

## Ⅶ-13 急速砂ろ過池における濁質除去能の改善に関する検討

—走査型電子顕微鏡などによる珪砂表面特性の把握—

北見工業大学 フェロー 海老江 邦 雄  
 北見工業大学 学生員 安 藤 丈 弘  
 北見工業大学 学生員 玉 川 幸 慎

### 1. ま え が き

高度浄水処理時代を迎え、既存の水処理施設、特に固液分離の最終工程にある急速ろ過池の効率の向上は、直接浄水水質の改善につながる重要なポイントと考えられる。

急速ろ過池の処理効率は、原水の特長、前処理法、ろ材の特長およびろ過池の運転条件など、多くの因子によって影響されている。これらの中で、濁質の抑留面となるろ材表面の特長は、ろ過初期における濁質捕捉効率だけでなく、抑留物の安定的な保持にも深く関わっていると考えられる。ろ材の表面特長に関しては、珪砂表面の化学的性質やゼータ電位が濁質除去に及ぼす影響<sup>1)~4)</sup>などろ層のマクロな現象についての研究が多い。また、海老江はろ過初期において濁質粒子の抑留は、ろ材表面の特定部分に捕捉された幾つかの粒子が核となり、その周辺にブロック形成を起こしながら進展(点型抑留)することを実体顕微鏡により観察している<sup>5)</sup>。著者らは、写真1に示すように、走査型電子顕微鏡(SEM)を用いた観察によっても、この点型抑留現象の存在を確認した。しかしながら、核粒子の付着と珪砂表面の物理的・化学的特長との関連性など、ろ材表面に関する情報はまだまだ十分とは言えない。

本論では、国内の5ヶ所から収集した珪砂を対象に、SEMによる表面観察と同装置に組み込まれたエネルギー分散型X線分析装置(EDS)による表面の金属元素の分析結果、および3次元画像解析法(ステレオSEM法)を用いた珪砂表面の凹凸の定量化の試みについて報告したい。



写真1 珪砂表面に捕捉された濁質(黒色の堆積物)  
 (下向流ろ過10分後、写真上部が上流側)

### 2. 実験と測定

#### 2-1 珪砂表面の凹凸観察と金属元素の測定

今回の研究にあたり、国内の5ヶ所(相馬、高萩、鹿島、枚方、福岡)からろ過用珪砂を収集した。最初に、これらの珪砂を洗浄・乾燥した後、250~300個の粒子(0.13~0.15g)を対象とした目視による色分けとそれぞれについての重量の測定を行った。その後、SEM(JEOL JSM T-330A)を用いて濁質粒子の捕捉に関連すると考えられる珪砂表面の凹凸を微視的に観察した。なお、観察に用いた試料は、予め0.1N-HCl溶液中で洗浄した後、蒸留水中ですすぎ洗い(それぞれ5分間程度の振とう)を行い、デシケーター内で十分に乾燥させた。また、SEMの加速電圧には、表面付近の詳しい情報が得られる低電圧(3.0kV以下)を用いた。

さらに、SEMとEDS(JEOL JED-2001)とを併用することにより、珪砂表面における金属元素の平均含有率とその偏在をを観測した。これらの分析には、前述と同様の洗浄・乾燥を行った後、炭素蒸着(真空蒸着装置 JEOL JEE-400、真空度  $0.15 \times 10^{-3}$  Pa、炭素棒の加熱電流 40A で 30秒間)を施した珪砂試料を用いている。金属元素の

Effect of the characteristics of sand surface on the removal of suspended particles in rapid sand filtration by Kunio EBIE, Takehiro ANDO and Yukinori TAMAKAWA

