

II-57

ろ材の表面性状と急速砂ろ過初期における懸濁粒子の除去特性

北見工業大学 正員 海老江 邦 雄
北見工業大学 輪 島 秀 則

1 ま え が き

急速ろ過では、殆んどの場合、ろ材として珪砂が用いられる。充填された珪砂が作る複雑で連通した細管状空隙は、層流域下でのフロック形成に極めて有効¹⁾なスペースであると同時に、懸濁粒子分離のための広大な抑留表面を提供している。

ろ過初期における懸濁粒子の分離は、当初、直接ろ材表面で行われるが、いまだ珪砂表面の露出部が残っているにもかかわらず、徐々に既抑留粒子が核となって後続の懸濁粒子を効率的に付着して成長する状況に移行して行く。このように数少ない核粒子がろ材表面に足場を定め多量の濁質を抱える形の抑留が進行することは、珪砂表面の懸濁粒子捕捉能力が一樣でないために起こると考えられ、急速ろ過現象を解明する上で珪砂表面の物理的、化学的特性の把握が重要であることを示唆している。

本論では、珪砂の成分分析、珪砂の表面観察、ろ過初期における懸濁粒子の付着、成長過程の観察と除去率の測定、珪砂表面における懸濁粒子の抑留部位の観察などを通して、珪砂の表面性状とろ過初期における懸濁粒子の除去特性などについて報告するものである。

2 実験用珪砂の成分分析

表1に、実験用珪砂の色別の重量測定結果を掲げた。珪砂の色としては白から半透明までの7種類に分類された。なかには、2～3種類の色が斑点状に混ざった珪砂もあったが、最終的には優占色のグループに所属させている。重量割合については、ろ過砂Aでは半透明のものが60%強と多く、ろ過砂Bでは透明・茶・黄・半透明など各種の色が含まれていた。

表2は、珪砂に含まれる元素と化合物の組成をエネルギー分散型X線分析装置で測定した結果である。元素含有率の全体的傾向としては、酸素が最も高く(44.83～53.21%)、ケイ素(23.78～46.41%)がそれに続いている。アルミニウムは、全てに含まれていたが、その比率は低く0.38～9.67%であった。したがって、化

表1 ろ過砂の色別重量割合

ろ過砂	A			B	
	重量(g)	粒子数	%	重量(g)	%
白	2.1316		18.80	0.6684	6.01
黄	1.3399		11.83	1.9360	17.39
白・黄	0.4757		4.20	0.8998	8.09
茶	0.4123	300	3.64	2.0642	18.54
黒	0.1004	77	0.89	1.6017	14.39
透明	0.0482	36	0.43	2.1441	19.26
半透明	6.8225		60.21	1.8167	16.32
合 計	11.3306		100.00	11.1309	100.00

*……ろ過砂の径：0.84～1.00 mm，比 重：2.65，空隙率：44.3%
ろ層厚：60 mm，充填量：23.65 g

表2 ろ過砂の色と成分組成

砂の色	白	半透明	透 明	黄	白・黄	茶	黒
元 素							
O	46.44	53.21	53.20	52.35	53.15	52.83	43.83
Si	30.85	46.41	46.33	44.30	45.93	45.45	23.78
Al	9.67	0.38	0.47	0.97	0.92	0.69	2.85
Fe				2.38		1.03	6.16
Ca							14.83
Mg							8.55
Na	0.10						
K	12.94						
化合物							
SiO ₂	66.00	99.28	99.11	94.76	98.26	97.23	50.88
Al ₂ O ₃	18.28	0.72	0.89	1.84	1.74	1.30	5.39
Fe ₂ O ₃				3.40		1.47	8.80
CaO							20.74
MgO							14.18
Na ₂ O	0.13						
K ₂ O	15.59						

JEOL JED-2001 AUTOZAP vers.3.07(1990年測定)，加速電圧：15.00 kV
取り出し角度：31度37分，有効時間：100.00秒，表中の数字は%で表示

Effect of Surface Characteristics
of Silica Sand on Particle Removal
in Water Filtration by Kunio EBIE
and Hidenori WAJIMA

