

国立公衆衛生院 正 伊藤雅喜
北海道大学工学部 正 丹保憲仁 小西俊久

1. はじめに

水中に含まれる生物難分解性有機物(フミン質)は土壤からの流出や下水処理水中に含まれて水系に入込む有機成分であり、水道原水中に普遍的に存在するものである。従って、浄水処理においてフェノールや農薬等の微量有害成分を活性炭吸着で処理しようとする場合には、フミン質存在下での挙動を考えなければならない。本研究では泥炭地水中に含まれるフミン質と微量有害成分としてのフェノールの共存を考え、実際の水処理で対応しなければならないような濃度レベルで実験を行い、その吸着性を調べた。

2. 実験方法

2-1 活性炭及び試料水

活性炭はFiltrasorb-400を粉碎し、粒径0.125~0.149mmのものを用いた。

生物難分解性有機物を含む試料水として泥炭地水を用いた。泥炭地水は予め凝集・沈殿処理し吸着を阻害する高分子の成分を除いておく。

フェノールは以前より多くの研究で用いられてきたが、その多くの濃度レベルは数十~数百mg/lのオーダーであった。本研究では実際の水道原水中に混入する状態のフェノールを考え 0.1~0.5 mg/lのフェノール濃度で実験を行った。

2-2 実験の概要

実験はミニカラム固定層を用いて行い、破過曲線より平衡吸着量、吸着速度を求めた。カラムは内径8mmのガラス管を用い、空塔速度 10cm/min, 活性炭充填量 75mg, 充填密度 0.336g/cm³の条件で実験を行った。原水タンクを恒温槽内に設置し実験温度を20°Cに保った。泥炭地水の濃度は紫外部260nmの吸光度(E₂₆₀)を5cmセルを用いて測定しフミン質の指標とした。

3. 吸着等温線

吸着等温線は破過曲線と流入濃度の間を積分して求めた。図-1にフミン質濃度をバラメータとしたフェノールの吸着等温線、図-2にフェノール濃度をバラメータとしたフミン質の吸着等温線を示す。単成分の吸着等温線は両成分ともLangmuir型吸着等温線で表わすことができる。そこでLangmuir型完全競合吸着を考えて求めた吸着等温線が図-1, 2の点線である。フェノールはフミン質の影響を完全競合以上に受け、フミン質はフェノールの影響を殆ど受けていない。これはフミン質のほうがフェノールより分子径が大きくフェノールの利用可能な細孔を閉塞させることと、フェノールとフミン質の濃度差による細孔表面積の利用率の違いによるものと考えられる。そこで本論ではLangmuir型吸着等温式をもとに次式で吸着等温線を表わすことを試みた。

$$q = \alpha q_m^* \beta K^* C / (1 + \beta K^* C)$$

ここで、q : 吸着量[mg/g], q^{*} : 单成分の飽和吸着量[mg/g], K^{*} : 单成分のLangmuir定数, C : 濃度 [mg/l], αは競合による飽和吸着量の低下を表わす係数、βはLangmuir定数の変化を表わす係数で共存成分の濃度の関数になる。α、βは実験により求めた。得られた式と結果を図-1, 2の実線で示す。

$$q_p = \frac{40.3\alpha_p \times 6.78\beta_p \cdot C_p}{1 + 6.78\beta_p \cdot C_p}$$

$$q_H = \frac{19.7\alpha_H \times 5.71\beta_H \cdot C_H}{1 + 5.71\beta_H \cdot C_H}$$

$$\alpha_p = 0.645 + \frac{1}{67.5C_H + 2.82}$$

$$\alpha_H = 1.0$$

$$\beta_H = 1.0$$

$$\beta_p = 1.0 - 0.904C_H$$

添字 p, H はそれぞれフェノール、フミン質を表す。

4. 破過曲線の予測

吸着の動力学モデルは湯浅・丹保による液膜表面拡散モデル¹⁾を二成分系に適用した。フェノールの境膜物質移動係数 k_f は分子拡散係数と J_d 因子の関係式²⁾より求めた。フミン質の k_f は分子量が確定できないため計算では求められないが、回分式実験で求めた値がフェノールの値と大きく違わないため同程度のオーダーであると考えた。またフェノールの表面拡散係数 D_s は湯浅・丹保の値をもとに、フミン質は文献³⁾の値をもとに k_f , D_s を変化させ、破過曲線との一致を試みた。この結果フミン質については $D_{s,H}=2.5 \times 10^{-11} [\text{cm}^2/\text{sec}]$ 、 $k_{f,H}=4.5 \times 10^{-3} [\text{cm/sec}]$ となり、回分式での拡散係数と同程度の結果が得られた。一方、フェノールは湯浅・丹保によって求められた拡散係数では表せず(図-3中の点線)、 $D_{s,P}=2.0 \times 10^{-10} [\text{cm}^2/\text{sec}]$ 、 $k_{f,P}=8.0 \times 10^{-3} [\text{cm/sec}]$ を用いて破過曲線を表すことができた(図-3, 4)。この拡散係数の減少は実験を行ったフェノール濃度が、従来行われていた濃度レベルの数百~数千分の一であることから、吸着質の濃度、吸着量の影響を受けているものと思われる。以上より得られた境膜物質移動係数と表面拡散係数を用いて実際のプラントでの破過曲

