

(5) 低圧逆浸透法における溶質透過特性と焼却灰模擬浸出液の処理

The characteristics of a solute permeation and treatment of  
artificial incineration ash leachate by low pressure reverse osmosis

尾崎 博明\* 金 時俊\* 寺島 泰\* 山田 佳子\*\*  
Hiroaki OZAKI\*, Shijun GHIM\*, Yutaka TERASHIMA\* and Yoshiko YAMADA\*\*

**Abstract :** Low pressure reverse osmosis (LPRO) is an effective wastewater treatment process providing high permeation of water and high rejection of solutes. The LPRO experiments were made with inorganic solutions of  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  and  $\text{Cl}^-$  and organic matters in different concentrations and pH levels. The experimental results showed that the solute permeability in LPRO membrane depends on the charge of membrane and ions in many cases. The divalent cations provided lower rejection of coexistent cations in mixed solutions system than that of the cation in single solution system. The LPRO was very effective in removing inorganic matters and organic matters in artificial incineration ash leachate. The membrane permeations of inorganic ions in the leachate were similar to those in mixed solutions system.

**Keywords :** Low pressure reverse osmosis (LPRO), inorganic matters, organic matters, artificial incineration ash leachate

## 1. はじめに

一般廃棄物は全国的に焼却処理が進められ、その割合は1991年度には72.8%<sup>1)</sup>に達している。焼却残渣としての焼却灰は不燃ゴミ等とともに埋立処分され、埋立廃棄物は質的に従来からの生ゴミ主体から焼却灰主体に移行している。これにともない、埋立地浸出水の質も以前には高濃度に含まれていた有機物や窒素化合物が低減し、一方、焼却灰等由來の難分解性有機物や塩類濃度が増加している。著者ら<sup>2)</sup>は、この難分解性有機物が塩素消毒にともなう有機ハロゲン生体の前駆物質になりうることを報告している。また、同難分解性有機物や埋立地に流入する多種多様な化学物質に起因すると推定される浸出水の変異原性を示す報告もある<sup>3)</sup>。浸出水中の塩類についてはすでに処理施設への影響や塩害の発生が指摘されている。浸出水の処理には、従来、生物処理と凝集、砂ろ過、活性炭処理などの物理化学的処理との組み合わせにより行われているが<sup>4)-7)</sup>、この方法では上記の難分解性物質や塩類の除去についてはきわめて不十分であり、最近ではこれらの物質に対応できるよう、電気透析法の併用<sup>8)</sup>や膜分離法の利用などの処理システムが検討されている。

膜分離法は、精密ろ過膜、限外ろ過膜、逆浸透膜や気体分離膜など様々な分離機能を有する種々の膜が開発されるにともない、し尿処理の分野では既に実用化がなされ、水処理分野においても、産業廃水処理、浄水処理などのいくつかの分野で実用化が進められている。埋立地浸出水については、すでにドイツにおいて「ばっ氣」→「pH調整」→「限外ろ過膜」→「逆浸透膜」の処理フローで実処理が行われており<sup>9)</sup>、わが国でも検討段階にある。伊藤ら<sup>10)</sup>は、凝集による前処理と限外ろ過と逆浸透法と組み合わせて浸出水処理を行い、有機物、 $\text{NH}_4^+$ -N、塩分などの高い除去率を得ている。また、著者らは、逆浸透膜、低圧逆浸透膜、ルーズ逆浸透膜により浸出水処理を行い、逆浸透膜によれば、各種溶質成分の高率除去が可能であり、また低圧逆浸透膜でも生物処理後に適用すれば良好な処理が可能であることを報告している<sup>11)・12)</sup>。このように、浸出水処理への膜処理法の

\* 京都大学工学部衛生工学科 (Dept. of Environ. & Sanitary Eng. Kyoto University)

\*\* (株) 日立製作所 (HITACHI)

適用は可能性が十分に高いと考えられる。しかしながら、通常の逆浸透膜では高圧での操作が必要であるうえに、膜の強いファウリングが懸念されている。したがって、低圧で水透過性が高く、かつ高い溶質阻止性能を有する低圧逆浸透膜のような膜が利用できればより望ましい。神山<sup>13)</sup>は、アルコールなどの一部の溶質を除き通常の逆浸透膜に近い溶質阻止性能を示す低圧逆浸透膜を開発、実用化し、いくつかの溶質について单一系における高い溶質阻止率を報告している。また、C. Ratanatamskulら<sup>14)</sup>は低圧逆浸透膜による混合陰イオンの阻止性能を調べ、1価イオンより多価イオンの方が阻止率がよく、また操作圧力によって阻止率に差がみられることを報告している。しかし、低圧逆浸透膜は最近急速に開発されてきた膜であり、各種溶質に関する基本的な分離特性についてはあまり検討されていないのが現状である。とくに、单一系での溶質阻止性能に関する知見が多成分における各成分の挙動にどの程度適応されるかについては明らかではない。

