

広島大学工学部 学生員 新 浩寛
 広島大学工学部 正員 山口 登志子
 広島大学工学部 正員 寺西 靖治

1. はじめに

水域の富栄養化の原因と考えられている下水中の窒素・リンの有効な除去方法として、下水の土壌散布処理法が注目されている。土壌散布処理法による窒素の除去過程は、下水中の窒素が硝酸性窒素へと酸化される硝化過程と、硝酸性窒素が窒素ガスとなる脱窒過程よりなる。本研究では、このうち脱窒過程に着目し、土壌カラムを用いた硝酸性窒素溶液の連続供給実験を行った。そしてカラム内の窒素の濃度分布を調べ、移流拡散方程式にもとづいて脱窒過程における反応速度係数を求め、理論解と実験値との比較検討を行ったものである。

2. 生物化学反応を伴う移流拡散方程式

生物化学反応を伴う移流拡散方程式は次式で表わされる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} + \mu \quad (1)$$

ここに、 C は基質濃度、 D は拡散係数、 v は実流速、 μ は微生物による基質の消費速度あるいは窒素化合物の生成速度、 x は土壌内での距離、 t は時間である。微生物反応速度が基質濃度に比例する一次反応 ($\mu = kC$) であると仮定すると、脱窒過程 $\text{NO}_3\text{-N} \xrightarrow{k} \text{N}_2\uparrow$ では定常状態 ($\partial C / \partial t = 0$) で次の方程式が得られる。

$$D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} = k \cdot C \quad (2)$$

拡散係数 D および実流速 v を測定し、実験データより k に関する1階および2階の導関数を三次のスプライン関数によって求め、(2)式の左辺に対して C をプロットすればその傾きが反応速度係数 k となる。(2)式を $C = C_0$ ($x=0$), $C=0$ ($x=\infty$) の境界条件で解くと解は次式で示される。

$$C(x) = C_0 \exp \left[\frac{x(v - \sqrt{v^2 + 4Dk})}{2D} \right] \quad (3)$$

ここで C_0 は供給溶液の窒素濃度である。

3. 実験方法

実験装置は図-1に示

すように、土壌カラムは塩化ビニルパイプ(内径20cm, 長さ120cm)に真砂を深さ100cmに充てんし、土壌溶液のサンプリングのため10cm間隔で9ヶ所に塩化ビニルパイプ(内径9mm, 長さ25cm, ランダムに直径1mmの穴を多数あけ

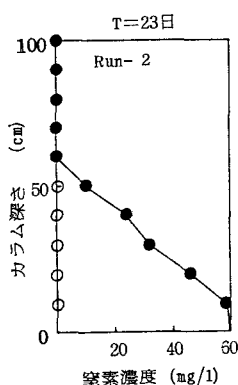


図-3 濃度分布

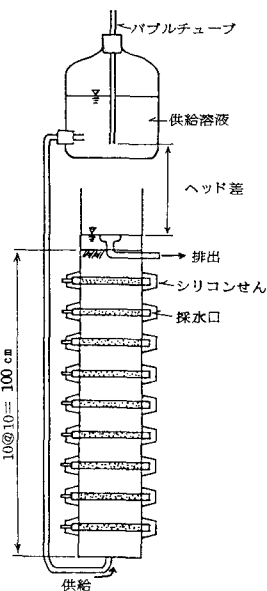


図-1 実験装置

表-1 実験条件

Run	NO ₃ -N (mg/l)	流量 (mg/hr)	実流速 (cm/day)	C/N
1	20	205 ± 40	40 ± 8	1.0 N: KNO ₃ C: CH ₃ OH
2	60	155 ± 30	30 ± 6	
3	30	495 ± 40	94 ± 8	
4	20	426 ± 40	81 ± 8	

NO₃-N: ●
 NO₂-N: ○
 NH₄-N: ○

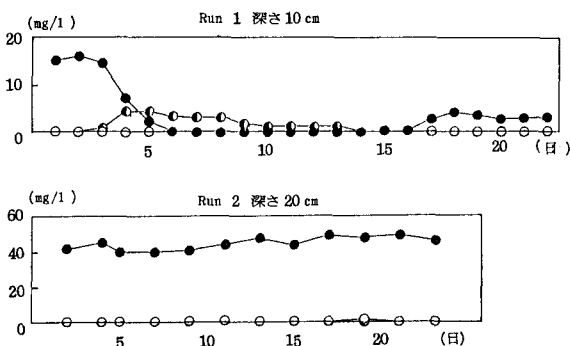


図-2 窒素濃度の経日変化

テフロン棒を通したもの)を通して恒温恒湿室内(温度28°C, 湿度80%)に鉛直に設置した。供給溶液は、マリOTTサイフォンを用いてカラムに連続供給し、パルチューブの位置によりヘッド差を変化させて供給速度を調節した。実験条件は $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度と流量を変化させて表-1のように4種で行った。採水は1~2日間隔で行い、採水した土壤溶液は3週後各N成分($\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$)について、また流出水についてはさらにpH, EC, T-Nについて水質分析を行った。

