HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	前凝集沈殿・膜分離活性汚泥法による都市下水の高度処理
Author(s)	田辺, 耕平; 木村, 克輝; 松宮, 知 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 . 4-4
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 9, 203-208
Issue Date	2001-11-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7171
Type	departmental bulletin paper
File Information	9-4-4_p203-208.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

4－4 前凝集沈殿・膜分離活性汚泥法による都市下水の高度処理

○田辺 耕平 木村 克輝 松宮 知 渡辺 義公 (北海道大学大学院工学研究科)

1. はじめに

我が国の下水道普及率は約60%に達し、今後の下水道事業展開においては、直接的・間接的な水の再利用をも視野に入れた処理の高度化、小規模処理への対応が重要となる。従来、下水処理の主流を占めてきた標準活性汚泥法では処理の高度化、小規模処理を行うことは難しく、これまでとは異なった下水処理へのアプローチが必要となってきている。このような状況の中で、流入下水をまず凝集沈澱処理し、有機物負荷の大幅な削減とリンの除去を行った後、生物処理を行う下水処理システムの提案・実用化がなされている[1),2)]。リン資源枯渇の可能性が指摘されている現状を考えると、流入下水中に含まれるリンの大部分を凝集汚泥中に取り込むことのできる下水の凝集処理は、今後有望なリン資源回収技術として位置付けられる。また、下水の前凝集沈澱処理を行うことで流入有機成分の多くが凝集汚泥として回収される。多くのエネルギーを流入有機物成分の無機化のために消費する通常の活性汚泥処理に比べると、前凝集を行うことでバイオガス・有機酸等の資源物をもより多く回収できる可能性がある。さらに、前凝集沈殿に伴って後段の生物処理にかかる負荷が軽減されるので、システム全体としての処理時間短縮が可能となる。

本報では、省エネルギー型個液分離装置である噴流攪拌個液分離装置（Jet Mixed Separator, JMS）[3),4)]を前凝集沈殿に用い、生物処理として膜分離活性汚泥法を採用して行った、パイロットスケールの都市下水高度処理実験結果について述べる。

2. 実験方法

実験は札幌市創成川下水処理場（合流式下水道区域）の最初沈殿池流出水を原水として、同処理場内に設置したパイロットスケール装置を使用して行った。図-1に実験フローを示す。処理前段の凝集沈殿処理は、低動力・省用地型の固液分離装置であるJMSを用いて行った。JMS内部には槽前段に数枚の多孔板と、槽後段に傾斜管が挿入されている。多孔板部では噴流を利用した凝集沈殿が進行し、傾斜管部では精密な個液分離が行われる。連続実験は、回転平膜分離槽内に投入した活性汚泥の馴致を行った後、平成12年8月8日より開始した。凝集剤は、基本的にポリ塩化アルミニウム（PAC）を使用したが、8月30日から9月11日の期間および9月19日から10月19日の期間はポリシリカ系鉄凝集剤（PSI）を使用した。注入量は10 mg-Al/L（PSIは12 mg-Fe/L）とした。8月31日から9月19日までの期間は塩酸を注入することでpH調整（pH=6.5）を行ったが、その他の期間は特にpH調整は行わなかった。この結果、pH調整を行わなかった期間は、JMS流出水のpHが6.35-7.39の範囲で変動した（平均値は6.96）。JMSでの水理学的滞留時間（HRT）は1.5時間であった。

JMSによる凝集沈澱処理を施した水を回転平膜装置に通水し、膜分離活性汚泥処理を行った。使用した装置は、直径750mmの膜ディスクを7枚（総膜面積 5.0m²）装着したものである。ディスク両面には、分画分子量75万のポリスルホン製UF膜が貼り合わされている。運転方式には定流量・全量ろ過方式を採用し、8分運転-2分停止の間欠運転を行った。膜回転数は50rpmに固定した。実験期間中、表-1に示す運転条件の変更を行いながら運転を継続した。本実験では、全実験期間を通じて膜の薬品洗浄は行わなかったが、膜間差圧が極端に上昇した際には、数mm大に切ったスポンジ片を利用した物理的膜洗浄（スポンジ洗浄）[5)]を行った。スポンジ洗浄の手順は以下の通りである。(1) 膜回転・吸引ポンプを停止し、みかけ体積4Lのスポンジ片を膜分離槽内に投入 (2) 膜を回転（50rpm）させたまま、30分間放置 (3) 膜回転を停止し、スポンジ片を回収後運転再開。スポンジ洗浄は11月20日と3月16日に行った。

