HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	オゾンによる汚泥減容化への膜分離方式の適用
Author(s)	小林, 琢也; 荒川, 清美; 田中, 俊博
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） . 7 水処理 . 7-4
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 9, 321-325
Issue Date	2001-11-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7195
Type	departmental bulletin paper
File Information	9-7-4_p321-325.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

7－4

オゾンによる汚泥減容化への膜分離方式の適用

小林 琢也○, 荒川 清美, 田中 俊博（株式会社 荏原製作所）

1.はじめに

活性汚泥処理において発生する余剰汚泥の処分は、埋立や焼却が行われている。しかし、近年処分地の減少や処理費の上昇などが問題となっており、余剰汚泥の発生量そのものを減少させる技術が注目を集めている。これは余剰汚泥を物理的、化学的手段により可溶化し液化した成分を生物処理槽で無機化することにより余剰汚泥の発生量を抑制するものである。様々な可溶化の手段が検討されているが、その中の一つとしてオゾンによる余剰汚泥の可溶化がある[1)]。筆者らは下水と食品工場廃水の活性汚泥処理に、オゾン汚泥減容化と膜分離方式を組み合わせたプロセスについて検討を行った。これらの検討から汚泥発生量や処理水水質、生物処理槽内の汚泥性状の変化について得られた知見について報告する。

2.実験装置および実験方法

本実験では、オゾン処理系（オゾン系）とオゾン処理を行わない対照系を同時に運転した。図1にオゾン系のフローを示す。また、オゾン系の運転条件を表 1 にまとめる。本実験では、固液分離方式、原水とオゾン反応槽の方式により実験期間を Run1～6 の 6 期間に分けた。

固液分離方式について Run1、2 は沈殿池方式、Run3～6 は膜分離方式を用いた。処理原水について Run1～Run4 は下水のみ、Run5 は下水と食品工場廃水を BOD 比 1:2 で混合した液、Run6 については食品工場廃水のみを生物処理槽に供給した。なお、本実験で用いた食品工場廃水は糖質が主成分で、繊維質や灰分は少ない廃水であった。また、Run2、3 ではオゾン反応槽に下水の一部（原水供給量の約 10%）を供給し、減容化特性への影響を検討した。

沈殿池方式の Run1、2 では、原水水量（Q）を約 14m^3/d として、硝化液の循環量は 2Q、返送汚泥量は 0.5Q に設定した。

膜分離は、Run3、4 では原水水量（Q）を約 14m^3/d、硝化液の循環量は約 2Q に設定した。Run5、6 では原水水量（Q）を 7.7～7.5m^3/d、硝化液の循環量を約 2Q に設定した。膜分離は中空糸膜モジュール（公称孔径 0.4 μ m、公称膜面積 42m^2）を硝化槽に浸漬し、13 分ろ過 2 分停止を 1 サイクルとして運転を行った。また、膜透過流速は、Run3、4 は約 0.4m/d、Run5、6 は約 0.2m/d に設定した。

オゾン処理は硝化液とイジェクタで供給したオゾンガスを混合することにより行った。処理汚泥量は Run1、2 で 4.9～5.3kg-SS/d、Run3、4 で 8.2～8.5kg-SS/d、Run5、6 で 3.8～4.4kg-SS/d となるようにオゾン反応槽に供給し、表 1 に示した割合でオゾンガスを注入した。なお、各 Run とも、オゾン系では実験期間中の排泥は行わず、対照系では MLSS を一定に保つように定期的な排泥を行った。

