

VII-27

クロスフロー型膜ろ過における凝集処理効果に関する検討

東北大学 正会員 後藤 光亀

1. はじめに

クロスフロー型膜処理では透過流束の維持等のため、凝集効果を併用することが多い。凝集処理ではフロック径の増大の他、比較的大きな分子量の有機物が除去されるのでゲル層の形成が抑えられ、透過流束の低下の防止が期待される。本研究ではまず、凝集処理を行うことによる透過流束の改善についての実験結果と、凝集処理に伴う粒径増加が膜面上のケーキ層堆積に及ぼす効果について、基礎的評価を行った。

2. 実験方法

実験に供した膜は中空糸タイプの限外ろ過膜（PAN（ポリアクリルニトリル）系共重合体：旭化成製：ACL-1050）で、内径1.4mm、外径2.3mm、分画分子量は13,000、有効膜面積は0.14㎡で内圧式によるろ過を行った。

本装置では濃縮水の他にろ過水もバイパス管で原水タンクへ直接返送して、原水濃度をほぼ一定に保持している。

カオリン懸濁液はカオリン（粒径0.6μm）を水道水で希釈し、カオリン濃度1000mg/lとした。またpHはNaOHまたはHClで7±0.05に調整した。凝集剤は硫酸アルミニウムを用い、注入量はALT比で $1 \times 10^{-5} \sim 5 \times 10^{-1}$ まで変化させた。

操作条件は、操作圧力が80kPa、クロスフロー流速1m/s、逆洗圧力150kPaとした。ろ過時間は2時間とした。

一方、懸濁液の凝集状態を知るために、凝集剤を添加した後膜処理装置で供給原水のバイパス経路のみで10分かくはん後（ろ過開始時）の原水を500ml採取し、ジャーテストを用いて40rpmで15分の緩速かくはんを行った後に30分静置して、上澄水濁度を測定した。また、ろ過開始時と実験終了後（2時間後）の原水1lをメスシリンダーに採取し、水面より10cmの高さの濁度と沈殿体積率 p_v を測定した。

3. 凝集処理による透過結束の変化

図-1は、ALT比を変化させたときの透過流束 J_r の経時変化である。図-2は、図-1におけるろ過開始時の透過流束 $J_{r,0}$ に対する各時間での透過流束比 $J_r/J_{r,0}$ を求め、ALT比に対して示した。ALT比がゼロの場合、2時間後の透過流束比は0.51まで低下するが、凝集剤注入により透過流束の改善が大きくなり、特にALT比が0.003以上での効果は顕著となり、ALT比が0.01以上では透過流束の低下はかなり小さくなる。また、 $J_r/J_{r,0}$ はALT比が0.02以上ではろ過2時間でいずれも0.9以上を維持することが可能となる。

一方、実験装置で凝集剤添加後、供給原水のバイパスのみでのかくはんは10分間行なった後、原水タンクから1l採取し、緩速かくはんを40rpmで15分、静置30分のジャーテストを行った。図-3は、原水タンクからの採水時の濁度に対するジャーテスト後の上澄水濁度との濁度比 R_t をALT比に対して示した。ALT比が0.003以下では、ジャーテスト後のフロック形成が十分ではなく、濁度比が高い。ALT比が0.01以上では濁度比は0.05未満で、重力沈降に十分なフロック形成が認められる。このジャーテストの結果からも凝集フロックが形成され得る状況下では膜処理における透過

流束改善の効果が明白である。

また、ろ過開始時およびろ過を2時間継続した後のカオリンフロック懸濁液1lを1lメスシリンダーに採取したときの沈降実験結果である。ここで、濁度比 $R_{t,s}$ 、 $R_{t,e}$ はそれぞれろ過開始時およびろ過2時間後のカオリンフロック懸濁液における沈降開始時の濁度に対する沈降60分後の濁度（水面下10cm）の比である。ろ過開始時の $R_{t,s}$ の結果は前途のジャーテストの上澄水の濁度比の変化に良く対応している。これに対し、ろ過2時間後ではALT比で0.004～0.01の範囲の $R_{t,e}$ もほとんど1になり、フロックが微細となり沈降が阻害され濁度が上昇したものと考えられる。この傾向は、ALT比が0.02～0.1の範囲でもわずかに認められる。

