

〈論文〉

送風量制御による下水処理における一酸化二窒素の排出削減方法

草野 吏¹⁾, 小沼 晋²⁾, 鈴木 重浩³⁾齋藤 利晃²⁾, 濱本 亜希⁴⁾, 小林 政行⁴⁾¹⁾メタウォーター(株) 事業戦略本部技術戦略部

(〒101-0041 東京都千代田区神田須田町1-25 E-mail: kusano-tsukasa@metawater.co.jp)

²⁾日本大学理工学部 (〒101-8308 東京都千代田区神田駿河台1-8-14)³⁾メタウォーター(株) 社事業戦略本部 R&D センター⁴⁾東京都下水道局計画調整部技術開発課 (〒163-8001 東京都新宿区西新宿2-8-1)

概要

下水処理プロセスからの地球温暖化ガス削減の運転管理の最適化を目的に、活性汚泥装置にて一酸化二窒素 (N_2O) の排出削減方法を調査した。調査結果から、 N_2O 排出削減型の送風量制御方法として、槽前段部で硝化を抑制し、槽後段部において硝化を促進する方法 (後段硝化型) が、対照系の DO 制御に比較し約 45% 削減した。また、反応槽の硝化速度を変化させて活性汚泥中の硝化細菌による N_2O 生成量を計算するモデルを開発し、実験結果との整合性を確認し、後段硝化型の送風量制御が N_2O 生成を抑制すると結論づけた。本稿では、その排出削減方法及び評価について報告する。

キーワード：一酸化二窒素, 硝化, 酸化還元電位, 活性汚泥処理, 送風量制御

原稿受付 2014. 6. 20 原稿受理 2014. 8. 27

EICA: 19(2・3) 106-114

1. はじめに

一酸化二窒素 (以下 N_2O) は、 CO_2 の約 300 倍と温室効果が大きく¹⁾、下水道事業者にとって、水処理プロセスからの N_2O の排出削減が急務の課題となっている。 N_2O は、生物学的窒素除去における硝化および脱窒の両プロセスから生成することが知られているが、特に好気条件下においては、アンモニア酸化細菌の寄与が大きいことが報告されている²⁻⁴⁾。また、アンモニア酸化細菌からの N_2O 生成については、種々の経路が報告されている⁵⁻⁷⁾ が、主な経路は亜硝酸からの脱窒と考えられており⁸⁾、従って、アンモニア酸化細菌による N_2O 生成を抑制するためには、亜硝酸濃度の低減と溶存酸素 (DO) の確保が望ましい。

一般に、反応槽内の水質管理指標としては、DO を指標とした送風制御が主流であり、末端部での DO 値をある値以上に保持する運転方法が採用されている。しかし、この方法では、反応槽前段部の低 DO 域 (DO 約 0~0.1 mg/L) での送風量及び、反応槽全体での送風バランスなどが考慮されておらず、 N_2O 生成抑制にはつながらない。従って本研究では、反応槽の中段と末端の 2 点における ORP 値もしくは DO 値に基づいて送風制御方法を行い、低 DO 環境での硝化速度を間接的に制御することで、従来法 (DO 制御) と比較した場合の N_2O 排出の削減効果を検証し

た。なお、ORP 計を用いたのは、DO が 0.1 mg/L 程度の条件下では、ORP 計の値の方が変化量を大きく捉えることができ、細かな制御に適していると考えたためである。

そこで本研究では、まず、実験的検討として、2 点 ORP 制御法および 2 点 DO 制御法による送風量制御を行い、 N_2O 排出量及び送風量の削減効果を検証した。次に、運転管理方法の検討として、活性汚泥中の硝化細菌叢からアンモニア酸化細菌に特異的な 2 つの FISH プローブを選択して定量評価を行い、 N_2O 生成の大きさとの関係を調べた。最後に、アンモニア酸化細菌 (以下、AOB) 及び亜硝酸酸化細菌 (以下、NOB) の生物学的定数を数理モデルに組み込み、多様な条件を設定し計算することにより、硝化の進行の制御が N_2O 生成抑制につながるメカニズムの検証及び運転方法について検討を行なった。

2. 実験方法

2.1 活性汚泥処理装置

実験には、Fig. 1 に示す有効容積 80 L の円筒形の反応槽を 6 槽直列に連結したものの 2 系列を用い、実下水を流量一定で流入させ、標準活性汚泥法にて運転した。

実験は、下記の 2 つの期間、期間 1 は、2013 年 7 月 31 日~2013 年 9 月 18 日、期間 2 は 2013 年 10 月

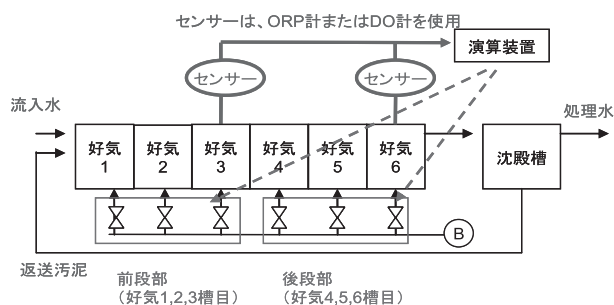


Fig. 1 実験装置の概要図

Table 1 実験期間における流入水、水温、MLSS 濃度および運転制御条件

系列	項目	期間 1 (7/31~9/18)	期間 2 (10/17~11/5)
流入水 (共通)	NH ₄ -N	13.8±4.0	13.0±2.8
	NO ₂ -N	0.04±0.05	0.09±0.06
	NO ₃ -N	0.11±0.15	0.99±0.64
系列 1	水温	27.3±0.9	22.1±0.6
	MLSS	2100±330	1630±210
	制御条件	2点 ORP 制御	2点 ORP 制御
	3槽目	60 mV	0 mV
6槽目	120 mV	80-120 mV	
系列 2	水温	27.4±1.0	22.0±0.6
	MLSS	2210±220	1470±240
	制御条件	2点 ORP 制御	2点 DO 制御
	3槽目	0-30 mV	0.5 mg/L
6槽目	100-120 mV	2.0 mg/L	

