

图4-5 1 wt% 肽酮水溶液经不同频率超声波辐照的体积流量。开圈为无超声波时获得的流量数据。

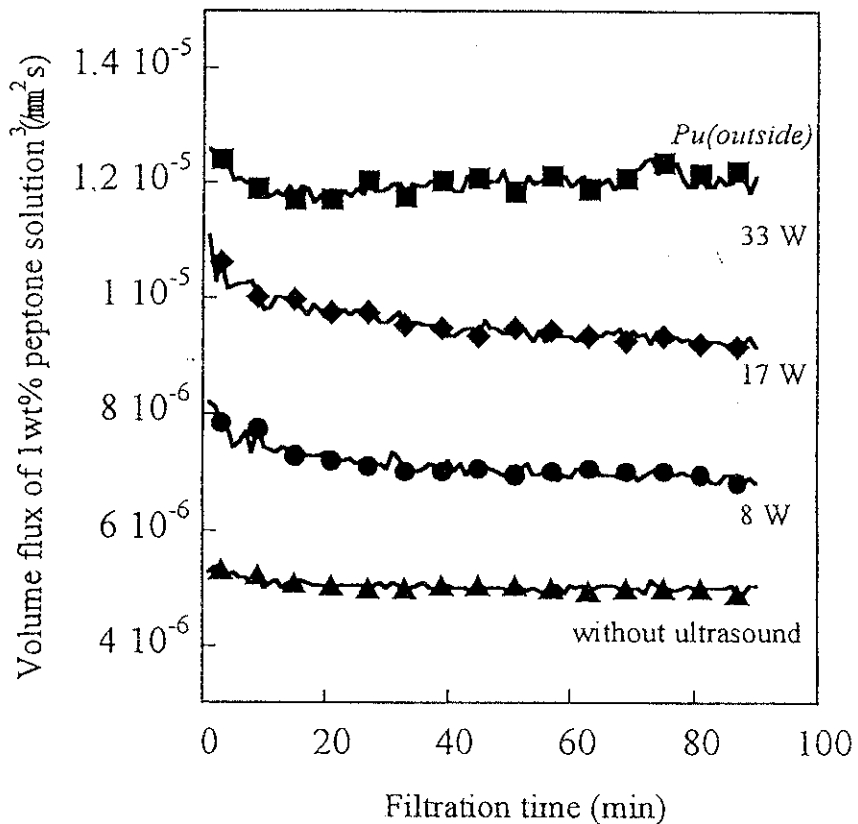


图4-6 1 wt% 肽酮水溶液在 28 kHz 超声波辐照下，不同功率时渗透通量随时间的变化。

4.3.2 ペプトン濃度依存性

ペプトン溶液の濃度を0.5から6wt%に代えて同様に体積流束を測定した結果を図4-7a)に示す。超音波を照射しない結果(図4-7b))と比べても全ての濃度範囲で、超音波照射の効果が確認でき、超音波により高い処理速度を維持できることが示された。超音波強度測定の結果から考察すると、最も超音波の効果が観測された28kHzでは、その強度は、用いた3種類の周波数の中で最も低かったために、超音波照射によって体積流束が増加する現象は、超音波強度の違いに起因するものではないことがわかる。この超音波効果は周波数に依存するが、超音波処理を併用することによりペプトンによる濾過特性を改善できることが明らかになった。

体積流束(J)と供給濃度(C)の対数をとると次のような関係が導かれる^{3,4)}。

$$J = k \ln(C_w/C) = k \ln(C_w) - k \ln(C)$$

ここで C_w は膜表面上の溶質濃度であり、 k は物質移動係数であり、 $k=D/\sigma$ で表れる。 D は溶質の拡散係数、 σ は濃度分極層の厚さ(m)である。図4-8に J と $\ln(C)$ のプロットを示す。いずれ直線近似でき、これより各パラメーターは表のようになる。 C_w の値は超音波処理により低下する傾向があり、特に28、45kHzの場合に低くなることを意味している。また、いずれも同じペプトン溶質を用いているため、その膜内拡散に対する超音波の周波数依存性が少ないとすると、 k の値より膜表面上の分極層溶質距離は、28kHzで他よりも小さいことがわかる。これと同じ解析をデキストランを溶質に用いた場合も行っており、ペプトンの結果と同様な傾向がすでに得られた⁴⁾。これらの結果は低周波の超音波を利用することにより膜表面で形成される濾物の堆積を抑制出来ることを示唆している。

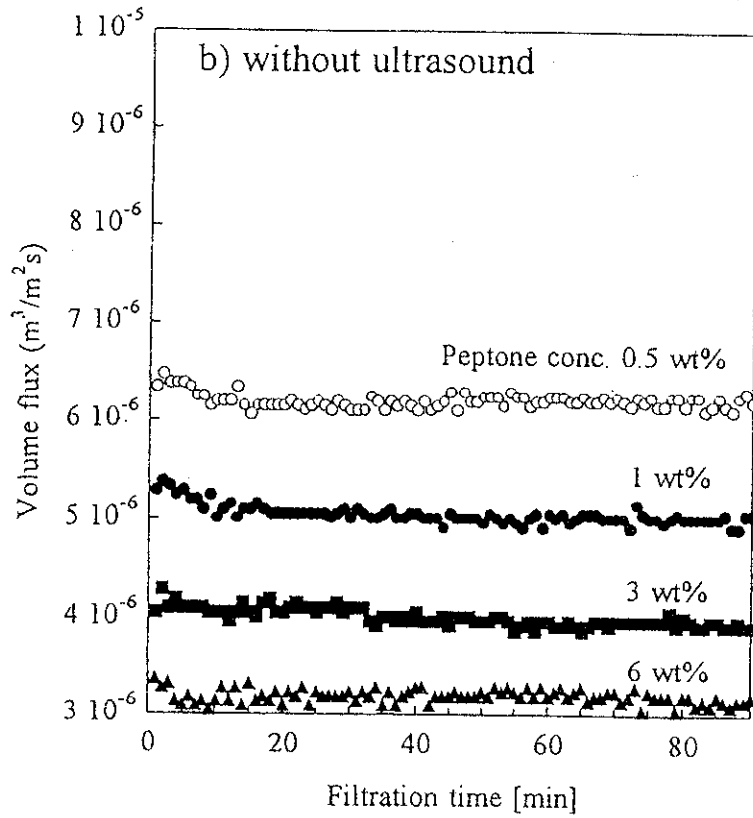
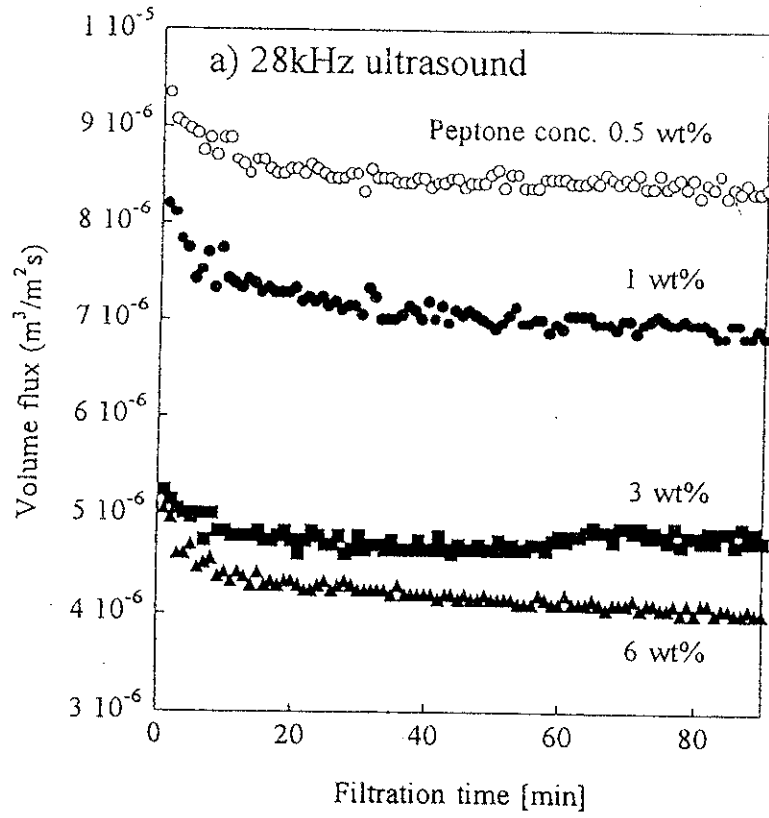


