

(13) 膜分離プロセスにおける操作因子、液中成分の透過フラックスに及ぼす影響に関する基礎的研究

BASIC STUDY ON EFFECT OF OPERATIONAL FACTORS AND CONSTITUENT SUBSTANCES FOR PERMEATION FLUX IN ULTRA MEMBRANE FILTRATION

西村和之*、河村清史*、伊藤雅喜*、真柄泰基*

Kazuyuki NISHIMURA*, Kiyoshi KAWAMURA*, Masaki ITOH*, Yasumoto MAGARA*

ABSTRACT; Operational conditions, in solid-liquid separation, of a cross-flow type ultra membrane filtration system were experimentally examined to make a proper formulation of permeation flux.

Pure water with and without selected constituent substance such as polyethylene glycol and activated sludge as used as water sample.

Pure water was used to obtain the basic information of filtration. Permeation flux as well as membrane resistance(R_m) was affected predominantly by applied pressure to the filter (P). R_m was increased consistently according to the increase of P and formulated as a function of P . The other samples showed various behavior of the flux and filtration resistance. The resistance caused by cake-layer and/or gel-layer(R_{cg}) was obtained by reducing R_m from the filtration resistance and formulated by substance weight attached on unit filter surface area, compression factor (n) of the attached substance and P . The permeation flux was satisfactorily expressed by introducing R_m and R_{cg} , and the behavior of it to P was explained by the magnitude of the compression factor (n).

KEYWORDS; Ultra membrane filtration, Operational factors, Constituent substances, Permeation flux, Filter resistance, Cake resistance, Gel resistance

1. はじめに

近年、クロスフロー型の膜分離プロセスが固液分離^{1)~5)}、中水道^{6)~8)}、バイオリアクター^{9)~11)}等水処理分野で用いられるようになって来た。これらのうち固液分離プロセスとしての膜分離プロセスは、懸濁粒子の沈降性を考慮する必要がなく、また省スペースな施設を設計することが可能であることから、高負荷脱窒素処理方式を導入するし尿処理施設の増加とともに普及することとなった^{12)~13)}。膜分離における固液分離性能の一つである水の透過フラックスは、ろ過に用いる膜素材やその分画分子量、ろ過の推進力となる加圧力、膜面流速等の操作因子、および膜面上にゲル層やケーキ層を形成する成分含有量等の処理対象水の水質に関係する¹⁴⁾。

透過フラックスはこれら種々の因子が相互に影響した結果として規定されることから、膜分離プロセスにおける最も高い透過フラックスを得るために、膜そのものの諸性能やろ過条件によるろ過抵抗の増加との関係に關し定量的な解析を行わねばならない^{15)~16)}。

*国立公衆衛生院 The Institute of Public Health

本研究では、ろ過に及ぼす操作因子や処理対象水中成分の影響を明かにするため、限外ろ過膜を用いたクロスフロー型ろ過における各種操作因子や処理対象水中成分と透過フラックスとの関係について実験を行い、ろ過抵抗を用いて検討を加えた。

2. 実験方法

2.1 実験装置

実験装置は図-1に、モジュールの構造は図-2に示す。装置は有効膜面積 0.0336 m^2 の平膜型モジュール（流路断面積： $0.8 \times 10^{-4}\text{ m}^2$ ）を装着したクロスフロー型膜ろ過装置である。限外ろ過膜は公称分画分子量 $2,000,000$ の分離膜（栗田工業（株）製K-221、素材：ポリスルホン、膜厚： $150\sim 200\mu\text{m}$ 、支持布：ポリエステル不織布）を使用した。操作圧力は循環ポンプ圧力に加えて窒素ガスによる圧力でも制御できるようにした。また、試料水温を

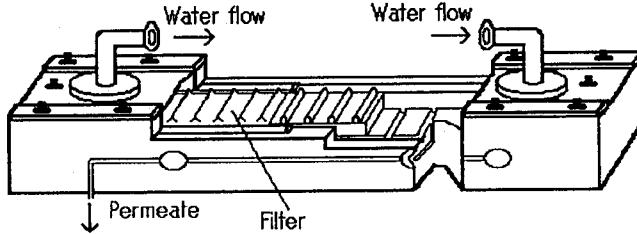
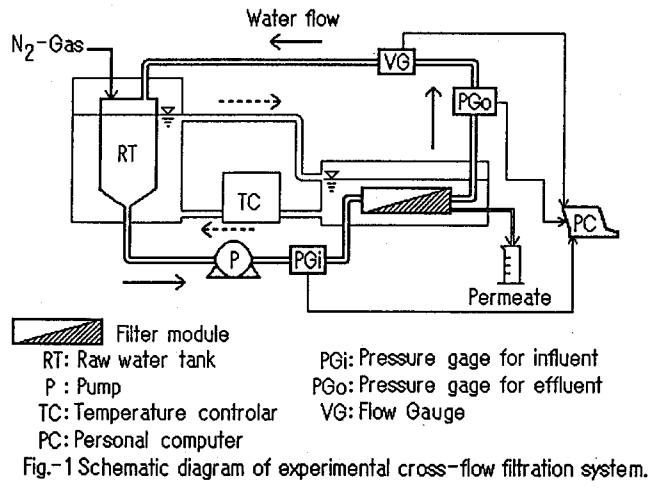
制御するためにモジュールと原水タンクは恒温水槽中に設置した。

