

学位論文題名

Onsite Treatment of Higher-load Graywater by Membrane Bioreactor

(膜分離活性汚泥法による高負荷雑排水のオンサイト処理)

学位論文内容の要旨

Higher-load graywater (HLGW) is the mixture of kitchen sink wastewater (KSWW) and washing machine wastewater (WMWW) and among the five graywater discharges from the household, these two have high percentages of contribution on the pollution load in terms of chemical oxygen demand (COD), nitrogen (N), and phosphorus (P) components. Furthermore, WMWW contains high concentration of linear alkylbenzene sulphonates (LAS) which is the surfactant mostly used in laundry detergent formulations. Therefore, treatment of HLGW is necessary before it is being discharged to the environment or reused for another purpose. Membrane bioreactor (MBR) has been recently applied to graywater treatment. In this paper, the MBR system is applied for onsite treatment of HLGW and is operated at constant transmembrane pressure (TMP), thus no pump requirement for permeation. Furthermore, MBR is subjected to intermittent feeding where TMP and flux varies throughout the day. In Chapter 1, background and objectives of the study were described. The graywater characteristics and existing treatment facilities were enumerated. The MBR as a candidate technology for higher-load graywater is described in this section. The chemical characteristics and impact of LAS to the environment is discussed.

In Chapter 2, the effect of organic loading rate (OLR) on the treatment of kitchen sink wastewater only was investigated. The subMBR used employed an ultrafilter, hollow fiber membrane and was operated at constant TMP of 5kPa. Four lab-scale subMBR were operated at HRT of 4.5, 7, 12 and 24 hr giving a corresponding OLR of 6.9, 4.5, 2.6 and 1.3 kgCODm⁻³d⁻¹. The parameters monitored were organic matter (OM) removal, characteristics of OM, N and P, and permeate flux decline. It was found out that regardless of high COD variations in the influent, relatively stable permeates were obtained at OLR of 4.5, 2.6 and 1.3 kgCODm⁻³d⁻¹ with COD < 40 mgL⁻¹. HRT of 4.5 hr was too short to degrade the high organic loading supplied to the system. Furthermore, the accumulated organic matter inside the reactor was characterized. Increase in larger molecules (0.1-0.45 μ m) was observed at HRT of 4.5 hr and 24 hr, but COD and biodegradability were high at HRT of 4.5 hr and low at HRT of 24 hr. This indicated that the accumulated organic matter in a short HRT system was due to undecomposed matter from the influent, while the ones accumulated in long HRT system was due to the microbial by-products. Nitrates and phosphates are low in the permeate. Severe fouling was observed in reactor at HRT of 4.5 hr, followed by the reactors at HRT of 7, 12 and 24 hr, respectively.

In Chapter 3, the effect of OLR on the treatment of the mixture of KSWW and WMWW was investigated. The same subMBR was used. Four of these were operated at HRT of 4, 8, 12 and 24 hr. A 1:1 ratio of KSWW and WMWW was used as an influent. It was found out that biological treatment of WMWW only is not feasible and also foaming can be a problem at high loading rate where the reactor with OLR of 5.3 kgCODm⁻³d⁻¹ or HRT of 4 hr was stopped due to this problem. HRT of 8 hr or longer (OLR of 2.7 kgCODm⁻³d⁻¹ or lower) could give a relatively stable permeate qualities compared to the shortest HRT operated at 4 hr. However, it was observed that high organic matter in the permeate of the system treating the mixture compared to KSWW only was obtained. It may imply that WMWW has some components that are not easily biodegradable. Furthermore, the influent LAS concentration is on the range of 10.3 ? 23.1 mg/L and about >99% of this was degraded. Therefore, the remaining OM is not LAS in its original form. Nitrates and phosphates are of low concentrations because these are not abundant in graywater but rather in blackwater. Low flux is observed which opted us to use another membrane, a micro-filter, flat plate (MF-FP) membrane for succeeding experiments.

