

## 論文の内容の要旨

論文題目 ナノろ過膜を用いた浄水処理における前処理プロセスの影響

氏名 金 賢児 (きむ ひよな)

本研究は、実際の河川水を用い、浄水処理におけるナノろ過膜のろ過運転に対する前処理のプロセスの影響を評価した。本研究は主に2つの構成要素からなり、第1の研究では、3つの前処理水、すなわち、凝集+砂ろ過（CS前処理）、精密ろ過（MF前処理）、とオゾン化-活性炭吸着（CSOB前処理）と、原水（RAW）をナノろ過の原水として、ナノろ過膜のファウリングへの影響を比較した。また第2の研究では、精密ろ過膜を前処理とし、添加する凝集剤の種類を変えて、NF膜ファウリングへの影響を評価した。

これらの前処理の効果は、3つのポリアミド膜のタイプによって異なった。すなわち、MF前処理はUTC-60とNF270膜（それぞれ、中間、最も高いMWCOを持った）ではCS前処理と同じくらい効果的だった反面、3種類のナノろ過膜の間で最も低いMWCOを持っていてUTC-70膜では効果的でなかった。一方、CSOB前処理はUTC-70とUTC-60膜に最も効果的であったが、NF270膜は運転開始から10時間で非常に高いラックスであったために、ろ過抵抗が急激に増加した。このことから、初期ラックスを調節することが膜ファウリングの制御にとって非常に重要なことを示唆していた。

NF膜ファウリングへの影響を調べるため、異なった膜口径のMF膜を用いてMFI値を測定した。その結果、MFI値は、測定時の膜孔径を減少させることで増加し、特に膜孔径0.1μm以下の場合、MFI値が大幅に上昇した。このことから、膜供給水のファウリングが主に0.1μm未満の粒子により引き起こされることを示した。0.1μm未満の粒子について更に詳細にみると、CS前処理とCSOB前処理のMFI<sub>0.05</sub>値は、MF前処理と比較してより高かった。また、CSとCSOB前処理では、0.05μmと0.025μmの膜孔径間でMFI値がやや減少していることから、0.05μmと0.025μmの間の粒径でより多くの膜汚染物を含んでいることが示された。また、CSとCSOB前処理水のMFI値は、測定時の膜孔径にかかわらずほぼ同じであり、このことは、CS前処理水に対してオゾンとBAC前処置を追加したCSOB前処理でも、MFI値を減少しなかったことを示している。

MF前処理はCS前処理とCSOB前処理より低くMFI<sub>0.05</sub>値を減らすためにより効果的だったが、溶存有機物質の除去効果は低かった。本研究で用いた3種類の膜の中で、UTC-70膜は最もラックスが低く、従って膜表面のケーキ層はできにくく、主として親水性の有機物の付着によりファウリングがおこると考えられる。それゆえに、親水性の有機物を除去できないMF前処理はUTC-70膜のファウリングを減らすことに効果的ではなかった。

一方、CSOB前処理は有機汚染物を取り除くことに最も効果的だった。このため、3種

類の膜の中で最も分画分子量が大きいNF270膜では、初期フラックスが大きくなり、その結果、急激なケーキ層の形成を引き起こしたものと考えられた。

膜供給水中の有機成分を、XAD樹脂により親水性、半親水性、及び疎水性成分に分離したところ、CS前処理より、CSOB前処理の方がより高い疎水性及び半親水性成分とより低い親水性成分を有することを示していた。また、UTC-70及びUTC-60膜の汚染物の総量当たりの有機汚染物の平均比率は、原水>MF前処理>CS前処理>CSOB前処理の順であり、無機汚染物の平均比率は、CSOB前処理>CS前処理>MF前処理>原水であった。この結果は、MF膜処理水を前処理とした場合、親水性の有機物によるファウリングが起こりやすいとした、前述の考察と一致していた。

異なる凝集剤を用いたMF前処理によるナノろ過膜のファウリング抑制に関する研究では、次のような結論を得た。

膜供給水にPAC及び塩化鉄凝集剤の添加は、いずれも膜ファウリングを低減する作用をした。特に、塩化鉄凝集剤はPAC凝集剤よりもろ過抵抗の上昇を抑制するのにより効果があった。

UTC-70膜の共存物質の除去率はいずれも90%以上で、UTC-60膜及びNF270膜はほぼ同様な傾向を見せた。UTC-70膜、UTC-60膜及びNF270膜のいずれも、ろ過抵抗の上昇率は、原水>PAC添加水>塩化鉄添加水の順で、膜の種類によらなかった。

汚染した膜を超音波、酸、アルカリなどにより薬品洗浄したところ、超音波洗浄及びアルカリ洗浄の効果が高かった。これは、酸洗浄により除去される鉄・アルミニウムなどの金属類による膜汚染が少なかつたためであると思われる。薬品洗浄終了後に膜の純水フラックスを測定したところ、NF-270膜は平均99.2%，UTC-70膜は平均 88.6%，UTC-60膜は平均 57.1%の回復率を示した。薬品洗浄により抽出した膜付着物質の構成成分を評価したところ、有機物、シリカ、鉄、カルシウムなどの存在が確認された。異なる凝集剤を用いたにも関わらず、膜面への付着量及び構成比はほぼ同じであり、有機物が平均62%，無機物が38%であった。対象水の中で、UTC-70膜及びUTC-60膜から抽出された無機物の平均割合は、塩化鉄添加水(30%)>原水(25%)>PAC添加水(24%)の順であった。抽出物中の金属及び無機物の主要成分はシリカ>ナトリウム>カリウム>カルシウム>鉄及びアルミニウム>その他の順であり、無機物の中では、シリカが主要な汚染物であった。

AFMにより新膜の膜表面の自乗平均面粗さを測定したところ、UTC-70 > UTC-60 > NF270の順であった。薬品洗浄終了後のそれぞれの膜の自乗平均粗さを示す。また、いずれの膜でも未使用膜に比べ、薬品洗浄後は自乗平均粗さが増加し、増加の割合は原水>PAC添加水>塩化鉄添加水の順で高かった。