

水素および酸素を注入する地下水の原位置独立栄養脱窒法の数学モデルに関する研究

早稲田大学院 学生会員 ○内藤 克貴
 (株)ヤマト 大和環境技術研究所 小森 正人
 早稲田大学理工学術院 正会員 榊原 豊

1. はじめに

現在、世界的な人口増加によって水需要が高まっている一方で、主要な飲料水源である地下水の硝酸性窒素汚染問題が顕在化している。

本研究は硝酸性窒素汚染地下水の浄化法として有効とされる原位置独立栄養脱窒法の処理能力を表す数学モデルの構築を目的とする。構築した数学モデルによる計算結果と、実験室規模の帯水層を用いて約 900 日間行った連続実験結果¹⁾を比較し、モデルの妥当性を検討した。

2. 実験装置および方法

実験装置の概略を図 1 に示す。反応槽は寸法 25mm × 2000mm × 800mm、容量 40L の水槽である。内部にはガラスビーズ(直径 2mm)を充填し、左端より 15(mg-N/L)の合成地下水を連続供給した。また帯水層下部の上流、下流にそれぞれ水素、酸素を注入している。実験は約 900 日間行い連続的にデータを収集した。

3. 数学モデル

帯水層内の移流拡散、水素及び酸素の溶解、脱窒反応、硝化反応等を考慮し、溶存水素濃度 C_{H_2} [mg/l]、溶存酸素濃度 C_{O_2} [mg/l]、硝酸性窒素濃度 C_{NO_3} [mg/l]、亜硝酸性窒素濃度 C_{NO_2} [mg/l]、脱窒菌量 X [mg/l]、硝化菌量 X_n [mg/l] を表す以下の物質収支式を立てた。

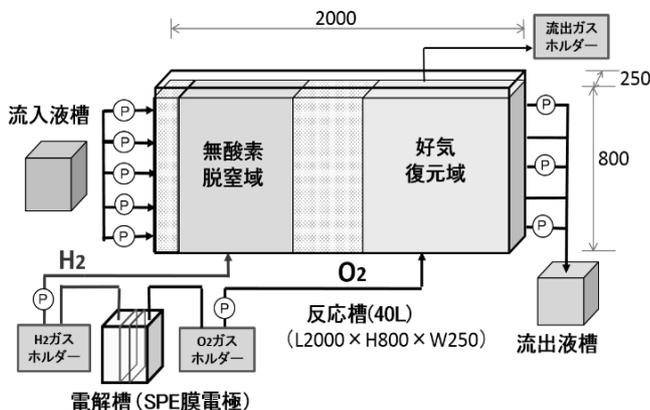


図 1 実験装置概略

【溶存水素】

$$\frac{\partial C_{H_2}}{\partial t} + v \frac{\partial C_{H_2}}{\partial x} = D \frac{\partial^2 C_{H_2}}{\partial x^2} + K_{LaH_2}(C_{H_2sat} - C_{H_2}) - \frac{D_{H_2}}{D_{O_2}} \cdot K_{LaO_2} \cdot C_{H_2} - r_{H_2} \quad (1)$$

$$r_{H_2} = Y_{H_2NO_3} \cdot r_{NO_3} + Y_{H_2NO_2} \cdot r_{NO_2} + Y_{H_2O_2} \cdot r_{O_2} \quad (2)$$

【溶存酸素】

$$\frac{\partial C_{O_2}}{\partial t} + v \frac{\partial C_{O_2}}{\partial x} = D \frac{\partial^2 C_{O_2}}{\partial x^2} + K_{LaO_2}(C_{O_2sat} - C_{O_2}) - \frac{D_{O_2}}{D_{H_2}} \cdot K_{LaH_2} \cdot C_{O_2} - r_{O_2} \quad (3)$$

$$r_{O_2} = (r_{mT,O_2} \cdot \frac{C_{O_2}}{K_{O_2} + C_{O_2}} \cdot \frac{K_{H_2}}{K_{H_2} + C_{H_2}}) \cdot X \quad (4)$$

