〈技術報告〉

濾過と吸着の機能を持つ複層膜による 溶存有機物を含有する微粒子懸濁液の分離特性

入 谷 英 司* 向 井 康 人* 小 田 敏 之*

Separation Properties of Particulate Suspension Containing Dissolved Organic Matter Due to Double Layer Membrane with Function of Filtration and Adsorption

Eiji IRITANI*, Yasuhito MUKAI* and Toshiyuki ODA*

* Department of Chemical Engineering, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8603 Japan

Abstract

Filtration experiments were conducted using the double layer membrane consisted of the microfiltration membrane and the activated carbon membrane. Such separation properties as the filtration rate and the rejection were examined using silicon dioxide suspensions containing phenol. The double layer membrane was found to be quite efficient for the separation of the particulate suspensions including the dissolved organic matter. The silicon dioxide particles were rejected by the sieve effects of the microfiltration membrane, whereas phenol was rejected by the adsorption effects of the activated carbon membrane. High phenol concentration caused the reduction of the phenol rejection as filtration proceeded. Although the filtration rate increased with the increase of the filtration pressure, the phenol rejection in the incipient stage of filtration became relatively small under high pressure conditions. It was also shown that the adsorption rate obtained in filtration experiments was significantly larger than that in static adsorption experiments.

Key words: filtration, adsorption, phenol, particle, membrane

1. はじめに

微粒子懸濁液の精密濾過は、各種の工業における生産プロセスから、廃液やスラッジの処理に至る広範な分野において利用されている。環境保全や資源の循環利用の観点からも、最近ますます重要となっており、特に濾過対象物の特性が濾過性能に及ぼす影響について、活発な研究が進められている¹⁻⁴⁾。

一般に実際の廃液やスラッジ中には微粒子だけでなく高分子や低分子の溶存有機物など、多種多様な物質が混在しているのが普通である。こうした混合系スラリーの精密濾過特性は最近研究が始められつつあるが^{5,6)}、この場合には、精密濾過操作のみによって分離を行うことが困難なことが多いばかりでなく、時にはこれらの混在物が膜のファウリングを引き起こす大きな要因となる場合もある^{7,8)}。このため、吸着、イオン交換、抽出等の他の分離操作を精密濾過操作と併用することが必要不可欠となり、分離プロセスは通常複数の過程に亘ることが多い。特に、濾過操作と吸着操作のハイブリッド化が浄水処理などを中心に最近注目され始めている^{9,10)}。効率的な分離

プロセスの確立のためには、複数の分離操作を複合化し、一体化して一つの装置内で行うことも有力な手段の一つとなり得るものと考えられる。

そこで本研究では、溶存有機物を含有する微粒子懸濁液の高度分離操作の確立のために、懸濁微粒子の捕捉除去が可能な精密濾過膜と低分子有機物の吸着分離が可能な活性炭成形膜を上下に重ね合わせたいわゆる濾過・吸着型複層膜を提案する。この複層膜を用いて、一例としてフェノールを含有する二酸化ケイ素の微粒子懸濁液の濾過を行い、濾過速度やフェノールの阻止率に及ぼす諸因子の影響を検討するとともに、活性炭成形膜による静吸着実験の結果と比較する。

2. 実験装置と実験方法

2.1 実験試料

試料には、低分子有機物としてフェノール（和光純薬工業(株)製）、懸濁微粒子として平均粒子径 $1.6\mu\text{m}$ の二酸化ケイ素（丸釜釜戸陶料(株)製、雪印 SP-3）を用いた。試料調製のための溶媒には、Milli-Q SP 超純水装置（ミリポア(株)製）で得られた電気比抵抗 $18\text{M}\Omega\cdot\text{cm}$ の超純水

* 名古屋大学大学院工学研究科分子化学工学専攻 〒464-8603 名古屋市中千種区不老町

を使用した。超純水中に所定量の二酸化ケイ素とフェノールを混合し、攪拌機により300rpmで30min攪拌した後、超音波を30min照射して分散させ、試料懸濁液とした。なお、懸濁微粒子の粒度分布は高分解能サブミクロンレーザ粒度分析装置（Campagne Industrielle Des Lasers 製、HR850 型）により求めた。

