

硝化過程における $\text{NO}_2\text{-N}$ および N_2O の生成特性

埼玉県・環科国セ ○正会員 見島伊織
日本大学理工学部 学生会員 伊藤耕輔 正会員 吉田征史
茨城大学工学部 正会員 藤田昌史

1. はじめにおよび目的

温室効果ガスの削減は急務の課題であり、下水処理分野においては汚泥処理、水処理の両方で温室効果ガスの発生抑制のための対策を講じる必要がある。水処理では、曝気のための電力由来の CO_2 、窒素除去過程で生成する N_2O (亜酸化窒素) の寄与が多いことが知られている。 N_2O は CO_2 の約 300 倍の温室効果ポテンシャルを有することから、削減の必要性が指摘されている。しかしながら、 N_2O 発生量を削減するための明確な運転方法が確立してはならず、 N_2O の生成から排出までの知見を網羅的に収集する必要がある。これまでの報告によると、 N_2O 生成には、DO、有機物、汚泥滞留時間、 $\text{NO}_2\text{-N}$ などが影響すると言われており、中でも $\text{NO}_2\text{-N}$ は支配的な要因であることが多い。また、我が国の下水処理場は標準活性汚泥法で運転されていることが多く、硝化過程の N_2O 生成について情報を整理することは非常に有益である。

これらのことから、標準活性汚泥法で運転されている処理場を対象として、硝化における硝化活性、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 生成、 N_2O 生成の関連性を考察した。なお、対象とした標準活性汚泥法の施設は、硝化促進から硝化抑制に運転条件が切り替わったため、硝化が十分に行われているオキシデーションディッチ (OD) 法の施設も別途調査し、結果を比較した。

2. 調査・実験方法

水質調査：2 種類の下水処理施設を対象とした。施設 A は OD 法を用いた農業集落排水処理施設、施設 B は標準活性汚泥法を用いた下水処理場である。施設 A では間欠曝気運転、施設 B では連続曝気運転が行われている。なお、施設 B においては、硝化を促進する運転 (case1) が行われていたが、調査期間の途中から曝気量を削減し硝化を抑制する運転 (case2) に変更になった。対象施設の流入水および処理水を定期的に採取し窒素成分を分析した。

硝化活性試験：施設 A および施設 B の反応槽から採取した活性汚泥を用いて硝化速度を求めるための回分試験を行った。試験では、活性汚泥を蒸留水で洗浄し pH を調整した後、 $\text{NH}_4\text{-N}$ を添加し、連続曝気を行いながら一定時間ごとに試料の一部を採取した。採取した試料をろ過し、ろ液の $\text{NO}_3\text{-N}$ を測定した。試験開始後 2 時間における $\text{NO}_3\text{-N}$ の増加速度を最小二乗法で求め、さらにこれを MLVSS で除し硝化活性を算出した。

N_2O 生成試験： $\text{NO}_2\text{-N}$ から N_2O への生成を調べるために、ヘッドスペース型の回分試験を行った。用いた試料は前述の 2 施設の活性汚泥である。まず、活性汚泥を遠心分離して上澄みを棄却し、窒素源を取り除いた BOD 希釈水と置換し pH を調整した。試料 50mL をバイアル瓶に分取し、0~20mgN/L になるように $\text{NO}_2\text{-N}$ 溶液を 1mL 添加した。バイアル瓶を密閉して、0~2h 振とう器で攪拌した。その後、グルコン酸クロルヘキシジン溶液 20% を 1mL 入れ、30 秒間激しく攪拌させた後、20°C で静置し、気液平衡させた。バイアル瓶気相部 N_2O を分析し、オストワルド溶解係数から生成した N_2O 濃度を計算した。

3. 結果および考察

水質調査：各施設の流入水および処理水の窒素成分を図 1 に示す。施設 A および施設 B の case1 の処理水において Org.-N や $\text{NH}_4\text{-N}$ は低く $\text{NO}_3\text{-N}$ が大部分を占めることから、硝化は進行しているが脱窒がやや律速となり $\text{NO}_3\text{-N}$ が処理水に残存したことが示唆された。施設 B の case2 では処理水に $\text{NH}_4\text{-N}$ が残存しており、硝化が case1 に比べ進行していないことが確認できる。また、施設 A では $\text{NO}_2\text{-N}$ はほとんど確認されなかったが、施設 B の case1 および case2 それぞれで、0.6mgN/L、1.4mgN/L の $\text{NO}_2\text{-N}$ が認められた。

キーワード 亜硝酸、亜酸化窒素、下水処理、窒素除去、硝化

連絡先 〒347-0115 埼玉県加須市上種足 914 埼玉県環境科学国際センター TEL0480-73-8369

硝化活性試験：試験中にNO₂-Nが生成することがあったため、硝化活性と試験開始後2時間に生成したNO₂-Nの関係を図2に示した。施設Aでは、硝化活性が低くNO₂-Nの生成も見られないが、施設Bのcase1では、硝化活性が高くなるにつれ、NO₂-Nの生成も高くなった。一方で、施設Bのcase2では、硝化活性が低下したにもかかわらず、NO₂-Nは1.4mgN/Lと高くなった。これは、硝化抑制運転に切り替わったことで、AOB（アンモニア酸化細菌）およびNOB（亜硝酸酸化細菌）の細菌数または活性が減少することにより、case2では硝化活性が低下するとともに亜硝酸酸化が停滞したことで試験中にNO₂-Nが多量に生成したためであると考えられた。

