

厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）
「水道システムにおける生物障害の実態把握とその低減対策に関する研究」
分担研究報告書

研究課題：生物障害を起こさないための浄水処理技術の開発

研究代表者 秋葉 道宏 国立保健医療科学院 統括研究官
研究分担者 西村 修 東北大学大学院工学研究科教授

研究要旨

本年度は、ピコ植物プランクトンによるろ過障害、濁度障害の問題への対応策として、浄水現場にて二段凝集が最もよく行われていることに鑑み、二段凝集の処理メカニズムの解明を目的に、培養したピコ植物プランクトンを懸濁させた原水を用いてラボスケールの凝集ろ過処理実験、および凝集沈澱ろ過処理実験を行い、二段凝集処理の効果を解析した。

その結果、ピコ植物プランクトンのような粒径の極めて小さい植物プランクトンに対して 5 mg-PAC/L の凝集剤を注入した凝集沈澱ろ過法において、粒径 200 μm 超にピークをもち、10 μm 以下のフロックがほとんど存在しないフロックを形成することが可能であり、このようなフロックは沈澱によっては 50%程度しか除去できないものの、ろ過によってほぼ完全に除去できることが明らかになった。

しかし、凝集剤注入量がより少ない 2 mg-PAC/L の場合、濁度は完全には除去されずろ過漏出が生じた。一方、凝集剤注入量がより多い 10 mg-PAC/L の場合、ろ過水の濁度は 0 度となったものの、ろ過閉塞が生じた。さらに、ろ過水へのアルミニウムの漏出という観点から、最適凝集剤注入量より高い場合も低い場合もアルミニウム濃度が高まることが示唆された。

ピコ植物プランクトンを凝集沈澱処理するためには、粘土粒子等に比べて比重が小さく沈澱除去が困難であること、また粘土粒子等に比べてより多くの凝集剤注入量を必要とし、結果としてフロックの再分散を生じる可能性が高いことから、ろ過処理前に適切な凝集剤注入量によってろ過除去可能なフロックを形成する凝集ろ過法は、ピコ植物プランクトンの除去には極めて合理的であると言える。

A. 研究目的

近年、湖沼、ダム貯水池を水源とする浄水場でピコ植物プランクトンによるろ過障害、濁度障害が問題となっている。この対応策として現場では二段凝集が最もよく行われている¹⁾。二段凝集とは通常の凝集沈澱処理に加え、ろ過池直前で再度凝集剤を添加する方法である。しかし、二段凝集操作の効果に関する知見は経験的な要素が多く、メカニズムや最適な処理条件に関する報告は少ない。

そこで本研究では、二段凝集の処理メカニ

ズムの解明を目的に、培養したピコ植物プランクトンを懸濁させた原水を用いてラボスケールの凝集ろ過処理実験、および凝集沈澱ろ過処理実験を行い、二段凝集処理の効果を解析した。

B. 研究方法

1) ピコ植物プランクトン懸濁液の作成

ピコ植物プランクトンは(独)国立環境研究所 NIES-1348 の *Synechococcus* sp.を使用した。CB 培地にて温度条件 25 ± 1 、光

条件 $18 \mu\text{mol photons/m}^2/\text{sec}$ 、12-h light/12-h dark で培養を行った。

草木ダム堰堤上流の表層水を分析したところ Cyanobacteria 門が $1 \times 10^5 \sim 2 \times 10^5$ cells/mL 検出され、そのうち *Synechococcus* 属が 90% だったという報告を参考に¹⁾、培養した *Synechococcus* sp. を活性炭を通した水道水で 1×10^5 cells/mL の細胞数になるよう希釈し (濁度は 2 度程度) これを曝気攪拌したものを原水として使用した。

2) 凝集剤

ポリ塩化アルミニウム (PAC) を所定の濃度で用いた。

3) ゼータ電位の測定

ゼータ電位の測定には Micro-Electrophoresis Apparatus Mk II (Rank Brothers, UK) を用いた。室温 20 ± 1 、80mV の条件で、Smoluchowski 式によって計算してゼータ電位を得た。

4) 粒径分布の測定

粒径は日機装社の粒度分光計 Microtrac HRA 9320-X100 を用いて測定した。全体を 100% としたときのある粒径の出現割合を頻度として表した。

5) アルミニウム濃度の測定

処理水に残留するアルミニウム濃度の測定は Thermo Scientific 社製 ICP-AES iCAP6500 を用いて行った。

6) 凝集ろ過実験

原水に凝集剤を注入した直後、ろ過を行う凝集ろ過法の実験は図 1 に示す装置を用いて以下の通り行なった。

ろ過には直径 3 cm、高さ 100 cm の円筒を使用した。ろ過速度が 100 m/d の急速ろ過になるよう流量は 50 mL/min に調整した。このろ過筒に有効径 0.5 mm、均等係数 1.5 の砂を高さ 50 cm 部分まで充填した。そして、ろ材の表層から深さ 5、15、30 cm の位置の水頭を測定できるようにマノメーターを設置した。

