

# 生物接触ろ過が MF 膜ファウリングに及ぼす影響の評価

## Effect of Pretreatment by Biological Contact Filter (BCF<sup>®</sup>) on Membrane Fouling in Microfiltration (MF) for Drinking Water Production



小野田草介\*  
Sosuke Onoda  
博士 (工学)



塩田憲明\*\*  
Noriaki Shiota  
農学博士



三浦雅彦\*\*  
Masahiko Miura  
農学博士



長谷川進\*\*\*  
Susumu Hasegawa  
工学博士・技術士 (水道部門)



松山秀人\*\*\*  
Hideto Matsuyama  
工学博士

臭気やアンモニア性窒素の除去機能を有する生物接触ろ過 (BCF) と膜ろ過を組合せた浄水システムにおいて、生物接触ろ過が後段の膜ろ過における膜ファウリングに及ぼす影響に関する検討を行った。水質と膜ファウリングの関連性を評価した結果、バイオポリマーが膜ファウリングの主要因子と考えられた。また、バイオポリマーは BCF で除去可能であった。これらのことから、BCF が浄水工程における膜分離の前処理として有効であることが示された。

A biological contact filter (BCF) is used to remove odors and ammonium nitrogen at drinking water treatment plants. In this study, we investigated the effect of a BCF as pretreatment prior to microfiltration on membrane fouling. After assessing the correlation between water quality and membrane fouling, biopolymers were found to be one of the major factors of membrane fouling. In addition, biopolymers could be removed by the BCF. These results suggest that a BCF is effective for pretreatment prior to microfiltration in drinking water production.

### Key Words :

浄水  
生物接触ろ過  
精密ろ過  
膜ファウリング

Water purification  
Biological contact filter  
Microfiltration  
Membrane fouling

### 【セールスポイント】

- ・前処理に生物接触ろ過を採用することで後段の MF 膜における膜ファウリングが軽減されることが明らかとなった。

### まえがき

浄水方式としての膜ろ過法は、従来の急速ろ過法に比べ、設置面積が小さい、処理水質が良好であるといった特長を有し、近年浄水場への採用件数が増加しており<sup>1)</sup>、今後のさらなる普及にも期待が寄せられている。浄水分野における膜ろ過では、精密ろ

過 (Microfiltration : 以下, MF) 膜をはじめとする多孔膜を用いるのが一般的である。浄水工程で MF 膜が担う役割はあくまで除濁であり、原水中の溶解成分を除去する必要がある場合においては、溶解成分除去機能を有する前処理と組合せた浄水システムが提案される。当社は生物接触ろ過 (Biological

