

長岡技術科学大学

○ 仁村誠司

亀屋隆志

桃井清至

小松俊哉

1. はじめに

アンモニウム性窒素 ($\text{NH}_4^+\text{-N}$) や硝酸性窒素 ($\text{NO}_3^-\text{-N}$) による水道原水の汚染が全国的に広がっている。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ は浄水処理工程において多量の塩素の使用を引き起こし、その結果、水中のフミン質などの有機物と塩素が反応して有機ハロゲン化合物などの有害物の生成が大幅に増加する。また、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ は乳幼児に対するメトヘモグロビン血症や発ガン性などの問題を引き起こす。これらの窒素化合物を除去を目的として粒状活性炭処理や生物処理などの高度浄水処理が注目されている。

本研究では、近年研究例の多い生物活性炭 (BAC) と生物濾過砂についての $\text{NH}_4^+\text{-N}$ および $\text{NO}_3^-\text{-N}$ の除去特性を明らかにするために、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ を含む人工原水を BAC あるいは砂で長期間処理し比較検討を行った。

2. 実験方法

実験装置図を図.1に示す。原水は、市販の腐葉土を温水で抽出した水にコンスティーブリカー (CSL) を DOC 比で 1:1 で混合し、炭酸アンモニウムを添加して $\text{DOC}=3\text{mg}\cdot\text{C/L}$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}=0.3\text{mg}\cdot\text{N/L}$ に調整したものを用いた。生物の付着担体となる活性炭あるいは砂を $0.50\sim 0.71\text{mm}$ に篩い分け、水中で減圧脱気した後、内径 12mm のアクリル製カラムに充填した。通水速度を 64mm/min として、カラム 1 本分の空筒接触時間 (θ) を 2.5min とし、カラム 4 本を直列に接続した。各カラムの出口にサンプリング口を設け、接触時間 2.5min 、 5.0min 、 7.5min および 10.0min の処理水を得た。

また、通常の通水実験では試料水に含まれる

$\text{NH}_4^+\text{-N}$ や $\text{NO}_3^-\text{-N}$ が非常に低濃度であるので脱窒反応を見ることが困難なため、活性炭カラムおよび砂カラムで実験途中の 300 日以降に各カラムを取り出して、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ を $2.5\text{mg}\cdot\text{N/L}$ と水素供与体のグルコースを含む水を通水した試験を行い、各カラムでの $\text{NO}_3^-\text{-N}$ の分解速度を (1) 式のような一次反応を仮定して生物濃度込みの分解速度定数を求めて比較した。

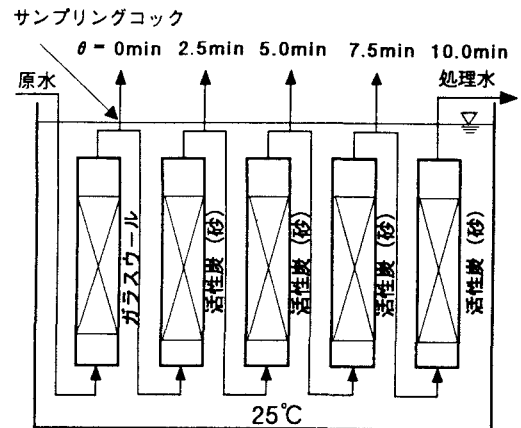


図.1 実験装置図

$$-\frac{dc}{dt} = kXC \quad \text{--- (1)}$$

k : 分解速度定数 ($\text{L}/\text{mg}\cdot\text{d}$)

X : 生物濃度 (mg/L)

C : 基質濃度 (mg/L)

3. 結果および考察

3.1 有機物除去のスタートアップ特性

活性炭カラムおよび砂カラムでのDOC除去速度の経日変化を図.2にそれぞれ各カラムごとに示す。活性炭の1本目のカラム ($\theta=0\sim2.5\text{min}$) では吸着性能の低下に伴い除去速度が約30日まで減少したが、約30日頃になると活性炭表面に付着増殖する生物によって有機物が分解されるようになり除去率が上昇し、その後は高い除去速度が持続した。また、2本目 ($\theta=2.5\sim5.0\text{min}$)以降のカラムでは1本目カラムでのDOC除去率が低下した時期にはそれを吸着効果によって補足する形でDOC除去速度が上昇したが、その後1本目カラムでのDOC除去速度が上昇すると徐々に低下した。一方、砂カラムでは1本目のカラムで通水開始約10日目から有機物の除去が開始され、約130日目ではほぼ定常状態に達したと見られた。また2本目以降のカラムでは1本目カラムよりも遅れて除去が開始したものの、除去速度はかなり小さかった。

