

5.2 電気透析と生物脱窒装置による硝酸性窒素除去システム（福岡県）

(1) 浄化サイトの概要

浄化サイト（図 5-2-1）は福岡県南部地域の砂礫質の丘陵（中位段丘）に位置し、表層土壌は腐植質黒ボク土壌である。上面の傾斜度は3度未満とほぼ平坦な地形である。年降水量は1,887mm（平年値）、年平均気温は16℃と温暖な気候であり、丘陵地区一帯では茶、果樹の栽培が行われている。

試験井戸は8mの浅井戸で、過去に30mg/Lを超える硝酸性窒素が検出されている。試験井戸の集水域では茶の栽培が行われており、集水域の表流水は灌漑用溜池に流入している。地下水の流れは地形から東から西の方向に流れていると推測される。試験地の集水域の面積は4.4haであり、集水域内には人家がなく、畑地面積は3.5haと集水域全体の80%を占めていた。試験井戸の硝酸性窒素は茶畑で施用されている窒素肥料に由来すると推定される。

汚染地下水の硝酸性窒素を除去する目的で、電気透析装置と生物脱窒装置を組み合わせた硝酸性窒素除去システム（神鋼パンテック社）を試験井戸の傍に設置した。

地下水の流下方向と考えられる試験井戸の西方に位置するA観測井戸及びB観測井戸についても硝酸性窒素濃度が高かったため、浄化システムの実験中において水質モニタリングを行った。



図 5-2-1 浄化サイトの位置図

(2) 試験地選定の背景

実証試験を実施した丘陵地帯では、梅雨期に溜池の pH が低下する酸性化現象が昭和 61 年頃から見られるようになった。丘陵地帯で pH が低下する溜池群の水質は硝酸性窒素が 10mg/L を超える高い濃度であった。原因を調査した結果、丘陵地帯に多く分布する茶畑で施用される硫安などの窒素肥料が原因と推定された。

茶畑から流出する窒素フローを把握するために、丘陵地帯の東に位置する茶園（図 5-2-2）で窒素フローの調査を平成 9 年～平成 11 年に行った。試験地では砂防堤下から硝酸性窒素濃度の高い湧水が流出しており、集水域の殆どが茶畑である。砂防堤の下流に水位計を設置し、2 年間にわたり継続的に流量測定を実施した。茶畑での窒素施肥量、窒素流出負荷量などを基に、茶畑での窒素フロー（図 5-2-3）を推定した。

茶畑の年窒素施肥量（図 5-2-4）は 1 年目（第 1 調査年）が 1,192kg/ha であったが、2 年目（第 2 調査年）には 810kg/ha に削減された。これに伴って湧水の硝酸性窒素濃度の年平均値（図 5-2-5）も 34mg/L から 29 mg/L まで減少した。

今後、湧水の硝酸性窒素濃度を環境基準値 10mg/L まで低下させるには、更に窒素施肥量を削減することが必要になる。茶の品質を保持しながら減肥を行うという課題が茶栽培農家に認識されるようになり、年窒素施肥量を 500kg/ha レベルまで削減することを目標としている。

当初、図 5-2-2 の窒素フロー調査試験地で浄化システムの実証試験を行うことを検討したが、設置場所の確保ができなかったため、用地、電気施設などの条件が整っている現浄化サイトを選定した。

