

オゾン処理における水中有機物と微生物の競合作用に関する検討

松阪市役所 正会員 ○川合 生子
 茨城大学工学部 正会員 神子 直之

1. 研究の背景と目的

水道水に対する安全確保のため、日本では長年にわたり塩素消毒を用いてきた。しかし、有害な副生成物の発生などの塩素消毒に由来する問題が浮上してきたため、塩素消毒に替わる処理技術としてオゾン処理が導入されるようになった。

オゾンと水中物質との反応は酸化だけではなく種々の反応が複雑に進行していると考えられ不明な点が多く、運転に必要な情報が整理されていない。また、一般的には微生物の不活化はオゾン濃度と接触時間の積：Ct値で議論されるが、実際には水質因子の影響を受けるとされている。

そこで本研究では、水質因子(有機物)の影響を考慮した微生物不活化の反応理論式を構築し、実験の数式化を目的に研究を行った。

2. 有機物の影響を考慮したオゾンによる微生物不活化

2.1 実験方法

有機物としてシュウ酸ナトリウム($\text{Na}_2\text{C}_2\text{O}_4$)、微生物としてF特異RNA大腸菌ファージQ β を用い、回分式実験を行った。飽和して一定濃度になったオゾン溶液を精製水に適量注入することによって初期オゾン濃度に調整した。そのオゾン溶液に対してファージ懸濁液を1/10000量、シュウ酸ナトリウム溶液を設定TOC濃度になるように注入した。緩やかに攪拌しながら経時的に採水し、生残Q β 濃度、残留オゾン濃度、TOCを測定した。生残Q β 濃度は二層寒天法、残留オゾン濃度はインジゴカルミンによる吸光度法により測定した。実験装置を図1、初期条件を表1示す。

2.2 実験結果

実験結果を図2、3に示す。残留オゾン濃度は、どのRUNも最初の計測時(1min)までに急激に減少した。その後の減少速度はゆっくりしたものとなった。しかし、測定限界に近く測定が不確かであると判断した。生残Q β 濃度はどのRUNも最初の計測時(1min)までに急激に不活化が進行したが、その後は進行せず一定の値

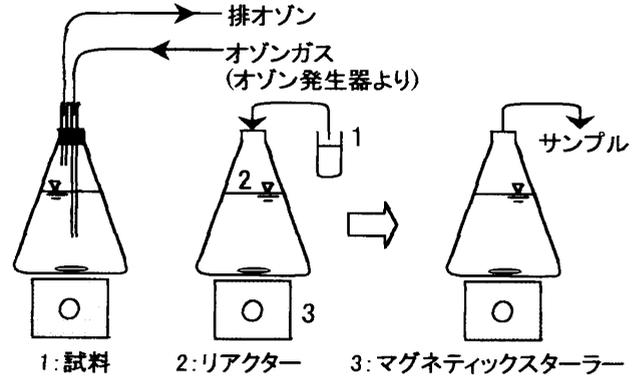


図1 実験装置

表1 初期条件

RUN	初期オゾン濃度	初期TOC濃度	初期Q β 濃度
	mgO $_3$ /L	mgC/L	PFU/mL
1	1.15	11.16	1.3×10^5
2	1.44	21.24	1.3×10^5
3	1.14	56.11	1.3×10^5
4	1.31	148.8	1.3×10^5

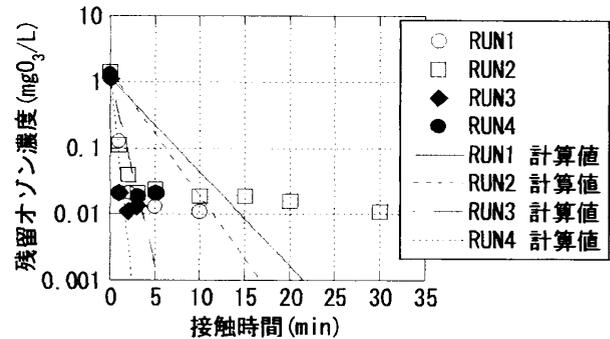


図2 残留オゾン濃度の経時変化

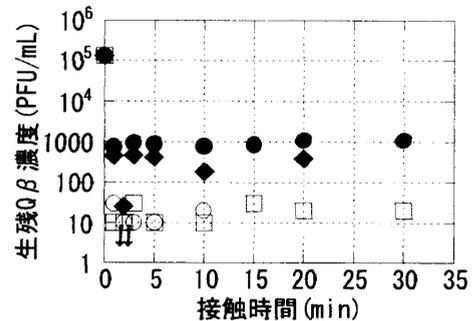


図3 生残Q β 濃度の経時変化

となった。初期TOC濃度が高いRUNほど最終Q β 濃度は高いことから、有機物はQ β の不活化を抑制する働きがあると判断された。

2.3 残留オゾン濃度減少速度に関する検討

初期オゾン濃度をx軸に、初期条件を変化させ2.1

キーワード オゾン処理、消毒、F特異RNA大腸菌ファージQ β 、有機物

連絡先 〒316-8511 日立市中成沢町4-12-1 茨城大学都市システム工学科

と同様に実験を行い求めた残留オゾン濃度の減少速度の傾きを y 軸に、初期 TOC 濃度ごとに 1 つの系としてプロットすると図 4 のようになった。残留オゾン濃度の減少速度はオゾンが高濃度の変化式から一次反応を仮定できるので、最もプロット数の多い TOC=11mg/L の系で両対数グラフ上において回帰直線を描かせると、傾きはほぼ -1 となった。ほかの系についてもほぼ平行に右上にシフトしていくことから、傾きが -1 であると仮定した。