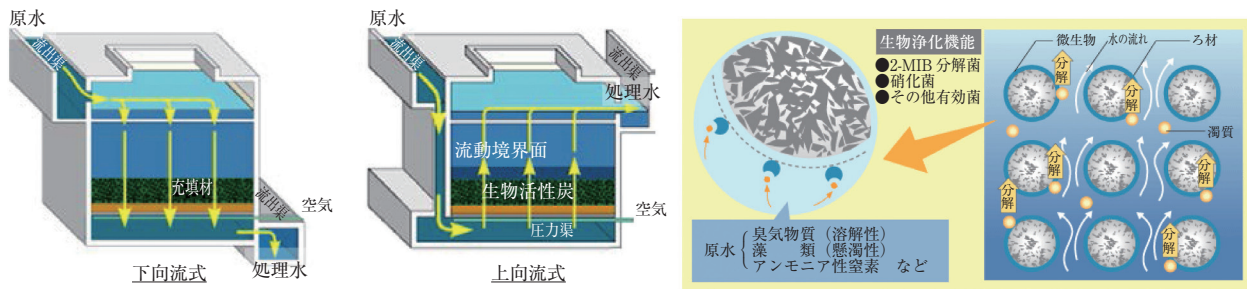


図1 BCF概略図（左：下降流式，中：上向流式，右：原理）

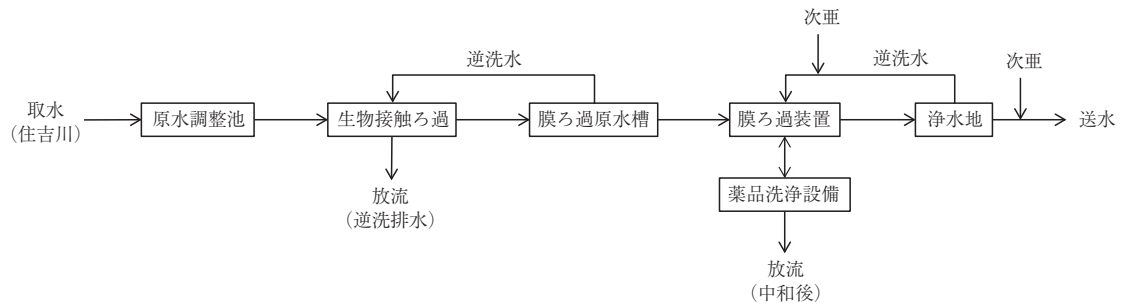


図2 本山浄水場の処理フロー

Contact Filter：以下，BCF）と膜ろ過を組合せた浄水システムをこれまでに納入してきた。

BCF装置の概略図を図1に示す。BCFは、充填材に微生物を付着、繁殖させた生物膜に水道原水を接触させることにより、原水中のアンモニア性窒素などを生物化学的に酸化、除去する技術で、薬品の添加が不要なため安全、維持管理が容易であるといった特長を有する。通水方向により、下向流式、上向流式の2種類があり、いずれも定流速ろ過を標準としている。また、週1回程度の頻度で水洗浄および空気洗浄を実施し、充填材にて捕捉された濁質を排出しながら運転する。

膜ろ過設備の運転における最大の課題は、運転に伴い発生する膜ファウリング（目詰まり）であり<sup>2)</sup>、これへの対応としては、逆圧洗浄（以下、逆洗）やエアバブリングに代表される物理洗浄を定期的に行うのが一般的である。物理洗浄で解消することができない膜ファウリング（以下、不可逆ファウリング）については、酸・アルカリ等を用いた薬品洗浄で対応するが、運転費を増加させる要因となるため、膜材質、前処理、および運転条件等の最適化により膜ファウリングを極力発生させないための技術開発が求められている。膜ファウリングを引起こす要因について、近年、バイオポリマー\*（以下、BP）と呼ばれる画分の溶解性高分子有機物が注目を集めている<sup>3), 4)</sup>。一方で、生物学的処理である

表1 本山浄水場 BCF 諸元

項目	仕様
通水方式	下向流式
担体	セラミックビーズ（平均粒径2 mm）
担体充填厚さ	1.6 m
通水速度 (LV)	120 m/d
逆洗	週に1度、気水洗浄（膜ろ過原水を使用）

BCFを膜ろ過の前処理に用いた場合、水質改善効果による膜ファウリング低減と、微生物のバイオポリマー生成による膜ファウリング助長のどちらが優勢となるかについて、明確な報告はこれまでにない。そこで、水質分析と膜ろ過試験のデータ蓄積によりBCFが後段のMF膜における膜ファウリングに及ぼす影響を評価し、また、BCFの設計の妥当性を評価したので報告する。

## 1. 実験方法

### 1.1 対象設備

本検討で対象とした神戸市本山浄水場（処理量：2000 m<sup>3</sup>/d、水源：住吉川表流水）の処理フローを図2に示す。取水された原水は調整池を経由し、BCF処理、MF膜ろ過が行われる。BCFおよびMF膜の諸元を表1および表2に示す。BCFの充填材には平均粒径2 mmのセラミックビーズが使用されており、通水方式は重力式の下向流である。

表2 本山浄水場 MF 膜諸元

項目	仕様
材質 形状 孔径 ろ過形式	ポリフッ化ビニリデン (PVDF) 中空糸 0.1 μm 外圧式
物理洗浄	30分ごとに1回 逆洗 (次亜 3 mg/L) + エアバブリング
簡易薬品洗浄	2週間ごとに1回 クエン酸0.3% × 13時間浸漬

