

Ⅶ-7

カオリン、フミン酸と共存するクリプト原虫モデルの凝集・砂ろ過挙動

北見工業大学 フェロー 海老江邦雄 ○正会員 土井 克哉 学生員 李 宰昊
 学生員 林田 武志 学生員 高田 善公 非会員 尹 泰漢

1. ま え が き

1996年、埼玉県越生町では人口約14,000人中、約8,800人が激しい下痢や腹痛を訴えるという事件¹⁾が起きた。それは、水道水がクリプトスポリジウムによって汚染されていたためである。これを契機に、わが国でも水道水中のこうした原虫による集団感染症を抑制すべく、様々な研究が開始された。

クリプトスポリジウムの感染型であるオーシストは塩素に対して強い抵抗力²⁾を示すので、当面は、浄水工程中の凝集沈殿やろ過等における固液分離効率を高め、現状の2.5log程度を4.5log程度に上昇させることが重要と指摘³⁾されている。

著者らは、クリプトスポリジウムの凝集および砂ろ過挙動を基礎的に明らかにすることを目的に、モデル粒子としてクリプトスポリジウムとほぼ同程度の径、比重およびゼータ電位をもつ蛍光ラテックスビーズ(以下、蛍光ビーズ)⁸⁾(粒径6μm、比重1.05、ゼータ電位-35mV⁹⁾)を用いて実験を行ってきた。

ここでは、カオリンを懸濁させた原水に一定数の蛍光ビーズを打ち込み、PACで凝集沈殿させた場合の処理性、および、ろ過中に原水pHあるいはろ速の変動がある場合におけるの蛍光ビーズやろ層内抑留および流出挙動について検討した結果を報告する。

2. カオリン共存下における蛍光ビーズの凝集沈殿挙動

2-1 実験条件・方法……表1に、原水およびジャーテストの条件を示す。

所定条件に各試料(500ml)を調整した後、ジャーテスターを用いて凝集沈殿処理を行った。今回の実験では、凝集沈殿後における上澄水濁度と上澄水中に残留する蛍光ビーズ数の両方を測定することとしたため、同一条件の原水を2つ用意し、一方を濁度、もう一方を蛍光ビーズ数の測定用試料とした。なお、蛍光ビーズの注入にあたっては、10μl中に蛍光ビーズを100個程度含む懸濁液を予め厳密に調整しておいた。

表1 原水およびジャーテストの条件

原 水	カオリン : 50mg/l P A C : 20mg/l 蛍光ビーズ : 108.6±5.5個 pH : 2~10
ジャーテスト	急速攪拌 : 100rpm, 5分 緩速攪拌 : 40rpm, 10分 沈降時間 : 1, 2, 3, 5, 10分

ジャーテストでは、500mlの原水に対し108.6±5.5個の蛍光ビーズをマイクロシリンジを用いて注入した。凝集沈殿後に採取する上澄水量は200mlとし、残りの300mlを沈殿汚水とした。実験における蛍光ビーズ数の収支を確認するため、沈殿汚水中のビーズ数をも測定した。上澄水および沈殿汚水に含まれる蛍光ビーズ数の測定にあたっては、最初に、これらの試料水を孔径1μmメンブレンフィルター上で希薄塩酸溶液をかけてフロックを溶解しながら吸引ろ過した。その後、フィルター上に残留したビーズ数を蛍光顕微鏡下で測定した。

2-2 pHの変化等に伴う両粒子の除去傾向……図1は、試料のpHを任意に調整して凝集沈殿した後の上澄水濁度および残留蛍光ビーズ数の動きを、図2は、凝集前後におけるカオリン粒子と蛍光ビーズのゼータ電位の動き⁴⁾を示している。図1によると、pH6.4~7.2の中性域では、上澄水濁度および残留蛍光ビーズ数はそれぞれ最低の5度、4個となった。それゆえ、蛍光ビーズについては、カオリンの場合と同様に、良好なフロックの形成や沈降は、中性のpH域で起こることが分かった。また、図2によると、最適凝集領域のpH7付近におけるカオリンと蛍光ビーズのゼータ電位は、凝集前後とも近似した値をとっており、ゼータ電位

