

(16) 回転平膜モジュールを用いた色度除去システムに関する研究

A Study on decoloration system using rotating membrane UF module

大熊那夫紀*, 大西真人*, 奥野 裕*, 堀田正見*

Naoki OHKUMA, Makoto OHNISHI, Yutaka OKUNO, Masami HOTTA

ABSTRACT ; The waste water reclamation system using a rotating membrane UF module, has been studied by adding a powdered activated carbon to a biological treatment process to remove the organic colored matter.

In this system, the powdered activated carbon dosage of 50 mg/ℓ, and retention time of 4.5 hours, have been required to stably obtain a treated water with the color of less than 5 degrees.

It was found that the activated sludge filterability could be improved by adding the powdered activated carbon and the rotating membrane UF module could operate at a permeation flux of 1.0 m³/m²·d for about one and half years.

KEYWORDS ; Decoloration, Rotating membrane UF Module, Powdered activated carbon, Membrane reactor, Reused water

1 はじめに

近年、水不足や都市部の再開発などによる水需要の増大に伴い、ビル排水を再利用するシステムが開発され、その中で生物処理と膜処理を組合せた膜利用型中水製造システム¹⁾が注目されている。膜利用型中水製造システムにおける膜処理は、既存の膜モジュールを用いているため、システムにおける運転動力の増大と維持管理の繁雑化を増す結果となっている。そのため、著者らは活性汚泥混合液の低動力分離用膜モジュールとして回転平膜モジュールを開発し、この膜モジュールを中水製造システムに適用した²⁾。しかし、ビル排水は下水と同様に生活系の有機排水であり、これらの処理水は20～30度の色度を有しているため、処理水をそのままトイレ用水に再利用する場合は、美観の問題から着色した用具を用いる必要があるなど用途が限定されている。また、ホテルや病院など不特定多数の人が利用する場所では、再生水の脱色のためにオゾン処理や活性炭処理を付加していることが多い。そのため、簡単な操作で低色度の再生水を造ることができれば、こうした用途の他に親水用水や修景用水などへの用途も期待できる。そこで、本論文では、再生水の色度を水道水基準と同等の5度以下に除去するため、生物反応槽内に粉末活性炭を添加して、回転平膜モジュールで固液分離し、再生水を得るシステムについて、粉末活性炭の添加効果、システムの処理性能などを検討したので報告する。

2 実験装置及び実験方法

2. 1 原水

*日立プラント建設株式会社 (Hitachi Plant Engineering & Construction Co., Ltd.)

システムの連続運転に用いた原水は、生活系排水の代表としてF下水処理場の流入下水を用いた。実験期間中の水質を表1に示す。また、活性炭の選定及び膜による色度成分の除去試験に用いた原水は、生物処理水の代表としてF下水処理場の二次処理水を用いた。

2. 2 供試活性炭の種類

試験に供した7種類の活性炭を表2に示す。原材料は木質系、ヤシガラ系、石炭系の3種を選定し、表中の細孔径はカタログ値、粒径は光透過法で測定した結果を示した。

項 目	下水流入水
pH (—)	6.62~7.47 (6.97)
BOD (mg/ℓ)	60.2~310 (125.0)
T-N (μ)	11.8~41.3 (21.0)
TOC (μ)	8.2~76.0 (34.9)
色 度 (度)	12~48 (30.0)

() 内平均値

記号	原 材 料	平均細孔径* (Å)	粒径 (μm) (光透過法)		
			20%径	50%径	80%径
A	ヤシガラ系	20~30	1.5	10.6	29
B	木質系	20~30	1.2	7.6	28
C	石炭系	18~20	100	212	310
D	木質系	—	0.7	6.1	26
E	木質系	—	2.5	14.1	33
F	ヤシガラ系	15	2.1	13.6	35
G	木質系	35~40	2.0	11.3	25

