



Title	下水再利用のための処理技術の特性比較-促進酸化処理法と膜処理法-
Author(s)	穴田, 健一; 煙崎, 正之; 奥田, 正彦 他
Description	第7回衛生工学シンポジウム (平成11年11月11日 (木) -12日 (金) 北海道大学学術交流会館) . 7 水処理 2 . 7-3
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 7, 242-247
Issue Date	1999-11-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7300
Type	departmental bulletin paper
File Information	7-7-3_p242-247.pdf



7-3

下水再利用のための処理技術の特性比較
—促進酸化処理法と膜処理法—

(株) タクマ ○ 穴田健一、煙崎正之、奥田正彦、春木裕人

1. はじめに

日本における年平均降水量は 6,500 億 m^3 であり、全人口で除すと約 $5,200 m^3$ /年・人で世界平均の約 1/5 しかなく、必ずしも水資源が豊富であるとはいえない。水資源開発は継続的に行われているが、環境への影響に対する配慮などから水資源開発自体が問題視される場合も多く、また農薬類や有機塩素化合物などの微量汚染物質による水源汚染の問題により、新たな水源の確保は困難になってきている。このような状況下、水資源は有限であるとの認識が高まり、水の再利用が重要視されつつある。

下水処理水量は晴天時の日平均で約 3000 万 m^3 /日であり、都市域において安定した水資源として親水用水・修景用水・中水道・雑用水などの多くの分野への適用が図られている。しかし、現在下水処理水を再利用しているのは、下水処理場の内外を含めて約 250 万 m^3 /日であり、全処理水量の 8% 程度が再利用されているにすぎない。したがって、今後下水処理水を再利用する動きは活発化するものと考えられる。

水を再利用する場合、水質基準もしくは指針値などとして、水道水質、親水用水、修景用水、散水用水、工業用水などの基準が示されており、用途に応じてこれらの基準を満足することが望まれる。現状の下水の再利用用途は、処理場内で消泡水などに使用されている例や処理場外で散水用水などに使用されている例が多く、下水二次処理水や放流水をそのままもしくは比較的簡易な処理で再利用可能な用途が多い。しかし、親水用水などとして再利用する場合には、現状の二次処理水では水質基準を満たすことができない場合があり、下水再利用のためにその用途に応じた処理が必要となる。

以上のようなことから、演者らは下水処理水の再利用を目的とした技術のうち、比較的高度な処理法として膜処理および促進酸化処理（オゾン/過酸化水素法）の適用性を実験的に検討し、一昨年に本シンポジウムにおいて結果の一部を報告した。本報では、さらにこれらの処理法の処理効果を比較し、処理法とその用途について検討した結果を報告する。

