研究論文

生物亜硝酸化と水熱反応の組合せによる高濃度排アンモニア除去

山﨑博人*・吉屋愛恵*・徳永　大*
根來宗孝*・宮越昭彦**・福永公寿***

要　旨

本報では工業排水中の高濃度アンモニア態窒素（NH_4-N）と，NH_4-N の生物亜硝酸化反応より得た高濃度亜硝酸態窒素（NO_2-N）を用いた亜臨界水熱反応を検討するため，反応温度を140，160，180，200℃の４種，NH_4-N と NO_2-N 濃度を等モルに調整した各1,500，3,000，5,000 mg/L の３グループの模擬排水を，無触媒による振とう攪拌下で，耐圧容器内にて１ h の反応に供した．

反応温度が180と200℃の場合，全濃度領域で総合除去率は90％以上に達した．そして，反応温度が140℃と低い場合でも，NH_4-N と NO_2-N の初期濃度が5,000 mg/L 以上では，総合除去率が90％以上に到達した．一方，生物処理水を用いた場合は，90％以上の総合除去率を達成するのに NO_2-N 初期濃度が NH_4-N のそれの1.6～2.2倍モル必要であった．

生物反応に化学・物理反応を組み合わせた本研究の成果は，汚泥排出量などの生物処理でのデメリットを軽減した，効率の良い，消滅型の工業排水中の高濃度窒素除去システムの構築につながるものと期待される．

キーワード：生物亜硝酸化反応，亜臨界水熱反応，高濃度窒素除去，アンモニア態窒素，亜硝酸態窒素

1．はじめに

半導体工場や火力発電所などの工業排水には，高濃度アンモニウム塩（NH_4^+）を含む窒素化合物が多量に含まれる．高濃度 NH_4^+ 含有排水の処理方法として，硝酸態窒素の共存が少ない場合は，化学的回収技術であるアンモニアストリッピング法がよく用いられている．しかし，この方法では大型装置や大量の化学薬品消費によるランニングコスト高の問題がある．一方，低コスト処理方法としては，微生物による硝化・脱窒処理法が古くから知られ，アンモニア態，亜硝酸態，硝酸態のどの形態の窒素にも対応できるが，高濃度 NH_4^+ 含有排水の処理の場合には，硝化速度は遅く，大量の希釈水と広大な処理面積が必要なことも相まって，適用が難しい[1, 2]．

先に我々は通常の工業的生物処理濃度の100倍以上，すなわち，5,300 mg/L の高濃度 NH_4^+ に耐性を有し，これを亜硝酸イオン（NO_2^-）へ酸化する（式(1)）微生物を含水ゲルに固定化した固定化亜硝酸菌群を開発した[3－8]．

［生物亜硝酸化反応］$NH_4^+ + 1.5\ O_2 \rightarrow NO_2^- + H_2O + 2H^+$　(1)

近年，余剰汚泥の減容化[9, 10]や油化[11]，熱硬化性廃プラスチックからの炭素繊維回収[12]やその油化[13]，重質油の加水分解[14]，そしてバイオマス資源であるセルロース[15－17]，都市ゴミ[18]および食品ゴミ[19]といった廃棄物の低温ガス・可溶化などに亜臨界水熱反応が

2015年４月８日受付，2015年６月15日受理
＊宇部工業高等専門学校　YAMASAKI Hirohito, YOSHIYA Itoe, TOKUNAGA Dai, NEGORO Munetaka
＊＊旭川工業高等専門学校　MIYAKOSHI Akihiko
＊＊＊山口大学大学院理工学研究科　FUKUNAGA Kimitoshi

効果的に適用されている．そこで，本研究では，先の固定化亜硝酸菌群[3－8]によりNH_4^+をNO_2^-に変換させ，これを原水NH_4^+水溶液と混合し，等モルNH_4^+とNO_2^-含有水溶液を調整した後に，亜臨界水熱反応を適用することにより，高濃度のNH_4^+とNO_2^-を無触媒下で窒素と水に変換する消滅型処理（式(2)）ができると着想し，その可能性と最適反応条件（排水濃度と亜臨界水熱反応温度）を明らかにする[20]．

