〈論 文〉

藻類が生産する有機物質による限外濾過膜のファウリング

金 忠 煥* 細 見 正 明*
岡 田 光 正** 村 上 昭 彦*

Characterization of Fouling Potential with Algogenic Organic Matter in Ultrafiltration

Chung Hwan KIM*, Masaaki HOSOMI*,
Mitumasa OKADA** and Akihiko MURAKAMI*

* Department of Chemical Engineering, Tokyo University of Agriculture and Technology, 2-24-16, Koganei-shi, Tokyo 184 Japan

** Department of Environmental Science, Hiroshima University, 1-4-1, Kagamiyama, Higashihiroshima-shi, Hiroshima 724 Japan

Abstract

The effects of clay on the fouling due to algogenic organic matter in the cross-flow ultrafiltration (MWCO 50,000, polysulfone, 100 kPa) were evaluated by algal cells, intercellular organic matter (IOM), extracellular organic matter (EOM) and anaerobic and aerobic decomposition products of algae in the presence of clay. The algae selected in this study were *Microcystis aeruginosa*, *Chlorella pyrenoidosa* and *Melosira granulata*. Algae was taken by plankton nets in Lake Tsukui in order to obtain anaerobic and aerobic decomposition of algae products. The kaolin was used as clay in this study. The flux of dispersions containing algal cells decreased with an increase in the cells number of algae, but increased with coexistence of kaolin. The flux of dispersions containing EOM and microbial decomposition products decreased with the increase of the fraction of organic matter having molecular weight more than molecular weight cut-off (MWCO) of membrane.

The flux of dispersions containing these organic substances with coexistence of kaolin decreased with the increase of the amount of kaolin, but they had nothing to do with their molecular weight distribution. The flux of dispersions containing IOM was not affected by the coexistence of kaolin

Key words: ultrafiltration, fouling, intercellular organic matter, extracellular organic matter, decomposition products of algal cells

1. はじめに

浄水処理に分離膜を取り入れる研究は、主に限外濾過膜および精密濾過膜中心に進められている^{1)~2)}。水道原水には無機物、低、高分子の有機物質のような溶存

性物質およびコロイド性の粘土性物質、さらに懸濁性である藻類細胞等が存在し、膜濾過の際これらの物質が膜に吸着および蓄積し、膜透過フラックスに影響を及ぼすと考えられる。

特に湖水を原水として利用する場合、植物プランク

* 東京農工大学工学部物質生物工学科 〒184 小金井市中町2-24-16

** 広島大学工学部環境基礎学講座 〒724 広島市鏡山1-4-1

トンのような有機性懸濁物質、藻類が生産する代謝産物（細胞外有機物質：Extracellular Organic Matter 以下 EOM と略す、細胞内有機物質：Intercellular Organic Matter 以下 IOM と略す）、さらに死んだ藻類細胞の微生物による分解産物等が、膜透過フラックスに大きな影響を及ぼすと考えられる^{3)~11)}。しかしながら、自然水を対象にした膜のファウリングの研究は、主に河川水を念頭において、モデル物質としてコロイド性である粘土性物質と溶存性有機物質を中心に研究されてきた^{12)~17)}。

本研究では、富栄養湖の原水を対象として、藻類粒子ならびに藻類が生産する有機物質、さらに微生物による藻類細胞の分解産物が膜ファウリングに及ぼす影響について検討した。また、これらの物質が粘土粒子と共存する場合、膜透過フラックスに及ぼす影響についても検討した。

2. 実験方法および実験装置

2.1 藻類の培養方法および培養条件

藻類としては *Microcystis aeruginosa*（藍藻類）および *Chlorella pyrenoidosa*（緑藻類）さらに *Melosira granulata*（珪藻類）の3種類を用いた。これらの株は国立環境研究所微生物系統保存施設より提供を受けた。藻類の培養には1 lの三角フラスコおよび10 lのガラス製の完全混合培養装置を用いた。培養条件は照度2,500 lx（24時間照射）、温度は25°Cとした。また *M. aeruginosa* と *M. granulata* は静置培養で、*C. pyrenoidosa* は無菌空気曝気しながら培養した。*M. aeruginosa* の培養には Gorham 5 倍希釈培地¹⁸⁾を、*C. pyrenoidosa* の培養には MC 5 倍希釈培地¹⁹⁾を、*M. granulata* の培養には珪素を10倍濃くした M Chu No. 10 培地²⁰⁾を用いた。