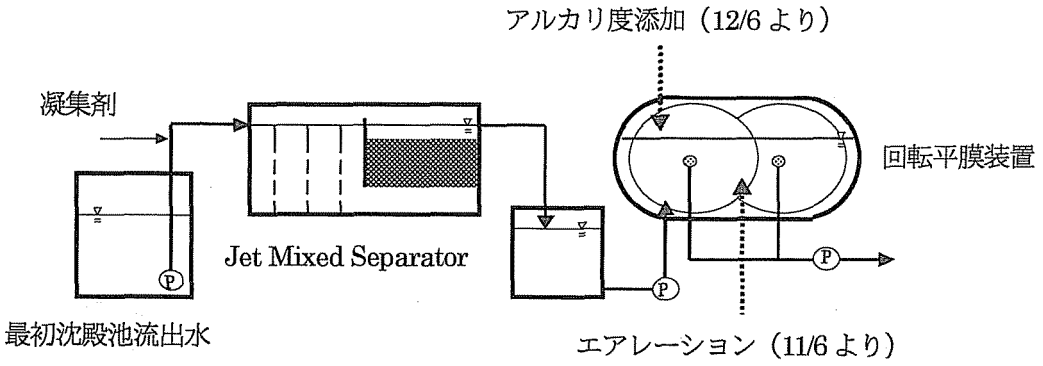

図-1　実験フロー

表-1　運転条件の変更

	膜透過水フラックス(m/d)	膜分離槽内HRT(時間)
8/8-8/24	0.5	2
8/25-8/29	0.2	5
8/30-8/31	0.3	3.3
9/1-9/6	0.4	2.5
9/7-10/25	0.5	2
10/26-11/1	0.4	2.5
11/2-	0.5	2

汚泥引き抜き　10/5,11/2,3/16 に実行
エアレーション　11/6 より開始
アルカリ度添加　12/6 より開始
（2/9-2/16 は停止）

3.　実験結果

3-1　JMS による凝集沈澱処理

図-2 から図-6 にそれぞれ JMS による処理前後の濁度（懸濁成分）、T-P、T-N、NH_4^+-N、DOC 濃度の変化を示す。凝集剤として PSI を使用した期間（図中ハッチ部分）においても、処理性に明確な差異は見られなかった。JMS 出口での濁度は平均して 5.2 度にまで低減されていた（JMS 流入水平均 58.4 度）。下水の凝集処理はリンの除去に極めて有効であることが知られているが本実験でも JMS 出口における T-P 濃度は極めて低くなり、平均で 0.20 mg-P/L となった（原水平均は 2.47 mg-P/L）。T-N 濃度も JMS による処理前後で平均約 40%減少した。これは、主に懸濁体の窒素成分が除去されたことによるが、図-5 に示したように、11 月中旬までは JMS 通過に伴う NH_4^+-N 濃度の減少が 5-10 mg-N/L の範囲で観察された。JMS 多孔板部や傾斜管部には大量の生物膜が付着していた。12 月-3 月の低水温期においては JMS 通過前後において濃度変化がほとんどなく、水温の上昇に伴って再び NH_4^+-N 濃度の減少が観察され始めたことから、JMS における NH_4^+-N 濃度の減少は、JMS 内部に付着した生物膜による NH_4^+-N の硝化あるいは菌体維持(同化)のための NH_4^+-N 利用の結果、観察されたものと考えられる。JMS 槽内水中の溶存酸素（DO）濃度は実験期間中ほとんどの期間において 2mg/L 以上であり、この溶存酸素を利用した硝化反応の進行は十分に可能であった。しかし、初沈流出水・JMS 流出水中の NO_3^--N、NO_2^--N 濃度を測定した結果、これらの酸化態窒素濃度はほとんど検出されなかった。NH_4^+-N の硝化により生成した酸化態窒素は速やかに脱窒され、水中から除去さ