［亜臨界水熱反応］$NH_4^+ + NO_2^- \rightarrow N_2 + 2H_2O$　(2)

なお，NH_4^+・NO_2^-含有排水の類似の処理技術として，（式(2)）で記述される生物亜硝酸化反応とアナモックス反応を組み合わせた処理プロセスがあり，曝気に必要な消費電力が低いなどの利点から，既に国内外で実用化されている[21-25]．

2．実　験

2.1　本反応システムの概略

本反応システムの概略図を**図1**に示す．まず，高濃度のNH_4^+を含む原水を固定化亜硝酸化生物処理槽に投入し，NH_4^+をNO_2^-へと変換する．次に，この処理水とNH_4^+原水の一部を亜臨界水熱反応装置に導入し，そこで，NH_4^+とNO_2^-を窒素と水への変換処理を行う．

2.2　亜臨界水熱反応

2.2.1　反 応 装 置

回分式の亜臨界水熱反応装置は，容量100 mLの反応容器（インコネル製特注品（円柱形状，内Φ40 ㎜，外Φ70 ㎜×H120 ㎜），㈱アルモウルド，宇部），保温容器（高温用石英マントルヒーターC-CL型，石英繊維発熱面，円柱形金属ケースΦ220 ㎜×H350 ㎜，大科電器㈱，大阪），振とう機（A-25型，往復振とう，ストローク幅140 ㎜，高崎科学器械㈱，埼玉），K熱電対温度センサー，温度制御ユニット（T-550，アズワン㈱，大阪）から構成される．反応容器を振とう機に取り付けて，容器内の反応液を振とう攪拌した．反応容器には，異常な高圧にならないよう圧力安全弁を取り付けた．また，亜臨界水熱反応装置を安全に操作するため，および反応容器の構造上の理由から，反応容器内の試料液は60 mLに固定した．

2.2.2　模擬排水を使用した場合の操作手順

模擬排水の場合，それぞれNH_4^+成分として$(NH_4)_2SO_4$，NO_2^-成分として$NaNO_2$のみを含んだ水溶液（pH 6.4～6.6）を使用し，両者のモル比が1：1となるように所定濃度で調整した．その模擬排水60 mLを反応容器に入れて密封し，保温容器に設置して75 rpmで振とうしながら温度を上昇させた．回分式での各温度における圧力は，それぞれの温度における

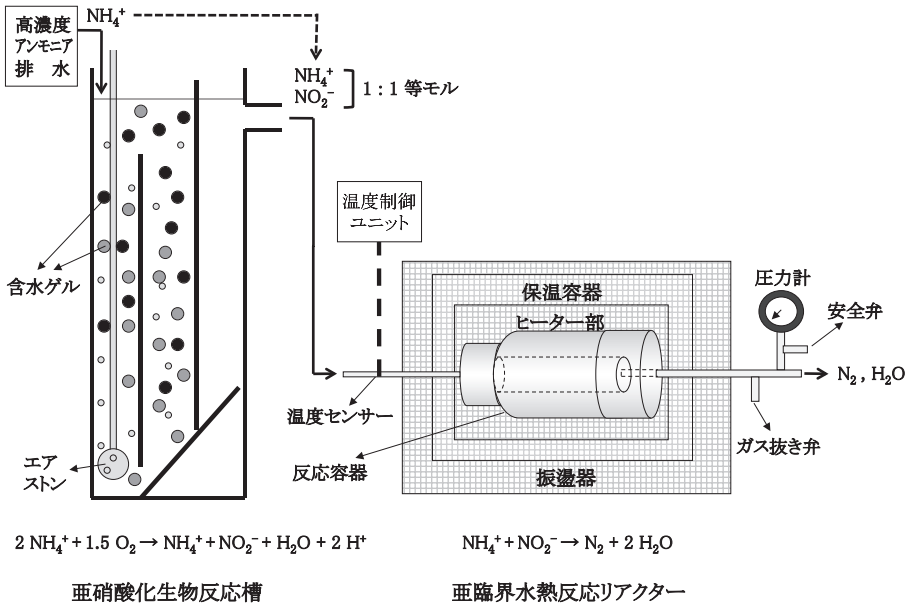

図1　生物亜硝酸化反応と亜臨界水熱反応を組み合わせた高濃度排アンモニアの除去システムの概略図

水の飽和蒸気圧と一致し，1～3.7 MPaとなった．所定温度に達するまでの昇温時間は約40分，所定温度に達してからの反応保持は1h，これを反応時間とする（1hの反応時間を越え，2，3hとした予備実験の場合でも同様の結果となった）．反応終了後，冷風機（スポットエアコン，SS-25EC-1型，スイデン㈱，大阪）による約30分間の冷却で，反応容器を40℃まで冷却した．以下，反応保持温度を水熱反応温度とした．

