

# し尿中の窒素成分の生物学的除去

## に関する中間実用化研究 (第1報)

土屋 隆夫  
(公害分析センター)

川原 浩

井上 亙

備藤 敏次

菊地 幹夫

古井戸 良雄

石丸 罔雄  
(東京農業大学)

大山 銀四郎  
(東京農業大学)

渡辺 勇  
(清化園衛生組合)

### 1 緒言

現在し尿処理場において、し尿はまず消化処理あるいは化学処理をほどこされ、さらに活性汚泥法により処理されて河川に放流されている。この活性汚泥法はBOD成分の除去には大変有効だが、し尿中に多量に含まれている窒素化合物(NH<sub>4</sub>-N, Org-N, NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N)やリン化合物の除去にはあまり効果がなく、これらの多くはそのまま河川に流れ込んでしまっているのが現状である。ところで河川に流入したNH<sub>4</sub>-Nは河川水を上水道として利用するさいに塩素要求量を増大させるとともに、窒素化合物とリン化合物は植物の栄養塩類であるため流入した河川において藻類の過度の生長を誘発し、水質のいちじるしい悪化を引き起こすことになる。そこでまずし尿中からの窒素成分除去技術の実用化について検討を行なうことにした。

窒素成分の除去方法には、

- アンモニアのエアストリップング(化学的脱窒素法)
- 生物学的硝化脱窒素法
- 酸化池法(緑藻による資化)
- 森林かんがい法
- 塩素処理法

などが考えられているが、これらの方法のうち生物学的硝化脱窒素法は、次の理由から実用化が有望であると言われている<sup>1)</sup>。

- 高度の除去率が得られる。
- プロセスに安定性と信頼性がある。
- プロセス管理が簡単である。
- 土地面積を多く要しない。

v) コストが望ましいレベルである。

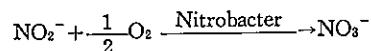
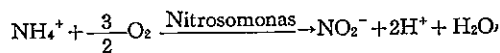
また、すでに遠矢らによりこの方法における硝化反応と脱窒素反応の速度論的基礎研究および小型プラントによる実用化実験が行なわれているので、ある程度の基礎データがあり、また実用化実験についての見通しもある。以上の理由から筆者らは生物学的硝化脱窒素法によるし尿中の窒素成分の除去技術について中間実用化研究を行なった。この報告はし尿中の窒素成分が生物学的硝化脱窒素法によりどの程度除去できるか化学的脱窒素法と比較検討し、あわせて脱窒素反応の有機炭素源として何をいいたらよいか検討することを目的としている。

### 2 生物学的硝化脱窒素法の理論

NH<sub>4</sub>-Nは硝化菌の働きによりNO<sub>2</sub>-NまたはNO<sub>3</sub>-Nにかえられ、次にNO<sub>2</sub>-NまたはNO<sub>3</sub>-Nは有機炭素源の存在下において脱窒素菌の働きによりN<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, NO<sup>-</sup>等のガスにかえられる。

#### (1) 硝化反応

NH<sub>4</sub>-Nに対しNitrosomonasおよびNitrobacterの2種の硝化菌により次のような2段階の酸化が行なわれる。



NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の一部は細胞資質に資化される。

硝化反応は活性汚泥法のような好気的プロセスにおいて、操作条件、環境条件が適当であれば技術上必要の程度に進行する。なお反応液中にNO<sub>2</sub>-Nが100mg/l以上蓄積するとNitrosomonas, NitrobacterだけでなくBOD酸化菌の機能まで阻害される<sup>2)</sup>。また、硝化菌は基

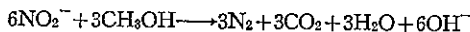
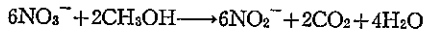
質中の溶存硫化物によって活性阻害を受け、Nitrobacterの活性に対する阻害の限界濃度はSとして5mg/ℓ程度であり、Nitrosomonasのそれは80mg/ℓ程度である。しかしこの硫化物の生物毒作用は鉄塩の添加によってほぼ完全に解消することができる。硝化反応は主にNO<sub>2</sub><sup>-</sup>が生成するかNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が生成するかによって便宜上亜硝酸型と硝酸型に分けられるが、硝化反応の条件は表1のようにまとめられている。

表1 硝化反応の条件

項目	型式	硝酸型	亜硝酸型
設定 pH		6.8~7.2	7.8~8.2
水温 (°C)		>15	>15
BOD・MLSS 負荷 (kg/kg day)		0.4~0.6	0.7~1.2
(MLSS 濃度) × (滞留時間) (hr・mg/ℓ)		≥30,000	≥15,000
滞留時間 (hr)		10~12	7~8
溶存酸素 (mg/ℓ)		2.5~3.5	1.0~2.0

(2) 脱窒素反応

脱窒素反応の主役となる硝酸還元菌は一般に通性嫌気性で Rseudomonas denitrificans, Pseudomonas stutzeri, Micrococcus denitrificans ほか数種類があげられているが、遠矢の研究によると、し尿処理プラントにおいては、Pseudomonas denitrificans が優先種であり、Pseudomonas stutzeri が従属種となる生物構成をとっている。Pseudomonas denitrificans が活動するためには有機炭素源と嫌気の状態とが必要とされる。有機炭素源としてメタノールを用いた場合を例示すると



の2段階の反応を経て脱窒素が行なわれる。また、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の一部は細胞資質に資化される。

3 実験

(1) フローシート

し尿処理プラントのフローシートを図1に示した。

表2 プラントの運転条件\*)

