[水環境学会誌 第18巻 第6号 511—517 1995]

<ノー ト>

有機物供給による土壌浸透水からの窒素除去に関する 流れと混合過程のシミュレーション

姜 志 恒* 川 西 琢 也** 阿 保 篤 志***
清 水 宣 明** 林 良 茂**

Simulation of the Transport Processes Occured in Pouring Organic Compounds into Rapid Infiltrator for Removing Nitrogen from Wastewater

Zhiheng JIANG*, Takuya KAWANISHI**, Atsushi ABO***,
Nobuaki SHIMIZU** and Yoshishige HAYASHI**

* Kanazawa University Graduate school of Natural Science and Technology, 2-40-20, Kotatsuno, Kanazawa
Ishikawa 920 Japan

** Kanazawa University Faculty of Technology, ditto

*** Kanazawa University Graduate school of Technology, ditto

Abstract

The method of rapid infiltration through soil lacks the ability in removing nitrogen from wastewater reason of insufficient of organic substances for denitrification in the anaerobic region. To urge the denitrification it was tried by pouring organic compounds into the deep region of the infiltrator, where the process of nitrification completed and the soils get to be anaerobic. For understanding the processes occurred in this procedure, the mathematical models (with the Finite Element Method) are presented to simulate the flowing and mixing processes occurred within the two-dimensional designed experimental apparatus. Because the hydraulic conductivity of water in variably saturated soils depends on pressure head and water content, this problem is strongly nonlinear. To solve this problem, the Newton-Rampson method have been utilized and the calculated results agree well with that of experimental ones. From the calculated results, a low ratio of denitrification is presumable according to the low mixing between these organic matters and nitrate by means of supplying organic substances from single point.

Key words: simulation, denitrification, rapid infiltration, finite element method, transport process

1. 緒 言

排水の土壌浸透処理法は簡易な省エネルギーの処理法として世界各地で用いられている^{1)~3)}。土壌浸透処

理法には様々な方式があるが^{4),5)}, それらは概して有機物の除去に優れているものの, 窒素の除去能は低い。このため, alternate wet and dry^{1),5),6)}法や多段土壌層法^{7)~9)}など, 窒素を除去するための様々な工夫が試み

* 金沢大学大学院自然科学研究科 〒920 石川県金沢市小立野 2-40-20

** 金沢大学工学部 同上

*** 金沢大学大学院工学研究科 同上

られている。

土壌浸透処理法で窒素の除去があまり進まない原因は排水中の有機物の分解が硝化より速く起こるため、排水中の窒素が硝酸態窒素の形になった段階で脱窒のための有機物が不足することにあると考えられる。そこで、我々は硝化過程がほぼ完了する土壌の比較的深い所に散水管を設け、有機物を供給することにより、そこでの脱窒反応を促進し、窒素を除去することができのではないかと考えた。

同様の研究としては山口らの一連の研究があり^{10)~13)}、優れた窒素除去能が報告されているが、彼らはカラム実験で検討している。本研究ではカラムではなく、通常の急速浸透サイトにおいて排水が下方に浸透している土壌中にいくつかの散水管を設置し、そこから有機物溶液を供給することにより脱窒を行う方法を試みる。

このような方法を開発する場合、土壌中における排水と有機物溶液との混合過程を把握する必要がある。このため、基礎研究として、土壌浸透断面を模した排水の流れと物質拡散過程の2次元的な数理モデルを作成し、Galerkin有限要素法により、シミュレーションをした。計算結果として、硝酸態窒素を含む排水が浸透している土壌中の一点から、蒸留水を供給する場合の濃度分布が得られた。次にこの水流を模した実験装置を用いて、実測した濃度分布の結果を計算結果と比較し、シミュレーションの正確性を検討した。

2. 数理モデル

排水が一様に浸透している土壌中の一点から有機物溶液を供給する際、流体の流れ過程や排水と有機物供給液間の混合過程は二つの数理モデルを用いて表すことにする。土壌中硝酸態窒素の濃度分布を求めるために、まず流体の流れ方程式を解いて、得られた流速分布や水頭分布を用いて、移流拡散方程式の解を求めた。