图4-7 Volume flux of peptone aqueous solution by the irradiation (a) and unirradiation (b) of 28kHz frequency ultrasound. Peptone concentration was changed in the range of 0.5 to 6 wt%.

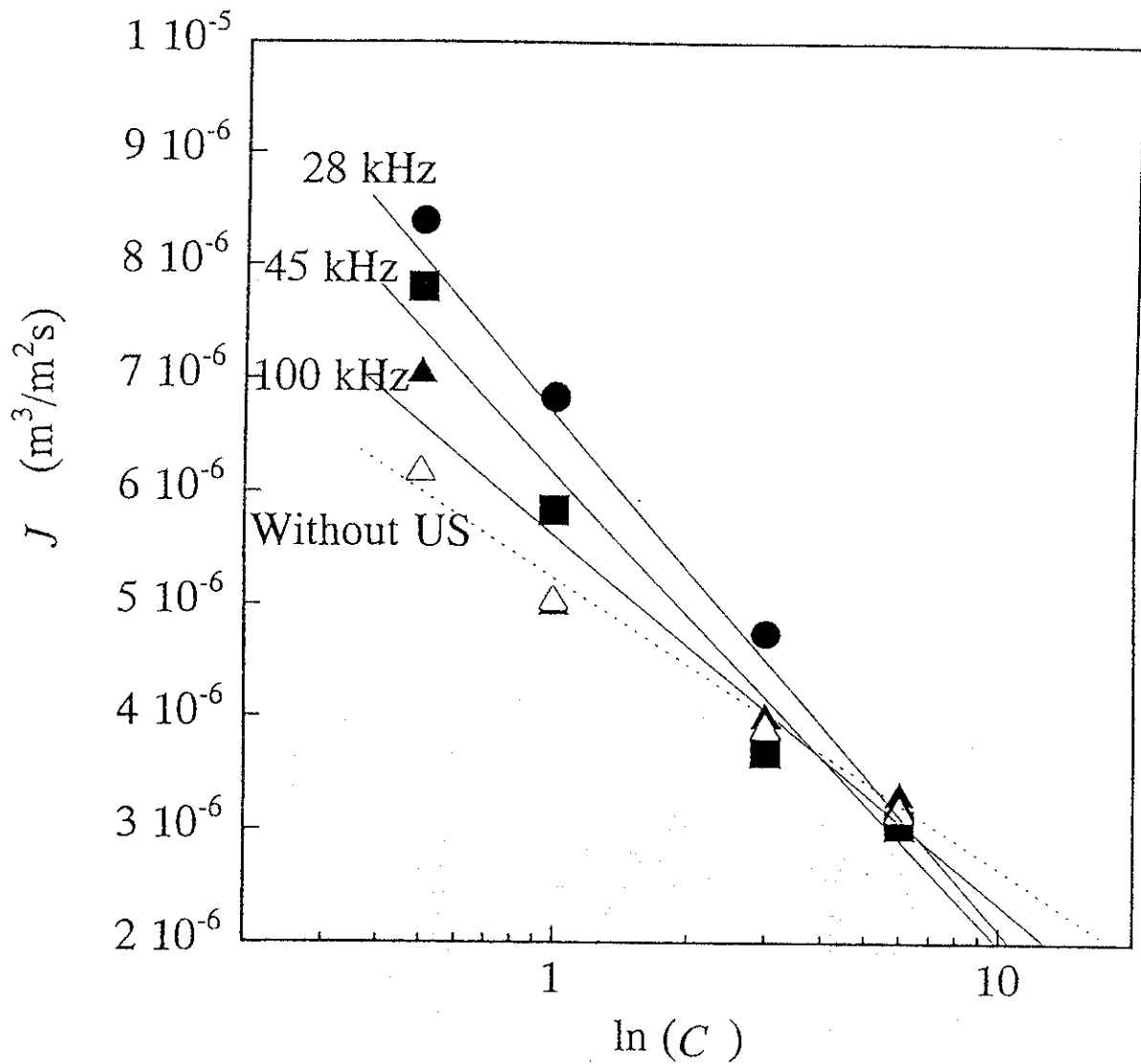


図4-8 J - $\ln(C)$ plots for PS membrane-Peptide system.

4.3.3 浸漬吸引型のMF膜について

図4-9に浸漬吸引型中空糸MF膜の装置図を示す。膜は三菱レイヨンの540TS中空糸モジュール(平均孔径0.1 μ m、膜面積0.01 m^2)を用いた。図に示すように、ガラス容器(30 \times 24 \times 16 cm^3)をステンレス製水浴槽(30 \times 24 \times 16 cm^3)内に浸し、その浴槽の底に振動子を張り付けた。ガラス容器内には、膜モジュールを固形分3.7%の牛乳(1L)に浸してあり、モジュール端からポンプで吸引を行い濾過実験を行った。濾過を行うとファウリングによる閉塞のために濾過特性の低下を生じるので、この状態に超音波を照射した。また、氷による洗浄については、ガラス容器内の牛乳を水に入れ替えた後で同様に実験を行った。図4-10はフラックスの経時変化である。実験を始めてから30分で低下

したフラックスがほぼ一定となった後に、そのまま濾過を継続しながら 28kHz の超音波を照射した (▽)。しかし、顕著な超音波効果はほとんどみられなかった。超音波照射しないで、水洗浄した場合も同じであった。水中で超音波を照射しながら濾過洗浄するとフラックスの回復は見受けられ、28kHz の周波数の場合が最も効果的であった。しかしながらその回復の程度はあまり良好ではなく、明らかに付着した牛乳固形分が洗浄終了後 (1 時間照射洗浄) も膜表面に残存しているのが見えた。この実験に関しては、まだ、当研究室で実験を始めたばかりであり濾過の最適化等が把握できていない問題もあり、超音波効果と濾過条件の最適化を行い、さらにより細かな検討を必要であると思われる。

