

②

鉄ろ材接触曝気方式による
生活排水からの
リン除去の実験的研究

1994

治 多 伸 介

目次

緒言	1
----	---

第1編 農村地域における生活排水からのリン除去の重要性と現状

第1章 富栄養化問題とリン

1.1 富栄養化による被害	3
1.2 リンと富栄養化の関係	5
1.3 農村地域でのリン除去の意義	6
引用文献	9

第2章 農村地域での排水処理の現状

2.1 生活排水処理の現状と問題点	11
2.2 農村地域での有機物処理	14
2.3 リン除去技術の現状	20
引用文献	28

第3章 農村地域でのリン除去技術の問題点

3.1 現状のリン除去技術の問題点	31
3.2 望まれるリン除去技術の具備すべき条件	34
引用文献	34

第2編 鉄ろ材接触曝気方式によるリン除去

第1章 鉄ろ材接触曝気方式の原理と課題

1.1 はじめに	36
1.2 鉄ろ材接触曝気方式の考案	36
1.3 鉄ろ材接触曝気方式の平衡論的妥当性	38
1.4 鉄ろ材接触曝気方式に関する研究課題の設定	40
引用文献	41

第2章	鉄ろ材浸漬条件による腐食機構の差異とリン除去能力	
2.1	実験目的	42
2.2	実験方法	42
2.3	実験結果	47
2.4	考察	54
2.5	まとめ	61
	引用文献	61
第3章	高率のリン除去を安定して達成するための管理手法	
3.1	実験目的	63
3.2	実験方法	63
3.3	実験結果	66
3.4	考察	71
3.5	まとめ	76
	引用文献	77
第4章	季節的な水温変化を考慮した管理手法	
4.1	実験目的	78
4.2	実験方法	79
4.3	実験結果	80
4.4	考察	80
4.5	まとめ	83
	引用文献	83
第5章	槽内流速の処理への影響	
5.1	実験目的	84
5.2	実験方法	84
5.3	実験結果	86
5.4	考察	87
5.5	まとめ	88
	引用文献	88

第6章	鉄ろ材の必要浸漬量の算定方法	
6.1	実験目的	89
6.2	実験方法	89
6.3	実験結果	93
6.4	考察	96
6.5	まとめ	107
	引用文献	108

結言	110
----	-----

謝辞	113
----	-----

緒言

現在、わが国では、閉鎖性水域の富栄養化問題が深刻である。富栄養化した水はその利用価値が著しく低下し、農業用水や水道水等への利用に様々な問題を生じさせる。また、その水域では水産資源が減少したり、レクリエーション環境も破壊されてしまう。

この富栄養化問題の原因は、人間活動によってリンや窒素といった栄養塩類が水域に多量に流入するためであると考えられ、特にリンの影響が大きいと言われている。

リンの発生源は、市街地、農地、山林と多岐にわたるが、一般家庭から排出される生活排水に起因する負荷量はその半分近くにも達し、その対策が急務である。しかし、現在すでに実用化されているリン除去技術には様々な問題があるため、わが国でリン除去対策が行われている生活排水の量は、人口割合で1割にも満たない。

ところで、農村地域にはわが国の全人口の約40%が居住しているので、ここから排出される生活排水に由来するリンの除去が重要なのは言うまでもない。さらに、農村地域は都市地域よりも内陸側に位置することが多く、そこからの排水が閉鎖性水域に流入する可能性は高く、農村地域からの排水の環境に対する悪影響は都市地域のものよりもむしろ大きいといえる。

一方、農村地域の排水処理施設は、その地域特性から都市型の大規模集中型ではなく、小規模分散型施設とするのが望ましいと考えられている。しかし、施設が小規模であるほど、そこに導入すべき技術に対する要求条件はむしろ厳しいものとなり、現在実用化されているリン除去技術は、この要求にどれも十分応えているとはいえない。そのため、一部の地域をのぞいて、現在農村地域にリン除去技術はほとんど導入されていないのが現状である。

このようなことから、本研究では、農村地域の小規模排水処理施設に特に適したリン除去技術の確立を目的として、新しい技術である「鉄ろ材接触曝気方式」の開発に取り組んだ。

「鉄ろ材接触曝気方式」では、鉄製のろ材を浸漬した槽に汚水を流入させ、その中で曝気と攪拌を行う。そして、ろ材表面に自然発生的に着生する微生物の膜の作用によって有機物を分解し、同時に鉄ろ材の腐食に伴って溶出する鉄イオンにより汚水中のリンを吸着させて、その化合物を沈澱排除することによってリンを除去する。

本論文は大きくは3つの部分から構成されており、それぞれで取り扱っている内容はつぎのようなものである。

第1編：

本編ではこの研究の背景をまとめ、研究の課題設定を行っている。

第1章では、富栄養化問題の実態とリン除去の意義を明確化し、わが国の農村地域での生活排水からのリン除去の重要性について言及する。

第2章では、農村地域での生活排水処理の実態をまとめる。

第3章では、以上の2章をうけて、現状のリン除去技術の問題点をまとめるとともに、現在農村地域で望まれているリン除去技術の具備すべき条件を整理する。

第2編：

本編は本論文の中心となるもので、新しいリン除去技術である「鉄ろ材接触曝気方式」の開発研究の結果をとりまとめる。

第1章では前編の内容をふまえた上で、「鉄ろ材接触曝気方式」を提案する。また、そのリン除去メカニズムの妥当性を化学平衡論の視点から検討するとともに、この研究で検討・解明すべき課題の明確化を行う。この後の章では、それらを明らかにするために室内で行った実験結果をとりまとめる。

第2章では、「鉄ろ材接触曝気方式」によりリンと有機物の同時除去が実際に可能であることを実証するとともに、鉄ろ材からの鉄イオンの溶出機構を明らかにするために行った基礎的な実験結果を報告する。

第3章以降は、この方式による施設の運転管理・設計上の留意点を明らかにするために行った実験結果を報告する。第3章では、「鉄ろ材接触曝気方式」により高率のリン除去を安定して達成するための維持管理手法として、ろ材の定期的な逆洗浄を提案し、その効果を検討する。

第4章では、「鉄ろ材接触曝気方式」の水温変化に対する処理特性を、また、第5章では、「鉄ろ材接触曝気方式」の槽内流速の変化に対する処理特性を明らかにする。

第6章では、「鉄ろ材接触曝気方式」の流入汚水の水質の変化に伴うリン除去の変化を明らかにし、それをもとに鉄ろ材の必要浸漬量の決定方法を提案する。また、同時にこの方法のリン除去コストと鉄ろ材耐用年数、発生汚泥量やその脱水性、鉄ろ材浸漬によるリン以外の水質への影響についても検討する。

結言：

本研究の結果を要約するとともに、今後望まれる「鉄ろ材接触曝気方式」の発展的な研究課題について考察する。

第1編 農村地域における生活排水からのリン除去の重要性と現状

第1章 富栄養化問題とリン

1.1 富栄養化による被害

現在、わが国をはじめ世界各国では、数多くの解決すべき水環境問題が生じている。なかでも、閉鎖性水域の富栄養化問題は深刻であり^{1) 2)}、わが国での報告数は昭和58年度で148湖沼におよび、その他の多くの湖沼でも問題発生の恐れがあるとされている³⁾。

富栄養化とは、植物プランクトンの発生が少ない生物生産性の低い貧栄養湖が、植物プランクトンが大量に増殖する生物生産性の高い富栄養湖に変化する現象のことである^{4) 5)}。

この変化の原因については第2節で詳しく述べるが、リンや窒素といった栄養塩類の濃度が高まるためであると考えられている。このような変化は自然的な作用のみでも起こるが、それには数千年から数万年という地質学的な歳月が必要である⁶⁾。ところが実際には、近年世界各国で極めて多くの富栄養化現象が観察されるようになってきている^{1) 2)}。このことは、人間の活動が富栄養化の進行を大きく加速させたことを示しており、これは自然作用のみで進行したものと区別され、人為的富栄養化とよばれる⁶⁾。本論文をはじめ、一般に環境問題としてあつかわれるのは、この人為的富栄養化である。

富栄養化は人間活動にさまざまな悪影響をおよぼす。それらをまとめると次のようになる。

(1) 農林水産業に対する悪影響

富栄養化した水域の水をかんがい用水として用いると、農作物の生育に悪影響がある。かんがい用水の水質基準は Table 1 のように定められているが⁷⁾、その水域の水はしばしばこれを上回る⁸⁾。なかでも窒素の供給過多による被害は特に大きく⁹⁾、稲の過繁茂、倒伏、登熟不良、病虫害の多発などによって収量が激減する¹⁰⁾。窒素以外についても、有機物過多によって根ぐされが起こったり⁸⁾、懸濁物質がスプリンクラーやパイプラインの目づまりを引き起こすことも多い¹¹⁾。

富栄養化が起こると、その水域に棲息する魚類の種類は大きく変化する。価値の高いアユ、サケ、マスなどの高級魚はいなくなり、商品価値の低い種類ばかりになって漁獲収益の低下をまねく。さらに富栄養化が進行すると、価値の低いものまでもがへい死してしまう。その原因は、藻類の分泌毒¹²⁾や死後藻類の微生物分解にともなう溶存酸素濃度の低下、無酸素状態のもとで発生する硫化水素などによる生理機能障害である⁹⁾とされている。

また、一部の藍藻類には有毒物質が含まれているので、魚類に対する悪影響だけ

でなく、富栄養化した水を家畜の飲料水として用いるとそれらが死亡するときがある¹³⁾。

Table 1 Standard of irrigation water quality for paddy in Japan⁷⁾

Item	Standard
pH (-)	6.0 - 7.5
COD (mg/l)	≦ 6
SS (mg/l)	≦ 100
DO (mg/l)	≧ 5
T-N (mg/l)	≦ 1
Conductivity (mS/cm)	≦ 0.3
As (mg/l)	≦ 0.05
Zn (mg/l)	≦ 0.5
Cu (mg/l)	≦ 0.02

(2) 上水道に対する悪影響

富栄養化した水は悪臭を放ち、利水者に不快感をあたえる。この臭気には、藻類が直接放出するものと、藻類の死後にこれを栄養とする細菌類などによって2次に生産されるものがある。これらは一般にカビ臭とよばれ、2-MIB (メチルイソボルネオール)、ジオスミンなどが同定されている¹⁴⁾。この臭気を、現在の浄水施設で除去するのは極めて困難である。

一般の水道水の浄水工程は、前塩素処理、凝集処理、ろ過、塩素消毒などから成り立っている¹⁵⁾。

前塩素処理は、その後に行う処理効果を高めるために行われるが、富栄養化した水を処理すると発ガン物質であるトリハロメタンが生成される。トリハロメタンの前駆体としては、*Microcystis* 等の植物プランクトンの細胞および細胞外有機物などがあげられる¹⁶⁾。

凝集処理では、懸濁物質をフロック化させるために、鉄塩やアルミニウム塩などの凝集剤が添加される。富栄養化した水には懸濁物質が多いため、凝集剤が多量に必要となってコストが上昇する。また、キレート作用を有する藍藻類の代謝生産物や分解生産物が多い場合は、凝集作用自体が阻害されることもある¹⁷⁾。

ろ過は懸濁物質や、凝集処理で生じたフロックを除去するために行う。富栄養化した水をろ過すると、藻類がろ過池を目標りさせることがある。特に珪藻類が大量に発生すると、その悪影響は大きくなる。これは、珪藻類が死亡後にもその殻を残存させるためである¹⁷⁾。

消毒過程では、アンモニアイオンやアミノ化合物がクロールアミン化合物 (NCl₃ など) を生成して、消毒効果を低下させる¹⁷⁾。また、アンモニアイオンは不完全に

酸化されると亜硝酸イオンとなるが、それを多く含んだ水を飲用すると、人体に対して極めて大きな健康被害が起きる¹⁷⁾。

(3) 周辺住民やレクリエーションに対する悪影響

水域が富栄養化すると、水は緑色や緑褐色に濁ったり、透明度が低下して美観が著しく損なわれる。そのため、レクリエーション資源としての価値が大きく低下する。さらに富栄養化が進行すると、藻類からなる膜状の浮遊物が水面に生成し、遊泳はもちろんボート遊びなどもできなくなる。これらが腐敗すると悪臭を発生し、沿岸住民に不快感をあたえる。同時に発生する硫化水素は、沿岸住宅の金属部分を変色させたり腐食させたりする。

1. 2 リンと富栄養化の関係

富栄養化とは、一次生産者である植物プランクトンが大量に発生することであるので、その増殖に必要な物質が十分に存在することが、それが起こる必要条件であるといえる。その物質としては、リン、窒素、カリウム、鉄、マグネシウム等の10数種類の元素やB群ビタミンがあげられる¹⁸⁾。しかし、リンと窒素以外はその必要量が極微量であったり、比較的少量に必要なものであってもどの水域にもすでに十分な量が存在している¹⁹⁾ ため、制限要因にはなりにくいと言われている²⁰⁾。このようなことから、現在ではリンと窒素の濃度が、富栄養化の進行に最も大きな影響を与えていると考えられている。

ところで、藻類の増殖には炭素源として炭酸ガスが必要なため、これが制限因子になるという説²¹⁾ がある。しかし、炭酸ガスの濃度は藻類の種類は変化させるが、藻類発生量は変化させず²²⁾、富栄養化の抑制にはつながらないとするのが最近では一般的である。

リンと窒素のどちらが制限要因になりやすいかについては多くの議論がなされてきたが、現在ではリンのほうが重要という認識が強い。それは、窒素が少ない環境のもとでも *Anabenaopsis*²³⁾、*Gloetrichia*²³⁾、*Aphanizomenon*²⁴⁾ などの藍藻類は、窒素ガスからそれを直接に同化することができることと、このような現象によって水域の窒素不足が自然に解消されるためである²⁵⁾。このため、Fig. 1 に示すように藻類発生量 (クロロフィル a) と水中のリンとの関係は統計的にも明確であるが、窒素との関係はあまり明らかではない²⁶⁾。ただし、短期的には窒素も富栄養化の大きな要因となりうるため、その対策が重要であることはいうまでもない。

以上のことから、アメリカ²⁷⁾ やヨーロッパ²⁸⁾ では、リンに重点をおいた考え方で富栄養化の防止対策がなされている。わが国でも、湖沼に対する窒素・リンの排水規制が水質汚濁防止法によって行われているが、そこでは、リンのみが制限要因の湖沼と、リンと窒素の両者が制限要因の湖沼とに分けて規制が行われている。すなわち、窒素は規制対象にならない湖沼もあるが、リンは富栄養化しやすいと考えられる湖沼の全てで対象になっている²⁹⁾。

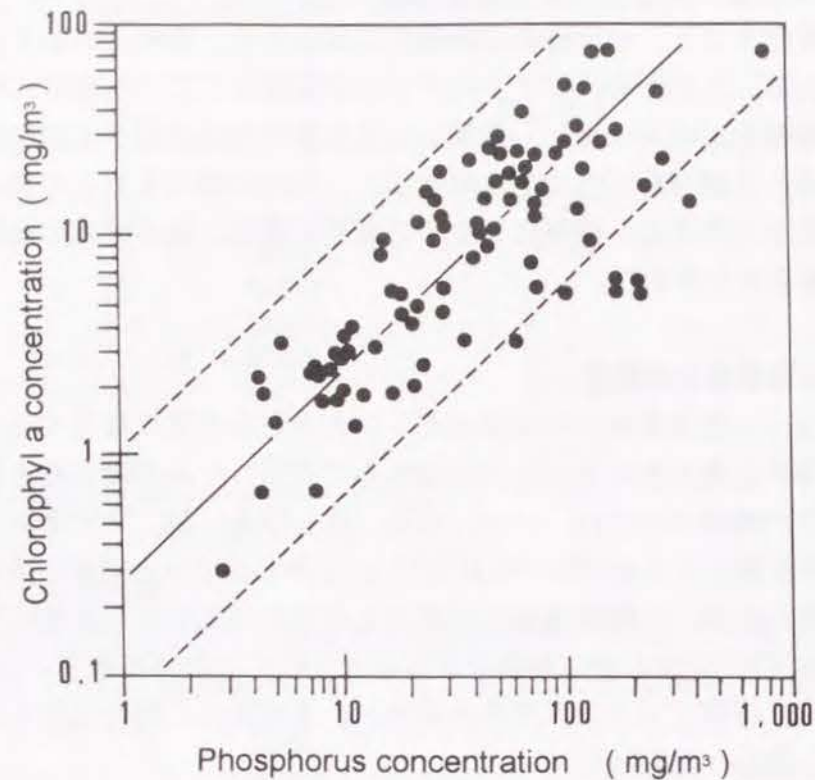


Fig. 1 Relations between year average of chlorophyll a concentration and year average of phosphorus concentration in lakes researched by OECD^{2,6)}

1. 3 農村地域でのリン除去の意義

リンは藻類の細胞の中で、核酸、脂質、タンパク質やATPの構成成分となるので、その生命活動に極めて重要である。藻類の増殖に十分なリン濃度は $0.02\text{mg}/\ell$ ³⁰⁾とされている。

現在農村地域の一般家庭から排出される生活排水（し尿と厨房、風呂、洗濯場、洗面所などから排出される雑排水をあわせたもの）は、以前と違って都市地域の家庭と質的にも量的にも変わらないようになっている³¹⁾。これは、生活様式の高度化、農家非農家の混住化、兼業化が進展したためである³²⁾。この生活排水のリン濃度は約 $4.0\text{mg}/\ell$ ³³⁾であり、前述の $0.02\text{mg}/\ell$ に比較して2オーダーも高い値である。このことから、富栄養化防止のために、生活排水からリンを除去することが極めて重要であるのが理解できる。しかし、わが国では生活排水中のリンはほとんど除去されず

に公共用水域に流入しているのが現状である。このことについては、第2章で詳しくふれる。

実際、Figs. 2, 3, 4 に示すように、代表的な富栄養湖に流入するリンのうちで生活排水に由来するものは、琵琶湖で約3割³⁴⁾、霞ヶ浦で約5割³⁵⁾、諏訪湖では約2割³⁶⁾と極めて大きな割合を占めている。このような傾向は閉鎖性海域についても同様であり、全国的に見ると、全水域に排出されるリンの量の30~40%が生活排水によるものである³⁷⁾。

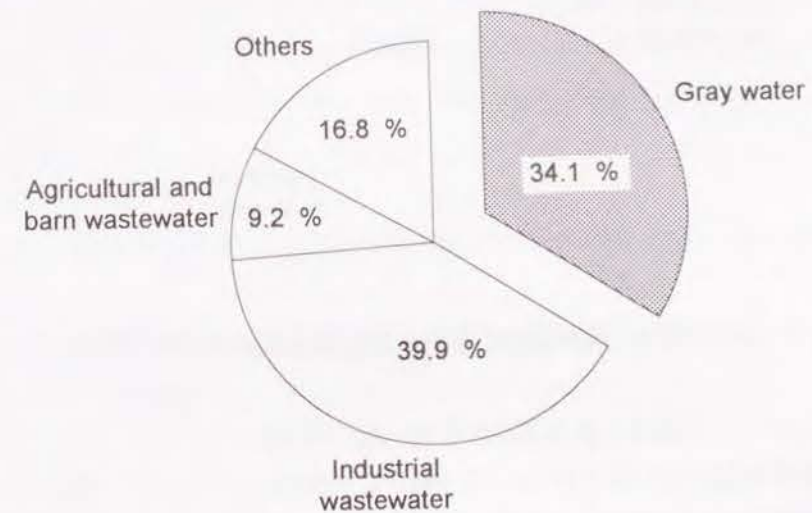


Fig. 2 Source of phosphorus loading to Lake Biwa (1990)^{3,4)}

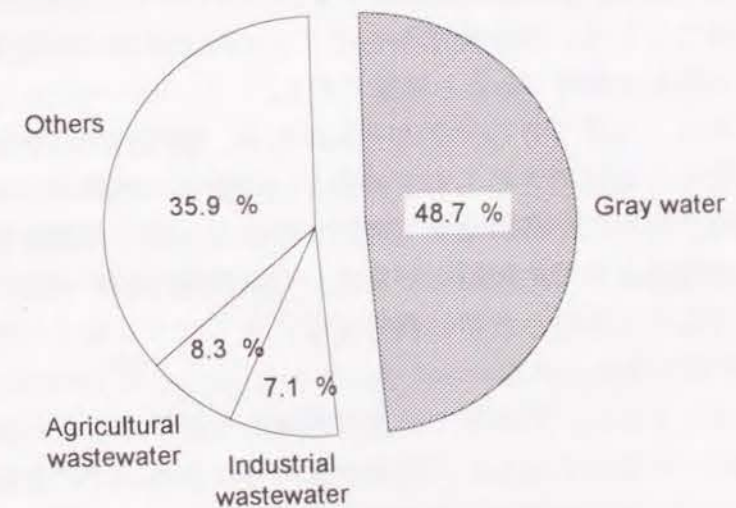


Fig. 3 Source of phosphorus loading to Kasumigaura (1990)^{3,5)}

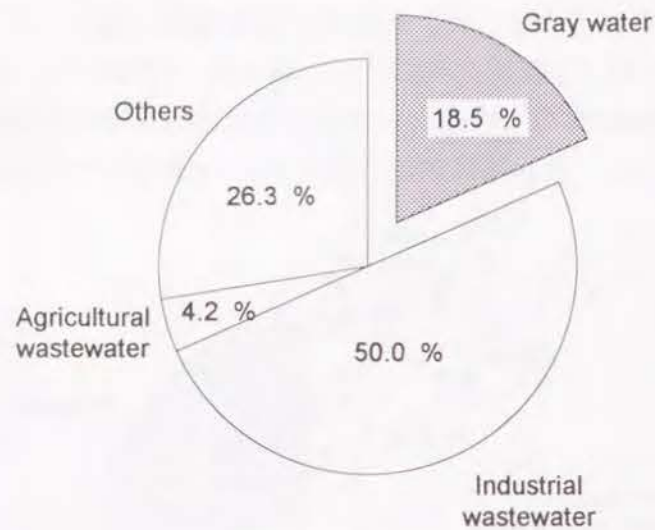


Fig. 4 Source of phosphorus loading to Lake Suwa (1991)^{3,6)}

ところで、農村地域には総人口のうち約40%が居住している。そのため、農村地域から環境に排出されるリンもこのうちのかなりの部分を占めていると考えられる。さらに、都市は海岸近くに立地することが多いが、逆に農業集落は内陸側や河川の上流側に位置することが多い。そのため、農村地域からの生活排水は閉鎖性水域に流れこむ確率が高く、その富栄養化の進行に与える悪影響は特に大きく^{3,8) 3,9)}、上下流側の利害の対立が大きな社会問題にまで至っていることもある^{4,0) 4,1)}。

このようなことから、生活排水からのリンの除去は極めて重要であり、特に農村地域でのリン除去は急務であると結論できる。

しかし、第2, 3章でさらに詳しくふれるが、現在実用化されているリン除去技術はどれも決して満足できるものではなく、生活排水対策には数々の問題のあるのが現状である。さらに、農村地域でのリンの除去や排水処理を考えるにあたっては、都市地域とは異なる独特の困難さがあり、その問題は特に深刻である。従って、都市地域向けのものとは違った特に農村地域に適したリン除去技術を確立していくことが急務であると考えられる。

このようなことから、本研究では農村地域の生活排水からの新しいリン除去技術の開発を目的とすることにした。研究を進めるにあたっての課題を十分に把握するため、第2章では農村地域での排水処理の現状をまとめ、第3章ではそれをふまえて現在望まれている技術像を検討する。

引用文献

- 1) 倉田 亮：世界の湖沼と琵琶湖研究，琵琶湖研究所報，pp. 17-37(1987)
- 2) 渡辺正孝：地球規模の赤潮問題，環境研究，70，pp. 109-115(1988)
- 3) 須藤隆一：排水からの窒素およびリン除去の意義，環境技術，14(6)，pp. 40-42(1985)
- 4) 宝月欣二：生態学講座13巻，共立出版，p. 127(1974)
- 5) 日本水産学会編：水圏の富栄養化と水産増殖，恒星社厚生閣，p. 9(1973)
- 6) 須藤隆一編：環境浄化のための微生物学，講談社，p. 32(1983)
- 7) 農林水産省構造改善局：土地改良計画設計基準 計画 水質障害対策，p. 4(1984)
- 8) 高村義親：農業土木技術者のための水質入門—湖沼の水質と富栄養化—，農土誌，52(11)，pp. 45-51(1984)
- 9) 上記6)，p. 36
- 10) 増島 博：農業土木技術者のための水質入門—水質と作物生育—，農土誌52(9)，pp. 51-56(1984)
- 11) 中曾根英夫：農業用水における浄化施設の提案—その実験結果について—，農土誌，48(11)，pp. 33-38(1980)
- 12) 合田 健：水質汚濁防止対策の将来像—雑排水問題を考える前に—，用水と廃水，26(5)，pp. 3-16(1984)
- 13) M. Collins：Algal Toxins，*Microbio. Rev.*，42(4)，pp. 725-746(1978)
- 14) 矢木修身他：かび臭発生機構—放線菌—，用水と廃水，pp. 13-20，26(8)，pp. 823-830(1984)
- 15) 茂庭竹生：上下水道工学，コロナ社，pp. 47-88(1985)
- 16) 福島 博他：藻類増殖過程で生成されるトリハロメタン前駆物質の評価，水質汚濁研究，6(3)，pp. 41-48(1984)
- 17) 上記6)，pp. 34-35
- 18) 清水 試：海洋の汚染，築地書館，pp. 38-41(1972)
- 19) M. Sakamoto：Arch. Hydrobiol.，62，p. 1(1966)
- 20) D. Patrick，鈴木静夫訳：水質汚染の化学生態学，東京化学同人，pp. 159-169(1973)
- 21) L. E. Kuenztl：Bacteria, Carbon Dioxide, and Algal Blooms，*J. Wat. Poll. Contr. Fed.*，41，1737(1969)
- 22) J. Shapiro：Blue-Green Algae: Why They Become Dominant，*Science*，179，pp. 382-384(1973)
- 23) R. A. Vollenweider：OECD Technical Report DAS/CSI/68，p. 27(1971)
- 24) D. W. Shiner：Evolution of Phosphorus Limitation in Lakes，*Science*，195，pp. 260-262(1977)
- 25) 浦野紘平他：排水中のリン除去技術の特徴と経済性，用水と廃水，29(5)，pp. 3-12(1987)
- 26) OECD：Eutrofication of water，OECD(1982)

- 27) Vollenweider, R. A: Advances in defining critical loading levels for phosphorus in lake eutrophication, *Mem. Ist. Ital. Idrobiol.*, 33, pp. 53-83 (1976)
- 28) 欧州湖沼調査団報告: 欧州の湖沼保全対策の最前線と日本の対応, 公害と対策, pp. 37-44 (1986)
- 29) 平林詩郎: 講座 農業集落排水(その4) - 水質保全の関係法令 -, 農土誌, 61(8), pp. 33-38 (1993)
- 30) 須藤隆一: 廃水処理の生物学, 産業用水調査会, p. 496 (1977)
- 31) 西口 猛: 農業土木技術者のための水質入門 - 集落排水の処理方法 -, 農土誌, 53(4), pp. 67-71 (1985)
- 32) 中曾根英雄: 農村の環境保全に果たす農業集落排水処理の役割, 農土誌, 52(3), 2-4 (1984)
- 33) 桜井敏郎: 小規模排水対策 - 小規模排水と処理施設 -, 用水と廃水, 33(4), pp. 58-59 (1991)
- 34) 滋賀県生活環境部環境室: 琵琶湖にかかる湖沼水質保全計画, (1991)
- 35) 茨城県: 霞ヶ浦富栄養化防止基本計画, (1992)
- 36) 長野県公害課: 長野県水環境保全総合計画, (1993)
- 37) 武藤暢夫: 生活廃水をめぐる諸問題, 用水と廃水, 19(5), pp. 61-69 (1977)
- 38) 増島 博: 集落排水における窒素・リン除去と農村環境, 農土誌, 56(3), pp. 19-23 (1988)
- 39) 田淵俊雄: 農業集落排水処理と広域水質保全, 農土誌, 52(3), pp. 5-6 (1984)
- 40) 大橋欣治他: 農村における集落排水処理の動向と課題, 農土誌, 48(11), pp. 47-57 (1980)
- 41) 有田博之他: 農業集落排水処理施設の処理水の処分, 故障, 維持管理費用 - 共用施設管理に関するアンケートから (II) -, 農土誌, 55(10), pp. 5-10 (1987)

第2章 農村地域での排水処理の現状

2.1 生活排水処理の現状と問題点

(1) 生活排水処理の現状

過去の農村では、し尿や雑排水は肥料などとして、大切に再利用されるのが通常であった¹⁾。しかし、現在ではこれらの扱いは Figs. 1, 2 のように大きく変化している²⁾。し尿については、そのほとんどがくみとり方式であり、既にその大部分は再利用されていない。雑排水はほとんどが未処理で放流されている。

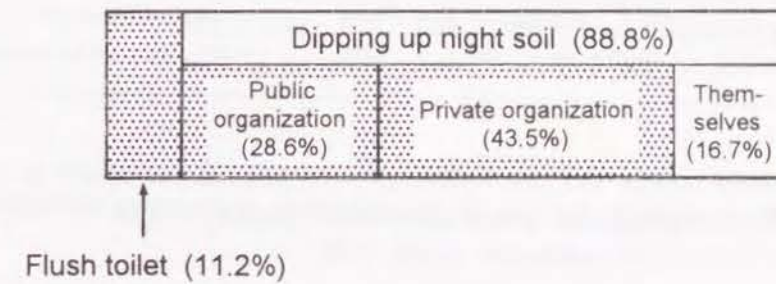


Fig. 1 Human excreta treatment in rural area in Japan²⁾
(In view of number of agricultural village, 1991)

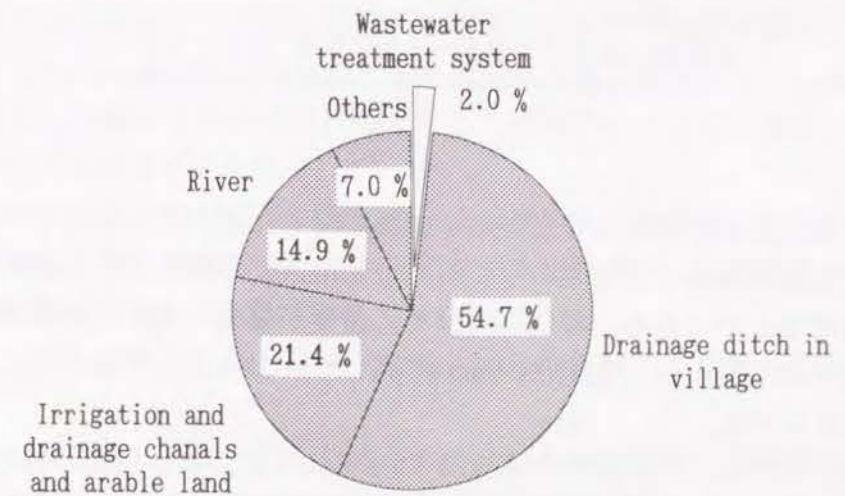


Fig. 2 Discharge point of gray water in rural area in Japan²⁾
(In view of number of agricultural village, 1991)

このような変化が起こったのは、Tables 1, 2 に示すように、近年の化学工業の発達につれて安価な化学肥料が大量に供給されはじめ、し尿などを還元する必要性が低下したためである³⁾。また、農村地域への都市住民の進出、いわゆる混住化の進行も、過去の自家処理を基本とした水環境の保全や自治の伝統をくずしていったという観点から、大きな原因として考えられている⁴⁾。

Table 1 Chronological changes of consumption of compost in Japanese paddy field³⁾

Year	1955	1960	1965	1970	1975	1980
Consumption amount (kg/10a)	560	630	545	451	268	199

Table 2 Chronological changes of consumption of chemical fertilizer in Japanese paddy field³⁾

Year	1940	1950	1960	1970	1980
N (kg/10a)	3.6	6.1	8.3	10.9	10.9
P (kg/10a)	3.6	4.4	6.2	10.3	12.2
K (kg/10a)	0.6	1.6	6.7	9.6	9.1

ところで、生活排水の処理は今までは有機物の除去に重点がおかれてきた。これは、有機物が放流されると居住地のすぐ近くで環境悪化が起こり、人間の生活に多大な支障をきたすためである。特にし尿はその濃度が極めて高いので影響が大きく、伝染病等の疫学的な面からも危険性が極めて高い⁵⁾。従って、その処理は多くの国で義務づけられている。

このようなことから、わが国では Fig. 3 に示すように、都市地域、特に大都市を中心として社会資本の集中的な投資によって下水道が整備され、トイレの水洗化が進められてきた⁶⁾。しかし、農村地域では資本投下が立ち遅れているので、依然としてくみ取り処理が主流になっている。

一方、雑排水については、その濃度はし尿と比較して極めて薄いために、その処理の重要性はこれまであまり認識されていなかった。そのため、都市地域の公共下水

道ではし尿とともに処理されているものの、農村地域ではほとんどが未処理となっている。

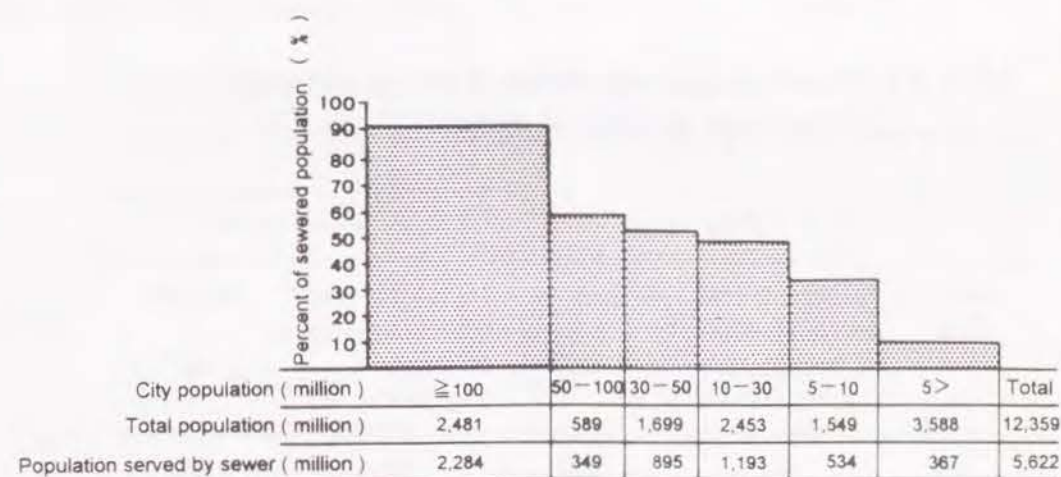


Fig. 3 Relations among city population and percent of sewered population and population served by sewer in Japan⁶⁾ (1992)

(2) 生活排水処理の問題点

前節で述べたように、雑排水の濃度はし尿に比較すると確かに薄い。しかし、Table 3 に示すように、その有機物の負荷量はし尿に匹敵する以上に大きいこと⁷⁾が近年指摘されて以来、その処理の重要性が強く認識されるようになってきた。実際、農村地域では、雑排水が放流されている集落内水路や農業用水路はドブ状となって悪臭を放ったり、蠅や蚊が発生して生活環境を大きく悪化させている。また農業用水路に流入した雑排水はかんがい用水として利用されることが多く、稲の倒伏や青立ち等の深刻な被害を引き起こしている⁸⁾。

リンについても同様であり、近年の合成洗剤の使用の停止にともなって雑排水による負荷量は大幅に削減できた⁹⁾が、それでも生活排水に起因する負荷量の約半分は雑排水に起因するものと算定されている⁹⁾。

このようなことから、農村地域での雑排水対策は極めて重要かつ急務であるといえる。

一方、し尿については、自家処理されているもの以外はし尿処理施設に運び込まれて処理されている。し尿処理施設では集中管理方式で高度な処理がなされており、有機物とともにリンや窒素も高率に除去されている¹⁰⁾。したがって現状では、農村地域から排出されるし尿が富栄養化問題の大きな原因であるとは必ずしも言えない。

しかし、くみ取り処理は住民の生活環境を考えたときには優れた方法であるとは結論できない。すなわち、くみ取り処理はその悪臭やイメージの悪さが極めて大き

な問題である。そのため、トイレの水洗化は近代的な農村生活の必須条件との認識がなされており¹¹⁾、住民らの要望も極めて強い。トイレの水洗化は農村地域での若者の定着や、嫁問題の改善などの2次的な効果についての期待も極めて高い^{12) 13)}。

Table 3 Pollutant load per unit activity of source and water quality of gray water and human excreta in Japan⁷⁾

Item	Gray water		Human excreta	
	Pollutant load per unit activity of source (g/capita·day)	Quality (mg/l)	Pollutant load per unit activity of source (g/capita·day)	Quality (mg/l)
BOD	27	180	13	260
COD	12	80	6	120
SS	13	87	22	440
T-N	1.3	9	6	120
T-P	0.3	2	0.5	10
Water Quantity	150 (l/capita·day)	-	50 (l/capita·day)	-

以上のことから、今後の農村地域での排水対策は、都市地域の下水道と同様にし尿と雑排水を同時に処理できる施設を建設することが最も得策と考えられている¹⁴⁾¹⁵⁾。だが、建設される施設は、有機物のみならずリンも十分に除去できるものでなければ、逆に環境を悪化させることがある¹⁰⁾。これはつぎのような理由による。

現在農村地域のし尿の多くを処理しているし尿処理施設は、し尿の排出地域外にあることが多く¹⁰⁾、さらに有機物とともにリンも高率に除去されている。しかし、現在の農業集落排水処理施設は、有機物のみの除去を主眼としたものがほとんどであり、リンの除去をも目的としたものはその約1割程度にすぎない¹⁶⁾。この根本的な原因は農村地域に適した有機物の除去方式は確立されているが、リンの除去については十分に満足すべき技術が存在しないためである。以下の2つの節でこれらのことについて詳述する。

2. 2 農村地域での有機物処理

(1) 農村地域での小規模分散型施設の有利性とその具備すべき条件

農村地域は Table 4 に示すように、人口規模はもちろんのこと、集落の形態や分布、住居密度、土地利用等が都市地域と大きく異なる。従って、都市地域向けの公共下水道に代表される大規模集中型の施設配置や、そこに導入されている処理方式

を、農村地域の処理施設にそのまま導入することは決して得策とは言えない。すなわち、農村地域では、住居のまとまりに応じて数集落以下ごとに小規模な施設を設置する、いわゆる小規模分散型施設の導入が望ましいと考えられる。この理由としてはつぎのようなものがあげられる。

Table 4 Difference in condition between urban and rural area

Item	Urban area	Rural area
Population	Numerous	Medium or few
Settlement form	Dense	Sparse
House density	High	Low
Settlement distribution	Big and concentrate	Small and disperse
Land-use	Mainly city space	Mainly agricultural, forestry, fishery space

