戦略的創造研究推進事業 CREST 研究領域「持続可能な水利用を実現する革新的な 技術とシステム」 研究課題「地域水資源利用システムを構築するた めの Integrated Intelligent Satellite System(IISS)の適用」

# 研究終了報告書

研究期間 平成21年11月~平成27年3月

研究代表者:中尾真一 (工学院大学 工学部 環境エネルギー化学科、教授)

- §1. 研究実施の概要
  - 1. 実施概要
    - 2. 顕著な成果
    - (1)優れた基礎研究としての成果
    - (2)科学技術イノベーションに大きく寄与する成果
- §2. 研究実施体制
  - 1. 研究チームの体制について
  - 2. 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について
- §3. 研究実施内容及び成果
  - 1. MBR+NF/RO システムの検討【研究項目1】
  - 2. MBR の膜洗浄技術の検討【研究項目2】
  - 3. 処理水の安全性評価【研究項目3】
  - 4. 運転支援技術の確立【研究項目4】
  - 5. 自然エネルギーの活用および蓄電技術との統合化【研究項目5】
  - 6. IISS の構築および実証【研究項目6】
  - 7. MBRにおけるファウリング因子解析と膜面洗浄散気の効率化【研究項目7】
- §4. 成果発表等
  - 1. 原著論文発表
  - 2. その他の著作物(総説、書籍など)
  - 3. 国際学会発表及び主要な国内学会発表
  - (1)招待講演
  - (2)口頭発表
  - (3)ポスター発表
  - 4. 知財出願
  - (1)国内出願
  - (2)海外出願
  - (3) プログラムの著作物
  - (4) データベースの著作物
  - 5. 受賞·報道等
  - (1)受賞
  - (2)マスコミ(新聞・TV等)報道
  - (3)その他
  - 6. 成果展開事例
  - (1)実用化に向けての展開
  - (2)社会還元的な展開活動
  - (3)他分野への波及効果
- §5.研究期間中の活動
  - 1. 主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動
- §6. 最後に

## §1. 研究実施の概要

#### 1. 実施概要

当グループは、世界中で顕在化する水問題を解決するためには、地域規模で生活排水を適切 に処理し、かつ処理水を有効活用(①水不足対策のために生活用水として活用 ②地球温暖化対 策のために河川流量維持水や親水利用として活用)することが、大きな効力を発揮すると考えた。 そこで、新規開発した低ファウリング膜を組み込み複数の膜技術を統合した革新的な水処理シス テムを開発して地域内に分散配置し、処理水を有効活用しやすい環境を作るだけでなく、これに 成熟度の高い自然エネルギー活用技術や、個々の施設を有機的につなぐ情報管理技術を融合し、 全く新しい独創的な地域水資源利用システム「Integrated Intelligent Satellite System(IISS)=水・エ ネルギー・情報を融合したサテライトシステム」の構築を目的としている。

IISS の中核をなす膜による水処理技術では、膜のファウリングが最大の障害となっている。本研究では、従来とは全く異なる水の分子レベルの構造に着目した分子動力学シミュレーションの活用による研究と、実験的な研究の連携によって新規な低ファウリング RO/NF 膜の開発を行ってきた。また、RO/NF 膜装置の前段に備えられ RO/NF 膜装置に供給水を提供するMBR (膜分離活性汚泥法、Membrane Bio-reactor)についても膜ファウリング抑制は重要な課題であり、本グループでは電場を利用した新規ファウリング制御技術を開発し、革新的な水処理システムを構築中である。また、2014 年度からは、担体投入型の平膜方式 MBR の洗浄方法についても新規課題に加え、更なる省エネ化も検討している。これにより、地域規模で生活排水の処理レベルを向上し環境汚染を改善するだけでなく、目的に合った安全安心な再利用水(水不足対策のために生活用水として活用/地球温暖化対策のために河川維持水や親水利用として活用)を供給することを目的としている。また、不安定電源として敬遠されがちな自然エネルギーを有効に利用できる手法についても検討を行った。

また、国内の要素技術検討の成果(数m<sup>3</sup>/日のフィールド試験含む)を集約してIISS 構築の実証 の為、中国・四川でIISS の実証試験を実施した。水資源確保の緊急性に乏しい国内ではなく、水 資源の確保が急務である地域で実証試験を行うことにより、実社会への適用性を強く意識し、現 地の状況と向き合うことで IISS の「実用性」「柔軟性」を高める狙いがある。中国の当該地域は近年 の発展に伴い水需要が伸びている地域の一つであり、四川省の中心である成都周辺地域では水 資源確保が課題となっている。そのことから、本研究対象である MBR+NF/RO を用いた小規模分 散システムのモデル実験対象地域として適当であると考え、成都地域を主たる実証試験先に選定 した。さらに、IISS が、本研究期間終了後直ちに中国で事業化が可能となるように、中国での本シ ステムの適用可能性について調査を行った。

IISSの中核技術となる低ファウリング膜の研究開発に関しては、カルボベタイン系ポリマーおよび ポリ2メトキシエチルアクリレートによる膜面修飾を実施し、タンパクに対し極めて優れた低ファウリン グ膜を開発することに成功した。MBR+NF/ROの中国実証においては、日本国内と異なり高 MLSS濃度でも粘度が低く該濃度20000mg/L近い条件で、ろ過圧上昇は低く十分な生物処理も 可能な結果を得た。膜運転支援モデルについては、ファウリングによるろ過圧上昇予測モデル構 築のためのデータを文献および実際のMBR装置から収集し、重要なパラメータの選出およびモデ ルを構築し予測を可能とした。オゾンマイクロバブル装置による高機能化検討では、RO濃縮水と MBR余剰汚泥の処理性能を評価し、中国放流水一級B水質基準を満足させる条件で約75%の汚 泥削減率を達成し、中国サイトでの実証運転を開始した。また、水運用計画最適化ツールのプロト タイプを作成し、試計算により機能確認を完了した。処理水の安全性評価については、四川大学 に設置されている実証機で処理した水を用いてヒト正常細胞による長期継代培養試験を行ったと ころ、有害性は検出されなかった。最終年度は、これら一連の成果を有機的に総合することで、 IISSの運用方法も含めて設計諸元化を行った。

#### 2. 顕著な成果

(1)優れた基礎研究としての成果

本 IISS を構築するにあたり、個別要素技術として研究開発を進めた中で、下記の顕著な成果を 得ることができた。

① NF/RO 膜ファウリング防止技術

プラズマグラフト重合法を用いて、ポリ2メトキシエチルアクリレート(MEA)ポリマーを精密ろ過膜の表面、および細孔壁に固定した低ファウリング膜を開発した。グラフトポリマー量はプラズマグラフト反応条件により制御することができ、一定のグラフト量を有する MEA 修飾膜は、1000ppmのBSA 水溶液をフィードとしても、全くファウリングしないことを示した。またダイナミック膜法を用いて、カルボキシベタインと n-ブチルメタクリレートの共重合ポリマーにより膜面を修飾した低ファウリング 腹を開発した。この膜は 1000ppmのBSA 水溶液やミオグロビン水溶液をフィードとしても、全くファウリングしないことを示した。

② 計算化学手法によるファウリング防止膜の素材ポリマーおよび表面構造設計

分離膜素材の耐ファウリング性を評価するための、新規な分子シミュレーション手法を提案した。 提案されたシミュレーション手法を用いて、両性イオン性ポリマーがタンパク質を吸着せず、優れた 耐ファウリング性を有していることを理論シミュレーションで初めて示した。本手法は、膜素材候補と タンパク質との相互作用を、比較的簡便な分子シミュレーション手法で評価できることを明らかにし た世界初の研究成果である。

③ 膜運転支援モデルの構築

MBRを定量ろ過運転する際に TMP(Trans Membrane Pressure、膜間差圧)の上昇を長期的に 予測するモデルを開発した。また長期ろ過後に膜差圧が急上昇する TMP jump という現象が起きる 時間を予測するためプロセスの知見から物理モデルを導入し、その後 TMP jump するかどうかの判 定を行う統計モデルを構築した。さらに TMP jump しにくい MBR 運転条件を検討するため、モデリ ングの結果を二次元に写像する手法を提案した。本研究に関連する論文から収集したデータおよ び実際の MBR の運転データを用いた解析により、本手法により精度良く TMP の上昇を予測できる こと、予測精度の高い TMP jump 予測モデルが構築できること、および結果を可視化することで妥 当な結果が得られることを確認した。

#### (2)科学技術イノベーションに大きく寄与する成果

NF/RO 膜ファウリング防止技術

ファウリングは膜を用いた水利用システム(浄水、下排水処理、海水淡水化など)において、極め て深刻な課題であったが、ファウリング現象の本質的理解の欠除のため、試行錯誤的・対症療法 的なファウリング抑制を行っているのが現状と言える。本研究において開発した膜は、ポリマー界 面の水和構造に着目するという観点から、ファウリング現象のミクロな描像を捉え、有機物のファウリ ングを徹底的に防止するものであり、下排水処理にとどまらず、広く造水ビジネスへの展開が期待 される。

②計算化学手法によるファウリング防止膜の素材ポリマーおよび表面構造設計

本研究の実施によって、これまで経験的手法が主であった水処理膜のファウリング現象を、分子 シミュレーションで理論的に取り扱う目処がついた。また水処理膜表面での水の構造解析シミュレ ーションにより耐ファウリング性の分子レベルでの発現機構について知見が得られたのは大きな成 果である。今後は分子シミュレーションを利用することで、処理水に最適化された耐ファウリング膜 を効率よく開発できることが予想され開発時間と費用に関する負担軽減は水処理膜事業の国際的 な競争力強化に結びつく

③膜運転支援モデルの構築

提案したモデルを使用して膜差圧を長期的に精度良く予測することで、膜の薬品洗浄を実施す る適切な時期を予測でき各 MBR における薬品洗浄のスケジューリングが可能となる。さらに膜差圧 予測モデルを活用することで、様々な種類の MBR および MBR 内の水質におけるファウリングの起 こりにくい運転条件の検討ができる。本成果で得られた技術により MBR の安定的かつ効率的な管 理が達成され MBR の維持管理コストが著しく低減される。

# §2. 研究実施体制

# 1. 研究チームの体制について

(1)「中尾」グループ

研る	とおけ	□君	-
"��! フ	山沙ハ	1411	

氏名	所属	役職	参加時期
中尾 真一	工学院大学	教授	H21.11~H27.3
酒井 裕司	工学院大学	講師	H21.11~H25.3
		准教授	H25.4~H27.3
赤松 憲樹	工学院大学	助教	H21.11~H25.3
		准教授	H25.4~H27.3
高羽 洋充	工学院大学	教授	H26.4~H27.3
藤森 ちえみ	工学院大学	院生(修士)	H22.4~H24.3
藤本 正巳	工学院大学	院生(修士)	H22.4~H25.3
三森 啓太	工学院大学	学部生	H22.4~H23.3
		→研究補助員	H23.4~H24.3
吉田 征央	工学院大学	学部生	H22.4~H23.3
須崎 貴宏	工学院大学	学部生	H22.4~H23.3
韓 芳	(派遣)	研究員	H22.4~H23.3
高瀬 慎	工学院大学	研究補助員	H22.4~H23.3
		→院生(修士)	H23.4~H25.3
奥山 みゆき	(派遣)	研究補助員	H23.4~H24.3
今野 浩徳	工学院大学	学部生	H23.4~H24.3
平戸 将道	工学院大学	学部生	H23.4~H24.3
米村 恵子	(派遣)	研究補助員	H24.4~H27.3
石川 聖人	工学院大学	院生(修士)	H24.4~H26.3
菅野 友樹	工学院大学	院生(修士)	H24.4~H24.8
成瀬 元彦	工学院大学	学部生	H24.4~H25.3
千葉 隼人	工学院大学	学部生	H24.4~H25.3
綿引 駿介	工学院大学	学部生	H24.4~H25.3
東元 優	工学院大学	研究補助員	H24.4~H26.3
原 明子	(派遣)	研究補助員	H24.5~H26.12
新井 利基	工学院大学	院生(修士)	H25.4~H27.3
飯村 隆浩	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3
斉藤 里望	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3
白石 悠真	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3
柳本 俊二	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3
藤本 憲一	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3
岩崎 裕樹	工学院大学	学部生	H26.4~H27.3
大石 響子	工学院大学	学部生	H26.4~H27.3
諸星 優	工学院大学	学部生	H26.4~H27.3
和田 拓真	工学院大学	学部生	H26.4~H27.3

# 研究項目

・NF/RO 膜ファウリング防止技術の検討

・電場利用型 MBR 膜洗浄技術の検討

IISS の構築および実証

(2)「大熊」グループ:(株)日立プラントテクノロジーグループH25年度解約研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
大熊 那夫紀	㈱日立プラントテクノロシー	副事業部長	H21.11~H25.3
能登 一彦	㈱日立プラントテクノロシー	課長	H22.4~H25.3
大川 雄介	㈱日立プラントテクノロシー	技師	H21.11~H25.3
関根 康記	㈱日立プラントテクノロシー	技師	H21.11~H25.3
花下 裕	㈱日立プラントテクノロシー	技師	H21.11~H25.3
安宅 徹	㈱日立プラントテクノロシー	技師	H21.11~H25.3
山本 智由	㈱日立プラントテクノロシー	技師	H21.11~H25.3
大西 真人	㈱日立プラントテクノロシー	部長	H21.11~H25.3
武村 清和	(株)日立プラントテクノロシー	主任研究員	H21.11~H25.3
森田 穣	(株)日立プラントテクノロシー	主任研究員	H22.4~H25.3
屋代 裕一	㈱日立プラントテクノロシー	部員	H21.11~H25.3
小高 夏来	(株)日立プラントテクノロシー	部員	H21.11~H24.3
堀内 敏彦	(株)日立プラントテクノロシー	統括部長	H22.4~H23.3
加藤 宗	(株)日立プラントテクノロシー	主任研究員	H21.11~H22.3
伊藤 力	(株)日立プラントテクノロシー	主任研究員	H21.11~H22.3
安藝 貴史	(株)日立プラントテクノロシー	研究員	H21.11~H22.3
渡部 雅智	(株)日立プラントテクノロシー	研究員	H23.4~H25.3
後藤 正広	(株)日立プラントテクノロシー	主任研究員	H23.4~H25.3
花本 陽介	㈱日立プラントテクノロシー	部員	H23.4~H25.3
宮前 祥子	㈱日立プラントテクノロシー	部員	H24.4~H25.3
安部 直樹	㈱日立プラントテクノロシー	課長	H24.4~H25.3
高森 毅	㈱日立プラントテクノロシー	課長	H24.4~H25.3

研究項目

- ・MBR+NF/RO システムの検討
- ・簡易 DNA チップを用いた細菌およびウイルスの評価
- ・無線を用いた遠隔監視技術
- ・本システムに適した自然エネルギーおよび蓄電技術の選定
- IISSの構築および実証

(3)「圓佛」グループ:(株)日立製作所グループH25年度変更契約前

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
圓佛 伊智朗	㈱日立製作所	部長	H21.11~H25.3
陰山 晃治	㈱日立製作所	主任研究員	H21.11~H25.3
日高 政隆	㈱日立製作所	主任研究員	H21.11~H25.3
五十嵐 由美子	㈱日立製作所	主任研究員	H21.11~H25.3
西村 彩子	㈱日立製作所	研究員	H21.11~H25.3

### 研究項目

## ·高機能化検討

- ・培養細胞を用いた処理水の安全性評価
- ・水運用最適化システムの検討
- IISSの構築および実証

(4)「中村」グループ:(株)日立製作所グループH25年度変更契約後

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
中村 裕紀	㈱日立製作所	主管技師	H25.4~H27.3
圓佛 伊智朗	㈱日立製作所	主管研究員	H25.4~H27.3
陰山 晃治	㈱日立製作所	主任研究員	H25.4~H27.3
日高 政隆	㈱日立製作所	主任研究員	H25.4~H27.3
五十嵐 由美子	㈱日立製作所	主任研究員	H25.4~H27.3
西村 彩子	㈱日立製作所	研究員	H25.4~H27.3
大熊 那夫紀	㈱日立製作所	部員	H25.4~H27.3
関根 康記	㈱日立製作所	技師	H25.4~H27.3
大西 真人	㈱日立製作所	部長	H25.4~H27.3
森田 穣	㈱日立製作所	主任研究員	H25.4~H27.3
屋代 裕一	㈱日立製作所	部員	H25.4~H27.3
渡部 雅智	㈱日立製作所	研究員	H25.4~H27.3
後藤 正広	㈱日立製作所	主管技師	H25.4~H27.3
花本 陽介	㈱日立製作所	部員	H25.4~H27.3
高森 毅	㈱日立製作所	課長	H25.4~H27.3
向 志鋒	㈱日立製作所	課長	H25.4~H27.3
和田 圭史	㈱日立製作所	部員	H25.4~H27.3

研究項目

- ・MBR+NF/RO システムの検討
- ·高機能化検討
- ・培養細胞を用いた処理水の安全性評価
- ・簡易 DNA チップを用いた細菌およびウイルスの評価
- ・水運用最適化システムの検討
- ・無線を用いた遠隔監視技術
- ・本システムに適した自然エネルギーおよび蓄電技術の選定
- IISSの構築および実証

(5)「船津」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
船津 公人	東京大学	教授	H21.11~H27.3
荒川 正幹	東京大学	助教	H21.11~H22.9
金子 弘昌	東京大学	院生(博士)	H21.11~H23.9
金子 弘昌	東京大学	助教	H23.10~H27.3
八城 祥子	(派遣)	研究補助員	H22.8~H23.3
内野 智功	(派遣)	研究補助員	H24.4~H24.7
伊藤 圭司	(派遣)	研究補助員	H24.12~H25.3
成 敬模	東京大学	院生(修士)	H23.4~H25.3
大石 隼人	東京大学	院生(修士)	H25.4~H27.3
西村 拓郎	東京大学	技術補佐員	H25.12~H26.9