実験期間 条件	昭和48年 1月~3月	昭和48年 4月~6月
し尿処理量		
生物学的硝化脱窒素法	0.375m <sup>3</sup> /day	0.500m <sup>3</sup> /day
化学的脱窒素法	0.125m <sup>3</sup> /day	0
処理水量	5.0m <sup>3</sup> /day	5.0m <sup>3</sup> /day
汚泥返送率	100%	100%
生物学的硝化脱窒素法		
硝化槽	滞留時間 15hr 完全混合型 MLSS 3660mg/ℓ pH 8.1	滞留時間 15hr 完全混合型 MLSS 3800mg/ℓ pH 6.6
脱窒素槽	滞留時間 33hr 密閉系、緩速攪拌、有機炭素源 (化学脱窒素処理し尿 0.125m <sup>3</sup> /day)	滞留時間 33hr 密閉系、緩速攪拌、有機炭素源 (メタノール 10~12ℓ/day)
再曝気槽	滞留時間 10hr) 完全混合型	滞留時間 10hr 完全混合型
沈殿池	滞留時間 3.2hr	滞留時間 3.2hr
化学的脱窒素槽	アンモニアエア ストリップング 滞留時間 48hr pH 約11 空気量 0.6Nm <sup>3</sup> /m <sup>3</sup> ・min	

\* 清化園し尿処理場の生し尿に硫酸第一鉄0.3%添加した後除渣したし尿を原料とした。

図1 フローシート

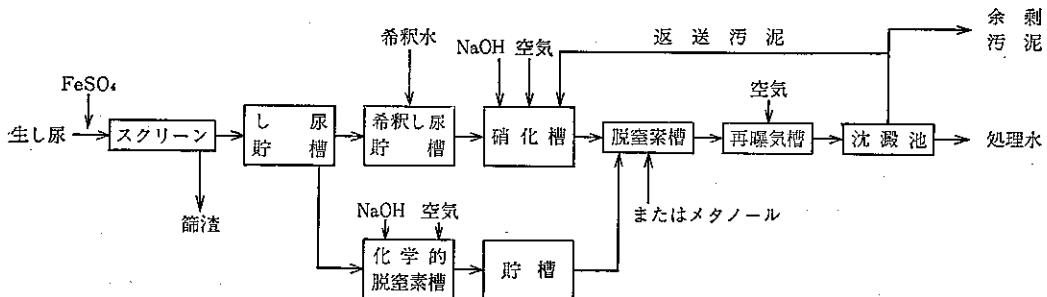
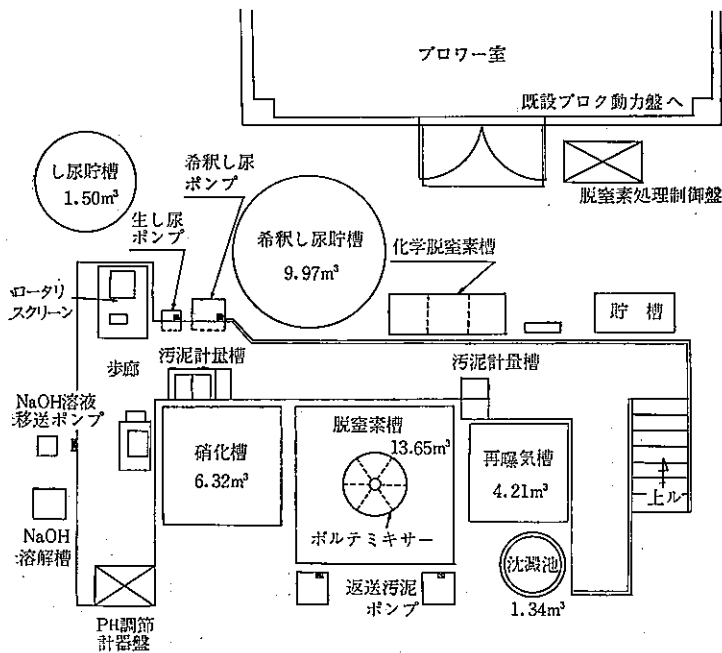


図2 パイロットプラントの配置図



下記のようにして試料水の分析をした。

pH (pHメーター), BOD (20°C, 5日間, ウィンクラーアジ化ナトリウム変法), COD (100°C, 30分,  $KMnO_4$ 法),  $NH_4-N$  (蒸留法), Org-N (ケルダール法),  $NO_2-N$  (酢酸アニリン法),  $NO_3-N$  (イオンメーター), T-N (=  $NH_4-N + Org-N + NO_2-N + NO_3-N$ )

4 結果と考察

(1) 化学的脱窒素法

化学的脱窒素法により、化学的脱窒素槽で  $NH_4-N$  がどの程度除去できるか検討した。化学的脱窒素槽の運転結果を表3に示した。化学的脱窒素槽流入水(し尿)の平均水質は  $BOD=7990mg/\ell$ ,  $NH_4-N=2380mg/\ell$  であるが、化学的脱窒素槽流

出水の平均水質は  $BOD=5610mg/\ell$ ,  $NH_4-N=990mg/\ell$  であり、 $NH_4-N$  を58%除去することができた。この化学的脱窒素槽流出水は高いBOD値をもっているため、これを生物学的脱窒素反応における有機炭素源として利用した場合、脱窒素槽に  $BOD$  は  $0.701kg/day$ ,  $NH_4-N$

