〈論 文〉

間欠ばっ気方式によるし尿中の窒素の除去に関する実験的研究

Nitrogen Removal of Night Soil by Single Sludge Intermittent Aeration Process

松 並 壯*, 眞 柄 泰 基**, 中 野 孝 二*, 岡 庭 良 安*

Takeshi MATSUNAMI, Yasumoto MAGARA, Koji NAKANO, Yoshiyasu OKANIWA

Abstract

An experimental pilot plant study has been carried out for about two years. It is concluded that single sludge intermittent aeration process should be feasible for the denitrification of night soil, and has following advantages; 1) Construction and running cost should be reduced. 2) 98% of nitrogen is removed by the condition of five times diluted waters. 3) Carbonaceous source applied for denitrification stage is reduced. 4) The pH value is maintained 6.7 to 7.6 without using alkali by the condition of five times dilution with water.

1. ま え が き

わが国の人口の約70%が直接あるいは間接的にし尿処理施設に依存している。¹⁾ そのし尿処理施設は公共下水道が整備されるまでの過渡的な施設として扱われている。しかし、公共下水道の完全な普及は当面達成できないものと考えられ、わが国特有のし尿処理施設が環境保全に果たす役割は今後も続くものと考えられる。

一方、こうした中で現行のし尿処理施設はBOD、COD、SSといった有機物質を除去することを目的としている。そのため、特に内海、湖沼等閉鎖水域の富栄養化に連る窒素化合物はわずかししか除去されない。参考として全国のし尿処理施設より排出される窒素量は硫安換算で1日900トンに達するものと推定される。²⁾ この窒素除去の問題を含めて、その資源制約条件あるいは環境制約条件が厳しい今日的な状況下で要求されているし尿処理施設のあり方に関する研究がなされると共に、新しい処理方式による施設の建設が計られるようになってきた。本報は、し尿中のBOD等有機物質と共に、窒素をも除去する生物学的脱窒素法に関するものであり、硝化、脱窒素反応を単一槽内で行う方式について検討したものである。

ンモノア態窒素を亜硝酸または硝酸に酸化する硝化工程と、更に硝酸または亜硝酸を窒素へ還元する脱窒工程から成り、量論的に反応式(1)~(4)で示される。

硝化工程では、酸の生成に伴うpHの低下、脱窒工程では、水素供与体の存在が必要であることを式(1)~(4)は示している。このため、これらの工程を順次組み合わせた生物学的脱窒素処理方法は、BOD除去工程、硝化工程、脱窒工程を別個に設けるため、個々の反応プロセス管理が独立して行うことができるという利点があるものの、設備の必要面積が大きくなるという難点がある。

そこで、これらの変法として、排水中のBODを炭素源として利用する循環方式が、F.J.Ludzack, J.L.Ba-

Fig. 1 Schematic flow of intermittent aeration process

2. 間欠ばっ気法の概要

生物学的脱窒素法は、その反応から、有機態およびア

* 住友重機械工業株式会社水処理事業部平塚研究所 〒254 平塚市夕陽ヶ丘63-30

** 国立公衆衛生院衛生工学部 〒108 東京都港区白金台4-6-1 Department of Sanitary Engineering, The Institute of Public Health, (4-6-1 Shiroganedai Minato-ku, Tokyo, Japan 108)

Fig. 2 Profile of nitrogen and BOD through unit cycle.

rnard 等^{3), 4), 5), 6), 7)}によって報告され、薬品費の低減と、設備の縮小が可能となった。更に、本報で述べるような間欠ばっ気法も、過去に下水を対象にした研究があるが^{8), 9)}高濃度実用規模での研究はなされていない。

間欠ばっ気法は、原理的には式(1)~(4)の反応を用いた生物学的脱窒素法であるが、BOD除去、硝化、脱窒を一槽で行わせ、更に設備の簡素化を図ると共に、運転管理を容易にしようとするものである。

間欠ばっ気法の基本フローシートを Fig. 1 に示した。ばっ気攪拌槽内では、ばっ気操作を交互に間欠的にを行い、硝化および脱窒反応を交互に行わせしめるものである。ばっ気攪拌槽の運転および、ばっ気攪拌槽内のアンモニア態窒素 ($\text{NH}_4\text{-N}$)、酸化態窒素 (Oxd-N) の挙動をモデル化して Fig. 2 に示した。

間欠ばっ気法におけるサイクル数は循環方式における循環比に関連するもので、次に記すように窒素除去率と密接な関係がある。なお、ここでは、藤本等¹⁰⁾と同様に以下の仮定を設けた。

- 流入し尿中の窒素で反応に供されるものは、 Alb-N も含めてすべて $\text{NH}_4\text{-N}$ とする。
- 脱窒工程で硝化反応は起こらないものとする。
- 脱窒工程で、有機態窒素の加水分解による $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成を無視する。
- 各工程で、ばっ気攪拌槽内の混合液は完全混合されているものとする。
- 処理水中の窒素とは、すべて溶解性窒素とする。
- 系を定常状態とする。

以上の仮定より、Fig. 1 で脱窒工程終了後のアンモニア態窒素濃度： $[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{II}}$ および、酸化態窒素濃

