

(32) 高負荷回分式硝化脱窒法における亜酸化窒素の発生

Production of Nitrous Oxide in a SBR-type High Load Nitrogen Removal Process

松尾吉高^{*}、岡安祐司^{*}

Yoshitaka MATSUO and Yuji OKAYASU

ABSTRACT : Nitrous oxide (N_2O) production by nitrification and denitrification is a subject of current concern in environmental engineering ; it is a global warming gas and possibly involves in the decay of stratospheric ozone layers. Nitrification and denitrification has been most extensively applied to nightsoil treatment in Japan. Accordingly, to inquire into possibilities of N_2O production in the nightsoil treatment, we operated a lab-scale reactor in a mode mimicking the SBR type high load nitrogen removal process, a prevalently used technology in the nightsoil treatment. The mode of operation features a high volume loading of nitrogen (0.8 g/L/day), a high biomass concentration (15-20 g VS/L), a high reactor temperature (33 °C) and a short cycle (30 minutes).

The yield of N_2O -N per nitrogen removed was less than 5 % under steady conditions but it reached 20% at the time nitrification rapidly improved after the accidental deterioration. Besides the reactor operation, we conducted batch tests to search for the mechanisms of the N_2O production. Results of the batch denitrification tests showed that nitrite was more prompt to emit N_2O than nitrate. The gas, however, was produced even by nitrate reduction under acidic conditions. The phenomena apparently resulted from the different pH dependency of the rate for nitrate, nitrite and nitrous oxide reduction.

KEYWORDS : Global warming, nightsoil treatment, nitrification and denitrification, nitrite, nitrous oxide, SBR.

1. はじめに

富栄養化防止を目的とした排水の窒素規制が湖沼流域から海湾流域へ広がるなかで、排水処理における硝化脱窒法の重要性はますます大きくなっている。わが国のし尿処理においては、処理高度化のために窒素除去が不可欠であったところから、富栄養化問題が顕在化する以前より硝化脱窒法を導入した。その後、処理を無希釈化することにより、種々な形態の高負荷硝化脱窒法を発達させて、現在に至っている⁽¹⁾。

ところで、硝化脱窒法がし尿処理に導入された際に、この技術が他の窒素除去技術に優るとして強調された利点の一つは、環境に対する二次影響が小さいことであった⁽²⁾。この議論は、除去された窒素が大気成分である二窒素ガス (N_2) に転換されることを前提としているが、実際に除去された窒素が N_2 に転換されているかどうかの確認を行った研究はほとんどなかった。当時より、生物学分野での硝化脱窒に関する研究では、硝化・脱窒過程で亜酸化窒素 (N_2O) が発生する可能性は指摘されていた^{(3) - (5)}。しかし、排水処理技術としての硝化脱窒法の開発過程においては、地球環境問題に対する認識が不十分なことあって、たとえば、 N_2O が発生しても余り大きな問題ではないと判断されていた。むしろ、 N_2O 発生量の大きい方が、曝気のための動力や脱窒のための補助有機物剤の節減の点で好ましいとすら考えられていた。

ところが、近年、 N_2O が地球温暖化やオゾン層破壊に果たす役割への認識が深化するとともに、硝化脱窒法における N_2O 発生の問題は無視できない重要性を帯びてきた^{(6) (7)}。 N_2O は化学的に安定な物質で、一旦、

* 中央大学理工学部土木工学科 (Dept. of Civil Eng., Faculty of Science and Engineering, Chuo University)

大気に放出されると成層圏での光化学反応によって消滅するまで、大気圏に 130-150 年間とどまると言われている⁽⁸⁾。地球温暖化やオゾン層破壊は、我々の世代には緊迫感の少ない環境問題であり、現実には直面している富栄養化問題とは軽重を比較し難い問題である。しかしながら、我々の世代が一つの環境問題への解決策として最善であると判断した技術がより大きな環境問題を引き起こし、しかも、その悪影響が後々の世代にまで及ぶとすれば、大変に遺憾である。この意味で、硝化脱窒法、とりわけし尿処理で普及の著しい高負荷硝化脱窒法における N_2O 発生問題は早急に解決しなければならない重要な課題であると考えられる。高負荷硝化脱窒法は、有機物酸化にともなう発酵熱を利用した高液温の維持、限外ろ過膜の利用による高微生物体濃度の保持など、下水など希薄排水処理で利用されている硝化脱窒技術とはかなり異なる側面を持った独特の硝化脱窒技術であるが、硝化脱窒法における N_2O 発生問題を扱ったこれまでの研究成果^{(9)~(11)}を参照すると、高負荷硝化脱窒法で採用されている運転方法は、比較的に N_2O が発生しやすい方法であると予測され、実際、かなりの量の N_2O が実施設で発生しているとの報告もある⁽¹²⁾。

