ピコ植物プランクトンのろ過処理に及ぼす凝集の効果

Effects of Coagulation on Filtration Treatment for Picophytoplankton Removal

野村宗弘¹, 安斎英悟¹, 秋葉道宏², 西村 修¹

¹東北大学大学院工学研究科 / 〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉6-6-06

²国立保健医療科学院 / 〒351-0197 埼玉県和光市南2-3-6

MUNEHIRO NOMURA¹, HIDENORI ANZAI¹, MICHIIHIRO AKIBA², and OSAMU NISHIMURA¹

¹Graduate School of Engineering, Tohoku University

/6-6-06 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8579, Japan

²National Institute of Public Health/2-3-6 Minami, Wako, Saitama 351-0197, Japan

Abstract

This study aimed to elucidate the effects of coagulation on filtration treatment for picophytoplankton removal. We analyzed the treatment and coagulation characteristics observed during filtration treatments by using a coagulation-sedimentation filtration experiment with cultured picophytoplankton. We found that the particle size distribution of leakage from the coagulation-sedimentation filtration was observed with a peak of 4.2 μm , revealing that the leakage had formed a fine floc rather than non-coagulation. In the coagulation treatment of picophytoplankton, when a low coagulant dose was injected, particle size of the floc was formed $< 10 \mu\text{m}$, and if a high coagulant dose was injected, particle size of the floc was formed $< 10 \mu\text{m}$ through re-dispersion of the floc. The results clearly show that injecting the optimal coagulant dose to maintain the size of the floc infiltrating the filter layer at $> 10 \mu\text{m}$ would play a vital role in preventing filtration leakage.

Key word: biological fouling, *Synechococcus* sp., filtration leakage, coagulant dose

1. はじめに

我が国の水道普及率は97%を超え¹⁾、国民の大部分が水道による水の供給を受けることができるようになった。水道の使命は安全で快適な水道水を安定して供給することである。水道の安全性を確保するうえで、人体に重大な健康影響を及ぼす重金属や有害化学物質、病原微生物の管理は重要な課題となっている。特に我が国で発生している飲料水などに起因する健康被害事例の大半は、水系感染微生物によるものであり²⁾、その管理は重要である。一方、感染性はないものの、毒素を産出する微生物、水道水の異臭味原因となる微生物、給水栓で生きたまま発見され利用者に不快感を与えさせる生物などが存在する。このような水道水の安全性・快適性にさまざまな影

響を及ぼす非感染性微生物の代表例がシアノバクテリア（藍藻類）である。

これまでの調査研究における代表的な水質障害シアノバクテリアは*Microcystis*属や*Anabaena*属などであり、肉眼的なアオコの形成、代謝産物によるカビ臭発生、有害物質の生産、凝集阻害、トリハロメタン前駆物質としての寄与などの原因として注目されてきた。これらのシアノバクテリアは不定形の群体あるいは糸状体を形成しており、通常の明視野顕微鏡を用いて観察できるサイズであった。一方、諸外国では細胞の大きさが0.2~2 μm の微小な植物プランクトン（ピコ植物プランクトン）の存在が早くから報告されていたが³⁾、日本においても1987年7月の琵琶湖北湖における大増殖の確認以降⁴⁾、次第にその存在が知られるようになってきた。このピコ植物プラ

ンクトンの多くもシアノバクテリアに属している。

近年、湖沼、ダム貯水池を水源とする浄水場において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⁵⁾。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⁵⁾。二段凝集とは通常の凝集沈殿ろ過処理に加え、ろ過槽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ない。二段凝集の過程である凝集ろ過処理および凝集沈殿ろ過処理といったピコ植物プランクトンに対するろ過処理に及ぼす凝集の効果进行を明らかにすることは、今後、二段凝集の効果を検討するうえで基礎的な課題といえる。そこで本研究では、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実験、および一般的な浄水処理法である凝集沈殿ろ過実験を行い、両者の処理過程を比較解析した。ここでは、凝集剤濃度を変化させ、処理水の濁度、損失水頭、凝集フロック径やろ過漏出フロック径、ゼータ電位の変化を測定し、処理効果に関する考察を行った。

