

〈研究発表〉

雨水利用に向けた光触媒膜/セラミック平膜システムのファウリング抑制効果

黄 永 杰¹⁾, 本 間 亮 介²⁾, 竹 内 悠³⁾, 丹 後 元 秀⁴⁾
河 中 祐 也⁵⁾, 鮫 島 正 一⁶⁾, 西 村 文 武⁷⁾, 新 井 喜 明⁸⁾

¹⁾ 京都先端科学大学 バイオ環境学部

(〒 621-0022 京都府亀岡市曾我部町南条大谷 1-1 E-mail: wong.yongjie@kuas.ac.jp)

²⁾ 京都大学大学院 工学研究科

(〒 615-8540 京都市西京区京都大学桂 C-1-3-461 E-mail: homma.ryosuke.6j@kyoto-u.ac.jp)

³⁾ 京都大学大学院 工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター

(〒 520-0811 滋賀県大津市由美浜 1-2 E-mail: takeuchi.haruka.6m@kyoto-u.ac.jp)

⁴⁾ (前) 京都大学大学院 工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター

(〒 520-0811 滋賀県大津市由美浜 1-2 E-mail: tango.motohide@gmail.com)

(現) 日水コン

⁵⁾ 京都大学大学院 工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター

(〒 520-0811 滋賀県大津市由美浜 1-2 E-mail: kawanaka.yuya.65u@st.kyoto-u.ac.jp)

⁶⁾ 株明電舎

(〒 141-6029 東京都品川区大崎 2-1-1 E-mail: sameshima-s@mb.meidensha.co.jp)

⁷⁾ 京都大学大学院 工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター

(〒 520-0811 滋賀県大津市由美浜 1-2 E-mail: nishimura.fumitake.3n@kyoto-u.ac.jp)

⁸⁾ 株明電舎

(〒 141-6029 東京都品川区大崎 2-1-1 E-mail: arai-yo@mb.meidensha.co.jp)

概 要

水不足の課題解決のため、日本国内でも雨水貯留で得られた水資源を有効活用する取り組みが注目されている。雨水利用方式の導入において、一般的に広く使用される膜処理技術が挙げられる。本報では、雨水利用に向けた膜処理技術の課題である膜ファウリングの抑制手法として、光触媒を集積したセラミック平膜処理システムによるファウリングの抑制効果を評価したので報告する。

キーワード：雨水, 光触媒, セラミック平膜, ファウリング, 光洗浄

原稿受付 2023.9.4

EICA: 28(2・3) 108-112

1. はじめに

水不足は、世界中の数百万人に影響を及ぼす重要な地球的課題であり^{1,2)}、人口増加、都市化の急速化、そして気候変動により、淡水資源の利用可能性が制約され、世界の人口の40%以上が直面している課題である。この水不足の危機は人間の生活、生態系、社会経済的発展に深刻な影響を及ぼしている。水不足の原因は多様で、人口増加による水の需要増加、気候変動による降水パターンの乱れ、産業や農業の排出物による水質汚染、効率の低い水管理が大量の水の浪費を招いている^{3,4)}。そして、雨水の再利用は、持続可能な開発目標 (SDGs) である SDGs 6 (清潔な水と衛生)、SDGs 11 (持続可能な都市と共同体) などに寄与し、水の利用可能性や持続可能な管理、水質汚染の削減、都市の水資源の安全性向上に寄与している。

水不足の問題に直面している中、雨水の再利用は従来の水源にかかる負担を軽減する持続可能な解決策と

して注目されている。適切に収集、処理、利用される雨水にはいくつかの利点がある⁵⁾。例えば、非飲用目的に雨水を利用することで、市町村の水供給システムの負担を軽減できる。また、雨水貯留システムは湿潤期に水を蓄え、乾燥期に利用することで、干ばつ時の水不足の影響を和らげることができる。これらのシステムは地下水層の再補給にも役立ち、乾燥地域における重要な淡水源となる。さらに、雨水を屋根から分岐させることで、しばしば汚染物質を含む雨水流出を減少させ、全体的な水質を改善することができる。

