

下水道放流方式向け亜硝酸化脱窒素し尿処理技術の開発



田邊 佑輔 ①
館野 覚俊 ①

要旨

当社はし尿処理における環境負荷の低減、コスト低減を目的に技術開発しており、し尿処理施設における、前脱水下水道放流方式に適した亜硝酸化脱窒素処理技術を開発した。今回、実証試験でその効果を明らかにしたので、その結果を報告する。

実証試験を通して、硝化槽のアンモニア濃度を制御することにより亜硝酸化率を概ね80%以上に維持できることを明らかにした。また、試験装置へのし尿処理施設の前脱水ろ液（実液）の投入量を調整（2.0～4.5 m³/日）することで、窒素投入負荷を3段階変更し、各負荷での運転状況を評価した。高負荷時に、平均0.21 kg-N/kg-SS・日⁻¹の窒素投入負荷で運転したところ、標準負荷および低負荷時と同様に下水排除基準以下である処理水質T-N150 mg/L以下の運転を安定的に継続した。

8ヶ月にわたる実証試験において取得したデータは、一般財団法人日本環境衛生センターにより検証され、当社は2022年10月に性能調査報告書を受領した。

キーワード

し尿処理, 亜硝酸化技術, 前脱水, 下水道放流

1. 緒言

我が国の生活排水処理システムは、図1¹⁾のとおり各地域の人口、地理などの地域特性に合わせ、公共下水道、集落排水処理施設、浄化槽、計画収集（し尿汲み取り）の組み合わせにより、公衆衛生の向上や公共用水域の水質保全を図っている。その中で計画収集したし尿や浄化槽から生じる汚泥は、公共用水域に放流するために、し尿処理施設に収集後、処理されている。

し尿処理施設は、主に下水道普及率が低い山間部などの地域に多く建設され、地域の生活排水処理の中核を担ってきた。また、し尿由来の堆肥化設備を敷設するなど、資源循環・回収の点においても独自の発展を進めてきた。

一方で、2018年には第五次環境基本計画において「地域循環共生圏」の方針が打ち出され²⁾、各処理施設は、単独の機能だけではなく、地域内の他施設との連携を含め、全体最適となる合理的な施設運営が望まれるようになった。

施設連携の一つの形として、し尿の下水道への投入などがあり、近年、放流先を下水道とするし尿処理施設（汚泥再生処理センター）の建設が増加している。これは下水道普及率の高い地域においては、下水道のスケールメリットを活かした効率的な処理が可能となり、し尿処理財源の削減および下水道の使用料収入増加を期待できるためである。³⁾