## 1.2 原水水質と膜ファウリングの関連性評価

本山浄水場の BCF 流入水および流出水を採水し、水質分析およびラボスケールの膜ろ過試験に供した。

膜ろ過試験には、図3に示す膜ろ過試験装置を用いた。実設備と同じポリフッ化ビニリデン製中空糸 MF 膜を8本束ねて作製したミニモジュールを用いた。ミニモジュールの膜面積は70 cm<sup>2</sup>で、中空糸内部を片端から吸引することでろ過水を得、ろ過流速は1.5 m/d に調整した。実際の膜ろ過設備において主に問題となる膜ファウリングは、不可逆ファウリングであるため、本検討でも不可逆ファウリングを対象とした。不可逆ファウリングを評価するために、本検討では、①新品膜での純水膜ろ過抵抗測定、②サンプル水を用いた約2週間の膜ろ過、③スポンジでの膜表面拭取り（物理洗浄を意味する）、④ファウリング膜での純水膜ろ過抵抗測定を行った。膜ろ過抵抗値は以下の式により算出した。

$$R = \frac{\Delta P}{\mu \cdot J}$$

ここで、 $R$ ：膜ろ過抵抗 [m<sup>-1</sup>]、 $\Delta P$ ：膜間差圧 [kPa]、 $J$ ：ろ過流速 [m/s]、 $\mu$ ：粘度 [10<sup>-3</sup> Pa·s] である。①と④の膜ろ過抵抗の差を②の膜ろ過時間で除して算出した膜ろ過抵抗上昇速度 [m<sup>-1</sup>/d] をサンプル水の不可逆ファウリング性の指標とした。また、②においては、実設備を模擬して、30分間のろ過と1分間の逆洗（逆洗水：膜ろ過水 + 5 mg/L 次亜塩素酸ナトリウム（以下、次亜）、逆洗流速：2.25 m/d）を繰り返す運転を行った。

水質分析について、濁度はポータブル濁度計 (TN100IR, ニッコー・ハンセン株)、全有機炭素 (TOC) は TOC 計 (TOC-VCSH, 株島津製作所)、BP およびフミン質は液体クロマトグラフィー-有機炭素検出器 (LC-OCD Model 8, DOC-Labor Dr. Huber)、SMP\*\* (Soluble microbial by-product; 微生物由来の溶解成分) は三次元蛍光測定装置 (Aqualog,

株堀場製作所)、全鉄 (以下、T-Fe) および全マンガン (以下、T-Mn) は誘導結合プラズマ発光分光分析装置 (SPS3100, 株日立ハイテクサイエンス) により測定した。SMP とは、微生物の活動に伴い生産される溶解性有機物の総称であり、膜ファウリングに影響を与える因子であると指摘されている<sup>5)</sup>。BP と一部重複する指標であると考えられるが、今回は蛍光分析による定量であるため、糖類を含まない点が BP と明確に異なっている。

## 1.3 使用済み膜を用いたファウラントの解析

本山浄水場で実際に約3年間使用された膜モジュールから単糸状の膜（長さ5 cm、膜面積12 cm<sup>2</sup>）を切出し、純水での単糸膜ろ過試験（図4）に供した。ろ過流速は1.5 m/d に調整し、その際の膜間差圧から使用済み膜の膜ろ過抵抗を算出した。その後、物理的に可逆な膜ファウリングの度合いを評価するためにスポンジによる物理洗浄を、また、物理的に不可逆かつ薬品により可逆な膜ファウリングの度合いを測定するために薬品洗浄を実施し、それぞれの後に純水で膜ろ過抵抗を測定することで各洗浄の効果を評価した。薬品洗浄の条件を表3に示す。

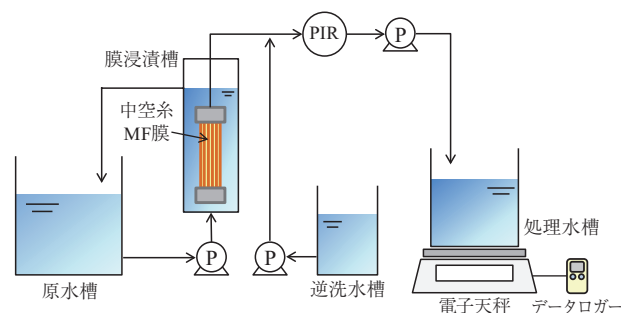


図3 膜ろ過試験装置

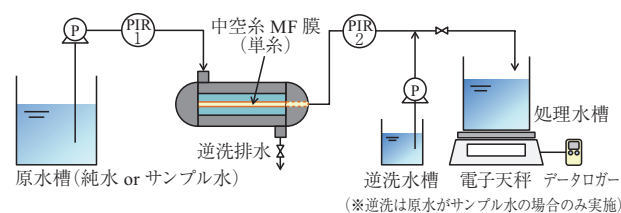


図4 単糸膜ろ過試験装置

表3 薬品洗浄条件

分類	薬品 (濃度)	仕様
酸	クエン酸 (3 000 mg/L)	13 h
	塩酸 (pH=2)	24 h
アルカリ	次亜塩素酸ソーダ (500 mg/L)	13 h
	苛性ソーダ (pH=12)	24 h