Coagulation and Sand Filtration of the Water Containing Fluorescent Latex Micro-beads as A Surrogate of Cryptosporidium Oocysts with Kaolinite and/or Humic Acid, by Kunio EBIE, Katsuya DOI, Jae-Ho LEE, Takeshi HAYASHIDA, Yoshitaka TAKADA and Tae-Han YOON

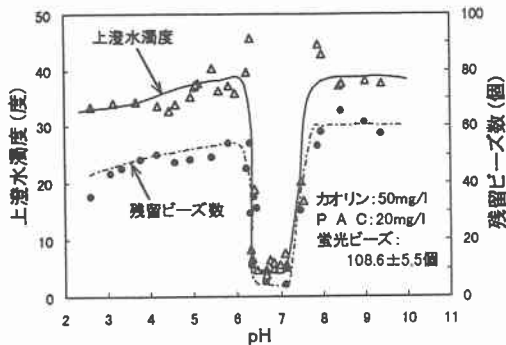


図1 カオリンと蛍光ビーズの凝集沈澱による処理性からも両粒子の凝集挙動の類似性が推測される。

図3は、pH7付近で凝集させた後の上澄水を沈降時間を変えて採水し、それら試料の濁度と残留蛍光ビーズ数を測定した結果である。同図によると、上澄水濁度と残留ビーズ数については、いずれのPAC注入率においても沈降時間の経過とともに概ね3分または5分までは急速に低下しており、それらの傾向は非常に類似している。このことは、上澄水の濁度と残留ビーズ数との間には非常に高い相関があることを示唆するものである。

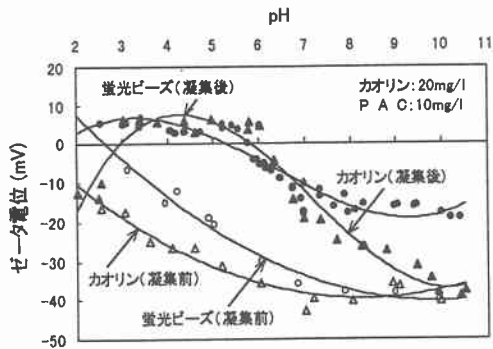


図2 pHの変化に伴うカオリン、ビーズのゼータ電位

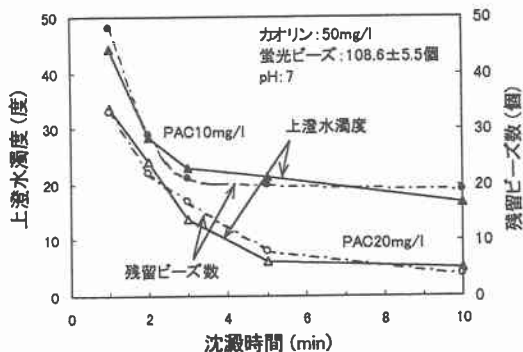


図3 pH7における上澄水濁度と残留ビーズ数の変化

3. 蛍光ビーズのろ層内抑留挙動

3-1 実験条件・方法……図4に示す小型直接ろ過装置を用いて、ろ層の表面上5cmの位置から所定量の蛍光ビーズをマイクロシリンジにて注入した場合、蛍光ビーズがろ層内でどのように抑留されるか、また、どの程度流出するかを実験的に検討した。すなわち、通常の定速ろ過の途中で蛍光ビーズを注入した場合と蛍光ビーズ注入後に原水pHまたはろ速を変動させた場合の2通りの実験を、表2に示す条件で行った。なお、蛍光ビーズについては、濃度調整された試料からマイクロシリンジを用いて所定時に10μl (101.7±5.0個)を打ち込んだ。また、定常時のpH6.8から変動時のpH5.5または8.0に切り替えるには約6分間かかるため、pH変動実験では、予定の時刻よりも6

