

京都大学	博士（工 学）	氏名	朴 駿遠（パク ジュンウォン）
論文題目	Removal Characteristics and Predictive Model of Pharmaceutical and Personal Care Products (PPCPs) in Membrane Bioreactor (MBR) Process (膜分離活性汚泥法における残留医薬品類の除去特性と予測モデルの開発)		
本論文は、膜分離活性汚泥法（MBR）における医薬品類の除去特性を把握するとともに、MBR の除去機構を解明し、その知見に基づいて予測モデルの開発を行ったものであって、8 章から成っている。 第 1 章は序論であり、本研究の位置づけ、研究目的と本論文の構成について述べている。 第 2 章は、本研究の背景を詳細に示すとともに、先行研究と比較することで本研究の新規性と有用性を示している。水環境中で検出されている医薬品類は世界的に注目されているが、現在多くの下水処理場に適用されている活性汚泥法 (AS) では十分に除去されないまま放流されているものが多く、環境影響が懸念されている。また、MBR は、これまでの導入事例から AS よりも有機物や栄養塩類の除去性能が優れていることが分かっているが、MBR の医薬品類の除去性能や除去機構の知見は不十分であることを明らかにした。 第 3 章は、韓国における現地調査により、下水処理過程における医薬品類の存在実態と挙動を明らかにするとともに、MBR と AS による医薬品類の除去性能の違いを明らかにするため、韓国における現地調査と小型の MBR 処理実験から、医薬品類の下水処理での物質収支を把握した。その結果、流入下水中に高濃度で検出されている acetaminophen、caffeine、theophylline、naproxen 等は MBR、AS とともに 90%以上の高い除去率を示し、調査した他の多くの医薬品類は、MBR の方が AS より大きな除去率を示すものが多くあった。また物質収支の結果から、AS よりも MBR の方が高い除去率を示す理由として、活性汚泥への吸着による汚泥引抜き効果よりも生分解機能が優れていることにあることを明らかにした。 第 4 章は、MBR にキトサンやポリ塩化アルミニウム（PAC）の凝集剤を添加することで膜ファウリングと膜透過性の改善の有無を評価した。MBR 反応槽に凝集剤を添加した場合は、添加した凝集剤により活性汚泥のフロックサイズが増大するとともに、膜ファウリングの原因である細胞外高分子物質（EPS）や溶解性微生物代謝物（SMP）、膜表面のケーキ層の無機成分が減るため、膜ファウリングの抑制と膜ろ過速度が改善できることを確認できた。また、凝集剤による医薬品類の除去の改善性を検討した結果、PAC（20 mg/L）はキトサン（10 mg/L）よりも数種類の医薬品類では高い除去率を示した。また pH が 7 付近では、凝集剤添加により、水中の医薬品類は、活性汚泥との固液分配係数に大きな変化が見られなかったため、医薬品類の活性汚泥への吸着による除去効果は、凝集剤の添加では大きくは変わらないことが確認された。一方、PAC 添加の有無での医薬品類の物質収支を比較した結果、凝集剤を添加した場合に生分解性が高まる医薬品類があることが分かった。またその時の活性汚泥の呼吸速度も上昇していた。これらのことから、PAC を添加することで活性汚泥の生物活性が上昇することが理由と			