- ①農村地域に施設を建設する場合、処理施設自体の建設費は規模の経済性により集中型のほうが安価となる。しかし、総事業費の約6割を占める管路施設¹⁷⁾については、分散方式では集落間の管路が不用になったり、中継ポンプ場などの付帯施設が少なくなるので安価となり、全体の建設費は分散方式の方が安価になる¹⁸⁾。
- ②分散型施設は規模が小さく必要経費が少ないために、その完成がはやい。そのため、供用の開始が速くなり、投資効果がすみやかに得られる。
- ③農業集落は、集落ごとにその地形や土地利用などが変化に富んでいる。そのため、それぞれの空間特性を生かした施設を設置できる。
- ④受益者の農地は集落の近くにあるので、処理水や汚泥の農業利用を行うためには小規模分散型のほうが対応し易い。
- ⑤農業集落は地縁的な関係が比較的強いので、数集落単位以内の計画のほうがまとまりやすい。
- ⑥処理施設を自らの集落内におくことで、集落自らの施設であるとの意識が強くなり、事業への理解、維持管理への協力、用地取得等が円滑に行われやすくなる。また、新しい集落コミュニティ形成の核とすることもできる。

このようなことから、Table 5 のように、わが国では農村地域の生活排水処理施設の建設について各省庁が様々な対応を行っているが、いずれも小規模分散型施設の設置が基本とされている。各事業の採択はその実施地区の人口規模や行政区域などによって決定されている。

Table 5 Projects of construction of domestic wastewater treatment plants in rural area by various Ministry in Japan

Wastewater treatment plants	Jurisdiction	Design population	Area
Rural sewerage treatment plants	Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries	Almost ≤ 1000	Agricultural promotion area
Community plants	Ministry of Health and Welfare	≥ 101 $< 30,000$	-
Gappei shori johkasou	Ministry of Health and Welfare	-	-
Specific environmental protection sewerage system	Ministry of Construction	Almost ≤ 1000 $\geq 10,000$	Except urbanization zone

しかし、小規模分散型施設にはこのような利点があるものの、そこに導入すべき処理方式には、大規模施設に対するものとは異なったつぎのような条件が具備されることが望まれる。これらは、有機物除去技術のみならず、第3章で詳述するリン除去技術にも望まれる条件である。

- ①小規模施設では、大規模施設のように各施設ごとに専門の管理者が常駐して維持管理作業を行うことは、コスト面、人材面から極めて難しい¹⁹⁾。例えば現在稼動している農業集落排水施設では、日常の点検は住民が行い²⁰⁾、月に2回程度の専門技術者の巡回管理体制のものが多い。したがって、構造が単純で故障が少なく、維持管理が容易であること。
- ②小規模施設では、処理場建設費と処理場必要用地に規模の経済性が大きく働く²¹⁾。そのため、施設の建設費が安いこと。
- ③維持管理費についても規模の経済性が働くので、特に安価な維持管理費で処理が行えること。
- ④施設設置場所は集落内や集落近くとなるため、悪臭や害虫などの二次公害が決し

て発生しないものであること。また、景観・美観にも十分に配慮がなされること。
 ⑤所定の処理水質を安定して得られる施設であること。特に、小規模処理施設の場合は都市部の下水道と比較して集水面積が小さく、管路延長が短い。そのため、住民の水使用実態が強く反映され、流入汚水の量・質の変動が大きくなる^{18) 23)}。従って、この流量変動に耐えられる技術であること。
 ⑥余剰汚泥などの処理に伴って生成される物質が、農地還元などによりリサイクルしやすいものであること。

(2) 有機物処理技術の概要とリン除去

一般に排水から有機物を除去するためには、微生物の代謝・分解作用を利用する、いわゆる生物処理が経済性の面から高く評価されてきた。特に、わが国の公共下水道やし尿処理施設では、その一種である活性汚泥法が広く採用されている。

活性汚泥法とは、汚水を流入させる槽をもうけ、そこに空気を吹き込んで（曝気して）強制的に汚水に酸素を溶解させて好気条件とし、水に浮遊して棲息する微生物（活性汚泥）の働きを利用して有機物を除去する方法である。このような環境のもとで、微生物は排水中の有機物を生命活動のためのエネルギー源として利用したり、微生物自身の生体を合成するために使用するので、有機物は排水から除去される。化学式を用いると Fig. 4 に示すように、好気条件のもとでの微生物による有機物の酸化分解（異化作用）はI式、生体の合成（同化作用）はII式で表される。

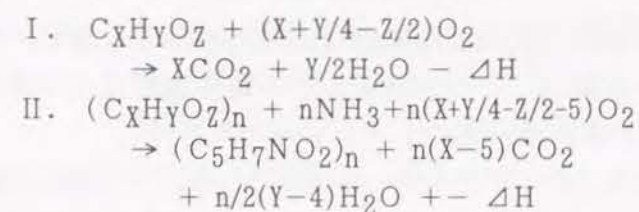


Fig. 4 Reaction of dissimilation and assimilation by heterotrophic bacteria²²⁾
 (ΔH indicates reaction energy)

活性汚泥法には様々な変法があるが、そのうち最も広く利用されているのは標準活性汚泥法である。Fig. 5 はその代表的なフローであり、活性汚泥法の装置を中心として、スクリーン、沈殿槽等の物理処理装置がその補助装置として組み合わされている。

流入した汚水は先ず、粗大浮遊物質を除去するためにスクリーニングや沈砂がなされ、さらに有機物の負荷を減らすために最初沈殿が行われる。その後、汚水は曝気槽に流入し、前述のようなメカニズムによって処理される。その後、浄化された

汚水は活性汚泥とともに最終沈殿槽に送られる。活性汚泥の比重は水に比較して大きいので、そこで静置されることによって、上澄水と汚泥に分離される。疫学的な危険性をなくすために上澄水はさらに消毒されて放流される。分離された汚泥の一部は系外に引き抜かれるが、残りの部分は再び曝気槽に返送され、そこでまた浄化に利用される。

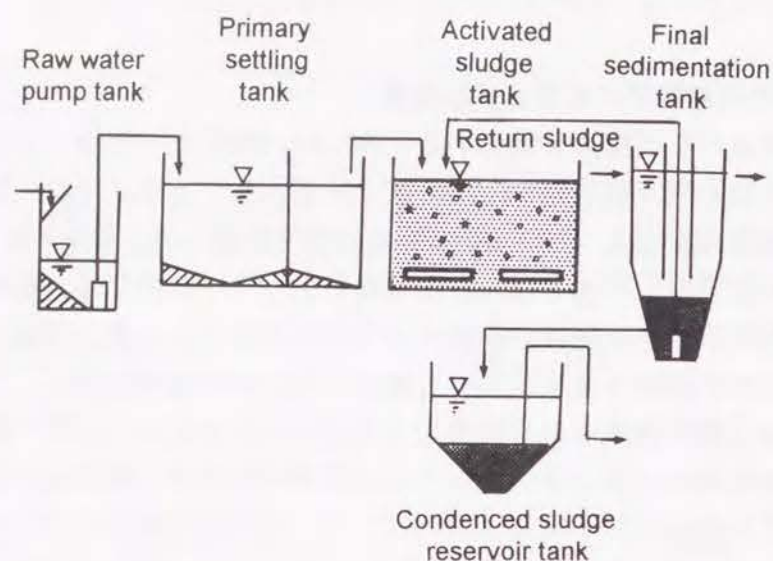


Fig. 5 Schematic figure of typical activated sludge process

以上のように、活性汚泥法による施設は完成度がかなり高く、その有機物除去の能力も優れている。しかし、このシステムを小規模施設に用いるのは困難であると考えられている。その理由はつぎのようなものである²³⁾。

- ①良好な処理を行うためには、処理槽内の活性汚泥濃度を適度に保つ必要がある。そのための最終沈殿槽からの返送量の調節が難しく、管理作業が煩雑になるので、専門の技術者の監視が望まれる。
- ②糸状性微生物が大量に発生するバルキングとよばれる現象が起こることがあり、このときには活性汚泥の沈降性が極めて悪くなる。このような時には汚泥と処理水の分離が困難になり、施設外に汚泥が流亡するといったトラブルに至ることがある。この現象についての十分な対策技術は未だ確立されておらず、実際には経験的な方法で対処されており、無人運転には不安がある。
- ③発生汚泥量が比較的多いので、その取り扱いに手数がかかったり維持管理費が高くなる。

このようなことから、現在では同じ生物処理ではあるが、接触曝気法と言う方法が小規模施設には適していると考えられている。この方法は、プラスチック等からできた様々な形状の接触ろ材が浸漬されている曝気槽内に汚水を流入させる。そして、Fig. 6 に示すようにその表面に自然発生的に棲息する付着微生物の膜の働きを利用して有機物を除去する。微生物の異化、同化作用を利用する点は活性汚泥法と全く同じである。

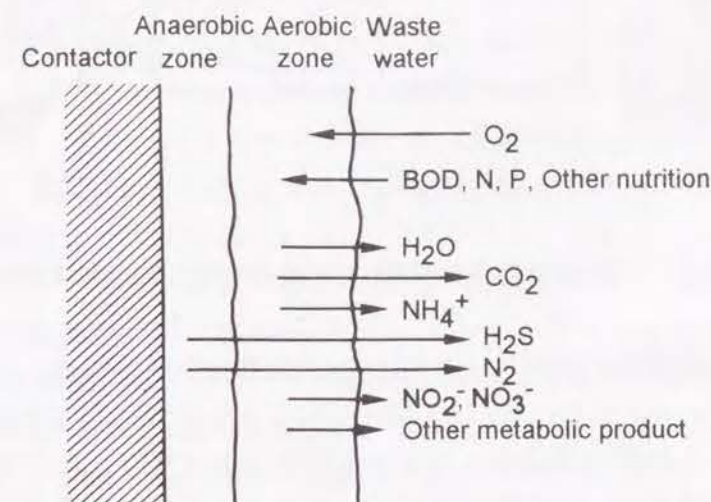


Fig. 6 Schematic figure of biofilm

この方法は、小規模施設への導入を考えると、以下のような点が活性汚泥法に比較して優れているといわれている²³⁾。

- ①微生物がろ材に着生しているため、汚泥返送（汚泥管理）など専門的知識を必要とする維持管理が少ない。
- ②バルキング現象を心配する必要がない。
- ③微生物がろ材表面に着生しているために、処理槽内での微生物の滞留時間（汚泥日令）が長くなり、多種の生物が棲息可能になる。すなわち、生物膜は活性汚泥に比較して安定した生態系が構成されやすく、流入汚水の負荷変動に強い安定した処理が期待できる²⁴⁾。
- ④汚泥日令が長いので、微生物の自己酸化が促進される。また、原生動物や後生動物が発生しやすい状況となり、食物連鎖が長くなり、汚泥の発生量が減少する。

この代表的なフローを Fig. 7 に示す。現在農業集落排水施設の80%程度が接触曝気法を採用している²⁵⁾。

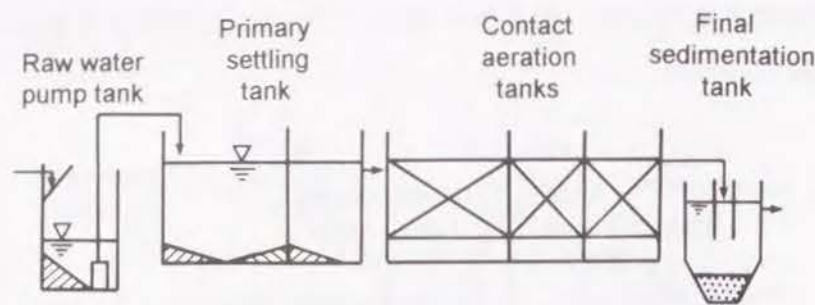


Fig. 7 Schematic figure of typical contact aeration process

接触曝気法で有機物の高率除去を行うための運転管理方法は、一応満足できる程度に確立されている。しかし、この方法のみでリンを安定して高率に除去することは困難であり、その除去率は高くても30%程度にとどまり、しかもその安定性は極めて低い。この理由は、接触曝気法では、微生物による同化作用の際に体内に取り込まれる量のリンしか除去が期待できず、同化に必要な量は生活排水中のリン全体量のごくわずかにすぎないためである²⁶⁾。

このようなことから、接触曝気法の施設でリン除去を達成するためには、一般にリン除去専用の装置や施設を付加する方法がとられる。しかし、次節で詳述するように、小規模排水施設への利用の観点からは、現在実用化されているリン除去方法はどれも決して満足できるものとはいえない。

2.3 リン除去技術の現状

この節では、農村地域ですでに導入されている、または導入が検討されているリン除去技術の原理、特徴および実績を整理する。

なお、近年注目を集めている生物脱リン法という技術は活性汚泥法の施設でなければその導入は困難である。しかし、近年の制御機器や自動制御技術の発展により、農村地域でも活性汚泥法の導入が積極的に検討され始めている²⁷⁾ので、ここではこの技術についてもふれることにする。

ところで、生活排水中のリンの形態は、オルトリン、ポリリン、有機リンなど多岐にわたる²⁸⁾が、前節で述べた活性汚泥や生物膜による処理がなされると、そのほとんどは速やかにオルトリン (PO_4^{3-}) に分解されることが知られている²⁹⁾。そのため、以下に述べるリン除去技術は PO_4^{3-} の除去が主眼となっている。

(1) 凝集沈殿法

凝集沈殿法は、リンと反応して難溶性の化合物を形成する化学薬品を添加し、生成した化合物を沈殿させて水中から分離することにより、リンを除去する方法である。このような薬品を凝集剤と呼び、これには硫酸バンド ($\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$)、塩化アルミニウム (AlCl_3)、ポリ塩化アルミニウム (PAC) などのアルミニウム塩や、硫酸第I鉄 (FeSO_4)、硫酸第II鉄 ($\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$)、塩化第I鉄 (FeCl_2)、塩化第II鉄 (FeCl_3) などの鉄塩が主として使用される。

凝集剤とリンの反応の概要は、アルミニウム塩の場合は Fig. 8 のI式によって示される³⁰⁾。この式に従うと、1mgのリン除去に必要なアルミニウムイオンの量は0.87mgとなる。しかし、アルミニウムイオンの一部は同図のII式の反応などにより水酸化物になるので、実際にはそれよりも多めの量が必要とされる。鉄塩についてもその反応機構はほぼ同じと考えられている。このようなことから、アルミニウム、鉄に関わらず十分なリン除去を達成するためには、汚水中のリンの量に対して2~4倍モルのイオン量の添加が必要と言われる³¹⁾。アルミニウムによるリンの除去率はA1:Pのモル比と密接な関係のあることが経験的に知られており、都市下水の例ではモル比2.3以上で除去率95%以上が得られると言われている³²⁾。また同様に、鉄イオンの添加モル比とリン除去率の関係も経験的に明らかにされている³⁰⁾。

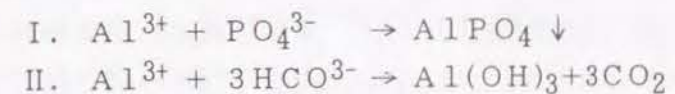


Fig. 8 Reaction equation of aluminium ion in water³⁰⁾

この方法を有機物処理と組み合わせるときには、その処理槽の後に凝集沈殿法専用の装置を設置するのが一般的である。Fig. 9 は一般的なフロー例である。難溶性物質を速やかにつくり、かつ処理水と分離しやすいフロックを形成させるために、2つの槽を用いて急速攪拌槽、緩速攪拌槽といった2段階の攪拌が行われる。

ところで、アルミニウムや鉄イオンは生物に対する毒性が低く、かつ凝集反応もほぼ中性域で進行する。そのため大規模処理施設では施設規模の拡大を防ぐために、凝集剤を活性汚泥槽に直接添加することがある³³⁾³⁴⁾。この方法はリン除去のほか、活性汚泥の沈降性を高めたり、バルキングを防ぐ効果もある³³⁾。有機物除去能力が向上するともいわれ³⁴⁾³⁵⁾、懸濁性有機物だけでなく溶解性物質も除去されるとも言われる³⁴⁾。

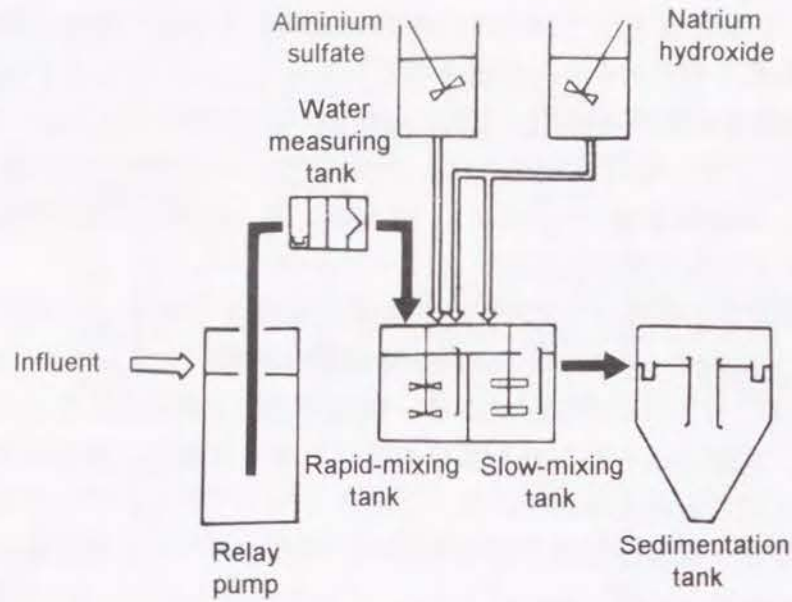


Fig. 9 Schematic figure of chemical precipitation process

凝集沈殿法の長所はつぎのようなものである。

- ①この方法の原理は純粋な化学反応であるので、リン除去の確実性が高い³⁶⁾。混和槽、急速・緩速攪拌槽、沈殿槽を設ければ、さらに確実に除去を行うことができる。活性汚泥槽に直接添加する方法についても、検討の余地は残されているものの、安定性は高い。
- ②リン除去効果に対して水温変化の影響が小さい³⁷⁾。

このように凝集沈殿法は技術確立度が高く、リンの除去率も高いために実績数は多く、大規模・小規模施設に関わらず、リン除去を行っているところでは、そのほとんどがこの方法を採用している³⁸⁾。

(2) 晶析脱リン法

汚水に石灰を添加し、リンを $[Ca_5(OH)(PO_4)_3]$ (カルシウムヒドロオキシアパタイト、以下アパタイト) として種晶の表面に晶析させてリンを除去する方法である。

この原理を図示したものが Fig. 10 である³⁹⁾。アパタイトの溶解度は小さいので、汚水にカルシウムイオンを供給すると析出反応がおこる。しかし、pHが8~10程度のときにはその速度は極めて遅く、実際には過飽和のまま安定した状態となる。この状態を示したのが図中の(A)である。そこで、この状態のうちでも過飽和度の高い(B)の状態とし、その中に結晶の核となる物質を添加すると、その表面にアパタイト

が速やかに析出してリンが除去される⁴⁰⁾。この変化後の状態が(C)である。種晶としては、ヒドロオキシアパタイトを主成分とするリン鉱石や骨炭が一般によく用いられる。この方法のフロー例を Fig. 11 に示す。

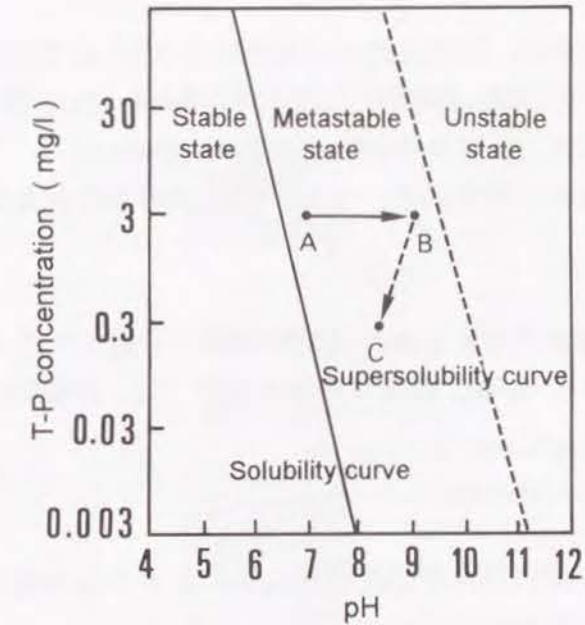


Fig. 10 Relations among condition of calcium hydroxyapatite and pH and phosphorus concentration³⁹⁾

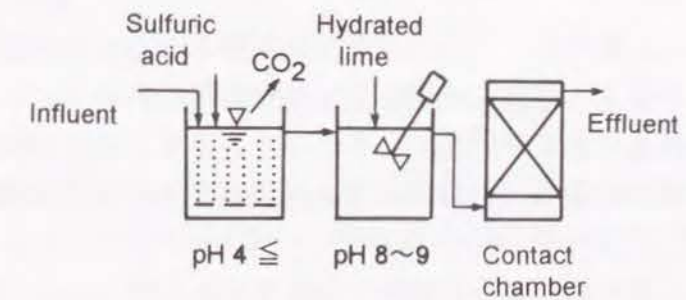


Fig. 11 Schematic figure of crystallization dephosphorization system

リン除去には、pHが8.5~9.0でカルシウム濃度40~70mg/ℓが望ましい条件といわれる⁴⁰⁾。生活排水はCa²⁺を30mg/ℓ程度含んでいるので、新たに添加するCa²⁺は40~50mg/ℓでよい⁴¹⁾。カルシウムイオンと水酸イオンの添加は、CaCl₂とNaOHなどで行う方法もあるが、消石灰を主として用いるのが最も経済的である⁴²⁾。

晶析脱リン法の長所としては、つぎのようなものがあげられる³⁸⁾。

- ①第3章で詳しく述べるが、凝集沈殿法で発生するリン-金属化合物の汚泥はその処分が難しいのが問題であるが、晶析脱リン法ではこのような汚泥が発生しない。
- ②原理が純粋な化学反応なので、リン除去の確実性が高い。
- ③析出したリンの回収が可能である。また、種晶は再生を行えば半永久的に使用が可能である。

この方法の大規模施設に対する適用は試験運転の段階であるが、公共下水道で設置される予定がある⁴³⁾。また、農業集落排水施設では、試験的にいくつかの導入実績がある⁴⁴⁾。

(3) 土壌トレンチ法

土壌に汚水を浸透させ、土壌に含まれるアルミニウムや鉄の吸着作用を利用してリン除去を行うものである。

この吸着作用は、粘土鉱物の末端や腐植分子、アロフェンなどの表面にあるAl-OHやFe-OHにリン酸が配位子として強く結合する、いわゆる特異吸着と考えられている⁴⁵⁾。一般に土壌のリン吸着能力は土壌100gが吸着しうるP₂O₅のmg数で表されるが、黒ボク土壌はアロフェンと腐植を多量に含むために特に大きく2,000以上もあり⁴⁶⁾、この方法に適した土壌の一つである。

土壌トレンチの実例を Fig. 12 に示す⁴⁷⁾。この方法の長所としては、つぎのようなものがあげられる。

- ①凝集沈殿法で発生するような処分に困難な汚泥の発生がない。
- ②高いリン除去率を得ることができる。
- ③通常は維持管理が特に必要なく、さらに薬品も使用しないので維持管理費がほとんどかからない。
- ④土壌にはろ過作用と微生物による有機物分解作用がある⁴⁸⁾ので、リンのみならずBOD, SSに対しても高い除去性能が期待できる。

この方法は大規模施設にはあまり使われておらず⁴⁹⁾小規模施設に導入されている例がほとんどである。農業集落排水施設にはいくつかの実施例があるが、全体から見ればごく少数である⁴⁴⁾。

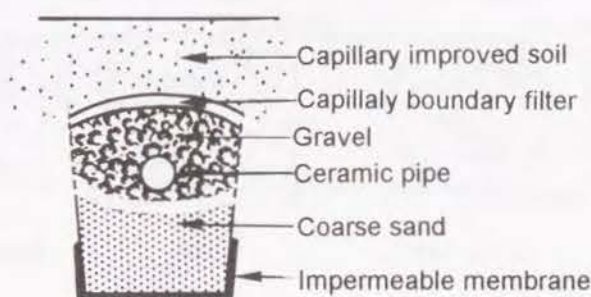
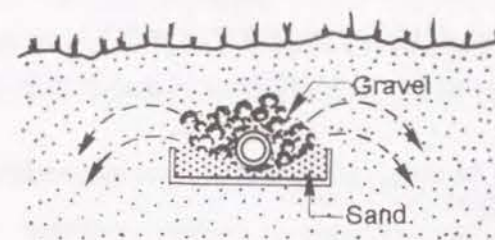


Fig. 12 Schematic figure of soil trench wastewater treatment system⁴⁷⁾

(4) 生物脱リン法

有機物処理槽内に存在する微生物のうちのいくつかの種は、通常の微生物が含有する量以上のリンを体内に貯蔵する。生物脱リン法は、このような種の微生物を処理槽内で優先的に増殖させることにより、リン除去を高率化しようとする方法である。一般の活性汚泥中に含まれるリンの含有量は1.5~2.0%P/MLSSであるが、この微生物を増殖させた汚泥では3.0~4.5%P/MLSSの報告が多く、6%以上になるときもある⁵⁰⁾。

他の微生物と異なり、リンを過剰に摂取する微生物は、溶存酸素のみならず硝酸・亜硝酸も存在しない完全嫌気状態のもとで有機物を含んだ汚水と接触すると、有機物を取り込むと同時にリンを放出する。そしてまた再び好気条件下におくとリンを体内にとりこむという性質がある。従って、この微生物を優先的に増殖させるためには、処理槽内で完全嫌気状態と好気状態が繰り返されるような施設をつくる必要がある。

これらの菌の代謝経路の詳細は十分に明らかとなっていないが、現在最も妥当と考えられている代謝経路の概要を Fig. 13 に示す^{5.1)}。これらの菌は、完全嫌気条件下のもとで溶液中の有機物をPHB（ポリ-β-ヒドロキシ酪酸）、グリコーゲン等の形で細胞内有機物として貯蔵することにより除去する。この過程で Poly-P → PO₄³⁻ の反応を触媒する Poly-Pホスファターゼが活性化され、結果としてPO₄³⁻ の放出が起こる。好気条件下ではこれらの貯蔵物質は酸化され、PO₄³⁻ が外界から摂取されるとともに微生物体内に Poly-P として蓄積される。また、同時にATP（アデノシン三リン酸）が Poly-P から合成（この過程で (PO₄³⁻)_n + ADP → (PO₄³⁻)_{n-1} + ATP の反応の触媒であるPoly-Pキナーゼが活性化される）される^{5.2)}。

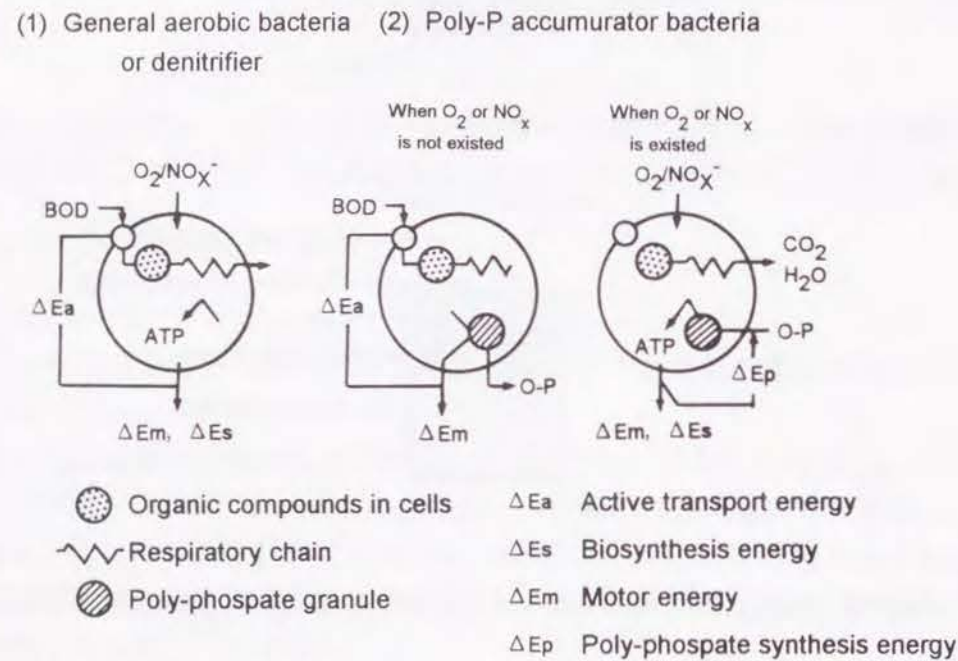


Fig. 13 Comparison of biochemical metabolic systems of organisms which have ability to store P as poly-phosphate and that which doesn't have the ability^{5.1)}

汚水からのリンの除去は、処理システムからリンを分離してはじめて除去が完結したといえる。そのため、この生物脱リン法による施設では、一旦微生物に摂取させた汚泥中のリンを最終的にどのような形で分離するかも極めて重要であり、この方法は2通りに区分される。第1の方法は、リンを微生物体内に摂取させた状態のまま余剰汚泥として系外に取り出す方法である。この方法の施設の代表的なフローは Fig. 14 のようなものである。第2の方法は、別に溶離槽とよばれる槽を設け、過剰摂取させたリンを嫌気条件のもとで放出させ、そこで生じたリン濃縮液に凝集剤を添加し、化学的にリンを沈殿分離させて除去する方法である^{5.2)}。その代表的なフローは Fig. 15 に示すようなものである。

生物脱リン法の長所としては、次のようなものがあげられる。

- ①特別な薬品などを使用しないのでよい、または凝集剤を添加したとしても、その必要量や汚泥発生量は一般の凝集沈殿法に比較して少ないので、維持管理費用が安価である^{4.0)}。
- ②活性汚泥法の既設の処理施設では、その一部を改良するだけでこの方法を利用することができる。

都市の大規模下水道では、生物脱リン法は凝集沈殿法について採用されている数が多いが、小規模施設で実用されている例はまだない^{5.3)}。

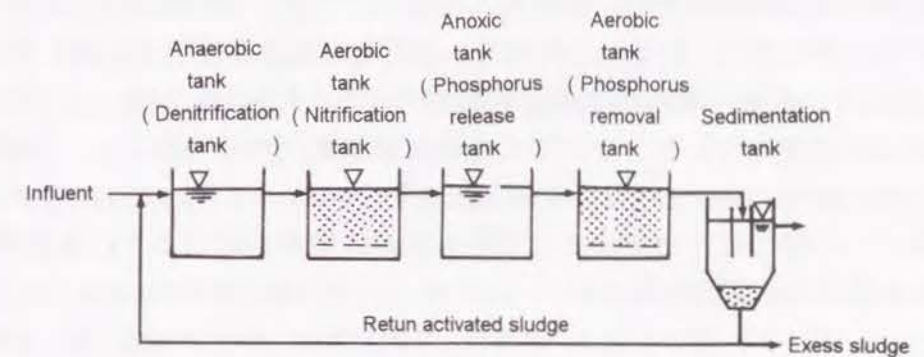


Fig. 14 Schematic figure of typical biological phosphorus removal system

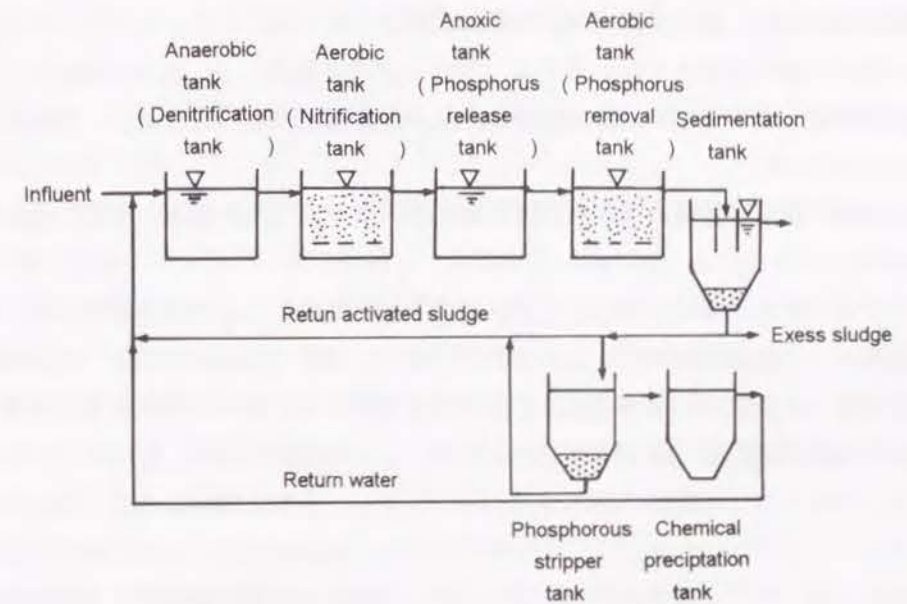


Fig. 15 Schematic figure of typical biological phosphorus removal system (Pho Stip process)

(5) その他の方法

リン酸イオンに対して選択性のあるイオン交換体及び吸着剤を用いて汚水中のリンを除去する方法がある⁵⁴⁾。使われる物質としてはジルコニア⁵⁵⁾、クリノプチライト⁵⁶⁾、活性アルミナ⁵⁶⁾などである。この方法の長所としては、つぎのようなものがあげられる。

- ①凝集沈殿法にみられるような汚泥の発生がない。
- ②原理が純粋な化学反応であるので、リン除去の確実性が高い。

植物を利用した方法もある。使われる植物としては、ホテイアオイ、タイパックス、オランダガラシ、セリなどがある。最近では花卉を栽培する例もみられる⁵⁷⁾⁵⁸⁾。花卉以外の植物は肥料や食用に使用されることもある。

人工的なため池をつくり、そこで人為的に富栄養化現象を起こし、その藻類を魚のテラピア、鯉等に補食させている例もある⁵⁹⁾。

しかし、この節で述べた方法はいずれも試験段階のものであり、農業集落排水事業として実施された例はまだない。

引用文献

- 1) 西口 猛：農村の水質保全対策の思想，農土誌，59(7)，pp. 39-44(1991)
- 2) 農業土木学会編：農村計画学，pp. 80-83(1992)
- 3) 小林俊昭：農業集落排水の処理対策，用水と排水，29(1)，pp. 16-20(1987)
- 4) 國松孝男他：農村地域における生活排水処理の変遷と「農村下水道」，環境技術，13(3)，pp. 42-49(1984)
- 5) 楠本正康：排水技術等の進歩に関する史的考(3)，用水と廃水，27(7)，pp. 9-17(1985)
- 6) 松井大悟：下水道事業の現状と課題，環境技術，22(1)，pp. 56-60(1993)
- 7) 須藤隆一：小規模排水対策—生活排水の特徴—，用水と廃水，33(10)，pp. 66-67(1991)
- 8) 八巻克男：土壌式接触曝気法による集落排水処理—福島県梁川町粟野地区の事例—，農土学会誌，52(3)，pp. 43-52(1984)
- 9) 松重一夫他：生活雑排水の汚濁成分および原単位，用水と廃水，32(5)，pp. 12-16(1990)
- 10) 稲森悠平他：生活・産業系排水対策の現状と窒素・リン削減をめざした高度処理技術の動向，公害と対策，27(9)，pp. 15-23(1991)
- 11) 神谷耕雄：農業集落排水事業における生活排水対策への新たな取り組み，用水と廃水，34(1)，pp. 17-22(1992)

- 12) 安藤 茂：合併処理浄化槽，コミュニティ・プラント等による快適な生活環境づくり，用水と廃水，34(1)，pp. 12-16(1992)
- 13) 梅川 治：農村地域の水質保全を担う農業集落排水事業，水と土，83，pp. 37-43(1990)
- 14) 須藤隆一：小規模排水対策—生活雑排水の処理施設(その1)—，用水と廃水，34(6)，pp. 58-59(1992)
- 15) 須藤隆一：小規模排水対策—生活雑排水の処理施設(その2)—，用水と廃水，34(7)，pp. 60-61(1992)
- 16) 農林水産省構造改善局事業計画課他：平成3年度 農業集落排水整備検討調査報告書—採択済処理区の概要—，p. 19(1992)
- 17) 上記16)，p. 14
- 18) 谷山重孝他：農業集落排水施設の処理性能と整備方式の検討，農土誌，57(5)，pp. 65-74(1989)
- 19) 中曾根英雄：農村の環境保全に果たす農業集落排水処理の役割，農土誌，52(3)，pp. 2-4(1984)
- 20) 有田博之：農業集落排水処理施設の管理と維持管理体制，農土誌，57(9)，pp. 51-57(1989)
- 21) 西口 猛：集落排水処理計画の樹て方，農土誌，52(3)，pp. 16-20(1984)
- 22) 須藤隆一編：環境浄化のための微生物学，講談社，p. 111(1983)
- 23) 西口 猛：農業集落排水処理の考え方，環境技術，13(3)，pp. 32-36(1984)
- 24) 上記22)，p. 122
- 25) 堀畑正純：集落排水整備検討調査結果について(集落排水整備計画調査全国集計結果)，季刊集落排水，16，pp. 2-8(1988)
- 26) 橋本邦彦：接触ばっ気法における生物膜の成長と処理水質の変化，水処理技術，29(7)，pp. 7-14(1988)
- 27) 柚山義人：パソコン通信を利用した集排施設の遠隔監視システム，農土誌，60(10)，pp. 25-30(1992)
- 28) 渡辺義公：凝集法によるリン除去技術，水質汚濁研究，11(10)，pp. 7-12(1988)
- 29) 田中 稔：窒素・リン除去技術の問題点，産業公害，19(10)，pp. 45-49(1983)
- 30) 松本利道：3次処理としての脱リン，用水と廃水，20(1)，pp. 63-69(1978)
- 31) 小川雄比古：し尿の脱リン，用水と廃水，22(8)，pp. 96-107(1980)
- 32) 京才俊則：リンの除去，用水排水ハンドブック(2)，産業用水調査会，pp. 827-832(1981)
- 33) 吉田亮他：曝気槽への凝集剤添加による処理水向上試験—第一報 基礎試験—，用水と廃水，17(1)，pp. 51-56(1975)
- 34) 橋本奨他編著：新しい活性汚泥法，産業用水調査会，pp. 192-217(1986)
- 35) 酒井憲司他：凝集剤添加活性汚泥法によるリン除去，用水と廃水，22(8)，pp. 63-68(1980)
- 36) 中曾根英雄：汚水からの窒素・リン除去技術の概要，農土誌，56(3)，pp. 25-29(1988)
- 37) 高橋 強：集落排水に適用できる窒素・リン除去技術，農土誌，56(3)，pp. 31-36(1988)