(2) プラント

プラントの配置図を図2に示した。

(3) プラントの運転条件

プラントの運転条件を表2に示した。

(4) 試料水の分析

表3 化学的脱窒素槽の運転結果

試料 項目		実験日									
		1月27日	2月3日	2月10日	2月17日	2月24日	3月3日	3月10日	3月17日	3月24日	平均
し尿	BOD	—	8700	6850	6740	7950	8830	8880	—	—	7990
	COD	—	3350	3120	2650	3110	2750	2940	4050	4620	3320
	$NH_4-N$	—	2470	2320	2300	2490	2330	2180	2150	2800	2380
化学的脱窒素槽流出水	Temp	12.5	—	—	—	—	—	—	12.3	—	12.4
	pH	8.30	10.2	9.87	11.0	10.2	9.96	—	9.60	—	9.88
	BOD	—	6890	3970	8430	5790	3520	5030	—	—	5610
	COD	—	967	2600	3050	1800	1450	2660	2860	—	2200
	T-N	—	1450	1070	1800	1030	1020	—	—	—	1270
	$NH_4-N$	—	1340	710	1250	595	458	1120	1460	—	990
	Org-N	—	110	360	548	439	562	—	—	—	404
	$NO_2-N$	—	Tr	Tr	Tr	—	—	—	—	—	Tr
$NO_3-N$	—	Tr	Tr	Tr	—	—	—	—	—	Tr	

(単位) Temp (°C)

BOD, COD, T-N,  $NH_4-N$ , Org-N,  $NO_2-N$ ,  $NO_3-N$  (mg/ℓ)

表4 プラントの運転結果

試料 項目		実験日									
		1月27日	2月3日	2月10日	2月17日	2月24日	3月3日	3月10日	3月17日	3月24日	平均
希釈し尿	BOD	802	689	613	579	788	634	850	—	—	625
	COD	426	249	268	248	149	232	359	381	317	292
	T-N	272	257	244	246	274	240	—	—	261	256
	NH <sub>4</sub> -N	232	232	238	219	238	169	188	240	254	223
	Org-N	40.4	25.0	6.3	26.6	36.2	71.0	—	—	7	29.4
硝化槽流出水	Temp	17.8	15.3	16.2	18.1	17.9	16.2	18.0	16.5	23.0	17.7
	pH	8.70	8.62	8.31	8.80	8.71	7.80	8.40	6.80	6.91	8.12
	SS	4080	3700	4400	3870	3770	2550	3050	3870	—	3660
	BOD	16.3	41.1	18.6	24.4	7.1	21.3	16.9	—	—	20.8
	COD	74.1	48.9	48.2	50.3	48.4	37.3	43.8	52.3	53.0	50.7
	T-N	210	—	170	158	159	—	—	—	283	196
	NH <sub>4</sub> -N	1.4	6.5	2.5	2.9	Tr	Tr	0.5	48.6	17.9	8.9
	Org-N	Tr	—	2.5	2.1	3.6	—	—	—	—	2.1
	NO <sub>2</sub> -N	7.0	9.3	13.2	5.6	16.3	9.9	Tr	Tr	Tr	6.8
	NO <sub>3</sub> -N	202	243	152	147	139	124	132	60	82	142
脱窒素槽流出水	Temp	14.9	12.4	13.3	16.3	16.0	14.6	15.3	13.7	17.2	14.9
	pH	8.52	8.90	8.92	9.10	9.11	8.39	8.40	7.30	7.90	8.50
	BOD	18.3	45.7	64.2	57.9	24.7	20.9	24.5	—	—	36.6
	COD	62.6	59.4	65.5	59.4	57.9	43.7	50.9	46.9	51.0	55.3
	T-N	—	—	161	122	125	—	—	—	—	136
	NH <sub>4</sub> -N	6.3	18.5	25.8	15.4	26.5	6.9	13.8	41.4	16.6	19.0
	Org-N	—	—	2.1	0.3	Tr	—	—	—	—	0.8
	NO <sub>2</sub> -N	2.2	2.5	10.3	5.6	8.5	—	Tr	Tr	Tr	3.6
	NO <sub>3</sub> -N	222	217	123	101	90	—	162	60	42	127
	再曝気槽流出水	Temp	—	11.0	12.1	15.2	15.3	13.6	13.5	12.1	21.0
pH		—	8.47	8.48	8.60	8.56	7.81	7.88	7.10	7.81	8.09
BOD		—	40.3	23.0	27.4	5.8	11.4	9.6	—	—	19.6
COD		—	40.9	55.2	44.1	27.9	35.8	42.1	41.9	53.8	42.7
T-N		—	—	157	133	114	—	—	—	—	135
NH <sub>4</sub> -N		—	1.2	2.0	3.9	Tr	Tr	0.8	35.5	14.1	7.2
Org-N		—	—	2.7	1.3	4.9	—	—	—	—	3.0
NO <sub>2</sub> -N		Tr	Tr	8.9	Tr	9.3	Tr	Tr	Tr	Tr	2.0
NO <sub>3</sub> -N		186	246	143	128	100	109	166	62	38	131
沈殿池越流水		Temp	12.9	10.7	11.3	15.0	14.5	13.2	11.3	12.1	19.0
	pH	8.40	8.27	8.26	8.60	8.38	7.73	8.00	7.25	8.00	8.10
	BOD	18.3	15.5	42.9	19.7	15.6	30.1	26.2	—	—	24.0
	COD	49.9	40.9	68.1	48.9	25.3	40.5	56.2	44.5	59.2	48.2
	T-N	—	257	165	128	109	118	—	—	—	155
	NH <sub>4</sub> -N	1.8	1.0	2.5	2.6	3.2	Tr	1.0	24.3	9.6	5.1
	Org-N	—	Tr	3.9	1.4	2.5	8.3	—	—	—	3.2
	NO <sub>2</sub> -N	—	Tr	10.0	Tr	9.1	Tr	Tr	Tr	Tr	2.4
	NO <sub>3</sub> -N	—	256	149	124	94	110	134	50	38	119
	返送汚泥	pH	8.12	8.29	8.22	8.56	8.40	7.53	7.90	7.20	7.75
SS		6480	6190	6420	7440	5180	—	6320	6030	—	6290
BOD		23.7	14.2	35.6	24.4	11.4	14.8	13.1	—	—	19.6
COD		52.1	38.7	61.0	52.7	24.7	42.1	47.7	46.6	57.8	47.0
NH <sub>4</sub> -N		0.8	1.5	3.3	3.8	2.6	Tr	3.1	15.6	12.8	4.8
NO <sub>2</sub> -N		Tr	Tr	—	Tr	6.3	Tr	Tr	—	—	1.1
NO <sub>3</sub> -N		194	236	154	121	70	101	134	64	40	124

