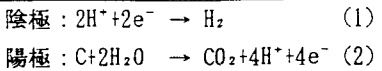


立命館大学大学院 学生員 ○稲井義明
立命館大学理工学部 正 員 合田 健

1. はじめに 近年、硝酸性窒素による地下水汚染や、脱窒過程での N_2O の発生が問題となりつつある。本報告は、これらの問題解消のため、新しい脱窒処理法を確立することを目的とし、特に低コストで、高い除去率を期待できる生物膜電極による脱窒処理法についての研究を行った。ここでは、生物膜電極による脱窒処理の利点を確認することを目的の第一とし、工場等からの高濃度 NO_3-N 廃水の処理を想定し、含脱窒菌汚泥中に浸漬された生物膜電極（脱窒菌固定化・生物膜化電極）への通電の有無や電極間距離が、 NO_3-N 除去に与える影響について検討した。

2. 生物膜電極による脱窒処理法 活性汚泥や土壌中に存在している脱窒菌には、水素供与体として、アルコールや有機物を利用するタイプの他に、水素ガスを利用するタイプのもの（例えば、*Paracoccus Denitrificans* や *Alcaligenes eutrophus*、*Pseudomonas* 属など）の存在が確認されており¹⁾、これらに水素ガスを添加し続けると、より効率の高い脱窒処理が可能となる。この水素ガスの確保に水の電気分解によって発生する水素を利用したものが、生物膜電極による脱窒処理法である。黒田ら²⁾は、通電することによって、単位時間当たりの処理量が、通電前の約3.8倍に向上することを実験によって示し、炭素製電極を使用した場合、式(1)及び(2)に記す反応が生じ、①電気分解によって酸素生成量が低減することや、②生成された CO_2 脱窒反応に伴うpHの上昇を抑制する、といった脱窒菌の脱窒活性維持に適した状態の持続が可能であることを報告している。



3. 実験装置 実験装置の概略を図1に示す。実験装置は、電極間距離が、6cm、12cm、18cmと異なるものを3基設け、生物膜電極反応槽の容積及び寸法(縦×横×高さ)は、それぞれ、0.85L(5×17×10cm)、1.15L(5×23×10cm)、1.35L(5×27×10cm)とした。反応槽内には、含脱窒菌汚泥中に約3カ月間浸漬し、固定化・生物膜化した炭素製電極(2×1×10cm：表面積64cm²)を2本設置し、さらに約0.8Lの含脱窒菌汚泥を加えた。また、反応槽内の流出入口付近に整流板を設置し、電気分解に伴う酸素発生への対応のため、陽極の回りに、隔壁を設け、ガス抜き用の穴を設けた。実験に用いた含脱窒菌汚泥は、K市A処理場の返送汚泥を種汚泥とし、約1カ月間、嫌気条件下にて、馴養したものを使用した。

4. 実験条件及び分析項目 実験は、先の3種類の実験装置にて、それぞれ、“通電あり”の場合と、“通電なし”の場合の2ケースについて行い、“通電あり”の場合には、約12Vの直流電圧を生物膜電極にかけるものとした。また、初期条件として、 $NaNO_3 \cdot CH_3COONa$ 混合溶液2L (NO_3-N 及びTOC濃度、各100mg/L)を貯留槽(2.5L)に添加し、以後1, 2, 3, 4, 5, 6, 8, 24時間毎に、貯留槽よりHeによる置換で、試料のサンプリングを行った。1回のサンプリング量は約150mLであり、表1に記した分析項目を測定した。なお、実験装置は、温度20℃、湿度65%に保たれた恒温室内に設置した。

表1 分析項目一覧表		
分析項目	測定方法	使用機械
pH	機械測定	pH METER F-21(HORIBA)
NH4-N	インドフェノール青吸光度法	UV-160A, ASC-5(SHIMADZU)
NO3-N	ブルシソ法	同上
NO2-N	N-(1-ナフチル)エチレンジアミン吸光度法	同上
T-N	アルカリ性ペルオキシ二硫酸カリウム法	同上
TOC	TOC計による自動測定	TOC-5000, ASI-5(SHIMADZU)