凝集剤の注入条件は 0、2、5、10 mg-PAC/L の 4 条件であり、攪拌は行わず、ろ過層上部の水を貯留する空間で原水と凝集剤を混合

した。

実験は 1 回毎に逆流洗浄を行った。1 回のろ過継続時間は 2 時間とし、15 分毎にろ水をサンプリングして濁度、損失水頭を測定した。ろ層に流入する粒子のゼータ電位は、凝集剤を添加した後の水をサンプリングして測定した。

7) 凝集沈澱ろ過実験

日本水道協会がまとめた「水道施設基準解説」を参考に、急速攪拌槽、フロック形成槽、沈澱槽を作成した。また、本実験には凝集ろ過実験で使用したろ過筒を使用した。概要を図 2 に示す。

ろ過速度が 100 m/d の急速ろ過になるよう流量は 50 mL/min に調整し、この流量で急速攪拌を約 7 分、緩速攪拌を約 30 分、沈澱を約 1 時間となるように各槽を設計した。

急速攪拌槽は直径 7cm、高さ 20cm の円筒であり、高さ 10cm の位置から水を流出させた。凝集剤、および原水はポンプを用いて流量を調整し、急速攪拌槽中の円筒の流入口の上部から注入し、下部のスターラーで攪拌されるようにした。攪拌にはスターラーを使用した。G 値は 100 s^{-1} に設定した。

フロック形成槽は縦 9cm、横 15cm、高さ 10cm の直方体である。急速攪拌槽からの処理水は阻流板によりフロック形成槽の下部でプロペラ攪拌機により満遍なく攪拌されるようにした。G 値は 18 s^{-1} に設定した。

沈澱槽は縦 9cm、横 40cm、高さ 10cm の直方体である。フロック形成槽と接続しており、フロック形成槽の処理水が越流して流れ込むようにした。またフロック形成槽と同様に阻流板を使用した。

急速攪拌槽における凝集剤濃度は 2、5、10 mg-PAC/L に設定した。実験は 1 回毎に逆流洗浄を行った。1 回のろ過継続時間は 3 時間とし、30 分毎にろ水、1 時間毎に沈澱処理水をサンプリングした。測定項目は濁度、粒径分布、ゼータ電位とした。

C. 研究結果および D. 考察

1) 凝集ろ過実験

凝集ろ過法の濁度処理能力を図3に示す。凝集剤を添加しない系では原水の濁度2.2度に対してろ過水の濁度は1.9度と14%の濁度が除去されるにとどまった。

これに対して凝集剤を添加した系では、ろ過漏出が起こった2mg-PAC/Lでも原水濁度2.3度からろ過水濁度0.3度と87%以上除去されていた。さらにこの系でも1時間を過ぎてからの濁度は0度(検出下限値未満、以降同様)となった。

一方、凝集剤注入量5、10mg-PAC/Lの場合は、初期より一貫してろ過水濁度が0度であった。

凝集ろ過法における総損失水頭の経時変化を図4に示す。2時間目の総損失水頭は2mg-PAC/Lで1.2cm、5mg-PAC/Lで4.7cm、10mg-PAC/Lで19.3cmであり、凝集剤濃度を高くするにつれて総損失水頭が顕著に上昇した。図5に、凝集ろ過法の2時間後の損失水頭の鉛直分布を示す。凝集剤濃度の増加に対し、表層での損失水頭は急激に上がり、10mg-PAC/Lの系ではろ層表面でろ過閉塞を引き起こしたことが分かる。

表1には各凝集剤注入量においてろ層に流入するフロックのゼータ電位を示した。ピコ植物プランクトンのゼータ電位が約-30(mV)であるのに対して、凝集剤注入量が増加するにつれて荷電中和が生じたが、10mg-PAC/Lでも-15(mV)であり、良好な凝集に必要な荷電中和領域である-5~+5(mV)²⁾には達しなかった。

本研究結果から、ピコ植物プランクトンの除去にろ過直前の凝集剤添加が有効であることが確認された。また、わずかにろ過漏出が起こった2mg-PAC/Lでも1時後には濁度がほぼ0となっており、時間とともにフロックの捕捉能力が向上したことが伺われる。

海老江ら³⁾は、PACをろ過装置に流した場合、ろ層上部5cmでアルミニウムが50%抑留されたことを明らかにしているが、ろ過直前に添加した凝集剤がろ層表面に抑留され、フロックを捕捉する能力を高めたために、2mg-PAC/Lの系で時間経過とともにフロッ

ク捕捉能力が高まったと考えられる。

2) 凝集沈澱ろ過実験

凝集沈澱ろ過法における沈澱処理水の濁度の経時変化を図6(a)に、ろ過処理水の濁度の経時変化を図6(b)に示す。凝集剤注入量2mg-PAC/Lの場合1.6度弱の濁度、凝集剤注入量5、10mg-PAC/Lの場合1度強の濁度でろ過筒へ流入していた。しかし、ろ過処理によって2mg-PAC/Lの系を除き濁度は0度となった。2mg-PAC/Lの系においては、0.5hの時のみ濁度が0.2度程度であり、「クリプトスポリジウム等対策指針」において求められている0.1度未満を達成していなかったが、それ以降は0.1度未満を達成していた。

