



Title	浸漬型MBRへの担体投入による膜ファウリングの抑制と曝気量の削減に関する研究
Author(s)	栗田, 宗大
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第12312号
Issue Date	2016-03-24
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k12312
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/61760
Type	doctoral thesis
File Information	Tokihiro_Kurita.pdf



博士論文

浸漬型 MBR への担体投入による 膜ファウリングの抑制と 曝気量の削減に関する研究

Mitigation of membrane fouling and reduction of aeration in submerged
MBRs by introduction of bio-carriers

2016 年 3 月

北海道大学大学院工学院 環境創生工学専攻

栗田 宗大

目次

第1章 序論

1.1 研究の背景	1
1.2 膜分離活性汚泥法(MBR)	
1.2.1 MBR の特徴	2
1.2.2 MBR の課題と膜ファウリング	3
1.2.3 膜ファウリング	5
1.2.4 膜ファウリング抑制手法	6
1.3 担体投入型 MBR	7
1.4 仕切り板挿入型 MBR(BMBR)	9
1.5 本研究の目的	10
1.6 本論文の構成と概要	11
第1章 参考文献	12

第2章 実験方法

2.1 分析方法	
2.1.1 MLSS、MLVSS 濃度	17
2.1.2 担体付着微生物	18
2.1.3 pH	18
2.1.4 溶存酸素(DO)	18
2.1.5 全有機炭素(TOC)および溶解性有機炭素(DOC)、全窒素(T-N)濃度	18
2.1.6 糖濃度	18
2.1.7 タンパク質濃度	19
2.1.8 単糖濃度	20
2.1.9 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 濃度	20
2.1.10 EEM スペクトル	21
2.1.11 汚泥粒度分析	21
2.1.12 汚泥粘度分析	21
2.2 汚泥懸濁液中の溶解性成分の採取方法	21
2.3 細胞外高分子物質(EPS)成分の抽出方法	21
2.4 回分ろ過試験	22
2.5 クリティカルフラックス測定実験	23

2.6	膜閉塞成分の抽出方法	24
2.7	走査型電子顕微鏡(SEM)による閉塞膜表面の観察	24
2.8	画像解析方法	25
第2章	参考文献	26
 第3章 粒状担体の投入がMBRの運転効率および膜ファウリング特性に与える影響		
3.1	はじめに	27
3.2	実験方法	
3.2.1	ベンチスケール MBR の運転条件	28
3.2.2	分析方法	31
3.3	結果と考察	
3.3.1	Run1	
3.3.1.1	クリティカルフラックス	32
3.3.1.2	担体投入による曝気量削減効果	33
3.3.2	Run2	
3.3.2.1	粒状担体の投入が MBR の長期運転に与える影響	34
3.3.2.2	閉塞膜の膜ろ過抵抗値	38
3.3.2.3	膜閉塞成分の分析	39
3.4	まとめ	40
第3章	参考文献	41
 第4章 MBR 汚泥粒状が粒状担体の膜ファウリング抑制効果に及ぼす影響		
4.1	はじめに	43
4.2	実験方法	
4.2.1	ベンチスケール MBR を用いたろ過試験	44
4.2.2	回分ろ過試験	44
4.2.3	分析方法	45
4.3	結果と考察	
4.3.1	汚泥ろ過性の経時変化	45
4.3.2	連続ろ過実験	48
4.4	まとめ	49
第4章	参考文献	50
 第5章 仕切り板挿入型 MBR への粒状担体の投入が MBR 運転効率に与える影響		
5.1	はじめに	53

5.2	実験方法	
5.2.1	パイロットスケール BMBR の運転条件	54
5.2.2	回分ろ過試験	56
5.2.3	走査型電子顕微鏡(SEM)による閉塞膜の観察	56
5.2.4	膜閉塞成分の抽出	56
5.2.5	分析方法	57
5.3	結果と考察	
5.3.1	パイロットスケール BMBR の運転	57
5.3.2	汚泥ろ過性の経時変化	59
5.3.3	閉塞膜の分析	61
5.4	まとめ	64
第5章	参考文献	65
第6章	粒状担体の投入と散気装置の改良による浸漬型 MBR の曝気量削減	
6.1	はじめに	67
6.2	実験方法	
6.2.1	ハイスピードカメラを用いた MBR 槽内における粒状担体の観測	68
6.2.2	パイロットスケール BMBR の運転条件	70
6.2.3	分析方法	72
6.3	結果と考察	
6.3.1	MBR 槽内における担体の流動様式	
6.3.1.1	ベンチスケール MBR 槽内における担体の流動様式	72
6.3.1.2	パイロットスケール BMBR 槽内における担体の流動様式	74
6.3.2	パイロットスケール BMBR の運転	
6.3.2.1	曝気条件が担体投入型 BMBR の運転に及ぼす影響	77
6.3.2.2	各運転条件における汚泥ろ過性と汚泥性状の比較	80
6.3.2.3	運転終了時における膜表面の損傷	82
6.4	まとめ	84
第6章	参考文献	85
第7章	異なる担体の使用が浸漬型 MBR の運転効率および膜ファウリングに与える影響	
7.1	はじめに	87
7.2	実験方法	
7.2.1	ベンチスケール MBR の運転条件	88
7.2.2	実験に使用した担体の特性	89

7.2.3	汚泥ろ過性の評価.....	91
7.2.4	分析方法.....	91
7.3	結果と考察	
7.3.1	Run1	
7.3.1.1	MBR の処理水質.....	92
7.3.1.2	異なる担体の使用が MBR の汚泥性状に与える影響.....	93
7.3.1.3	Run1 における MBR の膜ファウリング.....	94
7.3.1.4	Run1 における各 MBR の汚泥ろ過性.....	96
7.3.1.5	Run1 運転終了時の閉塞膜分析.....	97
7.3.1.6	Run1 まとめ.....	98
7.3.2	Run2	
7.3.2.1	スポンジ担体の投入が MBR の処理性に与える影響.....	99
7.3.2.2	Run2 における膜ファウリングの挙動.....	100
7.3.2.3	Run2 における汚泥性状.....	101
7.3.2.4	Run2 における閉塞膜の分析.....	104
7.3.2.5	Run2 まとめ.....	105
7.4	まとめ.....	106
第 7 章	参考文献.....	107
 第 8 章 総括		
8.1	本研究で得られた知見のまとめ.....	111
8.2	担体投入型 BMBR によって削減可能なエネルギー量.....	114
8.3	今後の課題.....	115
第 8 章	参考文献.....	116
謝辞.....		117

用語(略語)

BSA	ウシ血清アルブミン	Bovine Serum Albumin
C/P	糖/タンパク質比	Carbohydrate to Protein (ratio)
DO	溶存酸素	Dissolved Oxygen
DOC	溶解性有機炭素	Dissolved Organic Carbon
EEM	三次元励起蛍光スペクトル	Excitation-Emission Matrix
EPS	細胞外高分子物質(細胞外代謝産物)	Extracellular Polymeric Substances
HPLC	高速液体クロマトグラフィー	High Performance Liquid Chromatography
HRT	水理学的滞留時間	Hydraulic Retention Time
LMH		L/m ² /hour
MBR	膜分離活性汚泥法	Membrane Bioreactor
MCE	混合セルロースエステル	Mix Cellulose Ester
MF	精密ろ過	Micro Filtration
MLSS	活性汚泥浮遊物質	Mixed Liquor Suspended Liquid
MLVSS	活性汚泥有機性浮遊物質	Mixed Liquor Volatile Suspended Solid
PTFE	ポリテトラフルオロエチレン	Polytetrafluoroethylene
PVDF	ポリフッ化ビニリデン	Polyvinylidene Fluoride
R	ろ過抵抗	
R _{irr}	不可逆的ろ過抵抗	
R _m	膜ろ過抵抗	
R _r	可逆的ろ過抵抗	
R _t	全ろ過抵抗	
SAD _m	単位膜面積あたりの曝気量	Specific Aeration Demand per membrane area
SAD _p	単位処理量あたりの曝気量	Specific Aeration Demand per permeate
SEM	走査型電子顕微鏡	Scanning Electron Microscopy
SMP	溶解性微生物代謝産物	Soluble Microbial Products
SRT	汚泥(固形物)滞留時間	Sludge (Solid) Retention Time
T-N	全窒素	Total Nitrogen
TMP	膜間差圧	Trans-Membrane Pressure
TOC	全有機炭素	Total Organic Carbon

第1章

序論

1.1 研究の背景

水は農業や工業といった産業の基盤となる物質であり、人が生活する上で欠くことはできない。世界的な水需要は人口の増加および発展途上国の経済発展に伴う農業や工業、生活用水のために増加し続けており、今後も増加が続くことが予想されている[1]。乾燥地域を中心とする多くの国々で地下水が主要な水源として使用されているが[2]、過度な涵養は地下水位の低下や枯渇を引き起こすため、地下水に代わる新たな水資源の確保が求められる。新たな水資源として下水処理水の再利用が有望である。下水は人口密集地から安定して大量に採取できるため、ダムや人工河川と異なり流域環境への影響が少ない。さらに近年の水処理技術の躍進によって、飲料用水として利用できる水質まで下水を処理することも可能である[3]。したがって、今後は下水の再利用を目的とした新たな水供給システムの構築に適した、下水処理技術の導入を進めていく必要がある。

また、水不足が問題となる一方で発展途上国では人々の半数近くが水と衛生設備の欠陥に起因する健康問題を抱えていると報告されている[4]。発生する下水の約90%が未処理のまま放流されているため、河川汚濁や下流における衛生環境悪化の原因となっている[5]。先進国においても都市内の河川および沿岸部の水環境保全のために、排水処理水質の規制強化が進められており、従来よりも清澄な処理水質が求められている。

これらの排水処理および下水の再利用に関する問題を解決する手段として、生物処理と膜分離処理を組み合わせた排水処理方法である、膜分離活性汚泥法(Membrane bioreactor: MBR)の積極的な導入が有力視されている[6]。

1.2 膜分離活性汚泥法(MBR)

1.2.1 MBR の特徴

膜分離活性汚泥法(MBR)は生物反応槽で増殖する微生物体を膜によって処理水から分離する手法であり、通常生物反応プロセスとしては浮遊微生物法である活性汚泥法が用いられている。図 1-1 および図 1-2 に標準活性汚泥法と MBR 処理における一般的な処理フローをそれぞれ示す。標準活性汚泥法では活性汚泥の分離に重力沈降を用いる。そのため、標準活性汚泥法では汚泥フロックの沈降性が低下するバルキングが発生した場合、処理水に浮遊粒子が混入し水質が悪化する。また、標準活性汚泥法の後段に砂ろ過を設置することで、より高度な処理水を得ることも可能であるが処理施設面積の増加が問題となる。一方、MBR は膜を用いた完全な固液分離を達成できるため、汚泥フロックの沈降性に関わらず清澄な処理水を得ることができる。さらに、反応槽内の微生物濃度を高濃度で保持できるため、処理時間の短縮および反応槽の小型化が可能となり、小規模施設でも安定した運転を維持できる[8]。また、既存の活性汚泥処理施設に膜モジュールを設置することで MBR として改修することも可能である[9]。上記の特徴から排水処理技術として MBR の導入が世界中で進んでいる[10–12]。また、MBR は処理スペースが限られている都市部への導入が可能である。さらに、処理水に浮遊粒子が混入しないため消毒剤の添加量を削減できることから、排水の再利用に適した技術でもある[13]。

MBR は排水再利用のための技術として注目されることが多いが、施設の管理が容易で運転を自動化できるため、排水の分散型処理にも適している。分散型処理は工期の大幅な短縮や集水のための輸送コスト抑制できることから、MBR は発展途上国でこそ用いるべき技術であると位置づけられている[6]。

【標準活性汚泥法の処理プロセス】

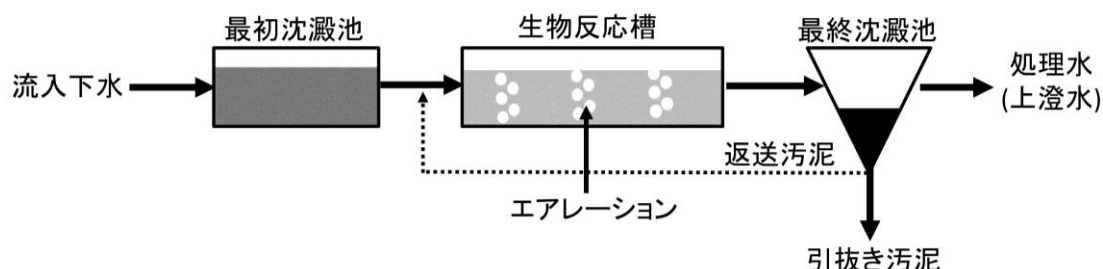


図 1-1 標準活性汚泥法のフロー図

【MBRの処理プロセス】

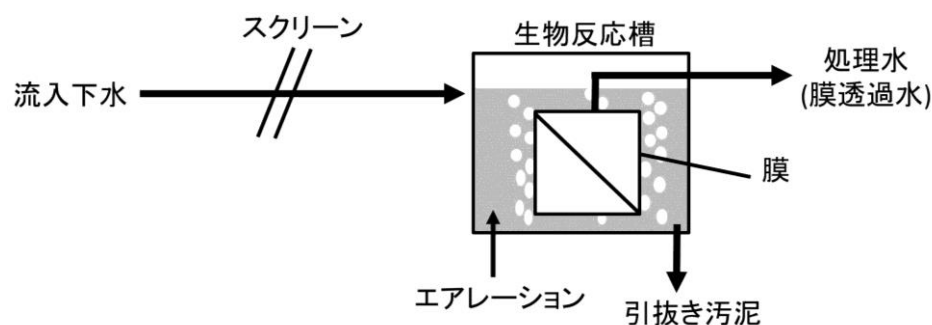


図 1-2 MBR のフロー図

1.2.2 MBR の課題と膜ファウリング

MBR は Smith らが 1969 年に発表した固液分離に膜を用いた研究が始まるとされ[14]、膜モジュールが生物反応槽の外側に設置された槽外型 MBR や膜モジュールが生物反応槽内に直接浸漬された浸漬型 MBR などの MBR が排水処理において主に用いられている[10,13]。しかし MBR 導入拡大に向けた課題として、標準活性汚泥法に比べて処理コストが高いことが挙げられる[15]。図 1-3[16]に MBR の維持・管理コストの推移を示す。1990 年代では、維持・管理コストの大半を膜の交換が占めていたが、膜価格の低下に伴って 2005 年には 10 分の 1 以下までコストが低下している。近年では維持・管理コストが MBR の運転で消費されるエネルギーの多くを占めるようになってきている。

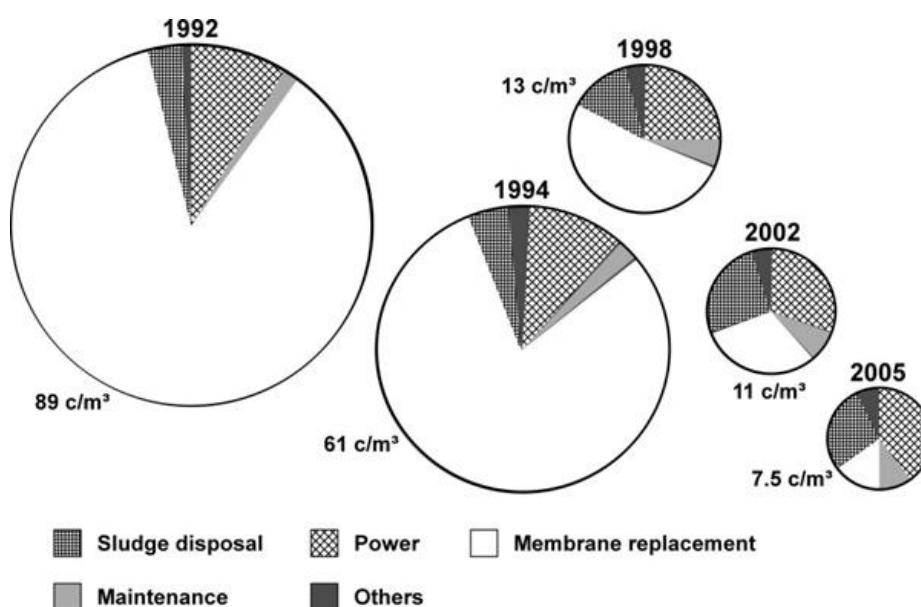


図 1-3 MBR における維持・管理コストの推移[16]

Fenu ら[17]の報告によると標準活性汚泥法に必要なエネルギーが 0.3 kWh/m^3 であるのに対して、MBR 処理では $0.8\text{--}1.2 \text{ kWh/m}^3$ と 2 倍以上のエネルギーが必要となっている。2010 年以降に中国で稼働したフルスケール MBR 施設においても、MBR の運転には $0.4\text{--}0.6 \text{ kWh/m}^3$ のエネルギーが消費されており[12]、MBR の運転に係るエネルギー消費が施設全体の運転コストの 60%に達することが報告されている(図 1-4)。MBR 運転コストを増加させる原因となっているのが、膜の目詰まりに伴う膜透過性能の低下(膜ファウリング)を抑制するための曝気である[12,16, 18–23]。図 1-5 にフルスケール MBR 施設における消費電力の内訳を示す[17]。通常、MBR 施設では生物処理のための曝気とは別に膜ファウリング抑制のための曝気の実施されている。図 1-5 に示すように、膜ファウリング抑制のための曝気には生物処理に必要な曝気の 2 倍以上のエネルギーが消費されている。また、フルスケール MBR 施設によっては膜ファウリング抑制のための曝気に消費されるエネルギーが施設全体の 70%以上に達する場合もある[20]。したがって、膜ファウリング抑制のための曝気を削減することが、MBR 処理コストを削減する上で重要な課題となっている。

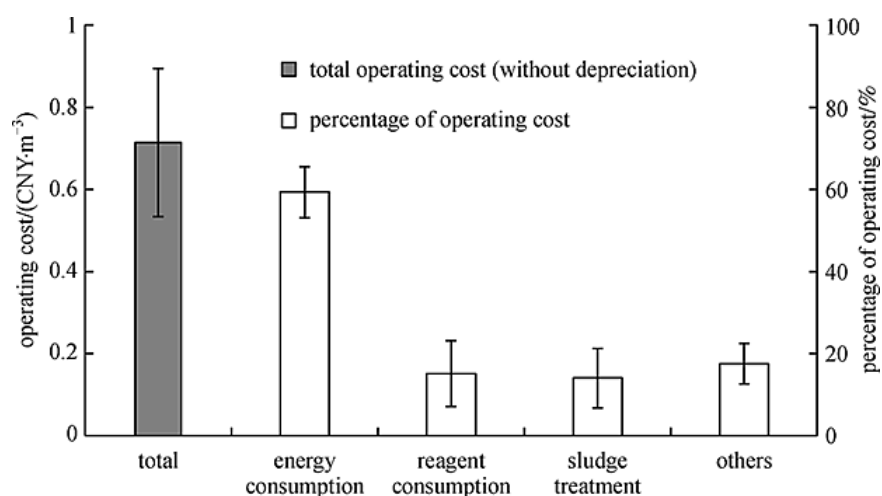


図 1-4 都市下水を処理するフルスケール MBR 運転コストの内訳
(2010 年以降に中国で建設された 8 つの MBR 施設からデータを収集) [12]

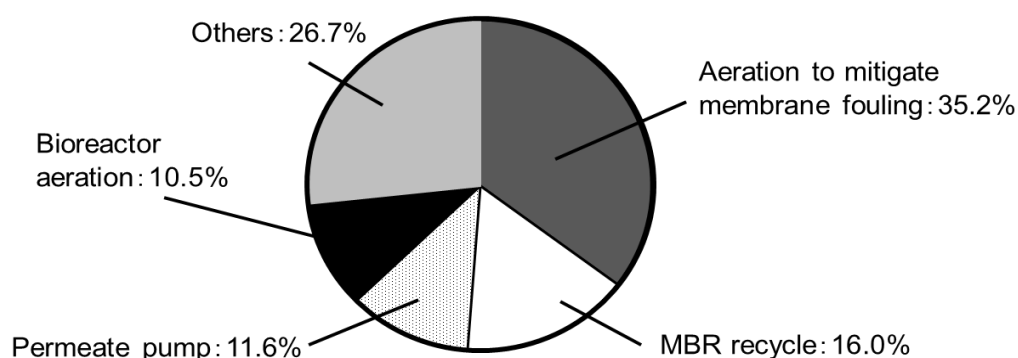


図 1-5 フルスケール MBR 施設における電力消費の内訳(Fenu らの報告を基に作成)[17]

1.2.3 膜ファウリング

膜ファウリングとは膜の目詰まりに伴う膜透過性能の低下である。膜ファウリングは、膜ファウリングを引き起こす物質のサイズによって主に3つに分類できる。汚泥フロックなどの膜孔径よりも十分に大きな物質は膜表面に堆積しケーキ層を形成する(図 1-6(a))。膜孔径とほぼ同じサイズの物質は膜細孔の入り口や内部に侵入し、細孔を閉塞するような形で膜ファウリングを引き起こす(図 1-5(b))。膜孔径よりも十分に小さい物質では膜細孔を透過するが、一部の物質が細孔の壁面に吸着・付着することで、次第に膜細孔を閉塞するようになる(図 1-5(c))。また、汚泥溶解性成分やコロイド成分などが膜表面に蓄積した場合ではケーキ層と区別してゲルと呼称する場合もある[24,25]。実際の MBR では図 1-5 に示すような異なる形態の膜ファウリングが同時に進行する。また、膜ろ過に伴う膜面への移流速度やクロスフロー流速および曝気などによって発生する膜からの逆輸送速度によって膜表面に蓄積する粒子の粒径が変化する。MBR は膜ろ過によって処理水を得るため、運転の継続に伴って膜ファウリングが進行することは不可避である。

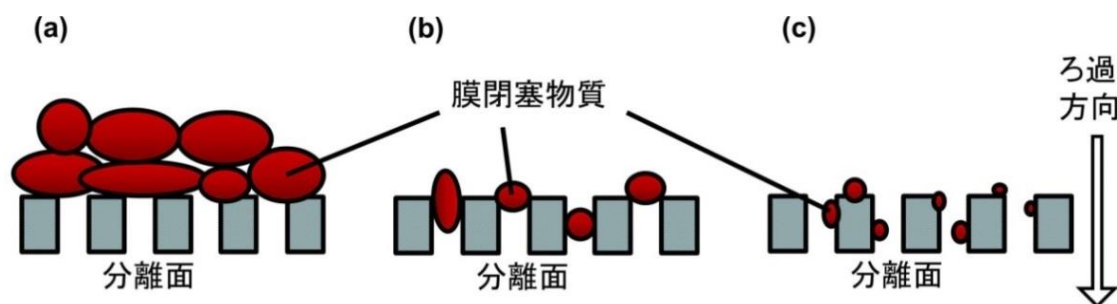


図 1-6 膜ファウリングの模式図

(a) ケーキ形成, (b) 完全閉塞, (c) 標準閉塞

膜ファウリングは可逆性という観点から分類することもできる[15]。可逆的膜ファウリング(Reversible fouling)は膜の逆圧洗浄やクロスフロー流条件下で膜ろ過を停止するなどの物理的な洗浄で回復できる膜ファウリングである。不可逆的膜ファウリング(Irreversible fouling)は物理洗浄で回復できず、薬品洗浄でのみ回復可能な膜ファウリングである。膜表面に付着するケーキ層が原因で発生する膜ファウリングは、主に可逆的膜ファウリングに分類され、完全閉塞や標準閉塞などの膜細孔および膜内部で発生する膜ファウリングは不可逆的膜ファウリングに分類される。しかし、膜表面に形成される膜ファウリングであっても、曝気で除去できないゲル層などを不可逆的膜ファウリングに分類する場合も見受けられる[24]。本論文においては、木村ら[26]の定義を適用し、スポンジによる膜表面のふき取りや加圧水の吹き付けで回復できる膜ファウリングを可逆的膜ファウリング、回復できない膜ファウリングを不可逆的膜ファウリングとした。

1.2.4 膜ファウリング抑制手法

膜ファウリングの抑制手法として主に5つの対策が取られている[9]。

- ①流入原水に対する前処理
- ②物理的・化学的な膜の洗浄
- ③膜透過水フラックスを低下させる
- ④曝気量を増加させる
- ⑤化学的もしくは生化学的に汚泥性状を改良する

以下にそれぞれの対策についての具体例を述べる

①流入原水に対する前処理

下水中に存在する髪の毛などの繊維やその他固形物などが膜モジュールに絡まることを防ぐために、通常は数 mm のスクリーン通過後の流入原水を MBR 処理する。

②物理的・化学的な膜の洗浄

物理的な洗浄法としては曝気によって膜表面近傍にクロスフローを発生させ、膜表面蓄積成分を除去することが一般的に行われている[7]。また、膜エレメントを直接回転させたり振動させたりすることで膜表面近傍にクロスフローを生み出す方式も開発されている[27,28]。中空糸膜などではろ過方向とは逆方向に膜透過水を送り出す、逆圧洗浄が実施されている。膜表面付着物を効率的に除去するために粒状活性炭や粉末活性炭、カオリン粒子などを直接膜と接触させる方法も報告されている[29-33]。

化学的な膜の洗浄は不可逆的膜ファウリングを回復するために実施される[15]。洗浄

に使用される薬液として次亜塩素酸ナトリウムや過酸化水素、クエン酸、シュウ酸、塩酸などが用いられる[7]。また、異なる薬液を続けて洗浄に使用することで洗浄効果を高めることも可能である。

③膜透過水フラックスを低下させる

膜透過水フラックスが高くなると、膜面へ供給される物質が増加しケーキ形成などに影響を与える。膜透過水フラックスが高い場合では、正味膜透過水フラックスが同じであっても膜ファウリングの進行が早まることが報告されている[34]。また、定流量ろ過においてはクリティカルフラックス[9,35–37]という考え方があり、膜透過水フラックスがクリティカルフラックス以上では膜ファウリングが急激に進行するが、クリティカルフラックスよりも低い場合では、膜透過水量を長時間にわたって維持することが可能である。

正味膜透過水フラックスを間欠ろ過によって低下させる方法も一般的である。ろ過を停止することで膜面への移流を止め、クロスフローによる逆輸送によって膜表面蓄積物の除去を促す。

④曝気量を増加させる

曝気量を増加させることで、クロスフローおよび曝気せん断力による膜表面洗浄効果を向上できる。

⑤化学的もしくは生化学的に汚泥を改良する

化学的方法としては凝集剤を MBR 槽内へ添加することで、コロイド状の有機物が減少し、膜ファウリングを抑制できることが報告されている[38]。生化学的な方法については微生物固定化担体を MBR に投入することで、MBR 汚泥の膜ろ過性が改善されることが報告されている[39]。また、クオラムセンシングを利用して、生物膜の膜表面への形成を抑制する方法も試みられている[40]。

1.3 担体投入型 MBR

浸漬型 MBR へ粒状担体やスポンジ担体を投入することで、膜表面が担体によって物理的に洗浄され、膜ファウリングの発生を抑制できることが報告されている[41–52]。図 1-7 に MBR と組み合わせて使用する担体の一例を示す。また、MBR に投入する担体には一定量の微生物が固定される。したがって、MBR に担体を投入する場合には生物膜処理を同時に行うことになる。MBR と生物膜処理を組み合わせることにより、窒素やリンの除去が効率的に行われることが期待される[47,54–56]。生物膜処理と MBR の組み合わせには粒状/スポンジ担体の膜分離槽への投入の他、ひも状やメッシュ状の微生物支持体を反応槽内

へ設置する方法[57,58]や歯車状およびリング状のプラスチック担体を流動させる方法[46,55,59–61]などがある。また、粒状/スポンジ担体および歯車型の担体を流動させる方法では、担体が膜に接触しないように膜分離タンクと担体流動タンクとを分ける場合もある[59,60,62–64]。生物膜処理との組み合わせによって MBR 汚泥ろ過性が改善され、膜ファウリングの発生を抑制できることが報告されている[39,46,47,63,64]。一方、生物膜処理と MBR を組み合わせた場合、膜表面にケーキが蓄積されやすくなり、膜ファウリングの進行が促進されたことも報告されている[65,66]。これらの矛盾する結果は生物膜処理と MBR とを組み合わせることによって汚泥性状が変化し、発生する膜ファウリングの特性が変化することを示唆している。MBR と組み合わせて使用する担体の種類によって微生物の保持形態や汚泥特性に差異が生じ、長期的な MBR の運転に影響をおよぼす可能性があるが、異なる性質の担体を組み合わせた MBR の比較はほとんど行われていない。また、担体の形状や比重などの物理特性が担体の流動性に与える影響については検討されているものの[45,67]、担体の膜面洗浄効果を最大化するための運転条件(曝気条件や反応槽形状など)について最適化を試みた検討はほとんど存在しない。

1.2.2 項で述べたように膜ファウリング抑制のための曝気量を削減することが、MBR 処理コストを削減する上で重要な課題となっている。担体投入型 MBR は検討や改善の余地が多く残されており、従来の MBR と比べて大幅に少ない曝気量で運転できる可能性を秘めている。担体投入型 MBR は MBR の普及を本格的なものとする起爆剤となりうる技術である。

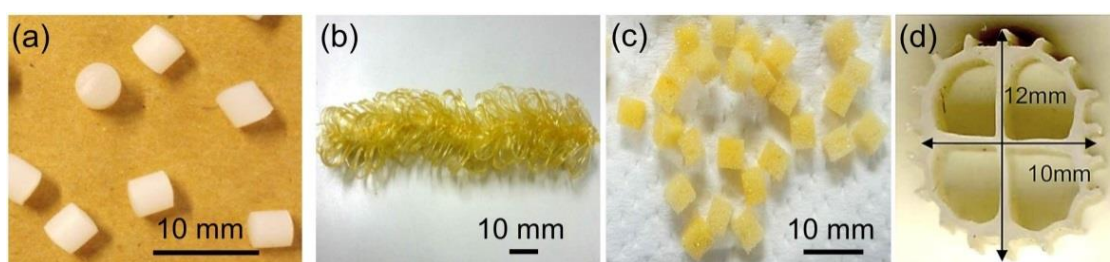


図 1-7 MBR と組み合わせて使用する担体の一例

(a) 粒状担体[53], (b) ひも状担体[53], (c) スポンジ担体[53], (d) リング状担体[46]

1.4 仕切り板挿入型 MBR(BMBR)

仕切り板挿入型 MBR(BMBR)[68]は MBR 反応槽内に仕切り板を挿入した MBR であり、仕切り板外側に好気状態と無酸素状態を交互に作り出すことで、単一槽内で硝化・脱窒を行う MBR である。図 1-8 に BMBR の概略図を示す。BMBR 槽内の水位が仕切り板上端部よりも高位置にある時は曝気により仕切り板外側が混合され、槽内全体が好気的な状態となる(図 1-8(a))。一方、水位が仕切り板上端部よりも低位置にある時は仕切り板により槽内が 2 つの領域に分けられる(図 1-8(b))。仕切り板内側は曝気により好気状態が常に保たれるが、仕切り板外側は無酸素状態が創出される。原水は仕切り板外側の四隅から供給され、あらかじめ設定した最大水位と最小水位の間で水位が変動する。水位変動のみで脱窒を行うために、BMBR では脱窒のための汚泥返送や無酸素槽における攪拌が不要となる。MBR の消費エネルギーの 10-20%が脱窒のために消費されていることが報告されており[18,19]、BMBR を用いることで MBR の省エネルギー化を実現できる可能性がある。また、BMBR では仕切り板の内外において循環流が発生する(図 1-8(a))。BMBR に担体を投入した場合、担体が仕切り板の内外をスムーズに循環することが予想され、担体による物理洗浄効果の向上が期待される。

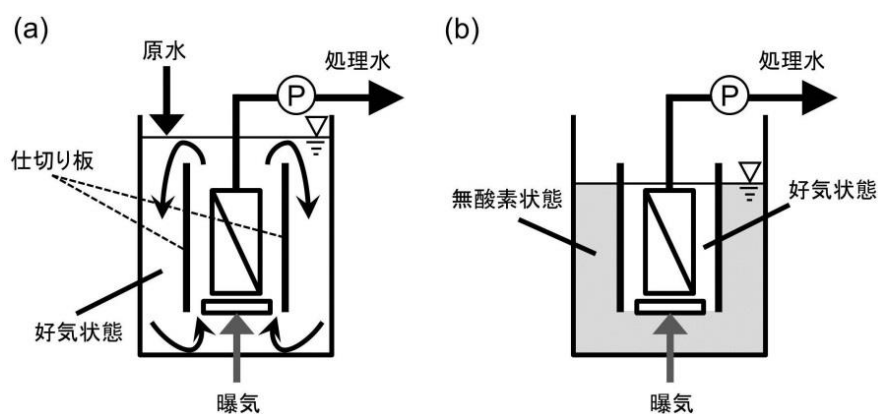


図 1-8 BMBR の概略図

(a) 仕切り板上端部より水位が高い状態, (b) 仕切り板上端部より水位が低い状態

1.5 本研究の目的

MBR 処理にかかるエネルギーの大半は膜ファウリング抑制のための過剰な曝気に占められている。MBR の導入を促進するためには、曝気量の削減と膜ファウリング抑制を同時に達成することが必要となる。浸漬型 MBR へ担体を投入することで担体と膜面が頻繁に接触し、膜ファウリングを引き起こす成分の膜面蓄積が抑制され、膜ファウリングを抑制するための曝気量の大幅な削減が期待される。一方で、MBR と組み合わせて使用する担体の種類によって微生物の保持形態や汚泥特性に差異が生じ、長期的な MBR の運転に影響をおよぼす可能性がある。担体投入時における膜ファウリング成分を明らかにすることで、担体投入型 MBR に適した特性を持つ膜を選択することができる。また、担体の膜面洗浄効果を最大化するための運転条件(曝気条件や反応槽形状など)について最適化を試みた検討はほとんど存在しない。このように担体投入型 MBR には改善の余地が多く残されている。本研究では担体投入型 MBR における膜ファウリング発生が抑制されるメカニズムの解明と曝気量の削減可能量およびその運転の最適化を目的として、実験室内におけるベンチスケール実験と都市下水を用いたパイロットスケール実験を実施した。また、泥返返送や無酸素槽における攪拌が不要となる BMBR に担体を投入することでさらなる消費エネルギーの削減可能性についても検討を行った。以下に本研究における主な検討項目を示す。

- ・ 浸漬型 MBR への担体投入による膜ファウリング抑制効果および曝気削減可能量の定量的評価。
- ・ 浸漬型 MBR への担体投入が膜ファウリング特性に与える影響についての検討
- ・ MBR 汚泥性状が担体の膜ファウリング抑制効果に与える影響の検討
- ・ 担体の膜面洗浄効果を最大化するための最適な曝気条件の探索
- ・ 担体投入型 MBR に適した担体の探索

1.6 本論文の構成と概要

本論文は第 1 章「序章」、第 2 章「実験方法」、第 3 章「粒状担体の投入が MBR の運転効率および膜ファウリング特性に与える影響」、第 4 章「MBR 汚泥性状が粒状担体の膜ファウリング抑制効果に及ぼす影響」、第 5 章「仕切り板挿入型 MBR への粒状担体の投入が MBR 運転効率に与える影響」、第 6 章「粒状担体の投入と散気装置の改良による浸漬型 MBR の曝気量削減」、第 7 章「異なる担体の使用が浸漬型 MBR の運転効率および膜ファウリングに与える影響」、第 8 章「総括」によって構成されている。以下各章の概要と検討結果を要約する。

第 1 章では、MBR 処理の特徴と課題について要約するとともに、本研究の背景と目的について述べた。

第 2 章では、本研究で用いた実験方法について詳細に記載した。

第 3 章では、浸漬型 MBR への担体投入による膜ファウリング抑制効果および曝気削減可能量について、ベンチスケール MBR を用いて定量的に評価した。また、担体の投入が膜ファウリング特性に与える影響についても検討した。

第 4 章では、MBR 汚泥性状が担体の膜ファウリング抑制効果に与える影響について検討した。実都市下水を処理するパイロットスケール MBR から採取した汚泥を用いて、ろ過実験と汚泥性状の分析を定期的実施した。

第 5 章では、実都市下水を処理するパイロットスケール BMBR に担体を投入した場合の膜ファウリング抑制効果と曝気量削減効果について検討した。また、BMBR 槽内の汚泥ろ過性や汚泥懸濁液中の溶解性成分などの汚泥性状についても分析するとともに、粒状担体の投入による膜表面損傷の有無についても調べた。

第 6 章ではベンチスケール MBR およびパイロットスケール BMBR 槽内における担体の流動様式を画像解析によって評価し、担体の膜表面洗浄効果を最大化するための曝気条件を探索した。曝気条件については散気管形状および曝気量を変更して比較した。得られた結果を基に最適と考えられる曝気条件でパイロットスケール BMBR の連続処理実験を実施した。

第 7 章では異なる担体を用いた場合の膜ファウリング抑制効果および汚泥性状について検討した。検討に使用した担体はひも状担体、粒状担体、スポンジ担体の 3 種類であり、スポンジ担体については密度と大きさを変更した場合についても検討した。

第 8 章では、本研究で得られた担体投入型 MBR に関する知見を総括し、従来型 MBR 処理に比べて削減できるエネルギー量を推定した。また、今後の検討課題についても指摘した。

第 1 章 参考文献

- [1] I. A. Shiklomanov, WORLD WATER RESOURCES A NEW APPRAISAL AND ASSESSMENT FOR THE 21ST CENTURY, 1998, <http://catdir.loc.gov/catdir/samples/cam034/2002031201.pdf> [accessed Jan. 20th, 2013].
- [2] I.S. Zekster, L.G. Everett, Groundwater resources of the world and their use. IHP-VI, Series on Groundwater no. 6, 2004.
- [3] H.L. Leverenz, G. Tchobanoglous, T. Asano, Direct potable reuse: a future imperative, *Journal of Water Reuse and Desalination* 1 (2011) 2–10.
- [4] 国連開発計画(UNDP), http://www.undp.or.jp/publications/pdf/undp_hdr2006.pdf [accessed Jan. 20th, 2013].
- [5] UN-Water; Sanitation: a wise investment for health, dignity, and development, 2008.
- [6] G.T. Daigger, B.E. Rittmann, S. Adham, G. Andreottala, Are MEMBRANE BIOREACTOR Ready for Widespread Application?, *Environ. Sci. Technol.* 8 (2005) 399–406.
- [7] 山本和夫 監修, MBR(膜分離活性汚泥法)による水活用技術, サイエンス&テクノロジー, 2010.
- [8] K. Tsuji, T. Hashimoto, K. Mukai, Operational Experience of MBR in Retrofitted Large Scale Wastewater Treatment Plant, 7th IWA Specialised Membrane Technology Conference and Exhibition for Water and Wastewater Treatment and Reuse (2013).
- [9] S. Judd, *The MBR Book: Principles and Applications of Membrane Bioreactors for Water and Wastewater Treatment*, second ed., Elsevier, 2011.
- [10] W. Yang, N. Cicek, J. Llg, State-of-art of membrane bioreactors: Worldwide research and commercial applications in North America, *J. Membr. Sci.* 270 (2006) 201–211.
- [11] B. Lesjean, E.H. Huisjes, Survey of the European MBR market: trend and perspectives, *Desalination* 231 (2008) 71–81.
- [12] K. Xiao, Y. XU, S. Liang, T. Lei, J. Sun, X. Wen, H. Zhang, C. Chen, X. Huang, Engineering application of membrane bioreactor for wastewater treatment in China: Current state and future prospect, *Front. Environ. Sci. Eng.* 8 (2014) 805–819.
- [13] T. Asano, F.L. Burton, H.L. Leverenz, R. Tsuchihashi, G. Tchobanoglous, *Water Reuse: Issues, Technologies, and Applications*, McGraw Hill, 2006.
- [14] C.V. Smith Jr, D.D. Gregorio, R.M. Talcott, The use of ultrafiltration membrane for activated sludge separation, Presented paper at 24th Annual Purdue Industrial Conference (1969).
- [15] A. Drews, Membrane fouling in membrane bioreactors-Characterisation, contradictions, cause and cures, *J. Membrane Sci.* 363 (2010) 1–28.

