

分類	No	詳細設問	評価区分	判定点	評価点 (50点満点)	合計点 (100点満点)
漏水	A	管(本体・継手)の漏水事故及び漏水修繕件数は? (第三者による破損等の場合は除く)	3:1度もない 2:記録は残していないが、分かっている範囲で事故はない 1:1度ある 0:複数回ある	1	17/50	42/100
	B.1	布設してからの経過年数は?	2:20年未満 1:20~39年、又は【不明の場合】 0:40年以上	0		
	B.2	金属管の場合は外面腐食対策、又は樹脂管の場合は必要な外面損傷対策(砕石等の突起による管体破損への対策)を行っているか?	2:区間内全て対策済み(ポリスリーブ・外面被覆・電気防食等の腐食対策、又は砕石等を含まない砂埋戻し等) 1:一部の箇所対策がなされていない、又は【不明/該当なしの場合】 0:全く対策をしていない	2	25/50	
	B.3	外部荷重や地盤沈下等の影響はないか? ※1	2:ほとんど影響はない 1:一部影響のおそれがある、又は【不明/該当なしの場合】 0:影響のおそれが大きい	1		
	B.4	特別な事項 (内容: )	2:良い(ほとんど問題はない) 1:普通(問題は少ない、大きな問題はない) 0:悪い(問題が多い) 3:全くない	0		
水質	A	この区間の管路が原因で赤水・濁水の発生、夾雑物(異物・シルコート)の混入、有機溶剤等による異臭味などの事故の発生があるか?	2:記録には残していないが、分かっている範囲で事故はない 1:1度ある 0:複数回ある	2	33/50	
	B.1	他の区間に比べ、サビコブ等による残留塩素消費は極端に大きくないか?	2:全く問題ない 1:ある時期(季節や昼夜の差)や一部の箇所(露出管路)で問題がある、又は【不明/該当なしの場合】	2		

図 18 埋設管路のカルテシート 2 の例

No	詳細設問	評価区分	判定点	点数 内訳	改善 必要度 (100点満点)
様式2 評価点	機能改善が必要な項目数は? (合計点50点以下)	4点:4項目すべて 3点:3項目 2点:2項目	1点:1項目 0点:なし	3	19/50
影響.1	影響範囲は大きいのか?	4点:極大 3点:大 2点:中、又は【不明の場合】	1点:小 0点:極小	4	60/100
影響.2	年代管種別の経年化レベルは?	別表4(new-epoch資料)参照		2	
影響.3	対象区間が該当する下記の項目数は? ○地域防災計画等に位置づけ…への給水ルート	4点:4項目以上 3点:3項目	1点:1項目 0点:なし	4	
				4	

図 19 改善必要度算出シート  
(カルテシート 3) の例

3) 改善必要度算出シート(カルテシート 3)  
平成 20 年度に作成した原案をもとに、ケーススタディによって課題の抽出・改善及び妥当性の確認を主に行い、図 19 に示す改善必要度算出シートを確立した。また、図 20 に診断手法の妥当性の確認結果の一例を示す。これは本診断手法を用いて評価された管路の改善優先順位と、ケーススタディ実施事業体が独自に詳細診断を行って評価していた既存の改善優先順位とを比較したものである。両者はおおむね一致し、

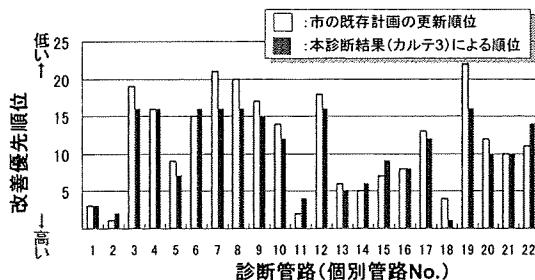


図 20 本診断手法による優先順位と詳細診断による優先順位との比較結果

本マニュアルの診断結果の妥当性が確認された。また、小規模事業者など、ほかのケーススタディにおいても同様の結果を得た。

## 1.2 浄水施設等機能診断マニュアル(案)の作成

### 1) 全体機能評価シート(カルテシート 1)

取水から配水までの施設は、管路もその構成要素として一体的に機能するものであり、全体機能評価においては浄水等の施設等と管路とを別々に扱うことは困難である。このことから、全体機能評価シート(カルテシート 1)は管路のそれと共通とすることとした。

### 2) 個別機能評価シート(カルテシート 2)

平成 20 年度に作成した「浄水施設等機能診断マニュアル(原案)」における検討課題であった個別機能評価シートの改善を主に実施した。具体的な評価対象設備は表 12 のリストに示すとおりであり、それぞれ「水質」「水量・水圧」「経年劣化」「地震・危機管理」「維持管理」の 5 つの機能関連項目ごと

に評価可能なシートとし、各対象設備の評価シートを作成した。これらのカルテシートに回答することによって、機能低下が生じている要因や構成資機材を設備ごと抽出することを可能とした。

表 12 機能評価対象設備リスト

<ul style="list-style-type: none"> <li>・取水施設 取水施設、井戸、沈砂池、ポンプ設備※2</li> <li>・導水施設 管路※1、ポンプ設備※2</li> <li>・浄水施設 生物処理設備、エアレーション設備、着水井、凝集池、沈殿池、急速ろ過池、緩速ろ過池、膜ろ過設備、オゾン処理設備、粒状活性炭吸着設備、排水池・排泥池、濃縮槽、脱水設備、天日乾燥床、消毒設備、薬品注入設備、受変電設備、配電・動力設備、自家発電設備、計装設備、監視制御設備、ポンプ設備、浄水池</li> <li>・送水施設 管路※1、ポンプ設備※2</li> <li>・配水施設 配水池、管路※1、ポンプ設備※2</li> </ul> <p>※1：管路は「管路の機能診断マニュアル（案）」を利用          ※2：ポンプ設備は取水、導水、送水、配水の施設種別にかかわらず統一シートを利用</p>
--

### 3) 改善必要度算出シート(カルテシート 3)

「浄水施設等機能診断マニュアル（原案）」における検討課題であった「改善必要度算出シート（カルテシート 3）」の改良を実施した。具体的には改善必要度の算出に当たっての判断指標として、機能に支障が生じた場合の影響の「範囲」・「期間」及び支障発生「可能性」の3項目を採用し、それぞれを4～5段階のレベルに分けるとともに、該当例を示すことにより簡便に選択できるようにした。

$$\text{改善必要度} = \left( \text{①範囲} \times \text{②期間} \right) \times \text{③可能性}$$

影響のボリューム
発生確率

## 2. 地震による管路被害の予測等

### 2.1 管路被害データベースの構築

兵庫県南部地震における神戸市、芦屋市、西宮市、新潟県中越地震における旧長岡市、小千谷市、能登半島地震における輪島市、七尾市、新潟県中越沖地震における柏崎市、刈羽村の管路被害データを収集し、被害地

点をGISにより電子化したデータベース（GISデータベース）として構築するとともに、管路属性も整備した。また、地震時地表面最大速度や微地形分類などについてもデータベースとして構築した。このGISデータベースを基に、分析に用いる250mメッシュごとのメッシュデータを作成した。データサンプル数は、兵庫県南部地震2,170、新潟県中越地震277、新潟県中越沖地震491、能登半島地震100の合計3,038サンプルである。

クロス集計と多変量解析の両方に用いる管路の延長を、図21管種別の布設延長、図22口径別の布設延長に示す。なお、「兵庫県」は、兵庫県南部地震における神戸市、芦屋市、西宮市のデータ、「新潟県」は、新潟県中越地震における旧長岡市、小千谷市、及び新潟県中越沖地震における柏崎市、刈羽村のデータであり、「合計」は、これらの合計である。

なお、今回クロス集計及び多変量解析の対象外とした兵庫県南部地震における宝塚市と能登半島地震のデータは、被害予測式の精度を検証するために用いることとしている。

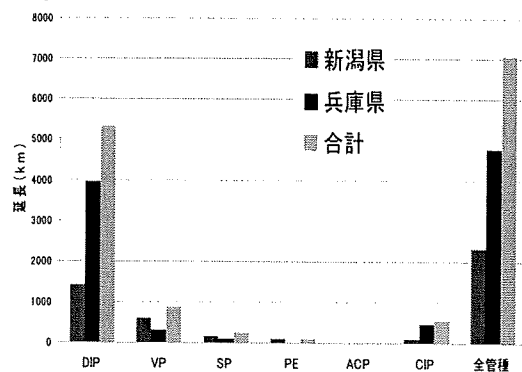


図 21 管種別の布設延長

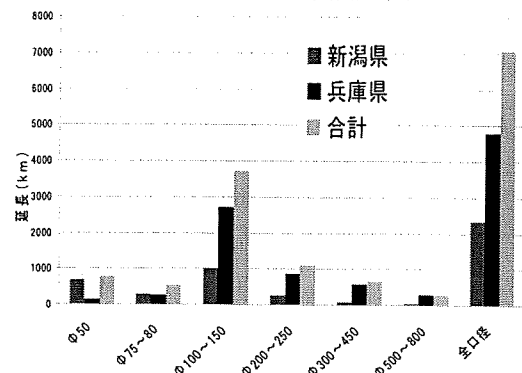


図 22 口径別の布設延長

## 2.2 クロス集計による被害分析

被害率を微地形分類、管種、口径、継手種類ごとに算出し、それぞれの要因がどのように被害に関与しているのかを分析した。

分析結果として、以下に、図 23 微地形分類と被害率の関係、図 24 管種と被害率の関係、図 25 口径と被害率の関係、図 26 継手種類と被害率との関係を示す。