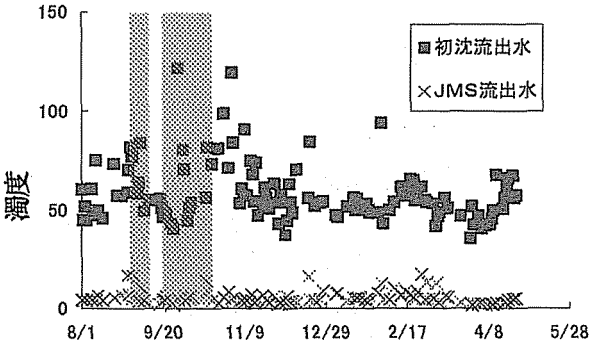

図-2　濁度経日変化

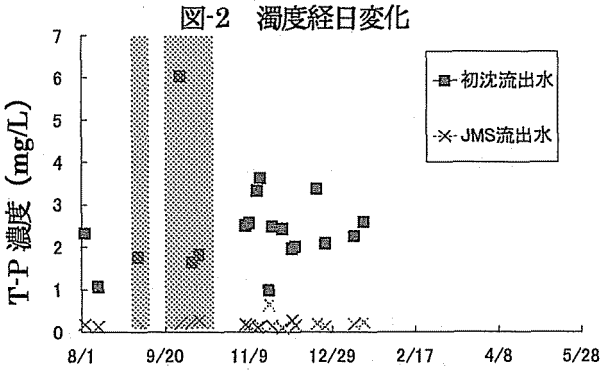

図-3　T-P 経日変化

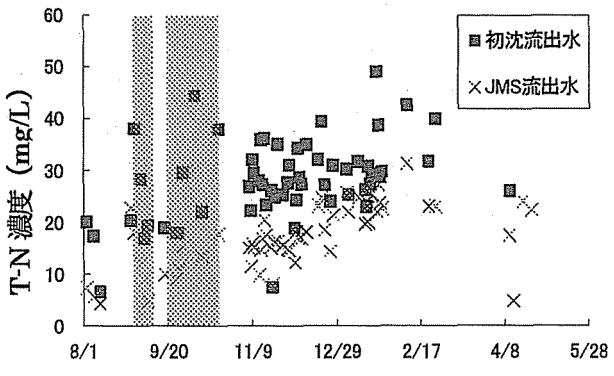

図-4　T-N 経日変化

れたものと推測される。液本体中に溶存酸素が存在していても、付着生物膜内深部には溶存酸素が枯渇している嫌気的部分が存在し[6]、この嫌気的部分において脱窒反応が進行しうる。図-6に示したように、JMS通過前後におけるDOC濃度の減少についても低水温期には顕著でなくなっていた。このことから、JMSにおけるDOCの除去は、コロイドサイズの流入有機成分が凝集沈澱処理によって除去されたことに加えて、脱窒反応を含む微生物の代謝活動によって達成されていた部分も少なくなかったと考えられる。

