

(31) 浸漬型中空糸精密濾過膜濃縮装置による
膜濾過物理洗浄排水の濃縮処理

—相模川原水による実証実験—

Retentate Thickening by Submerged Hollow-Fiber MF Thickener
in Membrane Water Purification Process
-Application to Raw Water from Sagami River-

○ 黄 建元 * (**), 滝沢 智 **, 藤田賢二 *
J.Y.HUANG, S.TAKIZAWA, K.FUJITA

ABSTRACT; Pilot-plant studies were carried out to verify the applicability of a newly developed micro-filter (MF) thickener for treatment and thickening of retentate coming out from membrane water treatment processes. The membrane thickener, which made use of the concentration polarization phenomena in the dead-end filtration process, was proved to be applicable to thickening of retentate having an average turbidity of 100 units and a maximum turbidity of up to 400 units at a filtration flux of 0.5 m/day. The water recovery ratio against raw water from Sagami River was more than 99 percent in the whole process of combined membrane water treatment and MF thickening. However, a high turbidity over 420 units caused a sudden increase of filtration resistance. The filtration resistance was maintained lower at a high filtration flux of 0.5 m/day than at a low flux of 0.3 m/day because turbid water was more rapidly excluded down to the bottom of the thickener at a higher filtration flux. Particle size distribution measurement revealed that the smaller particles with diameters of less than $3\mu\text{m}$ tended to remain suspended in the thickener and attached to the membrane, causing an increase of the filtration resistance.

KEY WORDS; concentrate thickening, concentration polarization, filtration resistance,
hollow-fiber micro-filter, particle size distribution, retentate.

1. はじめに

膜濾過法は、凝集・沈殿・砂濾過法に代わる新たな浄水処理方法として、様々な方向から導入が検討され、開発、適用が進められている¹⁾。膜の懸濁物質除去性能については、十分な評価がなされており、膜濾過法は小規模施設において実用化の段階に入った²⁾。しかしながら、今後、中・大規模施設に膜濾過法を適応するためには、解決すべきいくつかの問題が残っている。その中でも、物理洗浄排水の適切な処理方法を確立することが不可欠である^{3,4)}。

従来、物理洗浄排水の処理方法としては、濃縮槽を設けて重力沈降を行い、分離した上澄水を原水に返送する重力濃縮法がある。しかしながら、無薬注を基本とする膜濾過装置物理洗浄排水を重力沈降により濃縮するためには、濃縮槽内での長い滞留時間が要求され、実用的でない。また、凝集剤を用いると、滞留時間は短くなるが濃縮汚泥の保水性が高くなり、脱水機などにより水処理を行う際、脱水効率が悪くなるという不都合がある。

膜濾過から発生する物理洗浄排水量は、原水処理量の5%~10%である。物理洗浄排水量の増大は浄水の回収率を低下させ、さらに、除去された懸濁質成分や有機物および金属などを多く含むため、放流河川への影響が懸念されている⁵⁾。ここに、膜利用排水処理装置を用いれば、原水からの浄水回収率を高め、発生する排水量を低減することができる。

* 埼玉大学大学院理工学研究科 (Dept. of Science & Eng., Saitama University)

** 東京大学大学院工学系研究科 (Dept. of Urban Eng., The University of Tokyo)

*** 前澤工業(株) 研究開発部 (Dept. of Research & Development, Maezawa Industries, INC.)

そこで、本稿では、実河川水を処理する膜濾過装置から発生する物理洗浄排水を用いて、新しい濃縮機構³⁾に基づく膜濃縮装置のパイロットプラント実験を行った。

2. 1 パイロットプラント実験

本研究で用いた物理洗浄排水は、浸漬型中空糸精密濾過膜¹⁰⁾と内圧式中空糸限外濾過膜¹¹⁾を用いた膜濾過から排水される物理洗浄排水である。膜濃縮実験装置は、物理洗浄排水供給槽、排水供給ポンプ、膜モジュールと濃縮槽、吸引濾過ポンプ、エアープンプ、水逆洗ポンプ、逆洗水水槽、次亜塩素ナトリウム注入設備から構成されている。吸引濾過ポンプは膜濾過流速 0.5 m/day または 0.3 m/day となるようにインバータを介して定流量制御した。

実験装置の運転は、全量濾過 (30 分) → 部分排水 (1.5 秒 ~ 2 秒) → 物理洗浄 (1 分, エアースクラビングと水逆洗の組合) → 全量濾過のサイクルで行った。

