

(VII-18) 硝酸性窒素の電解還元反応に及ぼす共存イオンの影響

山梨大学大学院 学生員 和久 広丈
山梨大学工学部 正員 中村 文雄
山梨大学工学部 西田 継

1. はじめに

近年、各地で硝酸性窒素による地下水汚染が顕在化している。地下水中の硝酸性窒素の除去方法として幾つかの方法が検討されてきたが、処理装置、方法や処理効率の観点からイオン交換処理に関して多くの研究がなされ、一部実用に供されている状況にある。しかし、イオン交換処理においては一般に、硝酸イオンや塩素イオン等の陰イオンを高濃度に含有する再生廃水が発生するため、その処理が課題として残されてきた。著者らは、これまで硝酸性窒素還元と塩素回収を意図した電解処理の研究を行ってきたが、本研究では硝酸性窒素の電解還元反応に及ぼす共存イオンの影響、及びそれにより生成したアンモニア性窒素の除去について調べることを目的とした。

2. 実験装置及び実験方法

装置図を図 1、試料水の組成を表 1 にそれぞれに示す。試料水(表 1)700ml を、陽イオン交換膜で仕切ったプラスチック製の容器(図 1)中で攪拌しながら室温において電気分解を行った。

本実験では、電極面積を $3 \times 2\text{cm}^2$ に、電流を 2.0A、pH 7 とし電解を行った。電極は、陰極に鉛(Pb)、陽極に白金(Pt)をそれぞれ用いた。サンプリング時間は電解開始 0, 15, 30, 60, 90, 120 分後とした。硝酸性窒素、塩素イオン、硫酸イオンはイオンクロマトグラフ法、亜硝酸性窒素はスルファニルアミド・ナフチルエチレンジアミン吸光光度法、アンモニア性窒素はインドフェノール法、次亜塩素酸及びクロラミンは α -トリジン法により測定した。また所定時間毎の電圧は、電源装置に付属している電圧計により測定した。

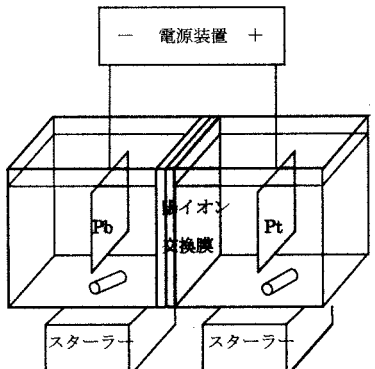


図 1 実験装置概略図

表 1 試料水の組成

Run No.	組成	濃度
1	NaNO_3 NaCl	$0.08\text{mol/l}(=1120\text{mg-N/l})$ $10\%(=60663\text{mg-Cl}^-/\text{l})$
2	NaNO_3 Na_2SO_4	$0.08\text{mol/l}(=1120\text{mg-N/l})$ $1\text{mol/l}(=96064\text{mg-SO}_4^{2-}/\text{l})$
3	NH_4Cl NaCl	$0.04\text{mol/l}(=560\text{mg-N/l})$ $10\%(=60663\text{mg-Cl}^-/\text{l})$

3. 実験結果及び考察

3-1 硝酸性窒素、塩素イオン共存系

硝酸性窒素、塩素イオン共存系電解の陰極槽内における各窒素成分の経時変化を図 2 に、陽極槽内における塩素系化合物の経時変化を図 3 に示す。

硝酸性窒素は、陰極槽において時間経過と共に減少傾向を示した。また、その生成物として亜硝酸性窒素及びアンモニア性窒素が生成した。亜硝酸性窒素は 60 分までは直線的に増加し、それ以降は増加がほぼ止まった。またアンモニア性窒素は、亜硝酸性窒素の増加がほぼ止まる 60 分以降から増加傾向を示した。このことから、亜硝酸性窒素から順次、アンモニア性窒素への還元反応

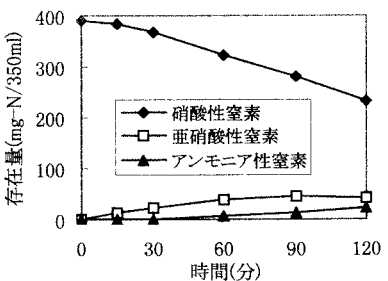


図2 NO_3^- , Cl^- 共存系の各窒素成分の経時変化(Run No.1:陰極槽)

キーワード 硝酸性窒素 電解処理 再生廃液 共存イオン

〒400-8511 山梨県甲府市武田 4-3-11 TEL 055-220-8593 FAX 055-220-8770

が進んでいると考えられる(図2参照)。

塩素イオンは、陽極槽において時間経過と共に減少傾向を示した。また、それに伴い次亜塩素酸の生成が認められた(図3参照)。以上のことから、陰極槽において硝酸性窒素の還元反応が、陽極槽において塩素イオンの酸化反応が起こっているといえる。

