

Ⅶ-127

粒状層硫黄脱窒による硝酸塩除去能に及ぼすろ過速度の影響

茨城大学工学部 ○西川 智世子
 東京大学大学院 古米 弘明
 茨城大学工学部 神子 直之

1. 研究背景と目的

地下水は良質で水量が安定した重要な水道水源であり、飲用水としても利用されている。しかし、近年、硝酸性窒素（ $\text{NO}_3\text{-N}$ ）及び亜硝酸性窒素（ $\text{NO}_2\text{-N}$ ）濃度の水道水質基準である10mg/lを越える地下水源が増加していることが報告されている。本研究では、有機物を用いない独立栄養性の硫黄脱窒細菌を利用した粒状層濾過プロセスによる、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 除去について検討を行った。比較的 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の高い実地下水を用い濾過速度を段階的に増大させ、どの程度まで良好な脱窒ができるのか、その除去特性について実験的に検討を行った。

2. 実験方法

実験場所はA市配水場内実験棟である。運転期間（97年7月29日～11月22日）における原水の平均水質を表1に示す。地下水温は約17℃と一定であったが、実験棟内の室温の影響を受け、ろ層内の水温は15℃～22℃の範囲であった。実験装置の概略を図1に示す。濾過筒は、全長約1.5m、内径10cm、透明アクリル樹脂製であり、濾材として粒径2～3mm、均等係数1.4のアンスラサイトを濾層厚さ800mmになるように充填し、原水をポンプで濾層上部より流入させた。運転開始時には、実験室にてチオ硫酸塩で培養した1.25gの集積培養硫黄脱窒菌をろ層に植種した。表2に添加基質を示す。チオ硫酸塩添加にともなう $\text{S}_2\text{O}_3\text{-S}$ の添加濃度が増加しているが、すべての期間で原水 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を除去するのに十分量添加している。7/28から運転を開始し、当初の約1ヶ月の間はチオ硫酸塩やアルカリ剤の添加条件を変化させたが、良好な処理水質が得られなかった。8/30以降、リン酸塩0.1mg/lの添加により処理が安定したため、ろ過速度を表2に示すように4m/dayから10、25m/dayと段階的に増加させて、ろ過速度の影響を検討した。

この運転期間で、流下方向の水質分布や処理水質の経時変化について調べた。なお、ろ層の閉塞によりろ過抵抗が5cm以上になった場合には、空洗および菌体引き抜き作業を行うことによって運転を維持した。

3. 実験結果及び考察

3-1. 処理水質の経時変化と濾過抵抗

図2には、流入水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度と流出水の $\text{NO}_3\text{-N}$ ・ $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の経時変化を示した。8/33（33日目）以降は、基質ポンプにトラブルがあった44日目以外は完全な除去が達成された。その後、処理が安定し完全な脱窒が2週間程度達成された段階で、ろ過速度を10m/dayに変更しても、安定した処理が継続された。しかし、図3に示したように、運転期間が進むにつれてろ過抵抗も次第に上昇した。ろ過速度を25m/dayに増加した場合でも、除去性能に変化はなかったものの、1週間に1回程度空洗および菌体引き抜き作業を行うこととなった。

3-2. ろ過筒内での窒素濃度分布

図4には、10m/dayと25m/dayの条件における流下方向分布（81日目と117日目）を示した。ろ過速度10m/dayでは、ろ過筒上部（ポート1,2の部分）で脱窒反応が行われており、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の蓄積もみられなかった。ろ過速度4m/dayにおいても、同様な流下方向分布を示していた。しかし、ろ過速度25m/dayでの運転期間後半の117日目では、流下方向分布に変化がみられ、流出水中に若干の $\text{NO}_2\text{-N}$ （0.1mg/l程度）が検出されていた。これは、過剰な菌体引き抜き、あるいは活発な脱窒にともなう窒素ガスのろ層内蓄積によるチャネリングの影響があったものと推察された。

図5には、ポート2、3（ろ層高さ68cm、38cm）における脱窒率の経時変化を示した。ここでいう脱窒率とは $\text{NO}_3\text{-N}$ ・

表1 原水水質

運転期間	7/29～11/22
水温（℃）	17.7±1.4
pH	6.18±0.1
アルカリ度（mg/l）	38.3
$\text{NO}_3\text{-N}$ （mg/l）	8.4
$\text{NO}_2\text{-N}$ （mg/l）	検出限界以下

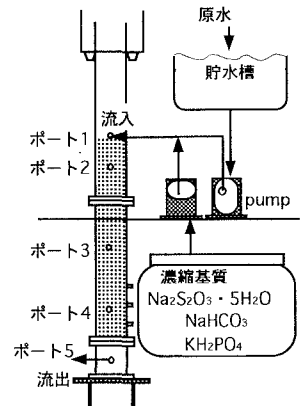


図1 連続実験装置

表2 添加基質

濾過速度(m/day)	4	10	25
運転期間	8/30～9/28	9/28～10/26	10/26～11/22
$\text{S}_2\text{O}_3\text{-S}$ （mg/l）	109±32	96±16	63±20
NaHCO_3 （mg/l）	900	700	
$\text{PO}_4\text{-P}$ （mg/l）		0.1	

キーワード

：地下水、硝酸性窒素、硫黄脱窒、粒状層濾過、濾過速度

連絡先（住所、電話、FAX）：〒316-8511 日立市中成沢町4丁目12-1 茨城大学工学部都市システム工学科

TEL 0294-38-5170 FAX 0294-35-8146

NO₂-Nをあわせた窒素除去率である。濾過速度が4、10m/dayの場合にはポート2で脱窒率が60%程度あり、速やかな処理が行われていた。しかし、濾過速度が25m/dayの場合にはポート2での脱窒率が低下し、ポート3で完全な除去が行われなくなっていた。

