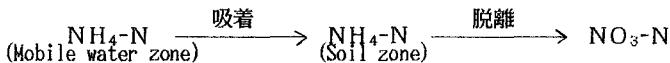


## 土壤内硝化過程における アンモニア性窒素の吸着機構

広島大学工学部	正 員 寺西 靖治
広島大学工学部	正 員 山口 登志子
広島大学工学部	学生員 松田 弘
神戸市	○正 員 津島 秀郎

1.はじめに 下水の土壤処理（急速浸透法）における硝化過程でのアンモニア性窒素 ( $\text{NH}_4\text{-N}$ ) の土壤への吸着機構を明らかにする。

2.解析方法 本研究では、土壤カラムに  $\text{NH}_4\text{Cl}$  溶液を連続供給し、土壤内の各窒素成分を経日的に調べて得られたデータについて解析を行った。カラム名をそれぞれ NM20, NM40, NS20 とし、全て温度 10°C で 140 日間行った。供給濃度は NM20, NS20 は 20 ppm, NM40 は 40 ppm とした。また、NM20, NM40 は 98% マサ土、NS20 は 98% 川砂で行った。本研究の解析において、以下のような吸着モデルを仮定した。



この吸着モデルを用い、次に示す反応移流分散方程式の逆問題として  $\text{NH}_4\text{-N}$  の土壤への吸着速度  $\Phi_1$ 、硝化速度  $\Phi_2$  及び土壤への  $\text{NH}_4\text{-N}$  の蓄積速度  $\Phi_a$  を求める。

$\text{NH}_4\text{-N}$  の反応移流分散方程式

$$\frac{\partial C_1}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C_1}{\partial X^2} - U \cdot \frac{\partial C_1}{\partial X} - \Phi_1 \quad \frac{\partial C_2}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C_2}{\partial X^2} - U \cdot \frac{\partial C_2}{\partial X} + \Phi_2$$

ここで、  $C_1$  :  $\text{NH}_4\text{-N}$  の濃度、  $C_2$  :  $\text{NO}_3\text{-N}$  の濃度、  $D$  : 分散係数、  $U$  : 間隙内平均流速

$X$  : 土壤内距離、  $t$  : 時間、

また、  $\Phi_a = \Phi_1 - \Phi_2$

求められた  $\Phi_a$ 、 $\Phi_2$  及び  $C_2$  の経時変化を図に表すと図 1 の要になる。この  $\Phi_a$  を時間的に積分することにより、土壤への  $\text{NH}_4\text{-N}$  の蓄積量が求められる。ここで、  $\text{NH}_4\text{-N}$  の土への吸着量を  $S$  (mg/l·soil)、吸着量を  $S'$  (mg)、蓄積量を  $S_m$  (mg)、蓄積濃度を  $S_a$  (mg/l·soil) とする。

3.結果と考察 求められた蓄積濃度  $S_a$  と  $\text{NH}_4\text{-N}$  の濃度  $C_1$  には硝化反応が起こる以前において比例関係がみられたので、Henry型吸着反応式を仮定して硝化反応が起こる以前に対して以下の式を立てた。

$$S_a = \theta \cdot R_1 \cdot C_1 \quad \text{ここで, } \theta \text{ ; 体積水分含有率, } R_1 \text{ ; 吸着係数}$$

この式の成立を確かめるために、理論解による Curvefitting で求められた  $R_1$  と、この式の逆算により求められた  $R_1$  を比較した。その結果を図 2 及び図 3 に示す。  $R_1$  は厳密には時間的空間的に変化しているが平均的に見るとどちらも  $R_1 = 80$  程度で一致する。これは、他のカラムにおいても同様の結果が得られた。よって、硝化反応が始まるまでの蓄積濃度  $S_a$  はこの式によってほぼ近似できる。しかし、吸着反応が起こ

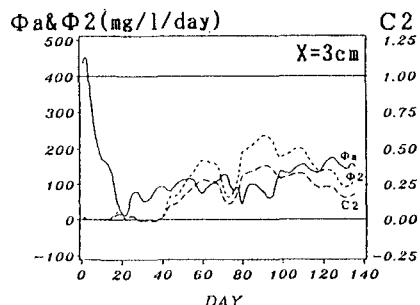


図 1 蓄積速度  $\Phi_a$ 、硝化速度  $\Phi_2$  及び  $\text{NO}_3\text{-N}$  の濃度  $C_2$  の経時変化