京都大学	博士（工 学）	氏名	朴 峻遠（パク ジュンウォン）
して考えられた。 第5章は、45種の医薬品類に関して除去メカニズムを究明するため、ASとMBRの活性汚泥を用いた回分実験を行い、吸着と生分解の機構をモデル式で表現し、医薬品類ごとにその除去特性を定量的に把握した。その結果、これらの医薬品類の用途ごとに除去特性が類似していた。また、水中の医薬品類の活性汚泥への分配係数や物質移動係数、単位活性汚泥量（MLSS）当たりの生分解速度は、ASとMBRには有意な差が見られなかった。このことから、反応槽内のMLSS濃度が高い要因により、MBRの方が、ASよりも生分解性が高まることで、医薬品類の除去率が改善することを明らかにした。 第6章は、MBRの汚泥滞留時間（SRT）が変化した場合に、従属栄養細菌（HET）による代謝とアンモニア酸化細菌（AOB）や亜硝酸生成細菌（NOB）による共代謝による医薬品類の生分解の寄与を回分実験により評価した。caffeine、theophylline、fenoprofen、bezafibrate等の分解しやすい物質はSRTの変化では大きな差は見られなかったが、naproxen、DEET、indometacin、sulfathiazole等の物質はSRTが長くなると生分解の寄与が大きくなることを明らかにした。硝化阻害を起こすと医薬品類の除去率に大きく影響することから、硝化細菌の共代謝の効果も大きい医薬品類があり、医薬品類の種類によって除去に関与するHET、AOB、NOBの細菌群の寄与率が異なることが確認された。 第7章は、5章と6章で得られた医薬品類の除去機構に基づいて、MBRでの医薬品類の除去モデルを開発した。また日本国内のMBRパイロットプラントで得られている運転条件と医薬品類の除去率のデータを使って、MBRの運転条件と除去率の関係を主成分分析で重要な因子を検討した。この結果、水温が重要な物質群、MLSS濃度が重要な物質群が見いだされた。開発したモデルで除去率を予測した結果、bezafibrate、ketprofen、frusemide、naproxenは、予測値と実験結果が一致した。このことから生分解性や汚泥への吸着が大きい医薬品類は、開発したモデルでMBRでの除去率は予測可能であることが明らかとなった。また、propranolol、diltiazem、sulfathiazole、licomycin、sulfamethoxazoleの除去率は、AOBの増殖と硝化反応による共代謝を考慮したモデルで予測可能であり、MBRでは硝化細菌による共代謝が、従属栄養細菌による代謝よりも生分解に寄与していることが示唆された。 第8章は、本研究の結論である。			

(論文審査の結果の要旨)

水環境中で検出されている医薬品類は世界的に注目されているが、現在多くの下水処理場に適用されている活性汚泥法(AS)では十分に除去されずに放流されているものが多く、環境影響が懸念されている。膜分離活性汚泥法(MBR)は、ASよりも有機物や栄養塩類の除去性能が優れていることが分かっているが、MBRの医薬品類の除去性能や除去機構の知見は不十分である。本研究は、ASとMBRにおける医薬品類の除去特性を比較するとともに、MBRの除去機構を解明し、それに基づいた予測モデルの開発を行ったものであり、得られた成果は以下のとおりである。

1) MBRとASによる医薬品類の除去性能と挙動を解明するため、現地調査とMBR処理実験を行い、物質収支をとった結果、MBRはASよりも多くの医薬品類で高い除去率を示し、除去機構として吸着による汚泥引抜きよりも生分解能が優れていることに起因していることを示した。

2) MBRに凝集剤(キトサン、PAC)を添加する場合は、添加しない場合よりも膜ファウリングの低減が可能であり、医薬品類の除去性も改善することを明らかにした。この原因として、凝集剤添加により、溶解性微生物代謝物と膜表面のケーキ層の無機成分が減ることでファウリングが低下すること、生物活性が上昇することが理由として考えられた。

3) 医薬品類の除去メカニズムを究明するため、ASとMBRの活性汚泥を用いた回分実験を行い、医薬品類の除去特性の分類を行った。この実験結果から、医薬品類の活性汚泥への分配係数や物質移動係数、単位活性汚泥量(MLSS)当たりの分解速度は、ASとMBRには有意な差がないが、MBRの方がASよりもMLSS濃度が大きいいため、除去率が改善することを明らかにした。

4) MBRの汚泥滞留時間(SRT)の変化による従属栄養細菌と硝化細菌による医薬品類の生分解性を回分実験により評価した。この結果、MBRのSRTが長くなると、従属栄養細菌による代謝と硝化反応による共代謝のため、医薬品類の除去率が大きくなることを示した。

5) MBRでの医薬品類の除去モデルを作成し、運転条件による除去率を予測し、パイロットスケールのMBR実験と比較した結果、この除去モデルでMBRでの医薬品類の除去率は予測可能であること、MBRでは硝化細菌による共代謝が従属栄養細菌による代謝よりも生分解に寄与していることを示した。

本論文は、MBRにおける医薬品類の除去特性を把握するとともに、予測モデルの開発及び評価を行ったものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成28年8月3日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。

要旨公開可能日：2016年12月23日以降