

一槽間欠曝気式膜分離法における曝気サイクルと容積負荷が窒素除去と膜透過性能に及ぼす影響

廃棄物・有害物管理工学研究室 友平 尚男
指導教官 小松 俊哉
桃井 清至

1. はじめに

富栄養化現象防止のため、放流先が閉鎖性水域となっている下水処理場等においては、標準活性汚泥法よりも高い窒素除去率が得られる高度処理が必要になってきている。この高度処理法としては、嫌気・無酸素・好気法（A2O法）や、循環式硝化脱窒法等が技術的に確立されたものとなっているが、これらの処理法では処理面積が広大となることや、維持管理の煩雑化といった問題がある。このため、コンパクトな処理装置で高度処理を行なうことが求められており、既存の標準活性汚泥処理施設の大幅な増改築が不要なことから、一槽間欠曝気式膜分離法が注目されている¹⁾。しかし、本法における曝気サイクルや容積負荷が窒素除去能・膜透過能に及ぼす影響については十分に検討されていないのが現状である。

そこで本研究では、一槽間欠曝気式膜分離装置における運転方式が、窒素除去能と膜透過能に及ぼす影響を検討することを目的に、曝気サイクル、容積負荷、汚泥引き抜きを行なわない Closed システムに着目し連続運転を行なった。さらに、膜透過能については、回分濾過実験や膜面附着物質の分析を行ない膜透過流速低下因子の検討を行なった。

2. 実験方法

2.1 実験装置

図-1 に本研究で用いた一槽間欠曝気式膜分離装置の概要を示す。有効容積 20L の反応槽中に（株）クボタの精密濾過膜（膜孔径 0.45 μm、有効面積 0.11m²、材質ポリオレフィン）を浸漬させ、ポンプによる吸引濾過を行ない、処理水を得た。吸引濾過は、曝気による膜表面の洗浄効果を利用するため、曝気時にのみ吸引濾過を行なった。また、タイマーコントローラーにより曝気を時間制御することで反応槽内を好気・無酸素状態に切り替え、硝化・脱窒反応による窒素除去を行なえるものとした。

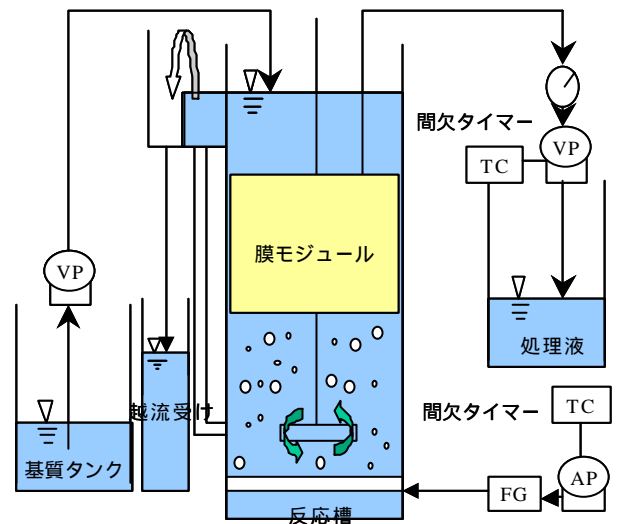


図-1 一槽間欠曝気式膜分離装置

2.2 運転条件

実験条件を表-1 に示す。また、基質には（株）王子コーンスターチのコーンステープリカー（CSL）を希釈して用いた。CSL の組成を表-2 に示す。全系列において運転開始 MLSS 濃度 5000mg/L で行なった。投入した汚泥は、CSL を基質として馴養させた活性汚泥を用い