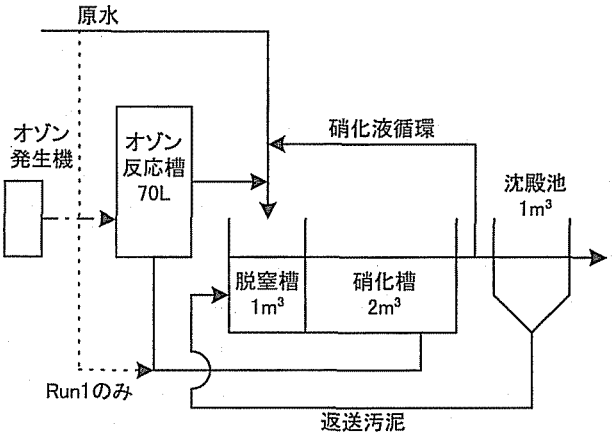

図1-1. オゾン系フロー（Run1, 2）

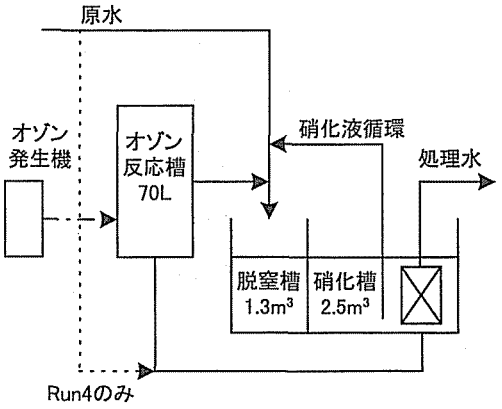

図1-2 オゾン系フロー（Run3～6）

表 1 オゾン系の実験条件

	固液分離	原水	生物処理槽			オゾン反応槽		
			原水供給量 (m^3/d)	MLSS (mg/L)	BOD-SS 負荷 (kg-BOD/kg-SS・d)	原水供給量 (m^3/d)	硝化液供給量 (m^3/d)	オゾン供給量 g/d
Run1	沈殿池	下水	13.9	5280	0.06	0.9	0.8	130
Run2	沈殿池		14.0	6010	0.07	なし	0.8	123
Run3	膜分離		14.1	9860	0.03	なし	0.8	135
Run4			14.0	10500	0.04	1.3	0.8	264
Run5		下水+工場廃水	7.7	5450	0.14	なし	0.8	251
Run6		工場廃水	7.5	5330	0.13	なし	0.8	126

3.実験結果

3.1.沈殿池方式(Run1、2)の結果

Run1、2 におけるオゾン系と対照系の水質と汚泥性状の平均値を表 2 に示す。SS は、オゾン系が対照系よりも約 2～7mg/L 少なくなった。COD は、Run1 では、オゾン系が対照系よりも約 1mg/L 高くなり、Run2 では、ほぼ同じであった。また、T-N についてオゾン系と対照系で顕著な差がなく、汚泥の硝化脱窒活性にオゾン処理は影響しないと考えられた。

表 2 Run1 と Run2 の水質と汚泥性状の平均値

水質項目 (mg/L)	Run1			Run2		
	原水	処理水		原水	処理水	
		オゾン系	対照系		オゾン系	対照系
SS	56.1	8.6	9.6	66.3	5.9	13.5
COD	44.7	11.7	9.8	44.9	11.0	10.5
BOD	72.0	4.3	3.4	82.5	4.7	4.0
NH_4-N	17.9	0.2	0.1	19.0	0.5	1.3
NOx-N	0.2	8.1	6.5	<0.1	5.7	5.8
T-N	25.7	10.4	8.2	27.1	8.4	9.3
T-P	2.7	2.8	2.6	2.7	2.4	2.6
	オゾン系汚泥	対照系汚泥		オゾン系汚泥	対照系汚泥	
MLSS	5280mg/L	4250mg/L		6010mg/L	5130mg/L	
MLVSS	3830mg/L	3280mg/L		4390mg/L	3850mg/L	
VSS/SS	70.4%	77.0%		73.0%	75.1%	

オゾン反応槽へ原水を分注した効果を評価するため、Run1 と Run2 のオゾン反応槽での処理結果を表 3 にまとめる。表 3 より、オゾン反応槽の入口と出口での NOx-N 濃度差を求めると、Run1；16.5mg/L、Run2；8.6mg/L であり、Run1 では原水と汚泥を混合し供給したことにより、原水の一部が硝化されたと考えられた。また、汚泥液化量(※1)は、Run1；750g/d、Run2；400g/d であり、オゾン処理汚泥量の 8～14%が液化した。

流出 SS を加味した累積 SS 量を図 2 に示す。Run1 の 8 月 30 日から 9 月 20 日まで(対照系の汚泥発生量が安定した区間)と Run2 の SS 発生量(kg/d)は、Run1 のオゾン系；0.28、対照系；0.72、Run2 では 0.25、0.72 であった。Run1 と Run2 では、オゾン系の汚泥発生量に差がなかったことから、減容化特性は、オゾン反応槽への原水供給の影響を受けないと考えられた。

また、オゾン消費量あたりの汚泥減少量(△SS/△O3)に換算すると、Run1；3.3kg-SS/kgO_3、Run2；2.9kg-SS/kgO_3 であり、この点においても下水をオゾン反応槽に供給した影響は見られなかった。