* カタログ値

2. 3 実験装置

実験装置のフローを図1に示す。装置は原水槽(50 ℓ)、生物反応槽(嫌気槽 9.5 ℓ、好気槽 9.5 ℓ)、回転平膜モジュール(φ 210、ディスク6枚)で構成されている。回転平膜モジュールの構成を図2に示す。使用した膜はポリスルホン系で分画分子量は75万である。原水である下水は、まず嫌気槽に入り、好気槽を経て回転平膜モジュールに送られる。回転平膜モジュールでは固液分離を行い、処理水を得るとともに、濃縮液は嫌気槽に返送した。粉末活性炭は、所定量を嫌気槽に注入した。この時の添加量は、原水量に対する粉末活性炭量で表わした。余剰汚泥は、生物反応槽より引き抜いた。嫌気槽は機械攪拌を、好気槽はエアレーションにより攪拌を行った。原水は、回転平膜モジュールの処理水が系外に流出した量だけ嫌気槽に供給される。滞留時間のコントロールは、回転平膜モジュールの間欠運転時間で調整した。例えばfluxを1 m³/m²・dに設定し、1サイクルを15分間とし、このうち5分間だけ処理水を系外に排出すると、この設定における生物反応槽(嫌気槽、好気槽の合計)滞留時間は4.5時間となる。回転平膜モジュールからの処理水は、処理水の引抜ポンプであるギアポンプの吸引力(ろ過圧力)として得た。

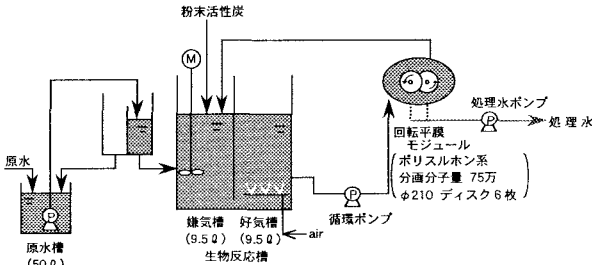


図1 実験装置フロー

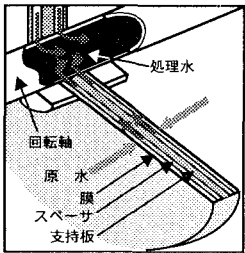


図2 回転平膜ディスクの構成

2. 4 実験方法

(1) 活性炭の選定方法

供試活性炭について、色度除去における吸着等温線及び吸着速度を測定し、単位活性炭量当りに吸着量が多く、吸着速度の大きい活性炭を選定した。吸着等温線は供試活性炭を乾燥した後、原水量に対して0、20、50、100、200、500、1,000 mg/ℓになるように添加し、25℃で24h、振とう後にNo.5A ろ紙にてろ別し、ろ液の色度を測定し、ろ液の色度と活性炭単位重量当りの色度吸着量をプロットして得た。吸着速度は、原

水に供試活性炭を50 mg/ℓ添加し、25℃で振とうしながら、時間経過ごとにNo.5Aろ紙でろ別し、ろ液中の色度、TOCを測定した。

(2) 膜による色度成分の除去試験

膜孔径の違いによる色度成分の除去を検討するため、原水を分画分子量1万、5万、10万、75万の4種類の膜でろ過し、原水とろ過水の色度を測定した。膜素材はいずれもポリスルホン系を用いた。このろ過処理は直径76 mmの膜を平膜ろ過セルに装着して、0.02MPaのろ過圧力で行った。

(3) システム性能実験

まず、システムにおける粉末活性炭添加量と生物反応槽滞留時間について色度除去への影響を検討した。粉末活性炭は、嫌気槽に所定量(10, 20, 50, 75 mg/ℓ)添加し、一つの条件で約2ヶ月間原水と処理水色度を測定し、色度除去率の平均値で整理した。生物反応槽滞留時間は、粉末活性炭添加量を50 mg/ℓとし、回転平膜モジュールの間欠運転時間を調整して、6.0, 4.5, 3.2, 2.3時間と変化させ、一条件で約2ヶ月間の処理水質を測定し、色度除去率の平均値で整理した。

次に、粉末活性炭の添加が回転平膜モジュールの性能に与える影響について検討した。活性汚泥に粉末活性炭を添加した混合汚泥液と活性汚泥混合液について、フロック径、平均ろ過比抵抗を測定し、次いで膜ディスク外周速(1.1~5.5m/s)を変化させてfluxを測定した。また、粉末活性炭混合汚泥液のSS濃度(3.5~26 g/ℓ)とfluxの関係についても測定した。これらのfluxは、0.08MPaでの定圧ろ過で求めた。

システムの連続運転期間中、膜ディスク外周速は3.3m/sで一定とした。運転時のfluxは、1 m³/m²・dに設定し、定流量運転を行った。システムの性能は、原則として週一回、原水、処理水の水質分析を行い評価した。汚泥の脱水性評価は、F下水処理場の余剰汚泥と連続運転開始6ヶ月後の粉末活性炭混合汚泥液について行った。