平均含有率の測定には、EDSの検出有効時間を100秒、デッドタイムを20~25%、SEMの加速電圧を20kvとして、できるだけ平滑な珪砂表面を1ヶの粒子について3ヶ所(1ヶ所あたり約 $10^4 \mu\text{m}^2$ )選定し、合計30箇所を測定した。また、金属元素の偏在については、珪砂表面をSEMで1,000倍に拡大し、EDSを用いて特定の金属元素の分布を定性的に確認した。さらに、その元素が比較的濃い部分と薄い部分とにおいて金属元素含有率の定量分析を行なった。なお、定量分析には、SEMの加速電圧を15kv、EDSのデッドタイムを20~25%、測定有効時間を100秒、測定面積を $100 \mu\text{m}^2$ とした。また、定性的観察では、観測面積を約 $9,800 \mu\text{m}^2$ 、EDSの測定有効時間を270秒とした。

### 2.2 珪砂表面の凹凸の定量化

珪砂表面の凹凸を定量的に把えることを目的として、SEMステレオ法を用いた3次元画像解析を試行した。この方法は非接触法であるため、特に高倍率の観察が必要な場合に用いられる。解析の手順としては、最初に、SEMを用いて基準画像および傾斜画像(この場合、縦軸方向に7.5度傾斜)を撮影(ステレオペア写真)する。つぎに、このステレオペア写真の同一点を探索して、一組の同一点の相対的な位置のずれと傾斜角度とから珪砂表面の凹凸高さを計算する。この同一点については、基準画像中の特定領域から取りだされた窓領域(テンプレート)を傾斜画像に重ねあわせ、解析格子点の濃度差が最も小さくなる領域から機械的に捜し出される。なお、これらの解析には本学情報処理センター内のホスト計算機(CONVEX C3440)、および研究室のパソコン(NEC PC-9821)を用いた。

## 3. 結果と考察

### 3.1 珪砂表面の凹凸観察と金属元素の測定

#### 1) 色を基準とした珪砂の分類

珪砂の色は、表面の凹凸や金属元素の含有量、すなわち、ろ過性能に深く関わっていると考えられる。そこで、各産地の珪砂を透明系3種類(無、白、橙)と不透明系5種類(白、黄、橙、茶、黒)の合計8種類に分類し、産地ごとのこれらの重量割合を表1に掲げる。その際、複数の色が混在している珪砂については、優占色のグループに所属させた。

表1 珪砂表面の色とその重量割合(%)

色	産地	相馬	鹿島	枚方	福岡	高萩
透明系	無	24.1	10.7	25.2	50.1	53.6
	白	58.0	59.7	33.3	25.6	21.3
	橙	0.1	8.6	5.0	5.4	5.0
不透明系	白	17.1	3.1	16.4	5.2	7.3
	黄	0.7	5.3	9.4	5.8	7.7
	橙	—	8.8	6.1	3.7	1.6
	茶	—	3.1	1.5	1.2	2.8
	黒	—	0.7	3.1	3.0	0.7

\*径0.590~0.710mmの珪砂0.13~0.15gを対象とした

同表で最も特徴的な点は、いずれの産地の珪砂においても透明(無)と透明(白)珪砂の重量割合が非常に高いことである。これら2種の重量割合の合計を産地別に見ると、相馬産が82.1%と最も高く、枚方産が58.5%と最も低くなっている。また、不透明系の重量割合については、相馬、枚方産で白色が約17%と高い値を示しているが、これら以外は、いずれも10%以下の低い値であった。これらのことから、急速砂ろ過層のろ過性能は透明(無)、透明(白)珪砂の表面性状に依存すると考えられる。

#### 2) 珪砂表面の凹凸観察

SEMを用いた微視的な観察により、珪砂表面はエッジ部とエッジで区分される面とに大別できる。また、面の部分はさらに平滑部と凹凸部とに分類できることが分かった。これらの性状が顕著に現れている枚方産の透明(無)、透明(白)、白色珪砂の全体像を写真2~4に、エッジ部および各種の凹凸部の性状を写真5~7に示した。これらの写真から、上述の部位を詳細に観察すると次のようである。