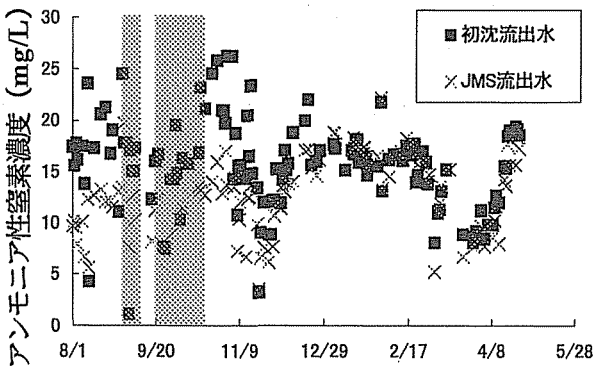

図-5　アンモニア性窒素濃度経日変化

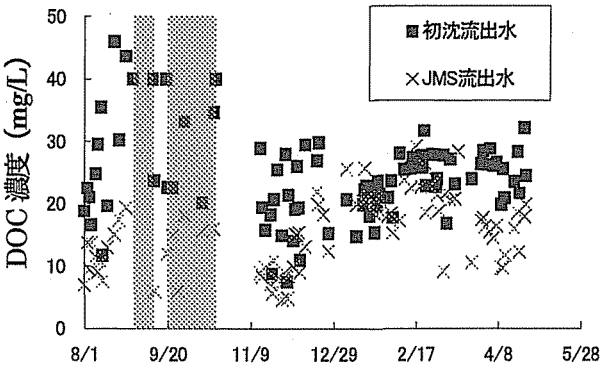

図-6　DOC濃度経日変化

3-2　膜間差圧の上昇

図-7に膜間差圧の経日変化を示す。差圧の上昇は不規則なものであった。すなわち、運転開始直後あるいは一度目のスポンジ洗浄直後のように長期間に渡りほとんど差圧の上昇が観察されない時期がある反面、11月初旬や2月から3月の期間に見られるように急激に差圧が上昇する時期もあった。膜分離活性汚泥法において、差圧の上昇がどのような機構によって引き起こされているかを把握することは、効率的な運転のために極めて重要である。図-8に膜分離槽内MLSS/MLVSS濃度の経日変化を示すが、これらの指標と差圧の上昇には直接的な関連性は見出せなかった。既往の研究例では、系内に蓄積する細胞外代謝産物の膜ファウリングへの関与が指摘されているが、普遍的に成立するような代謝産物と膜ファウリングの関係は未だに解明されていない。

図-9に膜分離槽内における溶存態の糖・タンパク濃度の経日変化を示す。糖・タンパクは細胞外代謝産物の主要な構成成分である。図-9より、本実験期間中に膜分離槽内に蓄積した代謝成分は、その組成が大きく変化していたことが分かる。また、代謝成分組成の変化と膜間差圧の急激な上昇との間には関連性が示唆される。すなわち、11月初旬に観察された差圧上昇時には、それまでの状況に比べて大幅にタンパク濃度が増加している。また、2月から3月にかけての差圧上昇時は、抵抗がほぼ一定だった時期に比べてタンパクの濃度が減少すると共に糖濃度が上昇していた。これらの代謝成分構成の変化が何によって引き起こされたかを特定することはできないが、筆者らは以下のように考えている。11月に観察された代謝成分構成の変化については11月2日に行った汚泥引き抜きと11月6日より開始した膜分離槽内におけるエアレーションが関連し、2月から3月にかけての代謝成分構成の変化は、硝化活性の高まり（詳しくは後述）が関連していた。

スポンジ洗浄は、11月20日と3月16日に行った。本実験では薬品洗浄は行わず、スポンジ片を利用した物理洗浄（スポンジ洗浄）のみを行った。スポンジ洗浄により、必要な膜間差圧は大幅に低減され、薬品洗浄を行うことなく9ヶ月以上の運転継続が可能であった。このことより本実験では、薬品洗浄によってのみ解消されるような不可逆的な抵抗に比べると、物理的洗浄によって解消されうる可逆的なケーキ抵抗が全体のろ過抵抗内で支配的であったことが示された。膜分離活性汚泥法の本格的な普及を阻む一要因は頻繁な薬品洗浄の必要性に伴って生じる廃液処理の問題だが、可逆的ケーキ抵抗が支配的である場合は、効率的物理洗浄の確立を前提とすれば薬品洗浄の頻度を大幅に下げることができるはずである。今後は、さらに効率的な物理洗浄方法の開発と共に、ケーキ抵抗の原因となる汚泥の膜面付着防止を最終的な目的として、膜間差圧上昇時における汚泥性状の変化を詳細に追跡することが重要である。