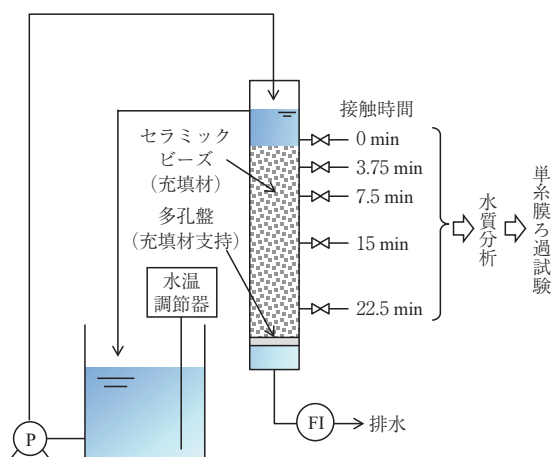


図5 BCF カラム試験装置

また、膜から抽出されたファウラントを調査するために、洗浄に使用した薬液に含まれる有機物の代表として TOC、無機物の代表として T-Fe、T-Mn を分析した。

#### 1.4 BCF における接触時間が膜ファウリングに与える影響の評価

BCF における流入水と充填材の接触時間が流出水水質および膜ファウリングに与える影響を評価するために、室内での BCF カラム試験および単糸膜ろ過試験を実施した。BCF カラム試験装置 (図5) は、直径32 mm の透明アクリル円筒管に平均粒径 2 mm のセラミックビーズを1.6 m の厚さに充填し作製した。カラム上部より供給される原水と充填材の接触時間が、3.75、7.5、15 (現設計基準)、22.5分となる位置に採水用ノズルを設けた。

それぞれのノズルから得た流出水について BP 濃度を測定した後、①流出水による単糸膜ろ過試験、②膜表面のスポンジ洗浄、③純水による単糸膜ろ過試験に供し、不可逆ファウリングによる膜ろ過抵抗を測定した。①は、30分間のろ過と1分間の逆洗 (逆洗水：膜ろ過水、逆洗流速：2.25 m/d) を繰り返して、20時間の運転を行った。また、水温による影響を評価するために、試験は夏季と冬季に実施し、夏季のサンプルでは20℃、冬季のサンプルでは5℃に水温を調整し、2週間馴致した後に試験に供した。

## 2. 実験結果および考察

### 2.1 原水水質と膜ファウリングの関連性評価

図6に2015年1月～2016年7月にかけて取得した BCF 流入水および BCF 流出水の BP 濃度と不可逆ファウリングによる膜ろ過抵抗上昇速度との関係とその相関係数を示す。BCF 流出水のプロットが

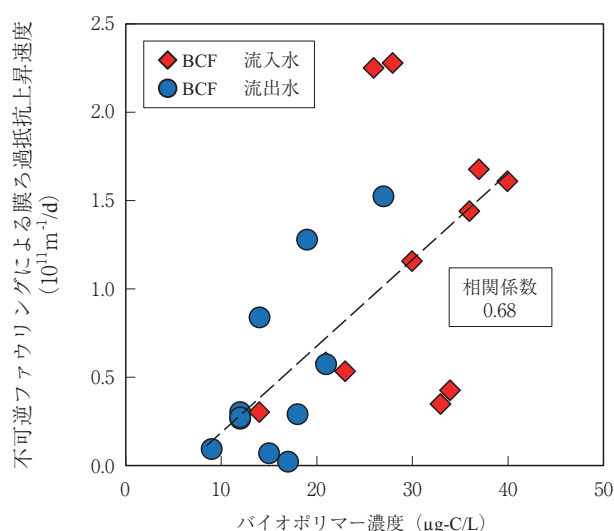


図6 バイオポリマー濃度と膜ろ過抵抗上昇速度の関係

表4 各水質の不可逆ファウリングとの相関係数

	水質項目	不可逆ファウリングとの相関係数
	濁度	0.40
有機物	TOC	相関なし
	バイオポリマー	0.68
	フミン質	0.39
	SMP	0.48
無機物	鉄	0.29
	マンガン	相関なし

