

令和 3 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的研究(開拓)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H05333・20K20351

研究課題名(和文) 超高強度洗浄を伴う膜分離による下水有機物の濃縮 - 下水道を創エネルギー型インフラへ

研究課題名(英文) Concentration of organic matter in municipal wastewater by membrane processes with extremely intensive membrane cleaning: sewage systems can be transformed into energy generating infrastructures

研究代表者

木村 克輝(Kimura, Katsuki)

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：10292054

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,800,000円

研究成果の概要(和文)：都市下水を直接膜ろ過(DMF)することで、下水中の有機物を回収・濃縮してエネルギー回収を行うことができる。セラミック平膜は物理的・化学的に強固であり、有機膜では適用できない高強度の膜洗浄を適用できる。本研究では物理的な高強度洗浄(粒状担体の流動)と化学的な高強度洗浄(高濃度の薬液による高頻度逆洗)を併用してセラミック平膜による下水のDMFを行い、高フラックスでの長期連続運転を試みた。本研究で採用した高強度洗浄の有効性を確認するとともに、原水の初沈流入水から初沈流出水への変更、極短時間のばっ気導入、逆洗における酸と酸化剤の併用がファウリング発生抑制に効果的であることを見いだした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

下水DMFを一定流量で長期間行うデータは現時点において関連研究例で希少であり、本技術の実用性を示すことができた。本研究では嫌気性消化に供されるスラリー体積を1/50-1/150にできることを実証したため加温が現実的になった。DMFでは嫌気性MBR等の競合技術と比較して回収エネルギーを大幅に増加させられることが示された。DMFで回収される有機物からのバイオガス発生ポテンシャルが高いことを実測により確認し、これをベースにDMFを基盤とする下水処理のエネルギー収支を推算した。DMFを用いた場合、現状で下水処理に用いられるエネルギーに相当するエネルギーを創出できる可能性が示された。

研究成果の概要(英文)：Organic matter in municipal wastewater can be recovered and concentrated by using direct membrane filtration (DMF) adequately, which leads to net-generation of energy from wastewater. Flat-sheet ceramic membranes are physically and chemically robust, and therefore intensive membrane cleanings that cannot be used with polymeric membranes can be used. In this study, DMF of municipal wastewater by flat-sheet ceramic membranes was investigated. With the aid of intensive physical and chemical cleaning, long-term operations under high membrane fluxes were possible. In addition, switching the feed from of the influent of the primary sedimentation basin to the effluent, very short-period aeration, alternative use of acid and oxidant in chemically enhanced backwash were found to be effective for mitigation of membrane fouling in DMF.

研究分野：環境工学

キーワード：有機物回収 膜処理 下水 直接膜ろ過 セラミック平膜

1. 研究開始当初の背景

現在、活性汚泥法を用いた下水処理が広く行われている。活性汚泥法は人類の健康増進および公共水域の水質改善に大きな貢献を果たしてきたが、非常に大きな電力を消費することが問題視されるようになってきた。先進国における全電力消費量の数%は下水処理によるものとされている。今後、途上国における下水道普及が進むことを考えれば、現在の活性汚泥法を用いた下水処理をこのまま世界中で使い続けることの是非についての議論は避けられない。

活性汚泥法における電力消費の主な部分は、微生物による有機物分解を促進するための空気吹き込み（エアレーション）である。前述したような膨大なエネルギーを注入して都市下水中の有機物を二酸化炭素と水に分解しているのが現在の下水処理であるが、これらの有機物を嫌気性消化することでメタンガスを発生させられる。すなわち、下水中の有機物を用いたエネルギー生産は可能であるが、都市下水処理への直接嫌気性消化適用の実用例はほとんどない。この理由は明らかであり、下水中有機物濃度が低いために嫌気性消化の効率が著しく低くなるためである。

