

(20) オゾン添加活性汚泥法による有機物ならびに 栄養塩除去特性

西村 文武^{1*}・加藤 剛²・藤原 拓³・津野 洋¹・増田 理子⁴・渡邊 政広²

¹京都大学大学院 工学研究科都市環境工学専攻 (〒615-8540 京都市西京区京都大学桂C1)

²愛媛大学大学院 理工学研究科生産環境工学専攻 (〒790-8577 愛媛県松山市文京町3番)

³高知大学 農学部生産環境工学科 (〒783-8502 高知県南国市物部乙200)

⁴名古屋工業大学 工学部社会開発工学科 (〒466-8555 名古屋市昭和区御器所町)

* E-mail: f.nishimura@kt5.ecs.kyoto-u.ac.jp

オゾン添加活性汚泥法は、余剰汚泥の発生量削減やパルキング抑制等に効果があるとされるが、オゾンによる汚泥液化のために処理水中の窒素やリン濃度が上昇することが懸念される。本研究では、汚泥減容化等を目的としたときに問題になる栄養塩類の除去方法について実験的検討を行った。窒素除去法として生物学的硝化脱窒法、リン除去法として凝集剤添加法について、その適用性を考察した。またオゾン添加活性汚泥法における連続通水時の窒素除去法として生物学的硝化脱窒法(無酸素-好気循環法)の適用を検討した。オゾンによる汚泥液化有機物は脱窒用の水素供与体として利用できることを実証し、オゾン添加を行うことで有機物律速の場合には脱窒率を上昇させること、その処理特性は従来から知られている汚泥液化特性やその生物分解特性により説明できること等を明らかにした。

Key Words : ozone, ozone-added activated sludge process, biological nitrification-denitrification, sewage treatment

1. はじめに

下水汚泥の適正な処理・処分は、都市下水処理の大きな課題の一つであり、またその必要性は下水道普及率の増加とともにますます高まってくると考えられる。近年、活性汚泥にオゾンを直接添加することにより汚泥発生量が削減できることがわかり、その下水処理への適用が検討されている^{1),2),3)}。しかし、オゾン添加による汚泥の可溶化にともない難分解性有機物や栄養塩類(N, P)の濃度が上昇するという問題があり、適用に際しては、それらの解決が不可欠となっている。そこで本研究では、まず下水汚泥のオゾン処理時における有機化合物や窒素、リン化合物の挙動を明らかにするとともに、それらの処理法として採用しうる手法について化学量論的な観点から検討した。窒素除去については、オゾン添加プロセスが活性汚泥を可溶化して液化有機物を生じさせる工程であることから、その液化有機物を有効活用しうると考えられる、生物学的硝化脱窒法の適用を

試みることとした。液化有機物を脱窒のための水素供与体として活用した研究はこれまでにいくつか報告されている。しかしそれらの多くはプラントによる連続実験結果を基にしたものであり、運転操作上、データ値の変動が大きくなりやすく、定量的な評価を行うのは比較的困難である。また難分解性有機物質の挙動に関して評価している研究例も多くはない^{4),5)}。ここでは回分実験で定量的な考察を加えるとともにラボスケールの無酸素-好気廃水処理システムを用い、オゾン添加活性汚泥法における有機物ならびに窒素化合物の連続処理特性についても明らかにすることを目的とした。また、リン除去については凝集沈殿法について検討した。下水のリン除去法としては生物学的手法も実用化されているが、オゾン添加活性汚泥法の特徴として余剰汚泥の削減効果があり、汚泥中のリン濃度を高めて除去する生物学的手法の原理に合致しない点があること、凝集剤添加活性汚泥法もリン除去法として広く用いられていることから、本研究では凝集剤添加法の適用を試み

ることとした。オゾン添加活性汚泥法にリン除去・回収過程を組み込んだ処理プロセスについても報告例はあるが⁶⁾、複雑なシステム構成となり、実際にオゾン添加活性汚泥法が適用されているような小規模処理場においては簡易な処理方法も希求されるものと考えられる。ここでは、簡便なリン除去法としての凝集沈殿処理について、リン除去特性と汚泥発生量の観点から適用性について検討した。

2. 実験方法

(1) オゾン添加時の栄養塩の溶出特性把握実験

a) 栄養塩の溶出特性

オゾン処理による汚泥可溶化特性と溶出物質を把握するために、散気方式による半回分式オゾン処理実験(オゾンガス:連続注入, 活性汚泥混合液: 回分式)を行った。供試汚泥として標準活性汚泥法で運転されている都市下水処理場より採取した返送汚泥を用いた。表-1に実験における操作条件を示す。反応槽(有効容積1.5L, ϕ 90mm, H=260mm)に活性汚泥を入れ、スターラーで攪拌しながら反応槽底部に設置したセラミック製散気管によりオゾンを直接注入する方法でオゾン処理を行った。オゾン注入率(単位汚泥量あたりのオゾン注入量)が0から72.1mgO₃/gSSの範囲内で経時的に一定量の汚泥を採取し、試料汚泥とした。また、その一部については

