



都市ゴミ埋立地から浸出する汚染水の脱窒処理に関する水質モデルと制御因子の分析

道奥, 康治 ; 田中, 健治 ; 田中, 大也 ; 井上, 晃介 ; 中道, 民広 ; 八木, 正博 ; 和田, 有朗

(Citation)

神戸大学都市安全研究センター研究報告, 19:200-209

(Issue Date)

2015-03

(Resource Type)

departmental bulletin paper

(Version)

Version of Record

(JaLCD0I)

<https://doi.org/10.24546/81011485>

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/81011485>



都市ゴミ埋立地から浸出する汚染水の脱窒 処理に関する水質モデルと制御因子の分析

An Ecological Model for Denitrification of Municipal Landfill Leachate and Parametric Analysis on Denitrification Controlling Factors

道奥康治¹⁾, 田中健治²⁾, 田中大也³⁾, 井上晃介⁴⁾, 中道民広⁵⁾, 八木正博⁶⁾, 和田有朗⁷⁾

Kohji MICHIOKU, Kenji TANAKA, Hiroya TANAKA, Kohsuke INOUE,
Tamihiko NAKAMICHI, Masahiro YAGI and Nariaki WADA

概要：都市ゴミ埋立地浸出水の窒素負荷を軽減するため、水素徐放剤を利用した脱窒技術を実験的・理論的に検討した。浸出水には脱窒に必要な炭素源が不足しているため、現在はメタノール添加による処理工程が組まれている。しかし、まもなく閉鎖を予定している排水処理施設に代わる処理系は現行よりも簡素で省力的でなければならない。そこで、浸透性反応層の炭素素材として水素徐放剤の利用を目指し、各種炭素源やリンなどの添加剤、担体、浸出水負荷量など各種支配因子が脱窒効率に及ぼす影響を水質モデルにより検討した。水質モデルは著者らの室内実験で計測された脱窒過程を精度よく再現し、水理学的滞留時間（HRT）などの処理条件が脱窒に及ぼす影響が定量的に評価された。

キーワード：disposal landfill, leachate, denitrification, water quality model, hydrogen feeding agent

1. はじめに

全国には2,000カ所近くの処分場に廃棄物が埋め立てられ、そのうちの98%程度は内陸部に設置されている¹⁾。本研究で対象とする都市ゴミ処分場を含めて山間部埋立地は全処分場の72%を占め、汚染浸出水が受水域へもたらす環境負荷が懸念される。1977年の「廃棄物の処理及び清掃に関する法律（廃掃法）」の改正にともない、当該の廃棄物埋立処分場でも排水処理施設が稼働しているが、埋立完了後30年余りを経過して施設はすでに老朽化し、早期の稼働停止が求められている。都市ゴミの堆積層を起源として地中を経由した浸出水は嫌氣的で、アンモニア態窒素 $\text{NH}_4\text{-N}$ と難分解性有機物が汚染負荷の主要成分である。埋立間もない頃には $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が800mg/lにも及ぶことがあったが、近年では30-100mg/l程度にまで減少している。しかし、排水基準の60mg/lを安定的に下回るまでに至らず、施設閉鎖後も受水域への環境負荷を緩和するために、何らかの水質管理を継続する必要がある。浸出水には脱窒に必要な易分解性有機物やリンが枯渇しているため、現行の排水処理ではメタノールを炭素源として添加しているが、施設閉鎖後には極力操作を簡素化した窒素除去システムへ移行しなければならない。

埋立地浸出水の経済的・簡便な窒素除去の一手法として、硝化・脱窒を基本工程とする生物学的処理法が用いられる。本研究では硝化済み浸出水の脱窒工程に焦点を絞る。一般には、現行施設のように枯渇気味の炭素源をメタノールで補給し、嫌氣的反応槽に脱窒菌担体²⁾や嫌気性汚泥床^{3), 4)}を投入する工程が利用される。これは、硝化・脱窒を個別の反応系で進行させるシステムである。この他に回分式活性汚泥法（Sequencing Batch Reactor, SBR）^{5), 6)}や回転円板法（Rotating Biological Contactor, RBC）^{7), 8)}により硝化・脱窒を単一反応系で同時に進行させる窒素除去も検討されている。

以上は、若い埋立処分地のように浸出水負荷が大きく大規模施設で集中的に処理する場合に適した脱窒技術である。しかし、本研究の対象処分地のように、当初よりも負荷が軽減し、しかも処理施設が老朽化して停止を余儀なくされる場合には、さらに簡素で省力的な代替処理系が持続的な水質管理のために必要である。著者らは、浸出水の脱窒のためのメンテナンスフリーな炭素源として、水素徐放剤の利用を検討してきた^{10), 11)}。水素徐放剤は、窒素・リンなどの負荷を受けた地盤に埋設され地盤汚染の処理剤としても利用されている⁹⁾。これまでの実験^{10), 11)}では、炭素源やリンなどの添加剤、担体設置条件、浸出水負荷量など律速因子が脱窒効率に及ぼす影響が明らかになった。

本研究では、実験結果に基づいて微生物や酸素・炭素・窒素など脱窒に関わる制御因子の生物化学的収支を考慮した水質モデルを定式化し、脱窒過程を数値シミュレーションによって再現する。著者らはマイクロバブル曝気による浸出水硝化に関して硝化菌消費などを考慮した水質モデルを開発し、窒素収支を精度よく再現することに成功している^{12), 13)}。ここでは、さらに脱窒解析モジュールを追加して窒素収支全般の解析が可能なモデルへと再編し、水素徐放剤を利用した脱窒現象を再現する。これにより、実験では定性的にしか考察できなかった脱窒への諸因子の影響が定量的・個別に分析される。また、水質モデルを用いて脱窒効率を最大化するための諸条件を推定し、代替処理システムの施設規模や運転条件を決定することが可能となる。

2. 脱窒実験（既報）の概要¹¹⁾

散水濾床塔から採取された硝化済みの浸出水（以降、「硝化水」と略記）を試料水とした。窒素成分のほぼ100%は硝酸態窒素 $\text{NO}_3\text{-N}$ である。図-1のような10の塩化ビニル製反応槽（内表面積 800cm^2 ）に硝化水、貯留池底泥（脱窒菌源）を10g、各種充填

