

(12) 回転平膜モジュールを用いた粉末活性炭添加型凝集処理の検討

A Study on wastewater treatment system by combined coagulation and adsorption using a rotating membrane UF module

大熊 那夫^{*} 鈴木 恒雄^{*} 松井 敏一^{*} 青井 透^{**}

Naoki OHKUMA, Tsuneo SUZUKI, Toshikazu MATSUI, Toru AOI

ABSTRACT; Rotating UF membrane module has been applied to simplify the conventional system composed of coagulation-sedimentation, sand filtration and activated carbon adsorption.

The new system has been designed to combine the UF module with a coagulation tank supplied by powdered activated carbon (PAC).

In this study, the effect of PAC addition on the treatment performance of a landfill leachate has been investigated.

It was found that the mean filtration resistivity of mixed liquor was reduced by PAC addition with the coagulant (FeCl_3) and no decrease of the adsorptive capacity of PAC was caused by the coagulant. Maintenance and control of the system was simply operated.

KEYWORDS; Coagulation, Activated carbon adsorption, Membrane filtration, Powdered activated carbon, Landfill leachate

1 はじめに

凝集、沈殿、砂ろ過、活性炭処理に代表される物理化学処理は産業廃水処理やし尿処理、ゴミ浸出水処理、浄水処理などに広く適用されている。近年、排水処理水の高度化による環境負荷の低減促進や、処理水の再生利用のため、凝集・沈殿一砂ろ過一活性炭処理を行う設備が増加している。しかし、これらの設備では単位操作数が多く、維持管理が複雑になるなどの問題がある。

一方、回転平膜モジュールは、高濃度懸濁物質液の固液分離用として開発され、各種廃水処理に適用されている¹⁾。昨年度、著者ら²⁾は、生物処理槽に粉末活性炭を添加した後、回転平膜モジュールで固液分離し、処理水の色度成分を除去するシステムについて報告した。粉末活性炭は、粒状活性炭に比べ安価であり、生物処理水の後段に活性炭塔を設置するよりコスト的に有利であった。

今回は、凝集・沈殿一砂ろ過一活性炭処理プロセスの簡素化を目的に、凝集処理、粉末活性炭処理及び回転平膜モジュールを組合せたシステムについて、粉末活性炭の添加効果及びゴミ浸出処理システムへの適用を検討した。

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

^{**}群馬工業高等専門学校 (Department of Civil Engineering Gunma College of Technology)

2 実験装置及び実験方法

2. 1 原水

原水には、焼却灰を主体に埋め立てを行っている浸出水処理設備から排出する生物処理水を用いた。表 1 に供試原水の水質を示す。SS は、既設生物処理(回転円板方式)に起因し、焼却灰に起因する Ca は、高濃度であるがほとんどが溶解していた。

表 1 原水の水質

項 目	水 質(mg/l)
BOD	2～6
COD	34～60
SS	98～1,600
Ca	835～1,210

2. 2 実験装置

(1) 小型実験装置

回転平膜モジュール小型実験装置を図 1 に、膜ディスクの構造を図 2 に示す。原水を凝集槽に流入させた後、凝集剤である塩化第二鉄を所定量注入し、pH 調整を行った。生成した凝集汚泥液は回転平膜モジュールに導入し、固液分離した。濃縮水、処理水とも凝集槽に循環した。粉末活性炭は、必要に応じて所定量を凝集槽に添加した。回転平膜ディスクは、径 210 mm のプラスチックディスクに貼り付けたスペーサ及びポリスルホン膜で構成した。ポリスルホン膜は、分画分子量 75 万である。原水は膜面で固液分離され、処理水はスペーサ間を通り、中空の回転軸より系外に排出した。ろ過に必要な圧力は、処理水ポンプの吸引力で得た。回転平膜モジュールの有効膜面積は、0.3 m² であり、1 軸に膜ディスク 3 枚を交互にかみ合わせた双軸構成とした。