実施設では運転条件を変えにくい面もあるので、この種の研究では、実施設での実態調査と並行して、室内規模模擬装置を利用した実験により、 N_2O 発生の挙動と運転条件との関係を調べる必要があると思われる。この研究においては、一日 48 回、30 分のサイクルで曝気・攪拌操作を繰り返す高負荷回分式硝化脱窒法の模擬装置を連続運転し、そこでの N_2O の発生量を調べた。また、その装置で培養された活性汚泥を用いた回分試験により、脱窒過程と硝化過程における N_2O 発生機構の検討を行った。

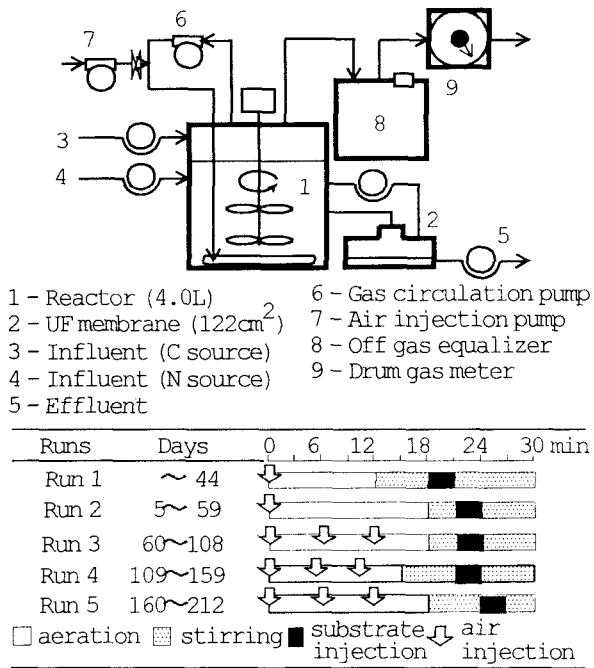


Fig.1. Experimental Set-up of Hi-Load SBR and Operation Mode of Each Runs

2. 実験方法

2.1 連続実験装置

連続実験装置の概略とここに報告する時期の運転方法を Fig. 1 に示す。反応槽は内容積 5.8 L、液張り容積 4.0 L の攪拌機を備えた密閉円筒槽で、恒温水槽に設置することにより、液温を 35℃ に制御した。固液分離には、膜面積 122 cm² の交差流型円盤平膜モジュールを用い、分離液は一日あたりの「合成し尿」投入量に対応する流量で

連続的に排出した。膜材には、当初、東ソの PS-300 (排斥分子量 300000) を用い、後には日東電工の NTU-2120 (排斥分子量 20000) を用いた。合成し尿は、Table 1 に示されるように、有機基質として CH_3COOH と少量の酵母エキスを含み、窒素基質としては、 NH_4HCO_3 を含むが、腐敗を防止するために、有機基質液と

Table 1. Influent Composition

CH_3COOH	9000 mg/L	K_2HPO_4	2220 mg/L
Yeast Ex.	900	$MgSO_4 \cdot 7H_2O$	630
NH_4HCO_3	2500 as N	$CaCl_2 \cdot 2H_2O$	320
NaCl	500		
COD_{Cr}	10000 mg/L	DOC	4000 mg/L

窒素基質液は別々に注入した。なお、窒素基質以外の無機塩類は、沈殿物の生成を防ぐために有機基質液に溶解させた。各基質流量は 0.5 L/day、合計 1.0 L/day に設定した。すなはち、設定 HRT 4 日 で運転した。これらの基質液は、反応槽内液が無酸素状態が確実に実現される攪拌工程開始 3 分もしくは 6 分の後に、3 分間の時間をかけて注入した。N₂O 発生量を測定するために、曝気には槽内ガスを循環させる方法を用いた。すなはち、曝気工程の開始とともに循環用エアポンプを作動させ、反応槽上部空間のガスをミスト除去容器を経て反応槽混合液に吹き込み、この工程の途中で所要量の新鮮空気をパルスの的に反応槽上部空間に供給した。この供給により押し出される内部ガスの排出量は、積算流量計で計測した。なお、新鮮空気送入をパルスのに行ったのは、少量の空気を定量的に送る適当なエアポンプがなかったからである。排出ガスの組成は時間変化するので、反応槽と積算流量計との間に内容積 13.5 L の排気平均化槽（ガラス瓶）を設け、N₂O 濃度測定用のガス試料は、この平均化槽より採取した。

反応槽には溶存酸素計とともに pH 計測制御器がとりつけられており、混合液 pH を 2 N NaOH で下限制御した。余剰汚泥の定量的な排出は行わなかったが、汚泥濃度計測用に混合液を週あたり約 60 mL 使用し、また、適時に行った回分実験に混合液を 1 回の実験ごとに 200 mL 使用した。