【硝酸性窒素】

$$\frac{\partial C_{NO_3}}{\partial t} + v \frac{\partial C_{NO_3}}{\partial x} = D \frac{\partial^2 C_{NO_3}}{\partial x^2} - r_{NO_3} + \frac{r_{nNO_2}}{\alpha} \quad (5)$$

$$r_{NO_3} = (r_{mT,NO_3} \cdot f(pH)_{NO_3} \cdot \frac{C_{NO_3}}{K_{NO_3}(1 + C_{O_2}/K_{O_2}) + C_{NO_3}} \cdot \frac{C_{H_2}}{K_{H_2} + C_{H_2}}) \cdot X \quad (6)$$

【亜硝酸性窒素】

$$\frac{\partial C_{NO_2}}{\partial t} + v \frac{\partial C_{NO_2}}{\partial x} = D \frac{\partial^2 C_{NO_2}}{\partial x^2} - (r_{NO_2} - \alpha r_{NO_3}) \quad (7)$$

$$r_{NO_2} = (r_{mT,NO_2} \cdot f(pH)_{NO_2} \cdot \frac{C_{NO_2}}{K_{NO_2}(1 + C_{O_2}/K_{O_2}) + C_{NO_2}} \cdot \frac{C_{H_2}}{K_{H_2} + C_{H_2}}) \cdot X \quad (8)$$

$$r_{nNO_2} = (r_{m,NO_2} \cdot \frac{C_{NO_2}}{K_{NO_2} + C_{NO_2}} \cdot \frac{C_{O_2}}{K_{O_2} + C_{O_2}}) \cdot X_n \quad (9)$$

【脱窒菌】

$$\frac{dX}{dt} = r_X - b \cdot X - K_d \cdot X \quad (10)$$

$$r_X = Y_{XO_2} \cdot r_{O_2} + Y_{XNO_3} \cdot r_{NO_3} + Y_{XNO_2} \cdot r_{NO_2} \quad (11)$$

【硝化菌】

$$\frac{dX_n}{dt} = r_{Xn} - b \cdot X_n - K_d \cdot X_n \quad (12)$$

$$r_{Xn} = (\mu_{max} \cdot \frac{C_{NO_2}}{K_{NO_2} + C_{NO_2}} \cdot \frac{K_{O_2}}{K_{O_2} + C_{O_2}}) \cdot X_n \quad (13)$$

以上の基礎式において、 r_{H_2} 、 r_{O_2} 、 r_{NO_3} 、 r_{NO_2} は脱窒による基質消費速度 [mg/d]、 r_{nNO_2} は硝化による基質消費速度 [mg/d]、 r_X 、 r_{Xn} は脱窒菌、硝化菌の増殖速度 [mg/d]、 μ_{max} は硝化菌の最大比増殖速度 [1/d]、 $C_{H_2, sat}$ 、 $C_{O_2, sat}$ は飽和溶存濃度 [mg/l]、 K_{LaH_2} 、 K_{LaO_2} は総括移動容量係数 [1/d]、 D_{H_2} 、 D_{O_2} は水中の分子拡散係数 [cm²/s]、

キーワード 地下水、硝酸性窒素汚染、脱窒、数学モデル

連絡先 早稲田大学院創造理工学研究所 (〒169-8555 東京都新宿区大久保 3-4-1) Email: sakaki@waseda.jp

r_{m, O_2} , r_{m, NO_3} , r_{m, NO_2} は微生物による最大基質消費速度 [mg/d]、 α は硝酸性窒素の同化代謝を考慮した係数 [-]、 Y_{H_2, O_2} , Y_{H_2, NO_3} , Y_{H_2, NO_2} は基質消費量に対する水素利用量の化学量論比[-]、 Y_{X, O_2} , Y_{X, NO_3} , Y_{X, NO_2} は基質消費量に対する微生物収率[-]である。脱窒および硝化による基質消費速度に関しては、水温、pH による補正を行った。パラメータは小森と榊原が報告する値²⁾を参照した。また、計算においては脱窒菌、硝化菌の初期濃度 X_0 [mg/l] を変化させて計算を行い、各計算結果を比較した。また、連続実験期間中の実験条件の以下の表 1 に示す。実験条件は一般的な地下水流速とされる条件 2 を基本条件とし、条件 3-10 において流速および気体注入量を変化させた。