下水道を利用したし尿処理の集約処理は、経済面で

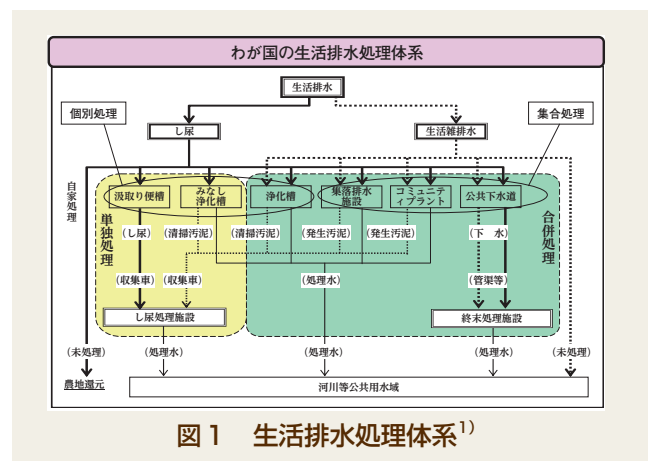


図1 生活排水処理体系¹⁾

① 環境事業本部 開発センター

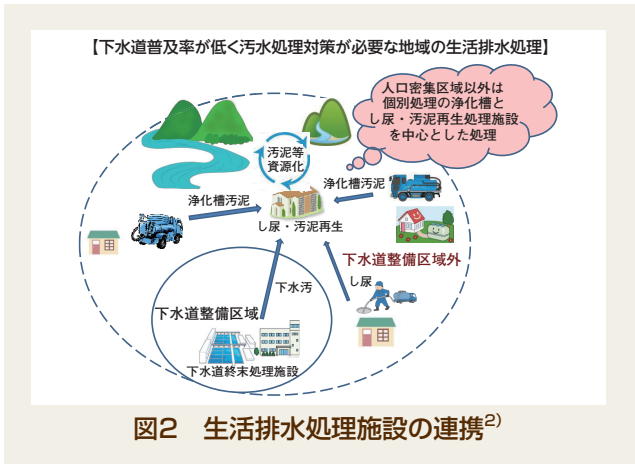


図2 生活排水処理施設の連携²⁾

大きなメリットがある一方、技術面では解決すべき課題もある。その中で投入量変動幅が大きいという課題については、収集したし尿を固液分離し、その分離液（以下、前脱水ろ液とする。）を貯留して下水道に定量投入することで対応できる。しかし、し尿に比較的大量に含まれる窒素分が下水処理施設に多量に投入される場合は、十分な除去が困難となり、処理水質が悪化する可能性がある。そこで、当社ではし尿処理施設-下水道（下水処理施設）の連携を深める課題解決として、下水道への窒素負荷低減を目指した処理方法を検討した。^{4),5)}

一般的にし尿処理の窒素除去は、生物学的脱窒素法を採用するケースが多いが、この方法では、全量硝化後に脱窒素処理するため、処理水中のT-N濃度は下水排除基準（表1）の240 mg/Lよりも大幅に低く、過剰な処理となる。また、脱窒素時にはメタノールなどの有機分を添加する必要があるため、環境負荷、薬品使用量が増加するリスクもある。

そこで窒素分を過剰に処理せず、あわせて脱窒素時に使用する有機分の使用量を抑制できる亜硝酸化型脱

表1 下水排除基準

項目	単位	基準値
BOD	(mg/L)	600
SS	(mg/L)	600
T-N	(mg/L)	240
T-P	(mg/L)	32
n-Hex	動植物油脂類	(mg/L) 30
	鉱油類	(mg/L) 5
ヨウ素消費量	(mg/L)	220

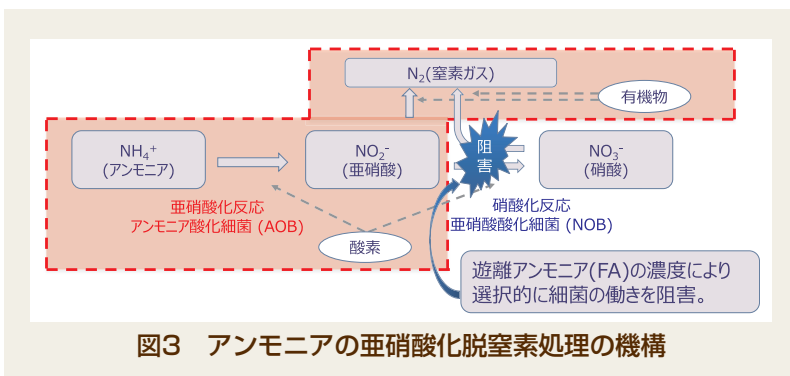


図3 アンモニアの亜硝酸化脱窒素処理の機構

窒素技術（以下、本技術とする。）に着目し、し尿処理向けの開発を進めた。

2. 亜硝酸化技術の特徴

生物学的脱窒素法は原水中のアンモニアを酸化(硝化)し、得られた硝酸を嫌気処理により窒素ガスに還元(脱窒素)するプロセスである。

この硝化工程は、アンモニア酸化細菌によるアンモニアからの亜硝酸生成、亜硝酸酸化細菌による亜硝酸からの硝酸生成の二段階に分かれる。しかし、既往研究により、系内に遊離状態のアンモニアを存在させることで、亜硝酸酸化細菌の機能を抑制し、硝化反応を亜硝酸の段階で留められることが分かっている（図3）。⁶⁾