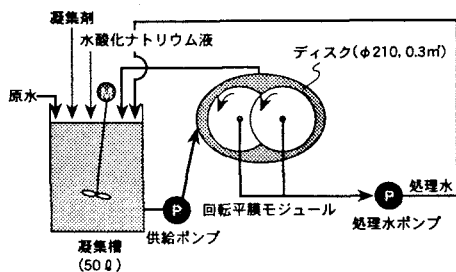


図 1 小型実験装置

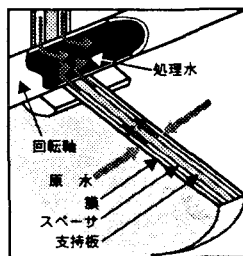


図 2 回転平膜ディスクの構造

(2) 長期性能試験装置

ゴミ浸出水処理への適用を検討するための長期性能試験装置を図 3 に示す。試験装置は、凝集槽、調整槽、回転平膜モジュール、供給ポンプ及び処理水ポンプで構成した。原水、凝集剤(塩化第二鉄)及び粉末活性炭は、凝集槽(100 ℓ)へ連続的に供給し、調整槽(100 ℓ)を経た後、回転平膜モジュールに導入した。濃縮液は調整槽に循環し、処理水は処理水ポンプの吸引力で得た。原水は、処理水を系外に排出したと同量を凝集槽に流入した。回転平膜ディスクは、実装置と同径の 750 mm であり、回転平膜モジュールは小型実験装置と同様に双軸構成とし、有効膜面積は、4.3 m² である。

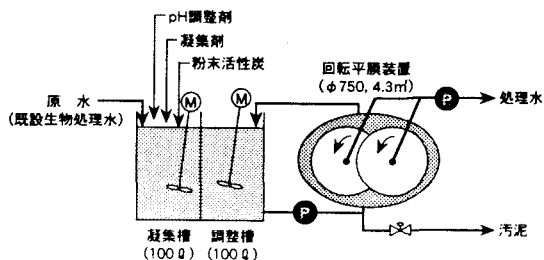


図 3 COD除去実験装置

2. 3 実験方法

(1) 凝集条件及び活性炭添加量の決定

原水に対する凝集条件及び活性炭必要量を定めるため、ジャーテスト、吸着等温線及び粉末活性炭の添加量と COD_{Mn} 除去率を求めた。凝集剤には塩化第二鉄を用い、注入量は $0 \sim 500 \text{ mg-FeCl}_3/\ell$ 、pHは、 $3.5 \sim 8.5$ と変化させた。 COD_{Mn} の除去から凝集剤の最適注入量とpHを求めた。また同時に処理水に残存する鉄量を調べた。

粉末活性炭は、メジアン粒径 $27 \mu\text{m}$ の木質系炭を用いた。吸着等温線は、 20°C で 24 時間振とう後に No.5A ろ紙にてろ別し、ろ液の COD_{Mn} を測定して得た。粉末活性炭の接触時間と COD_{Mn} 除去率の関係は、添加量 $100 \sim 1,000 \text{ mg-AC}/\ell$ と変化させ、所定時間ごとのろ液の COD_{Mn} を測定して求めた。凝集剤と粉末活性炭を組合せるときの粉末活性炭の必要量は、所定の凝集処理を行った後、No.5A ろ紙のろ液を原水として、所定量の粉末活性炭を添加し、1 時間後の COD_{Mn} 、色度を測定し求めた。

いずれも COD_{Mn} 値は、原水中の亜酸化態窒素に起因する COD_{Mn} 値を差し引いて整理した。

(2) 膜システムに対する粉末活性炭の添加効果確認実験

まず、 COD_{Mn} 除去効果を検討するため、原水に凝集剤と粉末活性炭の所定量を同時に混和し、経過時間ごとに $0.2 \mu\text{m}$ の孔径を有するフィルタでろ過してろ液の COD_{Mn} を測定した。比較のために、凝集剤と粉末活性炭の単独液も同様の手順で実験した。

