

ラウリン酸を水素供与体に用いた土壌カラムによる脱窒素処理 における機能低下とその対策

信州大学 学生会員 ○ 後藤 駿介
愛 知 県 河合 佑起
信州大学 正会員 松本 明人
環境生態工学研究所 鈴木 富雄

1. はじめに

地下水の硝酸性窒素汚染の一因として長野県では別荘地等で行われている浄化槽放流水の土壌浸透がある。当研究室では地下水汚染対策として浄化槽放流水からの窒素除去、そして汚染地下水の直接浄化を目的に固形性高級脂肪酸であるラウリン酸（以下、LA と略記）を脱窒素反応の水素供与体を用いた土壌カラムによる水処理システムを提案している。これまでの検討で、カラム前段に LA・鹿沼土混合層（混合比 1 : 9）を設け脱窒素反応と LA 供給を促進させる一方、後段に鹿沼土のみを充填し、混合層内の脱窒素反応で残存した LA イオンを脱窒素反応により除去する処理システムを用いたところ、2 ヶ月以上にわたり維持管理なしで、全窒素（以下、T-N と略記）除去率 95%、残存全有機炭素（以下、TOC と略記）濃度 14mgC/L と良好な処理が可能であった。しかし、平成 23 年度（累積通水期間 140 日以降）には、脱窒素反応にともない発生した窒素ガスの土壌カラム内への蓄積に伴う有効反応容積減少により窒素除去性能が低下することが観察された。そして、平成 24 年度（累積通水期間 390 日以降）にはガス蓄積がないにもかかわらず、除去性能の低下が観察されている。そこで、今回の窒素除去性能の低下の原因を解明し、その対策について検討した。

2. 実験装置および方法

反応槽には直径 7cm、高さ 70cm のアクリル製円筒カラムを用いた。カラム下端より高さ 13.5cm、26cm、38.5cm、51cm 及び 63.5cm のところに土壌間隙水採水装置（以下、採水装置と略記）を付置（以下、それぞれ S1、S2、S3、S4 および S5 と略記）し、これら採水装置で区切られた区間を下からそれぞれ L1、L2、L3、L4、L5 とした。L1 には LA（市販試薬 特級）と鹿沼土（市販園芸用 粒径およそ 2~3mm）を 1:9 の割合で混合・充填し、L2~L5 には鹿沼土のみを充填した。L1 の空隙容積は 285mL であり、L2~L5 の各層の空隙容積は 264mL である。また反応槽底部よりマイクロチューブ・ポンプを用いて模擬汚水を上向流で供給し、処理水は反応槽頂部からオーバーフローさせた。この実験装置を低温インキュベータに設置し、20℃で実験をおこなった。実験に用いた模擬汚水には、窒素濃度 20mgN/L の硝酸カリウム溶液に硫酸イオンが 8.8mg/L になるよう硫酸を添加した混合液を用いた。そして L1 の空隙容積を基準に計算した滞留時間が 0.25 日になるよう、運転した。

実験では、窒素除去性能低下の原因を究明することを目的に、まず原因のひとつと考えられる水みち解消を目的に反応槽に木槌で振動を与えた。続いて LA の溶出を促進させるため、アルカリ分（水酸化カリウム）を模擬汚水に添加（基質中の濃度で 8.4~25.2mg/L）した。さらに水素供与体が十分存在する条件で運転を実施し水みちの影響を確認するため、投入する模擬汚水に水酸化カリウムに加え、易溶解性の LA カリウムを添加（6.3 および 12.6mg/L）し、運転をおこなった。そして最後に水みちの解消を目的に、カラムに水および窒素ガスを注入し、カラムの逆流洗浄をおこなった。

測定項目（カッコ内は測定方法）は pH（ガラス電極法）、ORP（白金電極法）、T-N（JIS 法による紫外線吸光度法）、NO₃-N および NO₂-N（イオンクロマトグラフ法）、TOC（燃焼酸化・赤外線式 TOC 分析法）であり、各採水装置からサンプリングした試料に対して計測した。

