

膜通気生物膜による活性汚泥プロセスの硝化促進
に関する基礎的研究

**Fundamental Study on Facilitation of Nitrification by
Membrane-Attached Biofilm in Activated Sludge Process**

呉 春英

新潟大学大学院自然科学研究科博士後期課程
材料生産システム専攻

2008 年 3 月

目 次

Chapter 1 緒論	1
1.1 研究の背景.....	2
1.2 既往の研究.....	4
1.2.1 廃水の窒素除去法.....	4
1.2.2 従来の硝化脱窒処理プロセス.....	6
1.2.3 廃水処理における生物膜プロセスの特徴.....	9
1.3 膜通気生物膜 (Membrane-Attached Biofilm: MAB) の応用.....	11
1.4 本研究の目的.....	14
1.5 本論文の構成と内容.....	15
1.6 参考文献.....	16
Chapter 2 膜通気生物膜による活性汚泥槽の硝化促進	18
2.1 緒言.....	19
2.2 実験装置と方法.....	20
2.2.1 連続廃水処理.....	20
2.2.1.1 膜通気生物膜モジュール.....	20
2.2.1.2 実験装置.....	21
2.2.1.3 活性汚泥と連続廃水処理操作条件.....	22
2.2.1.4 分析方法.....	25
2.2.2 酸素透過速度の測定.....	25
2.2.2.1 亜硫酸酸化法による酸素透過速度の測定.....	25
2.2.2.2 シリコン中空糸膜モジュール.....	26
2.2.2.3 実験装置.....	28
2.2.2.4 操作条件.....	29

2.3	結果および考察	31
2.3.1	流入廃水濃度の影響	31
(a)	有機物の除去性能	31
(b)	硝化に及ぼす MAB の影響	34
2.3.2	硝化に及ぼす水力学滞留時間 (Hydraulic Retention Time: HRT) の影響	41
2.3.3	硝化に及ぼす酸素透過速度の影響	44
(a)	膜モジュールの出入口空気流量	44
(b)	酸素透過速度に及ぼす出入口空気圧力の影響	46
(c)	酸素フラックス	48
(d)	酸素透過速度から推定した硝化速度	50
2.3.4	(AS+MAB)プロセスのスケールアップ	55
2.4	まとめ	56
2.5	参考文献	57

Chapter 3	活性汚泥槽における微小動物の動態に及ぼす膜通気生物膜の影響と汚泥減量化の可能性	60
3.1	緒言	61
3.2	実験装置と方法	62
3.2.1	実験装置	62
3.2.2	膜通気生物膜モジュール	63
3.2.3	操作条件	64
3.2.4	微小動物の個体数の計数方法	65
3.3	結果および考察	66
3.3.1	活性汚泥槽で出現した微小動物	66
3.3.2	原生動物の経時変化	67
3.3.3	後生動物の経時変化	70

3.3.4 余剰汚泥減量化の可能性.....	72
3.4 まとめ.....	74
3.5 参考文献.....	75
 Chapter 4 結論	 78
4.1 本論文の総括.....	79
4.2 今後の課題.....	81
 謝辞.....	 83

第 一 章

緒 論

本章では、研究の背景、膜通気生物膜の特徴と廃水処理への応用、
本研究の立場を明らかにし、本研究の目的と意義を述べる。

Chapter 1 緒 論

1.1 研究の背景

工場排水の処理水、生活排水ならびにその処理水等に含まれる窒素、リン等の栄養塩による閉鎖性水域の富栄養化を防ぐことは、まだ水環境領域での重要な課題である。水環境の保全を図るためには、排水処理において有機汚濁物質の除去に加えて、栄養塩類、特に窒素やリン等の化合物の除去が必要である。リンは洗剤の無リン化が進んでいることや土壌による吸着除去等により、表流水中の窒素/リン (N/P) 比が大きくなっている。このため、リンに比べて、窒素を除去する重要性が高くなっている。排水から窒素化合物を除去する技術を効率化することは、環境工学の分野で非常に重要な課題である。都市下水や工業廃水を対象とした廃水処理では、主に活性汚泥法や浸漬濾床などの生物学的方法が採用されている。しかし、それらの多くは有機物の除去を目的としている。このため、既存の処理施設では効果的な窒素除去は期待できない。既存の処理施設で窒素の除去を行うためには、硝化工程と脱窒工程を付け加える必要がある。すなわち、生物学的窒素除去を既設の廃水処理施設に組み込むためには、新たに硝化や脱窒を行う設備を設置する必要がある。

生物学的窒素除去プロセスは、大きく分けて硝化細菌群と脱窒細菌群の二つの微生物群が窒素除去に関与している。前者の硝化細菌群はさらにアンモニア酸化細菌 (Ammonia Oxidizing Bacteria: AOB) と亜硝酸酸化細菌 (Nitrite Oxidizing Bacteria : NOB) の二種類に分けられる。AOB はアンモニア態窒素を亜硝酸態窒素に酸化し、NOB はその亜硝酸態窒素を硝酸態窒素へと酸化する (硝化反応)。脱窒細菌群はこの硝酸態窒素

を窒素ガスに還元し、大気に放出する（脱窒反応）。このように廃水中に含まれる窒素は、硝化反応と脱窒反応により除去される。

代表的な生物学的な窒素除去方法として、硝化・脱窒法と硝化液循環法がある。硝化・脱窒法は、硝化した窒素を全量脱窒槽に供給するため、脱窒率は循環法に比べて高い。しかし、脱窒槽で水素供与体（有機物）を加えなければならない。このため、コストが上昇する。さらに、水素供与体の添加量を適切に管理しないと、処理水に水素供与体が混入し、処理水を悪化させる恐れがある。硝化液循環法では、水素供与体として廃水中に含まれる有機物を用いる。このため、外部より水素供与体を供給する必要はない。しかし、硝化した液を前段の脱窒槽に返送するためのエネルギーが必要である。窒素の除去率は循環比により決まる。循環比は実用上最大でも 3 程度であるので、窒素の除去率は最大でも 75%程度である。また、いずれの方法についても硝化に必要な酸素を供給するためにエネルギーが余計にかかる。

有機物除去と窒素除去を効率的に組み合わせるために、有機物除去、硝化、脱窒に関与する細菌群を最大限に利用する必要がある。特に、有機物除去と硝化はともに好氣的過程であるために、酸素に関して有機物除去に関わる従属栄養細菌（BOD 酸化菌）と硝化菌の間で競合が起こる。BOD 酸化菌は硝化菌に比べて増殖速度が大きく、優先的に酸素を消費する。このため、硝化菌の増殖は抑えられる。つまり、硝化反応は有機物による阻害を受けやすい。脱窒プロセスは無酸素プロセスであるが、従属栄養細菌により行われるため、脱窒速度は硝化速度に比べて高い。このため、生物学的窒素除去プロセスでは、硝化反応が律速となりやすい。生物学的脱窒プロセスを効率的に行わせるためには、硝化菌の活性を高いレベルに維持して硝化が律速とならないようにすることが重要である。有機物による阻害を受けにくい状態で硝化を進めるために、通常は有機物

除去を目的とした処理槽の後に硝化専用の処理槽を設置する方策が採用される。しかし、既設の廃水処理施設では、土地が狭く、有機物除去用とは他に硝化専用槽を新設することは困難である。既設廃水処理施設に窒素除去機能を効果的に組み込むためには、硝化槽を新設しなくても、有機物除去と硝化を同時に行わせる処理法を開発する必要がある。

1.2 既往の研究

1.2.1 廃水の窒素除去法

窒素の除去法として、前述したように硝化・脱窒を組み合わせることにより行われる生物学的処理法と、アンモニアストリッピング法、不連続点塩素注入法、イオン交換法、逆浸透法、電気透析法などの物理化学的処理法がある。物理化学的処理法にはコスト、環境へ及ぼす影響、再生方法の未確立などの問題がある。これに対して、生物学的処理法は適用範囲が広く、物理化学的処理法に比べてコストが安いなどの利点が多いので、窒素除去法の主流になっている（須藤、1977）。廃水からの窒素除去は、アンモニア態窒素から酸化態窒素（亜硝酸態窒素および硝酸態窒素）への生物学的酸化（硝化）と、酸化態窒素から窒素ガスへの還元（脱窒）を組み合わせで行われている。硝化細菌は酸素呼吸をしながらアンモニア態窒素を亜硝酸態窒素に、さらに亜硝酸態窒素を硝酸態窒素に酸化してエネルギーを生み出し、無機炭酸塩を炭素源として増殖する。他方、脱窒細菌は有機物をエネルギーおよび炭素源とし、分子状酸素が存在すれば、酸素呼吸を行うが、分子状酸素がなくなると亜硝酸や硝酸中に存在する結合態酸素を利用して硝酸呼吸する能力を持つ微生物である。硝化細菌の増殖速度および菌体収率は **BOD 酸化菌**に

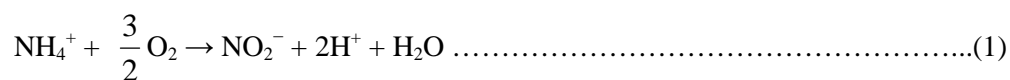
比べてはるかに低い (Table 1-1)。このため、硝化細菌の増殖は酸素が制限因子となりやすい。言い換えれば、水中に有機物が存在する場合には BOD 酸化菌により酸素が優先的に消費され、硝化細菌の増殖が阻害される。

Table 1-1 菌体の増殖速度

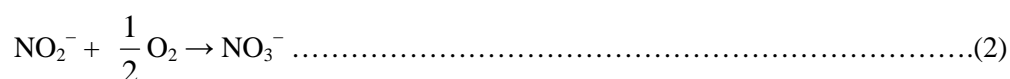
微生物 栄養型	硝化細菌		脱窒菌	BOD酸化菌
	アンモニア酸化	亜硝酸酸化		
	<i>Nitrosomonas</i> 属 独立栄養	<i>Nitrobacter</i> 属 独立栄養	従属栄養	従属栄養
増殖速度 (d^{-1})	0.21~1.08	0.28~1.44	0.4~0.5	40~60

硝化過程は生物学的窒素除去で重要な好気的プロセスである。まず、アンモニア態窒素は、アンモニア酸化菌により亜硝酸態窒素へ酸化され、さらに亜硝酸酸化菌により硝酸態窒素まで酸化される。アンモニアから硝酸までの反応式は次の通りである (Reactions (1) and (2)):

ammonia oxidizing bacteria (AOB)

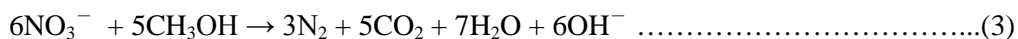


nitrite oxidizing bacteria (NOB)



次に、無酸素条件下で従属栄養脱窒細菌が有機物を酸化する際に、亜硝酸態窒素又は

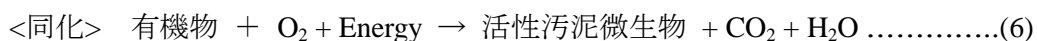
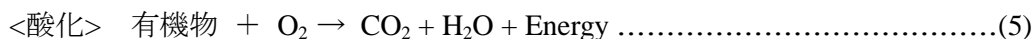
硝酸態窒素を窒素ガスに還元する。脱窒を行わせるためには水素供与体（有機物）が必要である。水中に有機物が存在しない場合、外部より水素供与体を供給しなければならない。このような場合、コストの面から安価なメタノール又は酢酸が水素供与体として使われることが多い(Reactions (3) and (4))。



このように、窒素除去プロセスは硝化と脱窒により達成される。

1.2.2 従来の硝化脱窒処理プロセス

活性汚泥（Activated Sludge : AS）プロセスは、有機物の除去速度が高く、良好な処理水が確保できるため、世界的に広く普及している（橋本、1986）。廃水中の有機物は、活性汚泥曝気槽で活性汚泥を構成する各種の微生物によって分解除去される（Figure 1.1）。空気供給が行われている曝気槽で、微生物が廃水中の有機物を利用して繁殖し、凝集性のあるフロック（活性汚泥）を形成する。流入水中の有機物は活性汚泥微生物の体内に取り込まれ、酸化されて生体維持のためのエネルギー材料、または、同化により活性汚泥微生物が増殖するための材料として利用される（Reactions (5) and (6))。



活性汚泥は沈殿槽において重力により沈殿し、上澄みは消毒後処理水として放流される。汚泥は引き抜かれ、一部の汚泥が曝気槽へ返送され、残りの汚泥は汚泥処理プロセスで処理される。

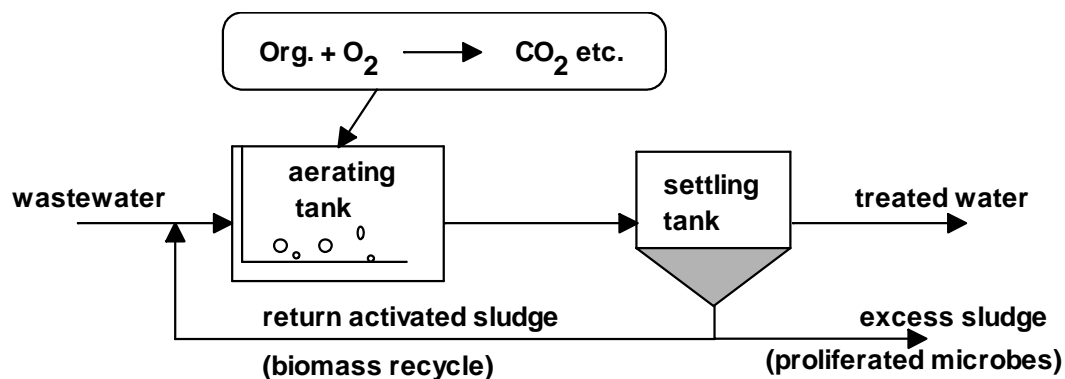


Figure 1.1 標準型活性汚泥法のフローシート

活性汚泥法では、有機物の汚泥負荷は通常 $0.2 \sim 0.4 \text{ kg-BOD/kg-MLSS d}$ の範囲で操作され、汚泥滞留時間は $2 \sim 4$ 日であることが多い。しかし、硝化細菌が活性汚泥内に存在するためには汚泥滞留時間を 5 日以上にする必要があるため、硝化細菌は活性汚泥槽からウォッシュアウトされやすい。硝化が有機物による阻害を受けやすいことに加えて、硝化細菌が系外にウォッシュアウトされやすいため、活性汚泥法では硝化・脱窒による窒素除去はほとんど期待できない。活性汚泥法による窒素の除去は主に従属栄養細菌の同化により行われる。例えば、生活排水の活性汚泥処理では、窒素の除去率は多くとも $20 \sim 40\%$ 程度であり、処理水の全窒素濃度は $20 \sim 30 \text{ mg/L}$ になることが多い（環境保全対策研究会、1998）。

有機物と窒素除去を目的とした方法としては、活性汚泥法による有機物除去プロセスに硝化・脱窒プロセスを組み合わせた方法がある。その代表的な処理プロセスとして、硝化・脱窒法と硝化液循環法がある。

硝化脱窒処理プロセスでは、活性汚泥処理の後に硝化槽と脱窒槽が設置される。流入廃水は活性汚泥槽に入り、ここで BOD 成分が酸化分解される（Figure 1.2）。次に、硝

化槽でアンモニア態窒素を亜硝酸態窒素又は硝酸態窒素にまで酸化する。ここではアンモニア態窒素を硝酸態窒素に変換するために酸素の供給が必要である。また、硝化過程でプロトンが生成して pH の低下が起こるため、アルカリ（中和剤）を添加する必要がある。その後、無酸素状態に保った脱窒槽に、硝酸態窒素を還元するための水素供与体を添加し硝酸を窒素ガスに還元する。水素供与体としては安価であるという理由からメタノールまたは酢酸等が用いられる。このため硝化脱窒プロセスではアルカリ度の調節、水素供与体の添加にコストがかかるという欠点がある。

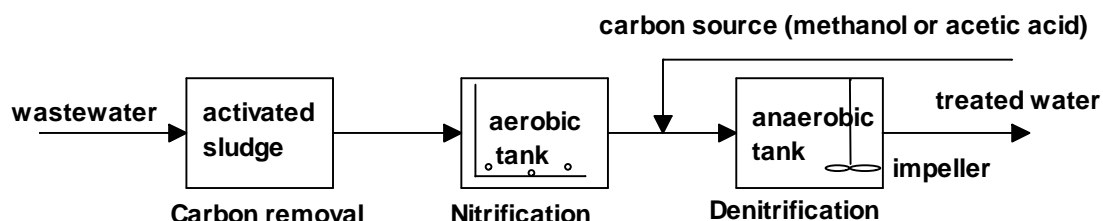


Figure 1.2 硝化・脱窒プロセス

改善案として硝化液循環型硝化脱窒処理プロセス（Figure 1.3）が開発された。このプロセスでは、流入廃水がまず脱窒槽へ導かれ、ここで硝化槽から循環されてくる硝酸態窒素を含んだ循環液と混合される。脱窒槽では流入水の BOD 成分を利用して脱窒素が起こり、硝酸態窒素が除去されるとともに BOD も部分的に除去される。また、脱窒によりアルカリ度が上昇するため、硝化槽で加えなければならないアルカリの添加量を減らすことができる。次に、汚泥混合液は活性汚泥槽へ送られ、ここでは、残存する BOD 成分が除去される。硝化槽でアンモニア態窒素が最終的に硝酸態窒素へ酸化される。このプロセスでは、流入水中の有機物を水素供与体として利用でき、また、硝化液を循環させることにより pH の変動を低く抑えることができるという利点がある。全窒素除去率

は循環流量に依存し、循環流量を大きくすれば、全窒素除去率は高くなる。しかしながら、硝化液の循環のために、運転コストが高くなる。

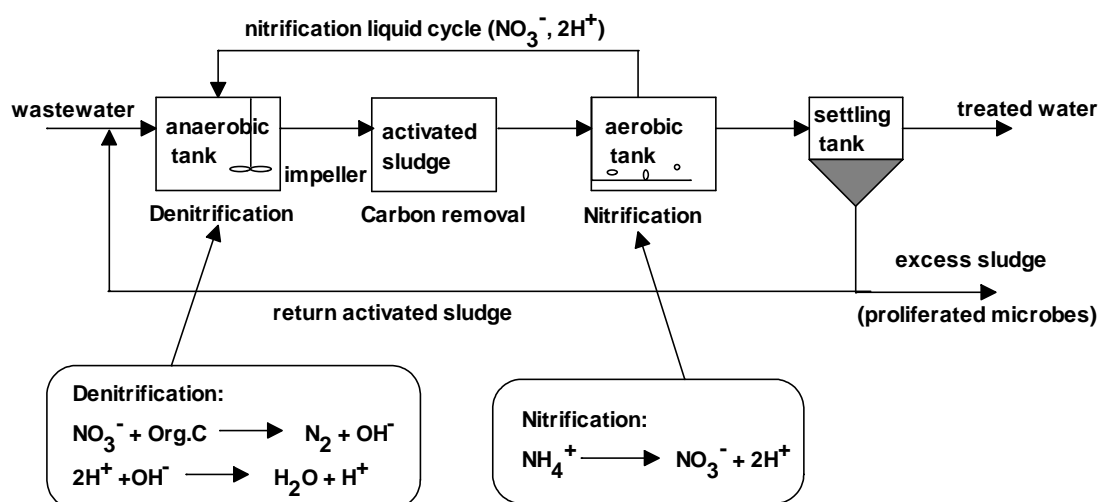


Figure 1.3 硝化液循環型硝化脱窒処理プロセス

いずれの方式でも、硝化を進めるために、あらかじめ有機物を除去する必要がある。このため、好気プロセスを多段化しなければならず、通気コスト、設備の設置面積が広くなるといった問題が生ずる。

1.2.3 廃水処理における生物膜プロセスの特徴

生物膜法は、生物ろ過法、接触曝気法、回転円盤法、散水ろ床法のように、排水を生物膜に接触させる方法である。活性汚泥法では、比増殖速度の小さい微生物を汚泥中に生息させるためには汚泥濃度の制御が必要であるが、生物膜法では水の滞留時間に関係なく、比増殖速度がかなり小さい生物が系内に生息することが可能となる。生物膜法で

は、水力学的滞留時間（Hydraulic Retention Time: HRT）が比較的短くても微生物が増殖できるので、硝化細菌のような比増殖速度の小さい細菌も安定して増殖することができる（須藤、1994、2004）。生物膜法では、酸素はバルク側からのみ供給されるため、生物膜表面に好気領域が形成される。生物膜表面では、有機物、酸素どちらも豊富であり、BOD 酸化菌が優先的に増殖し、酸素を消費する。その結果として、BOD 酸化菌と硝化菌による酸素の競合が起こり、硝化菌はほとんど増殖せず、硝化が阻害されるという欠点がある。生物膜法であつても有機物による阻害を避けるためには、あらかじめ廃水中の有機物を除去する必要がある。あるいは、既往の生物膜法で硝化を進めるためには有機物濃度を低くし、BOD 酸化菌が増殖しにくい環境を作る必要がある。そのため、生物膜法でも、硝化を進めるためには前処理やプロセスの多段化が必要である。つまり、プロセスの多段化によるコスト、スペースの増加が大きな問題となる。従って、有機物の阻害を受けにくい効率的な硝化プロセスの開発が要求されている。

