

B-9 紫外線前処理による膜ろ過浄水システムの目詰まり制御に関する理論的考察

東京大学工学部都市工学科

○大垣真一郎

同上

大瀧雅寛

同上

総合試験所

滝沢 智

埼玉大学大学院理工学研究科

藤田賢二

1. はじめに

浄水処理における膜分離プロセスの信頼性の確認と効率化、さらに適用上の限界については、厚生省 MAC 21プロジェクトをはじめ様々な研究活動によって明らかにされつつある。しかし、薬品洗浄頻度の低減につながる膜の目詰まりの抑制については、その原因について十分な合意が得られているとは言い難い。そのため目詰まり抑制方策は試行錯誤の結果得られた経験に基づいて行われている。

本研究は、目詰まりの一形態を説明しようとする試論である。流入水を殺菌することによって、膜モジュールへの流入生物量を減らし、その結果膜表面での生物増殖が小さくなり、目詰まりを抑制できることを理論的モデルによって示す。モデルの実験的な傍証としては、外圧式中空糸精密濾過膜の流入原水を紫外線で殺菌し、膜差圧の上昇を抑制できること、および紫外線殺菌が流入生物量低減化以外の効果を持たないことを示す。

2. 紫外線前処理による外圧式中空糸精密濾過膜の膜差圧上昇の抑制

2.1 実験装置と方法

実験は、相模川を原水とする横浜市小雀浄水場に、図1に示すパイロットプラントを設置して行った。1系は膜分離の前に原水を紫外線照射し、2系では対照実験として原水を無処理のまま膜分離を行った。本実験に用いた膜は、ポリエチレン製親水化中空糸精密濾過膜で、膜面積10m²、公称孔径0.1μmであった。濾過方式は定流量式の全量濾過で設定フラックスは0.5m³/(m²d)とした。60分間濾過後、送気量300L/minで1分間エアスクラビングし、その後3分間で洗浄廃液を排出する。紫外線ランプは三共電気製GL35SH型低圧紫外線流水殺菌装置(殺菌線出力9.0W)を用いた。

2.2 実験結果

図2に実験開始後の膜差圧の変化を示す。UV照射無し2系では、開始後2ヶ月ごろから差圧の上昇が激しくなり、77日目で98kPa(1kgf/cm²)を超えたために実験を中止した。これに対して、原水を紫外線で前処理した1系では差圧の上昇速度はわずかであり、実験開始から170日後ようやく差圧が98kPaに達した。これにより、膜ろ過の前処理として紫外線照射が、有効であることが実証された。

本紫外線のエネルギー量は、Qβ測定によれば、254nm吸光度が1.01cm⁻¹では、照射量が15.6mWs/cm²であった。実測した結果によれば、一般細菌数の不活化率は99~99.99%であった。従って、膜モジュールへの流入細菌数が対照実験と比較して0.01~1%となっている。

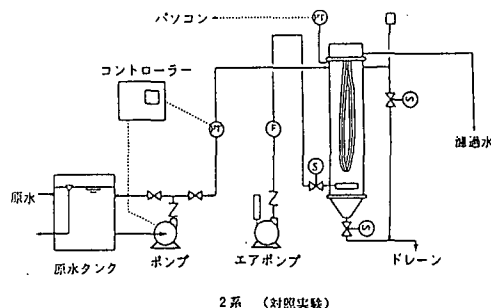
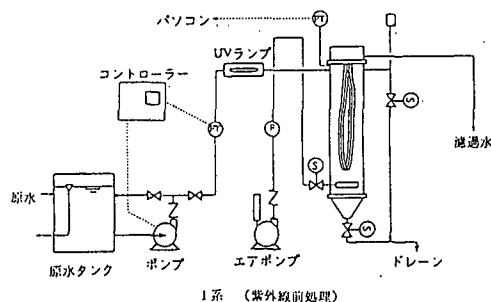