表 3 オゾン注入率と液化量の関係

	Run1 (原水+硝化液)		Run2 (硝化液)	
O_3 供給量	130		123	
オゾン処理汚泥量(g/d)	5300		4900	
SS 液化量(g/d)	750		400	
オゾン反応槽	入口	出口	入口	出口
NH_4-N(mg/L)	12.2	5.2	< 0.1	0.6
NOx-N(mg/L)	0.9	17.4	5.8	14.4

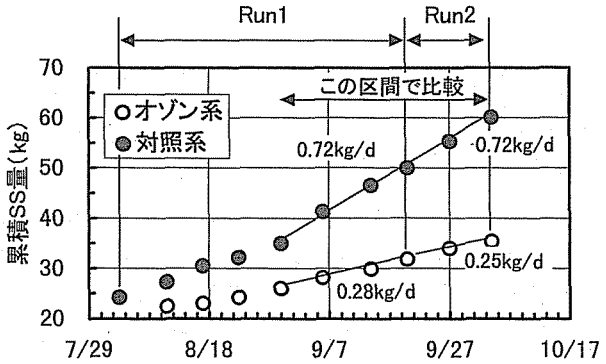

図 2 Run1、2 の汚泥量の経過

3.2.膜間差圧の経過(Run3～6)

図 3 に膜間差圧と膜透過流速の経過を示す。Run3、4 での膜透過流束は約 0.4m/d、Run5、6 では約 0.2m/d に設定した。膜間差圧について、Run3 の運転開始直後で約 6kPa であった。その後、膜間差圧は約 0.3kPa/d の割合で増加し、56 日後に 27kPa に達した。ここで次亜塩素酸ナトリウム溶液による薬品洗浄を行ったところ、膜間差圧は約 7kPa まで回復した。運転再開後は膜間差圧は約 0.4kPa/d の割合で増加し、約 30 日で 21kPa に達した。Run5 の実験区間では膜間差圧は 2～4kPa で推移した。Run6 では運転開始直後は約 6kPa であったのが約 40 日で 26kPa に達した。

3.3.Run3、4 の処理水質の結果

Run3 と Run4 の処理水水質の結果を表 4 にまとめる。処理水水質について、孔径 0.4 μm の中空糸膜を用いて膜分離したことにより、オゾン系、対照系とも SS は検出されなかった。COD について、各 Run ともオゾン系は対照系と比較して約 2～4mg/L 高くなった。膜分離方式(Run3、4)対照系は、沈殿池方式(Run1、2)対照系と比較して 3～4mg/L 水質の改善が見られた。一方、オゾン系については膜分離方式と沈殿池方式で COD 値の差は見られなかった。

BOD について、オゾン系、対照系とも 2mg/L 以下であり、沈殿池方式の処理水 BOD よりも改善が見られた。T-N についてはオゾン系、対照系に差はなく膜分離方式とオゾン処理を組み合わせたことによる脱窒への影響は見られなかった。

3.4.Run5、6 の処理水質の結果

Run5 と Run6 の処理水水質の結果を表 5 にまとめる。処理水水質について、オゾン系、対照系とも SS は検出されなかった。COD についてオゾン系は対照系と比較して約 6mg/L 高くなった。BOD

