HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	ナノろ過法による高度浄水処理について
Author(s)	工藤, 禎恵; 太田, 直輝; 島袋, 公男 他
Description	第4回衛生工学シンポジウム（平成8年11月7日（木）-8日（金） 北海道大学学術交流会館） . 4 物理化学処理 . 4-3
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 4, 161-166
Issue Date	1996-11-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7843
Type	departmental bulletin paper
File Information	4-4-3_p161-166.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

４－３

ナノろ過法による高度浄水処理について

工藤禎恵、太田直輝、島袋公男、品田　司（㈱西原環境衛生研究所）

１．はじめに

現在、膜を適用した浄水処理に関する研究が盛んに行われている。水道原水を直接膜ろ過することで清澄な水が得られ、従来の急速ろ過法（凝集沈殿・砂ろ過）に代わる方法として注目されている。また、安全でおいしい水を供給するため、膜浄水技術を中心として従来の処理水をさらに高度に処理するハイブリッドな浄水システムについての研究も進んでいる。

官学民共同プロジェクトＭＡＣ21計画では、ＭＦ膜又はＵＦ膜による浄水処理が、除菌・除濁に優れ、従来法に代わる浄水技術として十分適用可能であることが実証された。また、利点として、省敷地化、凝集剤等の薬品・汚泥発生量の削減、運転管理の容易さ等が挙げられ、特に無人に近い運転が可能であることから、小規模水道において施設の導入が進められつつある。

高度処理ＭＡＣ21では、ＭＦ膜／ＵＦ膜ろ過とＮＦ(ナノろ過)膜ろ過あるいはｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理とを組み合わせたハイブリッドな処理システムについての研究をしており、トリハロメタン前駆物質、農薬などの微量化学物質、異臭味、ウィルス等の従来システムではかならずしも十分に除去できない物質除去を対象としている。ＮＦ膜ろ過法は、逆浸透膜法よりも低圧で運転するため省ｴﾈﾙｷﾞｰで、水の衛生学的安全性を確実に確保することができ、維持管理の容易な処理法としてその実用化が有望視されている。

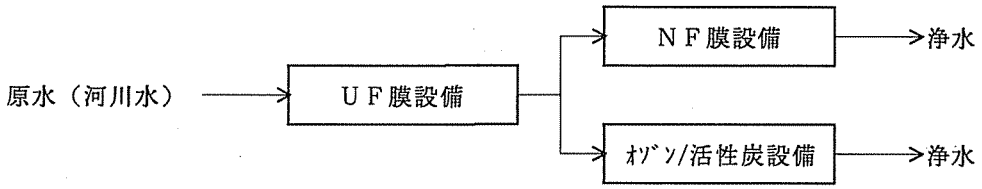
本稿では、ナノろ過法による長期間の運転特性、除去性能、オゾン･活性炭吸着処理による処理水水質との比較等についての若干の知見を報告いたします。

尚、本稿の一部は、高度処理MAC21での実験から得られた結果を用いております。

２．実験概要

２－１　処理フロー

処理フローの概略を下記に示す。



各装置の処理フローを図2-1-1、図2-1-2、図2-1-3に示す。

２－２　各装置の仕様・運転方法

各設備の仕様等を表2-1-1、表2-2-2、表2-2-3に示す。

原水（河川水）を、200μmのプレフィルターに通して夾雑物を除去した後ＵＦ膜ろ過した。その際、定流量ろ過となるようポンプの回転数をインバータで制御した。逆流洗浄はＵＦ膜ろ過水を用いて約30分毎に30秒間行った。逆洗水にはﾓｼﾞｭｰﾙ内の