雨水の再利用において、光触媒膜やセラミック平膜を使用することは、効率的な雨水浄化と再利用の手段として有望性を持ってある^{6,7)}。これらの技術は、光触媒の活性化や紫外線による有害物質の分解を含む物理化学的処理を組み合わせることで、実現するのに役立つ^{8,9)}。しかし、光触媒膜やセラミック平膜を使用する場合、ろ過装置の表面に付着する汚れや有機物が問題となることがあり、ファウリングを引き起こす可

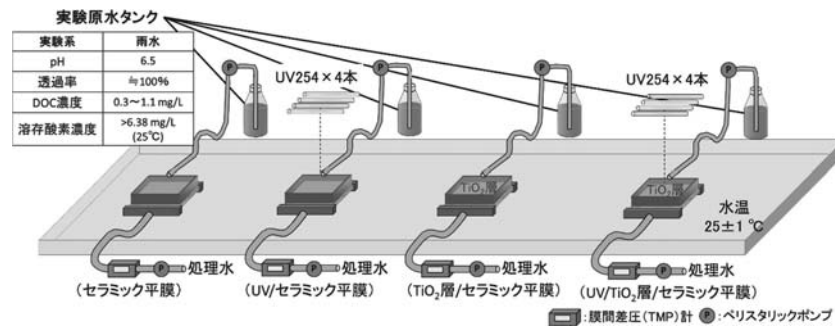


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental apparatus and experimental conditions

能性がある。膜ファウリングの対策としては、定期的な膜の清掃や予防的な処理が挙げられます。例えば、事前処理段階で粗いろ過を行うことで、膜への不純物の到達を抑制することができます。また、化学的処理や逆洗などの手法も使用されますが、これらは膜材料や運用条件によって効果が異なります。この付着により、膜の細孔が詰まり、処理効率が低下する可能性がある¹⁰⁾。また、ファウリングによって光触媒の活性部分が覆われることで、効果的な光触媒反応が妨げられることもある。

そこで筆者らは、セラミック平膜により TiO₂光触媒を保持させ、薬剤の添加を必要としない UV/TiO₂ による促進酸化を起こす新しい処理システムを考案した¹¹⁾。本処理システムでは、(i) セラミック平膜表面にケーキ層を形成した TiO₂ (TiO₂層) が、UV 照射による促進酸化処理によって、雨水の有機物を分解することにより、セラミック平膜の膜ファウリングの抑制が可能であることが期待されている。著者の知識の範囲内では、雨水でのファウリングが TiO₂層に与える影響に関する研究は限られており、ほとんど分かっていない。そこで本研究では、(ii) 雨水再利用に新しい処理システムを適用した場合に、UV 照射強度およびろ過流速の違いによる、セラミック平膜のファウリングの抑制効果がどの程度あるのか明らかにした。また、(iii) 世界の年間降水率を基に、本処理システムをどのように運用すべきか考察を行った。

2. 実験方法

2.1 雨水の収集

雨水は、ポリ容器を用いて 200 L の容量で採水した。収集された雨水のサンプルは、2つの異なる時点で収集された。サンプルは 2018 年 6 月 4 日に収集された。そして、もう一つのサンプルは 2021 年 10 月 31 日に収集された。本研究では、収集された雨水の特性について様々な水質分析が行われた。雨水に含まれる溶存有機炭素 (DOC : Dissolved Organic Carbon) 濃度、溶存酸素 (DO : Dissolved Oxygen) 濃度、pH を測定した。

2.2 実験装置の概略

本実験装置の概略図と実験条件を Fig. 1 に示す。セラミック平膜上 (膜孔径 0.1 μm, 明電舎製) に塩化ビニル製の枠 (高さ 2.0 cm) を上面に接着し、有効膜面積 25.0 cm² (5.0 cm×5.0 cm) に成型した膜を用い、ペリスタリックポンプ (SJ-1211 II-H, アトー製) により実験原水を下向流で吸引ろ過した。ろ過の開始とともに、事前に 30 分間予備点灯させた低圧水銀ランプ (UV254 : 主波長 254 nm) 4 本を実験装置上に配置し、その時間を 0 分と定義した。UV 照射強度は、分光光度計 UV-PadE (アルゴ製) を用いて測定した。TiO₂層上の UV 照射強度は、UV ランプと水面の距離を変化させることで調整し、実験原水の透過率から TiO₂層上の UV 照射強度を推算した。ろ過流速は、ペリスタリックポンプの強度を変化させることで調節した。

