

逆浸透膜を用いた二次処理水の高度処理 3連続運転試験の結果

吉田 勲*・猪迫耕二*・岩浅衛治**
(平成10年6月26日受付)

*鳥取大学農学部生存環境科学, **鳥取大学大学院農学研究科

An Advanced Treatment of Secondary Treated Wastewater by Reverse Osmosis Membrane The Results of Three Continuous Running Tests

Isao Yoshida*, Koji Inosako*, Eiji Iwaasa**

* *Department of Environmental Science, Faculty of Agriculture, Tottori University, Tottori, 680-8553, Japan*

** *The Graduate School of Agriculture, Tottori University, Tottori, 680-8553, Japan*

The authors tried to apply reverse osmosis (RO) membrane to the advanced treatment of secondary treated wastewater (STW) discharged from the working sewage treatment plant. RO membrane was set in the Tojino village sewage treatment plant and three kinds of long term running tests were carried out. At the beginning of each test, the used membrane was exchanged for new one. The results of three tests indicate the following: (1)The flux of the advanced treated wastewater decreases with time due to attaching of contaminants on the surface of the membrane, (2)The removal rate of T-N decreases with the increase of NH₄-N contained in the supplied wastewater in the case of T-N being constant, (3)PAC is effective for flocculation of contaminants in the STW, (4)The removal rate of contaminants decreases as a period of a running test gets longer, (5)PAC can lead the pre-treating device to be stuffed up, (6)The results of running tests show the different trends depending upon the water qualities of STW.

(Received 26 June 1998)

Key words: advanced treatment, secondary treated wastewater, reverse osmosis, T-N

緒言

農業用水水質と生活環境の保全を目的に開始された農業集落排水事業の事業採択地区数は、平成8年度現在で約3,500あり、このうち供用を開始している地区は約1,500、事業実施中の地区は約2,000となっている[2]。しかし、従来の汚水処理では有機物の除去に主眼が置かれ

ていたため、富栄養化の原因物質である窒素、リンはあまり厳しい規制を受けてこなかった。水質悪化が進む現在、処理場の放流水に含まれる窒素、リンの量を抑えることは緊急の課題であり、そのために様々な高度処理法の研究、開発が行われている。

我々が行ったのは、逆浸透膜(RO膜)を用いた二次処理水の高度処理である。RO膜は工業用の超純水を製

造する時などに使われている膜であり、一般にRO膜を通して得られる高度処理水は他の方法によるものよりも不純物の含有量が少なく、再利用の幅が広がる。また、今回の実験のように、既設処理場にROプラントを付設して二次処理水を送るようになれば、処理場を再設計することなしに機能アップできるので経済的である。

今回、我々はRO装置の実用化を目的に、同一種類のRO膜を用いて3回の連続運転試験を行った。以降では、その結果について報告するとともに、RO膜の高度処理への適用可能性と課題について検討する。

