

オゾン水による膜洗浄技術を適用した省エネ型 MBR の長期実証

Long-term demonstration of membrane bioreactor using ozonated water for membrane cleaning

○林 佳史*、佐藤 祐樹*、今村 英二*、古賀 大道*、西川 勝*、吉泉 啓輔*、中口 幸太*、
茂木 志生乃**、山本 明広**、糸川 浩紀**

*：三菱電機、**：日本下水道事業団

論文要旨

MBR の課題である消費電力の削減を目的として、ろ過膜のファウリング解消効果を高める次亜併用オゾン水洗浄と膜面及び生物補助曝気の風量自動制御技術を適用した省エネ型 MBR を開発した。今回、本技術を適用し、通年での運転・処理性能、洗浄性能等を確認する実証試験を実施した。その結果、膜間差圧の上昇を 1 年間通して抑制したろ過運転が可能であり、高フラックス条件下（冬季除く：0.91m/日、冬季：0.77m/日）で週 1 回の次亜併用オゾン水洗浄により、安定した膜ろ過性能と生物処理性能が得られることを確認した。

キーワード：MBR、膜洗浄、実証試験

1. はじめに

膜分離活性汚泥法 (MBR) の課題である消費電力の削減を目的として、筆者らはろ過膜のファウリング解消効果を高めた薬液洗浄技術及び膜面曝気・生物補助曝気各々の風量制御技術を適用した省エネ型 MBR を開発した¹⁾。本薬液洗浄技術は、酸化剤を使用した定期洗浄 (メンテナンスクリーニング：MC) の際に一般的に使用する次亜塩素酸ナトリウム水 (NaClO 水) にオゾン水を併用する薬液洗浄方式 (次亜併用オゾン水洗浄) である。また、膜面及び生物補助曝気風量制御技術は、それぞれ膜間差圧 (TMP) 変化速度、及び流入・流出水中のアンモニア性窒素 (NH₄-N) 濃度をを用いた風量自動制御技術である。これら開発技術により、膜ろ過性能の低下を抑制して高フラックス化するとともに、各風量の削減を図る。日本下水道事業団技術開発実験センターにおいて実下水 (初沈後水) を原水とし、本開発技術を適用した省エネ型 MBR のパイロット規模の実証試験を実施した。本稿では、本実証内で実施した下記 3 点の試験結果について報告する。

- (1) 通年処理試験 : 高フラックス条件下でも薬液洗浄頻度を高めることなく、安定した処理性能を維持して膜ろ過運転及び生物処理が可能であることの検証
- (2) 洗浄性能比較試験 : MC を NaClO 水洗浄のみと次亜併用オゾン水洗浄とした場合の洗浄性能の比較
- (3) MC 影響評価試験 : 次亜併用オゾン水洗浄に際してろ過膜を介して反応タンクに滲出した薬液が一時的に活性汚泥性状や処理水質に与える影響の評価

2. 試験方法

図-1 に本試験で用いた実証試験装置の概略フローを示す。本装置は、好気タンクに PVDF 製中空糸膜 (公称孔径 0.1μm、有効ろ過面積 25m²×1 本) を浸漬させた循環式硝化脱窒型 MBR のパイロットプラントであり、開発技術を適用した実験系と、評価項目以外は実験系と装置仕様・運転条件が同一の比較系を有する。ファウリングの解消を目的として週 1 回の MC を実施するため、NaClO 水洗浄に加え、オゾン水によるインライン洗浄を行うオゾン水生成・注入装置を実装した。

通年処理試験条件を表-1 に示す。同表に示す試験条件で 2021 年 2 月～2022 年 2 月までの 1 年間の連続運転を実験系で実施し、通年での膜ろ過性能と生物処理性能を確認した。全試験期間で原水流入量は下水処

理場の時間変動を模擬するために1日の平均水量(1Q:設計水量25m³/日)に対して1日の中で0.6~1.4Qで変動させ、これに応じて膜ろ過フラックスを変化させた。その結果、運転実績としては4~11月において使用したろ過膜の標準的なフラックス0.5m³/日に対して0.91m³/日(処理水量22.8m³/日)と高い日平均フラックスで運転し、冬季(12~3月)においては水温低下による汚泥ろ過性の低下を考慮して日平均フラックスを0.77m³/日(処理水量19.3m³/日)に引下げて運転した。膜面及び生物補助曝気風量は、それぞれ開発した風量自動制御技術¹⁾により制御した。通年で週1回の頻度で原水および処理水の24時間流量比例コンポジット採水を行うことで生物処理性能を確認した。表-2に洗浄性能比較試験条件を示す。本試験は、通年処理試験の期間中に実験系(次亜併用オゾン水洗浄)と比較系(NaClO水洗浄)を用いて、従来のNaClO水洗浄との効果を比較した。MC影響評価試験は、同じく通年処理試験の期間中の夏季(21年8月)および冬季(22年1月)にMC前後の活性汚泥の性状および処理水質の変化等を確認した(表-3)。