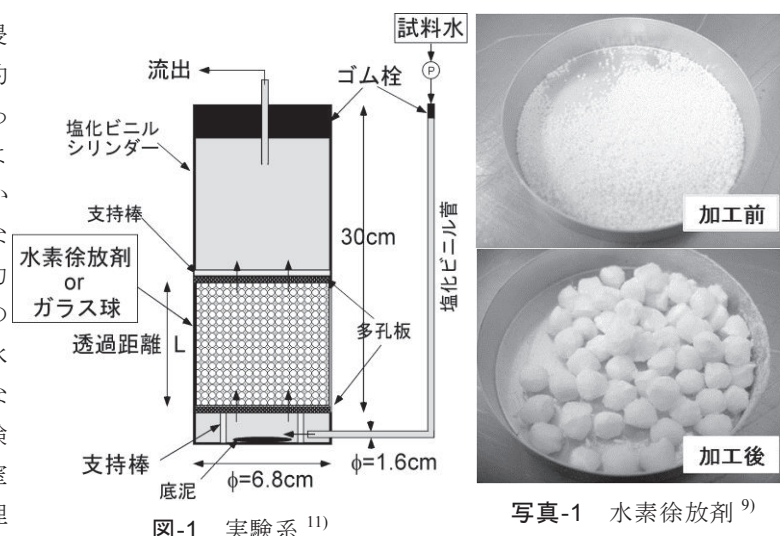


図-1 実験系¹¹⁾

写真-1 水素徐放剤⁹⁾

表-1 実験条件¹¹⁾

	track1	track2	track3	track4
試料水	硝化水			
充填材（炭素源）	水素徐放剤		ガラス球*	水素徐放剤*
充填材表面積 (cm^2)	1,000	2,000	4,000	4,000
リン酸の添加	あり			なし

※）炭素源またはリンを投入していない track3,4 では他に比べて脱窒が低調であった。そのため、脱窒菌の生息状況の確認などを兼ねて1日に一回、0.4mlのメタノールを瞬間投入した。リン酸は $\text{NO}_3\text{-N}$ に対し約50分の1相当の $2.0\text{ PO}_4\text{-P mg/l}$ 程度を試料水タンクに添加した。

表-2 実験条件の推移

月 日	経過 日数	track1	track2	track3	track4
10月1日	0	0.5ml/min	0.5ml/min	0.5ml/min	0.5ml/min
8日	7	1.0ml/min	1.0ml/min	メタノール 添加開始	メタノール 添加開始
25日	24	A=4,000m ² →1,000m ²			
26日	26				
11月8日	38				
11日	41				
15日	45	2.0ml/min	メタノール 添加終了	メタノール 添加開始	
25日	55		2.0ml/min		実験終了
12月14日	74		4.0ml/min		/
21日	81	0.5ml/min	0.5ml/min	メタノール 添加終了	
28日	88				
1月11日	102				
20日	108	実験終了	実験終了	実験終了	

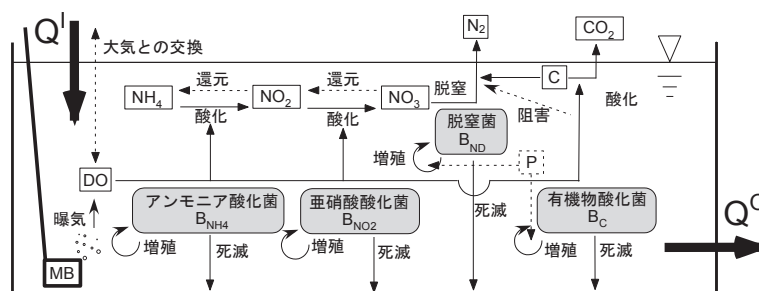


図-2 流出入負荷をともなう反応水系における水質収支

材などを投入して24hr馴致した後，ペリスタポンプを用いて所定の負荷流量の硝化水を連続的に給水した．実験は室温条件下（約22℃：浸出水貯留池の夏季相当）で実施された．処理水質を定期的に採水分析し，脱窒の安定性が確認されると，負荷流量を0.5→1.0→2.0→4.0→8.0ml/minと段階的に増加させ，硝化水負荷が脱窒に及ぼす影響を検証した．

表-1 に実験条件を示す．track1, 2, 4（各反応槽系列を”track”と表記）では炭素源として写真-1 上段の水素徐放剤（製品名「アムテクリン N」，Panasonic, TR-AMNO101）を湯煎・溶融して綿球に付着させ，写真-1 下段のように直径約 0.65cm の球体に整形しカラムへ充填した．これは，①栄養源としての炭素供給，②脱窒菌の付着基質，③有機物溶出による酸素消費と嫌気的環境の形成，という三つの機能を期待している．track3 は参照ケースであり，脱窒菌の付着基質機能だけを想定したガラス玉（平均粒径：約 0.49cm）を充填した．track1-4 における条件を表-2 のように時間的に変化させて，負荷流量，水素徐放剤の表面積・通過距離，浸出水起源の有機物，メタノール・リン添加，などが脱窒に及ぼす影響を評価し，水質モデルに必要な基礎的知見を収集した．

3. 浸出水処理に関わる水質モデル

(1) モデルの概念

浸出水貯留池と実験水槽を想定して，浸出水の流入負荷・流出をとまなう反応水系を図-2に示す．ある水質成分の濃度を C_j とすると，その収支は次式で表わされる．

$$V \frac{dC_j}{dt} = Q^I C_j^I - Q^O C_j + V \cdot S(C_j) \quad (1)$$

ここで， V ：反応水系の容積， C_j^I ：水質成分 j の流入濃度， Q^I ：浸出水の負荷流量（流入量）， Q^O ：反応水系からの流出量， $S(C_j)$ ：生産・消費フラックスである．

脱窒だけではなく，別途実施した単一反応槽での硝化・脱窒同時反応へも適用するために，硝化を含む窒素収支全体を解析対象としている．式(1)の生産・消費フラックス $S(C_j)$ は次のようにモデル化される．

(2) 窒素の収支

解析の簡素化のため，Anammox反応ならびに， $\text{NO}_3\text{-N} \rightarrow \text{NO}_2\text{-N}$ と $\text{NO}_2\text{-N} \rightarrow \text{N}_2$ の段階的な脱窒を考慮しない．

a) アンモニア態窒素： $\text{NH}_4\text{-N}$ ，アンモニア酸化菌： B_{NH_4}

アンモニア態窒素の収支 $S(\text{NH}_4)$ は次式で表わされる．

$$S(\text{NH}_4) = -R_{\text{N1}} \cdot f_{\text{N1}}(T) \cdot \frac{DO}{D_{\text{N1}} + DO} \cdot \frac{B_{\text{NH}_4}}{B_{\text{N1}} + B_{\text{NH}_4}} \cdot \frac{NH_4}{C_{\text{N1}} + NH_4} \quad (2)$$

