

II-34

濁質と色コロイドを含む原水の直接ろ過に関する研究 (2)

北見工業大学 正 員 海老江 邦 雄
北見工業大学 学生員 天 野 重 己
北見工業大学 学生員 飯 沼 真 治

1. ま え が き

自然界には粘土系濁質とともに泥炭層から浸出するフミン酸などの有機物質を含む表流水が多い。近年、浄水中のトリハロメタン（発癌性、催奇形成性）が大きな社会問題となったが、これは水中に溶存するフミン酸などの有機物質が、消毒の目的で注入された塩素と作用して生成されたものである¹⁾。したがって、浄水処理の段階においては、濁質は勿論のことトリハロメタン前駆物質である有機物質をも十分に低減化しておくことが重要である。

既報²⁾では、粘土系濁質（カオリン）と有機物質（フミン酸）の二成分を含む試料から、各成分の分離定量法を確立し、その方法を二成分試料のジャーテスト結果に適用して各成分の挙動について考察を加えた。

そこで、本報では、このような二成分原水の直接ろ過における各成分の挙動に関して不明の点が多いことに鑑み^{3)~4)}、三種類の原水（カオリンのみ、フミン酸のみ、二成分を含む原水）を対象に、凝集剤としてのポリ塩化アルミニウム（以下、PAC）とろ過助剤としての有機性高分子凝集剤⁵⁾（ノニオン系、推定分子量1200万、以下、N-ポリマー）とを併用した直接ろ過実験を行ない、二成分原水における各成分のろ過挙動について検討した結果を報告したい。

2. 実験装置と実験条件

図1にろ過装置の概要を掲げる。本装置は、ろ過筒急速混和槽、フロート式ろ速調整槽などからなっている。ろ過筒（ろ過断面積50~51cm²、矩形断面）には珪砂（有効径0.91mm、均等係数1.68、比重2.58、空隙率44.3%）を60cm厚に充填した。実験においては、本学水道水にカオリン、フミン酸、PAC（Al₂O₃ 9.8%）の所定量を注入した原水を急速混和（200 r.p.m.）したのちろ過筒に導き、ろ層表面上55cmの位置でN-ポリマーを注入して、240m/dのろ速でろ過した。その際、急速混和槽内のpHについては、カオリン、フミン酸それぞれの凝集pHにあたる7または5に調整して実験を行なった。

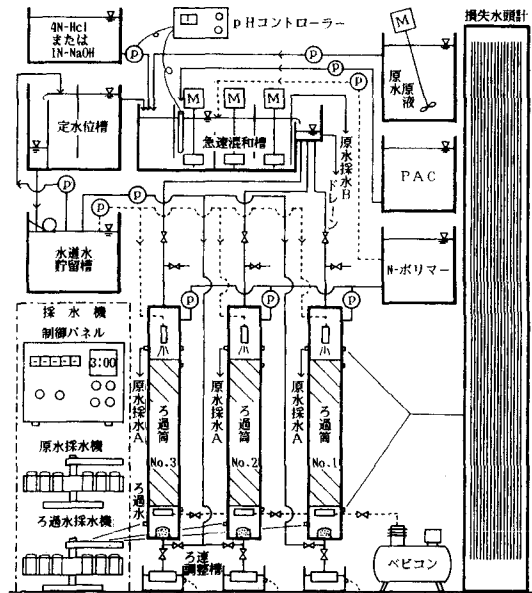


図1 実験装置の概要

表1に今回採用したろ過条件を掲げる。ろ過時間は

原則として18時間としたが、損失水頭の発生が著しい場合には正味の損失水頭が2.0mに達した時点でろ過を終了させた。また、ろ過中は所定のろ過経過時間に砂層5cmごとの損失水頭を測定した。さらに、原水（図1中のB）とろ過水を自動採水機で採水し、これら試料の濁度、色度およびAl濃度を測定した。