2.2 試料

実験には、次の6種の試料を用いた①精製水試料（Pure Water）、②水の粘性を高めるために膜透過性のエチレンギリコール（以下EG）を精製水に溶解したEG試料（EG sol.）、③実験に用いた分離膜により90%以上阻止されかつ膜面上にゲル層を形成することを予め確認した平均分子量500,000のポリエチレンギリコール（以下PEG 500K）を精製水に溶解したPEG 500K試料（PEG 500K sol.）、④ケーキ層形成成分のモデル物質として考えた平均粒径 $30\sim 50\mu\text{m}$ のシリカゲル（以下Si-Gel）を精製水に分散させたシリカゲル試料（Si-Gel）、⑤PEG 500KとSi-Gelを混合し精製水にて溶解・分散させた混合試料（SiGel+PEG）及び⑥スキムミルクを基質として培養している活性汚泥（精製水で洗浄）を精製水に懸濁させた生物フロック試料（A. Sludge）を用いた。なお、すべての試料はpHを7.2に調整して実験に使用した。

2.3 操作条件

操作圧力は、ポンプの吐出圧と窒素ガスによる加圧力との合算値である入口側圧力で制御し、膜面流速は、循環流量とモジュール流路断面積から計算される断面平均流速に等しいとし、循環流量を変えることにより制御した。また、前述のようにモジュールと原水タンクを恒温水槽中に設置することにより試料水温を一定にした。



本研究は基礎的情報の把握を目的とし、膜の履歴があまり影響を及ぼさない条件下での各種因子と透過フラックスの関係の解明を試みた。従って、膜、試料及び粘性が同じ条件下で、できるだけ多くの圧力と膜面流速の組み合せにおける透過フラックスを測定するために、各条件下での実験時間は5分間とした。実験手順は、原水タンクに試料を入れ水温調整し、膜面流速を設定した後窒素ガスにより入口圧力を設定した。透過フラックスは条件設定後装置が安定した後5分間の内2分目から4分目の2分間に流出したる液量から算出した。

ろ過膜は、精製水試料による実験では実験温度毎に交換し、その他の試料の実験では試料または試料濃度を変える毎に交換し実験温度毎の交換は行わなかった。ろ過膜は、交換の度に操作圧力392.3 kPa、循環流量18 L/min(膜面流速3.6 m/s)の操作条件で1時間精製水を透過させることによってろ過膜のスポンジ層を圧密させる前処理を行い、膜透過性の差異による透過フラックスの誤差を少なくするようにした。この操作により膜抵抗は初期の約1.7倍になったが、その後に同一条件で5分間運転しても膜抵抗は直前の値の5%以下の低下しか示さなかった。

実験を行った水温、試料種類及び濃度の組み合せを表-1にまとめる。

Tab.-1 Experiments conditions

2.4 透過フラッ

クスとモジュール圧

力の算出

実験は、各試料、

各温度毎に操作圧力

及び膜面流速を変化

させて透過フラック

スを測定し、別に試

料の動粘性係数を測

定した。ろ過抵抗

(膜抵抗とゲル層抵

抗やケーキ層抵抗を

合わせたもの)は、

式(1)で定義されるこ

と¹⁷⁾から、次式(1)

より求めた。

Sample Conc. (mgC/l)	Pure Water	EG Sol.		PEG 500K Sol.		
		200	10000	50	100	200
Temp (°C)						
16	○	○	○	○	○	○
20	○	○	○	○	○	○
24	○	○	○	○	○	○
31	○	○	○	○	○	○

Sample SS (mg/l)	Si-Gel	SiGel+PEG*	A.Sludge	
	12000	12000	5760	16050
Temp (°C)				
16	○			
20	○			
24	○	○	○	○
31	○			

The pH of all samples was adjusted to 7.2.

* : This sample is a mixture of Si-gel 12000 mg/l and PEG 500K 100 mgC/l

Applied velocity : 1.2, 2.4, 3.6, 4.8, 6.0, 7.2 m/sec.

Driving pressures : 196.1, 294.2, 392.3, 490.3 kPa.

$$J = \frac{P}{\eta \cdot (R_m + R_g + R_c)} \quad (1)$$

J : 透過フラックス (m/d)

P : 加圧力 (Pa)

η : 動粘性係数 (Pa·s)

R_m : 膜抵抗 (1/m)

R_g : ゲル層抵抗 (1/m)

R_c : ケーキ層抵抗 (1/m)

なお、ゲル層抵抗には膜内部での物質の詰まり抵抗を含んだものとしている。

前述のように操作圧力として入口側圧力値を用いたが、入口側圧力センサーと出口側圧力センサー間の管路部で圧力損失が生ずるので、膜面上に加わる真の圧力と操作圧力の間にズレが生じる。モジュールを取り外し管路を直結した状態で求めた管内流速と差圧力(入口圧力値 - 出口圧力値)との間に式(2)に示す関係

が成立していた。

$$P_L = 0.001067 \cdot V^2 \quad (2)$$

P_L : 差圧力 (kPa)

V : 管内流速 (m/s)

そこで、この圧力損失は両圧力センサー間の管路長と曲がりの数にのみ依存すると仮定し、式(2)と Bernoulliの式を応用し摩擦損失係数 f を算出した。さらに Manningの式(3)より、粗度係数を逆算し $n=0.013$ を得た。

$$f = 124.5 \cdot n^2 / D^{1/4} \quad (3)$$

f : 摩擦損失係数

n : 粗度係数

D : 管直径 (m)

