

B-51 溶解性の異なる有機物を添加した砂カラムによる地下水の硝酸性窒素除去

○松本 智也^{1*}・Bandunee Liyanage²・前田 守弘¹
 藤原 拓³・永禮 英明¹・赤尾 聡史⁴

¹岡山大学大学院環境学研究科 (〒700-8530岡山県岡山市北区津島中3丁目1-1)

²スリランカオープン大学

³高知大学農学部 (〒783-8502南国市物部乙200)

⁴鳥取大学大学院工学研究科 (〒680-0945鳥取市湖山町南4丁目101)

* E-mail: gev421162@s.okayama-u.ac.jp

1. はじめに

地下水の硝酸性窒素汚染が問題となっており、過剰な肥料投入による農業との関わりが指摘されている¹⁾。高濃度の硝酸性・亜硝酸性窒素を含む水を摂取するとメトヘモグロビン血症を引き起こすといわれ、近年、減肥による対策が行われてきたが、地下水の硝酸性窒素濃度の環境基準超過率は平成12年度から約5%前後で推移しており²⁾、改善には長期間を要すると考えられる。

広域の硝酸性窒素汚染水を直接浄化する方法として透過性浄化壁の研究が進められており、副島ら(2007)は生分解性プラスチックを用い、メンテナンスフリーの原位浄化システムを考案した。その結果、浄化壁上流の観測井では硝酸性窒素約10 mg/Lであったが、下流の観測井では、ほぼ0 mg/Lであった。しかし、全有機炭素濃度の上昇もみとめられ、二次汚染が懸念された³⁾。

そこで本研究では溶解性の異なる有機物を用い、硝酸性窒素除去能とTOC変化をカラム試験で調べ、適切な浄化システム構築の基礎とすることを目的とする。

地下水は岡山県南東部畑作地帯で採取した。この地帯は赤井ら(2000)により井戸の水質が調べられ、そのうち6割で硝酸性+亜硝酸性窒素濃度が10 mg/Lを超えていた。また硝酸性窒素の特に高い井戸水について、化学肥料の影響が示唆された⁴⁾。

から10 cmに有機物1.5 gと、脱窒菌源として活性汚泥(3000 mg/L MLSS)50 mLを埋設し、前述の実地下水($\text{NO}_3\text{-N}$ 62.7 mg/L, TOC 0.7 mg/L)を通水した。また還元的雰囲気を保つためにカラム上部は常時湛水した(水位は状況により変動)。概要を図-1に示す。

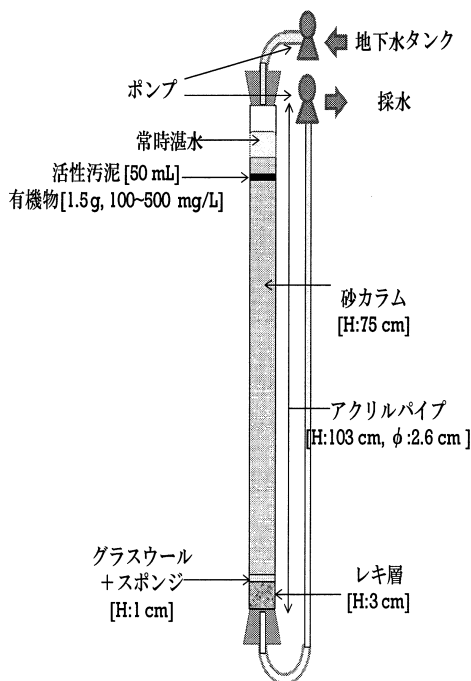


図-1 実験に用いたカラムの概要

2. 試験方法

(1) カラム設計

豊浦標準砂充填カラム(高さ75 cm、内径2.6 cm)の上

(2) 有機物源

有機物源はポリ乳酸(分子量：5000(LA1)、10000(LA2))、高級脂肪酸(FA)、徐放性水素供給材(HRCTM)、ショ糖(SU)を利用した。なお、以下の解析において、HRCは構造が不明なため乳酸として扱った。溶解性は分子量から推定し、SU>HRC>FA>LA1>LA2と考えた。難溶性有機物であるLA1、LA2、FAは直接カラムに埋設し、溶解性のHRC、SUは通水溶液に混合した。また有機物を添加しないControlを用意した。

