

II-7

寒冷地の高度浄水処理における生物活性炭の効果

北見工業大学工学部 正員 海老江 邦雄
北見工業大学大学院 学生員 東 義洋

1. ま え が き

北見市広郷浄水場では、一級河川である常呂川の表流水を水源として急速ろ過法を採用した浄水処理を行っている。同水源は、低水温期が長く、その上自然由来のフミン質濃度が高いのが特徴である。また、浄水場に流入するアンモニア性窒素(NH₄-N)濃度に関しては、1年間の平均値は0.04mg/l程度と非常に低いが、融雪期や降雨時には突発的に0.4~0.6mg/lにも上昇することがある。これらに対処するため、北見市では1999年から高度浄水を供給することを前提に、1992年9月からパイロットプラントによるオゾン処理および粒状活性炭処理に関する検討を行ってきた。ここでは、3年間のパイロットプラント実験で得られた高度浄水処理の効果、および間欠的に注入したNH₄-Nの生物活性炭による除去挙動を水温との関係で基礎的に検討した結果について報告したい。

2. 実験装置と実験方法

図1は実験装置のフローシートを、また表1は装置の概要と運転条件を示している。処理方式は、既設の実沈殿池の後段(急速ろ過池の前段)に粒状活性炭処理またはオゾン+粒状活性炭処理を組み込んだものである。各系の活性炭筒にはそれぞれ細孔径分布の異なる活性炭A(卓越細孔径：15~30Å)と活性炭B(同：30~100Å)が充填されている。これら活性炭A、Bの通水開始は、それぞれ1992年9月、1993年9月であった。

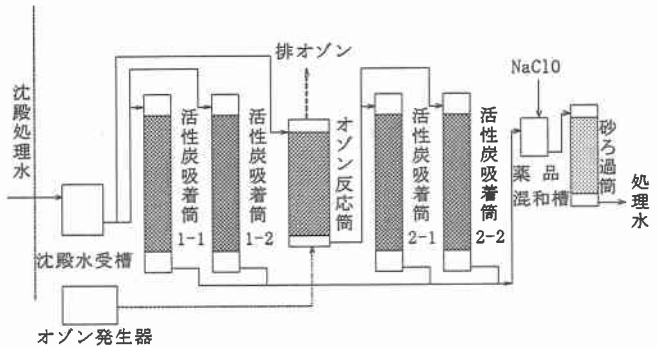


図1 実験装置のフローシート

表1 実験装置の概要と運転条件

装置	装置仕様	運転条件
オゾン反応筒	塩化ビニール製、φ130×3,000mm 1筒 有効水深：2.6m オゾン発生量：1gO ₃ /H オゾン発生濃度：20gO ₃ /Nm ³	下向流、O ₃ 注入 濃度：1.0mg/l 接触時間：9.0分
活性炭吸着筒	塩化ビニール製、φ104×4,400mm 2筒 ろ材：石炭系粒状活性炭 有効径：1.2mm 均等係数 1.3以下 炭層高：1,500mm	下向流 通水速度：180m/日 接触時間：12分

高度浄水処理の実験においては、KMnO₄消費量を酸性法で、E260を吸光光度法(5cmセル)で、また、THM生成能については、試料のpHを7.0、反応時間を24時間(20℃)と設定し、24時間後の遊離残留塩素濃度が1~2mg/lの条件で生成したTHM生成能を測定した。なお、THM生成能はE260と強い相関を示したので、本論では以後、E260を中心に説明した。また、NH₄-Nの生物活性炭による除去実験においては、凝集沈殿処理後の水にマイクロポンプを用いて所定濃度の塩化アンモニウムを間欠的に注入し、活性炭筒からの流出水を所定時間間隔で採水した。これら試料水中のNH₄-N濃度については、イオンクロマトグラフィーを用いて測定した。さらに活性炭層内

の硝化細菌数の測定にはMPN 5 本法を用いた。細菌数の測定においては、アンモニア酸化細菌培地としてNH₄-N濃度を10mg/lとした諏訪ほか(1991)⁴⁾による培地を、亜硝酸酸化細菌培地として土壤微生物実験法(1975)⁵⁾による培地を用いた。いずれの場合にも25℃(静置)で3ヶ月間の培養を行い、その後それぞれの硝化細菌数を計数した。

