

群馬大学大学院 学生員 中山俊之、学生員 中島広樹
群馬大学工学部 正員 渡辺智秀、正員 黒田正和、正員 榎原 豊

1. はじめに

著者らは、硝酸性窒素汚染地下水の浄化法として、脱窒菌を陰極上に固定化した生物膜電極法について検討を行っている。本法は、通電のみにより生物膜内に水素ガスの供給を行うことができるという特長を有するが、これまで処理速度が十分に高くなかった。本研究は脱窒処理の高速化を目的とし、陽極に対して陰極を多重に配置した多重生物膜電極槽（Multi Biofilm Electrodes Reactor）による脱窒処理について実験的検討を行った。

2. 実験装置及び方法

図-1に本実験に用いた装置の概略を示す。処理槽は円筒形で、外側を陰極部（脱窒反応部）32.5L、中心側を陽極部 3.5Lとした。電極形状は円筒メッシュ状とし、陽極には不溶性金属電極を 2 枚、陰極にはチタン電極を 8 枚、同心円上に約 2cm の間隔で設置した。また、陰極には生物膜支持のためにウレタンマットを縫い付けた。陰極部と陽極部はスポンジで隔て、陽極から発生する酸素による脱窒反応への影響を抑えるようにした。供試地下水は図-2に示すように陰極部の円周方向に入流させ、陽極部を経て中心から流出させた。また、脱窒反応に伴う pH の上昇を抑制するため、装置前部で流入水中に CO₂ を注入した。通電は直流安定化電源を用いて行い、各陰極への通電量は定电流回路で調整した。

実験はまず、陰極への脱窒菌固定化のため、反応槽内で回分的培養を約 1 カ月間行い、槽内を洗浄後に連続処理実験を開始した。表-1 に実験条件を示す。サンプリングは流入水、槽内、流出水の各点で行い、硝酸性窒素濃度、亜硝酸性窒素濃度、pH、ORP、DO を測定した。

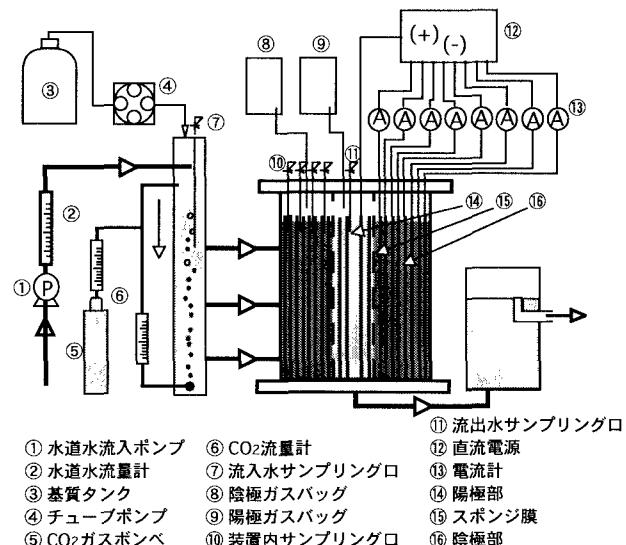


図-1 実験装置概略図

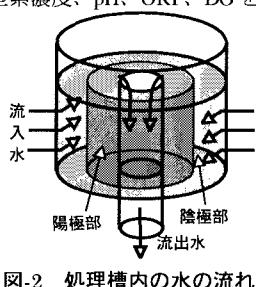


図-2 処理槽内の水の流れ

表-1 連続実験条件

| Run | 平均流入濃度 (mg-N/L) | HRT (hr) | current (mA) | flow (L/day) | CO ₂ (ml/min) | 各陰極の電流密度 (mA/cm ²) |
|-----|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|-----------------------------|-----------------------------------|
| 1 | 19.47 | 6 | 80 | 144 | 13 | 0.0015~0.0030 |
| 2 | 20.78 | 6 | 240 | 144 | 13 | 0.0044~0.0091 |
| 3 | 19.50 | 6 | 480 | 144 | 13 | 0.0087~0.0181 |
| 4 | 19.13 | 6 | 960 | 144 | 13 | 0.0122~0.0363 |
| 5 | 20.31 | 6 | 960 | 144 | 17 | 0.0122~0.0363 |
| 6 | 19.97 | 6 | 960 | 144 | 17 | 0.0236一定 |
| 7 | | 2 | 960 | 432 | 50 | 0.0236一定 |

3. 実験結果及び考察

1) 水素ガス生成

生物膜を付けていない陰極 10 枚、陽極 1 枚を多重に配置した矩形反応槽（液容積 3.7L）を作製し、通電時の水素

キーワード：生物膜電極、水素ガス、高速脱窒処理、多重生物膜電極システム、硝酸汚染地下水

連絡先：〒376-8515 群馬県桐生市天神町 1-5-1 Tel.0277-30-1631 Fax.0277-30-1601

ガス生成の様子を観察した。図-3は、様々な通電条件における電極間電圧を示したものである。電極間電圧はいずれの通電条件においても、各陰極と陽極間の距離が離れるにつれて僅かずつ上昇した。なお、通電時の電流、電圧は時間によらず、ほぼ一定であった。写真-2は、各通電条件の陰極近傍の様子を真横から写したものである。白く見える部分が電極に添って発生している水素ガスの微細な気泡であり、通電量の増加につれ気泡発生量も増加した。気泡の発生は、電極の上流側、下流側で起こった。

