

連続脱窒素における土壌内脱窒素

広島大学工学部 正 寺西 靖治
広島大学工学部 正 山口 登志子
広島大学工学部 学 大村 昭彦
日本水道コンサルタント 岡崎 昭夫

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から成っている。本研究は、土壌処理の脱窒過程に着目し、これを明らかにする目的で土壌カラムを用いた KNO_3 溶液の定濃度連続供給実験を行い、窒素成分($\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$)のカラム内分布の経時変化を測定し、考察を加えたものである。

2. 実験方法

実験装置は図-1に示すように、塩化ビニルカラムに採水装置を5~10cm間隔に取り付けたものを用いた。カラムは、5mmのフルイを通したマサ土のみを充填したもの2本に、マサ土に畑土を重量比で1%混合したものを充填したもの1本の計3本のカラム(C-1, C-2: マサ土のみ, C-3: マサ土+畑土)を使用した。使用したマサ土と畑土の理化学的性質、マサ土の物理的性質を表-1, 2に示す。

KNO_3 溶液はRun1~3は電磁弁, Run4~6は電磁定量ポンプを用いて供給した。

実験条件は表-3に示す。供給液の濃度は $\text{NO}_3\text{-N}$ で20~60mg/l, また脱窒菌の炭素源として CH_3OH をC/N=1となるように添加した。Run1~3は温度30℃, 湿度50%, Run4~6は温度20℃, 湿度50%の恒温恒室内で実験を行った。

Run2, 3およびRun5, 6はそれぞれRun1, Run4が定常に達してから供給濃度を変えを行った。なお、定常期は、窒素成分のカラム内分布に変化がみられなくなった時期とした。採取した試料は3500rpmで5分間遠心分離した後、各窒素成分($\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NH}_4\text{-N}$)について、

また流出水についてはさらにpH, EC, 酸素消費量について分析した。カラム上部に設置したガスためから採取したガスの組成とガス発生量を測定した。またRun6においてはORP, DOを測定した。実験開始前と実験終了後のカラム内の脱窒素菌の分布および脱窒活性について調べた。

3. 結果と考察

1) pH, EC : 流出水のpH, ECともに使

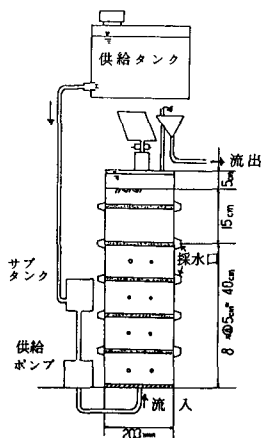


図-1 実験装置

表-1 マサ土, 畑土の理化学的性質

計量項目	単位	マサ土	畑土
塩基置換容量	me/100g	2.0	—
T-N	mg/kg	25	2200
T-P	mg/kg	370	2700
T-C	(w/w) %	検出されず	2.1

表-2 マサ土の物理的性質

比重	2.65
含水比 %	1.1
最大粒径mm	5.0
60%粒径	1.62
30%粒径	0.53
10%粒径	0.14
均等係数	11.57
曲率係数	1.24

表-3 実験条件

	Run-1	Run-2	Run-3	Run-4	Run-5	Run-6	
温度, 湿度	30℃, 50%			20℃, 50%			
$\text{NO}_3\text{-N}$	20	40	60	20	40	60	mg/l
N供給量	C-1 179±38	188±38	196±38	200±8	204±8	196±8	ml/hr
	C-2 300±25	275±63	279±25	300±8	304±4	300±8	
	C-3 300±17	267±58	288±21	304±13	292±4	300±4	
流量	C-1 3.58	6.92	11.77	4.00	8.12	11.82	mg/hr
	C-2 6.00	10.92	16.68	6.04	12.16	17.88	
	C-3 6.04	10.72	17.16	6.10	11.60	18.06	

表-4 発生気体の組成

		Run-1	Run-2	Run-3	Run-4	Run-5	Run-6
C-1	N_2	94.5	97.3	98.0	96.6	99.5	96.7
	O_2	4.7	2.7	3.3	1.6	2.1	1.6
C-2	N_2	97.4	96.4	99.4	93.7	95.3	94.4
	O_2	1.6	3.7	0.8	1.2	5.3	1.3
C-3	N_2	99.0	97.8	98.3	97.7	98.4	97.6
	O_2	1.0	2.2	0.7	1.7	2.2	1.1

(%)

給溶液の基質濃度が高くなるにつれて増大する傾向がみられた。流出水の pH は実験を通して約 7.00~8.20 であった。

2) 窒素成分の経日変化 : 図-2 に各窒素成分のカラム内分布の一割を示す。なお、図では各窒素濃度は、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 供給濃度を C_s 、実測値を C として相対濃度 C/C_s で表している。