なお、生物膜法は活性汚泥法に比較して生物種の多様性が増加し、食物環が複雑になって安定した生態系が構成され、水質変動に対応できるようになる。さらに、微小動物の占める割合が高く、特に微小後生動物の現存量が著しく大きい。生物膜法では、細菌を捕食する生物よりもさらに高次栄養段階の生物が生息しているため、活性汚泥よりも食物連鎖が長くなる。高次栄養段階の生物が多くなればなるほど、エネルギーとして消散される割合が大きくなるため、一般に生物膜法の発生汚泥量は活性汚泥法に比べて減少する。

1.3 膜通気生物膜(Membrane-Attached Biofilm: MAB)の応用

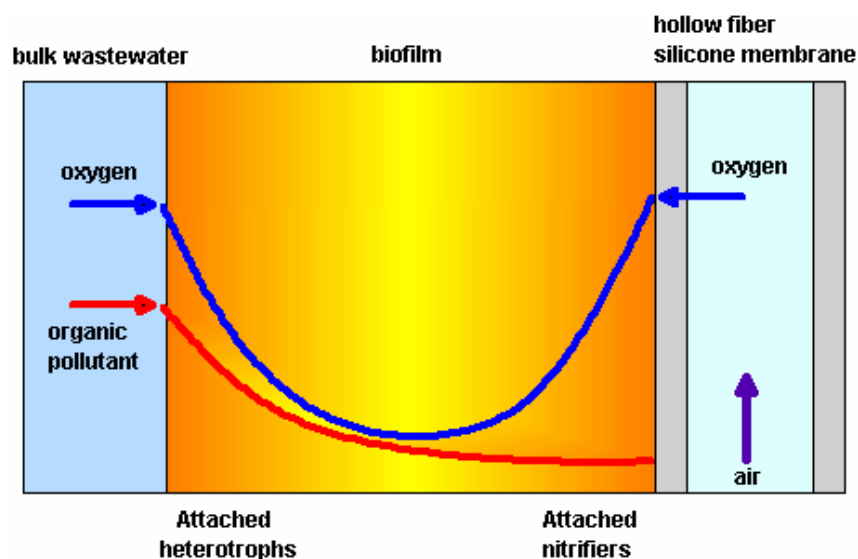


Figure 1.4 膜通気型生物膜の概念図

膜通気生物膜（Membrane Attached Biofilm : MAB）とは酸素透過性の膜上に生物膜を形成させたものである。酸素透過性膜としては疎水性多孔質膜やシリコン均質膜等が使われる。膜通気生物膜を通気している液中に浸漬させた場合、酸素がバルクと酸素透過膜の両方向から生物膜に供給される（Figure 1.4）。生物膜バルク側表面は従来の生物膜と類似している。バルクから生物膜に酸素と有機物はともに供給される。生物膜表面では、酸素を獲得するため、BOD 酸化菌と硝化細菌の間で競合が起こる。BOD 酸化菌の増殖速度は硝化菌に比べ、5～10 倍より速い。このため、BOD 酸化菌による有機物除去に酸素が優先的に消費されるため、硝化が阻害される。一方、生物膜底部では、酸素透過性膜から酸素が供給される。生物膜表面では有機物が酸化・分解されるため、生物膜底部には有機物が少なく酸素が多い領域ができる。つまり、硝化細菌にとって BOD 酸

化菌との酸素の競合が起こらない環境を作ることが可能となり、硝化が進む。従って、生物膜表面では有機物除去が、底部では硝化が同時に進行する。

膜通気生物膜を活性汚泥槽に浸漬した場合でも生物膜底部は好氣的となるため、従来の活性汚泥法に硝化機能を付与できると考えられる。

Yamagiwa ら（1994）はシリコン中空糸膜上に形成させた生物膜を用いて有機物除去と硝化を同時に達成できること、有機物の存在下で硝化速度 $2.2 \text{ g/m}^2\text{d}$ が得られたことを報告している。van Loosdrecht ら（1995）は生物膜内部での硝化細菌と従属栄養細菌の分布を利用して COD 除去と硝化を促進した。Timberlake ら（1988）と Abdel-Warithra ら（1996）は平膜を通し空気又は純酸素を供給して、比表面積 $20 \text{ m}^2/\text{m}^3$ で硝化率 50～75% が得られたことを報告している。阿部（2003）は膜の体積分率が 2.1% である膜通気生物膜反応器を用いて、硝化を行わせ硝化率 90% を得ている。この場合、廃水には有機物が含まれず、硝化専用の生物膜として膜通気生物膜を用いている。Brindle and Stephenson（1996）と Brindle ら（1998）は密封加圧型ポリエチレン中空膜を用い、生活排水を処理して硝化率 99% を得ているが、これも硝化専用の値である。松崎（2004）は TOC 除去速度 $23.7 \text{ g/m}^2\text{d}$ と硝化速度 $7.5 \text{ g/m}^2\text{d}$ を同時に達成している。

本研究では膜通気生物膜（MAB）を活性汚泥曝気槽（AS）に浸漬することにより、活性汚泥プロセスに硝化機能を付与することを試みた（AS+MAB）。有機物は活性汚泥フロックと MAB の表面で除去され、MAB の底部で硝化を行うことで有機物除去と硝化を同一反応槽で行えると期待される。（AS+MAB）には脱窒機能がないため、生物学的に窒素を除去するためには脱窒プロセスと組み合わせる必要がある。その組み合わせ方には、（AS+MAB）・脱窒と硝化液循環法があるが、一例として、（AS+MAB）・脱窒プロセスを Figure 1.5 に示す。（AS+MAB）槽で硝化した亜硝酸態窒素と硝酸態窒素を

脱窒槽に導入し、ここで、無酸素条件下で亜硝酸態窒素又は硝酸態窒素を窒素ガスに還元する。従って、全廃水処理プロセスは好氣的（AS+MAB）と無酸素脱窒の二つのプロセスから構成される。本システムでは微生物学的なリン除去は期待できない。余剰汚泥に含まれるリンが除去される程度である。リンを除去するためには、鉄やカルシウムを用いた沈殿法を適用できるだろう。しかし、従来の（AS+硝化+脱窒）プロセスに比べ、好気プロセスを（AS+MAB）槽のみで行わせるためコスト、設置面積を小さくできるという利点を持つ。

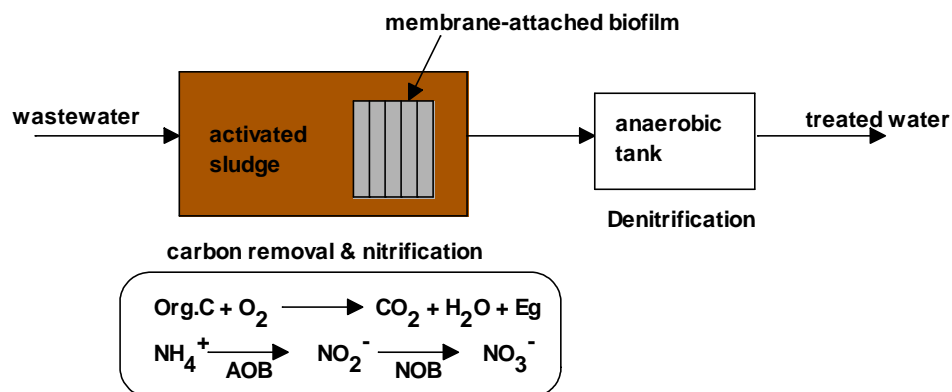


Figure 1.5 有機物除去と同時に硝化プロセス

MAB を用いて活性汚泥プロセスに硝化機能を付与するためには、硝化速度と有機物除去速度に及ぼす負荷、HRT、中空糸膜に供給する空気圧力などの操作因子の影響を明らかにする必要がある。また、MAB が原生動物、後生動物にとって増殖するための担体としても機能するため、微小動物の動態に及ぼす MAB の影響と AS+MAB プロセスにおける汚泥削減の可能性を検討する必要がある。

1.4 本研究の目的

本研究では、膜通気生物膜を浸漬することにより既設活性汚泥槽に硝化機能を付与することを目的とする。まず、活性汚泥単独で処理を行った場合と（AS+MAB）槽で処理を行った場合の有機物除去と硝化性能を比較することにより、MAB による硝化機能付与の効果を検討する。

廃水処理操作において、有機物除去と硝化に影響を及ぼす因子としては、廃水の組成、濃度、廃水流量といった処理条件の他に、温度や溶存酸素濃度、pH といった環境条件が挙げられる。（AS+MAB）プロセスでは、バルク活性汚泥微生物と MAB 微生物、特に BOD 酸化菌と硝化細菌の働きに及ぼす因子を取り上げることが重要である。つまり、硝化に影響を与えやすい因子を検討する必要がある。

（AS+MAB）プロセスにおける二次的な特徴として、MAB が微小動物の担体となることが予想される。すなわち、（AS+MAB）プロセスでは、AS プロセスに比べて、微小動物の種類や個体数が増えることが予想される。微小動物の動態は余剰汚泥の発生量にも影響を与えることから、（AS+MAB）プロセスでは余剰汚泥の発生量が削減できる可能性がある。

以上の点を考慮し、本研究では以下の点を明らかにすることを目的とする。

1. 硝化に影響を及ぼす処理条件として、負荷を取り上げ、廃水の濃度ならびに廃水の水力学的滞留時間の観点から検討する。有機物除去ならびに硝化に及ぼす負荷の影響を明らかにし、（AS+MAB）プロセスにおける硝化機能の最大値ならびにその条件を明らかにする。なお、温度や pH などの因子はこれまでに報告されている知見を（AS+MAB）プロセスに適用できると考えられる。

2. 運転条件として、**MAB** モジュールへの空気圧力と取り上げる。硝化に必要な酸素は酸素透過性膜によって供給されると考えられる。酸素透過速度と操作条件の関係を明らかにし、硝化速度の関係を明らかにする。これにより、既設活性汚泥槽に硝化機能を付与するために必要な **MAB** の仕様を決める基礎的なデータを取得することができる。
3. (**AS+MAB**) プロセスにおける微小動物の種類と個体数の変化を調べ、**AS** プロセスと比較する。(**AS+MAB**) プロセスにおける微小動物の動態を明らかにすることにより、余剰汚泥削減の可能性を検討する。

1.5 本論文の構成と内容

本論文は第一章の緒論と第四章の結論を含めて 4 章から構成されている。

第一章は緒論である。研究の背景、膜通気生物膜の特徴と廃水処理への応用現状、本研究の目的と意義について述べた。

第二章「膜通気生物膜による活性汚泥槽の硝化促進」では、活性汚泥(**AS**)槽に膜通気生物膜モジュール (**MAB**) を浸漬することにより、有機物除去性能と硝化性能を検討した。(**AS+MAB**) プロセスにおける有機物除去速度と硝化速度に及ぼす汚濁負荷の影響を廃水濃度、廃水の水力学的滞留時間を変えて検討した。また、シリコン中空糸膜による酸素透過速度を測定し、膜通気生物膜の硝化性能をシリコン中空糸膜からの酸素透過速度に関連づけて検討した。得られた結果に基づいて (**AS+MAB**) プロセスの処理性能と操作条件の関係を明らかにした。さらに、(**AS+MAB**) プロセスを実用化する場合における問題点とその解決方法を提示した。

第三章「活性汚泥槽における微小動物の動態に及ぼす膜通気生物膜の影響と汚泥減量

化の可能性」では処理機能解析を行ったことに基づいて、MAB を浸漬した活性汚泥槽での微小動物の個体数を測定し、膜通気生物膜の浸漬による微小動物の動態に及ぼす MAB の影響と (AS+MAB) 槽における余剰汚泥減量化の可能性を検討した。

第四章は結論として、以上の各章で得られた結果を総括して、今後の課題について述べた。

1.6 参考文献

須藤隆一編著、環境浄化のための微生物学、講談社、東京（1983）。

須藤隆一編著、廃水処理の生物学、産業用水調査会、東京（1977）。

須藤隆一、稲森悠平編著、水処理バイオ入門、産業用水調査会、東京（1994）。

橋本 奨、須藤隆一編著、新しい活性汚泥法、産業用水調査会、東京（1986）。

須藤隆一編著、水環境保全のための生物学、産業用水調査会、東京（2004）。

環境保全対策研究会編集、水質汚濁対策の基礎知識、産業環境管理協会（1998）。

松崎秀哉、膜通気型生物膜による有機物除去と硝化に及ぼす負荷の影響、新潟大学修士論文（2004）。

芝井まゆみ、膜通気型生物膜による有機物除去と硝化に及ぼす酸素供給の影響 新潟大学修士論文（2003）。

阿部真利子、膜通気型生物膜の硝化速度、新潟大学修士論文（2003）。

K. Yamagiwa, A. Ohkawa, O. Hirasa, Simultaneous organic carbon removal and nitrification by biofilm formed on oxygen enrichment membrane, J. Chem. Eng. Japan, 27 (5), 638-643 (1994).

- D.L. Timberlake, S.E. Strand, K.J. Williamson, Combined aerobic heterotrophic oxidation, nitrification and denitrification in a permeable-support biofilm. *Water Res.*, 22 (12), 1513–1517 (1988).
- A.S. Abdel-Warith, K.J. Williamson, S.E. Strand, Substratum aerated biofilm reactor. In: National Conference on Environmental Engineering ASCE, New York, NY, 360–365 (1996).
- K. Brindle, T. Stephenson, Nitrification in a bubbleless oxygen mass transfer membrane bioreactor. *Water Sci. Technol.*, 34 (9), 261–267 (1996).
- M.C.M. van Loosdrecht, L. Tijhuis, A.M.S. Wijdicks and J.J. Heijnen, Population distribution in aerobic biofilms on small suspended particles, *Water Sci. Technol.*, 31 (1), 163-171 (1995).
- T. Ahmed, B.T. Oakley, M.J. Semmens, J.S. Gulliver, Nonlinear deflection of polypropylene hollow fiber membranes in transverse flow, *Water Res.*, 30, 431-439 (1996).
- K. Brindle, T. Stephenson, M.J. Semmens, Nitrification and oxygen utilisation in a membrane aeration bioreactor, *J. Membr. Sci.*, 144, 197-209 (1998).
- M.J. Semmens, K. Dahm, J. Shanahan, A. Christianson, COD and nitrogen removal by biofilms growing on gas permeable membranes, *Water Res.*, 37, 4343-4350 (2003).
- A. Terada, K. Hibiya, J. Nagai, S. Tsuneda, A. Hirata, Nitrogen removal characteristics and biofilm analysis of a membrane-aerated biofilm reactor applicable to high-strength nitrogenous wastewater treatment, *J. Biosci. Bioeng.*, 95, 170-178 (2003).
- S. Matsumoto, A. Terada, S. Tsuneda, Modeling of membrane-aerated biofilm: Effects of C/N ratio, biofilm thickness and surface loading of oxygen on feasibility of simultaneous nitrification and denitrification, *Biochem. Eng. J.*, 37 (1), 98-107 (2007).

第 二 章

膜通気生物膜による活性汚泥槽の硝化促進

本章では、膜通気生物膜を従来の活性汚泥槽に浸漬することで、硝化機能を付与できることを明らかにし、(AS+MAB) プロセスを設計する基礎的なデータを取得することを目的とする。このために、(AS+MAB) プロセスの有機物除去、硝化速度に及ぼす負荷の影響を、廃水濃度と HRT を変えることにより検討する。さらに、硝化速度と酸素透過速度の関係を明らかにする。最後に、(AS+MAB) プロセスの実用化に向けての問題点について考察する。

Chapter 2 膜通気生物膜による活性汚泥槽の硝化促進

2.1 緒言

膜通気生物膜を活性汚泥槽に浸漬すること（AS+MAB プロセス）により、硝化機能を付与できると期待される。活性汚泥と膜通気生物膜の特徴を持つ（AS+MAB）プロセスは複雑な微生物生態系である。（AS+MAB）プロセスにおける有機物除去と硝化性能を明らかにするためには、これらに影響する温度、pH、バルク DO 濃度、流入負荷、水力学滞留時間（Hydraulic Retention Time : HRT）の影響を明らかにするとともに、MAB への酸素供給速度と処理性能の関係を明らかにする必要がある。活性汚泥の処理効率に及ぼす温度、pH などの影響については多くの研究がなされている（Antoniou, 1990）。活性汚泥処理の適温は 20～30℃といわれている。さらに、微生物の多くは、中性付近（pH 6.0～8.0）に増殖に最適な pH を持っているので、曝気槽の pH はこの範囲に保持することが望ましい（須藤、2004）。このように、温度、pH の影響については、既往の知見を採用できる。AS+MAB の硝化性能を明らかにするためには、有機物除去速度、硝化速度に及ぼす負荷の影響、膜を通しての酸素供給速度の影響を調べる必要がある。

本章では、AS 槽に MAB を浸漬することにより硝化を促進できるかどうかをまず検討した。次いで、AS+MAB プロセスの有機物除去、硝化速度に及ぼす負荷の影響を、廃水濃度と HRT を変えることにより調べた。得られた結果に基づいて、AS+MAB プロセスの硝化性能を既往の MAB プロセスと比較し検討した。さらに、シリコン膜を介しての酸素透過速度を測定し、硝化性能との相関を試みた。最後に、本章で得られた結果より、AS+MAB プロセスの実用化に向けての問題点について考察を加えた。

2.2 実験装置と方法

2.2.1 連続廃水処理

2.2.1.1 膜通気生物膜モジュール



Figure 2.1 膜モジュールの写真

シリコン中空糸膜は内径 250 μm 、外径 400 μm 、膜厚 75 μm のもの（永柳工業）を用いた。このシリコン中空糸膜の周囲には繊維が編み込んであり、微生物が付着しやすいようになっている。繊維層の厚さはおおよそ 200 μm である。廃水処理実験には、酸素富化型担体 46 本を平面状（長さ 24 cm、幅 5.5 cm）にモジュール化したものを生物膜の支持体として用いた。膜モジュールの写真を Figure 2.1 に示す。モジュール上に生物膜を形成させた場合、微生物は個々のシリコン中空糸膜上ではなく、中空糸周囲の繊維層で増殖する。このことから、生物膜の表面積は、モジュール外表面と等しいと仮定し

(Yamagiwa, 1994)、次式より算出した。

$$\begin{aligned}\text{モジュールの表面積} &= (\text{長さ}) \times (\text{幅}) \times (\text{面数}) \\ &= (24 \times 10^{-2} \text{ m}) \times (5.5 \times 10^{-2} \text{ m}) \times 2 \\ &= 2.64 \times 10^{-2} \text{ m}^2\end{aligned}$$

2.2.1.2 実験装置

Figure 2.2 に AS+MAB プロセスの概略図を示す。活性汚泥槽として固液分離部を持つ角型槽を用いた。MAB 用生物膜モジュール 1 枚を曝気槽内に設置した。エアポンプを用い生物膜モジュールに通気した。モジュール入口ゲージ圧力は、エアポンプ空気吸入口のバルブにより 29.4 kPa に調節した。エアポンプとモジュールの間に、シリカゲルによる脱湿管を設置した。また、バルクには別のエアポンプを用いて通気した。合成廃水をローラーポンプにより連続的に活性汚泥槽へ供給した。ローラーポンプにはタイゴンチューブ、その他の部位にはシリコンチューブを使用した。廃水供給チューブの目詰まり防止のため、定期的にチューブ内面の生物膜を除去した。廃水供給槽には保冷剤を入れた。温度を一定に保つため、リアクターを恒温槽内に設置した。リアクター内の濃度を均一にするため、活性汚泥槽の底部をスターラーにより攪拌した。なお、活性汚泥 (AS) プロセスは、MAB を設置しないことを除いて、AS+MAB プロセスと同じである。

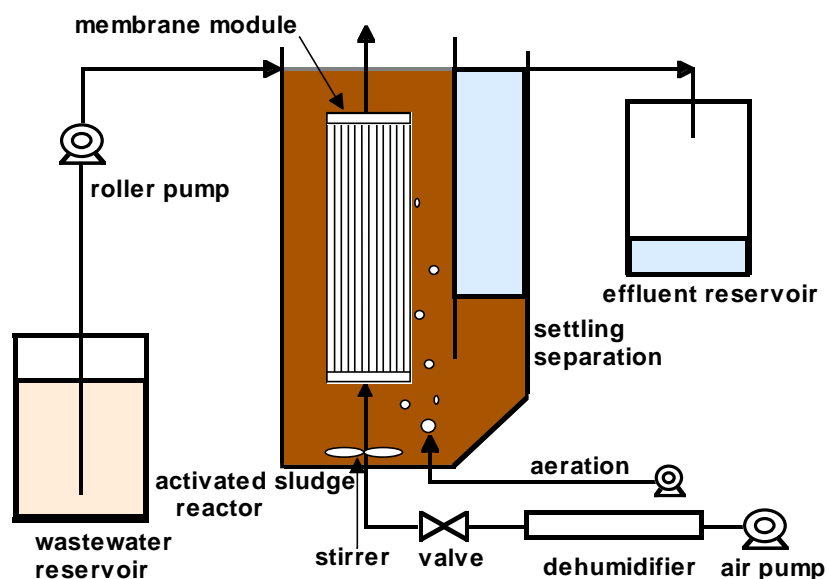


Figure 2.2 AS+MAB プロセスの装置概略図

2.2.1.3 活性汚泥と連続廃水処理操作条件

新潟市船見下水処理場から採取した余剰汚泥を実験に用いた。この活性汚泥をグルコース、ペプトン、硫酸アンモニウム、リン酸二水素カリウムを主成分とする模擬生活廃水で2ヶ月以上馴養した。