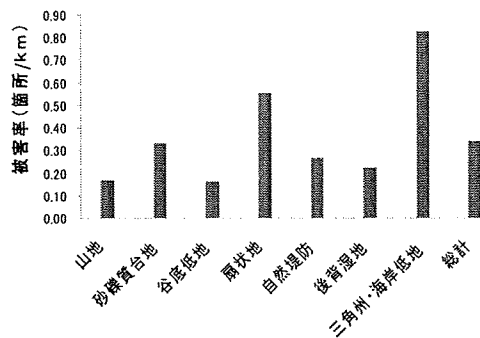
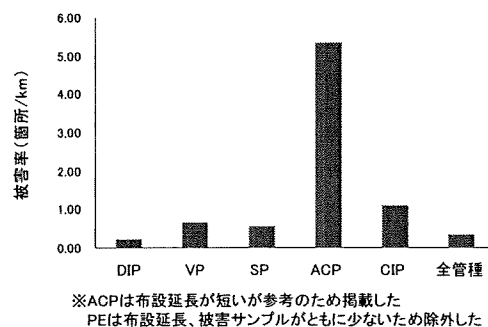


図 23 微地形分類と被害率の関係



※ACPは布設延長が短いが参考のため掲載した  
PEは布設延長、被害サンプルがともに少ないため除外した

図 24 管種と被害率の関係

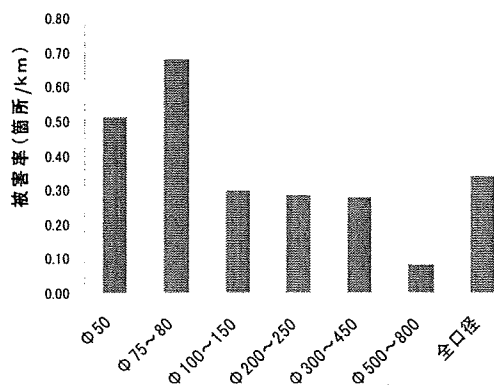
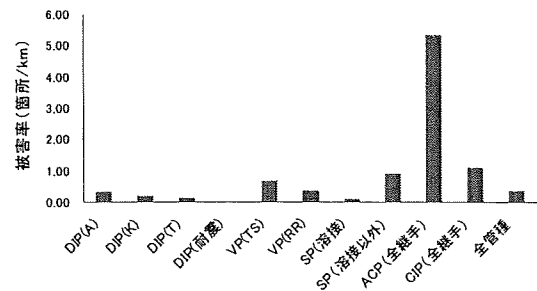


図 25 口径と被害率の関係



※ACPは布設延長が短いが参考のため掲載した  
PEは布設延長、被害サンプルがともに少ないため除外した

図 26 継手種類と被害率との関係

## 2.3 多変量解析

250m メッシュ内の管種、口径、微地形分類ごとの被害率を目的変数として解析を行うので、メッシュ内の布設延長が短いと、被害が少数でも被害率は大きな値となる。このことを確認するために、本データベースに基づく被害率と1メッシュ内における布設延長との関係でまとめると図 27 のようになる。

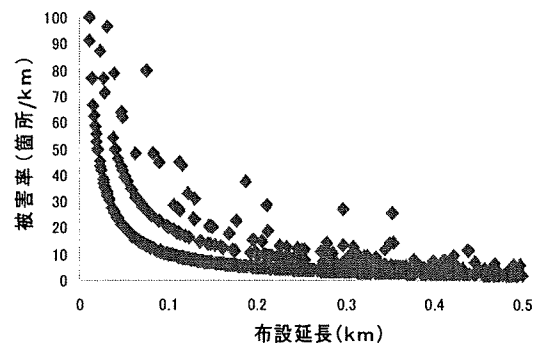


図 27 1メッシュ内の布設延長と被害率 (箇所/km) との関係

この図から、布設延長が短いと1箇所被害が発生しただけで被害率が10箇所/kmを超える場合が数多くあることが分かる。被害率と布設延長とは力学的には無関係であるが、本研究で用いる被害率の定義とメッシュを用いた分析という手法に起因して強い相関が生じていることが分かる。

そこで、この影響を排除するため、本来は無関係であるはずの1メッシュ当たりの布設延長も被害率を説明する変数として扱うことにした。

表 13 多変量解析の結果  
(管種、口径、微地形、布設延長)

		カテゴリスコア	サンプル数	偏相関係数	Ci	比較
管種	DIP	1	468	-0.19	0.65	1.00
	VP	2	232	0.10	1.27	1.96
	SP	3	27	-0.28	0.52	0.80
	PE	4	1	-2.01	解析不能(注1)	
	ACP	5	1	14.49	解析不能(注1)	
	CIP	6	194	0.31	2.02	3.12
口径	Φ50	1	161	0.16	1.44	1.11
	Φ75~80	2	112	-0.28	0.53	0.41
	Φ100~150	3	436	0.11	1.30	1.00
	Φ200~250	4	128	-0.14	0.73	0.56
	Φ300~450	5	75	-0.13	0.74	0.57
	Φ500~900	6	11	-1.52	0.03	0.02
微地形	砂礫質台地	1	231	-0.52	0.30	0.16
	谷底低地	2	68	-0.75	0.18	0.10
	扇状地	3	336	0.27	1.85	1.00
	自然堤防	4	41	0.84	6.86	3.70
	後背湿地	5	70	-0.03	0.94	0.51
	三角洲・海岸低地	6	177	0.28	1.88	1.02
布設延長	0.1~0.2	1	221	4.30	解析不適(注2)	
	0.2~0.3	2	209	0.30	2.00	1324.255347
	0.3~0.4	3	136	-0.76	0.18	115.7020826
	0.4~0.5	4	91	-1.77	0.02	11.29008646
	0.5以上	5	266	-2.82	0.00	1

注1 PE, ACPについてはサンプル数不足のため解析不能  
注2 1メッシュ当たりの延長不足のためばらつきが大きく解析不適

重相関係数 = 0.59

表 14 多変量解析の結果  
(管種の継手種別、口径、微地形、布設延長)

		カテゴリスコア	サンプル数	偏相関係数	Ci	比較
管種継手	DIP(A)	1	271	-0.25	0.57	1.16
	DIP(K)	2	67	-0.31	0.49	1.00
	DIP(T)	3	105	0.14	1.39	2.86
	VP(TS)	4	215	0.14	1.39	2.84
	VP(RR)	5	10	-1.12	0.08	0.16
	SP(溶接)	6	4	-2.86	解析不能(注1)	
	SP(溶接以外)	7	24	0.18	1.50	3.08
	PE(全継手)	8			解析不能(注1)	
	ACP(全継手)	9	1	14.38	解析不能(注1)	
	CIP(全継手)	10	194	0.24	1.72	3.52
口径	Φ50	1	155	0.06	1.15	0.70
	Φ75~80	2	112	-0.27	0.53	0.33
	Φ100~150	3	423	0.21	1.63	1.00
	Φ200~250	4	122	-0.23	0.59	0.36
	Φ300~450	5	69	-0.39	0.41	0.25
	Φ500~900	6	10	-1.30	0.05	0.03
微地形	砂礫質台地	1	223	-0.50	0.32	0.18
	谷底低地	2	65	-0.85	0.14	0.08
	扇状地	3	333	0.26	1.80	1.00
	自然堤防	4	40	0.92	8.33	4.63
	後背湿地	5	60	-0.33	0.47	0.26
	三角洲・海岸低地	6	170	0.38	2.38	1.32
布設延長	0.1~0.2	1	230	4.13	解析不適(注2)	
	0.2~0.3	2	221	0.11	1.28	1705.66
	0.3~0.4	3	140	-0.93	0.12	157.45
	0.4~0.5	4	87	-2.03	0.01	12.57
	0.5以上	5	213	-3.13	0.00	1.00

注1 SP(溶接), PE, ACPはサンプル数不足のため解析不能  
注2 1メッシュ当たりの延長不足のためばらつきが大きく解析不適

重相関係数 = 0.57

要因を管種、口径、微地形、布設延長としたときの多変量解析の結果を表 13 に示す。それぞれの要因が被害率に寄与している程度の大きさを偏相関係数が表しているが、この表によれば、布設延長が被害率に最も大きく寄与し、管種、微地形が続いている。表 13 の「Ci」は、被害予測式の補正係数に相当し、「比較」の欄は基準となるものを 1.0 として基準化したときの補正係数の値である。したがって、表 13 は、他の条件が同じであれば、VP (塩化ビニル管) の被害は DIP (ダクタイル鉄管) の約 2 倍、CIP (普通铸铁管) のそれは DIP の約 3 倍であることを示している。PE (ポリエチレン管)

と ACP (石綿管) が解析不能となっているのはサンプル数が 1 つのみであったことによる。なお、この解析は 1 メッシュ当たりの管路延長が 0.1km 以上のサンプルに対して行った。図 27 に示されるように、1 メッシュ当たりの延長が短くなるほど被害率のばらつきが大きくなり、解析に適さないからである。表 13 の延長 0.1~0.2km の欄が解析不適となっているのは、このばらつきの大きさの影響で Ci が非常に大きくなっていることを示している。

表 14 に管種の継手種別を考慮した多変量解析の結果を示す。表 14 においても、SP(鋼管)の溶接継手と PE、ACP はサンプル数

不足のため解析不能となっている。また、延長 0.1~0.2km の欄が解析不適となっているのは、表 13 と同じ理由である。

## D. 考察

### 1. 基幹水道施設の機能診断手法の検討

#### 1.1 管路機能診断マニュアル（案）

大規模及び中小規模事業体におけるケーススタディを実施して課題の抽出及びその改善を図り、かつ実計画との比較等により、本管路機能診断手法の妥当性の確認ができた。このことにより、本手法を利用する水道事業体等の事業規模にかかわらず、本手法を活用した機能評価・診断の有効性・汎用性が明らかとなった。別途作成した浄水施設等機能診断マニュアル（案）との統合の検討や「使いやすい」ツールを目指した計算ソフト（システム）作成が今後の課題である。

