

## B-40 竹炭微粒子を濾過助剤層としたフミン酸 溶質の清澄濾過分離

中倉 英雄\*・○松塚 和也

山口大学大学院理工学研究科 (〒755-8611 山口県宇部市常盤台 2-16-1)

\* E-mail: nakakura@yamaguchi-u.ac.jp

竹炭微粒子を濾過助剤層とした溶解性フミン酸溶液の清澄濾過実験を行い、竹炭微粒子の濾過助剤層としての有効性を検討した。竹炭助剤層厚さの増加は、フミン質阻止率の増大に寄与した。捕捉機構は、清澄濾過作用、すなわち、ブラウン拡散、さえぎり、慣性、水力学的接触、および物理吸着作用によるものと考えられる。白金線電極を組み込んだ濾過器を用いて助剤層の導電率変化を実測し、助剤層内部でのフミン酸の捕捉メカニズムを定量的に評価した。

**Key Words :** humic acid, deep bed filtration, bamboo charcoal, water treatment, filter cake

### 1. 緒言

近年、水道原水中の溶解性有機物質が浄水過程において、塩素と反応することによりトリハロメタンなどの消毒副生成物を生成し、これが生命体への有害物質として作用するため、大きな社会問題となっている<sup>1)</sup>。より安全な水道水の供給を図るため、限外濾過やナノ濾過などの膜分離法を利用した浄水処理をはじめ、さまざまな技術開発が展開されている<sup>2,3)</sup>。本研究では、資源循環型水処理法を目指した新たなプロセス開発例として、竹炭微粒子を助剤層とした溶解性フミン酸溶液の清澄濾過実験を行い、竹炭微粒子の濾過助剤層としての有効性および濾過助剤層内部でのフミン酸の捕捉メカニズムについて検討考察した。

### 2. 装置および実験方法

図-1 に実験装置の概略を示す。濾過器には内径 22mm のステンレス製円筒セルを使用し、圧力源には窒素ガスを用いた。清澄濾過実験は、始めに竹炭微粒子(平均粒子径  $d_p=2.1\mu\text{m}$ )・水懸濁液の定圧濾過操作により、支持濾材(Toyo, No.4, 保留粒子径  $1\mu\text{m}$ )上に竹炭助剤層を形成させる。この助剤層に超純水を透過して助剤層を安定させた後、一定操作圧力下で溶解性フミン酸溶液の清澄濾過実験を行った<sup>4)</sup>。フミン酸原液は、乾燥フミン酸(和光純薬工業㈱)を 0.01M NaOH 水溶液で攪拌・溶解ののち、常法<sup>5)</sup>により膜処理を行う。濾液を原液として 4℃で冷保存する<sup>4,6)</sup>。竹炭微

粒子には、市販のフレーク状竹炭(山口県阿知須産)をボールミルにより微粉碎処理したものを用いた。竹炭微粒子粉末を所定量秤量し、超純水を加えて、マグネティックスターラーを用いて回転数 500rpm で 20 分間攪拌し、超音波洗浄器で 10 分間分散処理ののち、竹炭微粒子・水懸濁液を作成した。なお、比較のため活性炭微粒子(粉末活性炭、和光純薬工業(株),  $d_p=2.0\mu\text{m}$ )を助剤層とした実験も、同様に実施した。竹炭および活性炭微粒子の諸特性値を表-1 に示す。

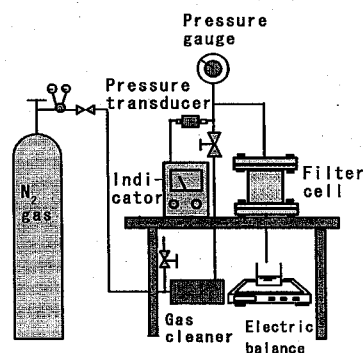


図-1 実験装置図

表-1 竹炭および活性炭微粒子の諸特性値

| 実験試料              | 平均粒子径<br>$d_p[\mu\text{m}]$ | 粒子真密度<br>$\rho_p[\text{g}/\text{cm}^3]$ | 空陥率<br>$\varepsilon_m[-]$ |
|-------------------|-----------------------------|-----------------------------------------|---------------------------|
| 竹炭                | 2.1                         | 1.55                                    | 0.51~0.56                 |
| 活性炭 <sup>a)</sup> | 2.0                         | 1.9~2.2                                 | 0.83~0.88                 |

a) 和光純薬工業(株)

