

博士論文

分離膜を用いた活性汚泥懸濁液のろ過における膜表面への  
汚泥堆積過程に影響を与える因子に関する研究

東京大学工学系研究科都市工学専攻

尾崎則篤

平成8年12月

①

博士論文

分離膜を用いた活性汚泥懸濁液のろ過における膜表面への汚泥堆積過程に影響を与える因子に関する研究

東京大学工学系研究科都市工学専攻

尾崎則篤

平成8年12月

## 目次

1. 序論	
1.1 はじめに	1
1.2 分離膜の種類、性質と特長	2
1.3 本研究の目的と方法	4
1.4 本論文の構成	6
2. 既往の研究	
2.1 ろ過におけるケーキ層の形成過程	8
2.1.1 低圧清澄ろ過理論	8
2.1.2 クロスフローろ過におけるケーキ層の形成過程	9
2.1.3 粒子の挙動とケーキ層の形成	10
2.1.4 クロスフロー流下における微生物懸濁液のろ過におけるケーキ層の形成	12
2.2 実廃水に対する長期処理実験	15
3. 平膜を用いたろ過における汚泥の堆積過程	
3.1 曝気流中のろ過における汚泥の堆積過程	16
3.1.1 実験装置及び実験方法	16
(1) 実験に用いた膜	
(2) 実験装置の概略	
(3) 活性汚泥の培養方法および性状の測定方法	
(4) ろ過実験方法	
3.1.2 実験結果	19
(1) 曝気量および膜間距離が汚泥堆積過程に及ぼす影響(MLSS2~3kg・m <sup>3</sup> の場合)	
(2) MLSS0.8~1.2kg・m <sup>3</sup> の場合のろ過実験結果	
(3) MLSS4~6kg・m <sup>3</sup> の場合のろ過実験結果	
3.1.3 膜面の流動状況	28
(1) 流動状況の測定方法	
(2) 気液の流速およびボイド率の測定結果	
(3) 膜面のせん断力の計算	
3.1.4 汚泥堆積過程に影響を与える水理学的な因子	34
(1) 平衡汚泥堆積量	
(2) 汚泥堆積速度	
(3) 汚泥堆積開始時間	
3.1.5 本節のまとめ	40
3.2 懸濁液クロスフロー中のろ過における汚泥の堆積過程	41
3.2.1 実験装置及び実験方法	41
3.2.2 実験結果	42
3.2.3 汚泥堆積過程に影響を与える水理学的な因子	51
(1) 異なる性状の汚泥が堆積する原因	
(2) 膜面のせん断力と平衡汚泥堆積量	
(3) 膜面のせん断力と汚泥堆積量分布の関係	
3.2.4 本節のまとめ	58
3.3 平膜の運転評価の試み	59
3.3.1 ろ過効率の評価方法	59
(1) 曝気流中のろ過	
(2) 懸濁液クロスフローろ過	
3.3.2 間欠曝気運転時の運転評価の例	64
3.3.3 本節のまとめ	67
3.4 本章のまとめ	68

4. 中空糸膜を用いた懸濁液クロスフロー流中のろ過における汚泥の堆積過程	
4.1 膜間距離及びクロスフロー流速、汚泥濃度が及ぼす影響	70
4.1.1 実験装置及び実験方法	70
(1) 実験装置	
(2) 実験方法	
4.1.2 実験結果	73
(1) 膜間距離及びクロスフロー流速と汚泥堆積過程	
(2) 汚泥濃度と汚泥堆積過程	
4.2 膜面に堆積した汚泥の増殖の影響	90
4.3 膜面の流動状況	91
4.3.1 実験装置及び実験方法	91
(1) 膜間流速の測定	
(2) 乱れ強度の測定	
(3) トレーサー実験	
4.3.2 実験結果	93
(1) 膜間流速の測定結果	
(2) 乱れ強度の測定結果	
(3) トレーサー実験結果	
4.3.3 膜糸間の乱れ強度	95
4.4 汚泥の堆積過程に影響を与える水理学的な因子	97
4.4.1 せん断力と平衡汚泥堆積量	97
4.4.2 膜糸配置と汚泥堆積開始時間	98
(1) 式(3.11)の適用	
(2) フロックの膜間領域の挙動のシミュレーションに基づく汚泥堆積開始時間の解析	
4.5 第4章のまとめ	111
5. 結論	112
6. 今後の展望	114
謝辞	
付録	
参考文献	

本論文は、  
第 1 章 序論  
第 2 章 基礎理論  
第 3 章 実験的検討  
第 4 章 結論

## 第 1 章

# 序論

本論文は、  
第 1 章 序論  
第 2 章 基礎理論  
第 3 章 実験的検討  
第 4 章 結論

## 1.1 はじめに

膜分離技術は1960年代の酢酸セルロースを用いた非対称膜の開発により実用的な意義が認識されて以来急速に普及し、様々な分野における分離技術として応用されている。

膜分離法の利点は膜による分離、ろ過、濃縮過程において熱的、化学的な変化を伴わないことであり、それらの利点を活かし海水の淡水化、超純水の精製工程、食品、化学工業などでの濃縮やろ過などに応用されてきた。

下排水処理の分野でも、工場排水処理などに多く適用され(尾崎, 1995)、また、し尿処理とビル中水道では、膜分離法が標準的な適用技術となっている[(日笠, 1991), (岡庭, 1994)]。

本研究の対象となる、活性汚泥法と分離膜による固液分離を組み合わせた膜分離活性汚泥法は下排水処理の分野でも現在開発、応用が進みつつある分野である。膜分離活性汚泥法は汚泥の沈降性によらない安定した処理水質が得られ、基本的には汚泥引き抜きを必要としない維持管理が容易な方法となりうる。一方、本法が広く適用されるには膜分離にかかるコストを低減することが重要であり、そのために透水能のすぐれた膜素材の開発、そして、よりコンパクト化された、処理効率のよい膜モジュールの開発、またそのための基礎的研究として、モジュール形状、ろ過形態の違いによって生じる現象の違いについて調べるのが重要になってくる。

## 1.2 分離膜の種類、性質と特長

膜の分類としては膜そのものの分離特性、膜の材質、膜モジュールの形状によってなされる。

最も基本的な分類となる膜の分離特性に関しては、その分画能から4つに大別されている。精密ろ過膜(microfiltration, MF)、限外ろ過膜(ultrafiltration, UF)、ナノろ過膜(nanofiltration, NF)、逆浸透膜(reverse osmosis, RO)の4つであり、分画サイズはこの順に細くなる。各々の分画能は、MFは $10\mu\text{m}$ から $0.01\mu\text{m}$ 程度まで、UFは分画分子量数百万から1万程度まで、NFは分画分子量千～数百程度、ROは分画分子量数百程度から塩類99.9%以上除去までの除去性能を持つ。図-1.2.1にその分画性能を分画径によって整理したものを示す。

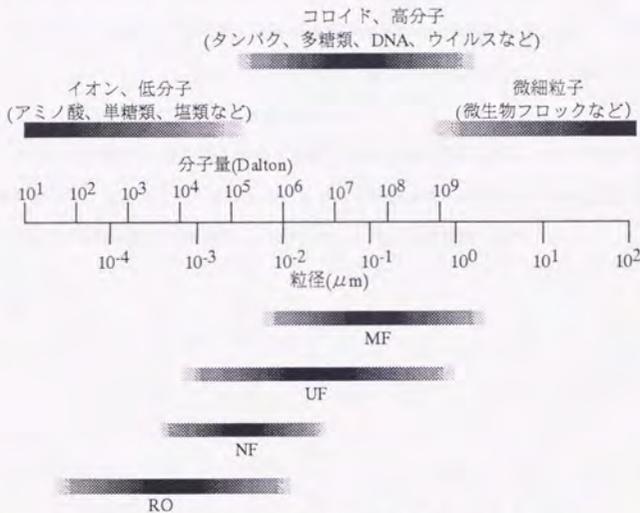


図-1.2.1 膜の分画性能と下水中に見出される物質の大きさ  
(Levine et al., 1985, 国眼, 1994)

ただし膜による除去能は、除去対象の物理的なサイズが決まれば一意に決まるとは限らず、特にMF、ROによる低分子有機物の除去に関しては、除去対象の物理的なサイズが同程度であってもその電気的化学的な性質や、膜との親和性の大小によって除去率は大きく異なってくる。

膜の分類に関しても、膜素材の開発によって、MFとUFの間に位置されるultramicrofiltration(UMF)などが開発されている。またNFももともと低圧逆浸透膜として開発されUFとROとの間に位置づけられた。これらの大分類による分類はその境界が曖昧になりつつある。

分離膜を膜素材で大別すると有機高分子膜、無機材質膜に分けられる。

有機高分子としては酢酸セルロース系、ポリアミド系、複素環ポリマー系、水溶性ポリマー架橋系、重合性モノマー系などの素材がある。素材は熱や薬品、酸、アルカリ耐性がどの程度要求されるか、また、モジュール形式や膜構造の選択との関連に基づいて選択される(中尾, 1995)。

無機材質膜の有機高分子膜に対する特長としては耐熱性、耐化学性、機械的強度の強さなどがあり、適用分野の拡大が期待されている。無機膜の材質としてはセラミック、ガラス、金属などがあり、製法としては泥しょう成形、延結法、熱分解法、分相法などがある。

膜をモジュール形態で分類すると平膜型、管型、スパイラル巻型、中空糸膜等がある。これらを目的、用途に応じた組み合わせで用いる。

またこれらのモジュール形態を基本とはするものの、より下排水処理に適したモジュールの開発も行われている[(長岡ら, 1993)、(二村ら, 1992)、(大熊ら, 1993)、(松本ら, 1993)]。

膜モジュールにおいてはモジュール単位容積あたりの表面積が大きいこと、ろ過液側で阻止物質のリークがないこと、モジュール内で液の均一な流動状態が維持され、死空間が生じないこと、洗浄がしやすい素材や構造であることが要求される。

モジュール構造はろ過効率を左右する重要な因子のひとつである。よりコンパクト、かつ低エネルギー運転で、なるべく汚泥堆積を避けることで高透過流束を維持し、高い処理効率を達成することが、特に膜分離法の下排水処理への適用をおこなう際には重要になってくる。

### 1.3 本研究の目的と方法

膜による懸濁液のろ過においては、懸濁質の微生物学的な性状、そして膜面の水理学的な状況が汚泥堆積過程を左右する主要な因子となると考えられる(図-1.3.1)。

本研究ではそのうち後者、すなわち膜面の水理学的な状況が汚泥堆積過程に及ぼす影響について焦点を当てその解析をおこなった。

膜による懸濁液のろ過においては、膜モジュールの構造と運転方法がバルク側の水理学的な状況を決める。適切なモジュール設計をおこなうにはどのようなモジュール形態がどのような水理学的状況を生じさせ、そしてその水理学的状況が汚泥堆積とどのような関わりを持っているかを詳細に知る必要がある。

そこで本研究においてはモジュールの設計とバルク側の水理学的状況との関わり、そして汚泥堆積過程との関連を広く且つ詳細に知ることを目的として、平膜及び中空糸膜を用いて活性汚泥懸濁液のろ過を行い、水理学的状況と汚泥堆積過程との関連についての解析をおこなった。

現在様々な形態を持った膜モジュールが高濃度懸濁液に適用されているが、基本的には本研究で用いた中空糸膜または平膜と類似した水理学的な状況を持っていると考えられ、本研究で得られる水理学的な因子に関する統合的な解析は様々なモジュールにおけるモジュール設計の考え方に対する基礎的な知見になりうるものと考えられる。

まず、第3章では曝気流中及び懸濁液クロスフロー流中に浸漬した平膜を用いたろ過をおこなった。ろ過中の汚泥堆積過程が実験条件(曝気線速度、クロスフロー流速、膜間距離、MLSS)に対してどのような依存性を持っているのかを調べた。そして清水実験に基づき実験条件によって水理学的諸因子(クロスフロー流速、乱れ強度、ポイド率、せん断力)がどのように変わるのかを調べ、それに基づき汚泥堆積過程が水理学的因子にどのように依存しているのかを解析した。

次に第4章では懸濁液クロスフロー流中に配した中空糸膜を用いたろ過における汚泥堆積過程を調べた。実験条件(膜間距離、クロスフロー流速、MLSS)を変化させて各々の条件で汚泥堆積過程がどのように変わっていくのかを調べた。そして膜面近傍の水理状況を詳細に調べ、平膜の場合との比較検討と併せて、汚泥堆積過程が水理学的因子にどのように依存しているのかを解析した。

なお、懸濁液クロスフロー流乃至は懸濁液流とは、気泡の上昇流によらず、懸濁液のみでクロスフロー流を膜面に与えた場合のことを意味し、本論文では「曝気流」と対応する用語として用いられる。

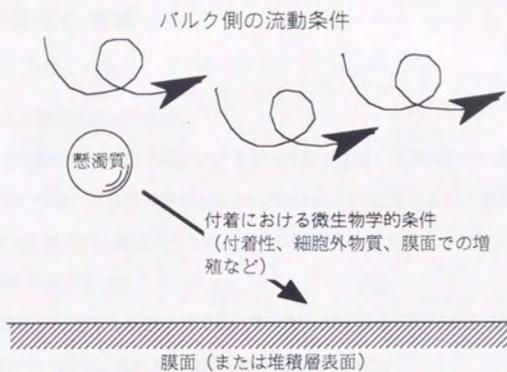


図-1.3.1 膜面への汚泥堆積に影響を与える因子

## 1.4 本論文の構成

図-1.4.1に本論文の構成を示す。

第2章では分離膜を用いてろ過におけるケーキ層の堆積に関する既往の研究の流れを概観した。

第3章においては、2枚の支持板とそれに挟まれる形で配置された1枚の平膜によって構成された平膜モジュールを用い、曝気流中でのろ過及び懸濁液クロスフロー中でのろ過における汚泥堆積過程に関する解析をおこなった。

汚泥堆積過程を記述する主要な因子として平衡汚泥堆積量、汚泥堆積速度、汚泥堆積開始時間という3つの因子を見出し、それらに関する解析をおこなった。

第4章においては、正三角形状に配置された3本の中空糸膜モジュールが外圧型中空糸膜モジュールを構成する基本単位になるとし、3本の膜系を持つ中空糸膜を用いた解析をおこなった。3本の膜モジュールは膜系に囲まれた領域が存在しうる最小の本数であり、その解析は一般の、多くの膜系を含む中空糸膜モジュールの堆積機構の解明の基礎となりうるものである。

中空糸膜を用いた解析においては懸濁液クロスフローろ過における解析のみをおこない、曝気流中における解析をおこなっていない。平膜と中空糸膜の総合的な優劣の比較は曝気流と懸濁液流の両方のろ過形態の比較をおこなうことによって初めて完結すると考えられるが、本論文ではそこには至っていない。

本研究においては、平膜を用いた曝気流中のろ過、懸濁液クロスフロー中のろ過、中空糸膜を用いた懸濁液クロスフロー中のろ過という、3つのまったく異なる流動状況下における汚泥の堆積過程を支配する因子について、可能な限り統合的、総括的に示すことを、その目標としておいた。

第5章の結論においてその総括を示した。

第6章に今後の展望を示した。

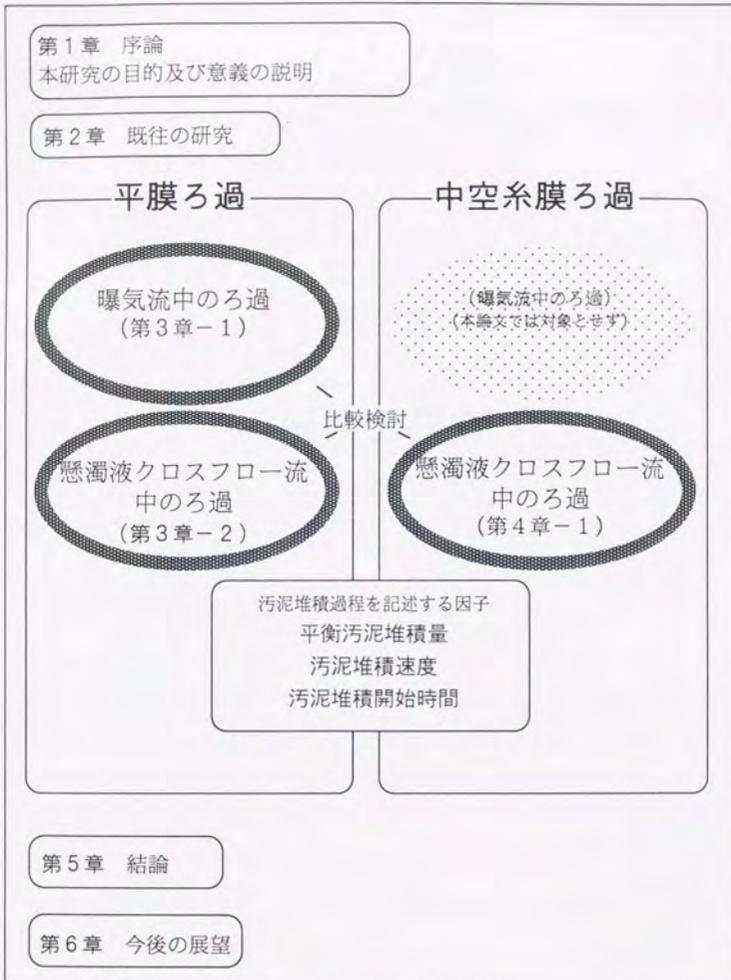


図-1.4.1 本論文の構成

この論文の目的は、ある特定の現象を明らかにすることである。そのために、まず、その現象の背景や歴史を調査し、次に、その現象のメカニズムを明らかにする。そのためには、実験や観察を行い、データを収集し、それを分析する。最後に、その結果をまとめ、結論を導き出す。

## 第2章

### 既往の研究

この分野の研究は、長い歴史を有している。19世紀後半から20世紀初頭にかけて、多くの研究者がそのメカニズムを明らかにしようと努力した。その結果、いくつかの重要な発見がなされた。例えば、1910年代には、ある特定の条件下で、その現象が顕著に現れることが観察された。これは、そのメカニズムの一部を明らかにする上で重要な手がかりとなった。

また、1950年代には、理論的なモデルが提案された。このモデルは、実験結果とよく一致する結果を示した。しかし、そのモデルにはいくつかの限界があった。例えば、特定の条件下でのみ適用可能であった。そのため、さらなる研究が必要とされた。

近年では、コンピュータ技術の進歩により、より詳細なシミュレーションが可能となった。これにより、そのメカニズムの理解がさらに深められた。また、新しい実験手法の開発により、より正確なデータが得られるようになった。

以上のように、この分野の研究は、長い歴史を有し、多くの重要な発見がなされている。しかし、そのメカニズムの完全な理解には、さらなる研究が必要である。本論文では、そのメカニズムの新たな側面を明らかにすることを目的とする。

## 2.1 ろ過におけるケーキ層の形成過程

懸濁液のろ過におけるケーキ層の形成過程に関する既存の研究について概観する。

膜表面にケーキ層が形成されると、膜内の目詰まり、ケーキ層の抵抗などのためにろ過抵抗が上昇する。ろ過圧力、ろ過抵抗と透過流束の関係は、一般に以下のように表される。

$$J = \frac{\Delta P}{\mu(R_m + R_f + R_c)} \quad (2.1)$$

J:透過流束[m<sup>3</sup>·s<sup>-1</sup>]、ΔP:膜間差圧[Pa]、μ:粘性係数[Pa·s]、R<sub>m</sub>:膜抵抗[m<sup>-1</sup>]、R<sub>f</sub>:膜内の目詰まりによる抵抗[m<sup>-1</sup>]、R<sub>c</sub>:ケーキ層抵抗[m<sup>-1</sup>]である。

限外ろ過膜では主に膜内の目詰まりに関して、精密ろ過膜では主に膜表面への汚泥の堆積に関して考察されている。勿論ろ過対象によっては精密ろ過膜の膜内目詰まり、限外ろ過膜の膜表面への汚泥堆積が重要になる場合もある。

### 2.1.1 定圧清澄ろ過理論

全量ろ過に関しては定圧清澄ろ過理論によって整理されている(杉本、1978)。輸送現象を表面堆積と膜内目詰まりに分類し、表面堆積に関しては膜透過流束は表面に形成されたケーキ層のみに支配され、膜内における目詰まりはないとし、一方膜内目詰まりに関しては膜内の目詰まりによる膜の透過性の低下のみが透過流束を支配するとしている。膜内の目詰まりに関しては、その捕捉機構によって更に完全閉塞、標準閉塞、中間閉塞とに分類されている。

(1)ケーキろ過理論は、透水量に比例して汚泥が表面に堆積し、その堆積量に比例してろ過抵抗が上昇し透過流束が変化するというものである

(2)完全閉塞ろ過は、膜構造を直径と長さが一樣な平行毛細管の集合体と仮定、1個の粒子が1本の毛細管の入口で捕捉されその毛細管が閉塞されるというものである。

(3)標準閉塞ろ過は、膜構造は完全閉塞の場合と同様に仮定し、粒子は毛細管の中に入りその内壁に付着捕捉され、毛細管径が減少するというものである。

(4)中間閉塞ろ過は、抵抗の上昇は有効膜面積の減少によって生じ、その有効膜面積の減少比率は透過流束と、その時点の有効膜面積の両方に比例するというものである。

これらの現象に関しては以下の式によって一般化されている。

$$\frac{d^2 t}{dV^2} = k \left( \frac{dt}{dV} \right)^n \quad (2.2)$$

t:時間[s], V:ろ過水量[m<sup>3</sup>]である。

(1)においては、n=0として、(2)においては、n=2として、(3)においては、n=1.5として、(4)においては、n=1として整理される。

### 2.1.2 クロスフローろ過におけるケーキ層の形成過程

一方、クロスフローろ過においては、ケーキ層形成の支配因子が透水量のみではなく、クロスフロー流速による堆積量の抑制の効果の程度を評価せねばならず、統一的な議論はまだ確立されていない。

現在提案されているモデルとしては、単粒子、層流の場合、Brownian diffusion model (Tretin et al., 1980)、Shear-induced diffusion model (Zydney et al., 1986)、Internal lift model [(Drew et al., 1991), (Porter, 1972)], Surface transportation model (Davis et al., 1987)などがある。Belfortら(1994)がこれらのモデルの適用範囲などの比較整理などを行っている。それに基づきこれらのモデルの概念及びそのパラメータ依存性を表-2.1.1, 2.1.2にまとめた。

表-2.1.1 各モデルの概念

Brownian diffusion model 濃度分極を基本とし、拡散係数が分子のブラウン運動によって決まると考える。 (Tretin et al., 1980, Porter, M. C., 1972)
Shear-induced diffusion model 濃度分極を基本とし、拡散係数がせん断応力との関係によって決まると考える。 (Zydney et al., 1986, Eckstein, et al, 1977)
Internal lift model 懸濁粒子の膜面への沈着が、クロスフロー方向の流速の分布によって生じる、膜面から遠ざかる方向への流速と、フラックスによって膜面に引き寄せられる流速との釣り合いによって決まると考える。 (Green et al., 1980, Drew et al., 1991, Porter, 1972)
Surface transportation model 付着面における、フラックスに応じて膜面に引き寄せられる力とクロスフローによるせん断力によって表面方向に引きずられる力との釣り合いが付着を決めると考える。 (Davis et al., 1987, Leonard et al., 1984, Lu et al., 1989, Stamatakis et al., 1993)

表-2.1.2 各モデルのパラメータ依存性 (Belfort, G. et al., 1994)

各因子の次数	Brownian diffusion	Shear-induced diffusion	Internal lift	Surface transport
n (せん断力)	0.33	1	2	1
m (粒径)	-0.67	1.33	3	1
p(バルク濃度)	-0.33	-0.33	0	0
q (モジュール長さ)	-0.33	-0.33	0	0
r (粘度)	-1	-0.33	-1	0

\*  $J = k \tau_w^a \phi^p L^q \mu^r$  ( $J$ :フラックス、 $\tau_w$ :壁面のせん断応力、 $a$ :粒径、 $\phi$ :バルク濃度、 $L$ :モジュール長さ、 $\mu$ :粘度)に基づく

### 2.1.3 粒子の挙動とケーキ層の形成

粒子の挙動を実験的に追跡、或いはシミュレートし、粒子の堆積に対して及ぼす影響を調べる試みもある。上に述べたInternal lift modelもそのひとつである。研究の対象としては、バルク中の挙動について考えるもの[(Green. et al., 1980)、(Otis et al, 1986)、(Shimizu et al., 1993)]と付着の際の挙動とケーキの構造との関連を調べるものがある[(Schmitz et al., 1990)、(上島ら、1991)、(長岡ら、1991)、(川勝ら、1991)]。

懸濁質のバルク中での挙動に関しては、バルク中で、クロスフロー流によって移動するが、クロスフロー流に、流速分布が存在するため(通常膜面から遠ざかるほど流速は上昇する)懸濁質に対しては、膜面から遠ざかる方へ力がかかる。その力と、フラックスによって膜面に向かう力との大小関係によって懸濁質が付着するかが決まる。考え方を図-2.1.1に示した。

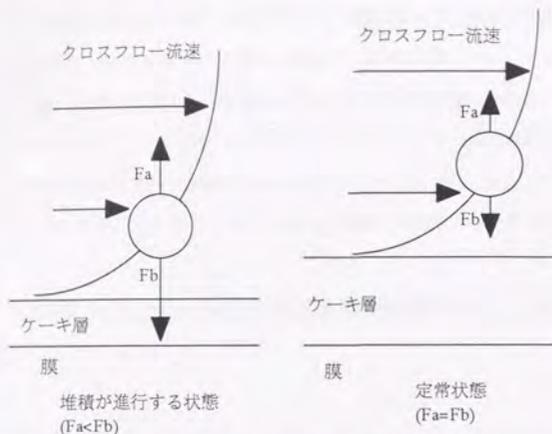


図-2.1.1 堆積層近傍の粒子の力の釣り合い

懸濁質のケーキ層の付着のシミュレーションに関しては、粒子同士の接触角度をパラメータとするもの[(Schmitz et al., 1990)、(長岡ら、1991)]、粒子同士の引力や斥力など相互作用を定式化したDLVO理論を用いるもの(上島ら、1991)などがある。しかしこれらは本来三次元的な現象を二次元に問題に置き換えたものであり、充填率の計算方法ひとつをとってみても、実際の三次元的な現象に対してどのように拡張してはめるのかという問題が生じる。一方、川勝ら(1991)は三次元でのシミュレーションを行っている。疑似三次元的等球粒子のシミュレーションにおいて、正方配列菱面体を想定し、ケーキ層内での粒子の移動に関して、物理的に妥当と思われる確率的なパラメータを設定することによって粒子の空隙率を近似的に説明することができたとしている。

粒子間の相互作用とケーキ層の構造との関係に関しては、粒子間の電気的反発力も重要な因子であると考えられる。一般的には粒子間の電気的反発力が小さいと堆積層が生じやすくなり(Iritani et al., 1994)ろ過抵抗が上昇する。

Matsuyamaら(1994)は単成分のタンパクを異なるpH条件下で限外ろ過し、等電点では初期フラックスは、それ以外のpHにおけるろ過と比較して高いが定常フラックスは低くなるという結果を得ている。また等電点における初期のタンパクの排除率が他のpH条件下におけるろ過より低いという結果も得、それにもとづき、初期は電気的反発力が少ないため膜をタンパクが通過しやすくそのためケーキ層が形成されにくくなるためフラックスが大きくなり、一方堆積が進行した後の定常期には電気的反発力が小さいためより多くのケーキ層が形成されるためフラックスが小さくなるためこのような傾向が得られるとしている。Kimら(1994)はタンパク質の一種であるBSAのUFろ過により等電点ではBSAが膜の内部まで付着が起きていることを電子顕微鏡により観察した。等電点では単にケーキ層が形成さ

れやすいだけでなく、膜内部の目詰まりの影響も小さくないと考えられる。

Welshら(1995)は粒子のゼータ電位を変えてる過実験をおこない、フラックスはあるゼータ電位で極小となることを示した。ゼータ電位が大きいと、反発力が強くなりケーキ層が形成されにくくなりフラックスが上昇する。一方ゼータ電位が小さいとバルク中で凝集が起こり、結果的により大きな粒子によって構成されるケーキ層が形成され比抵抗が小さくなる。そしてその間の、ケーキ層ができやすい、しかし凝集が起こるほどではないゼータ電位下で比抵抗が上昇するとしている。

#### 2.1.4 クロスフロー流下における微生物懸濁液のろ過におけるケーキ層の形成

乱流の場合は、クロスフローによるせん断力によるはぎ取り効果[(Chudacek et al., 1984), (Fane et al., 1984)]がもっとも重要な因子であるが、その影響に関する、統一的な整理はまだない。

微生物性の懸濁液のクロスフローろ過におけるケーキ層の形成についても調べられている。主な関心は微生物の形状などとケーキ層の性状との関連にあるようである。比較的球形に近い菌の懸濁液をろ過対象とした場合、ケーキ層の状態はデッドエンドろ過によって形成されるケーキ層と殆ど変わらないが、細長い菌になるとクロスフローろ過によって形成されるケーキ層は比抵抗が非常に大きくなる(Tanaka et al., 1994a)。その原因はケーキ層表面が常時クロスフローに曝されることによって表面の構造の一種の整頓化、稠密化が起こるためであるとしている。

また更にそこにその微生物よりもはるかに小さい微粒子が混入している場合、その微粒子が汚泥堆積層内に付着していくことによって比抵抗が変わってくる[(Redkar et al., 1993), (Tanaka et al., 1994b), (Foley et al., 1995), (Boyaval et al., 1996)]。クロスフローの上昇により、より小粒子の占める割合が高い堆積層が形成され、それにより比抵抗が上昇するとしている。

活性汚泥などをクロスフローろ過する場合、ろ過対象が多成分系であり、更に表面の水理が乱流であるということから解析を複雑にしている。実際、層流、無生物単粒子系で確立されたモデルをこういった系に単純には当てはめられず、実処理系に近い系での解析が必要である。

Wongら(1992)は中空糸膜を用いた活性汚泥の外圧式のろ過をおこない、膜系をある程度以上稠密に配置するとクロスフロー流速が一定であってもフラックスが急激に減少することを示した。これは、膜系を稠密に配置したために汚泥堆積が生じたためであるとしている。また、それ以上に稠密に配置

すると逆にわずかながらフラックスは上昇する。これは汚泥堆積が生じうる余地が少ないために汚泥堆積量が減少したためであるとしている。

西村ら(1992)は限外ろ過膜を用いた平膜クロスフローろ過において各種操作因子や処理対象水中成分と透過フラックスとの関係について実験的に検討を加え、クロスフロー流速がある一定値まではろ過抵抗層の掻き取り効果は上昇し、それ以上では一定になると報告している。また更にせん断力との関係についても調べ(西村ら、1993)、一定以上のせん断力まではケーキ層が発達し、それ以上のせん断力ではケーキ層が発達しないことを示した。また、SS濃度によって膜内部の目詰まりの程度が変わることを示した。

柳ら(1993)は限外ろ過膜を用いた活性汚泥懸濁液の管状膜クロスフローろ過をおこない、各種操作因子が汚泥堆積過程に及ぼす影響を調べた。堆積層はあるクロスフロー流速までは単調に減少し、それ以上では一定値に落ち着くことを示している。一方、比抵抗はクロスフロー流速の上昇とともに上昇した。これに関しては、膜面流速のはぎ取り効果で、ろ過抵抗係数の比較的大きい成分が優先的に付着したためではないかと推測している。

また柳ら(1995)は膜表面の性質が菌体付着に及ぼす影響も調べ、表面張力の低下が付着を増大させることを示した。菌体代謝成分が表面張力を低下させることを示し、これら溶解性成分が、膜表面の性質の変化を引き起こし、付着性を変化させるという事を示した。

後藤ら(1994)は中空糸タイプの限外ろ過膜を用いたカオリンのクロスフローろ過によって、粒子の電荷や凝集状態がケーキ層の堆積に及ぼす影響を調べた。粗大化したフロックのろ過においてはケーキ層の形成を抑制させられることを示した。これは粗大化したフロックが堆積層を掃流することが一因であると考えた。また、粗大化に至らない程度の微少な懸濁粒子の電荷や凝集状態が強く汚泥の堆積に影響を及ぼすことを示した。

新井ら(1995)は中空糸膜の長さ、太さを変化させ、それらの一端を固定させるタイプの形状を持つ五種類の中空糸膜を用いた直接浸漬型膜分離活性汚泥法によって実廃水の長期のろ過実験をおこなった。ろ過性能を、モジュール容積等マクロな視点から考慮した透過流量効率係数、除去粒子体積時間の2つの指標を提案し透過性能を評価した。透過性能は膜内径、長さの大きいものが優れる傾向にあったと報告している。また、吸引-停止のサイクルの大きさを変えてもほぼ同様の流量が得られたと

