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）
「大規模災害および気候変動に伴う利水障害に対応した環境調和型水道システムの構築に関する研究」

分担研究報告書

研究課題：ろ過漏出障害を回避するための浄水処理プロセスの開発

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

ピコ植物プランクトン *Synechococcus* sp.と藍藻 *Microcystis aeruginosa* を用いて凝集に関わる基本的特性としての pH とゼータ電位の関係、荷電中和に必要な凝集剤注入量、および荷電中和時の残留濁度を比較検討した。両藻類とも pH の上昇とともに荷電中和が起こり、*Synechococcus* では pH が 5 と 6 の間で、*Microcystis* では 6 と 7 の間で正電荷から負電荷に変化した。PAC を用いて pH6.5 と 7 における荷電中和に必要な凝集剤注入量を求めたところ、*Microcystis* は pH6.5 および 7 の両条件において凝集剤注入量は５から 10mg/L 必要であり pH 変化の影響は認められなかったが、*Synechococcus* では pH6.5 において 50 から 60mg/L、pH7 において 100 から 200mg/L と多量の凝集剤注入量が必要であり、pH のわずかな変化に大きな影響を受けることが明らかになった。

また、最適凝集剤注入量における残留濁度は *Microcystis* と比較して *Synechococcus* で著しく高く、荷電中和のために多量の凝集剤注入量を必要とする条件下で再分散が生じている可能性が考えられた。

なお、高塩基度 PAC による凝集に関する既往研究をまとめた結果、ピコ植物プランクトンの処理に有効である可能性が高いことから、H28 年度は高塩基度 PAC および二段凝集によってピコ植物プランクトンを除去することの有効性を検討する。

A. 研究目的

ピコ植物プランクトンは 0.2-2μm のサイズの小さな植物プランクトンで、ピコシアノバクテリアと真核性光合成生物からなる [1)]。ピコ植物プランクトンおよびその代謝物質が原水に存在することで、処理水の濁度上昇、ろ過閉塞、異臭味障害、同化可能有機物(AOC)、消毒副生成物、毒性物質等の様々な問題が発生する [2-8)]。

このようにピコ植物プランクトンによる浄水障害の発生が問題視され、様々な研究がなされてきているが、ピコ植物プランクトンの凝集阻害およびろ過漏出障害に関する研究は進んでおらず、対策技術の開発が求められているとともに、そのための基礎情報の収集が必要な段階にある。そこで本研究では、ピコ植物プランクトンの発生するような富栄養化水源の原水 pH が高いことに注目し、そのような水質に適すると考えられる新たな凝集剤の凝集特性に関する既往研究の文献調査を行った。また、ピコ植物プランクトンの凝集における pH の影響を明らかにすることを目的として、実験的検討を行なった。

B. 研究方法

１）文献調査

高塩基性塩化アルミニウム（高塩基度 PAC）に関する既往研究[10-14]について整理し、植物ピコプランクトンの凝集に応用する場合の研究課題をまとめた。

２）ピコ植物プランクトンの凝集実験

本研究ではピコ植物プランクトンとしてシアノバクテリア *Synechococcus* sp. (NIES-1348)を国立環境研究所より入手し、CB 培地で水温 25±1℃、蛍光灯下（18μmol photons/m^2/sec、12-h light/12-h dark）で培養した。

200mL の三角フラスコに 100mL の CB 培地を入れ、90rpm で振とう撹拌を行い、定常期になった培養液を水道水で希釈して 1.5×10^6(個/mL)の濃度に調整し実験に用いた。

また比較のため *Microcystis aeruginosa*(NIES-87)を用いた実験も行った。培養方法は *Synechococcus* sp.と同様であり、1.2×10^6(個/mL)の濃度に調整し実験に用いた。

凝集剤としてはポリ塩化アルミニウム(PAC)を用いた。

また、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。

ジャーテストは、４枚のパドルスターラー(60mm×30mm)が設置された装置を用いて行なった。HCl あるいは NaOH にて pH を所定の濃度に調整した植物プランクトン懸濁液に対して凝集剤を注入し 150rpm、３分の急速撹拌、30rpm、30 分の緩速撹拌および 60 分の沈殿を行い、水面から 2cm 下の上澄み液を採取し分析に供した。