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 清澄濾過実験結果

図-2は、支持濾材上に厚さ  $L$  が 5.4mm の竹炭助剤層を形成させた後、超純水を透過し、溶解性フミン酸溶液を定圧清澄濾過したときの濾過量  $V$  対時間  $\theta$ 、およびフミン酸阻止率  $R(\equiv 1-s/s_0)$  対時間  $\theta$  の関係を表す。ここで、 $s$  および  $s_0$  は原液および濾液中のフミン酸質量分率である。この場合、濾過開始時にフミン酸の流出が認められるが、濾過時間  $\theta$  が 1200 秒以降においては、フミン酸阻止率  $R$  は 0.83 程度と比較的高い値が得られた。

図-3は、阻止率  $R$  に及ぼす竹炭助剤層厚さ  $L$  の影響を表す。 $L$  の増加とともに  $R$  値が大幅に増大した。これは、 $L$  の増加によって助剤層内部での清澄濾過作用（ふるい分け、さえぎり、水力学的接触）、および物理吸着作用がより促進されるためと考えられる<sup>4)</sup>。

図-4は、活性炭微粒子を濾過助剤層として、溶解

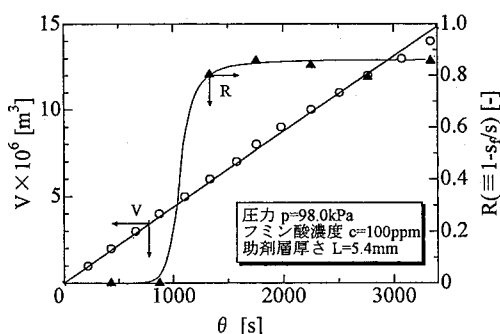


図-2  $V, R$  vs.  $\theta$  (竹炭助剤層)

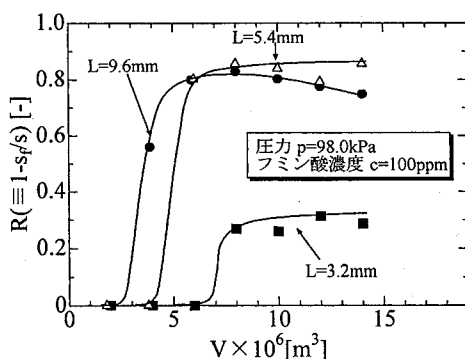


図-3  $R$  vs.  $V$  (竹炭助剤層, 厚さ  $L$  の影響)

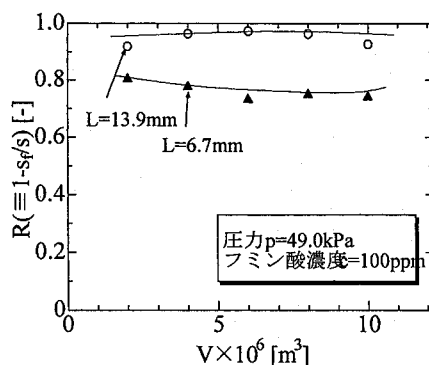


図-4  $R$  vs.  $V$  (活性炭助剤層,  $L$  の影響)

性フミン酸溶液の清澄濾過実験を行ったときの阻止率  $R$  対濾液量  $V$  の関係を表す。活性炭微粒子の場合には、竹炭微粒子に比べて濾過開始時より、比較的高いフミン阻止率が得られた。

#### 3.2 導電率測定結果

図-5は、活性炭微粒子懸濁液を形成させた後、膜面からの距離  $x$  が 0.2、0.6、および 1.2mm の位置に白金線電極(直径 0.3mm)が取り付けられているアクリル製濾過器<sup>7)</sup>を使用して、溶解性フミン酸溶液を定圧清澄濾過したときの導電率  $\kappa$  対単位膜面積あたりの濾液量  $v$  の関係を示す。図中の濾過期間 I において、導電率  $\kappa$  値が急激に増大するのは、活性炭助剤層間隙内の残留水が溶解性フミン酸溶液に置換されたことに起因する。導電率  $\kappa$  の値は、最大値  $\kappa_{max}$  を経たのちいずれの位置  $x$  においても濾過の経過とともに  $\kappa$  値が徐々に減少する傾向を示した。これは、助剤層内部においてフミン酸溶質が捕捉されていることを示唆している。