2. 実験装置および実験方法

実験装置のフローシートを Fig.-1 に、各装置の仕様および実験条件を Table-1 に示す。なお、実験装置は某流域下水道の処理場内に設置した。

実験においては、移床式砂ろ過器を促進酸化処理および膜処理の前処理として用いるフローとした。これは、促進酸化処

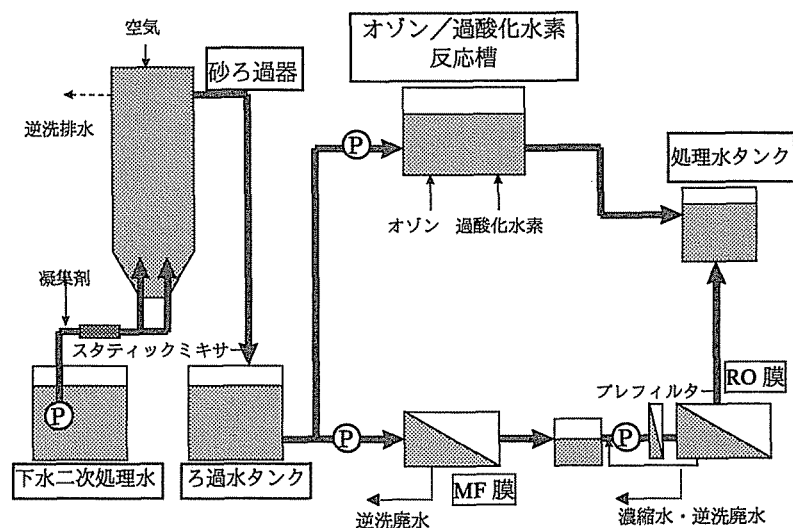


Fig.-1 実験装置フローシート

Table-1 実験装置仕様と実験条件

	砂ろ過器	促進酸化	MF 膜	RO 膜
計画水量	200 m ³ /d	20 m ³ /d	7 m ³ /d	4 m ³ /d
実験水量	200 m ³ /d	20 m ³ /d	7.2 m ³ /d	3.4 m ³ /d
形式	移床式上向流	直列 4 段	外圧中空糸膜	スパイラル膜
その他仕様	円筒型 ろ過面積 1.0 m ² 砂約 1 mmφ 連続逆洗	反応槽容積：0.6 m ³ 気液向流接触	膜素材：PP 孔径：0.2 μm 膜面積：4 m ² 膜本数：4 全量ろ過方式	膜素材：PVA 塩排除率：93% 膜面積：6.7 m ² 膜本数：1 クロスフローろ過方式
実験条件	ろ過回収率：90%	オゾン注入率 30 mg/l 過酸化水素添加量 2 mg/l	FLUX：1.8 m/d 回収率：90% 逆洗間隔：20 分	FLUX：0.5 m/d 回収率：50% 逆洗間隔：30 分

理では SS が混入することにより効率が大幅に低下すること、および膜処理では逆洗浄の頻度が大きくなることの防止を意図している。

実験では下水二次処理水（最終沈殿池流出水、塩素混和前）を水中ポンプで揚水し、凝集剤注入設備を備えた移床式上向流砂ろ過器に供給した。砂ろ過器において処理された水は、ろ過水タンクから促進酸化装置、MF 膜装置の 2 系列にそれぞれ供給され、さらに MF 膜処理水を RO 膜装置に供給する処理システムとした。

砂ろ過器はろ過速度 200m/日とし、凝集剤としては PAC を 1 mg-Al/l 添加した。促進酸化処理は比較的適用範囲が広いとされるオゾン/過酸化水素処理法を適用し、直列 4 段の反応槽を有し、各段においてオゾンおよび過酸化水素を添加する装置とした。これはオゾン/過酸化水素処理法の場合には、直列多段式反応槽とした方が 1 段の反応槽の場合よりも、同じオゾン注入率および過酸化水素添加量で効率の高い処理が可能となるためである。MF 膜装置は孔径 0.2 μm、1 m² × 4 本の中空糸膜で構成され、全量ろ過方式で空気による逆洗浄を一定時間ごとに行い、圧力が 1 kg/cm² を越えた場合に薬液洗浄を行った。RO 膜装置については 1.0 μm のプレフィルタを設置し、塩排除率 93%、6.7 m² × 1 本のルーズスパイラル膜で構成され、クロスフロー方式で逆洗を 30 分ごとに行い、圧力上昇の場合に薬液洗浄を行った。

3. 実験結果および考察

3-1 各処理水質の比較

1) 一般水質指標

各処理法による処理水質の一覧を Table-2 に示す。なお、Table-2 には併せて散水用水、工業用水、修景用水、親水用水および水道水質基準を示した。

砂ろ過処理では主に濁度、SS、BOD およびリンが除去され、窒素化合物の亜硝酸態・硝酸態窒素への酸化も行われている傾向となった。なお、Table-2 では色度も大幅に低下している結果となったが、Table-3 のように定期的に採取したデータでは砂ろ過による色度の低下傾向は認められなかった。また、リンが除去されているのは、PAC を添加したことが原因であると考えられる。