- [16] M. Kraume, A. Drews, Membrane Bioreactors in Waste Water treatment – Status and Trend, Chem. Eng. Technol. 33 (2010) 1251–1259.
- [17] A. Fenu, J. Roels, T.wambecq, K. De Gussem, C. Thoeye, G. De Guedre and B.Van De Steene, Energy audit of a full scale MBR system, Desalination 262 (2010) 121–128.
- [18] J.A. Gil, L. Túa, A. Rueda, B. Montaña, M. Rodríguez, D. Prats, Monitoring and analysis of the energy cost of an MBR, Desalination 250 (2010) 997–1001.
- [19] F. Fatone, P. Battistoni, P. Pavan, F. Cecchi, Operation and maintenance of full-scale municipal membrane biological reactors: a detailed overview on a case study, Ind. Eng. Chem. Res. 46 (2007) 6688–6695.
- [20] B. Verrecht, T. Maere, I. Nopens, C. Brepols, S. Judd, The cost of a large-scale hollow fiber MBR, Water Res. 44 (2010) 5274–5283.
- [21] P. Krzeminski, J.H.J.M. van der Graaf, J.B. van Lier, Specific energy consumption of membrane bioreactor (MBR) for sewage treatment, Water Sci. Technol. 65 (2012) 380–392.
- [22] P. Krzeminski, W. Langhorst, P. Schyns, D. de Vente, R Van den Broeck, I.Y. Smets, J.F.M. Van Impe, J.H.J.M. van der Graaf, J.B. van Lier, The optimal MBR configuration: Hybrid versus stand-alone — Comparison between three full-scale MBRs treating municipal wastewater, Desalination 284 (2012) 341–348.
- [23] B. Barillon, S. Martin, C. Langlaais, V. Lazarova, Energy efficiency in membrane bioreactor, Water Sci. Technol. 67 (2013) 2685–2691.
- [24] Z. Wang, Z. Wu, X. Yin, L. Tian, Membrane fouling in a submerged membrane bioreactor (MBR) under sub-critical flux operation: Membrane foulant and gel layer characterization, J. Membr. Sci. 325 (2008) 238–244.
- [25] D. Okamura, Y. Moria, T. Hashimotoa, K. Horib, Identification of biofoulant of membrane bioreactors in soluble microbial products, Water Res. 43 (2009) 4356–4362.
- [26] K. Kimura, Y. Hane, Y. Watanabe, G. Amy, N. Ohkuma, Irreversible membrane fouling during ultrafiltration of surface water, Water Res. 38 (2004) 3431–3441.
- [27] G. Wu, L. Cui, Y. Xu, A novel submerged rotating membrane bioreactor and reversible membrane fouling control, Desalination 228 (2008) 255–262.
- [28] J. Ho, S. Smith, J. Patamasank, P. Tontcheva, G.D. Kim, H.K Roh. Pilot demonstration of energy-efficient membrane bioreactor (MBR) using reciprocating submerged membrane, Water Environ. Res. 87 (2015) 266–273.
- [29] M.A.H. Johir, R. Aryal, S. Vigneswaran, J. Kandasamy, A. Grasmisk, Influent of supporting media

- in suspension on membrane fouling reduction in submerged membrane bioreactor (SMBR), *J. Membr. Sci.* 374 (2011) 121–128.
- [30] M.A. Jahir, S. Shanmuganathan, S. Vigneswarn, J. Kandasamy, performance of submerged membrane bioreactor (SMBR) with and without the addition of the different particle sizes of GAC as suspended medium, *Bioresour. Technol.* 141 (2013) 13–18.
- [31] S.J. Khan, C. Visvanathan, V. Jegatheesan, Effect of powdered activated carbon (PAC) and cationic polymer on biofouling mitigation in hybrid MBRs, *Bioresour. Technol.* 113 (2012) 165–168.
- [32] C.A. Ng, D. Sun, M.J.K. Bahir, S.H. Wai, L.Y. Wong, H. Nisar, B. Wu, A.G. Fane, Optimization of membrane bioreactor by the addition of powdered activated carbon, *Bioresour. Technol.* 138 (2013) 38–47.
- [33] M. Pradhan, S. Vigneswarn, J. Kandasamy, R.B. Aim, Combined effect of air and mechanical scouring of membranes for fouling reduction in submerged membrane reactor, *Desalination* 288 (2012) 58–65.
- [34] Z. Wu, Q. Wang, Z. Wang, Y. Ma, Q. Zhou, D. Yang, Membrane fouling properties under different filtration modes in a submerged membrane bioreactor, *Process Biochemistry* (2010) 1699–1706.
- [35] R.W. Field, D. Wu, J.A. Howell, B.B. Gupta, Critical flux concept for microfiltration fouling, *J. Membr. Sci.* 100 (1995) 259–272.
- [36] P.L. Clech, B. Jefferson, I.S. Chang, S.J. Judd, Critical flux determination by the flux-step method in a submerged membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 227 (2003) 81–93.
- [37] P. van der Marel, A. Zwijnenburg, A. Kemperman, M. Wessling, H. Temmink, W. van der Meer, an improved flux-step method to determine the critical flux and the critical for irreversibility in a membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 332 (2009) 24–29.
- [38] I. Ivanovic, T.O. Leiknes, Improved performance through particle surface modifications by coagulation with inorganic coagulants in a BF-MBR, *Sep. Sci. Technol.* 48 (2012) 288–294.
- [39] J. Hu, H. Ren, K. Xu, J. Geng, L. Ding, X. Yan, K. Li, Effect of carriers on sludge characteristics and mitigation of membrane fouling in attached-growth membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 122 (2012) 35–41.
- [40] D. Jahangir, H.-S. Oh, S.-R. Kim, P.-K. Park, C.-H. Lee, J.-K. Lee, Specific location of encapsulated quorum quenching bacteria for biofouling control in an external submerged membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 411–412 (2012) 130–136.
- [41] W.-N. Lee, I.-J. Kang, C.-H. Lee, Factors affecting filtration characteristics in membrane-coupled moving bed biofilm reactor, *Water Res.* 40 (2006) 1827–1835.
- [42] Q. Yang, J. Chen, F. Zhang, Membrane fouling control in a submerged membrane bioreactor with

- porous, flexible suspended carriers, *Desalination* 189 (2006) 292–302.
- [43] Q.-Y. Yang, T. Yang, H.-J. Wang, K.-Q. Liu, Filtration characteristics of activated sludge in hybrid membrane bioreactor with porous suspended carriers (HMBR), *Desalination* 249 (2009) 507–514.
- [44] B. Siembida, P. Cornel, S. Krause, B. Zimmermann, Effect of mechanical cleaning with granular material on the permeability of submerged membrane in the MBR process, *Water Res.* 44 (2010) 4037–4046.
- [45] S. Krause, B. Zimmermann, U. Meyer-Blumenroth, W. Lamparter, B. Siembida, P. Cornel, Enhanced membrane bioreactor process without chemical cleaning, *Water Sci. Technol.* 61 (2010) 2575–2580.
- [46] L. Jin, S.L. Ong, H.Y. Ng, Fouling control mechanism by suspended biofilm carriers addition in submerged ceramic membrane bioreactors, *J. Membr. Sci.* 427 (2013) 250–258.
- [47] L. Deng, W. Guo, H.H. Ngo, J. Zhang, S. Liang, S. Xia, Z. Zhang, J. Li, A comparison study on membrane fouling in a sponge-submerged membrane and a conventional membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 165 (2014) 69–74.
- [48] S.J. Khan, A. Ahmad, M.S. Nawaz, N. P. Hankins, membrane fouling and performance evaluation of conventional membrane bioreactor (MBR), moving biofilm MBR and oxic/anoxic MBR, *Water Sci. Technol.* 69 (2014) 1403–1409.
- [49] J. Guo, W. Guan, S. Xia, Membrane fouling of hybrid submerged membrane bioreactor (hMBR) in treating municipal wastewater, *Desalin. Water Treat.* (2014) 6858–6867.
- [50] M. Rezaei, M.R. Mehrnia, The influence of zeolite (clinoptilolite) on the performance of a hybrid membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 158 (2014) 25–31.
- [51] G. Cuevas-Rodríguez, P. Cervantes-Avilés, I. Torres-Chávez, A. Bernal-Martínez, Evaluation of different configurations of hybrid membrane bioreactors for treatment of domestic wastewater, *Water Sci. Technol.* 71 (2015) 338–346.
- [52] C. Fu, X. Bi, H.Y. Ng, Effects of bio-carriers on membrane fouling mitigation in moving bed membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 499 (2016) 134–142.
- [53] 茂木拓真, 異なる担体による浸漬型 MBR の膜ファウリング抑制効果, 北海道大学工学部卒業論文 (2014).
- [54] S.J. Khan, S. Ilyas, S. Javid, C. Visvanathan, V. Jegatheesan, Performance of suspended and attached growth MBR systems in treating high strength synthetic wastewater, *Bioresour. Technol.* 102 (2011) 5331–5336.
- [55] Q. Liu, X.C. Wang, Y. Liu, H. Yuan, Y. Du, Performance of a hybrid membrane bioreactor in municipal wastewater treatment, *Desalination* 258 (2010) 143–147.

- [56] I. Ivanovic, T.O. Leiknes, The biofilm membrane bioreactor (BF-MBR) — a review, *Desalin. Water Treat.* 37 (2012) 288–295.
- [57] J. Lee, W.-Y. Ahn, C.-H. Lee, Comparison of the filtration characteristics between attached and suspended growth microorganisms in submerged membrane bioreactor, *Water Res.* 35 (2001) 2435–2445.
- [58] L. Rodríguez-Hernández, A.L. Esteban-García, I. Tejero, Comparison between a fixed bed hybrid membrane bioreactor and a conventional membrane bioreactor for municipal wastewater treatment: A pilot-scale study, *Bioresour. Technol.* 152 (2014) 212–219.
- [59] K. Sombatsompopa, C. Visvanathan, R. Ben Aim, Evaluation of biofouling phenomenon in suspended and attached growth membrane bioreactor systems, *Desalination* 201 (2006) 138–149.
- [60] Y. Liu, Z. Liu, A. Zhang, Y. Chen, X. Wang, The role of EPS concentration on membrane fouling control: Comparison analysis of hybrid membrane bioreactor and conventional membrane bioreactor, *Desalination* 305 (2012) 38–43.
- [61] F. Yang, Y. Wang, A. Bick, J. Gilron, A. Brenner, L. Gillerman, M. Herzberg, G. Oron, Performance of different configurations of hybrid growth membrane bioreactor (HG-MBR) for treatment of mixed wastewater, *Desalination* 284 (2012) 261–268.
- [62] T.O. Leiknes, H. Ødegaard, The development of a biofilm membrane bioreactor, *Desalination* 202 (2007) 135–143.
- [63] S.J. Khan, Z.-U. Rehman, C. Visvanathan, V. Jegatheesan, Influence of biofilm carriers on membrane fouling propensity in moving biofilm membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 113 (2012) 161–164.
- [64] B. Rafiei, F. Naeimpoor, T. Mohammadi, Bio-film and bio-entrapped hybrid membrane bioreactors in wastewater treatment: Comparison of membrane fouling and removal efficiency, *Desalination* 337 (2014) 16–22.
- [65] S. Yang, F. Yang, Z. Fu, R. Lei, Comparison between a moving bed membrane bioreactor and a conventional membrane bioreactor on membrane fouling, *Bioresour. Technol.* 100 (2009) 6655–6657.
- [66] D.D. Trapani, G.D. Bella, G. Mannina, M. Torregrossa, G. Viviani, Comparison between moving bed-membrane bioreactor (MB-MBR) and membrane bioreactor (MBR) systems: Influence of wastewater salinity variation, *Bioresour. Technol.* 162 (2014) 60–69.
- [67] S. Rosenberger, F.P. Helmus, S. Krause, A. Bareth, U Meyer-Blumenroth, Principles of an enhanced MBR-process with mechanical cleaning, *Water Sci. Technol.* 64 (2011) 1951–1958.
- [68] K. Kimura, R. Nishisako, T. Miyoshi, R. Shimada, Y. Watanabe, Baffled membrane bioreactor (BMBR) for efficient nutrient removal from municipal wastewater, *Water Res.* 42 (2008) 625–632.

第2章

実験方法

2.1 分析項目

2.1.1 MLSS、MLVSS 濃度

3章から5章までは下水道試験法[1]に従い測定を行った。汚泥サンプルを40 ml採取し、遠心分離(5000 rpm, 10分)後に上澄みを捨て、蒸留水を元の体積となるように加え、よく混合する。混合後は再び同じ条件で遠心分離し、上澄みを捨てる。あらかじめ110℃でよく乾燥させ、冷却後に重量を測定した磁皿に遠心分離沈殿物を取り出す。取り出した沈降物を110℃で12時間以上乾燥させ、重量を測定した。乾燥後の重量から磁皿の重量を引き、濃度換算を行うことでMLSS濃度を算出した。MLVSS濃度についてはMLSS測定後のサンプルを600℃で2時間以上加熱し、冷却後の重量を測定した。110℃乾燥後の重量と600℃乾燥後の重量の差からMLVSSを算出した。

6章から7章まではStandard methods[2]に従って、測定した。汚泥サンプルを40 ml採取し、前述した磁皿と同様に105℃でよく乾燥させ、重量を測定した磁皿に取り出す。105℃で12時間以上乾燥させ、重量を測定した。乾燥後の重量から磁皿の重量を引き、濃度換算を行うことでMLSS濃度を算出した。MLSS測定後のサンプルを550℃で1時間以上加熱し、冷却後の重量を測定した。105℃乾燥後の重量と550℃乾燥後の重量の差からMLVSSを算出した。

2.1.2 担体付着微生物量

担体の形状に応じて、担体付着微生物量の測定方法を変更した。ひも状担体に付着した微生物量の測定は Yang ら[3]の方法に従った。微生物の付着したひも状担体をあらかじめ重量を測定したビーカーに入れ、110 °C で 12 時間以上乾燥させる。乾燥後の重量を測定した後、ひも状担体を 1000ppm の次亜塩素酸ナトリウム溶液に浸漬させ付着微生物を取り除く。洗浄したひも状担体を純水ですすいだ後、あらかじめ重量を測定したビーカーに入れ、110 °C で 12 時間以上乾燥させる。洗浄前後におけるひも状担体の重量の差から、ひも状担体に付着した微生物量を算出した。

粒状担体およびスポンジ担体の付着微生物量の測定方法は Khan ら[4]の方法に従った。粒状およびスポンジ担体 50 ml 分をビーカーに取り、蒸留水で全量を 200 ml とした。次にスターラーを用いて 300 rpm で 60 分間攪拌した後、担体を手で絞りながら取り出す。得られた懸濁液を試料として上記の MLSS 測定方法[2]と同様の手法で付着微生物量を測定した。

2.1.3 pH

pH 計(DKK-TOA, HM-20P, Japan)を用いて測定した。

2.1.4 溶存酸素(DO)

DO 計は YSI 製(MODEL 58, YSI, USA)および DKK-TOA 製(DKK-TOA, DO31-P ならびに LDO2, Japan)を用いて測定した。

2.1.5 全有機炭素(TOC)および溶解性有機炭素(DOC)、全窒素(T-N)濃度

TOC 計(TOC-VCSH, Shimadzu, Japan)を用いて測定を行った。また、浮遊粒子を伴うサンプルは、3 分間の超音波破碎処理後に分析を行った。DOC の測定については、遠心分離(4000 rpm もしくは 5000 rpm(3 章のみ), 5 分)後のサンプルを膜孔径 0.45 μm の混合セルロースエステル(MCE)膜(Advantec Tokyo, Japan)でろ過した試料を TOC 計で測定した。なお、MCE 膜由来の有機物の混入を防ぐため、MCE 膜は 6 時間以上蒸留水に浸漬させてから使用した。T-N 濃度についても TOC 計を用いて測定した。

2.1.6 糖濃度

グルコースを標準物質としたフェノール硫酸法[5]により糖濃度を測定した。溶解性糖濃度については DOC と同様の前処理後にサンプルの測定を行った。測定手順を以下に示す。

【測定方法】

検量線作成のための標準溶液の濃度は 0、5、10、25、50 mg/L となるように調整した。

1. 試料および標準溶液 1 mL を 15 mL 試験管に取り、超純水を 2 mL 加える(同一試料について、試験管を 3 本ずつ用意する)。
2. 5%フェノールを 1 mL 加える。
3. 硫酸(95%濃硫酸)をオートビュレットで 5 mL 加え、すぐに 3 秒間の強攪拌を行う。
4. 全ての試験管に硫酸を加えたら、沸騰した水道水で試験管を 5 分間加熱する。
5. 加熱後約 30 分以降に吸光度(490 nm)を測定する。
6. 3 本の内、異常値があれば除外して平均値を求める。検量線から糖濃度を算出する。

2.1.7 タンパク質濃度

牛血清アルブミン(BSA)標準物質とした Lowry 法[6]によりタンパク質濃度を測定した。溶解性タンパク質濃度については DOC と同様の前処理後にサンプルの測定を行った。測定手順を以下に示す。

【測定方法】

検量線作成のための標準溶液の濃度は 0、5、10、25、50 mg/L となるように調整した。

1. 試料および標準溶液 0.6 mL を試験管に取り、試薬 C を 3 mL 加えて 10 分以上静置する(同一試料について、試験管を 3 本ずつ用意する)。
2. フォーリン-チオカルト試薬(Folin & Ciocalte's phenol reagent, Sigma-Aldrich, USA)を超純水で 2 倍に希釈したものを 0.3 mL ずつ加え、すぐに 3 秒間の強攪拌を行う。
3. 2 時間以上静置し、吸光度(750 nm)を測定する。
4. 3 本のうち、異常値があれば除外して平均値を求め、検量線からタンパク質濃度を算出する。

【試薬の調整】

①A 試薬

水酸化ナトリウム(NaOH) 4.0 g を 1000 mL メスフラスコに入れ、超純水を約 500 mL 程度加え、溶解させる。NaOH 溶解後に炭酸ナトリウム(Na_2CO_3)を 20 g を加え、溶解後にメスアップする。

②B 試薬

酒石酸ナトリウム 0.250 g を 25 mL メスフラスコに入れ、超純水を約 20 mL 加え、完全に溶解させる。完全に溶解したら硫酸銅 5 水和物 0.125 g を加え溶解させた後、メスアップする。

③C 試薬

A 試薬と B 試薬を体積比で 50 : 1 となるように混合する。

2.1.8 単糖濃度

試料中の単糖濃度の分析は Croué ら[7]の手法に準拠して作成したサンプルを HPLC (DX-500, DIONEX, USA)に接続したアンペロメトリー検出器(ED40, DIONEX, USA)を用いて単糖の濃度を測定した。溶離液として 0.082M の NaOH 溶液を使用し、1.0 mL/min の流速でカラム(CarboPac PA1, DIONEX, USA)に通液した。カラムの温度は 30 °C に設定した。単糖の標準液としてフコース、ラムノース、アラビノース、ガラクトース、グルコース、マンノース、キシロース、グルコサミン、ガラクトサミンの 9 つの単糖の濃度がそれぞれ 1 mg/L となるような混合溶液を調整し、分析に使用した。また、前処理(加水分解処理)の手順を以下に示す。

【前処理の手順】

1. 試料 5 mL をキャップ付き 15 mL 試験管に取る。
2. 2M の H_2SO_4 溶液を 1.5 mL 加え、キャップを閉め混合する。
(試料の TOC 濃度が 15 mg/L 以下になるように超純水で希釈する)
3. アルミヒーターに試験管をのせ、100 °C で 5 時間加熱する。
4. 加熱後、アルミヒーターから試験管を取り出し室温まで冷却し、炭酸バリウム(BaCO_3)を 1.0 g ずつ加え硫酸を中和させる。
5. 攪拌器を用いて 15 分おきに試験管を攪拌しながら、2 時間以上反応させる。炭酸バリウムを添加して約 2 時間経過したら、30 分ほど静置して沈殿を沈める。
6. 試験管内の上澄み液をシリンジに取り、0.45 μm の PTFE フィルターでろ過する。

2.1.9 NH_4^+ -N、 NO_2^- -N、 NO_3^- -N 濃度

5 章ではサンプルを 0.2 μm の酢酸セルロース膜(Advantec, Japan)でろ過後、イオンクロマトグラフィー(DX-100, DIONEX, USA; 陽イオンカラム(IonPac CS12A); 陰イオンカラム(IonPac AS12A))を使用して測定した。6 章ではイオンクロマトグラフィーを ICS-90(DIONEX, USA)に変更した。MBR 膜透過水以外のサンプルは 0.45 μm の MCE 膜に通し、MBR 膜透過水はそのまま測定に供した。また NH_4^+ -N については HACH 試薬(HACH1289, HACH, USA)を用いた吸光光度法によって測定した。

2.1.10 EEM スペクトル

150 W のキセノンランプを光源とする蛍光分光光度計(RF-5300PC, Shimadzu, Japan)を用いて EEM の測定を行った。また、励起および蛍光波長は 5 nm 間隔とした。懸濁物質を含むサンプルは遠心分離(4000 rpm もしくは 5000 rpm (3 章のみ), 5 分)後に 0.45 μm の MCE 膜 (Advantec, Japan)でろ過し、分析を行った。

2.1.11 汚泥粒度分析

汚泥粒度分布の測定はレーザー回折粒度分布計(SALD-7100, Shimadzu, Japan)を用いた。

2.1.12 汚泥粘度分析

回転粘度計(BII, Tokisangyo, Japan)を用いて測定した。No. 1 ローター(測定レンジ: $\sim 100 \text{ mPa}\cdot\text{s}$) を用いて回転数 60 rpm にて 2 分間安定させた後の値を測定値として採用した。サンプルの粘度が $100 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ を超える場合は No. 2 ローター(測定レンジ: $\sim 500 \text{ mPa}\cdot\text{s}$)を用いた。

2.2 汚泥懸濁液中の溶解性成分の採取方法

汚泥懸濁液を遠心分離(4000 rpm もしくは 5000 rpm(第3章のみ), 5 分)後の上澄みを 0.45 μm の MCE 膜でろ過したろ液中に含まれる成分を汚泥懸濁液中の溶解性成分とした。

2.3 細胞外高分子物質(EPS)成分の抽出方法

汚泥からの EPS 成分の抽出は Frølund ら[8]の方法に従い、陽イオン交換樹脂(Dowex Marathon, Sigma-Aldrich, USA)を用いた。抽出手順を以下に示す。

【汚泥の前処理】

1. 汚泥懸濁液を 4 $^{\circ}\text{C}$ で遠心分離(4070 rpm, 15 分)し、上澄みを捨てる。
2. 沈殿した汚泥緩衝液(Na_3PO_4 : 2 mM, NaH_2PO_4 : 4 mM, NaCl : 9 mM, KCl : 1 mM)を元の体積となるように加え再懸濁させる。

【陽イオン交換樹脂の洗浄】

陽イオン交換樹脂をビーカーに取り、上述した緩衝液を用いて 300 rpm で攪拌しながら、1 時間洗浄する。

【EPS の抽出】

1. ビーカーに緩衝液で再懸濁させた汚泥懸濁液を移す。
2. 陽イオン交換樹脂を(18.5 g/g-MLVSS)となるように添加する。

3. 4 °C、300 rpm で1時間攪拌して、汚泥から EPS を抽出する。
4. 抽出された EPS(溶液部)と固体成分を 4 °C で遠心分離(9970 rpm, 1 分)により分離させる。
5. 遠心分離後の上澄みをさらに 2 回遠心分離にかけ、微細な粒子を除去する。遠心分離条件は 2 回とも 4 °C で 9970 rpm、15 分である。

2.4 回分ろ過試験

本研究では加圧型回分ろ過装置(Advantec Tokyo, Japan)を用いて、MBR の汚泥ろ過性の評価および閉塞膜ろ過抵抗値の測定を実施した。研究で使用した加圧型回分ろ過装置の装置構成を図 2-1 に示す。膜透過水流量を電子天秤により測定し、Darcy の式を用いて膜ろ過抵抗値 R (m^{-1})を算出した。

$$R = \frac{\Delta P}{J \cdot \mu}$$

ここで、 J は膜透過水フラックス($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}$)、 ΔP は膜間差圧(Pa)、 μ は膜透過水の粘性係数($\text{Pa} \cdot \text{s}$)である。

汚泥ろ過性の評価と閉塞膜のろ過抵抗値の測定では回分ろ過試験の条件が異なるため、以下に測定条件をそれぞれ示す。

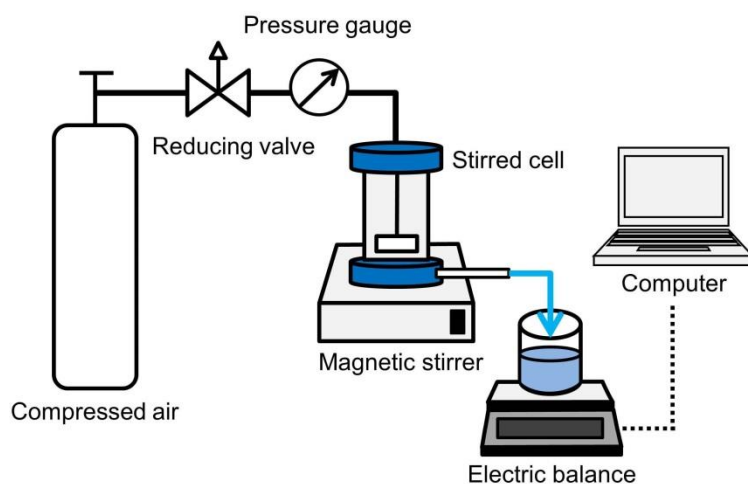


図 2-1 回分ろ過装置の構成

【汚泥ろ過性の評価】

回分ろ過試験から算出した MBR 汚泥懸濁液が発生させた膜ろ過抵抗値に基づき、MBR 汚泥ろ過性を評価した。回分ろ過試験に用いた膜は、実験で運転する MBR に装着した膜と同じである(有効膜面積: 37.4 cm^2)。攪拌子付き加圧セル内に 300 ml の MBR 汚泥懸濁液

を満たし、加圧した N_2 ガスまたは加圧空気によって一定圧力下でろ過を行った。第5章ではろ過圧力を 5 kPa、攪拌速度を 170 rpm に設定し、膜透過水をリザーバーで供給することで加圧セル内の汚泥体積を一定に保った。5章では回分ろ過装置の膜透過水量が 20 ml に達したところで膜透過水フラックスが安定したため、この点における膜透過水フラックスから膜ろ過抵抗値を算出し、汚泥ろ過性の評価を行った。4章および6章、7章ではろ過圧力を 10 kPa、攪拌速度を 300 rpm に設定し、リザーバーによる膜透過水の供給は実施しなかった。4章の回分ろ過試験ではろ過開始 20 分後における膜透過水フラックスから膜ろ過抵抗値を算出した。また、6章以降の回分ろ過試験ではろ過を 20 分継続したところで、膜透過水フラックスが安定する傾向となったため、引き続いて 5 分間のろ過を行い、5 分間の平均膜透過水フラックスから膜ろ過抵抗値を算出した。なお、全ての回分ろ過試験は未使用の新膜を用いて実施した。

【閉塞膜のろ過抵抗値の測定】

運転終了時に閉塞膜エレメントを MBR から取り出し、回分ろ過試験によって膜ろ過抵抗値を算出した。加圧セルに装着する膜面積は 5 章および 6 章では 37.4 cm^2 であり、3 章および 7 章では 3.5 cm^2 とした。加圧した N_2 ガスまたは加圧空気によって一定圧力下(30 kPa)で蒸留水のデットエンドろ過によって閉塞膜のろ過抵抗値を算出した(図 2-2)。

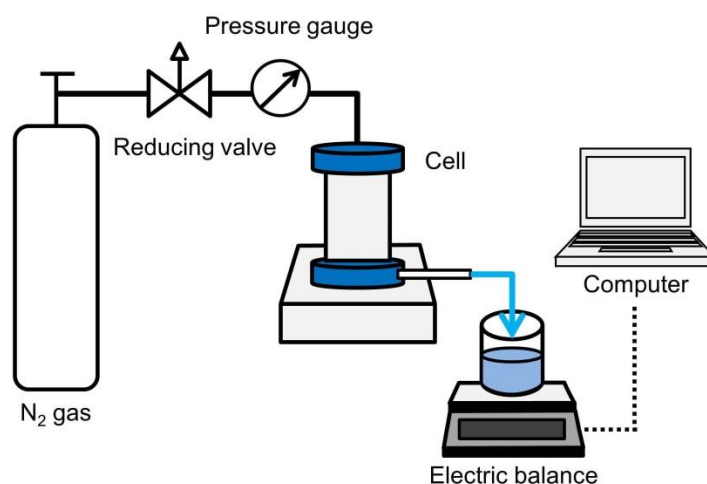


図 2-2 回分ろ過装置の構成(閉塞膜ろ過抵抗値の測定時)

2.5 クリティカルフラックス測定実験

クリティカルフラックスの測定はフラックスステップ法[10]を用いて算出し、TMP の上昇速度が急激に増加するフラックスをクリティカルフラックスとした。クリティカルフラ

ックスの測定に使用した膜は実験で使用した MBR に装着した膜と同じ膜である。有効膜面積が 0.02 m^2 の平板状の膜エレメントを測定に用いた。膜エレメントは測定に使用する前に薬液洗浄を実施した。3 章では膜透過水フラックスを 10.4 LMH から 2.08 LMH 間隔で増加させた。4 章および 6 章では 20 LMH から 5 LMH 間隔で増加させた。各フラックスで 15 分間の連続ろ過を行った。また、各フラックスの間は 5 分間ろ過を休止した。ベンチスケール MBR におけるクリティカルフラックスを測定する場合は、直接平膜エレメントをベンチスケール MBR に設置した。パイロットスケール MBR におけるクリティカルフラックスを測定する場合は、汚泥懸濁液をベンチスケール MBR(有効体積: 7.5–8.5 L)に移し、膜モジュール下部からの常時曝気(曝気量: 10 L/min)条件下で測定を実施した。

2.6 膜閉塞成分の抽出方法

本研究では不可逆的膜ファウリングの原因成分を抽出し、分析した。膜表面付着物の影響を取り除くために、スポンジによる閉塞膜表面のふき取りを行った後、NaOH 溶液(pH12)に浸漬させ 30 °C で 24 時間攪拌し、抽出を行った。なお、抽出溶液は pH7 に中和後(HCl を用いた)、遠心分離(9000rpm, 5 分)にかけ、上澄みを膜閉塞成分として各種分析に使用した。

2.7 走査型電子顕微鏡(SEM)による閉塞膜表面の観察

SEM による膜表面の観察は、S-4000 (Hitachi, Japan)を使用した。また、試料は固定化処理[10]および脱水処理後に臨界点乾燥装置(HCP-1, Hitachi, Japan)を用いて乾燥させた。なお、SEM 観察中の静電気による画像の乱れを防ぐために試料表面をイオンスパッター(E-1030 形, Hitachi, Japan)で白金コーティング処理した。以下に試料の前処理手順を示す。

【試料の固定化処理】

1. サンプルを 2%グルタルアルデヒド(0.1 M リン酸緩衝液)に 2 時間から一晩ほど浸漬させる。なお、サンプルは冷蔵(4–10 °C)条件で浸漬させた。
2. 0.1M リン酸緩衝液で 10 分間サンプルを洗浄し、リン酸緩衝液を取り換えてさらに 1 時間洗浄を行う。洗浄の際は振とう機を使用して、水面がわずかに揺れる程度に振とうする。
3. 1%OsO₄ (0.1 M リン酸緩衝液)に常温で 2 時間浸漬させる。
4. 2 の手順を繰り返す。

【リン酸緩衝液の組成】

※本来、0.1M リン酸緩衝液中に NaCl の添加は不必要であるが、過去の研究[11]で使用し

た条件を本研究においても適用した。

NaCl : 8 g/L

NaH₂PO₄ : 3.5 g/L

Na₂HPO₄ : 12.8 g/L

【サンプルの脱水処理】

1. サンプルを 50%、70%、80%、90%、 95%、100%、100%、100%のエタノールで各 15 分間脱水を行う。
2. 100%酢酸イソアミルに 15 分間浸漬させる。この作業をもう一度繰り返す。

2.8 画像解析方法

MBR 槽内における担体の流動様式を評価するために、画像解析を実施した。水道水もしくはキサンタンガム溶液(濃度: 0.8 g/L)[12,13]を満たした MBR 槽内における粒状担体の流動速度をハイスピードカメラとして使用できるデジタルカメラ(EX-ZR850, CASIO, Japan)で撮影した。動画撮影に使用した MBR は外壁が透明なアクリルおよび塩化ビニルで構成されている。画像の解像度は 512×384 ピクセルに設定し、撮影時のフレームレートを 240 fps とした。デジタルカメラは三脚の上部に取り付けたステンレス板に固定した。なお、MBR 反応槽を垂直に撮影できるようにデジタルカメラを固定するステンレス板は水平器で水平にした。また、ステンレス板にレーザーポインタを固定し、MBR 反応槽の外壁に取り付けた鏡にレーザー光を反射させた。反射光が照射部と一致するように調整することで、MBR 外壁に対して垂直にカメラを設置した。パイロットスケール MBR 槽内における担体の流動様式を撮影する際には、膜エレメントと同じ大きさの透明なアクリル板を設置し、膜モジュール中央部を撮影した。

得られた動画は ImageJ を用いて解析し、MBR 槽内における担体の流動速度を算出した。以下に本研究における動画の撮影から解析までの手順の要約を示す。

【動画解析の手順】

1. 水道水もしくはキサンタンガム溶液を満たした MBR 槽内を流動する担体をハイスピードカメラ(フレームレート: 240 fps)で撮影する。なお、担体の流動様式を解析するための動画とは別に、解析の際にスケールの基準として使用するために動画を別に撮影する。
2. 得られた動画を ImageJ で解析できるファイル形式である非圧縮の AIV 形式に変換する。
3. ImageJ を用いて動画の 10 フレーム(24 分の 1 秒)ごとに担体の位置を記録し、変位から速度を算出する。

第2章 参考文献

- [1] 日本下水道協会, 下水道試験法上巻 (1997).
- [2] E.W. Rice, R.B. Barid, A.D. Eaton, L.S. Clesceri, Standard Methods For the Examination of Water and Wastewater, 22nd ed., Water Environment Federation, 2012.
- [3] W. Yang, W. Syed, H. Zhou, Comparative study on membrane fouling between membrane-coupled moving bed biofilm reactor and conventional membrane bioreactor for municipal wastewater treatment, *Water Sci. Technol.* 69 (2014) 1021–1027.
- [4] S.J. Khan, S. Ilyas, S. Javid, C. Visvanathan, V. Jegatheesan, Performance of suspended and attached growth MBR systems in treating high strength synthetic wastewater, *Bioresour. Technol.* 102 (2011) 5331–5336.
- [5] M. Dubois, K.A. Gilles, J.K. Hamilton, P.A. Rebers, F. Smith, Colorimetric method for determination of sugars and related substances, *Anal. Chem.* 28 (1956) 350–356.
- [6] O.H. Lowry, N.J. Rosebrough, A.L. Farr, R.J. Randall, Protein measurement with the folin phenol reagent, *J. Biol. Chem.* 193 (1951) 265–275.
- [7] J.-P. Croué, M.F. Benedetti, D. Violleau, J.A. Leenheer, Characterization and copper binding of humic and nonhumic organic matter isolated from the South Platte River: evidence for the presence of nitrogenous binding site, *Environ. Sci. Technol.* 37 (2003) 328–336.
- [8] B. Frølund, R. Palmgren, K. Keiding, P. Nielsen, Extraction of extracellular polymers from activated sludge using a cation ion exchange resin, *Water Res.* 30 (1996) 1749–1758.
- [9] P. van der Marel, A. Zwijnenburg, A. Kemperman, M. Wessling, H. Temmink, W. van der Meer, an improved flux-step method to determine the critical flux and the critical for irreversibility in a membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 332 (2009) 24–29.
- [10] 日本電子顕微鏡学会関東支部編, 走査電子顕微鏡, 共立出版 (2000).
- [11] 渡辺江梨, MBR の化学薬品洗浄における薬液使用順序および洗浄方法が洗浄効果に与える影響, 北海道大学大学院工学院修士論文 (2011).
- [12] S. Rosenberger, F.P. Helmus, S. Krause, A. Bareth, U Meyer-Blumenroth, Principles of an enhanced MBR-process with mechanical cleaning, *Water Sci. Technol.* 64 (2011) 1951–1958.
- [13] L. Bohma, T. Kurita, K. Kimura, M. Kraume, Rising behaviour of single bubbles in narrow rectangular channels in Newtonian and non-Newtonian liquids, *Int. J. Multiph. Flow* 65 (2014) 11–23.

第3章

粒状担体の投入が MBR の運転効率および膜ファウリング特性に与える影響

3.1 はじめに

膜分離活性汚泥法(MBR)は従来型活性汚泥法と比べて、処理に多くのエネルギーを必要としており[1]、エネルギーの削減が MBR のさらなる普及に向けた最大の課題となっている。MBR 処理にかかるエネルギーを増加させている主な原因は膜ファウリングの抑制を目的とした曝気である[2,3]。曝気に使用されるエネルギーは MBR 処理に必要なエネルギーの 70%以上に達する報告もある[4,5]。MBR 処理にかかるエネルギーを削減するために、曝気に代わるより効率的な膜ファウリング抑制方法が求められている。粒状担体を MBR へ投入することで効率的な膜ファウリングの抑制が期待できる。

粒状担体を浸漬型 MBR へ投入することで、膜表面が粒状担体によって物理的に洗浄され膜ファウリングの発生を抑制できることが報告されている[6–9]。また、Hu ら[10]は担体に付着した微生物の生化学的な作用によって、汚泥性状が変化し膜ファウリングの発生が抑制されることを報告している。これらの報告は担体を浸漬型 MBR に投入することで膜ファウリング抑制のための曝気を大幅に削減できる可能性を示している。Pradan ら[11]は浸漬型 MBR に粒状物を投入することで、膜ファウリング抑制のための曝気を 2 倍にした場合と同程度の膜ファウリング抑制効果が得られることを報告している。しかし、担体の投入による曝気量削減効果などの MBR 運転効率の改善についての検討例は未だに乏しいのが現状である。また、担体を MBR に投入することで膜表面に蓄積するケーキが除去され、膜ファウリングを抑制できることが先行研究によって確認されている[6,9,12]。Jin ら[9]は担体を MBR に投入することで、膜表面に蓄積するケーキ内部のタンパク質様成分

が減少することを報告している。一方で、物理的な洗浄で除去できない不可逆的膜ファウリング[13]については、担体の効果は限定的であることが予想される。担体を浸漬型 MBR へ投入することで不可逆的膜ファウリングを引き起こす成分が変化する可能性がある。しかしながら担体を投入した場合における不可逆的膜ファウリング成分についての知見は不足している。担体投入時において膜ファウリングを引き起こす成分を明らかにすることで、担体投入型 MBR に適した特性を持つ膜を選択することが可能となる。

本章では浸漬型 MBR への粒状担体投入に伴う膜ファウリング抑制効果および曝気削減可能量の評価、担体の投入が膜ファウリング特性に与える影響に関する検討を行った。膜ファウリング特性については、粒状担体でコントロールできない不可逆的膜ファウリングに着目して分析を実施した。本実験では同一条件で並列運転する 2 台のベンチスケール MBR の一方に粒状担体を投入し、担体を投入しない MBR と比較を行った。膜ファウリング抑制効果および曝気量削減効果については、クリティカルフラックスおよび膜間差圧 (TMP) の上昇速度から評価した。膜ファウリング特性については閉塞膜の膜ろ過抵抗値および閉塞膜から抽出した膜閉塞成分を比較することで検討した。

3.2 実験方法

3.2.1 ベンチスケール MBR の運転条件

人工下水を流入原水とする 2 台のベンチスケール MBR(容積: 8 L)の一方に担体を投入し、同一条件で並列運転を行った。実験装置の構成を図 3-1 に示す。本研究では公称孔径 0.1 μm の PVDF 製平膜(Toray, Japan)を使用した。膜モジュール下部より常時曝気(曝気量: 17 L/min)を伴う間欠ろ過運転を実施した(12 分ろ過、1 分休止)。TMP が 40 kPa に達した時点で、膜の物理洗浄(加圧水の吹き付けおよびスポンジによる膜表面のふき取り)を実施した。実験の開始に先立ち、実都市下水を処理するパイロットスケール MBR の汚泥を種汚泥とし、人工下水による馴致を行った。実験期間を通して反応槽内の水温は恒温装置を用いて 20 $^{\circ}\text{C}$ とした。

実験に使用した担体(BCN, Nisshinbo Chemical Inc., Japan)は高さと直径が 4 mm の円柱形で、比重は 1.01 である。図 3-2 に本研究で使用した担体の写真を示す。本研究で使用した担体は、排水処理における微生物固定化を目的に開発されたものであり、ポリエチレングリコールが主成分である。見かけ体積で反応槽体積の 10%分に相当する量の担体を一方の MBR へ投入した。

本研究では約 2 週間の短期実験(Run1)と約 4 ヶ月間の長期実験(Run2)を行った。それぞれの実験期間における MBR 運転条件を表 3-1 に示す。

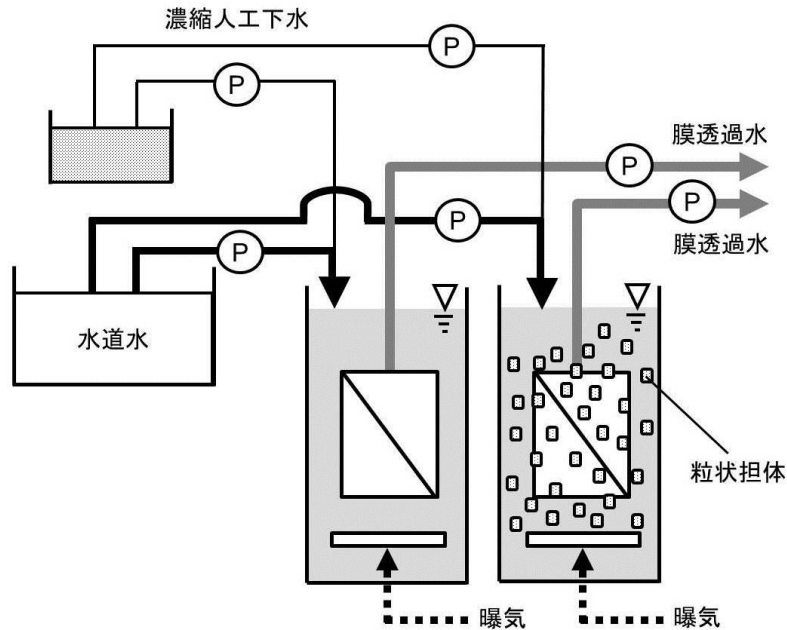


図 3-1 ベンチスケール MBR の装置構成

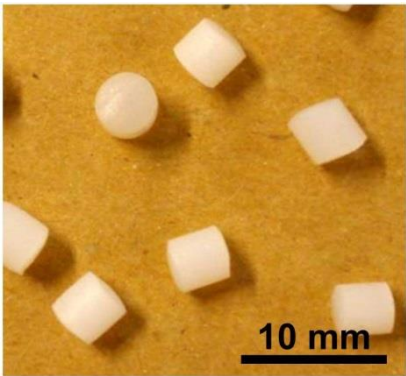


図 3-2 本研究で使⽤した担体の写真

表 3-1 各 Run における MBR 運転条件

	Run1	Run2
反応槽体積 (L)	8	7.5
膜透過水フラックス (LMH)	16.7	18.8
膜面積 (m ²)	0.12	0.06
SRT (d)	10	22
HRT (h)	4.0	7.2