た。実験室内はエアコンを用い室温 20 に制御した。各 RUN は別時期に運転を開始したが、それぞれ新たな活性汚泥を投入し、膜モジュールも新膜を使用した。実験は大きく 3 つに分類でき、曝気サイクルの影響の検討を行なうため、RUN1~4 の 4 系列の曝気サイクルを設定した。また、RUN1~4 の結果、窒素除去率の高かった RUN1、3 の曝気サイクルで HRT を 6 時間に短縮し容積負荷を 2 倍に高めた RUN5 及び RUN6 を行ない、更に汚泥引拔を行わない RUN7、8 の計 8 条件を設定し行なった。膜透過流束低下防止には曝気線速度を適正值に保つことが重要であり、曝気線速度は岩城ら²⁾の研究を参考にして 0.84m/day に設定して行なった。運転期間中 1 日 1 回膜をリアクターから取り出し、スポンジによる膜表面の洗浄を行ない、操作圧力を調節し設定膜透過流束に保つようにした。

連続運転期間中は、運転状況を把握するため pH、DO、ORP、操作圧力、膜透過流束の測定を行ない、3 日に 1 度、基質水・反応槽好気状態時・反応槽無酸素状態時・処理水のサンプリングを行ない、MLSS・MLVSS 濃度、菌体外高分子量(ECP)、各々の上澄み液の TOC、窒素濃度の測定を行なった。窒素濃度は HACKDR/2010 を用いて、NH₄⁺-N、NO₂⁻-N、NO₃⁻-N、Kje-N を測定した。

表-1 実験条件

	RUN1	RUN2	RUN3	RUN4	RUN5	RUN6	RUN7	RUN8
初期設定MLSS[mg/L]	5000							
設定HRT[hr]	12				6			
基質中有機物濃度[mg-TOC/L]	250							
基質中窒素濃度[mg-TN/L]	65							
膜の使用枚数	1				2			
設定膜透過流束[m/day]	0.37							
曝気線速度[m/min]	0.84							
余剰汚泥の引き抜き間隔[days]	3						-	
設定TOC-MLSS負荷[kg/kg/day]	0.1				0.2		<0.2	
設定TN-MLSS負荷[kg/kg/day]	0.026				0.052		<0.052	
設定容積負荷[kg/m ³ /day]	0.5				1.0			
曝気 曝気停止時間 [min min]	30:30	30:15	15:30	15:15	30:30	15:30	30:30	15:30

表-2 コーンステープリカー (CSL) 原液の組成 (mg/L)

	TOC	T-P	T-N	K	Mg	Na	Ca	Si	Fe
原液	160000	23000	42000	18000	11000	2600	400	200	320

2.3 回分濾過実験による濾過抵抗値の測定

30 日間の連続運転終了後に膜モジュールをリアクターから取り出し、回分濾過実験を行ない各種濾過抵抗値を測定した。回分濾過実験は膜モジュールを同形式のリアクターに移し、水道水を用いて行なった。その後、膜面付着物を金属のへらで剥離させた後、次亜塩素酸ナトリウム溶液 (塩素濃度 0.02%) に 24 時間浸漬後、シュウ酸溶液 (0.1%) に 24 時間浸漬後、の各々の膜について同様に水道水を用いて回分濾過実験を行なった。膜透過流束 (m/day)、水の粘度 (mPa・s)、操作圧力 (Pa) から各抵抗値を下記の濾過抵抗式により求めた。ここで J_v は膜透過流束 (m/day)、 P は操作圧力 (Pa)、 μ は水道水の粘度 (Pa・s)、

Rcg は金属のへらで除去可能なケーキ・ゲル層による抵抗値 (1/m) Rpo は次亜塩素酸による薬品洗浄で除去可能な主に有機物による目詰まり抵抗値 (1/m) Rpi はシュウ酸による薬品洗浄で除去可能な主に無機物による目詰まり抵抗値 (1/m) Rm は膜自身の抵抗値 (1/m) である。

$$J_v = \frac{P}{\mu (R_{cg} + R_{po} + R_{pi} + R_m)} \dots (\text{濾過抵抗式})$$

また、各洗浄工程で得られた付着物質を回収し、重量の測定を行なった。洗浄液に関しては、次亜塩素酸洗浄液は TOC 計で測定を行ない、シュウ酸洗浄液は ICP 発光分光分析装置により無機塩類の測定を行なった。膜面付着物の性状を調べるためケーキ・ゲル層中の菌体外高分子量 (ECP) の測定もあわせて行なった。