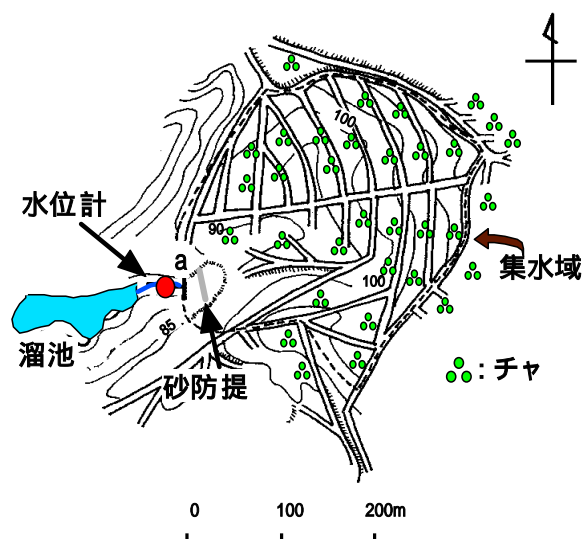


図 5-2-2 窒素フロー調査試験地

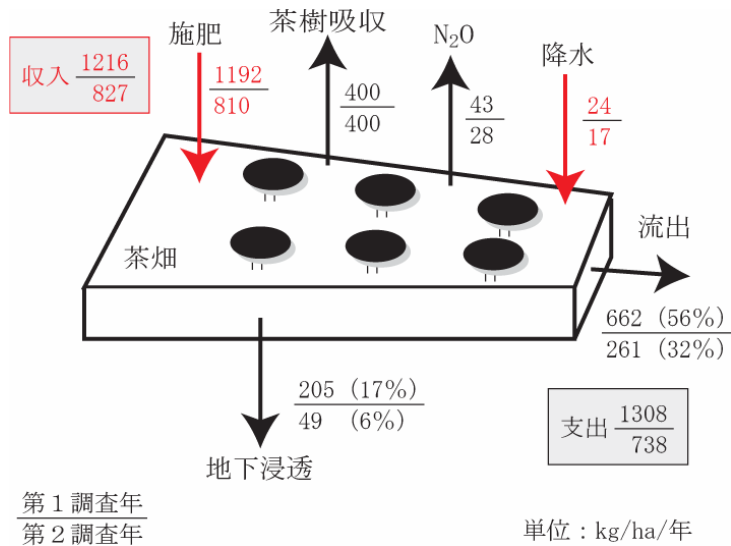


図 5-2-3 試験地の窒素フロー

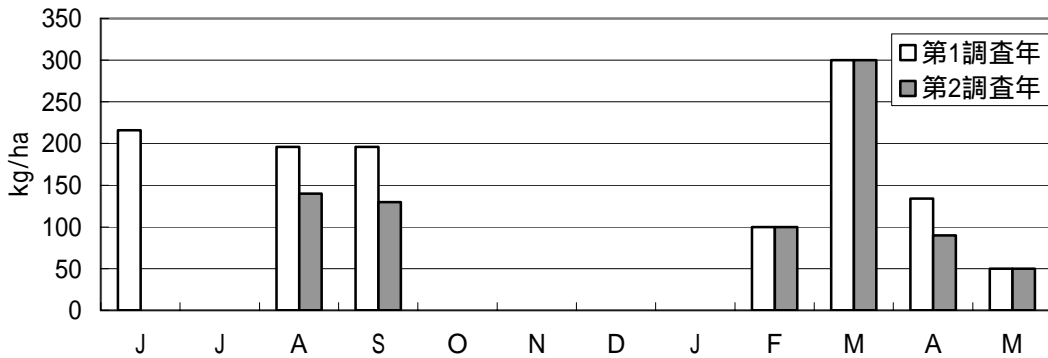


図 5-2-4 試験地の窒素施肥量

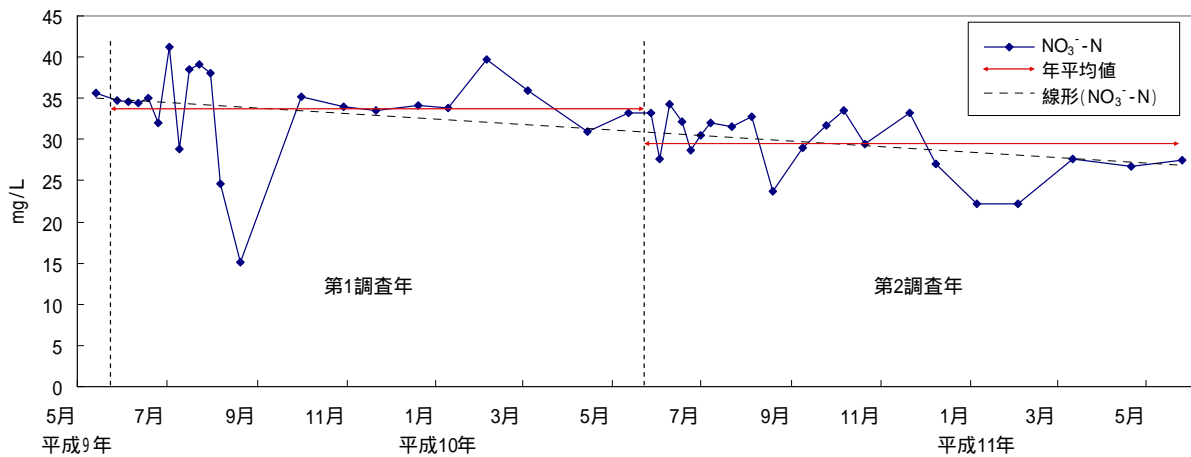


図 5-2-5 茶畑流出水（湧水）の時系列変化

(3) 浄化技術の概要

本硝酸性窒素浄化システムは極性転換方式の電気透析装置とグラニユール方式の生物脱窒装置から構成される。

1) 電気透析装置

電気透析法の原理図を図 5-2-6 に示す。電気透析とはイオンだけを通すことのできるイオン交換膜と電極からなり、電気エネルギーにより原水中のイオンをイオン交換膜を通過させて取り除く方法である。溶液中に陽極と陰極を入れ、その間に陽イオン交換膜と陰イオン交換膜を交互に配列する。陽イオン交換膜は陽イオンを通過させるが陰イオンを通過させず、陰イオン交換膜は陰イオンを通過させるが陽イオンを通過させない選択特性をもつ。このため、イオン交換膜間にはイオンが少なくなるのと、多くなる場所が交互に存在するようになる。原水として地下水を用いる場合に、硝酸性窒素が陰イオンであることから、これにより硝酸性窒素の除去された浄化水（生成水）と濃縮水に分離される。その際、透析槽の濃縮液室にアルカリスケールなどが発生するので一定の時間毎に極性転換（EDR：Electro Dialysis Reversal）を行い、電氣的に自己洗浄をする。