(1)エッジ部……珪砂表面で最も特徴的なのは、写真5のように二つの面を区分するエッジ部の存在である。その長さや周辺部の様子は多種多様であった。特に、写真2に見られる透明(無)珪砂のエッジ部が最も長くシャープであった。これに対し、写真4で見られる白色珪砂では、表面の凹凸が激しく明確なエッジ部は認めら

れなかった。また、写真3に示す透明(白)珪砂の表面は、これらの中間的な性状を有している。いずれにせよ、エッジ部は水流を乱し粒子を巻き込んで捕捉するなど、濁質除去に関わる重要な部位であると推測される。

(2) 平滑部……面内の平滑部の大きさおよびその滑らかさの程度は、珪砂の色によって異なる。特に、写真3、4に見られる透明(無)と透明(白)では、広い平滑部である同時に、ガラス表面と同様に数千倍の観察でも滑らかな状況であった。一方、写真5で見られる白色珪砂の平滑部は、規模も小さく、高倍率下では微細な凹凸(数ミクロン程度)の集合体であることが観察された。

(3) 凹凸部……面部には、平滑部の他に、写真6、7に示す亀裂、段差、窪み、隆起などが単独で、もしくは複数のものが組み合わせられた状態で確認された。また、透明(無)珪砂の一部には、写真6で見られるように平滑部とエッジ部との間隔が密に配置され、段差と見なせる部分もあった。透明(白)珪砂においては、透明(無)の場合より高低差の激しい凹凸が多く存在していた。また、不透明系の白色珪砂では、高低差の大きな凹凸部が珪砂表面全体に広く分布しており、さらにそれらの表面を高倍率で観察すると濁質粒子の抑留の足場となり得る10 μm以下の微細な凹凸であることが認められた。

以上のように、珪砂表面にはエッジ部や凹凸部など濁質粒子の機械的捕捉に有効と考えられる部位が各所に散在していた。また、これらの凹凸性状は珪砂の色によってそれぞれ異なった特徴を有していた。すなわち、濁質粒子の捕捉能力は珪砂の色によって異なっていると推測される。これらのことから、ろ過性能の改善には珪砂表面の凹凸性状を考慮したろ材選定が重要と考えられる。

### 3) 珪砂表面の金属元素の測定

表2は、珪砂表面の金属元素の平均含有率を示している。同表より、透明系のいずれの珪砂においても当然のことながらSiが92%(従って純度の高い石英<sup>脚注1)</sup>)と最も多く、それに次ぐAlは3%程度、その他の金属元素の含有率も殆ど同じであった。一方、不透明系の珪砂においてもSiが最も高かったが、Alは白、黄、茶、黒色珪砂において11%以上と際だっており、橙色の珪砂においても透明系の珪砂よりは若干高くなっている。また、不透明系白、黄色の珪砂におけるKの存在(18%以上)や、白、黄、橙、茶色の珪砂と褐色を帯びるにつれて含有率が高くなるFeの存在は極めて興味深い。

脚注1) 透明(無)および白色珪砂の化学組成を粉末X線回析装置を用いて測定したところ、主な鉱物はいずれにおいても石英(SiO<sub>2</sub>)であった。不透明系の白色珪砂は、その他に斜長石(NaAlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>)とCaAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub>の中間組成)と雲母粘土(K<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>(SiAl)<sub>2</sub>O<sub>10</sub>(OH,F))とを比較的多く含んでいた。したがって、AlおよびKはこれらの鉱物に由来していると考えられる。

