

# B-9 二段式膜分離活性汚泥法における 難分解性物質の除去特性

○浦瀬 太郎<sup>1\*</sup>・筒井 裕文<sup>1</sup>・陳 浩楊<sup>1</sup>・稲生 武士<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東京工科大学大学院・バイオニクス専攻（〒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

膜分離活性汚泥法(MBR)は、様々な排水の処理に広く用いられているが、標準活性汚泥法で除去の難しい生物難分解性の物質の分解はMBRでも難しい。工場排水などの処理においては、HRTやSRTを長くとることによりMBRで除去できる物質の範囲がやや広がるという報告もあり、易分解性物質が少ない環境の方が特殊な分解菌がリアクターに定着しやすくなる可能性がある。

本研究では、難分解性物質を含む工場排水などの処理への応用を念頭に、毒物による生物処理阻害を緩和する意図を含めて、MBRを2段直列に配置し、1段目で易分解性の有機物を除去したあとに2段目のMBRを置くことによって、難分解性物質がさらに除去される効果があるのかどうかを検証した。

## 2. 実験材料と方法

### (1) 人工排水の組成

表1に今回の実験で用いた人工排水の組成を示す。有機炭素源として、難分解性の高分子有機物を含有した糖蜜(日の出蜜、大日本明治製糖製)とグルコースとを用いた。低分子量の難分解性物質の除去率を調べるため、医

表1 人工排水の組成

| 組成                                              | 濃度                   |
|-------------------------------------------------|----------------------|
| グルコース                                           | 200 mg/L             |
| 糖蜜                                              | 200 mg/L             |
| (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> | 250 mg/L (約50 mgN/L) |
| K <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub>                 | 60 mg/L (約10 mgP/L)  |
| Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>                 | 350 mg/L             |
| MnSO <sub>4</sub> ・5H <sub>2</sub> O            | 1 mg/L               |
| FeSO <sub>4</sub> ・7H <sub>2</sub> O            | 1 mg/L               |
| 医薬品7種                                           | 各2.5 μg/L            |
| レボフロキサシン                                        | 5 mg/L(一部の期間のみ)      |
| クラリスロマイシン                                       | 1 mg/L(一部の期間のみ)      |

薬品7種(クロフィブリック酸、イブプロフェン、フェノプロフェン、ケトプロフェン、ナプロキセン、ジクロフェナク、インドメタシン)を各2.5 μg/L加えた。また、家庭下水程度の濃度となるよう栄養塩類を加えた。さらにリアクターの微生物群集を攪乱するために、実験期間のうち、134日目から136日目まで、および、191日目から199日目まではレボフロキサシンを5 mg/Lで添加した。また、155日目から157日目までと199日目にも、クラリスロマイシンを1 mg/Lで添加した。

### (2) 実験装置

図1に実験装置の概要を示す。流入水が1段目のMBRリアクターAに供給され、ここで生物分解性の有機物が除去されたあと、その膜処理水を2段目(リアクターB)に供給した。リアクターA、Bの有効容積はそれぞれ5.5 L、7.0 Lとした。

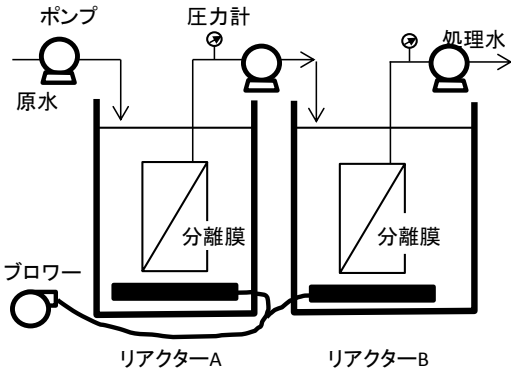


図1 実験装置

### (3) 測定方法

流量、膜差圧、水質(COD、アンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、硝酸性窒素、吸光度[390 nmおよび475 nm])の測定を行った。吸光度は分光光度計、CODは共立理化学

研究所のバックテスト(過マンガン酸アルカリ条件CODに対応)にて測定した。窒素各態は共立理化学研究所のバックテストで発色させたものを分光光度計で測定し、別に標準溶液で作成した検量線にて定量した。ただし、硝酸測定には亜硝酸による正の妨害があるため、酸性スルファニル酸による前処理によって亜硝酸の影響を取り除いた。医薬品は、PFBBrによる誘導体化処理の後、GC/MSにて測定した。また、*amoA*遺伝子をターゲットとしたリアルタイムPCRにより*amoA*遺伝子のコピー数を調べ、また、その増幅産物の融解曲線のちがいを硝化細菌群集のちがいを考察した。