これにより、スケール防止用の薬品注入が不要になり、洗浄回数を減らすことができるため、維持管理費が縮減される。

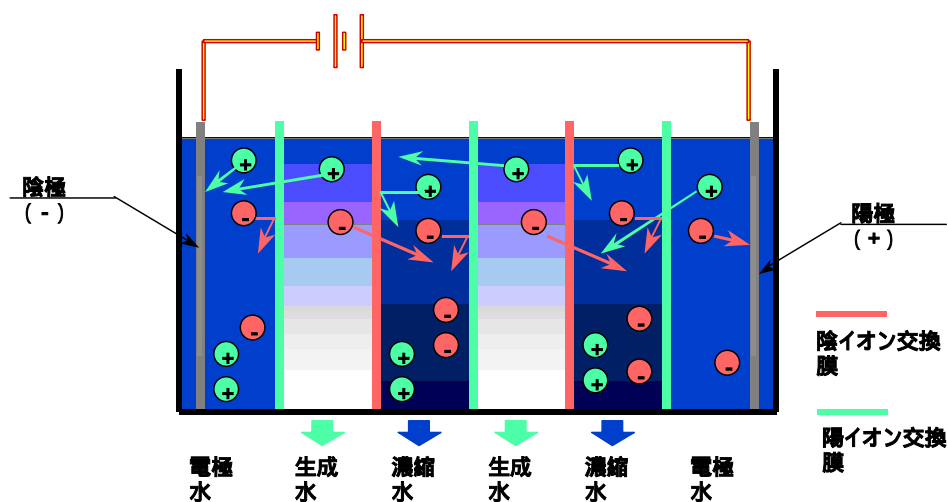


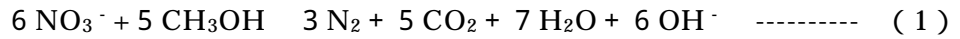
図 5-2-6 電気透析の原理

2) 生物脱窒装置

自己造粒化したグラニュール状の脱窒菌を用いて、排水中の硝酸性窒素を窒素ガスに還元除去する方法である。

グラニュール方式脱窒槽の概要を図 5-2-7 に示す。脱窒槽はグラニュール汚泥が保持されているベット部と発生ガスの捕集及びグラニュール汚泥の流出を防ぐ GSS 部（Gas Solid Separator）で構成されている。原水は槽下部から流入し、グラニュール汚泥と接触しながら上昇する間に硝酸性窒素は除去され、処理水として上部から流出する。

生物脱窒反応には有機物等の水素供与体が必要であり、本装置ではメタノールを使用し、脱窒槽に供給している。この反応式を（1）式に示す。



脱窒菌の働きによりメタノールは水と二酸化炭素に分解され、原水中の硝酸性窒素は窒素に還元され、発生ガスとして系外に排出される。所要メタノール量は理論値で $1.9\text{g/gNO}_3\text{-N}$ となる。地下水の生物脱窒処理ではリンがほとんど含まれていないため、メタノールの他にリン酸を脱窒槽に供給する必要がある。

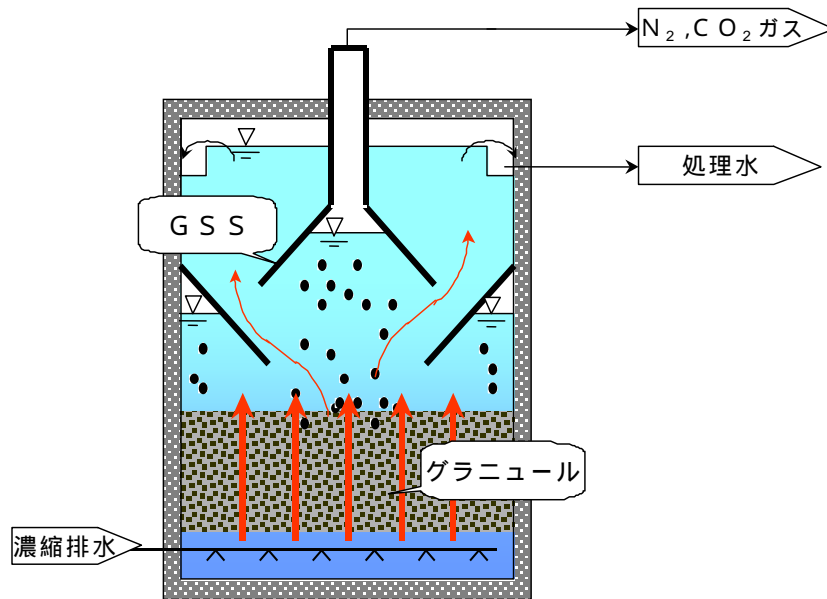


図 5-2-7 生物脱窒装置

(4) 浄化実証試験

1) 実証試験の方法

浄化システムを試験井戸近傍に設置し、1年間(平成12年1月～平成13年2月)の連続試験を行った。なお、生物脱窒装置の脱窒汚泥の馴化を行うため、連続試験の前に1ヶ月の馴養運転をした。

浄化システムのフローシートを図5-2-8に示す。試験井戸から汲み上げられた地下水は 12m^3 の貯水槽に導入され、この貯水槽の水は配管で施設の原水貯受槽に導水され、 $10\mu\text{m}$ の保安フィルターでろ過された後、電気透析槽に連続的に供給される。電気透析後、生成水と濃縮排水が排出されるが、生成水は放流水槽に導入され、濃縮排水は濃縮排水槽に導入される。濃縮排水はメタノールとリン酸を添加した後、生物脱窒処理槽で処理される。脱窒槽の pH コントロールは硫酸を用いる。曝気槽は脱窒過程で過剰となったメタノールを好気生物処理するためのもので中空円筒状担体が充填されている。曝気槽処理水は沈殿槽を経て放流水槽に導入され、電気透析生成水と合流、混合された後、近隣の溜池に放流される。

なお、放流時の硝酸・亜硝酸性窒素濃度が環境基準値の 10mg/L 以下になるよう留意して浄化システムの運転が行われた。

試験に用いた電気透析装置と生物脱窒装置の緒元を表 5-2-1 及び表 5-2-2 に示す。なお、本電気透析槽は陽イオン交換膜、陰イオン交換膜ともポリスチレンをベースとした、有効面積 $0.149\text{m}^2/\text{枚}$ の膜が使用されている。膜は合計 108 枚で、全膜有効面積は 16.1m^2 である。また、電気透析槽の電極には白金メッキしたチタン板が使用されている。原水の硝酸性窒素濃度 42mg/L に対し、生成水の硝酸性窒素濃度の処理目標値を 7mg/L に設定し運転を行った。

生物脱窒槽は、内径 250mm 、高さ $1,300\text{mm}$ 、有効容積 0.1m^3 の円筒形リアクターである。濃縮排水の硝酸性窒素濃度の設定値を 370mg/L とし、脱窒処理水の硝酸性窒素の処理目標値を 15mg/L として運転を行った。

試験は、浄化システムの試験井戸、生成水槽、濃縮排水槽、循環水槽（脱窒処理水）、沈殿槽（沈殿処理水）及び放流槽で水質のモニタリングを行った。積算水量計を設置して、試験井戸からの揚水量を把握した。