活性汚泥槽の操作体積は 1,460 mL とした。廃水の水力学的滞留時間（HRT）を 9 h とした。この時の廃水供給量は 0.16 L/h である。水温は $25 \pm 2^\circ\text{C}$ とした。活性汚泥槽中の DO 濃度が 2 mg/L になるようにバルクへの通気量を調節した。活性汚泥濃度（Mixed Liquor Suspended Solid : MLSS）を 2.0 kg/m^3 に保った。模擬生活廃水として主にグルコース、ポリペプトン、硫酸アンモニウム、リン酸二水素カリウムからなる合成廃水を用いた。廃水を活性汚泥槽へ連続的に供給し、廃水処理実験を開始した。あらかじめ濃縮合成廃水を用意し、使用時に濃縮廃水を希釈し、負荷にあわせて濃度を調整した。濃縮

廃水は冷蔵庫内に保管した。処理開始時の合成廃水の組成を Table 2-1 に示す。この廃水の特性は BOD 200 mg/L, TOC 114 mg/L, T-N 40 mg/L and T-P 5 mg/L である。

Table 2-1 模擬生活廃水の組成

Composition	Concentration
Glucose	130 mg/L
Polypepton	130 mg/L
K ₂ SO ₄	52.5 mg/L
NaCl	22.5 mg/L
KH ₂ PO ₄	17.0 mg/L
NaHCO ₃	45.0 mg/L
Na ₂ CO ₃	225 mg/L
(NH ₄) ₂ SO ₄	118 mg/L
MgSO ₄ · 7H ₂ O	27.5 mg/L

活性汚泥処理を 2 系列で並行して行った。処理が安定した後、一方の活性汚泥槽に MAB を 1 枚設置し、(AS+MAB) プロセスによる処理を開始した。膜モジュールの表面積は 0.0264 m² であり、生物膜を付着させるための利用できる有効な膜表面積は単位体積あたり 18.1 m²/m³ で、充填率は 1.2% (v/v) であった。なお、MAB は約 1 ヶ月硝化菌馴養槽に浸漬して、硝化菌をあらかじめ付着させた。硝化菌馴養槽に供給した無機廃水の組成を Table 2-2 に示す。なお、硝化菌を植菌しなくても長期間運転した後は、MAB 内側と外側で硝化菌と従属栄養細菌の分布が自発的に形成される (Yamagiwa, 1994) が、本研究では処理の立ち上がりを早くするため、MAB に硝化菌をあらかじめ植菌することとした。

Table 2-2 硝化菌馴養用無機廃水組成

Composition	Concentration
K_2SO_4	5.15 mg/L
NaCl	2.21 mg/L
KH_2PO_4	2.15 mg/L
$NaHCO_3$	10.0 mg/L
Na_2CO_3	20.0 mg/L
$(NH_4)_2SO_4$	18.9 mg/L
$MgSO_4 \cdot 7H_2O$	2.70 mg/L

(1) 供給廃水濃度の影響

廃水の C/N 比を一定として、廃水の濃度を変えて、負荷の影響を検討した。処理条件を Table 2-3 に示す。処理期間 A (0~52 d) の後、段階的に負荷を上げた。最終的な負荷 (期間 D) では TOC 濃度 285 mg/L、T-N 濃度 100 mg/L である。

Table 2-3 AS と AS+MAB プロセスの操作条件

Period	Days	Influent concentration [mg/L]		loading [g/Ld]		C/N ratio
		TOC	T-N	TOC	T-N	
A	0-52	114	40	0.300	0.105	2.85
B	53-83	171	60	0.450	0.158	2.85
C	84-142	228	80	0.600	0.210	2.85
D	143-192	285	100	0.750	0.263	2.85

(2) HRT の影響

活性汚泥を2ヶ月馴養した後65日目にMABを浸漬した。処理が安定になった78日目から、HRTを9hから7hに変更した。廃水濃度をTOC 114 mg/L、T-N 40 mg/Lで一定として、廃水流量を0.16 L/h (HRT = 9 h) から0.21 L/h (HRT = 7 h) に増やして、HRTの影響を検討した。

2.2.1.4 分析方法

処理水槽から処理液をサンプリングし、遠心分離(4°C、12000 rpm、15分)後、上澄み液を分析用サンプルとした。有機物は全有機炭素(TOC)により評価し、TOC計(TOC-500, Shimadzu Corp., Japan)を用いて測定した。全窒素(T-N)は紫外吸光光度法、アンモニア態窒素(NH_4^+-N)はインドフェノールブルー吸光光度法、全リン(T-P)は、ペルオキシ二硫酸カリウム分解法により定量した(JSWA, 1974)。亜硝酸態窒素(NO_2^--N)及び硝酸態窒素濃度(NO_3^--N)はイオンクロマトグラフィー(Shimadzu HIC-6A, Shim-pack IC A1, Japan)を用いて測定した。

pH、DO濃度は、pHメーター、DOメーターを用い直接バルク内で測定した。

2.2.2 酸素透過速度の測定

2.2.2.1 亜硫酸酸化法による酸素透過速度の測定

中空糸膜モジュールを透過する酸素量に比べて、空気流量が大過剰であるため、排ガス分析法により酸素透過速度を測定することはできなかった。そこで本研究では、亜硫酸酸化法により酸素透過速度を測定した。

Cu^{2+} 触媒下において、溶液中の亜硫酸ナトリウムは酸素濃度に対して0次反応で反

応する条件で実験を行った。この反応式を示す。



1 molの O_2 に対して2 molの Na_2SO_3 が消費されるため、酸素の透過量 (N_{O_2}) は Na_2SO_3 の減少量の1/2倍となる。従って、酸素の透過量は次式から算出した。

$$N_{\text{O}_2} = \frac{(n_0 - n_t)}{2} \dots\dots\dots(2)$$

ここで、 N_{O_2} : 酸素の透過量 [mmol]

n_0 : 滴定前の Na_2SO_3 のモル数 [mmol]

n_t : 滴定後の Na_2SO_3 のモル数 [mmol]

上式により求めた酸素の透過量と通気時間から酸素透過速度および酸素フラックスを求めた。

2.2.2.2 シリコン中空糸膜モジュール

シリコン中空糸膜(永柳工業)として、内径 200 μm 、外径 320 μm 、肉厚 60 μm のものを用いた。このシリコン中空糸膜 86 本を平面状にモジュール化したものを酸素透過速度の測定に使用した。膜モジュールの写真を Figure 2.3 に示す。中空糸膜モジュールは長さ 30.2 cm、幅 5.5 cm である。中空糸膜モジュールの表面積を次のように計算した。ここで、中空糸の直径として、便宜上内径と外径の算術平均値を用いた。

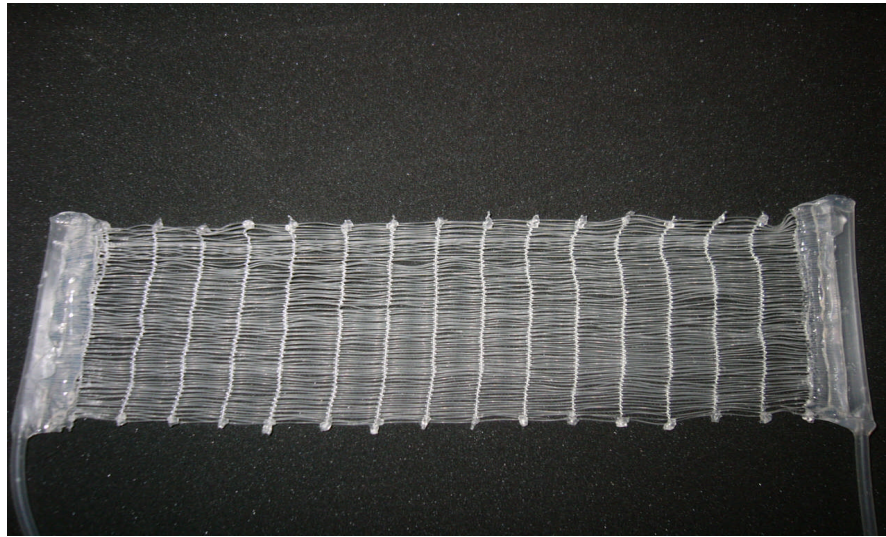


Figure 2.3 中空糸モジュールの写真

$$\begin{aligned}
 \text{中空糸膜の表面積} &= (\text{中空糸表面積}) \times (\text{本数}) \\
 &= (\pi D' L) \times (86) \\
 &= (\pi \times 2.6 \times 10^{-2} \text{ cm} \times 30.2 \text{ cm}) \times (86) \\
 &= 212.0 \text{ cm}^2 / \text{module} \\
 &= 0.0212 \text{ m}^2 / \text{module}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \text{モジュールの表面積} &= (\text{長さ}) \times (\text{幅}) \times (\text{面数}) \\
 &= (30.2 \text{ cm}) \times (5.5 \times \text{cm}) \times 2 \\
 &= 0.0332 \times \text{m}^2
 \end{aligned}$$

なお、参考として、外径基準の膜面積及び内径基準の膜面積を以下に示す。

$$\begin{aligned}
 \text{外径基準の膜面積 (S}_{\text{out}}) &= (\text{中空糸外表面積}) \times (\text{本数}) \\
 &= (\pi D_{\text{out}} L) \times (86)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= (\pi \times 3.2 \times 10^{-2} \text{ cm} \times 30.2 \text{ cm}) \times (86) \\
&= 260.9 \text{ cm}^2 / \text{module} \\
S_{\text{out}} &= 0.0261 \text{ m}^2 / \text{module} \quad (S_{\text{out}}/S = 1.23)
\end{aligned}$$

内径基準の膜面積 (S_{in}) = (中空糸内表面積) × (本数)

$$\begin{aligned}
&= (\pi D_{\text{in}} L) \times (86) \\
&= (\pi \times 2.0 \times 10^{-2} \text{ cm} \times 30.2 \text{ cm}) \times (86) \\
&= 163.1 \text{ cm}^2 / \text{module} \\
S_{\text{in}} &= 0.0163 \text{ m}^2 / \text{module} \quad (S_{\text{in}}/S = 0.769)
\end{aligned}$$

ここで、

D_{out} : シリコン中空糸膜の外径 [μm]

D_{in} : シリコン中空糸膜の内径 [μm]

D' : シリコン中空糸膜の算術平均直径 [μm]

$$D' = (\text{内径} + \text{外径}) / 2 = (200 + 320) / 2 = 260 \mu\text{m}$$

L : 膜モジュールの長さ [cm]

2.2.2.3 実験装置

Figure 2.4 に実験装置の概略を示す。反応槽は厚さ 3 mm のアクリル板を用いて製作した。槽の寸法は高さ 43 cm、長さ 12 cm、幅 5 cm である。シリコン中空糸膜モジュールを 1 枚装置内に設置した。エアポンプを用いて中空糸膜モジュールへ空気を供給した。中空糸膜モジュールの入口圧力は、エアポンプ空気の吸い込み口のバルブにより調節した。また、エアポンプと中空糸膜の間に、脱湿管、ニードルバルブ、圧力計及び空気流

量計（マスフローメーター）を設置した。脱湿管にはシリカゲルを充填した。モジュール出口側に圧力計、ニードルバルブ及び石けん膜流量計を取り付け、出口空気圧力を調節した。反応槽内のバルク液濃度を均一にするため、スターラーを用いて槽を攪拌した。さらに、液面からの酸素の吸収を防ぐために、装置をふたで覆い窒素ガスをガラス管を通してわずかに（1秒に気泡が1個できる程度）供給した。バルク液の温度を一定に保つため、装置を恒温槽内に設置した。

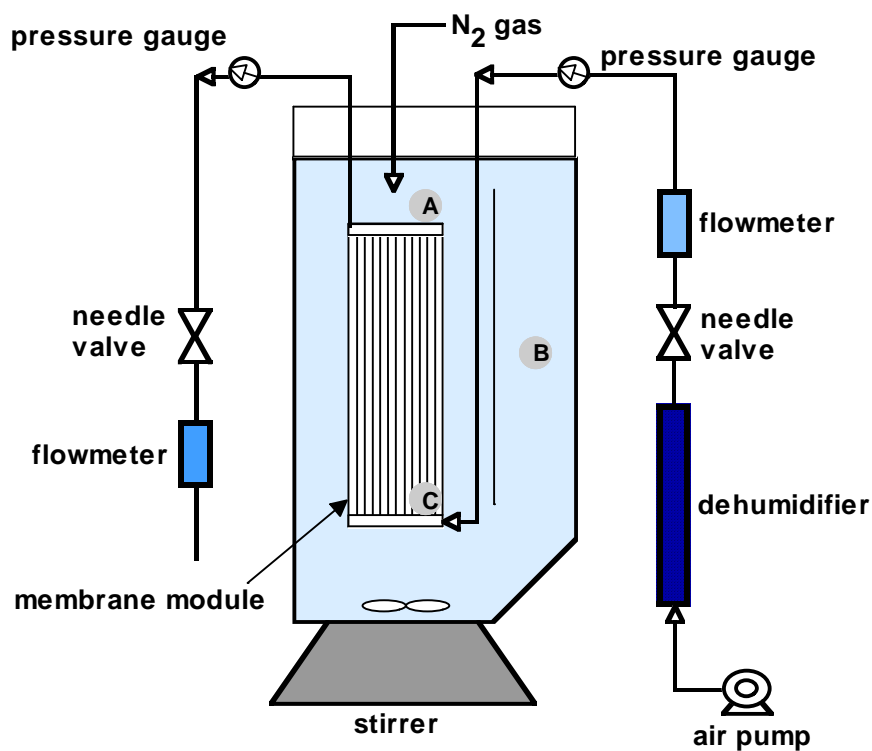


Figure 2.4 酸素透過速度の測定の装置概略図

2.2.2.4 操作条件

反応装置に 2,200 mL の蒸留水を入れ、実験開始前に蒸留水の溶存酸素(DO)を除去するために、スパージャーを用いて窒素ガスを約 90 分間蒸留水中に供給した。溶液の DO

濃度が約 0.5 mg/L 以下になったところで窒素ガスの供給を止めた。さらに、気相中の酸素の影響を除去するために、ガラス管を用いて窒素ガスを液面直下に毎秒 1 個の気泡が形成される程度に流した。膜モジュールを装置内に設置し、0.075 mol/L の Na_2SO_3 水溶液を入れ、触媒として 1.0×10^{-4} mol/L CuSO_4 溶液を加えて実験を開始した。操作体積は 2,200 mL とした。操作体積に対する中空糸膜モジュールの体積分率は 0.35% である。反応装置内の温度は $25 \pm 2^\circ\text{C}$ に保った。

これまでの廃水処理操作と同じ条件で酸素透過速度を測定するためにモジュール出口を大気に開放した。Table 2-4 に示すように、膜モジュール出口を大気に開放して、入口空気圧力を 0～39.2 kPa に変化させて実験を行った。また、膜モジュール入口圧力を 30 kPa に固定し、出口空気圧力を 0、4.9、9.8、14.7 及び 19.6 kPa に変化させて実験を行った。

液表面からの酸素移動速度（酸素吸収速度）を調べるために、膜モジュール出入口をバルブで閉めて、酸素吸収実験を行った。なお、反応液を均一に混合するかどうかを調べるために槽内の 3 ヶ所（槽底から 35 cm、25 cm、10 cm）からサンプリングして Na_2SO_3 水溶液濃度を測定した。

Table 2-4 操作条件

出口を大気に開放		入口を30 kPaに設定	
出口圧力 [kPa]	入口圧力 [kPa]	入口圧力 [kPa]	出口圧力 [kPa]
0	0	30	0
0	4.9	30	4.9
0	9.8	30	9.8
0	19.6	30	14.7
0	29.4	30	19.6
0	39.2	—	—

2.3 結果および考察

2.3.1 流入廃水濃度の影響

(a) 有機物の除去性能

二つの活性汚泥槽を同じ処理条件で運転した。Figure 2.5 にバルク温度、pH、DO 濃度と処理水 TOC 濃度の経時変化を示す。バルク DO 濃度を活性汚泥処理プロセスにおける典型的な値である 2 mg/L に調節しようと試みた。しかしながら、最初の 30 日 DO 濃度はいずれの AS 槽ともおよそ 4 mg/L であり、2 mg/L に調節することは困難であった。これは、負荷が低いため酸素消費速度が小さいこと、バルクへの空気供給量の微調節が難しいためと考えた。そのため、53 日目から TOC 濃度を 171 mg/L に増加させた (期間 B)。その結果、両方の活性汚泥槽ともバルク DO 濃度を 2 mg/L に調節できた。両方の活性汚泥槽ともバルク DO 濃度、pH、処理水 TOC 濃度および TOC 除去速度はほとんど同じであった。58 日目付近に一方の AS 槽で一時的な TOC 濃度の増加が見られたが、両槽とも処理水 TOC 濃度は平均で約 6 mg/L、TOC 除去率は約 95% であった。期間 B において処理が安定したと判断し、69 日目に片方の AS 槽に MAB を浸漬した。69 日目から、AS+MAB プロセスの運転を始めた。84 日目に TOC 負荷を 0.58 g/Ld、143 日目に TOC 負荷を 0.65 g/Ld に増加させた。負荷の増加に伴って、処理水 TOC 濃度に変動が見られるものの、TOC 除去速度は負荷の増加に対応して、速やかに増加した。期間 B では、AS プロセス、AS+MAB プロセスとも処理水 TOC 濃度は約 8.1 mg/L で、TOC 除去速度も約 0.43 g/Ld であった。期間 C では AS+MAB 槽処理水の TOC 濃度は AS 槽の処理水濃度よりも安定しており、値もやや低かった。期間 D では AS 槽処理水の TOC

濃度は約 21 mg/L、AS+MAB 槽処理水の TOC 濃度は約 14 mg/L であった。AS+MAB プロセスで有機物除去性能がやや高かった。

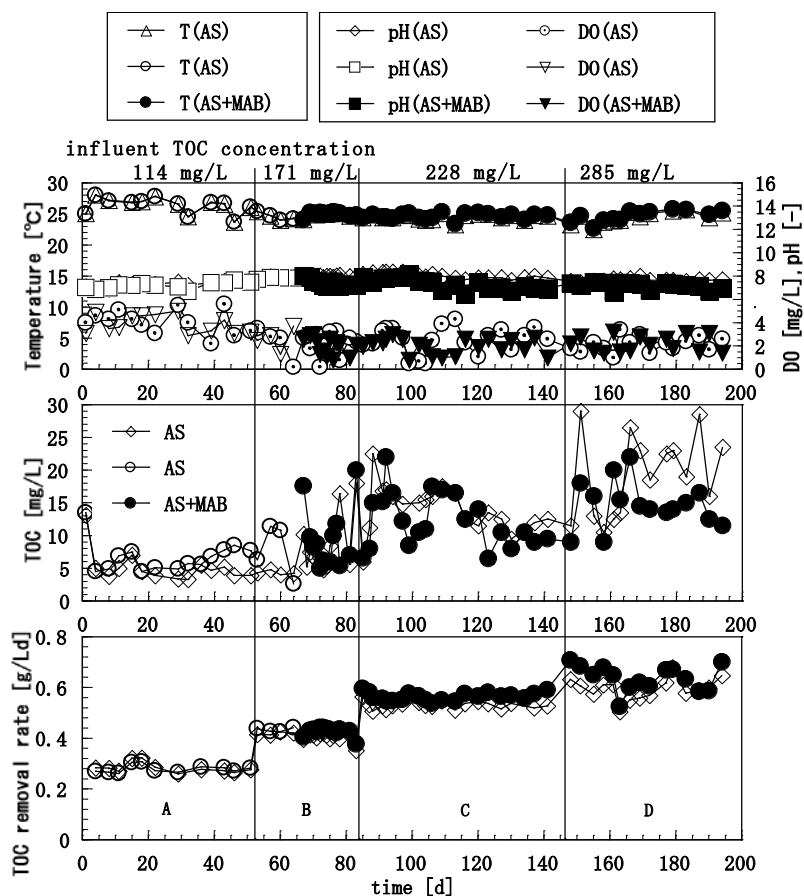


Figure 2.5 処理過程中的の TOC 濃度と TOC 除去速度

Figure 2.5 に示した結果に基づいて、AS、AS+MAB プロセスの TOC 除去速度を比較した。体積基準の TOC 除去速度は、単位体積 1 日当たりに除去される全有機炭素量であり、次式から算出した。

$$R_{TOC} = \frac{[TOC]_{inf} - [TOC]_{eff}}{V} \times F \dots\dots\dots(3)$$

ここで、 R_{TOC} : TOC 体積除去速度 [g/Ld]

