

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 7 日現在

機関番号：32678

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22560550

研究課題名（和文）XRF分析を用いたMBR膜面・膜孔内のEPSの挙動の解明とCFDとの統合モデル化

研究課題名（英文）Fouling model of MBR considering CFD analysis and XRF analysis of EPS inside and outside of membrane pore structure.

## 研究代表者

長岡 裕（NAGAOKA HIROSHI）

東京都市大学・工学部・教授

研究者番号：90207986

## 研究成果の概要（和文）：

膜分離法を利用した生物学的排水処理システムにおける膜ファウリングメカニズムを解明し、リアクターの最適設計手法の確立のための基礎的知見を得ることを目的とした。膜面および膜孔内に蓄積した膜目詰まり物質である菌体外ポリマー（EPS）を計測する目的で、フッ素系MF膜モデルメンブレンとして使い、蛍光X線分析およびフーリエ解析赤外分光光度計による元素組成および有機物の定量分析を行う手法を開発した。さらに、膜面の洗浄力として最も支配的な気泡流による物理的な洗浄力を数値流体力学（CFD）を用いて定量化する手法を開発し、リアクター内の混合液－膜表面－膜孔内系におけるEPSの量・質的变化の統合モデル化の検討を行った。

## 研究成果の概要（英文）：

This study was aimed at elucidating membrane fouling mechanism in membrane bioreactors and developing a fouling model considering behaviors of EPS inside membrane pore structure and fluid mechanics outside membranes. An analytical method to measure EPSs inside pore structure using XRF and FT-IR without extraction procedures was developed and was found to be effective to elucidate fouling mechanism in MBRs.

## 交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2012年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：水環境工学、上下水道工学

科研費の分科・細目：土木工学、土木環境システム

キーワード：膜分離活性汚泥法, MBR, ファウリング, 不可逆的ファウリング, 蛍光X線分析, フーリエ解析赤外分光光度計, 数値流体力学

## 1. 研究開始当初の背景

| 膜分離法を利用した生物学的排水処理シス

テムは、処理装置がコンパクトで処理水質が優れていること等から、次世代における中心的な高度水処理技術として期待されている。しかし、膜面の目詰まりに伴う膜間差圧の上昇への対策は、現在までのところ、膜面の物理学的洗浄、膜の薬液洗浄など、事後対策的なものに留まっている。このため、流入負荷の上昇期、冬期など処理性能が悪化する期間などで、膜目詰まりの進行に伴う予期しない膜間差圧の急上昇がみられると、その対策に苦慮し、維持管理コストの上昇を引き起こす原因となっている。また、リアクターの滞留時間、総膜面等の設計因子、ばっ気風量、膜透過流量など、リアクターのエネルギー消費量やコストを大きく左右するこれら設計因子の決定は、現在までのところ、もっぱら経験的に決定されてきた。効率的な膜分離リアクターの設計および運転管理を実現するため、リアクター内における挙動を記述するモデルの開発が望まれてきている。

研究代表者はこれまで、膜分離活性汚泥法における挙動のモデル化に取り組んでおり、膜面におけるリアクター内の菌体の挙動に加え、膜面における目詰まり物質（菌体ポリマー、EPS）の挙動をモデル化することにより、装置全体の挙動のシミュレートが可能であることを示し、また、膜面に働くせん断力が重要であることを指摘し、実測に基づいて、ばっ気風量と膜面せん断力との関係の定量化に取り組み、成果を挙げてきた。

しかしながら、膜面および膜孔内に蓄積した微量なポリマーを定量分析することは容易ではなく、抽出方法に依存しない安定した定量手法の確立が望まれている。また、ポリマーの生産、膜への蓄積、分解の一連の過程の生物・化学過程のモデル化と、膜面におけるポリマーのはく離に関わる物理過程のモデルを統合したモデルの開発も望まれている。

## 2. 研究の目的

本研究は、菌体が生産するポリマーの膜面における挙動に関するモデル化を行い、膜分離活性汚泥法における膜目詰まり過程を記述できるモデルを開発することを目的とし、(1)モデルメンブレンと蛍光 X 線分析による元素組成の定量分析手法による膜面および膜孔内の EPS の挙動の定量化手法の開発 (2)膜面におけるポリマーの堆積、分解、はく離過程のモデル化と膜分離活性汚泥法の統合モデルの提案、の 2 つの検討より構成される。