図1 実験装置

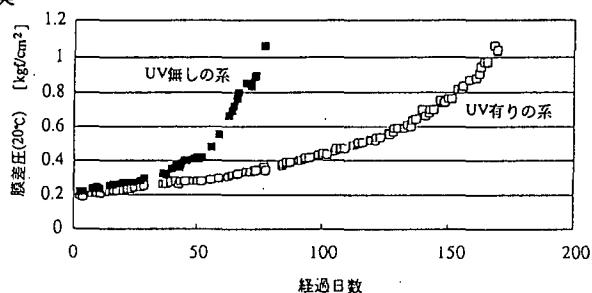


図2 膜差圧の変化

3. 紫外線前処理した水の残存殺菌力の有無について

前項に示した結果の理由として流入生物量低減化を想定する場合、紫外線処理した水に殺菌力が残存していないことが前提となる。一般に紫外線処理水に殺菌力が残存するとは考えられていないが、ノルウェーの最近の報告によると、紫外線による殺菌力の残存性が報告されている¹⁾。

3.1 実験方法

紫外線ランプを照射した試料水に照射後微生物を接触させ、不活化するかどうかを調べた。微生物としては、大腸菌 *E. coli* K12 A/λ (F+) と F 特異 RNA フェージ Q β を用いた。紫外線ランプ光源としては低圧と中圧の2種類の水銀紫外線ランプを用いた。試料水は相模川を取水源とする小雀浄水場の水道原水と、その原水を0.1 μm MF膜で16倍に濃縮した濃縮水を用いた。

試料水をあらかじめ0.45 μm フィルターで濾過滅菌しておき、紫外線照射を行う。紫外線照射量は殺菌照射量で、400 mWs/cm² となるように設定した。照射後、速やかに微生物高濃度溶液を投入した。同時に照射していない濾過滅菌済み試料にも投入し、対照試料とした。投入後、5分後、60分後にサンプリングして、各微生物濃度を測定した。各サンプルとも4〜8枚のプレートを作成し、F検定により対照試料と有為な差が生じたか判定した。

3.2 結果

表1にF検定の結果を示す。表に示されるように、ほとんどのケースで紫外線の照射の有無による有為な差は生じなかった。ただ、原水で低圧ランプ、大腸菌の場合でのみ、危険率1%で有意差無しが棄却できないと言う結果が得られたが、これだけでは、照射後の試料に紫外線の影響が残存するという証拠にはならず、紫外線照射後の試料が微生物の不活化に寄与するとは考えられない。

表1 照射後試料中の微生物の不活化の有意差検定²⁾

試料	微生物	接触時間	中圧紫外線ランプ	低圧紫外線ランプ
水道原水	大腸菌	5分	×	×
		60分	×	△
	フェージ Q β	5分	×	×
		60分	×	×
濃縮水	大腸菌	5分	×	×
		60分	×	×

×：有意差無しの仮定が危険率5%で棄却されない。
△：有意差無しの仮定が危険率5%で棄却、1%で棄却されない。

○：有意差無しの仮定が危険率1%で棄却。

4. 生物による膜目詰まりモデル

4.1 理論

藤田ら(1995)³⁾は、膜目詰まり過程のモデル化を行い、膜閉塞係数(γ)によって一意的に閉塞データを説明できること、2.に示した結果についてはγ値がUV照射により、1/2から1/3になったことによることを示している。しかし、何故γが小さくなるかは明確にされていない。

膜目詰まりの原因は、化学的要因と生物的要因に大きく分けることができる。両者が複合している系がほとんどであるが、その主たる原因はどちらかによるものと考えられる。本研究の仮説は次の通りである。目詰まりの主原因を流入水と共に膜モジュール内に運び込まれる生物(主に細菌)が、膜表面で増殖し、増殖した生物並びに生物が分泌する物質によって不可逆的な目詰まり(水、空気、振とうなどの通常の逆洗浄では流速を回復できない目詰まり)が進行すると仮定する。貝谷ら(1995)によれば⁴⁾、膜差圧の上昇は、生物由来の有機物によるところが大きいと報告されている。一般に生物量を抑制する方法としては、増殖を支配する初期生物量、増殖速度及び増殖に必要な基質量の内の一つを小さくする方法、あるいは増殖した生物を殺す方法がある。