これに対し、沈降60分後のフロックの沈殿体積率 p_v (%)もろ過開始時よりろ過2時間後が小さく、ALT比が0.5では p_v は86%から56%と大きく低下している。ALT比が0.5では J_r がほとんど低下していないので、中空糸膜面でのケーキ堆積量は大きくないと考えられ、 p_v の減少はフロックの密度の増加による体積減少と考えられる。

また、沈降実験でろ過開始時のカオリンフロック懸濁液ではALT比が0.005以上で界面沈降が認められ、60分後の濁度比も小さい。これに対しろ過2時間後では、ALT比が0.01では界面沈降は認められず、ALT比が0.02以上で明確な界面沈降が現れ、上澄水の清澄度が増加する。

本実験システムのように濃縮水を循環すると凝集フロックの物性が徐々に変化し、ジャーテストにおける最適ALT比（ALT比=0.01付近）での凝集剤添加では膜モジュール内的高かくはん強度下で密なフロックとなるが微細化し過ぎるため重力沈降分離を劣化させる。これに対し、高いALT比（ALT比=0.5）でもフロックの密化が起こるがフロック自体が十分大きいので重力沈降分離には影響は少なく、フロック沈殿体積率が減少するものと考えられる。

4. モデル解析

膜面上の粒径 d_p の球状粒子に働く膜接線方向の力を F_p 、膜法線方向の力を F_q と定義する。 F_p はクロスフロー流速 v_c の抗力（ F_{p1} ）と重力・浮力（ F_{p2} ）との合力（ $F_p = F_{p1} - F_{p2}$ ）であり、 F_{q2} は透過流束 v_t による抗力（ F_{q1} ）と v_c による揚力（ F_{q2} ）の合力（ $F_q = F_{q1} - F_{q2}$ ）であり、それぞれ次式で与えられる（ただし膜面近傍のクロスフロー流速分布は直線的に変化すると仮定）。

$$F_{p1} = 1.7007 \times \frac{1}{2} \rho_l C_D A_p v_c^2 = 1.7007 \times 3\pi \mu d_p v_c \quad \dots (1)$$

$$F_{p2} = (\rho_s - \rho_l) g V = \frac{\pi}{6} (\rho_s - \rho_l) g d_p^3 \quad \dots (2)$$

$$F_{q1} = \frac{1}{2} \rho_l C_D A_q v_f^2 = 3\pi \mu d_p v_f \quad \dots (3)$$

$$F_{q2} = \frac{1}{2} \rho_l C_D A_q u_t^2 = 3\pi \mu d_p u_t = 4267 \pi \eta v_t^2 d_p^4 d_m^{-2} \quad \dots (4)$$

C_D : 抵抗係数[-]、 g : 重力加速度[m/s²]、 ρ_l : 水の密度[kg/m³]、 ρ_s : カオリンの密度[kg/m³]、 A_p : クロスフロー方向の投影面積[m²]、 A_q : 透過流束方向の投影面積[m²]、 V : 粒子の体積[m³]、 v_c : 粒子中央部でのクロスフローによる速度[m/s]、 u_t : 粒子中央部での揚速度[m/s]、 d_m : 中空糸内径[m]

着目した粒子直前に高さ h の障害物があると仮定する。粒子の接触点回りのモーメントのつりあい式から堆積するための条件式は

$$F_q \sqrt{\left(\frac{d_p}{2}\right)^2 - \left(\frac{d_p}{2} - h\right)^2} \geq F_p \left(\frac{d_p}{2} - h\right) \quad \dots (5)$$

となるので、この式を満たす最小の h を

$$h_{\min} = \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{F_q}{F_p}}}\right) \frac{d_p}{2} \quad \dots (6)$$