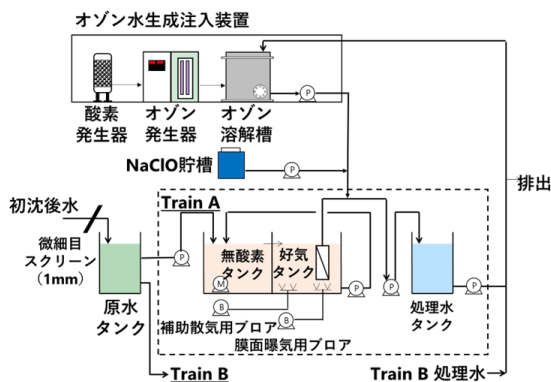


図-1 MBR実証試験装置の概略フロー

表-1 通年処理試験条件

| 実施系列 | 実験系 (Train B) | |
|----------------|--|---|
| 試験期間 | 2021年2月16日~2022年2月20日 | |
| 無酸素・好気HRT [h] | 4~11月 | 各3.3 |
| | 12~3月 | 各3.9 |
| MLSS [mg/L] | 7,700~13,000 | |
| 汚泥循環比 [-] | 2.7~5.1 (平均3.7) | |
| 平均フラックス (処理水量) | 4~11月 | 0.91m ³ /日 (22.8m ³ /日) |
| | 12~3月 | 0.77m ³ /日 (19.3m ³ /日) |
| フラックス変動比 | 0.6~1.4倍 (6~7月は雨天時を想定し、0.6~1.6倍) | |
| MC方法 | 1回/週の頻度、インライン、自動で実施 NaClO水洗浄: 3000mg/L、34分* オゾン水洗浄: >30mg/L、14分* | |

※薬液の膜への到達時間 (NaClO水20分、オゾン水3分)、配管内の薬液置換時間3分を除く

表-2 洗浄性能比較試験での試験条件

| 試験期間 | 2021年11月~2022年1月 | |
|------|------------------|---|
| 試験条件 | 比較系* (Train A) | 11/10~1/15 NaClO水洗浄のみ 1/16~1/26 次亜併用オゾン水洗浄 |
| | 実験系 (Train B) | 11/10~1/27 次亜併用オゾン水洗浄 |
| 洗浄条件 | NaClO水洗浄のみ | 1回/週の頻度、インライン、自動で実施 NaClO水洗浄: 3000mg/L、34分** |
| | 次亜併用オゾン水洗浄 | 1回/週の頻度、インライン、自動で実施 NaClO水洗浄: 3000mg/L、34分** ↓ オゾン水洗浄: >30mg/L、14分** |

※ 洗浄条件以外は実験系と運転条件を合わせた
** 薬液の膜への到達時間 (NaClO水20分、オゾン水3分)、配管内の薬液置換時間3分を除く

表-3 MC影響評価試験における測定項目 (一部抜粋)

| 採水タイミング | ①MC前 30分、②NaClO水注入完了後 5分、③オゾン注入完了後 5分 (膜ろ過水のみ15分)、④同30分、⑤同60分、⑥同90分、⑦同180分 | | | | | |
|---------|--|--------|-------|-----------|-----|---|
| 採水ポイント | 原水 (スクリーン透過後) | 無酸素タンク | 好気タンク | 好気タンク汚泥ろ液 | 処理水 | |
| 分析項目 | MLSS | - | ○ | ○ | - | - |
| | ろ紙ろ過量* | - | - | ○ | - | - |
| | 呼吸速度 (Rr) | - | - | ○ | - | - |
| | EEM** | - | - | - | ○ | ○ |
| | NH ₄ -N | ○ | - | - | - | ○ |
| | PO ₄ -P | ○ | - | - | - | ○ |
| | BOD ₅ | ○ | - | - | - | ○ |
| | 大腸菌ファージ | ○ | - | - | - | ○ |