Run1 では担体投入に伴う曝気量削減効果について検討を行った。ベンチスケール MBR への流入原水には酢酸ナトリウムを炭素源とする人工下水を使用した。人工下水は木村ら[14]の人工下水と同一組成とし、酢酸ナトリウムが主な炭素源である。1 ヶ月間の馴致後に、フラックスステップ法[15]を用いてクリティカルフラックスを測定した。膜透過水フラックスは 10.4 LMH ($0.25 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$)から 29.2 LMH ($0.70 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$)に 2.08 LMH($0.05 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$)間隔で増加させた。各フラックスで 15 分間の連続ろ過を行った。また、各フラックスの間は 5 分間ろ過を休止した。

Run2 では 4 ヶ月間の連続運転を通して、浸漬型 MBR への担体投入が膜ファウリング特性に与える影響について検討した。Run2 の実験に使用した人工下水の組成[16]を表 3-2 に示す。Run2 ではペプトンおよび肉抽出液を主な炭素源とする人工下水を使用した。運転開始 1 ヶ月後および 4 ヶ月後の閉塞膜を MBR 槽内から取り出し、膜ろ過抵抗値の測定および膜閉塞成分の分析を行った。1 ヶ月経過時点での閉塞膜試料採取時には、処理水量を維持するために同面積の新膜を MBR 装置に設置した。膜の物理洗浄後に加圧型回分ろ過装置(有効膜面積: 3.5 cm^2 , 圧力: 30 kPa)を用いて閉塞膜のろ過抵抗値の測定を行った。膜透過水量は電子天秤により測定し、膜ろ過抵抗値の算出には以下の式を用いた。

$$R_t = \frac{\Delta P}{J \cdot \mu} \quad (1)$$

$$R_t = R_m + R_r + R_{ir} \quad (2)$$

ここで、 J は膜透過水フラックス($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}$)、 ΔP はTMP(Pa)、 μ は膜透過水の粘性係数($\text{Pa} \cdot \text{s}$)、 R_t は全ろ過抵抗値(m^{-1})、 R_m は膜ろ過抵抗値(m^{-1})、 R_r は物理洗浄で解消できる物理的に可逆的なろ過抵抗値(m^{-1})、 R_{ir} は物理洗浄で除去できない物理的に不可逆的なろ過抵抗値(m^{-1})を示す。

本研究では物理洗浄で解消できない物理的に不可逆的な膜ファウリング[13]を引き起こす成分を抽出して比較を行った。膜表面蓄積物の影響を取り除くために、膜閉塞成分の抽出はスポンジによる物理洗浄後に実施した。閉塞膜を 30°C の水酸化ナトリウム水溶液($\text{pH} = 12$)に24時間浸漬させ、膜閉塞成分を抽出した。

表 3-2 Run2 における人工下水の組成

	濃度 (mg/L)
ペプトン	240
肉抽出液	165
尿素	45
K ₂ HPO ₄	42
NaCl	10.5
CaCl ₂ ・2H ₂ O	6
Mg ₂ SO ₄ ・7H ₂ O	3
NaHCO ₃	480

3.2.2 分析方法

全有機炭素(TOC)および溶解性有機炭素(DOC)は TOC 計(TOC-VCSH, Shimadzu, Japan)を用いて測定を行った。反応槽内の DO 濃度の測定は DO 計(DO-24P, DKK-TOA, Japan)を使用した。汚泥懸濁液中の DOC および溶解性糖、溶解性タンパク質成分の測定には汚泥遠心分離上澄み液(5000 rpm, 5 分)を 0.45 μm の混合セルロースエステル膜(MCE) (Advantec Tokyo, Japan)でろ過し、得られたろ液を使用した。糖およびタンパク質の分析にはフェノール硫酸法[17]、Lowry 法[18]を使用した。標準試料にはグルコース、牛血清アルブミン(BSA)をそれぞれ使用した。本研究では 150 W のキセノンランプを光源とする蛍光分光光度計(RF-5300PC, Shimadzu, Japan)を用いて、EEM の測定を行った。励起および蛍光波長は 5 nm 間隔とした。

Run2 においてベンチスケール MBR から取り出した閉塞膜表面を走査型電子顕微鏡(SEM)によって観察した。電子顕微鏡は S-4000(Hitachi, Japan)を使用した。膜モジュールから切り出した閉塞膜試料は膜表面付着物の構造を固定するために、2%グルタルアルデヒド(0.1M リン酸緩衝液で調整, pH = 7.2)に 5 °C で一晩浸漬させた。その後、1%オスミウム溶液(0.1M リン酸緩衝液で調整, pH = 7.2)に室温で 2 時間浸漬させた。膜表面付着物の固定化処理後のサンプルはエタノール脱水し、乾燥時の膜表面変形を防ぐために臨界点乾燥装置(HCP-1, Hitachi, Japan)を用いて臨界点乾燥を行った。臨界点乾燥の中間液には酢酸イソアミルを使用した。臨界点乾燥後の試料は、SEM 観察中における静電気の影響を取り除くためにイオンスパッター(E-1030, Hitachi, Japan)で白金コーティング処理を施した。

3.3 結果と考察

3.3.1 Run1

3.3.1.1 クリティカルフラックス

図 3-3 に膜透過水フラックスを増加させた場合の TMP 経時変化を示す。担体を投入しない MBR(曝気量: 17 L/min)では膜透過水フラックスが 14.6 LMH 以上になると急激に TMP が上昇した。これは担体を投入しない MBR のクリティカルフラックスが 14.6 LMH($0.35 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$)であることを示している。一方、担体を投入した MBR ではクリティカルフラックスが 22.9 LMH($0.55 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$)まで上昇した。Krause ら[19]は粒状担体を MBR に投入することで、粒状担体の物理洗浄効果によって膜透過水フラックスを約 30%高められることを報告している。本研究では、粒状担体の投入によってクリティカルフラックスを 40%以上昇させることが可能であった。表 3-3 に Run1 における各 MBR の MLSS および汚泥溶解性有機物の濃度を示す。担体を投入した MBR では MLSS 濃度が担体を投入しない MBR に比べて増加した。一方で汚泥懸濁液中の溶解性糖・タンパク質濃度は担体を投入しない MBR よりも減少していた。汚泥懸濁液中の溶解性糖およびタンパク質は MBR における主な膜閉塞成分と考えられている[20]。担体を投入した MBR では膜表面の物理的な洗浄効果に加えて、汚泥懸濁液中における溶解性成分の濃度低下がクリティカルフラックスを増加させたと考えられる。担体を投入した MBR のみ曝気量を半減させてクリティカルフラックスの測定を行ったところ、担体を投入しない MBR とほぼ同様の TMP 上昇傾向を得た。この結果は担体を投入することで、MBR における曝気量を 50%削減しても安定したろ過を継続できることを示唆している。曝気量を 8.5 L/min に削減した際の反応槽内の DO 濃度は十分に高かった($>2 \text{ mg/L}$)。クリティカルフラックス測定結果から、担体を投入した MBR では曝気量を 50%削減した状態(8.5 L/min)で運転を継続できることが示唆された。

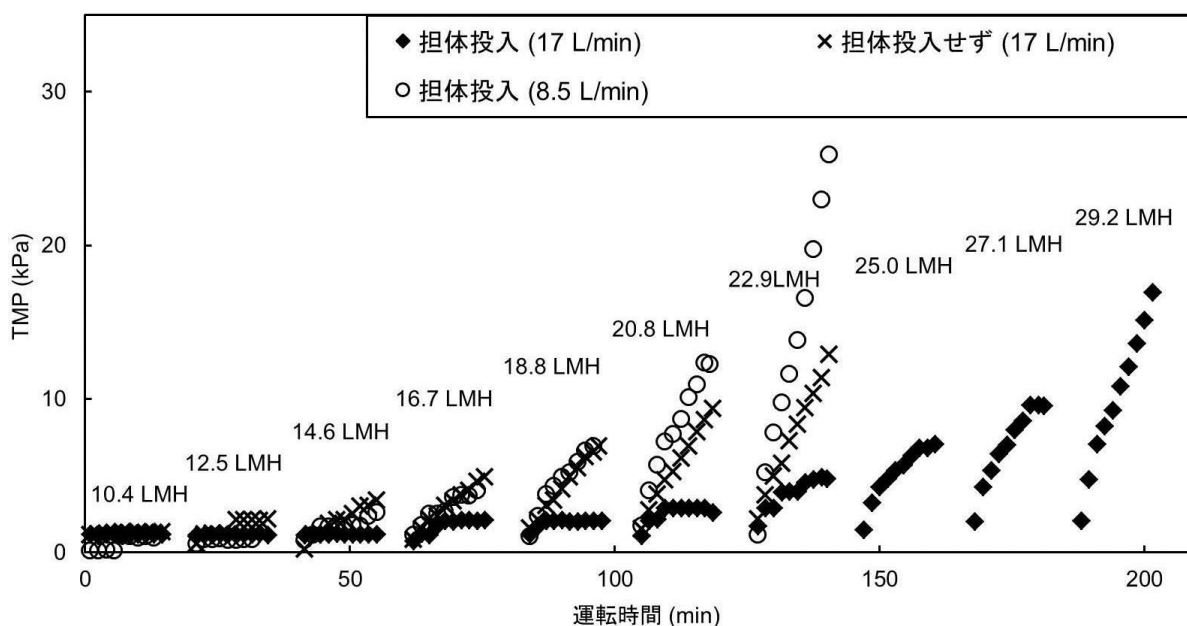


図 3-3 膜透過水フラックスを増加させた場合の TMP 経時変化

表 3-3 Run1 における MLSS および汚泥溶解性有機物濃度

	担体投入せず	担体投入
MLSS (mg/L)	2900 ± 400	3300 ± 100
糖 (mg/L)	27.6 ± 6.3	12.7 ± 4.9
タンパク質 (mg/L)	8.3 ± 6.9	9.6 ± 6.0
C/P	3.3	1.3

3.3.1.2 担体投入による曝気量削減効果

図 3-4 に担体を投入しない MBR と担体を投入し曝気量を削減させた MBR における TMP の経時変化をそれぞれ示す。図中の矢印は物理洗浄(スポンジによるふき取り)の実施時期を示している。Run1 では、担体を投入しない MBR の TMP は 100 時間ほどで 40 kPa まで上昇し、物理洗浄によって TMP は低下するものの、繰り返し TMP の上昇が観察された(図 3-4(a))。一方、担体を投入した MBR では曝気量を削減したにも関わらず、物理洗浄を一度も実施せずに運転を継続できた(図 3-4(b))。粒状担体を浸漬型 MBR へ投入することで膜ファウリングの抑制と曝気量の削減を同時に達成できることが示された。

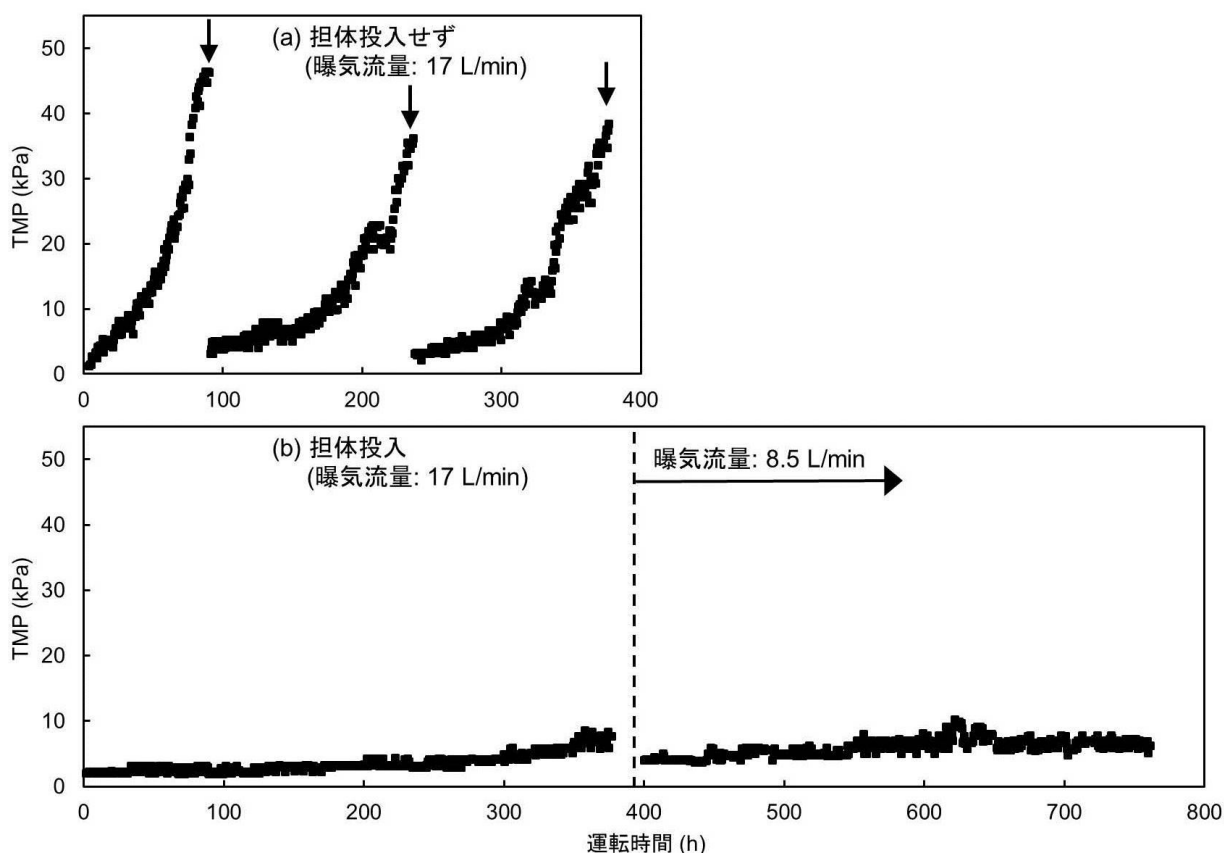


図 3-4 Run1 における TMP 経時変化

3.3.2 Run2

3.3.2.1 粒状担体の投入が MBR の長期運転に与える影響

表 3-4 に Run2 における MLSS および汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度を示す。担体を投入した MBR では Run1 と同様に MLSS 濃度が担体を投入しない MBR に比べて高くなった。一方、溶解性成分ではタンパク質濃度は同程度であったのに対して、糖濃度は担体を投入した MBR のみ低下した。図 3-5 に Run2 における溶解性成分の EEM スペクトルを示す。なお、EEM スペクトルの測定は Run2 の中で繰り返し実施したが、得られたスペクトルは図 3-5 と同様の形状となった。溶解性成分の EEM スペクトルはいずれの MBR の場合もフミン質様成分の存在を示す $Ex/Em = 330 \text{ nm}/400 \text{ nm}$ 付近のピーク[21]が支配的であり、同様のスペクトル形状となった。EEM による分析では糖成分については検出することができないことを留意する必要があるが、2 台の MBR から採取された汚泥懸濁液中の溶解性有機物の特徴がある程度類似していることが示唆された。処理水中の TOC 濃度は担体の投入の有無に関わらず、 5 mg/L 程度で推移し、4 ヶ月間の連続運転では担体投入に伴う処理水質の悪化は観察されなかった。

表 3-4 Run1 における MLSS および汚泥溶解性有機物濃度

	担体投入せず	担体投入
MLSS (mg/L)	5200 ± 400	6600 ± 700
糖 (mg/L)	35.4 ± 11.7	26.8 ± 19.1
タンパク質 (mg/L)	12.0 ± 2.8	11.7 ± 2.8
C/P	3.0	2.3

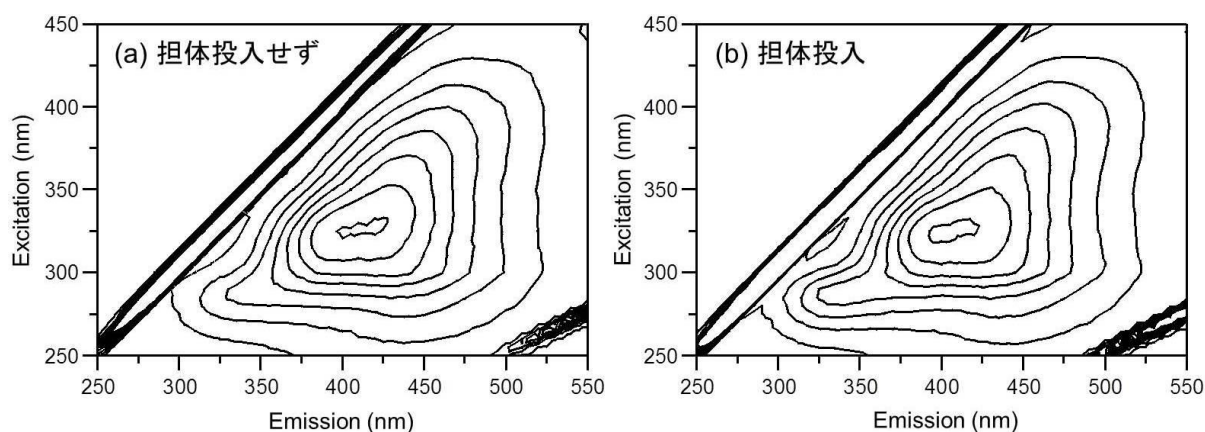


図 3-5 Run2 における汚泥溶解性成分 EEM スペクトル

図 3-6 に 4 ヶ月間の長期実験における TMP の経時変化を示す。図中の矢印は物理洗浄(スポンジによるふき取り)の実施時期を示している。担体を投入しない MBR(図 3-6(a))では TMP が 10 日ほどの間で急激に上昇し、物理洗浄の実施を余儀なくされた。膜表面の物理洗浄によって TMP が大きく低下したことから、担体を投入しない MBR では主に可逆的膜ファウリングが発生していることが示された。担体を投入しない MBR では TMP の急激な上昇が 4 ヶ月間繰り返し観察された。一方、担体を投入した MBR(図 3-6(b))では TMP の上昇は緩やかであり、一度も物理洗浄を実施することなく 4 ヶ月間の連続運転が可能であった。担体を浸漬型 MBR へ投入することで、膜ファウリングを長期にわたって抑制できることが示された。

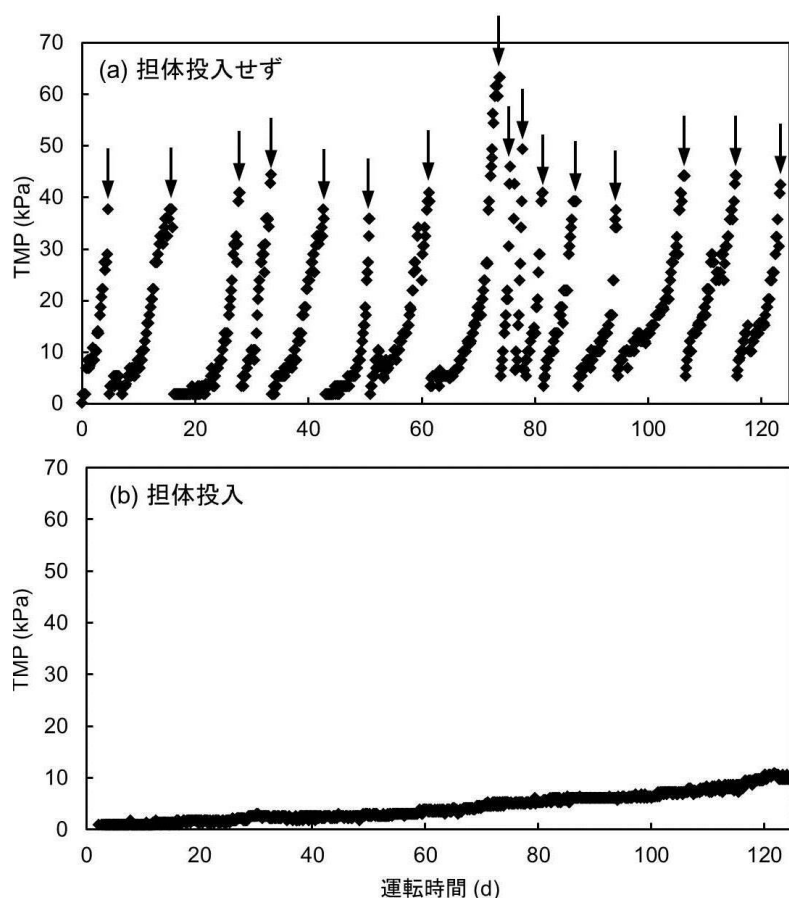


図 3-6 Run2 における TMP 経時変化

図 3-7 に運転開始 1 ヶ月後の膜表面 SEM 画像を示す。図 3-7 に示した画像は物理洗浄を実施せずに閉塞膜表面構造を固定して撮影したものである。担体を投入しない MBR では膜表面が蓄積物で覆われていた(図 3-7(b))のに対して、担体を投入した MBR では膜表面の蓄積物が観察されず、新膜とほぼ同様の状態が保たれていた(図 3-7(c))。浸漬型 MBR へ担体を投入することで、膜表面へのケーキ蓄積を効果的に抑制できることが SEM による観察から示された。Yang ら[6]は浸漬型 MBR へ担体を投入しても、中空糸膜表面にゲル層が形成されることを報告している。本研究では上述したように、担体を投入した MBR ではケーキ/ゲル層は観察されなかった。この違いは膜形状の違いによるものと考えられる。Yang ら[6]は中空糸膜を実験に使用したことで、膜表面(特に中空糸束の内側)に担体が到達しづらい構造となっていた。本研究では平膜を使用したことで、担体が膜表面に到達しやすくなり、担体の膜表面洗浄効果が向上したと考えられる。また、図 3-8 に運転開始 4 ヶ月後に MBR から取り出した閉塞膜表面の物理洗浄後における SEM 画像を示す。担

体が膜表面と接触することで、膜表面の損傷を引き起こすことが報告されているが[8,22]、本研究では膜表面損傷は観察されなかった。

一方で、4ヶ月間の運転を通して担体を投入したMBRにおいてもTMPの緩やかな上昇が観察された。長期的な運転によって、物理洗浄で除去できない膜ファウリング、すなわち不可逆的膜ファウリングは緩やかに進行することが示された。

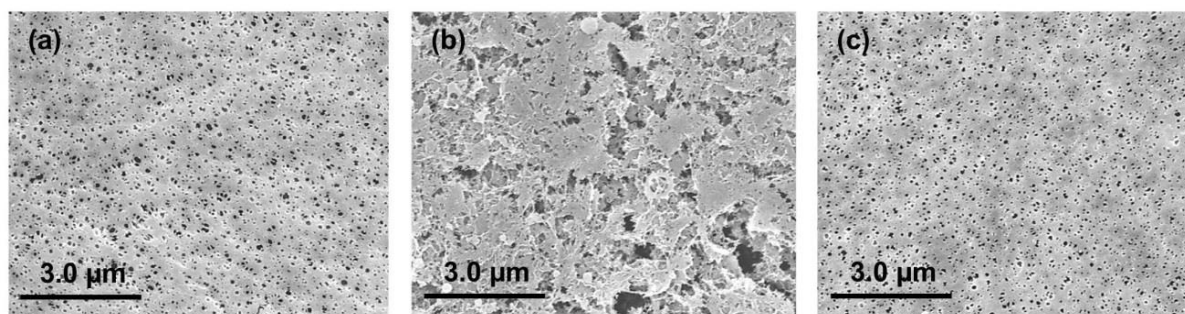


図 3-7 運転開始 1 ヶ月後の膜表面 SEM 画像:

(a) 未使用の新膜, (b) 担体投入せず, (c) 担体投入

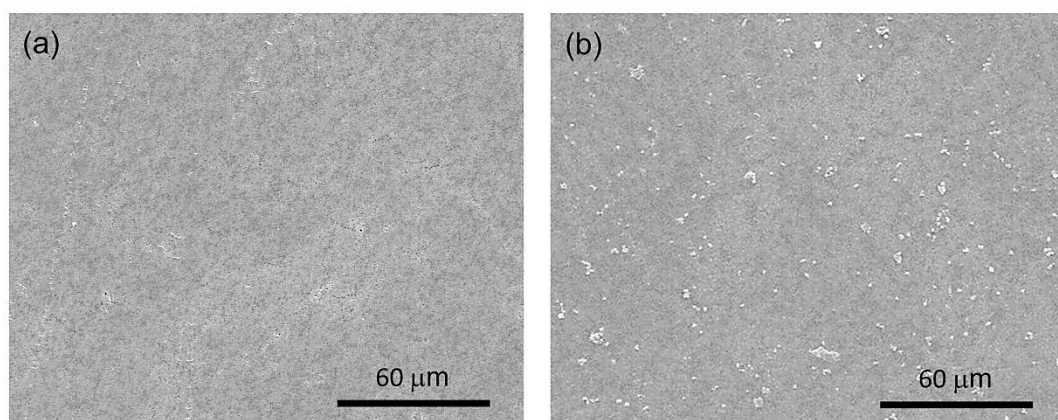


図 3-8 運転開始 4 ヶ月後の膜表面 SEM 画像(物理洗浄後):

(a) 担体投入せず, (b) 担体投入

3.3.2.2 閉塞膜の膜ろ過抵抗値

運転開始 1 ヶ月後および 4 ヶ月後に膜エレメントの一部を MBR 槽内から取り出し、小型回分ろ過装置を用いて膜ろ過抵抗値を測定した(表 3-5)。担体を投入しない MBR では、物理洗浄で解消できる可逆的な膜ファウリングが大きな割合(>80%)を占めていた。不可逆的膜ファウリングについては運転時間の経過に伴って、2 台の MBR とともに進行したが、担体を投入した MBR では膜ファウリングに占める不可逆的膜ファウリングの割合が大きく増加していた。運転開始 4 ヶ月後の閉塞膜では、担体を投入しない MBR に比べて担体を投入した MBR では不可逆的膜ろ過抵抗値が 2 倍以上となっていた。担体の投入によって可逆的膜ファウリングは効果的にコントロールできるが、不可逆的膜ファウリングについては進行が促進されることが示された。図 3-9 に物理洗浄実施後における運転開始 4 ヶ月後の膜表面を示す。担体を投入しない MBR ではスポンジによる物理洗浄によって膜表面蓄積物は除去された(図 3-9(a))。一方で、担体を投入した MBR では膜表面と強固に結合している成分が膜全面にわたり観察された(図 3-9(b))。膜表面のケーキ層はダイナミックフィルターとして作用し、汚泥中の粒子を補足する[23,24]。Lin ら[25]は SMP 成分が膜分離面および膜表面のケーキ層で除去されることを報告している。担体を投入した MBR では膜表面のケーキ蓄積が抑制され(図 3-7(c))、膜閉塞成分が膜表面に到達しやすくなることで不可逆的膜ファウリングを引き起こすことが示唆された。また、担体を投入した MBR ではケーキ層が消失したことで不可逆的膜ファウリングを引き起こす成分が、担体を投入しない MBR と異なることが示された(詳細は 3.3.2.3 項で述べる)。しかし、いずれの閉塞膜も次亜塩素酸ナトリウムによる薬液洗浄によって新膜と同程度の膜透過性能に回復させることができた。この結果は本研究で発生した不可逆的膜ファウリングは汚泥中の有機物によって引き起こされたことを示唆している。

表 3-5 閉塞膜のろ過抵抗

	運転開始 1 ヶ月後				運転開始 4 ヶ月後			
	担体投入せず		担体投入		担体投入せず		担体投入	
	$10^{11} (\text{m}^{-1})$	%	$10^{11} (\text{m}^{-1})$	%	$10^{11} (\text{m}^{-1})$	%	$10^{11} (\text{m}^{-1})$	%
R_m	0.6	10.5	0.6	31.6	0.6	0.8	0.6	3.9
R_r	4.8	84.2	0.4	21.0	69.1	93.8	6.2	40.5
R_{ir}	0.3	5.3	0.9	47.4	4.0	5.4	8.5	55.6
R_t	5.7		1.9		73.7		15.3	

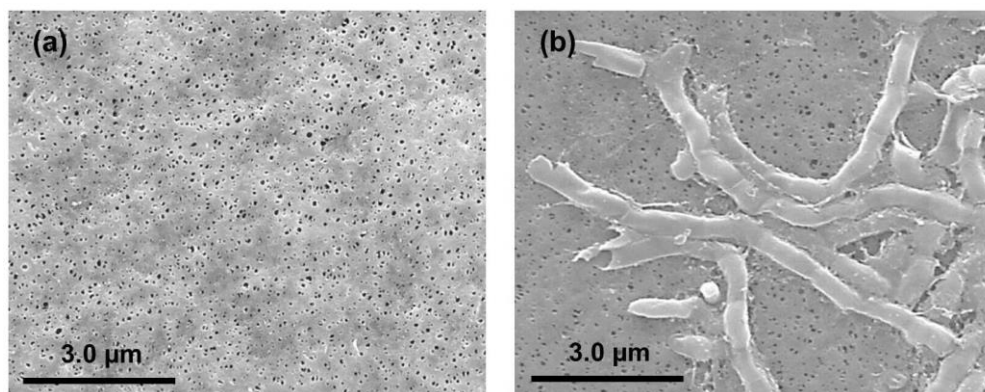


図 3-9 運転開始 4 ヶ月後の膜表面 SEM 画像(物理洗浄後):

(a) 担体投入せず, (b) 担体投入

3.3.2.3 膜閉塞成分の分析

表 3-6 に閉塞膜から抽出された膜閉塞成分の有機物量を示す。運転の延長に伴って、いずれの MBR においても膜閉塞成分の抽出量は増加した。運転の延長に伴い、膜閉塞成分中におけるタンパク質の寄与が増加したことが読み取れる。担体を投入した MBR と担体を投入しない MBR を比較すると、担体を投入した MBR では抽出されるタンパク質の量が多い一方で、糖の抽出量は同程度であった。図 3-10 に膜閉塞成分の EEM スペクトル図を示す。運転開始 1 ヶ月後では担体投入の有無に関わらず、同様のスペクトル形状となった(図 3-10(a), (b))。運転開始 4 ヶ月後ではいずれの MBR もタンパク質様成分($Ex/Em = 270\text{ nm}/320\text{ nm}$)の強いピークが観察された(図 3-10(c), (d))。これは、膜閉塞成分中におけるタンパク質成分の濃度が増加していたことを示しており、表 3-6 の結果と一致している。汚泥溶解性成分中の EEM スペクトル(図 3-5)ではフミン質様成分のピークが支配的であったにも関わらず、閉塞膜の抽出成分中にはタンパク質様成分のピークが強くなっていた。これはタンパク質成分が不可逆的膜ファウリングの進行を促進していることを示唆している。

運転開始 4 ヶ月後に担体を投入した MBR の閉塞膜から抽出した膜閉塞成分の EEM スペクトルでは、フミン質様成分の特徴的なピークが観察されるようになっていた(図 3-10(d))。一方で担体を投入しない MBR の閉塞膜成分中にはフミン質様成分の特徴的なピークは観察されなかった(図 3-10(c))。この結果は担体の投入によって、膜閉塞成分が変化することを示唆している。本研究では担体の投入によって膜表面蓄積物が除去されることで、ダイナミックフィルター効果が失われることが示された。その結果、粒状担体を投入した MBR において、フミン質様成分の不可逆的膜ファウリングへの寄与が増したと考えられる。

表 3-6 Run2 の閉塞膜から抽出された有機物量

	運転開始 1 ヶ月後		運転開始 4 ヶ月後	
	担体投入せず	担体投入	担体投入せず	担体投入
TOC (mg/m ²)	140	120	220	260
糖(mg/m ²)	89	75	160	140
タンパク質(mg/m ²)	160	210	490	570
C/P	0.56	0.36	0.33	0.25

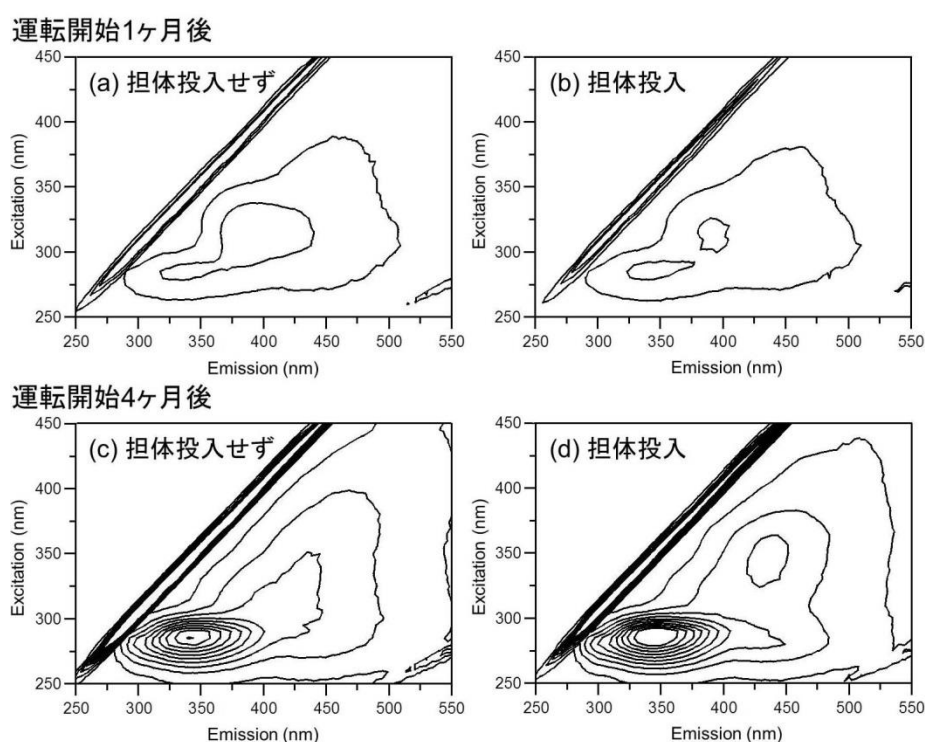


図 3-10 膜閉塞成分の EEM スペクトル

3.4 まとめ

浸漬型 MBR への粒状担体の投入により、クリティカルフラックスが 40%上昇した。担体を投入することで MBR の曝気量を削減できることが示された。本研究では浸漬型 MBR へ担体を投入することで、曝気量を 50%削減しても安定した運転を継続することが可能であった。4 ヶ月間の長期的な MBR の運転においても、担体の投入によって可逆的膜ファウリングは効果的に抑制されたが、不可逆的膜ファウリングについては進行が促進されることが示された。担体を投入することで異なる成分が不可逆的膜ファウリングを引き起こすことが示された。担体を投入した MBR ではフミン質様成分の不可逆的膜ファウリングへの寄与が増した。これらは、担体の膜表面洗浄効果によって膜表面に形成されるダイナミックフィルターが消失することで生じることが示唆された。

第3章 参考文献

- [1] A. Fenu, J. Roels, T. Wambecq, K. DeGussem, C. Thoeve, G. De Gueldre, B. van De Steene, Energy audit of a full scale MBR system, *Desalination* 262 (2010) 121–128.
- [2] J.A. Gil, L. Túa, A. Rueda, B. Montañó, M. Rodríguez, D. Prats, Monitoring and analysis of the energy cost of an MBR, *Desalination* 250 (2010) 997–1001.
- [3] F. Fatone, P. Battistoni, P. Pavan, F. Cecchi, Operation and maintenance of full-scale municipal membrane biological reactors: a detailed overview on a case study, *Ind. Eng. Chem. Res.* 46 (2007) 6688–6695.
- [4] M. Kraume, A. Drews, Membrane bioreactors in waste water treatment – status and trends, *Chem. Eng. Technol.* 33 (2010) 1251–1259.
- [5] B. Verrchaht, T. Maere, I. Nopens, C. Brepols, S. Judd, The cost of a large-scale hollow fibre MBR, *Water Res.* 44 (2010) 5274–5283.
- [6] Q. Yang, J. Chen, F. Zhang, Membrane fouling control in a submerged membrane bioreactor with porous, flexible suspended carriers, *Desalination* 189 (2006) 292–302.
- [7] W.-N. Lee, I.-J. Kang, C.-H. Lee, Factors affecting filtration characteristics in membrane-coupled moving bed biofilm reactor, *Water Res.* 40 (2006) 1827–1835.
- [8] B. Siembida, P. Cornel, S. Krause, B. Zimmermann, Effect of mechanical cleaning with granular material on the permeability of submerged membrane in the MBR process, *Water Res.* 44 (2010) 4037–4046.
- [9] L. Jin, S.L. Ong, H.Y. Ng, Fouling control mechanism by suspended biofilm carriers addition in submerged ceramic membrane bioreactors, *J. Membr. Sci.* 427 (2013) 250–258.
- [10] J. Hu, H. Ren, K. Xu, J. Geng, L. Ding, X. Yan, K. Li, Effect of carriers on sludge characteristics and mitigation of membrane fouling in attached-growth membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 122 (2012) 35–41.
- [11] M. Pradhan, S. Vigneswaran, J. Kandasamy, R.B. Aim, Combination effect of air and mechanical scouring of membrane for fouling reduction in submerged membrane reactor, *Desalination* 288 (2012) 58–65.
- [12] X. Huang, C.-H. Wei, K.-C. Yu, Mechanism of membrane control by suspended carriers in a submerged membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 309 (2009) 7–16.
- [13] K. Kimura, Y. Hane, Y. Watanabe, G. Amy, N. Ohkuma, Irreversible membrane fouling during ultrafiltration of surface water, *Water Res.* 38 (2004) 3431–3441.
- [14] K. Kimura, T. Naruse, Y. Watanabe, Changes in characteristics of soluble microbial products in

- membrane bioreactors associated with different solid retention times: relation to membrane fouling, *Water Res.* 43 (2009) 1033–1039.
- [15] P. van der Marel, A. Zwijnenburg, A. Kemperman, M. Wessling, H. Temmink, W. van der Meer, An improved flux-step method to determine the critical flux and the critical flux for irreversibility in a membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 332 (2009) 24–29.
- [16] OECD, OECD Guidelines for Testing Chemicals, Organization for Economic Cooperation and Development, Paris, Guideline 302A & 303A, 1993.
- [17] M. Dubois, K.A. Gilles, J.K. Hamilton, P.A. Rebers, F. Smith, Colorimetric method for determination of sugars and related substances, *Anal. Chem.* 28 (1956) 350–356.
- [18] O.H. Lowry, N.J. Rosebrough, A.L. Farr, R.J. Randall, Protein measurement with the folin phenol reagent, *J. Biol. Chem.* 193 (1951) 265–275.
- [19] S. Krause, B. Zimmermann, U. Meyer-Blumenroth, W. Lamparter, B. Siembida, P. Cornel, Enhanced membrane bioreactor process without chemical cleaning, *Water Sci. Technol.* 61 (2010) 2575–2580.
- [20] A. Drews, Membrane fouling in membrane bioreactors — characterisation, contradictions, cause and cures (review), *J. Membr. Sci.* 363 (2010) 1–28.
- [21] W. Chen, P. Westerhoff, J.A. Leenheer, K. Boolsh, Fluorescence excitation– emission matrix regional integration to quantify spectra for dissolved organic matter, *Environ. Sci. Technol.* 37 (2003) 5701–5710.
- [22] M.T. Alresheedi, O.D. Basu, support media impacts on humic acid, cellulose, and kaolin clay in reducing fouling in a submerged hollow fiber membrane system, *J. Membr. Sci.* 450 (2014) 282–290.
- [23] Y.Kiso, Y.-J. Jung, M.-S. Park, W. Wang, M. Shimase, T. Yamada, K.-S. Min, Coupling of sequencing batch reactor and mesh filtration: operational parameters and wastewater treatment performance, *Water Res.* 39 (2005) 4887–4898.
- [24] X. Zhang, Z. Wang, Z. Wu, F. Lu, J. Tong, L. Zang, Formation of dynamic membrane in an anaerobic membrane bioreactor for municipal wastewater treatment, *Chem. Eng. J.* 165 (2010) 175–183.
- [25] H. Lin, B.-Q. Liao, J. Chen, W. Gao, L. Wang, F. Wang, X. Lu, New insights into membrane fouling in a submerged anaerobic membrane bioreactor based on characterization of cake sludge and bulk sludge, *Bioresour. Technol.* 102 (2011) 2373–2379.