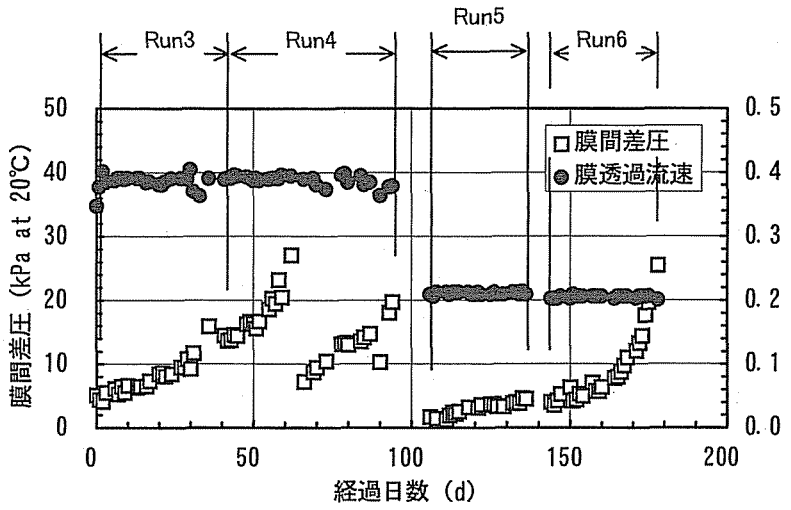

図 3 膜間差圧と膜透過流速の経過

表 4 Run3 と Run4 の水質と汚泥性状の平均値

水質項目(mg/L)	Run3			Run4		
	下水			下水		
	原水	処理水		原水	処理水	
		オゾン系	対照系		オゾン系	対照系
SS	74.2	N.D.	N.D.	75.0	N.D.	N.D.
COD	50.2	8.3	6.0	50.0	11.7	6.8
BOD	81.1	<1.0	<1.0	92.3	1.3	1.3
NH_4-N	20.9	0.6	0.2	25.2	1.4	1,3
NOx-N	0.1	12.4	13.6	0.2	19.9	23.8
T-N	29.5	13.8	14.3	35.6	22.7	25.5
T-P	2.9	2.5	2.3	3.4	2.8	2.5
	オゾン系汚泥	対照系汚泥		オゾン系汚泥	対照系汚泥	
MLSS	9860mg/L	7960mg/L		10500mg/L	7870mg/L	
MLVSS	7460mg/L	6290mg/L		8380mg/L	6330mg/L	
VSS/SS	76.7%	79.0%		77.9%	84.9%	

表 5 Run5～Run6 の水質と汚泥性状の平均値

水質項目(mg/L)	Run5			Run6		
	下水+工場廃水			工場廃水		
	原水	処理水		原水	処理水	
		オゾン系	対照系		オゾン系	対照系
SS	77	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
CODMn	236	14.7	8.3	237	9.7	3.7
BOD	270	1.1	<1	250	1.0	<1
S-BOD	210	-	-	-	-	-
NH_4-N	18.6	0.2	<0.1	16.4	2.8	1.7
NOx-N	0.2	4.3	5.4	1.4	0.9	0.2
T-N	27.1	7.1	6.6	19.4	5.0	2.4
T-P	2.9	1.7	0.2	3.9	2.4	0.6
	オゾン系汚泥	対照系汚泥		オゾン系汚泥	対照系汚泥	
MLSS	5450mg/L	3960mg/L		5330mg/L	6440mg/L	
MLVSS	4170mg/L	3380mg/L		4540mg/L	5710mg/L	
VSS/SS	76.6%	85.6%		85.0%	88.4%	

は両者とも 2mg/L 以下であった。T-N についてはオゾン系、対照系に差はなくオゾン処理による脱窒への影響は見られなかった。

3.5.Run3～6 における汚泥発生量

図 4 に Run3～6 までの SS の経過を示す。Run3 と Run4 の SS 発生量(kg/d)は、Run3 オゾン系；0.42、対照系；0.71、Run4 オゾン系 0.36、対照系 0.87 であった。これらをオゾン消費量当たりの汚泥減少量(△SS/△O_3)に換算すると、Run3(原水供給なし)；2.2kg-SS/kg-O_3、Run4(原水供給あり)；1.9kg-SS/kg-O_3 であり、下水をオゾン反応槽に供給した影響は見られなかった。

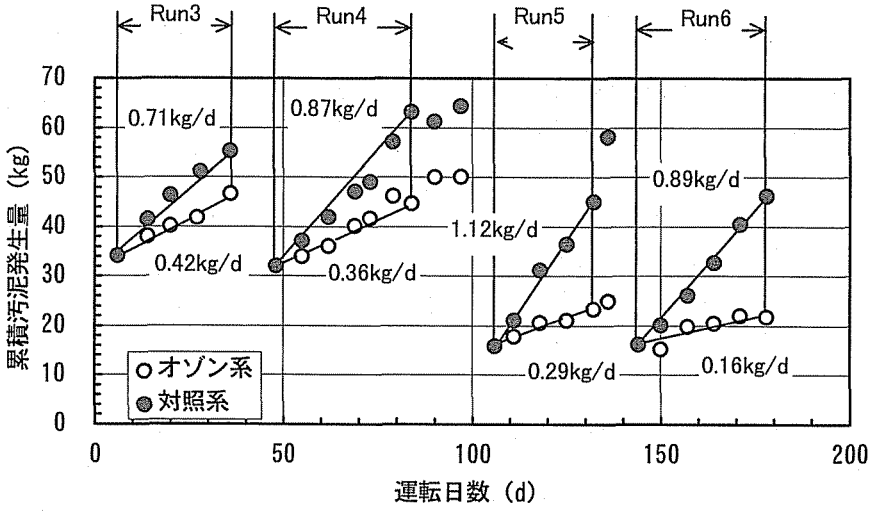

図 4 汚泥(SS)発生量の経過

Run5、6 におけるオゾン系と対照系の汚泥発生量は Run5 で 0.29、1.12、Run6 で 0.16、0.89 であった。これをオゾン消費量当たりの汚泥減少量に換算すると、Run5；3.3kg-SS/kg-O_3、Run6：5.8kg-SS/kg-O_3 となり、下水のみの Run3、Run4 よりも△SS/△O_3 が高くなった。以上の結果から食品工場廃水の割合が高くなるほど減容化され易くなると考えられた。