(3) 反応式

各有機物の脱窒反応式を下に示す。

LA1, LA2, HRC

$$\text{NO}_3^- + \frac{5}{12n} (\text{C}_{3n}\text{O}_{2n+1}\text{H}_{4n+2}) = \frac{1}{2} \text{N}_2 + \text{OH}^- + \frac{5}{4} \text{CO}_2 + (\frac{1}{3} + \frac{5}{12n}) \text{H}_2\text{O}$$

FA

$$\text{NO}_3^- + \frac{5}{6n-4} (\text{C}_n\text{O}_2\text{H}_{2n}) = \frac{1}{2} \text{N}_2 + \text{OH}^- + \frac{5n}{6n-4} \text{CO}_2 + (\frac{n+1}{3n-2}) \text{H}_2\text{O}$$

SU

$$\text{NO}_3^- + \frac{5}{48} (\text{C}_{12}\text{O}_{11}\text{H}_{22}) = \frac{1}{2} \text{N}_2 + \text{OH}^- + \frac{5}{4} \text{CO}_2 + (\frac{31}{48}) \text{H}_2\text{O}$$

上の式から1 gの硝酸性窒素浄化に必要なCはそれぞれ1.07 g, 0.8 g, 1.07 gである(FAはn=10で計算した)。

(4) 試験条件

試験条件はPhase 1～3の三段階で行った。Phase 1～3の試験条件を表1に示す。流出液はフラクションコレクター(東京理化 DC-1200)を用いPhase 1では1時間ずつ、流速の減少に応じてPhase 2, 3では1時間半ずつ分取した。

表1 有機物添加量と流速

炭素源	Phase 1		Phase 2		Phase 3	
	添加量	流速	添加量	流速	添加量	流速
LA1	1.5 g	10 mL/hr	1.5 g	6.67 mL/hr	1.5 g	6.67 mL/hr
LA2	1.5 g	10 mL/hr	1.5 g	6.67 mL/hr	1.5 g	6.67 mL/hr
FA	1.5 g	10 mL/hr	1.5 g	6.67 mL/hr	1.5 g	6.67 mL/hr
HRC	500 mg/L	10 mL/hr	100 mg/L	6.67 mL/hr	250 mg/L	6.67 mL/hr
SU	500 mg/L	10 mL/hr	100 mg/L	6.67 mL/hr	250 mg/L	6.67 mL/hr

3. 結果および考察

図-2に硝酸性窒素除去量とTOCの濃度変化を示す。硝酸性窒素除去量はControlの硝酸性窒素濃度から各流出液も硝酸性窒素濃度を引いた値である。なお、Controlの硝酸性窒素濃度を併記した。

(1) Phase 1

難溶性有機物では硝酸性窒素除去量、TOC共に低かった。流速が速いために、有機物放出による有機物濃度上昇が少なかったためと考えられる。易溶性有機物ではほぼ100%の硝酸性窒素除去率であったが、TOC流出も大きかった。また、HRCにおいてPhase 1の終了時には硫酸イオンの減少(データ省略)がみられ、TOCの減少と関連する可能性がある。

(2) Phase 2

Phase 1において、易溶性有機物でのTOC上昇、難溶性有機物で硝酸性窒素除去率が低かったことから、易溶性有機物濃度と流速を低下させた。

易溶性有機物のPhase 2初期では硝酸性窒素除去量が高いが、これはPhase 1の影響を受けていると考えられる。後半はやや除去率が低下したが、TOC流出を抑制することができた。