注) 単位は、水温 (°C)、MLSS (mg/L)、NH₄-N (mgN/L)、NO₂-N (mgN/L)、NO₃-N (mgN/L) を示す。±より右の値は標準偏差を示す。範囲で示した制御値は、範囲内で値を適宜変化させた。

17日~2013年11月5日に実施した。実験期間における流入水、水温、MLSS 濃度および運転制御条件を Table 1 に示す。

2.2 送風方式の影響を見るための運転条件

制御には、3槽目および6槽目に設置した2点のセンサーの値をもとに目標値となるよう前段部(1~3槽目)、後段部(4~6槽目)の送風量を、モデル予測制御(Model predictive control)によって制御した。

本法で採用したモデル予測制御は、ステップ応答試験により得られた操作量(送風量)と制御量(ORP値)のステップ応答曲線から、一次遅れモデルを構築し、送風量が最小になるような評価関数を組込むことで、最適化するように工夫し、試験的に導入した。制御方式の影響を確認するため、期間1は2系列ともに2点ORP制御で3槽目のORP設定値による影響を比較し、期間2では2点ORP制御と2点DO制御を比較した。

2.3 分析項目

NH₄-N、NO₂-N、NO₃-N分析は、下水試験方法⁹⁾に準じて測定した。N₂Oの測定は、ガス態のみを測定し評価した。ガス態N₂Oは、排ガス捕集装置を各反応槽水面上部に設置し、排ガスを大気との接触が無い

ように捕集しN₂O分析計(堀場製作所, VA-3000)にて連続測定した。AOB細菌数の定量は、FISH法によって行った。なお、FISHに用いたプローブとして、主なアンモニア酸化細菌を検出するプローブ(Nso190)¹⁰⁾と、*Nitrosomonas*属系を検出するプローブ(NEU)¹¹⁾の2種類を採用した。詳細な方法は文献¹²⁾を参照されたい。

2.4 評価指標

3槽目硝化率、NEU比率の定義を以下の式により定義し、本検討に採用した。なお、本研究での硝化率は、有機物除去にともなう窒素同化を含めた形で硝化率を定義し、純粋な硝化率ではないが、アンモニア性窒素濃度の変化のみで表現できる簡便さから本法を採用した。

3槽目硝化率(%) =

$$\frac{\left(\frac{\text{流入水NH}_4\text{-N}}{1+r}\right) - 3\text{槽目NH}_4\text{-N}}{\left(\frac{\text{流入水NH}_4\text{-N}}{1+r}\right)} \times 100$$

r: 返送率

$$\text{NEU比率}(\%) = \frac{\text{NEU}(\text{cell/mL})}{\text{Nso190}(\text{cell/mL})} \times 100$$

2.5 構築した数理モデルの概要

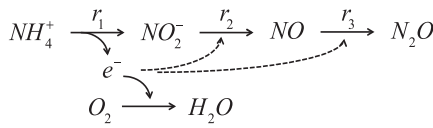
AOBとして*Nitrosospira*属系および*Nitrosomonas*属系の2種、NOB1種を組込んだN₂O生成モデルを構築し、N₂O生成量に及ぼす3槽目硝化率の影響を調べた。なお、本解析は実験で得られた現象のメカニズムを推察するために行うもので、計算値の大きさそのものではなく、傾向の確からしさに重点を置いたため、全ての定数を実験結果に対して補正したものではない。

基本的な式の構造や化学量論の考え方は活性汚泥モデルの考え方¹³⁾に従い、硝化細菌をAOBとNOBに分けて記述¹⁴⁾し、更にAOBについては*Nitrosospira*属系と*Nitrosomonas*属系に分けて記述を行った。

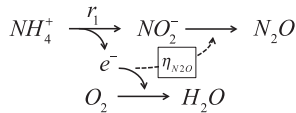
両者については、実験的に別途定量的に評価した事項(後述)以外は、AOB共通の値として文献値^{15, 16)}に準拠した値を用いた。N₂Oの生成はAOBのみが担うとし、AOBによるN₂O生成経路として亜硝酸の脱窒¹⁷⁾を主たる生成経路⁸⁾とし、その表現法として転換率モデル(Fig. 2(b))を採用した。即ち、N₂O生成速度をアンモニア酸化速度に転換率を乗じて表す方法である。これまで、いわゆる逐次反応としてモデル(Fig. 2(a))^{18, 19)}化する例が多いようであるが、NOに関する定数を決める必要がないなど簡便で実用性が高いと判断した。Table 2に、解析に用いた主なプロ

セス等の記述式²⁰⁾、Table 3に解析に用いた生物学的定数²⁰⁾をそれぞれ示す。別途行なった回分試験によりN₂O転換率に対するDOの阻害定数K_{ηO₂}は0.07, 最大N₂O転換率η_{max}はそれぞれ, *Nitrosomonas*属系で11(%), *Nitrospira*属系で40(%)を採用した。なお、低DO域におけるN₂O転換率の影響については、既往の見解^{21, 22)}によりモデル式を構築している。本検証ではS_{O₂}=0.25 mg/LにおいてN₂O転換率は最大値をとるモデルとし, 0 mg/L ≤ S_{O₂} < 0.25 mg/L 及び 0.25 mg/L ≤ S_{O₂}の場合に分けてN₂O転換率を計算した。

2.6 数理モデルを用いた解析方法



(a) 逐次反応モデル



(b) 転換率モデル(本研究)