$[TOC]_{inf}$: 流入 TOC 濃度 [g/L]

$[TOC]_{eff}$: 流出 TOC 濃度 [g/L]

F : 廃水の体積流量 [L/d]

V : 反応器体積 [L]

TOC 除去率は次式により定義した。

$$E_{TOC} = \frac{[TOC]_{inf} - [TOC]_{eff}}{[TOC]_{inf}} \times 100\% \quad \dots\dots\dots(4)$$

ここで、 E_{TOC} : TOC 除去率

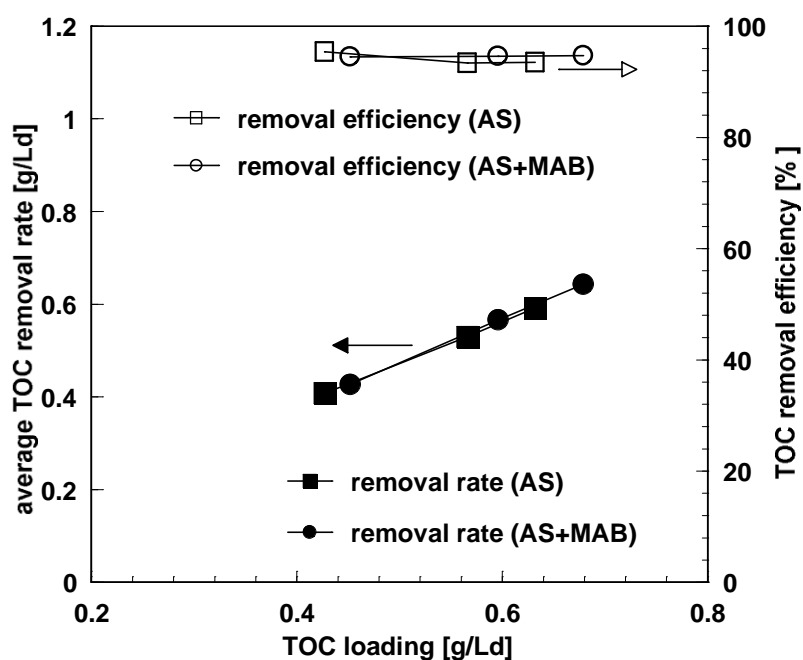


Figure 2.6 TOC 除去速度と除去率に及ぼす負荷の影響

Figure 2.6 に平均 TOC 除去速度、TOC 除去率と TOC 負荷の関係を示す。TOC 負荷が

0.43 から 0.68 g/Ld に増加するに伴い、AS と AS+MAB プロセスでの TOC 除去速度は、0.41 から 0.64 g/Ld まで TOC 負荷に比例して増加した。TOC 除去率は両プロセスともに 95%以上と高い値が得られた。二つのプロセスで有機物除去性能は良好であった。両プロセスで有機物除去に顕著な差が観察されなかった。このことから、(AS+MAB) プロセスでは MAB が TOC 除去にあまり寄与しなかったことが示される。言い換えれば、AS+MAB においても有機物除去にはバルク中の活性汚泥フロックが重要な役割を果たすことが分かった。これは、(AS+MAB) プロセスにおいても MLSS 濃度がおおよそ 2.0 kg/m³に保持され、十分な懸濁微生物がバルク中に存在すること、AS 槽のみでも十分な処理が可能であったことから説明できる。以上の結果より、AS プロセス、(AS+MAB) プロセスとも有機物除去性能が高いこと、MAB の浸漬は有機物除去速度にほとんど影響しないことを明らかにした。MAB の表面に付着している生物膜は全処理期間を通してまばらでその厚さは目視観察より約 1 mm であった。この厚さは、有機物除去・硝化一段処理を MAB で行った場合（松崎、2004）よりも薄かった。つまり、MAB 担体表面に付着している生物膜の厚さはほぼ定常に達していたと判断できる。通常の生物膜では、生物膜が厚くなると、生物膜底部が嫌氣的となり、部分的に剥離する。このため、生物膜は部分的に再生を繰り返しながら、一定の厚さを保つ。MAB では中空糸外周部に繊維層があるために、繊維層内部と表面に生物層が形成されるが、繊維層表面の生物膜も従来の生物膜と同様に部分的な剥離を伴いながら、一定の厚さになると考えられる。

(b) 硝化に及ぼす MAB の影響

処理水中でのアンモニア態窒素、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素濃度の経時変化を Figure 2.7 に示す。二つの活性汚泥プロセスを同じ処理条件で運転した。30 日までは両槽とも

にアンモニア態窒素は検出されず、硝化が完全に進んでいた。これは、この期間の DO 濃度が 4 mg/L 程度と高く、活性汚泥懸濁フロック中で硝化細菌の増殖が酸素律速にならなかったためと考えられた。30 日目から DO 濃度を 2~3 mg/L に調節した。これに対応して、アンモニア態窒素が蓄積した。40 日目からアンモニア態窒素濃度は約 20 mg/L で一定になった。53 日目（期間 B）から負荷を高くし、T-N 濃度を 60 mg/L に増加した。両プロセスでのアンモニア態窒素濃度は約 40 mg/L に増加したが、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素ともにほとんど検出されなかった。両 AS プロセスとも硝化がほとんど進行しなかった。

69 日目から、MAB を一つの活性汚泥槽に浸漬して、AS+MAB プロセスを開始した。Figure 2.7 中の黒丸が AS+MAB プロセスを示す。MAB を浸漬した後アンモニア態窒素濃度は急激にほとんどゼロまで減少した。これに対応して、亜硝酸態窒素と硝化態窒素濃度は速やかに増加した。AS+MAB プロセスでは硝化がほぼ完全に進んだ。一方、AS プロセスでは、硝化が全く進まなかった。この結果より、MAB を AS 槽に浸漬することにより硝化を促進できることが分かった。84 日目に負荷を上げた（期間 C）。100 日目に一時的にアンモニア態窒素濃度が増加し、これに対応して酸化態窒素が減少した。これは、Figure 2.5 に示されるように、DO 濃度が一時的に減少し硝化反応に対して酸素が制限因子になったためであると考えられる。期間 C では、AS+MAB プロセスのアンモニア態窒素濃度は約 20 mg/L、亜硝酸態窒素濃度は約 19 mg/L、硝酸態窒素濃度は約 17 mg/L であった。143 日目から負荷をさらに上げた（期間 D）。AS+MAB プロセスで 160 日目まではアンモニア態窒素濃度が一時的に高かったが、160 日目以降はほぼ一定になった。硝酸態窒素濃度はほとんど検出されず、亜硝酸態窒素が蓄積した。このように高い負荷でも AS+MAB プロセスでは硝化が進むことがわかった。

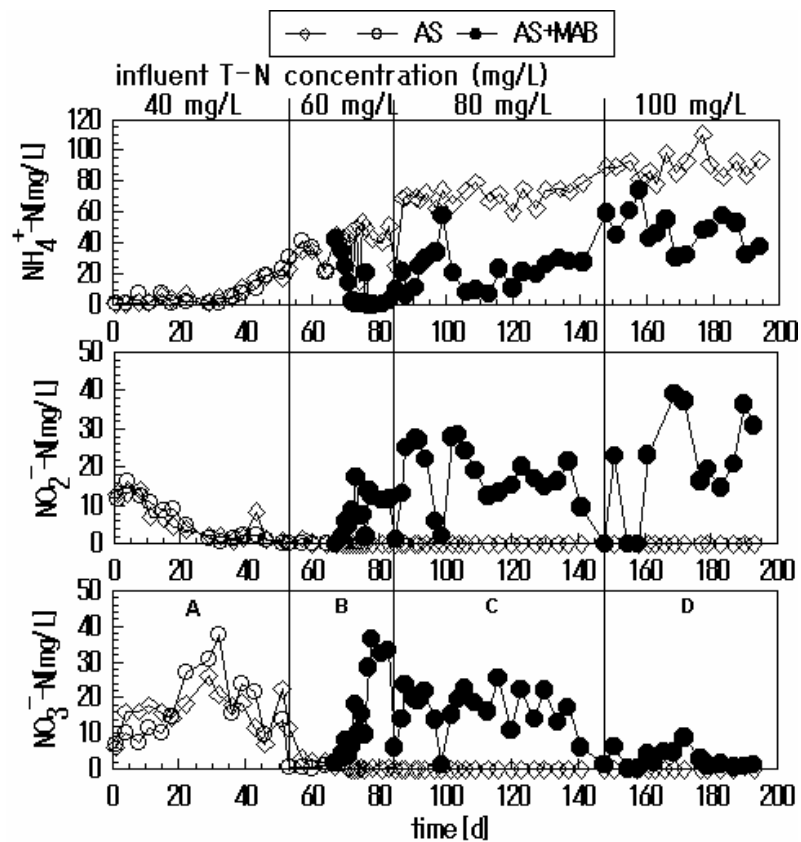


Figure 2.7 処理過程中的の窒素濃度の変化

Figure 2.8に処理水での各窒素濃度に及ぼす窒素負荷の影響を示す。ASプロセスでは、流出水の窒素はすべての実験負荷条件下でほとんどアンモニア態窒素であり、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素ともに検出されなかった。これに対して、AS+MAB プロセスでは、窒素負荷 0.16 g/Ld の時、アンモニア態窒素はほとんど検出されなかった。AS+MAB プロセスでは、窒素負荷を 0.21 g/Ld に増加すると、酸化態窒素（亜硝酸態窒素と硝酸態窒素）濃度は 36 mg/L に増加した。しかしながら、窒素負荷をさらに 0.21 g/Ld に増加させると、硝酸態窒素濃度は減少し、亜硝酸態窒素は蓄積した。酸化態窒素全体としては濃度が減少した。これらの結果から、AS+MAB プロセスでは窒素負荷を 0.24 g/Ld (C/N

＝2.85) まで増加させても、硝化が進むことが明らかになった。

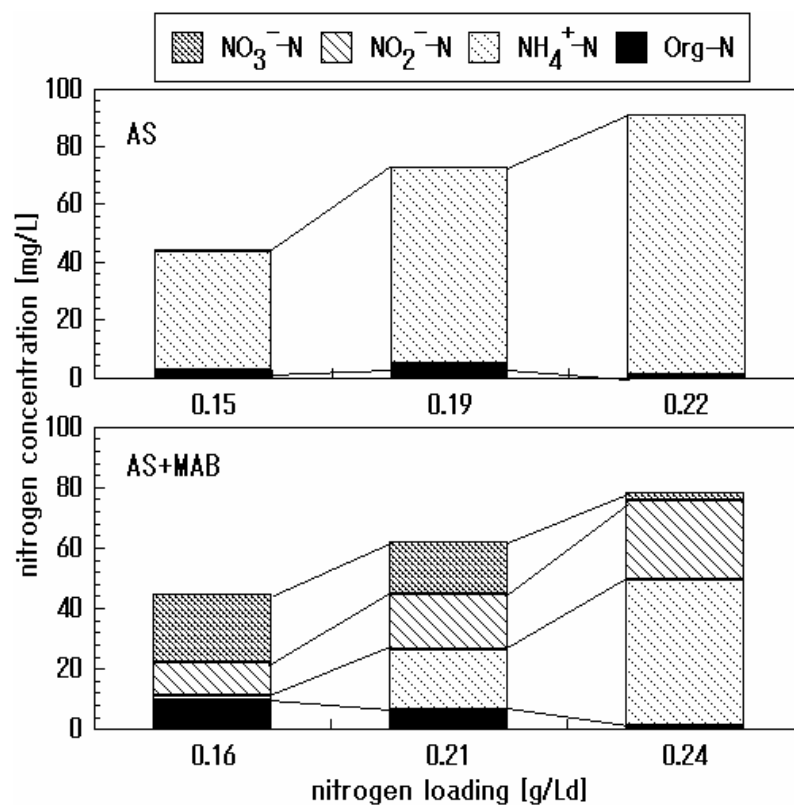


Figure 2.8 窒素濃度に及ぼす負荷の影響

体積基準の硝化速度を単位体積 1 日当たりのケルダール窒素（有機態窒素＋アンモニア態窒素）の見かけの除去量から算出した。

$$R_N = \frac{[TKN]_{inf} - [TKN]_{eff}}{V} \times F \dots\dots\dots(5)$$

ここで、 R_N ：体積硝化速度 [g/Ld]

$[TKN]$ ：流入ケルダール窒素濃度 [g/L]

$[TKN]$ ：流出ケルダール窒素濃度 [g/L]

F : 廃水の体積流量 [L/d]

V : 反応器体積 [L]

硝化率は次式により定義した。

$$E_N = \frac{[TKN]_{inf} - [TKN]_{eff}}{[TKN]_{inf}} \times 100 \% \dots\dots\dots(6)$$

ここで、 E_N : 硝化率

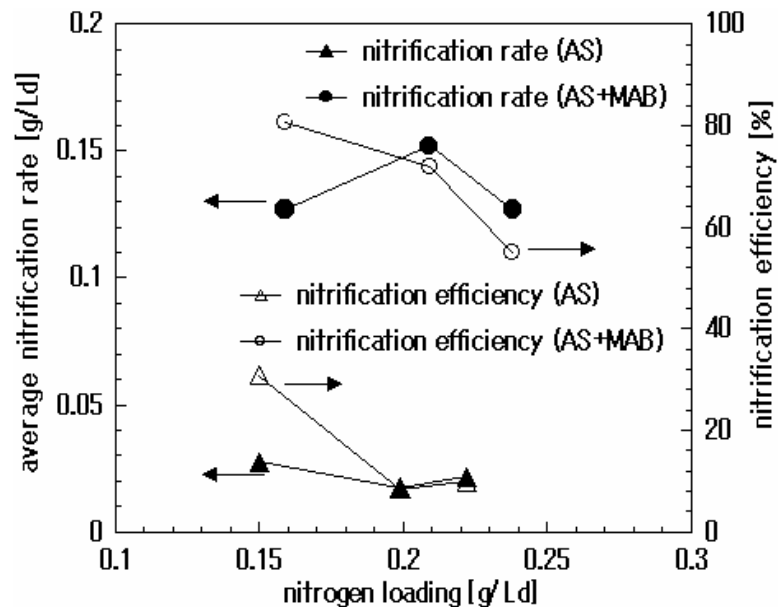


Figure 2.9 硝化速度と硝化率に及ぼす負荷の影響

Figure 2.9 に平均硝化速度と硝化率に及ぼす窒素負荷の影響を示す。AS プロセスでは実験を行った処理条件の範囲で、体積基準の硝化速度はおよそ 0.022 g/Ld であった。AS+MAB プロセスでは、窒素負荷を 0.15 g/Ld から 0.21 g/Ld まで上げたことに伴い、体

積硝化速度は 0.13 g/Ld から 0.16 g/Ld まで増加した。AS+MAB プロセスでの最大体積基準の硝化速度は約 0.16 g/Ld であり、AS プロセスの硝化速度に比べて約 7 倍大きかった。AS+MAB プロセスは AS に比べ、高い硝化速度が得られた。AS+MAB プロセスでは窒素負荷を 0.24 g/Ld に増加させると、硝化速度は 0.16 g/Ld から 0.13 g/Ld まで減少し、硝化率も 55% に低下した。C/N 比を一定として廃水濃度を高くしたことにより、有機物負荷も増加している。窒素負荷 0.24 g/Ld で硝化速度が減少した理由として流入有機物濃度が高くなったことによる阻害が考えられる。

AS プロセスでは硝化がほとんど進まなかった。これに対して、MAB を AS 槽に浸漬することにより、硝化が促進された。この結果より、AS+MAB プロセスでの硝化は MAB により行われると考えられる。そこで、MAB モジュール外表面基準の硝化速度を計算した。面積基準の硝化速度を用いると、MAB 一段処理、硝化 MAB の硝化速度と本プロセスの硝化速度を比較することができる。Figure 2.10 に AS+MAB プロセス、一段処理プロセス（松崎、2004）および硝化専用プロセス（阿部、2003）について窒素面積負荷と面積硝化速度の関係を示す。硝化専用 MAB では、無機廃水を反応器に供給しているため、硝化は有機物阻害を受けない。硝化専用 MAB の硝化速度は、窒素負荷は 9 g/m²d まで、窒素負荷に比例して増加し、硝化率は約 90% であった。一段処理 MAB プロセスは、膜モジュール入口の空気圧力を 29.4 kPa、廃水の C/N 比を 2.85 に保持して、有機物除去と硝化を MAB のみで行うもので、バルク中に懸濁微生物はほとんど存在しない。一段処理 MAB プロセスでは窒素負荷 8.21 g/m²d（C/N 比 2.85）で最大硝化速度約 7.4 g/m²d が得られ、これに対応する硝化率は 90% であった。本研究で検討した AS+MAB プロセスでは、窒素負荷 8.8 g/m²d で硝化速度は 7.1 g/m²d であった。この硝化速度は一段処理で得られた硝化速度 7.1 g/m²d と硝化専用で得られた硝化速度 7.6 g/m²d と同程度

であった。一方、本研究で面積硝化速度が最大となる窒素負荷は約 $11.6 \text{ g/m}^2\text{d}$ であった。

一段処理で硝化速度が最大になった時の窒素負荷は $8.21 \text{ g/m}^2\text{d}$ であった。この二つの研究に用いられた廃水の組成は同じであり、C/N 比も同じである。負荷が高くなって硝化速度が低下するのは、バルク有機物濃度が増加することに伴って、MAB 底部の有機物濃度も増加し、MAB 底部で行われていた硝化が有機物阻害を受けるためと考えられる。

硝化速度が最大となる負荷が高いことは、MAB による硝化が有機物阻害を受けにくいことを示している。AS+MAB の硝化速度が最大となる負荷が一段処理 MAB に比べて高くなったことは、AS+MAB の硝化が一段処理に比べて、有機物阻害を受けにくいことを示唆しているものと考えられる。

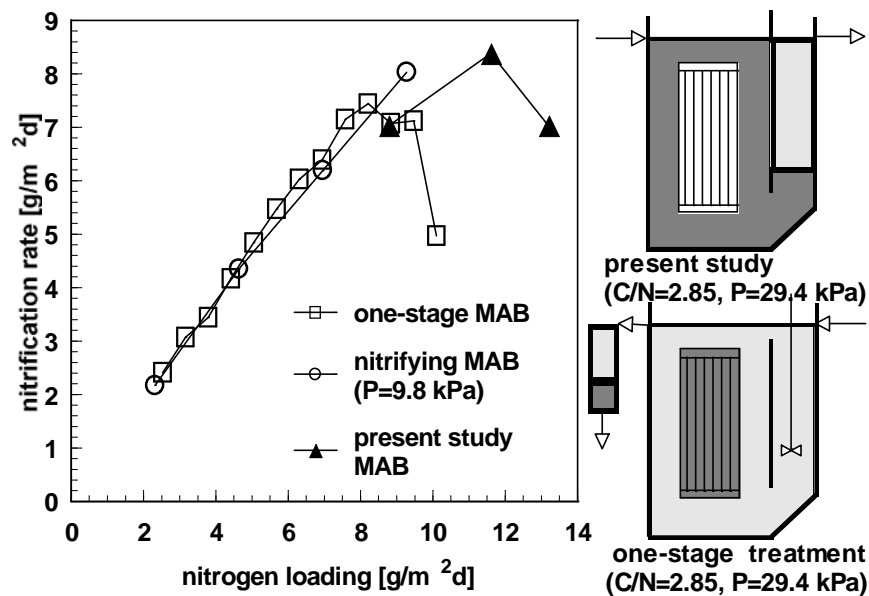


Figure 2.10 面積硝化速度と面積負荷の関係

2.3.2 硝化に及ぼす水力学滞留時間（Hydraulic Retention Time: HRT）の影響

廃水処理において、負荷は流量と濃度で決まる。ここでは、AS+MAB プロセスにおける流入 T-N 濃度 40 mg/L 場合について HRT（流量）を変えて、負荷を変えた場合の影響を述べる。