表 1 実験条件

条件	1	2	3	4	5
流量 (l/d)	5.8	11.3	22.5	34.3	
流速 (m/d)	0.29	0.57	1.13	1.73	
HRT (d)	2.76	1.42	0.71	0.46	
水素注入量(ml/d)	360	580	930	1550	1990
水素注入量(mol/d)	2.6	4.2	3.3	2.8	2.4
窒素流入量(mol/d)					
条件	6	7	8	9	10
流量 (l/d)	44.8	35.9	23.2	11.4	5.8
流速 (m/d)	2.24	1.80	1.16	0.57	0.29
HRT (d)	0.36	0.45	0.68	1.40	2.76
水素注入量(ml/d)	2150	2220	1550	930	580
水素注入量(mol/d)	1.9	2.7	2.8	3.3	4.2
窒素流入量(mol/d)					

4. 実験結果および考察

15[mg-N/l]の地下水を供給した際の、流出 NO_3 濃度の実測値と計算値の比較を図 1 に示す。初期微生物濃度を変化させた各計算結果は、初期段階を除きほぼ同様の値となった。これより初期微生物濃度に関わらず、定常状態に至ったのちは同様の挙動を示すことが示された。また各計算結果は実測値と概ね一致した。また条件 3-6 において硝酸性窒素負荷を増加させた条件では、脱窒性能の応答を再現できた。しかし硝酸性窒素負荷を減少させた条件7-10において計算値が実測値を若干下回る結果となった。

図 2 に定常状態(500 日)における各水質成分の濃度分布を示す。各項目について計算値は実測値の傾向を概ね再現することができた。しかし水素を注入する 50[cm]付近において NO_3 濃度の計算値が実測値を下回り、それに伴って NO_2 濃度の計算値が実測

値を上回った。また DO に関しても、水素注入域では計算値と実測値を下回る結果となった。したがって水素注入域での反応速度等をさらに検討する必要がある。

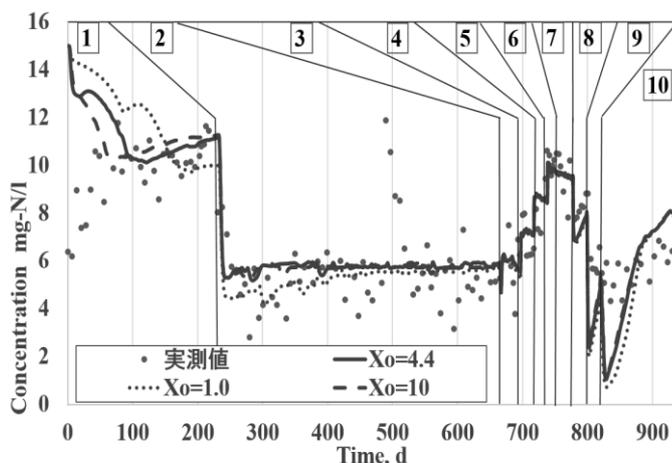


図 2 流出端における NO_3 濃度の比較

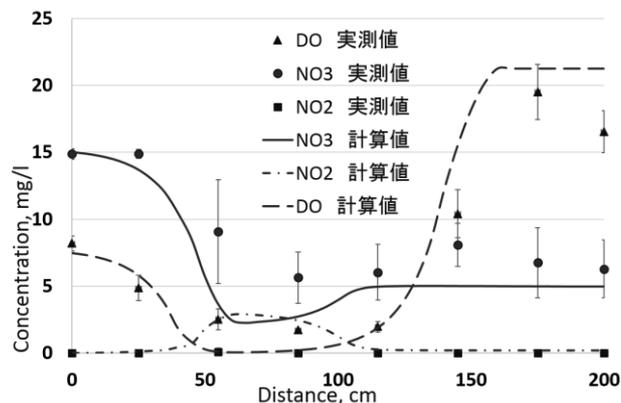


図 3 定常状態における各地点の濃度分布の比較

5. おわりに

数学モデルは長期実験結果を概ね再現できたが、負荷を変化させた場合の応答についてはさらに検討が必要である。また本モデルは反応機構の再現を主目的とするモデルであるが、地下水流動解析と組み合わせることで、原位置浄化を行う際の浄化性能予測への応用が可能であると考えられる。

参考文献

- 1) 葉、榊原: Continuous Treatment of Groundwater by In-situ Denitrification and Oxygen Process with Injection of Electrolytic Hydrogen and Oxygen 土木学会論文集 G, 69(7), 99-104. (2013)
- 2) 小森、榊原: 固体高分子電解質(SPE)膜電極を用いた硝酸性窒素汚染水の高速度脱窒処理に関する研究 土木学会論文集 G, 65(3), 153-163. (2009)