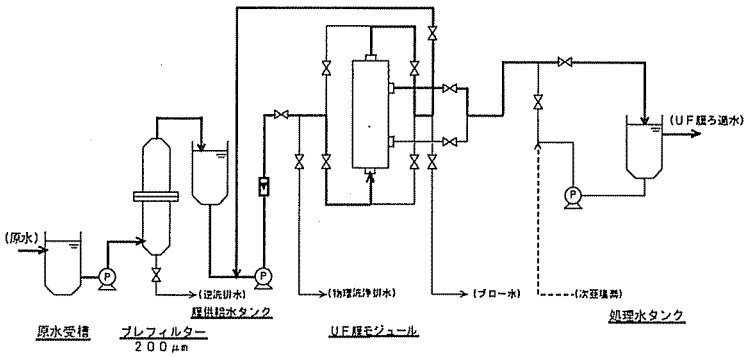


図2-1-1 UF膜ろ過処理フロー

殺菌を目的として4ppm程度の塩素を添加した。

ＵＦ膜ろ過水をＮＦ膜ろ過設備とｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理設備に供給した。

ＮＦ膜装置は、濃縮水を一部循環する循環式プロセスとした。

２種類のNF膜を使用し、前半の実験では低塩阻止率の膜を、後半ではやや高い塩阻止率の膜を使用した。

オゾン酸化槽は、気液対向流式の下向流とし、活性炭吸着塔は、下向流式とし、２週間に１回の空気/水洗浄を行った。

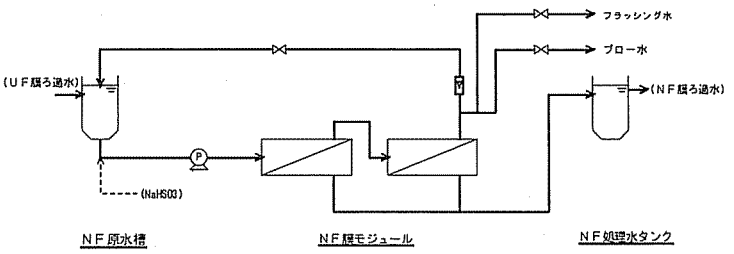


図2-1-2 NF膜ろ過処理フロー

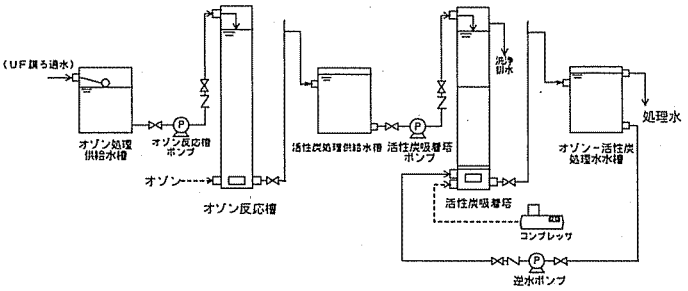


図2-1-3 ｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理フロー

３．実験結果及び考察

３－１　ＮＦの運転特性

ＮＦ膜ろ過の流束の推移を図3-1-1に、圧力及び水温の推移を図3-1-2に、回収率の推移を図3-1-3に示す。

・実験開始時に膜ろ過流束を約0.7㎥/㎡･日に設定したが、水温の低下ともに補正流束が低下し、有効圧力が１MPaを超えたため、設定実流束を段階的に下げ、約150日目以降約0.35㎥/㎡･日に実流束を設定し、その後、薬品洗浄を行わずに250日間以上安定した運転ができた。

・実験開始425日目にやや塩阻止率の高いNF膜に交換し、本年10月末まで運転を行った。

膜交換当初、水温の低下とともに補正流束の低下がみられたが、水温の上昇にしたがって補正流束

表2-1-1　ＵＦ膜・ＮＦ膜設備の仕様・運転方法等

		ＵＦ膜	Ｎ膜(1)／(2)
仕様	材質	酢酸セルロース	架橋ポリアミド系複合膜
	分画分子量	150,000 Dalton	約200～300 Dalton
	塩阻止率	－	NaCl　56%(1)/64%(2)
	形状寸法	中空糸型 （外径1.3mm,内径0.8mm）	スパイラル型 （長さ1,016mm）
	ﾓｼﾞｭｰﾙ寸法	長さ1,066mm×φ310mm	長さ1,116mm×φ116mm
	設置ﾓｼﾞｭｰﾙ数	１本	２本直列
	総膜表面積	50m^2	14m^2=7m^2/本×2本
運転方法	運転方法	内圧式ｸﾛｽﾌﾛｰ、定流量制御	ｸﾛｽﾌﾛｰ、定流量制御
	膜処理部回収率	92 %	50～85 %
	物理洗浄方法	逆圧洗浄，1回/30分程度	濃縮水を1回/1日,5分/回
	物理洗浄圧力	100～200kPa	
	物理洗浄水量	30L/分	

