

嫌気好気ろ床法における硝化・脱窒

Characteristics of Nitrification and Denitrification in an Anaerobic-Aerobic Filter Process

小 玉 実 阿 部 芳 久¹⁾
紀 岡 利 一¹⁾ 岩 城 秀 夫¹⁾

要 約

嫌気好気ろ床法に窒素除去機能を付加すべく、下水処理場(Kクリーンセンター)に試験装置を設置、硝化液循環型の生物学的脱窒素法による窒素除去性能とそれに係わる運転条件などについて実下水を用いて確認した。窒素除去のための嫌気好気ろ床プロセスは従来の第一・第二嫌気ろ床と好気ろ床の間に、脱窒槽と予備曝気槽を挿入した形式で、新たに追加される脱窒槽は固定化担体を用いる流動床方式とし、従来の好気ろ床には放流水の仕上げ処理と硝化を兼用させるものである。

硝化速度と脱窒速度の最大値は、それぞれ約 $0.4 \text{ kg NO}_3\text{-N/m}^3/\text{day}$, $0.5 \text{ kg NO}_3\text{-N/m}^3/\text{day}$ を得た。水温が 10°C 程度でも硝化が進んだこと、脱窒にはメタノールの添加が必要であること、また、担体流動に採用したRB ミキシングシステムは脱窒槽水面における担体浮遊や停滞などを完全に防止でき、かつ、使用する担体の形状、比重並びに担体充填率を変化させても、インペラの回転数を変えることで効率的な担体流動が可能になること、などが分かった。

目 次

- I. はじめに
- II. 試験方法
- III. 試験結果と検討
- IV. まとめ

I. はじめに

嫌気好気ろ床法による下水処理法は、汚泥の発生量が非常に少ないこと、維持管理が容易で負荷変動に強く省エネルギーであることなどから、その普及率は近年増加傾向にある。

一方、湖沼、閉鎖性水域において、富栄養化現象の改善スピードは遅く、各種下水処理法に対する窒素・リン除去への要請は年々高まってきている。

しかし、これまでの嫌気好気ろ床法は、基本的に有機物(BOD)除去を目的としたもので、窒素とリン除去機能は合わせ持っていない。

今回、嫌気好気ろ床法に窒素除去機能、すなわち、これまで各方面で知見が蓄積されつつある硝化液循環型の生物学的脱窒素法¹⁾を付加する目的で、脱窒槽などの窒素除去装置を下水処理場に併置、実下水を用いた実証試験で、窒素除去性能並びに窒素除去に係わる運転条件などについて明らかにした。

II. 試験方法

1. 試験場所、嫌気好気ろ床法

試験場所は山梨県のKクリーンセンターである。大略 $1,000\text{m}^3/\text{日}$ (夏の観光シーズン)、及び $500\text{m}^3/\text{日}$ (その他のシーズン)の下水流入量がある。

嫌気好気ろ床法は、一般的に、嫌気ろ床(滞留時間 23~25 時間)

で下水中の有機物の大部分が除去されるように計画され、第一・第二嫌気槽(皿状ろ材など充填)が直列に配置される。好気ろ床(滞留時間 1.6 時間程度)は、仕上げ処理に位置付けされている。

2. 実証試験装置

実証試験装置は Fig.1(次ページ)の破線で囲まれた部分で、脱窒槽、予備曝気槽、好気槽、処理水槽、さらにはメタノール・塩化アンモニウム・水酸化ナトリウム槽で構成される。試験装置の概略仕様を Table 1 に示す。

(1) 脱窒槽

脱窒槽は流動床方式とした。固定化担体は窒素ガスの抱き込みによる脱窒槽水面への浮上・停滞が懸念されたので、Fig.2 に示すようなRB(Radial Baffles)ミキシングシステムを採用し、水面近くのインペラと槽底部に設置したバップルの相互作用によって、脱窒槽

