

19980601

平成10年度

厚生科学研究費生活安全総合研究事業

膜処理法を導入した小型生活排水処理装置の実用化に関する

研究報告書

平成11年3月

財団法人 日本環境整備教育センター

# 目 次

## はじめに

1. 研究の目的	1
2. 研究内容及び実施計画	1
3. 研究結果の概要	3

## 第1章 膜と担持微生物のハイブリッドによる硝化・脱窒反応の高度化

1. 1 はじめに	9
1. 2 実験の概要	9
1. 3 結果及び考察	11
1. 4 まとめ	18

## 第2章 膜分離装置を組み込んだ小型合併処理浄化槽の開発に関する研究

2. 1 はじめに	19
2. 2 研究グループの構成	19
2. 3 実証試験装置の概要とフローシート	20
2. 4 実証試験の概要と試験結果	23
2. 5 まとめ	36

## 第3章 メッシュろ過による汚泥濃縮に関する研究

3. 1 はじめに	39
3. 2 実験方法	39
3. 3 実験結果	40
3. 4 おわりに	45

## 第4章 超音波処理によるファウリング防止技術の開発

4. 1 はじめに	47
4. 2 実験方法	47
4. 3 結果と考察	49
4. 4 おわりに	52

## 第5章 ARモデルを用いた膜分離活性汚泥法の膜目詰まり過程の予測手法の開発

5. 1	はじめに	54
5. 2	ARモデルの概要	54
5. 3	カルマンフィルタへの適用	55
5. 4	計算方法	55
5. 5	短期予測の計算結果及び考察	57
5. 6	長期予測	62
5. 7	結 論	66

## 第6章 浸漬型膜分離活性汚泥法における微生物生態系を利用した汚泥管理

6. 1	はじめに	68
6. 2	実験方法	68
6. 3	実験結果と考察	71
6. 4	ま と め	77

## はじめに

### 1. 研究の目的

小型合併処理浄化槽は、下水道と同等の処理性能を有する生活排水の処理施設として開発・実用化され、急速に普及しつつあるが、水環境の保全に対する社会的要請の高まりから、今まで以上に高度な処理機能を有することが求められてきている。しかしながらその一方、未だに合併処理浄化槽よりも処理機能の劣る単独処理浄化槽の新設数が5割強を占めているのが実状である。

また、病原性大腸菌O-157やクリプトスポリジウムなど経口摂取によって下痢症等を引き起こす感染性微生物が大きな社会問題となっており、これらの感染者が浄化槽を使用した場合でも、浄化槽放流水の衛生学的な安全性を確保する方策の確立が求められている。

我が国では、21世紀を迎えるに当たり、豊かでうるおいのある生活の創造が強く求められている。これまでは、日常生活に伴って生じた汚水は速やかに生活の場から排除し遠ざけるという発想であったが、小型合併処理浄化槽の普及により、汚れた水はその場で処理し、きれいな状況にして元の環境に返すことが可能となってきている。さらに、処理の高度化を進めれば処理水の再利用など水資源の確保・有効利用のみならず、身近なせせらぎの回復など、うるおいのある地域の水を基軸とした環境の創造にもつながるものと期待される。

このような社会の要請に応えていくためには、より高度な処理を行い従来の生物処理では分解・除去することが困難であった汚濁成分を除去することに加え、大腸菌やウイルス等の微生物の除去までも行い、衛生面での安全性を確保することが重要である。

そこで本研究は、水処理技術として、近年、著しく技術革新が行われている膜分離技術に焦点を当てて、これを活用した小型合併処理浄化槽の汚水処理技術を研究・開発することを目的とした。

### 2. 研究内容及び実施計画

(1) 研究期間：3ヶ年（平成10年度～平成12年度）

(2) 全体研究計画の概要

水処理技術として、近年、著しい技術革新が行われている膜分離技術は、微生物を高濃度に維持できるため処理施設のコンパクト化が可能であること、また、膜モジュールを付加することにより既存システムの改善が可能であること等に加え、処理水の循環利用等新たな可能性をもつものである。

そこで、し尿処理等各種水処理分野における膜分離技術の実態を踏まえて、生活排水処理分野における膜分離技術の適用可能性について研究し、必要となる技術の研究開発を行う。具体的な研究課題は以下のとおりである。

#### 1) 膜分離法における効率的な窒素除去に関する研究

膜分離法においては、硝化菌等の増殖速度が遅い細菌も洗い出しされることなく増殖が可能であるため、硝化が十分に進行する特性を有しているが、酸素が過剰に供給される傾向があり、脱窒反応が十分に進行する環境に至らない場合が認められる。そこで、膜分離活性汚泥法における窒素の効率的除去方法を確立するため、反応槽内に硝化細菌及び脱窒細菌を高濃度に保持することにより、好気性条件下における効率的な窒素除去方法を研究・開発する。

#### 2) 生物処理との組合せによる小型の生活排水処理技術の確立に関する研究

既存の生物処理に膜分離技術を適用することにより、飛躍的な処理の高度化及び小型化が可能となる。また、微生物の完全な除去により、従来型の塩素消毒を用いずに衛生的な処理水を確保することも可能となる。そこで、各種膜分離装置のろ過特性の評価を行うとともに、膜分離を導入する際に最も問題となるファウリング防止技術を開発する。また、有機系の平膜及び中空糸膜を反応槽に浸漬させた膜分離活性汚泥法を用いた小型合併処理浄化槽を実際の家庭に設置し処理性能を明らかにする。

#### 3) 膜分離技術による汚泥の減量化・処理方法の確立に関する研究

生活排水の処理には必ず汚泥の発生を伴うが、この汚泥をいかに減量化し、効率的に処理できるかが大きな課題となっている。そこで、汚泥の濃縮を目的とする場合、完全な汚泥分離を必要としないことに着目し、効率的で安定した汚泥濃縮が行える小型で維持管理が容易な汚泥の減量化・処理方法を研究・開発する。