表2-1-2　ｵｿﾞﾝ設備の仕様・運転方法等

	形状寸法	φ125mm×3.5m,水高さ3.0m
運転方法	運転方法	下向流式、気液対向流方式
	処理水量	5.0m^3/日
	接触時間	10分
	通水速度	407m^3/m^2･日
	ｵｿﾞﾝｶﾞｽ流量	0.6L/分
	ｵｿﾞﾝｶﾞｽ濃度	入5.0g-Os/m^3，出0.2g-Os/m^3
	溶存ｵｿﾞﾝ濃度	0.2mg/L
	ｵｿﾞﾝ注入率	0.8～1.2%
	気液比	0.18L^{気}/L^{液}

表2-1-3　活性炭設備の仕様・運転方法等

	形状寸法	φ125mm×3.5m,炭高さ1.7m
運転方法	運転方法	下向流式
	処理水量	3.0m^3/日
	接触時間	10分
	通水速度	244m^3/m^2･日
	洗浄方法	空気/水洗浄，1回/2週
	逆洗時膨張率	25%
炭仕様	材質	木質系
	平均粒径	1.25mm
	乾燥減量	1.5%

の回復傾向がみられたため、実流束を約0.5㎥/㎡・日に設定し、長期運転を行った。

・NF膜(1)の設定実流束0.35㎥/㎡・日の場合には、水温上昇にしたがって補正流束の上昇がみられた。NF膜(2)の設定実流束0.5㎥/㎡・日の場合には、補正流束が約0.15㎥/㎡・100kPa・日の値でかなり安定した運転ができている。薬品洗浄を250日以上も行わずに運転しており、膜面でのﾌｧｳﾘﾝｸﾞが確実に進行していると考えられが、水温の上昇によりろ過性能の低下が抑制されているものと考えられる。

・ろ過性能は、水温の影響を強く受け、水の粘性係数だけでは補正できなく、水温の上昇により補正流束の回復がみられる。

・回収率を30%から90%まで変化させたが、膜ろ過性能に明確な影響はみられず、回収率よりも水温と流束の影響を強く受けると考えられる。

・実験に供したNF膜は、回収率90%、実流束0.5㎥/㎡・日で安定した運転ができるものと考えられる。

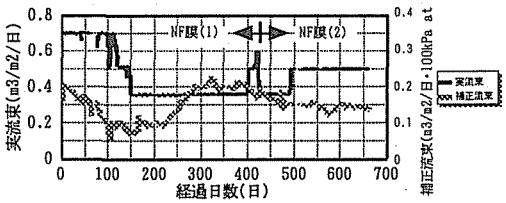


図3-1-1 実流束と補正流束の推移

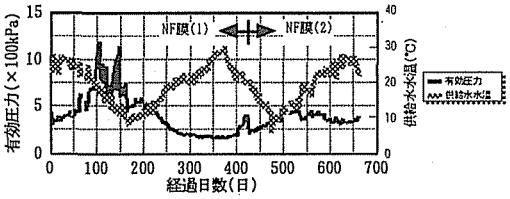


図3-1-2 有効圧力と水温の推移

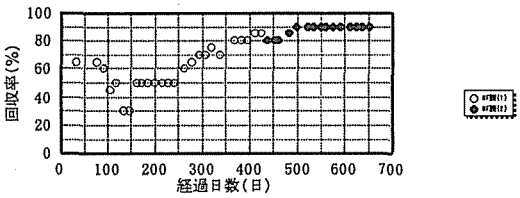


図3-1-3 NF膜処理回収率の推移

3－2　ＮＦ膜の除去性能

水道水質基準85項目について分析を行ったところ、原水について表3-2-1に示す水質項目が処理すべき対象と考えられた。表3-2-1に平均水質と各処理毎の除去率を示す。図3-2-1にUF膜及びNF膜による除去割合とNF膜ろ過水中の残存率を示す（全実験期間の平均値）。NF膜ろ過によって、UF膜ろ過では十分に除去できない色度,有機物および消毒副生成物前駆物質が除去されており、一方、硬度,蒸発残留物等の除去率が低いことがわかる。

