

高効率オゾン併用膜濾過システム

野中 規正 (のなか のりまさ)

角川 功明 (かどかわ なるあき)

本山 信行 (もとやま のぶゆき)

① まえがき

1980年代末に欧米において浄水プロセスに膜分離技術が導入され始めた。膜分離技術は従来の凝集・沈殿・濾過を主体とする技術と異なり、その運転、維持管理、処理水質でさまざまな利点を有することが明らかになった。この成功に刺激され、日本でも1991年から官・学・民が一体となったナショナルプロジェクト「膜利用型新浄水システム開発研究 (MAC 21 計画)」が行われた。この実験の成果を受け、1995年に、ガイドライン、技術認定などの水道膜濾過施設導入への体制が整えられ、それ以降、簡易浄水場を主として、飲料用の膜処理施設が導入され、2000年6月現在で185か所に達した。

1999年には北海道の西空知浄水場に処理水量 6,000 m³/日の膜濾過式浄水場が建設され、2001年3月には栃木県今市市の瀬尾浄水場において処理水量 10,000 m³/日の膜濾過式浄水場が稼動を始めた。このように膜濾過式浄水場は当初の簡易浄水場から次第に中・大規模の浄水場へ導入され始めた。欧米においてはすでに処理水量 10 万 m³/日規模の膜濾過式浄水場が建設され、稼動している⁽¹⁾⁽²⁾。このように処理施設の規模が大きくなるに伴い、簡易浄水場における膜濾過施設の導入目的であった浄水場運転の自動化、安定した処理水質、病原菌などの微生物除去の目的から、さらに、原水の汚濁に対応した膜濾過技術が要求されるようになった。

浄水場に使用される膜の種類としては、精密濾過膜 (MF 膜)、限外濾過膜 (UF 膜) が中心であり、外国においてはナノ濾過膜 (NF 膜) も応用されている例があるが、その使用のためには前処理、濃縮液の処分などが必要とされ、コスト、技術面で解決すべき課題があり、まだ普及は進んでいない。MF 膜、UF 膜の場合、除濁・除菌については非常に優れた能力を発揮するが、溶解性物質に対してはその除去能力は小さい。

都市における中・大規模浄水場においては、原水中のマンガン、微量有機物などの影響を考慮する必要がある、その処理が大きな問題となっている。また、浄水場の規模を

問わず、クリプトスポリジウムなどの病原性微生物に対応した処理技術がますます必要となってきた。MAC 21 計画に引き続いて行われたプロジェクト「高度処理 MAC 21 計画」においては、上記微量有機物除去のための NF 膜処理技術、活性炭吸着やオゾン処理と膜濾過の組合せ技術などの開発が進められ、その有効性が確認されている。しかしながら、既存の高度処理技術に対する優位性が確立されるためには、なお一層の技術開発が必要であり、高度処理 MAC 21 計画に引き続き実施されている「高効率浄水技術開発研究 (ACT 21 計画)」においてもさまざまな試みがなされている。その中でオゾン耐性膜の開発は、既存高度処理プロセスで実証されている処理効果を活用しながら、膜濾過施設が有する長所を生かす処理プロセスとして大きな期待を抱かせた。

本稿では、オゾン処理で培われた技術を活用し開発した、高効率オゾン併用膜濾過システムを紹介する。

② 膜のファウリング

ファウリングによる濾過膜の性能低下を回復させるためには、一般的に薬品による洗浄が行われる。しかしながら、膜の薬品洗浄は膜を劣化させたり、使用する薬品によっては廃液の処理が難しく、浄水プロセスに膜濾過を導入する場合の大きなネックとなっている。浄水プロセスにおけるファウリング物質として、下記のもの挙げられる。

(1) 懸濁物質

懸濁物質の粒子径、荷電などにより膜のファウリング状態に与える影響が異なる。凝集剤の使用によりファウリングを抑制する方法がよく利用される。

(2) 溶解性無機物

膜面あるいは膜の内部に蓄積して膜の目づまりを引き起こす。浄水プロセスでは、マンガンがファウリング物質として関心を集めている。

(3) 溶解性有機物

水道水の消毒副生成物の原因物質としてだけでなく、膜濾過においては膜に吸着されファウリング物質として膜



野中 規正

水処理のエンジニアリング業務に従事。現在、電機システムカンパニー環境システム本部環境システム事業部水環境技術部。技術士 (衛生工学部門)、電気学会会員。



角川 功明

膜を用いた上水の高度処理技術開発に従事。現在、(株)富士電機総合研究所環境技術研究所。



本山 信行

オゾン、膜を用いた上水の高度処理技術開発に従事。現在、電機システムカンパニー環境システム本部営業統括部水環境事業推進室課長。日本水道協会会員、日本内分必攪乱化学物質学会会員。