度： $[\text{Oxd-N}]^{\text{II}}$ は硝化工程終了後の窒素濃度： $[\text{N}_4\text{-N}]^{\text{III}}$ 、 $[\text{Oxd-N}]^{\text{III}}$ および流入窒素濃度： $[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{I}}$ 、 $[\text{Oxd-N}]^{\text{I}}$ を用いて、(5)、(6)式で表わされる。

$$[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{II}} = \frac{[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{I}} \cdot \frac{(1+r)Q}{\eta} + [\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{III}} \cdot V}{\frac{(1+r)Q}{\eta} + V} \quad \dots\dots\dots(5)$$

$$[\text{Oxd-N}]^{\text{II}} = \frac{[\text{Oxd-N}]^{\text{I}} \cdot \frac{(1+r)Q}{\eta} + [\text{Oxd-N}]^{\text{III}} \cdot V}{\frac{(1+r)Q}{\eta} + V} \quad (1-b) \quad \dots\dots\dots(6)$$

ここで、 Q ：流入し尿 ($\text{m}^3/\text{日}$)、 V ：ばっ気攪拌槽容積 (m^3)、 η ：サイクル数 (回/日)、 r ：返送汚泥比、 b ：ばっ気攪拌槽内での脱窒率である。

また、1 サイクルで、ばっ気攪拌槽へ流入する窒素濃度： $[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{I}}$ 、 $[\text{Oxd-N}]^{\text{I}}$ は、生し尿の窒素濃度： No 、沈殿槽越流水の窒素濃度： $[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{IV}}$ 、 $[\text{Oxd-N}]^{\text{IV}}$ を用いて、(7)、(8)式で表わすことができる。

$$[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{I}} \cdot \frac{(1+r)Q}{\eta} = \text{No} \cdot \frac{Q}{\eta} + [\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{IV}} \cdot \frac{rQ}{\eta} \quad \dots\dots\dots(7)$$

$$[\text{Oxd-N}]^{\text{I}} \cdot \frac{(1+r)Q}{\eta} = [\text{Oxd-N}]^{\text{IV}} \cdot \frac{rQ}{\eta} \quad \dots\dots\dots(8)$$

同様に、 $[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{III}}$ 、 $[\text{Oxd-N}]^{\text{III}}$ 、 $[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{IV}}$ 、 $[\text{Oxd-N}]^{\text{IV}}$ を(9)~(12)式で表わす。

$$[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{III}} = [\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{II}} \cdot (1-a) \quad \dots\dots\dots(9)$$

$$[\text{Oxd-N}]^{\text{III}} = [\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{II}} \cdot a \cdot c + [\text{Oxd-N}]^{\text{II}} \quad \dots\dots\dots(10)$$

$$[\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{IV}} = \frac{1+r}{1+r+d} \cdot [\text{NH}_4\text{-N}]^{\text{III}} \quad \dots\dots\dots(11)$$

$$[\text{Oxd}-\text{N}]^{\text{N}} = \frac{1+r}{1+r+d} \cdot [\text{Oxd}-\text{N}]^{\text{III}} \quad \dots\dots\dots (12)$$

ここで、 a : ばっ気攪拌槽内での硝化率、 C : ばっ気攪拌槽内で除去された NH_4-N のうち、 $\text{Oxd}-\text{N}$ 態となるものの比率、 d : 希釈水量比、である。

以上、(5)~(12)の関係式から、処理水の窒素濃度： $[\text{N}-\text{H}_4-\text{N}]^{\text{N}}$ および $[\text{Oxd}-\text{N}]^{\text{N}}$ は(13)、(14)式で表わされる。

$$[\text{NH}_4-\text{N}]^{\text{N}} = \frac{\text{No} \cdot (1-a) \cdot (1+r)}{k_1 \cdot k_2 - (1-a) \cdot k_3 - \eta D (1-a) k_2} \quad (13)$$

$$[\text{Oxd}-\text{N}]^{\text{N}} = \frac{a \cdot c \cdot (1+r) \cdot \text{No} \cdot k_1 \cdot k_2}{K \cdot \{k_1 \cdot k_2 - (1-a) \cdot k_3 - \eta D (1-a) k_2\}} \quad (14)$$

(13)、(14)式において、 $k_1 = 1+r+\eta D$ 、 $k_2 = 1+r+d$ 、 $k_3 = r(1+r)$ 、 $K = k_1 \cdot k_2 - (1-a) \cdot k_3 - \eta D \cdot (1-a) \cdot k_2$ 、 D = 生し尿の滞留時間(日)である。ここで、 a および b は、ばっ気攪拌槽での滞留時間を十分とることによって $a = b = 1$ に近づけることができるので、この場合の処理水の総窒素濃度： Ne は(15)式で表わされる。

$$\text{Ne} = \frac{C \cdot (1+r) \cdot \text{No}}{(1+r+\eta D) (1+r+d)} \quad \dots\dots\dots (15)$$

したがって、窒素除去率： ηn は(16)式となる。

$$\eta n = 1 - \frac{\text{Ne} \cdot (1+d)}{\text{No}} = 1 - \frac{C \cdot (1+r) (1+d)}{(1+r+\eta D) (1+r+d)} \quad (16)$$

(16)式において、 $d = 0$ の時の $n \cdot D$ は循環方式における循環率に相当し、本報告の設定では $n = 48$ 、 $D = 20$ であるので、 $n \cdot D = 960$ となる。

3. 実験用施設の概要

本実験は、茨城県湖北環境衛生組合柏山浄化プラントの一部を改造し、**Fig. 3** に示すように 16 $\text{kl}/\text{日}$ の処理能力を有する実験用施設を用いて行った。

ばっ気攪拌槽は覆蓋し、排ガスは処理場脱臭設備に導かれ、処理される。ばっ気攪拌槽内に pH 計、溶存酸素(DO)計、酸化還元電位(ORP)計、温度計を設置し、それらの指示は自動記録される。また、槽内の pH 低下を防止するため、苛性ソーダ注入設備をもつ pH 制御装置を設置した。

ばっ気攪拌槽より出た混合液は希釈された後、沈殿槽で固液分離される。沈殿汚泥は常時、ばっ気攪拌槽に返送され、余剰汚泥は返送汚泥流路より所定量を随時引き抜かれる。

Fig. 3 Schematic flow diagram of pilot plant.