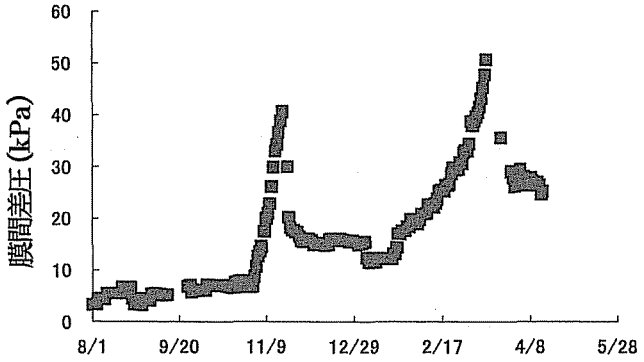

図-7　膜間差圧経日変化

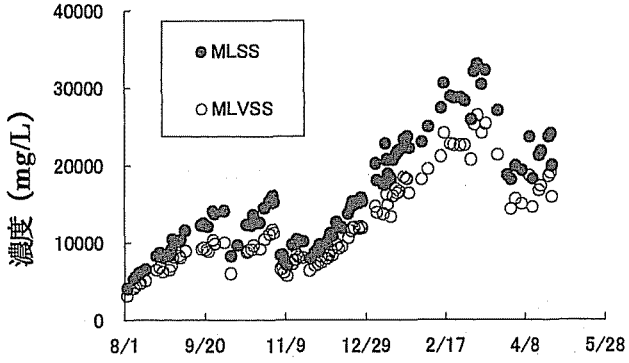

図-8　膜分離槽内 MLSS/MLVSS 濃度経日変化

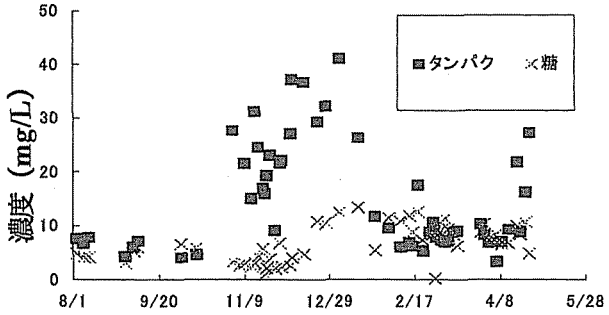

図-9　膜分離槽内溶存態タンパク・糖濃度経日変化

3-3　膜分離活性汚泥法の処理特性

(a)　有機物、リン

JMS 流出水中には平均 5.2 度の濁度成分が残存していたが、回転平膜透過水中の濁度は、全実験期間を通じてゼロであった。図-10 に膜透過水中 TOC 濃度の経日変化を示す。膜透過水中に残存する TOC 濃度は平均で 3.0 mg/L と極めて上質の処理水を得ることができた。図-11 に T-P 濃度の経日変化を示す。T-P 濃度は、JMS 流出水中に残存する微細リンフロックを膜の厳密な個液分離性能により確実に阻止できたことと、高濃度に保持した微生物にリンが利用されたことによる。

