

生物脱窒法による高濃度硝酸性窒素含有排水の窒素除去について

環境技術部 ○井上 充

1 はじめに

硝酸性窒素は、平成13年7月の水質汚濁防止法の一部改正によって、有害物質に指定され、一律基準（ $100\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ）も定められたが、零細企業が比較的多い電気メッキ業等については、排水実態に見合った適当な排水処理技術が見当たらないことから、3年間に限って暫定基準（ $800\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ）が適用された。しかし、この期間でも効果的な処理技術等の開発ができなかったことからさらに3年間延長されることとなった。

これらの事業所から排出される硝酸性窒素の濃度は約 $1000\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ と比較的高いところが多いため、排水処理技術が限られてしまい、現在、有力な候補としてはメタノール等を栄養源としたメタノール添加生物脱窒法と電解処理等による物理化学的脱窒法が考えられている。前者は電気代等の維持管理費が安価である反面、高度の維持管理技術が求められ、後者は前者と全く逆の関係で、維持管理が容易であるが、電気代等の維持管理費が高価となっている。

著者らは、槽内に脱窒菌の栄養源となる固形脱窒剤（粒径5mmのステアリン酸）を充填して、硝酸性窒素の汚染地下水を簡易な維持管理で除去する浄化技術の開発を行ってきた。この浄化技術は、メタノール添加生物脱窒法のように添加するメタノール溶液の調製作業及び添加装置等を全く必要とせず、また、接触材の閉塞防止のための逆洗浄を浮上する固形脱窒剤と攪拌との組み合わせによって対処しているため、維持管理の大幅な軽減化を可能にした。

そこで、本研究は、この浄化技術を濃度の高い硝酸性窒素含有工場排水にも積極的に利用して行くために、固形脱窒剤と同様に浮上する接触材を新たに加えて脱窒菌を大幅に増やす浮上式生物ろ過膜脱窒法を新たに考案し、人工排水と室内実験装置を用いて脱窒槽の最適処理条件、安定的な連続処理条件等の検討を行った。

2 実験方法

2.1 室内実験装置

本装置は、**図1**に示すように主に原水槽、脱窒槽及び間欠曝気槽の3槽で構成している。脱窒槽は、浮上する接触材（不織布）40%及び固形脱窒剤（粉末状のポリミチルアルコール）を運転開始時に25g添加し、約1.5カ月経過した時点から10日間毎に3.75g（理論消費量は $0.37\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ ）を添加した。間欠曝気槽は脱窒槽と同じ充填率の接触材を充填した。なお、充填率は充填容積／槽の有効容積の百分率割合で、有効容積は1000mlである。両槽には攪拌器及び間欠曝気槽には曝気及び停止の交互

運転のできる装置を設置した。また、両槽のpH調整は、pH調整槽に集めた両槽の循環水のpH調整を通して行った。

2. 2 運転方法

人工排水（硝酸性窒素濃度： $1000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ ）は、 $200\sim 600\text{ml}\cdot\text{d}^{-1}$ を一定量毎に脱窒槽に供給し、嫌気条件下で脱窒除去した後、自然流下でpH調整槽

に入れ、循環ポンプで再度脱窒槽に返送した。同じく自然流下で間欠曝気槽に入れたpH調整槽排水は曝気及び停止の交互運転によって、脱窒槽で除去しきれなかった硝酸性窒素を残留した脱窒剤でさらに脱窒除去し、また、脱窒に関与しなかった脱窒剤を好気分解によって除去した。間欠曝気槽排水は循環水槽からpH調整等のために再度pH調整槽に返送し、一部は最終処理水として槽外に排出した。汚泥は両槽からほぼ毎日約 20ml 引き抜いた。なお、実験開始時には植種菌として土壌溶出液（土壌 $0.2\text{g}\cdot\text{ml}^{-1}$ ） 10ml を脱窒槽及び間欠曝気槽に添加した。間欠曝気槽の交互運転は、 $0.5\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$ の曝気を5分間及び曝気停止を45分間を繰り返した。また、両槽の生成した窒素ガスの排出及び付着汚泥による閉塞防止を行うために、1日1回、約 $3\text{回}\cdot\text{min}^{-1}$ の回転速度で0.5分間の攪拌を行った。

2. 3 採水及び水質分析

脱窒槽の最適処理条件を求める実験は14～49日間にわたる訓養を行った後、原水及び脱窒槽排水を5～7日間にわたって3回採水及び分析し、その平均値から除去率等を求めた。水質分析項目はT-N（全窒素）、COD（化学的酸素要求量）及びTOC（有機体炭素）である。また、脱窒槽及び間欠曝気槽を組み合わせた連続処理実験は原水及び最終処理水のT-N、COD、TOC、SS（懸濁物質）及びpHの水質分析を行った。