表2 ろ過実験の条件

原水	カオリン : 20mg/l PAC : 20mg/l pH : 6.8(通常時) 5.5, 8.0(変動時)
ろ層	ろ材径 : 0.61mm 均等係数 : 1.39 ろ層深さ : 6cm
ろ過	ろ速 : 120m/d(通常時) 150m/d(変動時) ろ過時間 : 6時間
蛍光ビーズ	直径 : 6μm 注入数 : 101.7±5.0個
変動時刻	ろ過2~2.5, 3~3.5, 4~4.5時間

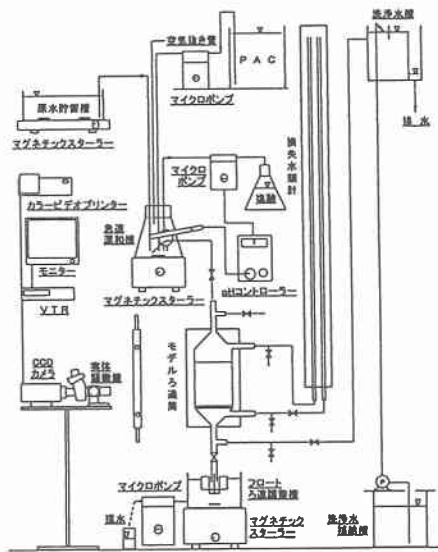


図4 小型直接ろ過装置

着した濁質を攪拌によって完全に剥離させた。このようにして得た剥離懸濁水とろ過運転中に採水したろ過水については、希薄塩酸溶液をかけながら孔径 $1\ \mu\text{m}$ のメンブレンフィルター上で吸引ろ過した後、フィルター上に残留した蛍光ビーズ数を蛍光顕微鏡下で測定した。こうした方法による蛍光ビーズの回収率は 88~96% が得られ、蛍光ビーズのろ層内抑留・流出挙動の解析方法としては適切であったと考えている。

3-2 通常ろ過の場合……図 4 は、6 時間連続の定速ろ過におけるろ過水濁度と損失水頭の経時変化を示している。同図で認められる初期漏出期（ろ過開始から 1 時間）内のろ過 15 分後、澄清期（1 時間から 3 時間 30 分）内のろ過 2、3 時間後、および終期漏出期（3 時間 30 分以降）内のろ過 5 時間後に蛍光ビーズを打ち込み、ビーズのろ層内抑留・流出挙動を実験的に調べてみた。その結果を図 5 と表 3 に掲げる。

注入時間ごとの蛍光ビーズのろ層内抑留分布を示す図 5 によると、初期漏出期に打ち込んだ蛍光ビーズは最も深層抑留され、ろ過水への流出数が最大となった。特に、ろ層上部 2 cm 内の抑留ビーズ数は、澄清期より 43~46% も少ない。これは、ろ層の熟成が十分でないためと考えられ、ろ過開始に先立ってろ材表面の電位調整が重要であることを示唆している。また、終期漏出期には、ろ層内の濁質抑留能力が低下するため、表層から運び込まれたビーズがよりろ層下部へ移行し、ろ層から流出し易くなっていると考えられる。したがって、ろ層上部 2 cm 内の抑留ビーズ数は、澄清期よりも 12~17% 少ない。

また、表 3 で見られるように、いずれの場合にも蛍光ビーズの打ち込み直後におけるビーズの流出数が多く、その数は、流出濁度にほぼ比例している。それゆえ、ろ層に流入したクリプトスポリジウムなどの原虫がろ過水に流出する可能性は初期漏出期が最も高く、終期漏出期、澄清期の順に低くなる。実ろ過池の運転において終期漏出は殆ど考えられないので、通常の定速ろ過では、初期漏出期に対する対策を十分に考えておくことが必要であろう。さらに、蛍光ビーズの流出は、打ち込み後、短時間のうちにほぼ終息するが、単発的なビーズの流出はその後においても認められた。これは、抑留ブロックの水流せん断力による剥離に随伴して蛍光ビーズが流出したものと考えられる。こうした間欠的な粒子の流出は、今回採用したろ層厚さが 6 cm と薄かったことが原因と考えられるが、避けることができない定速ろ過の弱点と考えられる。