- 3 8) 浦野紘平他：排水中のリン除去技術の特徴と経済性，用水と廃水，29(5)，pp. 3-12 (1987)
- 3 9) 砂川広志：晶析法によるリン除去技術，水質汚濁研究，11(10)，pp. 13-18(1988)
- 4 0) 野池達也：脱リン技術の現状と課題，水質汚濁研究，7(10)，2-7(1984)
- 4 1) 岡田和男他：接触脱リン法による下水中のリン除去に関する研究，下水道協会誌，18(204)，pp. 12-21(1981)
- 4 2) 岡田和男他：接触脱リン法による下水中のリン除去に関する研究，下水道協会誌，18(205)，pp. 11-19(1981)
- 4 3) 京才俊則他：高度処理の新展開，下水道協会誌，27(318)，pp. 28-36(1990)
- 4 4) (社)日本農業集落排水協会：農業集落排水便覧(1991)
- 4 5) 國松孝男：土壌による排水処理の実際と展望，公害と対策，21(14)，pp. 13-33(1985)
- 4 6) 増島 博：集落排水における窒素・リン除去と農村環境，農土誌，56(3)，pp. 19-23 (1988)
- 4 7) 木村正二郎：土壌浄化法による汚水処理の現状，公害と対策，17(7)，pp. 56-64(1981)
- 4 8) 有水 彊：汚水処理の基本的な考え方—微生物を中心として—，農土誌，48(11)，pp. 51-10(1980)
- 4 9) 稲森悠平他：土壌トレンチ法による生活系及び産業系排水の処理，産業公害，24(8)，pp. 25-34(1988)
- 5 0) 津野 洋：生物学的リン除去法の基礎的操作因子，水質汚濁研究，7(10)，pp. 8-12(1984)
- 5 1) 上記2 2)，p. 133
- 5 2) G. V. R. Maris et al. : Reviews: Observations Supporting Phosphorus Removal by Biological Excess Uptake, *Proc. IAWPRC Post-Conference Seminar on Phosphate Removal in Biological Treatment Process*, (1982)
- 5 3) 宗宮 功：生物学的リン除去法について，用水と廃水，30(1)，p. 5(1988)
- 5 4) 浦野紘平：吸着法によるリン除去技術，水質汚濁研究，11(10)，pp. 19-23(1988)
- 5 5) 村山勝男：排水中のリン除去とリサイクリング，資源環境対策，28(12)，pp. 7-15 (1992)
- 5 6) 田口洋治：カルシウム塩共存下での活性アルミナによるオルトリン酸の吸着除去，水質汚濁研究，12(10)，pp. 40-47(1989)
- 5 7) 宗宮 功他：下水二次処理水による花き植物の水耕栽培に関する研究，下水道協会論文集，27(316)，pp. 45-52(1990)
- 5 8) 津野 洋他：花き植物の水耕栽培による下水二次処理水からのリン及び窒素の除去に関する研究，下水道協会論文集，27(316)，pp. 53-60(1990)
- 5 9) 吉田 勲：集落排水から水環境を考える，農土誌，56(3)，pp. 2-4(1988)

第3章 農村地域でのリン除去技術の問題点

前章では，様々なリン除去技術の概要をまとめた。しかし，実際にそれらが導入されている例は極めて少なく，現在では公共下水道でさえも全供用人口の7%以下分の生活排水が処理されているにすぎない¹⁾。農村地域の小規模生活排水処理施設についての正確な値は明らかでないが，さらに低い値であることが予想できる。

このように，生活排水からのリン除去の実施率が低い直接的な原因は，それに対する法規制がまだ十分になされていないためである。現在，生活排水の処理水リン濃度について規制が行われているのは，滋賀県，茨城県をはじめとする数県のみである²⁾。しかも，この規制は大規模施設を中心としたものであり³⁾，小規模施設はほとんど対象になっていない。このような規制状況となっている理由は，現在のリン除去技術が，広く使用できる技術にまで確立されていないためである⁴⁾。したがって，小規模施設に適したリン除去技術の開発は必須かつ急務であるといえる。

この章では第2章で述べた脱リン技術の問題点を整理し，現在農村地域で望まれているリン除去技術像を明らかにし，この研究で開発すべき技術の課題を明確化する。

3. 1 現状のリン除去技術の問題点

(1) 凝集沈殿法について

この方法は現在最も広く使われている方法であるが，つぎのような多くの問題点がある。

①凝集剤の添加装置，急速・緩速攪拌装置や混和槽などを設けることにより，施設建設費が高くなる⁵⁾。

②凝集剤の補給や各装置の点検・維持管理が必要となり手間がかかる。また，そのための維持管理費用が必要となる。

③凝集剤の値段が高い。特に，PACは広いpH範囲で凝集作用を有する凝集剤と考えられてよく用いられるが，特に高価である⁶⁾。

④余剰汚泥の発生量が増加し，その処分費が高くなることがある。汚泥の脱水性が悪く，その扱いが困難になる場合⁵⁾もある。したがって，汚泥の脱水，コンポスト化にあたっては凝集沈殿槽の汚泥は別途処理するか，高分子凝集剤の添加等の工夫が必要になることがある⁷⁾。また，アルミ塩類の薬品による凝集沈殿処理を行った汚泥の農地還元は土壌への悪影響を及ぼす⁸⁾。

⑤凝集剤を添加すると水中のアルカリ度が消費されて⁹⁾ pHが低下し，放流水質が不適切になったり，有機物処理槽に直接添加するときには硝化の進行が阻害されるときがある。そのため，アルカリ剤(中和剤)の添加が必要になることがある⁹⁾。特に，小規模排水は流入水質の時間的な変動があるので，流入水中の汚濁物質濃度が薄い時間帯にはpHが低下する可能性が高くなる¹⁰⁾。従って，農業集落排水施設で

は安全のために中和用の設備を設置することが多く、コスト上昇をまねいている。

⑥金属塩を用いた場合の処理水中には、硫酸イオンや塩素イオン等の溶解成分が付加され、処理水中の溶存イオン量が増加する¹¹⁾。そのために、処理水の再利用の範囲が制限されることがある。

(2) 晶析脱リン法について

この方法については以下のような問題点が指摘できる。

①薬品添加装置、脱リン反応槽といった付加施設が必要であり、建設費が割高となったり維持管理が煩雑になる。

②薬品を使用するので維持管理費が高くなる。

③リン除去の確実性、安定性を高めるためには砂ろ過や脱炭酸のための装置が必要となる。そのため、建設費がさらに割高となったり、維持管理費も増大する。また、施設が複雑化するので、維持管理に高度な専門知識が要求されるようになる。

炭酸イオンの除去が求められるのは、炭酸があると、アパタイトと炭酸カルシウムの生成反応が競合したり、炭酸カルシウムが種晶表面に析出してその活性表面を減少させ、ヒドロオキシアパタイトの晶析速度を低下させる^{12) 13)}ためである。脱炭酸は通常硫酸を添加してpHを4.5程度まで低下させた後、空気を吹き込んで遊離炭酸を大気中に放散させるという方法がとられ、その後中和工程も必要である¹⁴⁾。

砂ろ過を行うのは、流入水中のSSを種晶が捕獲して¹⁵⁾目詰まりを起こすことがあるためである。

④処理の継続につれて、種晶の細孔部はアパタイトにより塞がってくるので、その有効表面積は減少する。従って、適宜それを引き抜いて再生や再充填を行わなければならない¹⁶⁾。そのための維持管理は煩雑であり、費用も必要になる。

(3) 土壌トレンチ法について

この方法についてはつぎのような点が指摘できる。

①他の方法に比較して広い用地面積が必要となる。

②土壌のリン吸着能力は有限である。汚水のリン除去に有効なリン酸イオンの飽和点はリン酸吸収係数の15%以下と考えられており、リン酸吸着力の弱い土壌はすぐに飽和に達してしまう。そのため、アルミニウム塩や鉄塩を土壌に加えてリン酸吸着能力を増強するというも行われている¹⁷⁾。しかし、これによってもリン吸着能力を無限にすることはできない。

また、土壌中には水みちがでしやすいので、トレンチ付近の全ての土壌が有効にはたらくわけではない¹⁸⁾。そのため、リンの除去効率は除々に低下する。大きく低下したときには、土壌を入れ換える必要が生じ、多大な手数がかかる。

③土壌が目詰まりを起こす場合があり、そのときの対応が困難である¹⁹⁾。

④処理した水は、集水せずに地下に自然浸透させることも多いが、このときには硝酸イオンによる地下水汚染の心配がある^{19) 20)}。

(4) 生物脱リン法

この方法についてはつぎのような点が指摘できる。

①維持管理に高度な専門知識が必要⁷⁾である。

②負荷変動に対する処理性能の安定性が乏しい⁷⁾。この方法でリン除去を良好に行うためには、適切な嫌気・好気条件が繰り返される必要がある。しかし、流入水質や水量が変動するときは良好な条件を安定して達成することが極めて困難になる。

③リンを多量に含んだ汚泥の処理方法は、管理者の常駐体制が前提とされている場合については一応は確立されているといえる。しかし、無人運転の場合については全く確立されていない⁵⁾。

④この方法では活性汚泥法を用いることが前提となる。しかし、前述のように活性汚泥法による施設の無人運転にはまだ不安が多い。

さらに、脱リン微生物が十分に同定されておらず、未だそれらの生理特性や成長特性が明確に把握されていない²¹⁾ということも不安材料である。

以上のことから、生物脱リン法は極めて有望なリン除去技術であるが、今後の十分な研究が期待される技術であると言うことができよう。

(5) その他の方法について

イオン吸着・交換法には次のようなことが指摘されている。

①すでに開発されているイオン交換樹脂や吸着剤は、リン酸イオンに対する選択性及び交換容量や吸着容量が小さい。そのため、それらはリン濃度が薄い少量の水を処理するには適しているが、比較的リン濃度が高い多量の水を扱う下水処理にはあまり適しておらず、経済的な面から実用は困難である²²⁾。

②付加施設が必要なため建設コストが高くなる。また、樹脂の交換や再生といった維持管理も必要になり、コストも高くなる。

植物や魚類などを使う方法は、その除去の安定性に不安があり、一般に除去率も低い。また、それだけで十分な処理を行おうとすれば、極めて広大な面積が必要になる。

3. 2 望まれるリン除去技術の具備すべき条件

前節の検討結果から、現在望まれているリン除去技術の具備すべき条件は次のようなものであることがわかる。これらは、第2章で述べた小規模分散型施設に適用すべき有機物処理方式の具備すべき条件と大略は同様であるが、農村地域に適用するリン除去技術ということを考えて具体的な表現を行っている。

- ①維持管理が簡便で、高度な専門知識を必要としないものであること。特に、凝集沈殿法や土壌トレンチ法に必要とされるくらいのレベルの知識でよいこと。維持管理が自動制御などによってほとんど不要であるのが最も望ましい。
- ②高率のリン除去が安定して達成できること。具体的には、T-P濃度1mg/ℓ以下の放流水質が達成でき、必要であればそれ以上の水質も得ることができること。T-P濃度1mg/ℓ以下は現在条例で設定されている小規模生活排水の放流基準値のうち最も厳しい値である²⁾。また、技術開発の目標値としても広く使われている^{2,3)}。
- ③施設の構造が簡単で故障等のトラブルが発生しにくいこと。
- ④施設面積が小さいこと。別槽の設置は望ましくなく、接触曝気槽をうまく利用したものであること。
- ⑤イニシャル・ランニングコストが安価であること。
- ⑥処理によって汚泥などの副生成物が生成するときには、その扱いに特別な考慮が必要ないこと。また、除去されたリンや生成物に含まれるその他の物質のリサイクル利用、特に農業利用が可能であること。

引用文献

- 1) 真下和彦：特定水域高度処理基本計画について，下水道協会誌，29(338)，pp. 14-19 (1992)
- 2) 稲森悠平他：生活・産業系排水対策の現状と窒素・リン削減をめざした高度処理技術の動向，公害と対策，27(9)，pp. 15-23(1991)
- 3) 石川和秀：琵琶湖周辺下水道計画，下水道協会誌，18(202)，pp. 55-63(1981)
- 4) 合田 健：公共用水域の水質管理，下水道協会誌，27(318)，pp. 2-5(1990)
- 5) 中曽根英雄：汚水からの窒素・リン除去技術の概要，農土誌，56(3)，pp. 25-29(1988)
- 6) 赤松 勲：種々の凝集剤による排水中のリン酸イオンの凝集作用，用水排水ハンドブック(3)，産業用水調査会，pp. 522-528(1979)
- 7) 高橋 強：集落排水に適用できる窒素・リン除去技術，農土誌，56(3)，pp. 31-36(1988)
- 8) 太田信介：農業集落排水事業の現状と将来展望，農土誌，56(3)，pp. 5-10(1988)
- 9) 橋本 奨他編著：新しい活性汚泥法，産業用水調査会，pp. 192-217(1986)

- 10) 三羽宏明他：曝気槽への凝集剤添加による処理水向上実験—第三報 硫酸バンド添加連続実験—，用水と廃水，18(6)，pp. 5-15(1976)
- 11) 京才俊則：リンの除去，用水排水ハンドブック(2)，産業用水調査会，pp. 827-832(1981)
- 12) 野池達也：脱リン技術の現状と課題，水質汚濁研究，17(10)，2-7(1984)
- 13) 山本泰寛他：晶析脱リン実証プラントによる下水処理水のリン除去，用水と廃水，26(3)，pp. 3-9(1984)
- 14) 岡田和男他：接触脱リン法による下水中のリン除去に関する研究，下水道協会誌，18(205)，pp. 11-19(1981)
- 15) 岡田和男他：接触脱リン法による下水中のリン除去に関する研究，下水道協会誌，18(204)，pp. 12-21(1981)
- 16) 浅田日出夫：下水2次処理の骨炭による接触脱リン法，用水と廃水，22(8)，pp. 69-76(1980)
- 17) 増島 博：集落排水における窒素・リン除去と農村環境，農土誌，56(3)，pp. 19-23(1988)
- 18) 松井三郎他：農業集落排水処理の課題と将来，環境技術，13(3)，pp. 61-69(1985)
- 19) 稲森悠平他：土壌トレンチ法による生活系及び産業排水の処理，産業公害，24(8)，pp. 25-34(1988)
- 20) 寺島 泰：生活系排水処理の現状と技術の動向，環境技術，10(16)，pp. 29-37(1987)
- 21) 深瀬哲朗：生物的リン除去法の機構に関する基礎検討，水質汚濁研究，5(6)，pp. 309-317(1982)
- 22) 浦野紘平：吸着法によるリン除去技術，11(10)，pp. 19-23(1988)
- 23) 武藤暢夫：生活排水対策へのバイオテクノロジー活用の期待と課題，用水と廃水，29(1)，pp. 21-26(1987)

第2編 鉄ろ材接触曝気方式によるリン除去

第1章 鉄ろ材接触曝気方式の原理と課題

1. 1 はじめに

第1編では、わが国の農村地域において生活排水からのリン除去が重要かつ急務であること、しかし、すでに実用化されているリン除去技術には様々な問題があり、その対策状況が極めて不十分であること、従って、新しいリン除去技術の開発が望まれているという、この研究の背景をまとめた。またそれをふまえて、現在望まれている技術の具体像を明らかにした。

本編ではこのような期待に応えるために、新しい技術として「鉄ろ材接触曝気方式」を考案し、その実用化のための基礎実験を行った結果を報告する。

まず、本章では「鉄ろ材接触曝気方式」を提案し、そのリン除去の原理を説明する。また、化学平衡論の視点からその理論的妥当性を検討した上で、この研究で解明すべき課題を明確化する。

1. 2 鉄ろ材接触曝気方式の考案

「鉄ろ材接触曝気方式」は、通常の接触曝気法に鉄製のろ材（以下、鉄ろ材）を使うというだけの極めて簡単な方式で、通常の接触曝気法と同様なメカニズムで有機物を除去し、さらにリン除去を高率に行おうとするものである。

そのリン除去のメカニズムは次のようなものである¹⁾。Figs.1, 2 に示すように、接触曝気槽（以下、曝気槽）内に浸漬された鉄ろ材では腐食が徐々に進行する。腐食現象とは、金属材料から水中に金属イオンが供給される現象とも言える²⁾ので、水中では鉄イオンとリンの共存状態ができ、それらは結合して難溶性の化合物になる。この生成物は曝気槽や沈殿槽で通常の生物汚泥とともに沈殿する。これらの沈殿物を系外に搬出することによってリン除去は完了する。

接触曝気法のろ材として、鉄以外の金属のろ材を使用しても、類似したメカニズムによりリン除去が行われる可能性はある。しかし、この研究では特にそれについての検討は行わなかった。その第1の理由はつぎのようなものである。この研究で開発すべき方式は、リンを除去すると同時に、同じ槽内で微生物による有機物除去を進行させる必要がある。そのため、微生物に対する毒性の低い金属を使用することが必須条件となるが、微生物毒性の低い金属は鉄とアルミニウムに限られる³⁾ためである。第2には、金属材料の中で鉄材はその値段が最も安価であるためである。

なお、鉄ろ材としては一般構造物用圧延鋼板の使用を前提として研究を行うこととした。この理由も、この鋼材が最も入手しやすく、かつ安価であるためである。

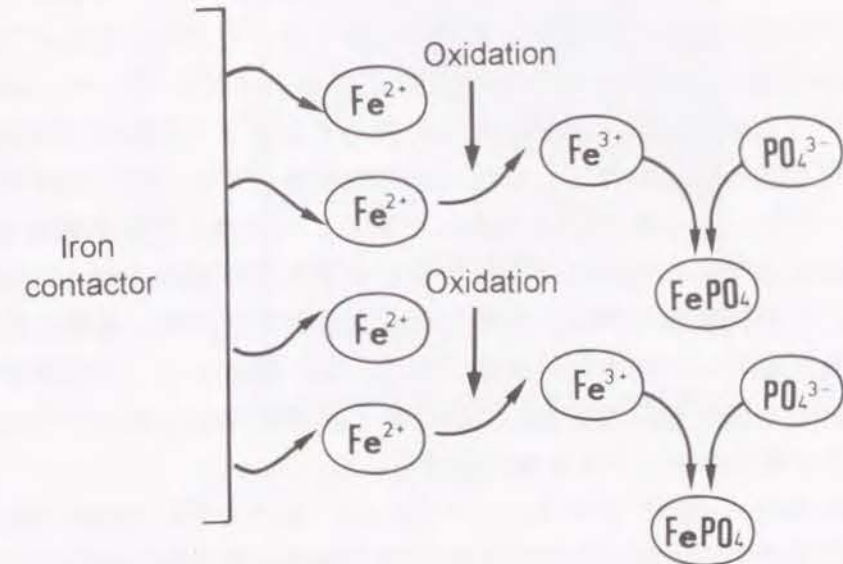


Fig. 1 Mechanism of aerating submerged iron contactor process

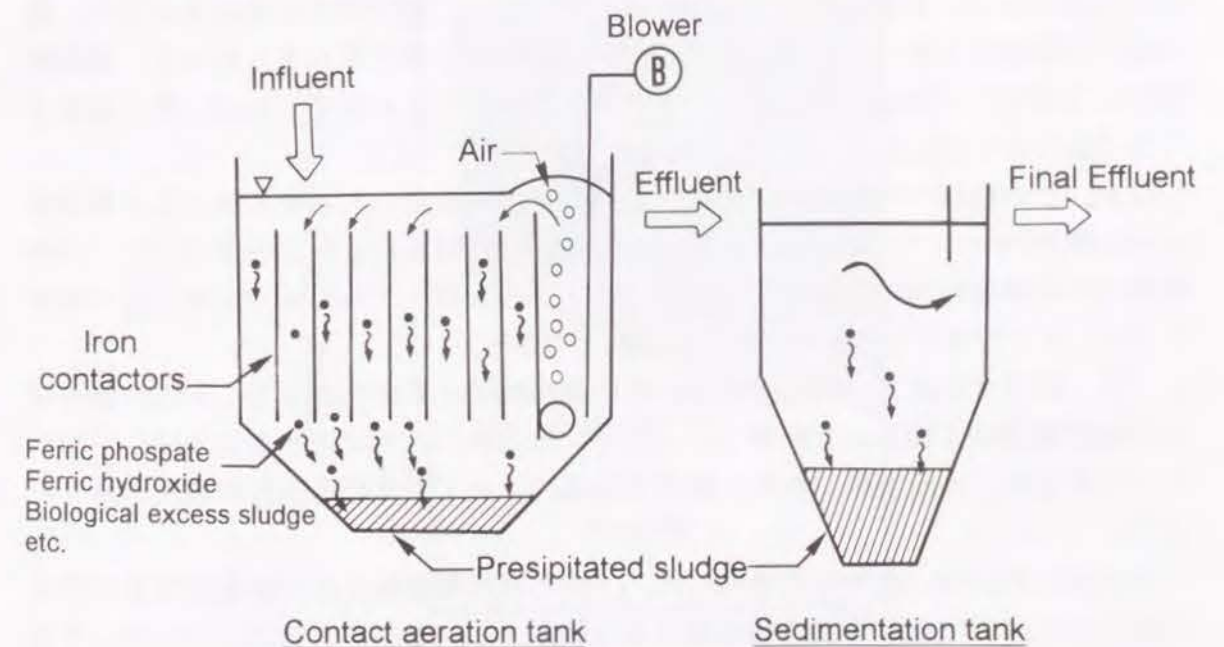


Fig. 2 Schematic figure of wastewater treatment system using aerating submerged iron contactor process

1. 3 鉄ろ材接触曝気方式の平衡論的妥当性

鉄が腐食するという現象はよく知られているが、その理論的根拠は化学平衡論によって説明できる⁴⁾。水中に浸漬された金属の腐食挙動を予測するには電位-pH図 (Pourbaix図とも呼ばれる) が有用である⁵⁾。この図は、あるpHの水溶液中で金属がある電位を示しているときに、その金属の腐食が進行している状態にあるか、ほとんど進行していない状態にあるかを化学平衡論によって予測したものである。ほとんど腐食しない場合については2種類の状態が示されている。一つはimmunity (不動態) というものであり、金属はこの状態でイオンよりも単体であるほうが安定であると推定できる。その例としては、pH中性の水中の白金や金の状態があげられる。もう一つは, passivity (不動態) である。これは、化学平衡論では、金属が金属単体であるよりもイオンになるほうが安定であると推定されるにも関わらず、実際には表面に不動態被膜と呼ばれる酸化物などの防食性の高い金属化合物の被膜が生成し、腐食がほとんど進まない状態である。言い替えると、その不動態被膜になると考えられる金属化合物の安定して存在する領域を示したものである。例としては、pH中性の水中のステンレス鋼があげられる。

Fig. 3 に鉄の電位-pH図⁵⁾を示す。この図には、水の安定して存在できる領域が点線で囲まれている。この図により鉄は水の安定域内、すなわち水中でpHに関わらず腐食が進行する条件を満たす (腐食域をもつ) ことがわかる。ただし、pHが3以上では不動態域も合わせ持つため、条件によっては腐食がほとんど停止してしまうこともわかる。なお、Fig. 4 に示すように、実測値にもとづいた電位-pH図は理論図とやや異なるが、両者はかなりよく一致している⁶⁾。第2章でもふれるように、曝気槽内に浸漬した鉄ろ材の表面はほぼpH中性であると考えられる。従って、接触曝気法のろ材として鉄を使った場合、その環境条件をうまく設定すれば、鉄の腐食をうまく進行させることができると考えられる。

なお、この金属の不動態化現象は、この研究で鉄以外のものをろ材として使わなかった理由の一つでもある。例えば、Alの電位-pH図は Fig. 5 に示すように、pH中性域で不動態域のみで腐食域を持たない⁵⁾。そのため、アルミニウムをろ材に使用しても、リンはほとんど除去できないと推定できる。

一方、鉄イオンがリン酸イオンとともに難溶性の物質を生成することは、第1編の凝集沈殿法や土壌トレンチ法といったリン除去法の説明で述べたように、一般的によく知られている現象であり、化学平衡論によってもその妥当性が証明されている⁷⁾。

以上のことから、化学平衡論的には、「鉄ろ材接触曝気方式」が有望なリン除去技術として確立できる可能性の高いことがわかった。しかし、このことは決して本方式の実用化を確約するものではなく、次節で示すような課題を解決することが必要である。

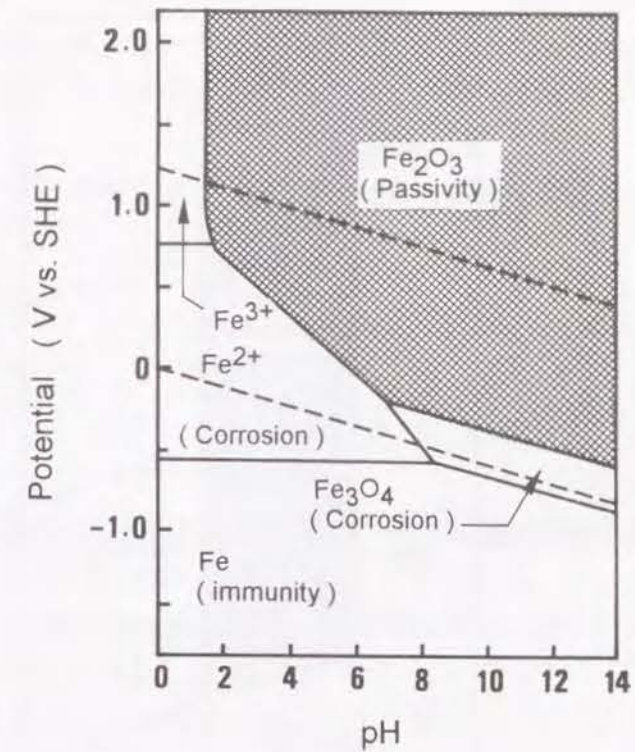


Fig. 3 Potential - pH (Pourbaix) diagram of iron by theoretical calculation⁵⁾

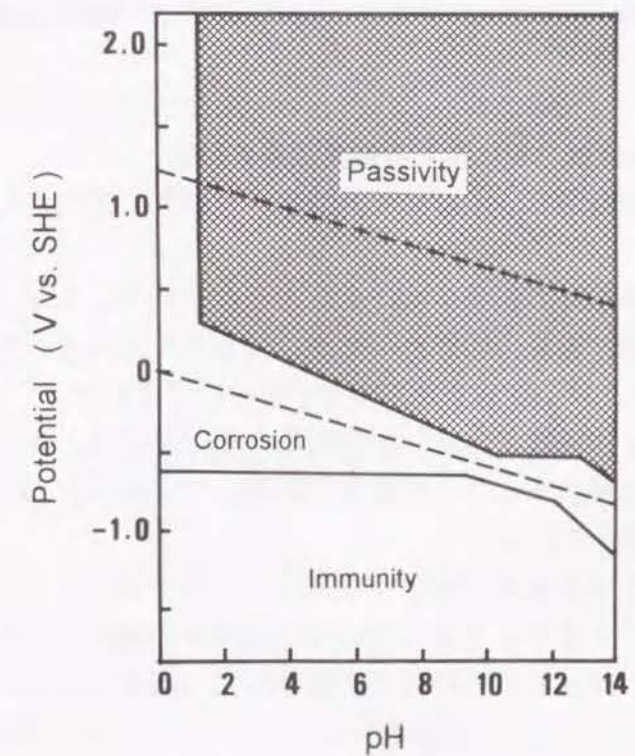


Fig. 4 Potential - pH (Pourbaix) diagram of iron by experiment⁶⁾

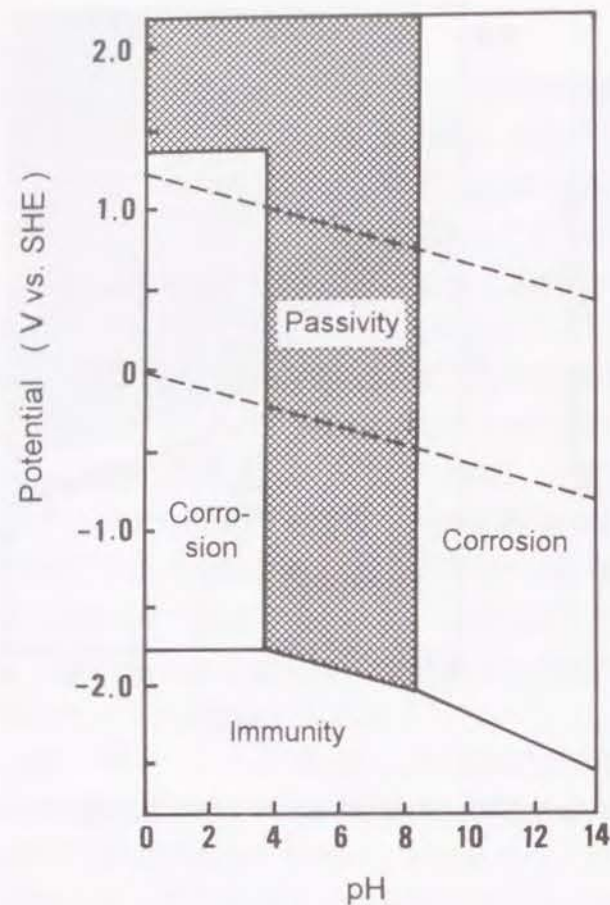


Fig. 5 Potential - pH (Pourbaix) diagram of aluminium by theoretical calculation⁵⁾

1. 4 鉄ろ材接触曝気方式に関する研究課題の設定

前節までの内容を勘案し、本研究で検討すべき課題を設定するとつぎのようになる。

化学平衡論は、鉄ろ材の腐食が進行することは示しているが、同時に不動態化を避けるような運転条件を見出す必要のあることを示している。そのため、この研究ではその条件を明らかにしておくことがまず第一に望まれる。

さらに、「鉄ろ材接触曝気方式」を実用化するためには、化学平衡論で明らかにならない点を十分に検討することが重要である。すなわち、つぎのような点を検討する必要があると考えられる。

実際の環境のもとで腐食がどのような反応や速度で進行するのか、またそれが長期的に安定して進行するかどうかについては化学平衡論だけでは全く予測できない。また、処理の継続に伴って鉄ろ材表面に着生してくると考えられる生物膜や腐食生成物が、それらにどのような影響をあたえるかについてもわからない。

鉄とリンとが難溶性物質を生成する反応の効率も様々な環境要因によって影響を受けると考えられるが、これについても明らかでない。

さらに、これらを明らかにし、高率で安定したリン除去を達成するための運転条件や施設の設計条件を確立した上で、第1編でまとめたような、現在望まれているリン除去技術が具備すべき条件を、本方式がどの程度達成できるものかも確認しておく必要がある。

以下の章では、このような観点から行った室内実験による検討結果を順次報告する。

引用文献

- 1) 西口 猛他：生物膜法による高率の脱リン技術（Ⅱ）—接触曝気法を用いた脱リン実験—，農士誌，54(8)，pp.31-36(1986)
- 2) H.H.Uhlig et al.，岡本 剛他訳：腐食反応とその制御（第3版），産業図書，p.1(1989)
- 3) 須藤隆一：廃水処理の生物学，pp.152-170(1977)
- 4) 西口 猛：鉄接触材を用いたリン除去技術 [IV] —鉄材利用による脱リンの原理—，用水と廃水，32(3)，pp.39-49(1990)
- 5) M.Pourbaix：Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solution, Pergamon Press(1966)
- 6) M.Pourbaix：Recent Applications of Electrode Potential Measurements in the Thermodynamics and Kinetics of Corrosion of Metals, *Corrosion*, 25, pp.267-281 (1969)
- 7) W.Stum et al.，安部喜也他訳：一般水質化学（下），共立出版，pp.477-525(1976)

第2章 鉄ろ材浸漬条件による腐食機構の差異とリン除去能力

2.1 実験目的

本章では「鉄ろ材接触曝気方式」の最も基礎的な特徴を明らかにするために行った実験について報告する。特に明らかにしようとする内容は次のようなものである。

まず第一には、実際に接触曝気槽内（以下曝気槽）で鉄ろ材の腐食が十分な速度で進行してリンの除去が行われ、さらに有機物の除去が同時に可能であることを確認することである。

第二には、この方式における鉄ろ材の腐食のメカニズムを明らかにすることである。腐食工学の分野では、鉄の腐食のメカニズムには様々なものがあり、実際にどのような反応が起こるかは金属の周辺環境に左右されるということが広く知られている。腐食のメカニズムとしてはすでに代表的なものがいくつか提唱されているが、排水処理槽内に浸漬された鉄について研究がなされた例は全くない。前章でも述べたように、腐食のメカニズムの違いによって、その持続性や速度を変化させる要因は全く異なることが考えられるので、このメカニズムを把握することは、「鉄ろ材接触曝気方式」の適切な維持管理手法や施設設計方法を確立するために極めて重要であると考えられる。

ところで、一般に接触曝気法による排水処理施設では、曝気槽は1室のみを設置するのではなく、多段直列式にする場合が多い。この理由は、短絡流が防止できたり、各段で水質の状態に応じた生物相の生物膜が形成したりすることにより処理の高度化が期待できるためである¹⁾。しかし逆に言えば、このように多段化された曝気槽内の環境は大きく異なっていると言える。

以上のことから、本章では、3室直列式の曝気槽からなる排水処理実験装置を3系列用意し、系列毎に鉄ろ材を浸漬する室をかえて処理実験を行い、前述の点について検討を行った結果を報告する^{2) 3)}。

2.2 実験方法

(1) 処理実験の概要

実験は、Fig.1 に示すように、プラスチック製の曝気槽を3室直列に連結した3つの処理系列を用いて行った。各曝気槽の有効容量は4ℓであり、系列毎の有効容量は12ℓである。

人工汚水としては、Table 1 に示すような排水処理実験に広く使用されている成分からなるものを用いた。その汚水水質は Table 2 に示すようなものである。人工汚水の単位水量当たりの成分量は、人工汚水の水質のうちBOD, T-N, T-P, SO_4^{2-} 濃度およびアルカリ度などが、実際の生活排水の濃度^{4) 5)}とほぼ同じになるようにした。なお、この汚水のSS濃度は実際の生活排水の濃度に比較して低いですが、これは本実験が基礎的な内容を明らかにするためのものなので、その結果の解釈などが複雑にな

ることを避けるためである。汚水は、各系列とも20ℓ/日の割合で、定量ポンプによって連続的に送水した。この送水量により、各系列とも汚水の曝気槽滞留時間は約14時間となる。この滞留時間は、一般に生活排水処理のために設置される曝気槽とほぼ同程度である⁶⁾。

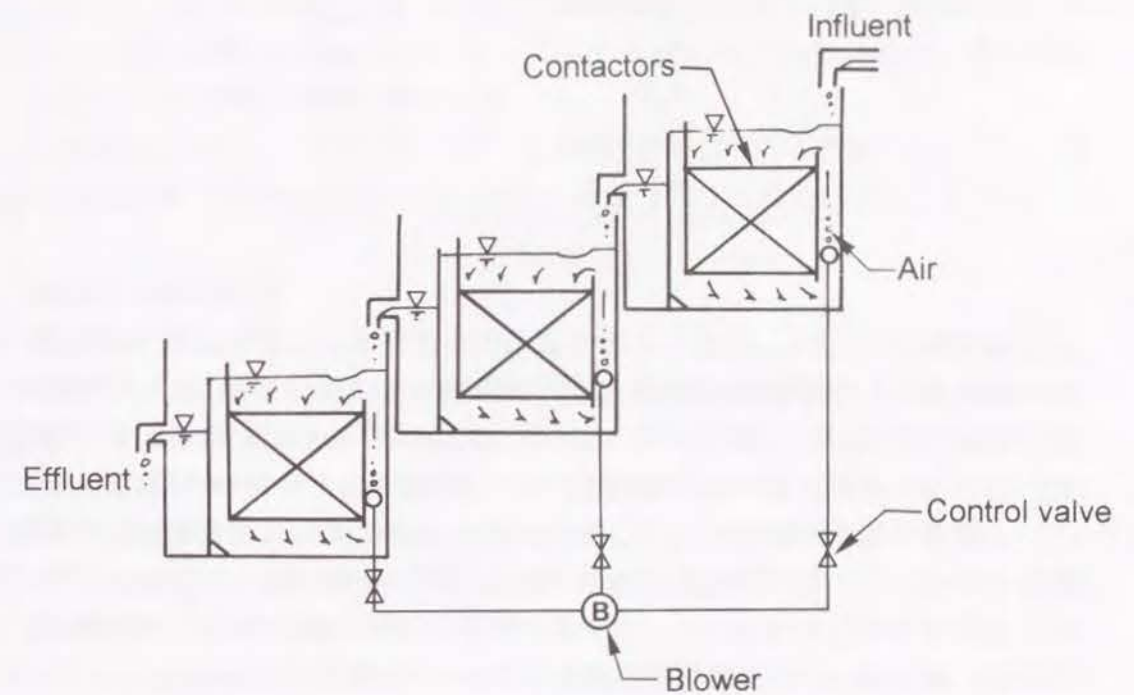


Fig. 1 Schematic figure of aeration tanks

Table 1 Composition of original artificial wastewater

Poly pepton	18 g
Meat extract	12 g
NaCl	9 g
KCl	0.42 g
CaCl ₂ ·2H ₂ O	0.42 g
MgSO ₄ ·7H ₂ O	0.30 g
KH ₂ PO ₄	2.5 g
Tap water	100 l

Table 2 Concentration of artificial wastewater

BOD	200	mg/l
COD	80	mg/l
SS	20	mg/l
T-N	50	mg/l
T-P	7.5	mg/l
SO ₄ ²⁻	23	mg/l
Alkalinity	90	mg/l
pH	7.0	-

各曝気槽に対しては Fig. 1 に示すように、ブローにより送風（曝気）を行った。その送風量は、全実験期間を通じて、各系列ともに曝気槽第1室の溶存酸素（以下、DO）濃度が2.5mg/l、第2室が4.5mg/l、第3室が6.5mg/l になるように適宜調節した。これは、実際の直列式の曝気槽では、後室に向かうにつれてDO濃度が高くなるという現象が観察されるので⁷⁾、その一般的な濃度変化状況を考慮して実験を行うためである。このような現象が観察されるのは、後室に行くほど流入してくる汚水中の有機物が少なくなったり、またそのために槽内の微生物量（生物膜量）も少なくなり、曝気槽内でのDO消費量が減少するためであると考えられる。

このような条件のもとで、まず全系列の全ての曝気槽にプラスチック製の球状ろ材を浸漬して約2ヶ月間の運転を行い、有機物の処理が安定したことを確認した。ろ材は表面積が95cm²/個であり、各室30個ずつ浸漬した。これにより、ろ材の表面積は各室あたり2,850cm²/室となり、浸漬密度は約72cm²/m³となる。

