

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

近年、浄水場では微生物による浄水トラブルが頻繁に発生している。特に、ろ過システムからのピコ植物プランクトンの漏出は、処理水の濁度を増加させる重要な問題の1つである。この問題を改善するために凝集剤の投入量を増加させる操作等が行なわれるが、基本的にピコ植物プランクトンの漏出のメカニズムは解っておらず、ピコ植物プランクトンの最適な凝集方法は確立されていない。そこで本研究では、一般的な凝集剤であるポリ塩化アルミニウム（PAC）と近年開発された高塩基性 PAC を用いて凝集、ろ過の実験を行い比較検討した。

その結果、通常 PAC において多量注入時に濁度上昇が発生した。一方で、高塩基度 PAC において 60, 80 mg/L の多量注入時に濁度がほぼ 0 になり、安定した濁度除去効果が得られることがわかった。しかし、凝集能をピコ植物プランクトンの残存数で評価した場合、PAC と高塩基性 PAC の間に差は無く、凝集・沈殿によって除去されない植物ピコプランクトンが存在することがわかった。そこで上澄水に残存する粒子の粒径を調べた結果、40 mg/L 注入時には両 PAC ともに 100 μm 付近にピークが現れたが、80 mg/L では両 PAC ともに 10 μm 前後に粒径のピークが現れ、凝集フロックの再分散が示唆された。また、上澄水の簡易的な砂ろ過処理により、ろ過後の濁度は 0.0 度となった。ただし、ピコ植物プランクトンの細胞数は両 PAC とも 2000 cells/mL 前後検出され、粒径約 4 μm にピークが現れた。このような凝集・沈殿および砂ろ過によっても除去されないフロックの生成メカニズムについて、さらなる検討が必要である。

A. 研究目的

わが国の水道普及率は 97%を超え¹⁾、公衆衛生の向上と生活環境の改善に寄与するとともに、産業経済活動を支え、国民生活に欠くことのできないライフラインとなっている²⁾。水道の使命である安全で快適な水道水を安定して供給するために、全国の浄水場での適切な処理は必要不可欠である。

近年、全国の浄水場や水道事業体において生物障害の発生が問題となっている。秋葉らによるアンケート調査の結果では、2010 年 10 月から 2012 年 9 月までの 2 年間に生物障

害が発生したのは、79 の水道事業体のうち 49 の事業体 (62%)、239 の浄水場のうち 102 の浄水場 (43%) であり、多くの水道事業体が生物障害に悩まされていることが明らかになった。地域差はあるものの日本全国すべての地域で障害が報告されており、さらに低水温地域での障害も発生している³⁾。

中でも異臭味障害に次いで多いろ過漏出障害は、10 年前の調査と比較して増加傾向にある⁴⁾。ろ過漏出障害は、0.2~2 μm と非常に微小なサイズのピコ植物プランクトンによって発生するといわれており³⁾、浄水場で

は発生時の対処に苦慮している。ろ過漏出障害を引き起こすピコ植物プランクトンの細胞数が高まった際、浄水場では凝集剤の注入量を増加させる方法や二段凝集法によって対応しているが⁵⁾⁶⁾、最適な処理条件に関する知見が乏しいことや、根本的なろ過漏出発生メカニズムが明確ではないことが課題として挙げられている。また、凝集剤の適正量を超えた多量注入は、凝集効果を悪化させるといった研究報告⁷⁾もあるため、ピコ植物プランクトンによる凝集阻害の改善のための検討が必要であると考えられる。