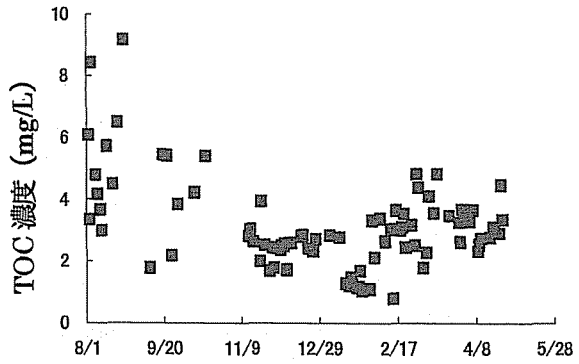

図-10　膜透過水中 TOC 濃度経日変化

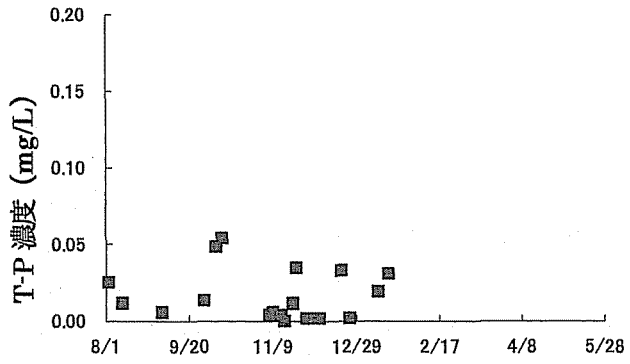

図-11　膜透過水中 T-P 濃度経日変化

(b)　窒素化合物

図-12 に NH_4^+-N 濃度の経日変化を、図-13 に膜分離槽内水温度の経日変化を示す。本実験では、前凝集を行っていることから後段の生物処理（膜分離活性汚泥法）への有機物負荷が軽減されること、膜を用いることで増殖速度の小さい硝化菌を高濃度に保持することが可能となることから、高い硝化率が得ることができると予想されたが、図-12 に示したように膜分離活性汚泥プロセスにおける NH_4^+-N 硝化は不安定であった。運転開始直後は、流入 NH_4^+-N 濃度が低かったとき、あるいは処理流量を低下させた（負荷が減少した）ことで、透

過水中 NH_4^+-N 濃度が低くなることもあったが、水温が 20℃を下回る時期より NH_4^+-N 処理性の低下は顕著になった。NH_4^+-N 処理性の向上を目的として、11 月 6 日より膜分離槽内におけるエアレーションを、12 月 6 日よりアルカリ度（120 mg-$CaCO_3$/L）の添加を開始した。この結果 1 月中旬より、水温 10℃付近の低水温条件にも関わらず良好な NH_4^+-N 処理が行われるようになった。硝化が立ち上がった以後の処理水中 NH_4^+-N 濃度上昇は、2 月中旬に関してはアルカリ度の添加を一時的に（2/9-2/16）に停止したことに、4 月上旬については流入濃度の急激な上昇に追随できなかったことによるものである。

図-13 に膜分離槽内 DO 濃度の経日変化を示す。本実験で用いた回転平膜装置は、常に膜ディスクの一部が水面上に出た状態で回転をしていたため、膜ディスク回転に伴うばっ気効果が期待できる。しかし、JMS 流出水中 DO 濃度が高くなった場合（雨天時等）を除いては、図-13 に見られるように膜分離槽内の DO 濃度は低い値で推移した。11 月 6 日に膜分離槽内におけるエアレーションを開始した結果、槽内 DO 濃度は急激に上昇したが、NH_4^+-N 硝化活性の高まりと共に減少し、硝化の立ち上がり以後は 0.5mg/L 前後で推移した。一般的に硝化細菌の活性維持にあたっては、DO 濃度を高く保つことが重要であるとされているが、実活性汚泥処理施設では DO 濃度が 0mg/L 近辺の低濃度であっても酸素供給が行われていれば硝化反応は進行することが報告されている[7]。本実験では送気した空気中に含まれる酸素が硝化細菌によって消費された結果、低 DO 濃度にも関わらず硝化が進行したものと考えられる。3 月 16 日に実行したスポンジ洗浄に伴って槽内汚泥を排出した結果、汚泥濃度（粘度）の減少からエアレーション効率が高まり、槽内 DO 濃度は上昇した。