2.2 測定方法など

分析計量は月曜日、水曜日、金曜日の週三日の頻度で行った。排出ガスの N₂O 濃度は光電離検出器 (PID) を備えたガスクロマトグラフ (Hitachi G-5000) で測定した。なお、分離カラムには Porapak Q を用いた。処理水の陰イオン類の濃度はイオンクロマトグラフ (Dionex 2000 i) で、また NH₄⁺ 濃度は次亜臭素酸酸化を利用する電量滴定器 (Central Kagaku HC 707 N) でそれぞれ測定した。汚泥濃度 (MLTS) は混合液 20 mL を直接に乾燥する磁皿法で、また MLTVS は乾燥汚泥を 670 °C で焼却して求めた。

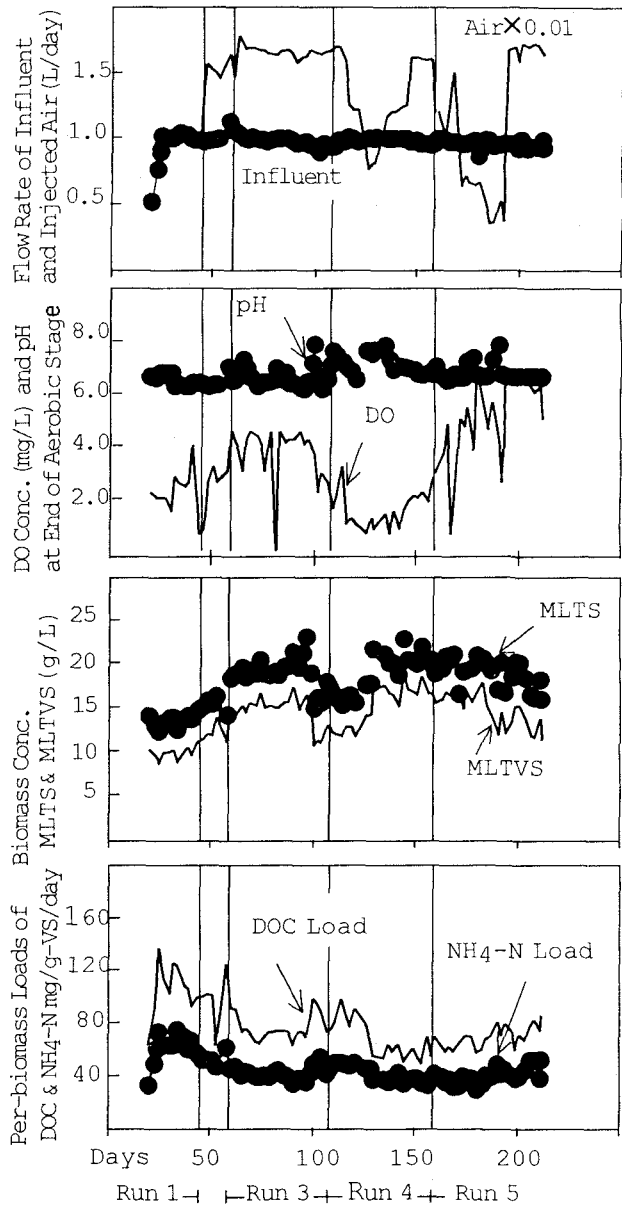


Fig.2. Variation in Operational Conditions

3. 実験結果と考察

3.1 連続実験

連続実験は、本報告実験開始より約 10 ヶ月前に、ほぼ同様の運転方法を採用している実し尿処理施設の回分式高負荷硝化脱窒法施設から種汚泥をもらい受けて、HRT 8 日、30 分サイクルの運転条件で開始した。この低負荷運転状態で、しかも硝化脱窒ともに順調な場合には、 N_2O の発生率は 1 % 以下であった⁽¹³⁾。

本報告の連続実験では、HRT を 4 日に短縮した高容積負荷条件で運転した。この高容積負荷での約 200 日間の運転状態変数、窒素除去成績、および N_2O の発生率 (N_2O -N 排出量/除去 T-N 比) の変化を Fig. 2 と Fig. 3 にまとめて示す。この間に、硝化・脱窒の状態を観察しながらシーケンスを若干変化させた。各運転区 (Run) のシーケンスは Fig. 2 に示す通りである。

HRT を短縮した直後の Run 1 では曝気時間/攪拌時間を 12 min/18 min としたが、硝化不完全の状態が続いたので、Run 2、Run 3 では、曝気時間を延長し、18min/12 min とした。Run 2 までの運転では、新鮮空気の送入を曝気工程開始時だけに集中して行っていたが、DO が曝気時間の経過とともに徐々に低下して