#### 1.2 浄水施設等機能診断マニュアル（案）

大規模及び中小規模事業体におけるケーススタディを実施して、個別機能評価シートの課題抽出と改善を行い、維持管理を担当する現場担当者の立場に立った個別機能評価用のカルテシート 2 の構築が実現できた。今後は作成した改善必要度算出シート（カルテシート 3）について、管路用と同様にケーススタディを実施して妥当性の確認を行うことも必要である。また、「使いやすい」計算ソフト作成も平行して作成する必要がある。

#### 1.3 管路・浄水統合版機能診断マニュアル

管路及び浄水施設等の機能診断マニュアルをそれぞれ確立した後、これらの統合版を検討するとともに、機能改善手法検討シート（カルテシート 4）・更新構想立案シート（カルテシート 5）の改善・改良を行い、最終的にいかなる規模の水道事業対等においても活用可能で、かつアセットマネジメントに資するツールとして確立する必要がある。

### 2. 地震による管路被害の予測等

#### 2.1 クロス集計による被害分析

クロス集計の結果は、三角州・海岸低地や扇状地、砂礫質台地の被害率が大きいことを示した。また、口径別では小口径管の被害率が高い。管種では ACP の被害率が極

めて高く、CIP が次いでいる。ただし、ACP の布設延長は極めて短いので、その影響により被害率が大きくなっている可能性も考えられる。また、微地形分類による被害率も、管路がすべての微地形に一樣に布設されているわけではないので、クロス集計結果を被害予測式に直接用いることはできない。

#### 2.2 多変量解析

多変量解析によって被害予測式における各要因の補正係数案の算出が可能となり、DIP の補正係数を 1.0 とすると VP のそれは 2.0、CIP は 3.0 の試算を得た。ただし、被害率の定義とメッシュ分析という手法に起因して、メッシュ内の布設延長が短いと、被害率にばらつきを生じるとともに非常に大きな被害率となる傾向にあることから、延長も解析における一つの要因として扱うとともに、メッシュ内の布設延長が 0.1km 未満のサンプルは採用しなかった。こうしたことから試算の扱いとしたが、布設延長の短い管路の扱い等を含めて平成 22 年度も検討を継続する必要がある。

また、PE はまだ普及段階であること、ACP は既に布設替えが進んでいることからサンプル数が少なく評価できなかったのも、さらに解析に改善が必要である。継手種別による補正係数は算出できたが、サンプル数が少ないため評価できないものもあるので、これらの点について改良を加える必要がある。

平成 22 年度には各補正係数並びに式の形を決定し、ケーススタディにより式の妥当性と使いやすさの確認を行う予定である。

## E. 結論

浄水部門及び管路部門ともに、当初計画どおり各種の調査・実験及びマニュアル案の作成等を行った。

具体的には、導入の進む膜ろ過及び紫外線処理に関する維持管理上の課題等を調査し、膜ろ過及び紫外線処理設備の維持管理の適正化・高度化、及びろ過膜の性能向上のための検討を行った。また、中山間部における管路の地震被害等のデータベースを

作成し、併せて管路及び浄水施設等の機能診断マニュアル(案)を作成した。

今後はこれらの成果を基に各マニュアルの更なる改良及び統合、地震被害予測手法の確立等を行うこととしており、以下の内容を予定している。

#### 1) 浄水部門

- ・ 膜処理性能向上の主な課題である膜構造と膜ファウリング特性の相関解明を中心とした実験を行い、原水水質別最適膜の性能・仕様等の検討を行う。
- ・ 膜ろ過浄水施設について得られた課題に関し、維持管理水準の向上等について検討を行い、維持管理高度化マニュアル(案)を作成する。
- ・ 地下水を対象とした紫外線処理における維持管理面の課題や地表水・排水処理への適用における水質等の制約条件及びその対応策を検討すると共に、地表水対象の紫外線処理導入・維持管理に関する実験・検討及び基礎資料の整備を行う。

#### 2) 管路部門

- ・ 管路の機能診断マニュアル(案)及び浄水施設等の機能診断マニュアル(案)を用いた機能診断ケーススタディを実施し、これを通じて診断手法の更なる改善・充実化を図った上で統合し、水道施設機能診断マニュアルの完成を図る。また、同マニュアルに基づく機能診断の際に用いる自動計算ソフトを作成し、人的・技術的に余裕の少ない中小規模都市においても使い易く分かり易い診断ツールの完成を目指す。
- ・ 水道管路の地震被害データの整理分析を基に、新たな管路等の被害予測式を提案する。また、ケーススタディにより被害予測式の適用性評価等を行うとともに、人的・技術的に余裕の少ない中小規模都市においても使いやすく分かり易い予測手法の完成を目指す。

## F. 健康危険情報

特になし。

## G. 研究発表

### 1. 論文発表

- ・ Yamamura, H., Okimoto, K., Kimura, K., Watanabe, Y., 「Influence of calcium on microfiltration membrane fouling caused by hydrophilic fraction of natural organic matter」, 2009, Submitted to Water Research
- ・ Wang, F., Cheng, Q., Highland, L., Miyajima, M., Wang, H. and Yan, C.: Preliminary investigation of some large landslides triggered by the 2008 Wenchuan earthquake, Sichuan Province, China, Landslides, Vol.6, No.1, 2009.5.
- ・ 天野幹大、「水道技術研究センターにおける耐震化対策の取り組み」、水道協会雑誌 vol79, No.3, March 2010

### 2. 学会発表

- ・ 稲田吉一、高嶋渉、鈴木泰博、安藤茂、藤原正弘、「膜ろ過浄水施設の維持管理状況に関する調査結果と課題」、第60回全国水道研究発表会講演集、2009、pp.150-151
- ・ 原敬一、三井康弘、高嶋渉、鈴木泰博、安藤茂、藤原正弘、「水道における紫外線照射装置の導入状況と維持管理上の留意点」、第60回全国水道研究発表会講演集、2009、pp.186-187
- ・ 畑中哲夫、藤原正弘、小泉明、細井由彦、船橋五郎、「水質劣化に着目した老朽管路診断・評価技術に関する研究」、第60回全国水道研究発表会講演集、2009、pp.266-267
- ・ K.Tsuji, Y.Kobayashi, K.Ishii, M.Fujiwara, Assessment on Improvement of Service Level with Performance Indicator “Ratio of earthquake-resistant pipe”、第8回水道技術国際シンポジウム講演集、2009、pp.566-581
- ・ 原敬一、安藤茂、藤原正弘、「紫外線照射装置の構造及び維持管理」、京都大学環境衛生工学研究会第31回シンポジウム講演論文集、2009、pp.61-64
- ・ 天野幹大、鈴木泰博、藤原正弘、「老朽化した水道施設の機能診断」、京都大学環境衛生工学研究会第31回シンポジウム講演論文集、2009、pp.65-68

- Y.Kobayashi, Y.Takahashi, T.Kamada, K.Koizumi, M.Fujiwara, Corrosion Assessment of Aging Drinking Water Pipes by Impact Elastic-Wave Method, 3rd IWA-ASPIRE Conference & Exhibition, 2009, USBmemory
- M.Amano, Y.Suzuki, M.Fujiwara, Activities Related to Earthquake-proofing of Drinking-water Infrastructure in the Japan Water Research Center, 第6回日米台地震ワークショップ, 2009
- T.Takeuchi, Current Situation and Issues of Water Distribution Pipes in Japan : Activities of JWRC(Japan Water Research Center), 第6回蘭日水技術ワークショップ, 2009
- H.Taniguchi, The Replacement of Aging Water Pipes in Japan, 2nd K-water International Symposium, 2009
- 片桐健, 大向吉景, 丸山達生, 曾谷知弘, 松山秀人, 「水処理用中空糸膜の膜表面構造と膜ファウリングの相関に関する研究」, 2009, E122, 化学工学会第74年会
- 片桐健, 大向吉景, 丸山達生, 曾谷知弘, 松山秀人, 「中空糸膜のファウリング特性における膜表面構造の影響」, 2009, A-9, 日本膜学会第31年会
- 片桐健, 大向吉景, 丸山達生, 曾谷知弘, 松山秀人, 「水処理用中空糸膜の表面構造制御によるファウリング特性への影響」, 2009, S11-P02, 分離技術会年会 2009
- Takeshi Katagiri, Yoshikage Ohmukai, Tatsuo Maruyama, Tomohiro Sotani, Hideto Matsuyama, “Effect of surface morphology of hollow fiber membrane on membrane fouling property,” 2009, P8-2, The fifth conference of aseanian membrane society.
- Kimura, K., Yamamura, H., Watanabe, Y., Evolution of physically irreversible fouling in an MF membrane filtering river water: a two-step fouling mechanisms, 2009, The Fifth Conference of Aseanian Membrane Society
- Matsuno, H., Yamamura, H., Kimura, K., Watanabe, Y., Measurements of adhesion force between proteins and membranes by using atomic force microscopy (AFM), 2009, The Fifth Conference of Aseanian Membrane Society
- 小寺翼, 神子直之, 安井宣仁「紫外線消毒における水中共存物質の不活化速度への影響に関する検討」第44回日本水環境学会年会講演集, ページ未定, 2010年3月
- 余川雄一, 神子直之, 安井宣仁「塩素・紫外線処理の消毒効果当たりのトリハロメタン生成量の検討」第44回日本水環境学会年会講演集, ページ未定, 2010年3月
- 大瀧雅寛, 流通式UV装置内の照射量分布の測定手法, 第12回日本水環境シンポジウム講演集, p.21, 東京, 2009
- 色川聡子, 大瀧雅寛, 廣畑歩美「紫外吸光スペクトルの中圧UVランプ消毒処理への影響」, 2010, 第44回日本水環境学会年会にて発表予定

