

(8-18)都市部の地下水を水源とする専用水道水の窒素化合物調査

- 窒素化合物を指標とした浄水処理方式の違いによる処理効果の確認 -

○吉川 循江(横浜市衛生研究所) 田中 礼子(横浜市衛生研究所)
荒井 桂子(横浜市衛生研究所) 日高 利夫(横浜市衛生研究所)

[はじめに] 近年、水道水が給水されている地域にもかかわらずコスト削減を主な理由として、地下水を水源とした専用水道(専水)を設置しようとする動きが目立ってきた¹⁾。横浜市域においてもそれは例外ではない。著者らはこれまでに、横浜市域において飲用井戸、簡易給水水道や自己水源型専水について水質実態調査を行い報告した。これらの調査を踏まえ、横浜市域の被圧(深層)地下水を水源としている施設において、その水質が還元性を示す場合にアンモニア態窒素($\text{NH}_4\text{-N}$)が検出される²⁾と考えられた。 $\text{NH}_4\text{-N}$ は結合残留塩素(結合塩素)を生成して消毒効果にまで影響を与える。しかし、水道法においては遊離塩素による消毒のほか、結合塩素による消毒(0.4mg/L以上)³⁾も認められている。このため必ずしも $\text{NH}_4\text{-N}$ を全て除去する必要はない。これは、原水に含まれている $\text{NH}_4\text{-N}$ が汚染性ではなく、深層地下水では細菌が少ないためである。一方、 $\text{NH}_4\text{-N}$ については、硝化により硝酸態窒素($\text{NO}_3\text{-N}$)や亜硝酸態窒素($\text{NO}_2\text{-N}$)が生成される⁴⁾ことも知られている。同様に、 $\text{NH}_4\text{-N}$ を含む地下水においても酸化剤である塩素系消毒剤を添加した場合、 $\text{NO}_3\text{-N}$ や $\text{NO}_2\text{-N}$ が生成されると考えられる。そこで、自己水源型専水の各施設を浄水処理方式によって区分し、処理工程の前後において $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ に代表される窒素化合物の濃度を比較したので報告する。

[方法] 2005年12月～2006年1月に横浜市内の自己水源型専水28施設から原水及び浄水処理水(浄水)を採水した。また、各施設を浄水処理方式によって6分類して表1に示した。

[結果] 各施設の原水と浄水における $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ を測定し、浄水処理方式別に表2に示した。

検討にあたり、原水中に $\text{NH}_4\text{-N}$ が検出された23施設と検出されなかった4施設(No. 4, 6, a, b)、あるいは原水が採水できなかった1施設(No. F)に区分した。なお、施設b, cについては原水から遊離塩素がそれぞれ0.8mg/L、2.0mg/L検出されていた。これらは、原水に塩素系消毒剤を添加しつつ、原水槽に貯水し、ここから採水しているため、検討から除いた。

1 $\text{NH}_4\text{-N}$ を含有する原水

$\text{NH}_4\text{-N}$ が原水中に検出された22施設(cを除く)を浄水処理過程で生成された、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の量によって次の(1)～(5)に分類した。(1)浄水処理前後で $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度に変化がない施設。(2) $\text{NH}_4\text{-N}$ から $\text{NO}_2\text{-N}$ の生成。(3) $\text{NH}_4\text{-N}$ から $\text{NO}_3\text{-N}$ の生成。(4) $\text{NH}_4\text{-N}$ のほぼ完全に除去。(5) $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{NO}_3\text{-N}$ を原水に含有。

(1)には、施設No. D及び2が該当した。原水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ がそれぞれ約6.18mg/Lから5.92mg/L、5.13mg/Lから4.99mg/Lと浄水中で若干の減少は認められるがほとんど変化していない。これらの2施設は、必要量の消毒剤が添加されていないにも係らず、DPD比色法で測定した遊離塩素がそれぞれ0.5mg/L、0.4mg/L検出されていた。浄水中に残留している $\text{NH}_4\text{-N}$ が高く結合塩素が高いため、結合塩素を遊離塩素として測定していると推定された。