いく傾向を示したので、Run 3 以後の運転では、新鮮空気を 3 回に分割して送入する方式に変更した。このような運転方法に変更した Run 3 ではしばらく良好な窒素除去が得られた。しかし、汚泥が安定化するとともに脱窒が徐々に不完全になったので、Run 4 では曝気工程/攪拌工程を 15 min/15 min とし、さらに曝気工程終了時の DO を下げるために新鮮空気の送入量を調整した。その結果、脱窒は回復したものの硝化は不完全になり、最高 700mg/L の NH_4 -N が流出水に残留した。この時期、計器で測定された DO は 1 mg/L 以上はあったが、汚泥の発泡が激しく、溶存酸素計が正しい DO 値を指示していなかった可能性もある。曝気工程での DO を高めるために新鮮空気の送入量を増やしたところ、硝化はかなり改善された。しかし、 NH_4 -N は、なおも残留したので、Run 5 では、曝気工程/攪拌工程を再び 18 min/12 min に戻した。散気管の目詰まりなどによる曝気不調が原因で、一時的に硝化が悪化することはあったが、散気管長を 20 cm から 90 cm に変えた 187 日以後は硝化脱窒がほぼ順調に行える状態になった。

このように運転状態が不安定なこともあって、 N_2O の発生量は変動した。高負荷条件で運転を開始した初期には、 N_2O 生成率が 4 % 以上である状態が続いた。とりわけ、空気注入回数を 3 回に増やした Run 3 の運転開始直後には、23 % もの高い N_2O 生成率を記録した。この時期は、直前の Run 2 の最終期に生じた汚

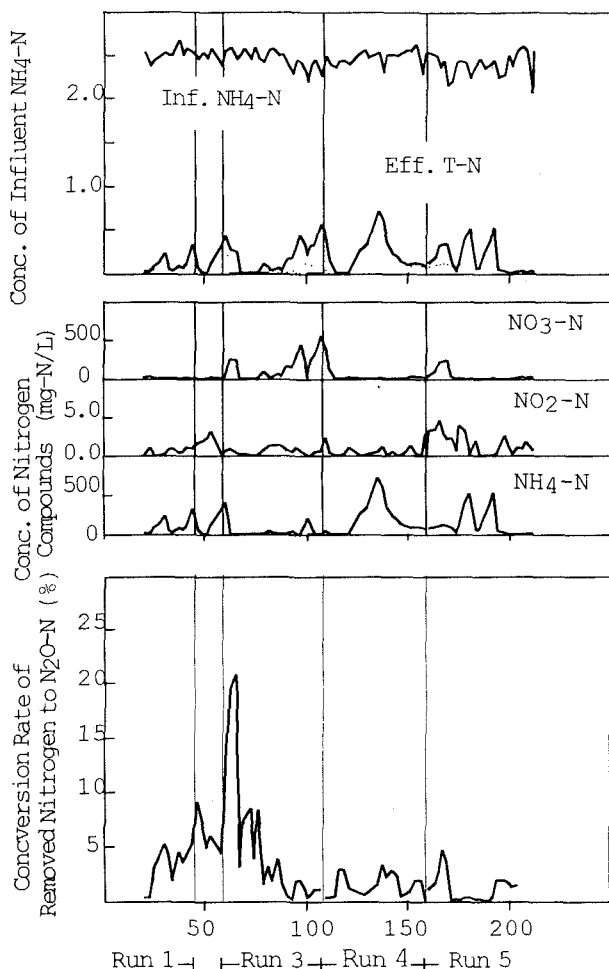


Fig.3. Variation in Operational Results

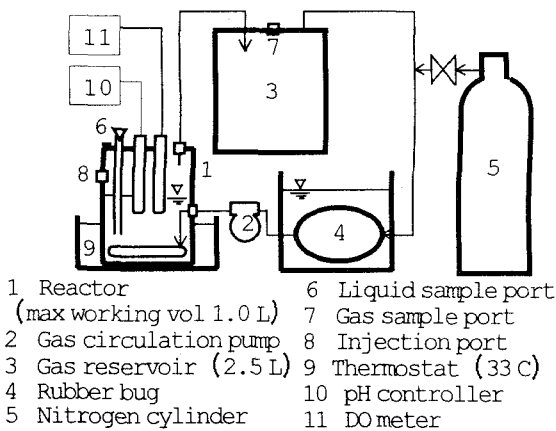
泥流出事故によって悪化した硝化が急速に回復する過程に相当する。後に行った硝化の回分試験では、 NH_4^+ 濃度が高く、 NO_2^- が蓄積するほどに硝化速度が十分な場合には、 N_2O が発生し易いことを示しており、この時期での N_2O の大量発生は、そのような状態が連続実験槽で実現していたことを示唆している。Run 3 以後の N_2O 発生率はおおむね 2 % 以下であったが、Run 5 のはじめに比較的に高い N_2O 発生率を記録した。この時期の特徴的な観測事項は処理水に比較的に高濃度の NO_2^- が残留したことである。回分試験の結果は、脱窒においても、硝化においても NO_2^- の蓄積が N_2O 発生に大きく影響することを示しており、Run 5 初頭での高 N_2O 発生量も NO_2^- 蓄積が原因があったものと思われる。 N_2O 発生率の最低値は、Run 5 で硝化が不完全になった時期に記録され、その N_2O 発生率は 0.3~0.5 % であった。

