

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

下水の土壌処理における窒素除去過程は硝化・脱窒素の二つのプロセスが基本である。土壌へ供給された下水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ は土壌中の硝化菌により好気的条件下で $\text{NO}_2\text{-N}$ を経て $\text{NO}_3\text{-N}$ に酸化され、さらに次の段階として脱窒素菌により嫌気的条件下で N_2 ガスにまで還元される。この硝化・脱窒素のプロセスにおいて、一般に $\text{NO}_2\text{-N}$ は中間生成物的存在であり、土壌中にはほとんど蓄積しないといわれる。しかし、いずれの過程においても $\text{NO}_2\text{-N}$ を経て反応が進むことは明らかであり、 $\text{NH}_4\text{-N}$ が $\text{NO}_2\text{-N}$ に酸化された段階で $\text{NO}_2\text{-N}$ から直接 N_2 ガスに還元される反応経路も考えられる。そこで本研究では、土壌における $\text{NO}_2\text{-N}$ の酸化還元過程を明らかにする目的で、土壌カラムを用いて NaNO_2 溶液 ($\text{C/N} = 0.4, 0.8$) の定濃度連続供給実験を行い、飽和浸透および不飽和浸透の2種類の浸透流の条件下で、土壌中の $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の分布を経時的に調べ、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の挙動について考察を加えた。さらに反応項を含む物流分散方程式を適用して実験データの解析を試みた。

2. 実験方法

用いた実験装置は図-1に示すような内径200 mm、長さ1200 mmの塩ビカラムにマサ土(比重2.63)を充てんしたもので土壌内の溶液を採水するための採水装置を10 cm間隔にとりつけた。 NaNO_2 溶液の供給はマリオート式定水量供給装置を用いた。図-1は飽和浸透流用の実験装置でタンクのバブルチューブと流出口とのヘッド差により流量を調節した。不飽和浸透流用の装置は図-1と同様のものでマリオートタンクから電磁弁を経て、カラム上部の散布装置の注射針から溶液を供給した。土壌カラムへのマサ土の充てん量は飽和流用、不飽和流用でそれぞれ47.2、50.5 kg(乾燥土)で深さ100 cmに充てんした。充てん時の間隔率はそれぞれ0.43、0.39である。実験条件は表-1の通りで、 NaNO_2 溶液に有機炭素源としてメタノールを加え、 $\text{C/N} = 0.4, 0.8$ とした。採水は2~4日毎に行い、GF/Pで3通して分析に供した。分析項目は $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ である。流出水についてはさらに TN 、 pH 、 EC を測定した。

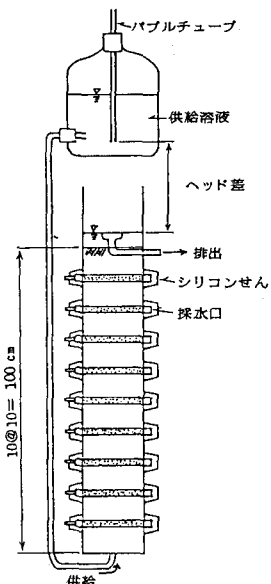


図-1 実験装置

表-1 実験条件

Run	$\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度(mg/l)	C/N	流量 (ml/h)	流速 (cm/h)	供給 方式	実験継続 日数(日)
1	20	0.4	210 ± 40	2.0 ± 0.4	飽和流	28
2		0.8	180 ± 40	1.8 ± 0.4		29
3		0.8	440 ± 70	6.0 ± 0.9	不飽和流	75

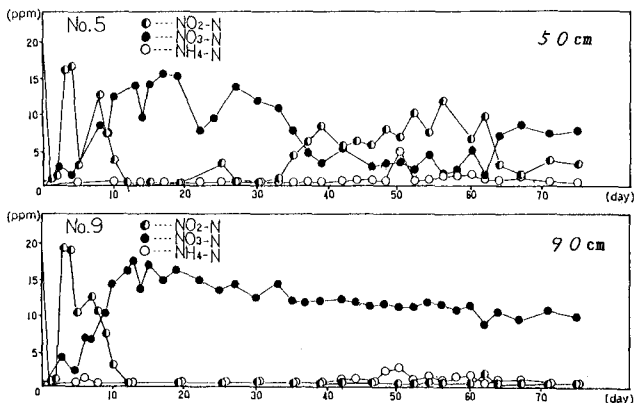


図-2 各深さにおける窒素成分の経時変化 (Run-3)

3. 結果と考察

図-2にRun 3における深さ50, 90 cmでの各N成分の経日変化を示す。深さ50 cmでは NO_2-N , $N-NO_3-N$ の変動が大きく、深さ40 ~ 60 cmでは同様の傾向がみられた。その他の深さにおいては90 cmでの経日変化とほぼ同様で大きな変動はみられなかった。この原因については不明である。 NH_4-N は図に示されるように検出量は微量であった。図-

