

# N-12 超低pH膜分離活性汚泥法によるフェノール類の除去

○小俣 拓己<sup>1</sup>・金子 琴絵<sup>1</sup>・浦瀬 太郎<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>東京工科大学大学院バイオ・情報メディア研究科 (〒192-0982 東京都八王子市片倉町1404-1)

\* E-mail: urase@stf.teu.ac.jp

## 1. はじめに

廃水処理には活性汚泥法が広く用いられており、生物分解性の有機物を分解することができる一方で、pH が中性以外の廃水に対しては中和が必要であり、生物分解の難しい有機物も存在する。活性汚泥を酸性条件で運転することが可能であれば、通常の活性汚泥法では処理が難しい酸性排水を中和なしで受け入れたり、カルボキシル基を有する物質の酸解離を抑制し微生物に取り込ませやすくすることが可能となり、真菌類主体の生物群集とすることで菌体外酵素による高分子の有機物の分解効果が生じる可能性がある。極端な酸性条件では微生物フロックの崩壊が懸念されるが、膜分離活性汚泥法(MBR)によれば完全な固液分離が期待できる。

本研究では MBR を極端な酸性条件で運転することが可能であることを実証し、フェノール類の除去能力、種々の運転状況の変化および活性汚泥中の微生物群集の変化を調査した。

## 2. 実験方法

### (1) MBR装置

本研究では種汚泥として東京工科大学下水処理施設の活性汚泥を使用した。有効体積10 Lの容器(以降、反応槽)に活性汚泥を10 L加え、エアレーションを常時行った。汚泥の引き抜きはほぼ1週間に一度のMLSS測定時に20 mL引き抜くのみであったため、SRTは数年のオーダーであった。

図-1に装置の概要を示す。ポンプを用いて連続的に人工廃水を反応槽に約3.3 mL/minで流入させた。活性汚泥混合液から反応槽内に浸漬した親水性ポリテトラフルオロエチレン精密ろ過膜(孔径0.45 μm)で連続的に処理水を引き抜いた。水学的滞留時間は2.08日であった。2つのリアクターのうち、ひとつのリアクターのpHを酸性(pH約3)に、もうひとつのリアクターのpHを中性(pH約7)に保つために18%塩酸または0.5 mol/L水酸化ナトリ

ウムを用いて人工廃水のpHをそれぞれ酸性(pH約3)と中性(pH約7)に調整した。

表-1に人工廃水の組成を示す。炭素源として運転日数1日目～82日目はグルコース、83日目～98日目はフェノール、99日目～107日目はサリチル酸に、108日目～115日目は安息香酸ナトリウムを添加した。

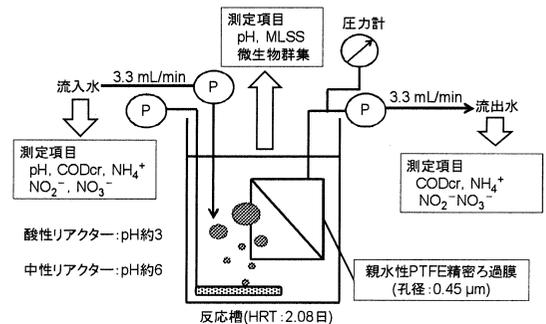


図-1.MBR装置の概要図

表-1.人工廃水の組成

炭素源*	200 mg/L
ペプトン	100 mg/L
酵母エキス	10 mg/L
硫酸アンモニウム	100 mg/L
リン酸水素二カリウム	10 mg/L
硫酸マグネシウム七水和物	10 mg/L
硫酸鉄(II)七水和物	1 mg/L
硫酸マンガン(II)五水和物	1 mg/L

\*: グルコース, フェノール, サリチル酸, 安息香酸のうちのいずれか一つ

### (2) 水質分析方法

流入水に対してpH, 化学的酸素要求量(COD<sub>Cr</sub>), 温度, アンモニア性窒素濃度, 亜硝酸性窒素濃度, 硝酸性窒素濃度を測定し, 反応槽(活性汚泥)に対してはpH, 温度, 活性汚泥中微生物濃度(MLSS)の測定と真菌及び従属栄

養細菌数の計測を行った。流出水に対しては膜間差圧、COD<sub>Cr</sub>、アンモニア性窒素濃度、亜硝酸性窒素濃度、硝酸性窒素濃度の測定を行った。COD<sub>Cr</sub>の測定は酸化剤として二クロム酸カリウムを用い、試料添加後に110°Cのオープンで2時間反応させ室温まで冷まし、HACH社DR/2010にて吸光度を測定し算出した。アンモニア性窒素濃度・亜硝酸性窒素濃度・硝酸性窒素濃度は簡易水質検査試験紙を用いた。硝化率は、処理水の(亜硝酸性窒素+硝酸性窒素)/(アンモニア性窒素+亜硝酸性窒素+硝酸性窒素)で評価した。

