



# HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	生物膜と分離膜を組み合わせた高度浄水処理プロセス
Author(s)	羽根, 康史; 木村, 克輝; 渡辺, 義公 他
Description	第9回衛生工学シンポジウム (平成13年11月1日 (木) -2日 (金) 北海道大学学術交流会館) . 4 水処理 1 . 4-3
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 9, 197-202
Issue Date	2001-11-01
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/7170">https://hdl.handle.net/2115/7170</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	9-4-3_p197-202.pdf



## 4-3

# 生物膜と分離膜を組み合わせた高度浄水処理プロセス

○羽根 康史、木村 克輝、渡辺 義公 (北海道大学)、大熊 那夫紀 (日立プラント建設)

### 1. はじめに

近年、水道水源水質の悪化に伴い、既存の浄水処理施設による良好な水道水質の確保が困難になりつつある。しかし、水道水源の水質改善は進んでいないのが現状であり、新たな水源の確保は困難な場合がほとんどである。一方で人々の安全でおいしい水道水に対する要望はますます高度なものとなってきており、これまで以上に精密な浄水処理、給配水管理が必要となってきている。

今後の浄水処理においては、アンモニア性窒素( $\text{NH}_4^+\text{-N}$ )、クリプトスポリジウムなどへの対応が重要となる。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  は塩素要求量を増加させることにより、トリハロメタンなどの消毒副生成物質の生成を促進する可能性がある。また、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  と塩素が反応して生成するクロラミンが、水道水のカルキ臭の原因物質であるという報告もなされている<sup>1,2)</sup>。これら  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の問題に加えて、我が国においてもクリプトスポリジウム等の塩素に対して耐性がある病原性微生物の水道水源への混入が問題となっている。クリプトスポリジウムは通常の砂ろ過では十分な制御が困難である。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  については、現在のところ不連続点塩素処理によって、主な対応が行われているが、塩素の使用には前述したようなさまざまな問題があるため、今後は生物活性炭のような生物処理による  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  への対応が主流を占めるとと思われる。また、病原性微生物に対しては固液分離性に優れた膜処理が有効である。

上述した背景から本研究グループでは、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の生物酸化と厳密な固液分離を同時に達成できるプロセスとして、回転平膜の表面に生物膜を固定しながら膜ろ過を行う水処理プロセスを提案している。実水道水源を用いたパイロットスケール実験より、本プロセスは高水温時において安定した処理を行えることを確認している<sup>3)</sup>。本研究では、より高い透過水 Flux および、低水温時における運転性、処理性について検討を行った。

### 2. 実験方法

実験は、江別市上江別浄水場内において、2000年6月28日より行った。図-1に実験フローを示す。原水は千歳川表流水を使用した。浄水場の取水地点は千歳川の下流部であり、水田の灌漑、千歳市や恵庭市などのし尿処理場や下水処理場からの放流水の影響を受けやすい。また、水田地帯や泥炭地帯を流れるためにフミン酸やフルボ酸といったような溶解性着色有機成分の濃度が高く、アンモニア性窒素、鉄、マンガンの含有量が多いという特徴を持っている。本実験では前処理として噴流攪拌固液分離装置 (JMS) による凝集沈殿