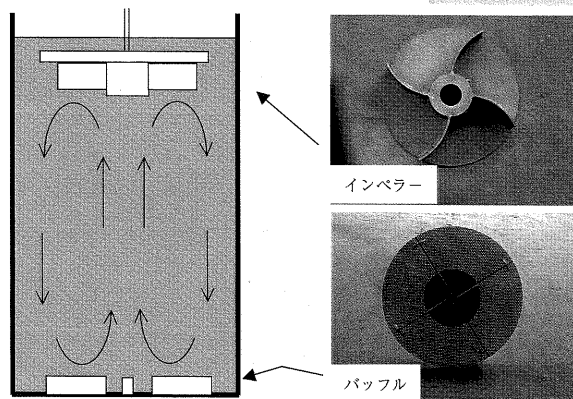


Fig.2 Radial Baffles (RB) Mixing System for Denitrification Basin

1) 環境本部

キーワード：下水処理、硝化、脱窒、嫌気好気ろ床

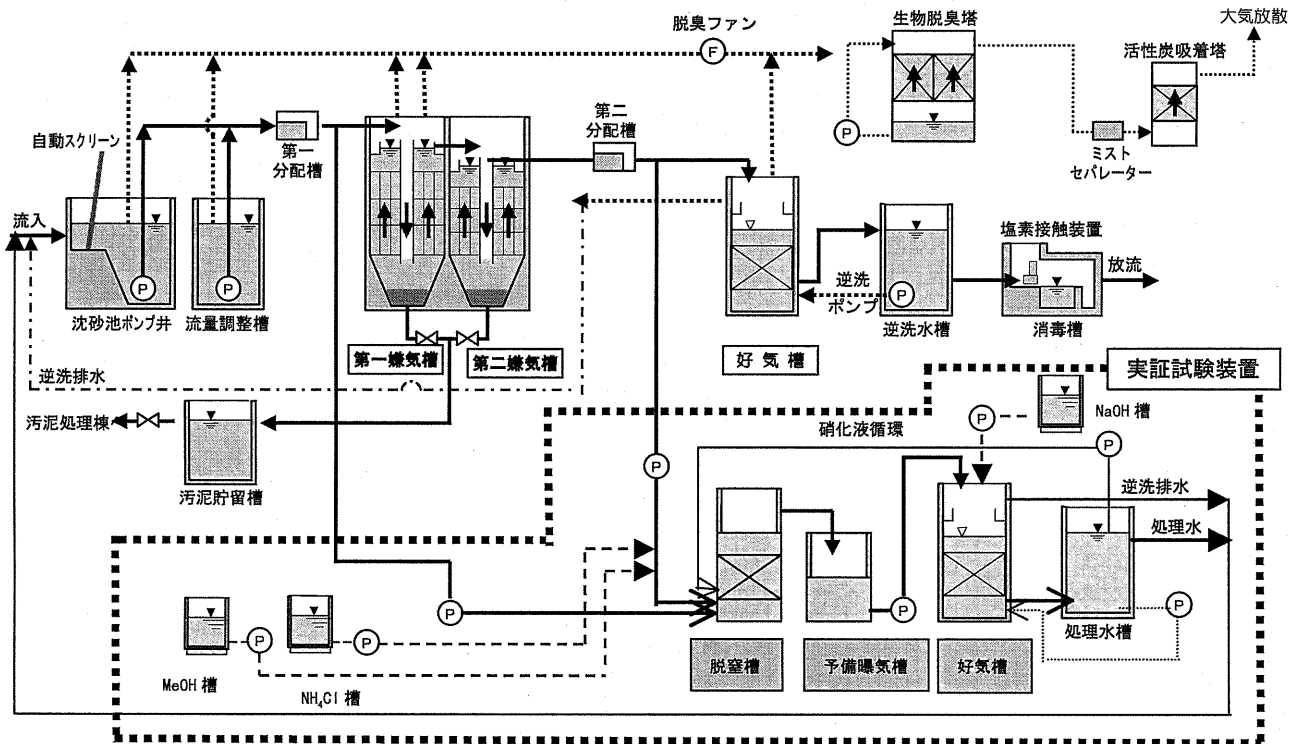


Fig.1 Flow Diagram of Existing Anaerobic-Aerobic Filter Process and Nitrification-Denitrification Field Evaluation Plant

Table 1 Design Specifications of the Field Evaluation Plant

	脱窒槽	予備曝気槽	好気槽	処理水槽	MeOH・NH ₄ Cl・NaOH槽
形状	400mm ^φ 2500mm ^H	900mm ^φ 700mm ^H	500mm ^φ 4000mm ^H	1000 ^φ 2600mm ^H	400mm [□] ・500mm ^H ×3ヶ
有効容積	220 l	500 l	390 l(ろ床部)	1900 l	各50 l

Table 2 Operational Conditions for the Field Evaluation Experiments

実験ケース	試験装置流入水・流量	循環比	MeOH 添加有無	NH ₄ Cl 添加有無	pH調整 有無	試験期間
CASE 1	原水1.0m ³ /day 嫌気流出水1.0m ³ /day	1	無	無	無	03.3.10-3.25
CASE 2	嫌気流出水2.0m ³ /day	2	有	無	無	03.4.21-4.28
CASE 3	嫌気流出水2.5m ³ /day	3	有	有	有	03.7.29-8.22
CASE 4	嫌気流出水5.0m ³ /day	2	有	有	有	03.9.5-9.30