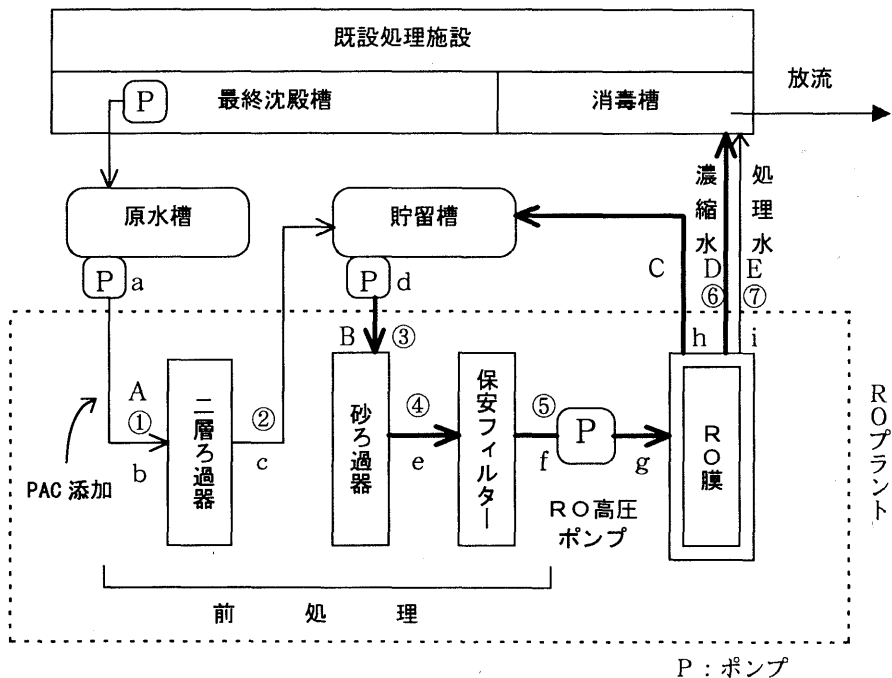
膜分離技術

膜を媒体として分離・濃縮を行う技術を経じて膜分離というが、その中でも特に圧力差を利用して溶液中の溶質と溶媒を分離する技術を膜ろ過と呼ぶ。膜ろ過はさらに精密ろ過(MF)、限外ろ過(UF)、逆浸透(RO)の3つに大別される。分離対象はそれぞれ、MFがミクロンオーダーの懸濁物質や細菌のような微粒子、UFがさらに小さなコロイドや高分子物質、ROがイオンや低分子物質である。溶液側にかける圧力は、MFで減圧 $\sim 2 \text{ kgf/cm}^2$ 程度、UF

で $2 \sim 10 \text{ kgf/cm}^2$ 程度、ROで $10 \text{ kgf/cm}^2 \sim 100 \text{ kgf/cm}^2$ 程度である[3]。RO膜を用いたときの操作圧力が大きいのは、溶液中の塩類によって生じる浸透圧に打ち勝つために大きな圧力が必要となるからである。

膜ろ過による溶質分離機構については未解明な部分が多いが、細孔説によると、膜の細孔径より小さな粒子のみを通過させる‘ふるい効果’が分離の第一要素であり、細孔内壁と粒子の間の距離が接近するために生じる‘相互作用’（親和力や反発力）が分離の第二要素となる。この場合、MFやUFでは‘ふるい効果’が支配因子であり、ROでは‘相互作用’が支配因子になる[1]。

膜による分離方式には全量ろ過方式とクロスフローろ過方式がある。全量ろ過方式は膜面に対して垂直に液を流す方式であり、供給水と処理水の流れの方向は同じになる。一方、クロスフローろ過方式は膜面に沿って平行に液を流す方式であり、供給水と処理水の流れの方向は垂直となる。クロスフローろ過方式はこのような十字流を作るために全量ろ過方式に比べて多量の供給水を必要とするが、膜面への濁質の付着・沈着を少なくできるという点では有利である[1]。本研究で採用したのはクロスフローろ過方式であった。



第1図 実験プラントの概要

第1表 各試験の運転条件の比較

	1回目運転	2回目運転	3回目運転
試験期間	'95.11.1 ~ '96.1.30	'96.3.8 ~ '96.11.26	'96.12.16 ~ '97.9.15
RO給水圧 (kgf/cm ²) (average)	7.3 ~ 16.5 (14.3)	9.0 ~ 17 (15)	6.7 ~ 15.5 (12.3)
濃縮排水量 (ℓ/h) (average)	35 ~ 40 (37.8)	20 ~ 42 (38)	20 ~ 40 (29.3)
採水時の水温 (°C) (average)	6.0 ~ 27.5 (15.3)	18 ~ 44 (33)	8.0 ~ 49 (33.4)

実験装置および運転状況

実験プラントは鹿野町閑野地区の農業集落排水処理場内に付設した。この処理場は平成5年に建設されたJARUS V型の施設であり、処理人口は約190人、処理水量は約60 m³/dayである。なお、JARUS V型は嫌気性ろ床と接触曝気を組み合わせた処理方式であり、流量調整槽や高度な窒素除去能力は有していない。本実験ではこの処理場の最終沈殿槽から汲み上げた二次処理水を実験用の原水として使用した。

