

回転平膜表面に硝化細菌を固定した膜処理プロセスにおけるろ過抵抗に関する研究

木村 克輝¹・渡辺 義公²・大熊 那夫紀³

¹正会員 工修 北海道大学大学院助手 工学研究科都市環境工学専攻
(〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目)

²フェロー会員 工博 北海道大学大学院教授 工学研究科都市環境工学専攻
(〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目)

³日立プラント建設株式会社松戸研究所 (〒271-0064 千葉県松戸市上本郷字船付537番地)

本研究では、回転平膜の表面に硝化細菌を保持しながら膜ろ過を行う膜処理プロセスを用いて、低濃度アンモニア性窒素 ($\text{NH}_4^+\text{-N}$) の酸化を行った場合に形成される膜ろ過抵抗について検討した。実験結果より、本プロセスにおける膜ろ過抵抗は運転開始時に膜面に付着させる微生物群の特性に強く依存することが明らかとなった。膜ろ過抵抗の分布について検討した結果、本プロセスでは全膜ろ過抵抗の70-80%が膜面に付着・蓄積したケーキに起因するものであった。約500時間に一度の頻度で付着ケーキの除去、排出を行いながら長期連続運転を試みた結果、約3000時間の運転継続が薬品洗浄無しで可能であった。付着ケーキに起因する抵抗以外の膜ろ過抵抗は、有機物質が膜細孔を覆い隠すことで発生していた。

Key Words: membrane, filtration resistance, cake layer, nitrification, biomass

1. はじめに

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、水源を取り巻く環境は複雑・多様化しており、依然として厳しい状況が続いている¹⁾。通常の浄水処理では対応の出来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 ($\text{NH}_4^+\text{-N}$ 1mg/Lにつき塩素添加量が7.6~15mg/L必要となる²⁾) 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³⁾。オランダの一部で試みられているように⁴⁾、塩素を添加しないで配水を行う場合においても、処理水中に $\text{NH}_4^+\text{-N}$ が残存した場合には、配水管壁において $\text{NH}_4^+\text{-N}$ を基質とする硝化細菌が増殖し、硝化細菌の放出する有機物質を利用することによって従属栄養細菌も増殖するおそれがある⁵⁾。配水管網内における微生物の増殖は、水道水の細菌学的安全性を損なうばかりでなく、微生物の代謝活動あるいは自己分解に伴う生産物が、新たに水道水に味や臭いをつける⁷⁾。

$\text{NH}_4^+\text{-N}$ は通常の急速砂ろ過システムでは十分に除去されないため、現在は不連続点塩素処理や生物処理によって対応している。不連続点塩素処理には、前述したようにトリハロメタンやカルキ臭の問題があるため、今後の浄水処理における $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 処理プロセスとしては、生物処理が主流を占めるものと思われる。近年導入が進みつつある高度浄水処理では、生物活性炭処理によって $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の除去が期待できる⁸⁾・⁹⁾、活性炭表面からの細菌類の剥離・漏出が懸念されている¹⁰⁾。

上述した $\text{NH}_4^+\text{-N}$ に関連する問題に加えて、クリ

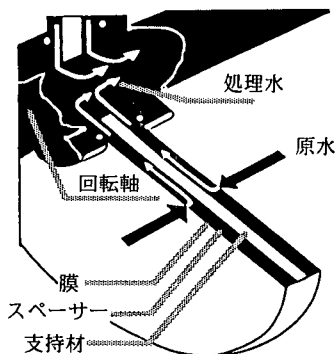


図-1 回転平膜構造図

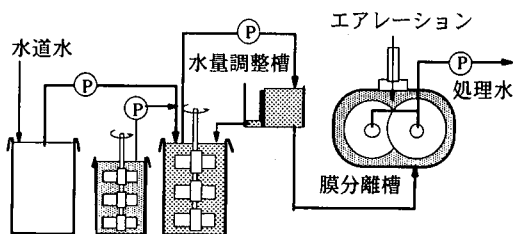


図-2 実験フロー

プトスポリジウム等、従来の消毒処理に対して耐性を有する病原微生物の水道原水への混入が問題となってきた¹¹⁾。クリプトスポリジウムについては、通常の砂ろ過では十分な制御が困難であると考えられているが¹⁰⁾、膜処理によって処理水中のクリプトスポリジウムを検出限界以下にすることが可能である¹²⁾。

このような背景から、筆者らは膜表面に硝化細菌を保持し、単一反応槽内において低濃度 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の酸化と同時に膜ろ過を行う膜処理プロセスを提案している。この膜処理プロセスでは、物質移動の促進等の効果によって処理水中の $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度を非常に低く保つことが可能であることを前報¹³⁾で明らかにした。