その後、第1系列については曝気槽第1室のプラスチックろ材を取り出して鉄ろ材を交換浸漬し、実験を継続した。同様に、第2系列については、曝気槽第2室についてのみ鉄ろ材をプラスチックろ材と交換浸漬し、第3系列については第3室のみのろ材を交換して実験を継続した。すなわち、汚水の流入条件や送風条件はそれまでと同じ条件で、系列ごとに鉄ろ材を浸漬する曝気槽を変えた処理実験を開始した。交換した鉄ろ材は、JIS規格によりSS41鋼板とされている一般構造物用圧延鉄板であり、その組成はP（リン）とS（硫黄）の含有率がともに0.050%以下⁸⁾、C（炭素）の含有率が0.15~0.25%⁹⁾ というものである。ろ材の寸法は5cm×10cmで厚さは0.8mmのものとし、各系列とも28枚を浸漬した。これにより、浸漬した鉄ろ材の表面積は2,800cm²となり、取り出したプラスチックろ材の面積とほぼ同じとなっている。実験はろ材交換後75日間継続した。

(2) 水質分析方法

上述のように処理実験を継続している間に、流入原水と各室流出水のT-P濃度の分析を行った。ろ材交換の前には、交換直前の10日間にのみ2日に1回の割合で測定を行った。ろ材交換の後には、同様に2日に1回の割合の測定を実験終了時まで継続した。

また、鉄ろ材の浸漬により、有機物の除去効率がどのように変化するかも明らかにするために、有機物（BOD、COD）の測定も各系列のそれぞれの曝気槽流出水について行った。測定は鉄ろ材浸漬前のプラスチックろ材のみでの処理時と、鉄ろ材浸漬後30日目および実験終了時の3回行った。

これらの測定は、すべてJIS K-0102¹⁰⁾ と下水試験方法¹¹⁾ に準拠して行った。なお、以下の章においても特に記述しない限り、水質分析はこれらによって行った。

(3) 硫酸塩還元菌の計数

鉄の腐食のメカニズムは様々なものが提唱されているが、それらは、純化学的に反応が進行するものと、その反応に微生物が関与する微生物腐食といわれるものに分けられる。微生物腐食にも、数多くのものがある¹²⁾ がそのうちでpH中性の水中に浸漬された鉄の腐食に関与する生物で、その影響が最も大きいと言われているものとして硫酸塩還元菌（Sulfate-Reducing-Bacteria, 以下、SRB）がある¹³⁾。

このようなことから、鉄ろ材接触曝気方式にSRBによる腐食（以下、SRB腐食）が関与しているかどうかを明らかにするために、SRBの計数を行った。実験終了時に鉄ろ材を浸漬した曝気槽からそれぞれ鉄ろ材を5枚ずつ取り出し、その表面に着生していた生物膜やさびを市販ブラシによって採取したものを試料とした。

SRBの計数は下水試験方法¹¹⁾ に準拠して、10倍希釈法により Table 3 に示す培地を用いて行った。培養時間は24時間、培養温度は35℃とした。この培地中ではSRBが存在すると黒色の硫化鉄コロニーが生成されるので、その数を計数することによってSRBの存在数を求めるというのがこの方法の概要である。

なお、この微生物の特徴やSRB腐食のメカニズムについては、後の考察の際に詳述する。

Table 3 Medium for SRB count

Yeast extract	1.0	g
K ₂ HPO ₄	0.5	g
NH ₄ Cl	1.0	g
Na ₂ SO ₄	1.0	g
CaCl ₂ ·6H ₂ O	0.1	g
FeSO ₄ ·7H ₂ O	0.2	g
MgSO ₄ ·7H ₂ O	0.1	g
C ₃ H ₅ O ₃ Na	3.5	g
Agar	15	g
Tap water	1000	ml

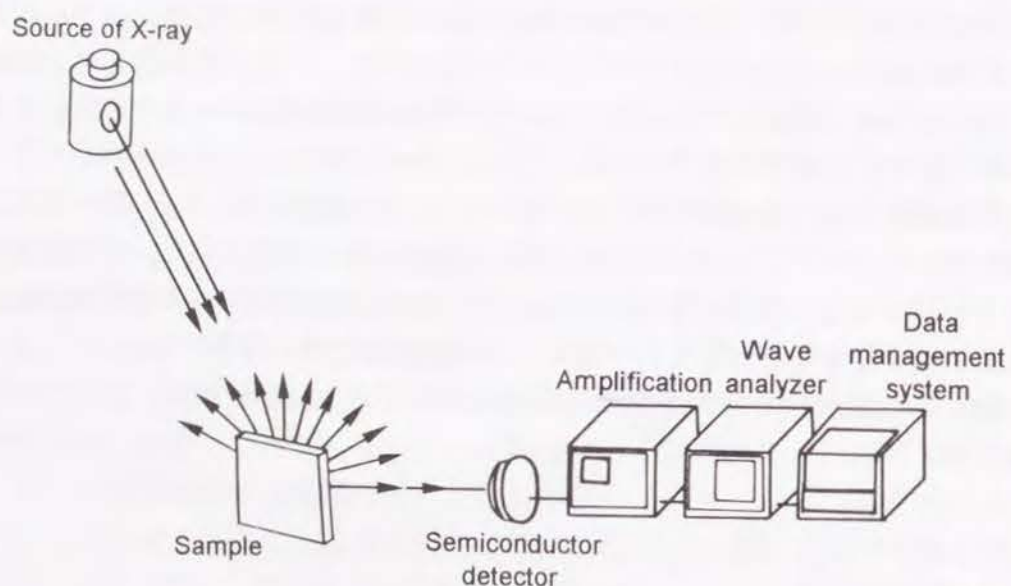


Fig. 2 Schematic figure of analytical system of fluorescent X-ray

(4) 鉄ろ材表面着生物の分析

SRB腐食が起った時に反応の最終生産物として硫化鉄が生成されることは、SRB腐食の最も大きな特徴である¹⁴⁾。そこで、SRBの存在の有無に加えて、SRB腐食が起ったのかどうかをさらに確実に判断するために、鉄ろ材表面着生物の分析を行うこととした。すなわち、上述のSRB計数のときと同様に、実験終了時にブラッシングによって剥離させたものを沈積生成物として分析した。また、その作業後も鉄ろ材表面に極めて薄く着生したままのものも表面皮膜として同時に分析した。分析は元素毎の定量分析とし、エネルギー分散型蛍光X線分析装置を用いて行った。

蛍光X線分析の原理は次のようなものである。X線を試料に照射すると、試料中の原子の内殻軌道の電子は励起され、逆にその空位に外殻軌道から電子が遷移するという現象が起こる。このときに発生するX線は蛍光X線とよばれ、その波長は原子に特有であり、かつその強度は試料中の各原子の存在量と比例関係にある。従って、この特有な波長のX線の強度を測定することにより、試料中に存在する元素の種類とその存在量を把握することができる¹⁵⁾。その装置例をFig. 2に示す。

2. 3 実験結果

(1) リン除去の経時変化

T-Pの水質分析結果の経日変化を系列毎に図示したものが、Figs. 3, 4, 5である。これらの図では、長期間のリン除去性能の安定性を見るために、初期のプラスチックろ材浸漬時の結果は10日間全ての平均を示しており、鉄ろ材浸漬以降については5日間ごとの平均値を示している。

図の上半分には、流入原水に対する各槽の流出水の除去率を示した。排水処理システムにおける除去率は、一般に次の式によって定義される。

(ある物質の除去率)

$$= \left\{ (\text{流入原水中の物質濃度}) - (\text{処理槽流出水中の物質濃度}) \right\} \div (\text{流入原水中の物質濃度}) \times 100$$

なお、いずれの図にも、除去率の経日変化の傾向を点線で示した。

T-Pの除去傾向は、系列によって全く異なっていた。第1系列については、Fig. 3に示すように、全実験期間曝気槽第1室、第2室、第3室流出水のT-P濃度は、第1, 2, 3室の順に低くなるという傾向が見られたが、その差はあまり大きくなかった。プラスチックろ材のみによる処理でのT-P除去率は約10%程度であった。鉄ろ材を浸漬してからすぐにT-P除去率は上昇したが、実験開始後15日目までは曝気槽第3室流出水で約25~30%と低率のままであった(図中A~B区間)。しかし、その後30日目まで、T-P除去率は経日的に上昇する傾向がみられた(図中B~C区間)。それ以

降は、T-P除去率は約60~80%の範囲で、かなり高率なまま安定した状態が実験終了時まで継続された(図中C~D区間)。

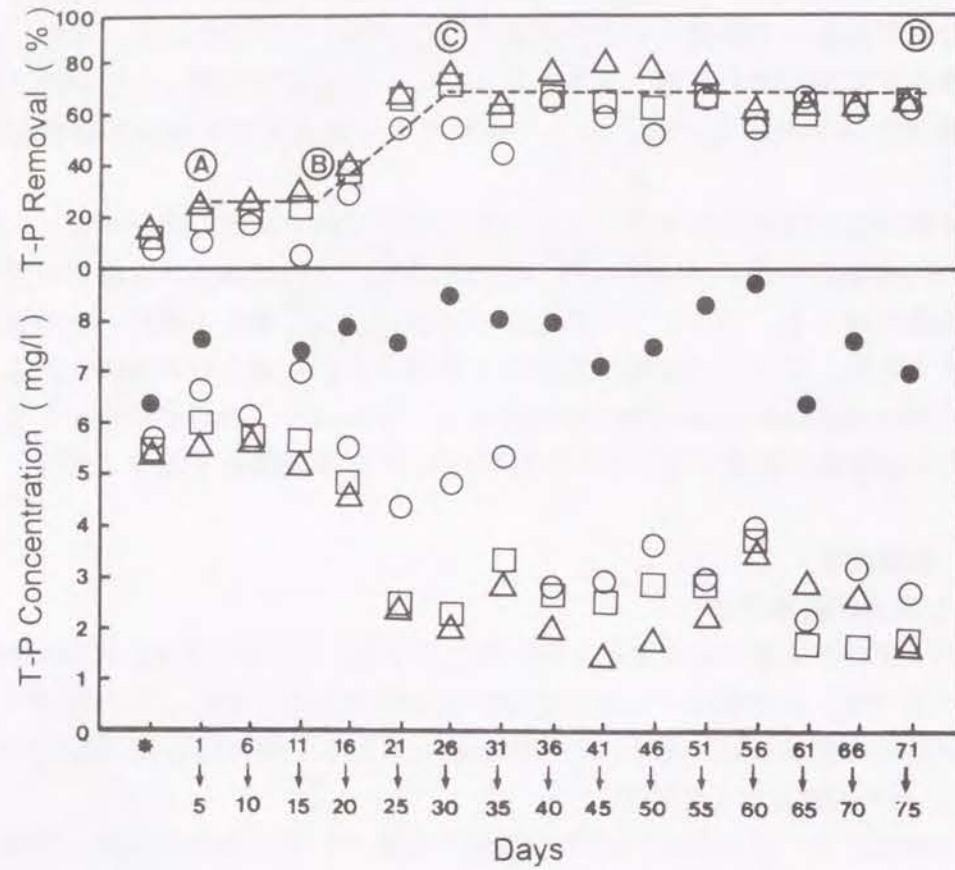


Fig. 3 Concentration and removal rate of phosphorus by aerating submerged contactor process
[First series : Iron contactors submerged in first aeration tank]
(* : Before submerging iron contactors
● : Influent wastewater
○ : Effluent water from first aeration tank
□ : Effluent water from second aeration tank
△ : Effluent water from third aeration tank)

第2系列については、Fig. 4 に示すように、全実験期間を通して曝気槽第1室流出水のT-P除去率は、0~20%の間で若干の変化はみられたが、低率のままであった。曝気槽第2、3室流出水については、プラスチックろ材のみによる処理でのT-P除去

率は約10%程度であったが、鉄ろ材浸漬後に第1室流出水とは全く異なった傾向を示した。鉄ろ材浸漬後すぐにT-P除去率は上昇し、鉄ろ材浸漬後5日目までは約50%程度の除去率が達成された。しかし、その後T-P除去率は経日的に低下し、30日目には鉄ろ材浸漬以前とほぼ同率の10%程度まで低下した(図中E~F区間)。だが、その後、除去率は40日目までは経日的に上昇し、約40%にまで達した(図中F~G区間)。それから、実験終了時までには、高率ではないものの約30~40%の除去が安定しておこなわれた(図中G~H区間)。

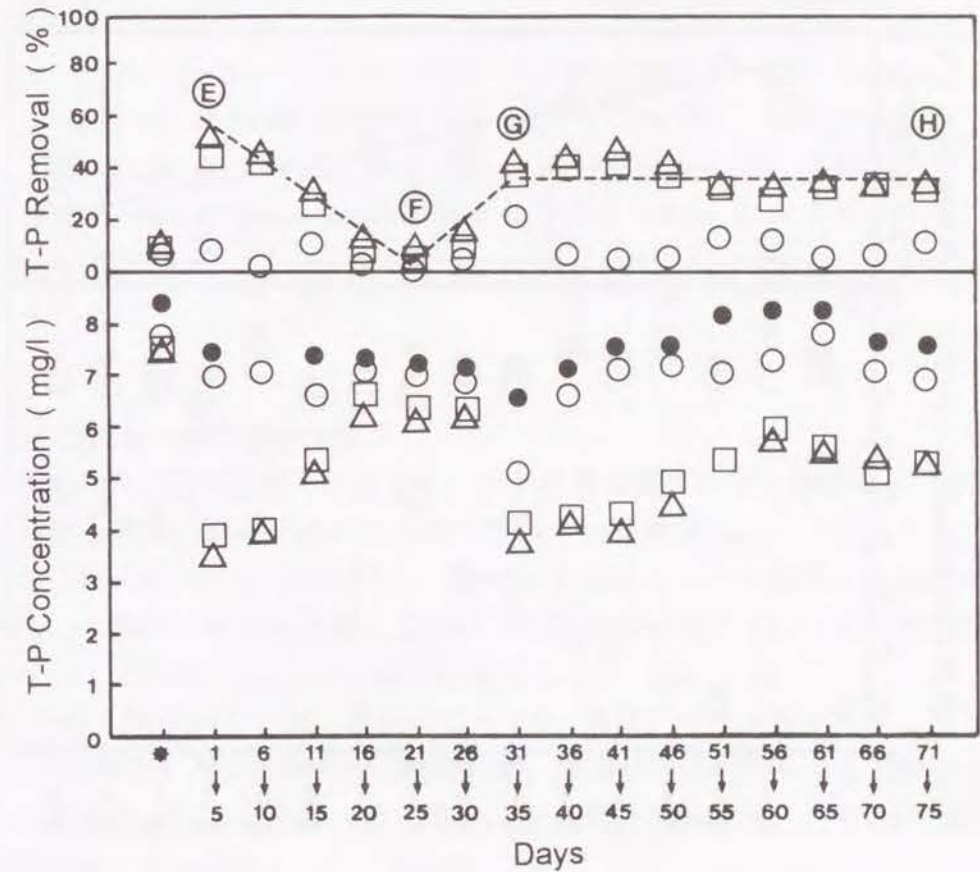


Fig. 4 Concentration and removal rate of phosphorus by aerating submerged contactor process
[Second series : Iron contactors submerged in second aeration tank]
(* : Before submerging iron contactors
● : Influent wastewater
○ : Effluent water from first aeration tank
□ : Effluent water from second aeration tank
△ : Effluent water from third aeration tank)

Fig. 5 に示すように第3系列については、全実験期間を通して曝気槽第1, 2室流出水のT-P除去率は0~20%の間で変化したが低率のままであり、両者のT-P濃度には大差はなかった。曝気槽第3室流出水については、プラスチックろ材のみによる処理でのT-P除去率は約10%程度であったが、鉄ろ材浸漬後には第1, 2室流出水とは全く異なった傾向を示した。まず、鉄ろ材浸漬後には約80~90%の極めて高率な除去が行われたが、その後は除去率は徐々に低下し、実験終了時には約30%にまでなった(図中I~J区間)。

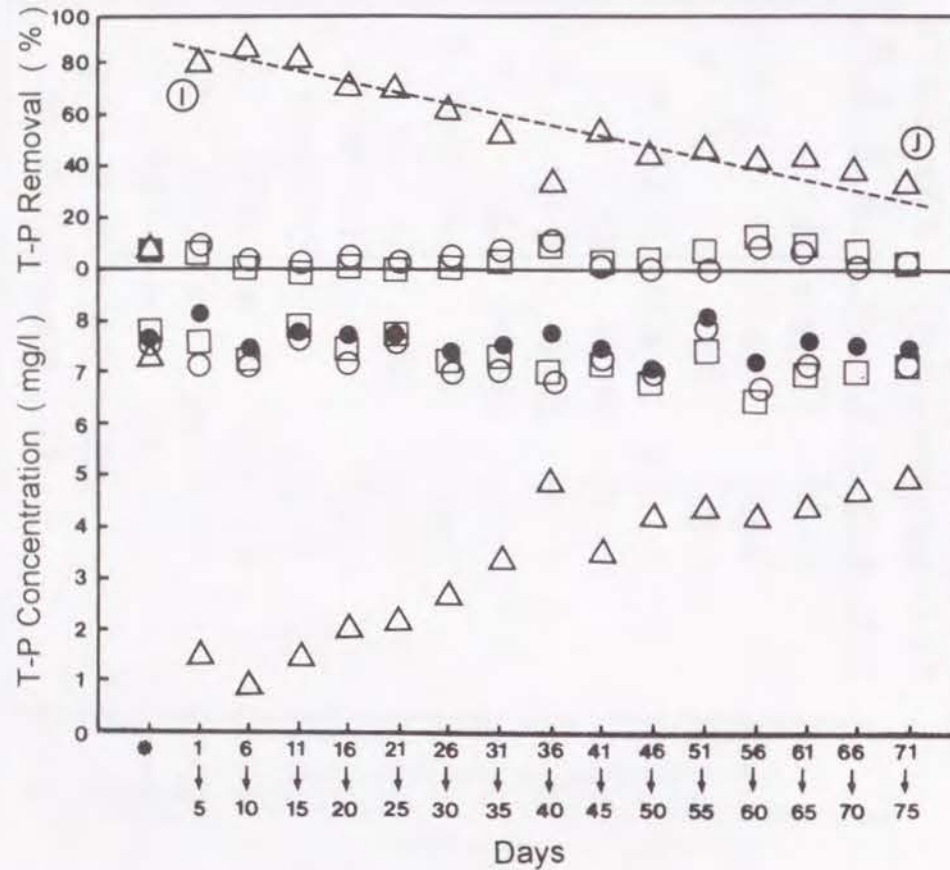


Fig. 5 Concentration and removal rate of phosphorus by aerating submerged contactor process
[Third series : Iron contactors submerged in third aeration tank]
(* : Before submerging iron contactors
● : Influent wastewater
○ : Effluent water from first aeration tank
□ : Effluent water from second aeration tank
△ : Effluent water from third aeration tank)

(2) SRBの計数結果

SRBの計数結果を、Table 4 にまとめて示す。これらの結果は、着生物1g当たりの検出量として示している。

系列に関わらず、曝気槽第1室では、 10^8 オーダー、第2室では 10^7 オーダー、第3室では 10^4 オーダーのSRBが検出された。すなわち、前段のほうが後段に比較して、SRBが多く棲息できるような生物膜がろ材表面に着生することが明らかになった。

Table 4 Results of SRB count in the sludge on iron contactors

The sludge of first aeraton tank in first series	2.1×10^9
The sludge of second aeraton tank in second series	8.0×10^7
The sludge of third aeraton tank in third series	3.3×10^4

(cells/ 1g SS)

(3) 鉄ろ材表面着生物の解析結果

エネルギー分散型蛍光X線分析による、鉄ろ材表面着生物の分析結果をTable 5 に示す。分析結果は、構成元素の相対原子数%・相対重量%として表示した。なお、表に示した元素の他に、C(炭素)、O(酸素)も検出されたが結果には含めなかった。それは、今回の分析が加速電圧を15kVと比較的高い電圧で行ったため、これら軽元素の測定には誤差が生じやすいと判断されたためである。

この結果で最も特徴的なのは、系列によってS(硫黄)の検出量が大きく異なることである。Sは、第1, 2系列では沈積生成物、表面被膜のどちらからも検出されたが、第3系列では検出されなかった。第1, 2系列を比較すると、その検出割合は第1系列でかなり高かった。

このような着生物の違いは色調からも判断できた。すなわち、実験終了時に鉄ろ材表面の着生物を観察したところ、第1, 2系列では鉄ろ材表面全体が黒色であったが、第3系列では赤褐色であった。

Table 5 Analytical results of precipitation and membrane on iron surface

	Element name	Precipitation on iron surface		Membrane on iron surface	
		Weight %	Atomic %	Weight %	Atomic %
Iron contactor of first series	Si	25.21	36.58	19.20	30.32
	Ca	-	-	-	-
	Fe	58.16	42.17	69.49	54.04
	P	5.64	7.38	4.38	5.93
	S	10.98	13.87	6.92	9.70
Iron contactor of second series	Si	15.84	26.70	24.49	37.25
	Ca	0.06	0.07	0.92	0.95
	Fe	78.10	64.37	64.40	48.09
	P	5.07	7.53	9.78	13.17
	S	0.92	1.33	0.41	0.54
Iron contactor of third series	Si	4.42	8.41	2.06	4.01
	Ca	1.54	1.59	-	-
	Fe	94.04	90.00	97.94	95.99
	P	-	-	-	-
	S	-	-	-	-

(4) BOD, CODの分析結果について

BOD, CODの分析結果を Table 6 に示す。どの系列のどの室の流出水の水質も、鉄ろ材浸漬前のプラスチックろ材のみでの処理時と、鉄ろ材浸漬後30日目、および実験終了時ではほとんど差がなかった。

Table 6 Quality of influent and effluent water

		First series		Second series		Third series	
		BOD (mg/l)	COD (mg/l)	BOD (mg/l)	COD (mg/l)	BOD (mg/l)	COD (mg/l)
Before experiment of aerating submerged iron contactor process	Effluent water from first aeration tank	82.4	44.3	85.7	44.5	88.6	47.2
	Effluent water from second aeration tank	20.3	22.5	19.3	20.6	23.4	22.6
	Effluent water from third aeration tank	8.8	7.7	9.2	10.3	7.4	9.4
In experiment period of aerating submerged iron contactor process	Effluent water from first aeration tank	73.3	46.5	74.0	45.6	73.5	43.5
	Effluent water from second aeration tank	13.0	14.2	13.5	17.7	14.6	18.4
	Effluent water from third aeration tank	7.5	7.3	6.5	9.4	7.4	9.3
At the end of experiment of aerating submerged iron contactor process	Effluent water from first aeration tank	72.5	43.1	57.5	47.2	68.3	44.8
	Effluent water from second aeration tank	23.5	18.4	21.0	19.2	18.7	17.3
	Effluent water from third aeration tank	7.3	9.3	8.5	9.0	7.6	8.6

2. 4 考察

(1) リン除去の経時変化と腐食形態の変化

系列に関わらず、鉄ろ材を浸漬することによってT-P除去率がプラスチックろ材のみの処理のときに比較して高くなったことは明らかである。このことにより、鉄ろ材接触曝気方式により実際にリン除去が行われることが確認できたといえる。

しかし、同じ曝気槽内とはいえ、その浸漬場所によってT-P除去の程度やその経時的な変化は全く異なっていた。この現象を、腐食状態や腐食速度の変化という観点から考察すると次のようになる。

a) 鉄ろ材浸漬直後のT-P除去率と酸素拡散形の腐食

水中で鉄の腐食が起こる原因は、鉄表面における局所的な電池の形成に伴って電流が発生するためである。局部電池の形成とは、金属表面で電子を放出して金属がイオン化するアノード反応、そして電子が消費されるカソード反応の起こる部位がミクロ的に接して存在することをいう¹⁶⁾。電気化学の分野では、pH中性域における鉄の最も一般的な腐食反応は、DOによって引き起こされるものであるとされており、その反応式は Fig. 6 で示される¹⁴⁾。

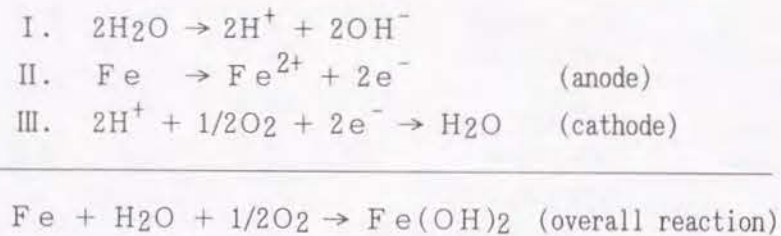


Fig. 6 Corrosion reaction with dissolved oxygen¹⁴⁾

この図の総括式からも推察できるように、この反応の律速となるのはDOの鉄表面に対する拡散速度といわれており、このような反応で進行する腐食は酸素拡散形の腐食と呼ばれる¹⁷⁾。本実験は全てpH中性の溶液中で行ったため、いずれの系列でも鉄ろ材の表面で酸素拡散形の腐食が進行する可能性は高いと考えるのが妥当であろう。

ところで、Figs. 3, 4, 5 に示されているように、鉄ろ材浸漬後の5日目までのT-P除去率の平均値は第1系列では約20%、第2系列では約50%、第3系列では約80%であり、系列ごとに異なっている。鉄ろ材表面に着生する生物膜や腐食生成物などが腐食速度に何等かの影響をあたえるとしても、鉄ろ材浸漬後5日目までの短期間にそれらはほとんど形成されていないと考えられる。そのため、このようなリン除去

率の差は、曝気槽内のDO濃度の差が鉄ろ材表面への酸素の到達量の差を生じさせ、それによって系列ごとに腐食量が異なったためと考えられる。すなわち、T-P除去率は第1、第2、第3系列の順に高くなっているが、それぞれの系列の鉄ろ材を浸漬した曝気槽のDO濃度も2.5, 4.5, 6.5mg/l と順に高くなっており、単位時間に鉄ろ材表面に達する酸素量もその順に多くなり、それによって腐食速度が順に速くなったものと考えられる。pH中性溶液中のDO濃度と腐食速度には比例関係が成り立つことは実証されている¹⁷⁾。

このようなことから、本実験の鉄ろ材浸漬初期には酸素拡散形腐食が起こっていたものと考えられる。

b) 鉄ろ材表面への生物膜や腐食生成物の着生とリン除去率の経日的低下

Figs. 4, 5 に示すように、第2系列においては図中のE~Fの期間、第3系列では鉄ろ材を浸漬した全期間であるI~Jの期間において、リン除去率の経日的な低下傾向がみられる。これは、Fig. 6 の総括式からわかるように、鉄ろ材表面の腐食の進行に伴って生成された水酸化第一鉄 [Fe(OH)₂] や、水和酸化第一鉄 [FeO·nH₂O] (水酸化第一鉄の縮合したもの)、あるいは両者が溶液中のDOによって酸化された水酸化第二鉄 [Fe(OH)₃] や、水和した酸化第二鉄 [Fe₂O₃·nH₂O] (水酸化第二鉄の縮合したもの) などが徐々に集積して層状皮膜を形成し、これらが酸素拡散障壁層となって腐食が抑制された¹⁴⁾ ためと考えられる。また、その層へのリン酸の混在がその防食性を高めた可能性も考えられる¹⁸⁾。

また、処理の進行にともなって、鉄ろ材表面の生物膜の厚さも徐々に厚くなり、これもまた鉄ろ材表面への酸素拡散に対する障壁となったり、それを構成する微生物によって酸素が消費されたりするため、鉄ろ材表面に到達する酸素量が減少したためとも考えられる。

それぞれの系列で、この両者のどちらの影響が大きかったのかは判断できない。しかし、一般に後段では有機物の負荷が低いために生物膜の肥厚速度は極めておそいか、比較的薄いままで定常的な膜厚になると考えられる。実際、この実験期間中の目視観察によると、第1系列、第2系列、第3系列の順で生物膜の肥厚速度は遅く、第3系列では生物膜の厚さは薄いままで安定していた。このことから、生物膜の肥厚が鉄ろ材の腐食速度の低下に及ぼした影響は、前段に鉄ろ材を浸漬した系列のほうが大きいと考えられる。腐食生成物の影響については後で再び詳述する。

このように考えると、第1系列でも経日的なリン除去の低下が観察されておかしくないが、実際には Fig. 3 のように、必ずしもそのようにはなっていない。この原因は十分に明らかではないが、もともと除去率が低いためにそのような傾向がはつきりと検知できなかったか、または槽内に浸漬した鉄ろ材の着生状況の進行にばらつきがあり、後に述べるその後の腐食速度の上昇現象が同時進行したためと考えられる。

c) 硫酸塩還元菌による微生物腐食とリン除去率の上昇

前項a)b)で述べたように、酸素拡散形の腐食という考えで、第3系列の結果や第1, 2系列の実験初期のT-P除去の傾向については十分に説明が出来る。しかし、第1系列でのB~C期間の除去率の上昇や、第2系列におけるF~G期間の除去率の上昇に対して説明することは困難である。また、前述のように、腐食生成物の色調は第3系列では赤褐色であったのに対し、第1, 2系列では黒色であったことから、第1, 2系列では全く異なったメカニズムで腐食が進行したと考えられる。

ところで、pH中性の環境であっても、嫌気状態で有機物と硫酸塩の存在する条件では、SRBが関与した腐食が進行することが知られている。この形態の腐食が観察された例としては、土壤中¹⁹⁾や、工業プラントなどの鋼管²⁰⁾、油井のケーシング²¹⁾、海底土中の矢板²²⁾などがある。

SRBは、嫌気性条件のもとで、乳酸、プロピオン酸や酢酸などの比較的低級な有機物を電子供与体とし、硫酸塩を電子受容体としてイオウに還元する電子伝達系によってエネルギーを獲得するという代謝を営む、従属栄養細菌の一群の総称である²²⁾。SRBの硫酸還元反応の概要をFig.7に示す²³⁾。生存や増殖に利用されるアデノシン三リン酸(いわゆるATP)の生成は、チトクロム電子伝達系で生成される²⁴⁾。

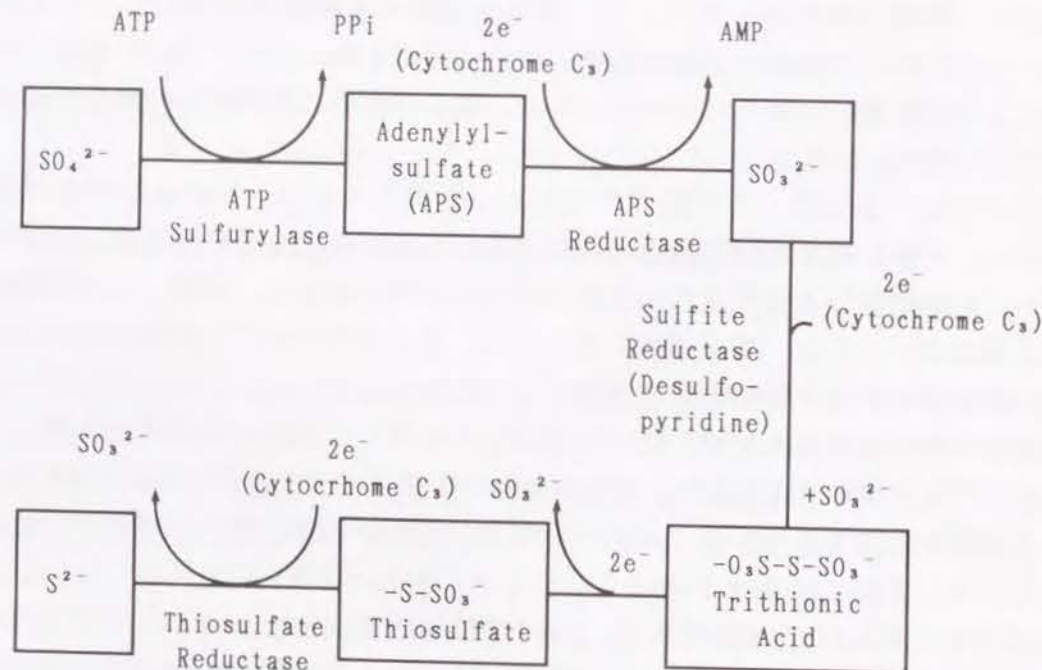


Fig. 7 Sulfate reduction process by SRB²³⁾

SRB腐食は生物学と化学の間に横たわる問題ゆえに、その研究は困難で十分に進展しておらず、そのメカニズムについてはまだ統一的な理論は確立されておらず、いくつかの説があるのが現状である²⁵⁾。このことについては、第3章で改めてふれるが、そのうちで最も代表的で有力視されている説はつぎのようなものである。その概念図と反応式をFigs.8, 9に示す¹⁹⁾。

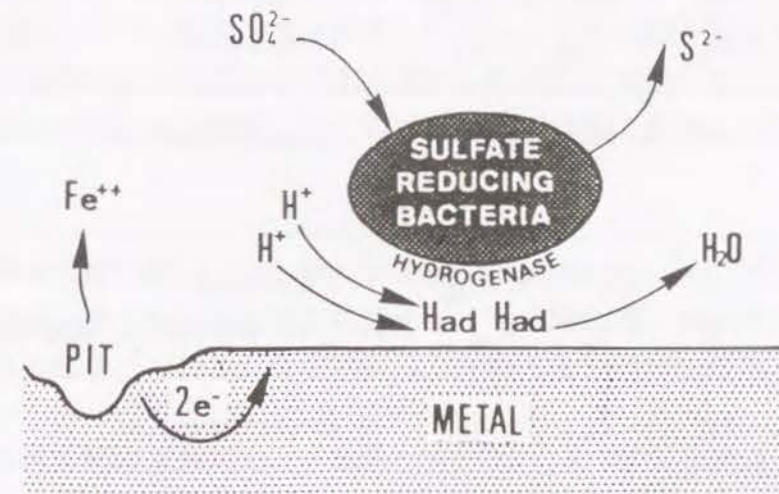


Fig. 8 Schematic figure of iron corrosion of cathodic depolarization theory (ad indicates the matter adsorbed on the iron surface)

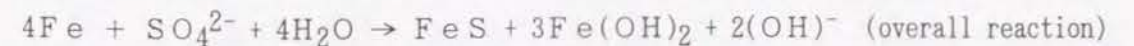
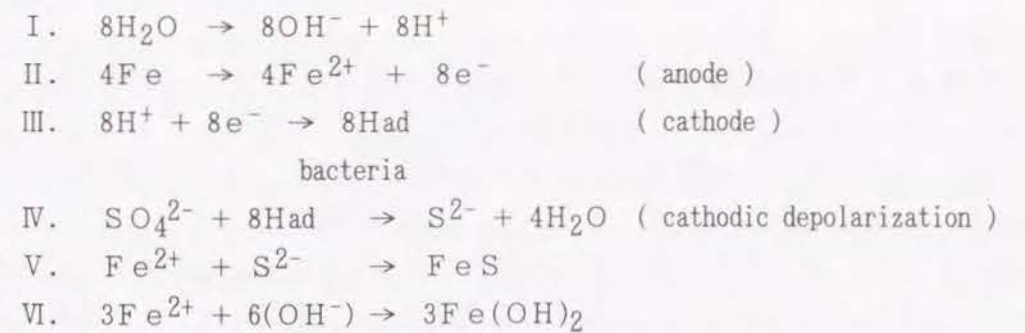


Fig. 9 Cathodic depolarization theory¹⁹⁾
(ad indicates the matter adsorbed on the iron surface)

この説は、SRBがヒドロゲナーゼ酵素をもつという特徴²⁶⁾に着目して、SRBが硫酸イオン(SO₄²⁻)を還元する際に、鉄の表面に吸着されているH(水素)を電子供与体として利用するという考えである。すなわち、酸素の存在しないpH中性の水中での鉄腐食のカソード反応は、Fig. 10の総括式の反応が主と考えられるが、この反応は極めておそい¹⁴⁾。これを素反応に分割したものがI~III式²⁷⁾であるが、この説では素反応のうちIIやIIIが律速となっていると考え、SRBがII, III以外の新たな吸着水素除去反応の経路を担うと考えている。

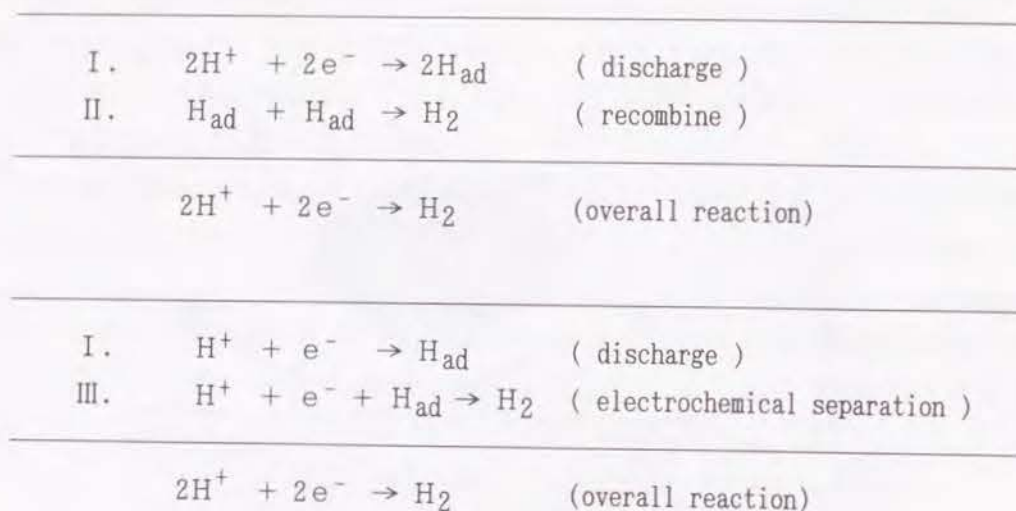


Fig. 10 Cathodic reaction by hydrogen ion²⁷⁾
(ad indicates the matter adsorbed on the iron surface)

このようなことから、本実験におけるSRB腐食の関与について考察すると以下のようなになる。

Table 4の鉄ろ材表面着生物中のSRB数の計数結果から、実際に第1, 2, 3室のいずれの環境においても実験終了時にSRBは繁殖していることがわかる。従って、どの系列でも実験終了時にSRB腐食が進行していた可能性はあると考えられる。しかし、その検出数が第1, 2, 3系列の順に少なくなっていることと、Table 5より、第1系列、第2系列の鉄ろ材表面にSを含む化合物が生成され、第3系列では検出されていないことをあわせ考えると、第3系列でSRB腐食が起こった可能性は低く、もし起こっていたとしても、その腐食速度に対する影響は酸素拡散形によって生じたものに比較して、極めて小さいと考えられる。一方、第1, 2系列では逆に実験終了時にはSRB腐食が酸素拡散形腐食より優先化した状態となっていた可能性が高いと考えられる。