連続実験の結果全体をみると、短サイクル回分式高負荷硝化脱窒法の硝化・脱窒が安定して行われている状態での N_2O 発生率は 5 % 以下であると推測される。また、高容積負荷の運転に切り替えて以後、汚泥濃度が増加するに従い、 N_2O 発生率は低くなる傾向を示したところから、 N_2O 発生率は窒素汚泥負荷にも関係しているようである。しかし、運転トラブルのために処理が安定しなかったこともあって、連続運転の結果からは、 N_2O 発生の支配因子を確定できなかった。

3.2 回分試験

1) 脱窒回分試験

連続実験だけでは、 N_2O 発生の原因を把握できなかったので、Fig. 4 に示されるような装置を作成し、連続実験で培養された汚泥を用いて、回分試験により脱窒過程での N_2O 発生を追跡した。 N_2O 発生量は、装置内気体の N_2O 濃度と体積を測定することによって、Fig. 4 に併記される式を利用して初期液量当りの N_2O 発生濃度に換算した。この式は、気液間にガス平衡が成立することを前提としているが、使用したエアポンプの送気量は十分に大きく、この前提は満たされていたものと思われる。式中係数の 55.5 は、水 1 L のモル数 (mol/L) を、24.5 (L) は、室温における気体 1 mol の容積 (L/mol) を、28 は N_2O 1 mol の窒素質量 (g/mol) である。Henry 定数 $H_{\text{N}_2\text{O}}$ には文献値⁽¹⁴⁾を用いた。また、ここに報告する脱窒試験においては、いずれの場合も試験開始時に CH_3COOH を過剰に添加して、



$$C_{\text{N}_2\text{O}} = \frac{28 \cdot X_{\text{N}_2\text{O}}}{24.5 \cdot V_{\text{L}0}} \left(V_{\text{G}} + P \frac{55.5 \cdot V_{\text{L}}}{H_{\text{N}_2\text{O}}} \right)$$

$X_{\text{N}_2\text{O}}$: gas N_2O conc. V_{L} : liq. volume (L)
 $V_{\text{L}0}$: initial liq. vol (L) V_{G} : gas volume (L)
 P : gas pressure (1 atm) $H_{\text{N}_2\text{O}}$: Henry's const (atm)
 $C_{\text{N}_2\text{O}}$: N_2O -N conc (g/L-initial liquid)

Fig.4. Set-up of Batch Experiments and Equation for converting Gas N_2O Conc. to Conc. of N_2O per Initial Liquid Volume

水素供与体の不足が脱窒の律速因子になることがないようにした。また、幾つかの回分試験では、途中で基質 (NO_3^- 塩、 NO_2^- 塩あるいは N_2O ガス) を補填する手法を用いた。

Fig. 5 は、pH を 7.0 に制御した場合の N_2O 発生の挙動である。 NO_3^- 脱窒する場合には、 N_2O をほとんど発生しないが、 NO_2^- の脱窒の場合には、その大部分が N_2O となり、 NO_2^- が完全に消失した時点から N_2O の減少が生じたことが理解できる。

