膜ファウリング特性の簡易評価に基づく濾過挙動の推算

片桐 誠之^{1),*}

篠田 大晴¹⁾
福地 翔哉¹⁾

山下 玲奈¹⁾

Estimation of Filtration Behavior Based on Simplified Evaluation of Membrane Fouling Characteristics

Nobuyuki KATAGIRI^{1),*}, Taisei SHINODA¹⁾, Reina YAMASHITA¹⁾ and Shoya FUKUCHI¹⁾

¹⁾ Department of Environmental Technology, Meijo University, 1-501 Shiogamaguchi, Tempaku-ku, Nagoya 468-8502, Japan

Abstract

We propose a method of estimating the overall behavior of filtration using the fouling index obtained from limited membrane filtration data. The blocking index and plugging constant required for estimating filtration behavior were determined from the fouling mechanism index (FMI) with the aid of the blocking filtration law. The calculated data of the variation over time of the flux decline using the blocking index, plugging constant, and membrane properties were in reasonable agreement with experimental data. It was confirmed that this method can be widely applied to estimate membrane filtration behavior regardless of filtration conditions, such as sample concentration and the type of membrane, and fouling mechanisms, such as membrane pore blocking and cake formation. The calculated data of filtration behavior obtained from the membrane properties and FMI are useful because they can be used to determine the timing of membrane cleaning and membrane replacement.

Keywords: Membrane filtration; Membrane fouling; Fouling index; Fouling mechanism; Blocking filtration

1. はじめに

浄水処理や下水処理,あるいは海水淡水化などにおいて,膜を用いる水処理技術が導入されつつある¹⁾。設置面積が小さい,微粒子や微生物細胞なども確実に除去され高度な処理水質が期待できるなど様々なメリットがあるものの,膜ファウリングによる処理性能低下が,更なる普及に向けて解決すべき課題の一つとして挙げられている。膜ファウリングは,水処理膜による濾過操作で,液中の懸濁粒子や溶質が膜の表面や内部で捕捉されることにより生じ,液の流れが妨げられるため濾過抵抗が増大する。その結果,定圧操作で濾過を行っている場合は濾過速度が減少,定速操作では濾過圧力が上昇することになる^{2,3)}。濾過を続けることで,濾過抵抗は徐々に大きくなり,やがて濾過の継続が非効率あるいは困難となるため,膜の洗浄や交換が必要となる。したがって,膜ファウリングの進行を簡便に評価し,濾過抵抗増大の挙動を推測することができれば,膜による水処理プロセスの効率化に極めて有用である。

膜ファウリングを評価するファウリング指標として,SDI (Silt Density Index) や MFI (Modified Fouling Index) が提案されている。SDIは,ASTM D4189-07⁴⁾

において,直径47 mm,平均孔径0.45 μm の親水性のMCE膜(Mixed cellulose nitrate and cellulose acetate)を用いて,濾過圧力207 kPaで濾過を行い,開始から500 mLの試料液を濾過するのに要する時間 t_1 と,開始15分後(試料液性状によって変更可)から500 mLの試料液を濾過するのに要する時間 t_2 から, $\text{SDI} = 100 (1 - t_1/t_2)/15$ により求めることが定められている。これは,濾過の継続により同量の試料液を濾過する時間が長くなる様子を,膜ファウリング指標として表している。簡便な評価法であることから広く用いられているが,測定に使用する膜の種類と孔径が限定され,SDI値が濁質や溶質の濃度に比例しないこともあり,また理論的な裏付けがないことなども問題点として指摘されている⁵⁻¹⁰⁾。MFI¹¹⁾は,平均孔径0.45 μm の精密濾過膜を用いて定圧条件で試験され,ケーキ濾過理論に基づき,濾過速度の逆数と濾液量の関係を表すグラフの傾きから求められる。ファウリングの程度を表すことができるが,SDIのような限られた期間のデータのみで評価することはできないため,連続的な濾過データが必要となる。また,膜面上にケーキが形成されず,膜の目詰まりが生じる場合の濾過挙動には適用が難しい。より小さな粒子においても妥当な値が得られるように,限外濾過膜やナノ濾過膜を用いる

