

下水二次処理水のオゾン消毒プロセスにおける N_2O の生成特性評価

秋田工業高等専門学校 学生会員 加賀谷悠聖 非会員 富樫ちあき
秋田工業高等専門学校 非会員 大友渉平 正会員 金主鉉 正会員 増田周平

1. はじめに

亜酸化窒素 (N_2O) は CO_2 の 265 倍の強力な温室効果を有しており、オゾン層破壊物質であるため発生量の削減が求められている。 N_2O は下水処理プロセスの生物処理工程から発生することが知られている。一方で、下水処理水には N_2O が溶存態として含まれており¹⁾、発生源として消毒プロセスの可能性が示唆されている²⁾。さらに本研究グループの既往調査において、実処理場のオゾン消毒前後で N_2O の発生を示唆するデータが得られた。以上をふまえ、本研究ではオゾン消毒過程での N_2O の生成特性の評価を目的とし、下水処理場の二次処理水を用いてオゾン注入率をパラメーターとした室内実験を行った。

2. 方法

2.1 実験の概要

秋田県内の A 下水処理場で採取した二次処理水を用いて、オゾンとの接触実験を行った。実験に供した二次処理水の水質は TN が 14.4mg/L, NH_4^+ が 12.6 mgN/L, NO_2^- が 1.6 mgN/L, NO_3^- が 0.1 mgN/L であり、一連の実験には 4°C で冷蔵保存した同じ水を用いた。実験の実施にあたり、二次処理水の溶存態 N_2O 濃度の調製と脱気による補正を目的とした予備的試験を実施した。さらに二次処理水を供試水として、連続または回分的にオゾンと接触させ、溶存態 N_2O 濃度の変化を観察した。実験にあたっては、PSA オゾナイザーおよび 6.5 L の反応塔等から構成されるラボスケール装置を用いた。

2.2 予備的検討

初期 N_2O 濃度の設定手法を確立するため、採水した二次処理水を空気と窒素で 3 L/min の流量で各 10 分間曝気を行い、曝気後の N_2O 濃度を分析した。

また蒸留水を供試水として、ガスの脱気速度を測定した。反応塔内に供試水 6.5 L を入れ、PSA オゾナイザーより本試験と同じ流量で酸素を送り込み、2.3 に示す試験と同様の手順で溶液中の溶存態 N_2O 濃度を定期的に測定した。

2.3 オゾン連続処理による N_2O 生成量評価

窒素曝気により初期 N_2O 濃度を低減させた後、反応塔内に 6.5 L の試供水を入れ、オゾン注入率 0 mg/L のサンプル 0.5 L を採取した。その後速やかに PSA オゾナイザーによって生成されたオゾンガスと連続的に接触させた。オゾンガスの流量は 0.2 L/min とし、反応塔内の水はポンプで常時循環させた。サンプルはオゾン注入率が 0.0, 2.0, 4.0, 6.0, 8.0, 10.0 mg/L に対応する 0, 5.9, 11.8, 17.4, 22.8, 27.9 分に反応塔内の溶液を 0.5 L 採水した。また、同時に HACH900DR を用いて溶存オゾンおよび全窒素濃度を、イオンクロマトグラフにより無機態窒素濃度を測定した。

2.4 オゾン回分処理による N_2O 生成量評価

100ml (満容量 122ml) のバイアル瓶に pH を 7.0 に調整した二次処理水を 61 mL 入れた。その後、蒸留水またはバイアル瓶中のオゾン濃度が 10 mg O_3 /L になるように調製したオゾン水を 61 mL 入れた。攪拌時間を 15 分設け、その前後の水サンプルを採取した。オゾン注入率は 0, 10 mg O_3 /L の 2 系列とした。

2.5 分析方法

溶存態 N_2O サンプルは、50 ml シリンジで溶液を 25ml 採水し、窒素ガス 25 ml を加えた後に密閉させ、シリンジ内で 1 分間攪拌した。その後、20 ml シリンジで気相部を 15 ml 採取し、真空引きした 10 mL バイアル瓶に封入した。分析は ECD ガスクロマトグラフを使用し、溶解度に基づき溶存態 N_2O 濃度を計算した。

キーワード：温室効果ガス 亜酸化窒素 オゾン消毒 二次処理水

連絡先：〒011-8511 秋田市飯島文京 1-1 秋田工業高等専門学校 増田周平 E-mail:masuda@akita-nct.ac.jp

3. 結果と考察

3.1 予備試験の結果

二次処理水の初期 N_2O 濃度設定試験で得られた 3 連のデータを平均値で評価した。空気曝気は初期濃度 $3.06 \mu\text{gN/L}$ から $0.88 \mu\text{gN/L}$ に減少した。それに対して、窒素曝気では初期濃度 $2.79 \mu\text{gN/L}$ から $0.17 \mu\text{gN/L}$ へと減少し、十分な N_2O の低減が見られた。よって本試験では窒素曝気を採用することとした。