2. 実験方法

2.1 ピコ植物プランクトン懸濁液の作成

他の生物など懸濁物質が混合した水道原水や複数種のピコ植物プランクトンを用いて実験検討することが望ましいが、本実験では、基礎的な凝集の特性を把握するためピコ植物プランクトンとして代表的な種とされる(独)国立環境研究所 NIES-1348 の *Synechococcus* sp. を使用した。CB 培地⁶⁾にて温度条件 $25 \pm 1^\circ\text{C}$ 、光条件 $18 \mu\text{mol photons/m}^2/\text{sec}$ 、12-h light/12-h dark で、300 mL 容の三角フラスコに 200 mL の培養液を入れて培養を行った。

草木ダム(群馬県)堰堤上流の表層水を分析したところ、*Cyanobacterium* 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⁵⁾、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。

2.2 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の実験は Fig. 1 に示す装置を用いて以下のとおり行なった。

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/

Fig. 1 Schematic diagram of the coagulation filtration experimental apparatus.

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。

凝集剤にはポリ塩化アルミニウム (PAC) を用いた。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。

2.3 凝集沈殿ろ過実験

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、緩速攪拌槽、沈殿槽を作成した。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。概要図を Fig. 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

Fig. 2 Schematic diagram of the coagulation-sedimentation filtration experimental apparatus.

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7 cm、高さ20 cmの円筒であり、高さ10 cm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。

緩速攪拌槽は縦9 cm、横15 cm、高さ10 cm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緩速攪拌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9 cm、横40 cm、高さ10 cmの直方体である。緩速攪拌槽と接続しており、緩速攪拌槽の処理水が越流して流れ込むようにした。また、緩速攪拌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。

2.4 測定項目

濁度は、日本電色工業社の濁度計・色度計WA6000（カオリン校正）を用いて測定した。

ゼータ電位の測定にはMicro-Electrophoresis Apparatus MkII (Rank Brothers, UK)を用いた。室温 $20 \pm 1^\circ\text{C}$ 、80 mVの条件で、Smoluchowski式によって計算してゼータ電位を得た。

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。

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。

3. 結果および考察

3.1 凝集ろ過実験

凝集ろ過実験の濁度処理能力をFig. 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%の濁度しか除去されず、ピコ植物プランクトンは砂ろ過のみでは除去されなかった。

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2 mg-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度となった。

一方、凝集剤注入量5、10 mg-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。この結果から、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。

次に凝集ろ過実験における総損失水頭の経時変化を

Fig. 3 Time variation of treated water turbidity in coagulation filtration of picophytoplankton suspension.

Fig. 4 に示す。2 時間目の総損失水頭は 2 mg-PAC/L で 1.2 cm、5 mg-PAC/L で 4.7 cm、10 mg-PAC/L で 19.3 cm 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。Fig. 5 に凝集ろ過実験の 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、10 mg-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。

このように 10 mg-PAC/L ではろ過閉塞が生じること、ならびに 2 mg-PAC/L ではろ過漏出が起こったが、5 mg-PAC/L では濁度が 0 度となったことから凝集ろ過実験におけるろ過直前の凝集剤濃度は 5 mg-PAC/L 未満が望ましいことがわかった。

Table 1 には各凝集剤注入量でのろ層に侵入するフロ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、10 mg-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 $-10 \sim +10$ mV⁷⁾ には達しなかった。しかし、わずかにろ過漏出が起こった 2 mg-PAC/L でも 1 時間後には濁度がほぼ 0 となっており、良好な処理結果となった。海老江ら⁸⁾ は、PAC をろ過装置に流した場合、ろ層上部 5 cm 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、フロクを捕捉する能力を高めたために、2 mg-PAC/L の系で時間経過とともにフロク捕捉能力が高まったと考えられる。ろ層の表面で損失水頭が上がったことを考慮すると凝集剤のろ過直前の添加はろ層表面にアルミニウムを抑留させ、ろ材との吸着によりフロクが捕捉されることが凝集ろ過実験の処理メカニズムと考えられた。

Fig. 4 Time variation of total head loss in coagulation filtration of picophytoplankton suspension.

