

N-5 堺市三宝下水処理場の膜分離活性汚泥プロセスにおけるファウリング物質と微生物群集の解析

○惣田 訓^{1*}・中山 能成²・楨尾 隆志²・高田 一輝¹・橋本 くるみ¹・
韓 成孩¹・池 道彦¹・宮本 博²・山下 喬子³・橋本 敏³

¹大阪大学大学院工学研究科（〒565-0871大阪府吹田市山田丘2-1）

²堺市上下水道局（〒591-8505 堺市北区百舌鳥梅北町1丁39番地2）

³日本下水道事業団（〒113-0034 東京都文京区湯島2-31-27 湯島台ビル3階）

* E-mail: soda@see.eng.osaka-u.ac.jp

1. はじめに

膜分離活性汚泥法（MBR: membrane bioreactor）は、省スペース性に優れ、活性汚泥の沈降性によらずに清澄な処理水を得ることができる。しかし、膜のファウリングを抑制するために大量の曝気が必要であり、定期的に膜を薬品で洗浄する必要もある。堺市三宝下水処理場のMBRでは、鉄を中心とする無機物がファウリングに大きく関与し、その洗浄には次亜塩素酸ソーダよりも、シユウ酸を用いることが効果的であることが報告¹されている。一方、微生物が分泌する細胞外高分子（EPS: extracellular polymeric substances）もファウリングに関与することが知られている。三宝下水処理場のMBRの活性汚泥中の細菌群集は、並列運転されていた標準活性汚泥法のものとは大きく異なることが報告²されているものの、膜表面に付着している細菌群集は今まで解析されていない。そこで本研究では、ファウリングに関与する微生物に関する知見を深めることを目的とし、MBRの膜付着物中の化学物質と細菌群集構造を解析した。

2. 実験方法

(1) 膜カートリッジからの膜付着物の採取

三宝下水処理場の旧1系MBR施設（合流式、日最大処理量60,000 m³/日、計画日最大ろ過フラックス0.58 m³/日、MLSS濃度8,000～10,000 mg/L）のNo. 5-1系、No. 5-2系（各6,500 m³/日）とNo. 3系（8,000 m³/日）を対象とし、表-1に示す調査を実施した。No. 5-1系とNo. 5-2系は、幅4.0m×長さ99.7m×有効水深4.0mであり、無酸素槽（323 m³）、好気槽（472 m³）、膜分離槽（800 m³）で構成されている。No. 3系は他の系列よりも幅が約1.2倍大きい。塩素化ポリエチレン製の浸漬型平膜カートリッジ（0.8m²/枚、公称孔径0.4 μm）が、No. 3系には400枚膜ユニット×42基、No. 5-1系は300枚膜ユニット×46基、No. 5-2系は300枚膜ユニット×36基が設置されている。なお、No. 5-2系には、2013年12月からリン除去のために凝集剤（PAC）が添加されている。各調査において、膜分離槽の上流の膜ユニットを引き上げ、中の膜カートリッジ表面の付着物（ケーキ層）をヘラで回収し、分析試料とした。2013年2月、2014年1月の調査では、中流の膜カートリッジからも試料を採取した。また、膜分離槽の中央から活性汚泥混合液を採取し、分析試料とした。なお、2014年2月調査で

