

# オゾンによる汚泥減容化プロセスでの窒素の挙動に関する研究

荒川清美\* 田中俊博\*\*

## Behavior of Nitrogen during Ozonation in an Excess Sludge Removal Process

by Kiyomi ARAKAWA, & Toshihiro TANAKA

The effects of sludge-reducing ozonation conditions on nitrogen in the effluent of an activated sludge process were studied through continuous bench-scale tests. The nitrogen concentration in the effluent and that in the produced sludge were monitored under different ozone injection rates. It was revealed that although ozonation was effective for reducing the amount of excess sludge produced, it increased the T-N in the effluent. The amount of nitrogen in the reduced sludge was found to be almost identical to amount of T-N (most of which was NO<sub>x</sub>-N) in the effluent. The results of this study suggest the possibility of a nitrification-denitrification process which would enable a large part of effluent nitrogen, produced by sludge reduction, to be removed, also that biological denitrification was practical for sludge reduction in activated sludge processes.

**Keywords:** Sludge reduction, Nitrification-denitrification process, Ozonation, Nitrogen removal, Activated sludge treatment

## 1. はじめに

現在、有機性廃水の処理方法は活性汚泥法が一般的であり、この活性汚泥処理ではBOD除去に伴い余剰汚泥が発生する。汚泥の処分地不足や汚泥処理コストが高騰していることから余剰汚泥を削減する技術が望まれ、余剰汚泥の減容化に関する多くの実験が行われている。オゾン処理などの汚泥減容化においては、余剰汚泥として活性汚泥処理系外に排出されていた窒素やりん及び難分解性有機物が、余剰汚泥の減少に伴い処理水側へ移行することが確認されている<sup>1, 2)</sup>。余剰汚泥の削減に伴う処理水水質の悪化は、定性的には確認されているが、オゾン処理による汚泥減少量と処理水窒素の増加量の関係について定量的に調査した報告は少ない。

本研究では、余剰汚泥の削減に伴う処理水窒素濃度の変化を定量的に把握し、生物学的脱窒素プロセスが汚泥減容化には合理的であることを実証するために二つの実験を行った。実験は、実験1としてオゾン処理を組み込んだ標準活性汚泥法での連続実験を行い、汚泥削減量、処理水の有機物、窒素及びりんの濃度を測定し、これらの関係について検討を行った。また、実験2としてオゾ

ン処理を組み込んだ循環型硝化脱窒法の連続実験を行い、処理性能について調査した。更に、実験1と実験2でのオゾン処理及び生物処理での有機物及び窒素の収支を調査し、汚泥をオゾン処理することによる生物処理への負荷の増加を解析し生物処理水への影響を検討した。以下に得られた知見を報告する。

## 2. 実験方法

### 2-1 実験1：標準活性汚泥法での処理

#### 2-1-1 実験装置

実験は、ベンチスケールプラントを用い、標準活性汚泥法に汚泥のオゾン処理工程を組み込んだプロセス（以下、オゾン系列という）を2系列と、標準活性汚泥法（以下、対照系列という）の1系列の合計3系列を用いて、同時に連続実験を行った。図1に実験装置のフローを示す。原水と返送汚泥はともに好気槽の第1槽に流入させた。返送汚泥は、容積0.3 Lのオゾン反応槽に全量流入させ、このオゾン反応槽に下部から散気球を用いてオゾンガスを間欠的にタイマで注入し、一部の返送汚泥についてオゾン処理した。

#### 2-1-2 供試原水

供試原水は、酢酸ナトリウムとポリペプトンを主成分としミネラル等を添加した合成廃水を用いた。原水の調製に用いた薬品の種類及び濃度を表1に、原水性状を表2

\* コーポレート 知的財産室 企画推進グループ

\*\* 荏原エンジニアリングサービス(株) 工学博士

下水道協会誌, Vol.44, No.537, 2007/7 掲載

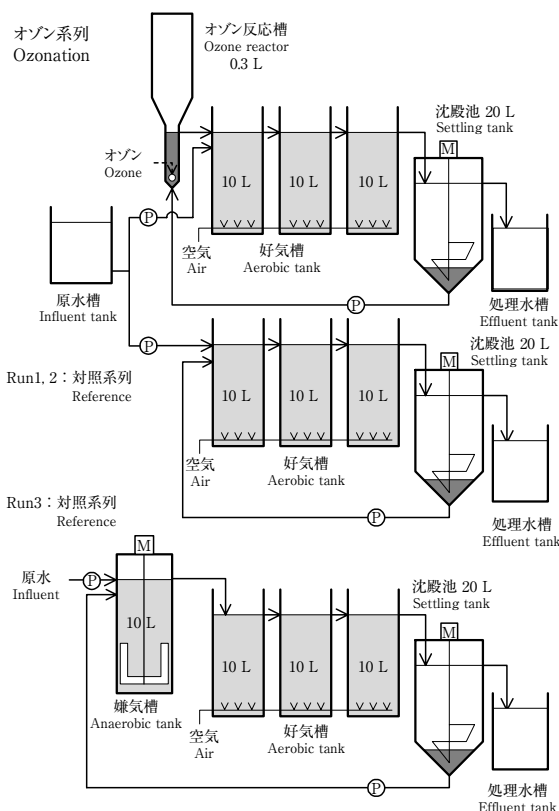


図1 実験装置フロー (標準活性汚泥法)  
Fig. 1 Flow diagram (Activated sludge treatment)

に示す。試薬で調製しているため原水中にSS (Suspended solid) は存在しない。また、原水のBOD、窒素及びりんの比(BOD : N : P)は、Run1及び2では100 : 6 : 1, Run3では100 : 6 : 3となるように調整した。