Run-1 と Run-2 においては、週に一度濃縮槽内水を全量引抜いた後、水シャワー洗浄を行った。Run-3 においては、実験開始時に膜の張り具合と散気管の調整を行い、運転開始後は、週に一度濃縮槽内水を全量引

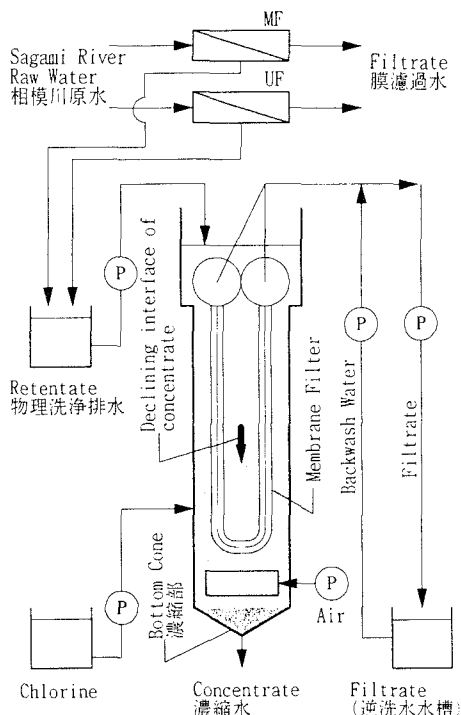


Fig. 1 Schematic of the Pilot-Scale Membrane Thickener

Table 1. Specifications of the Membrane

Item	Unit	Specification
Membrane material	—	polyethylene
Nominal pore size	μm	0.1
Surface area	m^2	4.0
Length	m	0.34 (U type)
Inner/Outer diameter	mm	0.27/ 0.41

Table 2. Operational Sequence

Parameters	Unit	Run-		
		1	2	3
Filtration flux	m/day	0.5 or 0.3	0.3	0.5
Filtration time	min	30		
Drain time	sec	1.5	2	
Drain volume	L	0.4	0.5	
Air-scrubbing time	min	1		
Back washing time	sec	10 or 30		
Air-scrubbing rate	L/min	80	150	
Back washing flow rate	L/min	1		
Calculation concentration rate	times	40 or 12	50	80
Bottom cone	L	2	0.5	
Membrane surface area ÷ Reactor volume ratio	m ² /m ³	670		

抜き、散気管の洗浄を行ったが、膜の水シャワー洗浄は行わず、代わりに 10 分間のエアースクラビングを行った。

また、すべての Run において凝集剤は無添加とし、週に一度、微生物繁殖による濾過抵抗を抑制するため、エアースクラビング時に塩素を槽内濃度約 10 mg/l となるように添加した¹²⁾。

2. 2 運転データの計測

膜濾過水流量、膜差圧、原水および物理洗浄排水の濁度と温度は 10 分間隔で自動記録した。

また、全濾過抵抗 R_T は、次式により求めた値を日平均値として表した。

$$R_T = R_M + R_C = \frac{\Delta P}{\mu J}$$

ここに、 R_T : 全濾過抵抗 (m^{-1})、 R_M : 膜抵抗 (m^{-1})、 R_C : ケーキ層抵抗 (m^{-1})、 ΔP : 膜差圧 (Pa)、 μ : 水の粘性係数 ($\text{Pa} \cdot \text{sec}$)、 J : 濾過流束 ($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$)。

2. 3 水質分析

水質分析は上水試験方法(1993)と STANDARD METHODS(1995)によった。濃縮水濁度、溶存有機炭素(DOC)、紫外部 260nm の吸光度(E_{260})、総鉄(Iron, total)、溶解性鉄(Iron, dissolved)、総マンガン(Manganese, total)、溶解性マンガン(Manganese, dissolved)、一般細菌数(HPC)、大腸菌群数(Coliform Group)は約 2 週間に 1 回の頻度で測定した。なお、溶解性鉄、溶解性マンガンは $0.45 \mu\text{m}$ のフィルターで濾過したものである。また、原水濁度および物理洗浄排水濁度はそれぞれ横河電気 (株) MODEL W301 濁度計および HACH (株) 6 型濁度計を用いて連続測定した。測定値はすべてカオリン濁度で表した。