表3-2-1 平均水質と各処理毎の除去率　　※ ()は除去率%

項目		基準値	原水水質	UF	NF(1)	原水水質	UF	NF(2)
ﾏﾝｶﾞﾝ	[mg/L]	0.01以下(目標値)	0.115 (100)	0.014 (88)	0.008 (43)	0.116 (100)	0.016 (86)	<0.005 (100)
Ca･Mg硬度	[mg/L]	10～100 (目標値)	95.8 (100)	93.2 (2.7)	59.2 (36)	94.8 (100)	96.4 (0)	68.1 (29)
蒸発残留物	[mg/L]	30～200 (目標値)	263.4 (100)	231.7 (12)	179.7 (22)	246.3 (100)	235.6 (4.3)	180.0 (24)
$KMnO_4$消費量	[mg/L]	3以下 (目標値)	22.5 (100)	7.2 (68)	1.3 (82)	18.5 (100)	8.4 (55)	0.9 (89)
TOC	[mg/L]	-	4.86 (100)	2.63 (46)	0.28 (89)	4.25 (100)	2.96 (30)	0.25 (92)
色度	[度]	5以下 (基準値)	41.4 (100)	6.1 (85)	0.5 (92)	35.2 (100)	4.3 (88)	<1 (100)
消毒副生成物生成能 ｸﾛﾛﾎﾙﾑ	[mg/L]	0.06以下(指針値)	0.038 (100)	0.024 (37)	0.005 (79)	0.036 (100)	0.027 (25)	0.005 (81)
ｼﾞﾌﾞﾛﾓｸﾛﾛﾒﾀﾝ	[mg/L]	0.03以下(指針値)	0.017 (100)	0.018 (0)	0.005 (72)	0.020 (100)	0.018 (10)	0.008 (56)
総ﾄﾘﾊﾛﾒﾀﾝ	[mg/L]	0.1 以下(基準値)	0.0861(100)	0.0685(20)	0.0166(76)	0.0768(100)	0.0729(5.1)	0.0156 (79)
抱水ｸﾛﾗｰﾙ	[mg/L]	0.03以下(指針値)	0.010 (100)	0.005 (50)	0.0005(90)	0.014 (100)	0.008 (43)	0.0003 (96)
ｼﾞｸﾛﾛ酢酸	[mg/L]	0.04以下(指針値)	0.019 (100)	0.015 (21)	0.001 (93)	0.028 (100)	0.024 (14)	0.0007 (97)

① NF膜(1)とNF膜(2)の除去性能

図3-2-2に回収率80%のときの各水質項目の除去率を示す。各水質項目とも塩阻止率の高いNF膜(2)のほうが高い除去率を示している。NF膜(1),(2)ともTOC,過ﾏﾝｶﾞﾝ酸ｶﾘｳﾑ等の有機物に対する除去率は、70%以上と高く、硬度,蒸発残留物などに対する除去率は、30%以下と低い値となっており、飲料水水質として適切な値となっていた。また、THM･FPについては、NF膜(1)で56%,NF膜(2)で81%の除去率であった。全実験期間を通じてのNF膜ろ過水水質の値は、NF膜(1),