3.6.固液分離方式の汚泥減少量への影響

沈殿池方式(Run1、2)と膜分離方式(Run3、4)で、オゾン消費量当たりの汚泥減少量(△SS/△O_3)を比較すると、Run3、4(1.9～2.2kg-SS/kg-O_3)では Run1、2(2.9～3.3kg-SS/kg-O_3)と比較して約 1kg-SS/kg-O_3 減少しており、膜分離方式では沈殿池方式と比較して汚泥が減少しにくい傾向が見られた。

そこで、この原因を検討するため、Run1(沈殿池方式)と Run4(膜分離方式)の SS 発生量の内訳を検討した(図 5)。本発表では、SS を微生物(※2)、灰分(SS から VSS を引いたもの)、非生物 VSS(VSS から微生物量を引いたもの、繊維質など)の 3 成分に分けた。

微生物発生量(kg/d)は、Run1 のオゾン系；0.09、対照系；0.28、Run4 では 0.06、0.44 であった。オゾン処理により発生量は、それぞれ 68%、86%減少し、汚泥中の微生物が効率よく減容化したと考えられた。灰分発生量(kg/d)は、Run1 では、オゾン系；0.08、対照系；0.12、Run4 では 0.17、0.12 であった。Run4 においてオゾン系の灰分発生量は、対照系よりも多く、灰分の蓄積が生じた。また、非生物 VSS 発生量(kg/d)は、Run1 のオゾン系；0、対照系；0.14 とオゾン系は 100%減少したが、Run4 では 0.13、0.31 と対照系の約 50%の減少にとどまった。

Run4 の汚泥について元素分析を行ったところ、オゾン系汚泥は、対照系汚泥より Al、Ca と Fe の割合が高くなった。これらから、膜分離方式を用いた場合、系内に非生物 VSS と灰分が蓄積し、減容化効率が低下する原因となることが考えられた。

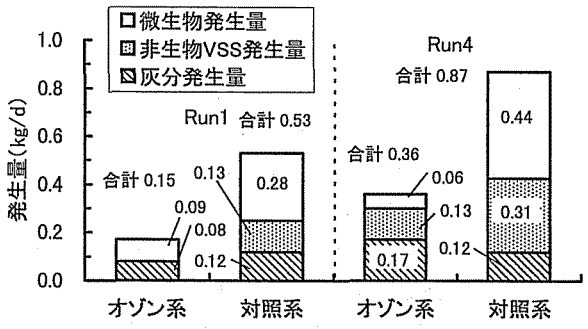

図 5 Run1 と Run4 における汚泥発生量の内訳

3.7.原水の汚泥減容化への影響

食品工場廃水を処理した Run5、6 のオゾン消費量当たりの汚泥減少量(3.3～5.8kg-SS/kg-O_3)であり、下水のみの Run3、Run4(1.9～2.2kg-SS/kg-O_3)と比較すると、食品工場廃水の割合が高くなるほど減容化され易くなった。

そこで、Run5、6 についても汚泥成分を微生物、非生物 VSS および灰分の 3 成分に分けてそれぞれの発生量を求めた(図 6)

