HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	分離膜・生物膜一体型リアクターの開発
Author(s)	木村, 克輝; 渡辺, 義公; 大熊, 那夫紀
Description	第3回衛生工学シンポジウム（平成7年11月9日（木）-10日（金） 北海道大学学術交流会館） . 1 水処理、廃棄物処理 . 1-1
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 3, 1-6
Issue Date	1995-11-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7872
Type	departmental bulletin paper
File Information	3-1-1_p1-6.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

１－１　分離膜・生物膜一体型リアクターの開発

○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、水処理の様々な分野で分離膜（膜）の導入が検討されている。膜は、従来の濾過池に比してかなり精密な懸濁性分の濾過が可能であるばかりでなく、操作の簡便性、装置のコンパクトさなどのメリットを持つ反面、溶解性成分は膜単独では除去が出来ないということが明らかになってきている。上水道で膜を導入した場合、問題となる物質としてはアンモニア性窒素（NH_4^+-N）が挙げられる。NH_4^+-Nは塩素注入量増加を引き起こして消毒副生成物の生成量を増やし、カルキ臭の原因物質といわれるクロラミンを形成する。

汚濁の進んだ河川では、既にNH_4^+-Nが問題となっている。NH_4^+-Nは、現行の凝集・沈殿プロセスでは全く除去されないので、回転円板や生物活性炭といった生物処理プロセスを付加することで対応している。これらの固着性微生物を用いた方法は既に実用化の例もあり、一応の成果をあげている。しかし、上水道の場合、希薄濃度のNH_4^+-Nを対象とすることから、濃度勾配によるNH_4^+Nの移動速度が小さく、充分な処理が行われないことが多い。また、急速濾過池の後段に生物活性炭を配する場合は、活性炭から剥離・漏出する微生物・有機物等も問題となる。

近い将来、上水道に膜が導入されたとしても、NH_4^+-Nは膜では除去できない。今後、さらに水源の汚染が予想される現状を考えると、膜が導入される時点ではかなりの浄水場でNH_4^+-Nへの対応が必要になっていると思われる。そこで、本研究では膜分離と生物処理を単一反応槽で行い、膜分離とNH_4^+-Nの硝化を同時に行うリアクターを提案する。

2. 実験方法

実験には回転平膜モジュールを用いた[1)]。図-1に構造を示す。円板形の支持材の両面に膜を張り合わせ膜ディスクとし、中央部を軸に固定している。吸引により膜面で分離された水はディスク内を通り、軸内に集水される。このモジュールは二軸で一つのモジュールを構成しており、膜ディスクと膜ディスクの間に他軸の膜ディスクを噛み合わせた構造となっている。これらの軸を駆動部である電動機と連結させ膜ディスクを回転させる構造である。膜材質はポリスルホン、分画分子量750000のUF膜を用いた。膜分離槽の中に微生物群を投入し、ろ過を行えば膜表面に微生物が堆積し、生物膜の形成が予想される。

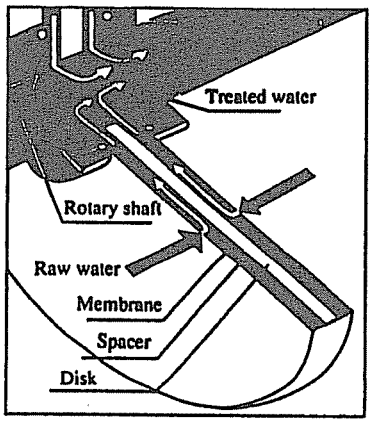

図-1　回転平膜構造図

本学市水に塩化アンモニウム、無機炭素を主体とする基質を混合した水をろ過原水として実験を行った。ろ過流量はインバータ制御により一定の流量が確保できるようになっている（定流量運転）。槽内水位が膜分離槽内水位と常に等しくなっている水量調整層を通してろ過原水を膜分離槽内に注入することにより、ろ過流量と全く同量の原水が膜分離槽に補充されるので、膜分離槽内からのオーバーフローは発生しない。NH_4^+-Nの硝化に必要な酸素を補給するため、膜分離槽内でエアレーションを行った。ろ過流量、膜回転数は任意の値に設定が可能である。水温、pHの調整は特別行っていない。水温は15度～25度の範

