

硝化・脱窒過程における N_2O 発生因子に関する研究

九州大学工学部

学生員 ○森 浩光 学生員 今村正裕

フェロー 楠田哲也 学生員 李 昇潤

1. はじめに

生物学的反応で発生する N_2O は、硝化・脱窒の最終生成物ではなく、中間生成物である。水域においては上層水中や底質表層で硝化による N_2O 生成が、底質の深層や表層の一部で、脱窒による N_2O の生成があることが知られている。従来の野外調査結果によると、 N_2O は間隙水中において、完全に還元されずに蓄積する傾向にある。そこで本研究では、この両過程を考慮し、底泥においては N_2O 生成に関わる因子、 N_2O から最終生成物である N_2 への流れを促進するような因子 (DO, pH) について検討し、実験結果より各因子の変化と N_2O 生成との関係を求めた。

2. 実験条件及び方法

容積 68.41ml のバイアルに湿泥 4 g、緩衝液 (pH7.2) 2ml を入れ、試料に対する瓶全体の容積を大きくし、急激な O_2 濃度変化の影響を極力防いだ。そして完全混合のバッチ実験を行い、容器内の 3 態窒素 (NH_4-N 、 NO_2-N 、 NO_3-N) 濃度およびヘッドスペース法により、ガスクロマトグラフを用いて気相中の N_2O 、 N_2 、 O_2 の経時変化を測定した。実験時の O_2 濃度は、1、0.5mg/l の 2 段階とした。試料には福岡県多々良川の名島弁天橋下の湿泥を用いた。硝化反応抑制剤として塩素酸塩、 N_2O 還元抑制剤としてアセチレンガスを用いた。実験 2 では C/N 値が 5 以上で脱窒が十分進むようにするために、フマル酸を有機炭素源として補ったものである。) 以下に実験条件を示す。

表-1 実験条件

	酸素濃度	基質	置換	塩素酸塩	フマル酸	実験番号
実験1	1mg/l	NO_2-N	C_2H_2	○	×	1- C_2H_2 -○
				×		1- C_2H_2 -×
実験2	0.5mg/l	NO_2-N	Ar	×	○	2-Ar
			C_2H_2			2- C_2H_2
		NO_3-N	Ar			2*-Ar
			C_2H_2			2*- C_2H_2

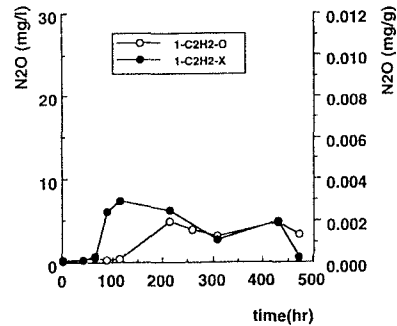
但し、液相中の濃度は、塩素酸塩 1.7g/l (1ml)、フマル酸 200mg-C/l (3ml) である。

また、基質濃度は、実験 1 では 40mg/l、実験 2 では 120mg/l である。

3. 結果及び考察

図-1 に、実験 1 での N_2O -N 濃度の経時変化を示す。双方ともアセチレンでヘッドスペースで置換したので、 N_2O 還元が抑制され、100~450h において N_2O の蓄積がみられる。ピーク時では 1- C_2H_2 -○で約 7.5mg/l、1- C_2H_2 -×では約 5mg/l となっている。 N_2O の発生にタイムラグが生じているが、これは塩素酸塩によって、試料の湿泥中の NH_4-N から NO_2-N への酸化が抑制されているためと考えられる。また 100h 前後で O_2 濃度が減少したが、これは硝化の進行によって O_2 が消費されたものと考えられる。