二成分試料から各成分を分離定量する手順²⁾については、最初に二成分試料のHaze値（濁度指標、拡散透過光量/平行透過光量）を測定する。そ

表1 ろ過条件

原水	mg/l	カオリン	フミン酸	二成分
		20	5	20+5
PAC	mg/l	7.5,	25	
ポリマー	mg/l	0.00,	0.05,	0.15
pH		7,	5	
ろ速	m/d	240		

の後、試料をpH 8.5~9.5 に調整し、超音波でフミン酸フロックを破壊する。つづいて、カオリン粒子を遠心分離(3000r.p.m.,1600G相当で10分間)し、上澄水のpH、吸光度(色度指標、390nm)を測定してフミン酸濃度を検量線より求める。カオリン濁度については、最初に測定しておいた二成分試料のHaze値と先に決定しておいたフミン酸濃度に相当するHaze値との差から算出する。また、Alの定量はオキシシン法によった。

3. 実験結果と考察

1) カオリンのみを含む原水(カオリン原水)

の直接ろ過

図2において、カオリンの凝集域であるpH7では、PACのみ注入の場合の正味の総損失水頭(以下、損失水頭)は、注入率が高いほど大きく、直線的な増加傾向を示している。しかしながら、N-ポリマー併用の場合には、損失水頭の発現が顕著で、ろ過3時間30分後には207.2cmとなった。これは、N-ポリマーの注入によって粘性で密実なフロックが形成され、それが主としてろ層の表面および表層部に抑留されたためと考えられる。また、非凝集域であるpH5では、ろ過18時間後の損失水頭は11.4cmであった。このように僅かとはいえ、損失水頭が発現したことは、ジャーテストでカオリンの非凝集域とされて来たpHにおいても一部のAlは不溶化していたことを示唆している。

図3において、pH7におけるカオリン流出率はPACの注入率に関わらず、ろ過初期に流出率が殆んど0%となる領域が短時間認められる。またPAC25mg/l注入の場合には、清澄域が短かく早い時期に終期漏出が出現している。これは、PAC注入率の上昇に伴って、形成されたフロックの体積が増加したことが原因と考えられる。これらに対応するAl流出率の動きを図4で見ると、カオリン流出率の動きと異なり、いずれの場合も類似の値を示し、変動幅が小さい動きをしている。一方、図3のpH5におけるカオリン流出率は、時間とともに徐々に低下して行き、ろ過18時間後に最低流出率にあたる12.0%を示した。このときの、カオリン平均流出率は18.4%であったのに対し、Al平均流出率は86%強であった。このように、ジャーテスト結果からは非凝集域と判断されるpH5においても、一部のAlはカオリンの凝集・フロック形成に関与し、ろ過によって除去されることが明らかとなった。この際、有効PAC量は損失水頭発生量の比較から2mg/l程度と推測される。

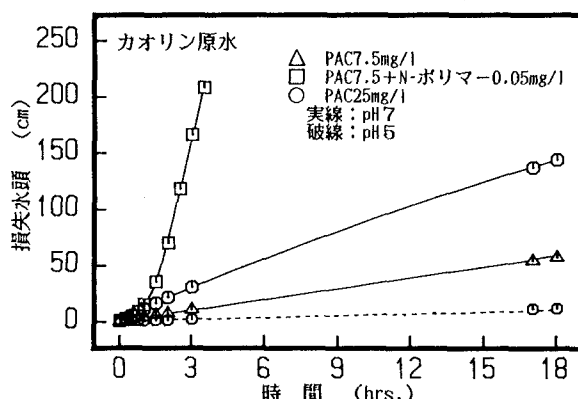


図2 損失水頭の動き(カオリン原水)