#### (4) リアクターの運転

原水を5:00~23:00の18時間、750 mL/hrの流量で供給したため、1日の処理水量は、13.5 Lであった。23:00~5:00の深夜時間帯は、原水の供給と処理水の引抜を停止した。原則として月曜から金曜の運転とし、金曜日には膜を取り外し、次亜塩素酸ナトリウムに浸漬し膜を洗浄し、月曜日に膜を再設置して、運転を再開した。ただし、193日目から194日目にかけての週末は短時間の膜洗浄の後、すぐに運転を継続した。また、膜差圧が異常上昇した140日目には臨時に膜洗浄を行った。水温は23℃~26℃とした。

実験期間のうち、120日目までは、汚泥の馴致の期間であり、同じ人工下水、同じ運転方法によって運転した。158日目から166日目までは運転を休止し、167日目の運転再開時には、リアクターA、Bともに新しい汚泥に入れかえた。また、添加したレボフロキサシンによる処理の不調を回復させるため、143日目にリアクターAの汚泥を入替えた。また、MLSSの制御のため、178日目に混合液1 Lを引抜いた。種汚泥は、東京工科大学の生活系排水処理施設から採取した。

### 3. 結果と考察

#### (1) リアクターの運転状況

図2にリアクターの運転状況を示す。火曜から木曜にかけては、13.5 Lの計画水量の処理を行い、月曜日及び金曜日には、10 L程度の人工排水を処理した。

134日目~136日目および191日目以降のレボフロキサシンを添加した時期に膜差圧の上昇がはやく、136日目に添加を中止した翌週も膜差圧の上昇が続いた。しかし、143日目に汚泥を入替えた以降は、膜差圧の上昇は抑えられた。レボフロキサシンの添加により、活性汚泥群集の一部が溶菌するなどして、膜の目詰まり成分が菌体内から混合液中に移行し、膜の目詰まりが生じやすくなったことが考えられる。

リアクターAの汚泥濃度は、増加傾向にあったが、180

日目以降安定した。一方、リアクターBではリアクターAの処理水が供給され、すでに生物が分解できる有機物濃度が低かったため、汚泥濃度がゆっくり減少した。

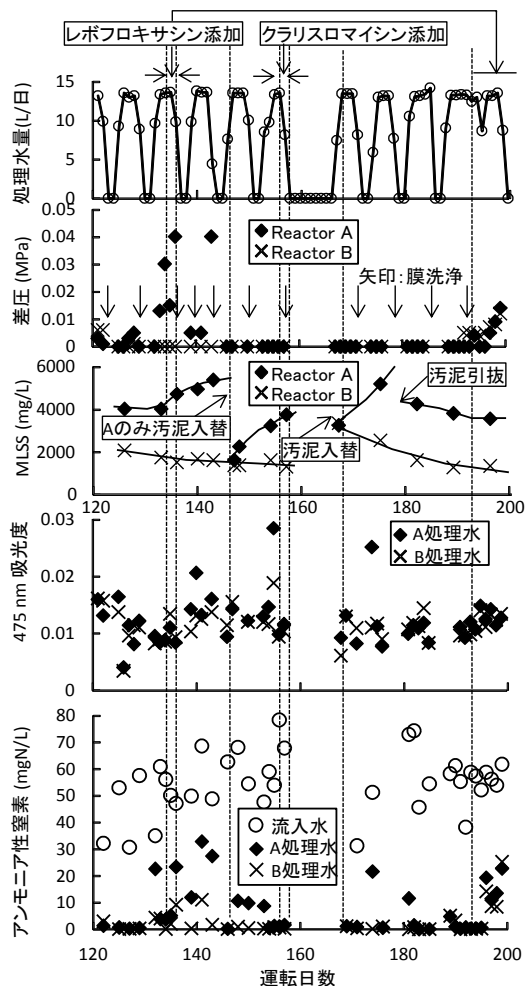


図2 リアクターの運転結果

#### (2) 硝化への抗生物質の影響

図2にはアンモニア性窒素の測定結果も示す。週末に流入水が供給されないことから、月曜日にリアクターAでややアンモニアが残ることがあった。図には硝酸性窒素の測定結果は示していないが、窒素はリアクター内でおおむねバランスしており、アンモニアとして残っている以外の窒素は硝酸にまで酸化されており、亜硝酸の蓄積はなかった。また、レボフロキサシンを添加しはじめて数日が経過するとアンモニアがリアクター内に残存するようになった。リアクターAの処理水に残ったアンモニアは、リアクターBに供給され一部がリアクターBで硝化されたが、レボフロキサシンを添加してしばらく経過した後は、リアクターBの処理水からもアンモニアが検

出された。添加したレボフロキサシンによって硝化細菌の活性が阻害されたためと考えられる。一方、クラリスロマイシンを3日間加えた場合には、顕著な硝化阻害は見られず、アンモニアは処理水中に検出されなかった。