3 実験結果及び考察

3. 1 脱窒槽の最適処理条件を求める処理実験

脱窒槽の最適処理条件を求めるために、図1に示す脱窒槽だけを用いて検討を行った。

3. 1. 1 固形脱窒剤の種類による効果

固形脱窒剤は、粒径約 2mm のラウリン酸等の高級脂肪酸3種類及びパルミチルアルコールの計4種類を用いた。なお、流入窒素負荷（1日の流入窒素負荷／接触材量）は $0.5\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ である。

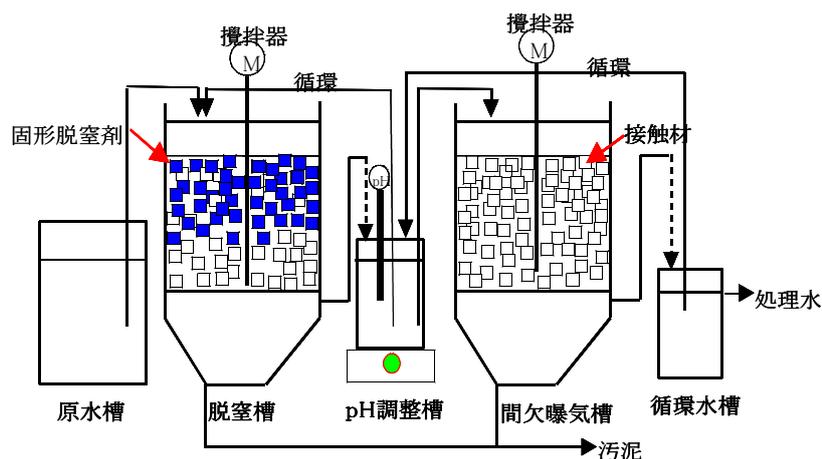
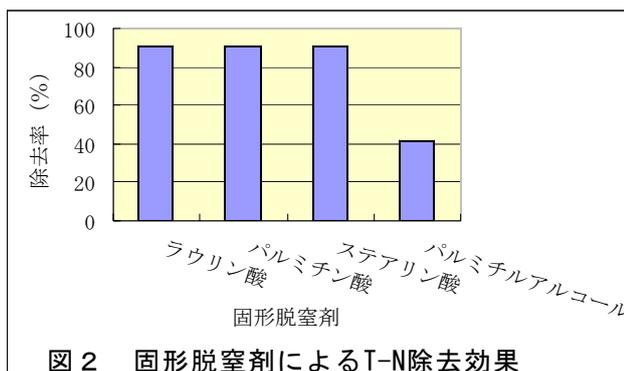


図1 室内実験装置

図2に示すように、高級脂肪酸のT-N除去率は最初、90%以上と良好であったが、時間の経過に伴って減少した。この原因は人工排水のカルシウムとステアリン酸が徐々に反応してステアリン酸カルシウム粒子を生成し、脱窒菌のステアリン酸利用ができなくなったためと考えられる。



また、この粒子は底部に堆積して、汚泥引き抜きの障害となった。一方、パルミチルアルコールは粒子状物質を全く生成しなかったが、除去率は約41%と低かった。電気メッキ業等では排水処理等に水酸化カルシウムを使用することが多いため、パルミチルアルコールを固形脱窒剤としての使用を検討することにした。

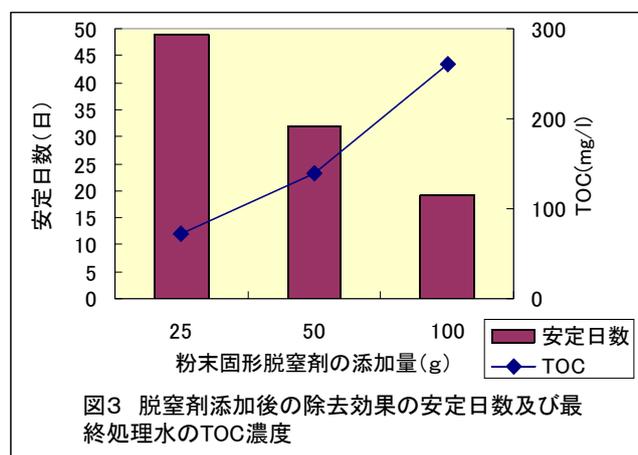
3. 1. 2 脱窒剤の性状及び循環による効果

パルミチルアルコールの固形脱窒剤の性状による T-N 除去効果について、粒状及び粉末で検討を行った。なお、流入窒素負荷は3.1.1と同様である。粉末固形脱窒剤の T-N 除去率は粒状時の約41%よりさらに24%向上して約65%となった。これは、粒径が小さくなることで、溶液への溶解度が増し、それに伴って脱窒菌への利用効率等が向上したものと考えられる。また、脱窒槽流出水を再度脱窒槽に戻す循環処理を行ったところ、T-N 除去率は約9.6%向上して、約75%となった。これは循環によって接触材に付着している脱窒菌と溶液との接触効率が向上し、除去効果に良い影響を与えたものと考えられる。なお、循環比（循環水量／流入水量）は約4である。