### 2-1-3 実験条件

実験1は、Run1～3で原水BOD濃度及び窒素濃度を変化させることでBOD汚泥負荷及び窒素負荷を調整した。Run1及びRun2の対照系列は、バルキング (膨化) が生じて汚泥の沈降性が悪くなり生物処理系内の汚泥量を維持できなかったため、長期間の実験は不可能であった。このため、Run3の対照系列は好気槽の前段に10 Lの嫌気槽を設置し嫌気-好気法にて運転を行った。実験条件を表3に示す。各処理フローとも、原水流量36 L/dとし、返送汚泥流量は活性汚泥有機性浮遊物質 (MLVSS) が2500～3000 mg/Lとなるように調整した。Run3の対照系列については原水流量を48 L/dとした。また、生物処理槽 (好気槽、嫌気槽) の水温は20℃にコントロールした。オゾン処理は、オゾンガス濃度65 mg/L、ガス流量200 mL/minでオゾンガスを1時間ごとに数分間注入し、オゾン注入量を0.3 g-O<sub>3</sub>/d、0.8 g-O<sub>3</sub>/d及び1.6 g-O<sub>3</sub>/dとした。オゾン処理汚泥流量は、7.5 L/d、7.9 L/d

表1 合成廃水組成  
Table 1 Composition of synthetic wastewater

Run	1	2	3	4, 5
酢酸ナトリウム CH <sub>3</sub> COONa (mg/L)	1240	930	620	620
ポリペプトン Polypepton (mg/L)	400	300	200	200
酵母エキス Yeast extract (mg/L)	40	30	20	20
塩化ナトリウム NaCl (mg/L)	200	150	100	100
硫酸マグネシウム MgSO <sub>4</sub> · 2H <sub>2</sub> O (mg/L)	300	225	150	150
塩化カルシウム CaCl <sub>2</sub> · 7H <sub>2</sub> O (mg/L)	100	75	30.6	30.6
塩化アンモニウム NH <sub>4</sub> Cl (mg/L)	0	0	0	267.5
りん酸二水素カリウム KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (mg/L)	25	18.75	62.5	62.55

表2 原水性状 (平均値)  
Table 2 Quality of influent (Average)

Run	1	2	3	4	5	
pH	(-)	7.3	7.2	7.3	7.1	7.1
全有機性炭素 TOC (mg/L)	590	400	250	243	271	
化学的酸素要求量 COD <sub>Mn</sub> (mg/L)	200	150	110	85	80	
生物学的酸素要求量 BOD (mg/L)	950	680	490	490	470	
アンモニア性窒素 NH <sub>4</sub> -N (mg/L)	4.6	8.3	3.7	73.1	70.1	
ケルダール窒素 Kj-N (mg/L)	56.6	43.7	28.7	97.8	97.7	
全窒素 T-N (mg/L)	57.0	43.7	29.1	99.6	97.8	
全りん T-P (mg/L)	9.4	6.9	15.3	15.9	15.5	

及び8.7 L/dであることから、汚泥に対するオゾン注入率 (以下、オゾン注入率とする) は15 mg-O<sub>3</sub>/g-VSS、30 mg-O<sub>3</sub>/g-VSS及び60 mg-O<sub>3</sub>/g-VSS\*となる。オゾン反応槽での反応時間はオゾン注入時間と同様である。オゾン消費率は95%程度である。

\* VSS = 揮発性浮遊物質

### 2-2 実験2 : 循環型硝化脱窒法での運転

#### 2-2-1 実験装置

図2に実験装置のフローを示す。実験1と実験2の相違点は、実験1の生物処理の構成は好気槽30 Lであるのに対し、実験2では脱窒槽10 Lと好気槽20 Lとした点である。

#### 2-2-2 供試原水

供試原水は、酢酸ナトリウムとポリペプトンを主成分としミネラル等を添加した合成廃水を用いた。表1に示すように、実験1と使用薬品はほぼ同一である。ただし、実験2では窒素除去能力をより明確にするために、実験1より原水T-Nの比率を高く設定した。実験2の原水のBOD、窒素及び

表3 実験条件 (平均値) (標準活性汚泥法)  
Table 1 Average test conditions (Activated sludge treatment)

Run		1			2			3			
系 列 Train	対 照 Reference	オゾン Ozonation			対 照 Reference	オゾン Ozonation		対 照 Reference	オゾン Ozonation		
		A	B	C		A	B		A	B	
日付 Date	(月/日) (M/D)	2/3-2/13	3/4-3/27	3/6-3/31	2/3-2/23	4/7-4/27	4/7-6/1	4/7-5/22	6/5-6/29	6/5-6/29	6/5-6/29
原水水量 Influent flow rate	(L/d)	36.1	32.2	35.4	36.1	35.7	35.6	35.6	47.1	35.6	35.5
返送汚泥流量 Return sludge flow rate	(L/d)	18.0	18.0	17.9	18.1	30.1	17.8	17.9	47.7	18.3	18.5
活性汚泥浮遊物質 MLSS	(mg/L)	3090	2800	3470	2840	2520	3330	3220	2690	3570	3450
活性汚泥有機性浮遊物質 MLVSS	(mg/L)	2820	2640	3170	2590	2340	3080	2880	2150	3240	3110
BOD汚泥負荷 BOD-SS load	(kg/(kg-VSS·d)) <sup>1)</sup>	0.39	0.40	0.43	0.44	0.35	0.27	0.28	0.25	0.18	0.19
窒素汚泥負荷 Nitrogen-SS load	(kg/(kg-VSS·d))	0.024	0.024	0.024	0.027	0.018	0.018	0.018	0.015	0.011	0.011
オゾン注入 Ozone injection	注入時間 (分) Time (min)	0.0	1.0	2.5	5.0	0.0	1.0	2.5	0.0	1.0	2.5
	サイクル時間 (分) Cycle (min)	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60
オゾン注入量 Amount of ozone	(g-O <sub>3</sub> /d)	0.00	0.30	0.81	1.62	0.00	0.31	0.79	0.00	0.31	0.76
オゾン注入率 Ozone injection rate	(mg-O <sub>3</sub> /g-VSS) <sup>2)</sup>	0.0	15.4	32.4	66.1	0.0	13.5	34.6	0.0	12.8	30.8
オゾン処理汚泥流量 Sludge flow rate into ozone treatment	(L/d)	0.0	7.5	7.9	8.7	0.0	7.5	7.9	0.0	7.5	7.9