NF膜(2)とも各水質項目の基準値,指針値を十分に満足していた。

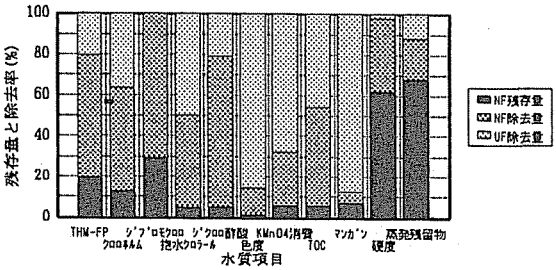


図3-2-1.1 NF膜(1)除去性能

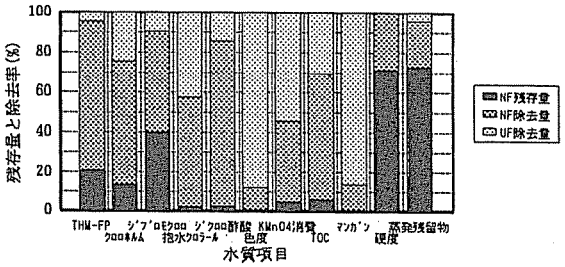


図3-2-1.2 NF膜(2)除去率

②有機物に対する除去性

有機物除去の例として過ﾏﾝｶﾞﾝ酸ｶﾘｳﾑ消費量について、NF膜ろ過水の値を図3-2-3に、ｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理水の値を図3-2-4に示す。

・NF膜ろ過水の値は、全実験期間を通じてほぼ2mg/ℓ以下であったが、NF膜(1)を用いた実験の後半(約360日目以降)ではNF膜ろ過での回収率を80%以上と高くしたため、膜面の一次側濃度が高くなり、システムとしての見かけの除去率が低下し、5mg/ℓ以上となることがあった。NF膜(2)では、膜の塩阻止率が高いため有機物除去率も高く、回収率90%以上でも2mg/ℓ以下と良好な結果となっている。

・一方、ｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理性能は、運転初期はNF膜ろ過とほぼ同等であったが、運転の経過とともに除去率が低下し、約150日後以降には除去率が50%程度となった。その後、約1年の経過後においても除去率が約50%で推移した。

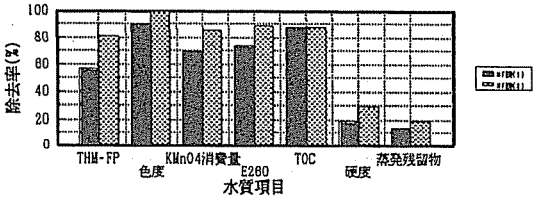


図3-2-2 NF膜(1)とNF膜の除去性能の比較

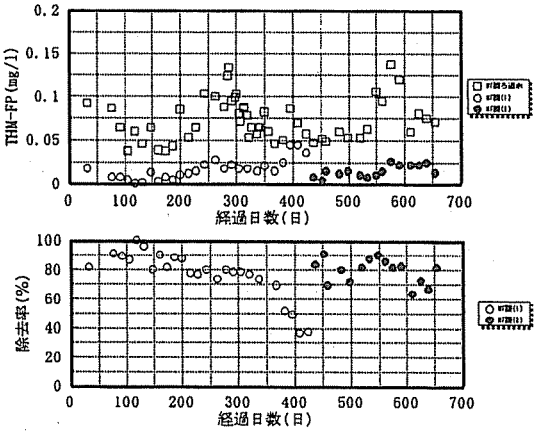


図3-2-3 KMnO4消費量の推移(NF膜)

③毒副生成物に対する除去性

消毒副生成物除去の例としてTHM･FPについて、NF膜ろ過水の値を図3-2-5に、ｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理水の値を図3-2-6に示す。

・NF膜ろ過水の値は、全実験期間を通じてほぼ30μg/ℓ以下であったが、NF膜(1)を用いた実験の後半では、有機物除去と同じようにNF膜ろ過での回収率を高くしたために50μg/ℓ弱となった。NF膜(2)では、回収率を90%以上としても30μg/ℓ以下で除去率60%以上であった。

・ｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理では、運転初期はNF膜ろ過とほぼ同等以上であったが、運転の経過とともに有機物除去と同様に除去率が低下し、約150日後以降には除去率が50%以下となった。その後、約1年の経過後においても除去率が50%弱で推移している。