本技術は、硝酸型の脱窒素処理と比較して、必要酸素量および必要有機分は理論上それぞれ75%、60%である。そのため、コストや環境負荷を低減できるメリットがある（表2）。

処理水にアンモニアが残留するものの、その他の窒素を含めて下水排除基準以下に制御できれば、下水道放流方式に適用可能な技術と考え、し尿処理分野での適用を検証する実証試験を実施した⁷⁾。

3. 実証試験

3.1 目的 し尿前脱水ろ液を安定的に亜硝酸化脱窒素処理し、処理水質を下水排除基準以下とすることとした。

3.2 場所 伊南衛生センター（長野県駒ヶ根市）内に試験装置を設置した。実施設の処理量は26 kL/日（し尿50%、浄化槽汚泥50%）であり、処理方式は前脱水後に簡易曝気し、希釈する前脱水型下水道放流方式である。

3.3 期間 2021年10月～2022年5月に実施した。ただし、実施設への搬入の関係により2021年12月28日～2022年1月4日および2022年4月29日～5月9日は装置への投入を停止した。

3.4 試験装置フロー 試験装置フローを図4に示す。試験原水は前脱水ろ液を貯留している簡易曝気槽（実施設）内液を使用した。試験装置の水槽は脱窒素槽、硝化槽ならびに沈殿槽で構成した。

表2 亜硝酸化脱窒素処理の化学反応式

方法	化学式	必要酸素量
硝化脱窒素法	$NH_4^+ + 2O_2 \rightarrow NO_3^- + H_2O + 2H^+$	(100%)
(本法) 亜硝酸化脱窒素法	$NH_4^+ + 1.5O_2 \rightarrow NO_2^- + H_2O + 2H^+$	75%
方法	化学式	必要有機分量
硝化脱窒素法	$2NO_3^- + 5H_2(BOD) \rightarrow 2N_2 + 2OH^- + 4H_2O$	(100%)
(本法) 亜硝酸化脱窒素法	$2NO_2^- + 3H_2(BOD) \rightarrow 2N_2 + 2OH^- + 2H_2O$	60%

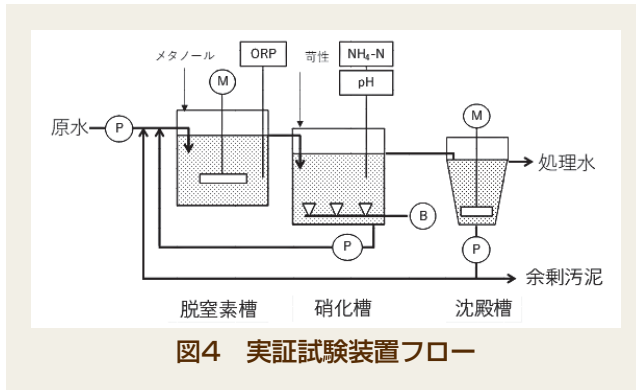


図4 実証試験装置フロー

脱窒素槽にはメタノール注入制御のためのORP計を設置し、硝化槽には苛性ソーダ注入制御のためのpH計および曝気量制御のためのアンモニア計を設置した。また、循環ポンプにより硝化液を脱窒素槽に循環し、脱窒素反応を促進する。沈殿槽では活性汚泥を濃縮し、返送汚泥ポンプにて脱窒素槽に濃縮汚泥を返送し、系内の汚泥濃度を維持した。返送汚泥ポンプの返送先をバルブで切り替え、一部を余剰汚泥として実施設のし尿貯留槽に排出した。

使用した工業計器類は表3に示す。計器指示値は動力制御盤に取り込んだ。

表3 実証試験装置計器類

名称	検出装置
脱窒素槽ORP計	ガラス電極式
脱窒素槽pH計	
硝化槽pH計	隔膜式
硝化槽DO計	
硝化槽アンモニア計	イオン電極式
硝化槽ブロウ風量計	オリフィス流量計
原水流量計	電磁流量計
返送汚泥流量計	
余剰汚泥流量計	
循環ポンプ流量計	

