

学 位 論 文 題 名

A Fundamental Study of Fluidized Pellet Bed Technique for
High Rate Solid/Liquid Separation in Water Treatment

（ペレット流動層による高速固液分離法に関する基礎的研究）

学位論文内容の要旨

アジア、アフリカと南米の諸国には、数 g/l 程度以上の高濁度河川を水源とする地域が少なくない。通常の急速ろ過法はこのような高濁度を直接に対処できず、前沈殿により濁度の大半を除き、残った部分を急速ろ過システムで処理することは現在に唯一の処理方式である。しかしながら、このような方式は、巨大な沈澱池の建設と膨大な量の汚泥を処理するため、広い土地を必要とし、普遍的に採用できる高効率の方式ではない。そこで、高濁度を対処する新しい浄水技術として、ペレット流動層による高速固液分離システムを提案する。この方式では数 g/l 乃至数十 g/l の高濁度水に対し前処理を要せず、僅か 5～6 分間で固液分離を行い、直ちに急速ろ過池へ導入できるような上澄水が得られる。更に、分離したペレット汚泥の含水率は 70% 台まで減じ、簡単に重力脱水できる。この処理方式の導入によって、高濁度水処理の効率化、処理施設の小形化、浄水場の敷地の減少等が期待できる。

無機凝集剤と有機ポリマーの合理的な使用と適切な攪拌を加えることにより、高密度かつ大径のペレットを形成させることが、このプロセスを運用する鍵である。このようなペレットの集塊過程は従来のフロック形成過程と根本的に異なり、ペレット凝集法について現在の理論で解明できない点が多い。そのため、プロセスの制御法とシステムの設計方針がまだ確立されていない。そこで、筆者は過去に行ったペレット流動層による高濁度水処理の実用的な研究を発展させ、この処理プロセスの制御方法、ペレットの集塊機構、プロセスの動力学等の基礎的問題について実験と理論的研究を行った。

さまざまな操作条件で実験を行った結果、良好な処理効果が得られる（すなわち、安定な流動層の成立、高密度ペレットの形成、清浄な処理水の取得の三要件が満たせる）操作条件を明らかにした。初期粒子としての粘土・アルミニウム微フロックを流動層に導入する際の粒子のランダムな成長を防ぐこと、流動層中の大きな集塊物の表面に次々と付着してくる初期粒子の不整形な

付着成長を妨げることは、ペレット流動層操作の鍵である。適切な注薬と攪拌条件の下で、 $10^2 \sim 10^4 \text{ mg/l}$ オーダーの高濁度水を $30 \sim 70 \text{ cm/min}$ の高い空筒上昇流速で処理することができる。

良好な処理結果を得るため、できるだけ少ない量のアルミニウムとしかるべき量のポリマーの組合せを選ぶことが重要である。さまざまな原水濁度に応じて2種類の凝集剤を適切に組み合わせて使う方法の法則性について検討を行った。ペレット流動層により粘土懸濁液を処理する際、粒子のゼータ電位が -20 mV 位になるようにアルミニウム凝集剤を注入すれば良い。この時にアルミニウムの注入率は従来のフロック形成操作（ゼータ電位が -10 mV になるように制御）の $\frac{1}{3}$ のみである。このことは、ペレット流動層の場合にアルミニウムとポリマーを併用するので、架橋作用をすべてポリマーに委ねて、ポリマーを含めてのヘテロ集塊が可能な範囲にまでアルミニウムにより粒子の荷電を中和しておけば良いと考えられる。また、ゼータ電位の測定によって最適アルミニウム注入率（ALT 比）を決定する上、ポリマー注入率（PT 比）を PT 比が ALT 比の $\frac{1}{2}$ （ $\text{PT} = \text{ALT} / 2$ ）となるように求めると良い。ペレット凝集に際してはアルミニウムとポリマーが荷電中和と架橋用の一對の薬剤として作用するので、2者の最適注入率は濁度に応じて同様な割合で変化すると考えられる。