3. 1. 3 粉末固形脱窒剤添加後の効果

粉末固形脱窒剤を25、50及び100 g 各々添加後のT-N除去率の安定日数と脱窒槽排水のTOC濃度を求めた。なお、流入窒素負荷は3.1.1と同様である。

図3に示すように、添加量が少ないと除去率の安定日数は多くなるが、脱窒槽排水のTOC濃度は低く抑えられること



ことが分かった。これは添加量が多くなることで、粉末固形脱窒剤の溶解量、微生物分解量等が増加したものと考えられる。なお、いずれの添加量も T-N 除去率は70～75%の範囲内であった。

以上のことから、粉末固形脱窒剤の添加は維持管理等を考慮しながら、一度に多く添加するのではなく、少量ずつ添加することが適正と考えられる。

3. 1. 4 窒素流入負荷による効果

人工排水の窒素流入負荷とT-N除去率の関係について、0.5～1.5kg・m⁻³・d⁻¹の範囲

で検討を行った。

窒素流入負荷が $1.0\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ まではほぼ一定の除去率を示したが、それ以上の窒素流入負荷になるとT-N除去率は下がる傾向を示した。このことから、適正な窒素流入負荷は $1.0\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ 以下と考えられた。

3. 2 脱窒槽及び間欠曝気槽組み合わせによる連続処理実験

上記の実験では脱窒槽排水のpHが7.5付近であったため、最初、pH調整を全く行わない室内実験装置で検討を行った。なお、流入窒素負荷は $1.0\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ で、循環は脱窒槽のみとし、循環比4で行った。

最終処理水にあたる間欠曝気槽排水のT-N濃度は時間の経過に伴って減少し、実験開始後約50日で $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下となったが、約10日間経過した頃から上昇傾向を示し、その後 $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以上となった。この原因は最終処理水のpHが最大で9.5と高く、脱窒菌の良好な生育環境であるpH6.5~7.5を大幅に超えたためと考えられる。

そこで、図1に示すように両槽のpH調整ができる実験装置に改良して検討を行った。なお、循環比は約30で行った。

pH調整を組み込んだ室内実験をほぼそのまま継続したところ、最終処理水のT-N濃度は約25日で $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下になった。しかし、CODが $42\sim 52\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ と高いため、COD成分を調べたところ、約7割以上が亜硝酸性窒素であることが判明した。この原因は接触材の一部が連続的な機械攪拌によって徐々に壊れ、脱窒菌の生息を阻害したものと考えられた。なお、接触材の使用期間は約4カ月間であった。

そこで、攪拌時間は大幅に減らし、間欠曝気槽と同じ $0.5\text{min}\cdot\text{d}^{-1}$ で検討を行った。なお、脱窒による窒素ガスの排出、接触材と溶液の接触効率等の低下対応については循環比を約60に上げて行った。その結果を図4に示す。

最終処理水のT-N濃度は間欠曝気槽から脱窒槽への脱窒菌供給もあって、実験開始から約30日程度で $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下になり、約2カ月経過した時点でも $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下を維持した。また、CODも大幅に減少し、約 $10\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後を推移している。その他の水質はpHが7.0~7.5及びSSが $15\sim 23\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。

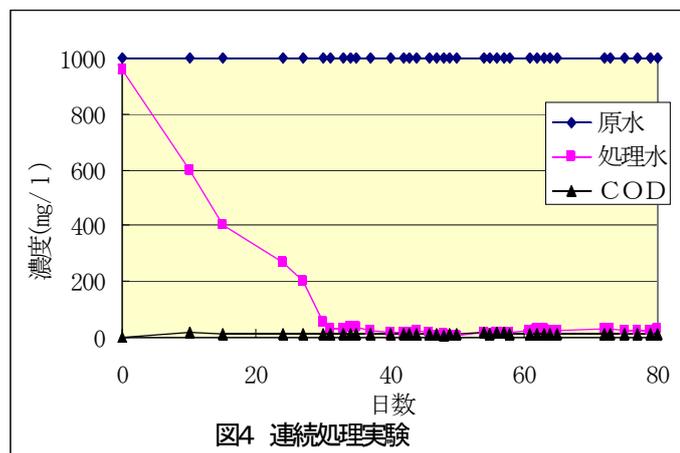


図4 連続処理実験

4 まとめ

浮上式生物ろ過膜脱窒法では、 $1000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ と濃度の高い硝酸性窒素含有排水を一律基準 $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下で処理する適正処理条件及び安定的な連続処理条件を人工排水と室内実験装置で求めることができた。今後は、さらに実験を継続して、長期間にわたって一律基準以下を安定的に維持できる維持管理技術の確立、窒素の物質収支等の検討を行い、また、当処理法を用いた埋め立て浸出水等への実用化試験を希望している機関への技術支援等を行う予定である。