

凝集沈澱を前処理としたハイブリッド浸漬型 メンブレンバイオリアクター

学位論文内容の要旨

生物反応槽に直接膜を浸漬させ、単一槽で生物処理と固液分離を同時に行う浸漬型メンブレンバイオリアクター(Membrane bioreactor, MBR)の下水処理への適用が注目を集めている。活性汚泥法に代表される従来の生物学的排水処理と比較して、MBR の利点は①生物反応槽内の微生物濃度を増加させることが可能となり、生物処理の効率が向上すること、②汚泥の沈降性に左右されない完全な固液分離が可能であること、③細菌を含まない処理水が得られること(UF 膜使用時はウィルス除去も可能)等が挙げられる。しかし、膜ファウリングの進行に伴う膜透過性能の低下が MBR 普及を妨げる主な原因となっている。MBR の膜ファウリングはバイオマスを含む混合液と膜間との物理化学的な相互作用によって引き起こされるため、どのような混合液を形成するかが重要である。

一方、都市下水中に存在する有機物のうち、粒径 $0.1\mu\text{m}$ 以上の割合は COD 及び TOC ベースで 60-80%を占める。これらの有機物は、粒径 $0.1\mu\text{m}$ 未満の有機物と比較して生物学的酸化速度が非常に小さく、また凝集沈殿処理の除去対象物質である。従って、生物処理の前処理として凝集沈殿処理を導入することは、生物学的排水処理単独のケースと比較して、量及び質的に有利な有機物が生物反応槽で処理されるため、水処理プロセスとして効率が高められる。

このような背景から、本論文では従来の下水処理システムよりもはるかに高度で効率的なシステムとなりうる凝集沈殿を前処理としたハイブリッド浸漬型 MBR(以下ハイブリッド MBR)を提案する。ハイブリッド MBR では、凝集沈殿による前処理により大半の有機物を高速に除去した結果、後段の MBR では量及び質的に生物分解しやすい有機物が処理されるため、従来法と比較して処理時間の短縮と処理水質の改善が図られると考えられる。同時に、ハイブリッド MBR では MBR への有機物負荷を低減させることにより、MBR の問題点であった膜ファウリングの抑制を試みた。本論文ではパイロットスケール装置を用いた長期連続実験を実行することにより、ハイブリッド MBR の処理性及び運転性について検討を行った。

本論文は第 1 章から第 6 章で構成され、各章の内容は以下の通りである。

第 1 章では、従来の都市水代謝システムの問題点を指摘し、新しい下水処理システムの必要性を説いた。また、新しい下水処理システムの核となる MBR の問題点である膜ファウリングについて指摘した上で、膜ファウリングの改善と処理水質の向上を両立させうる凝集沈殿を前処理としたハイブリッド MBR を提案した。

第 2 章では、凝集剤として鉄系無機高分子凝集剤(Poly Silicato Iron, PSI)を用いた噴流攪拌固液分離装置(Jet Mixed Separator, JMS)による都市下水の凝集沈殿処理について検討を行った。また、PSI とポリ塩化アルミニウム(Poly aluminum chloride, PAC)を用いた際に観察された JMS の処理性について

比較を行った。最初沈殿池流出水を対象としたジャーテストの結果より、PSI 注入量 10mg-Fe/L 以上で濁度の除去率が平衡に達した。最大の濁度除去を与える pH は、5.5 以下であったが、連続実験における凝集剤注入条件は、後段の生物処理を考慮して pH 無調整、PSI 注入量 10mg-Fe/L とした。上述した条件下にて JMS を用いた連続実験により、都市下水の凝集沈殿処理では最初沈殿池流出水の質的変動が緩和され、濁度 80%、TOC50%、全リン 77% 及び全窒素 25% の除去率が得られた。PSI、PAC では、凝集沈殿に PAC 使用時の処理性が若干優れていたが、汚泥の再利用を視野に入れて MBR の前処理の凝集沈殿処理に用いる凝集剤には PSI を採用した。

第 3 章では、都市下水を用いた長期連続実験を通じて、凝集沈殿を前処理としたハイブリッド MBR の処理性及び運転性に関して MBR 単独の処理と比較することによって検討を行った。ハイブリッド MBR では、MBR 単独による処理と比較して、極めて低い有機物及びリン濃度の処理水が得られた。また、PSI、PAC 使用時におけるハイブリッド MBR の処理水質はほぼ同程度であった。本研究で観察された膜ファウリングは、高い混合液粘度によって膜表面に肥厚なケーキ層が形成される可逆的膜ファウリングと溶解性有機物が原因であり薬液洗浄でなければ解消されない不可逆的膜ファウリングとに分類された。ハイブリッド MBR では、①低い生物分解性の高分子有機物が凝集沈殿によって除去されたことにより、不可逆的膜ファウリングの進行が抑制されること、②混合液粘度が低く維持されるため可逆的膜ファウリングを回避することが可能であった。MBR 単独による処理では混合液粘度の上昇より高い MLSS 濃度の運転を行うことが出来ず、MLSS 濃度 10g/L が上限値として示唆された。一方、ハイブリッド MBR では高い MLSS 濃度においても安定した運転の継続が可能であった。また、混合液粘度は MLSS 濃度とフロックの粒径によって支配されていた。

