

膜分離活性汚泥法 (MBR) における膜ファウリング 発生機構の解明に向けた膜ファウリング物質の特性解析

学位論文内容の要旨

膜分離活性汚泥法 (MBR) は、活性汚泥による生物処理と膜分離による固液分離を組み合わせた処理技術であり、現在世界中で広く用いられている標準活性汚泥法と比較して、高度な処理水質を安定して達成できること、設置面積が小さいこと、運転管理が容易であることといった様々な利点を有しており、近年急速に適用例が増加している。しかし、MBR においては膜の閉塞 (膜ファウリング) に起因する運転コストの増大が大きな問題となっている。MBR における膜ファウリングの進行を抑制できる運転条件を確立するためには、膜ファウリングの発生機構を正確に理解することが不可欠であるが、この部分に関しては現段階において十分な知見は得られていない。

MBR における膜ファウリングの発生機構を理解するためには、膜ファウリングに関与している有機物 (膜ファウリング物質) の特性を把握することが重要である。既往の研究において、糖やタンパク質といった有機物が MBR における膜ファウリング物質の主要な構成成分となっていることが明らかとなっているが、具体的にどのような糖もしくはタンパク質が膜ファウリングの進行に大きく寄与しているのかは明らかとなっていない。本研究では、実下水処理を行う MBR における膜ファウリング物質の起源を検討すると同時に、MBR において膜ファウリングに関与している糖及びタンパク質の特性に関して検討を行った。

MBR における有機物の起源としては、微生物の基質代謝に伴って放出される有機物 (UAP)、微生物の死滅に伴って放出される有機物 (BAP) 及び流入原水中に含まれる有機物の 3 種類が考えられることに着目し、実下水処理を行う MBR における膜ファウリング物質の起源を検討した。その結果、汚泥滞留時間 (SRT) の短い条件では、UAP が膜ファウリング物質中で支配的であったのに対し、SRT が長い場合は UAP の膜ファウリングへの寄与率が低くなり、BAP の膜ファウリングへの寄与がかなりあったものと考えられた。SRT を短く設定した MBR において膜ファウリングがより速やかに進行していたことから、UAP は膜ファウリングを引き起こしやすい特性を有しているものと考えられた。MBR における膜ファウリングの季節変動を検討したところ、物理洗浄で解消できる物理的に可逆的な膜ファウリングは水温の低下に伴って進行速度が増大した一方で、物理洗浄では解消することができない物理的に不可逆的な膜ファウリングについては、水温の高い時期の方が速やかに進行することが明らかとなった。物理的に可逆的な膜ファウリングの進行速度は活性汚泥懸濁液中の有機物濃度と一定の関連性が認められたものの、物理的に不可逆的な膜ファウリングの進行速度は活性汚泥懸濁液中の有機物濃度からでは説明ができなかった。水温の異なる時期では活性汚泥懸濁液中の有機物の特性が異なっていたことを考慮すると、物理的に不可逆的な膜ファウリングの進行速度には有機物の量ではなく、質が大きく影響していた可能性が示唆された。

また、膜透過水 flux の差異が膜ファウリングの進行及び膜ファウリング物質特性に及ぼす影響を検討するため、同一の MBR 反応槽に 2 つの膜モジュールを浸漬し、膜透過水 flux を変化させてろ過を行った。その結果、膜透過水 flux を高く設定することによって単位ろ過水量当たりの膜ファウリングの進行度がより大きくなることが明らかとなった。また、同一の汚泥をろ過していたにもかかわらず、膜透過水 flux が異なることによって、異なる有機物が膜ファウリングに関与していたことも明らかとなった。膜透過水 flux の差異に起因する膜ファウリング物質特性の差異を活性汚泥懸濁液中に含まれる有機物の粒径と関連付けて検討したところ、膜透過水 flux を高く設定した場合には、粒径の大きな成分（主に糖やタンパク質から構成される）の膜ファウリングへの寄与が増大していたものと考えられた。これらの結果から、粒径の大きな成分の中に大きな過抵抗を発生させる成分が含まれている可能性が示唆された。

上述した実験の結果を踏まえ、本研究では、膜ファウリングに大きく寄与している糖及びタンパク質の特性を検討した。糖については、レクチンアフィニティークロマトグラフィーを適用し、一部の糖のファウリングポテンシャルを評価したところ、糖の種類が異なることでファウリングポテンシャルが大きく異なることが明らかとなった。タンパク質については、活性汚泥懸濁液中溶存性タンパク質及び膜ファウリングに関与していたタンパク質に関してプロテオーム解析を行った。SDS-PAGE によって膜ファウリングを引き起こしやすいと考えられるタンパク質を分離したのち、N 末端アミノ酸配列解析を用いて該当タンパク質の同定を試みた。

本研究では、これまで全く検討されてこなかった、膜ファウリングを引き起こしやすい糖及びタンパク質の特性解析を行うことができる手法を確立した。これらの手法を用いて膜ファウリングへの寄与が大きい有機物の特性を詳細に検討することで、有機物と膜との間に働く相互作用に関する知見を深められると考えられる。これらの知見は、膜ファウリング発生機構の解明に大きく寄与するものと期待される。