一般に膜処理の導入にあたって、最も大きな問題の一つとなるのは膜ろ過抵抗の上昇（膜透過流束の減少）であるが、このことは筆者らが提案する膜処理プロセスにおいても同様である。膜ろ過抵抗の上昇を防ぎ、効率的な運転を長期間に渡って維持するためには、膜ファウリングを引き起こす物質、膜ファウリング機構についての情報、理解が必要である。

本論文では、筆者らが提案する膜処理プロセスを

表-1 膜分離装置諸元

膜分離槽容積	10 L
膜ディスク直径	210 mm
総膜面積	0.3 m ²
膜材質	ポリスルホン
分画分子量	75000

表-2 基質構成比

NH_4Cl	1.0g
NaHCO_3	7.9g
K_2HPO_4	0.9g
$\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	1.3g
NaCl	0.9g

用いて、低濃度 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 処理を行う際に生じる膜ろ過抵抗について検討した結果を報告する。

2. 実験方法

実験には回転平膜モジュールを用いた。図-1に構造を示す¹⁴⁾。円板形の支持材の両面に膜を張り合わせ膜ディスクとし、中央部を軸に固定している。吸引により膜面で分離された水は、ディスク内を通り軸内に集水される。このモジュールは二軸で一つのモジュールを構成しており、膜ディスクと膜ディスクの間に、他軸の膜ディスクを噛み合わせた構造となっている。これらの軸を駆動部である電動機と連結させ、膜ディスクを回転させる構造である。

実験装置のフローを図-2に、膜分離装置の諸元を表-1に示す。水道水に塩化アンモニウム、無機炭素（炭酸水素ナトリウム）を主体とする基質を表-2に示すような割合で混合した原水を用いて実験を行った。したがって原水中にSSはほとんど含まれていない。槽内水位が膜分離槽内水位と常に等しくなっている水量調整槽を通して原水を膜分離槽内

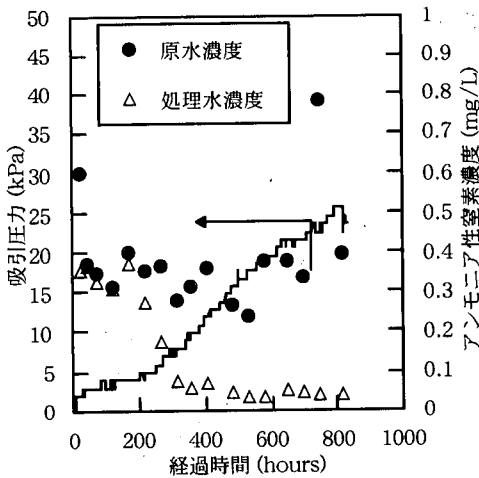


図-3 Run1における吸引圧力・アンモニア性窒素濃度の経時変化

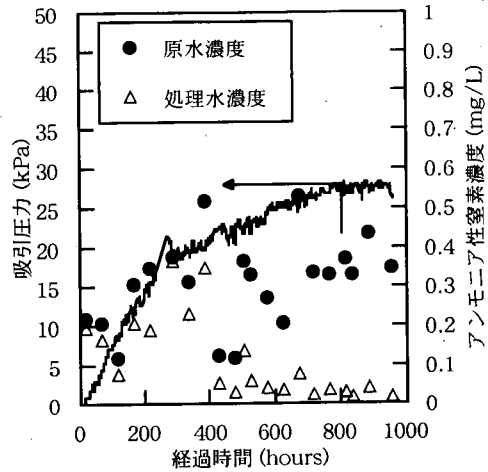


図-4 Run2における吸引圧力・アンモニア性窒素濃度の経時変化

に注入することにより、ろ過水量と全く同量の原水が膜分離槽に補充されるので、膜分離槽内からのオーバーフローは発生しない（全量ろ過）。膜分離槽内では常にエアレーションを行っていたので、槽内のDO濃度はほぼ飽和濃度に近いものとなった。水温、pHの調整は特に行っておらず、水温は14.2℃から28.8℃の範囲で、膜分離槽内のpHは7.1から7.9の範囲で変動した。膜透過流量、膜回転数は任意の値に設定が可能であるが、本実験では膜透過流量を0.8m³/m²/d、膜回転数を50rpmに固定した。

約1000～3000時間の連続実験を4回行った。全ての実験開始に先立ち、NH₄⁺-Nの酸化を行わせる微生物（詳しくは後述する）を膜分離槽内に投入した。全量ろ過を行っているため、微生物が膜分離槽から流出することはなく、膜ろ過開始後数時間で膜表面に付着した。