実験プラントの概要を第1図に示す。RO装置の前段に、膜モジュールの目詰まりを防ぐための前処理設備として、二層ろ過器、砂ろ過器、保安フィルターを設置している。二層ろ過器は上層にアンスラサイト（平均粒径0.9mm）、下層に砂（平均粒径0.6mm）を充填したろ過装置であり、二次処理水中のSSを除去することを目的としている。砂ろ過器は平均粒径0.5 mmの砂を充填したろ過装置で、二層ろ過器よりも更に小さなSSを除去することを目的としている。二層ろ過器は目詰まりを防ぐために毎日刻刻に充填物の洗浄が行われるように設定し、砂ろ過器もデータ採取の際に洗浄を行うようにした。保安フィルターはRO高圧ポンプに砂ろ過器から流出した砂などが絡まないように設置したろ過装置である。また、前処理過程でのSS除去率を高くするために二層ろ過器に入る前の液に凝集剤（PAC）を添加した。

実験プラントにおける高度処理過程は第1図に示すとおりである。原水槽（300ℓ）に溜めていた二次処理水を、ポンプで吸い上げたのち前処理設備に通し、高圧（約25 kgf/cm²）をかけてRO膜モジュールへ供給する。供給水はRO膜により処理水と濃縮水に分離されることになるが、このうち濃縮水の一部（20~40 ℓ/h）は処理水とともに処理場の消毒槽に返送し、残りの濃縮水（約1,000 ℓ/h）は貯留槽へ返送して二層ろ過後の水と合流させ、系

内を再循環させる。したがってRO膜への供給水の濃度は時間とともに高くなっていくことになる。なお、濃縮水の循環は、膜モジュールに十分な水量を供給するため、また、膜面への濁質の付着・沈着を抑制しうる流速を確保するために必要な操作である。

以上のような実験プラントを用いて、3回の連続運転試験を行った。使用したRO膜は3回とも同一種類のもので、日東電工製スパイラル型モジュールNTR-759HR-S4であった。運転期間は1回目運転が1995年11月1日から1996年1月30日まで、2回目運転が1996年3月8日から1996年11月26日まで、3回目運転が1996年12月16日から1997年9月15日までであった。運転条件の主な変更点としては、1回目運転で細孔径10 μmの保安フィルターを使用していたのを2回目運転から細孔径20 μmのものに変更したこと、3回目運転では二層ろ過器の砂を砂ろ過器の砂の一部と交換して運転したことが挙げられる。その他の運転条件の違いは第1表に示す。なお2回目運転ではPACの注入ポンプが詰まっていたため、早い時期からPACの注入が途絶えていた。

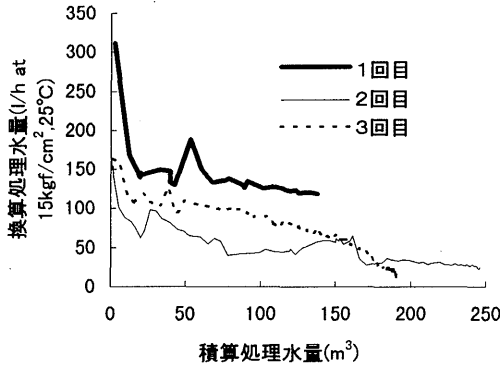
装置の運転状況を確認するために週2回、流量（第1図でA~Eで示した点における流量）と圧力（第1図でa~iで示した点における圧力）を測定した。また、週1回、第1図の①~⑦で示した点で採水をして持ち帰り、COD(Mn)、T-N、T-P、SSなどの測定を行った。

結果および考察

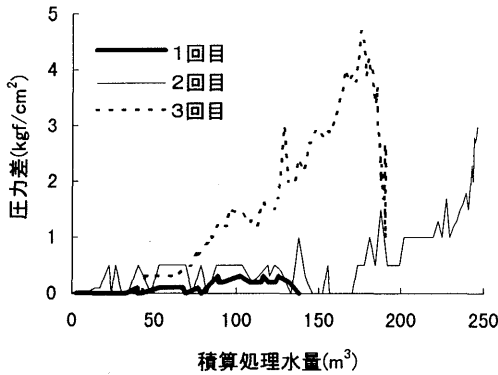
以下に3回の運転結果を示し、その違いについて考察を加え、RO高度処理プラントを実用化する上での諸問題について述べる。