Table-2 各処理法による処理水質一覧と各種基準（一部抜粋）

	原水	砂ろ過処理水	MF膜処理水	RO膜処理水	オゾン/過酸化水素処理水	散水用水基準	工業用水基準	修景用水基準	親水用水基準	水道水質基準
pH (-)	7.4	7.4	7.4	6.9	7.3	5.8~8.6	6.5~8.0	5.8~8.6	5.8~8.6	5.8~8.6
濁度 (-)	6	1.5	<1	<1	<1		<20	<10	<5	<2
色度 (-)	24	12	8	<2	<2			<40	<10	<5
SS(mg/l)	8	<1	<1	<1	2					
TDS(mg/l)	280	290	300	160	320		<250			
BOD ₅ (mg/l)	2.1	1.0	<1	<1	1.2			<10	<3	
COD _{Mn} (mg/l)	9.6	7.6	6.1	<1	3.7					
KMnO ₄ 消費量(mg/l)	24	18	14	1.4	8.1					<10
TOC(mg/l)	7.5	5.5	4.3	0.9	4.2					
MBAS(mg/l)	0.04	0.02	0.03	<0.01	<0.01					<0.2
硬度(mg/l)	70	69	70	15	70		<120			<300
NH ₄ ⁺ -N(mg/l)	<0.05	<0.05	<0.05	<0.05	<0.05					
NO ₂ ⁻ -N(mg/l)	<0.01	0.08	0.09	0.21	<0.01					} <10
NO ₃ ⁻ -N(mg/l)	4.2	4.6	4.4	3.9	5.0					
T-N(mg/l)	6.3	6.1	5.7	4.5	6.0					
T-P(mg/l)	0.32	0.09	0.02	<0.02	0.13					
Cl(mg/l)	50	52	52	29	52		<80			<200
総鉄(mg/l)	0.19	0.04	0.02	<0.01	0.09		<0.3			<0.3
総マンガン(mg/l)	0.04	0.03	0.03	<0.01	0.03		<0.2			<0.05
Ca(mg/l)	21	21	21	4.3	21					
Na(mg/l)	44	44	44	23	44					<200
Si(mg/l)	11	11	11	8.3	11					
SO ₄ (mg/l)	25	25	26	2.1	28					
Al(mg/l)	<0.05	0.26	<0.05	<0.05	0.24					
残留塩素(mg/l)						<0.4				
一般細菌数(個/100ml)	4.9×10	3.8×10	N.D.	N.D.	N.D.					<10000
大腸菌群数(個/100ml)	N.D.	4.2×10	N.D.	N.D.	N.D.			<1000	<50	N.D.

散水用水基準 建設省「下水処理水循環利用技術指針（案）」 S56.3
 工業用水基準 工業用水道事業施行令 S33.10
 修景用水基準 建設省「下水処理水の修景・親水利用水質検討マニュアル（案）」 H2.3
 親水用水基準 建設省「下水処理水の修景・親水利用水質検討マニュアル（案）」 H2.3
 水道水質基準 厚生省 水道法（改正） H4.12

MF 膜処理では、濁度、BOD、一般細菌・大腸菌が顕著に低減され、COD_{Mn}、TOC が若干減少している結果となった。RO 膜処理では色度、TDS、COD_{Mn}、KMnO₄ 消費量、TOC、MBAS、硬度、リン、一般細菌・大腸菌および各無機物が低減されているが、窒素の除去効果は低い結果となった。オゾン/過酸化水素処理では、色度、COD_{Mn}、KMnO₄ 消費量、TOC、MBAS、および一般細菌・大腸菌の低減効果が認められた。しかし、各水質指標の低減効果は RO 膜処理とほぼ同等もしくはそれ以下であった。なお、無機物の除去は行われていない結果となった。

再利用水の基準と各処理水質を比較した結果を Table-4 に示す。散水用水基準には Table-2 以外にも“臭気・外観が異常でないこと”という項目があるが、塩素による殺菌が行われていれば二次処理水でも問題なく使用できると考えられる。工業用水は無機物に関する基準が主であるため、RO 膜処理水以外は下水処理水質に依存する。本実験で検討した下水処理場の場合は TDS が工業用水基準を超過しており、RO 膜処理水のみが基準を満足していることが認められた。修景用水としては、二次処理水の BOD 平均値が約 10 mg/l であったことから、砂ろ過処理水を用いることが適当と考えられる。親水用水では色度が問題となり、砂ろ過処理水、MF 膜処理水では基準を満足していない。水道水質基準は上記の水質項目以外に微量金属類や有害物質などを考慮する必要があるが、Table-2 に示した水質項目ではオゾン/過酸化水素処理水、RO 膜処理水が基準とほぼ同等以上の水質となっていることが認められた。なお、オゾン/過酸化水素処理では窒素はほぼ硝酸に酸化されてそのまま水中に残留するため、原水中の窒素分が十分に

Table-3 色度の平均値

	平均値(度)
原水	22
砂ろ過処理水	21
MF膜処理水	20

Table-4 再利用水基準と処理水質の比較

	原水	砂ろ過処理水	MF膜処理水	RO膜処理水	オゾン／過酸化水素処理水
散水用水基準	○*	○*	○*	○*	○*
工業用水基準	△	△	△	○	△
修景用水基準	△**	○**	○	○	○
親水用水基準	×	×	×	○	○
水道水質基準	×	×	×	○	○