凝集沈澱ろ過法における総損失水頭の経時変化を図7に示す。凝集沈澱ろ過法では、実験終了時の3時間目の総損失水頭は2mg-PAC/Lで1cm、5mg-PAC/Lで1.6cm、10mg-PAC/Lで4.6cmであった。凝集剤濃度を上げると総損失水頭も増加するが、凝集ろ過実験で見られた急激な総損失水頭の増加は見られず、処理が良好に継続したことが分かる。

2時間目の総損失水頭を凝集沈澱ろ過法と凝集ろ過法で比較すると、2mg-PAC/Lで2倍、5mg-PAC/Lで5倍、10mg-PAC/Lで9倍、凝集ろ過法の総損失水頭が大きかった。

ろ過漏出が起こった2mg-PAC/L系の粒径分布を図8に示す。ここで、縦軸の頻度は粒子全体の個数に対する各粒径の粒子の出現頻度を示す(各ラインで示される頻度の総和(面積)は100%として示している)。沈澱槽で沈降するフロック(沈澱物)と浮遊するフロック(浮遊物)の粒径を比較すると、沈澱物には浮遊物よりやや大き目の100 μ m以上のフロックが存在し、一方浮遊物は10 μ m以下の比較的小さなフロックが存在した。この差が沈澱によって除去されたフロックの特徴を表している。すなわち図6に示したように凝集沈澱ろ過法において凝集沈澱処理によって濁度が2.2度から1.6度に低下したが、この結果は粒径100 μ m以上のフロックが除去されたことによるものと見ることが

できる。しかし、ろ過漏出した粒径の大きさは沈澱物、浮遊物におけるフロック粒径分布とは異なり、 $4.2\ \mu\text{m}$ にピークが検出された。図8にはピコ植物プランクトンそのものの粒径分布も示したが、それは $1\ \mu\text{m}$ 程度にピークを有する粒径分布をもっている。したがって、ろ過漏出したピコ植物プランクトンは未凝集ではなく微小なフロックを形成していたことがわかるが、凝集沈澱、さらにはろ過で除去されるフロックよりも小さいフロックであると言える。

表2には、凝集沈澱ろ過処理水中に検出されたアルミニウム量を示す。水道水をベースに原水を作成したが、それは 0.04mg-Al/L 程度のアルミニウムを含んでいた。これに対して凝集剤注入量2、5、 10mg-PAC/L の条件では、それぞれ 0.12 、 0.01 、 0.18mg-Al/L のアルミニウムが検出された。 2mg-PAC/L では濁度が0度にはならず、フロックのろ過漏出が起きていた。これによってアルミニウム濃度の上昇が生じたと考えられる。一方、 10mg-PAC/L では濁度は0度であったが、より高いアルミニウム濃度が検出されたのは、凝集剤がピコ植物プランクトンおよび砂と反応せずにそのまま漏出した可能性が考えられる。

3) 二段凝集の効果

図9には、ピコ植物プランクトン懸濁液の急速攪拌後の粒径分布に及ぼす凝集剤注入量の影響を示す。2から 5mg-PAC/L へと凝集剤注入量増加させると、粒径のピークは 105 から $228\ \mu\text{m}$ へと増加した。しかし、 10mg-PAC/L まで増加させると、一部の再分散が起こり、 $5.5\ \mu\text{m}$ にも粒径のピークが表れた。丹保ら⁴⁾は、水酸化アルミニウム重合物の量が過剰に存在するとフロック径は大きくなることを明らかにしているが、本実験でも同様の現象が確認された。

以上の結果をふまえて、二段凝集の効果を考察する。

最適凝集剤注入量は凝集沈澱による濁度の除去性を指標として、ジャーテストによって決定されることが一般的である。すなわち、

凝集剤添加によってゼータ電位を $-5\sim+5$ (mV)の荷電中和領域に調整し、より大きなフロックが形成される条件を整えることが、沈澱除去率を高める条件である。しかし、植物プランクトンを荷電中和するためには、粘土鉱物等と比較してより多くの凝集剤注入量を必要とするため⁵⁾、本研究で明らかになったように凝集剤注入量の増加によって一部が再分散する可能性が高い。

一方で、本研究で明らかになったように、ピコ植物プランクトンのような粒径の極めて小さい植物プランクトンに対して 5mg-PAC/L 程度の凝集剤を注入することで、粒径 $200\ \mu\text{m}$ 超にピークをもち、 $10\ \mu\text{m}$ 以下のフロックがほとんど存在しないフロックを形成することが可能である。ただし、これも本実験で明らかにしたように、粒径 $100\ \mu\text{m}$ 超のフロックは沈澱除去できたものの、それ以下の粒径の沈澱除去性は悪く、濁度としては除去率が50%程度であった。これにはピコ植物プランクトンの比重も関係すると思われる。すなわち粘土粒子等の比重2.6程度に比べて植物プランクトンの比重は1に近く、沈澱させるためにはより大きなフロックを形成させる必要がある。