3-3 原水 pH またはろ速に変動がある場合……図 6 は、3 時間の通常の定速ろ過を行った後、30 分間、原水 pH を 6.8 から 5.5 または 8.0 に、またはろ速を 120m/d から 150m/d (ろ速上昇率 25%) に変動させた場合のろ過水濁度と損失水頭の経時変化を示している。

同図(a)、(b)から、pH の変動に伴うろ過水濁度の動きを見ると、変動直前よりも pH5.5 への変動時に最

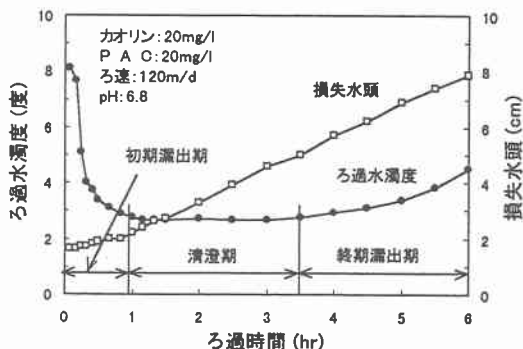


図 4 ろ過水濁度および損失水頭の経時変化

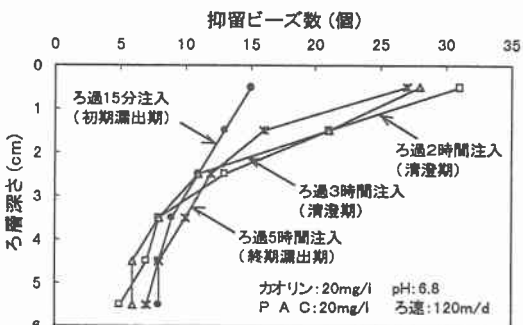


図 5 蛍光ビーズのろ層内抑留量分布

表 3 流出ビーズ数の経時変化

ろ過時間 (hr)	蛍光ビーズ注入時間			
	15min	2hr	3hr	5hr
0.0~0.5	20	—	—	—
0.5~1.0	3	—	—	—
1.0~1.5	2	—	—	—
1.5~2.0	1	—	—	—
2.0~2.5	0	6	—	—
2.5~3.0	1	1	—	—
3.0~3.5	1	1	6	—
3.5~4.0	0	0	1	—
4.0~4.5	0	2	1	—
4.5~5.0	0	1	0	—
5.0~5.5	1	0	1	9
5.5~6.0	0	0	0	4
合計	29	11	9	13

大で4.0度、平均で3.3度、pH8.0への変動時に最大で1.8度、平均で0.8度もろ過濁度が上昇している。このような原水pHの変動に伴うろ層の挙動については、既に指摘されているように、酸性側へ変動した場合には、主として抑留物質が酸性水と接触して溶解剥離⁵⁾すること、また、アルカリ性側へ変動した場合には、主として供給ブロックの体積増加に起因⁶⁾して流出することが考えられる。また、これらの傾向は、変動時間帯を変えた場合にも同様に認められた。

同図(c)から、ろ速を上昇させた場合を見ると、ろ層内の水流せん断力の増加に伴って抑留濁質が剥離・流出し、変動後5分でろ過水濁度がピークの、5.1度にまで上昇している。その10分後には、ろ過水濁度が3.1度にまで低下し、ろ速変動が終了するまでは2.9から3.3度の間を推移していた。このような動きは変動時間帯を変えた場合にも認められたが、ろ過水濁度のピーク値は、ろ速変動開始時のろ層内濁質残留量と強い相関があることは既に知られている。

以上の実験においては、蛍光ビーズをろ過1時間後に注入していた。一連の実験で、得られた蛍光ビーズの抑留量分布と蛍光ビーズの流出数の動きを図7～9、表4～6に掲げた。これらの図表から、それぞれの変動における蛍光ビーズの抑留・流出挙動は、以下に述べる通りである。

(1) 酸性側へ変動させた場合……図7から、蛍光ビーズのろ層内抑留分布に関しては、酸性側に変動させると、ろ層上部2cmで9～21%減少し、それ以下の部分で11～14%増加している。また、表4から、抑留濁質の溶解剥離に伴って蛍光ビーズの流出数が増加する様子が認められる。特に、ビーズの流出時間がpH変動の時間帯だけでなく、pHを6.8に戻した後も2時間程度継続している様子が認められる。したがって、ろ過4時間から30分間pH変動させた場合