3.5 試験方法

3.5.1 負荷設定 窒素-MLSS負荷を基準として0.10~0.20 kg-N/kg-SS・日⁻¹の範囲で投入量を調整した。窒素-MLSS負荷は式①のとおり算出した。

$$MLR = C_N \times Q_I \div V_N \times X \cdots \text{①}$$

NLR: 窒素-MLSS負荷 (kg-N/kg-SS・日⁻¹)

C_N: 原水T-N濃度 (mg/L)

Q_I: 原水投入量 (m³/日)

V_N: 硝化槽容量 (m³)

X: 硝化槽内 MLSS濃度 (mg/L)

3.5.2 サンプルングおよび水質分析 各工程処理水を1回/週、サンプルングして水質分析を実施した。測定項目および測定方法は、表4のとおりである。溶解性の項目は、サンプルをNo.5Cろ紙に通じ、得られた液を分析した。

表4 測定項目および測定方法

測定項目	測定方法	
pH	JIS K 0102 12.1	
BOD	JIS K 0102 21	
COD _{Mn}	JIS K 0102 17	
SS	JIS K 0102 14.1	
MLSS	下水試験法第2編第1章第12節2	
T-N	JIS K 0102 45.1	
Kj-N	JIS K 0102 44.1	
NH ₄ -N	JIS K 0102 42.4	
NO ₂ -N	JIS K 0102 43.1.2	
NO ₃ -N	JIS K 0102 43.2.5	
T-P	JIS K 0102 46.3.3	
n-Hex	動植物油脂類	S49環境庁告示第64号付表4
	鉱物油類	
ヨウ素消費量	S37厚建令第1号 別表第2	

3.6 原水性状

3.6.1 原水性状 T-Nは表5のとおり平均値は538 mg/Lであった。

BODの平均値は、608 mg/Lであったが、試験期間中の濃度のバラつきが非常に大きく、10、11月は200~300 mg/L程度であったが、徐々に濃度が高くなり、3、4月は1200 mg/Lを超えることもあった。

表5 試験原水性状

項目	単位	原水性状
T-N	(mg/L)	538 (330~1,010)
BOD	(mg/L)	608 (75.7~1,310)

3.6.2 窒素-MLSS投入負荷 試験は、低負荷、標準負荷、高負荷に分けて実施した。0.16 kg-N/kg-SS・日⁻¹を標準負荷とし、さらに約30%変動させた低負荷、高負荷で運転を実施した。各負荷は図5に示す通り、それぞれ低負荷:0.11±0.012、標準負荷:0.16±0.007、高負荷:0.21±0.013 (平均値±標準偏差、単位はkg-N/kg-SS・日⁻¹)であった。

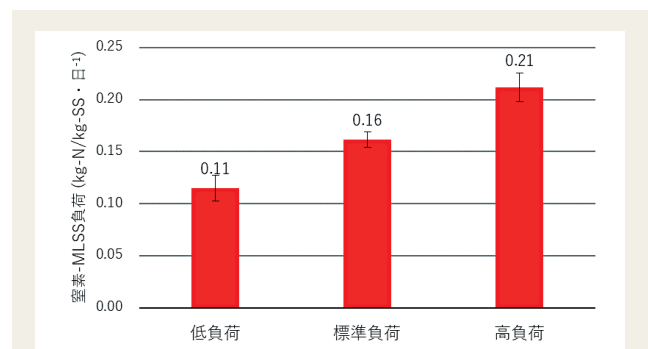


図5 硝化槽の窒素-MLSS負荷

3.7 亜硝酸優占化のための制御方法 硝化反応は、アンモニア酸化細菌 (Ammonia-Oxidizing Bacteria 以下、AOBとする。) によりアンモニアを亜硝酸に酸化す