(単位) Temp (°C)

SS, BOD, COD, NH<sub>4</sub>-N, Org-N, NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N (mg/l)

は 0.124kg/day もち込まれることになる。この場合NH<sub>4</sub>-N は脱窒素槽で除くことはできないので、生物学的硝化脱窒素法による処理水の水質として T-N=12mg/ℓ 以下は期待できない。

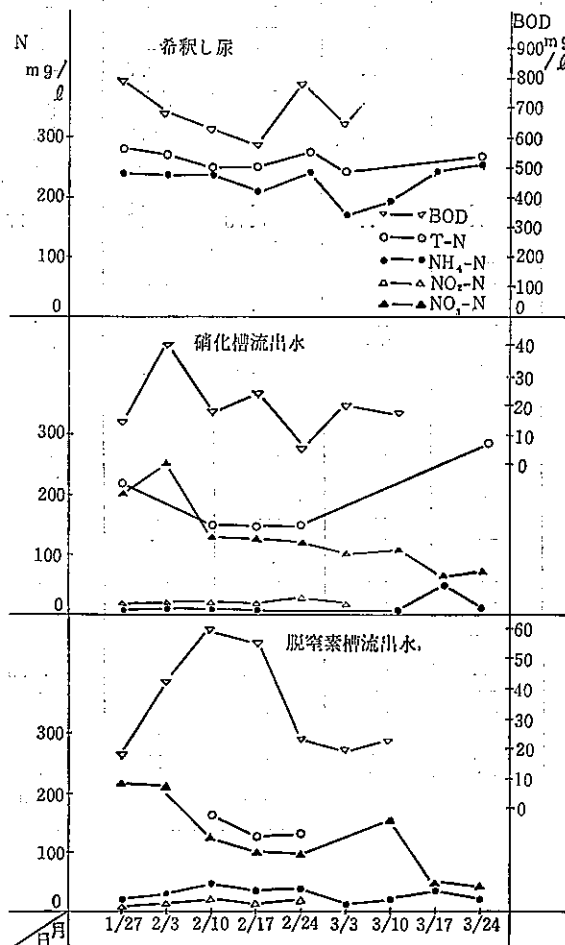
(2) 生物学的硝化脱窒素法

硝化槽では流入水中の BOD を除去すること、および NH<sub>4</sub>-N を NO<sub>2</sub>-N または NO<sub>3</sub>-N にかえること、脱窒素槽では流入水中の NO<sub>2</sub>-N または NO<sub>3</sub>-N を窒素ガスにかえること、再曝気槽では流入水中の BOD を除去することをそれぞれの目的にしている。

ア 化学的脱窒素槽流出水を有機炭素源として用いる生物学的硝化脱窒素法

昭和48年1月から3月にかけてプラントを運転した結果を表4と図3に示した。

図3 プラントの運転結果



(a) 硝化槽の反応

硝化槽は平均して水温=17.7°C, BOD・MLSS負荷=0.132kg/kg·day, 滞留時間=15hr, (MLSS)×(滞留時間)=5.5×10<sup>4</sup> hr·mg/ℓ である。硝化槽に流入する希釈し尿の平均水質は BOD=625mg/ℓ, NH<sub>4</sub>-N=223mg/ℓ であり、硝化槽流出水の平均水質は BOD=20.8mg/ℓ, NH<sub>4</sub>-N=8.9mg/ℓ である。したがって NH<sub>4</sub>-N は NO<sub>2</sub>-N または NO<sub>3</sub>-N に効率よく酸化され、また BOD も効率よく除去できたといえる。