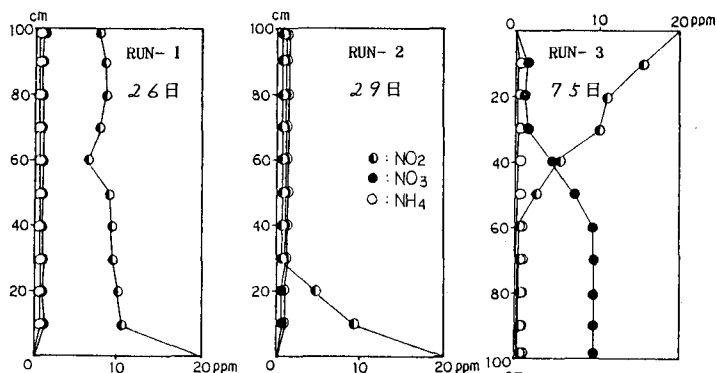


図-3 定常期の窒素成分のカラム内分布

3にRun 1~3の定常期における各N成分のカラム内分布を示す。Run 1では $C/N=0.4$ であるため、脱窒素が完了していない。脱窒素菌の異化、同化作用を含めた亜硝酸性窒素還元反応における C/N の理論値は0.57である。従って、 C/N を0.8として行ったRun 2では脱窒素はほぼ100%完了している。なお、Run 2はRun 1が定常に達した後、 C/N を変えて実験を行ったものである。Run 1, 2では NO_3-N 検出量は1 ppm以下、 NH_4-N は0.4 ppm以下であり、反応経路は $NO_2-N \rightarrow N_2 \uparrow$ と考えられる。これに対して不飽和流で行ったRun 3では、 NO_3-N が10 ppm程度検出されている。 NH_4-N はほとんど検出されないため、反応経路は $NO_3-N \leftarrow NO_2-N \rightarrow N_2 \uparrow$ と考えられる。飽和流と不飽和流という条件の相違により、反応経路が異なるのは酸素供給量に差があるためと考えられる。図-4はRun 3の流出水における各N成分の相対濃度の経時変化を示した。図において NO_2-N の減少量がすべて N_2 に変換されたものとして C/C_s で表わした。

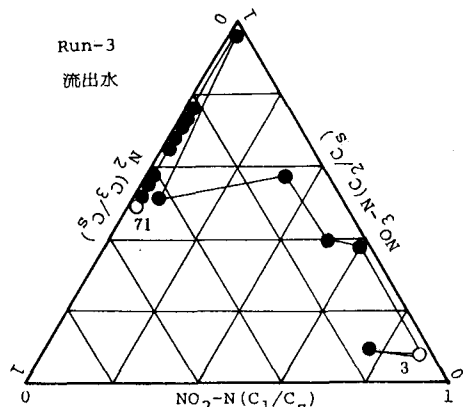


図-4 各窒素成分の相対濃度 (C/C_s) の経時変化

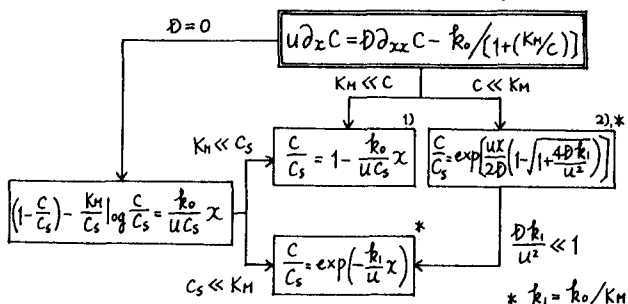


図-5 Michaelis-Menten 反応をともなう移流分散方程式の定常解

このような土壌中のNの生物学的変換過程を記述するには一般に反応項を含む移流分散方程式が用いられる。Michaelis-Menten反応をもつ移流分散方程式の定常解を図-5に示す。こゝに、 K_1 : Michaelis定数、 D : 分散係数、 u : 実流速、 C_s : N供給濃度(一定)、 k_0, k_1 : 反応速度係数である。Run 2については脱窒素を1次反応と仮定して図-5の2)式を適用し k_1 を求めると、0.15 (hr^{-1})が得られた。図-6に実測値と理論曲線を示す。Run 3については0次反応と仮定して1)式より k_0 を求めたが(0.56 $mg/l \cdot hr$)、実測値と理論曲線との充分な整合性は得られなかった。なお、実測した分散係数はRun 2, 3で2.57, 1.11 (cm^2/hr)である。

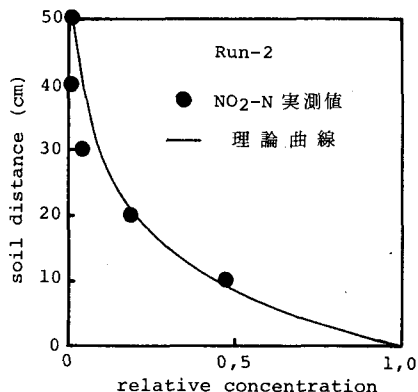


図-6 実測値と理論曲線