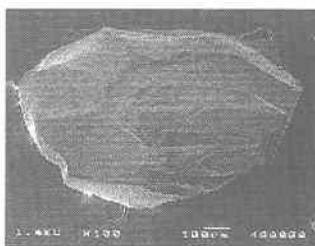


写真2 透明(無)珪砂

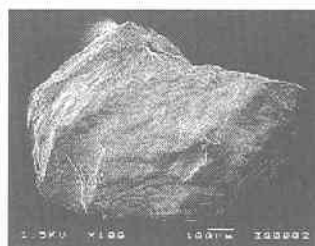


写真3 透明(白)珪砂

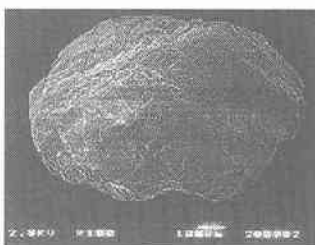


写真4 不透明系白色珪砂

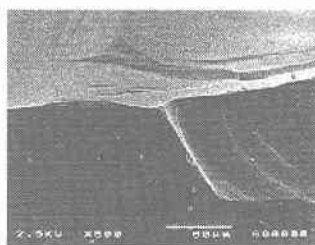


写真5 エッジ

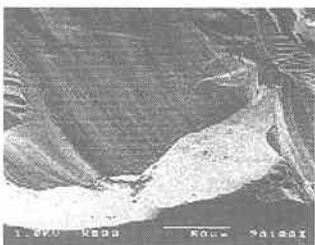


写真6 段差

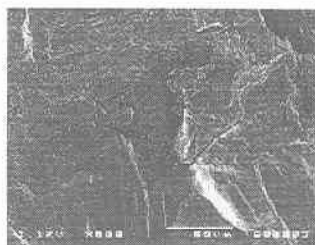


写真7 窪みと亀裂

これらのことから、透明系の珪砂は硬く、ろ層洗浄時の擦れによる損失量が少ないものと推測される。また、不透明系の白、黄、茶、黒色珪砂におけるAlやKなど比較的多く含まれる金属元素は、珪砂の色やろ過性能に影響を及ぼしていると考えられる。

つぎに、珪砂表面における各部の金属元素の分布を観測したところ、珪砂表面の過半を占める平滑部においては、殆どの金属元素はほぼ均一に分布していた。それに対して凹凸部においては特定な金属元素の偏在が認められた。金属元素の偏在の一例として、不透明系白色珪砂の凹凸部のSEM像を写真8に、また、同面のSi、Al、Kの分布図を写真9、10、11に掲げる。さらに、偏在が認められた部位における各元素の定量分析結果を表3に掲げる。まず、写真8から観測面の凹凸部の状況を見ると、同面は中央の凸部と左下方の段差、およびこれらを取り巻く細かな凹凸(10 μm以下程度)とで構成されている様子が認められる。つぎに、写真9、10、11のSi、Al、Kの分布図と写真8とを対比させると、Siの分布は中央の凸部の左下に希薄部が認められるが、大半は均等に分布している。また、Alの分布も中央凸部の左下および右上に希薄部が認められるが、他の部分では均等に分布している。一方、Kについては画面右上(領域C)と中央凸部下下の比較的広い範囲にわたってSi、Alの場合よりも顕著な希薄部が認められる。さらに、表3からこれら3元素すべてが希薄であった中央凸部の左下(領域A)とすべての元素が検出された部位(領域B)とを比較すると、明らかにKは減少(23.67%→6.39%)し、Feは増加(0.23%→8.89%)しているが、その他の元素には大きな変動は認められない。すなわち、同面においてKは明らかに偏在しているが、その他の元素はほぼ均等に分布していることが分かる。これらの傾向は不透明珪砂の白、黄色の珪砂の凹凸部に共通して認められた。このような珪砂表面の凹凸部は、ろ過初期における濁質粒子の捕捉に対し、機械的にだけでなく化学的にも有効に作用すると考えられる。したがって、これらの部位は濁質粒子の捕捉にとって重要な部位であるといえる。

表2 珪砂表面の金属元素の平均含有率<sup>\*1</sup>(%)