NH₄⁺-N濃度の測定にはインドフェノール青法¹⁵⁾を用いた。また、本研究では膜面に付着したケーキを回収し、ケーキ中のTS (Total Solid), VS (Volatile Solid), タンパク質, 糖の測定を行った。TSは110℃における乾燥重量、VSは600℃における乾燥重量を測定し求めた。タンパク質はLowry法¹⁶⁾、糖はフェノール硫酸法¹⁷⁾により測定した。VS測定後の試料を蛍光X線分析 (HORIBA MESA-500) することでケーキ中の無機元素組成を求めた。TOCはShimadzu TOC-5000を用いて測定した。

3. 実験結果

(1) 純粋培養細菌を用いた実験

初期投入微生物として、純粋培養細菌 (*Nitrosomonas europaea* IFO14298, *Nitrobacter winogradskyi* IFO14297) を用いて連続実験を行った。実験開始時の投入菌体量は、それぞれの菌について膜分離槽内の菌体濃度が10⁵ cells/mlのオーダーとなるようにした。菌体数はアクリジンオレンジ法¹⁸⁾で計測した。図-3に純粋培養細菌を用いた連続実験 (Run1) における吸引圧力とNH₄⁺-N濃度の経時変化を示す。本報で示す吸引圧力の値は20℃換算値である。連続運転期間中は一切の膜洗浄操作を行っていないが、約800時間経過後においても必要な吸引圧力の値は約20kPaにとどまった。無機基質に馴致させた活性汚泥を初期投入微生物とした実験¹³⁾と比較すると、吸引圧力の上昇はより一層ゆるやかなものとなった。無機基質を用いて馴致を行っても、活性汚泥中には硝化細菌以外の従属栄養細菌や有機物が含まれており、これらの成分が吸引圧力上昇の原因となると考えられる。NH₄⁺-Nの酸化についてみると、硝化の立ち上がりに300時間ほど必要としたが、以後は安定したNH₄⁺-Nの酸化が観察された。

(2) 馴致微生物を用いた実験

純粋培養細菌を初期投入微生物とすることで、活性汚泥を初期投入微生物とする場合に比べて、吸引圧力の上昇を抑制することが可能であるが、純粋培

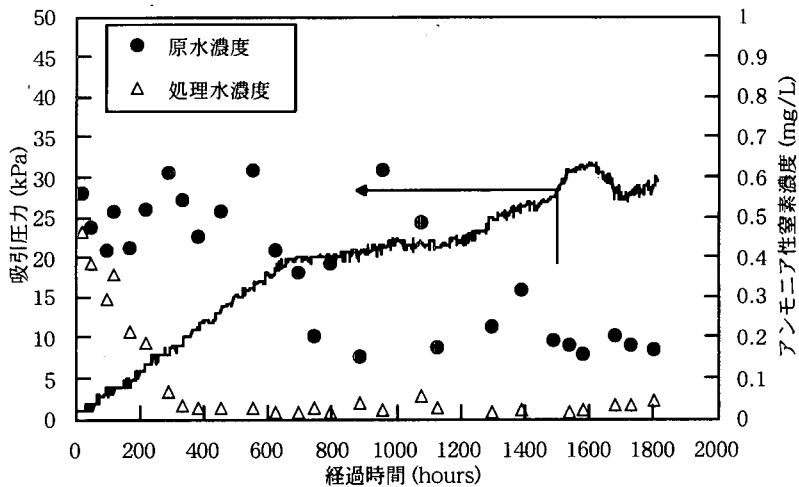


図-5 Run3における吸引圧力・アンモニア性窒素濃度の経時変化

養細菌の入手・管理は必ずしも容易ではない。また、純粋培養細菌は、活性汚泥のような混合系微生物群に比べると、水温などの生息環境に敏感であるため、純粋培養細菌を用いた運転では、安定した NH_4^+-N の酸化が起こらない場合がある¹⁹⁾。そこで、純粋培養細菌の使用以外の方法で、吸引圧力上昇を抑制できる方法を検討した。

まず、以前に筆者らが行った実験¹³⁾と同様に、下水処理場のエアレーションタンクから採取した活性汚泥を無機基質で馴養し、これを初期投入微生物として連続運転を行った(Run2)。実験開始時の膜分離槽内における活性汚泥濃度は、SS換算で 8mg/l であった。吸引圧力と NH_4^+-N 濃度の経時変化を図-4に示す。活性汚泥を用いた場合は、純粋培養細菌を用いた場合に比べて必要な吸引圧力が大きくなり、特に運転初期における吸引圧力上昇の速度が早くなった。

本実験では従属栄養細菌が利用できる基質の量が極めて少なかったことから、約900時間の連続運転で蓄積したケーキ内における微生物相は、硝化細菌を多量に含んだ、本実験条件に馴致したものとなっていたと考えてよい。したがって、Run2終了時の附着ケーキ内における従属栄養細菌の硝化細菌に対する相対的な量(従属栄養細菌量/硝化細菌量)は、Run2開始時に膜分離槽内に投入した活性汚泥に比較すると減少していたと思われる。このため、Run2で蓄積した附着ケーキを初期投入汚泥とすれば、吸引圧力の上昇を抑制できることが予想された。