研究項目

・膜運転支援モデルの構築

#### IISSの構築および実証

# (6)「高羽」グループ:東北大在籍時

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
高羽 洋充	東北大学	准教授	H21.11~H25.3
南雲 亮	東北大学	助教	H22.4~H24.2
佐藤 絵美	東北大学	研究補助員	H22.4~H25.3
斉 小峰	東北大学	研究補助員	H24.7~H25.1
小石 真人	東北大学	院生(修士)	H24.4~H25.1

研究項目

・計算化学手法によるファウリング防止膜の素材ポリマーおよび表面構造解析

# (7)「高羽」グループ:工学院大在籍時

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
高羽 洋充	工学院大学	准教授	H25.4~H26.3
飯島 俊介	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3
松井 良太	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3
高橋 佑輔	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3
早房 佑樹	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3
山本 航	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3
清水 暢章	工学院大学	学部生	H25.4~H26.3

研究項目

・計算化学手法によるファウリング防止膜の素材ポリマーおよび表面構造解析

(8)「陳」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
陳 文清	四川大学	教授	H23.4~H27.3
薛兰波	四川大学	研究員	H23.4~H26.3
张少磊	四川大学	学生	H23.4~H26.3
王志强	四川大学	学生	H23.4~H26.3
李天然	四川大学	院生(修士)	H26.4~H27.3
蒲维肖	四川大学	院生(修士)	H26.4~H27.3
侯翔	四川大学	院生(修士)	H26.4~H27.3

研究項目

IISSの構築および実証

(9)「木村」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
木村 克輝	北海道大学	准教授	H26.4~H27.3
栗田 宗大	北海道大学	院生(博士)	H26.4~H27.3
安彦 健斗	北海道大学	院生(修士)	H26.4~H27.3

大木 康充	北海道大学	院生(修士)	H26.4~H27.3
厚朴 大祐	北海道大学	院生(修士)	H26.4~H27.3
塩野 孝人	北海道大学	院生(修士)	H26.4~H27.3
安藤 菜子	北海道大学	院生(修士)	H26.4~H27.3
岡崎 紗彩	北海道大学	院生(修士)	H26.4~H27.3
山口 大輝	北海道大学	院生(修士)	H26.4~H27.3

研究項目

・MBR+NF/RO システムの検討

IISSの構築および実証

#### 2. 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

2012年1月12日の中尾チームによる IISS に関する公開ワークショップ、2014年1月24日に主催した中尾一都留チームによる合同シンポジウムにおいて、研究成果報告をすると同時に参加者との意見交換を行うなど、国内研究者のネットワーク形成を進めている。また、合同シンポジウムでは、招待講演を行った Tsinghua University の Prof. Xia HUANG、Seoul National University の Prof. Chung-Hak LEE との意見交換を通じ、国外研究者とのネットワーク形成に取り組んだ。本シンポジウムの意見交換により、中尾チームの東大グループ所属の金子助教が、Prof. Chung-Hak LEE の招聘により、同年2月12日に韓国で開かれた Prof. Chung-Hak LEE 主催のシンポジウムで下記講演を行い、国外研究者とのネットワーク形成に努めた。

Kaneko, H. and Funatsu, K., Prediction models of transmembrane pressure (TMP) and timing of TMP jumps for efficient fouling control in distributed MBR systems, MBR for the Next Generation and Waste-to-Energy Conversion, Korea, February 12 2014.

2013 年 6 月 12 日には、仙台で行われた CREST 横断ミーティングに中尾チームからも出席し、 当該領域内外の安全性評価の分野における関係者と広く意見交換を行うことができた。

また、同年10月22日に京都大学で開かれた CREST 横断ミーティング「病原微生物と持続可能 な水利用」において、日立製作所グループから二名が下記2件の招待講演者として参加し、処理 水安全性の評価に関し、国内の研究者等と広く意見と情報交換をすることができた。

1. 大熊那夫紀、「IISS のキーテクとなる膜による環境リスク低減」、CREST 横断ミーティング「病原 微生物と持続可能な水利用」、京都大学吉田キャンパス百周年時計台記念館、2013 年 10 月 22 日

2. 西村彩子、 五十嵐由美子、「ヒト正常細胞による水の慢性毒性評価」、CREST 横断ミーティン グ「病原微生物と持続可能な水利用」、京都大学吉田キャンパス百周年時計台記念館、2013年10 月 22 日

## §3. 研究実施内容及び成果

当グループは、地域水資源利用システム「Integrated Intelligent Satellite System (IISS)」を構築す るにあたり、【研究項目 1】MBR+NF/RO システムの検討、【研究項目 2】MBR の膜洗浄技術の検 討、【研究項目 3】処理水の安全性評価、【研究項目 4】運転支援技術の確立、【研究項目 5】自然 エネルギーの活用および蓄電技術との統合化、【研究項目 6】IISS の構築と実証、【研究項目7】M BRにおけるファウリング因子解析と膜面洗浄散気の効率化、についての研究開発を進めた。下記 に、実施内容と成果について報告する。

IISS のコンセプト図を、図 4-1 に示す。IISS は 3 つのタイプのサテライト施設である、サテライト施 設 A(モバイル型、MBR のみ、処理規模 50~100m<sup>3</sup>/日)、サテライト施設 B(固定設置型、MBR の み、処理規模 500~1,500m<sup>3</sup>/日)、並びにサテライト施設 C(固定設置型、MBR および NF/RO、処 理規模 500~1,500m<sup>3</sup>/日)から構成される。想定するサテライト施設は最大 100 箇所である。サテラ イト設備 AとB は、主に家庭排水、畜産排水を対象原水とし、MBR による処理水は河川放流される。 サテライト施設 C は、工業団地から排出される工業排水と家庭排水を対象とし、MBR による処理水 を更に NF/RO 膜による処理を行い、工業用水、親水・生活用水として再利用水を造水する。これ らのうち、モバイル型であるサテライト施設 A は、農業集落を巡回して処理を行う。

本研究開発では、このようなシステムを構築するため、前述の各研究項目において必要とされる 要素技術開発を進めると同時に、共同研究先の中国・四川大構内に設置した IISS 実証試験設備 を用いた実証試験を通じ、IISS のシステム構築検討を行った。



図 3-1 IISS のコンセプト図

#### 1. MBR+NF/RO システムの検討 【研究項目1】

1.1 MBR+NF/RO システムの要素検討

(日立製作所 中村グループ)

(1)研究のねらい

複数の膜技術を統合した革新的な水処理システム」として、MBRとNF/ROを組み合わせた水処理システムを構築する。本検討では、余剰汚泥の減容化やNF/RO 膜による MBR 処理水のろ過処理に関し、MBR 処理水が及ぼす影響についても検討する。

# (2)研究実施方法

中間評価が実施された 2012 年度まで実施した、MBR+NF/RO システムパイロット装置 (MBR:10

m<sup>3</sup>/d×2系列、RO 透過水量:1.35 m<sup>3</sup>/d×2系列、設置場所:日立市)の連続試験運転において、 活性汚泥浮遊物質(Mixed Liquor Suspended Solids; MLSS)濃度が 15,000mg/L 程度での高濃度 条件において、再現性確認実験運転を行い、同高濃度条件での運転が可能であり、余剰汚泥発 生率を従来比で 30%削減可能であることを確認した。また、高濃度 MLSS 条件で得られる MBR 処 理水から RO 膜装置で 50%の回収率を得ようとする場合、ろ過抵抗が約 1.4 倍に上昇する傾向を 確認した。これにより、濃縮度とファウリングの程度についての相関を得、運転条件の設計指針を 得ることができた。同じく2012 年度からは、IISS 実証試験設備(MBR+NF/RO システム:10 m<sup>3</sup>/d×2 系列、設置場所:中国・成都市)の四川大構内での処理試験運転を開始した(図 1.1-1)。本 IISS 実証試験設備は、同大構内に 2012 年度から入居が始まった教職員宿舎から出る排水を原水とし て実証試験運転を行っている。本実証試験では、国内 MBR+NF/RO システムパイロット装置の活 性汚泥と四川大に設置した実証試験設備の活性汚泥の粘度について著しい違いがあることを確 認した。図 1.1-2 に示すように、四川での実証試験で扱う汚泥の粘度は、国内の活性汚泥の粘度 に比べて著しく低い。これまで、(株)日立製作所の国内と中東のサイトで得られたデータから、日本 国内の活性汚泥の粘度が高い傾向があることを確認していたが、四川の実証設備で得られたデー タからも、同様の傾向があることを初めて確認した。



図 1.1-1 IISS 実証試験設備



2012 年度と2013 年度は、高 MLSS 濃度の活性汚泥による MBR+NF/RO システムの運転による 性能評価を行った。2012 年度は、図 1.1-3 に示すような槽分割構造(膜分離槽と好気槽を分けた 構造)での運転を行い、2013 年度は、図 1.1-4 に示すような槽一体構造(好気槽を別に設けず、祖 膜分離槽内に硝化用の微細散気装置を併設運転する構造)での運転を行った。

また、最終の 2014 年度は省エネ化を目的とした膜面洗浄散気量の低減については、間欠散気 手法等(弊社がNEDOの省水型・環境調和型水循環プロジェクトで開発した成果)を、本プロジェク トで検討している高MLSS 濃度条件で運転するMBRに適用した場合について評価、必要に応じて 数値流体シミュレーションを用いた解析も実施した。



図 1.1-3 槽一体型構造と運転操作の模式図



図 1.1-4 槽分割型構造と運転操作の模式図

(3)研究成果

図 1.1-5 に槽分割型構造での運転結果、図 1.1-6 に槽一体型構造での運転結果を示す。汚泥 濃度範囲は 10,000mg/L から 30,000mg/L の範囲で運転されており、このうち汚泥濃度が 15,000 以上の範囲での運転では(2012年11月から1月、2013年9月から11月)、TMP(Trans Membrane Pressure、膜間差圧)の上限値 15kPa に達するまで約 2 ヶ月間の運転が可能であることが示された。 これにより、余剰汚泥の削減率が、従来比 30%から最大で 50%削減できる評価結果を得た。



図 1.1-6 槽一体型構造の運転結果(2012 年度) 左図:Flux 及び TMP、右図:汚泥粘度 中間評価での報告の通り、2012 年度までの国内におけるパイロット装置を用いた実験では、運 転可能な最大 MLSS 濃度は 15,000mg/L であった。国内の活性汚泥については、MLSS 濃度が 15,000mg/L の場合の粘度は約 100mPa・s となり、膜エレメント間の流路を上昇する気泡の速度は 低くなり、気液二相流速が低くなることで、膜面洗浄に十分な強度のせん断応力が得られず、膜表 面の目詰まりが生じるものと推測される。それに対し、四川の実証設備の汚泥は、MLSS 濃度が 15,000mg/L の場合の粘度は約 8mPa・s、20,000mg/L の場合で約 14mPa・s となる。VOF(Volume Fraction 法)による CFD(Computational Fluid Dynamics)流体シミュレーションの解析結果に基づく 推算からは、粘度が 100mPa・s の場合の液相流速は、粘度が 8mPa・s の場合の液相流速の約半分 となる結果を得ている。この粘度の違いに由来する膜エレメント間流路内の流速の大きな違いによ り、四川での実証試験設備の運転では、MLSS 濃度が 15,000mg/L から 20,000mg/L の範囲でも運 転が可能となったと考えられる。処理水質は表 1.1-2 に示す通り、BOD、NH<sub>4</sub>-N も十分に除去できており、運転に問題は無い結果を得た。

水質項目	原水(mg/L)	処理水(mg/L)
BOD	130~150	1.3~3.8
COD	140~240	11~16
T-N	40~52	19~27
NH <sub>4</sub> -N	36~47	0.71~12
Т-Р	3.4~4	0.1~0.8
SS	53~147	<1

表 1.1-1 実証試験装置の処理水質

2014 年度は、省エネ化と膜面洗浄効率化を目的とした膜面洗浄散気量の低減について、間欠 散気手法(弊社が NEDO の省水型・環境調和型水循環プロジェクトで開発した成果)を、本プロジ ェクトで検討している高 MLSS 濃度条件で運転する MBR に適用した検討が、検討課題として加え られた。間欠散気は、膜面洗浄散気を散気運転時間と停止時間を設ける運転制御手法であり、散 気ブロワの停止時間を設けることで、ブロワ動力を低減する手法である(図 1.1-8)。2014年度は、図 1.1-3に示した槽一体型構造で、本膜面洗浄散気制御を加えた運転を実施している。図1.1-8に、 2014 年 5 月 12 日から 8 月 12 日の 92 日間に行った、本実験運転中の TMP 変化について示す。 本実験では、散気制御の影響と汚泥 MLSS 濃度の高濃度化の影響を分けて評価する必要から、 MLSS 濃度は約 12,000mg/L(平膜型 MBR の標準的な運転条件は 10,000~12,000 mg/L)とした。 本実験開始前の4月9日から5月9日までの期間は、調整運転として0.4m/日のFlux で運転し、 5月12日からは0.6m/日のFlux で運転を行った。間欠散気の制御条件は、5秒間の散気と5秒 間の停止で与えた。後者の 92 日間の運転期間における Flux の上昇は約 2kPa であり、TMP 上昇 速度は0.02kPa/日となった。これにより、膜面洗浄散気量を50%削減する省エネ効果を得ることが できた。 膜面洗浄の省エネ化の一方で、 膜好気槽内の DO が不足するため、同槽内に設置した生 物処理用の微細気泡の散気量を増やす必要が生じた。しかしながら、後述の4.4節に述べる通り、 ブロワ動力以外のユーティリティー(ろ過ポンプ、無酸素槽内の撹拌機、循環ポンプ等)も含めたシ ステム全体の動力を、膜面洗浄散気量の50%削減により15%削減することができた(後述4.4-1)。



図1.1-10に、VOFを用いた解析から得られた、粘度が5mPa・sの場合について、前記の間欠散 気の条件での、膜エレメント間流路内の液相と気相(気泡)の速度差(スリップ速度)の変化について の推算結果を示す。図 1.1-10 中に、散気を連続して行う場合における、スリップ速度定常解 (0.29m/s)を示す。この結果が示す通り、散気を間欠的に行う場合、気泡と液相の速度差は、散気 を連続的に行う場合に比べて高く推移する。これにより、気泡の運動に関するレイノルズ数が高く なることによって、気泡周囲、取分け後流の乱れが大きくなり膜面洗浄に寄与しすることで、TMPの 上昇が低く推移しているものと推測される。8月13日以降は、汚泥MLSS濃度を15,000mg/L以上 に高濃度化した実験を開始し、本散気条件を適用した場合について、高濃度での運転について 評価を行った。図 1.1-12 に、87 日間にわたる本実験結果を示す。図中には、連続的に散気した 89日間の運転結果(汚泥MLSS濃度15,000mg/L以上)を比較のために併せて示した。



間欠散気による膜面洗浄散気を行う場合の TMP 上昇速度は 0.04kPa/日であり、連続的に散気 を行う場合に比べ、TMP 上昇速度を大幅に低減させることができた。図 1.1-10 に示した通り、間欠 的な散気を行う場合、気泡と液相の流速差であるスリップ速度が連続散気の条件に比べて高くな る。これにより、気泡周辺の乱れがが強くなり膜面洗浄の効率が向上したものと推測される解析結 果を得た。

また、2012 年度まで国内の MBR+NF/RO システムパイロット装置 MBR による実験と同様に、 2012 年度の中国における IISS 実証試験設備においても、MBR による処理後水の RO 膜によるろ 過処理を行っている。図 1.1-12 に、約2年9ヶ月の運転期間における本 RO 膜処理のろ過圧の運 転履歴を示す。本運転期間中には2度の薬品洗浄を行い、2014 年 5 月に膜交換を行った(運転 使用期間は約2年8ヶ月)。2014 年 10月 17 日現在、高 MLSS 濃度の条件での MBR 実証設備 の運転を継続しており、同条件での MBR 処理水の RO 膜によるろ過運転も継続して運転し、2015 年3月まで時点においても、高 MLSS 濃度条件での MBR 処理水を RO 膜に供給する試験運転に おいては、ろ過圧の上昇は認められていない。



図 1.1-12 RO 膜のろ過運転履歴

1.2 NF/RO 膜ファウリング防止技術の検討

(工学院大 中尾グループ)

(1)研究のねらい

膜面の水和構造に着目して、ファウリング防止のための表面改質ポリマーを選定し、これを用いてファウリング防止膜を開発することが目的である。

(2)研究実施方法

ファウリング防止のために選定したポリマーは、図 1.2-1に示す zwitterionic 系のカルボキシメチ ルベタインをベースとしたポリマー(CMB 系ポリマー)、ノニオン系の poly(2-methoxyethylacrylate) (MEA ポリマー)である。CMB ポリマーは水に可溶で、MEA ポリマーは水に不溶であり、バルクの 性質には大きな違いがある。CMB 系ポリマーは Dynamic forming 法で表面改質を行い、また MEA ポリマーはプラズマグラフト重合法で表面改質を行い、ファウリング防止膜の作製を行った。さらに CMB ポリマーと MEA ポリマーの水和構造を低温 DSC 測定により詳細に検討した。



図 1.2-2 (左)CMB ポリマー (右)MEA ポリマー

(3)研究成果

①Dynamic forming 法を用いて CMB 系ポリマーで修飾した膜のファウリング防止性

CMBと*n*-butylmethacrylate(BMA)を、仕込み組成比を100:0、75:25、60:40、50:50、40:60と 変化させて共重合したポリマーを合成した。これらの1,000ppmの水溶液をUF 膜(MWCO:10k)、ま たは NF/RO 膜にクロスフロー方式でろ過することで、膜面に CMB 系ポリマーを堆積し、表面改質 を行った(Dynamic forming 法)。