表-1 可溶化特性把握実験の条件

初期 MLSS 濃度 (mg/L)	3140, 4530, 6800
水温 (°C)	17.6
ガス流量 (L/min)	0.3
注入オゾン濃度 (mgO ₃ /L-gas)	22.7
処理汚泥量 (L)	1.0

表-2 オゾン添加時の実験条件

オゾン注入率 (mgO ₃ /gSS)	27.2
初期 MLSS 濃度 (mg/L)	4020

表-3 栄養塩添加量

硝酸ナトリウム水溶液 (5000mgN/L)	24 mL
リン酸二水素カリウム水溶液 (300mgP/L)	4 mL
塩化アンモニウム水溶液 (300mgN/L)	20 mL

表-4 オゾン処理と凝集剤添加の実験条件

		汚泥	上澄み水
PAC	O ₃ 注入率(mgO ₃ /gSS)	9.8-10.3	11.3-12.3
	PAC 添加率(mgAl/L)	0-43.5	0-30
Fe ³⁺	O ₃ 注入率(mgO ₃ /gSS)	10-10.5	9.0-9.4
	Fe ³⁺ 添加率(mgFe/L)	0-40.5	0-75.0
Fe ²⁺	O ₃ 注入率(mgO ₃ /gSS)	8.9-9.2	10.0-11.0
	Fe ²⁺ 添加率(mgFe/L)	0-90.0	0-81.8

直ちに孔径1 μ mのガラス繊維ろ紙でろ過し、ろ液試料とし、窒素(S-N, NOx-N, NH₄-N), リン(S-P, PO₄-P, 加水分解性P)の各水質項目を下水試験方法⁷⁾に準拠して測定した。

b) 栄養塩除去

窒素除去法としては、生物学的処理法の適用を試みた。活性汚泥を表-2に示す条件でオゾン処理し、そのろ液と表-3に示す栄養塩類を1000mL三角フラスコに投入した。そして、オゾン処理していない汚泥を濃度が3000mg/Lになるように加え、無酸素条件下で脱窒反応を行わせた。適時一定量を採取し、試料とした。実験時には汚泥が沈降し、汚泥が偏るのを防ぐために、マグネチックスターラーでゆっくりと攪拌した。液中に酸素が溶け込まないように試料採取時以外は三角フラスコに栓をした。また槽内内部水温が25°Cに維持されるように三角フラスコを温度制御した水浴中に設置した。

リン除去法としては、無機系凝集剤添加法の適用を試みた。凝集剤はPAC, FeCl₂, FeCl₃の3種類を検討した。また添加条件として、凝集剤をオゾン処理汚泥に直接添加するケースと固液分離した上澄み水に添加するケースの2ケースを設定し、S-P除去効率を比較した。汚泥に直接添加するケースについては実際に反応槽に凝集剤を直接添加する凝集剤添加活性汚泥法を想定した。また上澄み水に添加するケースについては、汚泥発生を抑制するケースを想定した。凝集剤をオゾン処理汚泥に直接添加するケースでは、オゾン処理汚泥に凝集剤を添加した後、1000mLのメスシリンダー内で固液分離をさせ、添加1時間後にメスシリンダー内上部よりサンプリングを行った。そして、S-P濃度を測定し、リン除去効率を調べた。対照として凝集剤を添加しないケースも設定した。上澄み水に添加するケースでは、オゾン処理した汚泥を固液分離させて、上澄み水に凝集剤を添加した。サンプリングはオゾン処理汚泥に直接添加するケースと同様に行った。実験条件を表-4に示す。

(2) ラボスケール反応器での連続処理特性

a) 実験装置

本実験で用いた窒素除去プロセスの概要図を図-1に示す。窒素除去プロセスの装置は無酸素槽、好気槽、最終沈殿池、気液接触槽そして各槽をつなぐシリコンチューブからなる。無酸素槽と好気槽にはポリプロピレン製の容器(有効容積4.0L), 最終沈殿池にはポリエチレン製の容器(容積1.0L, 有効容積0.6L), 気液接触槽にはAS樹脂製の円筒形容器(容積1.5L, ϕ =90mm, H=260mm, 有効容積1.0L)を用い