る反応と亜硝酸酸化細菌 (Nitrite-Oxidizing Bacteria 以下、NOBとする。) により亜硝酸を硝酸に酸化する反応の二段階に分けられる。

これらの反応のうち、2段階目のNOBの機能を阻害することで硝化反応を亜硝酸で留められる。既往研究⁵⁾により遊離アンモニア (Free Ammonium, 以下FAとする。) 濃度が0.1 mg/L以上の場合にはNOB、15 mg/L 以上ではAOBの機能がそれぞれ阻害を受けることが分かっている。そのため、FA濃度0.1~15 mg/Lの範囲に制御することで、NOBのみを選択的に阻害可能な条件とし、亜硝酸酸化を優先した。FAは式②のとおり、NH₄-N濃度、pH、水温により算出した。

$$FA = \frac{17}{14} \times [NH_4 - N] \times \frac{10^{pH}}{e^{\left(\frac{6344}{273+T}\right)} + 10^{pH}} \quad \dots \textcircled{2}$$

FA：遊離アンモニア濃度 (mg/L)

NH₄-N：硝化槽アンモニア濃度 (mg/L)

T：硝化槽水温 (°C)

pH：硝化槽pH (-)

3.8 運転管理(運転条件) 試験期間中は以下の要領で運転管理した。

① 投入量 投入液の窒素濃度および硝化槽のMLSS濃度を分析し、窒素-MLSS負荷が設定した値となるように投入量を調整した。

② 脱窒素槽 ORP値によりメタノール注入を制御した。設定値は硝化槽と処理水のNO₂-NおよびNO₃-Nの値を参考にした。

③ 硝化槽 pH値により苛性ソーダ注入を制御した。アンモニア値も曝気ブロワの周波数を制御し、pHと同様に一定レベルとなるように調整した。

④ 循環水量および返送汚泥量 循環水量は投入量に対して9倍を基準として運転した。返送汚泥量は投入量に対して2倍を基準とし、硝化槽のMLSS濃度が約6,000 mg/Lとなるように調整した。濃度が6,000 mg/L以上となる場合は濃縮汚泥の一部を返送せずに余剰汚泥として引き抜いた。

⑤ 処理水質、目標水質 下水排除基準を踏まえ、試験上の管理目標値を表6のとおり定め、日常管理した。分析項目は各態窒素およびSSとした。

表6 処理目標水質

項目	下水排除基準	管理目標値
SS	600	300
T-N	240	150

⑥ 運転データ記録 計器類による運転データは、30秒間隔で収集し、電子データで保存した。各機器の運転周波数や電流値、薬品使用量などは1回/日の頻度で目視確認の上、記録した。

4. 結果と考察

4.1 アンモニア曝気制御 図6は硝化槽に設置したアンモニア計の指示値および曝気ブロワの風量である。図に示した期間はアンモニア上限値を50 mg/L、

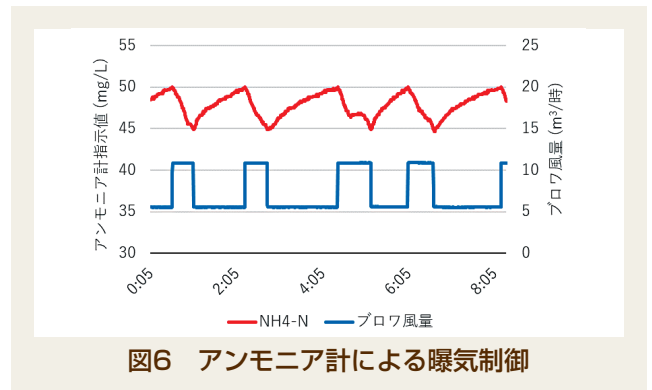


図6 アンモニア計による曝気制御

下限値を45 mg/Lとし、設定値に合わせてブロワ風量を変動させた。図に示すとおり、ブロワ風量の増減はアンモニア計指示値に連動しており、アンモニア計を用いた曝気制御を導入し、硝化槽内のアンモニア濃度を一定範囲内に調整できた。

4.2 FAおよび亜硝酸化優先率 アンモニアを残留させる目的は選択的に亜硝酸酸化細菌 (NOB) の働きを阻害することである。

試験期間中は、適正なFA濃度とするために硝化槽のアンモニア濃度を50~100 mg/Lの範囲で制御し、かつpHも7.5~7.7の範囲で制御した。FA濃度は図7のとおり、バラつきがあるものの最大で10.4 mg/Lであり、選択的にNOBのみを阻害可能なFA濃度0.1~15 mg/Lの範囲(青色着色部)内で制御できた。