処理液は吸引濾過により錆などの不純物を濾過し，サンプリングして，後述の高速液体クロマトグラフィー（HPLC）と多目的水質分析計によって処理液の各態窒素（NH_4-N，NO_2-N，NO_3-N）濃度を測定した．

2.2.3 生物処理水を使用した場合の操作手順

既報の亜硝酸化生物反応槽（培養液1L中に窒素成分の他，KH_2PO_4 0.5 g，HEPES 11.9 g，$NaHCO_3$ 0.5 g，$MgHSO_4 \cdot 7H_2O$ 0.1 g，$CaCl_2 \cdot 2H_2O$ 0.005 g，EDTA-Fe-$NH_4 \cdot 2H_2O$ 0.001 gを含む，pH 7.8（Na_2CO_3で調整），水温：15～20℃，DO：9.6～9.8 mg/L，TN：6,500 mg/L）を用い，初期濃度5,300 mg/LのNH_4-Nを亜硝酸化し，それぞれ約3,000 mg/Lと約2,000 mg/LのNO_2-NとNH_4-Nを含む生物処理水を得た．この亜硝酸化生物反応槽ではNO_3-Nをほとんど生成することなく，槽内には窒素成分としてNO_2-NとNH_4-Nのみが存在し，また，アンモニアストリッピング等での窒素成分消失割合は平均9％（0～29％）である[4]．この生物処理水はクロマトディスク（GLサイエンス㈱製，13A，水系，0.2 μm）で除菌した後，さらに，試料前処理用カートリッジ（東ソー㈱製TOYOPAK ODS-M）で低分子有機化合物の除去を行った．次に$(NH_4)_2SO_4$と$NaNO_2$を用い，所定濃度になるよう濃度調整した生物処理水を，反応温度200℃，反応時間1hの亜臨界水熱反応に供した．なお，この処理液については，2.2.2と同様の各態窒素濃度測定の他に，TOC測定も行った．

2.3 各種測定

2.3.1 NOx-NとNH4-Nの測定

HPLC測定は，カラムに東ソー㈱製TSK-GEL DEAE-5PW，溶離液に0.2M-NaClを使用し，カラム温度40℃，流速1.0 mL/min，試料量100 μLで行った．検出には紫外可視検出器（東ソー㈱製UV-8000）を用い，230 nmのUVで検出した一点絶対検量線法を使用した．多項目迅速水質分析計（セントラル化学㈱製DR/2500）による測定には，高濃度アンモニア性窒素用キット（TNTplus，HR）を用いた．

2.3.2 TOC測定

TOC測定には島津製作所製TOC-V_{CPH}装置を使用し，以下の条件下で行った．測定項目：NPOC，酸濃度と添加率：2N-HClを1.5％，通気時間：1.5 min（内部），測定方式：680℃燃焼触媒酸化，触媒：標準触媒，試料注入量：50 μL，キャリアガスと流量：純空気（G2）と150 mL/min.

3．結果と考察

3.1 模擬排水を使用した場合の亜臨界水熱反応

模擬排水を使用した場合，反応温度は140，160，180，200℃の4種，模擬排水中のNH_4-NとNO_2-N濃度は約1,500，3,000，5,000 mg/Lの3グループに調整して反応に供した．これらの濃度設定には，既報の亜硝酸化生物反応槽において，5,300 mg/LのNH_4-NをpH 7.0，7.5，8.0で亜硝酸化した場合に生成するNO_2-N濃度がそれぞれ約1,500，3,000，5,000 mg/Lとなる結果を考慮した[4]．実験結果を**表1**と**図2**にまとめた．図表中のNH_4-N，NO_2-Nと総合の除去率（％）は，窒素の収支を考慮して下式より誘導した．