2. 4 微粒子数の分布測定

Run-3 において液体用粒子カウンタ (倉敷紡績 (株) KP-100, 測定範囲: $3 \mu\text{m}$ 以下 $\sim 40 \mu\text{m}$) を用いて原水、物理洗浄排水、濃縮槽内水および濃縮水中の粒子径分布の測定を行った。

3. 実験結果と考察

3. 1 運転性

各 Run の主な物理洗浄排水水質を表-3 に示す。濁度の変化は図-2 から図-4 に示す。各 Run の水質指標の間では、Run-2 で若干高い一般細菌数が検出された他は、大きな変化は見られなかった。

Table 3. Retentate Quality Characteristics

Analysis	Run-1	Run-2	Run-3
Iron, total (mg/l)	7.16 - 17.61	1.45 - 23.30	3.39 - 43.00
Manganese, total (mg/l)	0.04 - 1.04	0.10 - 0.97	0.12 - 0.41
HPC (CFU/ml)	2.0E+3 - 4.0E+4	1.5E+3 - 2.0E+5	1.6E+2 - 7.4E+4
Coliform Group (CFU/100ml)	2.7E+2 - 7.0E+3	3.0E+3 - 2.0E+4	2.0E+1 - 1.3E+4

(1) 運転 Run-1

水温、濾過流束、濁度、ならびに全濾過抵抗 (以下、濾過抵抗という) の経時変化を図-2 に示す。運転初期の濾過流束設定は 0.5 m/day であった。水温は $5.5^\circ\text{C} \sim 29^\circ\text{C}$ の間で、原水濁度は 1 ~ 100 度、物理洗浄排水濁度は 16 ~ 650 度程度の間を推移した。

運転は冬から春にかけて約 5.5°C の低水温期に始めたが、低水温期に拘わらず、実験開始当初から 90 日目まで濾過抵抗を $1.72\text{E}+12 \text{ m}^{-1}$ 以下に維持することができた。

また、膜濾過にともなって濃縮槽内に上下方向の濃度差がはっきり見られるようになり、濃縮界面が形成された。濃度界面は濾過時間の経過とともに降下し、濾過時間が 20 分程度になると、膜モジュールの

下端に達した。また、実測濃縮率（濃縮水濃度÷物理洗浄排水濃度）と計算濃縮率 $\{(\text{膜濾過水量}-\text{逆洗水量})\div\text{濃縮部の体積}\}$ の差がほとんどなく、約40倍であった。

運転開始後82日目から90日目にかけて、物理洗浄排水の濁度が300度から650度以上昇した。このとき、濾過抵抗が急激な上昇を示し、92日目には $1.86\text{E}+13\text{ m}^{-1}$ になり、運転を中止した。また、膜濾過中の上下方向の濃度差と界面形成が見られず、実測濃縮率は計算濃縮率よりも小さく、約15倍であった。90日目から115日目までは膜を取り出して水シャワー洗浄をするなどしたが、回復効果は少なく、不安定な運転が続いた。そこで、115日目に10%過酸化水素水(H_2O_2)を用いて膜の薬品洗浄を実施し、濾過流束を0.5 m/dayから0.3 m/dayに変更して、運転を再開した。しかし、139日目および166日目の物理洗浄排水濁度がそれぞれ300度以上になると、薬品洗浄前と同じように、濾過抵抗を上昇する傾向が見られた。

以上より、物理洗浄排水の濁度300度以下では、濾過抵抗はほとんど上昇せず、膜モジュールを定期的にシャワー洗浄すれば、安定した濾過・濃縮運転操作が行えた。しかし、300度を大幅に上回る濁度は、濾過抵抗の急激な上昇を招いた。その後週に一度の水シャワー洗浄直後に濾過抵抗は下がるものの、全体的には高めの抵抗であった。

(2) 運転 Run-2

本実験の開始前に、膜濃縮槽内下部にある濃縮部の体積を2 Lから0.5 Lに縮小し、毎回の排出時に濃縮水を全量排出できるように改造した。また、濾過流束はすべて0.3 m/dayであった。

水温、濁度ならびに濾過抵抗の経時変化を図-3に示す。水温は $21.5\sim 5.5^\circ\text{C}$ の間で、また、原水濁度は1~80度、物理洗浄排水濁度は10~420度程度の間を推移した。

運転開始後、Run-2ではRun-1よりも高水温かつ安定した濁度であったにもかかわらず、濾過抵抗の上昇速度はRun-1よりも速かった。濾過流束0.3 m/day (Run-2)と0.5 m/day (Run-1の90日目迄)と比較すると、流束が速い方が濃縮界面の降下を起こしやすく、濾過抵抗の上昇が少いことが分かった。なお、この原因について、3.3節で後述する。