3. 結果及び考察

3.1 窒素除去性能

図-2 に RUN1 ~ 4 の処理水中各態窒素濃度を示す。結果は処理水中の窒素濃度が安定した 15 日目以降の値を平均したものである。尚、有機物除去率は全系列において 95%程度と高い除去率が得られ、運転条件の影響は見られなかった。

RUN2、4 で処理水中に硝酸性窒素が残存する傾向が見られた。これは反応槽中の DO、ORP の経時変化を測定したところ、曝気停止後溶存酸素が完全に消費されるまでに 10 分程度必要であった。このため、曝気停止時間が 15 分の RUN2、4 では無酸素時間が不足し、脱窒反応が十分行なわれず処理水中に硝酸性窒素が残存することが考えられる。また、窒素除去率は RUN1 で 88%、RUN2 で 74%、RUN3 で 86%、RUN4 で 82% であり、RUN1、3 の曝気サイクルで高い除去率が得られた。

次に容積負荷の影響 (RUN5、6) 及び汚泥引抜を行なわない Closed システムの影響 (RUN7、8) の処理水中各態窒素濃度の結果を図-3 に示す。

RUN5、6、8 の条件で処理水中にアンモニア性窒素が残存する傾向が見られた。これは、RUN5、6 では汚泥負荷が高いため汚泥の処理限界を越え硝化反応が十分に進行せず、処理水中にアンモニア性窒素が残存したことが考えられる。また、RUN8 においては、DO 濃度は 2.0mg/L 程度と RUN7 と同等であったが、曝気時間が 15 分と RUN7 に比べ短いため、溶存

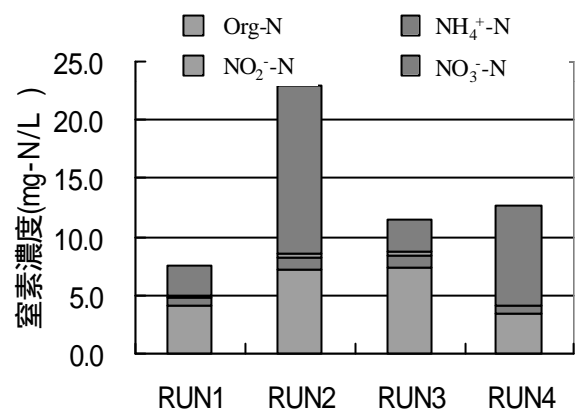


図-2 RUN1 ~ 4 の処理水中各態窒素濃度

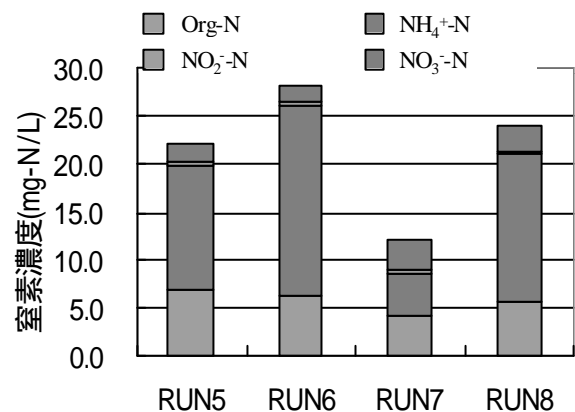


図-3 RUN5 ~ 8 の処理水中各態窒素濃度

酸素が不足し、硝化反応が進行しなかったことが考えられる。しかし、Closed システムで運転することで MLSS 濃度は 28000mg/L 程度まで上昇し、汚泥負荷が低減されるため、RUN7 のように曝気時間が十分で DO が保てられれば窒素除去率は 85%程度まで上がり、良好な処理水質が得られることがわかった。

