

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

信州大学大学院	学生会員	○	後藤	駿介
信州大学			肥田	知卓
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間隙への蓄積に伴う有効反応容積減少と思われる窒素除去性能低下がおり、土壌間隙のガスを抜くことによって除去率が改善された。そして、平成 24 年度（累積通水期間 390 日以降）にはガス蓄積が少なくにもかかわらず、除去性能の低下が観察された。そこで、処理性能低下の原因として、水みちの形成による短絡及び LA 溶出量不足を考え、実験を行った。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、LA は枯渇していないことを確認した。さらに水素供与体が十分に存在する条件で運転を実施することで脱窒素菌の活性を確認するため、投入する模擬汚水に水酸化カリウムにあわせ、易溶解性の LA カリウム（以下、LA・K と略記）を添加（6.3、12.6mg/L）し、運転を行った結果、脱窒素菌は活性があることが確認できた。そして水みちの解消を目的に、カラムに多量の水および窒素ガスを注入し土壌の攪拌をおこなった。土壌の攪拌及び模擬汚水の LA・K 濃度を 12.6mg/L にすることで、除去率が 90%以上と改善した。しかし、効果は持続しなかった。そこで、LA・鹿沼土混合層から LA イオン溶出量不足より除去能力が低下したと考え、LA カリウム添加量（25.2、50.4mg/L）を増加し、水みちやガス蓄積による除去能力低下の影響を調べた。

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。

実験は土壌間隙のガス抜きを実施した状態で模擬汚水へ LA・K の添加無し、添加濃度 25.2mg/L、50.4mg/L で添加、添加濃度 50.4mg/L でガス抜きを停止する、再度、添加無しの異なった条件で行った。なお、LA・K 濃度 25.2mg/L は模擬汚水の 20mgN/L の T-N を 100%除去するのに必要な水素供与体の理論量を供給できる濃度である。

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

測定項目（かつこ内は測定方法）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（燃烧酸化-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。

3. 実験結果及び考察

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。図は土壌攪拌後、LA・K の添加を中止してから測定を再開した 180 日目以降から示す。LA・K の添加していない状態の 206 日目には S3 の除去率は 20% 近くまで低下しており、土壌の攪拌で処理が回復しないことが分かる。

211 日目から LA・K 濃度 25.2mg/L に模擬汚水をすると、除去率が徐々に上昇し、S3 は最大で 90% 近くまで上昇するものの S3 以降では TOC が検出されず、完全に窒素を除去することは出来なかった。

258 日目から LA・K 濃度 50.2mg/L に模擬汚水をすると、除去率が S1 で 90% 近くまで上昇し、S2 で 100% 除去される傾向となり、脱窒素反応に使われなかった TOC が多く残るようになり、S3 でも 10mgC/L 以上が継続的に測定されるようになった。

図 3 に LA・K 濃度 50.2mg/L の条件でガス抜き中止前後の S1、S2、S3 における間隙水の T-N 除去率の経日変化を示す。296 日目から土壌間隙からのガス抜きの実施を止めたが、23 年度の測定結果とは違い除去率低下にはならなかった。ガス抜きの実施時同様 S1 で除去率が 90% 近くで前後し、S2 で 100% 除去される傾向となった。このことから、水素供与体が十分に模擬汚水にある状態では、土壌間隙にガス蓄積による影響は少ないと考えられる。

一方、図 1、2 に示すように 324 日目から LA・K の添加を止めると除去率は急激に低下し、S3 では 40% 以下まで低下した。TOC も急激に低下し、S3 での TOC は 1.5mgC/L 前後まで低下した。

なお、LA・K 濃度 25.2mg/L、50.4mg/L になるように模擬汚水に添加した実験から T-N1mg/L を除去するのに消費された TOC は約 0.83mg と求められた。T-N1mg/L を除去するのに必要な TOC の理論量は 0.76mg であることから、実際の消費量は理論量に近いものとなった。また、本実験装置の処理性能低下の原因として、土壌間隙にガス蓄積による反応容積の低下、水みちの形成による滞留時間低下を主に考えてきた。しかし、模擬汚水の窒素除去に必要な水素供与体の理論量の 2 倍の LA・K を添加すると、ガス蓄積の影響は少なく窒素は 100% 除去される測定結果が得られた。この結果より LA・鹿沼土混合層から LA の溶出量の低下が最も大きな原因と考えられた。

4. 結論

LA・鹿沼土混合層が長期間安定して水素供与体を供給可能であれば長期に渡り窒素除去が可能であることから、LA を溶出し易く、またより長期間運転が可能にするための方法として、微細なものを使用することと、混合比率を上げることを考えられる。

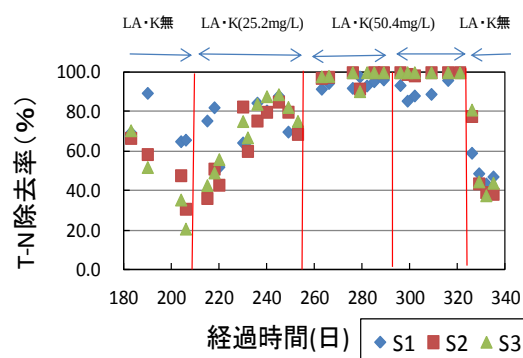


図 1 T-N 除去率の経日変化 (S1、S2、S3)

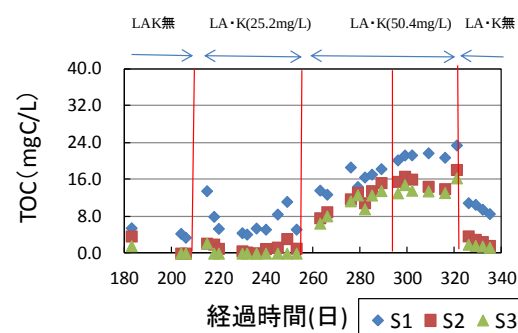


図 2 TOC の経日変化 (S1、S2、S3)

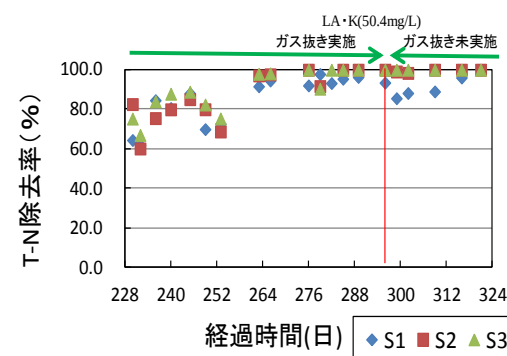


図 3 T-N 除去率の経日変化 (S1、S2、S3)