2.2 藻類細胞の微生物分解実験

藻類細胞は津久井湖から水の華が形成した1993年8月にプランクトンネットを用いて採集した。顕微鏡で同定した結果、優占種として藍藻類の *Microcystis* sp. が確認された。分解培地は1/30M KH₂PO₄およびNa₂HPO₄を含んだ培地をpH7.5に調整し用いた^{21)~22)}。

分解は3.5 lの培養ビンに3 lになるよう培地、藻類細胞を加え行い、連続的に攪拌しながら20°Cに維持した。

また、好気分解は600 ml・min⁻¹の空気をフィルター（日本ミリポア製、孔径：0.1 μm）でろ過し、通気した。嫌気分解は密閉式に行った。

2.3 藻類の細胞内外有機物質および微生物分解産物の濃度測定

藻類が生産するEOM、IOMおよび藻類細胞の嫌

気、好気分解産物は次のように測定した。培養液をポアサイズ0.45 μmのメンブランフィルターでろ過したろ液中の有機物質をEOMとした。また、メンブランフィルター上の藻類細胞を各々の培地で3回繰返し洗浄を行い、超音波破砕器（40W、3分）で破壊し²³⁾、メンブランフィルターでろ過したろ液中の有機物質をIOMとした。藻類細胞の好気および嫌気分解産物は、分解液をメンブランフィルターでろ過し、ろ液を分解産物として用いた。これらの濃度は溶存有機炭素として求め、さらに糖およびタンパク質の濃度も測定した。

2.4 藻類の細胞内外有機物質および微生物分解産物の分子量測定

藻類のEOM、IOMおよび微生物分解産物の分子量分画には限外ろ過膜を用いた^{24)~26)}。

限外ろ過膜（東洋ろ紙製、ポリスルホン、直径：76 mm）の分画分子量は1万、5万の2種類の膜を用いた。膜モジュール（ADVANTEC社、UHP-76）は、膜透過フラックスの測定に用いたものと同様に攪拌式を用いて行った。分画条件は圧力100 kPa、pH7.5であった。

2.5 粘土性物質

粘土性物質としては市販のカオリン（0.1~4 μm、Al₂O₃38.5%、SiO₂45.4%、Sigma社）を用いた。濃度を10および30 mg・l⁻¹に調整し、マグネティックスターラーで24時間攪拌したものを原液とした。

2.6 膜透過フラックスの測定

実験装置の概要はFig. 1に示す。各々の試料はカオリン、藻類粒子、EOM、IOM、藻類細胞の好気、嫌気分解産物および超純水（日本ミリポア社、MILLI-Q Labo）を3.5 lのタンクに3 lになるよう所定の濃度に調整した。試料タンクは密閉式とし、窒素ボンベよりガスを一定の圧力（100 kPa）で供給してろ過圧力を確保した。また、膜モジュールと試料タンク間は、定量ポンプ（古江サイエンス社、Peristaltic-pump）を用いて試料を定流量（0.25 l・min⁻¹）で循環しながら実験を行った。

膜の透過水量は電子天びん（島津製作所、EB3200H）を用いて重量法で測定した。膜分離装置は攪拌子が付いているクロスフローろ過形式（ADVANTEC社、UHP-76）を用いた。攪拌子はマグネティックスターラーを用いて700 rpmの速度で回転させた。

利用した膜はポリスルホン製の限外ろ過膜（ADVANTEC社製、分画分子量：50,000）で、直径76 mm、膜のろ過有効面積は38.5 cm²である。膜は利用する前に純水で十分に洗浄し、さらに膜透過フラックスを測定する前に純水を50 ml透過させた。水温は1時間までには差がないことや、超純水と試料との差が

Fig. 1 Schematic diagram of experimental UF unit
1. Cylinder (Nitrogen gas), 2. Sample tank, 3. Peristaltic pump, 4. UF module, 5. Magnetic stirrer, 6. Electronic balance