3. 実験結果と考察

3-1 高度浄水処理の効果

表2に1994年1月から12月までの原水水質を示した。水温の平均値は8.5℃、水温が5℃以下の低水温となる期間は11月から3月までの5ヶ月間であった。また、E260については、融雪期、降雨時には原水で0.4~0.6と高い値を示したが、凝集沈殿処理により平常時と同レベルの0.14程度の処理水が得られている。凝集沈殿処理によるKMnO₄消費量、E260の除去率は、それぞれ平均で50%、60%程度であったが、低水温期には若干低下する傾向が認められた。

表2 原水水質(1994年1月~12月)

測定項目	最大値	最小値	平均値
水温(℃)	26.0	0.6	8.5
濁度(度)	900	1.0	12.9
色度(度)	270	6.3	20.6
KMnO ₄ 消費量(mg/l)	53.1	3.0	9.2
アモニア性窒素(Nmg/l)	0.60	<0.04	<0.04
E260(吸光度/50mm)	0.652	0.185	0.304

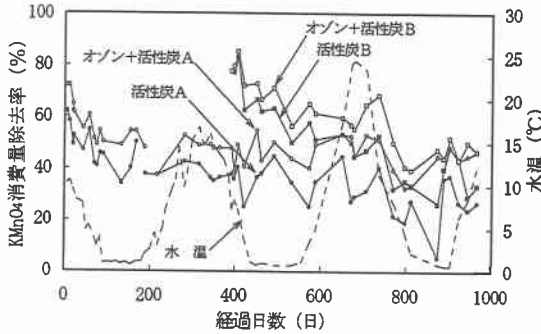


図2 KMnO₄消費量除去率の推移

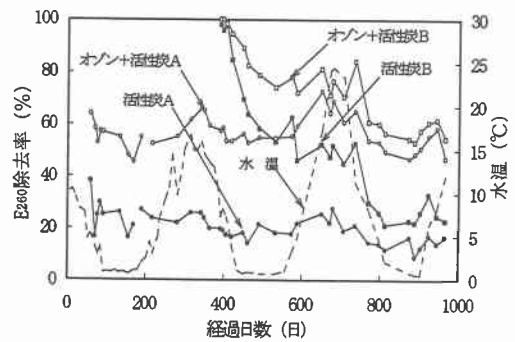


図3 E260除去率の推移

高度浄水処理におけるKMnO₄消費量、E260の除去率の推移、および水温の変化を図2、3に示した。先ずKMnO₄消費量の除去率については、活性炭A、Bのいずれにおいても通水開始直後には除去率の低下が著しいが、通水150日以降は緩やかに低下する傾向となった。E260の除去率についても、KMnO₄消費量の場合と同様に通水開始直後の除去率は急激に低下した。その後は、オゾン処理

表4 水温に伴うKMnO₄消費量とE260の除去率(%)の動き

経過日数(日)	水温期	KMnO ₄ 消費量				E260(吸光度)			
		活性炭A	オゾン+活性炭A	活性炭B	オゾン+活性炭B	活性炭A	オゾン+活性炭A	活性炭B	オゾン+活性炭B
60~220	低	43	51	—	—	24	54	—	—
~380	高	38	49	—	—	24	61	—	—
~600	低	35	46	53	61	18	55	54	75
~740	高	34	51	49	61	23	66	50	77
~900	低	25	41	37	45	13	50	24	56

*低水温期・・・水温5℃未満の期間 高水温期・・・水温10℃以上の期間

を加えた系では活性炭A、Bともに水温の上昇に伴って除去率が上昇する傾向を示している。また、THM生成能の除去率の推移は、E260の除去率の推移と類似していた。次に、表3に低水温期(水温が5℃未満の期間)と高水温期(10℃以上の期間)におけるKMnO₄消費量とE260の除去率の平均値を示した。先ずKMnO₄消費量の除去率は、いずれの活性炭単独処理の場合においても、通水期間の経過に伴い除去率が低下している。しかしながら、オゾン処理を加えた系における通水期間の経過に伴う除去率の動向については、一旦減少した除去率が高水温期で増加するなど、明確な傾向が認められない。この高水温期での除去率の向上は生物による