1. RO膜の性能について

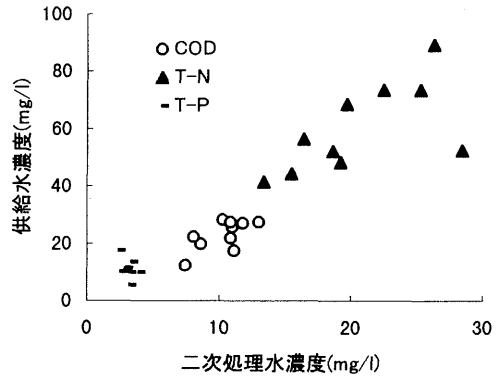
RO膜を高度処理装置として実用化するためには、少なくとも、①多くの処理水が安定して得られること、②純度の高い処理水が安定して得られること、の2点が要



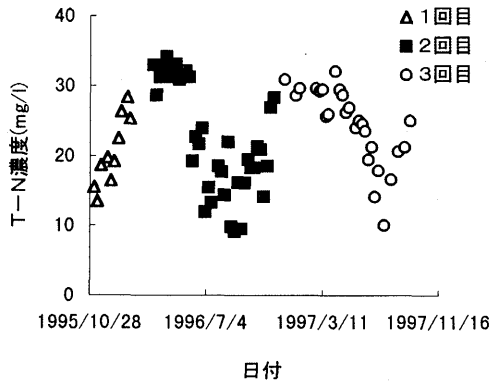
第2図 処理水量の変化



第3図 RO膜入口・出口の圧力差の変化



第4図 二次処理水と供給水の溶質濃度の関係(1回目運転)



第5図 二次処理水T-N濃度の経時変化

求される。

(1). 処理水量 第2図に3回の運転試験における処理水量の経時変化を、水温25℃、給水圧力15kgf/cm²の時の値に換算して示した。換算式は日東電工により示されたものである。ただし、横軸の積算処理水量は実測値をそのまま積算している。この図から明らかなように、運転試験は3回とも全く異なる結果となった。この原因として考えられることに供給水濃度の違いが挙げられる。積算処理水量が100m³になるまでに採水した供給水の平均濃度をCOD、T-N、T-Pで比較してみると、1回目それぞれ24.9mg/l、59.2mg/l、12.1mg/l、2回目それぞれ44.8mg/l、129mg/l、17.6mg/l、3回目それぞれ31.1mg/l、98.6mg/l、15.0mg/lである。1回目比べて2回目、3回目の供給水濃度が極端に高いのがわかる。供給水濃度が高いと膜面にスライムやスケールが附着・

生成しやすくなるため、水の透過が妨害されて処理水量は低下する[4]。また、第3図にはRO膜の入口と出口における圧力(第1図中gとh)の差を示しているが、これも1回目より2回目、3回目の圧力差が大きくなっている。圧力差が生じるのはRO膜モジュールに濁質が附着・堆積し、円滑な水の流れが阻害されるためであり[4]、このことから1回目より2回目、3回目のほうが濁質の負荷が大きかったことがわかる。

以上より、1回目の処理水量が多量で安定しているのは供給水濃度、特に運転初期の供給水濃度が低かったためであると結論づけられる。すなわち、所期の処理水量を得ようとすれば、供給水濃度が高くなりすぎないように運転条件を設定する必要があるということになる。

第4図には、1回目運転のCOD、T-N、T-Pについて、二次処理水濃度と供給水濃度の関係を示している。1回

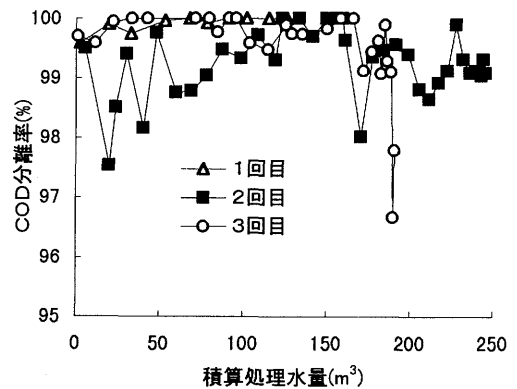
目運転は排水する濃縮水の流量が 35~40 l/h と安定していたため、二次処理水濃度と供給水濃度にはっきりとした比例関係が現われている。このことから供給水濃度が二次処理水濃度の影響を受けているのが確認できる。

