



Title	水素ガスを利用した生物学的脱窒処理に関する研究
Author(s)	宇田川, 万規子; 山田, 裕之; 八木, 康之
Description	第5回衛生工学シンポジウム (平成9年11月6日 (木) -7日 (金) 北海道大学学術交流会館) . 4 水処理 1 . P4-6
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 5, 156-160
Issue Date	1997-11-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7724
Type	departmental bulletin paper
File Information	5-4-6_p156-160.pdf



4-6

水素ガスを利用した生物学的脱窒処理に関する研究

○宇田川 万規子, 山田 裕之, 八木 康之 (日立プラント建設)

1. 緒言

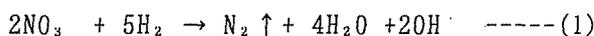
近年、窒素肥料などの影響で硝酸性窒素を含む地下水が増えてきている。水道水中の硝酸性窒素はメトヘモグロビン血症を誘発するとともに、発癌性物質であるニトロソアミンの前駆物質である。このため、厚生省では水道水中の硝酸性窒素と亜硝酸性窒素の合計値を10mg/ℓ以下とする基準値を設けている。平成4年度の水道統計では、国内浄水場の5%近くが硝酸性窒素5mg/ℓ以上の地下水を取水しており¹⁾、処理の対策が迫られている。

硝酸性窒素の処理は、イオン交換法や逆浸透法など物理化学的方法と脱窒菌を用いた生物学的脱窒法がある。しかし、物理化学的処理では再生や濃縮廃液の排出が問題となる。また、生物学的脱窒処理では反応に必要な水素供与体として有機物を添加するため、残留有機物の観点から飲料水としての安全性が指摘されている。浄水分野における硝酸性窒素処理は年々ニーズが高まるものの、現状の処理法には解決すべき問題点が多く、実用化された例は少ない。

そこで、地下水の硝酸性窒素を対象に、水素供与体として有機物の代わりに水素ガスを利用する生物学的脱窒法について検討した結果を報告する。

2. システムの概要

本システムの概要を図1に示す。本システムは脱窒菌の保持材を充填した密閉型反応槽で、原水と水素ガスは槽下部から供給し処理水を槽上部から排出する。未反応の水素ガスは槽上部から下部へと循環して水素ガスを有効利用する。水素ガスは脱窒反応の進行に伴って低下する槽内圧力を検知して自動供給する。これは、(1)式に示すように硝酸性窒素が窒素ガスに還元される過程で5倍の水素ガスを消費する反応原理に基づいている。



即ち、この方法は生物学的脱窒反応で消費された水素ガスのみを反応槽内に補充するため水素ガスの利用効率が高い。また、原水の窒素濃度変化に対応できるメリットがある。

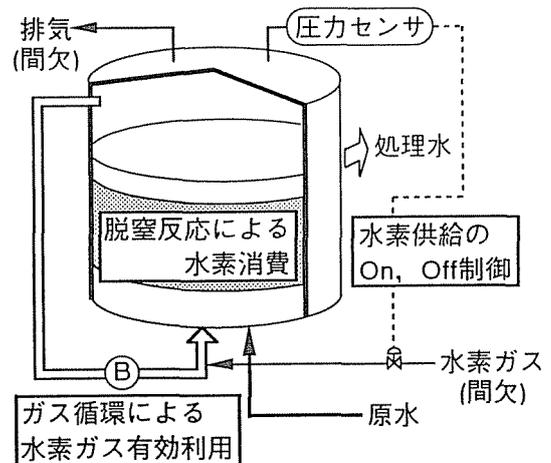


図1 システムの概要

3. 実験方法

本研究は、水素ガス利用脱窒菌の基本性能を回分実験で評価した後、小型装置を用いて連続通水実験を行い、硝酸性窒素負荷に対する除去性能を検討した。

3.1 回分実験方法

水素ガス利用脱窒菌と有機物を利用する脱窒菌との性能を回分実験で評価した。回分実験装置を図2に、模擬原水の性状を表1に示す。実験に用いた水素ガス利用脱窒汚泥は水素ガスを