#### 4) 既設単独処理浄化槽の改造による合併処理化技術に関する研究

既設単独処理浄化槽を合併化する場合、既設の浄化槽をいったん撤去し、新たに膜処理型の浄化槽を導入することは、一般家庭においては敷地的な制限並びに財政的な負担を増大させることから困難と考えられる。そこで、既設単独処理浄化槽に付加することが可能な膜分離活性汚泥法の試験装置を設置し、既存単独処理浄化槽の膜型への改造方法について必要となる技術の研究開発を行うこととする。

### (3) 本年度の研究実施計画

#### 1) 本年度の研究内容

- ①好気性条件下における窒素除去に関する研究
- ②平膜及び中空糸膜を組み込んだ小型合併処理浄化槽の開発
- ③各種ろ過分離材を用いた汚泥濃縮に関する研究
- ④超音波処理によるファウリングの防止に関する研究
- ⑤膜の目詰まり過程の予測に関する研究
- ⑥活性汚泥を構成する生物の基礎的諸特性を明らかとするための研究

本研究を実施するにあたり、「膜処理法を導入した小型生活排水処理装置の実用化検討委員会」を財団法人日本環境整備教育センターに設け委員会を開催した。委員会の構成は、以下に示すとおりである。

#### 2) 委員の構成

委員長 河村 清史 (国立公衆衛生院廃棄物工学部廃棄物計画室長)

委員：海野 肇 (東京工業大学生命理工学部教授)

大森 英昭 (財日本環境整備教育センター調査研究部長)

木曾 祥秋 (豊橋技術科学大学エコロジー工学系助教授)

小林 高臣 (長岡技術科学大学工学部助教授)

長岡 裕 (武蔵工業大学工学部助教授)

山本 和夫 (東京大学環境安全研究センター教授)

山本 康次 (大阪府立公衆衛生研究所公衆衛生部主任研究員)

### 3. 研究結果の概要

#### 第1章 膜と担持微生物のハイブリッドによる硝化・脱窒反応の高度化

小規模排水処理システムによる処理効率化の一つの方策は、複合機能を集積したコンパクトな微生物反応系を構築することである。そのため、硝化・脱窒反応を効率的に行うには、増殖速度が遅い硝化菌を高濃度で維持し、適切なプロトドナーを確保すると同時に、脱窒細菌が生育可能な嫌気環境を維持することが必要である。従来の好気・嫌気脱窒法では、好気環境と嫌気環境を異なる2つ以上の反応槽を用いることでこれを実現している。

本研究の目的は、好気反応槽内に適切な多孔質担体を投入して、これに微生物を担持させ、この担体内に好気と嫌気の相異なる環境の共存を実現し、さらに、排水中の有機質を

プロトドナーとして利用し、1つの好気反応槽内で硝化・脱窒反応を実現させることで、装置のコンパクト化を目指す点にある。この多孔質担体担持微生物は、活性の高い状態で有機質の酸化処理も併せて行えることによる汚泥発生量の低減も期待できる。

この特徴を利用すると、膜とハイブリッド化による場合には、膜への固形物負荷を低減できる可能性も有しており、より高度で、コンパクトな処理システムを構築しうると期待される。上記の微生物担持担体の流動層反応装置は、回分操作が可能なことをこれまでの検討で明らかにしてきたが、本年度はこれを連続実験系に拡張して検討すると共に、本装置内に膜系（平膜：ポリオレフィン系MF膜（0.4 $\mu$ m））を導入してハイブリッド反応装置を構成し、その操作特性に検討を加えた。

膜を設置しない場合の連続操作においては、回分操作と同様に有機質と窒素の同時除去能が付与できること、その能力が有機質負荷と窒素負荷の組み合わせ（C/N比）により大きく左右されること、懸濁微生物濃度が極めて小さい特徴があることなどを明らかにした。

膜を設置した場合の性能試験では、まず、目標透過フラックスを0.4m/dayに設定して膜の連続操作安定性の検討を行い、約2ヶ月毎の薬品洗浄処理により連続運転が可能なこと、懸濁微生物濃度が担持微生物濃度と同程度にまで高くなること、有機質除去能は十分に高く維持されること、脱窒能力を十分に高い値に維持するためには硝化反応を促進させるための無機炭素源を適切に供給する工夫が必要であることなどを明らかにした。

## 第2章 膜分離装置を組み込んだ小型合併処理浄化槽の開発に関する研究

平成10年度は、実用化段階になった装置を戸建て住宅に設置し、これまで検討してきた維持管理方法（3ヶ月に1回の保守点検、6ヶ月に1回の清掃と膜の薬品洗浄）で装置の管理を行い、処理水質の安定性、MLSS濃度及び透過流束の経時変化等を調べた。

実証試験装置の中から、平膜を用いた間欠ばっ気方式、硝化液循環方式、中空糸膜を用いた硝化液循環方式の各1装置についての試験結果を示した。これら3装置では、3ヶ月に1回の維持管理、6ヶ月に1回の薬品洗浄と清掃で、膜の透過性能に問題が生じることはなく、処理水質も良好で安定した性能が維持できることが明らかとなった。

一方、膜分離型小型合併処理浄化槽において、透過水量を安定して確保するためには膜分離装置の維持管理が非常に重要なことを明らかにしてきた。これには、定期的な薬品洗浄や初期段階からのMLSS濃度の確保が必要となる。薬品洗浄においては、①洗浄の時間の短縮、②活性汚泥の硝化反応に対する影響の把握、③洗浄後の薬品の処分方法、等の検討課題があるため、これらの課題について再度検討することとした。次亜塩素酸ナトリウム溶液を膜ユニットに注入し15分後、還元剤としてチオ硫酸ナトリウム水溶液を続けて注入