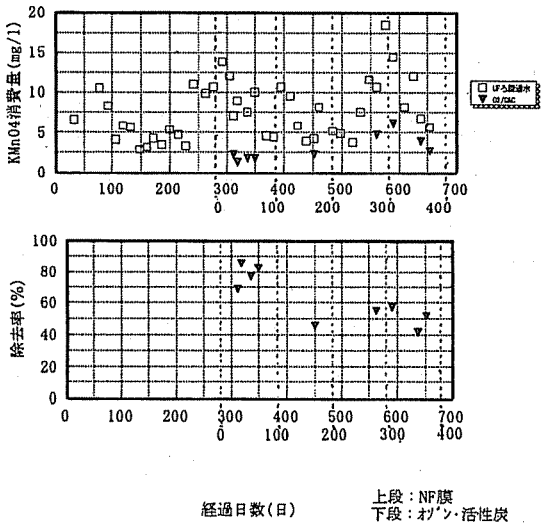


図3-2-4 KMnO4消費量の推移(O_3/GAC)

④無機物に対する除去性

無機物除去の例として硬度について、NF膜ろ過での値を図3-2-7に示す。

運転の経過にしたがって除去率が低下する傾向がみられ、運転開始から約150日後まで直線的に低下するが、その後、低下が緩やかとなり、除去率は40%以下となった。これは、新膜時に膜面にｶﾙｼｳﾑが付着するために見かけの除去率が高くなるが、ある程度運転を継続すると付着する割合が低下し、除去率が低くなるためである。ｶﾙｼｳﾑ等の膜面への吸着は膜ろ過性能の低下を来すが、本実験で用いた２種類の膜は、塩阻止率が比較的低いために1年程度の連続運転では重大な支障とはならなかった。

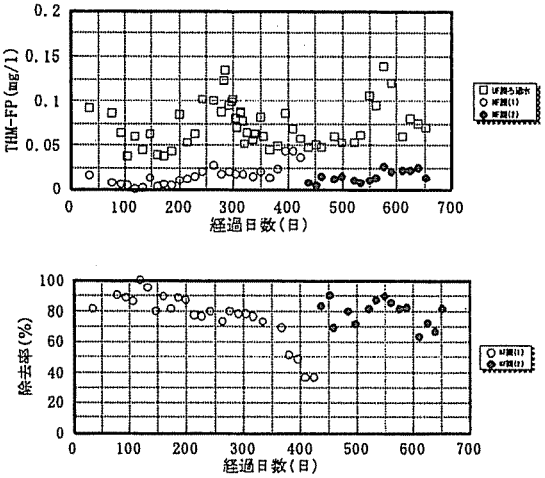


図3-2-5 THM･FPの推移(NF膜)

NF膜(1)を実験終了後解体し、付着物の分析を行った結果、ｶﾙｼｳﾑは付着物の20%以上であった。しかし、ｶﾙｼｳﾑは、薬品洗浄によって約99%が除去できた。また、付着無機物はケイ酸が一番多く(30%以上)、鉄,ｱﾙﾐﾆｳﾑ等の付着物構成比は10%以下と低い値であった。

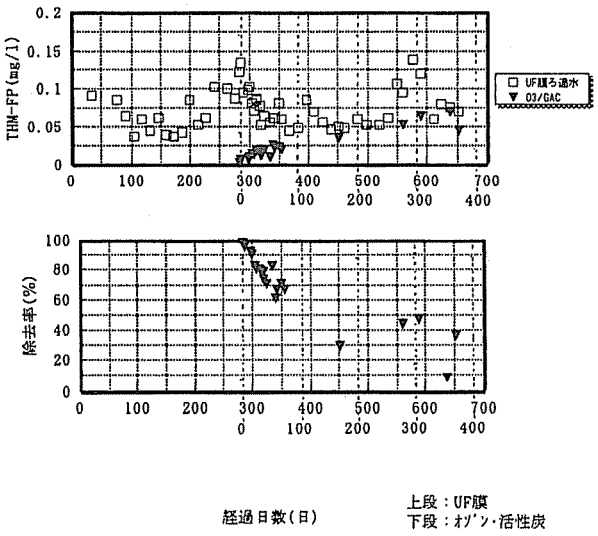


図3-2-6 THM･FPの推移(O_3/GAC)