回転平膜性能に及ぼす影響を検討するため、まず小型実験装置を用いて、原水に凝集剤を添加し、SS を $20\text{g}/\ell$ に調整(pH5.5)した凝集汚泥液と凝集汚泥液に粉末活性炭を等量混合した液(SS $20\text{g}/\ell$)を対象として連続ろ過を行った。ろ過条件は、設定 flux $1.5 \text{ m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{d}$ 、回転数 200rpm(外周速 $2.2\text{m}/\text{s}$)とし、10 分間ろ過、2 分間停止の間欠運転を行った。次に、各汚泥液のろ過性を評価するため、凝集汚泥液に粉末活性炭を所定量添加して、汚泥液の平均ろ過比抵抗値を測定した。また、凝集汚泥と粉末活性炭の混合液について、回転平膜性能に及ぼす回転数と汚泥濃度の影響を検討した。flux を $1.5 \text{ m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{d}$ の定流量運転とし、回転数は $50 \sim 400\text{rpm}$ (外周速 $0.55 \sim 4.4\text{m}/\text{s}$)、汚泥濃度は $5 \sim 35 \text{ g}/\ell$ とした。評価方法はろ過圧力の増減で評価した。

(3) システム性能評価

ゴミ浸出水処理システムへの適用の可能性を評価するため、長期性能試験装置を実施に設置し、まず凝集汚泥液を対象にし、次いで粉末活性炭を所定量注入し、システムの性能検討した。この時の凝集剤と粉末活性炭の添加量は、原水量当りで表わし、原水には連続的に供給した。凝集槽の pH は 5.5 にコントロールした。回転平膜モジュールは、回転数を 60rpm(外周速 $2.4\text{m}/\text{s}$)一定とし、設定 flux は $0.6 \sim 1.2 \text{ m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{d}$ の間で変化させた。回転平膜モジュール内の汚泥濃度は、 $20 \sim 30\text{g}/\ell$ になるように適宜引抜きを行った。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。汚泥液の脱水性は、凝集汚泥液及び粉末活性炭を添加した汚泥混合液について脱水試験を行い評価した。

2. 4 分析方法

水質分析は、JISK0102 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($\phi 76$)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)、EDX(堀場製 EMAX5770)を用いた。

3 実験結果及び考察

3. 1 凝集及び活性炭処理の検討

COD_{Mn}の除去率を指標として、凝集条件及び活性炭必要量を求めた。凝集剤の添加量は、100 mg-FeCl₃/ℓ以上では、COD_{Mn}除去率60~65%を得た。次に、凝集剤の添加量を100 mg-FeCl₃/ℓにして、pHの影響を調べた。結果を図4に示す。後段の膜処理にとって、溶解性鉄の存在は、膜内部での凝集などにより、膜閉塞を生ずる可能性がある。そこで、図4には処理水中の鉄濃度も測定した結果を示した。pH5.5以上では、処理水中の鉄濃度は検出限界(0.1 mg/ℓ)以下であった。また、COD_{Mn}除去率は pH4.5~5.5 付近で最大値を示した。これは、今回の原水として使用しているゴミ浸出水の COD_{Mn}成分が、フミン質主体であるため、いわゆる酸性凝集による COD_{Mn}の除去と考えられる。以後の実験では、凝集剤の添加量100 mg-FeCl₃/ℓ、pH5.5とした。

活性炭処理については、まず吸着等温線から粉末活性炭1 g 当り 0.042g の COD_{Mn}の吸着能(残存 COD_{Mn}10 mg/ℓ のとき)を得た。また、接触時間1時間では24時間の吸着量に対して、90%以上の吸着量を示した。これらの結果に加えて、凝集処理水について粉末活性炭の必要量を検討した。図5に結果を示す。凝集処理で COD_{Mn}が約60%除去でき、さらに粉末活性炭を添加することで、粉末活性炭500 mg/ℓ以上では90%以上の COD_{Mn}除去率を得た。処理水中 COD_{Mn}の目標を10 mg/ℓとすると、生物処理水である原水の COD_{Mn}は、約50 mg/ℓであるので、COD_{Mn}除去率80%を得る必要がある。つまり、粉末活性炭の必要添加量は250 mg/ℓであった。このときの色度の除去率は約90%であった。

3. 2 膜システムの粉末活性炭の添加効果

(1) 汚泥フロック形状

活性汚泥フロックと粉末活性炭を混合した場合²⁾では、活性汚泥に粉末活性炭を添加することで、混合汚泥フロックの粗大化が見られた。そこで、凝集汚泥液に粉末活性炭を添加、混合した汚泥液について、光学顕微鏡、SEM観察及び粒度分布を測定した。まず、光学顕微鏡による観察では、粉末活性炭添加によるフロックの粗大化は見られなかった。粒度分布の測定結果を表2に示す。

