

アンモニア性窒素の硝化・脱窒同時処理への 固定化微生物電極法の適用

群馬大学工学部建設工学科 ○史 紅
渡辺 智秀
黒田 正和

1.はじめに

近年、閉鎖性水域の富栄養化防止等の観点から、栄養塩類の排出規制等が強化される方向にあり、各種廃水からの効果的な窒素成分除去処理の必要性が高まっている。アンモニア性窒素含有廃水に対する生物学的硝化・脱窒においては、硝化過程における硝化速度と効率が全体の処理効率を左右する場合が多く、さらに生物膜利用プロセスでは、生物膜深部において、酸素が不足して嫌氣的となり、生物膜が有効に利用されない場合も多い。また、脱窒過程において、電子供与体成分が廃水中に十分に存在しない場合には、外部からの添加が必要となり、有機物水素供与体が用いられる場合には、過剰添加が必要であるため、残留有機物の後処理等、処理システムが複雑となる。本研究では、硝化菌を微生物膜として陽極表面に固定した固定化微生物電極を用いるとともに、脱窒菌固定化微生物電極を陰極として反応槽に配置し、通電に伴い陽極から生成する酸素による硝化反応の進行とその促進効果ならびに、生成硝酸イオンの陰極における水素を利用した脱窒反応の特性について検討を行い、本法によるアンモニア性窒素の硝化・脱窒同時処理の可能性を検討した。

2.実験装置及び実験方法

2.1実験装置

本実験に用いた装置の概略を図1に示す。本装置は有効液容積約6ℓの円筒型容器である。電極として直径8mm、高さ18cmの炭素棒を用い、陽極においては、ステンレス板の内外に2層に並ぶように計261本の炭素棒を配置し、図中のI部分に設置した。同様に陰極については、計98本の炭素棒がステンレス板をはさんでそれぞれ2層に並ぶように配置し、図中のII部分に設置した。また、陰極となる内筒電極の中心軸上に陽極となるステンレス棒を設置した。なお、陽および陰極の外表面積比は約3:1である。これらの電極は、直流安定化電源に結線した。装置内の溶液は、エアレーション及び循環ポンプにより完全混合状態になるようにした。