2.3 TiO₂層の形成方法

実験開始 60 分前に TiO₂ (P25, Degussa 製) 0.03 g を超純水 (Milli-Q 水)、実験装置内に注いだ。その後、実験開始までペリスタリックポンプにて吸引ろ過を行い、TiO₂ケーキ層 (TiO₂層) を形成させた。TiO₂層の形成の確認は、実験開始 60 分前と 0 分の実験装置内の液相の吸光度から判断した (Fig. 2)。なお、吸光度の測定には、三次元蛍光測定装置 Aqualog (HORIBA 製) を使用した。

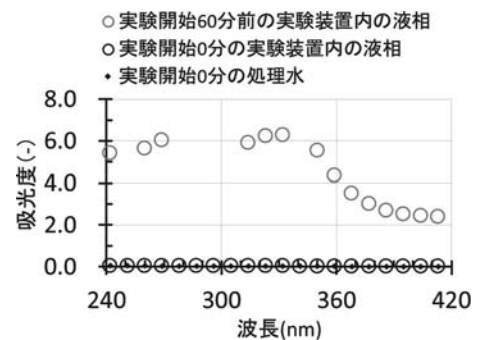


Fig. 2 Comparison of the absorbance of the supernatant water in the vinyl chloride frame on a ceramic flat membrane 60 min before and 0 min after the start of experiment¹⁰⁾

2.4 ファウリングの評価方法

膜で水をろ過する際に、膜を通過する抵抗により雨水を供給する側とろ液浸出側に圧力の差が生じる。この圧力差を膜間差圧 (TMP: Trans Membrane Pressure) といい、TMP の上昇が膜ファウリングの進行の指標となっている。本研究では TMP を測定するためにデジタル圧力計 (長野計器製) を使用した。

2.5 有機炭素量の把握方法

膜ファウリングの要因の検討のために、ろ過処理水の DOC 濃度を把握するために、燃焼式全有機炭素分析装置 TOC300-V (三菱ケミカルアナリティック製) を用いて測定した。

2.6 設定した実験系

Fig. 1 に示すように、セラミック平膜のみをろ過する場合 (以下、セラミック平膜)、その平膜上に TiO₂ 層を形成させる場合 (以下、TiO₂層/セラミック平膜)、TiO₂層/セラミック平膜を UV 照射する場合 (UV/TiO₂層/セラミック平膜) の 4 つのシステムを並行して運転した。雨水の有機物を分解することにより、セラミック平膜の膜ファウリングの抑制を観察する目的を行った。

Fig. 4 に示すように、雨水を対象とした UV/TiO₂/セラミック平膜処理のファウリングの解消効果が示されてある。本実験では、UV 照射強度 7.8 mW/cm² の条件で実験を行った。ファウリングの軽減効果を観察する目的を行った。UV 光は 60 分間の照射後に消灯され、その後 1007 分後に膜間差圧が上昇した際に再び点灯させた。

3. 実験結果および考察

3.1 TiO₂, UV 照射の有無の対照実験

Fig. 3 において、ろ過流速が 2.9 m³/(m²/day)、TiO₂層上における UV 照射強度が 7.8 mW/cm² の条件下での、セラミック平膜、UV/セラミック平膜、

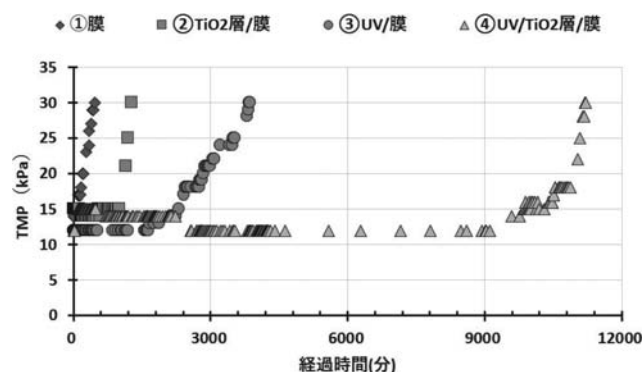


Fig. 3 Changes in TMP over time in the subject experiments with and without TiO₂ and UV irradiation

