

1. はじめに

し尿処理における膜分離技術は、膜分離高負荷生物脱窒素処理技術がし尿処理施設構造の指針外技術として認定されたこともあり、普及が促進され、新規し尿処理施設建設実績に占める導入割合は年毎に大きくなっている¹⁾。このような状況の中で、透過フラックスの長期安定維持が課題の一つとなっている。

本研究は、この課題に対する一連の研究の一つとして活性汚泥懸濁液を試料とした3日間の連続ろ過実験を行ない、目詰まり等の進行した膜におけるろ過条件と透過フラックスとの関係を検討した。また、水処理メーカー数社のパイロットプラントや実処理施設でのろ過条件と透過フラックスの関係^{2), 3)}について検討を加えた。

2. 実験方法

実験はクロスフロー型膜分離装置⁴⁾で行なった。膜モジュールは、平膜型モジュールとチューブラー型モジュールを用いた。チューブラー膜は、分画分子量 20,000 のポリスルホン膜を用い、平膜型モジュールの場合、分画分子量 2,000,000 のポリスルホン膜（平膜Ⅰ）と分子量二百万のデキストラン阻止率が60～70%のポリスルホン膜（平膜Ⅱ）の2種類の膜を用いた。

実験は、循環流量18 L/min（膜面流速として平膜型モジュールの場合3.6 m/sec、チューブラー型モジュールの場合2.9 m/sec）の一定流速の下での3日間の連続ろ過である。操作圧力は150～350 kPaの範囲であり、平膜型モジュールでは8条件、チューブラー型モジュールでは4条件行なった。また、膜透過水はポンプにより原水タンクへ返送した。いずれの実験でも、試料水温は、恒温水槽により24℃に保った。

実験には、精製水と活性汚泥懸濁液（スキムミルクを基質として培養した活性汚泥を精製水で洗浄し、精製水に再懸濁させたもの）のpHを7.2に調整したものを試料として用いた。連続ろ過実験における活性汚泥懸濁液のSS濃度は、試料調整時に3,800～6,800 mg/Lであったが、実験期間中に基質等の供給を行わなかったこと及び装置内でのたまり込みがあったこと等のため、実験終了時の測定ではSS濃度が初期値の40～80%にまで減少した。

ろ過膜は、実験毎に交換し、その都度操作圧力 392.3 kPa、循環流量18 L/minの操作条件で90分間精製水を透過させて、ろ過膜のスポンジ層を圧密、安定化させて使用した^{5), 6)}。膜の初期水透過フラックスは、膜の前処理後、実験と同じろ過条件で精製水をろ過して測定した。また、実験後の水透過フラックスは、実験終了後に試料を排出し、循環流量18 L/minで2回精製水を循環させ、同じく36 L/minで4回～6回精製水を循環させて循環水が透明になったことを確認した後に、実験と同じ操作条件で精製水を透過させて測定した。試料の粘性係数は回転式粘度計で測定した。

3. 結果及び考察

活性汚泥懸濁液を試料として連続ろ過を行うと、図-1に例示する平膜の結果のように、透過フラックス J_f はモジュール形状や膜に係わらずろ過初期に大きく低下した後やがて平衡値を示すようになった。このことから、ろ過実験の終了時点の結果は、平衡時に近い状態の結果として評価できるものと考えた。そこで、実験終了時の透過フラックス J_f を目詰まり等の進行した膜における透過フラックスと考え、連続ろ過時のモジュール圧力 P と J_f の関係を検討した。

図-2は、モジュール圧力 P と J_f の関係を示している。 J_f は、平膜型モジュールで3.6 m/sec、チューブラー型モジュールで2.9 m/secと比較的高い膜面流速で実験したにもかかわらず、 P が大きいかほど小さくなる傾向を示している。また、この J_f の減少傾向は、チューブラー型モジュールよりも平膜型モジュールの方が大きかった。