2.2実験方法

固定化微生物電極は、下水処理場より採取した活性汚泥を種汚泥として、あらかじめ研究室内で培養している硝化菌及び脱窒菌培養槽に上述の炭素棒電極群を浸漬して、

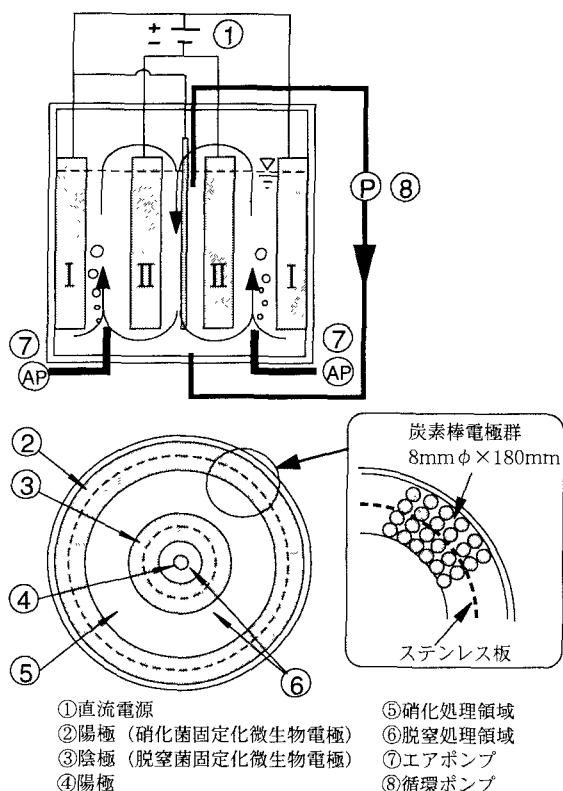


図1 実験装置

その表面にこれらの微生物群を付着固定させて作製した。さらにこれらの硝化菌および脱窒菌固定化微生物電極を実験装置内に設置し、半回分的な培養を繰り返して行い、馴養した。実験は、槽内各窒素成分濃度の変化が安定したことを確認した後、人工廃水を連続に供給し、エアレーション速度、HRTを変化させて、液本体DO濃度を制御するとともに、電流条件を種々変化させて、流出入水の水質および槽内pH、ORP等の測定を行った。なお、使用した人工アンモニア性窒素含有廃水の組成は、表1に示すとおりである。また、実験は、表2に示す条件で行った。

3. 実験結果及び考察

図2に実験結果の一例として、DOを2前後に保ち、電流を0mA～264mAの範囲で変化させた場合の流出入水のT-Nおよび NH_4^+ 濃度の経時変化を示す。また、図3には、各実験条件における処理水T-N濃度に占める NH_4^+ 、 NO_2^- 及び NO_3^- 濃度の変化を示す。

通電なしで有機物水素供与体がC/N=1.7となるように添加されたRun-1条件では、流出入水のT-N濃度にほとんど差異が見られなかった。この時、処理水の NH_4^+ 濃度は、流入 NH_4^+ 濃度に比べ6mg-N/ℓ程度減少しているが、 NO_3^- も5mg-N/ℓ程度存在していることから（図3）、硝化は起こっているもののその割合は小さく、生成 NO_3^- の脱窒反応はほとんど生じていないことがわかる。脱窒がほとんど進行していないのは、液本体DO濃度の影響と添加有機物が酸化分解を受けて消費されてしまい、脱窒菌の水素供与体として利用されないことによると考えられる。また、この添加有機物の酸化分解が硝化の進行にも大きく影響を及ぼし硝化率を小さくしていると考えられる。

有機物添加なしに通電(33mA)を行った条件(Run-2)では、時間の経過とともに処理水T-N濃度は低下し、最終的に約40%の窒素成分が除去された。残

表1 基質組成

Run-1		Run-2～Run-5	
アンモニア水	20mg-N/ℓ	アンモニア水	20mg-N/ℓ
NaHCO_3	70mg/ℓ	NaHCO_3	70mg/ℓ
CH_3COOH	C/N=1.7	yeast extract	5mg/ℓ
CH_3COONa		無機塩類	
yeast extract			
無機塩類	5mg/ℓ		

表2 実験条件

Run No.	電流 (mA)	電流密度(mA/cm ²)	
		陽極	陰極
1	0	0	0
2	33	0.01	0.03
3	66	0.016	0.05
4	132	0.03	0.1
5	264	0.06	0.2