このような現状を背景として本研究では、無機性あるいは有機性溶質の单一系における低圧逆浸透膜による溶質分離性能について実験的に検討し、その分離機構について考察した。また、混合系における溶質分離および焼却灰模擬浸出水の処理を行い、单一系で得られた溶質分離に関する知見の適用性について考究した。

## 2. 実験装置と方法

### 2.1 単一系および混合系における溶質分離

#### (1) 用いた膜、実験装置および供試試料

開発されている低圧逆浸透膜には種々あるが、ここでは埋立地浸出水などへの多成分系廃水への適用も考慮して、各種溶質分離性能がほぼ90%以上であり、また透過フラックス（透過水量）が他の膜より大きいことを基準に膜の選択を行い、NTR-729HF膜（日東電工（株）製）を用いることとした。同膜はポリビールアルコールを荷電層とするヒペラジン系の界面重合法により製膜された複合膜であり、Fig. 1に示すスキン層の化学構造を有するとされている。その構造からpH<5ではポリアミンの影響によりカチオン性を有し、pH>5では-COO基によりアニオン性を有すると言われている。したがって、イオン阻止性能は膜の荷電性に大きく影響を受けると予想され、この傾向は、一方でよく用いられるポリアミ

ド系膜にも共通している。なお、NTR-729HF膜の公称の溶質阻止性能は、塩化ナトリウム濃度1500 mg/L、グルコース濃度1500 mg/L、操作圧力1 MPa (10 kgf/cm<sup>2</sup>) の評価条件で阻止率が各々90%以上、95%以上である。Fig. 2に実験に用いた膜分離実験装置（日東電工（株）製、C-10T）を示す。膜モジュールはポンプ加圧の平膜型（有効膜面積：60cm<sup>2</sup>）であり、循環流により濃度分極と膜面汚れを防ぐ薄層流クロスフローろ過方式を採用している。操作圧力はできるだけ低圧力を指向して0.3 MPa (3 kgf/cm<sup>2</sup>) とし、温度は20°C一定にした。なお、溶媒透過フラックスはFig. 3に示すように印加圧力とともに比例した。

試料水の無機成分には、塩化ナトリウム(NaCl)、塩化カリウム(KCl)、塩化カルシウム

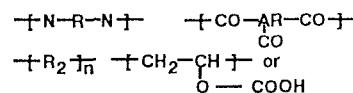


Fig. 1 Chemical structure of skin bed in composite membrane with type NTR - 729HF

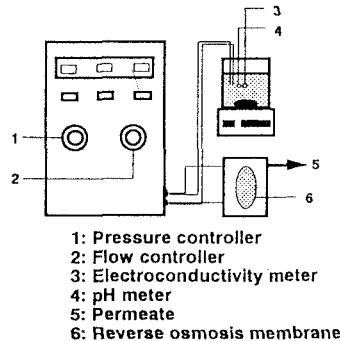


Fig. 2 Schematic diagram of LPRO unit

( $\text{CaCl}_2$ ) および塩化マグネシウム ( $\text{MgCl}_2$ ) を用い、溶液濃度は前三者については  $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  として 100, 200, 500, 1000, 2000, 5000 mg/L とした。また、塩化マグネシウムについては  $\text{Mg}^{2+}$  としてそれぞれ 100, 200, 500, 1000, 2000 mg/L とした。さらにこれら溶液の中から 2 種あるいは 3 種混合し実験に供した。溶液 pH は通常  $7.0 \pm 0.1$  としたが、溶質分離に及ぼす pH 依存性を調べる実験では各溶質濃度を 1000 mg/L とし、pH を  $3.0 \pm 0.1$ 、 $5.0 \pm 0.1$ 、 $7.0 \pm 0.1$  および  $9.0 \pm 0.1$  にそれぞれ調整した。なお、いずれの場合にも溶液 pH は pH コントローラにより制御した。有機成分の試料には、糖類としてグルコース ( $\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6$ : m.w. = 180) および サッカロース ( $\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}$ : m.w. = 342) を、酸類として酢酸 ( $\text{CH}_3\text{COOH}$ : m.w. = 60) および 乳酸 ( $\text{CH}_3\text{CH}(\text{OH})\text{COOH}$ : m.w. = 90) を、アルコール類としてメタノール ( $\text{CH}_3\text{OH}$ : m.w. = 32)、エタノール ( $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ : m.w. = 46)、ベンジルアルコール ( $\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_2\text{OH}$ : m.w. = 108) および フェノール ( $\text{C}_6\text{H}_5\text{OH}$ : m.w. = 94) を用い、それぞれの濃度が TOC として 1000 mg/L となるように溶液を作成し pH を  $3.0 \pm 0.1$ 、 $5.0 \pm 0.1$ 、 $7.0 \pm 0.1$  および  $9.0 \pm 0.1$  に調整して各溶液の膜分離を行った。また、グルコース、酢酸およびフェノールは pH  $7.0 \pm 0.1$  下で各段階に濃度を変化させて同様に膜分離実験を行った。pH 調整には 0.01N 水酸化ナトリウム水溶液と 0.01N 塩酸水溶液を使用した。ナトリウム ( $\text{Na}^+$ )、カリウム ( $\text{K}^+$ )、カルシウム ( $\text{Ca}^{2+}$ ) および マグネシウム ( $\text{Mg}^{2+}$ ) は原子吸光光度計 (NIPPON Jarrell Ash 社製 AA-11 型)、塩素イオンは硝酸銀法、TOC は全有機炭素計 (島津製作所社製 TOC - 5000A)、CODcr と  $\text{NH}_4^+$ -N はオートアナライザー (Technicon 社 II 型)、 $\text{NO}_3^-$ -N はイオンクロマトグラフ (DIONEX 社製)、T-N は TC-TN 計 (住友化学社製 GCT - 12NA 型) により測定を行った。