吹込みながら55日間連続馴養したものである。模擬原水に各汚泥をMLSS濃度として約3,500 mg/ℓ投入し、水温を25±2℃、pH値を7～8に調整した。なお、水素ガスの吹込みは1 ℓ/minとした。実験開始から1時間ごとに槽内液をサンプリングし、0.45 μmフィルタろ過液の硝酸性及び亜硝酸性窒素濃度をイオンクロマト(横河アナリティカルシステムズ社製、IC2000 SERIES II)で分析した。この結果から脱窒速度を算出した。

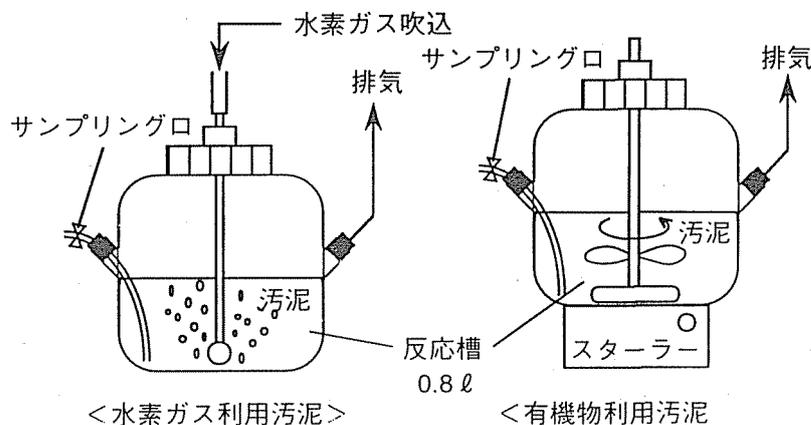


図2 回分実験装置

表1 模擬原水の性状

	回分実験		連続通水実験
	水素ガス利用	有機物利用	
KNO ₃ (mg-N/ℓ)	100	100	15
KH ₂ PO ₄ (mg-P/ℓ)	6.7	6.7	1
NaHCO ₃ (mg-C/ℓ)	150	—	—
CH ₃ COONa (mg-C/ℓ)	—	250	—

3.2 連続通水実験方法

実験装置の概要を図3に示す。この装置は内径120mm、高さ1,500mmの密閉型反応槽(有効容積:12ℓ)で、脱窒菌保持材としてアンスラサイトを層高530mm(充填容積:6ℓ)まで充填した。水素ガス馴養汚泥をMLSS濃度として3,000mg/ℓ投入し、水素ガスを吹込みながら1～2日間保持材と接触させた。反応槽内の水温を約25℃に調整し、表1に示す連続通水実験用の模擬原水を槽下部から供給した。処理水は槽上部のレベルコントローラを介してポンプで自動排出した。また、気相部の水素含有ガスをガスプロアで空塔速度として120～180m/hの条件で循環した。循環ガス中の水素は脱窒反応により消費され、気相部の圧力は徐々に低下する。実験では気相部のガス圧力が10kPaに低下した時点で水素ガスを反応槽内に供給し、60kPaで停止する間欠供給を行った。水素ガスの供給量はマスフローコントローラで0.5 ℓ/minに調整した。反応槽から自動排出される処理水を経過日数ごとにサンプリングし、0.45 μmフィルタろ過液の硝酸性及び亜硝酸性窒素濃度を分析した。硝酸性窒素負荷は処理水質の安定を確認し順次上昇した。なお、脱窒処理の安定した時点で反応槽内液をサンプリングし、硝酸性及び亜硝酸性窒素の濃度分布を調べた。