凝集汚泥液、粉末活性炭及び混合汚泥液とも30 μm前後でほとんど変わらず、光学顕微鏡の観察結果と同様であった。また、SEMの観察結果及び粉末活性炭表面のEDX分析を行った。その結果を図6に示す。若干の鉄分は検出されるが、活性炭の表面はほとんどが露出しており、鉄分による粉末活性炭の吸着能に及ぼす影響は少ないことが予想できた。

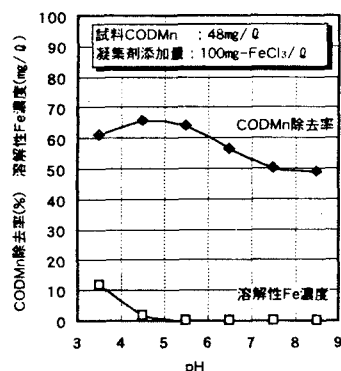


図4 COD_{Mn}除去に対するpHの影響

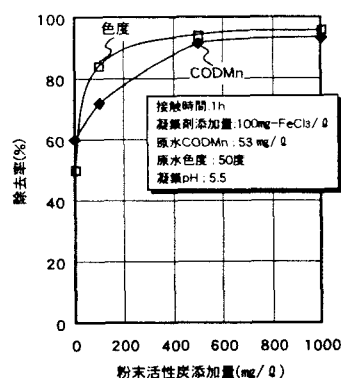


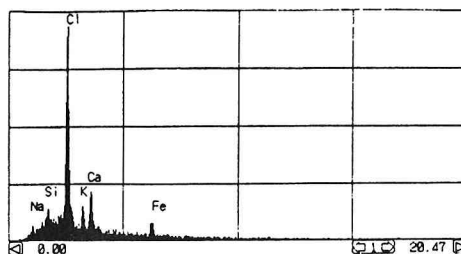
図5 粉末活性炭必要量

表2 汚泥液の粒度分布

	メジアン径
凝集汚泥液 (SS = 10 g/ℓ)	33.4 μm
粉末活性炭 (SS = 10 g/ℓ)	27.0 μm
混合汚泥液 (凝集汚泥 + 粉末活性炭 = 1/1)	34.5 μm



(a) SEM写真
(5,000倍)



(b) EDX分析結果

図6 粉末活性炭(凝集剤混在)の表面観察結果

(2) COD_{Mn} 除去効果

凝集処理槽に粉末活性炭を添加することを想定して、3.1項で求めた凝集条件と粉末活性炭添加条件で、凝集汚泥と粉末活性炭を混合した汚泥液について、接触時間ごとのCOD_{Mn}除去率を測定した。その結果を図7に示す。図7には、参考までに凝集剤、粉末活性炭単独の結果も示した。凝集剤と粉末活性炭を併用した場合、接触時間10分で70%以上のCOD_{Mn}除去率を得、以降時間経過とともに徐々に除去率は増加し、90分でCOD_{Mn}除去率80%を得た。粉末活性炭単独でも徐々にCOD_{Mn}除去率が増加することから、この増加分は粉末活性炭の吸着によると考えられる。また、3.1項の粉末活性炭必要量は、凝集処理後に汚泥フロックを除去した後に吸着実験を行ったものであるが、COD_{Mn}の除去率は約80%と凝集剤と粉末活性炭を混合した場合と同じ除去率であった。これらから、凝集処理と吸着処理を同一槽で行っても、吸着能に与える凝集フロックの影響は無いと考えられる。

(3) 膜性能への影響

粉末活性炭添加による回転平膜モジュール性能への影響については、小型実験装置を用いて検討した。凝集汚泥液と粉末活性炭を添加した汚泥混合液の連続ろ過におけるろ過圧力の経時変化を調べた。結果を図8に示す。凝集汚泥液は、徐々にろ過圧力が上昇するのに対して、粉末活性炭を混合した汚泥はろ過圧力が安定していた。この理由を調べるため、凝集汚泥液に所定量の粉末活性炭を添加し、汚泥液の平均ろ過比抵抗値を測定した。図9に示すように、粉末活性炭量が増えると平均ろ過比抵抗値は低下した。SS10g/ℓの凝集汚泥液に対して、10倍量の粉末活性炭が存在したときの値は、粉末活性炭単独における平均ろ過比抵抗値(9.5×10^{10} m/kg)とほぼ同等であった。粉末活性炭を混合した汚泥液では、平均ろ過比抵抗値が低下したことにより、ろ過性が向上したと考えられる。