以上のことから、T-P除去率の経日変化を考察すると次のようになる。第1, 2

系列では、酸素拡散形腐食が起きた後に、SRB腐食が起こったものと考えられる。Fig. 3に示すように、第1, 2系列では、鉄ろ材浸漬後のA~BおよびE~F期間には先ず酸素拡散形の腐食が進行するが、処理の継続にともなう生物膜などが徐々に着生し、鉄ろ材表面には徐々に酸素が到達しにくくなる。そしてSRBが徐々に繁殖し、その活動も活発になったと考えられる。それにもなう、腐食速度は再び上昇しはじめ、T-Pの除去率もそれにつれて上昇したと考えられる。第2系列についても、Fig. 4のF~G期間でも同様な現象が起こったために、やはり経日的にT-P除去率が上昇したと考えられる。

その後、第1, 2系列ともT-P除去率の上昇は停止し、実験終了時までのC~D, G~Hの期間に除去率はほぼ一定値で安定したが、これはSRBの繁殖や活動状況が一応の定常状態となり、腐食速度が安定したことによるものと考えられる。なお、その安定した除去率は第1系列の方が第2系列に比較して高かった。これは、第1系列の鉄ろ材表面でSRBの活動により適した環境が達成されていたためと考えられよう。

d) 鉄ろ材接触曝気方式で安定したリン除去を達成するための方法

以上のことから、鉄ろ材接触曝気方式で鉄イオンを曝気槽に供給する方法としては、酸素拡散形の腐食とSRB腐食を利用するという2つの方法のあることがわかる。

しかし、鉄ろ材接触曝気方式で、長期的に安定したリン除去を達成するためには、鉄ろ材を前段側の曝気槽に浸漬して、SRB腐食を利用するのが得策と考えられる。これは次のような理由による。

まず、実験結果からもわかるように、SRB腐食は長期にわたって継続した例が多く²⁸⁾、鉄ろ材接触曝気方式への利用が極めて有望であると考えられる。また、このような環境のもとで不動態化が起こった事例は全く報告されておらず、そのような心配は特に必要ないものと考えられる。

一方、酸素拡散形の腐食を利用するのはあまり得策でないと考えられる。実験結果からもわかるように、曝気槽の前段に浸漬したときに生物膜は徐々に肥厚化し、SRB腐食が進行するのに適した環境が自然と形成されやすい傾向がある。そのため、ここで安定して腐食を進行させるためには、生物膜の厚さを極めて薄い状態のままに保つことが第1に重要である。接触曝気法での生物膜厚の制御は、その過度の肥厚化に起因するろ材の目づまり等による処理の悪化を防止するために、逆洗浄という作業によって行われるのが一般的である。それ以外の方法は、電気代などの観点から現状では実質的に不可能である。逆洗浄とは、普段の流速以上にそれを急激に上昇させたときに生物膜が剥離するという現象を利用して、生物膜の過度の肥厚化を防止する方法である²⁹⁾。一般に逆洗浄は、通常の散気管と別に、ろ材浸漬部の下にそのための散気管を前もって設けておき、そこに曝気を集中的に行う³⁰⁾。しかし、実際にこの方法によって、十分に生物膜剥離を行うことは困難であり、その

傾向は前段の曝気槽ほど顕著であると考えられる。したがって、このような理由から前段で酸素拡散形腐食を安定して進行させることは極めて難しいと考えられる。

後段の曝気槽に鉄ろ材を浸漬した場合には、生物膜はあまり肥厚化しないが、防食性の高い腐食生成物の着生が問題となる。この防食性の高い腐食生成物の化学性についてはまだ十分に明らかとなっていない点も多いが、槽内の好気環境が強いほどその付着強度は強く、防食性も高くなることが指摘されており³¹⁾、このような現象は土壌中の好気性腐食についても観察されている³²⁾。

活性汚泥法の一変法である回分式間欠曝気方式に鉄ろ材を浸漬した場合には、槽内のDO濃度を低く保ち、さらに槽内流速を速めることによって、この腐食生成物の着生を防止し、長期的に安定して鉄の腐食とリンの除去を安定して行えることが明らかとされている³¹⁾。しかし、このような方策は、活性汚泥法ゆえにできる方法であり、生物膜法でこのような条件を整えることは困難である。それは、接触曝気法の後段では、有機物負荷が低く、しかも活性汚泥法と違って微生物量が極めて少ないために、DO濃度が上昇しやすくなり、それを低く保つことが困難なためである。また、それができたとしても曝気量が少なすぎて槽内の旋回流が十分に得られなくなり、有機物の処理に支障をきたすことが考えられる。なお、SRB腐食によっても鉄ろ材表面に錆層は着生するが、この錆層の防食性はあまり高くない³³⁾とされており、それは、この錆層の鉄表面に対する密着性が低く、さらにその多孔性が高いため³⁴⁾と考えられる。SRB腐食を利用した鉄ろ材接触曝気法で、実際に長期にわたって安定して腐食を継続できることは第3章で実証する。

また、さらに好気性腐食の場合には、鉄ろ材が不動態化する可能性もあり³⁵⁾これに対しての考慮も払わなければならない。

ところで、SRB腐食を利用するためには、多段式の曝気槽の場合に、前段に鉄ろ材を浸漬することが重要な理由は次のようなものである。Figs. 3, 4 に示されているように、前段ではBOD負荷が高いために、生物膜の肥厚化が速く、SRB腐食がすみやかに達成され、リン除去が安定するまでの期間が短くてすむ。また、第6章でさらに詳細に検討するが、BOD負荷が高くDO濃度が低い槽ほどSRB腐食の速度は速くなり、同じ表面積の鉄ろ材を浸漬した場合には、前段に浸漬した方がリンの除去が高率に行われると考えられるためである。

(2) 有機物の除去と流出水の着色について

Table 6 により、鉄ろ材接触曝気方式では、少なくとも通常のプラスチックろ材の場合と同程度の有機物の除去機能は期待できることが実証できた。

なお、鉄ろ材を浸漬したことにより、鉄イオンや水酸化物が処理水に混入して着色させるといった現象も特になかった。

2.5 まとめ

本章では、「鉄ろ材接触曝気方式」の基礎的な特徴を明らかにするために行った実験について報告した。その結果と考察をまとめると以下のようなになる。

- ①鉄ろ材接触曝気方式によって、実際にリンの除去が行えることが実証できた。
- ②また、それと同時に有機物の除去ができることも実証できた。少なくとも一般の接触曝気法で広く利用されているプラスチックろ材を用いた場合と同程度の有機物除去能力は十分に期待できることがわかった。
- ③接触曝気槽であっても、その内部環境によって鉄ろ材の腐食メカニズム、リン除去率の安定性や経時変化の傾向が異なることがわかった。
- ④接触曝気槽に鉄ろ材を浸漬したときに主として生じる腐食のメカニズムは大別して2種類である。ひとつは、酸素拡散形腐食と呼ばれるもので、水中の溶存酸素によって起こる。もうひとつは、SRB腐食といわれるもので、鉄ろ材表面が嫌気環境になったときに着生する生物膜や腐食生成物中に存在する硫酸塩還元菌(Sulfate-Reducing-Bacteria, 略称SRB)の活動によって起こる。
- ⑤鉄ろ材接触曝気方式で長期的に安定したリン除去を行うためには酸素拡散形の腐食ではなくSRB腐食を利用するのが得策であると考えられた。また、SRB腐食を利用するためには、接触曝気槽の前段に鉄ろ材を浸漬することが重要であることがわかった。
- ⑥酸素拡散形の腐食の利用が得策でないのは、処理の継続にともなって防食性の高い腐食生成物層や生物膜が鉄ろ材表面に着生し、リンの除去が継続的に徐々に低下してしまうためである。また、その防止対策として有望な方法が考えられないためである。

引用文献

- 1) 北尾高嶺：接触曝気法を用いた小規模下水道の現状と将来，用水と排水，25(1)，pp. 27-33(1983)
- 2) 西口 猛他：鉄製ろ材接触曝気法による脱リンの実験的研究—接触曝気槽内DO濃度と脱リン—，農土論集，135，pp. 41-47(1988)
- 3) S. Haruta et al. : Basic Studies on Phosphorus Removal by the Contact Aeration Process Using Iron Contactors, *Wat. Sci. Tec.*, 23, pp. 641-650(1991)
- 4) 須藤隆一：小規模排水対策—生活排水の特徴—，用水と廃水，33(10)，pp. 66-67(1991)
- 5) 森 忠洋他：下水管腐生物腐食の原因と対策(1)，下水道協会誌論文集，27(316)，pp. 122-129(1990)
- 6) 日本建築センター：尿尿浄化槽の構造基準・同解説—1984年度版—，pp. 201-202(1984)
- 7) 竺 文彦他：農業集落排水処理施設における省エネ運転に関する研究，環境技術，17(4)，

pp. 11-15(1988)

- 8) 日本工業標準調査会：JIS G 3101, 日本規格協会, pp.1-4(1987)
- 9) 日本金属学会, 日本鉄鋼協会：鉄鋼材料便覧, p. 554(1967)
- 10) 日本工業標準調査会：JIS K 0102, 日本規格協会(1985)
- 11) 日本下水道協会編：下水試験方法, 日本下水道協会(1983)
- 12) 下平三郎：細菌による金属の腐食, 防食技術, 22(1), pp. 2-9(1973)
- 13) 腐食防食協会編：防食技術便覧, 日刊工業新聞社, p. 239(1986)
- 14) H.H.Ulig: Corrosion and Corrosion Control, by John Wiley & Sons, Inc., pp.92-95 (1971)
- 15) 庄野利之他：入門機器分析, 三共出版, pp. 120-125(1988)
- 16) 日根文男：腐食工学の概要, 化学同人, pp. 25-29(1983)
- 17) 伊藤伍郎：腐食科学と防食技術, コロナ社, pp. 109-111(1971)
- 18) 西口 猛他：生物膜法による高率の脱リン技術(II), 農土誌, 54(8), pp. 31-36(1986)
- 19) C.A.H. von W.Kuhr: Unity of Anaerobic and Aerobic Iron Corrosion Process in the Soil, *Corrosion*, 17, pp. 293-299(1961)
- 20) 佐々木英次：硫酸塩還元菌による軟鋼の復極現象の可能性, 防食技術, 26(3), pp. 125-132(1977)
- 21) 小林豊治：細菌腐食(I), さび, 107, pp. 7-8(1986)
- 22) 竹内準一他：硫酸塩還元菌の計数法および硫酸還元活性の測定法, 水質汚濁研究, 11(1), pp. 38-49(1988)
- 23) 石本 真：「無機硫黄代謝」日本生化学学会編, pp. 142-143, 東京化学同人(1984)
- 24) 山中武生：微生物のエネルギー代謝, 学会出版センター, pp. 45-62(1986)
- 25) 佐々木英次：微生物腐食, 防食技術, 34(7), pp. 427-428(1985)
- 26) 竹内準一：硫酸塩還元細菌の生理生態, 用水と廃水, 31(4), pp. 14-25(1989)
- 27) 川島朝日他：硫化水素を含む酸性溶液中の軟鋼のカソード反応における硫化水素の作用機構, 日本金属学会誌, 38(6), pp. 553-559(1974)
- 28) U.R.Evans: The Corrosion and Oxidation of Metals, Arnold, London, pp. 275-278 (1968)
- 29) 厚生省生活衛生局水道環境部：浄化槽の維持管理, 日本環境整備教育センター, p. 304 (1986)
- 30) 上記29), p. 206
- 31) 西口 猛他：鉄接触材を用いた間欠曝気方式によるリン・窒素同時除去の基礎研究, 水質汚濁研究, 12(12), pp. 33-39(1989)
- 32) M.Romanoff: Underground Corrosion, National Bureau of Standards(1957)
- 33) J.W.West, 柴田俊夫訳：腐食と酸化, 産業図書, pp. 104-106(1983)
- 34) 下平三郎：細菌による金属の腐食, 防食技術, pp. 2-9(1973)
- 35) 西口 猛：鉄接触材を用いたリン除去技術[IV] -鉄材利用による脱リンの原理-, 用水と廃水, 32(3), pp. 39-49(1990)

第3章 高率のリン除去を安定して達成するための管理手法

3.1 実験目的

前章により、「鉄ろ材接触曝気方式」が新しいリン除去法として有望であること、長期間にわたって安定した高率のリン除去を達成するためには鉄ろ材をSRB腐食が起こる環境の曝気槽に浸漬するのが重要であることなどが明らかとなった。しかし、前章の実験は2ヶ月半程度の比較的短期間のものであったため、「鉄ろ材接触曝気方式」を実用化するためには、さらに適切な維持管理手法を確立するための検討を行い、リン除去の安定性を長期間にわたって実証することが必要であると考えられる。

本章では、このようなことから約1年間連続して行った室内実験の結果を報告¹⁾し、その適切な維持管理手法について考察する。

また、そこで発生した汚泥を利用した実験により、「鉄ろ材接触曝気方式」で発生する汚泥の管理方法についても考察した。

3.2 実験方法

(1) 処理実験の概要

現在広く利用されている接触曝気法では、有機物の除去が主目的となっている。そこで、第一の実験(以下[実験A])では鉄ろ材を浸漬した曝気槽において、BOD、CODといった有機物の処理が良好に行われるように、曝気槽底部に沈殿した余剰汚泥の引き抜きのみを行ったときの、リン除去の長期的な安定性を検討した。

[実験A]には、Fig.1に示すように、前章の実験とおなじくプラスチック製の曝気槽を3室直列に連ねた処理実験装置を1系列用いた。各曝気槽の有効容量は10ℓであり、3室の合計容量は30ℓである。

人工汚水としては、前章の実験で用いたのと同様のものを使用した。また、汚水は20ℓ/日の割合で定量ポンプによって連続的に供給した。この送水量により、曝気槽内での汚水の滞留時間は約36時間となる。

各曝気槽に対してはFig.1に示すように、ブローにより曝気を行った。その送風量は前章の実験と同様に、全実験期間中で、各系列ともに曝気槽第1室のDO濃度が2.5mg/ℓ、第2室が4.5mg/ℓ、第3室が6.5mg/ℓになるように曝気量を制御した。槽内の水温は、水中ヒータを使用して常に25℃以下に低下しないようにした。

このような条件のもとで、全ての曝気槽に先ずプラスチック製の球状ろ材を浸漬して30日間の処理を行い、BOD・CODの処理が安定したことを確認した。このろ材は、前章の実験で用いたろ材と同様のものであり、接触表面積は95cm²/個で、各室に105個ずつ浸漬した。ろ材の表面積は各室あたり9,975cm²、ろ材浸漬密度は99.7m²/m³であった。

その後、曝気槽第1室のろ材のみを鉄ろ材と交換した。鉄ろ材は前章の実験と同

様にSS41鋼板で、ろ材の寸法は15cm×20cm、厚さ0.4mmのものを16枚浸漬した。鉄ろ材の表面積は9,600cm²であり、交換したプラスチックろ材の表面積とほぼ同じとなり、ろ材浸漬密度は96.0m²/m³であった。[実験A]は鉄ろ材を浸漬してから220日間継続した。

後述のように、[実験A]ではT-P除去率は経日的に漸減する傾向が見られ、その原因は生物膜の過度の肥厚化であると考えられた。そこで、適宜ろ材の逆洗浄を行い、鉄ろ材表面の生物膜の過度の肥厚化を防止することによって、リン除去を長期的に安定させることができるかどうかを検討するために、第二の実験（以下[実験B]）を行った。この実験も[実験A]と同じく、曝気槽を3室直列に並べたものを使用した。各曝気槽の容量は12ℓとやや大きいものに変更した。これは、鉄ろ材の逆洗が効果的にできる曝気槽を新たに作成したためである。

浸漬したプラスチックろ材の形状・表面積は[実験A]と同一であるが、逆洗浄を効果的に行うために、鉄ろ材の表面積は7,680cm²（SS41鋼板、160mm×200mm×0.4mm×12枚、比表面積64m²/m³）とやや少なめにした。その他の、生物膜馴致方法、汚水流入量、曝気量の設定方法などの実験条件は[実験A]と全く同様である。

[実験B]は鉄ろ材を浸漬してから260日間継続した。

逆洗浄は、曝気を通常の側面曝気方式から全面曝気方式に変更するとともに、通常の処理時よりも送風量を増加させて行った。両実験とも通常の側面曝気時の槽内流速は1~2cm/sであったが、逆洗浄時の槽内流速は15cm/sであった。

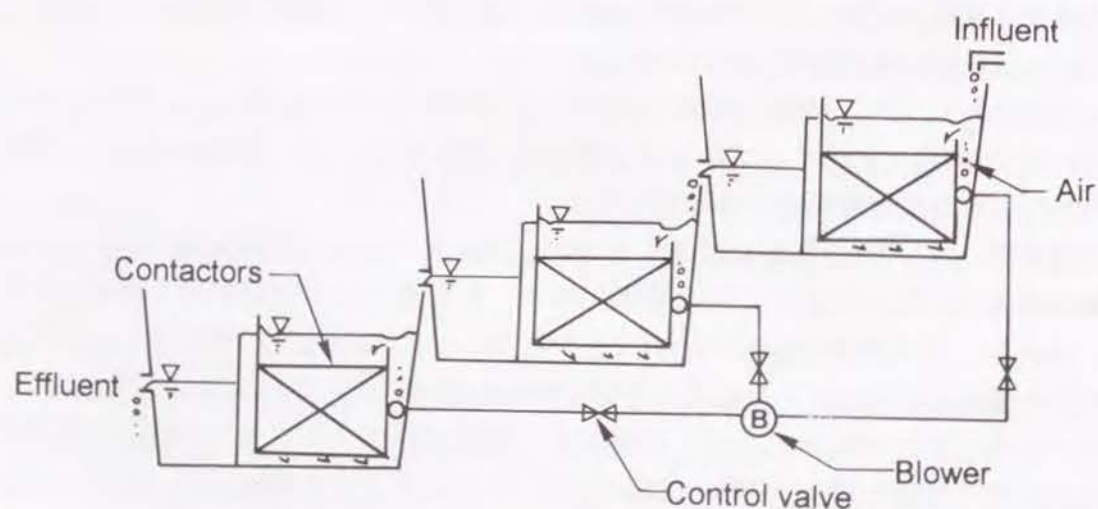


Fig. 1 Schematic figure of aeration tanks

(2) 水質分析方法

T-P濃度の測定は流入原水と曝気槽第1室、第3室の流出水について行った。ろ材交換前には、交換直前の10日間にのみ2日に1回の割合で行った。ろ材交換後にも同様に、2日に1回の割合で実験終了時まで測定を継続した。

有機物の除去状況や窒素の処理状況などの変化を確認するため、いずれの実験についても、鉄ろ材浸漬直前と浸漬後20日ごとに、定期的な水質分析を行った。測定項目は、pH、BOD、COD、T-N、各態窒素(NO₃-N、NO₂-N、NH₄-N)であり、曝気槽第1室と第3室の流出水について行った。また、同時にT-Feの分析も行った。

(3) 硫酸塩還元菌の計数

[実験B]においては、逆洗浄が生物膜中のSRBの繁殖状況に及ぼす影響を明らかにするために、鉄ろ材表面の生物膜等の着生物中に存在するSRBの計数を実験開始後90日目と実験終了時の2回行った。試料の調整および培地については、第2章の実験と同じである。ただし、計数方法は10倍希釈法からMPN法²⁾に変更した。これは、前章の実験で計数すべきコロニーが溶解して判別しにくくなることがあったためである。この現象は決して特殊なものではなく、共雑菌のなかに硫化物を可溶化してしまうものが存在したり、寒天を液化してしまうものがあるためと考えられている³⁾。なお、10倍希釈法とMPN法の結果の整合性は、あらかじめ予備実験により確認している。この方法の変更に伴って培養期間は10日間に延長した。

(4) 鉄ろ材表面着生物の分析

[実験B]については、逆洗浄がSRB腐食にどのような影響を与えたかについて検討するために、上述のSRBの計数とともに、表面着生物の分析を行った。分析はSRB計数と同じく、鉄ろ材浸漬後90日目と実験終了時の2回行った。

分析の方法や試料の調整方法は前章で行ったのと全く同じである。試料としては浸漬していた鉄ろ材の一部を裁断して用いた。

(5) 汚泥からのリンの再溶出に関する検討

前章の実験では、曝気槽底部に沈殿した鉄とリンの化合物を含む汚泥については、特に引き抜きを行わなかったが、リンの除去に悪影響は見られず、汚泥からリンの再溶出が起こったとは考えられなかった。今回の実験でも汚泥は実験装置外に適宜引き抜いたので、この実験でも汚泥からのリンの再溶出は特に問題とならなかった。

しかし、実際の現場では、曝気槽や沈殿槽に溜った汚泥は汚泥貯留槽に一時的に貯留され、その後に施設外へ搬出されるということが行われる。この搬出は普通は半年間に1回程度である。また、その時には搬出量を減らすために、貯留槽内の上澄水が処理施設にもどされる。従って、もし汚泥からの再溶出がこの期間に起こるとすれば、それは大きな問題となる。

このようなことから、[実験B]で採取した汚泥からのリンの再溶出の有無やその傾向を把握するためにつぎのような実験を行った。

[実験B]の終了時に各曝気槽底部に沈殿していた汚泥を室別に採取し、混合攪拌した後に広口瓶に入れてふたをし、20℃の恒温暗室に静置保存した。それらの試料の上澄水を調整後1, 2, 5, 30, 150日目に20mlずつ採取し、それについてT-Pの測定を行った。なお、試料に含まれるリンの量は2ℓの混合状態で、第1室の試料が914mg/ℓ、第2室が761mg/ℓ、第3室が1,597mg/ℓであった。

3.3 実験結果

(1) リン除去の経時変化

[実験A]、[実験B]におけるT-P除去率の経日変化をそれぞれ、Figs. 2, 3に示す。これらの図では長期間のリン除去性能の安定性を見るため5日間ごとの平均値を示した。なお、[実験A]で行った維持管理作業は、実験開始後165日目以降の約20日間ごとの、槽底部に沈降した余剰汚泥の引き抜きのみであった。

流入水に対する第3室流出水のT-P除去率は、両実験ともプラスチックろ材のみの処理時には5%以下であった。一方、鉄ろ材浸漬後約40日程度の期間はほぼ経日的に上昇し、その後はおおむね安定した状態が継続するようになった。これは前章の実験と同様に、鉄ろ材の腐食が溶存酸素によるものから、SRBによるものへと変化したためと考えることができる。ただし、前章の実験と違って、初期のT-P除去率の低下が見られなかったのは、この実験では前の実験に比べて大きな実験装置を用いたので、そのような変化が槽内で時間的にかなり不均一に進行したためと考えられる。実際鉄ろ材の表面は、その浸漬後40日目には全体が黒色だったが、それ以前は褐色の部分と黒色の部分が混在している状態だった。

その後[実験A]については、次のような変化が見られた。鉄ろ材浸漬後120日目までは90%以上の高率のT-P除去が継続された。しかし、T-P除去率はその後経日的に徐々に低下する傾向が見られた。鉄ろ材浸漬後200日目には約40%にまで低下した。

[実験B]についても、鉄ろ材浸漬後75日目までは90%以上の高率のT-P除去が継続された。しかし、その後、[実験A]と同様にT-P除去率は経日的に徐々に低下する傾向が見られたので、鉄ろ材浸漬後90日目以降は、第1室流出水のT-P濃度が2.0mg/ℓ以上に上昇した時点で、鉄ろ材の逆洗浄と汚泥引き抜きを行うこととした。その結果、Fig. 3に示すように、約10日間ごとにこれらの作業を行うこととなったが、実験終了時まで常に約85%以上の高率のT-P除去を安定して継続することができた。

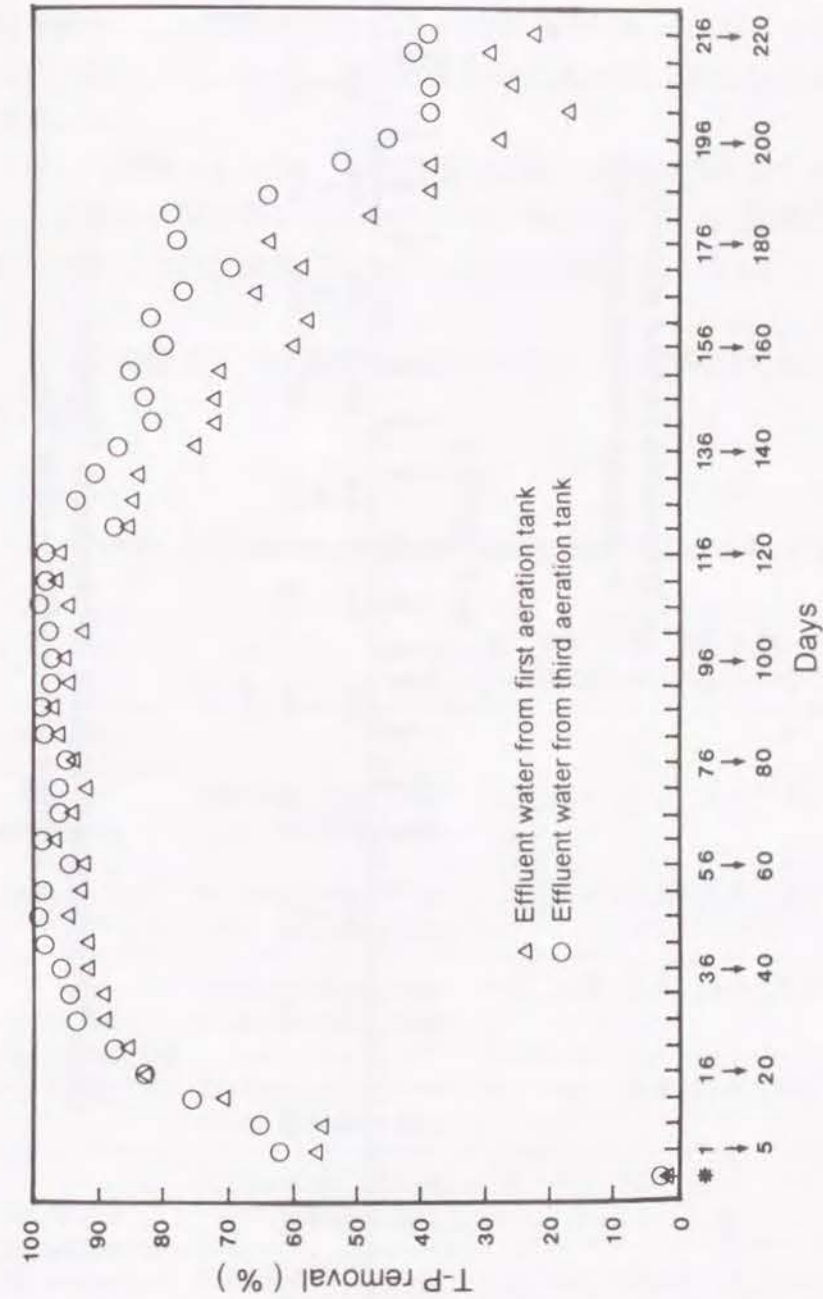


Fig. 2 Chronological changes in T-P removal in [Experiment A]
(* : Before submerging iron contactors)

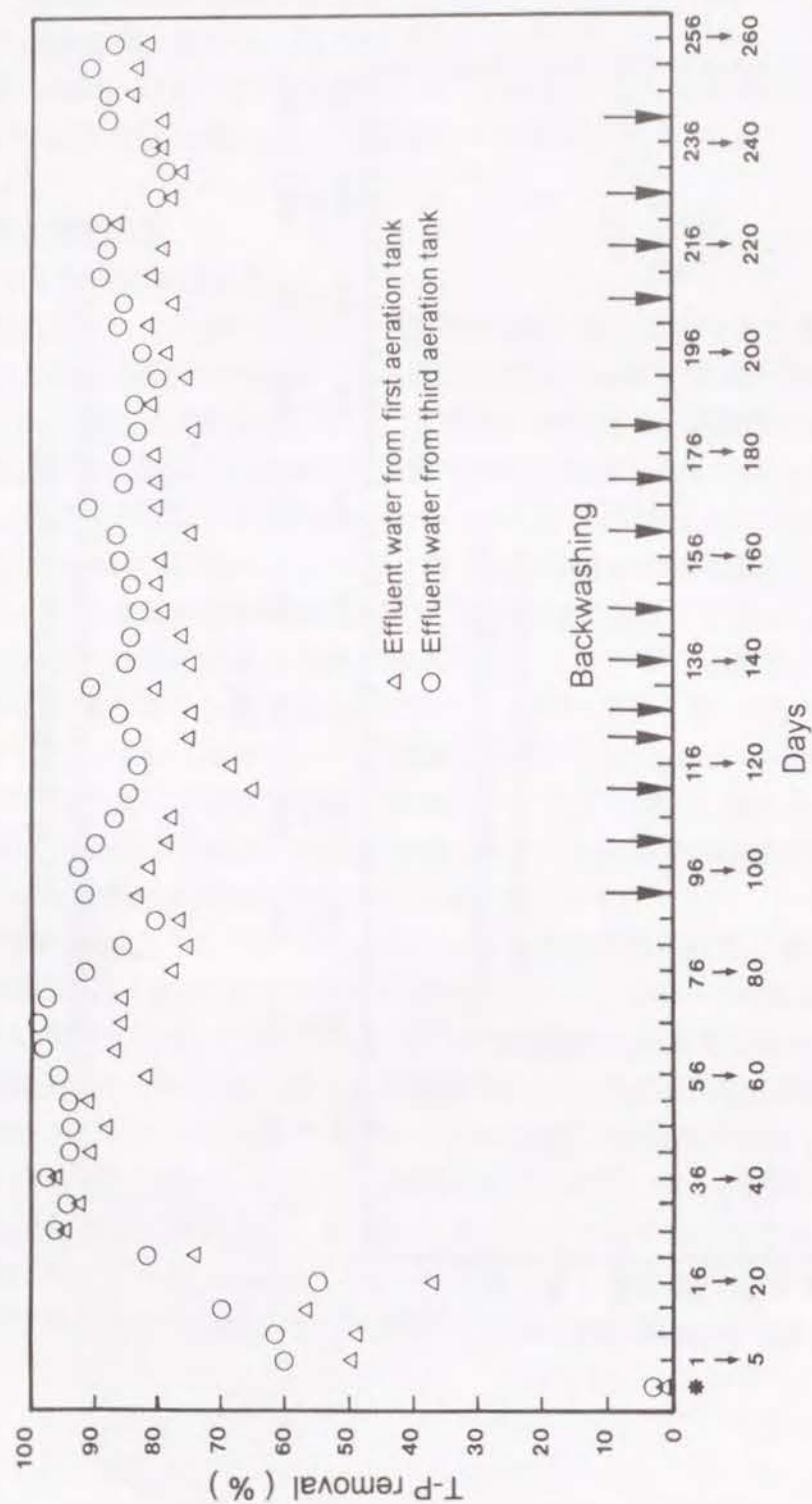


Fig. 3 Chronological changes in T-P removal in [Experiment B]
(* : Before submerging iron contactors)

(2) 有機物等の分析結果

T-P以外の水質分析は、鉄ろ材浸漬直前と浸漬後20日ごとに、定期的な水質分析を行ったが、[実験A]の鉄ろ材浸漬前と浸漬後100日目、200日目と、[実験B]の鉄ろ材浸漬後200日目の分析結果を Table 1 に示す。

[実験A]、[実験B]ともに、T-P以外のBOD、COD等の処理は実験期間中常時良好に行われていた。また、放流水質も常に良好で、着色も全実験期間で特に観察されなかった。

なお、[実験A]では、実験期間中に鉄ろ材間の目づまりは起こらなかった。しかし、逆洗浄作業を行わなかったため生物膜は経日的に肥厚化してゆく傾向が観察され、膜厚はろ材浸漬後120日目には約1mm程度であったものが、200日目には2~3mmになった。

一方、[実験B]では逆洗浄を行ったため、生物膜厚は1mm以上に厚くなることはなかった。

Table 1 Qualities of effluent water from first and third aeration tank

		pH	BOD (-)	COD (mg/l)	NO ₃ -N (mg/l)	NO ₂ -N (mg/l)	NH ₄ -N (mg/l)	T-N (mg/l)	T-Fe (mg/l)
Experiment A									
Before submerging iron contactors	Effluent water from first aeration tank	7.6	11.4	20.2	0.1	0.1	22.0	46.4	0.3
	Effluent water from third aeration tank	6.1	5.8	13.0	2.5	0.2	17.8	45.2	0.2
100th day after submerging iron contactors	Effluent water from first aeration tank	7.7	13.4	21.4	0.2	0.1	23.8	47.4	2.2
	Effluent water from third aeration tank	6.0	5.4	12.3	20.8	0.2	5.4	46.5	0.7
200th day after submerging iron contactors	Effluent water from first aeration tank	7.6	14.1	22.5	0.1	0.1	24.2	45.4	0.9
	Effluent water from third aeration tank	6.0	4.5	13.4	21.7	0.2	4.3	46.8	0.5
Experiment B									
200th day after submerging iron contactors	Effluent water from first aeration tank	7.6	10.1	20.0	0.1	0.1	23.3	47.2	1.2
	Effluent water from third aeration tank	6.1	5.0	12.6	19.1	0.1	5.1	46.6	0.6

(3) 硫酸塩還元菌の計数結果

SRBの計数結果は Table 2 に示すとおりである。その実施時期にかかわらず、計数値は $10^7 \sim 10^8$ 個/ dm^2 の範囲にあり、経時的な変化はほとんどみられなかった。

Table 2 Results of SRB counts

90 th day after submerging iron contactors (Cells/ dm^2)	2.9×10^7
260 th day after submerging iron contactors (Cells/ dm^2)	3.5×10^7

(4) 鉄ろ材表面着生物の分析結果

表面分析結果は Table 3 に示すとおりである。

Table 3 Analytical results of precipitation and membrane on iron surface

Element name	90th day after submerging iron contactors		260th day after submerging iron contactors	
	Precipitation (Weight %)	Membrane (Weight %)	Precipitation (Weight %)	Membrane (Weight %)
Si	8.2	3.6	7.7	5.5
P	1.9	tr.	2.2	1.2
S	3.6	1.2	2.9	3.1
Fe	86.3	95.1	87.2	90.2

鉄ろ材浸漬後90日目と、実験終了時のどちらも硫化鉄の存在を示唆する S (硫黄) が検出されている。また、両者を比較した場合、実験終了時のほうが S の検出量が少ないという傾向は特に見られなかった。

(5) 汚泥からのリンの再溶出実験結果

実験結果は Fig. 4 に示すとおりである。いずれの室から採取した汚泥の上澄水についても、T-Pの濃度は概ね経時的に低下し、30日目以降にはほぼ定常状態となった。すなわち、実験開始後150日目でも、T-Pはどの室も約 0.5mg/l 以下であり、問題となるようなリンの再溶出現象は全く観察されなかった。

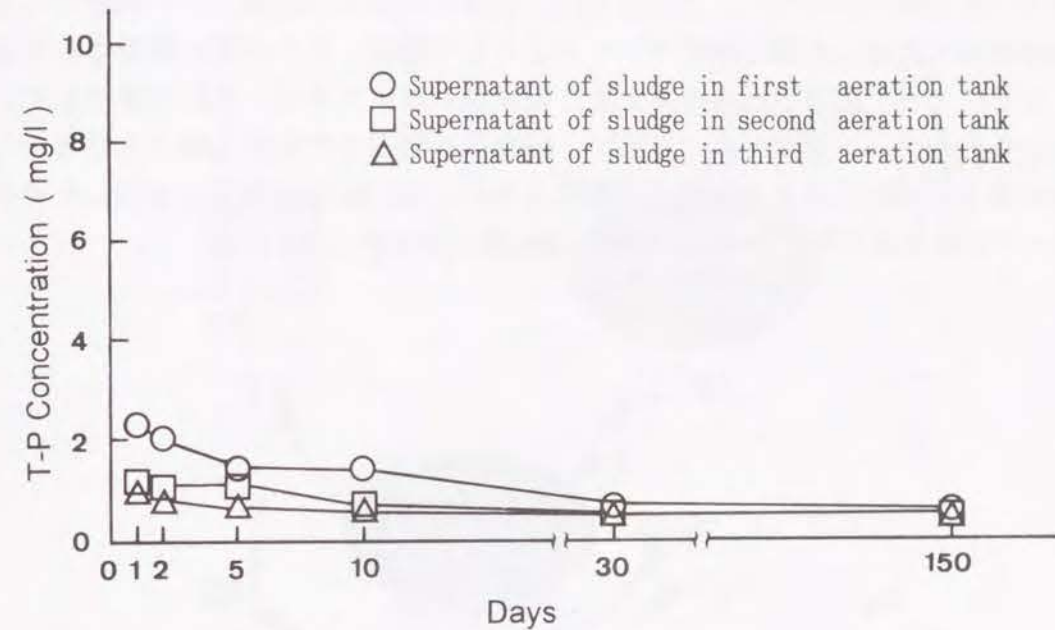


Fig. 4 Chronological changes in T-P concentration in supernatant of precipitated sludge

3. 4 考察

(1) 鉄ろ材によるリン除去性能の経日変化と逆洗浄の効果

Figs. 2, 3 に示したように、[実験A]については実験が長期にわたるにつれてT-P除去率は大きく低下したが、[実験B]では安定して高率のT-P除去を達成することができた。

まず、[実験A]で経日的にT-P除去率が低下した原因を考察する。この経日的なT-P除去率の低下は、鉄ろ材の腐食速度が徐々に低下したために起きたものと考えられる。この腐食速度の低下は生物膜中に存在する全てのSRBが鉄ろ材の腐食に大きく関与しているわけではなく、鉄ろ材の表面近くで活動しているものが腐食速度に影響を与えやすいという考えによって説明することができよう。以下にそのことを詳述する。

SRB腐食のメカニズムは前章でもふれたように、未だ十分に明らかとなっていない。しかし、有力と考えられている代表的なメカニズムはいくつかに絞られる。それらを整理し、表面生成物中のSRBの存在場所とその腐食促進効果という点について考察すると次のようになる。

まず、前節で述べたヒドロゲナーゼ復極説のメカニズムで腐食が進行するためには、鉄ろ材表面にSRBが接触する必要がある。したがって、鉄ろ材表面から離れて存在するSRBは腐食と全く無関係と考えられる。

つぎに、Fig. 5 に示したのは、硫化鉄マクロカソード・ヒドロゲナーゼ復極説とも言うべきものである^{4) 5)}。この説では、全体の反応式は前説と全く同様であるが、鉄の表面に沈着した硫化鉄がカソード部として働き、その表面に吸着された水素がSRBによって利用されると考える。硫化鉄が着生すると、それが着生していない時よりもカソード面積が広がって、腐食に有効なSRB数も増える⁶⁾。この場合もSRBによって腐食が起こるためには、鉄ろ材表面に着生したマクロカソードとなる硫化鉄とSRBは接触する必要がある。