Run2終了時に、平膜表面に附着したケーキの一

部を採取し、次の連続運転(Run3)における初期投入汚泥とした。投入濃度は、SS換算で膜分離槽内において 5mg/l とした。Run3における吸引圧力と NH_4^+-N 濃度の経時変化を図-5に示す。予想通り吸引圧力の上昇は緩やかで、Run1とほぼ同様の吸引圧力上昇となった。Run3では一切の膜洗浄を行うことなく、運転の継続が1800時間可能であった。

(3) 膜ろ過抵抗の評価

Run3の実験終了後、回転平膜の洗浄を行い、洗浄前後の吸引圧力差から、附着ケーキに起因する抵抗(R_c)と膜表面あるいは膜細孔内に不可逆的に結合した成分による抵抗(R_p)を評価した。まず、Run3終了後、膜分離槽内から膜ディスクを一枚ずつ取り出した。膜表面にはほぼ様々に茶褐色のケーキが附着していたが、水道水流水中においてスポンジを用いて軽く膜表面をこすることにより、簡単に附着ケーキをはがし取ることができた。6枚の膜ディスク全てについてこのような洗浄を行った後、再び膜ディスクを膜分離槽内に組み込んで膜ろ過運転を行うと、附着ケーキが除去された分だけ洗浄前に比べて吸引圧力の値が低くなる。ここで減少した吸引圧力から R_c を求めた。さらに、附着ケーキ除去後に残存するろ過抵抗から新膜時のろ過抵抗を減ずることで、 R_p を求めた。各抵抗値の算出には次式を用いた。

$$J = \frac{\Delta P}{\mu(R_c + R_p + R_m)}$$

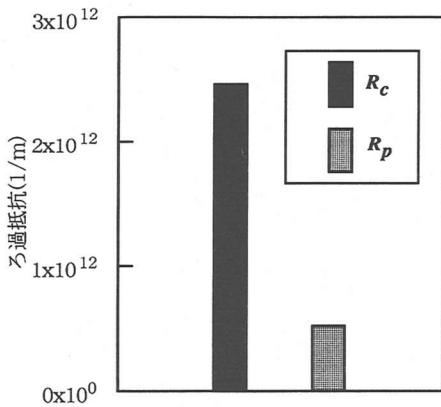


図-6 Run3終了時におけるろ過抵抗の分布

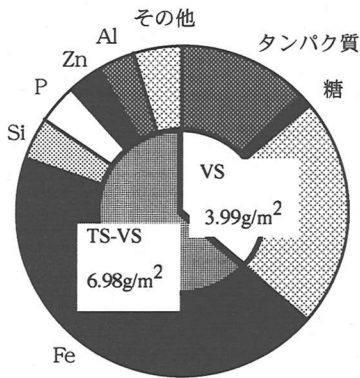


図-7 Run3終了時の付着ケーキ成分内訳

ここで、 J ：膜透過水フラックス ($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{d}$)、 ΔP ：膜間差圧 (Pa)、 μ ：水の動粘性係数 ($\text{kg}/\text{m}/\text{s}$)、 R_c ：膜面に付着したケーキに起因するろ過抵抗 (m^{-1})、 R_p ：膜表面あるいは膜細孔内に不可逆的に結合した成分による抵抗 (m^{-1})、 R_m ：膜自体の抵抗 (m^{-1})である。図-6にRun3における R_c と R_p を示す。図-6から明らかなように、Run3では R_c が卓越しているが、これは類似の実験で得られた結果とも一致している¹⁹⁾、²⁰⁾。膜面付着ケーキの成分を分析した結果を図-7に示す。無機物 (TS-VS) が全体の65%を占め、無機物中では鉄が7割強、以下ケイ素、リン、亜鉛、アルミニウムが続く。リン以外の成分は実験に用いた水道水に起因するものである。リンは硝化細菌の基質としてろ過原水に加えた K_2HPO_4 の一部が、膜面に蓄積した鉄に吸着したものと考えられる。有機物 (VS) 中

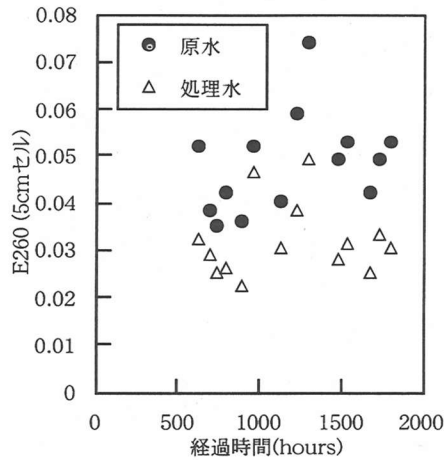


図-8 フミン質濃度経時変化 (Run3)