TiO₂層/セラミック平膜、UV/TiO₂層/セラミック平膜システムによる TMP の時間変化を示している。Fig. 3 は、ろ過流速が 2.9 m³/(m²/day) の条件下で、ペリスタルティックポンプによる吸引が可能だった期間 (TMP ≤ 30 kPa) をプロットしている。セラミック平膜、UV/セラミック平膜、TiO₂層/セラミック平膜、UV/TiO₂層/セラミック平膜の吸引可能な時間は、それぞれ 540, 4,272, 1,318, 13,410 分であった。TiO₂層/セラミック平膜システムにおいて、セラミック平膜に比べて約 3 倍の長時間ろ過が可能であった理由は、ファウラントが TiO₂層に吸着したことで、セラミック平膜のファウリングが抑制されたことと考えられる¹¹⁾。UV/セラミック平膜システムでは、セラミック平膜と比較して約 9 倍の長時間ろ過が確認された。この理由は、原水中のファウラントが UV にて光分解されたことにより、ファウリングの抑制効果が見られたものと考えられる。一般的に UV 照射の導入は、原水中の有機物や微生物などの危険リスク因子を処理するためであるが、本実験結果のように、ファウリングの抑制効果にも十分期待できることが明らかになった。さらに、UV/TiO₂層/セラミック平膜システムでは、セラミック平膜に比べて約 25 倍の長時間ろ過が可能であった。UV による光分解の効果と TiO₂層上に生成される・OH の促進酸化がファウラントを分解したためと考えられる。

既往研究の報告では、本処理システムを下水処理水に適応させた場合、流速 2.9 m³/(m²/日)、TiO₂層上の UV 照射強度 7.8 mW/cm² の条件 (本実験と同条件) における、セラミック平膜、TiO₂層/セラミック平膜、UV/TiO₂層/セラミック平膜システムの吸引可能であった時間は、それぞれ、145, 570, 1,780 分であった¹²⁾。雨水を原水とした系におけるセラミック平膜、TiO₂層/セラミック平膜、UV/TiO₂層/セラミック平膜システムのろ過可能時間は、この下水処理水を原水とした系と比較すると、それぞれ約 4, 2, 8 倍向上した。このことから、UV/TiO₂層/セラミック平膜システムは、有機物濃度や濁度の低い雨水を対象とした際には、セラミック平膜や TiO₂層/セラミック平膜システムよりも、ファウリングの抑制効果が高いことが明らかになった。従って、地下水などを原水とした場合には、地下水中の微量汚染物質の分解と同時に、薬液洗浄や逆洗をしなくとも長時間のろ過ができるものと示唆される。

3.2 光照射による膜ファウリングの解消効果

暗所条件下において、TiO₂層/セラミック平膜システムを運転し、ファウリングが進行した状態で、UV 光を再照射することで、TiO₂層を再度使用できるか評価した。実験開始 0 分から 60 分までのセラミック

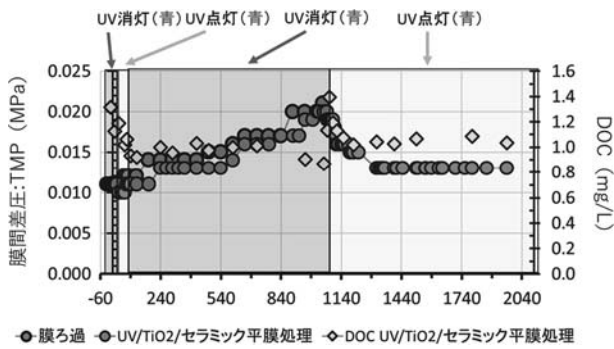


Fig. 4 Effectiveness of UV/TiO₂/ceramic flat membrane system for rainwater in eliminating fouling