する方法で膜の薬品洗浄を行った。その結果、膜のフラックスが回復するとともに、薬品洗浄後の処理水質は、残留塩素、pHとも問題の無いレベルまで中和された。硝化に対する影響もほとんどなかった。

また、初期段階からのMLSS濃度の確保のためには、種汚泥の添加は必須条件となる。これまでに種汚泥として使用してきた合併処理浄化槽の活性汚泥が確保できない場合も考えられるため、種汚泥として活性汚泥以外の汚泥や市販のシーディング剤が使用可能か検討した。その結果、合併処理浄化槽及び活性汚泥法の産業廃棄物処理施設の余剰汚泥脱水ケーキは、種汚泥としての使用が可能であることが確認された。シーディング剤については急激なフラックスの低下が認められ、実験に使用したシーディング剤は、種汚泥としては使用できないことがわかった。

これらの、実証試験、膜の薬品洗浄方法及び種汚泥の検討結果は、膜分離型小型合併処理浄化槽の維持管理を容易にするために反映できると考えられた。

### 第3章 メッシュろ過による汚泥濃縮に関する研究

中・小規模浄化槽における簡易な汚泥濃縮に対応できる方法として、平成9年度には、重力濃縮とメッシュろ過を併用する回分式の汚泥濃縮を提案し、基礎的な濃縮特性について報告を行った。本年度も上記汚泥濃縮法の処理特性について実験的検討を継続して行うこととした。

容量15ℓの汚泥濃縮槽にナイロンメッシュ(100、200、500 $\mu$ m)で作成した平膜型のろ過モジュールを浸漬し、初期水頭差85cmでろ過を行った。活性汚泥は長時間ばっ気法の返送汚泥を用い、その濃度は約3,000、6,000、9,000mg/ℓとして、メッシュ面積(1064cm<sup>2</sup>又は532cm<sup>2</sup>)、操作方法、凝集剤添加等の影響について検討を行った。

従来より目開きの大きなメッシュも用いたが、100、200 $\mu$ mのメッシュではろ過開始後5分程度で直接放流が可能な程度(SS<20mg/ℓ)の清澄なろ過水が得られた。初期汚泥濃度が高いほどろ過水の水質は良好で、かつ、汚泥回収率も高くなった。初期SSが9,000mg/ℓの場合、6時間のろ過操作における汚泥減容化率は7.5~8.3倍で、汚泥回収率は88.4~97.8%であった。このとき、500 $\mu$ mのメッシュでもろ過水は清澄であった。ろ過面積を1/2にした場合、ろ過開始直後の透過水量は低いながらも比較的高いろ過速度を維持し、6~7時間での濃縮倍率にろ過面積の影響が見られず、汚泥回収率は若干改善される傾向が認められた。

SSが6,000mg/ℓの場合において、汚泥を装置内で1時間静置してからろ過を開始したとき、初期のろ過速度が高く維持されたことから、前述と同程度の濃縮倍率を得る全操作時



間に差は見られなかった。なお、このとき、いずれのメッシュでも汚泥回収率は改善された。

無機凝集剤（硫酸アルミニウム）をSSに対して5～10%添加した場合、100 $\mu$ mのメッシュでのSS回収率にはほとんど変化はなかったが、目開きの大きなメッシュほどSS回収率が改善され、汚泥濃度が低いほどその効果は大きかった。SSが9,000mg/lの場合には、凝集剤添加によってむしろ汚泥回収率の若干の低下が見られたが、これはメッシュに付着していた汚泥が容易に脱落したためと考えられる。

以上の結果から、メッシュろ過法による回分式汚泥濃縮法は簡易な操作で有効に濃縮できることが示された。なお、ここで用いた好気性の汚泥では凝集剤を必要としない点で有用性が高いが、嫌気性の汚泥についてはさらに検討が必要であると考えられる。

#### 第4章 超音波処理によるファウリング防止技術の開発

生活処理への小型膜分離プロセスの導入に際し最も問題となることのひとつに、ファウリングが生じた後の膜の処理能力回復(再生)と、これの発生防止技術の確立がある。生活排水膜分離処理プロセスには、主に、限外ろ過膜(UF)や精密ろ過膜(MF)などの多孔膜が主に利用されることになるが、ろ過物の膜表面での堆積による膜処理速度の著しい低下は、この方法の普及を妨げている原因であり、効率よく、かつ、簡便にファウリングを防止できる膜処理システムの開発が、現在、実用化されているどの膜処理システムにも望まれている。

本研究では、平成9年度から超音波処理を膜分離プロセスに導入し、これによる膜を用いた水洗浄によるアンチファウリング技術の確立をめざし、特に、超音波処理デバイスを実装した膜処理システムの開発とその技術の基礎的研究を行ってきた。本年度は、膜処理法における超音波処理のファウリングに対する効果と水洗浄の効果の検討を行った。特にペプトン水溶液やデキストラン濃厚溶液を合成廃液として用い、ポリアクリロニトリル(PAN)UF膜、ポリスルホン(PS)UF膜を用い、クロスフロー透過実験を行った。この透過セルは超音波発生素子を固定してある浴槽内に浸してあり、ファウリングが生じた後に、セルに異なった共振周波数の超音波を照射できるようになっている。

超音波照射をろ過開始当初から照射した場合には、ファウリング現象発現を抑制できることがわかった。この興味ある現象は、特に、デキストランの場合に顕著であり、膜処理速度が増大するという結果が得られた。一方、ゲル層を形成するペプトン溶液でも、デキストランのように透過流束は増大させる効果はないにしてもファウリングは生じなかった。また、PS膜のように、溶質が吸着しやすく、膜の再生には、薬品洗浄が必要とされる場合でも、超音波を照射しながら、水洗浄することにより完全に膜を初期の状態に戻せ