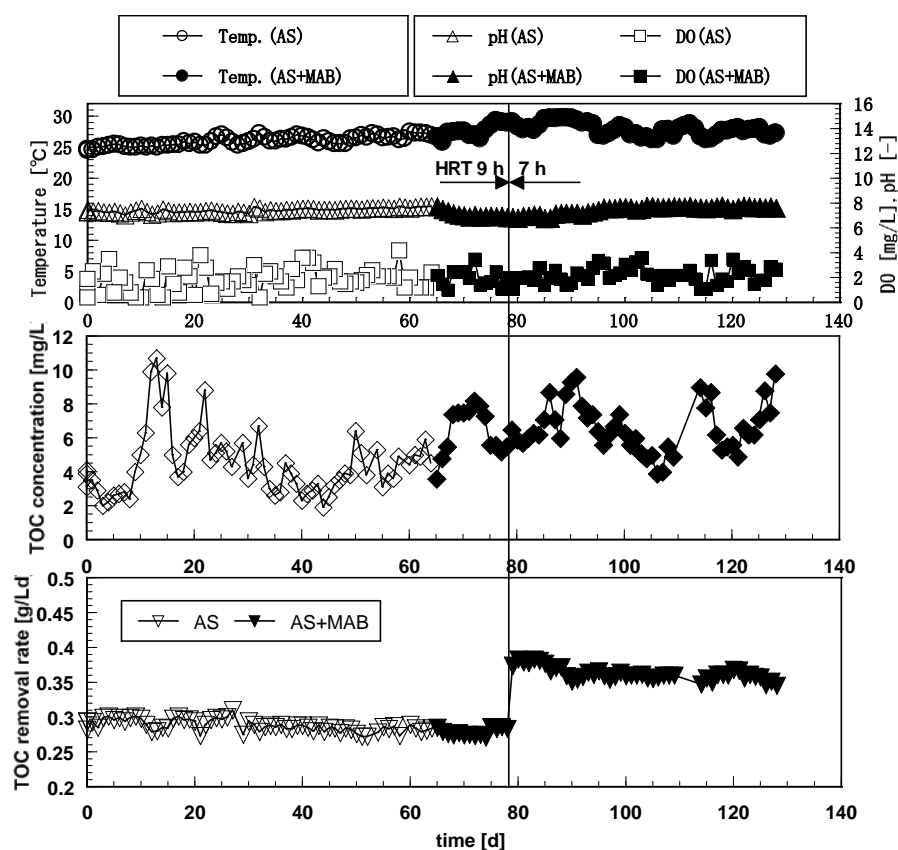


Figure 2.11 HRT を変更した場合の TOC 濃度と TOC 除去速度

活性汚泥処理がほぼ定常状態に達した 65 日目に AS 槽に MAB を浸漬して、AS+MAB プロセスを開始した。78 日目に HRT を 9 h から 7 h に変更した。Figure 2.11 にバルク温度、pH、DO 濃度と処理水 TOC 濃度、TOC 除去速度の経時変化を示す。廃水濃度を変

えた場合と同じように、MAB の浸漬は有機物除去にほとんど影響を与えなかった。HRT を 9 h から 7 h に短くすると、バルク平均 TOC 濃度は約 4.85 mg/L から 6.51 mg/L に増加した。TOC 除去速度は HRT の変化に速やかに対応した。

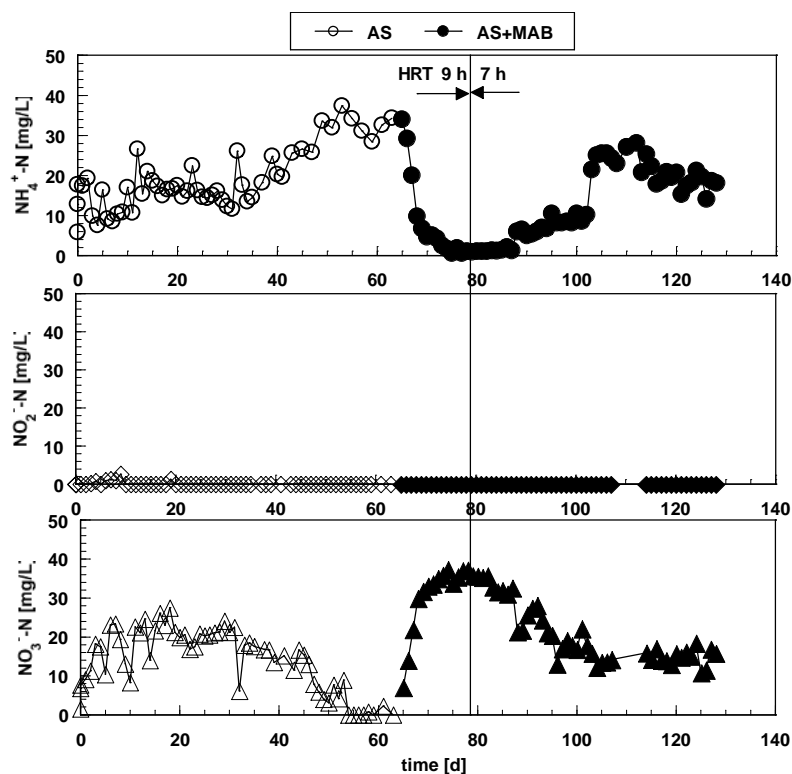


Figure 2.12 窒素濃度に及ぼす HRT の影響

Figure 2.12 に窒素濃度の経時変化を示す。アンモニア態窒素濃度は MAB を入れた直後急激に減少した。これに対応して、硝酸態窒素濃度は速やかに増加した。78 日目に HRT を 9 h から 7 h に変更した後、アンモニア態窒素濃度は増加し、硝酸態窒素濃度は減少する傾向が見られた。

有機物除去に及ぼす負荷の影響を Figure 2.13 に、硝化速度に及ぼす負荷の影響を Figure 2.14 に示す。図中には、廃水濃度を変えた場合についてもあわせて示した。有機

物に関しては、TOC 負荷 0.3~0.7 g/Ld の広い範囲で、TOC 除去速度は負荷に比例して増加し、除去率は約 95%であった。一方、硝化速度についても、窒素負荷約 0.2 g/Ld まで負荷に比例して増加した。これらの結果は (AS+MAB) プロセスの設計を行う上で基礎的なデータとして有用である。

(AS+MAB) プロセスで高い負荷で高い有機物除去速度と硝化速度が得られた。HRT を短く設計することにより、処理装置 (反応槽) を小型化することができ、設置面積を小さくできる。ここに示した結果より、(AS+MAB) ではよりコンパクトで高性能な廃水処理プロセスを構築できる可能性が示された。

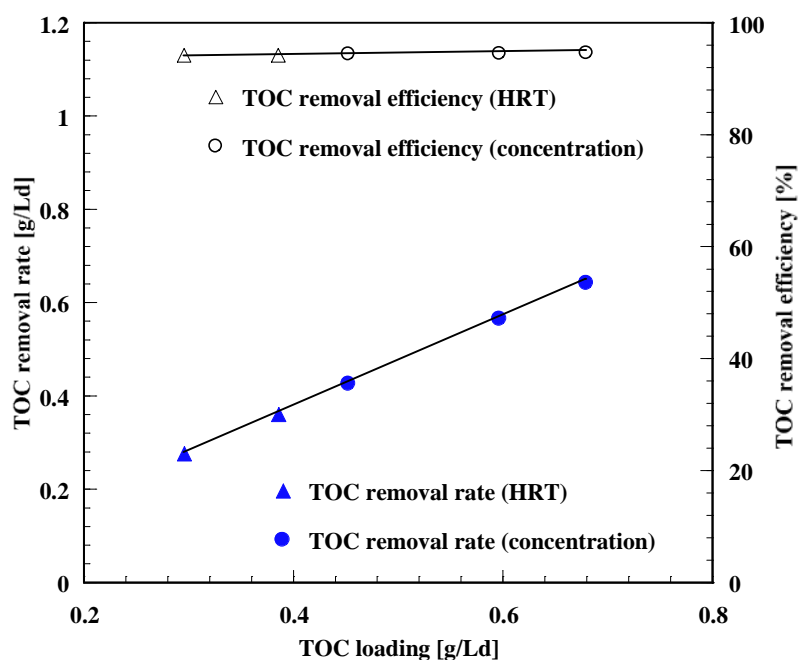


Figure 2.13 TOC 除去に及ぼす負荷の影響

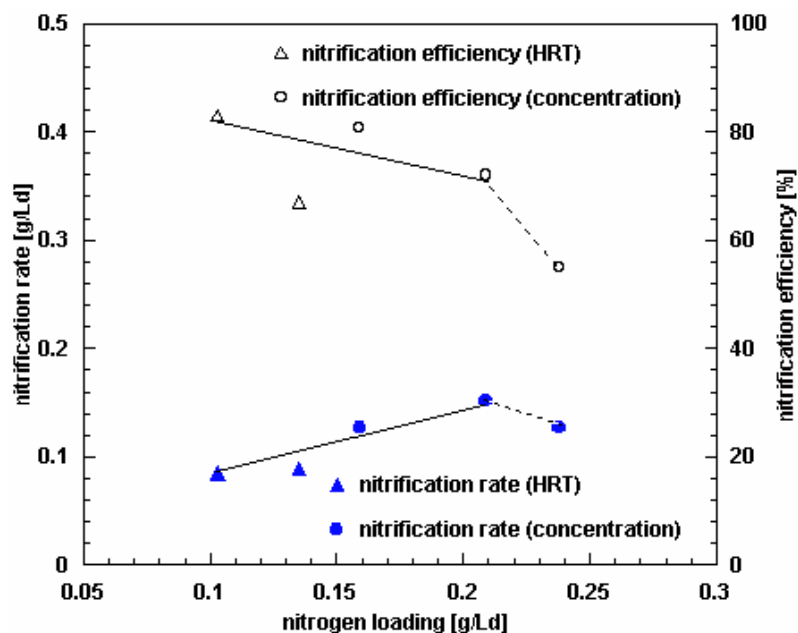


Figure 2.14 硝化に及ぼす負荷の影響

2.3.3 硝化に及ぼす酸素透過速度の影響

MAB により AS プロセスの硝化性能を促進できた。MAB の硝化において膜による酸素供給速度は MAB の硝化性能を決める重要な因子である。ここでは、硝化速度に及ぼす酸素供給速度の影響を検討した。

(a) 膜モジュールの出入口空気流量

中空糸膜モジュールの入口側および出口側の空気流量を測定した。膜モジュールの出口を大気に開放した場合の入口および出口の空気流量に及ぼす入口空気圧力の影響を Figure 2.15 に示す。膜モジュールの出口を大気に開放しているため、モジュールを通過する空気流量が大きく、入口と出口の空気流量差は約 0.71 mL/s 以下であった。入口および出口の空気流量は入口空気圧力に比例することがわかった。

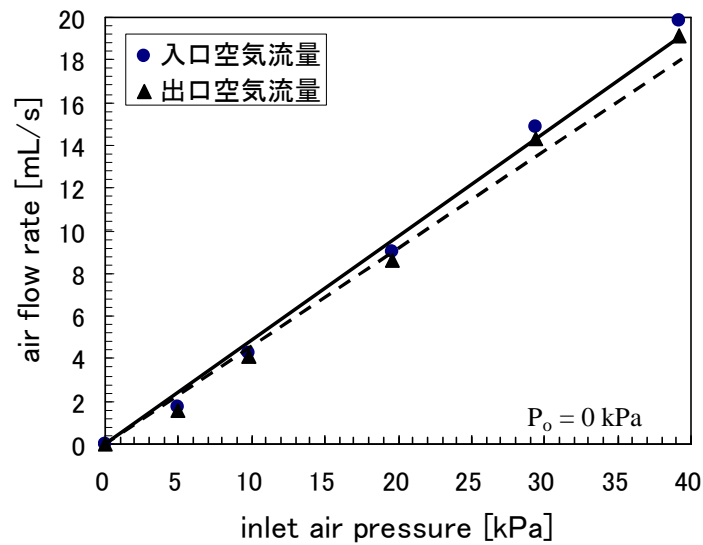


Figure 2.15 空気流量に及ぼす入口空気圧力の影響

入口空気圧力を 30 kPa に固定して出口側のバルブを調節し、出入口の空気流量に及ぼす出口空気圧力の影響を検討した。空気流量と出口空気圧力の関係を Figure 2.16 に示す。入口と出口の空気流量は、出口空気圧力の増加に伴い、直線的に減少することがわかった。さらに、空気流量差は、出口空気圧力に比例して増加した。出口空気圧力が 0 ～19.6 kPa に増加するに伴い、膜内部が徐々に加圧され、膜から透過する空気流量が多くなる。このため、空気流量の差は、出口空気圧力に比例したと考えられる。

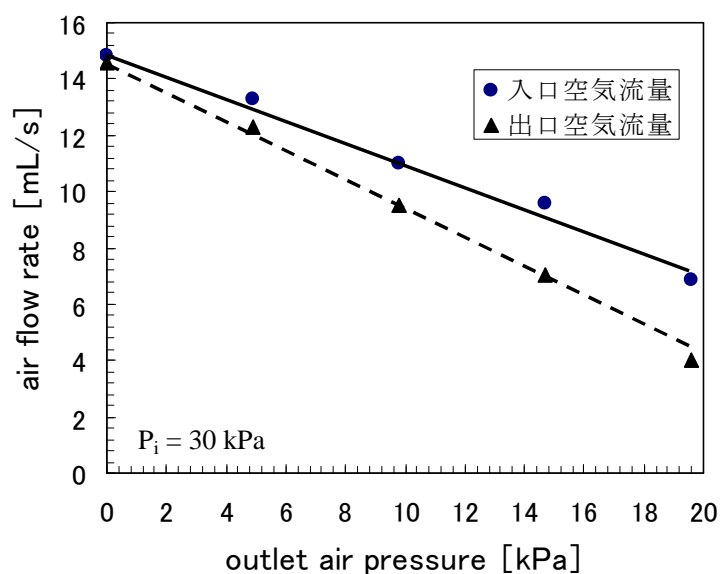


Figure 2.16 空気流量に及ぼす出口空気圧力の影響

(b) 酸素透過速度に及ぼす出入口空気圧力の影響

シリコン中空糸膜を透過した酸素量は通気時間に直線的に比例した関係より酸素透過速度を求めた。液面からの酸素移動速度（酸素吸収速度）を調べるために、膜モジュール出入口をバルブで閉めて、酸素吸収実験を行った。液面からの酸素移動速度は約 $0.084 \text{ g-O}_2/\text{d}$ であった。Figure 2.17 に膜モジュールの出口を大気開放した場合について、酸素透過速度と膜モジュール入口空気圧力の関係を示す。入口空気圧力 $P_i = 0 \sim 5 \text{ kPa}$ の範囲で酸素透過速度は入口空気圧力の増加に伴って大きく増加した。空気圧力が約 5 kPa のとき、酸素透過速度は約 $0.85 \text{ g-O}_2/\text{d}$ であった。空気圧力約 5 kPa 以上では圧力の増加に伴って酸素透過速度は緩やかに増加し、空気圧力約 40 kPa では約 $1.75 \text{ g-O}_2/\text{d}$ に達した。モジュールを通る空気流量が入口圧力に比例するのに対し、酸素透過速度は入口圧力に比例せず、入口圧力の小さい範囲で酸素透過速度が大きく増加した。バルク中

の溶存酸素濃度はゼロであるので、モジュール内に空気を流さなくてもシリコン膜両側には酸素分圧差が生じる。このため、入口圧力が小さい範囲では、モジュール内部を加圧しなくてもシリコン内側からが外側へ酸素が透過する量が多くなったものと考えられる。Figure 2.18 に入口圧力を 30 kPa とした場合について酸素透過速度とモジュール出口圧力の関係を示す。出口圧力を 0～19.6 kPa に増加させると、酸素透過速度は約 1.4～2.6 g-O₂/d まで増加した。これは膜の出口を大気開放した場合に比べ、入口圧力を固定して出口圧力を変えた場合は膜内部の圧力が高くなったためと考えられる。

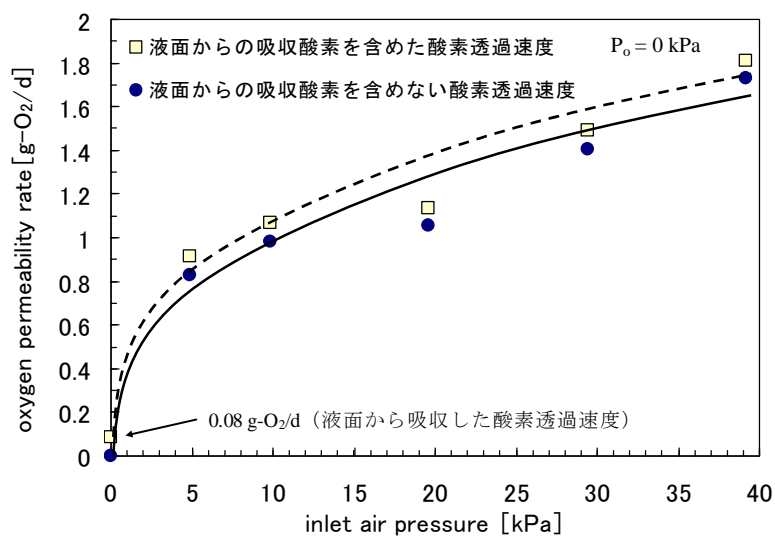


Figure 2.17 酸素透過速度に及ぼす入口圧力の影響

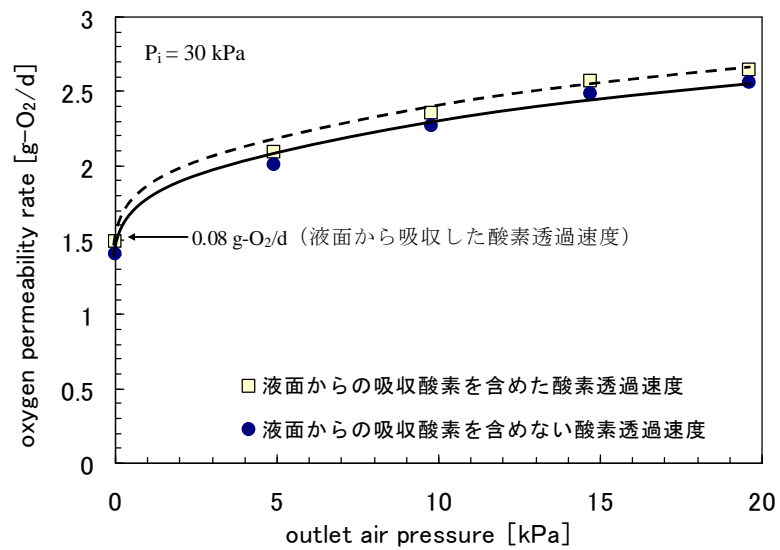


Figure 2.18 酸素透過速度に及ぼす出口圧力の影響

(c) 酸素フラックス

酸素透過速度に基づいて酸素フラックスを計算した。Figure 2.19 に膜の出口を大気に開放した場合における平均径基準の膜面積を基準とし、酸素フラックスと入口空気圧力の関係を示す。入口空気圧力 P_i [kPa] と酸素フラックス J [g/m²h] の関係を次式で相関することができた。

$$J_{ave} = 0.01 + 0.86 P_i^{0.36} \dots\dots\dots (7)$$

ここで、

J_{ave} : 平均径基準の膜面積から計算した酸素フラックス

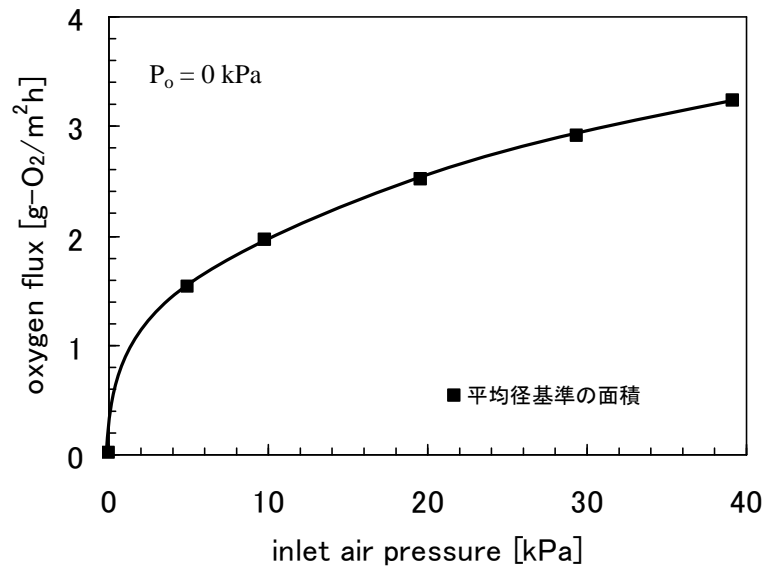


Figure 2.19 酸素フラックスに及ぼす入口圧力の影響

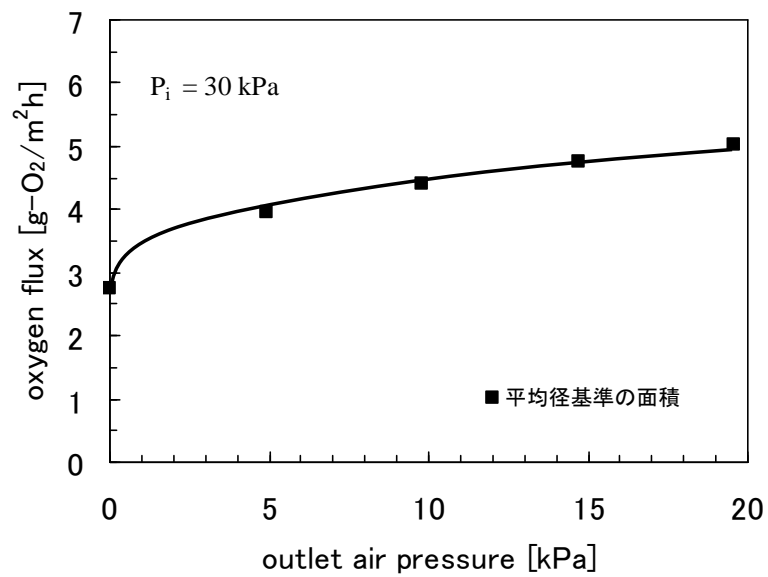


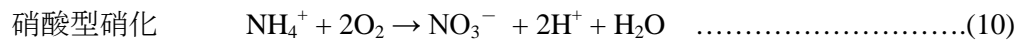
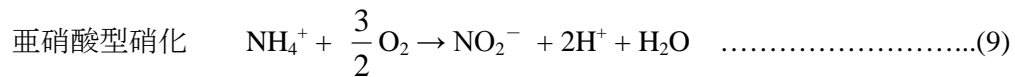
Figure 2.20 酸素フラックスに及ぼす出口圧力の影響