に占める微生物量 (ここではタンパク質を微生物量の指標として考えている) の割合は約3割、ケーキ全体中に占める微生物の割合はわずかに10%であった。

図-7において、タンパク質、糖以外の有機物としては水道水中に含まれるフミン質が考えられる。図-8にRun3中におけるフミン質濃度の経時変化を示す。ここではフミン質量を表す指標として波長260nmにおける吸光度 (5cmセル) を用いた。図-8から、原水に含まれるフミン質の30-40%が、本プロセスにより除去されていることが分かる。

R_p は次亜塩素酸ナトリウムによる洗浄でほぼ完全に消滅したことから、 R_p の原因物質は何らかの有機成分であると考えられる。

(4) 洗浄を伴う長期連続運転

前節までに、①硝化細菌以外の不要な微生物・有機物を可能な限り排除した微生物群の使用が、吸引圧力上昇の抑制には有効であること、②全体のろ過抵抗中の大半を付着ケーキに起因するもの (R_c) が占めること、③付着ケーキの構成成分の多くを微生物以外の水道水に由来する成分が占めていることを明らかにした。また、本実験で対象とするような低濃度 NH_4^+-N の酸化のために必要な微生物量は極めて少量でよいと考えられる。

これらのことから、実験条件に馴致した微生物を初期投入微生物として、膜面に蓄積した付着ケーキを適宜除去・排出しながら運転を行えば、長期間に渡って非常に低い吸引圧力で運転の継続が可能であ

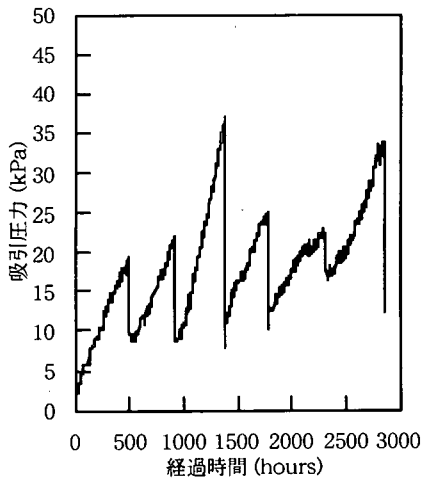


図-9 吸引圧力経時変化 (Run4)

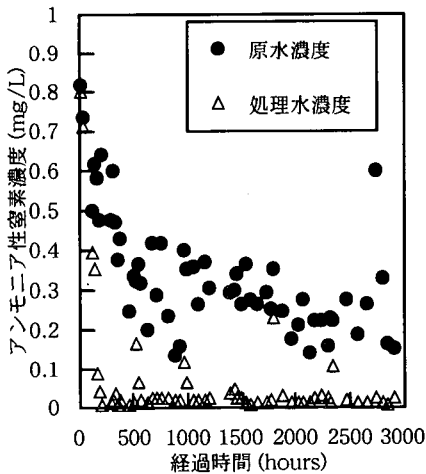


図-10 アンモニア性窒素濃度経時変化 (Run4)

ると考えた。そこで、約500時間に一度の頻度で膜面からのケーキ除去を行うこととし、長期連続運転 (Run4) を開始した。付着ケーキの除去は、連続運転時50rpmの膜回転数を400rpmに上昇させることで生じるせん断力によって行った。洗浄操作中は吸引ポンプを停止し、400rpmの回転数を15分間保持した。洗浄操作後、剥離したケーキを含む膜分離槽内の懸濁液を排出して運転を再開した。

Run4における吸引圧力の経時変化を図-9に示す。運転開始後500時間の吸引圧力の上昇をRun1, 2, 3と比較すると、Run4ではRun1, 3よりも圧力上昇がやや速くなったが、活性汚泥を用いたRun2よりは吸引圧力の上昇が抑制された。膜回転数を上昇させる洗浄によって、吸引圧力は約10kPaまで減少し、運転再開後再び緩やかに上昇し

表-3 洗浄直前の膜面微生物量

洗浄回数	膜面タンパク質量 (g/m ²)
1	0.75
2	0.66
3	1.07
4	0.82
5	0.44
6	0.99

た。運転操作上のミスから、2回目の洗浄時における懸濁液の排出が十分に行われなかったが、このことが2回目の洗浄後における吸引圧力の著しい上昇を招いたと考えられた。また、5回目の洗浄は他洗浄時に比べると洗浄の効果が小さく、洗浄後の吸引圧力は18kPaと高い値をとった。この理由として、5回目の洗浄中は、他洗浄時には閉じていた膜透過水バルブを開いたまま洗浄操作を行ったことが、何らかの関与をしていたのではないかと考えている。1~4回目の洗浄と同様に膜透過水バルブを閉じた状態で膜回転数を上昇させた6回目の洗浄では、吸引圧力は再び約10kPaまで減少した。この時点で約2900時間運転を継続していたが、吸引圧力は非常に低い値をとっており、さらに長期間の運転継続が可能であることが予想された。