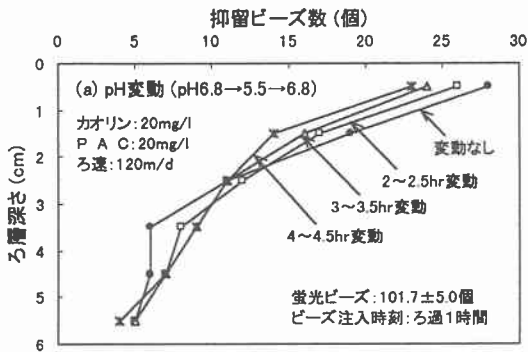


図7 蛍光ビーズのろ層内抑留分布

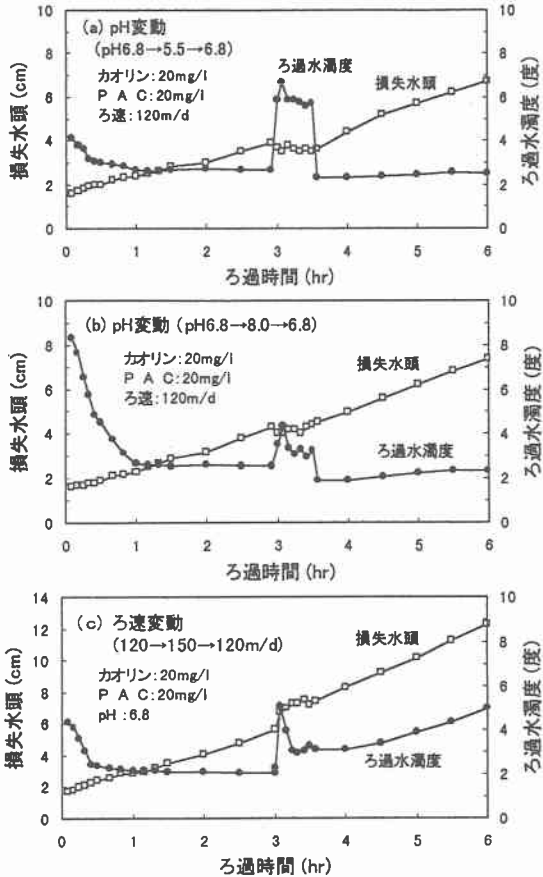


図6 変動に伴うろ過水濁度と損失水頭の変化 (ろ過3～3.5時間に変動がある場合)

表4 流出ビーズ数の経時変化

(pH変動(pH6.8→5.5→6.8)の場合)

ろ過時間 (hr)	pH変動時間			
	変動なし	2~2.5hr	3~3.5hr	4~4.5hr
0.0~0.5	—	—	—	—
0.5~1.0	—	—	—	—
1.0~1.5	13	11	11	14
1.5~2.0	1	1	1	2
2.0~2.5	1	* 3	0	0
2.5~3.0	0	1	0	1
3.0~3.5	0	1	* 2	1
3.5~4.0	0	2	3	0
4.0~4.5	1	1	2	* 3
4.5~5.0	0	0	2	2
5.0~5.5	2	0	1	2
5.5~6.0	0	1	0	2
合計	18	21	22	27