また、放流先の溜池水質、地下水の流下方向にある観測井戸（A、B）の水質モニタリングも併せて実施した。

モニタリング調査は月 1 回ないし 2 回の頻度で行った。

なお、水収支、窒素収支法による浄化効果の評価を行うために、現地の降水量、気温に関するデータの収集を行った。

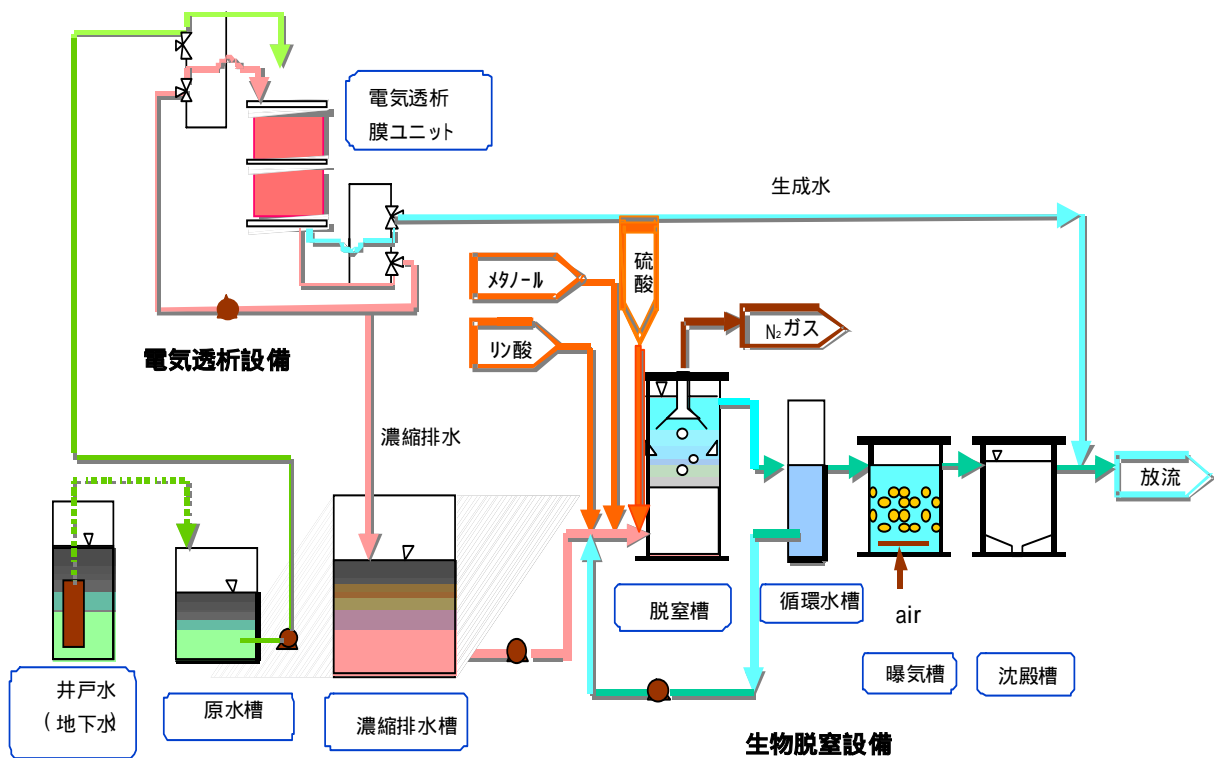


図 5-2-8 硝酸性窒素浄化システム試験フローシート

表 5-2-1 電気透析装置の緒元

原水 NO ₃ -N 濃度	42mg/L
生成水 NO ₃ -N 濃度	7 mg/L
方式	極性転換方式
電気透析槽	膜サイズ (46cm×51cm)
	膜有効面積(0.149m ²)
	膜対数 (108 セルペア)
	全膜有効面積(16.1m ²)
電極 (白金メッキタ板)	
原水槽	有効容積 300L
必要電力	200V, 3 相
設置方法	屋内設置
設置所要面積	12m ²

表 5-2-2 生物脱窒装置の緒元

濃縮排水 NO ₃ -N 濃度	370mg/L
脱窒処理水 NO ₃ -N 濃度	15mg/L
方式	グラニュール式
EDR 濃縮排水槽	有効容積 200L
調整槽	有効容積 75L
生物脱窒槽	有効容積 100L
曝気槽	有効容積 34L
沈殿槽	有効容積 50L
放流槽	有効容積 50L
必要電力	200V, 3 相
設置方法	屋内設置
設置所要面積	13.5m ²

2) 実証試験の結果

ア) 浄化システムの水質

浄化システムの各段階における水質分析結果の平均値を表 5-2-3 に示す。電気透析装置により、生成水及び濃縮排水の硝酸性窒素濃度はそれぞれ 8.53mg/L、361 mg/L に分離された。濃縮排水の硝酸性窒素は生物脱窒装置で脱窒され、脱窒処理水で 31.2 mg/L、更に沈殿処理水で 22.7 mg/L まで減少した。生成水と沈殿処理水は合流し、硝酸性窒素濃度 9.81 mg/L の放流水として溜池に排出された。図 5-2-9 に示すように硝酸性窒素の環境基準 10 mg/L 以下で放流するという処理条件は平均値で一応達成された。

濃縮排水には、カルシウムイオン、マグネシウムイオン、ナトリウムイオン、カリウムイオン、塩化物イオン及び硫酸イオンなどが原水の 6 ~ 10 倍程度に濃縮され、含まれていた。

脱窒処理水において全リン、リン酸性リンが検出されたが、これは生物脱窒装置に添加したリン酸に由来しているものと思われ、放流水においては低濃度であった。また、同様に脱窒処理水における溶存有機炭素 (DOC) 量の増加も認められた。これは生物脱窒装置に添加したメタノールの余剰分を検出しているものと思われた。