(b) 脱窒素槽の反応

硝化槽が効率よく働いていて硝化槽流出水に NH<sub>4</sub>-N が殆んど存在しない1月27日から3月10日において、脱窒素槽は平均して水温=14.7°C, 滞留時間=33hr である。脱窒素槽流入水(硝化槽流出水)の平均水質は BOD=20.8mg/ℓ, NH<sub>4</sub>-N=2.0mg/ℓ, NO<sub>2</sub>-N=8.8mg/ℓ, NO<sub>3</sub>-N=163mg/ℓ であり、脱窒素槽流出水の平均水質は BOD=36.6mg/ℓ, NH<sub>4</sub>-N=16.2mg/ℓ, NO<sub>2</sub>-N=4.9mg/ℓ, NO<sub>3</sub>-N=153mg/ℓ である。この結果は脱窒素反応があまり起こっていないことを示している。脱窒素反応において、添加 BOD と除去 NO<sub>3</sub>-N との間には相関がある。筆者らの実験では、化学的脱窒素槽流出水および硝化槽流出水の平均の BOD はおのおの 5610mg/ℓ, 20.8mg/ℓ であるので、脱窒素槽への BOD のもち込みは 0.909kg/day となり、したがって脱窒素槽での BOD は 90.9 mg/ℓ となる。また硝化槽から脱窒素槽への NO<sub>3</sub>-N の平均流入濃度は 163mg/ℓ である。遠矢らは 90mg または 200mg の BOD で 50mg または 160mg の NO<sub>3</sub>-N を除去できると述べている。したがって本実験では、脱窒素槽に 90.9mg/ℓ の BOD が供給されているので 50mg/ℓ の NO<sub>3</sub>-N を除去できることが期待されるが、実際には NO<sub>3</sub>-N はほとんど除去できていない。しかし、図3において脱窒素槽での BOD と NO<sub>3</sub>-N とをくらべてみると、BOD が高い場合には NO<sub>3</sub>-N が低く、BOD が低い場合には NO<sub>3</sub>-N が高い傾向が観察される。したがって、本実験においてもさらに多くの BOD を添加すれば良好な NO<sub>3</sub>-N 除去率が得られると推察される。しかし硝化槽より流入した 163mg/ℓ の NO<sub>3</sub>-N を除去するのに必要な BOD 200mg/ℓ のすべてを化学的脱

表5 プラントの運転結果 (1)

試料 項目		実験日								
		4月28日	5月1日	5月2日	5月3日	5月7日	5月8日	5月9日	5月11日	
希釈し尿	BOD	517	—	—	—	—	—	—	—	
	COD	—	—	—	—	—	—	—	—	
	T-N	250	—	—	—	—	—	—	—	
	NH <sub>4</sub> -N	188	—	—	—	—	—	—	—	
	Org-N	—	—	—	—	—	—	—	—	
硝化槽流出水	Temp	19.1	20.4	20.9	19.9	—	20.2	18.9	20.7	
	pH	6.28	5.94	5.75	5.43	7.10	6.91	6.64	6.96	
	BOD	13.1	—	—	—	—	—	—	—	
	COD	49.4	—	—	—	—	—	—	—	
	T-N	—	—	—	—	—	—	—	—	
	NH <sub>4</sub> -N	1.4	4.9	4.2	4.3	5.7	0.7	12.8	—	
	Org-N	2.9	—	—	—	—	—	—	—	
	NO <sub>2</sub> -N	—	Tr	0.8	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	
	NO <sub>3</sub> -N	—	90.0	120	110	160	180	76.0	190	
脱窒素槽流出水	Temp	20.2	21.3	21.3	21.0	—	21.0	19.7	20.9	
	pH	7.75	7.49	7.49	7.07	7.49	8.00	8.03	7.77	
	BOD	12.0	—	—	—	—	—	—	—	
	COD	46.4	—	—	—	—	—	—	—	
	T-N	—	—	—	—	—	—	—	—	
	NH <sub>4</sub> -N	2.1	4.3	2.8	5.7	2.8	—	0.7	—	
	Org-N	—	—	—	—	—	—	—	—	
	NO <sub>2</sub> -N	—	—	0.2	Tr	Tr	—	Tr	Tr	
	NO <sub>3</sub> -N	—	7.5	7.5	Tr	10.0	10.0	10.0	13.0	
再曝気槽流出水	Temp	19.3	21.1	21.2	20.2	—	21.0	19.7	20.8	
	pH	7.77	7.64	7.60	7.37	7.62	8.73	7.71	7.77	
	BOD	1.1	—	—	—	—	—	—	—	
	COD	37.2	—	—	—	—	—	—	—	
	T-N	—	—	—	—	—	—	—	—	
	NH <sub>4</sub> -N	—	1.4	2.1	1.4	—	0.7	—	—	
	Org-N	—	—	—	—	—	—	—	—	
	NO <sub>2</sub> -N	—	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	
	NO <sub>3</sub> -N	—	10.0	15.0	Tr	—	13.0	12.0	18.0	
沈殿池越流水	Temp	20.2	—	—	—	—	—	—	—	
	pH	7.80	—	—	—	—	—	—	—	
	BOD	9.5	—	—	—	—	—	—	—	
	COD	42.1	—	—	—	—	—	—	—	
	T-N	—	—	—	—	—	—	—	—	
	NH <sub>4</sub> -N	—	—	—	—	—	—	—	—	
	Org-N	—	—	—	—	—	—	—	—	
	NO <sub>2</sub> -N	—	—	—	—	—	—	—	—	
	NO <sub>3</sub> -N	—	—	—	—	—	—	—	—	
返送汚泥	pH	7.72	7.69	7.90	7.51	—	7.71	7.71	7.76	
	SS	—	—	—	—	7000	—	—	—	
	BOD	13.9	—	—	—	—	—	—	—	
	COD	45.9	—	—	—	—	—	—	—	
	NH <sub>4</sub> -N	1.4	—	1.4	1.4	—	2.1	—	—	
	NO <sub>2</sub> -N	—	Tr	0.2	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	
	NO <sub>3</sub> -N	—	—	6.0	Tr	—	7.0	8.0	13.0	

表5 (続) プラントの運転結果 (2)