ることが明らかになった。

このように、ファウリング膜を超音波を組み合わせた洗浄処理を行うことで、高効率で簡便な膜再生方法を確立することができた。

## 第5章 ARモデルを用いた膜分離活性汚泥法の膜目詰まり過程の予測手法の開発

膜分離活性汚泥法は処理水質が良好である反面、膜が目詰まりを起こすため、薬品による膜の洗浄が必要となる。その際、膜の目詰まり過程を予測することができれば、膜洗浄の時期をあらかじめ予測し、効果的な運転を行うことが可能になる。本研究では、膜の目詰まりに関する物理的要因を完全に無視し、ある法則性を持った数値の並びとしてとらえるARモデルを用いた予測手法について検討を行った。

ある時系列データの現在値 $Z_t$ が $N$ 期前の値とランダムショック $V_t$ の線形関数で表すことができるとき、この時系列データは $N$ 階の自己回帰過程に支配されている。これを式にすると、以下のように示される。

$$x_t = \sum_{i=1}^N a_i x_{t-i} + v_t \quad (1)$$

ここで $a_i$ は自己回帰パラメータであり、 $N$ 期前の値が変化したときの $V_t$ への影響をあらわしている。これは推定すべきパラメータである。ランダムショック $V_t$ は誤差項であり、本研究では平均値0、標準偏差 $\sigma$ のガウス白色雑音となる。また、 $V_t$ と $X_{t-1}$ は互いに独立であると仮定されている。ARモデルにおける自己回帰パラメータの推定にカルマンフィルターを用いた。状態量にAR係数をとると状態方程式および観測方程式は以下のようになる。

$$[a_1 \ a_2 \ a_3 \ \dots \ a_n] F_{t+1} = [a_1 \ a_2 \ a_3 \ \dots \ a_n] F_t + w_t \quad (2)$$

$$x_t = a_1 \cdot x_{t-1} + a_2 \cdot x_{t-2} + \dots + a_N \cdot x_{t-N} + v_t \quad (3)$$

以上の式をカルマンフィルタのアルゴリズムに当てはめることにより、観測データ $X_t$ に追尾したAR係数を自己回帰パラメータにより逐次求めることができ、これにより膜の目詰まり過程の予測が可能であることがわかった。

## 第6章 浸漬型膜分離活性汚泥法における微生物生態系を利用した汚泥管理

浸漬型膜分離活性汚泥法は、排水の高度処理技術として、その基礎研究から実用化まで、わが国が世界をリードしている排水処理技術の一つである。その中で、小型生活排水処理装置としての実用化は、浸漬型膜分離活性汚泥法の利点を最大限に生かせるものとして、非常に有望とされている。しかし、小規模処理であるため、発生する汚泥の管理が重要で

あり、微生物生態系を利用したバイオリアクター制御とともに、その汚泥管理法の提示と実際の管理技術の確立が求められている。汚泥管理の内容は、余剰汚泥を発生させないという目的と、途上国技術として特に重要なメンテナンスフリーを実現すること及び微生物を利用した膜汚染制御にある。本研究では、以上の観点から、実排水を利用したパイロットプラントを用いた実験を行うことで、これらへの対応策について考察した。

本年度は、まず某下水処理場におけるパイロットプラント運転におけるデータ収集・解析、特に活性汚泥を構成する細胞内外成分の他のプロセスとの比較、浮遊微小フロックの動態と原生動物との関係など、実排水で成長した膜分離活性汚泥の基礎的諸特性の把握を行った。成果の概要は、以下のとおりである。

- 1) 汚泥の引抜きが必要ない膜分離活性汚泥の細胞外成分として、単位MLVSS当たりの蛋白量、全糖量、TOC量を、他の汚泥（A<sub>2</sub>O法汚泥、SBR汚泥、下水処理場汚泥等）と比較すると、その成分比はいずれも低い値を示し、活性の低さを伺わせた。ただし、各成分総量は、生物量が多いため、他の処理法より多いことは従前の結果と同様である。
- 2) 膜分離活性汚泥の粒径ごとの成分を見ると、単位MLVSS当たりの細胞外成分は、フロック径が小さいほど大きい値を示した。
- 3) 熱分解GC/MSの結果から、細胞外構成成分は主として酢酸とアセトアミドであることがわかった。
- 4) 10ミクロンメートル以下の微小フロックにおいては、粒径2ミクロンメートル以下の浮遊している分散細胞が多く、その消長と遊泳型微小原生動物の動態が密接な関係にあることがわかった。

# 第1章 膜と担持微生物のハイブリッドによる硝化・脱窒反応の高度化

## 1.1 はじめに

小規模排水処理システムによる処理効率向上の1つの方策は、複合機能を集積したコンパクトな微生物反応系を構成することである。このための課題は、増殖速度が遅い硝化菌を高濃度で反応器内に保持し、適切なプロトドナーを確保すると同時に脱窒細菌が生育可能な嫌気環境を維持することである。従来の好気・嫌気脱窒法では好気環境と嫌気環境を異なる2つ以上の反応槽を用いて実現している。本研究の特徴は、好気反応槽内に適切な多孔質担体を投入してこれに微生物を担持させ、この担体内に好気と嫌気の相異なる環境の共存を実現し、さらに、排水中の有機質をプロトドナーとして利用し、1つの好気反応槽内で硝化・脱窒反応を実現し、装置のコンパクト化を目指す点にある。この多孔質担体担持微生物は活性の高い状態で有機質の酸化処理も併せて行いうるため汚泥発生量の低減を期待できる。この特徴を利用すると、膜とハイブリッド化した場合に、膜への固形物負荷を低減しうる可能性も持っており、より高度で、コンパクトな処理システムを構築しうると期待される。

平成9年度は平成8年度の結果に基づいて反応過程を適切に記述すると同時に関連機能微生物量の担体内分布のシミュレーションを行い、有機物酸化、アンモニア酸化、亜硝酸酸化、脱窒の機能を有するバイオマス分布を合理的に説明できる数学モデルを構築した。