囲で変化し、膜分離槽内のpHは実験期間を通じてほぼ中性であった。

3. 実験結果

3-1 FLUX=0.5m/dの実験 (RUN1)

膜分離槽内に札幌市創成川下水処理場より採取した活性汚泥を約1000mg/l (MLSS換算) 投入し、前述した原水を用いて連続ろ過実験を開始した。設定FLUXは1m/d、膜回転数は210rpmである。膜分離槽からのオーバーフローがないこと、また膜は微生物程度の粒子は完全に抑止することから、膜分離槽内に投入した活性汚泥は槽内に滞留し続ける。

200時間ほど運転を継続したところで吸引圧力は約40kPaまで上昇し、膜面に微生物の付着が認められた。この付着した微生物のみでNH_4^+-Nの硝化が起こるかどうかを調べるため、膜分離槽内から浮遊微生物を排出し、膜面に微生物を付着させたまま運転を開始した。すでに微生物の付着により膜透過性能が低下した状態であること、膜面に付着した微生物の量は多くはなく、HRTを増やしてやらないと十分な硝化が期待できないことから設定ろ過流量を0.1L/min. (FLUX=0.5m/d) と低めに設定した。また、付着微生物の剥離を抑えるため、膜回転数も50rpmと低い値に設定して運転を開始した。

処理水質の経時変化を図-2に示す。運転開始当初は付着生物膜内で硝化菌が十分に生育していなかったため、NH_4^+-Nの硝化は僅かしか起こらなかったが、運転継続につれて膜透過水中のNH_4^+-N濃度は減少してゆき、硝化のパターンも亜硝酸型から硝酸型へ推移していった。このときのHRTは約100分である。運転開始後10日間を過ぎるあたりから硝化形式は完全に硝酸型となっており、数mg/L程度のNH_4^+-Nであれば完全に硝酸まで硝化できる。

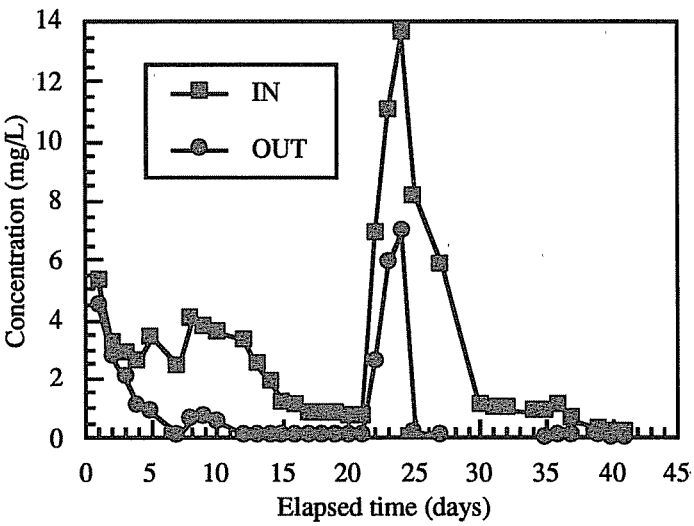

図-2 アンモニア性窒素濃度経時変化(RUN1)

1mg/L未満の低濃度NH_4^+-Nの硝化がほぼ完全に起こっている。既存の生物膜処理では、NH_4^+-N濃度が低く生物膜近傍の濃度勾配が小さい場合は、生物膜への水量負荷(FLUX)を極めて低く保たなければ十分な硝化は期待できない。本実験ではNH_4^+-Nの移動を膜ろ過に伴う移流で確保したために500l/dのFluxにおいても、良好なNH_4^+-N除去が行われたものと思われる。