た．気液接触槽の上部にはオゾンあるいは空気注入口と排出口を作成し，送排気用のチューブ(テフロンパイプ)を2本つなぐことができるようにした．オゾン処理槽の後には排出オゾン进行处理するために10g/Lのよう化カリウム水溶液で容器を満たした排オゾン処理槽(4.0L)を設置した．汚泥が常に攪拌され，反応させ易くするために気液接触槽内をマグネチックスターラーで攪拌した．気液接触槽内ではオゾン曝気した系と，対照系として空気曝気した系を設定し，両系列の実験結果を比較・考察した(以下，オゾン曝気した系列をオゾン系列，空気曝気した系列を空気系列と記述する)．本実験では標準活性汚泥法で運転されている下水処理場より採取した返送汚泥(3880mg/L)をMLSS濃度2500mg/Lになるように無酸素槽と好気槽に満たして連続運転を開始した．無酸素槽に流入した人工下水はオーバーフローによって好気槽そして最終沈殿池に流入し，最終沈殿池底部から沈殿汚泥をチューブポンプにより引き抜き，気液接触槽に流入させた．気液接触槽でオゾン処理または空気曝気した汚泥はオーバーフローによって無酸素槽に返送した．また窒素除去率の向上を目的として，好気槽の流出部付近からチューブポンプで汚泥混合液を引き抜き，無酸素槽の流入部付近に循環比(流入流量に対する流量比率)=2で循環させた．

b) 連続通水処理

実験条件はHRT=12 hr(システム全体として)に設定し，流入流量 $Q=0.8\text{L/hr}$ ，循環比 $Q_r/Q=2$ ，返送汚泥流量 $Q_s=0.24\text{L/hr}$ ，で各槽を循環させた．また槽内水温が 20°C に維持されるように無酸素槽，好気槽および最終沈殿池を水浴中に設置した．気液接触槽へは， $1.02\text{mgO}_3/\text{L}$ のオゾン化空気を 0.3L/min の流量で連続注入した．この場合の単位汚泥量あたりのオゾン注入率は， $25\text{mgO}_3/\text{gSS}$ 程度となり，MLSS中の硝化活性に著しい影響を与えるものではないことがこれまでの研究により明らかになっている⁸⁾．対照

系では同流量の空気で汚泥を連続曝気した．流入水として，グルコース($\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6$)，塩化アンモニウム(NH_4Cl)，リン酸二水素カリウム(KH_2PO_4)，硫酸マグネシウム(MgSO_4)を主成分とするDOC 80mg/L， $\text{NH}_4\text{-N}$ 30mgN/L， $\text{PO}_4\text{-P}$ 3mgP/Lの人工廃水を用いた．またSRTは最終沈殿池からの汚泥引抜により約15日程度になるように調整・管理した．採水は流入下水と各系列の無酸素槽，好気槽で行った．また流出SS濃度経日変化を調べるために最終沈殿池からの排水を定期的にサンプリングした．水温，pH，DOを測定するとともに，サンプルのアルカリ度，SS，DOC，そして栄養塩(N,P)濃度を測定した．水質分析は下水試験方法⁷⁾に準拠して行った．

3. 実験結果および考察

(1) オゾン添加時の栄養塩の溶出特性把握実験

a) 栄養塩の溶出特性

図-2に，初期MLSS濃度が 4530mg/L の汚泥にオゾン添加した時の各態窒素濃度の経時変化を示す．可溶化した窒素成分の約95%は有機態窒素であり，無機化はほとんどなされていなかった．ここでオゾン処理に伴う，DOC増加量に対するSN増加量($\Delta\text{S-N}/\Delta\text{DOC}$)について図-3に示す． $\Delta\text{S-N}/\Delta\text{DOC}$ は多少のばらつきはあるもののオゾン注入率の増加に関わらず， 0.2mgN/mgC 付近の値となっていることがわかる．細菌の元素構成は乾燥重量に対して炭素が45~55%程度，窒素が12~16%程度⁹⁾であり，観察されたN/C比は細菌構成により示される値と同程度であることから，オゾンによる汚泥中の微生物細胞組織の溶解に伴いDOC，S-Nが処理水中に溶解したと考えられる．

同様に，オゾン添加時のリン(S-P， $\text{PO}_4\text{-P}$)の挙動を図-4に示す．溶解性リンに対するリン酸態リンの割合は，オゾン注入率 $0\text{mgO}_3/\text{gSS}$ の時は93.5%であったが， $72.1\text{mgO}_3/\text{gSS}$ の時は65.2%とその割合は減少していた．オゾン添加量が増加するにつれて，S-Pにおける有機態リンやポリリン酸などの加水分解性リンの割合が大きくなった．オゾン処理に伴うDOC増加量に対するS-P増加量($\Delta\text{S-P}/\Delta\text{DOC}$)について図-5に示す．窒素のケースとは異なり，オゾン注入率が小さいほどすなわち反応初期において大きな値をとり，オゾン添加を継続するにつれ小さくなるが示されている．オゾン注入率が小さいときにDOCに対してリンの溶出比率が大きくなる要因としては，汚泥表面に吸着・付着していたリン酸の溶出，細胞膜のリン脂質の溶解ならびに酸化分解などが考えられる．汚泥にオゾン添加したときの汚泥よ