CMB-BMA 共重合ポリマーで改質した膜、および未処理膜を用いて、1000ppmの BSA 水溶液の ろ過試験を行った結果を図 1.2-2 に示す。この実験は、実験開始後から 30 分は純水を供給し、純 水フラックスが4×10<sup>-6</sup> m/sとなるようにし、30 分後に 1000ppmの BSA 水溶液をフィードとしている。 いずれの組成の CMB 系ポリマーで修飾した膜も、未処理膜と比べて高いフラックスを維持している。 すなわち CMB 系ポリマーによるファウリング防止性を実現している。その後、180 分後に圧力を初 期の 1.5 倍、300 分後に初期の 2.5 倍に上昇し、全くファウリングがおきていなければフラックスがそ れぞれ 6×10<sup>-6</sup> m/s、1×10<sup>-5</sup> m/sとなるような条件で実験を継続したところ、高フラックス条件になる につれ、修飾ポリマーの組成の違いが大きくなり、仕込みモル比 50:50 の CMB-BMA ポリマーで修 飾した膜が、最も優れたファウリング防止性を有することが明らかとなった。またこの膜はミオグロビ ンに対しても高いファウリング防止性を有することを明らかにした。タンパク水溶液と比較するとその ファウリング防止性は少し小さくなるものの、汚泥に対しても、高いファウリング防止性を有することを明らかにした。



図 1.2-2 CMB 系ポリマーで修飾した膜を用いた, 1000ppm の BSA 水溶液のろ過試験における フラックスの経時変化

②プラズマグラフト重合法を用いて MEA ポリマーで修飾した膜のファウリング防止性

プラズマグラフト重合法を用いて、重合量が重合量 0.257mg/cm<sup>2</sup> および 0.075mg/cm<sup>2</sup> の MEA 修 飾膜(単位膜面積あたりの MEA 固定量を重合量[mg/cm<sup>2</sup>](=MEA 固定量[mg]/膜面積[cm<sup>2</sup>])と定 義)を作製した。これらの膜、および未処理膜を用いて、1000ppm の BSA 水溶液のろ過試験を行っ た結果を図 1.2-3 に示す。ろ過実験の操作は CMB-BMA の系と同様である。いずれの重合量の MEA 修飾膜も、未処理膜と比べて高いフラックスを維持している。すなわち MEA ポリマーによるフ ァウリング防止性を実現している。特に、重合量 0.257mg/cm<sup>2</sup> の MEA 修飾膜の場合、BSA を供給 した場合も純水の場合と比較してほとんどフラックスが変化しておらず、ほとんどファウリングがおき てないことが分かる。

また単位膜面積当たりのグラフトポリマー量が 0.385mg/cm<sup>2</sup>の修飾膜を用いて汚泥溶液 (MLSS:12,200ppm)の透過試験を行ったところ、未処理膜を用いて汚泥溶液(MLSS:9,000ppm)の透 過試験を行った結果と比較して、ファウリング防止能を確認した。



図 1.2-3 MEA ポリマーで修飾した膜を用いた, 1000ppm の BSA 水溶液のろ過試験における フラックスの経時変化

③低温 DSC 測定によるポリマーの水和状態の解明

上述のように、CMB ポリマーは水に可溶で、MEA ポリマーは水に不溶である。膜のファウリング 防止性を議論する際に、我々は膜界面の修飾ポリマーの水和状態が重要と考えている。よって含 水率を様々に変化させながら低温 DSC 測定を行い、これらのポリマーの水和状態について検討を 行った。 MEA ポリマーでは、通常のポリマーでは見られない Cold Crystallization が-40°C付近で観察された。また含水率が上昇す ると同時に freezing-bound water が free water に近い性質をもつ様 子 が 認 め ら れ た 。さら に non-freezing water は 0.05 g-water/g-polymer であった。MEA の低温 DSC に関する測定は、 1 報のみ報告例があり、これらの傾向はこの報告例と一致してい た。

CMB ポリマーの低温 DSC チャートを図 1.2-4に示す。MEA ポリ マーのときと同様に、-50℃付近に緩やかなピークとして Cold Crystallization が存在することが明らかとなった。また freezing-bound water が2つのピークとして現れること、その低温側 のピークは含水率に依らず-20℃付近に現れること、高温側のピ ークは含水率が上昇するに従い 0℃に漸近すること、non-freezing water 量が 0.5 g-water/g-polymer 程度であることを明らかにした。 これらの CMB ポリマー系の結果は、MPC ポリマー(ホスホベタイン 系ポリマー)と全く同様の特性である。また上述のように、



non-freezing water 量には違いがあるが、MEA ポリマーと 図 1.2-CMB ポリマーの水和状態も類似する点が非常に多い。さら に、含水溶媒を純水から塩水に変化させても、これらの水和 水の量や性質に変化は認められず、原水に含まれる塩の種 類や塩強度が変化してもファウリング防止性が維持されると考えられる。



このように CMB ポリマーと MEA ポリマーは水への溶解性という点で大きく性質を異とするものの、 水和状態という水のミクロ構造の観点から眺め、ファウリング防止に重要な特徴を明らかにした。

1.3 計算化学手法によるファウリング防止膜の素材ポリマーおよび表面構造設計

(工学院大 高羽グループ)

(1)研究のねらい

計算化学を用いて、改質候補材料のファウリング耐性を理論的に評価し、有望な改質候補剤の 選定を行なう。

(2)研究実施方法

膜表面におけるタンパク質吸着を防止することができれば、ファウリング負荷を軽減することがで きる。しかし、タンパク質を構成する全ての原子を顕わに取り扱いながら、水溶液中からタンパク質 が膜表面にファウリングしていくダイナミクスを有りのまま追跡するのは、現在の理論やコンピュータ 能力の水準から極めて困難である。すなわち、フォールディング(折りたたみ)現象を含むタンパク 質のファウリングによる構造変化を精緻に検証するには長時間のシミュレーションが必要であり、本 プロジェクトの期間内で検討するには困難である。こうした状況を踏まえ、本研究では、生体分子と してのタンパク質をそのまま扱うのを回避して、タンパク質の構成モノマーであるアミノ酸を直接の 検討対象とした。

アミノ酸を計算する場合においても、その種類は多数存在することから、何らかの基準に沿って 対象を絞り込む必要がある。本研究は、タンパク質は主に 20 種類のアミノ酸から構成されることに 着目した。さらに、親疎水性および酸塩基性の違いに基づき、以下の4グループで分類して評価 の対象を絞り込んだ。

・親水性かつ酸性(アスパラギン酸、グルタミン酸の2種類)

・親水性かつ中性(グリシン、アスパラギン、セリン、トレオニンなどの7種類)

・親水性かつ塩基性(リシン、アルギニン、ヒスチジンの3種類)

・疎水性(フェニルアラニン、アラニン、バリン、ロイシンなどの8種類)

これら4つのグループの中から各1つのアミノ酸を選定し、合計で4種類のアミノ酸を優先的に

検証した。具体的には、アスパラギン酸(Asp)、リシン(Lys)、グリシン(Gly)、フェニルアラニン (Phe)について、膜改質候補材料との相互作用をシミュレーションした。

膜材および改質剤に関しても、ポリマーのアモルファス構造を直接扱うことはせず、ポリマー表 面を構成するモノマー繰り返し単位を計算対象とした。一方、周囲の水分子を精緻に取り扱うこと は溶媒効果の影響を取り込む上でも不可欠と考え、モノマーならびにアミノ酸残基を含めた全原子 を顕わに考慮した。このように、タンパク質の表面吸着現象をアミノ酸とモノマー同士の相互作用で モデリングするため、本項目のシミュレーションで得られる結果については、局所的なミクロ相互作 用に限定してのものとなる。言い換えれば、本項目での評価は、ファウリングの初期段階を評価し ているものであり、相互作用が弱ければファウリングが起こらず、したがってファウリング負荷が軽減 できるという論拠に基づいている。また、強い相互作用からは、逆洗による洗浄が困難であり不可 逆的なファウリングが起こる可能性が高いとも判断することができる。

計算化学手法としては、平均場ポテンシャル分子動力学法を用いた。シミュレーションでは、ま ず直方体の計算セル内に、上記アミノ酸残基を1分子、および膜材(膜改質剤)を構成するモノマ ー1分子と、512個の水分子を配置した。密度が1.0g/cm<sup>3</sup>となるよう、20万から30万ステップ程度 の分子動力学法(MD)法による構造緩和計算を実行した。温度は293K、水の比誘電率は80.4と 設定した。構造緩和の結果、得られた立方体セルの一辺は約25Åとなった。アミノ酸残基とモノマ ー間の相互作用を定量するために、構造緩和後のセルを用いて MD 計算を実行した。計算の際 は、SHAKE 法によって両分子の重心間距離を固定した。Gly と CMB モノマーの分子間距離を固 定する場合の模式図を、図1.3-1に示す。熱力学的積分法によって自由エネルギーを計算するた めに、アミノ酸残基とモノマー分子間の距離を最大12.0Åまで、0.1Å刻みに変更しながら MD 計算を実行し、分子間に働く力の平均値を算出した。これらの計算によって得られた力の積分値 から、自由エネルギーを定量した。



距離 zを固定した分子動力学(MD)計算 ➡アミノ酸接近による自由エネルギー変化を算出

図 1.3-1 シミュレーションのモデルの模式図

(3)研究成果

①自由水や中間水や結合水を議論可能な計算化学手法の確立

膜素材とファウラント、水分子の相互作用を計算化学手法によって定量評価することで、MBR 後 段に設置するNF/RO 膜として最適な素材ポリマーをスクリーニングするための方法論を構築した。 具体的なシミュレーション方法は前項に記した。このシミュレーション方法を応用し、アミノ酸残基と、 両性イオン性のカルボキシベタインポリマー (PCMB)との相互作用プロファイルを算出した。また PCMB と比較するため、疎水性汎用ポリマーであるポリエチレンテレフタラート(PET)を対象とする 計算も実施した。アミノ酸残基としてPhを選択した場合の計算結果を図 1.3-2 に示す。この図に示 されるように、両者に顕著な相違が認められた。すなわち PET のプロファイルでは、アミノ酸残基が PET 近傍で安定的に存在できることを示す、エネルギーの極小点が明瞭に現れた。一方、PCMB ではそうした極小点は現れず、ほぼ平坦なプロファイルとなった。他のアミノ酸残基(Lys,Gly,Asp) についての PCMB は、フラットな形状であった。この結果は、PCMB がアミノ酸残基の吸着を阻害 することを示しており、PETとPCMBではタンパク質の吸着量が顕著に異なるという、既往の実験結 果(S. Fujishita et al., Biol. Pharm. Bull., 31 (2008) 2309.)を理論的に裏づける結果を得た。



図 1.3-3 PMEA とアミノ酸残基((左上 a) Gly, (右上 b) Asp, (左下 c) Lys, and (右下 d) Phe)が 接近する際の自由エネルギー変化

②種々の膜素材スクリーニングの実施

修飾剤の候補として、非イオン性ポリマーに注目した。非イオン性のポリ(アクリル酸2-メトキシエ チル)(PMEA)とアミノ酸残基の自由エネルギー変化を計算した結果を、図1.3-3に示した。全ての 曲線がフラットになっており、しかも PCMB と比較してもよりフラットであったことから、PMEA が両性 イオン性である PCMB よりも、ファウリング防止性に優れた修飾剤となることが判明した。

また、PMEA と汎用ポリマーと比較するために、親水性のポリビニルアルコール(PVA)について、 同様の条件にて自由エネルギー計算を実施した。その結果、親水性の PVA 表面では、PMEA や PCMB とは対照的に、疎水性アミノ酸残基の表面吸着が特に顕著となった。このことから、汎用的 なポリマー素材である PVA よりも、PMEA が優れたファウリング特性を示すことが予測された。 ③実験結果との比較対照(PMEAとPHEMAの比較)

また、PMEA の計算結果の妥当性を検証すべく、2000 年に報告されたタンパク質吸着量測定デ ータのトレース計算を実施した。その報告では、PMEA とポリ(メタクリル酸2ーヒドロキシエチル) (PHEMA)のタンパク質吸着量の間には、大きな相違が認められないという結果が掲載されている。 そこでこの系について、自由エネルギー計算を実施した。その結果、これらのアミノ酸残基でも、 PMEA と PHEMA が同等のタンパク質吸着抑止能を示す実験結果と一致した。

以上の修飾剤候補ポリマーについての計算結果を表 1.3-1 に示した。ここでは、自由エネルギ 一変化の最小値をまとめてある。この値が0になるものが「完全」フラットであり、いずれのアミノ酸残 基を吸着させず、優れたファウリング防止効果をもつ修飾剤だと判定される。この表に基づき、両性 イオンポリマーである PCMB と非イオン性の PMEA がファウリング防止剤の候補として選定された。

	膜素材・表面修飾ポリマー				
		PET (疎水性)	PCMB (両性イオン性)	PVA (親水性)	PMEA (非イオン性)
	Gly	浅い安定点 (−2 kJ/mol)	ほぼフラット (-0.5 kJ/mol)	浅い安定点 (−1 kJ/mol)	『完全』 フラット
吸着	Phe	底深い安定点 (−4 kJ/mol)	ほぼフラット (-0.5 kJ/mol)	安定点 (−3 kJ/mol)	『完全』 フラット
アミノ酸	Asp	浅い安定点 (-1 kJ/mol)	『完全』 フラット	浅い安定点 (−1 kJ/mol)	『完全』 フラット
	Lys	浅い安定点 (−2 kJ/mol)	『完全』 フラット	浅い安定点 (−2 kJ/mol)	『完全』 フラット

表 1.3-1 各種修飾剤候補ポリマーの自由エネルギー変化のまとめ

1.3-4水分子のミクロ挙動解析

ファウラント吸着を抑制するメカニズムの解明を目的として、膜素材の近傍に存在する水分子のミクロ挙動を解析した。両性イオン性ポリマー(PCMB)、汎用親水性ポリマー(PVA)、疎水性ポリマー(PET)の表面モデルを構築して、それらの表面上での水分子の配向性と表面滞留時間を、分子動力学法でシミュレーションを行った。

図1.3-4には、表面での水分子の配向性の分布結果を示した。PVA表面上での水分子は、60° 付近に極大値をもっており、水分子が配向性をもって存在していることがわかる。一方、PCMB で はバルクの水(液体)と同じくほぼ直線の変化を示しており、配向性がないことがわかる。PCMB は ファウリング防止効果が大きいことから、このような水の無配向性をもつポリマーがファウリング防止 剤として有望であることが推定された。

また、図 1.3-5 には、各種ポリマー表面での水の滞留時間を、相関関数の変化として示した。相 関関数は、初期の位置に滞留している水分子の割合に比例しており、水分子の動きが早い(滞留 時間が短い)ほど相関関数は鋭く減少する。ポリマーの表面では、バルク水と比較して、滞留時間 が長いことがわかる。特に PVA で長い親水性であることに対応しているからである。一方、PCMB では、比較的滞留時間が短く、水に流動性があることがわかる。これは、水がいわゆる中間水であ る状態であることを示唆している。したがって、このような解析を行えば、ポリマー中での水が中間 水であるか、あるいは束縛水が多いかの判定が可能であり、中間水の多いポリマーを選定すること で、優れたファウリング性が期待できる修飾剤が選定できることを明らかにした。



図 1.3-4 ポリマー表面上での水の配向性分布



図 1.3-5 ポリマー表面上での水の滞留時間解析(相関関数プロット)

1 1.5 2	<u> </u>					
	PCMB	PVA	PET			
タンパク質吸着抑制	O	$\bigtriangleup$	×			
水の配向性	ランダム	あり	あり			
水の束縛性	やや強	強	弱			

表 1.3-2 種々のポリマーについての水の構造解析結果のまとめ

以上のポリマー表面上の水の構造についてまとめたものが、表 1.3-2 である。ここでは、疎水性 汎用ポリマーとして PET についての結果も示した。この図に示されるように、水分子をその表面上 でランダムな配向性で比較的強く束縛できるポリマーが、ファウリング防止のための修飾剤として有 効であることを明らかにした。本シミュレーション手法は、スクリーニング速度の観点から優れており、 様々なポリマーの耐ファウリング性を理論的に評価でき、開発コストの削減効果も大きい。改質剤 候補として選定された、PCMB および PMEA は、工学院大学グループによる実験的検証に反映さ れ、優れたファウリング防止特性が確認された。

1.3-5 ファウリング係数の算出

水処理では多種多様なタンパク質がファウラントとして想定され、ファウリング性も異なると考えられる。そこで、開発したシミュレーション方法をベースに、さらにファウラントの種類ごとの各種膜材のファウリング性を予測するシミュレーション方法を開発した。 計算方法としては、前節で計算された4種のアミノ酸と種々のポリマーの自由エネルギープロファイルから得られた相互作用の強さに、ターゲットとするファウラントの表面での4種のアミノ酸残基の表面積を掛け合わせたものをファウリング係数と定義して求めた。ファウリング係数は、ファウラントごとのファウリング性を表す。

図 1.3-6 には、ファウラントモデル物質としてよく使われるタンパク質の一つである Bovine Serum Albumin (BSA)について、酸性アミノ酸残基であるグルタミン酸の表面での分布状態を示した。BSA の表面に露出しているアミノ酸残基でもっとも多いのがグルタミン酸であり、表面の 30.9 %が酸性 アミノ酸で覆われている。また次に割合の多い疎水性アミノ酸残基の割合は 24.0 %であった。続いてほぼ同じ割合で、塩基性、中性アミノ酸残基が表面に露出している。

これらの4種のアミノ酸残基の表面での露出割合を体表的なファウラントモデル物質(4 種類のタンパク質と糖であるアルギン酸)用いて、ファウリング係数を算出した。その結果を表 1.3-3 に示す。



図 1.3-6 BSA の分子構造モデル (表面の円で囲まれた部分にグルタミン酸残基が露出している)

#### 表 1.3-3 算出されたファウリング係数

		膜素材・表面改質ポリマー					
		PET (疎水性)	PCMB (両性イオン性)	PVA (親水性)	PMEA (非イオン性)	PHEMA (親水性)	PVDF (MBR膜)
	リゾチー ム	15.2	2.6	12.0	2.0	2.3	33.0
ファ	ミオグロ ビン	19.4	3.2	16.0	2.5	3.0	44.5
ゥ	BSA	58.5	10.6	45.9	8.1	9.4	149.2
ラン	バクテリ オドロプ シン	36.3	5.4	26.6	3.4	4.9	76.8
ト種	アルギ ン酸	3.9	2.5	0.9	3.3	1.9	18.2
12	アルギ ン酸Na	10.8	5.2	5.3	4.3	5.4	19.8
合計		144	<u>30</u>	107	<u>24</u>	<u>27</u>	342