そこで本研究では、ろ過漏出障害を引き起こすとされるピコ植物プランクトンの凝集阻害のメカニズムの解明と凝集処理プロセスの改善を研究目的とし、近年残留アルミニウム濃度を低減できる凝集剤として開発された高塩基度ポリ塩化アルミニウム(高塩基度 PAC)⁸⁾を用いた凝集実験を行った。高塩基度 PAC の効果や課題に関する知見は数少なく、本研究で使用するピコ植物プランクトンへの効果や高塩基度 PAC を多量注入した際の影響に関する報告は限られている。以上を踏まえて、本研究の目的を達成すべく、一般に用いられているポリ塩化アルミニウム(通常 PAC) および高塩基度 PAC の注入量をそれぞれ変化させ、特に凝集剤を多量に注入した際の凝集効果の比較やピコ植物プランクトンへの影響を検証した。原水には、カオリン懸濁液およびピコ植物プランクトン懸濁液を用いた。さらに、凝集処理プロセスの改善として、実際に高凝集剤注入時にろ過漏出が発生するのかを確認するため、簡易的な砂ろ過筒を作成しろ過実験を行った。

B. 研究方法

1) カオリン懸濁液を用いた凝集実験

基本的な凝集メカニズムの知見を得るため、カオリンを用いた懸濁液で凝集実験を行った。ジャーテストの攪拌条件は、衛生工学実験指導書⁹⁾を参考に、急速攪拌(100 rpm) 1分経過後に凝集剤を注入し、さらに5分間の急速攪拌(100 rpm)、15分間の緩速攪拌

(30 rpm)、静置は30分間とし、原水濁度を20度程度になるよう調整した。凝集剤には、通常 PAC および高塩基度 PAC を用い、凝集剤注入量を0, 10, 20, 40, 60, 80 (mg/L) とした。凝集沈殿後の上澄水における pH, アルカリ度, 濁度, ゼータ電位, 残留アルミニウム濃度をそれぞれ測定し凝集効果の比較を行った。

2) ピコ植物プランクトン懸濁液を用いた凝集実験

本研究で対象にしたピコ植物プランクトンは、(独)国立環境研究所 NIES-1348 の *Synechococcus* sp. である。CB 培地にて温度条件 20 ± 1 °C, 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。培養した *Synechococcus* sp. を一晩曝気した水道水で濁度が2度程度になるよう希釈し、これを原水として使用した。ジャーテスト攪拌条件および凝集剤添加量はカオリン懸濁液同様の条件とし、それぞれの pH, アルカリ度, 濁度, ゼータ電位, アルミニウム濃度, 粒径分布, ピコプランクトン数を測定した。

また、ろ過処理実験において、上記と同様の実験条件で凝集沈殿処理を行った上澄水を砂ろ過によって処理し、その処理水の濁度, 粒径, ピコ植物プランクトン数を測定した。ろ過後の処理水に砂が混ざらないよう、濁度が0になるまで蒸留水を流し続けた砂ろ過筒を用いてろ過処理実験を行った。

C. 研究結果および D. 考察

1) カオリン懸濁液を用いた凝集実験における濁度の変化

カオリン懸濁液における濁度変化の結果を図1に示した。通常 PAC において、添加量を10~40 mg/L と増加させるにつれて濁度は減少したが、60, 80 mg/L 注入の際に濁度上昇が発生した。最小の濁度は40 mg/L 注入時の1.3度であり、60 mg/L 注入時は2.8度、80 mg/L 注入時に3.1度となった。

一方で、高塩基度 PAC において、少量の10 mg/L 注入時に通常 PAC より濁度が高い結

果となった。しかし、それ以降の注入量においては、通常 PAC と比較して全て濁度が小さく、高塩基度 PAC の高い濁度除去効果が確認された。また、通常 PAC では 60, 80 mg/L 注入時に濁度上昇が発生したが、高塩基度 PAC において、最小濁度は 60 mg/L で 0.6 度、そして 80 mg/L 注入時に 1.3 度とわずかな濁度上昇が発生した。

以上の結果より、凝集剤の最適注入量を超えた多量注入は、凝集効果を悪化させ濁度上昇を発生させる原因であると示唆された。特に濁度上昇は通常 PAC において顕著であり、高塩基度 PAC では高凝集剤注入時にも安定して濁度の除去が行われた。