Run4では500時間毎に付着ケーキの除去・排出を行ったが、付着ケーキの排出と同時に付着ケーキに含まれる硝化細菌をも排出してしまうので、膜分離槽内から過度に硝化細菌を排出してしまった場合にはNH₄⁺-N酸化能力の低下が懸念された。Run4におけるNH₄⁺-N濃度の経時変化を図-10に示す。Run4の連続運転開始後、約100時間経過時から良好なNH₄⁺-Nの酸化が認められた。洗浄に伴って一時的に処理水NH₄⁺-N濃度が上昇するが、40~50時間後には洗浄前と同等のNH₄⁺-Nの酸化が起こるようになった。洗浄後も僅かに膜面にケーキが残存しており、ケーキに含まれていた硝化細菌が運転再開後増殖したために、NH₄⁺-N酸化能力が回復したものと考えられる。

NH₄⁺-N酸化能力が回復した直後の膜面保持微生物量が、本実験での必要最小限の微生物量であるといえる。硝化細菌の比増殖速度を考慮すると剥離ケーキ排出後40~50時間で増殖した硝化細菌量は非常に少なかったはずである。6回目の洗浄直後に膜面

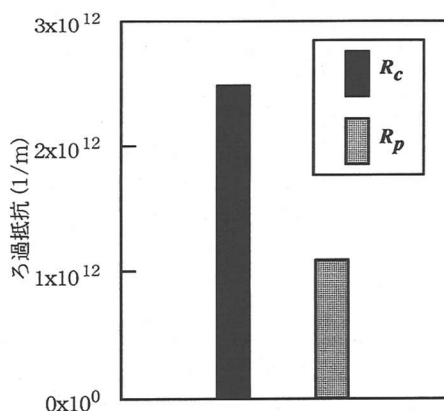


図-11 Run4終了時におけるろ過抵抗の分布

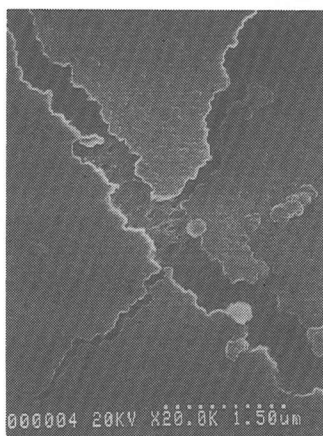


写真-1 電子顕微鏡による膜表面観察

に残存していた微生物量はタンパク質換算で $0.04\text{g}/\text{m}^2$ であった。硝化細菌の世代時間としては3~10日が報告されている²¹⁾。40~50時間という時間は硝化細菌の増殖に十分な時間ではないが、過小評価を避けるため、40~50時間で硝化細菌がほぼ増殖したと考え、本実験で必要最小限の単位膜面積当たりの微生物量を $0.1\text{g}/\text{m}^2$ と推測した。これに対し、洗浄直前における膜面微生物量を洗浄直後の剥離タンパク質量から推算したところ、表-3に示すようにほぼ1オーダー高い値となっていた。

6回目の洗浄終了後、前節で述べた実験同様にスポンジによる膜面の手洗浄を行い、 R_c と R_p を評価した。図-11に結果を示す。これまでの実験と同様に R_c が卓越しているが、Run4では運転時間が約2900時間と長くなったためか、 R_p の値が他の実験に比べて大きいものとなった。

表-4 有機成分抽出結果

	Run4	新膜
TOC (mg/L)	17.6	15.9
E260 (1cm セル)	0.316	0.108
タンパク質 (mg/L)	ND	—*
糖 (mg/L)	7.3	ND
抽出に用いた膜面積 (cm ²)	156	51.9
抽出液量 (ml)	90	30

*分析を行わなかった

前節で述べたように、本実験では R_p は何らかの有機成分によって生じていると考えられる。スポンジで洗浄後の平膜表面を走査型電子顕微鏡で観察したところ、膜表面にスポンジ洗浄で除去出来なかった堆積物の存在が認められ、膜細孔は堆積物に覆われて見えなくなっていた。電子顕微鏡観察と同時にX線元素分析を行った。今回行ったX線元素分析ではNaよりも原子量の大きな元素の分析が可能であったが、堆積物中からはNaよりも原子量の大きな元素は検出されなかった。このことから、堆積物が有機物であることが推測された。