○:測定 - :未測定、*5種Cろ紙(孔径1μm)を用いた所定時間当たりのろ過量 **励起-蛍光マトリクス

3. 結果および考察

(1) 通年処理試験

表-4に本試験期間の水質分析結果を示す。処理水 BOD₅濃度は平均 1.7mg/L (最大 3.6mg/L)、TN 濃度は平均 6.9mg/L (最大 9.7mg/L) と目標水質 (いずれも 10mg/L 以下) を安定して達成し、生物補助曝気風量の自動制御および週1回のMCの条件下で良好な処理水質が得られた。また、本期間における1日平均TMP (水温20℃換算)の推移を図-2に、MC直後のTMPおよびMC間のΔTMP (MC直後から次のMC直前までのTMP差)の推移を図-3に示す。ファウリングの進行速度を表すMC間のΔTMPは試験期間中に16~41kPaの範囲で大きく変動したが、MC直後のTMPは次亜併用オゾン水洗浄により8.5~13.4kPaに低減できた。このように週1回のMCによりTMPが十分に低減された結果、自動制御による膜面曝気風量の平均値が5.7m³/hと従前の必要風量9m³/h(ピークフラックス運転時)に比べて大幅に低減された条件にもかかわらず、TMP平均値は16.8kPaと低く推移した。本試験では冬季の水温低下への予防保全の観点で11/4に膜の浸漬洗浄(リカバリークリーニング:RC)も実施した。RCはアルカリ洗浄(NaClO 3,000mg/L + NaOH 1%、浸漬時間17h)→酸洗浄(クエン酸 1%、浸漬時間2h)の順で別槽にて実施した。以上より、

週1回の次亜併用オゾン水洗浄（MC）によるTMPの低減と膜面曝気風量制御によるTMPの上昇抑制により、高フラックス・流量時間変動の条件下、安定したMBRの連続運転が可能であることを実証した。

表-4 通年処理試験期間の水質分析結果

| 項目 | 設計値 | 結果 単位[mg/L] |
|----|--------------------|-----------------|
| 原水 | BOD ₅ | 160 74 (21~120) |
| | COD _{cr} | - 128 (33~200) |
| | SS | 170 40 (13~83) |
| | TN | 35 24 (8.1~38) |
| | NH ₄ -N | - 24 (11~31) |

| 項目 | 目標値 | 結果 単位[mg/L] |
|-----|--------------------|-------------------|
| 処理水 | BOD ₅ | ≦10 1.7 (1.0~3.5) |
| | COD _{cr} | - 9.4 (6.0~15) |
| | SS | - 0.3 (0.1~0.6) |
| | TN | ≦10 6.9 (3.3~9.7) |
| | NH ₄ -N | - 0.6 (0.1~8.1) |

※結果は試験期間中の平均値を示し、()内は範囲を示す。

※TMPの水温補正：TMP@20℃ = 測定したTMP × 水温20℃での水の粘度 ÷ 実水温での水の粘度

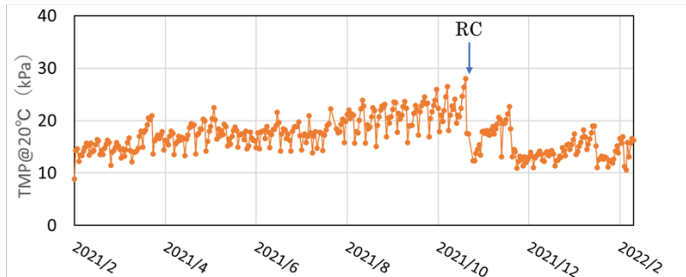


図-2 通年処理試験期間における1日平均TMPの推移

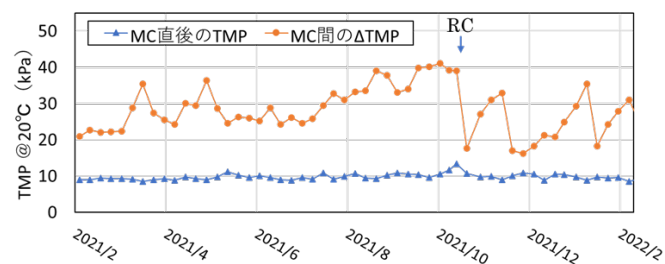


図-3 MC直後のTMPとMC間のΔTMPの推移

(2) 洗浄性能比較試験

両系でMC方法の比較を行った21年11月～22年1月の期間について、両系の1日平均TMP及びMC直後のTMPの推移をそれぞれ図-4、図-5に示す。11/10～1/14の期間において、NaClO水洗浄を適用した比較系のMC直後のTMPは、安定して低かった実験系に比べ高く推移し、その差は徐々に広がって最大18kPaとなった。そのため、1日平均TMPも、比較系では実験系よりも高く推移し、1/9には両系の差が最大7kPaとなった。しかしながら、1/16以降に比較系ではMCを次亜併用オゾン水洗浄に変更した結果、MC直後のTMPは速やかに低下し、その後、実験系と同程度の1日平均TMPで推移した。以上より、MCとしての次亜併用オゾン水洗浄の効果は明白であり、NaClO水洗浄ではTMPの回復が不十分となる条件においても次亜併用オゾン水洗浄を適用することで実験系と同程度のTMPまで回復することを確認した。