中心部における上昇流と周辺部での下降流のフローパターンを維持できるようにした。

脱窒槽にはスポンジ状の固定化担体（セルロース製 5mm立方体及び10mm立方体担体を等量混合）を有効容積当たり40%の充填率で投入した。

(2) 好気槽（硝化槽）

ろ材はペレット状（径3～5mm，長さ10mm）で，みかけ比重は

0.5～0.6，珪酸アルミ系の材質である。洗浄は1回/日，空気洗浄約4分間実施後，処理水槽貯留水で約5分間逆洗した。

3. 実証試験装置運転条件，試験期間

運転条件をTable 2に示す。試験装置流入水はFig.1の第一分配槽流出水（以下原水と呼ぶ）と第二分配槽流出水（以下嫌気流出水と呼ぶ）である。また，試験期間は2003年3月～9月である。

水質分析頻度は一週間当たり1～2回とし，分析方法はJIS K0102 工場排水試験法に準じた。

Ⅲ. 試験結果と検討

1. 硝化速度

Fig.3にK-N（ケルダール窒素：NH₄-N＋有機態窒素）容積負荷と硝化速度のデータを示す。

硝化速度は，好気槽でのNO₃-N生成量ベースで，「((好気槽流出水 NO₃-N)－(好気槽流入水 NO₃-N))×好気槽流入水量/好気槽ろ床部容積」で算出した。

また，K-N容積負荷は，(好気槽流入水 K-N×好気槽流入水量/好気槽ろ床部容積)で算出した。

Fig.3の直線は硝化率100%を示す。最大の硝化速度は0.41 kg NO₃-N/m³/dayで，その時のK-N容積負荷は0.52 kg K-N/m³/dayであった。

K-N容積負荷0.2 kg K-N/m³/day付近で硝化率100%を超える硝化

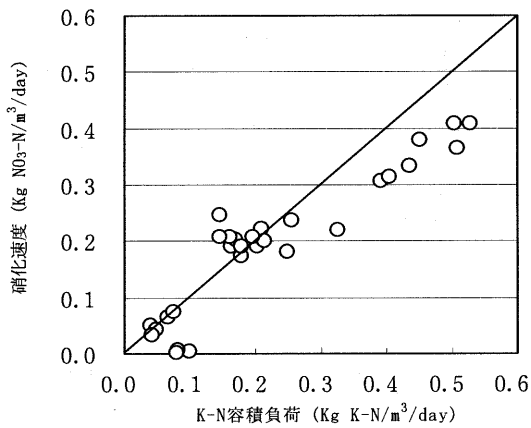


Fig.3 Correlation between Nitrification Rate and Volumetric K-N Loading Rate in Aerobic Filter (Basin)

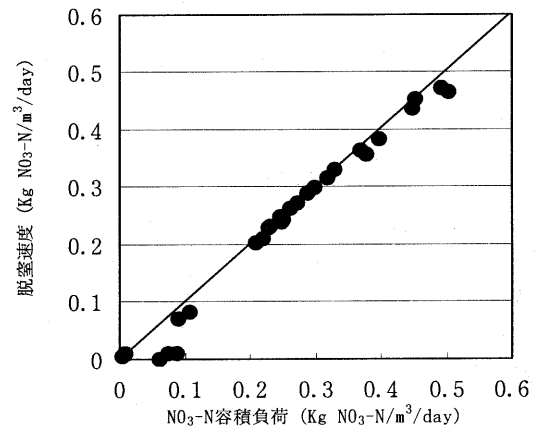


Fig.4 Correlation between Denitrification Rate and Volumetric $\text{NO}_3\text{-N}$ Loading Rate in Anaerobic Filter (Basin)

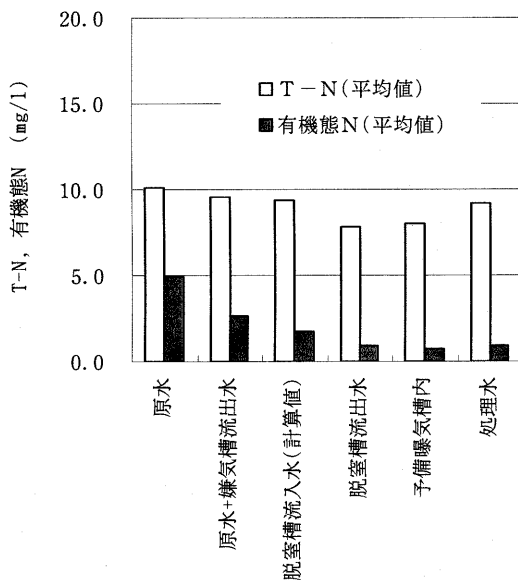


Fig.5 T-N and Org-N Concentration Profile (Case 1)