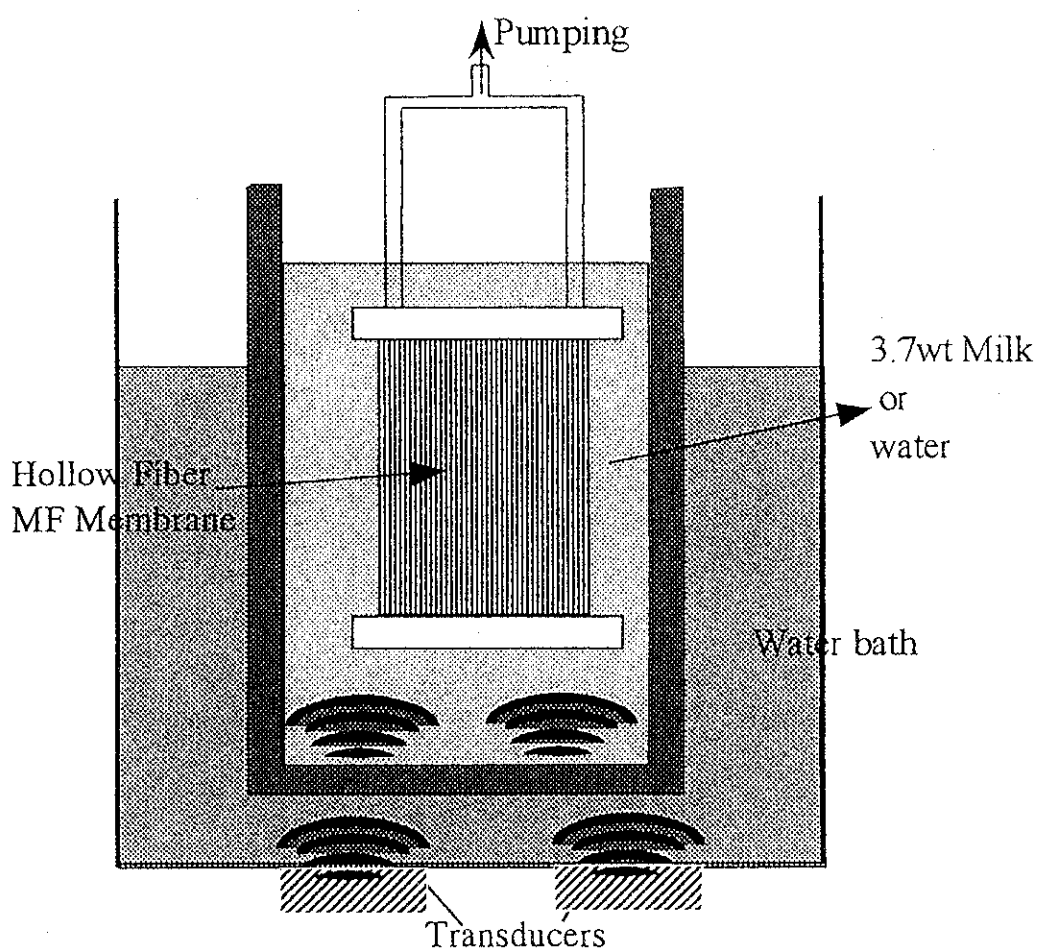


図4-9 Schematic illustration of ultrasound-hollow fiber membrane system.

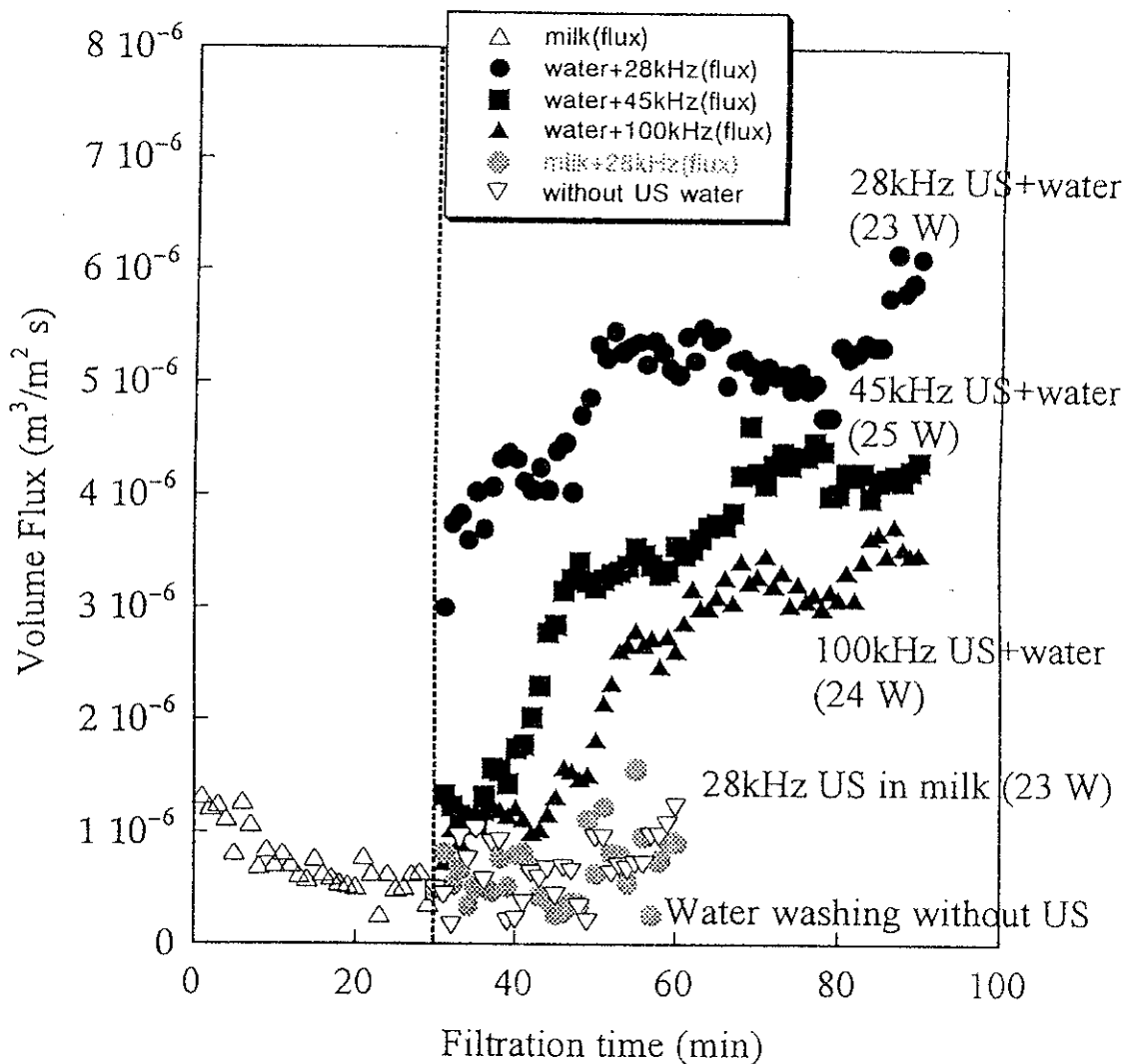


図4-10 Change of permeate flux with filtration time for milk treatment by hollow fiber membrane. Various frequency ultrasounds were emitted with 23-24 W.

4.4 まとめ

PS 限外濾過膜へのペプトン透過に関する超音波効果は、低周波な超音波ほど効果があることが示された。その濾過に関して濃度分極モデルを適応した結果、28kHz の超音波照射の場合には 100kHz や照射しない場合に比べ、膜面ゲル分極層濃度が低いことがわかった。また超音波の強度が高くなるほど透過性が促進された。

浸漬型の中空系タイプの精密濾過膜についても固形分 3.7%の牛乳を用い超音波効果についての研究を開始し、その予備的結果が得られた。膜へのファウリングが著しく、その状態に超音波を照射しても効果的な膜再生を可能とする条件を見いだせず、条件の最適化が必要であった。

文献

- 1)J. Raso, P. Manas, R. Pagan and F. J. Sala: *Ultrasonic Sonochem.*,5(1999) 157.
- 2)P. F. Contamine, A.M. Wilhelm, J. Berlan and H. Delmas: *Ultrasonic Sonochem.*, 2(1995) S43.
- 3)*Basic Principles of Membrane Technology*, 2 ed. M.Mulder, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht 1996.p430-432.
- 4)T. Kobayashi, X. Chai, and N. Fujii: *Sep. & Purif. Tech.* 17 (1999)31 .