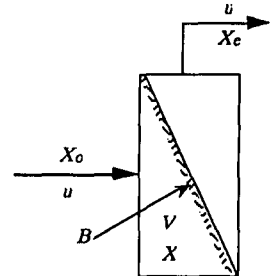
図3に示すようなモデルを考える。V中の生きている生物濃度に比例してBが増殖するものとする。まず浮遊生物濃度Xのみが効くとして、Xに関する式を考える。モジュール内での死滅も一次反応として、μを純増殖についての比増殖速度とする。一周期間のモジュールにおける生物の物質収支は次の通り。

$$\frac{dX}{dt} V = X_0 u - X e u + \mu X V \quad \dots (1)$$

一般にはμは基質濃度に依存する形をとるが、ここでは水のFluxは十分あり、基質濃度は一定であるので基質による制限を略した。微生物と基質の連続的流入があるが、微生物は全く流出しない(つまりXe=0) 単槽連続培養に相当する。t=0でX=X₀として解くと次式となる。

$$X = X_0 \left\{ \left(1 + \frac{\mu}{V} \right) e^{\mu t} - \frac{\mu}{V} \right\} \quad \dots (2)$$

小雀実験プラントでの実際の数値を代入してみる。u=5[m³/d]、V=1.28×10⁻²[m³]、μ=0.5[1/d]とした(同じ微生物相を基質充分の条件で培養した結果、μ=0.5[1/d]であった⁵⁾)。計算結果は、t=TでX=17X₀となった(一周期Tは、濾過60分+空気洗浄1分+洗浄液排水3分であるが、簡単のためT=60分とした)。同じ周期で増殖を考えない濃縮倍率は16.3であるので、生物増殖があってもなくても、SSの膜モジュール内の濃度に大きな差はない。従ってUVによる膜差圧の上昇抑制効果は、モジュール内で浮遊状態で増殖した生物によるSS増加が原因の目詰まりを、抑制するためではないと考えられる。



V：モジュール体積[m³] u：流量[m³/d]
B：膜面上に付着した単位面積当たりの微生物量[g/m²]
X：生物濃度[g/m³]
X₀：流入生物濃度[g/m³]
X_e：流出生物濃度[g/m³]

図3 膜モジュールモデル

そこで、膜差圧の上昇は生物由来ではない物質による目詰まりと、生きた生物の生成する分泌物によるものと仮定する。膜面上に付着する微生物はバルク中の微生物濃度に比例するとすれば、膜面上に付着する微生物量に関しては、次式が成立する。

$$\frac{dB}{dt} = \alpha u X + z B S \quad \dots (3)$$

B : 膜面上の単位面積当たり微生物量 $[g/m^3]$ S : 膜表面積 $[m^2]$

α : 膜面付着率 $[-]$ z : 付着生物の比増殖速度 $[1/d]$

X は一時間周期の $X_0 \sim 17X_0$ の範囲のほぼノコギリ刃型の関数となっているが長期間の過程をモデル化するときには、単純化して X を平均値 $X_{avg} = r \cdot X_0$ とする。 $t=0$ で $B=0$ として解くと次式となる。

$$B = \frac{q}{z} X_0 (e^{zt} - 1) \quad \dots (4)$$

ここで、 $q = \alpha u r / S$ である。膜面上の生きた微生物の生成する分泌物は、微生物量に比例し、膜差圧への寄与が分泌物量に比例するとすれば、

$$\Delta P_B = \varepsilon B = \varepsilon \frac{q}{z} X_0 (e^{zt} - 1) \quad \dots (5)$$