3-3 硫黄の蓄積と処理効率

流出水中のS₂O₃-SとSO₄-Sの濃度の和が、流入水中のそれより低いことが測定結果から明らかとなった。硫黄脱窒細菌は、細胞内に硫黄粒を蓄積することが知られており、この濃度差を系内への見かけの蓄積硫黄として評価した。図6に、流出S₂O₃-SとSO₄-S濃度と合わせて、この蓄積硫黄量の経日変化も示した。流出水SO₄-S濃度は運転期間中ほぼ一定であり、流入NO₃-Nに見合って硫黄脱窒が進行していることが確認できた。そこで、流出水から流入水SO₄-S濃度を差し引きして、生成されたSO₄-S濃度を求め、流入NO₃-Nに対する比を計算したところ、約4.8程度であり菌体合成も考慮した硫黄脱窒の化学量論式¹⁾の値(S/N=3.86)より大きく、過剰にS₂O₃-SがSO₄-Sへと酸化されていることが推察された。一方、蓄積硫黄量にはばらつきがあるものの、経過日数80日目付近から目立って増大している。この蓄積は、流入NO₃-Nに対して過剰なS₂O₃-Sを添加していたために起こったものと思われる。上記の過剰なSO₄-S生成とも関係していると考えられる。この硫黄蓄積増大傾向は、図3における濾過抵抗の上昇傾向と一致しており、硫黄脱窒細菌の通常の増殖とともに、硫黄蓄積により、ろ層内の閉塞が進み濾過抵抗が上昇しやすくなったものと考えられる。25m/dayに変更した後にはS₂O₃-Sの流入濃度を低下させたものの、S₂O₃-S添加量は硫黄脱窒反応には十分量存在していたため、硫黄の蓄積量には変化がなく、継続して濾過抵抗の大きな上昇をもたらしたものと考えられた。

3. まとめ

- ・非常に低いリン濃度の実地下水に対して硫黄脱窒を適用する場合、亜硝酸塩の蓄積抑制や脱窒能の安定性にリン添加は非常に重要であると考えられた。
- ・ろ過速度25m/dayでも、週1回の空洗・菌体引き抜き作業等を行うことで、実地下水から硫黄脱窒により硝酸性窒素（約8mg/l）を完全に除去することが可能であった。しかしながら、菌体の引き抜き方法や活発な窒素ガス発生に伴う層内チャネリングにも注意が必要である。
- ・チオ硫酸塩を過剰添加したことにより菌体内部への硫黄蓄積が増大し、その影響を受けて濾過抵抗が上昇したと考えられた。したがって、添加チオ硫酸塩と菌体への硫黄蓄積と濾過抵抗上昇の関係、さらにはろ過閉塞の予測についてさらに検討する必要がある。また、残留チオ硫酸塩自体も水道水としては非常に問題であるため、適切な添加濃度の設定方法について検討が必要がある。

謝辞 本実験は、(社)日本水道協会「硝酸性窒素除去装置の実用化に関する研究会」の活動のなかで実施したものである。実験実施に際し、ご協力をいただいた関係者に感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 古米弘明ら（1996）：硫黄脱窒作用を利用した生物ろ過による硝酸性窒素の除去、水環境学会誌、Vol.19, No.9, p715-723

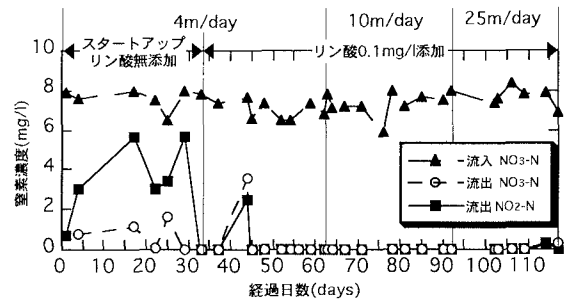


図2 処理水質の経時変化

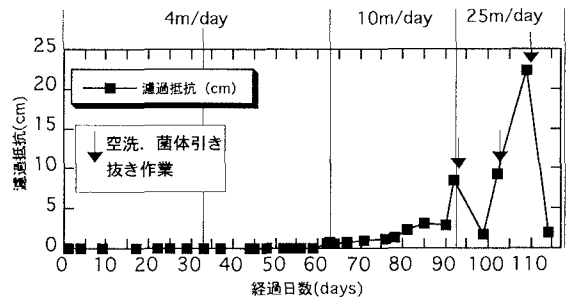


図3 濾過抵抗の経時変化

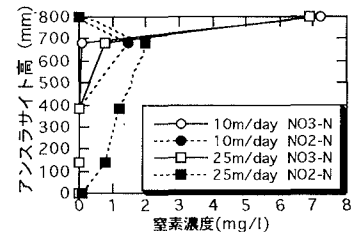


図4 流下方向水質分布

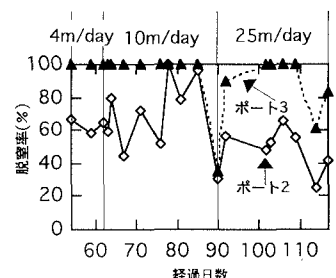


図5 脱窒率の経時変化

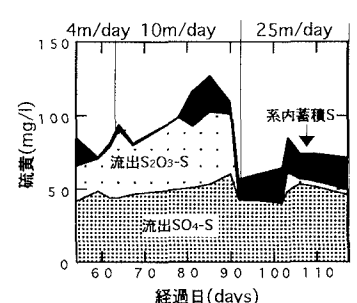


図6 硫黄化合物の経時変化