43日目には、エアースクラビング風量を80 L/minから150 L/minに増加した。エアースクラビング風量の増加は、濾過抵抗の一時的な低減には有効であった。しかし、運転日数の経過とともに、散気管からの吹出し空気に偏りが生じ、膜の張り具合が均一でなくなった。このため、これ以降はエアースクラビング洗浄の効果が著しく低下した。

その後65日目以降は物理洗浄排水濁度の低下にともなって、濾過抵抗も $1.04\text{E}+13\text{ m}^{-1}$ から $6.53\text{E}+12\text{ m}^{-1}$

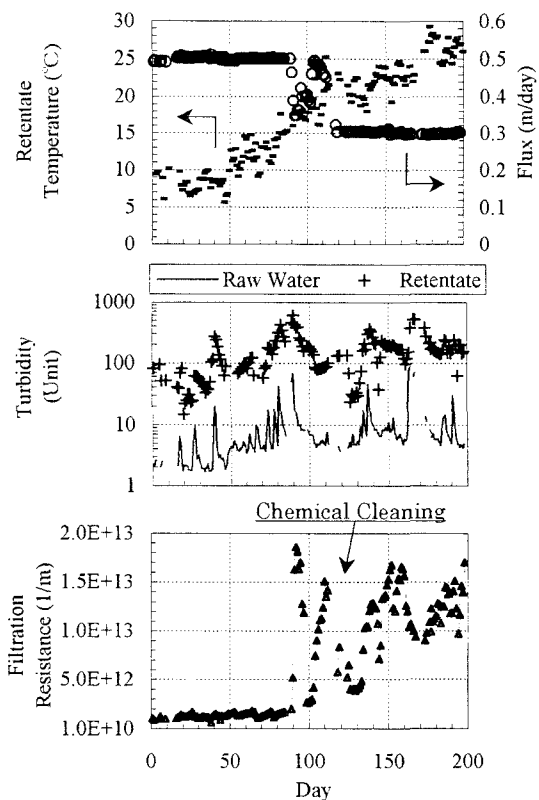


Fig.2 Performance of Membrane Thickener (Run-1)

まで下降した。しかしながら、77 日目に濁度約 420 度の物理洗浄排水の流入とともに濾過抵抗が再び上昇する傾向が見られた。ただし、Run-1 の高濁度時に見られた急激な濾過抵抗の上昇は見られず、濾過流速を下げて、濃縮高濁度水を全量排水すれば、一時的な高濁度の流入時期において、急激な濾過抵抗の上昇を起こしにくいことが確認された。

一方、24 日目から約 12 日間と 98 日目から約 14 日間の長期運転休止をしても、濾過抵抗は低下しなかった。

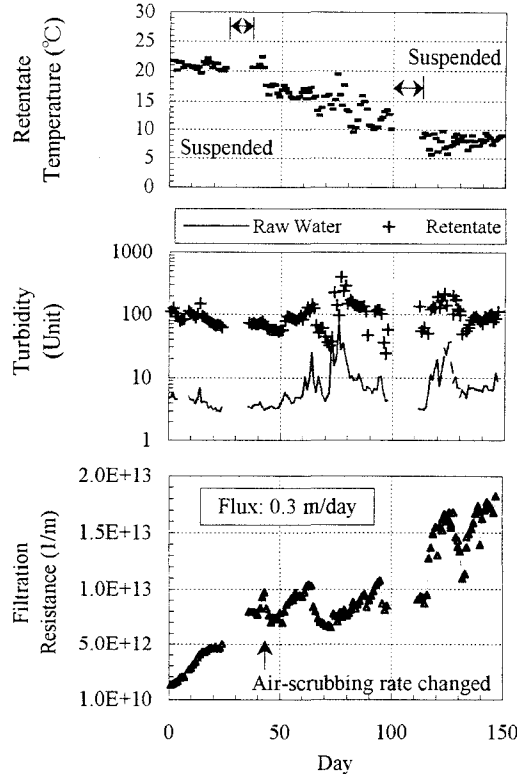


Fig 3 Performance of Membrane Thickener (Run-2)

(3) 運転 Run-3

Run-3 の開始時には、散気管の穴の配置を調整し、実験開始後は週に一度散気管の洗浄を行った。また、物理洗浄排水濁度が 300 度を超える場合は、原水を物理洗浄排水に混合することにより、濁度の急激な上昇を抑制した。また、濾過流速はすべて 0.5 m³/day であった。