流動層中で形成したペレットの密度が粒径と関係なく、ほぼ一定であることは本プロセスの重要な特徴である。そこで、このような性質を持つペレットの集塊機構について検討した。フロッキュレーター中でランダムな衝突合一による従来のフロック形成は段階的に進行すると考えられる。ここで、集塊を一段上る際に一定割合の空隙を新たに内包するようになる。その結果、フロックの成長につれて粒子の有効密度は粒径の負の指数関係で減少していく。密度が高く且つ成長の度合と関係がない集塊物を形成させるルートは、初期粒子から大きい粒子までの集塊の段階を最少にするか、毎段階で内包する空隙を最低限にするかの2つが挙げられる。前者は one-by-one 型の集塊機構、後者は Syneresis 型の集塊機構で進行する。異なる操作方式で形成したペレットの粒径-密度関係を調べた結果、初期粒子が1つまた1つ（one-by-one）と既成粒子表面に層状に付着する方式で生成したペレットは密度が比較的高く且つ粒径と関係がない。ペレット流動層操作の場合に one-by-one が主要な集塊機構として働くと考えられる。

ペレット流動層の動力学的研究の第一歩として、層内における固体粒子の挙動について検討した。メチリンブルーでカオリン粒子を染色して粒子の動きを可視化する実験を行い、流動層に流入するカオリン粒子の流動層内の滞留時間分布を把握した。初期粒子が既存粒子の表面へ付着して生ずるペレット形成、せん断流による過剰成長粒子の破壊、破壊によって生じた小粒子が上昇

水流に伴われて上層への移行の3つの過程は同時に進行し、流動層の定常状態はそれらの過程の動的な平衡の結果である。このことにより、流入初期粒子濃度によって流動層縦方向のペレット粒径プロフィルの相違がよく解釈できる。

層内で固形粒子の挙動を表現するため、流動層における物質収支式を導いた。式に含まれる各項はペレットの成長速度、ペレットの破壊速度、ペレット断片の移行による各粒径のペレット個数の増加速度と関連する。それぞれの項を検討した結果、流動層におけるペレット凝集プロセスを記述する動力学式が得られた。さまざまな実験によって式中の未知関数、常数、係数等を探索し、数式モデルによるプロセスのシミュレーション計算を行った。いくつかの条件下の計算で求めたペレット粒径のプロフィルは実測値とほぼ一致しており、提案したモデルの妥当性を示した。また、固液分離効果を示す流動層から分離装置に越流するペレットの粒径分布が計算により求められ、原水濁度による処理効果の差異が見いだされた。流動層高さの処理効果へ与える影響を計算によって検討し、深すぎる流動層は良好な水質を得るための固液分離には不利であり、原水濁度に応じて処理粒子の除去が十分できる範囲内で比較的低い高さの流動層が望ましいことが分かった。

ペレット流動層技術の応用範囲を更に拡大することを試み、高濃度の有機着色物質が濁度と共存している2成分系の処理実験を行った。色度が存在するとアルミニウムによる凝集の機構が濁度のみの系と異なり、弱酸性領域のpH5.0でコロイドを等電点付近まで荷電中和させることが必要となる。このように選んだ最適アルミニウム注入量と適切なポリマー注入量の下で、色度が100度から1000度までの高い値の場合にも、濁質がほぼ同程度の数値(mg/ℓ として)以上共存すれば、 $30\text{cm}/\text{min}$ という高い上昇流速でペレット流動層による高速凝集固液分離ができた。その際、凝集可能な色度成分についてはほぼ全部除去され、濁度成分についてはほぼ完全な除去が得られた。また、生成した2成分ペレットの有効密度は 0.02 から $0.1\text{g}/\text{cm}^3$ 程度であり、排除されたペレットを微細な網目の上に短時間放置することのみで含水率が90%以下まで簡単に脱水された。自然の原水中に存在する色度は本実験の条件のように高い場合は少ないので、相当量以上の濁質と共存するような系の色度成分は、ほとんどの場合にペレット流動層で高速処理することができる。

ペレット流動層法は比較的に広い範囲の水源に応用できる新しい処理法である。特に高濃度の懸濁液を処理する際、本システムの導入により固液分離効率の飛躍的向上、浄水場の建設費用の節約、薬品消耗の低減等が期待できる。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 丹 保 憲 仁