以上の結果から、用いた試料水では活性炭カラムおよび砂カラムとも $\theta=2.5\text{min}$ でほとんどの有機物が除去され、有機物分解菌が接触時間の短いところに多く存在していることがわかった。

3.2 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 除去のスタートアップ特性

活性炭カラムおよび砂カラムでの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 除去率の経日変化を図.3にそれぞれ各接触時間ごとに示す。通水当初しばらくは $\text{NH}_4^+\text{-N}$ が除去されない誘導期が続いたがその後、活性炭では約90日、砂では約120日頃から除去率が上昇し始めた。これより活性炭の方が砂よりも早い時期に生物膜の形成が開始されることがわかった。

活性炭カラムおよび砂カラムでの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 除去速度の経日変化を図.4にそれぞれ各カラムごとに示す。活性炭カラムおよび砂カラムともに $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の除去は2本目カラムで最も早く開始した。すなわち、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 除去が開始した初期の頃では、2本目カラムでの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 除去速度が他に比べて最も高い状態がしばらく続いた。これは初期には1本目カラムで有機物分解菌の増殖が優先して硝化菌の増殖が抑えられたためと考え

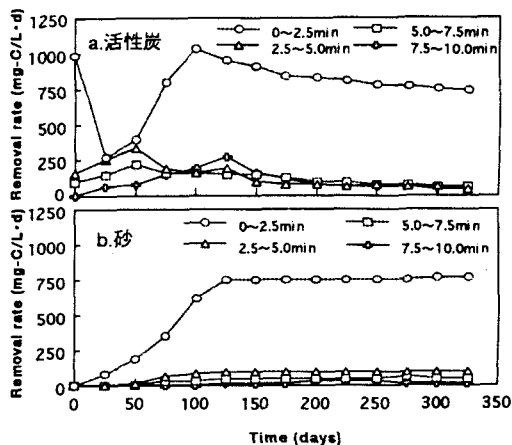


図.2 活性炭と砂カラムでのDOC除去速度の経日変化

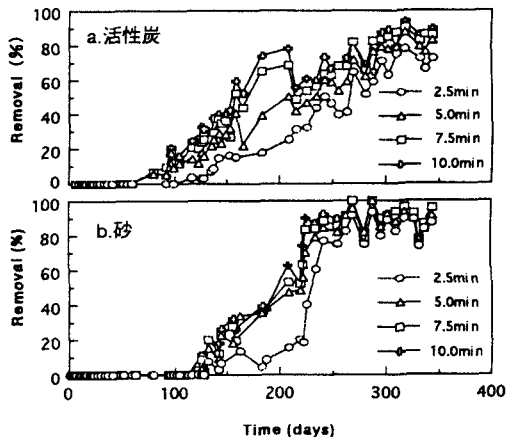


図.3 活性炭と砂カラムでの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 除去率の経日変化

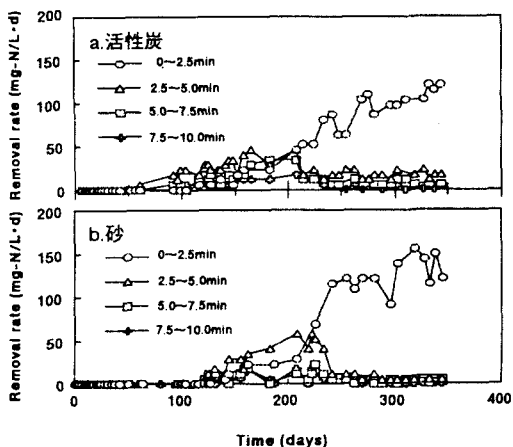


図.4 活性炭と砂カラムでの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 除去速度の経日変化

られる。しかし長期通水後で除去速度は1本目カラムでもっとも高くなり、接触時間が小さい入口付近の方のカラムで硝化菌が増加したと考えられる。

3.3 装置内での分解速度のプロファイル

砂カラムでのDOCについての分解速度の接触時間によるプロファイルを図.5に示す。有機物分解については分解速度は、1本目カラムで最大となったが、2本目以降のカラムでは1本目に比べて分解速度が非常に小さくなった。このことから接触時間の短い1本目カラムで生物濃度が高いことが確かめられた。