放流水の DOC は低濃度であった。

表 5-2-3 浄化システムの水質平均値

試料名	水温 ()	DO (mg/L)	pH	EC (μ S/cm)	Ca ²⁺ (mg/L)	Mg ²⁺ (mg/L)	Na ⁺ (mg/L)	K ⁺ (mg/L)	DOC (mg/L)
試験井戸水	17.1	7.9	6.1	443	30.5	15.8	10.8	1.9	0.9
生成水	17.9	8.5	6.1	100	4.7	2.9	5.9	0.8	0.7
濃縮排水	17.7	8.7	7.0	2,940	300	152	59.7	13.7	1.3
脱窒処理水	19.5	3.9	7.7	1,800	148	138	54.9	12.9	108
沈殿処理水	18.1	4.3	7.9	1,560	97.1	134	52.3	11.8	80.4
放流水	17.6	7.8	7.4	246	10.9	12.1	9.4	1.5	5.0

試料名	Cl ⁻ (mg/L)	SO ₄ ²⁻ (mg/L)	T N (mg/L)	NH ₄ N (mg/L)	NO ₂ N (mg/L)	NO ₃ N (mg/L)	N ₂ O N (μ g/L)	T P (mg/L)	PO ₄ P (mg/L)
試験井戸水	11.6	9.2	42.8	0.03	0.01	42.5	17.5	0.023	0.012
生成水	2.5	1.5	8.69	0.02	0.01	8.53	9.05	0.012	0.008
濃縮排水	100	89.4	371	0.05	0.01	361	7.20	0.078	0.078
脱窒処理水	92.3	169	34.4	0.42	1.63	31.2	8,040	0.435	0.254
沈殿処理水	88.3	156	26.5	0.19	1.72	22.7	559	0.233	0.104
放流水	9.3	8.0	10.3	0.03	0.18	9.81	20.6	0.035	0.015

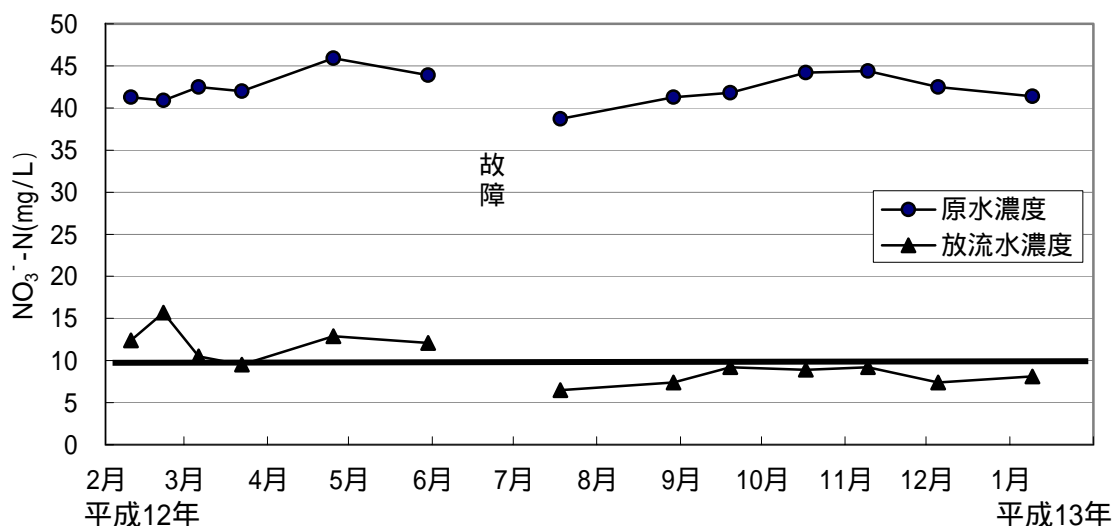


図 5-2-9 試験井戸及び放流水の硝酸性窒素濃度の変化

イ) 処理能力の季節変化

図 5-2-10 に月毎の脱窒量の変化を示した。夏季に比べて冬季に脱窒量が著しく減

少した。冬季に脱窒量が減少しているのは、気温の低下による脱窒菌の脱窒活性の低下が原因の一つと考えられた。

実績処理水量と月平均気温の季節変化を図 5-2-11 に示した。夏季は 11.79m³/日の処理水量であったが冬季は 3.13 m³/日まで低下した。生物脱窒装置での脱窒能は温度の影響を受け、かつ装置内で加温しなかったので処理能力の季節変化が顕著に現われた。