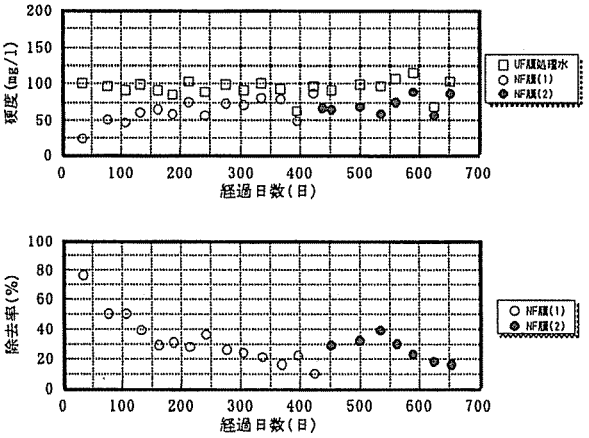


図3-2-7 硬度の推移(NF膜)

⑤ｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理による有機物と消毒副生成物の除去

ｵｿﾞﾝ･活性炭吸着設備における、運転開始約１年後の活性炭吸着だけの処理(ｵｿﾞﾝ注入停止時)とｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理の場合の処理水質を表3-2-2に示す。活性炭吸着だけの処理では、有機物(過ﾏﾝｶﾞﾝ酸消費量,TOC),THM･FPとも低い除去率であるが、活性炭吸着の前にｵｿﾞﾝ酸化処理を行うことによって、かなりの除去の向上が図られている。

表3-2-2 ｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理の処理水質

			UFろ過水	活性炭処理水	ｵｿﾞﾝ･活性炭処理水
色度		[度]	4 (100)	2 (50)	<1 (100)
KMnO4消費量		[mg/L]	5.6 (100)	4.2 (25)	2.7 (52)
TOC		[mg/L]	1.6 (100)	1.2 (25)	1.0 (38)
E260		[mg/L]	0.230 (100)	0.129 (44)	0.094 (59)
T	ｸﾛﾛﾎﾙﾑ	[mg/L]	0.014 (100)	0.007 (50)	0.005 (64)
H	ﾌﾞﾛﾓｼﾞｸﾛﾛﾒﾀﾝ	[mg/L]	0.023 (100)	0.017 (26)	0.013 (44)
M	ｼﾞﾌﾞﾛﾓｸﾛﾛﾒﾀﾝ	[mg/L]	0.027 (100)	0.026 (3.7)	0.020 (26)
・	ﾌﾞﾛﾓﾎﾙﾑ	[mg/L]	0.006 (100)	0.011 (0)	0.007 (0)
FP	総ﾄﾘﾊﾛﾒﾀﾝ	[mg/L]	0.070 (100)	0.061 (13)	0.045 (36)

4．まとめ

・UF膜ろ過法とNF膜ろ過法を組み合わせる浄水処理システムを採用することにより、水の衛生学的安全性を高度に確保できることが実証できた。

・本実験の河川水に対して、UF膜ろ過処理の後段にNF膜ろ過を配置することにより、UF膜ろ過の実流束を0.5㎥/㎡・日，回収率90%で長期間(200日以上)薬品洗浄をせずに安定して運転することができた。

・NF膜ろ過では、UF膜ろ過では除去できない色度，溶解性有機物，消毒副生成物を高度に除去することができた。また、その除去性は、ｵｿﾞﾝ･活性炭吸着処理より優れ、長期間安定して得られた。

・本実験のNF膜ろ過ｼｽﾃﾑでは、NF膜ろ過の濃縮水を原水側へ戻す循環型プロセスとしたため、回収率を高くすると膜ろ過水水質の低下が起きたが、実施設では一過式のプロセスを採用することが多く、その場合には膜ﾍﾞｯｾﾙを多段に配置することにより回収率を高くするので、前段での膜ろ過水水質は後段よりかなり低い値となる。したがって、全体としての水質は実験結果の値より良好となる。

・本年度で終了する高度処理MAC21では、NF膜ろ過技術の実用化に向けての種々の検討を行っており、来春にはNF膜ろ過施設ｶﾞｲﾄﾞﾗｲﾝが刊行される予定となっており、近い将来には、MF膜/UF膜/NF膜ろ過技術が浄水技術の要となるだろう。