一方で、都市下水中では大半（70-80%）の有機物がコロイド（0.1 μm ）以上のサイズで存在していることが知られている。この事実に着目し、都市下水の直接膜ろ過（Direct Membrane Filtration, DMF）により下水中の有機物を濃縮すれば、嫌気性消化の適用は容易になり下水からのエネルギー回収を効率的に行うことができるようになる。有機ポリマー製中空糸膜を用いた都市下水の DMF に挑戦している研究グループが国内外に散見されるが、DMF では深刻な膜目詰まり（膜ファウリング）が発生する。この結果、膜透過水フラックスを低く設定した（用いる膜面積が大きくなる）膜ろ過運転をせざるをえない、一定流量での運転が難しいなどの問題が未解決になっている。

2. 研究の目的

セラミックは物理的、化学的に非常に強固な材質である。近年、セラミックを用いた平板膜（平膜）が上市された。セラミック平膜を用いることで、有機ポリマー膜では用いることのできない高強度の洗浄を組み込んだ膜ろ過運転が可能になる。セラミック平膜を用いて高強度の物理的・化学的洗浄を組み込めば、高い膜透過水フラックス条件下においても都市下水の DMF を安定して継続できると考えた。本研究では下水処理場でセラミック平膜を用いた DMF を行い、長期連続運転が可能になるような運転条件について検討した。

3. 研究の方法

図1に実験装置フローを示す。本研究では公称孔径 0.1 μm のセラミック平膜を使用した。一段目のタンク1で濃縮した下水を二段目のタンク2で更に濃縮する二段濃縮を行った。流入下水体積/濃縮下水体積で定義する濃縮倍率は 50 倍または 150 倍とした。平膜を用いることで、粒状担体の槽内流動による膜面洗浄が可能になる。中空糸膜の場合には膜糸間に担体が絡め取られて洗浄効率が低くなってしまいうため、粒状担体による膜洗浄は困難である。有機ポリマー平膜を粒状担体洗浄することで高効率の膜洗浄が行われるが、担体と膜面が過度に接触する結果、膜が破損してしまう。粒状担体の槽内流動は、セラミック平膜を使う場合にのみ適用が可能となる高強度物理洗浄方法である。また、セラミック膜を用いることで有機ポリマー膜では使用が困難であるような高濃度の薬液を用いた逆洗（chemically enhanced backwashing, CEB）が可能となる。本研究では粒状担体流動と CEB を併用することで、深刻化しやすい DMF の膜ファウリングを克服することを試みた。各タンクにタンク容積の 30%に相当する粒状担体（PEG 製, 4 mm）を投入し、これを流動させるためにタンク内で機械攪拌を行った。中空糸膜を用いた DMF の検討例では膜透過水フラックスを 5 $\text{L}/\text{m}^2/\text{h}$ (LMH) 付近に設定する例が多いが、これの 2 倍または 3 倍に相当するフラックスでの安定運転を目指した。

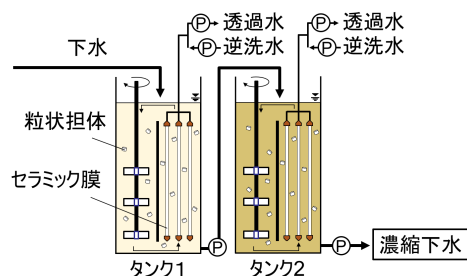


図1 実験装置フロー

4. 研究成果

DMF の高フラックス運転を安定して継続するために様々な予備実験を行い、有益な知見を得た。すなわち、DMF に導入する下水の初沈流入水から初沈流出水への変更により膜ファウリングは軽減され、最初沈殿池で沈殿する有機物も合算すれば有機物の回収量はほとんど変化しないこと、短時間のばっ気であれば有機物回収量の低下（有機物の無機化）を抑制しながら膜ファ

ウリングの発生を制御できること、間欠ろ過運転がファウリング発生抑制に極めて有効であること、異なる薬品を交互に用いる CEB が有効であること、などである。これらの知見に基づき、セラミック平膜を用いた DMF の安定運転が可能であった実験例を以下に示す。