4. 実験方法および経過

実験は水張り運転、馴養運転を経たのち、昭和54年5月下旬から本報に示すデータ解析のための定常運転を行った。**Table 1** に実験期間中の運転条件を示す。除渣し尿のばっ気攪拌槽への投入は原則として、定量ポンプによって行った。

ばっ気攪拌槽のMLSSは9,000 mg/ℓ 前後で運転した。したがって、沈殿槽での固液分離を容易ならしめるため、沈殿槽センターウェルに希釈水を注入することをしたが、その水量は2Q(Q:し尿投入量)程度を標準とした。沈殿槽からばっ気攪拌槽への返送汚泥濃度は10,000~14,000 mg/ℓ であったため、4Q程度の返送汚泥量で、ばっ気攪拌槽のMLSS濃度を8,700~10,500 mg/ℓ に維持することができた。

上記の運転条件のもとで、pH、 Cl^- 、アルカリ度、S、BOD、COD、TK-N、 NH_4-N 、 NO_2-N 、 NO_3-N 、T-Pを下水試験方法により測定した。また運転管理上の問題点の把握のために、データ解析を目的とはしなかったが、下記の事項を明らかにするための実験をも行った。

- (1) し尿投入量の変動(負荷変動)
- (2) NH_4-N の残留
- (3) $\text{Oxd}-\text{N}$ の残留
- (4) NH_4-N 、 $\text{Oxd}-\text{N}$ の共存残留
- (5) 槽内液温の低下及び上昇
- (6) 余剰汚泥の引き抜き停止
- (7) 盆、年末、年始の完全停止

5. 結果および考察

5.1 処理成績について

- (1) ばっ気攪拌槽内のモニタリング結果

Fig. 4 はばっ気攪拌槽内液のDO、ORP、pH、水温について自動記録した一部を示したものである。図からわかるように、本処理方式では硝化工程時の硝化反応進行に伴うDOの増加とORPの上昇、また、脱窒工程時のDOの0レベル維持、ORPの下降が30分間隔で規則的に繰り返されている。DO、ORPの変動パターンは、投入し尿の性状、硝化、脱窒のタイムスケジュール等によって変化するが、ORPの最大値が+50 mV程度以上であれば、硝化反応が進行することが明らかにされており、¹⁾ 本実験でもORPを運転管理上の操作指標として用いた。

- (2) 水質分析結果

Table 2 に四季おのおの1ヶ月間の投入除渣し尿と処理水の分析結果を示す。処理結果の概要は以下のようであった。

除渣し尿の $\text{C}\ell^-$ 濃度は1,600~5,200 mg/ℓ と変化した。

Table 1 Summary of operating results.

Month			Night	Soil	BOD Loading	MLSS	Me(OH)	Temp.	Time Sequence		
			(kl)	(kl/Day)	($kg/m^2/Day$)	(mg/l)	(kg/Day)	($^{\circ}C$)	Nitrification	DN *	Denitrification
1979.	Jul.	Summer	472	15.2	0.30 ~ 0.53	8900	6.2	34	15	5	10
	Aug.		478	15.4	0.39 ~ 0.58	9490	4.7	35	15	5	10
	Sep.	Autumn	458	15.8	0.47 ~ 0.62	10500	0.8	35	15	5	10
	Oct.		456	15.2	0.30 ~ 0.52	9640	10.3	32	15	5	10
	Nov.		468	15.6	0.37 ~ 0.68	10100	11.3	29	15	5	10
1980.	Dec.	Winter	265	14.7	0.39 ~ 0.63	9760	9.4	27	15	5	10
	Jan.		201	13.4	0.37 ~ 0.51	8920	7.2	26	15	5	10
	Feb.		445	15.9	0.34 ~ 0.64	9230	11.9	25	15	5	10
	Mar.	Spring	490	15.8	0.40 ~ 0.58	8730	7.8	25	15	5	10
	Apr.		471	15.7	0.44 ~ 0.52	9240	3.6	30	15	5	10
	May		352	15.5	0.34 ~ 0.64	9240	0.6	32	15	5	10
	Jun.	Summer	471	15.7	0.42 ~ 0.55	9270	6.6	33	15	5	10

note). *: Rag time of nitrification.

Fig. 4 Monitoring data in intermittent aeration tank.