- 1) BOD汚泥負荷、窒素汚泥負荷は、好気槽の汚泥に対する原水の値。  
The values of BOD-SS load/nitrogen-SS load are for influent with sludge in the aerobic reactor.
- 2) オゾン注入率は、オゾン反応槽に投入した汚泥1gに対するオゾン注入量。  
The values of BOD-SS load/nitrogen-SS load are for influent with sludge in the aerobic tank.

りの比 (BOD : N : P) は 100 : 20 : 3 である (表2参照)。

2-2-3 実験条件

実験2はRun4及びRun5で行った。実験条件を表4に示す。各処理フローとも、原水流量36 L/dとし、返送汚泥流量は、MLVSSが4000 mg/Lになるように流量を調整し、BOD汚泥負荷は、0.2 kg/(kg-VSS·d)程度となった。また、生物処理槽(脱窒槽、好気槽)の水温は20℃にコントロールした。オゾン処理条件は、オゾンガス濃度50 mg/L、ガス流量200 mL/minに設定した。Run4ではオゾンガスを1時間ごとに3.6分間注入し、オゾン注入量; 0.86 g-O<sub>3</sub>/d, オゾン処理汚泥流量; 7.2 L/d, オゾン注入率; 20.8 mg-O<sub>3</sub>/g-VSSとした。Run5ではオゾンガスを2時間ごとに14.4分間注入し、オゾン注入量; 1.83 g-O<sub>3</sub>/d, オゾン処理汚泥流量; 4.6 L/dであり、オゾン注入率; 101 mg-O<sub>3</sub>/g-VSSとした。オゾン反応槽での反応時間は、オゾン注入時間と同様である。オゾン消費率は95%程度である。ただし、Run5のオゾン系列では、Run4に比べてオゾン注入量が約2倍と大きいため汚泥減少量が大きくなり、生物処理槽内の汚泥量が減少し、その結果MLVSSが設定値より低くなった。

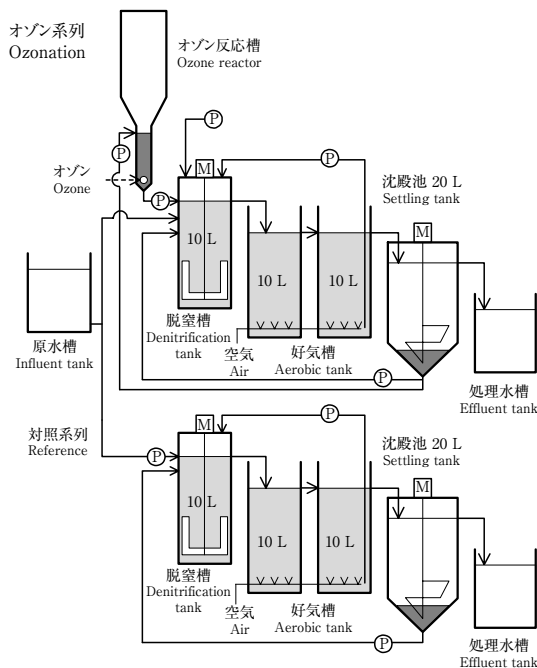


図2 実験装置フロー (循環型硝化脱窒法)

Fig. 2 Flow diagram (Nitrification-denitrification process)

表4 実験条件 (平均値) (循環型硝化脱窒法)

Table 4 Average test conditions (Nitrification-denitrification process)

Run	4		5		
系列 Train	対照 Reference	オゾン Ozonation	対照 Reference	オゾン Ozonation	
日付 (月/日) Date (M/D)	6/9-7/21	6/9-7/21	9/6-10/16	9/6-10/16	
原水流量 Influent flow rate (L/d)	35.0	35.1	36.1	35.2	
返送汚泥流量 Return sludge flow rate(L/d)	27.8	57.9	33.1	52.9	
循環流量 Return flow rate (L/d)	141.6	142.8	142.1	141.4	
活性汚泥浮遊物質 MLSS (mg/L)	4690	4290	4640	3110	
活性汚泥有機性浮遊物質 MLVSS (mg/L)	3730	4000	3770	2660	
BOD汚泥負荷 BOD-SS load (kg/(kg-VSS·d)) <sup>1)</sup>	0.21	0.20	0.24	0.32	
窒素汚泥負荷 Nitrogen-SS load (kg/(kg-VSS·d))	0.048	0.045	0.049	0.068	
オゾン注入 Ozone injection	注入時間 (分) Time (min)	0.0	3.6	0.0	14.4
	サイクル時間 (分) Cycle (min)	60	60	120	120
オゾン注入量 Amount of ozone (g-O <sub>3</sub> /d)	0.00	0.86	0.00	1.83	
オゾン注入率 Ozone injection rate (mg-O <sub>3</sub> /g-VSS) <sup>2)</sup>	0.0	20.8	0.0	101	
オゾン反応槽汚泥流量 Sludge flow rate into ozone treatment (L/d)	0.0	7.2	0.0	4.6	

- 1) BOD汚泥負荷、窒素汚泥負荷は、好気槽の汚泥に対する原水の値。  
The values of BOD-SS load/nitrogen-SS load are for influent with sludge in the aerobic reactor.
- 2) オゾン注入率は、オゾン反応槽に投入した汚泥1gに対するオゾン注入量。  
The values of BOD-SS load/nitrogen-SS load are for influent with sludge in the aerobic tank.