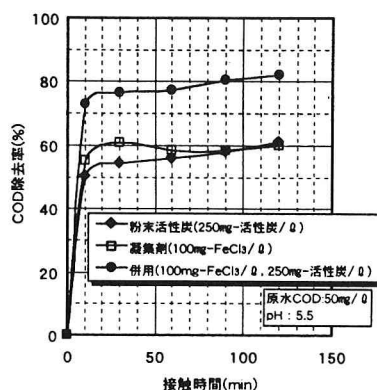


図7 接触時間とCOD除去特性

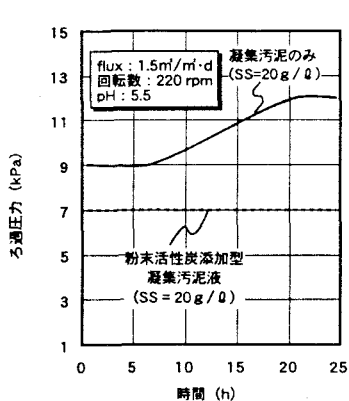


図8 ろ過における粉末活性炭の添加効果

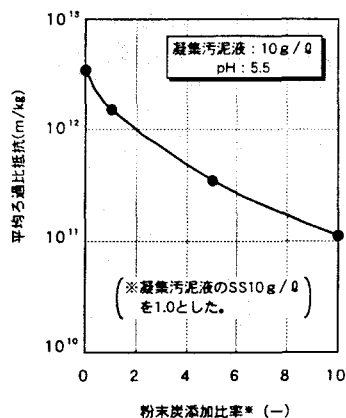


図9 粉末炭添加による平均ろ過抵抗変化

次に、粉末活性炭混合液について、回転平膜モジュールの特性を調べた。汚泥濃度依存性については、汚泥濃度が10~40 g/lの間では、ろ過圧力に変化はなかった。また、回転数についても50~400rpmの範囲で回転数を変化させても、ろ過圧力は変化しなかった。これは、活性汚泥混合液の分離には見られない現象であり、粉末活性炭混合液はろ過しやすい液性状であるといえる。

3. 3 ゴミ浸出水処理システムへの適用

(1) 連続運転結果

ゴミ浸出水処理システムへの適用を検討するため、実施設に長期性能試験装置を設置し、長期連続運転を行った。このときの処理性能の経時変化を図10に示す。当初1,700時間までは凝集剤のみを注入し、それ以後は粉末活性炭を添加し、徐々に増加させた。汚泥濃度は、当初引抜きを行わず、20g/lを超えてからは20~30g/lの範囲でコントロールした。

flux は、最大吸引圧力を-60kPaに設定したため、凝集剤単独の場合は、0.6~0.8 ml/m²·dでの運転が限界であった。これに対し、粉末活性炭を添加した系では、0.9~1.2 ml/m²·dのfluxを得ることができた。これは3.2項の基礎検討結果と同様に、粉末活性炭の添加効果と考えられる。また、処理水COD_{Mn}も粉末活性炭を添加した1,700時間以降は、10 mg/lをほぼ満足できた。水質分析結果を表3に示す。

ここで、徐々に粉末活性炭を増加させた理由は、水温の低下による吸着能低下を防ぐことと、原水(生物処理水)中のCOD_{Mn}値の上昇に起因した。1,700時間から3,500時間にかけて、粉末活性炭の添加量が基礎検討結果の250 mg/lより少量で十分であった。これは、