#### H. 知的財産権の出願・登録状況（予定を含む）

該当なし

## II. 分担研究報告



厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）  
分担研究報告書

水処理用中空糸膜の膜構造と膜ファウリング特性の相関解明に関する研究

研究分担者 松山 秀人 神戸大学大学院工学研究科 教授

**研究要旨**

膜ファウリング挙動に関して、ファウラントと分離膜の親水性や表面ゼータ電位、膜の構造、透水量など多くの要素が影響を及ぼすと考えられている。しかし、市販膜ではこれらの要因が複雑に異なっているため、基礎的検討が困難である。本研究では、膜の孔構造と分布に着目し、これらの物理的要因のみが異なる膜を作製することによりファウリング挙動に及ぼすを詳細に検討した。高分子に PVDF を用いて透水量は同じであるが相分離過程の異なる膜ならびに相分離過程が同じで透水量の異なる多孔膜を作製し、ファウリング実験を行った。フミン酸、アルギン酸ナトリウム、BSA を用いた検討より、膜表面の構造とファウラントの大きさが、ファウリング挙動に強い相関を持っていることが示された。また孔の分布が異なる膜を作製してファウリング特性評価を行った結果、供給液と接する側に緻密層を有する膜が高い耐ファウリング性を有することを明らかにした。このように、MF、UF という区分でない具体的な膜構造とファウリング特性の関係性を示した。

**A. 研究目的**

限外ろ過膜（UF 膜）、精密ろ過膜（MF 膜）等の膜ろ過法は、分離性能の高さ、自動運転可能なこと、およびコンパクトさにより、近年、浄水処理において急速に普及している。これらの UF 膜、MF 膜は、主に非溶媒誘起相分離法（NIPS 法）および熱誘起相分離法（TIPS 法）を用いて製膜される。効率的な水処理プロセスの構築に向けた膜法の課題は、

(1) 製膜プロセスと得られる膜構造の関係を明らかにすること

(2) 得られた膜構造と膜性能の関係を明らかにすること

の 2 点である。このうち、製膜プロセスと膜構造の関係に関しては、多くの研究が行われ、相分離プロセスの熱力学的相平衡及び動力学的な解析を行い、定量的な膜構造予測が可能になりつつある。一方、膜構造と膜性能（透水性能、溶質の除去性能、機械的強度、化学薬品に対する耐性）の関係については、初期の膜性能についての報告はあるものの、処理対象液（浄水処理の場合、河川水等）をろ過した場合、透水性能はファウリングにより初期性能から大幅に低下するが、この様なファウリングと膜構造との関係は明らかにされていない。高性能な分離膜の作製に対する指針として、上

記の関係を体系的に明らかにすることが不可欠である。

MF 膜、UF 膜を用いて河川水をろ過した場合の膜ファウリングに関しては、主にファウリング物質の特定について、多くの研究が行われている。通常、膜ろ過法は、逆洗等の物理洗浄を定期的に行いファウリング物質の除去を行う。ここで除去できないファウリング物質はろ過抵抗を上昇させ、不可逆なファウリング物質として問題視されている。

これまでファウリング物質と膜構造との関係についての研究事例は少なく、UF 膜の場合、ファウリング物質が膜面に堆積することが、MF 膜の場合は、細孔内を閉塞しながらファウリングが進行することが、SEM、AFM を用いた膜表面の形態観察から報告されているにすぎない。

本研究では、PVDF を用いて相分離のメカニズムが異なる数種の膜を作製し、その構造がファウリング挙動に及ぼす影響を検討した。また、CAB を用いて表面形状の異なる膜を作製し、膜表面の細孔構造がファウリング挙動に及ぼす影響の検討を行った。

**B. 研究方法**

B-1 相分離過程の違いによるファウリング特性への影響評価

### B-1-1 実験試薬

ポリマーとして PVDF, 溶媒としてグリセロールトリアセテート(トリアセチン)およびジエチルフタレート(DEP), 添加剤としてグリセリンおよびデキストランを用いた。またファウラントとして、NOM の一種であるフミン酸, EPS の一種であるアルギン酸ナトリウム, タンパク質の一種である牛血清アルブミン(BSA)を用いた。

### B-1-2 中空糸膜の作製

中空糸膜作製装置の攪拌タンクに所定量の PVDF と溶媒をセットし、180℃で 30 min 攪拌することにより均一溶液を作製した。90 min 静置して脱気した後、二重管構造の口金の外側にこの PVDF 溶液を、内側に溶媒を供給して水槽に押し出し、中空糸膜を作製した。今回用いた 3 種類の中空糸膜の作製条件を表 1 に示す。膜作製時の相分離過程が固-液相分離であるものを S-L, 液-液相分離であるものを L-L とし、

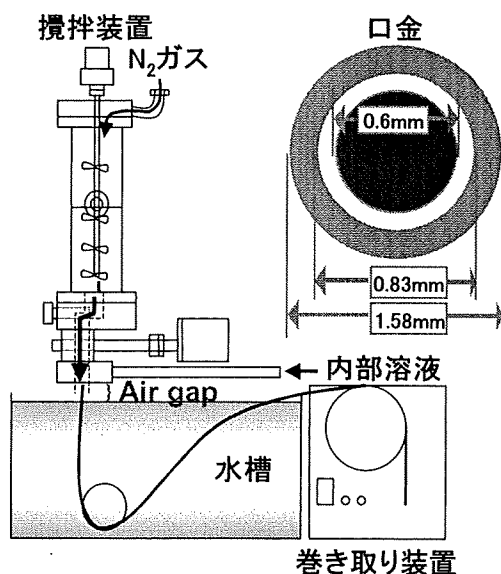


図 1 中空糸膜作製装置の概略

表 1-1 中空糸膜の作製条件

	S-L100	S-L800	L-L100
溶媒	DEP	DEP	triacetin
高分子濃度 [wt%]	35	25	30
溶媒濃度 [wt%]	65	75	60
添加剤濃度 [wt%]	0	0	10
エアギャップ [mm]	5	5	5
巻き取り速度 [m/s]	0.08	0.08	0.08
高分子溶液流速 [m/s]	0.26	0.26	0.26
内部液流速 [m/s]	0.17	0.17	0.17
水槽温度 [°C]	0	0	30

この略号の後におよその透水量(L/(m<sup>2</sup> h atm))を記載したものを膜の名前としている。

### B-1-3 透水量評価およびファウリング試験

作製した中空糸膜の外側から  $\Delta P = 0.05$  MPa, 流速 16.6 ml/min で MilliQ 水を供給し、膜を透過する水の速度から透水量を測定した。

また、バッファとしてフミン酸, アルギン酸の場合は炭酸水素ナトリウム(0.5 mmol/l)を、BSA の場合はリン酸水素二ナトリウムとリン酸二水素ナトリウム(0.1 mol/l)を用い、ファウラント濃度 50ppm, pH = 7 となるよう供給液を調製した。透水量測定の場合と同様に膜の外側から液を供給し、外圧式でファウリング実験を 3 h 行った。この際、フミン酸については分光光度計を用いて透過液の UV (波長 254 nm) を、アルギン酸, BSA に関しては TOC で濃度を測定することによりファウラントの阻止率を算出した。

### B-2 表面構造の違いによるファウリング特性への影響評価

#### B-2-1 実験試薬

ポリマーとしてセルロースアセテートブチレート(CAB), TIPS 用溶媒としてトリエチレングリコール, NIPS 用溶媒としてジメチルスルホキシドを用いた。

#### B-2-2 中空糸膜の作製および評価

B-1-2 と同様に中空糸膜を作製した。作製条件を表 2 に示す。作製した膜について、B-1-3 と同様に 50 ppm のアルギン酸ナトリウム水溶液を用いた外圧式定圧濾過実験を行った。その際、1 hr 毎に 1 min の逆洗操作を行った。また、膜表面構造の観察は走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて行った。

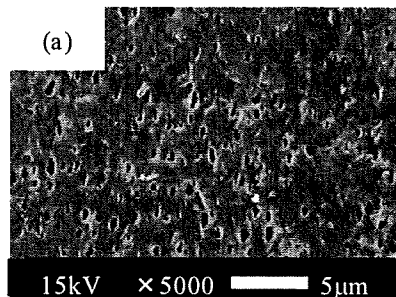
表 2 中空糸膜の作製条件

	高分子濃度 [wt%]	Air gap [mm]	凝固浴組成
NIPS1	15	30	水
NIPS2	15	30	DMSO:水=8:2
TIPS1	20	5	水
TIPS3	25	0	水

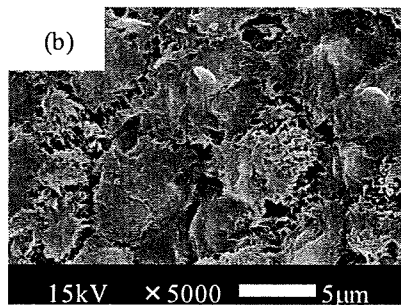
### C. 研究結果と考察（相分離過程の違いによる影響）

#### C-1 膜構造の評価

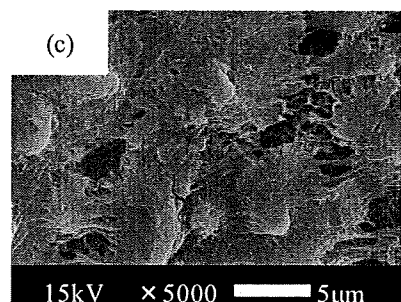
作製した中空糸膜の断面SEM画像を図2に示す。液-液相分離で作製したL-L膜では比較的緻密な構造が、固-液相分離で作製したS-L膜では球晶構造が見られ、大きく異なっていることがわかる。L-L膜では液-液相分離により構造が形成されるため緻密なマトリックスが形成され、S-L膜では球晶の成長が起こることからその間隙に由来する大きな孔が形成したと考えられる。いずれの膜においても膜内部では球晶が確認でき、構造に大きな差は見られなかった。