年間平均で $3,200 \text{ mg/l}$ となった。これに対し、処理水は $880 \sim 1,340 \text{ mg/l}$ となり、ほぼ設定通りの 3 倍希釈運転となっていた。

除渣し尿の pH は $7.2 \sim 8.5$ の間で変化した。

本実験プラントでは、ばっ気攪拌槽内 pH が 6.5 以下に下らないように NaOH 自動注入設備を有しているが、これを用いなくても処理水の pH を $6.7 \sim 7.6$ の範囲におさめることができた。

また、除渣し尿のアルカリ度は $5,200 \sim 12,400 \text{ mg/l}$ 、年間平均では $7,500 \text{ mg/l}$ であったのに対し、処理水のアルカリ度は $140 \sim 350 \text{ mg/l}$ と通常の生下水のアルカリ度程度であった。

SS については、除渣し尿は $1,400 \sim 39,500 \text{ mg/l}$ と大きな変動があったが、処理水では $18 \sim 180 \text{ mg/l}$ 、年

間平均で 80 mg/l という結果が得られた。

除渣し尿の BOD は $6,000 \sim 16,000 \text{ mg/l}$ 、年間平均では $9,500 \text{ mg/l}$ であった。また 101 汙紙による汙過液の BOD は $2,200 \sim 9,100 \text{ mg/l}$ 、年間平均で $6,800 \text{ mg/l}$ と約 70 % が溶解性または沈殿分離できない形の BOD であった。処理水 BOD については、希釈率が 3 倍程度という低希釈であるにもかかわらず、月間平均で $37 \sim 57 \text{ mg/l}$ 、同汙過液で $18 \sim 28 \text{ mg/l}$ と良好な結果が得られた。

COD に関しては、除渣し尿は $1,400 \sim 8,600 \text{ mg/l}$ 、年間平均で $2,900 \text{ mg/l}$ 、同汙過液では $1,000 \sim 2,400 \text{ mg/l}$ 、年間平均で $1,700 \text{ mg/l}$ であった。処理水では $76 \sim 210 \text{ mg/l}$ 、年間平均で 130 mg/l 、同汙過液では $75 \sim 130 \text{ mg/l}$ 、年間平均で 110 mg/l となり、処理水の BOD のうち SS に起因するものが 50 % 程度占めているのに対し、COD は溶解性の占める割合が高かった。

Table 3 は処理水々質を Cl^- 濃度を尺度として無希釈換算し、除去率を求めたもの（月平均で表示）であり BOD : 98.0 % 以上、COD : 83.9 % 以上という成績が得られた。

以上の結果より、3 倍希釈処理によっても高度処理の付加なしには、し尿処理構造指針に定むる放流水質を満たすことはできないが、5 倍希釈にすれば安定してそのまま放流できることが確認された。

(3) 窒素収支

実験期間中、除渣し尿の T-N ($\equiv$ TK-N) は $1,600 \sim 6,700 \text{ mg/l}$ と変動が大きかったが、各月平均では $3,100 \sim 3,800 \text{ mg/l}$ と安定しており、年間平均では $3,350 \text{ mg/l}$ となった。また、 NH_4-N は $1,400 \sim 3,600 \text{ mg/l}$ 、年間平均で $2,090 \text{ mg/l}$ であった。したがって、除渣し尿 T-N の形態は 60 % 程度が NH_4-N 、残り 40 % は $Alb-N$ であると考えられた。処理水の T-N は月平均で $9.2 \sim 17.2 \text{ mg/l}$ と良好な結果を得た。

Fig. 5 に処理水中の各態窒素の変動を示した。遠矢

Table 2 Summary of analysis data.

		Summer Jul. 1979		Autumn Oct. 1979		Winter Feb. 1980		Spring May. 1980	
		Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.	Inf.	Eff.
pH	N	18	26	17	27	15	24	19	25
	Min.	7.2	6.8	7.2	6.7	7.8	6.8	7.3	6.9
	Ave.	-	-	-	-	-	-	-	-
	Max.	7.6	7.3	8.3	7.2	8.5	7.3	7.9	7.4
Cl ⁻	N	18	26	17	27	15	24	19	25
	Min.	3,000	980	2,300	1,050	1,600	1,020	2,950	950
	Ave.	3,280	1,050	3,410	1,120	2,680	1,060	3,100	1,020
	Max.	3,700	1,170	5,100	1,240	3,300	1,120	3,300	1,070
Alkalinity	N	18	26	17	27	15	24	19	25
	Min.	5,600	190	5,400	140	6,000	170	7,000	190
	Ave.	8,100	220	6,530	190	7,500	210	7,100	240
	Max.	12,400	310	7,400	230	9,200	260	8,200	290
SS	N	18	18	17	17	15	15	19	19
	Min.	8,600	37	1,400	48	1,500	37	5,730	18
	Ave.	15,300	57	12,600	120	14,100	72	17,800	46
	Max.	19,600	100	23,600	180	28,000	110	39,500	100
BOD (T)	N	18	18	17	17	15	15	19	19
	Min.	6,000	17	6,400	25	6,800	24	7,000	17
	Ave.	8,640	42	8,410	53	8,700	43	9,980	37
	Max.	11,200	56	10,100	88	12,900	74	13,200	51
BOD (F)	N	18	18	17	17	15	15	19	19
	Min.	2,200	12	5,300	11	4,700	13	5,300	11
	Ave.	5,310	18	6,990	19	6,100	21	6,400	19
	Max.	7,900	39	8,200	54	8,800	42	7,500	32
COD (F)	N	18	23	17	26	15	21	19	25
	Min.	1,700	79	2,000	89	1,950	84	1,600	80
	Ave.	3,180	110	3,160	140	2,290	140	2,700	120
	Max.	4,600	130	4,400	160	2,650	160	3,700	140
COD (T)	N	18	23	17	26	15	21	19	25
	Min.	1,200	77	1,300	85	1,400	82	1,170	77
	Ave.	1,620	97	1,570	120	1,760	110	1,620	100
	Max.	2,100	110	2,000	130	2,100	130	2,430	120
T-N	N	18	18	17	17	15	15	19	19
	Min.	2,300	7.2	2,200	4.6	2,450	4.5	3,500	8.9
	Ave.	3,100	14.3	3,700	16.1	3,410	12.8	3,820	14.2
	Max.	4,100	23.9	3,600	28.2	4,410	17.4	4,060	22.1
NH ₄ -N	N	18	26	17	27	15	21	19	25
	Min.	1,400	< 1	1,500	< 1	1,020	< 1	2,000	< 1
	Ave.	2,120	3.3	2,010	3.3	2,050	< 1	2,420	< 1
	Max.	2,400	16.5	2,600	14.9	2,700	3.2	3,570	7.7
NO ₂ -N	N	-	26	-	27	-	21	-	25
	Min.	-	< 0.1	-	< 0.1	-	< 0.1	-	< 0.1
	Ave.	-	0.2	-	< 0.1	-	0.4	-	0.1
	Max.	-	0.3	-	0.3	-	3.5	-	2.2
NO ₃ -N	N	-	26	-	27	-	21	-	25
	Min.	-	0.3	-	0.2	-	0.5	-	0.4
	Ave.	-	3.3	-	2.2	-	3.0	-	3.3
	Max.	-	16.4	-	9.1	-	4.7	-	15.2
Temperature	Ave.	-	21	-	20.5	-	18.5	-	20.5