膜は、運転継続につれてその透過性能が低下するため、長期の連続運転に際しては何らかの洗浄を行い、透過性能を回復させる必要がある。一般的によく用いられる洗浄方法としては運転を継続しながら30分程度の間隔で行う逆圧洗浄と、運転を停止して行う酸・アルカリを用いた薬品洗浄が挙げられる。本実験では、運転継続時に膜を高速で回転させることによって膜の洗浄を行うことにした。回転に伴って生じる水のせん断力により、膜表面の堆積物をはぎ取ろうとするものである。

膜洗浄は吸引ポンプを停止し、通常50rpmの膜回転数を400rpmに設定して15分間行った。この洗浄により膜面に付着していた微生物のケーキがはがれ落ち、吸引圧力の減少が起こった。連続運転における吸引圧力の経時変化を図-3に示す。洗浄後は再び吸引圧力が上昇して

ゆくが、再度上述の洗浄を行うことにより、安定した運転の継続が可能であった。

3-2 FLUXを0.8m/dに上昇させた実験(RUN2)

RUN1終了後、次亜塩素酸ナトリウムによる薬品洗浄を行い、膜透過性能をほぼ完全に回復させた後、設定ろ過流量を0.1L/min.から0.16L/min.（FLUX=0.8m/d）に上昇させて連続運転を行った。実験に先立ち、再び膜分離槽内に札幌市創成川下水処理場より採取した活性汚泥を450mg/L（MLSS換算）投入した。図-4に吸引圧力の経時変化を示す。図-3と比較すると、設定流量を上げているため、吸引圧力上昇の勾配が大きく、膜洗浄の頻度を上げることが必要となった。なお、ここでおこなった膜洗浄はRUN1で行ったものと同じであるが、洗浄時間を多少変化させている。吸引圧力の上昇が激しくなったので、2、4回目の洗浄を30分、5回目の洗浄は60分行った。洗浄時間を長くしたものの、その効果はほとんど見られず、本実験で用いた洗浄方法では回復しない機構で膜汚染が進行していることが推察された。

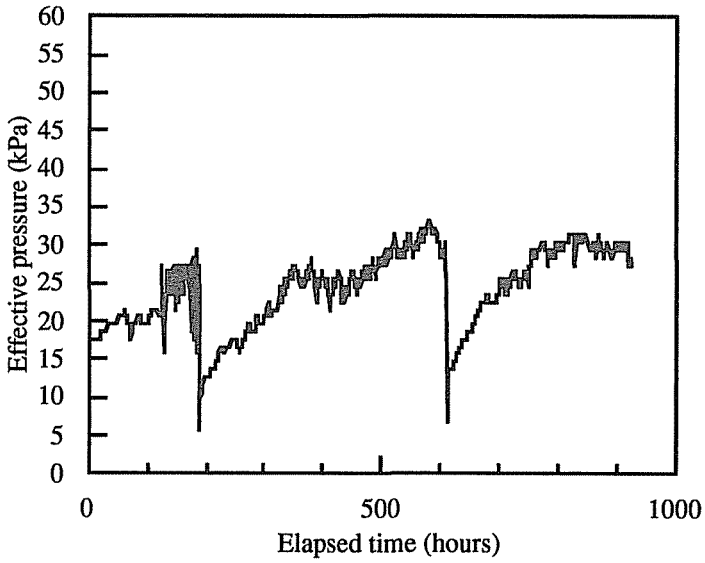

図-3 吸引圧力経時変化(RUN1)