効果と推定され、オゾン処理によってその効果が増幅されたものと考えられる。E260の除去率についてもKMnO₄消費量の除去率の動きと類似した傾向が認められたが、オゾン処理を加えた系での高水温期における除去率の向上はKMnO₄消費量の場合より顕著に現れており、最大で11%程度除去率が改善されている。以上のようにE260とKMnO₄消費量の除去に及ぼす水温の効果に関しては、経過日数やオゾン処理の有無ほど大きくないことが分かった。

3-2 生物活性炭によるアンモニア性窒素の除去

(1) 採水時間

図4は、塩化アンモニウム（窒素濃度で0.8mg/l）の注入に伴って活性炭筒から流出したNH₄-N濃度の推移を示している。この実験における水温は24.5℃、通水速度は180m/日であった。

その結果、いずれの場合にも注入2時間後のNH₄-N濃度はほぼ平衡に達している。したがって、以下の実験における処理水の採水時間は塩化アンモニウム注入後3時間とした。

(2) 水温とアンモニア性窒素の除去

図5は、塩化アンモニウム（窒素濃度0.6mg/l）注入時におけるNH₄-N除去量の動きを水温と経過日数との関係で示している。活性炭Aによる除去量は、高水温期には最大値で0.3mg/l強であったが、水温が5℃以下になると0.1mg/l以下（高水温期の30%以下）に低下した。また、オゾン+活性炭Aでの除去量は活性炭A単独の場合よりも高い値を示しており、オゾン処理を加えることにより最大で活性炭A単独の場合より0.2mg/l程度改善された。一方、通水期間が短い活性炭Bによる除去量は、高水温期においても0.1mg/l程度

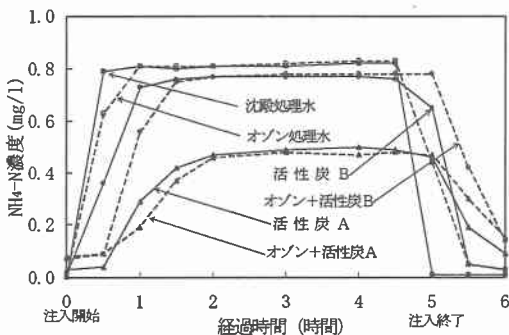


図4 流出水のNH₄-N濃度の推移

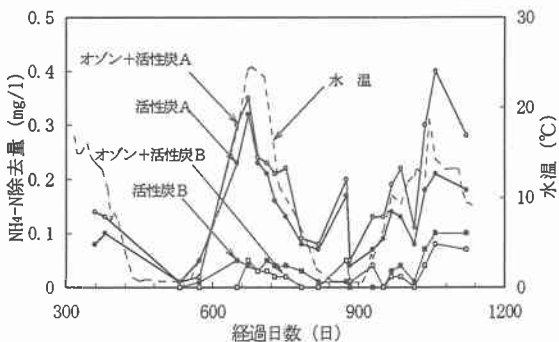


図5 NH₄-N除去量の推移

表4 水温に伴うアンモニア性窒素の除去率(%)の動き

経過日数 (日)	水温期	活性炭A	オゾン+活性炭A	経過日数 (日)	水温期	活性炭B	オゾン+活性炭B
360~380	高	20	25	0~20	高	—	—
~530	低	7	6	~170	低	0	0
~750	高	31	37	~390	高	5	4
~930	低	14	18	~570	低	2	3
~1120	高	29	51	~760	高	13	9

* 低水温期…水温5℃未満の期間 高水温期…水温10℃以上の期間

い除去率を示しており、通水日数の経過に伴って除去率が増加する傾向を示している。また、オゾン処理の効果に関しては、オゾン+活性炭Aの高水温期(経過日数930~1120日)には、活性炭Aより22%も高い除去率を示した。しかし、活性炭Bにおいては低水温期(経過日数390~570日)を除いて、オゾン処理を加えた場合の方が低い除去率を示した。このように、活性炭A, Bによる処理性の差は非常に大きく、同程度の経過日数で比較しても大きな差があることから、通水期間の違いだけではなく活性炭が持っている細

孔径分布の違いによっても影響されていると考えられる。次に、NH₄-Nの除去に及ぼす水温の影響をより詳細に検討するために、活性炭層の深さに伴うNH₄-Nの除去傾向と生物活性炭層内の細菌数の推移を水温との関係で述べたい。

