

学 位 論 文 題 名

A novel biofilm-membrane reactor for advanced drinking water treatment

（新規生物膜・分離膜一体型リアクターによる高度浄水処理）

学位論文内容の要旨

公共用水域の水質汚濁、水資源の繰り返し利用の増加に伴い、水道水源水質の悪化が指摘されて久しい。いわゆる水道水源水質関連二法が制定されたものの、水源を取り巻く状況は複雑・多様化しており、依然として厳しい状況が続いている。通常の浄水処理では対応のできない成分を含む水を、水道水源とせざるを得ないケースがすでに各地で生じており、今後さらに増加することが予想される。一方で安全でおいしい水道水に対する要望はますます高まってきており、これまで以上に精密な浄水処理、給配水管管理が必要となっている。このような状況においては、アンモニア性窒素（ $\text{NH}_4^+\text{-N}$ ）への対応が非常に重要である。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ は塩素要求量を著しく増加させるため、トリハロメタンに代表される消毒副生成物の生成を促進する可能性がある。また、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ と塩素が反応して生成するクロラミンが、水道水のカルキ臭の原因物質であるという報告もなされている。これらの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ に関連する問題に加えて、クリプトスポリジウム等、従来の塩素消毒に対して耐性を有する病原微生物の水道原水への混入も問題となってきた。

本博士論文では、低濃度 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の生物酸化と、クリプトスポリジウムのような病原性微生物を確実に除去できる膜処理を単一反応槽内において達成できる新規水処理プロセスとして、分離膜表面に固定した硝化細菌を通して膜ろ過を行う水処理方法（Biofilm-Membrane Reactor, 以下BMRと称す）を提案する。本論文では、実験室内における模擬原水を用いたベンチスケール実験と、実浄水場におけるパイロットスケール実験によって得られた実験結果を通じて、BMRの有効性・適用性について検討を行った。

本論文は全7章により構成した。第1章では、日本の水収支の現状、浄水処理が抱える問題について概説し、BMR着想に至った経緯を述べた。膜面に固定する硝化細菌は独立栄養細菌であり、増殖量・細胞外代謝産物放出量が少ないことから、硝化細菌による膜透過性能の劣化は軽微であることが予想された。また、BMRにおいては、膜表面に固定した硝化細菌（生物膜）への物質輸送は分子拡散に加えて膜ろ過に伴う移流によっても生じること、反応槽内で $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度が最も低くなっている生物膜底部から処理水を得ることから、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 処理効率が高くなることが予想された。第2章では、BMR具現化のための基本的検討を行った。本研究では、分画分子量75万のポリスルホン製UF膜を装着した回転平膜装置を採用することとした。ベンチスケール（膜ディ

スク直径210mm、総膜面積 0.3m^2)の回転平膜装置を用いた実験より、膜表面に微生物を固定したまま膜ろ過を継続することが可能であること、またその際に良好な $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 酸化が起こることを確認した。第3章では、約1000時間から3000時間の長期連続ろ過実験により、BMRにおいて発現するろ過抵抗について検討を行った。連続実験時の膜透過水フラックスは $0.8\text{m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ 、膜回転数は50rpmとした。実験の結果、連続運転開始時に膜表面に固定する微生物群の特性が以後のろ過抵抗の増加に深く関与していることが示された。純粋培養硝化細菌の使用がろ過抵抗上昇の抑制には最も効果的であったが、運転条件に馴致した微生物群を種汚泥とすることで、純粋培養硝化細菌の場合と同等のろ過抵抗抑制効果が得られた。運転開始時における微生物固定量としては、 $0.3\text{g-SS}/\text{m}^2\text{-membrane}$ 程度で十分であった。ろ過抵抗の形態について検討した結果、BMRの連続運転において発現するろ過抵抗は70-80%が可逆的なケーキ抵抗であった。薬品洗浄をすることによってのみ解消されうる不可逆的抵抗は、フミン質・多糖類と推定される有機物質が膜細孔を覆い隠すことで発生していた。これらのろ過抵抗は、大部分がろ過原水中に含まれる成分に起因するものであり、膜面に固定した低濃度 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の酸化を行う微生物が増加させるろ過抵抗は極めて小さなものであることが示唆された。連続運転時50rpmの膜回転数を一時的に400rpmに上昇させることによって生じるせん断力を利用した膜洗浄を500時間に一度の頻度で行うことで、3000時間以上の運転継続が薬品洗浄をすることなく可能であった。第4章では、BMRの効果的な洗浄方法について検討した。原水に濁質が混入する場合、膜面上に形成されるケーキは非常に強固なものとなり、第3章と同様の手順による膜洗浄は全く洗浄効果が見られなかったが、数mm大に切ったスポンジ片を膜分離槽内に混入させながら膜回転数を上昇させた結果、大幅な洗浄効率の向上が観察された。このスポンジを利用した洗浄は非常に効果的であり、付着ケーキに起因するろ過抵抗をほぼ完全に解消できることが可能であった。しかしながら、スポンジを用いた洗浄後は、膜面に固定した微生物もほぼ完全に剥離させてしまうので、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 処理性能の維持のためには、剥離ケーキの一部を運転再開時に膜面に付着させる必要があった。第5章では、BMRにおいて形成される硝化細菌生物膜の動力学的解析を行った。解析にあたっては、生物膜を平滑かつ均一な連続体と仮定したシンプルな生物膜モデルを採用した。約800時間の連続運転において形成された生物膜の断面観察、微小電極による濃度分布の測定を行った結果、前記したようなシンプルな生物膜モデルの適用の妥当性が示された。これは、BMRにおいて形成される生物膜は常に膜ろ過に伴う吸引圧力の影響を受けているため、モデルで仮定したようなシンプルな構造を実際に有していたことによる。また、前述した膜ろ過に伴う移流による生物膜への物質移動の促進、生物膜底部からの処理水採取による $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 酸化効率の向上について、モデルを用い検討した。第6章では、実水道原水を用いたパイロットスケール実験の結果を記述した。膜ディスク直径750mm、総膜面積 4.5m^2 の回転平膜装置を江別市上江別浄水場に設置し、前処理として凝集沈殿処理を施した千歳川表流水をろ過原水として連続ろ過実験を行った。実水道原水を用いた実験においても、スポンジを利用した膜洗浄は極めて有効であり、BMRの運転を約8ヶ月間、薬品洗浄を行うことなく継続することが可能であった。パイロットスケール実験では良好な $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 酸化に加えて、AOC、マンガンの除去も同時に観察された。第7章では、本研究の総括を行った。