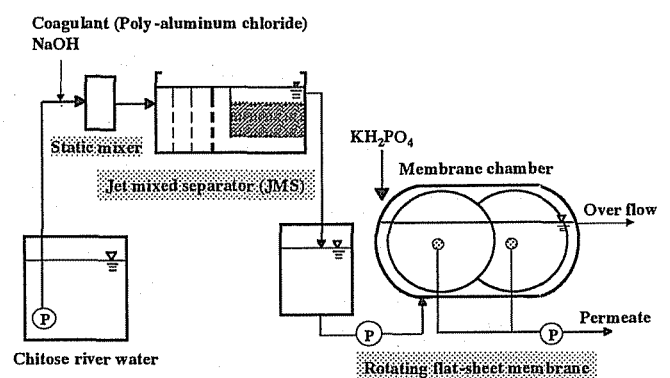


図-1 実験フロー

処理を行った。凝集剤としては、ポリ塩化アルミニウム (PAC) を使い、アルミニウム換算で約 5 mg/L となるように注入した。JMS 上澄水を回転平膜モジュール (総膜面積 4.5 m<sup>2</sup>、分画分子量 75 万のポリスルホン製 UF 膜を装着) へ供給した。また 2000 年 11 月 27 日から 2001 年 1 月 16 日までの間、生物活性の低下を補うためにリン酸二水素カリウムをリン換算で 0.05 mg/L となるように膜分離槽内に直接添加した。連続運転時においては、水回収率が約 90 % になるように膜分離槽からのオーバーフローを発生させ、膜回転数は 20 rpm で固定し、定流量運転を行うとともに、一定期間毎に吸引ポンプを休止させる間欠運転 (ろ過 30 分、休止 2 分) を実行した。過度に膜間差圧が上昇した際には、数 mm 大のスポンジ片を投入後、膜回転数を上昇させる (70 rpm、60 分) スポンジ洗浄を行うこととした。また、スポンジ洗浄では除去できない汚れが膜面に蓄積した場合には、シュウ酸溶液、次亜塩素酸ナトリウム溶液による薬品洗浄を行った。本実験と同様の実験において回転平膜表面に蓄積したケーキ層を種微生物とし、膜分離槽内に 6 g-SS の微生物投入後、連続実験を開始した。

### 3. 実験結果

#### (1) 膜間差圧の上昇

図-2 に膜間差圧経日変化を示す。図中のデータは、20°C に温度換算したものである。運転開始時は膜透過水 Flux を 0.8 m/d に設定した。連続運転の途中、停電などの都合で、一時的な運転の停止があったが、約 1 ヶ月間、膜洗浄を行うことなく運転の継続が可能であった。1 回目のスポンジ洗浄は 8 月 8 日に行った。スポンジ洗浄によって、膜面に付着していたケーキ層を効率よく剥離させることができた。洗浄後における迅速な生物処理性の回復を目的として、剥離ケーキを含む槽内水は排出せず、スポンジ片のみを回収した後、運転を再開した。

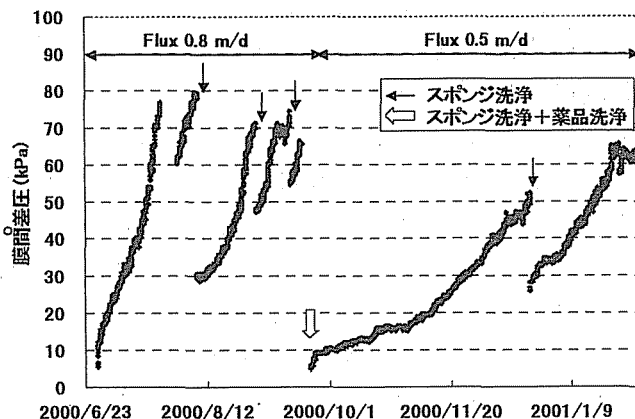


図-2 膜間差圧経日変化

再開時、膜間差圧は約 30 kPa まで減少していた。洗浄後は、約 3 週間の連続運転が可能であった。2、3 回目のスポンジ洗浄をそれぞれ 9 月 1 日、9 月 15 日に行ったが、洗浄効率はスポンジ洗浄の回数を重ねるごとに低下した。すなわち、洗浄直後における膜間差圧の値が十分に低下せず、長期の連続運転が困難となった。このことは、スポンジ洗浄では除去できない不可逆的な抵抗 (ファウリング) が増加したことを示すものである。9 月 20 日から 23 日にかけてスポンジ洗浄と薬品洗浄を行ったところ、スポンジ片では取れなかった汚れが取れ、新品同様に膜が白くなり、運転開始時と同じ膜透過性能を得ることができた。

薬品洗浄後、膜透過水 Flux を 0.5 m/d に設定し、9 月 20 日に行ったスポンジ洗浄時に回収した剥離ケーキを種汚泥として膜分離槽内に投入した後、運転を再開した。その結果、約 3 ヶ月間、膜洗浄を行うことなく運転の継続が可能であった。スポンジ洗浄は、12 月 23 日に行った。低水温時においてもスポンジ洗浄は有効であり、ほぼ完全に膜表面付着ケーキを除去することができた。洗浄後、膜間差圧は約 25 kPa にまで減少した。またリン添加に起因する膜間差圧の上昇は見られなかった。