(2)には、施設No. 1及び9が該当した。原水中から $\text{NH}_4\text{-N}$ のみが検出されており、その濃度はそれぞれ3.21mg/Lから2.19mg/L、3.22mg/Lから2.47mg/Lと浄水中では若干の減少が認められた。一方、減少した窒素量に見合う量の $\text{NO}_2\text{-N}$ が0.64mg/Lと0.71mg/L、さらに $\text{NO}_3\text{-N}$ が0.81mg/Lと0.58mg/L生成されていた。また、遊離塩素については検出されないか、痕跡程度の検出であった。これは、 $\text{NO}_2\text{-N}$ が還元性無機物であり、管理目標値(0.05mg/L)の10倍以上生成されているため、遊離塩素が消費されていた⁵⁾と推定された。このため浄水中に残留している $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が高く、結合塩素として存在している領域にあったとしても、結合塩素を遊離塩素として見誤るようなことはおきていない。

(3)には、施設No. B, C, E, 3, I～IV, VI, VIIの10施設が該当した。原水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ が除去され、浄水中では検出されていない。しかし、いずれの施設も $\text{NO}_2\text{-N}$ は検出されないが、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が0.08mg/L以上検出されていた。なかでも減少する $\text{NH}_4\text{-N}$ にほぼ見合うように $\text{NO}_3\text{-N}$ が検出されていた施設はVII, Bであった。施設VIIは $\text{NH}_4\text{-N}$ が0.39mg/L減少し、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が0.55mg/L検出されていた。また、施設Bは $\text{NH}_4\text{-N}$ が0.33mg/L減少し、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が0.36mg/L検出されていた。検出された $\text{NO}_3\text{-N}$ の一番多かった施設はNo. IIで、 $\text{NH}_4\text{-N}$ が4.65mg/L減少し、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が0.83mg/L検出されていた。特に、施設No. IIIは原水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ が6.22mg/Lと高く塩素要求量も多い。また、浄水中の遊離塩素が痕跡程度しか検出されておらず、一

般細菌数が160cfu/mLと高いことから、塩素系消毒剤の添加量を増やす必要がある。

(4)には、施設No. A, 5, 7, 8, e, V, VIIIの7施設が該当した。原水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ が除去され、浄水中では検出されていない。かつ、いずれの施設においても $\text{NO}_2\text{-N}$ が検出されない。 $\text{NO}_3\text{-N}$ は若干検出されているが0.04mg/L以下であった。この7施設全てについては、遊離塩素が0.4mg/L以上検出されており、不連続点に達するまで塩素系消毒剤が添加されていることが確認できた。

(5)には施設No. d及びFが該当した。No. dは原水中から $\text{NH}_4\text{-N}$ が0.49mg/L、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が0.14mg/L検出されており、かつ、一般細菌数が910cfu/mLであった。これらのことから、被圧地下水を水源としているが、 $\text{NO}_3\text{-N}$ を含有する浅い位置からも採水されて、混合されている可能性があると考えられた。より汚染を受けやすい浅井戸水をも水源としている可能性があることから、よりきめ細かく浄水処理工程を管理していく必要がある。施設No. Fは原水が採水されていないため、原水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 等の濃度が分かっている。しかし、被圧地下水を水源としているにも係らず、浄水中から検出された $\text{NO}_3\text{-N}$ は一番高く、9.29mg/Lに達していた。また、浄水中から遊離塩素は検出されておらず、一般細菌数が120cfu/mLであった。原水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ から $\text{NO}_3\text{-N}$ が生成されたのか、或いは浅井戸水を水源としているのか、今後に詳細な調査を行いたい。

2 $\text{NH}_4\text{-N}$ を含有していない原水

原水中から $\text{NH}_4\text{-N}$ が検出されていなかった施設No. 4, 6, a, (bは除く)においては、浅井戸水を水源としていると考えられた。また、3施設とも一般細菌数は1cfu/mL以下であった。施設No. 4の $\text{NO}_3\text{-N}$ は原水が2.81mg/L、浄水では2.80mg/Lで変化がなかった。この施設については深井戸と浅井戸から取水していることになっていた。施設No. 6では、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は原水1が0.50mg/L、原水2が0.05mg/L、浄水では0.62mg/Lと増加した。この施設は、これらのほかに原水井戸が2箇所あり、この2箇所の原水を浄化して得る浄水と連通管で混合されていた。このため、窒素量の増減が合わないと考えられた。施設No. aでは $\text{NO}_3\text{-N}$ が原水0.05mg/Lに対して、浄水0.35mg/Lと増加していたが、この理由については明らかではなかった。

