

II-413

し尿処理水のフェントン酸化処理に関する研究

○ 一宮市役所 正会員 川島 輝幸
岐阜大学工学部 正会員 湯浅 晶

1. 研究目的

活性汚泥法等により生物学的に処理されたし尿処理水中に残存する難生物分解性の有機物をさらに除去する高度処理として、凝集沈殿処理・活性炭吸着処理・化学的酸化処理等が行われている。本研究では硫酸第1鉄と過酸化水素を用いたフェントン酸化処理を行い、色度とTOC(全有機炭素量)の除去性から見た酸化効果と凝集効果を比較検討することを目的とする。

2. フェントン酸化処理について

第1鉄塩と過酸化水素の混合物はフェントン試薬と呼ばれ、次の反応を起こす。

$$\text{Fe}^{2+} + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{Fe}^{3+} + \text{OH}^- + \cdot\text{OH}$$

フェントン酸化処理では、この反応で生成される水酸基ラジカル $\cdot\text{OH}$ による強い酸化効果と、同時に生成される Fe^{3+} による凝集効果が得られる。

3. 実験方法

し尿処理水〔秋田県五城目町クリーンセンターで1990年11月22日採水、高負荷活性汚泥法+UF膜(分画分子数20000)汙過法で処理;TOC178.9mg/L, 色度901度)を実験試料として、次の実験を行った。

実験① 硫酸第1鉄と過酸化水素添加量を固定して、pH1.5~8.0の範囲でフェントン酸化処理(Fe^{2+} 1000mg/L, H_2O_2 4000mg/L)を行った。また凝集作用の効果と過酸化水素のみの酸化効果と比較するために、同量の薬品添加量で硫酸第1鉄による凝集処理(Fe^{2+} 1000mg/L)、硫酸第2鉄による凝集処理(Fe^{3+} 1000mg/L)、過酸化水素による酸化処理(H_2O_2 4000mg/L)を行った。

実験② pH4.0に固定して、硫酸第1鉄と過酸化水素の添加量の組合せを48通りに変化させてフェントン酸化処理(Fe^{2+} 50, 100, 200, 400, 600, 800, 1000, 2000mg/L, H_2O_2 500, 1000, 2000, 3000, 4000, 5000mg/L)を行い、処理効果に及ぼす薬品添加量の影響について検討した。

処理実験は、試料水100mLに対して各薬品を添加後、1N-NaOH及び1N- H_2SO_4 でpHを調整してから、マグネチックスターラーを用いて急速攪拌(200rpm)10分、緩速攪拌(75rpm)20分、静置30分で行った。静置30分後直ちに汚泥発生量を観察し、上澄液のpHを測定した後、上澄み液を0.3 μm のガラスフィルターで汉過して汉液のTOCと色度(波長390nmにおける吸光度から換算)を測定した。

4. 実験結果と考察

実験①の結果を図1と図2に示す。フェントン酸化処理によるTOC除去率はpH3付近で最大であり、pH3からpH8にかけてはほぼ直線的に除去率85%から45%へと低下し、またpH3以下の酸性側でもpHの低下につれて処理性は急激に低下する(図1)。フェントン酸化処理による色度の処理性はpH4~7の範囲で95~98%以上の高い除去率を示すが、pH3.5以下の酸性側では除去率が低下する(図2)。これらのことからTOCと色度の両方の除去率を考慮すると、フェントン酸化処理の最適pH範囲はpH3.5~4.5であることが示される。

フェントン試薬の構成薬品それぞれによる単独処理(過酸化水素による酸化処理及び第1鉄塩による凝集処理)におけるTOCと色度の処理性はフェントン酸化処理に比べて著しく劣るのに比べて、第2鉄塩による凝集処理ではpH4~pH8の範囲でのTOC除去率はフェントン酸化処理に比べてわずかに下回る程度であり、これらのことはフェントン酸化処理によるTOC除去の大部分は Fe^{3+} の水酸化物(アコ錯体)による凝集作用の効果によるものであることを示している。ただしpH4以下の酸性側では第2鉄による凝集除去率が低下することと、図3に示すようにpH3以下では過酸化水素の消費が激しいことから、酸化作用によるTOC除去効果の役割も高くなることが示される。また第2鉄による色度の除去率はpH3~5の範囲ではフェントン酸化処理を若