(1)では、フッ素系メンブレン (PTFE) をモデルメンブレンとして運転を行いながら、膜からポリマーを抽出することなくそのまま蛍光 X 線分析を行って、膜面および膜孔内のポリマーの定量化する手法を開発する、(2)

では(1)の手法を用いてポリマーの量及び質の変化とそれにもなう膜ろ過抵抗の変化に関するモデル化を行うとともに、膜面に働くせん断力に関する物理的過程のモデルとの統合化を行う。

## 3. 研究の方法

(1)フッ素系モデルメンブレン (PVDF) を用いた膜分離活性汚泥法運転により、蛍光 X 線分析による膜面および膜孔内に蓄積した菌体外ポリマーの分析手法を開発する。炭素については、膜中のフッ素を基準とする方法によって膜素材とポリマーの炭素を分離する手法を検討する。

(2)膜面および膜孔内のポリマーの分解挙動と膜のろ過性の回復過程を定量化するモデルを開発する。目詰まりの発生した膜を水中に浸漬させながら運転することによって、両者の関係を定量化する。

(3)膜面に働くせん断力（はく離力）を定量化する物理モデルとともに、統合モデルを開発する。膜面に働くせん断力の定量化と数値流体力学による計算を比較しながら、数値解析的手法の有効性を検討する。

## 4. 研究成果

(1) 塩素化ポリエチレン膜の細孔内に侵入する EPS の挙動

塩素化ポリエチレン製メンブレンを用いた、膜面および膜穴内に存在する EPS 量を計測する手法の検討を行った。実際に実下水を用いて膜分離活性汚泥法の運転を行い、不可逆的ファウリングを起こした膜（塩素化ポリエチレン製 MF 膜）と、ファウリングを起こしていない膜について、膜全体を蛍光 X 線によって元素組成の定量分析と FT-IR による有機物の定性分析を行ったところ、細孔内の有機物の検出が可能であることを示した。また、膜のみについても蛍光 X 分析を行っておき（C、B と C 1 のみが検出される）、EPS には塩素は含まれないことを考慮し、塩素またはホウ素をマーカーとして利用することによって、膜から EPS を抽出することなく、その元素組成を定量することが可能となることを示した。また、フッ素系メンブレンについても、同様の検討を行い、F をマーカーとして膜内の元素組成の計測が可能であることがわかった。

(2) CFD による平膜モジュールの表面に働くせん断力のシミュレーション

平膜モジュールにおける膜面せん断力の測定と CFD (数値計算力学) による計算手法の検討を行った。実験装置は、プラスチック製水槽下部に酸気管を設置したものを使用し、気泡流に伴うせん断力を壁面に設置したせん断力センサーにより測定した。気泡流に伴う壁面上のせん断力のシミュレーションに

は有限体積法を利用した  $k-\epsilon$  法を用い、2次元計算により実験装置内の流動を計算した。なお、計算には、Ansys CFX11を使用した。CDF による計算は、せん断力の時間変動についても良好に再現できることを示すことができたが、気泡条件の入力についてさらに検討が必要であることがわかった。

(3) PVDF 膜の細孔内に浸入した EPS の分析手法の開発

膜分離活性汚泥法において、膜細孔内へ侵入する EPS の挙動を解明することを目的に、抽出することなくファウリングを起こした膜を直接、蛍光 X 線分析 (XRF) および赤外分光装置 (FT-IR) による分析する手法の確認を試みた。膜細孔内に、タンパク質第 II 級アミド特有のピーク、多糖類のピークを確認することができ、膜細孔内へ EPS の侵入が示唆された。また、膜細孔内への侵入物質には、C, O, N, Al, Si, P, S, K, Ca, Fe が含まれていたことがわかった。

膜の不可逆的ファウリングによるろ過抵抗の上昇にともない、S, C の含有率が増加する傾向が示され、たんぱく質などで構成される EPS の進入が示唆された。また、多糖類に特有の FT-IR のピーク高さの上昇も示され、多糖類の細孔内への浸入が確認された。