2. 5 分析方法

水質分析は、JISK 0102に準拠した。フロック径の測定は、レーザー法(島津製作所製 LC-1000)を用いた。平均ろ過比抵抗は分画分子量75万の膜(φ76)を用いて、0.05MPaの圧力で定圧ろ過を行い、ケーキろ過式から計算で求めた。フロック形態の観察には光学顕微鏡を、また添加した粉末活性炭表面の観察にはSEM(日立製 S-800)を用いた。

3 実験結果及び考察

3. 1 活性炭種の選定

7種の活性炭の吸着等温線及び残存色度の経時変化を図3、4に示す。B, D, E, Gは木質系であり、A, Fはヤシガラ系、Cは石炭系である。吸着量はヤシガラ系、石炭系に比べ木質系が高く、また図4に示すように木質系は色度の吸着速度もヤシガラ系、石炭系に比べ早いいため、色度成分の除去には木質系の活性炭が適していると判断した。木質系の中でコストはB炭が安価であるので、以降の実験ではB炭を使用した。

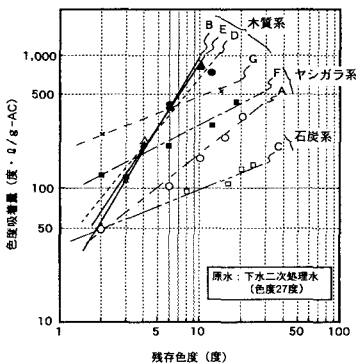


図3 各種粉末活性炭の吸着等温線

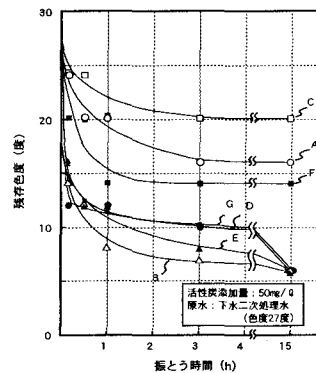


図4 残存色度の経時変化

3. 2 膜による色度除去の検討

本実験で使用した分画分子量75万の膜における色度成分の除去効果を検討した。比較のため、他の分画分子量の膜についても評価した。結果を図5に示す。分画分子量1万の膜で約6割が除去でき、分画分子量75万の膜では、色度成分はまったく除去できなかった。下水二次処理水中の色度成分の主成分は、フミン質が主体であり、分子量1万未満のフミン質は7～8割³⁾といわれており、ほぼ同様な結果であった。

これらの結果から、本システムにおける色度成分の除去は、添加した活性炭の吸着作用により行われることが分かった。

3. 3 活性炭添加量の検討

本システムにおける粉末活性炭添加の色度除去効果を検討するため、嫌気槽に粉末活性炭を所定量添加し、処理水色度を測定した。実験は、各粉末活性炭添加量ごとに約2ヶ月間の連続運転を行い、色度除去率で評価した。結果を図6に示す。粉末活性炭を添加しない場合の色度除去率は約40%であるが、粉末活性炭を20 mg/ℓ以上添加することにより90%以上の色度除去率が得られた。しかし、原水色度が60度以上になると処理水の色度が5度を超えるため、安定した処理水色度5度以下を得るためには、粉末活性炭50 mg/ℓの添加が必要であった。

浄水の高度処理では、粒状活性炭の表面に付着した微生物が硝化反応などを行うと同時に、生物再生効果により活性炭の寿命を延ばす生物活性炭処理法が知られている。本システムは同様に微生物と活性炭との組合せシステムであるため、本システムにおける生物再生効果について飽和吸着量から再生効果を推算した。生物処理水に残存している色度成分を添加した活性炭で吸着するという仮定で、飽和吸着量から必要添加量を推算した。生物処理水色度17度(実験値)、膜処理水色度5度、粉末活性炭吸着量を280度・ℓ/g-ACとし、実験装置における処理量57 ℓ/dとすると、必要添加量は43 mg/ℓとなる。先の実験結果では、20 mg/ℓ、90%以上の色度除去率が得られたことから若干の生物再生効果はあると考えられる。

3. 4 生物反応槽滞留時間の検討

粉末活性炭の添加量を一定(50 mg/ℓ)とし、滞留時間を変化させたときの処理水色度について検討した。滞留時間と色度除去率の関係を図7に示す。処理水色度を安定して5度以下にするための色度除去率90%以上を得るには、4.5時間以上の滞留時間が必要であった。これは色度の成分であるフミン質の活性炭への吸着速度が遅いために、滞留時間を短くすると吸着が不十分になることを示している。