2.2 濾過実験

濾過実験装置の概要を Fig. 1 に示した。濾過面積28.2 cm²のバッチ式濾過器（アドバンテック東洋製、UHP-62型）を用い、これと試料液供給タンクに試料液を注入し、減圧弁で制御した一定圧力の窒素ガスを作用させて非攪拌型のデッドエンド濾過を行い、濾液量（濾液体積）と濾液中のフェノール濃度の経時変化を測定した。濾液量は、プリンターを付属した電子天秤をタイマーユニットで制御して、所定時間毎に濾液質量を測定し、濾液密度の値を用いて濾液量に換算した。フェノール濃度は、濾液を公称孔径0.22μmで親水性ポリビニリデンジフロライド製の精密濾過膜（ミリポア製、SLGV）を用いてシリッジ加圧式濾過器により濾過した後、濾液に対して分光光度計で270nmの吸光度を測定することにより求めた。

濾過器底部に膜支持用多孔板を設置し、その上に60～200メッシュの粉末活性炭を原料として成形された

Fig. 1 Schematic diagram of experimental filtration apparatus.

Fig. 2 Rejection model of silicon dioxide and phenol by double layer membrane.

厚さ3.2mmの活性炭成形膜（㈱三進製作所製）を置いた。さらにその上部に、公称孔径0.45μmでセルロース混合エステル製の精密濾過膜（ミリポア製、HVLP）を設けて、濾過・吸着型複層膜とした。なお、実験毎にあらかじめ活性炭成形膜の質量を、338Kで30min乾燥した後測定した。また、活性炭成形膜内部の比表面積はBET法により測定された。二酸化ケイ素の微粒子は、Fig. 2のモデル図に示すように、上部の精密濾過膜によって完全に阻止されるが、低分子のフェノールはこの精密濾過膜をほぼすべて透過するので、下部の活性炭成形膜で吸着除去されることが期待される。図とは逆に、精密濾過膜の上部に活性炭成形膜を設けると、精密濾過膜によって阻止された二酸化ケイ素の微粒子は活性炭成形膜内に堆積するため、有効濾過面積の減少による濾過速度の低下を引き起こすことが予想される。また、比較のため精密濾過膜のみと活性炭成形膜のみの濾過実験も行った。

2.3 吸着実験

濾過における活性炭成形膜のフェノール吸着特性と比較するため、静的吸着実験を行った。種々の初濃度のフェノール溶液を入れた100ml三角フラスコに活性炭成形膜を細かく切断して投入し、80rpmの強度で種々の時間振とうした。次いで、溶液を上述の0.22μmの精密濾過膜で濾過した後、濾液のフェノール濃度を測定し、初濃度との差よりフェノールの吸着量を求めた。

3. 実験結果および考察

3.1 吸着実験による活性炭成形膜のフェノール吸着特性

種々のフェノール濃度 c に対して、静的吸着実験から得られた活性炭成形膜単位表面積あたりのフェノール吸着量 W の経時変化を Fig. 3 に示した。後述する濾過実験の結果と比較するため、吸着時間 θ の範囲は、濾過時間と同程度に限定して図示した。吸着時間の増大とともに、吸着量は顕著に増加した。なお、BET法により求めた活性炭成形膜内部の比表面積は、936m²・g⁻¹であった。

吸着等温線として、24h後のフェノール吸着量 W を

Fig. 3 Variation of amount of phenol adsorbed per unit internal surface area of activated carbon membrane over time.

Fig. 4 Adsorption isotherm for phenol within activated carbon membrane.

フェノール平衡濃度 c に対して Fig. 4 にプロットした。なお、24h 程度の吸着時間で十分吸着量の平衡値が得られることを、あらかじめ確認している。図中の実線は、次式で表される Freundlich 式のフィッティングによるものである。本研究で使用した活性炭成形膜によるフェノールの吸着特性は、図の濃度範囲においては Freundlich 式に従うものと考えられ、フェノール分子と 1 対 1 で結合するような明確な吸着サイトが活性炭表面に存在しないものと推察される。

$$W = K_{FC} c^{1/N} \quad (1)$$

ここに、 K_F および N は吸着定数であり、図より $K_F = 1.85 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot (\text{g} \cdot \text{cm}^{-3})^{-1/N}$, $N = 3.07$ の値を得た。上式から種々のフェノール濃度において活性炭成形膜に吸着可能なフェノール量が推測できる。

3.2 濾過・吸着型複層膜の有効性

濾過・吸着型複層膜を用いた場合と精密濾過膜のみの場合との比較を、フェノールの阻止率 R および濾過速度の逆数 $(d\theta/dv)$ 対単位膜面積あたりの濾過量 v として Fig. 5 に示した。いずれの実験においても、二酸化ケイ

Fig. 5 Comparison between double layer membranes and microfiltration membrane alone.