速度がプロットされているが、好気槽ろ床内に蓄積した SS 由来の窒素分硝化によるものと考えられる。

2. 脱窒速度

Fig. 4 に $\text{NO}_3\text{-N}$ 容積負荷と脱窒速度のデータを示す。図中の直線は脱窒率 100%を示す。最大の脱窒速度は $0.47\text{kg NO}_3\text{-N/m}^3/\text{day}$ で、その時の $\text{NO}_3\text{-N}$ 容積負荷は $0.49\text{kg NO}_3\text{-N/m}^3/\text{day}$ であった。

3. 原水 T-N 濃度が 10~15mg/l レベルでのメタノール添加なしの条件下における窒素除去 (CASE 1)

脱窒反応に必要な S-BOD(溶解性 BOD)を確保する目的で、CASE 1 のみ、原水 (第一分配槽) と嫌気流出水 (第二分配槽) の等量混合液を脱窒槽へ流入させた。T-N (全窒素: $\text{K-N} + \text{NO}_3\text{-N} + \text{NO}_2\text{-N}$) 平均値は、原水が 10.1mg/l 、「原水+嫌気流出水」混合液は 9.5mg/l 、処理水は 9.2mg/l であり、T-N の除去は不十分であった (Fig. 5)。なお、Fig. 5 の脱窒槽流入水 (計算値) は硝化液の返送を考慮した値である (以下同じ)。

CASE 1 は水温が 10°C 程度と低く (Fig. 6)、硝化と脱窒への悪影響が懸念された。硝化槽では、処理水 (好気槽流出水) の $\text{NH}_4\text{-N}$ がゼ

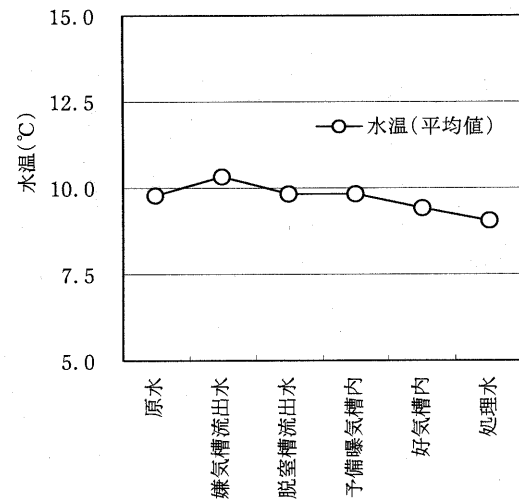


Fig.6 Water Temperature Profile (Case 1)

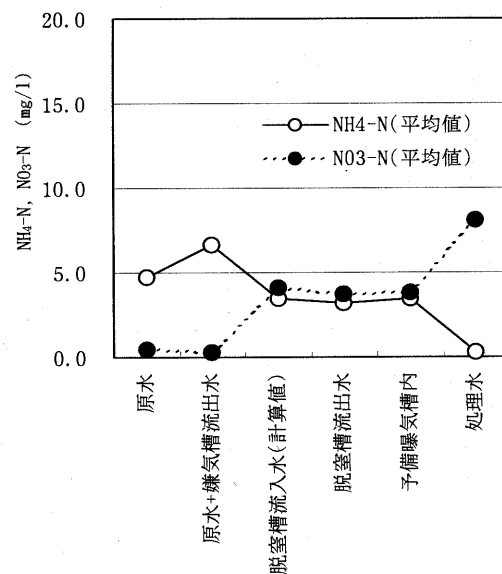


Fig.7 $\text{NH}_4\text{-N}$ and $\text{NO}_3\text{-N}$ Concentration Profile (Case 1)

口近くまで低下、それに対応した $\text{NO}_3\text{-N}$ の増加 (Fig. 7) が生じていることから、 10°C 程度の低温条件下でも硝化反応は十分進んだ。一方、脱窒反応は不十分であった。水温が 10°C 程度と低いことに加え、脱窒反応に必要な条件とされる S-BOD の不足が懸念された。ちなみに、脱窒槽流入水の S-BOD と $\text{NO}_3\text{-N}$ の比は約 2.3 と計算された。

4. 原水 T-N 濃度が $10\sim 15\text{mg/l}$ レベルでのメタノール添加条件下における窒素除去 (CASE 2)

CASE 2 は、K クリーンセンター流入下水の T-N レベルを対象とした場合に、処理水 T-N を 10mg/l 以下にするための窒素除去運転条件について確認したものである。