アンモニア酸化

ここに， NH_4 ：アンモニア態窒素濃度， R_{N1} ：基準状態でのアンモニア酸化速度， $f_{\text{N1}}(T)$ ：温度制御関数（以下同様）， DO ：溶存酸素濃度， B_{NH_4} ：アンモニア酸化菌濃度， $(D_{\text{N1}}, B_{\text{N1}}, C_{\text{N1}})$ ：アンモニア酸化における $(DO, B_{\text{NH}_4}, \text{NH}_4)$ の半飽和定数である．添え字 N1 はアンモニア酸化に関連する諸量を意味する．

本モデルでは全ての反応に対して，次の指数型温度制御関数 $f(T)$ を用いる（ θ ：温度補正係数）¹³⁾．

$$f(T) = \theta^{T-20} \quad (3)$$

無機態リン濃度 PO_4 ，アンモニア態窒素濃度 NH_4 ，溶存酸素濃度 DO ，アンモニア酸化菌の濃度 B_{NH_4} は，アンモニア酸化菌の活性化・増殖を促す．一般下水と異なり，浸出水には懸濁態成分がほとんど含まれておらず，微生物の活動は担体表面や反応槽壁面など基質表面に形成される微生物膜に限定されと考える．生物膜と浸出水との接触面積の合計 A （＝担体表面積＋反応槽壁面積）に対し， B_{NH_4} の収支 $S(B_{\text{NH}_4})$ は次式であらわされる．

$$S(B_{\text{NH}_4}) = R_{\text{BN1}} \cdot \frac{A}{V} \cdot f_{\text{BN1}}(T) \cdot \frac{DO}{D_{\text{BN1}} + DO} \cdot \frac{NH_4}{C_{\text{BN1}} + NH_4} \times \frac{\text{PO}_4}{P_{\text{BN1}} + \text{PO}_4} \cdot \frac{B_{\text{NH}_4}}{B_{\text{BN1}} + B_{\text{NH}_4}} - \frac{R_{\text{DBN1}} \cdot f_{\text{DBN1}}(T) \cdot B_{\text{NH}_4}}{\text{死滅}} \quad (4)$$

増殖

ここで， $R_{\text{BN1}}, R_{\text{DBN1}}$ ：基準状態での B_{NH_4} の増殖・死滅速度， $f_{\text{BN1}}(T), f_{\text{DBN1}}(T)$ ：温度制御関数， $(D_{\text{BN1}}, C_{\text{BN1}}, P_{\text{BN1}}, B_{\text{BN1}})$ ： $(DO, \text{NH}_4, \text{PO}_4, B_{\text{NH}_4})$ に関する半飽和定数である．添え字 BN1 はアンモニア酸化菌の増殖，DBN1 は死滅に関する諸量を意味する．

b) 亞硝酸態窒素： $\text{NO}_2\text{-N}$ ，亞硝酸酸化菌： B_{NO_2}

亜硝酸態窒素 $\text{NO}_2\text{-N}$ の生産量は $\text{NH}_4\text{-N}$ の酸化量 (式(2)) に等しく, $\text{NO}_2\text{-N}$ の消滅量は硝酸態窒素 $\text{NO}_3\text{-N}$ への酸化量に等しいと考えて, $\text{NO}_2\text{-N}$ の生産・消費フラックス $S(\text{NO}_2)$ を次式で与える.

$$S(NO_2) = R_{N_1} \cdot f_{N_1}(T) \cdot \frac{DO}{D_{N_1} + DO} \cdot \frac{B_{NH_4}}{B_{N_1} + B_{NH_4}} \cdot \frac{NH_4}{C_{N_1} + NH_4} - R_{N_2} \cdot f_{N_2}(T) \cdot \frac{DO}{D_{N_2} + DO} \cdot \frac{B_{NO_2}}{B_{N_2} + B_{NO_2}} \cdot \frac{NO_2}{C_{N_2} + NO_2} \quad (5)$$

ここで、 R_{N2} : 基準状態における亜硝酸酸化速度、 B_{NO2} : 亜硝酸酸化菌濃度、 NO_2 : 亜硝酸態窒素濃度である。添え字 N2 は亜硝酸酸化に関する諸量を意味する。

$S(B_{\text{NO}_2})$ も B_{NH_4} 同様に

$$S(B_{NO_2}) = R_{BN_2} \cdot \frac{A}{V} \cdot f_{BN_2}(T) \cdot \frac{DO}{D_{BN_2} + DO} \cdot \frac{NO_2}{C_{BN_2} + NO_2} \times \times \frac{PO_4}{P_{BN_2} + PO_4} \cdot \frac{B_{NO_2}}{B_{BN_2} + B_{NO_2}} - R_{DBN_2} \cdot f_{DBN_2}(T) \cdot B_{NO_2} \quad (6)$$

となる。ここで、 R_{BN2} 、 R_{DBN2} ：基準状態における亜硝酸酸化菌の増殖・死滅速度で、添え字(BN2, DBN2)は亜硝酸酸化菌の増殖、死滅に関する諸量をそれぞれ意味する。

c) 硝酸態窒素 : $\text{NO}_3\text{-N}$, 脱窒菌 : B_{ND} , B_{NDO}

NO₃-N の生産量・消費量はそれぞれ NO₂-N の酸化量と NO₃-N の脱窒量に等しいと考える。優占的脱窒菌 B_{ND} は従属栄養の嫌気性微生物と考える。また、好気性脱窒菌 B_{NDO} に関するモデルパラメータは調整されないが、将来の適用を想定してモデル式に収支を組み込む。以上により NO₃-N の生産・消費フラックス $S(NO_3)$ は