得られた粗度係数とモジュールを接続した場合の管路長及び曲がりの数から Bernoulliの式を応用し入口側圧力センサーとモジュール入口間、モジュール出口と出口側圧力センサー間の管路内流速による圧力損失の係数を求め、それらの値と管内流速から各センサーとモジュールまでの圧力損失を計算した。実測した各センサーでの圧力値と求めた圧力損失値からモジュールの入口および出口での圧力を算出し、両者の平均値を膜面上に加わる圧力（以下：モジュール圧力）とした。なお、全ての実験条件下で管路内の流れは乱流であったことから、試料粘性が変化しても管路内の圧力損失係数は変化せず、試料粘性の違いがモジュール圧力算定に影響を及ぼさないと考えた。

3. 実験結果

3.1 精製水試料およびEG試料の結果

精製水試料とEG試料 (EG 10,000 mgC/L) の24°Cにおける膜面流速と透過フラックスの関係を図-3に示す。各操作圧力で透過フラックスは膜面流速の増加と共に低下する傾向を示しているが、これは主として前述したように膜面流速の増加に伴う圧力損失によりモジュール圧力が低下するためと考えられる。なお、透過フラックスは試料により2倍以上の差を示しているが、これは使用した膜が異なるためであり、実験に用いた膜の特性である。

この結果をモジュール圧力と透過フラックスとの関係として表わすと図-4のようになる。

図中の点線は透過フラックスの増加傾向が加圧力の増加とともに直線的に増加すると仮定し、圧密の影響の少ない低いモジュール圧力域でのモジュール圧力と透過フラックスの関係を直線的に延長した場合の傾向線である。図にみるようにいずれの試料でも、透過フラックスの値は図中の点線より下にずれている。また、実験結果をモジュール圧力と膜抵抗との関係として表わすと膜抵抗は図-5に示すようにわずかながらモジュール圧力の増加と共に増加している。このことは、膜の異方性構造¹⁸⁾から考えて、主に加圧力の増加により膜のスポンジ層が圧密し膜抵抗が増加し透過フラックスは加圧力の増加と共に増加するが、その増加傾向が加圧力の増加と共に小さくなるためと考えられる。

実験結果から、モジュール圧力と膜抵抗の関係について式(4)を想定し、実験結果から温度毎に指數回帰させて各係数を求める表-2に示すようになる。 R_{M150} は実験条件の下限に近い150 kPaにおける膜抵抗であ

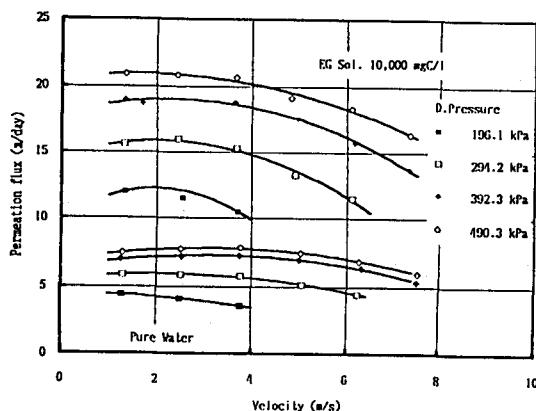


Fig.-3 Relationship between velocity and permeation flux in pure water sample and EG solution (at 24°C)

る。

$$R_m = R_{m150} \cdot a^{(P_m - 150)} \quad (4)$$

R_m : 膜抵抗 ($1/m$)

R_{m150} : 150 kPaにおける膜抵抗 ($1/m$)

a : 係数

Pm : モジュール圧力 (kPa)

表-2より、係数 aは精製水試料のように膜が異なる場合も、EG試料のように同じ膜で試料粘性を変化させた場合でもほとんど変化しない。一方、 R_{m150} については、膜の違いや同一膜の履歴により変化するものと考えられる。

本研究では、同一試料の実験は同一膜を用いて行ったが、全ての実験条件で膜抵抗を実測することは、くりかえし使用による溶質の膜への影響を取り除くことができないことから実験上不可能である。

したがって、以下の検討における R_m は、式(4)により定めることとしたが、係数 aについては表-2に示した全ての値の平均値 1.0009を用い、 R_{m150} については膜面流速6.0, 7.2 m/sで得られたろ過抵抗とモジュール圧力の関係をもとに図より推定した。

3. 2 PEG 500K試料、Si-Gel試料、混合試料および生物フロック試料の結果

PEG 500K試料、Si-Gel試料、混合試料および生物フロック試料について、24°Cの結果をモジュール圧力と透過フラックスの関係として図-6に示した。なお、図中の実線は後述する式(9)を用いて計算した透過フラックスを表わしている。

PEG 500K試料の場合、透過フラックスはモ

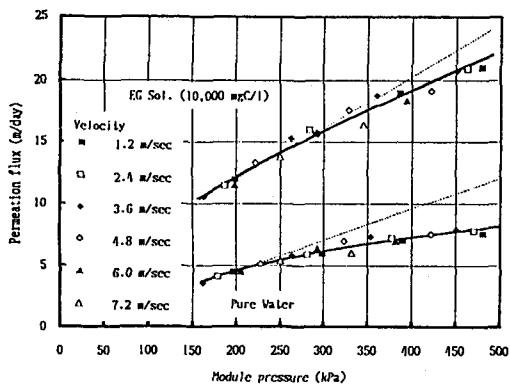


Fig.-4 Relationship between module pressure and permeation flux in pure water sample and EG solution (at 24°C).