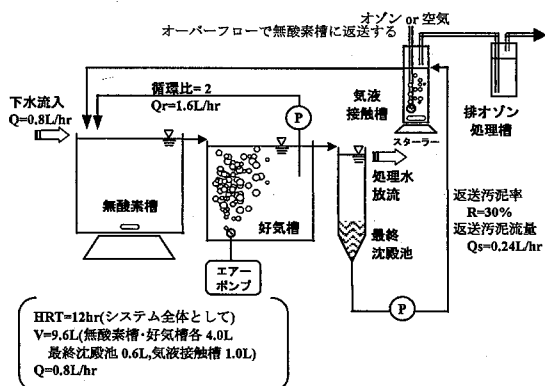


図-1 窒素除去プロセスの概要図

り溶出する各態リン(有機態リン, 加水分解性リン, リン酸態リン)の溶解性リンに対する比率変化を図-6に示す。汚泥より溶出する有機態リンの割合はオゾン添加に伴い増大傾向にあり, オゾン注入率が $57.9\text{mgO}_3/\text{gSS}$ のときには30%程度の値を示した。また加水分解性リンの比率は, オゾン添加にともない約10~15%の範囲の値を示す結果になった。オゾン添加のみでは有機物の無機化は進行しにくいこと, 有機態リンや加水分解性リンの濃度がオゾン添加量に比例する傾向にあることから, 無機化とは別にリン酸態リンが初期オゾン添加時に液中に溶出する機構があるものと推察された。詳細についてはさらなる検討が必要であるものの, いずれにせよオゾン処理の初期段階でリンの溶出が大きくなることは, 栄養塩除去システムに汚泥のオゾン処理法を組み込むときに配慮すべき事項となる。

b) 栄養塩除去

フラスコ内での脱窒反応による $\text{NO}_3\text{-N}$ とDOCの濃度変化を図-7に, 脱窒反応による $\text{NO}_3\text{-N}$ 減少量($\Delta\text{NO}_3\text{-N}$), 有機態窒素の無機化にともなう $\text{NH}_4\text{-N}$ 増加量($\Delta\text{NH}_4\text{-N}$)とDOC減少量(ΔDOC)の関係を図-8に示す。実験開始時より硝酸性窒素や溶解性窒素濃度が減少し, 同時に可溶化有機物も減少していることが示されている。 $\text{NO}_3\text{-N}$, DOC濃度がともに同様の变化で減少していることと, $\Delta\text{NO}_3\text{-N}/\Delta\text{DOC}$ 比が $1\text{mgN}/\text{mgC}$ 付近であり, 脱窒反応における化学量論

から導出される値に等しいことから¹⁰⁾, 溶出有機物を水素供与体とした脱窒反応が行われると考えられた。しかし可溶化した有機物すべてが水素供与体として使用できるのではなく, 可溶化有機物は30%程度残存することも同時に示され, 脱窒反応の水素供与体として活用できる画分と難分解性の画分があることも示されている。これまでの知見により, 可溶化有機物には好気的条件下でも活性汚泥に分解されにくい画分があることが分かっているがその割合も30%程度であり¹¹⁾, 無酸素条件下でも同様な画分が難分解性有機物として残存するものと考えられた。この脱窒反応にともない有機態窒素が $\text{NH}_4\text{-N}$ に変化し, $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が上昇することも示されているが, $\text{NH}_4\text{-N}$ 増加量よりも $\text{NO}_3\text{-N}$ 減少量が5倍ほど多くなる結果となった。汚泥を可溶化させることで有機物と窒素分が液側に移行するが, $0.2\text{mgN}/\text{mgC}$ の割合で溶出すること, 一方脱窒により $1\text{mgN}/\text{mgC}$ の割合で液中から除去されることから, 有機炭素の30%が難分解画分であることを考慮しても, 窒素除去のための有機分は, 可溶化有機物で賄うことができると考えられる。よって, 生物学的硝化脱窒法を活性汚泥プロセスに組み込むことで, オゾン添加時に増加する窒素除去は可能になると考えられる。