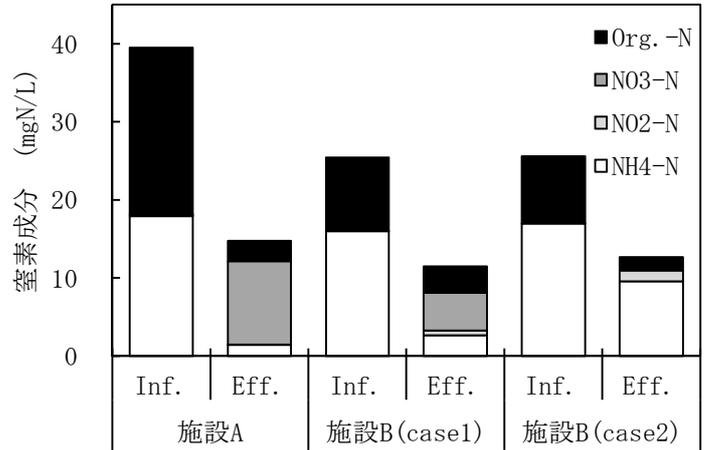


図1 流入水、処理水の窒素成分

N₂O生成試験：試験時間を1時間としてNO₂-N濃度を変化させた場合の結果を図3に、NO₂-N濃度を5mgN/Lとして試験時間を変化させた場合の結果を図4に示す。図3では、いずれの施設においてもNO₂-Nが高くなると生成されたN₂Oも増加し徐々に一定値に収束したことから、NO₂-NからN₂Oへの生成はミカエリス・メンテン式で説明できることが示唆された。図4では、いずれの施設においても多少のばらつきは認められるものの、時間とともにN₂O生成量が直線的に増加した。これらの結果は、好気的な条件においても、NO₂-NからN₂Oへの還元が進行したことを示している。また、図3および図4において、同条件では施設Bにおいて施設Aの2倍以上のN₂O生成が見られた。これらのことから、硝化が進行していない施設においては、硝化の際にNO₂-N生成が多く、生成したNO₂-Nから多くのN₂O生成が行われると考えられた。

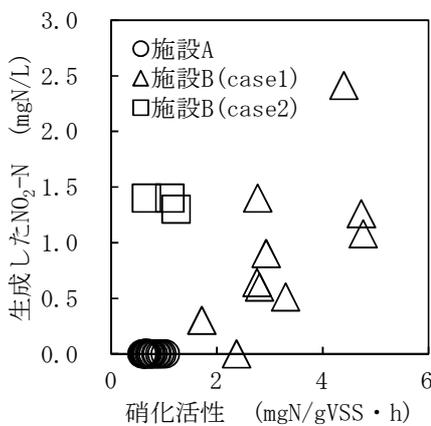


図2 硝化活性とNO₂-N生成

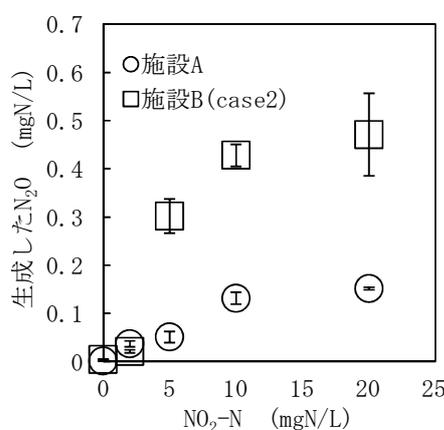


図3 NO₂-N濃度に対するN₂O生成

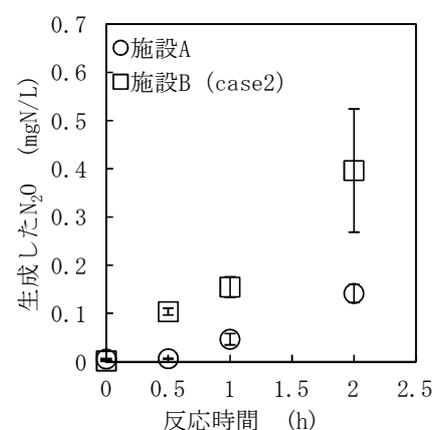


図4 反応時間に対するN₂O生成

他方、施設Bのcase2で行った実際の現場調査の結果では、N₂O排出量がcase1に比べて低い傾向にあった。よって、施設Bのcase2では、NO₂-NおよびN₂O生成のポテンシャルは高く有するものの、硝化量そのものがそれよりも支配的な要因になっているため、N₂Oの排出量は低い可能性が示唆される。

4.まとめ

2つの下水処理施設を対象として、窒素除去特性、NO₂-N生成特性、N₂O生成特性を調査ならびに室内実験から検討した。硝化が十分に進行していた施設では、硝化活性、NO₂-NおよびN₂O生成が低かった。しかしながら、硝化が抑制されている施設においては、硝化活性が低い場合でもNO₂-N生成および、N₂O生成が高くなった。今後は、窒素負荷量、硝化量に加え、脱窒も考慮したN₂O生成機構を検討する予定である。

謝辞

本研究を進めるにあたり公益信託下水道振興基金および公益財団法人鉄鋼環境基金の助成の支援を受けた。ここに記して謝意を表する。