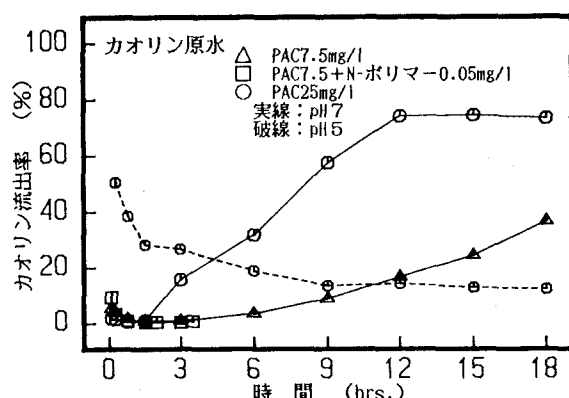


図3 カオリン流出率の動き(カオリン原水)

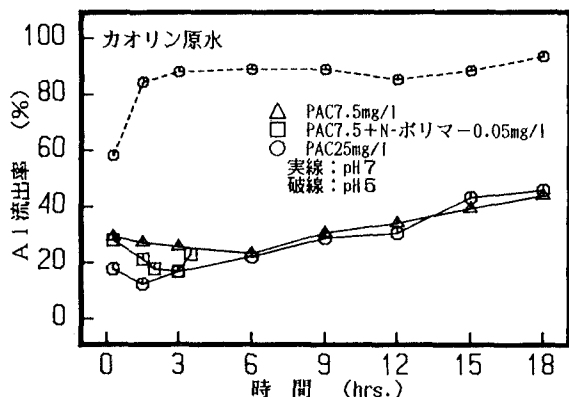


図4 Al流出率の動き(カオリン原水)

2) フミン酸のみを含む原水（フミン酸原水）の直接ろ過

図5と表2より、フミン酸の非凝集域であるpH7と凝集域であるpH5における損失水頭は、いずれにおいてもN-ポリマー注入率の上昇に伴い着実に増加している。PACのみ注入の場合にはpH7の損失水頭の方が大きい、N-ポリマー併用の場合にはpH5の方が大きな値を示した。また、カオリン原水の場合に比較すると、pH7ではフミン酸原水の方が小さいが、pH5では著しく発生量が増加している。これらのことから以下のような状況が推察される。

pH7では、Alは注入後速やかに不溶化するのに対し、取り残されたフミン酸は負電位が高いまま存在するので凝集は起こらない。したがって、pH7では不溶化したAlが中心となって、先行的にろ過され、それが後続のフミン酸を吸着する形でろ過が進行するものと推察される。それに対し、pH5では、フミン酸はAlの注入によって凝集は起こるものの、フロック形成の進行が緩慢なため微細な状態のままろ層に供給される。ジャーテストでは、pH5における除去率は40%程度であったにも関わらず、ろ過の初期には80%程度の高い除去率を示した。さらに、フミン酸は微細フロックになっていたためN-ポリマーの注入によって効率よく取り込まれ、ろ過初期の流出率は10%以下であった。PACのみ注入の場合pH5における損失水頭はpH7におけるより低下したにも関わらず、N-ポリマー注入とともに高い損失水頭を示したのは、除去率の向上と表層抑留の傾向をとったためと考えられる。

図6と表2より、pH7におけるフミン酸流出率は、ろ過6～9時間まで低下し、その後、最低値を持続する、もしくは徐々に上昇する傾向を示した。フミン酸除去率は、N-ポリマー注入率を上昇させることによって徐々に改善されて行く。とくに、N-ポリマー0.15mg/l併用注入の場合には、フミン酸平均流出率は48.3%となって最良のろ過状況を呈した。また、図7でpH7におけるAl流出率の推移は、フミン酸流出率の推移と類似している。これらのことから、カオリン原水の場合とは異なり、注入したAlはフミン酸の凝集に一樣に関与し

