

下水汚泥中の従属栄養脱窒細菌が有する亜酸化窒素還元性能に及ぼす溶存酸素の影響
Effect of Dissolved Oxygen on Nitrous Oxide Reduction Performance of Denitrifying Bacteria in Sewage Sludge

○樋口悠太¹, 齋藤利晃², 藤井大地²
*Yuta Higuchi¹, Toshiaki Saito², Daichi Fuji²

Abstract: The effect of dissolved oxygen (DO) on the nitrous oxide reduction performance of denitrifying bacteria in sewage sludge was quantitatively evaluated by the batch tests using 50ml syringe with different oxygen concentration in the gas phase. DO-induced inhibition of N₂O reduction was observed. The N₂O reduction rates decreased from 15 μgN g-SS⁻¹ h⁻¹ under 0.6 mg/L of DO down to 10 μgN g-SS⁻¹ h⁻¹ or less under DO above 1.0 mg/L or more. The important findings are that the N₂O reduction still occurred DO above 1.0 mg/L or more, suggesting the applicability of this N₂O reduction to N₂O emission suppression technology in aerobic tanks. From the data obtained, the mathematical model was developed to express N₂O reduction by denitrifying bacteria. Half-saturation constants of N₂O (K.N₂O) and inhibition constants of oxygen (K.DO) were 0.013 and 2.0, respectively.

1. 研究背景及び目的

脱炭素社会の実現に向けて、水処理過程における亜酸化窒素(以下 N₂O)の排出抑制が課題になっている。N₂Oは二酸化炭素に比して約265倍の温室効果を有する物質で、水処理過程においては、主に好気槽内で生じるアンモニア酸化に伴って N₂O が生成されるとされている。一方、無酸素槽内では突発的な生成はあるものの^[1]、脱窒細菌による N₂O の分解が観察されており、その性質を利用した実処理場での N₂O 生成抑制が期待されている^[2]。既往の研究で、対象とする処理場における好気槽において、硝化の発生と同時に脱窒が発生した際に N₂O 転換率と溶存酸素(以下 DO)に正の相関が報告されている^[3]。本研究では、好気条件下での脱窒細菌による N₂O の分解を発生させ、同時硝化脱窒による N₂O の排出抑制を行うため、硝化抑制剤を使用した実験を通じて、脱窒細菌の N₂O 還元性能に及ぼす DO の影響を定量的に評価することを試みた。

2. 実験方法

2-1. シリンジ試験の概要

Fig.1 に示すように、50mL プラスチックシリンジに嫌気槽から採取した下水汚泥 10mL、調整ガスを 40mL 及び硝化抑制剤(アシルチオ尿素) 0.1mL(最終濃度 10mg/L)を入れ、所定時間振とうした。調整ガスには、窒素ベースの N₂O 10ppm 及び O₂ 0~2%を含む4種類のガスを用いた。また、シリンジ投入直前に NaNO₃水溶液(最終濃度 20mgN/L)及び pH 緩衝剤として、リン酸緩衝液(最終濃度 1.3g-PO₄/L)を添加して用いた。

2-2. 試料採取及び測定項目

所定時間振とう後、気相部より採取したガスを GC/ECD により測定した。溶存態 N₂O 濃度(d-N₂O)及び DO は、測定された気相部 N₂O 濃度及び O₂濃度から気液平衡関係を用いて換算した。溶存態無機態窒素は液相部より汚泥を採取し、孔径 0.45μm のメンブレンフィルターでろ過し、アンモニア態、亜硝酸態及び硝酸態の窒素を HPLC にて測定した。

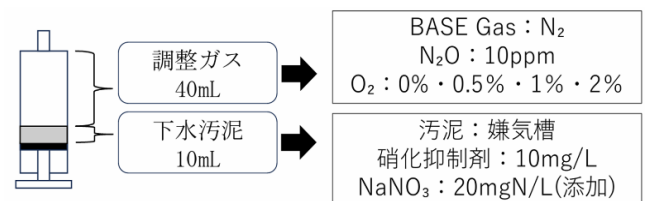


Fig.1 Initial condition of each syringe

3. 実験結果及び考察

3-1. d-N₂O 及び硝酸態窒素について

Fig.2 に、d-N₂O 及び硝酸態窒素濃度(NO₃-N)の経時変化の一例を示す。気相部ガス中に O₂が存在するいずれの系においても、d-N₂O の減少が確認されたことから、好気条件下でも脱窒細菌による N₂O の還元が行える可能性が示された。また、気相部ガス中 O₂濃度が高い系ほど、d-N₂O の還元が抑制されていることから、脱窒細菌による N₂O の還元についても DO による阻害が生じていると考えられる。気相部 O₂濃度 2%系についても 2 割程度の N₂O 還元能が残存していた。一方、硝酸態窒素濃度について、いずれもほぼ一定であり、脱窒による還元は確認されなかった。脱窒細菌による硝酸態窒素の還元がみられなかったのは、DO による阻害及び汚泥内に蓄積した有機物量が十分ではなかったためではないかと考えられる。