Fig. 2 アンモニア酸化細菌によるN₂Oの生成モデル

Table 2 解析に用いた主なプロセス等の記述式

硝化細菌の増殖速度式	$\mu_{MAX} \cdot \frac{S_{O_2}}{K_{O_2} + S_{O_2}} \cdot \frac{S_{NH_4}}{K_{NH_4} + S_{NH_4}} \cdot X_{AOB}$
N ₂ O生成速度式	$\eta_{AOB} \cdot \frac{\mu_{max}}{Y} \cdot \frac{S_{O_2}}{K_{O_2} + S_{O_2}} \cdot \frac{S_{NH_4}}{K_{NH_4} + S_{NH_4}} \cdot X_{AOB}$
<i>Nitrosomonas</i> 属系のN ₂ O転換率	$ \begin{array}{l} 0 \text{ mg/L} \leq S_{O_2} < 0.25 \text{ mg/L の場合} \\ 9.625 \cdot S_{O_2} \\ 0.25 \text{ mg/L} \leq S_{O_2} \text{ の場合} \\ \eta_{max}^{mns} \cdot \left[\frac{K_{\eta_{O_2}}^{mns}}{K_{\eta_{O_2}}^{mns} + S_{O_2}} \right] \end{array} $
<i>Nitrospira</i> 属系のN ₂ O転換率	$ \begin{array}{l} 0 \text{ mg/L} \leq S_{O_2} < 0.25 \text{ mg/L の場合} \\ 35 \cdot S_{NO_2} \cdot S_{O_2} \\ 0.25 \text{ mg/L} \leq S_{O_2} \text{ の場合} \\ \eta_{max}^{spr} \cdot S_{NO_2} \cdot \left[\frac{K_{\eta_{O_2}}^{spr}}{K_{\eta_{O_2}}^{spr} + S_{O_2}} \right] \end{array} $

添字 nitrifier: AOBもしくはNOB, mns: *Nitrosomonas*属系
 AOB: mnsもしくはspr, spr: *Nitrospira*属系

Table 3 解析に用いた生物学的定数^{注1)}

項目	X _{mns}	X _{spr}	X _{NOB}
最大比増殖速度 (d ⁻¹)	1.45	0.50	0.37
死滅係数 (d ⁻¹)	0.172	0.060	0.044
増殖収率 (gCOD gN ⁻¹) ^{注2)}	0.20	0.20	0.05
NH ₄ -Nに対する半飽和定数 (mgN L ⁻¹)	10	2.0	-
NO ₂ -Nに対する半飽和定数 (mgN L ⁻¹) ^{注2)}	-	-	0.10
DOに対する半飽和定数 (mgO ₂ L ⁻¹)	1.02	0.30	0.10

注1) 注釈の無いものは文献値を基に補正した値
 注2) Sinら (2008)¹⁶⁾

3槽目硝化率の制御は、各槽のDOを次の通りに変化させることにより行なった。6槽目DOを2.0 mg/Lに固定した上で3槽目DOを0~2.0 mg/Lで18段階に分け、各槽のDO値は2槽目のDOを3槽目DOの2/3の値にするなどして、間を直線的に変化させた。

初期微生物濃度は、AOB細胞の組成を与え、COD/VSS比を求めてAOB量を約50 mgCOD/Lとした。AOBが2種類から、25 mgCOD/Lずつ等量に設定し、NOBについても同値を設定した。今回の計算では化学量論計算上求めたAOB量をもとに、720時間後(30日後)の解を求めてN₂Oを評価した。

運転条件は、プロセス実験の運転条件を模擬し、槽容積480(L), HRT 7(h)を採用した。Table 1に示した流入水アンモニア濃度13~14 mg/Lを参考に流入水アンモニア性窒素濃度10 mg/L及び15 mg/Lを採用した。なお、概ね定常解に達したと判断された720時間後(30日後)でN₂Oを評価した。なお、解析にはAQUASIM 2.0²³⁾を用いた。

3. 実験結果

3.1 プロセス実験結果

(1) 送風量制御と窒素除去の進行との関係

2点ORP制御系及び2点DO制御系に於ける代表的な窒素処理の状況をFig. 3に示す。アンモニアはいずれの系に於いても第6槽までに処理されたが、2点ORP制御系では前段部(1~3槽目)におけるアンモニア性窒素濃度の減少量が1 mgN/Lに満たないのに対し、2点DO制御系では約2 mgN/L減少していた。すなわち、2点ORP制御による送風量制御の方が前段部における硝化が抑制される傾向であった。各槽N₂O排出量においてもアンモニア酸化が進むとN₂O排出量が増加し、アンモニアの残存量が減少するとN₂O排出量は抑制される傾向が確認できた。

前段部での硝化を抑制された2点ORP制御系の方が2点DO制御系よりも1槽目~6槽目の合計のN₂O排出量が抑制されていたことが確認されたことから、本法にてN₂O排出量を抑制できる可能性が示唆され

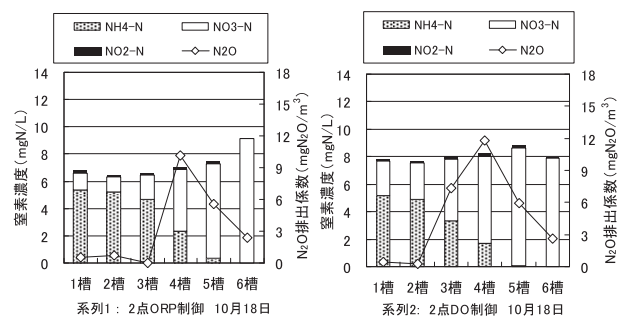


Fig. 3 各槽の水質測定結果

た。また他の測定日においても同様な結果を得た。**Fig. 4** に示した同日の送風量, ORP 及び DO の測定結果をからも, 3 槽目 ORP 値および DO 値のいずれも, 2 点 ORP 制御系の方が低く, より還元的な環境であったことが確認できた。