中性域における NO_3^- 脱窒においては、 N_2O は発生しないが、Fig. 6 に示すように弱酸性域では、脱窒さ

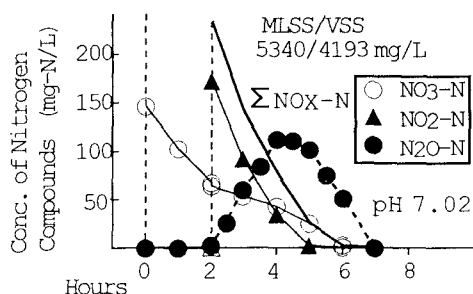


Fig. 5. N₂O Production in Denitrification at a Neutral pH Range

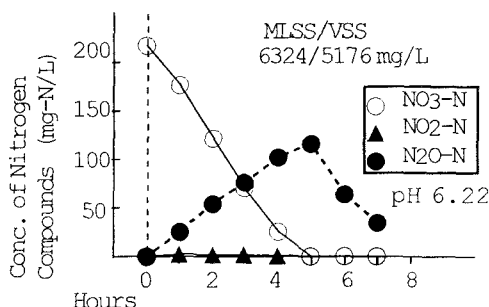


Fig. 6. N₂O Production in Denitrification at a Weakly Acidic pH Range

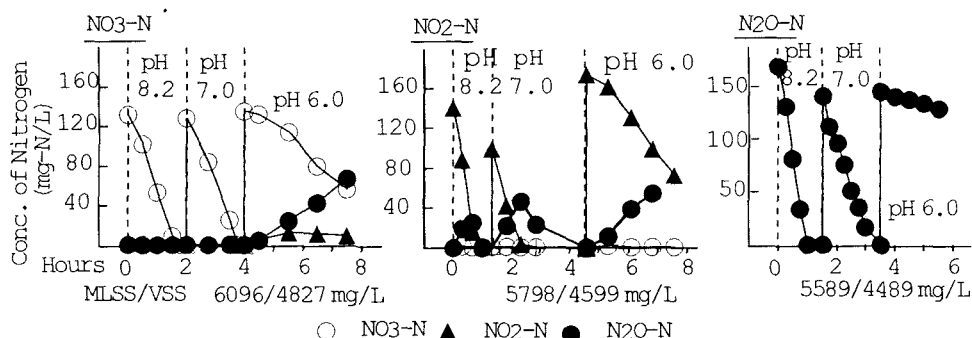


Fig. 7. Reduction of Oxidized Nitrogen Compounds at Various pH Ranges

れた NO_3^- -N のかなり量が N_2O -N となり、 NO_3^- が消失してはじめて N_2O の還元分解が生じた。

このように、脱窒過程での N_2O 発生は水素受容体種だけでなく pH にも影響されることがわかったので、 NO_3^- 、 NO_2^- および N_2O の還元速度におよぼす pH の影響を同じ汚泥を用いて制御 pH を変えてゆくことによって調べてみた。 N_2O の還元速度を調べた実験では、各 pH 域ごとにシリンジで純 N_2O ガスを系内ガス相に封入して、 N_2O 濃度変化を追跡した。結果を Fig. 7 および Table 2 に示す。いずれの水素受容体種の場合にも、還元速度は、pH の影響を受け、アルカリ側で大きく、酸性側で小さな値であった。とりわけ N_2O の還元速度は、pH に強く影響され、pH 6 の場合には極端に小さくなった。その結果、pH 6 においては、 NO_3^- の還元速度は、 N_2O の還元速度を越える値になった。このことは、酸性状態では NO_3^- 脱窒であっても N_2O の蓄積することを意味し、Fig. 6 の実験結果と符合する。

一方、 NO_2^- の還元は、どの pH 域においても N_2O の還元よりも大きな速度で行われるが、pH 値が十分に高いア

Table 2. pH and Reduction Rates of Oxidized Nitrogen Compounds

pH	NO_3^- -N	NO_2^- -N	N_2O -N
8.2	19.4	47.0	43.6
7.0	14.1	25.1	18.4
6.0	6.0	9.0	1.9

Unit : mg-N/g-VS/hour

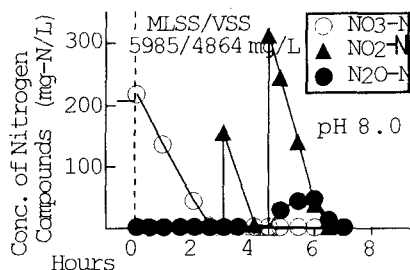


Fig. 8. N₂O Production in Denitrification at a Weakly Alkaline pH Ranges

ルカリ側であれば、 N_2O 還元は NO_2^- 還元と比肩できる速度で行われ、 N_2O 発生量は小さい。しかしながら、Fig. 8 の液性を pH 8.0 に制御した実験では、 NO_2^- を高濃度に添加した場合には、かなりの量の N_2O が蓄積したが、低濃度の添加では、 N_2O 蓄積が認められなかった。このことは NO_2^- 脱窒における N_2O 発生は pH だけではなく、 NO_2^- の濃度にも影響されることを意味しており、実施設において、 NO_2^- 型の硝化が行われても、蓄積される NO_2^- 濃度が低い場合には、 N_2O 発生量は小さくなる可能性を示唆している。

なお、これらの脱窒回分試験は、前述のように pH が 6.7-7.0 に維持されていた連続実験で培養された活性汚泥を用いて行われたものであり、低い pH に長く馴致すれば、たとえ低い pH の場合でも、 N_2O は発生しなくなることも考えられる。実際、そのような連続実験を行ったところ、pH 6 でも N_2O をほとんど発生しない活性汚泥が馴養された⁽¹⁵⁾。