(a) L-L100



(b) S-L100



(c) S-L800

図3 フミン酸を用いたファウリング試験結果

#### C-2 ファウリング実験

##### C-2-1 フミン酸を用いたファウリング実験

作製した3種類の中空糸膜に50 ppm フミン酸水溶液を透過させ、ファウリング実験を行った。図3(a)に相対透水量の変化を、図3(b)に阻止率の変化を示す。透水量の増加とともにファウリングが進行したが、相対透水量の減少率では3種類の膜に大きな差は見られなかった。阻止率は、L-L100が90%とS-L100膜より高く、透水量の増加とともに減少した。

ファウリング前後の膜外表面のSEM画像を比較したところ、S-L100、L-L100膜では孔が閉塞していることが確認できたが、S-L800では変化が確認できなかった。L-L100膜は外表面の孔径が小さいため、フミン酸は膜表面でカットされて内部まで侵入せず、高い阻止率を維持したままファウリングを抑制できたものと考えられる。S-L100、800膜については、外表面の孔径がL-L100より大きいいため、フミン酸がより内部まで進入したものと考えられる。そのため、S-L100ではL-L100の場合より

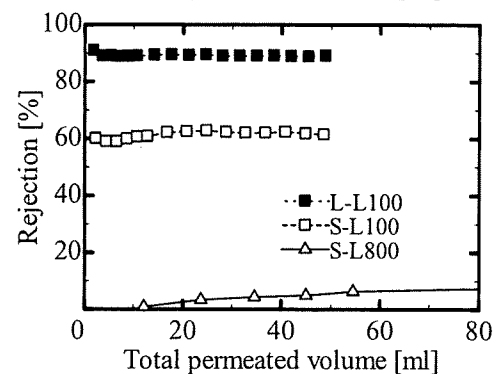
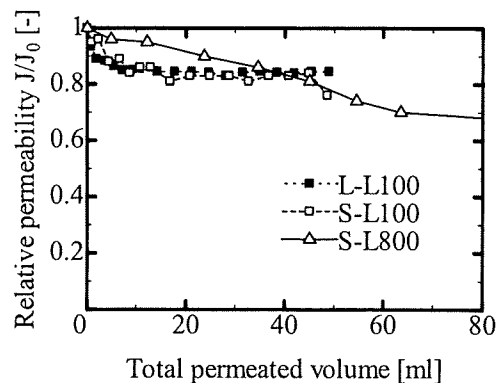


図2 中空糸膜外表面のSEM画像

も低い阻止率となっている。S-L800 に関しては、阻止率が非常に低い結果から判断して、ほぼフミン酸がそのまま透過したと考えられる。以上より、フミン酸を用いた系では膜表面の孔径が小さいほど阻止率が高く耐ファウリング性が高いという結果が得られた。

#### C-2-2 アルギン酸 Na を用いたファウリング実験

作製した 3 種類の中空糸膜に 50 ppm アルギン酸 Na を供給し、ファウリング実験を行った。図 4 (a)に相対透水量の変化を、図 4 (b)に阻止率の変化を示す。これらの図から透水量の増加とともにファウリングが進行することがわかる。また、阻止率に関して、L-L100, S-L100 膜は 30~50%で一定の値を示し、S-L800 膜は積算透水量の増加とともに増加する傾向が見られた。ファウリングの挙動から判断すると、L-L100, S-L100 膜では相対透水量がすぐに一定となっていることから、膜表面にファウリング物質が堆積するケーキ層モデルにしたがってファウリングが進行していると推測される。また、S-L800 膜では相対透水量が徐々に下がっていることから、標準閉塞モ

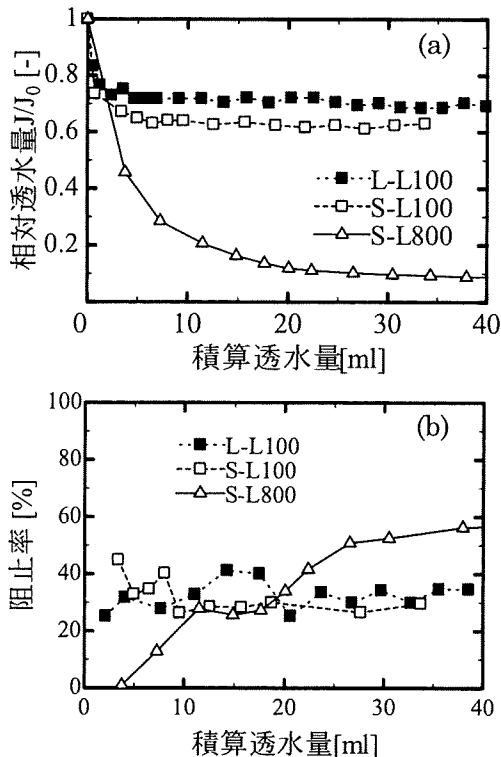


図4 アルギン酸 Na を用いたファウリング試験結果

デルでファウリングが起こったと考えられる。これは、S-L800 膜では表面の孔径が大きく、孔内部にファウラントが進入しやすいことと一致する。孔の閉塞効果は、ファウラントが内部に進入して閉塞するだけの細孔の大きさを持つ膜の場合に高いと結論づけられる。

#### C-2-3 BSA を用いたファウリング実験

作製した 3 種類の中空糸膜に 50 ppm BSA を供給し、ファウリング実験を行った。図 5(a)に相対透水量の変化を、図 5 (b)に阻止率の変化を示す。ファウリング実験後にこれらの膜の外表面を SEM で観察したところ、他の 2 種のファウラントを用いた場合と異なり、ケーキ層は形成していなかった。BSA の粒子径は約 5 nm であり、膜表面の孔径と比較して極端に小さい。そのため、容易に膜内部に進入できるものと考えられる。また、フミン酸の場合と同様に相対透水量の低下があまり起こっておらず、阻止率も初期の段階では高いが、積算透水量が増えるにつれて低下している。以上の結果から、BSA はファウリング初期の段階で膜内部の細孔に吸着し、細孔が破過した

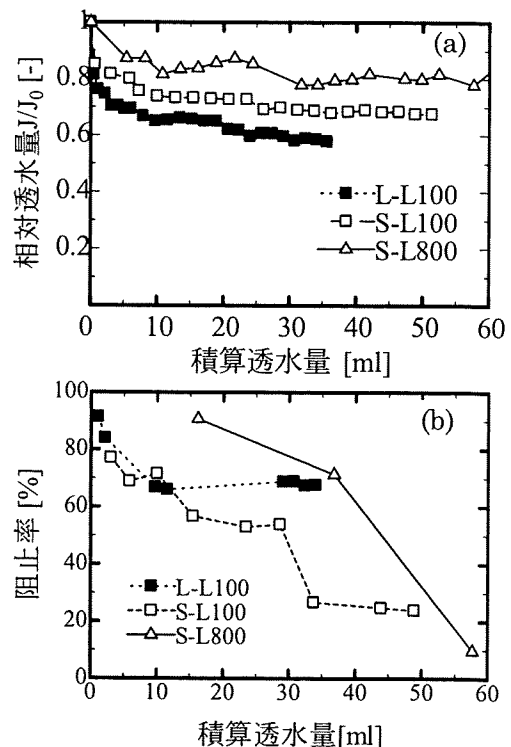


図5 BSA を用いたファウリング試験結果

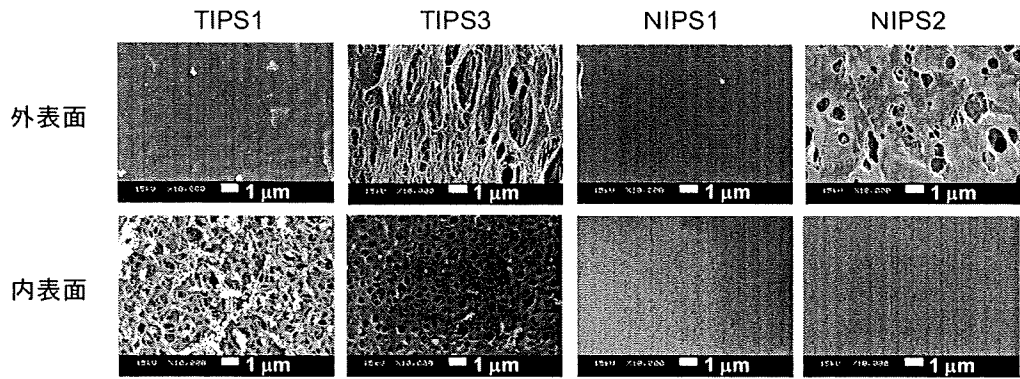


図6 作製した中空糸膜の外表面および内表面のSEM画像

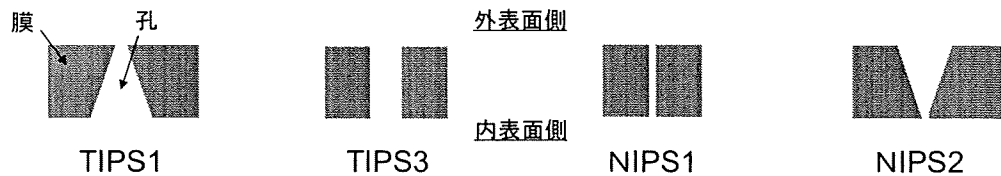


図7 膜構造のモデル図

ことで中空糸膜で阻止されることなく素通りしたと考えられる。

#### D. 結果と考察 (表面構造の影響)

##### D-1 膜構造の評価

図6に、今回作製した4種類の異なる構造を有する膜の外表面および内表面のSEM画像を示す。図より、TIPS1は外表面にスキン層(緻密層)、内表面に多孔構造を有する非対称性膜であることがわかる。これは、TIPS1ではエアギャップを5mmに設定したため、外表面付近での溶媒蒸発が顕著に起こり、外表面付近の高分子濃度が増加したことによるものと考えられる。TIPS3の場合には、エアギャップを0mmとしたため溶媒蒸発が起こらず、内外表面に多孔構造を有する対称性膜が形成した。NIPS膜に関して、凝固槽に水のみを用いたNIPS1は外表面、内表面ともにスキン層が形成された対称性膜であり、凝固槽として水にDMSOを80%加えた混合液を用いたNIPS2は外表面に大きな孔を、内表面にスキン層を有する非対称性膜であることが分かった。また、NIPS膜においてしばしば起こるマクロポイドの形成は見られなかった。これは、中空糸膜の作製に用いた高分子溶液の粘度が高いため、物質移動の速度が遅く相分離による孔形成が緩やかに起