Figure 2.20 に入口圧力を 30 kPa とした場合について、平均径基準の酸素フラックスと出口空気圧力の関係を示す。出口空気圧力 P_o [kPa] と酸素フラックス J [g/m²h] の関係を次式で相関できた。

$$J_{ave} = 2.75 + 0.58 P_o^{0.46} \dots\dots\dots(8)$$

(d) 酸素透過速度から推定した硝化速度

酸素フラックスの相関式をもとに、硝化反応における酸素と窒素の量論比から硝化速度を推定した。亜硝酸型硝化、硝酸型硝化の反応式は次のように表される。



膜を透過した酸素がすべて硝化に利用されると仮定する。酸素透過速度に対応して、生成される亜硝酸態窒素 ($\text{NO}_2^- - \text{N}$)、硝酸態窒素 ($\text{NO}_3^- - \text{N}$) の濃度は次式より表される。

$$\text{亜硝酸型反応における窒素濃度 } C_1 = N_0 \times \left(\frac{2}{3}\right) \times \left(\frac{N_2}{F}\right) \dots\dots\dots(11)$$

$$\text{硝酸型反応における窒素濃度 } C_2 = N_0 \times \left(\frac{1}{2}\right) \times \left(\frac{N_2}{F}\right) \dots\dots\dots(12)$$

$$\text{亜硝酸型硝化速度} = \frac{C_1 F}{A} = N_0 \times \left(\frac{2}{3}\right) \times \left(\frac{N_2}{A}\right) \dots\dots\dots(13)$$

$$\text{硝酸型硝化速度} = \frac{C_2 F}{A} = N_0 \times \left(\frac{1}{2}\right) \times \left(\frac{N_2}{A}\right) \dots\dots\dots(14)$$

ここで、

N_0 : 酸素フラックス式 (7) から得られた酸素透過速度 [mmol- O_2 /h]

A : 本研究に使用した平均径基準の膜面積 [m^2]

F : 実際に行われた廃水処理の体積流量 [L/d]

N_2 の分子量=14

Figure 2.21 に膜出口を大気に開放した場合の膜モジュール入口圧力と硝化速度の関係を示す。入口圧力を 0～39.2 kPa の範囲で増加させると、酸素透過フラックスに対応する亜硝酸型硝化速度は約 0～13.4 g/ m^2 d、硝酸型硝化速度は約 0～10.0 g/ m^2 d であった。

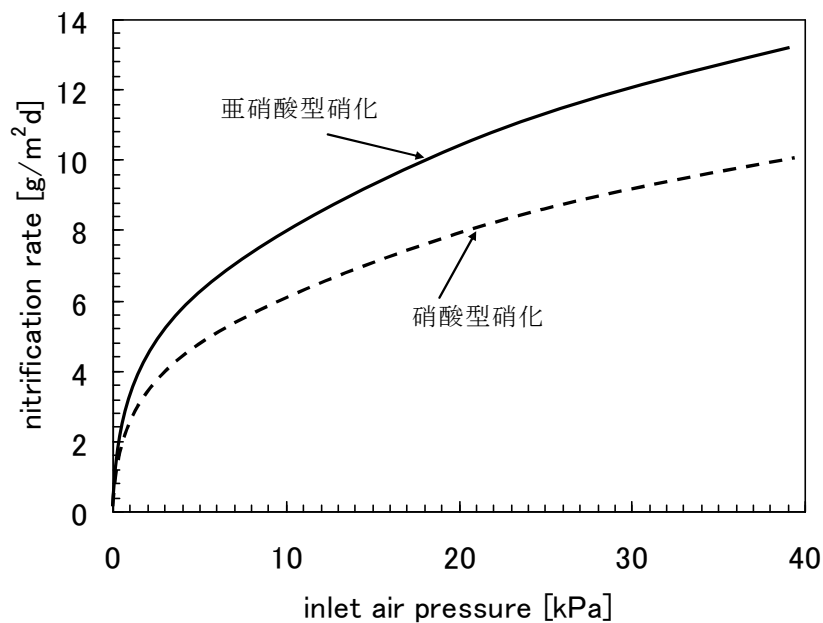


Figure 2.21 硝化速度に及ぼす入口圧力の影響

Figure 2.22 に入口空気圧力を 30 kPa とした場合の膜モジュール出口空気圧力と硝化速度の関係を示す。出口圧力を 0～19.6 kPa の範囲で増加させた場合、酸素透過フラッ

クスに対応する亜硝酸型硝化速度は約 11.4～20.9 g/m²d、硝酸型硝化速度は約 8.6～15.6 g/m²d であった。膜出口を開放とした場合に比べ酸素フラックスの値が大きいため、硝化速度が増加したと考えられる。

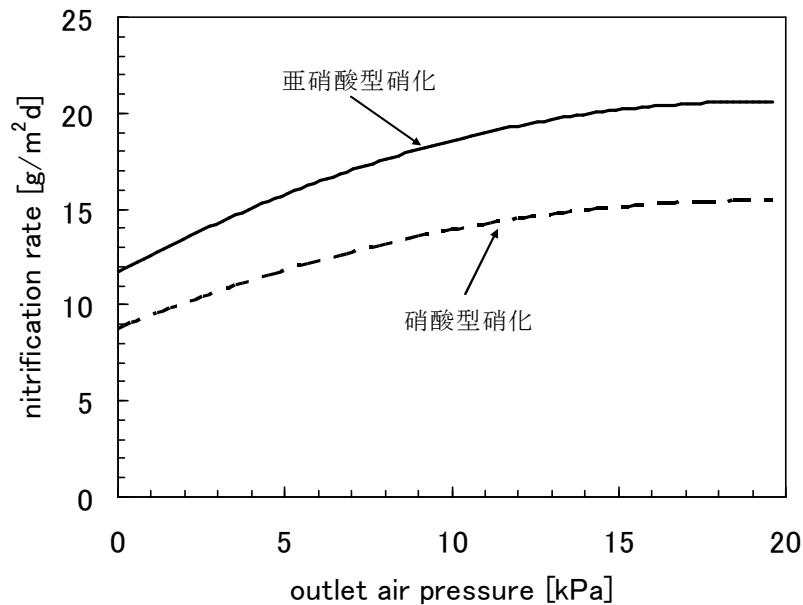


Figure 2.22 硝化速度に及ぼす出口圧力の影響

次に、この結果と廃水処理実験での結果を比較した。ここで、酸素透過速度測定実験で使用した膜は、廃水処理に使用されたものと膜面積と肉厚が異なるため、酸素透過速度を次のように補正した。

$$\text{亜硝酸型反応における窒素濃度 } C_1 = N'_0 \times \left(\frac{2}{3}\right) \times \left(\frac{N_2}{F}\right) \dots\dots\dots(15)$$

$$\text{硝酸型反応における窒素濃度 } C_2 = N'_0 \times \left(\frac{1}{2}\right) \times \left(\frac{N_2}{F}\right) \dots\dots\dots(16)$$

$$\text{亜硝酸型硝化速度} = \frac{C_1 F}{A'} = N'_0 \times \left(\frac{2}{3}\right) \times \left(\frac{N_2}{A'}\right) \dots\dots\dots(17)$$

$$\text{硝酸型硝化速度} = \frac{C_2 F}{A'} = N'_0 \times \left(\frac{1}{2}\right) \times \left(\frac{N_2}{A'}\right) \dots\dots\dots(18)$$

$$N'_0 = N_0 \times \left(\frac{A'}{l'}\right) \times \left(\frac{l}{A}\right) \dots\dots\dots(19)$$

ここで、

N_0 : 酸素フラックス式(7)から得られた酸素透過速度 [mmol-O₂/h]

N'_0 : 換算した酸素透過速度 [mmol-O₂/h]

A' : 一段処理の廃水処理に形成した生物膜の面積 [m²]、 $A' = 0.0528 \text{ m}^2$

l' : 廃水処理に使用された膜の肉厚 [μm]、 $l' = 75 \text{ μm}$

A : 本研究に使用された膜面積 [m²]、 $A = 0.0358 \text{ m}^2$

l : 本研究に使用した膜の肉厚 [μm]、 $l = 60 \text{ μm}$

硝化速度と MAB モジュール入口空気圧力の関係を Figure 2.23 に示す。図中の実線は亜硝酸型硝化、破線は硝酸型硝化を仮定した場合の硝化速度を示す。プロットは以前の廃水処理操作 (Yamagiwa, 2004、松崎、2004) と本研究で得られたデータである。硝化専用の処理結果では、膜の入口圧力 29.6 kPa、6.35～8.03 g/m²d の硝化速度が得られた (Yamagiwa, 2004)。一段処理では、入口圧力を P=19.6 kPa に設定し、C/N 比を 3～4.6 の範囲で増加させた。処理水中に亜硝酸態窒素濃度は約 0～7.4 mg/L の範囲にあるのに対し、硝酸態窒素濃度は 35.7～25.1 mg/L の範囲であった。窒素負荷が 5～9.8 g/m²d の範囲で、硝酸型硝化速度は約 4.8～8.1 g/m²d に増加した (松崎、2004)。本研究で膜の入口圧力 29.4 kPa での硝化結果では、窒素負荷 0.16 g/Ld のとき、亜硝酸態窒素濃度は約

9.35 mg/L (全窒素に占める割合 26%) で、硝酸態窒素濃度は 17.8 mg/L (全窒素に占める割合 49%) であった。窒素負荷約 0.21 g/Ld のとき、亜硝酸態窒素濃度は 18.8 mg/L (全窒素に占める割合 37%) で、硝酸態窒素濃度は 17.0 mg/L (全窒素に占める割合 33%) であった。窒素負荷約 0.24 g/Ld のとき、亜硝酸態窒素濃度は 26.1 mg/L (全窒素に占める割合 44%) で、硝酸態窒素濃度は 2.63 mg/L (全窒素に占める割合 44%) であった。以上の結果により、本研究の硝酸型硝化速度の結果(破線)は以前の研究とほぼ一致した。また、硝化の型と膜から供給される酸素により MAB の硝化に大きく影響を受けることが分かった。この結果は、膜からの酸素供給速度から逆に MAB の硝化性能を予想できることを意味しており、AS+MAB プロセスの設計に有用な情報となることを意味している。

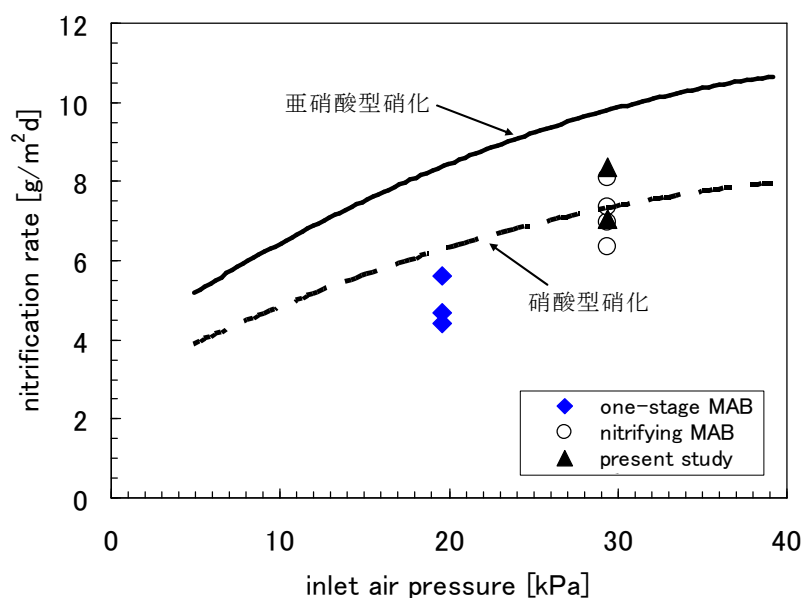


Figure 2.23 硝化速度に及ぼす入口圧力の影響

2.3.4 AS+MAB プロセスのスケールアップ

AS+MAB プロセスを実用化するためには、MAB の充填率や MAB への空気供給量を予測する必要がある。活性汚泥槽に充填する膜モジュールの面積は、ケルダール窒素負荷と膜面積基準の硝化速度により決まる。本研究では膜モジュール充填率は 1.2%であり、流入ケルダール窒素濃度を 80 mg/L まで上げて十分な硝化が可能であった。これは、都市下水の 2 倍程度まで窒素負荷を増加させた場合に相当する。従って、都市下水の処理を対象とした場合には、有機物除去と同時に硝化を目的として、充填率は約 1.2%で十分であると考えられる。これよりも高い窒素負荷に対応するためには、面積基準の窒素負荷を基準として、膜モジュールの必要面積を求めれば良いと考えられる。ただし、固定化微生物による廃水処理操作で、固定化担体の充填率に実用的な上限値があることを考えると、モジュールの充填率にも実用的な上限値が存在すると予想される。なお、シリコンが安価な材料であること、同じ膜モジュールを 5 年以上使用しているが問題がないことを考えると、MAB モジュールのコストは低いと予想できる。本研究では一段 MAB プロセスや硝化専用 MAB プロセスと硝化性能を比較するために MAB モジュール出口を大気に開放した。このため、MAB への空気流量が多くなった。硝化に及ぼす酸素透過速度の影響を検討した結果、モジュール入口空気圧力を一定に保ったままモジュール出口空気圧力を高くすることによって、空気流量は少なくなるが酸素供給量が増加することがわかった。従って、AS+MAB プロセスを実用化する場合には、MAB モジュール出口の空気圧力を高くすることが望ましい。また、MAB モジュールのスケールアップに伴って、MAB モジュールの圧力損失が大きくなる。このため、MAB への空気流量は少量で十分であろう。活性汚泥槽におけるディフューザーへ供給する空気量の一部

を MAB に使用でき、MAB 用に新たにコンプレッサーを設けたり容量を大きくしたりする必要はない。以上の考察を確認する必要があるが、MAB を用いることにより既設活性汚泥槽に安価に硝化機能を付与できると期待される。

2.4 まとめ

本章では、膜通気生物膜（MAB）を従来の活性汚泥（AS）槽に浸漬する AS+MAB プロセスと AS プロセスの 2 系列を同じ条件で運転し、硝化性能と有機物除去性能を検討した。得られた結果を以下にまとめる。

AS プロセスの体積基準硝化速度はおよそ 0.022 g/Ld であった。AS プロセスでは硝化がほとんど完全に阻害された。これに対して、AS+MAB プロセスでは、窒素負荷 $0.15 \text{ g/Ld} \sim 0.21 \text{ g/Ld}$ の範囲で体積硝化速度は 0.13 g/Ld から 0.16 g/Ld まで増加した。AS+MAB プロセスでの最大体積基準硝化速度は約 0.16 g/Ld であり、AS プロセスの硝化速度に比べ約 7 倍大きかった。この結果より、MAB を浸漬することにより、AS プロセスの硝化を促進することができた。一段処理 MAB プロセスや硝化専用 MAB プロセスと比較して、窒素負荷 $8.8 \text{ g/m}^2\text{d}$ の時、AS+MAB プロセスでの硝化速度は $7.1 \text{ g/m}^2\text{d}$ であった。この硝化速度は一段処理 MAB プロセスで得られた硝化速度 $7.1 \text{ g/m}^2\text{d}$ と硝化専用 MAB プロセスで得られた硝化速度 $7.6 \text{ g/m}^2\text{d}$ と同程度であった。さらに、一段処理 MAB で硝化速度が最大となる窒素負荷 $8.21 \text{ g/m}^2\text{d}$ に比べ、AS+MAB で硝化速度が最大となる窒素負荷は約 $11.6 \text{ g/m}^2\text{d}$ であった。これより、AS+MAB プロセスでの硝化は一段処理プロセスに比べ、有機物による阻害を受けにくいことがわかった。なお、両プロセスともに良好な有機物除去性能が得られ、95%以上と高い TOC 除去率が得られ

たことから、両プロセスで有機物は活性汚泥系の懸濁微生物によりほとんど除去されたと考えられる。MAB は有機物除去にあまり寄与しないことがわかった。

AS+MAB プロセスにおける HRT を変化させて負荷を増加させた場合は、流入廃水濃度を上げて負荷を増加させた場合と比較して、同程度の高い TOC 除去率と硝化率が得られた。この結果から、AS+MAB プロセスを小型化し、設置面積を小さくできる可能性があることがわかった。

膜モジュールの出口を大気に開放した場合と、入口空気圧力を 30 kPa で一定にした場合の酸素透過速度に及ぼす出入口空気圧力の影響を明らかにした。シリコン中空糸膜モジュールから供給された酸素が膜通気生物膜の硝化に大きく寄与することが分かった。

本研究の (AS+MAB) プロセスを実用化する場合について、活性汚泥槽での膜モジュールの充填率、MAB への空気供給量を考察した。その結果、MAB を利用することにより、既設活性汚泥槽に比較的容易かつ安価に硝化機能を付与できることが予想される。

2.5 参考文献

松崎秀哉、膜通気型生物膜による有機物除去と硝化に及ぼす負荷の影響、新潟大学修士論文 (2004) .

須藤隆一、水環境保全のための生物学、産業用水調査会、東京 (2004) .

日本水環境協会編集、水環境ハンドブック、朝倉書店、東京 (2006) .

阿部真利子、膜通気型生物膜の硝化速度、新潟大学修士論文 (2003) .

S. Villaverde, P. A. García-Encina, F. Fdz-Polanco, Influence of pH over nitrifying biofilm

- activity in submerged biofilters, *Water Res.*, 31 (5), 1180-1186 (1997).
- P. Antoniou, J. Hamilton, B. Koopman, R. Jain, B. Holloway, G. Lyberatos, S. A. Svoronos, Effect of temperature and ph on the effective maximum specific growth rate of nitrifying bacteria, *Water Res.*, 24 (1), 97-101 (1990).
- L.G. Meng, N. Tsuno, Y. Bando, M. Nakamura, Enhancement of nitrogen removal in a rectangular airlift bubble column having aerobic and anaerobic regions by adding an immobilizing carrier. *J. Chem. Eng. Japan*, 37 (3), 399-405 (2004).
- K. Yamagiwa, A. Ohkawa, O. Hirasa, Simultaneous organic carbon removal and nitrification by biofilm formed on oxygen enrichment membrane, *J. Chem. Eng. Japan*. 27 (5), 638-643 (1994).
- K. Yamagiwa, M. Abe, M. Shibai, M. Yoshida, A. Ohkawa, M. Furusawa, Nitrification performance of membrane-attached nitrifying biofilm, *J. Chem. Eng. Jpn.* 37 (11), 1423-1426 (2004).
- Japanese Sewage Works Association (JSWA): "Experimental methods in sewage", Japanese Sewage Works Association, Tokyo (1974).
- K. Hibiya, J. Nagai, S. Tsuneda, A. Hirata, Simple prediction of oxygen penetration depth in biofilms for wastewater treatment, *Biochem. Eng. J.*, 19 (1) 61-68 (2004).
- S. Wäsche, H. Horn, D. C. Hempel, Influence of growth conditions on biofilm development and mass transfer at the bulk/biofilm interface, *Water Res.*, 36 (19), 4775-4784 (2002).
- K. Brindle, T. Stephenson, M. J. Semmens, Nitrification and oxygen utilisation in a membrane aeration bioreactor, *J. Membr. Sci.*, 144 (1-2), 197-209 (1998).
- M. J. Semmens, K. Dahm, J. Shanahan, A. Christianson, COD and nitrogen removal by biofilms

- growing on gas permeable membranes, *Water Res.*, 37 (18), 4343-4350 (2003).
- A.A.L. [Furtado, R.T.](#) Albuquerque, S.G.F. [Leite,](#) Effect of Hydraulic Retention Time on Nitrification in an AirLift Biological Reactor. *Braz. J. Chem. Eng.*, 15 (3), 303-307 (1998).
- U.J. Ndon, R.R. Dague, Effects of temperature and hydraulic retention time on anaerobic sequencing batch reactor treatment of low-strength wastewater, *Water Res.*, 31 (10), 2455-2466 (1997).