(2) 送風量制御と N₂O 及び送風量の関係

ORP 制御による N₂O 排出係数及び送風量の削減効果を **Table 4** 及び **Fig. 5** に示す。期間 1 では, 時系列での 3 槽目設定値による N₂O 排出量の大小関係は, 60 mV < 0 mV (7/31~8/2), 60 mV ≒ 30 mV (8/6~8/21), 60 mV ≤ 0 mV (8/23~8/29), 60 mV ≥ 30 mV (9/3~9/18) であった。つまり, 60 mV ≥ 30 mV の傾向であったが, 一方で 60 mV ≤ 0 mV の傾向も観察されたことから 3 槽目 DO を下げ過ぎることによって排出係数が逆に大きくなってしまいう現象も確認された。これについては後述のシミュレーション結果からも示されていると考える。期間 2 では, 2 点 ORP 制御は 2 点 DO 制御に比較して N₂O 排出量を期間平均で約 45%, また送風量については約 12% 削減することができた。

(3) 3 槽目硝化率と N₂O 排出係数の関係

上述の通り, 硝化の進行と N₂O 排出量に関係があることが推察されたことから, 3 槽目硝化率と N₂O 排出係数 (全槽合計) の関係を整理し, **Fig. 6** に示した。いずれの期間も両系とも 3 槽目硝化率が増加するに伴い, N₂O 排出係数が増加する傾向を示した。一方で, **Fig. 6 (b)** からは両系ともに, 3 槽目硝化率が低い側において, 逆に排出係数が大きくなる傾向も読み取れることから, N₂O 排出係数を小さく保つこと

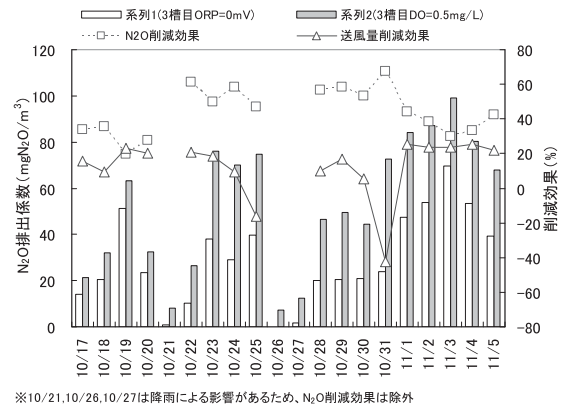
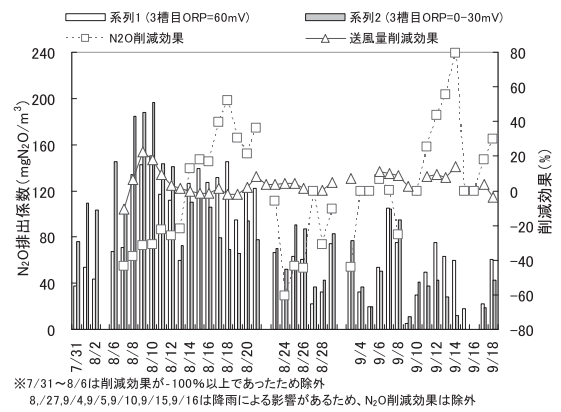


Fig. 5 ORP 制御による N₂O 排出量及び送風量の削減効果

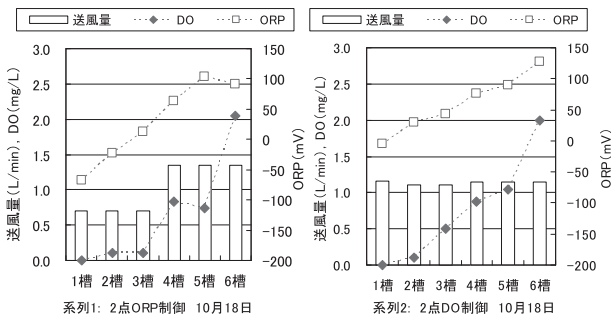


Fig. 4 各槽の送風量及び ORP

		期間 1	期間 2
N ₂ O 排出係数 (mgN ₂ O/m ³)	系列 1 : A	86	32
	系列 2 : B	84	58
N ₂ O 排出削減効果 (%) (B-A) ÷ B × 100		-2.4	45
曝気風量 (L/min)	系列 1 : C	14.3	7.6
	系列 2 : D	13.6	8.7
曝気風量削減効果 (%) (D-C) ÷ D × 100		-5.1	12.6

注) 降雨等による期間を除き, 平均値で示した。

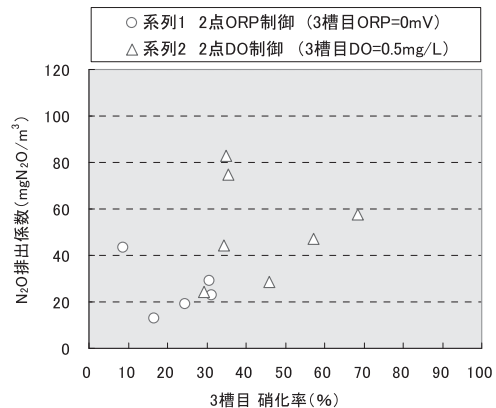
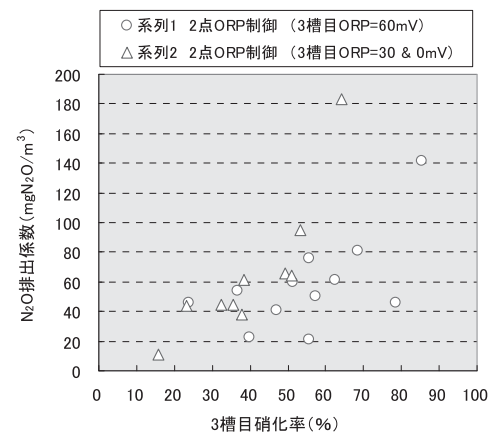