水温、濁度、ならびに濾過抵抗の経時変化を図-4 に示す。物理洗浄排水水温は 30℃～6℃の間であった。台風および大雨により原水（河川水）濁度が 300 度以上となることもあったが、物理洗浄排水濁度は前述のように高濁度時の濃度の平準化ため、30～400 度程度の間を維持した。

運転初期の濾過抵抗上昇速度は速く、11 日間までは $7.34\text{E}+12 \text{ m}^{-1}$ になった。これは、濃縮した污泥がエアースクラビング用散気管中に入り、膜モジュール全体にわたって洗浄力が均一にならなかったためであるが、その後は定期的な散気管の洗浄により、その後の濾過抵抗は低下した。40 日目から 90 日目の間、定常期の濾過抵抗は同じ濾過流速であった Run-1 よりも高かったが、これは Run-1 では週に一度水シャワー洗浄を行っていたのに対し、Run-3 ではこれを行わなかったためである。

また、濃縮槽を観察すると、濾過時間の経過とともに水槽内濃度差による界面が生じ、さらに界面が下降して、約 15 分～20 分後には膜モジュール下端の濃縮部に達し、高濃度に保たれた。Run-3 の運転条件では、計算により約 80 倍の濃縮率となるが、運転経過とともに、実際には 70 倍程度に減少する傾向があった。その後 100 日目以降に、濾過抵抗が一旦上昇するが、120 日目から 150 日目まで物理洗浄排水濁度の低下とともに、濾過抵抗の上昇は抑えられた。また、150 日目以降も濾過抵抗は $1.0\text{E}+13\text{ m}^{-1}$ を超えることなく、Run-1 および Run-2 に比べて、安定した運転が行えた。

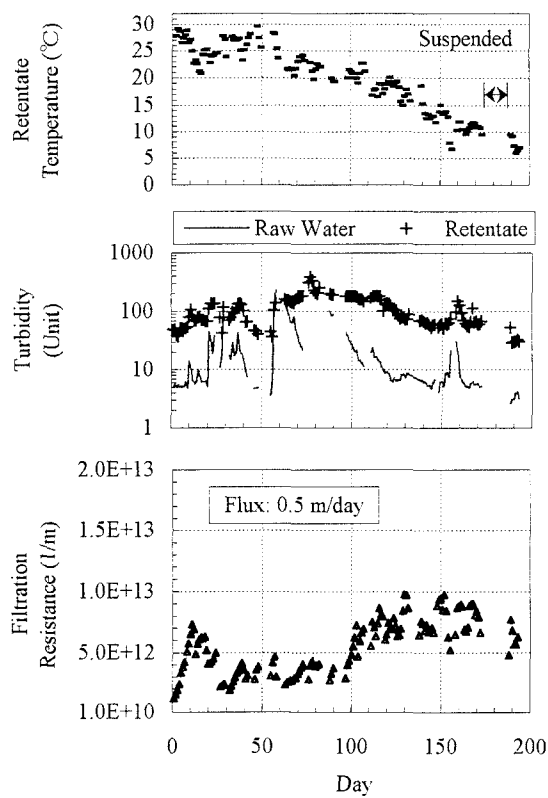


Fig.4 Performance of Membrane Thickener (Run-3)

3. 2 水質測定結果

Run-1～Run-3 の水質測定結果の水質の経時変化を表す一例として、Run-3 の測定結果を図-5 に示す。
物理洗浄排水中に含まれる鉄とマンガンはほぼすべてが懸濁態なので、膜濃縮槽内に捕捉され、濃縮水中に排出される。細菌類については、前段の二つの膜濾過装置において、物理洗浄時に塩素を添加していたために、原水（河川水）よりも小さく計数されることがあった。膜濃縮・濾過装置においては、塩素添加が週に一度 10 mg/l 程度であったために、残留効果はなく、いくつかの例外データを除いて、濁度と同様に 70 倍～80 倍に濃縮された。Run-1 および Run-2 の水質データからも同様な結果が得られた。濃縮槽からの膜濾過水平平均濁度は Run-1 から Run-3 を通じて 0.12 度以下と低く、表-4 に示すように、その他の水質項目も飲料水基準を満足していた。