第 4 章

MBR 汚泥性状が粒状担体の 膜ファウリング抑制効果に及ぼす影響

4.1 はじめに

膜分離活性汚泥法(MBR)は標準活性汚泥法に比べて、高度な処理水、省スペースなどの優れた特徴を持つ[1]。排水処理分野における MBR の利用は世界的に増加している[2–4]。一方で膜ファウリングの発生による運転コストの増加が MBR 導入拡大の大きな障害となっている。担体を浸漬型 MBR 槽内へ投入することで、膜表面が担体によって物理的に洗浄され、膜ファウリングの発生を抑制できることが報告されている[5–12]。また、Guo ら[13]と Achilli ら[14]はスポンジ担体や粒状担体を MBR 槽内へ投入することでクリティカルフラックスが上昇することを報告している。本研究においても 3 章での検討から、粒状担体を浸漬型 MBR へ投入することでクリティカルフラックスが 40%増加することを確認している。しかし、前述の研究は実都市下水に比べて組成や水温が一定である人工下水や産業排水を流入原水としているため、実都市下水を処理する MBR と大きく異なる運転条件となっている。実都市下水を処理する MBR において、粒状担体の投入によるクリティカルフラックス上昇効果についての検討は乏しく、担体の膜ファウリング抑制効果に影響を与える因子についての知見が不足しているのが現状である。また、実都市下水を処理する MBR 施設では汚泥ろ過性が季節変動し、水温の低下する冬季に汚泥ろ過性が悪化することが報告されている[15–17]。Brink ら[18]は水温の異なる条件で MBR を運転した場合、低水温条件下では汚泥懸濁液中の糖濃度が増加し膜ファウリング進行速度が上昇することを報告している。粒状担体を浸漬型 MBR へ投入することで、ろ過性の悪化した汚泥についても膜ファウリングの発生を抑制し、膜透過水フラックスを変更することなく安定し

た運転の継続が期待できる。

本章では汚泥性状が粒状担体の膜ファウリング抑制効果に与える影響について検討した。本研究では実都市下水を処理するパイロットスケール MBR から汚泥を採取し、ベンチスケール MBR によるろ過実験を実施した。汚泥ろ過性については回分ろ過試験およびクリティカルフラックスの測定によって評価した。

4.2 実験方法

4.2.1 ベンチスケール MBR を用いたろ過試験

札幌市創成川水再生プラザに設置したパイロットスケール MBR[19]より採取した汚泥をベンチスケール MBR(有効体積 7.5 L)に移し、ろ過実験を行った。汚泥を採取したパイロットスケール MBR の汚泥滞留時間(SRT)および水理学的滞留時間(HRT)は 30 日と 6 時間である。ろ過実験では膜透過水をベンチスケール MBR に再び流入させ、水位を一定に保った。本研究では公称孔径 0.1 μm の PVDF 製平膜(Toray, Japan)を使用した。設置膜面積は 0.04 m^2 とした。膜モジュール下部より常時曝気(10 L/min)を行い、連続ろ過実験の際には間欠運転は実施しなかった。また、フラックスステップ法[20]を用いて、各フラックスにおける膜間差圧(TMP)上昇速度を測定した。膜透過水フラックスは 20 LMH から 5 LMH 間隔で増加させた。各フラックスで 15 分間の連続ろ過を行い、15 分間における TMP の上昇速度を算出した。各フラックスの間は 5 分間ろ過を休止した。ベンチスケール MBR に投入した担体は 3 章で使用した粒状担体と同一であり、反応槽体積の 5%に相当する量の担体を投入した。

4.2.2 回分ろ過試験

パイロットスケール MBR から採取した汚泥のろ過性を加圧型回分ろ過装置(Advantec Tokyo, Japan)を用いて評価した。回分ろ過試験に用いた膜は、ベンチスケール MBR に装着した膜と同じ膜である(有効膜面積: 37.4 cm^2)。攪拌子付き加圧ろ過セル内に 300 ml の MBR 汚泥懸濁液を満たし、加圧空気によって一定圧力下でろ過を行った。ろ過圧力を 10 kPa、攪拌速度を 300 rpm に設定した。全ての回分ろ過試験は未使用の新膜を用いて実施した。膜透過水流量を電子天秤により測定し、Darcy の式を用いて膜ろ過抵抗値 R (m^{-1})を算出した。

$$R = \Delta P / (J \cdot \mu)$$

ここで、 J は膜透過水フラックス($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}$)、 ΔP は膜間差圧(Pa)、 μ は膜透過水の粘性係数(Pa $\cdot$ s)である。一連の回分ろ過試験では、ろ過を 20 分継続したところで、膜透過水フラ

ックスが安定する傾向があったことから、20 分経過時点における膜透過水フラックスから膜ろ過抵抗値を算出した。回分ろ過試験において MBR 汚泥懸濁液が発生させた膜ろ過抵抗値に基づき、MBR 汚泥ろ過性の評価を行った。

4.2.3 分析方法

全有機炭素(TOC)および全窒素(T-N)濃度は TOC/TN 計(TOC-VCSH, Shimadzu, Japan)を用いて測定を行った。汚泥懸濁液中の溶解性有機炭素(DOC)、溶解性糖、溶解性タンパク質成分の分析は、0.45 μm の混合セルロースエステル(MCE)膜(Advantec Tokyo, Japan)で遠心分離後(4000 rpm, 5 分)の汚泥上澄みをろ過し、得られたろ液を分析に使用した。糖およびタンパク質の分析にはフェノール硫酸法[21]、Lowry 法[22]を用いた。標準試料にはグルコース、牛血清アルブミン(BSA)をそれぞれ使用した。汚泥粒径の測定にはレーザー回析粒度分布測定装置(SALD-7100, Shimadzu, Japan)を使用した。汚泥粘度の測定には回転粘度計(BII, Tokisangyo, Japan)を用いた。

4.3 結果と考察

4.3.1 汚泥ろ過性の経時変化

回分ろ過試験によって測定したパイロットスケール MBR 汚泥のろ過性および水温の経時変化を図 4-1 に示す。測定日によって MBR の汚泥ろ過性は大きく変化し、水温が低くなるにつれ、膜ろ過抵抗値が上昇する傾向が観察された。Krzeminski ら[16]と Wang ら[23]は実都市下水を処理する MBR の汚泥ろ過性が水温の低下に伴って悪化することを報告しており、本研究においても同様の結果が得られた。表 4-1 に汚泥ろ過性の評価日における汚泥性状を示す。本研究では水温が低下し、汚泥ろ過性の悪化が観察された 11 月 28 日、12 月 13 日、1 月 10 日、2 月 18 日における汚泥性状を分析した。水温が低下するにつれ、汚泥粒径が小さくなる一方で汚泥上澄み中のタンパク質濃度が増加した。しかし、汚泥中の溶解性有機物濃度の上昇がわずかであったことから、低水温時では汚泥中に含まれるコロイド成分などのサブミクロン粒子が増加することが示唆された。汚泥中のサブミクロン粒子の増加は、汚泥ろ過性の悪化を引き起こす[16,24]。さらに、汚泥中のタンパク質は膜ファウリングの原因物質であることが報告されている[25]。これらの結果から、水温の低下が MBR 汚泥中のサブミクロン粒子を増加させ、タンパク質などの膜ファウリング原因物質濃度が上昇することで、汚泥ろ過性の悪化を引き起こすことが示唆された。

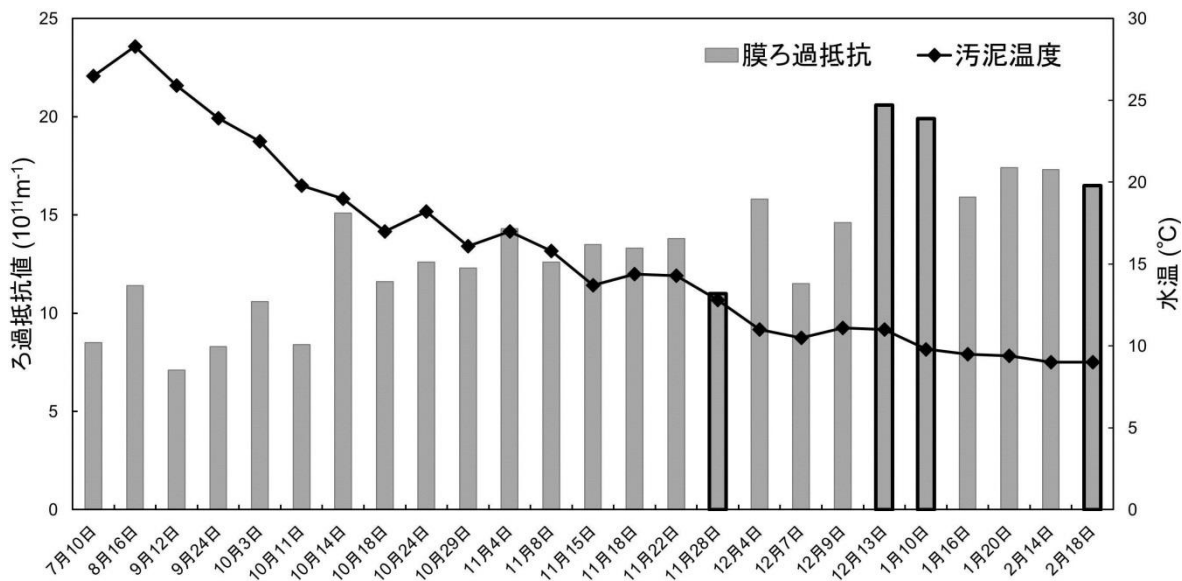


図 4-1 パイロットスケール MBR から採取した汚泥ろ過性および水温の経時変化
(粹線の測定日に汚泥性状を分析した)

表 4-1 汚泥ろ過性の評価日における汚泥性状

	11 月 28 日	12 月 13 日	1 月 10 日	2 月 18 日
汚泥水温 ($^{\circ}\text{C}$)	12.8	11	9.8	9.0
MLSS 濃度 (mg/L)	5800	7000	4800	10000
汚泥粘度 (mPa $\cdot$ s)	19	26	27	18.5
汚泥粒径(個数基準) (μm)	3.5 ± 0.3	1.0 ± 0.4	0.7 ± 0.4	0.1 ± 0.1
汚泥上澄み糖濃度 (mg/L)	29.0	16.8	29.5	41.5
汚泥溶解性糖濃度 (mg/L)	14.3	2.2	10.8	-*
汚泥上澄みタンパク質濃度 (mg/L)	13.4	26.8	39.3	52.1
汚泥溶解性タンパク質濃度 (mg/L)	4.0	4.0	4.9	-*

*溶解性成分を採取できず

図 4-2 にベンチスケール MBR を用いて膜透過水フラックスを段階的に増加させ、ろ過を行った際の TMP 上昇速度を示す。水温が水の粘度に与える影響を考慮し、TMP 上昇速度は 20 °C における粘度を基準に補正した。汚泥上澄み中の有機物濃度が最も高くなった 2 月 18 日における測定では、TMP 上昇速度の増加が最も顕著となった。いずれの測定日も粒状担体の投入では TMP 上昇速度を減少させることはできず、担体を投入しない場合に比べて TMP 上昇速度は増加した。Huang ら[26]はベンチスケール MBR を用いた短期実験によって、浸漬型 MBR へ過剰に粒状担体を投入した場合では汚泥フロックが壊され、汚泥上澄み中の微小粒子および有機炭素量が増加し、膜ファウリングの発生が促進されることを報告している。粒状担体の投入では汚泥ろ過性は改善されないばかりか、逆に悪化することが示唆された。一方で Hu ら[27]は浸漬型 MBR へ担体を投入することによって、担体による膜表面の洗浄効果よりも担体に付着した微生物によって汚泥ろ過性が改善し、膜ファウリングが抑制されたことを報告している。本研究は短期実験であるために担体に微生物が付着せず、物理的な洗浄効果のみが作用していたと考えられる。この結果は汚泥ろ過性が悪化した状態では、担体の物理洗浄効果だけではクリティカルフラックスを上昇させることができないことを示している。

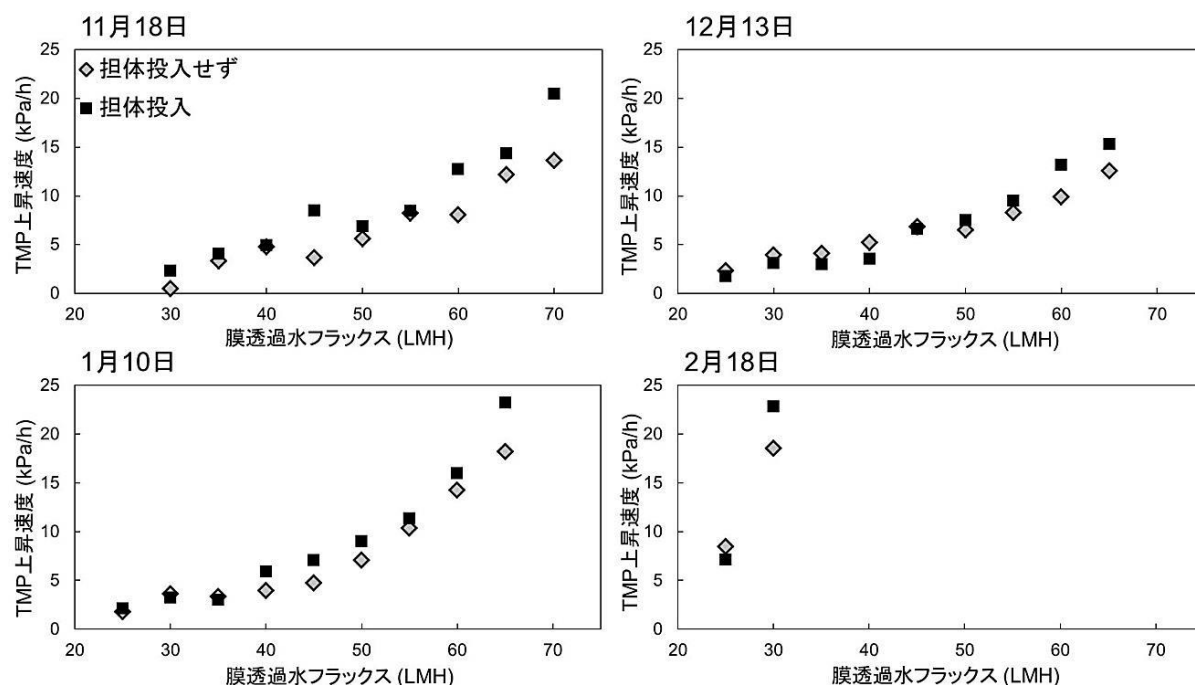


図 4-2 各膜透過水フラックスにおける TMP 上昇速度(20 °C で温度補正)

4.3.2 連続ろ過実験

図 4-3 にろ過性の悪化した 1 月 11–24 日にかけての汚泥をベンチスケール MBR によって連続ろ過した場合の TMP 経時変化を示す。膜透過水フラックスが高い場合(50 LMH)では担体投入の有無に関わらず、1 時間のろ過で TMP が 40 kPa に達した。膜透過水フラックスが高い場合では吸引による膜面への移流速度が増加するために、粒状担体で膜表面に付着する成分を十分に取り除くことができなかったと考えられる。一方で膜透過水フラックスを減少させるにつれ、粒状担体の投入による TMP の上昇抑制がより顕著となった。膜透過水フラックスが低下した場合では、膜面への移流速度が低下することで、膜表面付着物が粒状担体によって取り除かれやすくなったと考えられる。汚泥ろ過性が悪化した場合、設定する膜透過水フラックスにより粒状担体の膜ファウリング抑制効果が異なることが示された。

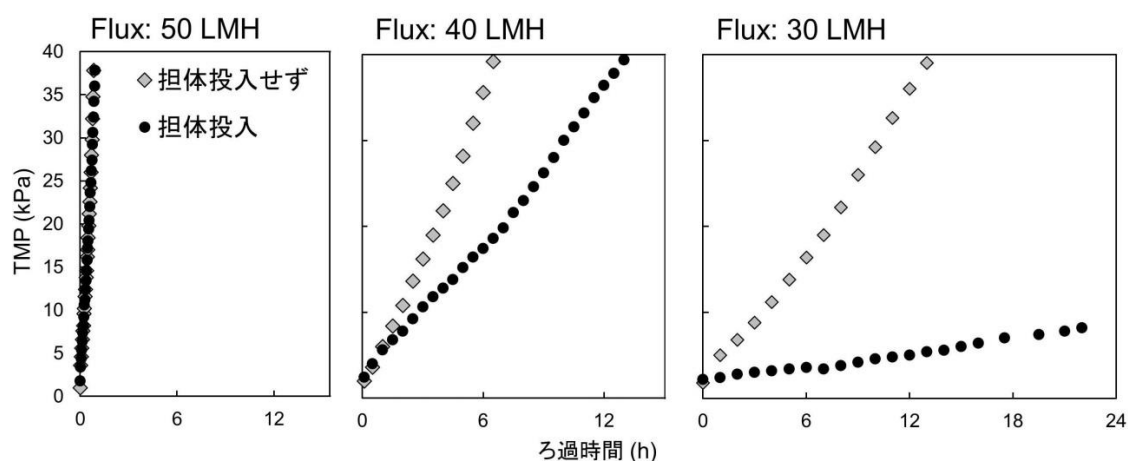


図 4-3 各膜透過水フラックスにおける TMP 経時変化

次に粒状担体の投入量が膜ファウリング抑制効果におよぼす影響について検討した。実験には TMP 上昇速度の増加が最も顕著であった 2 月 18 日以降の汚泥を用いた、連続ろ過実験時の TMP 経時変化を図 4-4 に示す。ろ過実験は 3 月 2 日に実施し、運転条件を変更する際には膜の物理洗浄(スポンジによる膜表面のふき取り)を実施した。膜透過水フラックスを 25 LMH に設定したにも関わらず、担体投入による TMP の上昇抑制はわずかであった。次に担体の投入量を増加させたところ、投入量が増加するにつれ、TMP の上昇が抑制された。これは膜面と担体が接触する頻度を増やすことで担体の膜表面洗浄効果を高めることで、汚泥ろ過性が悪化した場合でも膜ファウリングの発生をある程度抑制できることを示している。一方、担体投入量を反応槽体積の 30%に増加させた場合では、担体が MBR 反応槽の底部に滞留し、流動しない担体が多く観察された。これにより担体投入量

を 20%から 30%に増加させても TMP 上昇速度が同程度となったと考えられる。また、ろ過時間が長くなるにつれろ過試験開始時の TMP が増加した。これは、運転の延長に伴って物理洗浄で解消することのできない不可逆的膜ファウリング[28]が進行したことを示している。Brink ら[18]と Ma ら[29]は水温が低下することで汚泥中の溶解性糖などの溶解性微生物代謝産物(SMP)濃度が上昇し、不可逆的膜ファウリングが進行することを報告している。また、3 章における検討から粒状担体を浸漬型 MBR へ投入することで、膜表面に形成されるダイナミックフィルターが消失し、不可逆的膜ファウリングの進行を早めることが示唆されている。担体を MBR 槽内に投入する場合には、低水温時における不可逆的膜ファウリングへの対策(薬液による膜のインライン洗浄等)が必要であると考えられる。

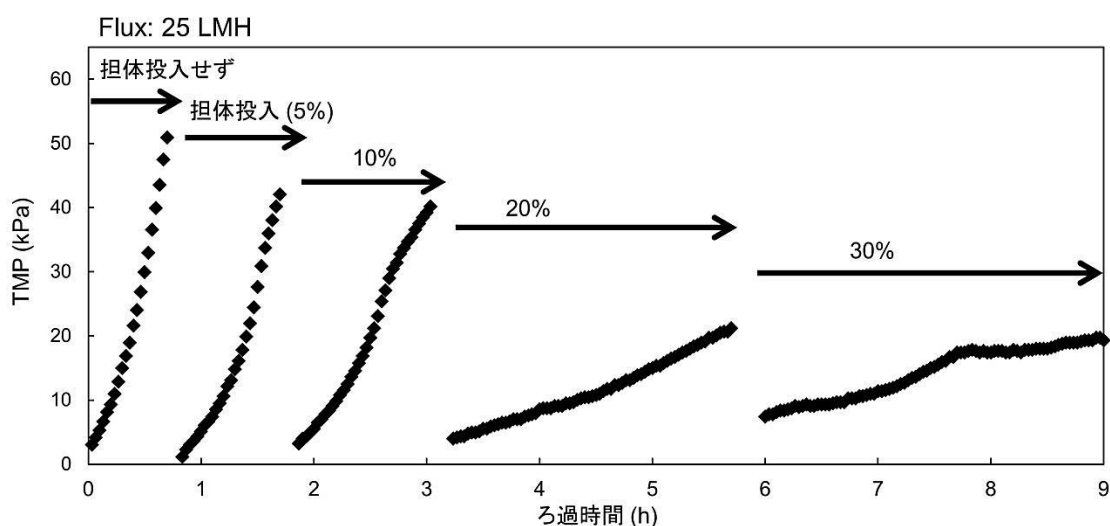


図 4-4 担体投入量を増加させた場合における TMP 経時変化
(%は反応槽体積に対する担体投入量を示す)

4.4 まとめ

実下水を処理する MBR では、水温の低下によって汚泥上澄み中の有機物濃度が増加し、汚泥ろ過性が悪化した。浸漬型 MBR への粒状担体の投入では、汚泥ろ過性を改善できないばかりか、悪化することが示唆された。MBR の汚泥ろ過性が悪化した状況で膜透過水フラックスを高く設定した場合(本研究では 40 LMH 以上)、粒状担体の投入で膜ファウリングの発生を抑制できないことが示された。また、汚泥ろ過性が著しく悪化した場合では、膜透過水フラックスを低下させても担体投入による膜ファウリング抑制効果はわずかであった。MBR への担体投入量を増やすことで、膜面洗浄効果が向上し、TMP の上昇を抑制できることが示された。

第4章 参考文献

- [1] S. Judd, *The MBR Book: Principles and Applications of Membrane Bioreactors for Water and Wastewater Treatment*, second ed., Elsevier, 2011.
- [2] W. Yang, N. Cicek, J. Llg, State-of-art of membrane bioreactors: Worldwide research and commercial applications in North America, *J. Membr. Sci.* 270 (2006) 201–211.
- [3] B. Lesjean, E.H. Huisjes, Survey of the European MBR market: trend and perspectives, *Desalination* 231 (2008) 71–81.
- [4] K. Xiao, Y. XU, S. Liang, T. Lei, J. Sun, X. Wen, H. Zhang, C. Chen, X. Huang, Engineering application of membrane bioreactor for wastewater treatment in China: Current state and future prospect, *Front. Environ. Sci. Eng.* 8 (2014) 805–819.
- [5] B. Siembida, P. Cornel, S. Krause, B. Zimmermann, Effect of mechanical cleaning with granular material on the permeability of submerged membrane in the MBR process, *Water Res.* 44 (2010) 4037–4046.
- [6] S. Krause, B. Zimmermann, U. Meyer-Blumenroth, W. Lamparter, B. Siembida, P. Cornel, Enhanced membrane bioreactor process without chemical cleaning, *Water Sci. Technol.* 61 (2010) 2575–2580.
- [7] L. Jin, S.L. Ong, H.Y. Ng, Fouling control mechanism by suspended biofilm carriers addition in submerged ceramic membrane bioreactors, *J. Membr. Sci.* 427 (2013) 250–258.
- [8] L. Deng, W. Guo, H.H. Ngo, J. Zhang, S. Liang, S. Xia, Z. Zhang, J. Li, A comparison study on membrane fouling in a sponge-submerged membrane and a conventional membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 165 (2014) 69–74.
- [9] S.J. Khan, A. Ahmad, M.S. Nawaz, N. P. Hankins, membrane fouling and performance evaluation of conventional membrane bioreactor (MBR), moving biofilm MBR and oxic/anoxic MBR, *Water Sci. Technol.* 69 (2014) 1403–1409.
- [10] J. Guo, W. Guan, S. Xia, Membrane fouling of hybrid submerged membrane bioreactor (hMBR) in treating municipal wastewater, *Desalin. Water Treat.* (2014) 6858–6867.
- [11] M. Rezaei, M.R. Mehrnia, The influence of zeolite (clinoptilolite) on the performance of a hybrid membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 158 (2014) 25–31.
- [12] G. Cuevas-Rodríguez, P. Cervantes-Avilés, I. Torres-Chávez, A. Bernal-Martínez, Evaluation of different configurations of hybrid membrane bioreactors for treatment of domestic wastewater, *Water Sci. Technol.* 71 (2015) 338–346.
- [13] W.S. Guo, S. Vigneswaran, H.H. Ngo, W. Xing, Comparison of membrane bioreactor systems in

- wastewater treatment, *Desalination* 231 (2008) 61–70.
- [14] A. Achilli, E.A. Marchand, A.E. Childress, A performance evaluation of three membrane bioreactor systems: aerobic, anaerobic, and attached-growth, *Water Sci. Technol.* 63 (2011) 2999–3005.
- [15] P. Krzeminski, J.G. Linares, A. van Nieuwenhuijzen, J. van der Graaf, J.B. van Lier, Flat Sheet Hollow Fibre — Comparison of Full-scale Membrane Bio-Reactor Configurations, *Desalin. Water Treat.* 42 (2012) 100–106.
- [16] P. Krzeminski, A. Iglesias-Obelleiro, G. Madebo, J.M. Garrido, J.H.J.M. van der Graaf, J.B. van Lier, Impact of temperature on raw wastewater composition and activated sludge filterability in full-scale MBR systems for municipal sewage treatment, *J. Membr. Sci.* 423–424 (2012) 348–361.
- [17] J. Sun, K. Xiao, Y. Mo, P. Liang, Y. Shen, N. Zhu, X. Huang, Seasonal characteristics of supernatant organics and its effect on membrane fouling in a full-scale membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 453 (2014) 168–174.
- [18] P. van den Brink, O.A. Satpradit, A. van Bentem, A. Zwijnenburg, H. Temmink, M. van Loosdrecht, Effect of temperature shocks on membrane fouling in membrane bioreactors, *Water Res.* 45 (2011) 4491–4500.
- [19] 山口大輝, MBR 膜ファウリング発生度と関連する汚泥特性指標の探索, 北海道大学大学院工学院修士論文 (2015).
- [20] P. van der Marel, A. Zwijnenburg, A. Kemperman, M. Wessling, H. Temmink, W. van der Meer, an improved flux-step method to determine the critical flux and the critical for irreversibility in a membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 332 (2009) 24–29.
- [21] M. Dubois, K.A. Gilles, J.K. Hamilton, P.A. Rebers, F. Smith, Colorimetric method for determination of sugars and related substances, *Anal. Chem.* 28 (1956) 350–356.
- [22] O.H. Lowry, N.J. Rosebrough, A.L. Farr, R.J. Randall, Protein measurement with the folin phenol reagent, *J. Biol. Chem.* 193 (1951) 265–275.
- [23] Z. Wang, Z. Wu, S. Tang, Extracellular polymeric substances (EPS) properties and their effects on membrane fouling in a submerged membrane bioreactor, *water Res.* 43 (2009) 2504–2512.
- [24] T. Itonaga, K. Kimura, Y. Watanabe, Influence of suspension viscosity and colloidal particles on permeability of membrane used in membrane bioreactor (MBR), *Water Sci. Technol.* 50 (2004) 301–309.
- [25] A. Drews, Membrane fouling in membrane bioreactors—Characterisation, contradictions, cause and cures, *J. Membrane Sci.* 363 (2010) 1–28.
- [26] X. Huang, C.-H. Wei, K.-C. Yu, Mechanism of membrane control by suspended carriers in a

- submerged membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 309 (2009) 7–16.
- [27] J. Hu, H. Ren, K. Xu, J. Geng, L. Ding, X. Yan, K. Li, Effect of carriers on sludge characteristics and mitigation of membrane fouling in attached-growth membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 122 (2012) 35–41.
- [28] K. Kimura, Y. Hane, Y. Watanabe, G. Amy, N. Ohkuma, Irreversible membrane fouling during ultrafiltration of surface water, *Water Res.* 38 (2004) 3431–3441.
- [29] Z. Ma, X. Wen, F. Zhao, Y. Xia, X. Huang, D. Waite, J. Guan, Effect of temperature variation on membrane fouling and microbial community structure in membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 133 (2013) 462–468.

第 5 章

仕切り板挿入型 MBR への粒状担体の投入が MBR 運転効率に与える影響

5.1 はじめに

MBR は標準活性汚泥法に比べて、高度な処理水、省スペースなどの優れた特徴を持つ[1]。膜分離によって処理水の完全な固液分離を達成し、高度な処理水を得ることができるため、処理水を様々な用途に利用することが可能である[2]。また、MBR は維持管理が容易であることから、分散型排水処理にも適しており、今後の排水処理および処理水の再利用を行う上で有望な技術である[3]。

しかし、MBR は標準活性汚泥法と比べて、処理に 2 倍以上のエネルギーが必要となっていることが大きな課題となっている[4]。MBR 処理の消費エネルギー増加の主な原因は、膜ファウリング抑制のための曝気であり、MBR 処理施設における消費エネルギーの 60–70%に達する[5]。MBR の導入拡大に向けて膜ファウリングを効率的に抑制することが求められている。浸漬型 MBR 槽内へ粒状担体を投入することで、担体が膜表面を物理的に洗浄し、膜ファウリングを効果的に抑制できることが報告されている[6–8]。担体を投入することで従来の MBR と比較して大幅な曝気量の削減が期待できる。

また、MBR の消費エネルギーの 10–20%が脱窒のための汚泥返送や無酸素槽における攪拌に使用されている[9,10]。筆者らは汚泥返送や無酸素槽における攪拌が不要となる仕切り板挿入型 MBR(BMBR)を提案している[11]。BMBR は MBR 反応槽内に仕切り板を挿入し、仕切り板内側を曝気によって常に好気状態に保つ一方で、仕切り板外側に好気状態と無酸素状態を交互に作り出すことで、単一槽内で硝化・脱窒処理を行う MBR である。BMBR では仕切り板の内外において循環流が発生する。BMBR に担体を投入した場合、担体が仕

切り板の内外をスムーズに循環することが予想され、担体による物理洗浄効果の向上とさらなる消費エネルギー削減が期待できる。

本章では粒状担体を BMBR へ投入し、膜ファウリング抑制効果および曝気量削減効果の検討を行った。担体投入前後における膜間差圧(TMP)の上昇速度を比較することで担体投入による膜ファウリング抑制効果を検証した。また、BMBR 槽内の汚泥ろ過性や汚泥溶解性成分などの汚泥性状に加えて、閉塞膜から抽出した膜閉塞成分についても分析し、担体投入時における膜ファウリング特性について検討した。

5.2 実験方法

5.2.1 パイロットスケール BMBR の運転条件

実都市下水処理場(Soseigawa wastewater Treatment Center, Sapporo, Japan)に設置したパイロットスケール BMBR に担体を投入し、連続運転を行った。図 5-1 にパイロットスケール BMBR の模式図を示す。公称孔径 $0.1\ \mu\text{m}$ の PVDF 製平膜(TORAY, Japan)を使用し、総膜面積が $6.8\ \text{m}^2$ の膜モジュールを設置した。なお、設置した膜面積の半分は水理的滞留時間(HRT)の調整に用いた。仕切り板内側に設置した膜モジュールの下部から粗大気泡による常時曝気を行った(曝気量: $9\ \text{m}^3/\text{h}$)。担体の膜ファウリング抑制効果を評価しやすくするために膜透過水フラックスを $33.3\ \text{LMH}$ ($0.8\ \text{m}^3/\text{m}^2/\text{d}$)と通常の MBR と比べてやや高い値に設定した[12]。膜ろ過では間欠運転(15 分間ろ過, 1 分間休止)を実施した。反応槽の有効体積は $450\ \text{L}$ であり、HRT および汚泥滞留時間(SRT)は 3.4 時間、20 日に設定した。TMP が $40\ \text{kPa}$ に達した時点で、膜の物理洗浄(加圧水の吹きつけおよびスポンジによる膜表面のふき取り)を実施した。MBR 流入原水は $1\ \text{mm}$ スクリーン通過後の最初沈澱池流入水を使用した。連続運転の開始に先立ち、2 ヶ月間の汚泥馴致を行った。

投入した担体(BCN, Nisshinbo Chemical, Japan)は直径と高さが約 $4\ \text{mm}$ の円柱形で、比重は 1.01 である。本研究で使った担体は 3 章で使ったものと同一の担体であり、ポリエチレングリコールを主成分としている。反応槽体積の 5%分に相当する、見かけ体積 $22.5\ \text{L}$ の担体を BMBR 槽内へ投入した。反応槽内を流動する担体を標準活性汚泥法と組み合わせる際には、反応槽体積の 20–30%分の担体が投入されている[13]。本研究で投入した担体の体積は反応槽体積の 5%分であり、コスト面においても実現可能である。

実験期間は Run1、Run2、Run3 の 3 期間に分割される。Run1 では、担体を投入せずに連続運転を行った。Run2 では、はじめ担体を投入せずに運転を行い、TMP が $20\ \text{kPa}$ 付近に達した時点で担体を投入した。Run3 では担体を投入した状態で曝気量を $9\ \text{m}^3/\text{h}$ から $4\ \text{m}^3/\text{h}$ に削減し、連続運転を行った。表 5-1 に各運転期間における MBR 槽内(仕切り板内側の好

気槽)の MLSS 濃度、pH、水温、DO 濃度の平均値を示す。Run2 および Run3 は冬季に実験を実施したため、Run1 に比べて水温が低くなっている。また、仕切り板内側の DO 濃度が Run1 および Run2 では 4–6 mg/L で推移したのに対して、曝気量を削減した Run3 では 1 mg/L 以下まで低下した。各期間の運転開始前に膜モジュールの NaClO 溶液およびシュウ酸溶液による薬液洗浄をそれぞれ行い、膜透過性能を未使用の新膜と同程度まで回復させた。流入原水および膜透過水については自動採水機を用いたコンポジット試料を採取し、各種分析に使用した。

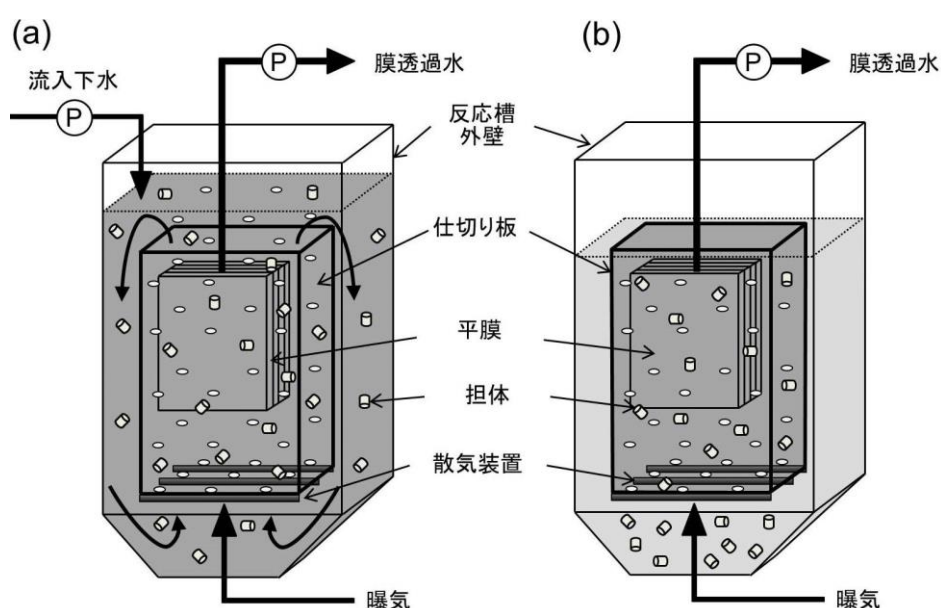


図 5-1 パイロットスケール BMBR の模式図

- (a) 水位が仕切り板上部よりも高い場合; 反応槽全体が好気条件となり担体が活発に流動する
 (b) 水位が仕切り板上部よりも低い場合; 仕切り板外側が無酸素条件、内側は好気条件となる

表 5-1 各運転期間における MBR 運転条件

	MLSS (mg/L)	pH	水温(°C)	DO (mg/L)
Run1	9100 ± 1300	6.6 ± 0.1	22.7 ± 1.5	2.5–5.6
Run2 (担体投入せず)	9100 ± 4000	6.4 ± 0.2	17.0 ± 1.4	4.0–6.9
Run2 (担体投入)	11300 ± 8000	6.6 ± 0.1	14.1 ± 1.6	3.8–8.4
Run3	13700 ± 1900	7.0 ± 0.2	13.1 ± 0.3	0.3–1.8

5.2.2 回分ろ過試験

加圧型回分ろ過装置を用いて、BMBR 反応槽への担体投入が汚泥ろ過性に与える影響を評価した。回分ろ過装置にはパイロットスケール BMBR に装着したものと同一膜を使用した。有効膜面積は 37.4 cm^2 である。攪拌子付きろ過セル内に 300 ml の汚泥懸濁液を満たし、加圧空気を用いて一定圧力下でろ過を行った。本研究はパイロットスケール BMBR の膜透過水をリザーバーで供給することによって、ろ過セル内の汚泥体積を一定に保った。ろ過圧力を 5 kPa 、攪拌速度を 170 rpm に設定した[14]。また全ての回分ろ過試験は未使用の新膜を用いて実施した。膜透過水流量は電子天秤により測定し、以下の式を用いて膜ろ過抵抗値 $R_t (\text{m}^{-1})$ の算出を行った。

$$R_t = \frac{\Delta P}{J \cdot \mu}$$

ここで、 J は膜透過水フラックス ($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}$)、 ΔP は TMP (Pa)、 μ は膜透過水の粘性係数 ($\text{Pa} \cdot \text{s}$) である。一連の回分ろ過実験では汚泥の膜透過水量が約 20 ml に達したところで膜透過水フラックスが安定したため、この点における膜透過水フラックスから膜ろ過抵抗値を算出し、汚泥ろ過性の評価を行った。

各 Run 終了時にパイロットスケール装置の膜モジュールから閉塞膜を一部切り出し、汚泥ろ過性の評価に使用した回分ろ過装置を用いて、閉塞膜のろ過抵抗値を測定した。ろ過圧力を 30 kPa に設定し、蒸留水のデッドエンドろ過によって膜ろ過抵抗値を算出した。

5.2.3 走査型電子顕微鏡(SEM)による閉塞膜表面の観察

各 Run 終了時に SEM (S-4000, Hitachi, Japan) による閉塞膜表面の観察を行った。膜モジュールから切り出した閉塞膜試料は、膜表面付着物の構造を固定するために、2% グルタルアルデヒド (0.1M リン酸緩衝液で調整, $\text{pH} = 7.2$) に 5°C で一晩浸漬させた。その後、1% オスミウム溶液 (0.1M リン酸緩衝液で調整, $\text{pH} = 7.2$) に室温で 2 時間浸漬させた。膜表面付着物の固定化処理後のサンプルはエタノール脱水し、乾燥時の膜表面変形を防ぐために臨界点乾燥装置 (HCP-1, Hitachi, Japan) を用いて臨界点乾燥を行った。臨界点乾燥の中間液には酢酸イソアミルを使用した。臨界点乾燥後の試料は、SEM 観察時に静電気による影響を取り除くためにイオンスパッター (E-1030, Hitachi, Japan) で白金コーティング処理を施した。

5.2.4 膜閉塞成分の抽出

各 Run 終了時に膜閉塞成分の抽出および分析を行った。本研究では物理洗浄で回復できない物理的に不可逆的な膜ファウリング成分について分析した。膜表面蓄積物の影響を取

り除くために、膜閉塞成分の抽出は物理洗浄後に行った。閉塞膜を水酸化ナトリウム溶液 (pH = 12)[15,16]に 30 °C で 24 時間浸漬させ、膜閉塞成分の抽出を行った。

5.2.5 分析方法

全有機炭素(TOC)および溶解性有機炭素(DOC)、全窒素(T-N)濃度は TOC/TN 計 (TOC-VCSH, Shimadzu, Japan)を用いて測定を行った。浮遊粒子を含むサンプルは超音波破碎処理を3分間行った後に TOC/T-N 濃度を測定した。汚泥成分中の DOC および溶解性糖、溶解性タンパク質成分の分析は、仕切り板内側から採取した汚泥の遠心分離上澄み液(4000 rpm, 5 分)を 0.45 μm の混合セルロースエステル膜(Advantec Tokyo, Japan)でろ過し、得られたろ液を分析に使用した。糖およびタンパク質の分析にはフェノール硫酸法[17]、Lowry 法[18]を使用した。標準試料にはグルコース、牛血清アルブミン(BSA)をそれぞれ使用した。 NH_4^+ -N、 NO_2^- -N、 NO_3^- -N 濃度の測定には、イオンクロマトグラフィー(DX-100, DIONEX, USA)を使用した。汚泥粒度分布の測定にはレーザー回析粒度分布測定装置(SALD-7100, Shimadzu, Japan)を使用した。DO 濃度の測定には DO 計(Model 58, YSI, USA)を使用した。

5.3 結果と考察

5.3.1 パイロットスケール BMBR の運転

表 5-2 に各運転期間における流入原水水質(TOC, T-N)および処理水水質(TOC, T-N, NH_4^+ -N, NO_2^- -N, NO_3^- -N)を示す。すべての運転期間を通して処理水中の TOC 濃度は流入原水濃度に関わらず、6–8 mg/L で推移した。処理水 TOC 濃度は、担体投入後の Run2 および Run3 でも担体投入前の Run1 と同程度であった。本研究では、担体投入に伴う処理水の TOC 濃度への影響は認められなかった。しかし、曝気量を削減した Run3 では仕切り板内側の DO 濃度が低下し、硝化が抑制されたことで処理水中のアンモニア性窒素濃度が大きく増加した。Run3 では反応槽内微生物への酸素供給が不十分となり、硝化が抑制されたことが示唆された。

これまでに我々の研究チームが実施した BMBR を用いたパイロットスケール実験では、HRT4.7 時間で窒素除去率は 70%に達した。HRT を 3.4 時間に変更した本研究では、窒素除去率が 40%前後に留まった。BMBR の運転では、仕切り板外部における好気・無酸素状態のサイクル時間が窒素除去性に大きく影響する[11]。本実験では HRT を短縮化したもののサイクル時間の最適化については十分な検討を行わなかったために、高い窒素除去率を得ることができなかったと考えられる。