## (2) 膜処理操作

上記の各種試料溶液 (1L) を Fig. 2 の膜分離実験装置に通水し、透過液を得た。装置は循環型のため、初期には装置内に保持されている水が原液に加わることから、透過液は通水開始 30 分後から採水し 30~60 分、60~90 分、90~120 分のコンポジットサンプルを分析に供することとし、ここでは 90~120 分の透過液の結果を表示した。原液濃度、pH は通水開始 30 分以後に測定し、これを基準として溶質阻止率を計算した。また、1 試料の処理を行う毎に、蒸留水を約 60 分以上流し、さらに 2、3 の試料の処理を行う毎に、膜の性能テストを行って必要に応じて膜の洗浄を行った。

## (3) 膜の性能テストおよび洗浄操作

100 mg/L の塩化ナトリウム溶液約 500 mL を pH  $7.0 \pm 0.2$  に調整して膜処理を行い、膜処理開始 30 分から 60 分までの 30 分間に透過した透過液と原液の電気伝導度から阻止率を求めた。NTR - 729HF 膜の標準的なナトリウム阻止率と上記で求めた阻止率の差が 10 % 以上のときは、pH 3.0~3.2 の塩酸溶液を 120 分以上膜処理する方法により膜の性能が回復するまで膜洗浄を行った。なお、pH 調整のために流入したナトリウムはほとんど無視できる程度であった。

## 2.2 燃却灰模擬浸出液の膜分離

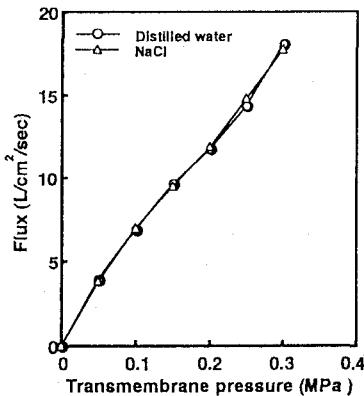


Fig. 3 Comparison of permeate flux to distilled water and NaCl solution by LPRO with type NTR - 729

## (1) 焼却灰模擬浸出液の作成方法

使用した焼却灰は、混合収集された一般廃棄物を焼却しているK市N清掃工場の灰出しコンベアから採取した焼却残灰（ボトムアッシュ）で、乾燥機内において110°Cで3日間乾燥させた後の開口部9.52 mmのふるいの通過分である。焼却灰模擬浸出液は、産業廃棄物に含まれる金属などの溶出試験方法である「環境庁告示13号」に準じて作成した<sup>15)</sup>。すなわち、焼却灰と溶媒の質量比が1:10になるように、焼却灰100 gに対して蒸留水1 Lを加え、振とう速度200 rpmでジャーテスターを用いて1時間攪拌後、5Cろ紙でろ過したもの焼却灰模擬浸出液とした。この焼却灰模擬浸出液の水質をTable 1に示す。

## (2) 膜分離処理

2.1に示した膜と膜分離装置を用いて、印加圧力0.3 MPaで膜処理を行った。膜処理に供する模擬浸出液は、塩酸と水酸化ナトリウムを用いて、pHを9.0±0.1、7.0±0.1、5.0±0.1および3.0±0.1にそれぞれ調整した。

## 3. 実験結果および考察

### 3.1 単一無機成分系

#### (1) 溶質分離性能の濃度依存性

pHを7.0±0.1に維持しながら、塩化ナトリウムおよび塩化カルシウム水溶液の低圧逆浸透膜による分離実験を行った結果をFig. 4に示す。縦軸には透過液中のイオン濃度をとっている。透過液中のカチオンとアニオンの濃度は高濃度域では近づくが、低濃度域では両者の濃度差が大きくなっていく。