### 3. 結果及び考察

#### 3-1 実験1：標準活性汚泥法での運転結果

処理結果を表5に示す。Run1, Run2, Run3ともに処理水水質の安定した期間の平均値である。

すべてのRunにおいて、原水に比べ処理水pHが高くなった。今回の実験では、原水の主成分に酢酸ナトリウムを使用したため、生物処理で酢酸が消費されナトリウムだけが残留し、処理水pHが上昇したと推察される。処理水SSは、オゾン系列ではすべて10 mg/L以下であったが、Run2の対照系列及びRun3の対照系列では10 mg/L以上となった。対照系列にて処理水SSが高くなった理由は汚泥のSVI (汚泥容量指標 Sludge volume index) が上昇して沈殿池での固液分離が不能となり、汚泥が処理水へ流出したためである。オゾン系列の処理水S-BOD, NH<sub>4</sub>-Nはオゾン注入量にかかわらずほぼ同濃度であった。これに対し、Run2及びRun3の処理水TOC, S-COD<sub>Mn</sub>,

NO<sub>x</sub>-N, T-Nは、オゾン注入量の増加に従って上昇する傾向が認められた。処理水T-Pは、Run1及びRun3ではオゾン注入量の増加に従って上昇した。一方、Run2はオゾン注入量の増加に従って低下した。

汚泥発生量 (以下、 $\Delta X$ とする) と好気槽汚泥量 (以下、 $X$ とする) の比を $\Delta X/X$ としたときの、BOD汚泥負荷と $\Delta X/X$ との関係を図3に示す。

また、同一BOD汚泥負荷としたときの対照系列とオゾン系列との汚泥発生量の差を汚泥減少量 (以下、 $\Delta X_R$ とする) とし、オゾン注入量と $\Delta X_R$ の関係を図4に示す。なお、汚泥発生量は、系内の汚泥量を定期的に計測し求めた系内汚泥増加量に、処理水SSとして流出した汚泥量と引抜汚泥量を加えたものである。図4では、汚泥へのオゾン注入量を大きくするに従い $\Delta X_R$ は増加しており、オゾン注入量と $\Delta X_R$ はほぼ比例関係であった。Run1~3の同じオゾン注入量での $\Delta X_R$ を比較するとRunにより異なっていたが、BOD汚泥負荷との明確な関係は認められなかった。 $\Delta X_R$ は、生物処理槽の水温や生物活性に

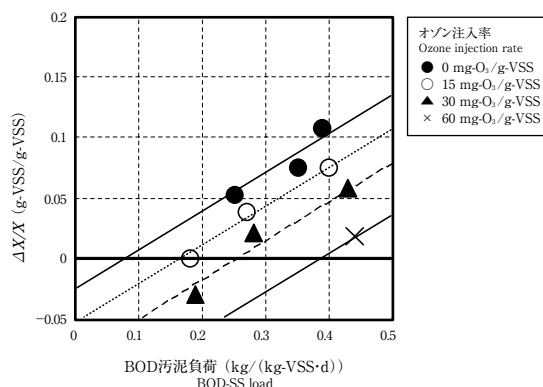


図3 BOD汚泥負荷と $\Delta X/X$ の関係  
Fig. 3 Correlation between BOD-SS load and  $\Delta X/X$

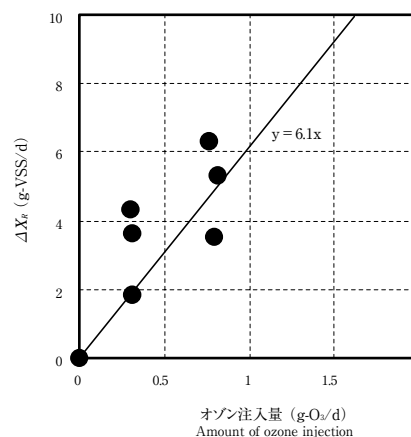


図4 オゾン注入量と $\Delta X_R$ の関係  
Fig. 4 Correlation between amount of ozone injection and  $\Delta X_R$

表5 処理水水質 (平均値) (標準活性汚泥法)  
Table 5 Effluent water quality (Average) (Activated sludge treatment)