## (2) 不可逆的抵抗（ファウリング）の原因物質

不可逆的膜ファウリングの原因となる物質についての情報を得るために、9月20日のスポンジ洗浄後の膜を一部採取して、膜と不可逆的に結合している成分の分析を行った。赤外スペクトル分析の結果より、有機物の付着は軽微であったことが推測された。無機物についての情報を得るため X 線分析を行った結果、マンガンが 50%以上を占めていたことがわかった。本実験では無機成分のマンガンが主な膜ファウリングの原因物質であったと考えられる。

## (3) $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 処理性

図-3 に  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  濃度変化を、図-4 に膜分離槽内の水温経日変化を示す。図-3 より、凝集沈殿処理では、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の除去は期待できないことがわかる。運転開始直後から、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の安定した処理が観察された理由としては、運転開始時の水温が約 20 度前後と高かったことが挙げられる。本実験に先立って行われた同様の実験では、スポンジ洗浄後における  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  処理性の回復が課題となっていた<sup>3)</sup>。本実験では、洗浄後の剥離ケーキを膜分離槽内に残したまま運転を再開した結果、硝化に必要な微生物を膜表面に保持することが可能となり、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  処理性の迅速な回復を達成できた。また 2 度目や 3 度目のスポンジ洗浄後においても同様の操作を行った結果、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  処理性の迅速な回復が観察された。10 月下旬から水温が約 10°C 以下になると原水中の  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  濃度上昇に伴い、処理水中の  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  濃度も上昇した。そこで生物活性を上昇させるために 11 月 27 日よりリンの添加を行ったところ、リン添加約 10 日後から  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  処理性の向上が見られ、約 3 週間後には、ほぼ完全な  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の酸化が観察された。また 12 月 23 日のスポンジ洗浄後においても 1

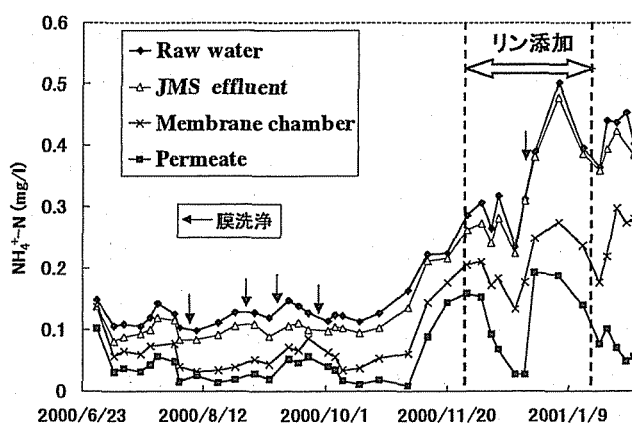


図-3 アンモニア性窒素濃度経日変化

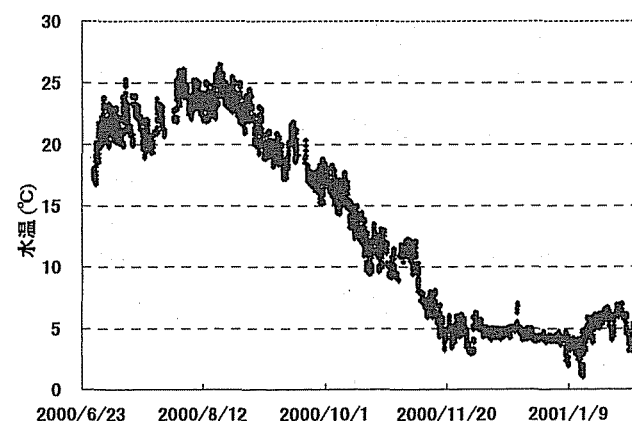


図-4 水温経日変化

~3 回目のスポンジ洗浄と同様の操作を行うことにより、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  処理性の迅速な回復が観察された。スポンジ洗浄後、約 1 ヶ月を経過しても完全な  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の酸化にはいたらなかったが、同実験場で同時に行なわれた生物活性炭の系列においてはほとんど  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の酸化が起こっていないことを考慮に入れると<sup>4)</sup>、水温の低下による  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の処理性の低下を抑えるのにリン添加は有効であったと考えられる。また 1 月 16 日からリンの添加を中止したが、リン添加が行われていない状態でもリン添加中と同じく、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の酸化は継続して観察された。このことにより、リン添加は、継続的に行う必要はなく、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の処理性の向上が観察される時点まで添加を行えばよいのではないかと考えられる。