2) カオリン懸濁液を用いた凝集実験におけるゼータ電位の変化

一般に、ゼータ電位の絶対値が大きければ凝集しにくく、絶対値が 0 に近づくほど凝集しやすいといわれている⁷⁾。図-2 において、凝集剤の注入量を増加させるにつれ全体的にゼータ電位の絶対値は 0 に近づいている。しかしながら、通常 PAC 60, 80 mg/L、高塩基度 PAC 40, 60, 80 mg/L 注入時において、測定時に明らかな微小フロックの増加を肉眼で確認し、この微小フロックのゼータ電位を測定したところマイナスの電位が大きいことがわかった。

以上の結果より、適正量を超えた凝集剤注入はフロックの再分散を引き起こし、濁度上昇の原因になることが示唆された。しかし、濁度の結果に比例した結果ではなかったため、さらに確実なゼータ電位の測定方法が必要であることが課題として挙げられる。

3) カオリン懸濁液を用いた凝集実験における残留アルミニウムの変化

凝集剤注入量を増加させるほど残留アルミニウム濃度は増加し、通常 PAC 40, 80 mg/L 注入時でアルミニウム濃度が 0.40, 0.82 mg/L、高塩基度 PAC でそれぞれ 0.44, 0.84 mg/L と同程度のアルミニウム残存量であった。一方で、それぞれのサンプルをメンブレンによりろ過した後の残留アルミニウム濃度も測定した (図-3)。ろ過を経た残留アルミニウム

濃度の結果として、通常 PAC より高塩基度 PAC のアルミニウム濃度の残存量が少ない結果が得られた。この結果から、高塩基度 PAC の残留アルミニウム濃度の低減効果は、ろ過後の溶存態アルミニウムに顕著に得られることが示唆された。

4) カオリン懸濁液を用いた凝集実験におけるアルカリ度の変化

凝集剤注入量の増加とともに、30 mg/L に調整した原水のアルカリ度は消費され、通常 PAC 80 mg/L でアルカリ度 24.8 mg/L、高塩基度 PAC 80 mg/L で 29.0 mg/L と、高塩基度 PAC のアルカリ度の消費が小さい結果となった。言い換えると、高塩基度 PAC の使用は、通常 PAC の使用より酸消費量が少なく済む特徴を有している。

5) ピコ植物プランクトンを用いた凝集実験における濁度の変化

ピコ植物プランクトン懸濁液における凝集剤を変化させた際の濁度変化の結果を図 4, 5 に示した。通常 PAC において、カオリン懸濁液同様、多量注入時において濁度上昇が発生した。原水濁度に差があるため、通常 PAC における多量注入量にもばらつきが生じたが、3 回の実験全てにおいて濁度上昇が生じた。実験 1 回目では 60 mg/L、実験 2 回目では 40 mg/L、実験 3 回目においては 60 mg/L でそれぞれ濁度が上昇した。

一方で、20 度に設定したカオリン懸濁液を用いた凝集実験での高塩基度 PAC において、わずかに濁度上昇が発生したが、ピコ植物プランクトン懸濁液による凝集実験においては、3 回の実験ともに 60, 80 mg/L 注入時に濁度がほぼ 0 になった。1 回目の実験では 60, 80 mg/L で濁度 0、2 回目の実験では 60 mg/L で 0.131 度、80 mg/L で 0.002 度、3 回目の実験では 60 mg/L で 0.047 度、80 mg/L で濁度 0 という結果が得られた。

以上の結果より、通常 PAC を多量に注入することは濁度上昇の原因となり、浄水場での対応策である凝集剤注入量の増加は凝集不良を引き起こす可能性のあることが示唆された。さらに、通常 PAC で発生した濁度