学位論文審査の要旨

主査	准教授	木村克輝
副査	教授	船水尚行
副査	教授	松井佳彦
副査	教授	高橋正宏

学位論文題名

膜分離活性汚泥法 (MBR) における膜ファウリング 発生機構の解明に向けた膜ファウリング物質の特性解析

膜分離活性汚泥法 (MBR) は、活性汚泥による生物処理と膜分離による固液分離を組み合わせた処理技術であり、現在世界中で広く用いられている標準活性汚泥法と比較して、高度な処理水質を安定して達成できること、設置面積が小さいこと、運転管理が容易であることといった様々な利点を有しており、近年急速に適用例が増加している。しかし、MBR においては膜の閉塞 (膜ファウリング) に起因する運転コストの増大が大きな問題となっている。MBR における膜ファウリングの進行を抑制できる運転条件を確立するためには、膜ファウリングの発生機構を正確に理解することが不可欠であるが、この部分に関しては現段階において十分な知見は得られていない。

MBR における膜ファウリングの発生機構を理解するためには、膜ファウリングに関与している有機物 (膜ファウリング物質) の特性を把握することが重要である。既往の研究において、糖やタンパク質といった有機物が MBR における膜ファウリング物質の主要な構成成分となっていることが明らかとなっているが、具体的にどのような糖もしくはタンパク質が膜ファウリングの進行に大きく寄与しているのかは明らかとなっていない。本研究では、実下水処理を行う MBR における膜ファウリング物質の起源を検討すると同時に、MBR において膜ファウリングに関与している糖及びタンパク質の特性に関して検討を行った。

MBR における有機物の起源としては、微生物の基質代謝に伴って放出される有機物 (UAP)、微生物の死滅に伴って放出される有機物 (BAP) 及び流入原水中に含まれる有機物の 3 種類が考えられることに着目し、実下水処理を行う MBR における膜ファウリング物質の起源を検討した。その結果、汚泥滞留時間 (SRT) の短い条件では、UAP が膜ファウリング物質中で支配的であったのに対し、SRT が長い場合は UAP の膜ファウリングへの寄与率が低くなり、BAP の膜ファウリングへの寄与がかなりあったものと考えられた。SRT を短く設定した MBR において膜ファウリングがより速やかに進行していたことから、UAP は膜ファウリングを引き起こしやすい特性を有しているものと考えられた。MBR における膜ファウリングの季節変動を検討したところ、物理洗浄で解消できる物理的に可逆的な膜ファウリングは水温の低下に伴って進行速度が増大した一方で、物理洗浄では解消することができない物理的に不可逆的な膜ファウリングについては、水温の高い時期の方が速やかに進行することが明らかとなった。物理的に可逆的な膜ファウリングの進行速度は活

性汚泥懸濁液中の有機物濃度と一定の関連性が認められたものの、物理的に不可逆的な膜ファウリングの進行速度は活性汚泥懸濁液中の有機物濃度からでは説明ができなかった。水温の異なる時期では活性汚泥懸濁液中の有機物の特性が異なっていたことを考慮すると、物理的に不可逆的な膜ファウリングの進行速度には有機物の量ではなく、質が大きく影響していた可能性が示唆された。また、膜透過水 flux の差異が膜ファウリングの進行及び膜ファウリング物質特性に及ぼす影響を検討するため、同一の MBR 反応槽に 2 つの膜モジュールを浸漬し、膜透過水 flux を変化させてろ過を行った。その結果、膜透過水 flux を高く設定することによって単位ろ過水量当たりの膜ファウリングの進行度がより大きくなることが明らかとなった。また、同一の汚泥をろ過していたにもかかわらず、膜透過水 flux が異なることによって、異なる有機物が膜ファウリングに関与していたことも明らかとなった。膜透過水 flux の差異に起因する膜ファウリング物質特性の差異を活性汚泥懸濁液中に含まれる有機物の粒径と関連付けて検討したところ、膜透過水 flux を高く設定した場合には、粒径の大きな成分 (主に糖やタンパク質から構成される) の膜ファウリングへの寄与が増大していたものと考えられた。これらの結果から、粒径の大きな成分の中に大きなろ過抵抗を発生させる成分が含まれている可能性が示唆された。

上述した実験の結果を踏まえ、本研究では、膜ファウリングに大きく寄与している糖及びタンパク質の特性を検討した。糖については、レクチンアフィニティークロマトグラフィーを適用し、一部の糖のファウリングポテンシャルを評価したところ、糖の種類が異なることでファウリングポテンシャルが大きく異なることが明らかとなった。タンパク質については、活性汚泥懸濁液中溶存性タンパク質及び膜ファウリングに関与していたタンパク質に関してプロテオーム解析を行った。SDS-PAGE によって膜ファウリングを引き起こしやすいと考えられるタンパク質を分離したのち、N 末端アミノ酸配列解析を用いて該当タンパク質の同定を試みた。本研究では、これまで全く検討されてこなかった、膜ファウリングを引き起こしやすい糖及びタンパク質の特性解析を行うことができる手法を確立した。これらの手法を用いて膜ファウリングへの寄与が大きい有機物の特性を詳細に検討することで、有機物と膜との間に働く相互作用に関する知見を深められると考えられる。

これを要するに、著者は、MBR における膜ファウリング発生機構についての新知見を得たものであり、膜ファウリング抑制手法の開発と MBR の広範な普及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。