合物としても二酸化ケイ素の割合が断然高く、白と黒の珪砂を除けば 94.76~99.28 %にものぼっている。透明と半透明の珪砂は、一応区分はしたものの成分的には殆んど変わらず、二酸化ケイ素に微量のアルミン酸（酸素、ケイ素のほか微量のアルミニウム）を含むものであった。また、黄と茶の珪砂は、これらのほかに酸化第二鉄（元素としては鉄）を含んでいた。だいたい色の珪砂は、恐らく鉄を含んでいたと推測されるが、ここでは検出されておらず、成分はむしろ透明、半透明の珪砂と類似している。さらに、白色の珪砂ではカリウムとアルミニウムが、また黒い珪砂では鉄の含有量が多く、その他、カルシウム、マグネシウムが含まれていた。

以上のことから、今回使用した珪砂は二酸化ケイ素が主体をなす化合物であり、殆んどが二酸化ケイ素からなる珪砂は透明ないし半透明、アルミニウムの比率が若干高くなると白っぽくなり、さらに、鉄が混入するとその量が少ないうちは黄、だいたいまたは茶色、少し多くなると黒色となることなどが明らかになった。

なお、珪砂表面における各元素の分布状態は、特定元素の偏在は稀にしか認められず、観測面の凹凸によらずほぼ一様であった。このことはろ過条件が設定されると、懸濁粒子の捕捉に関する珪砂表面の化学的因子の効果はほぼ一様になることを意味する。したがって、ろ材表面における粒子の抑留状況が局部的に異なるならば、それは物理的または機械的因子の効果に起因すると判断すべきであろう。

3 珪砂上における凝集性懸濁粒子の捕捉

3・1 実験方法など……ろ材上における懸濁粒子の付着と成長過程の観察およびろ過初期の濁度除去率の把握を目的として図1に示す小型のろ過装置を運転した。ろ過筒内（幅30mm、奥行8mm）には珪砂を60mm厚さ（空隙率44.3%）に充填した。水道水にカオリン20mg/lと所定量の凝集剤を注入して急速混和したものを原水とし、ろ速240m/dでろ過した。原水のpHは0.2N-HClまたはNaOHで所定値に調整された。濁度除去率をおさえるために所定の時間間隔でろ過水を採取し、その濁度を測定した。また、ろ過筒前方に実体顕微鏡を設定し、ろ層表面から0~5mm下の位置に焦点を合わせ、ろ過の経過に伴う珪砂表面上の様子を20~30倍に拡大して観察し、必要画面についてはその都度写真撮影した。

3・2 実験結果……ろ材と懸濁粒子のゼータ電位は粒子の捕捉に密接に関連する因子と考えられる。篠原²⁾とO'Melia & Crapps³⁾によると、珪砂のゼータ電位はpHによって変動し、pH5の-25mVからpH10の-45mVまでpHの上昇に伴ないほぼ直線的に低下する。それに対し、カオリンにPACまたは硫酸アルミニウムを注入した微フロックのゼータ電位は、pH4.5~5.0で+10~30mVのピーク値をとった後、pH7.5付近までpHの上昇とともに急速に低下（等電点はpH6付近に出現）し、それ以降の電位はpH10までほぼ-30mVの横這い状態となっている。このように珪砂のゼータ電位はpHの全領域において懸濁粒子の値より低いので、ゼータ電位の観点からは、懸濁粒子は珪砂表面よりも懸濁粒子相互の方が付着し易い状態にあると判断される。