第5章 膜分離活性汚泥の挙動の予測手法の開発

5.1 カルマンフィルタを用いた予測手法の開発

5.1.1 はじめに

膜分離活性汚泥法の最大の問題点は、膜面に菌体外ポリマーなどの粘性物質が膜面に付着し、膜透過流束が減少し、十分な処理水量が得られなくなる点にある。ろ過抵抗の上昇を表すモデル式を直接、カルマンフィルタに適用させて、ろ過抵抗の上昇及び混合液粘度を予測し、観測値と予測値を比較することによりカルマンフィルタによる予測の信頼性について検討を行った。さらに、モデル式中のパラメータを線形確率システムの状態量に組み込む事により、同時にパラメータ同定も試みた。

5.1.2 推定に用いるモデル式

本論では膜目詰まりの原因を、槽内に蓄積した菌体の代謝物質である、菌体外高分子ポリマーであるとした数理モデルを採用した。このモデル式は Nagaoka らが開発した数理モデルを、カルマンフィルタに適用しやすくするために、簡略化したものである。

$$\frac{dp}{dt} = Y \cdot L \cdot \beta - k_d \cdot p \quad (1)$$

$$\frac{dm}{dt} = c \cdot p \cdot J - K \quad (2)$$

$$R_p \equiv (R_t - R_{memb}) = \alpha \cdot m \quad (3)$$

$$\mu = a \cdot P \quad (4)$$

ここに、Y:収率=0.5 L:TOC 容積負荷=0.9(g/L/day) β :ポリマー生成率 p:菌体外ポリマー量(g/L)
 k_d :自己酸化定数=0.018(1/day) m:膜付着ポリマー量(kg/m²) c:定数=0.2J:膜透過流束=0.12(m/day)
K:ポリマーの剥離速度(kg/m²·day) R_t :ろ過抵抗(m⁻¹×10¹²) α :ポリマーの比抵抗 1.9×10¹⁷(m/kg)
 R_p :付着物によるろ過抵抗= $R_t - R_{memb}$ μ :混合液粘度(mPa·s) a:菌体外ポリマーの粘度への影響=0.5(m)
 R_{memb} :膜のろ過抵抗=2.5726(m⁻¹×10¹²)とする。

ポリマーの膜面への付着速度は、ポリマー量のうちのある部分がろ過抵抗に関係しているとして、

定数 c を乗じて、その物質とフラックスの関係で付着していくものとして、剥離速度 K により剥離していくものと考えた。

膜面に付着する菌体外ポリマーのみがろ過抵抗に影響を与えると、仮定するろ過抵抗は(3)式のようになる。また、菌体外ポリマーと混合液の粘度の関係が線形であると考えると、(4)式のようになる。

3.1.3 カルマンフィルタへの適用

活性汚泥法のような不確定な要因が相互に関連するような現象は、確率論的に扱うのが妥当である。実際の物理現象は、モデルの構造系、観測系の全てにノイズが含まれており、本論では観測量を確率量として扱うこととする。線形確率システムは以下の状態方程式(5)と、観測方程式(6)で表現される。雑音ベクトルは平均値0のガウス白色雑音である。

$$x_{t+1} = F_t \cdot x_t + G_t \cdot w_t \quad (5)$$

$$Y_{t+1} = H_t \cdot x_t + K_t \cdot v_t \quad (6)$$

ここに、 x_t :状態ベクトル Y_t :観測ベクトル w_t :システム雑音 v_t :観測雑音 H_t :観測行列 G_t, K_t :駆動行列である。

(1)~(4)式を、時間きざみ $\Delta t(2\text{day})$ で差分化し、(1), (3) の線形確率システムに適用させる。そのときに状態量として菌体外ポリマー量、付着ポリマー量、菌体に対するポリマーの割合、剥離量を取り、観測量に混合液粘度、ろ過抵抗をとるとそれぞれのマトリクスは以下のようになる。

$$x_t = \begin{pmatrix} P \\ m \\ \beta \\ K \end{pmatrix} \quad G_t = \begin{pmatrix} 0.03 \\ 0.02 \\ 0.001 \\ 0.00001 \end{pmatrix}$$

$$Y_t = \begin{pmatrix} \mu \\ R_t \end{pmatrix} \quad K_t = \begin{pmatrix} 1 \\ 4 \end{pmatrix}$$

$$F_t = \begin{pmatrix} -(k_d \cdot \Delta t - 1) & 0 & Y \cdot L \cdot \Delta t & 0 \\ J \cdot \Delta t & 1 & 0 & -\Delta t \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} H_t = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \alpha & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

雑音にかかる項である G_t, K_t は状態量または観測量に対する雑音の重みを調整するために設定した。また、その数値については植田らによる実験値¹⁾の大きさより推定した。 β と K にかかる重みが異なるのは、ポリマー生成率のほうが値の変動が激しいためと考えたからである。

5.1.4 洗浄の取り扱い及び初期値

観測値となるデータは、MF 中空糸膜を用いた室内実験結果である。TOC 容積負荷は $0.9(\text{g/L/day})$ で行われている。

膜洗浄は 30, 46, 72 日目に、46, 66 日目に汚泥の引き抜きを行っているので、その時点で計算を一旦止めて、数値を初期値に戻して再度、計算をおこなった。

初期値は、実験値を参考にし、システム雑音 w_t の標準偏差は 1、観測雑音 v_t の標準偏差は 7 とし、 $P=0.202(\text{g/L}), m=0(\text{kg/m}^3), \beta=0.032, K=0.01(\text{kg/m}^3 \cdot \text{day})$ とした。