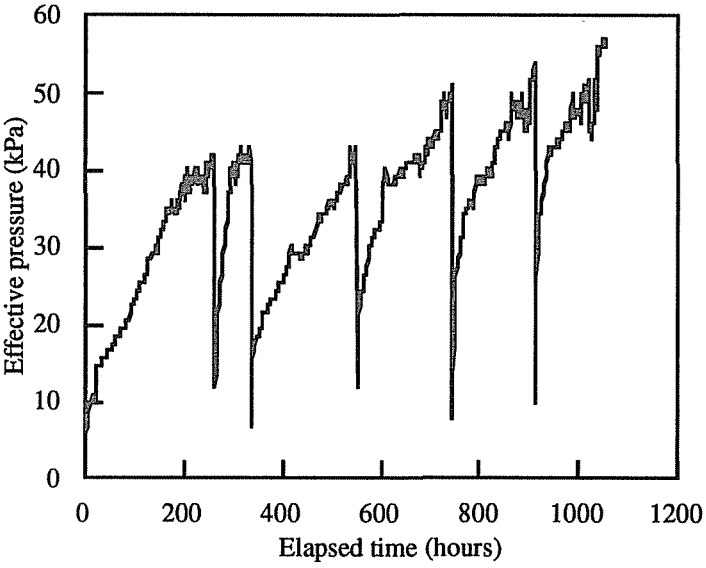

図-4 吸引圧力経時変化(RUN2)

洗浄後の膜表面の状態を調べるため、走査型電子顕微鏡(SEM)による観察と、X線による元素分析を行った。分析に供した膜は1000時間連続運転を行った後、15分間の洗浄を施したものである。マイクロスライサーを用いて生物膜厚を実測したところ、厚さ約300μmの生物膜が膜表面に付着していたが、15分間の洗浄で生物膜はかなりはがれ落ちており、肉眼では何も膜面に付着していないように見える部分も多い。生物膜が残っていた部分は分析に用いていない。図-5、図-6

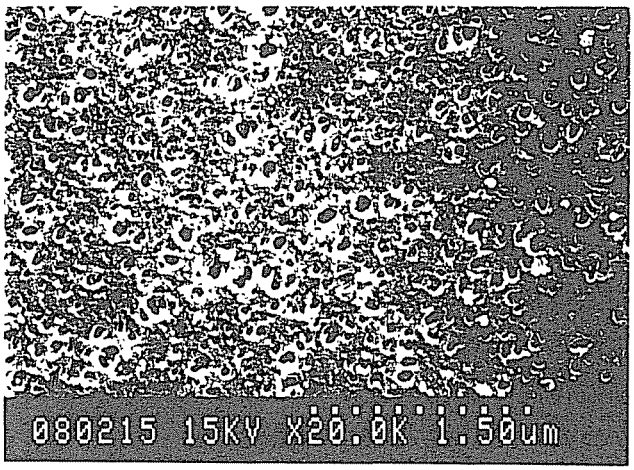

図-5 洗浄後の膜表面ＳＥＭ写真(1)

に洗浄後の状態を示す。洗浄後は、図-5や図-6のような部分が混在している。図-5より、新膜とそれほど変わらない密度で膜細孔が露出している部分が存在していることが分かり、洗浄の効果が認められる反面、堆積物が剥離せずに残留し、膜細孔を塞いでいる部分が存在することが図-6から分かる。図-7に洗浄前に膜に付着していた生物膜のSEM写真を示す。図-6と図-7を比較すれば、図-6に見られる堆積物が微生物でないことはその形状から明らかである。この図-6の堆積物表面と図-5の露出した膜表面について元素分析を行った。今回行った元素分析ではNaより原子量の大きな元素の分析が可能であることから、この堆積物中に含まれる無機成分に関する知見が得られる。分析の結果、堆積物の部分と堆積物がない部分の元素組成に大きな違いは見られなかった。このことは、堆積物中にはNaより原子量の大きな元素が含まれていないことを示している。これらのことから、洗浄後に残留していた堆積物は有機物であることが推測される。その起源は、原水中に僅かに含まれている有機物、あるいは微生物の代謝産物が考えられ、これらが本実験で用いた洗浄では剥離せずに、膜細孔を塞いでしまっているようである。