Table 1 The characteristics of artificial incineration ash leachate

Items	Conc. (mg/L)
COD	400
TOC	180
TN	15
Org-N	14.4
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	0.3
NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N	0.075
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	0.19
Alkalinity	600
Na <sup>+</sup>	249
Ca <sup>2+</sup>	74.4
Cl <sup>-</sup>	386
pH	10.5

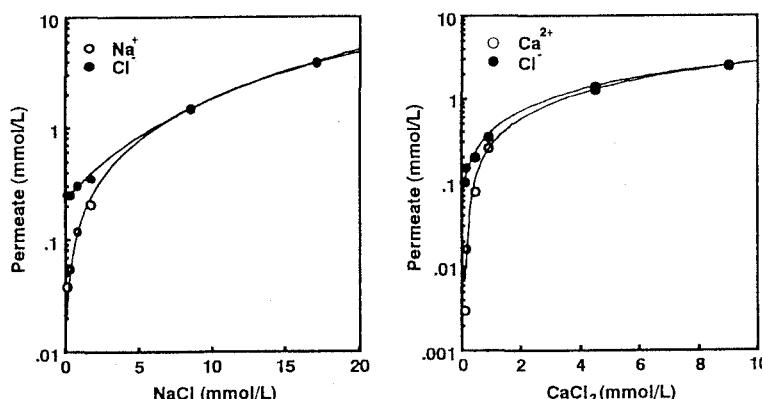


Fig. 4 Comparison of permeate concentration to inorganic compounds solution by LPRO with type NTR-729HF

る。これは、膜中に存在する固定イオンの影響によるDonnan平衡の影響<sup>13)</sup>であり、膜の荷電性は溶質の膜への吸着性や低濃度イオンの阻止性能に大きく影響を与えると考えられる。Fig. 4は膜中に存在する固定イオンの影響により、低濃度ほどカチオンとアニオンの透過性が著しく異なる結果となっている。Fig. 5に単一無機成分系におけるカチオンの溶質分離性能の濃度依存性を示す。Fig. 5において  $\text{Na}^+$  と  $\text{Cl}^-$  には阻止率の差はあまりみられない。 $\text{Ca}^{2+}$  と  $\text{Cl}^-$  の低濃度域では  $\text{Ca}^{2+}$  と  $\text{Cl}^-$  の阻止率に若干の差がみられ、これには  $\text{Ca}^{2+}$  による膜表面汚れの影響が考えられる。また、各イオンの濃度が高くなるにしたがって阻止率が減少している。これは、イオン強度が増加するにしたがって、Donnan平衡によって膜表面の電荷が減少しイオンが透過しやすくなるためと考えられる。一方、阻止率が比較的一定である濃度域の各イオンの透過性については  $\text{Ca}^{2+}$  が最も通過しやすい結果となっている。後述 (Fig. 6(a), Fig. 6(b)) するように、荷電膜におけるイオンの透過性についてはpH依存性が強いことから、これを含めて総合的に論じなければならず、少なくとも逆浸透膜について言われている阻止率の傾向<sup>16)</sup> ( $\text{Mg}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{Na}^+ > \text{K}^+$ ) に単純に従うものではないことを示している。

## (2) 溶質分離性能のpH依存性

塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化カルシウムおよび塩化マグネシウム水溶液のpHを  $3.0 \pm 0.1$ 、 $5.0 \pm 0.1$ 、 $7.0 \pm 0.1$  および  $9.0 \pm 0.1$  にそれぞれ調節し、実験中にはそれぞれのpH値を一定に保ちながら膜処理を行った。各水溶液の濃度は  $1000 \text{ mg/L}$  とした。Fig. 6 (a)に単一無機成分系における1価イオンの溶質分離性能のpH依存性を示す。1価カチオンであるナトリウムとカリウムはpH 5でもっ

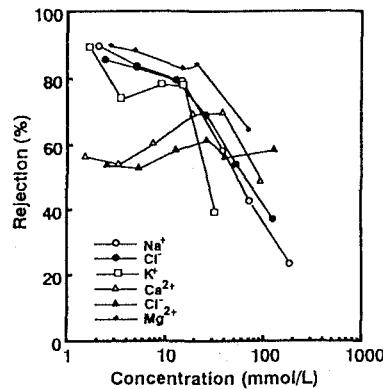


Fig. 5 Comparison of concentration dependency to inorganic compounds solution by LPRO with type NTR-729HF

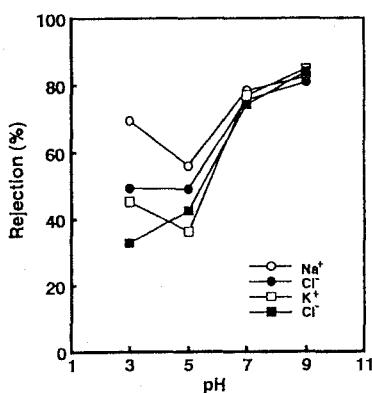


Fig. 6 (a) Comparison of pH dependency to univalent ion by LPRO with type NTR - 729