図 2 に示す実験では間欠ろ過(12 分ろ過、3 分休止)と定期的な水逆洗および CEB を実施した。濃縮倍率は 50 倍に設定した。膜透過水フラックスをタンク 1 では 15.6 LMH、タンク 2 で 8.8 LMH に設定した。水逆洗をタンク 1 では 1 時間毎に(100 LMH, 60 秒)、タンク 2 では 30 分毎に(100 LMH, 50 秒)実施するとともに両タンクで間欠曝気を 5 分毎に 1 分間行った。水逆洗に加えて、NaOCl による CEB (500 ppm、100 LMH、120 秒)を 2 日毎に実施した。タンク 1 では膜間差圧(TMP)が 20 kPa に到達した時点から、タンク 2 は運転開始時から定期的な CEB を実施した。図 2 に示すのはこの実験における膜間差圧(TMP)の経時変化である。本研究では全て定流量運転を行ったため、TMP の上昇が膜ファウリング発生指標となる。タンク 2 ではほぼ完全にファウリングの発生を抑制できた。一方でタンク 1 では、約 2 週間の安定運転後に TMP の上昇が観察された。運転 14 日目に NaOCl による CEB を実施したところ、TMP は顕著に低下した。タンク 1 で再度 TMP が上昇した運転 18 日目にも CEB を実施したところ、再び TMP は低下した。セラミック膜に蓄積した有機物を NaOCl が分解することで TMP の上昇が抑制されたものと考えられる。運転開始 18 日目よりタンク 1 においてもタンク 2 と同様に 2 日毎の CEB を実施したところ、十分に安定した運転を行うことができ、高フラックス条件下における安定運転の可能性が示された。図 2 に示した実験結果に基づき、NaOCl を用いた CEB (500 ppm、100 LMH、120 秒、2 日毎)を運転開始時より両タンクで実施した実験における TMP の経時変化を図 3 に示す。この実験でもタンク 1 におけるフラックスは 15.6 LMH、タンク 2 におけるフラックスは 8.8 LMH に、濃縮倍率は 50 倍に設定した。この実験では約 1 カ月間にわたりほぼ完全に TMP の上昇を抑制できた。DMF では可逆的ファウリングが支配的となるが、本実験で確立した粒状担体と間欠曝気の併用は膜閉塞物の膜面堆積を抑制し、NaOCl による CEB は不可逆的ファウリングの発生を効果的に抑制したものと考えられる。本研究で開発した運転方法により、50 倍濃縮(濃縮下水の COD 濃度は約 3800 mg/L)を行う DMF における膜ファウリングはほぼ完全に制御できることが示された。

本研究では、さらに高い濃縮倍率を設定して DMF を行うことも可能であることが示された。図 3 に示した実験と同じ膜透過水フラックスと洗浄条件を設定し、150 倍濃縮を試みた実験における TMP 経時変化を図 4 に示す。粒状担体、間欠曝気、CEB の組み合わせは 150 倍濃縮(濃縮下水の COD 濃度 約 8500 mg/L)においても DMF における膜ファウリングを効果的に抑制することを確認できた。高倍率濃縮を行うことでエネルギー回収を行う嫌気性消化に必要な加温エネルギーを削減でき、DMF の実用性は一層高くなる。

一方で低水温時には、DMF における膜ファウリングの抑制が困難になることも示された。図 4 に示した実験は水温が 22 から 28℃の時期に実施した。ほぼ同じ運転条件で、低水温期(10 から 14℃)に行った実験における TMP の経時変化(タンク 2 のみ)を図 5 に示す。タンク 1 における膜ファウリングは良好に制御された。しかし、タンク 2 における TMP の上昇が速くなった。ろ過サイクルを 4 分ろ過・1 分休止に設定することで TMP の上昇は明らかに抑制され、ろ過継続時間の短縮が低水温時におけるファウリングの進行を緩やかにする効果が大きいことが分かった。DMF では膜面上のケーキが緻密化しやすい。ろ過継続時間を短くすることで、膜面ケーキが過度に緻密化する前に担体流動で膜面からケーキを剥がすことができたものと推察される。低水温期においても、上述した間欠運転サイクルの変更と CEB 使用薬品の変更(酸 CEB の併用など)で安定運転が可能であると考えられる。