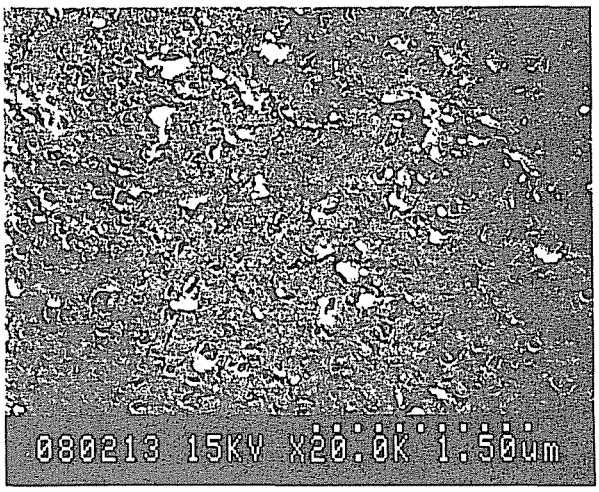

図-6　洗浄後の膜表面ＳＥＭ写真(2)

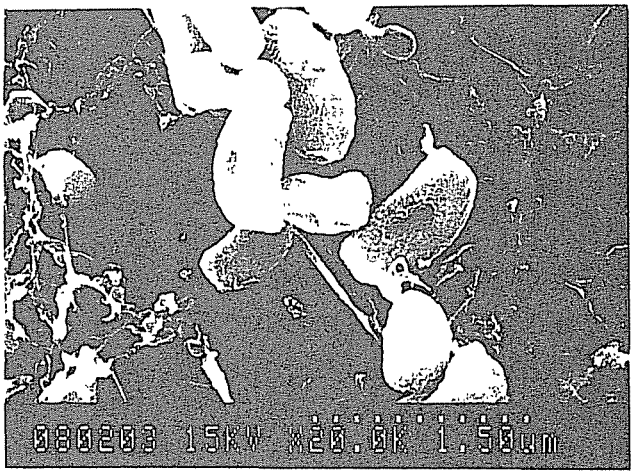

図-7　洗浄前の生物膜ＳＥＭ写真

RUN2におけるNH_4^+-N濃度の経時変化を図-8に示す。このときのHRTは62.5分である。RUN2では、上水道への適用を念頭に置いて、流入NH_4^+-N濃度を全実験期間を通じて1mg/L未満に制御した。運転開始当初はほとんどNH_4^+-Nの硝化は起こらない。その原因は、添加活性汚泥の硝化活性がもともと低かったこと、流入NH_4^+-N濃度が低かったために硝化菌の増殖が抑えられていたことによると思われる。運

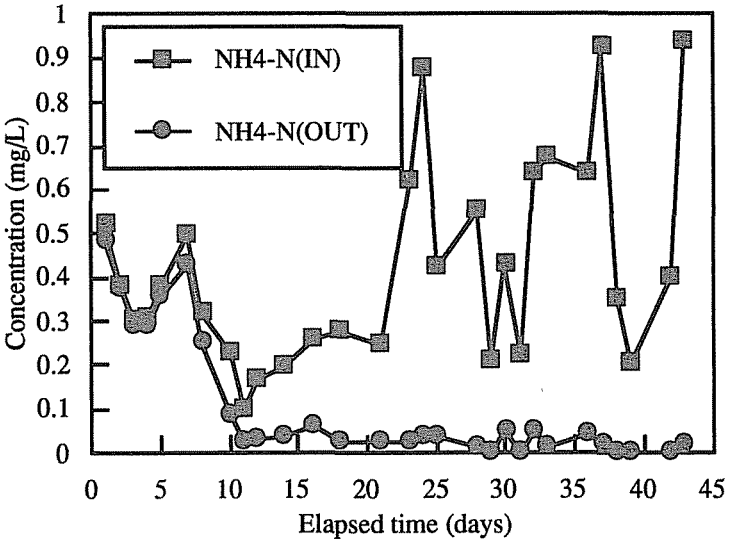

図-8　アンモニア性窒素濃度経時変化(RUN2)