干下回る程度であり、フェントン酸化処理における Fe^{3+} の凝集作用の効果が非常に大きいことを示している（図2）。しかし、pH5からpH8へと高くなるにしたがい Fe^{3+} 凝集作用による色度除去率は次第に低下していくにつれて酸化作用の役割が高まり、凝集作用で除去されずに残留する着色有機成分の大部分を水酸基ラジカル（ $\cdot OH$ ）の作用により脱色することが示される。なおpH4以下では凝集に有効に働かずに残留する溶解性の Fe^{3+} 自体の着色（褐色）も加わるためにフェントン酸化処理と第2鉄塩凝集処理による色度の除去率はいずれもかなり低下するが、pH2.5以下のフェントン酸化処理では酸化作用による有機物の脱色作用の役割が大きいことが示される。

図中記号（図1～3）

- フェントン酸化処理（ Fe^{2+} 1000mg/L, H_2O_2 4000mg/L）
- ◇ 硫酸第1鉄による凝集処理（ Fe^{2+} 1000mg/L）
- △ 硫酸第2鉄による凝集処理（ Fe^{3+} 1000mg/L）
- ▽ 過酸化水素による酸化処理（ H_2O_2 4000mg/L）

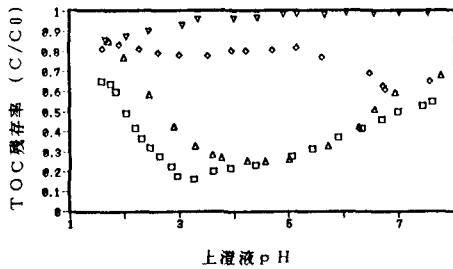


図1 上澄液 pH と TOC 残存率の関係

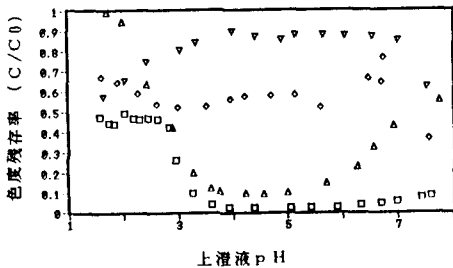


図2 上澄液 pH と色度残存率の関係

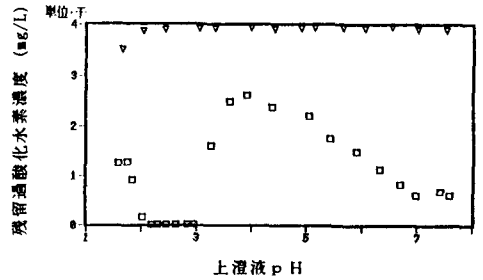


図3 上澄液 pH と残留過酸化水素濃度の関係

実験②の結果を図4と図5に示す。過酸化水素が500mg/L以上添加されていけばTOC及び色度の除去性に及ぼす H_2O_2 添加量の影響はほとんどなく、第1鉄塩の添加量が増加するにつれてTOC及び色度の除去率は増加するが、 Fe^{2+} 800mg/Lで色度の除去限界（95～98%）にはほぼ達し、また Fe^{2+} 1000mg/LでTOCの除去限界（80～85%）にはほぼ達する。しかし、 Fe^{2+} を Fe^{3+} に酸化するのに十分な量の H_2O_2 が添加されていない場合には、フェントン酸化処理によるTOC及び色度除去能力が最大限に発揮されないことが示される。

図中記号（図4、5）

- フェントン酸化処理（ H_2O_2 50mg/L）
- ＋ フェントン酸化処理（ H_2O_2 100mg/L）
- △ フェントン酸化処理（ H_2O_2 200mg/L）
- ◇ フェントン酸化処理（ H_2O_2 500mg/L）
- × フェントン酸化処理（ H_2O_2 1000mg/L）
- ▽ フェントン酸化処理（ H_2O_2 2000mg/L）

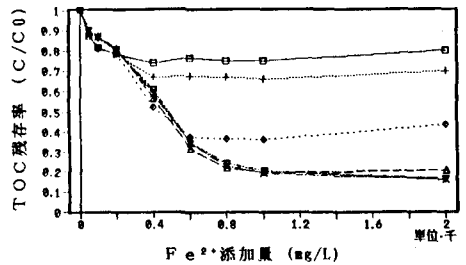


図4 Fe^{2+} 添加量と TOC 残存率の関係

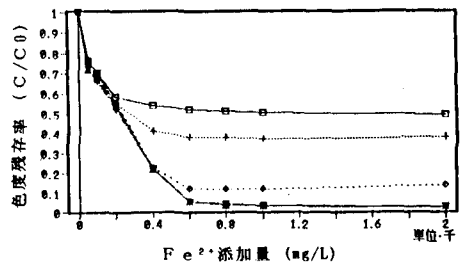


図5 Fe^{2+} 添加量と色度残存率の関係