原水と放流水の全窒素濃度の差分と処理水量の積から浄化システムの窒素除去量を算定した結果、1年間の窒素除去量は 96.2kg/年と推計された。

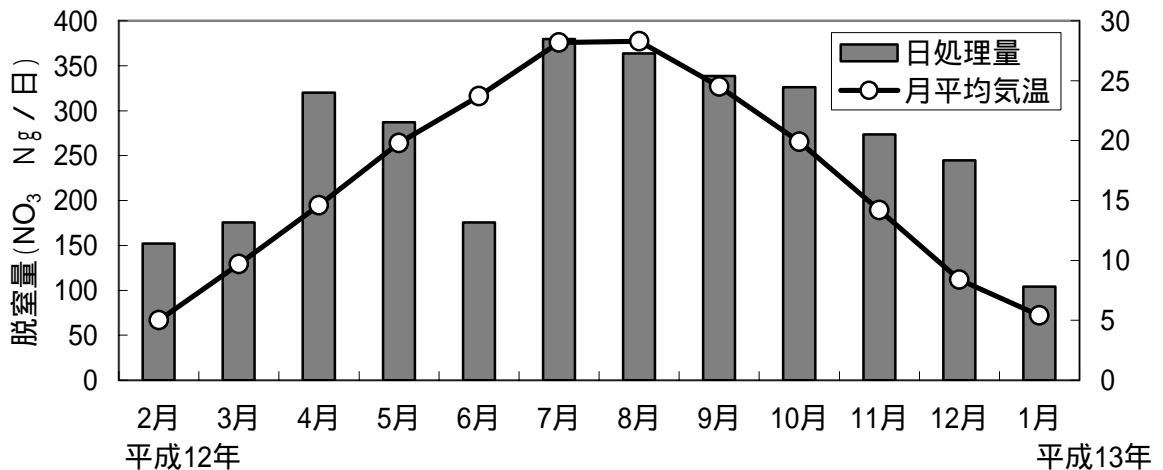


図 5-2-10 脱窒量の季節変化

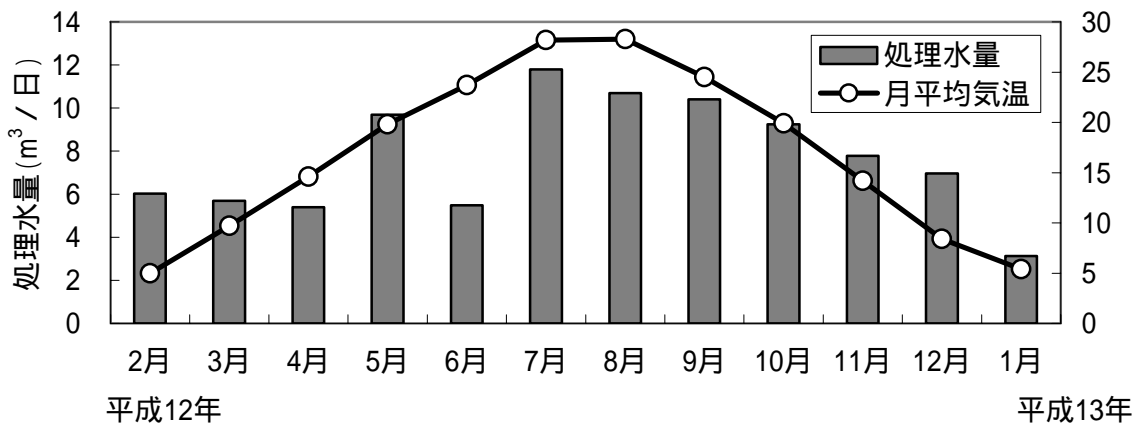


図 5-2-11 処理水量の季節変化

ウ) 溜池の水質

放流先の溜池の水質調査は平成 7 年、平成 8 年に実施した。過去の調査結果によると、溜池の T P と COD には図 5-2-12 に示すような相関がみられることから、溜池はリン制限と推定された。実証試験中の溜池の T P の平均濃度は図 5-2-13 に示すように平成 7 年、平成 8 年当時とあまり変化してないことから、浄化システムの溜池水質への影響は少ないと考えられた。

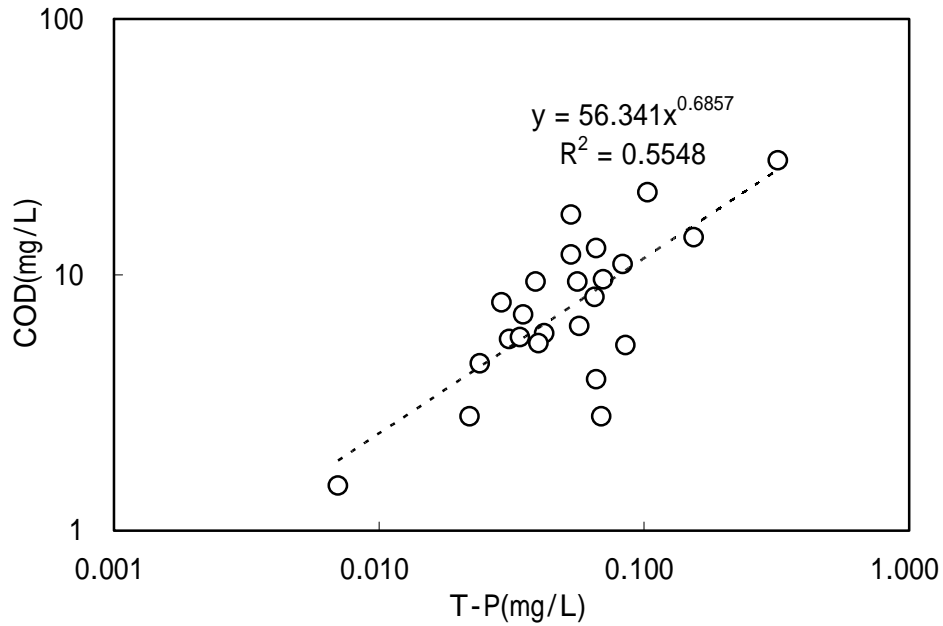


図 5-2-12 溜池の T-P と COD の相関

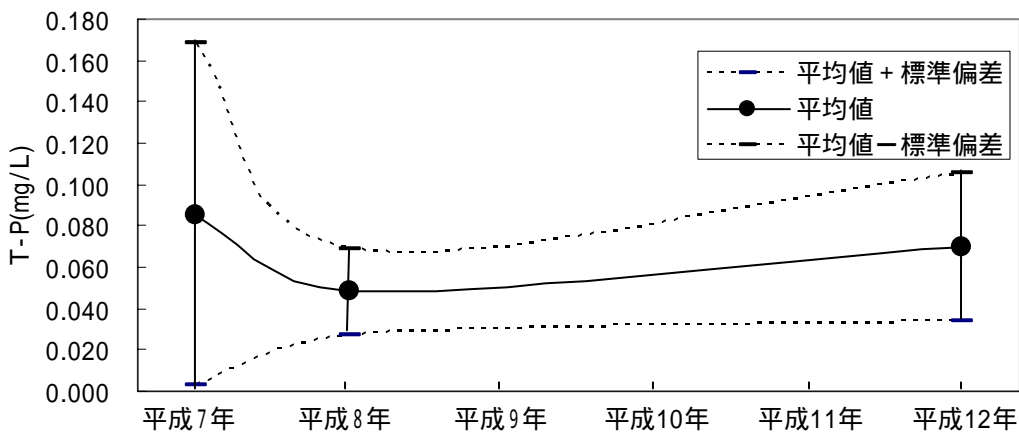


図 5-2-13 溜池の T-P の変化

エ) 観測井戸の水質

浄化システムの効果を検討するために、試験井戸及び観測井戸（A、B）の硝酸性窒素濃度の変化を図 5-2-14 に示した。3カ所の井戸ともに硝酸性窒素濃度が30mg/Lを超えていた。