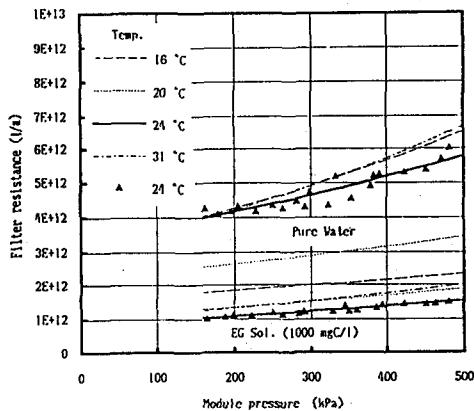


Fig.-5 Relationship between module pressure and filter resistance in pure water sample and EG solution (at 24°C).

Tab.-2 Factor a, R_{m150} and kinematic viscosity of various samples at different water temperature

Temp.(°C)	Pure Water			EG Sol. (200 mgC/l)			EG Sol. (10000 mgC/l)		
	Factor a	R_{m150}	η (Pa·s)	Factor a	R_{m150}	η (Pa·s)	Factor a	R_{m150}	η (Pa·s)
16	1.0014	3.98E+12	0.0011	1.0001	2.32E+12	0.0012	1.0008	1.78E+12	0.0013
20	1.0009	2.53E+12	0.0010	1.0005	2.14E+12	0.0011	1.0011	1.29E+12	0.0013
24	1.0011	3.94E+12	0.0009	1.0006	2.05E+12	0.0010	1.0012	1.04E+12	0.0013
31	1.0015	3.91E+12	0.0008	1.0003	3.21E+12	0.0009	1.0014	1.25E+12	0.0011

η : Kinematic viscosity

ジュール圧力と共に増加し、同一モジュール圧力の場合は膜面流速が速いほど大きな値となる傾向を示したが、4.8 m/sec以上の膜面流速域では変化しなくなる。

一方、シリカゲル試料や混合試

料でもモジュール圧力の増加と共に透過フラックスは増加する

が、これらの場合、膜面流速の影響は小さく、あるモジュール圧力以上では頭打ちとなり平衡的な値を持つ傾向を示している。

また、混合試料

では、その他の試料の結果と異なり膜面流速が

速いほど透過フラックスが小さくなっている。生物フロック試料の場合、SS濃度の低い試料ではシリカゲル試料や混合試料と同様の傾向であるが、特に膜面流速の遅い場合には、透過フラックスはモジュール圧力の増加にともない上に凸の曲線を描く傾向を示している。一方、SS濃度の高い生物フロック試料では、膜面流速の遅い場合は、透過フラックスはモジュール圧力の増加と共に減少するが膜面流速が速い場合には、透過フラックスがモジュール圧力の増加に対してあまり変化しない場合や増加する場合が認められる。

このように試料によりモジュール圧力と透過フラックスの関係は大きく異なる。また、これらの結果をモジュール圧力とろ過抵抗の関係として見ると図-7のようになり、ろ過抵抗はモジュール圧力の増加とともに増加する傾向を示している。また、混合試料の場合を除き膜面流速が 4.8 m/secを越える

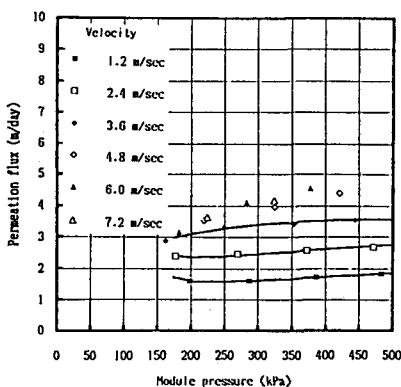


Fig.-6a Relationship between module pressure and permeation flux in PEG 500K solution (at 24°C)

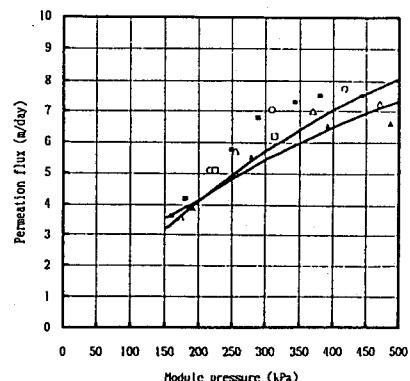


Fig.-6b Relationship between module pressure and permeation flux in PEG Si-Gel suspension (at 24°C)

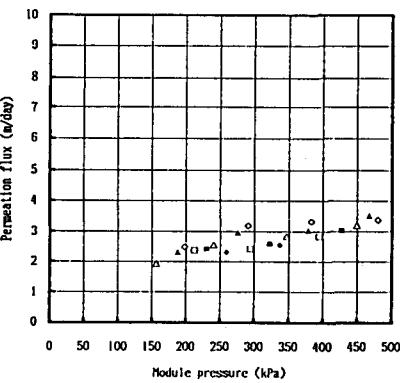


Fig.-6c Relationship between module pressure and permeation flux in mixed suspension (at 24°C)

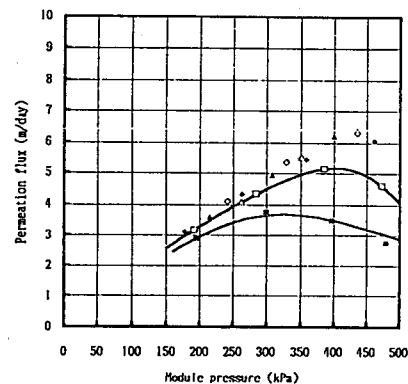


Fig.-6d Relationship between module pressure and permeation flux in A.Sludge suspension (SS 5760 mg/L; at 24°C)