Table 4. Summary of Filtrate Quality Analysis for Run-1 to 3

Analysis	Run-1	Run-2	Run-3
Turbidity (Unit)	0.10	0.12	0.09
Iron (mg/l)	0.011	0.017	0.006 (0.017) [※]
Manganese (mg/l)	0.010	0.014	0.003 (0.006) [※]
HPC (CFU/ml)	60	70	100
Coliform Group (CFU/100ml)	0	0	0
DOC (mg/l)	1.88	1.62	1.20
E ₂₆₀ (50mm-cuvette)	—	—	0.10

※ Raw water (dissolved)

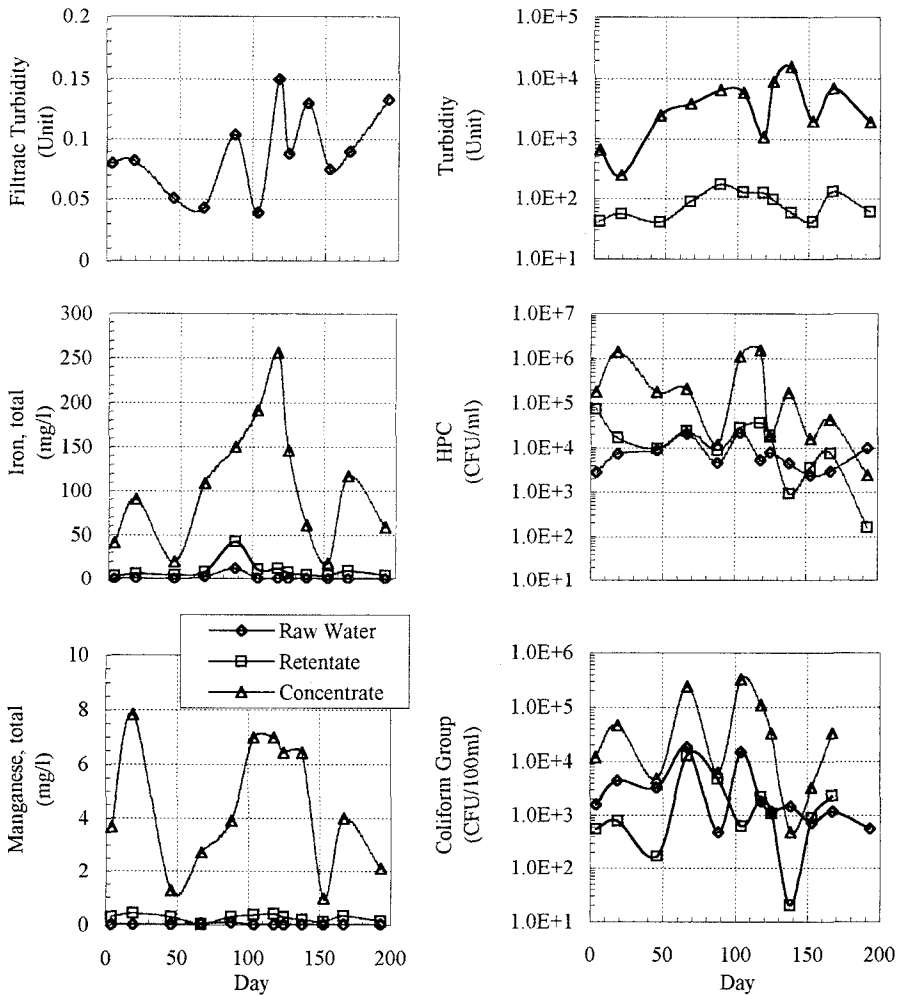


Fig.5 Water Quality Data of Run-3

3. 3 膜濃縮プロセスにおける粒子分布の変化

Run-3 における粒子径分布測定結果を図-6 および図-7 に示す。

図-6 は、原水（河川水）、物理洗浄排水、濃縮槽内水（膜上端から深さ 25cm、濾過開始 25 分後）および濃縮水中の粒子分布を比較するために、それぞれ粒子画分毎に粒子数(%)で示したものである。この図によると、粒径 $3\mu\text{m}$ 以下の画分は、原水で最も割合(%)が高く、物理洗浄排水、槽内水、濃縮水となるにつれて割合が低くなっている。反対に、粒径 $30\mu\text{m}\sim 40\mu\text{m}$ の画分は、この順に割合が高くなっている。粒径 $3\mu\text{m}\sim 30\mu\text{m}$ の範囲を見ると、わずかではあるが、濃縮水の割合が高くなっている。このことから、膜濃縮・濾過を経るにつれて、原水中の粒子は序々に粗大化して行くことが分かる。これは膜面に付着した粒子が、物理洗浄によって膜から剥離した後も微細化せず、凝集したままであったためと考えられる。