一方で、ろ過による粒径 $100\ \mu\text{m}$ 以下のフロックの除去効率は極めて高く、ろ過漏出したフロックの粒径分布が $4.2\ \mu\text{m}$ にピークをもち、 $10\ \mu\text{m}$ 以上のフロックがほとんど存在しないことを考えると、粒径 $10\ \mu\text{m}$ 以上のフロックを形成する凝集条件が、凝集ろ過では重要と考えられる。

このような凝集条件は、ゼータ電位で示される荷電中和領域からははずれており、凝集剤の注入量が低い場合は $10\ \mu\text{m}$ 以下のフロックが形成され、また高い凝集剤注入量においてもフロックの一部が再分散して $10\ \mu\text{m}$ 以下となるため、最適な凝集剤注入量を保つことが重要である。

さらに、ろ過水へのアルミニウムの漏出という観点からも、最適凝集剤注入量より高い場合も低い場合もアルミニウム濃度が高まることが示唆された。

また、総損失水頭の急激な上昇、すなわちろ過閉塞の観点からは、過剰な凝集剤注入量が問題であることも示された。

以上をふまえると、ろ過処理前に適切な凝集剤注入量によってろ過除去可能なフロックを形成する凝集ろ過法は、ピコ植物プランクトンの除去には極めて合理的であると言える。

E. 結論

ピコ植物プランクトンのように、凝集沈澱処理において多量の凝集剤注入量を必要とする懸濁物質の除去には、ろ過の前に凝集剤を添加する凝集ろ過法が合理的な処理法である。ただし、凝集剤注入量が少ない場合粒径 $10\ \mu\text{m}$ 以下のフロックが形成され、凝集剤注入量が多い場合フロックの再分散により一部が粒径 $10\ \mu\text{m}$ 以下となることから、最適な凝集剤注入量によってフロック径を $10\ \mu\text{m}$ 以上に保つことが肝要である。

G. 研究発表

1) 論文発表
該当なし

2) 学会発表

(1)安斎英悟、AKTAS Tugrul Selami、西村修、藤本尚志、岸田直裕、秋葉道宏、LEE Shunhwa、ピコ植物プランクトンの凝集特性に関する基礎的研究、第 48 回日本水環境学会年会、2014 年

(2)安斎英悟、千葉信男、秋葉道宏、西村修、ピコ植物プランクトンに対する凝集ろ過法の効果、日本水処理生物学会、2014 年

H. 知的財産権の出願・登録状況（予定も含む。）

1) 特許取得
該当なし

2) 実用新案登録
該当なし

3) その他
該当なし

I. 参考文献

- 1) 秋葉道宏：水道システムにおける生物障害の実態把握とその低減対策に関する研究：平成 25 年度総括・分担研究報告書：厚生労働科学研究費補助金健康安全・危機管理対策総合研究事業
- 2) Anthony Anable *et al.*: Chem, & Met. Eng. 45、No.5、1938
- 3) 海老江邦雄ら：PAC 被覆砂ろ過による濁質の高効率分離に関する基礎的研究、土木学会第 55 回年次学術講演会、2000
- 4) 丹保憲仁ら：フロック形成におよぼす凝集条件について、衛生工学、16、pp.37-47、1968
- 5) 秋葉道宏ら：Chlorella sp. の細胞内外有機物質の凝集阻害に関する基礎的研究、水道協会雑誌、60(2)、pp.2-10、1991