注) *は変動時間帯、灰色部分はビーズ流出時間帯を示す。

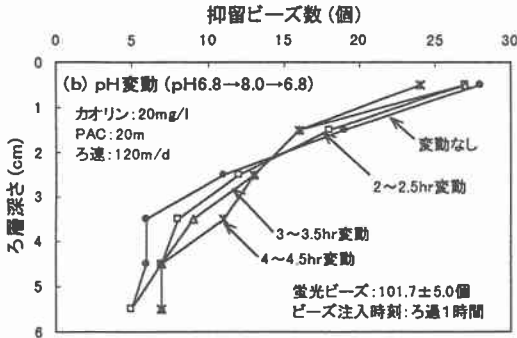


図8 蛍光ビーズのろ層内抑留分布

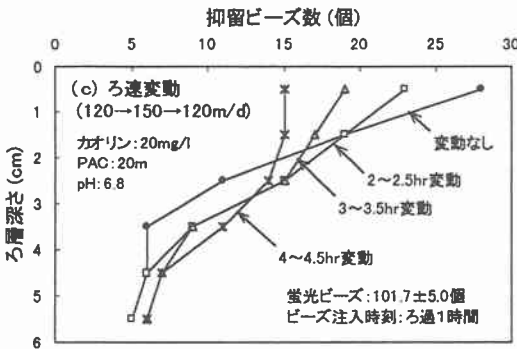


図9 蛍光ビーズのろ層内抑留分布

表5 流出ビーズ数の経時変化
(pH変動(pH6.8→8.0→6.8)の場合)

ろ過時間 (hr)	pH変動時間			
	変動なし	2~2.5hr	3~3.5hr	4~4.5hr
0.0~0.5	—	—	—	—
0.5~1.0	—	—	—	—
1.0~1.5	13	11	13	12
1.5~2.0	1	0	1	1
2.0~2.5	1	* 1	1	1
2.5~3.0	0	0	0	0
3.0~3.5	0	1	* 1	0
3.5~4.0	0	1	1	1
4.0~4.5	1	0	0	* 0
4.5~5.0	0	0	0	1
5.0~5.5	2	1	1	0
5.5~6.0	0	0	1	0
合計	18	15	19	16

注) *は変動時間帯、灰色部分はビーズ流出時間帯を示す。

表6 流出ビーズ数の経時変化

(ろ速変動(120→150→120m/d)の場合)

ろ過時間 (hr)	pH変動時間			
	変動なし	2~2.5hr	3~3.5hr	4~4.5hr
0.0~0.5	—	—	—	—
0.5~1.0	—	—	—	—
1.0~1.5	13	13	14	12
1.5~2.0	1	0	1	2
2.0~2.5	1	* 1	0	1
2.5~3.0	0	2	1	0
3.0~3.5	0	1	* 2	0
3.5~4.0	0	1	3	1
4.0~4.5	1	0	1	* 6
4.5~5.0	0	0	0	2
5.0~5.5	2	0	1	1
5.5~6.0	0	1	0	0
合計	18	19	23	25

注) *は変動時間帯、灰色部分はビーズ流出時間帯を示す。

には、蛍光ビーズの流出はまだ続いていると考えられる。

(2) アルカリ側へ変動させた場合……図8でろ層3~6cmの蛍光ビーズ抑留数を見ると、酸性側へのpH変動(図7参照)時よりも平均して12%多かった。アルカリ性側のpHにおいては架状なフロックが形成されてろ層に供給されるフロック量が増加するが、これに伴って、表層部で抑留されていたフロックの一部が剥離され、それらが下層で再捕捉されたものと考えられる。その結果、表5でも認められるように、蛍光ビーズの流出数は、酸性側への変動時より85%も少なくなった。しかしながら、ろ層が60cm厚さの場合には、原水pHをアルカリ性側に変動させても、架状なフロックが大量に抑留される状態が認められただけで、ろ過水濁度は変化しなかった⁵⁾。今回は、厚さが薄いのために、多量のフロックを抑留する余地がないため、僅かながら、ろ過水濁度や蛍光ビーズ流出数の上昇につながったものと考えられる。

(3) ろ速が短時間上昇した場合……図9から、ろ速増加に伴って、また、ろ速変動を加える時期が遅くなるほど、濁質と同様に蛍光ビーズも深層抑留される様子が認められる。しかしながら、原水pH変動時とは異なり、ろ速変動時には抑留濁質が多いろ層上部3cm間での濁質の移動が多く認められる。また、表6から、変動後における蛍光ビーズの流出は、酸性側へのpH変動の場合と同様に、変動時間中だけではなく変動後においても蛍光ビーズが流出している。その時間は90~120分と推測される。このように、ろ速変動によるビーズ流出時間が長引くのは、上層部で剥離したフロックに取り込まれていたビーズが下層部で不安定な状態で抑留されてになっていたためと考えられる。

