

VII-34 亜硝酸型硝化脱窒法の亜酸化窒素発生

中央大学理工学部 学生会員 岡安 祐司
正会員 松尾 吉高

1 はじめに

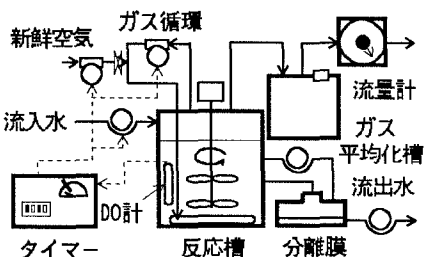
排水からの窒素規制が湖沼域から海域に広がるなかで、硝化脱窒法の重要性が増している。一方で、硝化脱窒法から温暖化ガスである N_2O が発生する可能性も指摘されている。硝化脱窒法の N_2O 発生に関する最近の研究成果は、 NO_2^- の蓄積と N_2O 発生との間の強い相関を示唆している。

標準的な硝化脱窒法では、DO 濃度の低い環境において、硝化脱窒を同時に行わせている。また、多くの場合、硝化形式が亜硝酸型になると報告されている。この方式の利点は、曝気動力および pH 調整剤や脱窒助剤などの薬品量が節減できる経済性にあるが、その一方で、大量の N_2O 発生が危惧される。

そこで、本研究では、低 DO の亜硝酸型高負荷硝化脱窒の室内模擬装置を運転し、その運転方法と N_2O 発生との関係を検討した。

2 実験方法

実験装置・運転方法の概要を図 1 に示す。反応槽（液容積 4.0L）は 水温 33℃ の恒温水槽に設置した気密槽で、曝気工程時に、槽内のガスを循環させ、同時に、新鮮空気を、断続的に系の外から供給し、消費される酸素を補給した。槽内液の DO は、反応槽に設置した溶存酸素計を用いて測定し、空気の供給量の設定を変えることによって管理した。排出ガスの濃度は時間変化するので、少なくとも 1 サイクル分の排出ガスが貯留できる、平均化槽を設け、試料気体を採取した。また、排出ガス量は、ガス流出口の積算流量計で測定し、排出ガス量に排出ガスの N_2O 濃度を乗じて N_2O 発生量を算出した。なお、 N_2O 濃度は、PID を備えた GC で測定した。流入水は 1 L/日（HRT=4日）とし、腐敗防止のために、有機基質と窒素基質は、別々に保管し、同時に注入した。汚泥濃度の管理は、経常分析および回分試験に採取した以外に、余剰汚泥の排出は特にには行わなかった。測定、計量・分析は週 3 日の頻度で行った。



流入水の組成

CH_3COOH 9000 mg/L、Yeast Ex. 900 mg/L、 NH_4HCO_3 2500 mg/L as N、その他無機塩類。

運転方法

実験区	曝気工程	攪拌工程	低DO制御	下限 pH
A	108 min	72 min	×	7.0
B	135 ^{*)}	45	○	7.0
C	360 ^{*)}	120	○	7.0
D	360 ^{*)}	120	○	6.1

^{*)}実験区 B の中旬以後は、DO が設定値に達すると攪拌に切り替わるシステムを採用。

^{**)}基質液は攪拌時間の中途に注入。

3 実験結果

図 1 実験装置と運転方法

連続実験での測定データを図 2 にしめす。実験区 A では 3 時間サイクルとした。曝気工程での DO は 2~4 mg/L 前後に設定し、その結果、硝化工程で NH_3 から NO_2^- 、さらに一部が、 NO_2^- から NO_3^- へと酸化され、曝気工程終了時に NO_2^- と NO_3^- がほぼ等量で残留した。この時の除去窒素の N_2O 転換率は 4~7 %で、曝気工程での窒素の気相中への損失は、ほとんど観察されなかった。（図 3、上段）

実験区 B 以後においては、曝気工程での DO を低濃度に制御した。 NH_3 が残留する間は、DO は、0.2 mg/L 前後の一定値に制御することができ、その間は、 NO_2^- から NO_3^- への酸化が抑えられた。また、 NH_3 が完全に消費されると、DO が上昇する傾向が確認できた。そこで、DO 値を入力とする計電圧リレーをタイマーに組み込み、DO が設定値に達するとガス循環が停止する方式を、実験区 B 途中より採用し、完全な亜硝酸型の運転を実現した。すると、 N_2O 転換率は、40~50 %になり、曝気工程での気相中への損失窒素率は約 20 % になった。（図 3、下段）

実験区 C ではサイクル時間を 8 時間に変更し、曝気工程に蓄積する NO_2^- の濃度の増加を意図したが、 NO_2^- の蓄積量は、比例的には増加せず、また、 N_2O の転換率も実験区 B に比べて、ほぼ変化がなかった。しかし、曝気工程での窒素損失率は、顕著に増加した。（図 4）