素は $0.45 \mu\text{m}$ の精密濾過膜により完全に阻止され、無色透明の濾液が得られるため、以後、濾液中のフェノール濃度についてのみ記述する。複層膜によるフェノールの阻止率は次式によって与えられる。

$$R = 1 - \frac{c_p}{c} \quad (2)$$

ここに c , c_p はそれぞれ原液および濾液中のフェノール濃度である。

活性炭成形膜を重ねず、精密濾過膜のみの場合にはフェノールは阻止されないで、図のように低い阻止率の値を示すが、活性炭成形膜を重ね合わせて複層膜として使用すると、フェノールがかなり阻止されるようになった。活性炭成形膜を加えると、はじめは、濾過速度が大きく溶液と活性炭成形膜との接触時間が小さいため、阻止率はそれほど大きくはない。しかし、濾過の進行による濾液量 v の増大とともに阻止率は次第に増加し、やがて約 0.9 の一定値となり、高いフェノール除去性能を示した。

一方、二酸化ケイ素の微粒子はすべて膜面上に濾過ケーキとして堆積し続けるため、濾過の進行に伴うケーキ抵抗の増大により濾過速度は次第に減少し、 $(d\theta/dv)$ 値は増加した。なお、図より膜抵抗はケーキ抵抗に比べ無視できるものと考えられる。濾過速度の変化は次式で表される Ruth のケーキ濾過速度式^{11,12)}に従い、ほぼ直線関係を示した。

$$\frac{d\theta}{dv} = \frac{2}{K_R} v \quad (3)$$

ここに K_R は Ruth の定圧濾過係数であり、次式で定義される。

$$K_R = \frac{2p(1-ms)}{\mu a_{av}\rho s} \quad (4)$$

式中の p は濾過圧力、 m は濾過ケーキの湿乾質量比、 s は質量分率で表した懸濁微粒子の濃度、 μ は濾液の粘度、 a_{av} は濾過のしにくさの指標となる濾過ケーキの平均濾過比抵抗、 ρ は濾液の密度である。複層膜の場合と精密濾過膜のみの場合との両者の濾過速度のプロットは実験誤差の範囲内でほぼ一致していると考えられ、活性炭成形膜によるフェノールの吸着が、濾過速度にはほとんど影

Fig. 6 Result of activated carbon membrane alone.

響を及ぼさないことが明らかとなった。

次に、活性炭成形膜のみを用いて濾過実験を行った結果を Fig. 6 に示した。この場合には、二酸化ケイ素はほとんど阻止されず、活性炭成形膜面上に濾過ケーキは形成されず、また膜内の目詰まりもほとんど生じないことがわかった。したがって、試料懸濁液の濾過速度、すなわち透過速度は著しく大きくなり、図のように実験期間中ほぼ一定値を示した。このことは、試料と活性炭成形膜との接触時間が小さくなることを意味し、このため活性炭成形膜へのフェノール吸着率は30%弱程度の低い値となった。すなわち、活性炭成形膜のみでは、試料液を効率よく分離することが不可能であり、精密濾過膜と組み合わせることで複層膜として用いる方法が有効であると考えられる。

3.3 フェノール濃度の影響

濾過速度に及ぼすフェノール濃度 c の影響を Fig. 7 に示した。フェノール濃度によらず、 $d\theta/dv$ 対 v のプロットは実験の誤差範囲内ではほぼ一致することが明らかである。このことから、濾過速度はフェノール濃度の影響を

Fig. 7 Effects of concentration of phenol on filtration rate.

Fig. 8 Effects of concentration of phenol on rejection of phenol.

