

茨城大学工学部 正員 ○古米弘明  
同上 学生員 尾林 寿

1. はじめに

近年、地下水の窒素汚染が進行しているため、水道水源である地下水の硝酸性窒素濃度が飲料水質基準値を越える場合には、対策として1) 代替水源を求めると、2) 前処理による除去を行う必要がある。現在までに、水道原水からの硝酸塩除去方法としてイオン交換法などの物理化学処理だけでなく、有機物を添加する生物学的脱窒素も検討されてきている。本実験は、汚染された水道原水を対象に、有機物を利用しない独立栄養性の硫黄脱窒菌を積極的に利用することを考え、新たな窒素除去プロセスの可能性を検討する研究の一環である。今回は、昨年の回分脱窒活性試験<sup>1)</sup>で見られたアンモニア性窒素欠乏における窒素除去の抑制（特に亜硝酸塩蓄積の問題）を再度評価した結果と、連続流の生物ろ過プロセスでの硝酸塩除去について検討を行った結果を報告する。

2. 実験方法

連続ろ過実験装置の概要を図-1に示す。装置は、内径10cm、高さ200cmの亚克力樹脂製であり、80cmの深さまでろ材としてアンスラサイトを充填している。ろ過速度（下向き）が4m/日になるようにポンプで20℃に調節した模擬水道原水を流入させる。ろ過処理実験に先立ち、A筒には硫黄脱窒菌、B筒には硫黄脱窒菌とエタノールで培養した従属栄養脱窒菌を植種し、表-1のように電子供与体としてチオ硫酸塩のみを添加する系（A筒：単独系）、チオ硫酸塩とともにエタノールも添加する系（B筒：共存系）にそれぞれの生物ろ過膜を形成させることとした。間欠的に原水を投入して循環培養した後、逆洗浄を行い、連続的に原水を流入させて実験を開始した。約3ヶ月間の運転における処理水質、流れ方向水質分布を調べることで硝酸塩除去について検討を行った。なお、A筒におけるチオ硫酸塩濃度は、流入硝酸塩除去に必要な量の2倍であり、B筒におけるエタノールの添加量は硝酸塩除去に必要な量の3割である。

測定項目と方法は以下のとおりである。DO、ORP、pH（電極法）、チオ硫酸塩（ヨウ素滴定法）、T-N（紫外外部吸光度法）、亜硝酸塩、硝酸塩（イオンクロマトグラフ法）。

3. 実験結果及び考察

3.1 NH<sub>4</sub>-N添加による硝酸塩除去への影響

長期集積培養した硫黄脱窒菌を遠心分離し、高濃度菌体条件で回分脱窒活性試験を行った。これにより、培養液中の代謝産物の影響のない条件で、アンモニア性窒素の添加の有無（無添加、0.5、5.0 mgN/l 添加の3段階）による硝酸塩除去の違いを調べた。図-2に示すように、添加の有無によらず硝酸塩は亜硝酸塩、窒素ガスへ着実に還元され、液中から除去された。アンモニア性窒素を全く添加しない場合、亜硝酸塩の最終的な除去がわずかに遅れ

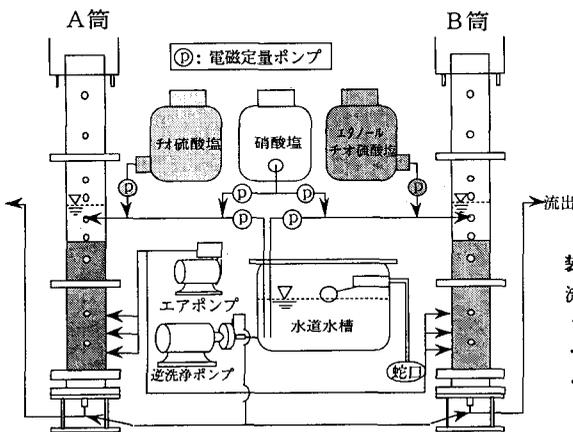


表-1 模擬水道原水の水質

	装置A	装置B
KNO <sub>3</sub>	20mgN/l	
Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>3</sub> · 5H <sub>2</sub> O	424mg/l	310mg/l
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH	0	4.3mgTOC/l
NaHCO <sub>3</sub>	120mg/l	64mg/l
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	2.2mgP/l	

装置諸データ

- 流下方式 下降流
- ・全高 2116mm
- ・筒直径 100mm
- ・アンスラサイト高 800mm
- ・サンプリング口間隔  
0、120、400、660、800mm（濾床下部から）
- ・ろ過速度 4m/d
- ・流入水温度 20℃

図-1 ろ過処理実験装置と運転条件

ている傾向も伺えるため、前回の結果と同様にアンモニア性窒素の供給が除去速度を促進することも考えられるが、その差は少ないとも言える。少なくとも菌体を高濃度条件に維持できれば、菌体の自己酸化などにより窒素源が供給されることも予想され、外部からのアンモニア性窒素の添加は重要でなくなる可能性も考えられる。