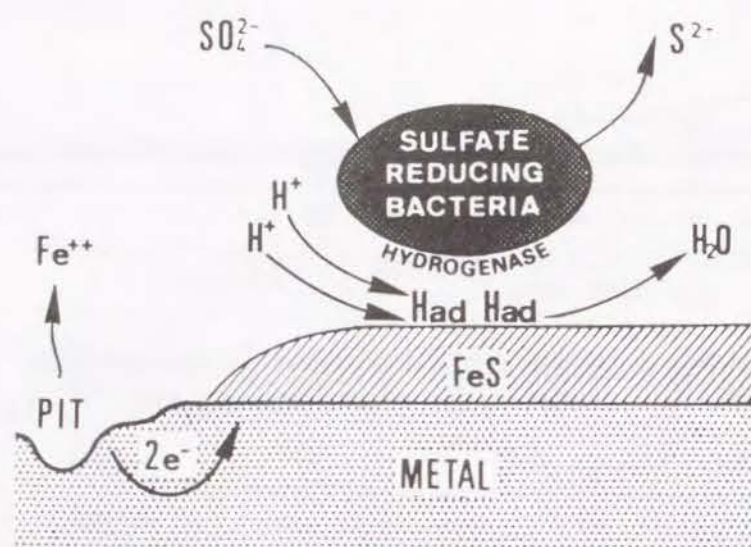


Fig. 5 Schematic figure of iron corrosion (FeS-macro cathode · hydrogenase depolarization theory)

Figs. 6, 7 に示したのは、硫化水素によるカソード復極説とも呼ぶべきものである^{7) 8)}。この説では、SRBの生成したH₂Sが鉄の表面で Fig. 7 のIやIIの反応を起こし、これがカソード反応になると考える。

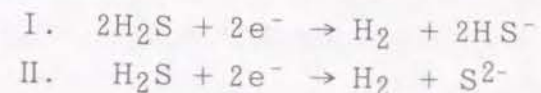


Fig. 6 Cathodic reaction by hydrogen sulfide^{7) 8)}

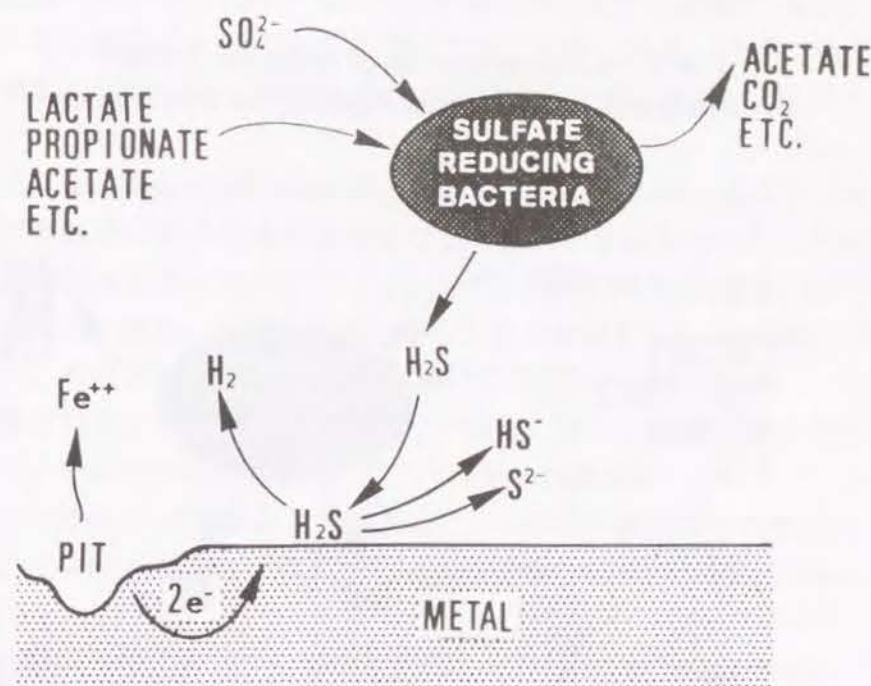


Fig. 7 Schematic figure of iron corrosion (hydrogen sulfide cathodic depolarization theory)

Figs. 8, 9 に示したのは、硫化水素触媒説とも呼ぶべきものである⁹⁾。この説では、SRBが生成したH₂SやHS⁻が Fig. 8 の反応によって、前章のFig. 10 に詳述した水素発生反応の触媒となると考える。

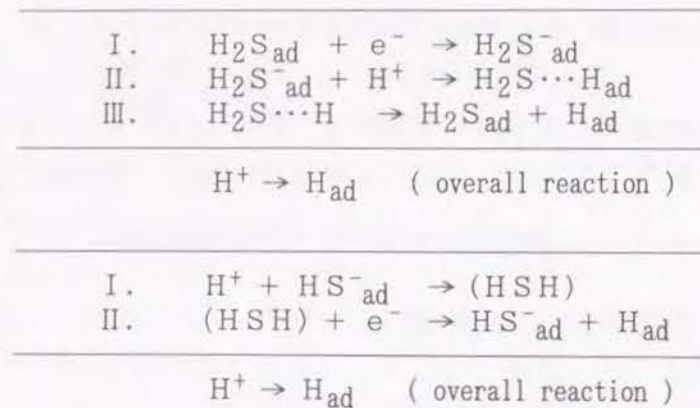


Fig. 8 Catalyst reaction of hydrogen sulfide⁹⁾
(ad indicates the matter adsorbed on the iron surface)

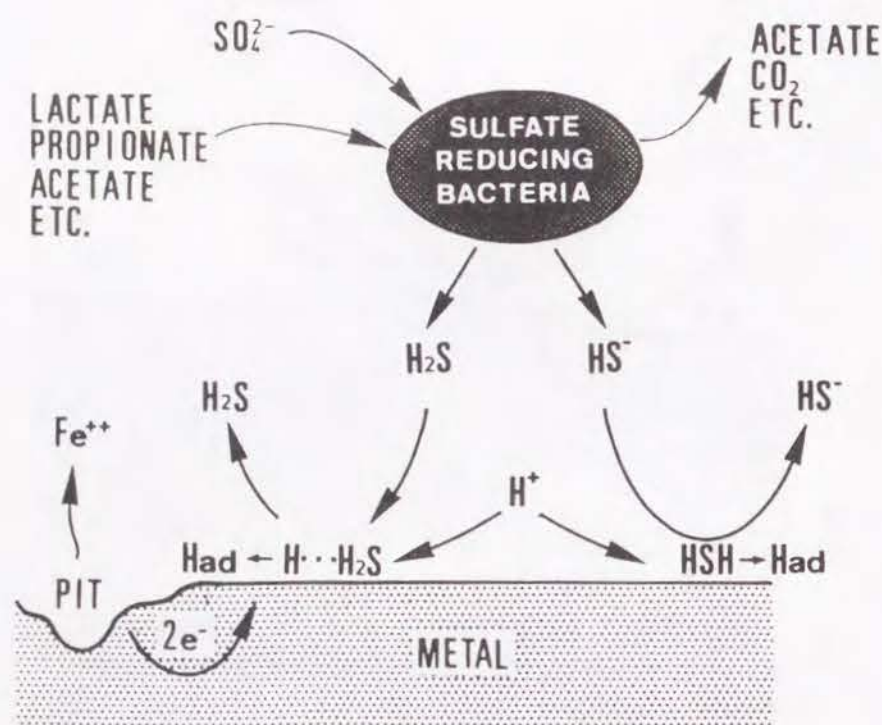


Fig. 9 Schematic figure of iron corrosion
(hydrogen sulfide catalyst theory)

最後の2つの説は前の2説とちがい、SRBが腐食に関与するためには、鉄や硫化鉄そのものに接する必要はないと考えている。しかし、いずれもSRBの発生した硫化水素などは、拡散によって鉄表面にまで到達しなければならないので、SRBが鉄表面に近いほどそれらは効果的に鉄表面に到達すると考えられる。

以上のことから、現在有力であると考えられているSRB腐食のメカニズムのどれにおいても、生物膜中に存在する全てのSRBが鉄ろ材の腐食に均等に関与するのではなく、鉄ろ材表面の近傍でSRBの生存・増殖に適した環境が形成されるほど鉄ろ材の腐食速度が速くなると考えられる。

一方、生物膜中の微生物に対する栄養基質の供給速度は、生物膜の深部に向かうに従って小さくなるものと考えられる¹⁰⁾。またSRBに有用な栄養基質としては、硫酸還元反応で電子供与体になると共に同化作用に利用される有機物(BOD)、および電子受容体となる硫酸イオン(SO₄²⁻)等が考えられる。また、次章に示すように鉄ろ材単位面積あたりのBOD負荷が大きいほど腐食速度が速くなることも明らかにされている。

従って、[実験A]でのT-P除去率の経日的な低下は、生物膜の肥厚化に伴い、SRBに有用な栄養基質が鉄ろ材表面近傍まで十分に供給されなくなり、それによって鉄ろ材表面近傍でSRBが存在しにくくなって、鉄ろ材の腐食速度が低下したのが原因と考えられる。また、SRB繁殖に最も大きな影響を与えた基質は、BODである可能性が高いと考えられる。

一般に、海底でのSRBの活性も表面近くで高く、深くなるほど低くなることが知られているが、上述の考察に関連した現象と考えられ興味深い¹¹⁾。

このようなことから、[実験B]で安定したT-P除去が達成できたのは、[実験A]とは逆に、生物膜が過度に肥厚化することが逆洗浄によって防止されたためと考えられる。

従って、鉄ろ材接触曝気方式で長期的に安定してT-P除去を行うためには、逆洗浄などの手段により、生物膜が過度に肥厚化しないように、膜厚の制御を行わなければならないと考えられる。ただし、ここでの逆洗浄は決して鉄ろ材表面の生物膜をすべて剥離させるほどのものである必要はない。実際、この実験でも、生物膜は常時0.5mm程度は残っており、それでもこのように十分な効果が認められた。

なお、実施設で本作業を完全に自動化することは十分に可能であると考えられるので、この作業により鉄ろ材接触曝気方式の大きな利点の一つである、処理の簡便性が失われることは特になく考えられる。

(2) 鉄ろ材表面のSRB繁殖量と硫化物蓄積状況

Table 2により、[実験B]では鉄ろ材表面の付着物中のSRBの繁殖数は、逆洗浄を行い始める前の実験開始後90日目と、実験終了時の260日目では、その検出数はほとんど変わっていないことがわかる。また、Table 3によると、表面着生物についても同様に、時期の違いによらずS(硫黄)が検出され、その検出量が減少し

たという傾向もない。

これらのことから、[実験B]では、逆洗浄による鉄ろ材表面のSRB繁殖に対する悪影響は特になく、実験終了時までSRBによる鉄ろ材の腐食が安定して進行していたことが確認できる。

(3) 余剰汚泥の管理について

Fig. 4により、余剰汚泥中の鉄とリンの結合は極めて安定した状態となっており、貯留中に問題となるほどのリンと鉄が汚泥から再溶出してしまふ危険性は極めて低いと考えられる。そのため、鉄ろ材接触曝気方式の余剰汚泥の管理について頻繁にその系外搬出を行うといった特別な考慮をする必要はほとんどないと考えられた。

3. 5 まとめ

本章では、約1年間にわたって行った室内実験の結果を報告し、「鉄ろ材接触曝気方式」で高率のリン除去を長期的に安定して行うための維持管理方法について検討した。また、この方法によって発生する汚泥中の鉄とリンとの結合の安定性についても検討し、余剰汚泥の管理方法を考察した。

その結果と考察をまとめると以下ようになる。

- ①有機物の処理が良好であっても、リンの除去率が低下する場合のあることがわかった。このときのリン除去の低下原因は、生物膜の過度の肥厚化による鉄ろ材表面近傍でのSRBの繁殖や活動の低下であると考えられた。
- ②ろ材の逆洗浄を定期的に行って、生物膜が過度に肥厚化しないようにしたところ、SRB腐食を安定して継続でき、リン除去率の低下を防止することができた。
- ③以上のことから、「鉄ろ材接触曝気方式」で高率のリン除去を長期的に安定して行うためには、生物膜の過度の肥厚化を防止することが極めて重要であることがわかった。具体的には、定期的なろ材の逆洗浄管理が有望であるが、現場では、この作業は完全自動化することも可能なので、特にこの方法の維持管理に関する負担の増大にはつながらないと考えられた。
- ④余剰汚泥からのリンの再溶出の可能性は極めて低く、この方法の余剰汚泥の管理については、通常の接触曝気法以上の特別な考慮をする必要はほとんどないと考えられた。

引用文献

- 1) 治多伸介他：鉄ろ材接触曝気方式による脱リンの実験的研究(II)ーリン除去の長期的安定性と水温・流速変化の影響ー, 農土論集, 158, pp.57-63(1992)
- 2) 門田元他編：海洋微生物研究法, 学会出版センター, pp.117-127(1985)
- 3) 竹内準一他：硫酸塩還元菌の計数法および硫酸還元活性の測定法, 水質汚濁研究, 11(1), pp.38-49(1988)
- 4) R.A.King et al.: Corrosion by the Sulfate Reducing Bacteria, *Nature*, 233, pp.491-492(1971)
- 5) R.A.King: Corrosion of Mild Steel by Ferrous Sulfide, *Br. Corros. J.*, 8, pp.41-45(1973)
- 6) H.C.Flemming et al.: Biofouling and Biocorrosion in Industrial Water Systems, Springer-Verlag, p.189(1991)
- 7) K.Kaesche: Electrochemische Untersuchungen über die Korrosion des eisens in Sulfidhaltigen Lösungen, *Welk. U. Korros.*, 211, pp.185-195(1971)
- 8) P.W.Bolmer: Polarization of Iron in H₂S-NaHS Buffers, *Corrosion*, pp.69-75(1965)
- 9) 川島朝日他：硫化水素を含む酸性溶液中の軟鋼のカソード反応における硫化水素の作用機構, 日本金属学会誌, 38(6), pp.553-559(1974)
- 10) K.Williamson et al.: A Model of Substrate Utilization by Bacterial films, *JWPCF*, 48(1), pp.9-24(1976)
- 11) H.R.Rosser et al.: Simple Assay for Accute Determination of [³⁵S]Sulfate Reduction Activity, *Appl. Environ. Microbiol.*, 42, pp.1956-1959(1983)

第4章 季節的な水温変化を考慮した管理手法

4.1 実験目的

前章では、「鉄ろ材接触曝気方式」によって高率のリン除去を安定して達成するための維持管理手法として逆洗浄を提案し、その有効性を実証した。これにより、この方法の実用化には一応の目途がたったと言っても過言ではなからう。

しかし、実際の施設では、前章までに述べてきた実験条件とかなり異なった環境が存在することがある。その一つとして、曝気槽内の水温変化があげられる。曝気槽は冬期に水温が大きく低下しないように、土壌中に埋設されるのが普通である。しかし、それでも冬期の水温低下を完全に防止することはできない。

Fig. 1 は、著者が滋賀県内の農業集落排水施設で測定した年間の水温変動の例である。このように、一般に現地施設の曝気槽内の水温は夏季には25℃程度であるが、冬期には12~13℃程度にまで低下することが知られている。水温低下時には生物膜中の微生物の活性や増殖速度が低下し、曝気槽の有機物処理性能や硝化性能が低下する場合のあることが知られている。

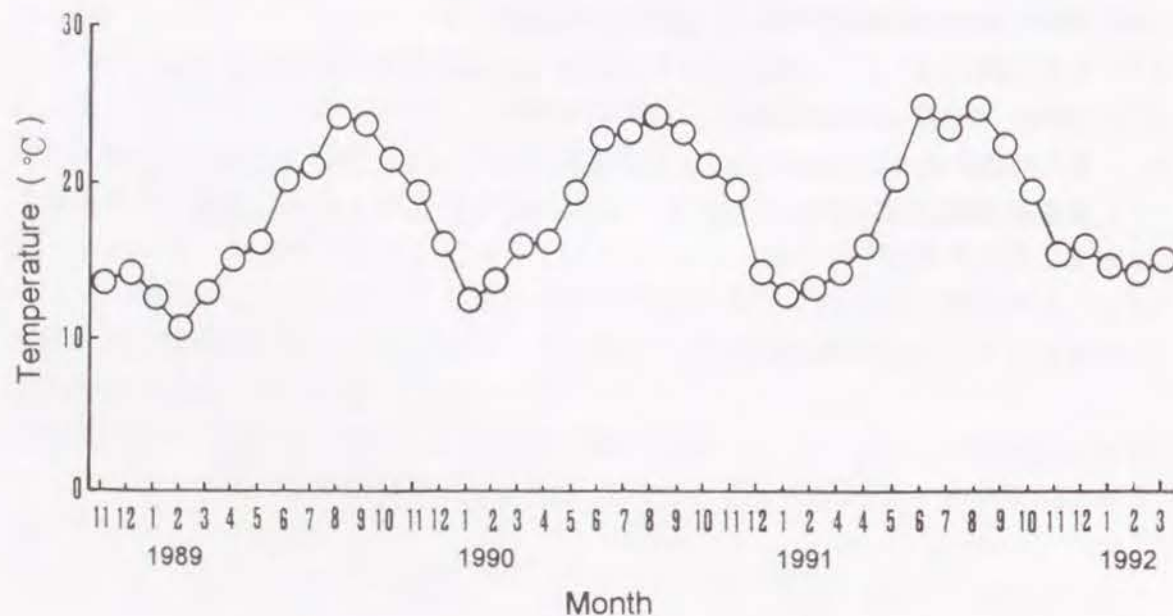


Fig. 1 Chronological changes in water temperature in rural sewerage

ところで、「鉄ろ材接触曝気方式」における鉄ろ材からの鉄イオンの溶出も、微生物の作用（SRBの生命活動）がその駆動力となっている。したがって、鉄ろ材の腐食速度やリン除去性能に対する水温変化の影響を把握しておくことは、極めて重要であると考えられる。

このようなことから本章では、経目的に水温を変化させた実験を行い、鉄ろ材の腐食速度やリン除去性能に対する影響を検討するとともに、これをふまえて適切な維持管理方法について検討した¹⁾。

4.2 実験方法

(1) 処理実験の概要

槽内水温以外については、この実験の条件は第3章の[実験B]と同様である。すなわち、使用した実験装置やろ材についての条件、ろ材の交換方法やその量、使用した汚水や流入条件、曝気量などの設定については全く同様とした。

水温については、鉄ろ材浸漬後35日目までは[実験B]とおなじく25℃としたが、その後はサーモスタット付きの水中ヒーターによって約20~30日ごとに変化させた。実験開始後36日目から55日目までは20℃、56日目から80日目までは15℃、81日目から110日目までは10℃から15℃と、段階的に水温を低下させた。また、その後は逆に、111日目から130日目までは15℃、131日目から160日目までは20℃、161日目以降については25℃と、段階的に水温を上昇させた。鉄ろ材浸漬以降の実験期間は180日間である。

また、この実験では前章の結果をふまえ、鉄ろ材浸漬槽（曝気槽第1室）の逆洗浄と汚泥引き抜きを、水温を変化させた前日と各水温安定期間内に約10日間隔で1~2回、すなわち、実験開始後、35、45、55、65、80、90、100、110、120、130、145、160、170日目に行った。

(2) 水質の測定

T-Pの測定は鉄ろ材浸漬後に2日に一度の割合で、流入原水と曝気槽の第1、3室流出水について行った。

T-Feの分析についても同様の地点、頻度で行った。

(3) 腐食減量の測定

実験に用いた全ての鉄ろ材は、あらかじめ重量を測定したのちに曝気槽へ浸漬した。そして、実験終了後に全ての鉄ろ材の表面着生物を市販の歯ブラシによって剥離させ、デシケーター内で乾燥させた後に重量を測定した。測定した重量差から鉄ろ材の腐食減量を求めた。

同様の方法によって測定した、第3章[実験B]の全実験期間を通じての腐食減量は131.6gであった。これから実験期間の平均腐食速度を算出すると、7.2mg/dm²・日（以下、mdd）となる。この値と本実験で得られた平均腐食速度を比較することによって、水温の変化が腐食速度に与える影響を評価することができると考えられる。

なお、mddという単位は腐食工学の分野でよく使用されるもので、この値を0.1倍すればg/m²・日の単位に換算できる。

4. 3 実験結果

(1) リン除去と鉄濃度の経時変化

本実験における曝気槽流出水のT-P除去率および鉄濃度の経日変化を Fig. 2 に示す。試料の採取・分析は原則として2日に一度の割合で行ったが、この図ではリン除去性能の長期的な変化傾向を見るため5日ごとの平均値を示した。流入水に対する曝気槽第3室流出水のT-P除去率は、前章〔実験B〕と同様に、鉄ろ材浸漬後約30日間は経日的な上昇傾向が見られた。その後除去率は安定し、実験終了時まで約85%以上の除去が常に継続された。すなわち、水温が低下したにも関わらず、放流水の水質は特に悪化せず、大きな変化はみられなかった。

しかし、第1室流出水のT-P除去率は、実験前半の水温の低下にともなって80%から65%程度に低下し、実験後半の水温上昇とともに再び元の80%程度まで上昇する傾向が見られた。

T-Feの濃度については、流入原水では常に0.3~0.5mg/l と低い値で安定していたので特に図示していない。曝気槽第3室流出水では常にほぼ1mg/l 以下と低く、水温の変化に関わらず着色は特に観察されなかった。しかし、第1室流出水では実験開始後56日目までの傾向は〔実験B〕と同様であったが、61日目以降の水温を15℃以下にした期間では徐々に上昇する傾向があり、81日目から110日目までの期間に約8~10mg/l で安定した。その後水温の上昇に伴って低下し、161日目以降は〔実験B〕とほぼ同程度まで低下した。

なお、この実験のいずれの期間においても有機物の除去は良好に行われていた。

(2) 腐食減量の測定結果

実験終了時に測定した鉄ろ材の腐食減量は89.9gであり、これから算出した鉄ろ材浸漬期間中の平均腐食速度は6.5mddとなった。

4. 4 考察

(1) 曝気槽第1室流出水のリン除去率と鉄イオン濃度の変化

曝気槽第1室の流出水については、水温が低下するとT-Fe濃度は高くなり、それにもともなって第1室でのT-P除去率は低下する傾向がみられた。

次節で詳しく述べるが、本実験においては、水温低下に伴う鉄ろ材の腐食速度の低下はほとんどなかったと判断できた。従って、このような曝気槽第1室でのT-P除去率の低下現象は、次のような原因によるものと考えられる。鉄ろ材から溶出した直後の鉄の形態は、2価イオンであることが知られている²⁾。またpH中性域では2価イオンは3価イオンに比較して水酸化物（非溶解性物質）を生成しにくく³⁾沈殿しにくく、またリン酸化合物も生成しにくい（リン酸との親和性が低い）⁴⁾といわれている。これらのことから、水温低下に伴う第1室流出水のT-Fe濃度の上昇やT-P除去率の低下現象は、曝気槽第1室での2価鉄イオンから3価鉄イオンへの酸化速

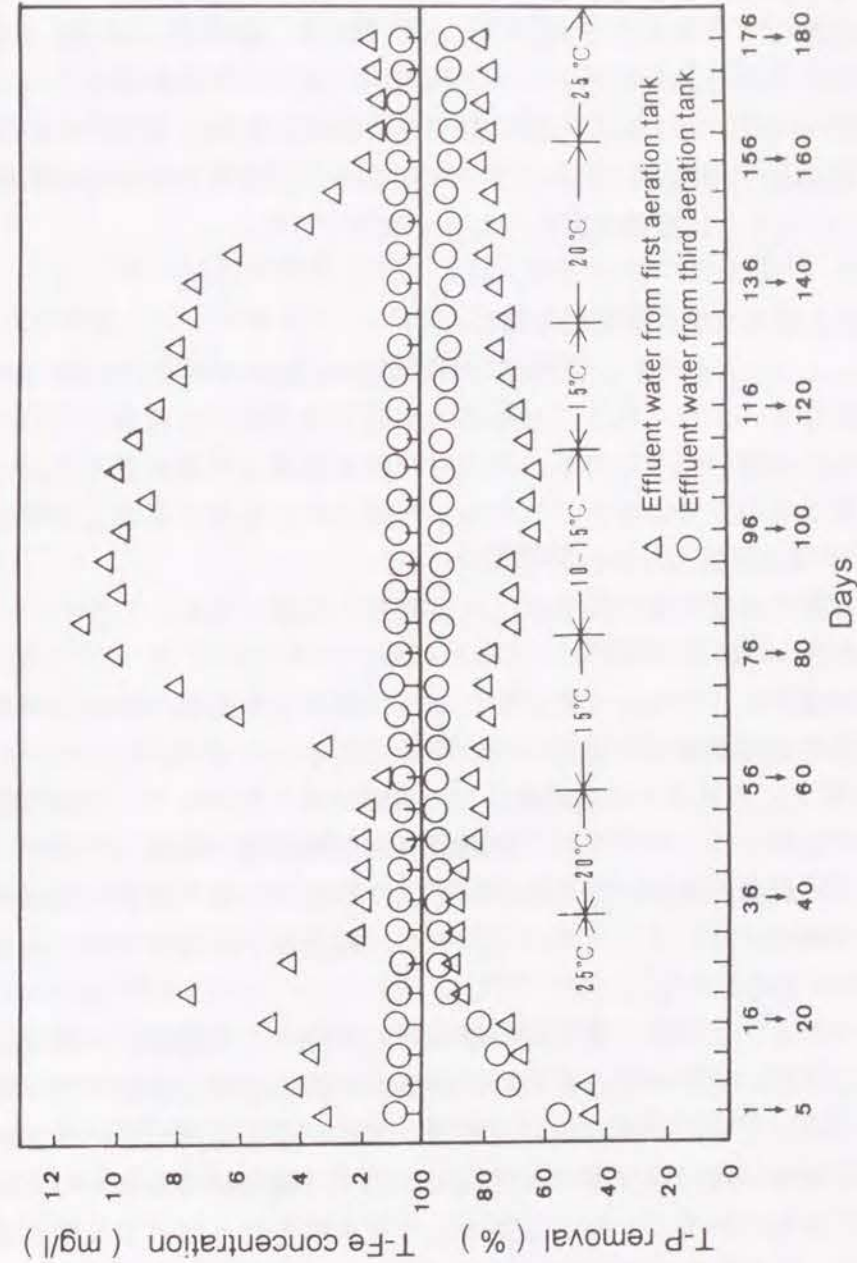


Fig. 2 Chronological changes in T-P removal and T-Fe concentration

度が低下したことが主な原因であると考えられる。

なお、この水温低下にともなう鉄イオンの酸化速度の低下は、溶存酸素による純化学的な酸化速度が低下したためとも考えられるが、曝気槽での鉄バクテリアの活性が低下したためと考えるほうが妥当であろう。このことは Fig. 2 において、T-Fe の変化が決して水温を変化させた際に急激に変化していないことから推察される。

鉄バクテリアと呼ばれるものには多数の種類があつて、その生態も様々であるが、共通しているのは水中に存在する Fe^{2+} を酸化して Fe^{3+} とし、この時に生じるエネルギーを生命活動に利用していることである⁵⁾。この実験で、曝気槽にどのような鉄バクテリアが存在し、またそのうちのどれがこの現象に最も大きな影響を与えていたかは十分に明らかでない。しかし、一般に曝気槽にひろく存在するといわれている *Sphaerotilus natans* は代表的な鉄バクテリアであり⁶⁾、これが本実験中に曝気槽内に多数存在していたことは顕微鏡観察によって確認できた。

(2) 鉄ろ材腐食速度と放流水リン除去率の変化

Fig. 2 からわかるように、鉄ろ材浸漬期間における曝気槽第3室でのT-P除去率は、第1室流出水とは異なり、水温の低下にともなって低下するという現象はみられなかった。このことは、水温が低下しても、鉄ろ材の腐食速度は水温の低下によってあまり変化せず、第1室で十分に酸化されなかった鉄イオンも第2室および第3室では酸化され、T-P除去に貢献したためと考えられる。

実際、この実験の腐食速度の算出結果は、[実験B]の値と比較してやや小さいが、その差は全腐食速度の約10%程度にすぎなかった。

S R Bの活性が水温によって大きく変化すること⁶⁾はよく知られているにもかかわらず、この様に腐食速度があまり変化しない原因は明らかでない。しかし、河川底泥からの H_2S 発生量も、S R Bのみの培養系での実験結果と比較して、水温の影響を受けにくいことが指摘されており⁷⁾、この現象も本実験結果と類似した原因によるものであると考えられ興味深い。これについては、S R Bと他の細菌の助棲作用^{7) 8)}のためである可能性が高いと考えられる。また、優先種が低温で生きられる菌種⁹⁾へと変化したためかもしれない。

第3章にまで述べてきたように、実用時の鉄ろ材の浸漬はこの実験と同様に、S R Bによる腐食を効率的に起こさせるために、DO濃度が低く有機物負荷の高い曝気槽の第1室に行くこととなる。したがって、冬期に水温が低下したときにも、本実験と同様に鉄ろ材浸漬槽以降の曝気槽の酸化能力により、鉄ろ材浸漬槽から流出した鉄イオンは十分に酸化されてリン除去に寄与したり水酸化物となって沈殿するため、放流水中に混入して着色等の問題を生じる可能性は少ないものと推察される。

これらのことから、わが国で通常の土壌埋設型の接触曝気方式に鉄ろ材接触曝気方式を適用する場合には、冬期の水温低下による腐食速度を考慮して余裕をもった鉄ろ材量を浸漬するといった、特別な設計上の留意や維持管理の必要性は小さいものと考えられる。

4. 5 まとめ

本章では、経時的に水温を変化させた処理実験を行い、その鉄ろ材の腐食速度やリン除去性能に対する影響を検討するとともに、これをふまえて適切な維持管理方法についても検討した。その結果と考察をまとめると次のようになる。

- ①実際の接触曝気槽で観察される程度の水温の低下では、鉄ろ材の腐食速度やリンの除去率はほとんど変化しないことがわかった。
- ②だが、水温の低下によって鉄ろ材から溶出した鉄イオンの酸化速度は遅くなり、それにともなつて鉄ろ材を浸漬した槽でのリンの除去率は低下した。しかし、実際に鉄ろ材を浸漬するのは多段直列式の曝気槽の前段の室に限られるので、後段の槽でその酸化は十分に進行し、施設全体のリンの除去にはほとんど影響はないと考えられた。
- ③従つて、「鉄ろ材接触曝気方式」では、特に冬期の水温低下に起因する腐食速度の低下を考慮して、余裕をもった鉄ろ材量を浸漬するといった、特別な設計上の留意や維持管理の必要性は少ないものと考えられた。

引用文献

- 1) 治多伸介他：鉄ろ材接触曝気方式による脱リンの実験的研究(Ⅱ)ーリン除去の長期的安定性と水温・流速変化の影響一、農土論集、158、pp. 57-63(1992)
- 2) H.H.Ulig: Corrosion and Corrosion Control, John Wiley & Sons, Inc., pp. 92-95 (1971)
- 3) 三沢俊平他：鉄錆の生成機構と耐候性さび層、防食技術、23(1)、pp. 17-27(1974)
- 4) 小山忠四郎：湖沼堆積物の物質変化の機構に関する生物地球化学的考察、水処理技術、16(1)、pp. 19-39(1975)
- 5) 岡本剛他：腐食と防食、大日本図書、p. 115(1987)
- 6) 須藤隆一：廃水処理の生物学、産業用水調査会、p. 17(1977)
- 7) 菅野照造：用水中の腐食因子となる微生物と対策、用水と廃水、13(9)、pp. 14-20(1961)
- 8) 鎌形洋一：絶対嫌気環境下における微生物の共生、水環境学会誌、15(7)、pp. 21-26(1992)
- 9) 畑 幸彦：「海洋微生物学」多賀信夫編、東大出版会、p. 192(1974)

第5章 槽内流速の処理への影響

5.1 実験目的

前章までの実験は、全て小型実験装置を用いた室内実験である。そのため各実験とも槽内流速は極めて小さく、速くても2cm/s程度であった。

しかし、家庭用浄化槽程度の大きさの処理施設ではこれとあまり変わらないが、実際の農業集落排水施設での曝気槽内の流速は概ね10~25cm/sであり、室内実験の流速とは大きな差があるとともに、施設の構造によって変化することが一般に知られている。また、流速の変化は生物膜内への基質の輸送や生物膜の厚さ等に影響を及ぼし、曝気槽の有機物処理能力や硝化能力が変化することがあることも知られている。

「鉄ろ材接触曝気方式」においても同様な理由により、流速の変化によって鉄ろ材の腐食速度およびリン除去性能が変化する可能性がある。従って、流速変化の処理に及ぼす影響を検討しておくことは重要であると考えられる。

このようなことから、経目的に槽内流速を変化させた実験を行い、その腐食速度やリン除去に対する影響を検討した¹⁾。

5.2 実験方法

(1) 処理実験の概要

この実験には、槽内に設置した循環ポンプにより流速を変化させることのできる有効容量30ℓの曝気槽と、第3章の[実験B]に用いたのと同様な有効容量12ℓの曝気槽を直列に並べた2段式の実験装置を使用した。Fig. 1に流速可変曝気槽の概要図を示す。曝気槽第1室での流速は、槽内の循環ポンプの吐出量を変化させることによって制御した。曝気は循環ポンプ吐出口の直後のみで行い、槽内のDO濃度が常に2.5mg/ℓになるように曝気量を調整した。

流速を変化させることのできる曝気槽第1室には鉄ろ材のみを浸漬した。鉄ろ材は、前章までの実験と同様にSS41鋼板を使用し、寸法は10cm×9cm、厚さが0.4mmのものを20枚浸漬した。これにより、鉄ろ材の接触表面積は3,600cm²、浸漬密度は12m²/m³となる。ろ材浸漬密度が前章までの実験よりも小さいのは、これが大きいときには循環ポンプの吐出量を大きくしてもろ材が抵抗となり、所定の流速を達成できないためである。

曝気槽第2室にはプラスチック製の球状ろ材のみを浸漬した。ろ材の接触表面積は95cm²/個であり、これを105個浸漬したので、全接触表面積は9,975cm²となった。このときのろ材浸漬密度は83m²/m³である。第2室での曝気はDO濃度が6.5mg/ℓになるように側面曝気方式で行った。

流入原水には前章までの実験と同じ成分、水質のものを用いた。流入汚水量は30ℓ/日とした。

鉄ろ材を浸漬した第1室の槽内流速は、実験開始後50日目までは3cm/sとしたが、Fig. 2に示すように、その後は20日ごとに流速を10, 15, 20cm/sと段階的に上昇させて実験を行った。なお、本実験での逆洗浄と汚泥引き抜きは実験開始後50日目以降10日間隔で、流速を変化させた前日と各流速安定期間内に1回ずつ行った。逆洗浄の方法は、一時的に循環ポンプの吐出量をあげて25cm/sの槽内流速をあたえることによって行った。

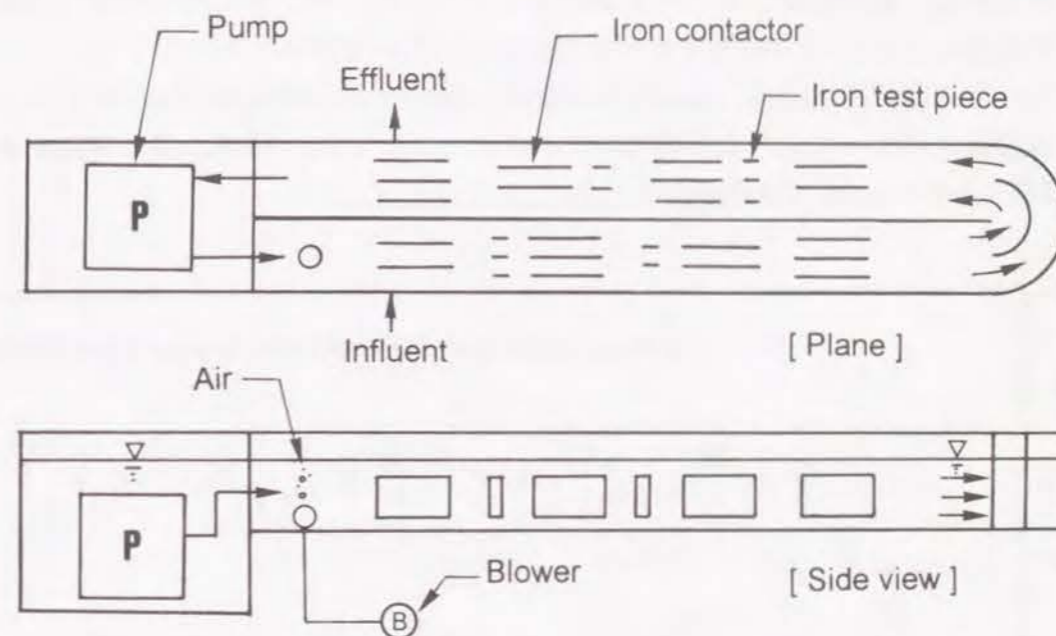


Fig. 1 Schematic figure of first aeration tank

(2) 水質の測定

水質は、T-PとT-FeとBODについて2日に一度の割合で測定した。T-FeとBODは曝気槽第1室の流出水のみについて行い、T-Pについてはさらに流入原水と曝気槽第2室流出水についても行った。

(3) 硫酸塩還元菌の計数と鉄ろ材腐食速度経時変化の測定方法

曝気槽第1室には上記の鉄ろ材の他に、鉄のテストピースを浸漬した。これは腐食速度と表面に存在するSRB数を測定するためのものであり、ろ材と同様のSS41鋼板であるが、寸法は2cm×9cm、厚さは0.4mmと極めて小さいものを10枚浸漬した。これらは後述のようにT-P除去率の安定した実験開始後30日目と、流速を変化させた日の前日、即ち50, 70, 90日目と実験終了時の110日目の計5回、2枚ずつ引き抜いた。そして、腐食減量を測定すると共に表面着生物を採取してその中に存在するSRB数の計数を行った。

腐食減量の測定方法やSRBの計数方法は、第3、4章と同様のMPN法で行った。

5.3 実験結果

(1) T-P除去率と曝気槽流出水中のT-Feの経日変化

T-P除去率の経日変化を Fig. 2 に示す。試料の採取・分析は原則として2日に一度の割合で行ったが、この図では長期間のリン除去性能の安定性を見るため、5日ごとの平均値を示している。実験開始後30日間は、前述の各実験と同様にT-P除去率は徐々に上昇し、概ね安定した状態が継続するようになった。そこでその後、流速を経日的に変化させたがT-P除去率に大きな変動は見られなかった。

一方、第1室流出水中のT-Fe濃度も実験開始後30日目以降は概ね1mg/l以下であり、流速変化によって大きな影響は見られなかった。また、同様に第1室流出水中のBOD濃度も約20mg/lで変化がなかった。