2) 硝化回分試験

Fig. 3 に示す装置のガス貯留槽を 22.5 L に拡張し、実験開始時および実験途中で微量の純酸素ガスを供給しながら、脱窒回分試験と同様の手法で硝化過程での N_2O 発生を追跡した。なお、全ての実験で、pH は 7.0 に制御した。

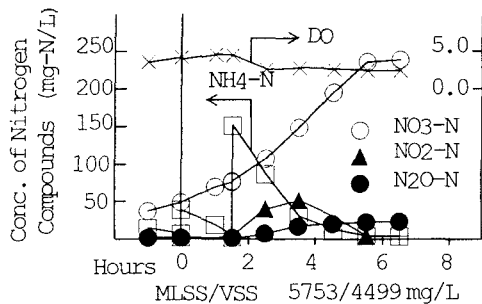


Fig. 9. N_2O Production in Nitrification (No 1)

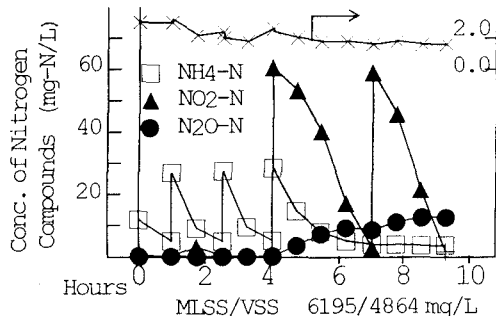


Fig. 10. N_2O Production in Nitrification (No 2)

Fig. 9 の実験は、添加 NH_4^+ -N 量が N_2O 発生に及ぼす影響を調べたものである。 NH_4^+ の添加量が少ない場合には、 N_2O 発生はほとんど観察されなかった。しかし、添加 NH_4^+ -N 濃度を 140 mg/L にすると、かなりの N_2O 発生が観察され、最終的には、添加窒素の 12 % 程度が N_2O -N に変換された。高濃度の NH_4^+ を添加すると、 NO_2^- が蓄積したので、 N_2O 発生は、高濃度の NH_4^+ の存在したことによるものではなく、蓄積した NO_2^- による可能性も考えられた。そこで、Fig. 10 の実験においては、硝化の際の NO_2^- の存在が N_2O 発生に及ぼす影響を調べた。低濃度の NH_4^+ だけを添加した最初の 3 ばっ気区間においては、 N_2O はほとんど発生しなかったが、 NH_4^+ とともに NO_2^- を加えた第 4 ばっ気区間では、有意量の N_2O 発生が観察された。そこで、最後のばっ気区間においては、 NO_2^- だけを添加してみたところ、第 4 ばっ気区間とほぼ同量の N_2O が発生した。すなわち、この回分実験からは、ばっ気の際 N_2O 発生は、 NH_4^+ 酸化そのものに起因するのではなく、その酸化の生成物である NO_2^- が活性汚泥に何等かの作用を及ぼして N_2O を発生させると解釈される。

生物学における最近の研究では、硝酸菌にも脱窒作用があると報告されており⁽¹⁶⁾、 NO_2^- 存在下のばっ気過程での N_2O 発生も硝酸菌による可能性も否定できない。しかし、一方で、従属栄養細菌のなかには、DO の存在下においても、解毒のために NO_2^- を N_2O に還元するものが多いと報告されており⁽¹⁷⁾、きわめて複雑な混合培養系である活性汚泥による N_2O 発生も、そのような細菌の NO_2^- 解毒化による可能性もある。いずれが原因であれ、硝化回分試験の結果は、硝化工程での NO_2^- の蓄積が硝化脱窒法における N_2O 発生の因子になることを示唆している。すなわち、硝化と脱窒のいずれの場合にも、 NO_2^- 蓄積は N_2O 発生をもたらす

易く、 N_2O 発生の観点からみると、いわゆる「亜硝酸型硝化脱窒法」は好ましい方法ではないと言える。

4. まとめ

短サイクル型高負荷回分式高負荷硝化脱窒法の模擬装置を連続運転し、そこからの N_2O 発生量を調べると同時に、並行して回分試験を行い、脱窒および硝化における N_2O 発生の機構を検討した。得られた結果は、次の通りである。

- (1) 短サイクル型回分式高負荷硝化脱窒法においては、HRT 4 日 (0.8 kg-N/day/m^3) の高負荷状態においても、硝化脱窒が適切に行われてさえすれば、 N_2O 発生率は 5 % 以下であった。しかし、ばっ気不足などの事故後の硝化回復過程で最高 23 % の N_2O 発生率を記録された。
- (2) 脱窒過程における N_2O 発生量は、水素受容体種と pH の双方に支配される。 NO_2^- からは全ての pH 域から N_2O が発生するが、高 pH になるに従い、その量は減少する。一方、 NO_3^- からは、アルカリ性域での N_2O 発生は認められないが、酸性域ではかなりの量の N_2O が発生した。これらの現象は、ある程度まで各水素受容体の還元速度の pH による差異から説明できたが、 NO_2^- 濃度そのものも N_2O 発生に影響しているようである。
- (3) 硝化（ばっ気）過程での N_2O 発生は、 NH_4^+ の酸化そのものによるのではなく、その酸化の生成物である NO_2^- が蓄積することに原因があると解釈された。