実験区 C までは、槽内液 pH を 7.0 に下限値として制御したが、実験区 D では、これを 6.1 に変更した。すると、曝気工程での窒素損失量はさらに増加し、除去窒素の 90 % 以上が N_2O へ転換した。

また、低 DO の亜硝酸型の運転を続けた汚泥を用いて、高 DO（6.0 mg/L 以上）下で硝化回分実験を行ったところ、図 5 に示されるように NO_2^- の酸化を全く行わなかった。このことから、亜硝酸型法は、長い SRT にもかかわらず低 DO 操作により硝酸菌を活性汚泥から洗出する方法であると思われる。なお、この回分実験で用いた対照系汚泥は、並列して運転していた 2 槽循環型高負荷法の模擬実験装置から得た。

4 まとめ

曝気工程での DO が低い、亜硝酸型高負荷硝化脱窒法の模擬実験を行ったところ、 N_2O が大量に発生した。特に、8 時間サイクルの間欠曝気方式で、低 pH の運転条件では、除去された窒素のほぼ全てが N_2O に転換した。

首記外共同研究者

浅江大介、阿部勇弥、上原章正、金井勝彦、
加藤賢一、新妻普宣、初谷和紀、平松恵一、
二木康裕、舟倉健司、秋葉竜大

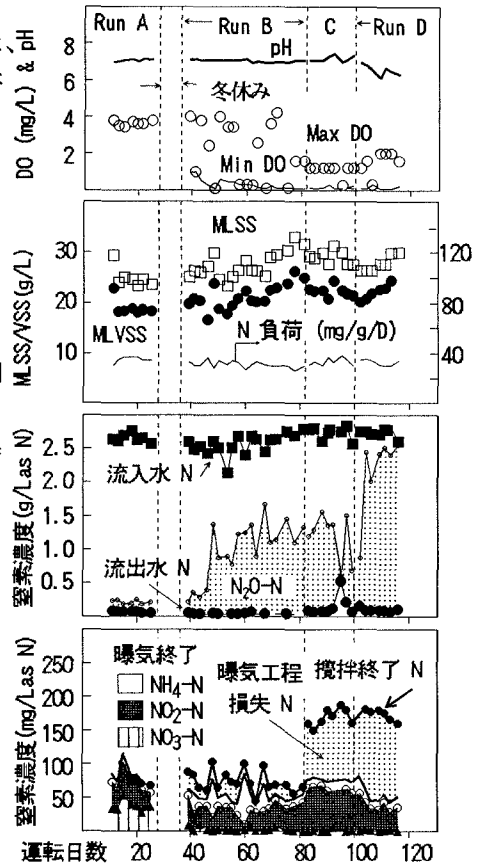


図 2 連続実験の測定データ

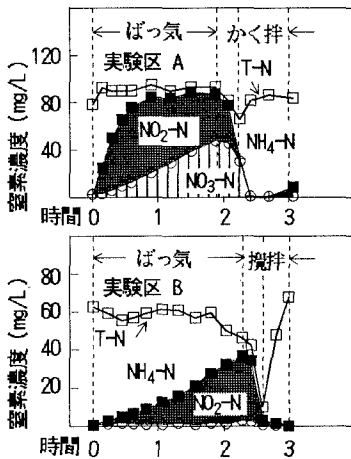


図 3 実験区 A、B における 1 サイクルの窒素化合物変化

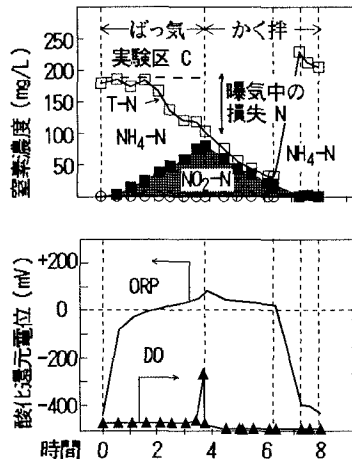


図 4 実験区 C における 1 サイクルの状態変化

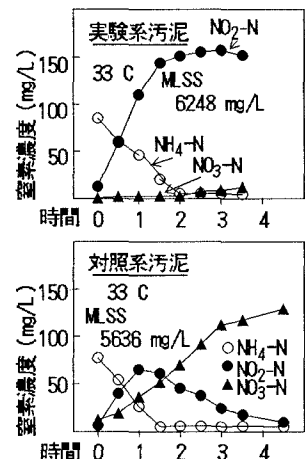


図 5 高 DO での硝化回分実験結果

〔参考文献〕 松尾・岡安ほか：脱窒過程における N_2O の発生（第 30 回水環境学会年會講演集 P 115）
松尾・上原ほか：高負荷回分式硝化脱窒法における N_2O の発生（第 30 回水環境学会年會講演集 P 119）