(3) 活性炭層の深さに伴うNH₄-Nの除去挙動と細菌数

図6, 7は、活性炭層(活性炭A, オゾン+活性炭A)の深さとNH₄-Nの除去率との関係を示している。活性炭Aでは、いずれの水温期においても中段(表面から71cm)から下段(表面から135cm)にかけての除去率は同程度となっている。これに対し、上段(表面から6cm)から中段にかけての除去率は、高水温期には低水温期の約12倍であったことから、上段から中段にかけての除去率は水温の影響を受けやすいと考えられる。次にオゾン+活性炭Aの場合には、いずれの水温においても活性炭A単独による除去率を上回り、高水温期には全体で約60%もの除去率となること、特に、上段から中段にかけての除去率が大幅に上昇する傾向が認められた。

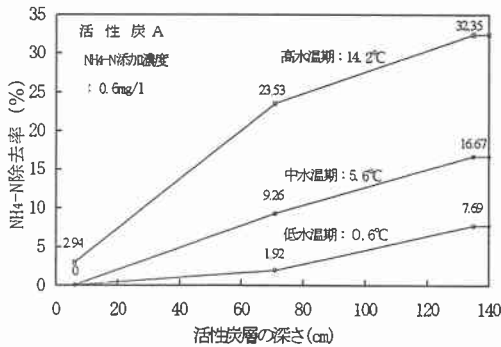


図6 活性炭層の深さとNH₄-Nの除去率

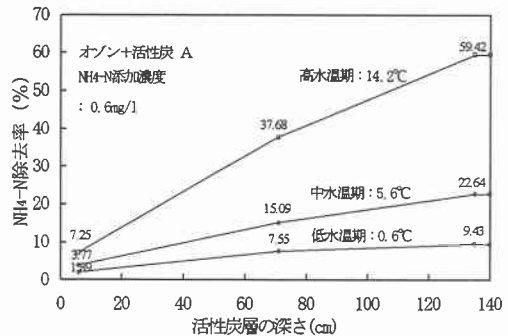


図7 活性炭層の深さとNH₄-Nの除去率

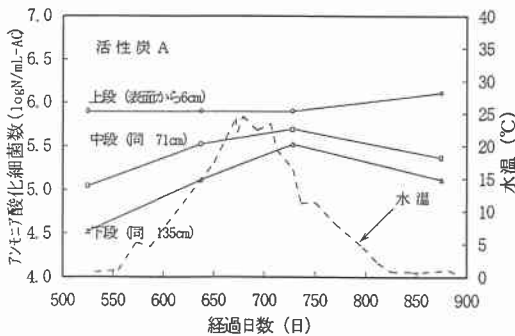


図8 活性炭の深さとアンモニア酸化細菌数

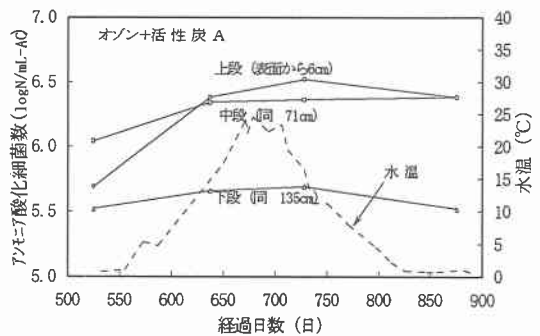


図9 活性炭層の深さとアンモニア酸化細菌数

一方、図8, 9は活性炭A, オゾン+活性炭Aによるアンモニア酸化細菌数の経日変化を水温の変化と絡めて示している。活性炭Aでは、上段のアンモニア酸化細菌数は 10^6 個/ml-AC程度で年間を通してほぼ一定であり、中段、下段の順に細菌数が少なくなっていたが、全体として低水温化に伴う細菌数の減少は僅かであった。オゾン+活性炭Aでは上段と中段の細菌数の差が小さく、下段は上段、中段に比べ細菌数は少なかった。活性炭Aとオゾン+活性炭Aにおける細菌数を比較すると、後者における細菌数が多く、オゾン処理によるアンモニア酸化細菌数の増加が直接NH₄-N除去率の向上につながっていること、また、活性炭層内の細菌の分布が異なることが分かった。特に、低水温期になっても細菌数には大差がないのに除去率が低いのは細菌の活性度が低下しているためと考えられる。

図10, 11は同じ活性炭層における亜硝酸酸化細菌数の動きを示している。これらにおいて、活性炭Aとオゾン+活性炭Aとにおける細菌数は上段と中段とではほぼ等しく $10^{6.5} \sim 10^{7.0}$ 個/ml-AC程度であった。