以上のことより、本論文で提案するBMRは、効率的な高度浄水処理を行うことができる、実用可能な水処理方法であることが示された。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 渡 辺 義 公

副 査 教 授 高 桑 哲 男

副 査 教 授 眞 柄 泰 基

副 査 教 授 Hallvard Ødegaard (ノルウェー科学技術大学)

学 位 論 文 題 名

A novel biofilm-membrane reactor for advanced drinking water treatment

(新規生物膜・分離膜一体型リアクターによる高度浄水処理)

公共用水域の水質汚濁、水資源の繰り返し利用の増加に伴い、水道水源水質の悪化が指摘されて久しい。いわゆる水道水源水質関連二法が制定されたものの、水源を取り巻く状況は複雑・多様化しており、依然として厳しい状況が続いている。通常の浄水処理では対応できない成分を含む水を、水道水源とせざるを得ないケースがすでに各地で生じており、今後さらに増加することが予想される。一方で良質の水道水に対する要望はますます高まってきており、これまで以上に精密な浄水処理、給・配水が必要となっている。このような状況においては、アンモニア性窒素 ($\text{NH}_4^+\text{-N}$) への対応が非常に重要である。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ は塩素要求量を著しく増加させるため、トリハロメタンに代表される有害消毒副生成物の生成を促進する。また、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ と塩素が反応して生成するクロラミンが、水道水のカルキ臭の原因物質であるという報告もなされている。これらの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ に関連する問題に加えて、クリプトスポリジウム等、従来の塩素消毒に対して耐性を有する病原微生物の水道原水への混入も問題となってきた。

本博士論文では、低濃度 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の生物酸化と、クリプトスポリジウムのような病原性微生物を確実に除去できる膜処理を単一反応槽内において達成できる新規水処理プロセスとして、分離膜表面に固定した硝化細菌を通して膜ろ過を行う水処理方法 (Biofilm-Membrane Reactor、以下 BMR と略す) を提案する。本論文では、実験室内における模擬原水を用いたベンチスケール実験と、実浄水場におけるパイロットスケール実験によって得られた実験結果に基づき、BMR の有効性・適用性について検討した。

本論文は全 7 章より構成される。第 1 章では、日本の水収支の現状、浄水処理が抱える問題について概説し、BMR 着想に至った経緯を述べた。膜面に固定する硝化細菌は独立栄養細菌であり、増殖量・細胞外代謝産物放出量が少ないことから、硝化細菌による膜透過性能の劣化は軽微であることが予想された。また、BMR においては、膜表面に固定した硝化細菌 (生物膜) への物質輸送は分子拡散に加えて膜ろ過に伴う移流によっても生じること、反応槽内で $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度が最も低くなっている生物膜底部から処理水を得ることから、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 処理効率が高くなることが予想された。第 2 章では、BMR 具現化のた