3. 5 回転平膜モジュール性能への粉末活性炭添加効果

まず、ピーカ内で活性汚泥混合液に粉末活性炭を添加した時の光学顕微鏡写真を図8に示す。粉末活性炭

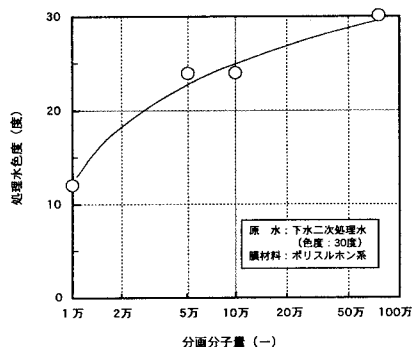


図5 膜の分画分子量と色度成分の除去効果

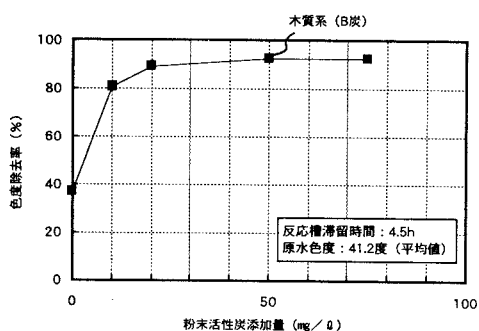


図6 粉末活性炭添加量と色度除去率

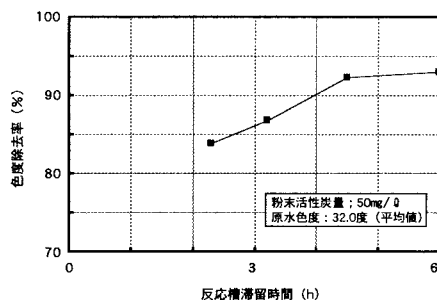


図7 反応槽滞留時間と色度除去率

が活性汚泥フロックに取り込まれている状況が分かる。そこで、フロックの平均径、平均ろ過比抵抗を測定した。結果を表3に示す。活性汚泥混合液単独に比べ、フロック平均径は3倍になり、平均ろ過比抵抗も1/10に低減した。粉末活性炭はケイソウ土などを用いたろ過助剤と同様な働きをされると考えられる。



図8 光学顕微鏡写真

表3 粉末活性炭添加による膜性能への影響

	活性汚泥	活性汚泥 + 粉末活性炭	粉末活性炭*
SS濃度 (g/ℓ)	10.6	22.2 (10.6+11.6)	11.1
平均粒径 (μm)	44.4	134	7.6
平均ろ過比抵抗 (m/kg)	1.42×10 ¹³	1.15×10 ¹²	—

* 木質系 (B炭)

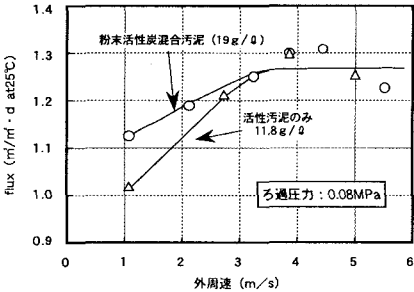


図9 fluxに及ぼす外周速の影響

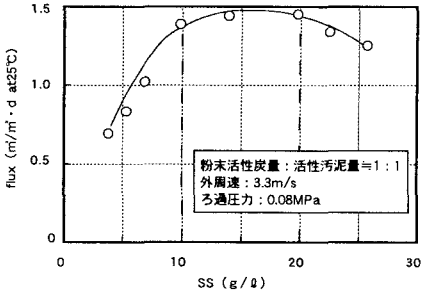


図10 活性炭混合液SS濃度とfluxの関係

そこで、粉末活性炭を添加した活性汚泥混合液について、膜ディスク外周速がfluxに及ぼす影響を検討した。結果を図9に示す。外周速が3m/s以上では粉末活性炭を混合した汚泥液と活性汚泥混合液は、ほとんど同様な傾向を示すのに対し、外周速が遅くなるほど活性汚泥液に比べ、粉末活性炭混合汚泥液のfluxが高くなった。これは回転数が遅くなり、外周速が低下するとケーキ層の抵抗が支配的になるため、平均ろ過比抵抗の小さい粉末活性炭混合汚泥液のfluxが高くなったものと推定される。