また、下段の細菌数はいずれにおいても上段、中段に比べて少なかったが、オゾン+活性炭Aの場合の方が下段における細菌数は多く、上段、中段との差は小さかった。図12、13は同じ活性炭層における従属栄養細菌数の動きを示している。活性炭Aは上段の細菌数が $1.6\sim 6.0\times 10^7$ 個/ml-ACで、上段、中段、下段の順で細菌数は少なくなっていたが、低水温時には上段と下段における細菌数の差は小さくなった。オゾン+活性炭Aでは、上段と中段とにおける細菌数は 10^8 個/ml-AC程度と年間を通してほぼ一定であるのに対して、下段では水温による細菌数の増減が大きく、低水温時には上段や中段よりも細菌数が増えることがあった。また、アンモニア酸化細菌や亜硝酸酸化細菌の場合と同様にオゾン処理を加えた場合の方が細菌数が増える傾向を示した。

以上のことをまとめると、生物活性炭単独よりもこれにオゾン処理を組み合わせた場合の方が細菌数が増加し、除去率を高めるのに有効となることが分かり、図6、7の処理性と大略一致する結果が得られた。しかし、いずれの細菌においても、その数の増減に及ぼす水温の影響は明確には認められなかった。

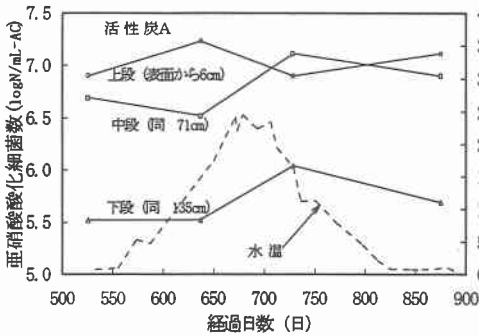


図10 活性炭層の深さと亜硝酸酸化細菌数

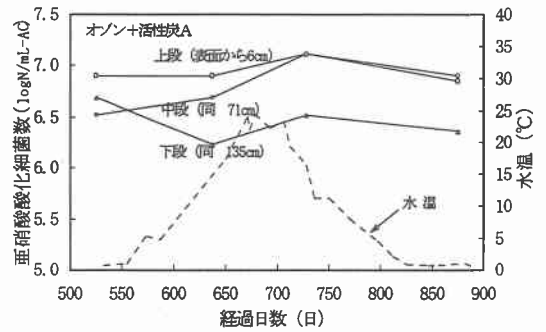


図11 活性炭層の深さと亜硝酸酸化細菌数

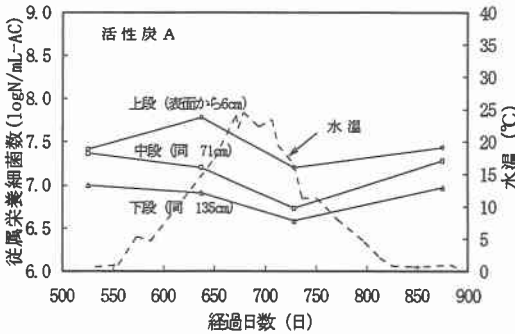


図12 活性炭層の深さと従属栄養細菌数

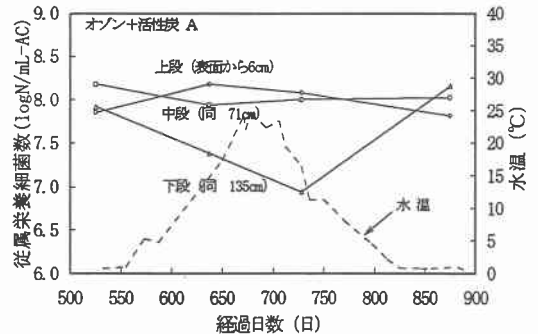


図13 活性炭層の深さと従属栄養細菌数

(4) 低水温期の活性炭に生息する硝化細菌の活性化

低水温期(水温5℃以下の期間)に活性炭層内に生息する硝化細菌が25℃の水中で活性化するのに要する時間について実験的検討を行った。図14は、活性炭層の中段(表面から71cm)から抜き取った低水温期(水温5℃以下で100日経過)の活性炭を用いて、水温をほぼ一定に保ちながら(25±1℃)ミニカラムを用いて実験(内径:25mm、充填層厚:24.5cm、SV:5)を行った際のNH₄-N濃度の経時変化を示している。活性炭A(通水日数898日経過)においては、通水開始直後における濃度低下が大きく、通水70時間後には50%程度の除去率が得られた。また活性炭B(通水日数538日経過)におけるNH₄-Nの濃度低下は、活性炭Aよりも緩慢に推移し通水70時間後で20%程度の除去率となっている。これらの結果から、低水温期における硝化細菌の活性度は低いものであるが、水温を上昇させアンモニアを連続的に供給すれば短時間のうちに細菌は活性化され、