1) 名城大学理工学部環境創造工学科 〒468-8502 名古屋市天白区塩釜口1-501

* 連絡先: katagiri@meijo-u.ac.jp

MFI-UF¹²⁾ や MFI-NF¹³⁾ が提案されている。いずれのファウリング指標にも長所と短所があり、様々な要望に応えられる理想的な指標がないことから、より有用性が高く、簡便に測定することができる新たな膜ファウリング指標の開発が望まれている。

最近、限られた濾過速度の減衰データから膜ファウリングの機構と程度を個別に判定する二つの指標 FMI (Fouling Mechanism Index) と FDI (Fouling Degree Index) が提案された¹⁴⁾。FMI と FDI は、SDI と同様に限られた期間の濾過データのみで評価可能であるが、使用する膜や濾過圧力は限定されず任意で、一定時間に得られる濾液量の変化から求められる。対象とする濾過データを、濾過時間ではなく、濾液量にすることで濾過理論が適用できるようになり、SDI とは異なり理論的裏付けが与えられ、濾過挙動の推算にも繋がる。FMI には、閉塞濾過理論が適用され、使用する膜の透過特性と閉塞特性が条件を満たすと、閉塞特性値との関係を表す理論式が得られ、ファウリング機構のみを評価することができる。一方、FDI には、ケーキ濾過理論が適用され、一定時間に得られる濾液量の変化の仕方からファウリングの程度のみが評価される。いずれの指標も実際に用いる試料、膜、圧力で測定することができ、粒子(カオリン、ベントナイト、PMMA、シリカ)、高分子(アルギン酸ナトリウム、デキストラン、ポリエチレングリコール、BSA)、混合物(ウーロン茶、緑茶)で有用性が確認されている。

FMI は、値の求め方が容易で、利用のしやすさにおいて FDI より優位性があるが、膜ファウリング機構のみを表す指標として提案されている¹⁴⁾。すなわち、FMI ではファウリングがどの程度進行しているかを評価する

ことはできない。これは理論式を導出する際に、条件 $(k(dv/dt)_0^{2-n}(2-n)T \gg 1$, 各記号の説明は後述する) が設定されているためである¹⁴⁾。したがって、設定条件を満たしていない場合には、ファウリング機構だけでなくファウリングの程度も値に影響を及ぼすことになり、理論式による解析ができないものと考えられるが、このことについては明らかとなっていない。条件にとらわれず、理論式が適用できない場合においても、シンプルな計算で FMI 値から濾過挙動を推算する手法が確立されれば、膜ファウリング指標 FMI の有用性をさらに高めることができる。そこで本研究では、廃水処理汚泥や海水中から検出され、数多くの膜ファウリング研究でモデルファウラントとして用いられているアルギン酸ナトリウム^{15~19)}を試料とし、試料濃度3条件、分離膜3種類で膜濾過試験を行い、FMI 値と膜閉塞特性値との関係を明らかにすることで、濾過全体の挙動を推算できる新たな手法を提案し、その妥当性を検証する。

2. 方法

2.1 濾過試料

試料液には、アルギン酸ナトリウム (SA: Sodium Alginate, 分子量 129,000, ナカライテスク) の水溶液を用いた。アルギン酸ナトリウムを、超純水製造システム (Elix-UV20 および Milli-Q Advantage, ミリポア) で得た超純水に溶解させ、濃度 $C = 25, 50, 100 \text{ mg L}^{-1}$ のアルギン酸ナトリウム水溶液を調製した。溶液の pH は、6.5 程度であった。

2.2 濾過装置

濾過試験は、Fig. 1 に示す濾過システムを用い、窒素ガスによる加圧濾過を行った。電子レギュレータで濾過

Fig. 1 Schematic of the apparatus for membrane filtration test.