表-1 三宝下水処理場 MBR の膜付着物の調査

調査日	MBR 系列	膜 ユニット	膜間差 圧 kPa ^a	洗浄経過 日数 ^b	膜付着物 g-wet/m ²	膜付着物中の含有量 mg/g-wet						
						糖類	タンバ ク質	フミン 質	Fe	Ca	Al	Mn
2013年 2月4日	No. 3	上流 (1-4)	15.4	28	3.24	1.2	1.5	5.7	19.0	7.0	4.0	<1.0
		中流 (2-5)	9.9	28	2.14	0.8	4.0	1.9	1.0	1.0	1.0	<1.0
1月23日	No. 5-1	上流 (1-1)	4.4	13	4.25	- ^c	4.4	1.3	4.8	2.3	2.1	0.1
		中流 (2-5)	4.1	13	0.30	-	6.5	2.1	7.2	8.7	10.0	1.7
1月24日	No. 5-2	上流 (1-11)	4.1	35	0.33	-	9.4	2.1	1.4	0.6	0.9	0.2
		中流 (2-5)	3.4	10	-	-	2.4	1.5	2.2	1.1	1.7	1.4
2月10日	No. 5-1	上流 (1-1)	6.0	31	5.25	-	1.7	2.6	6.2	2.6	2.3	0.1
		上流 (1-11)	3.7	7	0.43	-	4.4	1.7	1.4	0.4	0.4	0.1
2月18日	No. 5-1	上流 (1-1)	3.7	7	1.75	-	2.6	1.4	8.2	2.9	2.8	0.1
		上流 (1-11)	3.8	15	-	-	-	-	-	-	-	-

^a試料採取前日の最大値、^b次亜塩素酸ソーダによるインライン洗浄、^c未測定

は、No. 5-2系からは微生物群集構造の解析に十分な量の膜付着物が回収できなかった。

(2) 膜付着物中の化学物質の化学分析

採取した膜付着物をリン酸カリウム緩衝液 (KH_2PO_4 50 mM, K_2HPO_4 50 mM, pH 7.4) に懸濁させて 0.004 g-wet/mL に調整し、Frolund[®] と同様の手法で EPS の抽出および糖類、タンパク質、フミン質を定量した。また、膜付着物中の金属元素を誘導結合プラズマ発光分析装置で定量した。

(3) 膜付着物中の電子顕微鏡観察と元素分析

採取した膜を実験室において 0.5% の次亜塩素酸ソーダで 1 時間洗浄後、さらに 1% のシュウ酸で 1 時間洗浄した。それらの試料を走査型電子顕微鏡 (SEM: Scanning Electron Microscope) で観察し、電子プローブマイクロアナリシス法 (EPMA: Electron Probe Micro Analyzer) で元素分析した。

(4) 膜付着物中の微生物の群集構造解析

膜付着物中の真正細菌の 16S rRNA 遺伝子を対象とした T-RFLP (Terminal Restriction Fragment Length Polymorphism) 解析⁹⁾を行った。試料間の細菌群集構造の比較のため、*HhaI* で消化した T-RF プロファイルを主成分分析した。

3. 結果および考察

(1) 膜付着物中の化学物質

三宝下水処理場の MBR は、計画日最大フラックス以上の過運転を行う日もあり、次亜塩素酸ソーダで膜を洗浄しても、表-1 に示すように約 1 ヶ月で膜分離槽の上流のファウリングが進行し、膜間差圧が高まる状況が続いていた。次亜塩素酸ソーダによる洗浄は、有機物によるファウリングの解消にはある程度の効果があったが、雨天による急激な流入水量の増加により、洗浄から 20 日前後が経過すると、急激に膜間差圧が高まることもあった。膜間差圧が高い膜には、褐色のケーキ層が形成され、鉄やカルシウムが無機物として多く含まれていた。また、有機物としては、糖類とタンパク質に加え、フミン質が多く蓄積しており、微生物が分泌する EPS がファウリングに関与している可能性も示唆された。

(2) 膜の SEM-EPMA 分析

2014 年 1 月 23 日に No.5-1 系 MBR の膜分離槽上流から採取した膜の SEM 画像を図-1 に示す。ファウリングが進行していたこの膜の表面には堆積物が観察され、EPMA によると鉄、カルシウム、アルミニウム、酸素が多いことが明らかとなった。ファウリング物質は、次亜塩素酸ソーダでは効果的には洗浄除去できず、鉄やアルミニウムの

