植物プランクトンの増殖にともなう アンモニア態窒素の空中放散について

赤 野 誠 之

Ammonia Removal by Aeration During the Cultivation of Phytoplankton

Seishi AKANO

Abstract

The effect of ammonia removal by aeration during the cultivation of phytoplankton was investigated. The results obtained are as follows.

1) Ammonia removal by aeration was observed during the cultivation of *Chlorella* in domestic waste.

2) The decrease of total nitrogen concentration was mainly dependent on ammonia removal. Gaseous nitrogen release was not likely to occur during the cultivation.

3) The following equation was obtained for the rate of ammonia removal (R) :

$$R (\%/hr) = 3.38 \times 10^{-11} \cdot P^{10.53} \cdot Q \cdot e^{0.046T}$$

where R is temperature (°C), P is pH and Q is air volume per water volume per minute.

4) The rate of aeration is not enough to remove ammonia in outdoor ponds like oxidation pond. But more effective method of aeration will be able to release ammonia from water bodies.

1. 緒 言

最近、わが国の湖沼は都市廃水や各種産業廃水等の流入によって急激に富栄養化が進行する傾向にある。一般に天然水域の漁業生産は植物プランクトンの一次生産の増大にともない増大するものと考えられるが、ある限界を超える場合には、生態系のバランスを失われ、魚類等の生物の棲息に不適な環境となり得る。このような富栄養化の進行を防止する方法としては、まず植物プランクトンの栄養源の流入を減少させることがあげられる。現在の廃水処理の中心は、有機物の無機化に止まり、無機化された栄養塩の除去は殆んど行なわれていないのが現状である。これまでの3次処理の技術のうち、生物を利用したものとしては酸化池における植物を利用した栄養塩の除去があるが、本報では植物プランクトン培養中の光合成により pH の上昇が、2次処理水中の窒素の主成分であるアンモニア態Nのガス化による除去効果について検討したので報告する。

2. 実験方法

アンモニア態Nは pH 値の変化によって次式のように変化する。

ここで Fig. 1 のようなフラスコにクロレラ (*Chlorella* sp.) を培養し、ゴム栓を通してフラスコ中に入るガラス管から空気を送り込み他方のガラス管を通して出てくる空気を希塩酸に導きガス化した NH_3 を捕え NESSLER 法によって測定した。また Total-N は Microkjeldahl 法、 $\text{NO}_2\text{-N}$ は GRIESS-ROMIJU 法、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は Brucine-Sulfamic Acid 法によりおのおの測定した。

3. 実験結果および考察

(1) エアレーションによる $\text{NH}_4\text{-N}$ 除去効果

まず、クロレラを尿処理水で培養した場合について NH_3 として空中に放散させることができるかどうか検討した。1l の排水を用い室内光に 20W 蛍光灯

を加えた条件下でエアレーションを行ない、クロレラ添加区、無添加区および光の照射しない無添加区の3つの条件下で3日間培養を行なった。結果は Fig. 2 のとおりである。原水の pH は 7.5 で培養中に各区

Fig. 1. Apparatus for determination of ammonia removal.

Fig. 2. Ammonia removal from domestic waste water by aeration. One liter of domestic waste containing 59.9 mg/l $\text{NH}_4\text{-N}$ was aerated under the next three conditions. A: One liter of domestic waste was aerated in dark bottle. B: One liter of waste was aerated under continuous lighting. C: One ml containing 4.14×10^7 cells/ml of *Chlorella* was added to B. Figure shows pH value.

