

ハイブリッド膜システムによる高度浄水処理に関する研究

学位論文内容の要旨

近年の浄水処理は原水の汚濁が進行するに伴い、従来の急速ろ過システムの様な懸濁成分の除去を主とした浄水処理システムでは安全な水の供給は行い難くなりつつあり、溶解性成分の除去を含む高度な浄水処理システムの必要性が高くなっている。一方、膜処理技術は近年大きな進歩を遂げた処理技術であり、従来の分離技術に比較し高度な分離がシンプルな装置で行えるという特色を持つ。但し、分離能の高い膜は操作圧が高く、エネルギー消費量も高い。これより、効率的な高度浄水システムとして、操作圧の低いMF膜と他の物理化学処理を組合せて一体化した、① 粉末活性炭循環型 MF 膜装置、② 循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置 の2つのハイブリッド膜処理法に関してプラント実験による研究を行った。

ハイブリッド膜処理では吸着、酸化（生物学的、化学的）反応等と膜分離を組合せる事で、多種の反応と高度な分離を一つの装置で行う。研究を行ったシステムのうち、粉末活性炭循環型 MF 膜装置は、比較的有機汚濁の進行した原水に対応できる膜装置、また後者の循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置は有機汚濁はないが、溶解性マンガンの除去が必要な原水に対し高速の膜処理を行うハイブリッド膜装置として位置づけた。本研究のハイブリッド膜装置は浸漬型膜装置と攪拌槽よりなり、各反応を効率的に行う事を目的として浸漬槽の汚泥あるいは活性炭を前段の攪拌槽へ返送するフローとした。また、浸漬膜は孔径 0.1 μm のポリエチレン製の中空糸膜モジュールを用いた。各ハイブリッド型膜装置における研究結果は下記のとおりである。

① 粉末活性炭循環型 MF 膜装置

粉末活性炭循環型 MF 膜装置では、粉末活性炭が攪拌槽で添加（本研究では間欠的に添加）され、これらが浸漬槽内で膜分離され処理水が得られる。一方、膜分離された汚泥と粉末活性炭は攪拌槽へ返流され原水と混合される。粉末活性炭循環型 MF 膜装置の溶解性有機物の除去は中・低分子成分が粉末活性炭により吸着除去され、高分子成分が膜分離される事より行われる。本研究では、膜分離により除去される高分子有機物に、液境膜・表面拡散モデルに基づく中・低分子有機物の除去シミュレーション結果を加える事で、処理水の有機物濃度のシミュレーションが行えることを示した。また、溶解性マンガンの除去は鉄バクテリアによる生物学的酸化とそれら酸化物の膜分離によって行われる。鉄バクテリアによる溶解性マンガンの酸化は水温の影響を受け、中・高水温では良好なマンガン除

去が行えるが、低水温では除去性が劣化する。またマンガンの酸化を行う鉄バクテリアは、浸漬槽内で増殖するより、原水から流入した鉄バクテリアが膜分離により浸漬槽で濃縮するものと考えられ、これに基づいて行なったシミュレーションは、実測値とほぼ一致する。なお、生物学的マンガン除去を行うには、回収率の高い運転が必要であり、浸漬型膜装置はこれに適している。アンモニア性窒素の酸化も水温の影響を受け、中・高温期のアンモニア性窒素の酸化はほぼ 100%であるが、水温 5℃以下の低水温期では約 60～70%の酸化率であった。

粉末活性炭循環型 MF 膜装置での膜の運転性は粉末活性炭を添加しない場合より安定する。粉末活性炭循環型 MF 膜装置と対照系の MF 膜装置の膜透過係数の変化を、膜への E260 累積負荷量に対し指数関数でプロットすると、その両者の勾配はほぼ等しい値となる。よって、本原水に対する膜運転では E260 発現性有機物が膜の汚染物質の主なものであると考えられた。粉末活性炭循環型 MF 膜装置では、活性炭吸着により原水中の中・低分子の E260 発現性有機物が除去されることより、膜への有機物負荷が削減し、膜運転は安定して行える。

② 循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置の処理性と運転性

循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置では、浸漬槽内の膜分離汚泥を攪拌槽へ返送し、塩素の添加を行った状態で原水と混合させる。膜分離汚泥中には、比較的多くの酸化マンガンを含む事より、攪拌槽では接触酸化による溶解性マンガンの酸化が進行する。循環汚泥のマンガン最大飽和吸着量は約 $0.3\text{molMn(II)}/\text{molMnO}_2$ であった。また、原水のアンモニア性窒素濃度が低い時の溶解性マンガンの除去率は約 95%であった。

循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置では塩素の添加により浸漬槽内の生物が抑制され、粉末活性炭循環型 MF 膜装置に比較し高速の膜運転が安定して行える。ただし、膜透過係数 K_{20} の変化は粉末活性炭循環型 MF 膜装置、対照系の MF 膜装置と同様に、膜にかかる E260 累積負荷量の指数関数で近似され、その係数は他の膜装置と類似した値であった。よって、粉末活性炭循環型 MF 膜装置や汚泥濃縮型 MF 膜装置と同様に塩素添加での汚泥循環型 MF 膜装置でも E260 発現性有機物による膜ファウリングが進行すると考えられた。

最後に、粉末活性炭循環型 MF 膜装置と循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置のハイブリッド膜システムが、溶解性成分の除去と高度な分離が行なえる浄水処理法である事を明かにした。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 渡 辺 義 公