(4) マンガン、アルミニウム、鉄処理性

図-5 にマンガン濃度測定結果を示す。高水温時では生物学的なマンガンの酸化によって、本プロセスにおいてもマンガンが良好に処理されることが確認されている<sup>4)</sup>が、本実験で検討したような高 Flux 条件下においても、良好なマンガン処理性が観察された。しかし、水温が低下した11月7日の時点では、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 処理は高水温時と同じく良好に行われていたのに対し、マンガン除去率は高水温時に比べてかなり低下していた。さらに水温が低下した1月22日では、マンガンの酸化はほとんど観察されなかった。また、リン添加後も NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 処理性とは異なり、マンガン処理性の向上は見られなかった。これらのことから、マンガン酸化を行う細菌は、硝化細菌に比べて、水温に敏感であることが示唆される。

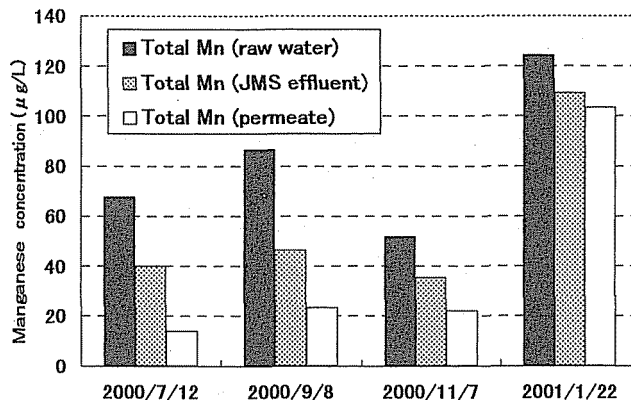


図-5 マンガン濃度測定結果

図-6 にアルミニウム濃度測定結果を示す。アルミニウムについては、凝集剤に PAC を使用していることから、JMS 上澄水中に多量のアルミニウムが存在するが、そのほとんどが懸濁態である。凝集沈殿に伴い、JMS 上澄水中における溶存態 (<0.45 μm) アルミニウム濃度は原水に比べて増加する場合があります(図-6)、0.2 mg/l を超えることもあったが、膜処理を行うことで透過水中の全アルミニウム濃度は常に 0.05 mg/l 以下にまで減少していた。このことは、残留アルミニウム制御に膜の導入が有効であることを示すものである。

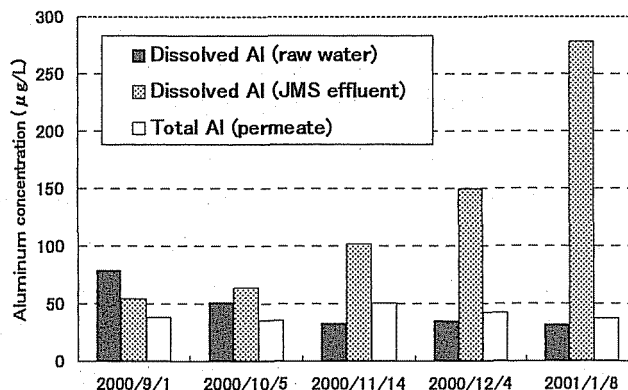


図-6 アルミニウム濃度測定結果

鉄は、アルミニウムと同様に、原水中に多量に存在するが、JMSを用いた凝集沈殿により 0.3 mg/l 以下にまで除去され、処理水中の濃度は 0.03 mg/l 以下にまで除去されていた。

(5) 全リン濃度変化

図-7 に全リン濃度経日変化を示す。リン添加前の JMS 上澄水中における全リン濃度ならびに溶存態リン濃度は、それぞれ約 0.01 mg/L、約 0.004 mg/L であった。また、リン添加前の膜透過水中におけるリン濃度は、0.002 mg/L 以下に抑えられていた。リン添加開始直後は、リン添加前と同様に、膜透過水中のリン濃度は 0.002 mg/L 以下に抑えられていたが、約 10 日後以降から約 0.003~0.004 mg/L に上昇した。