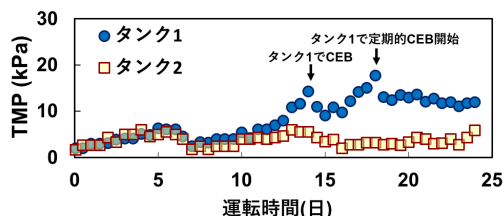


図 2 50 倍濃縮実験における TMP 経時変化

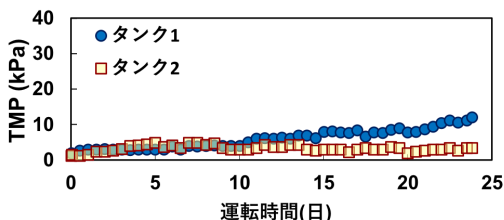


図 3 50 倍濃縮実験における TMP 経時変化 (CEB 条件調整後)

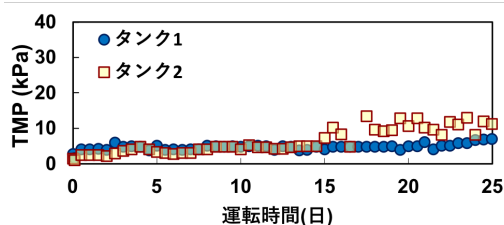


図 4 150 倍濃縮実験における TMP 経時変化

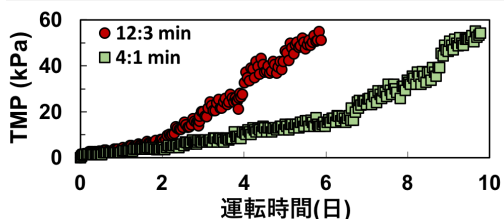


図 5 150 倍濃縮実験における TMP 経時変化 (低水温期、タンク 2)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Hafuka, A., Takahashi, T., Kimura, K.	4. 巻 161
2. 論文標題 Anaerobic digestibility of up-concentrated organic matter obtained from direct membrane filtration of municipal wastewater	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Biochemical Engineering Journal	6. 最初と最後の頁 107692
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.bej.2020.10769	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kimura, K., Yamakawa, M., Hafuka, A.	4. 巻 277
2. 論文標題 Direct membrane filtration (DMF) for recovery of organic matter in municipal wastewater using small amounts of chemicals and energy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 130244
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.chemosphere.2021.130244	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Katsuki Kimura and Megumi Kato
2. 発表標題 Direct membrane filtration of municipal wastewater by ceramic flat-sheet membranes for recovery of organic matter
3. 学会等名 3rd IWA Resource Recovery Conference（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Katsuki Kimura
2. 発表標題 Membrane technology for resource and energy recovery from wastewater
3. 学会等名 International Environmental Engineering Conference（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋威胤、加藤恵、山川むつみ、木村克輝
2. 発表標題 セラミック平膜を用いた都市下水中有機物の濃縮回収における効率的膜洗浄方法
3. 学会等名 第53回日本水環境学会年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋威胤、杉山徹、伊藤結衣、羽深昭、木村克輝
2. 発表標題 セラミック平膜を用いた都市下水中有機物の濃縮回収におけるファウリング制御
3. 学会等名 第55回日本水環境学会年会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	渡部 靖憲 (Watanabe Yasunori) (20292055)	北海道大学・工学研究院・教授 (10101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------