粉末活性炭混合液のSS濃度がfluxに及ぼす影響を検討した。結果を図10に示す。SS濃度が10～20 g/ℓの範囲でfluxは高くなり、10 g/ℓ以下あるいは20 g/ℓ以上でfluxは低くなる傾向があった。この結果は、活性汚泥混合液単独のデータ⁴⁾と同様であり、反応槽内のSS濃度を10～20 g/ℓの範囲にコントロールすれば良いことが分かった。

3. 6 色度除去システムの性能

粉末活性炭添加量 50 mg/ℓとした連続運転での水質の経時変化を図11に示す。処理水色度は、滞留時間 2.3時間以外は5度以下を安定して満足できた。BOD、TOCは原水変動に関係なく安定した処理水質であった。これらは、膜リアクタの特徴を表わしており、処理水中のSSが完全に除去できた結果と考える。表4には、滞留時間4.5時間における各水質項目について、粉末活性炭添加の有無を比較した。数値は平均値で示した。BOD、T-Nなど生物処理に起因する項目は、粉末活性炭の有無に関係なく、同様な除去率を示した。しかし、TOCや色度は粉末活性炭の吸着作用により除去されるため、粉末活性炭を添加した本システムでは、

処理水質を向上できた。システム内に保持されている粉末活性炭量は、100 日目以降 4～7 g/ℓ と推定されるが、この保持粉末活性炭が処理水質に与える影響について、明確なデータはなく、今後検討していきたいと考えている。

図 12 には、回転平膜モジュール性能の経時変化を示す。反応槽内の汚泥濃度は 10～20 g/ℓ にコントロールした。設定 flux は 1 m³/m²・d で定流量運転を行い、ろ過圧力の変化で膜性能を評価した。ろ過圧力は徐々に増加し、0.04～0.05MPa で一旦安定したが、400 日目以降徐々に上昇した。400 日目以降は滞留時間 2.3 時間のデータを取得しているときで処理水色度の悪化に加え、膜性能にも影響を及ぼすことが分かった。500 日目以降、4.5 時間の滞留時間に変更したところ、ろ過圧力は安定した。しかし、ろ過圧力が低下することはなかった。これは、一度付着したケーキ層はこの回転数では除去できないためと考えられる。この間、薬品による膜洗浄は行わず、本システムは約 1 年半にわたり安定した膜処理ができた。

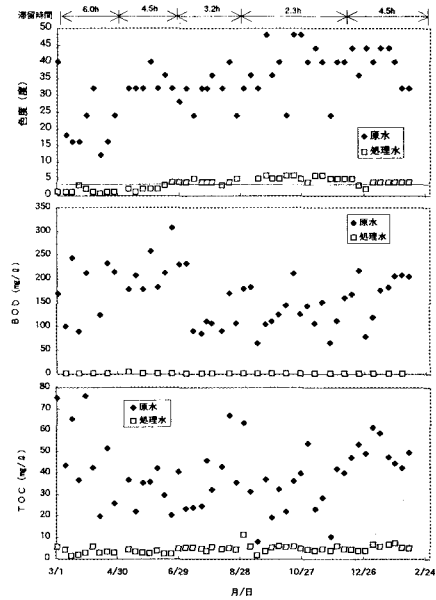


図11 水質の経時変化 (粉末活性炭添加量:50mg/ℓ)

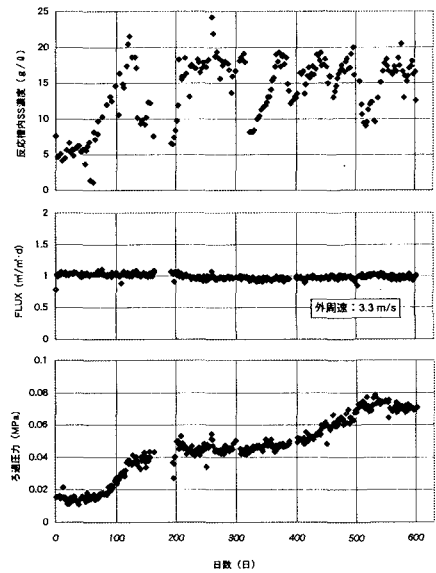


図12 回転平膜モジュール性能の経時変化

表 4 水質分析結果

	粉末活性炭添加 (50mg/ℓ)			無添加 (活性汚泥のみ)		
	原 水	処理水	除去率 (%)	原 水	処理水	除去率 (%)
pH (—)	6.9	7.3	—	6.8	7.5	—
BOD (mg/ℓ)	227.4	1.0	99.6	134.4	1.1	99.2
T-N (mg/ℓ)	24.6	11.2	54.5	19.1	8.3	56.5
TOC (mg/ℓ)	32.5	2.9	91.1	28.2	4.1	85.5
色 度 (度)	34.4	2.6	92.4	30.8	19.3	37.3