Fig. 6 3 槽目硝化率と N₂O 排出係数の関係

ができる3槽目硝化率の値にはある範囲があることが推察された。

4. 数理モデルを用いた検証

4.1 シミュレーション結果

上述のとおり、2点ORP制御系では前段部の硝化が抑制されるとともに N_2O 排出量及び送風量の削減効果が顕著に観察された。従って、槽前段部に於ける硝化の進行を抑制し、末端部で硝化を完了する送風方式（後段硝化型）が、 N_2O 排出抑制に効果的であるとの結果が得られた。ここでは、これらの送風量制御方式が優位であることのメカニズムを数理モデルを用いて検証した。

(1) 3槽目硝化率と N_2O 排出係数の関係

シミュレーションによって得られた3槽目硝化率と N_2O 排出係数（全槽合計）の関係を実験結果とともにFig. 7に示す。3槽目硝化率が0から約20%までの範囲において、 N_2O 排出係数は、3槽目硝化率が大きくなるに連れて減少し、それより大きな3槽目硝化率の範囲（約20%～約75%）では、 N_2O 排出係数が増加する傾向を示した。排出係数の絶対値に違いはあるが、3槽目硝化率約20%～約75%における前述の実験結果と同じ傾向を表現することができた。また、シミュレーションでは、約75%で最大値をと

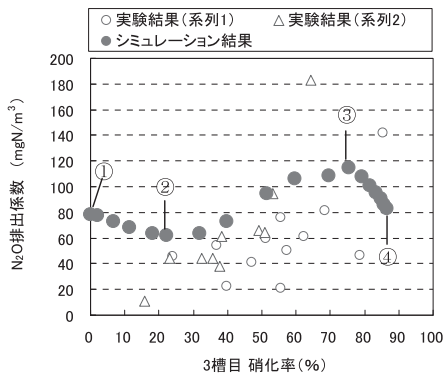


Fig. 7 3槽目硝化率と N_2O 排出係数（実験結果とシミュレーション結果）

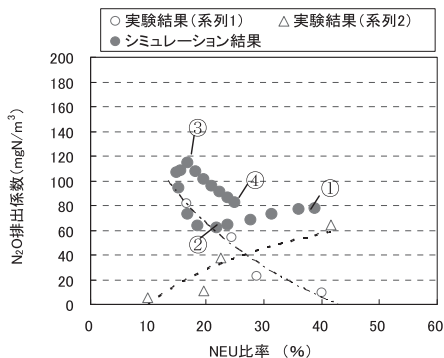


Fig. 8 NEU比率と N_2O 排出係数（実験結果とシミュレーション結果）

た後、再び減少するという複雑な傾向を示した。なお、実験結果は、ガス態 N_2O の測定のみから N_2O を評価しているため、 N_2O 排出量は若干少なめに評価されている。

(2) NEU比率と N_2O 排出係数の関係

NEU比率と N_2O 排出係数のシミュレーション結果を実験結果とともにFig. 8に示す。なお、図中①～④の番号は、Fig. 7の番号に対応している。実験結果によれば、NEU比率が増加するに伴い、系列1では N_2O 排出係数は減少傾向を示し、系列2では対照的に N_2O 排出係数は増加傾向を示した。系列2の傾向は、NEU比率が増加するに伴い N_2O 排出係数が増加した既往の知見²⁴⁾と一致していたことを確認した。

一方、シミュレーションによる解析結果では、3槽目硝化率が0から約20%に相当する①～②ではNEU比率が低下するに従って N_2O 排出係数が減少する傾向を示したのに対し、3槽目硝化率が約20%～約60%に相当する②から③の手前までは逆にNEU比率が高くなるほど排出係数が低くなる傾向を示し、更に③に近づく間ではNEU比率と排出係数は正の相関が、また、約75%を超えて④に近づく間は再度負の相関が示されるという複雑な傾向を示した。この解析結果は、絶対値では実験結果と合っていないが、概ねの傾向を捉えており、系列1の3槽目ORP=60 mVの場合と、系列2の30 mV、0 mVの場合の差異を表現したものと理解される。なお、両系で異なる傾向を示した理由として、*Nitrosomonas*属系と*Nitrospira*属系の N_2O 生成能が異なることから、DOによって両細菌属系のアンモニア酸化量、 N_2O 生成量に違いがあったのが理由と考えられる。実際、Fig. 9に示されるとおり、*Nitrosomonas*属系のアンモニア酸化に対する寄与は、3槽目DOが0～0.4 mg/L未満の範囲ではDOが高くなるに伴って減少したのに対し、0.4 mg/L以上2.0 mg/L以下の範囲では、逆にDOが高くなるに伴って増加している。