しかしながら、ハイブリッド MBR では、凝集剤添加に起因するアルカリ度の消費に伴って、MBR 部における硝化反応が不安定であったこと及び脱窒素処理を念頭に置いていなかったため、システム全体での全窒素除去率が 40% に留まったこと等の問題点が提示された。

第 4 章では、溶解性有機成分(Dissolved organic matter, DOM)及び細胞外高分子物質(Extracellular polymeric substances, EPS)の膜ファウリングに及ぼす影響について検討を行った。また、連続実験で観察された膜ファウリングのメカニズムを評価するため回分ろ過試験を行った。溶解性有機炭素では膜ファウリングとの関連が確認されたが、糖・タンパク質で定量される DOM では膜ファウリングとの関連が確認されなかった。また、連続実験中に観察された急激な膜透過性能の低下は、回分ろ過試験の結果、コロイド成分(1 μ m 前後)が原因であった。このコロイド成分の発現は、汚泥中に EPS として保持されていた糖・タンパク質がバルク中に放出されたことに由来すると示唆され、可逆・不可逆どちらの膜ファウリングにも属せず、混合液の固液分離性を著しく低下させた。

第 5 章では、循環型に比して省スペース・省エネルギーで脱窒素を行い、さらに高い稼働率で膜ろ過を行うことのできる MBR として、膜分離槽内に仕切り板を挿入した新規硝化脱窒同時反応型 MBR を提案した。実都市下水を原水としたパイロットスケール実験を通じ、新規 MBR の処理性及び運転性について検討した。槽内に仕切り板を挿入した新規 MBR では、単一槽内で部分的及び断続的に無酸素状態を形成することによって硝化・脱窒反応を同時に進行させることが可能であった。仕切り板を設置することにより全窒素の除去率は約 30% 向上し、前凝集沈殿を含んだシステム全体での T-N 除去率は 66.2% となった。また TOC については 91.5%、全リンは汚泥の引拔を行った結果、97.2% の除去率が得られた。新規 MBR では、脱窒反応に伴って発生するアルカリ度により硝化反応を安定させることが可能となり、第 3 章で問題となっていた窒素処理性が改善された。

第 6 章では、本論文の総括を行い、また今後の課題を指摘した。

本論文では、生物処理を主体とした従来の下水処理システムにかわる凝集沈殿を前処理としたハイブリッド浸漬型 MBR を提案した。都市下水の凝集沈殿に用いる凝集剤には PSI が適していた。ハイブリ

ッド MBR では、従来の処理方式と比較して極めて低い有機物及びリンの濃度の処理水が得られた。また、ハイブリッド MBR に窒素除去プロセスを組み込むことによって、全窒素濃度 10mg/L 以下の処理水が得られた。連続実験で観察された膜透過性能の低下は、混合液粘度が原因である可逆的膜ファウリングと溶解性有機物が原因である不可逆的膜ファウリングとそのどちらにも属さないコロイド成分が原因である三つに分類された。ハイブリッド MBR では、MBR への有機物負荷を低減させることにより、MBR 単独と比較して膜ファウリングの進行が抑制された。これらの結果よりハイブリッド MBR は従来の下水処理システムよりもはるかに高度で効率的な下水処理システムであった。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 渡 辺 義 公
副 査 教 授 高 桑 哲 男
副 査 教 授 眞 柄 泰 基
副 査 助 教 授 岡 部 聡

学 位 論 文 題 名

凝集沈澱を前処理としたハイブリッド浸漬型 メンブレンバイオリアクター

生物反応槽に直接分離膜を浸漬させ、単一槽で生物処理と固液分離を同時に行う浸漬型メンブレンバイオリアクター(Membrane bioreactor, MBR)の都市下水処理への適用が注目を集めている。活性汚泥法に代表される従来の生物学的都市下水処理法と比較して、MBR の利点は①生物反応槽内の微生物濃度を増加させることが可能となり生物処理の効率が向上すること、②汚泥の沈降性に左右されない完全な固液分離が可能であること、③細菌を含まない清澄な処理水が得られること(UF 膜使用時はウィルス除去も可能)等が挙げられる。しかし、膜ファウリングの進行に伴う膜透過性能の低下が MBR 普及を妨げる主な原因となっている。

著者は都市下水中に存在する有機物のうち、粒径 $0.1\mu\text{m}$ 程度以上の粒子に起因する COD 及び TOC は 60-80%を占めること、これらの有機物は生物学的酸化速度が非常に小さい点に着目し、MBR の前処理として凝集沈殿処理の導入したハイブリッド浸漬型 MBR システムを提案した。ハイブリッド浸漬型 MBR(以下ハイブリッド MBR)では、凝集沈殿による前処理によりコロイドより大きな有機物を高速に除去できるので、後段の MBR へ流入する有機物の生物学的酸化速度の増加と有機物負荷の低減化が可能である。これによって、通常の MBR よりも短い滞留時間で高度の処理水が得られ、膜ファウリングも低減化される。本論文ではパイロットスケールの実験装置を用いた長期連続実験によって、ハイブリッド MBR の処理性及び運転性についての上記の優れた特性を検証すると共に、MBR における膜ファウリングの機構とその軽減化を検討した。

