地下水透過型浄化壁を用いた水素ガス利用原位置脱窒処理における 長期安定性に関する研究

早稲田大学大学院理工学研究科 学生会員 〇鈴木 康祐 早稲田大学理工学術院 正会員 榊原 豊

1. はじめに

窒素肥料の施肥や家畜排泄物の土壌還元などにより、地下水中の硝酸性窒素濃度は年々上昇傾向にある。このような汚染地下水の浄化技術として、生物学的原位置脱窒法が提案されている ^{1),2)}。脱窒処理には独立栄養菌あるいは従属栄養菌を利用する 2 種類があり、従属栄養菌による脱窒処理は比較的に高速処理が可能であるが、有機物の添加による二次汚染や微生物の過剰増殖による土壌閉塞が指摘されている ²⁾。一方、独立栄養菌を用いた脱窒処理は、微生物増殖速度が小さく閉塞問題は比較的起こりにくいと考えられる。

本研究は水素ガス利用による原位置脱窒処理実験を行い、処理水質及び脱窒性能の長期安定性について検討した。また、数理モデルを構築し、実験結果と比較した。

2. 実験装置及び実験方法

帯水層に水素を供給し、原位置脱窒実験を約3年間行った。図1に実験装置の概略を示す。帯水層は標準砂を充填して作製し、また帯水層流入端から5-25[cm]部分に平均粒径1[mm]の川砂を充填して透過壁を構築した。実験は硝酸性窒素濃度を約25[mg-N/l]、栄養塩類として0.1[mg-P/l]に調整した人工地下水をHRT=14[day]で供給した。また、水素ガスは200[ml/d]で透過壁下部より直接注入し、流入、流出端での硝酸性及び亜硝酸性窒素濃度、DO濃度、pH及び水温を測定した。

3. 結果·考察

1) 長期実験結果

図2に約3年間連続運転した場合の結果を示した。図より、透過壁によって硝酸性窒素が長期間除去され、亜硝酸性窒素の蓄積は見られなかった。しかしながら、処理水の硝酸性窒素濃度には約50-300日程度の周期的変動が見られた。この原因については不明であるが、透過壁内に部分的な閉塞が生じ水素/地下水間の気液接触効率の低下あるいは偏流が生じたことによると思われる。

2) 数理モデルの構築

透過壁内では脱窒菌と水素利用菌により、以下に示すように主に 2 つの反応が起こると考えられる。また式(1)、(2)より水素、硝酸、酸素、微生物についての物質収支式をもとに、以下に示すように数理モデルを構築した。

$$2NO_3^- + 5H_2 \rightarrow N_2 + 4H_2O + 2OH^-$$
 (1) $2H_2 + O_2 \rightarrow 2H_2O$ (2)

[水素]

$$V\frac{d[H_2]}{dt} = Q([H_2]_{in} - [H_2]) + K_{La} \cdot V \cdot (H_2 * - [H_2])$$

$$-V \cdot E_{f} \left\{ \frac{[X]}{Y} \left(\frac{\mu_{\max}[O_{2}]}{K_{O_{2}} + [O_{2}]} \cdot \frac{[H_{2}]}{K_{H_{2}} + [H_{2}]} + \frac{\mu_{\max}[NO_{3} - N]}{K_{NO_{3}} + [NO_{3} - N]} \cdot \frac{[H_{2}]}{K_{H_{2}} + [H_{2}]} \cdot \frac{K_{O_{2}}}{K_{O_{2}} + [O_{2}]} \right) \right\}$$
(3)

[硝酸性窒素]
$$V\frac{d[NO_3-N]}{dt} = Q([NO_3-N]_{in}-[NO_3-N])$$

$$-V \cdot E_f \left\{ \frac{2}{5} \cdot \frac{\begin{bmatrix} X \end{bmatrix}}{Y} \cdot \frac{\mu_{\text{max}} \begin{bmatrix} NO \ 3-N \end{bmatrix}}{K_{NO \ 3} + \begin{bmatrix} NO \ 3-N \end{bmatrix}} \cdot \frac{\begin{bmatrix} H \ 2 \end{bmatrix}}{K_{H \ 2} + \begin{bmatrix} H \ 2 \end{bmatrix}} \cdot \frac{K_{O \ 2}}{K_{O \ 2} + \begin{bmatrix} O \ 2 \end{bmatrix}} \right\}$$
(4)