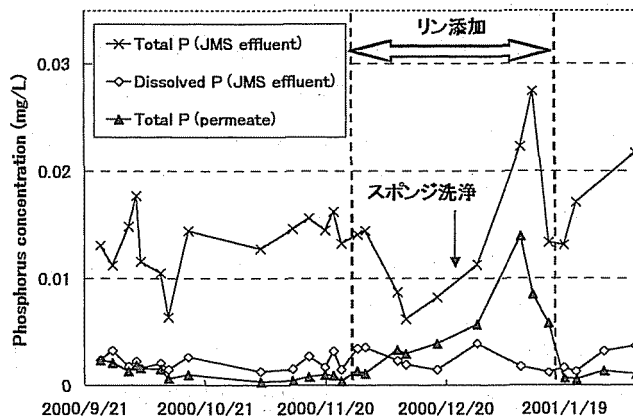


図-7 全リン濃度経日変化

リン添加を開始した直後は、添加したリンの大部分が、鉄、アルミニウムを多量に含む付着ケーキ層に吸着されていたが、添加の継続に伴って、リン吸着サイトが飽和し、結果として処理水中にも漏出してきたのではないかと考えられる。処理水中リン濃度の微量な増加に伴い、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  処理性の向上が観察された。また、スポンジ洗浄後において、処理水中のリンの濃度は、スポンジ洗浄前と比較すると、約 2~3 倍に上昇している。この原因としては、スポンジ洗浄を行うことにより、付着ケーキ層が膜表面から剥離することにより、リンが吸着されなくなるために、リンが漏出したことが考えられる。

#### (6) AOC (Assimilable Organic Carbon)

図-8 に Assimilable Organic Carbon (AOC) 濃度測定結果を示す。原水中の AOC 濃度に注目すると、約 50~210 (平均 132)  $\mu\text{g/l}$  であり、DOC 全体に占める割合は数%程度であった。図-8 において、JMS 流出水の AOC に注目すると、AOC-P17 を中心に約 50%以上の AOC が除去されており、JMS における凝集沈殿も AOC-P17 の除去には効果があることが示唆された。AOC-NOX についてはほとんど除去されておらず、また膜透過水中においても除去され