オゾン処理汚泥に凝集剤を直接添加したときの凝集剤添加率とS-P除去量の関係を図-9, オゾン処理汚泥の上澄み水に凝集剤を添加したときの凝集剤添

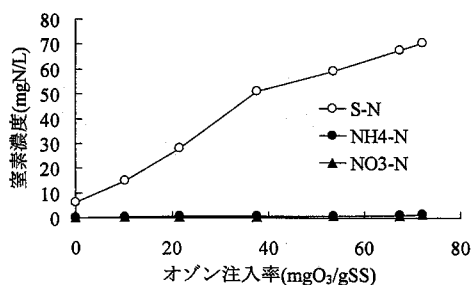


図-2 各態窒素濃度変化

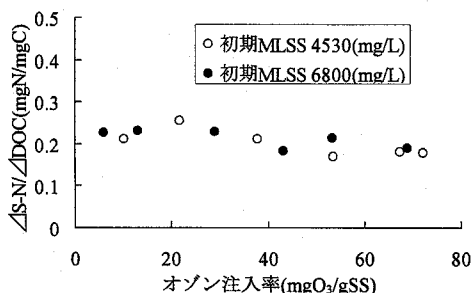


図-3 オゾン処理にともなう $\Delta\text{S-N}/\Delta\text{DOC}$ 変化

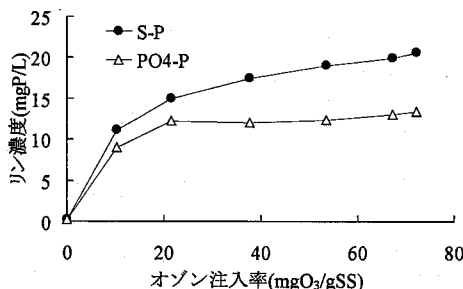


図-4 各態リン濃度変化

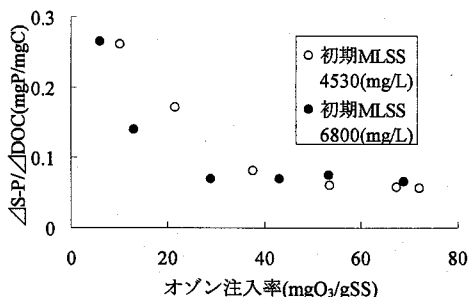


図-5 オゾン処理にともなう $\Delta\text{S-P}/\Delta\text{DOC}$ 変化

加率とS-P除去量の関係を図-10に示す。S-P除去に必要な凝集剤はモル比でPの2～4倍必要であることが実験的に知られている¹²⁾。凝集剤をオゾン処理汚泥に添加するケースでは、S-P除去効率は用いた3種類の凝集剤の中ではFeCl₃が最も高かった。しかし、凝集剤が汚泥粒子に吸着してしまうため、上澄み水に添加するケースと比較してS-P除去効率は全体的に低くなった。上澄み水に凝集剤添加するケースのS-P除去効率は、オゾン処理汚泥に凝集剤添加した場合と比べて2倍ほど高く、中でもPAC添加のケースにおいて $\Delta S-P : \Delta Al = 0.49 : 1$ (モル比)と、最も高いS-P除去効率が得られた。

図-11に凝集剤添加に伴うS-P残存量の変化を示す。PACとFeCl₃のケースでの処理水中のS-P残存量はオゾン添加前の汚泥中に存在していた初期S-P量よりも低くなった。可溶性により液中のリン濃度が上昇するが、PACとFeCl₃において凝集剤添加率が1.4mmol/L以下でS-P除去を達成できることが示されている。このときのオゾン添加による汚泥可溶化量と凝集剤による汚泥増加量の差(Δ MLSS濃度)の変化を図-12に示す。これより、凝集剤添加率の増加にともない Δ MLSSは低くなるが、適切な範囲で凝集剤添加を行えば、汚泥増加量よりも汚泥可溶化量が多くなることがわかった。S-Pの除去効率を加味して考察すると、固液分離させた上澄み水にPACを添加する方法が、汚泥量を減少させかつS-P除去を

達成しうる最も効果的な手法であることがわかった。

(2) ラボスケール反応器での連続処理特性

溶存酸素濃度は両系列とも無酸素槽は0～0.2mg/L、好気槽は4.0～6.0mg/Lであり、硝化および脱窒反応を発現させるための適切な条件が維持されていた。水温は設定どおり20℃をほぼ保っており、両系列間の平均水温の差は1.0℃未満であり水温差が各系列の硝化反応に与える影響はほとんどないものと考えられた。図-13にMLSS濃度の経日変化を示す。実験開始15日目に、SRTを大きくし硝化菌保持を容易にするために、両系列に活性汚泥を追加投入して処理を再開した。汚泥はMLSS濃度が2500mg/L程度になるように投入した(投入汚泥量はオゾン系列6000mg、空気系列6560mg)。オゾン系列では、その後約100日間MLSS濃度は2000mg/L程度に保持できたが、空気系列では実験開始30日過ぎから汚泥沈降性が悪くなり、MLSS濃度が徐々に減少する結果となった。

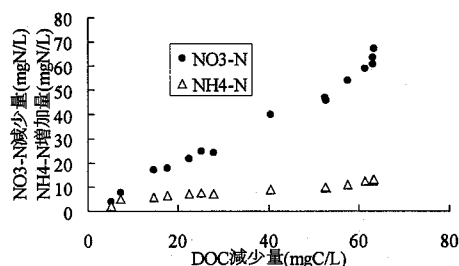


図-8 ろ液の Δ DOCと Δ NO₃-N、 Δ NH₄-Nの関係

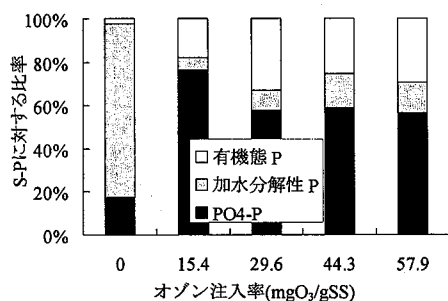


図-6 溶出する各態リン濃度の比率変化
(初期 MLSS 濃度: 3140mg/L)