なかったため温度補正は行わなかった。

膜透過フラックスの経時変化、すなわち膜のファウリングの評価は以下のように表した。

F/F_w = ある時刻における試料の膜透過フラックス /
新膜の初期純水の膜透過フラックス
 $(F/F_w)_{60}$ = 60分における F/F_w

有機物質の濃度は、DOC として $0.25 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ とし、さらに濃度を10倍高くし $2.5 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ の場合についても実験した。特に藻類細胞による膜透過フラックスの測定は、純水を利用する場合は粒子が水の浸透圧によって破壊される可能性があることから、無機塩が入っている水（各々の培地）を用いて膜透過フラックスを測定した。

2.7 測定項目

藻類の濃度は、血球計算盤（菱垣医理工科工業，THOMA，JHS）を用いて細胞数の計数によって求めた。溶存有機炭素は、TOC 計（島津製作所，TOC-500 型）を用いて測定した。タンパク質の濃度は、プロテインアッセイキット（パイオランド社）法に従って定量した。さらに、糖の濃度はフェノール硫酸法²⁷⁾によって定量した。

3. 結果および考察

3.1 藻類の増殖曲線と分子量分画

M. aeruginosa, *C. pyrenoidosa* および *M. granulate* の増殖曲線および培養液中の DOC, 糖の濃度をそれぞれ Fig. 2 に示す。

藻類細胞の増殖は約10日間の増殖期を経た後、約20日目に最大になりその後減少した。このことより、*M. aeruginosa* は培養開始から10日目、18日目、32日目の培養液を、*C. pyrenoidosa* は10日目、20日目、32日目の培養液を、また、*M. granulate* は9日目、21日目、

Fig. 2 Changes with time of cells number and of DOC, saccharide concentration in batch cultures of the algae

—■— DOC —□— Saccharide

32日目の培養液を各々増殖期 (L: logarithmic phase), 定常期 (S: stationary phase), 減衰期 (D: decline phase) とし、分子量分画および膜透過フラックスの測定に用いた。

藻類の EOM および IOM の分子量分布を Fig. 3 に示す。EOM は増殖期, 定常期, 減衰期について, IOM は定常期の *M. aeruginosa*, *C. pyrenoidosa* について分子量分布を調べた。*M. aeruginosa*, *C. pyrenoidosa* の EOM の分子量は, 分画分子量 5 万より大きい分布が増殖期間の経過により増加する傾向を示した。しかし, *M. granulate* は増殖期間に関係なく有機成分の分子量がほとんどが 5 万以下を示し, 特に定常期には増殖

Fig. 3 Molecular weight distributions of DOC in algal extracellular organic matter (EOM), intercellular organic matter (IOM) and DOC in microbial decomposition products of algal cells

L: logarithmic phase, S: stationary phase, D: decline phase,

30, 60, 90: 30 day, 60 day, 90 day

■ MW > 50,000 □ 10,000 < MW < 50,000 ▨ MW < 10,000

期および減衰期より5万以上の有機成分が大きい割合を示した。IOMの分子量分布はEOMより狭い分布を示し、ほとんどが分子量5万以下の割合を示した。

3.2 膜透過フラックスに及ぼす藻類細胞、細胞内有機物質および細胞外有機物質とカオリンの共存の影響

3.2.1 藻類細胞

M. aeruginosa (3~4 μm) および *C. pyrenoidosa* (5~6 μm) の定常期の細胞については1 ml 当たり10,000個にし、さらに100,000個の場合も加え調整し、これらについて測定した膜透過フラックスをFig. 4に示す。藻類細胞により膜透過フラックスが減少し、さらに細胞の数が多いほど膜透過フラックスの減少率が大きくなった。

藻類細胞とカオリンの懸濁液の膜透過フラックスは、カオリン30mg・ l^{-1} と共存することにより増加が見られた。藻類細胞100,000個・ ml^{-1} とカオリンの共存による膜透過フラックスの増加は *M. aeruginosa* は16%, *C. pyrenoidosa* は約12%であった。なお、カオリンのみが30mg・ l^{-1} の場合、膜面に蓄積してケーキ層は形成するが1時間における膜透過フラックスは減少しなかった¹⁷⁾。藻類細胞はカオリン粒子と比較して、平

