

学 位 論 文 題 名

Membrane Fouling in Air-sparged Side-stream Tubular
Membranes used in a municipal wastewater MBR

(槽外型チューブラー膜を装着した都市下水処理MBRにおける膜ファウリング)

学位論文内容の要旨

Membrane bioreactors (MBRs) have become very attractive during the past decade due to their advantages, although optimization of MBR operation has not been achieved yet. Recently, air-sparged side-stream MBRs (ASMBRs) have received much attention since they can overcome the drawbacks of submerged MBRs such as difficulty in cleaning membrane modules. Widespread application of MBRs has been limited by problems associated with membrane fouling and ASMBRs are not exceptions. In this doctoral thesis, membrane fouling in ASMBRs was investigated on the basis of a series of pilot-scale experiments carried out at an existing wastewater treatment plant. This thesis is composed of the following 6 chapters.

In chapter 1, background and objectives of the study were described. In addition to recent research papers focusing on membrane fouling in MBRs, studies dealing with two-phase flow (mixed liquor and gas), which is supposed to be important in the operation of ASMBRs, were thoroughly reviewed in this chapter.

In chapter 2, results of experiments carried out right after the installation of the pilot-scale ASMBR were described. Basic operational parameters of the ASMBR were determined on the basis of the results obtained in these experiments and were used in the following experiments. In this doctoral study, a baffled bio-reactor that enabled efficient nutrient removal was coupled with air-sparged side-stream tubular membrane modules, which was used as an ASMBR. A high-load operation of the pilot-scale ASMBR was investigated at two different periods (high- and low-temperature). Although nitrogen removal efficiency slightly decreased at the low-temperature period, the ASMBR showed excellent nitrogen and phosphorus removal efficiencies. The developments of both physically reversible and irreversible fouling were assessed during operation at various gas velocities and the mixed-liquor velocity was fixed at 0.50 m/s. The membrane flux was fixed at 80 L/m²/hour with filtration cycle of 10 min filtration and 1 min backwash throughout the experiments. Regardless of the difference in temperature, the trends in the development of the two types of membrane fouling caused by the difference in gas velocity were found to be similar. With respect to physically reversible fouling, an optimum gas velocity, at which the development of this type of fouling was minimized, was found to be around 0.42 m/s (corresponding void fraction was 0.45). A further increase in gas velocity resulted in more reversible fouling. On the other hand, the degree of physically irreversible fouling decreased as gas velocity increased.

In chapter 3, the characteristics of foulants in a pilot-scale ASMBR was investigated. After long-term operations, membrane modules were disassembled and foulants were extracted by alkaline solution for various analyses. Cylindrical membrane modules used in this study held about 100 membrane tubes each. Differences of foulants depending on tube positions in the horizontal cross section were investigated. There was no significant difference in the characteristics of foulants regardless of the positions of tubes in the membrane module. It was also found that humic substances were dominant in the foulant extracted from tubular membranes used in the ASMBR. This is a very interesting finding as hydrophilic organic compounds such as polysaccharides/proteins have been reported as major foulants in “conventional” submerged MBRs.

In chapter 4, influences of hydraulic conditions in the ASMBR on characteristics of foulant were assessed. Different liquid and gas velocities were examined to create different hydraulic conditions in the ASMBR. Ten days operations were repeatedly carried out with gas velocity of 0.42 m/s, 0.92 m/s and liquid velocity of 0.3 m/s, 0.5 m/s and 0.7 m/s. The membrane flux was fixed at 80 L/m²/hour with filtration cycle of 10 min filtration and 15 sec backwash. It was shown that liquid velocity of 0.3 m/s was not sufficient to operate the tubular membrane with a high flux such as 80 LMH. Experimental results suggested that increasing gas velocity was more effective than increasing liquid velocity for control of reversible membrane fouling. Humic substances were found to be dominant in the foulant regardless of hydraulic conditions examined. Humic substance was found to be very significant foulant in high gas velocity condition compare to lower gas velocity condition.

In chapter 5, a comparison between ASMBRs and submerged MBRs in terms of foulant characteristics was carried out. For this purpose, tiny-scale hollow fiber and flat sheet membranes made from the same polymer material (PVDF) as used for the tubular membrane were submerged in the bio-reactor of the ASMBR. Membrane flux was set at 42 L/m²/hour for the three types of membranes with filtration cycle of 10 min filtration and 15 sec backwash. Foulants were extracted from the membranes after 40 and 20 days of continuous operations in two different experiments for further analyses. In general, the flat sheet (MF) membrane got fouled more rapidly compared to other two membranes. Tubular membrane was fouled the least among the three types of membranes. Humic substances were found to be dominant in tubular and flat sheet membrane whereas, protein was found to be dominant in the hollow fiber membrane.

In chapter 6, important results of the present study were summarized and recommendations for future study are presented.