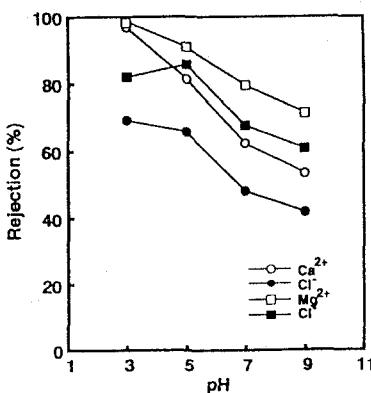
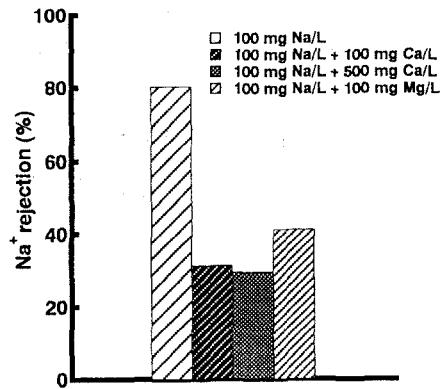


Fig. 6 (b) Comparison of pH dependency to divalent ion by LPRO with type NTR - 729

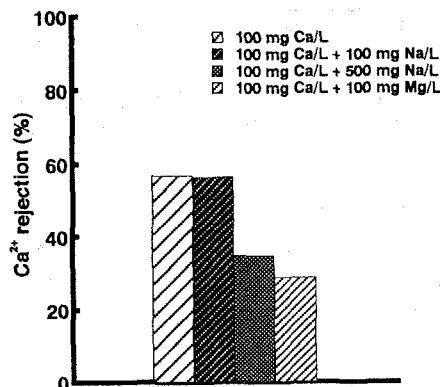
とも阻止率が低く30%から50%、pH 3では40%から70%、pH 7およびpH 9ではその差は小さく80%程度である。前述のようにNTR-729HF膜はpH<5ではカチオン性を有し、pH>5ではアニオン性を有すると言われている。したがってpH<5ではナトリウムおよびカリウムは膜に接近することが妨げられ、阻止率が高くなると考えられる。pH 5のとき阻止率がもっとも低いのはこの膜がpH 5付近で等電点をもち、イオンが膜との相互作用のない状態で透過すると考えられる。一方、pH>5ではナトリウムおよびカリウムが膜に接近しやすい領域であることから阻止率が低下すると予想されるが、それに反した結果となっている。Fig. 6 (b)に単一無機成分系における2価イオンの溶質分離性能のpH依存性を示す。2価カチオンについては1価カチオンとは異なった挙動を示し、pH 3のときに両イオンとも阻止率が高く、pHが高くなるにしたがって阻止率は低くなっている。この傾向は1価イオンと逆であり、イオン性と膜の荷電が影響を与えると考えられる。ただし、カルシウムやマグネシウムなどの2価カチオンは負電荷をもつ膜に吸着あるいは膜表面に強く配位されることが予想される。したがってpH>5での2価カチオンの膜透過については、膜の吸着帯を移動しながら膜を透過する機構や、膜近傍に配位されたものが細孔壁面近くを流れる表面流とともに透過する機構が考えられる。また、2価カチオンの分離実験後に1価カチオンの分離を行った場合、1価カチオンの阻止率が通常より著しく低下することが観察される。この場合は、2価カチオンの膜への吸着による膜電位の低下が推定され、この現象が2価カチオン自身および1価イオンの阻止率の低下を引き起こしている可能性もある。このような傾向は、アミノ基とカルボン酸基の両方を有し、NTR-729HF膜と類似の電気的性質をもつ複合膜（両性荷電膜）でも報告されており<sup>13)</sup>、荷電性、移動度およびイオンの拡散性などの要因も関与していることを示していると考えられる。なお、塩素イオンに対するCa<sup>2+</sup>あるいはMg<sup>2+</sup>の阻止率はpHが高くなるにつれて阻止率が低下し、Na<sup>+</sup>あるいはK<sup>+</sup>の場合とは逆になっている。これは存在する1価イオンおよび2価イオンの電気的バランスの結果と考えられる。Fig. 6 (a), Fig. 6 (b)において得られた結果において電荷バランスが完全にとれているかどうかについては不明な部分もある。ただし、Fig. 6 (a)のpH<5においては、膜がカチオン性に有することによる電気的バランスの影響としてNa<sup>+</sup>よりもCl<sup>-</sup>が多く透過することが考えられる。また、Fig. 6 (b)のpH<5でもCl<sup>-</sup>の阻止率が共存するカチオンより低くなっている。これはカチオンの膜への吸着にともなう膜電位の低下に関係していると推察され、詳細については確定できないものの、この場合はCl<sup>-</sup>の荷電移動力（固定相における荷電を持つイオンの動く速度）が大きいことによっていると考えられる。