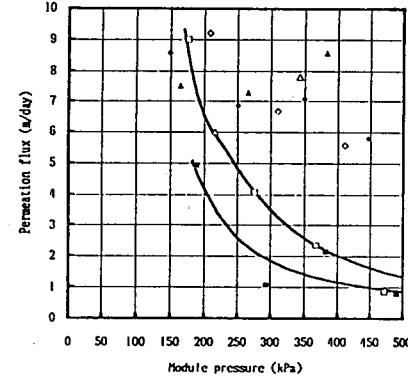


Fig.-6e Relationship between module pressure and permeation flux in A.sludge suspension (SS 16650 mg/L; at 24°C)

条件ではろ過抵抗と計算した膜抵抗とが近づく傾向を示している。なお、図中の点線は、実験結果より推定した Rm_{150} と $a = 1.0009$ を用いて式(4)より求めた Rm を表しており、実線は式(4)と後述する式(7)を用いて計算したろ過抵抗を表わしている。

4. 考察

4. 1 ろ過理論による実験結果の整理
実験結果をケイキろ過理論との関係で考察する。ろ過抵抗から膜抵抗を引いた値をろ過抵抗層による抵抗

(以下: Rcg) は式(5)に従い、ろ過抵抗層の部分比抵抗は式(6)に従うとすると、式(7)が得られる¹⁹⁾。

$$Rcg = \alpha \cdot (W/A) \quad (5)$$

α : 部分比抵抗 (m/kg)

W : ろ過抵抗層固体重量 (kg)

A : ろ過膜全面積 (m²)

Rcg : ろ過抵抗層による抵抗 (ゲル層抵抗 + ケイキ層抵抗)
(1/m)

W/Aは単位ろ過面積当たりのろ過抵抗層量に相当する。

$$\alpha = c \cdot P^a \quad (6)$$

α : 部分比抵抗 (m/kg)

c : 実験定数

P : 加圧力 (Pa)

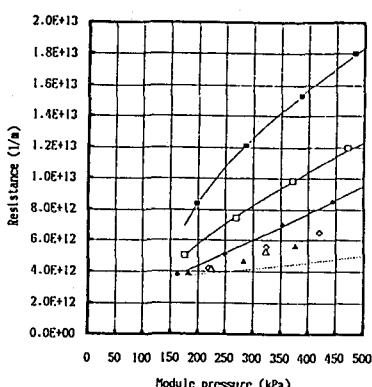


Fig.-7a Relationship between module pressure and resistance in PEG 500K solution (at 24°C)

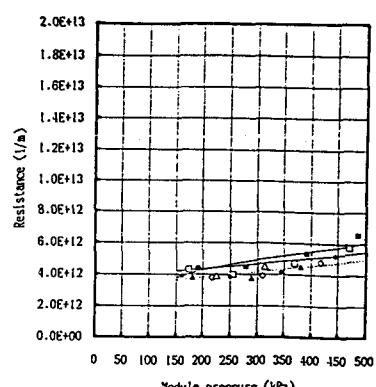


Fig.-7b Relationship between module pressure and resistance in Si-Gel suspension (at 24°C)

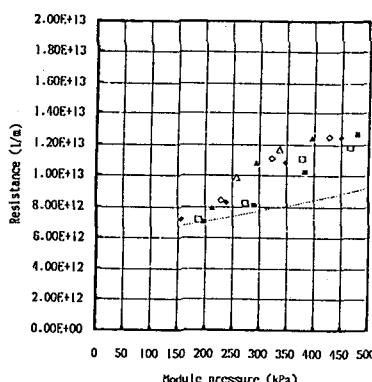


Fig.-7c Relationship between module pressure and resistance in mixed suspension (at 24°C)

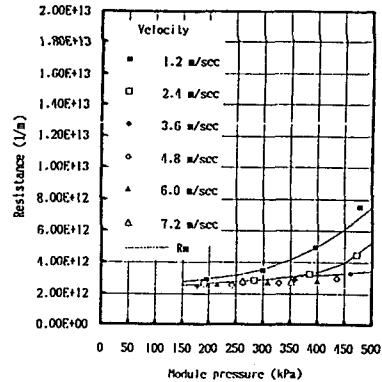


Fig.-7d Relationship between module pressure and resistance in A.sludge suspension (SS 5760 mg/L; at 24°C)

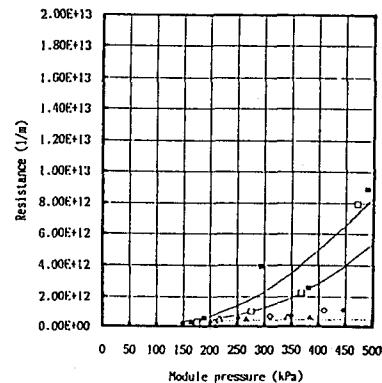


Fig.-7e Relationship between module pressure and resistance in A.sludge suspension (SS 16650 mg/L; at 24°C)

n : 圧縮係数

$$Rcg = (W/A) \cdot c \cdot P^n$$

(7)

式(7)は、Rcgが膜面上に形成されるろ過抵抗層量(W/A)とろ過抵抗層の部分比抵抗 α により決定されることを表わしている。

同一圧力の場合に膜面流速が速くなるとろ過抵抗層に対するかき取り効果が増加するが、これは式(7)中のWの減少として表わされる。したがって、Rcgは膜面流速の増加と共に減少しかき取り効果が限界に達すると一定の値となる。