第 三 章

活性汚泥槽における微小動物の動態に及ぼす膜通気生物膜 の影響と汚泥減量化の可能性

本章では、(AS+MAB)プロセスにおける微小動物の動態に及ぼす MAB
の影響を明らかにし、余剰汚泥減量化の可能性を検討する。

Chapter 3 活性汚泥槽における微小動物の動態に及ぼす膜通気生物膜

の影響と汚泥減量化の可能性

3.1 緒言

活性汚泥（AS）槽に膜通気生物膜（MAB）を浸漬させた場合、第二章で述べたように、硝化を促進することができた。MAB は硝化細菌に酸素を供給するだけでなく、増殖速度の小さい硝化細菌を活性汚泥槽に保持する担体としての機能も有する。従って、MAB を浸漬することにより、硝化細菌だけでなく、比増殖速度の小さい後生動物も槽内で増殖できると予想される。MAB を活性汚泥槽に浸漬することで、（AS+MAB）プロセス内における後生動物の個体数が増加して、食物連鎖が長くなり、余剰汚泥の発生量が減少する可能性がある。この可能性を確かめる予備的な検討として、微小動物の量(個体数)を調査する必要がある。

本章では（AS+MAB）における微生物生態系の動態を明らかにし、余剰汚泥減量化の可能性を評価することを目的とする。そのため、MAB を浸漬した活性汚泥（AS+MAB）槽中の鞭毛虫類、繊毛虫類など原生動物、ワムシ類、貧毛虫類、線虫類など後生動物の個体数を計数し、微小動物の動態に及ぼす MAB の影響と（AS+MAB）槽における汚泥削減の可能性を検討した。

3.2 実験装置と方法

3.2.1 実験装置

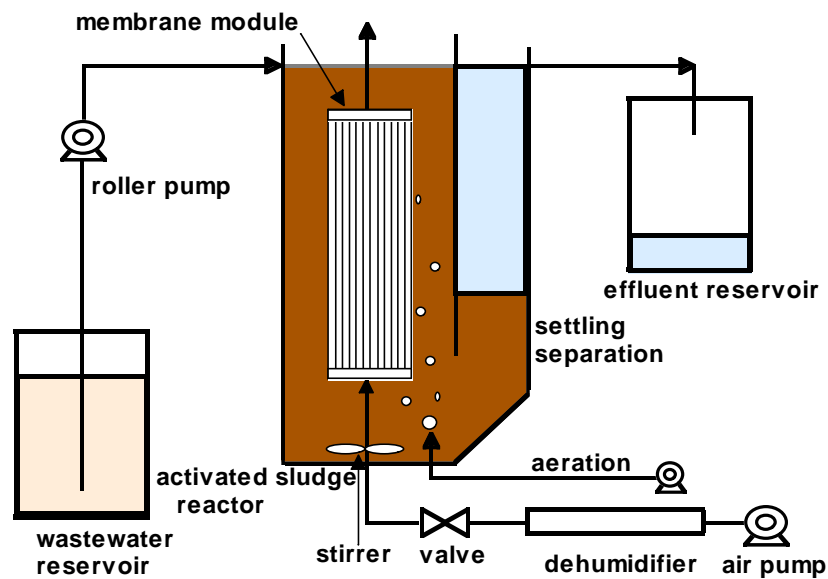


Figure 3.1 AS+MAB プロセスの装置概略図

Figure 3.1 に AS+MAB プロセスの概略図を示す。活性汚泥槽として沈殿分離部を持つ角型槽を用いた。MAB 用生物膜モジュール 1 枚を曝気槽内に設置した。エアポンプを用い MAB モジュールに通気した。モジュール入口ゲージ圧力は、エアポンプ空気吸入口のバルブにより調節した。エアポンプとモジュールの間に、シリカゲルによる脱湿管を設置した。バルクには別のエアポンプにより通気した。合成廃水をローラーポンプにより連続的に活性汚泥槽へ供給した。ローラーポンプにはタイゴンチューブ、その他の部位にはシリコンチューブを使用した。廃水供給チューブの目詰まり防止のため、定期

的にチューブ内面の生物膜を除去した。廃水供給槽には保冷剤を入れた。温度を一定に保つため、リアクターを恒温槽内に設置した。なお、活性汚泥（AS）プロセスは、MABを設置しないことを除いて、AS+MAB プロセスと同じである。リアクター内の濃度を均一にするため、活性汚泥槽の底部をスターラーにより攪拌した。

3.2.2 膜通気生物膜モジュール



Figure 3.2 膜モジュールの写真

シリコン中空糸膜は内径 250 μm 、外径 400 μm 、膜厚 75 μm （永柳工業）のものを用いた。シリコン中空糸膜の周囲は繊維が編み込まれている。繊維層の厚さはおおよそ 200 μm である。実験には、酸素富化型担体 46 本を平面状にモジュール化（長さ 24 cm、幅 5.5 cm）したものを生物膜（MAB）の支持体として用いた。膜モジュールの写真を

Figure 3.2 に示す。

3.2.3 操作条件

新潟市船見下水処理場から採取した余剰汚泥を実験に用いた。この活性汚泥を模擬生活廃水で2ヶ月以上馴養した。活性汚泥槽の操作体積は1,460 mLとした。廃水の水力学的滞留時間は9 hとした。この時の廃水供給量は0.16 L/hである。水温は $25\pm 2^{\circ}\text{C}$ とした。活性汚泥槽中のDO濃度が2 mg/Lになるようにバルクへの通気量を調節した。活性汚泥濃度 (Mixed Liquor Suspended Solid : MLSS) を 2.0 kg/m^3 に保った。模擬生活廃水として主にグルコース、ポリペプトン、硫酸アンモニウムからなる合成廃水を用いた。廃水を活性汚泥槽へ連続的に供給し、廃水処理実験を開始した。あらかじめ濃縮合成廃水を用意し、使用時に濃縮廃水を希釈し、負荷にあわせて濃度を調整した。濃縮廃水は冷蔵庫内に保管した。処理開始時の合成廃水の組成はTable 2-1に示した。この廃水の特性はBOD 200 mg/L, TOC 114 mg/L, T-N 40 mg/L and T-P 5 mg/Lである。

活性汚泥処理を2系列で並行して行った。処理が安定した後、一方の活性汚泥槽にMABを1枚設置した。膜モジュールの充填率は1.2%であり、膜モジュールの入口空気圧力を29.4 kPaに保持した。MABは約1ヶ月硝化菌馴養槽に浸漬して、硝化菌をあらかじめ付着させた。初期の廃水濃度BOD 300 mg/L, TOC 171 mg/L, T-N 60 mg/L and T-P 7.5 mg/LからC/N比を2.85一定に保ち、段階的に負荷を上げた。最終的な負荷はTOC濃度285 mg/L、T-N濃度100 mg/Lである。

3.2.4 微小動物の個体数の計数方法

汚泥サンプルを両槽ともにバルクより採取し、プランクトン計数板（MPC-100, Matsunami Glass Industrial Corp., Japan）を用いて微小動物の個体数を計数した。サンプリングを3回行い、平均値を求めた。400区画を観察して、1 mL に存在する個体数を求めた。観察対象とした微小動物は、鞭毛虫類、固着性繊毛虫（縁毛目など）、遊泳性繊毛虫（下毛目や膜口目など）、ワムシ（ヒルガタワムシ目や遊泳目など）、線虫、節足動物（ミズダニ）、貧毛虫とした。

$$\begin{aligned}(\text{計数板 1 区画}) &= (\text{縦}) \times (\text{横}) \times (\text{高さ}) \\&= (0.5 \text{ mm}) \times (0.5 \text{ mm}) \times (1 \text{ mm}) \\&= 2.5 \times 10^{-4} \text{ mL}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{生物個体 [N/mL]} &= \frac{a_1 + a_2 + a_3}{3} \times \frac{1}{\text{検水量[mL]}} \\&= \frac{a_1 + a_2 + a_3}{3} \times \frac{1}{2.5 \times 10^{-4} \times 400}\end{aligned}$$

ここで： a_1 : 1 回目のサンプリング

a_2 : 2 回目のサンプリング

a_3 : 3 回目のサンプリング

3.3 結果および考察

3.3.1 活性汚泥槽で出現した微小動物

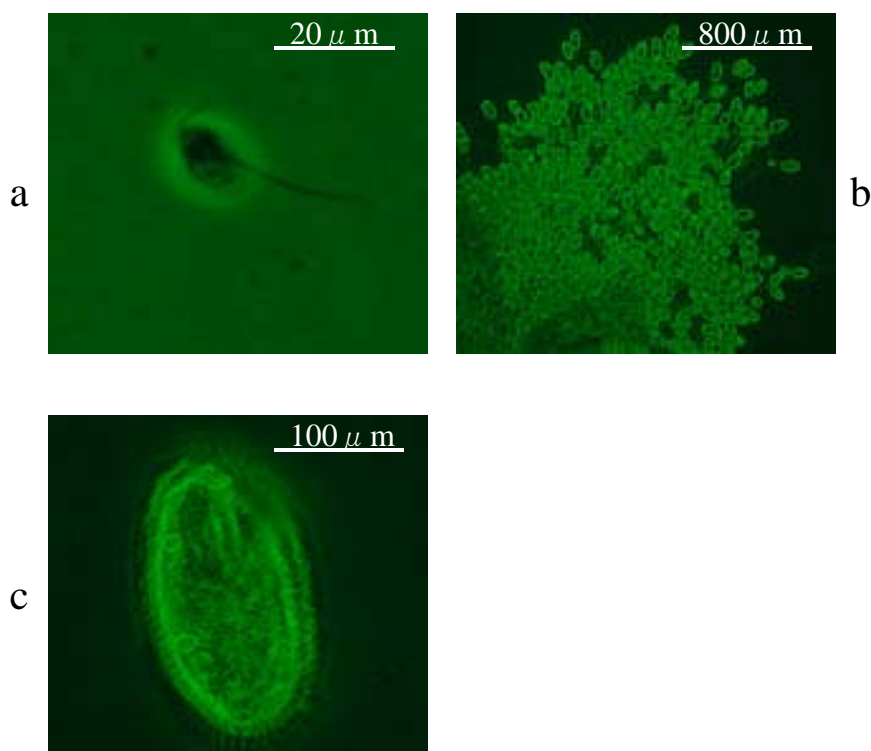


Figure 3.3 出現した原生動物

原生動物として、鞭毛虫類、固着性繊毛虫類、遊泳性繊毛虫類などが出現し、後生動物として、ワムシ、貧毛虫類、線虫類などが出現した。鞭毛虫類、固着性繊毛虫類、遊泳性繊毛虫類など原生動物の写真を Figure 3.3 に示す。写真 a が *Bodo* 属である。*Bodo* 属は活性汚泥の状態が悪い時に出現する非活性汚泥性生物である。写真 b は *Carchesium* 属である。これは固着性繊毛虫類の縁毛目に属し、柄が枝分かれし群体を形成する。写真 c は遊泳性繊毛虫類の下毛目の *Oxytricha* 属である。

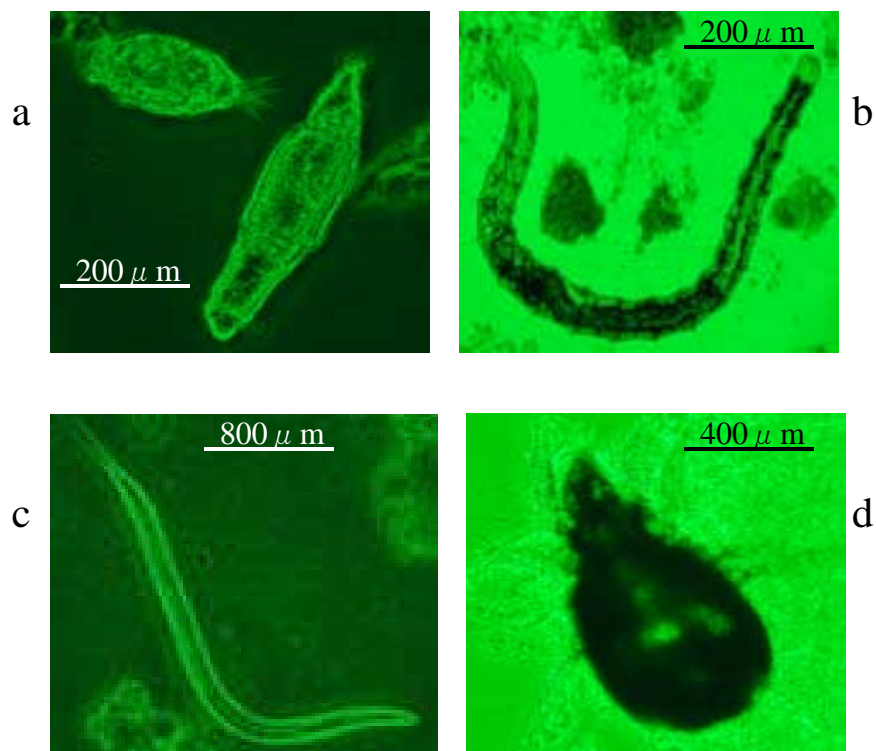


Figure 3.4 出現した後生動物

ワムシ類、線虫、貧毛虫類、節足動物など後生動物の写真を Figure 3.4 に示す。写真 a はワムシ類である。左が遊泳目の *Lecane* 属であり、右はヒルガタワムシ目の *Rotaria* 属である。写真 b が、低負荷で運転されている死領域に生息するといわれている *Nais* 属である貧毛虫類であり、写真 c は線虫である。線虫は一般に曝気槽の死領域で、負荷に関係なく、処理水質の良好な場合でも出現する。写真 d は節足動物中のミズダニで良好水質の指標生物である。

3.3.2 原生動物の経時変化

Figure 3.5 に鞭毛虫類、固着性繊毛虫類、遊泳性繊毛虫類など原生動物の経時変化を

示す。この処理期間における温度、pH、DO、TOC 濃度は Figure 2.5 に、窒素濃度は Figure 2.7 に示した。鞭毛虫類の経時変化を Figure 3.5（上）に示す。AS において、流入 TOC 濃度 171 mg/L の場合では鞭毛虫類が 100～200 個/mL 程度存在していた。しかしながら、94～155 日目まで出現しなかった。その後、TOC 濃度を 285 mg/L に上げると 10～2,000 個/mL 程度になった。一方、AS+MAB では TOC 濃度 171 mg/L の場合、鞭毛虫類は 50～500 個/mL 程度存在していた。流入 TOC 濃度を 228 mg/L に上げると 102 日目から鞭毛虫類はまた出現し始め、104 日目には 10,000 個/mL 程度まで増加した。流入 TOC 濃度を 228 mg/L に上げると、鞭毛虫類は 60 個/mL 程度に減少した。さらに、112～160 日目まで出現しなかった。

鞭毛虫類は BOD 負荷が高く、溶存酸素濃度が低い時に多く出現すると言われている。しかし、本実験では、鞭毛虫類の個体数はそれほど多くはなかった。この理由として、DO 濃度が 1 mg/L 以下になることは少なかったこと、汚泥滞留時間が長くなり、鞭毛虫類を食物源として捕食する後生動物が大量に増殖したことが考えられる。

固着性繊毛虫類の経時変化を Figure 3.5（中）に示す。縁毛目が固着性繊毛虫類の大部分を占めていた。AS では、流入 TOC 濃度 171 mg/L で固着性繊毛虫類は 2,000 個/mL 程度存在した。TOC 濃度を 228 mg/L に上げると個体数は 2,000 個/mL 程度、さらに、285 mg/L に上げると 4,000 個/mL 程度に増加した。しかし、いずれの場合も有機物濃度を上げてから 10～20 日間程度経過すると、一時的に減少する傾向が見られた。これは AS プロセスで、有機物濃度を上げたと、同時に廃水中のアンモニア態窒素濃度も増加したことにより固着性繊毛虫類の増殖に不利な影響を与えたと考えられる。一方、AS+MAB の場合、TOC 濃度 171 mg/L では 3,000 個/mL 程度で一定となった。流入 TOC 濃度 228 mg/L では 2,500 個/mL 程度存在し、TOC 濃度を 285 mg/L に上げて 4,000 個

/mL 程度存在した。AS の場合とは異なり、廃水濃度を上げた直後も有機物による阻害を受けず、AS のように固着性繊毛虫類の個体数が減少する傾向は見られなかった。固着性繊毛虫類は全期間を通して、AS、AS+MAB に問わず生物個体数は豊富であった。

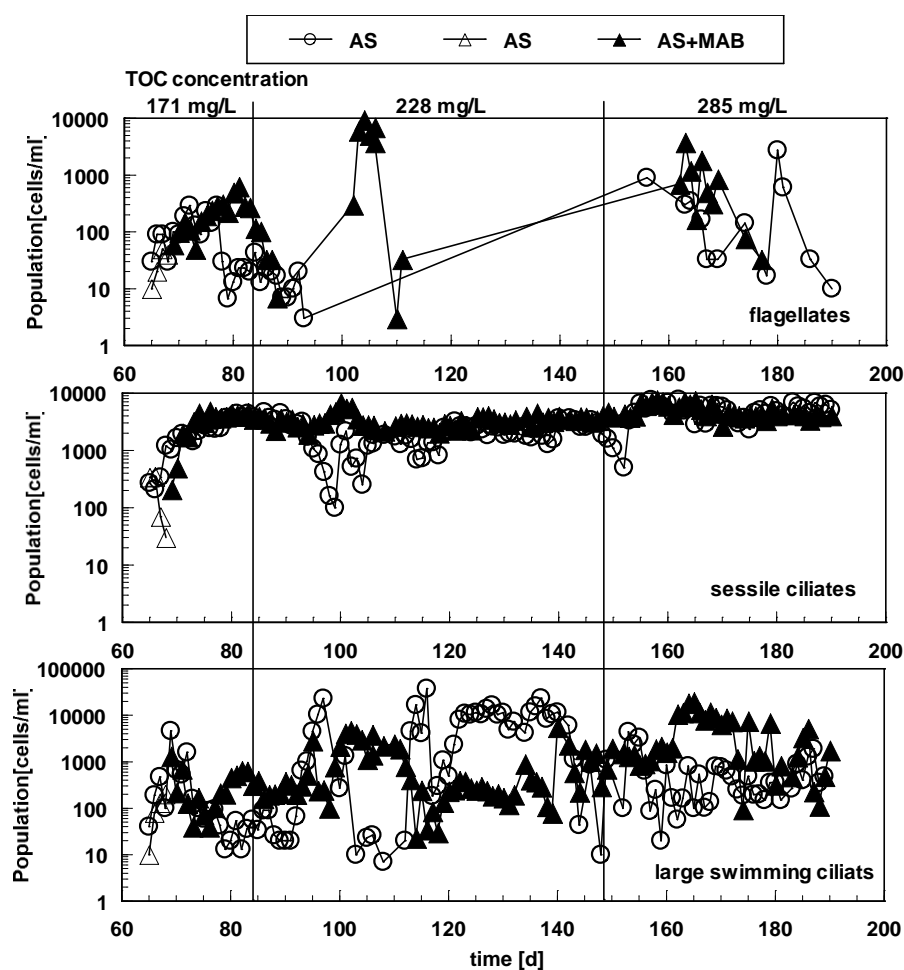


Figure 3.5 原生動物の経時変化

遊泳性繊毛虫類の個体数の経時変化を Figure 3.5（下）に示す。AS の場合、流入 TOC 濃度 171 mg/L では 10～8,000 個/mL の間で変動した。TOC 濃度 228 mg/L では 10～20,000 個/mL の間で変化し、TOC 濃度 285 mg/L に上げると 10～3,000 個/mL になった。AS+MAB の場合、流入 TOC 濃度 171 mg/L では 30～1,000 個/mL 程度存在し、TOC 濃度を 228 mg/L

に上げると個体数は 2,000～4,000 個/mL 程度で期間中ほぼ一定であった。TOC 濃度を 285 mg/L に上げてても 4,000 個/mL 程度存在していた。

AS では遊泳性繊毛虫類の個体数は 70～94 日目、100～115 日目の間で 10～20 個/mL 出現したが、94～103 日目、115～143 日目の間で 20,000 個/mL に達した。TOC 濃度を 285 mg/L に上げた 143 日目以降は増減を繰り返していた。AS+MAB では 80～98 日目、115～140 日目、174～182 日目の間は少なく、103 日～110 日目、143～162 日目、165～175 日目の間は多かった。遊泳性繊毛虫類の個体数は周期的に変動する傾向が見られた。AS では小型の膜口目が多いのに対して、AS+MAB では大型の下毛目が多く観察された。これは汚泥滞留時間が長いためと考えられる。

