

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 21 日現在

機関番号：12201

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009～2011

課題番号：21241020

研究課題名（和文） 磁化活性汚泥法を軸とするサステナブルな水処理法の先端的研究

研究課題名（英文） Innovative study of sustainable wastewater treatment technology by magnetic activated sludge process

研究代表者

酒井 保藏 (SAKAI YASUZO)

宇都宮大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：70186998

研究成果の概要（和文）：汚泥の発生が無く、誰でも維持管理できる微生物を利用した水の簡単な新規の廃水の浄化法である磁化活性汚泥法の研究をおこなった。微生物に磁気分離を適用するために微生物に磁性粉を吸着させる。吸着した磁性粉を微生物から簡単に脱着する方法を見出した。また磁化活性汚泥の磁気分離装置の設計指針を示した。磁化活性汚泥法を応用した染料廃水、高濃度の窒素を含む廃水、畜産廃水の浄化法、下水の高度浄化法を提案した。

研究成果の概要（英文）：Innovative wastewater treatment technology by magnetic activated sludge process of easy operation and zero sludge emission was investigated. In this process, magnetic powder must be adsorbed on microorganisms for applying magnetic separation. A simple method for desorption of magnetic powder from microorganisms using magnetic traction was proposed in this research. Also, basic strategy of designing magnetic separators using permanent magnet for magnetic activated sludge and innovative processes for dye wastewater, high-nitrogen wastewater, stock raising wastewater purification, and advanced sewage purification were proposed in this research.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	14,600,000	4,380,000	18,980,000
2010年度	10,900,000	3,270,000	14,170,000
2011年度	10,200,000	3,060,000	13,260,000
年度			
年度			
総計	35,700,000	10,710,000	46,410,000

研究分野：排水処理、微生物工学、磁気分離工学

科研費の分科・細目：環境学・環境技術・環境材料

キーワード：磁化活性汚泥法・磁気分離・生物処理・排水処理・汚泥ゼロエミッション

1. 研究開始当初の背景

産業革命以降、科学技術による飛躍的發展と引換えに、人類は、次の100年の持続的發展に向けて、乗り越えなければならない大きな課題を抱えるに至った。とりわけ、水問題は発展途上国を中心としてすでに深刻な問題となっている。国連統計では現在200万人の子供が水が原因で病死し、2025年には世界

人口の1/3が深刻な水不足を体験すると予測されている。複数の国にまたがる河川では水利権が国際紛争の原因となり、水源の汚染は飲用や農業用水の安全を脅かしている。我国では一人当たりの水資源量は世界平均の1/4に過ぎないが、良好な水環境を維持している。これは工業廃水や下水を浄化して河川に戻すことで維持されている。国内の主要河川の

ほとんどは 5%以上の下水が混入しているが適切に浄化されてから放流されるため、上水の原水として問題なく利用できる環境が保持されている。良好な水環境を維持するための主要技術として廃水中の有機物を分解する活性汚泥法が用いられている。活性汚泥法は水の浄化を微生物によりおこなう。安価で良好な浄化水を得られる手法として優れた性能をもつが、2つの課題が残されている。一つは微生物が有機物を分解して増殖するために二次廃棄物として余剰汚泥が発生することである。下水処理にともなう汚泥は年間4億m³(霞ヶ浦の水量の約半分)発生しており、その半分は増殖した微生物と考えられる。余剰汚泥は99%近くが水分であるため、濃縮、脱水、焼却して安全に廃棄されるまで多くのエネルギーとコストを必要とする。もう一つの課題は運転管理の難しさである。最終的な浄化水は水処理微生物を沈降分離して得られるが、微生物は味噌汁の味噌のような状態であり、沈降性の良好な微生物の状態を維持し続けるために高度な技術が必要とされる。

我々は水処理微生物が磁性粉である四三酸化鉄の微粒子を強く吸着することを利用して、磁性粉を吸着した水処理微生物(磁化活性汚泥)と磁気分離法を組合わせた新規水処理法を提案した。四三酸化鉄は特別な表面処理を必要とせず市販の状態で用いることができ、砂鉄と同じ物質で安価で安全な材料である。四三酸化鉄を吸着した磁化活性汚泥は磁石で引き上げることも可能になり磁気力で容易に分離できる。また、磁気分離は高濃度の微生物を分解槽に維持することで、有機物から炭酸ガスに変換される割合を増やし、最終的には有機物の大部分を炭酸ガスと水に分解することが可能となる。この条件では微生物の増殖と死滅(自己消化)がバランスし余剰汚泥を発生しない水処理が可能である。また、磁気分離は磁性粉を吸着できる微生物を選択的に反応槽に戻すため、磁性粉を吸着し、磁気分離できる微生物は自然と優占種となるシステムとなっている。そのため、様々な条件や廃水に対して固液分離のトラブルは発生せず、安定な生物処理が可能となった(論文②)。