の性能低下を引き起こす。

(4) 微生物

膜面に付着した微生物は膜面で増殖すると同時に、多糖類などの菌体外高分子化合物を生産し分離膜表面に生物膜を形成する。生物膜は形成されると、塩素の内部への浸透が困難であるため、逆洗などでは除去できずファウリング物質としてたまり積ることとなる。

これまで目づまりを抑制するためのオゾンの適用技術が検討され、その有効性は徐々に明らかになってきているが、オゾンの詳細な作用機構については不明な点が多いのが現状である。

このような状況で、ファウリング物質の蓄積を抑制するためのオゾンの操作条件、膜ろ過装置の運転条件などについての技術開発が求められていた。

③ オゾンを併用した膜ろ過システムの実証実験

3.1 前オゾン注入式膜ろ過システム

3.1.1 目的

本システムは、オゾン耐性を有する精密ろ過膜（以下、オゾン耐性 MF 膜と記す）とオゾン処理を組み合わせることにより、高い膜ろ過流束を得ることおよび併せて高度処理を行うことを目的としている。

前処理としてオゾンを注入し、膜ろ過水中にオゾンを残留させながらろ過することにより、ファウリングが抑制されるため高い膜ろ過流束においても安定して運転ができる方式で、従来システムの膜ろ過流束が 1.0 ~ 1.5 m³ / (m²・日) で運転されているのに対して、本システムでは 5 m³ / (m²・日) を目標とし、高効率化を目指している。

3.1.2 実験方法

(1) 実験場所

北千葉広域水道企業団北千葉取水場

(2) 実験期間

2000年2 ~ 8月

(3) 実験設備

実験設備は、オゾン処理ユニット、膜ろ過ユニットおよび活性炭処理ユニットから構成され、処理水量は約30 m³ / 日である。実証実験装置フローを図1に示す。また、膜モジュールの仕様を表1に示す。なお、本設備による膜ろ過ユニットの上限膜差圧は 200 kPa である。

原水は着水槽から取水した江戸川河川表流水を 100 μm のオートストレーナで処理して用いた。図1の(a)、(b)、(c)にて原水、膜ろ過水および活性炭処理水を採用し、上水試験方法に準拠して水質分析を行った。

(4) 運転方法

表2に実験期間における運転条件を示す。オートストレーナで処理した原水に、PAC (ポリ塩化アルミニウム) を 2 mg/L (Al₂O₃ 換算) ライン注入し、膜ろ過流束 5 m³ / (m²・日) でクロスフローろ過およびデッドエンドろ過にて実施した。20分ごとに、逆洗 + エアスクラビングおよびフラッシングの物理洗浄をした。また、通常、膜の薬品洗浄

図1 前オゾン注入式膜ろ過システムの実証実験装置フロー

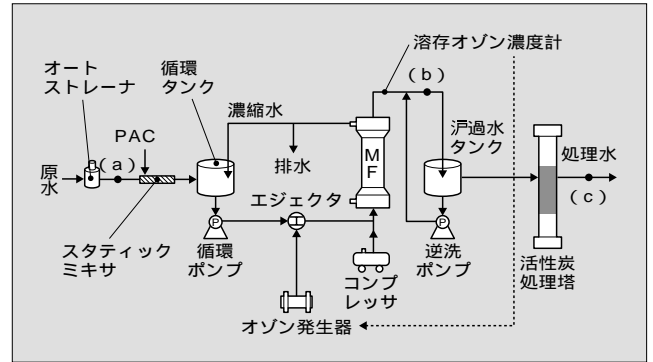


表1 膜モジュールの仕様

型式	外圧式中空糸
公称孔径	0.1 μm
材質	ポリふっ化ビニリデン
寸法	外径1.25 mm, 内径0.7 mm
面積	7 m ²

表2 前オゾン注入式膜ろ過システムの運転条件

運転期間	RUN1		RUN2	
	2000年2 ~ 4月		2000年4 ~ 8月	
前処理	PAC 注入率 (アルミナ換算)	2 mg/L		
	オゾン注入方法	エジェクタ		
	溶存オゾン濃度	1.0 ~ 2.6 mg/L	0.5 ~ 1.0 mg/L	
膜ろ過	ろ過方式	クロスフローろ過	デッドエンドろ過	
	膜ろ過流束	5 m ³ / (m ² ・日)		
	運転工程	ろ過	逆洗 + エアスクラビング	フラッシング
	物理洗浄間隔	20 分		
	薬品洗浄間隔	2,000 時間		
活性炭処理	ろ過速度	250 m/日		
	洗浄間隔	2 日		