Fig. 10では、3槽目DOが0.20 mg/L以上では明

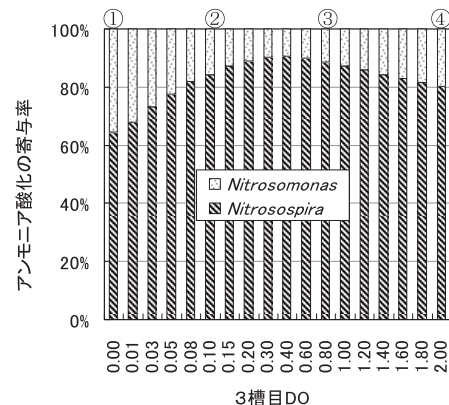


Fig. 9 3槽目DOの相違によるアンモニア酸化寄与率

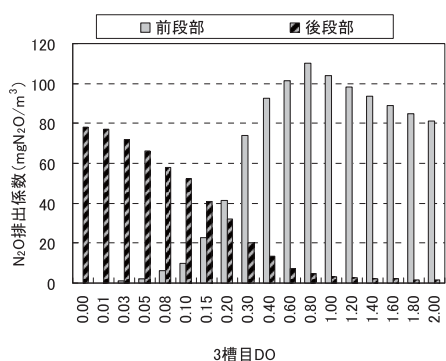


Fig. 10 3槽目 DO における前段・後段部の N₂O 排出係数

らかに前段部が後段部より高い N₂O 排出量であり、0.20 mg/L よりも低い DO 値が N₂O を抑制していることが示されている。

4.2 プロセス実験とシミュレーション結果の整合性

本研究では、後段硝化型の硝化パターンが N₂O 排出を抑制する結果を得たが、その制御値は確立できていない。そこで負荷変動をシミュレーション上でかけてみることで適切な送風量制御方法を考察した。Fig. 7 より、N₂O 排出係数は、シミュレーション結果に比較し、実験結果 (系列 1) (系列 2) で低い値が観察されたが、一部はシミュレーションよりも高い値が観察された。理由としては、実験では流量一定処理を行っているが、流入水中アンモニア濃度や固形物滞留時間 (SRT) の影響があり、非定常な制御であったことが挙げられる。実用化に向けては、このような非定常な状態をいかに適切に運転するかが重要である。本考察では、シミュレーションの運転環境を複数変化させ負荷変動を与えることによって、制御値の絞り込み方法について考察した。上述の前段部を硝化率で制御し、後段部を硝化速度制御する後段硝化型の運転条件において、負荷変動をかけた場合に N₂O 排出係数は、どのような挙動を示すかを、確認し、その適切な制御方法を考察した。

負荷変動の設定は、流入アンモニア濃度 (mgN/L) を 10 または 15 mgN/L、固形物滞留時間 (SRT) を 10 日または 15 日を設定した。

(1) 前段を槽中間部硝化率、後段を硝化速度で制御する場合の送風量制御方法

中間部硝化率 (3槽目硝化率) と N₂O 排出係数の関係を Fig. 11 に示す。Fig. 11 から、N₂O 生成速度が最も低い時の 3槽目硝化率は、流入 NH₄-N=15 mg/L、SRT=10 日の場合に約 25%、流入 NH₄-N=15 mg/L、SRT=15 日の場合に約 30%、流入 NH₄-N=10 mg/L、SRT=10 日の場合に約 50% であり、負荷変動により、制御値に幅を持つことがわかった。

次に、後段の硝化速度と N₂O 生成速度の関係を

Fig. 12 に示す。Fig. 12 から、N₂O 生成速度が最も低い時の後段部の硝化速度は、流入 NH₄-N=15 mg/L、SRT=10 日の場合に約 3.0 mgN/L・h、流入 NH₄-N=15 mg/L、SRT=15 日の場合に約 2.9 mgN/L・h、流入 NH₄-N=10 mg/L、SRT=10 日の場合に約 1.9 mgN/L・h あり、負荷変動により、制御値に 1.0 mgN/L 以上の幅を持つことがわかった。

(2) 流入負荷当たりの硝化速度で制御する場合の送風量制御方法

上述(1)では、負荷変動がある場合に制御値に比較的大きな幅を持つことがわかった。硝化工程を前段、後段に区分し、前段部の硝化を抑制し、後段部で硝化を完了させる為には、負荷変動に依存しない制御値による送風量制御が必要になる。これらの制御値の変動幅を小さな範囲に絞り込むために、流入負荷当たりの硝化速度という表現で、グラフのプロットを整理したものを Fig. 13, Fig. 14 に示す。

下式にて、流入負荷当たりの硝化速度 (無次元数) を定義し以下検討した。

$$\text{流入負荷当たりの硝化速度} =$$

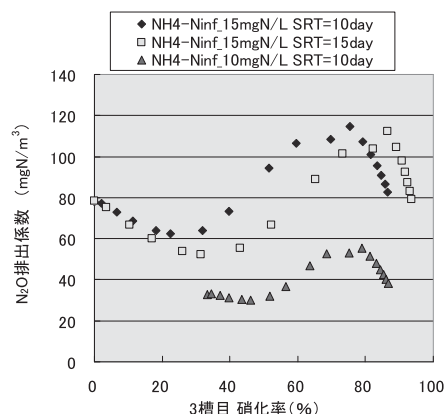


Fig. 11 3槽目硝化率と N₂O 生成速度 (負荷変動の場合)

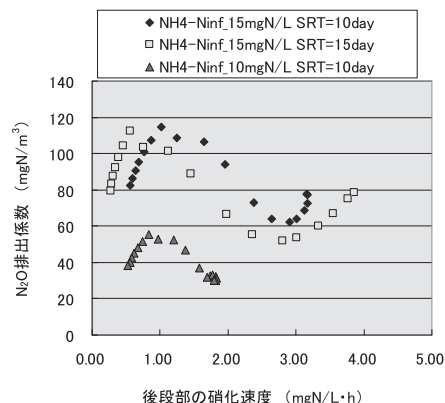


Fig. 12 後段部の硝化速度と N₂O 生成速度 (負荷変動の場合)