Run 1, 4 では、脱窒素が定常に達するまでに 16~34 日程度要している。これは Run 1, 4 とともに一連の実験の最初の実験のために、脱窒素菌が十分に増殖していなかったためであらう。また Run 1, 4 ではかなりの $\text{NO}_2\text{-N}$ が検出された。これは脱窒素菌が、 $\text{NO}_3\text{-N} \rightarrow \text{NO}_2\text{-N} \rightarrow \text{N}_2\uparrow$ の還元過程を経ることと、最初の実験のため $\text{NO}_2\text{-N} \rightarrow \text{N}_2\uparrow$ に関与する酵素の生成に遅れがあるためと考えられる。Run 2, 3, 5, 6 では 10 日前後で定常に達しており、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の検出も C/C_s で 0.02 以下であった。流入端より 10~20 cm 以内では脱窒は完了していると思われる。 $\text{NH}_4\text{-N}$ については、すべての Run を通じて C/C_s で 0.01 以下であった。

3) 発生ガス組成 : 発生した気体の組成と発生量を表-4, 5 に示す。発生ガスの 94~100% が N_2 ガスであった。なお乾燥空気組成は、体積%で $\text{N}_2 = 78.03$, $\text{O}_2 = 20.99$, $\text{Ar} = 0.933$, $\text{CO}_2 = 0.030$ である。表-5 の中の数字は、供給した $\text{NO}_3\text{-N}$ がすべて N_2 ガスに変換された場合の理論値であり、実測値とほぼ一致している。

4) 酸化還元電位 (ORP) および溶解酸素 (DO) : Run-6 において ORP は 200~400 mV の範囲で、一般に脱窒素が進行しやすいといわれている値 (200~400 以下) と一致している。またカラム内の土壌溶液の DO (Run-6) は、1~3 mg/l であった。なお供給液の DO は 7~8 mg/l である。

5) 反応速度係数 : 脱窒素を 1 次反応と仮定し、反応-移流分散方程式の定常解から反応速度係数を決定した。得られた反応速度係数は、0.9~2.3 h^{-1} であった。また移流項と分散項の比を表わす Péclet 数は 0.1~3.3 であった。

6) 脱窒素菌の分布 : 実験開始前および Run-6 終了後のカラム内の脱窒素菌の分布を図-3 に示す。脱窒素菌数 (μ) は MPN/1g 乾土である。この脱窒素菌分布は Run-6 における定常期の $\text{NO}_3\text{-N}$ 分布と対応しており、別に測定した脱窒活性とも対応していることがわかった。

4. まとめ
本研究で得られた結果を要約すると次のとおりである。

4. まとめ

本研究で得られた結果を要約すると次のとおりである。

1. $\text{NO}_2\text{-N}$ の検出と N_2 ガスの確認により、 $\text{NO}_3\text{-N} \rightarrow \text{NO}_2\text{-N} \rightarrow \text{N}_2\uparrow$ の脱窒経路が明らかになった。

2. 供給した $\text{NO}_3\text{-N}$ がほぼ全量 N_2 ガスに変換されており、カラム内で脱窒素は完了している。

3. C/N (有機炭素量と窒素基質量の比) = 1.0 で脱窒素は、ほぼ完全に進行する。

4. 脱窒素を 1 次反応と仮定して求めた反応速度係数は、0.9~2.3 h^{-1} であった。

表-5 気体の発生量

	Run-4	Run-5	Run-6
C-1	105 (80)	186 (167)	243 (236)
C-2	141 (117)	222 (238)	343 (346)
C-3	138 (122)	199 (233)	327 (364)

(ml/day)

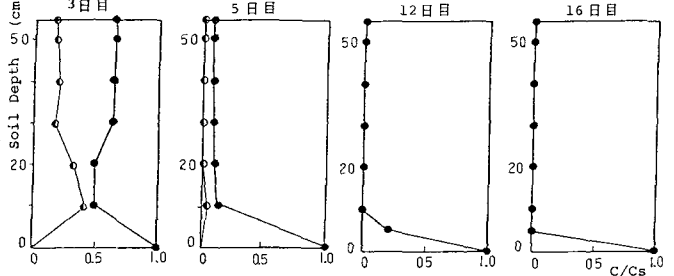
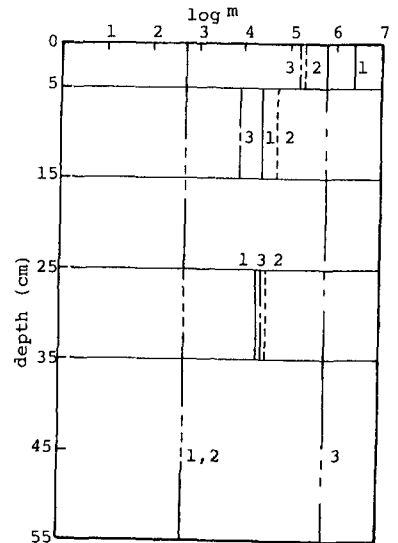


図-2 窒素のカラム内分布 Run-1 C-1



(m: MPN/1g 乾土)
--- 初期の脱窒素菌数
1, 2, 3 の番号はカラム番号を示す。
図-3 カラム内の脱窒素菌分布