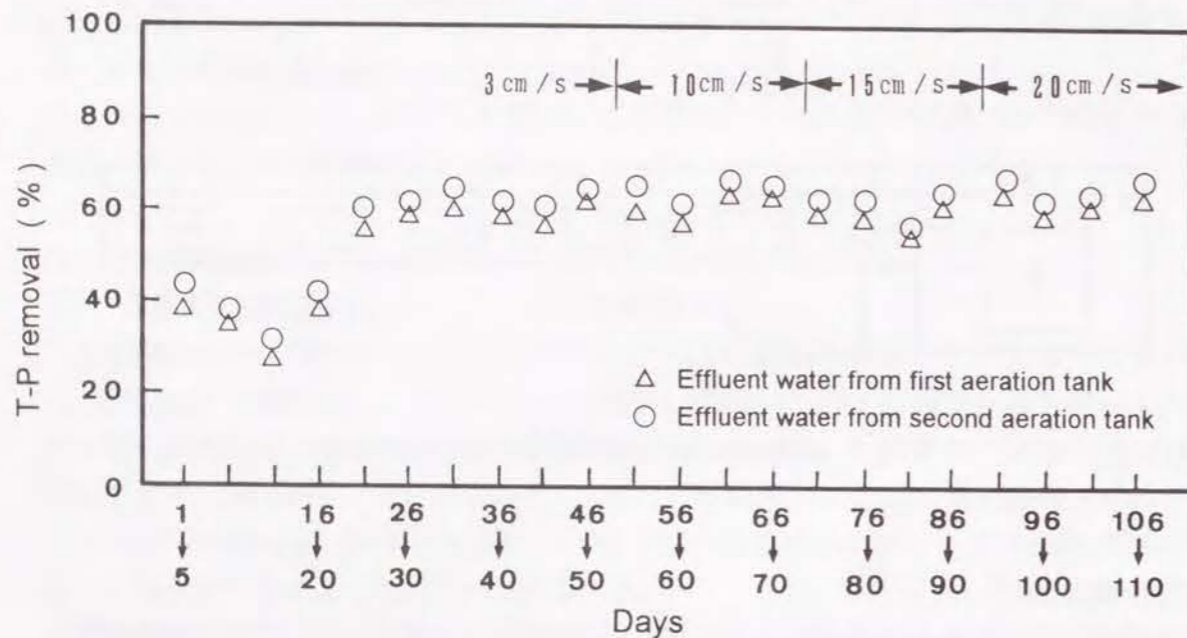


Fig. 2 Chronological changes in T-P removal

(2) 鉄ろ材腐食速度の経日変化

テストピースの腐食減量から算出した各流速時の腐食速度を Table 1 に示す。腐食速度はほぼ6~7mddであり、流速との間に特に明確な関係は見られなかった。

(3) 硫酸還元菌の経日変化

SRBの計数結果を Table 2 に示す。いずれの流速のもとでもSRBの検出数は $10^7 \sim 10^8$ 個/dm²であり、これも流速と特に明確な関係は見られなかった。

Table 1 Corrosion rate

Flow rate (cm/s)	Corrosion rate (mg/dm ² ·day)
3	7.2
10	6.3
15	6.9
20	6.1

Table 2 Number of SRB

Flow rate (cm/s)	Number of SRB (cells/dm ²)
3	6.0×10^7
10	1.9×10^8
15	1.3×10^8
20	7.2×10^7

5.4 考察

以上のように、T-Pの除去、T-Feの濃度、鉄ろ材腐食速度、鉄ろ材表面からのSRB検出数のいずれも、流速との間に特別な関係を見いだすことはできなかった。

近年、鉄ろ材を活性汚泥法の曝気槽内に浸漬して、リン除去を行うという試みもなされている²⁾。この場合には、溶存酸素による腐食を利用するため、槽内流速が安定したリン除去を達成するための重要な操作因子であることが明らかとなっている²⁾。しかし、本実験結果からは、鉄ろ材接触曝気方式における鉄ろ材の腐食速度およびリン除去性能は、通常の現地施設で観察される程度の流速範囲ではほとんど変化しないものと推察された。したがって、鉄ろ材接触曝気方式の施設を設計する際には、特に流速を考慮した設計を行う必要性は小さいと考えられる。

流速の変化によって上述のようにリン除去等に変化がみられない原因の詳細については不明な点が多いが、第4章でも指摘したように、SRBと他の細菌との相互

作用がこの現象を理解するのに重要と考えられる。現在、このような細菌の相互作用についての研究は不十分であるが、ポピュレーションダイナミクス研究という分野で新しい研究手法などが進歩しつつある³⁾。従って、このようなものが発展すれば、本実験で観察された現象をさらに詳細に検討することが可能となるだろう。

5.5 まとめ

本章では、経日的に槽内流速を変化させた実験を行い、その腐食速度やリン除去に対する影響を検討した。その結果と考察をまとめるとつぎのようになる。

①T-Pの除去、T-Feの濃度、鉄ろ材腐食速度、鉄ろ材表面からのSRB検出数のどれもが、通常現場で観察される数cm/s～20cm/sの流速範囲では特に変化せず、流速変化と明確な関係を見いだすことはできなかった。

②このことから、「鉄ろ材接触曝気方式」の施設を設計する際には、特に流速を考慮した設計を行う必要性は少ないものと考えられる。

引用文献

- 1) 治多伸介他：鉄ろ材接触曝気方式による脱リンの実験的研究（Ⅱ）—リン除去の長期的安定性と水温・流速変化の影響—，農土論集，158，pp. 57-63(1992)
- 2) 西口 猛他：鉄接触材を用いた間欠曝気方式によるリン・窒素同時除去の基礎研究，水質汚濁研究，12(12)，pp. 33-39(1989)
- 3) 森 忠洋：ポピュレーションダイナミクスと環境浄化，水環境学会誌，15(9)，p. 1(1992)

第6章 鉄ろ材の必要浸漬量の算定方法

6.1 実験目的

実際に鉄ろ材接触曝気方式の利用を考えるときには、計画放流水質としてT-P濃度があらかじめ決められているのが普通であろう。前編第3章で述べたように、この方式の開発目標放流水質はT-P濃度で1mg/l以下としたが、この水質を達成するための施設の設計条件を明らかにすることは極めて重要である。ところで、一方、地域によっては特にそこまでの処理水質は要求しないが、省エネルギーで安価な処理コストによって簡便にリンを除去したいという要望のところも存在すると考えられる¹⁾。

このようなことから本章では、「鉄ろ材接触曝気方式」を用いる場合に、所定の放流水質を達成するために、具体的にどの程度の面積や重量の鉄ろ材を浸漬した曝気槽を設置すべきかということをはっきりさせるための実験を行うこととした。

ところで、第2章の実験でも明らかのように、SRB腐食が起こっているとしても、鉄ろ材の浸漬環境によってその腐食速度やリン除去能力が異なることは明らかである。鉄ろ材接触曝気方式では、鉄ろ材表面近傍の嫌気性生物膜に対するSRBに有用な栄養基質の供給速度の差異により、鉄ろ材の腐食速度が変化する。そのため、鉄ろ材を浸漬した曝気槽への汚濁物質の負荷量の差異によって、鉄ろ材の腐食速度は変化し、それに伴ってリン除去性能が変化する可能性が考えられる。

このようなことから本章では、曝気槽への流入水質に着目して実験を行った。すなわち、鉄ろ材を浸漬した曝気槽への流入水のT-P濃度を一定とし、それ以外の汚濁物質濃度を変化させた実験と、逆にT-P濃度のみを変化させた実験を行い、その結果から「鉄ろ材接触曝気方式」での、鉄ろ材の必要浸漬量の算定方法について考察した^{2) 3)}。

また、同時にこの方法のリン除去コストと鉄ろ材の耐用年数、発生汚泥量やその脱水性、鉄ろ材浸漬によるT-P以外の処理に対する影響についても検討を加えた^{2) 3)}。

6.2 実験方法

(1) 処理実験の概要

実験には Fig. 1 に示すような3室で構成されたプラスチック製の曝気槽を8系列使用した。曝気槽の有効容量は第1室が6ℓ，第2室が4ℓ，第3室が2ℓの合計12ℓとした。

第1～第7系列の曝気槽には、第1室には鉄ろ材のみ、第2室、3室にはプラスチックろ材のみを浸漬した。鉄ろ材としてはSS41鋼板を用い、寸法が100mm×150mm、厚さは0.4mmのものを21枚浸漬した。これにより、接触表面積は6,300cm²、ろ材浸漬密度は105m²/m³になる。プラスチックろ材の寸法と厚さは鉄ろ材と同じである。しかし、その浸漬量は曝気槽容量に比例して、第2室で14枚、第3室では7枚とした。

これらに対する比較実験として、第8系列はすべてプラスチックろ材のみの処理系列とした。

第1～4系列については、T-P以外の汚濁成分の濃度を変化させ、第5～7系列については逆に第2系列に用いた汚水のT-P濃度のみを変えた汚水を用いて実験を行った。第8系列については、第2系列とまったく同じ汚水を用いた。すなわち、流入原水には Table 1 に示す成分構成の人工汚水を使用することとし、水道水の量を変化させて Table 2 に示す水質に調整した。ただし、T-P濃度については KH_2PO_4 を適量添加して、Table 2 に示す濃度に調整した。各系列への送水量はすべて20ℓ/日とした。なお、第2、8系列に用いた汚水の水質は、前章までの実験で用いたものと同じである。

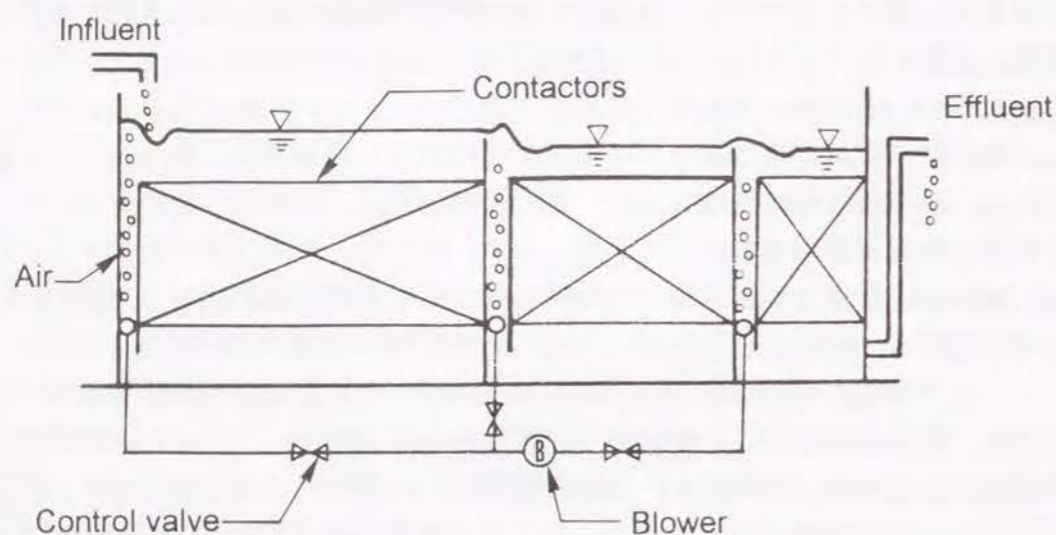


Fig. 1 Schematic figure of aeration tanks

Table 1 Composition of artificial wastewater

Poly pepton	18 g
Meat extract	12 g
NaCl	9 g
KCl	0.42 g
$\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	0.42 g
$\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	0.30 g
Tap water	50~400 l

Table 2 Concentration of artificial wastewater

	Run 1	Run 2	Run 3	Run 4	Run 5	Run 6	Run 7	Run 8
BOD (mg/l)	400	200	100	50	200	200	200	200
COD (mg/l)	160	80	40	20	80	80	80	80
SS (mg/l)	40	20	10	5	20	20	20	20
T-N (mg/l)	100	50	25	12.5	50	50	50	50
SO_4^{2-} (mg/l)	25	23	22	21	23	23	23	23
Alkalinity (mg/l)	120	90	75	65	90	90	90	90
T-P (mg/l)	7.5	7.5	7.5	7.5	9.5	5.5	3.5	7.5
pH	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0

曝気槽のDO濃度は系列ごとに差をつけず第1室が2.5mg/ℓ、第2室が4.5mg/ℓ、第3室が6.5mg/ℓとなるように曝気量を適宜調整しながら実験した。

後にもふれるように、実験開始後約25日を経過したころから鉄ろ材を浸漬した各系列のT-P除去率は安定した。そこで、第1～7系列では、鉄ろ材単位面積あたりのT-P負荷量を変化させるため、実験開始後35日目とその後約10日ごとに鉄ろ材を数枚ずつ引き抜き、同一寸法のプラスチックろ材を交換浸漬した。

全実験期間は90日間とした。この実験は継続期間が短かったことから、特にろ材の逆洗浄は行わなかった。しかし、後述のように経日的な腐食速度の低下は顕著には観察されず、実験結果に対する影響はほとんどなかったと考えられた。ただし、曝気槽底部に沈積した余剰汚泥については、汚水の槽内での流れ状況を変化させる可能性があるため、適宜引き抜いて後述する汚泥試験のために系列ごとに分けてポリビン内に保管した。

(2) 水質の測定

第1～7系列の鉄ろ材浸漬後の放流水のT-Pの測定を、鉄ろ材表面積が変わるたびに1回ずつ測定した。すなわち、鉄ろ材を引き抜くと、放流水のT-P濃度は約1～2日で安定するようになったが、十分な余裕をもって次の鉄ろ材引き抜きを実施する前日にその測定を行った。

鉄ろ材浸漬によるリン以外の処理に対する影響を詳細に調べるため、プラスチックろ材のみによる処理を行った第8系列と、鉄ろ材が浸漬しているが汚水のT-P濃度のみが異なっている第2、第5～7系列については、T-P以外の水質についても測定を行った。測定は、鉄ろ材の浸漬量が最も多く、また各系列の各水質が定常状態となっていた実験開始後35日目とした。測定項目は透視度、pH、アルカリ度、BOD、COD、SS、各態窒素、T-Fe（全鉄）、D-Fe（溶解性鉄）とした。

(3) 硫酸塩還元菌の計数と鉄ろ材腐食速度の算出方法

各系列でのSRBの繁殖状況を把握するために、最終の鉄ろ材引き抜きを行った際に、鉄ろ材表面着生物中のSRBの計数を行った。その試料調整方法とSRBの培養、計数方法などは前章までの方法と同様である。

鉄ろ材の腐食速度の算出は次のようにして行った。引き抜いたすべての鉄ろ材については、前章までと同じ方法によって腐食減量を測定した。この腐食減量は後に図示するように、各系列とも実験経過日数と直線回帰でき、実験開始後25日目以降の各系列における鉄ろ材の腐食はほぼ一定の速度で安定して継続していたものと推定することができた。このようなことから、それらの回帰直線の勾配を腐食速度として扱うことにした。

(4) 発生汚泥量と含有鉄量とその脱水性の把握方法

発生汚泥量は、曝気槽底部に沈澱した余剰汚泥と鉄ろ材表面の着生物、プラスチックろ材表面の着生物の総量として測定した。測定方法は通常の水中のSS測定方法と同じである。汚泥中に含まれる鉄の量についても、通常の水質測定の方法と同様に行った。

汚泥の脱水性については、Fig. 2 に示すような装置によりヌッチエテスト⁴⁾を行い、その測定された汚泥の比抵抗値の値によってその良否を判断した。汚泥の比抵抗値とは、汚泥を非圧縮性の粒子と考えてDarcy則をもとにした式から求めるものであり、ろ過層単位面積当りの単位汚泥乾ケーキによりどれだけのろ過抵抗が生じるかを示したものである⁵⁾。従って、この値が小さいほど汚泥の脱水性は優れていると考えることができる。

なお、これらの試験は第4系列については行わなかった。その理由は、後に述べるように、上述の試験の結果から、第4系列ではDOによる腐食が優先化していたことがわかったためである。

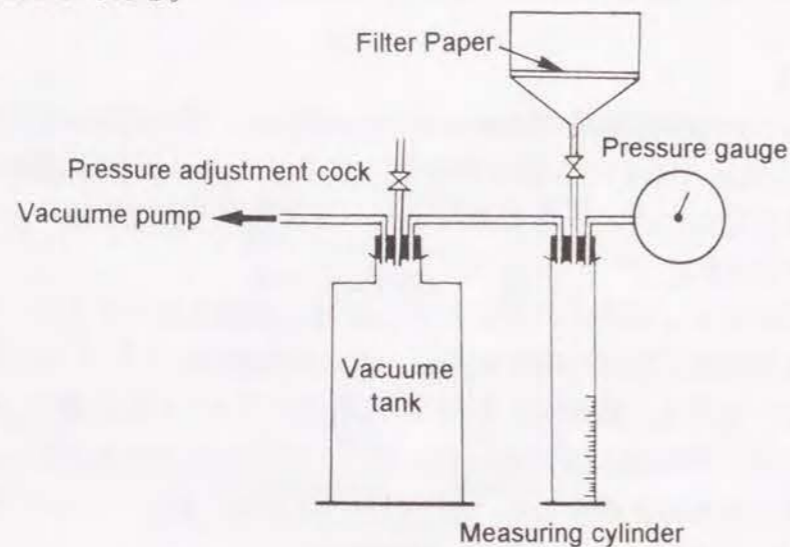


Fig. 2 Schematic figure of experimental system of Buchner funnel test

6. 3 実験結果

(1) T-P除去率の経日変化について

鉄ろ材を浸漬した各系列のT-P除去率は Fig. 3 に示すように、BOD負荷が最も低い（流入原水BOD濃度50mg/l）第4系列を除き、実験開始後若干の低下の後に徐々に上昇し、実験開始後25日目には各系列とも安定した。一方、第4系列のT-P除去率は約60~70%で、ほとんど変化は見られなかった。プラスチックろ材のみの第8系列のT-P除去率は、実験開始時から終了時までほぼ一定で、5~10%と低率であった。

鉄ろ材の引き抜きにともなって、各系列のT-P除去率は低下する傾向がみられた。後に詳述するように、鉄ろ材に対するT-Pの単位面積あたりの負荷が同一であっても、系列ごとにその除去率には差がみられた。

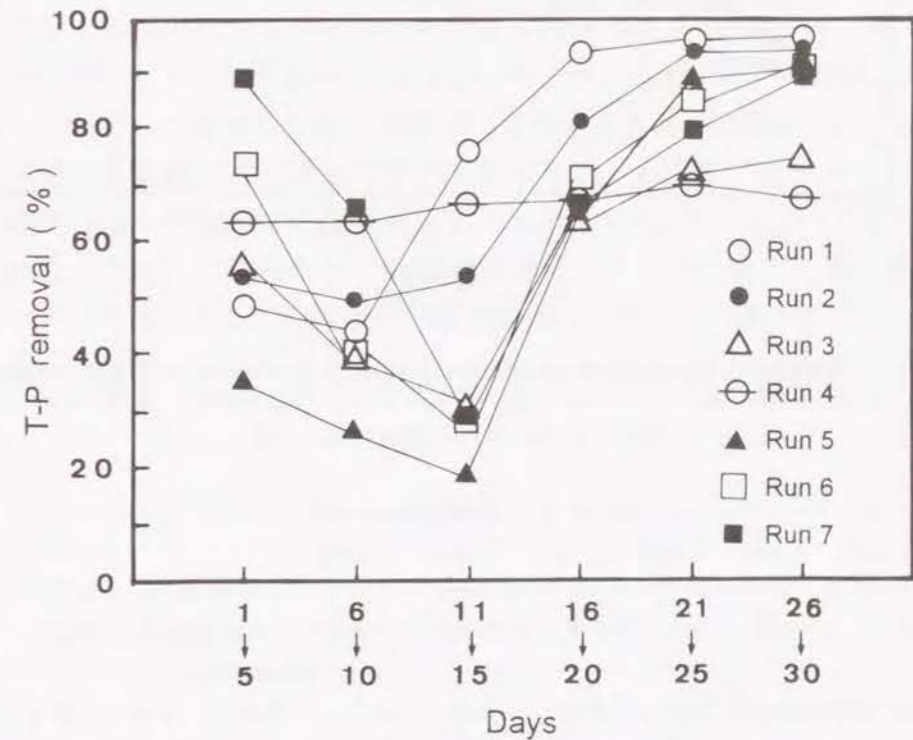


Fig. 3 Chronological changes of phosphorus removal

(2) 鉄ろ材腐食速度

鉄ろ材の腐食減量の測定結果と浸漬日数の直線回帰結果を示したものが Fig. 4 である。なお、この図中の腐食減量は同じ系列で同時に引き抜いたろ材すべての平均値である。

この結果から得た、腐食速度を Table 3 に示す。T-P濃度のみを変化させた第2, 6, 7系列の腐食速度は、6.1~6.4mddでほぼ同じであるが、全般的な汚濁物質濃度

を変化させた第1～4系列腐食速度は、第4系列を除くと汚濁負荷が大きい系列ほど腐食が速いという傾向があり、3.5～8.0mddまでの大きな差が見られた。

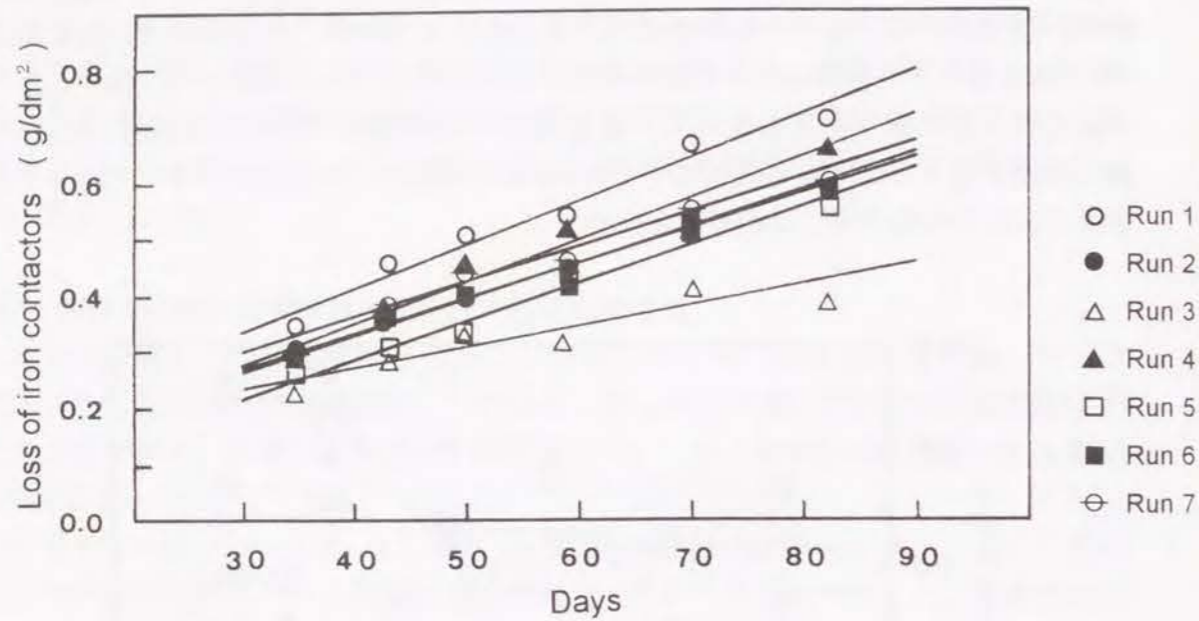


Fig. 4 Relations between loss of iron contactors and experimental days

Table 3 Corrosion rate

	Run 1	Run 2	Run 3	Run 4	Run 5	Run 6	Run 7
Corrosion rate (mg/dm ² ·day)	7.6	6.4	3.5	7.6	6.6	6.1	6.1

(3) 硫酸塩還元菌の計数結果

SRBの計数結果をTable 4に示す。SRB数についても、T-P濃度のみを変化させた第2, 6, 7系列では、ほぼ $5.0 \times 10^7 \sim 5.0 \times 10^8$ 個/dm²とほとんど同じであるが、全般的な汚濁物質濃度を変化させた第1～4系列では、 $10^4 \sim 10^9$ 個/dm²までの大きな差が見られた。特に、汚濁負荷が大きい系列ほどSRBの検出数が大きいという傾向が見られた。

Table 4 Results of SRB count

	Run 1	Run 2	Run 3	Run 4
Number of SRB (Cells/dm ²)	7.3×10^8	9.7×10^7	1.4×10^7	7.0×10^4
	Run 5	Run 6	Run 7	Run 8
Number of SRB (Cells/dm ²)	1.5×10^8	1.5×10^8	3.1×10^8	-

(4) 汚泥発生重量と含有鉄量の測定結果

プラスチックろ材のみでの処理を行った第8系列の結果から求めた、BOD-汚泥(S)転換率は、約5%、Fe含有率は2.2%であった。この転換率が、その他の系列でも同一であると仮定して算出した鉄ろ材浸漬による発生汚泥の重量増加をTable 5に示す。各系列とも大幅な汚泥重量の増加が認められ、系列間で60～100gとかなりの差がみられた。同じ表に含有鉄量も示したが、これも系列間で差18～25gとかなりの差がみられた。だが、余剰汚泥中のFe増加重量に対する汚泥発生重量の増加割合は、系列によってやや差はあるものの約3～4倍の範囲でほぼ一定であった。

Table 5 Increases in sludge weight and Fe weight in sludge by submerging iron contactors

	Run 1	Run 2	Run 3	Run 5	Run 6	Run 7
① Increase in sludge weight(g)	101.6	80.8	69.6	68.7	66.0	75.8
② Increase in Fe weight (g)	25.7	23.2	18.6	22.9	19.4	20.8
①/② (-)	4.0	3.5	3.7	3.0	3.4	3.6

(5) 汚泥の脱水性の測定結果

ヌッチェテストの結果をTable 6に示す。プラスチックろ材のみで処理を行った第8系列の汚泥のみが 10^{14} オーダの比抵抗値が得られたが、それ以外の鉄ろ材を浸漬した系列では、どれも1桁小さい 10^{13} オーダの値が得られた。即ち、鉄ろ材を浸漬した系列の汚泥の方が脱水性は優れていた。

Table 6 Specific resistance of excess sludge

	Run 1	Run 2	Run 3	Run 5	Run 6	Run 7	Run 8
Specific resistance of excess sludge in first aeration tank (m/kg)	6.8 ×10 ¹³	4.4 ×10 ¹³	5.7 ×10 ¹³	3.7 ×10 ¹³	5.4 ×10 ¹³	3.6 ×10 ¹³	1.1 ×10 ¹⁴
Specific resistance of excess sludge in second aeration tank(m/kg)	5.1 ×10 ¹³	2.3 ×10 ¹³	3.2 ×10 ¹³	4.4 ×10 ¹³	4.6 ×10 ¹³	4.3 ×10 ¹³	-

(6) T-P以外の水質の測定結果

測定結果を Table 7 に示す。このように、系列間で水質は異なっていたがその詳細は次節でのべる。

6. 4 考察

(1) BOD負荷と腐食形態

一般に、接触曝気方式のろ材に着生する生物膜は、BOD負荷が大きいほど、増殖のための栄養源が多いために肥厚化しやすく、ろ材表面は嫌気状態になりやすいと考えられる。この実験では、鉄ろ材を浸漬している曝気槽内のDO濃度は同じであるので、BOD負荷が大きい系列ほどSRB腐食が起こりやすい条件にあったと推測できる。Table 4 のSRB計数結果で、BOD負荷が大きい系列ほどSRBの検出数が多かったことは、この考えの妥当性を裏づけるものと考えられる。

実験開始後のT-P除去率の経日変化は Fig. 3 のように、BOD負荷の最も低い第4系列以外では、経日的な除去率の上昇がみられている。この現象は、腐食がDOによるものからSRBによるものへと変化したことが原因と考えられる。実際、実験開始後5日目までのT-P除去率は、T-P負荷が同じ第1～4系列ではほぼ50～60%と等しいことや、T-P除去率が上昇した後の安定した除去率には大きな差があることも、この考えを裏づけるものと考えられる。

また、曝気槽から引き抜いた鉄ろ材に着生していた腐食生成物の色調は、第4系列では常に褐色であったのに対し、それ以外の系列では黒色であった。

このようなことから、実験開始後25日目以降の第4系列以外の系列ではSRBによる腐食が、第4系列では全実験期間でDOによる腐食が優勢化していたものと考えられる。

ところで、第2章で述べたように、鉄ろ材接触曝気方式で安定したリン除去を行うためにはSRBによる嫌気性腐食を利用することが重要である。従って、以下の

Table 7 Quality of effluent water from first and third aeration tank

	Transparency (cm)	pH (-)	Alkalinity (mg/l)	BOD (mg/l)	COD (mg/l)	SS (mg/l)	NO ₃ -N (mg/l)	NO ₂ -N (mg/l)	T-N (mg/l)	T-P (mg/l)	T-Fe (mg/l)	D-Fe (mg/l)
Run 5 Influent T-P concentration 9.5mg/l	Effluent water from first tank	5.6	7.8	207.5	62.5	39.2	36.0	tr.	46.2	0.32	10.3	2.7
	Effluent water from third tank	>30	7.1	9.0	8.5	17.6	8.0	19.4	45.3	0.40	1.2	0.7
Run 2 Influent T-P concentration 7.5mg/l	Effluent water from first tank	7.3	7.7	198.5	50.0	41.0	34.2	tr.	47.5	0.63	11.6	3.0
	Effluent water from third tank	>30	7.2	13.5	7.5	15.7	12.0	18.3	44.0	0.35	1.1	0.5
Run 6 Influent T-P concentration 5.5mg/l	Effluent water from first tank	4.4	7.7	140.5	52.0	38.6	36.0	tr.	47.2	0.48	13.2	4.3
	Effluent water from third tank	>30	7.1	19.5	9.5	11.3	10.0	20.4	45.1	0.18	1.1	0.7
Run 7 Influent T-P concentration 3.5mg/l	Effluent water from first tank	4.2	7.7	150.5	40.0	25.6	30.0	tr.	49.2	0.33	15.2	5.8
	Effluent water from third tank	>30	7.1	21.5	9.0	9.7	12.0	18.4	46.7	0.15	1.1	0.6
Run 8 Influent T-P concentration 7.5mg/l	Effluent water from first tank	25.1	7.8	144.0	65.0	41.1	18.0	tr.	48.6	7.44	0.8	0.3
	Effluent water from third tank	>30	6.5	5.5	9.0	18.8	12.0	20.7	46.4	7.38	0.5	0.2

考察では、特にことわらない限り第4系列の実験結果は利用しないこととする。

なお、実際に鉄ろ材接触曝気方式を使用する際には、D0腐食からSRB腐食への移行がすみやかに起こる環境に鉄ろ材を浸漬する必要がある。前述の考察から、SRB腐食が速やかに起こるかどうかにについては、BOD負荷がその一つの指標になることがわかる。具体的には、ろ材単位面積当りのBOD負荷量が、この実験の第3系列と第4系列中間の約 $2.0\text{g/m}^2\cdot\text{日}$ がその境界値と推定できる。

(2) 流入水質による鉄の腐食速度への影響

第3章で詳述したように、鉄ろ材接触曝気方式では、鉄ろ材表面近傍の嫌気性生物膜に対するSRBの生命活動や増殖に有用な栄養基質の供給速度が高いほど鉄ろ材の腐食速度は速くなるものと考えられる。従って、この実験でTable 3のように汚濁負荷が大きい系列ほど、鉄ろ材の腐食速度が大きくなったのは、負荷の大きい系列ほど、鉄ろ材表面近傍でSRBの活動や繁殖が活発になる環境となったためと考えられる。

ところで、SRBに有用な栄養基質としては、有機物、硫酸イオン(SO_4^{2-})、窒素源等があげられる⁶⁾。

有機物は、硫酸イオンを還元する際の電子供与体として使われるほか、SRBは従属栄養細菌であるので酢酸⁷⁾などの有機物を増殖のための炭素源として必要とする。エネルギー獲得のための水素供与体としては水素ガスなども利用できるが、炭素源がない場合には極めて増殖がおそくなることが実験的に実証されている⁸⁾。第2章でも述べたように、硫酸イオンはエネルギー獲得のための電子供与体となる。SRBは窒素固定能力がないので、窒素源が必要となる⁹⁾。

しかし、この実験では、流入汚水のBOD:N比が比較的高いことから、窒素源は各系列とも流入水中に十分な量が存在しているものと考えられる。また、本実験に用いた人工汚水の硫酸イオンは、そのほとんどが水道水から供給されていることから、Table 2のように各系列の原水中の硫酸イオン濃度には大差はなく、供給された硫酸イオンの量はほぼ同量である。

これらのことから、この実験で鉄ろ材の腐食速度に最も大きな影響を与えたのは、SRBのエネルギー獲得や同化作用の際に使用される有機物(BOD)の鉄ろ材表面近傍の嫌気性生物膜に対する供給速度であると推定される。すなわち、汚濁負荷の大きい系列ほど腐食速度が大きかったのは、生物膜の深部にまで有機物が十分に到達し、SRBの活動が鉄ろ材表面の近傍で活発に行われる環境ができあがったためと考えられる。

従って、鉄ろ材接触曝気方式における鉄ろ材の腐食速度は、Fig. 5に示すように鉄ろ材に対するBOD負荷量に大きく依存しているということができよう。

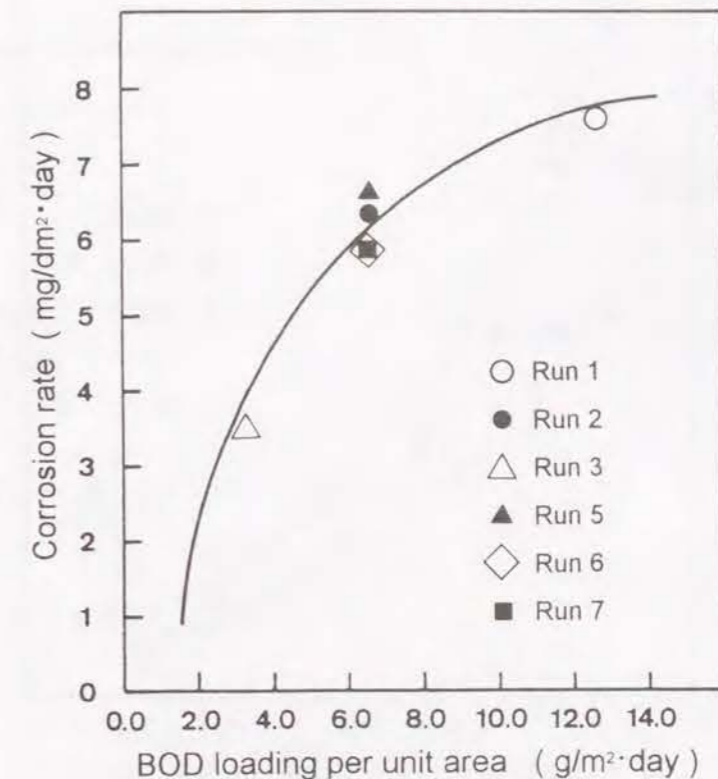


Fig. 5 Relations between BOD loading and corrosion rate

(3) 流入水質によるT-P除去への影響

鉄ろ材を引き抜いて、鉄ろ材単位面積当りのT-P負荷を変化させたときのT-P除去率の変化を第1～3系列について同時に図示したのが、Fig. 6である。図中の傾向線は $Y = a e^{-bx}$ (Y : T-P除去率(%), X : T-P面積負荷($\text{g/m}^2\cdot\text{日}$), a, b : 定数)の式で各系列の結果を回帰したものである。

鉄ろ材単位面積一日あたりのリン負荷量が同一であっても、BOD負荷の高い系列ほどT-Pの除去が高率に行われることがわかる。これは前述のように、BOD負荷の差によって各系列の鉄ろ材の腐食速度が変化し、BOD負荷が高いほど鉄イオンの供給量は多くなり、それにとまってT-Pの除去量も多くなったためと考えられる。

このようなことから、実際に鉄ろ材接触曝気方式を使用するときには、鉄ろ材に対するBOD負荷量を考慮して、所定のT-P除去を達成するために必要な鉄ろ材の量を決定する必要のあることがわかる。

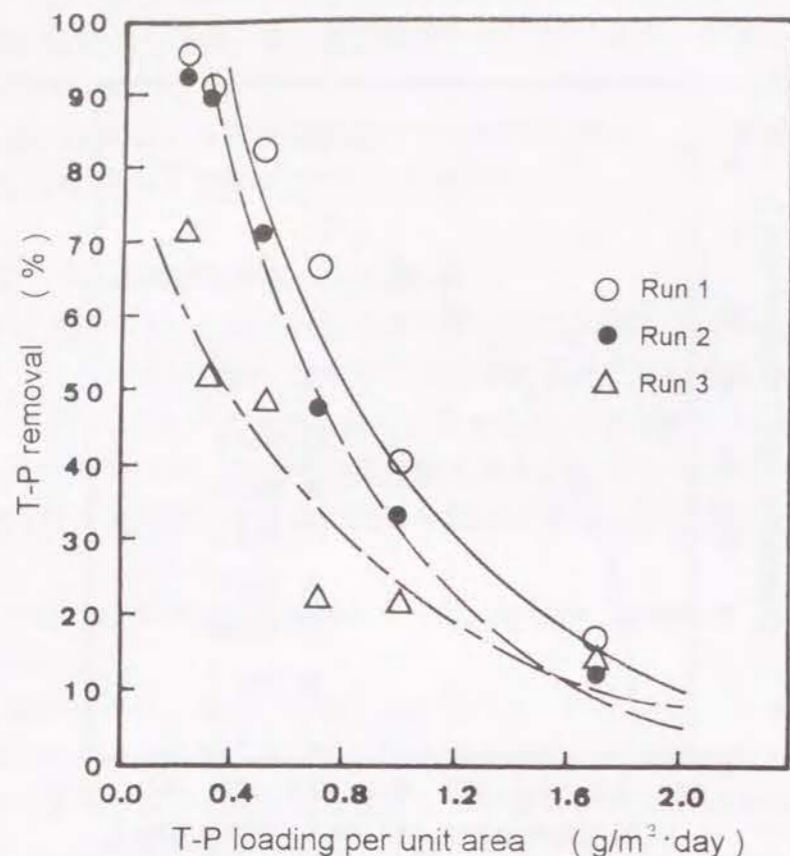


Fig. 6 Relations between T-P removal and T-P loading

(4) 鉄ろ材浸漬量の決定方法

前述の鉄ろ材腐食速度から算出した鉄ろ材浸漬槽へのT-P負荷量に対する鉄イオンの溶出モル比と、放流水中のT-P濃度との関係を示したものが Fig. 7, T-P除去率との関係が Fig. 8 である。両者の関係は系列ごとにある程度の差はみられるものの、両者とも密接な関係があることがわかる。したがって、鉄ろ材接触曝気方式での鉄ろ材の適正浸漬量の設定は、鉄ろ材浸漬槽へのT-P負荷量に対して所定のモル比の鉄イオン溶出量を確保するために必要な鉄ろ材量を算定するという方法によって達成できると考えられる。