そこで、二次処理水濃度という点から運転結果を見直す。第5図に二次処理水の T-N 濃度の経時的变化を示しているが、この図から、冬から春にかけての T-N 濃度が高く、夏から秋にかけての T-N 濃度が低いのがわかる。これは水温が低い冬よりも高い夏のほうが曝気槽中の微生物の働きが活発で、汚水中の汚濁物質がよく処理されるからである。グラフからすると、2回目運転と3回目運転は運転初期にかなりの T-N 負荷を受けていることになり、1回目運転は T-N 負荷が高くなる直前に試験を終了していることになる。したがって、もし1回目の運転を継続していたとしてもそれまでと同じような処理水量が得られたとは限らず、むしろ二次処理水濃度の上昇の影響を受けて供給水濃度が高くなり、処理水量は大幅に減少していたものと推測できる。

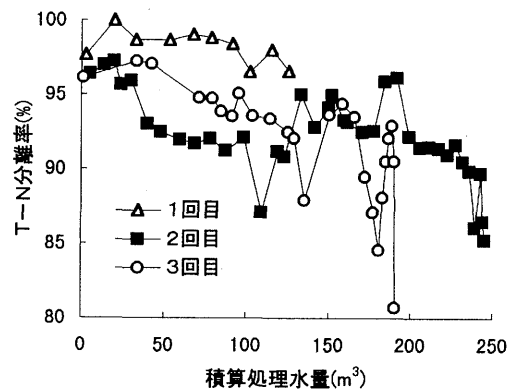
供給水濃度の上昇による処理水量低下を防ぐためには、排水する濃縮水量を増やして貯留槽へ流入する二層ろ過水の量を増やしたりすることも考えられるが、この方法によると、系内への SS の流入量が増えるため、前処理設備や RO 膜が目詰りを起こしやすくなる。

装置に大きな負担をかけずに所期の処理水量を得ようとすれば、もともと二次処理水濃度が低い処理場や二次処理水水質の季節変動が少ない処理場に限定して装置を付設することになる。

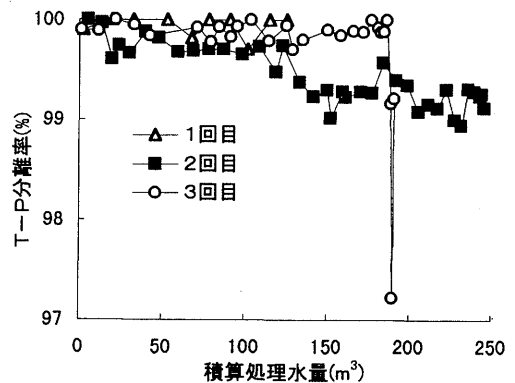
(2). 処理水質 第6図~第8図に RO 膜の溶質分離率の経時变化を示す。これらの図では、2回目運転が1回目、3回目よりも劣る傾向を示しているのだが、この原因としてまず考えられることに PAC の影響が挙げられる。1回目運転と3回目運転は運転終了時まで薬注タンクに PAC を継ぎ足していたが、2回目運転は5月10日(積算処理水量約 70m³)を最後に継ぎ足しを行わなかった。また、薬注タンク内の PAC は4月の時点で既にほとんど減らない状況となっていた。後にこの原因は薬注ポンプが詰まっていたからと判明したが、これらの事実から、2回目運転では PAC 注入量が1回目、3回目運転より大幅に少なかったか、あるいは PAC が全く注入されていなかったかであることが考えられる。PAC は一般に汚水中の濁質を凝集除去するために使われるが、PAC が注入されなければ供給水中で低分子やイオンの状態で存在する溶質の割合が高くなり、それに応じて処理水中の溶質濃度も高くなるはずである。したがって、2回目運転と1回目、3回目運転の溶質分離率の違いに PAC が影響している可能性は十分に考えられる。