### (3) 混合系における溶質分離性能

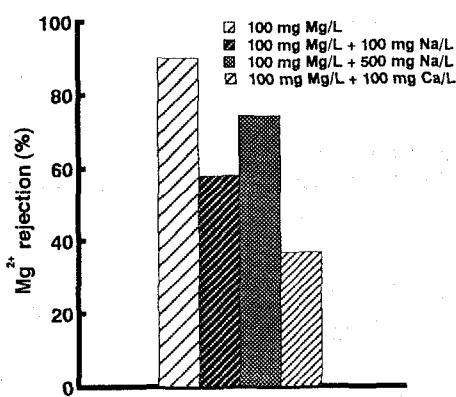
濃度100 mg/Lの塩化ナトリウム溶液に100 mg/Lまたは500 mg/Lの塩化カルシウム溶液あるいは塩化マグネシウム溶液を混合した時のNa<sup>+</sup>阻止率をFig. 7 (a)に示す。また同様に塩化カルシウムに塩化ナトリウム溶液あるいは塩化マグネシウム溶液を混合した時のCa<sup>2+</sup>阻止率をFig. 7 (b)に、塩化マグネシウム溶液に塩化ナトリウム溶液あるいは塩化カルシウム溶液を混合した時のMg<sup>2+</sup>阻止率をFig. 7 (c)に示す。それぞれの図には単一系におけるNa<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>の阻止率も示してある。Fig. 7 (a)より、Na<sup>+</sup>の阻止率は2価イオン共存の影響を強く受け、単独系の場合の阻止率の1/2以下となっている。Fig. 7 (b), Fig. 7 (c)より、2価イオンの阻止率は1価イオンの影響をうけてはいるもののFig. 7 (a)における1価イオンに対する2価イオンの影響ほどではなかった。ただし、Ca<sup>2+</sup>とMg<sup>2+</sup>の共存系では、それぞれの阻止率が単独系の1/2程度となり、いずれの場合でも2価イオンの共存の影響が大きい。以上の挙動には、前項でも記述したように、負に荷電している膜への2価カチオンの吸着、およびそれによる膜電位の低下が関与している可能性がある。なお、Ca<sup>2+</sup>とMg<sup>2+</sup>の阻止率を比較すると全体的にMg<sup>2+</sup>の阻止率の方が高い。Ca<sup>2+</sup>とMg<sup>2+</sup>の移動度を比較するとCa<sup>2+</sup>の方が大きいことからMg<sup>2+</sup>の方が透過し難く、したがって阻止率がカルシウムより高いことが考えられる。



**Fig. 7 (a)** Sodium rejection efficiency to inorganic compounds solution by LPRO with type NTR - 729HF (pH 7.0)



**Fig. 7(b)** Calcium rejection efficiency to inorganic compounds solution by LPRO with type NTR - 729HF (pH 7.0)



**Fig. 7 (c)** Magnesium rejection efficiency to inorganic compounds solution by LPRO with type NTR - 729HF (pH 7.0)

### 3.2 単一有機成分系における溶質分離性能

グルコース、酢酸およびフェノールの阻止率の濃度依存性をFig. 8に示す。グルコースとフェノールの阻止率は濃度にほとんど依存しなかったが、グルコースが93 %以上の阻止率を示したのに対し、フェノールは10 %程度の低い阻止率であった。酢酸は濃度が高くなるにしたがって阻止率が低下し、この傾向は無機イオンの結果と一致した。Fig. 9に有機成分の阻止率のpH依存性を示す。

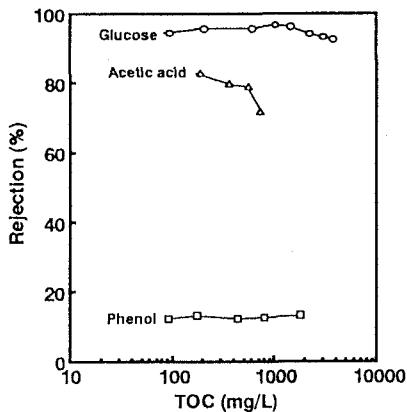


Fig. 8 Concentration dependency to glucose, acetic acid and phenol by LPRO with type NTR-729HF

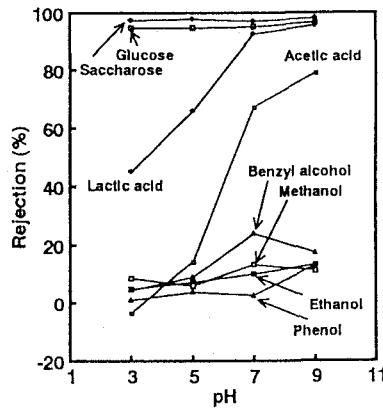


Fig. 9 pH dependency to organic matters by LPRO with type NTR-729HF

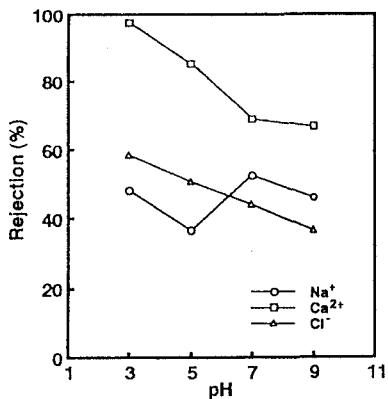


Fig. 10 pH dependency of sodium, calcium and chloride to artificial incineration ash leachate by LPRO with type NTR - 729