報告している。

中空糸膜は細い膜糸を稠密に配することで大きな膜面積の得られる方法であるが、膜糸を細くすると堆積が生じやすくなり、透過性能を減少させるとしている。

## 2.2 実廃水に対する長期処理実験

分離膜の下廃水処理の適用に関しては日本においては尿処理の工程として適用が進んでおり、また、ビル中水道において既に10年以上の適用実績がある。

そして現在、通常の下水処理法に変わるものとして、また、その維持管理の簡便さから合併処理浄化槽など小規模下廃水処理への適用を目指して様々な研究が進められている。

分離膜の下廃水処理の適用に関しては様々なモジュール、ろ過形態を持つ反応槽が作成され、実廃水処理に対して、長期試験などによりその適用性が検討されている。

主に中空糸膜[(Yamamoto et al., 1991)、(丹保ら, 1992)]や管状膜[(Krauth et al., 1993)、(山本ら, 1996)]、平膜[(石田ら, 1993)、(青井ら, 1995)]、回転平膜(大熊ら, 1993, 1994)などを用い数十日～一年以上の長期実験がなされている。

実験の方向性としては、外圧型のろ過によって、高いクロスフロー流速により汚泥の膜面への付着を極力防ぐ方向で高濃度、高透過流束を維持しつつコンパクトで密度の高い処理を目指すものと、浸漬型のろ過によって、それほど高い透過流束でなくとも、より低い運転エネルギー、簡単なメンテナンスで長期間安定した処理を目指すものが存在する。浸漬型のろ過では、低い透過流束、或いは間欠ろ過によって、より低いろ過抵抗を維持し、総合的な運転の効率化を図ることが出来ることが知られており(Yamamoto et al., 1989)、そのメリットを利用して維持管理の簡便さが要求される比較的小規模な処理への適用を目指すという方向性をもっている。

いずれにせよ、高濃度の懸濁液を処理しようとする以上、膜表面への汚泥の付着をどのように抑制し、なるべく高い処理効率を維持するかが重要な点であり、その為に様々なろ過形態、モジュール形態が模索されている。

そこで適切なろ過条件を見出すためには、ろ過形態や、モジュール形態による膜面への付着過程の違いを機構的に明らかにする必要がある。これが、本研究の意義である。

### 第3章

## 平膜を用いたろ過における 汚泥の堆積過程

本章においては、平膜を用いた活性汚泥懸濁液のろ過における汚泥堆積過程を調べた。曝気流条件下および懸濁液クロスフロー流条件下でろ過をおこない、実験条件が汚泥堆積過程に及ぼす影響を調べた。そして清水実験に基づき実験条件によって水理学的諸因子がどのように変わるのかを調べ、それに基づき汚泥堆積過程が水理学的因子にどのように依存しているのかを解析した。

## 3.1 曝気流中のろ過における汚泥の堆積過程

### 3.1.1 実験装置及び実験方法

#### (1) 実験に用いた膜

実験に用いた平膜モジュールは日東電工社製の精密ろ過膜で、材質はポリオレフィン系、分画径は $0.4\ \mu\text{m}$ （ラテックス球93%除去）である。平膜モジュールのサイズは $450 \times 570 \times 8\ \text{mm}$ 、有効膜面積は $0.3\ \text{m}^2$ である。用いたモジュールの形状を図-3.1.1に示す。またエレメントの仕様を表-3.1.1に示す。

#### (2) 実験装置の概略

ろ過実験装置の概略を図-3.1.2に示す。エアレーションタンクのサイズは $460 \times 230 \times 1100\ \text{mm}$ であり、膜モジュールを図-3.1.2に示したように直接浸漬し、平膜モジュールの直下に散気装置を設定する。気泡の上昇流がろ過中の膜面へ付着した汚泥を剥離する。

エアレーションタンクの上面図を図-3.1.3に示す。膜モジュールは側壁及びボルトによってその隙間の中央に固定され、その隙間の全域（膜間領域）を均一に気泡が上昇する。散気装置としては、微細な気泡（平均気泡径 $5\ \text{mm}$ ）を発生させる市販のエアレータを用いた。

平膜の配置の指標として、平膜から側壁までの距離を「膜間距離」として定義した（図-3.1.3参照）。また、曝気の強さの指標に（曝気量/流路断面積）を「曝気線速度」として定義した。

#### (3) 活性汚泥の培養方法及び性状の測定方法

活性汚泥懸濁液はグルコース、ペプトンを中心とした基質を用いて実験室内で馴致した。基質の構成比を表-3.1.2に示す。Fill and drawによって培養し汚泥滞留時間は40日に保った。

また基質の汚泥に対する負荷の指標として、汚泥負荷率 $F$  [ $\text{kgC} \cdot \text{kgMLSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ ] を、以下の式で定義した。

$$F = \frac{C_f}{C} \quad (3.1)$$

ここに $C_f$ : 基質容積負荷 [ $\text{kgC} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ ]、 $C$ : MLSS [ $\text{kg} \cdot \text{m}^3$ ] である。

水温は $20^\circ\text{C}$ とした。活性汚泥懸濁液の性状の指標として、MLSS及び懸濁液の粘度、汚泥フロックの粒径を測定した。粘度は振動式粘度計（秩父セメント社製、CJV-1000）を用いて測定した。粒径分布は粒度分布測定装置（堀場製作所製、CAPA-300）によって測定し、体積ベースの粒度分布の中央値を代表値として粒径を示した。

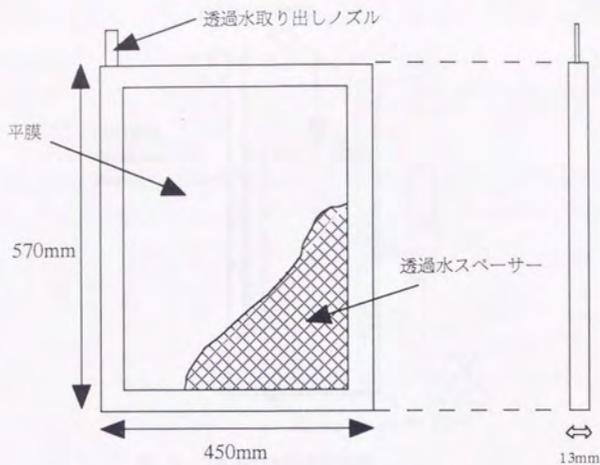


図-3.1.1 平膜モジュールの形状

表-3.1.1 平膜の仕様

モジュール寸法	450×570×13 mm
膜素材	ポリオレフィン系
有効膜面積	0.3 m <sup>2</sup>
乾燥重量	約600g
分画径	0.4 μm(ラテックス球93%除去)

表-3.1.2 活性汚泥の基質の組成(数値は重量比)

Glucose	1
Pepton	1
Yeast Extract	0.1
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	0.8
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	0.18
MgSO <sub>4</sub> ·7H <sub>2</sub> O	0.2
MnSO <sub>4</sub> ·6H <sub>2</sub> O	0.18
FeCl <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	0.001
CaCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O	0.02

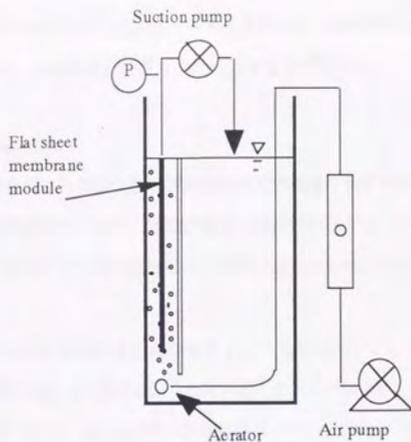


図-3.1.2 浸漬型平膜実験装置

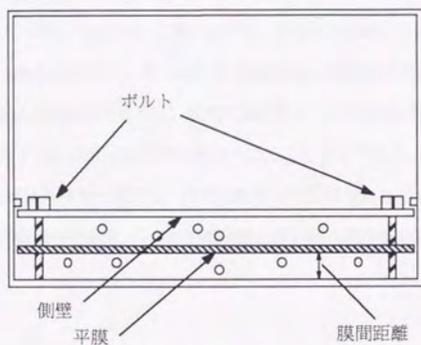


図-3.1.3 リアクター上面図と平膜の配置

#### (4) 濾過実験方法

ろ過及び曝気は連続しておこなった。ろ過水はローラーポンプを用いて吸引し、フラックスを  $0.3\text{m} \cdot \text{d}^{-1} \sim 0.6\text{m} \cdot \text{d}^{-1}$  の間に保った。ろ過水は再びエアレーションタンクに戻した。

一回の実験期間は約1日、実験毎に曝気線速度または膜間距離をかえておこなった。

ろ過抵抗は式 (2.1) より求めた。

また汚泥堆積過程を知ることが目的としてろ過中の汚泥堆積量を測定した。測定に際してはろ過を

一時中断し膜モジュールを取り出し、膜面の一部をふき取りその湿潤重量を測定した。汚泥堆積は膜面に一様に生じているとし、単位膜面積当たりの汚泥堆積量を計算した。

#### (5) 実験条件及び懸濁液の性状

本章で行った、平膜を用いたろ過実験の実験条件及び懸濁液の性状を表-3.1.3に総括的に示した。曝気流条件下では汚泥濃度は3段階、膜間距離は3段階に変化させ、各々の条件で実験を行った。懸濁液クロスフロー流条件下では汚泥濃度及び膜間距離を2段階に変えて各々の条件で実験を行った。

汚泥の性状としてはMLSSの他には汚泥負荷率 [ $\text{kgC} \cdot \text{kgMLSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ ]、粘性及びフロック径を示した。汚泥負荷率はMLSS4- $6\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ の場合がやや高いが、それ以外は大体一定である。粘性は同水温の純水と比べて1~2割高かった。MLSSが高い方が粘性は高かったがその差はそれほど顕著なものではなかった。

気泡流実験時で、MLSS2- $3\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ 及びMLSS5.5- $6.5\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ の場合は100-200  $\mu\text{m}$ 、それ以外の場合は60-70  $\mu\text{m}$ であった。フロック径が大きく異なるのは、懸濁液流実験に用いたポンプによってフロックが破碎され細くなったためであると考えられる。懸濁液流と曝気流の実験は交互に行う形で行ったが、一旦破碎され60-70  $\mu\text{m}$ になったのちは、懸濁液流実験に用いているポンプを止めて、曝気流の実験を行っている期間中もフロックサイズが再び大きくなることはなかった。

実験期間中は汚泥の培養条件を一定にし、汚泥の性状は一定に保たれているものと見なした。ろ過ごとに異なるのは水理学的条件であり、汚泥の堆積過程の違いは水理学的状況の違いが原因であると見なされる。

### 3.1.2 実験結果

各濃度、曝気量、膜間距離おこなったろ過実験結果を示す。この節では結果のみを示し、詳細な解析結果は後述する。

#### (1) 曝気量及び膜間距離が汚泥堆積過程に及ぼす影響 (MLSS2- $3\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ の場合)

曝気線速度は0.01-0.06  $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、膜間距離は0.5, 1.0, 1.5cmにかえて各々ろ過実験をおこなった。

図-3.1.4にろ過抵抗の、図-3.1.5に汚泥堆積量の経時変化の例を示した。汚泥堆積量が多いほどろ過抵抗は大きいようである。図-3.1.6に、横軸にろ過終了時の汚泥堆積量とろ過開始1時間後の汚泥堆

表-3.1.3 ろ過条件と懸濁液の性状

MLSS[kg・m <sup>-3</sup> ]	0.8-1.2	2-3	4-6
曝気流			
膜間距離0.5cm	○	◎	○
膜間距離1.0cm	○	◎	○
膜間距離1.5cm	○	◎	○
单相クロスフロー流			
膜間距離0.5cm	○	◎	
膜間距離1.0cm	○	◎	
汚泥の性状			
汚泥負荷 [kgC・kgMLSS <sup>-1</sup> ・d <sup>-1</sup> ]	3.4×10 <sup>2</sup>	3.4×10 <sup>2</sup>	5.3×10 <sup>2</sup>
相対粘度(懸濁液の粘度/水の粘度)	1.1-1.2		
フロックの粒[μm]	気泡流実験時の、MLSS2-3の場合:100-200 その他の場合:60-70		

\*その条件で実験を行ったものには○、重点的に、回数を多く行ったものは◎で示した。

積量との差、縦軸にろ過終了時のろ過抵抗とろ過開始1時間後のろ過抵抗との差としてその関係を示す。汚泥堆積量が多いモジュールほどろ過抵抗も大きいということが分かる。

なお、これ以降、ろ過終了時の汚泥堆積量とろ過開始1時間後の汚泥堆積量との差を「ろ過後汚泥堆積量」と称し、ろ過終了時のろ過抵抗とろ過開始1時間後のろ過抵抗との差は、その期間に生じた「ろ過後汚泥堆積量」が生じたことによるろ過抵抗の増加分と見なし、「ろ過後汚泥堆積層抵抗」と称することにする。

「ろ過後汚泥堆積量」=ろ過終了時の汚泥堆積量-ろ過開始1時間後の汚泥堆積量

「ろ過後汚泥堆積層抵抗」=ろ過終了時のろ過総抵抗-ろ過開始1時間後のろ過総抵抗

汚泥堆積量に影響を与える因子について考察する。

図-3.1.5をみると汚泥堆積はろ過開始後、ある程度の時期を経て後直線的に上昇をし、平衡に至るという傾向を見出すことが出来る。その概念図を図-3.1.7に示した。実際、汚泥堆積量の測定毎にモジュールを取り出した目視によっても、ろ過初期には殆ど汚泥の堆積が見られないのに、ある時間を経過した後に汚泥の堆積が生じはじめているという観察を得た。次にこの各々の因子について実験結果を示す。

まず、平衡汚泥堆積量の結果を示す。図-3.1.5を見るとろ過開始後12時間程度過ぎると、一部の

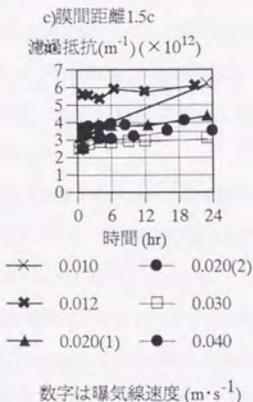
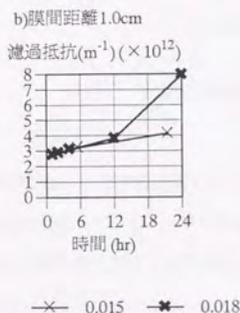
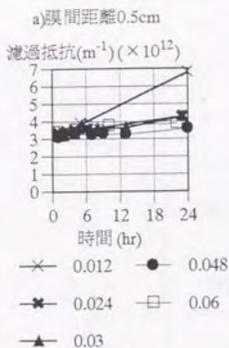


図-3.1.4 ろ過抵抗の経時変化の例

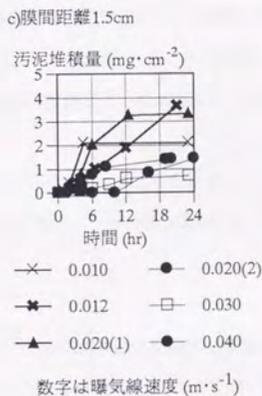
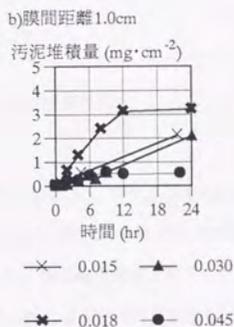
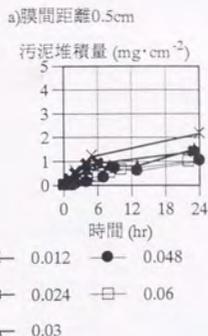


図-3.1.5 汚泥堆積量の経時変化の例

ろ過後汚泥堆積層抵抗( $\text{m}^{-1}$ ) $\times 10^{12}$

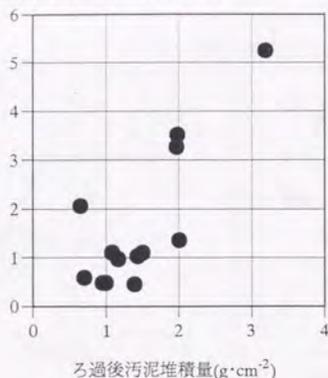


図-3.1.6

ろ過後汚泥堆積量とろ過後汚泥堆積層抵抗

例外 (膜間距離 1.0cm、曝気線速度  $0.015, 0.030\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 、膜間距離 1.5cm、曝気線速度  $0.012\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) を除いて汚泥堆積量は安定している。そこでろ過開始後 20 時間目の汚泥堆積量を平衡汚泥堆積量と見なし、曝気線速度と平衡汚泥堆積量との関係を図-3.1.8 に示した。曝気線速度が上昇するに従って平衡汚泥堆積量が減少しているのがわかる。また、曝気線速度が等しければ平衡汚泥堆積量もほぼ等しい。曝気線速度の大小で平衡汚泥堆積量が決まっているのが分かる。

汚泥堆積速度についてその結果を示す。図-3.1.5 を見ると汚泥堆積の速さはろ過期間にわたって一定ではなく、初期段階では直線的に上昇し、一定時間を経過すると平衡に至ることがわかる。そこで、初期段階の、汚泥堆積量が直線的に上昇している時期の汚泥堆積速度と、曝気線速度との関係を図-3.1.9 に示した。

1 点、値が非常に大きいものを除けば曝気線速度が増加するに従ってゆるやかに減少している。膜間距離 0.5cm で若干他の膜間距離のものより値が大きい傾向にあるが、その差は僅かであり、膜間距離による違いは大きくないといえる。

汚泥堆積開始時間についてその結果を示す。

汚泥堆積速度の計算の際傾きの推定に用いた直線の横軸の切片の値を汚泥堆積開始時間としてとり、曝気線速度と汚泥堆積開始時間との関係を図-3.1.10 に示した。直線の切片が 0 より小さい場合は、汚泥堆積開始時間は 0 とした。

曝気線速度が上昇するに従って汚泥堆積開始時間は上昇している。しかし、その上昇率は膜間距離

汚泥堆積量 ( $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ )

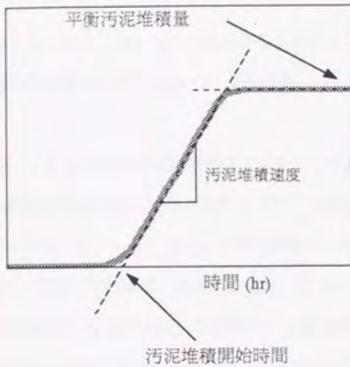
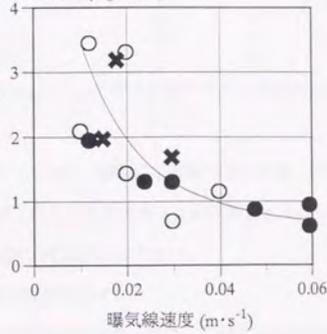


図-3.1.7 汚泥堆積過程概念図

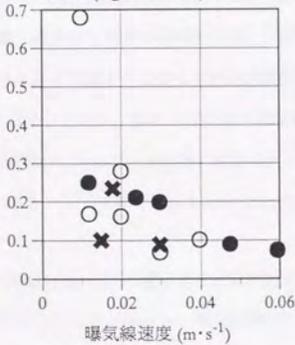
汚泥堆積量 ( $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ )



- 0.5
- ✕ 1 数字は膜間距離 (cm)
- 1.5

図-3.1.8 平衡汚泥堆積量 (MLSS:  $2\sim 3\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ )

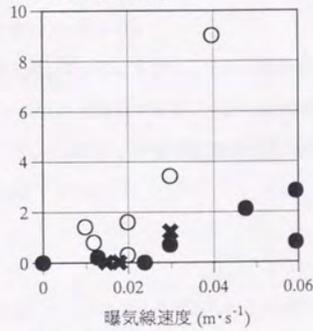
汚泥堆積速度 ( $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{hr}^{-1}$ )



- 0.5
- ✕ 1 数字は膜間距離 (cm)
- 1.5

図-3.1.9 汚泥堆積速度  
(MLSS:  $2\sim 3\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ )

汚泥堆積開始時間 (hr)



- 0.5
- ✕ 1 数字は膜間距離 (cm)
- 1.5

図-3.1.10 汚泥堆積開始時間  
(MLSS:  $2\sim 3\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ )

によって異なっており、同じ曝気線速度であっても膜間距離の大きい方が汚泥堆積開始時間が大きい傾向にある。

### (2) $MLSS0.8-1.2\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ の場合のろ過実験結果

曝気線速度は $0.01-0.06\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 、膜間距離は $0.5, 1.0, 1.5\text{cm}$ にかえて各々の条件下でろ過実験をおこなった。

図-3.1.11に汚泥堆積量の経時変化を示した。図-3.1.12に、横軸にろ過後汚泥堆積量、縦軸にろ過後汚泥堆積層抵抗としてその関係を示す。ろ過抵抗の上昇と汚泥堆積量は比例関係にあるのがわかる。前節の実験(図-3.1.6)よりもやや堆積量当たりの抵抗(比抵抗)は大きい。

次に平衡汚泥堆積量、汚泥堆積速度、汚泥堆積開始時間を示す。

前節同様ろ過開始後20時間目の汚泥堆積量を平衡汚泥堆積量と見なし、曝気線速度と平衡汚泥堆積量との関係を図-3.1.13に示した。曝気線速度が上昇するに従って平衡汚泥堆積量が減少しているのがわかる。また、曝気線速度が等しければ平衡汚泥堆積量もほぼ等しい。前節よりばらつきが小さくその傾向がより明瞭である。

次に初期段階の、汚泥堆積量が直線的に上昇している時期の汚泥堆積速度と、曝気線速度との関係を図-3.1.14に示した。曝気線速度が $0.02\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ より小さい領域では汚泥堆積速度は大きく、それ以上の曝気線速度の領域では小さな値で比較的一定している。膜間距離によって曝気線速度が大きく異なることはない。それらの傾向は平衡汚泥堆積量と共通している。

次に曝気線速度と汚泥堆積開始時間との関係を図-3.1.15に示した。

曝気線速度が上昇するに従って汚泥堆積開始時間は上昇している。しかし、その上昇率が膜間距離によって異なっており、その点は前節の実験結果(図-3.1.10)と同様である。しかし前節の実験のように膜間距離が $1.0\text{cm}$ のときのみ値が0近くなるということはない。汚泥堆積開始時間は曝気線速度が等しい場合、膜間距離 $1.5\text{cm}, 1.0\text{cm}, 0.5\text{cm}$ の順番で小さくなる。

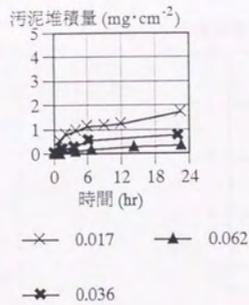
### (3) $MLSS4-6\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ の場合のろ過実験結果

曝気線速度は $0.01-0.06\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 、膜間距離は $0.5, 1.0, 1.5\text{cm}$ にかえて各々の条件下でろ過実験をおこなった。

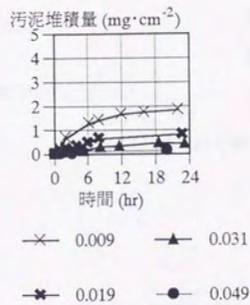
図-3.1.16に汚泥堆積量の経時変化を示した。図-3.1.17に、横軸にろ過後汚泥堆積量、縦軸にろ過後汚泥堆積層抵抗としてその関係を示す。また、前節の実験結果(図-3.1.12)と併せて示した。

次に平衡汚泥堆積量、汚泥堆積速度、汚泥堆積開始時間を示す。

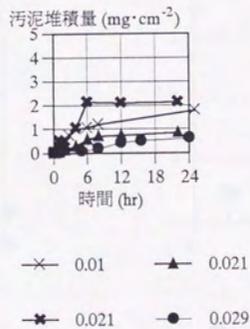
a) 膜間距離0.5cm



b) 膜間距離1.0cm



c) 膜間距離1.5cm



数字は曝氣線速度 ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )

図-3.1.11 汚泥堆積量の経時変化( $\text{MLSS}:0.8\sim 1.2\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ )

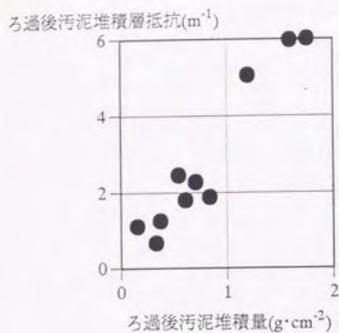


図-3.1.12  
ろ過後汚泥堆積量とろ過後汚泥堆積層抵抗  
(MLSS:0.8-1.2 $kg \cdot m^{-3}$ )

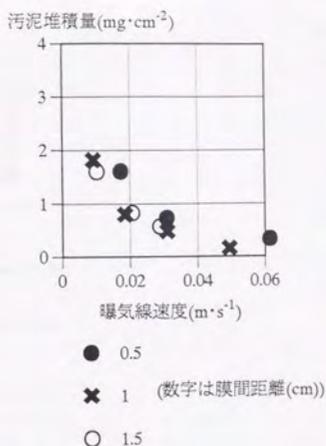


図-3.1.13 平衡汚泥堆積量(MLSS:0.8-1.2 $kg \cdot m^{-3}$ )

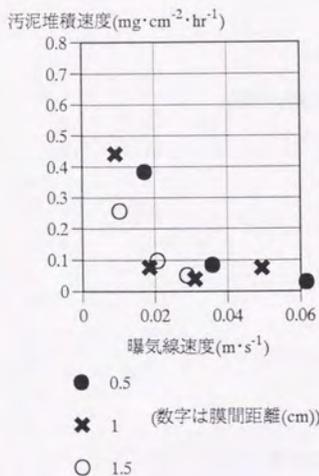


図-3.1.14 汚泥堆積速度(MLSS:0.8-1.2 $kg \cdot m^{-3}$ )

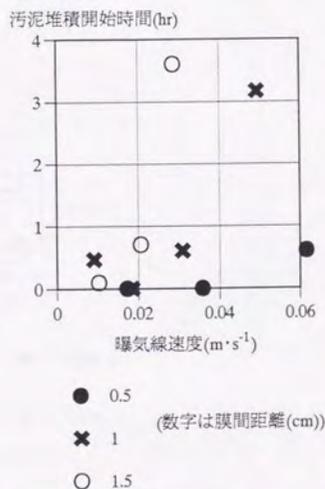
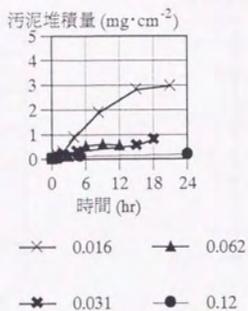
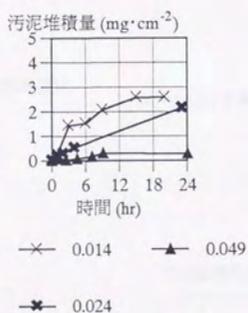


図-3.1.15 汚泥堆積開始時間(MLSS:0.8-1.2 $kg \cdot m^{-3}$ )

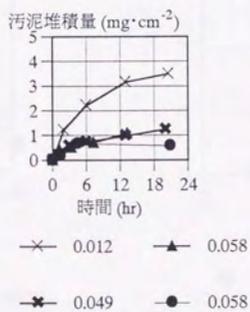
a) 膜間距離0.5cm



b) 膜間距離1.0cm

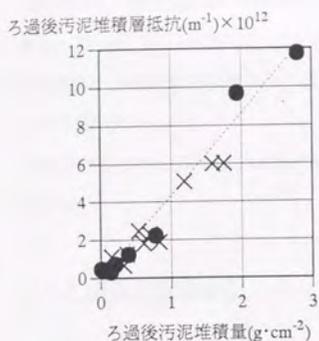


c) 膜間距離1.5cm



数字は曝気線速度 ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )

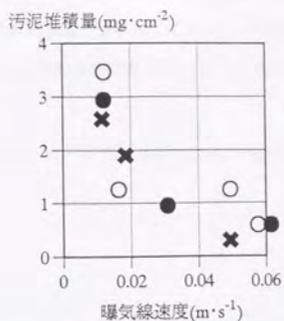
図-3.1.16 汚泥堆積量の経時変化( $\text{MLSS}:4\text{-}6\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ )



× : 低濃度( $MLSS:0.8-1.2kg \cdot m^{-3}$ )の場合の結果 (図-3.12より)

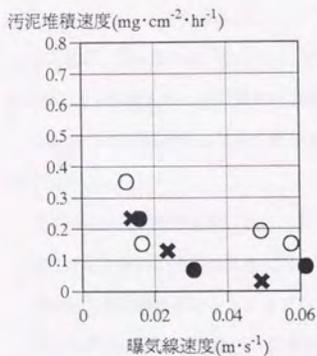
図-3.1.17

ろ過後汚泥堆積量とろ過後汚泥堆積層抵抗  
( $MLSS:4-6kg \cdot m^{-3}$ )



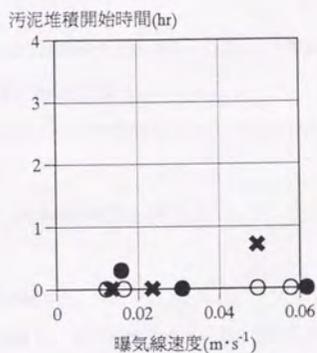
● 0.5  
× 1 (数字は膜間距離(cm))  
○ 1.5

図-3.1.18 平衡汚泥堆積量( $MLSS:4-6kg \cdot m^{-3}$ )



● 0.5  
× 1 (数字は膜間距離(cm))  
○ 1.5

図-3.1.19 汚泥堆積速度( $MLSS:4-6kg \cdot m^{-3}$ )



● 0.5  
× 1 (数字は膜間距離(cm))  
○ 1.5

図-3.1.20 汚泥堆積開始時間( $MLSS:4-6kg \cdot m^{-3}$ )

前節同様にろ過開始後20時間目の汚泥堆積量を平衡汚泥堆積量と見なし、曝気線速度と平衡汚泥堆積量との関係を図-3.1.18に示した。また初期段階の、汚泥堆積量が直線的に上昇している時期の汚泥堆積速度と、曝気線速度との関係を図-3.1.19に示した。前節の実験結果(図-3.1.13、図-3.1.14)とほぼ同様の傾向である。

曝気線速度と汚泥堆積開始時間との関係を図-3.1.20に示した。汚泥堆積速度は2点の例外を除いて0であった。

### 3.1.3 膜面の流動状況

汚泥堆積過程に影響を与える因子を検討するに先立ち、膜面の流動状況を知る必要がある。本節では気液の上昇速度及びボイド率を測定した。またその測定結果に基づき膜面のせん断力を求めた。

#### (1) 流動状況の測定方法

測定には水温20°Cの水道水を用いた。ろ過実験に用いた活性汚泥懸濁液と同水温であった。清水と活性汚泥ではその水理学的性質が異なるが、本実験条件の範囲では活性汚泥の粘性は同じ温度の清水と比較して高々2割程度増加するに過ぎず(平均1割程度の上昇)、粘性の違いによる水理学的状況の差は大きくはないと考えられる。

実験装置は図-3.1.1に示したものと、細部を除いてはほぼ同様である(図-3.1.21)。水槽は、透明塩ビ板によって組まれ、中の流動状況を直接観察することが可能である。

膜は基本的に設置せず、仕切り板のみを設置して実験を行った。仕切幅を0.5、1.0、1.5cmに変えて各々測定を行った。

まず流動状況の観察をおこない、また写真撮影によって気泡の直径を測定した。

次に気泡及び水の上昇速度を測定した。

気泡の上昇速度は外からストップウォッチを用いて測定した。

水の循環量の測定の際は、仕切り板の上部に堰を設置し、そこを越流する水量を測定した(図-3.1.22参照)。

これらの測定値に基づいてボイド率、気相及び液相の上昇速度を計算した。

ボイド率は以下のように計算される。

$$\alpha = \frac{u_b}{U_b} \quad (3.2)$$

ここに $\alpha$ :ボイド率[-]、 $u_b$ :気泡の上昇速度[m·s<sup>-1</sup>]、 $U_b$ :曝気線速度(見かけの気泡上昇速度)[m·

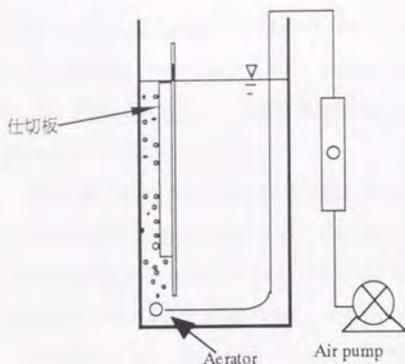


図-3.1.21 流動状況観察のための装置

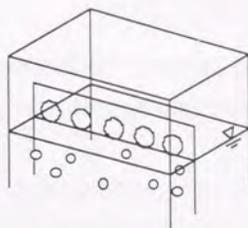


図-3.1.22 循環流の越流部

$s^{-1}$  である。

また、液相の上昇速度は以下のように計算される。

$$u_l = (1 - \alpha) \left( \frac{Q_l}{A} \right) \quad (3.3)$$

ここに  $u_l$ : 液相の上昇速度 [ $m \cdot s^{-1}$ ]、 $Q_l$ : 液相の循環量 [ $m^3 \cdot s^{-1}$ ]、 $A$ : 流路断面積 [ $m^2$ ] である。 $(Q_l/A)$  は液相の見かけの上昇速度 [ $m \cdot s^{-1}$ ] である。