酸化物が残留することが示唆された。一方、シュウ酸を用いた場合には、ファウリング物質が効果的に除去され、洗浄後には膜孔が観察された。

(3) 微生物群集構造の系統学的構造解析

MBR の細菌群集の T-RF プロファイルを 2014 年 1 月 23 日の No.5-1 系を例として図-2 に示す。ファウリングが進行していた膜分離槽上流の膜付着物には、201bp の T-RF が優占していた。一方、中流の膜付着物と活性汚泥の細菌群集構造は類似しており、406-409 bp の T-RF が優占していた。他の試料においても同様の傾向がみられ、ファウリングが進行している膜の表面には、201 bp の T-RF を有する特有の細菌群集が集積されていた。

T-RF プロファイルを主成分分析した結果を図-3 に示す。第 1 主成分 (PC1) の値は調査時期によって大きく異なった。PC1 の主成分負荷量は、1085-1087 bp の T-RF のものが -0.76 と小さく、この T-RF は、2014 年 1 月 23 日、2 月 10 日の活性汚泥に優占していたのに対し、2013 年 2 月 4 日、2014 年 2 月 18 日には検出されなかった。三宝下水処理場の MBR の細菌群集構造は、運転が数ヶ月以上経過しても安定しないことが報告²⁾されており、PC1 は MBR の変動する細菌群集構造を反映していると考えられる。一方、第 2 主成分 (PC2) の値は、中流の膜付着物の細菌群集構造は活性汚泥のものに類似しているのに対し、上流の

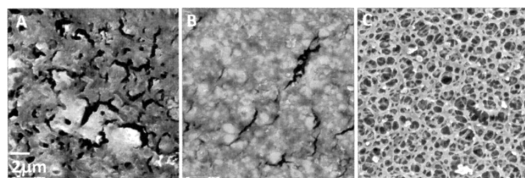


図-1 三宝下水処理場の No. 5-1 系 MBR の膜の SEM 画像 (2014 年 1 月 23 日)。(A) 洗浄前の膜、(B) 次亜塩素酸ソーダによる洗浄後の膜、(C) シュウ酸による洗浄後の膜。

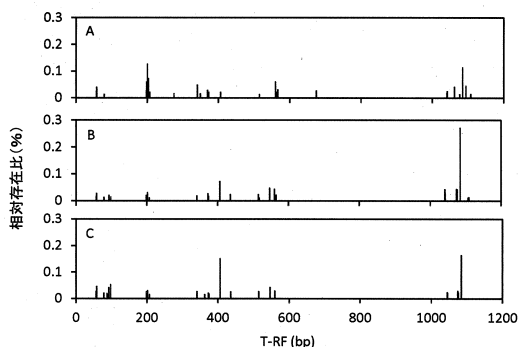


図-2 三宝下水処理場の No. 5-1 系 MBR の細菌群集の 16S rRNA 遺伝子の *HhaI* 消化した T-RF プロファイルの例 (2014 年 1 月 23 日)。(A) 膜分離槽上流の膜付着物、(B) 膜分離槽中流の膜付着物、(C) 膜分離槽の活性汚泥混合液。