BCF 流入水のプロットに対して左下側へシフトしていることがわかる。このことから、BCF 処理は、流入水中の BP を除去し、膜ファウリングを低減する機能を有していることが明らかとなった。

また、図6と同様の方法で求めた各水質項目と不可逆ファウリングとの相関係数の一覧を表4に示す。BP の相関係数がもっとも高いことから、BP が不可逆ファウリングの主要因子であると推察された。また、BP はタンパク質および多糖類を含む溶解性高分子有機物の総称であるのに対し、蛍光分析で測定した SMP は多糖類を含まない。従って、BP の不可逆ファウリングとの相関係数が、SMP の不可逆ファウリングとの相関係数より大きいということは、BP 中のとくに多糖類が不可逆ファウリングと強い相関を持っていると推察できる。

### 2.2 使用済み膜を用いたファウラントの解析

#### 2.2.1 物理洗浄および薬品洗浄の効果

図7にファウリング膜、物理洗浄後の膜、および各種薬品洗浄後の膜、および新品膜で測定した膜ろ

過抵抗を示す。物理洗浄の前後で膜ろ過抵抗にほとんど差が無かったことから、今回用いた使用済み膜モジュールでは、運転中の物理洗浄（すなわち、逆洗およびエアバブリング）で十分な洗浄効果が得られていることが分かった。一方、薬品洗浄前後での膜ろ過抵抗の差が意味する薬品洗浄効果の大きさは、次亜、クエン酸、苛性、塩酸の順列となった。一般的に、アルカリ（次亜、苛性）は有機物を対象とした洗浄に用いられるが、今回はアルカリ・酸のいずれでも一定の洗浄効果が得られた。これは、本山浄水場の膜ろ過設備では、有機物と無機物が複合的に膜ファウリングを引起こしていたことを示している。

### 2.2.2 ファウラントの解析

各種薬品による洗浄の洗浄廃液の分析を基に算出した単位膜面積あたりから抽出された無機物および有機物の量を表5に示す。クエン酸による無機物抽出量と次亜による有機物抽出量を比較から、膜モジュールには無機物より有機物の方が多く付着していると推察された。これは実運転で定常的に実施されているクエン酸洗浄では除去されにくい有機物が多く付着していた結果であると考えられる。また、抽

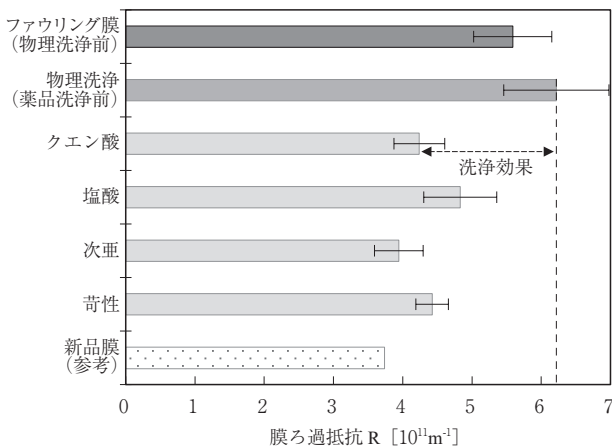


図7 各種薬品洗浄の効果

出された有機物には、2.1.項で膜ファウリングの主な原因であると述べたBPも含まれると考えられる。

一方、クエン酸洗浄での有機物抽出量が塩酸洗浄と同程度であったと仮定すると、抽出された有機物量は少ないにもかかわらず、膜ろ過抵抗の低減量は次亜洗浄と同程度である。すなわち、無機物は少量の付着でも膜ファウリングに大きな影響を与えると考えることができる。これらのことから、本施設での定期的な簡易薬品洗浄では酸と次亜を併用し、無機物と有機物の両方による膜ファウリングに対応してゆくことが膜設備の運転安定化に好ましいことが分かった。

### 2.3 BCFにおける接触時間が膜ファウリングに与える影響の評価

図8にBCFにおける接触時間とBP濃度の関係を示す。BP濃度は、季節に関わらず接触時間の設計値である15分までは接触時間とともに低下したが、冬季においては15分以上の接触時間では逆に上昇した。これは、接触時間が長くなることにより微生物がBPを分泌したためであると考えられる。また、膜ろ過抵抗についてもBP濃度と同様の傾向が