圧力を 50 kPa に保ち、濾液量の経時変化を電子上皿天秤により測定した。濾過器の濾過面積は 9.35 cm^2 、試料液タンク (RP-1, アドバンテック) の容量は 1 L である。分離膜には、公称孔径 $d_m = 0.1 \text{ }\mu\text{m}$ の 2 種類の精密濾過 (MF) 膜; Polyvinylidene Difluoride (親水性 PVDF, メルクミリポア) 膜と Mixed Cellulose Ester (MCE, アドバンテック) 膜、および分画分子量 10 kDa の限外濾過 (UF) 膜; 再生セルロース (ウルトラセル-PL, メルクミリポア) 膜を用いた。

3. 結果および考察

3.1 膜ファウリング指標 FMI (Fouling Mechanism Index)

膜ファウリング指標 FMI は、二つの濾過期間における濾液量の比から求められる¹⁴⁾。FMI を決定するための時間設定は任意とされているので、濾過開始後 T ($= 10 \text{ min}$) から t_0 ($= 5 \text{ min}$) で採取される濾液量 V_i 、および濾過開始後 ($T + t_i$) ($t_i = 15 \text{ min}$) から同じ t_0 ($= 5 \text{ min}$) で採取される濾液量 V_f から FMI を求めることとした。Fig. 2 は、膜濾過を行った際の 5 分ごとの濾液量の変化で、●で示した 10 min から 15 min までの濾液量 $V_i = 21.9 \text{ cm}^3$ と 25 min から 30 min までの濾液量 $V_f = 11.7 \text{ cm}^3$ を式 (1) に代入することにより $\text{FMI} = 3.10 \text{ min}^{-1}$ が求まる。したがって、濾液量の経時変化を連続的に測定する必要はなく、任意の時間からの 5 分間といった限られた期間に採取した濾液量を測定すればよい。なお、濾過開始直後から濾液を採取しないのは、特に新品の膜を用いた場合、濾過初期における閉塞挙動が複雑となることから多く、濾過機構との関係を評価するのが難しくなるからである。計測開始時間 T の設定は、挙動の安定性と計測に要する時間を考慮して決定することが望ましく、本研究における $T = 10 \text{ min}$ 、計測終了時間 30 min は適度な時間であると考えられる。

$$\text{FMI} = \frac{100}{t_i} \left(1 - \frac{V_f}{V_i} \right) \quad (1)$$

Fig. 2 Typical membrane filtration data in dead-end constant pressure filtration.

Fig. 3 Relationship between FMI and solute concentration C .

試料液の濃度 C を変化させて、種々の分離膜で膜濾過を行ったときの、FMI と C との関係を Fig. 3 にプロットした。試料濃度が大きくなると膜ファウリングが生じやすくなり、いずれの分離膜においても濃度 C に比例して FMI 値が大きくなることが確認された。これは濃度増大による膜ファウリングの進行を FMI で評価できることを示している。また、図からは、膜によって同一試料によるファウリングの程度や濃度増大にともなうファウリングの進行が異なることが明らかである。特に、溶質が膜を透過する MF 膜と、溶質が全阻止され膜面上に堆積する UF 膜とでは、FMI 値に顕著な差が認められ、UF 膜の方が値が小さくなった。入谷ら¹⁴⁾ が示したように FMI はファウリング機構に大きく影響されるものと推察され、膜種が異なる場合は値の大きさのみでファウリングの程度を評価することはできない。

3.2 閉塞濾過挙動の解析

濾材の閉塞を記述するモデルとして、Hermans と Bredée²⁰⁾ により提案され、Grace²¹⁾ により体系化された閉塞濾過モデルがある^{22, 23)}。閉塞濾過モデルにおける定圧条件での特性式として次式が提案されており、膜閉塞濾過挙動の解析にも用いられている³⁾。