Fig. 4 Flux decline after 60 minutes in ultrafiltration of algal cells (each $\cdot ml^{-1}$ + Kaolin 30 $mg \cdot l^{-1}$)

▨ 10,000 ■ 100,000
□ 10,000 + K30 ▨ 100,000 + K30

均サイズは大きい、膜透過フラックスの減少率は大きかった。このようにカオリンの共存による膜透過フラックスの増加は、カオリンのケーキ層への蓄積および膜面に蓄積する藻類細胞の量がカオリンにより制限されるためと考えられる。

3.2.2 藻類の細胞内有機物質

定常期の *M. aeruginosa*, *C. pyrenoidosa* の IOM および IOM とカオリンの混合液の膜透過フラックスを Fig. 5 に示す。*M. aeruginosa* および *C. pyrenoidosa* の IOM $0.25\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ による膜透過フラックスは各々 20, 12% 減少した。有機物質の分子量と膜の分画分子量との相関関係が有機物質による膜透過フラックスの減少に及ぼす影響について、Kim et al.¹⁷⁾ はファウリング物質の分子量の大きさが膜の分画分子量より小さい場合には、大きい場合より膜透過フラックスの減少率が小さくなると報告した。このように *M. aeruginosa* の IOM が、*C. pyrenoidosa* の IOM より膜透過フラックスの減少率が大きいのは、Fig. 3 に示すように *M. aeruginosa* の方が分子量の大きい割合が多いためであると考えられる。

IOM $0.25\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ とカオリンの共存は、IOM による膜透過フラックスの減少には影響を及ぼさなかった。これはほとんどの分子量が分画分子量より小さいた

Fig. 5 Flux decline after 60 minutes in ultrafiltration of algal IOM

■ 0.25 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$
 ▨ 0.25 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ + Kaolin 10 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$
 ▩ 0.25 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ + Kaolin 30 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$

Fig. 6 Flux decline after 60 minutes in ultrafiltration of algal EOM (L: logarithmic phase, S: stationary phase, D: decline phase)

■ 0.25, 2.5 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$
 ▨ 0.25, 2.5 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ + Kaolin 10 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$
 ▩ 0.25, 2.5 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ + Kaolin 30 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$

め、膜面に蓄積する量が少ないためであると考えられる¹⁷⁾。

3.2.3 藻類の細胞外有機物質

藻類のEOMおよびEOMとカオリン混合液の膜透過フラックスをFig. 6に示す。*M. aeruginosa*のEOM $0.25\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ および $2.5\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の膜透過フラックスは濃度が高いほど、さらに増殖期間の経過により減少率が大きくなった。*C. pyrenoidosa*は、*M. aeruginosa*と同様に、増殖期間の経過により膜透過フラックスの減少率が大きくなったが、*M. granulate*は、定常期が増殖期および減衰期より膜透過フラックスの減少率が大きい傾向を示した。このように増殖期間の違いにより膜透過フラックスの減少率が異なった。Fig. 3に示すように、分子量の分布が増殖期間の違いにより異なり、膜の分画分子量5万より大きい分子の割合が大きい場合に膜透過フラックスの減少率が大きくなった。

EOMとカオリン混合液の膜透過フラックスは、EOMの膜透過フラックスより減少しており、カオリンの濃度が $10\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ から $30\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に増加することにより、膜透過フラックスの減少率が大きくなった。

*M. aeruginosa*の減衰期のEOMを分画分子量1万(東洋汙紙製、材質：ポリスルホン)の限外濾過膜で分画し、濾液のEOM $0.25\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ についてカオリン $30\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ との共存の影響を調べた結果をFig. 7に示す。

Fig. 7 Flux decline after 60 minutes in ultrafiltration of EOM and anaerobic decomposition products of algal cells (*M. aeruginosa*)

■ 0.25 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ (MWCO 10,000 cut)
 ▨ 0.25 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ + Kaolin 30 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ (MWCO 10,000 cut)
 (Anaerobic decomposition products, 150 day)
 ▩ 0.25 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ (MWCO 10,000 cut)
 ▪ 0.25 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ + Kaolin 30 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ (MWCO 10,000 cut)