ファウリング係数の値が大きいほど、ファウリングしやすいことを示している。表に示されるように、 PVA は BSA に対して高いファウリング性を示し、PCMB や PMEA などの膜材ではここで検討した いずれのタンパク質および糖に対してもファウリングしにくいことが予測された。また表の最下段に は、5 種類のファウラントのファウリング係数の合計値を示した。ファウリング係数はファウラントの種 類によって変わるので、処理水のファウラント成分がわかれば、それらの成分によるファウリング性 を数値化して予測することが可能となった。

#### 1.4 高機能化検討(日立製作所 中村グループ)

#### (1)研究のねらい

IISS のメインストリームとなる MBR や NF/RO などの膜処理技術を相補できる技術として、図 1.4 -1に示すようなマイクロバブル(微細気泡;径 50µm 以下)を用いた処理方式の開発を行った。 IISS から排出される MBR 余剰汚泥、および NF/RO 濃縮水をオゾンマイクロバブルで処理すること により、放流可能な水質レベルとすることを目的とした。

(2)研究実施方法

本プロジェクトで開発した新たなマイクロバブル生成方式は、0.5MPa 程度の残圧を有する RO 濃縮液にオゾンガスを混合して加圧状態で溶解した後、ノズルで減圧発泡させるもので、従来必要であった高圧ポンプが不要となる。濃縮液処理ループでは、溶解タンク内で濃縮液が溶存オゾンと反応して一部が酸化分解され、その後、接触槽に注入したオゾンマイクロバブルによって MBR 余剰汚泥を可溶化するとともに、浮上分離効果で汚泥の残留固体成分を分離することができる。(3)研究成果

本方式の装置成立性と処理性能を評価するため、図 1.4-1 に示すようなパイロット装置(処理流 量:10m<sup>3</sup>/d)を設計・製作した。国内某下水処理場にて第一次実証試験を実施した結果、図 1.4-2 に示すように、実用化を想定する中国での放流水一級水質基準(表 1.4-1)を満足させる処理条件 において、最大 75%の汚泥添加率(=余剰汚泥削減率)を達成できる見通しを得た。また、国内で の第一次実証試験で得られた知見と評価に基づいて、中国での第二次実証試験に向けた実証設 備を設計・製作した。



図 1.4-1 オゾンマイクロバブル生成状況パイロット装置

2013 年度からは、中国・四川大学サイトでの第二次実証試験を開始した。過年度に実施した国内での実証装置と同等仕様のパイロット装置(処理流量:10m<sup>3</sup>/d)を製作し、同サイトの IISS 実証試

験設備に組み込んだ。MBR+NF/RO装置と連携した実証試験を実施し、図 1.4-3 に示すように、 国内実証での結果とほぼ同様に、汚泥添加率 75%程度までの範囲において、中国での放流水一 級基準を達成することができた。また、実証試験データに基づく経済性評価の結果、従来の汚泥 処分費と比較して 20~30%程度のコスト削減が見込める結果が得られた。

		·級	- 411.	- 41	
横日	Α	В	— 积义		
COD(mg/L)	50	60	100	120	
BOD(mg/L)	10	20	30	60	
SS(mg/L)	10	20	30	50	
色度(度)	30	30	40	50	
大腸菌群数 (個)/L	1000	10000	10000		

表 1.4-1 中国放流水水質基準





# 2. MBR の膜洗浄技術の検討(工学院大学 中尾グループ、日立製作所 中村グループ) 【研究項目2】

2.1 電場利用型膜洗浄技術の検討と装置化検討(工学院大学 中尾グループ) (1)研究のねらい

MBR におけるファウリング物質は負に帯電したものがほとんどであることから、本研究項目では、 MBR における曝気洗浄の代替となる膜面洗浄技術として、膜面に間欠的に電場を印加しファウリ ング物質を除去する電場利用型洗浄技術を開発することを目的とする。

#### (2)研究実施方法

MBR 用浸漬平膜の原液側と透過側に電極を配した、新しい Membrane-Electrode-Assembly(膜 一電極複合体)を開発し、直流電源を用いて電場印加を行い、ファウリング防止性を評価した。 (3)研究成果

①膜―カーボンクロス複合体の開発

安価なカーボンクロスを電極として用いることとし、膜とのフレキシブルな複合体を可能とする「膜 一カーボンクロス複合体」を設計開発した(図 2.1-1 参照)。電場利用型膜洗浄が可能であることを 実証するため、帯電モデル粒子として、粒径 200nm のコロイダルシリカの 1,000ppm 分散液(ゼータ 電位-47mV)、さらに MLSS が 5,000 の汚泥を用いて、ファウリング防止効果を評価した。



図 2.1-1 電場利用型膜洗浄技術開発のための新規なコンセプト : 膜-カーボンクロス複合体

まず、コロイダルシリカを用いた基礎検討により、間欠的に印加する電場由来の静電的な力を利用することで、表面が帯電しているシリカの膜面からの脱着を実現することができることを示した。さらに汚泥を用いて曝気洗浄と電場洗浄の効果を比較した。結果を図2.1-2に示す。曝気条件の実験は実験開始直後から膜面に曝気をしているが、電場洗浄条件の実験は実験開始直後15分は電場を印加せず、その後に4分間隔で電場のon-offを切り替える間欠的な運転を行った。フラックスの経時変化は8分周期の波形となり、電場を印加すると常時曝気しているときと同程度のフラックスの回復が見られた。



図 2.1-2 汚泥を用いた場合の, 膜-カーボンクロス複合体による電場洗浄の効果

②汚泥粘度が電場洗浄効果に与える影響の検討

IISS では MLSS の高濃度化が重要な課題の1つであり、とくに粘度の影響が顕著に表れると考え、 汚泥粘度が電場洗浄効果に与える影響について検討した。粘度が10mPas または70mPas の汚泥 (MLSS は 8,300~8,500)を用いて、初期フラックスなどのろ過条件を統一し、1 分間隔で電場の on-off を切り替える間欠的な運転を行った場合の、フラックスの挙動を図 2.1-3 に示す。粘度が 10mPas の場合は電場を印加した際に急激にフラックスが回復するのに対し、粘度が 70mPas の場 合はフラックス回復効果が極めて限定的であり、粘度が洗浄効果に与える影響が大きいことが分か った。すなわち、高濃度 MLSS による MBR 運転においても、可能な限り低粘度での運転が求めら れると言える。ただし中国四川での検討結果に報告するように、我々の検討では、MLSS を高めて も汚泥粘度の低減が可能であり、極めて有利な結果であると言える。



図 2.1-3 粘度が異なる汚泥(MLSS 8,300~8,500)に対する電場洗浄効果の比較

③膜ーカーボンクロス複合体の大型化と装置化検討

膜一カーボンクロス複合体の大面積化(試験膜面積を0.012m<sup>2</sup>/assembly から0.089m<sup>2</sup>/assembly へ7.4倍に拡大)を行い、MBRベンチスケール装置(0.75m<sup>3</sup>/d、設置場所:東京都八王子市北野下水処理場)にて電場洗浄試験を行った。MBRベンチスケール装置はMLSS 12000~14000mg/Lで 運転したが、この範囲のMLSSの汚泥混合液に対しても間欠電場洗浄が可能であることを明らかにした(図 2.1-4 参照)。

同時に、水の電気分解による発生する水素量が多くなり、さらなる大型化を図るには、発生水素

を回収しエネルギー利用するシステムの開発を並行して行うべきという課題が明らかとなった。



#### 3. 処理水の安全性評価(日立製作所 中村グループ) 【研究項目3】

(1)研究のねらい

処理水を有効活用するためには、安全性が十分確保されていなければならない。本研究では、 処理水の迅速かつ簡便な分析を行うために、菌やウイルスを対象とした DNA チップの開発および 評価を行う。さらに、処理水の安全性(飲用も想定)を評価するために新たな試みとしてヒト培養細 胞を用いた評価方法の開発も行う。

(2)研究実施方法

簡易 DNA チップを用いた細菌およびウイルスの評価については、①指標細菌およびウイルスの 選定、②選定した指標細菌およびウイルスのプライマーの設計、③チップの試作,評価(検出感度 等)および改良により、実液への適用検討によって、3 時間以内に目視観察の可能性について評 価する。

培養細胞を用いた処理水の安全性評価については、①処理水の安全性評価要素の調査、② 培地に処理水を用いた長期(1ヶ月~半年)継代培養試験の要素技術検討し、必要に応じた改良 を行う。

(3)研究成果

①簡易 DNA チップを用いた細菌およびウィルスの評価

反応効率が低かった要因としては、固相増幅のプライマー反応効率の低さに加え、核酸合成酵素の性能やプライマー構造が適当でなかったことが考えられた。そこで、LAMP(Loop-Mediated Isothermal Amplification)を応用した核酸検出プロトコルに変更することで、下水流入ウイルスの cDNA の目視判定に成功し、検出プレートの検出感度は 5.1×10<sup>2</sup> copies cDNA/reaction まで上げることに成功した。また、その検出の特異性はきわめて高く、相同性 86%の cDNA を検出すること はなかった。

以上の結果から、反応プロトコル構築において、増幅と固相化を同時に行い、反応時間を短縮し 2時間以内で陽性または陰性の検査が完了する結果を得た。これにより、従来の PCR と電気泳動 による方法に対して、測定時間を目標の3時間以内に対し、2時間で検出可能とした。



図 3.1-1 DNA チップによるウイルス cDNA の検出原理



図 3.1-3 検出シグナルの特異性評価

②培養細胞を用いた処理水の安全性評価

一般に水質評価に用いられる成分分析は非常に高感度であるが、様々な物質が混在する水の 評価はできない。これに対し、複合体である水や大気を評価する方法として、バイオアッセイがある。 人に対する毒性を調べる目的には、例えば薬物の場合、ヒト由来の培養細胞が用いられている。 我々は水質検査においても人への健康影響を考慮した検査方法が必要であると考え、培養細胞 を用いた水質検査方法を開発した。水の飲用は一生涯継続するため、弱い毒性を継続して暴露された場合を想定し、慢性毒性の評価法を研究開発対象とした。

評価に用いる培養細胞は、ストレスを受けると分裂寿命が短縮する性質のあるヒト正常細胞を用 いた。初めに基礎データの取得として、4 種類のヒト正常細胞(TIG-1-40・TIG-119・LI-90・ HUV-EC-C)の分裂寿命を確認し、増殖速度の安定性からTIG-1-40、TIG-119を選別した。次に 弱い毒性を検出できるか確認するため、超純水に水道水の水質基準値のクロム(0.05mg/l)、ヒ素 (0.01mg/l)を添加した水を用い、細胞の増殖速度と分裂寿命を指標に毒性を評価した(図 3.2-1)。 クロムは水道水質基準濃度であっても2つの細胞共に増殖せず、ヒ素に関しては、TIG-1-40で増 殖速度が遅く、分裂寿命が短縮した。以上のように本評価法の有効性を確認した。本法を実処理 水に適用して、CREST 実験機の膜分離式活性汚泥法(MBR)処理水(5 倍濃縮)と逆浸透膜法 (RO)処理水(20 倍濃縮)を評価した(図 3.2-2)。MBR 処理水・RO 処理水共に、TIG-1-40 におい てはコントロールよりもやや増殖が活発で分裂寿命も延びる傾向があったが、有害性は検出されな かった。

繰り返し実験を行うと細胞増殖のグラフは毎回同様の傾向を示すものの、簡単に評価することが 困難であったため、細胞増殖のグラフにおける線形近似曲線の傾きを増殖値とし、コントロールを1 とした時の増殖の割合で数値化すると、再現性のよい評価が可能になった(図 3.2-3)。 以上のように、ヒト正常細胞の分裂増殖を指標とした慢性毒性の評価系を構築した。





#### 4. 運転支援技術の確立 【研究項目4】

4.1 無線を用いたシステム遠隔監視技術(日立製作所 中村グループ)

(1)研究のねらい

本システムは小規模分散施設であるため、遠隔集中監視による現場無人運転を目標としている。 そのためには、有線による情報伝達手段がない地域でも、遠隔集中監視が可能となるように無線 データ通信技術の導入を検討する。

#### (2)研究実施方法

2012 年度に、MBR+NF/RO システムパイロット装置(日立市)に設置している、ろ過流量計、ろ 過圧力計、DO 計等のリアルタイムで計測可能な項目について、制御盤内の PLC で取り込んだの データを無線技術との併用により、クラウドサーバー上の Virtual Machine を経由した遠隔監視を行 った。図 4.1-1 に、具体的な運用形態の模式図を示す。パイロット装置と現地計測室の間は LAN ケーブルを設置することが出来なかった為、図 4.1-1 に示すような無線機((株)日立製作所製 TAGMO)を用い、PLC からデータを計測室内の通信装置を介してクラウドサーバーへ送り、(株)日 立製作所・松戸開発センタ所員室内の外部端末(PC)ブラウザアクセスし状態管理を行った。



図 4.1-1 遠隔監視の運用模式図

(3)研究成果

図 4.1-2 に、遠隔監視場所での外部端末での監視画面を示す。2012 年度の1 年間、本遠隔監 視運用を行った結果、運用上の問題の無いことを確認した。これらの知見に基づき、海外のインフ ラ未整備地域を想定した運転維持管理方法のデザインを、図 4.1-3 と図 4.1-4 に示す。IISS は、図 4.1-3 は、後述 6 節の表 6-1 に示す規模と構成の異なる3 種類のサテライトで構築される。インフラ 未整備では、全てのサテライトに維持管理者を配置することは困難であると想定されることから、各 サテライトの制御盤内に設けられた PLC を介してデータロガーに取り込みが可能な運転監視パラメ ーター(処理流量、ろ過圧力、水温)の連続データを、無線や LAN により管理する。



図 4.1-2 IISS 遠隔監視システム外部端末ツール(国内使用試作品)



図 4.1-3 拠点管理室によるシステム管理方式

(a)拠点管理質と各サテライトのデータロガーを結ぶ実線矢印は送信データを示す流れ (b)拠点管理質と各サテライトのデータロガーを結ぶ破線矢印は運転指示を示す流れ



図 4.1-4 クラウドサーバー利用のシステム管理方式 (a)拠点管理質と各サテライトのデータロガーを結ぶ実線矢印は送信データを示す流れ (b)拠点管理質と各サテライトのデータロガーを結ぶ破線矢印は運転指示を示す流れ

図 4.1-3 に示すシステム管理方式では、IISS の中で最もインフラが整備されている地域に配置さ

れるサテライト設備Cの一つに拠点管理室を設け、全てのサテライトから送られる情報を監視し、必要に応じ、本拠点から作業者に作業指示を与えて巡回点検させる。図 4.1-4 に示すシステム管理 方式では、いずれのサテライトにも拠点管理室を設けず、全ての情報をサーバーに送信する。これ により、例えば日本国内の拠点等において監視を行い、必要に応じて現地作業者へ作業指示を 出し、サテライトの巡回点検を行う方式である。

次に、IISS の具体的運用方法について述べる。IISS の特長の一つは、次節で述べるろ過圧力の 予測による管理、並びにそれによる維持管理負担の軽減である。ろ過圧力のトレンドを事前に予測 できれば、膜洗浄等の準備を急に行う必要負担が無く、また膜面洗浄散気風量の調整による問題 回避も図ることが可能である。図 4.1-5(非公開)に、ろ過圧力予測モデルを適用したシステムの運 用方法を示す。

本サーバー利用監視システムでは、前述のPLCから送信されるデータは、CSV形式で作成され、 Excel 形式のファイルに変換して運転管理データファイルが作成されている。次節に述べるろ活力 予測シミュレーターは MATLAB-Simulink で作成されており、この Excel 形式のデータファイルを入 力データとして読み込むことが可能であり、日々送られるデータを基に、ろ過圧力上昇を予測して 管理することが可能となる。

4.2 膜運転支援モデルの構築(東大 船津グループ)

(1)研究のねらい

MBR においては膜が使用されるため膜のファウリングという問題を抱えている。ファウリングとは、 活性汚泥・難溶性成分、高分子の溶質・コロイド等のファウラントが膜細孔に詰まったり膜に堆積し たりする現象である。例えば MBR を定量ろ過運転した場合、膜のファウリングによる膜抵抗の上昇 に伴い同じ処理流量を維持するため多大なエネルギーを投入しなければならない。

このファウリングの対策として、膜付近に空気や酸素を送り込む曝気や、通常のろ過の流れとは 逆方向に処理水を流す逆洗により、膜面のファウラントを運転中に洗浄することが行われている。し かしこれらの物理洗浄では除去しきれないファウラントも存在し経時的に膜差圧(transmembrane pressure、TMP)が上昇するため、ある程度時間が経過した後に薬品を用いて膜を化学的に洗 浄する必要がある。この薬品洗浄を行わずに時間が経ってしまうと、ファウラントの除去が不可能に なり、膜を交換しなければならない。この膜交換と頻繁な薬品洗浄には多くのコストがかかってしま う。

薬品洗浄を適切な時期に行うため長期的にファウリングを予測する必要がある。ファウリングの予 測とは、定量ろ過運転の場合は TMP を予測すること、定圧ろ過運転の場合は処理流量または flux を予測することである。さらに分散型 MBR を達成するためには無人運転で MBR を遠隔管理する 必要があり、遠隔地における薬品洗浄時期を計画するためには将来の TMP や処理流量を予測し なければならない。

定量ろ過運転の MBR において TMP の長期予測を困難にしている要因の一つが TMP jump であ る。 TMP jump とは、MBR の長期運転後における TMP の急上昇である。 TMP jump のメカニズムに ついて、部分的に膜が閉塞して局所的な flux が critical flux を超えたという仮説が提唱されている。 Critical flux とは、それ以下なら不可逆ファウリングが起こらない flux のことである。 TMP jump は critical flux 以下の flux でも長期ろ過後に生じる TMP の急上昇である。 もちろん将来の TMP を予 測することも重要であるが、実際の MBR 運転を考えた場合には将来 TMP jump が起こる時期を予 測することも重要といえる。 TMP jump の時期を予測できれば、 TMP jump の前に薬品洗浄を行うス ケジュールの作成ができる。