2. 研究の目的

本研究は(1)汚泥と微生物の吸脱着制御手法の確立、(2)活性汚泥の磁気分離装置の設計指針の構築、(3)磁化活性汚泥法の特徴を生かした新規プロセスの構築、(4)国内外、とりわけ発展途上国との研究ネットワークの構築などを目的として研究を展開した。

3. 研究の方法

(1)汚泥と微生物の吸脱着制御手段の確立については、主に、活性汚泥と磁性粉の脱着

手法について検討した。

(2)活性汚泥の磁気分離装置の設計指針の構築については、高濃度の汚泥を磁気分離するための設計指針について小型の磁気分離装置による基礎的な検討をおこなった。また、磁化活性汚泥法に後付けするための三次処理に適した低濃度の懸濁物質とリンの高速磁気分離装置についても検討した。

(3)磁化活性汚泥法の特徴を生かした新規プロセスの構築についてはベンチスケール実験装置(図1)を基本として用い、①難生分解性物質や染料を対象とした嫌気・好気の磁化活性汚泥プロセスの検討、②硝化液循環法を磁化活性汚泥法に取り込んだ高アンモニア廃水に対する新プロセスの創成、③殺菌剤を含む有機廃水への生物処理法適用の可能性の検討、④下水放流基準までの中間処理に特化した磁化活性汚泥法の変法などについて検討をおこなった。また、⑤宇都宮大学附



図1. ベンチスケール磁化活性汚泥実験



図2. 畜産廃水処理のための実験ハウス



図3. 約80人分の都市下水を浄化できるパイロットプラント

属農場の畜産廃水処理施設に隣接して実験ハウスを設置し(図2)、実廃水を用いて畜産実廃水処理に適したプロセスを検討した。さらに、⑥ 24 m³/日(約80人分)の下水処理可能な大型パイロットプラント(図3)により窒素除去を含む下水浄化高度処理プロセスの実証試験をおこなった。

(4)国内外の研究ネットワークの構築については、まず国内については、電気学会調査研究委員会の活動、磁気力制御・磁場応用夏の学校の運営、栃木県産業技術センターとの共同研究などを通して磁気分離を利用した水の浄化処理に関する研究ネットワークの構築に努めた。また国際的にはバングラデシュ・ダッカ大の共同研究の推進に加えて、中国・華中技科大、インドネシア企業との磁化活性汚泥法に関連する研究交流を始めた。

4. 研究成果

(1)活性汚泥からの微生物の汚泥と微生物の吸脱着について：磁性粉と汚泥の吸着メカニズムについては不明の点が多いが、粒子径を最適化することで磁気力を利用して、微生物から磁性粉の脱着が可能であることを明らかにした。磁気力により十数秒の短時間で90%以上の磁性粉濃度まで磁性粉濃縮された汚泥を回収することができた。薬品や熱、超音波などによる磁性粉の回収と比較すると省エネルギーであり、分離プロセスからの二次的な環境負荷の発生も少ない優れた方法といえ、水環境学会等で発表をおこなった。(学会発表⑧など)

(2)磁化活性汚泥の磁気分離装置の設計指針の検討：①汚泥磁気分離装置の開発では、磁化活性汚泥流出水に少量の磁性粉と凝集剤を加えて20~30 mg/L濃度の懸濁物質とリンを同時除去するプロセスを構築した。永久磁石を利用した磁気分離装置を用いて500 m/dの高速で10 mg/L以下の懸濁物質濃度、1 mg/L以下のリン濃度まで磁気分離することができ、分離汚泥の剥離も瞬間的におこなうことができた(学会発表①など)。②高濃度汚泥の磁気分離装置については、高濃度汚泥の分離に汚泥パイロットプラントから採取した磁化活性汚泥を用いて実験をおこない、磁化活性汚泥の磁気分離装置に関する基本的な指針を検証した。その結果、磁気分離装置に用いる磁石のもつ汚泥の最大保持量が設計の重要因子となること、回転ドラムタイプの磁気分離装置を使用する場合には小径の磁石を用いるほど性能向上が期待できることなどを明らかにした。これらの成果は濃厚な磁性スラッジを効率よく磁気分離する装置の性能向上に基本的な戦略を与えることができると考える。これらの成果は低温工学会誌に論文が掲載された(雑誌論文①)。