C. 研究結果および D. 考察

１）文献調査結果および考察

「超高塩基度 PAC のアルミニウム溶解度と pH 管理目標値」（中島ら）

鹿児島県薩摩川内市丸山浄水場では、季節的な要因で原水 pH が上昇することがあり、pH 調整のために凝集剤（PAC）を過剰に注入することで処理水質の安定化を図ってきた。この問題に対応するために、高 pH 原水用に開発された塩基度 70%（通常の PAC の塩基度は 50%）の超高塩基度 PAC を平成 26 年 11 月より試験的に使用したところ、通常 PAC の場合、残留アルミニウム濃度水質管理目標値 0.1 mg/L 以下に対する pH 管理目標値は 7.2 以下であったのに対して、高塩基度 PAC の pH 管理目標値は 8.2～8.3 となり、pH 制御を行う必要がないことがわかった。

「高濁度原水の処理不良時における二段凝集処理による濁度およびクリプトスポリジウムの除去効果ならびに感染リスク評価」（島崎ら）

近年の豪雨発生件数の増加により、高濁度原水や有機物濃度上昇の発生頻度が高まり、水道事業体では対応に苦慮しており、導入しやすく効果の高い原水濁度対応技術が必要とされている。このため二段凝集処理、高塩基度 PAC によるクリプトスポリジウム模擬粒子の除去特性を調べたところ、高濁度原水における二段凝集処理の適用により、沈殿不良、凝集不良の発生時ともに砂ろ過水の濁度低減効果が確認され、特に沈殿不良時における清澄化の効果が大きく表れた。しかし、高塩基度 PAC は従来型 PAC と同程度の濁度除去能力を示すものの、クリプトスポリジウムの除去性は優れない可能性が示唆された。

「高塩基度 PAC の運用効果」（青木ら）

福岡県筑後川表流水を主とする原水の処理において、高塩基度 PAC を用いた凝集実験を行った。凝集剤注入率を低減した系においても浄水処理の安全性を図るために設けている企業団水処理指針における水質管理値を満足することができるとともに、薬品注入量については凝集剤のみならず pH 調整剤（硫酸、消石灰）も含めた薬品使用量の低減効果が確認できた。

「高塩基度ポリ塩化アルミニウムの浄水処理への適応性」（長良ら）

明石市の鳥羽浄水場では、ろ過池の洗浄水が混和池に返流されることで原水の水温変動が著しく、原水 pH の変動を自動調整できないことも重なり、凝集処理が悪化する問題が生じている。この鳥羽浄水場の全系統（1 系：地下水、2・3 系：河川水）で、原水 pH の上昇に伴う凝集不良などの改善を目的と

した高塩基度PACの試験を実施したところ、高塩基度 PAC の効果が少ないと想定された冬季にあえて試験を実施したにもかかわらず、フロック形成もよく除濁性、沈降性も向上し、濃縮槽の界面管理も容易になった。また、汚泥濃度も上昇し、汚泥脱水機の運転回数も減少した。さらに長期的に観ると、脱水ケーキ量の削減、電力量の削減、ろ布の交換周期の延長の可能性があることがわかり、高塩基度型 PAC の注入量削減の可能性は原水が河川水の場合に高く、使用コスト削減も可能であることが示唆された。

「ウイルス処理に有効な新規アルミニウム系凝集剤の開発」（白崎ら、北海道大学大学院）

近年の水道水源の富栄養化に伴う pH 上昇により、従来のアルミニウム系凝集剤では最適 pH 条件下（中性付近）での処理が困難な状況が生じてきており、そのような弱アルカリ性の原水においては、ウイルスの処理性も著しく低下することが知られている。また、最適 pH 条件下での処理のために凝集剤の多量注入や酸注入による pH 制御を実施せざるを得ない場合も多く、結果として薬品の大量消費、注入設備の増設、管理の煩雑性、さらには処理水中の残留アルミニウム濃度の増加といった問題が生じている。このような背景に鑑み、高塩基度 PAC によるウイルス処理に関する凝集実験を行い、凝集剤の塩基度および凝集剤中の硫酸はウイルスの処理性に影響し、塩基度が高く硫酸を含まない凝集剤を用いることにより、従来型 PAC に比べて高い除去率が得られることが明らかになった。