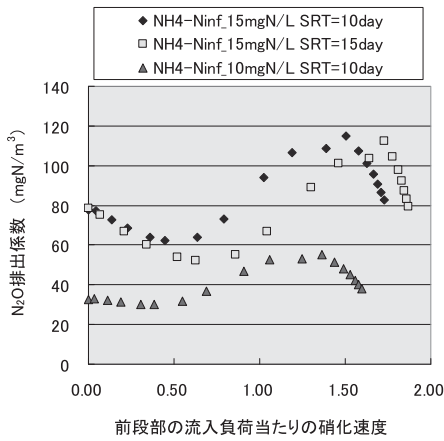


Fig. 13 前段部の流入負荷当たりの硝化速度とN₂O生成速度（負荷変動の場合）

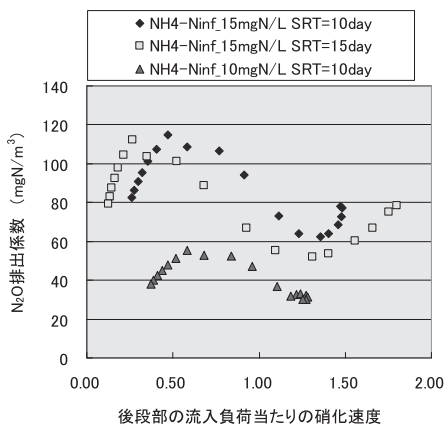


Fig. 14 後段部の流入負荷当たりの硝化速度とN₂O生成速度（負荷変動の場合）

$$\frac{\text{NH}_4\text{-N酸化速度}(\text{mgN/L} \cdot \text{h})}{\left(\frac{\text{流入水NH}_4\text{-N濃度}(\text{mgN/L})}{\text{滞留時間}(\text{h})}\right)}$$

Fig. 13 から、前段部の流入負荷当たりの硝化速度は、流入 NH₄-N=15 mg/L, SRT=10 日の場合に約 0.5, 流入 NH₄-N=15 mg/L, SRT=15 日の場合に約 0.6, 流入 NH₄-N=10 mg/L, SRT=10 日の場合に約 0.4 であり、負荷変動により、制御値は約 0.5±0.1 に絞られていた。Fig. 14 から、後段部の流入負荷当たりの硝化速度は、流入 NH₄-N=10 及び 15 mg/L, SRT=10 日及び 15 日の場合それぞれ約 1.3 であり、負荷変動があっても、制御値は、ほぼ同じであった。硝化率及び、硝化速度で表した Fig. 11 及び Fig. 12 の制御値より、絞り込まれていることがわかった。

本考察では、流入水中アンモニア性窒素濃度、SRT のみを負荷変動として設定し、値を変更することによって運転条件の多様性を整理した。一方で、実際の反応槽内の硝化は非定常系で構成されていることから、他の負荷変動の指標から、N₂O 排出特性を整理していくことも重要である。

5. ま と め

本研究では、送風量制御の違いによる N₂O 排出削減方法の検討を行い、モデル解析の結果と合わせて以下の知見を得た。

- ・流量一定条件のもと 2 点 ORP 制御系は、2 点 DO 制御系と比較して、N₂O 排出において、期間平均で約 45% の削減効果を有していた。また、送風量については、削減効果は約 12% であった。
- ・AOB に占める *Nitrosomonas* 属系の比率（NEU 比率）と N₂O 排出量の関係は、一意には定まらなかった。その理由として、数理モデル解析の結果から、DO によってアンモニア酸化への寄与率が変化するためと推察された。
- ・3 槽目硝化率は約 75~20% の範囲では低くなることによって、N₂O 排出係数は抑制されたが、約 20% 以下の硝化率の範囲では N₂O 排出は増加傾向を示した。
- ・NEU 比率は約 40~20% の範囲では低くなることによって、N₂O 排出係数は抑制されたが、約 20% 以下の NEU 比率の範囲では N₂O 排出は増加傾向を示した。
- ・以上の結果から、N₂O 生成抑制する送風量制御方法は 3 槽目の硝化率を約 20~30% に維持する後段硝化型による制御方法により、N₂O 生成速度が最も低くなることがわかった。
- ・N₂O 生成抑制する送風量制御方法の指標を考察した結果から、流入負荷当たりの硝化速度を指標にした送風量制御によって、硝化率、硝化速度を指標にした制御よりも制御値を絞ることができ、N₂O 抑制する硝化率を決定する上で有効な指標と考えられた。
- ・今後は、N₂O 排出削減に向けて、より適切な制御値の確立を目指していくことが重要である。

参考文献

- 1) Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K. B. Averyt, M. Tignor and H. L. Miller (eds.): Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, pp.212 (2007)
- 2) Kim SW, Miyahara M, Fushinobu S, Wakagi T and Shoun H.: Nitrous oxide emission from nitrifying activated sludge dependent on denitrification by ammonia-oxidizing bacteria. *Bioresour Technol* 101: 3958-3963. (2010)
- 3) Schreiber F, Loeffler B, Polerecky L, Kuypers MMM and de Beer D.: Mechanisms of transient nitric oxide and nitrous oxide production in a complex biofilm. *ISME J* 3: 1301-1313. (2009)
- 4) Yang Q, Liu X, Peng C, Wang S, Sun H and Peng Y.: N₂O