4. 結果および考察

図-2に各N成分の経日変化の一例を示す。Run-1においては1~5日の期間に $\text{NO}_3\text{-N}$ の減少とともに $\text{NO}_2\text{-N}$ が増加した。これはRun-1が最初の実験であり、土壌内の脱窒菌がまだ十分に増殖しておらず脱窒反応の経路 $\text{NO}_3\text{-N} \rightarrow \text{NO}_2\text{-N} \rightarrow \text{N}_2\uparrow$ をたどる過程で生成される $\text{NO}_2\text{-N}$ が検出されたものと考えられ、その後脱窒菌の増殖に伴い $\text{NO}_2\text{-N}$ は減少していく。各深さにおけるN成分濃度の経日変化がほとんどなくなり、値が一定となった状態を定常状態とみなした。Run-1の定常までの期間は約20日であった。Run-2は実験期間を通じて値に変化が少なく、実験開始後約10日で定常に達した。Run-3, Run-4も同じ傾向であり、定常までの期間は5~10日程度であった。図-3にRun-2における定常時のN成分の濃度分布を示す。他の実験条件でも定常時では図-3とほぼ同じ傾向を示し、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は深さ20~80cmまでではほぼ完全に除去され、 $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NH}_4\text{-N}$ はほとんど検出されなかった。これらの実験データと(2)式から反応速度係数 k を求めた。図-4にRun-2の場合の、(2)式の左辺対 $\ln$ のアロットを示す。また得られた反応速度係数 k と移流拡散方程式の解(3)式による理論曲線と実測値を図-5に示す。同様にしてRun-1, 3, 4の場合についての反応速度係数 k を求めると図-6に示すような理論曲線となる。Run-1, 2においては理論曲線と実測値とがほぼ一致したが、Run-3, 4ではあまり適合しなかった。この原因としては、土壌中の微生物密度の不均一性、カラム内の嫌気状態の不完全さなどが考えられる。

5. おわりに

本研究において得られた結果を要約すると次のとおりである。

5. おわりに

本研究において得られた結果を要約すると次のとおりである。

1) $\text{N}/\text{C}=1.0$ で脱窒はほぼ完全に行われた。

2) 脱窒反応を基質濃度に関する一次式として解いた移流拡散方程式の定常解を用いた理論曲線は、ある程度適切にカラム内での窒素の挙動を表わした。

3) 脱窒反応の反応速度係数 k は、1.2~7.0の値であった。

4) 供給された $\text{NO}_3\text{-N}$ は、深さ20~80cmではほぼ完全に除去された。

5) 土壌内における脱窒反応が定常に達するまでの時間は5~20日であった。

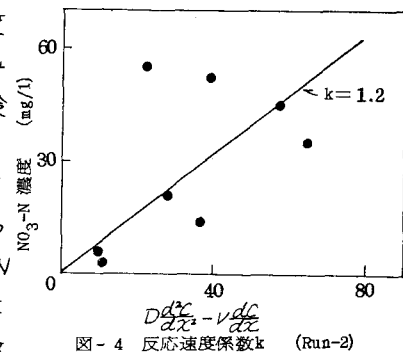


図-4 反応速度係数 k (Run-2)

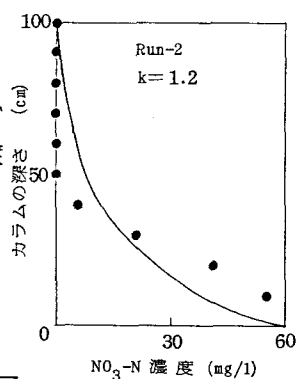


図-5 理論曲線と実測値 (I)

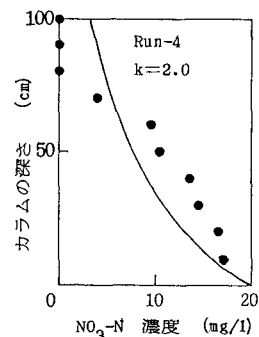
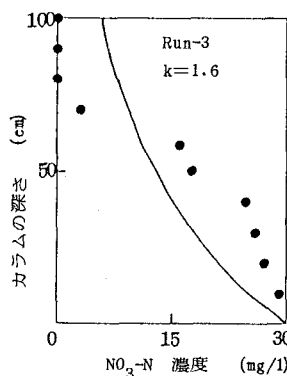
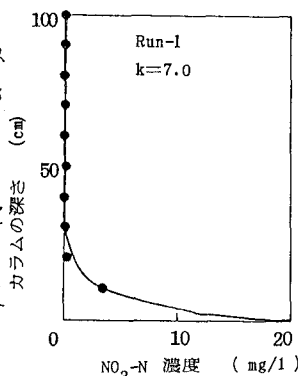


図-6 理論曲線と実測値 (2)