$$\begin{aligned}
S(NO_3) = & \frac{R_{N_2} \cdot f_{N_2}(T) \cdot \frac{DO}{D_{N_2} + DO} \cdot \frac{B_{NO_2}}{B_{N_2} + B_{NO_2}} \cdot \frac{NO_2}{C_{N_2} + NO_2}}{\text{亜硝酸酸化}} - \frac{R_{ND} \cdot f_{ND}(T) \cdot \frac{D_{ND}}{D_{ND} + DO} \cdot \frac{B_{ND}}{B_{NDD} + B_{ND}} \cdot \frac{NO_3}{C_{ND} + NO_3}}{\text{}} \times \\
& \times \left(\phi_{11} \cdot \frac{C_{ori}}{C_{Co} + C_{ori}} + \phi_{12} \cdot \frac{C_{ante}}{C_{Ca} + C_{ante}} + \phi_{13} \cdot \frac{C_{meth}}{C_{Cm} + C_{meth}} \right) - \frac{R_{NDO} \cdot f_{NDO}(T) \cdot \frac{DO}{D_{NDO} + DO} \cdot \frac{B_{NDO}}{B_{NDDO} + B_{NDO}} \cdot \frac{NO_3}{C_{NDO} + NO_3}}{\text{嫌気性脱窒菌による脱窒}} \times \\
& \times \left(\phi_{21} \cdot \frac{C_{ori}}{C_{OCO} + C_{ori}} + \phi_{22} \cdot \frac{C_{ante}}{C_{OCA} + C_{ante}} + \phi_{23} \cdot \frac{C_{meth}}{C_{OCm} + C_{meth}} \right) \quad (7)
\end{aligned}$$

となる。ここで、 R_{ND} , R_{NDO} : 基準状態における嫌氣的・好氣的脱窒速度, D_{ND} , D_{NDO} : DO に関する好氣・嫌氣反応のスイッチ定数, (B_{ND}, B_{NDO}) : (嫌氣性脱窒菌, 好氣性脱窒菌)の濃度, NO_3 : 硝酸態窒素濃度, $(C_{ori}, C_{amte}, C_{meth})$: 本解析で対象とする各炭素源 (浸出水起源の有機物, 水素徐放剤, メタノール) の濃度, $(C_{Co}, C_{Ca}, C_{Cm}, C_{OCO}, C_{OCA}, C_{OCm})$: 各炭素源の嫌氣・好氣反応制御関数の半飽和定数, $(\varphi_{11}, \varphi_{12}, \varphi_{13}, \varphi_{21}, \varphi_{22}, \varphi_{23})$: 各炭素源を素材とする嫌氣・好氣反応速度の重み係数 ($\varphi_{11}+\varphi_{12}+\varphi_{13}=1$, $\varphi_{21}+\varphi_{22}+\varphi_{23}=1$) である。添え字(ND, NDO)は、それぞれ嫌氣・好氣性脱窒に関する諸量を、添え字(ori, amte, meth)は各炭素源 (浸出水起源の有機物, 水素徐放剤, メタノール) に関する諸量をそれぞれ意味する。

嫌気・好気性脱窒菌の増減速度は、それぞれ次のように与えられる。

$$S(B_{ND}) = \frac{(R_{BNDori} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{ori}}{C_{NDCO} + C_{ori}} + R_{BNDamte} \cdot \frac{A_{amte}}{V} \times \frac{C_{amte}}{C_{NDCA} + C_{amte}} + R_{BNDmeth} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{meth}}{C_{NDCM} + C_{meth}}) \times}{\text{增殖}} \times \frac{f_{BND}(T) \cdot \frac{D_{BND}}{D_{BND} + DO} \cdot \frac{NO_3}{C_{BND} + NO_3} \cdot \frac{PO_4}{P_{BND} + PO_4} \times \frac{B_{ND}}{B_{BND} + B_{ND}} - \frac{R_{DBND} \cdot f_{DBND}(T) \cdot B_{ND}}{\text{死滅}}}{\text{增殖}} \quad (8)$$

$$S(B_{\text{NDO}}) = \underbrace{(R_{\text{BNDOrri}} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{\text{ori}}}{C_{\text{NDOCO}} + C_{\text{ori}}} + R_{\text{BNDOrante}} \cdot \frac{A_{\text{amte}}}{V} \times \frac{C_{\text{amte}}}{C_{\text{NDOCA}} + C_{\text{amte}}} + R_{\text{BNDOrmeth}} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{\text{meth}}}{C_{\text{NDOCM}} + C_{\text{meth}}})}_{\text{增殖}} \times \underbrace{\times f_{\text{BNDOr}}(T) \cdot \frac{DO}{D_{\text{BNDOr}} + DO} \cdot \frac{NO_3}{C_{\text{BNDOr}} + NO_3} \cdot \frac{PO_4}{P_{\text{BNDOr}} + PO_4} \times \frac{B_{\text{NDO}}}{B_{\text{BNDOr}} + B_{\text{NDO}}} - R_{\text{DBNDOr}} \cdot \frac{f_{\text{DBNDOr}}(T) \cdot B_{\text{NDO}}}{\text{死滅}}}_{\text{增殖}} \quad (9)$$

ここで、(R_{BNDori} , R_{BNDamte} , R_{BNDmeth} , R_{BNDOori} , R_{BNDOamte} , R_{BNDOmeth}):各炭素源を利用した嫌気・好気性脱窒菌の基準状態における増殖速度, A_{amte} : 水素徐放剤の表面積, (R_{DBND} , R_{DRBND}): 嫌気・好気性脱窒菌の基準状態に

おける死滅速度である。添え字(BND, BNDO)はそれぞれ嫌気・好気性脱窒菌に関する諸量である。

(3) 炭素の収支

各炭素源は脱窒への利用と好氣的分解に消費される。三種類の炭素収支は以下のように表される。

a) 浸出水起源の炭素： C_{ori}

$$S(C_{ori}) = -R_{ND} \cdot f_{ND}(T) \cdot \frac{DO}{D_{ND} + DO} \cdot \frac{B_{ND}}{B_{NDD} + B_{ND}} \times \frac{NO_3}{C_{ND} + NO_3} \cdot \phi_{11} \cdot \frac{C_{ori}}{C_{Co} + C_{ori}} \cdot Y_{Cori} - \frac{R_{Cori} \cdot f_{CO}(T) \times}{\text{脱窒への利用}} \times \frac{DO}{D_{Co} + DO} \cdot \frac{B_{CC}}{B_{Co} + B_{CC}} \cdot \frac{C_{ori}}{C_{Cori} + C_{ori}} \quad (10)$$