そこで本グループでは、MBR における TMP を長期的に精度良く予測するモデルを開発すること を研究のねらいとした。モデルは二つに分けることができ、一つは現状の MBR 状態から将来の TMP を予測するモデル、もう一つは TMP jump する時期を予測するモデルである。これらのモデル を用いることで、最適な薬品洗浄時期を検討できるだけでなく、TMP の上昇を穏やかにする運転コ ントロールの検討が可能となる。TMP の長期予測の概念図を図 4.2-1に示す。 膜洗浄または膜交 換後の運転開始日である 0 日目から TMP の長期予測を行う。ただ MBR においては各種 MBR パ ラメータが測定されており、それらの最新の測定値を用いることで予測結果は更新される。またモ デルはTMPの予測値だけでなくTMP jump が起きる時期も出力する。実際は将来の水質など不確 定要素があるためTMPの予測値やTMP jump の時期は幅を持って予測される。分散型 MBR にお ける原水や汚泥性状等の MBR パラメータを測定してその情報を遠隔地にある管理室に送ることで、 管理室で対象の MBR を監視してその結果を踏まえて薬品洗浄時期を決定したり MBR を適切にコ ントロールしたりすることが可能となる。これにより分散型 MBR の無人管理が達成される。



図 4.2-1 TMP の長期予測の概念図

(2)研究実施方法

統計的手法を駆使して将来のTMPを予測するモデルとTMP jump する時期を予測するモデルを 開発した。TMP jump 予測モデルには MBR に関連する物理式を考慮した。モデルを構築したりモ デルの有用性を確認するデータは、文献等から収集したり実際の MBR における運転データを提 供していただいた。

(3)研究成果

長期 TMP 予測モデル

MBR のパラメータの中から時間(t)、処理流量もしくは flux(V)、過去の膜抵抗(R)、R の変化率  $(\Delta R/\Delta t)$ が長期的な膜抵抗の上昇を説明するために重要と判断されたため、これらを用いて翌日 の R を予測する統計モデル(R 予測モデル)を構築する。

$$R_{(t)} = f\left(t, V_{(t)}, R_{(t-1)}^{n}, \Delta R_{\Delta t(t-1)}^{n}\right)$$
(4.2.1)

括弧内の下付き文字は膜交換日または薬品洗浄日からの時間を表わし、n はある定数である。統計モデルの構築には partial least squares や support vector regression が使用される。式(4.2.1)により予測された R の値を TMP に変換することで TMP の値が計算される。

$$TMP_{(t)} = \mu_{(t)}J_{(t)}R_{(t)}$$
 (4.2.2)

J は flux、μ は粘度である。式(4.2.1)から得られる R の予測値を再び式(4.2.1)に入力することで時間 t+1 における R の値を予測できる。このように式(4.2.1)による R の予測を繰り返すことで長期的な TMP の予測が達成される。

すでにMBRで測定されたデータを用いてR予測モデルが構築され将来のTMPの予測に使用される。ただし過去のMBRの運転状態における測定データで構築されたモデルが、新しい運転状態におけるTMPを予測できるとは限らない。そこでMBRにおいて逐次測定されるデータを使用してR予測モデルの更新を自動的に行う仕組みを開発した。予測したい時間に近いデータを使用してR予測モデルを構築する。データ数を様々に変化させて構築したモデルを準備しておき、実際は直近の予測結果の最も良いモデルを使用する。

MBR においては膜抵抗と活性汚泥浮遊物質 (MLSS)・汚泥の粒径分布、菌体外高分子ポリマー

(EPS)・粘度などとの関係が知られている。このようなパラメータを入力変数に追加することで水質を 考慮した R 予測モデルを構築できる。

実際の MBR で測定されたデータを使用して長期 TMP の予測を行った結果を図 4.2-2 に示す。 赤線が実際の TMP の時間変化であり水色の点線と黄色の点線が予測された TMP の時間変化で ある。各時刻から1週間の長期間にわたって TMP を予測しているため、複数の点線が伸びている。 なお図 4.2-2 の(a)と(b)はそれぞれ別の MBR から得られたデータを使用した結果である。図 4.2-2(a)より TMP の実測値と予測値が近い値であり、提案したモデルを用いることで長期的に精度 良く TMP の値を予測できたことが分かる。また時刻によって実際の TMP の増加の割合は異なり MBR の運転状態も異なると考えられるが、新しい測定データを使用してモデルを逐次更新すること でそのような運転状態の変化に追随できた。図 4.2-2(b)は別の MBR における TMP の予測結果で ある。黄色の点線は 250 から 260 時間付近に flux の値が変化することを考慮して TMP を予測した 結果であるが、提案したモデルを使用することで flux が変化した後にどのように TMP が上昇するか 予測できることを確認した。

今回示した結果では、流入水の水質・各槽での水質・処理水質は考慮されていないが、それらの水質を考慮してモデルを構築することで予測精度の向上が確認されている。長期的に TMP を予測するモデルを活用することで薬品洗浄のスケジューリングが事前に可能になるだけでなく、TMP が上昇しにくい MBR の運転条件・水質を検討することができる。



図 4.2-2 TMP の予測結果

②TMP jump 予測モデル

ろ過の式・ケークろ過の式・critical fluxの概念などから、TMP jumpの判定式はt・V・TMP・水質の 非線形関数で表わされることを導いた。そこでこれらのパラメータと TMP jump の有無との間で統計 モデル(TMP jump 予測モデル)を構築する。TMP jump 予測モデルの概念図を図 4.2-3 に示す。 入力変数は t・V・TMP・その他の MBR パラメータであり、出力変数は TMP jump するかどうかを表 現するラベルである。TMP jump 前のデータを 1、TMP jump 後のデータを-1 とラベリングを行い、 入力変数から 1 か-1 を判定する support vector machine (SVM) モデルを構築する。

将来の TMP jump を予測する際、t については予測したい時間をモデルに入力する。V について は定量ろ過運転のため現在の設定値や将来の設定値をモデルに入力する。 TMP については将 来の TMP jump を予測するため将来の TMP の値を入力する必要がある。ケークろ過を仮定した場 合は初期の TMP を時間の一次関数で表わすことができるため、最初の数時間または数日のデー タを用いて時間とTMPとの間の直線の傾きと切片を決定する。将来の TMP をその直線を用いて予 測してその予測値を TMP jump 予測モデルに入力する。 ここで 4.2.2 の長期 TMP 予測モデルを使 用することでより正確に TMP の値を予測できる。 その他の MBR パラメータについては、現状の測定 値・設定値や将来の設定値を TMP jump 予測モデルに入力する。 以上により対象とする時刻にお いて TMP jump するかどうかを予測できる。

さらに V や水質等の将来の設定値を様々に変更しながらモデルに入力することで、将来 TMP

jump を起こしにくい運転条件・水質の条件を探索することが可能になる。つまり TMP jump しないような MBR の管理方法を検討できる。ただ TMP jump 予測モデルは非線形モデルであるため、どのように運転条件を変更すればよいか検討することは困難である。また対象の時間について TMP jump するかどうかの判定は可能になるが、TMP jump しない場合にその後すぐに TMP jump するのか、まだ TMP jump するまでに時間的な余裕があるのか、といった定量的な解析はできない。

そこで SVM モデルの結果を二次元のマップに写像する。その概念図として多次元データがある 二次元  $x_1, x_2$  に写像された状況を図 4.2-4 に示す。写像する手法として、線形手法の principal component analysis (PCA) や非線形手法の kernel PCA、self-organizing map、generative topographic mapping が知られている。まず SVM モデルを用いて二次元マップ上の空間を TMP jump する領域としない領域に分ける。予測する際は予測データを二次元マップに写像することで、 そろそろ TMP jump するのか、まだ余裕があるのかを判断できる。また V や水質等の MBR パラメー タを変更させながら二次元マップに写像することで、変更前後で TMP jump しやすくなったか、TMP jump しにくくなったかを検討できる。例えば図 4.2-4 において、矢印 A となる MBR パラメータと矢 印 B となる MBR パラメータの候補があれば B の方が望ましい。A の方がより早く TMP jump する領 域へ向かうと考えられるためである。もちろんモデルに様々な値を入力する際はモデルの適用範 囲を考慮しなければならない。



図 4.2-3 TMP jump 予測モデル



図 4.2-4 TMP jump 判定モデルの結果を可視化した際の概念図

モデル構築および構築されたモデルの検証に使用するデータを文献等から収集した。膜の種類 および材質ごとの文献数およびバッチ数を表 4.2-1 に示す。ここで 1 バッチとは膜交換または膜 洗浄から次の膜交換または膜洗浄までのことである。それぞれの膜の種類および材質ごとに構築 した TMP jump 予測モデルにおける TMP jump 判定の正解率を表 4.2-2 に示す。それぞれ 90%を 越える高い正解率で TMP jump を判定できることを確認した。TMP jump の予測結果の例を図 4.2-5 に示す。 青点が TMP jump 前と判定されたデータであり赤丸が TMP jump 後と判定されたデ ータである。 予測結果より提案手法を用いることで TMP が急激に上昇する時期を適切に予測でき たことが分かる。

得られた SVM モデルが TMP jump しないと判定した領域と TMP jump すると判定した領域の可視 化を行った。今回は多次元データを二次元に写像する手法として PCA を用いた。図 4.2-6 に可視 化の結果を示す。 MBR の運転データを PCA によって二次元に写像したことになる。 灰色の部分が TMP jump 前の領域、白い部分が TMP jump 後の領域である。 各バッチのデータを図 4.2-6 の二次 元マップに写像させることで時間ごとにデータの軌跡を確認できる。 この軌跡により現在 TMP jump する方向に進んでいるか確認できるだけでなく、運転パラメータの値を変化させながら二次元マッ プに写像させることで TMP jump のしにくい運転条件の検討が可能になる。

実際の MBR において測定されたデータを用いて構築された TMP jump 予測モデルを解析して TMP jump しにくい運転条件の探索を行った。その結果、同じ運転コストで膜洗浄時期を従来より 20 時間も遅らせることのできる散気量の運転条件を見つけることに成功した。

膜形状	平膜			中空糸	、膜
材質	PVDF	PE	PES	PVDF	PE
文献数	13	2	3	7	14
バッチ数	26	5	6	13	22

表 4.2-1 TMP jump 予測モデルの構築および検証に使用したデータ

膜形状	平膜			中空糸	ќ膜
材質	PVDF	PE	PES	PVDF	PE
正解率 [%]	95.6	99.9	93.5	90.4	91.6

表 4.2-2 TMP jump 予測モデルの正解率



図 4.2-5 TMP jump の予測結果



図 4.2-6 TMP jump 予測モデルの可視化

本研究では長期的に TMP を予測するモデルおよび TMP jump する時期を予測するモデルを開発した。文献から収集したデータ・実際の MBR データなど様々な MBR の運転データを用いることで、これらのモデルの有用性を確認した。提案した二つのモデルを組み合わせて活用することで将来の TMP 予測および分散型 MBR の効率的な管理が達成される。

4.3 水運用最適化システムの検討(日立製作所 中村グループ)

(1)研究のねらい

IISS を構成する水処理システム群全体での効率を向上させる技術として、水運用最適化手法を 開発した。IISS 導入地域での再生水需要量を満足する分散型装置の配置箇所、装置規模および 配管経路を適正化し、全体コスト(水処理プラントコスト+再生水配送コスト+配管敷設コスト)を最 小化することを目的とした。

(2)研究実施方法

IISS 導入想定地域の水運用計画問題を、コストを評価指標とし、最適な水処理・送水計画を策定する数理計画問題として定義した。さらに、このような水運用計画モデルを実装した水処理システム運用計画最適化ツールのプロトタイプを作成し、試計算を実施して機能確認を行った。

最適化手法としては、分散型装置(水再生センター)から水需要点までの最短配管経路を探索 するダイクストラ(Dijkstra)法、および全体コストを最小化する分散型装置の配置箇所を探索する 遺伝的アルゴリズム(GA)法を適用し、実用的な計算時間で求解可能とした。 (3)研究成果

2014年度には、IISS 導入を想定したモデル地区でのデータベースを作成し、複数の異なる水運 用計画シナリオを同ツールにより評価した。一例を図 4.3-1に示す。水処理プラントコストのスケー ルメリットや導入地域の特性などを反映し、コスト的に有利な水再生センターの規模と数、配置箇 所を求解できることを確認した。これにより、導入地区の水需要特性や地理的な条件に基づいて、 合理的な水運用計画の策定を可能とした。



図 4.3-1 水処理システム運用計画最適化ツール試算例(最適敷設経路の求解)

4.4 開発システム導入効果シミュレーション(日立製作所 中村グループ)

(1)研究のねらい

本システムの導入効果を明確にするために、本システム処理水を実際に運用した際の効果予測 シミュレーションを検討する。

(2)研究実施方法

本報告書作成時点での、導入効果に関する評価結果を示す。従来方式((株)日立製作所インフ ラシステム社の MBR をベンチマーク対象)に対し、今回の IISS の構築検討で得られた成果のうち、 1.1 節の MBR+NF/RO システムの要素検討において示した通り、MLSS 濃度が 12,000mg/L の条 件において、MBRの膜面洗浄散気量が 50%削減される評価結果を得た。この結果を基に、システ ム動力の試算評価を行った。

(3)研究成果

MBRの膜面洗浄動力が50%削減さた条件での、MBRシステム動力の比較を図4.1-1に示す。 図4.4-1に示した、他ユーティリティーは、原水送水ポンプ、微細目スクリーン、無酸素タンク撹拌 機、硝化液循環ポンプ、膜ろ過ポンプの動力で構成される。対象とした槽構造は、1.1節の図 1.1-3に示した、膜槽内に生物処理(硝化処理)用の微細気泡発生装置を設けた槽一体型構造あり で、MBRの処理規模は1,500m<sup>3</sup>/日(後述の表 6-1)とした。膜面洗浄と生物処理用のブロワ動力は、 システム動力の60%を占めることから、ブロワ動力の低減は省エネに効果的に寄与する。今回の 評価では、膜面洗浄散気量の50%削減することで、その分だけ膜好気槽内のDOが低下する為、 それを補う生物処理用散気量が約33%増える為、システム全体の動力比率は15%となる評価結 果を得た。RO 膜処理に関しては、弊社製品を適用した場合(サテライトCの処理規模1,500m<sup>3</sup>/日 用、回収率約67%)、処理量あたりのシステム動力について、現状とIISSを比較した結果を図 4.4-2に示す。この試算では、MBRの間欠散気の省エネ化に関よる動力低減効果のみを反映して いる。本試算においては、システム動力全体として8%の効果を得た。



図 4.4-2 RO 膜処理も含めたシステム動力評価

図 4.4-2 に示した通り、RO 膜処理まで含めた場合、間欠散気による MBR の省エネ効果を反映 する条件では 8%のシステム動力削減効果が得られる。 担体投入型 MBR については、間欠散気 の制御手法の評価実験と異なり標準的な MLSS 濃度での評価であることから、本試算への反映は 難しい。 但し、担体投入型 MBR の膜面洗浄散気量削減効果は極めて大きく、10%以上の動力削 減効果が見込まれる。

# 5. 自然エネルギーの活用および蓄電技術との統合化 【研究項目5】

5.1 システムに適した自然エネルギーおよび蓄電技術の選定(日立製作所 中村グループ) (1)研究のねらい

本システムの構築に当たっては、システムから排出されるCO<sub>2</sub>の排出抑制や災害時のリスク回避 を目的に自然エネルギーの活用を検討する。活用可能な自然エネルギーは、対象地域により異な るため、様々な技術をメニューとして準備する必要がある。現在、国内外では自然エネルギーの活 用および制御に関する多くのプロジェクトが進行しており、ここ数年で更なる技術革新が期待できる 分野である。

(2)研究実施方法

本システムが適用される新興国地域において得易い自然エネルギー源の調査を行い、技術メニ ューの作成(FS)を行う。最終的には、蓄電技術選定と合わせて、技術選定を行う。 (3)研究成果

中間評価では、自然エネルギーの典型である太陽光と風力を適用した場合の発電能力について評価した。自然エネルギーである太陽光と風力を利用する場合、自然エネルギー発電機の容量を MBR 装置の電源容量と同レベルと仮定する。環境負荷低減の効果として、1m<sup>3</sup>の処理水を得る際の二酸化炭素の削減効果について試算した結果、一般的な仮定として風力による発電自給率

を 20%、太陽光による発電自給率を 10%とすると処理水 1m<sup>3</sup>あたりの CO<sub>2</sub> 排出量については、 各々100、50g 程度の削減が可能となる試算結果を得た。中間評価後は、これらのエネルギーを効 率的に蓄電運用できる技術としてNaS電池を選択した。IISSが適用される地域は、新興国、後進国 のインフラ整備が進んでいない地域である。新興国、発展途上国において分散化した排水処理施 設へ安定した電力を供給するためには、NaS 電池などの UPS(Uninterruptible Power Supply;無停 電電源)機能を要した蓄電池の活用が想定される。それらの国や地域の電力供給源には、通常の 送配電もしくは風力発電や太陽光発電などが考えられるが、いずれも不安定な電源であるため、 安定した排水処理の為には蓄電機能を付随させる必要がある。IISS を運用する為の無停電電源 (UPS(Uninterruptible Power-suply System))として NaS 電池を採用することを条件とした。現在、蓄 電技術としては、鉛電池、NaS電池、ニッケル水素電池、リチウムイオン電池の4種類が一般的で ある。これらの技術は、自動車用あるいは出力安定化用として利用されているが、本 IISS のような 固定設置型で高い蓄電量が求められる場合、NaS 電池の適用が有効であると考えられる。表 5-1 に、各々の蓄電技術の特長を示す。実際、鉛電池、リチウムイオン電池は自動車等の移動物が主 な対象であり、表 5-1 に示した特徴からも、NaS 電池はエネルギー密度が高く、寿命が長いことから、 本 IISS に適した蓄電技術と考えられる。例として、1,500m<sup>3</sup>/日の処理規模の MBR システムの 24 時 間の動力を賄う場合、処理水量あたりのシステム動力を0.6kWh/m3を仮定する条件(図4.4-1にし めした省エネ化ベース)では、195kgの NaS 電池が必用な試算となる。