EOMの分子量は分画分子量5万より小さいものであるが、カオリンの共存による膜透過フラックスはEOMのみの場合より減少した。

EOM $0.25\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の膜透過フラックスは、Fig. 10に示すように、膜の分画分子量5万より大きい分子の割合が大きいほど減少率が大きくなる傾向を示した。

このように藻類のEOMによる膜透過フラックスは、藻類の種類に関係なく、分画分子量より大きい分子が増加することにより減少率が大きくなった。さらにカオリンとの共存による膜透過フラックスは、Fig. 10に示すように藻類の種類、分子量分布に関係なく減少率が大きくなった。

EOMは陰イオンポリマーの特性を有して、コロイドに付着し、負の荷電量を増加させると報告されている²⁸⁾。従って、EOMはフミン酸^{29),30)}のようにカオリン粒子間の安定性が増加して凝集阻害が生じるために分子量の大きさに関係なく膜透過フラックスが減少すると考えられる。

3.3 藻類細胞の分解産物と分子量分画

津久井湖から採取した藻類細胞を、好気および嫌気状態で微生物により分解させ、分解産物中のDOC、タンパク質および糖の濃度を測定した。Fig. 8に経時変化を示す。藻類細胞の微生物による分解産物は、90日までの30日毎に、分解液の分子量分画および膜透過フラックスの測定を行った。DOCの濃度は時間の変化によって徐々に増加し、90日目には好気分解が $32.5\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、嫌気分解は $270.2\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ となり、嫌気分解産物が好気分解産物より高い傾向を示した。タンパク質および糖の濃度は、嫌気分解が好気分解より高い傾向を示し、さらに90日目には糖がタンパク質の濃度より高くなった。

Fig. 8 Changes of concentration with time of decomposition products in microbial decomposition of algal cells

■ DOC □ Saccharide
 ○ Protein

分解産物の分子量分画は、Fig. 3 に示すようにほとんどの場合、分画分子量 5 万より大きい分子量の割合が 50% 以下であり、分解時間が経過することによってその割合が減少する傾向を示した。さらに同じ時間を比べると、嫌気分解産物が好気分解産物より 5 万以下の小さい分子の割合が大きくなった。

3.4 膜透過フラックスに及ぼす藻類細胞の分解産物とカオリンの共存の影響

藻類の嫌気、好気分解産物および分解産物とカオリンの混合液の膜透過フラックスを Fig. 9 に示す。

分解産物の膜透過フラックスは、30 日目から 90 日目までに溶存有機物の濃度に関係なく、時間の経過に伴い膜透過フラックスの減少率が小さくなった。これは Fig. 3 に示したように、膜の分画分子量 5 万より大きい分子の割合が、嫌気および好気分解の場合、各々 30 日目には 44%, 58%, 90 日目には 31%, 33% になったように時間の経過とともに減少したためと考えられる。

分解産物とカオリンの混合液の膜透過フラックスは、分解産物より減少率が大きくなり、カオリンの濃度が $10\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ から $30\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に増加することにより大きくなった。このように分解産物がカオリンとの共存により膜透過フラックスの減少が大きくなるのは、3.2.3 の EOM、およびフミン酸と同じような特性を持つためと考えられる^{29)~30)}。

さらに分解産物とカオリン混合液の膜透過フラックスについて分子量の影響を把握するため、Fig. 7 に示すように *M. aeruginosa* と同様な実験を行った。その結果、分解産物の膜透過フラックスは、分子量が膜の分画分子量より小さかったが、カオリンが共存することにより膜透過フラックスの減少率が大きくなった。このことよりカオリンの共存による膜透過フラックスの減少は、EOM と同じく分子量分布の影響がないことがわかった。

このように藻類分解産物の膜透過フラックスは、分解特性に関係なく、Fig. 10 に示すように分子量の割合が膜の分画分子量 5 万より大きいほど、減少率が大きい傾向を示すことから、分子量の影響を受けることがわかった。しかし、カオリンが共存すると膜透過フラックスは、Fig. 10 に示すように、分解特性および分子量の分布に関係なく、分解産物のみの場合より減少率が大きくなった。このような結果から、分解産物とカオリンの共存による膜透過フラックスの減少率が大きくなるのは、前述のようにカオリン粒子の安定性の増加が一つの原因であることが示唆される。