上昇は高塩基度 PAC において発生せず、高塩基度 PAC を高注入した際も安定して濁度除去効果が得られることがわかった。

6) ピコ植物プランクトンを用いた凝集実験におけるゼータ電位の変化

ピコ植物プランクトン懸濁液におけるゼータ電位の変化を図 6 に示した。結果として、通常 PAC および高塩基度 PAC とともに 40 mg/L 以降においてゼータ電位のマイナス値が大きくなり、80 mg/L 注入時に再びマイナス値がわずかに小さくなった。しかし、高凝集剤注入時で濁度上昇が発生した通常 PAC のゼータ電位の数値より、濁度が 0 になった高塩基度 PAC のゼータ電位のマイナス値が大きい結果となった。この結果としては、濁度 0 になった高塩基度 PAC で測定したゼータ電位は、これ以上凝集はしないが濁度としては検出されない粒子であり、通常 PAC で観測された粒子は凝集されず濁度として残留したフロックであると推察される。ゼータ電位の結果から、凝集剤の多量注入はゼータ電位のマイナス値を大きくし凝集阻害や凝集フロックの再分散を発生させて濁度上昇の原因となる機構が把握できた。

また、カオリン懸濁液によるゼータ電位の測定時には、高凝集剤注入時において微小フロックが肉眼で観測されたが、本実験での測定ではピコ植物プランクトンの粒径が非常に微小であるためか同様の現象はみられなかった。

7) ピコ植物プランクトンを用いた凝集実験におけるピコ植物プランクトン数の変化

凝集実験におけるピコ植物プランクトン数の結果を図 7 に示した。通常 PAC および高塩基度 PAC の注入量を増加させるほど、ピコ植物プランクトンの細胞数は減少した。しかし、凝集剤の高注入時に濁度がほぼ 0 になった高塩基度 PAC での細胞数が、通常 PAC における細胞数とほぼ同等数で残留する結果となった。

この結果から、濁度除去に非常に効果的である高塩基度 PAC による生物（ピコ植物プランクトン）除去は、濁度除去と同等の効果

が得られない可能性が示唆された。

8) ピコ植物プランクトンを用いた凝集実験における残留アルミニウム濃度変化

図 8 より、凝集剤最大注入時(80 mg/L)、通常 PAC でアルミニウム濃度 1.54 mg/L、高塩基度 PAC で 1.02 mg/L と、高塩基度 PAC を用いたアルミニウム残存量が通常 PAC のものより少ない結果が得られた。カオリン懸濁液での凝集実験では、ろ過後のみ高塩基度 PAC の残留アルミニウム濃度の低減効果が得られたが、ピコ植物プランクトン懸濁液では凝集沈殿後において確認された。

9) ピコ植物プランクトンを用いた凝集実験における粒径の変化

ピコ植物プランクトン懸濁液における粒径変化の結果を図 9 に示した。通常 PAC において濁度除去効果の高かった 40 mg/L 注入時の粒径および多量注入である 80 mg/L 注入時の粒径比較を行った。40 mg/L 注入時には両 PAC とともに 100 μ m 付近にピークが現れているが、多量注入である 80 mg/L では両 PAC とともに 10 μ m 前後に粒径のピークが現れたことから、凝集フロックが再分散したことが示唆される。しかし、80 mg/L 注入時に高塩基度 PAC および通常 PAC で似たようなサイズの粒径が検出されたにも関わらず、濁度変化が異なる原因は不明であり今後の課題である。

10) ピコ植物プランクトンを用いた凝集沈殿・砂ろ過の効果

上記の凝集実験同様に、*Synechococcus* sp. によって濁度 2 度程度に作成した原水のろ過処理後の濁度は、変わらず 2 度程度であった。しかし、凝集剤を多量注入した通常 PAC 80 mg/L、高塩基度 PAC 80 mg/L におけるろ過後の濁度は 0.0 度となった。濁度としては検出されなかったが、ピコ植物プランクトンの細胞数における結果としては、通常 PAC 80 mg/L で 1,634 cells/mL、高塩基度 PAC 80 mg/L で 2,184 cells/mL が確認された。また、ろ過後のピコ植物プランクトン懸濁液における粒径変化の結果を図 10 に示した。通常 PAC・高塩基度 PAC とともに、80 mg/L 注入時

に 3.889 μm に粒径のピークが現れた。今回の実験では、凝集剤多量注入時におけるろ過漏出および濁度上昇の再現ができず、粒径約 4 μm 付近の粒径では濁度として検出されるサイズではないことが結果として得られた。ろ過漏出障害および濁度障害における発生メカニズムについては、さらに研究が必要である。