※ 塩素消毒が必要

※※ 消毒が必要な場合有り

低減されていることが必要となる。

2) 微量汚染物質の除去効果

下水処理水の再利用を行う場合、微量汚染物質が問題となる可能性がある。例えば親水用水の場合、親水中で経口的に摂取する可能性がある水の毒性は、その摂取量や作用量などを考慮する必要があるが、低い方が好ましいことは明らかである。

そこで本研究では、微量汚染物質の一つとして内分泌攪乱化学物質に注目し、各処理法における内分泌攪乱化学物質の除去能を検討した。なお検討方法としては、遺伝子組み替え酵母によりヒトエストロゲン様物質の総量を測定する yeast estrogen screen 法、およびヒトエストロゲンである 17β Estradiol を抗原抗体反応を利用して選択的に検出する ELISA 法（または EIA 法；Enzyme-linked immunosorbent assay）を用いた。結果を Fig.-2 に示す。

砂ろ過処理では、yeast estrogen screen 法による測定で約 35%の除去率を示したが、ELISA 法による測定では除去されていない結果となった。また MF 膜処理でも、ELISA 法による測定では除去効果はなく、yeast estrogen screen 法による測定では砂ろ過処理よりも増加している結果となった。RO 膜処理およびオゾン／過酸化水素処理では、yeast estrogen screen 法、ELISA 法の両者の測定結果が高い除去率を示し、とくにオゾン／過酸化水素処理の方が除去効果が優れている結果となった。

yeast estrogen screen 法および ELISA 法の測定結果が、RO 膜処理よりもオゾン／過酸化水素処理の方が高い除去率となったことは、これら微量汚染物質は物理的に阻止するよりも、化学的にその一部を酸化して有害性を低減させる方が、効果が高い場合もあることを示唆している。

なお、オゾン／過酸化水素法における反応生成物の毒性については、上記のように内分泌攪乱化学物質は問題なく、また Microtox 試験による急性毒

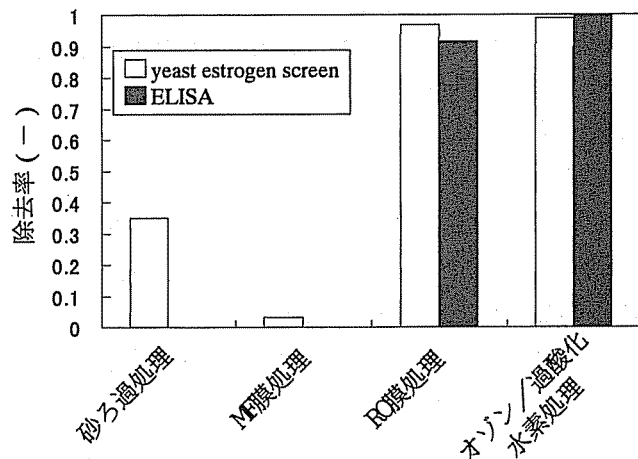


Fig.-2 内分泌攪乱化学物質の各処理法による除去率

性試験、Ames 試験、umu 試験および Rec-assay による変異原性試験でも RO 膜処理水と同等であったことから問題のない範囲であると予想される。

3-2 運転費用

MF 膜処理、RO 膜処理およびオゾン/過酸化水素処理のランニングコストを比較した結果を Fig.-3 に示す。ランニングコストで比較した場合、オゾン/過酸化水素処理法が最も低い結果となった。

膜処理では、MF 膜処理は膜交換費の占める割合が高く、RO 膜処理ではそれに加えて電気代が高くなっている。これは、RO 膜処理を行うために高圧ポンプが必要になり、この消費電力が高いためである。オゾン/過酸化水素処理では電気代の占める割合が大きいが、これはオゾン発生器による消費電力が大きいが原因である。