ΔP_B : 生きた生物による膜差圧上昇分 $[kgf/cm^2]$ ε : 生きた生物による膜差圧上昇への寄与率 $[kgf \cdot m^3/cm^2/g]$

膜差圧の上昇は上述したように、生物に関係ない物質の膜目詰まりによる膜差圧の上昇 (ΔP_{inert}) と生きた生物による膜差圧上昇分 (ΔP_B) の和であると仮定する。つまり $\Delta P = \Delta P_{inert} + \Delta P_B$ である。

4.2 計算結果

図4にこのモデルに基づいた計算結果を示す。生物無しの場合の計算値 (ΔP_{inert}) は藤田らの論文³⁾に基づいている。パラメータ値は、 $z = 0.06 [1/d]$ 、 $\varepsilon q = 0.085 [kgf \cdot m^3/cm^2/g/d]$ を用いた。 z の値に関しては、van der Wendら(1989)⁶⁾は単槽連続培養による実験の結果、生物膜を形成する生物の増殖速度が $0.06 [1/d]$ としていることより、この値を用いた。紫外線有り系の系では、流入生物量 X_0 を紫外線無し系の系の $1/1000$ とした。図4の計算値は図2の実測値の結果を良く表しており、微生物の膜差圧の上昇への寄与をモデル化できた。

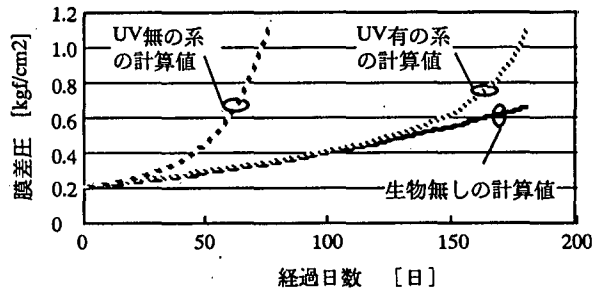


図4 膜差圧上昇モデルの計算値

5. 結論

本モデルは生物を原因とする目詰まりの機構に関する試験である。微生物の膜面上での増殖に伴って生成される物質が目詰まりの原因であるならば、微生物の増殖を支配する様々な因子（流入微生物の種類とその濃度、モジュールの水理学的濃縮率、増殖に利用可能な炭素源の濃度、無機栄養塩濃度、付着微生物への基質供給速度を意味することになる膜ろ過流速、水温、pH、膜表面での水の剪断力、増殖阻害物質の存在有無など）が目詰まりの速度に影響することになる。ここに示した目詰まり機構の概念をより定量的に表すことができるようになれば、原水水質、運転条件、季節などが異なっても目詰まりの速さに関する比較を合理的に行うことができ、また目詰まりを抑制する手法を開発できる。

6. 参考文献

- 1) V. Lund and D. Hongve, "Ultraviolet irradiated water containing humic substances inhibits bacterial metabolism", *Wat. Res.*, Vol.28, No.5, pp.1111-1116, 1994.
- 2) 大瀧雅寛, 「水処理における紫外線殺菌とその副次的効果に関する研究」 東京大学都市工学専攻博士論文、1995
- 3) 藤田賢二、滝沢智「外圧式中空糸膜における目詰まり過程のシミュレーションと操作方法の評価」、水道協会雑誌、第64巻、第3号、pp.12-23, 1995.
- 4) 貝谷吉英、伊藤義一、滝沢智、藤田賢二「浄水膜処理における汚染物質(2)」、第46回水道研究発表会講演集、pp.222-223, 1995.
- 5) A. Sathasivan, "Development and application of bacterial regrowth potential method for drinking water", 東京大学都市工学専攻博士論文、1995.
- 6) E. van der Wende and W.G. Characklis, "Biofilms in Potable Water Distribution Systems", *Drinking Water Microbiology* edited by G. A. Mcfeters, Springer-Verlag, pp.249-257, 1990.