CASE 2 に先立って実施された CASE 1 の試験で、脱窒反応に必要な電子供与体不足が懸念されたのでメタノールを添加した。

T-N の平均値は、原水が約 16mg/l 、嫌気流出水は、約 13mg/l で、

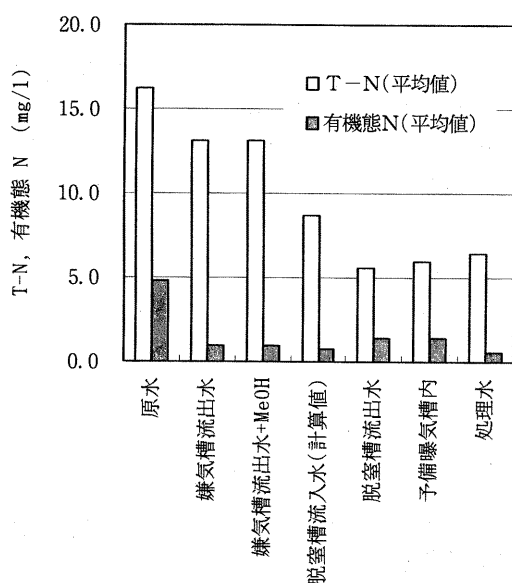


Fig.8 T-N and Org-N Profile (Case 2)

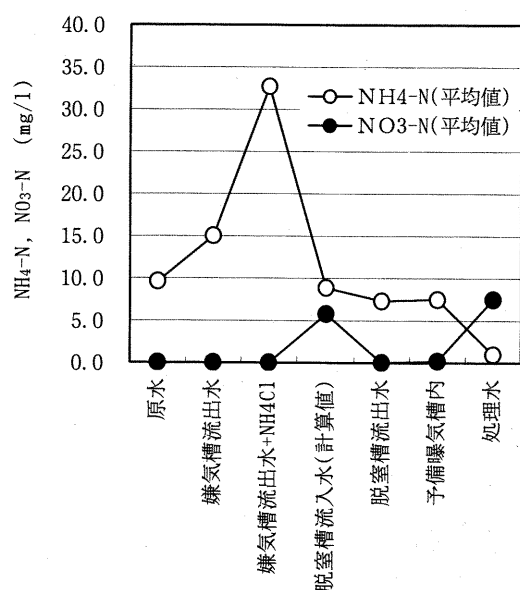


Fig.10 $\text{NH}_4\text{-N}$ and $\text{NO}_3\text{-N}$ Concentration Profile (Case 3)

処理水は約 7mg/l となった。T-N 除去率は原水基準で 60%、嫌気流出水基準で 51% となった (Fig. 8)。なお、循環比は 2 なので、嫌気流出水基準の無機態窒素理論除去率は 67% と計算される。

水温は約 15°C (図省略)、メタノール添加量は、脱窒槽流入水 $\text{NO}_3\text{-N}$ の約 2.7 倍(重量比)と計算された。

5. 高い原水 T-N 濃度 30mg/l レベルでのメタノール添加, pH 調整有りの条件下における窒素除去 (CASE 3)

原水の T-N が高い場合を想定して、嫌気流出水の T-N が 30mg/l 程度になるよう塩化アンモニウムを添加した。また、塩化アンモニウムの増加 ($\text{NO}_3\text{-N}$ 生成量増加) による好気槽の pH 低下が懸念されたので、水酸化ナトリウムで pH 調整した。さらには T-N 除去率を向上させる目的で循環比を 3 に設定した。

「嫌気流出水+ NH_4Cl 」の T-N 平均値は、約 33mg/l で、処理水は

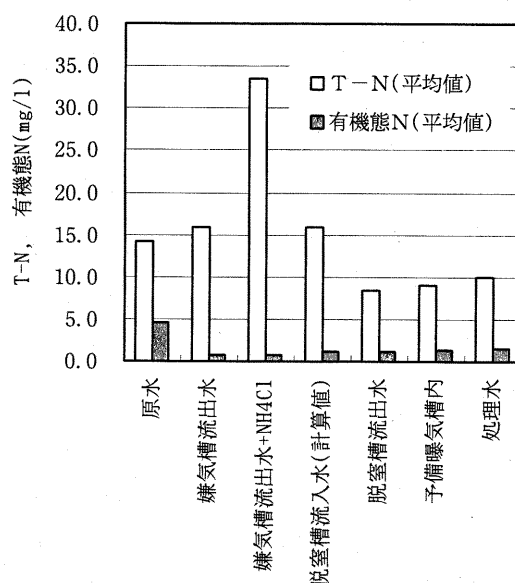


Fig.9 T-N and Org-N Profile (Case 3)