電子顕微鏡観察の最中、電子線照射によって堆積物に亀裂が生じ、間隙から膜細孔を観察することが出来た(写真-1)。写真-1より、膜細孔内での目詰まりはほとんど生じていないことが分かる。これらのことから、 R_p は膜細孔内の目詰まりに起因するものではなく、膜表面を覆って、簡易な物理洗浄では剥離しない有機堆積物によって生じていた可能性が示唆される。

R_p の原因となっている有機成分についての情報を得るため、スポンジで洗浄後の平膜から有機成分を抽出し、簡易な分析を試みた。有機成分の抽出はpH12のNaOH溶液にカッターナイフで切り取った平膜を室温で24時間浸漬させることで行った。抽出液を $0.45\ \mu\text{m}$ のメンブランフィルター (PTFE製) でろ過し、TOC、波長260nmの吸光度 (E260)、タンパク質、糖について分析を行った。ブランク試験として行った新品膜の抽出試験結果も合わせて表-4に示す。TOCについては、Run4で用いた膜と新品膜に大きな差が見られなかった。新品膜からもTOC成分の溶出が認められたが、これは膜支持体の加水分解の結果であると考えられる。フミン質

(E260) , 糖が新品膜と比較すると多く溶出したことから、これらの成分が R_p 形成に大きな役割を果たしていたことが分かる。

4. まとめ

本研究では、回転平膜の表面に硝化細菌を保持しながら膜ろ過を行う膜処理プロセスを用いて、低濃度 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 処理を行った際に生じる膜ろ過抵抗について検討した。本研究により得られた成果を要約すると以下の通りである。

- 1) 浄水処理で対象となるような低濃度 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の処理を行う場合、ろ過抵抗の大きさは運転開始時に膜面に付着させる微生物群の特性に強く依存する。すなわち、従属栄養細菌、有機物が多く含まれている微生物群を用いるとろ過抵抗が大きくなる。純粋培養の硝化細菌を用いることでろ過抵抗を大きく削減できるが、本プロセスの運転条件に馴致した微生物群を用いることで、純粋培養細菌を用いる場合と同等のろ過抵抗削減効果を得られる。
- 2) 本プロセスにおけるろ過抵抗は付着ケーキによるもの(R_c)が大部分を占める。馴致微生物を用いた実験では、付着ケーキの大部分が鉄とフミン質であり、微生物量は付着ケーキ全体の10%を占めるのに過ぎなかった。本実験のような低濃度 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 処理においては微生物はろ過抵抗の形成に大きな寄与をしていないとも考えられる。しかし、微生物への鉄、フミン質の吸着が報告されていることから^{22), 23)}、たとえ少量であっても微生物が鉄、フミン質を吸着することで付着ケーキ量を増加させ、結果として R_c の値を大きくしているという可能性もある。今後は、微生物・フミン質・鉄のそれぞれがどの程度 R_c に寄与しているのか、また R_c の形成過程における微生物・フミン質・鉄の相互関係についてより詳細な検討を加える必要がある。
- 3) 500時間に一度の物理洗浄を繰り返して運転を行い、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の酸化能力を維持しながら長期に渡って非常に低い吸引圧力下で連続運転が可能であることを確認した。今回の実験では、低濃度 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の処理に必要な量以上の微生物を膜面に保持していたと考えられ、さらに低い吸引圧力下における運転の可能性も示唆された。
- 4) ケーキ抵抗以外の抵抗(R_p)はフミン質あるいは糖類と思われる有機物によって引き起こされていた。