(3)磁化活性汚泥法の特徴を生かした新規

プロセスの構築：

①難生分解性物質や染料を対象とした嫌気・好気の磁化活性汚泥法：嫌気・好気の磁化活性汚泥シーケンシャルバッチリアクターを考案し、単一反応槽、単一磁気分離装置で、通常の活性汚泥法ではほとんど脱色不可能な模擬染料廃水の脱色・分解処理を約1年間継続することができた。簡便な運転管理で90%の脱色率と91%以上のCOD_{Cr}除去率を維持できた。余剰汚泥の発生もなく、磁気分離は安定しており汚泥濃度の管理などは不要で維持管理が容易であることも確認できた。(学会発表⑨⑩など)また、界面活性剤に代表される曝気により発泡しやすい有機廃水についても磁化活性汚泥法の適用を検討した。廃水中に窒素やリン成分が不足する場合、従来の活性汚泥法では沈降性を維持するなどの運転管理上の必要性によりBOD:N:P=100:5:1となるよう窒素やリンを添加する必要があったが、磁気分離を適用した磁化活性汚泥法では最小限の添加量で処理を継続できることが示された。窒素やリンの添加コストを節約できるだけでなく、添加した栄養塩が二次汚染の原因となることを防止できる。また、余剰汚泥を引き抜かないために界面活性剤に対する微生物の馴致も十分に進行し、発泡を抑えた処理が実現できた(学会発表②など)

②硝化液循環プロセスを磁化活性汚泥法に取り入れた高アンモニア廃水に対するプロセスについてはジメチルホルムアミドを主成分とする合成廃水の処理に適用検討した。ジメチルホルムアミドはそれ自身難生分解性であるだけでなく、窒素成分を多く含む化合物である。工業的に多量に使われており、水処理の需要も大きい。この廃水に従来の磁化活性汚泥法の間欠曝気運転による窒素除去を試みたが、生分解によって発生したアンモニアが生物毒であるために硝化菌が影響を受けて窒素除去は安定しなかった。本研究では硝化槽を設置し第1槽を磁化活性汚泥の微好気槽とすることで硝化液循環フローを構築した。これにより、窒素の除去率が70%程度まで向上し、硝化菌の活性が安定した。これは硝化槽のpHが低下することで毒性の高い遊離アンモニア濃度を抑制できたためだと考えられる。また嫌気槽に循環する硝化液の酸素を有機物の分解に利用し80%以上のCOD_{Cr}除去率を得た(学会発表③など)。

③殺菌剤を含む有機廃水への生物処理法適用の可能性の検討：殺菌剤として過酸化水素を含む有機廃水は食品工場などで発生する可能性があるが、そのまま活性汚泥法を適用することは難しい。磁化活性汚泥法は固液分離トラブルが原理的に発生しないことから、そのまま処理したところ、流出水の懸濁物質濃度が若干上昇したが、数ヶ月にわたり連続

水処理ができた（学会発表④など）。

④下水に廃水を放流する場合、公用水域に対するような厳しい排出基準はないが、下水受入基準がある。そのため、厨房廃水などはそのまま下水放流できず、活性汚泥法で浄化した後、下水に放流している。この処理では大部分の有機物を除去せざるを得ないため、多量の余剰汚泥発生し、また分解のために曝気電力も多く消費する。磁化活性汚泥法は磁気力により短時間で微生物を分離できるため廃水と微生物を任意時間接触させて、すばやく分離し、分離後に有機物を曝気槽で分解させることが可能である。このプロセスにより、油分と界面活性剤を含む合成廃水から10分程度の接触時間で下水放流基準まで廃水を部分浄化することができた。接触後、磁気分離された磁化活性汚泥は曝気槽でしばらく曝気された後、再度、廃水と接触させた。これを繰り返すことで、従来の活性汚泥法による下水放流の前処理装置に比べて大幅に小型化、省エネルギー化した廃水の部分浄化装置を提案できた（学会発表⑤など）。