以上の通り、高塩基度 PAC を用いた凝集に関する研究は限られているが、高塩基度 PAC の特徴は以下の通りまとめられる。

弱アルカリ域でも使用でき、pH 制御を行う必要が少なく、残留アルミニウム濃度が低減できる。

従来型 PAC と同程度、同等以上の濁度除去能力を示すが、クリプトスポリジウムの除去性は濁度より優れない可能性がある。

薬品注入量については、凝集剤のみならず pH 調整剤も含めた薬品使用量の低減効果がある。

冬季においてもフロック形成が良く、除濁性、沈降性も従来型 PAC よりも向上し、汚泥処理においても負荷の低減効果が期待できる。

ウイルスの処理性に関して、高塩基度 PAC は従来型 PAC に比べて高い除去率が得られる。

しかしながら、植物プランクトンおよびピコ植物プランクトンの凝集処理に高塩基度 PAC を用いた研究は無いことから、今後研究をすすめて凝集特性を明らかにする必要がある。

２）ピコ植物プランクトンの凝集に及ぼす pH の影響

藍藻 *Microcystis* とピコ植物プランクトン *Synechococcus* のゼータ電位と pH の関係を図 1 に示す。

Synechococcus は pH2 から 4 の強い酸性領域で約 10 から 20mV の正電荷を有していたが、*Microcystis* はさらに大きな正電荷（約 30 から 40mV）を呈していた。しかし、pH の上昇とともに荷電中和が起こり、*Synechococcus* では pH が 5 と 6 の間で、*Microcystis* では 6 と 7 の間で正電荷から負電荷に変化した。結果として pH7 付近で両者とも負電荷であるものの、*Synechococcus* は pH7 で約−10mV、*Microcystis* は−20mV 以下であり、pH7 付近でのわずかな pH 変化が凝集に大きな影響を及ぼすことが予想された。

このようなピコ植物プランクトンおよび藍藻の特徴をふまえ、通常の PAC を用いて pH6.5 と 7 に調整して荷電中和に必要な凝集剤注入量を求めるための実験を行った。その結果は表１に示す通り、*Microcystis* は pH6.5 および 7 の両条件において凝集剤注入量は５mg/L 必要であり、pH 変化の影響は認められなかったが、*Synechococcus* では pH6.5 において 50 から 60mg/L、pH7 において 100 から 200mg/L と多量の凝集剤注入量を必要とし、それは pH のわずかな変化に

大きな影響を受けることが明らかになった。

このように荷電中和に必要な凝集剤注入量が *Synechococcus* と *Microcystis* で大きく異なる理由の一つとしては、細胞の大きさが関与しているものと考えられる。本実験で用いた *Microcystis* の細胞は球形であり、直径は 5.5 μm 程度であった。一方、*Synechococcus* の直径は 2 μm であり、結果として細胞当たりの表面積は 8 倍程度 *Synechococcus* の方が大きい。本実験では、細胞濃度を *Microcystis* は 1.2×10^6(個/mL)、*Synechococcus* は 1.5×10^6(個/mL)と同程度に調整したため、負に帯電する表面積の比はやはり 8 倍程度 *Synechococcus* 懸濁液の方が大きい。このような違いが荷電中和に必要な凝集剤注入量の違いをもたらしたと考えられる。

Synechococcus において pH が 6.5 から 7 に変化したときに荷電中和のための凝集剤注入量が倍以上増加する理由についてゼータ電位の変化は見られないことから凝集剤に対する pH の影響ではないかと考えられた。高塩基度 PAC は、弱アルカリ域でも使用でき、アルミニウムイオンの重縮合が進み多核錯体となっているためアルミニウムモノマーイオンより高いプラスの電荷を有し、架橋性も有している。このような特性からウイルスの除去性にも優れていると考えられるが、本研究の対象とするピコ植物プランクトンを藍藻と比較すると、高塩基度の特性はピコ植物プランクトンの凝集に有利な特徴を有していると評価できる。