浸出水起源の有機物酸化

b) 水素徐放剤起源の炭素： C_{amte}

$$S(C_{amte}) = -R_{ND} \cdot f_{ND}(T) \cdot \frac{DO}{D_{ND} + DO} \cdot \frac{B_{ND}}{B_{NDD} + B_{ND}} \times \frac{NO_3}{C_{ND} + NO_3} \cdot \phi_{12} \cdot \frac{C_{amte}}{C_{Ca} + C_{amte}} \cdot Y_{Camte} - \frac{R_{Camte} \cdot f_{CA}(T) \times}{\text{脱窒への利用}} \times \frac{DO}{D_{Ca} + DO} \cdot \frac{B_{CC}}{B_{Ca} + B_{CC}} \cdot \frac{C_{amte}}{C_{Camte} + C_{amte}} + AMe \cdot \frac{A_{amte}}{V} \cdot \frac{[pH - C_{pH}]}{K_H + [pH - C_{pH}]} \cdot (C_{Amax} - C_{amte}) \quad (11)$$

アムテクリンの酸化 アムテクリンの溶出

c) メタノール起源の炭素： C_{meth}

$$S(C_{meth}) = -R_{ND} \cdot f_{ND}(T) \cdot \frac{DO}{D_{ND} + DO} \cdot \frac{B_{ND}}{B_{NDD} + B_{ND}} \times \frac{NO_3}{C_{ND} + NO_3} \cdot \phi_{13} \cdot \frac{C_{meth}}{C_{Cm} + C_{meth}} \cdot Y_{Cmeth} - \frac{R_{Cmeth} \cdot f_{CM}(T) \times}{\text{脱窒への利用}} \times \frac{DO}{D_{Cm} + DO} \cdot \frac{B_{CC}}{B_{Cm} + B_{CC}} \cdot \frac{C_{meth}}{C_{Cmeth} + C_{meth}} \quad (12)$$

メタノールの酸化

ここで、 Y_{Cori} , Y_{Camte} , Y_{Cmeth} : 脱窒による各炭素の消費係数, R_{Cori} , R_{Camte} , R_{Cmeth} : 各炭素源の基準状態における酸化速度, AMe : 水素徐放剤の溶出係数, pH : 水素イオン濃度, C_{pH} : 水素イオン濃度の下限値, K_H : pH に関する半飽和定数, C_{Amax} : 水素徐放剤表面の炭素濃度である。

B_{CC} は好氣的分解を担う有機物酸化菌の濃度であり、その増減速度を次式で与える。

$$S(B_{CC}) = (R_{BCCori} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{ori}}{C_{CCO} + C_{ori}} + R_{BCCamte} \cdot \frac{A_{amte}}{V} \times \frac{C_{amte}}{C_{CCA} + C_{amte}} + R_{BCCmeth} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{meth}}{C_{CCM} + C_{meth}}) \times \times f_{BCC}(T) \cdot \frac{DO}{D_{BCC} + DO} \cdot \frac{PO_4}{P_{BCC} + PO_4} \cdot \frac{B_{CC}}{B_{BCC} + B_{CC}} - \frac{R_{DBCC} \cdot f_{DBCC}(T) \cdot B_{CC}}{\text{死滅}} \quad (13)$$

増殖 増殖 増殖

ここで、 R_{BCCori} , $R_{BCCamte}$, $R_{BCCmeth}$, R_{DBCC} : 各炭素源を栄養素とする有機物酸化菌の基準状態における増殖・死滅速度である（添え字 BCC, DBCC は増殖・死滅に関する諸量を意味する）。

(4) リン酸態リンの収支： PO_4-P

リンは脱窒菌・有機物酸化菌の増殖・活性化に消費され、その収支は以下のようにあらわされる。

$$S(PO_4) = -(R_{BNDori} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{ori}}{C_{NDCO} + C_{ori}} + R_{BNDamte} \cdot \frac{A_{amte}}{V} \times \frac{C_{amte}}{C_{NDCA} + C_{amte}} + R_{BNDmeth} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{meth}}{C_{NDCM} + C_{meth}}) \cdot f_{BND}(T) \times \times \frac{D_{BND}}{D_{BND} + DO} \cdot \frac{NO_3}{C_{BND} + NO_3} \cdot \frac{PO_4}{P_{BND} + PO_4} \cdot \frac{B_{ND}}{B_{BND} + B_{ND}} \cdot Y_{NDP} - (R_{BNDOri} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{ori}}{C_{NDOCO} + C_{ori}} + R_{BNDOamte} \cdot \frac{A_{amte}}{V} \times \frac{C_{amte}}{C_{NDOCA} + C_{amte}} + R_{BNDOmeth} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{meth}}{C_{NDOCM} + C_{meth}}) \cdot f_{BNDO}(T) \times \times \frac{DO}{D_{BNDO} + DO} \cdot \frac{PO_4}{P_{BNDO} + PO_4} \cdot \frac{B_{NDO}}{B_{BNDO} + B_{NDO}} \cdot Y_{NDOP} \quad (14)$$

嫌気性脱窒菌増殖に消費 嫌気性脱窒菌増殖に消費 嫌気性脱窒菌増殖に消費
嫌気性脱窒菌増殖に消費 好気性脱窒菌増殖に消費 好気性脱窒菌増殖に消費
好気性脱窒菌増殖に消費 好気性脱窒菌増殖に消費 好気性脱窒菌増殖に消費

$$\begin{aligned}
& - \frac{(R_{BCCori} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{ori}}{C_{CCO} + C_{ori}} + R_{BCCamte} \cdot \frac{A_{amte}}{V} \times \frac{C_{amte}}{C_{CCA} + C_{amte}} + R_{BCCmeth} \cdot \frac{A}{V} \cdot \frac{C_{meth}}{C_{CCM} + C_{meth}} \cdot f_{BCC}(T) \times}{\text{有機物酸化菌増殖に消費}} \\
& \times \frac{DO}{D_{BCC} + DO} \cdot \frac{PO_4}{P_{BCC} + PO_4} \cdot \frac{B_{CC}}{B_{BCC} + B_{CC}} \cdot Y_{BCP} \\
& \quad \text{有機物酸化菌増殖に消費}
\end{aligned} \quad (14)$$