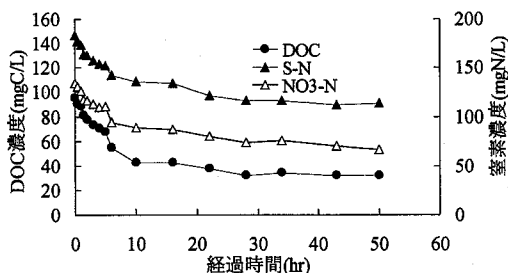


図-7 脱窒反応によるDOC、窒素濃度率変化

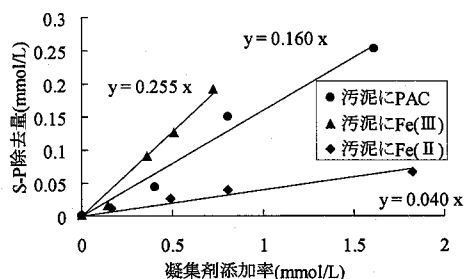


図-9 凝集剤添加率とリン除去量の関係

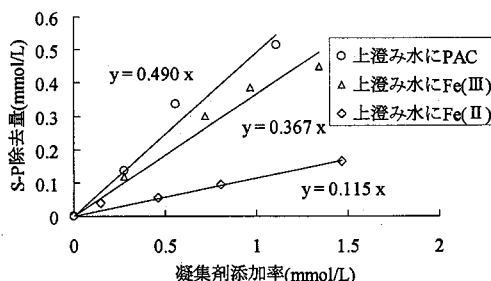


図-10 凝集剤添加率とリン除去量の関係

この時のオゾン系列の好気槽におけるSVI値は118であったが、空気系列においては糸状微生物が多く見られ、SVI値も479でありバルキング状態となっていた。実験開始56日目に再度、空気系列のみに、MLSS濃度が2200mg/L程度になるまで下水処理場からの汚泥を投入(投入汚泥量は10080mg)するとともに、両系列に汚泥流出防止ネットを増設しバルキング汚泥流出に対処したが、空気系列では糸状微生物が多く存在する結果となった。設定したオゾン注入率においては、バルキング抑制やスカム抑制効果があることが知られており^{13),14)}、本研究でも類似の効果があることが示された。またオゾン系列の方が空気系列よりも、わずかであるが発生汚泥量が少なくなっていた。

図-14に各槽内のDOC濃度の経日変化を示す。空気系列においては除去されていてほとんど残存していなかった。オゾン系列の無酸素槽内ではオゾン処理汚泥から溶出する有機物が流入するため、DOC濃度は30mg/L程度になった。また、後続の好気槽内ではDOC濃度は15mg/L程度になり生物分解されずに残った。オゾン添加により汚泥から生物難分解性物質が溶出したことが要因だと考えられた。

図-15に各槽の $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ および S-N 濃度経日変化を示す。両系列で硝化反応には差が見られず、本研究で設定したオゾン注入率では硝化への影響は確認されなかった。また亜硝酸性窒素の蓄積も両系列においてほとんど観察されなかった。硝化