は膜差圧が上限に達したところで実施するが、本実験においては、およそ 2,000 時間で実施し、新しい運転条件で次の運転を行うこととした。なお、この 2,000 時間の薬品洗浄間隔は、MAC21 計画時に、同原水を用いた通常の膜ろ過法による実験の薬品洗浄間隔が約 2,000 時間であるものが多かったことから設定した。また、活性炭処理はろ過速度 250 m/日、洗浄間隔 2 日で運転した。

3.1.3 実験結果および考察

(1) 運転性能評価

図2に、RUN1における膜差圧の連続運転結果を示す。膜差圧に大きな影響を与える原水濁度、水温および膜ろ過水中の溶存オゾン濃度も併せて示す。膜ろ過水中に 1 mg/L 以上の溶存オゾンを残留させながらろ過することにより、膜ろ過流束 5 m³ / (m²・日) においても約 1,900 時間の連続運転を達成することができた。なお、本実験においてはここで運転を停止したが、本装置の上限膜差圧が 200

kPaであることと、この時点における膜差圧が 150 kPa 程度であることから、2,000時間の無薬品洗浄連続運転をすることは可能と推定された。

この結果から、膜濾過水中にオゾンを残留させ、ファウリングを抑制する本システムにおいて、膜濾過流束を向上させることが可能であることを実証した。

図3に、RUN2の連続運転結果を示す。膜濾過水中に0.5～1 mg/Lのオゾンを残留させることにより、2,000時間以上の無薬品洗浄運転を達成することができた。また、運転期間中に原水濁度が150度程度まで上昇することがあったが、膜濾過水中の溶存オゾン濃度を1 mg/Lに保持することにより、安定して濾過を継続することができた。

以上の結果から、デッドエンド方式においても、膜濾過水中の溶存オゾン濃度が1 mg/L以上になるようにオゾン注入率を制御することにより、長期間安定して高い膜濾過流束で運転できることを確認した。

(2) 処理水質

表3に実験期間中に実施した水質分析結果の一例を示す。活性炭処理水は、いずれの水質項目も水道水質基準を満た

図2 前オゾン注入式膜濾過システムの連続運転結果 (RUN1)

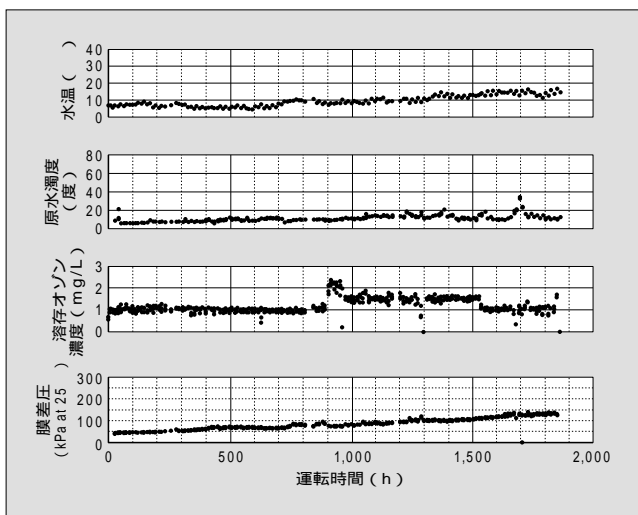
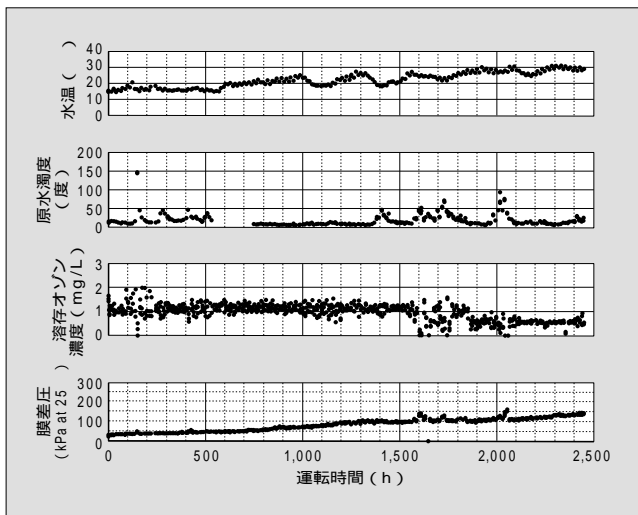