	鉛電池	NaS電池	ニッケル水素	リチウムイオン			
			電池	電池			
エネルギー密度	約 35	約 110	約 60	約 120			
(kWh/kg)							
エネルギー効率	87	90	90	95			
(%)							
寿命	4500	4500	2000	3500			
(サイクル数)							

表 5-1 各蓄電技術の特長

注記:サイクル数…1回の充放電を1サイクルとして何サイクル充放電できるかを示す指標 (出典:http://www.meti.go.jp/committee/materials2/downloadfiles/g90225a05j.pdf)

# 6. IISS の構築および実証 (工学院大 中尾グループ、日立製作所 中村グループ、東大 船津グループ、四川大 陳グループ)【研究項目6】

(1)研究のねらい

国内で検討した成果を基に IISS の構築を行う。また、実証試験地域(海外)を選定し、試運転期 間も含め約3年間の実証試験を行う。本実証試験において新たな課題等が抽出された場合、適宜 国内での要素検討に反映する。

(2)研究実施方法

2011 年度に設計製作し、2012 年から中国四川大構内に設置した本実証試験設備を用い、四川 大の教職員宿舎からでる排水の処理運転をおこなっている。この処理試験において、各要素技術 課題に関する検証等を行い、必要に応じて国内での要素技術開発に反映する。本実証試験では、 得られた TMP の運転履歴等のデータを東大グループのろ過圧予測モデルのデータとして供し、 RO 膜ろ過処理水を日立製作所グループの処理水安全性評価のデータとして供した。 (3)研究成果

①IISS のサテライト施設形態

実際の小規模分散型 MBR(+NF/RO)システムの運用を考えた場合、3 つの適用形態を検討している。一つは可搬型の MBR(処理規模 75m<sup>3</sup>/日)、二つ目は固定設置型の MBR(処理規模 750m<sup>3</sup>/日)、三つ目は同じく固定型の MBR と NF/RO を組み合わせた水再生システム(処理規模 1,500m<sup>3</sup>/日)である。表 6-1 に、平膜方式の MBR を用いる場合の、IISS の適用形態を示す。導入による効果は、4.4 節の通りである。

表 6-1 IISS の適用形態

サテライト施設形態	サテライト施設 A	サテライト施設 B	サテライト施設 C			
	(可搬型)	(固定設置型)	(固定設置型)			
処理水量	75m <sup>3</sup> /日	750m <sup>3</sup> /日	1,500m <sup>3</sup> /日			
MBR 反応槽構成	無酸素槽	同左	同左			
	+					
	膜好気槽					
MBR 平膜構成	1m <sup>2</sup> ×20 枚×3 段	1m <sup>2</sup> ×100 枚×3 段	1m <sup>2</sup> ×200 枚×3 段			
	×2 系列	×4 系列	×4 系列			
MBR 運転 Flux	0.625m/日	同左	同左			
NF/RO(回収率)	無し	無し	有り(50%)			

②IISS のサテライト施設 A の運用方法検討

表 6-1 に記載の適用形態Aは可搬式であるため、未整備地域へ活性汚泥を含めて設備一式を 移動設置する際、装置の運転開始時に汚泥が嫌気化していると推測される。また、適用形態BとC についても、未整備地域のインフラ環境においては電力事情や資材調達事情により、設備が一定 期間停止する、もしくは嫌気化した汚泥を設備に入れた後の設備運転開始までに時間を要するな どで嫌気化が進行することも考えられる。その為、IISS の運転手法のデザインの一つとして、嫌気 化した汚泥をろ過運転可能な汚泥にするプロトコルの構築が必要である。そこで、本実証試験で は、下記の条件の汚泥について、ろ過運転可能な条件になるまでの曝気循環時間を検討した結 果、1から2時間でろ紙ろ過性能が回復(10mL/5min以上)したことを確認した後、低 Flux(0.3m/ 日程度)でのろ過運転を再開した。図 6-1 と図 6-2 に、上記条件についてろ過運転再開後の汚泥 性状と処理性能の変化を示す。

条件1:夏季に2週間運転停止した場合、再立上運転中の汚泥性状と処理性能の評価 条件2:冬季に1ヶ月運転停止した場合、再立上運転中の汚泥性状と処理性能の評価

MBR 実証試験設備は2系列あり、平膜 MBR のデータをFS、中空糸 MBR のデータをHF で示 す。汚泥性状変化の評価指標にはろ紙ろ過量、ろ過運転処理性能の指標には処理水中のアンモ ニア性窒素を用いた。夏季の実験運転では、24 時間経過後には、処理水中のアンモニア性窒素 が2mg/L以下となり処理運転が安定化した。冬季の場合には、48時間経過後に、処理水中のアン モニア性窒素が 5mg/L 以下となり処理運転が安定化した。図 6-3 に、膜好気槽内の汚泥の観察 結果を示す。運転停止後の膜好気槽汚泥は嫌気化(黒色)しているが、曝気運転再開1日後には 好気汚泥(茶褐色)に変化している。本検討評価結果から、曝気循環運転を1から2時間行う後、 0.3m/日程度の低 Flux で運転を行うことで、嫌気化した汚泥からの運転安定化をすることを確認し た。





図 6-2 冬季1ヶ月間放置汚泥の再立上時の汚泥性状変化



(夏季) 左:運転停止2週間後の好気槽汚泥 右:運転再開1日後の好気槽汚泥



(冬季) 左:運転停止1ヶ月後の好気槽汚泥 右:運転再開1日後の好気槽汚泥図 6-3 汚泥の回付状況

#### ③IISS のサテライト施設統合

各グループが進めてきた研究開発成果を、図 6-4 に示すように有機的に統合した IISS の具体的 運用方法に関しては、4.1 節の図 4.1-3 から図 4.1-5 に示した通り、ろ過圧予測モデルとの組み合 わせにより、IISS を有機的に運用することができる。実際、運転データの監視については、既に(株) 日立製作所が中東に納入した一部の MBR 設備においてデモ運用されており、本ろ加圧予測モデ ルを用い、各設備を有機的に統合管理することが可能である。



図 6-4 IISS の構想図

IISS の具体的な設計・構築方法については、次の通りである。

- 1. 現地の地域情報を収集(人口、地図等)
- 2. 水処理システム運用計画最適化ツールを用いて、前記情報を入力データとし、各サテライト 設備の処理規模、サテライト設備のタイプ(表 6-1 に示す A、B、C)、並びに最適配置を計画 する。

【研究項目 4】4.3「水運用最適化システムの検討」の成果を適用

3. 各サテライト設備の実設計

1)現地原水水質に対して計画処理水質の設計

2)実設備の設計(MBRの膜面洗浄制御手段を含む装置設計) 別紙に、サテライトCのプロセスダイアグラムを示し、表 6-2 に計画水質を示す。

水質項	流入水質	計画処理水質(mg/L)				
目	(mg/L)					
T-BOD	150	2				
SS	180	0				
TN	60	20				
TP	4.5	_				

表 6-2 計画処理水質

また、1.1節の図 1.1-3 と図 1.1-4 の説明において述べた通り、本 IISS で想定する MBR システムは、好気槽と膜分離槽が別置構造になるタイプと、好気槽と膜分離槽を一槽の構造でうんてんするタイプの二方式の切り替えが出来る反応槽構造を想定している。本構造の MBR の運転方法の切り替えプロセスを、図 6-5 に示す。



図 6-5 運転方法切り替えプロセス

A1:硝化反応用微細気泡発生装置(槽分割運転時) A2:同上(槽一体型運転時) A3:膜面洗浄用散気装置

【研究項目1】1.1「MBR+NF/ROシステムの要素検討」、並びに【研究項目6】「IISSの構築および実証」の成果を適用

3) 電源供給の安定性が担保されていない地域に関しては自然エネルギー等の蓄電に必要な UPS の計画設計を行う。 【研究項目 5】「自然エネルギーの活用および蓄電技術との統合」の成果を適用

4) RO 膜処理設備を有するサテライト設備 C については、オゾンマイクロバブル利用の汚泥減 容、並びに RO 濃縮水処理用の設備設計を行う。 【研究項目 1】1.4「高機能化検討」の成果を適用

4. 試運転開始時

1)各サテライト設備に搬入される活性汚泥の性状に応じて、試運転を開始する。 【研究項目 6】「IISS の構築および実証」の成果を適用

2)運転時の処理水の安全性についての評価 【研究項目3】「処理水安全性評価」を適用

5. 運用時

1)ろ過圧力のデータの監視の実施 ・データ監視 【研究項目 4】4.1「無線を用いたシステム遠隔監視技術」の成果を適用

2)運用工程(逆洗、膜点検等の作業計画)の作成
 ・運転状態予測
 【研究項目 4】4.2「運転支援モデルの構築」の成果を適用

運用時、もしくは試運転時において、MBRの膜面に著しいファウリングが生じる場合、散気動力 を初期計画時より省動力化する必要が生じた場合、次の成果を適用する。

【研究項目 2】「MBR の膜洗浄技術の検討」

【研究項目7】「MBR におけるファウリング因子解析と膜面洗浄散気の効率化」のうち膜面洗 浄散気の効率化の成果 また、原水サンプルの分析による想定外課題の抽出のため、次の成果を適用する。 【研究項目7】「MBRにおけるファウリング因子解析と膜面洗浄散気の効率化」のうちファウリン グ因子解析の成果

運用時、もしくは試運転時において、NF/RO 膜処理設備を有するサテライト設備 C において、 NF/RO 膜面に著しいファウリングが生じる場合、次の成果を適用する。

【研究項目 1】1.2「NF/RO 膜ファウリング防止技術の検討」の成果

【研究項目1】1.3「計算機化学手法によるファウリング防止膜の素材ポリマーおよび表面設計」

# 7. MBRにおけるファウリング因子解析と膜面洗浄散気の効率化 (北海道大学 木村グ ループ) 【研究項目7】

(1)研究のねらい

MBR の普及のためには、膜ファウリング機構の発生機構を理解し、その発生を抑制することが重要である。MBR における膜ファウリングの発生には、微生物が放出する細胞外有機ポリマー(特に多糖類)が大きな関与をしているが、その詳細な特性についてはほとんど分かっていない。また、MBR 反応槽内においては様々な多糖が存在しているが、膜ファウリングに重大な関与をするものは一部の多糖であると考えられている。膜ファウリングを引き起こす多糖の詳細な特性が分かれば、重要な多糖のみの選択的な追跡や、適切なモデル多糖を用いた抗ファウリング膜の設計などに基づいた革新的膜ファウリング制御が視野に入ってくる。

平膜方式の浸漬型 MBR へ担体を投入することで膜ファウリングを効率的に制御でき、膜面洗浄 曝気量を低減させられると考えられる。適当な流動性・固さを持つ担体を MBR 槽内に投入すること で担体が膜面と頻繁に接触し、膜ファウリングを引き起こす成分の膜面蓄積を抑制することが予想 されるためである。担体を用いて MBR 内における微生物保持形態を変化させた場合に細胞外有 機ポリマーの挙動がどのように変化するか、担体の使用に伴う膜破損が発生しないか、などの検討 項目が残っており、担体投入型 MBR の最適化にはまだ遠い状況にある。しかしながら、担体投入 型MBRでは従来型 MBR に比較すると 50%以上の膜面洗浄曝気量削減が可能であることが、こ れまでの実験結果より示唆されている。

(2)研究実施方法

本研究では、人工下水を処理するベンチスケールMBRおよび実都市下水を処理するパイロット スケールMBRを用いて実験を行う。長期連続運転を行ったMBRより閉塞膜を切り出し、薬剤(アル カリ)を用いて膜ファウリングの原因となっている多糖を抽出する。抽出した多糖を穏和な条件で酸 加水分解し、オリゴ糖フラグメントを得る。このオリゴ糖を含む試料に糖構造を特異的に捕捉して精 製するグライコブロッティング法を適用し、MALDI-TOF/MS分析を行う。MALDI-TOF/MS分析よ り得られる糖鎖構造の質量数データをデータベースと照合し、ファウリング多糖の構造と起源の詳 細に迫る。

担体の投入については、開孔率の異なる複数の担体を用いたMBR系を並列させたベンチスケール実験(リアクター有効体積:7.5L、膜面積:0.06m<sup>2</sup>)を行い、差圧上昇(膜ファウリングの発生)、細胞外ポリマーの発生状況、膜閉塞状況を比較する。上記のファウリング多糖構造解析についても、担体型MBRを対象として実施する。パイロットスケール MBR(リアクター有効体積:450L、膜面積:6.8m<sup>2</sup>)に担体を投入し、より実処理装置に近い状況において担体を導入した際の担体流動状況についても、詳細な検討を行う。

(3)研究成果

表 7-1 に本研究で使用した 3 種類のスポンジ担体(小担体、粗担体、密担体)それぞれの物理 特性、図 7-1 に担体の外観を示す。 ベンチスケール実験で使用した担体はすべてポリウレタン製 であり、リアクター有効体積の 5%相当分を投入して実験を行った。

表 7-1 各スポンジ担体の物理特性

	小担体	粗担体	密担体
密度(kg/m <sup>3</sup> )	35	30	55

セル数(個/25mm)	46	15	_
サイズ (mm)	$4 \times 4 \times 4$	$8 \times 8 \times 8$	$7 \times 7 \times 7$



図 7-1 各スポンジ担体の外観(左から小担体、粗担体、密担体)

図7-2に、人工下水を原水として行った連続処理実験における膜間差圧の経時変化を示す。実 験開始時の膜透過水フラックスは、全ての MBR で 0.45 m3/m2/d とした。小担体および密担体を 投入した MBR では、対照系の MBR と比較すると明らかに膜間差圧の上昇が抑制された。運転期 間中、機械トラブル(自動運転を行う基盤のブレーカーが落ち、ろ過、曝気がストップしてしまった) が発生したために全 MBR で膜間差圧が上昇したが、小担体および密担体を用いた MBR ではトラ ブル解消後は速やかに膜間差圧が低下した。一方、粗担体を投入した MBR では膜間差圧の上昇 が顕著であり、物理洗浄の実行後も繰り返し膜間差圧が上昇した。全てのMBRで、運転開始後50 日目に膜を交換した。膜ファウリングを抑制できる小担体・密担体を投入した MBR では、膜交換後 はフラックスを1.5倍に上昇させて実験を行った。小担体を投入した MBR では約60日目経過時か ら膜間差圧が上昇し始め、頻繁に物理洗浄を行うようになった。物理洗浄の効果は限定的であり、 フラックスを上昇させた後は不可逆的膜ファウリングの進行が顕著となった。運転開始後75日目に は連続運転が困難となったため、膜を交換した。密担体を投入した MBR についても同様に、フラッ クスを上昇させた後は膜間差圧の上昇が観察された。スポンジ担体を投入した MBRの運転におい ては、透過水フラックスをある一定レベルより高く設定する場合には不可逆的膜ファウリングの進行 が顕著となり、連続運転が困難となることが示された。粗担体を投入したMBRでは、運転開始後50 日目に粗担体を取り除き運転を継続した。膜間差圧の上昇は粗担体投入時と比較して緩やかに なり、物理洗浄の実施後は一定期間ろ過の継続が可能となった。粗担体の投入は MBR における 膜間差圧の上昇を促進していたことを示す結果であり、担体の選択が膜ファウリングの抑制に極め て重要であることが示された。



図 7-2 各 MBR における膜間差圧の経時変化

図7-3に運転50日経過時に引き上げた閉塞膜を物理洗浄後した後に電子顕微鏡観察した結果 を示す。物理洗浄により、どの膜についても表面のケーキ層を良好に除去できたことが確認できる。 しかし、粗担体と密担体の投入を投入したMBRでは、担体と膜との衝突によって膜が損傷している ことが示された。粗担体を投入したMBRの膜では特に大きな損傷が認められた。小担体を投入し たMBRにおいて観察された膜の損傷は担体なしのMBRと同程度であった。小担体は膜に与える 影響を最も抑制するとともに、ケーキ層を剥離させられる担体であったことが明らかとなった。



図 7-3 物理洗浄後の閉塞膜表面 (左上:担体なし、右上:小担体、左下:粗担体、右下:密担体)

表7-2に、回分試験により評価した汚泥が発生させるろ過抵抗を示す。50日経過以前では、スポンジ担体を投入したすべての MBR で対照系よりもろ過抵抗が大きくなっており、担体の投入により汚泥のろ過性が悪化する傾向が認められる。同様の結果が、我々がこれまでに行った異なる担体を用いた実験においても得られている。密担体を投入した MBR より採取した汚泥では、担体投入に伴う汚泥ろ過性の悪化が抑制されており、対照系の MBR から採取した汚泥と同程度のろ過性であった。実験条件を変化させた 50 日経過以後は、密担体を投入した MBR の汚泥ろ過性が大きく低下した。しかし、担体を投入していない対照系 MBR の汚泥ろ過性も低下していたことから、密担体を投入した MBR におけるろ過性低下の原因は運転の継続に伴う汚泥性状の変化であったものと考えられる。粗担体を投入した MBR では、50 日経過時に実施した粗担体の引き抜きに伴い汚泥ろ過性の大幅な改善が認められた。粗担体の投入によって汚泥のろ過性が大きく悪化していたことが改めて示された。

図 7-4 に汚泥溶解性成分について実施した LC-OCD 分析結果を示す。50 日経過以前に採取 した試料については、保持時間 30 分前後の多糖類やタンパク質を示すバイオポリマーのピークが 小担体、粗担体を投入した MBR の場合に大きくなっていた。バイオポリマー濃度の上昇に伴って 汚泥ろ過性が低下したものと考えられる。一方、担体なしの MBR、密担体を投入した MBR の場合 はバイオポリマーのピーク大きさは同程度であった。密担体における汚泥ろ過性の高さは、バイオ ポリマー濃度の低さが深く関係したものと考えられる。50 日経過以後は担体を投入していない MBR でもバイオポリマーのピークが大きくなっており、前述した汚泥ろ過性の低下と連動していた 可能性が高い。