平成10年度は微生物担持担体の流動層反応装置を用いる連続実験系を構成して有機質と窒素の同時除去能が付与できる確認実験を行い、有機質負荷量と窒素除去能との関係を検討すると共に、懸濁バイオマスの状況を検討した。また、硝化反応に及ぼす無機炭素源の影響、微小溶存酸素濃度電極による微生物担持担体内の好気/嫌気の領域の検討を行った。さらに、この連続処理系に平膜を組み込んで、その結果派生する現象の解析を開始した。

## 1.2 実験の概要

### 1.2.1 実験装置及び方法

#### (1) 多孔質担体流動化連続装置による実験

装置は円錐状の低部構造を備えた円形断面の亚克力樹脂製反応槽で、1稜が15mmの立方体状多孔質ポリウレタン(密度30kg/m<sup>3</sup>、平均孔径1.47mm)を体積率で12.5%投入し、種活性汚泥を添加して培養した。スパージャーを用いて空気を通気し(空気流量は0.4vvm)、溶存酸素濃度の供給と攪拌を行った。培養ならびに微生物担持操作は、まず回分培養によって微生物担持を行い、さらに1カ月の馴養期間を経てを連続操作に切り替えた。水力

学的滞留時間は8時間とした。なお、有機物負荷量と高い濃度範囲の窒素負荷による影響を把握するためにC/N濃度 $[(\text{mg}/\ell)/(\text{mg}/\ell)]$ を100~400/10~50で、また、無機炭素濃度による硝化反応の影響を調べるために無機炭素(炭酸水素ナトリウム)濃度0~48 $\text{mg}/\ell$ の範囲で連続実験も行った。

## (2) 膜と担持微生物のハイブリッド型装置による連続実験

膜システムとのハイブリッド操作では、平膜モジュールのユニットを図1-1に示すように槽内に設置した。まず、膜操作の安定性を調べるために、液フラックスの目標設定値を0.4 $\text{m}/\text{d}$ に設定し、吸引圧をモニターしながら操作した。膜の特性などは表1-1に示した。

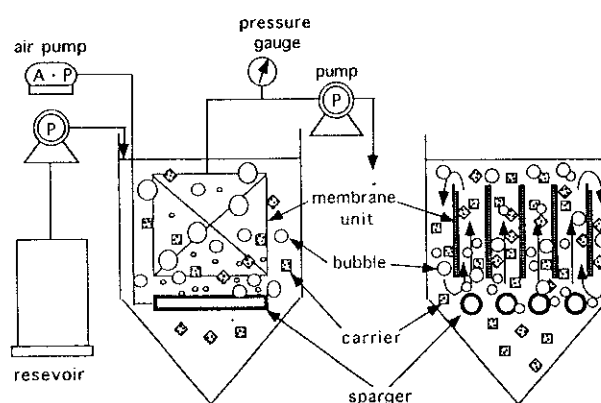


図 1-1 Experimental Apparatus

表 1-1 Characteristics of Membrane Module

Material	: Polyolefin
Shape	: Plate
Pore Size	: 0.4 ( $\mu\text{m}$ )
Surface Area	: 0.104 ( $\text{m}^2$ )
Flux	: 0.15-5 ( $\text{m}/\text{d}$ )
Suction/Washing Cycle	
Suction	: 8 min
Washing	: 2 min

### 1.2.2 分析方法及び微生物反応活性の評価方法

#### (1) 分析ならびに測定方法

分析項目の内、pH、担体への担持微生物濃度及び培養液中の懸濁微生物濃度、尿素、アンモニウムイオン、亜硝酸イオン、硝酸イオンの各態窒素濃度、全窒素濃度、全有機炭素濃

度(TOC)の測定ならびに分析方法は平成9年度の報告書に記載したものと同様である。

担体内の溶存酸素濃度分布を測定するため、図1-2に示すClark型微小溶存酸素電極を制作して用いた。担体の構造体を貫通して溶存酸素濃度分布を測定するために物理的強度が保てる先端サイズ200 $\mu$ mの電極とした。印加電位は-0.75Vとした。なお、測定担体周辺の環境を実際の反応環境に近似するため、流入水と同じ成分の培地を供給しながら測定した。

硝化反応活性の評価は、懸濁微生物の場合はサンプリングした一定量の培養液中の微生物をpH7のリン酸緩衝液で3回洗浄し、また、担体担持微生物の場合は槽内から取り出した数個の担体そのものを、それぞれ容量500mlのガラス容器に入れて実操作と同じ条件にし、曝気しながらアンモニアイオン、亜硝酸イオン、硝酸イオン濃度の経時変化を計測して硝化反応速度を求めることにより行った。

膜の透過液フラックスはシリンダで計量することにより、また、吸引圧は圧力ゲージによりモニターした。

## (2) 微生物反応活性の評価方法

生物反応活性(好気酸化反応、嫌気脱窒反応)の評価は平成9年度の報告書に記載したものと同様である。

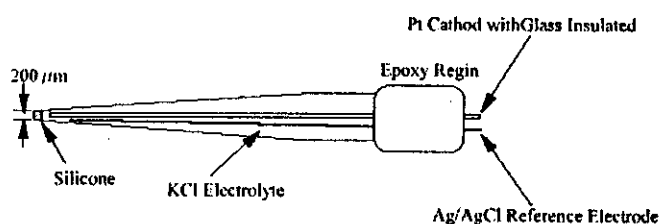


図1-2 Clark-Type Oxygen Microelectrode

## 1.3 結果及び考察

### 1.3.1 TOC濃度の窒素除去に対する影響

流入窒素濃度20mg-N/L及び140mg-N/Lの場合の窒素除去に対するTOC負荷量の影響を図1-3に示す。窒素濃度20mg-N/L(生活排水を想定)の場合、窒素除去率は流入TOC負荷の増加につれ上昇した。これは脱窒反応に関わるプロトドナーの供給量の増加によると考えられる。C/N濃度負荷を300/20にすると約90%の除去率が得られた。この場合は細胞合成による窒素の取り込みの寄与も少なくないと考えられる。