図 5-2-15 に示す各井戸の硫酸イオンの濃度レベルは、試験井戸と B 観測井戸では類似しているが A 観測井戸は試験井戸とかなり異なっていることが示された。このため、試験地での窒素除去の効果は B 観測井戸の水質に影響すると考えた。

しかしながら、B 観測井戸の硝酸性窒素濃度の変動係数は平均濃度の 8.5% と大きいこと、試験井戸との距離が 250m ほど離れていることから、調査期間において浄化システムの効果は観測できなかった。

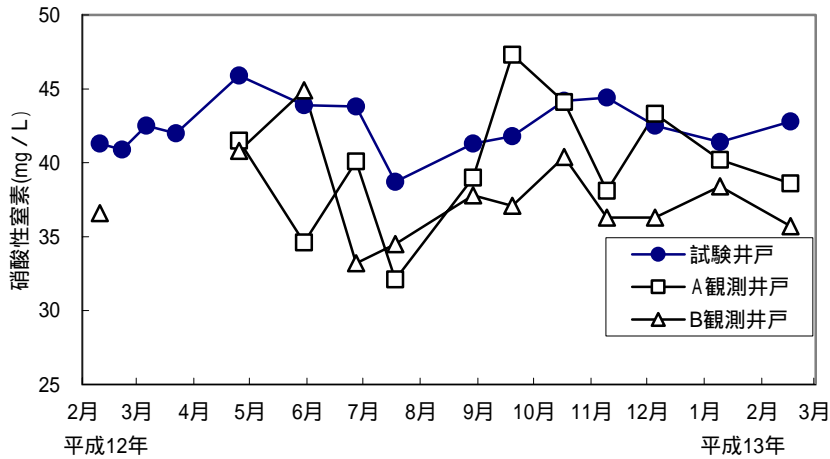


図 5-2-14 観測井戸の硝酸性窒素濃度の変化

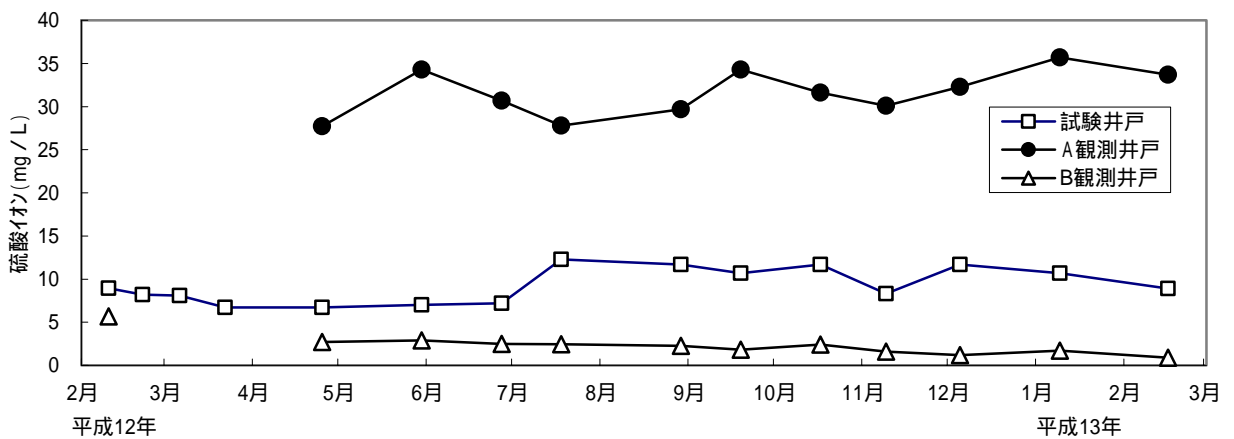


図 5-2-15 観測井戸の硫酸イオン濃度の変化

3) 浄化効果

集水域 4.4ha のうち茶畑が 3.5ha を占めている。その他の地域は、降水以外には殆ど窒素負荷が無視できると考えた。窒素負荷量は次のように求めた。

降水からの窒素負荷量

日降水量と日窒素負荷量との間の回帰式を用いて、年間の降水量のデータから推計した。降水からの窒素負荷量は 16.8kg/ha/年と推定した。

施肥による窒素負荷量

集水域の茶栽培農家 29 戸に対して施肥量に関するアンケート調査を行い、集水域全体の作付け面積の 70.8% に相当する回答が得られた。アンケート調査による窒素施肥量の平均値を基に茶畑全体の施肥量を求めた。窒素施肥量は 620kg/ha/年と推計した。

作物の窒素吸収量

文献値から茶樹の窒素吸収量を 400kg/ha/年とした。

脱窒による消失

茶畑土壌の pH は 3 ~ 5 程度と一般に酸性化されているため、アンモニアとしての揮散は無視できると考えられる。また、酸性土壌では、硝酸イオンの多くは亜硝酸性窒素の段階で脱窒反応が制限されていると考えられる。文献値から、窒素施肥量の 3.46% が亜酸化窒素として放失されているものとして計算し、脱窒量を 21.4kg/ha/年と推定した。

地下浸透窒素量

地下浸透窒素量は、表面流出量がないものと仮定して、次の窒素収支を示す式から計算した。この結果、地下浸透窒素量は 220kg/ha/年であると推計した。

$$\text{地下浸透窒素量} = \text{窒素施肥量} + \text{降水からの窒素負荷量} - \text{茶樹吸収量} - \text{脱窒量}$$