⑤畜産実廃水の処理に適した新規磁化活性汚泥活用プロセス：畜産廃水はSS、リン、窒素成分を多く含み、そのまま活性汚泥処理してもリンや窒素の除去は難しい。本研究では一段目に凝集／アンモニアストリッピング法、二段目に磁化活性汚泥法、三段目に接触酸化法を組み合わせた複合プロセスを提案した。一段目ではリンと窒素の大部分が除去され、二段目と三段目で有機物が生分解される。これらの処理により、宇都宮大学附属農場の畜産廃水を処理したところBOD、窒素、リンのいずれも排出基準以下まで浄化することができた。また、現行の窒素除去と間欠曝気を取り入れた活性汚泥廃水処理施設では14日の滞留時間が設定されているが、本研究では3～4日ですべての汚濁物質を排出基準以下まで浄化しており、大幅な高速化が可能であることが示唆された。余剰汚泥の引き抜きは必要とせず、沈降性管理も不要であるため、生物処理の維持管理も簡易化できることが示唆された（雑誌論文③、学会発表⑥⑦など）。

⑥大型パイロットプラント(図3)による窒素除去を含む下水浄化高度処理プロセスの実証試験：従来までの磁化活性汚泥法の研究で、磁化活性汚泥法は生物学的硝化脱窒プロセスに有利であることがわかってきた。これは余剰汚泥引き抜きをおこなわない磁化活性汚泥法では、汚泥滞留時間が無限大となるため硝化菌の増殖に有利なためである。適切な曝気／非曝気時間を設定した間欠曝気を適用するだけで70%程度の窒素除去と十分な有機物除去がおこなえたが、流入水中の有機物濃度が低い場合など窒素除去率が低下して安定性は不十分であった。本研究ではシ

ーケンシャル制御によって嫌気時間の初期に下水流入をおこなった。これにより、下水中の有機物が有効に脱窒素の電気供与体として用いられることとなり、また曝気時の有機物負荷が軽減されるため、窒素除去率は70%程度であったが、安定した窒素除去が実現できた。有機物については十分に除去できた。余剰汚泥の引き抜きは必要なかった。

これらの磁化活性汚泥法の特性を生かした新規プロセスの提案や検討結果については水環境学会、低温工学などで報告された（雑誌論文②、学会発表⑩）

(4)国内外の研究ネットワークの構築について：国内については、電気学会調査専門委員会委員として磁気分離の環境応用に関する調査をおこなった。年4回程度の会議を継続的におこない、報告書を作成した(図書①)。毎年開催されている磁気力制御・磁場応用夏の学校の開催に協力し、若手研究者向けの磁気シーディングに関する講師を担当した。先の電気学会報告書はこの夏の学校の教科書として活用されている。また、栃木県産業技術センターに磁化活性汚泥法の応用分野についての研究会を立ち上げ、めっき廃水の処理などについて検討した。国外では、バンラデシュ・ダッカ大学のサハ教授との研究交流を3年間継続した。代表者が研究交流と染料廃水処理の現地調査のためダッカを訪問した他、サハ教授が日本に数ヶ月滞在して主に染料廃水処理に関する共同研究や学会発表をおこなった。またアメリカでの国際会議にも参加した。バンラデシュの植物(Botanical)学会主催の国際会議に招待され発表した。このとき、環境技術セッションの座長を務め、バンラデシュ政府へ環境技術育成の重要性についての提言を提出した。2011年には中国・華中技科大と磁化活性汚泥法と電気化学的水処理法の融合プロセスに関する研究交流を開始した。また、インドネシアの工場から磁化活性汚泥法への照会があり、現地視察や研究交流、予備的な廃水分解の基礎研究を開始した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計3件)

①酒井 保蔵, 松田祐三, 佐々木哲也, 佐々木貞幸, 磁化活性汚泥プロセスにおける濃厚な磁性スラッジの磁気分離装置設計に関する基本的な考え方, 低温工学, 46, pp.669-675 (2012). 査読有

②酒井 保蔵, 磁化活性汚泥法による余剰汚泥ゼロ化—特徴とメリット—, 水と水技術, No.7, 28-33 (2010). 査読無

③ Chun Ying, Kazutaka Umetsu, Ikko

Ihara, Yasuzo Sakai, Takaki Yamashiro, Simultaneous removal of organic matter and nitrogen from milking parlor wastewater by a magnetic activated sludge (MAS) process, Bioresource Technology, 101, pp.4349-4353 (2010).査読有

〔学会発表〕(計 71 件)