### (3) 硝化細菌群集

155日目のリアクター汚泥を採取し、*amoA*遺伝子をターゲットとしたリアルタイムPCR分析をおこなった。リアクターAの*amoA*遺伝子のコピー数は、 $2.3 \times 10^6$ コピー/mLで、リアクターBは $8 \times 10^6$ コピー/mLであり、硝化菌数はリアクターAの方が圧倒的に多かった。これは、リアクターBへ持ち込まれているアンモニア濃度が低いためと考えられる。PCR産物の融解曲線は図3のようになった。リアクターAでは92℃付近にピークがあり、これは*Nitrosospira*属によるピークと考えられる一方、リアクターBでは、85℃付近にピークがあり、リアクターAの*Nitrosospira*属や87℃付近にピークを生じる*Nitrosomonas europaea*の標準菌株とは異なる群集であった。

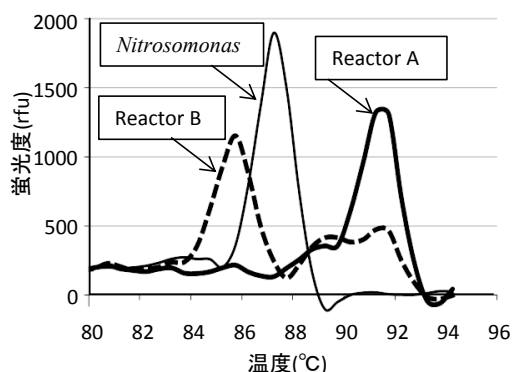


図3 リアクター内の*amoA*遺伝子をターゲットとしたリアルタイムPCR分析におけるPCR産物の融解曲線

### (4) 着色物質の除去

図2には475 nmの吸光度の測定結果も示す。原水には糖蜜由来のメラノイジンなどの着色成分が吸光度で0.022程度含まれており、その過半が処理水にも残った。図に示すようにリアクターAの流出水の475 nmの吸光度とリアクターBの流出水の475 nmの吸光度とはほとんど差がなく、リアクターAで除去できない着色成分がリアクターBでさらに除去されることはなかった。

### (5) 医薬品の除去

図4には157日目および196日目の医薬品の残存率を示す。両期間とも、クラリスロマイシン、あるいは、レボフロキサシンを流入させた期間で、抗生物質による微生物群集の攪乱があった時期と考えられるが、イブプロフェンなど従来から生物処理で消失しやすいとされる物質

は、よく処理されていた一方、クロフィブリック酸、ジクロフェナクなどの従来から難分解性であるとされる物質は処理水中に残存されていた。リアクターAの処理水には、すでに生物分解可能な有機物はほとんど含まれておらず、リアクターBは少しづつ汚泥が減少していく状態で運転されていたにもかかわらず、リアクターAの処理水(つまりリアクターBの流入水)とリアクターBの処理水とを比較すると、リアクターBの処理水の方が医薬品濃度が低くなっていた。つまり、極めて低負荷でMBRを運転することにより、生物難分解性の医薬品などをより低濃度まで処理できる可能性があることが示された。

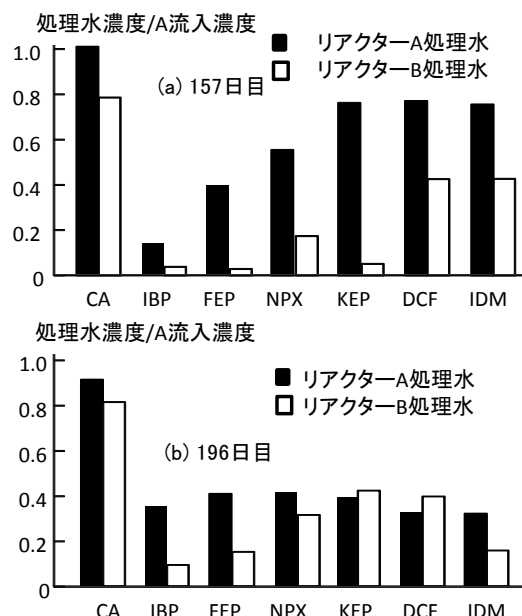


図4 添加した医薬品の残存率(a) 157日目、(b) 196日目

## 4. まとめ

膜分離活性汚泥法の反応器を2つ直列に接続し、後段のリアクターを有機物負荷の極めて低い状態で運転することにより、難分解性物質の分解率を向上させることが可能かどうかを調べたところ以下の知見を得た。

- 1) 糖蜜に由来する難分解性の着色成分は、後段のリアクターの設置によりさらに除去されることはなかった。
- 2) 医薬品類は、後段のリアクターによる除去が認められ、2段目の低負荷運転がある程度有効であった。
- 3) レボフロキサシンなどの抗生物質の流入による微生物攪乱の処理水水質への影響を調べたところ、レボフロキサシンを入れはじめた翌週に硝化が顕著に抑制されたが、着色成分の除去には大きな影響はなかった。
- 4) 後段のリアクターは前段とは異なる硝化菌群集をもっていた。