こったためではないかと考えられる。NIPS2では、凝固槽に溶媒を添加したことで、外表面付近の高分子濃度の増加が抑制されたため相分離による多孔構造が形成されたと考えられる。図7にこれらの膜構造のモデル図を示す。

##### D-2 透水量の評価

表3に、作製した中空糸膜の内圧式試験で測定した透水量を示す。ファウリング特性の評価において、膜の透水量が影響を及ぼすことが知られている。しかし、今回作製した膜はいずれもほぼ同じ透水量であることから、この影響はほぼ無視できるといえる。

表3 中空糸膜の透水量(内圧式試験)

中空糸膜	透水量 [L/(m <sup>2</sup> ·atm·h)]
NIPS1	251
NIPS2	421
TIPS1	341
TIPS3	638

##### D-3 ファウリング特性評価

アルギン酸Naを用いて、NIPS1, NIPS2, TIPS1, TIPS3の4種類の中空糸膜のファウリング試験を行った。相対透水量および阻止率の変化を図8に示す。図8(a)より、全ての膜において、濾過初期の20分程度で急

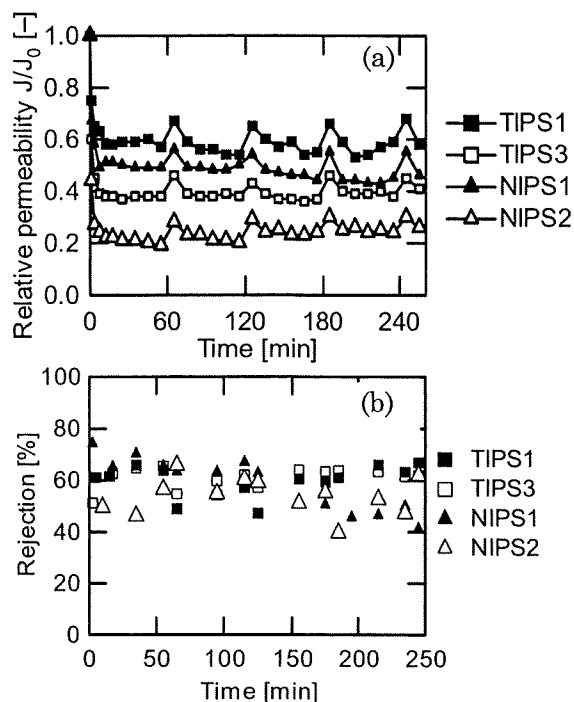


図 8 表面構造の異なる膜を用いたファウリング試験結果

激に透水量が減少する傾向が見られた。また、図 8 (b)より、アルギン酸 Na の阻止率は初期の値で高い値に達しており、その後ほぼ一定の値を示した。このことから、いずれの膜においても、濾過初期に大きなアルギン酸 Na 分子により膜表面上にケーキ層が形成されたことが予想される。さらに、それらのケーキ層の厚さはクロスフロー流による剥ぎ取り効果によって、ある一定値以上にはならないと考えられる。そのため、これら 4 種類の膜表面には、最終的にはほぼ同程度の厚みを有するケーキ層が形成されていたものと思われる。また、図 9 に示すように、今回用いたアルギン酸 Na には 10 kDa 以下の小さな分子が約 50%含まれているため、このような小さな分子がケーキ層でカットされずに素通りしたため、どの膜においてもアルギン酸 Na の阻止率が 50~60%程度で一定になったのではないかと考えられる。

多孔膜の逆洗効果は、

$$nRF = (\text{逆洗による透水量の回復率}) / (\text{ファウリングによる透水量の低下率})$$

によって定量的に評価できる。今回作製した膜における nRF 値を表 4 に示す。これよ

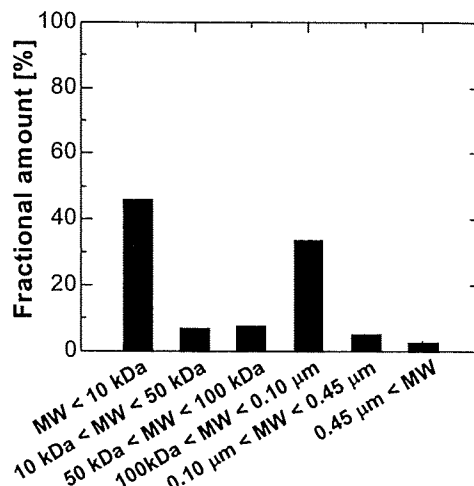


図 9 アルギン酸 Na のみかけの分子量分布 (50 ppm 水溶液)

表 4 作製した膜における逆洗の効果

中空糸膜	nRFの平均値
NIPS1	0.22
NIPS2	0.1
TIPS1	0.15
TIPS3	0.1

り、TIPS1 や NIPS1 は nRF の値が高く逆洗効果が大きいことが分かる。一般に、膜表面上の堆積物の方が孔内部への吸着物に比べ、逆洗により除去しやすい。そのため、TIPS1, NIPS1 のように外表面にスキン層を有する膜では、孔内部へのアルギン酸 Na 分子の吸着が少なく、逆洗がより効果的に行われたと考えられる。特に TIPS1 は外表面にスキン層、内表面に大きな孔を有するため、逆洗時の圧力損失が最も小さく最大の逆洗効果を示したと考えられる。一方、TIPS3 や NIPS2 では孔内部へのファウラントの吸着が多く、それらを逆洗により除去することが困難であったため、逆洗効果が小さくなったと考えられる。

## E. 結論

二つのアプローチにより、表面構造がファウリング特性に対する影響を検討した。異なる相分離法で中空糸膜を作製することにより、透水量が同じであっても膜構造によってファウリング特性が異なることがわかった。膜表面の構造とファウラントの大

きさが、ファウリング挙動に強い相関を持っていることが示唆された。

また、スキン層と多孔構造を持つ表面を任意に組み合わせた膜を用いてファウリング特性評価を行った。外表面にスキン層を持つ場合に、耐ファウリング性、逆洗効果ともに高いことが明らかとなった。

このように、MF, UFという区分でなく、具体的な表面構造とファウリング特性の相関を明らかにした。本知見は、高い耐ファウリング性を持つ分離膜を作製する際の基礎的な設計指針として非常に有用であるといえる。

#### F. 健康危険情報

(総括研究報告書にまとめて記入)

#### G. 研究発表

##### 1. 論文発表

なし

##### 2. 学会発表

片桐健, 大向吉景, 丸山達生, 曾谷知弘, 松山秀人, 「水処理用中空糸膜の膜表面構造と膜ファウリングの相関に関する研究」, 2009, E122, 化学工学会第74年会

片桐健, 大向吉景, 丸山達生, 曾谷知弘, 松山秀人, 「中空糸膜のファウリング特性における膜表面構造の影響」, 2009, A-9, 日本膜学会第31年会

片桐健, 大向吉景, 丸山達生, 曾谷知弘, 松山秀人, 「水処理用中空糸膜の表面構造制御によるファウリング特性への影響」, 2009, S11-P02, 分離技術会年会 2009

Takeshi Katagiri, Yoshikage Ohmukai, Tatsuo Maruyama, Tomohiro Sotani, Hideto Matsuyama, "Effect of surface morphology of hollow fiber membrane on membrane fouling property," 2009, P8-2, The fifth conference of aseanian membrane society.

#### H. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を含む)

##### 1. 特許取得

なし

##### 2. 実用新案登録

なし

##### 3. その他

なし

厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）  
分担研究報告書

特徴の異なる水道水源から採取した有機物が引き起こす膜ファウリング

研究分担者 木村 克輝 北海道大学大学院工学研究科 准教授

**研究要旨**

膜ろ過の浄水処理適用において、膜ファウリングの制御は依然として重要な検討課題である。効果的な膜ファウリングの制御を行うには、膜ファウリングを引き起こす成分に関する情報および理解が不可欠である。本研究では、特性の大きく異なる有機物を実水道水源から回収し、有機物中のどのような画分が不可逆的膜ファウリングの発生に関与するかを検討した。本研究で検討対象とした水源は清澄な表流水、泥炭地の影響を受ける表流水、富栄養化の影響を受ける湖沼水、下水処理水の影響を受ける表流水である。いずれの水源から回収した実験においても、従来から膜ファウリングへの関与が指摘されている疎水性画分（フミン質）は、可逆的膜ファウリングは発生させるものの、不可逆的ファウリングの発生は限定されたものであった。水道水源のタイプによらず、多糖類等からなる親水性画分が不可逆的膜ファウリングの主な原因成分であることが明らかとなった。

**A. 研究目的**

膜ろ過の浄水処理適用において、膜ファウリングの制御は依然として重要な検討課題である。効果的な膜ファウリングの制御を行うには、膜ファウリングを引き起こす成分に関する情報および理解が不可欠である。既往の研究の大半において、自然由来有機物（NOM）が膜ファウリングの原因物質として指摘されている。しかし、NOMは非常に広い範囲の高分子量生物難分解性有機物の総称であり、NOMのうちどのような成分がファウリングを引き起こすのかについては統一された見解が得られていない。NOMの特性は地質・気候などにより変化するはずであるが、NOMの諸特性と膜ファウリング発生との関係については、知見が乏しいのが現状である。膜ファウリング研究の初期においては、フミン質に代表されるNOMの疎水性画分が浄水処理における主なファウリング原因物質として注目されていたが、近年になって多糖類等の親水性画分が膜ファウリングに大きく関与しているという報告が増えてきている。我々の研究グループも、河川水（北海道江別市千歳川表流水）を用いたパイロットスケール実験において多糖類の膜ファウリングへの重要な関与を確認している。多糖類中に含まれる水酸基が膜表面と水素