- production during nitrogen removal via nitrite from domestic wastewater: Main sources and control method. *Environ Sci Technol* 43: 9400-9406. (2009)
- 5) Hooper, A. B.: A Nitrite Reducing Enzyme from *Nitrosomonas europaea*. Preliminary Characterization with hydroxylamine as Electron Donor. *Biochim. Biophys. Acta*, 162, 49-65. (1968)
 - 6) Stuvven R, Vollmer M. and Bock E.: The impact of organic matter on NO formation by *Nitrosomonas europaea*. *Arch Microbiol* 158: 439-443. (1992)
 - 7) Poth M.: Dinitrogen production from nitrite by a *Nitrosomonas* isolate. *Appl Environ Microbiol* 52, 957-959. (1986)
 - 8) Schmidt I, van Spanning RJM and Jetten MSM: Denitrification and ammonia oxidation by *Nitrosomonas europaea* wild-type, and NirK- and NorB-deficient mutants. *Microbiology* 150: 4107-4114. (2004)
 - 9) 日本下水道協会, 下水試験方法上巻 2012年 pp.298-301, 304-308, 314. (2012)
 - 10) Mobarry, B. K., Wagner, M., Urbain, V., Rittmann, B. E., and Stahl, D. A.: Phylogenetic Probes for Analyzing Abundance and Spatial Organization of Nitrifying Bacteria, *Applied and Environmental Microbiology*, 62, 2156-2162. (1996)
 - 11) Wagner, M., Rath, G., Amann, R., Koops, H. P., and Schleifer, K. H.: In situ Identification of Ammonia-oxidizing Bacteria, *Systematic and Applied Microbiology*, 18, 251-264. (1995)
 - 12) Konuma, S., Satoh, H., Mino, T. and T Matsuo, T. Comparison of enumeration methods for ammonia-oxidizing bacteria, *Water Science & Technology*, 43, 107-114. (2001)
 - 13) Henze, M., Grady, C. P. L. Jr, Gujer, W., Marais, G. v. R. and Matsuo, T.: Activated sludge model no. 1. IAWPRC Scientific and Technical Report No. 1, IAWPRC, London, UK (1986)
 - 14) Hiatt WC, Grady CPL Jr: An updated process model for carbon oxidation, nitrification, and denitrification. *Water Environ Res* 80(11), p. 2145-2156. (2008)
 - 15) Taylor, A. E., Bottomley, P. J.: Nitrite production by *Nitrosomonas europaea* and *Nitrosospira* sp. AV in soils at different solution concentrations of ammonium. *Soil Biol. Biochem.* 38(4), p. 828-836. (2006)
 - 16) Sin, G., Kaelin, D., Kampschreur, M. J., Takács, I., Wett, B., Gernaey, K. V., Rieger, L., Siegrist, H. and van Loosdrecht, M.: Modelling nitrite in wastewater treatment systems: a discussion of different modelling concepts. *Water Science and Technology* 58(6), p. 1155-1171. (2008)
 - 17) Shaw, L. J., Nicol, G. W., Smith, Z., Fear, J., Prosser, J. I. and Baggs, E. M. *Nitrosospira* spp. can produce nitrous oxide via a nitrifier denitrification pathway. *Environ. Microbiol.*, 8(2), p. 214-222. (2006)
 - 18) Guo H, Vanrolleghem, P. A.: Calibration and validation of an activated sludge model for greenhouse gases no. 1 (ASMG1): prediction of temperature dependent N₂O emission dynamics, *Bioprocess Biosyst. Eng.* Vol. 37, pp. 151-163. (2014)
 - 19) Mampaey K. E., Beuckels B., Kampschreur M. J., Kleerebezem R., van Loosdrecht M. C. M. and Volcke E. I. P.: Modelling nitrous and nitric oxide emissions by autotrophic ammonia-oxidizing bacteria, *Environ Technol.*, Vol. 34 (12), pp. 1555-1566. (2013)
 - 20) 齋藤利晃, 加賀美雅彦, 小沼 晋, 杉浦将平, 草野 吏, 鈴木重浩, 活性試験を用いたアンモニア酸化細菌の亜酸化窒素生成能評価, 第48回日本水環境学会年会講演集, p. 54, (2014)
 - 21) 齋藤利晃, 平井鐘太郎, 大嶽祐介, 鈴木重浩 活性汚泥中のアンモニア酸化細菌による亜酸化窒素生成条件の検討, 第44回日本水環境学会年会講演集, p. 398, (2010)
 - 22) Y. Furuya, T. Saito, S. Konuma, Y. Otake and S. Suzuki: Effect of aeration intensity on nitrous oxide production. *Journal of water and environment technology*, Vol. 11, No. 6, pp. 477-486. (2013)
 - 23) Reichert, P.: AQUASIM 2.0 — User Manual. Swiss Federal Institute for Environmental Science and Technology (EAWAG), Duebendorf, Switzerland. (1998)
 - 24) 草野 吏, 古屋勇治, 鈴木重浩, 濱本亜希, 佐藤浩一, 小沼 晋, 齋藤利晃, ORP計を用いた送風量制御による一酸化二窒素の排出量削減効果の検討, 第50回下水道研究発表会講演集, p. 583-585, (2013)

Reduction method of Nitrous Oxide (N₂O) Emission from Activated Sludge Process with Aeration Control

Tsukasa Kusano^{1) †}, Susumu Konuma²⁾, Shigehiro Suzuki³⁾, Toshiaki Saito²⁾
Aki Hamamoto⁴⁾ and Masayuki Kobayashi⁴⁾

¹⁾ Business Strategy Division Technology Strategy Dept., METAWATER Co., Ltd.

²⁾ College of Science and Technology, NIHON University

³⁾ Business Strategy Division R&D Center, METAWATER Co., Ltd.

⁴⁾ Technical Development Section Planning and Coordination Division,
Bureau of Sewerage Tokyo Metropolitan Government

† Correspondence should be addressed to Tsukasa Kusano :
(METAWATER Co., Ltd, E-mail : kusano-tsukasa@metawater.co.jp)

Abstract

In order to reveal the optimum aeration control strategy of the conventional activated sludge process for substantial reduction of nitrous oxide (N₂O) emission, we operated two identical bench-scale reactors with six consecutive aeration tanks, focusing on the progress of nitrification. From the experimental results, we have found that low N₂O emission was observed when nitrification occurred more at the latter part of the aeration tanks than the former part. This control method focusing on the progress of nitrification attained 45% reduction of N₂O emission as compared to DO control method. To confirm the experimental results, the mathematical model with N₂O production by two groups of ammonia oxidizing bacteria was developed. The simulation results agreed with tendency of the experimental results. Hence we concluded that the aeration control to provide more nitrification at the latter part of aeration tanks is preferable for the reduction of N₂O emission.

Key words: nitrous oxide, nitrification, oxidation-reduction potential, activated sludge process, aeration control