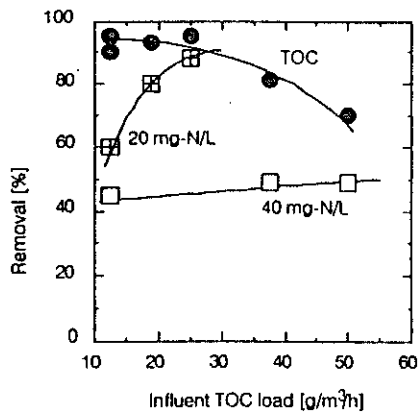


図 1-3 Effect of Influent TOC Loading on T-N, TOC Removal (Parameters are inlet nitrogen concentration.)

窒素濃度が40mg-N/Lの場合、流入TOC負荷を12.5から50 g/m<sup>3</sup>.hに増加しても窒素除去率は45～50%で殆ど変化がなかった。平成9年度の研究結果から流出水中の窒素の大部分がアンモニア態窒素であることから、硝化反応が制限されていることが考えられる。

### 1.3.2 無機炭素添加の硝化反応に対する影響

TOC濃度を100mg-C/Lの場合の硝化過程に及ぼす無機炭素供給の影響の例を図1-4に示す。無機炭素がない場合、流入水中の窒素の大部分がアンモニア態窒素として残っているが、無機炭素の供給によりアンモニア態窒素が減少し、硝酸イオンが増加している。この実験は有機炭素濃度を低く維持して脱窒反応を抑えているため、反応器内に硝酸が蓄積している。有機炭素の添加により脱窒反応が進行して窒素除去率は向上すると考えられる。

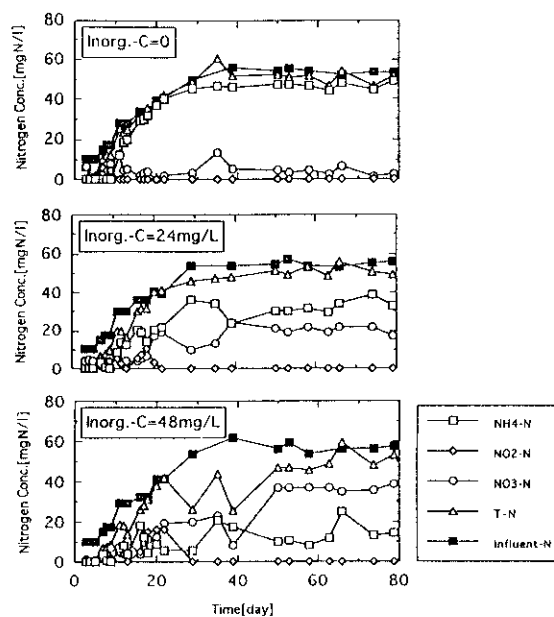


図 1-4 Effect of Inorganic Carbon Concentration on Time Course of Nitrogen Concentration (TOC = 100 mg/L)

### 1.3.3 無機炭素濃度による硝化能の変化

図1-4に示した経時変化に基づいてそれぞれの無機炭素濃度での流入窒素負荷と酸化された窒素量との関係を図1-5に示す。無機炭素の添加がない場合、低濃度窒素条件下においては90%以上のアンモニア態窒素の酸化率が得られたが、窒素負荷量の増加につれ窒素の酸化率は減少した。これは硝化反応に関わる無機炭素制限によると考えられる。無機炭素を加えることにより酸化率は増加した。無機炭素濃度が48mg-C/Lの場合、窒素負荷量が $7.5 \text{ g/m}^3 \cdot \text{h}$ までの実験範囲では大略80%以上の酸化率であった。

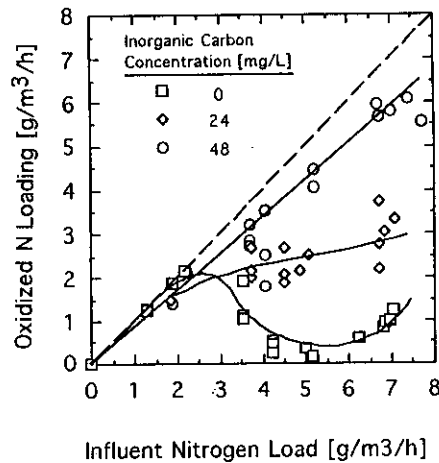


図1-5 Effect of Inorganic Carbon on Nitrification.  
(TOC loadong =  $12.5 \text{ g/m}^3/\text{h}$ )

### 1.3.4 懸濁、担持微生物のアンモニア態窒素酸化能

担体担持微生物の連続運転開始60日以降の流出水質が安定になった時点で、懸濁微生物及び担体担持微生物の硝化活性を調べた。結果を図1-6に示す。反応器内の硝化反応は主に担持微生物により行われており、無機炭素を加えることにより硝化速度が大きくなる(アンモニア濃度が減少する)傾向を示した。

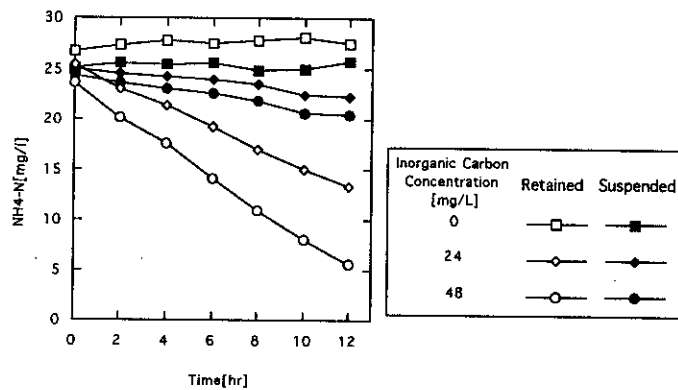


図1-6 Activity of Nitrification.