ここで、 Y_{NDP} , Y_{NDOP} , Y_{BCP} : 微生物の増殖にともなうリン酸態リン重量への換算係数である。

(5) 溶存酸素の収支：DO

水質反応における溶存酸素の生産・消費に加えて、水面での自然曝気とマイクロバブル曝気による供給を考慮すれば、DOの収支は以下のように記述される。

$$\begin{aligned}
S(DO) = & \frac{E_{AW}(C_A - DO)A}{V} + \frac{Q_X \cdot Q_0(C_0 - DO)}{V} - R_{N1} \cdot f_{N1}(T) \cdot \frac{DO}{D_{N1} + DO} \cdot \frac{B_{NH_4}}{B_{N1} + B_{NH_4}} \cdot \frac{NH_4}{C_{N1} + NH_4} \cdot Y_{NH_4} \\
& \quad \text{大気との交換} \quad \text{曝気} \quad \text{アンモニア酸化による酸素消費} \\
& - R_{N2} \cdot f_{N2}(T) \cdot \frac{DO}{D_{N2} + DO} \cdot \frac{B_{NO_2}}{B_{N2} + B_{NO_2}} \cdot \frac{NO_2}{C_{N2} + NO_2} \cdot Y_{NO_2} - R_{C_{ori}} \cdot f_{CO}(T) \cdot \frac{DO}{D_{CO} + DO} \cdot \frac{B_{CC}}{B_{Co} + B_{CC}} \cdot \frac{C_{ori}}{C_{C_{ori}} + C_{ori}} \cdot Y_{O_{ori}} \\
& \quad \text{亜硝酸酸化による酸素消費} \quad \text{硝化水の酸化による酸素消費} \\
& - R_{C_{amte}} \cdot f_{CA}(T) \cdot \frac{DO}{D_{CA} + DO} \cdot \frac{B_{CC}}{B_{Ca} + B_{CC}} \cdot \frac{C_{amte}}{C_{C_{amte}} + C_{amte}} \cdot Y_{O_{amte}} - R_{C_{meth}} \cdot f_{CM}(T) \cdot \frac{DO}{D_{CM} + DO} \cdot \frac{B_{CC}}{B_{Cm} + B_{CC}} \cdot \frac{C_{meth}}{C_{C_{meth}} + C_{meth}} \cdot Y_{O_{meth}} \\
& \quad \text{アムテクリンの酸化による酸素消費} \quad \text{メタノールの酸化による酸素消費}
\end{aligned} \quad (15)$$

ここで、 E_{AW} : 「水-大気」境界面での物質移動係数、 C_A : 飽和溶存酸素濃度（温度に関する変数）、 Q_X : 酸素の水中への溶解効率（曝気水深や送気量により変動）、 Q_0 : 送気流量、 C_0 : 気体の酸素濃度、 Y_{NH_4} , Y_{NO_2} , $Y_{O_{ori}}$, $Y_{O_{amte}}$, $Y_{O_{meth}}$: 各酸化反応に対する酸素換算係数である。

4. 水質モデルによる浸出水の脱窒過程の解析

モデルパラメータは全ての水質項目の実験値を再現するように同定された。パラメータの調整作業を最小化するために、窒素酸化や好氣的分解など陸水域共通の生物化学反応については、活性汚泥モデル¹³⁾や湖沼・貯水池の水質モデル¹⁴⁾などを参考にパラメータのデフォルト値を設定して調整を開始した。

浸出水の硝化過程に関しては、すでに本モデルの水質シミュレーションを実施し、実験値との良好な適合性を得ている¹³⁾。本文では2.で報告した脱窒過程を対象に水質解析を実施した。パラメータ・セットの同定値を付録に示す。

図-3に窒素各成分（T-N, NO_3 -N, NO_2 -N）、図-4に溶存酸素DO、図-5にリン酸態リン PO_4 -P、そして図-6に全有機炭素TOCの経時変化を示す。

まず、十分な水素徐放剤を充填しリンを供給したtrack1, 2においては、図-4のDO濃度に見られるように溶出した有機物の分解により実験開始当初から嫌氣的環境が形成され、図-3(a)のT-N濃度の減少に見られるように脱窒が順調に進行した。そこで、負荷流量を0.5ml/min→1.0ml/min→2.0ml/min→4.0ml/min→8.0ml/minと段階的に増加させると、脱窒が減速してT-Nや NO_3 -Nが残留気味になっている（図-3(a), (b)）。このように本モデルは、水素徐放剤や負荷流量が脱窒に及ぼす特徴的な水質挙動を精度よく再現している。

track3（破線）では、ガラス球を充填しただけで炭素源がなく、図-3(a)のT-N時系列に見られるように26日目まで脱窒が全く生じなかったが、メタノール添加によって瞬時に無酸素状態となり（図-4）、やや遅れてT-Nが減少して脱窒が進んだ。このようにtrack3に関しても水質モデルは窒素収支に関わる水質挙動を良好に再現している。ただし、41日目のメタノール添加停止後も実験では嫌気状態が継続しているのに対し、水質解析ではDOが直ちに回復している（図-4）。水質モデルでは、便宜上、実験でのメタノール添加と当量の連続流入として取り扱っているが、実験ではメタノール添加により反応槽内で有機物酸化菌のフロックが形成されてしばらく残留するため、水質モデルと必ずしも等価な状況ではないことが、「解析—実験」間の違いの原因と考えられる。

track4では、track1の4倍、track-2の2倍の水素徐放剤が充填されているにもかかわらず、リンを添加していないためにtrack1, 2よりも脱窒がかなり低調である（図-3(a)）。しかし、45日目にメタノールを添加すると一気にT-Nが減少している。これらのことから、リンがなくとも脱窒菌に利用されやすいメタノールのような分

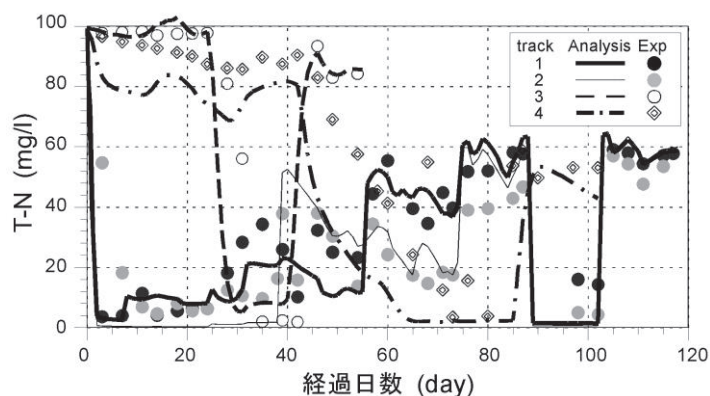
子量の少ない炭素源を供給すると、脱窒が促進される。これに対し、track3のようにリンが添加されても炭素が供給されない場合には脱窒は進まない。すなわち、脱窒に対して炭素源は必要素材であり、リンは促進素材と言える。以上のように、メタノール・リンの添加と供給停止にともなう脱窒の加速・減速挙動も水質モデルによって良好に再現されている。