表 5-2 流入原水および処理水質の比較

	流入原水		膜透過水					除去率	
	TOC mg/L	T-N mg/L	TOC mg/L	T-N mg/L	NH ₄ ⁺ -N mg/L	NO ₂ ⁻ -N mg/L	NO ₃ ⁻ -N mg/L	TOC %	T-N %
Run1 (2012 年 8 月–9 月)	45.1 ± 20.8	17.7 ± 3.6	7.9 ± 2.1	9.3 ± 2.4	Nd*	0.1 ± 0.1	9.5 ± 1.8	81 ± 4	47 ± 15
Run2 担体投入せず (2012 年 10 月–11 月)	38.1 ± 6.2	16.7 ± 4.0	7.2 ± 1.4	10.6 ± 1.4	Nd*	0.1 ± 0.03	10.1 ± 0.1	81 ± 2	35 ± 8
Run2 担体投入 (2012 年 11 月–12 月)	33.0 ± 6.7	16.8 ± 2.5	5.9 ± 1.8	10.7 ± 1.0	Nd*	0.1 ± 0.04	10.3 ± 1.4	82 ± 4	35 ± 7
Run3 (2013 年 1 月)	44.0 ± 3.5	23.4 ± 0.5	6.0 ± 0.9	13.8 ± 2.7	12.5 ± 3.6	0.1 ± 0.1	1.7 ± 2.5	86 ± 2	41 ± 11

Nd* = 不検出

図 5-2 に各運転期間における TMP の経時変化を示す。水の粘度が膜のろ過性に与える影響を考慮し、水温を 20 °C に補正して TMP を算出した。担体を投入しなかった Run1 では 10 日ほどの運転で TMP が 40 kPa 程度まで上昇し、運転の継続が困難であった。本研究における膜透過水フラックスは一般的な値よりも高く設定しているため[12]、TMP の上昇速度が大きくなったと考えられる。物理洗浄の実施により TMP は大きく減少したが、再び急激に TMP が上昇した。Run1 では長期の運転継続は困難であった。膜の薬液洗浄後に実施した Run2 でも、担体投入前は Run1 と同様に TMP の急激な上昇が観察されたが、担体投入後は TMP が低下し、以後の TMP の上昇は緩やかであった。Run2 では、物理洗浄を実施せずに 50 日以上運転の継続が可能であった。曝気量を 9 m³/h から 4 m³/h に削減した Run3 においても、20 日以上運転の継続が可能であった。Run3 における TMP 上昇速度は Run1 における TMP 上昇速度と同程度であった。フルスケール MBR において同様の効果が得られるかは現時点では不明であるが、本研究で用いたパイロットスケール BMBR では、膜ファウリング抑制のための曝気量を 50%以上削減しても膜ファウリングの発生をコントロールできることが示された。

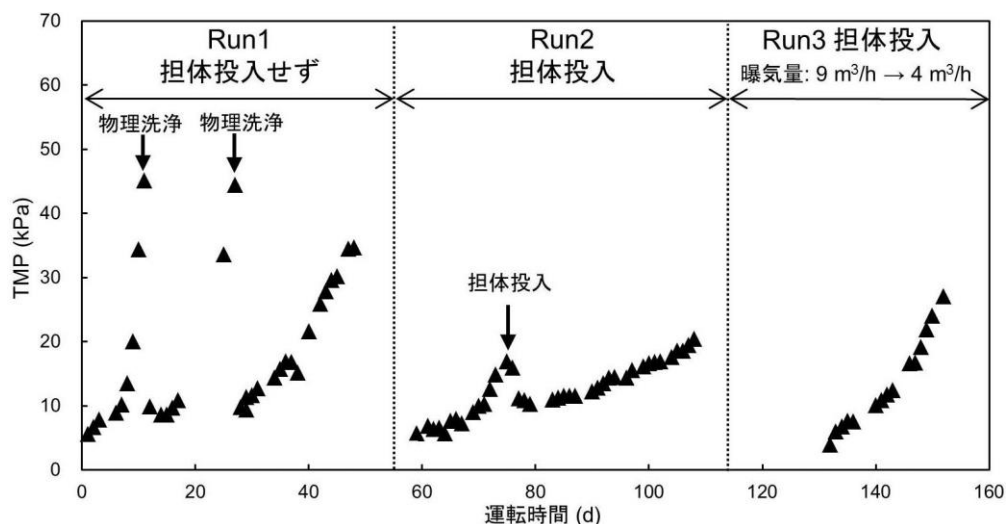


図 5-2 各運転期間における TMP の経時変化(20 °C で温度補正)

5.3.2 汚泥ろ過性の経時変化

図 5-3 に回分ろ過試験から算出した汚泥の膜ろ過抵抗値と反応槽内水温、汚泥懸濁液中の溶解性糖およびタンパク質濃度の経時変化を示す。担体投入前(運転開始 76 日目)の膜ろ過抵抗値は $4 \times 10^{10} \text{ (m}^{-1}\text{)}$ 以下の値で推移したが、運転開始 94 日目以降に水温が 14°C 以下となると、ろ過抵抗値が急激に上昇した。また、溶解性糖濃度が増加するにつれ、汚泥ろ過性が悪化した。一方で溶解性タンパク質濃度は一定であった。汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度が高くなることで、汚泥ろ過性が悪化することが報告されている[19]。Van den Brink ら[20]と Lyko ら[21]は水温の低下が溶解性糖濃度の増加を引き起こすことを報告している。また、Run2 では担体の投入前後で汚泥粒子の平均粒子径が $3.86 \mu\text{m}$ (76 日目: 担体投入前) から $0.12 \mu\text{m}$ (84 日目: 担体投入後)に減少した。この結果は、担体を投入することで汚泥粒子径が小さくなったことを示している。Huang ら[22]は担体の投入によって汚泥粒子が壊され、汚泥上澄み中の微小粒子および有機炭素量が増加することを報告している。本研究における汚泥懸濁液中の溶解性糖濃度の増加は水温の低下と担体による汚泥粒子の破壊が影響していると考えられる。

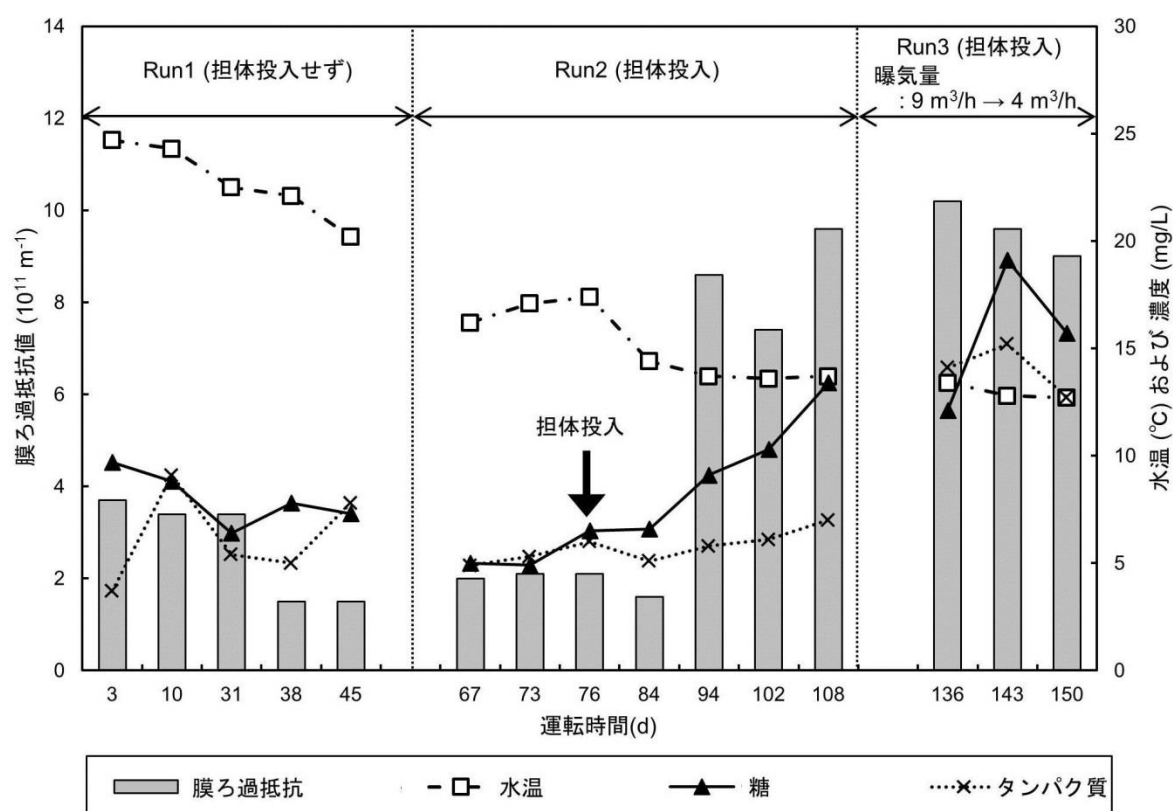


図 5-3 汚泥の膜ろ過抵抗値と水温、糖およびタンパク質濃度の経時変化

汚泥懸濁液中の糖の特性は水温に影響されると考えられる。運転開始3日目(水温: 25 $^{\circ}\text{C}$)における溶解性糖濃度は、低水温となっていた運転開始95日目(水温: 14 $^{\circ}\text{C}$)と同程度であったにも関わらず、低水温時の汚泥ろ過性は著しく悪化していた。低水温時に微生物から分泌される糖成分は高水温時の場合とは異なるものとなり、汚泥ろ過性をより悪化させることが示唆された。

表 5-3 に各運転期間における汚泥懸濁液中の溶解性有機成分の濃度を示す。上述したように、Run2 では担体投入後に溶解性糖濃度が増加した。溶解性タンパク質濃度は Run1 および Run2 を通して一定の値となった。一方で DO 濃度が 1 mg/L 以下に低下した Run3 では、DOC および溶解性糖・タンパク質濃度が他の期間に比べて高い値となった。MBR 槽内の DO および硝酸イオン濃度が低い場合では膜を透過する SMP 成分が減少することが報告されている[23]。表 5-2 に示すように、Run3 における硝酸イオン濃度は Run1 および Run2 に比べて低下していた。Run3 における汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度の増加は DO および硝酸イオン濃度の低下によって、SMP 成分が反応槽内に滞留することで引き起こされる

ことが示唆された。また、Run3 では上述した低水温および担体による汚泥フロックの崩壊も汚泥懸濁液中の溶解性糖濃度の増加に寄与していると考えられる。

表 5-3 各運転期間における汚泥中の溶解性有機物濃度

	Run1	Run2		Run3
		担体投入せず	担体投入	
糖 (mg/L)	8.0 ± 1.3	5.5 ± 0.9	9.9 ± 2.8	20.1 ± 6.9
タンパク質 (mg/L)	6.2 ± 2.2	5.4 ± 0.6	6.0 ± 0.8	16.1 ± 2.6

5.3.3 閉塞膜の分析

図 5-4 に各運転期間における膜モジュールの写真を示す。Run1 は物理洗浄実施時(運転開始 27 日目)、Run2 および Run3 は運転期間終了時に BMBR 反応槽から取り出した膜モジュールである。Run1(図 5-4(a))では膜表面が全面にわたり付着ケーキに覆われていた。一方、運転期間の中ほどで担体を投入した Run2(図 5-4(b))では膜表面への付着ケーキは目視では認められなかったが、膜表面の一部が茶色に着色していた(図 5-4(b)矢印部分)。曝気量を削減した Run3 においても、膜表面への付着ケーキはほとんど認められなかった(図 5-4(c))。しかし、膜モジュールの一部は Run1 と同様に膜表面が付着ケーキで覆われていた。これは曝気量を削減した Run3 では、担体が膜モジュールの設置された仕切り板内側を均一に流動していないことを示している。担体の流動に偏りが生じたために、Run3 では一部の膜モジュールのケーキを除去できなかったと考えられる。5.3.1 項に述べたように Run3 における TMP の上昇速度は Run1 と同程度であった(図 5-2)。反応槽内の担体を均一に流動させることで Run3 においても TMP の上昇を抑制できると考えられる。反応槽形状の改良や担体投入量の増加によって、低曝気量時においても付着ケーキの形成を抑制できると予想されるが、さらなる検討が必要である。

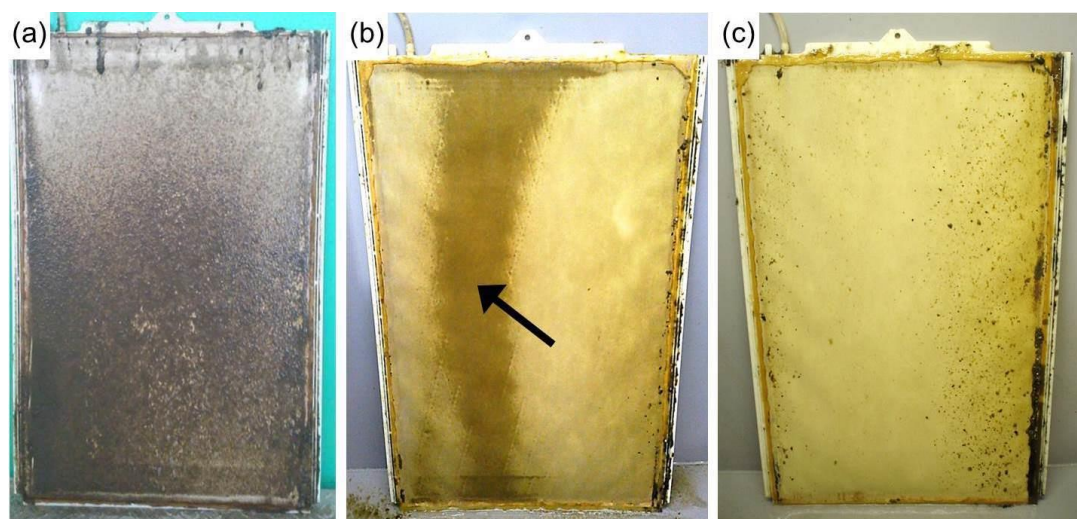


図 5-4 各運転期間における膜モジュールの写真

(a) Run1 (担体投入せず), (b) Run2 (担体投入; 矢印は着色部分を示す),
(c) Run3 (担体投入)

上述したように Run2 では膜表面にケーキは付着していなかったが、膜表面の一部に物理洗浄で除去することのできない着色が観察された(図 5-4(b)矢印部分)。Run2 では着色部分と非着色部分の閉塞膜サンプルをそれぞれ切り出し、各種比較を行うこととした。表 5-4 に各運転期間終了時における閉塞膜のろ過抵抗値を示す。物理洗浄後および NaClO 溶液洗浄後の膜ろ過抵抗値は回分ろ過試験から算出した。閉塞膜のろ過抵抗値は運転終了時における TMP の値と設定膜透過水フラックス(33.3 LMH)から算出した。Run1 で採取された閉塞膜のろ過抵抗値は物理洗浄(スポンジによる膜表面のふき取り)によって大きく減少した。これは、Run1 で発生した膜ファウリングが主に可逆的膜ファウリングであることを示している。物理洗浄後のろ過抵抗値は主に不可逆的膜ファウリングに由来するものとみなすことができる。Run2 で採取された着色部分の閉塞膜(図 5-4(b)矢印部分)では、物理洗浄を実施したにも関わらず非常に高い膜ろ過抵抗値となった。また、着色部分では NaClO 溶液による薬液洗浄の効果が他の閉塞膜と比べて低下した。一方、同じ Run2 終了時に採取した閉塞膜であるにも関わらず非着色部分では、物理洗浄後の膜ろ過抵抗値が Run1 と同程度となった。これは着色部分と非着色部分とで膜ファウリング特性が大きく異なることを示している。また、Run2 では担体投入後に膜表面の付着ケーキが除去されたにも関わらず、運転終了時における膜モジュール全体の膜ろ過抵抗値($22.3 \times 10^{11} \text{ m}^{-1}$)は物理洗浄後の非着

色部分のろ過抵抗値($7.5 \times 10^{11} \text{ m}^{-1}$)に比べて高い値を示した。これは Run2 の閉塞膜において着色部分が非常に高いろ過抵抗値となったため、膜モジュール全体のろ過抵抗値を増加させたことを示唆している。Run3 では不可逆的膜ファウリングが Run1 および Run2(非着色部分)に比べて進行していた。

表 5-4 各運転期間終了時における閉塞膜のろ過抵抗値

	Run1	Run2 (10^{11} m^{-1})		Run3
	(10^{11} m^{-1})	非着色部分	着色部分	(10^{11} m^{-1})
閉塞膜	37.7	22.3		30.0
物理洗浄後	7.4 ± 2.7	7.5 ± 1.5	200 ± 48	13.0 ± 1.5
薬液(NaClO)洗浄後	0.5 ± 0.03	0.5 ± 0.06	2.1 ± 1.0	0.6 ± 0.05

表 5-5 に各運転期間終了時に閉塞膜から抽出された有機物量を示す。有機物の抽出は物理洗浄後に行った。Run1 および Run2(非着色部分)から抽出された有機物量ならびに C/P 比はほぼ同程度であった。一方で Run2(着色部分)では、抽出される膜閉塞成分の量が大きく増加するとともに、C/P 比の上昇が認められた。Run2 では同じ膜エレメントから採取した閉塞膜であるにもかかわらず、着色部分と非着色部分では異なる膜閉塞成分が膜ファウリングに関与したことが明らかである。Run3 から抽出されたタンパク質量は Run1 および Run2(非着色部分)と同程度であったが、物理洗浄後の膜ろ過抵抗値は Run1、Run2(非着色部分)の 2 倍に達した。また、Run3 では抽出される有機物量および C/P 比は Run1、Run2(非着色部分)よりも増加した。糖成分は主な膜閉塞成分であることが報告されている[24-27]。Run3 では汚泥中の溶解性糖濃度の増加(表 5-3)が不可逆的膜ファウリングを進行させたことが示唆された。

表 5-5 閉塞膜から抽出された有機物量

	Run1	Run2 (担体投入)		Run3
	(担体投入せず)	非着色部分	着色部分	(担体投入)
TOC (mg/m^2)	100	131	760	140
糖 (mg/m^2)	96	91	760	114
タンパク質 (mg/m^2)	239	232	1098	224
C/P	0.40	0.39	0.69	0.51

図 5-5 に薬液洗浄後の膜表面 SEM 画像を示す。Run2 で採取された着色部分の閉塞膜表面部分の構造(図 5-5(c))は他の閉塞膜と大きく異なっていた。これは着色部分では担体によって膜表面が損傷したことを示している。一方で担体を投入して曝気量を削減した Run3 では、Run1 および Run2(非着色部分)と同様の膜表面構造が観察された。なお、Run3 で分析した閉塞膜は付着ケーキに覆われていない部分から採取した。曝気量が多くなることで担体が膜表面と活発に接触するために、膜表面が損傷すると考えられる。この結果は担体による膜表面の損傷は、担体と膜表面の接触強度に影響することを示唆している。担体の接触強度は膜表面付近のクロスフロー流速および膜エレメントの配置間隔の影響を受けると考えられる。担体による膜表面損傷を防ぐためにも、担体の接触強度の最適化に関するさらなる検討が必要である。

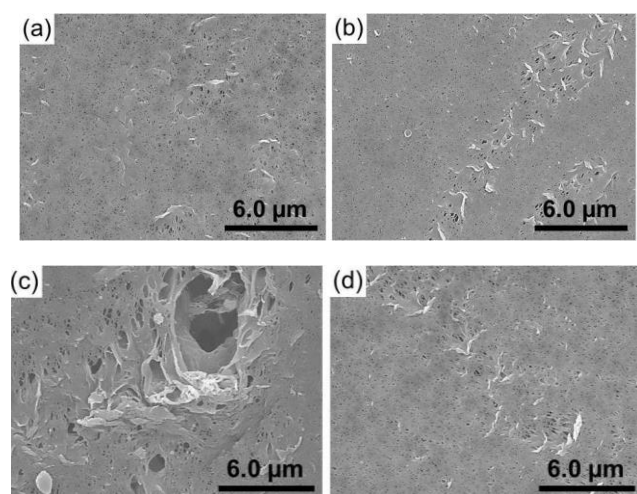


図 5-5 薬液洗浄後の閉塞膜表面の SEM 画像:

(a) Run1, (b) Run2: 非着色部分, (c) Run2: 着色部分, (d) Run3

5.4 まとめ

BMBR へ粒状担体を投入することで、膜表面が担体によって洗浄され、膜ファウリングの発生を抑制できることが示された。担体を投入することで BMBR の曝気量を 50%以上削減しても、膜ファウリングをコントロールできることが示された。一方で、担体の投入によって膜表面の一部が損傷した。本研究では担体が膜表面と過度に接触していた可能性がある。膜と担体の接触強度を最適化することで、膜表面の損傷を避けることが可能だと考えられる。最適な担体の接触強度および反応槽形状(膜エレメントの配置間隔など)についてさらなる検討が必要である。

第 5 章 参考文献

- [1] S. Judd, *The MBR Book: Principles and Applications of Membrane Bioreactors for Water and Wastewater Treatment*, second ed., Elsevier, 2011.
- [2] T. Asano, F.L. Burton, H.L. Leverenz, R. Tsuchihashi, G. Tchobanoglous, *Water Reuse: Issues, Technologies, and Applications*, McGraw Hill, 2006.
- [3] G.T. Daiger, B.E. Rittmann, S. Adham, G. Andreottola, Are membrane bioreactors ready for widespread application?, *Environ Sci. Technol.* 39 (2005) 399A–406A.
- [4] A. Fenu, J. Roels, T. Wambecq, K. De Gussem, C. Thoeye, G. De Guedre, B. van De Steene, Energy audit of a full scale MBR system, *Desalination* 262 (2010) 121–128.
- [5] M. Kraume, A. Drews, Membrane bioreactors in waste water treatment — status and trends, *Chem. Eng. Technol.* 33 (2010) 1251–1259.
- [6] B. Siembida, P. Cornel, S. Krause, B. Zimmermann, Effect of mechanical cleaning with granular material on the permeability of submerged membrane in the MBR process, *Water Res.* 44 (2010) 4037–4046.
- [7] L. Jin, S.L. Ong, H.Y. Ng, Fouling control mechanism by suspended biofilm carriers addition in submerged ceramic membrane bioreactors, *J. Membr. Sci.* 427 (2013) 250–258.
- [8] C. Fu, X. Bi, H.Y. Ng, Effects of bio-carriers on membrane fouling mitigation in moving bed membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 499 (2016) 134–142.
- [9] F. Fatone, P. Battistoni, P. Pavan, F. Cecchi, Operation and maintenance of full-scale municipal membrane biological reactors: a detailed overview on a case study, *Ind. Eng. Chem. Res.* 46 (2007) 6688–6695.
- [10] J.A. Gil, L. Tua, A. Rueda, B. Montano, M. Rodriguez, D. Prats, Monitoring and analysis of the energy cost of an MBR, *Desalination* 250 (2010) 997–1001.
- [11] K. Kimura, R. Nishisako, T. Miyoshi, R. Shimada, Y. Watanabe, Baffled membrane bioreactor (BMBR) for efficient nutrient removal from municipal wastewater, *Water Res.* 42 (2008) 625–632.
- [12] 国土交通省都市・地域整備局下水道部下水道企画課, 下水道への膜処理技術導入のためのガイドライン [第 2 版] (2011).
- [13] G. Tchobanoglous, F.L. Burton, H.D. Stensel, *Wastewater Engineering: Treatment and Reuse*, fourth ed., McGraw Hill, 2004.
- [14] Y. Shen, W. Zhao, K. Xiao, X. Huang, A systematic insight into fouling propensity of soluble microbial products in membrane bioreactors based on hydrophobic interaction and size exclusion, *J. Membr. Sci.* 346 (2010) 187–193.

- [15] H. Lee, G. Amy, J. Cho, Y. Yoon, S.-H. Moon, I.S. Kim, Cleaning strategies for flux recovery of an ultrafiltration membrane fouled by natural organic matter, *Water Res.* 35 (2001) 3301–3308.
- [16] S. Hong, R. Aryal, S. Vigneswaran, M.A.H. Johir, J. Kandasamy, Influence of hydraulic retention time on the nature of foulant organics in a high rate membrane bioreactor, *Desalination* 287 (2012) 116–122.
- [17] M. Dubois, K.A. Gilles, J.K. Hamilton, P.A. Rebers, F. Smith, Colorimetric method for determination of sugars and related substances, *Anal. Chem.* 28 (1956) 350–356.
- [18] O.H. Lowry, N.J. Rosebrough, A.L. Farr, R.J. Randall, Protein measurement with the Folin phenol reagent, *J. Biol. Chem.* 193 (1951) 265–275.
- [19] J. Sun, K. Xiao, Y. Mo, P. Liang, Y. Shen, N. Zhu, X. Huang, Seasonal characteristics of supernatant organics and its effect on membrane fouling in a full-scale membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 453 (2014) 168–174.
- [20] P. van den Brink, O.-A. Satpradit, A. van Bentem, A. Zwijnenburg, H. Temmink, M. van Loosdrecht, Effect of temperature shocks on membrane fouling in membrane bioreactors, *Water Res.* 45 (2011) 4491–4500.
- [21] S. Lyko, T. Wintgens, D. Al-Halbouni, S. Baumgarten, D. Tacke, K. Drensla, A. Janot, W. Dott, J. Pinnekamp, T. Melin, Long-term monitoring of a full-scale municipal membrane bioreactor — characterisation of foulants and operational performance, *J. Membr. Sci.* 317 (2008) 78–87.
- [22] X. Huang, C.-H. Wei, K.-C. Yu, Mechanism of membrane fouling control by suspended carriers in a submerged membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 309 (2008) 7–16.
- [23] A. Drews, J. Mante, V. Iversen, M. Vocks, B. Lesjean, M. Kraume, Impact of ambient conditions on SMP elimination and rejection in MBRs, *Water Res.* 41 (2007) 3850–3858.
- [24] K. Kimura, N. Yamato, H. Yamamura, Y. Watanabe, Membrane fouling in pilot-scale membrane bioreactors (MBRs) treating municipal wastewater, *Environ. Sci. Technol.* 39 (2005) 6293–6299.
- [25] H.P. Chu, X.Y. Li, Membrane Fouling in a membrane Bioreactor (MBR): Sludge Formation and Fouling Characteristics, *Biotechnol. Bioeng.* 90 (2005) 323–331.
- [26] J. Zhou, F.-L. Yang, F.-G. Meng, P. An, D. Wang, Comparison of membrane fouling during short-term filtration of aerobic granular sludge and activated sludge, *J. Environ. Sci.* 19 (2007) 1281–1286.
- [27] S. Arabi, G. Nakhla, Characterization of foulants in conventional and simultaneous nitrification and denitrification membrane bioreactors, *Sep. Purif. Technol.* 69 (2009) 153–160.

第 6 章

粒状担体の投入と散気装置の改良による 浸漬型 MBR の曝気量削減

6.1 はじめに

MBR は標準活性汚泥法に比べて、高度な処理水、省スペースなどの優れた特徴を持つ [1] が、標準活性汚泥処理と比べて処理に多くのエネルギーが必要となっている [2]。MBR 処理の消費エネルギーを増加させる主な原因は、膜ファウリング抑制のための曝気であり、MBR 処理施設における消費エネルギーの 60–70% に達する [4]。MBR の導入拡大に向けて膜ファウリングを効率的に抑制することが求められている。5 章までの検討から浸漬型 MBR 槽内へ粒状担体を投入することで、担体が膜表面を物理的に洗浄し、膜ファウリングの発生と膜ファウリング抑制のための曝気量を削減できることが明らかになった。MBR 槽内における担体の膜洗浄効果を向上させられれば、従来の MBR と比較して膜ファウリング抑制のための曝気量をさらに削減でき、MBR 運転コスト低減が期待できる。一方で過度な担体の接触が膜表面を損傷させることが報告されている [4,5]。5 章におけるパイロットスケール仕切り板挿入型 MBR(BMBR)を用いた検討においても、過度な担体の接触が膜表面を損傷させ、膜の性能が劣化することを確認している。担体が膜に接触する強さは担体の流動速度に大きく影響すると考えられる。担体の流動状態を適切に制御できれば膜の損傷と膜ファウリングの双方が抑制され、長期間にわたる MBR の安定運転が可能となる。

本章では粒状担体による膜表面損傷を抑制し、膜面洗浄効果を最大化するための曝気条件の最適化を目的に、浸漬型 BMBR における曝気条件の違いが粒状担体の流動速度および流動様式に与える影響について検討した。3 章で検討したベンチスケール MBR 槽内の

粒状担体の流動様式およびパイロットスケール BMBR 槽内の担体の流動様式を画像解析によって評価した。また、得られた結果を基に最適と考えられる曝気条件でパイロットスケール BMBR の連続処理実験を実施し、散気装置の改良による膜ファウリング抑制効果および曝気量削減効果についても検討した。

6.2 実験方法

6.2.1 ハイスピードカメラを用いた MBR 槽内における粒状担体の観測

本研究で使用したベンチスケールおよびパイロットスケール BMBR の形状を図 6-1, 6-2 にそれぞれ示す。ベンチスケール MBR は 3 章で使用したベンチスケール MBR と同一の形状であり、粒状担体の投入により膜表面を損傷させることなく、膜ファウリングの発生を抑制できることを確認している。表 6-1 にベンチスケール MBR およびパイロットスケール BMBR の諸元を示す。MBR 外壁および仕切り板は透明なプラスチックで構成されており、水道水を満たした MBR 槽内における粒状担体の挙動をハイスピードカメラとして使用可能なデジタルカメラ(EX-ZR, CASIO, Japan)を用いて正面側から撮影した。また、パイロットスケール BMBR 槽内の担体を撮影する際には、膜エレメントと同じ大きさの透明なアクリル板を設置し、仕切り板中央付近を撮影した。撮影時の解像度は 512×384 ピクセルとし、フレームレートを 240 fps に設定した。得られた動画を ImageJ によって解析を行い、MBR 槽内における担体の流動速度および流跡線を作成した。本研究で使用した担体は 3-5 章で使用した担体と同一であり、直径と高さが約 4 mm の円柱形で比重は 1.01 となっている。実際の汚泥を用いた場合の担体の挙動を模擬するために、キサンタンガム溶液中における担体の流動様式についても解析した。MLSS 濃度で 10 mg/L 相当の粘度となる 0.8 g/L のキサンタンガム溶液[6]を純水に溶解させた。キサンタンガム溶液中における担体の挙動解析はベンチスケール MBR のみ実施した。

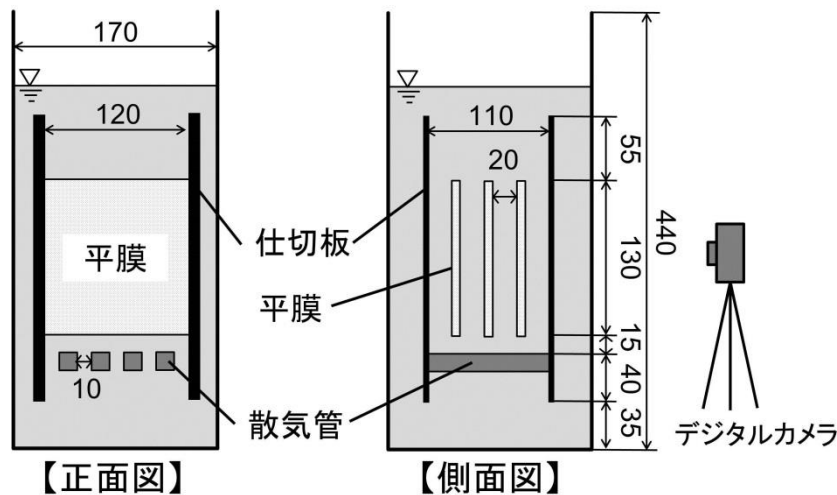


図 6-1 ベンチスケール MBR の形状(単位は mm)

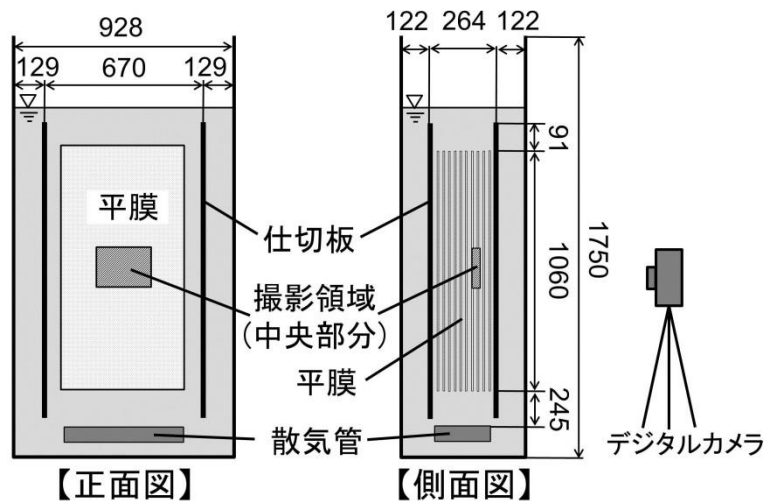


図 6-2 パイロットスケール BMBR の形状(単位は mm)

表 6-1 撮影に使用した MBR の諸元

	容積 (L)	膜エレメント間隔 (mm)	外壁の材料
ベンチスケール	7.5	20	ポリ塩化ビニル
パイロットスケール	650	18	アクリル

図 6-3 にパイロットスケール BMBR に取り付けした散気管を示す。いずれの散気管も膜モジュール下部の仕切り板中央部分に設置した。Case1 で用いた散気管は仕切り板中心付近が主に粗大気泡で散気され、5 章で運転したパイロットスケール BMBR に取り付けした散気管と同じ形状である。Case2 では花本と森田の作成した散気管[7]を参考にして、仕切り板内側が均一に粗大気泡で曝気される散気管形状とした。Case3 では Case2 における散気管

の空気穴部分をスリット長 1 mm の微細気泡チューブ(DAICEN MEMBRANE-SYSTEMS, Japan)に変更し、微細気泡曝気時における担体の挙動を解析した。また、ベンチスケール MBR に設置した散気管は市販のエアーストーン(Kotobuki, Japan)を用いた。なお、画像解析によって算出した各散気条件における気泡径を表 6-2 に示す。

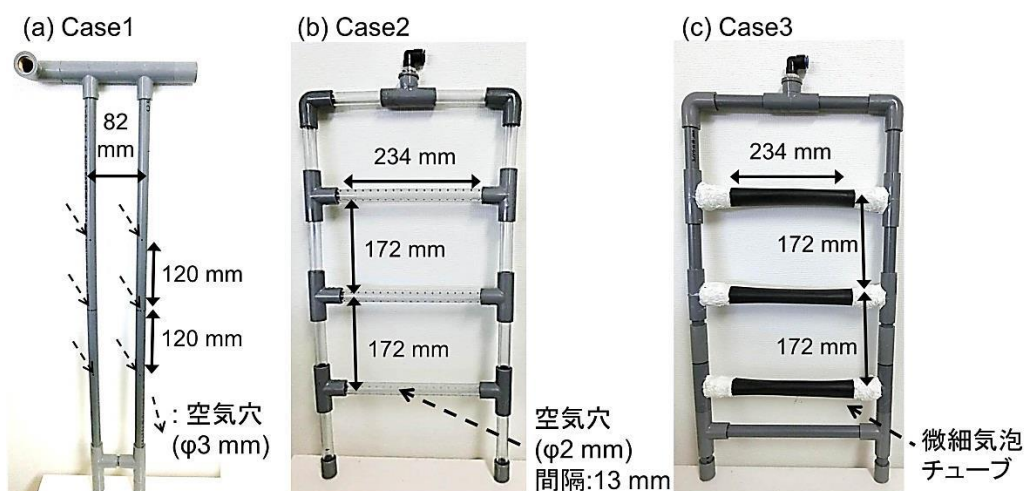


図 6-3 パイロットスケール BMBR に取り付けけた散気管形状

表 6-2 各散気条件における気泡径 ($n = 50-60$)

	ベンチスケール条件	Run1	Run2	Run3
気泡径 (mm)	3.5 ± 1.0	14.3 ± 10.3	12.4 ± 8.0	4.5 ± 0.7

6.2.2 パイロットスケール BMBR の運転条件

実都市下水処理場(Soseigawa wastewater treatment center, Sapporo, Japan)に設置したパイロットスケール BMBR(有効体積: 650 L)に担体を投入し、連続運転を行った。パイロットスケール BMBR の形状は 6.2.1 項で記述したものと同一である。公称孔径 0.1 μm の PVDF 製平膜(Toray, Japan)を使用し、10 枚の膜エレメントを仕切り板内側に設置した(総膜面積: 9 m^2)。なお、設置した膜面積の半分は水理学的滞留時間(HRT)の調整に用いた。膜透過水フラックスを 25 LMH (0.6 $\text{m}^3/\text{m}^2/\text{d}$)に設定し、間欠運転を実施した(15 分間ろ過, 1 分間休止)。膜間差圧(TMP)が 30 kPa に達した時点で膜の物理洗浄(加圧水の吹き付け)を実施した。BMBR の流入原水は 1 mm のスクリーン通過後の最初沈澱池流入水を使用した。連続運転の開始に先立ち、2 ヶ月間の馴致を実施した。

BMBR 槽内に投入した担体は 6.2.1 項で検討した粒状担体と同一であり、反応槽体積の 4%分に相当する見かけ体積で 26 L の担体を BMBR 槽内へ投入した。

本実験は Run1、Run2、Run3、Run4 の 4 期間に分割される。それぞれの期間では散気管形状および曝気量などを変更し、TMP の上昇速度から膜ファウリング抑制効果について検討した。表 6-3 に各運転期間における運転条件を示す。Run1 では 5 章で検討した曝気条件 (Case1: 150 L/min) で担体を投入せずに連続運転を行った。Run2 では担体流動様式の解析から得られた膜ファウリングの発生を抑制できると考えられる最小曝気量に変更し (Case3: 30 L/min)、Run の途中から担体を投入した。Run3 では担体を投入した状態で曝気量を増加させた (Case3: 50 L/min)。Run4 では Run3 から曝気条件を変更せずに水理的滞留時間 (HRT) を延長した (3.4 h から 6.2 h に変更)。なお、全ての運転期間を通して汚泥滞留時間 (SRT) は 20 日に設定した。表 6-4 に各運転期間における水温および DO 濃度、MLSS 濃度の平均値を示す。各期間の運転開始前に膜モジュールの NaClO 溶液およびシュウ酸溶液による薬液洗浄をそれぞれ行い、膜透過性能を未使用の新膜と同程度まで回復させた。流入原水および膜透過水については Run1-3 では午前 10 時に採取した。Run4 では自動採水機を用いたコンポジット試料を各種分析に使用した。各 Run 終了時に閉塞膜の分析を行うために、10 枚の膜エレメントの内、1 枚を BMBR から取り出し、分析に用いた。

表 6-3 各運転期間における運転条件

(SAD_m: 膜面積当たりの曝気量, SAD_p: 処理流量当たりの曝気量)

	散気管形状	曝気量	SAD _m (総膜面積あたり)	SAD _p	HRT (h)
Run1	Case1	150 L/min	1.00 m ³ /m ² /h	47.4 m ³ /m ³	3.4
Run2	Case3	30 L/min	0.20 m ³ /m ² /h	9.48 m ³ /m ³	3.4
Run3	Case3	50 L/min	0.33 m ³ /m ² /h	15.8 m ³ /m ³	3.4
Run4	Case3	50 L/min	0.33 m ³ /m ² /h	28.4 m ³ /m ³	6.2

表 6-4 各 Run における水温、DO(仕切り板内側)および MLSS 濃度の平均値

	水温 (°C)	DO (mg/L)	MLSS (mg/L)
Run1	23.7 ± 0.6	1.1 ± 0.6	10900 ± 900
Run2	22.5 ± 0.8	0.2 ± 0.2	12200 ± 1200
Run3	20.0 ± 1.8	0.4 ± 0.6	10500 ± 300
Run4	18.2 ± 1.6	1.0 ± 0.8	9000 ± 700

6.2.3 分析方法

全有機炭素(TOC)および全窒素(T-N)濃度は TOC/TN 計(TOC-VCSH, Shimadzu, Japan)を用いて測定を行った。浮遊粒子を含むサンプルは超音波破碎処理を 3 分間行った後に TOC/T-N 濃度の測定を行った。汚泥懸濁液中の溶解性糖・タンパク質成分の分析は、仕切り板内側から採取した汚泥の遠心分離上澄み液(4000 rpm, 5 分)を 0.45 μm の混合セルロースエステル膜(Advantec Tokyo, Japan)でろ過し、得られたろ液を分析に使用した。糖およびタンパク質の分析にはフェノール硫酸法[8]、Lowry 法[9]を使用した。標準試料にはグルコース、牛血清アルブミン(BSA)をそれぞれ使用した。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度は HACH 試薬(HACH1289, HACH, USA)を用いて吸光光度法によって測定し、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ および $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 濃度はイオンクロマトグラフィー(ICS-90, DIONEX, USA)を用いて測定した。DO 濃度の測定には DO 計(LDO2, DKK-TOA, Japan)を使用した。

各 Run における汚泥ろ過性をフラックスステップ法[10]を用いて評価した。パイロットスケール BMBR より採取した汚泥を 4 章で使用したベンチスケール MBR に移し、ろ過実験を実施した。ベンチスケール MBR へは担体を投入せずに膜透過水フラックスを 20 LMH から 5 LMH 間隔で増加させた。各フラックスで 15 分間の連続ろ過を行い、15 分間における TMP 上昇速度より汚泥ろ過性を評価した。また、各フラックスの間は 5 分間ろ過を休止した。