平膜と UV/TiO₂層/セラミック平膜システムの TMP は、ほぼ同じ値 (TMP : 0.010 MPa) を示した (Fig. 4)。その後、UV ランプを消灯すると、各処理システムのファウリングの進行は、時間差があるものの、ほぼ同じ傾向を示した。この理由は、TiO₂層にファウラントが吸着したためであると考えられる。次に、UV ランプを再照射 (1067 分) すると、ファウリングの解消が確認され、再照射から 133 分後に、TMP は 0.020 MPa となり、0.050 MPa の TMP を減少することができた。また、その際の DOC の変動に着目したところ、UV ランプを再照射すると、ろ過水中の DOC 濃度が著しく上昇した。その後、照射下において、ろ過水中の DOC 濃度は減少し、TMP の減少と同様の傾向を示した。UV 照射後にろ過水中の DOC 濃度が増加した理由は、TiO₂層上に蓄積したファウラントが分解され、剥がれたためと考えられる^{13,14)}。

以上より、TiO₂層/セラミック平膜システムは UV を併用することで、ファウリングの解消効果と処理水質の向上が期待できることが示唆された。

3.3 世界の雨の降水確率

世界の降水日数を Fig. 5 に示す¹⁵⁾。水の供給の安定性は、地域ごとの降水確率に大きく影響を受ける。降水確率は、異なる地域がどれだけの頻度で雨水を受け取るかを示す指標であり、水の利用可能性を判断する

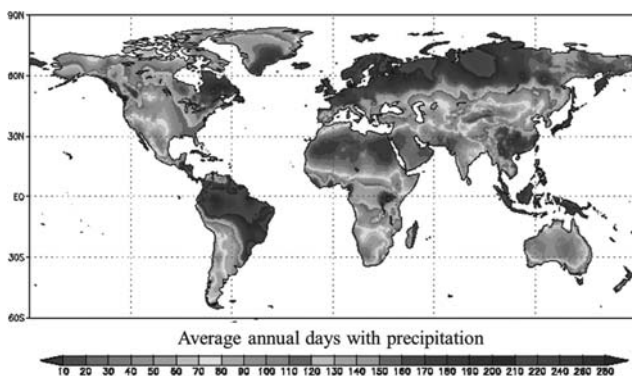


Fig. 5 Number of days of precipitation worldwide¹⁵⁾

上での重要な要素となる。日本 (東京) では、年間を通じて約 123 日に雨が降る降水確率があり、3~4 日に 1 回程度の頻度で雨が降ることが予想される¹⁶⁾。欧米地域では、降水確率に幅広い変動があり、約 81~164 日に雨が降ることがあるが、これも日本と同様に 3~4 日に 1 回程度の頻度で雨が降る地域が多い。一方、中東・南アフリカ・中国では、約 41~154 日に雨が降る降水確率があり、3~9 日に 1 回程度の頻度で雨が降る傾向が見られる (ただし、ロサンゼルスとサンフランシスコを除く)¹⁶⁾。特に、貯水タンクと太陽光利用を組み合わせた本処理システムは、下水処理設備が整備されていない開発途上国の地域においても、低コストで安全な水供給を実現する可能性を秘めている。この研究からは、UV/TiO₂層/セラミック平膜構造を用いた実験においては、約 8 日間にわたってろ過が効果的に行われることが確認された。つまり、地域ごとの降水率の違いが、持続可能な水供給の観点からどのような示唆をもたらすかが明らかになった。特に、新たな技術や方法論が、雨水の浄化と供給の課題に対する有望な解決策となり得る可能性が示唆された。ただし、これらの手法を実現するには、適切な管理体制の構築と、継続的な研究開発が必要であることも重要である。

4. ま と め

本研究では、以下のことが明らかになった。

① UV/TiO₂層/セラミック平膜による雨水処理効果の明確化

TiO₂層と UV 照射の有無を比較した実験により、各システムのろ過可能時間が明らかになった。また、UV 照射によるファウリングの抑制と解消効果が確認された。

② 地域ごとの降水率と持続可能な水供給への展望

世界の降水確率に基づく地域ごとの水供給の違いから、UV/TiO₂層/セラミック平膜システムを導入した際に、持続可能な水供給における技術的アプローチの有望性が示唆され、新たな解決策となりうることが示唆された。