E. 結論

カオリン懸濁液およびピコ植物プランクトン懸濁液を用いた凝集実験を行った結果、以下の知見が得られた。

濁度やゼータ電位、粒径変化の結果から、通常 PAC の多量注入はゼータ電位のマイナス値を大きくし、凝集フロックの再分散を引き起こすため濁度上昇が発生する原因である可能性が示唆された。

一方、高塩基度 PAC の使用は、多量注入した際でも高い濁度除去効果があり、特徴の一つである残留アルミニウム濃度の低減効果も確認できた。

濁度除去効果の高い高塩基度 PAC であるが、生物除去に関しては濁度除去と同等の効果が得られない可能性が示唆された。

凝集沈殿後の砂ろ過による処理は、多量注入でフロックが再分散し、濁度上昇が発生した処理水に効果的であるが、さらにろ過では除去できない粒径約 4 μm のピコ植物プランクトンの微小なフロックの生成メカニズムを明らかにする必要があることがわかった。

G. 研究発表

1) 論文発表

野村宗弘, 安斎英悟, 秋葉道宏, 西村修, ピコ植物プランクトンのろ過処理に及ぼす凝集の効果, 日本水処理生物学会誌, 52(3), pp. 65-71, 2016

2) 学会発表

多田早奈恵, 田中伸幸, 千葉信男, 西村修, 秋葉道宏, ピコ植物プランクトンの凝集処理プロセスの最適化, 日本水処理

生物学会誌別巻, (36), p.16, 2016

多田早奈恵, 田中伸幸, 千葉信男, 秋葉道宏, 西村修, ピコ植物プランクトンによる凝集阻害メカニズムと凝集処理プロセスの改善, 第 51 回日本水環境学会年会, 2016

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) 厚生労働省「水道普及率の推移」
[<http://www.mhlw.go.jp/file/06-Seisakujouhou-10900000-Kenkoukyoku/0000164506.pdf>] (2017年5月23日閲覧)
- 2) 厚生労働省健康局, 新水道ビジョン, 2015
- 3) 秋葉道宏, 厚生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」, 平成 24~26 年度総合研究報告書, 2015
- 4) 秋葉道宏, 厚生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」, 平成 26 年度総括・分担研究報告書, 2015
- 5) 秋葉道宏, 厚生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」, 平成 25 年度総括・分担研究報告書, 2014
- 6) 藤本尚志, 村田昌隆, 大西章博, 鈴木昌治, 矢島修, 岸田直裕, 秋葉道宏, 分子

生物学的手法による浄水場における濁度障害原因生物の解明, 水道協会雑誌, 82(5), pp. 2-10, 2013

- 7) 丹保憲仁, 穂積準丹保, フロック形成におよぼす凝集条件について, 衛生工学, 36, pp37-47, 1968
- 8) 多木化学株式会社, PAC700A について, 2016
- 9) 社団法人土木学会, 衛生工学実験指導書(プロセス編), 1981