MAB の浸漬により、鞭毛虫類、固着性繊毛虫類、遊泳性繊毛虫類など原生動物の個体数には変化はなかった。しかし、遊泳性繊毛虫では大型の下毛目が多くなった。

3.3.3 後生動物の経時変化

微小後生動物の経時変化を Figure 3.6 に示す。ワムシ類個体数の経時変化を Figure 3.6 (上) に示す。AS の場合、処理期間中でワムシの個体数は 5～90 個/mL であった。流入 TOC 濃度 171 mg/L で 3～50 個/mL、TOC 濃度 228 mg/L 以上に上げるとワムシの個体数は 2～10 個/mL に減少した。一方、AS+MAB では MAB を浸漬させると同時にワムシ類が増殖し開始し 100 個/mL に達した。流入 TOC 濃度 228 mg/L に上げた場合、個体数は 94 日目に最大に達し、その数は 10,000 個/mL 程度であった。それ以降は緩やかに減少した。98 日目になると著しくワムシが減少した。TOC 濃度を 228 mg/L に上げると 160 日目より、再び増加し、3,000 個/mL 程度でほぼ一定になった。AS+MAB において、

遊泳目は 140～155 日目間は見られなかったが、それ以外の期間では 10～100 個/mL 存在していた。

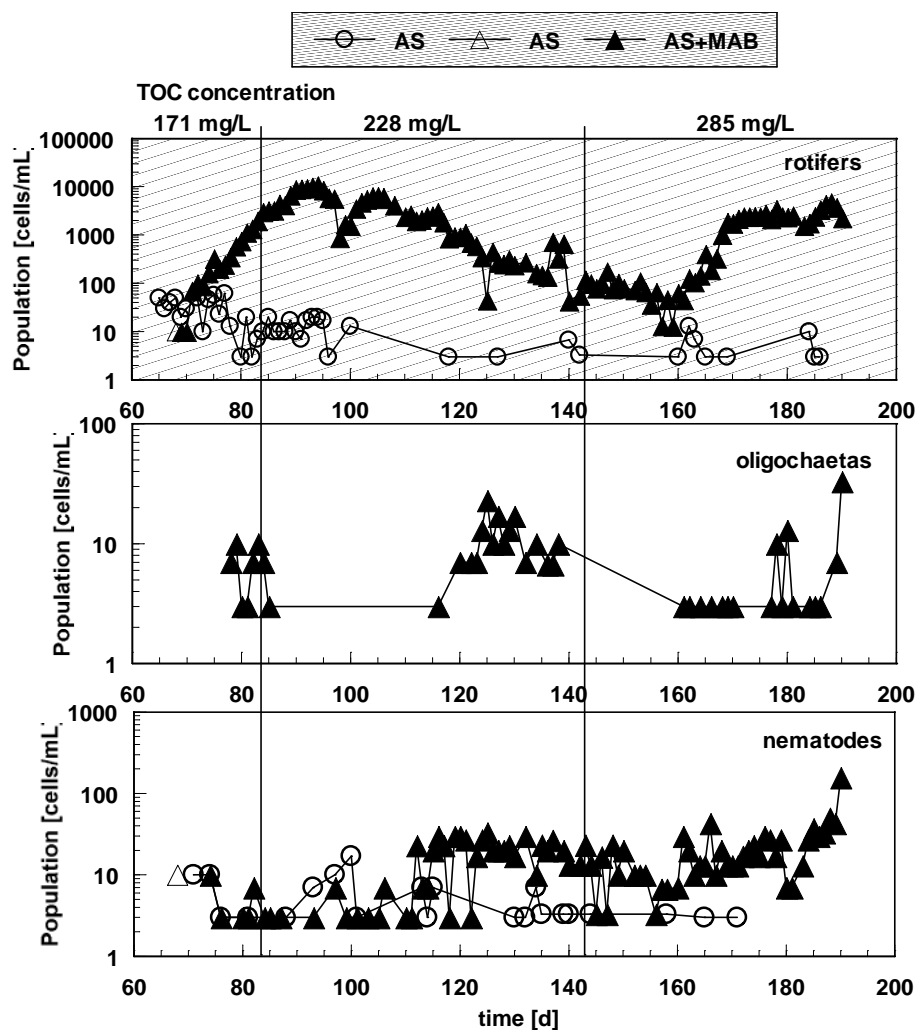


Figure 3.6 後生動物の経時変化

MAB を浸漬させたことにより、汚泥滞留時間が長くなったことで比増殖速度の小さいワムシ類がウォッシュアウトされず、AS と AS+MAB 間で生物個体数に大きな差が生じたものと考えられる。

貧毛虫類個体数の経時変化を Figure 3.6 (中) に示す。AS では貧毛虫類は全く観察さ

れなかった。AS+MAB では 3～60 個/mL 程度観察された。貧毛虫類は増殖速度の小さい後生動物であるため、AS ではウォッシュアウトされた可能性があると考えられる。貧毛虫類は凝集体摂食性を持つため、濾過摂食性を持つワムシと共存することにより水質が向上し、汚泥生成量も減少すると言われており（須藤 2004）、AS+MAB では汚泥の減量化が期待される。

線虫個体数の経時変化を Figure 3.6（下）に示す。AS では出現頻度と個体数とも少なかった。これに対して、AS+MAB では 20～70 個/mL 程度存在した。

節足動物としてミズダニが観察された。AS、AS+MAB のどちらの場合においても流入 TOC 濃度 171 mg/L、228 mg/L の時に見られることが多かったが、TOC 濃度を 285 mg/L に上げた場合ほとんど見られなくなった。ミズダニは良好水質の指標生物であることから、廃水 TOC 濃度 171 mg/L、228 mg/L の場合でも、処理水 TOC 濃度が 5～20 mg/L 程度であり、廃水が十分に処理されていたことを示すものである。

第二章に述べたように、AS 槽に MAB を浸漬した後、AS+MAB プロセスをすぐに開始した。AS+MAB における硝化が進行した（Figure 2.7）。この期間、微小後生動物に関しては、ワムシ類が増殖し始めた（Figure 3.6 の上）。バルクのアンモニア態窒素濃度が低い場合にワムシの個体数が増加する傾向にあるように見受けられるが、AS+MAB プロセスにおいて、微小動物とバルクの水質との関係を明らかにするためには、さらに検討が必要である。

3.3.4 余剰汚泥減量化の可能性

活性汚泥中の微生物は廃水中の有機物を餌にして活動している。有機物の一部は菌体

合成や内生呼吸（活動エネルギー）に使われ、残りが CO_2 、 N_2 、 H_2O 等となって排出される。

有機物 \rightarrow 菌体合成 + $\text{CO}_2 \uparrow$ + $\text{N}_2 \uparrow$

つまり菌体合成分が余剰汚泥となる。原生動物・後生動物などの捕食生物を利用することは余剰汚泥を減量化するために効果的な方法の一つである。捕食作用は汚泥の増減にとって重要な因子の一つであり、食物連鎖における微小動物の影響が強いほど汚泥は減量化される。

標準活性汚泥法では、原生動物の密度が大きい、原生動物の多くは分散状細菌のみを捕食する濾過摂食性の原生動物である。それ故、原生動物による汚泥減量化はそれほど顕著なものではない。

後生動物が大量に存在した場合、例えば、ワムシと貧毛虫が共存すると細菌の捕食活性が高まり、水質が向上するとともにバイオマスも顕著に減少すると言われている（須藤、2004）。処理槽中に後生動物の個体数が多い場合、余剰汚泥の発生量が減少することが期待できる。AS+MAB プロセスでは、ワムシ類の個体数が MAB を浸漬した後、直ちに増加し、最大 10,000 個/mL に達した。貧毛虫も 8~60 個/mL 存在した。貧毛虫が存在すれば、水質浄化と同時に汚泥の減量化も効果的に行われると言われている（須藤、1983）。

ワムシ類は分散状の食物源を濾過摂食するために濁度を低下させ、処理水の透明度を高める働きがある。また貧毛虫類は凝集状の食物源を好選して摂食するために汚泥等の減量化に大きく貢献している。さらにワムシ類には粘着物質と共に排出された未消化物質の糞塊がフロック形成（かたまり）を促進させる働きがある（須藤、2004）。すなわちワムシ類が分散する有機物を摂食し、残った物を凝集する。さらに貧毛類がそれらの

物質を摂食する。このことからワムシ類と貧毛虫類が共存することによって水質浄化能力は一層向上し、生息可能な有用微小動物の個体密度が高まると考えられる。

懸濁系においてワムシが 10^3 個/mL 程度存在すると、汚泥が 40% 程度減少することが報告されている（大友、2003）。大友によれば、汚泥収率はワムシの個体数が 0 個/mL 時には、0.45 mg-MLSS/mg-TOC であり、ワムシの個体数 560~2400 個/mL 時には、0.26 mg-MLSS/mg-TOC であった。本研究でも、平均で 10^3 個/mL 以上まで増殖しており、汚泥の減量化が期待される。貧毛虫は大型であり、汚泥フロックを摂食することから余剰汚泥を直接減量化する効果を有する。Liang ら（2006）の研究によれば貧毛虫の一種である *Aelosoma hemprichi* の汚泥減少速度は約 0.004 mg-sludge/cell \cdot d である。本研究でも、TOC 負荷 0.29 g/Ld の時に、平均して貧毛虫は 25 個/mL 程度まで存在しており、槽内では約 3.7×10^4 個存在していたこととなる。従って、*Aelosoma hemprichi* 基準で考えてみると、汚泥減少速度は 148 mg-sludge/cell \cdot d であり、AS 中に全くいない時と比べると汚泥が約 40 % 削減することになる。以上の結果より、AS 中に MAB を浸漬することより、バルク中の後生動物が顕著に増加した。以上の結果より、AS+MAB 槽では、後生動物の個体数が増加したことにより、食物連鎖が長くなり、余剰汚泥の発生量が減少している可能性があることが示唆される。

3.4 まとめ

膜通気生物膜（MAB）を活性汚泥（AS）に浸漬させたことによる微小動物の動態について AS と AS+MAB の両槽で比較し、処理性能に及ぼす微小動物の影響を検討した。これに基づいて、余剰汚泥減量化の可能性を評価した。

MAB の浸漬は鞭毛虫類、固着性繊毛虫類、遊泳性繊毛虫類など原生動物の動態に顕著な影響を与えなかった。後生動物に対して、AS の場合では、TOC 負荷 0.57 g/Ld 以上では後生動物がほとんど出現しないのに対して、AS に MAB を浸漬させるとワムシは 100~10,000 個/mL、線虫は 10~30 個/mL、貧毛虫は 8~60 個/mL 程度存在した。AS と AS+MAB で比増殖速度の小さい後生動物の個体数に違いが顕著に現れた。MAB を AS 槽に浸漬することにより、AS+MAB プロセスの硝化が進行するとともに、微小動物の捕食作用により余剰汚泥が減量化できることが期待できる。微小動物と余剰汚泥減量化との関係、および汚泥発生量に関してはさらに実験を行う必要があるが、ワムシと貧毛虫など後生動物が大量に存在したことは、食物連鎖が長くなり、余剰汚泥の減量化が実現できる可能性が示される。

3.5 参考文献

- 千種 薫、図説微生物による水質管理、産業用水調査会、東京（1998）。
- 甲斐 祐司編著、汚泥の減量化と発生防止技術、丸善、東京（2000）。
- 橋本 奨、須藤隆一編著、新しい活性汚泥法、産業用水調査会、東京（1986）。
- 中村和憲、環境と微生物—環境浄化と微生物生存のメカニズム、産業図書、東京（1998）。
- 須藤隆一、環境浄化のための微生物学、講談社、東京（1983）。
- 須藤隆一、水環境保全のための生物学、産業用水調査会、東京（2004）。
- 須藤 隆一、稲森悠平編著、水処理バイオ入門、産業用水調査会、東京（1994）。
- 大友寛子、余剰汚泥発生量に及ぼす微小動物の影響、新潟大学修士論文（2003）。
- 松崎秀哉、膜通気型生物膜による有機物除去と硝化に及ぼす負荷の影響、新潟大学修士

論文（2004）.

堀井浩史、膜通気型生物膜を浸漬させた活性汚泥槽中の微小動物の動態、新潟大学卒業

論文（2005）.

W. Ghysels, W. Verstraete, Reduced sludge production in a two-stage membrane-assisted bioreactor. *Water Res.*, 34 (1), 205–215 (1999).

M. Rocher, G. Goma, A.P. Begue, L. Louvel, J.L. Rols, Towards reduction in excess sludge production in activated sludge process: biomass physicochemical treatment and biodegradation. *Appl. Microbiol. Biotechnol.*, 51, 883–890, (1999).

X. Huang, P. Liang, Yi Qian, Excess sludge reduction induced by *Tubifex tubifex* in a recycled sludge reactor, *J. Biotechnol.*, 127 (3), 443–451 (2007).

P. Liang, X. Huang, Y. Qian, Excess sludge reduction in activated sludge process through predation of *Aeolosoma hemprichi*, *Biochem. Eng. J.*, 28 (2), 117–122 (2006).

K. Yamagiwa, M. Yoshida, A. Ito, A. Ohkawa, A new oxygen supply method for simultaneous organic carbon removal and nitrification by a one-stage biofilm process, *Water Sci. Technol.*, 37, 117–124 (1998).

K. Yamagiwa, A. Ohkawa, O. Hirasa, Simultaneous organic carbon removal and nitrification by biofilm formed on oxygen enrichment membrane, *J.Chem. Eng. Japan.*, 27 (5), 638–643 (1994).

Japanese Sewage Works Association (JSWA): “Experimental methods in sewage”, Japanese Sewage Works Association, Tokyo (1974).

Y.S. Wei, H.R.T.Van, A.R. Borger, D.H. Eikelboom, Y.B. Fan, Comparison Performance of Membrane Bioreactor and Sludge Process on Sludge Reduction Induced by *Oligochaete*,

Environ. Sci. Technol., 37, 3171-3180, (2003).

Y.S. Wei, H.R.T. Van, A.R. Borger, D.H. Eikelboom, Y.B. Fan, Minimizaton of excess sludge production for biological wastewater treatment, Water Res., 37, 4453-4467, (2003).

K. Yamagiwa, H. Ohtomo, Y. Shiroishi, M. Yoshida, A. Ohkawa, Dynamics of microfauna in fluidized activated carbon bed and the roll in reduction of excess sludge, Proceedings of 1st IWA-ASPIRE, Singapore, 1P5, (2005).

第 四 章

結 論

各章で得られた結言を総括して今後の課題について述べる。

Chapter 4 結 論

4.1 本論文の総括

水環境の保全を図るためには、環境水中に排出される窒素、リン、特に窒素を削減する必要がある。生物学的に窒素を除去するためには、律速となりやすい硝化を促進する必要がある。そのためには有機物阻害を受けにくく、既設廃水処理施設に導入しやすい硝化プロセスを開発しなければならない。

本研究では、既設活性汚泥（AS）槽に硝化機能を付与することを目的として、膜通気生物膜（MAB）を AS 槽に浸漬した（AS+MAB）プロセスを考案した。まず、（AS+MAB）プロセスの有機物除去、硝化性能を調べ、AS プロセスと比較検討した。その結果、（AS+MAB）プロセスにより、有機物除去と硝化を一段処理プロセスで効率よく行えることを明らかにした。また、（AS+MAB）プロセスのスケールアップの指針について考察を加えた。

次に、MAB の設置より生じる二次的な効果として、微小動物の個体数が増加することにより、余剰汚泥の発生量が減少する可能性を指摘し、微小動物の動態およびその効果を検討した。

各章で得られた結論は次の通りである。

第二章「膜通気生物膜による活性汚泥槽への硝化促進」では、膜通気生物膜（MAB）を活性汚泥（AS）槽に浸漬した（AS+MAB）プロセスの特性を検討した。AS プロセスでは、検討を行った処理条件の範囲で硝化はほとんど完全に阻害された。これに対して、（AS+MAB）プロセスでは、窒素負荷を 0.15 g/Ld から 0.21 g/Ld まで上げた場合、体積

硝化速度は 0.13 g/Ld から 0.16 g/Ld まで増加した。(AS+MAB) プロセスで最大の体積基準硝化速度は約 0.16 g/Ld であり、AS プロセスの硝化速度に比べ約 7 倍大きかった。AS+MAB プロセスは AS プロセスに比べ高い硝化速度が得られた。つまり、AS プロセスに MAB を用いて硝化機能を付与できることを明らかにした。AS+MAB プロセスでの硝化速度は、一段処理 MAB プロセス硝化専用 MAB プロセスで得られた硝化速度と同程度であった。さらに、一段処理 MAB で硝化速度が最大となる窒素負荷 8.21 g/m²d に比べて、AS+MAB で硝化速度が最大となる窒素負荷は約 11.6 g/m²d であった。この結果より、AS+MAB プロセスでの硝化は一段処理プロセスに比べ、有機物による阻害を受けにくいことがわかった。なお、両プロセスともに良好な有機物除去性能が得られ、95%以上と高い TOC 除去率が得られた。

AS+MAB プロセスにおける HRT を変化させ、処理性能に及ぼす負荷の影響を明らかにした。高い負荷で高い有機物除去率と硝化率が得られた。この結果より、AS+MAB プロセスを小型化し、設置面積を小さくできる可能のあることがわかった。

膜モジュールの酸素透過速度に及ぼす出入口空気圧力の影響を明らかにした。また、シリコン中空糸膜モジュールから供給された酸素が膜通気生物膜の硝化に大きく寄与することを明らかにした。得られた結果に基づいて、(AS+MAB) プロセスの実用化を念頭において、膜モジュール必要面積、通気量について考察し、定性的ではあるが、スケールアップの指針を提示した。

第三章「活性汚泥槽における微小動物の動態に及ぼす膜通気生物膜の影響と汚泥減量化の可能性」では、MAB を浸漬する二次的な効果として、処理系における微小動物への影響と余剰汚泥削減の可能性について検討した。MAB の浸漬により、AS プロセスの硝化が促進されるとともに、大量のワムシおよび少量ながらも貧毛虫と線虫など

の後生動物が出現したことにより、食物連鎖が長くなり、余剰汚泥の減量化が実現することが期待できる。

本研究で AS 槽に MAB を浸漬したことにより、AS プロセスの硝化を促進できることを明らかにした。AS+MAB プロセスにおける有機物除去と同時に硝化を行わせた。高負荷で高い TOC 除去速度と硝化速度が得られた。シリコン中空糸膜モジュールから供給された酸素が MAB の硝化に大きく寄与することがわかった。また、MAB の浸漬により、AS+MAB プロセスにおける余剰汚泥の減量を実現できる可能性がある。AS+MAB プロセスを実用化する場合についてスケールアップの指針を提示した。

4.2 今後の課題

AS+MAB プロセスでは MAB の硝化機構をさらに解明する必要がある。このためには、FISH (fluorescence in situ hybridization) 法により、細菌群集を真正細菌、アンモニア酸化細菌、ニトロバクター属およびニトロスピラ属に分けて、各微生物の濃度分布を測定し、処理条件や MAB 中の微環境と関係付けることが必要である。

本研究では、(AS+MAB) プロセスの基礎的な特性を明らかにした。しかし、AS+MAB プロセスの実用化に当たっては、考慮しなければならない点が多い。現在の実験室規模の操作体積は 1,460 mL と小さい。温度 $25\pm 2^{\circ}\text{C}$ で運転した。また、本研究で用いられた廃水は合成廃水であった。都市下水または工場排水の場合は、実際の廃水の C/N 比および負荷の日変動などが処理性能にどのように影響するか明らかにする必要がある。特に、北方冬季を念頭に硝化に対して温度変化に対応する方策を検討したい。また、大型プロセスの場合、膜モジュールの幾何学的形状を検討する必要がある。そのため

には、膜を通しての酸素透過速度についての情報が必要であるが、既往の研究や本研究で得られた知見に基づいて、膜モジュールの設計手法を確立したい。なお、(AS+MAB) プロセスの汚泥減量化の可能性については、今後具体的に汚泥収率を明らかにするための検討が必要であろう。

謝 辞

本研究を遂行し、まとめるにあたって、実に多くの方にお世話になりました。この場を借りて、感謝の意を述べさせていただきたいと思います。

指導教官である新潟大学大学院自然科学研究科教授山際和明先生には、以前から興味があった環境工学、微生物というキーワードを併せ持つ研究をするチャンスをいただきました。また、三年間本研究を行うにあたり、主査の山際和明先生は、研究環境から学会発表の支援、本論文の作成まで、さまざまな面で見守っていただきました。御多忙にも関わらず、終始懇切なるご指導と温かい励ましを賜りましたことを衷心より感謝申し上げます。

本論文の審査を引き受けて下さり、多くの貴重なアドバイスを頂きました新潟大学工学部教授大川 輝先生、田口洋治先生、伊東 章先生、谷口正之先生に深く感謝いたします。

本研究を行った三年間、佐々木環境技術振興財団から育英奨学金を頂きました喜びと新潟大学での学習と研究を完成できることになった喜びを分かち合いたいと思います。貴財団理事長佐々木文雄様および貴財団の方々に厚く御礼申し上げます。

さらに、有益なご助言ならびに意見を頂きました新潟大学工学部助教吉田雅典先生、新潟大学大学院自然科学研究科助教多島秀男先生、ならびにと共に実験、ディスカッションを行った山際研究室の皆様に御礼を申し上げます。

最後に、日本で留学した 5 年半の間、温かく見守り、時間と機会を与えてくれた家族、特に夫と幼い息子に心からの謝意を記します。

2008 年 3 月