その結果、硝化槽における亜硝酸化率は図8のとおりとなった。亜硝酸化率は硝化槽内で生成した硝酸態窒素と亜硝酸態窒素の和に対する亜硝酸態窒素の割合とし、式③に基づいて算出した。

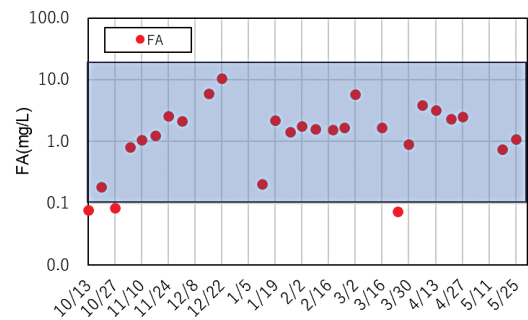


図7 硝化槽のFA濃度

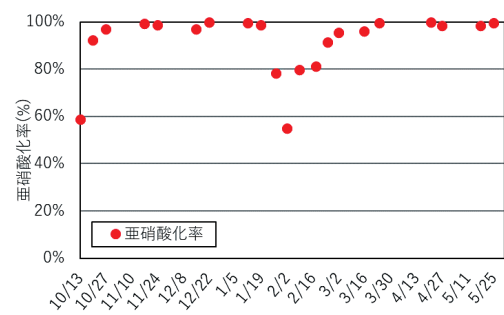


図8 硝化槽の亜硝酸化率

表7 処理水性状

項目	単位	低負荷	標準負荷	高負荷	下水排除基準
BOD	(mg/L)	62±4	59±10	58±11	600
COD _{Mn}	(mg/L)	155±15	143±11	145±10	—
SS	(mg/L)	114±24	57±9	68±9	600
T-N	(mg/L)	95±13	113±11	103±9	240
T-P	(mg/L)	15±3	24±0.7	25±2	32
n-Hex	動植物油脂類	<3	<3	<4.5	30
	鉱油類	<1	<1	<1	5
ヨウ素消費量	(mg/L)	29±4	14±2	20±8	220