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

ここで、 t : 濾過時間 (s)、 v : 単位濾過面積あたりの濾液量 (m)、 dt/dv : 濾過速度の逆数 (s m^{-1})、 k : 定数 ($\text{s}^{1-n} \text{ m}^{n-2}$)、 n : 定数 (-) である。モデルにおいて n は閉塞機構を表すものであり、2 (完全閉塞)、1.5 (標準閉塞)、1 (中間閉塞)、0 (ケーキ濾過) のいずれかの値となる³⁾。濾過速度の逆数 dt/dv は、濾過抵抗の指標と見なすことができるため、式 (2) は膜閉塞の進行による濾過抵抗の増加の程度を表している。濾過データを連続的に測定している場合は、式 (2) に基づいた閉塞挙動の解析が可能となる。

Fig. 4 には、濾過速度の逆数 dt/dv を v で微分した d^2t/dv^2 と dt/dv との両対数プロットを示す。溶質の SA が膜細孔内に侵入して捕捉され閉塞が生じると推察され

Fig. 4 Blocking filtration characteristic curve based on Eq. (2).

るMF膜の場合、孔径 $d_m = 0.1 \mu\text{m}$ のPVDF膜で $C = 50 \text{ mg L}^{-1}$ のSA溶液を濾過したときの結果は、Fig. 4 (a)に示すようにプロットが右上がりの直線状となり、直線近似により $n = 1.04$, $k = 0.100 \text{ s}^{1-n} \text{ cm}^{n-2}$ が得られた。分離膜に $d_m = 0.1 \mu\text{m}$ のMCE膜を用いた場合にも右上がりの直線状となり、 $n = 1.32$, $k = 0.0186 \text{ s}^{1-n} \text{ cm}^{n-2}$ であった。一方、膜表面でSAが全阻止されると推察されるUF膜 (MWCO 10,000) を用いた場合には、Fig. 4 (b)に示すようにプロットはほぼ一定の d^2t/dv^2 値となり、 $n = 0$, $k = 868 \text{ s cm}^{-2}$ が得られた。 n が0となることから、閉塞濾過モデルでは膜面上に濾過ケーキが形成されるケーキ濾過に分類される³⁾。なお、PVDF膜の $n = 1.04$ およびMCE膜の $n = 1.32$ は、閉塞濾過モデルでは規定されていない値であるが、式(2)の根拠をKozeny-Carman式に求め、膜細孔内での粒子捕捉による空隙率と比表面積の変化を考慮したモデルでは、 n の取り得る値に制限がないことが示されている²⁴⁾。溶質のSAの大きさから、MF膜とUF膜とでは膜閉塞機構が大きく異なることが

推察され、解析結果はこの相違を明確に示している。また、同じMF膜に分類されるPVDF膜とMCE膜においても、両者の間には閉塞特性値の n と k に相違があり、膜材質や膜構造の違いが表れている。膜構造がほぼ同じで、表面特性の異なる親水性PVDF膜と疎水性PVDF膜との比較では、 n 値は同程度、 k 値は疎水性PVDF膜の方が大きいといった結果が得られており²⁵⁾、膜特性と閉塞特性値との間に相関性があることが推察される。

3.3 濾過挙動の推算

膜ファウリング指標FMIは限られた期間に採取した濾液量で評価できるのに対し、閉塞特性値を得るための解析には連続的に測定した濾過データが必要となる。FMIと閉塞特性値 n および k との関係がわかれば、限られた期間のデータのみで簡便に閉塞濾過挙動を推算することができる。式(2)の閉塞特性式を積分すると濾過速度を記述する次式が得られる²⁶⁾。

$$\frac{dt}{dv} = \left\{ \left(\frac{dt}{dv} \right)_0^{1-n} + k(1-n)v \right\}^{1/(1-n)} \quad \text{for } n \neq 1 \quad (3)$$

$$\frac{dt}{dv} = \left(\frac{dt}{dv} \right)_0 \exp(kv) \quad \text{for } n = 1 \quad (4)$$