2.1 基礎式

土壌中の水の流れは、ダルシー (Darcy) の法則と連続の式によって表される。

$$\begin{aligned} v &= -K \nabla H \\ &= -K \nabla (-\phi + z) \end{aligned} \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot (\rho v) \quad (2)$$

ここで、 v はダルシー流速、 $v=(u_x, u_z)$ 、 ∇H は水頭勾配で吸引圧と重力との両成分を含んでいる。すなわち、 ϕ が吸引圧水頭を表す項でマトリック (matric) 吸引圧水頭と呼ばれている。 z は重力項を表している。 ρ は流体の密度である。 K は透水係数であるが、これは一般に土壌の含水率の関数となり、従って吸引圧水

頭の関数となる。この関係については後述する。

ここでは定常状態のみを取り扱い、系内で密度の変化はないと仮定する。従って、水流に関しては解くべき基礎式は以下の通りになる。

$$u_x - K \frac{\partial \phi}{\partial x} = 0 \quad (3-a)$$

$$u_z - K \frac{\partial \phi}{\partial z} + K = 0 \quad (3-b)$$

$$\frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_z}{\partial z} = 0 \quad (3-c)$$

溶質の分布の計算には、移流拡散方程式を用いる。定常状態での溶質分布に関して次の式が成立する。

$$\frac{DC}{Dt} - \theta D_{AB} \nabla^2 C = 0 \quad (4)$$

ここで $\frac{D}{Dt}$ は Lagrange 微分で、 θ は土壌中の含水率である。 D_{AB} は分散係数と呼ばれる項であり、分子拡散の効果と流れによる混合による効果の両方の効果を含んだものである。

2.2 境界条件

今回の計算は、後述の実験をシミュレートするため、流れに関する境界条件は以下の通りになる。

$$\begin{cases} u_z = \text{const.}, u_x = 0, & (z = z_b) \end{cases} \quad (5-a)$$

$$\begin{cases} u_x = 0, & (x = 0) \end{cases} \quad (5-b)$$

$$\begin{cases} u_x = 0, & (x = x_b) \end{cases} \quad (5-c)$$

$$\begin{cases} |v| = u_0, & (x, z \in x_0, z_0) \end{cases} \quad (5-d)$$

$$\begin{cases} \phi = 0, & (z = 0) \end{cases} \quad (5-e)$$

すなわち水流に関しては、上から流した流体の流速は均一と扱い、 $x=0$ の位置で左右対称であるので、横向

Fig. 1 The schematic representation of the computing field

きの流れは零と扱い、また、 $x=x_b$ 処の不透過性に対して、横向き流速は零と取り扱った。排水の流出口で吸引圧水頭は零と扱う。グリーン法則に従って、蒸留水供給部は Fig. 1 に示すような形でモデル化した。

物質移動に関する境界条件は以下の通りである。

$$\begin{cases} C=C_0 & (z=z_b) & (6-a) \end{cases}$$

$$\begin{cases} C=0 & (x, z \in x_0, z_0) & (6-b) \end{cases}$$

$$\begin{cases} \frac{\partial C}{\partial x}=0 & (x=0) & (6-c) \end{cases}$$

$$\begin{cases} \frac{\partial C}{\partial x}=0 & (x=x_b) & (6-d) \end{cases}$$

$$\begin{cases} \frac{\partial C}{\partial z}=0 & (z=0) & (6-e) \end{cases}$$

一定 flux で物質の流入の生じている境界(6-a, 6-b)では、普通は $u_z C - \theta D_{AB} \frac{\partial C}{\partial z} = \text{一定}$ という形の境界条件を設定する。今回の計算では分散係数の値として、 $2 \times 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ を用いている。土壌表面での流速 ($u_z: z=z_b$) は急速浸透法を想定して (後述の実験に合わせて) $10.2 \text{ cm} \cdot \text{d}^{-1}$ に設定している。また、蒸留水供給部の流量はこれよりもはるかに速い。従って、移流項にくらべ、分散 (拡散) 項の影響が無視し得ると考え、より取り扱いの簡単な濃度一定の境界条件を用