### (3) 反応槽内微生物の測定

MLSS測定は下水道試験法を参考に、従属栄養細菌および真菌の培養法は上水試験法を参考に、従属栄養細菌数はR2A寒天培地、真菌数はポテトデキストロース・クロラムフェニコール寒天培地を用いて培養し、コロニー数を計測した。

## 3. 結果と考察

### (1) pH, 硝化率の推移

図-2より実験開始66日目までは、中性リアクター・酸性リアクターに関係なくpHが4以下になったが、これは図-3に示すように、66日までの期間においては、硝化が活発に行われたことによって、pHが低い状態で維持されたためである。この期間に、中性リアクターにおいてはpHを7付近に調整するように0.5 mol/L水酸化ナトリウム(または炭酸ナトリウム)を数回添加したが、pHの上昇は一時的なものとなった。その後、中性リアクターの硝化活性が低下し、pHはそれに伴い上昇し、70日目以降はpH8程度となった。低pHにより活動が抑制されていた硝化細菌がpH中性の条件に戻ることによって再び硝化が行われたと考えられる。

酸性リアクターにおいては安定して酸性状態を保つことができた。また、酸性リアクターでは次第に硝化活性は失われた。

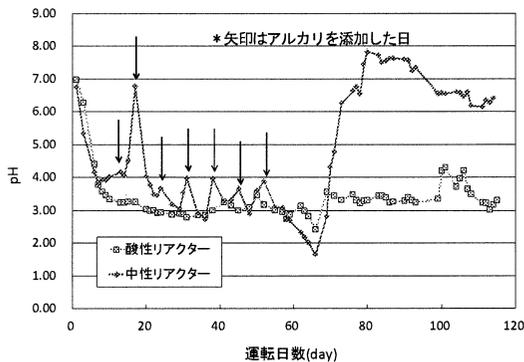


図-2 リアクター内のpHの変化

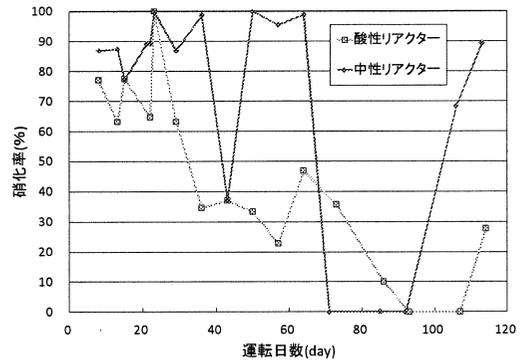


図-3. 硝化率の推移

### (2) MLSSの推移

図-4よりMLSSは酸性のリアクターでは5,000~8,000 mg/L、中性のリアクターでは4,000~6,000 mg/Lの値ではほぼ安定していた。水理的滞留時間2.08日、流入COD<sub>Cr</sub>が164~615 mg/L程度と低かったため、汚泥の引き抜きを行わずに、このレベルの汚泥濃度で安定したと考えられる。

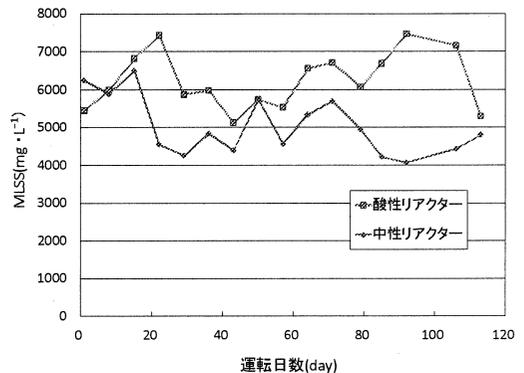


図-4.リアクター内のMLSSの推移

### (3) 膜透過性能の安定性

図-5に膜間差圧の推移を示した。本実験では、膜透過フラックスが0.030~0.51 m/dayと低かったことから、膜の目詰まりはそれほど大きく生じず、膜交換回数は酸性リアクターで0回、中性リアクターで1回、膜洗浄回数は酸性リアクターでは3回、中性リアクターで6回であった。膜洗浄は膜の目詰まりが顕著になった際に行ったが、その回数からも酸性リアクターは安定した運転が可能であることがわかる。中性リアクターでは、pHを調整するために0.5 mol/L水酸化ナトリウム(または炭酸ナトリウム)を添加した直後に膜が目詰まりすることが多く観察された。これはアルカリを添加することによって、細胞が破壊され、目詰まり成分が反応槽中に溶出したためと考えられる。