$$NH_4\text{-N 除去率}(\%) = 100 - \text{残留 } NH_4\text{-N}(\%) \quad (3)$$

$$NO_2\text{-N 除去率}(\%) = 100 - \text{残留 } NO_2\text{-N}(\%) - \text{生成 } NO_3\text{-N}(\%) \quad (4)$$

$$\text{総合除去率}(\%) = \{NH_4\text{-N 除去率}(\%) + NO_2\text{-N 除去率}(\%)\}/2 \quad (5)$$

なお，実用化を考慮した場合，総合除去率は90％以上が望ましいので，以下では総合除去率90％を1つの基準として検討する．

反応温度が180～200℃の場合，NH_4-NとNO_2-Nの模擬排水の初期濃度によらず，全濃度領域で総合除去率は90％以上に達した．NH_4^+とNO_2^-が亜臨界の加圧・高温状態で，窒素と水に容易に変換されたことになる．そして，反応温度が160℃と140℃の場合，NH_4-NとNO_2-Nの初期濃度が前者は5,000と3,000 mg/Lで，後者は5,000 mg/Lの条件でのみ，総合除去率が90％以上となった．当然のことながら，反応温度が低ければ亜臨界水熱反応は進行し難くなる．しかし，140℃の反応でも，NH_4-NとNO_2-Nの初期濃度が5,000

表１　模擬排水を用いた無触媒亜臨界水熱反応による高濃度 NH_4^+ と NO_2^- の除去

Run	温度（℃）	模擬排水組成		水熱反応処理水組成			除去率			残留率	生成率
		NH_4-N（mg/L）	NO_2-N（mg/L）	NH_4-N（mg/L）	NO_2-N（mg/L）	NO_3-N（mg/L）	NH_4-N（%）	NO_2-N（%）	総合（%）	NO_2-N（%）	NO_3-N（%）
1-1	200	5,000	5,000	110	44	78	98	97	97	1	2
1-2	180	5,000	5,000	140	44	70	97	98	98	1	1
1-3	160	5,000	5,000	310	180	72	94	95	94	4	1
1-4	140	5,000	5,000	320	181	65	94	95	94	4	1
1-5	200	3,000	3,000	40	104	68	99	95	97	3	2
1-6	180	3,000	3,000	10	91	66	100	95	97	3	2
1-7	160	3,000	3,000	352	115	62	88	94	91	4	2
1-8	140	3,000	3,000	514	290	55	83	88	85	10	2
1-9	200	1,500	1,500	89	12	42	94	96	95	1	3
1-10	180	1,500	1,500	78	177	58	95	88	91	8	4
1-11	160	1,500	1,500	198	80	44	87	92	89	5	3
1-12	140	1,500	1,500	443	323	32	70	76	73	22	2
1-13	200	1,500	0	1,430	0	0	5	0	5	0	0

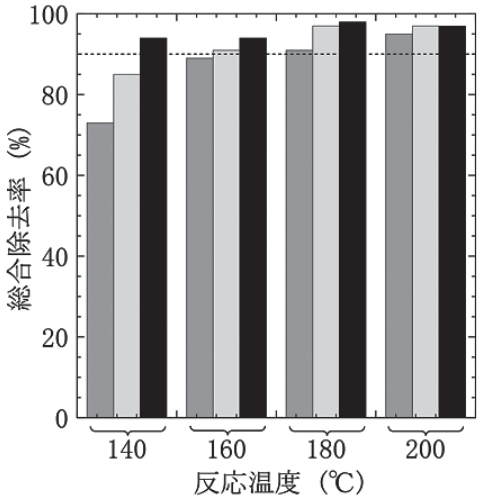

図２　模擬排水を用いた無触媒下での亜臨界水熱反応
初期 NH_4-N と NO_2-N 濃度；■：1,500 mg/L，□：3,000 mg/L，■：5,000 mg/L.