系 列 Train	Run	1			2			3			
		対 照 Reference	オゾン Ozonation			対 照 Reference	オゾン Ozonation		対 照 Reference	オゾン Ozonation	
			A	B	C		A	B		A	B
日付 Date	(月/日) (M/D)	2/3-2/13	3/4-3/27	3/6-3/31	2/3-2/23	4/7-4/27	4/7-6/1	4/7-5/22	6/5-6/29	6/5-6/29	6/5-6/29
pH	(-)	8.7	8.7	8.6	8.6	8.7	8.7	8.6	8.5	8.5	8.4
浮遊物質 SS	(mg/L)	4.9	2.7	6.9	6.4	15.2	4.9	4.8	21.3	2.8	4.6
全有機性炭素 TOC	(mg/L)	7.7	9.2	8.3	34.3	4.4	6.1	12.1	2.9	6.9	12.2
溶解性化学的酸素要求量 S-COD <sub>Mn</sub> <sup>1)</sup>	(mg/L)	9.8	20.0	15.2	33.1	7.0	8.9	19.3	4.4	9.6	17.3
溶解性生物学的酸素要求量 S-BOD	(mg/L)	1.9	1.3	1.5	2.9	1.2	1.3	2.3	1.1	1.0	1.8
アンモニア性窒素 NH <sub>4</sub> -N	(mg/L)	3.30	1.02	0.40	1.62	0.70	0.17	0.16	<0.10	<0.10	<0.10
硝酸性及び亜硝酸性窒素 NO <sub>x</sub> -N	(mg/L)	7.92	18.2	23.6	39.5	9.62	16.0	26.5	2.99	17.1	23.1
ケルダール窒素 Kj-N	(mg/L)	2.3	4.9	4.5	7.49	5.4	3.2	4.5	2.70	2.8	6.6
全窒素 T-N	(mg/L)	15.2	23.1	28.8	47.1	15.0	19.2	30.9	5.70	19.8	29.7
ΔTN <sup>2)</sup>	(mg/d)	-	260	490	1160	-	150	570	-	170	520
全りん T-P	(mg/L)	4.53	5.49	6.98	8.43	4.75	3.66	2.94	8.60	15.3	16.1
ΔX <sup>3)</sup>	(g-VSS/d)	10.3	5.95	4.98	1.46	5.30	3.46	1.76	3.46	-0.06	-2.84
ΔX <sup>4)</sup>	(g-VSS/d)	0.00	4.35	5.32	8.84	0.00	1.84	3.54	0.00	3.65	6.34

- 1) COD<sub>Mn</sub>はNO<sub>2</sub>-N由来の量を除いた値である。The values of COD<sub>Mn</sub> are except for NO<sub>2</sub>-N.
- 2) オゾン処理による処理水T-Nの増加量。The growth of T-N due to ozonation
- 3) 汚泥発生量 Amount of sludge production
- 4) 汚泥減少量 (対照系列との汚泥発生量の差) The amount of sludge reduction (Difference of sludge production of reference)

より異なることが他の実験で確認されている。今回の実験では生物処理槽水温を20℃にコントロールしており、水温の影響は考えられないことから、Runごとに生物活性が異なっていた可能性が考えられる。

オゾン処理による処理水T-Nの増加量 (以下、ΔTNとす) とXの比をΔTN/Xとしたときの、BOD汚泥負荷とΔTN/Xとの関係を図5に示す。なお、Run3の対照系列は嫌気槽を設置していたため、Run3の対照系列の

窒素データは解析から除外した。

BOD汚泥負荷を大きくしてもΔTN/Xは各オゾン注入率ではほぼ一定であった。また、オゾン注入率とΔTN/Xはほぼ比例関係であった。

同様に、オゾン処理による処理水T-Pの増加量 (以下、ΔTPとす) とXの比をΔTP/Xとしたときの、BOD汚泥負荷とΔTP/Xとの関係を図6に示す。オゾン注入率とΔTP/Xの相関は認められなかった。

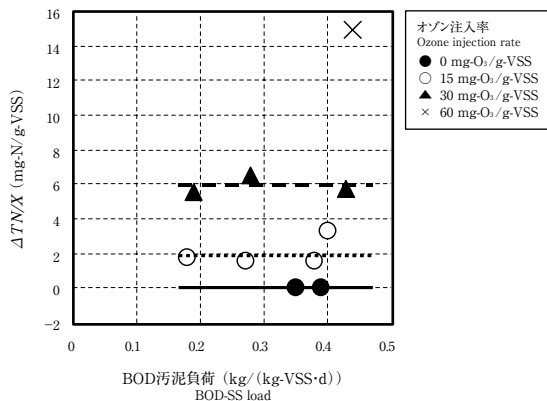


図5 BOD汚泥負荷とΔTN/Xの関係  
Fig. 5 Correlation between BOD-SS load and ΔTN/X

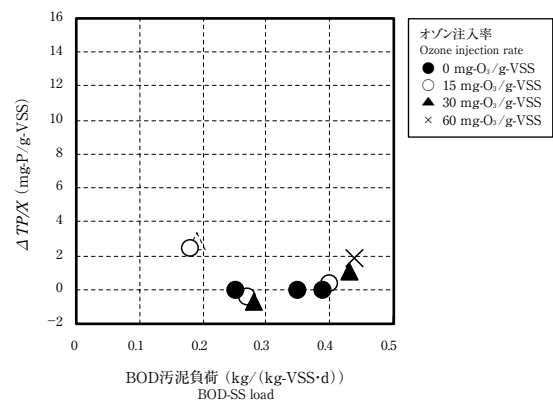


図6 BOD汚泥負荷とΔTP/Xの関係  
Fig. 6 Correlation between BOD-SS load and ΔTP/X

図4では、オゾン注入量により $\Delta X_R$ が決まることが示されている。また、図5で示したとおりオゾン注入量と $\Delta TN$ はほぼ比例関係であることから、 $\Delta X_R$ と $\Delta TN$ にも関係があると推察される。そこで、 $\Delta X_R$ と以下の項目について、関係を整理した。結果を図7に示す。

(1)  $\Delta TN$

(2) オゾン処理による処理水中の有機態窒素増加量 (以下、 $\Delta OrgN$ とする)

(3) オゾン処理による処理水中の $NH_4$ -N増加量 (以下、 $\Delta NH_4$ とする)

(4) オゾン処理による処理水中の $NO_X$ -N増加量 (以下、 $\Delta NO_X$ とする)

$\Delta X_R$ を大きくしても $\Delta OrgN$ 及び $\Delta NH_4$ は増加しなかった。 $\Delta NO_X$ 及び $\Delta TN$ は、 $\Delta X_R$ が大きくなるに伴い一次的に増加した。これらの結果より、オゾン処理を導