と定義すると、障害物の高さが $h_{\min}$ よりも大きい場合、粒子は堆積する。そこで h の最大値が $h_{\max} (=d_p/2)$ であり、障害物の高さが一様に分布していると仮定すると、粒径 d_p の球状粒子の堆積確率 γ は次式で表される。

$$\gamma = 1 - \frac{h_{\min}}{h_{\max}} \quad \dots (7)$$

5. 結果と考察

図-4 に、粒子に働く力と粒径の関係を示す。同図はカオリンの単一粒子を想定した結果である。

粒子が堆積しないための条件として、(5)式を満足しない場合とともに、 $F_q < 0$ の場合もあげられる。 F_{p1} は粒径の 1 乗、 F_{p2} で 3 乗、 F_{q1} で 1 乗、 F_{q2} で揚速度も考慮すると 4 乗で効く。そのため、膜面に大きい粒子は堆積しにくく、小さいものが選択的に堆積する。

凝集フロックとフロックの有効密度 ($\rho_s - \rho$) はフロック密度関数

$$(\rho_s - \rho) = d^k \quad \dots (8)$$

によって表される。

K_p は急速ろ過プロセスでは 1.0–1.5 の値を示し、ALT 比によって変化する。

したがって(2)式は

$$F_{pi} = \frac{\pi}{6} g \cdot d^2 \cdot k_i \quad \dots (9)$$

となり、重力・浮力の項は、より影響しにくくなる。

最大フロック径は、乱流破壊とフロック強度の平衡によって決定される。したがって、前途のように循環型クロスフロー式膜ろ過では、フロックの密度と粒径が変化することを留意する必要がある。

乱流下でのカオリン凝集粒子は 1 μm オーダーの単一カオリン粒子が通常の凝集プロセスでは一般的に数十～数百 μm の凝集粒子になるものと推察される。したがって、凝集粒子間の粘着力を考えない場合は、ごくわずかの粒子径の増加で膜面上に堆積できないはずである。しかし、顕著な透過流束の低下が生じない ALT 比は 0.004 より現れ、0.01 以上で顕著であることを考えると、凝集粒子間の力を考慮することが示唆された。

6. おわりに

クロスフロー下の場合、凝集フロックがその密度と粒径分布を変化させないと仮定し、凝集フロック間の凝集力も無視すれば、前途のモデル解析で、クロスフロー型膜ろ過のケーキ形成過程を再現することは可能であるが、今後さらなる評価、検討が必要である。

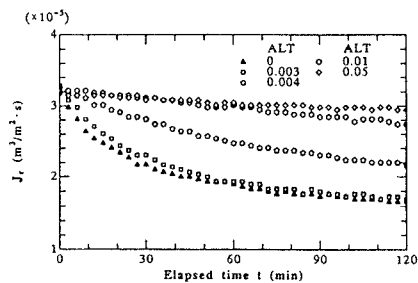


図-1 ALT 比による透過流束の変化

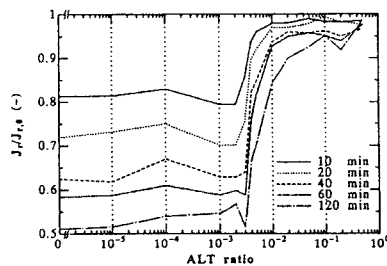


図-2 ALT 比による透過流束比 $J_t/J_{t,0}$ の時間的变化

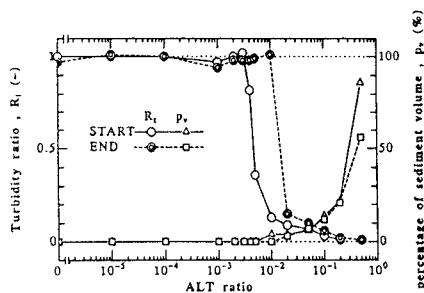


図-3 ALT 比と循環混合前後の沈殿体積率 P_s と濁度比 P_t の変化

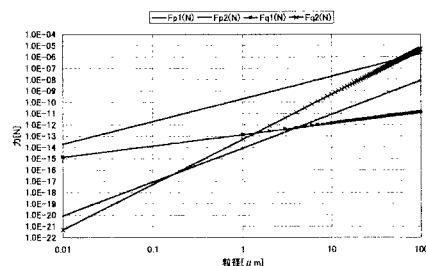


図-4 粒子に働く力と粒径 (クロスフロー流速 0.5m/s, 透過流束 1m/d)