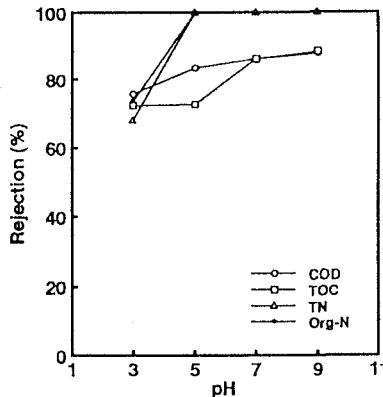


Fig. 11 pH dependency of organic matters to artificial incineration ash leachate by LPRO with type NTR - 729

糖類はpHに関係なく94 %以上の高い阻止率を示している。これは糖類が非解離性で分子量が大きいことによっていると考えられる。酢酸と乳酸はpH 9のときには80~90 %と阻止率が高く、pHの低下とともに阻止率は低下し、pH 3のときには乳酸が45 %、酢酸の阻止率は負の値（膜の透過水の方が供給水よりも高濃度なることを示す）を示している。溶液をアルカリ側に調整したときには両者ともにその解離度が増加し、一方、pH > 5ではこの膜はカルボキシル基によってアニオン性を持つため、両者の阻止率が高くなると考えられる。また、pH < 5では膜はカチオン性を有するが酢酸

或いは乳酸は非解離の状態にあるため膜を透過しやすくなると考えられる。これらの結果は神沢<sup>17)</sup>の逆浸透膜に関する報告と一致している。また、酢酸と乳酸の電離定数はそれぞれ $1.86 \times 10^{-5}$ と $1.38 \times 10^{-4}$ であり、乳酸の方が電離度が高く、分子量も大きいことから酢酸より阻止率が高くなっていると考えられる。アルコール類およびフェノールは全体的に阻止率は低い。通常、未解離分子や低分子量の水溶性溶質はきわめて分離度が低いことが知られており、上記溶質もそれに従う結果となっている。アルコール、フェノールはほとんど中性であるがわずかに酸性の性質を持っており、 $pH > 5$ でアニオン性を持った膜に反発されやすくなり、 $pH < 5$ の酸性領域より阻止率がわずかではあるが増加すると考えられる。なお、上記の有機成分と $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ などの無機成分の混合系でのそれぞれの成分の阻止率は单一系の阻止率とあまり変わらなかった。

### 3.3 焼却灰模擬浸出液の膜分離処理

$\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ および $\text{Cl}^-$ の阻止率のpH依存性をFig. 10に示す。 $\text{Ca}^{2+}$ と $\text{Cl}^-$ の阻止率はpHの増加とともに減少し、Fig. 6の单一系における $\text{Ca}^{2+}$ と $\text{Cl}^-$ の結果とよく似た傾向を示した。 $\text{Na}^+$ については单一系における実験結果と同様にpH5のときに阻止率が最も低かったが、阻止率は全体的に低く、2価イオンとの混合系における結果に近くなかった。これらの結果から浸出液のように組成が複雑な場合でも無機成分についてはその单一系あるいは混合系における結果が適用できると考えられる。

COD, TOC, T-NおよびOrg.-Nの阻止率のpH依存性をFig. 11に示す。CODとTOCは全体的に70-90%と高い阻止率となり、焼却灰中の有機物には比較的高分子の難分解性物質のものが多いことに対応していると考えられる。また、pHの低下とともに阻止率が若干低下する傾向が認められる。これは、有機成分单一系における解離性物質の挙動と傾向的に類似しており、焼却灰の有機成分中の解離成分に由来するものと推定される。用いた焼却灰中の窒素化合物はほとんどOrg.-Nであり、Org.-Nの阻止がT-Nの阻止率につながっている。また、これは、比較的高分子のC, Nを含む有機物が膜により阻止された結果と考えられる。