図-14 に膜分離活性汚泥処理に伴う T-N 濃度減少量（JMS 流出水濃度と膜透過水濃度の差）の経日変化を示す。図-14 において、値が負の場合は膜分離活性汚泥処理によって T-N 濃度が増加したことを示す。膜分離槽内 DO 濃度が低くなり、JMS からの DOC 流出量が多くなっていた 1 月-2 月の期間は、5-10mg/L 程度の窒素濃度減少が継続して観察された。このことは、膜分離活性汚泥プロセスでの硝化・脱窒同時進行の可能性を示すものである。膜分離活性汚泥過程における T-N 濃度減少の結果、システム全体での T-N 除去率（最初沈殿池流出水と膜透過水の T-N 濃度より算出）は、最大約 70%に達した。逆に、全実験期間を通じて、膜分離活性汚泥プロセスを経ることで T-N 濃度が上昇する場合が散見された。これは膜分離槽内に保持した極めて高濃度の活性汚泥が自己分解した結果、処理水中に無機窒素として流出したものと考えられる。汚泥の自己分解に伴って生じる NH_4^+-N は、本プロセスの見かけ上の硝化活性を低下させていた可能性がある。また、前述したように汚泥濃度を減少させることでエアレーション効率が高まり、DO 濃度を高く設定できる。今後は、いたずらに活性汚泥の高濃度化をはかるのではなく、特に窒素処理効率の向上を勘案して最適な汚泥保持量を探索する必要がある。

