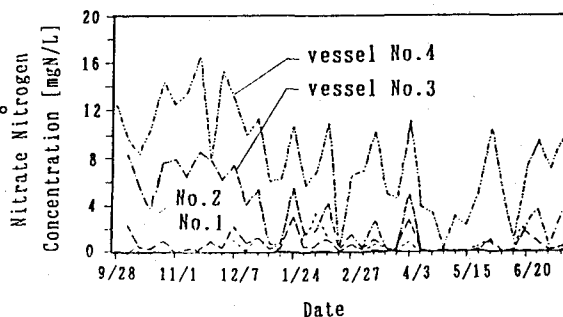


Fig.8 Time Course of Nitrate Nitrogen

開始当初から硝化反応が進まず、硝酸性窒素濃度の上昇はみられないが、第3、4槽ではそれぞれ7 [mgN/l]程度の硝酸性窒素が生成された。しかし、第3槽の硝化反応は水温の低下する12月初旬から悪化し、それ以後、第1槽の曝気量を70 [L/min]にもどした6月中旬まで回復が遅れた。

図-8からも明らかなように、本実験の期間中、脱窒槽である第1槽で硝酸性窒素が残留したことはなく、接触曝気槽における窒素の除去は、硝化反応が律速となっていた。

3.3 窒素除去速度への影響因子

図-9は、ケルダール窒素の除去量から硝化速度を求めたものである。実験開始から12月のはじめまでは、3号池、4号池とも高い硝化活性を維持したが、その後、水温の低下とともに、3号池のみ活性が低下し、4月から5月にかけては硝化反応がほとんど停止した状態になった。この間、接触曝気各槽内のpHは7.3~7.6であり、窒素除去反応への影響は無いと考えられる。また、4月のはじめからは水温が急激に上昇していることを考えると、硝化反応を抑制した原因は水温以外にあったと考えられる。

以下に、3号池の硝化反応に影響を及ぼす因子について個別に検討を加える。

(1) 水温

図-10は、接触曝気第3槽の水温と硝化反応速度との関係を表したものである。全体のデータはバラついて見えるが、図中の三角印(DOが3 [mg/L]以下になる4月以降のデータ)を除いて考えると、実線のように水温15℃以下に低下した場合に硝化反応が阻害される。

(2) 溶存酸素濃度

同じく第3槽の溶存酸素濃度と硝化速度との関係を示したのが、図-11である。データ全体ではDO=4 [mg/L]付近にピークをもつ山形の実験結果になっているようだが、四角印のデータ(12月から3月末までの水温が15℃未満となる時期)を除いて考えると、図中破線の範囲内にあり、溶存酸素濃度3 [mg/L]以下では十分な硝化速度が得られない。従って、第3槽での硝化反応を進行させるには、少なくともDOを3 [mg/L]以上に維持する必要がある。

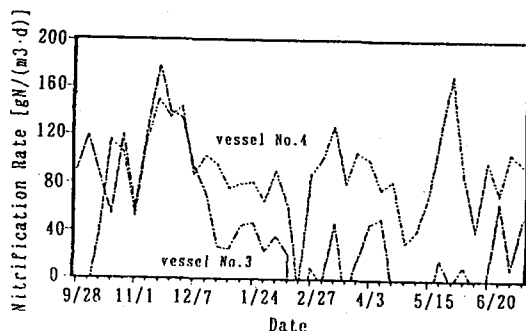


Fig.9 Time Course of Nitrification Rate in 3rd and 4th Vessels of Contact Aeration Reactor

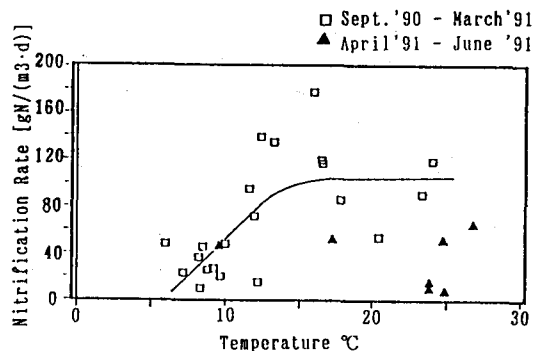


Fig.10 Effect of Water Temperature on Nitrification Rate in 3rd Vessel of Contact Aeration Reactor

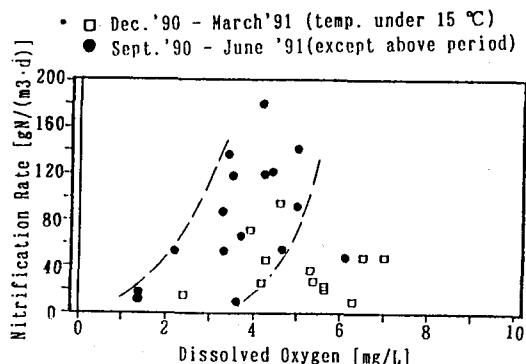


Fig.11 Effect of Dissolved Oxygen(DO) on Nitrification Rate in 3rd Vessel of Contact Aeration Reactor

