

## VII-30 Bio-electroreactorによる硝酸態窒素除去に及ぼす電流の影響

前橋市立工業短大 正会員 趙 哲石 正会員 尾崎 益雄  
群馬大学工学部 正会員 黒田 正和

### 1. はじめに

固定化微生物電極による硝酸態窒素除去において、脱窒菌は電極から発生する水素ガスを水素供与体として脱窒反応を行う<sup>1)</sup>。固定化微生物電極による脱窒反応において、高い脱窒率を得るためには、生物膜に十分な水素ガスの提供が必要であるほか、処理費用の節約、処理操作の安全性から水素ガス提供量に対する適切な制御が必要である。

また、固定化微生物電極による脱窒反応過程は生物反応であり、脱窒菌が脱窒機能を正常に發揮できる電流範囲を検討する必要もある。本研究は、固定化微生物電極による硝酸態窒素除去に及ぼす電流の影響を検討した。脱窒菌を固定した固定化微生物電極を用いて、硝酸態窒素除去実験を行い、 $\text{NO}_3^-$ 除去速度、 $\text{NO}_2^-$ 生成速度及び脱窒菌による水素利用率を検討することにより、最適な電流範囲を検討した。

### 2. 実験装置及び方法

図1は本研究に用いた実験装置の概略を示す。反応槽には横10cm、高さ19cmの炭素材電極が、陰極2枚、陽極3枚ずつ設置されており、有効陰極面積は480cm<sup>2</sup>であった。A市下水処理場から採取した一定量の下水汚泥を用いて、陰極表面に脱窒菌を接種した後、下水処理場処理水と硝酸ナトリウム混合液を反応槽に連続投入しながら、通電して電極表面に脱窒菌を固定した。安定した脱窒効果を確認した後、下水処理場処理水に硝酸ナトリウムを添加したものを原水として、電流を0mA～200mAの範囲で変化させ実験を行い、 $\text{NO}_3^-$ 濃度、 $\text{NO}_2^-$ 濃度、BOD濃度、ORP及びpHを測定した。また、実験は反応槽を恒温槽に浸漬して一定の温度に保持して行った。

### 3. 実験結果及び考察

図2は温度30°C、HRT10.9hr、 $\text{BOD} 10 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ ～ $15 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ のもとで、電流量を0mA～200mAの範囲で変化させ、電流量が $\text{NO}_3^-$ 除去及び $\text{NO}_2^-$ 生成に及ぼす影響を検討した実験結果を示している。

BOD濃度は主に下水処理場処理

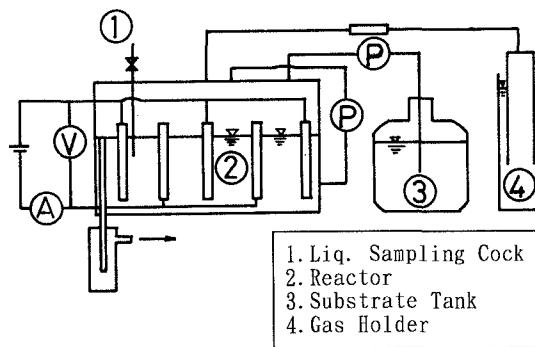
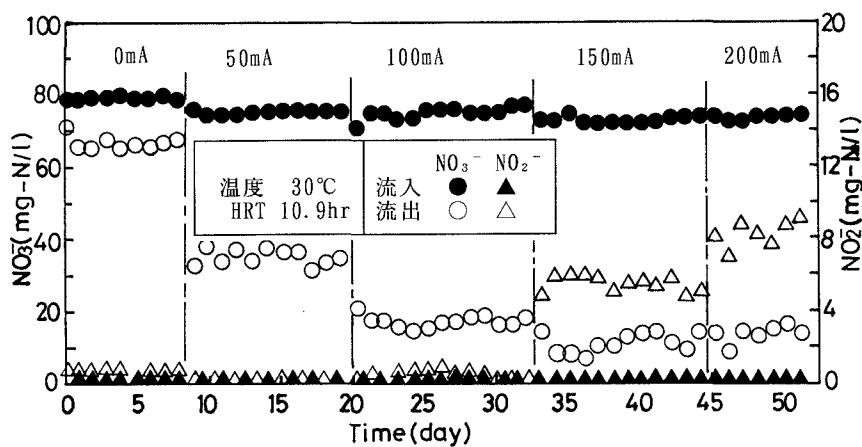