図-6は、導電率  $\kappa$  の値を最大値  $\kappa_{max}$  で除して正規化した  $(\kappa/\kappa_{max})$  の値を濾液量  $v$  に対して示す。パラメータ  $(x/L)$  は、白金線の膜面からの位置  $x$  を助剤層厚さ  $L$  で除した無次元距離を表す。 $(x/L)$  値が 0.7 の時、すなわち助剤層の表面近くでは、 $(\kappa/\kappa_{max})$  値が 1.0 とほぼ一定値を示すのに対し、 $(x/L)$  値が小なほど、導電率が順次低下することがわかる。これは、活性炭助剤層の底部に移行するほどフミン酸の捕捉率が増大するためではないかと考えられる。

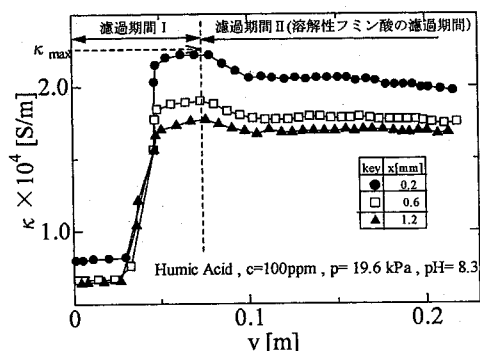


図-5  $\kappa$  vs.  $v$  (活性炭助剤層)

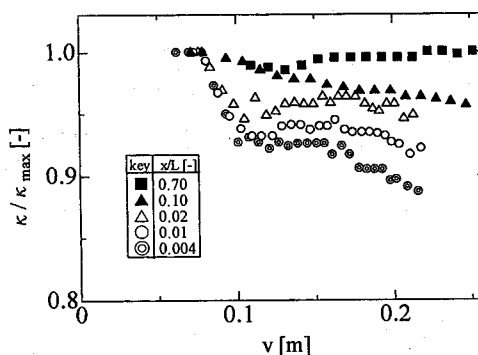


図-6 ( $\kappa / \kappa_{max}$ ) vs.  $v$

#### 4. 結言

竹炭微粒子助剤層による溶解性フミン酸の清澄濾過は、フミン酸阻止率の観点から、その有効性が明らかとなった。また、白金線電極法に基づいて、助剤層内部でのフミン酸の捕捉過程を定量的に評価することが可能であった。

#### 参考文献

- 1) 丹保憲仁編著：水道とトリハロメタン，pp. 84-137(1983)
- 2) 伊藤雅喜：空気調和・衛生工学，Vol. 72, pp. 27-31(1998)
- 3) 卞 如林，渡辺義公ら：水道協会雑誌，Vol. 67, pp. 11-19 (1998)
- 4) 武富，中倉ら：化学工学会第 37 回秋季大会要旨集，M121 (2005)
- 5) 中倉，浜田ら：化学工学会第 65 年会要旨集，E126 (2000)
- 6) Cassell, E.A. et al.: *AIChE J*, Vol. 17, pp. 1486-1492 (1971)
- 7) Nakakura, H., A. Yamashita et al.: *J. Chem. Eng. Japan*, Vol. 30, pp. 1020-1025 (1997)

### Deep Bed Filtration of Humic Acid Solute by Flow Through Bamboo Charcoal Particle Beds

Hideo NAKAKURA<sup>1</sup> and Kazunari Matsutsuka<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Dept. of Environmental Science and Engineering, Yamaguchi University

The separation characteristics for deep bed filtration of dissolved humic acid solutions were experimentally investigated with filter cake of bamboo charcoal particles. The filter cake of bamboo charcoal particles was effectively applied as a deep bed filter in rejecting dissolved humic acid in solution. An increase in filter cake thickness of bamboo charcoal particles resulted in a remarkable increase in rejection of humic acid. Three pairs of platinum wire electrodes were employed to measure the capturing process of humic acid solute in filter cake of bamboo charcoal particles. The capture mechanism may be interpreted in the same way as deep bed filtration, that is, Brownian diffusion, interception, inertia, hydrodynamics and physical adsorption of humic substances. The new dynamic filtration system proposed in this study is effective in drinking water treatment process from viewpoint of both the filtration flux and the rejection of humic acid.