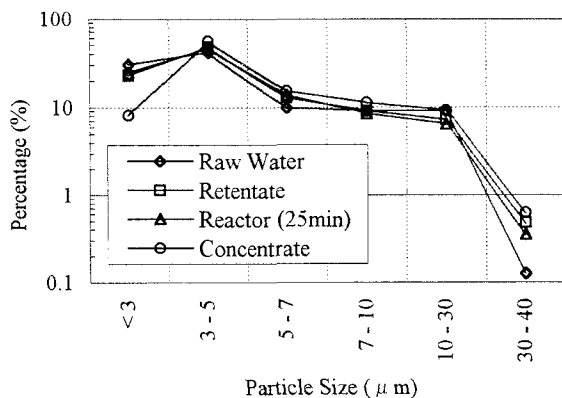


Fig.6 Particle Size Distribution in Run-3

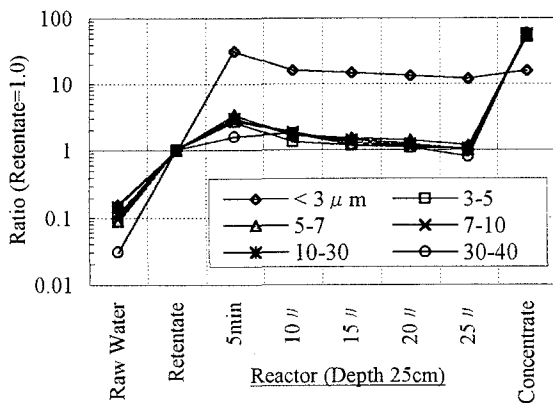


Fig.7 Change of Particle Size Distribution during Membrane-Thickening (Run-3)

図-7は、膜濃縮プロセスにおける各粒子画分の時間的な変化を見るために、各画分の物理洗浄排水中の濃度を1.0としてその変化を相対的な比で表したものである。同図から明らかなように、粒径 $3\mu\text{m}$ 以下の画分は、他の粒径の画分とは異なった挙動を示した。膜の物理洗浄後5分の時点で、 $3\mu\text{m}$ 以下の画分の流入水（物理洗浄排水）に対する槽内水の比率は他の粒径の粒子に比べて極めて高く、それだけ多くの粒子が膜に付着していたことを示している。濾過時間の経過とともに、濃縮された水塊は濃縮槽下方に降下して行くが、この過程においても粒径 $3\mu\text{m}$ 以下の画分は、他の画分のように流入水と同じレベルになるまでは低下せず、高い濃度のままである。さらに濾過工程終了直前の25分の濁度と、膜濃縮水の濁度とを比較すると、他の粒径画分では、濃縮水中の濁度が約80倍となり、効果的に濃縮が行われているのに対して、 $3\mu\text{m}$ 以下の画分では濁度にほとんど差がなく、濃縮槽下部においてまったく濃縮が行われていない。

以上に述べた粒子分布の測定結果から、本研究で用いた膜濃縮装置においては、粒径 $3\mu\text{m}$ 以下の画分が濃縮槽下部において濃縮および槽外排出されにくく、濃縮槽内に蓄積する傾向が見られた。このため $3\mu\text{m}$ 以下の微粒子は膜面により多く付着し、濾過抵抗上昇の一因となった。

4. 結論

膜濾過において発生する物理洗浄排水の効率的な濃縮法の開発を目的として、新しい濃縮機構に基づいたパイロット膜濃縮実験装置を2年間にわたり運転した。その結果、本装置の有効性に関して、以下の知見が得られた。