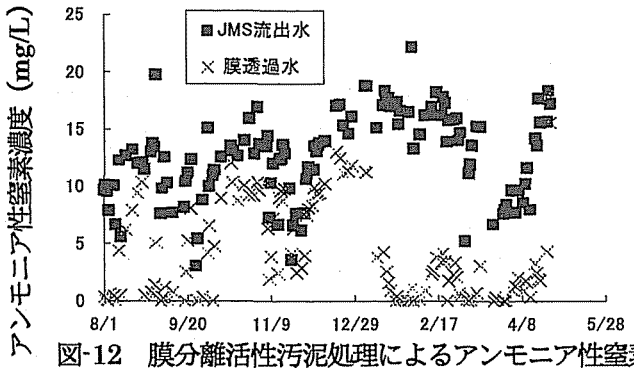

図-12　膜分離活性汚泥処理によるアンモニア性窒素の除去

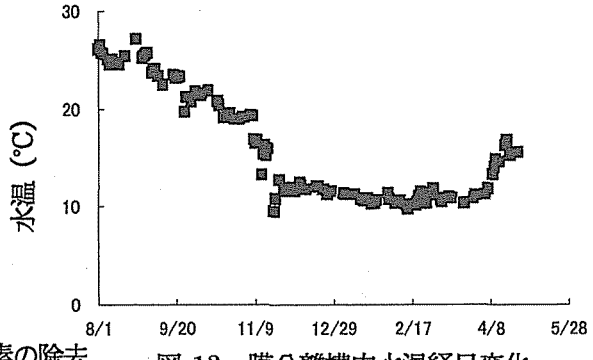

図-13　膜分離槽内水温経日変化

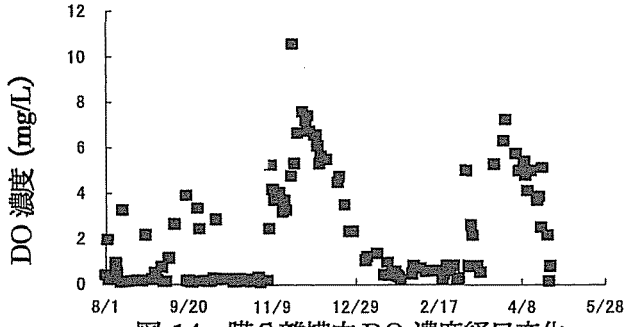

図-14　膜分離槽内 DO 濃度経日変化

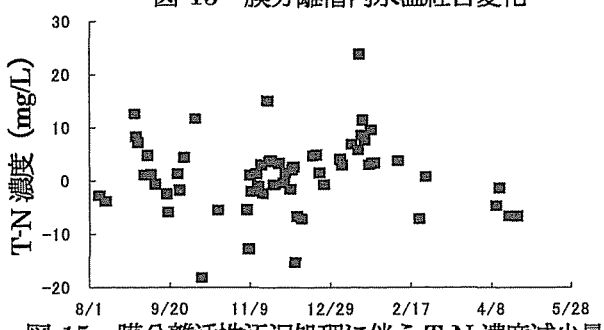

図-15　膜分離活性汚泥処理に伴う T-N 濃度減少量

4. まとめ

本実験で得られた結果を以下にまとめる。

1) 本実験で採用した前凝集沈殿・膜分離活性汚泥処理により、システム全体の滞留時間が 3.5 時間の条件で、有機物・リンについては極めて良好な除去が達成された。処理水中の TOC 濃度は平均で 3.0mg/L、全リン濃度は平均で 0.012mg/L まで低減された。全窒素については、主に凝集沈殿部における除去により、システム全体で最高約 70%の除去を達成した。
2) 膜分離活性汚泥処理過程における NH_4^+-N の硝化は安定しなかったが、長期間のスタートアップ期間後は、水温 10℃前後の低水温期においても良好な硝化が観察された。反応槽内の DO 濃度が低く、溶存有機成分の流入があった時期には、膜分離活性汚泥処理過程における硝化・脱窒同時進行が観察された。
3) 膜の目詰まりは不定期かつ急速に進行した。膜目詰まりと膜分離槽内に蓄積する高分子有機成分の変化との間に関連性が示唆された。この有機成分変化を引き起こす原因の一つとして硝化細菌の活性向上を指摘した。本実験で発現した膜ろ過抵抗は可逆的なケーキ抵抗が支配的な抵抗形態であり、薬品洗浄を行うことなく運転の継続が約 9 ヶ月可能であった。
4) 前凝集沈殿処理を伴う膜分離活性汚泥処理においては、汚泥濃度を必要以上に高くすることでエアレーション効率・みかけの硝化活性の低下等の弊害が生ずる。
5) 本実験で凝集沈殿処理に用いた JMS は、内部の多孔板・傾斜管部に付着した生物膜の働きにより、固液分離装置としてだけでなく、バイオリアクターとして機能していた可能性がある。

謝辞

本実験は、科学技術振興事業団・戦略的基礎研究推進事業（CREST）の助成を受けた。また、現場での実験に関しては、札幌市下水道局創成川下水処理場の皆さんに格別のご配慮を頂きました。記して謝意を表します。

参考文献

1) Watanabe Y. and Iwasaki Y.: Performance of hybrid small wastewater treatment system consisting of jet mixed separator and rotating biological contactor. Water Science and Technology, Vol.34, No. 11,pp.51-58, 1996
2) 日高　平、津野　洋、宗宮　功、貫上　佳則、中本　正明：好気性ろ床を組み込んだ前凝集・生物膜プロセスの開発、土木学会論文集、No. 643/Ⅶ-14, pp.71-80, 2000
3) Watanabe Y., Fukui M. and Miyanoshita T.: Theory and Performance of a Jet – Mixed Separator, International Journal of Water Supply Research and Technology, Vol.39, No.6, pp.10-20, 1990
4) 笠原　伸介、渡辺　義公、小澤　源三、丹保　憲仁：噴流攪拌固液分離装置による固液分離の簡素化、水道協会雑誌、Vol. 65, No. 5, pp. 22-31, 1996
5) Kimura K., Watanabe Y. and Ohkuma N.: Filtration resistance and efficient cleaning methods of the membrane with fixed nitrifiers, Water Research, Vol. 34, No. 11, pp.2895-2904, 2000
6) 佐藤　久、岡部　聡、渡辺　義公：微小電極および FISH 法を用いた生物膜内アンモニア酸化細菌菌体密度分布および活性分布に及ぼす流入基質 C/N 比の影響評価、水環境学会誌、Vol. 22, No. 9, pp. 763-769, 1999
7) 北谷　道則、多田　実：実施設における硝化速度の解析、下水道協会誌論文集、vol. 34, No. 419, pp. 49-62, 1997