Fig. 5 Vertical distribution of head loss in coagulation filtration of picophytoplankton suspension (data after 2 hours).

Table 1 Relationship of the coagulant dose and zeta potential in coagulation filtration of picophytoplankton suspension

Coagulant dose (mg-PAC/L)	0 (raw water)	2	5	10
Zeta potential (mv)	-29.3	-26.8	-21.7	-15.1

3.2 凝集沈殿ろ過実験

凝集沈殿ろ過実験における沈殿処理水の濁度の経時変化を Fig. 6 (a) に、ろ過処理水の濁度の経時変化を Fig. 6 (b) に示す。凝集剤注入量 2 mg-PAC/L の場合、1.6 度弱の濁度、凝集剤注入量 5、10 mg-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 2 mg-PAC/L の系を除き濁度は 0 度となった。2 mg-PAC/L の系においては、0.5 h の時のみ濁度が 0.2

Fig. 6 Time variation of treated water turbidity in coagulation-sedimentation filtration of picophytoplankton suspension. (a) coagulation-sedimentation water, (b) filtration treated water.

度程度であり、基準値の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。

凝集沈澱ろ過実験における総損失水頭の経時変化をFig. 7に示す。凝集沈澱ろ過実験では、実験終了時の3時間目の総損失水頭は2 mg-PAC/Lで1 cm、5 mg-PAC/Lで1.6 cm、10 mg-PAC/Lで4.6 cm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実験と凝集ろ過実験と比較すると、2 mg-PAC/Lで2倍、5 mg-PAC/Lで5倍、10 mg-PAC/Lで9倍であり、凝集ろ過実験の総損失水頭が大きかった。

ろ過漏出が起こった2 mg-PAC/L系の粒径分布をFig. 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

Fig. 7 Time variation of total head loss in coagulation-sedimentation filtration of picophytoplankton suspension.

Fig. 8 Change of the particle size distribution in coagulation-sedimentation filtration of picophytoplankton suspension (coagulant concentration: 2 mg-PAC/L).

は10 μ m以下の比較的小さなフロックが存在した。浮遊物には100 μ m以上のフロックが存在しないというこの差は沈澱によって除去されたフロックの特徴を表している。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 μ mにピークが検出された。また、ろ水（ろ過漏出）には10 μ m以上のフロックはほとんど存在しなかった。Fig. 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 μ 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いえる。このことからろ層に侵入する粒径を10 μ m以上にすれば、ろ過漏出を防ぐことができる可能性が示唆された。

Table 2 には、凝集沈殿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0.04 mg-Al/L程度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、10 mg-PAC/L の条件では、それぞれ0.12、0.01、0.18 mg-Al/Lのアルミニウムが検出された。2 mg-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こっていた。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、10 mg-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。

Fig. 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 5 mg-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 μm へと増加した。しかし、10 mg-PAC/Lまで増加させると、一部の再分散が起こり、5.5 μm にも粒径のピークが表れた。丹保ら⁹⁾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らない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。

Table 2 Aluminum concentration in the treated water in coagulation-sedimentation filtration of picophytoplankton suspension

	2 mg-PAC/L	5 mg-PAC/L	10 mg-PAC/L
Raw water	0.04	0.04	0.03
Filtered water	0.12	0.01	0.18

Aluminum concentration (mg-AL/L)

Fig. 9 Effect of coagulant dose on particle size distribution after rapid mixing in coagulation-sedimentation filtration of picophytoplankton suspension.