なお、track4のメタノール添加期間やtrack2の初期において $\text{NO}_2\text{-N}$ が残留していることから、本モデルのように「 $\text{NO}_3\text{-N} \rightarrow \text{N}_2$ 」の一段階脱窒だけではなく、「 $\text{NO}_3\text{-N} \rightarrow \text{NO}_2\text{-N}$ 」, 「 $\text{NO}_2\text{-N} \rightarrow \text{N}_2$ 」など脱窒の中間過程も定式化し、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の残留を再現できるように水質モデルを精緻化する余地がある。

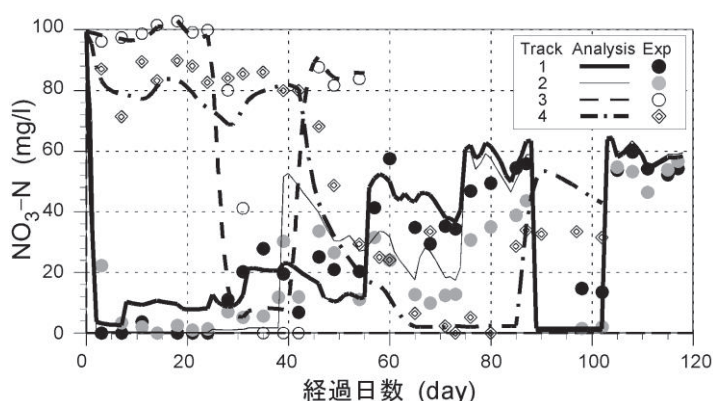
5. 脱窒におよぼす水理学的滞留時間の影響

track1, 2 では脱窒素材（水素徐放剤、リン）が充足された条件下で負荷流量が脱窒に及ぼす影響を検証した。track3 では水素徐放剤が欠如する条件下で炭素源が脱窒に果たす役割を、track4 ではリンの脱窒促進機能をそれぞれ確認した。

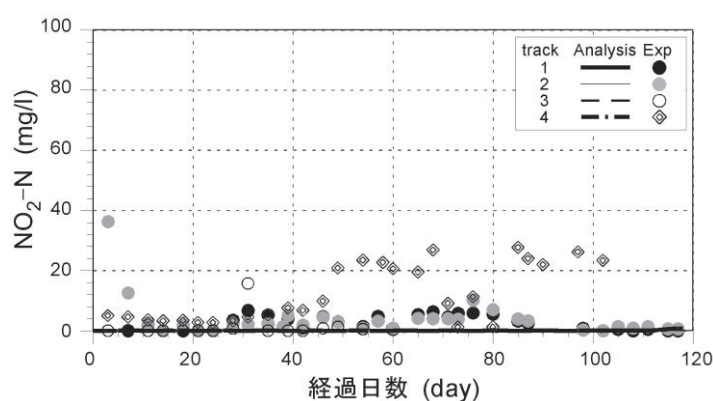
本節では、水理学的滞留時間 HRT（[水槽容量 V] / [負荷流量 Q]）と、脱窒率（[流入前後の T-N 濃度差] / [流入前の T-N 濃度]）との関係を図-7 のように整理し、track1, 2 を中心に実験結果を総括する。一方、水質解析から得られる $\text{NO}_3\text{-N}$ の減少量から脱窒率を算定し、同図中に併記する。具体的には、track1, 2 の実験条件を用いて様々な負荷流量 Q に対するシミュレーションを実施し、平衡状態に至った最終段階における脱窒率の数値解を図-7 に示している。ここでは、主に HRT の影響を見るために、十分に嫌氣的で水温・脱窒菌濃度・DO の律速を受けずこれらの制御関数を全て 1 とおいてシミュレーションを実施した。track1, 2 における脱窒率の HRT にともなう増加挙動、水素徐放剤表面積がより大きな track2 ($2,000\text{m}^2$) の方が track1 ($1,000\text{m}^2$) よりも脱窒率が大きいことなど、実験で得られた脱窒特性が水質モデルによって良好に再現されている。



(a) T-N



(b) $\text{NO}_3\text{-N}$



(c) $\text{NO}_2\text{-N}$

図-3 無機態窒素各成分の時系列

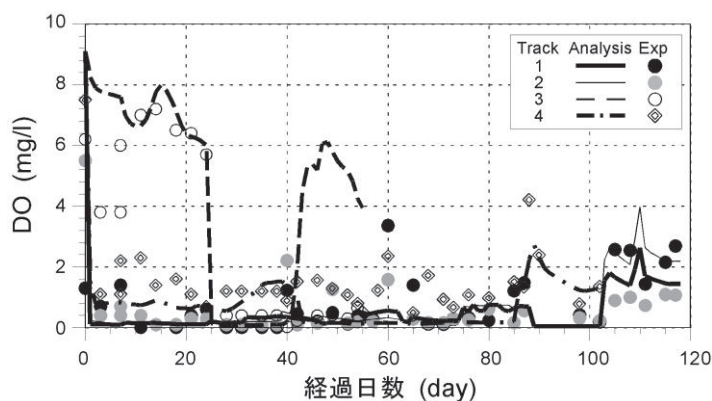


図-4 溶存酸素濃度 DO の時系列

6. むすび

未処理で埋め立てられた都市ゴミの処分場は全国で経年化が進んでいる。埋立地盤の安定化により当初よりも負荷が低減しているものの、浸出水を直接放流できる程度の水質には至っていない。今後も、多くの排水処理施設で老朽化が進むことから、中長期的な視野の下で持続的な水質管理方を講ずる必要がある。

本研究に先立ち著者らは、脱窒に炭素を供与する浸透性反応層材料としての水素徐放剤の性能に関する室内実験を実施した。本研究では脱窒過程を再現するために、硝化を含む窒素収支を記述できる水質モデルを定式化した。硝化については、別途、室内・屋外実験を対象にモデルの性能を検証している。モデルには酸化・還元にとまなう窒素各成分の生産・消費、窒素・炭素収支を担う微生物、溶存酸素や炭素の生物化学的収支が考慮されている。炭素源がない場合やメタノールとの比較から水素徐放剤の脱窒性能を検証し、さらに溶存酸素や炭素収支に対する水素徐放剤の効果、リンの脱窒促進などが水質モデルにより確認された。水質モデルは実験結果と良好に一致し、水理学的滞留時間（HRT）などの処理条件が脱窒に及ぼす影響も本モデルで的確に評価された。脱窒過程の精緻化の余地もあるが、水素徐放剤を用いた浸出水の脱窒システムの設計における本モデルの適用性が期待される。