本論文は 6 章で構成される。各章の内容は以下の通りである。

第 1 章では、従来の都市水代謝システムの問題点を指摘し、新しい下水処理システムの必要性を説いた。また、新しい下水処理システムの核となる MBR の問題点である膜ファウリングについての既往の研究を紹介した上で、膜ファウリングの改善と処理水質の向上を両立させうる凝集沈殿を前処理としたハイブリッド MBR を提案した。

第 2 章では、凝集剤として鉄系無機高分子凝集剤(Poly Silicato Iron, PSI)を用いた噴流攪拌固液分離装置(Jet Mixed Separator, JMS)による都市下水の凝集沈殿処理について検討を行った。下水処理場の最初沈殿池流出水を原水としたジャーテストの結果より、PSI 注入量 10mg-Fe/L 以上で

濁度の除去率が平衡に達した。最大の濁度除去を与える pH は、5.5 以下であったが、連続実験における凝集剤注入条件は、後段の生物処理を考慮して pH 無調整、PSI 注入量 10mg-Fe/L とした。上述した条件下における JMS を用いた連続実験により、凝集沈殿処理によって、濁度 80%、TOC50%、全リン 77%及び全窒素 25%の除去率が得られることを示した。

第3章では、都市下水を原水とした長期連続実験により、ハイブリッド MBR の処理性及び運転性に関して MBR 単独の場合と比較検討した。ハイブリッド MBR では、MBR 単独の場合と比較して、極めて低い有機物及びリン濃度の処理水が得られた。また、膜ファウリング機構については、高い混合液粘度によって膜表面に肥厚なケーキ層が形成される可逆的膜ファウリングと溶解性有機物が原因であり薬液洗浄でなければ解消されない不可逆的膜ファウリングに分けて検討した。その結果、ハイブリッド MBR では、①生物学的分解性の低い高分子有機物が凝集沈殿によって除去されたことにより、不可逆的膜ファウリングの進行が抑制されること、②混合液粘度が低く維持されるため可逆的膜ファウリングを低減化できること、を明らかにした。MBR 単独の場合は、混合液粘度の上昇により高い MLSS 濃度の運転を行うことが出来ず、MLSS 濃度 10g/L が上限値として示唆された。一方、ハイブリッド MBR では高い MLSS 濃度においても安定した運転の継続が可能であった。また、混合液粘度は MLSS 濃度と活性汚泥フロックの粒径によって支配された。ハイブリッド MBR では、凝集剤添加に起因するアルカリ度の消費に伴う pH の低下による硝化効率の減少が生じたり、前段で有機物の大半を除去することによる低脱窒素効率が問題となる場合がある。それを解消するには、凝集沈殿処理過程の最適化が課題であることも指摘した。

第4章では、溶解性有機成分(Dissolved organic matter, DOM)及び細胞外高分子物質(Extracellular polymeric substances, EPS)の膜ファウリングに及ぼす影響について検討した。そのために、連続実験で観察された膜ファウリングを評価するための回分膜ろ過試験を行い、溶解性有機炭素と膜ファウリングとの関連を明らかにした。また、ハイブリッド MRB でも膜透過性能の低下が観察されたが、これは過度の凝集沈殿処理による極端な有機物負荷の低下によって細菌が粗コロイド寸法に破壊されたと推論した。この場合は、可逆・不可逆どちらの膜ファウリングにも属さず、膜近傍に粗コロイドの濃度分極が形成されるためと考えた。このことから、凝集沈殿処理過程の最適化の重要性を指摘した。

第5章では、省スペース・省エネルギーで脱窒素を行いながら高い膜透過性を維持できるハイブリッド MBR として、膜分離槽内に仕切り板を挿入した新規硝化脱窒同時反応型 MBR を提案し、都市下水を原水としたパイロットプラント実験によって、新規ハイブリッド MBR の処理性及び運転性を検討した。槽内に仕切り板を挿入した新規ハイブリッド MBR では、単一槽内に部分的及び間歇的に無酸素ゾーンを形成することによって硝化・脱窒反応を同時に進行させることが可能であった。仕切り板を設置することにより全窒素の除去率は約 30%向上し、前凝集沈殿を含んだシステム全体での TN 除去率は約 70%となった。また TOC 除去率は 90%以上、全リン除去率も汚泥の引拔を行った結果、95%以上であった。新規ハイブリッド MBR では、脱窒反応に伴って発生するアルカリ度により硝化反応を安定させることが可能となり、第3章で指摘した問題は改善された。

第6章では、本論文の総括を行い、また今後のハイブリッド MBR に関わる研究課題を示した。これを要するに、著者は循環型社会の構築に必要な高度な都市下水処理を可能にする新しいハイブリッド浸漬型 MBR を提案し、その有効性をパイロットプラント実験によって実証すると共に、MBR の膜ファウリング機構についても新たな知見を得たことにより、都市水代謝工学と下水処理工学の発展に貢献すること大である。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。