- ①小林 力, 酒井保藏, 小原健司, 磁気分離を利用した三次処理プロセス～磁化活性汚泥法流出水からのリン・SS の高速除去, 第 46 回日本水環境学会年会講演集, p.259, 東京・東洋大 (2012/03/14-16).
- ②陳 燕仔, 酒井保藏, Mihir Lal SAHA, 窒素、リン不足の排水の処理における磁化活性汚泥法の安定性, 第 46 回日本水環境学会年会講演集 p.281 東京・東洋大(2012/03/14-16).
- ③廣島浩二, 酒井保藏, Mihir Lal SAHA, 含窒素有機廃水の処理に適した硝化液循環磁化活性汚泥法の創成, 第 46 回日本水環境学会年会講演集 p.45, 東京・東洋大 (2012/03/14-16).
- ④水野雄太, 酒井保藏, 除菌剤として過酸化水素を含む有機排水の磁化活性汚泥法による浄化処理, 第 46 回日本水環境学会年会講演集 p.649, 東京・東洋大(2012/03/14-16).
- ⑤廣田浩一, 酒井保藏, 下水放流のための除害処理を目的とした磁化活性汚泥法の可能性, 第 46 回日本水環境学会年会講演集 p.268, 東京・東洋大 (2012/03/14-16).
- ⑥梶井祥吾, 酒井保藏, 岩渕和則, 柏崎 勝, 井原一高, Mihir Lal SAHA, 凝沈法と磁化活性汚泥法を組み合わせた畜産廃水の効率的な浄化プロセス, 第 46 回日本水環境学会年会講演集 p.282, 東京・東洋大 (2012/03/14-16).
- ⑦ Yasuzo Sakai, Shogo Kajii, Fumika Kawakami, Mihir Lal Saha, Kazunori Iwabuchi and Masaru Kashiwazaki, Merits of magnetic activated sludge process and the application to advanced purification of dairy wastewater, Fifth International Botanical Conference 2011, Dhaka, Bangladesh, Programme & Abstracts p.19 (2011/12/09-11).
- ⑧猪野隼也, 酒井保藏, 小原健司, 磁化活性汚泥法に用いる強磁性粉の粒子サイズに関する基礎的考察, 第 45 回日本水環境学会年会講演集 p.730, 札幌・北海道大学 震災のため講演集による紙上发表)(2011/03/18-20).
- ⑨正法地美奈, 酒井保藏, Mihir Lal Saha, 嫌気/好気磁化活性汚泥法による反応染料排水の脱色処理～ベンチスケール実験での検討, 第 45 回日本水環境学会年会講演集 p.344, 札幌・北海道大学 震災のため講演集による紙上发表)(2011/03/18-20).
- ⑩ Mihir Lal Saha, Yasuzo Sakai and

Masato Oda, Dye Decolorization and Organic Compounds Removal of Synthetic Textile Effluent by Anaerobic-Aerobic Magnetic Activated Sludge (A2-MAS) Reactor, The 4th International Workshop on Materials Analysis and Processing in Magnetic Fields (MAP4), Atlanta, U.S.A. Programme & Abstracts p.29, (2010/05/10-12).

⑪ Yasuzo Sakai, Shunsuke Watanabe and Chikara Kobayashi, Sewage Treatment by a Pilot Plant of Magnetic Activated Sludge Process, The 4th International Workshop on Materials Analysis and Processing in Magnetic Fields (MAP4), Atlanta, U.S.A. Programme & Abstracts p.30, (2010/05/10-12).

〔図書〕(計 1 件)

①酒井保藏 (共著), 電気学会, 電気学会技術報告 1198 号 (物質の磁気特性を活用した精密磁気制御応用技術調査専門委員会編), 22-27, (2010)

〔その他〕

ホームページ等

<http://118.82.78.28/pdfs/pdf000070.pdf>

6. 研究組織

(1)研究代表者

酒井 保藏 (SAKAI YASUZO)

宇都宮大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：70186998

(2)研究分担者

井原 一高 (IHARA IKKO)

神戸大学・農学研究科・助教

研究者番号：50396256

岩渕 和則 (IWABUCHI KAZUTAKA)

宇都宮大学・農学部・教授

研究者番号：00193764

小原 健司 (OHARA TAKESHI)

金沢工業大学・工学部・教授

研究者番号：20354318

前田 勇 (MAEDA ISAMU)

宇都宮大学・農学部・准教授

研究者番号：10252701

(3)連携研究者

梅津 一孝 (UMETSU KAZUTAKA)

帯広畜産大学・畜産学部・教授

研究者番号：20203581

(4)海外研究協力者

ミヒル ラル サハ (MIHIR LAL SAHA)

ダッカ大学・植物学科・教授