(4) 膜細孔内の EPS の挙動と CFD の統合モデル化

CFD により気泡流に起因する膜面せん断力の計算手法を確立し、ばつ気風量、有機物負荷量などとファウリングの進行速度との関係をシミュレートすることができた。さらに実験室規模の MBR リアクターにおける膜間差圧上昇データを用いて、開発したモデル中のパラメータの妥当性を示すことができた。また、細孔内への EPS の浸入をモデル化することができた。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計4件)

①ランムゾー, 李泰日, 長岡 裕, 見島伊織: 平膜状浸漬型 MBR における担体投入による膜面有効せん断応力の評価、土木学会論文集 G (環境)、67 巻 170-177, 2011、査読有

② Hlwan Moe Zaw, Tari Li, H. Nagaoka: Simulation of membrane fouling with consideration of the mixed liquor viscosity and the variation of the shear stress on the membrane surface, Water Science & Technology, Vol. 63, 270 - 275, 2011, 査読有

③ランムゾー, 李泰日, 長岡 裕: 数値流体

力学手法を用い MBR における中空糸膜に働くせん断応力の評価、土木学会論文集 G (環境), Vol. 67, 30-38, 2011 査読有

④ランムゾー, 長岡 裕: 浸漬型 MBR における気泡径が膜面せん断応力に与える影響、環境工学論文集, Vol. 47, 659-666, 2010 査読有

[学会発表] (計11件)

①佐々木哲哉, 長岡裕: 平膜状浸漬型 MBR における間欠曝気が膜面せん断力の変動に与える影響、日本水環境学会年会、2013年03月11日～2013年03月13日、大阪工業大学

②河野貴之, 長岡裕: MBR における MPC ポリマー加工が膜濾過性能に与える効果、日本水環境学会年会、2013年03月11日～2013年03月13日、大阪工業大学

③劉 融松, 長岡裕: 逆洗を伴う浸漬型膜分離活性汚泥法における膜間差圧上昇モデル式の構築、日本水環境学会年会、2013年03月11日～2013年03月13日、大阪工業大学

④佐々木哲哉, 長岡裕: 浸漬型中空糸膜 MBR において気泡径が膜面洗浄力に与える影響、土木学会第67回年次学術講演会講演概要集、2012年09月05日～2012年09月07日、名古屋大学

⑤佐々木哲哉, 長岡裕: 平膜状浸漬型 MBR において膜面せん断応力に及ぼす MLSS の影響、第49回下水道研究発表会講演集、2012年07月24日～2012年07月26日、神戸国際会議場

⑥林達也, 長岡裕: 膜分離活性汚泥法におけるろ過抵抗の上昇に伴う膜細孔内 EPS の挙動の検討、第49回下水道研究発表会講演集、2012年07月24日～2012年07月26日、神戸国際会議場

⑦ZAW Hlwan Moe, 長岡裕: 浸漬型 MBR における膜モジュールの膜間距離が膜面せん断応力に与える影響、下水道研究発表会講演集、250-252、2011年7月、東京ビッグサイト

⑧ランムゾー, 長岡 裕: MBR における担体投入によるせん断応力の変動と有効せん断応力の評価、第47回下水道研究発表会、2010年7月28日、名古屋市(ポートメッセ名古屋)

⑨Hlwan Moe ZAW, Tairi LI, Hiroshi NAGAOKA:  
Simulation of membrane fouling  
considering mixed liquor viscosity and  
variation of shear stress on membrane  
surface, IWA World Water Congress and  
Exhibition, September 2010 Montréal,  
Canada2010, 2010年9月20日, モントリオ  
ール(Palais de Congre de Montreal), カナ  
ダ

⑩橋本祥子, 長岡裕, 石崎圭祐: 膜分離活性  
汚泥法(MBR)における膜細孔内EPSの  
分析手法の検討, 土木学会第65回年次学術  
講演会, 2010年9月1日, 北海道大学工学部

⑪張偉, 長岡裕: セラミック平膜を用いた浸  
漬型膜分離活性汚泥法における運転方法の  
評価, 土木学会第65回年次学術講演会、2010  
年9月1日、北海道大学

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

長岡 裕 (NAGAOKA HIROSHI)  
東京都市大学・工学部・教授  
研究者番号: 90207986