ここで、 $(dt/dv)_0$: 濾過初速度の逆数 (s m⁻¹) である。また、式(3)および(4)を積分することで濾液量 V と濾過時間 t の関係を記述する次式が得られる¹⁴⁾。

$$V = \frac{A}{k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{1-n} (1-n)} \left[\left\{ k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{2-n} (2-n)t + 1 \right\}^{\frac{1-n}{2-n}} - 1 \right] \quad \text{for } n \neq 1, 2 \quad (5)$$

$$V = \frac{A}{k} \ln \left\{ k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0 t + 1 \right\} \quad \text{for } n = 1 \quad (6)$$

$$V = \frac{A}{k} \left(\frac{dv}{dt} \right)_0 \{ 1 - \exp(-kt) \} \quad \text{for } n = 2 \quad (7)$$

ここで、 A : 濾過面積 (m²) である。FMIの定義より、濾過開始後 T から t_0 で採取される濾液量 V_i は式(5)により次のように表すことができる。

$$V_i = \frac{A}{k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{1-n} (1-n)} \left[\left\{ k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{2-n} (2-n)(T+t_0) + 1 \right\}^{\frac{1-n}{2-n}} - \left\{ k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{2-n} (2-n)T + 1 \right\}^{\frac{1-n}{2-n}} \right] \quad (8)$$

また、濾過開始後 $(T + t_i)$ から t_0 で採取される濾液量 V_i は次式で表すことができる。

$$V_f = \frac{A}{k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{1-n} (1-n)} \left[\left\{ k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{2-n} (2-n)(T+t_t+t_0)+1 \right\}^{\frac{1-n}{2-n}} - \left\{ k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{2-n} (2-n)(T+t_t)+1 \right\}^{\frac{1-n}{2-n}} \right] \quad (9)$$

式(8)と(9)を式(1)に代入すると、FMIの定義式は次式となる。

$$FMI = \frac{100}{t_t} \cdot \left[1 - \frac{\left\{ k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{2-n} (2-n)(T+t_t+t_0)+1 \right\}^{\frac{1-n}{2-n}} - \left\{ k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{2-n} (2-n)(T+t_0)+1 \right\}^{\frac{1-n}{2-n}}}{\left\{ k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{2-n} (2-n)(T+t_t)+1 \right\}^{\frac{1-n}{2-n}} - \left\{ k \left(\frac{dv}{dt} \right)_0^{2-n} (2-n)T+1 \right\}^{\frac{1-n}{2-n}}} \right] \quad (10)$$

ここで、 t_t 、 T 、 t_0 は設定時間であり、 $(dv/dt)_0$ は濾過初速度で、用いる分離膜によって決まる値である。したがって、FMIは閉塞濾過の特性値である n と k に依存することがわかる。

なお、 $k(dv/dt)_0^{2-n}(2-n)T \gg 1$ のとき、FMIは次式で表すことができる¹⁴⁾。

$$FMI = \frac{100}{t_t} \left(1 - \frac{(T+t_t+t_0)^{\frac{1-n}{2-n}} - (T+t_t)^{\frac{1-n}{2-n}}}{(T+t_0)^{\frac{1-n}{2-n}} - T^{\frac{1-n}{2-n}}} \right) \quad (11)$$

t_t 、 T 、 t_0 は設定時間であるため、式(11)で定義されるFMIはファウリング機構を表す閉塞特性値 n のみに依存する。したがってFMIと n は1対1の関係にあるが、Fig. 3に示したようにFMIがファウリングの程度にも影響される場合には、 n 値が同じ、すなわちファウリング機構が同じでも異なるFMI値を取り得ることが考えられる。