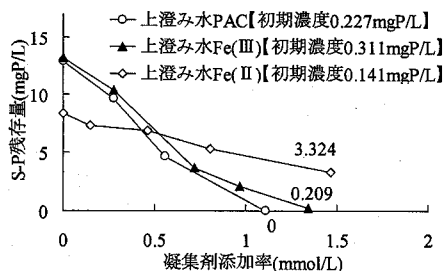


図-11 凝集剤添加率とS-P残存率の関係

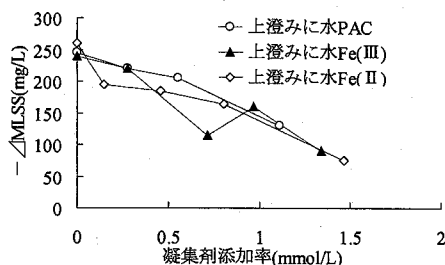


図-12 凝集剤添加率と ΔMLSS の関係

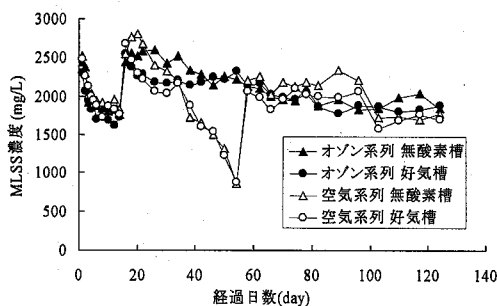


図-13 MLSS濃度の経日変化

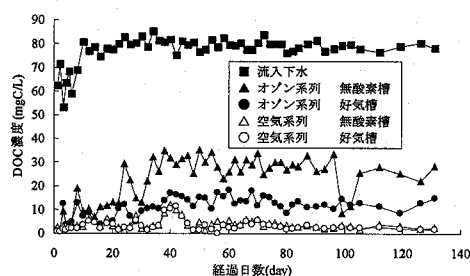


図-14 DOC濃度の経日変化

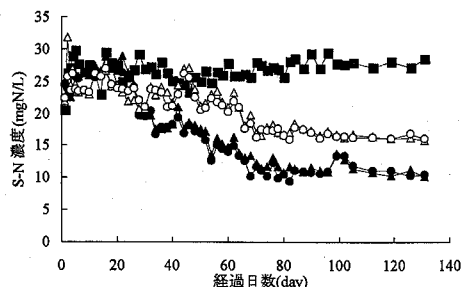
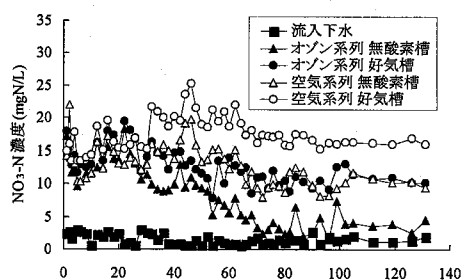
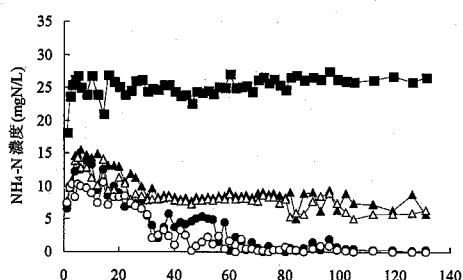


図-15 各槽の $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ および S-N 濃度経日変化

阻害を示す化学物質が存在するときには、亜硝酸酸化菌の方がアンモニア酸化菌よりも影響を受けやすく亜硝酸イオンが蓄積されることがあるが、本実験でのオゾン添加条件においては亜硝酸酸化菌も特に影響を受けないことがわかった。無酸素槽内の有機物濃度が高いオゾン系列の方が窒素除去率は高い結果となり、最も高い溶解性窒素除去率で67.2%であった。一方空気系列での窒素除去率は最も高い値でも44.4%であり、反応槽内での有機物濃度が低いことから、空気系列の無酸素槽内は有機物不足状態であったと考えられた。オゾン系列では返送汚泥にオゾン処理することにより再度汚泥が液化され、脱窒のための水素供与体として利用されたために、脱窒率が向上したものと推察された。しかし、水素供与体として利用される易分解性有機物は液化全有機物の70%程度であり⁸⁾、処理水中の有機物濃度は対照系と比較して高くなった。前述のとおり、残存有機物濃度は15mg/L程度であったが、これはオゾン添加に対する液化有機物量(0.42-2.04mgC/mgO₃)⁸⁾中の難分解性有機物量に相当する量であることから、本実験においてもこれまでの知見に沿った現象が観察されたものと考えられた。

4. まとめ

- 1) オゾン処理にともない溶出する窒素成分の約95%は有機態窒素であった。リンの溶出に関しては、オゾン添加初期における $\Delta S-P/\Delta DOC$ の値は大きくなった。無機化とは別にリン酸態リンが初期オゾン添加時に液中に溶出する機構があるものと推察された。
- 2) 溶出有機物を水素供与体とした脱窒反応により窒素除去できること、有機態窒素の無機化にともないNH₄-Nが生成するがその生成量は脱窒量より小さいことがわかった。また溶出有機炭素の約30%は難分解性物質であるが、これを差し引いても、溶出する窒素分を脱窒するに十分な量の有機炭素が溶出有機物中に存在することもわかった。よって、生物学的硝化脱窒法を活性汚泥プロセスに組み込むことで、窒素除去が可能になると考えられた。
- 3) オゾン処理汚泥より溶出するS-Pを凝集剤で除去する際、PAC、FeCl₂、FeCl₃の凝集剤の中では、固液分離させた上澄み水にPACを添加すれば汚泥量を減少させつつ、S-P除去が出来ると考えられた。
- 4) 無酸素一好気循環法をオゾン添加活性汚泥法に用いたとき、オゾンによる液化有機物は脱窒の

ための水素供与体として利用されることがわかった。無酸素槽で有機物不足となる場合には、オゾンを添加することにより脱窒を促進させる結果となった。実験結果は従来の知見から予測されるものであったが、連続処理実験においても同様な現象が生じ、処理法として活用できることが実証された。