平膜があることによって次のように流動状況が変わってくる可能性も考えられる。まず、ろ過方向の流速の存在によって流動状況が変化することが考えられる。また、ろ過実験装置は、平膜の両面に関して完全には対称ではないため（リアクターの端に設定しているため、出入口の流動状況が若干異なってくる）、流動状況が膜の両面で異なってくる可能性もある。

そこでこれらの可能性も検討するため、まず、平膜を設定し、活性汚泥のろ過の際とほぼ同程度のフラックス ( $0.6m \cdot d^{-1}$ ) 下で、気泡及び液相の上昇流速を測定した。また、膜の両面の気泡の上昇速度を測定し、両面の流動状況の違いの可能性を考察した。

## (2) 気液の流速およびボイド率の測定結果

流動状況は本実験の範囲ではいずれも気泡流であった。また、気泡の直径は約 5 mm であった。膜間距離、曝気線速度が異なっても気泡径は変わることはなかった。

図-3.1.23に気泡及び水の上昇速度の測定結果を示す。液相の上昇速度は曝気線速度にほぼ比例して上昇していることがわかる。気泡の上昇速度は曝気線速度が 0 に近づくと静水中の気泡の上昇速度に漸近すると考えられる。気泡径 5mm の場合の単一の気泡の上昇速度は  $0.2m \cdot s^{-1}$  であるとされており

(Peeble et al., 1953)、本実験結果ともほぼ一致している。

次に膜間距離 1.0cm で、膜を設定し、ろ過をおこなった場合の気泡及び水の上昇速度を図-3.1.24に示した。比較のために図-3.1.23b)の結果をあわせて示した。気泡、液相ともほぼ仕切板のみの場合と同じ測定結果が得られている。

また、膜の両面ともに、気泡の上昇速度は等しく、また、仕切板のみの場合とも等しいのがわかる。各面の液相の上昇速度を測定することは出来ないが、もし何らかの原因で片面の水の上昇速度が変化すれば、気泡もそれぞれにある程度追従して変化するはずであり、気泡の上昇速度が両面で等しいということは、液相の上昇速度も両面で等しいと考えることが出来る。

膜の両面で、また、膜透過フラックスの有無で流動状況は大きく変化することはなく、図-3.1.23に示した仕切り板の実験結果が、膜を設定した場合の流動状況を十分表しうるとい事がいえる。

従ってこれ以降の計算は図-3.1.23に示した測定結果を用いて行うことにする。

図-3.1.25にポイド率を示した。ポイド率は曝気線速度の上昇とともに直線的に増加している。また膜間距離による違いはない。

### (3) 膜面のせん断力の計算

気液二相流におけるせん断力の計算は、Akitaら(1988)および植田(1967)の実験式を用いて行い、両者の結果の比較検討もおこなった。

Akitaらによると、壁面の影響による圧力損失 $\Delta P$ は以下のように表される。

$$\Delta P = \frac{4f_r \cdot \rho \cdot x}{D} \left( \frac{U}{1-\alpha} \right)^2 \quad (3.4)$$

ここにU: 水の見かけ流速 [m・s<sup>-1</sup>]、D: 膜間距離 [m]、 $\rho$ : 水の密度 [kg・m<sup>-3</sup>]、 $f_r$ : 摩擦損失係数 [-]、 $\alpha$ : ポイド率 [-]、x: 深さ [m] である。

また $f_r$ は次のように与えられる。

$$f_r = 0.0468 \left( U / \sqrt{2Dg} \right)^{-1.1} \alpha^{0.5} \quad (3.5)$$

これらより、せん断力は圧力損失を用いて以下のように表される。

$$\tau = \frac{D \Delta P}{2 \Delta x} \quad (3.6)$$

式(3.3)~(3.5)からせん断力を計算した結果を図-3.1.26に示した。

また植田らによると、

$$\tau_w = \frac{\rho}{50} \left( \frac{1.40 u_m}{Re_m} \right)^2 \quad (3.7)$$

ただし、 $u_m$ 、 $Re_m$ は以下のように表される。

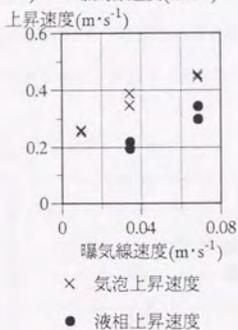
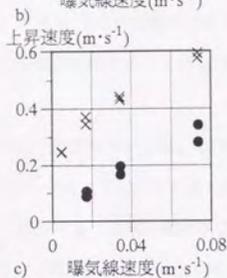
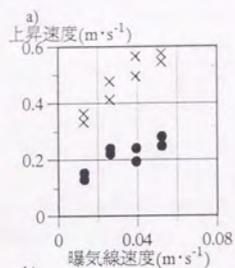


図-3.1.23 気泡と水の上昇速度

(a): 膜間距離1.5 cm,

b): 膜間距離1.0 cm,

c): 膜間距離0.5 cm)

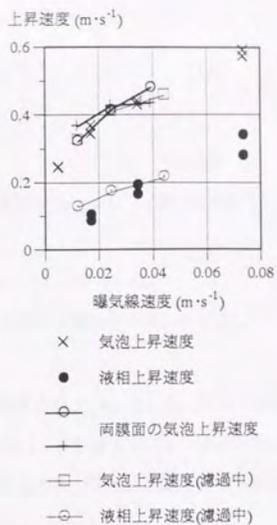


図-3.1.24

水と気泡の上昇速度の例 (膜間距離1.0cmの場合)

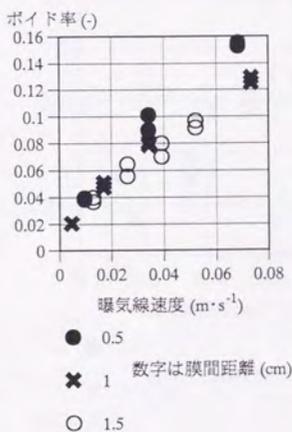


図-3.1.25 ポイド率

$$u_m = u_l + 5.0 \left\{ \frac{2g\alpha D(1-\sqrt{\alpha})}{u_g - u_l} \right\}^{4/5} (u_g - u_l) \quad (3.8)$$

$$Re_m = \frac{2u_m D}{\nu} \quad (3.9)$$

ここに  $u_g$ : 気泡の上昇速度 [ $m \cdot s^{-1}$ ]、 $u_l$ : 液相の上昇速度 [ $m \cdot s^{-1}$ ]、 $g$ : 重力加速度 [ $m \cdot s^{-2}$ ]、 $\nu$ : 液相の動粘性係数 [ $m^2 \cdot s^{-1}$ ] である。

式 (3.7) ~ (3.9) からせん断力を計算した結果を図-3.1.27に示した。

せん断力の値が両者でかなり異なっているのは、両者の実験条件の違いを反映しているものと考えられる。

また、植田の計算においては、気泡と液相の上昇速度の差 ( $u_g - u_l$ ) という、測定誤差の影響の出やすい値をパラメータとして用いているため、Akitaらに基づく計算値よりばらつきが大きい。

しかし、両者とも、膜間距離が異なっても曝気線速度が等しければせん断力は概ね等しく、また曝気線速度に概ね比例している点では共通の傾向を持っている。

本実験の範囲では、膜面に及ぼすせん断力は曝気線速度に比例し、また、膜間距離が異なることによってその値が大きく変わることはないと考えられる。

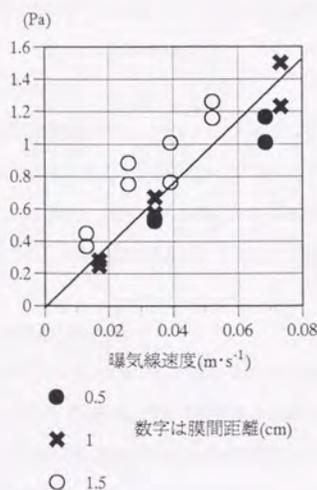


図-3.1.26  
膜間距離と膜面のせん断力(Akitaら(1988)による)

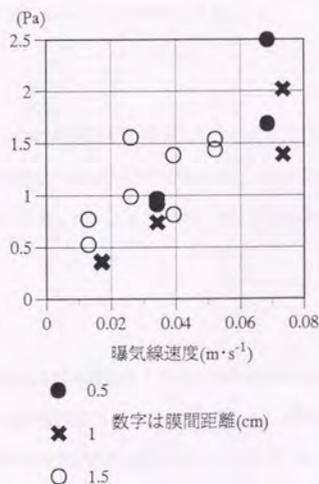


図-3.1.27 膜間距離と膜面のせん断力  
(植田(1967)による)

以下、膜面のせん断力を解析に用いる際には Akitaらの式に基づき、図-3.1.26のプロットから求められた直線の回帰式に基づき壁面のせん断力を計算する。

### 3.1.4 汚泥堆積過程に影響を与える水理学的な因子

#### (1) 平衡汚泥堆積量

3.1.2節に示された平衡汚泥堆積量の結果を見ると、堆積量は主に曝気線速度に依存しており、膜間距離によって大きく変わることはないことが分かる。これは膜面せん断力と共通する傾向である。

このことから平衡汚泥堆積量は膜面のせん断力によって決まっていると推察される。

膜面のせん断力が増加すれば平衡汚泥堆積量は減少し、せん断力が減少すれば汚泥堆積量は増加する。すなわち、膜面せん断力と平衡汚泥堆積量には負の相関がある。

そこで図-3.1.28に MLSS $0.8\sim 1.2\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $2\sim 3\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $4\sim 6\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$  の場合のせん断力の逆数と汚泥堆積量との関係をプロットして示した。グラフはいずれも両者の線形関係を示しており、せん断力と汚泥堆積量は反比例の関係にあるといえる。

次に MLSS との関係について述べる。

図-3.1.28におけるプロットの傾きに関して考察をおこなう。

膜面せん断力の逆数  $1/\tau$  と平衡汚泥堆積量  $C_e$  の関係は以下のように定式化できる。

$$C_e = k \cdot (1/\tau) \quad (3.10)$$

$k$ : 定数 [ $\text{Pa}\cdot\text{mg}\cdot\text{cm}^3$ ] となる。

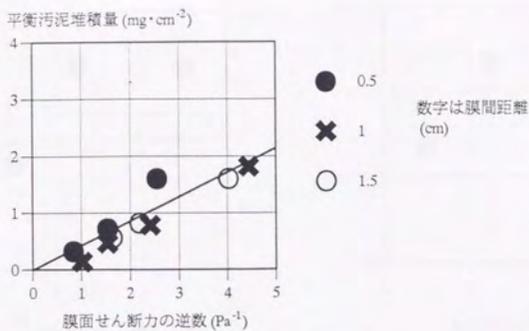
$k$  は汚泥堆積が生じやすいほど大きくなる定数であり、平衡汚泥堆積量の実際の値を決定する指標である。MLSS と  $k$  との関係を図-3.1.29 に示す。平衡汚泥堆積量の MLSS 依存性は少ないものと考えられる。MLSS $0.8\sim 1.2\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$  の場合はやや値が小さく、MLSS が  $1\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$  以下の非常に希薄な汚泥濃度の範囲では、平衡汚泥堆積量も小さくなる可能性がある。

#### (2) 汚泥堆積速度

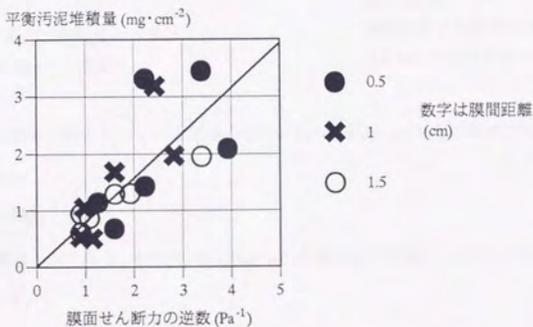
図-3.1.9, 14, 19 をみると曝気線速度の上昇とともに減少する傾向はあるものの、曝気線速度  $0.01\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  より大きい場合は、汚泥堆積速度は比較的一定である (値の範囲は  $0.1\sim 0.2\text{mg}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{hr}^{-1}$ )。膜面せん断力への依存性はあるものの、ある程度以上の曝気線速度ではその依存性は小さく、一定に近いものと考えられる。

MLSS への依存性について調べる。

a) MLSS:  $0.8-1.2 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$



b) MLSS:  $2-3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$



c) MLSS:  $5-6 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

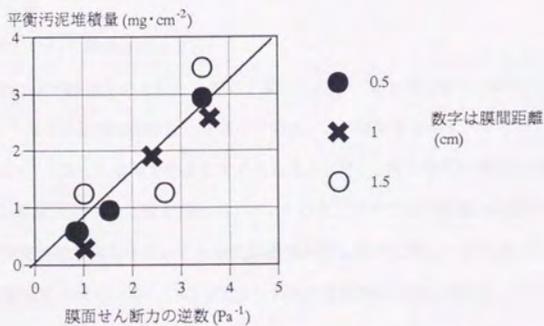


図-3.1.28 膜面せん断力の逆数と平衡汚泥堆積量

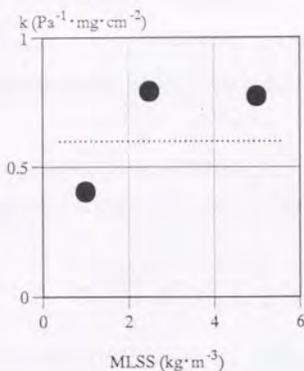


図-3.1.29  
平膜を用いた曝気流中のろ過におけるMLSSとkとの関係

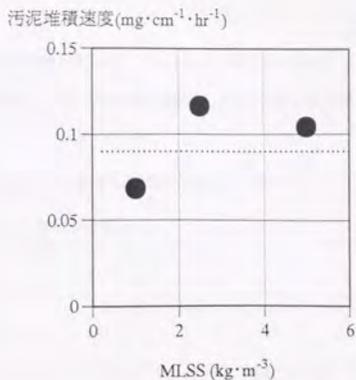


図-3.1.30  
平膜を用いた曝気流中のろ過におけるMLSSと汚泥堆積速度との関係

汚泥堆積速度が比較的一定となっている領域、 $0.02\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ~ $0.05\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ で汚泥堆積速度の平均を取り、MLSSとの関係を見る。

図-3.1.30にその関係を示した。

汚泥堆積速度は概ね一定である。MLSS $0.8$ ~ $1.2\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ の場合にやや値が小さいという点は平衡汚泥堆積量と共通している。

### (3) 汚泥堆積開始時間

汚泥堆積開始時間について考察を加える。

汚泥堆積開始時間は曝気線速度の上昇とともに上昇しており、曝気線速度が上昇すると汚泥堆積が生じにくくなるという点は平衡汚泥堆積量と共通している。これは両者ともせん断力が上昇し、それにより汚泥堆積が生じにくくなった結果であると考えられる。しかし、同じ曝気線速度でも膜間距離が異なる場合、汚泥堆積開始時間は異なる値を持っており、その点で平衡汚泥堆積量とは傾向が異なっている。膜面せん断力は膜間距離が異なっても曝気線速度が等しければ等しい値を持っており、これは膜間距離が異なれば膜面せん断力が等しいにも関わらず汚泥堆積開始時間は異なるということを意味している。

そこで、膜間距離の影響も加味した、汚泥堆積開始時間を決定するモデルについて考える。

膜間距離が短くなると汚泥堆積開始時間が短くなるのはバルク中を移動しているフロックが膜面に

接触しやすくなるためではないかと考えられる。

フロクの膜面に向かう方向の移動度に対して膜間距離が相対的に短くなると同じ壁面せん断力であっても膜面への接触機会が増加し、その接触の増加が原因となり汚泥堆積開始時間が短くなると推測される。

そこで汚泥堆積開始時間を、膜間距離とフロクの移動度とを考慮して無次元化し、無次元化した汚泥堆積開始時間と膜面のせん断力を以下に示す式によって比較した。

$$T_A / \left( \frac{D - 2\delta}{u'} \right) = k_s \cdot \left( \frac{\tau}{f_{pm}} \right)^n = \left( \frac{k_s}{f_{pm}^n} \right) \cdot \tau^n \quad (3.11)$$

ここに  $T_A$ : 汚泥堆積開始時間 [s]、 $\tau$ : 膜面せん断応力 [Pa]、 $D$ : 膜間距離 [m]、 $\delta$ : 粘性底層厚さ [m]、 $u'$ : 液相の乱れ強度 [ $m \cdot s^{-1}$ ]、 $f_{pm}$ : 汚泥の膜に対する付着力 [Pa]、 $k_s$ : 定数 [-] である。ここでは  $f_{pm}$  の値は不明であるが、汚泥の粘度と、膜面のごく近傍の膜方向への流速、すなわちフラックスによって決まると考えると、本実験条件を通して一定値を持つと考えられる。

( $D - 2\delta$ ) は膜間領域のうち、粘性底層をのぞいた、壁面の影響が少ないと考えられる外部領域であり、( $D - 2\delta$ ) と  $u'$  との比とは粒子の膜間距離方向の移動度に対する外部領域の相対的な広さの指標となるものである。

粘性底層厚さは、壁面近傍ではボイド率は小さく単相流に近いと見なし、以下の式によって評価した。

$$\delta = 11.6 \frac{v}{u_*} \quad (3.12)$$

ただし  $v$ : 液相動粘性係数 [ $m^2 \cdot s^{-1}$ ]、 $u_*$ : 摩擦速度 ( $= (\tau_w / \rho)^{1/2}$ ) [ $m \cdot s^{-1}$ ] である。

図-3.1.31にその結果を示す。粘性底層厚さは0.3-0.8mm程度である。汚泥堆積開始時間がある程度大きな値を持つ曝気線速度  $0.04 m \cdot s^{-1}$  以上では粘性底層厚さは0.4mm程度であり膜間距離が最低でも5mmあることと比較するとその値は大きなものではない。また実際には粘性底層近傍でも完全に単相流であるとは考えられず、気泡の影響によって粘性底層はこれよりも更になくなると思われる。そこで本節では  $\delta = 0$  として計算する。

$$\frac{T_A}{D/u'} = k_s \cdot \tau^n \quad \left( k_s = \frac{k_s}{f_{pm}^n} \right) \quad (3.11')$$

液相の乱れ強度に関しては、Theofanousら (1982) によって求められた、以下に示す垂直円管の気泡流の中心部の乱れ強度に関する関係式がある。

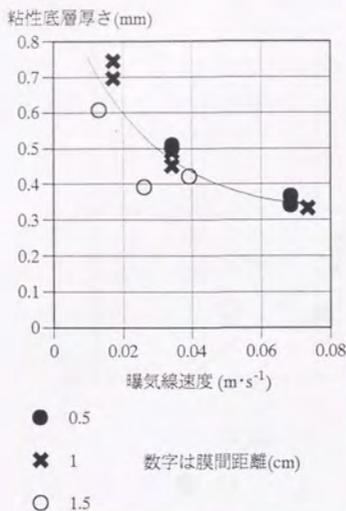


図-3.1.31 液相レイノルズ数と粘性底層厚さ

$$k^2 = \left( \frac{u_{c'}}{u_{cm'}} \right)^2 = (1-\alpha)^2 + \frac{4\alpha(1-\alpha)}{u_{cm'}^2} \left( 1 - \frac{\rho_G}{\rho_L} \right) Dg \quad (3.13)$$

$k$ は二相流と单相流の乱れ強度の比、 $u_{c'}$ は液相の乱れ強度 [ $m \cdot s^{-1}$ ]、 $u_{cm'}$ は同じ液相流速をもつ单相流の乱れ強度 [ $m \cdot s^{-1}$ ] である。单相流の乱れ強度はLaufer (1950) による実験結果から定めた。

図-3.1.32、図-3.1.33に汚泥堆積開始時間のばらつきが大きいMLSS0.8~1.2 $kg \cdot m^{-3}$ の場合及びMLSS2~3 $kg \cdot m^{-3}$ の場合に関して $T_{\lambda'} / (D/u')$ と $\tau$ との関係を示した。ただし曝気線速度が小さく汚泥堆積開始時間が0のものについては、ろ過の初期の挙動のために生じる不安定性が原因による誤差であると見なし、省いて示してある。

膜間距離によらず一定の関係を持つようになっており、式(3.11')によって膜間距離の影響を相殺することは妥当であると考えられる。

### 3.1.5 本節のまとめ

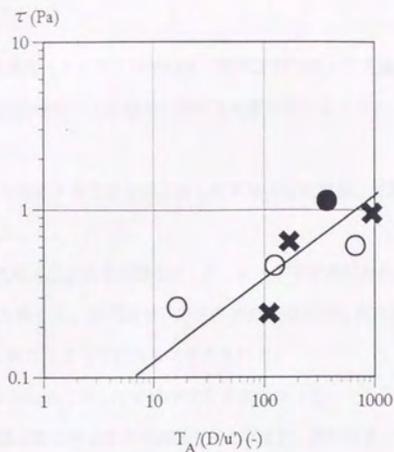


図-3.1.32  $T_A/(D/u)$ と $\tau$ (MLSS0.8~1.2 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ )

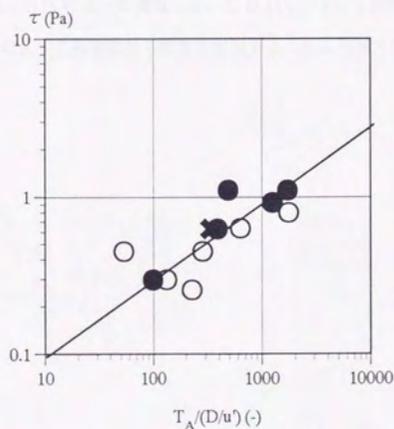


図-3.1.33  $T_A/(D/u)$ と $\tau$ (MLSS2~3 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ )

気泡流条件下で、懸濁液濃度、クロスフロー流速、膜間距離を変えてる過実験をおこない、水理学的な側面から汚泥堆積過程に影響を与える因子に関する考察をおこなった。

それにより得られた結果は、

・汚泥堆積過程を記述する記述する主要な因子として平衡汚泥堆積量、汚泥堆積速度、汚泥堆積開始時間という3つの因子を見出した。

・平衡汚泥堆積量は、曝気線速度と負の相関を示した。また膜間距離が異なっても曝気線速度が等しければ概ね汚泥堆積量も等しく、膜間距離に対する依存性は見出されなかった。

汚泥堆積量は膜面のせん断力によって決まると考えられた。

また、平衡汚泥堆積量はMLSSに対しては依存性を示さなかった。

・汚泥堆積速度も、曝気線速度に対して負の相関を示し、また、膜間距離に対しては依存性を持っていないと考えられた。またMLSSに対しても依存性を示さなかった。

・汚泥堆積開始時間は曝気線速度と膜間距離の両方に依存する。膜間距離が短くなると汚泥堆積開始時間は短くなる。汚泥堆積開始時間が膜間距離に依存するのは、ブロックの膜面に向かう方向の移動度に対して膜間距離が相対的に短くなり、ブロックの膜面への接触機会が増加し、そのために汚泥堆積開始時間が短くなると考え、式(3.11)によって整理した。式(3.11)によって膜間距離によらない一定の関係が見出され、式(3.11)によって膜間距離の影響を相殺することは妥当であると考えられた。

### 3.2 懸濁液クロスフロー流中のろ過における汚泥の堆積過程

前節の実験においては平膜を曝気流中に浸漬した状態でろ過を行った。曝気流中でのろ過は、より効果的に汚泥の付着を抑制することが出来ると考えられているが、曝気による汚泥の付着の抑制効果の程度を検討するには、懸濁液クロスフロー流中のろ過との比較検討を行う必要がある。

そこで本節では、懸濁液クロスフロー流中でのろ過実験をおこない、汚泥堆積過程を調べ、汚泥堆積過程に影響を与える水理学的な因子について、曝気流中でのろ過実験における汚泥堆積過程との比較を含めた検討をおこなった。

#### 3.2.1 実験装置および実験方法

実験装置は図-3.2.1に示した。基本的には前節で用いた装置の、エアポンプの部分を液体ポンプに入れ替えたものである。ポンプの前部にはタンク2を設けている。ポンプとタンク2の間にはバイパスが設けられ、バイパスのバルブT1によってクロスフロー流量が調整される。

平膜は片面をシールし、ろ過面も部分的にシールした(図-3.2.2参照)。なるべく高いクロスフロー流速を得るために、仕切り板を設け流路を狭くし、シールをしていないろ過面のみにクロスフロー流が流れるように設計した。流路幅は10cmで、膜間距離は0.5cmまたは1.0cmとした。

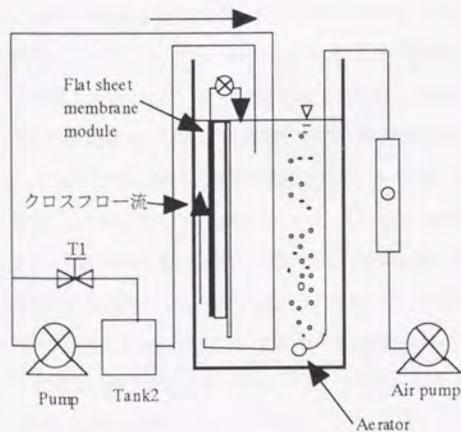


図-3.2.1 クロスフロー型平膜実験装置

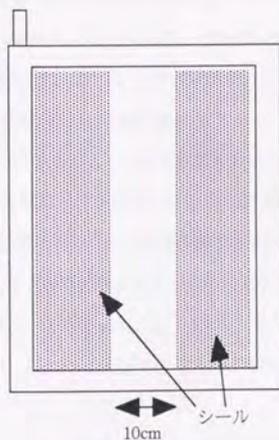


図-3.2.2 平膜モジュール

MLSSは $0.8\text{--}1.2\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ 及び $2\text{--}3\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ の2段階で実験をおこなった。クロスフロー流速は $0.2\text{--}1.4\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ まで段階的に変化させ、ろ過時間は20~24時間であった。

### 3.2.2 実験結果

懸濁液の性状に関しては既に表-3.1.3に一括して示してある。

ろ過終了時に、平膜を取り出したところ、汚泥堆積は、高さ方向に対して不均一であった。これは、気泡流の実験では見られなかったことである。汚泥堆積量の流下方向の分布の測定例を図-3.2.3に示す。比較のために気泡流下での測定例を図-3.2.4示した。クロスフローの流入部で生じた乱れの影響によって、入り口付近で汚泥堆積量が少なくなっているものと考えられる。そして境界層の発達によって乱れが抑制されて流下方向に汚泥堆積量が増加しているのではないかと考えられる。

一方、気泡流の場合、汚泥堆積量の流下距離による増加が生じないのは、気泡による乱れによって、境界層の発達する領域が、入口近傍のごく短い区間に限定されているためではないかと考えられる。

以下の実験では、流下距離30cmより下流のところで汚泥堆積量を測定した結果を用いることにする。

図-3.2.5にMLSS $0.8\text{--}1.2\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ の場合の汚泥堆積過程を、図-3.2.6にMLSS $2\text{--}3\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ の場合の汚泥堆積過程を示してある。

次に図-3.2.7にろ過後汚泥堆積量とろ過後汚泥堆積層抵抗との関係を示す。気泡流の実験で得られた回帰直線(図-3.1.17)の例を、比較として併せて示す。

気泡流の結果と異なり、値のばらつきが非常に大きい。汚泥堆積量が比較的小さいとき( $20\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ より小さい程度の時)、気泡流の結果と似た傾向を示しているが、汚泥堆積量がそれ以上大きいところで、汚泥堆積量に比較して非常にろ過抵抗の小さい領域(領域Aとして示した)がある。即ち、汚泥堆積が殆どろ過抵抗の増加に寄与していない領域である。

ろ過終了時に堆積した汚泥を観察したところ、領域Aでは軽く水洗いしただけで剥離をするような非常にもろい堆積汚泥が形成されていた。これは気泡流の時には観察されなかったことであり、非常にもろい汚泥が形成される条件が存在することが分かる。図-3.2.8にいくつかの堆積汚泥を取り出しその含水率を測定し、含水率と比抵抗(ろ過後汚泥堆積層抵抗/ろ過後汚泥堆積量)との関係を示した。含水率が高くなるにつれて比抵抗が減少する傾向を持っているのがわかる。

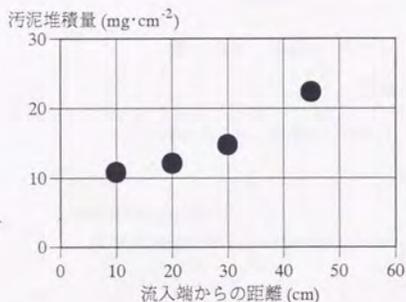
領域Aの汚泥は含水率の高い、すなわちもろい汚泥が生じることで、比抵抗の小さな堆積層が形成されたと考えられる。

一方含水率0.7という、非常に含水率の小さい堆積層も生じている。実際、しばしば汚泥堆積量の測

定の際に、汚泥を剥離させるのが困難なほどに含水率の低い汚泥が生じたことも多かった。後述する中空系膜を用いたろ過を含め他の条件ではこれほど含水率の低い汚泥が発生したことはなく、平膜懸濁液流の場合の特徴的な現象であった。

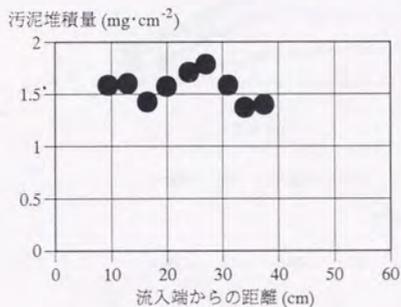
図-3.2.9にろ過開始後20時間目の汚泥堆積量を平衡汚泥堆積量と見なし、その平衡汚泥堆積量を示す。

流速が早くなるにつれて平衡汚泥堆積量は減少する傾向が見られるが、MLSS2-3 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ の場合特に、同じクロスフロー流速でも膜間距離0.5cmと1.0cmとでは平衡汚泥堆積量はかなり異なる。膜間距離0.5cmの場合、クロスフロー流速1 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ より小さい領域では、かなり高い値(20-30 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ )で一定し



(MLSS:0.8-1.2 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、膜間距離1.0cm、クロスフロー流速0.27 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )

図-3.2.3 単相流における汚泥堆積量分布の例

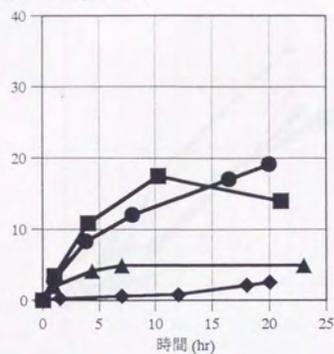


(MLSS0.8-1.2 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、膜間距離1.0cm、曝気線速度0.007 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )

図-3.2.4 気泡流における汚泥堆積量分布の例

a) 膜間距離0.5cm

汚泥堆積量 ( $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ )



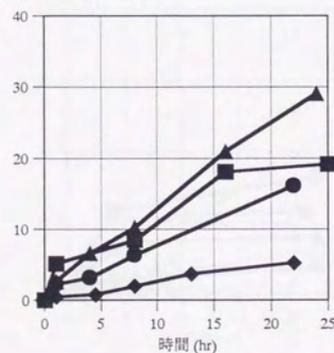
■ 0.39 ▲ 0.99

(数字はクロスフロー流速  $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ )

● 0.69 ◆ 1.33

b) 膜間距離1.0cm

汚泥堆積量 ( $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ )



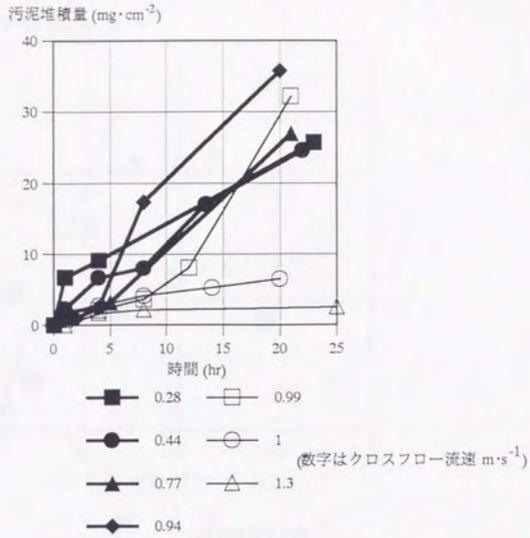
■ 0.21 ▲ 0.52

(数字はクロスフロー流速  $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ )