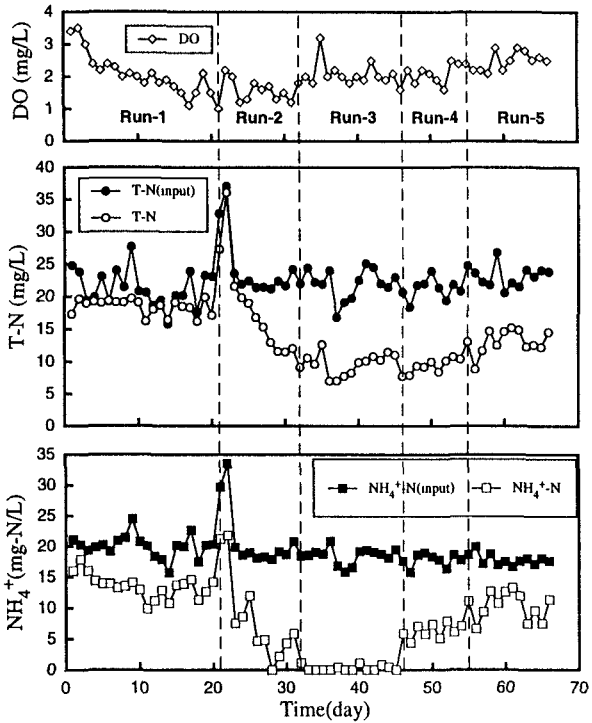


図2 液本体DO濃度、 NH_4^+ 濃度、及びT-N濃度の経時変化

留している窒素成分のうち、 NH_4^+ は6mg-N/ℓ程度以下であり、残りは主に NO_3^- として存在した(図3)。本条件下では、有機成分が存在しないことにより硝化が比較的進行しているものの、窒素除去率は大きいとは言えない。この由を、本通電条件における理論電解水素生成速度から判断すると、生成水素は、ほぼ100%脱窒に利用されていると考えられるので、電子供与体供給量の不足によるものである。

通電量を増加したRun-3では、処理水中に NH_4^+ はほとんどなく、ほぼ完全に硝化した。Run-2との比較から、この硝化率の増大は、通電による効果であることが推察できる。すなわち、電流値の増大に伴い陽極表面から生成する酸素が増加し、生物膜深部において硝化に利用されたものと考えられる。窒素除去率は、電流の増大に伴い上昇したが、 NO_3^- が10mg-N/ℓ程度残留しており、本条件における脱窒に対する理論電解水素利用率は、50%程度に留まり、期待される除去率が得られなかった。この原因としては、液本体中のDO濃度の影響が挙げられ、DO濃度依存性について現在検討を行っている。

さらに電流値を増大して行ったRun-4~Run-5では、処理水 NO_3^- 濃度は数mg-N/ℓであるものの、残留 NH_4^+ 濃度はRun-3に比べて上昇し、硝化率が低下した。既報¹⁾において、硝化菌固定化微生物電極を用いる NH_4^+ の硝化における電流密度依存性について検討しているが、本実験の陽極電流密度では、最適条件を超えて硝化速度の低下が見られる条件ではないと判断されるため、現段階では、この原因は不明である。なお、Run-5では、反応槽内を洗浄し、SS分を除去した後に実験を行ったが、処理水中の窒素成分の濃度は条件変更後もすぐに比較的安定しており、本条件下における窒素除去の結果は、陽極及び陰極に形成されている生物膜中で進行した硝化・脱窒によるものと推察できる。

4.まとめ

硝化菌及び脱窒菌を固定化した微生物電極を用いて硝化・脱窒同時処理の可能性について実験的に検討した結果、エアレーションとともに通電を行うことにより硝化反応の進行が促進された。また、硝化により生成した硝酸イオンは陰極として用いた脱窒菌固定化生物電極によって、水電解で生成する水素を利用し脱窒された。脱窒反応は硝化効率及び液体中のDO濃度により左右されることがわかった。

【謝辞】本研究の一部は、平成7年度鉄鋼業環境保全技術開発基金及び平成8年度文部省科学研究費(課題番号07650635)により行われた。記して謝意を表す。

【参考文献】1) 黒田ら, (1995), バイオエレクトロ法によるアンモニア性窒素の硝化, 第29回水環境学会年会講演集, p22

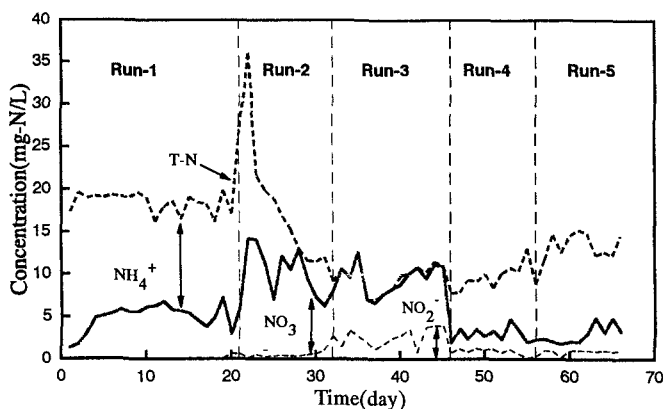


図3 処理水T-N, NH_4^+ , NO_3^- 及び NO_2^- 濃度経時変化