(3) ORP

図-12に第3槽ORPと硝化速度との関係を示す。ORPは、水温や溶存酸素濃度の違いなどに比較的影響されず、ORPが高いほど硝化速度が高いという傾向を示した。そこで、HRT=12時間の条件下、原水窒素濃度を30[mgN/L]、処理水窒素濃度の目標値を10[mgN/L]、硝化反応は第3、4槽のみで受け持つとすると、これら両反応槽での平均硝化反応速度は90[gN/(m³・d)]となるが、この値を満たすようなORP条件は、80mV以上であった。

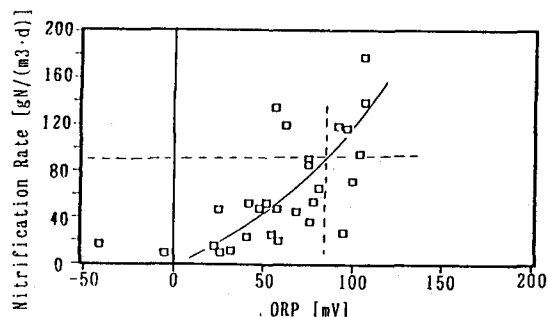


Fig.12 Effect of ORP on Nitritification Rate in 3rd Vessel of Contact Aeration Reactor

(4) BOD

図-13示したように、BODと硝化速度との関係は、全体的にみると余りはっきりとした傾向を示してはいない。しかし、BOD=10[mg/L]以下と、それを越えた場合のデータで比較すると、やはりBODが高い場合には、硝化速度も60[gN/(m³・d)]以下の低い値である場合が多い。また、このようにBODが高く、硝化速度が低いデータは、図中に四角で示した12月から3月までの低水温期のデータが多い。

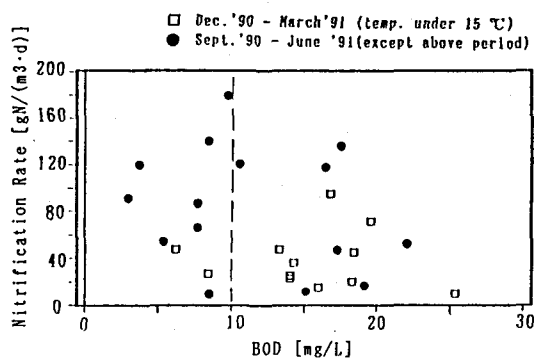


Fig.13 Effect of BOD on Nitritification Rate in 3rd Vessel of Contact Aeration Reactor

以上のことから、硝化反応を十分に進めるには、残留BODを10[mg/L]以下にすることが目安となる。

(5) 脱窒細菌、硝化細菌、および好気性従属栄養細菌数

細菌数の計測結果を、図-14に示す。低水温時の計数結果である2月21日のデータからは、第1槽が脱窒槽、第2槽が好氣的有機物分解槽、第3～4槽が硝化槽としての性格を示している。しかし、実際には、第3槽と第4槽の硝化菌数が同じオーダーで存在するのにも関わらず、第3槽での硝化反応は進まなかった。この時の槽内生物量は、第1槽4,000[mg/L]、第2槽3,100[mg/L]、第3槽2,600[mg/L]、第4槽2,400[mg/L]と、第3槽と第4槽とで大きな違いがみられないことから、硝化菌数の減少以外の要素によって第3槽の硝化反応が阻害を受けたものと考えられる。ここで阻害要因として挙げられるものには、

①水温の低下

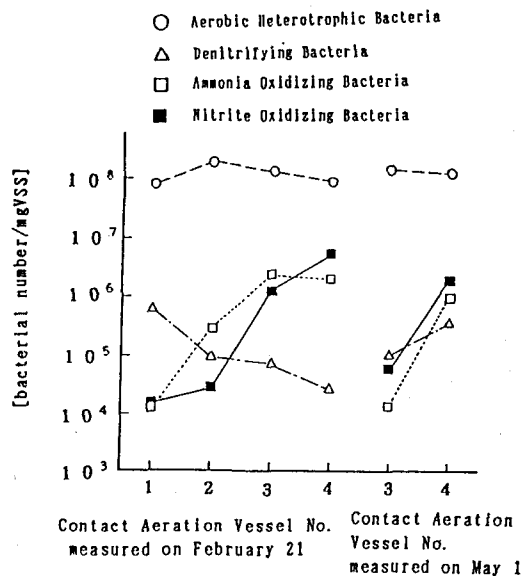


Fig.14 Results of Enumeration of Bacterial Number Aerobic Heterotrophic Bacteria

②溶存酸素濃度の低下

③未分解BOD成分の流入による影響

が考えられるが、①については、第4槽も同様に水温が低下しているにも関わらず、硝化活性が維持されたことを考えると、この場合の原因には該当しない。②については、3.3(2)で述べたように、低水温期のほうがむしろ溶存酸素濃度は高くなっていることを考えるとこれも該当しない。従って、③の理由が第3槽の硝化速度低下の原因として最も考えられるが、これについては3.3(4)でも述べた通り、低水温期にはBODが高く硝化活性が低いデータが多いことから、両者には相関があるものと考えられる。