[考察] これまで著者らは、浄化過程を経て、 $\text{NO}_2\text{-N}$ が生成される例⁶⁾を経験している。 $\text{NO}_2\text{-N}$ の検出は、「塩素処理が不十分であることを意味する」⁷⁾ことが知られており、これほどの量の $\text{NO}_2\text{-N}$ の生成は、不連続曲線におけるモデルからは説明ができなかった。 $\text{NO}_2\text{-N}$ 1mgが酸化されるのに要する塩素系消毒剤の必要量は2.53mgであり、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の必要量7.6～10.1mgに比べて少ない。しかし、反応順序は $\text{NO}_2\text{-N}$ の方が $\text{NH}_4\text{-N}$ に比べて早い⁸⁾。このことから、消毒効果を得るためには、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の除去は重要であると考えられた。また、1(5)及び2に該当した施設は、汚染を受けやすく原水の変動も大きいと考えられることから、水質検査の回数を増やす等、浄水処理工程の管理が必要と考えられた。

今後、これらの結果を塩素系消毒剤の注入量の制御や、浄水処理工程の改善に役立てたいと考えている。

文献

- 1) 社団法人 日本水道協会; 地下水利用専用水道の拡大に関する報告書, 2005.
- 2) 吉川循江, 他; 横浜市南部地域にみられる地下水の水質とその地質的背景, 環境地質学シンポジウム, 151-156, 2006.
- 3) 水道法施行規則 第一章 第一節 衛生上必要な措置 第17条; 昭和32年12月14日厚生省令第45号, 最終改正平成19年11月14日厚生労働省令第136号.
- 4) 上水試験方法 解説編2001年版, 社団法人日本水道協会, 273-282, 285, 291-295, 299-302, 2001.
- 5) 吉川循江, 他; シアン化物イオンおよび塩化シアン分析 - 地下水試料に関する測定上の検討 -, 横浜市衛生研究所年報, 44, 123-127, 2005.

表2 自己水源型専用水道における $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の浄水処理による変化 (mg/L)

処理方式	施設	原水			浄水			遊離塩素 DPD法
		NH ₄ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	NH ₄ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	
膜ろ過なし								
①	A	0.158	ND	ND	ND	ND	0.009	0.7
①	B	0.329	ND	0.009	ND	ND	0.362	0.2
①	C	1.272	ND	0.002	ND	0.004	0.096	1.5
①	D	6.177	0.005	0.004	5.924	0.019	0.020	0.5
①	E	0.635	ND	0.008	ND	0.003	0.083	0.5
①	F	—	—	—	ND	ND	9.285	0.0
②	1	3.212	0.004	0.070	2.186	0.644	0.806	0.0
①+②	2	5.133	0.004	0.004	4.992	0.028	0.032	0.4
①+②	3	0.700	ND	0.003	ND	ND	0.301	0.7
①+②	4	ND	ND	2.805	ND	ND	2.801	1.0
①+②	5	0.142	ND	ND	ND	ND	0.002	0.4
		0.053	ND	ND				
①+②	6	ND	ND	0.497	ND	ND	0.619	0.4
		ND	ND	0.046				
①+②	7	0.433	ND	ND	ND	0.003	0.019	0.4
①+②	8	1.775	ND	ND	ND	ND	0.028	1.5
①+②	9	3.225	0.004	0.009	2.466	0.714	0.583	痕跡
膜ろ過あり								
①	a	ND	ND	0.054	ND	ND	0.352	0.4
①	b*	ND	ND	6.400	ND	ND	6.123	0.5
①	c*	0.163	0.007	0.086	ND	0.005	0.417	0.7
①	d	0.493	ND	0.144	ND	0.002	0.470	0.5
①	e	0.392	ND	ND	ND	ND	0.016	0.7
②	I	0.647	ND	ND	ND	ND	0.372	0.5
①+②	II	4.646	ND	ND	ND	ND	0.829	0.7
①+②	III	6.224	ND	0.007	ND	ND	0.142	痕跡
①+②	IV	1.230	0.031	0.021	ND	ND	0.116	0.4
①+②	V	0.690	ND	ND	ND	ND	0.043	0.8
①+②	VI	0.555	ND	ND	ND	ND	0.164	0.5
①+②	VII	0.388	ND	ND	ND	ND	0.553	0.5
①+②	VIII	0.218	ND	0.004	ND	ND	0.037	0.7

①除鉄・除マンガンを目的とする砂ろ過設備を備えた方式 ②凝集剤を添加しているが凝集剤
殿処理を行わずに直ちに急速ろ過を行う方式 *施設b, cは原水から遊離残留塩素が検出