運転 155 日目の活性炭表面の SEM 写真と汚泥混合液の粒度分布を図 13、14 に示す。活性炭の表面に微生物の付着は観察されるが、その量は非常に少なかった。にもかかわらず、若干の生物再生の効果があるということは、粉末活性炭を取り囲むように存在する活性汚泥フロックが生物再生に寄与している可能性があると考えられる。また、155 日目の汚泥混合液のフロック平均径は 29.2 μm とピーク内で粉末活性炭を混合した汚泥フロック径の 134 μm、さらに活性汚泥単独液の 44 μm に比べ、かなり小さくなっている。膜

分離活性汚泥フロックは、標準活性汚泥に比べ小さくなることは知られており⁵⁾、同様な傾向であった。これは回転平膜モジュール内のせん断力で、汚泥フロックが細分化した結果であり、それ以降も同様のフロック径であった。

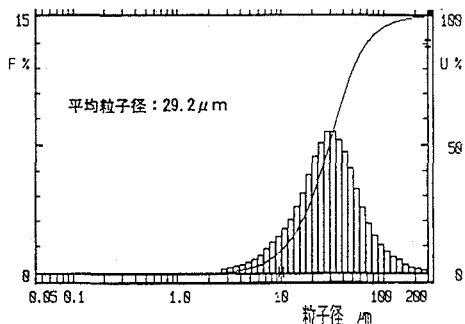
生物反応槽内の汚泥性状をF市下水処理場の余剰汚泥と比較した。ろ過のし易さを表わす平均ろ過比抵抗値は、処理場の余剰汚泥の $4.8 \times 10^{13} \text{ m/kg}$ に対して $4.8 \times 10^{12} \text{ m/kg}$ と1桁低い値であった。また、汚泥の脱水性評価では、処理場汚泥の含水率86.3%に対し78.0%と脱水し易い汚泥であることが分かった。本システムの余剰汚泥は、従来の生物処理から発生する余剰汚泥に比べ、脱水性を向上できることが示唆された。



(×5,000)

<155目>

図13 粉末活性炭表面のSEM写真



<155目>

図14 粒度分布変化

4 まとめ

回転平膜モジュールを用いた再生水の色度除去システムについて、生物反応槽に粉末活性炭を添加するシステムを検討し、以下の結果を得た。

- (1) 色度除去用の活性炭種は、吸着能の高い木質系の粉末活性炭を選定した。
- (2) 本システムにおいて下水を原水とした場合、処理水色度を安定して5度以下にするためには、粉末活性炭の添加量 50 mg/l 、生物反応槽における滞留時間を4.5時間以上にする必要があった。
- (3) 粉末活性炭の添加は、汚泥混合液の平均ろ過比抵抗を低減し、回転平膜モジュールの性能向上、特に低回転数域でのflux向上を図ることができた。
- (4) 回転平膜モジュールは、設定flux $1 \text{ m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{d}$ で定流量運転を行い、約1年半無薬洗で運転できた。本システム内の汚泥フロックは、フロック平均径 $29.2 \mu\text{m}$ と通常の活性汚泥フロックより小さいが、脱水性の良い汚泥であった。

<参考文献>

- 1) 内田駿一郎：最もコンパクトな雑用水道，造水技術，10，(1)，pp.33～37 (1983)
- 2) 大熊那夫紀，堀田正見，奥野 裕：回転平膜モジュールの排水処理への適用，膜，20，(5)，pp.346～354 (1995)
- 3) 筒木 潔：フミン物質の生成機構とその性質，水環境学会誌，18，(4)，pp.2～7 (1995)
- 4) M. Ohnishi, H. Masuda, N. Ohkuma, T. Yamadera：Performance of Activated Sludge Filtration by Rotary Disk Type UF Module, ICOM'90 Proceedings, pp.1103～1105 (1990)
- 5) 張 博苒，山本和夫，大垣真一郎：標準活性汚泥と膜分離活性汚泥の性状及び微生物活性の比較，第28回日本水環境学会年会講演集，pp.88～89 (1994)