mg/L 以上であれば，総合除去率は90％以上に達することがわかった．

Run 1-13 は模擬排水に NH_4^+ のみが存在している場合で，NH_4-N 1,500 mg/L の模擬排水を200℃で水熱反応に供しても，除去率は僅か７％であった．NH_4^+ のみの反応系では（式(2)）の水熱反応は進行せず，既報の手法[4]等により高濃度 NO_2^- を共存させることが必要である．

3.2　生物処理水を用いた亜臨界水熱反応

生物処理水を，反応温度200℃での水熱反応に供した結果を**表２**にまとめた．Run 2-1およびRun 2-2は，それぞれ初期濃度5,000と3,000 mg/L の条件下での水熱反応結果であり，模擬排水のそれらには**表１**中の Run 1-1と1-5がそれぞれ対応する．生物処理水を用いた系では，NO_2-N 成分の除去率が99％以上に達しているにもかかわらず，NH_4-N 成分の除去率が46～63％に留まったため，総合除去率は73～81％となった．この値は模擬排水の総合除去率97％に比べ，かなり低い．また，模擬排水の場合，6.4～6.6の pH が水熱反応後は6.5～7.2に増加する程度であったが，生物処理水では，pH7.7の pH が水熱反応後は8.2～8.8の塩基性側に増加し，TOC 値も4.2 ～4.8 g/L にやや増加した．これらのことから，生物処理水中の TOC 成分によって，NO_2-N 成分が消費され，結果として NH_4-N と水熱反応する NO_2-N 成分が減少することが示唆される．これは，有機化合物中の炭素元素が求核攻撃を受けやすいためと考えられる．

そこで，Run 2-3および Run 2-4では，NH_4-N 濃度5,000と3,000 mg/L に対して，NO_2-N 濃度を Run 2-1および Run 2-2の1.6～2.2倍モル量に高めて水熱反応に供した．その結果，処理水の塩基性度（9.2～9.4）はさらに増加したが，TOC（4.1～4.3）値はほとんど変化しなかった．そして，NH_4-N 成分の除去率が72～79％に改善されたため，総合除去率は86～90％に増加した．今後，NH_4-N 対 NO_2-N 成分濃度比を微調整することで，模擬排水の総合除去率の値に近づけることが可能であろう．

生物学的亜硝酸化反応とアナモックス反応を組み合

表２　生物処理水を用いた無触媒亜臨界水熱反応による高濃度 NH_4^+ と NO_2^- の除去

Run	温度（℃）	生物処理水組成				水熱反応処理水組成					除去率			残留率	生成率
		NH_4-N (mg/L)	NO_2-N (mg/L)	pH	TOC (g/L)	NH_4-N (mg/L)	NO_2-N (mg/L)	NO_3-N (mg/L)	pH	TOC (g/L)	NH_4-N (%)	NO_2-N (%)	総合 (%)	NO_2-N (%)	NO_3-N (%)
2-1	200	5,000	5,000	7.7	4.1	1,838	34	64	8.8	4.8	63	99	81	1	1
2-2	200	3,000	3,000	7.7	4.1	1,619	3	48	8.2	4.2	46	100	73	0	2
2-3	200	5,000	7,906	7.7	4.1	1,060	16	3	9.4	4.1	79	100	90	0	0
2-4	200	3,000	6,517	7.7	4.1	840	22	4	9.2	4.3	72	100	86	0	0

わせた生物処理システムで報告されている NH_4-N 濃度は高い場合で約1,000 mg/L で[21-25]，本研究での濃度の１／５である．したがって，NH_4^+・NO_2^- 含有排水を無害化するシステムがより狭い敷地内で求められる場合や，より短時間で処理したい場合，あるいは200℃程度の廃熱をもつプラントでは，本研究の亜硝酸化生物処理と水熱反応処理を組み合わせたプロセスが有効であると思われる．

４．結　　論

亜硝酸化生物処理槽内で高濃度アンモニア（NH_4^+）を亜硝酸（NO_2^-）へと変換した後，アンモニア・亜硝酸等モル混合処理を経て，亜臨界水熱反応に供する窒素成分の分解反応において，初期濃度1,500～5,000 mg/L の NH_4-N と NO_2-N 等モル混合模擬排水では180～200℃，１ｈの反応で総合除去率は90％以上に達した．140℃，１ｈの反応で総合除去率を90％以上にするには，5,000 mg/L 以上の NH_4-N と NO_2-N 等モル混合水溶液の初期濃度が必要である．