図3 前オゾン注入式膜濾過システムの連続運転結果 (RUN2)



した良好なものであった。また、定期水質分析として11回行った色度、pH、過マンガン酸カリウム消費量、マンガ、鉄、一般細菌、大腸菌群の7項目を含め、水道水質基準46項目すべて基準値を満足した。

マンガンに関しては、膜濾過での除去率は低かった。これはオゾン注入によりマンガンの一部が7価まで酸化され、過マンガン酸イオンとなって溶解したためと考えているが、活性炭処理により検出限界以下まで除去可能とされることを確認した。

3.2 オゾン洗浄式膜濾過システム

3.2.1 目的

本システムは、膜濾過法にオゾン水を用いた洗浄を組み合わせることによりファウリングを抑制して、高い膜濾過流束を得ることを目的とした。

3.2.2 実験方法

(1) 実験場所

北千葉広域水道企業団北千葉取水場

(2) 実験期間

2000年2～11月

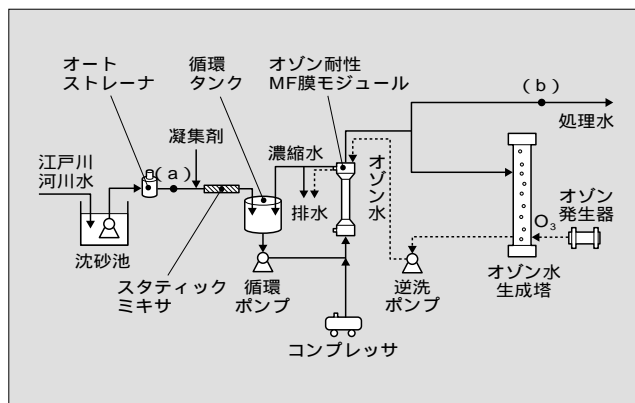
(3) 実験設備

実証実験装置フローを図4に示す。処理水量は12～18 m³/日で、原水および膜モジュールは前オゾン注入式膜濾過システムと同様のものを用いた。そして、図4(a)、bにて原水および膜濾過水を採用し、上水試験方法に準拠して水質分析を行った。

表3 前オゾン注入式膜濾過システムにおける水質分析結果

水質項目	単位	原水	膜濾過水	活性炭処理水	水道水質基準
濁度	度	30.0	< 0.1	< 0.1	2以下
色度	度	10	< 1	< 1	5以下
pH	-	6.8	7.0	6.8	5.8～8.6
過マンガン酸カリウム消費量	mg/L	11.4	3.4	2.2	10以下
マンガ	mg/L	0.06	0.02	< 0.005	0.05以下
鉄	mg/L	1.30	< 0.01	< 0.01	0.3以下
一般細菌	個/mL	860	0	6	100以下
大腸菌群	-	陽性	陰性	陰性	検出されない

図4 オゾン洗浄式膜濾過システムの実証実験装置フロー



(4) 運転方法

表4に実験期間における運転条件を示す。オートストレーナで処理した原水に適宜PACを注入し、膜ろ過流速2~3m³/(m²・日)でクロスフロー方式にてろ過した。20分ごとに、逆洗+エアスクラビングおよびフラッシングの物理洗浄をした。ここで、逆洗はオゾン水を用いて行っており、図4に示した点線のラインである。なお、逆洗に使用したオゾン水はオゾン水生成塔にて膜ろ過水を用いて製造した。

3.2.3 結果と考察

(1) 運転性能評価

表4 オゾン洗浄式膜ろ過システムの運転条件

項目	RUN1	RUN2	RUN3
	2000年 2~6月	2000年 6~9月	2000年 10~12月
PAC注入率 (アルミナ換算)	2 mg/L	なし	0.2 mg/L
ろ過方式	クロスフローろ過		
膜ろ過流速	2 m ³ /(m ² ・日)		3 m ³ /(m ² ・日)
運転工程	ろ過 逆洗+エアスクラビング フラッシング		
物理洗浄間隔	20分		
逆洗水オゾン濃度	5~7 mg/L	7 mg/L	
薬品洗浄間隔	2,000時間		