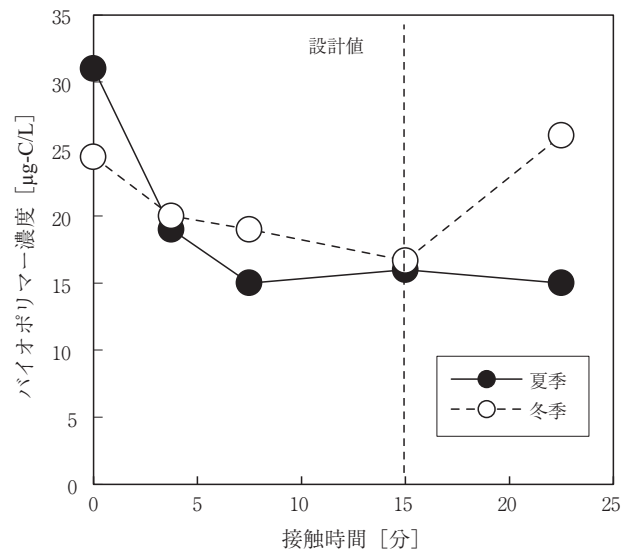


図8 BCFにおける接触時間とバイオポリマー濃度の関係

表5 ファウラント抽出量

薬品	抽出量 mg/m <sup>2</sup>		膜ろ過抵抗低減量 10 <sup>11</sup> m <sup>-1</sup>
	無機物 (T-Fe+T-Mn)	有機物 (TOC)	
クエン酸 3000 mg/L	12	測定不可	2.0
塩酸 pH=2	9.7	31	1.4
次亜 500 mg/L	0.9	138	2.3

確認されている。このことから、BP濃度と膜ファウリングとの強い関連性が示される結果となった。また、接触時間15分を境にBP濃度および膜ろ過抵抗が上昇することから、膜ファウリング低減を目的とした前処理装置としても、当社のBCFの設計が妥当であることが示された。

## む す び

BCFが後段のMF膜における膜ファウリングに与える影響を評価することを目的とし、実サンプルによる水質分析および膜ろ過試験、実設備で使用された膜モジュールのファウラント解析、カラム試験によるBCFの設計の妥当性評価を実施し、以下の結果が得られた。

- 1) BPが膜ファウリングともっとも強い関連性を示し、BPを除去可能であるBCFは膜ファウリングを低減する機能を有することがわかった。
- 2) 浄水場で使用された膜には多くの有機物が付着していたが、少量の無機物の付着でも膜ファウリングに与える影響は大きいことがわかり、有機物／無機物いずれによる膜ファウリングにも対応するために、薬品洗浄では酸とアルカリを併用することが好ましいと考えられた。
- 3) BCFにおいて15分の接触時間がBP濃度および膜ろ過抵抗をもっとも低減することがわかり、当

社のBCFの設計が妥当性であることが示された。

水道水源の水質悪化が問題となっている昨今、浄水処理において前処理の担う役割はますます重要度を増してゆくと思われる。薬品の添加が不要なBCFは、維持管理性および安全性で特長を有しているが、今回の検討で膜ファウリングを低減するという新たな魅力を見出すことができた。今後は、ファウラントの詳細、薬品洗浄の方法などを追究し、BCFと膜処理を組合わせた浄水システムのさらなる安定運転に資する知見を蓄積してゆく所存である。

最後に、本検討は、神戸市水道局よりご提供いただいたサンプル水を用いて実施いたしました。関係各位に深く感謝いたします。

## [参考文献]

- 1) 水道技術研究センター, <http://www.jwrc-net.or.jp/jigyuu/gijyutsu-shien.html>
- 2) 中尾真一, 日本海水学会, 62 (2008) 234-237
- 3) Huber ほか, *Water Res.*, 45 (2) (2011) 879-885.
- 4) 木村 克輝ほか, *Water Res.*, 49 (2014) 434-443
- 5) Jarusutthirak ほか, *Environ. Sci. Technol.*, 40 (3) (2006) 969-974

\*) LC-OCD分析で検出される分子量約10 kDa以上の溶解性高分子有機物の総称。

\*\*\*) 微生物が活動に伴い分泌する溶解性有機物の総称。