3.2 膜透過性能

膜透過性能に及ぼす曝気サイクルが及ぼす影響について、RUN1~4 の操作圧力の経日変化を図-4 に、膜透過流束の経日変化を図-5 に示す。RUN3 (15 分曝気:30 分停止) において操作圧力の上昇が見られるが、これは、本実験では曝気時にのみ吸引濾過を行なっているため RUN3 のように曝気時間が短い運転では操作圧力を高め、膜透過流束を上げる必要があるためである。しかし、操作圧力の上昇は見られたが膜透過流束は設定値 (0.37m/day) に保つことが出来た。他の系では操作圧力の上昇はほとんど見られなかった。

同様に容積負荷及び Closed システムが及ぼす影響について、RUN5~8 の操作圧力の経日変化を図-6 に、膜透過流束の経日変化を図-7 に示す。汚泥負荷の高い RUN5、6 において操作圧力の急速な上昇がみられ、RUN6 (15 分曝気:30 分停止) においては操作圧力の調節を行なっても設定膜透過流束に保つことが出来なかった。しかし、汚泥を引き抜かない Closed システムでの運転 (RUN7、8) では操作圧力の上昇は微小であり、膜透過流束も安定していた。

3.3 濾過抵抗値

回分濾過実験より求めた濾過抵抗値の結果を図-8 に、膜面付着物量の結果を図-9 にそれぞれ示す。結果は特に差が顕著であった RUN5~8 について示す。

結果より濾過抵抗値に及ぼす因子としては、有機物目詰まりによる影響がどの系においても大きく支配的であることがわかった。また、膜

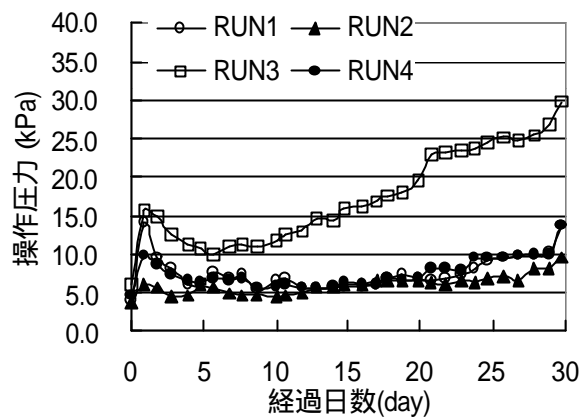


図-4 RUN1~4 の操作圧力の経日変化

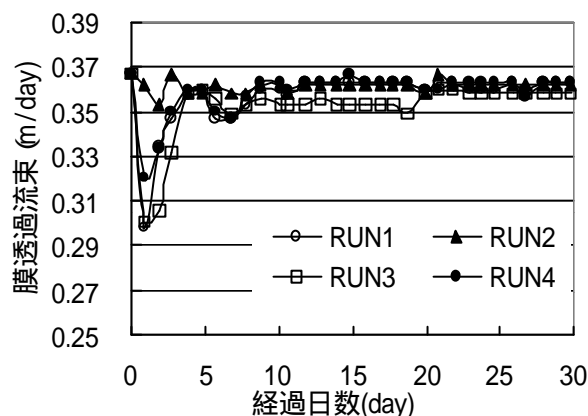


図-5 RUN1~4 の膜透過流束の経日変化

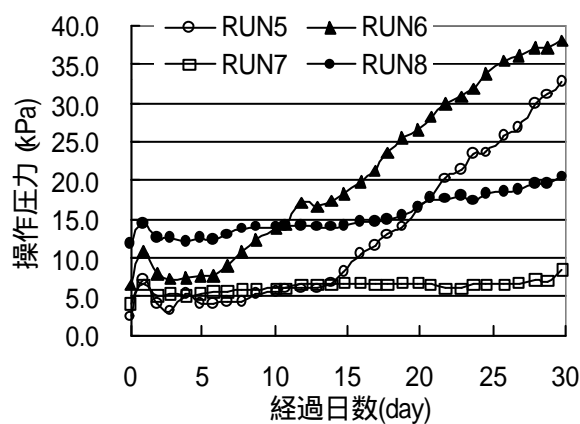


図-6 操作圧力の経日変化

面付着物量と濾過抵抗値の結果より、濾過抵抗値には膜面付着物の量的因子よりも、操作圧力の上昇により膜面付着物質特に有機目詰まり物質が圧密（質的变化）を受け、影響を及ぼすことが考えられる。

また、膜面付着ケーキ・ゲル層中の菌体外高分子量（ECP）を測定し、ECP/MLVSS 比を求めたところ、汚泥負荷が高い RUN5、6 において 0.25 (mg-TOC/mg-MLVSS) と RUN7、8 の 0.1 (mg-TOC/mg-MLVSS) と比べて 2 倍以上高い値であった。これは、汚泥負荷が高い条件では活性汚泥に吸着・貯蔵されている有機物量が多くなるため、汚泥の粘性が上昇し、膜表面に粘性の高い付着層（ゲル層）が形成されていたことが考えられる。このゲル層による操作圧力の上昇、付着物の圧密による強固な目詰まり物質に変質し、更に操作圧力の上昇が加速されたものと考えられる。これに対して Closed システムでの運転（RUN7、8）では、汚泥負荷が低いため汚泥の粘性も低く保たれ、膜表面には粘性の低い付着層（ケーキ層）が形成されていたことが考えられる。

この粘性の低いケーキ層が膜面をコーティングし、高分子成分（粒径が 0.1 ~ 1 μm 程度のコロイド状物質が特に膜目詰まりに影響を及ぼす）の膜面への堆積を防ぎ、膜透過流束の低下が抑制されることが考えられる。