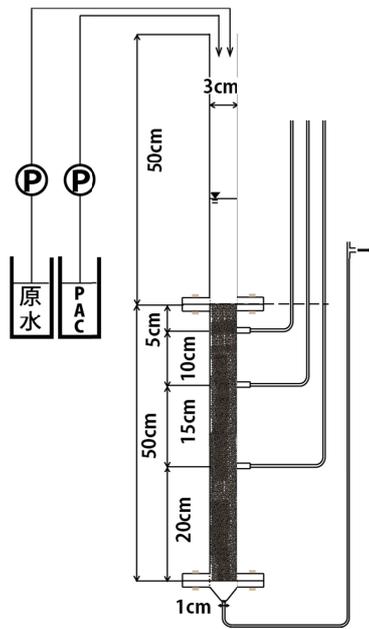


図1 凝集ろ過実験装置概要
 流量：50mL/min
 ろ過速度：100m/日

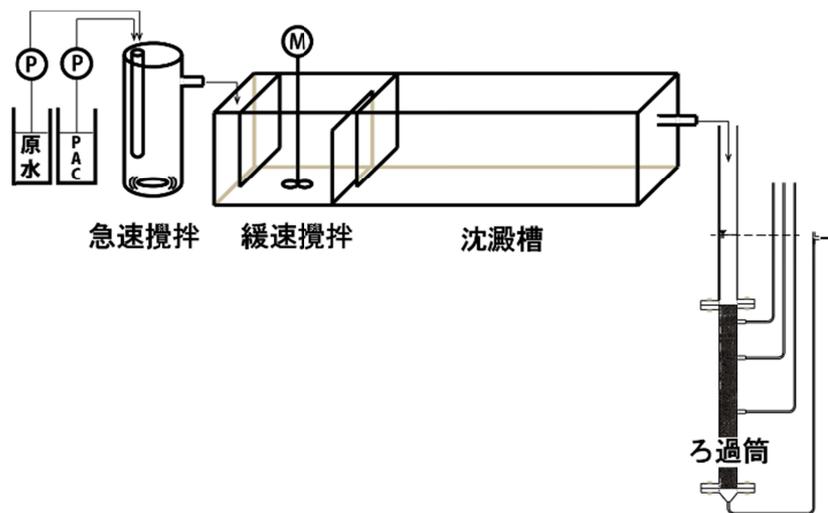


図2 凝集沈澱ろ過実験装置概要
 流量：50mL/min
 急速攪拌：G 値 $100s^{-1}$ 、7 分
 緩速攪拌：G 値 $18s^{-1}$ 、30 分
 沈澱：1 時間