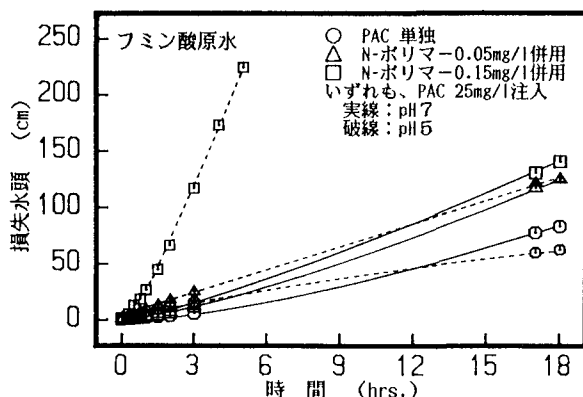


図5 損失水頭の動き（フミン酸原水）

表2 実験結果

原水	ろ過条件			ろ過時間 hrs.	損失水頭 cm	ろ過水平均流出率 %		
	PAC mg/l	N-ポリマー mg/l	pH			カオリン	フミン酸	Al
カオリン 20mg/l	7.5	0.00	7	18	56.3	12.1	-	31.2
	7.5	0.05	7	3.5	207.2	1.9	-	21.8
	25.0	0.00	7	18	143.3	47.7	-	28.6
	25.0	0.00	5	18	11.4	18.4	-	86.3
フミン酸 5mg/l	25.0	0.00	7	18	82.3	-	61.1	67.4
	25.0	0.05	7	18	103.1	-	54.0	57.3
	25.0	0.15	7	18	139.6	-	48.3	51.3
	25.0	0.00	5	18	61.6	-	54.5	66.3
	25.0	0.05	5	18	124.1	-	49.2	47.7
	25.0	0.15	5	5	223.6	-	1.6	13.2
二成分 20mg/l + 5mg/l	25.0	0.00	7	18	26.0	30.7	81.5	79.3
	25.0	0.05	7	18	47.3	29.1	78.1	76.0
	25.0	0.15	7	18	111.3	14.6	69.3	69.5
	25.0	0.00	5	18	75.1	37.6	48.2	41.9
	25.0	0.05	5	18	96.4	42.0	39.6	35.8
	25.0	0.15	5	13	204.9	23.9	22.0	25.0

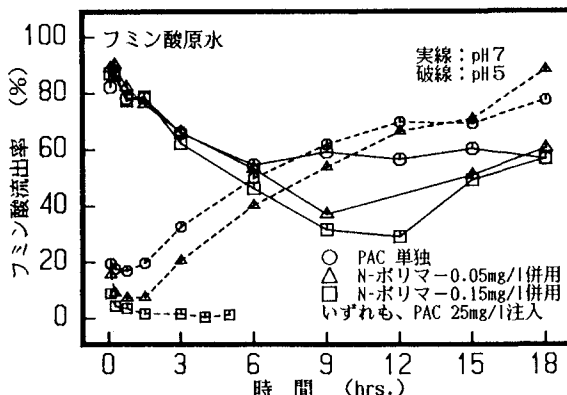


図6 フミン酸流出率の動き（フミン酸原水）

たものと考えられる。こうした状況をジャーテストの結果と比較すると、ろ過初期の除去率はジャーテストと同定度に低いが、ろ過池は現象の積分効果を示すため、ろ層空隙が律速とならない限りろ過の経過とともに除去率が次第に向上する傾向を示したのである。

他方、pH5におけるフミン酸流出率は、pH7の場合と異なり、ろ過初期に最低値をとり、その後急激に上昇する傾向を示している。こうした推移となった理由は、損失水頭のところで説明したようにフミン酸の凝集域であるため、ろ層に供給されたフロック体積が増加したためである。また、

Al流出率の推移は、pH7の場合と同様にフミン酸流出率の挙動と類似している。したがって、pH5では、ろ過6時間程度まではpH7よりもフミン酸流出率は低く、ここを境に逆転する結果となった。PACのみみ注入した場合のpH7におけるフミン酸流出率の最低値を比較すると、それぞれ54.2、16.5%であり、後者で著しく改善されている。また、N-ポリマーを併用注入した場合、pH7の場合と同様に、大幅に改善される結果となった。とくに、N-ポリマー0.15mg/l注入時にはフミン酸平均流出率が1.6%という大層低い値を示した。このように、フミン酸原水の場合にもN-ポリマー併用の効果は顕著であった。