謝辞：実験データの整理にあたり、神戸大学工学部学生、池田俊一、黒田将嵩の両氏のご協力を頂いた。記して謝意を表する。

参考文献

- 1) 環境省大臣官房廃棄物・リサイクル対策部 廃棄物対策課：日本の廃棄物処理 平成 21 年度版, 2011.
- 2) Welander, U. Henrysson, T. and Welander, T.: Biological nitrogen removal from municipal landfill leachate in a pilot scale suspended carrier biofilm process, Water Research, Vol. 32, Issue 5, pp.564-1570, 1998.
- 3) Borzacconi, L., Ottonello, G., Castell, E., Pelaez, H., Gazzola, A. and Vi, M.: Denitrification in a Carbon and Nitrogen Removal System for Leachate Treatment: Performance of a Upflow Sludge Blanket (USB) Reactor, Water Science and Technology, Vol. 40, No 8, pp 145-152, 1999.
- 4) 大久保努・渡辺悠介・大浦一恵・久保田健吾・李玉友・原田秀樹, DHS-USB 方式による埋立地浸出水の

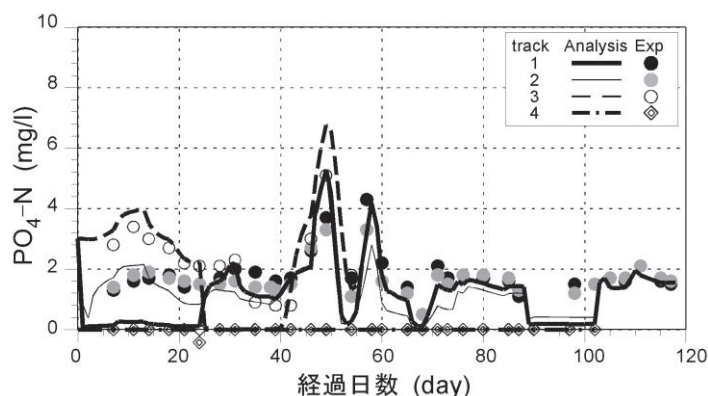


図-5 リン酸態リン $\text{PO}_4\text{-P}$ の時系列

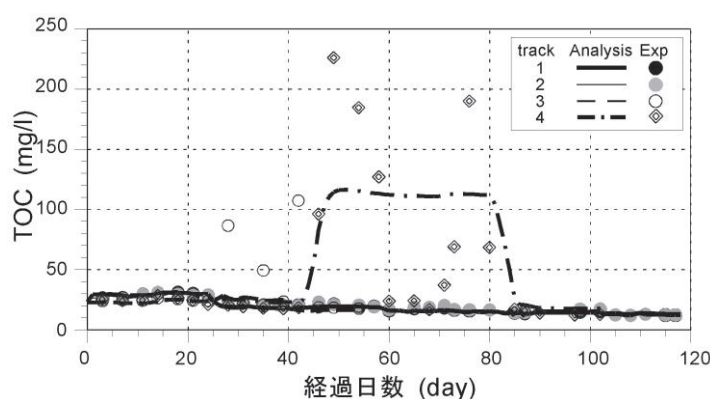


図-6 全有機炭素 TOC の時系列

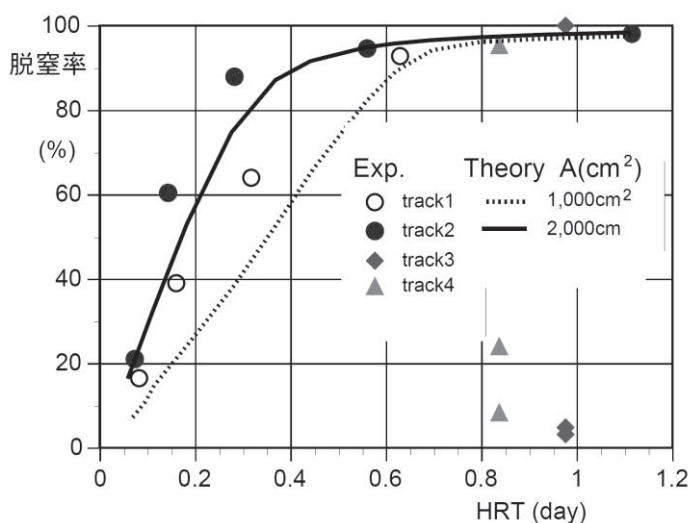


図-7 水理学的滞留時間 HRT に対する脱窒率

14) 岩佐義朗編著：湖沼工学，山海堂，511P., 1990.

An Ecological Model for Denitrification of Municipal Landfill Leachate and Parametric Analysis on Denitrification Controlling Factors

Kohji MICHIOKU, Kenji TANAKA, Hiroya TANAKA, Kohsuke INOUE,
Tamihiro NAKAMICHI, Masahiro YAGI and Nariaki WADA

Abstract

Denitrification of municipal landfill leachate was investigated by performing a water quality modeling in which biochemical processes of nitrogen, dissolved oxygen, carbon, phosphorus and denitrification bacteria were taken into consideration. The present study is to develop a new technology for denitrifying leachate by using hydrogen feeding agent. The agent is expected to have functions not only of feeding carbon to activate denitrification bacteria but also of reducing nitrified leachate. A laboratory experiment on denitrification of leachate was already performed by the authors and performance of hydrogen feeding agent was examined under various conditions of ammonia loading rate and carbon resources. The water quality model was verified by comparing the analytical solutions with the laboratory data. Time-dependent behaviors of every water quality component observed in the experiment were very well reproduced by the model. The model also gives a solution of denitrification rate as a function of hydraulic retention time, HRT. The analysis showed that the hydrogen feeding agent was found to be a very promising material for efficiently removing nitrogen from seriously contaminated leachate. In addition, the water quality model would be a useful design tool for constructing a cost-saving leachate treatment system.

©2015 Research Center for Urban Safety and Security, Kobe University, All rights reserved.