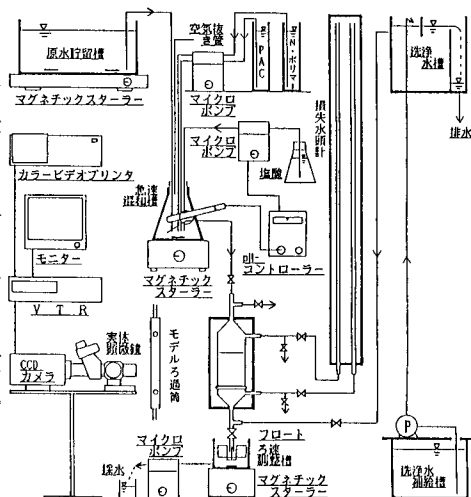


図1 実験用ろ過装置

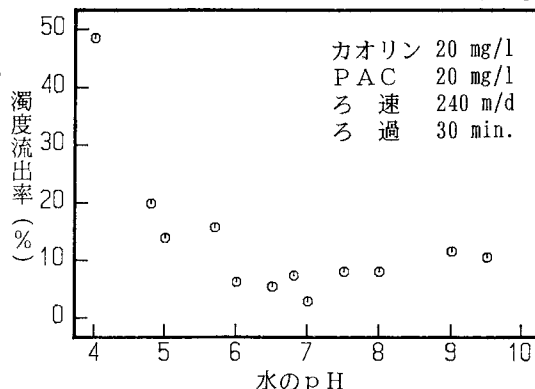


図2 平均濁度流出率の動き

図2は、pH 4～10におけるろ過30分までの平均濁度流出率を示している。このろ過時間はほぼ初期漏出期（主に、懸濁粒子が直接珪砂表面に接触して捕捉される期間）に相当すると考えられる。濁度流出率はpH6.5～7.0で最低、また酸性側よりもアルカリ性側において低い値をとっている。この濁度流出率が最低（濁度除去率が最高）となるpH領域における懸濁粒子の付着・成長の状況の例を写真1と2に掲げる。

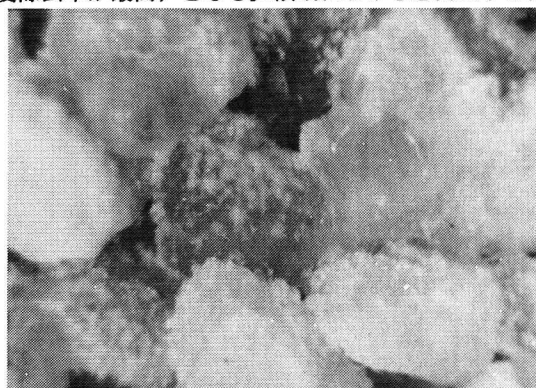


写真1 下向ろ過（240 m/d で4時間ろ過
カリン 20 mg/l, 硫酸アルミニウム 5 mg/l）



写真2 上向ろ過（240 m/d で3時間ろ過
カリン 20 mg/l, 硫酸アルミニウム 5 mg/l）

これらの観察では、当初、懸濁粒子は流れの上流面（下向流では珪砂の上向面、上向流では珪砂の下向面）に散在して確認された。その後は、珪砂表面にまだ懸濁粒子が割り込んで付着しうる露出サイトがあるにもかかわらず、そうした部分よりも既に付着している懸濁粒子に優先的に付着して成長する傾向が強く認められた。こうした傾向は、珪砂と懸濁粒子のゼータ電位からも予測されたことである。写真1と2で抑留物が局部的に集塊化（点型抑留物）して認められるのはそのためと考えられる。この進行過程をモデル化して示したのが図3である。抑留はその後も進展し、隣接する点型抑留物同士が接合し、抑留表面が次第に高密度化、平滑化する様子が観察された。それゆえ、珪砂表面近くの抑留物内部には空隙が残っているため密度が低く、時として剥離のせん断面となることは既に指摘⁴⁾したところである。

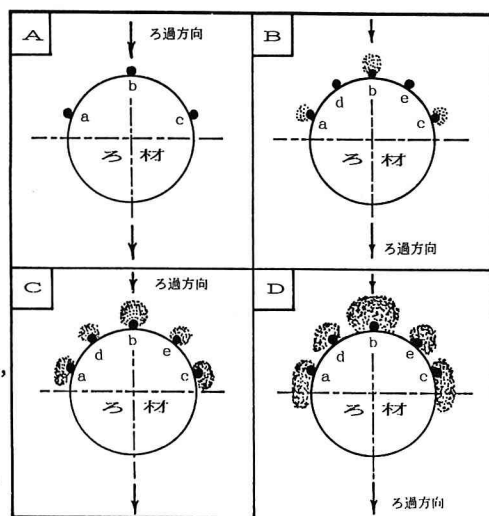


図3 懸濁粒子の付着・成長モデル
(A～Dは進行順, a～eは核粒子)