● 0.39 ◆ 0.71

図-3.2.5 汚泥堆積過程 ( $\text{MLSS}: 0.8\text{--}1.2\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ )

a) 膜間距離0.5cm



b) 膜間距離1.0cm

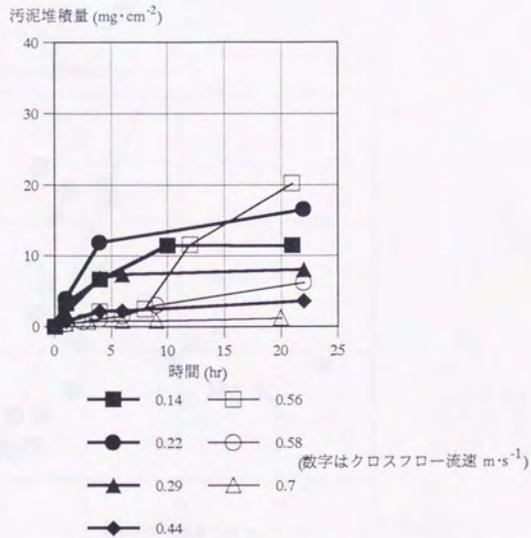
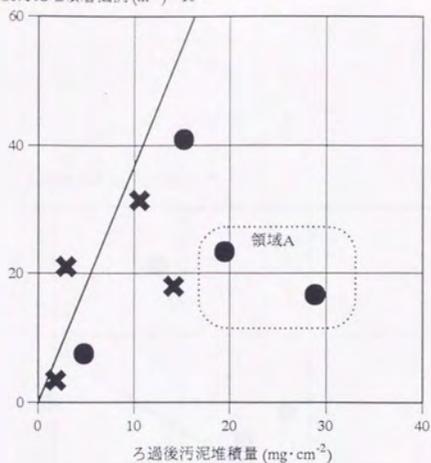


図-3.2.6 汚泥堆積過程 ( $\text{MLSS}: 2 \sim 3 \text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ )

a) MLSS:  $0.8 \sim 1.2 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

ろ過後汚泥堆積層抵抗 ( $\text{m}^{-1}$ )  $\times 10^{12}$

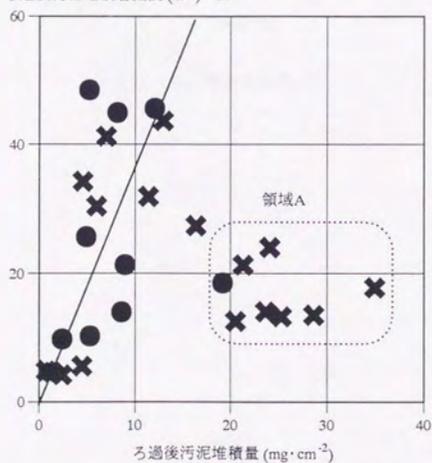


× 0.5 (数字は膜間距離 (cm))

● 1

b) MLSS:  $2 \sim 3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

ろ過後汚泥堆積層抵抗 ( $\text{m}^{-1}$ )  $\times 10^{12}$



× 0.5

● 1

図-3.2.7 ろ過後汚泥堆積量とろ過後汚泥堆積層抵抗

比抵抗 ( $\text{m}^{-1}/\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ )  $\times 10^{12}$

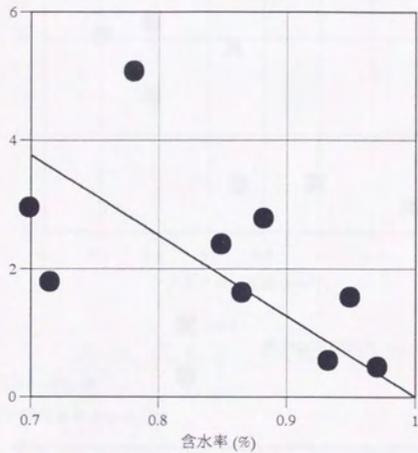
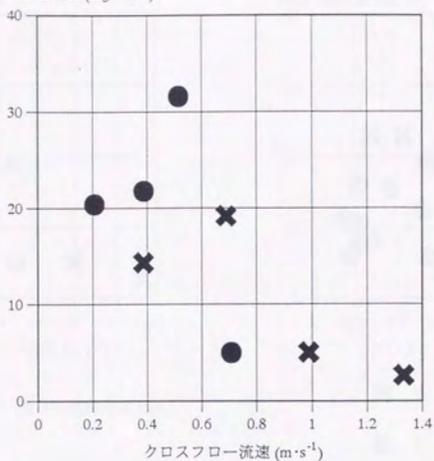


図-3.2.8 含水率と比抵抗

a) MLSS:  $0.8 \sim 1.2 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

平衡汚泥堆積量 ( $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ )

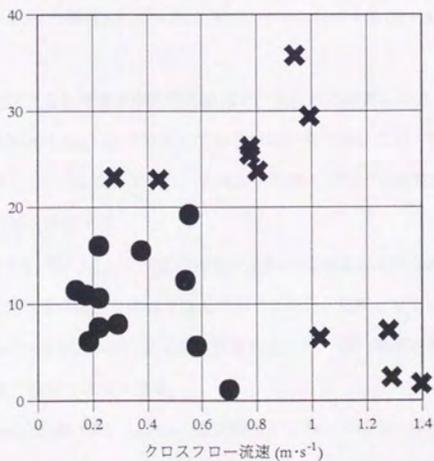


✕ 0.5  
(数字は膜間距離 (cm))

● 1

b) MLSS:  $2 \sim 3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

平衡汚泥堆積量 ( $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ )

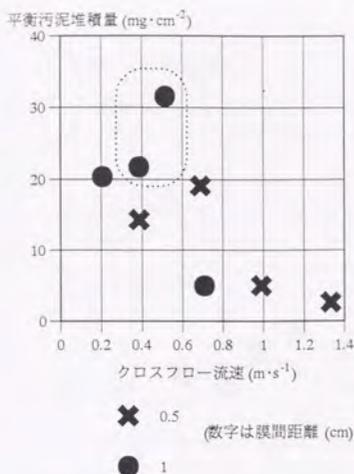


✕ 0.5  
(数字は膜間距離 (cm))

● 1

図-3.2.9 クロスフロー流速と平衡汚泥堆積量

a)  $MLSS: 0.8-1.2 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$



b)  $MLSS: 2-3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

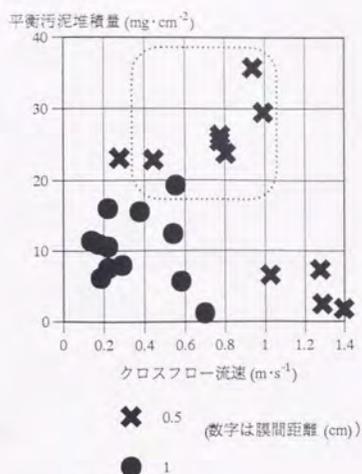


図-3.2.10 緩い汚泥堆積が生じたら過  
(点線で囲んだ領域が緩い汚泥堆積が生じたら過)

ているように見える。図-3.2.7の領域Aに含まれる各プロットに対応する図-3.2.9のプロットを、図-3.2.10に示した。

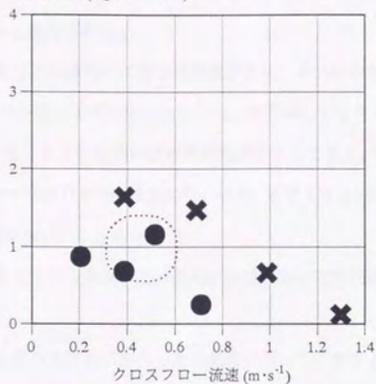
$MLSS: 2-3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  の場合を見ると流速が中程度の領域で、比抵抗の非常に小さい状態 (領域A) が生じているのがわかる。 $MLSS: 0.8-1.2 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  では生じている領域がやや異なるが、流速が中程度の領域で生じているという点は共通している。クロスフロー流速が中程度の領域で比抵抗の小さい、緩い堆積が生じている原因に関する考察は後述する。

次に汚泥堆積速度を調べる。図-3.2.11に汚泥堆積量が直線的に増加している時期の汚泥堆積速度を示す。また緩い堆積を生じたら過の場合を点線で囲んで示してある。傾向としては平衡汚泥堆積量と同様である。 $MLSS: 2-3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  の場合の方が汚泥堆積速度は大きい。緩い堆積が生じたら過を除いて比較すると、その差はそれほど顕著ではなくなる。

汚泥堆積開始時間についても調べた。しかし、本実験条件においては2つほどの例外を除いて、ろ過を開始してから、汚泥堆積が始まるまでのラグは殆ど見出されなかった。本実験条件においてはろ過初期から汚泥堆積が生じていたといえる。

a) MLSS:  $0.8 \sim 1.2 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

汚泥堆積速度 ( $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{hr}^{-1}$ )



b) MLSS:  $2 \sim 3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

汚泥堆積速度 ( $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{hr}^{-1}$ )

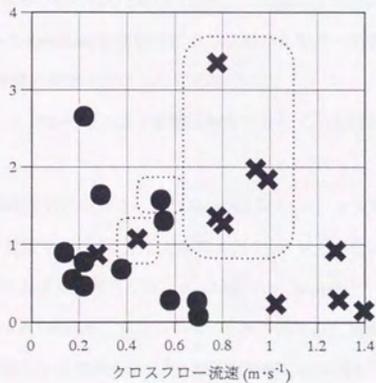


図-3.2.11 汚泥堆積速度

(点線で囲まれた領域のプロットは緩い汚泥堆積が生じたる過)

### 3.2.3 汚泥堆積過程に影響を与える水理学的な因子

#### (1) 異なる性状の汚泥が堆積する原因

まず緩い堆積が生じている原因に関して考察する。緩い堆積が生じるのは膜面近傍の流動状況が異なるためであると考えられる。

緩い堆積が生じている時には汚泥堆積量が多い。それは膜面のせん断力が小さかったためとも推測できる。しかしなぜ緩い堆積が生じたかという点に関してはせん断力では説明できない。クロスフロー流速が非常に小さいときにも同程度の汚泥堆積を生じており、その時には生じた汚泥の圧密現象が中程度のクロスフロー流速下では何故生じないのか、と考えると、緩い堆積が生じる原因をせん断力のみを求めることは出来ない。

緩い堆積が生じている条件下で、何らかの特殊な水理学的状況が生じている可能性があるのかについて検討する。

まず流れが乱流から層流に変化した可能性に関して考察する。

$Re = U \cdot (2D) / \nu$  ( $U$ : クロスフロー流速 ( $m \cdot s^{-1}$ ),  $D$ : 膜間距離 [ $m$ ] ( $2D$ : 相当直径),  $\nu$ : 動粘性係数 [ $m^2 \cdot s^{-1}$ ]) として  $Re = 2 \times 10^4$  になるクロスフロー流速を計算すると膜間距離  $1.0cm$  の場合は  $0.1m \cdot s^{-1}$ 、膜間距離  $0.5cm$  の場合は  $0.2m \cdot s^{-1}$  であり、比抵抗の小さな汚泥堆積の生じたクロスフロー流速より小さい。従って Reynolds 数の低下による乱流から層流への遷移ではないと考えられる。

次に層流境界層の発達状況について考察する。

測定区間は、入口からそれほど距離は離れておらず、入口から生じた層流境界層が影響を与えている可能性がある。

入口からの距離  $x$  を代表長さとした Reynolds 数  $Re_x = U \cdot x / \nu$  を取ると、単一平板の場合、境界層の遷移は  $Re_x = 3 \times 10^5$  程度で生じる。主流方向の流速  $0.8m \cdot s^{-1}$  の場合、遷移の生じる長さは  $x = 37.5cm$ 、約  $40cm$  である。この点での境界層厚さ  $\delta$  は、 $\delta = 5.48 \cdot (\nu \cdot x / U)^{1/2}$  とすると、 $\delta = 3.75mm$ 、約  $4mm$  である。図 3.2.12 に  $Re_x = 3 \times 10^5$  の点、すなわち単一平板の場合の、層流境界層から遷移状態に至る点と、本実験における測定部位との関係を示した。流路は実際には両面を平板に囲まれており、単一平板とは異なる水理学的状況下にある筈である。特に上で計算された境界層厚さと膜間距離と同程度であり、境界層厚さが膜間距離のオーダーと近くなるに応じて両面の影響が生じるため単一の平板の水理学的状況とは異なる状況が生じていると考えられる。

それでも遷移が存在すると思われる領域と、緩い堆積が生じている領域が比較的近いということは遷移状態が存在し、そのなかで生じる、ある特殊な水理学的状況が緩い堆積を生じさせた可能性は十

分ある。

また、その遷移領域の発生が不安定なため、装置の設置の僅かな違いによって状況が大きく変わるために、同程度の流速でも堆積状況が異なったりするのではないだろうか。(例えば図-3.2.9b)、MLSS2-3kg・m<sup>3</sup>の場合における膜間距離0.5cm、クロスフロー流速1.0m・s<sup>-1</sup>近傍、或いはMLSS0.8-1.2kg・m<sup>3</sup>の場合とMLSS2-3kg・m<sup>3</sup>の場合の比較)

しかし実際に単一平板の境界層-遷移層と同様の状況が本実験条件でも生じたのか、また、遷移状態が存在したとして、なぜその遷移状態が異なる堆積層を生じさせるかという点は依然不明であり、今後の検討課題である。

## (2) 壁面のせん断力と平衡汚泥堆積量

壁面のせん断力については、まず、通常の乱流のせん断力から推定する。

$$\tau_w = \frac{D}{2} \frac{\Delta P}{\Delta x} \quad (3.14)$$

D: 膜間距離 [m]、 $\Delta P$ : 流路中の圧力損失 [Pa]、 $\Delta x$ : 流路長 [m] である。

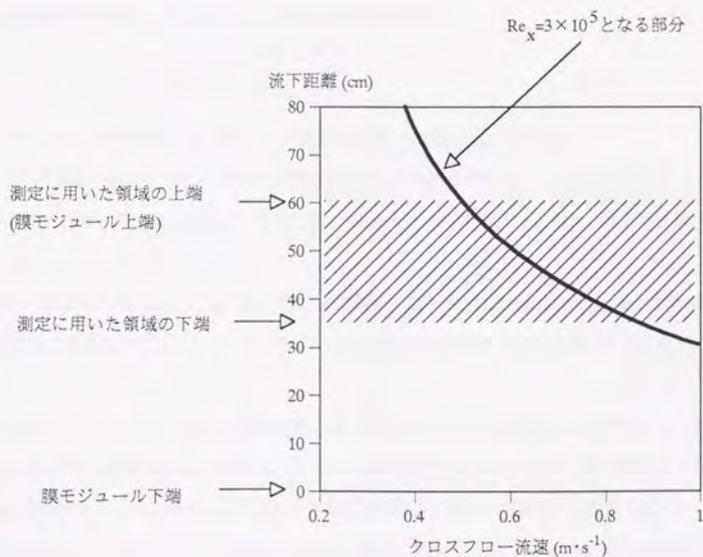


図-3.2.12 測定部位と境界層の遷移が始まる長さ

圧力損失は以下のように表される。

$$\frac{\Delta P}{\Delta x} = f \frac{1}{2D} \frac{V^2}{2g} \quad (3.15)$$

ここに  $f$ : 摩擦損失係数 [-],  $g$ : 重力加速度 [ $m \cdot s^{-2}$ ],  $U$ : クロスフロー流速 [ $m \cdot s^{-1}$ ] である。

摩擦損失係数は以下の Blasius 式を用いて算出する。

$$f = 0.316 Re^{-1/4} \quad (3.16)$$

ここに  $Re$ : Reynolds 数 ( $= U \cdot (2D) / \nu$ ) [-] である。

式 (3.14) ~ (3.16) から膜面のせん断力を求めることが出来る。

MLSS2-3 $kg \cdot m^{-3}$  の場合の結果を例として図-3.2.13 に示した。曝気流の傾向と比較するために同じ MLSS の曝気流の場合 (図-3.8) の結果をあわせて示した。なお、緩い汚泥堆積を生じた場合の結果は省いて示してある。

同じせん断力でも懸濁液流の場合と曝気流の場合とでは汚泥堆積量が大きく異なる。懸濁液流の場合の方が同じせん断力であっても程度汚泥堆積量が多い。上記の計算方法では両方のケースを統一的に解釈することは出来ない。

そこで次に懸濁液流の場合膜面には層流境界層が形成されているとして壁面のせん断力を計算した。

層流境界層の壁面のせん断力は、以下のように表される。

$$\tau_w = 0.730 \frac{\rho U^2}{2} \sqrt{\frac{\nu}{Ux}} \quad (3.17)$$

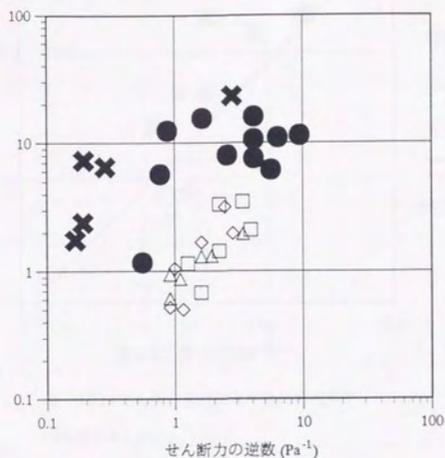
ただし  $U$ : 主流の流速 [ $m \cdot s^{-1}$ ],  $x$ : 平膜流入端からの距離 [ $m$ ] である。

汚泥堆積量の測定点の流入端からの距離は 35-60cm の範囲であった。式 (3.17) における  $x$  の計算値としてはる過終了時の主な測定点であった値、 $x=40cm$  として計算する。また、 $U$  としては平均流速を用いた。

図-3.2.14 に MLSS0.8-1.2 $kg \cdot m^{-3}$  の場合の結果を、図-3.2.15 に MLSS2-3 $kg \cdot m^{-3}$  の場合の結果を、同じ濃度の曝気流の結果とともに両対数軸に示す。緩い汚泥堆積を生じた場合の結果は省いて示してある。

MLSS0.8-1.2 $kg \cdot m^{-3}$  の場合は懸濁液流と曝気流とでやはずれが見られる。ただしこのずれは図-3.2.13 と比較すれば僅かなものである。図-3.2.15 は懸濁液流と曝気流との一致の程度はよい。層流境界層が形成されていると考えると懸濁液流と曝気流の両者の場合の平衡汚泥堆積量を統一的に説明することが出来ることがわかる。せん断力と堆積量の関係について、式 (3.10) を用いて実験値との当てはめをおこなうと、両者とも  $Ce=0.55 (1/\tau)$  となった。

平衡汚泥堆積量 ( $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ )



✕ 0.5(懸濁液流)

● 1(懸濁液流)

△ 1.5(曝気流) 数字は膜間距離(cm)

◇ 1(曝気流)

□ 0.5(曝気流)

図-3.2.13 膜面のせん断力の逆数と平衡汚泥堆積量

(MLSS:  $2-3\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ )

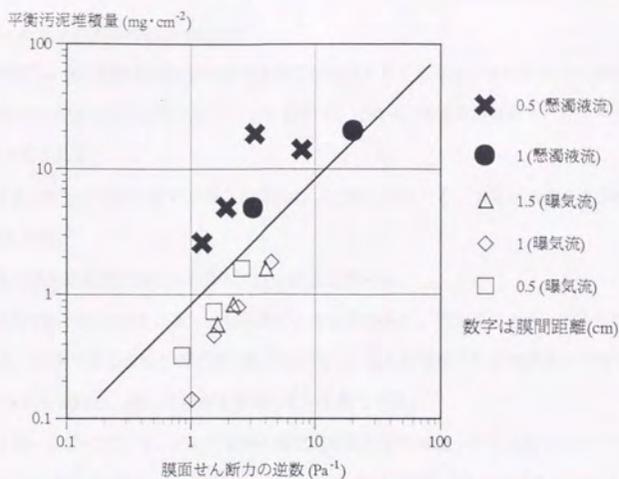


図-3.2.14 せん断力の逆数と平衡汚泥堆積量  
(MLSS:0.8~1.2kg·m<sup>3</sup>)

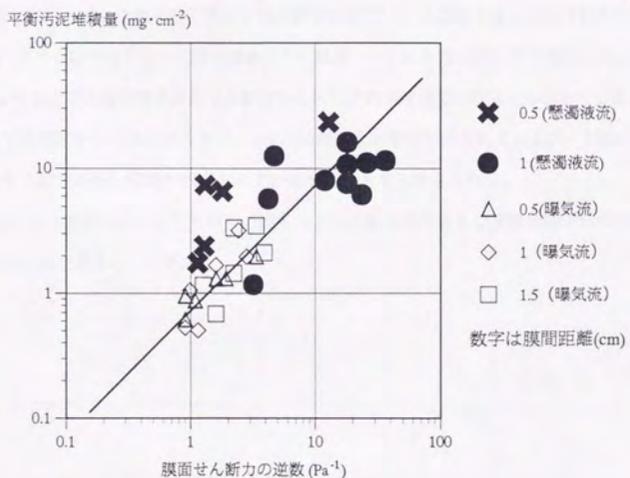


図-3.2.15 せん断力の逆数と平衡汚泥堆積量  
(MLSS:2~3kg·m<sup>3</sup>)

### (3) 膜面のせん断力と汚泥堆積量分布の関係

(1), (2) の考察によって本実験条件では層流境界層が形成されているのであろうという考察がなされた。すると、層流境界層は流下距離に応じた分布を持つことから、汚泥堆積量もそれに応じた分布を形成することが予想される。

層流境界層のせん断力分布は平板先端からの距離の  $-1/2$  乗に比例する。すると次の 2 点が汚泥堆積量に関して予想される。

①汚泥堆積量の分布は平膜先端からの距離の  $1/2$  乗に比例する。

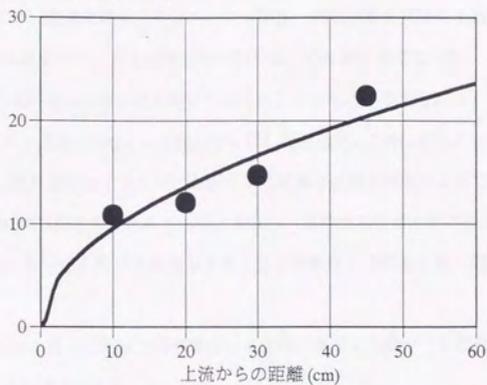
②中程度の流速で緩い堆積が生じるのは遷移層によるものである。即ちそのような堆積が生じているときは、流れの上流部では①の形の汚泥堆積量分布が生じ、ある程度流下した地点より下流では①から予測される分布から逸脱し、緩い堆積層を形成している筈である。

①に関しては図-3.2.3に対して、せん断力から推定される汚泥堆積量分布と比較することで確認することが出来る。せん断力分布は、クロスフローとせん断力分布との関係式である式 (3.17) より求め、せん断力と堆積量との関係は図-3.2.14から定めた。図-3.2.16にその結果を示した。曲線との適合性はよく、汚泥堆積量はせん断力によって決まる分布を形成していると考えられる。

②の検討に関しては、緩い堆積が生じうる過実験をおこない、ろ過終了後に汚泥堆積量分布を調べた。図-3.2.17にその結果を示す。汚泥堆積量の分布は図-3.2.16と同じやり方で導出した。上流からの距離が 20cm 程度までは層流境界層のせん断力から推定される堆積量の曲線と適合しているが、それ以上のところでは曲線からの逸脱が大きい。上流では層流境界層が形成されているが、下流になると遷移状態に入りせん断力が弱い領域が形成されているためであると考えられる。

これらのことから膜面にはクロスフローの流下とともに層流境界層及び遷移領域が形成されていると考えることは妥当であるといえる。

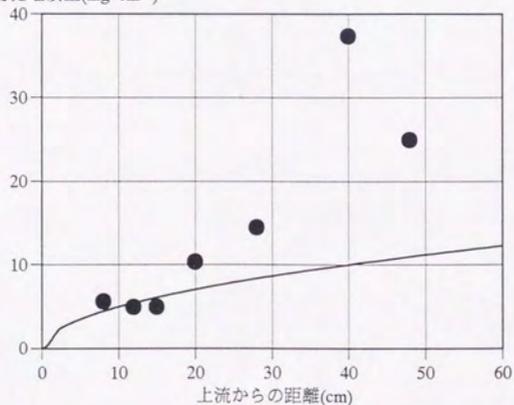
汚泥堆積量 ( $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ )



(MLSS:  $0.8\sim 1.2\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、膜間距離  $1.0\text{cm}$ 、クロスフロー流速  $0.27\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )

図-3.2.16 せん断力の分布からの推定

汚泥堆積量 ( $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-1}$ )



(MLSS:  $0.8\sim 1.2\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、膜間距離  $1.0\text{cm}$ 、クロスフロー流速  $0.85\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )

図-3.2.17 汚泥堆積量の分布

### 3.2.4 本節のまとめ

懸濁液流条件下で、懸濁液濃度、クロスフロー流速、膜間距離を変えてる過実験をおこないそれに基づき水理的な考察を行い、また曝気流の実験結果との比較をおこなった。

本実験条件下では膜面には層流境界層が形成されているものと考えられる。また含水率の高い、緩い堆積がクロスフロー流速 $0.5\sim 1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ の範囲でしばしば生じた。これは流れの状態が層流境界層から遷移状態へと遷移し、それが原因でせん断力の低下する領域が形成されたため生じたのではないかと推測された。また、層流境界層が形成されているとみなし、懸濁液流のせん断力を計算することによって、懸濁液流、曝気流ともにせん断力を指標とすることで平衡汚泥堆積量を統一的に説明できることがわかった。

またクロスフローの流下に沿った汚泥堆積量の分布に基づく考察からも膜面には層流境界層一遷移層が形成されていると考えられた。

平膜を用いたクロスフローろ過では、層流境界層の発達によって膜面に汚泥堆積量の分布が生じる。また、下流部に行くに従い層流境界層から遷移層へと遷移し、その遷移層内に非常に緩い汚泥堆積を生じさせやすい水理的状況が生じ、そのため下流部には緩い堆積が生じる可能性があるといえる。

### 3.3. 平膜の運転評価の試み

前節までの解析で、平膜を用いた曝気流中のろ過および懸濁液クロスフロー流中のろ過において膜面近傍の流動状況、MLSSが汚泥堆積過程に及ぼす影響について解析した。

流動状況と汚泥堆積量との関係を知ることができれば、どのようなモジュール形状、ろ過形態にすれば、低動力、コンパクトかつ汚泥堆積の生じにくい、効率の良い運転を達成することができるかについて考察することができる。

本節では曝気流中でのろ過、懸濁液クロスフロー流中のろ過および間欠曝気条件下で、一定の膜間差圧どのようなモジュール形態、ろ過形態がより多くの透過水を得られるのかという運転効率に関する考察をおこなった。

#### 3.3.1 ろ過効率の評価方法

##### (1) 曝気流中のろ過

曝気流中のろ過に関しては、その評価についての考え方は単純である。本研究の範囲であれば平衡汚泥堆積量の膜間距離依存性はなく、一定の曝気量、膜間差圧条件下では膜間距離5~15mmの範囲で膜間距離をより狭くすることで、運転効率を上げることができる。

##### (2) 懸濁液流クロスフローろ過

懸濁液流のろ過について考察する。

懸濁液流の場合は、クロスフロー流の流下方向に沿って、境界層の発達のために汚泥堆積量が増加することが分かった。このことは、流下方向に長い平膜を用いてろ過をするよりも、平膜を分割し、分割したギャップの部分で乱れを発生させることによって実質的な膜の長さを短くしてろ過をおこなう方が有利なるろ過をおこなうことができる可能性がある(図-3.3.1)ということの意味している。そこで平膜を適切に分割することによってどの程度効率を上げることが出来るのかに関する評価を、以下のように設定された状況についておこなう。

図-3.3.2に設定したリアクターおよび膜モジュールを示した。平膜に対してはリアクター下部に設定した攪拌装置によってクロスフロー流が与えられる。ろ過は連続的かつ長期間おこない、定常運転をおこなうものとする。膜間距離は1cmで一定であるとする。平膜を設定することの出来る深さL、幅Dは一定とする。クロスフロー流に対して横断的に幅aのギャップを設けることによって、セグメント長

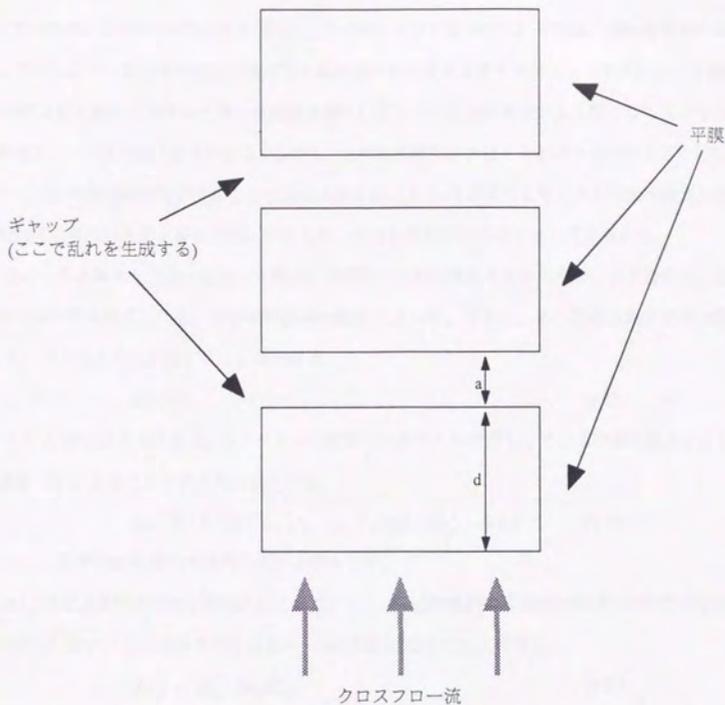


図-3.3.1 平膜を用いたクロスフロー流における汚泥堆積を抑制しうるモジュールの検討

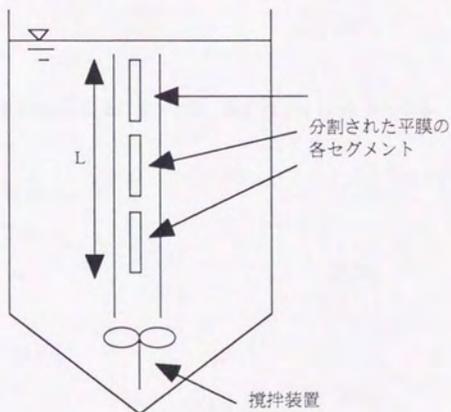


図-3.3.2 単相クロスフローろ過における分割された平膜モジュールの概念図

さ  $d$  ずつ均等に  $n$  分割し (図-3.3.1 参照)、そのギャップの部分で乱れを生成し汚泥堆積量の抑制を図る。それにより一定の膜間差圧の条件下で総透過水量を最大にするモジュール形態について調べる。

分割された膜のセグメントは、分割数を増やし各セグメントの長さがより短くなることで汚泥堆積量が減少し、フラックスは上昇する。しかし、分割数を増加させ過ぎるとギャップの長さの総和の増加によって有効膜面積が減少することで透過水量が減少する。そのように考えると汚泥堆積量を抑制しつつ有効膜面積のロスを必要最小限に押さえる、適切な分割数が存在すると考えられる。

達成しうる最大の透過水量は、分割なしの膜で、しかも汚泥堆積が全く生じずる過抵抗の上昇が生じない条件下で達成される。その時の透過水量を  $V_0$  とする。すると、ある透過水量  $V$  を得た際の効率  $Eff$  を、以下のように定義することが出来る。

$$Eff = V/V_0 \quad (3.18)$$

すると  $Eff$  はフラックス ( $J$ )、リアクターの総運転時間のうちろ過をしている時間の割合 ( $r$ )、モジュール面積 ( $S$ ) によって以下のように表される。

$$Eff = (J \cdot S \cdot r) / (J_0 \cdot S_0 \cdot r_0) = (J/J_0) \cdot (r/r_0) \cdot (S/S_0) \quad (3.19)$$

ただし添字 0 は  $V_0$  を得た条件における値を示す。

$(J/J_0)$  は定圧条件下ではろ過抵抗によって決まる。ろ過総抵抗は膜自体の抵抗と汚泥堆積層抵抗との和に等しいものとし、膜自体の抵抗を  $R_m$ 、汚泥堆積層抵抗を  $R_s$  とすると、

$$(J/J_0) = \{R_m / (R_m + R_s)\} \quad (3.20)$$

となる。

$r_0$  は 1 であり、また  $r$  も、評価対象が連続ろ過であるので、 $r=1$  となる。

$$r_0 = r = 1 \quad (3.21)$$

となる。

$(S/S_0)$  に関しては、まず  $S_0$  は、 $S_0 = 2LD$  となる。また  $S$  は、 $S = 2 \{L \cdot (n-1) a\} D$  となる。

これより、

$$(S/S_0) = \{L \cdot (n-1) a\} / L \quad (3.22)$$

となる。なお、セグメント長さ  $d$  は、

$$d = \{L \cdot (n-1) a\} / n \quad (3.23)$$

となる。

これから、 $(S/S_0)$  を  $a, d$  を用いて表すと、

$$(S/S_0) = d / (a+d) \quad (3.24)$$

と表される。

これらから、式 (3.20) ~ (3.24) を式 (3.19) に代入して Eff を書き替えると、

$$\text{Eff} = \{R_m / (R_m + R_c)\} \cdot d / (a+d) \quad (3.25)$$

となる。

$R_c$  について考える。クロスフロー流速  $U$  [m · s<sup>-1</sup>] および  $d$  [m] によってせん断力が決まり、せん断力から堆積量が求められる。堆積量と  $R_c$  との間には線形の関係があり、その関係から  $R_c$  を  $U$  および  $d$  の関数として定めることが出来る。