第6図 RO膜のCOD分離率の変化



第7図 RO膜のT-N分離率の変化



第8図 RO膜のT-P分離率の変化

また、2回目運転の溶質分離率が低かった原因としてもう一つ、供給水濃度の高さが考えられる。処理水量の項で述べたように、供給水の溶質濃度が高いと膜面にスライムやスケールが付着・生成しやすくなるため、膜面での溶質濃度が高くなることもある。このような現象が起こった場合、実際の膜の溶質分離能力は変わらなくても、見かけ上溶質分離率が低下したように見えるのである。

次に、溶質分離率の高かった1回目運転と3回目運転を比較する。第7図よりT-Nの分離率に明らかな差があることが分かるが、この原因として供給水中の窒素化合物の存在割合の違いが挙げられる。3回目運転においてRO膜の $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_3\text{-N}$ の分離率を調べたところ、運転初期でそれぞれ96%台、99%台であった。この差はRO膜の表面が負に荷電しているためと考えられる。また、測定の結果、供給水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_3\text{-N}$ の存在割合が二次処理水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_3\text{-N}$ の存在割合の影響を強く受けていることも分かった。1回目運転では二次処理水のT-N濃度が25~30mg/lのとき $\text{NH}_4\text{-N}$ の存在量は2~6 mg/l程度であったが、3回目運転では16~28 mg/l程度もあった。よって3回目運転のT-N分離率が1回目運転よりも低かったのは、3回目運転の二次処理水の方が $\text{NH}_4\text{-N}$ の存在割合が高かったからと結論づけられる。この結果より、今回の実験で使ったRO膜を使用する場合、二次処理での曝気を十分に行って二次処理水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ の存在割合を減らしておくことが重要と判断される。仮に二次処理水中のT-Nが全て $\text{NO}_3\text{-N}$ だった場合、処理水のT-N濃度を1 mg/l程度に抑えるには、供給水窒素濃度は100mg/l程度でなければならないという計算になる。

その他にも、第6図~第8図からは、1回目運転では終了時(積算処理水量約140m³)まで溶質分離率に変化がないのに対し、2回目、3回目運転ではともに150m³以降において明らかな低下が見られることが確認される。また、栗田テクニカルサービスによる使用済み2回目膜の分析により、膜汚染物質が主にスライムであったことが判明した。したがって、溶質分離率低下の原因としては、濁質の付着・堆積によって膜面における溶質濃度が上昇した、膜面に付着・堆積した濁質のために膜と溶質の相互作用性(反発力)が低下したなどの理由が考えられる。

以上の結果より、今回使用したような高度処理装置でRO膜の性能を生かす(1回目運転のような成果を挙げる)には、二次処理水の溶質濃度が低く安定していること、処理場での硝化が十分に行われていること、PACを

併用すること、が必要であるという結論に至る。

2. 前処理設備について

RO装置を高度処理に適用する場合、膜面への濁質の付着・堆積を防ぐための確実な前処理を行う必要がある。以下に3回の運転の前処理状況を比較し、その違いについて考察を加え、ROプラントを実用化する上での諸問題についてまとめる。

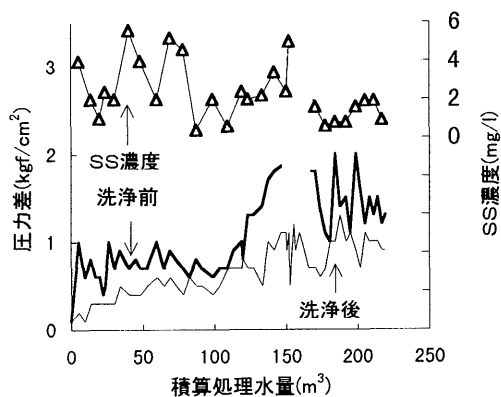
本プラントでは、前処理装置として二層ろ過器、砂ろ過器、保安フィルターを使用している。2回目運転では保安フィルターを分離粒径10 μm のものから20 μm のものに変更した以外は1回目運転のものをそのまま継続使用した。3回目運転は二層ろ過器と砂ろ過器の充填材を水道水で洗浄した上で、二層ろ過器の砂(平均粒径0.6mm)と砂ろ過器の一部の砂(平均粒径0.5mm)を入れ替えた。保安フィルターは分離粒径20 μm のものを使用した。