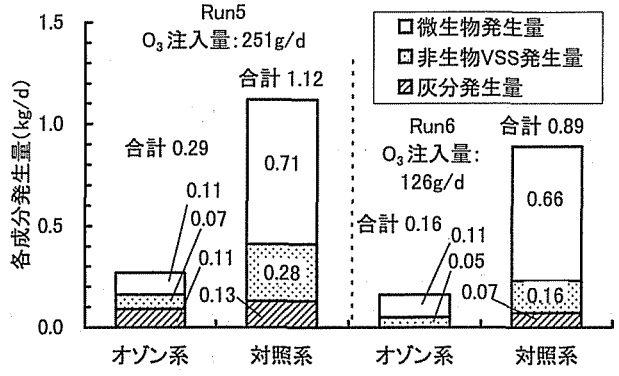

図 6 Run5、6 の汚泥発生量の内訳

図 6 より、微生物発生量(kg/d)は、Run5 のオゾン系;0.09、対照系;0.71、Run6 では 0.11、0.66 であった。オゾン処理により微生物発生量は、それぞれ 85%、83%減少し、汚泥中の微生物は効率よく減容化したと考えられた。非生物 VSS については Run5 のオゾン系;0.07、対照系;0.28、Run6 では 0.05、0.06 であり、減少率は Run5;69%、Run6;75%であった。一方、灰分発生量(kg/d)は、Run5 では、オゾン系;0.11、対照系;0.13、Run6 では 0.00、0.07 であり、減少率は Run5;31%、Run6;100%となった。オゾン注入量は Run6 が Run5 の約半分であるが、微生物と非生物 VSS の減少率はほぼ同じであり、灰分については Run6 の減少率が高くなった。

本実験で用いた食品工場廃水の主成分は生分解されやすい糖質で、沈殿するような金属類をほとんど含まない。Run3、4 と比較して Run5 や Run6 の減容化効率が高くなったのは、食品工場廃水が主成分の Run5 や食品工場廃水のみを処理した Run6 において、Run3、4 でみられた下水由来の灰分や繊維質の蓄積が、起きなかったためと考えられた。

3.8.汚泥減少量と処理水 COD の関係

処理水水質について、BOD や SS はオゾン系と対照系で同等であるのに対し、COD はオゾン系が対照系よりも悪化する傾向が見られた。そこで、液化処理による水質への影響を検討するため、汚泥減少量と溶解性 COD(S-COD)増加量の比を求めた。結果を表 6 に示す。本実験ではオゾン処理により汚泥減少量の約 5～14%にあたる溶解性 COD 成分が処理水に流出した。また、系内汚泥量に対して 0.1～0.2%が溶解性 COD として流出した。これら溶解性 COD 成分の増加は活性汚泥に吸着していた難分解性の有機物類が液化処理工程により脱着したものと考えられた。

Run3、4(下水処理)と Run5、6(食品工場廃水処理)では、前者の溶解性 COD 成分増加量/汚泥減少量の比が後者より 6 ポイント高い結果となった。これは原水の違いにより、食品工場廃水では難分解性物質が少なく、汚泥中への難分解性物質の蓄積が少ないため、汚泥減少量に対する溶解性 COD 成分の増加量が少なくなったと考えられた。

表 6 汚泥減少量と S-COD 排出量

	Run1	Run2	Run3	Run4	Run5	Run6
汚泥減少量(kg/d)…①	0.44	0.47	0.29	0.51	0.83	0.73
S-COD 増加量(g/d)…②	27.8	23.8	32.4	68.6	49.3	45.0
②/①(%)	6.3	5.1	11.2	13.5	5.9	6.2
系内汚泥量(kg)…③	15.8	18.0	37.5	39.9	20.7	20.3
②/③(%)	0.18	0.13	0.09	0.17	0.24	0.22

S-COD 増加量はオゾン系と対照系の処理水 S-COD の差に 1 日あたりの平均水量をかけて求めた

4.結論

1)硝化槽汚泥の一部をオゾン処理することにより、減容化が可能であった。また、汚泥減少量は、汚泥と原水を混合してオゾン処理したことの影響を受けなかった。

2)オゾン反応槽に下水を供給し、オゾン処理することにより、硝化反応が促進された。

3)オゾン減容化と膜分離方式を組み合わせた下水処理において、本実験では、約 2 ヶ月間、膜の薬品洗浄を行わずに連続運転が行えた。ただし、オゾン処理されにくい灰分や非生物 VSS 成分が系内に蓄積し、減容化効率が低下する傾向があった。

4)灰分含率がほとんどない食品廃水にオゾン汚泥減容化を適用した場合、オゾン消費量当たりの汚泥減少量が高く、減容化されやすいと考えられた。

5)オゾン汚泥減容化処理により系内汚泥量に対して 0.1～0.2%が溶解性 COD として流出した。

※1 汚泥液化量は以下の式から算出した。

$$\text{汚泥液化率} = \frac{(\text{処理後の溶解性成分}) - (\text{処理前の溶解性成分})}{(\text{処理前のSS性+溶解性成分}) - (\text{処理前の溶解性成分})}$$

※2 微生物量は、活性汚泥微生物の細胞質を $C_5H_7NO_2$(分子量:113)と仮定し、系内の有機窒素量から換算し求めた。

1)小林, 第 37 回下水道研究発表会講演集, 671, 2000