ここで、FMIと閉塞特性値との関係を実験結果に基づいて検討する。同じ分離膜を用いて、溶質の濃度を変化させた場合の閉塞濾過挙動を式(2)に基づいて解析すると、 n 値がほぼ同じ値になるという特徴的な結果が得られた。Fig. 3で示した各条件におけるFMIと、閉塞特性値 n との関係をFig. 5に示す。3種類のいずれの分離膜においても、プロットは縦方向に変化しており、溶質濃度によりFMIは変化するが、ファウリング機構を表す n 値は一定と見なすことができる。すなわち、用いる分離膜によって n 値は決まり、FMIは k 値に依存すると考えることができる。なお、いずれの膜濾過においても、条件 $(k(dv/dt)_0^{2-n}(2-n)T \gg 1)$ は満たされていなかった。

分離膜ごとに n 値が既知であるならば、FMIから閉塞特性値 k を求めることができる。FMI値と t_t 、 T 、 t_0 、 $(dv/dt)_0$ 、 n の各値を式(10)に代入して求めた k 値と溶

Fig. 5 Relationship between FMI and n in Eq. (2).

質濃度 C との関係をFig. 6に示す。 $n = 1.04$ としたPVDF膜と $n = 1.29$ としたMCE膜 (Fig. 6 (a))、および $n = 0$ としたUF (Fig. 6 (b))膜とも、 k と C の間には比例関係が認められ、FMIと同様に溶質濃度により k が定まるものと考えられる。ただし、膜閉塞機構が異なるMF膜とUF膜では、 k 値にオーダーの異なる大きな相違が認められた。

以上のような手順で、連続的に測定した濾過データがなくても膜ファウリング指標FMIから閉塞特性値を求めることが可能である。ここでは、本手法で決定した n と k の妥当性を検証するため、得られた値を式(3)あるいは(5)に代入して求めた計算値と実験データの比較を行った。Fig. 7は、PVDF膜を用いて3種類の溶質濃度の試料を濾過した時の濾過速度の経時変化で、式(3)に基づいて濾過速度の逆数 (dt/dv) と単位濾過面積あたりの濾過量 v との関係を示している。実線で示した計算値は、プロットの実験値の挙動をよく表している。Fig. 8は、濾過量の経時変化で、Fig. 7に示したPVDF膜に加えてMCE膜とUF膜のデータも示している。いずれの条件においても実験値の挙動を式(5)に基づく計算値で記述できている。したがって、FMIを測定することで閉塞特性値が求まり、濾過全体の挙動が推算可能となることから、膜の洗浄や交換の時期の決定にも応用できるものと期待され、本手法の有用性は明らかである。なお、本手法は逆洗後の膜にも適用できるものと考えられ、この場合には逆洗で取り除けない不可逆ファウリングの影響が濾過初速度 $(dv/dt)_0$ に表れること、またファウリング機構を示す n 値が逆洗の前後でどのように変化するかを調べておくことが重要となる。FMI値や閉塞特性値から、膜ファウリングを可逆ファウリングと不可逆ファウリングに区別することはできないが、ごくわずかな膜濾過データで求まる指標から濾過の全挙動を推算できるという点に提案手法の意義があると考えられる。

4. まとめ

膜ファウリングの進行を簡易的な方法で評価し、濾過挙動の推算に繋げる手法について検討を行った。限られ

Fig. 6 Relationship between k in Eq. (2) and solute concentration C .

Fig. 7 Evaluation of flux decline behaviors calculated on basis of FMI.

Fig. 8 Evaluation of relationship between filtrate volume and filtration time calculated on basis of FMI.