### 3. 2 逆洗後の生物ろ過処理特性

チオ硫酸塩のみ添加の単独系(A筒)とエタノールも少量添加している共存系(B筒)における流下方向での水質分布変化を図-3にそれぞれ示した。逆洗の後、徐々に硝酸塩の減少量が増し、一方で亜硝酸塩の蓄積が両系とも見られている。この減少と蓄積傾向は単独系の方が顕著である。それは、硫黄脱窒にもない生成される硫酸塩濃度の増加傾向からも伺える。亜硝酸塩の蓄積を抑制するために、少量のエタノールの添加を検討したものの、流入原水自体に入れたことにより硝酸塩から亜硝酸塩の還元を利用され、効率的な窒素除去を行うために共存系がうまく機能しなかったものと思われる。また、有機物添加により従属栄養菌の増殖が生物ろ過層の上部に見られ、ろ過抵抗が約2ヶ月近く増加しなかった単独系に比べ、共存系では短期間の運転で著しく増加することも明らかとなった(図-4参照)。

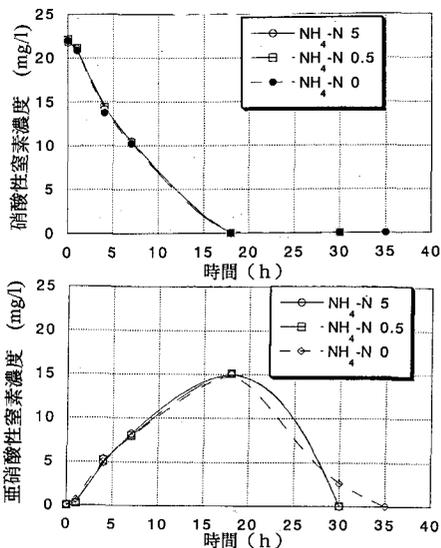


図-2 アンモニア性窒素添加の窒素除去への影響

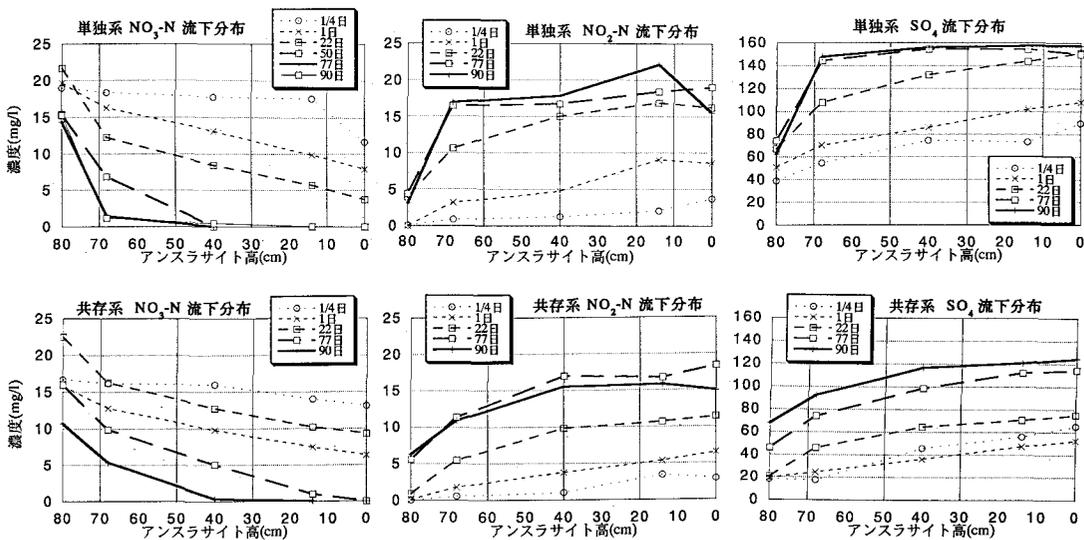


図-3 流下方向水質分布の経日変化(A筒:単独系、B筒:共存系)

### 4. まとめ

長期集積培養した硫黄脱窒菌を遠心分離し、高濃度菌体条件下で回分脱窒活性試験を行ったところ、アンモニア性窒素の添加の有無によらず、硝酸塩から窒素ガスまでの完全な窒素除去が可能であった。しかしながら、アンモニア性窒素を原水に添加しない条件で行った連続流生物ろ過プロセスでは、チオ硫酸塩が十分量あるにも関わらず、亜硝酸塩の蓄積が見られた。また、亜硝酸塩蓄積を抑制する目的で原水中にエタノールを添加した系を試みたものの、有効に機能しないことに加えてろ過抵抗の増大を引き起こす結果となった。

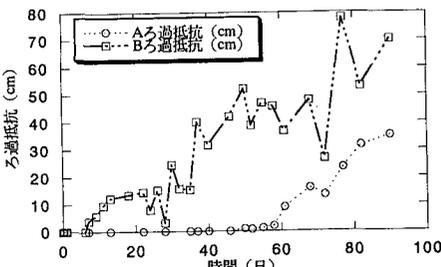


図-4 ろ過抵抗の経日変化

<参考文献> 1) 尾林、古米(1993): 硫黄脱窒菌を利用した水道原水からの硝酸塩除去、土木学会第48回年講 II-564