実験結果を図 5-1, 図 5-2 に示す。

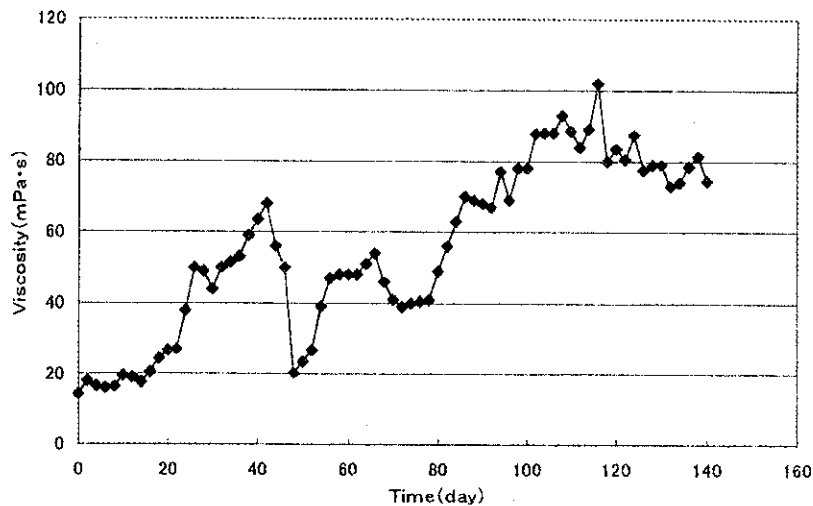


図5-1 Experiment results of viscosity

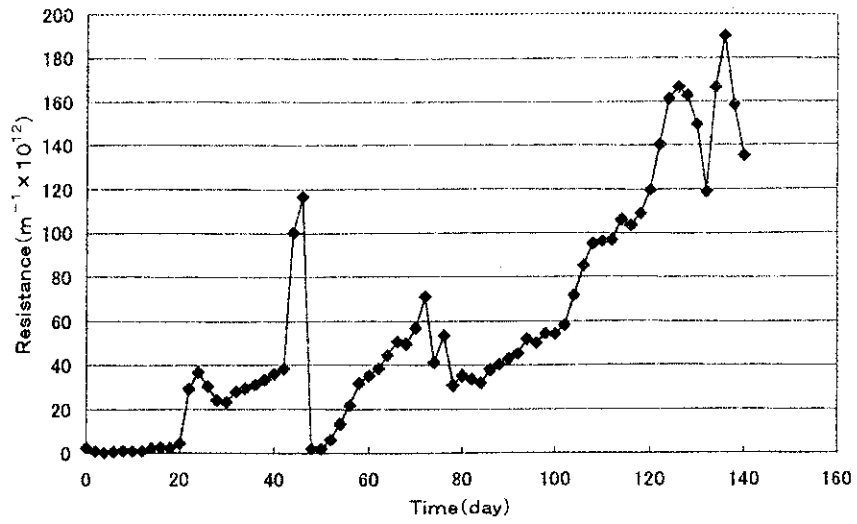


図5-2 Experiment results of Filtration resistance.

5.1.5 推定結果及び考察

計算されたポリマー量 p を図5-3に示す。

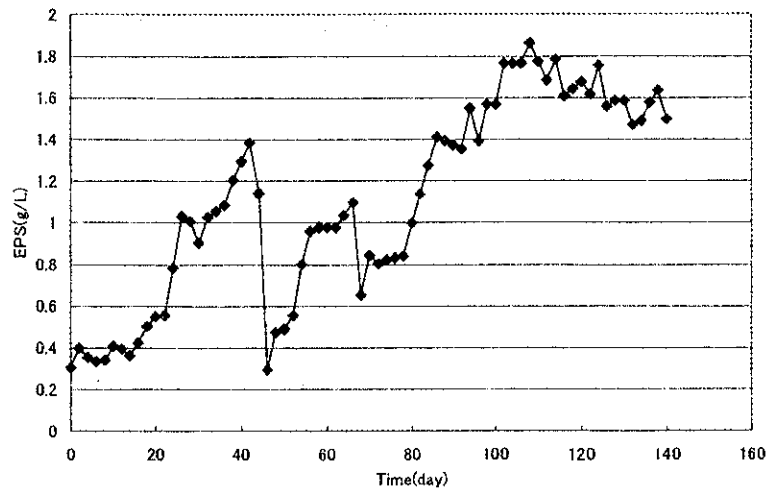


図5-3 variation of EPS

図5-4にポリマー量にかかるカルマンゲインの値を示す。

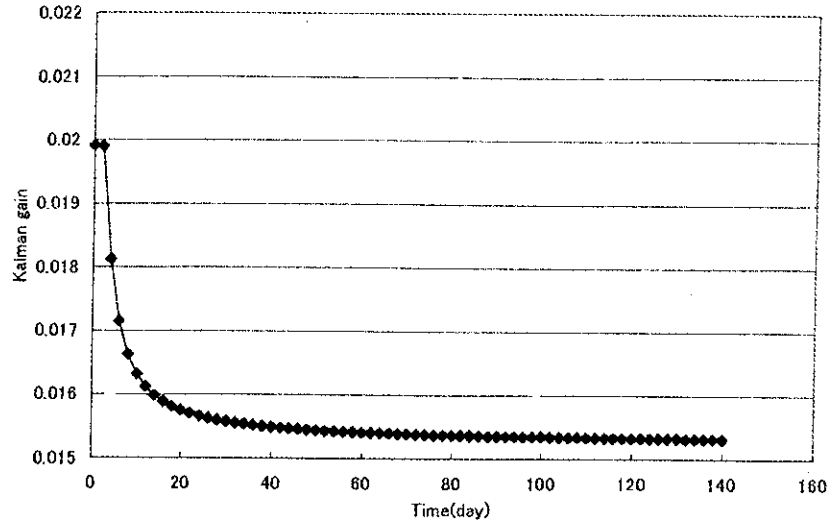


図5-4 Variation of Kalman gain

計算された膜附着ポリマー量を図5-5に示す。

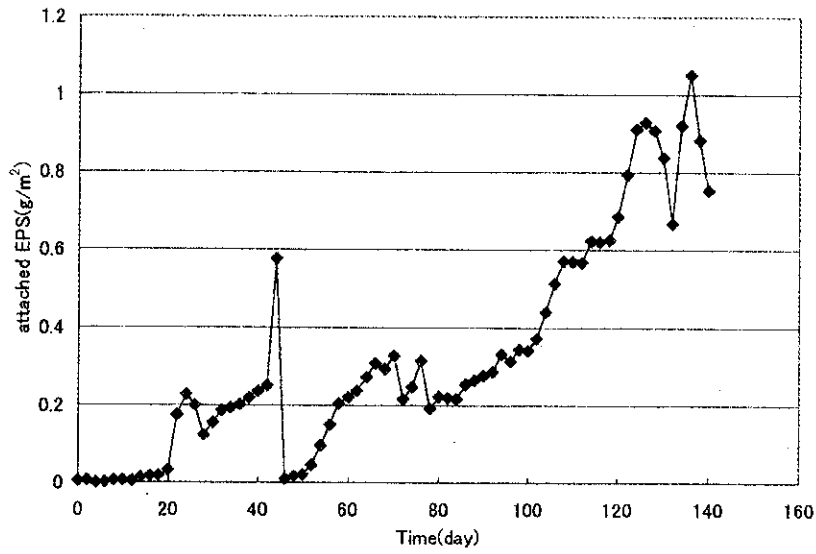


図5-5 variation of EPS attach on membrane

図5-6に膜附着ポリマー量にかかるカルマンゲインの値を示す。

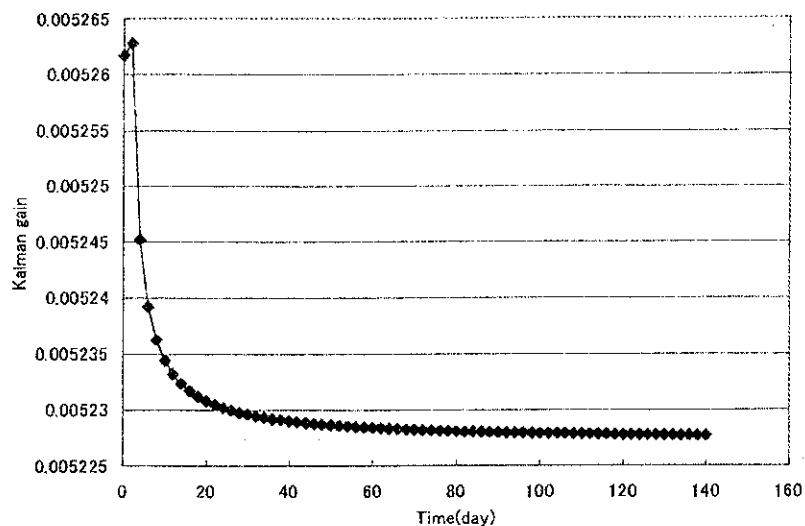


図5-6 Variation of Kalman gain

ポリマー生成率 β を計算した結果を図5-7に示す。始めは計算が安定していないため、数値が乱れているが、60日目付近からは約0.03程度の値に収束してきている事がわかる。