生物処理水では200℃，１ｈの水熱反応において，NO_2-N 濃度を NH_4-N 濃度5,000 mg/L と等モルにした場合，総合除去率は80％であったが，NO_2-N 濃度割合を高めることにより，90％以上の総合除去率に達した．

以上のことから，亜硝酸化生物より得られる高濃度 NO_2^- と，200℃以下の亜臨界水熱反応の組み合わせで，窒素除去が効率的に行え，流通方式の水熱反応も可能であるので，低コストの高濃度アンモニアの消滅型除去に有望な反応システムとなり得る．

謝辞：本研究は2011-2013年度科学研究費補助金（基盤研究(C)；課題番号23510108），2009-2010年度公益財団法人鉄鋼業環境保全技術開発基金（一般研究助成），2010年度公益財団法人中国電力技術研究財団試験研究助成（試験研究(Ａ)，2011-2012年度実施分）の助成を受けて実施したものである．ここに記して謝意を表します．

参 考 文 献

１）大西彬聡；窒素除去に関する技術動向, 環境管理, **34**, (7), p.643-652, 1998.
２）江森弘祥，中村裕紀，竹島正，田中和博，中西弘；包括固定化微生物を用いた窒素除去リアクターの開発，土木学会論文集，**515**, p.115-126, 1995.
３）山﨑博人，辻村春菜，村上定瞭，品川恵美子，杉村佳昭，福永公寿；ストリッピングと硝化反応を併用した超高濃度アンモニア性窒素の除去：固定化高濃度アンモニウムイオン耐性硝化菌体の特徴，化学工学論文集，**35**, (1), p.20-26, 2009.
４）山﨑博人，吉屋愛恵，根來宗孝，福永公寿；固定化亜硝酸菌群による高濃度窒素含有排水処理と生態学的考察，環境技術，**42**, (6)，p.362-369, 2013.
５）榊原隆司，鬼頭佑典，山崎博人，根來宗孝；窒素含有排水の亜硝酸型硝化処理方法及び処理装置，特願2012-099211.
６）TSUJIMURA H, YAMASAKI H, FUKUNAGA K, SHINAGAWA E, MURAKAMI S; Nitrification of high concentration ammonium wastewater with a bubble column installed with immobilized nitrifying bacteria, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Environmental & Green Chemistry 358, Hawaii (USA)，Dec.15-20, 2005.
７）YAMASAKI H, MURAKAMI S, ITO T, FUKUNAGA K; Treatment of super high concentration ammonium wastewater with immobilized aerobic nitrifying bacteria and stripping effects, 18th International Congress of Chemical & Process Engineering, Summaries 4, p.1577, Praha (Czech Republic)，Aug.24-28, 2008.
８）YAMASAKI H, TAKEUCHI M, FUKUNAGA K; Microbial Ecology of Immobilized Aerobic Nitrifying Bacteria in High-Concentration Ammonium Wastewater, 3rd EuCheMS Chemistry Congress, Vc.018, p.78, Nürnberg (Germany)，Aug.29-Sep.2, 2010.
９）村上定瞭，谷口稔，清水英男，竹内正美，石川宗孝，中西弘；水熱反応を用いる汚泥消滅型生物法（水熱・生物法）に関する研究，環境技術，**28**, (8)，p.566-570, 1999.
10）奥田友章，古崎康哲，村上定瞭，笠原伸介，石川宗孝；水熱反応を利用した汚泥削減化システムに関する基礎的研究，土木学会論文集，**692**, p.21-30, 2001.
11）横山伸也，鈴木明；水熱反応による有機廃棄物の資源化処理―下水汚泥の資源化処理―，エネルギー・資源，**16**, (2)，p.181-186, 1995.
12）佐伯孝，藤江幸一，大門裕之；炭素繊維および炭素繊維強化樹脂への水熱反応の適用，環境科学会誌，**27**, (2)，p.84-92, 2014.
13）守谷武彦；水熱反応を利用した混合廃プラスチックの油