2 国力の過転機において行れた光王ととのの通知が						
汚泥ろ過抵抗(10 <sup>11</sup> m <sup>-1</sup> )	担体なし	小担体	粗担体	密担体		
50 日経過前	$16.2 \pm 1.6$	$20.1 \pm 0.9$	$20.6 \pm 0.9$	$16.5 \pm 2.4$		
50日経過後	$19.2 \pm 1.1$	$20.3 \pm 0.3$	$16.6 \pm 1.6$	$21.2 \pm 1.8$		

表 7-2 回分ろ過試験において汚泥が発生させるろ過抵抗



(左)50 日経過前(右)50 日経過後

担体投入型 MBR において膜ファウリングを引き起こした多糖の構造と起源について、グライコブ ロッティング法の適用を試みた。ベンチスケール実験ではファウリング多糖を抽出するための膜面 積が小さく、他分析実施の必要性もあり十分な試料量を確保出来なかった。このため、グライコブロ ッティング法を用いた分析の実施には至らなかった。少量の閉塞膜試料についてもグライコブロッ ティング法を適用できるようなプロトコル確立に向けた検討が、今後必要となる。

パイロットスケール MBR 内部における担体の挙動を検討するため、外周部全面をアクリル材で構成したパイロットスケール MBR を新規に製作した。曝気量および散気装置を変更させながら担体を槽内に投入し、担体の動きを目視および高速度ビデオカメラで追跡した。この実験では、以前 我々が行った実験において膜表面に深刻なダメージを与えたポリエチレングリコール製粒状担体 (4mmの円筒形、比重 1.01)を用いた。

図 7-5 に示す4 種類の散気装置(粗大気泡、微細気泡、改良型粗大気泡、改良型微細気泡)を 比較した。粗大気泡装置は、本研究グループがこれまでに用いてきたパイロットスケール MBR に おける散気装置と同仕様のものである。粗大気泡装置と微細気泡装置を用いた場合には複数枚 挿入した膜モジュール中心付近に曝気が集中し、外部挿入モジュールには気泡が効果的に接触 していない様子が観察された。この結果、膜面は担体が頻繁に接触する部分と接触しない部分に 二分化されてしまっていた。このことが以前実施したパイロットスケール実験において膜面に深刻 なダメージが生じた原因となっていたと考えられる。また、微細気泡装置を用いた場合には槽内の 循環流に大きく偏りが生じ、図 7-6 に示すように担体が一部に集中して洗浄に関与しない様子が 観察された。粗大気泡装置および微細気泡装置を用いて曝気量を 100 L/min から 50 L/min に減 少させた場合には、担体が槽内を循環しなくなった。これらの結果に基づき新規に作成した改良 型の散気装置を取り付けた場合には膜モジュール外側にも気泡が分布するようになり、曝気量を 50 L/min に削減しても担体は槽内を良好に循環し、高い洗浄効果が期待できた。また、改良型微 細気泡装置を用いる場合には気泡の発生位置がさらに均一化された結果、担体の流動状況も均 質化された。本研究の結果、散気装置・散気方法によって担体の流動状況が大きく変化することが 確認された。今後は、高い洗浄効果が見込まれる散気方法による膜ファウリングの発生抑制を評 価する必要がある。



図 7-5 本研究で検討した散気装置 (左から粗大気泡、微細気泡、改良型粗大気泡、改良型微細気泡)



図 7-6 微細気泡装置を使用した場合に観察された担体の偏り

# §4. 成果発表等

**1. 原著論文発表** (国内(和文)誌 5件、国際(欧文)誌 15件、中文誌 5件) (国際)

1.Akamatsu, K., Mitsumori, K., Han, F., Nakao, S., Fouling-free membranes obtained by facile surface modification of commercially available membranes using the dynamic forming method, Ind. Eng. Chem. Res., 50, 12281-12284 (DOI: 10.1021/ie201201f) (2011)

2. Akamatsu, K., Yoshida, Y., Suzaki, T., Sakai, Y., Nagamoto, H., Nakao, S., Development of a membrane-carbon cloth assembly for submerged membrane bioreactors to apply an intermittent electric field for fouling suppression, Sep.Purif.Technol., 88, 202–207 (DOI: 10.1016/j.seppur.2011.12.031) (2012)

3. Nagumo, R., Akamatsu, K., Miura, R., Suzuki, A., Tsuboi, H., Hatakeyama, N., Takaba, H., Miyamoto, A., "Assessment of the Antifouling Properties of Polyzwitterions from Free Energy Calculations by Molecular Dynamics Simulations", Industrial & Engineering Chemistry Research, 51, 4458-4462 (2012)

4. Nagumo, R., Akamatsu, K., Miura, R., Suzuki, A., Tsuboi, H., Hatakeyama, N., Takaba, H., Miyamoto, A. Molecular dynamics simulations for microscopic behavior of water

molecules in the vicinity of zwitterionic self-assembled monolayers, Polymer Journal, (DOI:10.1038/pj.2012.72) (2012)

5. Kaneko, H., Funatsu, K., Visualization of Models Predicting Transmembrane Pressure Jump for Membrane Bioreactor, Industrial & Engineering Chemistry Research., 51(28), 9679–9686 (2012)

 Nagumo, R., Akamatsu, K., Miura, R., Suzuki, A., Hatakeyama, N., Takaba, H., Miyamoto, A. A Theoretical Design of Surface Modifiers for Suppression of Membrane Fouling: Potential of Poly(2-methoxyethylacrylate), Journal of Chemical Engineering of Japan, (DOI:10.1252/jcej.12we110) (2013)

7. Kaneko, H., Funatsu, K., A Chemoinformatic Approach to Prediction of Transmembrane Pressure in Membrane Bioreactors, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 126 30-37. (DOI: 10.1016/j.chemolab.2013.04.016) (2013)

8. Kaneko, H., Funatsu, K., A Physical and Statistical Model Predicting Transmembrane Pressure Jump for Membrane Bioreactor, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 121 66-74. (DOI: 10.1016/j.chemolab.2012.11.013) (2013)

9. Nagumo, R., Akamatsu, K., Miura, R., Suzuki, A., Hatakeyama, N., Takaba, H., Miyamoto, A. Computational Chemistry Study on the Microscopic Interactions between Biomolecules and Hydrophilic Polymeric Materials, J. Chem. Eng. Jpn., 46, 421-423 (DOI: 10.1252/jcej.12we212) (2013)

10. Akamatsu, K., Okuyama, M., Mitsumori, K., Yoshino, A., Nakao, A., Nakao, S. Effect of the composition of the copolymer of carboxybetaine and n-butylmethacrylate on low-fouling property of dynamically formed membrane, Sep. Purif. Technol., 118, 463-469 (DOI: 10.1016/j.seppur.2013.07.034) (2013)

11. Akamatsu, K., Furue, T., Han, F., Nakao, S. Plasma graft polymerization to develop low-fouling membranes grafted with poly(2-methoxyethylacrylate), Sep. Purif. Technol., 102, 157-162 (DOI:10.1016/j.seppur.2012.10.013) (2013)

12. Kaneko, H., Funatsu, K., Model for predicting transmembrane pressure jump for various membrane bioreactors, Desalination and Water Treatment, 1 1-11

(DOI: 10.1080/19443994.2014.943469) (2014)

13. Kaneko, H., Funatsu, K. Analysis of a Transmembrane Pressure (TMP) Jump Prediction Model for Preventing TMP Jumps, Desalination and Water Treatment, 1, 1-6 (DOI: 10.1080/19443994.2014.940646) (2014)

14. Akamatsu, K., Usa, T. Nakao, S. Long-term durability of desalination performances of dynamically formed membranes using poly(acrylic acid) and tubular ceramic supports, Membrane. 39, 409-415 (2014)

15. Nagumo, R., Terao, S., Miyake, T., Furukawa, H., Iwata, S., Mori, H., Takaba, H., Theoretical screening of antifouling polymer repeat units by molecular dynamics simulations, Polymer Journal, 46, 736–739 (DOI:10.1038/pj.2014.45) (2014)

16. Nishimura, A., Igarashi, Y., Evaluation of Chronic Toxicity of Water using Human Normal Cells, Journal of Water and Environment Technology, (submitted) (2015)

# (国内)

1. 金子 弘昌、船津 公人、Genetic Algorithm-based WaveLength SelectionとSupport Vector Regressionを組み合わせた変数領域選択手法の開発、Journal of Computer Chemistry、Japan.、10(4)、122-130 (2011)

2. 金子 弘昌、船津 公人、Membrane Bioreactor における膜差圧予測モデル構築手法の開発、 Journal of Computer Chemistry、Japan.、10(4)、131-140 (2011)

3. 日高 政隆、他マイクロバブル浮上分離挙動の解析に基づく濁質除去性能の評価、下水道協 会誌、48(586)、101-110 (2011) 4. 成 敬模、金子 弘昌、船津 公人、膜分離活性汚泥法における長期的膜差圧予測モデルの構築、Journal of Computer Aided Chemistry、13(1)、10-19 (2012)

5. 日高政隆ほか、オゾンマイクロバブル水処理装置による汚泥可溶化性能の評価、下水道協会 誌、51(618)、91-101 (2014)

# (中文)

1. Zhao, Lina, Qing, Peng, Zhang, Shuang, Zhang, Shaolei , Chen, Wenqing, Li, Zhengshan. Pilot Test on Domestic Sewage from Campus by Using Integrated A /O-MBR[in chinese]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2011, 10:5989–5991.

2. Zhang, Shaolei, Wang, Zhiqiang, Chen, Wenqing. The pilot Study of Membrane-bioreactor Systems for Domestic Sewage Treatment [in chinese]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2012, 40(2):972-973.

3. Zhang, Shaolei, Wang, Zhiqiang, Chen, Wenqing. Effect of the Factors on the Treatment Effect in the Pilot Study of MBR[in chinese]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2012, 40(12):7343-7344.

4. Zhang, Shaolei, Li, Li, Chen, Wenqing. The pilot study on the submerged membrane bioreactor in treatment of campus sewage[in chinese]. Environmental Pollution and Control(Online edition), 2012(2):www.zjepe.com.

5. Li,Li, Wang,Zhiqiang, Chen,Wenqing.The Mechanism of the Membrane Fouling in MBR and the Research Progress in Membrane Fouling Control[in chinese].Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2012, 40(1):284-286.

# 2. その他の著作物(総説、書籍など)

1. 南雲亮、「自由エネルギーの理論計算による人工膜の素材設計アプローチ開発」、 膜 MEMBRANE、290-296、2013

2. 圓佛伊智朗、造水技術ハンドブック(追補版)、441-442、2014

3. 高羽洋充、「ここまできた膜分離プロセス-基礎から応用-」、第 17 章 シミュレーション、 172-183、三恵社、2014

4. 金子 弘昌、「濾過スケールアップの正しい進め方と成功事例集」、第10章 濾過膜のファウリングトラブル対策 第1節 長期ファウリング予測モデル、技術情報協会、2014.

5. 高羽 洋充、南雲亮、「逆浸透膜のファウリングシミュレーション」、MEMBRANE、 39、366-371、 2014

# 3. 国際学会発表及び主要な国内学会発表

(1)招待講演(国内会議 16件、国際会議 3件)(国内)

1. 日高 政隆、「下水分野におけるオゾンマイクロバブルの応用技術 一実証実験と解析評価 一」、化学工学会反応工学部会「反応場の工学分科会」、第 13 回水環境制御研究センターシン ポジウム、東京大学武田ホール、2010 年 9 月 7 日

2. 日高 政隆、「下・排水分野におけるオゾンマイクロバブルの応用技術」、造水シンポジウム 2010、 主婦会館プラザエフ、2011年2月3日

3. 南雲亮、「膜の表面近傍における水分子のミクロ挙動解析:分子動力学シミュレーションの応用」、 先端膜工学研究推進機構 23 年度秋季膜工学サロン、神戸大学、2011 年 9 月 21 日

4. 高羽洋充、「水とポリマーの界面相互作用の解明による低ファウリング膜の理論設計」、インケム 2011 産学官マッチングフォーラム、東京ビッグサイト、2011 年 11 月 17 日

5. 南雲亮、「計算化学手法によるファウリング現象のメカニズム解析」、ニューメンブレンテクノロジ ーシンポジウム 2011、三田 NN ホール、2011 年 12 月 2 日

6.日高 政隆、「下水及び排水分野におけるオゾンマイクロバブルの応用技術 一実証実験と解 析評価一」、化学工学会反応工学部会「反応場の工学分科会」、千葉工業大学津田沼キャンパ ス、2011年12月2日

7.日高 政隆、「[展望講演]下排水分野におけるマイクロバブル利用技術の開発」、化学工学会第 44 回秋季大会、東北大学、2012年9月19日

8. 金子 弘昌、「膜分離活性汚泥法における長期ファウリング予測モデルの開発」、ニューメンブレ ンテクノロジーシンポジウム 2012、三田 NN ホール、2012 年 11 月 30 日

9. 南雲亮、「自由エネルギーの理論計算による人工膜の素材設計アプローチ開発」、日本膜学会 第35年会(日本膜学会膜学研究奨励賞受賞記念講演)、早稲田大学、2013年5月21日

10. 高羽洋充、「マルチスケール化学工学による物性から機能性材料設計への取り組み」、化学 工学会第45回秋季大会、岡山大学、2013年9月18日

11. 大熊那夫紀、「IISS のキーテクとなる膜による環境リスク低減」、CREST 横断ミーティング「病原 微生物と持続可能な水利用」、京都大学吉田キャンパス百周年時計台記念館、2013 年 10 月 22 日

12. 西村彩子、五十嵐由美子、「ヒト正常細胞による水の慢性毒性評価」、CREST 横断ミーティング「病原微生物と持続可能な水利用」、京都大学吉田キャンパス百周年時計台記念館、2013 年 10月22日

13. 圓佛伊智朗、「オゾンマイクロバブルによる高効率な下水再生」、造水シンポジウム 2013、主婦 会館プラザエフ、2014年2月21日

14. 高羽洋充、「液相系分離膜のミクロ・マクロシミュレーション」、分離技術会年会 2014、名古屋大学、2014 年 5 月 30 日

15. 金子 弘昌、「膜分離活性汚泥法におけるファウリング予測モデルおよびモデルを用いた運転 条件の検討」、先端膜工学研究推進機構秋季講演会、神戸大学、2014 年 9 月 29 日

16. 森田穣、「担体添加型 MBR システムによる省エネ化」、造水シンポジウム 2014、主婦会館プラ ザエフ、2015 年 2 月 18 日

#### (国際)

1. Hiromitsu Takaba, Novel Atomic-Scale Modeling Technique for Protein Fouling in Water Purification Membranes, The International Conference on Membranes: Environmental and Biological Applications, Kottayam, India, September 18, 2011

2. Ichiro EMBUTSU, Water Treatment Systems for Safe and Secure Water Use, JST and NSERC (Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada) Workshop on Sustainable Water Use, Fuji Soft Plaza, October 21, 2013

3. Kaneko, H. and Funatsu, K., Prediction models of transmembrane pressure (TMP) and timing of TMP jumps for efficient fouling control in distributed MBR systems, MBR for the Next Generation and Waste-to-Energy Conversion, Korea, February 12 2014.

(2)口頭発表 (国内会議 31 件、国際会議 12 件)

1. 日高 政隆、 隅倉 みさき、田所 孝之、舘 隆広、「オゾン下水再生処理におけるマイクロバブ ルの濁質除去性能の解析的評価」、第47回下水道研究発表会、ポートメッセなごや、2010年7月 28日

2. 赤松憲樹・三森啓太・韓芳・中尾真一、「Dynamically-forming 法を用いたファウリング抑制膜の 開発」、日本膜学会第33年会、産業技術総合研究所臨海副都心センター、2011年5月12日

3. 日高 政隆、 圓佛 伊智朗、武本 剛、舘 隆広、「RO膜処理濃縮水の残留圧力を利用したオ ゾンマイクロバブル水処理技術の開発」、第48回下水道研究発表会、東京ビッグサイト、2011年7 月28日

4. 南雲 亮・三浦 隆治・鈴木 愛・坪井 秀行・畠山 望・高羽 洋充・宮本 明、「計算化学手法に よる医用高分子材料の耐バイオファウリング性能解析」、第 60 回高分子討論会、岡山大学、2011 年 9月 29日

5. 南雲 亮・三浦 隆治・鈴木 愛・坪井 秀行・畠山 望・高羽 洋充・宮本 明、「生体適合性ポリマ 一の表面修飾による膜ファウリング抑止機構の計算化学的解析」、化学工学会第43回秋季大会、 名古屋工業大学、2011年9月15日

6. 高羽 洋充・南雲 亮・三浦 隆治・鈴木 愛・坪井 秀行・畠山 望・宮本 明、「新規粗視化ポテ ンシャルによるベタイン型マテリアル表面へのタンパク質吸着に関する動力学シミュレーション」、 化学工学会第43回秋季大会、名古屋工業大学、2011年9月15日

7. 南雲 亮・三浦 隆治・鈴木 愛・坪井 秀行・畠山 望・高羽 洋充・宮本 明、「ベタイン系高分子 マテリアル表面におけるタンパク質吸着現象の分子動力学シミュレーション」、第 33 回日本バイオ マテリアル学会大会、京都テルサ、2011 年 11 月 22 日

8. 金子 弘昌、船津 公人、「Genetic Algorithm-based WaveLength Selection 法と Support Vector Regression を組み合わせた変数領域選択手法の提案」、日本コンピュータ化学会 2011 秋季年会、福井商工会議所、2011 年 11 月 4 日

9. 宇佐拓馬・赤松憲樹・中尾真一、「ポリアクリル酸ダイナミック膜を用いた簡便な脱塩システムの 長期安定性」、日本海水学会若手会第3回学生研究発表会、徳島大学工業会館、2012年3月 10. 古江隆明・韓芳・赤松憲樹・中尾真一、「Poly(2-methoxyethylacrylate)をプラズマグラフト重合