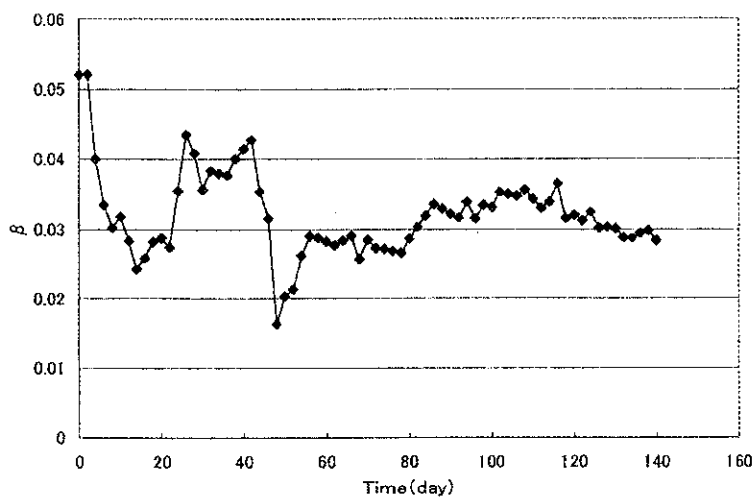


図5-7 Variation of β

図5-8にポリマー生成率にかかるカルマンゲインの値を示す。

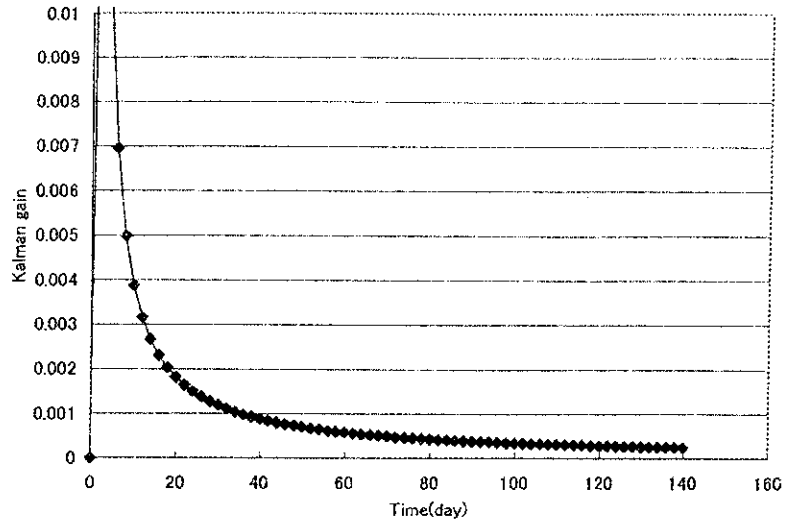


図5-8 Variation of Kalman gain

図5-9に剥離量 K の変化を示す。やはり β の同定結果と同様、始めの系が安定しないうちは値が乱れている。しかし、80日目以降にろ過抵抗が安定した上昇を見せると、剥離量も同じように安定した上昇を見せている。剥離量は膜面に付着する物質の量と関係しているのであるが、この予測においても、膜付着ポリマー量が上昇するのに合わせて、剥離量が上昇していることがわかる。

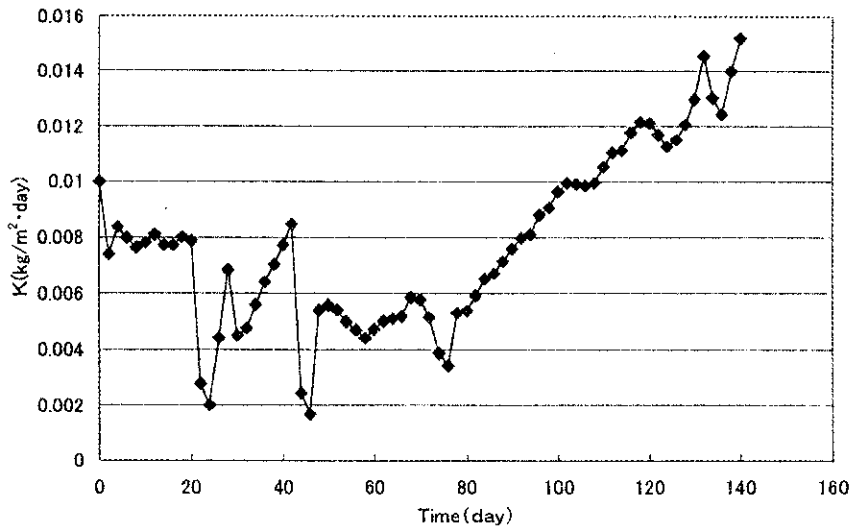


図5-9 Variation of K

図5-10に膜付着ポリマー量にかかるカルマンゲインの値を示す。

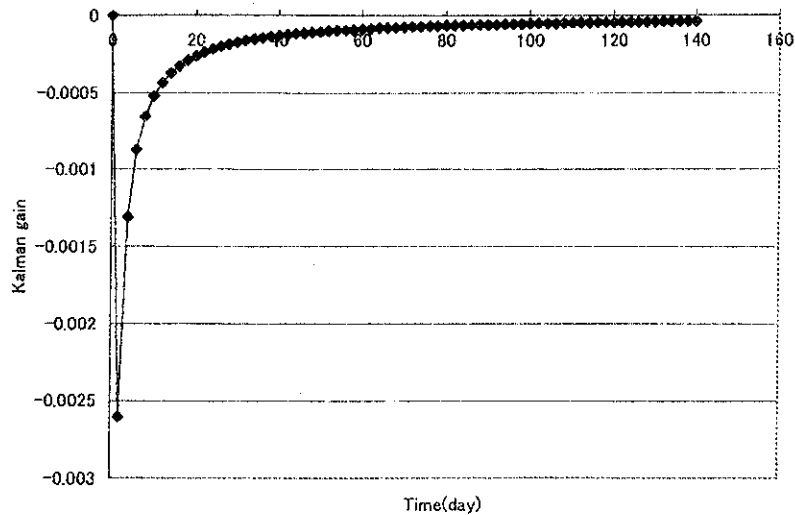


図5-10 Variation of Kalman gain

粘度について1ステップ(2日)先を予測した結果と実測値の比較を図5-11に示す。混合液の粘度の予測値については概ね、精度の良い値が出ているといえるが、40日目付近や102日目付近における、生物の状態を起因とする値の急激な上昇もしくは下降が起こった場合に、予測値が1期おくれで追従していくような傾向が見られる。これらの原因としては、予測値は1期前の値に依存するというマルコフ性をカルマンフィルタが仮定しているためであると考えられる。そのため生物の状態が不安定で値が激しく上下するような過程を予測するには、モデル式の中で定数として扱っている収率 Y や自己酸化定数 k_i などを状態量とするか、新たに β の数値に関する方程式を構築し、カルマンフィルタに組み込むなどの工夫が必要であると思われる。