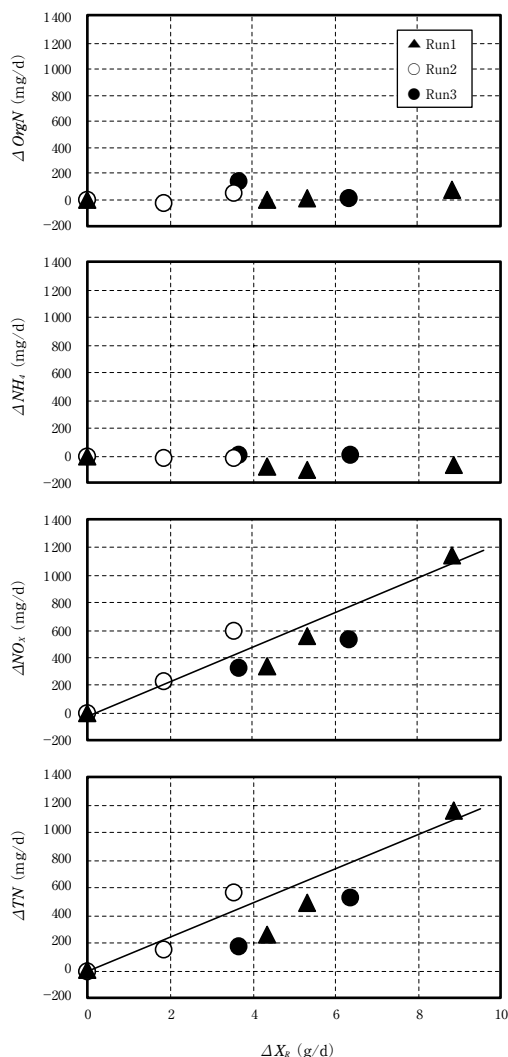


図7  $\Delta X_R$ と処理水中の窒素量の関係

Fig. 7 Correlation between  $\Delta X_R$  and the concentration of each nitrogen component in effluent

入し汚泥発生量を減少させても硝化能力は低下せず、硝化はほぼ100%進行する。また、汚泥発生量の減少に伴い、処理水のT-Nは $NO_X$ -Nが主成分で増加する。脱窒処理を追加することで処理水 $NO_X$ -Nの増加を抑制できると考えられる。

標準活性汚泥法の場合、 $\Delta X_R$ を大きくするに従い $\Delta TN$ は増加しており、 $\Delta XR$  1 gあたりの $\Delta TN$ は0.1 gであった。本実験での活性汚泥の窒素含有率は約0.1 g-N/g-VSSであり、汚泥に含まれていた窒素のほぼ全量が処理水側へ移行しているといえる。

### 3-2 実験2：循環型硝化脱窒法での運転

処理結果を表6に示す。オゾン系列、対照系列ともに、処理水水質の安定した期間の平均値である。

処理水SS, S-BODについては、オゾン系列と対照系列ではほぼ同じであった。処理水TOC, S-COD<sub>Mn</sub>はオゾン系列が対照系列より高い値を示した。処理水 $NH_4$ -Nは両系列とも1 mg/L以下であり硝化はほぼ100%進行していた。処理水 $NO_X$ -N, Kj-N及びT-Nについてはオゾン系列の方が対照系列より若干高い値であった。しかし、

表6 処理水水質 (平均値) (循環型硝化脱窒法)

Table 6 Effluent water quality (Average) (Nitrification-denitrification process)

Run	4		5	
系列 Train	対照 Reference	オゾン Ozonation	対照 Reference	オゾン Ozonation
日付 Date	(月/日) (M/D) 6/9-7/21	6/9-7/21	9/6-10/16	9/6-10/16
pH	(-) 8.3	7.9	7.8	7.5
浮遊物質 SS (mg/L)	13.2	7.7	20.6	13.9
全有機性炭素 TOC (mg/L)	5.8	19.7	4.1	28.2
溶解性化学的酸素要求量 S-COD <sub>Mn</sub> <sup>1)</sup> (mg/L)	7.3	21	5.1	34.1
溶解性生物学的酸素要求量 S-BOD (mg/L)	4.8	6.6	1.7	3.3
アンモニア性窒素 $NH_4$ -N (mg/L)	0.12	0.30	0.17	1.63
硝酸性及び亜硝酸性窒素 $NO_X$ -N (mg/L)	13.7	15.0	11.7	14.8
ケルダール窒素 Kj-N (mg/L)	1.0	3.6	1.6	7.2
全窒素 T-N (mg/L)	14.7	18.6	13.3	22.1
$\Delta TN$ <sup>2)</sup> (mg/d)	-	140	-	310
全りん T-P (mg/L)	1.33	17.4	5.1	21.9
$\Delta X$ <sup>3)</sup> (g-VSS/d)	5.71	-0.62	4.87	-2.22
$\Delta XR$ <sup>4)</sup> (g-VSS/d)	0.00	6.33	0.00	7.09

1) COD<sub>Mn</sub>は $NO_2$ -N由来の量を除いた値である。

The values of COD<sub>Mn</sub> exclude  $NO_2$ -N.