副 査 教 授 高 桑 哲 男

副 査 教 授 真 柄 泰 基

学 位 論 文 題 名

ハイブリッド膜システムによる高度浄水処理に関する研究

近年の浄水処理は原水の汚濁が進行するに伴い、従来の急速ろ過システムの様な懸濁成分の除去を主とした浄水処理システムでは安全な水の供給は行い難くなりつつあり、溶解性成分の除去を含む高度な浄水処理システムの必要性が高くなっている。一方、膜処理技術は近年大きな進歩を遂げた処理技術であり、従来の分離技術に比較し高度な分離がシンプルな装置で行えるという特色を持つ。但し、分離能の高い膜は操作圧が高く、エネルギー消費量も高い。これより、効率的な高度浄水システムとして、操作圧の低いMF膜と他の物理化学処理を組合せて一体化した、① 粉末活性炭循環型 MF 膜装置、② 循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置 の 2 つのハイブリッド膜処理法に関してプラント実験による研究を行った。

第 1 章は序論であり、研究の背景、目的をまとめている。ハイブリッド膜処理では吸着、酸化（生物学的、化学的）反応等と膜分離を組合せる事で、多種の反応と高度な分離を一つの装置で行う。研究を行ったシステムのうち、粉末活性炭循環型 MF 膜装置は、比較的有機汚濁の進行した原水に対応できる膜装置、また後者の循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置は有機汚濁はないが、溶解性マンガンの除去が必要な原水に対し高速の膜処理を行うハイブリッド膜装置として位置づけた。本研究のハイブリッド膜装置は浸漬型膜装置と攪拌槽よりなり、各反応を効率的に行う事を目的として浸漬槽の汚泥あるいは活性炭を前段の攪拌槽へ返送するフローとした。また、浸漬膜は孔径 $0.1\mu\text{m}$ のポリエチレン製の中空糸膜モジュールを用いた。

第 2、3 章では 粉末活性炭循環型 MF 膜装置の処理性と運転性について論じている。粉末活性炭循環型 MF 膜装置では、粉末活性炭が攪拌槽で添加（本研究では間欠的に添加）され、これらが浸漬槽内で膜分離され処理水が得られる。一方、膜分離された汚泥と粉末活性炭は攪拌槽へ返流され原水と混合される。粉末活性炭循環型 MF 膜装置の溶解性有機物の除去は中・低分子成分が粉末活性炭により吸着除去され、高分子成分が膜分離される事より行われる。本研究では、膜分離により除去される高分子有機物に、液境膜・表面拡散モデルに基づく中・低分子有機物の除去シミュレーション結果を加える事で、処理水の有機物濃度のシミュレーションが行えることを示した。また、溶解性マンガンの除去は

鉄バクテリアによる生物学的酸化とそれら酸化物の膜分離によって行われる。鉄バクテリアによる溶解性マンガンの酸化は水温の影響を受け、中・高水温では良好なマンガン除去が行えるが、低水温では除去性が劣化する。またマンガンの酸化を行う鉄バクテリアは、浸漬槽内で増殖するより、原水から流入した鉄バクテリアが膜分離により浸漬槽で濃縮するものと考えられ、これに基づいて行なったシミュレーションは、実測値とほぼ一致する。なお、生物学的マンガン除去を行うには、回収率の高い運転が必要であり、浸漬型膜装置はこれに適している。アンモニア性窒素の酸化も水温の影響を受け、中・高温期のアンモニア性窒素の酸化はほぼ 100%であるが、水温 5℃以下の低水温期では約 60～70%の酸化率であった。

粉末活性炭循環型 MF 膜装置での膜の運転性は粉末活性炭を添加しない場合より安定する。粉末活性炭循環型 MF 膜装置と対照系の MF 膜装置の膜透過係数の変化を、膜への E260 累積負荷量に対し指数関数でプロットすると、その両者の勾配はほぼ等しい値となる。よって、本原水に対する膜運転では E260 発現性有機物が膜の汚染物質の主なものであると考えられた。粉末活性炭循環型 MF 膜装置では、活性炭吸着により原水中の中・低分子の E260 発現性有機物が除去されることより、膜への有機物負荷が削減し、膜運転は安定して行える。

第 4 章では循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置の処理性と運転性について論じている。循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置では、浸漬槽内の膜分離汚泥を攪拌槽へ返送し、塩素の添加を行った状態で原水と混合させる。膜分離汚泥中には、比較的多くの酸化マンガンを含む事より、攪拌槽では接触酸化による溶解性マンガンの酸化が進行する。循環汚泥のマンガン最大飽和吸着量は約 $0.3\text{molMn(II)}/\text{molMnO}_2$ であった。また、原水のアンモニア性窒素濃度が低い時の溶解性マンガンの除去率は約 95%であった。

循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置では塩素の添加により浸漬槽内の生物が抑制され、粉末活性炭循環型 MF 膜装置に比較し高速の膜運転が安定して行える。ただし、膜透過係数 K20 の変化は粉末活性炭循環型 MF 膜装置、対照系の MF 膜装置と同様に、膜にかかる E260 累積負荷量の指数関数で近似され、その係数は他の膜装置と類似した値であった。よって、粉末活性炭循環型 MF 膜装置や汚泥濃縮型 MF 膜装置と同様に塩素添加での汚泥循環型 MF 膜装置でも E260 発現性有機物による膜ファウリングが進行すると考えられた。

第 5 章は総括であり、本研究で得られた成果をまとめている。

これを要するに、本研究は粉末活性炭循環型 MF 膜装置と循環汚泥接触酸化型 MF 膜装置のハイブリッド膜システムが、溶解性成分の除去と高度な分離が行なえる浄水処理法である事を明かにしており、浄水工学の発展に貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。