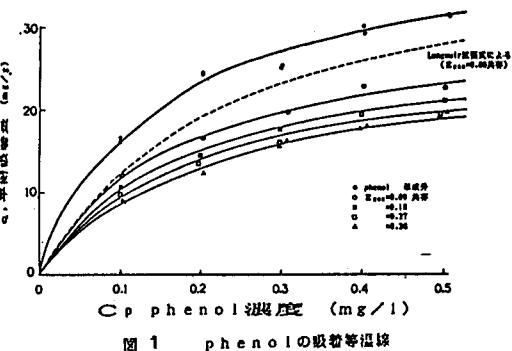


図 1 phenol の吸着等温線

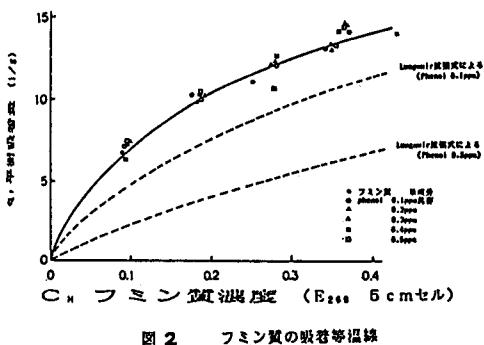


図 2 フミン質の吸着等温線

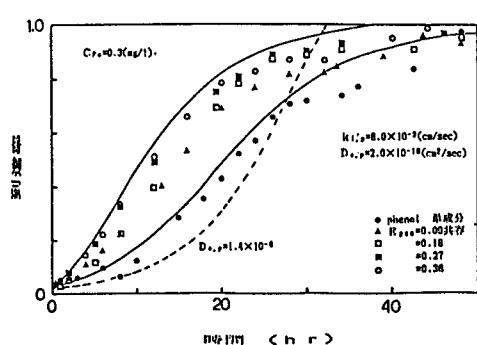


図 3 phenol 0.3ppm 時間変化とシミュレーション

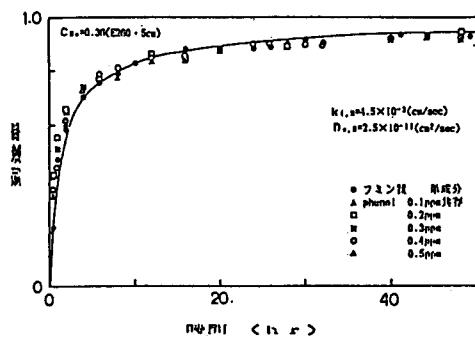


図 4 フミン質 0.3ppm 時間変化とシミュレーション

線を予測したのが図-5である。フェノールはフミン質の共存により破過開始時間が4割程度短くなっているが、フミン質存在下でもフェノール除去を目的とする吸着処理は約3ヶ月間は継続可能であることを示している。

参考文献

- 1)湯浅・丹保、水協誌、第533号
- 2)湯浅・丹保、水協誌、第534号
- 3)丹保・亀井・伊藤、土木学会 第40回年講

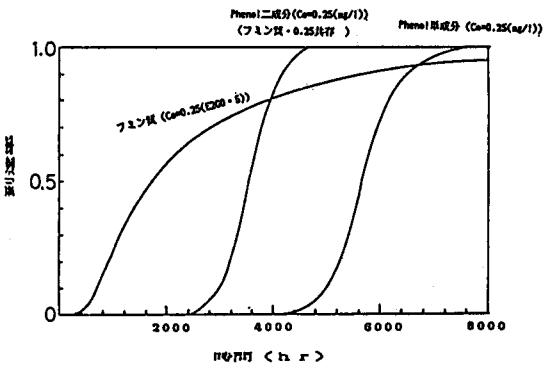


図 5 層厚 1m でのPhenol, フミン質の破過曲線の予測