### 1.3.5 担体担持微生物の硝化過程

無機炭素供給濃度48mg/lの場合の担体担持微生物活性実験におけるアンモニア態窒素、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素、無機炭素の濃度変化を図1-7に示す。アンモニア態窒素は無機炭素と共に酸化され亜硝酸態窒素と硝酸態窒素が蓄積する過程が見られた。実験培地中には有機炭素を入れていないため脱窒反応は起こっていない。

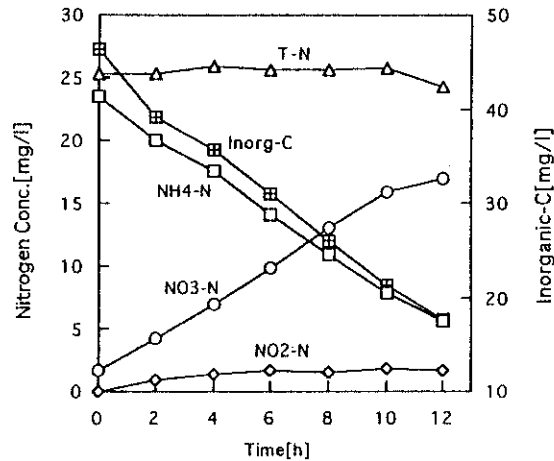


図1-7 Nitrification by the Carrier.  
(Inlet Inorganic Concentration = 48 mg/L)

### 1.3.6 担体内溶存酸素濃度分布

所定のC/N条件で50日以上連続運転を行い反応器内の反応が定常状態になった時点で担体を取り出して溶存酸素濃度分布測定を行った。結果を図1-8に示す。

#### (1) TOCの影響

窒素濃度を50mg-N/Lとし、TOC濃度をそれぞれ10、100、200mg-C/Lとした場合の担体内溶存酸素濃度分布を図1-8(A)に示した。溶存酸素濃度は担体表面から0.7-1.4mmの深さでゼロとなり、担体内部は嫌気領域となっている。TOC濃度が高い程酸素浸透深さは小さくなっており、有機物分解活性が高いことを示している。

#### (2) 窒素濃度の影響

図1-8(B)は窒素濃度が変わってもTOC濃度が一定であれば溶存酸素濃度分布は大きく変わらないことを示している。これは担体内溶存酸素濃度分布がTOC濃度に支配されていることを示唆している。

(3) 無機炭素の影響

図1-8(C)に示すように、C/N濃度を100/50にして無機炭素を添加すると、溶存酸素の浸透深さが小さくなる。これは硝化反応の進行に伴う溶存酸素の消費によると考えられる。無機炭素を添加することにより硝化反応の促進だけでなく担体内嫌気領域が大きくなる。この現象は脱窒反応にも有利であることを示唆する。

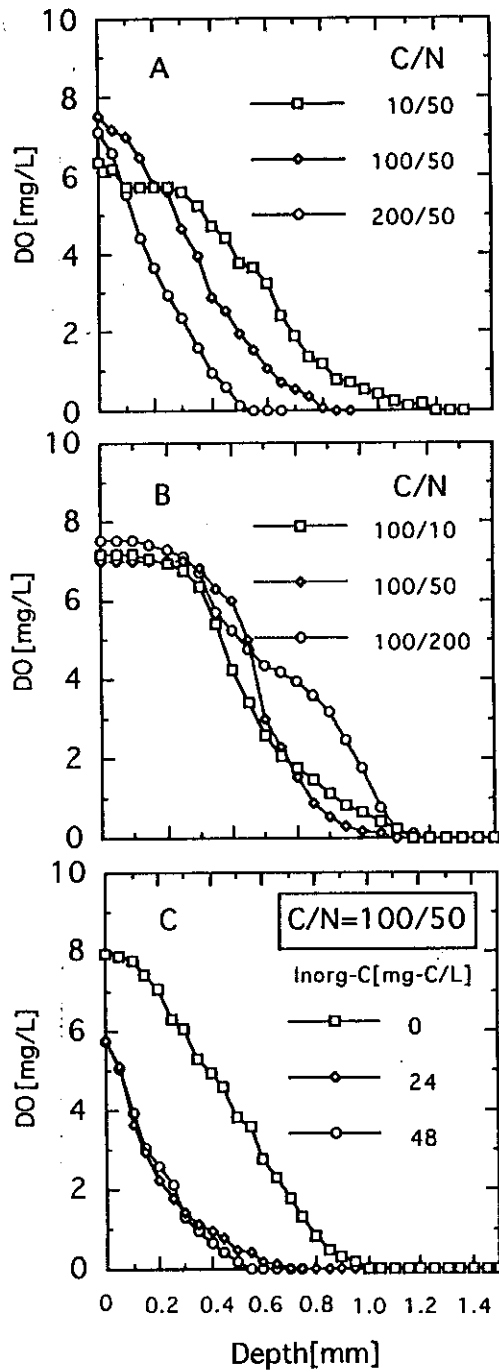


図1-8 DO Distribution in Carrier

### 1.3.7 膜と担持微生物のハイブリッド運転結果

膜と担持微生物のハイブリッドによる高濃度窒素条件下で窒素除去実験を図1-1の装置を用いて行った。全運転期間は180日であり、基質は有機炭素源としてグルコース、窒素源として硫酸アンモニウム、無機炭素源として炭酸水素ナトリウムを用いた。操作条件は有機炭素濃度を100mg-C/Lとし、(Ⅰ)無機炭素=0、窒素=50mg-N/L、(Ⅱ)無機炭素=30mg-C/L、窒素=50mg-N/L、(Ⅲ)無機炭素=60mg-C/L、窒素=100mg-N/Lの3段階に変化させて連続運転を行った。その運転結果を図1-9に示す。