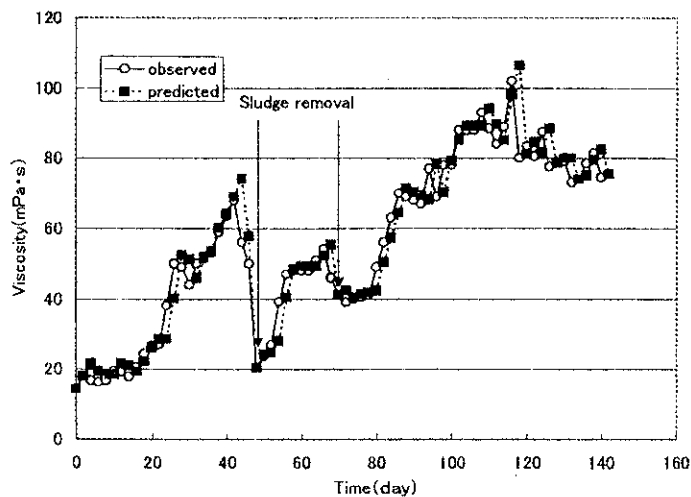


図5-11 Prediction of Viscosity(1step)

図5-12に1ステップ先を予測したろ過抵抗の値を示す。混合液の予測値と同様に精度の良い値が出てるといえる。しかし、40日目付近や120日目付近における、急な剥離や曝気状態の変化などが原因となる値の急激な上昇もしくは下降には、1期おくれとなるような結果がでている。これらの誤差も剥離速度Kについての方程式を構築するなどの工夫により、低減されると思われる。

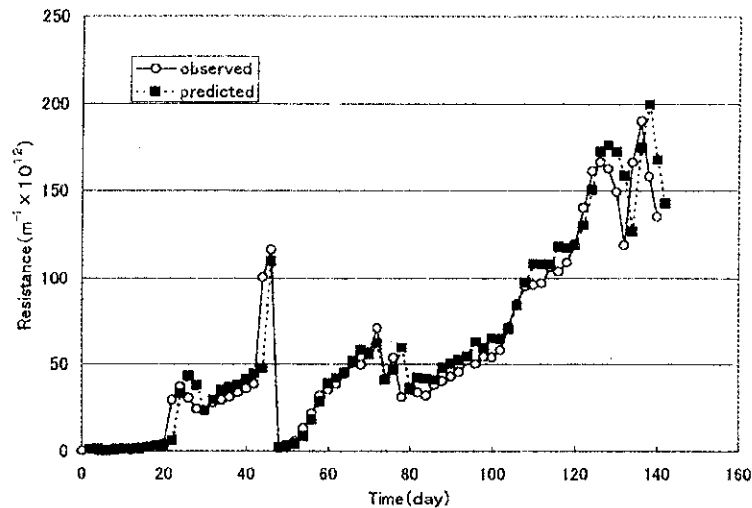


図5-12 Prediction of filtration Resistance(1 step)

5.1.6 長期予測

以上の結果から、菌体に対するポリマーの割合 β 及び剥離量 K が計算された。そこで、計算されたパラメータを用いて、実験終了よりもさらに未来のろ過抵抗の上昇をシミュレートし、実際の洗浄時期などを決定する目安となるものを求める事を試みた。

菌体に対するポリマーの割合 β は定数として扱えるが、剥離速度 K は膜付着ポリマー量に依存していると考えられるので、剥離速度 K と膜付着ポリマー量 m の間に以下のような関係があると仮定した。

$$K = k_m \cdot m \quad (7)$$

k_m : 剥離速度定数(day^{-1})

よって、膜面に付着するポリマー量の変化に関連する式である式(2)を式(6)のように書き換え、これを用いて、ろ過抵抗の長期的なシミュレーションを行った。

$$\frac{dm}{dt} = c \cdot p \cdot J - k_m \cdot m \quad (8)$$

剥離速度 K を膜面付着ポリマー量 m により除し、剥離速度定数 k_m を計算した結果を図 5-13 に示す。剥離速度定数は 0.02 程度の数値に収束している。

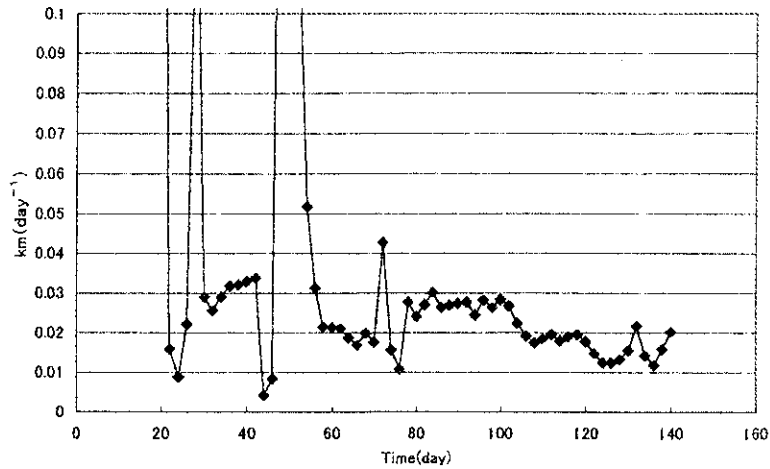


図5-13 Variation of k_m

実験を開始してからすぐに今後のろ過抵抗の上昇を予測する事を想定して、実験開始 10 日目に同定されたパラメータを用いて長期間の予測をおこなった結果を図 5-14 に示す。

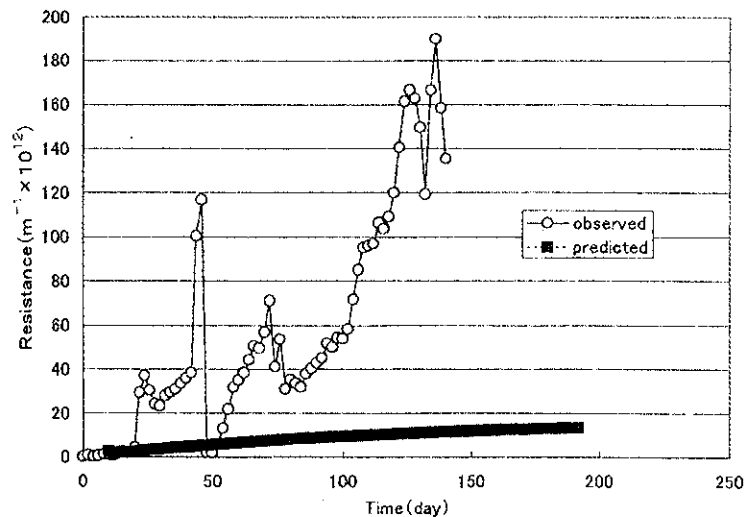


図5-14 Prediction of filtration resistance

図 5-14 では、未だ上昇傾向が現れていない時点で同定されたパラメータを用いているため、

予測においてもほとんどろ過抵抗は上昇しない結果が出てしまい、実際の実験値からは大きく離れてしまっている。

つぎに、34 日目において求められているパラメータ値を用いてその後の長期予測を行った結果を図 5-15 に示す。膜洗浄については、サンプルとなる実験と同様の日に行い、膜附着ポリマー量を 0.2 倍して計算を行った。