4. まとめ

一槽間欠曝気式膜分離法において曝気サイクル・容積負荷・汚泥引き抜きを行なわない Closed システムでの運転を行なった結果、以下の知見が得られた。

1：有機物除去性能

- ・ どの条件においても有機物除去率に影響はなく、運転開始時から 95%程度と高い除去率が得られた。

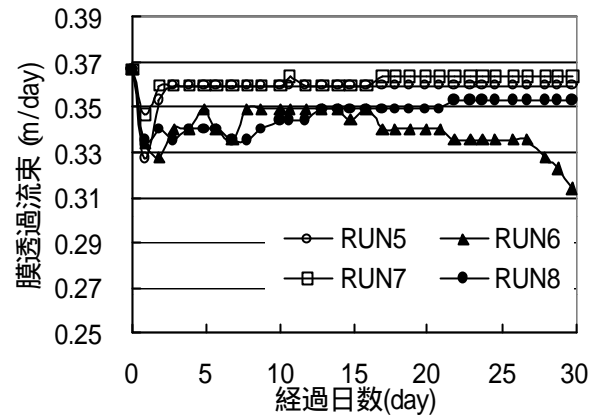


図-7 膜透過流束の経日変化

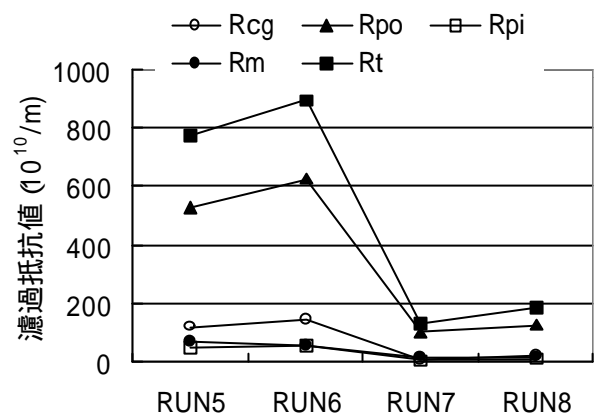


図-8 濾過抵抗値に及ぼす各影響因子

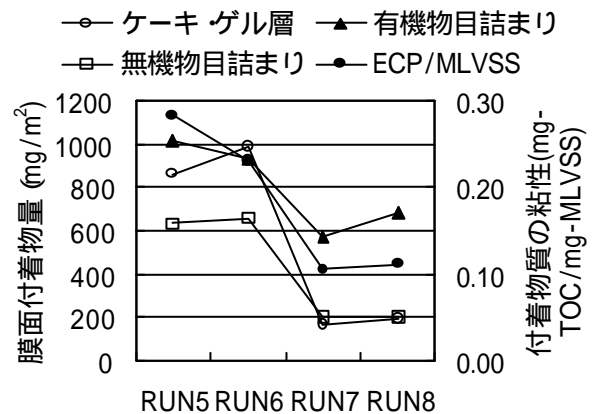


図-9 膜面付着物量に及ぼす容積負荷と Closed システムの影響

2：窒素除去能

- ・曝気停止後、溶存酸素が完全に消費されるまでに10分程度の必要とする。このため、間欠曝気式において曝気停止時間が15分では無酸素時間が不足し、処理水中に硝酸性窒素が残存する傾向が見られる。
- ・容積負荷を高めることで、反応槽中汚泥の硝化・脱窒活性は高まり処理効率が上昇することがいえる。しかし、その限度を越えた負荷での運転では、硝化反応が十分に進行せず、結果として処理水中にアンモニア性窒素が残存し、除去率が低下する。
- ・汚泥を引き抜かないことで、反応槽中の汚泥濃度が上昇し、汚泥負荷が低下する。このため、汚泥の硝化・脱窒活性は低下し、処理効率としては悪化することがいえる。また、曝気を十分に行なわなければ硝化反応の進行が不十分となり、処理水中にアンモニア性窒素が残存する。しかし、曝気が十分であれば高い容積負荷であっても窒素除去率は85%程度まで上がり、良好な処理水質が得られる。

