

II - 554

連続曝気方式の硝化脱窒法における 亜酸化窒素の挙動

中央大学 O鄭 萩 松尾 吉高

1. はじめに

水域の富栄養化に対する技術的な対応策として、窒素とリンを除去する高度技術を導入していくことが不可欠である。そのうち、窒素の除去技術については、これまでにいくつかの方法が開発されているが、特に下水や尿尿などを対象にする場合には、生物学的窒素除去法が総合的にみて最も優れた方法であるといえる。しかし、生物学的窒素除去法の場合、その設計、運転管理法によっては、地球温暖化の原因となる亜酸化窒素（以下 N_2O と表記する）を生成する恐れがある。

N_2O は二酸化炭素、メタン、 $CFCl_3$ （フロン）とならぶ温室効果ガスであり、その挙動が注目されている。 N_2O 一分子の温暖化能力は CO_2 200分子以上に相当し、大気中では低濃度でありながらも重要な温室ガスといえる。現在、大気中の N_2O 濃度は約310ppmであり、毎年、0.2-0.3%の割合で増加している。 N_2O の大気中の寿命は150年といわれており、早期の発生源対策が必要とされている。

N_2O は硝化においても脱窒においても発生する可能性がある。脱窒については、相対的に有機物が不足し、SRTが短いほど、また、pHが低いほど N_2O が発生しやすい¹⁾。硝化については、DOが低いほど N_2O が発生しやすいと報告されている²⁾。連続曝気方式の硝化脱窒法は運転管理しやすく、ほかの方法に比べコストの有利であるが、好氣的脱窒での N_2O 生成についてはほとんどわかっておらず、本研究では、尿尿処理を模擬した連続曝気方式硝化脱窒処理の実験を行い、その処理過程での N_2O 生成量を調べた。

2. 実験方法

模擬した処理方法は膜分離を利用した連続曝気方式硝化脱窒法である。図1に示すような反応槽を設置し、運転制御にはSequence Controllerを利用した。空気はほぼ連続的に注入し、DO制御を容易にするために槽内気体を循環する曝気方法を用いた。排出ガスは積算ガス流量計で計量した。排出ガスの N_2O 濃度は、試料（1mL）を平均化槽から採取し、光電離検出器（PID）を備えたガスクロマトグラフによって測定した。処理水は面積が $140cm^2$ の画分子量30万の限外濾過膜によって連続排出した。HRTは8日間に設定した。余剰汚泥の排出は行わなかったが、混合液のMLSS濃度は約14000mg/Lであった。反応槽内のDOは記録計により連続的に監視し、pHはコントローラで7.0前後制御した。合成排水の組成を表-1に示す。

図-1 実験装置

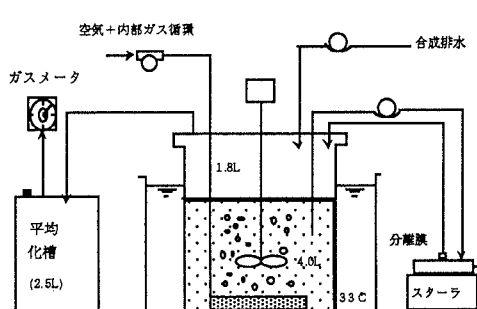


表-1 合成排水の組成（水道水をベースに作成）

CH_3COOH	9000 mg/L
酵母エキス	900 mg/L
NH_4HCO_3-N	2500 mg/L
KH_2PO_4-P	506 mg/L
$MgSO_4 \cdot 7H_2O$	630 mg/L
$CaCl_2 \cdot 2H_2O$	320 mg/L
NaOH	適宜

3. 結果と考察

合成排水を用いた室内実験により生物脱リン装置からの余剰汚泥を種汚泥とし、上記の排水に馴致した。好気性脱窒での N_2O 生成を調べるため、まず次のシーケンス（Seq-1）を用いて運転をした。流出水中の各窒素濃度を図-2に示す。運転開始とともに NO_3^- が蓄積し始め、4日目 NO_3^-N は約1200mg/Lまで蓄積された。不完全な脱窒とともに大量の N_2O 生成が見られた。 N_2O 生成量と N_2O 転換率（生成する N_2O の量と