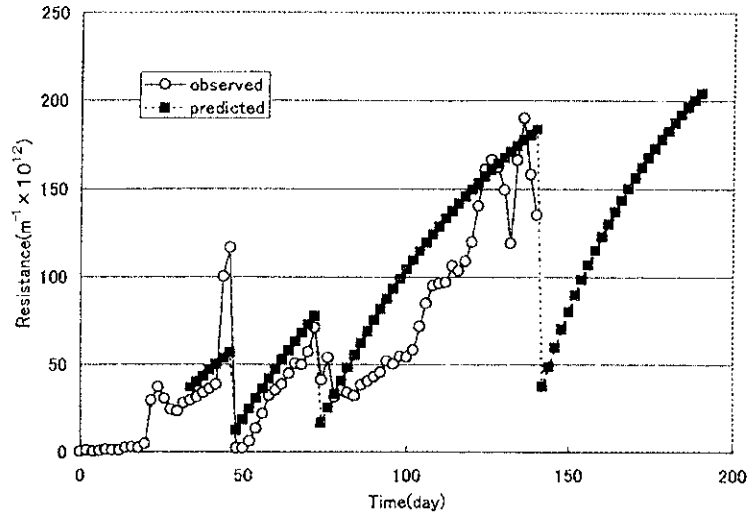


図5-15 Prediction of filtration resistance

上昇の傾向や膜洗浄直前のろ過抵抗の状態など精度の高い長期予測の結果を得ることができた。この時点で同定されたパラメータが概ね正確なものであることがわかる。

ろ過抵抗の上昇傾向が現れており、かつ系が安定している実験開始後 88 日目に同定されたパラメータ値を用いて長期予測を行った結果を図 5-16 に示す。

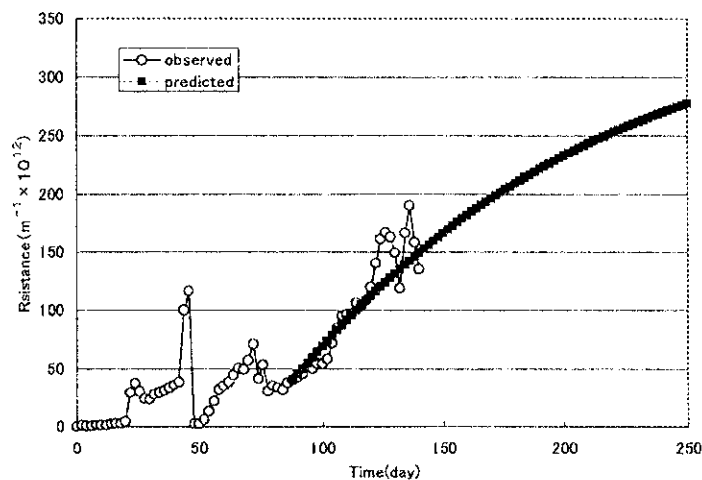


図5-16 Prediction of filtration resistance

88 日目以降は、ろ過抵抗の上昇傾向が安定しており、微生物の変化等を要因とする値の大きな変動がないため実験値に対し正確な予測を行う事ができた。さらに、実験終了後もどのようにろ過抵抗が上昇していくかを把握する事ができたといえる。

5.1.7 膜洗浄の時期の推定

実際の装置においては、膜間吸引差圧が 100kPa を超える事はありえない。そこで膜洗浄を加える事になる。本論においても膜間吸引差圧の上限値を 100kPa として、それを越えた時点で膜洗浄を加える予測を行った。膜間吸引差圧とろ過抵抗の関係式には次式を使用した。

$$R = \frac{\Delta P}{\mu \cdot J} \quad (3.9)$$

ΔP : 膜間差圧(Pa)

μ : 水の粘性係数(20°C)=0.001009(Pa · s)

この式からフラックスを一定に保ちながら運転を行う場合、ろ過抵抗の上限値は $1.06 \times 10^{14}(\text{m}^{-1})$ となる。

膜洗浄におけるろ過抵抗回復率は過去の回復率の平均をとり、0.29 とした。

予測結果を図 5-17 に示す。

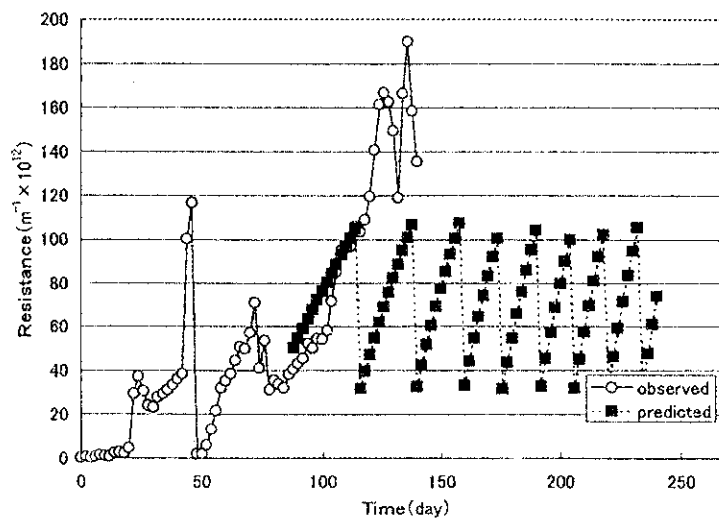


図5-17 Prediction of filtration resistance

約 20 日に 1 度膜洗浄を加える必要があることが予測されている。また、槽内に菌体外ポリマーが蓄積されていくために、ろ過抵抗の上昇速度が速くなり、次の膜洗浄までの日数が短くなっていく事が示されている。

実験終了の時点で求められているパラメータを用いて長期予測を行った結果を図 5-18 に示す。実験終了の時点で膜洗浄を行ったとし、膜洗浄は上記の条件に基づいた。

結果としては 88 日目以降のパラメータを用いて予測したものと同様の結果がでたことから、予測の精度は高いものと予測される。

以上より、将来の膜洗浄の時期及び回数を予測が可能であることが示された。

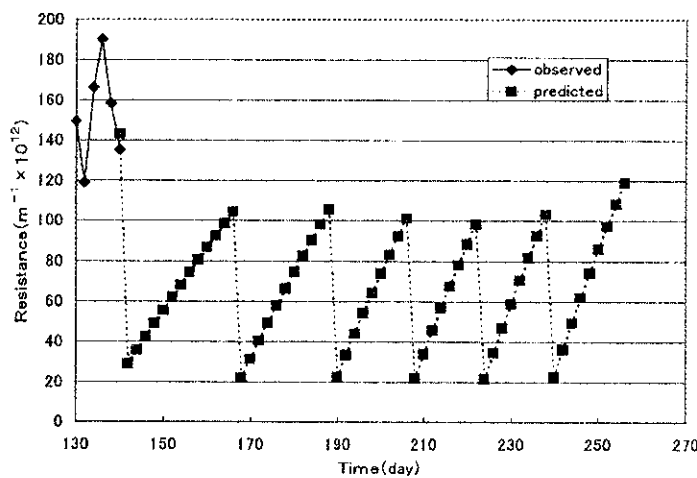


図5-18 Prediction of filtration resistance after 140days

5.1.8 結論

膜分離活性汚泥法におけるろ過抵抗の上昇の予測を、物理モデルを用いて行った。その結果より得られた結論を以下に示す。

- (1)ろ過抵抗の上昇モデルを直接カルマンフィルタに適応させる事により、観測値に追従した予測値を求めると同時に、モデル式中のパラメータ同定を行う事ができた。
- (2)計算されたパラメータを用いて長期予測を行う事により、将来のろ過抵抗の上昇傾向や、膜洗浄の実行時期を推定することができた。

5.2 壁面近傍における気泡上昇に伴う気液固界面付近の流れの解析

5.2.1 はじめに

平膜を導入した膜分離法による浄水処理の効率的なシステム開発として、処理過程での課題とさ