た期間のごくわずかな濾過データで評価できる膜ファウリング指標 FMI を用い、閉塞濾過理論の適用により、膜の閉塞挙動の記述に必要不可欠な特性値を求める方法を確立した。本手法は、アルギン酸ナトリウムをモデル試料として用い、試料濃度 3 条件、分離膜 3 種類で検討した結果、いずれの条件にも適用可能で、使用する膜の特性の把握により、詳細な濾過データがなくても容易に濾過全体の挙動を推算できることを明らかにした。限られたわずかな期間に採取した濾液量の変化のみで、濾過速度が急激に減少するまでの濾過時間が推測でき、膜洗浄や膜交換の時期の決定にも繋がることから、本提案手法は周期逆洗型膜濾過プロセスの容易かつ効率的な運転に貢献できるものと考えられる。

謝 辞

本研究の一部は、令和 2 年度文部省科学研究費（基盤研究 (C)、17K06889 および 20K05190）の援助を受けて行われたことを記して感謝の意を表する。

（原稿受付 2021 年 3 月 19 日）

（原稿受理 2021 年 5 月 17 日）

参 考 文 献

- 1) Yusuf, A., Sodiq, A., Giwa, A., Eke, J., Pikuda, O., De Luca, G., Luque Di Salvo, J., Chakraborty, S., 2020. A review of emerging trends in membrane science and technology for sustainable water treatment. *Journal of Cleaner Production* 266, 121867.
- 2) 入谷英司, 片桐誠之, 杉山悠生, 2011. 希薄コロイドの定速および定圧精密濾過における膜閉塞特性. *化学工学論文集* 37(4), 323-326.
- 3) Iritani, E., Katagiri, N., 2016. Developments of blocking filtration model in membrane filtration. *KONA Powder and Particle Journal* 33, 179-202.
- 4) American Society for Testing and Materials, 2007. Standard