以上の観察から、ろ過初期に珪砂表面に核となる粒子が適切に配置されることがその後の懸濁粒子除去に重要となること、また核粒子が付着する珪砂表面部分はそれ以外の部分と化学的または物理的に異なっていることが推測された。

4 走査電顕による珪砂表面性状の観察

珪砂の特長な表面性状を示す例を写真3～5に掲げた。これらの写真でも確認されるように、懸濁粒子の物理的ないし機械的捕捉に関連する特長な珪砂表面はつぎのように分類される。

(1) エッジ部……珪砂表面の観察で最も特長なのは、いくつかの面とそれらの面を区分するエッジ部が存在（もっとも、エッジ部が無く比較的滑らかな曲面のみを持つ珪砂もある）することである。エッジ部とは、珪砂を1つの山にたとえると、丁度、山の稜線または尾根の部分に相当し、エッジの角度、規模、周辺

の様相は多様であり、懸濁粒子を含んだ水流が通過するとその前後に粒子の付着や流れの乱れを発生させると考えられる。また、個々の面で認められる性状については以下に述べる通り。

(2) 平滑部……低倍率で観察すると、個々の珪砂によって大きさは異なるが、ガラス表面のように非常に平滑な部分が認められる。しかしながら、この平滑部分を数千～10,000倍に拡大すると、ミクロン規模の緩やかで、規則的な縞状の起伏が観察される場合が多かった。

(3) 凹凸部……エッジ部で区分された面上には、平滑部の他につぎのような凹凸が観察された。最初に懸濁粒子より相当大きな凹凸としては、亀裂、段差、窪み、隆起などの部分が挙げられる。ここで亀裂とは、低倍では珪砂表面の筋状の溝として観察され、それを挟む両側平面に段差が殆んどないものである。これら各種の凹凸の組み合わせにより、珪砂表面にいわゆる谷とか丘の部分が形成されることになる。また、懸濁粒子規模の微細な凹凸としては、突起と陥没孔のほか、縞状または鱗状起伏部、さらに数ミクロン程度の微細粒子が集塊または散在している部分など極めて多彩で特長的な珪砂表面が観察された。

以上のように、珪砂表面には懸濁粒子を物理的ないし機械的に捕捉する可能性の高い部分が相当散在していることが確認されたので、これらの凹凸と懸濁粒子の捕捉の状況を直接捉えるためにつぎの実験・測定を行った。

5 走査電顕による懸濁粒子捕捉部の観察

5・1 走査電顕観察用珪砂試料の作成手順

(1) 直径0.3 mm程度のガラス棒またはピアノ線上に珪砂(0.2N-HCl溶液中で超音波洗浄)1粒を固定し、これを図1のろ過筒断面中央に装着する。

(2) その後、本学水道水にカオリン 20 mg/l、凝集剤 PAC 5 mg/lを注入し、pH6.5～7.0 に調整した後の原水をろ速120m/dでろ過筒内に通し、1粒の珪砂上で4分間のろ過を行う。