注記) 1. 表中Nはサンプル数を示す。

2. 単位はpHを除き、すべてmg/lである。

Table 3 COD, BOD and T-N removal.

	COD (%)	BOD (%)	T-N (%)
1979. Jul.	89.2	98.5	98.6
Aug.	87.4	98.0	98.2
Sep.	85.7	98.5	98.7
Oct.	86.5	98.1	98.4
Nov.	91.4	99.0	98.5
Dec.	87.7	98.7	98.7
1980. Jan.	87.8	98.4	98.8
Feb.	83.9	98.7	99.0
Mar.	85.6	98.5	98.9
Apr.	87.6	98.8	99.2
May	86.5	98.9	98.9
Jun.	81.9	98.6	98.6

Table 4 Characteristics of excess sludge.

	Excess Sludge (mg/l)	VSS (%)	TK-N (%)
1980. Jan.	11,000	82.5	6.3
Feb.	11,500	79.2	7.1
Mar.	12,500	82.4	6.6
Apr.	12,000	81.6	7.8
May	11,400	77.7	7.5
Jun.	12,200	77.6	6.6
Ave.	11,800	80.0	7.0

Fig. 5 Characteristics of nitrogen in effluent.

ら¹²⁾は生物学的脱窒プロセスにおける生成酸化態窒素の形態によって、その硝化反応様式を亜硝酸型、硝酸型とに分類しているが、本実験では $\text{NO}_3\text{-N}$ の占める割合が高く、硝酸型である。また Alb-N については $5.0 \sim 12.7 \text{ mg/l}$ となっており、残留T-N中の過半を占め

ていた。

次に実験より得られたデータをもとに窒素収支に関する検討を行った結果を示す。収支をとるにあたり、以下に述べる条件設定を行った。

- 余剰汚泥の成分は **Table 4** に示されるように有機質 80 %, 無機質 20 % であり、有機質中の窒素含有量は 7 % とする。
- 処理水 SS は全て有機質とみなし、その窒素含有量は 7 % とする。
- 処理水中の窒素で、 Oxd-N 及び SS に含有される窒素以外はすべて未反応の窒素とする。
- 処理水中の Oxd-N 、未反応窒素、SS 含有窒素及び余剰汚泥中に含有される窒素以外はすべて脱窒されて N_2 ガスになるものとする。

以上の条件のもとに、窒素収支をとると **Fig. 6** のようになる。〔次項(4)汚泥収支参照〕

この結果、流入総窒素のうち、86.9 % が N_2 ガスに変換されたことになる。

(4) 汚泥発生量および沈降性

Table 5 は実験期間中の昭和 54 年 8 月から 12 月の間の汚泥収支について、一覧表にしたものである。データは月毎の平均値で示した。表より引抜汚泥量は固形分で流入 SS 量の 51.6 %, 容積では流入量（し尿投入量）の 60 % となっている。したがって、余剰汚泥発生量は、投入し尿 kg あたり 7.3 kg となる。

本実験においては先にも述べたように、ばっ気攪拌槽 MLSS 濃度は $9,000 \text{ mg/l}$ 前後とかなり高濃度に保たれる。このため、重力式沈殿槽を採用する場合、このままで固液分離を行うことは難しい。そこで流入する混合液を希釈するため、泡泡を兼ねて沈殿槽センターウェルに希釈水を注入した。**Fig. 7** に 2 l のシリンダー（径 8.5 cm ）を用いて行った混合液汚泥の沈降試験の 1 例を示す。希釈された混合液を直接サンプリングすることは構造的にできなかったので、供試サンプルはばっ気攪拌槽混合液を希釈したものを用いた。¹³⁾ この結果より見ると、汚泥濃度を $3,000 \text{ mg/l}$ 程度に希釈すれば、この混合液中の活性汚泥は固液分離できることが明らかである。

5.2 薬品使用量

(1) 苛性ソーダ使用量

硝化、脱窒反応に伴うアルカリ度収支では化学量論的に、硝化反応時に 7.14 kg/kg-N のアルカリ度が消費され、脱窒反応時には水素供与体としての有機炭素源の存在のもとに 3.57 kg/kg-N のアルカリ度が生成すると考えられている。したがって、本方式においては、ばっ気攪拌槽内の pH 維持のために必要なアルカリ度は次式で示さ

Fig. 6 Mass balance of nitrogen through process.