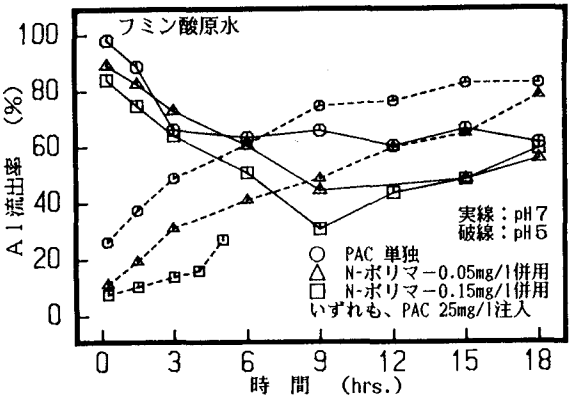


図7 A1流出率の動き(フミン酸原水)

3) カオリンとフミン酸を同時に含む原水(二成分原水)の直接ろ過

図8と表2より、pH7、5における損失水頭はいずれもフミン酸原水のろ過時と同様に、N-ポリマーの注入に伴って上昇している。また、両pHにおける損失水頭の値を比較してみると、いずれの場合にも、pH5の方がpH7より2~3倍大きく、フミン酸の凝集の影響が強く現われている。しかしながら、こうした二成分原水のろ過における損失水頭発生量は、フロックが高密度化したためか、フミン酸原水の場合よりも少なくなっている。

図9と表2より、pH7におけるカオリン・フミン酸流出率の推移を見ると、ろ過の経過に伴い緩慢ではあるが流出率は低下している。また、N-ポリマー注入率の上昇に伴ってろ過水質は相当改善される傾向が認められた。カオリンおよびフミン酸流出率は、いずれの凝集剤注入率においても前者が後者よりも2.6~4.7倍の低い値となっており、全体として、

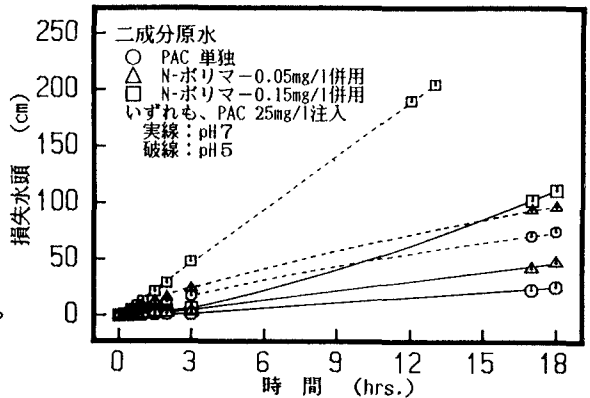


図8 損失水頭の動き(二成分原水)

ジャーテストの結果と類似している。また、PACのみの注入時にに対しN-ポリマー0.15mg/l注入時には、カオリン平均流出率が30.7から14.6%とほぼ1/2に低下しているが、フミン酸平均流出率は81.5から69.3%と12%程度の低下に止まっている。これらのことから、pH7では、PACもN-ポリマーも、フミン酸よりもカオリン粒子に対して効率的に作用していることが理解される。さらに、カオリン原水、フミン酸原水、および二成分原水のろ過におけるカオリンとフミン酸の平均流出率をPAC 25mg/l時と比較すると、二成分原水のろ過においてカオリンが17%低く、フミン酸が20%程度高くなっている。このように、pH7における二成分原水のろ過では、単成分ろ過の場合に比べてカオリンの除去率が上昇しフミン酸の除去率が低下する結果となった。ただし、カオリン除去率が上昇したとはいえジャーテストにおけるカオリン除去率には及んでい