3.3 水素ガス利用脱窒菌の計測方法

保持材表面に付着した水素ガス利用脱窒菌数をMPN法により計測した。菌数計測方法を表2に示す。まず、充填槽上部及び下部から各々アンスラサイト20mℓ採取して超音波処理(300W, 20kHz, 1分間×3回)し、70mℓの滅菌生理食塩水に均一分散させた。分散後のサンプルを液体培地に接種し、ブチルゴム栓で密栓して気相部を水素と窒素の50%混合ガスで置換した。ガス置換後の培養試験管を30℃で2週間振とうした。その後、培養試験管内のガス消費量を図4に示す簡易測定器で計測し、これを判定指標としてMPN表から算出した。

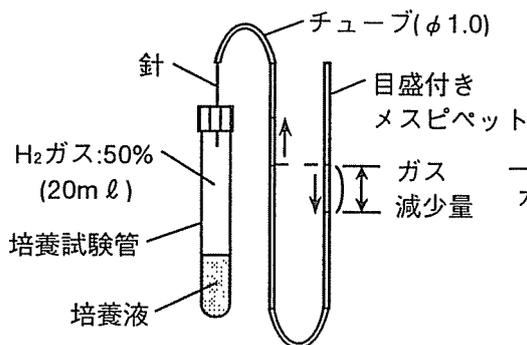


図4 ガス消費量の測定器

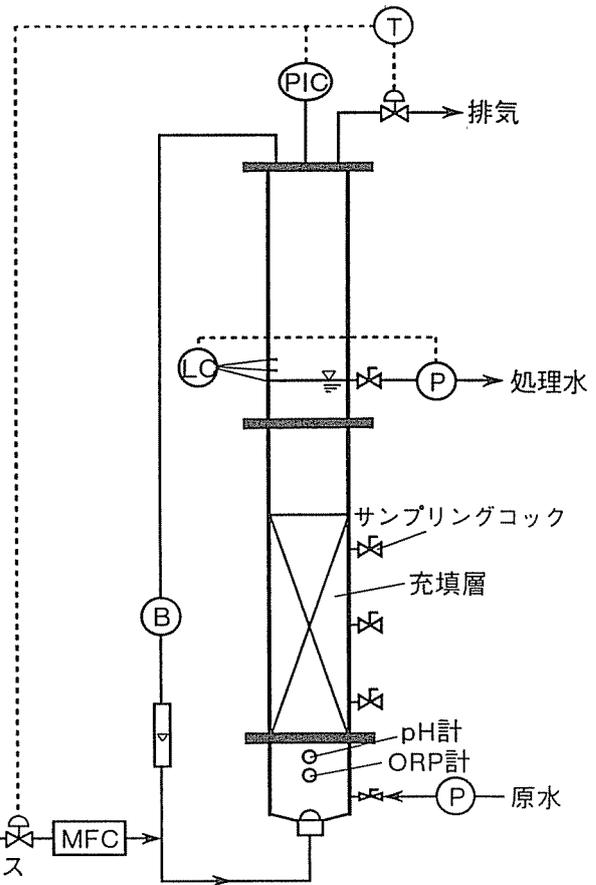


図3 連続通水実験装置の概要
(φ120mm×1,500mm^H:有効容積12ℓ)

表2 水素ガス利用脱窒菌の計測方法

培地組成 (mg/ℓ)		培養条件		MPN判定指標
KNO ₃	1,000	方式	密閉培養式	培養試験管内の ガス減少量で判定 陽性 > 2 mℓ > 陰性
MgCl ₂ ·6H ₂ O	413	置換ガス	H ₂ : 50%, N ₂ : 50%	
Fe(NH ₄)C ₆ H ₅ O ₇	50	培養温度	30±2℃	
KH ₂ PO ₄	2,300	振とう時間	100min ⁻¹ (横置き)	
CaCl ₂ ·2H ₂ O	10	培養日数	2週間	
Na ₂ HPO ₄ ·12H ₂ O	5,800			
NH ₄ Cl	1,000			
NaHCO ₃	500			

4. 結果及び検討

4.1 水素ガス利用脱窒汚泥の基本除去性能

回分実験結果を図5に示す。実験は同一条件で2回繰り返して行い、その平均値をプロットした。硝酸性及び亜硝酸性窒素濃度は経過時間とともに低下し、水素ガス利用脱窒汚泥の場合は4時間、有機物利用脱窒汚泥では3時間で殆ど検出されなくなった。この結果から、それぞ