とも pH の上昇および NH_3 ガスの空中放散がみられた。この中、クロレラ添加区が3日間のアンモニア除去率で27.3%の高値を示し、次いでクロレラ無添加の22.3%, 暗ビンの場合には14.0%であった。クロレラ無添加の場合には、培養中に緑色を呈し、植物プランクトンの発生が考えられるが、暗ビンでも pH の上昇がみられるのはいかなる原因によるか不明である。しかし、これらの結果から尿処理水で植物プランクトンを培養しエアレーションを行なえば $\text{NH}_4\text{-N}$ の空中放散を促すことが確認された。

(2) クロレラの繁殖速度とアンモニア除去率との関係

次に植物プランクトンの濃度が $\text{NH}_4\text{-N}$ の空中放散にどのような影響を与えるかについて次の実験を行なった。クロレラ無添加を対照とし、 0.24×10^6 個/ml から 2.74×10^6 の範囲でクロレラを添加した4区について5日間培養を行なった。結果は Fig. 3 のとおり5日間のアンモニア除去率は、クロレラ添加 0.24×10^6 の区で最大46.1%を示し、除去率の低いのは 0.80×10^6 の区で24.9%であった。この時の pH を Table 1 に示したが、クロレラ添加量が pH の上昇と直接関係するのではなく、添加後の増殖速度と関係するものと思われる、このことが間接的にアンモニア除

Fig. 3. Ammonia removal in relation to concentration of *Chlorella* at 29°C. Medium used for this experiment is domestic waste containing 73.5 mg/l $\text{NH}_4\text{-N}$. Concentration of *Chlorella* at beginning is as follows; A: Blank, B: 2.74×10^6 cells/ml, C: 0.80×10^6 , D: 0.24×10^6 .

去率につながるものと考えられる。

(3) 脱窒素の検討

以上のように尿尿処理水に植物プランクトンを添加培養し、エアレーションを行えば $\text{NH}_4\text{-N}$ を空中放散させ除去することがわかった。そこで次に $\text{NH}_4\text{-N}$ のガス化以外に N_2 としての除去の可能性について若干の吟味を行なった。Table 2 のような条件でクロレラを 0.48×10^6 個/ml の密度で添加して7日間培養し、Total-N, NO_3 , NO_2 および $\text{NH}_4\text{-N}$ の測定を行ない、それらの経時変化を検討した。結果は Table 2 のとおりで、これを図示したものが Fig. 4 である。試水中の窒素の総和は初め 72.6mg/l であったが、7日目には 53.3mg/l で26.5%の減少を示し、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は初め 63.7mg/l から 1.32mg/l に減少した。この7日間で、空中放散された $\text{NH}_4\text{-N}$ は総窒素の25.4%に相当する 18.2mg/l であり、試水の総窒素減少量にはほぼ一致している。したがって、試水中から系外にとりだされた窒素の殆んどが $\text{NH}_4\text{-N}$ のガス化によるものと見ることができる。

(4) $\text{NH}_4\text{-N}$ の濃度と放散量との関係

いま、単純に $\text{NH}_4\text{-N}$ の空中放散が pH 値による電離と通気量に関係するものと考え NH_4Cl を使用し pH 9.8, 水温 27°C, 1分間当りの通気量 Q (通気量/水量) を0.75と一定に保ちながら、 NH_4Cl 水溶液の濃度と放散量の関係を求めたのが、Fig. 5 である。

Table 1. Changes in pH value during the cultivation.

Days	0	1	2	3	4	5
A	7.7	8.9	8.7	8.8	—	—
B	7.7	9.1	9.0	9.5	—	—
C	7.7	9.2	9.1	9.7	—	—
D	7.7	9.2	9.4	9.8	—	—

Table 2. Changes in nitrogen concentration in domestic waste by phytoplankton culture.

Days	0	3	7
Temperature (°C)	27.0	30.0	30.0
pH	8.2	9.0	9.0
$\text{NH}_4\text{-N}$ (mg/l)	63.7	31.4	1.32
$\text{NO}_2\text{-N}$ (mg/l)	0	0.34	10.1
$\text{NO}_3\text{-N}$ (mg/l)	0	2.44	9.03
Total-N (mg/l)	72.6	48.4	34.2
<i>Chlorella</i> (cells/ml)	0.48×10^6	1.28×10^6	1.88×10^6
Ammonia removal (mg/l)	0	9.38	18.4

Fig. 4. Changes in nitrogen concentration in medium by phytoplankton culture. *Chlorella* was cultured in four liter of domestic waste at 27~30°C in continuous lighting of 20 W fluor lamp to add to natural light. pH values were changed at 8.8 to 9.2.