結合をすることで、ファウリングを発生させるようである。

本研究では、NOMの特性が大きく異なると予想される4箇所の実水道水源から有機物を採取・分画し、同一条件下で膜ろ過試験を行った。NOMの特性が異なる場合に、膜ファウリングへ関与する有機物画分がどのように変化するかを検討することが目的である。本研究では、膜運転コストの削減にあたり本質的に重要となる物理的に不可逆的なファウリング（物理洗浄では解消できないファウリング）に着目して実験を行った。

**B. 研究方法**

本研究では、清澄な河川水として豊平川表流水（北海道札幌市）、富栄養化が進行した湖沼水として印旛沼水（千葉県佐倉市）、泥炭地水として釧路川表流水（北海道釧路市）、下水処理水の影響がある河川水として淀川表流水（大阪府大阪市）を選定した。いずれの水も、実際の水道水源として使用されているものである。各水源より数百リットルの試料を採取し、大学実験室に輸送した後NOMの濃縮・精製をおこなった。NOMの濃縮には逆浸透膜（脱塩率99%）を用いた。濃縮後の有機物は、DAX-8およびXAD-4樹脂を用いて疎水性画分、弱疎水



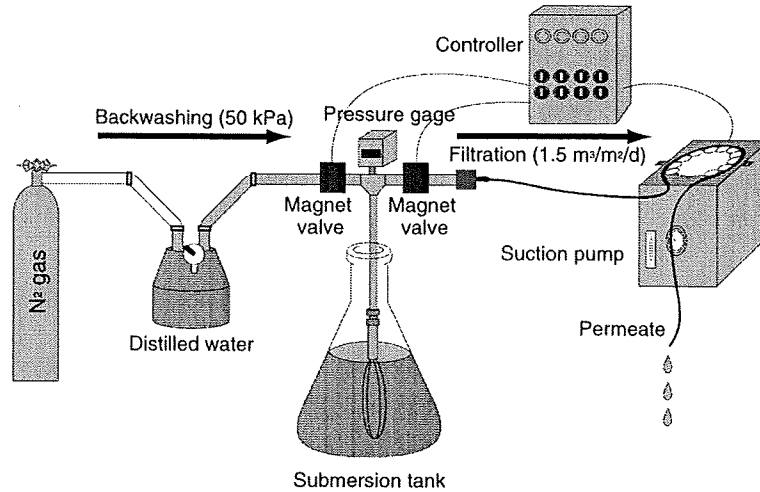


図-1 ベンチスケール膜ろ過実験装置

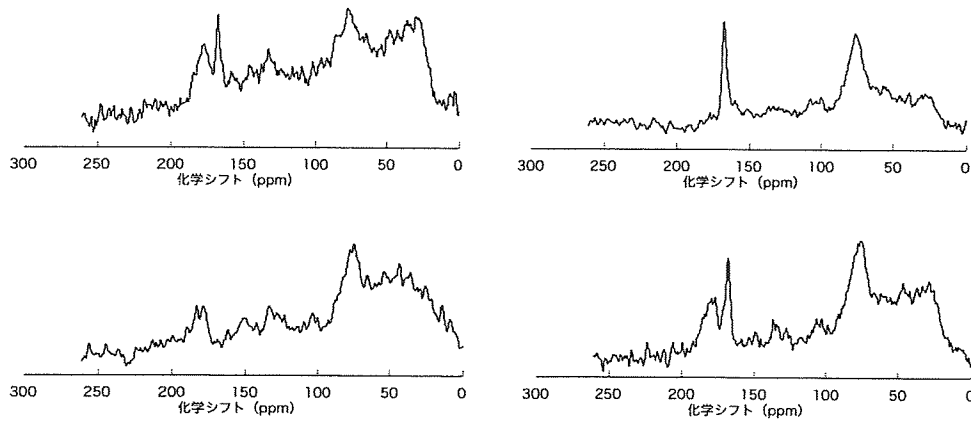


図-2 各水道原水に含まれる有機物の<sup>13</sup>CNMR スペクトル  
(左上：豊平川、右上：印旛沼、左下：釧路川、右下：淀川)

性画分、親水性画分に分画した。酸性条件下 (pH=2) で DAX-8 に吸着する成分が疎水性画分、XAD-4 に吸着する成分が弱疎水性画分、どちらの樹脂にも吸着しない成分が親水性画分となる。樹脂からアルカリ溶液で溶出させた後は (親水性画分については樹脂通過後は)、電気透析装置 (旭硝子製) により電気伝導度が 0.5mS/cm 未満になるまで脱塩精製処理を行った。それぞれの有機物画分を含む水を原水として実験室内でベンチスケールろ過実験を行い、膜ファウリングの発生状況を検討した。

図-1 にベンチスケールろ過実験装置の概要を示す。ろ過原水中の有機物濃度は全ての実験において 2 mg-TOC/L となるように添加し、pH を 7 に調整して連続実験を行

った。膜面積 15cm<sup>2</sup> のミニモジュールを作成し、フラックス 1.5m/d に設定した定流量吸引ろ過を行った。吸引ろ過はペリスタリックポンプにより行った。本実験で使用した膜は PVDF 製の中空糸膜 (膜細孔径 0.1 μm、旭化成ケミカルズ製) である。ろ過実験にあたっては 15 分に 1 度、30 秒間の逆洗を実施した。圧力データはデジタル圧力計により、パソコンに接続して連続採取した。

### C. 研究結果

図-2 に各水源より回収した有機物の<sup>13</sup>CNMR スペクトルを示す。この分析方法は、有機物中の炭素がどのような結合をしているものであるかを定量的に調べるため

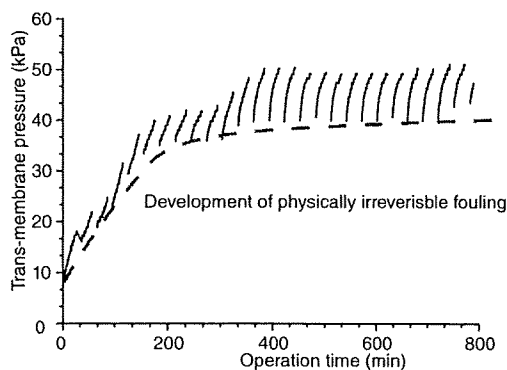


図-3 ベンチスケール実験において測定された膜間差圧の一例

のものである。図-2 に示すとおり、各有機物のスペクトル形状は大きく異なっていた。本研究で回収した有機物はそれぞれ性質が大きく異なるものであったことが明確に示されている。印旛沼と淀川から採取した有機物のスペクトルでは、化学シフト 75ppm のピークが目立っているが、これは多糖類に起因するものである。この二つの水源では、NOM の中で多糖類が特に大きな寄与をしていることが示されている。印旛沼は藻類由来の、淀川は下水処理過程で活性汚泥微生物が放出する多糖類が考えられる。印旛沼では 75ppm のピークの他に 170ppm 付近のピークが目立つ。これはカルボキシル基によるもので、タンパク質に由来すると考えられる。印旛沼では、NOM の大半が藻類の放出する多糖類およびタンパク質類で占められていることが予想される。一方、豊平川および釧路川から採取した有機物のスペクトルは広い範囲に様々なピークが認められる。印旛沼および淀川のスペクトルと比較して、特徴があるのは化学シフト 120ppm 付近のピークが占める割合が大きいことである。この部分のピークは芳香族有機物の存在の多寡を示すものであり、フミン質の存在と関連づけられる。

膜ファウリングは、物理洗浄で解消可能な物理的に可逆的な膜ファウリングと、化学洗浄によって解消可能な物理的に不可逆的な膜ファウリング（煩雑であるので、以後それぞれ可逆的膜ファウリング、不可逆的膜ファウリングと表記する）に大別される。膜ろ過装置の実機では、何らかの形で（逆洗が一般的）物理洗浄工程が運転サイクル

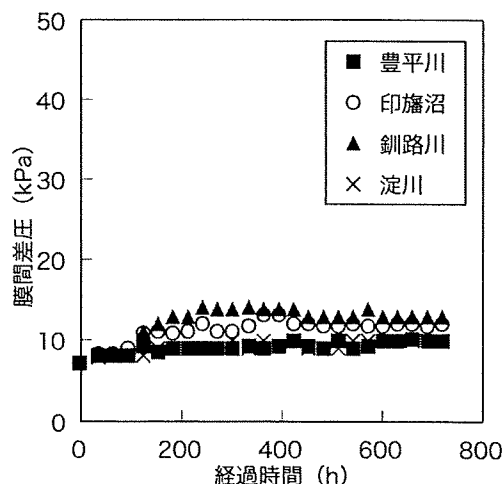


図-4 疎水性画分による不可逆的膜ファウリング

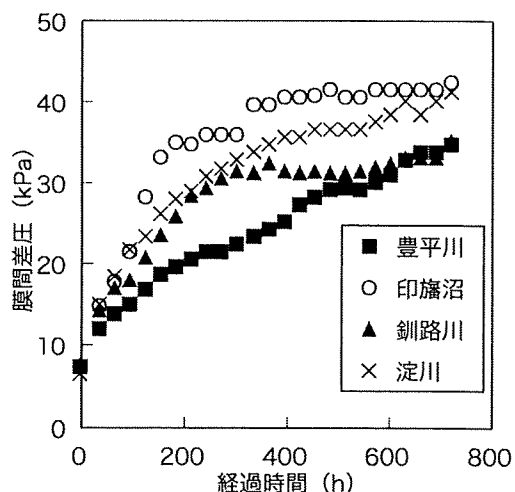


図-5 親水性画分による不可逆的膜ファウリング

に組み込まれているが、物理洗浄を行ってもなお進行するのが不可逆的膜ファウリングである。本実験では物理洗浄（逆洗）を定期的に行っており、物理洗浄直後に測定された膜間差圧の値から、不可逆的ファウリングの進行を評価できる。図-3 にベンチスケール膜ろ過実験において測定された膜間差圧の一例を示す。図-3 中、赤の破線で示されるのが不可逆的ファウリングの進行である。