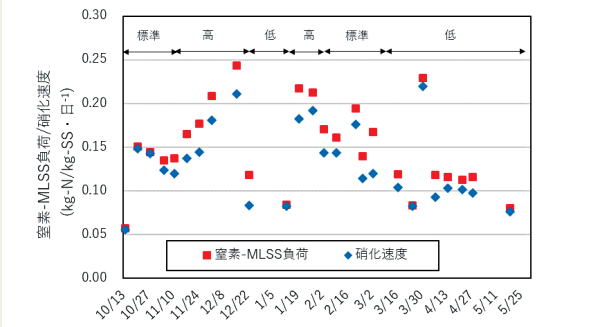


図9 窒素-MLSS負荷および硝化速度の推移

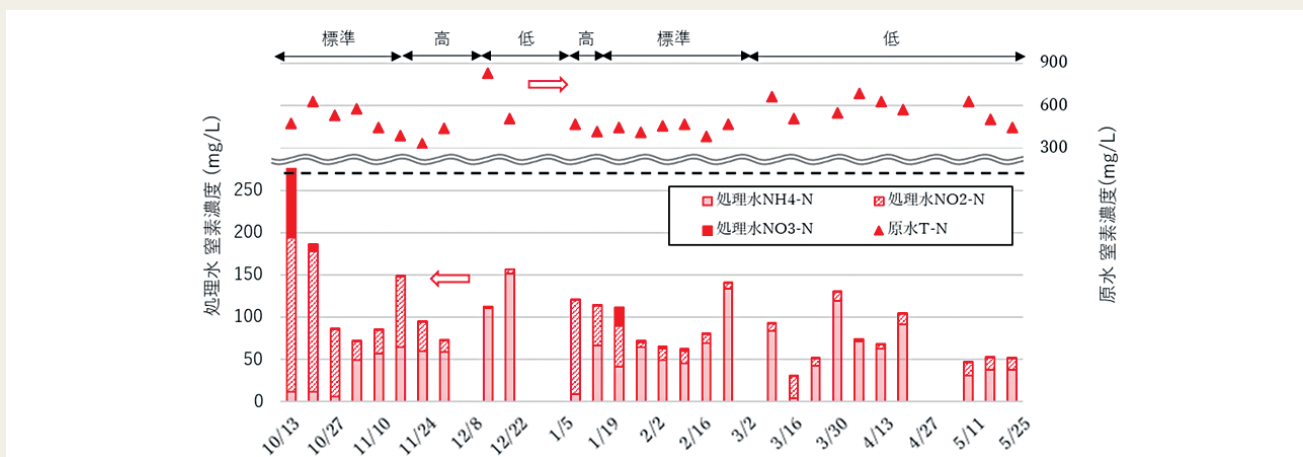


図10 原水および処理水の窒素濃度

$$NR = \{[\Delta NO_2-N] \div ([\Delta NO_2-N] + [\Delta NO_3-N])\} \times 100 \dots \textcircled{3}$$

NR：亜硝酸化率 (%)

$\Delta NO_2-N = ([\text{硝化槽} NO_2-N] - [\text{脱窒素槽} NO_2-N])$

$\Delta NO_3-N = ([\text{硝化槽} NO_3-N] - [\text{脱窒素槽} NO_3-N])$

4.3 窒素の処理状況

4.3.1 窒素-MLSS負荷および硝化速度

各試験の窒素-MLSS負荷および硝化速度は図9のとおりであった。硝化槽でNH₄-Nを残留させるアンモニア曝気制御を実施したため、これらの数値に差はあるが、本試験条件に範囲においては、硝化速度は窒素-MLSS負荷と同様の挙動を示していた。

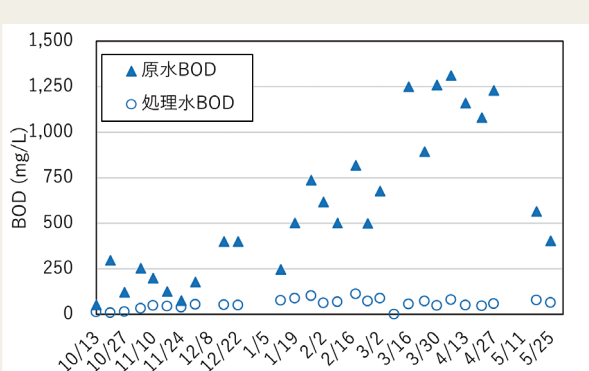


図11 原水および処理水のBOD濃度

4.3.2 窒素の処理水質 処理水の各態窒素性状を図10に示す。窒素-MLSS投入負荷を「低」、「標準」、「高」の3パターンで運転したが、いずれの負荷でも管理目標としたT-N150 mg/Lをほとんどの期間で安定的に下回り、NH₄-Nはアンモニア曝気制御において設定した50~100 mg/Lの範囲で概ね推移した。亜硝酸化脱窒素処理のため、NO_x-NのほとんどはNO₂-Nであった。

4.3.3 BODの処理水質 原水濃度は大きくバラつきがあるものの、いずれも処理水は200 mg/L以下であり、安定的な処理が認められた(図11)。

4.3.4 その他の処理水質 その他の処理水質を表7に示す。本システムでは処理水中に多くのNO_xを含むため、沈殿槽での脱窒素ガスによる汚泥浮上の懸念があったが、日常の目視点検では特に認められなかった。処理水SSも低負荷時では114±24 mg/Lでやや高かったものの、高負荷および標準負荷時は60~70 mg/L程度であり、管理目標値300 mg/Lを十分に下回っていた。

また、その他の項目も全て、下水排除基準を安定的に下回る結果を得た。

5. 結 言

今回の実証試験を通し、アンモニア計を用いた曝気制御により硝化槽内のアンモニア態窒素濃度を制御できることを明らかにした。また、その制御により一定量のア

ンモニア態窒素を硝化槽に残留させることで亜硝酸化率80%程度の安定的な亜硝酸化処理を実現した。BOD、SSおよびその他の処理水質についても下水排除基準を十分に満足できる結果が得られた。