一方、膜面流速が同一の場合では $(W/A) \cdot c$ が一定と仮定する

と、Rcgはモジュール圧力の関数となり、ろ過抵抗層の持つ圧縮係数の値により規定される。

これらの中でもろ過抵抗層量と実験係数cを乗じた値 $(W/A) \cdot c$ と圧縮係数nは、膜面流速毎にモジュール圧力とRcgの対数値を線形回帰させることにより求めることができる。実験結果から同一膜面流速で4つの異なるモジュール圧力値とRcgとの関係が得られる1.2, 2.4, 3.6 m/sの場合について、得られたモジュール圧力とRcgとの関係から $(W/A) \cdot c$ と圧縮係数nを求め各々表-3、表-4に示した。なお、ここでの加圧力Pはモジュール圧力から150 kPaを引いた値とした。

その結果、 $(W/A) \cdot c$ の値は、シリカゲル試料や混合試料の場合を除き膜面流速の増加と共に減少する傾向を示しており、膜面流速が増加するとかき取り効果が増加することから、膜面上のろ過抵抗層量が減少することが理解される。また、nの値は、ゲル層形成成分と想定されるPEG 500K試料では1以下ではほぼ一定であるが、生物フロック試料ではnが1を越えており、モジュール圧力の増加とともにRcgの増加傾向にはろ過抵抗層の圧縮性が関与していると考えられる。しかしながら、シリカゲル試料のように非圧縮性の懸濁物質でRcgとRmとの差が明瞭ではない場合には、計算に実験値誤差が大きく影響し結果がばらついたものと考えられる。また混合試料の結果は、他の試料と異なり膜面流速が速いほど透過フ

Tab.-3 $(W/A) \cdot c$ and kinematic viscosity of various model samples.

	Temp.(°C)	η (Pa·s)	Velocity (m/sec)		
			1.2	2.4	3.6
PEG 500K Sol. 50 mgC/l	16	0.0012	2.83E+11	3.80E+10	-
	20	0.0012	1.77E+11	1.19E+09	-
	24	0.0012	2.27E+11	3.43E+10	-
	31	0.0009	2.49E+11	1.09E+10	-
PEG 500K Sol. 100 mgC/l	16	0.0013	2.32E+11	1.94E+10	-
	20	0.0012	4.05E+11	3.33E+10	-
	24	0.0010	2.89E+11	4.95E+10	-
	31	0.0010	2.47E+11	6.86E+10	-
PEG 500K Sol. 200 mgC/l	16	0.0013	1.02E+12	5.29E+11	2.26E+11
	20	0.0013	5.72E+11	1.28E+11	1.52E+10
	24	0.0013	5.58E+11	1.33E+11	9.04E+09
	31	0.0011	6.48E+11	1.08E+11	-
Si-Gel 12 g/l	16	0.0012	2.38E+13	5.02E+09	4.12E+10
	20	0.0011	4.40E+10	1.50E+11	-
	24	0.0010	9.97E+10	5.82E+11	-
	31	0.0008	2.84E+11	1.61E+13	-
Si-Gel + PEG	24	0.0010	4.48E+11	1.36E+09	1.49E+11
A.Sludge 1	24	0.0020	5.78E+05	1.60E-05	-
A.Sludge 2	24	0.0060	5.00E+08	2.27E+07	-

A.Sludge 1 : SS 5760 mg/l

A.Sludge 2 : SS 16650 mg/l

Tab.-4 Compression factor of various model samples.

	Temp.(°C)	Velocity (m/sec)		
		1.2	2.4	3.6
PEG 500K Sol. 50 mgC/l	16	0.61	0.87	-
	20	0.68	1.47	-
	24	0.63	0.86	-
	31	0.61	1.07	-
PEG 500K Sol. 100 mgC/l	16	0.62	0.99	-
	20	0.53	0.90	-
	24	0.60	0.83	-
	31	0.61	0.75	-
PEG 500K Sol. 200 mgC/l	16	0.45	0.44	0.47
	20	0.55	0.69	0.97
	24	0.54	0.69	1.06
	31	0.52	0.74	-
Si-Gel 12g/l	16	-0.69	0.80	0.43
	20	0.54	0.28	-
	24	0.40	-0.04	-
	31	0.21	-0.83	-
Si-Gel + PEG	24	0.24	1.35	0.53
A.Sludge 1	24	2.68	6.71	-
A.Sludge 2	24	1.65	2.10	-

A.Sludge 1 : SS 5760 mg/l

A.Sludge 2 : SS 16650 mg/l

ラックスが小さくなつたことに
よると考えられ
るが、その理由
については明ら
かではない。

4. 2 透過フ ラックスとレイ ノルズ数（以下 Re）の関係

図-7より、膜
面流速の 4.8m/
sを越える条件で
はろ過抵抗が計
算される膜抵抗
に近づく傾向が
認められる。こ
のことから本実
験系では、膜面
流速によるろ過
抵抗層のかき取
り効果が膜面流
速 4.8 m/s付近
で限界に達する
ものと考えられ
る。この結果を、

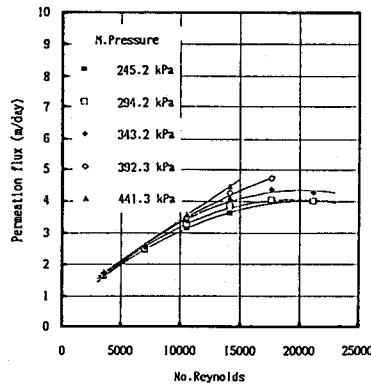


Fig.-8a Relationship between
Re and permeation flux in
PEG 500K solution (at 24°C)