各 Run 終了時に閉塞膜エレメントを BMBR から取り出し、走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて閉塞膜表面を観察した。SEM は S-4000(Hitachi, Japan)を使用した。1 cm^2 の閉塞膜を切り出し、膜表面付着物の構造を固定するためにグルタルアルデヒドおよびオスミウム溶液処理を施した後、エタノール脱水を行った。脱水後、乾燥時の膜表面の変形を防ぐために、臨界点乾燥装置を(HCP-1, Hitachi, Japan)を用いて臨界点乾燥を行った。臨界点乾燥の中間液には酢酸イソアミルを使用した。臨界点乾燥後の試料は、SEM 観察時における静電気の影響を取り除くために白金コーティング処理を施した。

6.3 結果と考察

6.3.1 MBR 槽内における担体の流動様式

6.3.1.1 ベンチスケール MBR 槽内における担体の流動様式

正面方向からの動画解析によって算出したベンチスケール MBR における担体の流動速度を表 6-5 に示す。曝気量 17 L/min および 8.5 L/min は 3 章で運転したベンチスケール MBR の曝気条件であり、膜ファウリングの発生を抑制できることを確認している。実際の活性汚泥を模擬したキサンタンガム溶液中では、水道水中に比べて担体の流動速度の平均値と

ばらつきが大きくなった。キサンタンガム溶液は非ニュートン流体であり、気泡の挙動が水道水と大きく異なる[11]。図 6-4 に正面側から撮影した担体の流跡線を示す。枠内の矢印は担体が 24 分の 1 秒間に移動した距離を示す。水道水を満たした場合では膜モジュールが均一に曝気され、担体の流路は分散していた。一方、キサンタンガム溶液中における担体の流動は水道水中と比べて、流跡線の進行方向が一定であった。これは液体の粘度が増加することで MBR 槽内における担体の流路に偏りが生じやすくなることを示唆している。このことから、実際の活性汚泥中で膜面全体を担体によって洗浄するためには、膜モジュール内に均一に散気する方式が望ましいと考えられる。

表 6-5 ベンチスケール MBR における担体の流動速度

	水道水	水道水	キサンタンガム溶液
曝気量 (L/min)	17	8.5	8.5
担体流動速度 (mm/s)	297 ± 74	204 ± 53	237 ± 68

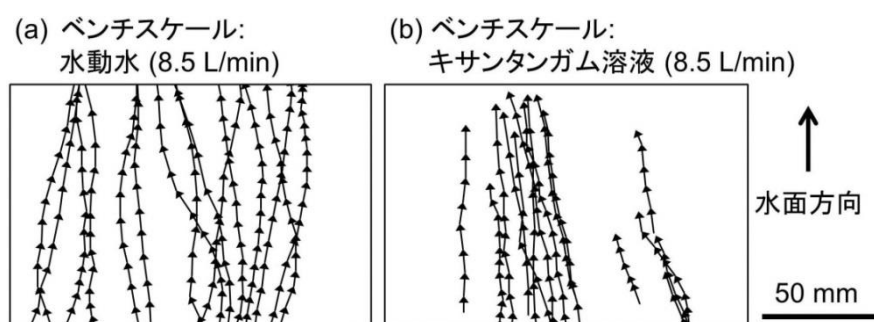


図 6-4 正面側から撮影した担体の流跡線 (n = 15)

図 6-5 にベンチスケール MBR 槽内における担体の流動速度分布を示す。ベンチスケール MBR における流動速度分布は正規分布に近い形状となった。曝気流量および液体粘度が増加した場合には、速度のピークがなだらかとなった。3 章における長期運転の曝気条件である 17 L/min では、担体の流動速度は最大で 600 mm/s であることが示された。担体と膜面とが接触する強度は担体の流動速度に大きく影響すると予想されることから、担体投入による膜表面の損傷を抑制するためには、600 mm/s 以下で担体を流動させることが望ましいと考えられる。また、キサンタンガム溶液中では水道水中に比べて、流動速度分布の幅が大きくなることが示された。

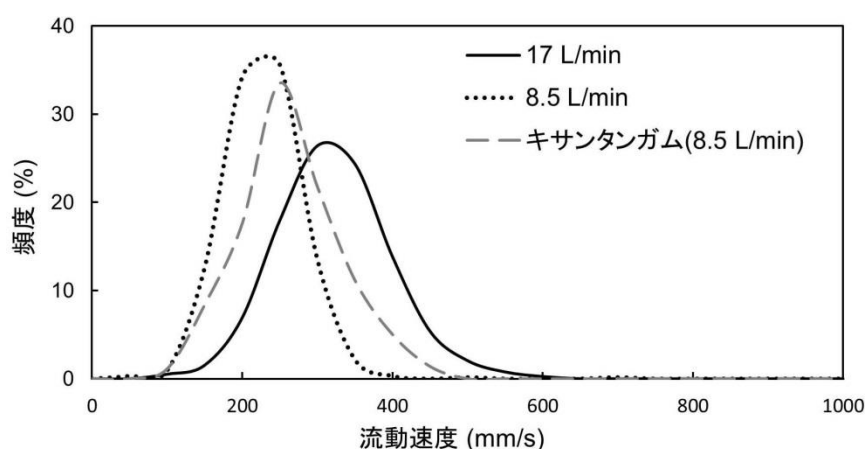


図 6-5 ベンチスケール MBR 槽内における担体の流動速度分布

(17 L/min : n = 390, 8.5 L/min: n = 643, キサンタンガム 8.5 L/min: n = 358)

6.3.1.2 パイロットスケール BMBR 槽内における担体の流動様式

表 6-6 に正面側からの動画解析によって算出した各曝気条件における担体の平均流動速度を示す。曝気量を 50 L/min に設定した場合は、Case1 において担体が反応槽底部に滞留したため、担体の流動速度を測定できなかった。また、Case1 では膜モジュール中心部に曝気が偏った結果、膜モジュール外側付近を担体が流動しない様子が観察された。担体を投入する場合には膜モジュールを一様に曝気できる Case2 および Case3 の散気管形状が適していると考えられる。いずれの Case もベンチスケール MBR に比べて担体の平均流動速度が大きく、担体は膜表面を十分に洗浄できることが示唆された。しかし、担体が膜表面と過度に接触することで膜葉面が損傷する可能性があるため、流動速度はベンチスケール条件に近いことが望ましいと考えられる。粗大気泡曝気(Case1,2)に比べて微細気泡曝気(Case3)の場合では担体の流動速度の変動が小さく、担体の流動速度は微細気泡曝気を行う Case3 で曝気量を 30 L/min に設定したところ最もベンチスケール条件に近い値となった。これは、担体を浸漬型 MBR に投入する場合、微細気泡曝気のみで MBR の膜ファウリングがコントロールできることを示唆している。担体の流動速度のみを考慮した場合は、5 章で検討した曝気量を最大で 80%削減しても安定した運転を継続できると考えられる。

表 6-6 パイロットスケール BMBR 槽内における担体の平均流動速度

	Case 1		Case2		Case3		
	(粗大気泡曝気)		(粗大気泡曝気)		(微細気泡曝気)		
曝気量 (L/min)	100	50	100	50	100	50	30
流動速度 (mm/s)	599	流動	474	360	519	348	227
	± 197	せず	± 194	± 158	± 107	± 98	± 70

各曝気条件における担体の流動様式について検討するために、正面側における粒状担体の流跡線を作成した(図 6-6)。枠内の矢印は担体が 24 分の 1 秒間で移動した距離を示す。粗大気泡曝気を実施した Case1 および Case2 では、担体が大きく蛇行するように上昇する様子が観察された。一方、微細気泡曝気を実施した Case3 では、担体は水面方向に向かって垂直に近い形で膜表面付近を流動することが示された。Lutz ら[12]は液中を上昇する気泡径が増加するにつれ、気泡後方に発生する渦が大きくなることを報告している。微細気泡曝気に比べて粗大気泡曝気で担体の流路が蛇行したのは、水中を上昇する気泡が生み出す渦の影響をより強く受けたことが原因であると考えられる。

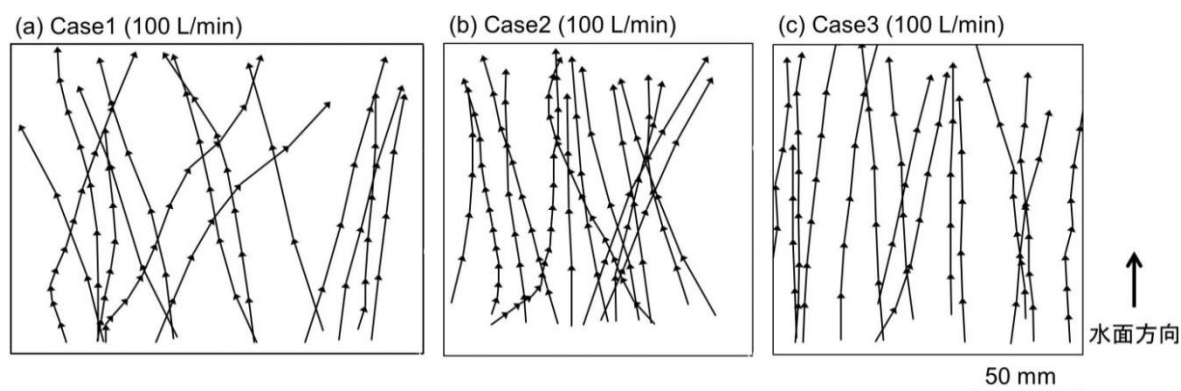


図 6-6 パイロットスケール BMBR における担体の流跡線 (n = 15)

図 6-7、図 6-8、図 6-9 に各 Case における担体の流動速度分布とベンチスケール条件(水道水: 8.5 L/min)における担体の流動速度分布をそれぞれ示す。5 章における検討で膜表面に損傷が観察された条件である Case1(150 L/min)では、担体の流動速度が 600 mm/s を大きく上回っていた。5 章において膜表面が損傷したのは、担体の流動速度が大きく、過度に膜表面と接触したことが原因であることが示唆された。また、Case1 では曝気量を 100 L/min

に削減しても流動速度分布は同様の形状となったことから、曝気量を削減しても膜表面の損傷を軽減できないと考えられる。膜モジュールを均一に散気する Case2 の条件では Case1 に比べて、流動速度分布はベンチスケールに近づいたものの速度の変動が大きく、曝気量を削減しても一部の担体は 600 mm/s 以上で流動した。一方、微細気泡曝気を実施した Case3 では担体の流動速度分布は他の Case に比べて速度の変動が小さくなった。曝気量を 50 L/min に設定した場合では、担体の流動速度は 600 mm/s 以下となった。このことから、Case3 では曝気量を 50 L/min 以下に設定することで膜表面の損傷を抑制できると考えられる。また、曝気量を 30 L/min に設定した場合では流動速度分布が最もベンチスケール条件に近い形状となった。これらの結果から、浸漬型 MBR に担体を投入する場合では、膜表面への損傷を抑制する観点から粗大気泡曝気よりも微細気泡曝気を実施することが望ましいと考えられる。

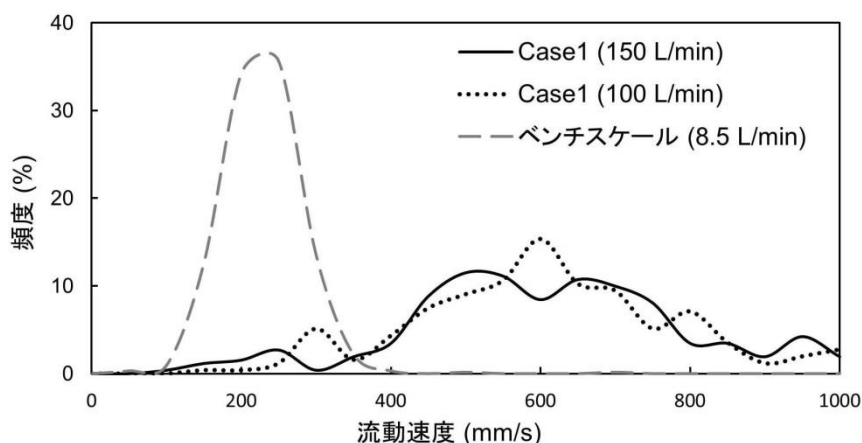


図 6-7 Case1 における担体の流動速度分布

(150 L/min: $n = 261$, 100 L/min: $n = 254$, ベンチスケール 8.5 L/min: $n = 643$)

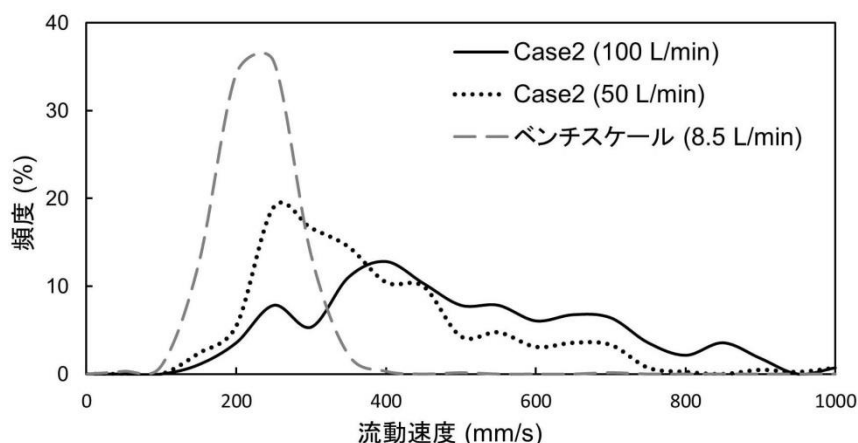


図 6-8 Case2 における担体の流動速度分布

(100 L/min: $n = 281$, 50 L/min: $n = 421$, ベンチスケール 8.5 L/min: $n = 643$)

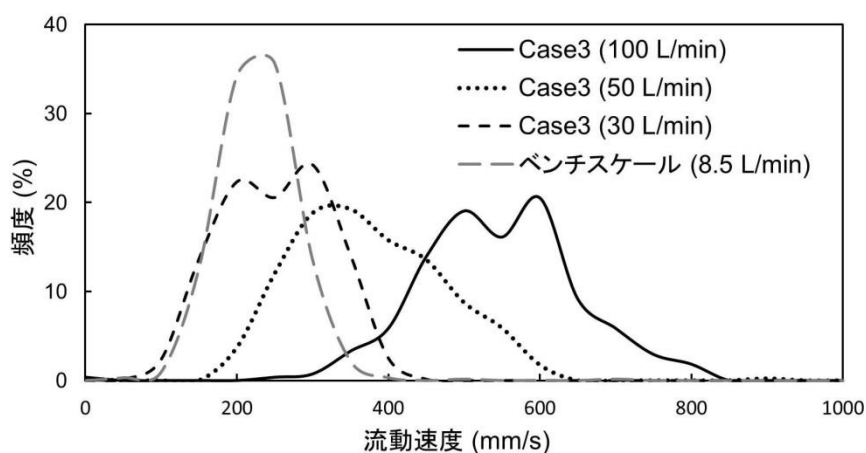


図 6-9 Case3 における担体の流動速度分布

(100 L/min: $n = 273$, 50 L/min: $n = 457$, 30 L/min: $n = 681$, ベンチスケール 8.5 L/min: $n = 643$)

6.3.2 パイロットスケール BMBR の運転

6.3.2.1 曝気条件が担体投入型 BMBR の運転に及ぼす影響

各運転期間における TMP の経時変化を図 6-10 に示す。水の粘度が膜のろ過性に与える影響を考慮し、水温を 20 °C に補正し TMP を算出した。下向きの実線矢印は物理洗浄の実施時期を破線矢印は担体を投入した時期を示している。曝気条件が 5 章と同じ粗大気泡条件(Csee1: 150 L/min)で担体を投入しなかった Run1 では緩やかに TMP が上昇し、約 30 日間の連続運転が可能であった。Run1 では運転開始 30 日目以降に急激に TMP が上昇したため、膜の物理洗浄を実施した。物理洗浄によって TMP は 10 kPa 程度まで回復したことから、Run1 で発生した膜ファウリングは主に物理的に可逆的膜ファウリングであることが示された。散気装置を Case3 の微細気泡条件に変更し曝気量を 30 L/min に削減した Run2

では、初め担体を投入しない条件で運転したところ、10 日間の運転で急激に TMP が上昇した。物理洗浄の実施により、TMP が運転開始時と同程度まで回復したことから、Case3 の微細気泡曝気(30 L/min)では可逆的膜ファウリングを抑制できないことが示された。Run2 では物理洗浄後に担体を投入したところ、担体を投入したにもかかわらず約 10 日間の運転で TMP が急激に上昇したため、膜の物理洗浄を実施した。担体投入時の Run2 における物理洗浄後の TMP は 18 kPa と高く、担体投入後の運転で急激に不可逆的膜ファウリングが進行したことが示された。Run2 では曝気量を大幅に削減したことで仕切り板内側の DO 濃度が大幅に低下していたことから(平均値: 0.2 mg/L)、30 L/min の曝気量では微生物処理に必要な酸素を十分に供給できていないことが明らかになった。一方で、Run2(担体投入後)の物理洗浄時に引き上げた膜エレメントに付着していたケーキはわずかであった(図 6-11(a)矢印部分)。これは、担体を投入することで微生物処理に必要な曝気量以下で可逆的膜ファウリングの発生を抑制できたことを示している。不可逆的膜ファウリングの進行には汚泥性状が大きく影響していると予想されるが、それらの考察は 6.3.2.2 項にて詳細に記述する。Run3 では仕切り板内側の DO 濃度を増加させるために、担体投入時に膜表面が損傷しないと考えられる最大曝気量である 50 L/min に変更した。Run3 では曝気量を増加させたが DO 濃度は低いままであり(平均値: 0.4 mg/L)、Run2 と同様に運転開始 10 日目以降に急激な TMP の上昇が観察された。物理洗浄後の TMP は 17 kPa であり、Run3 においても不可逆的膜ファウリングの進行が TMP の上昇を引き起こしたことが示された。Run4 では曝気条件を変更せずに HRT を約 2 倍に延長した。Run4 では仕切り板内側の DO 濃度は平均で 1 mg/L に達し、TMP の上昇は緩やかであった。約 45 日間の運転後に物理洗浄を実施したところ、物理洗浄前後の TMP がほぼ同じ値になったことから、Run4 では可逆的膜ファウリングを完全に抑制できていたことが明らかになった。BMBR に設置する散気装置を担体投入時に適した形状に改良することで、曝気量を 3 分の 1 に削減しても可逆的膜ファウリングの発生を完全に抑制できることが示された。

Run4 では HRT を延長したことで SAD_p が $15.8 \text{ m}^3/\text{m}^3$ から $28.4 \text{ m}^3/\text{m}^3$ に増加したが、一般的なフルスケール MBR($10\text{--}65 \text{ m}^3/\text{m}^3$)[3]と同程度となった。また、Run4 における曝気量の SAD_m 換算値は $0.33 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{h}$ であり、これは一般的なフルスケール MBR の範囲である $0.18\text{--}1.28 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{h}$ [3]の下限に近い値となっている。パイロットスケール MBR に比べてフルスケール MBR ではスケールメリットによるさらなる SAD_m の削減が見込まれることから、既存の MBR に比べて曝気に消費されるエネルギーを大幅に削減できることが示唆された。

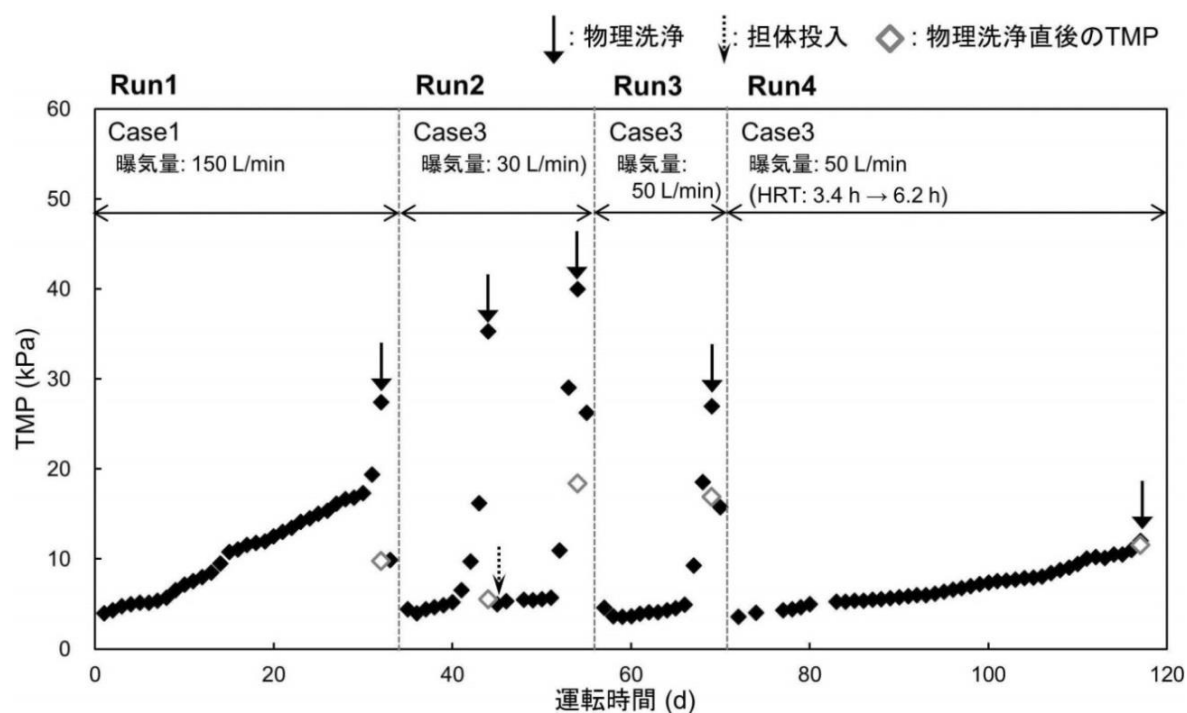


図 6-10 TMP の経時変化(20 °C で温度補正)

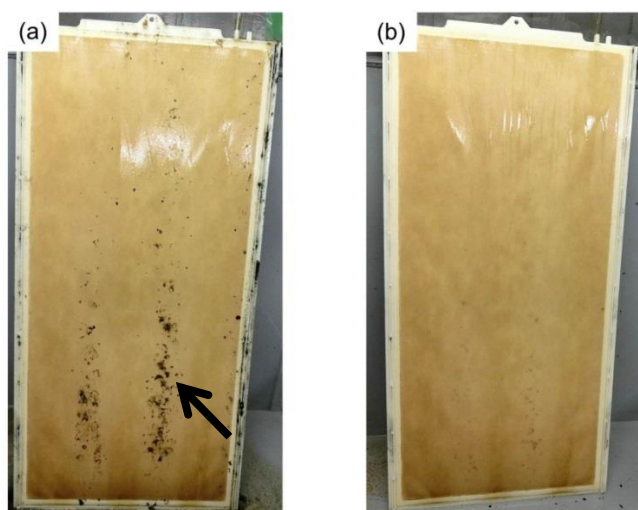


図 6-11 Run2(担体投入後)の物理洗浄時における膜モジュールの写真:

(a) 物理洗浄前 (矢印部分は膜表面付着物), (b) 物理洗浄後

表 6-7 に各運転期間における流入原水および処理水質の平均値を示す。全ての運転期間を通して処理水中の TOC 濃度は 7 mg/L 以下で推移した。Run2 および Run3 は DO 濃度が低い(<0.5 mg/L)状況となったが、他の Run と同程度の TOC 濃度となった。曝気量削減前の Run1 では T-N 除去率が 70%に達していたが、Run2 および Run3 では処理水中の $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度が増加し、T-N 除去率が 60%を下回った。Run2 および Run3 では仕切り板内側の DO 濃度が低下したことで、硝化が抑制されたと考えられる。Run4 では HRT を延長したことに加えて、流入原水の TOC 濃度が低下したことで仕切り板内側の DO 濃度が 1 mg/L 程度まで上昇した。Run4 では処理水中の $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度が低下し、T-N 除去率が 75%に達した。Run4 における窒素除去率はこれまでに我々の研究チームが実施したパイロットスケール BMBR 実験[13]と同程度であり、担体の投入に適した散気管形状とすることで曝気量の大幅な削減に加えて、高い窒素除去率を達成できることが明らかになった。

表 6-7 各運転期間における流入原水および処理水質の比較

	流入原水		処理水					除去率	
	TOC (mg/L)	T-N (mg/L)	TOC (mg/L)	$\text{NH}_4^+\text{-N}$ (mg/L)	$\text{NO}_2^-\text{-N}$ (mg/L)	$\text{NO}_3^-\text{-N}$ (mg/L)	T-N (mg/L)	TOC %	T-N %
Run1	49.7 ± 17.0	27.2 ± 10.9	4.3 ± 0.4	4.2 ± 4.0	0.0 ± 0.0	2.1 ± 2.9	6.8 ± 2.7	90 ± 3	71 ± 15
Run2	55.4 ± 12.2	31.4 ± 5.4	4.8 ± 1.0	13.4 ± 3.8	0.0 ± 0.0	0.0 ± 0.0	14.2 ± 3.6	91 ± 1	55 ± 8
Run3	51.5 ± 12.1	28.8 ± 6.9	4.3 ± 1.1	11.0 ± 4.1	0.0 ± 0.0	0.0 ± 0.1	12.0 ± 4.1	92 ± 2	59 ± 6
Run4	33.9 ± 11.3	20.3 ± 4.9	4.7 ± 0.9	3.6 ± 3.5	0.1 ± 0.1	1.0 ± 1.2	4.8 ± 2.9	85 ± 6	75 ± 13

6.3.2.2 各運転条件における汚泥ろ過性と汚泥性状の比較

図 6-12 に各運転期間における汚泥を採取し、フラックスステップ法によって算出した TMP の上昇速度を示す。水の粘度が膜のろ過性に与える影響を考慮し、TMP 上昇速度は 20 °C における粘度を基に補正した。5 章での実験と同じ粗大気泡曝気条件で運転した Run1 は、TMP 上昇速度の増加が最も緩やかであり、汚泥ろ過性が他の Run に比べてよい状態であった。一方、微細気泡曝気条件に変更し曝気量を削減した Run2(担体投入前)では TMP 上昇速度が Run1 に比べて増加し、汚泥ろ過性が悪化した。Faust ら[14]は MBR 槽内の DO 濃度が低下することで、汚泥ろ過性が悪化することを報告している。Run2 における汚泥ろ過性の悪化は DO 濃度低下によって引き起こされたことが示唆された。また、担体投入に

よって Run2 の汚泥ろ過性がさらに悪化した。4 章における検討で、担体の投入によって汚泥ろ過性が悪化することを確認している。本章においてもパイロットスケール BMBR への担体投入によって汚泥ろ過性が悪化することが示された。Run3 では曝気量を 30 L/min から 50 L/min に増加させたが、仕切り板内側の DO 濃度を Run1 と同程度まで上昇させることができず、汚泥ろ過性は Run2(担体投入後)と同程度となった。Min ら[15]は DO 濃度が低い場合(0.2 mg/L)では、高い場合(3.7 mg/L)に比べて汚泥懸濁液中の溶解性有機物成分の膜ろ過抵抗への寄与が増すことを報告している。また、3 章における検討で浸漬型 MBR へ担体を投入することで、膜表面に形成されるダイナミックフィルターが消失し、不可逆的膜ファウリングが進行しやすくなることが示唆されている。Run2 および Run3 では汚泥懸濁液中の溶解性有機物成分のろ過性が悪化したことに加えて、膜表面のダイナミックフィルターが担体によって消失したことで、不可逆的膜ファウリングの急激な進行を引き起こしたと考えられる。HRT を延長した Run4 の DO 濃度は Run1 と同程度まで上昇したが、汚泥ろ過性は Run2(担体投入前)に比べて悪化した。Run4 では他の Run に比べて汚泥懸濁液中の溶解性糖濃度の増加が観察された(図 6-13)。Run4 は秋季から冬季にかけて運転を行ったため、流入原水の水温が低下し、他の Run に比べて MBR 反応槽内の汚泥水温が低下した(表 6-4)。水温の低下は汚泥懸濁液中の溶解性糖濃度を増加させる[16-18]。汚泥懸濁液中の糖成分は主な膜ファウリング成分であることが報告されており[19,20]、汚泥溶解性糖濃度の増加が Run3 における汚泥ろ過性の悪化を引き起こしたと考えられる。

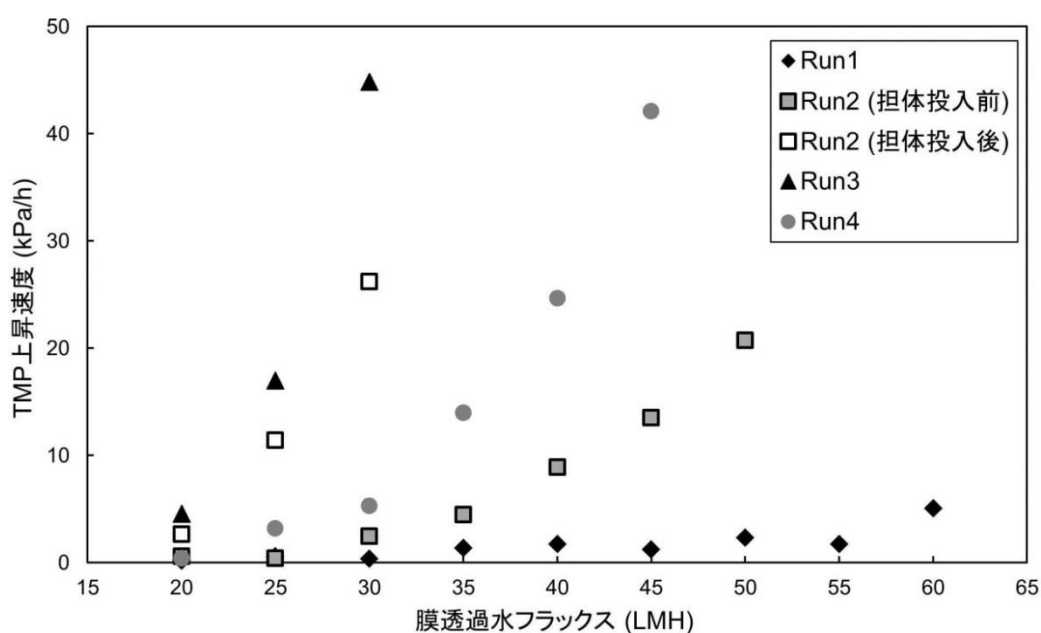


図 6-12 各膜透過水フラックスにおける TMP 上昇速度の比較(20 °C で温度補正)

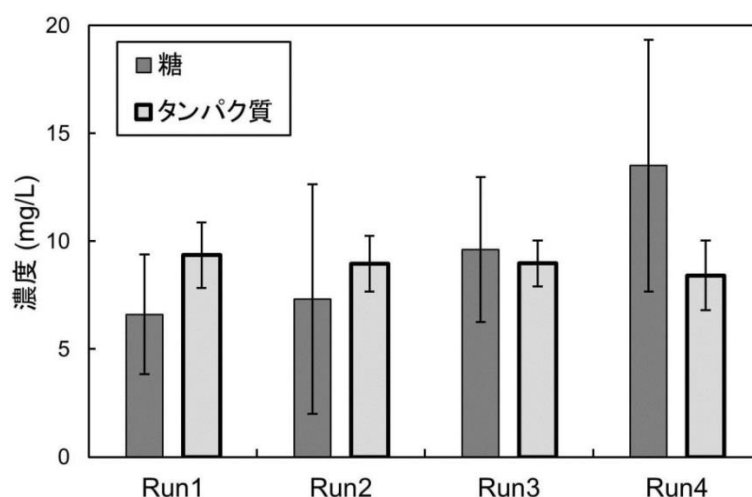


図 6-13 各運転期間における汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度

6.3.2.3 運転終了時における膜表面の損傷

図 6-14 に Run4 運転終了時における膜モジュールの写真を示す。1 ヶ月以上運転したにも関わらず、膜表面蓄積物はほとんど目視では観察されず、担体によって効果的に膜表面が洗浄されていたことが示された。また、5 章における検討で膜表面の一部に観察された物理洗浄で除去することのできない着色は、本研究では観察されなかった。図 6-15 に Run4 運転終了時における物理洗浄後の閉塞膜表面 SEM 画像を示す。5 章で観察された損傷に比べて軽減されていたが、担体投入による膜表面の損傷が観察された(図 6-15(a))。一方で、膜表面ケーキがわずかに付着していた領域(図 6-11 (a)矢印部分と同じ領域)では膜表面の損傷はほとんど観察されなかった。Run4 の曝気条件における担体の流動速度は、ベンチスケール条件(3 章における曝気条件)と同程度であることが 6.3.1.2 項で示されたにも関わらず、膜表面の損傷が観察された。汚泥懸濁液は水道水に比べて粘度が高いことから、担体の流動速度の絶対値が水道水中に比べて大きくなった可能性がある(6.3.1.1 項)。Run4 における曝気条件(50 L/min)では、担体が過度に膜表面と接触していたことが示唆された。Run4 の散気管形状(Case3)は、膜モジュールを一様に曝気できることを画像解析の際に確認していたが、実際の汚泥中では曝気が当たる膜面に偏りが生じていることが示唆されている(図 6-11(a)矢印部分では担体の接触頻度が少ないと考えられる)。Lutz ら[11]は非ニュートン液中を上昇する気泡は直進することを報告している。実際の汚泥中では、散気管から放出された空気は水道水中に比べて、散気部分の真上付近を主に上昇すると考えられる。Case3 における散気部分の間隔を小さくすることで、膜面にあたる曝気の偏りを減らすことができ、より効果的に担体と膜面とを接触させられる可能性がある。

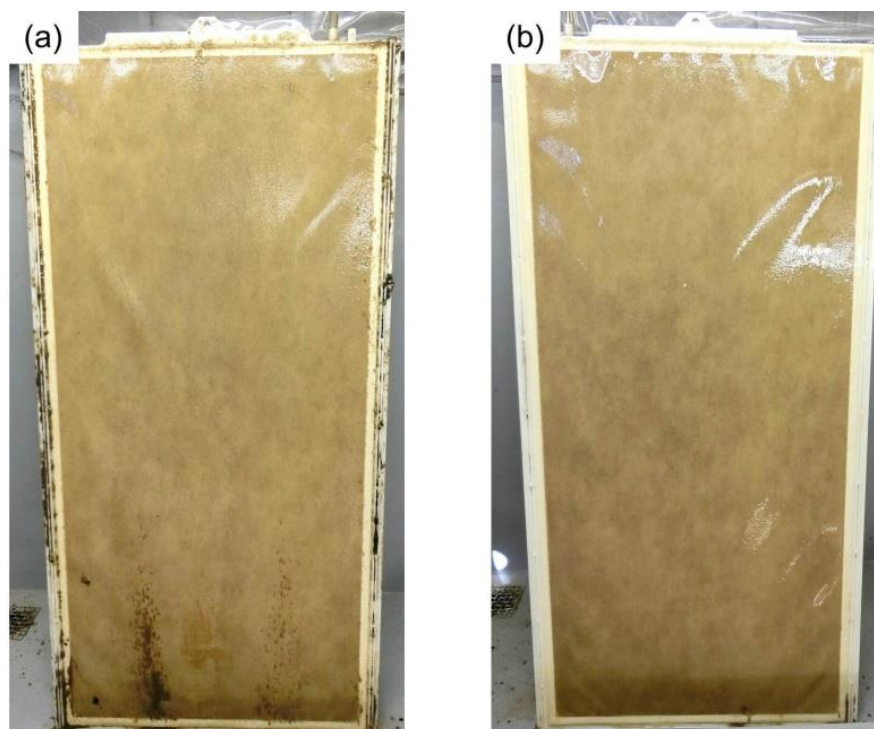


図 6-14 Run4 運転終了時における膜モジュールの写真:

(a) 物理洗浄前, (b) 物理洗浄後

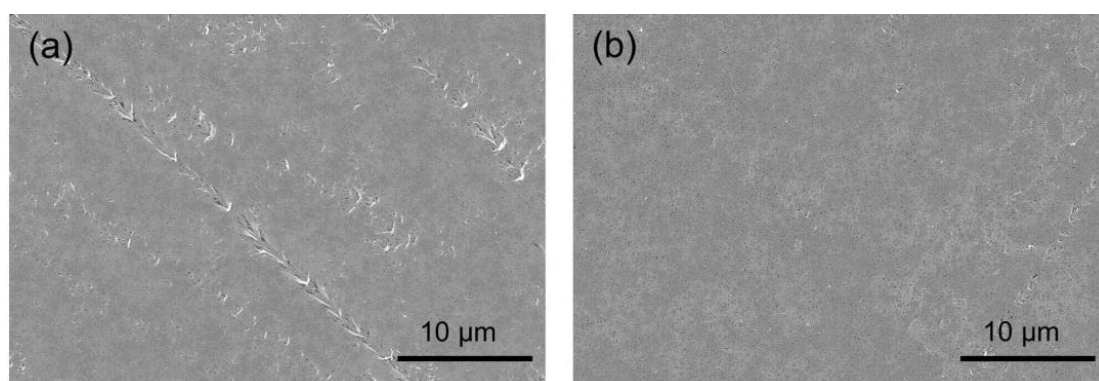


図 6-15 Run4 終了時における物理洗浄後の閉塞膜表面の SEM 画像

(a) 損傷の多い部分, (b) 損傷の少ない部分

6.4 まとめ

パイロットスケール BMBR における曝気条件と粒状担体の流動様式との関係を比較した結果、微細気泡曝気条件は粗大気泡曝気条件に比べて、担体の流動速度の変動が小さくなった。過度な担体の接触による膜表面の損傷を抑制する上で、微細気泡曝気条件を担体投入型 BMBR に適用することが望ましいと考えられる。また、担体の流動様式の解析から、微細気泡曝気条件時では曝気量を粗大気泡曝気条件時から 80%削減しても膜ファウリングを抑制できることが示唆された。微細気泡曝気条件(SAD_m : $0.2 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{h}$)で担体を投入したパイロットスケール BMBR の連続運転(HRT: 3.4 h)を実施したところ、仕切り板内側の DO 濃度が低下($<0.2 \text{ mg/L}$)したことで、汚泥ろ過性が悪化し、不可逆的膜ファウリングが急激に進行した。一方で、膜表面付着物は担体によって除去されていたことから、BMBR へ担体を投入することで微生物処理に必要な曝気量以下で可逆的膜ファウリングの発生を抑制できていたことが示された。仕切り板内側の DO 濃度を上昇させるために曝気量と HRT を増加させたところ(SAD_m : $0.33 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{h}$, HRT: 6.2 h)、平均 DO 濃度が 1 mg/L まで上昇し、汚泥ろ過性が改善した。汚泥ろ過性が改善した条件では不可逆的膜ファウリングの進行は緩やかであり、担体によって可逆的膜ファウリングを完全に制御できることが示された。しかし、担体が頻繁に膜と接触する部分では、膜表面の損傷が観察された。膜の損傷を防ぐために、曝気量をさらに削減する必要がある。また、処理水質については反応槽内の平均 DO 濃度が 1 mg/L に達した運転条件で窒素除去率が 70%を超えた。

第 6 章 参考文献

- [1] S. Judd, *The MBR Book: Principles and Applications of Membrane Bioreactors for Water and Wastewater Treatment*, second ed., Elsevier, 2011.
- [2] A. Fenu, J. Roels, T. Wambecq, K. De Gussem, C. Thoeye, G. De Guedre, B. van De Steene, Energy audit of a full scale MBR system, *Desalination* 262 (2010) 121–128.
- [3] M. Kraume, A. Drews, Membrane bioreactors in waste water treatment — status and trends, *Chem. Eng. Technol.* 33 (2010) 1251–1259.
- [4] B. Siembida, P. Cornel, S. Krause, B. Zimmermann, Effect of mechanical cleaning with granular material on the permeability of submerged membrane in the MBR process, *Water Res.* 44 (2010) 4037–4046.
- [5] M.T. Alresheedi, O.D. Basu, support media impacts on humic acid, cellulose, and kaolin clay in reducing fouling in a submerged hollow fiber membrane system, *J. Membr. Sci.* 450 (2014) 282–290.
- [6] S. Rosenberger, F.P. Helmus, S. Krause, A. Bareth, U Meyer-Blumenroth, Principles of an enhanced MBR-process with mechanical cleaning, *Water Sci. Technol.* 64 (2011) 1951–1958.
- [7] 花本陽介, 森田穰, 膜モジュールの膜面洗浄効率に関わる散気構造評価, 第 23 回環境工学総合シンポジウム 2013 (2013).
- [8] M. Dubois, K.A. Gilles, J.K. Hamilton, P.A. Rebers, F. Smith, Colorimetric method for determination of sugars and related substances, *Anal. Chem.* 28 (1956) 350–356.
- [9] O.H. Lowry, N.J. Rosebrough, A.L. Farr, R.J. Randall, Protein measurement with the folin phenol reagent, *J. Biol. Chem.* 193 (1951) 265–275.
- [10] P. van der Marel, A. Zwijnenburg, A. Kemperman, M. Wessling, H. Temmink, W. van der Meer, an improved flux-step method to determine the critical flux and the critical for irreversibility in a membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 332 (2009) 24–29.
- [11] L. Bohma, T. Kurita, K. Kimura, M. Kraume, Rising behaviour of single bubbles in narrow rectangular channels in Newtonian and non-Newtonian liquids, *Int. J. Multiph. Flow* 65 (2014) 11–23.
- [12] L. Böhm, M. Kraume, Investigation of single bubbles rising in narrow rectangular channels with Particle Image Velocimetry, 16th Int Symp on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics (2012).
- [13] K. Kimura, R. Nishisako, T. Miyoshi, R. Shimada, Y. Watanabe, Baffled membrane bioreactor (BMBR) for efficient nutrient removal from municipal wastewater, *Water Res.* 42 (2008) 625–632.