各原水中の疎水性画分、親水性画分をろ過した際の不可逆的ファウリング進行を図-4 および図-5 にそれぞれ示す。疎水性画分を

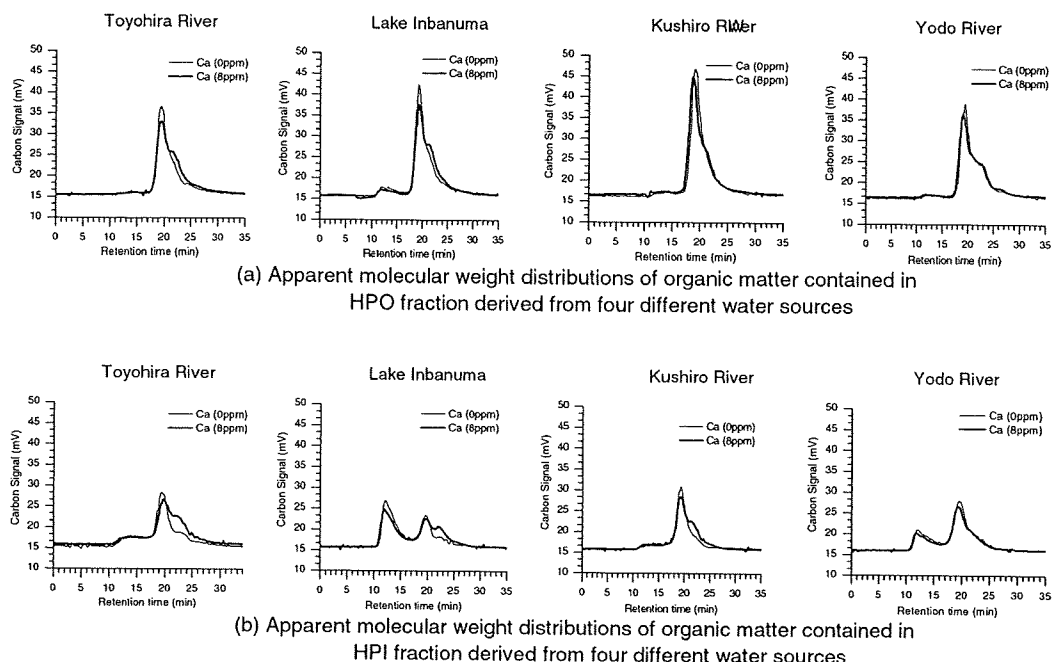


図-6 ろ過実験に用いた有機物の分子量分布（上：疎水性画分、下：親水性画分）

ろ過した実験では、膜ファウリングの進行（膜間差圧の上昇）が認められたが、定期的に行う逆洗の実施により膜間差圧の値を大幅に低減させることができた。この結果、疎水性画分のろ過においては不可逆的ファウリングの進行がほとんど起こらなかった。試料を採取した水道水源の場所に関わらず、疎水性画分による不可逆的ファウリングの進行は緩やかであった。既往の研究の多くで、フミン質などの疎水性有機物による膜ファウリングの発生が報告されているが、多くの場合で可逆的なファウリングを評価していたのではないかと考えられる。一方、試料を採取した水道水源の場所によらず、親水性画分をろ過した場合には急激な不可逆的ファウリングの進行が観察された。

図-6 に疎水性および親水性画分の分子量分布を示す。図-6 中、保持時間が長いほど分子量は小さくなっている。親水性画分では、保持時間 12 分付近（分子量  $10^6\text{Da}$  に相当）に疎水性画分では見られないピークが認められ、特に印旛沼と淀川の場合に顕著である。図-6 に示したクロマトグラムは有機物検出器による信号をプロットしたものであるが、本測定では同時に紫外検出器（波長  $260\text{nm}$ ）も使用して測定を行った。

親水性画分においてのみ認められる  $10^6\text{Da}$  以上の大分子量成分は紫外吸光を示すものではなかった。

#### D. 考察

筆者らは有機物中の親水性有機物が不可逆的ファウリングの主要な原因物質である可能性を指摘してきた。本研究では特徴の大きく異なる様々な有機物を用いて試験を行ったが、いずれの場合も親水性有機物が不可逆的ファウリングへ重要な関与をすることが示された。筆者らの仮説は一般性を持つものへと拡張できたのではないかと考えている。親水性画分中にも様々なタイプの有機物が含まれているが、特に膜ファウリングの発生において重要である有機物は多糖類様成分であると考えられる。図-2 に示したとおり、豊平川および釧路川の水に含まれる有機物中では多糖類は必ずしも主な構成成分とはなっていないが、膜ファウリングの発生においては重要な役割を果たすようである。

分子量と分子径の関係は一義的に定まるものではないが、分子量  $10^5\sim 10^6\text{Da}$  は概略  $0.1\sim 0.01\mu\text{m}$  程度に相当すると考えられる。図-6 に示した、親水性画分中に含ま

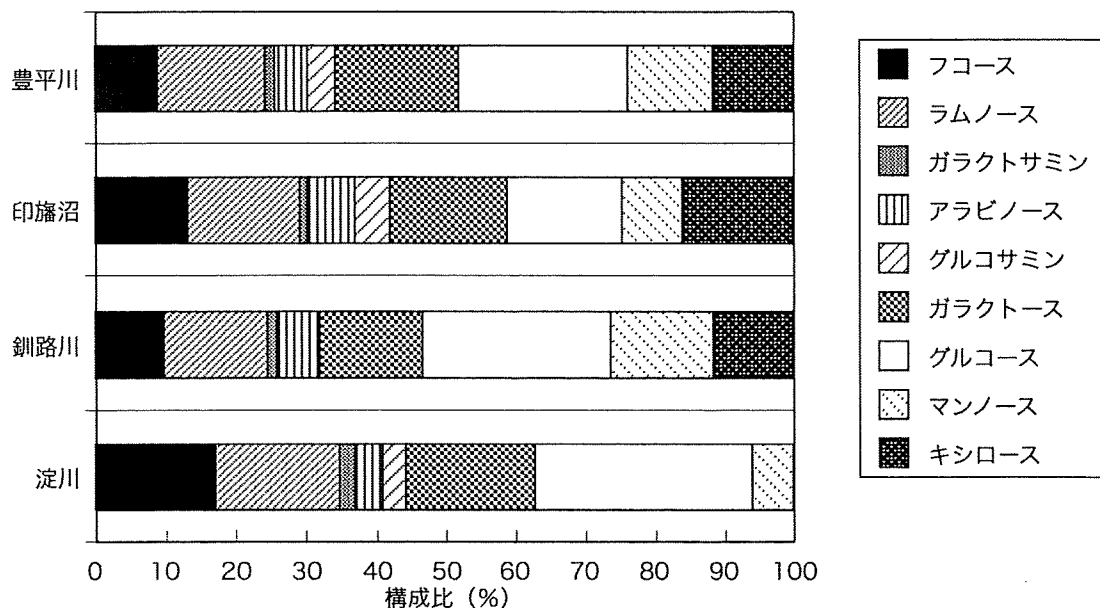


図-7 親水性画分中の単糖組成分布

れる紫外外部吸光を示さない大分子量成分は、浄水処理に用いられるMF・UF膜の細孔径とほぼ同程度の寸法を有していることになる。これらの大分子量成分はMF・UF膜の細孔を完全閉塞に近い形で閉塞させて膜ファウリングを発生させる可能性がある。このような物理的条件に加えて、糖類中の水酸基が膜表面と水素結合をすることでより強固に結びつき、不可逆的膜ファウリングの発生に繋がるものと考えられる。世界各地の様々な表流水中の有機物について分子量分布が測定されているが、本研究の結果と同様に大分子量成分は紫外外部吸光を示さないことが多い。また、これらの成分はMF・UF膜の細孔径に近い粒径を有していることが多い。親水性有機物が引き起こす不可逆的ファウリングは、普遍性の高いものであると言えそうである。

図-6には、カルシウムを添加(8ppm)した場合の有機物分子量分布も合わせて示している。僅かではあるが、親水性画分に含まれる有機物はカルシウムの添加により分子量が高分子量側へシフトするようである。実際の処理条件ではカルシウムが存在するが、親水性画分の分子量分布を高分子量側へシフトさせることでファウリングの発生をさらに促進させる可能性がある。

図-5より、親水性画分による不可逆的フ

ァウリングの発生速度は原水によって大きく異なっていたことが分かる。各試料間のファウリング発生速度は、試料のSUVA値(単位有機物量あたりの紫外外部吸光度)と明確な関連性が認められた。すなわち、SUVA値が低いほどファウリングの進行が速くなる傾向があった。SUVA値を低くする有機物構成成分としては糖類が考えられる。そこで、試料中の糖類についてより直接的に検討するために、試料中の単糖構成成分分析を行った。図-7に各親水性画分中の単糖構成分析結果を示す。単糖の構成は原水間で明らかに異なっており、各試料中の糖類の性質もまた大きく異なっていた可能性が高い。このことが図-5に示した膜ファウリング進行度の差異に反映されていたと考えられる

#### E. 結論

本研究では、特性の大きく異なる有機物を実水道水源から回収し、有機物中のどのような画分が不可逆的膜ファウリングの発生に関与するかを検討した。従来から膜ファウリングへの関与が指摘されている疎水性画分(フミン質)は、可逆的膜ファウリングは発生させるものの、不可逆的ファウリングの発生は限定されたものであった。水道水源のタイプによらず、多糖類等から