2) オゾン処理による処理水T-Nの増加量。

The growth of T-N due to ozonation

3) 汚泥発生量

Amount of sludge production

4) 汚泥減少量 (対照系列との汚泥発生量の差)

The amount of sludge reduction (Difference between sludge production of reference)

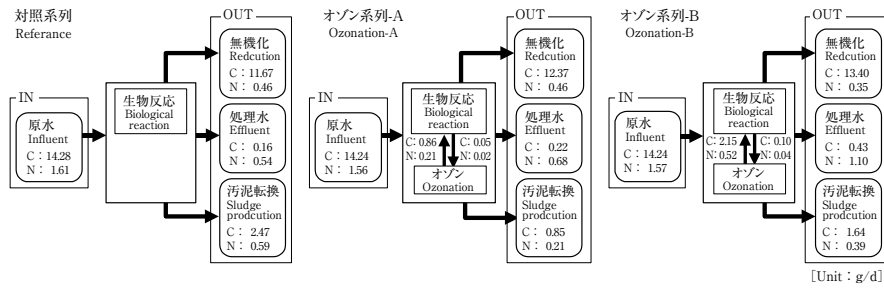


図8 TOCと窒素の物質収支 (Run2: 標準活性汚泥法)  
 Fig. 8 Material balance of TOC and nitrogen (Run 2: Activated sludge treatment)

原水に対する窒素除去率は、Run4ではオゾン系列81%、対照系列85%、Run5ではオゾン系列77%、対照系列85%であり、オゾン系列では汚泥発生量はほぼ0であるにもかかわらず、対照系列とほぼ同等の窒素除去性能を示した。オゾン処理を行ったとき  $\Delta X_R$  がほぼ同じであった標準活性汚泥法と循環型硝化脱窒法の  $\Delta TN$  について比較を行った。標準活性汚泥法のRun3では原水流量 35.3 L/d、処理水 T-N はB系列 29.7 mg/L、対照系列 5.70 mg/L であることから  $\Delta TN$  は 520 mg/d であった。循環型硝化脱窒法のRun4では原水流量 35.1 L/d、処理水 T-N はオゾン系列 18.6 mg/L、対照系列 14.7 mg/L であることから  $\Delta TN$  は 140 mg/d であった。循環型硝化脱窒法では、標準活性汚泥法に比べて  $\Delta TN$  が低くなっていた。前述のとおり、標準活性汚泥法では  $\Delta X_R$  1 gあたりの  $\Delta TN$  は 0.1 g であった。一方、循環型硝化脱窒法での  $\Delta X_R$  は 6.33 gVSS/d であることから、 $\Delta X_R$  1 gあたりの  $\Delta TN$  は 0.03 g であった。このことから、汚泥発生量の減少に伴う処理水への窒素の流出量は、脱窒槽を組み込むことにより低下するといえる。

### 3-3 物質収支からみた炭素及び窒素の挙動

標準活性汚泥法 (Run2) の炭素及び窒素の物質収支を図8に、循環型硝化脱窒法 (Run4) での炭素及び窒素の物質収支を図9に示す。生物処理槽への「IN」は原水、「OUT」は処理水流出分、汚泥転換分と生物反応による無機化分とした。図中の汚泥転換分は実際の汚泥発生量中に含まれる炭素及び窒素量を記載してある。対照系列における無機化分は、「IN」から処理水流出分と汚泥転換分を引いた量とした。オゾン系列における無機化分については、オゾン系列での汚泥転換量は対照系列と同量と考え、「IN」とオゾン処理による液化量 (オゾン処理での流入量と流出量の差) の合計から、処理水流出分と汚泥転換分を引いた量とした。図中のオゾン系列におけるオゾン処理から生物反応へ入る炭素及び窒素量

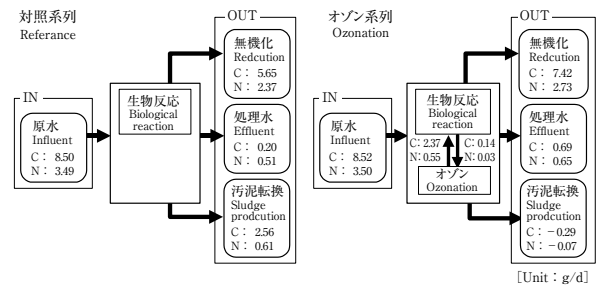


図9 TOCと窒素の物質収支 (Run4: 循環型硝化脱窒法)  
 Fig. 9 Material balance of TOC and nitrogen (Run 4: Nitrification-denitrification process)

は、オゾン処理後の汚泥中のS-TOC及びS-Kj-Nである。これらは、別途行ったオゾン処理の回分実験で求めたオゾン注入量あたりの液化量より算出した値である。

炭素の処理水流出量は対照系列に比べてオゾン系列では増加していた。オゾン系列での増加量 (対照系列とオゾン系列の差) は標準活性汚泥法 (Run2) のA系列で 0.06 g/d、B系列で 0.27 g/d、循環型硝化脱窒法 (Run4) のオゾン系列で 0.49 g/d であった。これらはオゾン処理での液化量の 7~22% であり、オゾン処理により基質化される炭素量の大部分 (78~93%) は生物反応によって分解されていた。この処理水流出量の増加分は、汚泥減容化を行わない場合は余剰汚泥として生物処理系外に排出される難分解性の有機物であると推察される。

窒素の処理水流出量も、対照系列に比べてオゾン系列では増加しており、オゾン系列での増加量 (対照系列とオゾン系列の差) は、標準活性汚泥法 (Run2) のA系列で 0.14 g/d、B系列で 0.56 g/d、循環型硝化脱窒法 (Run4) のオゾン系列で 0.14 g/d であった。標準活性汚泥法はオゾン処理での液化量とオゾン系列での処理水流出増加量はほぼ同じであり、オゾン処理による負荷増加分は、そのまま処理水側へ移行しているといえる。一方、循環型硝化脱窒法ではオゾン処理での液化量よりもオゾ

ン系列での処理水流出増加量の方が小さかった。また、オゾン系列は対照系列に比べ、生物処理による除去量（脱窒量）が増加していることから、オゾン処理による窒素負荷の増加分は脱窒槽を追加することにより除去できることを示している。