- [14] F. Faust, H. Temmink, A. Zwijnenburg, A.J.B. Kemperman, H.H.M. Rijnaarts, Effect of dissolved oxygen concentration on the bioflocculation process in high loaded MBRs, *Water Res.* 66 (2014) 199–207.
- [15] K.-N. Min, S.J. Ergas, A. Mermelstein, Impact of dissolved oxygen concentration on membrane filtering resistance and soluble organic matter characteristics in membrane bioreactors, *Water Sci. Technol.* 57 (2008) 161–165.
- [16] S. Lyko, T. Wintgens, D. Al-Halbouni, S. Baumgarten, D. Tacke, K. Drensla, A. Janot, W. Dott, J. Pinnekamp, T. Melin, Long-term monitoring of a full-scale municipal membrane bioreactor — characterisation of foulants and operational performance, *J. Membr. Sci.* 317 (2008) 78–87
- [17] P. van den Brink, O.-A. Satpradit, A. van Bentem, A. Zwijnenburg, H. Temmink, M. van Loosdrecht, Effect of temperature shocks on membrane fouling in membrane bioreactors, *Water Res.* 45 (2011) 4491–4500.
- [18] Z. Ma, X. Wen, F. Zhao, Y. Xia, X. Huang, D. Waite, J. Guan, Effect of temperature variation on membrane fouling and microbial community structure in membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 133 (2013) 462–468.
- [19] S. Rosenburger, C. Laabs, B. Lesjean, R. Gnirss, G. Amy, M. Jekel, J.-C. Schrotter, Impact of colloidal and soluble organic material on membrane performance in membrane bioreactors for municipal wastewater treatment, *Water Res.* 40 (2006) 710–720.
- [20] A. Drews, J. Mante, V. Iversen, M. Vocks, B. Lesjean, M. Kraume, Impact of ambient conditions on SMP elimination and rejection in MBRs, *Water Res.* 41 (2007) 3850–3858.

第 7 章

異なる担体の使用が浸漬型 MBR の運転 効率および膜ファウリングに与える影響

7.1 はじめに

膜分離活性汚泥法(MBR)は標準活性汚泥法に比べて、高度な処理水、省スペースなどの優れた特徴を持つ[1]が、膜ファウリング抑制のための曝気によって処理コストが大きく増加している[2-4]。MBR の広範な利用を促進するためには、膜ファウリングを効果的に抑制する方法の確立が必要である。浸漬型 MBR へ粒状担体やスポンジ担体を投入することで、膜表面が担体によって物理的に洗浄され、安定した運転を継続できることが報告されている[5-7]。6 章までの研究によって担体の投入はケーキ/ゲル除去に非常に効果的であり、担体の投入によって膜ファウリング抑制のための曝気量を大幅に削減できることを確認した。

MBR に投入する担体には一定量の微生物が固定される。したがって MBR に担体を投入する場合には生物膜処理を同時に行うことになる。MBR と生物膜処理を組み合わせることにより、窒素やリン除去性の向上が期待される[8-12]。生物膜処理と MBR の組み合わせには、上述した粒状/スポンジ担体の膜分離槽への投入の他、ひも状やメッシュ状の微生物支持体を反応槽内へ設置する方法[13-15]や歯車状およびリング状のプラスチック担体を膜分離槽内で流動させる方法[9,16-19]などがある。また、粒状/スポンジ担体および歯車型の担体を流動させる方法では、担体が膜に接触しないように膜分離タンクと担体流動タンクとを分ける場合もある[9,16,17,20-22]。生物膜処理との組み合わせによって MBR 汚泥ろ過性が改善され、膜ファウリングが抑制されることが報告されている[7,19,21-23]。一方、生物膜処理と MBR を組み合わせた場合、膜表面にケーキが蓄積さ

れやすくなり、膜ファウリングの進行が促進されたことも報告されている[24,25]。これらの矛盾する結果は生物膜処理と MBR とを組み合わせることによって汚泥性状が変化し、発生する膜ファウリングの特性が変化することを示唆している。MBR と組み合わせて使用する担体の種類によって微生物の保持形態や汚泥特性に差異が生じ、長期的な MBR の運転に影響をおよぼす可能性があるが、異なる性質の担体と組み合わせた MBR の比較はほとんど行われていない。

本章では異なる形状・性質を持つ担体の使用が MBR 汚泥性状および膜ファウリング特性に与える影響について比較した。MBR と組み合わせて使用する担体として、ひも状担体、粒状担体、スポンジ担体の3種類の担体を比較した。また、スポンジ担体については密度および大きさなどの物理特性を変更して比較を行った。それぞれの担体を使用したベンチスケール MBR を並列運転し、人工下水の連続処理実験を行った。粒状担体およびスポンジ担体は MBR 槽内を流動させ、担体と膜表面が接触するようにした。一方、ひも状担体は MBR 槽内に固定し、膜表面と接触しないようにした。各 MBR の汚泥ろ過性および汚泥懸濁液中の溶解性成分について分析を行うとともに、各 MBR で発生した膜ファウリング特性を比較した。

7.2 実験方法

7.2.1 ベンチスケール MBR の運転条件

4 台のベンチスケール MBR(有効体積: 7.5 L)を並列運転した。本研究は比較する担体の異なる Run1 および Run2 に分けて実施した。各 Run で使用した担体については 7.2.2 項に記述する。3 台の MBR は異なる担体を設置および投入した。1 台の MBR は担体を投入せずに運転した(Control-MBR)。本研究では公称孔径 0.1 μm の PVDF 製平膜(Toray, Japan)を使用し、膜モジュール下部からの常時曝気(流量: 17 L/min)を伴う間欠運転を実施した(12 分間ろ過、1 分間休止)。本実験で使用した散気管は、長さが 10 cm のエアーストーン(Kotobuki, Japan)であり、Run1 では膜モジュール下部に 4 つ設置した。Run2 では担体の流路を確保するために、散気管の設置数を 2 つに減らした。また、膜透過水フラックスは 18.8 LMH に設定した。水理学的滞留時間(HRT)は 7.2 時間に設定した。また、Control-MBR の汚泥滞留時間(SRT)が 20 日となるように、すべての MBR から 380 ml の汚泥を毎日引抜くこととした。運転期間を通して反応槽内の水温は恒温装置を用いて 20 $^{\circ}\text{C}$ とした。膜間差圧(TMP)が上昇し運転の継続が困難になった時点(TMP > 40 kPa)で MBR から膜を取り出し、膜の物理洗浄(加圧水の吹き付けおよびスポンジによる膜表面のふき取り)を実施した。実験の開始に先立ち、札幌市創成川水再生プラザにて実都市下水を処理するパイロットスケール

MBR の汚泥を種汚泥とし、ペプトンおよび肉抽出液を主成分とする人工下水による馴致を約 40 日間実施した。人工下水の組成については、OECD ガイドライン[26]に従った。

表 7-1 に本研究で使用した人工下水の組成を示す。

Run2 では運転終了時に閉塞膜から不可逆的膜ファリング[27]の原因物質の抽出を行った。閉塞膜表面の付着物をスポンジによる物理洗浄で除去した後に、NaOH 溶液(pH = 12)[28,29]に閉塞膜を 30 °C で 24 時間浸漬させ、膜閉塞成分を抽出した。

表 7-1 人工下水の組成

	濃度 (mg/L)
ペプトン	160
肉抽出液	110
尿素	30
K ₂ HPO ₄	28
NaCl	7
CaCl ₂ ・2H ₂ O	4
Mg ₂ SO ₄ ・7H ₂ O	2
NaHCO ₃	238

7.2.2 実験に使用した担体の特性

Run1 ではひも状担体(MBR-A)、粒状担体(MBR-B)、スポンジ担体(MBR-C)を設置および投入した。ひも状担体(RingLace, Kajima Corp., Japan)は PVDF 製の糸を輪状に織り込んだもので輪の直径は 25 mm である。本研究では 10–15 cm の長さのひも状担体を MBR 槽内に垂直に設置した。製造企業の推奨設置長さ(0.33 m/L)に従い、2.5 m 分のひも状担体を MBR-A に設置した。粒状担体(BCN, Nisshinbo Chemical, Japan)は円柱形であり、3 章で使用した担体と同一である。粒状担体はポリエチレングリコールを主成分とし、長さおよび直径は約 4 mm、比重は約 1.01 である。スポンジ担体(Achilles, Japan)はポリエーテル系ウレタンフォーム(密度: 35 kg/m³, セル数: 46 個/25 mm)で 1 辺が 4 mm の立方体形状のものを用了。粒状担体およびスポンジ担体については、反応槽体積の 5%に相当する量の担体を MBR 槽内へ投入した。なお、本研究で使用したひも状担体およびスポンジ担体は Integrated fixed film activated sludge (IFAS)および Moving bed bioreactor (MBBR)で用いられている[11]。ひも状担体は反応槽内に固定し、担体と膜が接触しないようにした。一方、

粒状担体およびスポンジ担体は反応槽内を流動させ、担体と膜表面を接触させた。MBR-C では馴致開始 1 ヶ月後に、スポンジ担体の流動性が低下し MBR 底部に滞留したため、反応槽底部に間欠曝気装置(5 L/min で 20 秒間曝気、5 分間休止)を別途取り付け、スポンジ担体の滞留を抑制した。

Run2 では異なる物理特性のスポンジ担体を比較した。小型スポンジ担体(MBR-D)、低密度スポンジ担体(MBR-E)、高密度スポンジ担体(MBR-F)を投入した。1 台の MBR は担体を投入せずに運転した(Control-MBR)。本研究で使用了スポンジ担体はポリエーテル系ウレタンフォーム製の立方体形状となっている。表 7-2 および図 7-1 に実験で使用了スポンジ担体の諸元および写真を示す。また、小型スポンジ担体は Run1 の MBR-C で使用了スポンジ担体と同一である。なお、Run2 を開始するにあたり各スポンジ担体の流動様式を 6 章における画像解析方法を用いて、解析を行った。各スポンジ担体は粒状担体に比べて流動速度の絶対値がやや大きくなったが、粒状担体と同程度の流動性を持つことを確認した。

表 7-2 スポンジ担体の諸元

	密度 (kg/m ³)	大きさ (mm)	セル数 (cells per 25 mm)
小型スポンジ	35	4 × 4 × 4	46
低密度スポンジ	30	7 × 7 × 7	15
高密度スポンジ	55	7 × 7 × 7	uncountable

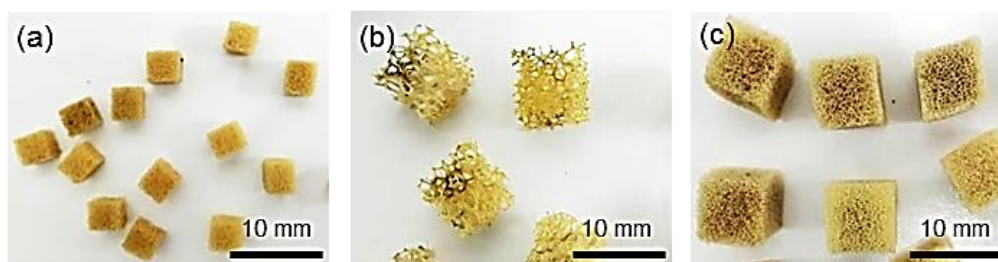


図 7-1 実験で使用了スポンジ担体の写真

(a) 小型スポンジ担体, (b) 低密度スポンジ担体, (c) 高密度スポンジ担体

7.2.3 汚泥ろ過性の評価

各 MBR の汚泥ろ過性を加圧型回分ろ過装置(Advantec Tokyo, Japan)を用いて評価した。回分ろ過試験に用いた膜は、ベンチスケール MBR に装着した膜と同じ膜である(有効膜面積: 37.4 cm²)。攪拌子付きろ過セル内に 300 ml の MBR 汚泥懸濁液を満たし、加圧した N₂ ガスによって一定圧力下でろ過を行った。ろ過圧力を 10 kPa、攪拌速度を 300 rpm に設定した。全ての回分ろ過試験は未使用の新膜を用いて実施した。膜透過水流量を電子天秤により測定し、Darcy の式を用いて膜ろ過抵抗値 R (m⁻¹)を算出した。

$$R = \Delta P / (J \cdot \mu)$$

ここで、 J は膜透過水フラックス(m³/m²/s)、 ΔP は膜間差圧(Pa)、 μ は膜透過水の粘性係数(Pa · s)である。一連の回分ろ過試験ではろ過を 20 分継続したところで、膜透過水フラックスが安定する傾向があった。引き続いて 5 分間のろ過を行い、5 分間の平均膜透過水フラックスから膜ろ過抵抗値を算出した。回分ろ過試験において MBR 汚泥懸濁液が発生させた膜ろ過抵抗値に基づき、MBR 汚泥ろ過性を評価した。

7.2.4 分析方法

全有機炭素(TOC)および全窒素(T-N)濃度は TOC/TN 計(TOC-VCSH, Shimadzu, Japan)を用いて測定を行った。汚泥懸濁液中の溶解性有機炭素(DOC)、溶解性糖、溶解性タンパク質成分の分析は、遠心分離後(4000 rpm, 5 分)の汚泥上澄みを 0.45 μm の混合セルロースエステル(MCE)膜(Advantec Tokyo, Japan)でろ過し、得られたろ液を分析に使用した。細胞外高分子物質(EPS)は Frølund ら[30]の方法に従って、陽イオン交換樹脂(Dowex Marathon, SIGMA-ALDRICH, USA)を用いて汚泥から抽出した。糖およびタンパク質の分析にはフェノール硫酸法[31]、Lowry 法[32]を用いた。標準試料にはグルコース、牛血清アルブミン(BSA)をそれぞれ使用した。溶解性糖成分中の単糖は Croué ら[33]の方法に従って Dionex DX 500 HPLC を用いて分析した。ひも状担体に付着した微生物量の測定は Yang らの方法に従った[34]。粒状担体およびスポンジ担体に付着した微生物量の測定については Khan らの方法に従った[10]。

実験終了時に閉塞膜エレメントを MBR から取り出し、閉塞膜の分析を行った。MBR 汚泥ろ過性の評価に使用した回分ろ過装置と同様の装置(有効膜面積: 3.5 cm²)を用いて、閉塞膜のろ過抵抗値を測定した。ろ過圧力を 30 kPa に設定し、蒸留水のデッドエンドろ過によって閉塞膜のろ過抵抗値を算出した。Run1 では閉塞膜を段階的に洗浄した膜についても回分ろ過試験を実施し、効果の高い洗浄に関する検討も行った。また、走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて閉塞膜表面を観察した。SEM は S-4000 (Hitachi, Japan)を使用した。1 cm²

の閉塞膜を切り出し、膜表面付着物の構造を固定するためにグルタルアルデヒドおよびオスミウム溶液処理を施した後、エタノール脱水を行った。脱水後、乾燥時の膜表面の変形を防ぐために、臨界点乾燥装置を(HCP-1, Hitachi, Japan)を用いて臨界点乾燥を行った。臨界点乾燥の中間液には酢酸イソアミルを使用した。臨界点乾燥後の試料は、SEM 観察中における静電気の影響を取り除くために白金コーティング処理を施した。

7.3 結果と考察

7.3.1 Run1

7.3.1.1 MBR の処理水質

各 MBR の MLSS および担体付着微生物の濃度を表 7-3 に示す。Control-MBR の MLSS 濃度は他の MBR に比べて低い値となった。ひも状担体の付着微生物量が最も多くなった一方で、粒状担体の付着微生物量はわずかであった。粒状担体とスポンジ担体は同量(反応槽体積の 5%分)を投入したにも関わらず、付着微生物量に大きな違いが生じた。

表 7-3 各 MBR における MLSS および付着微生物濃度

(mg/L)	Control-MBR	MBR-A	MBR-B	MBR-C
MLSS	4000 ± 760	5100 ± 860	5400 ± 460	4800 ± 170
付着微生物		780	50	240

表 7-4 に人工下水および各 MBR 処理水中の平均 TOC および T-N 濃度を示す。すべての MBR で TOC 除去率は 94%以上となったが、Control-MBR に比べて担体を投入した MBR で TOC 除去率が向上した。スポンジ担体を投入した MBR-C で最も TOC 除去率が高くなった。T-N 除去率については MBR-A および MBR-C が他の 2 つの MBR に比べて高い値となった。本研究では脱窒のための無酸素槽の設置や間欠曝気など組み入れておらず、4 台の MBR は好気条件で連続運転を行った。ひも状担体およびスポンジ担体は粒状担体に比べて、微生物を多く保持していた(表 7-3)。Liu ら[9]と Khan ら[10]は担体に付着する生物膜の深部で無酸素領域が形成されることで脱窒反応が促されることを報告している。MBR-A および MBR-C においても担体に付着した生物膜内部で無酸素領域が形成されたことで、T-N 除去率が高くなったと考えられる。

表 7-4 Run1 における流入原水および各 MBR 処理水中の TOC、T-N 濃度

	Control-MBR	MBR-A	MBR-B	MBR-C
流入水中 TOC (mg/L)	160.4 ± 19.9	160.4 ± 19.9	160.4 ± 19.9	160.4 ± 19.9
処理水中 TOC (mg/L)	8.5 ± 3.6	7.3 ± 2.1	7.5 ± 1.7	6.1 ± 1.0
TOC 除去率	94.7%	95.4%	95.3%	96.2%
流入水中 T-N (mg/L)	71.1 ± 9.1	71.1 ± 9.1	71.1 ± 9.1	71.1 ± 9.1
処理水中 T-N (mg/L)	66.7 ± 8.1	58.6 ± 10.5	67.3 ± 3.7	57.1 ± 6.1
T-N 除去率	6.2%	17.5%	5.3%	19.7%

7.3.1.2 異なる担体の使用が MBR の汚泥性状に与える影響

各 MBR 汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度の平均値を表 7-5 に示す。MBR 反応槽内の溶解性有機物は主に生物代謝産物(SMP)で構成される[36]。実験を開始する前に十分な馴致期間を設けたにもかかわらず、Control-MBR において汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度が運転開始 20 日以降に急激に増加した。一方で担体を投入した MBR では溶解性有機物濃度は安定していた。MBR と担体を組み合わせて使用することで、汚泥性状が安定することが示唆された。担体に生物膜が多く付着していた MBR-A および MBR-C では汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度(特に溶解性糖濃度)が他の 2 台の MBR に比べて低くなっていた。無酸素条件下における SMP の産生は好気条件下に比べて低下することが知られている[36]。ひも状担体およびスポンジ担体に付着した生物膜内部が無酸素状態となっていたことが、溶解性有機物の濃度低下に寄与した可能性がある。また Liu ら[9]は担体に形成された生物膜に汚泥懸濁液中の溶解性有機物が吸着されることを報告している。このことも MBR-A および MBR-C の溶解性有機物濃度の低下に寄与したことが示唆された。一方で粒状担体を投入した MBR-B では溶解性有機物濃度が他の担体を投入した MBR に比べて高い値となった。表 7-3 に示すように MBR-B では担体への付着微生物量が最も少なくなっていた。したがって、SMP 産生量の減少および SMP 成分の生物膜への吸着がわずかであったと考えられる。また、Huang ら[37]は粒状担体の投入によって、汚泥粒子が壊され細胞外高分子物質(EPS)の一部が汚泥液中に放出されることを報告している。このことも MBR-B における溶解性有機物濃度の上昇に寄与した可能性がある。

表 7-5 Run1 における各 MBR 汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度

	Control-MBR		MBR-A	MBR-B	MBR-C
	運転開始	運転開始			
	20 日以前	20 日以降			
DOC (mg/L)	20.6 ± 7.6	37.2 ± 6.5	17.5 ± 2.5	22.3 ± 3.6	11.9 ± 2.5
糖 (mg/L)	64.5 ± 14.2	72.7 ± 12.5	48.9 ± 8.1	67.4 ± 6.7	37.7 ± 5.8
タンパク質 (mg/L)	14.5 ± 2.0	31.8 ± 7.3	14.7 ± 2.2	18.9 ± 2.6	11.8 ± 2.2
C/P	4.5	2.3	3.3	3.6	3.2

7.3.1.3 Run1 における MBR の膜ファウリング

図 7-2 に各 MBR における TMP の経時変化を示す。図中の矢印は物理洗浄(スポンジによるふき取り)の実施時期を示している。Control-MBR では TMP の急激な上昇が観察された(図 7-2(a))。物理洗浄によって TMP は大きく低下したが、急激な TMP の上昇は繰り返し観察された。また、Control-MBR では運転開始 20 日以降に TMP の上昇速度が加速した。

7.3.1.2 項で述べたように、Control-MBR の汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度は運転開始 20 日以降に急激に増加した(表 7-5)。汚泥懸濁液中の溶解性糖およびタンパク質は主な膜閉塞成分とされている[38,39]。運転開始 20 日以降の溶解性有機物濃度の増加が Control-MBR における深刻な膜ファウリングの発生を引き起こしたことが示唆された。MBR-A は Control-MBR 以上に TMP が急激に上昇した(図 7-2(b))。MBR-A は運転を継続するために頻繁な物理洗浄が必要であった。物理洗浄は Control-MBR および MBR-A において、効果的であった。この結果は Control-MBR および MBR-A で発生する膜ファウリングが主に可逆的膜ファウリングであったことを示している。一方で、MBR-B および MBR-C では TMP の上昇はわずかであり(図 7-2(c), (d))、一度も物理洗浄を実施することなく 30 日間の連続運転が可能であった。MBR-C ではスポンジ担体の流動性を維持するために補助曝気を MBR 底部に設置したため、曝気量がわずかに増加した。なお、MBR-C における正味曝気量は 17.3 L/min (2%分の増加)である。30 日間の MBR の連続運転を通して、膜ファウリングは粒状担体およびスポンジ担体の使用によって効果的に抑制できることが示された。

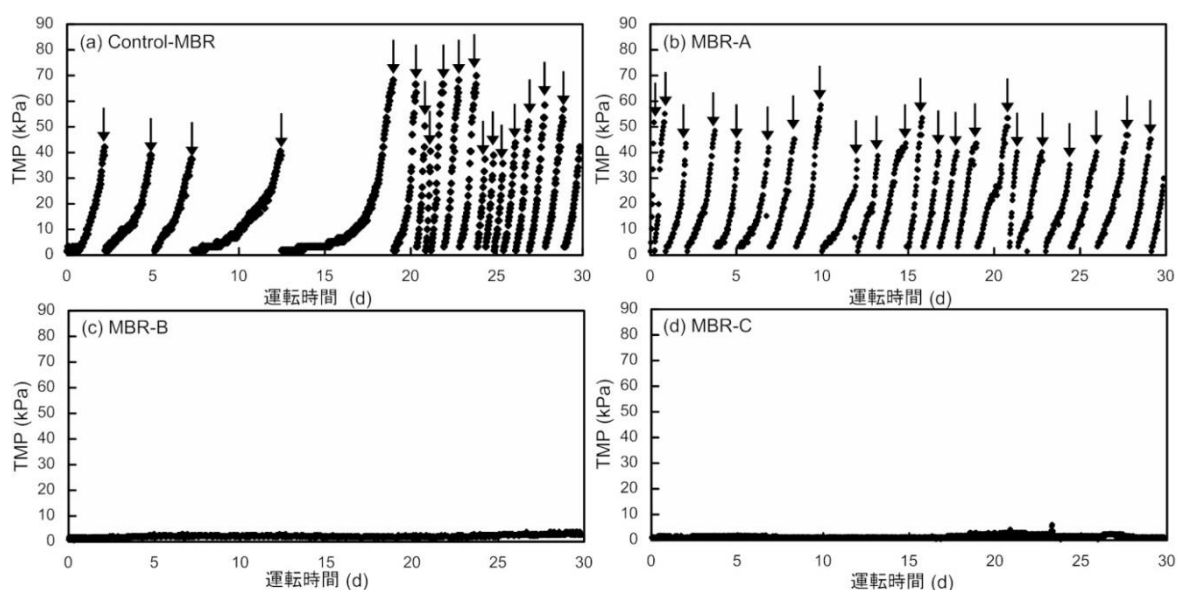


図 7-2 Run1 における各 MBR の TMP 経時変化

運転終了時に SEM を用いて閉塞膜表面の観察を行った(図 7-3)。Control-MBR および MBR-A は膜表面が完全にケーキ層で覆われていた(図 7-3(b), (c))。一方で MBR-B および MBR-C の膜表面は新膜に近い状態となっていた(図 7-3(d), (e))。Wang ら[40]は、曝気だけでは膜表面のゲル層形成を防ぐことができないことを報告している。本研究では、MBR 槽内を流動する担体は膜表面のケーキ/ゲル層を効果的に取り除くことが示された。

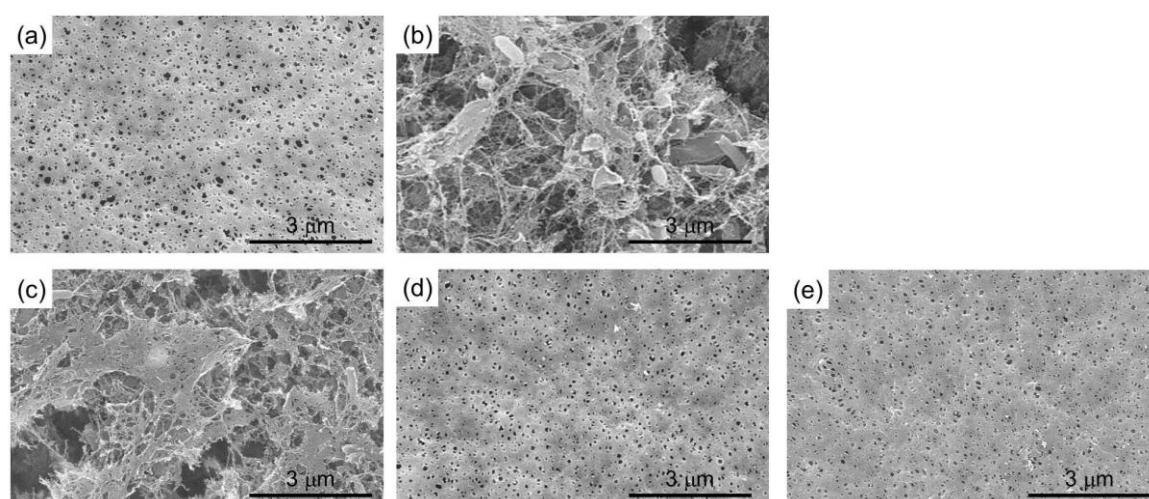


図 7-3 Run1 運転終了時における閉塞膜表面の SEM 画像

(a) 新膜, (b) Control-MBR, (c) MBR-A, (d) MBR-B, (e) MBR-C

7.3.1.4 Run1 における各 MBR の汚泥ろ過性

図 7-4 に回分ろ過試験によって算出した、各 MBR における汚泥懸濁液の膜ろ過抵抗値を示す。膜ろ過抵抗値の測定は 30 日間の連続運転終了時に実施した。粒状担体を投入した MBR-B では汚泥のろ過性が他の MBR に比べて悪化していた。一方でスポンジ担体を投入した MBR-C の汚泥ろ過性は Control-MBR と同程度となった。運転開始 20 日以降における Control-MBR の汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度は MBR-B よりも高い値となった。しかしながら、MBR-B における汚泥の膜ろ過抵抗値は Control-MBR よりも高い値となった。これは MBR-B で産生される SMP の特性が汚泥ろ過性を悪化させた可能性を示している。各 MBR から採取された SMP 成分中の単糖組成を図 7-5 に示す。各 MBR の SMP 中の単糖はそれぞれ異なる組成となった。特に MBR-B から採取した SMP 成分中のフコースの割合が他の MBR に比べて高くなり、ガラクトースの割合が低下した。この結果は粒状担体を使用することで異なる性質の SMP が産生されたことを示している。木村ら[41]は MBR における膜ファウリングの発生は SMP の特性に影響されることを報告している。MBR と組み合わせて使用する担体の種類により、産生される SMP の性質が変化し、汚泥ろ過性に影響をおよぼすことが示唆された。汚泥懸濁液中 SMP の性質と汚泥ろ過性の関係についてはさらなる検討が必要である。しかし、上述したように粒状担体を投入した MBR-B では TMP の上昇が効果的に抑制された(図 7-2(C))。4 章における検討結果と同様に、汚泥ろ過性が極端に悪化しない限り、粒状担体の膜表面洗浄効果によって TMP の上昇を抑制できることが示された。

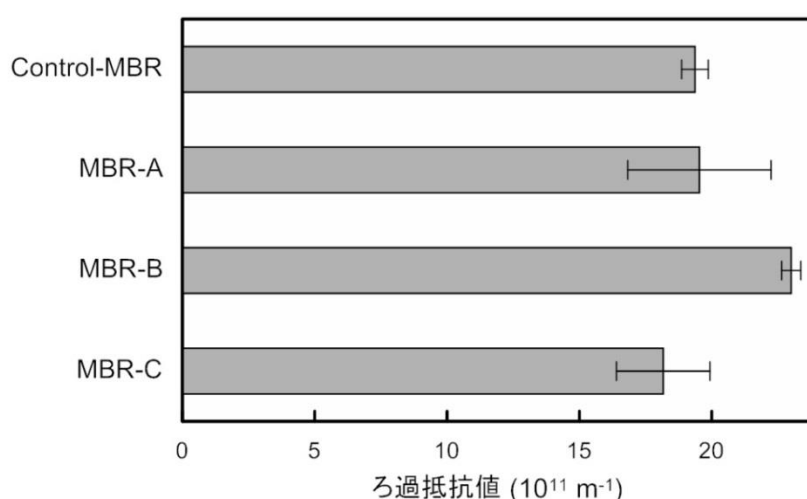
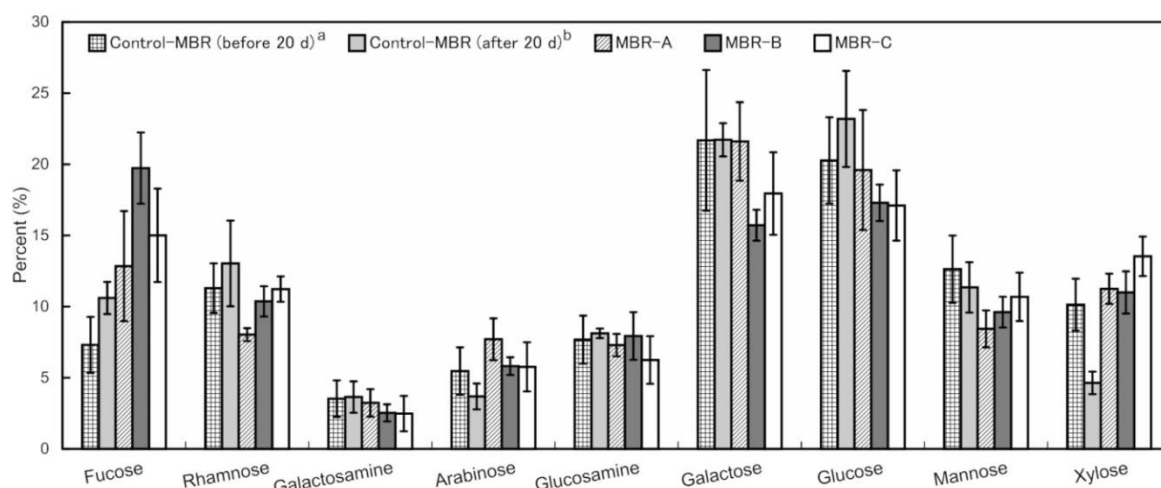


図 7-4 各 MBR における汚泥ろ過性 (n = 3)

図 7-5 SMP 成分中における単糖組成 (n = 9, ^a n = 6; ^b n = 3)

7.3.1.5 Run1 運転終了時の閉塞膜分析

図 7-6 に運転終了時に各 MBR から取り出した閉塞膜のろ過抵抗値を示す。アルカリ洗浄では物理洗浄後の閉塞膜を pH12 の NaOH 溶液で浸漬洗浄(24 時間, 30 °C)した。図 7-6 における物理洗浄後の膜ろ過抵抗値と新膜のろ過抵抗値との差が不可逆的膜ファウリングの発生度を示す[27]。いずれの MBR においても不可逆的膜ファウリングが進行していた。粒状担体を投入した MBR-B で最も不可逆的膜ファウリングの発生が顕著であった。3 章において粒状担体を浸漬型 MBR に投入することで不可逆的膜ファウリングの進行が促進されることを確認している。不可逆的膜ファウリングが進行する原因として、膜表面のケーキ/ゲル層が担体によって除去され、膜閉塞成分が膜表面に付着しやすくなることが考えられる。スポンジ担体を投入した MBR-C においても膜表面へのケーキ/ゲル層の蓄積が抑制されたため、MBR-B と同様に膜閉塞成分が膜表面に付着しやすくなり、不可逆的膜ファウリングの進行が予想された。しかし、MBR-C における不可逆的膜ファウリングの発生度は Control-MBR と同程度であった。7.3.1.2 項で述べたように、MBR-C は MBR-B に比べての汚泥懸濁液中の SMP が低濃度であった。このことが MBR-C における不可逆的膜ファウリングの進行が MBR-B に比べて抑制された原因の 1 つであると考えられる。しかしながら、従来方法(TOC など)で測定される MBR 槽内の SMP 濃度が直接的に不可逆的膜ファウリングの発生と関連するわけではないことが指摘されている[41]。図 7-5 で示すように、各 MBR で産生された SMP 成分は性質が大きく異なるものであった可能性が高い。MBR-C では他の MBR に比べて不可逆的膜ファウリングを引き起こしにくい SMP が産生され、膜ファウリングの発生が抑制されたことも考えられる。ひも状担体を設置した MBR-A では、膜表面がケーキ/ゲル層で覆われていたにも関わらず、MBR-B の次に不可逆

的膜ファウリングが進行していた。また、アルカリ洗浄による不可逆的膜ファウリングの回復率は、MBR-A が最も低くなった。MBR-A における不可逆的膜ファウリングの原因物質は、他の MBR の膜閉塞成分よりも強固に膜表面に付着していたようである。MBR と組み合わせて使用する担体の種類によって産生される SMP 成分が異なることで、不可逆的膜ファウリングの特性が大きく変化することが示された。各担体を用いた場合に産生される SMP 成分と不可逆的膜ファウリングの発生メカニズムについてはより詳細な検討が必要である。

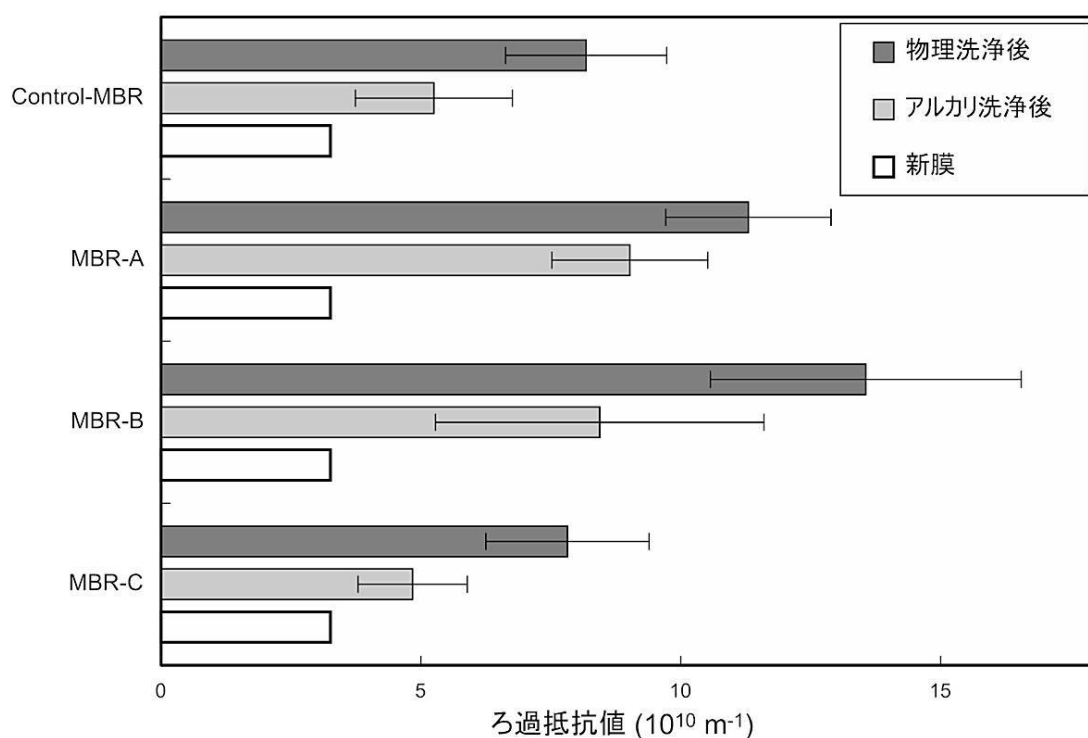


図 7-6 Run1 運転終了時における閉塞膜のろ過抵抗値

7.3.1.6 Run1 まとめ

Run1 では異なる担体(ひも状担体・粒状担体・スポンジ担体)の使用が MBR 汚泥性状および膜ファウリング特性に与える影響について比較した。ひも状担体およびスポンジ担体を MBR と組み合わせて使用することで、窒素除去性が向上した。しかし、ひも状担体を設置した MBR では頻繁に膜ファウリングが発生した。また、粒状担体を投入した MBR では汚泥ろ過性が悪化し、不可逆的膜ファウリングの進行が加速した。MBR 槽内で産生される SMP 成分は使用する担体の種類によって異なり、SMP 成分の違いが汚泥ろ過性や不可逆的膜ファウリングの進行に影響を与える可能性が示された。

7.3.2 Run2

7.3.2.1 スポンジ担体の投入が MBR の処理性に与える影響

各 MBR の MLSS 濃度およびスポンジ担体に付着した微生物濃度を表 7-6 に示す。スポンジ担体に付着した微生物量は馴致終了時と運転終了時に測定した濃度の平均とした。各スポンジ担体に付着した微生物量は同程度となった。MBR-E は MLSS 濃度が最も低い値となった。MBR-E では貧毛類が担体に付着する主なバイオマスとして、スポンジ担体(低密度スポンジ担体)内部に多く観察された。低密度スポンジ担体は他のスポンジ担体に比べて大きな空隙を持つため(表 7-2 および図 7-1(b))、スポンジ内部が貧毛類の生息しやすい環境であったと考えられる。貧毛類は汚泥粒子を捕食するため、貧毛類が増殖することで MBR の汚泥発生量が減少することが報告されている[42,43]。低密度スポンジ担体内部で増殖した貧毛類によって MBR-E の MLSS 濃度が低下したことが示唆された。

表 7-6 Run2 における各 MBR の MLSS および付着微生物濃度

	Control-MBR	MBR-D	MBR-E	MBR-F
MLSS (mg/L)	3900 ± 470	3400 ± 410	2900 ± 300	3100 ± 310
付着微生物 (mg/L)		150	170	150

表 7-7 に Run2 における流入原水および処理水中の TOC、T-N 濃度を示す。4 台の MBR の処理水中の TOC 濃度は同程度となった。処理水中の T-N 濃度については Control-MBR に比べてスポンジ担体を投入した MBR で低下した。スポンジ担体を MBR へ投入することで、担体に付着した生物膜内部に無酸素領域が形成され、脱窒反応が促進されることが報告されている[8,10,11]。本研究でもスポンジ担体の投入による窒素除去効果を確認した。

表 7-7 Run2 における各 MBR の MLSS および付着微生物濃度

	流入原水	Control-MBR	MBR-D	MBR-E	MBR-F
TOC (mg/L)	96.5 ± 11.1	4.6 ± 0.4	4.8 ± 0.5	4.9 ± 0.5	4.5 ± 0.5
T-N (mg/L)	48.5 ± 2.6	47.2 ± 3.8	43.5 ± 4.9	41.2 ± 5.6	41.2 ± 7.3

7.3.2.2 Run2 における膜ファウリングの挙動

Run2 における TMP の経時変化を図 7-7 に示す。図中の矢印は物理洗浄(スポンジによるふき取り)の実施時期を示している。破線の矢印は装置トラブルによる運転停止時期を示している。Control-MBR では運転開始 7 日で TMP が急激に増加した(図 7-7(a))。物理洗浄の実施によって TMP は大きく低下したが、運転期間を通して TMP の急激な上昇が繰り返し観察された。MBR-E についても急激な TMP の上昇が観察され(図 7-7(c))、運転開始 10 日以降に TMP 上昇速度が増加した。物理洗浄で TMP はある程度低下したものの、運転期間を通して頻繁な物理洗浄を実施した。これは MBR-E では不可逆的膜ファウリングが進行したことで、物理洗浄の洗浄効果が低下したことを示唆している。一方、MBR-D および MBR-F では装置トラブルを除き、安定した運転を継続できた。