図1 実験装置

図2  $\text{NO}_3^-$ 除去に及ぼす電流の影響

水中の残留有機物である。電流0mAの時、 $\text{NO}_3^-$ 除去速度は約 $1.38\text{mg-N} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{hr}^{-1}$ で、脱窒率は約19%であった。また、 $\text{NO}_2^-$ 生成は小さく、濃度は $1.0\text{mg-N l}^{-1}$ 以下であった。 $\text{NO}_3^-$ 除去速度が小さいことは、下水処理場の処理水中の残留有機物を水素供与体とする場合、高い脱窒率を得ることが困難であることを示す。電流50mA、100mA、150mAにおける $\text{NO}_3^-$ 除去速度はそれぞれ $2.11\text{mg-N} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{hr}^{-1}$ 、 $3.85\text{mg-N} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{hr}^{-1}$ 、 $4.13\text{mg-N} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{hr}^{-1}$ で、電流量の増加と共に増加したが、電流200mAにおける $\text{NO}_3^-$ 除去速度は $4.12\text{mg-N} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{hr}^{-1}$ で、電流の150mA時とほぼ同じであった。このことは、電流量が $\text{NO}_3^-$ 除去速度に影響を及ぼし、 $\text{NO}_3^-$ 除去速度が最大値を表す電流範囲が存在することを示す。電流50mA～100mA範囲において、 $\text{NO}_3^-$ からの $\text{NO}_2^-$ 生成濃度は $1.0\text{mg-N l}^{-1}$ 以下であり、電極に通電による $\text{NO}_2^-$ 生成濃度の上昇は確認されなかった。しかしながら、電流150mA、200mAにおいて、 $\text{NO}_2^-$ はそれぞれ約 $5.8\text{mg-N l}^{-1}$ 、 $8.4\text{mg-N l}^{-1}$ 生成されており、電流が高い領域において $\text{NO}_2^-$ が生成されやすいことを示す。Faraday則に従う電流

50mA、100mA、150mAにおいて、電極単位面積当たりの水素発生速度はそれぞれ $4.88\text{ml} \cdot \text{hr}^{-1} \cdot \text{dm}^{-2}$ 、 $9.66\text{ml} \cdot \text{hr}^{-1} \cdot \text{dm}^{-2}$ 、 $14.49\text{ml} \cdot \text{hr}^{-1} \cdot \text{dm}^{-2}$ である。これらに対して、脱窒菌が電極から発生する水素ガスを水素供与体として除去した $\text{NO}_3^-$ から求めた水素利用速度はそれぞれ $5.7\text{ml} \cdot \text{hr}^{-1} \cdot \text{dm}^{-2}$ 、 $9.26\text{ml} \cdot \text{hr}^{-1} \cdot \text{dm}^{-2}$ 、 $9.93\text{ml} \cdot \text{hr}^{-1} \cdot \text{dm}^{-2}$ であった。これらの結果は、脱窒菌による水素利用率が、電流50mA～100mAの場合はほぼ100%であるが、電流150mAの場合は約69%であることを示す。

上述の結果は、固定化微生物電極を用いて $\text{NO}_3^-$ を除去する時、最適な電流は $\text{NO}_3^-$ 除去速度、 $\text{NO}_2^-$ 生成速度、脱窒菌による水素利用率等から検討することが必要なことを示し、本実験条件のもとでは約 $20.80\text{mA} \cdot \text{dm}^{-2}$ であることを示す。

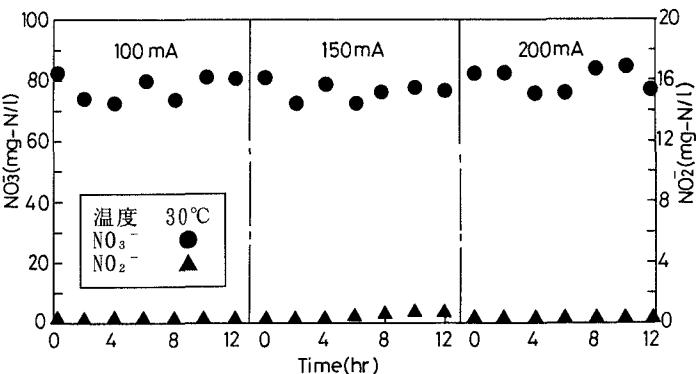
中村ら<sup>2)</sup>は、 $\text{NO}_3^-$ 溶液を電気分解する時、 $\text{NO}_3^-$ が $\text{N}_2$ へ還元される同時に、電流によって、その一部が $\text{NO}_2^-$ へ転化されると指摘している。図3は硝酸ナトリウムで $\text{NO}_3^-$ 濃度を約 $75\text{mg-N hr}^{-1}$ に調整して、電流を100mA、150mA、200mAの順に変化させ、電流による $\text{NO}_3^-$ 還元実験を行った結果である。図に示したように、この電流範囲で $\text{NO}_3^-$ はほとんど還元されず、 $\text{NO}_2^-$ も生成されなかった。この結果は、図2の電流150mA、200mAにおいて、 $\text{NO}_2^-$ が生成しやすいことは、主に電流が微生物に影響を及ぼし、脱窒菌による $\text{NO}_3^-$ 除去反応が影響された結果であると思われる。

#### 4. 結論

固定化微生物電極を用いて、 $\text{NO}_3^-$ 除去に及ぼす電流の影響について検討した。電流は $\text{NO}_3^-$ 除去及び $\text{NO}_2^-$ 生成速度に共に影響を及ぼすが、 $\text{NO}_3^-$ 除去速度が最大値を表す領域と $\text{NO}_2^-$ が生成しやすい領域が存在する。最適な電流密度は $\text{NO}_3^-$ 除去速度、 $\text{NO}_2^-$ 生成速度及び脱窒菌による水素利用率から検討する必要があり、本実験条件において、約 $20.80\text{mA} \cdot \text{dm}^{-2}$ であった。

#### 参考文献

1. Sakakibara, Y. and Kuroda, M. (1993) Electric prompting and control of denitrification, Biotechnology and bioengineering, Vol. 42, pp. 535～537
2. Nakamura, F., Ookawa, M. (1992) Electroreduction on nitrate nitrogen, Japan society on water environment, pp. 196～197

図3  $\text{NO}_3^-$ の電解還元