受けず、主として精密濾過膜による二酸化ケイ素微粒子の阻止に伴う濾過ケーキの形成に依存しているものと推察される。

次に、フェノール阻止率 R に及ぼすフェノール濃度 c の影響を Fig. 8 に示した。濾過初期にはいずれの濃度においても阻止率はほぼ同様に v の増大とともに増加する。これは、濾過速度の減少に伴う溶液と活性炭成形膜との接触時間の増大により、フェノールの吸着が促進されるためと推察される。 $2 \times 10^{-4} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ のフェノール濃度ではやがてほぼ一定の阻止率を示すが、より高濃度のフェノールを用いた場合には、やがて v の増大とともに、活性炭成形膜の吸着量が次第に飽和状態へ近づくため、阻止率は徐々に減少する傾向を示した。この吸着性能の低下は濃度が大きいほど顕著となり、阻止率が著しく減少した。

Fig. 8 の結果に基づき、フェノール吸着量 W と濾液量 v の関係が、次式から求められる。

$$W = A \left(\int_0^v R c dv \right) / S \quad (5)$$

ここに、 A は濾過面積、 S は活性炭成形膜内部の表面積である。さらに、濾液量 v と濾過時間 θ の関係を用いると、結局フェノール吸着量 W の経時変化が求められ、これを Fig. 9 に示した。図には静的吸着実験により得られた平衡吸着量も破線で示した。濾過をさらに続けると、次第にこの値に漸近するものと考えられる。いずれのフェノール濃度においてもプロットは上に凸の曲線状を呈し、吸着の進行程度が濾過時間の経過とともに緩やかになることが明らかである。またフェノール濃度が大きいほど同一時間における吸着量が大きくなった。また、Fig. 3 と比較すると明らかなように、静的吸着実験の場合よりかなり速く吸着現象が進行しており、興味深い。タンパク質溶液の精密濾過においても、濾過過程における吸着が静的吸着実験の場合よりかなり顕著となると同様の結果が報告されている¹³⁾。 $2 \times 10^{-4} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ の低濃度では、濾過で得られる吸着量は平衡吸着量と比べて

Fig. 9 Effects of concentration of phenol on variation with time of amount of phenol adsorbed per unit internal surface area of activated carbon membrane during filtration.

著しく小さいが、 $10 \times 10^{-4} \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ の高濃度では、平衡吸着量にかなり近い値を示した。

3.4 二酸化ケイ素濃度の影響

Figs. 10, 11 に濾過速度およびフェノールの阻止率に及ぼす二酸化ケイ素濃度 s の影響を示した。Fig. 10 に示すように、濃度の増大とともに $d\theta/dv$ 対 v の直線勾配の傾きは大きくなり、精密濾過膜面上に形成される濾過ケーキ量の増大により濾過速度が小さくなった。また、フェノール阻止率は、Fig. 11 に示されるように、濃度の増大とともに大きくなる傾向が見られ、これは溶液と活性炭成形膜との接触時間の増大に起因するものと考えられる。二酸化ケイ素は精密濾過膜面上ですべて阻止されるため、活性炭成形膜へのフェノール吸着に対する二酸化ケイ素微粒子の阻害の影響は認められない。なお、Fig. 10 の直線勾配を用いて Eqs. (3), (4) により算出した濾過ケーキの平均濾過比抵抗 α_{av} は、二酸化ケイ素濃度 s の影響をほとんど受けずほぼ一定 ($3.7 \times 10^{12} \text{m} \cdot \text{kg}^{-1}$) であった。

Fig. 10 Effects of concentration of silicon dioxide on filtration rate.

Fig. 11 Effects of concentration of silicon dioxide on rejection of phenol.

3.5 濾過圧力の影響

Figs. 12, 13 には濾過速度とフェノールの阻止率に及ぼす濾過圧力の影響を示した。圧力が大きくなるほど濾液は精密濾過膜面上に形成された二酸化ケイ素微粒子の濾過ケーキ中を流動しやすくなるので、Fig. 12 のようにプロットの直線勾配は緩やかになり、大きな濾過速度が得られた。すなわち、圧力が大きいほどある一定の濾液量を得るのに要する時間は短くなる。一般に、濾過速度は圧力に正比例はせず、これは、圧力の増大に伴い濾過ケーキ層が圧縮され、その流動抵抗が増加するためである。Fig. 12 の結果に基づき、Eqs. (3), (4) を用いて濾過ケーキの平均濾過比抵抗 α_{av} を求めると、次式で整理できた。

$$\alpha_{av} = a_1 p^n \quad (6)$$

ここに、 n は圧縮性指数、 a_1 は定数である。本研究で用いた二酸化ケイ素の濾過ケーキでは、 $n=0.108$ の値が得られ、この値は濾過ケーキの圧縮性がそれほど顕著ではないことを示す。また、 α_{av} は $3 \sim 4 \times 10^{12} \text{m} \cdot \text{kg}^{-1}$ の範囲にあり、中程度の抵抗をもつ¹⁴⁾。Fig. 12 に示すように圧力の増大とともに濾過速度は大きくなり、処理量は増加した。しかし、その一方で溶液と活性炭成形膜との接触

Fig. 12 Effects of filtration pressure on filtration rate.