活性炭カラムおよび砂カラムでの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ についての分解速度の接触時間によるプロファイルを図.6にそれぞれ各通水日数ごとに示す。1本目のカラムでの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の分解速度は、通水開始200日頃では活性炭カラムおよび砂カラムともに小さいが、その後硝化菌が増殖し、ほぼ定常となった320日頃ではいずれも大きくなり、最大の分解速度を示している。以上の結果からも、活性炭および砂両カラムとも1本目のカラムで硝化菌の生物濃度が高いことがわかった。

活性炭カラムおよび砂カラムでの各接触時間カラムごとの $\text{NO}_3^-\text{-N}$ の生物濃度込みの分解速度定数 ($k \cdot X$) の変化を図.7に示す。 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ の分解速度定数は、活性炭では1本目のカラムから次第に大きくなり、4本目のカラムで最大となったが、砂では全てのカラムで分解速度定数がほぼゼロとなった。これらのことから、活性炭では有機物分解菌や硝化菌が優占している接触時間の短い所よりも接触時間の長い所で脱窒菌の濃度が高く、また、砂では320日以上通水しても脱窒菌がほとんど付着していないと考えられた。すなわち、脱窒菌についても砂に比べて活性炭の方が付着が速いことがわかった。また、活性炭では有機物を添加しなくても脱窒が起こったが、これは脱窒菌が活性炭に吸着している有機物を水素供与体として脱窒に用いたものと考えられる。

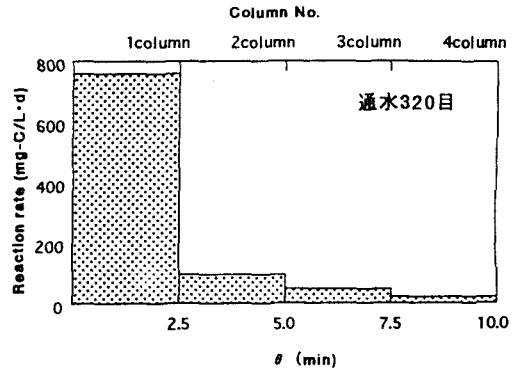


図.5 砂カラムでのDOC分解速度の接触時間によるプロファイル

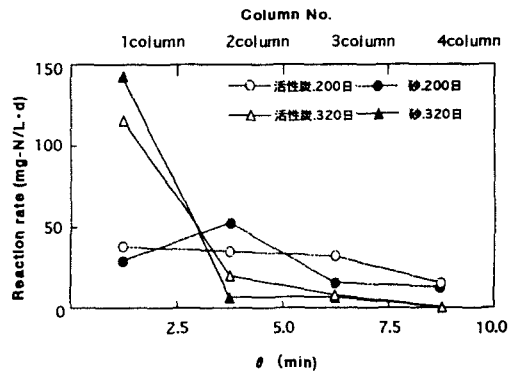


図.6 活性炭カラムおよび砂カラムでの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 分解速度の接触時間によるプロファイル

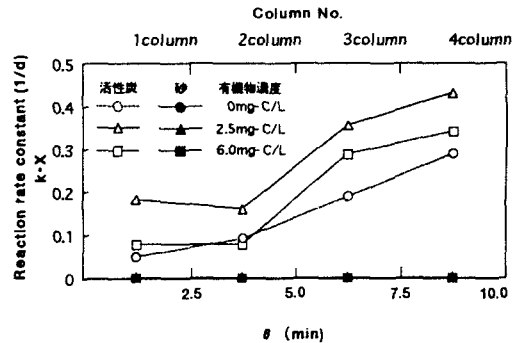


図.7 長期通水後の活性炭カラムおよび砂カラムでの $\text{NO}_3^-\text{-N}$ の分解速度定数 $k \cdot X$ の接触時間によるプロファイル