謝 辞

本研究は下記の平成 7 年度中央大学理工学部土木工学科衛生工学研究室卒業研究生 4 氏の協力を得て行われたことを銘記し、各氏に謝意を表す。

加藤 賢一（航空大学校）

金井 勝彦（日水コン）

上原 章正（NJS 日本上下水道設計）

秋葉 竜大（日本水工設計）

また、本研究は、国立公衆衛生院と（財）廃棄物研究財団の共同プロジェクト「液状廃棄物のエコ処理システムの開発」の 1995 年度研究の一環として行われたことを記す。

参考文献

- 1) Magara, Y. and Itoh, M. (1991) The effect of operational factors on solid liquid separation by ultra-membrane filtration in a biological denitrification system for collected human excreta treating plants. *Wat.Sci.Tech.*, 26 (5/6): 1325-1334
- 2) 松尾吉高，鈴木隆幸（1978）生物学的硝化脱窒法，し尿処理ハンドブック（岩井重久編，環境技術研究会），194-207
- 3) Barbaree, J.M. and Payne, W.J. (1967) Products of denitrification by marine bacterium as revealed by gas chromatography. *Marine. Biol.*, 1: 136-139
- 4) Hooper, A.B. (1968) A nitrite-reducing enzyme from *Nitrosomonas europaea*-preliminary characterization with hydroxylamine as electron donor. *Biochim.Biophys. Acta*, 162: 49-65
- 5) Ritchie, G.A.F. and Nicholas, J.D. (1972) Identification of the source of nitrous oxide produced by oxidative and

- reductive processes in *Nitrosomonas europaea*. *Biochem. Jour.* 126: 1181–1191
- 6) 花木啓祐 (1991) 地球温暖化時代の排水管理, 水質汚濁研究, 14 (9): 593-598
 - 7) Robertson, L.A. and Kuenen, J.G. (1992) Nitrogen removal from water and waste, *Microbial Control of Pollution* Fry, J.G., Gadd, G.M., Herbert, C.W., Jones, C.W. and Watson-Craik, I.A. ed., Cambridge Univ. Press, G.B., 227–267
 - 8) Levine, J.S. (1992) The global atmospheric budget of nitrous oxide. *Proc. Fifth Int. Workshop on Nitrous Oxide*, K-L-1-1.
 - 9) Hanaki, K., Zheng, H. and Matsuo, T. (1992) Production of nitrous oxide gas during denitrification of wastewater. *Wat.Sci.Tech.*, 26 (5/6): 1027–1036
 - 10) von Schulthesse, R., Wild, D. and Gujer, W. (1994) Nitric and nitrous oxides from denitrifying activated sludge at low oxygen concentration. *Wat.Sci.Tech.*, 30 (6): 123–132
 - 11) Zheng H., Hanaki, K. and Matsuo, T. (1994) Production of nitrous oxide gas during nitrification of wastewater. *Wat.Sci.Tech.*, 30 (6): 133–141
 - 12) 糸川浩紀, 花木啓祐, 松尾友矩 (1995) 間欠曝気をおこなうし尿処理施設における硝化・脱窒過程からの亜酸化窒素の発生と制御, 環境工学研究論文集, 32: 311-320
 - 13) 鄭 紅, 松尾吉高 (1995) 高濃度排水の硝化脱窒処理における亜酸化窒素の発生, 日本水環境学会年会講演集, 29: 1-A-15-1
 - 14) Hodgeman, C.D. (1963) *Handbook of Chemistry and Physics* (44 th Ed), The Chemical Rubber Publishing Company, 日本化学会 (1974) 化学便覧 (基礎編) II -158 (丸善出版) に引用.
 - 15) 松尾吉高, 岡安祐司, 上原章正, 金井勝彦 (1996) 高負荷脱窒素法における N_2O の発生, 日本水環境学会年会講演集, 30: 1-A-14-4
 - 16) Bock, E., Koops, H.-P. and Harms, H. (1989) *Nitrifying bacteria, Autotrophic Bacteria*, Schlegel, H. and Bowen, B. ed., Springer Verlag, Berlin, Germany, 81–96
 - 17) Tidje, J.M. (1988) Ecology of denitrification and dissimilatory nitrate reduction to ammonium. *Biology of Anaerobic Microorganisms*, Zhender, J.B. ed., Wiley-Liss, New York, U.S., 179–244