色 元素	透明系			不透明系				
	無	白	橙	白	黄	橙	茶	黒
Na	1.54	1.48	1.66	2.50	1.98	1.61	1.83	2.47
Mg	1.58	1.56	1.74	1.68	1.87	1.89	2.20	2.39
Al	3.07	3.06	3.33	15.43	17.31	6.13	11.29	11.42
Si	92.34	92.21	91.02	53.40	52.39	86.66	73.71	75.65
K	0.03	0.06	0.29	25.13	18.57	0.26	1.92	1.50
Ca	0.03	0.01	0.00	0.15	0.50	0.11	0.36	0.20
Fe	0.10	0.35	0.73	0.52	1.13	2.28	7.47	4.29
Cu	0.00	0.00	0.00	0.00	2.04	0.00	0.00	0.19
その他 <sup>*2</sup>	1.31	1.27	1.23	1.19	4.21	2.45	1.23	1.88

\*1. 枚方産、測定条件: JEOL JED-2000、検出有効時間100sec、ZAP補正、Ver. 3.0  
加速電圧20kv、1粒子につき3視野、合計10粒子について30視野測定

\*2. その他は、S、Cl、Mn、Zn

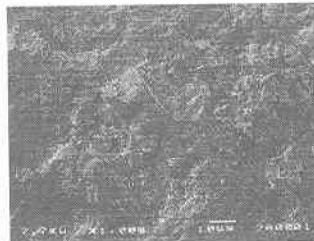


写真8 白色珪砂の凹凸部

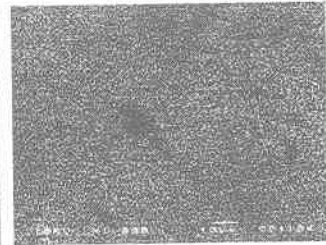


写真9 白色珪砂のSi分布

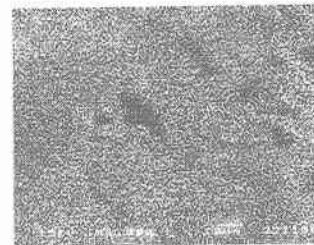


写真10 白色珪砂のAl分布

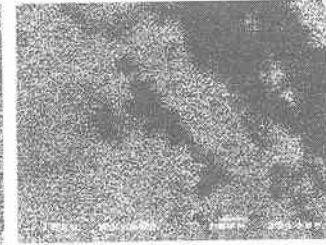


写真11 白色珪砂のK分布

表3 不透明系白色珪砂表面における金属元素含有率<sup>\*1</sup>(%)

部位	元素	Na	Mg	Al	Si	K	Fe	その他 <sup>*2</sup>
平均		3.23	1.87	16.80	55.58	18.65	1.70	2.17
A		2.28	1.83	16.07	54.26	23.67	0.23	1.66
B		2.56	2.63	21.09	56.09	6.39	8.89	1.54
C		7.55	1.93	19.66	65.82	1.04	2.50	1.51