実験日 試料 項目		5月12日	5月14日	5月15日	5月16日	5月18日	5月19日	5月21日	5月23日
		希釈し尿	BOD COD T-N NH <sub>4</sub> -N Org-N	720 — 284 233 —	— — — — —	— — — — —	— — — — —	— — — — —	664 363 256 — —
硝化槽流出水	Temp pH BOD COD T-N NH <sub>4</sub> -N Org-N NO <sub>2</sub> -N NO <sub>3</sub> -N	19.4 7.00 5.4 36.5 — 1.4 7.1 Tr 230	22.2 7.00 — — — — — Tr 200	23.3 7.11 — — — 2.8 — Tr 300	— 6.95 — — — 5.0 — Tr 300	22.2 7.31 20.0 — — 1.4 — Tr 300	23.7 6.76 20.0 — — — — Tr —	— 6.10 — — — — — Tr 350	17.3 6.82 — — — 10.7 — Tr 260
脱窒素槽流出水	Temp pH BOD COD T-N NH <sub>4</sub> -N Org-N NO <sub>2</sub> -N NO <sub>3</sub> -N	20.0 7.88 — — 22.7 1.4 4.3 Tr 17.0	22.4 7.53 — — — — — Tr 65.0	23.0 7.64 — — — 8.5 — Tr 95.0	— 7.47 — — — — — Tr 160	22.5 8.50 — — — 6.7 — — 100	23.6 7.99 32.7 — — — — Tr —	— 7.49 — — — — — 0.1 100	19.1 7.72 — — — 8.5 — Tr 70
再曝気槽流出水	Temp pH BOD COD T-N NH <sub>4</sub> -N Org-N NO <sub>2</sub> -N NO <sub>3</sub> -N	19.8 7.76 5.2 32.5 25.7 1.4 4.3 Tr 20.0	22.4 7.51 — — — — — Tr 80.0	23.5 7.60 — — — 0.7 — Tr 120	— 7.34 — — — — — Tr 180	22.4 7.68 — — — 1.4 — — 160	23.7 7.70 14.5 — — — — Tr —	— 7.58 — — — — — Tr 125	18.7 7.70 — — — 4.9 — Tr 90.0
沈殿池越流水	Temp pH BOD COD T-N NH <sub>4</sub> -N Org-N NO <sub>2</sub> -N NO <sub>3</sub> -N	20.4 7.92 10.3 31.9 — 0.7 5.0 — 21.0	— — — — — — — — —	— — — — — — — — —	— — — — — — — — —	— — — — — — — — —	23.5 7.74 34.1 — — — — — —	— — — — — — — — —	— — — — — — — — —
返送汚泥	pH SS BOD COD NH <sub>4</sub> -N NO <sub>2</sub> -N NO <sub>3</sub> -N	7.77 — 5.7 31.3 0.7 Tr 21.0	7.58 7000 — — — Tr 65.0	7.61 — — — 2.8 Tr 60.0	7.53 — — — — Tr 48.0	7.72 6310 — — 1.4 — 56.0	7.74 — 31.2 — — Tr 34.0	— — — — — — 115	7.68 — — — 3.6 Tr 80.0

表5 (続) プラントの運転結果 (3)

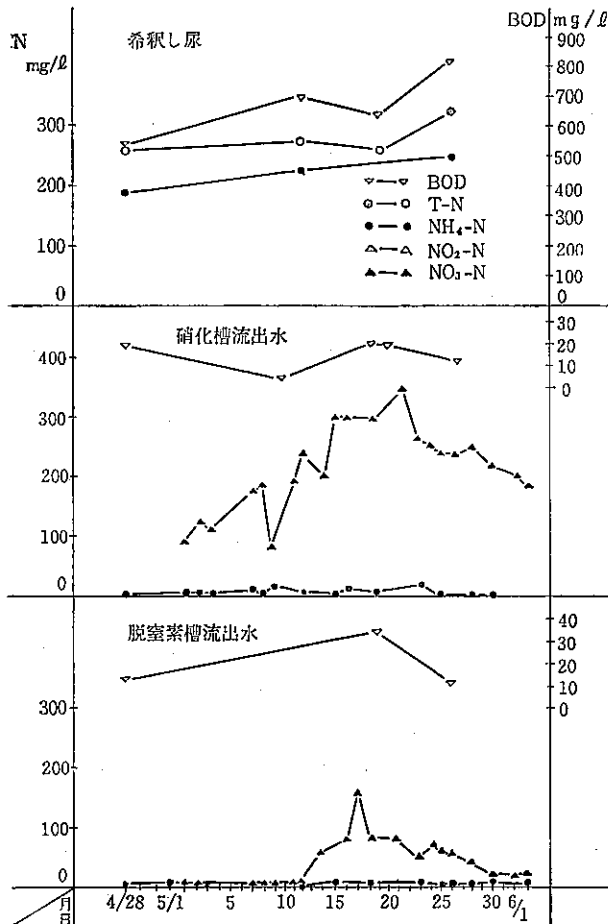
試料 項目		実験日							
		5月24日	5月25日	5月26日	5月28日	5月30日	6月1日	6月2日	平均
希釈し尿	BOD	—	—	820	—	—	—	—	680
	COD	—	—	—	—	—	—	—	363
	T-N	—	—	270	—	—	—	—	265
	NH <sub>4</sub> -N	—	—	250	—	—	—	—	224
	Org-N	—	—	—	—	—	—	—	—
硝化槽流出水	Temp	—	19.2	20.5	23.8	22.5	—	21.7	20.9
	pH	71.9	6.51	6.10	—	6.21	6.93	6.90	6.63
	BOD	—	—	11.9	—	—	—	—	14.9
	COD	—	—	18.3	—	—	—	18.7	30.7
	T-N	—	—	—	—	—	—	—	—
	NH <sub>4</sub> -N	—	2.8	Tr	2.1	0.7	—	Tr	3.6
	Org-N	—	Tr	0.4	—	—	—	—	2.6
	NO <sub>2</sub> -N	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr
	NO <sub>3</sub> -N	250	240	240	250	215	200	185	212
脱窒素槽流出水	Temp	—	20.0	21.4	24.5	23.1	—	23.1	21.6
	pH	7.69	7.46	7.30	—	7.61	7.75	7.80	7.68
	BOD	—	—	9.9	—	—	—	—	18.2
	COD	—	—	16.3	—	—	—	20.9	27.9
	T-N	—	80.0	75.0	—	—	—	—	59.2
	NH <sub>4</sub> -N	—	2.1	1.4	4.3	3.6	—	3.6	3.9
	Org-N	—	2.9	3.6	—	—	—	—	3.6
	NO <sub>2</sub> -N	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr
	NO <sub>3</sub> -N	82.0	75.0	70.0	47.0	16.0	16.0	15.0	47.0
再曝気槽流出水	Temp	—	19.3	20.8	24.1	22.9	—	22.8	21.3
	pH	7.62	7.52	7.40	—	7.73	7.52	7.50	7.65
	BOD	—	—	1.6	—	—	—	—	5.6
	COD	—	—	16.4	—	—	—	23.7	27.5
	T-N	—	—	100	—	—	—	—	62.9
	NH <sub>4</sub> -N	—	2.1	Tr	1.4	0.7	—	0.7	1.5
	Org-N	—	—	4.3	—	—	—	—	4.3
	NO <sub>2</sub> -N	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr
	NO <sub>3</sub> -N	100	83.0	96.0	75.0	23.0	26.0	14.0	63
沈殿池越流水	Temp	—	—	21.0	—	23.0	—	22.4	21.8
	pH	—	—	—	—	7.60	—	7.62	7.74
	BOD	—	—	3.4	—	—	—	—	14.3
	COD	—	—	14.7	—	—	—	20.1	27.2
	T-N	—	—	—	—	—	—	—	—
	NH <sub>4</sub> -N	—	—	Tr	—	Tr	—	Tr	Tr
	Org-N	—	—	—	—	—	—	—	5.0
	NO <sub>2</sub> -N	—	—	—	—	Tr	—	Tr	Tr
	NO <sub>3</sub> -N	—	—	—	—	25.0	—	19.0	21.7
返送汚泥	PH	7.62	8.00	7.46	—	—	7.57	7.55	7.68
	SS	—	—	8000	9800	—	—	—	7620
	BOD	—	—	2.4	—	—	—	—	13.3
	COD	—	—	15.5	—	—	—	19.8	28.1
	NH <sub>4</sub> -N	—	2.1	Tr	1.4	Tr	—	1.4	1.5
	NO <sub>2</sub> -N	Tr	Tr	Tr	Tr	—	—	Tr	Tr
	NO <sub>3</sub> -N	80.0	80.0	80.0	82.0	25.0	17.0	13.5	42.7