In Chapter 4, the 10-L MBR system employing a MF-FP membrane was evaluated. Continuous feeding of the influent at a 1:1 ratio of WMWW and KSWW was used. The analytical measurement of LAS using LC-MS was developed. The membrane flux during the stable stage of the operation was 0.22 m³m⁻²d⁻¹ at constant TMP of 3 kPa. The COD in the permeate and inside the reactor decrease through time from 35 to 20 mgL⁻¹ and 80 to 40 mgL⁻¹, respectively. This can be accounted to the fact that HRT increases through time due to decrease in membrane flux, thus, giving more contact time between the microorganisms and micropollutants for degradation. The HRT increased from 10 to 16 hr giving an average HRT of 13.6 hr. The total LAS removal achieved was >99%, indicative of its non-inhibited degradation even at influent concentration of 30.8 mgL⁻¹. SPCs are detected from the permeate but are not quantified.

In Chapter 5, the effect of intermittent feeding on the treatment of HLGW using a MF-FP membrane system was investigated. The MBR in Chapter 4 was modified to compensate for high inflow of the wastewater in the morning and the evening. The morning discharge (7:00-8:30) was a 1:1 ratio of KSWW and WMWW while the evening discharge (19:00-22:00) was KSWW only. The variations of flux and TMP throughout the day were measured in addition to COD, N and P components. Flux at each corresponding TMP decreases through time. And it was found out that during the first 60 days, the MBR operated with continuous feeding gave a lower flux at TMP of 3 kPa compared to that operated with intermittent feeding. It has been observed also that the composite sample from the morning discharge has a higher COD than that of the evening discharge regardless of the fact that the influent COD of the latter is higher.

In Chapter 6, the batch experiment for two wastewaters (a) KSWW only and (b) mixture subjected to the same operating conditions were investigated. It has been found out that through time, the organic matter in terms of DOC in the mixture is higher than that of the KSWW only. Furthermore, LAS has been removed but not completely degraded into CO₂ and H₂O. SPCs, the by-product of LAS, were detected even after 12 hours and 24 hours of operation for the mixture. This must be one of the reasons why the COD or DOC of the mixture is higher than that of the KSWW only.

In Chapter 7, important results of the present study were summarized and recommendations for future study are presented.

学位論文審査の要旨

主査	教授	船水尚行
副査	教授	松井佳彦
副査	教授	高橋正宏
副査	准教授	木村克輝

学位論文題名

Onsite Treatment of Higher-load Graywater by Membrane Bioreactor

(膜分離活性汚泥法による高負荷雑排水のオンサイト処理)

排水処理を単なる排水処理から資源回収型へ転換することが求められている。ここで回収する資源とは水資源に加え、排水中の窒素やリンといった栄養塩類である。また、排水系のうち、管路ネットワークに係る初期投資や維持管理費用が膨大になることから、管路ネットワークに依存しない仕組みの開発も緊急の課題として認識されている。このような課題に対して、排水を発生源において分離し、かつ処理・資源回収する排水分離分散型排水処理法が一つの解決策を与える。本方式ではし尿は水を用いないドライトイレで資源化、雑排水は処理後、再利用化することが想定されている。本研究は、排水分離分散型排水処理法のうち、雑排水処理を対象としている。

し尿を除いた家庭からの排水のうち有機物、窒素、リンの負荷に対して大きな寄与を占めている排水は台所排水 (KSWW) と洗濯排水 (WMWW) である。洗濯排水は高濃度の界面活性剤 (アルキルベンゼンスルホン酸 LAS) を洗剤成分として含有している。このような雑排水処理に近年膜分離活性汚泥法 (MBR) の適用が試みられ始めている。本研究では、MBR を雑排水のうち高負荷雑排水のオンサイト処理に適用し、膜分離において従来使用されていたポンプを使用しない、水位差を用いた定差圧ろ過運転の可能性について検討している。また、家庭からの排水生成が時間的に大きく変動することから、これまで MBR の運転では検討されることのなかった、時間的に膜ろ過差圧 (TMP) と膜透過フラックスが変動するような運転方式について解析している。本論文は以下の 7 章より成る。