オゾン系列は、オゾン反応槽からの流入により生物処理の窒素流入量が増加しているにもかかわらず、表5に示したとおり処理水窒素の大部分は $\text{NO}_x\text{-N}$ であった。このことから、オゾン系列での硝化量の方が対照系列に比べて多いといえる。J.VAN LEEUWEN<sup>3)</sup>や栗林ら<sup>4)</sup>は活性汚泥処理にオゾン処理を組み込んだ方が硝化は進行すると報告しており、今回も同様の傾向であった。オゾン処理を組み込んだ場合、汚泥発生量が少ないため汚泥のSRT（固形物滞留時間 Solids retention time）が長くなり、生物処理槽内への硝化菌が保持されやすくなる。このため、硝化は問題なく進行し硝化型になると推察される。

オゾン反応槽からの流入量のうち80%以上は生物処理で利用可能な炭素であり、オゾン反応槽から流入する生物処理に利用可能な炭素量とオゾン反応槽からの窒素流入量の比は3.4以上となった。この結果から、オゾン処理による窒素増加分を脱窒するのに十分な量の炭素がオゾン処理にて生成しており、外部から炭素を供給しなくても100%脱窒することは可能であるといえる。

以上の結果から、標準活性汚泥法では、オゾン処理で余剰汚泥の減容を行うと、液化した活性汚泥に含まれていた窒素が処理水側へ移行し処理水窒素濃度が高くなることが判明した。また、生物処理に循環型硝化脱窒法などの生物学的窒素除去法を用いることで、余剰汚泥削減による窒素負荷増加分は、脱窒反応により窒素ガスとして系外へ排出されるため、処理水の窒素濃度上昇を防止できることが判明した。

#### 4. おわりに

オゾンによる汚泥減容化プロセスにおいて、オゾン処理条件と処理水窒素との関係を定量的に把握し、生物学的脱窒素プロセスでの汚泥減容化について検討を行ったところ、次のことが明らかとなった。

(1) オゾン処理を導入し余剰汚泥を削減しても硝化能力は低下せず、硝化は完全に進行していた。また、余剰汚泥の削減により処理水T-Nは増加し、その大部分は $\text{NO}_x\text{-N}$ であった。

(2) オゾンによる汚泥減容化プロセスの生物処理を標準活性汚泥法から循環型硝化脱窒法に変更することにより、硝化及び脱窒反応が進行し、処理水T-Nはオゾン処

理を組み込まないプロセスと同レベルとなった。

(3) 標準活性汚泥法では汚泥減少量を大きくするに従いオゾン処理導入による処理水窒素増加量は大きくなっており、汚泥減少量1 gあたりの処理水窒素増加量は0.1 gであった。それに対し、循環型硝化脱窒法では、汚泥減少量1gあたりの処理水窒素増加量は0.03 gであり、汚泥発生量の減少に伴う処理水への窒素流入が低減した。

(4) オゾン処理を組み込むことにより、生物処理への炭素及び窒素の流入量が増加し、これが生物処理への負荷増加となるが、炭素増加の大部分は生物処理で分解されていた。処理水の炭素増加量はオゾン処理での液化量の7～22%であった。

(5) 標準活性汚泥法は、オゾン反応槽から流入する窒素のほぼ全量が処理水側へと移行する結果であった。これに対し、循環型硝化脱窒法においては生物処理での窒素無機化量が増加しており、オゾン処理からの増加分は脱窒反応により窒素ガスとして系外へ排出されていた。また、オゾン処理により増加した窒素を脱窒するのに十分な量の炭素がオゾン処理にて生成しており、外部から炭素を供給しなくても100%脱窒可能である。

本報の結果により、オゾンによる汚泥減容化を実施する場合、処理水による放流水域の富栄養化を防止する観点から、脱窒工程を組み込むことは必須であると判断した。更に、処理水 $\text{NO}_x\text{-N}$ が高いと、沈殿池にて脱窒反応が進行し固液分離が困難になることが懸念される。この点からも脱窒工程は合理的であると考えられる。

#### 使用記号

$\Delta X$	: 汚泥発生量 (g-VSS/d)
$X$	: 好気槽汚泥量 (g-VSS)
$\Delta X_R$	: オゾン処理による汚泥減少量 (g-VSS/d)
$\Delta TN$	: オゾン処理による処理水T-Nの増加量 (mg-N/d)
$\Delta TP$	: オゾン処理による処理水T-Pの増加量 (mg-P/d)
$\Delta OrgN$	: オゾン処理による処理水有機態窒素増加量 (mg-N/d)
$\Delta \text{NH}_4$	: オゾン処理による処理水 $\text{NH}_4\text{-N}$ 増加量 (mg-N/d)
$\Delta \text{NO}_x$	: オゾン処理による処理水 $\text{NO}_x\text{-N}$ 増加量 (mg-N/d)

#### 参考文献

- 1) 小林琢也, 葛甬生, 田中俊博「膜分離法の汚泥減容化への適用」第37回下水道研究発表会講演集, pp.671-673 (2000).
- 2) 荒川清美, 葛甬生, 小林琢也, 田中俊博「オゾンを用いた活性汚泥法における汚泥減容化の基礎的研究」環境工学研究論文集, 37, pp.107-118 (2000).
- 3) J.VAN LEEUWEN "Improved Sewage Treatment with Ozonated Activated Sludge" Journal of the Institution of WATER AND ENVIRONMENTAL MANAGEMENT, 2, pp.493-499 (1988).
- 4) 栗林栄, 大川昌俊, 洙田泰臣「曝気槽へのオゾン添加による放線菌増加抑制に関する検討」第29回下水道研究発表会講演集, pp.52-54 (1992).