Fig. 9 Flux decline after 60 minutes in ultrafiltration of microbial decomposition products of algal cells

■ 0.25, 2.5 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$
 ▨ 0.25, 2.5 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ + Kaolin $10\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$
 ▤ 0.25, 2.5 DOC $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ + Kaolin $30\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$

4. 結 論

富栄養湖の原水を対象にし、浄水処理のため限外ろ過する際の膜ファウリング特性を把握するため、藻類の粒子、藻類が生産する有機物質および藻類の微生物分解産物と、これら各々の物質と粘土性物質との共存が膜透過フラックスに及ぼす影響について検討した。その結果、得られた結論は以下の通りである。

1) 藻類粒子は膜透過フラックスを減少させるが、

Fig. 10 Relation between the flux after 60 minutes and DOC fraction of molecular weight larger than MWCO 50,000 in molecular weight (MW) of EOM and algal decomposition products 0.25 DOC mg·L⁻¹ 2.5 DOC mg·L⁻¹

□ *M. aeruginosa* ● Anaerobic decomposition
 ■ *C. pyrenoidosa* ○ Aerobic decomposition
 □ *M. granulate*
 with Kaolin 30 mg·L⁻¹
 ■ *M. aeruginosa* ● Anaerobic decomposition
 ■ *C. pyrenoidosa* ● Aerobic decomposition
 □ *M. granulate*

カオリンが共存することにより膜透過フラックスは増加した。

2) 藻類の細胞内有機物質は膜透過フラックスを減少させ、カオリンの共存は膜透過フラックスには影響を及ぼさなかった。

3) 藻類の細胞外有機物質は膜透過フラックスを減少させ、カオリンの共存により膜透過フラックスの減少が促進された。

4) 藻類細胞の微生物による嫌気および好気分解産物は膜透過フラックスを減少させ、カオリンが共存すると膜透過フラックスの減少が促進された。

5) 藻類の細胞外有機物質および分解産物について、分子量分布と膜透過フラックスの関係は、膜の分画分子量より大きい割合が増加することにより膜透過フラックスの減少率が大きくなった。しかし、カオリンが共存すると膜透過フラックスは分子量の分布に関係なく減少率が大きくなった。

(原稿受付 1994年10月3日)

(原稿受理 1994年12月12日)

参考文献

- 1) 真柄泰基, 国包章一 (1992) 水道浄水技術開発の課題と展望, 用水と廃水, 34, 243-249.
- 2) AWWA Membrane Technology Research Committee

(1992) Committee report, Membrane processes in potable water treatment, *Journal of American Water Works Association*, 84, 59-67.