各系の回帰直線の y 切片 (x = 1 の時の y の値) : a を求めた。

TOC=0mg/L	y=0.0223x ⁻¹	TOC=11mg/L	y=0.4025x ⁻¹
TOC=3mg/L	y=0.2262x ⁻¹	TOC=20mg/L	y=0.5962x ⁻¹
TOC=7mg/L	y=0.3627x ⁻¹	TOC=50mg/L	y=1.2723x ⁻¹

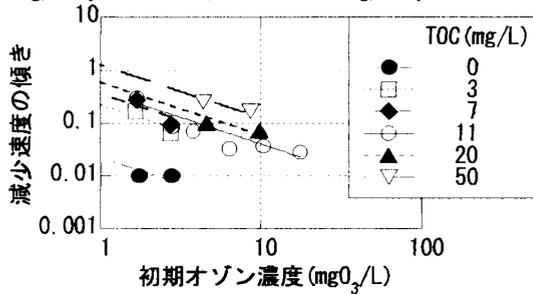


図 4 初期オゾン濃度と傾きの関係

求められた a を y 軸に、初期 TOC 濃度 (S₀) を x 軸にプロットすると直線になり以下の回帰式が得られた。

$$a = 0.112 + 0.0245 S_0$$

以上より、一次反応を仮定した残留オゾン濃度の減少速度の傾きを k₁ とすると

$$k_1 = (0.112 + 0.0245 S_0) \cdot (O_3|_{t=0})^{-1} \quad (1)$$

となり、残留オゾン濃度は以下のように表せる。

$$O_3|_{t=0} = O_3|_{t=0} \exp(-k_1 t) \\ = O_3|_{t=0} \exp\left(-\frac{0.112 + 0.0245 S_0}{O_3|_{t=0}} t\right) \quad (2)$$

(2) 式の計算値と実験値を比較すると (図 2)、RUN1・2 ではかなりずれがあるが、RUN3・4 では残留オゾン濃度の減少傾向はよく表せていることから、(2) 式を用いて残留オゾン濃度を表すこととした。

2.4 有機物の影響を考慮した Qβ 不活化速度式の推定

有機物の影響を考慮した Qβ 不活化速度式は接触時間 t における残留オゾン濃度 O₃ と生残 Qβ 濃度 N で表されるとしたとき、反応速度式は (3) 式のように表せる。

$$-\frac{dN}{dt} = k_2 \cdot O_3 \cdot N \quad (3) \quad k_2 : \text{定数}$$

残留オゾン濃度は (2) 式で表せ、(3) 式より接触時間 t に

おける生残 Qβ 濃度 N は以下のように表せる。

$$N = N_0 \exp\left[\frac{k_2}{k_1} \cdot O_3|_{t=0} \{\exp(-k_1 t) - 1\}\right] \quad (4)$$

ただし、N₀ : 初期 Qβ 濃度 (PFU/mL)、k₁ : (1) 式

ここで、Ct 値は C が変化するとき以下のように表せる。

$$Ct = \int_0^t C dt = \frac{O_3|_{t=0}}{k_1} \{1 - \exp(-k_1 t)\}$$

よって、(4) 式は Ct 値で表せるので、Qβ の不活化は C の経時変化を考慮した Ct 値で評価できることが明らかになった。

次に定数の算出を行った。k₁ は (1) 式から計算できる。k₂ は log(生残 Qβ 濃度) を y 軸、接触時間を x 軸にプロットして回帰曲線より求めた。

(4) 式の計算値と実験値の比較を行うと (図 5)、RUN1 では最終 Qβ 濃度が低く表されているが、ほかの RUN では減少傾向がよく表されており、(4) 式には整合性があると考えられる。

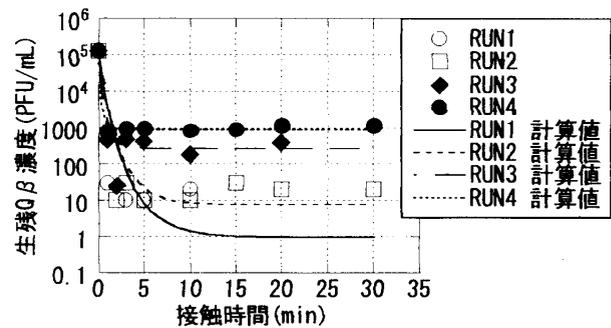


図 5 実験値と計算値の比較

3. 結論

- ・ 処理水中に共存物質として有機物が存在する場合、有機物はオゾンによる Qβ 不活化を阻害することがわかった。

- ・ 本研究の実験条件において、接触時間 t における生残 Qβ 濃度 N を初期 Qβ 濃度 N₀ と初期オゾン濃度 O₃|_{t=0}、初期有機物濃度 S₀ の関数として表せた。また、オゾンによる Qβ の不活化は Ct 値で評価できた。

参考文献

原田宣男(2000) : 大腸菌ファージ Qβ に対するオゾンの消毒効果の PCR 法による評価、茨城大学大学院理工学研究科修士論文 / 伊藤康朗(1999) : オゾンの不思議、講談社 / 杉光英俊(1996) : オゾンの基礎と応用、光琳、pp.158-160 / 神子直之、大垣眞一郎(1993) : ウイルス不活化手法の大腸菌ファージによる評価、環境微生物工学実験法、技報堂出版、pp.223-236