れの脱窒速度は $24.5\text{mg}/\ell\cdot\text{h}$, $35.3\text{mg}/\ell\cdot\text{h}$ と算出された。水素ガス利用脱窒菌の脱窒速度は有機物利用と比べ $20\sim 30\%$ 低いもの、有機物を添加せずに $20\text{mg}/\ell\cdot\text{h}$ 以上の比較的高い脱窒速度が得られることが分かった。

4.2 連続通水実験による性能評価

図3に示した小型装置を用いて連続通水実験を行った。結果を図6に示す。水素ガス馴養汚泥をシードした後、硝酸性窒素負荷 $5\text{mg}/\ell\cdot\text{h}$ で連続処理を開始した。その結果、運転開始直後から窒素除去率 95% 以上を得たため窒素負荷を順次上昇した。通水開始36日後から20日間にわたり窒素負荷 $20\sim 25\text{mg}/\ell\cdot\text{h}$ の条件で運転し、安定した除去性能を得た。この窒素負荷は、先に回分実験で得られた脱窒速度と同等であり、水素ガスを利用する本生物学的脱窒システムで良好な硝酸性窒素除去が可能であることが分かった。

通水開始52日目に、反応槽内の窒素濃度分布を調べた。結果を図7に示す。硝酸性窒素は充填層の中央部で $3\text{mg}/\ell$ にまで除去されており、上部で $1\text{mg}/\ell$ 以下であった。この状態は、充填層全体で脱窒反応が行われていないことを示しており、さらに負荷上昇が可能な見通しである。