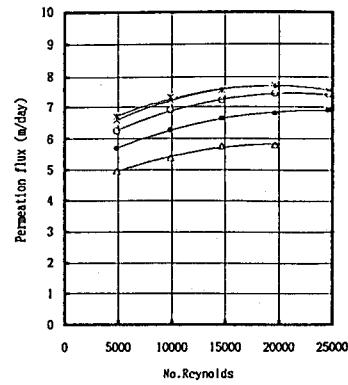


Fig.-8b Relationship between
Re and permeation flux in
Si-Gel suspension (at 24°C)

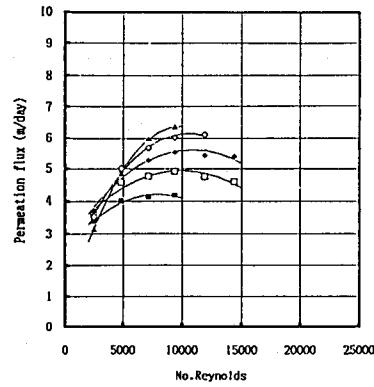


Fig.-8c Relationship between
Re and permeation flux in
A.sludge suspension
(SS 5760 mg/L; 24°C)

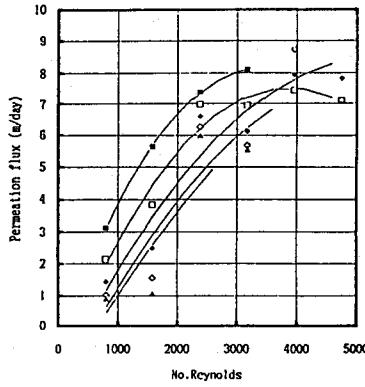


Fig.-8d Relationship between
Re and permeation flux in
A.sludge suspension
(SS 16650 mg/L; 24°C)

膜面流速の代わりに試料の動粘性係数をも考慮に入れることのできるReを用い、図-6から一定のモジュール圧力に対する膜面流速と透過フラックスの関係を読みとりReと透過フラックスの関係として図-8を得た。なおReは、試料の動粘性係数、膜面流速及び潤辺から以下の式により求めた²⁰⁾。

$$Re = \frac{D \cdot V \cdot \rho}{\mu} \quad (8)$$

Re : レイノルズ数

D : 相当直径 (D = 4A/S ; A:管路断面積 m², S:潤辺 m)

V : 膜面流速 (m/s)

ρ : 試料密度 (g/mL)

μ : 試料粘性 (Pa·s)

いずれの結果も透過フラックスは、あるReまでは増加するがそれ以降平衡に達している。しかしながら、PEG 500K試料やシリカゲル試料等の動粘性係数の低い試料の場合は、その平衡に達するReが15,000前後で一定であるが、生物フロック試料の場合は一定でなく、粘性が大きくなると極度に小さなReで平衡に達している。

4. 3 透過フラックスに及ぼすモジュール圧力の関係

図-6および表-4より、nが0.6~0.7付近にあるPEG 500K試料の場合には透過フラックスはモジュール圧力と共に増加するが、nが1を越えている生物フロック試料の場合には操作因子の違いにより透過フラックスがモジュール圧力の増加と共に上に凸の曲線を描いたり、低下する一方であった。

これは、膜面流速が同じ場合はかき取り効果が一定であると仮定すると、 $(W/A) \cdot c$ は定数となることから、式(7)より求められるRcgは圧力の関数となり、式(4)と式(7)を式(1)に代入して求められる透過フラックスは式(9)のように圧力の関数となる。これをPについて微分すると式(10)となる。

$$J = \frac{P}{\eta \cdot \{b \cdot a^{(P-150)} + K \cdot (P-150)^n\}} \quad (9)$$

b : Rm_{150}

K : $(W/A) \cdot c$

$$\frac{dJ}{dP} = \frac{(1-P \cdot \log a) \cdot b \cdot a^{(P-150)} + \{(1-n) \cdot P - 150\} \cdot K \cdot (P-150)^{(n-1)}}{\eta \cdot \{b \cdot a^{(P-150)} + K \cdot (P-150)^n\}^2} \quad (10)$$

式(10)において、Pが本実験条件内($150 < P \leq 490$)であれば分子の第1項 $(1-P \cdot \log a) \cdot b \cdot a^{(P-150)}$ は常に正である。一方、第2項はnの値により正、負が異なる結果となる。すなわち $\{(1-n) \cdot P - 150\} = 0$ となるようなnの値(実験条件内では0.6~0.7の間となる)未満の場合は第2項は正となり分子がすべて正となることから透過フラックスは加圧力と共に増加する。これに対してnがこれ以上の場合には、第2項は負となるので第1項と第2項の大小関係により分子は正にも負にもなり得ることから、図-6にみるような多様な関係が説明できる。

実験結果から求めた Rm_{150} や $a=1.0009$ 及び表-3、表-4に示した各数値と式(9)を用いて透過フラックスを計算し図-6に示した。図-6にみるように式(9)より計算した透過フラックスは実験結果をよく再現している。なお、シリカゲル試料や混合試料の結果については、4.1にみたように $(W/A) \cdot c$ とnの計算結果に対する実験値誤差が大きく影響していると考えられることから式(9)を用いた結果と実験結果の間に差が生じている。また混合試料については、実験結果の傾向が異なることから式(9)を用いた透過フラックスの計算は行われなかった。