法により固定化したファウリング抑制膜の開発」、日本海水学会若手会第3回学生研究発表会、徳島大学工業会館、2012年3月5日

11. 三森啓太・吉野彰洋・赤松憲樹・中尾真一、「Zwitterionic ポリマーを用いたファウリング抑制膜の開発」、日本海水学会若手会第3回学生研究発表会、徳島大学工業会館、2012年3月5日

12. 平戸将道・今野浩徳・赤松憲樹・酒井裕司・長本英俊・中尾真一、「膜分離活性汚泥法における電場洗浄技術に関する研究」、日本海水学会若手会第3回学生研究発表会、徳島大学工業会館、2012年3月5日

13. 南雲 亮・三浦 隆治・鈴木 愛・坪井 秀行・畠山 望・高羽 洋充・宮本 明、「ポリマー膜表面 近傍における水分子のミクロダイナミクス解析」、化学工学会第77年会、工学院大学、2012年3月 16日

14. 金子 弘昌、船津 公人、「Support vector regressionを応用した変数領域選択手法の開発、 第 12 回計測自動制御学会制御部門大会、奈良県文化会館」、2012 年 3 月 14 日

15. 金子 弘昌、船津 公人、「ケモインフォマティックス手法を用いた膜分離活性汚泥法における膜差圧予測モデルの構築」、化学工学会第77年会、工学院大学、2012年3月17日

16. 成 敬模、金子 弘昌、船津 公人、「分散型膜分離活性汚泥法のための長期膜差圧予測 モデルの構築」、化学工学会第77年会、工学院大学、2012年3月17日

17. 三森啓太・吉野彰洋・赤松憲樹・中尾真一、Z「witterionic polymerを用いた anti-fouling ダイナ ミック膜の開発」、日本膜学会第34年会、早稲田大学国際会議場、2012年5月8日

18. 日高 政隆、 圓佛 伊智朗、武本 剛、舘 隆広、「オゾンマイクロバブルによるRO膜処理濃縮 水と余剰汚泥処理性能の実験的評価」、第49回下水道研究発表会、神戸国際会議場、2012年7 月25日

19. 五十嵐由美子、西村彩子、「ヒト正常細胞による水の慢性毒性評価」、第47回日本水環境 学会年会、大阪工業大学、2013年3月11日

20. 高羽洋充、瀬戸川浩、南雲亮、「膜材とタンパク質の相互作用解析に基づくファウリング耐性の評価」、日本膜学会第35年会、早稲田大学、2013年5月21日

21. 南雲亮、高羽洋充、「浄水膜の表面近傍における相互作用エネルギー計算」、分離技術会年会 2013、日本大学生産工学部、2013 年 5 月 24 日

22. 日高政隆、「オゾンマイクロバブル水処理装置における汚泥の浮上分離性能の評価」、第 50 回下水道研究発表会、東京ビッグサイト、2013 年 7 月 30 日

23. 赤松憲樹、米村恵子、中尾真一、「カルボキシメチルベタインポリマーの水和状態に塩が与える影響」、化学工学会第45回秋季大会、岡山大学、2013年9月16日

24. 大石隼人、金子弘昌、船津公人、「Membrane bioreactor における更新型長期膜差圧予測 モデルの開発」、化学工学会第45回秋季大会、岡山大学、2013年9月16日

25. 金子弘昌、船津公人、「膜分離活性汚泥法における膜差圧急上昇予測モデルの開発」、 日本コンピュータ化学会 2013 秋季年会、九州大学、2013 年 10 月 18 日

26. 赤松憲樹、米村恵子、中尾真一、「低ファウリング性付与を実現する膜面改質ポリマーの水和

構造」、膜シンポジウム 2013、京都府立医科大学、2013 年 11 月 7 日

27. 大石隼人、金子弘昌、船津公人、「Membrane bioreactor における長期的ファウリング予 測モデルの開発」、第36回情報化学討論会、筑波大学、2013年11月7日

28. 西村彩子、五十嵐由美子、「ビト正常細胞によるMBRおよびRO処理水の慢性毒性評価」、 第48回日本水環境学会年会、東北大学、2014年3月17日

29. 赤松憲樹、中尾真一、「水和構造に着目したファウリング防止膜の開発」、第63回高分子討論 会、長崎大学、2014年9月24日

30. 西村彩子、五十嵐由美子、森田穣、後藤正広、花本陽介「高機能水処理システムによる RO 処理水のとト正常細胞を使用した慢性毒性評価」、第 49 回日本水環境学会年会、金沢大学、2015 年 3 月 16 日

31. 金子弘昌、船津公人、数理モデルを活用した MBR における運転条件の最適化の検討、化学 工学会第80年会、芝浦工業大学、2015年3月20日

### (国際)

1. Kaneko, H., Funatsu, K., Classification of the Degradation of Soft Sensor Models and Discussion on Adaptive Models, TIChE International Conference 2011, Hatyai, Thailand, November 10, 2011

2. Kaneko, H., Funatsu, K., A Statistical Approach to Prediction of Transmembrane Pressure in Membrane Bioreactors, AIChE 2012 Spring Meeting, U.S.A., April 3, 2012

3. Takaba, H., Nagumo, R., Miura, R., Suzuki, A., Tsuboi, H., Hatakeyama, N., Miyamoto, A., Theoretical Assessing of Protein Antifouling Properties of Polymer Membranes, The 7th Conference of Aseanian Membrane Society (AMS 7), Busan, Korea, July 17, 2012

4. Takaba, H., Qi, X., Setogawa, H., Nagumo, R., Prediction of Membrane Fouling Properties Using Molecular Modeling Techniques, The 8th Conference of Aseanian Membrane Society (AMS 8), Xi'an, China, July 17, 2013

5. Usa, T., Akamatsu, K., Nakao, S., High-flux nanofiltration (NF) membranes prepared by dynamic forming method using poly(acrylic acid) and their durability, The 8th Conference of Aseanian Membrane Society (AMS 8) Xi'an, China, July 17, 2013

6. Akamatsu, K., Mitsumori, K., Yoshino, A., Nakao, S., Low-fouling membranes modified with copolymers of carboxybetaine and n-butylmethacrylate using dynamic forming method, The 8th Conference of Aseanian Membrane Society (AMS 8) Xi'an, China, July 18, 2013

7. Akamatsu, K., Okuyama, M., Mitsumori, K., Yoshino, A., Nakao, S., Surface modification of ultrafiltraion membranes with carboxybetaine-based polymers by dynamic forming method for obtaining low-fouling properties, The 7th IWA Specialized Membrane Technology Conference and Exhibition for Water and Wastewater Treatment and Reuse, Toronto, Canada, August 27, 2013

8. Kaneko, H., Funatsu, K., Model for Predicting Transmembrane Pressure Jump for Various Membrane Bioreactors, Engineering with Membranes Towards a Sustainable Future – EWM2013, France, September 5 2013.

9. Akamatsu, K., Mitsumori, K., Yoshino, A., Okuyama, M., Yonemura, K., Nakao, S., A Facile Surface Modification Method for Obtaining Low-Fouling Properties Using Carboxybetaine-Based Polymers, The 10th International Congress on Membranes and Membrane Processes, Suzhou, China, July 22, 2014

10. Takaba, H., Takahashi, Y., Molecular level understanding of polysaccharides fouling on NF/RO membranes, The 10th International Congress on Membranes and Membrane Processes, Suzhou, China, July 24, 2014

11. Kaneko, H., Funatsu, K., Application of Ensemble Online Support Vector Regression to the Prediction of Fouling in Membrane Bioreactors, 3W Expo 2015 + CPPE Expo 2015, Bangkok,

Thailand, January 31 2015

12. Oishi H., Kaneko, H., Funatsu, K., The development of widely applied long-term transmembrane pressure prediction model for membrane bioreactors, 3W Expo 2015 + CPPE Expo 2015, Bangkok, Thailand, January 31 2015

(3)ポスター発表 (国内会議 5件、国際会議 7件)

(国内)

1. 西村 彩子、五十嵐 由美子、ヒト正常細胞によるモデル汚染水の慢性毒性評価、第 46 回日 本水環境学会年会、東洋大学、2012 年 3 月 14-16 日

2. 金杉尚将、赤松憲樹、小池修、藤田昌大、中尾真一、SNAP-F を用いたデッドエンド濾過にお ける膜ファウリングシミュレーション、化学工学会3支部合同大会、岩手大学、2013年8月8日

3. 高橋佑輔、高羽洋充、「表面改質による耐ファウリング性水処理膜の理論設計」、第 62 回高分 子討論会、金沢大学、2013 年 9 月 13 日

4. 高橋佑輔、高羽洋充、「アルギン酸に対する各種水処理膜素材の耐ファウリング性理論評価」、 化学工学会第79年会、岐阜大学、2014年3月19日

5. 大石隼人、金子弘昌、船津公人、Membrane bioreactor における水質を考慮した更新型長 期膜差圧予測手法の開発、化学工学会第79年会、岐阜大学、2014年3月20日

6. 中島誠治、高羽洋充、「ポリマー表面上での水分子の静的構造および動的挙動に関する分子 論的研究」、化学工学会 第80年会、芝浦工業大学、2015年3月21日

(国際)

1. Akamatsu, K., Mitsumori, K., Han, F., Nakao, S., Delopment of fouling-suppression membranes from the viewpoint of the structure of water in the vicinity of membrane surfaces, International Congress on Membranes and Membrane Processes (ICOM 2011), Amsterdam, Netherlands, July 25 2011

2. Nagumo, R., Miura, R., Suzuki, A., Tsuboi, H., Hatakeyama, N., Endou, A., Takaba, H., Kubo, M., Miyamoto, A., The International Congress on Membranes and Membrane Processes (ICOM 2011), Amsterdam, Netherland, July 25, 2011

3. Furue, T., Han, F., Akamatsu, K., Nakao, S., Surface modification of microfiltration membranes with poly(2-methoxyethylacrylate) to obtain fouling-free membranes by the plasma graft polymerization method, The 7th Conference of Aseanian Membrane Society (AMS 7), Busan, Korea, July 5, 2012

4. Kaneko, H., Funatsu, K., Prediction model of transmembrane pressure jump for membrane bioreactor using physical and statistical approaches, Euromembrane 2012, London, U.K., September 2012

5. Takaba, H., Nagumo, R., Miura, R., Suzuki, A., Tsuboi, H., Hatakeyama, N., Miyamoto, A., Novel Atomic-scale Modeling Technique for Protein Fouling in Water Purification Membranes, Euromembrane 2012, London, U.K., September 26, 2012

6. Kaneko, H., Funatsu, K., Adaptive Soft Sensor Model Using Online Support Vector Regression and the Time Variable, AIChE Annual Meeting, U.S.A. November 4 2013.

7. Kaneko, H., Funatsu, K., Analysis of a Transmembrane Pressure (TMP) Jump Prediction Model for Preventing TMP Jumps, DESALINATION, FOR THE ENVIRONMENT, Limassol, Cyprus, May 2014

# 4. 知財出願

(1)国内出願

1. 膜処理設備、日高政隆、隅倉みさき、武本剛、陰山晃治、㈱日立製作所、2010/11/05、特願 2010-248348

2. 液体処理装置及び液体処理方法、日高政隆、隅倉みさき、武本剛、㈱日立製作所、

2011/06/23、特願 2011-138988

【本出願は平成26年6月13日登録】登録番号:特許第5558421号

3. 液体処理装置、日高 政隆、舘隆広、武本 剛、㈱日立製作所、2012/09/24、特願 2012-209565

4. 細胞を利用した水質評価法、西村彩子、五十嵐由美子、㈱日立製作所、2014/3/11、 P2014-048012

5. 膜分離活性汚泥処理装置及びその運転方法、花本陽介、森田穣、(株)日立製作所、 2014/6/16、特願 2014-123709

6. マイクロバブル応用水処理システムの制御方法およびシステム、圓佛伊智朗、日高政隆、武本 剛、㈱日立製作所、特許庁出願準備中(2015/4予定)

(2)海外出願

 
 1. 膜分離活性汚泥処理装置及びその運転方法、花本陽介、森田穣、(株)日立製作所、 2014/6/16、特願 2014-123709(上記(1)5. の案件について 2015/4 GCC 出願準備中)
 (3) プログラムの著作物

・長期 TMP 予測モデル構築プログラム

・長期 TMP 予測モデルを用いた長期 TMP 予測プログラム

・TMP jump 予測モデル構築プログラム

・TMP jump 予測モデルを用いた TMP jump 予測プログラム

・水処理システム運用計画最適化ツール

・IISS 遠隔監視システム外部端末ツール(国内使用試作品)

(4) データベースの著作物

該当なし

#### 5. 受賞·報道等

(1)受賞

1. 南雲亮、日本膜学会膜学研究奨励賞、 2013 年 5 月 21 日

2. 金子弘昌、平成 26 年度 化学工学会 研究奨励賞【内藤雅喜記念賞】、 2015 年 3 月 19 日 (2)マスコミ(新聞・TV等)報道 該当無し

(3)その他 該当無し

#### 6. 成果展開事例

(1)実用化に向けての展開

国内及び中国におけるMBR+NF/RO装置の運転データと、国内で実施してきている要素検討の組合せにより小規模分散型水再生システムを、特に海外において実用化する上で必要な設計諸元、並びに運用ツールと維持管理プロトコルが構築可能な見通しである。将来的な運用面については、国内検討で採用していたクラウドサーバー活用により、例として本研究課題の一つであるろ過圧予測技術をコンテンツとした運転支援システム構築も可能な見通しを得た。

(2)社会還元的な展開活動

2014 年 2 月にジャカルタにおいて、Application of Integrated Intelligent Satellite System (IISS) to Construct Regional Water Resources Utilization System と題したシンポジウムを開き、本 IISS の構築の為の進めてきた検討内容や成果について、広く成果の普及を行った。

(3)他分野への波及効果

本プロジェクトの中で開発した高いファウリング防止性を有する膜は、IISS で対象とする下排水処 理だけでなく、浄水分野や海水淡水化分野など、水処理分野全般に展開可能なものである。また とくにタンパクに対して極めて優れたファウリング防止性を示すことから、食品・医療分野におけるタ ンパク分離・精製・分画技術などにも展開できると考えている。さらにバイオマテリアル膜材料など へも展開可能と考える。

また、本プロジェクトを通して開発された MBR におけるファウリングを予測するモデルは、上水お

よび海水の膜ろ過におけるファウリング予測にも展開できる。

# §5.研究期間中の活動

## 1. 主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

本研究期間において、中尾チームは、下記の表に示すワークショップ、シンポジウム等の成果 の公開報告活動を行った。2014年の1月24日には、広大の都留チームと合同で、「CREST 合同 シンポジウム 水処理における膜ファウリングに関するシンポジウム」と題する公開合同シンポジウ ムを東大の弥生講堂にて主催した。本シンポジウムでは、Tsinghua University の Prof. Xia HUANG、Seoul National University の Prof. Chung-Hak LEE による、膜を用いた水処理技術に関 する先端的な研究成果に関する招待講演が行われた。本シンポジウムでは、領域総括、領域ア ドバイザー、中尾チームおよび都留チーム関係者、招待講演者等による活発な意見交換を行うこ とができた。2014年度も、中尾チームは、池田チーム、都留チームとの合同公開シンポジウムを 2015年3月9日に行った。

年月日	名称	場所	概要
2010年4月26日	サイトビジット	(株)日立プラントテクノロジー	·2009年度成果報告指摘
		松戸研究所	事項への対応報告、並び
			に意見交換
			・松戸研究所内研究設備
			の見学会
			※領域総括御出席
2012年1月12日	IISS シンポジウム	工学院大学	IISS 成果の公開報告
		新宿校	
2013年5月	サイトビジット	四川大学	・実証装置視察
10-13 日			・進捗報告と意見交換
			※領域総括御出席
2014年1月14日	ワークショップ	ジャカルタ	IISS 概要紹介
2014年1月24日	公開合同	東大	・中尾-都留チームによる
	シンポジウム	弥生講堂	合同公開シンポジウム
			・各チームの成果の公開
			報告
			※領域総括御出席
2014年6月5日	ワークショップ	ジャカルタ	IISS 概要紹介
2014年10月	ワークショップ	四川	IISS 概要紹介
11 日		(四川大)	
2015 年3月 9 日	公開合同	アルカディア市ヶ谷	・中尾-池田-都留チー
	シンポジウム	(私学会館)	ムによる合同公開シンポジ
			ウム
			・各チームの成果の公開
			報告
			※領域副総括御出席

表 主なワークショップ、シンポジウム等の活動一覧表

# §6. 最後に

当グループは、世界中で顕在化する水問題を解決するためには、地域規模で生活排水を適切 に処理し、かつ処理水を有効活用(①水不足対策のために生活用水として活用 ②地球温暖化対 策のために河川流量維持水や親水利用として活用)することが、大きな効力を発揮すると考えた。 そこで、新規開発した低ファウリング膜を組み込み複数の膜技術を統合した革新的な水処理シス テムを開発して地域内に分散配置し、処理水を有効活用しやすい環境を作るだけでなく、これに 成熟度の高い自然エネルギー活用技術や、個々の施設を有機的につなぐ情報管理技術を融合し、 全く新しい独創的な地域水資源利用システム「Integrated Intelligent Satellite System (IISS)=水・エ ネルギー・情報を融合したサテライトシステム」の構築に必用な、設計諸元化、運用方法のデザイ ン等を進めてきた。この研究期間内には、社会の環境も大きく変わり、例えば IT とエネルギーに関 する技術や環境は、本研究テーマの提案時から大きく変化した。本グループは、こうした変化に柔 軟に対応し、運転支援技術の確立(情報管理技術との統合化)に関しては、(株)日立製作所のク ラウドサーバー環境を利用した遠隔監視の評価などを実施した。また、自然エネルギーと蓄電技術 との統合についても、NaS 電池をUPSとして活用する上での仕様をまとめ、社会の変化に合わせて 柔軟に対応するように務めた。

本研究終了後も、引き続き IISS の適用形態や適用先を拡張した、より高い実用性を有する水処 理システムの構築を進めたいと考えている。