図-2 に、実験 2 での N_2O -N、 N_2 -N 濃度の経時変化を示す。ヘッドスペースの O_2 濃度が 0.5mg/l と低く、底質は嫌気状態

図-1 N_2O 濃度の経時変化・実験 1

にあるので脱窒が促進され、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ いずれの基質においても50h以内で N_2O が急激に生成されている。この基質による生成濃度の差はあまり見られないが、若干 $\text{NO}_3\text{-N}$ の方が発生時期が遅い。これは脱窒過程の経路によると思われる。アセチレンで置換した $2\text{-C}_2\text{H}_2$ と $2^*\text{-C}_2\text{H}_2$ では N_2O 還元抑制効果により70h付近まで N_2O が蓄積され、ピーク時には約22mg/lの濃度となったが、アルゴンで置換した 2-Ar と 2^*-Ar では、ピーク時でも0.8~0.9mg/lと低く、生成後まもなく N_2 に還元されていることが分かる。しかし、 $2\text{-C}_2\text{H}_2$ と $2^*\text{-C}_2\text{H}_2$ において、ピークに達した後、 N_2O は一定でなく減少に転じている理由として、アセチレンが他の物質と反応を起こして変化しやすい性質を持つ、若しくは基質として働いている場合があるということが考えられる。この生成濃度の違いは、置換条件以外は同条件であることより、アルゴン置換では初期 N_2O 生成過程で $\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2$ への移行が同時進行しているからだと考えられる。

今回は、 O_2 濃度が0.5mg/lと1mg/lでしか実験していないが、この程度の差でも N_2O の生成速度は、 $1\text{-C}_2\text{H}_2$ と $2\text{-C}_2\text{H}_2$ で大きく違うことが明らかとなった。 O_2 が2~3mg/lと低 O_2 濃度でも硝化からの N_2O 生成が考えられ、 O_2 濃度の制御が N_2O 生成・還元全体の操作因子として大きな役割を果たしていると言える。今後、 O_2 濃度を変化させ、またpHといった他の因子による N_2O 生成・還元について検討する予定である。

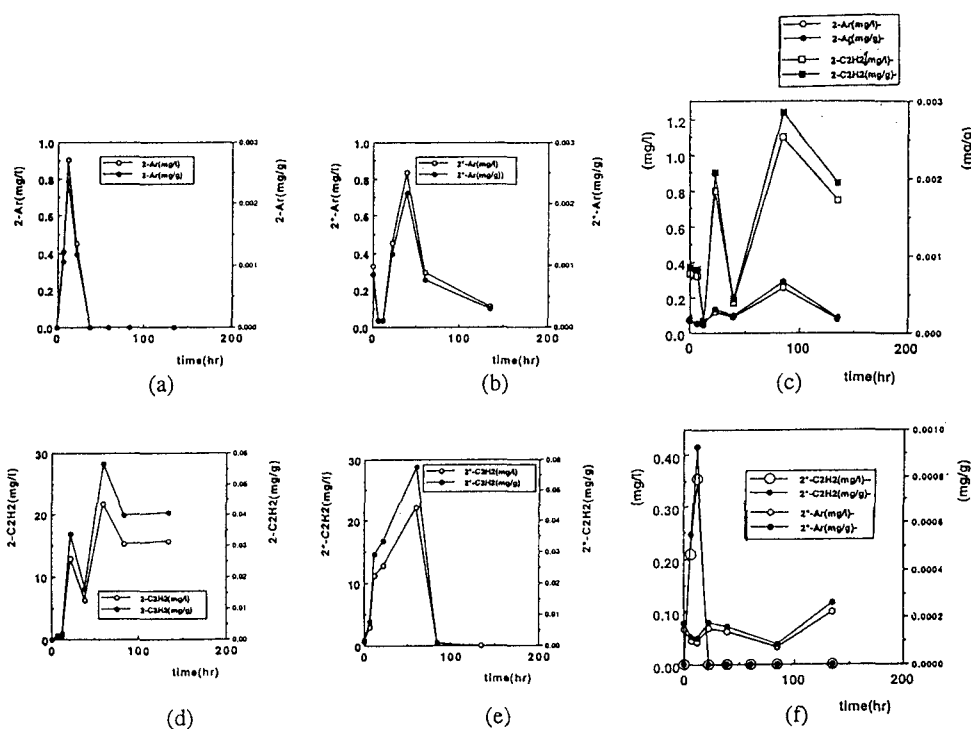


図-2 N_2O と N_2 濃度の経時変化

参考文献

- 楠田：地球環境保全に適応する新しい都市環境保全システムの開発と評価に関する総合研究 (1995)
 花木：富栄養化した水域における一酸化二窒素の生成と反応支配因子解明に関する研究 (1995)