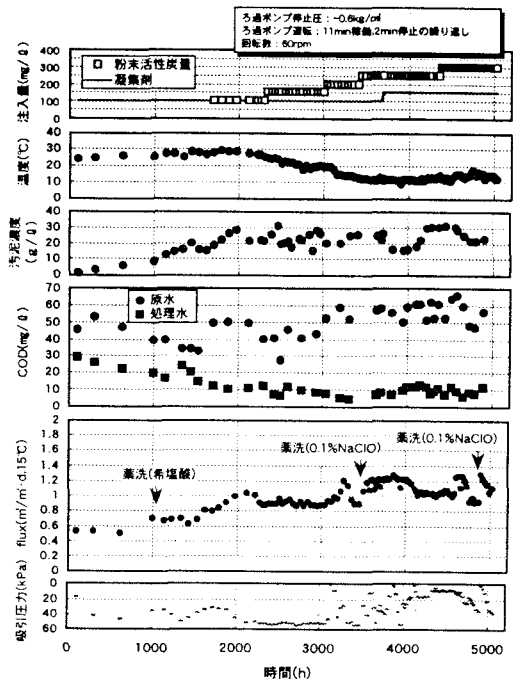


図10 開発システム性能の経時変化

この期間中雨が少なく、実施設における浸出水量が少なかったため、実験装置での処理量も減少させる必要があり、活性炭の接触時間が3~4時間と当初の設定より長くなった結果と考えられる。

回転平膜モジュールの薬液洗浄間隔は、夏期で2.5ヶ月、冬期で1.5ヶ月と考えられ、膜の洗浄には次亜塩素酸ナトリウム液が有効であった。これは、生物処理水中の生物フロック由来の物質が膜のろ過圧力上昇に影響している事を示している。

(2) システムの評価

今回、開発したシステムと従来の凝集・沈殿一砂ろ過一活性炭処理を行うシステムについて比較を行った。これを表4に示す。開発システムでは、物理化学処理の単位操作数は半減することができた。また、凝集剤の使用量も半減できた。これは、開発システムが凝集汚泥液を膜分離する方式であるため、汚泥の沈降分離に必要な凝集剤量を低減できた結果と考える。この効果は、浄水処理における膜の適用効果³⁾と同様である。活性炭の必要量は、比表面積の大きな粉末活性炭を用いているため、約1/3に低減できた。汚泥の脱水性は汚泥の含水率で評価すると、粉末活性炭を含有した開発システムの含水率は76%と従来汚泥に比べて低くなった。

これらの結果と維持管理の容易さを踏まえると、生物処理後に凝集処理槽に粉末活性炭を添加し、回転平膜モジュールで固液分離するシステムは、ゴミ浸出水の処理システムに適用できる見通しを得た。

4. まとめ

凝集・沈殿一砂ろ過一活性炭処理に代替するシステムとして、凝集剤と粉末活性炭を添加した後、回転平膜モジュールで固液分離するシステムについて検討し、以下の結果を得た。

- (1) 凝集剤と粉末活性炭を添加することで、汚泥液の平均ろ過比抵抗値を低減でき、膜のろ過性向上が図れた。
- (2) 粉末活性炭の吸着能は、凝集剤との混合により、低下することはなく、凝集と吸着の共存は可能であった。
- (3) 開発システムをゴミ埋立地の浸出水处理に適用したところ、従来システムに比べ、プロセスを簡略化でき、維持管理の容易なシステムの見通しを得た。

<参考文献>

- 1) 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、Vol.20, No.5, pp.346~354, 1995.
- 2) 大熊那夫紀、大西真人、奥野裕、堀田正見：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、環境工学研究論文集、Vol.33, pp.139~145, 1996.
- 3) 国包章一：膜利用型新浄水システムの研究成果と今後の展望、ニューメンブレンテクノロジーシンポジウム'95, pp.5-1-1~5-1-6, 1995.

表3 水質分析結果(平均値)

	凝集処理		粉末活性炭を添加した凝集処理	
	原水	処理水(除去率,%)	原水	処理水(除去率,%)
BOD(mg/l)	13.7	<2	5.0	<2
COD(mg/l)	43.6	21.9 (49.8)	45.0	8.3 (81.6)
SS(mg/l)	539	<1	282	<1
色度(度)	50	18.5(63.0)	50	3.1(93.8)

表4 開発システムとの比較

	従来システム	開発システム
単位操作数	4	2
凝集剤量	100	50
活性炭必要量	100	35
汚泥の脱水性	86%	76%
処理水質	○	○