クロスフロー流速とせん断力の関係は、式 (3.17) で定められる。せん断力と堆積量との関係は図-3.2.13、図-3.2.14 に基づき、一般に以下の関係を持つものとする。

$$C = k_1 / \tau \quad (3.26)$$

汚泥堆積量は、流下方向に分布を持つので、ここではその平均値を汚泥堆積量の代表値として取る。すると式 (3.16) , (3.27) より、

$$C_{ave} = \frac{1}{d} \int_0^d C dy = \frac{1}{d} \int_0^d \frac{k_1}{\tau} dy = \frac{1}{d} \int_0^d \frac{k_1}{0.730 \frac{\rho U^2}{2} \sqrt{\frac{\nu}{Uy}}} dy = 0.45 k_1 U^{-3/2} d^{1/2} \quad (3.27)$$

ただし、 $\rho = 1.0 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $\nu = 1.0 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  とする。

また堆積量と汚泥堆積層抵抗との関係は、

$$R_c = k_2 \cdot C \quad (3.28)$$

となる。これより、

$$R_c = k_2 \cdot C_{ave} = 0.45 k_1 \cdot k_2 U^{-3/2} d^{1/2} \quad (3.29)$$

これを式 (3.25) に代入して、

$$\text{Eff} = \{R_m / (R_m + 0.45 k_1 \cdot k_2 U^{-3/2} d^{1/2})\} \cdot d / (a+d) \quad (3.30)$$

となる。

ここで  $R_m$ ,  $U$ ,  $k_1$ ,  $k_2$  は膜の種類、攪拌強度、汚泥の性状が決まれば決まる定数である。また、ギャップの幅  $a$  は、十分な乱れを与えることさえ可能であれば、短ければ短い程よい。すると  $a$  は、十分な乱れを与えることの可能な最小の値  $a_{min}$  として与えられる定数であるといえる。

これらの与えられた条件下で最大の Eff は、 $\frac{\partial}{\partial d} \text{Eff} = 0$  を満たす  $d$  によって与えられる。

これを  $a$  について解いて、

$$a = \frac{0.45 k_1 k_2 \sqrt{d}}{2R_m + 0.45 k_1 k_2 \sqrt{d}} \quad (3.31)$$

これにより、 $a$  と  $d$  との関係が定まり、ある  $a_{min}$  に対応する最適なセグメント長さ  $d_{opt}$  が定まることに

なる。

$$d_{opt} = d(a_{min}, U, k_1, k_2, R_m) \quad (3.32)$$

この関係を満たすセグメント長さ  $d$  をもつモジュールを用いることが、あるろ過条件、活性汚泥の培養条件を与えられたときの、もっとも高い効率を与えるモジュールであるということになる。

具体的な  $k_1, k_2, U$  を代入した場合の、 $a, d$  と  $Eff$  の関係の例を図-3.3.3 に示した。

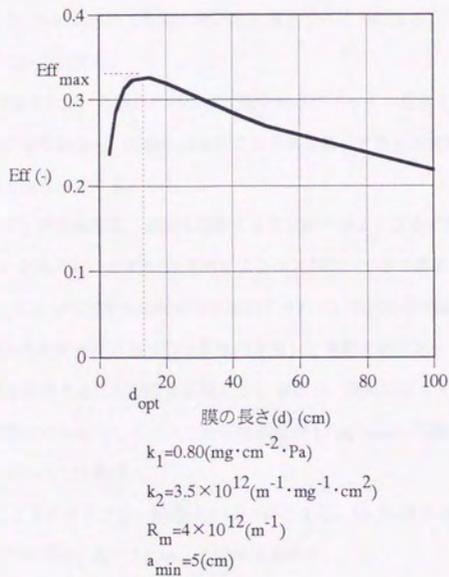


図-3.3.3

単相クロスフロー流の場合の膜セグメントの長さ  
と  $Eff$  との関係の例

### 3.3.2 間欠曝気運転時の運転評価の例

間欠曝気運転をおこなうリアクターを用いたろ過においては、曝気時のみにろ過をおこなうか、連続ろ過をおこなうかの選択がありうる。連続ろ過をおこなうと、ろ過時間を増やすことが出来るもの、無曝気時、攪拌によるクロスフローのみを与えている時間帯にもろ過をおこなうことになるので著しく汚泥堆積量が増加し、ろ過の効率を損なうと考えられる。しかし、膜をセグメントに分けることにより汚泥堆積量を抑制し、懸濁液クロスフロー流中でも比較的ロスを少なくすることにより、連続ろ過のメリットを活かしろ過効率を維持することが可能であると考えられる。

曝気時のみろ過をおこなうとすれば、曝気時においては、汚泥堆積量の分布は一様なので膜をセグメントに分ける必要はなく、一枚の連続した膜を用いてろ過をすることになる。そのときろ過の効率は、リアクターの運転条件のみで決まる。

連続ろ過をおこなうとすれば、ろ過の効率は運転条件およびギャップ長さ  $a_{min}$  で決まる。すなわち、曝気時のみにろ過をおこなう場合と、連続ろ過をおこなう場合と、どちらが有利になるかは、 $a_{min}$  をどの程度短く取りうるかで決まってくる。

$a_{min}$  を十分短く取ることが出来れば、連続ろ過をする方が効率がよくなる可能性がある。しかし  $a_{min}$  をあまり小さく取ることが出来ないとすれば、それによるロスが効いてきて連続ろ過の効率は低下する。

そこで、とりうる  $a_{min}$  によってどちらの方式のろ過がすぐれているのかの判断のやり方について、本研究の実験によって得られたデータに基づいた具体例を通して考察をおこなってみたい。

膜間距離 1.0cm、膜を設定することの出来る深さは L、幅は D、膜抵抗は  $4 \times 10^{12} \text{m}^{-1}$  とする。

曝気時の、曝気線速度は  $0.04 \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、そのとき汚泥堆積量が  $1.2 \text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ 、汚泥堆積層抵抗が  $5 \times 10^{12} \text{m}^{-1}$  とする (図-3.1.17、図-3.1.18 参照)。

無曝気時の、攪拌によるクロスフロー流速は  $0.5 \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$  とする。MLSS は  $2\text{--}3 \text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$  とする。このときせん断力と堆積量との関係は、図-3.2.14 より回帰式を求め、

$$C=0.55/\tau \quad (C: \text{堆積量} (\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2})) \quad (3.33)$$

すなわち式 (3.26) の  $k_t=0.55$  となる。また堆積量と汚泥堆積層抵抗との関係は、図-3.1.17 より回帰式を求め、

$$R_t=3.5 \times C \times 10^{12} \quad (3.34)$$

すなわち式 (3.28) の  $k_s=3.5 \times 10^{12}$  となる。式 (3.33) よりクロスフロー流速と汚泥堆積量との関係は、

$$R_t=7.64 \times U^{-1.5} \times (d \cdot 2/3)^{0.5} \times 10^{12} \quad (U: \text{クロスフロー流速} (\text{m} \cdot \text{s}^{-1})) \quad (3.35)$$

また、(曝気時間/総運転時間) は  $r$  とする。

すると、曝気時のみろ過の場合は、

$$\text{Eff}_{\text{bubble flow}} = [(4 \times 10^{12}) / \{(4 \times 10^{12}) + (5 \times 10^{12})\}] \times r \quad (3.36)$$

となる。

連続ろ過の場合は、せん断力が曝気時と無曝気時との間で変動することにより汚泥堆積量が変動することになる。ここでは、曝気-無曝気のサイクルは堆積汚泥の剥離が有意には生じない程度に速いものとする。すると一旦汚泥堆積が生じたら実質的には剥離は生じないものと見なしうる。すると連続ろ過の場合の汚泥堆積量は無曝気時に生じた汚泥堆積量に等しいと見なしうる。

曝気時と無曝気時の、両者の汚泥堆積量が等しいとき、すなわち両者の汚泥堆積層抵抗が等しいときの  $d$  は、 $7.64 \times U^{-1.5} \times (d \cdot 2/3)^{0.5} \times 10^{12} = 5 \times 10^{12}$  を解いて、

$d=12\text{cm}$ 、また、それに対応する  $a_{\text{min}}$  は、式 (3.31) より  $a_{\text{min}}=5\text{cm}$  となる。

$a_{\text{min}}$  が  $5\text{cm}$  より小さいときは曝気流条件下で生じる汚泥堆積層抵抗の方が値が大きくなり、 $R_c$  は曝気流下での汚泥堆積量をとることになる。しかし、曝気流条件下における汚泥堆積層抵抗より懸濁液流条件下における汚泥堆積層抵抗の方が小さいという状況を想定することはやや現実的ではない。ここでは簡単のために  $a_{\text{min}} > 5\text{cm}$  の場合のみを考えることにする。

これらの値を式 (3.30) に代入し、連続ろ過の場合の  $\text{Eff}_{\text{max}}$  は、

$$\text{Eff}_{\text{max}} = \frac{4 \times 10^{12}}{(4 \times 10^{12}) + (7.64 \times U^{-1.5} \times (\frac{2}{3} d_{\text{opt}}(a_{\text{min}}))^{0.5} \times 10^{12})} \times 1 \times \frac{d_{\text{opt}}(a_{\text{min}})}{d_{\text{opt}}(a_{\text{min}}) + a_{\text{min}}} \quad (3.37)$$

となる。

連続ろ過の場合の  $a_{\text{min}}$  と  $\text{Eff}_{\text{max}}$  との関係を図-3.3.4に示した。

曝気時のみろ過と連続ろ過との比較をおこなう。曝気時のみろ過がよいのか、連続ろ過の方がよいのかは、 $a_{\text{min}}$  をどの程度小さな値に取りうるのかによって決まる。

そこで、総運転時間のうち曝気時間が占める比率 ( $=r$ ) がある値に定まったとき、 $a_{\text{min}}$  がどのような値以下のときに連続ろ過の方が有利になりうるのかの検討をおこなう。

曝気時のみろ過の方が良いのか、連続ろ過の方が良いのかは、曝気時のみろ過の場合の  $\text{Eff}_{\text{bubble flow}}$  (式 (3.36)) と連続ろ過の場合の  $\text{Eff}_{\text{max}}$  (式 (3.37)) との比較によってなされる。 $\text{Eff}_{\text{bubble flow}}$  のほうが  $\text{Eff}_{\text{max}}$  より大きければ曝気時のみろ過でろ過をおこなうべきであるし、 $\text{Eff}_{\text{max}}$  のほうが  $\text{Eff}_{\text{bubble flow}}$  より大きければ連続ろ過をおこなうことができる。

$a_{\text{min}}$ 、 $r$  と、両者の比較した結果を図-3.3.5に示した。

この図を見ると、例えば  $r$  が  $0.5$  のときは  $a_{\text{min}}$  は約  $15\text{cm}$  程度である。これはギャップ幅を  $15\text{cm}$  程度に抑えることが可能であれば、無曝気時間が全体のプロセスの半分以上の時間をしめる様な条件でリア

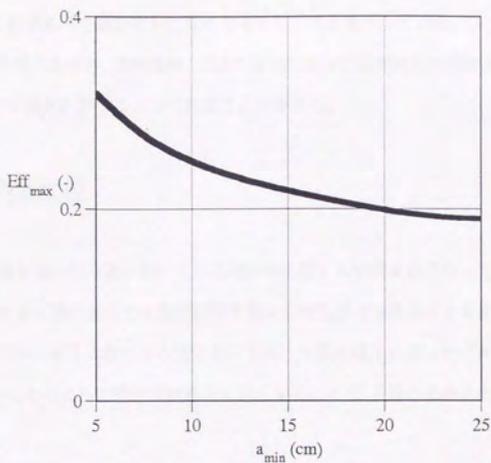
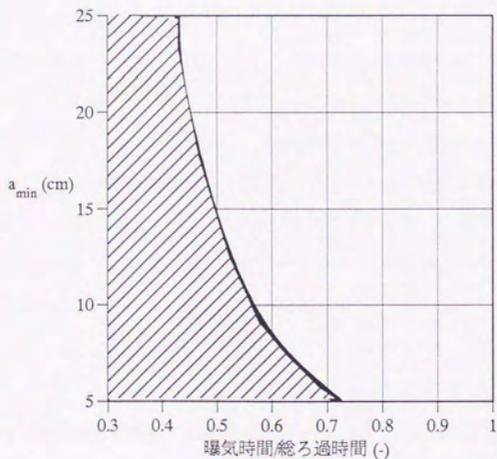


図-3.3.4  $a_{\min}$  と  $Eff_{\max}$  との関係



 : 連続ろ過が有利になる領域

図-3.3.5 連続ろ過と曝気時ろ過との比較

クターを動かすときは連続ろ過が有利になりうるということを示している。

このように間欠曝気の場合、運転条件、汚泥の性状を知ることが出来れば間欠運転が有利なのか、連続運転が有利なのかを判断することが可能なことが分かる。

### 3.3.3 本節のまとめ

本節では、平膜を用いたろ過において、ろ過効率に関する考察をおこなった。

曝気流下におけるろ過においては膜間距離を短くした方がろ過効率は上昇する。

懸濁液クロスフロー流下におけるろ過においては、平膜を流下方向にセグメントに分断し、境界層の発達を抑制することによって汚泥堆積量を少なくすることで、ろ過の効率を上げることが可能であることを示した。

それらの結果に基づいて、間欠曝気条件下におけるろ過においても、曝気中のみにろ過をおこなうよりも、平膜をセグメントに分断し連続ろ過をおこなうことによつてろ過効率を上げられる可能性があることを示した。

### 3.4 本章のまとめ

本章では平膜を用いた曝気流および懸濁液クロスフロー流条件下でのろ過における汚泥堆積過程を調べた。

3.1節では、気泡流条件下で、懸濁液濃度、クロスフロー流速、膜間距離を変えてろ過実験をおこない、水理学的な側面から汚泥堆積過程に影響を与える因子に関する考察をおこなった。

それにより得られた結果は、

- ・汚泥堆積過程を記述する主要な因子として平衡汚泥堆積量、汚泥堆積速度、汚泥堆積開始時間という3つの因子を抽出した。

- ・平衡汚泥堆積量は、曝気線速度と負の相関を示した。また膜間距離が異なっても曝気線速度が等しければ概ね汚泥堆積量も等しく、膜間距離に対する依存性は見出されなかった。

汚泥堆積量は膜面のせん断力によって決まると考えられた。

また、平衡汚泥堆積量はMLSSに対しては依存性を示さなかった。

- ・汚泥堆積速度も、曝気線速度に対して負の相関を示し、また、膜間距離に対しては依存性を持っていないと考えられた。またMLSSに対しても依存性を示さなかった。

- ・汚泥堆積開始時間は曝気線速度と膜間距離の両方に依存する。膜間距離が短くなると汚泥堆積開始時間は短くなる。汚泥堆積開始時間が膜間距離に依存するのは、フロクの膜面に向かう方向の移動度に対して膜間距離が相対的に短くなり、フロクの膜面への接触機会が増加し、そのために汚泥堆積開始時間が短くなると考え、式(3.11')によって整理した。式(3.11')によって膜間距離によらない一定の関係が見出され、式(3.11)によって膜間距離の影響を相殺することは妥当であると考えられた。

3.2節では懸濁液流条件下で、懸濁液濃度、クロスフロー流速、膜間距離を変えてろ過実験をおこない、それに基づき水理学的な考察を行い、また曝気流の実験結果との比較をおこなった。

本実験条件下では膜面には層流境界層が形成されているものと考えられた。また含水率の高い、緩い堆積がクロスフロー流速 $0.5\sim 1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ の範囲でしばしば生じた。これは流れの状態が層流境界層から遷移状態へと遷移し、それが原因でせん断力の低下する領域が形成されたため生じたのではないかと推測された。また、層流境界層が形成されているとみなし、懸濁液流のせん断力を計算することによって、懸濁液流、曝気流ともにせん断力を指標とすることで平衡汚泥堆積量を統一的に説明できることがわかった。

またクロスフローの流下に沿った汚泥堆積量の分布に基づく考察からも膜面には層流境界層一遷移層が形成されていると考えられた。

平膜を用いたクロスフローろ過では、層流境界層の発達によって膜面に汚泥堆積量の分布が生じる。また、下流部に行くに従い層流境界層から遷移層へと遷移し、その遷移層内に非常に緩い汚泥堆積を生じさ

せやすい水理学的状況が生じ、そのため下流部には緩い堆積が生じる可能性があるといえる。

3.3節では、これらの結果に基づいて、平膜を用いたろ過において、ろ過効率に関する考察をおこなった。

曝気流下におけるろ過においては膜間距離を短くした方がろ過効率は上昇する。

懸濁液クロスフロー流下におけるろ過においては、平膜を流下方向にセグメントに分断し、境界層の発達を抑制することによって汚泥堆積量を少なくすることで、ろ過の効率を上げることが可能であることを示した。

それらの結果に基づいて、間欠曝気条件下におけるろ過においても、曝気中のみにろ過をおこなうよりも、平膜をセグメントに分断し連続ろ過をおこなうことによつてろ過効率を上げられる可能性があることを示した。

## 第4章

# 中空糸膜を用いた懸濁液 クロスフロー流中のろ過における汚泥 の堆積過程

本章においては、懸濁液クロスフロー流中に配した中空糸膜を用いた活性汚泥懸濁液のろ過における汚泥堆積過程を調べた。

平膜と大きく異なる中空糸膜モジュールにおける汚泥堆積過程を調べ、平膜と比較し両者に共通する理論を確立することによって、ろ過における汚泥堆積過程に関する一般性の高い知見を得ることが出来ると考えられる。

そこで膜間距離及びクロスフロー流速という膜面近傍の水力に直接的に影響を与える因子を様々に変化させて各々の条件下でろ過実験をおこない、汚泥堆積がどのように影響を受けるかについて調べた。また数段階にMLSSを変化させてろ過実験をおこないMLSSが汚泥堆積過程に与える影響を調べた。そして膜面近傍の水力状況を詳細に調べ、どのような水理学的因子が汚泥の堆積に対して影響を与えているのかについて考察した。

## 4.1 膜間距離及びクロスフロー流速、汚泥濃度が汚泥堆積過程に及ぼす影響

### 4.1.1 実験装置及び実験方法

#### (1) 実験装置

実験に用いた膜は表-4.1に示す仕様のものである。膜モジュールの形状を図-4.1.1に示す。3本の膜系が正三角形に配置されている。膜系の固定は両ヘッド部によってなされる。片側のヘッド部はシールされており、片側のみからろ過水を得る。

中空糸膜における膜系配置の稠密さの度合いの指標として、一般化された膜間距離を以下のように定義する。

$$l = \frac{2S}{d} \quad (4.1)$$

ただし、 $l$ : 一般化された膜間距離 [mm]、 $S$ : 膜系を囲む領域の断面積 [mm<sup>2</sup>]、 $d$ : 膜系断面の周長 [mm] である。図-4.1.2aに各々の示す部分について記した。特に3本の膜系を持つモジュールの場合は図-4.1.2bの様に計算される。

これは膜系配置の指標としての一般化を目指し、また第3章の平膜における膜間距離の定義との一貫性も意図している。

この定義による膜間距離は通常の意味での膜間距離 (図-4.1.2bに示した $l_1$ ) が0のときも膜系に囲まれた領域と膜系の外に空隙ができるため0にはならない。本研究で用いた3本の膜系を用いた膜モジュールでは、一般化された膜間距離 0.6mm が通常の意味での膜間距離の 0mm に相当している。

以後は特に断りのない限り、この一般化された膜間距離を「膜間距離」と呼ぶことにする。

実験装置の概要を図-4.1.3に示す。溶液タンクで汚泥は培養されポンプP1によって圧力タンクに送られる。P1はまた膜間差圧を与える役割をもつ。循環流によるクロスフローはポンプP2によって与え

表-4.1 中空糸膜の仕様

サイズ	外径2mm, 内径1.2mm
素材	ポリスフォン系
分画分子量	約20,000、限外ろ過膜
純水フラックス	1.2m <sup>3</sup> ·d <sup>-1</sup> at 70kPa、25°C
構造	外側に活性層、内側に支持層

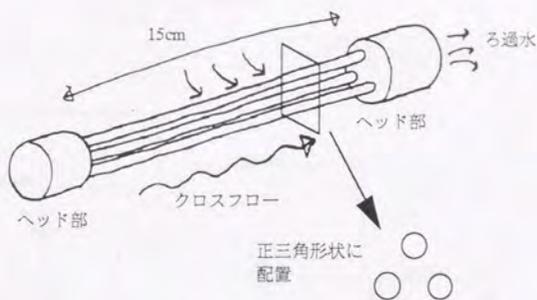


図-4.1.1 膜モジュールの形状

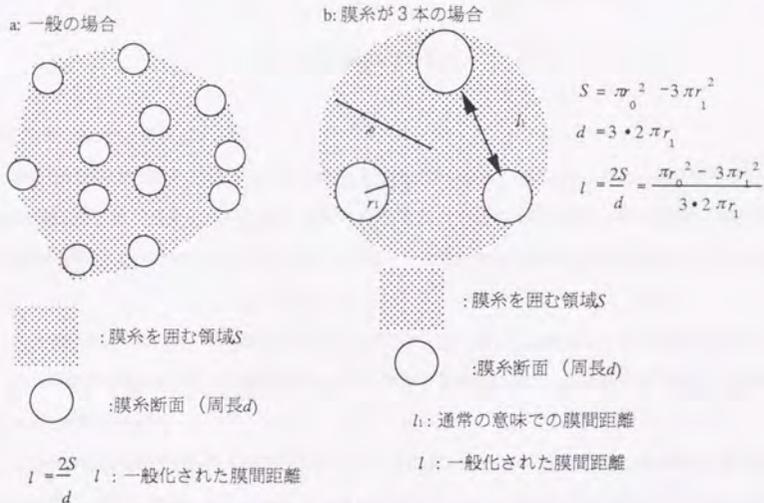


図-4.1.2 膜系断面と一般化された膜間距離の計算

られる。二つのポンプと、弁によって圧力とクロスフローが独立に調節される。ろ過水は再び容液タンクに返送される。

膜モジュールは直径 20mm の円管の中心部に固定され、クロスフロー中で外圧式でろ過される。

## (2) 実験方法

活性汚泥懸濁液の基質の構成比は第3章の実験と等しい(表-3.2参照)。Fill and Draw方式で汚泥

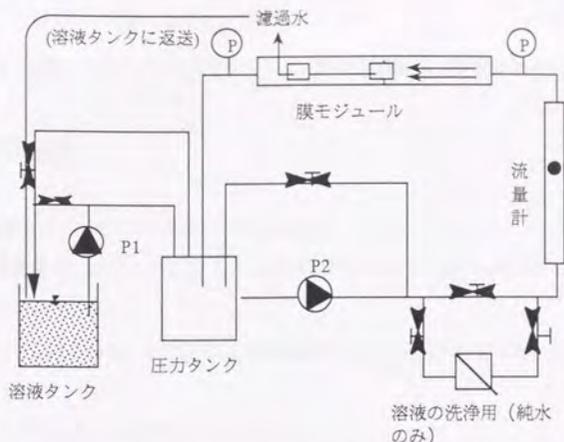


図-4.13 実験装置の配置

滞留時間 (SRT) は 10 日とした。

活性汚泥懸濁液の性状の指標として、MLSS 及び懸濁液の粘度、汚泥フロックの粒径を測定した。粘度は振動式粘度計 (秩父セメント社製、CJV-1000) を用いて測定した。粒径分布は粒度分布測定装置 (堀場製作所製、CAPA-300) によって測定し、体積ベースの粒度分布の中央値を代表値として粒径を示した。

ろ過実験中は Fill and Draw を継続して行い、SRT を一定に保った。水温は 25°C に保った。

活性汚泥懸濁液を外圧式で懸濁液クロスフロー流中で連続ろ過をし、膜間差圧は 70 kPa、ろ過時間は 72-96 時間であった。

測定項目は活性汚泥懸濁液ろ過時のフラックス (体積フラックス) および、ろ過実験終了後に膜表面に付着した汚泥の重量である。付着した汚泥の重量は活性汚泥のろ過終了後、膜モジュールを取り出し、キムワイプで膜表面の汚泥をふき取りモジュールをふき取る前後の重量差から計算した。またふき取った汚泥は 105°C で 2 時間強熱乾燥させ、再び重量を測定し付着した汚泥の含水率を計算した。汚泥は膜系全体に様に堆積しているとし、膜系の長さで除した値で汚泥付着量を表した。

ろ過はまずクロスフロー流速を一定にし、様々な膜間距離を持つ膜モジュールを用いておこない、汚泥付着量とフラックスとの関係を調べた。またフラックスの経時変化に基づき汚泥堆積層抵抗を求め膜間距離との関係を調べた。

次に様々なクロスフロー流速でろ過を行いクロスフロー流速とフラックス、汚泥付着量との関係を

調べた。

また MLSS を段階的に変えてろ過実験をおこない懸濁液濃度の及ぼす影響を調べた。

#### 4.1.2 実験結果

##### (1) 膜間距離及びクロスフロー流速と汚泥堆積過程

活性汚泥懸濁液の MLSS は  $1.5\text{--}1.8\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、汚泥負荷率は  $1.5 \times 10^{-1}\text{kgC}\cdot\text{kgMLSS}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$  で、汚泥フロククの粒径は  $40\ \mu\text{m}$  であった。

クロスフロー流速は  $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  に固定し、膜間距離は  $0.8\text{--}4.0\text{mm}$  までの間に変化させ、各膜間距離下でろ過実験をおこなった。

図-4.1.4 にフラックスの経時変化の例を示した。

フラックスの低減は 4 8 時間までは甚だしいが、それ以降は比較的安定している。そこでろ過終了時、9 6 時間目のフラックスを定常フラックスと見なして、膜間距離と定常フラックスとの関係を図-4.1.5 に示した。また活性汚泥懸濁液のろ過の前、新膜の段階での純水を用いたフラックス及びろ過終了後、膜面洗浄後の純水フラックスを併せて示した。

またろ過終了時の汚泥堆積量を平衡汚泥堆積量と見なし、膜間距離と平衡汚泥堆積量との関係を図-4.1.6 に示した。汚泥堆積量は膜間距離が中程度で多く、膜間距離が大きい場合と小さい場合に少なくなっている。また、フラックスも膜間距離が中程度で非常に小さい値を持つという傾向を持っている。

Wong ら (1992) は 10 本の膜系を持つ中空糸膜モジュールでろ過をおこない、膜系配置の密度が中程度の領域で定常フラックスが減少するという本実験と共通の傾向を得ている。

膜間距離がある範囲では汚泥堆積量が多くなり、そのため定常フラックスが非常に小さくなっていることがわかる。

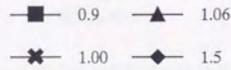
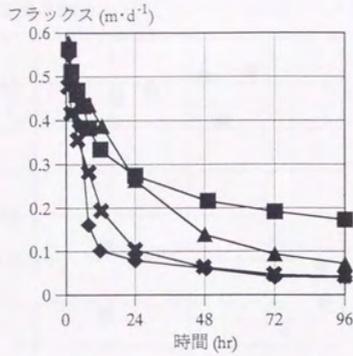
そこで汚泥堆積量とろ過抵抗との関係を更に詳細に調べるために、フラックスの値に基づき汚泥堆積層抵抗を算出し、汚泥付着量との比較を行った。

フラックスと膜間差圧、ろ過総抵抗には以下の関係がある。

$$J = \frac{\Delta P}{\mu R_T} \quad (4.2)$$

ここに J: フラックス [ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ]、 $\Delta P$ : 膜間差圧 [Pa]、 $R_T$ : ろ過総抵抗 [ $\text{m}^{-1}$ ]、 $\mu$ : 粘性係数 [ $\text{Pa}\cdot\text{s}$ ] である。

また、ろ過総抵抗  $R_T$  は、膜抵抗  $R_m$  [ $\text{m}^{-1}$ ]、膜内の目詰まりによる抵抗  $R_f$  [ $\text{m}^{-1}$ ]、汚泥堆積層



数字は膜間距離 (mm)  
(クロスフロー流速  $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )

図-4.1.4 フラックスの経時変化

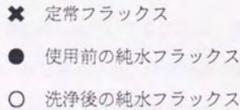
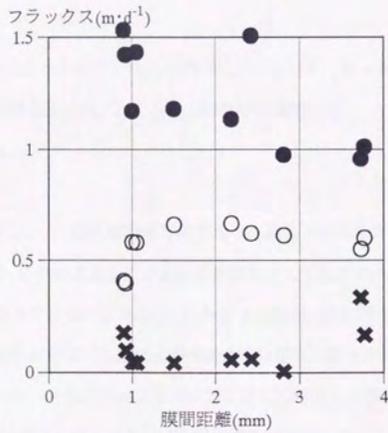


図-4.1.5 膜間距離とフラックス

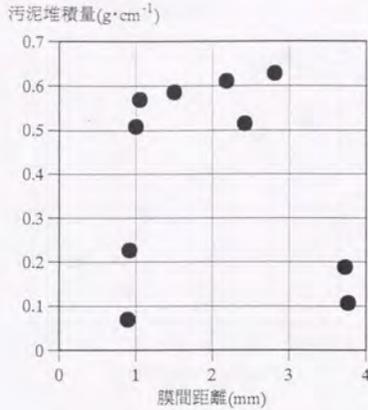


図-4.1.6 膜間距離と平衡汚泥堆積量

抵抗  $R_c$  [ $m^{-1}$ ] を用いると、

$$R_c = R_m + R_f + R_c \quad (4.3)$$

と表される。

ろ過時に汚泥堆積を起こさなかった場合、汚泥堆積層抵抗は生じず、 $R_c = 0$  となり、 $R_f = R_m + R_f$  となる。そこで、この場合のろ過総抵抗を  $R_{f0}$  とすると、汚泥堆積層抵抗は

$$R_c = R_f - R_{f0} \quad (4.4)$$

として計算される。

同じ時間ろ過を行ったとしても、一般には汚泥堆積が起きた場合と起きなかった場合とでは膜内の目詰まりによる抵抗  $R_c$  が異なる。これは主としてろ過水量が異なってくるためろ過水が膜を透過する際に付着する目詰まりの量が異なってくるからである。しかし本実験中、最も汚泥堆積が多かった場合とほとんど堆積が起きなかった場合とでは、ろ過総水量が最大2倍程度の開きがあったにもかかわらず、洗浄によって表面の汚泥を取り除いた後の純水フラックスには1割程度しか差がなかった(図-4.1.5参照)。このことから、本実験においてはろ過実験ごとに汚泥付着量が異なっても膜内目詰まり抵抗に大きな差はなく、本実験においては汚泥堆積が異なっても目詰まり抵抗に大きな差はないといえる。

本実験においてはクロスフロー流速が一定であっても、汚泥付着が甚だしいものと殆ど汚泥が付着しないものに分かれ、フラックスに大きな差が生じることが観察された。この解析の目的はなぜ膜間距離によって汚泥付着量が様々な異なる値を取るかを調べることである。そこで汚泥の付着がほとんど

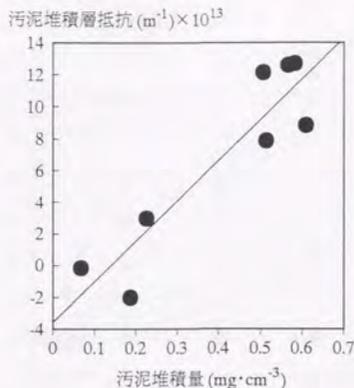


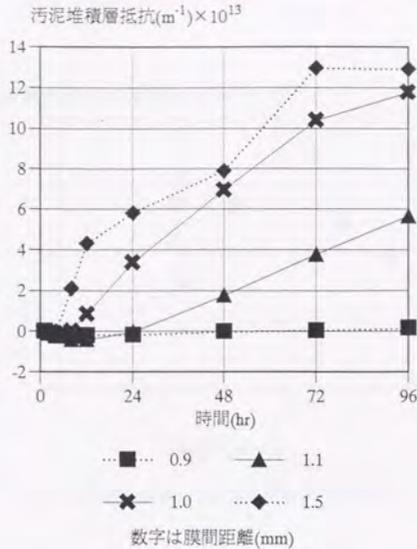
図-4.1.7 汚泥堆積層抵抗と汚泥堆積量

起きなかった膜モジュールの抵抗を  $R_{10}$  と見なし、それ以外の各々の膜モジュールの抵抗との差として汚泥堆積層抵抗  $R_c$  を式 (3.5) から計算し汚泥付着量との関係を調べた。