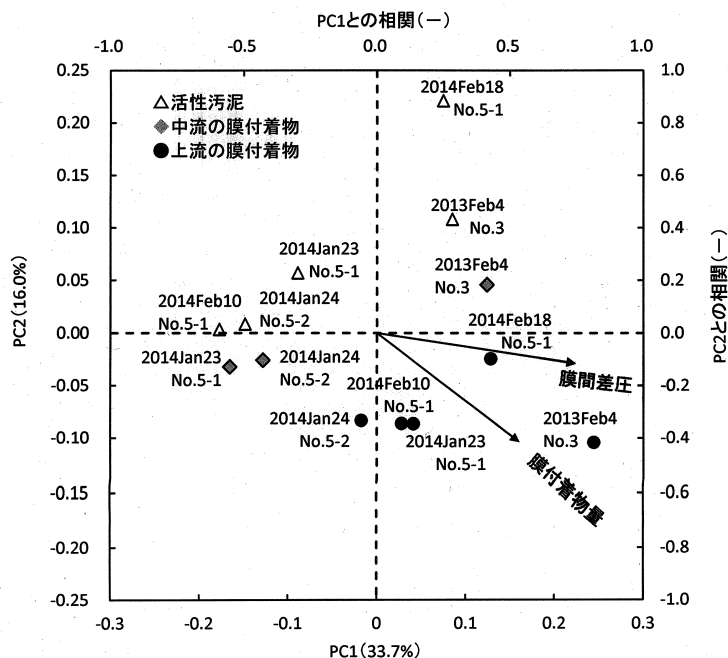


図-3 三宝下水処理場のMBR (No.3系, No.5-1系, No.5-2系) の細菌群集の T-RF プロファイルの主成分分析. ベクターは主成分1および主成分2に対する膜付着物量と膜間差圧の相関係数を示している。

膜付着物のものは他の試料よりも低い値を示した。PC2の主成分負荷量は、201 bpのT-RFが-0.45、406-409 bpのT-RFが0.32と特徴的であった。

膜付着物中の細菌群集のT-RFの主成分分析の得点とMBRの運転状況および膜付着物のデータ (表-1) を比較した結果を図-3に示す。膜間差圧はPC1と正の相関 ($r=0.75$) を示した。膜付着物量は、弱いながら、PC1と正の相関 ($r=0.54$) を、PC2と負の相関 ($r=-0.42$) を示した。なお、膜付着物中の鉄とフミン質の含有量も、膜付着物量と同様の相関を示した。この解析結果からも、膜のファウリングが進行し、膜付着物量が増加すると、その中には活性汚泥とは異なる特徴的な細菌群集が形成されることが示唆された。

4. まとめ

三宝下水処理場のMBRの膜付着物に含まれる物質の化学物質および微生物群集構造の解析を行った。ファウリングが進行している膜の表面には褐色の付着物が蓄積し、そこには活性汚泥とは異なる特有の微生物群集が形成され、糖質とタンパク質に加え、フミン質が多く蓄積されていることが明らかとなった。三宝下水処理場では、ファウリングの主要な原因物質は鉄を中心とする無機物に加え、EPSの分泌やゲル層の形成に関与する細菌群集の存在を示唆している。

謝辞

本研究の一部はJSPS科研費25281039の助成を受けて実施した。膜試料の採取にはクボタ環境サービス株式会社の協力を頂いた。膜のSEM-EPMA観察には大阪大学接合科学研究所共同研究員制度により、西川宏准教授、浅野健司氏の協力をいただいた。

参考文献

- 1) 植尾隆志, 宮本博一, 柳瀬仁志: 堺市三宝下水処理場 MBR施設におけるファウリング現象の解析. 第49回下水道研究発表会講演集, 217-219, 2012.
- 2) 橋本くるみ, 池田彦, 橋本敏一, 濱田浩志, 酒井孝輔, 筒井裕文, 井上大介, 清和成, 惣田訓, 辻幸志: 三宝下水処理場の膜分離活性汚泥法における微生物群集の変遷. 第49回下水道研究発表会講演集, 220-222, 2012.
- 3) Frølund, B., Palmgren, R., Keiding, K., and Nielsen, P. H.: Extraction of extracellular polymers from activated sludge using a cation exchange resin. *Water Res.*, 30, 1749-58, 1996.
- 4) Matsuda, M., Inoue, D., Anami, Y., Tsutsui, H., Sei, K., Soda, S., and Ike, M.: Comparative analysis of DNA-based microbial community composition and substrate utilisation patterns of activated sludge microorganisms from wastewater treatment plants operated under different conditions. *Water Sci. Technol.*, 61, 2843-2851, 2010.