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

Membrane Fouling in Air-sparged Side-stream Tubular Membranes used in a municipal wastewater MBR

(槽外型チューブラー膜を装着した都市下水処理MBRにおける膜ファウリング)

膜分離活性汚泥法 (Membrane Bio-Reactor, MBR) は従来の下水処理法に比べて多くの優位点があり、次世代の主流下水処理技術となりうるものである。現在普及が進みつつあるのは生物反応槽に分離膜を浸漬して膜ろ過を行う浸漬型 MBR であるが、膜透過性能の低下 (膜ファウリング) 防止を目的として行う反応槽内の曝気消費エネルギー量を大幅に増大させており、本格的な MBR 普及の妨げになっている。膜分離部と生物反応槽を分離した MBR (槽外型 MBR) では、エネルギー消費量が少なくなる可能性がある。特に、膜分離部にチューブラー膜を用い、チューブラー膜内部に空気を導入して気液混合流を創出しながら膜ろ過を行う MBR (Air-sparged Side-stream MBR, ASMBR) は浸漬型 MBR に比べて大幅に高いフラックスで運転が出来る可能性があり、大きな注目を集めている。ASMBR においても膜ファウリングは問題となるが、ASMBR における膜ファウリングに関する知見は現時点では非常に限られている。本研究ではパイロットスケールの ASMBR を用いた都市下水処理実験に基づき、ASMBR における膜ファウリング、特に膜ファウリングを引き起こす成分の特性を検討している。本博士論文は以下の 5 章より構成される。

第 1 章では本研究の背景、目的を記述している。MBR における膜ファウリングを扱った既往の研究を概観するとともに、気液混合流理論の ASMBR への適用性についても整理し、本研究の新規性および有用性について述べている。

第 2 章ではパイロットスケール ASMBR を用いた長期連続処理実験において必要となる運転パラメータ設定のために実施した短期実験結果を整理している。チューブラー膜内部に導入する空気の流速を過度に上昇させた場合には可逆的なファウリング (膜面に付着するケーキに起因するファウリング) の発生が顕著になること、一方で不可逆的なファウリング (薬品洗浄によって解消されるファウリング) は空気流速の上昇に対応して発生が抑制されることを明らかにしている。第 2 章

の実験結果に基づき、以後の章において実施した連続処理実験における運転パラメータの値が決定されている。

第3章では、**ASMBR**において膜ファウリングの発生を引き起こす成分の特性について検討されている。長期連続ろ過運転を実施した後にチューブラー膜モジュールを解体し、チューブラー膜から薬品(水酸化ナトリウム)により膜ファウリング成分を抽出して三次元励起・蛍光スペクトル、赤外スペクトル他の分析を行った結果、**ASMBR**の膜ファウリング物質中にはフミン質が多く含まれており、浸漬型 **MBR** において主要ファウリング物質として指摘されてきた多糖類やタンパク質の相対的な存在量は少なかったことを示している。さらに、小型の中空糸膜モジュールを **ASMBR** の生物反応槽内に浸漬させて(小型の浸漬型 **MBR** を作成して)**ASMBR** と並列運転する実験を行っており、**ASMBR** のファウリング物質中ではフミン質が卓越することを確認する一方で、浸漬型 **MBR** では既往の研究と同じく多糖類やタンパク質が主なファウリング物質となっていたことを示している。この理由として、**ASMBR** と浸漬型の **MBR** とでは、膜面にかかるせん断力が大きく異なることを指摘している。

第3章で提示した仮説を検証するため、第4章では異なる水理学的条件で **ASMBR** を運転した場合に膜ファウリング物質の特性がどのように変化するかを検討している。チューブラー膜内の空気流速および液流速を変化させて繰り返し10日間の膜ろ過実験を行い、空気流速および液流速が高く設定されて大きなせん断力がかかる条件では、膜ファウリング物質中におけるフミン質の存在がより顕著になることを示している。浸漬型 **MBR** において主なファウリング原因物質となる多糖類およびタンパク質は分子量数十万以上の巨大分子として **MBR** 内に存在しているのに対し、フミン質は分子量数千～数万である。膜面からの逆輸送速度は、前者で小さく後者では大きくなる。浸漬型 **MBR** に比べて大きな膜面せん断力をかけることができる **ASMBR** では逆輸送速度の小さい多糖類およびタンパク質の膜面および膜内部への蓄積を回避することができる結果、フミン質が主要なファウリング物質となったものと考察している。

第5章では、本研究で得られた主要な成果が整理され、将来の展望について述べられている。

以上を要するに、著者は次世代の主流下水処理技術となりうる **MBR** における膜ファウリングについて、従来主要なファウリング物質と考えられてきた多糖類あるいはタンパク質ではなく、フミン質が主なファウリング物質になりうることなどの新知見をパイロットスケールの実都市下水処理実験に基づいて与えており、水処理工学に対して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。