図-4.1.7に経過終了時における汚泥堆積層抵抗と、汚泥付着量との関係を示す。汚泥堆積層抵抗と汚泥付着量は一定の直線関係を持っている。ただし回帰直線は原点を通らずに、汚泥堆積量が0のところでは汚泥堆積層抵抗が負になっている。これは汚泥堆積が生じていないと見なされているろ過においても、実際にはわずかながら汚泥堆積が生じており、その分計算に用いた  $R_{10}$  が真の  $R_{10}$  より大きな値を持ち、そのため汚泥堆積量が0のところでは回帰直線の汚泥堆積層抵抗が負の値を持ったものと考えられる。また、汚泥堆積層抵抗のプロットが負の値を持っているものがあるが、これは式 (4.4) において  $R_c$  と  $R_{10}$  を、異なるモジュールのフラックスから算出したために生じた誤差である。

汚泥付着量は直接にはろ過終了時に膜を取り出さねば測ることは出来ない。しかし、一旦図-4.1.7が得られれば、式 (4.2) - 式 (4.4) によって定義された汚泥堆積層抵抗に基づき汚泥堆積量の経時変化を推定することが可能になることが分かる。

図-4.1.8に汚泥堆積層抵抗の経時変化の例を示した。ろ過後しばらくは汚泥堆積層抵抗は生じず、ある程度時間を経てのち汚泥堆積層抵抗が直線的に上昇しているのがわかる。そこでまずこの直線的に上昇している部分を汚泥堆積層抵抗の増加速度と見なし、膜間距離と汚泥堆積層抵抗の増加速度との関係を図-4.1.9に示した。膜間距離1mmのところにある1点を除いては、膜間距離が大きくなるにつれて値が小さくなるという傾向をもっている様であるが、そのばらつきは2倍程度であり、膜間距離による大きな差はみられない。



(クロスフロー流速 $0.53m \cdot s^{-1}$ )

図-4.1.8 汚泥堆積層抵抗の経時変化の例

次にろ過開始後、汚泥堆積が始まるのに要する時間を汚泥堆積開始時間として膜間距離と汚泥堆積開始時間との関係を見る。汚泥堆積速度の計算の際に用いた回帰直線の横軸の切片を汚泥堆積開始時間とし、膜間距離と汚泥堆積開始時間との関係を図-4.1.10に示した。

汚泥堆積層抵抗の増加速度と比べると膜間距離による違いは最大10倍程度と差が大きい。全体として下に凸の傾向を持ち、膜間距離1.6mm程度が最も汚泥の堆積開始時間が早い。膜間距離による汚泥堆積過程の違いは、主に汚泥堆積開始時間の違いに現れているのがわかる。

膜間距離2.8mm付近に汚泥堆積開始時間が非常に小さく、他と傾向の異なる実験結果がある(括弧で括ったプロット)。このとき、原因は不明だが汚泥の性状が他のものに比べて見かけ粘性が高くなっていたことが観察され、汚泥の性状の変化が膜面への付着の起きやすさに影響を与えたのではないかと推測された。

次にクロスフローの違いによる影響を見るためにクロスフローを変えてろ過実験を行った。

図-4.1.11に膜間距離と定常フラックスとの関係を、図-4.1.12に膜間距離と平衡汚泥堆積量との関係を示した。但しクロスフロー流速 $0.62, 0.70m \cdot s^{-1}$ の分に関しては72時間しかろ過を行っていないの

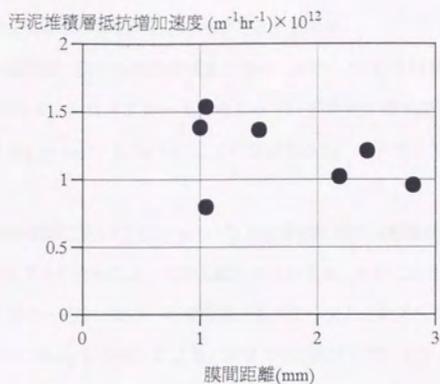
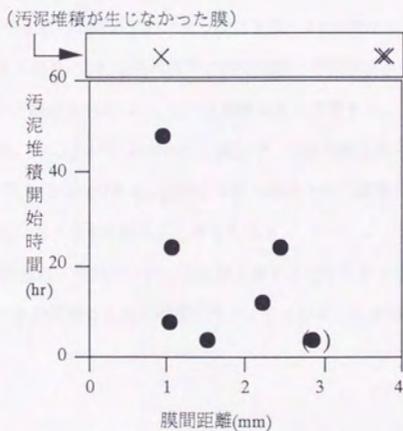


図-4.1.9 膜間距離と汚泥堆積層抵抗の増加速度



(濾過において汚泥堆積を起こさなかった場合を上記に別示した)

図-4.1.10 膜間距離と汚泥堆積開始時間

でその72時間時点での値を定常値と見なしている。

クロスフロー流速 $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ のもの以外はデータ数も少なくまたばらつきも大きい、クロスフロー流速が変わることによる全体的な傾向を読みとることが出来る。

各クロスフロー流速毎に最大の汚泥堆積量が存在し最大の汚泥堆積量はクロスフロー流速の増加とともに減少している。クロスフロー流速 $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合は最大の汚泥堆積量は $0.6\text{g}\cdot\text{cm}^{-1}$ 、 $0.62\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合は $0.3\text{g}\cdot\text{cm}^{-1}$ 、 $0.7\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 以上の場合は $0.1\text{g}\cdot\text{cm}^{-1}$ で、それ以上の流速では $0.1\text{g}\cdot\text{cm}^{-1}$ で一定である。

実験中の膜系表面の観察においても $0.7\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 以上の場合は汚泥の堆積が殆ど認められなかった。クロスフロー流速が上昇するとそれに応じてせん断力が上昇する。それに応じて汚泥堆積量が減少し、ある程度以上のクロスフロー流速になると汚泥堆積が生じなくなると考えられる。

ここで比較のために Wong ら (1992) による、同じく中空糸膜を用いたクロスフロー中で外圧式のろ過の実験結果を示す。用いた膜系の太さは直径 $1.4\text{mm}$ 、膜系の本数は10本、材質はポリスルホン系、分画分子量2万の限外ろ過膜である。膜間距離の計算に際しては、簡単のために十分多くの膜系が正三角形に配置されていると見なし、図-4.1.13に示したように、単位正三角形中の膜系外部の断面積と膜系周長を用いて計算した。

1週間活性汚泥懸濁液をろ過した時点でのフラックスを図-4.1.14に示す。ある膜間距離以下で急激にフラックスの減少が起きており、これはそれ以下の膜間距離で汚泥堆積を生じたためである。これは本実験におけるクロスフロー流速 $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ における実験結果と共通する。

Wongの結果においては、 $0.6\sim 1.3\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ のすべての範囲で、汚泥堆積を生じている膜間距離が存在しており、本章の実験結果と異なる傾向である。膜系の本数が多いために膜間の相互作用がより生じやすくなり、そのため汚泥堆積が生じやすくなったと考えられる。

汚泥堆積が生じる膜間距離は、クロスフロー流速が上昇すると短くなっている。クロスフロー流速の上昇とともに、より短い膜間距離でも汚泥堆積が生じにくくなることが分かる。

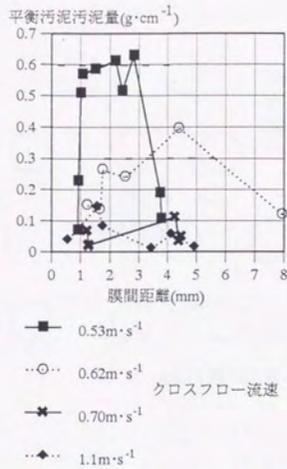


図-4.1.11 各クロスフロー流速下における膜間距離と平衡汚泥堆積量

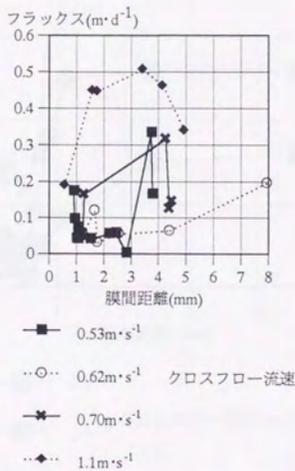


図-4.1.12 各クロスフロー流速下における膜間距離とフラックス

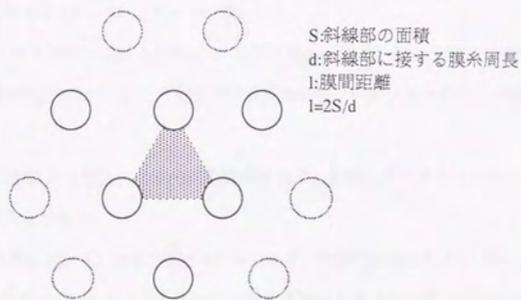


図-4.1.13 膜間距離の計算

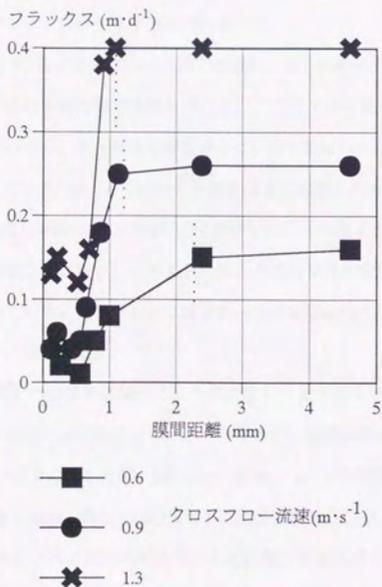


図-4.1.14 膜間距離と平衡汚泥堆積量(Wong(1992)に基づき計算)

## (2) 汚泥濃度と汚泥堆積過程

汚泥濃度は  $0.5 \sim 8.6 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  まで5段階に段階的に変化させて、各濃度下でろ過実験を行い汚泥堆積過程を調べた。汚泥負荷率は  $0.9 \times 10^4 \sim 2.0 \times 10^4$  であった。

膜間差圧は  $70 \text{ kPa}$ 、クロスフロー流速は  $0.53 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  及び  $0.35 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  で行った。活性汚泥懸濁液のろ過時間は72時間とし、ろ過終了時のフラックス及び汚泥堆積量を各々平衡フラックス、平衡汚泥堆積量であるととした。

測定項目は新膜の純水フラックス、活性汚泥懸濁液を透過した際のフラックスの経時変化、ろ過終了時の膜面への汚泥堆積量である。

汚泥の粒径および粘度を図-4.1.15及び図-4.1.16に示す。汚泥の粘度は純水の1.1-1.4倍で、MLSSが  $6 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  を越えたあたりでMLSSの上昇とともに上昇する傾向を見ている。粒径は平均  $20 \sim 50 \mu \text{ m}$  でMLSSへの依存性はない。

実験に用いた膜の、新膜の純水フラックスは  $1.1 \sim 1.6 \text{ m} \cdot \text{d}^{-1}$  であった。前節で用いた膜よりフラックスが低めなのは保存中の膜の劣化が原因であると考えられる。本実験を通して、実験の時期が後になるにつれて、若干フラックスが低下する傾向にあった。

図-4.1.17に各濃度下、各クロスフロー流速下で測定した、ろ過終了時のフラックス及び汚泥堆積量すなわち平衡フラックスと平衡汚泥堆積量を示した。クロスフロー流速  $0.53 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  では平衡汚泥堆積量はいずれも非常に値が小さい。また汚泥堆積量が少ない分  $0.35 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  と比較するとフラックスはいずれも大きい。目視によっても  $0.53 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  では殆ど汚泥の付着は確認されなかった。これは前節の結果とは異なる傾向である。本節の実験に用いた汚泥の付着性が前節の汚泥より小さく、同じクロスフロー流速では殆ど汚泥の付着が起こらなかったと考えられる。クロスフロー流速が  $0.35 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  の場合は、ある程度の汚泥堆積が起こっている。そこで、クロスフロー流速  $0.35 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  の場合に関して、その汚泥の堆積過程を更に詳細に調べ、検討する。

データ数がひとつひとつの条件に関しては十分になく、またばらつきも大きいため、膜間距離が変わることによる堆積量の違いは明確ではないが、いくつか、膜間距離が大きい場合 (MLSS  $6.6 \sim 8.6 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  で膜間距離  $4.5 \text{ mm}$ 、図中に示した①、MLSS  $4.8 \sim 6.8 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  で膜間距離  $4.5 \text{ mm}$ 、同じく②、MLSS  $0.5 \sim 1.5 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  で膜間距離  $4.5 \text{ mm}$ 、同じく③の3つ) に汚泥付着量が少なくなっている。(③の汚泥付着量は  $0.2 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$  であり、それ以外の膜間距離のデータと比較してそれほど低くなってはいないが、これはモジュール端部に付着した汚泥を併せて測定してしまったためであると考えられる。フラックスは他のものより高い傾向にあり、実際には汚泥付着量はより少なかったのではないかと考えられる。)

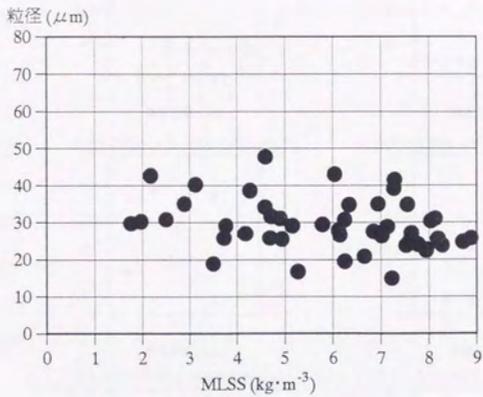


図-4.1.15 MLSSと粒径

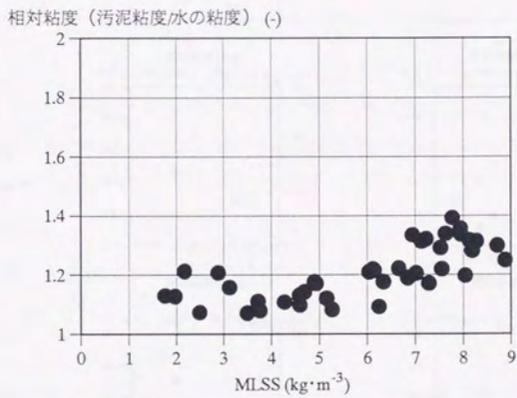


図-4.1.16 MLSSと汚泥の粘度

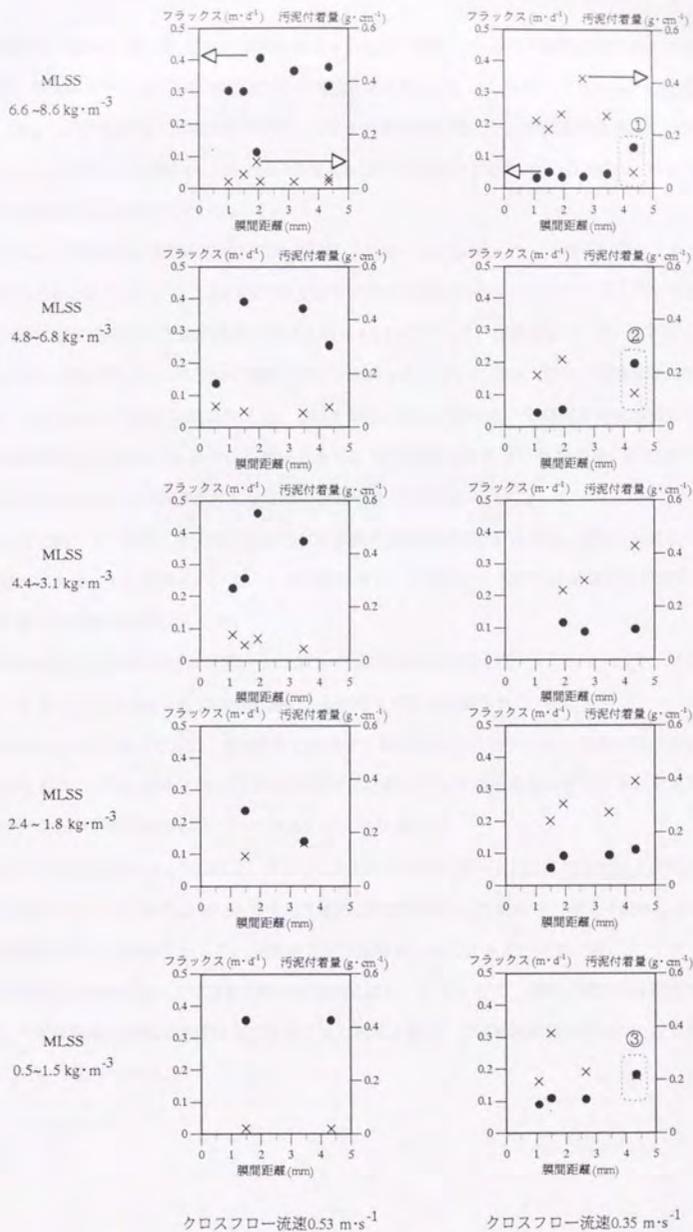


図-4.1.17 ろ過終了時のフラックスと汚泥堆積量

そこで前節と同様に、①、②、③のろ過総抵抗とそれ以外のモジュールのろ過総抵抗の差として、式(4.2) - (4.4) の関係を用いて汚泥堆積層抵抗の経時変化を計算した。MLSS4.4 - 3.1kg・m<sup>-3</sup>の場合及びMLSS2.4 - 1.8kg・m<sup>-3</sup>の場合は、膜間距離が大きいときも汚泥堆積を起こし、汚泥堆積量が少ないケースが存在しなかったので、MLSS4.4 - 3.1kg・m<sup>-3</sup>の場合は②のろ過抵抗との差で、MLSS2.4 - 1.8kg・m<sup>-3</sup>の場合は③のろ過抵抗との差で代用した。

このようにして計算した汚泥堆積層抵抗の経時変化を図-4.1.18に示した。ろ過の経過とともに、抵抗の上昇が見られ、また全体としてMLSSが低くなるに従って抵抗は小さくなっているようである。ろ過終了時の汚泥堆積層抵抗と汚泥付着量の関係を図-4.1.19に示した。前節の結果(図-4.1.7)も併せて示した。ばらつきはあるものの、大体前節の実験の傾向とも一致しており、抵抗と堆積量は比例している。但し、MLSSの依存性を詳細に見ると、MLSSが低くなるに従って、同程度の汚泥堆積量であっても汚泥堆積層抵抗が少なくなるという傾向にある。単位付着汚泥量当りの抵抗値、即ち比抵抗はMLSSが小さくなるにつれて若干小さくなる傾向をもつようである。

図-4.1.18に基づき、汚泥堆積層抵抗増加速度と汚泥堆積開始時間を計算した。前節の計算と同様に抵抗が直線的に上昇している時期のプロットを直線回帰し、その傾きを汚泥堆積層抵抗増加速度とし、横軸の切片を汚泥堆積開始時間とした。

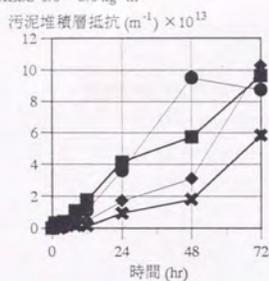
汚泥堆積層抵抗増加速度の結果を図-4.1.20に、汚泥堆積開始時間を図-4.1.21に示した。ばらつきが大きく、またデータが少ないため膜間距離による明確な傾向は観察されない。

前節の0.53m・s<sup>-1</sup>における実験は、膜間距離に依存する微妙な差を見出すためにろ過初期の段階のフラックスをなるべく一定に揃えて行ったが、本実験では初期フラックスのばらつきが大きのまま実験を行ったので、それが原因で値がばらついていると考えられる。

MLSSによる傾向を調べる。MLSSと、各因子との関係を示す。図-4.1.22にはMLSSと平衡汚泥堆積量との関係を、図-4.1.23にはMLSSと汚泥堆積層抵抗増加速度との関係を、図-4.1.24にはMLSSと汚泥堆積開始時間との関係を示した。平衡汚泥堆積量はMLSSによらず一定である。

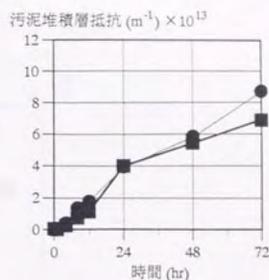
汚泥堆積量抵抗増加速度および汚泥堆積開始時間はばらつきが大きく、明確な傾向性は観察され難い。ただし汚泥堆積層抵抗増加速度はMLSSの上昇と共に上昇し、汚泥堆積開始時間はMLSSの減少と共に減少しているようである。

a) MLSS  $6.6 \sim 8.6 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$



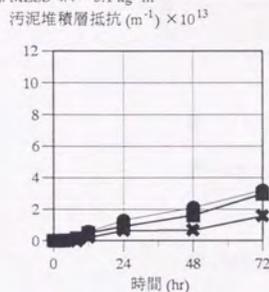
■ 2.7    ✕ 1.5 (数字は膜間距離(mm))  
● 1.9    ◆ 1.1

b) MLSS  $4.8 \sim 6.8 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$



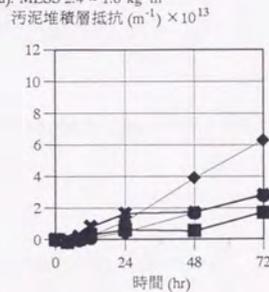
■ 1.9    ● 1.1 (数字は膜間距離(mm))

c) MLSS  $4.4 \sim 3.1 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$



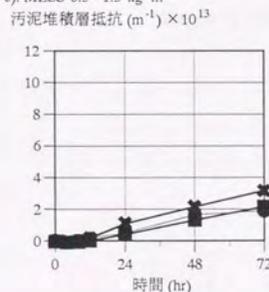
■ 4.3    ✕ 1.9 (数字は膜間距離(mm))  
● 2.7

d) MLSS  $2.4 \sim 1.8 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$



■ 4.3    ✕ 1.9 (数字は膜間距離(mm))  
● 3.5    ◆ 1.5

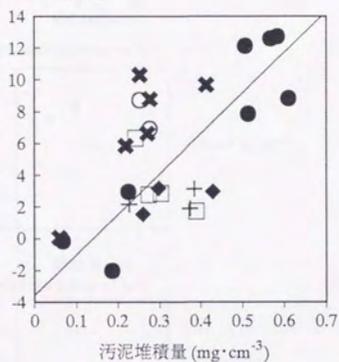
e) MLSS  $0.5 \sim 1.5 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$



■ 2.7    ✕ 1.1 (数字は膜間距離(mm))  
● 1.5

図-4.1.18 汚泥堆積層抵抗の経時変化  
(クロスフロー流速:  $0.35 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ )

汚泥堆積層抵抗 ( $m^{-1}$ ) $\times 10^{13}$



● クロスフロー流速 $0.53m \cdot s^{-1}$ 、MLSS $1.2 \sim 1.8kg \cdot m^{-3}$ (図-4.7より)

× MLSS  $6.6 \sim 8.6 kg \cdot m^{-3}$

○ MLSS  $4.6 \sim 6.8 kg \cdot m^{-3}$

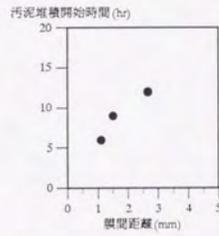
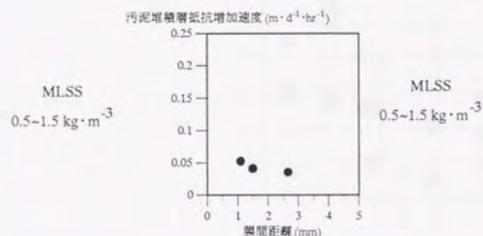
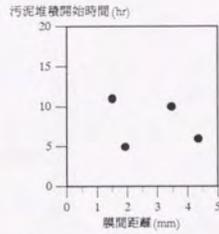
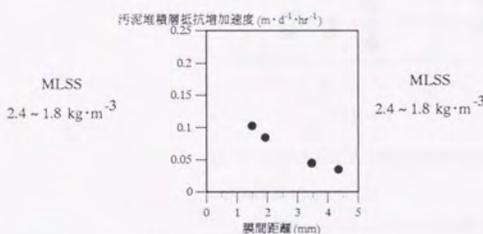
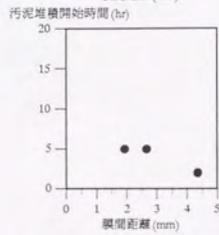
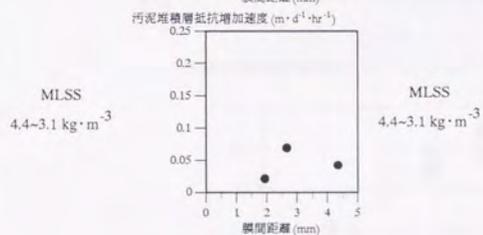
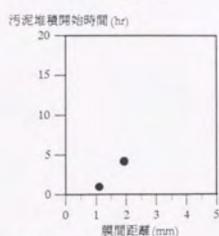
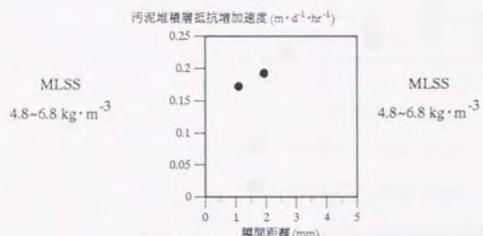
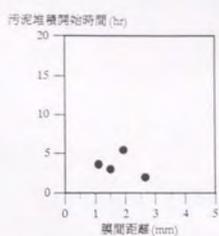
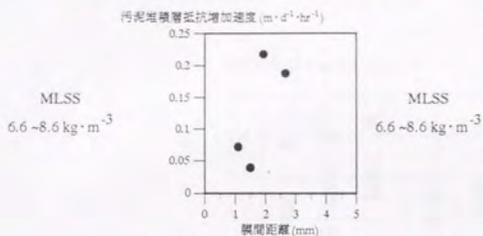
◆ MLSS  $4.4 \sim 3.1 kg \cdot m^{-3}$

□ MLSS  $2.4 \sim 1.8 kg \cdot m^{-3}$

⊕ MLSS  $0.5 \sim 1.5 kg \cdot m^{-3}$

} クロスフロー流速 $0.35m \cdot s^{-1}$

図-4.1.19 汚泥堆積層抵抗と汚泥付着量



クロスフロー流速  $0.35 m \cdot s^{-1}$

図-4.1.20 汚泥堆積層抵抗増加速度

クロスフロー流速  $0.35 m \cdot s^{-1}$

図-4.1.21 汚泥堆積開始時間

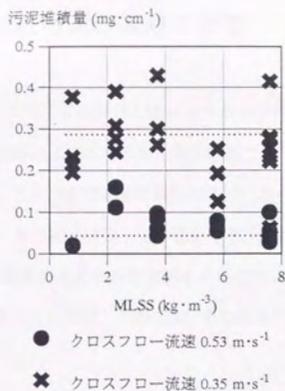


図-4.1.22 汚泥濃度と汚泥堆積量

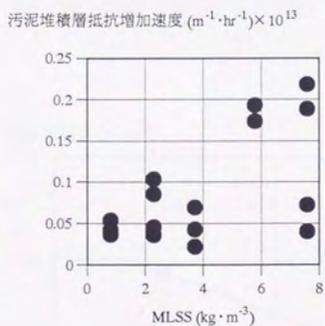


図-4.1.23 汚泥濃度と汚泥堆積層抵抗増加速度

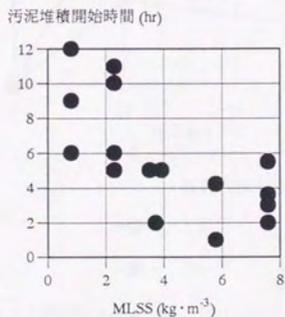
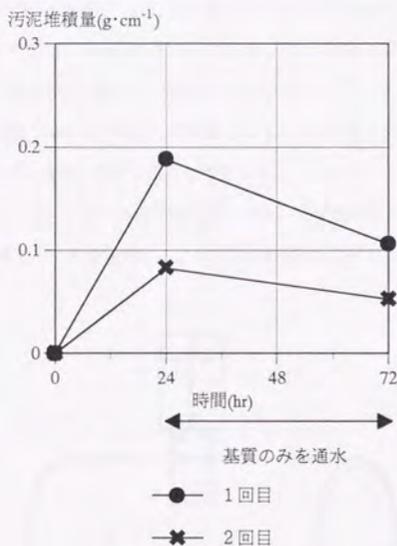


図-4.1.24 汚泥濃度と汚泥堆積開始時間

## 4.2 膜面に堆積した汚泥の増殖の影響

堆積汚泥が時間的に増加していくのは浮遊しているフロックが付着していくのが主要な原因であるのか、ある程度堆積したのちは膜面上での増殖が主要な原因であるのかを調べるための実験を行った。2つのモジュールを並行して、24時間は通常の条件でろ過したのち、ひとつのモジュールを取り出し汚泥堆積量を測定する。もう一本の膜は継続してろ過を行う。ただしろ過対象液を24時間時点で、通常の活性汚泥懸濁液から、同濃度の基質のみを溶解させた溶液に切り替えてろ過を行う。付着するフロックの影響を排除し、増殖をすると仮定した場合の、その増殖に用いられるであろう基質のみでろ過を行い、増殖の影響を見た。

図-4.2.1にその結果を示す。24時間以降は汚泥堆積量は増加しておらず、汚泥堆積量の増加の主要な原因は増殖によるものではなく、浮遊しているフロックの付着によるものであることがわかる。



(クロスフロー流速 $0.35\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 、MLSS $1\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、膜間距離 $2.5\text{mm}$ )

図-4.2.1 膜面に堆積した汚泥の増殖の影響

### 4.3 膜面の流動状況

前節の実験において様々な過条件が汚泥堆積過程に与える影響について調べた。本節ではそれらの過条件の違いがどのようにして汚泥堆積過程に違いを生じさせるかを解析するための基礎として、膜面近傍の水理学的状況を、清水実験により調べた。

測定項目は膜間領域の平均流速、膜モジュールヘッド部の有無による乱れ強度の違い、そしてトレーサー実験による流況の観察である。

#### 4.3.1 実験装置及び実験方法

##### (1) 膜間流速の測定

膜系に囲まれた領域（膜間領域）の中心点での流速（膜間流速）を測定した。膜系に囲まれた狭い領域の流速を測定するため、外径0.65mmのビトー管を用いた。ビトー管は、注射針を応用し自作した。図-4.3.1に示したようにビトー管を流れにおき測定した。

静水管は動水管の測定点の5mm程度上流、また静水管が動水管の測定点での流れをなるべく乱すことのないように流れに直角方向に2mm程度ずらして設置した。測定点は膜系上流端から7cm流下したところであった。管内平均流速は $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ で測定を行った。

ビトー管の校正は、管径20mmの円管中心に設置し動水圧と静水圧との水位差を測定し、円管流の平均流速から計算される中心流速と比較することで行った。

円管の平均流速は $0.6\sim 1.7\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ まで段階的に変化させた。円管流の中心流速は、円管乱流の流速分布である $1/7$ 乗則から計算した。円管流のレイノルズ数の範囲は $1.2 \times 10^4 \sim 3.4 \times 10^4$ であり、流速分布

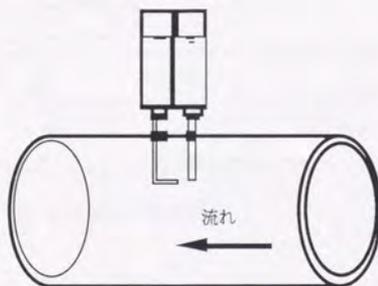
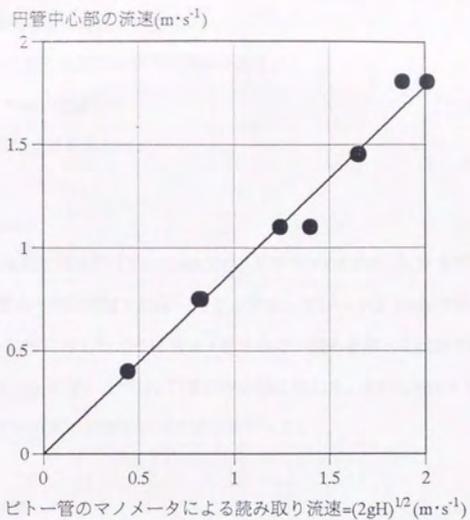


図-4.3.1 ビトー管の設定



$$V=K\cdot(2gH)^{1/2}, K=0.89\text{となる。}$$

図-4.3.2 ピトー管の校正

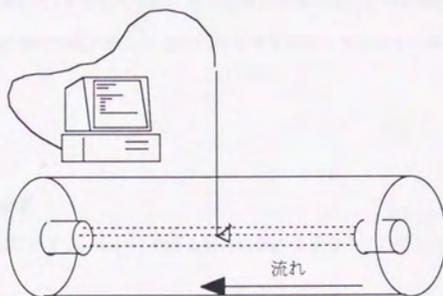


図-4.3.3 熱線流速計の設定

として1/7乗則が適用可能な範囲といえる。

ピトー管のヘッド差と流速には以下の関係がある。

$$V=K \cdot (2gH)^{1/2} \quad (4.5)$$

図-4.3.2に校正の結果を示した。

### (2) 乱れ強度の測定

測定装置としては熱線流速計 (KANOMAX社、モデル 1008,1010,1013) を用い、プローブは幅 2 mm のものを用いた。管内平均流速は  $0.53\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、サンプリングレートは 50Hz であった。