- 5) オゾンにより汚泥を液化させると難分解性有機物も生じるために、空気系列よりもオゾン系列の方が処理水中の有機物濃度は高くなった。

オゾン添加活性汚泥法では、脱窒促進や余剰汚泥削減ならびにバルキング防止が、対照系よりも優れている点として例示されたが、一方で難分解性有機物の流出やオゾンを使用することのコスト面の課題が存在する。適用に当たっては、各々の廃水処理目的から総合的に判断する必要があると考えられる。

謝辞：本研究の一部は(財)昭和シェル石油環境研究助成財団の助成(萌芽的研究)、科学研究費、愛媛大学開発支援経費を受けました。また研究遂行にあたり愛媛大学工学部環境建設工学科/大学院生産環境工学専攻 水環境工学研究室の学生諸氏の多大なる協力を得ました。最後に記して謝意を表します。

引用・参考文献

- 1) H.Yasui, and M.Shibata: An innovative approach to reduce excess sludge production in the activated sludge process, *Wat. Sci. Tech.*, Vol.30, No.9, pp.11-20, 1994.
- 2) H.Yasui, K.Nakamura, S. Sakuma, M.Iwasaki and Y.Sakai: A full-scale operation of a novel activated sludge process without excess sludge production, *Wat. Sci. Tech.*, Vol.34, No.3-4, pp.395-404, 1996.
- 3) T.Kamiya and J.Hirotsuji: New combined system of biological process and intermittent ozonation for advanced wastewater treatment, *Wat. Sci. Tech.*, Vol.38, No.8-9, pp.145-153, 1998.
- 4) Magdalena A. Dytczak, Kathleen L. Londry, Hansruedi Siegrist, and Jan A. Oleszkiewicz: Ozonation reduces sludge production and improves Denitrification, *Water Research*, Vol.41, pp.543-550, 2007.
- 5) M.Boehler, and H.Siegrist: Partial ozonation of activated sludge to reduce excess sludge, improve denitrification and control scumming and bulking, *Wat. Sci. Tech.*, Vol.49, No.10, pp.41-49, 2004.
- 6) W.Saktaywin, H.Tsuno, H.Nagare, and T.Soyama: Advanced sewage treatment with excess sludge reduction and phosphorus recovery, *Water Research*, Vol.39, pp.902-

- 910, 2005.
- 7) 日本下水道協会: 下水試験方法 -1997年版-.
- 8) F.Nishimura: Alternation and Reduction Characteristics of Activated Sludge by Ozonation, *J. of KKNN(Advances in Asian Environmental Engineering)*, Vol.1, No.1, pp.33-38, 2001.
- 9) 宗宮功, 津野洋共著: 水環境基礎科学, コロナ社, p.95, 1997.
- 10) 宗宮功, 津野洋共著: 環境水質学, コロナ社, pp.147-148, 1999.
- 11) F.Nishimura, G.Kato, T.Fujiwara: Improvement and Reduction of Activated Sludge by ozonation and its application to wastewater treatment, *Proceedings of the 15th OZONE WORLD CONGRESS*, London 2001, Vol. I, pp.324-331, 2001.
- 12) 松本利通: 3次処理としての脱リン, 用水と廃水, Vol.20, No.1, pp.63-69, 1978.
- 13) 金咲蘭, 宗宮功: オゾン処理による活性汚泥の糸状性, バルキング制御効果の定量化, 環境技術, Vol.27, No.8, pp.590-597, 1998.
- 14) 五井正季, 西村孝彦, 宇城碩弥, 大河内孝, 村上孝雄, 須賀研二: オゾン添加による放線菌スラム抑制技術, 第32回下水道研究発表会講演集, pp.559-561, 1995.
- (2007. 5. 25 受付)

Characteristics of Biological Removal of Organic compounds and Nutrients in Ozone-Added Activated Sludge Process

Fumitake Nishimura¹, Go Katoh², Taku Fujiwara³, Hirosh TSUNO¹,
Michiko MASUDA⁴ and Masahiro WATANABE²

¹Dept. of Urban and Environmental Engineering, Kyoto University

²Dept. of Civil and Environmental Engineering, Ehime University

³Dept. of Environmental Engineering, Kohci University

⁴Dept. of Architecture and Civil Engineering, Nagoya Institute of Technology

Ozone-added activated sludge process is one of the modified processes for reduction of excess sludge production. However, nutrients(N, P) in activated sludge are also dissolved by ozonation in this process, and their concentrations in the effluent become higher as a result. In this study, solubilization characteristics of activated sludge by ozone were firstly investigated, and the treatment methods which seem to be most effective for organics and nutrient removal were selected. Then nitrification-denitrification process was investigated for nitrogen removal in ozone-added activated sludge process. It was shown that organic materials from solubilized activated sludge could be used as electron donors for biological denitrification, and nitrogen removal efficiency was higher in the ozone-added activated sludge process than a conventional activated sludge process in the case that carbon-nitrogen(C/N) ratio was lower in the influent. It is verified that ozone-added activated sludge process is also applicable for nitrogen removal.