謝辞：本研究は科学技術振興事業団の戦略的基礎研究推進事業（環境低負荷型の社会システム）、河川整備基金の助成を受けて行われた。

参考文献

- 1) 厚生省水道環境部水道整備課，日本水道協会水道統計編纂専門委員会：水道統計の経年分析，水道協会雑誌，vol. 66, No. 8, pp. 37-75, 1997.
- 2) 丹保憲仁：新体系土木工学88上水道，p. 276，技報堂出版，1980.
- 3) 鍋田好雄，西川真人：カルキ臭の原因物質と低減化，水道協会雑誌，vol. 66, No. 4, pp. 16-23, 1997.
- 4) Schippers, J. C. and Kruijthof, J. C.: Innovations in surface water treatment in the Netherlands, *Proceedings of IWSA Specialized Conference on Advanced Treatment and Integrated Water System Management into the 21st Century*, vol. 1, pp. 18-23, 1995.
- 5) Rittman, B. E. and Brunner, C. W.: The non-steady-state biofilm process for advanced organic removal, *Jour. WPCF*, vol. 56, pp. 874-880, 1984.
- 6) Wilczac, A., Jacangelo, J. G., Marcinko, J. P., Odell, L. H., Kirmeyer, G. J. and Wolfe, R. L.: Occurrence of nitrification in chloraminated distribution systems, *Jour. AWWA*, vol. 88, No. 7, pp. 74-85, 1996.
- 7) Allen, M. J., Taylor, R. H. and Geldreich, E. E.: The Occurrence of microorganisms in water main encrustations, *Jour. AWWA*, vol. 72, vol. 11, pp. 614-625, 1980.
- 8) 海賀信好，石川勝廣，西島 衛，鈴木静夫，眞柄泰基：オゾンと生物活性炭による高度浄水処理プラント実験，水道協会雑誌，vol. 60, No. 6, pp. 2-11, 1991.
- 9) 笠原伸介，相澤 拓，渡辺義公，小澤源三，岡部聡：木質系及び石炭系粒状活性炭を用いたオゾン・生物活性炭処理，水道協会雑誌，vol. 66, No. 12, pp. 20-29, 1997.
- 10) Gordon A. McFeter編（金子光美監訳）：飲料水の微生物学，技報堂出版，1992.
- 11) 例えば，眞柄泰基：クリプトスポリジウムの制御と管理を考える，第5回衛生工学シンポジウム講演集，pp. 305-308, 1997.
- 12) Jacangelo, J. G., Adham, S. S. and Lainé, J.-M.: Mechanism of cryptosporidium, giardia and MS2 virus removal by MF and UF, *Jour. AWWA*, vol. 87, No. 9, pp. 107-121, 1995.
- 13) 木村克輝，渡辺義公，大熊那夫紀：回転平膜に付着した生物膜による低濃度アンモニア性窒素の硝化特性，土木学会論文集 No. 552/VII-1, pp. 43-52, 1997.
- 14) Ohkuma, N., Shinoda, T., Aoi, T., Okaniwa, Y. and Magara, Y.: Performance of rotary disk modules in a collected human excreta treatment plant, *Water Science and Technology*, vol. 30, No. 4, pp. 141-149, 1994.

- 15) 日本分析化学学会北海道支部編：水の分析-第3版-，pp. 210-213，化学同人，1981.
- 16) Lowry, O. H., Rosebrough, N. J., Farr, A. L. and Randall, R. J.: Protein measurement with the Folin phenol reagent, *J. biol. Chem.*, vol. 193, pp. 265-275, 1951.
- 17) Dubois, M., Gilles, K. A., Hamilton, J. K., Rebers, P. A., and Smith, F.: Colorimetric method for determination of sugars and related substances, *Analyt. Chem.*, vol. 28, pp. 350-356, 1956.
- 18) 土壤微生物学研究会編：土壤微生物実験法，養賢堂，1992.
- 19) 木村克輝，渡辺義公，大熊那夫紀：回転平膜表面に付着した生物膜のろ過抵抗，土木学会第52回年次学術講演会講演概要集第7部，pp.370-371，1997.
- 20) Kimura, K., Watanabe, Y. and Ohkuma, N.: Filtration resistance induced by ammonia oxidizers accumulating on the rotating membrane disk, *Water Science and Technology*, in press.
- 21) Rehn, H. J. and Reed, G.: *Biotechnology*, vol. 8, VCH Publishers, p.69, 1986.
- 22) Carlson, G. and Silverstein, J.: Effect of ozonation on sorption of natural organic matter by biofilm, *Wat. Res.*, vol. 31, No. 10, pp. 2467-2478, 1997.
- 23) Gu, B., Schmitt, J., Chen, Z., Liang, L. and McCathy, J. F.: Adsorption and desorption of natural organic matter on iron oxide: mechanisms and models, *Environ. Sci. Technol.*, vol. 28, No. 1, pp. 38-46, 1994.

(1998. 2. 2 受付)

A STUDY ON FILTRATION RESISTANCE IN THE MEMBRANE PROCESS WHERE AMMONIA OXIDIZERS ARE FIXED ON THE MEMBRANE SURFACE

Katsuki KIMURA, Yoshimasa WATANABE and Naoki OHKUMA

The authors have developed a novel membrane process in which ammonia oxidizers are fixed on the membrane disk. In this study, the characteristics of the membrane filtration resistance was investigated. The results derived from this study were summarized as follows: (1) The magnitude of the filtration resistance was strongly affected by the initial inoculation. (2) The filtration resistance due to the accumulated cake was found to be dominant. (3) Increasing the disk rotational speed was found to be efficient for removing cake. About 3000 hours of the operation could be continued by only implementing this simple cleaning method every 500 hours. (4) Filtration resistance excluding the cake resistance seemed to be caused by humic substances and extracellular polymeric substance produced by biomass.