測定の際は図-4.3.3に示したようにヘッド部のみで、膜系を除いた状態で設定した。プローブは膜系上流端相当部から 7cm 流下した部分、円管の中心部に配した。また比較のためにヘッド部を装着していない状態、すなわち通常の円管流れでの測定を行った。

### (3) トレーサー実験

クロスフロー中の懸濁液のマクロな流動状況を把握することを目的としてトレーサー実験を行った。

トレーサー実験にはピトー管として用いたものと同じ、先を曲げた注射針を用いてトレーサーを注入した。トレーサー注入点は膜系上流端から 7cm 流下した部分で、膜間領域の中心点であった。

またヘッド部のみで、膜系を設定しない場合でも測定を行い、クロスフロー中のマクロな乱れが膜系の有無によって大きく変わるかの比較検討も行った。測定点は円管の中心部、膜系を設定して測定した場合と同じ場所に相当する (図-4.3.4)。管内平均流速は  $0.53\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$  であった。写真撮影によってトレーサーの広がりを観察した。またその写真に基づき膜系がある場合とない場合とでトレーサーの広がり比較を行い、膜系の存在が乱れ強度にどの程度影響を及ぼしているかを調べた。

## 4.3.2 実験結果

### (1) 膜間流速の測定結果

測定結果を図-4.3.5に示す。 $0.66\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$  を通る横線は膜系を設定していない場合の同じ場所での流速を示したものである。

一般化された膜間距離 0.6mm (通常の意味での膜間距離 0.0mm) 以外での膜間流速はほぼ一定値を示している。

クロスフロー流速  $0.53\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$  で行った活性汚泥のろ過実験においては膜間距離 3mm 以下で汚泥の堆

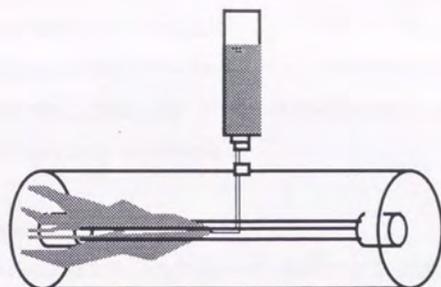


図-4.3.4 トレーサー実験

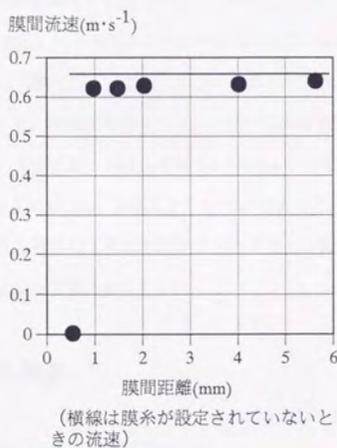


図-4.3.5 膜間距離と膜間流速

積を起こしており (図-4.1.6)、また汚泥堆積開始時間も様々な値を示している (図-4.1.10)。しかし膜間流速はほぼ一定であり、膜間流速が一定であるにも関わらず汚泥堆積開始時間が異なっていることが分かる。

## (2) 乱れ強度の測定結果

管内平均流速を  $0.53 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  にして測定を行った。図-4.3.6 にヘッド部を装着した場合の瞬時流速を、また比較のためヘッド部を装着していない場合の円管中心部の瞬時流速を 図-4.3.7 に示した (これは

通常の円管乱流の流速を測定したことになる)。

ヘッド部を装着した場合乱れ強度は  $9.9 \times 10^{-2} \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、ヘッド部を装着していない場合  $3.1 \times 10^{-2} \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$  であった。ヘッド部を装着した場合、装着していない場合の乱れ強度の3.4倍となっており上流の膜部の存在が乱れ強度を大きくしているのが分かる。

### (3) トレーサー実験結果

膜間距離 1.5mm, 4.3mm の膜モジュールでトレーサー実験をおこなった結果 (付録の写真1)、いずれもトレーサー注入点を頂点とする紡錘状の広がりを見せた。膜間領域で層流であるとすればトレーサーは膜間領域に封じ込められるか、少なくとも広がりが遅れると考えられる。トレーサーが注入点から拡散したということは膜間領域内も乱流であることを示している。

また膜系を設置した場合と、ヘッド部のみで膜系を設定していない場合との乱れ強度の違いを調べるために、膜間距離 4.3mm の膜モジュールと、ヘッド部のみで膜系を設定していない場合とでトレーサーの広がり角の違いを調べた。複数の写真からトレーサーの広がり角度を調べた。

膜系が存在しない場合、その広がり角度は平均  $2.2 \times 10^{\circ} \text{rad}$ 、分散  $7.0 \times 10^{\circ} \text{rad}$ 、膜系が存在している場合は広がり角度は平均  $2.6 \times 10^{\circ} \text{rad}$ 、分散  $6.0 \times 10^{\circ} \text{rad}$  であった。広がり角の違いは2割程度であり、ヘッド部の有無によって乱れ強度に3倍以上の差が出たことと比較すると全般的な乱れ強度は膜系の存在によって大きく異なることはないといえる。

### 4.3.3 膜系間の乱れ強度

膜系間における乱れ強度について考察する。

膜間領域では時間平均流速のみを測定し、乱れ強度は測定していない。

トレーサー実験により、膜間距離が小さい場合であってもその膜間領域全体が層流になっているわけではないという結果を得た。しかし、乱れ強度の値そのものは測定結果として得ていない。乱れ強度が膜間領域で異なっている可能性がある。

膜間領域で乱れ強度が異なっている可能性としては、膜間領域で層流境界層または乱流境界層を形成することにより、乱れが抑制されているという状態が考えられる。

まず層流境界層形成の可能性に関して考察する。

層流境界層であるとした場合、膜間領域全体で層流境界層を形成しているわけではないことはトレーサー実験により明らかである。膜系表面の近傍にのみ層流境界層を形成している可能性はあるが、膜間

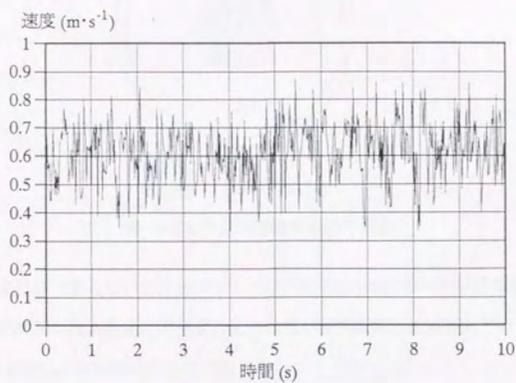


図-4.3.6 ヘッド部後流の流速

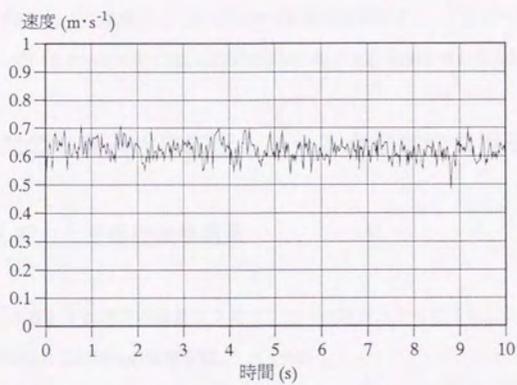


図-4.3.7 円管中心部の流速

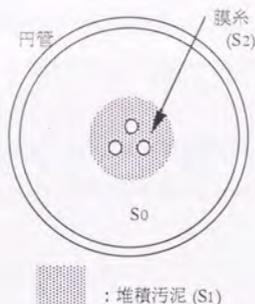


図-4.3.8 汚泥堆積時の流路の収縮

領域全体が層流境界層であるということではなく、必ず境界層外部の領域が膜間領域にまで及んでいる。つまり、膜間領域外部の乱れ強度と同程度の乱れ強度が膜間領域にまで及んでいるといえる。

次に乱流境界層形成の可能性について考察する。

乱流境界層の場合、粘性底層以外では乱れ強度は大きく低下することはないことが知られている。膜間流速は膜系を設定していない場合の流速と比較して1割以下の速度低下しか示しておらず、粘性底層は膜間領域の支配的な領域ではないことが分かる。

$y=11.4 \tau / u$  ( $y$ :粘性底層厚さ、 $\tau$ :壁面せん断応力、 $u$ :摩擦速度)を用いて粘性底層厚さを評価すると0.1mm程度であった(付録参照)。この評価からも膜間領域のほとんどの部分では、粘性底層以外の外部領域に属しているといえ、乱れ強度は膜間領域外側の乱れ強度と変わらないと考えられる。

## 4.4 汚泥の堆積過程に影響を与える水理学的な因子

### 4.4.1 せん断力と平衡汚泥堆積量

図-4.1.12によると平衡汚泥堆積量はクロスフロー流速が大きくなるに従い小さくなっている。0.70m・s<sup>-1</sup>以上ではほとんど汚泥の堆積を起こしていない。

そして各クロスフロー流速毎に、最大の平衡汚泥堆積量(最大汚泥堆積量)が存在している。

一定以上のクロスフロー流速では汚泥堆積を起こさなくなる限界クロスフロー流速が存在している。そこで、付着した汚泥による流路の収縮によって最大汚泥堆積量に達した状態では限界クロスフローになっているのではないかと予測できる。汚泥堆積が起きた場合、汚泥の堆積は膜モジュールを包み込むように成長することが(図-4.3.8)観察された。一旦そのような成長が始まると、最大汚泥堆積量に達

するまで成長し、その値は限界クロスフロー流速によって決まっていたのではないかと考えられる。

そこで  $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 、 $0.62\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  の各結果において最大汚泥堆積量に達したときの収縮した流路内でのクロスフロー流速を計算した。

流路内でのクロスフロー流速を  $v_e$  [ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ]、初期状態でのクロスフロー流速を  $v_0$  [ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ]、流路の収縮率を  $e$  [-]、管の断面積を  $S_0$  [ $\text{cm}^2$ ]、膜系の断面積を  $S_1$  [ $\text{cm}^2$ ]、汚泥堆積層の断面積を  $S_2$  [ $\text{cm}^2$ ] とすると、

$$v_e = \frac{v_0}{e} = \frac{S_0}{S_0 - (S_1 + S_2)} v_0 \quad (4.6)$$

となる。汚泥堆積層厚さは流れにわたって一様であると仮定すると、式 (4.6) から限界クロスフロー流速を求めることができる。クロスフロー流速  $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  の場合は最大汚泥堆積量  $0.6\text{g}\cdot\text{cm}^{-1}$ 、 $0.62\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  の場合は  $0.3\text{g}\cdot\text{cm}^{-1}$  であった。これらの値に基づき計算をおこなうと、 $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  の場合は流路内での流速は  $0.66\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 、 $0.62\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  の場合は  $0.71\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  という値を得た。この値は、クロスフロー流速  $0.7\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  以上でのろ過ではほとんど汚泥の堆積を起こしていないという結果とも一致する。

本実験においては膜面流速が  $0.7\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  に達すると汚泥堆積がそれ以上生じなくなったといえる。これは流速の上昇によりせん断力が上昇し、ある一定値以上のせん断力に達すると汚泥堆積がそれ以上生じなくなるためであると考えられる。

せん断力によって平衡汚泥堆積量が決まっているとすれば、懸濁液の粘性が大きく変わらない範囲であれば MLSS が変わっても平衡汚泥堆積量は変わらないはずである。MLSS を変えて行ったろ過実験結果 (図-4.1.22) によると平衡汚泥堆積量は MLSS によって大きく変わることはなく、この考察を裏付けるものであるといえる。

本実験において限界クロスフロー流速 ( $0.7\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) に達したときのせん断応力を求めると  $2 \times 10^4\text{Pa}$  であった。

#### 4.4.2 膜系配置と汚泥堆積開始時間

##### (1) 式 (3.11) の適用

図-4.1.10を見ると膜間距離による汚泥堆積過程の違いは主として汚泥堆積開始時間の違いとしてあらわれるのが分かる。図-4.1.10によると汚泥堆積開始時間は膜間距離  $1.5\text{mm}$  程度を極小として下に凸の変化をしており、汚泥堆積開始時間の違いは、一定時間ろ過した後汚泥堆積が起こるかどうかの差にあらわれる。図-4.1.6によると汚泥堆積が起こりうるクロスフロー流速であっても、実際に一定のろ過時間内に堆積が起こるかどうかは膜間距離に依存して異なっている。クロスフロー流速  $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  の

場合、膜間距離 1.0mm~3.0mm の範囲では一定量の汚泥堆積を起こしているが、その範囲外では汚泥の堆積量は少なくなっており、目視によってもほとんど汚泥堆積は観察されていない。

ろ過を継続することで、いずれ汚泥の堆積は起こりうるものの、その汚泥堆積開始時間が大きく異なる。堆積開始までの時間がろ過時間よりも長い場合、結果として汚泥堆積が起きなかったと考えられる。

汚泥堆積開始時間が膜間距離によって大きく異なる原因は、膜間領域における流速の低下ではないかとも考えられる。しかし、清水実験によると汚泥堆積が早くに起こる膜モジュール（膜間距離 1.0~3.0 mm）も、その膜間領域での速度は一定であり（図-4.3.5）、また乱流であるという点でもそれ以上の膜間距離をもつモジュールと変わりはない。

乱流であってもその乱れ強度が膜間領域で低下している可能性もある。しかし境界層に関する考察によって、乱れ強度も膜間領域の外側と比較して大きく変わってはいないであろうことが示された。

平均流速と乱れ強度の違いからは汚泥堆積開始時間に大きな違いがあることは説明できない。汚泥堆積開始時間に違いを与えるものとしては別の要因が支配しているのではないかと考えられる。

平膜を用いた曝気流中のろ過に戻って考えると、平膜においても同様にせん断力が等しいにも関わらず汚泥堆積開始時間が異なるという現象を見いだした。このことから中空糸膜と平膜とは同じ原因が汚泥堆積開始時間の違いに関わっているのではないかと考えられる。

そこで第3章における式 (3.11) を用いて中空糸膜における膜間距離による汚泥堆積開始時間の違いについて考察をおこなう。

中空糸膜においては膜間距離と汚泥堆積開始時間との関係が図-4.1.10によって示されている。しかしこれに式 (3.11) を適用しようとする、膜面のせん断力と乱れ強度は一定であり、実質的に膜間距離のみを変数とする比較となり、式 (3.11) に関して十分な検討をおこなうことはできない。

そこで図-4.1.14 に示した Wong ら (1992) の結果を用いて検討をおこなう。図-4.1.14 に示した結果は汚泥堆積開始時間ではなく定常フラックスに過ぎないが、膜間距離がある一定値以下で急激に減少した原因はその膜間距離で汚泥堆積が生じたことによるものであり、本研究の場合と同様、それは汚泥堆積開始時間の減少によって引き起こされたものであると考えられる。そこで、膜間距離が短くなり、フラックスの低下が生じ始める部分を、ちょうどろ過時間（144時間）で汚泥堆積が始まった膜間距離であると見なし（図-4.4.1）、その点に対して式 (3.11) を適用する。

$\tau$  は 4.3 節の付録で用いた導出と同じやり方で求める。D、 $\delta$  は、 $\delta \ll D$  とし、膜間距離で表し、式 (3.11) を適用する。本研究における中空糸膜の場合  $\delta \sim 0.1\text{mm}$  と評価され（4.3 節参照）この場合においても、膜間距離と比較してそれほど大きくはないと考えられる。 $u'$  は本研究で測定したヘッド部後流

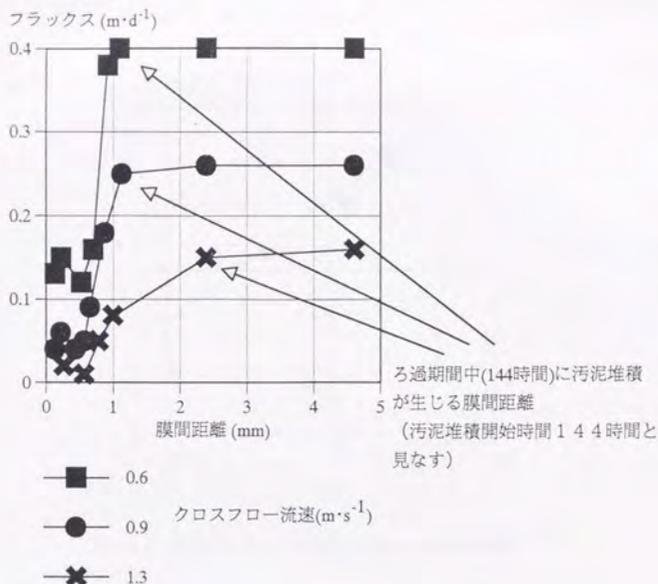


図-4.4.1  
汚泥堆積が生じ始める膜間距離(Wong(1992)に基づき計算)

の値(図-4.3.6)を用いた。ただし、Wongの結果に当てはめる際は、クロスフロー流速が各々異なるので、 $u/U$ が一定であると仮定して $u'$ を求めた。

Wongの実験の場合、用いた膜系は10本であり、本研究とは異なり膜間領域でも流速等が低下している可能性があるが、膜系密度が極端に高い領域以外では、ある程度ここに示したパラメータの関係が成立していると考えられ、図-4.1.14で示されているフラックスが低下し始める領域(膜間距離1-2mm)の範囲であればこれらのパラメータを使うことは有効であると考えられる。

図-4.4.2にその結果を示した。またこの傾きから回帰した $n (=1.3)$ を用いて $\tau^{1.3} \cdot (D/u)$ とフラックスとの関係を図-4.4.3に示した。 $\tau^{1.3} \cdot (D/u)$ を指標として用いることで、クロスフローに依存して異なる、ある膜間距離におけるフラックスの減少を統一的に説明することがある程度可能であることが分かる。

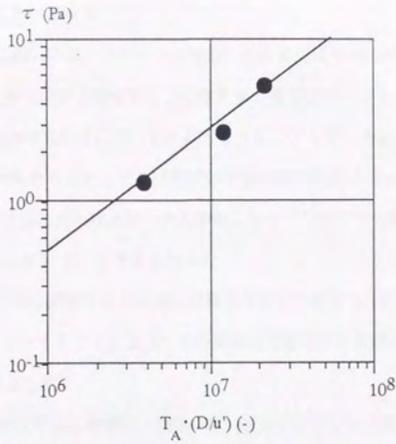


図-4.4.2  $T_A \cdot (D/u)$ と $\tau$  (Wongら(1991)に基づき計算)

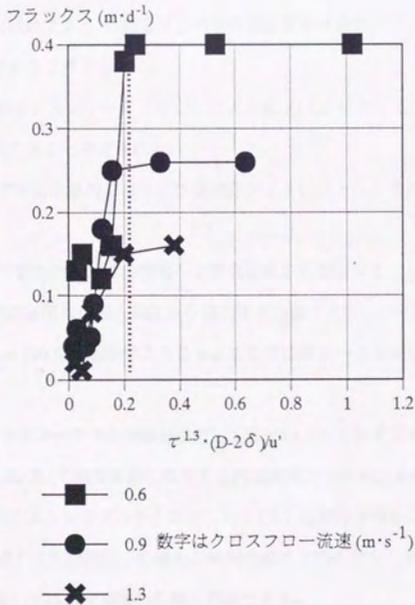


図-4.4.3  $\tau^{1.3} \cdot (D-2\delta) / u'$ とフラックス(Wongら(1992)に基づき計算)

## (2) フロックの膜間領域の挙動のシミュレーションに基づく汚泥堆積開始時間の解析

### a) フロックのバルク中における挙動

平膜でおこなった考察においては、フロックの挙動における膜間領域の相対的な広さが汚泥堆積開始時間に影響を与えるのではないかと考察した。中空糸膜の場合においても、Wongらの結果への当てはめによって、この考え方が中空糸膜に対しても敷衍しうることを示した。

膜間の水理学的な状態が変わらないとすれば汚泥の挙動は膜間距離によって変わることはない。しかし変わらないということは逆に見ればフロックの挙動にとっての相対的な膜間領域の広さは膜間距離が変わることによって変わっている、と考えられる。

そこでフロックのバルク中の流動状況と膜面との相互作用が重要であるのであれば、バルク中でのフロックの挙動をシミュレートすることによっても汚泥堆積開始時間の膜間距離依存性を考察することが可能なのではないかと考えられる。

この場合の中空糸膜において汚泥堆積開始時間の違いを生じさせている膜間領域は、フローチャンネルの中の一部を占めるに過ぎず、膜間領域全体を知ることによって値が決定される平膜の場合の式(3.11)をそのまま中空糸膜の場合に当てはめるのはやや難しい面もある。一方中空糸膜の場合は流れの状態は気泡流より単純な流れであり、問題とするべき汚泥の挙動を直接シミュレーションすることにより追跡することが可能であると考えられる。

即ち、フロックの挙動をシミュレートすることにより式(3.11)における、 $(D-2\delta)/w'$ に相当する指標を導き出すことが可能であると考えられる。

そこで以下の節でまず中空糸膜のフロックの挙動をシミュレートし、それに基づき汚泥堆積開始時間への影響を考察する。

膜面へのフロックの付着をフロックの膜面への衝突現象から説明することを試みる。それらに類する試みとしては、懸濁物の膜面への進入角度から説明する方法(長岡、1991)や、膜面への衝突回数から説明する方法(Schmitz, 1990)などが考えられる。ここでは膜面への衝突回数から説明する方法を用いて考察する。

まず汚泥粒子のクロスフロー中での挙動を記述し(図-4.4.4)、その粒子の膜系への衝突分布について調べる。そしてそれに基づいて膜間距離に依存する汚泥堆積開始時間の違いを考察する。汚泥粒子の膜系への衝突分布は、次のようなモデルから導出した：(1)汚泥粒子は独立に運動し各粒子は流体の乱れと運動して動く。(2)また汚泥粒子の膜面の衝突の際は弾性衝突をし運動量を失わない。(3)汚泥粒子の運動の記述に際しては粘性底層の影響を無視できる。

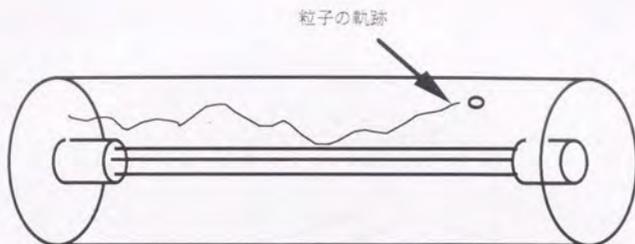


図-4.4.4 クロスフロー中における粒子の軌跡

水理条件に関しては次のように定めた：変動のLagrange自己相関は凍結乱流の仮定に基づきEuler自己相関から記述し、管路中心付近での現象を追うことになるので（図-4.3.8）、乱れは一様、等方的であると見なす。膜系近傍では膜系による壁面の粘性底層の影響が考えられるが、膜系の壁面の占める割合は、円管の壁面と比較すると1/100程度であり、その影響は膜面のごく近傍を除いては無視できると考えている。

これらから、粒子の移動距離の分散は、

$$\overline{d^2(\Delta t)} = \overline{\left( U\Delta t - \int_0^{\Delta t} u(\tau) d\tau \right)^2} \quad (4.7)$$

と表される。

ここに、

$d^2$ ：粒子の移動距離の分散 [m<sup>2</sup>]、 $U$ ：平均流速 [m・s<sup>-1</sup>]、 $u$ ：瞬時流速 [m・s<sup>-1</sup>]、 $\Delta t$ ：時間ステップ [s]、 $u'$ ：乱れ強度 [m・s<sup>-1</sup>]、 $R_L(t)$ ：ラグ $t$ における速度変動の自己相関係数 [-] である。 $u'$ および $R_L(t)$ は図-4.3.6に示した測定結果から導出される。

汚泥粒子が乱れと連動して動くことの妥当性は汚泥の粒径と乱れのスケールとの比較で判断できる。汚泥の粒径は40  $\mu$ mである。乱れの渦の代表スケールであるTaylor scaleは数百  $\mu$ mであり（付録参照）、汚泥粒子の大きさは乱れスケールと比較して十分小さく、汚泥粒子が流体と連動して動くことができる。

これらの仮定に基づき、図-4.4.5に示したように相関の及ぶ範囲の時間ステップを選んでステップごとの粒子の動きを与えた。

これら粒子の挙動に関する仮定を用いて汚泥粒子の膜面への衝突頻度と膜間距離との関係を調べた。

図-4.4.6に膜間距離と、衝突頻度（膜系への衝突回数/総粒子数）との関係を示した。衝突頻度は

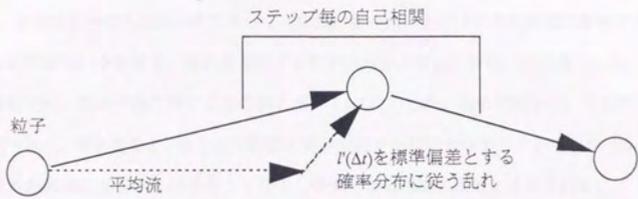


図-4.4.5 汚泥粒子の挙動の決定

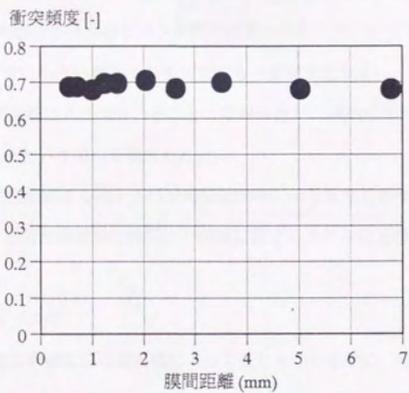


図-4.4.6 粒子が膜系に衝突する頻度  
(膜系への衝突回数/総粒子数)

膜間距離によらず一定である。流速分布が膜間距離によらず一様とした場合、このモデル中の粒子の衝突頻度も一定であることが分かる。衝突頻度の差によっては膜間距離によって汚泥堆積開始時間が異なることを説明できない。

そこで、衝突頻度そのものが一定であっても膜間距離が短いときは何度も膜面に衝突する粒子の数が増加するのではないかと考え、複数回衝突する粒子の数をカウントした。その例として、3, 4, 5回以上衝突する粒子の、総粒子数に対する比の例を図-4.4.7に示した。他の回数を用いて整理しても同様の傾向が見られた。図を見ると、ある膜間距離の範囲ではその個数が増加しているのが分かる。これは膜系に囲まれた領域に存在する粒子がより衝突しやすくなるためであると考えられる。

衝突頻度は膜間距離に依存しないが、膜間距離が小さくなることで膜系に囲まれた領域は膜系によってより閉じられた領域となり、同じ粒子が複数回衝突しやすくなる。一方膜系配置の偏りによって、より膜系からの距離が遠い、衝突に関与しにくい粒子の数が増加し、それらの粒子と衝突しやすい粒子の数との釣り合いによって全体としての衝突頻度は一定に保たれる。膜間距離が非常に小さいときに複数回衝突する粒子の数が減少するのは、膜系に囲まれた領域が非常に小さくなりその中の粒子そのものの数が非常に少なくなるため、複数回衝突する粒子数も減少するものと考えられる。また、より衝突回数が多い粒子の場合、その衝突頻度の分布のピークは膜間距離の小さい方にシフトし、その回数の釣り合いによって、膜間距離が非常に小さい領域での衝突頻度も一定に保たれる。

衝突頻度そのものは膜間距離によって変わることはなかったが、複数回衝突する粒子の個数は膜間距離が短いところで増加するという傾向を見出した。

そこでこれら膜面に複数回衝突する粒子が汚泥堆積開始時間の差を生じさせるのではないかと考え、複数回膜面に衝突する粒子と汚泥堆積開始時間との関係に関するモデル化を行った。

#### b) 汚泥堆積開始時間のモデル化

前節の計算結果から、総衝突頻度は膜間距離によって変わらないものの、複数回衝突する粒子の個数は膜間距離によって変わり、山なりの変化をすることが分かった。そこでこの違いが汚泥堆積開始時間の違いに反映されていると考え、汚泥堆積開始時間に関してさらに以下の3つの仮定をおいた。

(1) 膜面に複数回衝突する粒子は、その一部は膜面との接触で運動量を有意に失う結果として膜面に付着をする。

(2) 剥離頻度(初期状態における可能最大値)は水理条件(クロスフロー流速)一定のもとでは一定とする。

(3) 付着した汚泥粒子が、膜表面を薄く覆うことで膜面の性状が変化し汚泥粒子が非常に付着しや

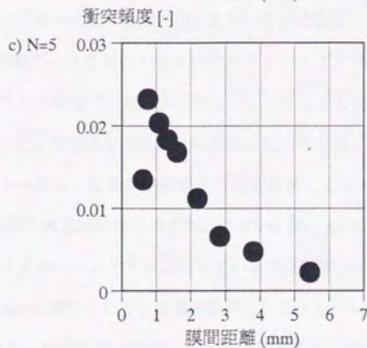
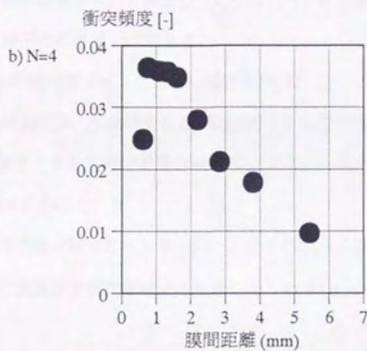
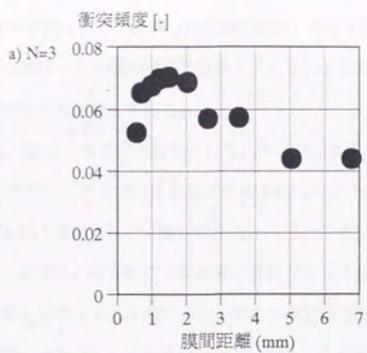


図-4.4.7 粒子が膜系に複数回衝突する頻度の例  
(N=3,4,5の場合)

すくなることで、汚泥堆積の進行が開始される。

膜面に付着を起こす粒子数は前節で計算した複数回衝突する粒子数に一定の比率を掛けて得られる。前節のモデルでは粒子は膜面への接触の際に運動量を失わないと仮定し、一方ここでは付着は運動量を失う結果起きるとしており一見矛盾している。

この点に関しては以下のような仮定を前提としているからである：

濾過はクロスフローで行っており膜面に接触する粒子数は膨大である。そして、ほとんどの粒子は膜面に複数回接触しても失う運動量はごく僅かである。一方、ごくわずかの、流速分布の裾野にあたるもともと運動量の少ない粒子は、相対的により有意に運動量を失う結果として付着を起こす。しかし、運動量を失う割合は全体と比較すると非常に少なく衝突分布にはほとんど影響を与えない。それゆえ複数回衝突分布は弾性衝突の仮定から出る衝突分布にほぼ従う。また複数回衝突する粒子に対する、運動量を失い付着をおこす粒子の比率は一定である。

衝突頻度と汚泥堆積開始時間は以下のような関係を持つ。

衝突頻度は C、付着係数を A、剥離頻度を D、流路断面を単位時間に通過する総粒子数を N、粒子一個の体積を  $v$ 、膜面を覆うときの汚泥付着層体積を V とすると、汚泥堆積開始時間 T は、

$$V = Nv (AC - D) T \quad (4.8)$$

から求められる。汚泥堆積が開始されるきっかけとなるのは汚泥粒子がちょうど膜面を単層相当覆った時とし、そのときの付着層厚さは汚泥粒子の粒径に等しい  $40 \mu\text{m}$  として汚泥付着層堆積 V を計算した。

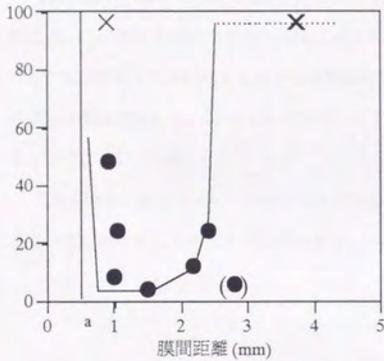
図-4.4.8 に図-4.4.7の結果に基づき式(4.8)を用い汚泥堆積開始時間を計算した結果を示した。膜間距離が 1.5~2.5mm の実験データを用いパラメータフィッティングを行い、膜間距離が 1.0mm で急に汚泥堆積開始時間が大きくなる領域で、実測値とシミュレーションとの適合性を見た。その結果、最も実験結果と適合性のよかった、3回以上衝突する粒子数を用いて計算した結果を示した。複数回の衝突分布に基づく数値シミュレーションは実験結果をある程度再現しうるものであることが分かる。

膜間距離が小さい領域では実験結果とのずれが大きい。図-4.4.8は粒子が膜系に3回以上衝突する頻度の分布を用いてシミュレーションをおこなっているが、衝突回数をかえてシミュレーションをおこなっても膜間距離が 1.0mm 近傍のところでは実験結果とシミュレーションをこれ以上適合させることはできなかった(図-4.4.9)。膜間距離が非常に小さくなると膜系に囲まれた領域における境界層などの影響が無視し得なくなるため(境界領域は  $D \cdot 2\delta$  のみならず  $u'$  にも影響を与えるであろう)、境界層の存在を無視している本シミュレーションでは実験値とのずれが生じているのではないかと推測される。