5.まとめ

近年、水処理分野において導入されるようになったクロスフロー型の膜分離プロセスについて、各種操作因子と透過フラックスの関係を実験により求め、ろ過抵抗に及ぼす操作因子や液中成分の影響の把握を行った。

その結果を以下にまとめる。

(1) 膜抵抗は、予め十分な加圧力と膜面流速により精製水を透過させることにより膜のスponジ層の圧密を行った膜を使用しても、加圧力の増加と共に増加した。その増加は式(4)の関係にあり、aは膜や試料粘性によっても変化しないが、 Rm_{150} は用いる膜により変化する。

(2) 同一加圧力の場合、膜面流速によるろ過抵抗層のかき取り効果は、膜面流速の増加とともに大きくなり4.8 m/s以上では一定となる。すなわち、Rcgは膜面流速の増加とともに減少し4.8 m/s以上では平衡に達することが推定できる。この境界値をReで表した場合、PEG 500K試料やシリカゲル試料等では15,000で一定であったが、粘性の高い生物フロック試料では一定とならず、かなり小さな値となった。

(3) 同一膜面流速の場合、膜面流速によるろ過抵抗層のかき取り効果が一定であるとすると、Rcgはモジュール圧力の増加とともに増加するが、その増加傾向はろ過抵抗層の圧縮性により異なり、Rcgとモジュール圧力の間には式(7)が成り立つものと考えられる。

(4) 式(4)、式(7)および式(1)を組み合わせた式(9)を用いて透過フラックスの圧力による変化傾向を説明することができた。

謝辞

本研究における実験について、東海大学工学部土木工学科、大川勝君（現山梨大学工学部修士課程生）および東洋大学工学部土木工学科、松下貴俊君（現豊橋市役所）の協力をえたことに感謝いたします。また、本研究は(財)公衆衛生振興会より研究助成金の交付を受け実施した。

[参考文献]

- 1) Kazuo Yamamoto, Masami Hiasa, Talat Mahmood & Tomonori Matsuo; Direct Solid-Liquid Separation Using Hollow Fiber Membrane in an Activated Sludge Aeration Tank, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 21, pp. 43-54, 1989
- 2) 益本 正憲、小西 克育、砂原 広志、正藤 英司、大野 省太郎：活性汚泥－平膜限外ろ過による下水の長期運転処理、第23回水質汚濁学会要旨集、p. 205, 1989
- 3) 菅原 正孝、大田 崇史、宮下 正康：UF膜併用活性汚泥法の処理特性、第23回水質汚濁学会要旨集、p. 203, 1989
- 4) 南家 捷成、佐藤 栄祐、梶山吉則：菌体分離における膜評価方法の検討、第23回水質汚濁学会要旨集、p. 213, 1989
- 5) 橋爪 隆夫、野口 仁、田井中 友幸、藤瀬 和彦：既設し尿処理施設の膜分離方式への改造について、第10回全国都市清掃研究発表会公演論文集、p. 29, 1989
- 6) 小泉 求：ビル用水の循環再生における膜の利用例：公害と対策、Vol. 20, No. 9, p. 23, 1984
- 7) 木村 尚史：膜利用における技術開発の現状と今後の動向：公害と対策、Vol. 20, No. 9, p. 2, 1984
- 8) 浜 光太郎、片山 茂、金山 彦喜、坂崎 章：限外ろ過膜法を組み込んだ排水の高度処理、用水と排水、Vol. 29, No. 10, p. 36, 1987
- 9) 中村 忠：嫌気性バイオリアクターと膜分離法の組み合せによる排水処理、用水と排水、Vol. 29, No. 10, p. 49, 1987
- 10) 日笠 勝：限外ろ過を組み込んだ高濃度活性汚泥法による排水処理、用水と排水、Vol. 27, No. 10, p. 43, 1985
- 11) 綾 日出教、並木 克之、小林 正裕、遠藤 栄志：膜分離嫌気性活性汚泥法による下水汚泥の消化、土木学会第44回年次学術公演会、p. 986, 1989
- 12) し尿処理施設構造指針解説（1988年度版）、（社団）全国都市清掃会議
- 13) 黒沢 義乗、武藏 昌弘、真柄 泰基、武藤 暉明：し尿処理施設の現状とその水質保全への対応に関する研究、水質汚濁研究、Vol. 10, No. 6, p. 33, 1987
- 14) Y. Magara, M. Itoh; The effect of operational factors on solid/liquid separation by ultra-membrane filtration in a biological denitrification system for collected human excrete treatment plant, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 23, pp. 1583-1590, 1990
- 15) 真柄 泰基、田中 勝、伊藤 雅喜：膜技術を利用したし尿処理技術の課題と展望、京都大学環境衛生工学研究会第11回シンポジウム講演論文集、p. 1-16, 1989
- 16) 浦野 紘平、藤江 幸一、中川 信一：膜を利用した生物処理法の現状と方向、水処理技術、Vol. 31, No. 4, p. 1, 1990
- 17) 浦瀬太郎、山本和夫：下水処理におけるクロスフロー濾過に係わる諸因子の検討、衛生工学研究論文集、Vol. 27, p. 55, 1991

- 18) 萩原文二、橋本光一：膜による分離法、講談社サイエンティフィック
- 19) 化学工学会(社)編：化学工学便覧第5版、丸善(株)
- 20) 金成英夫、遠藤郁夫：下水汚泥の摩擦損失係数に関する実験的研究－正方形断面管路における人工粗度について－、衛生工学研究論文集、Vol. 26, p. 71, 1990