転開始後10日を過ぎるあたりから良好に硝化が起こり始め、亜硝酸の蓄積も起こらなかった。RUN1に比べてHRTが少なくなっているものの、運転開始後10日目以降は1mg/L未満のNH_4^+-Nをほぼ完全に硝化でき、上水道におけるNH_4^+-N処理装置としては十分な性能を維持できた。

4. 回転円板（ＲＢＣ）との比較

本実験では円板状の膜面に微生物を保持し、膜を回転させながらろ過、同時にNH_4^+-Nの処理を行った。一方、円板状のメディアに微生物を保持し、円板を回転させながらNH_4^+-Nの処理を行う方法（即ち回転円板法）については既に多くの研究が行われ、実測値を予測し得るモデルが渡辺らによって提案されている[2]。このモデルを用いて、本実験で膜表面に付着した生物膜と同じ生物膜を持つRBCを仮定し、本実験で用いた装置との比較を行った。

計算値と実測値の比較を図-9に示す。点はRUN1,RUN2における実測NH_4^+-N Fluxを、曲線は渡辺らのモデルを用いて計算した値を示す。下部の曲線は円板回転数が1.6rpm（実際に稼働している回転円板の回転数[3]）、上部の曲線は円板回転数が50rpmの場合における計算値である。二つの曲線を比べると、回転数を上げることによってNH_4^+-N Fluxが大幅に向上していることが分かる。　これは回転数上昇に伴い拡散層厚が減少し、NH_4^+-Nの移動速度が向上したためであるが、通常の回転円板では回転数をいたずらに上げると微生物の剥離が起こってしまう。本実験では50rpmという、回転円板に比べてかなり高い回転数でありながら生物膜の保持が実現できたが、これは膜ろ過によって生物膜を常に引きつけているからである。本実験のように生物膜を保持しながら膜ろ過をすれば、通常の生物膜処理に比べて拡散層厚を小さくすることが出来る。

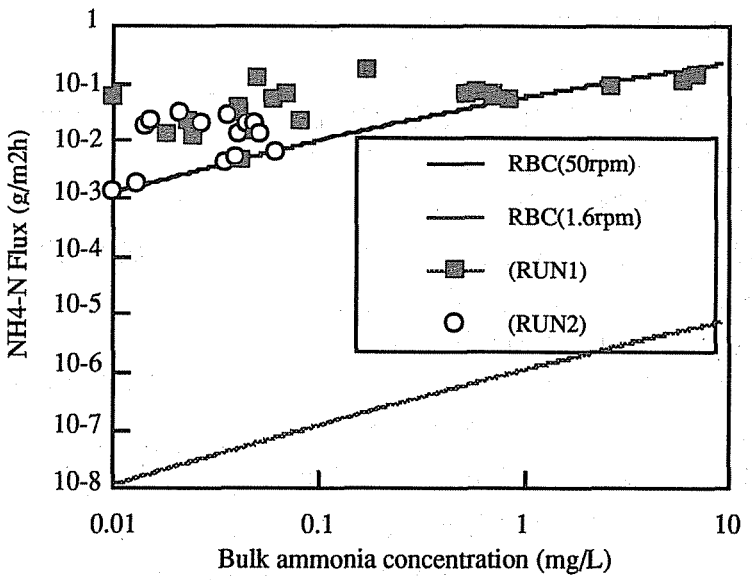

図-9　仮想回転円板との比較

実測NH_4^+-N　Fluxは計算値よりもさらに大きなものとなっている。これは、通常の生物膜では、生物膜表面への物質移動は濃度勾配による分子拡散でしか起こらないのに対し、本実験では分子拡散に加え、膜ろ過に伴う移流による強制的な物質移動が起こっていることによる。