3.4 原水濃度変動の処理水水質への影響

図-15は、平成3年3月26日から27にかけて行なった通日採水試験におけるBODの分析結果である。ろ過塔を通った下水中のBODは、夕方最大時で84[mg/L]、深夜の最低時で43[mg/L]と約2倍の違いがあるが、処理水への影響は僅かであり、処理水BODは最大でも10[mg/L]であった。

図-16は、同様に、通日試験における窒素の分析結果である。BODは、ろ過後もSS性成分が残留していたが、SS性の窒素はろ過処理水中にはほとんど残留せず、総窒素と溶解態窒素の濃度は同じであった。ろ過水中の総窒素濃度は最大で42[mgN/l]、最小で29[mgN/l]と13[mgN/l]の濃度差があったが、処理水では最大と最小時の濃度差は5[mgN/l]であった。本処理実験では、HRT=12時間で処理を行っているため、午後7時頃の最大窒素負荷の処理水が、翌朝7時頃に放流されるという結果となっているが、今回の実験では窒素の除去率が低かったせいもあり、BODに比べて原水の濃度変動を十分吸収したとは言えなかった。

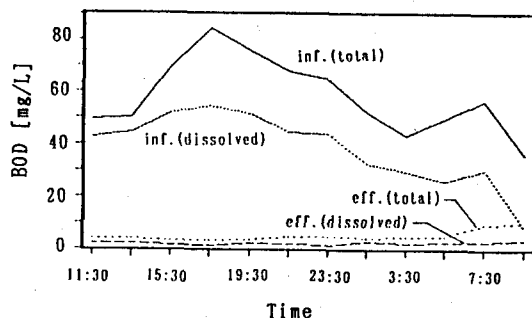


Fig.15 Hourly Changes of BOD in Contact Aeration Process

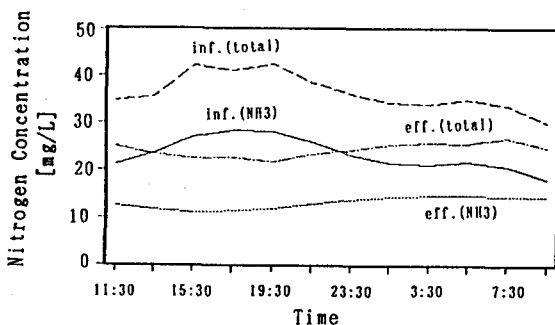


Fig.16 Hourly Changes of Nitrogen Concentration in Contact Aeration Process

4. まとめ

砂ろ過・接触曝気法の高度処理への応用を目的として、循環法による脱窒運転を行い以下の知見を得た。

(1) 接触曝気槽HRT12時間で運転した結果、処理水BOD、SSともに20[mg/L]以下の水質を得ることができた。

(2) 処理水透視度は、水温低下とともに低くなり、最低で45cmの期間が約2週間続いたが、水温の上昇にやや遅れて100cm以上の値に回復した。

(3) 本実験で得られた平均窒素除去量は約10[mgN/L]であり、原水総窒素濃度30[mgN/L]の約30%であった。このように窒素除去量が余り大きくならなかったのは、脱窒反応よりも硝化反応が律速となったためである。

(4) 硝化反応に影響を及ぼす因子として、①水温、②DO、③ORP、④BODおよび⑤細菌数について検討した結果、処理水中の窒素濃度の目標値を10[mgN/L]と定めた場合、硝化反応槽(本実験では第3槽に

ついて)

- ①水温は15℃以上、
- ②DOは3[mg/L]以上、
- ③ORPは80mV以上、
- ④BODは10[mg/L]以下

を保つ必要がある。これらの指標のうち、反応槽の制御指標として一つを選ぶのならば、ORPが、他の指標の影響を受けず、硝化反応速度と最もよい相関を示した。

<参考文献>

- 1) 網状充填材を用いた接触ばっ気法による都市下水中の窒素除去に関する研究；南部敏博、河村清史、金子光美、下水道協会誌、Vol. 26、No. 297、1989. 2
- 2) 接触曝気法による生活污水の処理；橋本奨、張傑、下水道協会誌、Vol. 24、No. 280、1987. 9
- 3) 土木研究所資料、昭和61年度下水道関係調査研究年次報告書
- 4) 土木研究所資料、昭和62年度下水道関係調査研究年次報告書
- 5) 土木研究所資料、小規模下水処理場における汚泥の処理処分にに関する調査報告書、1991. 9
- 6) 下水試験方法（1984年版）；日本下水道協会
- 7) 硝化-脱窒同時反応法に関する研究；森山克美ら、土木学会第45回年次学術講演会要旨集、1990. 9