キーワード:硝酸性窒素、水素、脱窒、透過壁、土壌閉塞、有効係数

連絡先: 〒169-8555 新宿区大久保 3-4-1 早稲田大学理工学部社会環境工学科 TEL/FAX: 03-5286-3902

[酸素]
$$V\frac{d[O_2]}{dt} = Q([O_2]_{in} - [O_2]) - V \cdot E_f \left\{ \frac{1}{2} \cdot \frac{[X]}{Y} \cdot \frac{\mu_{\max}[O_2]}{K_{O_2} + [O_2]} \cdot \frac{[H_2]}{K_{H_2} + [H_2]} \right\}$$
 (5)

[微生物]
$$V\frac{d[X]}{dt} = \left\{ E_{f}\left(\frac{\mu_{\text{max}}[O_{2}]}{K_{O_{2}} + [O_{2}]} \cdot \frac{[H_{2}]}{K_{H_{2}} + [H_{2}]} + \frac{\mu_{\text{max}}[NO_{3} - N]}{K_{NO_{3}} + [NO_{3} - N]} \cdot \frac{[H_{2}]}{K_{H_{2}} + [H_{2}]} \cdot \frac{K_{O_{2}}}{K_{O_{2}} + [O_{2}]}\right) - b \right\} [X] \cdot V$$
 (6)

式(4)-(7)において、 E_f は有効係数とした。本研究では $E_f = E_0(1 - \frac{\sigma_c}{\epsilon_c})$ と仮定し、 E_0 は不均一係数、 ϵ_c は初期透過壁空隙率、 σ_C は壁内の微生物が占有する体積比とした。また、表 1 に示すパラメータを用いて計算を行った 1 。

3)実験結果と数理モデルの比較

図3に硝酸性窒素濃度の実験結果と計算結果を示す。有効係数については E₀=0.15 と仮定した場合に、計算結果と実験結果の平均値がほぼ一致する結果を得た。以上から、透過壁内空隙率の変化、反応の不均一性を考慮することによって処理性能をほぼ評価できることがわかった。

4. おわりに

3025

5 0

0

水素ガスを用いた脱室透過壁によって硝酸性窒素を長期間除去できたが、処理水質は周期的に変動する傾向が見られた。また、数理モデルの有効係数を E_0 =0.1-0.2 とすると、解析結果がほぼ一致した。今後は反応の不均一性にともなう偏流、微生物増殖、分散、拡散も含め、処理性能の変動について、さらに詳細に解析する予定である。

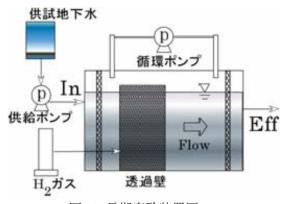
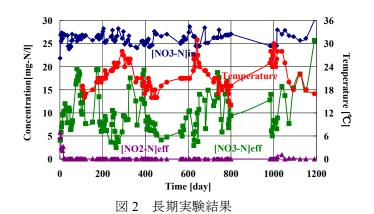


図1 長期実験装置図

Calculated [E₀=0.15]

200



erimental
800 1000

表1 数理モデルに用いたパラメータ

$\mu_{max} \left[d^{-1} \right]$	Y [-]	K _{NO3} [mol/l]
0.15	0.046	2.5×10-5
K _{H2} [mol/l]	K _{O2} [mol/l]	H ₂ * [mol/l]
8.0×10-4	9.4×10-6	8.0×10-4
V [l]	b [d ⁻¹]	[O2] _{in} [mol/l]
2.3-3.1	0.0046	2.7×10-4
[NO ₃ -N] _{in} [mol/l]	KLa [d-1]	$\mathbf{E_0}$ [-]
1.8×10-3	0.21-1.5	0.1-0.2

図3 硝酸性窒素濃度の実験結果と計算結果の比較

Time [day]

600

「参考文献」 1)土居、榊原:環境工学論文集、 第41巻、pp.119-126 (2004)

2)M. A. Gomez et al.: Journal of Hazardous Materials, B80, pp.69-80 (2000)