- test method for silt density index (SDI) of water, D19.08 on membranes and ion exchange materials. ASTM D4189-07.
- 5) White, D.A., 1996. The interpretation of the SDI for water solids content using the filtration equation. *Process Safety and Environmental Protection* 74(2), 137-140.
- 6) Park, C., Kim, H., Hong, S., Choi, S.I., 2006. Variation and prediction of membrane fouling index under various feed water characteristics. *Journal of Membrane Science* 284(1-2), 248-254.
- 7) Park, C., Kim, H., Hong, S., Lee, S., Choi, S.I., 2007. Evaluation of organic matter fouling potential by membrane fouling index. *Water Science & Technology: Water Supply* 7(5-6), 27-33.
- 8) 松本幹治, 古市光春, 中村一穂, 新田見匡, 2009. 膜ろ過プロセスにおける修正 SDI による水質評価. *膜* 34(2), 94-103.
- 9) Alhadidi, A., Kemperman, A.J.B., Schippers, J.C., Wessling, M., van der Meer, W.G.J., 2012. SDI: is it a reliable fouling index? *Desalination and Water Treatment* 42(1-3), 43-48.
- 10) Habib, M., Habib, U., Memon, A.R., Amin, U., Karim, Z., Khan, A.U., Naveed, S., Ali, S., 2013. Prediction colloidal fouling of tap water by silt density index (SDI): Pore blocking in a membrane process. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 1(1-2), 33-37.
- 11) Shippers, J.C., Verdouw, J., 1980. The Modified Fouling Index, a method of determining the fouling characteristics of water. *Desalination* 32, 137-148.
- 12) Boerlage, S.F.E., Kennedy, M.D., Dickson, M.R., El-Hodali, D.E.Y., Schippers, J.C., 2002. The modified fouling index using ultrafiltration membranes (MFI-UF): characterization, filtration mechanisms and proposed reference membrane. *Journal of Membrane Science* 197(1-2), 1-21.
- 13) Khirani, S., Ben Aim, R., Manero, M.H., 2006. Improving the measurement of the Modified Fouling Index using nanofiltration membranes (NF-MFI). *Desalination* 191(1-3), 1-7.
- 14) Iritani, E., Katagiri, N., Sawada, D., 2018. Simultaneous evaluation of mechanism and degree of fouling from limited flux decline data in dead-end microfiltration. *Journal of Chemical Engineering of Japan* 51(6), 507-517.
- 15) Tow, E.W., Lienhard, J.H., 2017. Unpacking compaction: Effect of hydraulic pressure on alginate fouling. *Journal of Membrane Science* 544, 221-233.
- 16) Cao, D.Q., Jin, J.Y., Wang, Q.H., Song, X., Hao, X.D., Iritani, E., Katagiri, N., 2020. Ultrafiltration recovery of alginate: membrane fouling mitigation by multivalent metal ions and properties of recycled materials. *Chinese Journal of Chemical Engineering* 28, 2881-2889.
- 17) 原田美冬, 古澤和輝, 鈴木祐麻, 新苗正和, 和田善成, 市村重俊, 2020. 下水の再利用を目的とした統合的膜処理システムにおける逆浸透膜のアルギン酸によるファウリングとカルシウムイオンの役割. *水環境学会誌* 43(6), 165-173.
- 18) Lee, H., Ahmad, R., Kim, J., 2020. Alginate to simulate biofouling in submerged fluidized ceramic membrane reactor: Effect of solution pH and ionic strength. *Bioresource Technology* 302, 122813.
- 19) Teng, J., Chen, Y., Ma, G., Hong, H., Sun, T., Liao, B.Q., Lin, H., 2020. Membrane fouling by alginate in polyaluminum chloride (PACl) coagulation/microfiltration process: Molecular insights. *Separation and Purification Technology* 236, 116294.
- 20) Hermans, P.H., Bredée, H.L., 1936. Principles of the mathematical treatment of constant-pressure filtration. *Journal of the Society of Chemical Industry* 55T, 1-4.
- 21) Grace, H.P., 1956. Structure and performance of filter media. II. Performance of filter media in liquid service. *AIChE Journal* 2(3), 316-336.
- 22) Shirato, M., Aragaki, T., Iritani, E., 1979. Blocking filtration laws for filtration of non-Newtonian fluids. *Journal of Chemical Engineering of Japan* 12(2), 162-164.
- 23) Hermia, J., 1982. Constant pressure blocking filtration laws - Application to power-law non-Newtonian fluids. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers* 60(3), 183-187.
- 24) Iritani, E., Katagiri, N., Sugiyama, Y., Yagishita, K., 2007. Analysis of flux decline behaviors in filtration of very dilute suspensions. *AIChE Journal* 53(9), 2275-2283.
- 25) 片桐誠之, 2014. 微生物試料の分離における膜利用. *膜* 39(1), 14-20.
- 26) Iritani, E., Katagiri, N., Yamashita, Y., 2017. Effect of membrane morphology on rising properties of filtration resistance in microfiltration of dilute colloids. *AIChE Journal* 63(8), 507-517.

[論 文 要 旨]

限られた期間のごくわずかな膜濾過データで求まるファウリング指標から、濾過の全挙動を推算する手法を提案する。閉塞濾過理論に基づき、膜閉塞特性とファウリング指標 FMI (Fouling Mechanism Index) との関係性を明らかにすることで、濾過挙動の推算に必要な閉塞特性値を求める方法を確立した。定圧条件の膜濾過における、濾過速度および濾液量の経時変化を推算したところ、膜の初期特性と閉塞特性に基づく計算値は実験値の挙動を概ね表していた。本手法は、試料の濃度や分離膜の種類といった濾過条件、および膜の目詰まりやケーキの形成といったファウリング機構によらず広く適用可能なことも確認された。したがって、実際の膜処理条件に合わせて、濾過試験を限られた時間で行い、膜特性と FMI を求めることで、膜洗浄や膜交換の時期の決定にも繋がる濾過挙動の推算値を得ることができる。

キーワード: 膜濾過; 膜ファウリング; ファウリング指標; ファウリング機構; 閉塞濾過