新しい膜を用いた場合、クロスフロー型膜分離における透過フラックスは、ケーキろ過式を導入することにより式

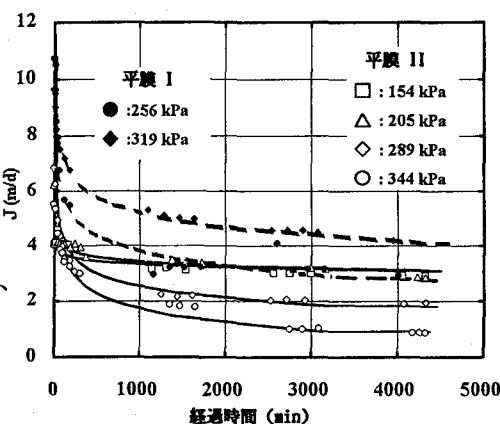


図-1 活性汚泥懸濁液の限外ろ過における透過フラックスの変化（平膜型モジュール）

(1)で表されることがわかっており、圧力 P と膜面流速に支配されるろ過抵抗層固体重量 W およびろ過抵抗層の圧縮係数 n の関数となる⁷⁾。

$$J = \frac{P}{\eta \cdot \left\{ R_m + \left(\frac{W}{A} \right) \cdot c \cdot P^n \right\}} \quad (1)$$

ここで、 J : 透過フラックス (m/d)、 P : 圧力 (kPa)、 η : 透過水の粘性係数 (Pa·s)、 R_m : 膜抵抗 (1/m)、 c : 実験定数(-)、 n : 圧縮係数(-)、 W : ろ過抵抗層固体重量(kg)、 A : ろ過膜全面積 (m²)であり、 W/A は単位ろ過面積当りのろ過抵抗層固体重量に相当する。

J_f について式(1)を用いて検討したところ、図中に示す傾向線のように、平衡時に近い状態の膜においても、 P と J_f の関係は、式(1)により近似することができた。

図-3は、前処理後の水透過フラックスを用いて求めた初期膜抵抗 R_m 、実験終了時点での透過フラックス J_f から求めた総抵抗 R_f およびろ過実験後に精製水を循環させて洗浄した後、精製水をろ過して求めたろ過抵抗 R_r とモジュール圧力との関係を示している。図に示される R_r と R_m の差は、精製水を循環させるだけでは除去できない膜汚れやろ過抵抗層による抵抗 R_p であり、 R_f と R_r の差は、水の循環により除去できるろ過抵抗層による抵抗 R_{cg}' と考えられる。

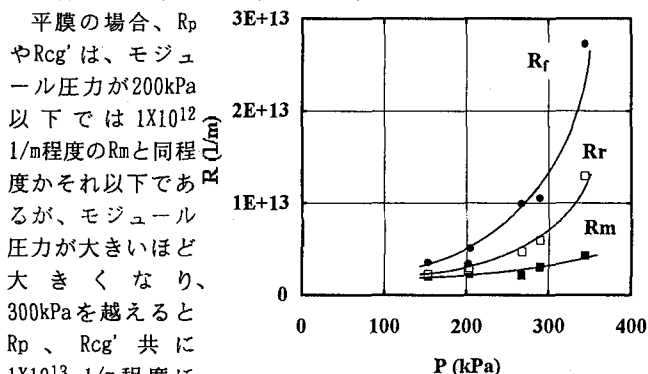


図-3a モジュール圧力とRとの関係 (平膜型モジュール)

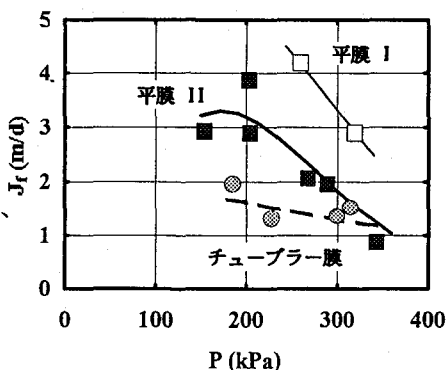


図-2 モジュール圧力と実験終了時の透過フラックスとの関係

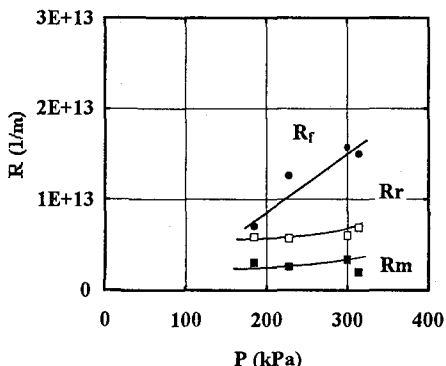


図-3b モジュール圧力とRとの関係 (チューブラー型モジュール)