Fig. 2 The relationship between θ and ψ

Fig. 3 The relationship between hydraulic conductivity and matric potential of the soil used in the experiment

いている。

2.3 不飽和透水係数

不飽和土壌中の水流においては、前述したように透水係数が含水率によって変化する。従って、別途のカラム実験で、水の流量と土壌内の吸引水頭の関係を測定することによって、本実験で用いた砂の透水係数 K と吸引圧水頭 φ の関係を求めた。また、水分特性曲線 (吸引圧水頭 φ と含水率 θ の関係) は土柱法によって求めた。結果を Fig. 2 と Fig. 3 に示す。

計算に際してはこの実測値を数式で表す必要がある。水分特性曲線に関しては van Genuchten¹⁴⁾ が Mualem¹⁵⁾ の土壌の孔隙のサイズに関する統計分布モデルを用いて提出した式を用いる。

$$\theta = \frac{\theta - \theta_0}{\theta_s - \theta_0} = \frac{1}{[1 + (\alpha\varphi)^{1-m}]^m} \quad (7)$$

ここで、 θ_s と θ_0 は土壌の飽和含水率と残余含水率 (自然乾燥した状態での土壌の含水率) である。 θ は有効飽和度と呼ばれる。

不飽和透水係数は Šimůnek¹⁶⁾, Vogel と Čislerová¹⁷⁾ に従って、三つの関数形を用いて表すことにした。

$$K_r = \frac{K}{K_s} =$$

$$\begin{cases} \left\{ \frac{K_k}{K_s} \left(\frac{\theta}{\theta_k} \right)^{\frac{1}{2}} \left[\frac{(1 - \theta_0^{\frac{1}{m}})^m - (1 - \theta^{\frac{1}{m}})^m}{(1 - \theta_0^{\frac{1}{m}})^m - (1 - \theta_k^{\frac{1}{m}})^m} \right]^2 \right. & (\varphi \leq \varphi_k) & (8-a) \end{cases}$$

$$\begin{cases} \frac{K_k}{K_s} + \frac{\varphi - \varphi_k}{\varphi_s - \varphi_k} \left(1 - \frac{K_k}{K_s} \right) & (\varphi_s \leq \varphi < \varphi_k) & (8-b) \end{cases}$$

$$\begin{cases} 1 & (\varphi < \varphi_s) & (8-c) \end{cases}$$

すなわち、吸引圧水頭値の低い範囲内では ($\varphi < \varphi_s$) 透水係数が飽和透水係数の値 K_s で一定であるとしており、吸引圧水頭の値の高い範囲では ($\varphi > \varphi_k$) 透水係数が式 (8-a) に従う曲線となるとしている。また、それらの間で線形関係である。 K_k は φ_k における透水係数である。

パラメータは、それぞれ Genuchten¹⁴⁾, Šimůnek¹⁶⁾らの文献に示されている方法にしたがって決定した。パラメータとして、 $\alpha = 0.038 \text{ cm}^{-1}$, $m = 0.86$ および $K_s = 2 \times 10^{-2} \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の値が得られた。別の土壌と比べると、本実験で用いた土壌 (砂) の飽和透水係数は高く、また、残余含水率は低い ($\theta_0 = 0.001$)。Fig. 2 と Fig. 3 中の実線はこれらの関係を示したものである。

2.4 計算方法

後述の実験に対応するために、解析区域として片側の幅は 49 cm とし、土壌層の深さ 85 cm を設定した。蒸留水の供給口は土壌表面から深さ 30 cm の所と設定した。排水の浸透速度は $10.2 \text{ cm} \cdot \text{d}^{-1}$ 、蒸留水の供給流量

は0.6, 1.2, 2.4 $l \cdot d^{-1}$ として、次々に計算した。

計算には、まず、定常状態の流速分布を求め、それを用いて、硝酸態窒素の濃度分布を求めた。両計算ともにガラーキン有限要素法^{18)~20)}により行い、同じ三角形要素を使用した。