キーワード 生物学的脱窒素、水素供与体、固形性高級脂肪酸、ラウリン酸、T-N、TOC

連絡先 〒380-8553 長野県長野市若里 4-17-1 信州大学工学部土木工学科 TEL 026-269-5321

3. 実験結果

図1にS1、S2、S3における間隙水のT-N除去率の経日変化を、図2にS1、S2、S3における間隙水のTOC濃度の経日変化を示す。運転開始直後から大きく変動しているが、S3におけるT-N除去率は25%~65%と昨年度に比べ、大きく低下している。またS2よりS1のT-N除去率が高く、水みちによる短絡の存在が示唆された。そこで、運転開始後33日から反応槽に木槌で振動を与え、水みちの解消を試みた。しかし、S3でのT-N除去率はおおよそ30%~45%程度と改善効果はなかった。ただし、S1におけるTOCは3~8mgC/Lと増大しており、振動により微細化し溶解したLAが検出された可能性がある。つづいてLAの溶出を促進するため、運転開始後71日から水酸化カリウムの添加をおこなった。その結果、水酸化カリウム添加量にほぼ比例してS3でのT-N除去率は増大し、最大添加量であるKOH濃度25.2mg/Lのとき、おおよそ60%~75%まで除去率は改善された。以上のことから、LAが存在すれば脱窒素は進行し、脱窒素菌に問題はないことがわかる。そこで投入する模擬汚水に易溶性のLAカリウムを添加し、水素供与体が十分存在する条件で運転をおこない、水みちの影響を検証した。結果はS3でのT-N除去率がおおよそ50%~80%程度と、水酸化カリウム添加実験と同程度であった。一方、S1のTOC濃度は5~8mgC/Lと水酸化カリウム添加実験に比べ、上昇している。TOC濃度が増加したのも関わらず、T-N除去率が高くない原因として、水みちにより、実質的な滞留時間が減少し、LAの低分子化が不十分であるため、脱窒素細菌に利用されないことが示唆された。

そこで土壌カラム内へ処理水や蒸留水、そして窒素ガスを注入することでカラム内の土壌を逆流洗浄し、水みちを破壊することを試みた。投入する模擬汚水には水酸化カリウムやLAカリウムが含まれている。運転開始後161日にS1から水およびガスを注入し、鹿沼土層内の水みち破壊を試みた。続く運転開始後164日に基質を投入する反応槽底部から水・ガスを注入し、反応槽全体を逆流洗浄した。図3にS1、S2、S3における間隙水のT-N除去率の経日変化を、図4にS1、S2、S3における間隙水のTOC濃度の経日変化を示す。経過日数164日におけるS3のT-N除去率、TOCとも、逆流洗浄前の161日目の結果と変わらず、鹿沼土層のみの洗浄では、処理機能の回復が見られなかった。それに対して、反応槽底部が洗浄をおこなったあとの168日でのデータではS3における間隙水のT-N除去率は改善され、またTOCもS1、S2では増大し、処理の効率化が見込め、逆流洗浄の効果が見られた。ただしS2のT-N除去率がS1より低いなど、水みちの存在を示すデータも見られた。

4. おわりに

24年度の性能低下の原因は土壌中の水みちの形成であり、その対策としてカラムの逆流洗浄が有効である。

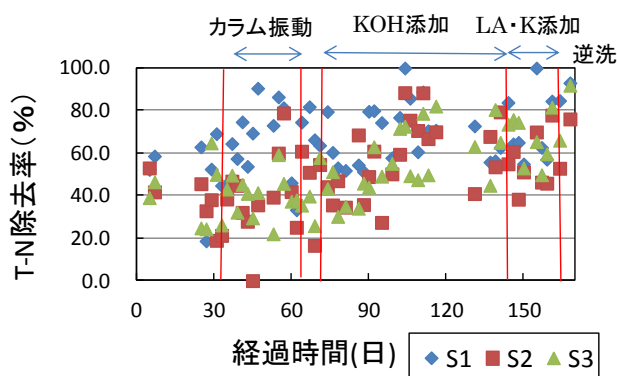


図1 T-N 除去率の経日変化 (S1、S2、S3)

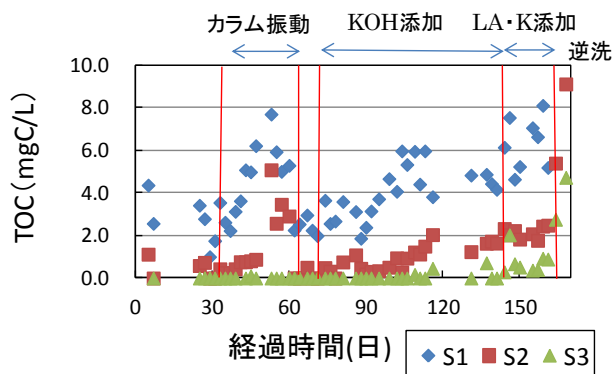


図2 TOC の経日変化 (S1、S2、S3)

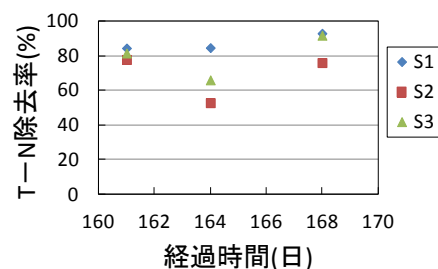


図3 T-N 除去率の経日変化 (S1、S2、S3)

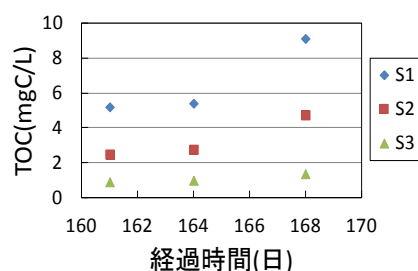


図4 TOC 濃度の経日変化 (S1、S2、S3)