

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 崔 宰 熏 (ちえ じえふん)

本論文は「Development of nanofiltration membrane bioreactor (NFMBR) for wastewater reclamation and reuse in urban area (都市における下水の高度利用のためのナノ濾過メンブレンバイオリアクターの開発)」と題し、ナノ濾過中空糸膜を活性汚泥曝気槽内に直接浸漬し吸引濾過で処理水を得るといふ、全く新しい発想で、これまでにない高度処理性能を有する下水処理法を開発した先駆的研究である。

第1章は「序論」である。研究の背景とこれまでの下水処理水再利用の動向をまとめた後で、研究の目的と本論文の構成を示している。

第2章は「既往の研究」である。膜技術の下水処理における適用から、ナノ濾過膜分離活性汚泥法の先行知見、下水再生利用技術、逆浸透・ナノ濾過の基礎理論についてまとめている。

第3章は「実験材料と方法」である。実験装置の構成や分析方法についてまとめている。

第4章は「2 酢酸セルロース膜(CDA)を用いたナノ濾過メンブレンバイオリアクターの性能」で、以下のような結果を得ている。ナノ濾過膜の膜表面積当り透過流量と膜間差圧の変化からみると、約60日の運転期間中、約30 kPaの膜間差圧下で膜のフラックスは平均0.001 m³/日を若干上回ったが、20日以降は膜間差圧及び濾過水量は大きく変化が起こった。この現象の原因としては膜の荷電性の変化による浸透圧の減少、膜構造の劣化等が考えられた。ナノ濾過膜分離活性汚泥法の処理水の有機物濃度は60日間2.5 mg/L程度の良質の処理水が得られた。ナノ濾過膜の塩阻止率は2価イオンの場合、運転開始後約20日までは20%だったが、それ以降は上澄み水と処理水の濃度差は有意に認められなかった。窒素の場合は十分な曝気によって窒素酸化が進行されていたが、時間経過に従って逆に硝酸性窒素及び全窒素の濃度が徐々に低下した。膜モジュールの中に污泥が蓄積されて無酸素の状態になって脱窒が進行したと考えられた。膜の構造変化を確認するため、AFM (Atomic Force Microscopy) で膜表面を解析した結果、膜の運転開始後の経過日数が多いほど、膜の劣化程度(微生物分解の程度)が大きいことが分かった。この実験の結果を基にし、以下の章で、実下水を処理対象として浸漬ナノ濾過膜分離活性汚泥法の長期運転を試みている。

第5章は「3 酢酸セルロース膜を用いたナノ濾過メンブレンバイオリアクターの性能評価」で、以下のような結果を得ている。3 酢酸セルロース(CA) ナノ濾過膜を用いた運転において、膜表面積当り透過流量及び膜間差圧の変化は約250日間にわたってCDA膜とほぼ同じ傾向が認められた。CA膜の塩阻止率はCDA膜より高い故に初期膜間差圧が80 kPa程度で相当高かったが、膜の荷電性の変化により、膜透過流量は徐々に上がったことが分かった。膜濾過水のDOC濃度の経時変化は、運転初期の約100日までは1.0 mg/Lを下回ったが、膜劣化によって徐々に水質が悪化し3.0 mg/L前後になった。膜透過水量及び透過水質の観点から見ると、一系統を除き、その他の膜モジュールにおいては深刻なトラブルの無い状態で安定的な運転結果が得られたことにより、本研究で開発したナノ濾過膜分離活性汚泥法の実用化の可能性は高いと評価できた。XAD、EEM及び熱分解GC/MS等を用いた膜濾過水内の溶存有機物質を分析した結果、DOC濃度の増加に伴って溶存成分の相違も見られた。この原因としては膜の劣化によって膜表面の荷電性が著しく減少したことに起因していると考えられた。窒素及びリンの除去の場合、荷電性を持つ硝酸性窒素とリン酸塩イオンの阻止率が運転初期においては相当高かったが、膜の荷電性が次第に弱くなるに伴ってこれらの除去率も低くなった。膜の劣化程度を調査する為、AFM分析を行った。その結果、CDA膜の方より劣化程度が深刻でないことがわかった。これはCA膜の構造がCDA膜よりタイトな構造を持つこと、膜モジュールをナイロンネットのカバーで膨らみを防ぐ工夫により微生物の膜モジュールへの侵入がある程度抑制されたこと等が理由として挙げられた。従って、