第 1 章では、本研究の背景、目的を議論している。そして、雑排水の水質的な特徴を整理し、膜分離活性汚泥法が高負荷雑排水処理に適した処理法の一つであることを示している。加えて、高負荷雑排水中有機物の主要成分である LAS の化学的特性について既往の研究成果をもとに、その処理性を含めて整理している。

2 章では台所排水のみを処理する場合の処理装置への最適有機物負荷 (OLR) について検討した結果が記されている。中空糸型の限外ろ過膜 (UF 膜) を生物反応槽に浸漬して膜分離活性汚泥法を構築している。そして、膜分離差圧は従来と比較して極めて低い 0.5kPa を採用して運転した結果を報告している。これらの実験では、有機物除去量、有機物の特性、窒素濃度、リン濃度、膜分離フラック

スの経時変化が測定された。その結果、流入台所排水中 COD 濃度の大きな変動にもかかわらず、処理水中 COD 濃度は安定し、有機物負荷 $4.5, 2.6, 1.3 \text{ kgCODm}^{-3}\text{d}^{-1}$ の場合には COD 濃度 40mg/L 以下と良好な結果を得た。一方、HRT4.5 時間 (有機物負荷 $6.9 \text{ kgCODm}^{-3}\text{d}^{-1}$) の場合には、反応時間が充分ではなく、有機物負荷が高すぎるとの結果となった。また、反応装置内に蓄積した有機物の特性評価を行った結果、負荷が高い場合には排水中高分子有機物の蓄積、低負荷の場合には微生物代謝産物の蓄積が生じることが明らかとなった。極めて激しいファウリングが HRT4.5 時間の場合に観察され、HRT が長いほどファウリングの進行は遅くなっていた。

3 章では、台所排水と洗濯排水を同時に処理する場合の有機物負荷について検討している。2 章の実験で用いた装置と同様の装置を用いた結果である。本実験では台所排水と洗濯排水を 1:1 の割合で混合したものを処理した。なお、洗濯排水のみを生物処理することは栄養バランスの観点から不可能であることは事前に確認済みである。実験結果より洗濯排水には生物分解速度の遅いものが存在していることが確認され、LAS の除去率は 99% 以上であった。

4 章には、MF 膜の平膜型を用いた MBR の特性についての検討結果が整理されている。この MF 膜を用いた実験では、台所排水と洗濯排水を 1:1 で混合したものをを用いている。排水を一定流量で供給した場合、2,3 章で示した UF 膜を用いた場合と比較して、比較的安定した膜透過フラックス ($0.22 \text{ m}^3\text{m}^{-2}\text{d}^{-1}$) が低い差圧 (3 kPa) で得られている。平均 HRT が 13.6 時間程度の場合には、LAS の除去は 99% 以上という結果であり、LAS による生物分解の阻害は観察されていない。しかし、LAS は完全に分解された訳ではなく、分解副生成物である SPC が処理水中から検出されている。

5 章では、MF 膜の平膜型を用いた MBR について、排水が間欠的に供給される場合が検討されている。排水は朝 (7:00-8:00) に台所排水と洗濯排水を 1:1 で混合したものを供給、夜 (19:00-22:00) に台所排水のみを供給するという間欠的供給パターンを用いている。膜間差圧と膜透過フラックスの関係はファウリングの進行により変化し、運転 60 日後には 4 章で示した一定流量運転時のフラックス (差圧 3MP 時) より低下する結果となった。また、朝の排水の処理水中 COD は夜の処理水より高い結果となった。

6 章では、LAS の分解特性を詳細に調査するために実施した回分試験結果について記されている。LAS を含有する洗濯排水が混合された場合にのみ、SPC が観察され、この SPC の生成が洗濯排水含有排水の処理水の高 COD に寄与していることが確認された。

7 章には本研究で得られた主要な成果が整理され、将来の展望が述べられている。

これを要するに、著者は排水分離分散型排水処理において、雑排水処理に膜分離活性汚泥法が有用であることを実証し、かつ、有機物負荷等の設計の基礎数値を与えている。また、界面活性剤の生物分解過程における分解挙動について新知見を与えており、排水処理工学に対して貢献するところ大なるものがある。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。