以上、凝集剤濃度 2 mg-PAC/Lではろ過漏出が生じること、10 mg-PAC/Lではフロック径が大きくなり、ろ水のアルミニウム濃度も高まることから、濁度 2 度のピコ植物プランクトンの最適凝集剤濃度は 5 mg-PAC/Lであることがわかった。

3.3 ピコ植物プランクトンのろ過処理に及ぼす凝集の効果

ピコ植物プランクトンに対する凝集ろ過処理実験ならびに凝集沈殿ろ過処理実験の結果をふまえて、ピコ植物プランクトンのろ過処理に及ぼす凝集の効果を考察する。

最適凝集剤注入量は凝集沈殿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 -10 ~ +10 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、沈殿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¹⁰⁾、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 5 mg-PAC/L 程度の凝集剤を注入することで、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る。ただし、これも本実験で明らかにしたように、粒径 100 μm 超のフロックは沈殿除去できたものの、それ以下の粒径の沈殿除去性は悪く、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、沈殿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 μm 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 μm にピークをもち、10 μm 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 μm 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 μm 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 μm 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処理は、ピコ植物プランクトンの除去には極めて有効であるといえる。ただし、本実験は、1種の*Synechococcus* sp.の典型株を用いた結果であり、今後、より一般的なピコ植物プランクトンの凝集ろ過処理特性の評価を目指し、他の懸濁物質や溶解物質を含む水道原水を用いて実験を行うなどの検討が必要と考える。

4. まとめ

ピコ植物プランクトンに対するろ過処理に及ぼす凝集の効果を明らかにするため、凝集ろ過実験、および一般的な浄水処理法である凝集沈殿ろ過実験を行い、両者の処理過程を比較解析した。本研究で得られた知見は以下のとおりである。

- 凝集沈殿ろ過実験でろ過漏出する物質は $4.2\ \mu\text{m}$ にピークが検出され、未凝集ではなく微少なフロックを形成していた。
- ピコ植物プランクトンの凝集処理において、凝集剤の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ろ層に侵入するフロック径を $10\ \mu\text{m}$ 以上に保つことがろ過漏出を防ぐために重要である。

謝辞

本研究は、厚生労働科学研究費補助金（H26-健危一般-003）の助成を受けたものである。また、東北大学工学部技術部の千葉信男様、丸尾知佳子様、田中伸幸様には技術的サポートをいただいた。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- 1) 厚生労働省：水道普及率の推移、<http://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/topics/bukyoku/kenkou/suido/database/kihon/>（閲覧日2016/08/22）
- 2) 山田俊郎、秋葉道宏：最近10年間の水を介した健康被害事例、保健医療科学、56、16-23（2007）
- 3) Sakamoto, M.: Primary production by Phytoplankton community in some Japanese lakes and its dependence on lake depth, Archiv fur Hydrobiologia, 62, 1-28（1966）
- 4) 藤本尚志、福島武彦、稲森悠平、須藤隆一：全国湖沼データの解析による藍藻類の優占化と環境因子との関係、水環境学会誌、18、901-908（1995）
- 5) 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（2014）
- 6) 国立研究開発法人 国立環境研究所：微生物系統保存施設、<http://mcc.nies.go.jp/>（閲覧日2016/08/22）
- 7) 丹保憲仁、小笠原鉦一：浄水の技術、技報堂出版、45-47、東京（1985）
- 8) 海老江邦雄、李 宰昊、張 一憲、佐藤秀哉：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回年次学術講演会講演概要集、94-95（2000）
- 9) 丹保憲仁、穂積 準：フロック形成におよぼす凝集条件について、衛生工学、16、37-47（1968）
- 10) 秋葉道宏、後藤光亀、佐藤敦久：*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)、2-10（1991）

（受付 2016.8.3）

（受理 2016.8.30）