(単位) Temp (°C)

SS, BOD, COD, NH<sub>4</sub>-N, Org-N, NO<sub>2</sub>-N, NO<sub>3</sub>-N (mg/l)



図4 プラントの運転結果



窒素槽流出水に依存するとなると、約 0.32m<sup>3</sup>/day の供給量が必要となる。そしてその場合、化学的脱窒素槽流出水からの脱窒素槽への NH<sub>4</sub>-N のもち込み量は 0.317 kg/day となり、脱窒素槽での濃度にして NH<sub>4</sub>-N=32 mg/l となる。したがって上記の化学的脱窒素槽流出水を脱窒素反応の有機炭素源として用いる限り、処理水中の T-N を 32mg/l 以下にすることはできない。そこでイにおいては有機炭素源としてメタノールを用いることを検討する。

イ メタノールを有機炭素源として用いる生物学的硝化脱窒素法

昭和48年4月から6月にかけてプラントを運転した結果を表5と図4に示した。

(a) 硝化槽の反応

ア(a)とくらべて実験条件は水温が 20.9°C とやや高いがその他はほぼ同じである。

硝化槽に流入する希釈し尿の平均水質は BOD=680mg/l, NH<sub>4</sub>-N=224mg/l であるが、硝化槽流出水の平均水質は BOD=14.9mg/l, NH<sub>4</sub>-N=3.6 mg/l である。したがって NH<sub>4</sub>-N は NO<sub>3</sub>-N または NO<sub>2</sub>-N に 97%酸化され、また BOD も 96%除去された。ところで図4において硝化槽流出水の NO<sub>3</sub>-N 濃度が5月15日以降約2週間にわたってかなり高くなっているが、これは脱窒素槽において脱窒素反応がうまく進まず、返送汚泥による NO<sub>3</sub>-N の硝化槽へのもち込みが大きく寄与したためである。

(b) 脱窒素槽の反応

ア(b)とくらべて水温は平均 21.6°C と高く、また有機炭素源としてはメタノールを用いた。滞留時間は 33hr である。

脱窒素反応において添加すべきメタノール量は次式から計算される。

$$C_m = 2.47N_0 + 1.53N_1 + 0.87D_0$$

C<sub>m</sub>: メタノール濃度 (mg/l)

N<sub>0</sub>: NO<sub>3</sub>-N 濃度 (mg/l)

N<sub>1</sub>: NO<sub>2</sub>-N 濃度 (mg/l)

D<sub>0</sub>: 溶存酸素濃度 (mg/l)

したがって、NO<sub>3</sub>-N, NO<sub>2</sub>-N, 溶存酸素濃度を連続測定して必要なメタノール量を決定するのが最も好ましいわけであるが、今回はメタノールを脱窒素