#### (1) 連続運転中の膜操作圧力とフラックス

運転期間中の吸引圧力は40-50kPaの範囲に維持した。運転初期フラックスは0.4m/dであったが、運転60日後急激に落ち、運転70日目に薬品洗浄を行った。その後フラックスは徐々に上昇するが再びフラックスの減少が見られ運転160日目に2回目の薬品洗浄を行った(図1-9(A))。

#### (2) 微生物濃度

懸濁微生物濃度(図1-9(B))は運転開始後50日まで増加し3,000-3,500mg/lで安定した。担持微生物濃度は運転80日で最高値に達し、その後徐々に減少して15,000mg/lの濃度で安定した。反応器内全体微生物濃度は5,000mg/l前後であった。

#### (3) TOC除去率

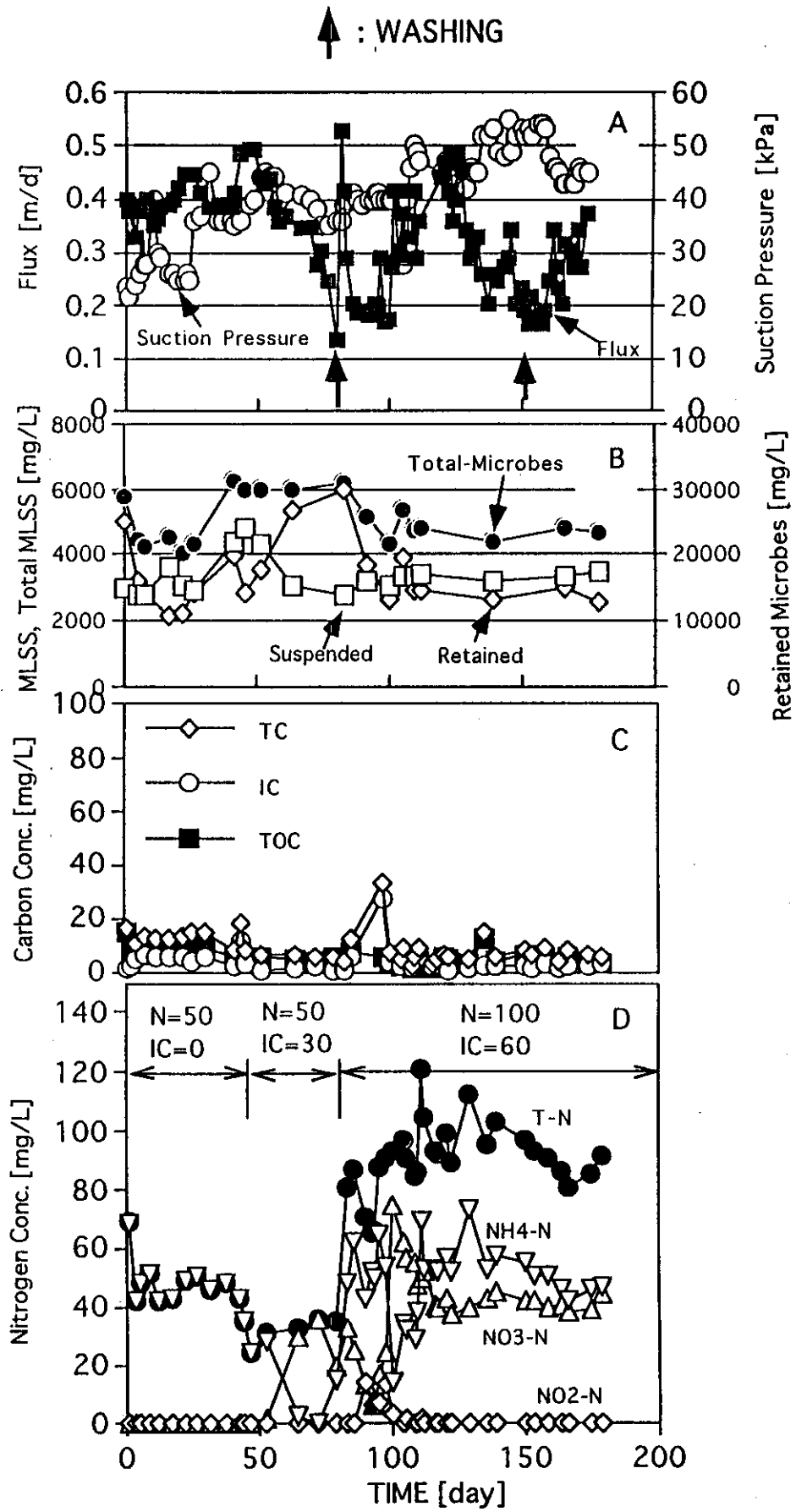
全運転期間を通して90%以上の除去率を示した(図1-9(C))。

#### (4) 窒素濃度

I)では流入水中窒素50mg-N/Lはほとんど除去されず、アンモニアとして流出されている。これは高濃度窒素下で硝化反応が制限されたためと考えられる。

II)では無機炭素を加えた結果、50mg-N/Lのアンモニアイオンは全て酸化され、窒素量15-20mg-N/Lが除去され、硝酸として30mgN/Lが残った。この結果から無機炭素により硝化反応が促進できることが示された。

III)では最大消化能力を把握するため窒素濃度を100mg-N/Lまで上げて実験を行った。流出水中の窒素成分はアンモニアイオンが50mg-N/L硝酸イオンが40mg-N/Lであった。



☒ 1-9 Time Course of Membrane-Carrier Hybrid System (TOC= 100 mg-C/L)