- 3) Clack, M.M. and Heneghan, K.S. (1991) Ultrafiltration of lake water for potable water production, *Desalination*, 80, 243-249.
- 4) 田井慎吾, 松重一夫 (1988) 限外濾過法による富栄養化湖水の浄化に関する実験研究, 水処理技術, 29 (5), 15-23.
- 5) Hama, T. and Handa, N. (1980) Molecular weight distribution and characterization of dissolved organic matter from lake water, *Arch. Hydrobiol.*, 90, 106-120.
- 6) Hama, T. and Handa, N. (1983) The seasonal variation of organic constituents in a eutrophic lake, Lake Japan Part II. Dissolved organic matter, *Arch. Hydrobiol.*, 98 (4), 443-462.
- 7) Zumstein, J. and Buffle (1989) Circulation of pedogenic and aquagenic organic matter in eutrophic lake, *Water Research*, 22, 229-239.
- 8) Sundh, I. (1989) Characterization of phytoplankton extracellular products (PDOC) and their subsequent uptake by heterotrophic organisms in a mesotrophic forestlake, *Journal of Plankton Research*, 11, 463-486.
- 9) Hama, T. and Hanada, N. (1987) Pattern of organic matter production by natural phytoplankton in a eutrophic lake (2. Extracellular products), *Arch. Hydrobiol.*, 109, 227-243.
- 10) Suido, R., Ohtake, H., Aiba, S. and Mori, T. (1978) Some ecological observation on the decomposition of periphytic algae and aquatic plants, *Water Research*, 12, 179-184.
- 11) Fallon, R.D. and Brock, T.D. (1979) Decomposition of blue-green algal (Cyanobacterial) blooms in lake Mendota, Wisconsin, *Applied and Environmental Microbiology*, 37, 820-830.
- 12) Wiesner, M.R., Clark, M.M., Associate Members, ASCE and Mallevialle, J. (1989) Membrane filtration of coagulated suspensions, *Journal of Environmental Engineering*, 115, 20-40.
- 13) 金忠煥, 細見正明, 村上昭彦, 岡田光正 (1994) 限外濾過膜の有機物質によるファウリングに及ぼす粘土性共存物質の影響, 水環境学会誌, 17, 587-595.
- 14) Lahoussine-Turcaud, V., Wisner, M.R. and Bottero, J.Y., (1990) Fouling in tangential flow ultrafiltration: The effect of colloid size coagulation pretreatment, *Journal of Membrane Science*, 52, 173-179.
- 15) Bersillon, J.L. (1989) Fouling and analysis, in Futhure Industrial Proctests of Membranes Processes (L. Cecille and J.C. Toussaint, ed.), pp2-34, Elsevier Sci., Amsterdam, the Netherlands.
- 16) Lahoussine-Turcaud, V., Wisner, M.R., Bottero, J.Y. and Mallevialle, J. (1990) Coagulation pretreatment for ultrafiltration of a surface water, *Journal of American Water Works Association*, 83(2), 77-81.
- 17) Kim, C.H., Hosomi, M., Murakami, A. and Okada, M. (1994) Effects of clays on the fouling by organic substances in potable water treatment by ultrafiltration, *Water Science and Technology*, 30, 159-168.

- 18) Zehnder, A. and Gorham, P.R. (1960) Factors influencing the growth of *Microcystis aeruginosa* KUTZ. EMEND ELENKIN, *Can. J. Microbiol.*, **6**, 645-660.
- 19) 秋山優, 有賀祐勝, 坂本充, 横浜康継 (1986) 藻類の生態, 298pp, 内田老鶴圃.
- 20) 国立環境研資料 F-28-91/NIES, NIES-Collection, List of Strains, Third Edition, *Microalgae and Protozoa*, 96pp, 国立環境研究所.
- 21) Otsuki, A. and Hanya, T. (1972) Production of dissolved organic matter from dead green algal cells: I. Aerobic microbial decomposition, *Limnology and Oceanography*, **17**, 248-257.
- 22) Otsuki, A. and Hanya, T. (1972) Production of dissolved organic matter from dead green algal cells: II. Anaerobic microbial decomposition, *Limnology and Oceanography*, **17**, 258-264.
- 23) 秋葉道宏, 後藤光亀, 佐藤敦久 (1990) *Chlorella* sp. の細胞内外有機物質の凝集阻害にする基礎的研究, 水道協会雑誌, **60** (2), 2-10.
- 24) Hoyer, O., Lusse, B. and Bernhardt, H. (1985) Isolation and characterization of extracellular organic matter (EOM) from algae, *Z. Wasser-Abwasser-Forsch.*, **18**, 79-90.
- 25) Lusse, B., Hoyer, O. and Soeder, C. (1985) Mass cultivation of planktonic freshwater algae for the production of extracellular organic matter (EOM), *Z. Wasser-Abwasser-Forsch.*, **18**, 67-75.
- 26) Haarhoff, J. and Cleasby, L. (1989) Direct filtration of *chlorella* with cationic polymer, *Journal of Environmental Engineering*, **115**, 348-346.
- 27) 福井作蔵 (1969) 還元糖の定量法, 45-47pp, 東京大学出版社, 東京.
- 28) Benhardt, H., Hoyer, O., Scheel, H. and Lusse, H. (1985) Reaction mechanisms involved in the influence of algogenic organic matter on flocculation, *Z. Wasser-Abwasser-Forsch.*, **18**, 18-30.
- 29) Jekel, M.R. (1986) The stabilization of dispersed mineral particles by adsorption of humic substances, *Water research*, **20**, 1543-1554.
- 30) Gibbs, R.J. (1983) Effect of natural organic coatings on the coagulation of particles, *Environmental Science and Technology*, **17**, 237-240.