5. まとめ

本研究では、回転平膜モジュールを用いて膜分離と生物処理の一体化について実験・考察を行った。その結果、従来の生物処理では困難であった低濃度NH_4^+-Nの処理を良好に行うことができた。その理由は、拡散層厚の減少と、膜ろ過に伴う移流の効果により、分離膜表面に形成された生物膜への物質移動を促進したことによる。

また、本研究では一般的によく用いられる逆圧洗浄・薬品洗浄の代わりに、膜回転数を上昇させることによって膜透過性能の回復を試みたところ、洗浄効果はあったものの、この洗浄方法では膜面から剥離しない有機物と思われる堆積物の存在が認められた。

今後はろ過原水中にカオリンを混合し、NH_4^+-Nの処理性、膜ろ過性能に対する濁質の影響を考察してゆく予定である。原水中に濁質が含まれている場合、本実験で用いた装置では、運転の継続と共に膜分離槽内に濁質が蓄積されてゆくので、洗浄頻度の増加と、適当な期間ごとの汚泥排出が必要となると思われる。本実験で行った洗浄の後に膜分離槽内から汚泥を排出すると、蓄積した濁質と共にNH_4^+-Nの硝化を行う微生物も排出されてしまい、NH_4^+-N処理能力の低下が懸念される。そこで、汚泥中の微生物と無機濁質を分離できるような汚泥排出方法として、微生物と濁質の沈降速度差を利用する方法を現在検討中である。

膜透過性能の維持を考えると、膜面に保持する微生物は、目的とする処理にとって必要最小限の量であることが望ましい。硝化活性の高い生物膜を保持できれば、必要な生物膜量は少なくて済み、同時に膜ろ過の際の抵抗も少なくなる。RUN2終了時に膜面に付着した生物膜中の菌体密度を最確数法により測定したところ（表-1）、NH_4^+-N負荷が極めて低かったのにも関わらず、かなりの密度で硝化菌が存在していることが分かった。しかし、単位体積生物膜の硝化活性を渡辺ら[4]が高濃度のNH_4^+-Nを基質とする生物膜について求めたものと比較すると（表-2）、本実験で生成した生物膜の硝化活性が著しく低いことが分かる。本実験では全硝化菌数に対して流入NH_4^+-N濃度が低かったため、硝化菌が飢餓状態になっていたためと思われる。本実験のような条件で硝化活性を高めるには、硝化菌の適当な排出を行い、単位硝化菌あたりのNH_4^+-N負荷を増やしてやる必要がある。上述した微生物と濁質の分離と合わせ、必要最低限の微生物を保持できるような汚泥の排出を考えてゆかねばならない。

表-1　RUN2終了時の生物膜内菌体密度

細菌名	菌体密度（個/ｃｍ3）
一般細菌	3.2×10^8
アンモニア性窒素酸化細菌	7.1×10^4
亜硝酸性窒素酸化細菌	1.7×10^6

表-2　生物膜内反応速度の比較

	生物膜内反応速度（ｇ/ｍ3時）
本実験で生成した生物膜	400
渡辺らが求めた値	7500

参考文献

1）N.Ohkuma et.al.：Application of Rotary Disk Membrane Type UF Module to the Activated Sludge Process,the 1987 ICOM proceedings,p408-409

2）渡辺義公・西留　清：物質移動モデルに基づく回転円板法の合理的設計ー基礎理論と硝化プロセスへの適用ー、下水道協会誌　26（301）p34-42

3）小林桓明・豊田福美・松本哲也・永野博之：回転円板処理施設の稼働状況、第37回全国水道研究発表会講演集　p202-204

4）渡辺義公・石黒政儀・西留　清：回転円板法の浄化機構に関する研究（II）、下水道協会誌　17（195）p14-23