- 1) デッドエンド濾過にともなう濁質の濃縮作用を応用した本膜濃縮装置は、最大濁度400度、平均濁度100度の物理洗浄排水を流入水として、濃縮槽膜濾過流束 0.5 m/day 、濃縮率80倍、濾過抵抗 $1.0\text{E}+13\text{ m}^{-1}$ 以下で、最長半年間の連続運転をすることができた。さらに、従来の膜濾過浄水装置と本研究で開発した膜濃縮装置とを組み合わせることにより、全浄水処理工程での浄水回収率を99%以上に高め、排水量を格段に低減することができた。
- 2) しかしながら、降雨などにより一時的に原水濁度が上昇し、濃縮槽に420度を越える高濁度物理洗浄排水が流入する場合には、濾過抵抗が急激に上昇する問題があった。濃縮槽への流入物理洗浄排水の上限濁度は、装置の構造、運転方法、さらに濁度の粒径分布に依存するが、本膜濃縮装置を濁度が大幅に変動する条件下で運転するには、変動緩和策が必要である。
- 3) 濃縮槽の膜濾過流束 0.3 m/day と 0.5 m/day とを比較した場合、流束の速い 0.5 m/day の方が、槽内の高濁度水塊を、下部の濃縮部により速く降下させることができるため、濾過抵抗の上昇が抑えられることが分かった。ただし、一旦膜面にケーキ層が形成されると、 0.5 m/day では急激な濾過抵抗の上昇を招いた。
- 4) 濃縮槽濾過水濁度は、全運転期間を通じて 0.15 度以下と安定して低く、その他の水質分析項目も飲料水水質基準を満足するものであった。
- 5) 粒子数測定の結果、粒径 $3\mu\text{m}$ 以下の微粒子が、それ以上の粒子径のものより膜面に付着しやすく、濾過抵抗上昇の一因となっていることが示された。また、この画分は、本装置の濃縮操作において、他の大きな粒子画分より濃縮効率が低いという問題が見出された。このことから、本膜濃縮装置をより高効率化し、物理洗浄排水濁度変動に対応できるように改善するには、 $3\mu\text{m}$ 以下の微粒子分画の濃縮・分離効率を高める必要がある。

[付記]

長時間実験場所を提供頂いた横浜市水道局小雀浄水場の方々、また、膜の提供を頂いた三菱レイヨン(株)に感謝の意を表したい。最後に、一部のデータ採取にあたり、東京大学大学院(当時)李秉鎬 君の協力を得た。記して謝す。

<参考文献>

- 1) 藤田賢二：膜分離技術による浄水場の試設計，
水道協会雑誌，Vol. 59，No. 4，pp. 10-18 (1990)
- 2) 真柄泰基，国包章一：膜利用型新浄水システム開発研究(MAC21)とその進捗状況，
水道，Vol. 38，No. 9，pp. 1-7 (1993)
- 3) 藤田賢二，滝沢 智：「高度処理 MAC21」膜利用型新高度浄水技術開発研究，
研究事業報告書(平成6年度～平成8年度)，pp. 24-25，(社)水道浄水プロセス協会 (1994)
- 4) 藤田賢二(代表研究者)：浄水処理における膜分離排水の衛生的処理方法の開発，
平成7年度～平成9年度科学研究費補助金〔基盤研究(A)(1)〕研究成果報告書 (1998)
- 5) 膜を利用した浄水場排水処理に関するガイドライン(案)，(社)水道浄水プロセス協会 (1997)
- 6) 鈴木基之，藤井隆夫，大熊那夫紀：回転平膜による汚泥分離，
第29回日本水環境学会年会講演集，pp. 258-259 (1995)
- 7) 根本 茂，小沢春夫：セラミック膜による上水汚泥の濃縮，
第47回全国水道研究発表会講演集，pp. 240-241 (1996)
- 8) 黄 建元，牧 豊，滝沢 智：膜濾過洗浄排水の間欠吸引膜濾過濃縮－横浜市相模川表流水－，
第32回日本水環境学会年会講演集，p. 182 (1998)
- 9) 李 秉鎬，滝沢 智，藤田賢二：濃縮膜濾過装置による膜洗浄排水処理の濃縮，
水道協会雑誌，Vol. 66，No. 8，pp. 29-36 (1997)
- 10) 黄 建元，荒海純一，安楽幸一，滝沢 智，藤田賢二：塩素注入量の違いによる浸漬型中空糸膜の運転特性，第47回全国水道研究発表会講演集，pp. 200-201 (1996)
- 11) 荒海純一，黄 建元，小林幸夫，滝沢 智，藤田賢二：限外濾過膜薬品洗浄後の流束回復率，
第48回全国水道研究発表会講演集，pp. 220-221 (1997)
- 12) Huang, J. Y., Takizawa, S., Fujita, K. (1999). *Pilot-Plant Study of a High Recovery Membrane Filtration Process for Drinking Water Treatment*. Submitted for the International Specialized Conference on Membrane Technology in Environmental Management, Tokyo, Japan.