3：膜透過能

- ・膜透過水量が同量であっても膜透過流束が高い場合、操作圧力が上昇し、膜面付着物量の増加及び、圧密現象により強固な目詰まり抵抗物質となる。
- ・一旦操作圧力が上昇すると、膜透過流速の低下 操作圧力の上昇 付着物量の増加及び圧密現象 操作圧力の上昇という悪循環がおき、操作圧力及び膜面抵抗値の上昇が加速される。
- ・汚泥負荷の高い条件では、汚泥の凝集性、沈降性が悪化し、汚泥引抜を行なう場合、汚泥滞留時間も短くなり、活性汚泥に吸着・貯蔵されている有機物が多くなる。このため汚泥の粘着性が増し、膜面に粘性の高い付着層を形成することが考えられる。
- ・Closedシステムでの運転では、汚泥の増殖に伴い汚泥負荷が低下するため、汚泥の粘性（ECP/MLVSS）が低く、付着力の弱いケーキ層が膜面をコーティングし、粒径が0.1～1 μm（コロイド状物質）の膜面への堆積を防ぎ、膜透過流束の低下が抑制される。

以上のことより、汚泥引抜を行なわないClosedシステムで、曝気サイクルを30分曝気：30分曝気停止の条件において、高い容積負荷であっても窒素除去・膜透過性能ともに優れていることが示され、運転の効率化が行なえた。

5．参考文献

- 1) 須藤隆一、稲森悠平：高度処理対応型浄化槽の開発、水環境学会誌、Vol19、No.3、20-30（1996）
- 2) 岩城洋武、小松俊哉、桃井清至：浸漬型膜分離活性汚泥法における膜透過性能に及ぼす設定フラックスと曝気強度の影響、浄化槽研究、Vol.11、No.2、37-46（1999）