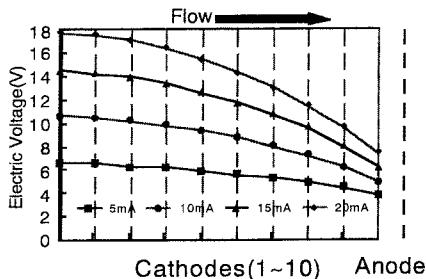


図-3 異なる電流値における電極間電圧

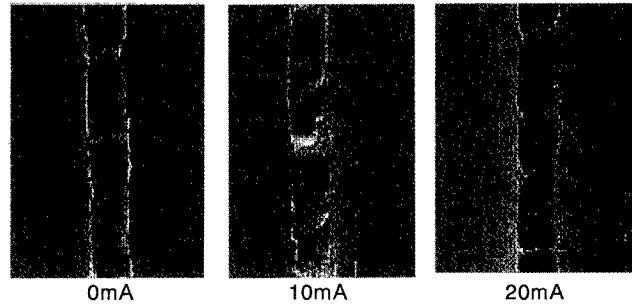


写真-2 通電時の電極近傍の様子

2) 脱窒処理実験

硝酸性窒素、亜硝酸性窒素濃度、pH、DO の経日変化を図-4に示す。実験開始直後の Run1 では電流値も低く、はっきりとした脱窒反応は見られなかつたが、電流値を 240mA とした Run2 では、条件変更直後から 100%に近い脱窒効率となった。Run2 の装置トラブル以降は若干不安定となつたが、Run3 では電流値の増大とともに脱窒効率も増加し、脱窒効率は高い値で安定した。化学量論的には流入硝酸性窒素のほぼ全量を処理できる 960mA とした Run4 以降では、脱窒効率は 70~80%の範囲で推移した。CO₂の注入により槽内の pH 値は、ほぼ中性域に制御することができたが、通電量を増やした Run4 などでは上昇がみられた。この pH 上昇が、Run4 以降の脱窒効率の減少の一因とも考えられるため、CO₂の曝気量のコントロールが重要であるといえる。DO は、槽内では 2mg/L を下まわる値で安定し、流出水では陽極からの酸素供給により飽和、あるいはそれ以上の値であった。図-5は、各条件における陽極と各陰極の電極間電圧、硝酸性窒素濃度、DO の槽内分布を示したものである。硝酸性窒素濃度の変化から段階的に脱窒反応が進行していることがわかる。しかし、Run4 以降は電位勾配の影響により硝酸イオンが陽極に泳動し、陰極部の一部の濃度が低くなつた。

4.まとめ

電極を多重に配置した多重生物膜電極槽は、処理時間 2~6 時間で安定した脱窒処理が可能であった。また、適切な電流密度、電極間隔の設定などにより、さらに高速化が可能であると考えられる。

[謝辞] 本研究は、文部省科学研究費（基盤研究(B)(2)07555461）の補助を受けて行った。記して謝意を表します。

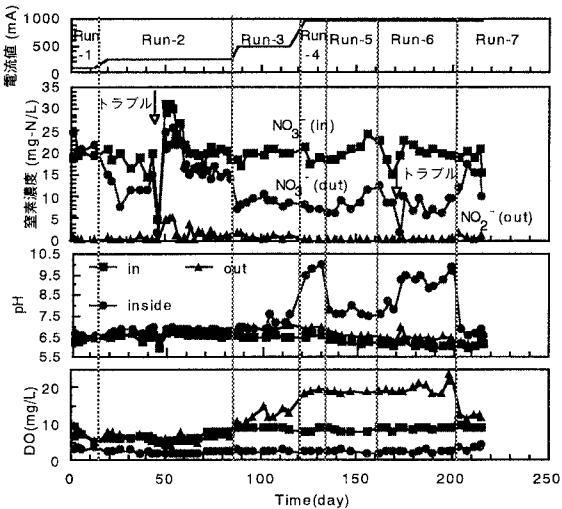
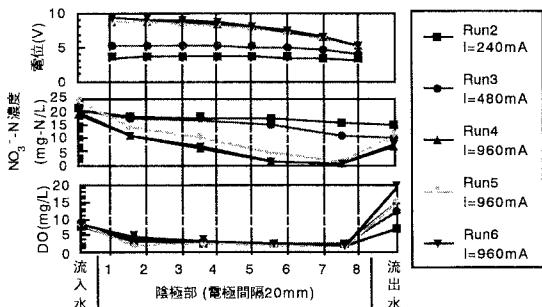


図-4 窒素濃度、pH、DO の経日変化

図-5 電極間電圧、NO₃⁻、DO 槽内分布