NH₄-Nの除去率を向上させることが分かった。

4. ま と め

今回の実験的研究により、次の諸知見が得られた。

- (1) 活性炭単独処理におけるKMnO₄消費量とE₂₆₀の除去率は、通水日数の経過に伴い水温の高低に関わらず次第に低下する傾向を示した。活性炭Aの場合には、KMnO₄消費量の除去率は当初の60%～70%から約800日経過後は30～50%へ、また、E₂₆₀の除去率は30%から20%弱へと低下した。
- (2) オゾン+活性炭処理においては、活性炭単独処理の場合よりおおそKMnO₄消費量の除去率が10%程度、E₂₆₀除去率が40%程度上昇し、オゾン処理の効果が明らかに認められた。また、水温と除去率の関係では、いずれの項目においても、低水温期より高水温期の方が数%～10%程度高い除去率を示した。
- (3) NH₄-N除去に関しては、活性炭A、Bのいずれにおいても低水温期より高水温期の方が2～6倍程度高い除去率を示した。また、通水日数の経過に伴い除去率は向上した。
- (4) オゾン処理を加えた場合のNH₄-Nの除去率の動きを活性炭Aについて見ると、高・低水温期のいずれにおいても活性炭単独処理の場合より高い除去率が得られた。
- (5) 活性炭単独処理とオゾン+活性炭処理のいずれの活性炭層内においても、低水温期と高水温期での硝化細菌数に大差はなかったが、除去率には大きな差が認められた。
- (6) 低水温期における硝化細菌の活性度は低いが、水温の上昇とアンモニアの連続的供給によって短時間のうちに活性炭層内におけるNH₄-Nの除去能を高めうるということが分かった。

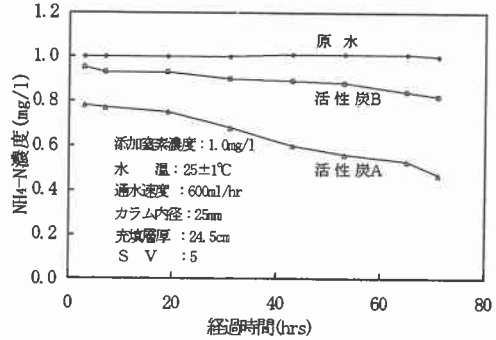


図14 低水温期下活性炭の活性化に伴うNH₄-Nの除去の動き

5. あとがき

最後に一連の実験に協力いただいた北見市広郷浄水場の高畑征夫係長と荻下隆係員、水道機工株式会社の末広誠一主査および北見工業大学土木工学科上・下水道研究室の卒論生寺菌一彦君に感謝の意を表す。

【参考文献】

- 1) 海老江ほか：北見市における高度浄水処理実験、第44回全国水道研究発表会講演集, pp. 189～190
- 2) 海老江ほか：粒状活性炭による高度浄水処理実験、第45回全国水道研究発表会講演集, pp. 290～291
- 3) 海老江ほか：高度浄水処理の効果と活性炭付着細菌数の分布、第3回衛生工学シンポジウム論文集, pp. 117～121
- 4) 諏訪ほか：水質汚濁研究, Vol. 14, No4, pp. 261～265 (1991)
- 5) 土壌微生物実験法(1975)養賢堂
- 6) 海老江ほか：寒冷地における粒状活性炭によるアンモニア性窒素の除去、土木学会第50回年次学術講演会講演概要集, pp. 1036～1037 (1995)
- 7) 海老江ほか：低水温における生物活性炭の硝化活性、1994年水文・水資源学会研究発表要旨集 pp. 158～159
- 8) 海老江ほか：北見市における高度浄水処理実験と今後の課題、1994年水文・水資源学会研究発表要旨集 pp. 156～157