膜濾過水の DOC 濃度が約 250 日間で 3.0 mg/L 以下で安定していたと判断された。従って、CA 膜を使用する場合には膜の劣化を長期間抑制できる方法を開発していくことが重要であると指摘している。

第 6 章は「ポリアミド膜 (PA) を用いたナノ濾過メンブレンバイオリアクターの性能評価」である。本章では、微生物による膜劣化の可能性が高いと考えられる 3 酢酸セルロース膜のデメリットを克服するため、ポリアミド (PA) 系の中空糸型ナノ濾過膜を用いた運転を並行して同時に行った結果をまとめたものである。PA の場合は膜間差圧及び透過水量は大きく変化せず、一定の透過水量が 70 - 80 kPa の差圧によって維持された。膜濾過水の有機物濃度は、運転初期においては 2.0 mg DOC/L 以下で、そして経時変化につれて水質がより安定化され、約 150 日目以降は 1.0 mg/L を下回るほど水質の良い濾過水が得られた。膜濾過水を対象とした XAD、EEM 及び熱分解 GC/MS の分析結果によると、CA 膜濾過水に比して PA 膜濾過水の場合は経時変化に伴う DOC 成分の変化は大きくなかった。これは、運転期間中、PA 膜品質が変化せず一定の品質を維持した結果である。下水中の栄養物質である窒素の除去は膜への親和性等によって硝酸性窒素の阻止率が相当程度低かったが、リンの阻止は 3 価のリン酸塩イオンの阻止率が一定に保持された。しかしながら、阻止されたリンは反応槽に蓄積されて上澄水の濃度が高くなり、膜濾過水中のリン濃度が高くなった。PA 膜の汚染物質の付着程度を調べるため AFM 分析を行った。その結果、経時的に膜表面に付着した汚染物質の量も増えていることが分かった。濃度分極現象を抑える目的として導入した水道水洗浄の効果はあまり見られなかったが、ナイロンネットにより微生物の膜モジュールへの侵入等をおある程度抑制する効果を挙げたと考えられる。PA 膜の膜濾過水は、有機物濃度の点から、下水再利用のための地下水への注入を目的とした実規模の高度下水処理システムの処理水 (RO 膜濾過水) と比較しても、同等の処理水が得られることが明らかになった。

第 7 章は「ナノ濾過メンブレンバイオリアクターと精密濾過メンブレンバイオリアクターの性能評価」であり、以下のような結果を得ている。CA 及び PA 膜のバイオリアクターの運転性能を、同条件で並行して運転した MF 膜のリアクターと比較したところ、PA 膜リアクターの場合、リン濃度/MLSS 濃度の比がほかのリアクターより高かった。その原因としては PA 膜の塩阻止による上澄水内のリン酸塩イオンの蓄積及び流入粒子等が相対的な少なかったことが要因として挙げられた。反応槽内の滞留時間 (HRT) が短い CA 膜リアクターが一番大きい活性汚泥のフロック径を持っていることが分かった。酸素消費速度 (OUR) は運転初期においては MF 膜リアクターが大きかったが、約 150 日後は CA 膜リアクターの方がより大きくなった。これは CA 膜リアクターの HRT が 2.0 日から 1.5 日への減少したことにより、微生物活性が大きくなったと考えられる。各々のリアクター内の細胞外成分 (EPS) には大きな相違が認められなかった。

第 8 章は「ナノ濾過メンブレンバイオリアクター膜モジュール設計のための圧力降下及びフラックス低下のシミュレーション」で、浸漬中空糸膜モジュール設計法提案のため、膜糸の密集度と圧力の低下及び日フラックス低下との関係に関して、シミュレーションを行ったものである。その結果、実用化のため、本研究で使用された膜モジュールの膜糸の数より 2 倍程度多く詰めても、糸の密集度による圧力低下の影響は殆どないなど、シミュレーションによるモジュールサイズの最適化に関する設計法に関する知見を提供している。

第 9 章は「結論および今後の課題」である。

以上要するに、本論文は極めて斬新な発想による中空糸を用いた浸漬ナノ濾過メンブレンバイオリアクターを開発し、その実用化にあたっての基本性能を明らかにし、また開発した処理プロセスが、十分に実用化可能であることを実下水を用いた長期試験により実証した独創的研究であると高く評価できる。また、本論文で得られた知見は、都市環境工学の学術の発展に大きく貢献するものである。

よって本論文は、博士 (工学) の学位請求論文として合格と認められる。