ない。また、図11でpH7におけるAl流出率の動きを見ると、フミン酸原水の場合と同様に、フミン酸の動きと非常に似ている。

図10と表2より、pH5におけるカオリン・フミン酸流出率の推移を見ると、ろ過初期の除去率は高いが、いずれもろ過1～3時間後に終期漏出が生じている。また、N-ポリマーの注入によって各成分の流出率はpH7の場合と同様に改善されている。さらに、カオリンとフミン酸流出率の動きが非常に類似している点特徴的である。このように、フミン酸の凝集域であるpH5においては、カオリンがフミン酸の挙動に強く影響される状況が認められ、ジャーテストの傾向と同じであった。また、フミン酸原水と二成分原水のフミン酸平均流出率を比較すると、二成分原水の方が10%程度低い値となった。さらに、ジャーテスト後の上澄水においては²⁾、pH5の場合、二成分原水中のカオリン・フミン酸の残留率はそれぞれ5、20%程度となっており、単成分原水の場合よりも、それぞれ80、40%程度低い残留率となった。これらのことから、つぎのことが推察される。

pH5はフミン酸の凝集域であるので、本来フミン酸の凝集が主体となる筈であるが、フミン酸がカオリンと共存することによって、外面的にはフミン酸がカオリンの凝集を促進させる効果を発揮すると同時に、損失水頭の動きからも推測されたように高密度のカオリンを取り込んだために、全体として密度の高い沈降性の優れたフロックが形成され、それがひるがえってフミン酸フロックの除去率を高めたものと考えられる。

4. あ と が き

粘土系濁質（カオリン）のみ、有機物質（フミン酸）のみ、あるいはこれらの二成分を含む原水に対し凝集剤としてPACを、ろ過助剤としてノニオン系有機性高分子凝集剤（N-ポリマー）を用いた今回の直接ろ過実験において、以下のような諸知見が得られた。

(1)pH7における、損失水頭の発生量は、カオリン原水>フミン酸原水>二成分原水の順番になった。それに対し、pH5においてPACのみを注入した場合には、二成分原水>フミン酸原水>カオリン原水となった。しかしながら、N-ポリマー併用注入の場合には、二成分原水とフミン酸原水の損失水頭発生量は逆転した。