参考文献

- 1) Deser, C., Phillips, A., Bourdette, V. et al. Uncertainty in climate change projections: the role of internal variability. *Climate Dynamics* 38, 527-546. <https://doi.org/10.1007/s00382-010-0977-x> (2012)
- 2) D. Gerrity, Y. Lee, S. Gamage, M. Lee, A. N., Pisarenko, R. A. Trenholm and S. A. Snyder: Emerging investigators series: prediction of trace organic contaminant abatement with UV/H₂O₂: development and validation of semi-empirical models

- for municipal wastewater effluents, *Environmental Science: Water Research & Technology*, Vol. 2, No. 3, pp. 460-473 (2016)
- 3) 環境工学委員会：下水再生水の利用促進における環境工学の役割, 土木学会平成 29 年度全国大会 研究討論会, pp. 1-14 (2017)
 - 4) United Nations: The Sustainable Development Goals Report, p. 7 (2018)
 - 5) 国土交通省：下水処理水の再利用のあり方を考える懇親会報告書：新たな社会的意義を踏まえた再生水利用の促進に向けて, pp. 1-25 (2009)
 - 6) Okhravi, S., Eslamian, S., & Dalezios, N. R. Reducing water shortage crisis through rainwater reuse: lessons learned from ancient toward integrated technology. *International Journal of Hydrology Science and Technology*, 9(6), 587-602. (2019)
 - 7) Wang, R. Landscape design of rainwater reuse based on ecological natural environment: Hangzhou as an example. *Arabian journal of geosciences*, 14(18). (2021)
 - 8) R. Homma, N. Nakada, E. Sadudeewong, M. Yoshimoto, M. Kusumi, K. Toyooka, Y. Arai and H. Tanaka: Evaluation of PPCPs removal from pure water by UV/TiO₂ photocatalytic oxidation process followed by ceramic flat membrane filtration, The 23rd KAIST-KU-NTU-NUS Symposium, pp. 261-268 (2015)
 - 9) Abdel-Aziz, R., Ahmed, M. A., & Abdel-Messih, M. F. A novel UV and visible light driven photocatalyst AgIO₄/ZnO nanoparticles with highly enhanced photocatalytic performance for removal of rhodamine B and indigo carmine dyes. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 389, 112245. (2020)
 - 10) 本間亮介, 牧野樹生, 中田典秀, 鮫島正一, 田中宏明：光触媒とセラミック平膜を用いた下水再生処理におけるファウリング抑制に関する研究, 第 31 回環境システム計測制御学会研究発表会 (2019)
 - 11) Arora, I., Chawla, H., Chandra, A., Sagadevan, S., & Garg, S. Advances in the strategies for enhancing the photocatalytic activity of TiO₂: Conversion from UV-light active to visible-light active photocatalyst. *Inorganic Chemistry Communications*, 143, 109700. (2022).
 - 12) 本間亮介, Sadudeewong Esara, 中田典秀, 鮫島正一, 清家聡, 新井喜明, 田中宏明：セラミック平膜上の TiO₂ ケーキ層厚が純水中 PPCPs の促進酸化処理に及ぼす効果, 第 51 回日本水環境学会年会, p. 143 (2017)
 - 13) Zakria, H. S., Othman, M. H. D., Kamaludin, R., Kadir, S. H. S. A., Kurniawan, T. A., & Jilani, A. Immobilization techniques of a photocatalyst into and onto a polymer membrane for photocatalytic activity. *RSC advances*, 11 (12), 6985-7014. (2021)
 - 14) R. Homma, N. Nakada, E. Sadudeewong, S. Sameshima, S. Seike, M. Uchibayashi, Y. Arai and H. Tanaka: Basic study of pharmaceuticals removal by combination of Ultraviolet and TiO₂, The proceeding of 3rd International Workshop on Environmental Issues for Young Students and Researchers by Young Students and Researchers, p. 38 (2017)
 - 15) Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). IPCC Working Group I (WGI): Fifth Assessment Report. Average annual days with precipitation world map. (2014)
 - 16) World Meteorological Organization (WMO). United Nations Statistics Division. Average Annual Climatological Precipitation Frequency. (2015)
- Note : Aqualog は, HORIBA JOBIN YVON S.A.S. の登録商標