硝化脱窒で消費された窒素量の割合）を図-3に示す。なお、この運転シーケンスを用いた硝化脱窒過程においてのDOは0-5.0mg/Lの間で変化した。

硝化脱窒過程におけるDOを一定にするため、運転を（Seq-2）に示すようなシーケンスに変更した。反応槽内DOに応じて空気の注入時間は2.5-6.0秒の間に調整した。その結果、反応槽内DOは0.5mg/L前後の一定値になった。比較的低いDOの維持ができたため、脱窒は回復し始めたが、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ は約300mg/L残留するようになった。脱窒の急速な回復とともに、 N_2O の発生量は増大し、その転換率は最大74%を記録した。この原因は N_2O 還元酵素の合成が脱窒（ N_2O までの還元）の回復に追いつかなかったためと考えられる。その後、硝化も脱窒も次第に回復し、窒素除去が完全に行われた状態での N_2O 転換率は10%前後まで減少した。しかし、事故があったため、再び硝化が悪化し、それと同時に N_2O 転換率は70%以上になった。その後、反応槽内DOを約0.1mg/Lに維持しながら、硝化の回復をはかったところ、 N_2O 生成は次第に減少し、その転換率は1%前後になることもあった。しかし、硝化脱窒が不完全になると、 N_2O 転換率は再び急激に増加した。

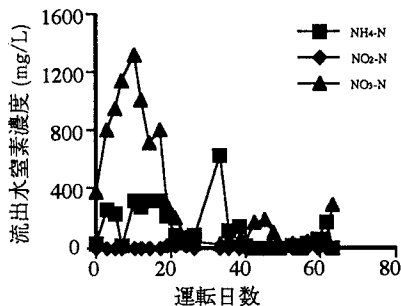


図-2 流出水窒素濃度の経日変化

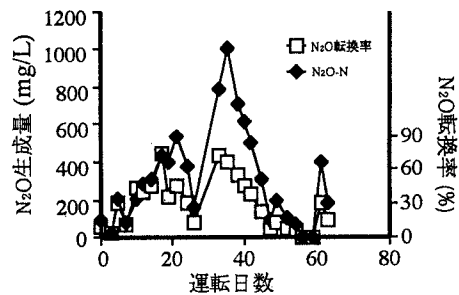


図-3 N_2O 生成量と N_2O 転換率の経日変化

完全な硝化脱窒は行われない限り、このような連続曝気方式での N_2O 転換率は常に30-40%の恐れがあることがわかった。30日目の事故のデータを除いて、このような大量な N_2O の生成は主に脱窒過程での中間代謝物として生成したと考えられる。好気的な脱窒での N_2O 生成メカニズムは次の二つが想定される。(1) 連続曝気によって、注入した一部の有機物は酸素呼吸に消費され、有機物の相対不足による不完全な脱窒が行われたため、 N_2O の生成が促進された。(2) N_2O 還元酵素が溶存酸素に阻害されたため、 N_2O の N_2 への還元が不十分であった。このような大量な N_2O の生成は地球環境への影響が無視できないものであり、硝化脱窒法の運転方法については、さらに検討する必要がある。

4.まとめ

尿処理を模擬した連続曝気方式の硝化脱窒処理（好気的脱窒）の実験を行い、 N_2O 生成の挙動を調べた。その結果、連続曝気方式では、硝化脱窒が不完全な場合には、 N_2O 転換率は30-40%にもなることがわかった。

5.謝辞

本研究は上原章正、金井勝彦、岡安祐司、玄順貴史、四君の協力を得た。

6.参考文献

- 1) K. Hanaki, H. Zheng and T. Matsuo: Production of Nitrous Oxide Gas during Denitrification of Wastewater, Wat. Sci. and Tech., Vol. 26, No. 5/6, 1027-1036 (1992)
- 2) H. Zheng, H. Hanaki and T. Matsuo: Production of Nitrous Oxide Gas during Nitrification of Wastewater, IAWQ 17th Bien-nial International Conference, Preprint Book 1, NR11 (1994)