土壌水流の流速分布の計算には、 x 方向の流速、 z 方向の流速、水頭の3つを未知数として解く、いわゆる三方程式スキームを採用した。また、圧力に関しては一次の補間関数を、流速に関しては2次の補間関数を用いている。

透水係数 K が吸引圧水頭の関数であるため、この計算では得られた全体方程式は非線形になる。今回の計算では逐次代入法を用いた場合は解が収束しなかったが、ニュートンラプソン法を用いて初期値を適当に選ぶことにより、解くことができた。

濃度分布の計算には、一次の補間関数を用いた。硝酸態窒素の分散係数 D_{AB} として、まずは硝酸イオンの分子拡散係数の値を用い、 $2.0 \times 10^{-5} \text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ とした。

3. 実験装置および方法

Fig. 4 に実験装置の略図を示す。アクリル樹脂製の槽の中に砂を充填してある。海岸砂を用いたのは、土壌中の残留有機物の影響を避けるためである。この実験装置の幅は98cm、高さは85cm、奥行きは5 cm と

Fig. 4 Schematic diagram of the experimental apparatus

なっている。

装置には7 cm 間隔でサンプリング孔を設け、そこにボラスカップを取付け、真空ポンプで、装置内の溶液をサンプリングできるようにした。また、装置の底には、水の流出口を7カ所設け、そこから出てくる溶液をポリタンクで集めた。

そして、装置の上部より人工排水として50mg-N $\cdot l^{-1}$ の硝酸カリウム溶液を7カ所から供給した。また中

Fig. 5-a The calculated concentration profiles of nitrate

Fig. 5-b The experimentally found concentration profiles of nitrate

Calculated under the conditions of:
 Draining water: $4.6 \text{ l} \cdot \text{d}^{-1}$ and dimensionless concentration of 1.0
 Distilled water: $2.4 \text{ l} \cdot \text{d}^{-1}$ flowed in the center inlet
 Diffusion coefficient of nitrate: $2.0 \times 10^5 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$

Fig. 6-a The calculated concentration profiles of nitrate

Draining water: $4.6 \text{ l} \cdot \text{d}^{-1}$ with $50.0 \text{ mg-N} \cdot \text{l}^{-1}$
 Distilled water: $1.2 \text{ l} \cdot \text{d}^{-1}$ applied into the center inlet

Fig. 6-b The experimentally found concentration profiles of nitrate

中央部、砂の層の表面から深さ29cmの所にも一つの供給口を設け、有機物溶液、あるいは蒸留水を供給した。有機物としては、グルコースを用いた。

この装置で、まず蒸留水を供給することにより、排水と供給液の流れと混合過程を検討し、次に有機物溶液を供給して脱窒実験を行った。流入、流出水量、流出水質、土壌溶液中の硝酸態窒素濃度を測定することにより、脱窒量、グルコース分解量、ならびに土壤中

の硝酸態窒素の濃度分布を得ることができる。

4. 結果および考察

4.1 蒸留水供給による硝酸態窒素濃度分布

Fig. 5 と Fig. 6 には蒸留水をそれぞれ 0.6 および $2.4 \text{ l} \cdot \text{d}^{-1}$ で流した場合の装置内の実験結果と計算結果を示す。Fig. 5-a と Fig. 6-a で、それぞれの等濃度線は硝酸イオンの供給濃度に対する相対濃度の値が 0.1 (実験データの $5 \text{ mg-N} \cdot \text{l}^{-1}$ に相当する) から 0.9 ($45 \text{ mg-N} \cdot \text{l}^{-1}$ に相当する) を表している。

計算結果は、実験結果よりも等濃度線の横方向への広がりが若干狭くなっている感はあるが、ほぼ、濃度分布を再現していると考えられる。とくに、蒸留水の供給流量を増やすことにより、その供給口の直下に相対濃度値が 0.1 以下の低濃度区域が広がっていく現象は実験結果と計算結果がよく一致していることが分かる。以降、便宜上、硝酸態窒素濃度 $5 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以下(相対濃度 0.1 以下)の領域を低濃度区域と呼ぶ。