(3) 直ちに原水を清浄水に切り換え、珪砂上に捕捉された懸濁粒子の剥離流出を起こさないように注意しながらろ過筒内の水をマイクロチューブポンプで排出する。

(4) ろ過筒内からこの珪砂を取り出してデシケーター内で充分に乾燥させる。

(5) 低加速電圧のもとで(表面コーティング無しの状態)珪砂表面各部における懸濁粒子の残留状況を走査

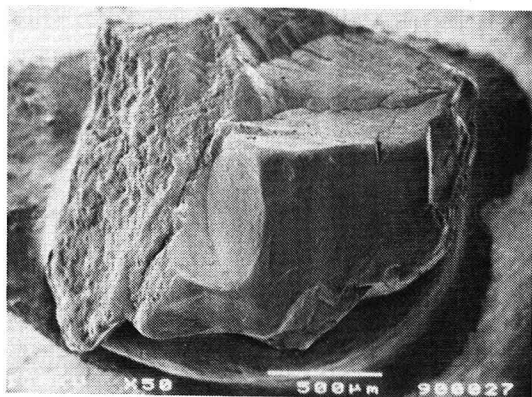


写真3 茶色珪砂

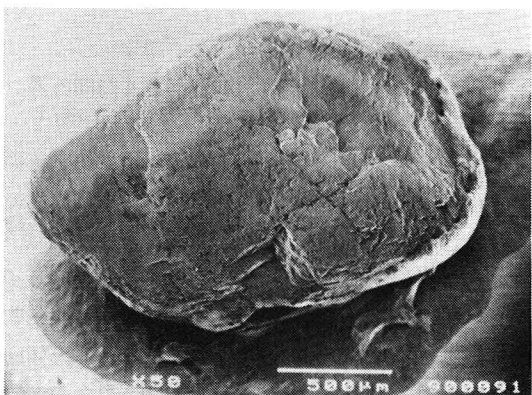


写真4 白色珪砂

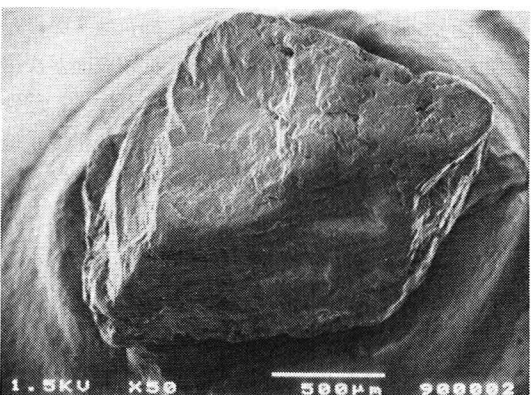


写真5 黄色っぽい半透明珪砂

電顕を用いて観察する。

5・2 ろ材表面における凝集性懸濁粒子捕捉状況の観察……ろ過初期の懸濁粒子の捕捉状況を示す例を写真6～9を掲げる。捕捉状況に関しては、少なくともろ材の色には関係がなく、全体としてつぎのような傾向が観察された。

懸濁粒子が頻繁に確認された場所としては、エッジ部、段差また規模の大きな隆起部に挟まれ比較的深い谷間を形成している部分、窪みや険しいエッジ部の周辺などであった。また、比較的平坦な部分でも表面に微細な突起物や陥没等の凹凸がある場所では多くの懸濁粒子が確認された。写真6（白色珪砂）では中央の割合平滑な部分に、写真7（黄色っぽい半透明珪砂）では中央の表面が粗く窪んでいる部分に、写真8（黄色珪砂）では左上から右下に走っている段差に沿っておよび写真9（半透明珪砂）では下方に展開している隆起部の上の谷間で多数の懸濁粒子が観察されるなどはこうした例である。これらに対し、表面が滑らかな部分での抑留は稀であった。また凹凸の多い珪砂と少ない珪砂とでは、前者においてより多くのフロックが捕捉される傾向が認められた。

さらに、懸濁粒子の付着状況をそれを構成する大型カオリンのスケールで詳細に観察すると、懸濁粒子は突起物や陥没部など珪砂表面そのものの凹凸に噛み合う形で捕捉されている場合が多かった。すなわち、懸濁粒子は水流によって珪砂表面に輸送され、珪砂表面の種々の凹凸部で物理的、機械的に捕捉された粒子がその後の抑留の足場として機能する様子が確認された。