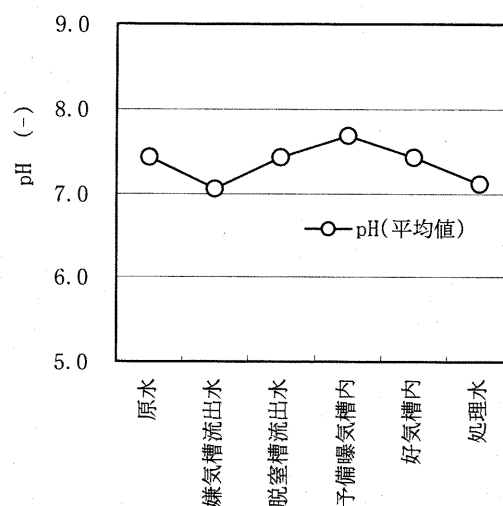


Fig.11 pH Profile (Case 3)

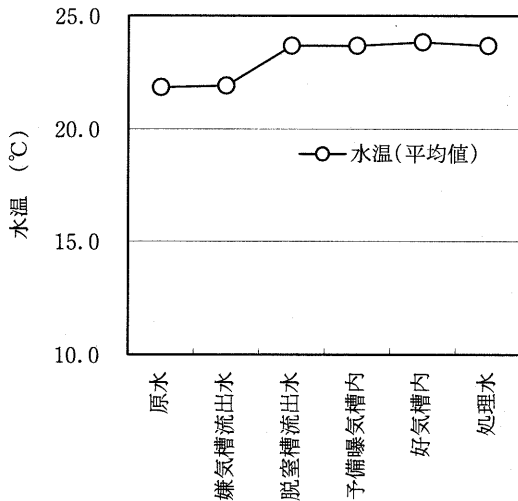


Fig.12 Water Temperature Profile (Case 3)

約 10mg/l, T-N 除去率は 70% であり (Fig. 9), 処理水 T-N 10mg/l を満足する見通しを得た。なお、循環比は 3 なので、嫌気流出水基準の無機態窒素理論除去率は 75% と計算される。

硝化・脱窒反応は、ほぼ 100% 進んだ処理水 (好気槽流出水) の $\text{NH}_4\text{-N}$ がゼロ近くまで低下、それに対応した $\text{NO}_3\text{-N}$ の増加があり、また、脱窒槽流出水の $\text{NO}_3\text{-N}$ がゼロになっている (Fig. 10)。

ちなみに、硝化・脱窒反応の影響因子について、脱窒槽流出水、好気槽 (硝化槽) の pH は、共に 7.4 (Fig. 11), 水温は 22~23°C (Fig. 12), DO は、脱窒槽流出水がほぼゼロ、好気槽は 4.7mg/l であった (Fig. 13)。

メタノール添加量は、脱窒槽流入水 $\text{NO}_3\text{-N}$ の約 3.3 倍、脱窒槽流入水の S-BOD と $\text{NO}_3\text{-N}$ との比は 4.2 と計算された (Fig. 14)。

6. 高い水量負荷における原水 T-N 濃度 30mg/l レベルでのメタノール添加, pH 調整有りの条件下における窒素除去 (CASE 4)

最大の硝化速度と脱窒速度を得る目的で、水量負荷を上げた試験を行った。

「嫌気流出水 + NH_4Cl 」の T-N の平均値は、約 30mg/l, 処理水は約 13mg/l であり、T-N 除去率は 56% となった。 (Fig. 15)。なお、循環比は 2 なので、嫌気流出水基準の無機態窒素理論除去率は 67% と計算される。

最大硝化速度は 0.41kg $\text{NO}_3\text{-N}/\text{m}^3/\text{day}$ (Fig. 3) を得た。

CASE 4 では、処理水に残留する $\text{NH}_4\text{-N}$ のレベルは 2~3mg/l 程度と CASE 1~3 までの処理水残留 $\text{NH}_4\text{-N}$, 1mg/l 以下に比較して高くなっていることから (Fig. 16), ここで得られた硝化速度は、本方式・運転条件で達成できる最大値と考えられた。なお、水温は約 22°C, 好気ろ床の滞留時間 (好気槽ろ床部容積/好気槽流入水量) は約 40 分, ろ過速度 (好気槽流入水量/ろ床部水面積) は約 8 0m/day である。

最大脱窒速度は 0.47kg $\text{NO}_3\text{-N}/\text{m}^3/\text{day}$ を得た (Fig. 4) が、脱窒槽流出水の $\text{NO}_3\text{-N}$ がほぼ 0 となっていることから (Fig. 16), 脱窒槽にはまだ余裕があり、本方式での最大脱窒速度は、ここで得られた脱窒速度を上回る可能性がある。