反応にはほぼ十分な量として 3.2~3.7 $\theta$ /day (2.5~2.9kg/day, 250~290mg/l) 供給した。4月28日から5月12日において、脱窒素槽流入水(硝化槽流出水)の平均水質は BOD=13.1mg/l, NH<sub>4</sub>-N=4.4mg/l, NO<sub>2</sub>-N=Tr, NO<sub>3</sub>-N=145mg/l であるが、脱窒素槽流出水の平均水質は BOD=12mg/l, NH<sub>4</sub>-N=2.8mg/l, NO<sub>2</sub>-N=Tr, NO<sub>3</sub>-N=9.8mg/l であり、NO<sub>3</sub>-N は 93%除去された。しかし、5月13日~16日はポンプの故障のためメタノールが供給できず、その結果脱窒素反応が十分進行せず図4から明らかのように脱窒素槽流出水中に多量の NO<sub>3</sub>-N が含まれてきた。そしてメタノールの供給が5月17日に再開されると脱窒素槽流出水中の NO<sub>3</sub>-N は徐々に減少したが、NO<sub>3</sub>-N=15~16mg/l になるまで約2週間を要した。

したがって、メタノールの存在が脱窒素反応に極めて重要な役割をはたしていること、および十分なメタノールが供給されれば90%以上の $\text{NO}_3\text{-N}$ 除去率が可能となることがわかった。しかしメタノールの供給停止による脱窒素槽の機能低下の回復には、メタノールの供給を再開してからかなり長い期間を要するので、プラントの運転には十分な維持管理が必要となる。

#### (c) 再曝気槽の反応

再曝気槽流入水(脱窒素槽流出水)の平均水質は $\text{BOD}=18.2\text{mg}/\ell$ ,  $\text{COD}=27.9\text{mg}/\ell$ ,  $\text{NH}_4\text{-N}=3.9\text{mg}/\ell$ ,  $\text{Org-N}=3.6\text{mg}/\ell$ ,  $\text{NO}_2\text{-N}=\text{Tr}$ ,  $\text{NO}_3\text{-N}=47.0\text{mg}/\ell$ であるが、再曝気槽流出水の平均水質は $\text{BOD}=5.6\text{mg}/\ell$ ,  $\text{COD}=27.5\text{mg}/\ell$ ,  $\text{NH}_4\text{-N}=1.5\text{mg}/\ell$ ,  $\text{Org-N}=4.3\text{mg}/\ell$ ,  $\text{NO}_2\text{-N}=\text{Tr}$ ,  $\text{NO}_3\text{-N}=63\text{mg}/\ell$ であり、再曝気により $\text{BOD}$ を大きく下げることができた。

## 5 結 論

し尿中の窒素成分の除去について、中間実用化規模(し尿処理量 $0.500\text{m}^3/\text{day}$ )で生物学的硝化脱窒素槽法を検討した結果次のことが明らかになった。

(i) 4月28日から6月2日において硝化槽で $\text{NH}_4\text{-N}$ を $\text{NO}_3\text{-N}$ に97%かえることができ、また $\text{BOD}$ も96%除去できた。

(ii) 脱窒素槽に供給する有機炭素源としてはメタノールが好ましく、その場合プラントが正常に作動していた4月28日から5月12日において $\text{NO}_3\text{-N}$ は93%除去できた。

(iii) 脱窒素槽へのメタノールの供給を停止すると脱窒素槽は機能しなくなるが、その回復には長期間を要した。したがってプラントの運転には十分な維持管理が必要となる。

(iv) 4月28日から5月12日において再曝気槽流出水の平均水質として $\text{BOD}=3.2\text{mg}/\ell$ ,  $\text{NH}_4\text{-N}=1.4\text{mg}/\ell$ ,  $\text{NO}_2\text{-N}=\text{Tr}$ ,  $\text{NO}_3\text{-N}=12.6\text{mg}/\ell$ を得ることができ

た。これはし尿処理水として十分満足できる値である。

(v) したがって、し尿処理にこの生物学的硝化脱窒素法が利用できるといえよう。

(vi) 一方、化学的脱窒素法では $\text{NH}_4\text{-N}$ は58%しか除去できず満足できる結果ではなかった。

このプラントにおけるし尿処理量の増大や各槽における滞留時間の短縮などについては検討中である。

本研究を進めるにあたり、宮坂明邦氏(東京農業大学)、西山博氏(同)、矢野徹男(同)、矢沢伸一氏(清化園衛生組合)の多大な協力に対し、また、適切な助言をいただいた角義明氏(荏原インフィルコ株式会社)、遠矢泰典氏(同)に深く感謝する。

## 参 考 文 献

- 1) Metcalf & Eddy Inc.: Wastewater Engineering, McGraw-Hill, (1972)
- 2) 遠矢泰典: 下水道協会誌, 7 (74), 1 (1970)  
遠矢泰典, 鈴木康司: 下水道協会誌, 7 (75), (1970)  
遠矢泰典: 下水道協会誌, 7 (76), 1 (1970)  
遠矢泰典: 下水道協会誌, 7 (77), 1 (1970)  
遠矢泰典: 下水道協会誌, 7 (78), 1 (1970)  
遠矢泰典, 鈴木康司, 矢口昌司: 用水と廃水, 12 (12), 28 (1970)  
遠矢泰典, 鈴木康司, 矢口昌司: 用水と廃水, 13 (2), 46 (1971)
- 3) McCarty, P. L., Beck, L. & st. Amant, P.: Biological Denitrification of Wastewaters by Addition of Organic Materials, Proc of the 24 th Purdue Industrial Waste Conference. Lafayette, Ind. (1969)