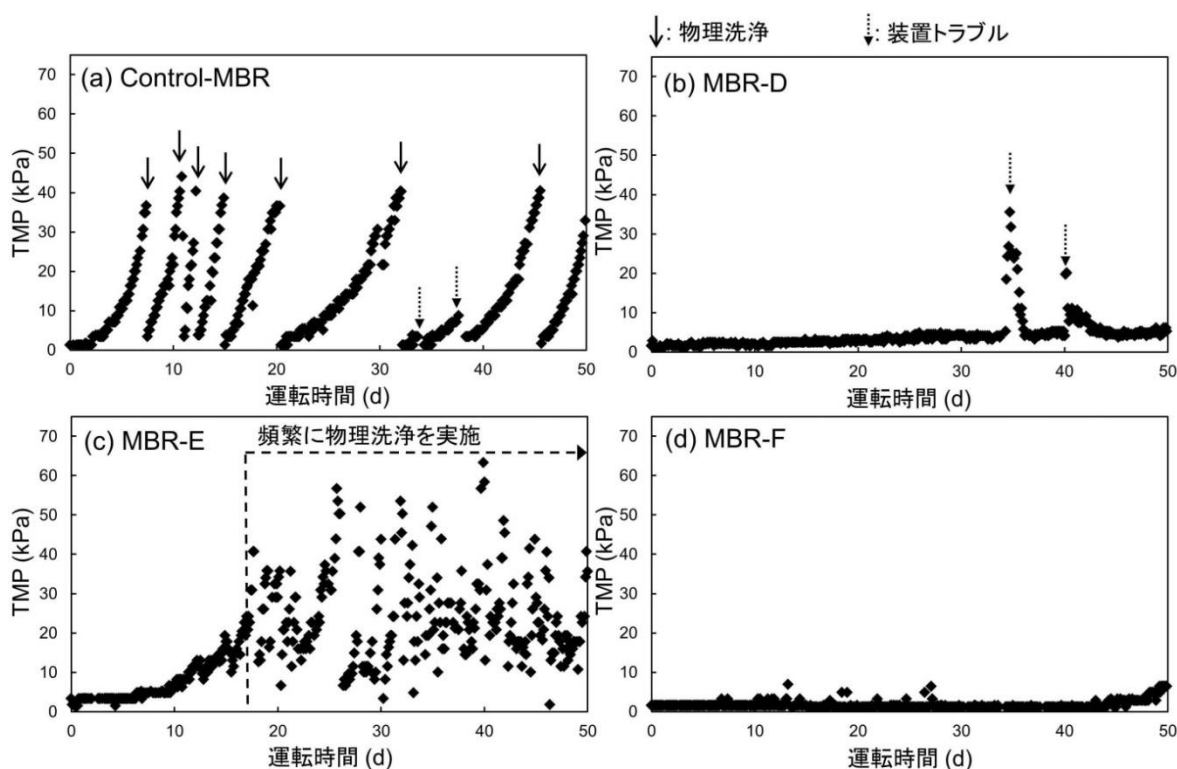


図 7-7 Run2 における各 MBR の TMP 経時変化

Run2 終了時における膜表面の SEM 画像を図 7-8 に示す。Control-MBR および MBR-E は膜表面が完全にケーキ/ゲル層で覆われていた(図 7-8(b),(d))。一方で、MBR-D および MBR-F ではケーキ/ゲル層は観察されなかった。MBR-D および MBR-F ではスポンジ担体による膜表面の洗浄によって可逆的膜ファウリングの発生が抑制されたことが示された。しかしながら、MBR-E では低密度スポンジ担体を投入したにもかかわらず、ケーキ/ゲル

層を膜表面から除去することができなかった。これは低密度スポンジ担体では膜表面蓄積物を十分に除去できないことを示している。低密度スポンジ担体は他の担体に比べてスポンジの空隙が大きく(図 7-1(b))、スポンジ担体と接触する膜表面積が小さくなることで、洗浄効果が低下したと考えられる。また、Control-MBR および MBR-E の膜表面蓄積物の構造は異なっていた(図 7-8 (b),(d))。これは Control-MBR と MBR-E の汚泥性状が異なることを示している。Wong ら[42]は MBR 槽内で貧毛類が増加した場合に汚泥ろ過性が悪化し、膜ファウリングの進行を早めることを報告している(原因については 7.3.2.3 項で詳しく述べる)。MBR-D では他のスポンジ担体を投入した MBR に比べて、膜ファウリングを引き起こしやすい汚泥性状であったことが示唆された。

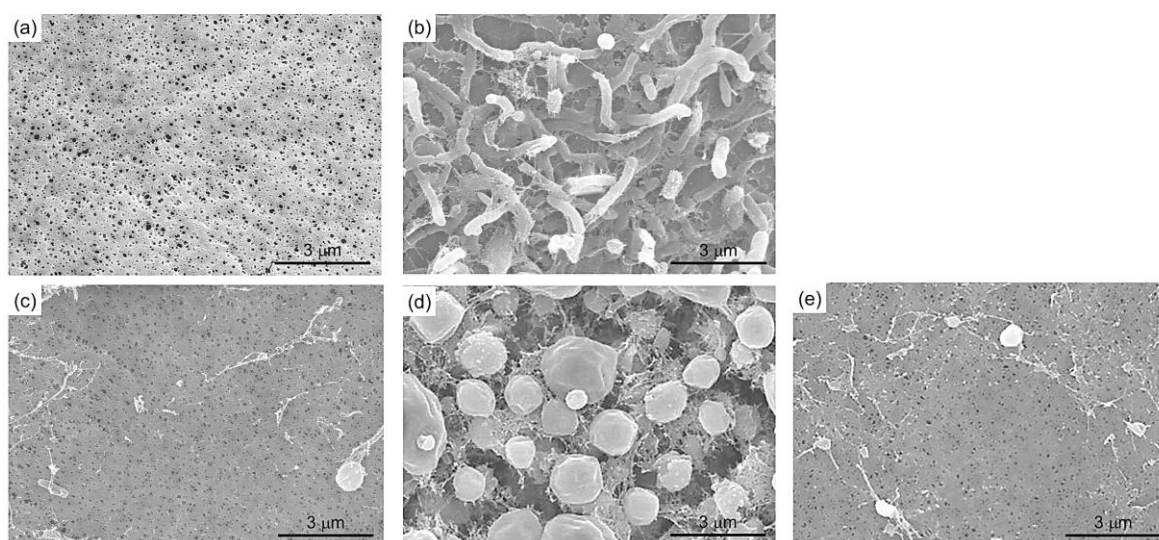


図 7-8 Run2 終了時における閉塞膜表面の SEM 画像

(a) 新膜, (b) Control-MBR, (c) MBR-D, (d) MBR-E, (e) MBR-F

7.3.2.3 Run2 における汚泥性状

Run2 における各 MBR の汚泥ろ過性を図 7-9 に示す。MBR-D および MBR-E において、汚泥ろ過性が Control-MBR に比べて悪化していた。一方で、MBR-F の汚泥ろ過性は Control-MBR と同程度であった。Run2 における各 MBR 槽内の汚泥懸濁液中の溶解性有機物(SMP成分とみなす[35])濃度および汚泥EPS濃度を表 7-8、表 7-9 にそれぞれ示す。MBR-E における溶解性糖濃度が他の MBR に比べて著しく高くなった。溶解性糖成分は主な膜ファウリング成分として報告されている[38,39]。また、Navaratna ら[44]は MBR 槽内で貧毛類が増殖することで、汚泥懸濁液中の溶解性糖濃度が増加し、汚泥ろ過性を悪化させることを報告している。本研究では、MBR-E における SMP 成分の C/P 比が他の MBR に比べ

て高くなった。これは MBR-E で発生した貧毛類によって汚泥中の溶解性糖濃度が増加したことを示唆している。一方で、MBR-D で使用したスポンジ担体は MBR-C で使用したスポンジ担体と同一であったにも関わらず、汚泥中の SMP 濃度は Control-MBR に比べて高くなり、Run1 と矛盾する結果となった。また、MBR-D に投入した小型スポンジ担体には貧毛類の付着は観察されなかった。Huang ら[37]は、MBR 槽内への担体の投入によって汚泥粒子が壊され、EPS 成分の一部が汚泥液中に放出されることで、汚泥中の溶解性有機物濃度が上昇することを報告している。MBR-D における EPS 濃度は他の MBR に比べて低いことから(表 7-9)、汚泥 EPS 成分が SMP 成分として汚泥液中に放出されていることが示唆された。Run2 では Run1 から散気管数を半分にしたことで、Run1 に比べて 1 つあたりの散気管から吹き込まれる曝気量が増加し、MBR 槽内が強く攪拌されていたと考えられる。また、小型スポンジ担体は他のスポンジ担体に比べて小さく、流動性が高いと考えられる。図 7-10 に活性汚泥の粘度を模擬したキサンタンガム溶液中(0.8 g/L)における小型スポンジ担体の流動速度分布を示す。なお、流動速度分布の解析は 6 章で実施したベンチスケール MBR 槽内における粒状担体の画像解析と同様の手法を用いた。散気管が 2 つの場合では 4 つの場合に比べて、小型スポンジ担体の流動速度分布が大きくなり、450 mm/s 以上で流動する小型スポンジ担体の割合が増加していた。散気管を 2 つに変更した Run2 では、Run1 に比べて MBR 槽内を流動する小型スポンジ担体によって生み出されるせん断力が大きくなり、汚泥粒子の破壊が Run1 に比べて促進された可能性がある。しかし、7.3.2.2 項で述べたように小型スポンジ担体を投入した MBR-D では膜ファウリングの発生は効果的に抑制されていた。この結果は、小型スポンジ担体による膜表面洗浄効果によって汚泥ろ過性が悪化した状態であっても、膜ファウリングの発生を抑制できることを示している。高密度スポンジ担体を投入した MBR-F では、汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度が Control-MBR よりも低下していた。Liu ら[9]は MBR 槽内の溶解性有機物が生物膜に吸着されることを報告している。また、MBR-F において汚泥 EPS 濃度は Control-MBR に比べてやや高くなった。これは、高密度スポンジ担体は小型スポンジ担体に比べて汚泥粒子を破壊せず、溶解性有機物の汚泥中への放出がわずかであったことを示唆している。

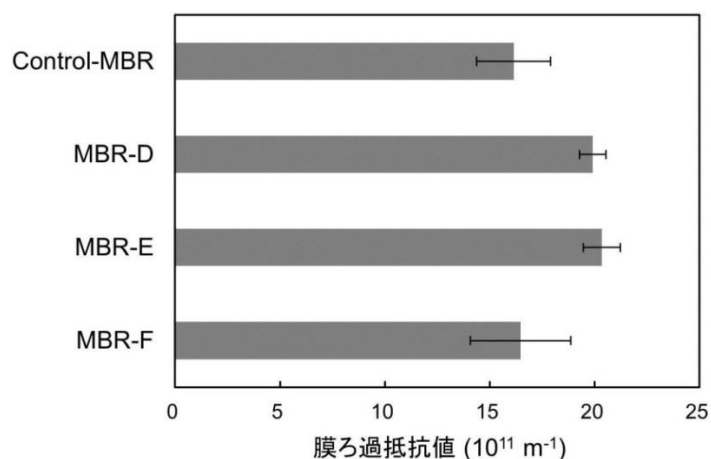


図 7-9 各 MBR における汚泥ろ過性 (n = 5)

表 7-8 Run2 における各 MBR 汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度

	Control-MBR	MBR-D	MBR-E	MBR-F
糖 (mg/L)	22.4 ± 6.1	27.5 ± 6.4	37.0 ± 16.4	17.6 ± 5.5
タンパク質 (mg/L)	7.2 ± 1.8	9.6 ± 2.5	9.8 ± 3.4	6.3 ± 1.3
C/P	3.1	2.9	3.8	2.8

表 7-9 Run2 における各 MBR の汚泥 EPS 濃度

	Control-MBR	MBR-D	MBR-E	MBR-F
糖 (mg/g-VSS)	5.8 ± 1.6	4.7 ± 1.5	5.9 ± 2.0	5.8 ± 2.0
タンパク質 (mg/g-VSS)	9.8 ± 2.2	6.8 ± 1.1	9.2 ± 3.5	11.4 ± 3.6
C/P	0.59	0.69	0.67	0.51

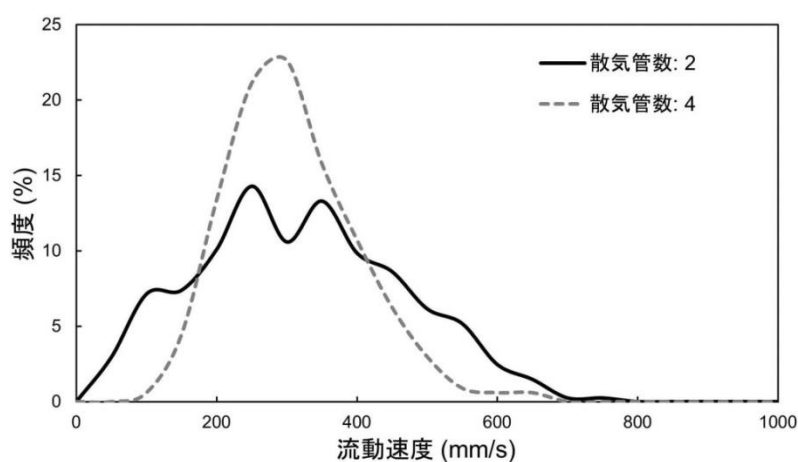


図 7-10 キサンタンガム溶液中(0.8 g/L)における小型スポンジ担体の流動速度分布
(散気管数 2: n = 406, 散気管数 4: n = 336)

7.3.2.4 Run2 における閉塞膜の分析

図 7-11 に Run2 終了時における物理洗浄後の閉塞膜ろ過抵抗値を示す。物理洗浄後の閉塞膜ろ過抵抗値と新膜ろ過抵抗値との差が、不可逆的膜ファウリングの発生度を示す[27]。スポンジ担体を投入した MBR では、Control-MBR に比べて不可逆的膜ファウリングが進行していた。Run1(7.3.1.5 項)における考察と同様に、Run2 においても不可逆的膜ファウリングが進行した原因として、膜表面のケーキ/ゲル層が担体によって除去され、膜閉塞成分が膜表面に付着しやすくなったことが考えられる。不可逆的膜ファウリングの進行は MBR-D および MBR-F で同程度となった。一方で、低密度スポンジ担体を投入した MBR-E では不可逆的膜ファウリングが大きく進行していた。MBR-E では膜表面がケーキ/ゲル層で覆われていたにもかかわらず、不可逆的膜ファウリングの進行が顕著となった。SMP 成分中の糖は主な不可逆的膜ファウリング成分であることが報告されている[45, 46]。MBR-E では汚泥懸濁液中の溶解性糖濃度が増加したことで、不可逆的膜ファウリングが進行したことが示唆された。

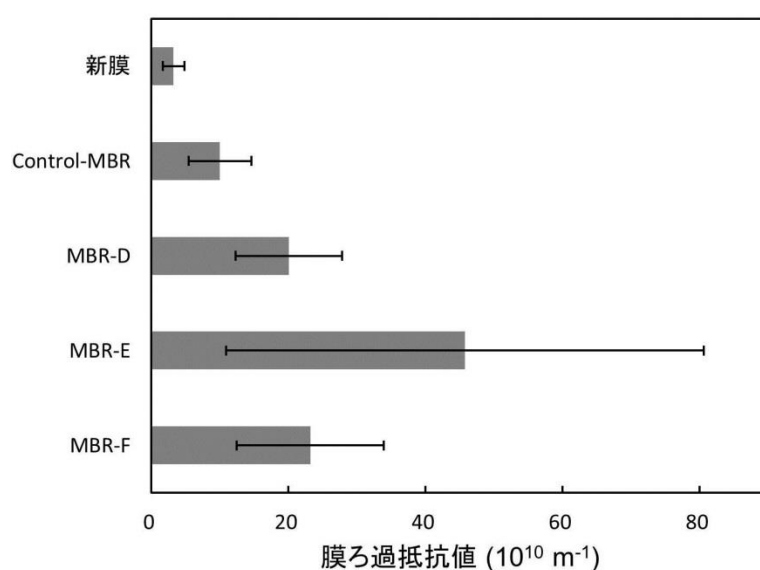


図 7-11 Run2 運転終了時における物理洗浄後の閉塞膜ろ過抵抗値

Run2 終了時の閉塞膜から抽出された膜閉塞成分の有機物量を表 7-10 に示す。閉塞膜から抽出される有機物量は不可逆的膜ファウリングが進行するにつれ、増加する傾向となり、Control-MBR からの抽出量が最も少なくなった。また、スポンジ担体を投入した MBR から抽出された膜閉塞成分の C/P 比は、Control-MBR に比べて高くなった。これはスポンジ

担体を投入した MBR では、Control-MBR よりも糖成分の不可逆的膜ファウリングへの寄与が増したことを示している。MBR-D および MBR-F では担体による膜表面洗浄効果によって、膜表面蓄積物が消失したことで膜閉塞成分が変化したと考えられる。MBR-E では低密度スポンジ担体内部で貧毛類が増殖したために、他の MBR と異なる SMP 成分が産生されていたことが示唆されている(7.3.2.3 項)。木村ら[41]は不可逆的膜ファウリングの発生度は MBR 槽内の SMP 成分に大きく影響されることを報告している。スポンジ担体を投入した MBR における不可逆的膜ファウリングの発生メカニズムを明らかにするためにも、SMP 成分についてより詳細な分析が必要である。

表 7-10 Run2 運転終了時の閉塞膜から抽出された有機物量

	Control-MBR	MBR-D	MBR-E	MBR-F
TOC (mg/m ²)	190	380	440	320
糖 (mg/m ²)	150	320	350	270
タンパク質 (mg/m ²)	330	530	680	530
C/P	0.46	0.60	0.52	0.51

7.3.2.5 Run2 まとめ

Run2 では MBR に投入するスポンジ担体の密度や大きさ、セル数などの物理特性が、MBR 汚泥性状および膜ファウリング特性に与える影響について検討した。スポンジ担体を投入することで、MBR の窒素除去性が向上することが示された。低密度スポンジ担体を投入した場合には、スポンジ担体内部に貧毛類が発生することで汚泥懸濁液中の溶解性糖濃度が増加し、汚泥ろ過性が悪化した。また、低密度スポンジ担体では膜表面付着物を除去できず、可逆的膜ファウリングを抑制できないことが示された。一方で、小型スポンジ担体および高密度スポンジ担体を投入した MBR では、可逆的膜ファウリングの発生が効果的に抑制された。高密度スポンジ担体を使用した MBR で汚泥懸濁液中の溶解性有機物濃度が最も低くなり、汚泥ろ過性の悪化は観察されなかった。不可逆的膜ファウリングの進行に汚泥 SMP 成分の特性が大きく寄与することが示唆された。

7.4 まとめ

本章では異なる形状・性質を持つ担体の使用が MBR 処理性および汚泥性状、膜ファウリング特性に与える影響について比較した。ひも状担体およびスポンジ担体を使用することで窒素除去性が向上するものの、ひも状担体を設置した場合には、膜ファウリングの発生を抑制できないことが示された。MBR 槽内を流動し、膜表面と接触する担体を使用することで、可逆的膜ファウリングを効果的に抑制できることが示された。また、スポンジ担体と比較して粒状担体を投入した MBR では汚泥ろ過性が悪化し、不可逆的膜ファウリングの進行が加速することが示された。高密度のスポンジ担体を MBR へ投入することで汚泥懸濁液中の SMP 濃度が低下し、汚泥ろ過性が他のスポンジ担体を使用する場合に比べて改善することが示された。

第7章 参考文献

- [1] S. Judd, *The MBR Book: Principles and Applications of Membrane Bioreactors for Water and Wastewater Treatment*, second ed., Elsevier, 2011.
- [2] J.A. Gil, L. Túa, A. Rueda, B. Montaña, M. Rodríguez, D. Prats, Monitoring and analysis of the energy cost of an MBR, *Desalination* 250 (2010) 997–1001.
- [3] M. Kraume, A. Drews, Membrane bioreactors in waste water treatment — status and trends, *Chem. Eng. Technol.* 33 (2010) 1251–1259.
- [4] B. Verrchaht, T. Maere, I. Nopens, C. Brepols, S. Judd, The cost of a large-scale hollow fibre MBR, *Water Res.* 44 (2010) 5274–5283.
- [5] B. Siembida, P. Cornel, S. Krause, B. Zimmermann, Effect of mechanical cleaning with granular material on the permeability of submerged membrane in the MBR process, *Water Res.* 44 (2010) 4037–4046.
- [6] S. Krause, B. Zimmermann, U. Meyer-Blumenroth, W. Lamparter, B. Siembida, P. Cornel, Enhanced membrane bioreactor process without chemical cleaning, *Water Sci. Technol.* 61 (2010) 2575–2580.
- [7] L. Deng, W. Guo, H.H. Ngo, J. Zhang, S. Liang, S. Xia, Z. Zhang, J. Li, A comparison study on membrane fouling in a sponge-submerged membrane and a conventional membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 165 (2014) 69–74.
- [8] W. Guo, H.-H. Ngo, F. Dharmawan, C. G. Palmer, Roles of polyurethane foam in aerobic moving and fixed bed reactors, *Bioresour. Technol.* 101 (2010) 1435–1439.
- [9] Q. Liu, X.C. Wang, Y. Liu, H. Yuan, Y. Du, Performance of a hybrid membrane bioreactor in municipal wastewater treatment, *Desalination* 258 (2010) 143–147.
- [10] S.J. Khan, S. Ilyas, S. Javid, C. Visvanathan, V. Jegatheesan, Performance of suspended and attached growth MBR systems in treating high strength synthetic wastewater, *Bioresour. Technol.* 102 (2011) 5331–5336.
- [11] I. Ivanovic, T.O. Leiknes, The biofilm membrane bioreactor (BF-MBR) — a review, *Desalin. Water Treat.* 37 (2012) 288–295.
- [12] L. Deng, W. Guo, H.H. Ngo, J. Zhang, S. Liang, S. Xia, Z. Zhang, J. Li, A comparison study on membrane fouling in a sponge-submerged membrane and a conventional membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 165 (2014) 69–74.
- [13] J. Lee, W.-Y. Ahn, C.-H. Lee, Comparison of the filtration characteristics between attached and suspended growth microorganisms in submerged membrane bioreactor, *Water Res.* 35 (2001) 2435–

2445.

- [14] L. Rodríguez-Hernández, A.L. Esteban-García, I. Tejero, Comparison between a fixed bed hybrid membrane bioreactor and a conventional membrane bioreactor for municipal wastewater treatment: A pilot-scale study, *Bioresour. Technol.* 152 (2014) 212–219.
- [15] F.Y. Sun, P. Li, J. Li, H.J. Li, Q.M. Ou, T.T. Sun, Z.J. Dong, Hybrid biofilm-membrane bioreactor (Bf-MBR) for minimization of bulk liquid-phase organic substances and its positive effect on membrane permeability, *Bioresour. Technol.* 198 (2015) 772–780.
- [16] K. Sombatsompopa, C. Visvanathan, R. Ben Aim, Evaluation of biofouling phenomenon in suspended and attached growth membrane bioreactor systems, *Desalination* 201 (2006) 138–149.
- [17] Y. Liu, Z. Liu, A. Zhang, Y. Chen, X. Wang, The role of EPS concentration on membrane fouling control: Comparison analysis of hybrid membrane bioreactor and conventional membrane bioreactor, *Desalination* 305 (2012) 38–43.
- [18] F. Yang, Y. Wang, A. Bick, J. Gilron, A. Brenner, L. Gillerman, M. Herzberg, G. Oron, Performance of different configurations of hybrid growth membrane bioreactor (HG-MBR) for treatment of mixed wastewater, *Desalination* 284 (2012) 261–268.
- [19] L. Jin, S.L. Ong, H.Y. Ng, Fouling control mechanism by suspended biofilm carriers addition in submerged ceramic membrane bioreactors, *J. Membr. Sci.* 427 (2013) 250–258.
- [20] T.O. Leiknes, H. Ødegaard, The development of a biofilm membrane bioreactor, *Desalination* 202 (2007) 135–143.
- [21] S.J. Khan, Z.-U. Rehman, C. Visvanathan, V. Jegatheesan, Influence of biofilm carriers on membrane fouling propensity in moving biofilm membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 113 (2012) 161–164.
- [22] B. Rafiei, F. Naeimpoor, T. Mohammadi, Bio-film and bio-entrapped hybrid membrane bioreactors in wastewater treatment: Comparison of membrane fouling and removal efficiency, *Desalination* 337 (2014) 16–22.
- [23] J. Hu, H. Ren, K. Xu, J. Geng, L. Ding, X. Yan, K. Li, Effect of carriers on sludge characteristics and mitigation of membrane fouling in attached-growth membrane bioreactor, *Bioresour. Technol.* 122 (2012) 35–41.
- [24] S. Yang, F. Yang, Z. Fu, R. Lei, Comparison between a moving bed membrane bioreactor and a conventional membrane bioreactor on membrane fouling, *Bioresour. Technol.* 100 (2009) 6655–6657.
- [25] D.D. Trapani, G.D. Bella, G. Mannina, M. Torregrossa, G. Viviani, Comparison between moving

- bed-membrane bioreactor (MB-MBR) and membrane bioreactor (MBR) systems: Influence of wastewater salinity variation, *Bioresour. Technol.* 162 (2014) 60–69.
- [26] OECD, OECD Guidelines for Testing Chemicals, Organization for Economic Cooperation and Development, Paris, Guideline 302A & 303A, 1993.
- [27] K. Kimura, Y. Hane, Y. Watanabe, G. Amy, N. Ohkuma, Irreversible membrane fouling during ultrafiltration of surface water, *Water Res.* 38 (2004) 3431–3441.
- [28] H. Lee, G. Amy, J. Cho, Y. Yoon, S.-H. Moon, I.S. Kim, Cleaning strategies for flux recovery of an ultrafiltration membrane fouled by natural organic matter, *Water Res.* 35 (2001) 3301–3308.
- [29] S. Hong, R. Aryal, S. Vigneswaran, M.A.H. Johir, J. Kandasamy, Influence of hydraulic retention time on the nature of foulant organics in a high rate membrane bioreactor, *Desalination* 287 (2012) 116–122.
- [30] B. Frølund, R. Palmgren, K. Keiding, P. Nielsen, Extraction of extracellular polymers from activated sludge using a cation ion exchange resin, *Water Res.* 30 (1996) 1749–1758.
- [31] M. Dubois, K.A. Gilles, J.K. Hamilton, P.A. Rebers, F. Smith, Colorimetric method for determination of sugars and related substances, *Anal. Chem.* 28 (1956) 350–356.
- [32] O.H. Lowry, N.J. Rosebrough, A.L. Farr, R.J. Randall, Protein measurement with the folin phenol reagent, *J. Biol. Chem.* 193 (1951) 265–275.
- [33] J.-P. Croué, M.F. Benedetti, D. Violleau, J.A. Leenheer, Characterization and copper binding of humic and nonhumic organic matter isolated from the South Platte River: evidence for the presence of nitrogenous binding site, *Environ. Sci. Technol.* 37 (2003) 328–336.
- [34] W. Yang, W. Syed, H. Zhou, Comparative study on membrane fouling between membrane-coupled moving bed biofilm reactor and conventional membrane bioreactor for municipal wastewater treatment, *Water Sci. Technol.* 69 (2014) 1021–1027.
- [35] S. Lyko, T. Wintgens, D. Al-Halbouni, S. Baumgarten, D. Tacke, K. Drensla, A. Janot, W. Dott, J. Pinnekamp, T. Melin, Long-term monitoring of a full-scale municipal membrane bioreactor – characterisation of foulants and operational performance, *J. Membr. Sci.* 317 (2008) 78–87.
- [36] D.J. Barker, D.C. Stuckey, A review of soluble microbial products (SMP) in wastewater treatment systems, *Water Res.* 33 (1999) 3063–3082.
- [37] X. Huang, C.-H. Wei, K.-C. Yu, Mechanism of membrane control by suspended carriers in a submerged membrane bioreactor, *J. Membr. Sci.* 309 (2008) 7–16.
- [38] A. Drews, Membrane fouling in membrane bioreactors – characterisation, contradictions, cause and cures, *J. Membr. Sci.* 363 (2010) 1–28.

- [39] J.R. Pan, Y.-C. Su, C. Huang, H.-C. Lee, Effect of sludge characteristics on membrane fouling in membrane bioreactors, *J. Membr. Sci.* 349 (2010) 287–294.
- [40] Z. Wang, Z. Wu, X. Yin, L. Tian, Membrane fouling in a submerged membrane bioreactor (MBR) under sub-critical flux operation: Membrane foulant and gel layer characterization, *J. Membr. Sci.*, 325 (2008) 238–244.
- [41] K. Kimura, T. Naruse, Y. Watanabe, Changes in characteristics of soluble microbial products in membrane bioreactors associated with different solid retention times: Relation to membrane fouling, *Water Res.* 43 (2009) 1033–1039.
- [42] Q. Wang, Z. Wang, Z. Wu, X. Han, Sludge reduction and process performance in a submerged membrane bioreactor with aquatic worms, *Chem. Eng. J.* 172 (2011) 929–935.
- [43] Y. Tian, Z. Li, Y. Ding, Y. Lu, Identification of the change in fouling potential of soluble microbial products (SMP) in membrane bioreactor coupled with worm reactor, *Water Res.* 47 (2013) 2015–2024.
- [44] D. Navaratna, L. Shu, V. Jegatheesan, Performance of a laboratory-scale membrane bioreactor consisting mixed liquor with aquatic worms under toxic conditions, *Bioresour. Technol.* 155 (2014) 41–49.
- [45] K. Kimura, N. Yamato, H. Yamamura, Y. Watanabe, Membrane fouling in pilot-scale membrane bioreactors (MBRs) treating municipal wastewater, *Environ. Sci. Technol.* 39 (2005) 6293–6299.
- [46] S. Arabi, G. Nakhla, Characterization of foulants in conventional and simultaneous nitrification and denitrification membrane bioreactors, *Sep. Purif. Technol.* 69 (2009) 153–160.

第 8 章

総括

8.1 本研究で得られた知見のまとめ

本研究では浸漬型 MBR へ担体を投入することによる膜ファウリングの発生抑制と曝気量の削減について検討した。ベンチスケールおよびパイロットスケール実験における曝気削減可能量の定量的評価ならびに担体の膜面洗浄効果を最大化するための曝気条件最適化、浸漬型 MBR の投入に適した担体の探索などを実施した。各章で得られた知見について以下にまとめる。

第 3 章「粒状担体の投入が MBR の運転効率および膜ファウリング特性に与える影響」では、ベンチスケール MBR に粒状担体を投入し、担体投入による膜ファウリング抑制効果および曝気削減可能量の定量的評価を行った。また、担体の投入が膜ファウリング特性におよぼす影響についても検討した。浸漬型 MBR へ担体を投入することで、クリティカルフラックスが 40%上昇し、曝気量を 50%削減しても安定した運転を継続できることが明らかになった。4 ヶ月間の長期的な連続運転でも、担体の投入によって可逆的な膜ファウリングは効果的に抑制されたが、不可逆的膜ファウリングについては進行が促進されることが示された。担体を投入した MBR ではフミン質成分の不可逆的膜ファウリングへの寄与が増した。不可逆的膜ファウリングの発生とフミン質の膜ファウリングへの関与については、通常の MBR で膜表面に形成されるケーキ/ゲル層からなるダイナミックフィルターが担体によって消失することで生じたものと考えられる。

第 4 章「MBR 汚泥性状が粒状担体の膜ファウリング抑制効果に及ぼす影響」では下水

処理場で稼働するパイロットスケール MBR から採取した汚泥を用いて、ろ過実験と汚泥性状の分析を定期的に実施した。汚泥ろ過性については回分ろ過試験およびクリティカルフラックスの測定によって評価した。実下水を処理する MBR では、水温の低下によって汚泥上澄み中のタンパク質濃度が増加し、汚泥ろ過性が悪化した。汚泥ろ過性が悪化した状態では、粒状担体の投入によって汚泥ろ過性がより悪化することが示された。汚泥ろ過性が悪化した状況で膜透過水フラックスを高く設定した場合(本研究では 40 LMH 以上)、粒状担体の投入で膜ファウリングの発生を抑制できないことが示された。担体の投入量を増やすことで、膜面洗浄効果が向上し、膜ファウリングの発生を抑制できることが示された。

第 5 章「仕切り板挿入型 MBR への粒状担体の投入が MBR 運転効率に与える影響」では、実下水を処理するパイロットスケール仕切り板挿入型 MBR(BMBR)に粒状担体を投入し、膜ファウリング抑制効果および曝気量削減効果について検討を行った。膜ファウリング抑制効果については担体投入前後における膜間差圧(TMP)の上昇速度を比較することで評価した。また、BMBR 槽内の汚泥ろ過性や汚泥懸濁液中の溶解性成分などの汚泥性状についても分析するとともに、粒状担体の投入による膜表面への損傷の有無についても調べた。BMBR へ担体を投入することで、膜表面が担体によって物理的に洗浄され、膜ファウリングの発生を抑制できることが示された。水温の低下と粒状担体の投入によって汚泥懸濁液中の溶解性糖濃度が上昇し、汚泥ろ過性が悪化した。担体によって膜ファウリングの発生を抑制することが可能であった。担体を投入することで BMBR の曝気量を 50% 以上削減しても、膜ファウリングの発生をコントロールできることが示唆された。一方で、担体の投入に伴う膜表面構造の変化や損傷が膜の一部で認められた。パイロットスケール実験では担体の過度な膜面との接触が生じていたことが示唆された。3 章におけるベンチスケール MBR への担体投入では、膜表面の損傷は観察されなかったことから、膜と担体の接触強度を最適化することで、膜表面の損傷を避けられる可能性が示された。

第 6 章「粒状担体の投入と散気装置の改良による浸漬型 MBR の曝気量削減」では、粒状担体投入時における膜表面損傷を抑制し、膜洗浄効果を最大化するための曝気条件の探索を行った。浸漬型 MBR における曝気条件の違いが粒状担体の流動速度および流動様式に与える影響について、画像解析によって定量的に評価した。画像解析によって、微細気泡曝気条件は粗大気泡曝気条件に比べて、担体の流動速度の変動が小さくなり、速度の絶対値が減少することが明らかになった。微細気泡で膜モジュールを一様に曝気する条件での担体の流動様式が、膜表面に損傷が観察されなかったベンチスケール条件に最も近いことが明らかになった。膜表面の損傷を抑制する上で、微細気泡曝気条件が担体投入型 MBR

に望ましいと考えられる。また、担体の流動様式の解析から、微細気泡曝気条件に変更することで従来条件(5章における曝気条件)の曝気量を80%削減しても膜ファウリングを抑制できることが示唆された。得られた結果を基に最適と考えられる曝気条件でパイロットスケール BMBR の連続処理実験を実施した結果、BMBR へ担体を投入することで微生物処理に必要な曝気量以下で可逆的膜ファウリングを抑制できることが明らかになった。この結果は、BMBR へ粒状担体を投入することで微生物処理に必要な曝気だけで、膜ファウリングの発生を抑制できることを示している。一方で、汚泥ろ過性が悪化した場合には不可逆的膜ファウリングが急激に進行し、MBR の運転を継続できなかった。汚泥ろ過性が改善した場合には不可逆的膜ファウリングの進行は緩やかとなり、担体によって可逆的膜ファウリングを完全に制御できることが示された。しかし、担体が頻繁に接触する部分では膜表面の損傷が観察された。

第7章「異なる担体の使用が浸漬型 MBR の運転効率および膜ファウリングに与える影響」では、ベンチスケール MBR を用いて異なる形状・性質を持つ担体の使用が MBR の処理性能および汚泥性状、膜ファウリング特性に与える影響について比較し、担体投入型 MBR に適した担体の探索を実施した。ひも状担体およびスポンジ担体を使用することで、担体に付着した生物膜内部が無酸素状態となり、MBR の窒素除去性が向上することが明らかになった。一方で、ひも状担体を MBR に設置した場合には、膜ファウリングの発生を抑制できないことが示された。MBR 槽内を流動し膜表面と接触する担体で、可逆的膜ファウリングを効果的に抑制できることが示された。また、スポンジ担体と比較して粒状担体を投入した MBR では汚泥ろ過性が悪化し、不可逆的膜ファウリングの進行が加速することが示された。高密度のスポンジ担体を MBR へ投入することで汚泥懸濁液中の SMP 濃度が低下し、他のスポンジ担体に比べて汚泥ろ過性が改善することが示された。

8.2 担体投入型 BMBR によって削減可能なエネルギー量

本研究で得られた知見によって、曝気条件を最適化することで担体投入型 BMBR では微生物処理に必要な曝気量だけで膜ファウリングの発生を抑制できることが示された。また、単一槽で硝化脱窒を行う BMBR としての処理性能についても、これまでに我々の研究で得られた結果と同程度の窒素除去率を本研究でも達成できた。これらの結果から、担体投入型 BMBR では従来型 MBR における「①膜ファウリング抑制のための曝気動力」および「②脱窒のための汚泥循環および汚泥の攪拌動力」を削減可能である。表 8-1 に 2010 年から 2013 年にかけて報告された、フルスケール MBR 施設における、排水処理に伴う消費電力と担体投入型 BMBR の導入によって削減可能な電力(①および②に起因する電力消費)の割合、削減後の MBR 消費電力を示す。なお、本研究で検討した膜モジュールが平膜形状であるため、平膜モジュールを設置したフルスケール MBR 施設についての調査結果を示す。

表 8-1 平膜モジュールを設置したフルスケール MBR における電力消費量

WWTP	消費電力 (kWh/m ³)	削減可能電力の割合	削減後の消費電力 (kWh/m ³)	参考文献
施設 A	0.64	58.5%	0.27	[1]
施設 B	1.05	72%	0.29	[2]
施設 C	1.07	82%	0.19	[3]
施設 D	0.96	78%	0.21	[3]

削減可能電力はフルスケール MBR の排水処理に伴う電力消費の 58–82% に達することが示された。削減可能電力を全て削減した場合では、消費電力は 0.19–0.29 kWh/m³ となり、従来型活性汚泥法における消費電力である 0.3 kWh/m³[4] 以下で担体投入型 BMBR を運転できる可能性がある。担体投入型 BMBR を実際の下水処理場で用いた場合では、流入原水を連続処理することができないため、流入原水の水量調整タンクを設置しなければならず、流入調整槽の攪拌に伴う電力消費が増加すると予想される。また、排泥の際には担体を汚泥中から分離・回収する必要があるため、担体回収のためのスクリーンなどを取り付けるコストが増加すると考えられる。一方で、担体投入型 MBR では膜ファウリング抑制のための曝気装置および脱窒処理のための汚泥循環ポンプや無酸素槽などを設置する必要がないことから、処理施設全体では建設コストを削減できると考えられる。本研究によって、BMBR に担体を投入することで従来型 MBR に比べて大幅に少ない電力消費で MBR を運転できることが示された。

8.3 今後の課題

本研究を通して明らかとなった担体投入型 BMBR の課題および検討が及ばなかった点について以下に示す。

- ・曝気条件を最適化することで担体による膜表面損傷を軽減できることが本研究で明らかになった。しかし、膜表面の損傷を完全に防ぐためには担体投入型 MBR に設置する膜材質として有機膜よりもセラミック膜などの物理的強度の高い膜が望ましいと考えられる。セラミック膜と有機膜とでは膜ファウリング特性が大きく異なることが予想されるため、膜材質が担体投入型 MBR の運転に与える影響についても検討が必要である。
- ・本研究では膜ファウリングの抑制を目的として曝気条件の最適化について主に検討したが、担体の投入量を増加させることで処理水質をより向上できる可能性がある。流動床リアクターでは反応槽体積の 20–30% 分の担体が投入されることから[5]、担体投入量の最適化についても検討を行う必要がある。
- ・本研究では膜ファウリングの発生抑制について主に検討し、BMBR の窒素除去性に影響を与えるサイクル時間[6]などについては検討していない。BMBR の運転条件最適化についても検討の余地が大きく残されている。
- ・担体を投入することで、不可逆的膜ファウリングの進行が促進されることが明らかとなったが、担体投入型 BMBR の薬液洗浄に適した薬品については検討していない。担体投入型 BMBR で発生する不可逆的膜ファウリング特性の分析と合わせて、薬液洗浄条件についても検討を行う必要がある。

参考文献

- [1] J.A. Gil, L. Túa, A. Rueda, B. Montaña, M. Rodríguez, D. Prats, Monitoring and analysis of the energy cost of an MBR, *Desalination* 250 (2010) 997–1001.
- [2] P. Krzeminski, J.H.J.M. van der Graaf, J.B. van Lier, Specific energy consumption of membrane bioreactor (MBR) for sewage treatment, *Water Sci. Technol.* 65 (2012) 380–392.
- [3] B. Barillon, S. Martin, C. Langlaais, V. Lazarova, Energy efficiency in membrane bioreactor, *Water Sci. Technol.* 67 (2013) 2685–2691.
- [4] A. Fenu, J. Roels, T.wambecq, K. De Gussem, C. Thoeve, G. De Gueldre and B.Van De Steene, Energy audit of a full scale MBR system, *Desalination* 262 (2010) 121–128.
- [5] G. Tchobanoglous, F.L. Burton, H.D. Stensel, *Wastewater Engineering: Treatment and Reuse*, fourth ed., McGraw Hill, 2004.
- [6] K. Kimura, R. Nishisako, T. Miyoshi, R. Shimada, Y. Watanabe, Baffled membrane bioreactor (BMBR) for efficient nutrient removal from municipal wastewater, *Water Res.* 42 (2008) 625–632.

謝辞

筆をおくにあたり、本研究の指導助言を賜った木村克輝准教授に心から拝謝する。また、実験に際し多くの援助を与えられた工藤憲三研究員、神戸大学 三好太郎特命助教、中央大学 渡辺義公教授に深く謝意を表したい。そして、有益なご助言をいただいた船水尚行教授、伊藤竜生助教、北方建築総合研究所 牛島健研究員に厚く敬意を表する。短期間であったが、画像解析に関わる実験について指導をいただいたベルリン工科大学 Lutz Böhm、Paul Schallau、Matthias Kraume 教授に謝意を表したい。

本研究は CREST (Innovative Technology and System for Sustainable Water Use) の支援および JSPS 科研費 2601222 の助成を受けたものである。