場合、モジュール圧力に係わらず R_p は、 2×10^{12} 1/m程度で常に R_m と同程度存在するが、 R_{cg}' はモジュール圧力の増加とともに増加し、300kPa以上では 1×10^{13} 1/m以上にまで増加した。

なお、 R_f と R_m の差で定義されるろ過抵抗層による抵抗 R_{cg} (式(1)の中では $(W/A) \cdot c \cdot P^n$ に相当する)とモジュール圧力との関係を図-4に示すが、 R_{cg} はモジュール圧力の増加とともに急激に増加した。

以上の結果をまとめると、活性汚泥懸濁液の限外ろ過では、水を循環させるだけでは除去できない R_p と水の循環により除去できる R_{cg}' の2種類のろ過抵抗が存在すると考えられた。これらの変化から見て、200 kPa以下の圧力の平膜では膜ろ過に近い状態であるが、それ以上の圧力の場合やチューブラー膜では、 R_p と R_{cg}' が大きく関与するろ過状態であると判断される。

4. パイロットプラントおよび実処理施設での運転データの評価

水処理メーカー数社のパイロットプラント実験と実処理施設における運転データとを用いて、活性汚泥懸濁液の固液分離における膜分離プロセスの運転状況を評価した。データは、平均膜面流速を指標としてまとめ、平膜の場合は、1.9~2.0m/sの範囲にある5ケース

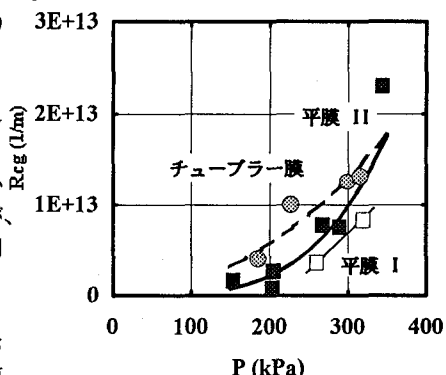


図-4 モジュール圧力と実験終了時の R_{cg} との関係

を、チューブラー膜の場合は、2.0～2.1m/sの範囲にある5ケースと2.7～3.2m/sの範囲にある6ケースを用いた。なお、操作圧力、膜面流速及び透過フラックスは、報告されている値の平均値を用い、 R_{cg} の計算に必要な R_m と粘性係数 η の値は、パイロットプラントで報告されている代表値、各々 1×10^{12} 1/m、0.77mPa・sを定数として与えた。

図-5は、透過フラックスと操作圧力の関係を示した。操作圧力と透過フラックスの関係は、図中に示した式(1)によって計算した傾向線で近似でき、式(1)の妥当性が確認された。図-6は、運転データから計算した R_{cg} と操作圧力との関係を示した。操作圧力と R_{cg} の関係は、モジュール形状、膜性能、MLSS濃度等様々であるが、操作圧力が大きいほど R_{cg} が大きくなる傾向を示した。

これらの結果から、実施設では、モジュール形状に係わらず、膜面上には、操作圧力や膜面流速に支配されるろ過抵抗層が常に存在し、その抵抗値に透過フラックスが支配されるろ過形態で運転されていると考えられる。

5. まとめ

活性汚泥懸濁液を試料とした3日間の連続ろ過実験により、目詰まり等の進行した膜におけるろ過条件と透過フラックスとの関係を検討した。また、水処理メーカー数社のパイロットプラントや実処理施設での膜分離プロセスの運転状況を評価した。