Fig. 13 Effects of filtration pressure on rejection of phenol.

Fig. 14 Effects of filtration pressure on variation with time of amount of phenol adsorbed per unit internal surface area of activated carbon membrane during filtration.

時間が小さくなるため、フェノールは吸着されにくくなり、Fig. 13のように濾過速度が大きい濾過初期において、圧力が大きいほど阻止性能が低下する。Fig. 13に基づいてEq. (5)により算出した吸着量 W の経時変化をFig. 14に示した。いずれの圧力においても時間の経過に伴い吸着量の増加が緩やかになるが、圧力が大きいほど、より短時間で多くのフェノールを吸着することができる。しかしながら、Fig. 13に示すように圧力が大きい場合には濾過初期に阻止性能の低下が生じることを考慮すると、一概に大きな圧力を作用させることが必ずしも良いとは言えず、本操作の最適化には圧力の操作に基づく濾過速度の制御も重要な因子となるものと思われる。このため、今後、阻止率と濾過速度との複雑な関係を明らかにすることが必要になると考えられる。

3.6 濾過圧力のステップ操作

Figs. 12~14には、濾過圧力のステップ操作の結果も示し、定圧操作の場合と比較した。濾過の途中 ($v=30$ cm) で圧力を294kPaから49kPaにステップ状に減少させると、Fig. 12のように濾過速度も急激に変化し、その後、プロットははじめから49kPaで定圧操作を行った場合のプロットとほぼ平行な直線を示し、定圧操作に比べ濾過速度は若干小さくなった。これは、一度高い圧力で圧縮された濾過ケーキは、圧力を低下させても、完全にはその低い圧力に対応する緩やかなケーキ構造に戻らないためと推察される。一方、ステップ操作により圧力を減少させると、Fig. 13のように阻止率ははじめから49kPaや294kPaで定圧操作を行った場合より大きくなり、阻止性能が向上した。圧力の低下により濾過速度が減少するため、溶液と活性炭成形膜との接触時間が大きくなり、吸着性能が向上するものと推察される。したがって、濾過速度の制御が効率的な吸着分離を行うために重要となる。ただし、Fig. 14に示すように、高い圧力での定圧操作の方が、単位時間内における吸着量は大きくなる。

今後、精密濾過膜による濾過ケーキの形成や膜の目詰

まり、また活性炭成形膜の破過現象を考慮しつつ、分離性能が低下した濾過・吸着型複層膜の洗浄、交換などの操作法を確立することが必要になるものと考えられる。また、活性炭成形膜の厚さなどの制御による吸着性能の向上も今後の検討課題となる。

4. ま と め

効率的な水処理プロセスの設計指針の確立を目指して、濾過・吸着型複層膜を用いてフェノールを含有する二酸化ケイ素の微粒子懸濁液の濾過特性を検討し、以下の知見が得られた。

1) 精密濾過膜と活性炭成形膜を上下に重ね合わせた濾過・吸着型複層膜を用いて、フェノールを含有する二酸化ケイ素懸濁液の濾過を行い、二酸化ケイ素は精密濾過膜のふるい機能により、またフェノールは活性炭成形膜の吸着機能により効率よく分離できることを明らかにした。このことから、本手法が溶存有機物を含有する微粒子懸濁液の分離操作に有効であることが示唆された。

2) 濾過速度やフェノールの阻止率に及ぼす試料懸濁液中のフェノール濃度や二酸化ケイ素濃度、ならびに濾過圧力の影響を検討した。活性炭成形膜の平衡吸着量の観点から、フェノール濃度が大きくなると、濾過の進行に伴いその阻止率は次第に低下した。また、濾過圧力が大きいほど濾過速度は大きくなり、処理量は増加したが、溶液と活性炭成形膜との接触時間が小さくなるため、特に濾過初期において阻止率は低下する傾向を示した。この結果に立脚して、濾過圧力のステップ操作法を提案した。

3) 静的吸着実験の結果と比較することにより、濾過実験におけるフェノールの吸着速度の方がより大きくなることが示された。しかし、平衡吸着量に関しては濾過実験と静的吸着実験の間ではそれほど顕著な差はないものと推測される。