Fig. 5. Relationship between ammonia removal and concentration in ammonium chloride solution. Culture was carried out at 27°C and pH 9.8 with air : liquid ratio of 0.75.

放散による除去率は $\text{NH}_4\text{-N}$ が $8.3\sim 500\text{mg/l}$ の範囲では 8.3mg/l で最少で 7.1% を示した。また濃度が高くなるにしたがってやや上昇するよう 500mg/l では 12.4% と最大となっている。しかし、その増加の割合はごくわずかであり、この範囲では 10% と一定と見てさしつかえなからう。

(5) 通気量と放散量の関係

次に pH を 7.3 から 9.1 の範囲で 4 群について、通気量を変化させて放散量を測定したのが Fig. 6 である。放散による除去率は当然のことながら pH の高いもの程大きい。いずれの場合にも通気量に比して増加し、通気量 Q が 13 に達した pH 9.1 の例では除去率が $17.3\%/hr$ に達した。

(6) 水温と放散量の関係

pH を 7.3 から 9.1 の範囲で変化させて、通気量 Q を 6.37 で一定に保ち、水温を 6°C から 30°C の範囲で変化させて水温と除去率の関係を求めたのが Fig. 7 である。水温の上昇にともなって除去率は急激に増加し、水温 (T) と除去率 (R) の対数は直線を示している。いま、pH 9.1 の例について両者の関係を求めると

$$R = 2.68e^{0.046T}$$

となり、もし pH が一定であれば除去率は $e^{0.046T}$ に比例するものと考えられる。

(7) 水質浄化を考える上での問題点

以上の結果を総合すると除去率 (R) は次式で表わすことができる。

$$R (\%/hr) = 3.38 \times 10^{-11} \cdot P^{10.53} \cdot Q \cdot e^{0.046T}$$

ここで P は pH 値である。pH が比較的高く Q が大きい場合には、 R は $10\sim 20\%$ にもおよび、水質浄化を行なう上で有効な方法となりうるように思われる。

Fig. 6. Effect of air: liquid ratio on ammoniaremoval at various pH values.

Fig. 7. Effect of temperature on ammonia removal. Air: liquid ratio = 6.37 .

しかし、 Q をこのように大きくすることは実験室のフラスコの内では容易であるが、実際の戸外の池では 0.1 を超えることは殆んどないようである。ここで $Q=0.1$ として pH 9 , $T=24^\circ\text{C}$ での 1 時間当りの除去率を求めると 0.1% にすぎない。しかし、この方法は pH を上昇させるのに石灰等の薬剤を使用せず、もっぱら植物プランクトンの繁殖を利用している利点があり、なんらかの方法により通気量の増大が可能になれば、3 次処理の技術として有効なものとなる。

4. 摘 要

植物プランクトン培養にともなう pH の上昇と $\text{NH}_4\text{-N}$ のガス化による空中放散効果について検討した。

1. 尿処理水でクロレラを培養しエアレーションを行なうと $\text{NH}_4\text{-N}$ の空中放散が認められた。

2. 培養中の窒素収支からみて、脱窒素は少なく、 NH_3 が系外に除かれる窒素の大部分を占めるものと思われる。

3. NH_4Cl 溶液での実験から、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の除去率 (R) は、pH (P)、通気量 (Q) および、水温 (T) により次のように表わされる。

$$R = 3.38 \times 10^{-11} \cdot P^{10.53} \cdot Q \cdot e^{0.046T}$$

4. 酸化池では実際には Q が小さいために空中放散効果は小さいものと考えられるが、通気方法を検討することにより効率を高めることが可能となると考えられる。

(著者：赤野誠之，茨城県内水面水産試験場；Seishi AKANO, Freshwater Experiment Station, Ibaraki, Pref.)