水温は 22°C, メタノール添加量は、脱窒槽流入水 $\text{NO}_3\text{-N}$ の約 2.2 倍、脱窒槽流入水の S-BOD と $\text{NO}_3\text{-N}$ との比は 2.8 と計算された。

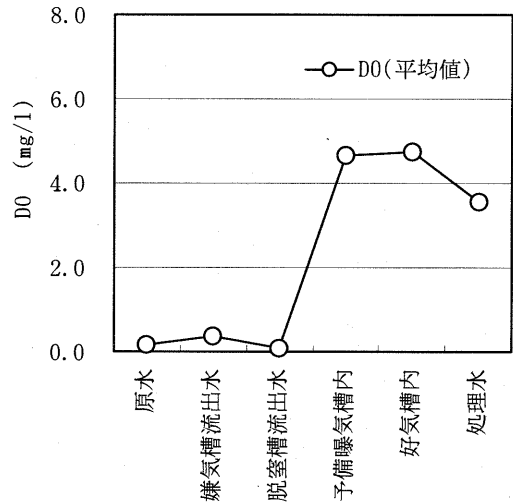


Fig.13 DO Profile (Case 3)

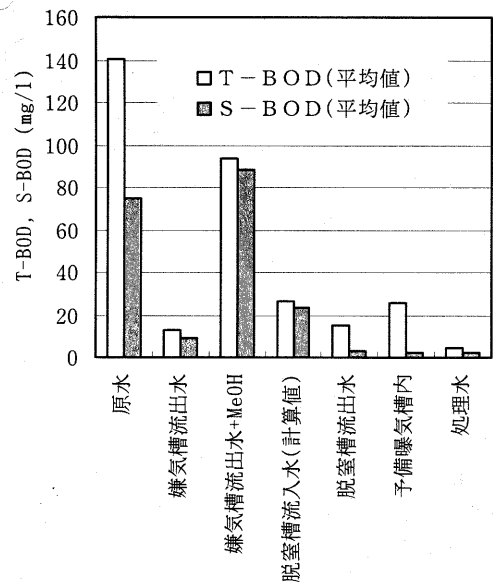


Fig.14 T-BOD and S-BOD Concentration Profile (Case 3)

IV. まとめ

1. 硝化について

硝化反応の操作条件として、至適水温と pH がそれぞれ 20~35°C, 7.0~8.5, 並びに溶存酸素が十分にあること、さらには、T-BOD (全 BOD) が低いこと、などが上げられている。また、水温が 15°C 以下では著しい活性低下があるとされている¹⁾。

原水の T-N が 10mg/l と低い濃度ではあったが、水温 10°C でも十分に硝化反応は進んだ。また、得られた硝化速度の最大値は約 0.4kg $\text{NO}_3\text{-N}/\text{m}^3/\text{day}$ で、その時の K-N 容積負荷は約 0.5kg $\text{K-N}/\text{m}^3/\text{day}$ であった。

なお、ここで得られた硝化速度は本方式、運転条件での最大値と考えられ、ほかの実験例²⁾の硝化速度、約 0.4kg $\text{N}/\text{m}^3/\text{day}$ とほぼ同程度の値であった。

2. 脱窒について

脱窒反応の至適水温と pH は、それぞれ 20～35℃、7.0～8.0 であり、また、DO は 0.1mg/l 以下であることが大切とされている。さらに、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の約 3 倍量の S-BOD（電子供与体）が必要とされる¹⁾。

水温 10℃ で脱窒槽流入水の S-BOD と $\text{NO}_3\text{-N}$ との比が 2 程度の条件下では脱窒反応は不十分であった。この原因として、低い水温と脱窒反応に必要な S-BOD 不足が考えられた。また、ほかのグループの同様な実験²⁾での指摘「高負荷時・低温時の条件においても脱窒反応に必要な有機炭素源が十分にあれば、目標とする T-N 除去率を達成できる」を合わせ考えると、水温よりも S-BOD 不足が原因で脱窒反応が進まなかったものと推測された。

嫌気好気ろ床法では原水中の T-BOD は嫌気ろ床で 5～8 割除去される³⁾ことから、脱窒反応に利用できる S-BOD を十分に確保できない状況になってしまう。これまでの実験から総合的に判断して、少なくとも脱窒槽流入水 S-BOD と $\text{NO}_3\text{-N}$ との比を約 3 にするようなメタノール添加が必要と考えられた。