謝 辞

本研究に際し、活性炭成形膜を提供頂いた㈱三進製作所に深く感謝いたします。本研究の一部は、文部省科学研究費補助金(課題番号10650758)および平成9年度鉄鋼業環境保全技術開発基金研究助成の援助を受けて行われた。ここに記して謝意を表します。

(原稿受付 1998年12月4日)

(原稿受理 1999年4月29日)

使用記号

- A : 濾過面積 (m^2)
- c : 原液中のフェノール濃度 ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)
- c_p : 濾液中のフェノール濃度 ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)
- K_F : Eq. (1)における吸着定数 ($\text{kg}^{(N-1)/N}\cdot\text{m}^{(2N-3)/N}$)
- K_R : Eq. (4)で定義されるRuthの定圧濾過係数 ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)
- m : 濾過ケーキの湿乾質量比 (—)
- N : Eq. (1)における吸着定数 (—)
- n : Eq. (6)で定義される圧縮性指数 (—)
- p : 濾過圧力 (Pa)
- R : 阻止率 (—)
- S : 活性炭の表面積 (m^2)
- s : 二酸化ケイ素濃度 (—)
- v : 単位膜面積あたりの濾液量 ($\text{m}^3\cdot\text{m}^{-2}$)

W : 活性炭単位表面積あたりのフェノール吸着量 ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$)

α_{av} : 濾過ケーキの平均濾過比抵抗 ($\text{m} \cdot \text{kg}^{-1}$)

α_1 : Eq. (6)における定数 ($\text{m}^{n+1} \cdot \text{s}^{2n} \cdot \text{kg}^{-(n+1)}$)

θ : 時間 (s)

μ : 濾液の粘度 ($\text{Pa} \cdot \text{s}$)

ρ : 濾液の密度 ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)

参 考 文 献

- 1) Bacchin, P., Aimar, P. and Sanchez, V. (1995) Model for colloidal fouling of membranes, *AIChE J.*, **41**, 368-376.
- 2) Hlavacek, M. and Remy, J. F. (1995) Simple relationships among zeta potential, particle size distribution, and cake specific resistance for colloid suspensions coagulated with ferric chloride, *Sep. Sci. Technol.*, **30**, 549-563.
- 3) Iritani, E., Toyoda, Y. and Murase, T. (1997) Effect of solution environment on dead-end microfiltration characteristics of rutile suspensions, *J. Chem. Eng. Japan*, **30**, 614-619.
- 4) Wakeman, R. J. and Akay, G. (1997) Membrane-solute and liquid-particle interaction effects in filtration, *Filtration & Separation*, **34**, 511-519.
- 5) Madaeni, S. S. and Fane, A. G. (1996) Microfiltration of very dilute colloidal mixtures, *J. Membrane Sci.*, **113**, 301-312.
- 6) Jiratananon, R., Uttapap, D. and Sampranpiboon, P. (1998) Crossflow microfiltration of a colloidal suspension with the presence of macromolecules, *J. Membrane Sci.*, **140**, 57-66.
- 7) Iritani, E., Tachi, S. and Murase, T. (1994) Influence of protein adsorption on flow resistance of microfiltration membrane, *Colloids Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, **89**, 15-22.
- 8) Nazzari, F. F. and Wiesner, M. R. (1994) pH and ionic strength effects on the performance of ceramic membranes in water filtration, *J. Membrane Sci.*, **93**, 91-103.
- 9) Brasquet, C., Subrenat, E. and Le Cloirec, P. (1996) Water treatment by ultrafiltration and adsorption onto fibrous activated carbon, Proc. 7th World Filtration Congress, Vol. II, pp.485-489.
- 10) Lee, H. W., Kim, K. J. and Fane, A. G. (1997) Removal of phenol by adsorption on powdered activated carbon in a continuous flow stirred cell membrane system, *Sep. Sci. Technol.*, **32**, 1835-1849.
- 11) Ruth, B. F. (1935) Studies in filtration. III. Derivation of general filtration equations, *Ind. Eng. Chem.*, **27**, 708-723.
- 12) Ruth, B. F. (1946) Correlating filtration theory with industrial practice, *Ind. Eng. Chem.*, **38**, 564-571.
- 13) 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.
- 14) 化学工学会編(1999) 化学工学便覧(改訂六版), 804pp., 丸善, 東京.