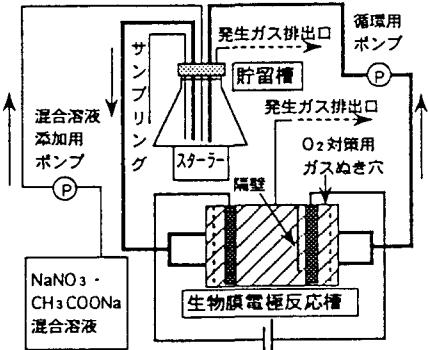


図1 実験装置概略図

Yoshiaki INAI Takeshi GODA

5. 実験結果及び考察 図2に示すように、通電を行うことにより $\text{NO}_3\text{-N}$ 除去量が大きく向上した。既に述べたように、脱窒菌には、水素供与体として、水素ガスを利用するタイプのものと、有機物を利用するタイプのものが存在する。このうち、水素ガス発生の影響は前者だけに作用し、その際 $\text{NO}_3\text{-N}$ の除去効率は向上するが、TOC除去効率は向上しない。一方、通電によるpH低下の影響は両者に作用するため、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 除去効率とTOC除去効率は共に向上すると考えられる。通電による除去効果を評価するため、“通電なし”の場合に対する、“通電あり”の場合の除去量の比を算定すると、表2のようになる。その結果、通電の有無による除去量の比は、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の場合、初期において大きく、以後、時間の経過と共に小さくなる傾向が見られた。それに対し、TOCの場合は、通電の有無に関わらず、終始、ほぼ一定となった。従って、通電により発生した水素ガスが、脱窒菌の脱窒活性を向上させ、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 除去効率を向上させたと考えることができる。ただし、図3に示すように、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 発生量が大きかったため、図4に示す程度のT-N減少量しか得られなかった。別途行った実験結果より、pH調整が $\text{NO}_2\text{-N}$ 発生量の抑制に有効であることが分かっていることから、生物膜電極による脱窒処理を効率よく行うためには、pH調整が重要だと考えられる。なお実験中 $\text{NH}_4\text{-N}$ は、ほとんど検出されなかった。pHに関しては、図5に記すように、通電によって、pH上昇の抑制が行われた。また、電極間距離が $\text{NO}_3\text{-N}$ 除去量に与える影響を調べた結果、除去成績は予想通り、電極間距離6cmの場合が最も良かったが、それ以後は、予想に反し18cm、12cmの順となった。この現象を十分説明することはできないが、原因の1つに槽内脱窒菌数の違いがあげられる。今回の実験では、脱窒菌数の均一化のために、十分攪拌した含脱窒菌汚泥を同量ずつ、3種類の実験装置に添加し、同一条件にて馴養した。しかし、含脱窒菌汚泥を添加した日から、実験開始日まで3カ月が経過していたため、脱窒菌数に隔たりが生じた可能性が考えられる。

7. まとめ 含脱窒菌汚泥を貯留した生物膜電極反応装置を作成し、通電の有無及び電極間距離と $\text{NO}_3\text{-N}$ 除去量の関係を調べた。さらに、脱窒菌数などの測定を行い、電極間距離が脱窒量に及ぼす影響を定式化したいと考えている。

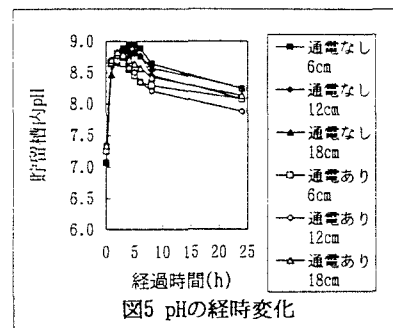
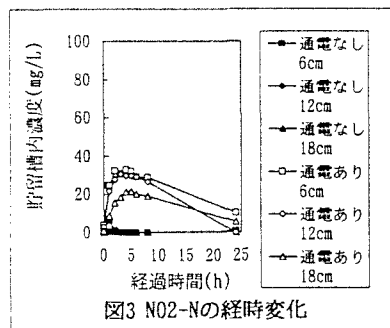
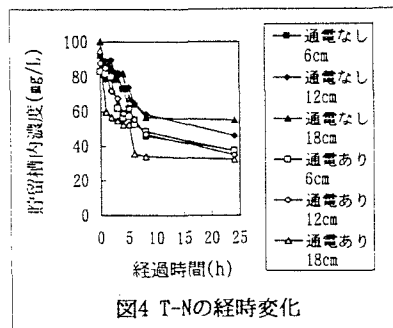
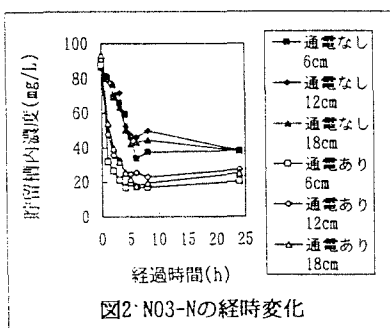


表2 通電の有無による $\text{NO}_3\text{-N}$ 及びTOC除去量の比計算結果

経過時間		1時間	2時間	3時間	4時間	5時間	6時間	8時間	12時間
$\text{NO}_3\text{-N}$ 除去量の比 (通電あり)/(通電なし)	電極間距離 6cm	9.9	3.6	3.3	2.7	1.7	1.3	1.4	1.4
	12cm	6.0	3.5	4.1	1.9	1.7	1.6	1.9	1.3
	18cm	7.9	5.5	2.6	1.9	1.6	1.8	1.8	1.4
TOC除去量の比 (通電あり)/(通電なし)	電極間距離 6cm	1.2	1.2	1.2	1.1	1.0	1.0	1.0	1.0
	12cm	1.2	1.1	1.1	1.0	0.9	0.9	0.9	0.8
	18cm	1.1	1.0	1.0	1.0	1.0	0.9	0.8	0.8

*)図及び表に示す初期値($t=0$ における値)は、 $\text{NaNO}_3\cdot\text{CH}_3\text{COONa}$ 混合溶液添加以前の貯留槽内残留物質の影響を考慮し、次式にて修正した。
初期値: $((\text{添加するNaNO}_3\cdot\text{CH}_3\text{COONa混合溶液の濃度}) \times 2 + (\text{混合溶液添加前の貯留槽内濃度}) \times 0.5) / 2.5$
ただし、混合溶液の濃度は、理論値である100mg/Lとした。

<<参考文献>>

1)明賀、角田他:水環境学会誌Vol. 17 No. 10:p669-675:1994 2)黒田、渡辺他:水環境学会誌Vol. 17 No. 10:p623-631:1994