3. 脱窒槽の担体流動方式について

RB ミキシングシステムは、某化学機械メーカーが槽内に竜巻現象を再現できるように考えたものである。また、インペラ部分は、担体の磨耗防止のため、回転方向に向かって緩やかな凸面状インペラとし、さらに水面近くの攪拌渦による空気混入を防ぐため、インペラ上部を円盤で覆う工夫をした。槽中心部での竜巻状上昇流と槽周辺部の下降流により、槽水面での担体浮遊や停滞などは全く観察されなかった。ドラフトチューブなど特別な装置が不要なこのような担体流動方式の採用とインペラ回転数のインバーター制御によって、使用される担体の形状、比重並びに担体充填率に関する選択肢はかなり広がり、より低コストの担体の選別や種類の異なる担体の混合使用が可能であると考えられた。

4. 窒素除去率について

脱窒槽流入水（試験装置流入水）ベース窒素除去率について、試験で得られた窒素除去率を 100% の硝化と脱窒が行われた場合の返送比を考慮した窒素理論除去率で除した値は、CASE 2: 76%、CASE 3: 93%、CASE 4: 83% であり、CASE 2 が一番小さい値であった。上記運転条件の内、値の小さな CASE 2 は水温が 15℃ 付近で最も低い。窒素除去率に影響を与える因子として水温は常に念頭に置いておくべき項目と考えられた。

また、CASE 1～4 の試験ケースすべてにおいて、予備曝気槽内の T-N よりも処理水の T-N が高く、その原因として好気槽における $\text{NH}_4\text{-N}$ 減少よりも、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 増加量の大きいことが上げられる。 $\text{NO}_3\text{-N}$ の増加は好気槽ろ床蓄積 SS 由来の窒素分の硝化によるものと考えられ、逆洗回数を増やすなどの対策が必要と考えられた。

5. リン除去について

リン除去は、今回は検討の対象外で、今後の課題である。 $\text{PO}_4\text{-P}$ （溶解性）は原水が 0.7～1.8mg/l、嫌気流出水は 1.0～2.9mg/l で、いずれの試験ケースにおいても嫌気流出水の方が高く、嫌気ろ床に

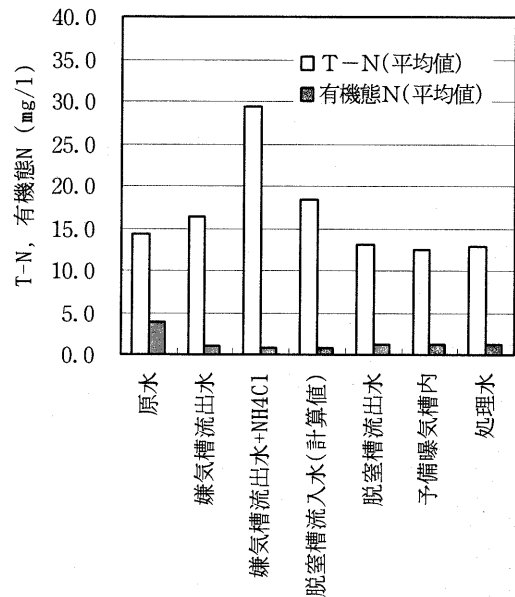


Fig.15 T-N and Org-N Profile (Case 4)

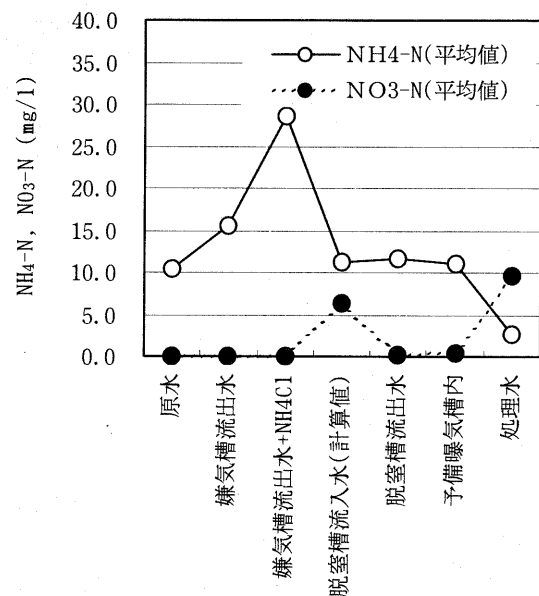


Fig.16 $\text{NH}_4\text{-N}$ and $\text{NO}_3\text{-N}$ Concentration Profile (Case 4)

おいては流入下水 SS に由来するリンの可溶化が起こっているものと考えられた。

参考文献

- 1) 化学工学協会編，生物学的水処理技術と装置，1978.
- 2) 松原淳，鷹取信，浜本洋一；嫌気好気ろ床における窒素除去の処理性能について，第 40 回下水道研究発表会講演集，(2003) .
- 3) 日本下水道事業団技術開発部，技術開発部報，新技術導入の事後評価に関する調査－嫌気好気ろ床－，1999.