3回の運転のうち、前処理設備がトラブルを起こさなかったのは1回目だけであり、2回目、3回目運転では“RO入口圧低”により何度か運転が停止した。“RO入口圧低”による運転停止は、RO高圧ポンプに入る直前の供給水の圧力が一定値よりも低くなるときに安全装置が働いて起こる自動停止である。第9図は2回目運転における供給水SS濃度と砂ろ過器に関係した圧力の経時変化を示したものである。砂ろ過器の洗浄時間は逆洗浄10分、順洗浄10分で、貯留槽の水を使い、その水がなくなったら水道水を継ぎ足して洗浄を続けた。この図より、砂ろ過器の入口・出口の圧力差が次第に増加していくのが分かる。したがって、砂ろ過器の洗浄は十分ではなかったと言える。また、同図から、運転初期には供給水SS濃度と砂ろ過器差圧に明確な関係は認められないが、積算処理水量約80m³以降では供給水SS濃度と砂ろ過器差圧の変化がほぼ並行しているのが分かる。この結果より、装置の停止が供給水の溶質濃度の上昇に起因したものであることが推察できる。

次に2回目運転と3回目運転について、測定時に運転が停止していた日を比較すると、2回目運転が7日、3回目運転が20日あり、その差は歴然である。その上、3回目運転では装置の運転を再開するために砂ろ過器の洗浄時間を2倍にしていた時期もあった。また、保安フィルターの交換回数を比較すると、積算処理水量200m³までで2回目運転が5回、3回目運転が15回であった。

2回目運転と3回目運転の運転条件での主な違いは、二層ろ過器の砂と砂ろ過器の一部の砂を入れ替えたこと、およびPACの使用である。しかし、交換後の二層ろ過器の砂の粒径は交換前よりやや小さく、砂ろ過器の砂の方

はやや大きくなっているため、砂の交換が“RO 入口圧低”が頻発した原因であるとは考えにくい。一方、PACは水中の濁質を取り込んでフロックを形成する性質を持つため、前処理で捕捉されやすくなる。したがって、3回目運転の前処理設備の成績が悪かったのは、PACの投入量が適当でなかったことが原因と考えられる。



第9図 砂ろ過器入口・出口の圧力差

結論

本研究では、逆浸透膜 (NTR-759HR-S4) を利用した高度処理プラントの連続運転試験を行った。その結果、以下のことが確認された。

- (1) 膜面への濁質の付着により処理水量は低下する。
- (2) 供給水中の T-N のうち $\text{NH}_4\text{-N}$ の割合が高くなると

T-N の分離率は低下する。

- (3) PAC は供給水中の濁質の凝集除去に有効と考えられる。
- (4) 運転期間が長期になると溶質分離率が低下する。
- (5) PAC は前処理設備の目詰まりの原因となりうる。
- (6) 運転結果は二次処理水の状態によって大きく異なる。

逆浸透膜を利用して二次処理水を高度処理するには安定した処理水量と処理水質が確保されなければならないが、それに最も大きな影響を与えていたのは二次処理水の溶質濃度であった。二次処理水の状態にかかわらず毎回安定した運転結果を得る手段については今後の研究課題である。また、今回は省略したが、濃縮水の処理も大きな問題として残っており、現在のところ RO プラントの用途は、中水道や、緊急時に処理水の一部を回収再利用する場合などに限定されるであろう。

引用文献

- 1) 藤田賢二編著, 山本和夫, 滝沢智著: 急速濾過・生物濾過・膜濾過, 技報堂出版株式会社, 東京 (1994) pp.240-241
- 2) 小林英一郎: 農業集落廃水事業の役割と今後の展望, 環境技術, 27:36-39(1998)
- 3) 高分子学会編: 高分子機能材料シリーズ第7巻 分離・輸送機能材料, 共立出版株式会社, 東京 (1992) p.430
- 4) 和田洋六: 水のリサイクル (応用編), 地人書館, 東京 (1992) p.100