Table 5 Summary of sludge balance.

	Night Soil			Excess Sludge		
	Conc (mg/ℓ)	Q (m^3/Day)	SS (kg/Day)	Conc (mg/ℓ)	Q (m^3/Day)	SS (kg/Day)
1979.Aug.	14,300	15.4	220.2	11,500	9.0	103.5
Sep.	8,900	15.8	140.6	12,800	10.0	128.0
Oct.	12,600	15.2	191.5	12,100	9.0	108.9
Nov.	17,200	15.6	268.3	12,300	9.0	110.7
Dec.	17,600	14.7	258.7	11,800	9.0	106.2

れる。

$$M = (7.14 \text{ NnQ} - 3.57 \text{ NdQ}) - \text{MoQ} \quad \dots\dots\dots (17)$$

M : アルカリ度必要量 ($\text{kg}/\text{日}$)

Mo : し尿中のアルカリ度 (kg/kl)

Q : し尿投入量 ($\text{kg}/\text{日}$)

Nn : 硝化される窒素量 (kg/kl)

Nd : 脱窒される窒素量 (kg/kl)

Fig. 7 Family of curves developed from batch settling tests using various MLSS concentrations.

ここで本方式の特徴として、各サイクル毎に硝化、脱窒反応が完了するのでNnとNdはほぼ等しくなり、必要アルカリ度量は(18)式となる。

$$M = 3.57 \text{ NnQ} - \text{MoQ} \quad \dots\dots\dots (18)$$

(18)式より、硝化される窒素量の3.57倍量のアルカリ度が投入し尿中に存在すれば、外部よりアルカリ度を補給する必要のないことがわかる。

既に述べたように、除渣し尿のアルカリ度は年間平均で7,500 mg/ℓ であった。これに対し、除去し尿のT-N、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は年間平均で各々、3,350 mg/ℓ 、2,090 mg/ℓ となっており、本実験で用いたし尿の場合、Mo : T-N比は2.24、Mo : $\text{NH}_4\text{-N}$ 比で3.59となる。したがって、T-Nベースで考えた場合、アルカリ度はかなり不足することになるが、実験期間中、アルカリ度補給のための苛性ソーダの注入は全く行う必要がなかった。これは除渣し尿のT-Nについて $\text{NH}_4\text{-N}$ 以外はAlb-Nと見なせることと、そのAlb-Nは $\text{NH}_4\text{-N}$ を経由して硝化されることから、Alb-Nの $\text{NH}_4\text{-N}$ への移行に伴う新たなアルカリ度の生成があるために結果的にpHが低下しなかったためと思われる。

(2) メタノール使用量

本方式による生物学的脱窒素処理においては、し尿中の有機物(BOD)を用いて脱窒素を行うので、有機物と窒素の比率が窒素除去量を左右する要因の1つとなる。田中らは¹⁴⁾脱窒反応におけるBODと $\text{NO}_3\text{-N}$ の反応比率について次式を示し、2.86 $\text{kg BOD}/\text{kg}-(\text{NO}_3\text{-N})$ とした。

また、有機炭素源としてメタノールを用いた場合、McCartyら¹⁵⁾はその必要量として実験的に次式を示している。

$$\text{Cm} = 2.47 \text{ H}_1 + 1.53 \text{ N}_2 + 0.87 \text{ DO} \quad \dots\dots\dots (20)$$

ここで、Cm : 必要メタノール濃度 (mg/ℓ)

N_1 : $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度 (mg/ℓ)

N_2 : $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度 (mg/ℓ)

DO : DO濃度 (mg/ℓ)

脱窒反応を確実に行うためには、有機炭素源が不足する場合、有機炭素源を添加する必要があるが、投入し尿水質の日変動等を考えると、その適正添加は難しい。本実験においては除渣し尿のBOD/T-N比は約2.8であり、ほぼ当量に近い値を示した。このため、通常は補給有機炭素源としてのメタノール注入をほぼ0とし、ばっ気攪拌槽内に残留 $\text{NO}_3\text{-N}$ の蓄積が認められた時点でメタノール注入を行った。その蓄積の程度は最大20 mg/ℓ /日程であり、注入量は(20)式に従い、残留 $\text{NO}_3\text{-N}$ の2.5倍量とした。この結果、実験期間中のメタノール使用量はTable 1に示したようになり、年間を通すと0.37 kg/kl となった。

5.3 サイクル設定

式(15)に本実験での実績数値を代入し、サイクル数と処理水窒素濃度の関係を求めた結果をFig. 8に示す。数値の代入にあたっては、 N_0 として、実験での除去T-N、3,300 mg/ℓ 、返送汚泥量、1.4 Q、希釈水量2.0 Q

生し尿滞留時間 20 日を用い、除去された $\text{NH}_4\text{-N}$ がすべて、 $\text{NO}_3\text{-N}$ になるとして、 $C=1$ を用いた。Fig. 8 に示すとおり、本実験で設定した 48 回/日というサイクルでは、処理水窒素濃度 1.9 mg/l となる。一方、実験で得られた処理水濃度は、 $\text{NH}_4\text{-N}$ が、 1 mg/l 以下となり、硝化反応がほぼ完全に行われている期間において、酸化態窒素濃度 1.9 mg/l 以下が得られており、ばっ気攪拌槽内において 30 分サイクルでの硝化、脱窒によっても生物脱窒処理が行なわれることが明らかになった。

Fig. 8 Relationship between effluent nitrogen concentration and intermittent cycle.