ると、Henry型でも、Freundlich型でも記述できなかった。

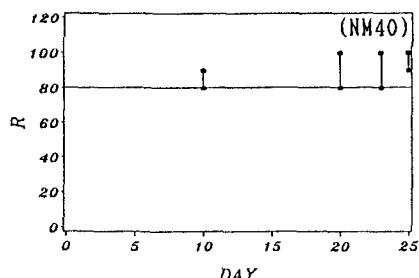


図2  $R_1$ の経時変化(Curvefitting)

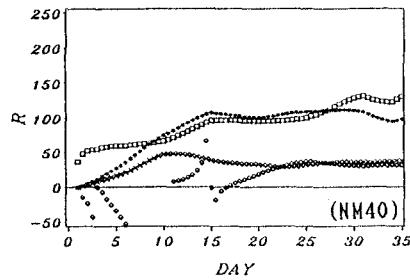


図3  $R_1$ の経時変化(逆算)

次に、 $\Phi_a$ の積分により求められる蓄積濃度分布  $S_a$  の経時変化と実験終了後のT-Nの濃度分布を比較すると図4のようになる。 $S_a$  の合計値と実測のT-Nの総量はほぼ等しい。しかし、濃度分布は図4のように浅い位置では  $S_a$  が増加し続けその他の層では  $S_a$  は0付近の値を取るのに対しT-N実測値はほぼ均一に吸着しているという違いが現れている。この考察結果より、土壤に吸着したNH<sub>4</sub>-Nが吸着相内を移動していると考えられる。そこで、NH<sub>4</sub>-Nの吸着相での移動を拡散によるものと仮定して、以下に新たなモデルを示す。

#### <吸着相内拡散モデル (SPDM)>

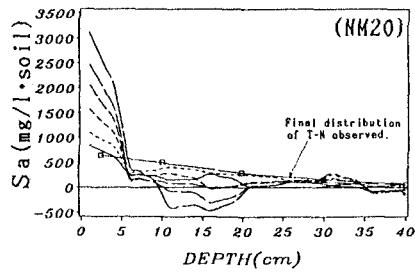
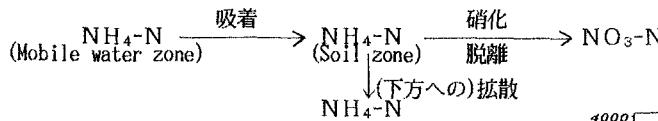


図4 NH<sub>4</sub>-Nの蓄積濃度分布の経時変化とT-Nの濃度分布との比較

このモデルにより解析を行うには、従来の反応移流分散方程式に加え、吸着相でのNH<sub>4</sub>-Nの拡散を記述するために、以下の拡散方程式を適用する。

$$\frac{\partial S}{\partial t} = D_1 \cdot \frac{\partial^2 S}{\partial X^2} \quad \text{ここで, } D_1: \text{分子拡散係数}$$

分子拡散係数のオーダーは  $10^{-5}$  (cm<sup>2</sup>/sec) である。これより  $D_1 = 1.0$  (cm<sup>2</sup>/day) として蓄積濃度分布を求める。この結果を図5に示す。

図5のように、吸着相でのNH<sub>4</sub>-Nの拡散を考慮すると、蓄積濃度分布は実測値にかなり近づく。

**4. まとめ** 本研究で得られた結果は以下の通りである。1) 硝化反応が起こる以前では、NH<sub>4</sub>-Nの土壤への吸着はHenry型吸着反応式でほぼ近似できるが、硝化反応を伴うNH<sub>4</sub>-Nの吸着はHenry型吸着反応式では記述できない。2) 土壤へ吸着したNH<sub>4</sub>-Nは、吸着相（土壤）内で移動していることが明らかとなり、その現象は土壤に吸着したNH<sub>4</sub>-Nが土壤付着水相を介して分子拡散により移動すると仮定することで説明できることを示した。

今後の課題としては、吸着相での溶質の移動を詳しく調べる実験を行うこと、硝化反応を伴うNH<sub>4</sub>-Nの吸着反応の定式化についてさらに検討を進めるなどがあげられる。

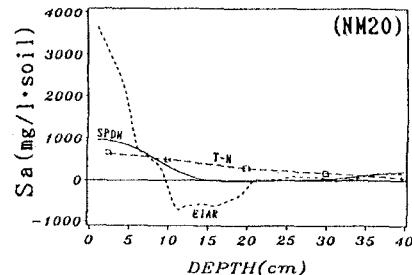


図5 NH<sub>4</sub>-Nの蓄積濃度分布とT-Nの濃度分布の比較