1 : 日大理工・院(前)・土木 2 : 日大理工・教員・土木

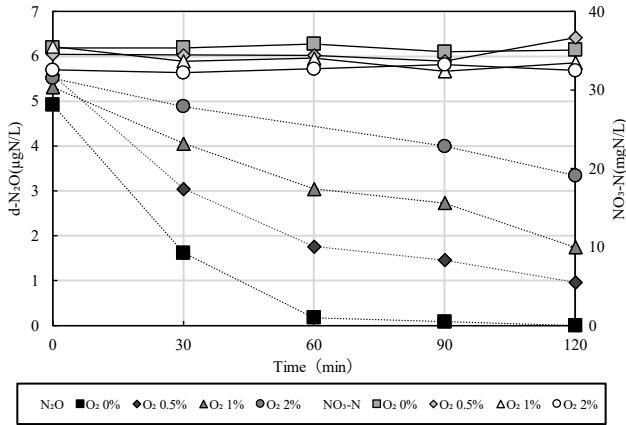


Fig.2 Changes in d-N₂O and NO₃-N concentrations

3-2. N₂O還元能に及ぼすDOの影響の定量的評価

異なる汚泥について、同一の条件下で複数回実験を行い、再現性の確認を行った結果、硝酸態窒素の還元が確認されない場合において、気相部ガス中O₂濃度に応じて、N₂Oの還元が阻害されることを確認した。DOによる阻害を定量的に評価するために、実験日毎の各系（気相部O₂濃度0%、0.5%、1%及び2%系）におけるDOの平均値を各系における換算DO値とし、初期値から変化しないものと仮定した場合のN₂Oの還元速度を式(1)により導出した。

$$r_{N_2O} = \frac{\mu_{max}}{Y} \times f(pH, C_{NH_4}, \dots) \times \frac{S_{d_N_2O}}{K_{d_N_2O} + S_{d_N_2O}} \times \frac{K_{DO}}{K_{DO} + (S_{DO})^2} \quad (1)$$

ここに、 r_{N_2O} : N₂O還元速度 (μgNg-SS⁻¹h⁻¹)

$\frac{\mu_{max}}{Y}$: 最大比基質消費速度
(μgNg-SS⁻¹h⁻¹)

$f(pH, C_{NH_4}, \dots)$: pHやNH₄-Nなどのその他の環境条件による阻害項

$S_{d_N_2O}$: d-N₂O (μgN/L)

$K_{d_N_2O}$: N₂Oに対する半飽和定数 (μgN/L)

S_{DO} : DO値 (mg/L)

K_{DO} : DOによる阻害定数 (mg/L)

式(1)を用いて残差平方和が最小となるように、 $K_{d_N_2O}$ 及び K_{DO} を数値解析的に求めた。 $K_{d_N_2O}$ は2.0μgN/L、 K_{DO} は0.013mg/Lとなった。

Fig.3にN₂O還元初速度の実測値と、式(1)により得られるN₂O還元初速度の予測値を示す。実測値より、N₂O還元初速度は多少のばらつきが見られるが、換算DO値0.75mg/L以下で15~35μgNg-SS⁻¹h⁻¹程度である。N₂O還元初速度はDOの増加に伴い低下していき、換算DO値1.0mg/L以上で概ね10μgNg-SS⁻¹h⁻¹を下回るがN₂Oの還元が行われていることが示された。換算DO値について、いずれの系においても0.58mg/Lを上

回っており、シリンジ内への酸素の混入が認められた。予測値と実測値を比較すると、概ね同様の傾向を示していることから、DOによるN₂O還元能への阻害を表現することができた。しかし、換算DO値0.75mg/L以下の濃度域でばらつきが強くみられた。ばらつきを与える因子として、有機物量や各態窒素濃度の影響を明らかにし、N₂O還元速度式の精度を向上させていく必要がある。

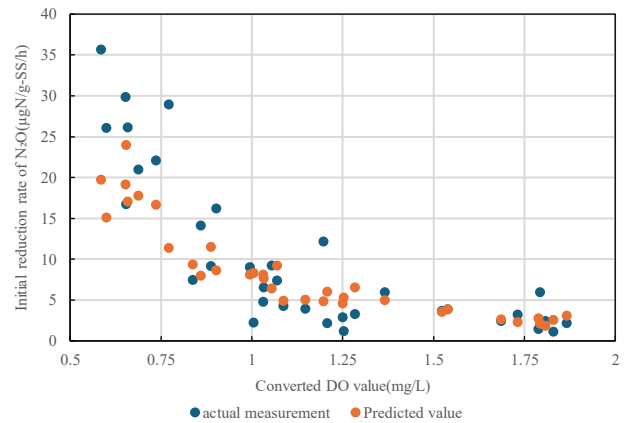


Fig.3 Initial reduction rate of N₂O

4. 総括

本研究では、好気条件下での下水汚泥中の従属栄養脱窒細菌が有するN₂O還元能を明らかにするため、硝化抑制剤を用いた上で異なる気相部O₂濃度のガスを用いて、DOによる影響の定量的評価を試みた。

硝酸態窒素の還元が見られない場合、好気条件下における脱窒細菌によるN₂O還元能は、DOによる阻害を受けることが示された。N₂O還元初速度は換算DO値0.75mg/L以下で15~35μgNg-SS⁻¹h⁻¹程度となり、DOの増加に伴い低下していき、換算DO値1.0mg/L以上で概ね10μgNg-SS⁻¹h⁻¹を下回るが、還元が発生することより、好気槽でのN₂O排出抑制運転の可能性が示された。予測値についても実測値と概ね同様の傾向が見られた。今後の研究では、酸素の混入を抑えた実験系を構築し、N₂O還元速度式にばらつきを与える因子の特定を進め、精度の向上に努めていきたい。

5. 参考文献

[1] 花木啓祐ら:都市下水の硝化脱窒過程での亜酸化窒素の発生, 水環境学会誌, Vol.6, No.12, 803-810, 2000
 [2] Monica Conthe *et al.*: “Denitrification as an N₂O sink”, Water Research, 151, 381-387, 2019.
 [3] 中澤拓飛:好気槽を2槽有する実下水処理プロセスにおける亜酸化窒素生成因子の検討, 修士論文, 2025