図5 オゾン洗浄式膜ろ過システムの連続運転結果

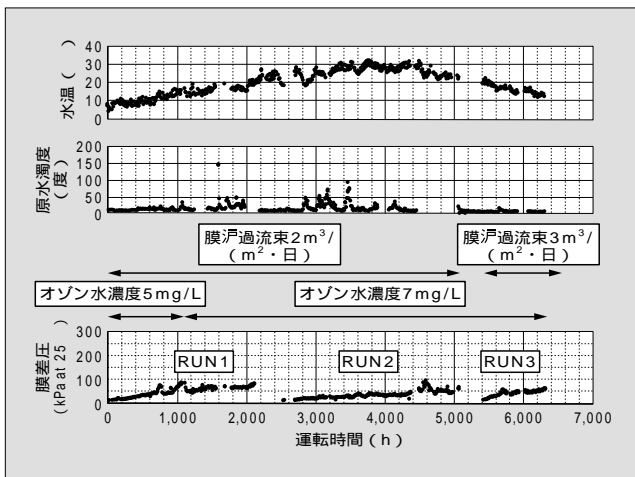


表5 オゾン洗浄式膜ろ過システムにおける処理水質

水質項目	単位	原水	膜ろ過水	水道水質基準
濁度	度	5.0	< 0.1	2以下
色度	度	4	< 1	5以下
pH	-	7.6	7.6	5.8~8.6
過マンガン酸カリウム消費量	mg/L	3.1	2.1	10以下
マンガン	mg/L	0.02	< 0.005	0.05以下
鉄	mg/L	0.28	< 0.01	0.3以下
一般細菌	個/mL	4,300	0	100以下
大腸菌群	-	陽性	陰性	検出されない

図5に連続実験における連続運転結果を示す。RUN1において、逆洗水中の溶存オゾン濃度を5mg/Lに設定して膜ろ過流速2m³/(m²・日)の条件にて運転を開始した。約1,000時間運転した時点で膜差圧の上昇速度が大きくなったため、逆洗オゾン水の溶存オゾン濃度を7mg/Lまで上げたところ、膜差圧の上昇は抑えられ、2,000時間以上、2m³/(m²・日)の高流速で安定してろ過することができた。薬品洗浄を行った後、RUN2において、PACを添加せずに膜ろ過流速2m³/(m²・日)の条件で運転を再開した。実験期間中、濁度が40~80度程度まで上昇することが5回以上あったが、2,000時間以上安定して運転することができた。さらに薬品洗浄後、RUN3において膜ろ過流速を3m³/(m²・日)まで上げて運転を行ったところ、1か月間以上安定ろ過でき、さらなる膜ろ過流速向上の可能性が確認された。

これらの結果から、逆洗にオゾン水を用いるオゾン洗浄式膜ろ過システムにおいても、オゾンの効果でファウリングを抑制でき、膜ろ過流速を向上することが可能であると実証された。

(2) 処理水質

表5に実験期間中に実施した水質分析結果の一例を示す。処理水は、いずれの水質項目も水道水質基準を満たした良好なものであった。また、定期水質分析として18回行った色度、pH、過マンガン酸カリウム消費量、マンガン、鉄、一般細菌、大腸菌群の7項目を含め、水道水質基準46項目すべて基準値を満足した。

前オゾン注入式における膜ろ過システムではマンガン除去率が低かったが、本システムでは膜ろ過のみでも十分に除去することができた。マンガンの除去率はPACの添加の有無にかかわらず実験期間中93%以上であった。

4 システムの仕様

4.1 オゾン併用膜ろ過装置の仕様

オゾン併用膜ろ過システムは、実証実験に示したことおりの方式がある。実証実験から得られた装置の仕様を表6に示す。高度処理が必要とされる原水に対しては前オゾン注入式膜ろ過システムを、高度処理が不要な原水に対してはオゾン洗浄式膜ろ過システムを採用することにより、オゾンの効果的な適用ができ、システム全体の高効率化が図

表6 システムの仕様

分類 項目	前オゾン注入式 膜ろ過システム	オゾン洗浄式 膜ろ過システム
対象原水	高度処理必要	高度処理不要
オゾン適用法	前オゾン注入	オゾン水逆洗
膜ろ過流速	5 m ³ /(m ² ・日)	2~3 m ³ /(m ² ・日)
凝集剤	PAC適宜注入	
処理フロー	オゾン 膜ろ過 活性炭	膜ろ過
処理水質	水道水質基準を満足 ただし、濁度は0.1未満	