難溶性有機物では、FAで硝酸性窒素除去量の上昇がみられた。他の難溶性有機物については差がみられなかった。

(3) Phase 3

Phase 2において、易溶性有機物で硝酸性窒素除去量の低下がみられたため、有機物濃度を上昇させた。

易溶性有機物では、硝酸性窒素除去率がほぼ100%となり、TOC流出を低減することができた。

難溶性有機物では、FAでPhase 2から硝酸態窒素除去量が徐々に上昇し、Phase 1に比べ2倍以上の硝酸性窒素を除去した。

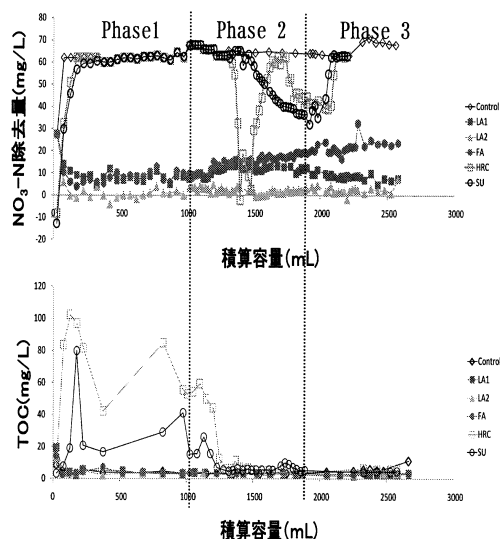


図-2 硝酸性窒素除去量(上)とTOC濃度推移(下)

(4) 易溶性有機物の量論的考察

表 2に易溶性有機物の収支を示す。数値は硝酸除去量安定時の値である。C減少量＝有機物流入量－有機物流出量である。

Phase 1, 3ではC減少量に対して、NO₃-N除去量が少なく、(3)で示した理論式でのC消費量との差が大きかった。菌体増殖におけるC同化やカラム残存が影響したと考えられる。Phase 2ではC減少量よりNO₃-N除去量が多く、カラムに残存した有機物の利用が考えられる。

表 2 易溶性有機物のC収支

	Phase 1 (mgC/L)	Phase 2 (mgC/L)	Phase 3 (mgC/L)
HRC	C減少量: 102.7	C減少量: 33.9	C減少量: 88.2
	NO ₃ -N除去量: 62.0	NO ₃ -N除去量: 46.0	NO ₃ -N除去量: 62.8
SU	C減少量: 156.6	C減少量: 31.5	C減少量: 94.8
	NO ₃ -N除去量: 62.4	NO ₃ -N除去量: 40.0	NO ₃ -N除去量: 62.8

4. まとめ

Phase 3においてHRC、SUで硝酸性窒素の高い除去率、TOC流出の低減を達成した。このことから溶解性の高い有機物も硝酸性窒素濃度と有機物濃度のバランスに配慮することで二次汚染を防ぐことができ、添加量を調整できることから高濃度硝酸汚染地域で有効な対策と考えられる。またFAでは硝酸性窒素除去率が34%と高く、メンテナンフリーの透過性浄化壁での利用が期待される。

今後は難溶性有機物および易溶性有機物についてより詳細な量論的観察を行い、C減少量とNO₃-N除去量の差について調査する必要がある。また有機物の溶解性、分解特性についても調べる必要がある。

参考文献

- 1) 増岡健太郎・高畑陽・須網功二・伊藤雅子・下村雅則：水平浄化壁による土壌浸透水の硝酸性窒素浄化技術、Journal of Geography、116(6)、922-931、2007
- 2) 和田篤也・西前昌子・中嶋進・吉井啓剛：平成19年度地下水測定結果について、用水と廃水、Vol.51 No. 3、187-192、2009
- 3) 副島敬道・伊藤雅子・今村聡・寺尾宏：生分解性プラスチックを利用した硝酸性窒素汚染地下水の原位浄化実証試験、土木学会論文集G、Vol.63 No.1、58-67、2007
- 4) 赤井直彦・石橋英二・大家理哉：畑作地帯における浅層地下水の実態調査、 $\delta^{15}\text{N}$ 法による地下水の硝酸態窒素汚染源の推定事例集、日本土壌協会、2000