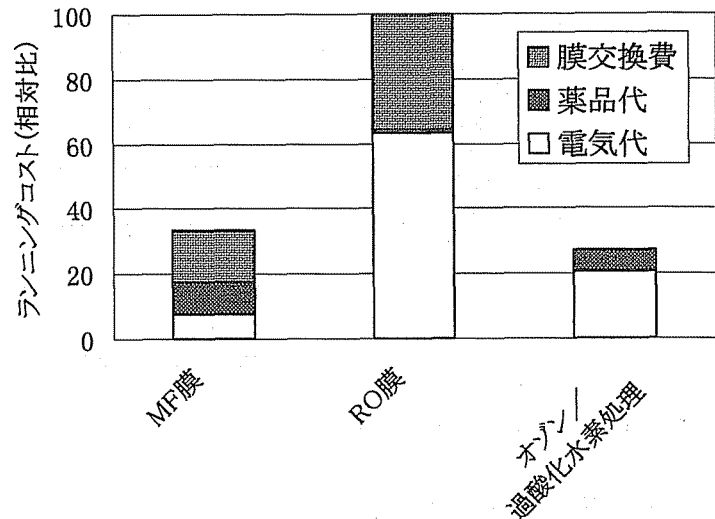


Fig.-3 各処理法のランニングコストの比較

では電気代の占める割合が大きいが、これはオゾン発生器による消費電力が大きいが原因である。

以上のように、処理水質のみに注目した場合は RO 膜処理が最も清澄な処理水が得られ、再利用用途としても広いと考えられる。しかし、オゾン/過酸化水素処理法は有機物や色度・臭気の低減が主目的であり、また微量汚染物質の影響を低減させることが好ましい場合には、最もランニングコストが低く、かつ効果の高い処理方法であると考えられる。

4. まとめ

本研究では、下水処理水の再利用を目的とした技術のうち、比較的高度な処理法として膜処理、および促進酸化処理（オゾン/過酸化水素法）の適用性を、下水処理場に実験プラントを設置して検討した。結果をまとめると、以下のようなになる。

- ① MF 膜処理では、濁度、BOD、一般細菌・大腸菌が顕著に低減され、COD_{Mn}、TOC が若干減少していた。
- ② RO 膜では色度、TDS、COD_{Mn}、KMnO₄ 消費量、TOC、MBAS、硬度、リン、および各無機物が低減されているが、窒素の除去効果は低かった。
- ③ オゾン/過酸化水素処理では、色度、COD_{Mn}、KMnO₄ 消費量、TOC、MBAS および一般細菌・大腸菌の低減効果が認められたが、RO 膜処理とほぼ同等もしくはそれ以下の低減効果であり、無機物の除去効果はなかった。
- ④ 散水用水は塩素による殺菌が行われていれば二次処理水でも使用することができ、工業用水は無機物に関する基準が主要であるため、RO 膜処理水以外は下水処理水質に依存すると考えられた。また、修景用水としては、砂ろ過処理水を利用することが可能であり、オゾン/過酸化水素処理水、RO 膜処理水のみが親水用水基準を満足し、水道水質基準とほぼ同等の水質となっていた。
- ⑤ 砂ろ過処理、MF 膜処理では内分泌攪乱化学物質の除去効果は低く、RO 膜処理およびオゾン/過酸化水素処理で高い除去率を示し、とくにオゾン/過酸化水素処理法の方が除去効果

が優れている結果となった。

- ⑥ MF 膜処理、RO 膜処理およびオゾン／過酸化水素処理のランニングコストを比較すると、オゾン／過酸化水素処理法は最も低かった。したがって、オゾン／過酸化水素処理法は有機物や色度・臭気の低減が主目的であり、また微量汚染物質の影響を低減させることが好ましい場合には、最もランニングコストが低く、かつ効果の高い処理方法であると考えられた。

謝辞

本研究を実施するにあたり、yeast estrogen screen 法および ELISA 法の実施に関し、京都大学大学院工学研究科附属 環境質制御研究センター 松田知成助手に御尽力いただきましたことをここに御礼申し上げます。また、ご協力いただいた関係者各位に深く感謝いたします。

参考文献

- ・日本オゾン協会(1999)都市における水再生、循環システムへのオゾン利用に関する調査研究、平成 10 年度河川整備基金助成事業報告書
- ・(社)日本下水道協会(1998)平成 8 年度版下水道統計 行政編、p1226-1273
- ・山田春美、越後信哉、松井三郎(1996)オゾン／真空紫外線処理とオゾン／過酸化水素処理の諸特性とその比較、PPM、No.12、p16-21
- ・穴田健一、越後信哉、山田春美、松井三郎(1999)オゾン／過酸化水素法における TOC 除去に関する操作因子の影響と高効率システムの構築に関する検討、水環境学会誌、Vol.22、No.3、p199-205
- ・E.J.Routledge, J.P.Sumpter (1996) Estrogenic activity of surfactants and some of their degradation products assessed using recombinant yeast screen, *Environmental Toxicology and Chemistry*, 15(3), 241-248
- ・穴田健一、煙崎正之、春木裕人、山田春美他(1998)下水二次処理水を対象とする高度処理法のバイオアッセイによる評価、環境衛生工学研究、12(3)、p230-233