めの基本的検討を行った。本研究では、分画分子量 75 万のポリスルホン製 UF 膜を装着した回転平膜装置を採用することとした。ベンチスケール（膜ディスク直径 210mm、総膜面積 0.3m^2 ）の回転平膜装置を用いた実験より、膜表面に微生物を固定したまま膜ろ過を継続することが可能であること、またその際に良好な $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 酸化が起こることを確認した。第 3 章では、約 1000 時間から 3000 時間の長期連続ろ過実験により、BMR において発現するろ過抵抗について検討を行った。連続実験時の膜透過水フラックスは $0.8\text{m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ 、膜回転数は 50 rpm とした。実験の結果、連続運転開始時に膜表面に固定する微生物群の特性が以後のろ過抵抗の増加に深く関与していることが示された。純粋培養硝化細菌の使用がろ過抵抗上昇の抑制には最も効果的であったが、運転条件に馴致した微生物群を種汚泥とすることで、純粋培養硝化細菌の場合と同等のろ過抵抗抑制効果が得られた。運転開始時における微生物固定量としては、 $0.3\text{g-SS}/\text{m}^2\text{-membrane}$ 程度で十分であった。ろ過抵抗の形態について検討した結果、BMR の連続運転において発現するろ過抵抗は 70~80% が可逆的なケーキ抵抗であった。薬品洗浄をすることによってのみ解消される不可逆的抵抗は、フミン質・多糖類と推定される有機物質が膜細孔を覆い隠すことで発生していた。これらのろ過抵抗は、大部分がろ過原水中に含まれる成分に起因するものであり、膜面に固定した低濃度 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の酸化を行う微生物が増加させるろ過抵抗は極めて小さなものであることが示唆された。連続運転時 50 rpm の膜回転数を一時的に 400rpm に上昇させることによって生じる剪断力を利用した膜洗浄を 500 時間に一度の頻度で行うことで、3000 時間以上の運転継続が薬品洗浄をすることなく可能であった。第 4 章では、BMR の効果的な洗浄方法について検討した。原水に濁質が混入する場合、膜面上に形成されるケーキは非常に強固なものとなり、第 3 章と同様の手順による膜洗浄は全く洗浄効果が見られなかったが、数 mm 大に切ったスポンジ片を膜分離槽内に混入させながら膜回転数を上昇させた結果、大幅な洗浄効率の向上が観察された。このスポンジを利用した洗浄は非常に効果的であり、付着ケーキに起因するろ過抵抗をほぼ完全に解消できることが可能であった。しかしながら、スポンジを用いた洗浄後は、膜面に固定した微生物もほぼ完全に剥離させてしまうので、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 処理性能の維持のためには剥離ケーキの一部を運転再開時に膜面に付着させる必要があった。第 5 章では、BMR において形成される硝化細菌生物膜の動力学的解析を行った。解析にあたっては、生物膜を平滑かつ均一な連続体と仮定したシンプルな生物膜モデルを採用した。約 800 時間の連続運転において形成された生物膜の断面観察、微小電極による濃度分布の測定を行った結果、前記したようなシンプルな生物膜モデルの適用の妥当性が示された。これは、BMR において形成される生物膜は常に膜ろ過に伴う吸引圧力の影響を受けているため、モデルで仮定したようなシンプルな構造を実際に有していたことによる。また、前述した膜ろ過に伴う移流による生物膜への物質移動の促進、生物膜底部からの処理水採取による $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 酸化効率の向上について、モデルを用い検討した。第 6 章では、実水道原水を用いたパイロットスケール実験の結果を記述した。膜ディスク直径 750mm、総膜面積 4.5m^2 の回転平膜装置を江別市上江別浄水場に設置し、前処理として凝集沈殿処理を施した千歳川表流水をろ過原水として連続ろ過実験を行った。実水道原水を用いた実験においても、スポンジを利用した膜洗浄は極めて有効であり、BMR の運転を約 8 ヶ月間、薬品洗浄を行うことなく継続することが可能であった。パイロットスケール実験では良好な $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 酸化に加えて、AOC、マンガンの除去も同時に観察された。第 7 章では、本研究の総括を行った。

以上のことより、本論文で提案する BMR は、効率的な高度浄水処理を行うことのできる、実用可能な水処理方法であることが示された。

これを要するに、著者は低濃度 $\text{NH}_4\text{-N}$ を含む河川水进行处理し、良質の水道水を造水できる新たな膜分離装置を考案し実用化すると共に、その生物酸化機能を微小電極と生物膜モデルにより論理的に解析したことにより、浄水工学の発展に貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。