例えば、放流水のT-P濃度1mg/l以下にしようとする場合には、T-P負荷に対する鉄ろ材から溶出する鉄イオンの量が、モル比で約1.5以上に、90%以上のT-P除去を行おうとする場合には、モル比が約2以上になるだけの量の鉄ろ材を浸漬する必要があることがわかる。

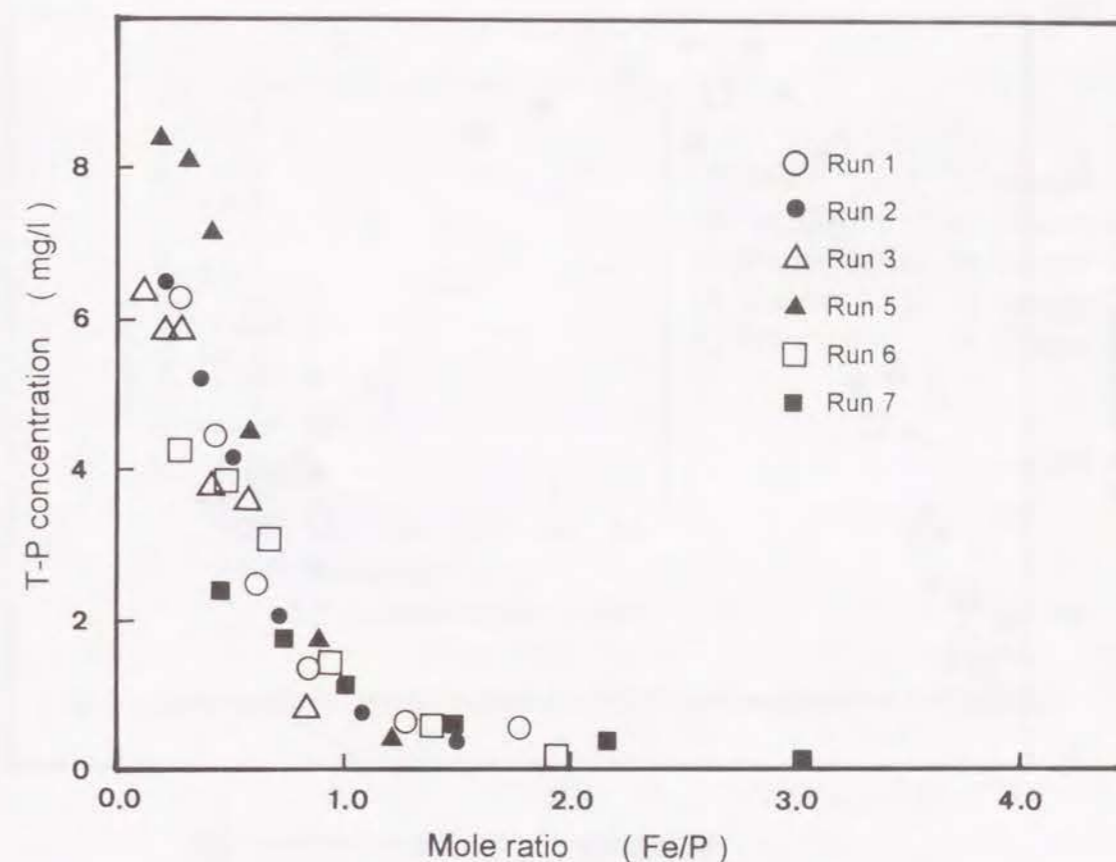


Fig. 7 Relations between T-P concentration of effluent water from third aeration tanks and mole ratio of iron cations from iron contactors to the T-P loading

以上の知見から、鉄ろ材の浸漬量の決定手順の一つとして、次のような方法が考えられる。まず、Fig. 7 および Fig. 8 を参照して、施設のリン負荷に対して必要な鉄ろ材からの鉄イオン溶出量を求め、次に前節で示した鉄ろ材に対するBOD面積負荷量と腐食速度の関係図 (Fig. 5) を利用して、鉄ろ材腐食速度 (鉄イオン溶出量) を予測し、鉄ろ材の必要浸漬量を決定する。

この鉄ろ材算定が有効であるかどうかを確認するために、第2章から5章の実験結果について、この方法を適用してその予測した放流水質と実測値を対応させたものが Figs. 9, 10 である。いずれも、それぞれの実験でSRB腐食が安定していた際の放流水質を、各実験の鉄ろ材に対するBOD負荷などによって推定したものである。この結果からも、ここで示した鉄ろ材の浸漬量の決定方法が有効であることがわかる。

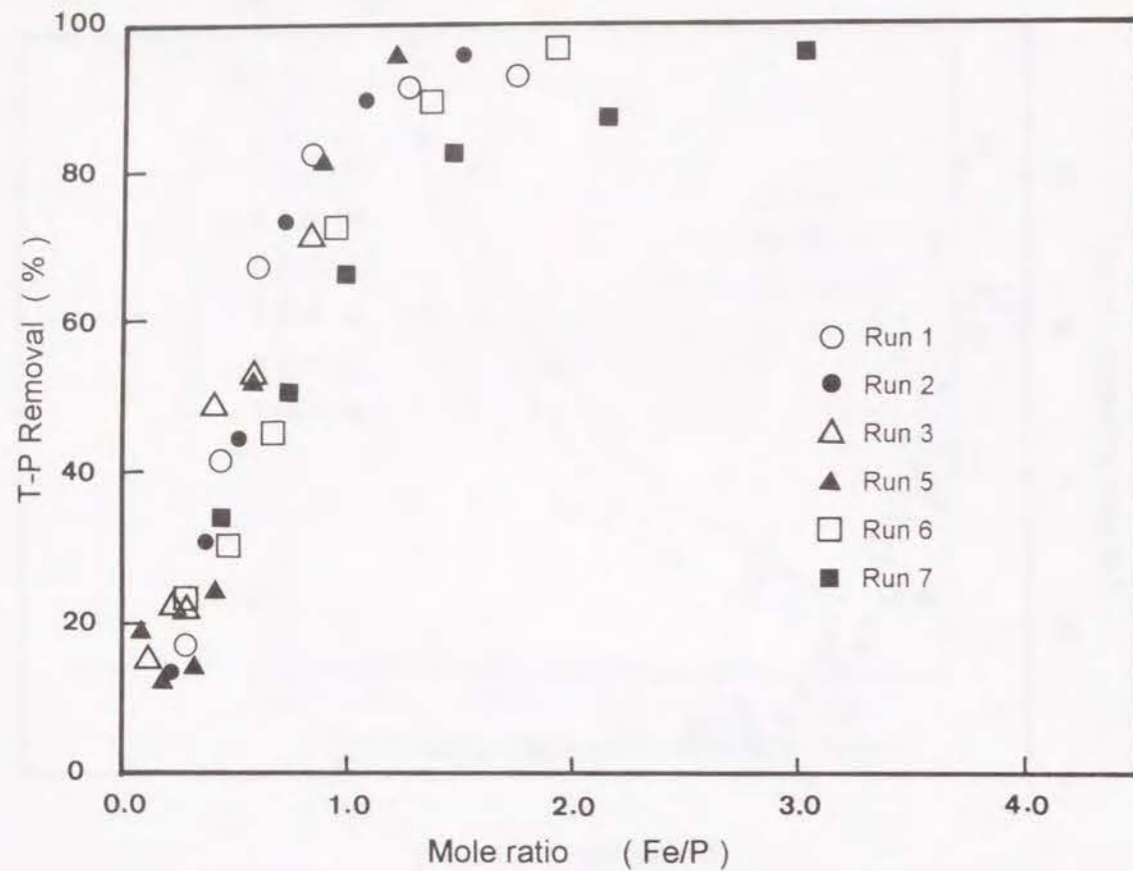


Fig. 8 Relations between T-P removal and mole ratio of iron cations from iron contactors to the T-P loading

さらに、鉄ろ材浸漬量の精度を向上させるためには、曝気槽内のDO濃度などにも着目した検討を行い、それを一般化することが考えられる。しかし、これらの影響が腐食速度をあげる方向に働くのか、下げる方向に働くのかを定性的に推定することは容易であるので、それを勘案しつつ、実際には現場適用に際しては、余裕を持った量の鉄ろ材を浸漬するという方法で対応するので十分だと考えられる。

この方法を用いて、農業集落排水事業で広く採用されている、(社)日本農業集落排水協会が開発したJARUS I型の接触曝気槽第1室に鉄ろ材を浸漬し、T-P:1mg/l以下の処理水を得ようとする場合に必要な鉄ろ材浸漬量を算定するとつぎのようになる。ただし、生活排水の汚濁負荷量の原単位としては、一般にはBODについては60g/人・日、T-Pについては2.0g/人・日がいられるが¹⁰⁾、この施設には曝気槽の前に、

沈殿分離槽などの前処理施設が設置されているので、それらによる汚濁物質の除去率を25%と仮定した。すなわち、曝気槽第1室への流入水の原単位は、BODで45g/人・日、T-Pは1.5g/人・日として算定を行った。

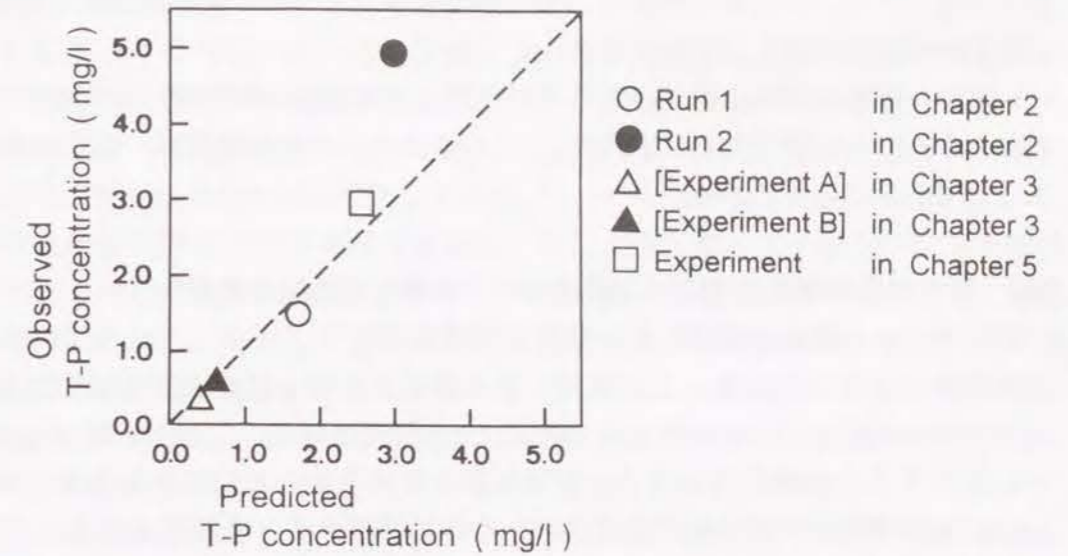


Fig. 9 Observed and predicted values of T-P concentration of final effluent

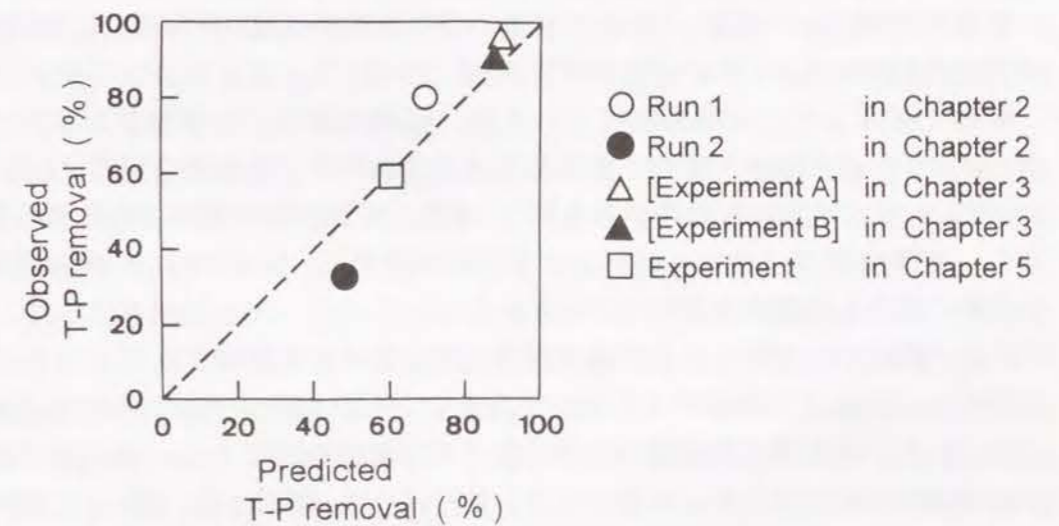


Fig. 10 Observed and predicted values of T-P removal

このときの曝気槽第1室のT-P容積負荷は12.5g/m³・日となる。したがって、曝気槽の単位容積当りに必要な鉄イオン溶出量は、T-P容積負荷のモル比で1.5倍の約34g

/m³・日以上と推定できる。一方BOD容積負荷は375g/m³・日となるため、曝気槽第1室のろ材を全て鉄ろ材とし、40, 50, 60m²/m³の密度で浸漬したときのBOD面積負荷は、それぞれ9.4, 7.5, 6.3g/m²・日となる。この値を利用して、Fig. 5 から腐食速度はそれぞれ約7.2, 6.8, 6.2mg/dm²・日（以下mdd）と推定される。従ってこれらの場合の、曝気槽単位容積あたりの鉄イオン溶出量はそれぞれ28.8, 34.0, 37.2g/m³・日と推定できる。以上の結果から、鉄ろ材の浸漬密度は50m²/m³以上にすればよいことがわかる。

一般に、接触曝気槽に浸漬されるろ材の比表面積は50～数100m²/m³である¹¹⁾。このことから、先に算定した50m²/m³以上という鉄ろ材の浸漬密度は、実用上極めて妥当な値であることがわかる。

(5) 鉄ろ材接触曝気方式のリン除去コストと鉄ろ材の耐用年数

SRBによる腐食を利用した、鉄ろ材の腐食速度は Fig. 5 より、おおむね8.0mdd以下であると考えられる。この値は、鉄ろ材表面が均一に腐食すると仮定した場合、浸漬鉄板の消耗厚さに換算すると15年間で1mm程度になる。しかし、腐食は全面で均一に進行するとは限らないので、実用に際しては上記の算出年数に余裕を見込むことと、曝気槽内での鉄ろ材の固定方法を十分に検討することが望まれる。だが、数mmの厚さの鉄ろ材を使用すれば、鉄ろ材の交換作業の頻度は数10年に1回以下程度に抑えることも可能であると考えられる。

(6) 鉄ろ材接触曝気方式のリン除去コストについて

有機物処理については、公共下水道の維持管理費は約5,000円/人・年であり¹²⁾、集落排水施設では約5,000～10,000円/人・年である¹³⁾。

前編で紹介したリン除去法については、凝集沈殿法、生物脱リン法（フォストリップ法）、晶析脱リン法のどれも処理水量500m³/日以下程度の施設で約5,000～10,000円/人・年という試算結果がある¹⁴⁾。また、実際の農業集落排水施設の調査結果から、凝集沈殿法のランニングコストを算出すると、1,044円/人・年であった¹⁵⁾。いずれの場合も汚泥処分費は含まれていない。

一方、前述の、JARUS I型の曝気槽第1室に鉄ろ材を浸漬することによって、T-P濃度が1mg/l以下の処理水を得ようとしたときのランニングコストはつぎのように試算できる。曝気槽単位体積あたりの鉄イオン溶出量は27.2g/m³・日であるから、これを処理人口1人あたりに換算すると、約1.2Kg/人・年となる。従って、鉄ろ材の単価を運搬・加工費を含めて150円/Kgと仮定すると、ランニングコストは180円/人・年と推定される。この値は、有機物処理費の1割にも満たず、かつ他のリン除去法と比較しても1/5以下である。これらのことから、鉄ろ材接触曝気方式のランニングコストは極めて安価であるといえる。

また、イニシャルコストについても、鉄ろ材接触曝気法の場合は、この算定方法に従うと鉄ろ材の固定台のみの費用となるので、凝集沈殿法などに比較して極めて

安価であると考えられる。

鉄ろ材接触曝気方式で発生する汚泥については、農地還元利用の有効性が指摘されている¹⁶⁾ことから、本方式は汚泥処分費についても凝集沈殿法をはじめとした他の方法に比較して安価であると考えられる。

(7) 発生汚泥と脱水性について

Table 5 に示すように、鉄ろ材の浸漬により汚泥重量には大幅な増加が認められた。この原因は、鉄ろ材を浸漬することにより溶出した鉄イオンがリンと結合したり、水和物となって沈殿したりしたためと考えられる。また、後述のように有機物を吸着して沈殿したものもあると考えられる。

鉄ろ材接触曝気方式での汚泥増加重量は、このように鉄イオンの化学変化と密接な関係があるため流入リン濃度、アルカリ度等の様々な要因によって影響されると考えられる。しかし、この実験の余剰汚泥中のFe増加重量に対する汚泥発生重量の増加割合は、Table 5 に示すように、系列によって差はあるものの、約3～4倍の範囲となっている。従って、実用上は余剰汚泥の発生の増加重量を鉄ろ材からの鉄イオンの溶出速度によって推定することができると考えられる。

一方、この実験で発生した余剰汚泥の含水率は、プラスチックろ材のみを浸漬した第8系列では99%であったのに対し、鉄ろ材を浸漬した系列では97～98.5%であり、比較的低い値が得られた。すなわち、前述のように、鉄ろ材浸漬による汚泥重量は確かに大幅に増加するが、体積はあまり増加しないといえる。

一般に農業集落排水施設などの小規模排水処理施設では、余剰汚泥は一旦汚泥貯留槽に移送しておき、貯留槽の貯留限界に達した時点で、汚泥の搬出を行っている。この汚泥の搬出回数が増加することは、維持管理の煩雑さや、搬出費用を増加させることになり、望ましいことではない。

しかし、この回数や煩雑さに影響をあたえるのは、汚泥の重量ではなく容積であり、この実験結果から余剰汚泥の容積は余り増大しないことが明らかとなったため、鉄ろ材接触曝気方式でそのような問題が起こる可能性は小さいと考えられる。

また、鉄ろ材接触曝気方式での汚泥の含水率が低いことも関係があると思われるが、Table 6 のヌッチェテストの結果からわかるように、鉄ろ材を浸漬した系列の汚泥は、脱水性の点でも第8系列に比較して優れていた。この原因は、一般の汚泥の脱水工程でも、鉄イオンが加えられた後に作業が行われる¹⁷⁾ことのある理由と同様と考えられる。すなわち、これが加えられることにより、汚泥中の微粒子が凝集粗大化して¹⁸⁾脱水性が良好になったと考えられる。

なお、通常の接触曝気法などの生物処理によって生成した余剰汚泥は、運搬コストを低下させるために、脱水作業を行ってから運搬するのが一般的である。脱水方法としては、通常は圧搾ろ過、加圧ろ過、真空ろ過などの方法がとられる。しかし、余剰汚泥は一般にこれらの方法で脱水を行うのにはあまりにも脱水性が悪いので、引き抜き後の汚泥には鉄やアルミニウムや高分子凝集剤を添加して、脱水性を高め

たうえで作業を行っているのが現状である。しかし、鉄ろ材接触曝気方式の汚泥は、Table 6 からわかるように、極めて脱水性がよく、この程度の比抵抗値であれば、圧搾ろ過のみならず加圧ろ過ができる範囲にある¹⁹⁾。従って、薬品をさらに添加することなく脱水作業を行えることになり、薬品代の低減につながるとともに、維持管理作業の省力化にもつながると考えられる。

(8) 鉄ろ材浸漬によるT-P以外の処理に対する影響について

第1室流出水のBOD、COD濃度については、鉄ろ材浸漬系列の方が、第8系列に比較して良好であった。それらの濃度は流入水T-P濃度が低い方が低い傾向が見られた。これは鉄ろ材から溶出した鉄イオンの水酸化物に有機物が吸着されたためと考えられるが、第3室流出水については特に差は見られなかった。

第1室流出水中のSS濃度については、鉄ろ材浸漬系列の濃度が高かった。これは、第1室の流出水に非溶解性の鉄水酸化物が含まれていたことによるものと考えられる。しかし、その水酸化物は槽を経るに従って凝集・沈降したり、生物膜に吸着されたものと考えられ、第3室の流出水中のSS濃度は第8系列とその他の系列の差異はほとんどみられなかった。透視度についても第1室の流出水は鉄ろ材浸漬系列で低かったが、これも同じ理由によるものと考えられる。第3室の流出水は全て30cm以上と良好であった。

以上の現象と深い関係があると思われる鉄濃度については、第1室の流出水ではT-Fe、D-Feともに、流入水のT-P濃度が低い系列の方が高くなる傾向がみられた。この原因は明らかでないが、同様に流入水のT-P濃度が低い系列ほど、第1室で除去されたリンの量が少なくなっていることから、リンと鉄の化合物の生成に関係しているものと考えられる。一方前述のように、第1室の流出水中の鉄イオンは、槽を経るに従って凝集・沈降したり、あるいは生物膜に吸着されたりすると考えられ、第3室の流出水の鉄濃度は鉄ろ材の浸漬系列間に差は見られなかったが、第8系列に比較して鉄ろ材の浸漬系列の方がやや高い値であった。しかし、鉄による流出水の着色はほとんど感じられず、前述のように透視度にも悪影響は観察されなかった。

第1室流出水のアルカリ度は、第8系列に比べて鉄ろ材浸漬系列の方が高く、またT-P濃度の高い系列の方がアルカリ度も高いといった傾向が見られた。また第3室流出水のアルカリ度については、T-P濃度の低い系列の方がアルカリ度は高いという傾向が見られたが、どの系列も第8系列に比較すると高かった。同じ傾向がpHについても観察された。つまり、一般の凝集剤添加に伴って生じると言われるアルカリ度の低下や、pHの低下の傾向は観察されなかった。このことから、凝集沈殿法のように中和のための設備を付加する必要性はないものと考えられる。この原因は、鉄ろ材の腐食メカニズム、鉄イオンとリンの結合形態等に関係していると考えられるが、現在は十分に明らかでない。

曝気槽添加式の凝集沈殿法においては、しばしば硝化阻害が観察される場合がある²⁰⁾。しかし本実験において、硝化の進行については、鉄ろ材浸漬系列と第8系列

の間には特に差は観察されなかった。これは前述のように、鉄ろ材接触曝気方式が凝集沈殿法と異なり、処理に伴うアルカリ度低下を起ささないことも大きな理由の一つであろう。

このように、鉄ろ材の浸漬の、T-P以外の処理に対する影響は特に大きな影響がないか、むしろ良好になるものもあった。

このことから鉄ろ材を浸漬することにより、特に他の処理に対する悪影響などの面から、施設を大きめに設計するなどの考慮は、特に必要がないと考えられ、そのことが実証できたものと考えられる。

6.5 まとめ

本章では、鉄ろ材浸漬槽への流入水のT-P濃度を一定とし、それ以外の汚濁物質濃度を変化させた実験と、逆にT-P濃度のみを変化させた実験を行い、その結果から「鉄ろ材接触曝気方式」の施設設計方法について検討を行った。

また、この方法のリン除去コストと鉄ろ材の耐用年数、発生汚泥量やその脱水性、鉄ろ材浸漬によるT-P以外の処理に対する影響についても検討を加えた。

①SRBによる鉄腐食を利用した場合の腐食速度は、鉄ろ材に対するBOD負荷の差異によって変化し、BOD負荷が大きいほど鉄ろ材の腐食速度は大きいという関係が得られた。従って、鉄ろ材を用いてリン除去を行う場合の鉄ろ材浸漬量の算定には、BOD負荷の影響を考慮しなければならないことが明らかとなった。また、SRB腐食を利用するためにはBOD負荷 $2.0\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{日}$ 以上が一つの目安になると考えられ、これ以下であれば溶存酸素による腐食が優勢化し、SRB腐食に速やかに移行しないと考えられた。

②鉄ろ材から溶出した鉄イオン量のT-P負荷量に対するモル比と、放流水のT-P除去率、ならびに放流水のT-P濃度には、密接な関係がみられた。この関係によれば、放流水質を $1\text{mg}/\ell$ 以下にするためにはモル比を約1.5以上に、90%以上のリン除去を行うためにはモル比を約2以上にすると推定された。

③これらのことから、実際に鉄ろ材接触曝気方式を利用する場合の、鉄ろ材の浸漬量の決定方法としてつぎのような方法を提言した。まず、②に示した関係から、施設のリン負荷に対して必要な鉄ろ材からの鉄イオン溶出量を求める。そして、次に、①で述べた鉄ろ材に対するBOD面積負荷量と腐食速度の関係から、BOD面積負荷量を指標として鉄ろ材腐食速度（鉄イオン溶出量）を予測し、鉄ろ材の必要浸漬量を決定する。この方法によって、これまでの実験結果を予測したところ、極めてよい結果が得られた。

④SRBによる鉄ろ材の腐食速度は概ね 8mdd 以下と推定された。従って、数mm厚さの鉄ろ材を使用すれば、ろ材の交換作業の頻度を、数10年に1回以下程度とすることも可能であると考えられた。

⑤鉄ろ材接触曝気方式の処理コストは、いままで用いられてきた各種のリン除去技

術に比較して安価であることが確認できた。凝集沈殿法に比較して維持管理費は5分の1以下程度と考えられた。

⑥発生汚泥重量は、通常の接触曝気方式による発生量に比較して増加したが、汚泥の含水率は97~98.5%と低く、脱水性も良好であった。従って、鉄ろ材浸漬による施設の運転管理や維持管理等の作業負担は、通常の接触曝気方式に比較してほとんど変化しないことが明らかとなった。

⑦鉄ろ材の浸漬にともなうBOD, COD, SSの処理, 硝化についての悪影響は観察されなかった。また、鉄ろ材による処理水の着色も特に問題となることはなかった。処理水中のアルカリ度は凝集沈殿法と異なり、上昇する傾向が見られた。このことから、凝集沈殿法のような中和のための付加設備は特に必要ないといえる。以上のことから、鉄ろ材を浸漬することにより、リン以外の処理に対する悪影響などの観点から、通常の接触曝気法に比較して施設を大きめに設計するなどの考慮は、特に必要がないと考えられた。

引用文献

- 1) 武藤暢夫：生活排水対策へのバイオテクノロジー活用の期待と課題，用水と廃水，29(1)，pp. 21-26(1987)
- 2) S. Haruta et al. : Basic Studies on Phosphorus Removal by the Contact Aeration Process Using Iron Contactors, *Wat. Sci. Tec.*, 23, pp. 641-650(1991)
- 3) 治多伸介他：鉄ろ材接触曝気方式による脱リンの実験的研究(Ⅲ) -鉄ろ材適正浸漬量の算定方法-，農土論集，158，pp. 65-72(1992)
- 4) 日本下水道協会：下水試験法-1984年度版-，日本下水道協会，pp. 315-319(1985)
- 5) 井出哲夫他：水処理工学，技報堂出版，pp. 147-160(1986)
- 6) 下平三郎：細菌による金属の腐食，防食技術，22(1)，pp. 2-9(1973)
- 7) Y. I. Sorokin : Role of Carbon Oxide and Acetate in Biosynthesis by Sulfate Reducing Bacteria, *Nature*, 210, pp. 551-552(1966)
- 8) 佐々木英次他：硫酸塩還元菌による軟鋼の水素復極の可能性，防食技術，26，125-132(1977)
- 9) 畑 幸彦：「海洋微生物学」多賀信夫編，東大出版会，pp. 193-194(1974)
- 10) 農林水産省構造改善局計画部：土地改良事業計画指針 農村環境整備，p. 52(1990)
- 11) 北尾高嶺：接触曝気法を用いた小規模下水道の現状と将来，用水と廃水，25(1)，pp. 27-32(1983)
- 12) 國松孝男：農村地域における生活排水処理の変遷と「農村下水道」，環境技術，13(3)，pp. 42-49(1984)

- 13) 有田博之他：農業集落排水施設の処理水の処分，故障，維持管理費用-共用施設管理に関するアンケートから(Ⅱ)-，農土誌，55(10)，pp. 5-10(1987)
- 14) 浦野紘平他：排水中のリン除去技術の特徴と経済性，用水と廃水，29(5)，pp. 3-12(1987)
- 15) 高橋 強：集落排水に適用できる窒素・リン除去技術，農土誌，56(3)，pp. 31-36(1988)
- 16) 西口 猛：農村地域における下水の高度リン除去の新方式，環境技術，14(6)，pp. 8-10(1985)
- 17) 西口 猛編著：農村集落排水のための汚水処理技術入門，農業土木学会，p. 130(1985)
- 18) 藤田賢二：下水道工学演習，学献社，p. 167(1981)
- 19) 土木学会編：衛生工学実験指導書(プロセス編)，土木学会，p. 63(1977)
- 20) 須藤隆一：廃水処理の生物学，産業用水調査会，p. 570(1977)

結言

本論文では、農村地域の小規模分散型の生活排水処理施設に適した新しいリン除去方式として「鉄ろ材接触曝気方式」を提言し、その開発研究にとり組んだ結果を報告した。

「鉄ろ材接触曝気方式」とは、わが国の農村地域で、生活排水からの有機物除去のためにすでに広く使われている、「接触曝気法」のろ材として、通常使用されるプラスチックろ材などにかえて鉄製のものを利用するという極めて簡単なものである。すなわち、鉄製のろ材を浸漬した槽に汚水を流入させ、その中で曝気と攪拌を行う。それにより、ろ材表面に自然着生する微生物の膜の作用によって有機物を分解し、同時に鉄ろ材の腐食に伴って溶出する鉄イオンにより汚水中のリンを吸着させて、その化合物を沈殿排除することによってリンを除去する技術である。

第1編では、まずこの研究の背景と課題を明確化するために、富栄養化問題の現状とリン除去の重要性をまとめ、さらにわが国における農村地域での生活排水処理の実態を検討した。これらにより、富栄養化問題解決のためには、農村地域の生活排水からのリン除去が特に重要であるという結論を導いた。しかし、実際には農村地域でリン除去はほとんど行われておらず、その本質的な原因は現在のリン除去技術が決して満足できるものでなく、農村地域に普及するためには未だに多くの問題を持っているためであることを指摘した。そして、それらの技術の問題点を検討することにより、現在農村地域に期待されているリン除去技術の具備すべき条件をまとめた。

第2編ではこれらの条件を考慮して、新しいリン除去技術である「鉄ろ材接触曝気方式」の開発研究を行った。その結果と考察をまとめると次のようになる。

第1章では、化学平衡論の視点からこの方法のリン除去メカニズムについて検討を行い、この方式が有望なリン除去技術として確立できる可能性を確認したうえで、以下の章で報告した人工汚水を用いた室内実験による検討で解明してゆくべき内容を明確化した。

第2章から第6章までで明らかにした内容の特に重要な点をまとめると次のようになる。

まず、「鉄ろ材接触曝気方式」によって排水からのリン除去を達成することができた。また、有機物除去も一般の接触曝気法に比較して同程度以上に行え、他の水質面にも決して悪影響をあたえないことが確認できた。

ただし、長期的に安定したリン除去を達成するためには次のような点に注意することが重要であることがわかった。①鉄ろ材の腐食が水中の溶存酸素ではなく生物膜中の硫酸塩還元菌の作用によって進行するような環境に鉄ろ材を浸漬すること。そのためには、鉄ろ材に対するBOD負荷が $2.0\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{日}$ 以上というのが目安になること。②鉄ろ材表面の生物膜が過度に肥厚化しないように定期的な逆洗浄などによりその

膜厚を制御すること。

次に、「鉄ろ材接触曝気方式」において所定の処理水質を得るためには、鉄ろ材の浸漬量と浸漬環境の両者を考慮する必要があることがわかった。すなわち、鉄ろ材単位面積単位時間あたりの有機物(BOD)負荷の差によって鉄ろ材の腐食速度は変化し、それにつれて鉄ろ材のリン除去能力も変化することがわかった。BOD負荷が高いほど腐食速度は速く、リン除去能力は高くなった。さらに、鉄ろ材から溶出する鉄イオン量のリン負荷量に対するモル比を指標とすると、放流水のリン濃度やリン除去率を予測できることがわかった。これらのことから、この方式での鉄ろ材の浸漬量の決定方法として次のようなものを提案した。

まず、モル比を指標として、所定のリン除去を達成するために必要な鉄ろ材からの鉄イオン溶出量を求める。そして、次に、鉄ろ材に対するBOD負荷量を指標として鉄ろ材腐食速度(鉄イオン溶出量)を予測し、鉄ろ材の必要浸漬量を決定する。

また、水温や流速の変化については、「鉄ろ材接触曝気法」のリン除去性能は比較的安定しており、施設設計の際にそれらの影響を特に考慮する必要性は低いものと考えられた。

余剰汚泥の性状についてはつぎのようなことがわかった。①余剰汚泥中のリンと鉄の結合状態は極めて安定しており、それらが貯留中に再溶出する危険性は低いものと考えられた。②発生汚泥の重量は通常のプラスチックろ材を用いた処理に比較して増加するが、汚泥の含水率は低くなり、脱水性はむしろ良好になった。このようなことから、本方式の発生汚泥に関する管理は、通常の接触曝気法とほとんどかわらないものと考えられた。

「鉄ろ材接触曝気法」での鉄ろ材の腐食速度は10年でたかだか1mm以下程度であることがわかった。従って、ろ材の交換は数10年に一度程度でよいと考えられ、さらに鉄材の値段が安価であることはよく知られていることである。これらのことから、この方式のリン除去コストは、現在実用化されている処理方式に比較して極めて安価であることが確認できた。

以上のことから、「鉄ろ材接触曝気方式」は農村向けのリン除去技術として極めて有望であると結論することができ、本論文に述べたことに留意すれば、「鉄ろ材接触曝気方式」は富栄養化問題解決のための有力なリン除去技術として実用に供することができるものと考えられた。

ところで、この技術をさらに発展させるためには次のような研究が行われることが望まれる。

まず、本研究で行った検討はすべて、人工汚水を用いたものであるため、実際の生活排水を用いた実規模の施設での実験が望まれる。この時に検討すべき課題としては、次のようなものがあげられる。

前述のように「鉄ろ材接触曝気方式」で安定した高率のリン除去を行うためにはろ材の定期的な逆洗浄が重要である。しかし、この逆洗の強度や頻度などは施設によって異なる可能性があり、この作業をマニュアル化するためにはいくつかの事例

研究が必要と考えられる。

流入水質の変動に対して「鉄ろ材接触曝気方式」がどの程度の処理の安定性を持っているかを確認し、それに対する留意点等を検討することも望まれる。

また、汚泥の農地還元に関する研究も重要である。本文中でも述べたように、「鉄ろ材接触曝気方式」の余剰汚泥の農地への還元利用は、土壌中のリンや鉄不足の問題の解決方法として極めて有用である可能性が高いと考えられている。実際、回分式活性汚泥法の処理施設に鉄ろ材を浸漬した実験の結果からは、その汚泥中には可給態リンが多く含まれていることが実証されている。「鉄ろ材接触曝気方式」についても、その実証や現場での長期的な効果の検討が望まれる。

一方、生活排水以外の産業排水や畜産排水などの処理施設に対しての「鉄ろ材接触曝気法」の適用に関する研究は極めて興味深いと考えられる。これらの汚水に含まれている成分やその濃度は、生活排水とは大きく異なっている。そのため、原理的にはこの方法が適用できる可能性は大きい、その鉄ろ材腐食速度や適正浸漬量は本研究結果から推定されるものとはかなり異なることが予想される。「鉄ろ材接触曝気方式」は、生活排水処理を目的として開発したものであるが、これらの点が解明できればさらに用途の広い技術としてその有効性が高まるものと考えられる。

ところで、最近の小規模生活排水処理では、好気性処理に加えて、嫌気性処理が用いられることが多くなってきた。具体的には、接触曝気槽の前に、接触曝気槽と同様にろ材は浸漬するが曝気を行わない嫌気性ろ床槽と呼ばれるものが設けられる。それによって流入水の有機物のある程度除去することによって、接触曝気槽への有機物の負荷を減じることができる。嫌気性処理の利点としては、省エネルギーで汚泥の発生量が少ないことなどがあげられる。前述のように、「鉄ろ材接触曝気方式」の鉄イオンの溶出は生物膜中の硫酸塩還元細菌の作用によって起こるが、この細菌は偏性嫌気性菌なので、嫌気性ろ床槽の生物膜中にも多数存在する。従って、嫌気性ろ床槽のろ材として鉄製のものをを用いれば、「鉄ろ材接触曝気方式」に類似したメカニズムによって、リンの除去がなされることが期待できる。著者らは、嫌気性ろ床槽のろ材に鉄ろ材を利用して、リン除去が行えることを近年実証することができた。この方法が確立できれば、「鉄ろ材接触曝気方式」と組み合わせて、リンの除去に加えて窒素も同時に除去できる処理システムなどもつくることができるようになり、「鉄ろ材接触曝気方式」はさらに有望な技術として広く使われるようになると考えられる。

謝辞

この論文は、京都大学大学院生時代からの研究成果をとりまとめたものである。この間には大変たくさんの方々にお世話になり、感謝の念に耐えない。最後に、特に直接的に多大なご指導、ご協力をいただいた方々の御名前などを記して感謝の意を表したい。

西口 猛 京都大学名誉教授

京都大学農学部農地計画学研究室

高橋 強 教授

牛野 正 助手

谷本律子 事務官

卒業生、大学院生、専攻生諸氏

京都大学農学部農業工学科

長谷川高士 教授

丸山利輔 教授

はじめ諸先生方

京都大学農学部農芸化学科

久馬一剛 教授

(株)神戸鋳鉄所

佐藤四方治 開発部部長(当時)

特に、西口名誉教授のご指導なくして本論文はありえなかったといっても過言ではない。先生には、研究のきっかけをつくっていただき、著者の学部学生時代、修士課程大学院生時代には、ご退官前の特に多忙な時期にもかかわらず懇切丁寧な研究指導を頂いた。本論文のなかには、先生のご退官後に行った研究もあるが、それらに対しても常に適切なお助言を頂いたことは、誠に至福の限りであったと考えている。

また、高橋教授には、化学分析の基本から、研究の方向づけ、とりまとめにいたるまで本論文の細部に渡って終始一貫のご指導をいただいた。

両先生には特に心からの感謝の意を表すとともに、厚く御礼を申し上げたい。

最後に、本論文が現代の水環境問題解決の一助になれば、この上ない喜びである。