副 査 教 授 高 桑 哲 男

副 査 教 授 田 中 信 壽

黄河の数十 g/ℓ 以上の濃度にも達する超高濁度の水や、アジア・アフリカ・南米等の熱帯の河川における数百 mg/ℓ にも及ぶ高濁度水や時には高い濃度の腐植質を共存する高濁水を、従来の浄水法によって処理するには多くの困難があり、効率の高い適切な処理プロセスの出現が望まれていた。本研究は、このような高濁度の水に対処する新しい浄水技術としてペレット流動層による高速固液分離システムを提案し、その適切な操作条件を検討し、作動機構を明らかにし、プロセスの動力学モデルを提案する一連の実験的、理論的検討を行い、新プロセスを設計し運用するための基礎を作ったものである。

ここで提案されたペレット流動層分離操作は、凝集による微フロック生成、流動層におけるペレット形成、分離槽における清澄分離と污泥堆積の3段階から成る。

まず、ペレット流動層分離操作を適切に行うための凝集とペレット形成条件が検討された。アルミニウム凝集剤による粘土系懸濁質の凝集を、ゼーター電位を従来のフロック形成に比して大幅に低い -20mV の値に調整し、微フロック群をフロック形成のための準安定領域に保持したまま流動層下部に流入させ、瞬時に高分子凝集剤を注入することによって高密度のペレットを流動層内に形成させ得ることを明らかにした。すなわち、分子量 10^7D のオーダーの非イオン性、弱アニオン性のポリマーを添加凝集剤の $\frac{1}{2}$ 程度の重量比で用いることによって、流動層に存在しているペレット粒子の表面に1つまた1つと微フロックを付着させ高密度のペレットの成長を促す。ペレットの不整形な成長を防止し同心球的な成長を促すために、 G 値が 30S^{-1} 程度の適切な攪拌を加える。このような条件で成長した数 mm にも及ぶ大きな径を持つペレットは密度が従来のフロックに比して1桁以上大きく、微フロックの最密充填が行われた集塊となる。その結果、 $10^2 \sim 10^4 \text{mg}/\ell$ オーダーの高濁度水の分離操作を $30 \sim 70 \text{cm}/\text{min}$ という従来のプロセスよりも1桁も高い速度で運転する事に成功した。この際の処理水の濁度は数 mg/ℓ 以下であり従来法に比して大幅に改善されている。

また、高い色度が共存している高濁系についての研究をも行い、アルミニウム凝集剤の注入率を等電点で微フロックが生成するように定め、添加アルミニウム量の $\frac{1}{2}$ のポリマーを導入するこ

とによって、高濁度と色度が共存している系についても30cm/min という高い分離速度を得る事に成功した。このような操作が成立する条件は濁度と色度の比が2 : 1 以下であることを明らかにした。また、この操作において凝集剤の必要量は色度によってのみ定まり、pH5.0という色度系に対する最適条件がこの操作でも最適 pH であり、共存する $10^2 \sim 10^4 \text{ mg/l}$ に及ぶ濁質成分の存在は注薬条件にほとんど関係しないことを明らかにし、この現象を凝集した色度フロックが粘土等の粗懸濁度に架橋して微フロックを形成する機構で説明した。

これらの検討の結果、本ペレット流動層高速分離法は極めて広範な原水条件に対応できる汎用性の高い操作であることが明らかとなった。一方、生成したペレットは流動層上部から分離槽に越流し、自由沈降によって高速に分離され槽底に堆積するので、間欠的な排泥によって系外に取り出され、気中での単なる重力脱水のみで90%以下の含水率のスラッジとなり濃縮操作等を必要としない。

最後に、このようなペレット流動層における同心球的なペレット生成と破壊の動力学的過程をペレット粒子群の滞留時間分布を求めるトレーサー実験により考察し、流動層中のペレット粒子群の成長と破壊過程を考慮して物質収支を記述する動力学式を提案し、シミュレーションにより実験過程を再現し、その正確な記述に成功した。その結果、この新しいプロセスを定式化して表現することが可能となり、理論式により操作を設計することや様々な外的条件に対して適切な操作条件を定めることが可能となった。

これを要するに、著者は従来極めて処理が困難であった高濁水や色度を伴う高濁水の処理に対して画期的な流動層分離プロセスを提案し、その操作条件と設計過程を明らかにしたものであり、衛生工学、水処理工学の進歩に寄与すること大であり、博士（工学）の学位を授与される十分な資格があるものと認める。