3-2 硝酸性窒素、硫酸イオン共存系

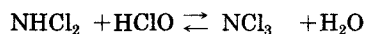
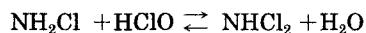
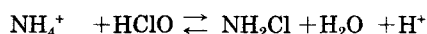
硝酸性窒素、硫酸イオン共存系電解の陰極槽内における、各窒素成分の経時変化を図4に示す。

硝酸性窒素、亜硝酸性窒素及びアンモニア性窒素は、陰極槽において図2と同様の傾向を示した。しかし、硝酸性窒素の還元量は塩素イオン共存系と比べて減少しており、硝酸性窒素還元に対する影響は、塩素イオンと硫酸イオンとは異なっていた。なお、硫酸イオンは陰陽両極槽においてほとんど変化しなかった。

3-3 アンモニア性窒素、塩素イオン共存系

上記により、陰極槽でアンモニア性窒素が生成する事が明らかとなったため、次にアンモニア性窒素と塩素イオン共存下で電気分解する実験を行なった。陽極槽内における、各窒素成分の経時変化を図5に、同じく塩素系化合物の経時変化を図6に示す。

アンモニア性窒素は陽極槽において、電解開始60分後までにその大半が減少し、同時に微量の硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素を生成した(図5参照)。また陽極槽において塩素イオンも時間経過と共に減少し、次亜塩素酸及びクロラミンを生成した(図6参照)。硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素を生成した原因として、アンモニア性窒素の電極上での直接的な酸化と、次亜塩素酸による酸化の2つが考えられる。次亜塩素酸による酸化は次式で示される¹⁾。



上記のモノクロラミン、ジクロラミン、トリクロラミンは何れも不安定であり、最終的には分解して窒素ガスとなる。

以上より、硝酸性窒素の電解反応においては、陽極槽内の塩素イオンとアンモニア性窒素を同時に酸化し、効率よく窒素成分を系外に放出できる可能性が示された。

4. まとめ

- (1)硝酸性窒素の電解還元にあつては共存イオンの影響については、硫酸イオンよりも塩素イオンの方が、硝酸性窒素をより多く還元できた。
- (2)アンモニア性窒素と塩素イオンを共存させると、陽極槽においてクロラミンを生成し、アンモニア性窒素を除去できる事がわかった。
- (3)硝酸性窒素の電解還元において塩素イオンが共存するのは大変有効だと言える。

参考文献 1)D.Barnes, F.Wilson: Chemistry And Operations In Water Treatment, 144-146, APPLIED PUBLISHERS LTD(1983)

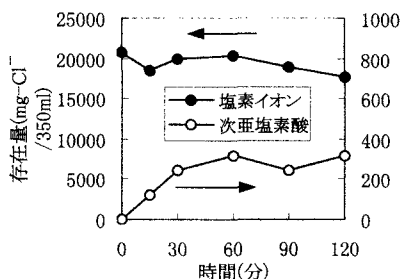


図3 NO₃⁻, Cl⁻ 共存系の塩素系化合物の経時変化(Run No.1:陽極槽)

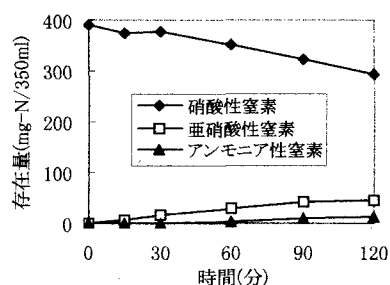


図4 NO₃⁻, SO₄²⁻ 共存系の各窒素成分の経時変化(Run No.2:陰極槽)

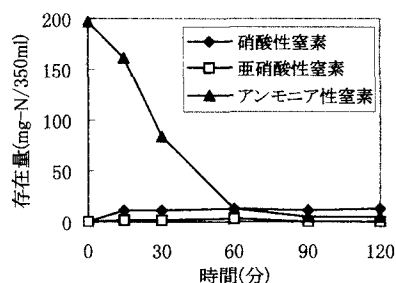


図5 NH₄⁺, Cl⁻ 共存系の各窒素成分の経時変化(Run No.3:陽極槽)

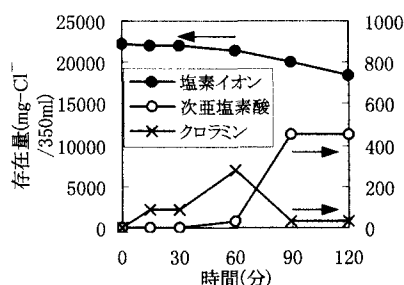


図6 NH₄⁺, Cl⁻ 共存系の塩素系化合物の経時変化(Run No.3:陽極槽)