6 ま と め

本研究で得られた知見をまとめると以下の通りである。

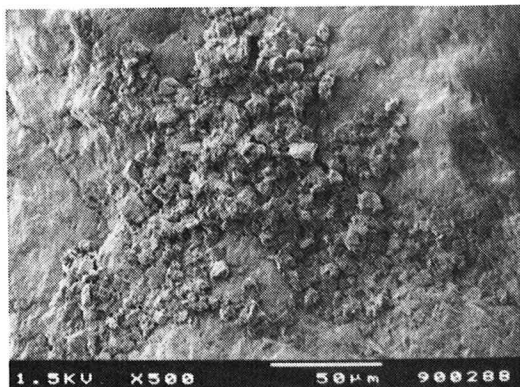


写真6 白色珪砂

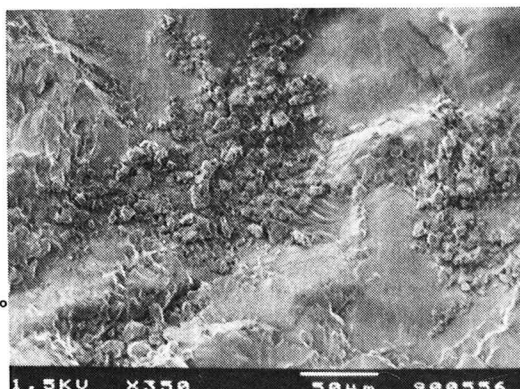


写真7 黄色っぽい半透明珪砂

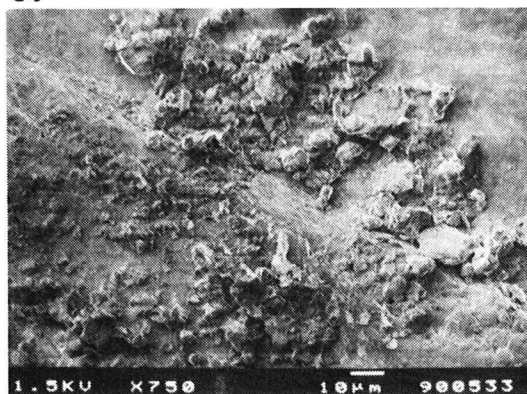


写真8 黄色珪砂

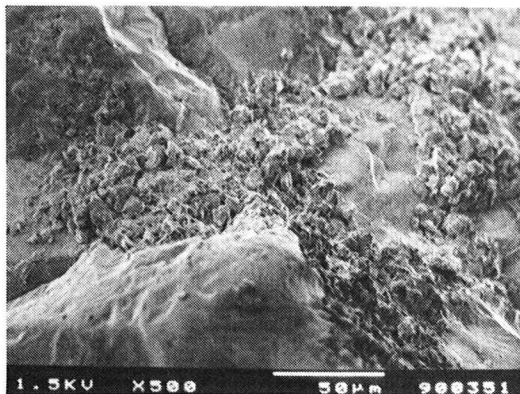


写真9 半透明珪砂

(1) 実験に用いた珪砂は、白～半透明の7色に分類でき、いずれも二酸化ケイ素が主体をなす化合物であった。各元素の分布状態は珪砂表面の凹凸によらずほぼ同様であった。

(2) 凝集pH領域の原水をろ過し、珪砂上における懸濁粒子の捕捉過程を観察したところ、ろ材表面に露出部があるにもかかわらず、流れの上流面に散在する形で捕捉された粒子を核にして局部的に集塊化（点型抑留物）して捕捉された。このことから珪砂表面上にある核粒子の付着部を解明することの重要性が示唆された。

(3) 走査電顕により珪砂表面を観察し、特長的な珪砂表面としてエッジ部（エッジと面）、平滑部、凹凸部（亀裂、段差、窪み、隆起、突起、陥没孔など）が存在すること、したがって、懸濁粒子を物理的、機械的に捕捉する部位のあることを明らかにした。

(4) 懸濁粒子を捕捉した珪砂表面の走査電顕による観察では、多くの懸濁粒子が珪砂表面にある種々の凹凸部に噛み合う形で捕捉された。このことは、初期付着粒子は珪砂表面に化学的ではなく、物理的、機械的に捕捉されたことを示している。

今後は、化学的観点からの検討結果をも加えてこの問題を総合的に考察することが必要であろう。

7 謝 辞

本研究の実験遂行にあたっては、北見工業大学土木工学科上下水道工学研究室の学生に協力いただいた。ここに記して謝意を表す。また、本研究は文部省科学研究費補助金一般研究C（平成元年、2年継続）の助成を受けて実施されたものであることを付記する。

【 参 考 文 献 】

- 1) 丹保 憲仁：砂ろ過の抑留機序に関する研究（Ⅱ）-砂層内でのフロックの挙動-，水道協会雑誌，No.484，1975.1.
- 2) 篠原 紀：急速ろ過池のろ過機構と複層ろ過に関する基礎的研究，九州大学工学博士論文，1974.8.
- 3) O'Melia, C.R. & Crapps, D.K. : Some Chemical Aspects of Rapid Sand Filtration, Jour. AWWA, Vol. 56, No. 10, 1964. 10.
- 4) 海老江邦雄：急速ろ過ろ層における抑留物質の挙動（Ⅲ），水道協会雑誌，No. 507，1976. 12.