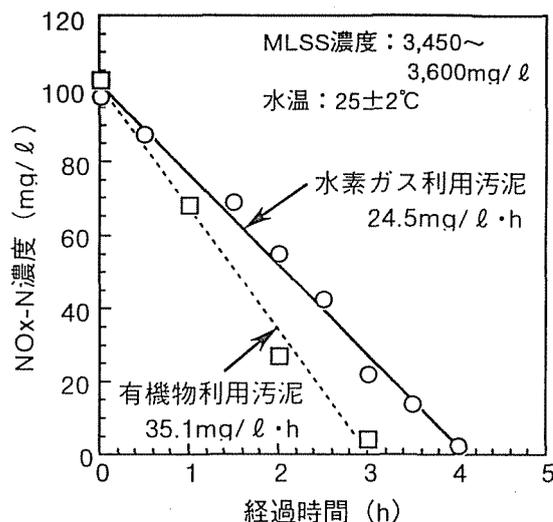


図5 回分実験による脱窒速度比較

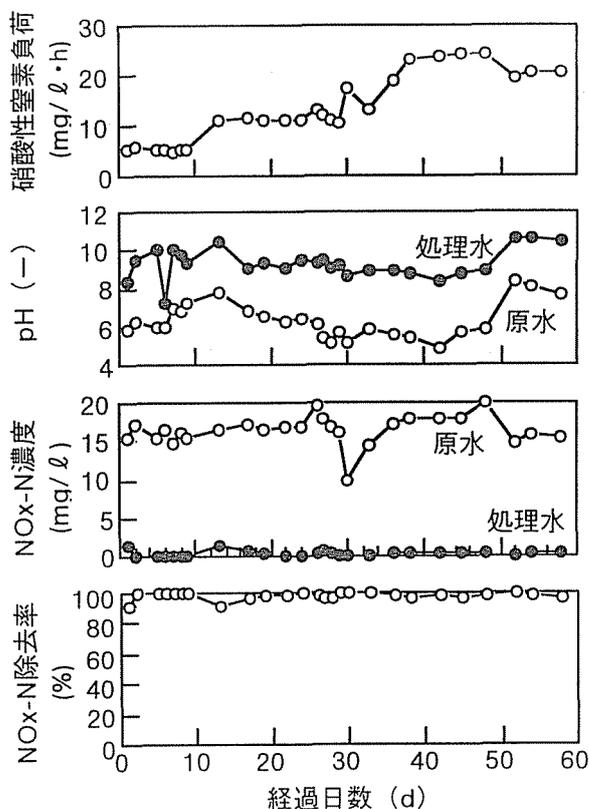


図6 連続通水実験結果

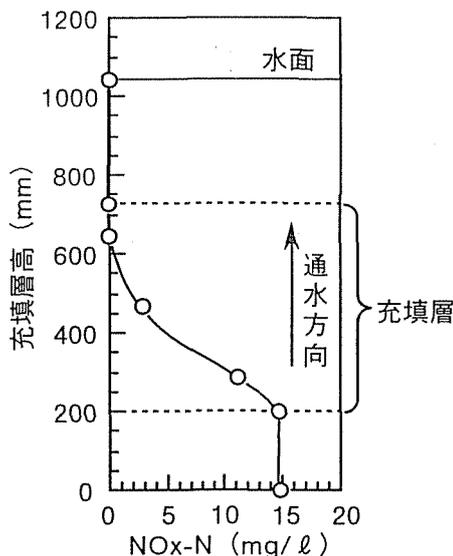


図7 反応槽内の窒素濃度分布

アンスラサイト表面の電子顕微鏡観察結果を図8に示す。充填層内には2 μm 程度の桿菌が生息しており、層下部は特に細菌が密集していた。付着脱窒菌数をMPN法で計測し図中に付記した。脱窒菌数は層上部で $8.5 \times 10^3 \text{ cells/m}\ell$ -保持材であった。これに対して層下部は $4.0 \times 10^5 \text{ cells/m}\ell$ -保持材と約50倍計測され、脱窒反応が活発に行われていると判断できる。なお、本実験は水素含有ガスを槽内に120~180m/hで循環するため、汚泥蓄積による充填層の閉塞は認められなかった。

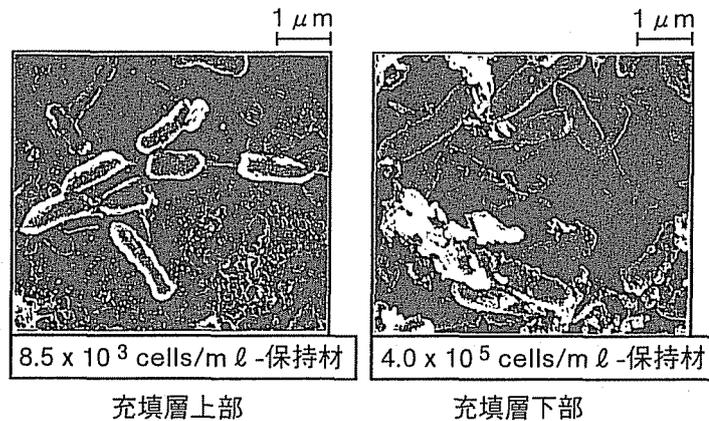


図8 アンスラサイト表面観察写真

5. まとめ

地下中に含まれる硝酸性窒素除去法として水素ガスを利用する生物学的脱窒法を検討し、以下の知見を得た。

- (1) 水素ガスで連続馴養した脱窒汚泥を用いて回分実験を行い、脱窒速度として $24.5 \text{ mg}/\ell \cdot \text{h}$ を得た。
- (2) 脱窒反応で消費された水素ガスを間欠供給する小型実験装置を用い、硝酸性窒素負荷 $20 \sim 25 \text{ mg}/\ell \cdot \text{h}$ の条件で20日間にわたり除去率95%以上の安定した性能を得た。
- (3) 充填層内には2 μm 程度の桿菌が生息しており、層下部では脱窒菌数として $4.0 \times 10^5 \text{ cells/m}\ell$ -保持材が計測された。

6. 参考文献

- 1) 日本水道協会：平成4年度水道統計水質編
- 2) 宇田川ほか：水素ガス利用脱窒菌の計測に関する一考察，第33回環境工学フォーラム(1996)