\*1. 枚方産、測定条件: JEOL JED-2000、検出有効時間100sec、ZAP補正

\*2. その他はS、Cl、Ca、Mn、Cu、Zn

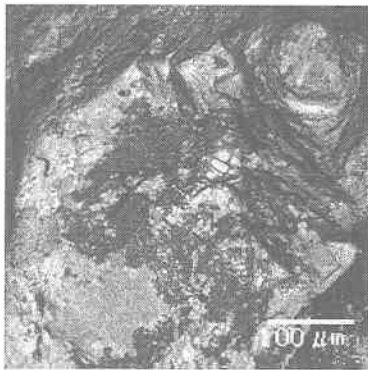


写真12 不透明系白色珪砂表面  
拡大率：150倍

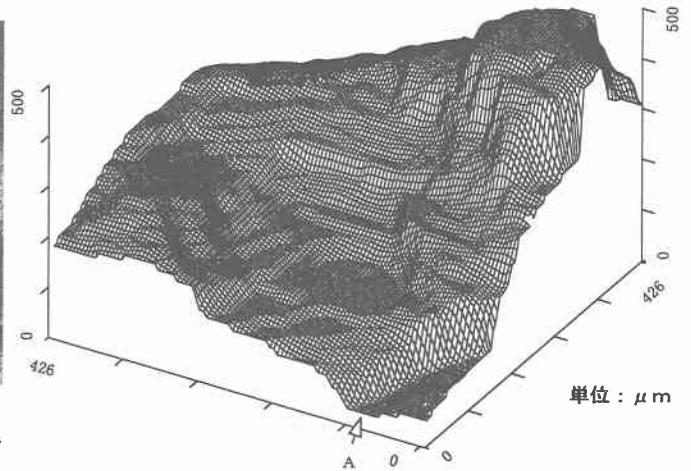


図1 不透明系白色珪砂表面の鳥瞰図  
解析条件：格子間隔4.26 μm、面積181732 μm<sup>2</sup>

### 3-2 珪砂表面の凹凸の定量化

写真12に不透明系の白色珪砂表面を150倍に拡大したSEM像を示した。また、図1および図2に、写真12に対応する鳥瞰図と等高線図とをそれぞれ掲げた。写真12のSEM像からは、右上方の隆起や左上方の傾斜は認められるが、全体の状況を詳細に把握することは困難である。一方、図1および図2からは、同面の右上方の隆起が際だって高い様子やそこを頂点として緩やかにカーブしながら左側方へとつながる稜線(エッジ部)の様子、稜線から右下方にかけてすり鉢状に下ってゆく斜面の様子などがSEM像よりも立体的に把握することができる。また、この鳥瞰図をもとに基準面(解析の最低部A)から上に5 μmごとに区切った水平断面面積の差(各区分間ごとの珪砂表面積の垂直投影面積)を図3に掲げる。同図において、基準面からの高さ110、230、440 μm付近に3つのピークが見られる。このことは、これらの位置に水平面ないし緩斜面が存在することを示しており、図2においてもこれらに対応する2箇所(1箇所)の水平面と1箇所(2箇所)の緩斜面とを確認することができる。また、第2と第3ピークとの間隔が比較的広いことから、水平面と緩斜面とは急斜面で連結されていることが分かる。

以上のように、この手法には、濁質粒子規模の微小な部分においてより正確な解析が可能であるかなど、検討すべき課題が残されているものの、濁質粒子の機械的捕捉に関連する珪砂表面の凹凸を定量的に扱う上で有効な手段である考えられる。今後は、この手法によって珪砂の色と凹凸の関連性や、実際に使用されている珪砂の表面特性の経時変化などを定量的に把握して行きたいと考えている。

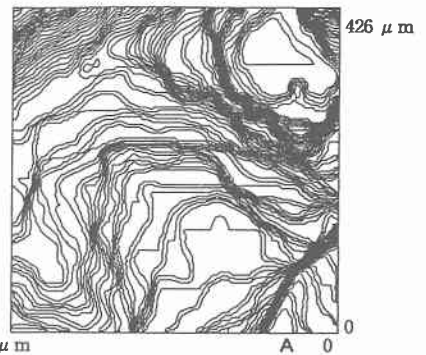


図2 白色珪砂表面の等高線図  
等高線間隔5 μm、最大高さ=440.35 μm  
解析条件：格子間隔=3 pixel、  
格子数(x,y)=(101,101)、解析総面積=181732 μm<sup>2</sup>