図２には pH6.5 における *Microcystis* と *Synechococcus* のゼータ電位と残留濁度の関係を示した。凝集性の悪いことで知られている *Microcystis* と比較しても *Synechococcus* の凝集沈殿処理性は悪く、荷電中和領域と言えるゼータ電位の範囲（-5～+5mV）でも高い残留濁度を示した。この理由としては、荷電中和のために 50～100mg/L と多量の凝集剤注入量を必要とする条件下で、再分散が生じている可能性が考えられた。このことについてさらに検討を要するが、高塩基度 PAC は荷電中和のみならず架橋作用も期待できるため、ピコ植物プランクトンに適用した場合に凝集効果は少なからず期待できるものと考えられる。

E. 結論

ピコ植物プランクトン *Synechococcus* の凝集に関する基本的特性に関して、*Microcystis* と比較しながら検討し、PAC より凝集しにくい特性を有すること、このためより多量の凝集剤注入量を必要とすること、その結果再分散が生じている可能性が高いことを明らかにした。また、文献調査から高塩基度 PAC によって凝集効果を高めることが可能と考えることを考察した。

G. 研究発表

1) 論文発表

該当なし

2) 学会発表

該当なし

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) J.G. Stockner, N.J. Antia, Algal picoplankton from marine and freshwater: A multidisciplinary perspective, Can. J. Fish. Aquat. Sci. 43 (1986) 2472–2503.
2) F. Jutter, Physiology and biochemistry of odorous compounds from freshwater cyanobacteria and algae, Water. Sci. Technol. 31(11) (1995) 69–78.

3) C.D. Wu, X.J. Xu, J.L. Liang, Q. Wang, Q. Dong, W.L. Liang, Enhanced coagulation for treating slightly polluted algae-containing surface water combining polyaluminum chloride (PACl) with diatomite, Desalination 279 (2011) 140–145.
4) S.D. Faust, O.M. Aly, Chemistry of Water Treatment, Butterworth, 1983, pp. 137–139.
5) T. Nakamura, K. Soneda, M. Miyata, K. Takeyasu, Leakage of turbidity to filtrate by picophytoplankton and investigation for measures in water purification plant, Jpn. J. Water Treat. Biol. 33(4) (1997) 233–243.
6) T. Hoson, K. Soneda, M. Miyata, T. Takeyasu, Occurrence of picophytoplankton in Yodo river basin and its effect on turbidity control in water treatment system, J. Water Waste 44(9) (2002) 755–762.
7) P. Domingos, T.K. Rubim, R.J.R. Molica, S.M.F.O. Azevedo, W.W. Carmichael, First report of microcystin production by picoplanktonic cyanobacteria isolated from a Northeast Brazilian drinking water supply, Environ. Toxicol. 14(1) (1998) 31–35.
8) W.W. Carmichael, L. RenHui, Cyanobacteria toxins in the Salton Sea, Aquat. Biosyst. 2(5) (2006) 5–18.
9) J. Shi, Y. Zhang, K. Zou, F. Xiao, Speciation characterization and coagulation of poly-silica-ferric-chloride: The role of hydrolyzed Fe(III) and silica interaction, J. Environ. Sci. 23(5) (2011) 749–756.
10) 中島浩ほか、超高塩基度 PAC のアルミニウム溶解度と pH 管理目標値、平成 27 年度水道研究発表会講演集、pp.636-637
11) 島崎大ほか、高濁度原水の処理不良時における二段凝集処理による濁度およびクリプトスポリジウムの除去効果ならびに感染リスク評価、平成 27 年度水道研究発表会講演集、pp.622-623
12) 青木綾佑ほか、高塩基度 PAC の運用効果、平成 27 年度水道研究発表会講演集、pp.302-303
13) 長良野柄ほか、高塩基度ポリ塩化アルミニウムの浄水処理への適応性、平成 27 年度水道研究発表会講演集、pp.300-301
14) 白崎伸隆ほか、ウイルス処理に有効な新規アルミニウム系凝集剤の開発、土木学会論文集 G(環境)、Vol.68, No.7、2012 年、pp.Ⅲ_41-Ⅲ_50