間欠ばっ気法におけるサイクル数の下限値については、要求される処理水質、ばっ気攪拌槽内の pH 維持、一回の投入し尿量及び流出液量の増大に伴う設備の大型化、等の問題から制約が生じるが、Fig. 8 によれば、一日一回生し尿投入という完全なバッチ運転では 80 mg/l の処理水濃度が得られることになる。しかしながら、ピーカテストによる酸滴定の結果から、硝化反応に阻害がないと考えられている槽内 pH を 6.5 以上に維持するためには、硝化反応終了時のばっ気攪拌槽内の Oxd-N を 30 mg/l 以下にしなければならないことが明らかとなった。すなわち $[\text{Oxd-N}]^{\text{III}} = 0.03 \text{ kg/m}^3$ として、(12) および (15) 式より n を求めると、 $n = 5.4$ となり、ばっ気攪拌槽内の pH 維持の面からは、サイクル数 6 回/日が最低条件となる。

5.4 ばっ気攪拌槽における熱収支

(1) 槽内での熱発生量

一般に生物処理において、水温は大きな影響因子である。特に硝化菌（亜硝酸菌、硝酸菌）に対しては影響が大きく、反応槽内の水温は $15 \sim 35^\circ\text{C}$ の範囲でなければならないとされている。^{16), 17), 18)}

本実験期間中の水温は Table 1 に示したように $25 \sim 35^\circ\text{C}$ と適切な範囲にあった。これは、槽内でかなりの熱発生があったものの、希釈水として地下水を用いたために、夏期には温度上昇抑制、冬期には温度低下抑制があったためである。

槽内での熱発生原因としては (1) 生物反応による生成熱 (2) ばっ気用空気の圧縮熱及び攪拌装置の仕事に伴う発熱等が考えられる。(1) の生物反応をモデル反応で示すと以下になる。

本処理方式では、(21)、(22) 式で示される反応が主反応となる。

本処理方式による熱収支を Fig. 9 に示す。図中、みかけの槽内発熱量 (q_0) を推定するために、希釈水注入と汚泥返送を止めて槽内水温を測定した結果、温度上昇は平均で $0.75^\circ\text{C}/\text{日}$ となった。また、この時のし尿投入量： Q は $13 \text{ kl}/\text{日}$ であったので、液の比熱を 1 とすると、槽容積・ $V = 320 \text{ m}^3$ であることから、1 日当りの熱発生量は $240,000 \text{ Kcal}/\text{日}$ となる。したがって、 $q_0 = 18,500 \text{ kcal/kl}$ と算定される。

Fig. 9 Schematic diagram of heat balance.

(2) 槽内水温調整

前項で検討した通り槽内でかなりの熱発生があり、槽内を適切な水温に保つためには外部より何らかの形でコントロールをする必要がある。本実験では希釈水で槽内水温調整を行った。以下に水温と希釈水温または水量の関係を検討する。検討に先立ち、実測データより求めた発熱量に関して安全を見込むために次のように設定する。

$$\text{夏期 } q_0 = 18,500 \times 1.2 = 23,000 \text{ Kcal/kl}$$

$$\text{冬期 } q_0 = 18,500 \times 0.8 = 15,000 \text{ Kcal/kl}$$

① 槽内水温 t と希釈水温 t_3 の関係

(夏期)；投入し尿温度を 25°C とする。

Fig. 9 より、ばっ気攪拌槽内の熱収支は、

$$q_0 + q_1 + q_4 = q_2$$

$$\text{すなわち、} 2.3 Q \times 10^{14} + 2.5 Q \times 10^4 + 1.4 t_4 Q \times 10^3 = 2.4 t Q \times 10^3$$

$$\text{したがって } t_4 = \frac{1}{0.14} (0.24 t - 4.8) \quad (24)$$

また、沈殿槽系の熱収支より

$$q_2 + q_3 = q_4 + q_5$$

すなわち、 $2.4 t Q \times 10^3 + 2 t_3 Q \times 10^3 = 1.4 t_4 Q \times 10^3 + 3 t_5 Q \times 10^3$ 今、 $t_4 = t_5$ とすれば $t_4 = \frac{1}{4.4} (2.4 t + 2 t_3)$ (24) 式に代入すると、

$$t = 0.389 t_3 + 29.34 \quad \dots\dots\dots(25)$$

(冬期)；投入し尿温度を 4℃ とする。

同様に収支計算すると、

$$t_4 = \frac{1}{0.14} (0.24 t - 1.9) \quad \dots\dots\dots(26)$$

$$t = 0.389 t_3 + 11.6 \quad \dots\dots\dots(27)$$

② 槽内水温 t と希釈水量 αQ の関係

(夏期)；投入し尿温度を 25℃，希釈水量を αQ とする。

ばつ気攪拌槽系の熱収支は (24) 式と同様になる。沈殿槽系熱収支より、

$$2.4 t + \alpha t_3 = 1.4 t_4 + (\alpha + 1) t_5$$

$t_4 = t_5$ とし (24) 式に代入すると、

$$t = \frac{(4.8 + 0.14 t_3) \alpha + 11.52}{0.24 (\alpha + 1)} \quad \dots\dots\dots(28)$$

(冬期)；投入し尿温度を 4℃，希釈水量 αQ とする。

$$t = \frac{(1.9 + 0.14 t_3) \alpha + 4.56}{0.24 (\alpha + 1)} \quad \dots\dots\dots(29)$$

以上、① (25)，(27) 式，② の (28)，(29) 式より槽内水温と希釈水温の関係は、Fig. 10，Fig. 11 のようになる。したがって、槽内水温を適正に保とうとする場合、図より適切な希釈水量又は水温を選択すればよいことになる。

Fig. 10 Relationship between temperature of reactor and that of weak water.