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。

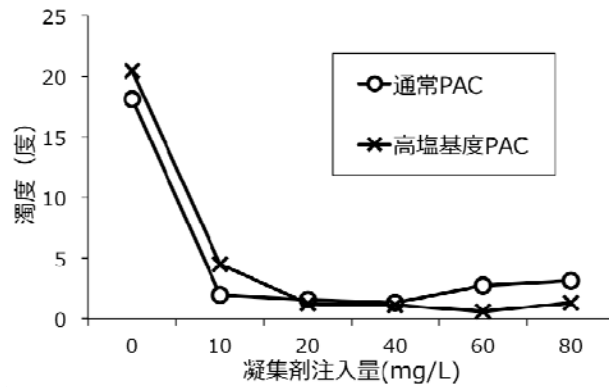


図-1 カオリン懸濁液における濁度変化

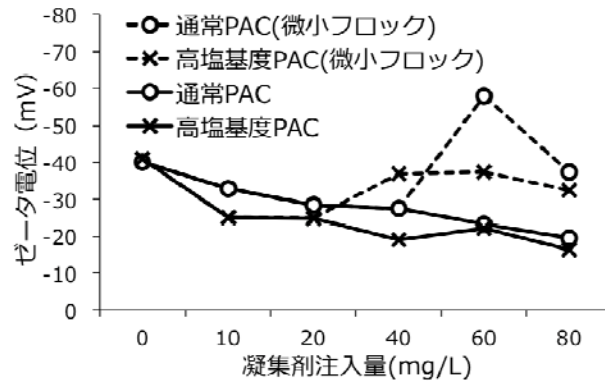


図-2 カオリン懸濁液におけるゼータ電位の変化

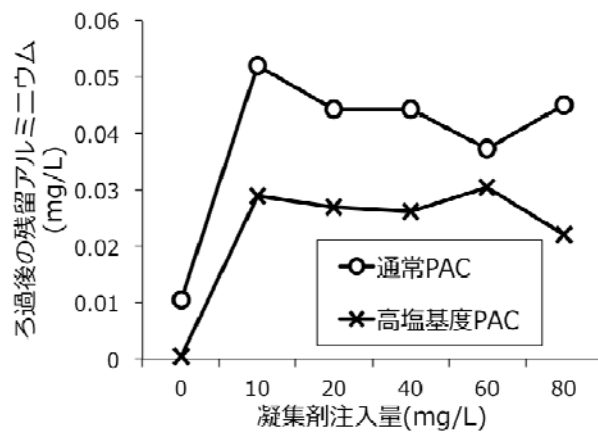


図-3 カオリン懸濁液におけるろ過後の残留アルミニウム濃度の変化

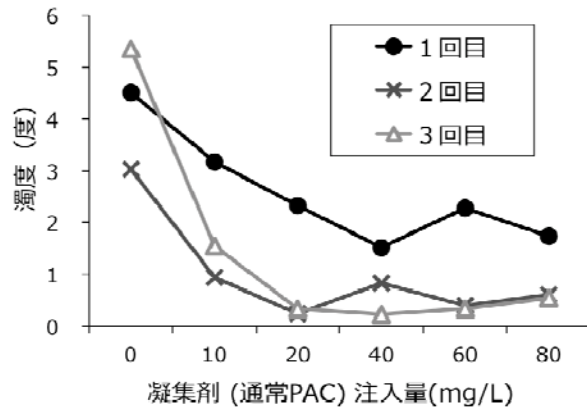


図-4 ピコ植物プランクトン懸濁液における濁度変化(通常 PAC)

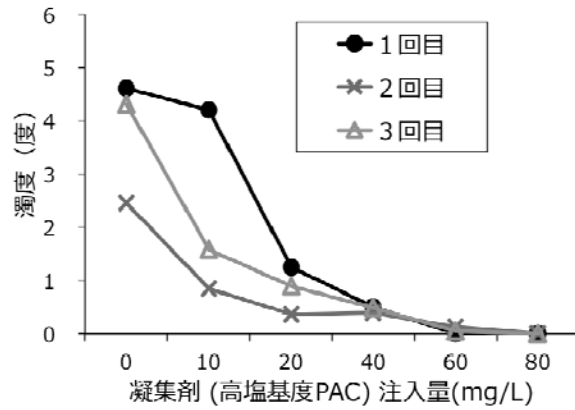


図-5 ピコ植物プランクトン懸濁液における濁度変化(高塩基度 PAC)