以上の窒素収支の計算結果から浄化システムの評価を行った。試験地の窒素収支を図 5-2-16 に示す。

浄化システムの稼働により、96 kg/年の窒素が除去された。これを集水域の茶畑栽培面積 3.5ha に換算すると 27 kg/ha/年の窒素量が除去できたことになる。これは、地下浸透窒素量の 220kg/ha/年の 12% に相当する。

気象データから、水収支計算を行うと、地下浸透量は 984mm と推計された。地下水の硝酸性窒素の環境基準 10mg/L 以下のレベルを達成するのに、更に地下浸透窒素量 122kg/ha/年の除去が必要になる。これは、実証試験で用いた浄化施設の約 5.5 倍の規模に相当する。

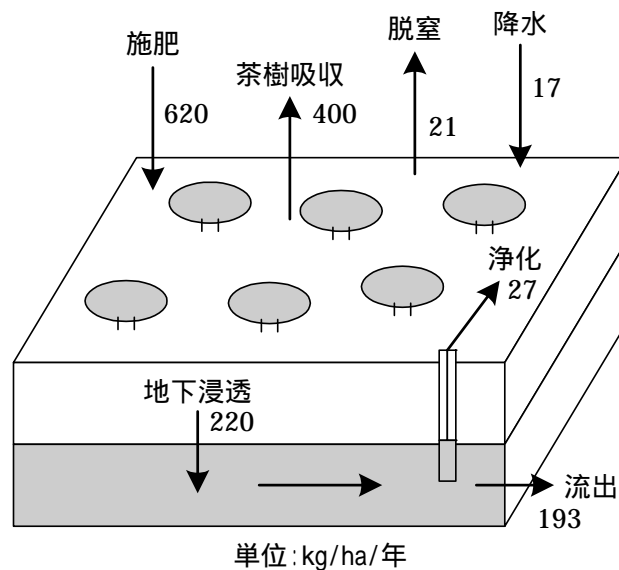


図 5-2-16 試験地の窒素収支

(5) 課題

1) 技術的課題

生物脱窒槽の脱窒反応は温度の影響を受けやすく、冬季の低温時には脱窒活性が著しく低下し、処理能力が低下する。生物脱窒槽の処理効率が浄化システム全体の処理効率の律速となるため、地下水の保温対策を行うことによって、冬季の処理効率の低下を防ぐことができる可能性がある。

また、施肥による硝酸性窒素汚染井戸水の場合には、硝酸性窒素の他に高い濃度のカルシウムイオン、マグネシウムイオンなどが共存している。このため電気透析での濃縮過程で硝酸性窒素と共にカルシウムイオンなども濃縮され炭酸カルシウムの沈殿物が反応槽内に生成することで、除去効率の低下を招く。ただし、この問題については、硫酸による槽内の pH 調整によってある程度緩和できると思われる。

更に、脱窒過程で温室効果ガスの一つである亜酸化窒素が高いレベルで検出されることがあり、亜酸化窒素の発生を抑制できる運転条件の検討が必要と考える。

2) 経済的課題

実証試験の結果から、処理水量 11.1m³/日の施設規模で建設費が 86,400 千円、運転費が 1,245 千円/年と算定された。この結果に基づいて、処理水量を 5 倍（ケース 2）、25 倍（ケース 3）にスケールアップした場合について、また、電気透析装置を用いずに生物脱窒装置のみで対応した場合（ケース 4）について建設費（表 5-2-4）と運転費（表 5-2-5）を試算した。

建設費は原水水量が多くなるほど処理水量当たりの建設費は安くなる。ケース 1 とケース 3 では約 12 倍の差が生じる。運転費についても同様に、処理原水量が多くなるほど安くなりケース 1 とケース 3 では約 5 倍の差が生じる。原水濃度が高い場合は、ケース 4 の生物脱窒処理単独で対応する場合は処理水量の同じケース 2 と比較して建設費が約 1/3、運転費は約 1/2 になる。

しかしながら、ケース 2 で茶畑 1 ha 当たりの費用に換算すると、建設費が 32,570 千円、運転費が 627 千円/年となる。農家だけでは費用の負担が大きすぎるので、水道水源として生成水を利用するなど地域全体で費用を分担するなどのシステムづくりが重要となる。

表 5-2-4 建設費試算結果

		ケース 1	ケース 2	ケース 3	ケース 4
処理原水量	m ³ /日	11.1	55.6	277.8	55.6
建設費 (千円)	電気透析設備	42,000	60,000	102,000	0
	生物脱窒設備	32,400	36,000	54,000	38,000
	土木、建築設備	12,000	18,000	27,600	2,500
	設備全体	86,400	114,000	183,600	40,500
建設費比率	電気透析設備	0.486	0.526	0.556	0.000
	生物脱窒設備	0.375	0.316	0.294	0.938
	土木、建築設備	0.139	0.158	0.150	0.062
処理水量当たり建設費(千円/m ³)		7,784	2,050	661	728

表 5-2-5 運転費試算結果

		ケース 1	ケース 2	ケース 3	ケース 4
処理原水量	m ³ /日	11.1	55.6	277.8	55.6
運転費 (円/年)	電気透析設備	842,040	1,241,640	2,723,400	0
	生物脱窒設備	402,577	954,155	3,938,336	938,023
	合計	1,244,617	2,195,795	6,661,736	938,023
運転費比率	電気透析設備	0.68	0.57	0.41	0.00
	生物脱窒設備	0.32	0.43	0.59	1.00
処理水量当たりコスト(円/m ³)		311.5	109.7	66.6	46.9
茶畑 1ha 当たりコスト(万円/ha/年)		35.9	63.2	191.8	27.0

注) 設備稼働日数は 360 日/年として計算。