(1)~(3)より、ろ過を通常の定速ろ過状態から原水pHやろ速変動の状態にすると、流出数に差異はあるものの、蛍光ビーズの流出が認められたことが明らかになった。このことは、実ろ過池で一旦クリプトスポリジウムが抑留されても、ろ過条件が変動すれば、その一部が抑留濁質とともにろ過水中に流出することを

示唆している。それゆえ、クリプトスポリジウムのろ過流出を抑制するためには、ろ過池運転条件の変更をできる限り避けるとともに、初期漏出を抑制する具体的な手法を早急に確立することが重要と考えられる。

4. ま と め

今回の実験的研究によって、次の知見が得られた。

- (1) カオリンと蛍光ビーズが共存する試料を PAC で凝集処理した場合、沈殿上澄水中の蛍光ビーズ数は、上澄水濁度と同様に、pH6.4~7.2 の中性域で最低になった。また、上澄水濁度と残留蛍光ビーズ数との間には、非常に高い相関が認められた。
- (2) 通常の定速ろ過で蛍光ビーズを注入した場合、注入直後を除けば、蛍光ビーズの流出数は初期漏出期に最も多く、終期漏出期、清澄期の順で減少する。初期漏出期のビーズ流出を抑えるためには、ろ材表面の改善が有効と考えられる。
- (3) 通常の定速ろ過の状態から原水 pH やろ速を変動させた場合、ろ層内の抑留濁質の動きに随伴して、蛍光ビーズのろ層内抑留分布の変化が起こるとともに、蛍光ビーズも流出することが確認された。
- (4) 急速ろ過法によってクリプトスポリジウムを高効率で分離するためには、まず第一に、最適凝集 pH 領域内で凝集沈殿を行うこと、また、ろ過途中における原水 pH 酸性化やろ速上昇を避けることが重要と考えられる。さらに、ろ層が未熟なろ過初期の原虫流出は避け難いので、ろ過に先行してろ材表面を改善する技術の開発が必須と考えられる。

5. 謝 辞

実験に協力いただいた北見工業大学土木開発工学科上・下水道工学研究室の卒論生、浅香博則および川和の両君に深く感謝する。

【 文 献 】

- 1) Y. Magara & M. Kaneko, et al. : Nationwide Survey of Cryptosporidium and Giardia, 11th IWSA-ASPAC Regional Conference, pp.237-242 (1998.11)
- 2) 平田 強・橋本 温 他 : クリプトスポリジウム汚染と水道、水道協会雑誌、第 735 号、pp.2-10 (1995.12.)
- 3) 間柄 泰基 : クリプトスポリジウムの制御と管理を考える、北海道大学衛生工学会 第 5 回衛生工学シンポジウム論文集、pp.305-308 (1997.11.)
- 4) 海老江邦雄・土井克哉 他 : 原虫のモデル微粒子を用いた凝集および砂ろ過の基礎的検討 - モデル粒子としての蛍光ビーズの凝集特性 -、土木学会北海道支部論文報告集 第 54 号(B)、pp.644-649 (1998.2.)
- 5) 海老江邦雄・玉川幸慎 他 : 原水の pH 変動と砂層内抑留濁質の挙動、土木学会北海道支部論文報告集 第 54 号(B)、pp.650-655 (1998.2.)
- 6) 海老江邦雄・土井克哉 他 : カオリンと共存する原虫モデル粒子の凝集および砂ろ過、土木学会第 53 回年次学術講演会概要集 第 7 部、pp.248-249 (1998.10.)
- 7) K. J. Ives & J. Gregory, et al. : A Microsphere in Water : Cryptosporidium parvum, 6th World Filtration Congress, pp.241-231 (1993)
- 8) 岡部 聡・安田岳雄 他 : 混合培養系生物膜内の懸濁粒子の挙動に関する基礎的研究、環境工学研究論文集、第 33 巻、pp.103-114 (1996)
- 9) J. E. Ongerth & J. P. Pecoraro : Removing Cryptosporidium Using Multimedia Filters, Jour. of AWWA, Vol.87, No.12, pp.83-89 (1995.12.)