また、 N_2O 脱気速度試験の結果を図 1 に示す。これより、 N_2O 濃度は時間の経過とともに直線的に減少した。グラフの近似結果より、毎分約 $0.82 \mu\text{gN/L}$ ずつ、2.45%に相当する速度で溶存態 N_2O 濃度が減少した。減少率を本試験におけるストリップング速度として補正に用いた。

3.2 連続試験結果

各注入率における溶存態 N_2O 濃度の分析結果を図 2 に示す。これより、 N_2O 濃度は各注入率においてほとんど差がはなく、 N_2O の生成は確認されなかった。なお、各注入率における溶存オゾン濃度は、オゾン注入率 6.0mg/L までは検出限界以下であったものの、注入率 8.0mg/L では $0.06 \text{mgO}_3/\text{L}$ 、注入率 10.0mg/L では $0.31 \text{mgO}_3/\text{L}$ となった。さらに、オゾン注入により亜硝酸性窒素の硝酸性窒素への酸化が見られたことから、オゾンとの接触による反応自体は起こっており、実験系の制御は適切であったと考えられる。

3.4 回分試験結果

オゾン注入率 0.0mg/L の結果は初期濃度および 15 分経過ともに N_2O 濃度は $0.27 \mu\text{gN/L}$ であった。それに対し、オゾン注入率 10mg/L では初期濃度では N_2O 濃度は $0.23 \mu\text{gN/L}$ だったのに対し、15 分経過後は $0.34 \mu\text{gN/L}$ になった。ただしその差はわずかであり、調整したオゾン水に含有する N_2O の混入に由来するレベルの変動と考えられた。

4. 結論

本研究では、下水二次処理水のオゾン処理にともなう N_2O 生成について実験的に検討した。実験系構築にあたり予備的試験を行い、オゾン処理による温室効果ガスの評価試験に関する基礎的知見を得た。実験の結果、オゾンによる連続および回分処理にともなう N_2O 生成は認められなかった。これより、オゾン処理は温室効果ガスの生成をとまなわない消毒プロセス

であることが示された。

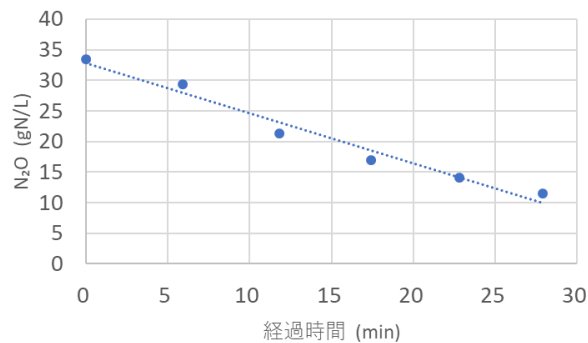


図 1 予備試験結果：脱気による N_2O 減少

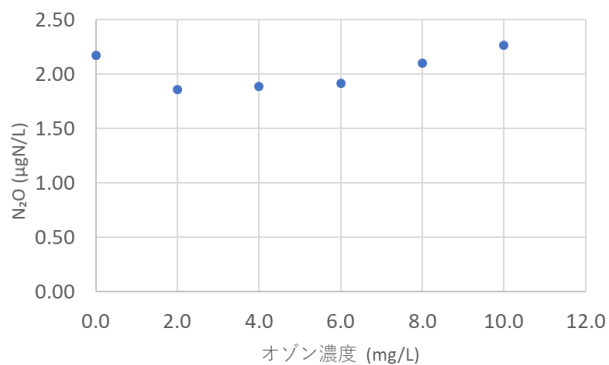


図 2 オゾン処理の N_2O 濃度変化（連続処理）

謝辞

本研究は、(独)環境再生保全機構の環境研究総合推進費（JPMEERF20192002）の助成を受けて実施した。

参考文献

- 1) 増田他, 直接発生, 間接発生, 溶存態成分を考慮した下水処理場由来の温室効果ガスの発生量評価 土木学会論文集 G, Vol68, No.7, III-557-III563, 2012
- 2) 田中他, クロラミン類生成に関する新たな知見と浄水処理での低減化への適用, 水道協会雑誌, 第 79 巻, 第 6 号, 2-11, 2010