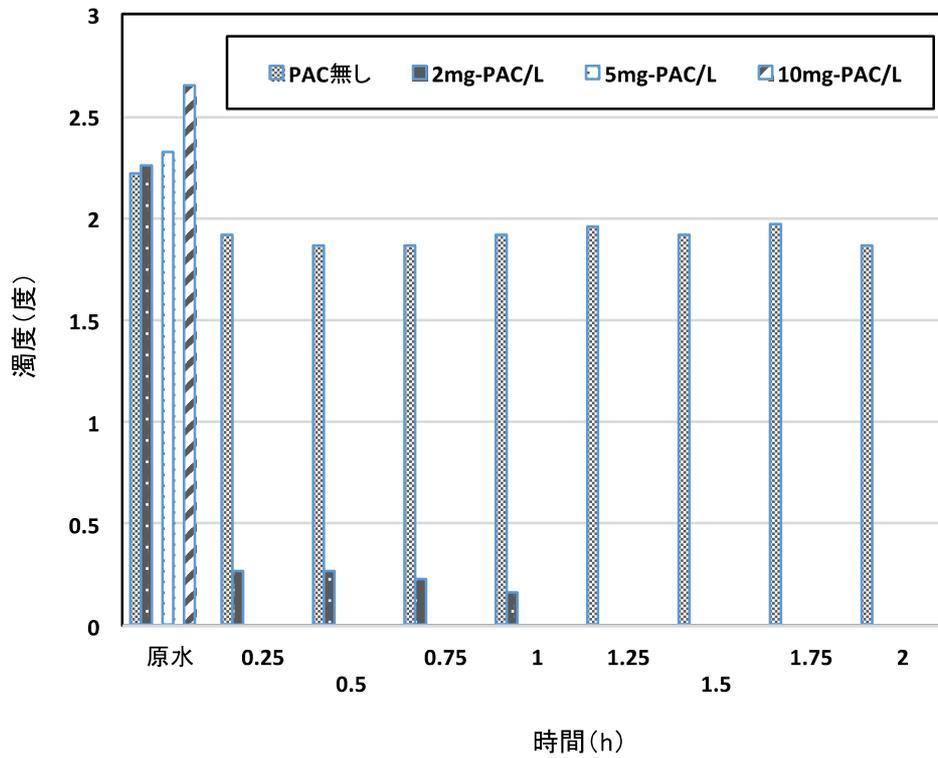


図3 ピコ植物プランクトン懸濁液の凝集ろ過における処理水濁度の経時変化

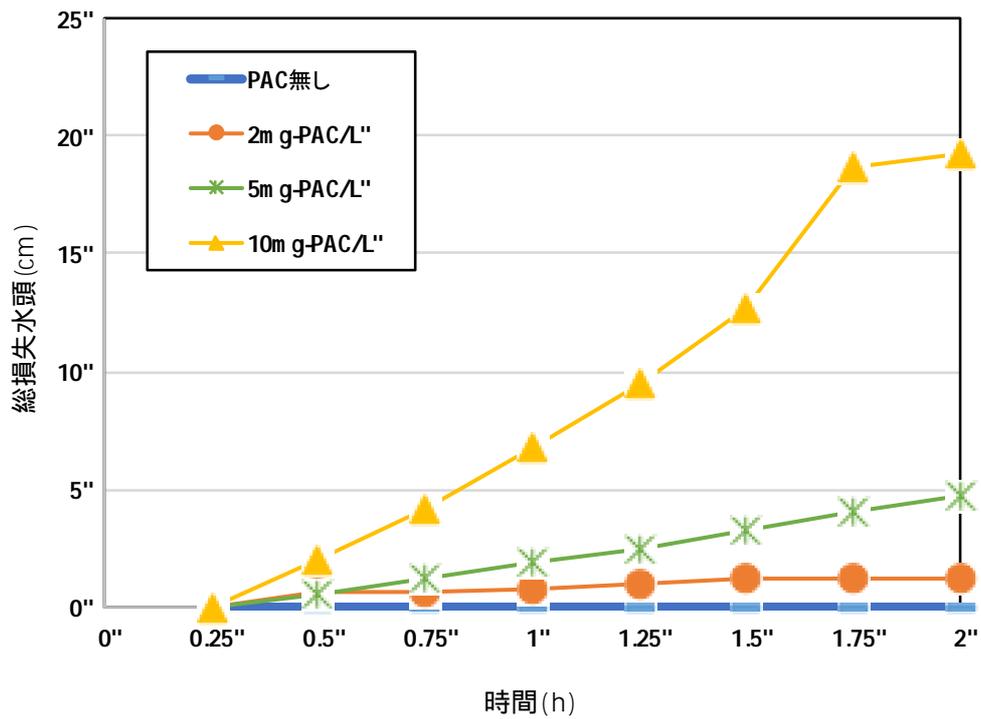


図4 ピコ植物プランクトン懸濁液の凝集ろ過における総損失水頭の経時変化

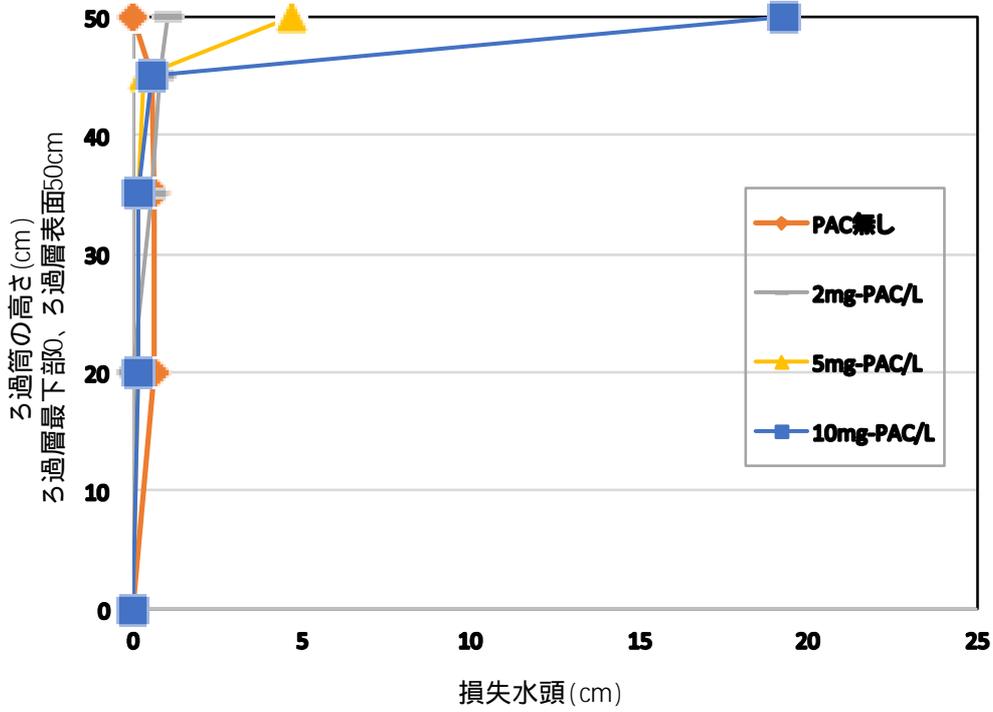


図5 ピコ植物プランクトン懸濁液の凝集ろ過における損失水頭の鉛直分布（2時間後）

表1 ピコ植物プランクトン懸濁液の凝集ろ過における凝集剤注入量とゼータ電位の関係