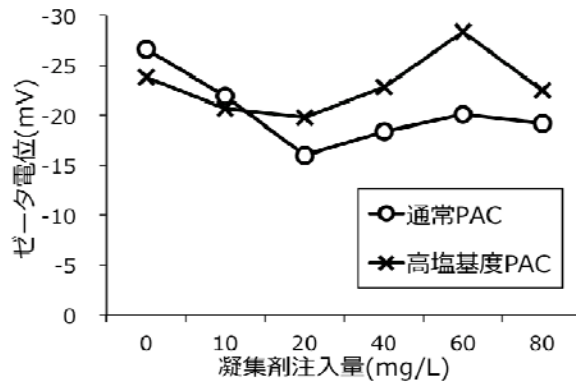


図-6 ピコ植物プランクトン懸濁液におけるゼータ電位の変化

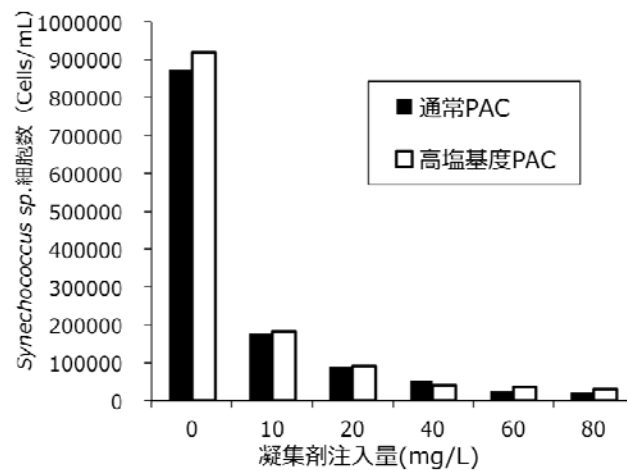


図-7 ピコ植物プランクトン懸濁液における *Synechococcus sp.*細胞数の変化

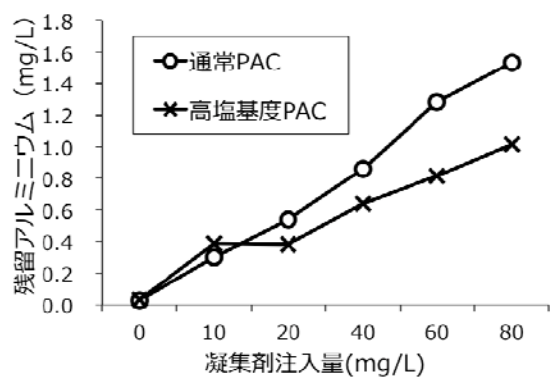


図-8 ピコ植物プランクトン懸濁液におけるアルミニウム濃度変化

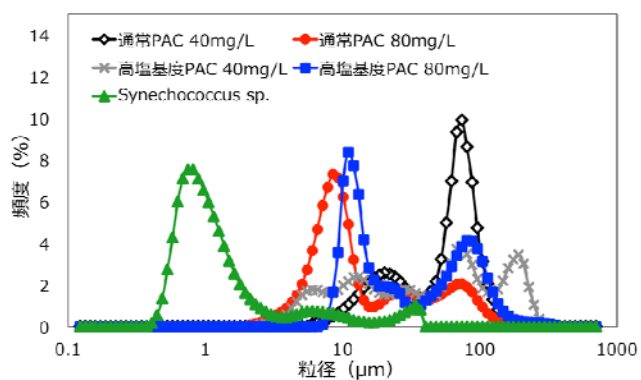


図-9 ピコ植物プランクトン懸濁液における粒径変化

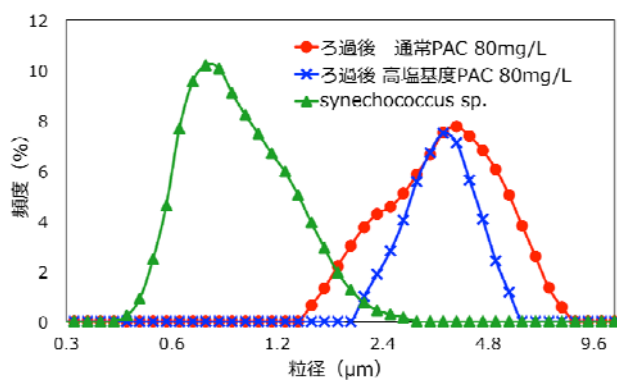


図-10 ピコ植物プランクトン懸濁液におけるろ過処理後の粒径変化