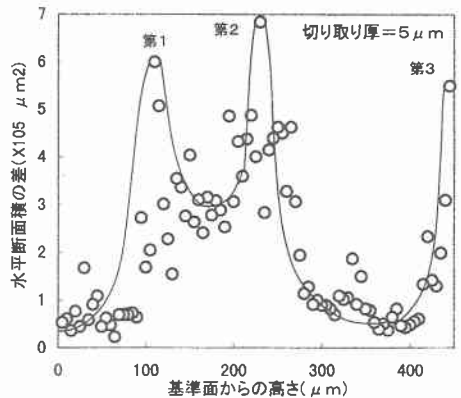


図3 各区分間ごとの水平断面面積の差

#### 4. ま と め

今回の研究で得られた知見は以下の通りである。

- 1) 5箇所の産地の珪砂を色で分類したところ、いずれの産地においても透明(無)および透明(白)の珪砂が60～80%の重量割合であった。このことは、ろ過性能がこれらの色を持つ珪砂の表面性状に依存することを示している。
- 2) 濁質粒子の機械的捕捉に有効なエッジ部や各種の凹凸部の多寡は、珪砂の色によって異なることが確認された。したがって、濁質粒子の捕捉能力は珪砂の色によって影響されるものと考えられる。
- 3) 珪砂中のSiの重量割合は52～92%であり、AlやKを25%程度含む場合もあった。これらの金属元素は、珪砂の色とろ過性能とに影響を及ぼしているものと考えられる。
- 4) いずれの珪砂の平滑部においても金属元素(Si、Al、K)の分布はほぼ同様であったが、不透明系の白色珪砂の凹凸部にはKの顕著な偏在(1.1～23.7%)が認められた。それゆえ、同珪砂の凹凸部は物理的にだけでなく、化学的にも濁質粒子の捕捉にとって重要と考えられる。
- 5) ステレオSEM法による3次元画像解析法は、珪砂表面の凹凸を定量的に解析する上で有効な方法と考えられる。

#### 【参 考 文 献】

- 1) V. S. Stenkamp & Mark M. Benjamin : Effect of iron oxide coating on sand filtration, Jour. AWWA, Vol. 86, No. 8, pp. 37-50 (1994. 8)
- 2) 徳平 淳 : 急速ろ過におけるろ過砂の粒度のろ過効率に及ぼす影響、水道協会雑誌、第302号、pp. 19-33 (1959. 11)
- 3) 佐藤 敦久 : 急速ろ過におけるろ過機構に関する研究(II)、水道協会雑誌、第430号、pp. 13-27 (1970. 7)
- 4) 角田 省吾・青柳 由重 : 直接凝集ろ過に関する実験的研究、水道協会雑誌、第486号、pp. 2-10 (1975. 3)
- 5) 海老江邦雄 : 急速ろ過層における抑留物質の挙動(III)、水道協会雑誌、第507号、pp. 20-34 (1976. 12)
- 6) 海老江邦雄 : ろ材の表面性状と急速ろ過初期における懸濁粒子の除去特性、土木学会北海道支部論文報告集、第47号、pp. 515-520 (1991. 2)
- 7) 海老江邦雄・安出 卓司ら : 直接ろ過における珪砂表面性状と懸濁粒子の捕捉機構、土木学会第46回学術講演集第2部、pp. 400-401 (1991. 9)
- 8) 海老江邦雄・安出 卓司ら : 直接ろ過におけるろ材の表面性状と懸濁粒子の捕捉、土木学会北海道支部論文報告集、第48号、pp. 601-604 (1992. 2)
- 9) 海老江邦雄・安出 卓司ら : ろ過砂の表面性状に関する2、3の検討、第43回全国水道研究発表会講演集、pp. 169-170 (1992. 5)
- 10) 山本健太郎 : 角および面の形状測定—表面アラサ測定—、日刊工業新聞社 (1958. 9)
- 11) 駒井健治郎・野口 昌利 : 疲労破面の3次元解析、鉄と鋼、第15号、pp. 149-155 (1986)
- 12) 塩野 清治・升本 真二・弘原 海清 : BASICによるコンターマップ—1基礎編—、共立出版社(1989. 6)
- 13) K. V. Ellis & M. E. Aydin : Penetration of solids and biological activity into slow sand filters, Wat. Res., Vol. 29, No. 5, pp. 1333-1341 (1995. 5)