以上の計算結果と実験結果に見られるように、低流量の蒸留水を供給する場合には、供給した流体が処理する排水に影響する範囲は狭い。一方、供給量を増やすと影響範囲は広がるが、供給口の下に低濃度区域も広がってしまう。実際の場合、反応は排水と有機物と両方が存在する区域のみで起こるので、有機物溶液を供給する際、単純に供給量を増やすことは、全体の脱窒量をあげるのにさほど効果がないと予想される。なぜならば供給流量を増やすと、排水と有機物溶液との混合の程度の低い低濃度区域が広がる、しかも、供給液の滞留時間も短くなるので、有機物の利用効率は低くなると考えられるからである。

4.2 脱窒実験

装置の中央部の供給口より、蒸留水の代わりに有機物溶液を注入して、脱窒反応実験を行った。有機物供給量を変えて、装置中の硝酸態窒素の濃度分布や脱窒率の変化について検討した。Fig. 7 と Fig. 8 にはそれぞれの濃度分布、Table 1 には実験における物質収支を示す。

蒸留水を注入した混合実験結果と比較して、有機物を注入した実験の方が装置中の硝酸態窒素の濃度分布がさらに広がっていくようになる。有機物溶液の注入量を増やすと、その低濃度区域の範囲は大きくなるのは当然なことだが、全体の脱窒率は上げられない。有機物の利用効率はいずれも低い。

以上の結果により、この様な一点から有機物溶液を注入する方法では、脱窒率は低く、また、有機物溶液の供給量を大きくしても、脱窒率を向上させることは難しいことが明らかになった。その原因については、

Glucose: $1.2 \text{ l} \cdot \text{d}^{-1}$ and $200 \text{ mg-C} \cdot \text{l}^{-1}$
 $\text{NO}_3\text{-N}$: $4.6 \text{ l} \cdot \text{d}^{-1}$ with $50 \text{ mg-N} \cdot \text{l}^{-1}$

Fig. 7 The concentration profiles of nitrate measured in the denitrification experiment

Glucose: $1.2 \text{ l} \cdot \text{d}^{-1}$ with $1000 \text{ mg-C} \cdot \text{l}^{-1}$
 $\text{NO}_3\text{-N}$: $4.6 \text{ l} \cdot \text{d}^{-1}$ with $50 \text{ mg-N} \cdot \text{l}^{-1}$

Fig. 8 The concentration profiles of nitrate measured in the denitrification experiment

Table 1 The Mass Balance Data of Denitrification Experiments

Conc. of Glucose $\text{mg-C} \cdot \text{l}^{-1}$	Flow Rate of Glucose Solution $\text{l} \cdot \text{d}^{-1}$	Amount of Glucose Applied $\text{mg-C} \cdot \text{d}^{-1}$	Amount of Glucose Flowed out $\text{mg-C} \cdot \text{d}^{-1}$	Amount of Nitrate Applied $\text{mg-N} \cdot \text{d}^{-1}$	Amount of Nitrate Flowed out $\text{mg-N} \cdot \text{d}^{-1}$	Rate of Denitrif. %
200	1.2	234	14.9	226	226	0
1000	1.2	1227	443	222	196	11.7
1000	1.8	1797	962	219	181	17.4

前節で考察した通りである。すなわち、一点から注入した場合、排水と有機物溶液との混合領域は狭い範囲に限られるために脱窒率が低いのである。

5. 結 言

硝酸態窒素を含む排水を土壤に浸透処理する時、蒸留水を一点から注入する場合についての数値モデルを作成し、両流体の流れと物質の拡散過程をシミュレートした。二次元実験装置を作成し、蒸留水を注入することより混合実験を行った。また、有機物溶液を注入し、脱窒実験を行った。混合実験の結果とシミュレーションの計算結果とはほぼ一致した。一点から注入する方法では流体間の混合領域が制限され、脱窒率が低くとどまることが分かった。