図6 前オゾン注入式膜濾過システムを用いた場合の給水フロー

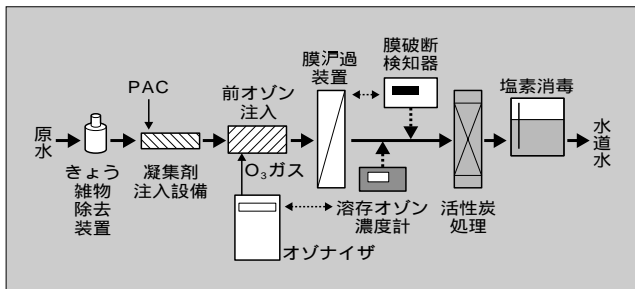
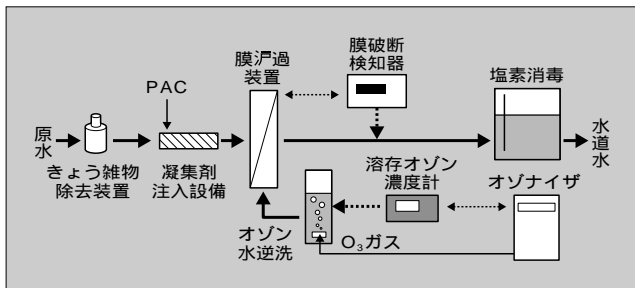


図7 オゾン洗浄式膜濾過システムを用いた場合の給水フロー



られる。

4.2 オゾン併用膜濾過装置のフロー

前オゾン注入式膜濾過システムおよびオゾン洗浄式膜濾過システムを用いた給水フローを図6および図7に示す。それぞれの方式ともに、膜の損傷や膜モジュール入口などの閉そくを防止するために原水をきょう雑物除去設備にて処理したのちに、各プロセスを経て処理水が得られ、最終的に塩素殺菌して給水されるものである。また、膜の破断対策として高感度濁度計もしくは微粒子カウンタを用いて系列ごとの膜濾過水の水质を計測し、異常が生じた場合には、その系列の運転を停止する安全な制御となっている。

4.3 オゾン注入量制御

前オゾン注入式膜濾過システムでは、膜濾過水中の溶存オゾン濃度を所定値（原水水质，膜濾過流速，薬品洗浄間隔により設定）に維持することが、濾過水を安定供給するうえで重要となる。本システムでは、膜濾過水中の溶存オゾン濃度を計測し、それを基に供給オゾンガス濃度を制御

することによって、必要最低限のオゾン注入率にて運転を行う。

オゾン洗浄式膜濾過システムにおいても、逆洗水の溶存オゾン濃度が所定値となるように、供給オゾンガス濃度を制御することにより、必要最低限のオゾン注入率にて運転を行う。

5 あとがき

オゾン耐性を有するMF膜を用いた高効率オゾン併用膜濾過システムとして、「前オゾン注入式膜濾過システム」と「オゾン洗浄式膜濾過システム」を紹介した。今後は、ファウリング物質に与えるオゾン作用機構の解明をさらに進め、個々の水道原水に適した高効率で高品質な処理水を得るための浄水システムを提供する所存である。

なお、本実証実験は、ACT21計画第3研究グループの持込研究として、旭化成(株)、磯村豊水機工(株)および日本鋼管(株)との共同で実施したものであり、遂行にあたっては、北千葉広域水道企業団の関係各位にご協力いただいた。ここに感謝の意を表する次第である。

参考文献

- (1) Crapper, J. et al. CMF-S Microfiltration Plant to Treat 126ML/day. 第2回国際水道膜フォーラム講演要旨集. 2001, p.13.
- (2) States, S. et al. Membrane filtration as posttreatment. JAWWA. vol.92, 2000, p.59-68.
- (3) 橋野昌年ほか. 耐オゾン膜モジュールを用いたオゾン併用プロセスの検討. 第50回全国水道研究発表会講演集. 1999, p.212.
- (4) 角川功明ほか. オゾン耐性膜を用いた湖沼水の浄化に関する基礎的検討. 第51回全国水道研究発表会講演集. 2000, p.202.
- (5) 澤田繁樹ほか. オゾンと共存させたMF膜ろ過におけるファウリング抑止効果. 水道協会雑誌. vol.69, no.7, 2000, p.12-21.
- (6) 国包章一ほか. 膜ろ過実証プラント実験における膜ろ過流速と浄水能力の関係. 第46回全国水道研究発表会講演集. 1995, p.206.



*本誌に記載されている会社名および製品名は、それぞれの会社が所有する
商標または登録商標である場合があります。