(2)pH7における二成分原水のろ過においては、

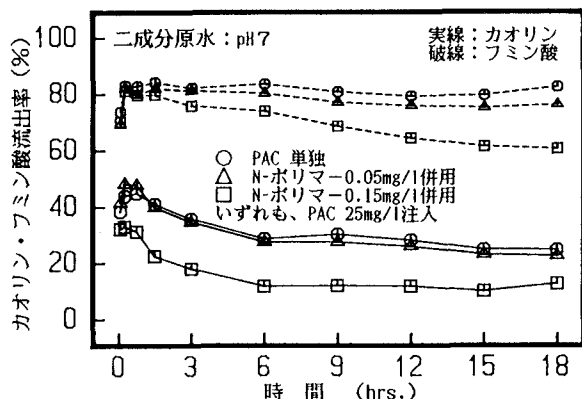


図9 カオリン・フミン酸流出率の動き（二成分原水）

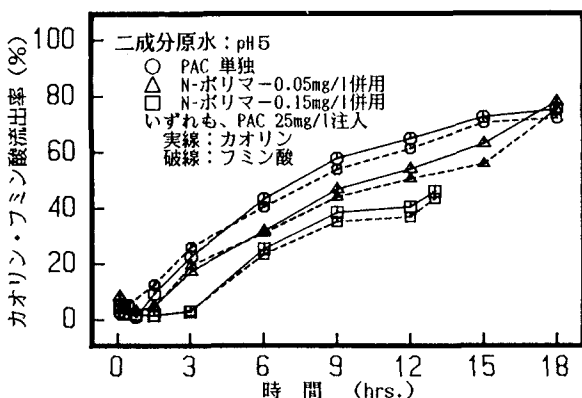


図10 カオリン・フミン酸流出率の動き（二成分原水）

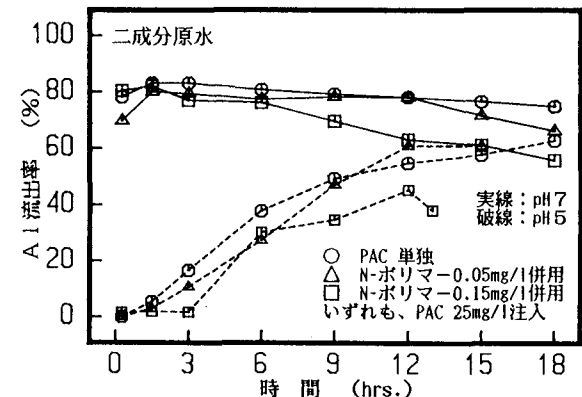


図11 Al 流出率の動き（二成分原水）

カオリン流出率がフミン酸流出率より 2.6~4.7 倍低く、カオリンが選択的に捕捉されジャーテストの結果と大幅に異なっている。それに対し、pH5におけるカオリンとフミン酸の平均流出率は、ジャーテストの結果より相当高くなっているものの、二成分の除去率には有意な差は認められなかった。

- (3)pH7の場合、二成分原水のろ過におけるカオリン・フミン酸平均流出率は、各々の単成分原水のろ過結果に比べて、カオリン流出率は低いがフミン酸流出率は上昇している。それに対し、pH5においては、カオリン流出率は、上昇しているがフミン酸流出率は減少している。
- (4)N-ポリマーをろ過助剤として用いる場合、予めPACなどの凝集剤で除去対象粒子の荷電を調整し、少なくとも微細フロック化をはかった後に注入する方がろ過水質を効果的に改善することができる。
- (5)二成分原水のジャーテスト結果とろ過初期における流出率の動きとを比較してみると、pH7におけるカオリン流出率が低いほかは、比較的ジャーテストの結果と類似している。しかしながら、ろ過の経過とともに分離現象に対するろ層の積分的効果が顕著となり、両結果の差は次第に広がっている。
- (6)実際に二成分原水を対象とするろ過においては、①フミン酸濃度が低くカオリン除去が主対象となる原水の場合にはpH7付近の領域、②フミン酸濃度が高く濁質と同時にフミン酸の除去をも対象となる原水の場合にはpH5付近の領域、を採用することが望ましいといえる。

以上、今回の実験で採用した二成分原水のろ過においては、全体的な傾向として、フミン酸側のろ過特性に強く影響される状況が、また、N-ポリマーの併用や二層ろ過などの空隙量の大きなろ層の採用によりろ過水質の大幅な改善が予想されること、などが明らかとなった。

最後に、実験に協力した北見工業大学土木工学科上下水道工学研究室の二学生（山内秀博、本所克浩）に対し、心から感謝の意を表す。

【 参 考 文 献 】

- 1) 梶 野 勝 司 : 塩素処理におけるトリハロメタンの形成, 水道協会雑誌, No.514, 1977.7.
- 2) 海老江・天 野 : 濁質と色コロイドを含む原水の直接ろ過に関する研究(1), 土木学会北海道支部論文報告集, 第44号, 1988.2.
- 3) J.K.Edzwald, et al : Organics, Polymers and Performance in Direct Filtration, J. Environmental Engineering Div., ASCE, Vol.113, No.1, 1987.2.
- 4) M.R.Collins, et al : Evaluation of Factors Affecting Performance of Direct Filtration, J. Environmental Engineering Div., ASCE, Vol.113, No.2, 1987.4.
- 5) 海老江・藤縄・天野 : 直接ろ過法における高分子凝集剤の効果, 土木学会北海道支部論文報告集, 第43号, 1987.2.