凝集剤注入量 (mg-PAC/L)	0(原水)	2	5	10
ゼータ電位(mV)	-29.3	-26.8	-21.7	-15.1

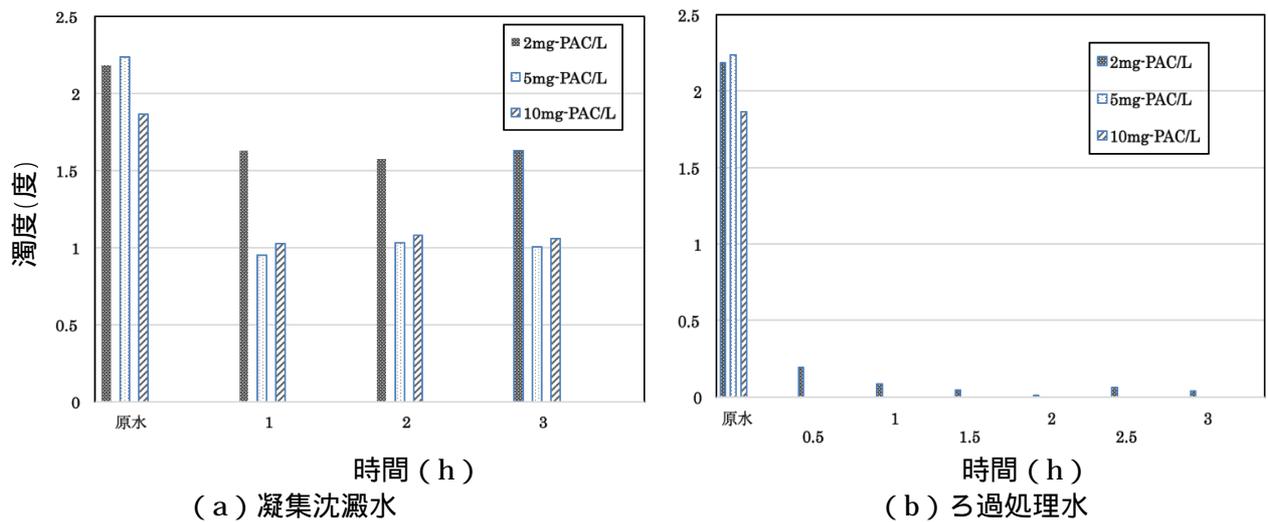


図6 ピコ植物プランクトン懸濁液の凝集沈澱ろ過における処理水濁度の経時変化

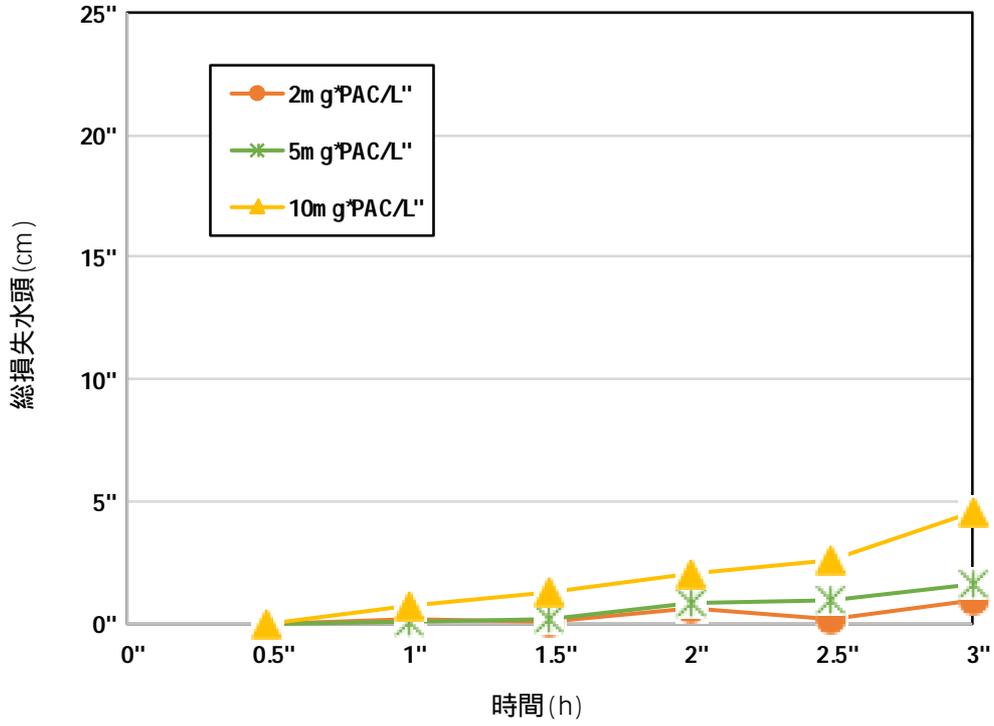


図7 ピコ植物プランクトン懸濁液の凝集沈殿ろ過における総損失水頭の経時変化

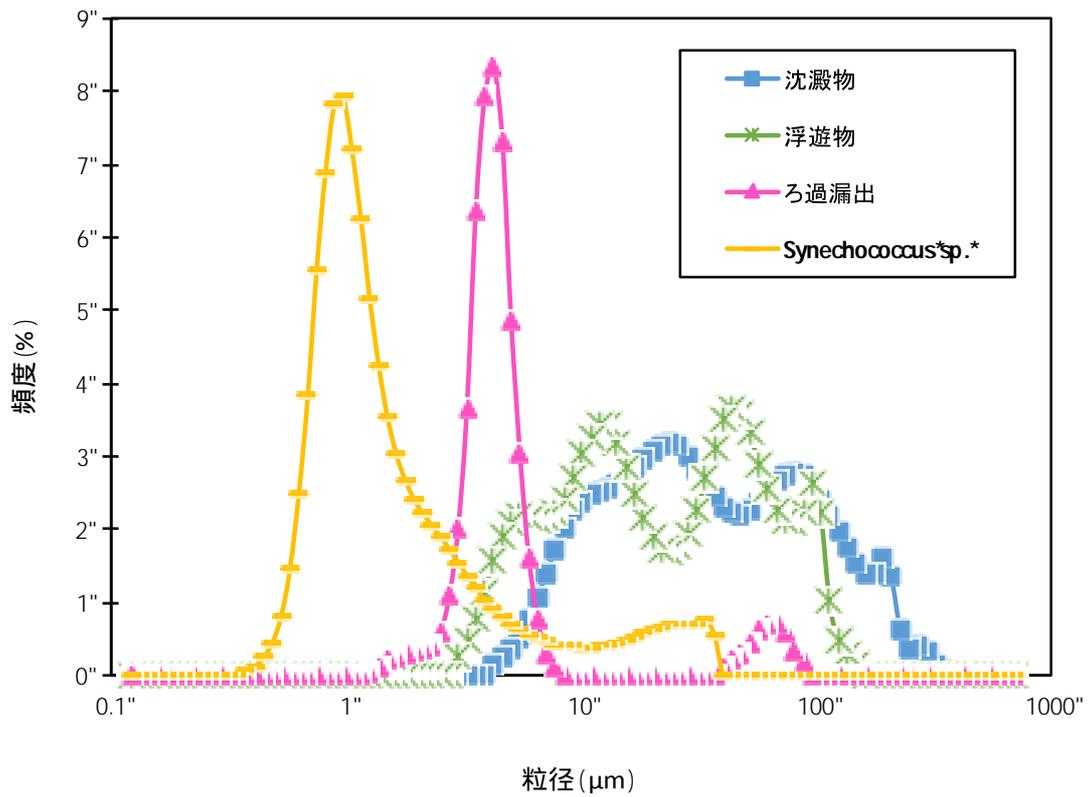