以下に得られた結果をまとめる。

- 1) 実験終了時の透過フラックスを目詰まり等の進行した膜での透過フラックス J_f と考えると、 J_f はモジュール圧力が大きい程小さくなり、その減少傾向はチューブラー膜よりも平膜の方が大きかった。
- 2) 初期膜抵抗 R_m 、実験終了時点での総抵抗 R_f 及びろ過実験後に求めたろ過抵抗 R_r とモジュール圧力との関係から、活性汚泥懸濁液の限外ろ過では、膜面上に水の循環だけでは除去できない膜汚れやろ過抵抗層による抵抗 R_p と水の循環で除去できるろ過抵抗層による抵抗 R_{cg}' の2種類のろ過抵抗が存在し、それらは圧力が高い程大きな値を示す傾向を持つと考えられる。
- 3) 本実験では、平膜の場合200 kPa以下の圧力では膜ろ過に近い状態であった。一方、チューブラー膜の場合や平膜でモジュール圧力が200 kPaを越える場合には、 R_p と R_{cg}' が透過フラックスに大きく影響するろ過状態にあると判断された。
- 4) パイロットプラントや実施設での操作圧力と透過フラックスの関係は、ケーキろ過式を導入した式(1)を用いて近似できた。また、 R_{cg} と圧力との関係から、パイロットプラントや実施設におけるろ過形態は、モジュール形状に係わらず、操作圧力や膜面流速に支配される R_{cg} に大きく影響されるろ過形態であると判断された。

謝辞

本研究の実施ならびに論文作成にあたり、国立公衆衛生院廃棄物工学部井上雄三主任研究官、同水道工学部伊藤雅喜主任研究官に御助言をいただき、また、実験にあたり、当時東洋大学工学部土木工学科学生石田欣司君（現新潟県庁）の協力を得たので記して感謝いたします。また、本研究は、ヒューマンサイエンス振興財団のヒューマンサイエンス基礎研究事業および環境庁の国立機関公害防止等試験研究費による研究成果の一部である。

【参考文献】

- 1) 田中勝、三崎岳郎：膜を利用した尿処理技術の研究、第14回全国都市清掃研究発表会講演論文集、pp43～45、1993
- 2) 尿処理における膜利用技術に関するヒューマンサイエンス基礎研究事業に係わる資料
- 3) 国立公衆衛生院廃棄物工学部が実施した膜分離高負荷脱窒素処理施設運転状況調査の結果
- 4) 西村和之、河村清史、伊藤雅喜、真柄泰基：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、衛生工学研究論文集、Vol. 28、pp. 113～124、1992
- 5) 西村和之、河村清史、真柄泰基：限外ろ過膜の水及び物質透過に及ぼす圧密の影響：第28回衛生工学研究討論会講演集、62-64、1992
- 6) 中垣正幸監修：膜処理技術大系上巻(基礎・製品編)、フジ・テクノシステム、106-109、1991
- 7) 西村和之、河村清史、真柄泰基：活性汚泥懸濁液の膜分離における透過フラックスに関する研究、衛生工学研究論文集、Vol. 29、pp 85～91、1992

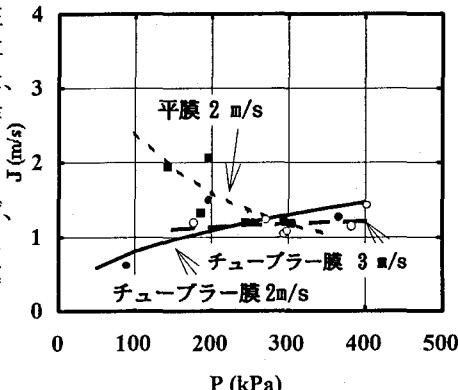


図-5 操作圧力と透過フラックスの関係 (パイロットプラント及び実施設のデータ)

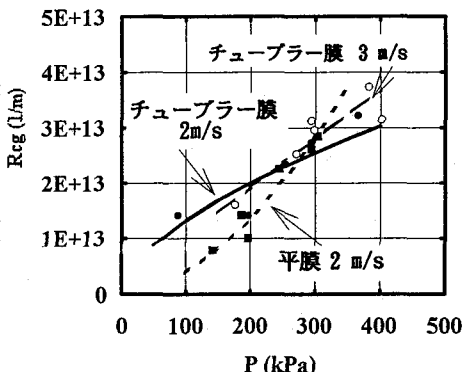


図-6 操作圧力と R_{cg} の関係