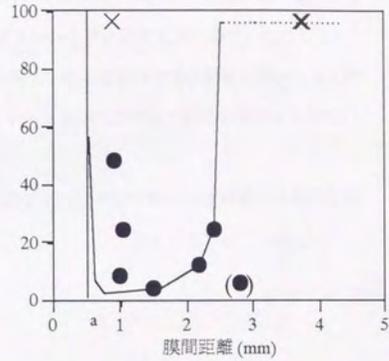
a) N=4の場合

汚泥堆積開始時間 (hr)



b) N=5の場合

汚泥堆積開始時間 (hr)



● 実験結果  
×

— ..... シミュレーション結果

..... 濾過時間内 (96時間) に堆積を起  
こさないと考えられる領域

濾過実験に置いて堆積を起  
こさなかった実験結果

aの縦線は通常の意味での膜間距離が0に相当する

図-4.4.9 汚泥堆積開始時間の実験値とシミュレーションの比較 (N=4, 5の場合)

c) 式 (3.11) との関連性に関する考察

本節においては、中空糸膜を用いたろ過に関して、粒子の挙動のシミュレーションに基づく汚泥堆積開始時間に関するモデル化を試み、ある程度の実験値との一致を見いだすことができた。平膜を用いたろ過においては、粒子の挙動が汚泥堆積開始時間に関与しているのではないかと考え式 (3.11) で表される評価指標を導入した。

せん断力が一定の条件下では、バルク側の空間の広さに対する粒子の移動の相対的な幅が増加すれば式 (3.11) における汚泥堆積開始時間は減少する。本シミュレーションの考え方に基づいたとしても、バルク側の空間の広さに対する粒子の移動の相対的な幅が増加すれば複数回の衝突頻度が増加し汚泥堆積開始時間は減少する。式 (3.11) のモデル式と本シミュレーションはその点で同様の構造をもっているといえることができる。

これらから、本シミュレーションのモデルの構造が、式 (3.11) に対して粒子の運動論的な解釈を与えているものであると考えることができる。

#### 4.5 本章のまとめ

本章では中空糸膜を用いた単相クロスフローろ過における汚泥堆積過程を調べた。

汚泥堆積過程を記述する因子として平衡汚泥堆積量、汚泥堆積速度、汚泥堆積開始時間を見出した。

平衡汚泥堆積量はクロスフロー流速に依存し、濃度に依存しなかった。これは平衡汚泥堆積量がせん断力に依存していることを示すと考えられる。

汚泥堆積開始時間は膜間距離及に依存した。汚泥堆積開始時間の膜間距離依存性は、平膜を用いた曝気流中のろ過における傾向とも共通した。そこで平膜において得られた、汚泥堆積開始時間を記述す

る関係式 (3.11):  $\frac{T_A}{D/u} = k_s \cdot r^n$  への適用をおこない、この式によって中空糸膜の場合でも汚泥堆積開始時間を説明することができることを示した。また、粒子の挙動を直接シミュレートすることで汚泥堆積開始時間を説明するモデルを提案した。このモデルの構造が式 (3.11) に対して粒子の運動論的な解釈を与えるものであると考えられる。

## 第 5 章

## 結論

本研究で得られた知見をまとめると以下のようになる。

平膜および中空糸膜を用いたろ過において汚泥堆積過程を調べた。以下、得られた結果を章ごとに示す。

第3章では平膜を用いた曝気流および懸濁液クロスフロー流条件下でのろ過における汚泥堆積過程を調べた。

3.1節では、気泡流条件下で、懸濁液濃度、クロスフロー流速、膜間距離を変えてろ過実験をおこない、水理学的な側面から汚泥堆積過程に影響を与える因子に関する考察をおこなった。

それにより得られた結果は、

- ・汚泥堆積過程について詳細に解析することを目的として、汚泥堆積過程を記述する主要な因子として平衡汚泥堆積量、汚泥堆積速度、汚泥堆積開始時間という3つの因子を見出した。

- ・平衡汚泥堆積量は、曝気線速度と負の相関を示した。また膜間距離が異なっても曝気線速度が等しければ概ね汚泥堆積量も等しく、膜間距離に対する依存性は見出されなかった。

汚泥堆積量は膜面のせん断力によって決まると考えられた。

また、平衡汚泥堆積量はMLSSに対しては依存性を示さなかった。

- ・汚泥堆積速度も、曝気線速度に対して負の相関を示し、また、膜間距離に対しては依存性を持っていないと考えられた。またMLSSに対しても依存性を示さなかった。

- ・汚泥堆積開始時間は曝気線速度と膜間距離の両方に依存する。膜間距離が短くなると汚泥堆積開始時間は短くなる。汚泥堆積開始時間が膜間距離に依存するのは、ブロックの膜面に向かう方向の移動度に対して膜間距離が相対的に短くなり、ブロックの膜面への接触機会が増加し、そのために汚泥堆積開始時間が短くなると考え、式(3.11)によって整理した。式(3.11)によって膜間距離によらない一定の関係が見出され、式(3.11)によって膜間距離の影響を相殺することは妥当であると考えられた。

3.2節では懸濁液流条件下で、懸濁液濃度、クロスフロー流速、膜間距離を変えてろ過実験をおこないそれに基づき水理学的な考察を行い、また曝気流の実験結果との比較をおこなった。

本実験条件下では膜面には層流境界層が形成されているものと考えられた。また含水率の高い、緩い堆積がクロスフロー流速 $0.5\text{--}1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ の範囲でしばしば生じた。これは流れの状態が層流境界層から遷移状態へと遷移し、それが原因でせん断力の低下する領域が形成されたため生じたのではないかと推測された。また、層流境界層が形成されているとみなし、懸濁液流のせん断力を計算することによって、懸濁液流、曝気流ともにせん断力を指標とすることで平衡汚泥堆積量を統一的に説明できることがわかった。

またクロスフローの流下に沿った汚泥堆積量の分布に基づく考察からも膜面には層流境界層—遷移層が形成されていると考えられた。

平膜を用いたクロスフローろ過では、層流境界層の発達によって膜面に汚泥堆積量の分布が生じる。また、下流部に行くに従い層流境界層から遷移層へと遷移し、その遷移層内に非常に緩い汚泥堆積を生じさ

せやすい水理学的状況が生じ、そのため下流部には緩い堆積が生じる可能性があるといえる。

3.3節では、これらの結果に基づいて、平膜を用いたろ過において、ろ過効率に関する考察をおこなった。

曝気流下におけるろ過においては膜間距離を短くした方がろ過効率は上昇する。

懸濁液クロスフロー流下におけるろ過においては、平膜を流下方向にセグメントに分断し、境界層の発達を抑制することによって汚泥堆積量を少なくすることで、ろ過の効率を上げることが可能であることを示した。

それらの結果に基づいて、間欠曝気条件下におけるろ過においても、曝気中のみにろ過をおこなうよりも、平膜をセグメントに分断し連続ろ過をおこなうことによつてろ過効率を上げられる可能性があることを示した。

第5章では中空糸膜を用いた懸濁液クロスフローろ過における汚泥堆積過程を調べた。

平衡汚泥堆積量はクロスフロー流速に依存し、濃度に依存しなかった。これは平衡汚泥堆積量が、平膜の場合と同様せん断力に依存していることを示しているものと考えられる。

汚泥堆積開始時間は膜間距離への依存性を示した。汚泥堆積開始時間の膜間距離依存性は、平膜を用いた曝気流中のろ過における傾向とも共通した。そこで平膜において得られた、汚泥堆積開始時間を記述する関係式(3.11):  $\frac{T_i}{D/u'} = k_p \cdot r^m$  への適用をおこない、この式によって中空糸膜の場合でも汚泥堆積開始時間を説明することができることを示した。また、粒子の挙動を直接シミュレートすることで汚泥堆積開始時間を説明するモデルを提案した。この粒子の挙動に関するモデルの構造が式(3.11)に対して粒子の運動論的な解釈を与えるものであると考えられる。

以上のように、平膜および中空糸膜という、形態の大きく異なる膜を用いたろ過において、膜の配置が水理学的状況に対して及ぼす影響と、それが汚泥堆積過程に対して及ぼす影響についてある程度統合的な知見を得ることが出来た。

ここで得られた汚泥堆積過程の水理学的な諸因子に対する依存性に関する基本的な考え方は本研究で用いた膜以外の様々な膜モジュールやろ過形態に対しても適用可能であると考えられる。

## 第6章

# 今後の展望

本研究は中空糸膜と平膜の汚泥堆積に関する総合的な解析を目指すものであるが、中空糸膜を用いた曝気流中のろ過は本研究の対象外であり、そのため、中空糸膜と平膜とでどちらがすぐれているのかという形での評価には至らなかった。その意味では中空糸膜を用いた曝気流中のろ過における汚泥の堆積過程を調べ、それに基づいた中空糸膜と平膜との総合的な比較をおこなうことによって、本研究はより完全なものになるともいえる。

また、本研究は汚泥の膜面への付着現象を支配する因子として水理学的因子に焦点を絞って調べたものである。

そのため汚泥堆積に与える影響の微生物学的な側面は取り扱いの対象外であった。汚泥を長期間馴致し、微生物学的な因子は一定という仮定の下実験をおこなっていった訳であるが、屢々それらの因子が変わったために現象が大きな影響を受けたのではないかと考えられる局面が発生した。例えば、第4章の実験において、4.1.1の実験では $0.53\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ で汚泥堆積を見出したのに4.1.2では同じクロスフロー流速で殆ど汚泥の堆積を生じなかった。これらの現象は汚泥の付着性に影響を及ぼす因子として、微生物学的な因子の重要性を改めて確認するものであった。

汚泥の性状を表す様々な因子のうち、どのような因子が汚泥の付着性を表しうる因子となるのかは、その意味で大変興味深く、また、重要なテーマであり、既に多くの研究が存在する。しかし未だ統一した見解が確立されているとは言いがたい。こちらの方面に対しても今後の研究の更なる発展を期待したい。

## 謝辞

卒業研究以来5年間以上に渡り指導していただいた東京大学都市工学科の山本和夫教授にまず感謝いたします。

また、研究会などの場で私の研究に関して助言して下さった大垣眞一郎教授、北脇秀俊客員助教授（現東洋大学教授）、滝沢智助教授、神子直之博士（現横浜国大講師）、大瀧雅寛博士、浦瀬太郎博士に感謝致します。

研究の方向性をしばしば見失いそうになるのをこれらの方々の常なる適切かつ鋭い指摘のおかげでその道を得て来たような気がします。

また、東京大学都市工学科のスタッフ、諸先輩や同輩、後輩にはいろいろお世話になりました。特に同期の中島典之さん、桜井健郎さん、西田継さん、張博再さんにはいろいろとお世話になり、またすぐれたライバルとして刺激を受けてきました。

本当にどうもありがとうございました。

付録

① Taylor scale の導出

Taylor scale は、

$$\lambda_T = \sqrt{30 \frac{\nu u'^2}{\varepsilon}} \quad (1)$$

と表される。ここに  $\lambda_T$ : Taylor scale [m],  $\nu$ : 動粘性係数 [ $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ],  $u'$ : 乱れ強度 [ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ],  $\varepsilon$ : 乱れエネルギー散逸 [ $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-3}$ ], である。また、 $\varepsilon$  は円管流においては

$$\varepsilon = gUI = f \frac{U^3}{2D} \quad (2)$$

と表される。ただし、 $g$ : 重力加速度 [ $\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$ ],  $U$ : 平均流速 [ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ],  $I$ : エネルギー勾配 [-],  $f$ : 摩擦損失係数 [-],  $D$ : 管径 [m] である。式 (1), 式 (2) より  $\lambda_T$  が求められる。自己相関係数は熱線流速計による測定によって膜モジュールのヘッド部の有無ではほとんど変わらなかった。そこで、Taylor scale はモジュールの存在の有無にかかわらず一定であると考えヘッド部が存在しない円管流の測定結果から導出し、 $\lambda_T = 1.2 \times 10^{-4}$  [m] という結果を得た。これより Taylor scale は数百  $\mu\text{m}$  のオーダーであることが分かる。

② 膜表面の剪断応力の評価

膜表面の剪断応力は、円管壁面の剪断応力に等しいとして計算する。

すると剪断応力は乱れエネルギー散逸を用いて表すと、

$$\tau_s = \frac{1}{8} f \rho U = \frac{\rho D}{4} \frac{\varepsilon_m}{U} \quad (3)$$

となる。ただし  $\tau_s$ : 剪断応力 [Pa],  $\varepsilon_m$ : ヘッド部が存在する場合の乱れエネルギー散逸 [ $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-3}$ ] である。 $\varepsilon_m$  はヘッド部の存在によって異なると考えられ直接式 (2) から導出することはできない。そこで Taylor scale はヘッド部の存在によらず一定であることを用いて  $\varepsilon_m$  を導出する。Taylor scale 一定より、

$$\frac{\lambda_{Tm}}{\lambda_T} = \sqrt{\frac{\varepsilon}{\varepsilon_m}} \sqrt{\frac{u_m'^2}{u'^2}} = 1 \quad (4)$$

となる。 $\lambda_{Tm}$ : 膜モジュールを設定した場合の Taylor scale [m],  $\varepsilon_m$  および  $u_m'$  は膜モジュールを設定している場合の乱れエネルギー散逸および乱れ強度である。 $u_m'$  および  $u'$  は実験により既知であるので式 (4) より  $\varepsilon_m$  を定めることができる。

こうして求められた  $\varepsilon_m$  を式 (4.4) に代入してせん断応力を求めると、 $\tau_s = 2 \times 10^4$  [Pa] となった。

③膜表面の粘性底層厚さの評価

粘性底層厚さは

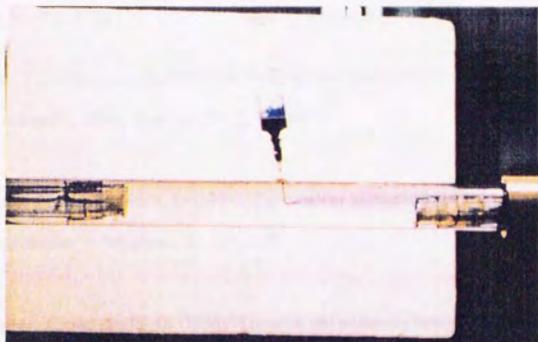
$$\delta = 11.6 \frac{\nu}{u_*} \quad (5)$$

となる。ただし $\delta$  : 粘性底層厚さ [m]、 $\nu$  : 動粘性係数 [ $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ]、 $u_*$  : 摩擦速度 [ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ] である。  
 $u_*$ は

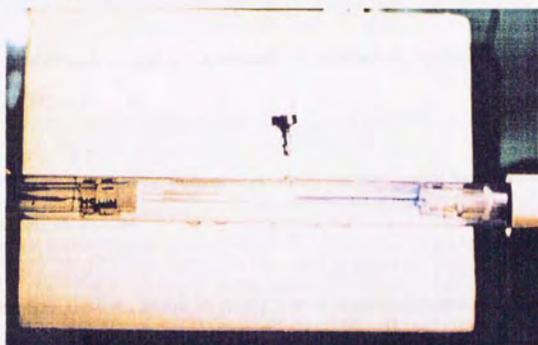
$$u_* = \sqrt{\frac{\tau_b}{\rho}} \quad (6)$$

である。ただし $\rho$  : 懸濁液密度 [ $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ] である。また、 $\tau_b$ は式(3)から計算できる。  
これより $\delta$ を計算すると、 $\delta = 0.09 \sim 0.1 \text{ mm}$ となる。

a) 膜糸を設定しない場合



b) 膜間距離1.5mm



c) 膜間距離 4.3mm

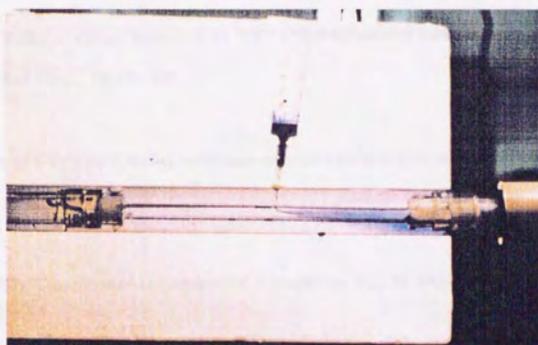


写真1 トレーサー実験

## 参考文献

英語 (アルファベット順)

Akita, K., Okazaki, T. and Koyama, H. (1988): "Gas hold-ups and friction factors of gas-liquid two-phase flow in an air-lift bubble column" *J. Chem. Eng. Jpn.*, 21, 5, 476-482

Belfort, G., Davis, R. H. and Zydney, A. L. (1994): "The behavior of suspensions and macromolecular solutions in crossflow microfiltration" *J. Membrane Sci.*, 96, 1-58

Boyaval, P., Lavenant, C. and Daufin, G. (1996): "Transient and stationary operating conditions on performance of lactic acid bacteria crossflow microfiltration" *Biotechnol. Bioeng.*, 49, 1, 78-86

Chudacek, M. W. and Fane, A. G. (1984): "The dynamics of polarisation in unstirred and stirred ultrafiltration" *J. Membrane Sci.*, 21, 145-160

Davis, R. H. and Birdsel, S. A. (1987): "Hydrodynamic model and experiments for crossflow microfiltration" *Chem. Eng. Commun.*, 49, 217-234

Drew, D. A., Schonberg, and J. A., Belfort, G. (1991): "Lateral inertial migration of a small sphere in fast laminar flow through a membrane duct" *Chem. Eng. Sci.*, 46, 3219-3224

Eckstein, E. C., Bailey, P. G. and Shapiro, A. H. (1977): "Self-diffusion of particles in shear flow of a suspension" *J. Fluid Mech.*, 79, 191-208

Fakhru'l-Razi, A. (1994): "Ultrafiltration membrane separation for anaerobic wastewater treatment" *Wat. Sci. Tech.*, 30, 12, 321-327

Fane, A. G. (1984): "Ultrafiltration of suspensions" *J. Membrane Sci.*, 20, 249-259

Foley, G., Malone, D. M. and MacLoughlin, F. (1995): "Modelling the effects of particle polydispersity in crossflow filtration", *J. Membrane Sci.* 99, 77-88

- Green, G. and Belfort, G. (1980): "Fouling of ultrafiltration membranes: lateral migration and the particle trajectory model" *Desalination*, 35, 129-147
- Iritani, E., Hattori, K. and Murase, T. (1994): "Evaluation of dead-end ultrafiltration properties by ultracentrifugation method" *J. Chem. Eng. Japan* 27, 3, 357-362
- Kim, K. J., Chen, V. and Fane, A. G. (1994): "Characterization of clean and fouled membrane using metal colloids" *J. Membrane Sci.* 88 93-101
- Krauth, K. and Staab, K. F. (1993): "Pressurized bioreactor with membrane filtration for wastewater treatment" *Wat. Res.*, 27, 3, 405-411
- Laufer, J. (1950): "Investigation of turbulent flow in a two-dimensional channel", NACA TN. No. 2123
- Leonard, E. F. and Vassilieff, C. S. (1984): "The deposition of rejected matter in membrane separation processes" *Chem. Eng. Commun.*, 30, 209-217
- Levine, A. D., Tchobanoglous, G., Asano, T. (1985): "Characterization of the size distribution of contaminants in wastewater: treatment and reuse implications" *J. WPCF*, 57, 7, 805-816
- Lu, W. M. and Ju, S. C. (1989): "Selective particle deposition in crossflow filtration" *Sep. Sci. Tech.*, 24, 512-540
- Lubbecke, S., Vogelpohl, A. and Dewjanin, W. (1995): "Wastewater treatment in a biological high-performance system with high biomass concentration" *Wat. Res.*, 29, 3, 793-802
- Matsuyama, H., Shimomura, T. and Teramoto, M. (1994): "Formation characteristics of dynamic membrane for ultrafiltration of protein in binary protein system" *J. Membrane Sci.* 92, 107-115
- Muller, E. B., Stouthamer, A. H., Van Verseveld, H. W. and Eikelboom, D. H. (1995): "Aerobic domestic waste

water treatment in a pilot plant with complete sludge retention by cross-flow filtration" *Wat. Res.*, 29, 4, 1179-1189

Otis, J. R., Altena, F.W. and Belfort, G. (1986): "Measurements of single spherical particle trajectories with lateral migration in a slit with one porous wall under laminar conditions" *Exp. in Fluids*, 4, 1-10

Peeble, F. K. and Garber, H. J. (1953): "Studies on the motion of gas bubble in liquid" *Chem. Eng. Prog.*, 49, 2, 88-97

Porter, M. C. (1972): "Concentration polarization with membrane ultrafiltration" *Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Develop.*, 11, 3, 234-248

Redkar, S. and Davis, R. H. (1993): "Crossflow microfiltration of yeast suspensions in tubular filters" *Biotechnol. Prog.*, 9, 625-634

Schmitz, P. and Houi, D. (1990): "Statistical model of particle accumulation on a membrane during a cross-flow microfiltration operation", *I. C. O. M '90*, 767-769

Shimizu, Y., Shimodera, K. and Watanabe, A. (1993): "Cross-flow microfiltration of bacterial cells" *J. Fermentation Bioeng.*, 76, 493-500

Stamatakis, K. and Tien, C. (1993): "a simple model of crossflow filtration based on particle adhesion" *AIChE J.*, 39, 1293-1302

Tanaka, T., Abe, K., Asakawa, H., Yoshida, H. and Nakanishi, K. (1994a): "Filtration characteristics and structure of cake in crossflow filtration of bacterial suspension" *J. Fermentation Bioeng.* 78, 6, 455-461

Tanaka, T., Kamimura, R., Fujiwara, R. and Nakanishi, K. (1994b): "Crossflow filtration of yeast broth cultivated in molasses" *Biotech. and Bioeng.*, 43, 11, 1094-1101

Theofanous, T. G., Sullivan, J. (1982): "Turbulence in two-phase dispersed flows" *J. Fluid Mech.*, 116, 343-362

Trettin, D. R. and Doshi, M. R. (1980): "Limiting flux in ultrafiltration of macromolecular solutions" Chem. Eng. Commun., 4, 507-522

Welsh, K., McDonough, R. M., Fane, A. G., and Fell, C. J. D. (1995): "Calculation of limiting fluxes in the ultrafiltration of colloids and fine particulates" J. Membrane Sci. 99, 229-239

Wong, Y. K., Yamamoto, K. and Ohgaki, S. (1992): "Optimal fiber spacing in externally pressurized hollow fiber module for solid liquid separation" Wat. Sci. Tech. 26, 5-6, 1245-1254

Yamamoto, K. and Win, K. H. (1991): "Tannery wastewater treatment using sequencing batch membrane reactor" Wat. Sci. Tech., 23, 1639-1648

Yamamoto, K. Hiasa, M and Matuso, T. (1989): "Direct solid-liquid separation using hollow fiber membrane in an activated sludge aeration tank", 21, 43-54

Zydney, a. L. and Colton, C. K. (1986): "A concentration polarization model of the filtrate flux in cross-flow microfiltration of particulate suspensions" Chem. Eng. Commun., 47, 1-21

## 日本語 (50音順)

青井透 (1995): "サイフォン吸引式浸漬平膜装置の合併処理施設での長期処理実験", 環境工学フォーラム講演集, 31, 21-23

新井一仁、長岡裕 (1995): "直接浸漬型膜分離活性汚泥法におけるモジュール形態及び吸引サイクルの評価", 水環境学会誌, 18, 4, 324-331

石田宏司、岩部秀樹、中野一郎、岸野宏 (1993): "浸漬型有機平膜を用いた硝化脱窒処理における処理特性と水温の影響", 第31回下水道研究発表会講演集, 449-451

上島健二、広川典夫、野島康弘、東谷公(1991):"粒子堆積時の規則構造性に関するシミュレーション"、化学工学秋季大会講演要旨集、24, 413

植田辰洋(1967):"気液混合物の垂直管内上昇流について(第1報)(第2報)"、機械学会論文集、33, 248, 601-610, 611-618,

大熊那夫紀(1994):"回転平膜モジュールの下・排水処理への適用"、ニューメンブレンテクノロジー94(日本膜学会), 4, 9-16

大熊那夫紀、奥野裕、青井透、真柄泰基(1993):"屎尿処理に用いた回転平膜装置の処理特性"、第30回環境工学研究フォーラム講演集、19-21

大熊那夫紀、奥野裕、青井透、真柄泰基(1993):"し尿処理に用いた回転平膜装置の処理特性"、環境工学フォーラム講演集、30, 19-21

岡庭良安、平山道明、萩原薫、大野茂(1994):"高負荷脱窒素膜分離方式によるし尿処理の実証的研究"、用水と廃水、36, 9, 780-787

尾崎博明(1995):"膜分離法の下・排水処理への適用"、水環境学会誌、18, 2, 79-84

川勝孝博、中尾真一、木村尚史(1993):"正方配列菱面体を仮想充填形式とした疑似三次元的等球粒子堆積シミュレーション"、化学工学論文集、19, 6, 1202-1205

国眼孝雄(1994):"総論 分離技術を支える膜"、化学装置、36, 6, 19-24

後藤光亀、平田強、牛尾修央、佐藤敦久(1994):"クロスフロー型限外ろ過膜法における凝集状態と透過流速に関する基礎研究"、環境工学研究論文集、31, 181-188

杉本泰治(1978):ろ過のメカニズム、地人書館

丹保憲仁、アン・レビーネ、林康一(1992):"中空糸UF膜による河川水の処理—札幌市豊平川における

評価一”、水道協会誌、61, 11, 19-26

中尾真一 (1995):”膜分離技術の現状と将来動向”、水環境学会誌、18, 4, 66-73

長岡裕、綾日出教、持田悦夫、屋井裕幸 (1993):”中空糸膜分離活性汚泥法の処理特性—膜モジュール、運転条件の相違による—”、第30回下水道研究発表会講演集、569-571

長岡秀男、入谷英司、村瀬敏朗 (1991):”粒径の異なる2成分系懸濁液の精密ろ過特性とケーキの堆積構造”、化学工学会年會講演要旨集、24,425

二村修、小島良三、竹内清 (1992):”膜分離一体型活性汚泥法による連続処理試験”、第29回下水道研究発表会講演集、435-437

長岡秀男、入谷英司、村瀬敏朗 (1991):”精密ろ過特性に及ぼすケーキ構造の影響”、化学工学会年會講演要旨集、56,419

中村育雄 (1992):乱流現象、朝倉書店

西村和之、河村清史、伊藤雅喜、真柄泰基 (1992):”膜分離プロセスにおける操作因子、液中成分の透過フラックスに及ぼす影響に関する基礎的研究”、衛生工学研究論文集、28, 113-124

西村和之、河村清史、真柄泰基 (1993):”活性汚泥懸濁液の膜分離における透過フラックスに関する研究”、環境工学研究論文集、29, 85-91

日笠勝 (1991):”平膜型UF装置を用いた排水処理”、化学装置、33, 10, 69-72

澁上善弘、山本和夫、浅見恵一、松尾友矩 (1987):”膜分離活性汚泥法の処理特性”、衛生工学研究論文集、23, 239-248

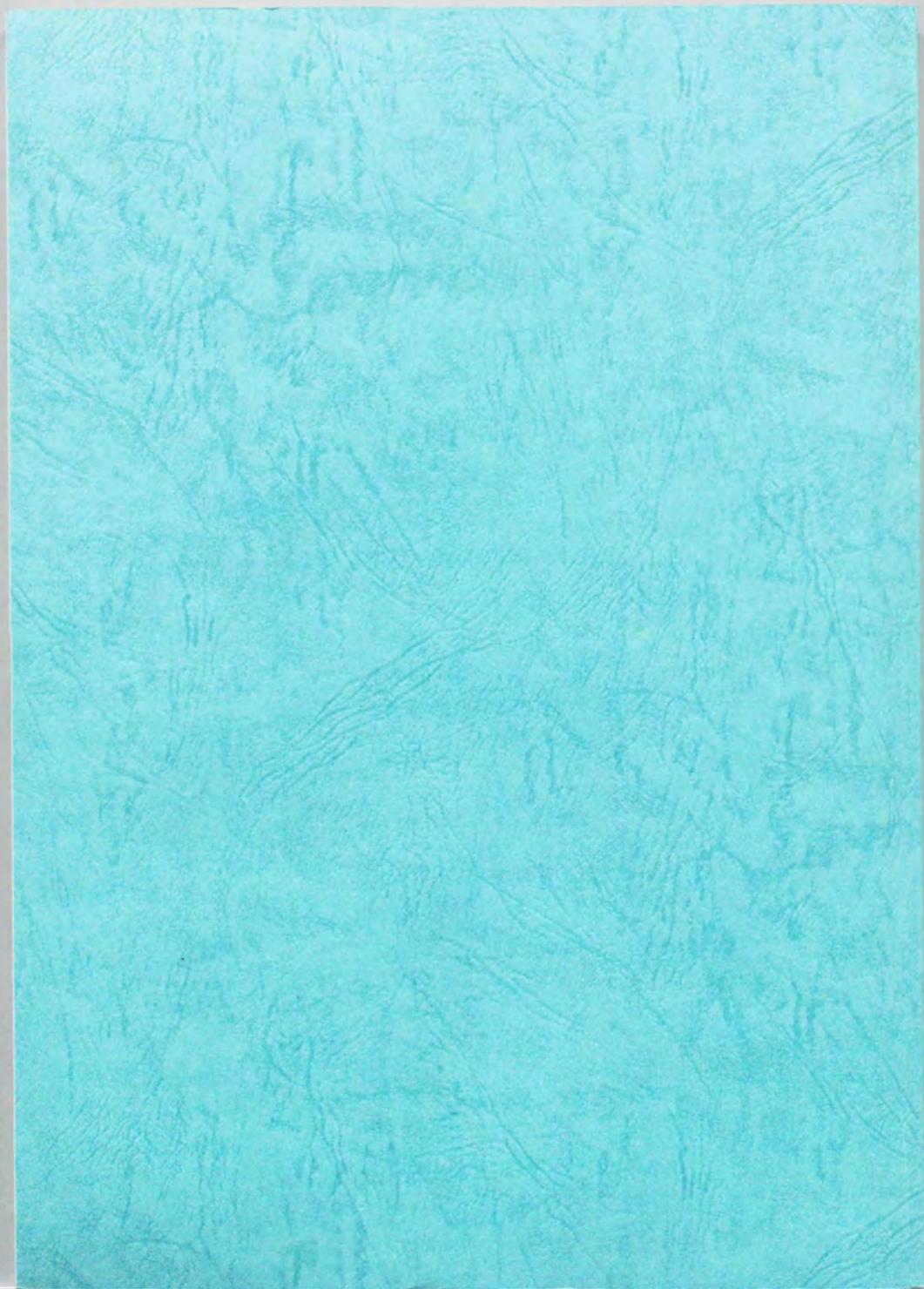
松本伸吾、松田恒男、鳴上善久、徳島幹治 (1993):”浸漬型セラミック膜分離を用いた活性汚泥排水処理システムの開発”、第30回環境工学研究フォーラム講演集、16-18

柳根勇、桃井清至、原田秀樹(1992):"管状限外ろ過膜における透過流速に影響を及ぼす成分について"  
、土木学会第47回年次学術講演会、47, 828-829

柳根勇、桃井清至、原田秀樹(1993):"管状限外ろ過膜における膜透過流速に影響を及ぼす因子に関する研究"  
、環境工学研究論文集、30, 303-310

柳根勇、桃井清至、原田秀樹(1995):"限外ろ過における膜面付着層形成に対する生物代謝成分の影響に関する研究"  
、環境工学論文集、32, 19-27

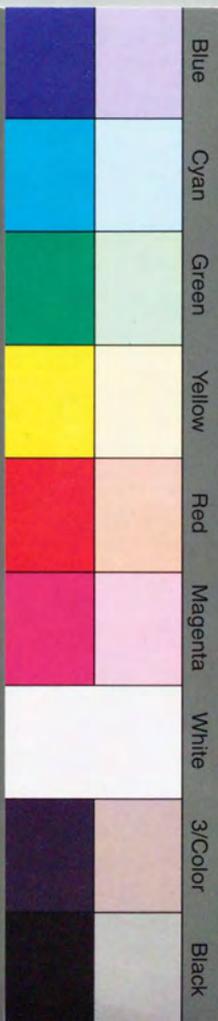
山本康次、奥村早代子、松田恒男、鳴上善久、吉崎健(1996):"浸漬型セラミック膜を用いた生活排水処理と膜汚染"  
、膜、21, 3, 205-213



inches  
1 2 3 4 5 6 7 8  
cm  
1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19

# Kodak Color Control Patches

© Kodak, 2007 TM, Kodak



# Kodak Gray Scale



© Kodak, 2007 TM, Kodak

A 1 2 3 4 5 6 M 8 9 10 11 12 13 14 15 B 17 18 19