化処理技術，高圧ガス，**32**,（11），p.916-923, 1995.
14）FAN H, ZHANG Y, LIN Y; The catalytic effects of minerals on aquathermolysis of heavy oils, Fuel, **83**,（14/15），p.2035-2039, 2004.
15）新井邦夫；水熱反応による有機廃棄物の資源化処理―バイオマスの廃棄物の資源化―, エネルギー・資源, **16**,（2），p.175-180, 1995.
16）花岡寿明，美濃輪智朗，井上誠一；バイオマスエネルギー３超(亜)臨界水を用いたバイオマスの油化・低温ガス化 バイオマスの水熱反応，クリーンエネルギー，**11**,（4），p.6-9, 2002.
17）槇島聡，佐藤伸明；水熱反応を利用した各種糖質の生産技術，応用糖質科学，**2**，（3），p.174-179, 2012.
18）GOTO M, OBUCHI R, HIROSE T, SAKAKI T, SHIBATA M; Hydrothermal conversion of municipal organic waste into resources, Bioresour Technol, **93**,（3），p.279-284, 2004.
19）BHUIYAN M. N. A., ITO Y, SUGIMOTO K, DEMACHI T, KATAYAMA A, HASEGAWA T; Hydrothermal treatment and characterization of model food garbage, focusing on the effect of additional foreign matter on internal temperature, pressure and products, J Mater Cycl Waste Manag, **16**,（2），p.227-238, 2014.
20）YAMASAKI H, YOSHIYA I, NEGORO M, MIYAKOSHI A; High-concentration nitrogen removal in industrial wastewater by subcritical hydrothermal reaction without catalyst, 4th International IUPAC Conference on Green Chemistry, P272, p.370, Foz do Iguaçu/PR (Brazil), Aug.25-29, 2012.
21）古川憲治；アナモックス技術の展望，環境技術，**40**,（10），599-600, 2011.
22）橋本敏一；下水処理におけるアナモックス技術の実用化，環境技術，**40**,（10），p.601-607, 2011.
23）井坂和一；アナモックス反応を用いた省エネ型窒素排水処理技術，用水と排水，**57**,（4），p.58-64, 2015.
24）井坂和一；包括固定化担体を用いたアナモックス法，環境技術，**40**,（10），p.608-611, 2011.
25）高木啓太，奥田正彦；付着固定化担体を用いた２槽式アナモックス法，環境技術，**40**,（10），p.616-619, 2011.

High-concentration Nitrogen Removal in Industrial Wastewater Combining Biological Nitrite Reactions and Subcritical Hydrothermal Reactions

YAMASAKI Hirohito*, YOSHIYA Itoe*, TOKUNAGA Dai*
NEGORO Munetaka*, MIYAKOSHI Akihiko**, Kimitoshi FUKUNAGA***
* National Institute of Technology, Ube College
** National Institute of Technology, Asahikawa College
*** Graduate School of Science and Engineering, Yamaguchi University

ABSTRACT

The removal of high-concentration nitrogen using subcritical hydrothermal reactions of equivalent mixtures of NO_2^- converted from the original NH_4^+ and NH_4^+ without a catalyst was studied. This reaction was carried out in a pressure bottle shaken for 1h with three kinds of initial substrate concentrations: 1,500, 3,000, and 5,000 mg/L of either NH_4-N or NO_2-N while setting the temperature at 140, 160, 180, or 200℃.

In the cases where the reaction temperatures were 180 and 200℃, over 90% of the total nitrogen successfully decomposed at the initial concentrations in the artificial water. Even if the reaction temperature was lowered to 140℃, over 90% was removed when the concentration of NH_4-N and NO_2-N were over 5,000 mg/L.

On the other hand, it was necessary to achieve above a 90% total nitrogen decomposition value when the initial concentration of NO_2-N was 1.6 to 2.2 times higher than that of NH_4-N when biologically treated water were used.

The combined treatment of a subcritical hydrothermal reaction followed by a biological nitrite reaction, can effectively remove high concentrations of nitrogen in industrial wastewater.

Key Words：Biologic Nitrite Reaction, Subcritical Hydrothermal Reaction, High Concentration Nitrogen Removal, Ammonia Nitrogen, Nitrite Nitrogen