(原稿受付 1994年11月11日)

(原稿受理 1995年3月4日)

引 用 文 献

- 1) Leach, L.E. and Enfield, C.G. (1983) Nitrogen control in domestic wastewater rapid infiltration systems, *Journal, WPCF*, **55**, 1150-1157.
- 2) 鈴木富雄, 山浦源太郎 (1985) 土壌式処理技術の実際問題点, 公害と対策, **21**, 38-44.
- 3) U.S. EPA (1980) Design manual onsite waste-water treatment and disposal system, EPA625/1-80-012.
- 4) Crites, R.W. (1984) Land use of wastewater and sludge, *Environ. Sci. Technol.*, **18**, 141A-147A.
- 5) Loehr, R.C., Jewell, W.J., Novak, J.D., Clarkson, W.W. and Friedman, G.S. (1979) Land Application of Wastes, Vol. II, Van Nostrand Reinhold Company.
- 6) Groffman, P.M. and Tiedje, J.M. (1988) Denitrification hysteresis during wetting and drying cycles in soil, *Soil Sci.*

- Soc. Am. J.*, **52**, 1626-1629.
- 7) 若月利之, 小村修一, 安部裕治, 泉一成 (1989) 多段土壌層法による生活排水中の窒素, リンおよび BOD 成分の除去とその浄化能力の評価, 日本土壌肥科学雑誌, **60**, 335-344.
 - 8) 若月利之, 小村修一, 安部裕治, 泉一成 (1989) 気温, 流出浄化水の流出速度, pH, 鉄およびマンガン濃度の経時的変化と浄化能力との関係, 日本土壌肥科学雑誌, **60**, 345-351.
 - 9) 若月利之, 小村修一, 沢田吉晴 (1991) 非湛水下における硝酸態窒素とリン酸の同時除去に対する金属鉄粒とジューツ資材の効果, 日本土壌肥科学雑誌, **62**, 417-423.
 - 10) 山口登志子, 寺西靖治 (1986) 土壌内硝化速度の時空分布, 衛生工学研究論文集, **22**, 1-7.
 - 11) 山口登志子, 寺西靖治 (1987) 不飽和浸透流における脱窒過程, 衛生工学研究論文集, **23**, 211-217.
 - 12) 山口登志子, 寺西靖治 (1988) 単一土カラムにおける硝化脱窒素の直列生起, 水質汚濁研究, **11**, 50-57.
 - 13) 山口登志子, 井藤壮太郎, 益本正憲, 寺西靖治 (1991) 土壌カラムを用いた 2 次処理下水中の窒素除去, 水質汚濁研究, **14**, 747-754.
 - 14) Van Genuchten, M.T. (1980) A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **44**, 892-898.
 - 15) Mualem, Y. (1976) A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media, *Water Resources Research*, **12**, 513-522.
 - 16) Šimůnek, J. and Suarez, D.L. (1993) UNSATCHEM-2D code for simulating two-dimensional variably saturated water flow, heat transport, carbon dioxide production and transport, and multicomponent solute transport with major ion equilibrium and kinetic chemistry, Version 1.1, Res. Rep. 128, U.S. Salinity Lab. Agric. Res. Serv., U.S. Depart. of Agric., Riverside, Calif.
 - 17) Vogel, T. and Čislerová, M. (1988) On the reliability of unsaturated hydraulic conductivity calculated from the moisture retention curve, *Transport in Porous Media*, **3**, 1-15.
 - 18) Pinder, G.F. and Gray, W.G. (1977) Finite Element Simulation in Surface and Subsurface Hydrology, Academic press.
 - 19) Yeh, Gour-Tsyh, (1981) On the computation of darcian velocity and mass balance in the finite element modeling of groundwater flow, *Water Resources Research*, **17**, 1529-1534.
 - 20) 大西和栄, 林健次, 遠山洋, 二之宮弘 (1986) パソコンによる流れ解析, 朝倉書店.