## 4. 結論

本研究では、低圧逆浸透法の無機成分および有機成分の溶質透過性能と焼却灰模擬浸出液の膜分離処理について検討を行った。以下に得られた結果をまとめると。

- 1) ナトリウム ( $\text{Na}^+$ )、カリウム ( $\text{K}^+$ )、カルシウム ( $\text{Ca}^{2+}$ ) およびマグネシウム ( $\text{Mg}^{2+}$ ) の無機成分の单一系においては、原液濃度が高くなるにしたがって阻止率が減少した。特に、1価イオンの阻止率の減少が2価イオンの阻止率の減少に比べて大きい傾向を示した。
- 2) 1価カチオンはpH 5付近で阻止率が最低となり、それよりpH < 5およびpH > 5では阻止率が高くなかった。膜の溶質阻止（透過）性は、膜の荷電性とイオン性とからある程度の説明は可能であると考えられるが、上記の傾向は膜の荷電性のみでは説明できず、荷電性以外の要因も関与していると推定される。また、2価カチオンは1価カチオンと異なった挙動を示し、pHが高いほど阻止率は低下した。この傾向はイオン性と荷電性から説明が可能であった。
- 3) 無機成分の混合系では、2価カチオン共存による阻止率の低下が著しかった。これには、2価カチオンの膜への吸着およびそれによる膜電位の低下が関与していると考えられる。
- 4) 有機成分の单一系においては、グルコースのように非解離性であっても分子量がある程度大きい糖類については阻止率が高くなかった。酢酸のような解離分子の場合には、低分子であっても阻止率はpHに依存しながら変化した。全般的な傾向としては分子量が大きいほど阻止率が高くなかった。
- 5) 焼却灰模擬浸出液の膜分離処理における無機成分の阻止の結果は上記1)-3)の結果と類似していることから、单一系あるいは混合系における結果がある程度適用できると考えられる。

6) 焼却灰模擬浸出液のCODとTOCの阻止率として70 - 90 %の比較的高い値を得た。また、ほとんどがOrg - NであるT - Nの阻止率も高かった。これは比較的高分子のC, Nを含む難分解性有機物が膜に阻止された結果と考えられる。

## [参考文献]

- 1) 厚生省編：厚生白書（平成7年度版），pp. 302 (1995)
- 2) 尾崎博明，寺島泰，藤原誠司，安村宣之：廃棄物埋立地浸出水の有機ハロゲン化合物生成能について，第2回廃棄物学会研究発表会講演論文集，pp.345-348 (1991)
- 3) 鯉川寿美子，染谷厚，立藤綾子，松藤康司，花嶋正孝：廃棄物埋立処分場浸出水に含まれる変異原性物質の特性，廃棄物学会論文誌, Vol.3, No.3, pp. 51-60 (1992)
- 4) 圓谷哲男：最終処分場からの浸出液について，都市清掃，Vol. 43, No. 175, pp. 163-167 (1990)
- 5) S. Ho, W. C. BOYLE and R. K. HAM : Chemical treatment of leachates from sanitary landfills, JWPCF, Vol.46, No. 7, pp. 1776-1791 (1974)
- 6) 辻 喜廣，金山彦喜，横幕豊一：浸出水に対する実験装置による適応性の検討（その2），都市清掃，Vol. 42, No. 172, pp. 495-504 (1988)
- 7) 辻 幸男，大下紀男，大野栄一：埋立地浸出汚水の高度処理，PPM, No. 3, pp. 22-29 (1985)
- 8) 金時凌，尾崎博明，寺島泰：電気透析装置による廃棄物浸出水および混合液の脱塩処理について，第5回廃棄物学会研究発表会講演論文集，pp. 417-419 (1994)
- 9) J. T. KETTEN : Biological or Chemico-Physical landfill leachate purification an alternative or a useful combination, Wat. Sci. Tech., Vol. 26, No. 1-2, pp. 137-145 (1992)
- 10) 葛 踊生，小島康成，伊藤三郎：膜分離法を用いたゴミ浸出水の高度処理，第5回廃棄物学会研究発表会講演論文集，pp. 426-428 (1994)
- 11) 尾崎博明，山田佳子，寺島泰，金時凌：廃棄物埋立地浸出水の膜分離処理特性，土木学会第48回年次学術講演会講演集，pp. 1326-1327 (1993)
- 12) 尾崎博明，山田佳子，寺島泰，金時凌：廃棄物埋立地浸出水処理への膜分離法の適用，第4回廃棄物学会研究発表会講演会論文集，pp. 519-521 (1993)
- 13) 神山義康：逆浸透複合膜の新展開，日東技報，Vol.30, No.5, pp. 66 - 76 (1993)
- 14) C. Ratanatamskul, T. Urase, K. Yamamoto, S. Ohgaki and N. Kamiko : Rejection of anions by LPRO membranes under very low pressure as tertiary treatment for wastewater reclamation, 土木学会第49回年次学術講演会講演集, pp. 1054 - 1055 (1994)
- 15) 厚生省生活衛生局水道環境部計画課編：廃棄物六法, pp. 74-78 (1987)
- 16) 木曾祥秋：逆浸透法による有機溶質の分離に関する研究，京都大学衛生工学科博士学位論文, pp. 3-14 (1979)
- 17) 神沢千代志：工業化学誌, 72, pp. 1227, (1989)