Fig. 11 Relationship between temperature of reactor and quantity of weak water.

6. ま と め

約 2 カ年に及ぶ実用規模での実験を通して、間欠ばつ気法による窒素除去を含むし尿処理の可能性が検討された。その結果、本法が十分実用可能な処理方式であることが判明した。

本法の特徴は設備の簡素化が図れること、維持管理が容易なこと、アルカリ剤等の薬注費の大幅な削減が望めることにある。本実験では、アルカリ剤無添加、メタノール添加量 0.37 kg/kg し尿で、98% 以上の総窒素除去を安定して行うことができた。さらに、5 倍程度の希釈水量で、し尿処理施設構造指針に定められた放流水質を満足することも確認された。

7. お わ り に

本報告は、茨城県湖北環境衛生組合により調査、研究がなされ、同組合事務局長兼石岡市企画室々長中島義一氏、北海道大学工学部衛生工学科教授神山桂一氏、神奈川県衛生研究所衛生工学科々長桜井敏郎氏、それに著者の真柄、松並よりなる研究委員会であつた最終試験報告書をもとに、再度考察を加え、まとめ直したものである。

本研究を遂行するにあたり、前記各氏の他に下記の方の多大なる御助力があつた。ここにそのご芳名を記し謝意を表するものである。

- ・湖北環境衛生組合 稲見場長、矢ノ中主任技師
- ・住友重機械工業 荻原副課長、打江技師、西山栄子氏、島田寿賀子氏

(原稿受理：昭和 56 年 7 月 13 日)

— 引 用 文 献 —

- 1) 厚生省環境衛生局水道環境部環境整備課 (1980) 日本の廃棄物処理
- 2) 相川光男、中島義一、松並壯 (1979) 硫安回収を目的としたスチームストリッピング実証試験について 第 15 回下水道研究発表会講演集、419～421。
- 3) Ludzack F.J., Ettinger M. B. (1962) Controlling operation to minimize activated sludge effluent nitrogen. J.W.P.C.F. September. 920～931
- 4) Barnard J.L. (1973) Biological Denitrification. Wat. Poll. Control 705～720.
- 5) 遠矢泰典、松尾吉高、鈴木隆幸 (1974) 生物学的脱窒素プロセスについて、第 10 回 衛生工学研究討論会講演文集 116～121
- 6) 宮地有正、深瀬哲朗 (1976) 循環方式による下水中の窒素除去について、第 12 回衛生工学研究討論会

講演文集 18～23

- 7) 久保田宏, 宮地有正 (1977) 循環方式による廃水中の窒素除去プロセス, 水処理技術, Vol.18, No 2, 113～117
- 8) Christensen M.H. (1975) Denitrification of sewage by alternating process operation. Progress in Water Technology. Vol.7, No2, 339～347
- 9) Bishop D.F., Heidman J.A. & Stanberg J.B. (1976) Single stage nitrification-denitrification. J.W.P.C.F., Vol.48, No3, 521～532
- 10) 藤本政男 (1976) し尿よりの生物学的脱窒素による窒素除去の検討, 水処理技術, Vol.17, No9, 45～54
- 11) 中島義一, 岡庭良安, 松並壯 (1980) 単一槽におけるし尿の脱窒について, 第17回下水道研究発表会講演集 409～411
- 12) 遠矢泰典, 鈴木康司, 矢口昌司 (1970) 生物学的脱窒素法の間工業化試験, 用水と廃水 Vol.12, No12, 28～45
- 13) 真柄泰基, 南部祥一 (1976) 維持管理指標としてのSV₃₀およびSVIの意義, 下水道協会誌 Vol.13, No.149, 25～31
- 14) 田中和夫, 中沢俊明 (1980) 低希釈循環方式し尿処理の設計, 用水と廃水 Vol.22, No2, 70～76
- 15) McCarty P.L. (1969) Biological Denitrification of Waste Waters by Addition of Organic Materials. In. Proc. of the 24 th. Industrial Waste Conference. Purdue Univ. May.
- 16) Downing A.L. (1964) Nitrification in the Activated Sludge Process. J. Inst. Sew. Purif. 130～158
- 17) Jenkins S.H. (1969) Nitrification. Water Poll. Control. Vol.68, No6
- 18) 遠矢泰典 (1974) 脱窒法, 再生水の造水と利用技術集大成, フジテクノシステム, 680～743
- 19) 加藤三千雄, 三羽宏明 (1978) 生物学的脱窒素法新しい生物学的処理技術総覧, 科学技術センター, 248～264
- 20) Andrews J.F., Kambhu K., (1973) Thermophilic Aerobic Digestion of Organic Solid Wastes. U.S. EPA. Rept. No 670/2-73-061