本技術は、一般財団法人日本環境衛生センターにより検証され、その結果をまとめた性能調査報告書「亜硝酸化型脱窒素処理技術」を2022年10月に受領した。

あわせて、本技術について部分亜硝酸脱窒素を意味する「De-Nitrification Partial Nitritation」から、システム名称を「DNPN[®]」として商標登録した。

本技術の応用として、脱窒素槽へのメタノール添加による処理水中NO_x-Nの積極的な処理や硝化槽のアンモニア計の設定値変更による処理水T-Nの低減も検討できる。その場合は、下水排除基準に上乘せ基準がある施設への適用も可能となる。また、従来の前脱水方式にも適用できるため、汚泥助燃剤化設備やMAP回収設備との組み合わせた展開が可能である。

今後も環境負荷低減や経済性の追求を進めながら、地域資源循環に貢献できる水処理技術の発展に寄与していきたい。

SDGsに貢献する技術

前述のとおり、本技術は必要酸素量および薬品使用量を低減でき、環境負荷低減可能な技術である。また、本技術を採用することでし尿処理施設と公共下水道を合理的に連携ができ、地域循環社会の形成への貢献が可能となる。

謝 辞

本開発は伊南衛生センター様のご協力の下、実施できました。関係者の皆さまに対し、深く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 環境省環境再生・資源循環局廃棄物適正処理推進課 一般財団法人日本環境衛生センター 令和元年度し尿処理技術・システムに関するアーカイブス作成業務報告書, 2020, p.1.
 - 2) 環境省:第五次環境基本計画の概要, 2018.
 - 3) 環境省環境再生・資源循環局廃棄物適正処理推進課 一般財団法人日本環境衛生センター 令和元年度し尿処理技術・システムに関するアーカイブス作成業務報告書, 2020, pp.511-516.
 - 4) 金本紗季, 松下知広ほか:第41回全国都市清掃研究・事例発表会 講演論文集, 2020, pp.346-348.
 - 5) 館野覚俊, 田邊佑輔:第44回全国都市清掃研究・事例発表会 講演論文集, 2023, pp.302-304.
 - 6) 劉媛, 北條俊昌, 何士龍, 甄広印, 李玉友, 酸素制御による部分的亜硝酸化の実現と維持, 土木学会論文集G(環境), 2016, 70, III_233-III_241.
 - 7) 田邊佑輔, 館野覚俊:下水道放流方式に適した亜硝酸化脱窒素処理技術の開発, 都市清掃, 第76巻 第375号, 2023, pp.495-501.
- ※ 本稿は、参考文献7) に一部解析結果と考察を追加したものである。

文責者

日立造船株式会社 環境事業本部
開発センター
田邊佑輔
E-mail: tanabe_y@hitachizosen.co.jp

Development of Nitrite Denitrification Treatment Technology for Sewage Discharge

Abstract

In our work to develop technologies for reducing the environmental load and cost of treating human waste, Hitachi Zosen had developed a nitrite oxidation / denitrification treatment technology for pre-dewatering sewer discharge systems. This paper reports the results of demonstration tests that revealed its effectiveness.

The demonstration tests found that the nitrite oxidation rate can be maintained at approximately 80% or higher by controlling the ammonia concentration in the nitrification tank. In addition, we adjusted the amount of actual liquid input from the human waste treatment facility into the test equipment (2.0-4.5m³/day) to change the nitrogen input load in three stages and evaluated the operating status at each load. During high load, when operated at a nitrogen input load of 0.21 kg-N/kg-SS/day⁻¹ (average), stable operation continued with treated water quality of T-N 150 mg/L or lower, which is below the standard water quality of sewage discharge, as during standard load and low load.

The data obtained during eight months of demonstration tests was verified by the Japan Environmental Sanitation Center. Hitachi Zosen then received a performance investigation report in October 2022.

Authors

Yusuke Tanabe (Hitachi Zosen Corporation, E-mail: tanabe_y@hitachizosen.co.jp)
Akitoshi Tateno