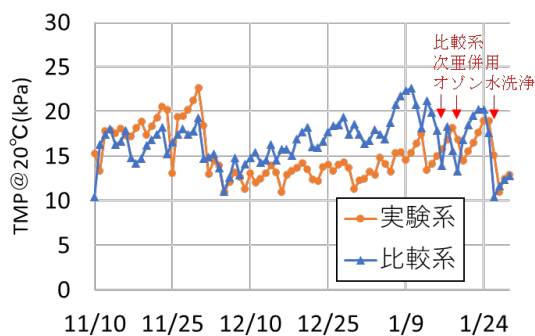


図-4 洗浄性能比較試験における1日平均TMP

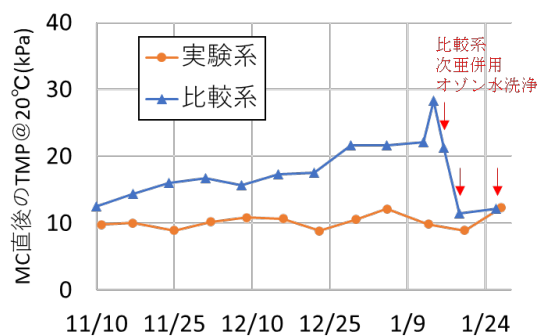


図-5 洗浄性能比較試験におけるMC直後のTMP

(3) MC影響評価試験

図-6に夏季（21年8月）および冬季（22年1月）に各1回実施したMCによる活性汚泥への影響評価結果を示す。好気タンクのMLSS濃度は、MC実施中の無酸素タンクとの平準化と好気タンクに滲出した洗浄水による希釈効果により低下したが、オゾン注入完了60分後（ろ過運転再開後44分）ではMC前と比べて顕著な違いは見られなかった。また、活性汚泥の呼吸速度（Rr）もMC前後で顕著な変化が見られず、活性汚泥は失活しなかったと考えられる。一方、ろ紙ろ過量はMC直後にMC前に対して2～3割低下し、汚泥のろ過性低下が見られた。EEM分析（図-7）においてEx/Em=275nm/350nm付近の蛍光強度がNaClO水注入後に上昇した。この波長域の蛍光強度が高いほどファウリングに寄与する微生物代謝物濃度が高いとき

れており、NaClO 水注入後の微生物代謝物濃度の上昇が汚泥ろ過性低下の一因と考えられる。一方、オゾン注入では NaClO 水注入後からさらに微生物代謝物濃度が増加することはなかった。図-8 に MC による膜ろ過水質への影響評価結果を示す。BOD₅ 及び NH₄-N 濃度には MC 前後で顕著な変化はなく、膜ろ過水の大肠菌ファージ (図示せず) も MC 直後を含めて未検出 (<1CFU/100mL) であった。一方、膜ろ過水の PO₄-P 濃度は夏季・冬季ともに MC 前に比べて 1.4 倍程度増加した。既往研究²⁾において、NaClO 水洗浄を模して汚泥に NaClO 水を添加したビーカー試験により、汚泥分解に伴う溶出や嫌気・無酸素条件でのリン蓄積生物からの放出により PO₄-P が上昇する可能性があるとして報告された。本実証装置では MC 実施中も好気タンクの DO 維持のため生物補助曝気を継続していたため、好気タンクの嫌気化により PO₄-P が放出された可能性は低い。そのため、NaClO やオゾンによる汚泥分解に伴い一時的に PO₄-P が溶出したと考えられる。