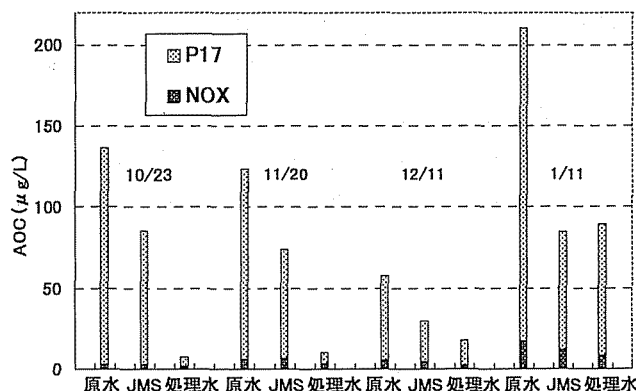


図-8 AOC 濃度変化

ていない。AOC は配水管内の二次増殖ポテンシャルを表現する 1 つの指標である。配水管網内における微生物の再増殖を引き起こさない、生物学的に安定である水の AOC 濃度として 10  $\mu\text{g/L}$  が提示されている<sup>9)</sup>。これまで、千歳川表流水を原水としたオゾン・生物活性炭による高度浄水処理実験における AOC の挙動が調査されてきたが<sup>6)</sup>、生物学的に安定な AOC 濃度 10  $\mu\text{g/l}$  という処理水を得ることは非常に困難であった。リン添加前のデータを見ると、本実験では、水温に関係なく膜透過水中の AOC 濃度は約 10  $\mu\text{g/L}$  に低減されていた。本水処理プロセスは、通常の高処理システムに比べ、より生物学的に安定な処理水を供給できる可能性があることが示された。リン添加期間中である 12 月 11 日では、膜透過水中の AOC 濃度は約 20  $\mu\text{g/L}$  に低減されていた。しかし、同じリン添加期間中である 1 月 11 日では、膜透過水中の AOC 濃度は JMS 上澄水中の AOC 濃度とほぼ同じであった。しかし、このことは二次増殖を引き起こす有機物の除去が起こらなかったということの意味するわけではない。AOC 除去を担う細菌（他栄養性細菌）は、硝化細菌に比べると低水温に対する耐性が高いと考えられる。前述の通り、この時期は硝化細菌がリン添加により活発に活動しており、有機物の除去性も高かったものと考えられる。1 月 11 日のデータにおいて膜透過水の AOC 濃度が高くなった原因としては、12 月 11 日の時点では、処理水中へのリンの漏出はごく微量であったのに対し、1 月 11 日の時点においては、12 月下旬に行ったスポンジ洗浄により、多量のリンが処理水中へ漏出していたことが挙げられる。微生物の二次増殖ポテンシャルには有機物のみでなく、リンも影響を与えると考えられており<sup>7)</sup>、 $\text{PO}_4\text{-P}$  の増加で、AOC 濃度を上昇させるという報告もされている<sup>8)</sup>。本実験においても、生物活性の低下を補うために添加したリンは、見かけの AOC 濃度を増加させていた可能性がある。本実験のように生物活性の低下を補うためにリンを添加する場合には、微生物の二次増殖ポテンシャルを考える際には、生物易分解性の有機物のみでなく、リンの濃度にも着目する必要がある。

#### 4. まとめ

本研究で提案する水処理プロセスは、膜透過水 Flux 0.8 m/d の条件においても、膜透過水中の  $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、マンガンを、AOC 濃度を低く抑えることが可能であった。また、スポンジ洗浄は有効であり、長期間の運転が無薬洗で可能であった。また、スポンジ洗浄後において、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  処理性の低下が懸念されたが、スポンジ洗浄後の剥離ケーキを膜分離槽内にそのまま残し、運転を再開することにより、低水温期における  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  処理性の迅速な回復が可能であった。低水温時においても、スポンジ洗浄は有効であった。リンを添加することにより、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  処理性の維持が可能であったが、マンガン処理性の向上は観察されなかった。リン添加は、膜透過水中のリン濃度を増加させた。これに伴うと考えられる AOC 濃度の上昇が観察され、配水管内における二次増殖を抑制するためには、有機物のみならず、リンについても注意を払う必要があると考えられる。

本研究の遂行にあたっては、科学技術振興事業団 (CREST) の援助を受けて遂行された。実験場を提供して下さった江別市水道部のご協力を得ました。記して謝意を表します。

#### 5. 参考文献

- 1) 木村 克輝, 渡辺 義公, 大熊 那夫紀: 回転平膜表面に硝化細菌を固定した膜処理プロセスにおけるろ過抵抗に関する研究, 土木学会論文集, No. 608/VII-9, pp.87-95, 1998.
- 2) 鍋田 好雄, 西川 真人: カルキ臭の原因物質と低減化, 水道協会雑誌, 66 巻, 4 号, pp.16-23, 1997.
- 3) Kimura K., Watanabe Y. and Ohkuma N.: A novel biofilm-membrane reactor for advanced drinking water treatment—a pilot-scale study. *Proceedings of the Conference on Membrane in Drinking and Industrial Water Production*, Vol. 1, pp.619-628, 2000.
- 4) 井上 一成: 高効率型高度浄水処理システムの特性評価, 北海道大学工学部衛生工学科平成 12 年修士論文, 2000.
- 5) Van der Kooji D.: Assimilable organic carbon as an indicator of bacterial regrowth, *Journal of AWWA*, Vol. 84 (2), pp.57-65, 1992.
- 6) 笠原 伸介, 相澤 拓, 渡辺 義公, 小澤 源三, 岡部 聡: AOC を指標とした高度浄水処理システムの性能評価, 水道協会雑誌, 67 巻, 11 号, pp.12-21, 1998.
- 7) Markku J. Lehtola, Ilkka T. Miettinen, Terttu Vartiainen, and Pertti J. Martikainen: A New Sensitive Bioassay for Determination of Microbially Available Phosphorus in Water, *Applied and Environmental Microbiology*, pp.2032-2034, May 1999
- 8) Ilkka T. Miettinen, Terttu Vartiainen, and Pertti J. Martikainen: Phosphorus and Bacterial Growth in Drinking Water, *Applied and Environmental Microbiology*, pp.3242-3245, Aug. 1997