J. 謝辞

高塩基度 PAC に関する情報をご提供いただきました多木化学株式会社に心より感謝いたします。

表１　植物プランクトンの荷電中和に必要な凝集剤（PAC）注入量

	pH 6.5	pH 7
Microcystis	5-10 mg/L	5-10 mg/L
Synechococcus	50-60 mg/L	100-200 mg/L

注）初期細胞濃度（個/mL）：*Miicrocystis* 1.2×10^6、*Synechoccocus* 1.5×10^6

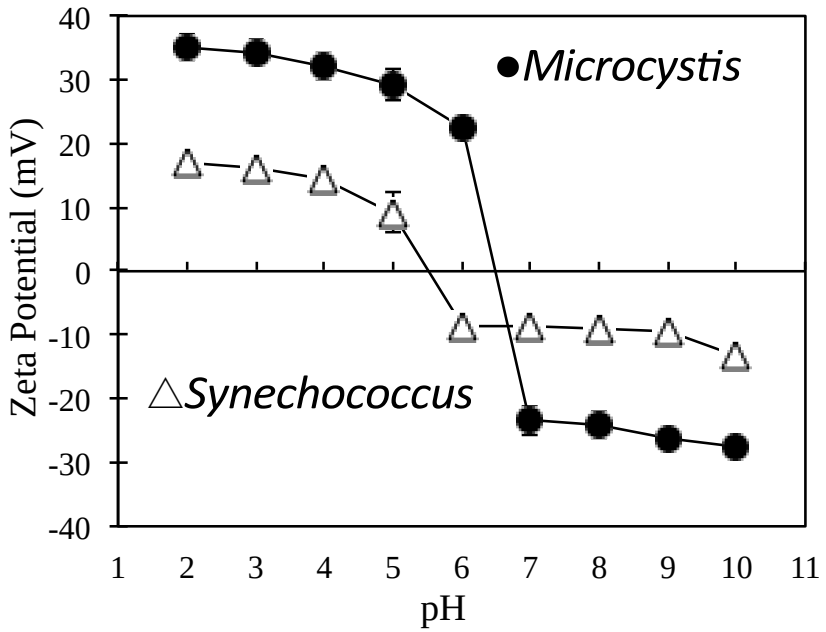

図 1　藍藻 *Microcystis* とピコ植物プランクトン *Synechococcus* の pH とゼータ電位の関係

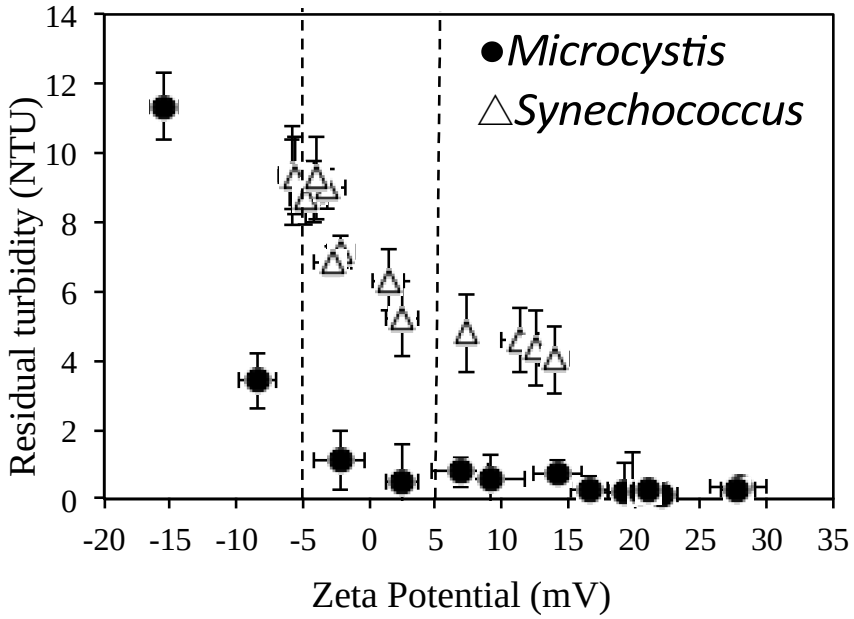

図 2　*Microcystis* と *Synechococcus* のゼータ電位と残留濁度の関係（pH 6.5）