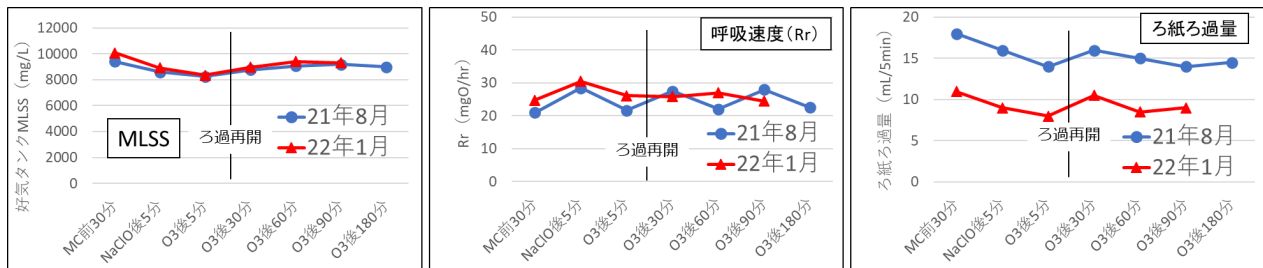


図-6 MCによる活性汚泥への影響評価結果 (グラフ左から MLSS、呼吸速度 (Rr)、ろ紙ろ過量)

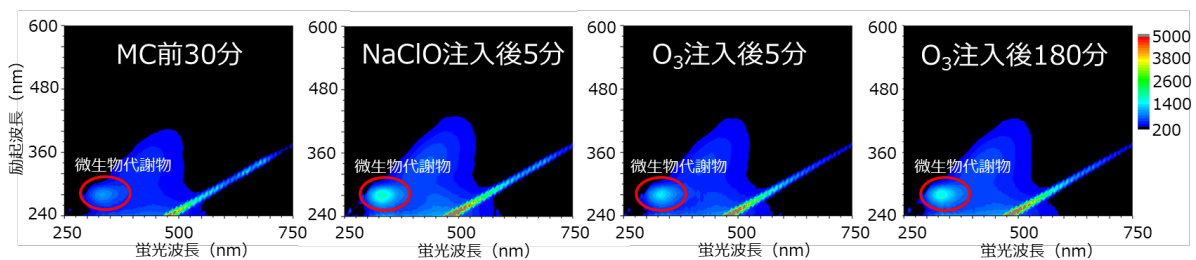


図-7 MC前後の好気タンク活性汚泥ろ液のEEM分析結果 (21年8月実施分)

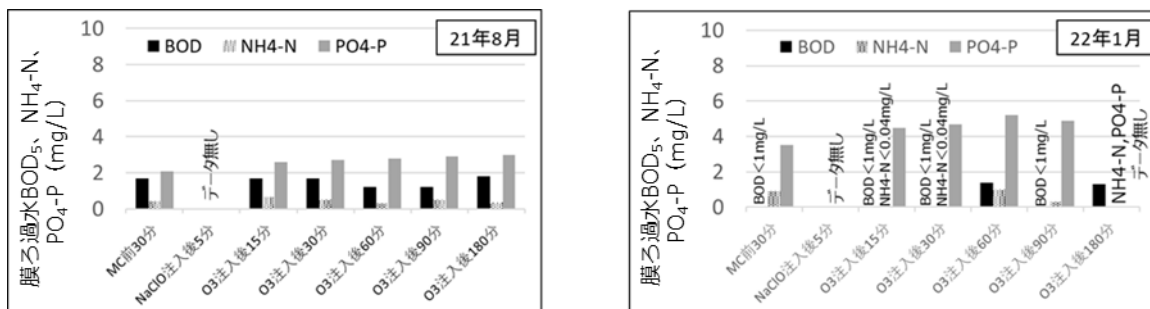


図-8 MCによる膜処理水質への影響評価結果

4. まとめ

通年処理試験において、本適用技術により高フラックス条件下 (冬季除く : 0.91m/日、冬季 : 0.77m/日) で週1回のMC頻度で安定した膜ろ過性能と生物処理性能が得られることを確認した。洗浄性能比較試験において、NaClO水洗浄のみと比較し、次亜併用オゾン水洗浄では、その高い薬液洗浄効果によりTMPの上昇を抑制できることを確認した。MC影響評価において、MLSS、Rr、膜ろ過水のBOD₅、NH₄-Nおよび大肠菌ファージに対してはMCの影響は小さかったが、MCによる一時的な汚泥ろ過性の低下と処理水PO₄-P濃度の上昇は認められた。

参考文献

- 1) 古賀大道ら : オゾン水による膜洗浄技術を適用した省エネ型 MBR の長期実証, 第 59 回下水道研究発表会講演集, pp.739-741(2022).
- 2) 三宅十四日ら : MBR 膜洗浄の処理水質への影響について, 第 48 回下水道研究発表会講演集, pp.253-255 (2011).