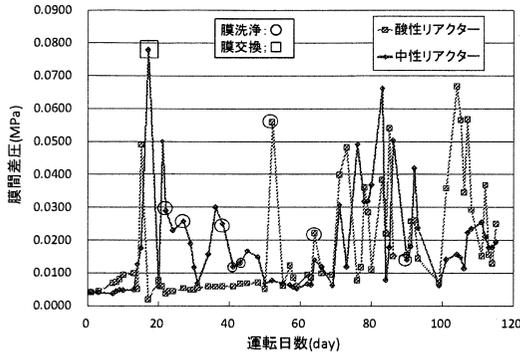


図-5.リアクター内の膜間差圧の推移

(4) CODcr 除去率

図-6 に酸性リアクターおよび中性リアクターの流入水と流出水の CODcr の推移を示す。酸性ではサリチル酸は水に溶解しにくい、ほぼ定量的にリアクターに注入できたことを示している。図-7 に酸性リアクターと中性リアクターの CODcr 除去率を示した。酸性リアクターでは運転開始直後に CODcr 除去率が低下したが、30 日後には 90%以上の除去率を維持できた。初期の CODcr の除去率が低いのは、pH 中性の種汚泥を 10 日程度で pH3 まで急速に下げたために有機物の分解を行っていた微生物の活動が抑制されたためであると考えられる。中性リアクターではサリチル酸の添加により除去率 90%以下に低下したが、酸性リアクターではサリチル酸添加時にも 90%以上の除去率を示した。

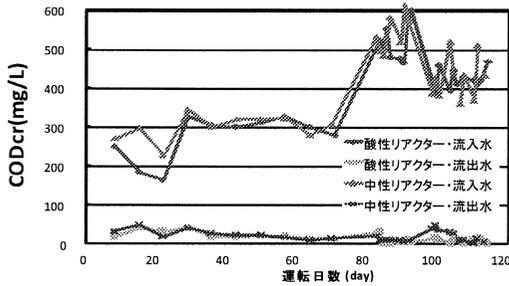


図-6 流入水・流出水の CODcr の推移

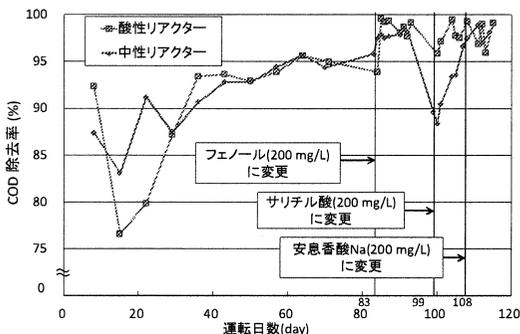


図-7. CODcr 除去率の比較

(5) 微生物群集

図-8, 9 にリアクター内の従属栄養菌数および真菌数を示す。中性リアクターでは従属栄養細菌数が約  $1 \times 10^7$  CFU/mL で真菌数は約  $1 \times 10^4$  CFU/mL であった。酸性リアクターにおいては従属栄養細菌数が約  $1 \times 10^6$  CFU/mL と中性リアクターより少なかった一方、真菌数が約  $1 \times 10^6$  CFU/mL と中性リアクターの 20 倍以上であった。酸性リアクターの微生物群集の特徴として中性リアクターと比較して真菌の割合が大きいことを挙げることができる。

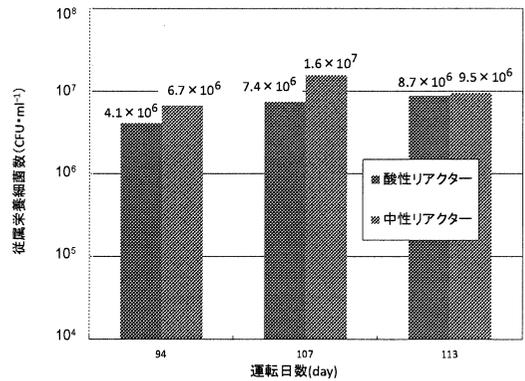


図-8.リアクター内の従属栄養細菌数の比較

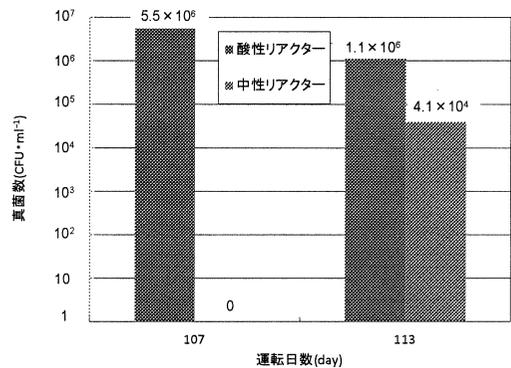


図-9.リアクター内の真菌数の比較

4. まとめ

pH3の酸性条件で膜分離活性汚泥法を100日以上運転したところ、中性リアクターに比較し、酸性リアクターでは膜交換や膜洗浄の回数が少なくても安定した運転ができた。フェノール類のうち、中性リアクターでは除去率の低下したサリチル酸を炭素源として与えた場合にも、酸性リアクターではCODcr除去率の低下が見られなかった。酸性リアクターの微生物群集は中性リアクターと比べて真菌数が多く、中性リアクターの微生物群集との違いがみられた。