図8 ピコ植物プランクトン懸濁液の凝集沈殿ろ過過程における粒径分布の変化 (2 mg-PAC/L)

表2 ピコ植物プランクトン懸濁液の凝集沈澱ろ過における
処理水中のアルミニウム濃度

	2mg-PAC/L	5mg-PAC/L	10mg-PAC/L
原水	0.04	0.04	0.03
ろ水	0.12	0.01	0.18

Al(mg-Al/L)

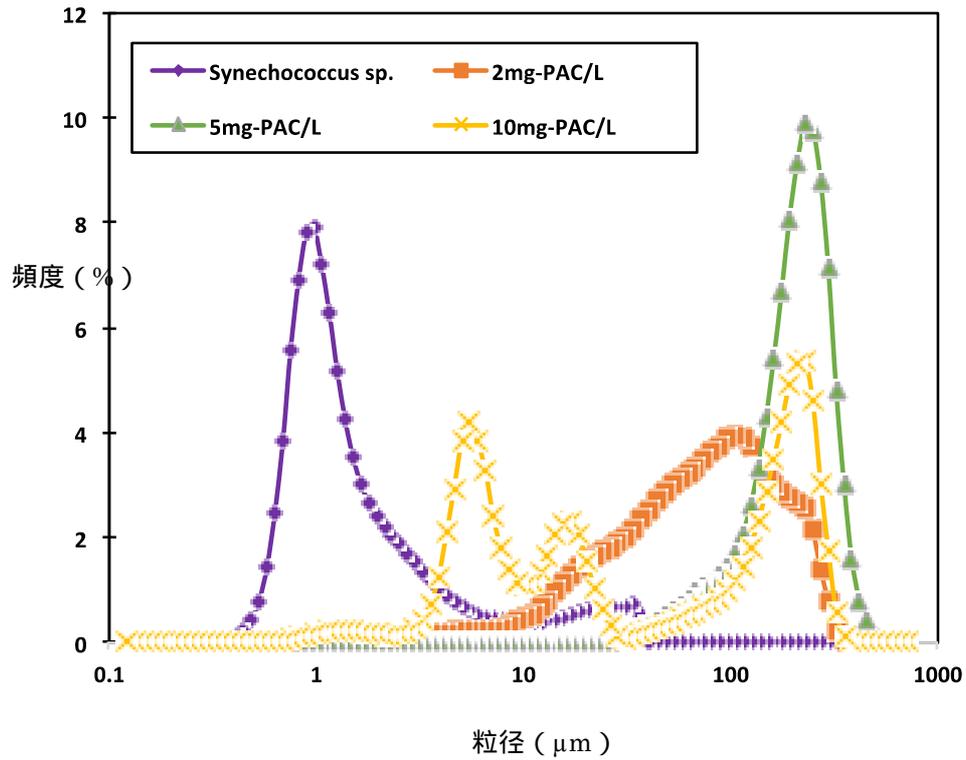


図9 ピコ植物プランクトン懸濁液の急速攪拌後の粒径分布に及ぼす凝集剤注入量の影響