

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 5 月 31 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289179

研究課題名(和文)嫌気性膜分離リアクターを用いた下水処理技術の革新に関する研究

研究課題名(英文) A study on innovation of sewage treatment technology by using anaerobic membrane bioreactor

研究代表者

李 玉友 (LI, Yu-You)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30201106

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、低炭素社会に対応した革新的下水処理システムを開発することを目的として、嫌気性処理と機能性分離膜を融合させることで、水質確保とエネルギー回収の両立を実現できる創エネルギー型下水処理システムの確立を目指すものである。AnMBRを用いた下水処理における温度、滞留時間および下水組成の影響を検討することを目的として、人工下水の連続処理実験を行い、処理性能、物質収支、膜性能に及ぼす影響を評価した。また平膜と中空糸膜の2種類の分離膜の機能も評価した。人工下水に対してCOD除去率は95-97%と高かった。一方、界面活性剤AEの除去率が90%以上であったが、LASの除去率が約50%と低かった。

研究成果の概要(英文)：An experimental study on the innovation sewage treatment by using anaerobic membrane reactor (AnMBR) was conducted. The effects of HRT, temperature and sewage composition on treatment performance of AnMBR were investigated. The treatment performance was evaluated by using two type of membranes, flat sheet membrane and hollow fiber membrane, and a total of four different sewages including three artificial sewages containing surfactants (AE, LAS) and SS (toilet paper) respectively, and real sewage. The COD removal was high as 95-97% for artificial sewages. In the all experiments, AE removal was over 90%, but the LAS removal was only about 50%.

研究分野：環境保全

キーワード：土木環境システム 下水処理 嫌気性 MBR メタン発酵 バイオガス エネルギー回収 温度影響

### 1. 研究開始当初の背景

低炭素・循環型社会の形成やバイオマスの利活用が推進されている中、下水処理における省エネルギーおよび創エネルギーが注目されている。本研究の担当者らは、嫌気性処理(メタン発酵)に関する研究を長年にわたって継続してきており、豊富な実績を有している。下水処理の省エネルギー・創エネルギー化を実現するには、メタン生成能力を持つ嫌気性古細菌を活用することが有効であるが、従来技術では処理水質の確保に問題があった。近年、膜分離活性汚泥法(MBR)の普及により機能性分離膜の技術がかなり進歩したのに伴い、著者が嫌気性処理と膜分離の融合デザインにいち早く注目し、メタン発酵に分離膜を導入して新規システムによる高濃度廃水処理を試みた結果、嫌気性 MBR が嫌気性古細菌の活用に適した優れた排水処理技術であり、有機性排水処理からのエネルギー回収において非常に高いポテンシャルを有していることを明らかにした。2013年5月韓国およびスペインで開催された国際会議でその成果を発表したところ、注目を集めた。また、これらの学会においてアメリカスタンフォード大学の McCarty 教授およびイギリスインペリアル・カレッジ・ロンドン大学の Stuckey 教授も下水処理における嫌気性 MBR の有用性と研究の必要性を力説していた。しかし、これまでの研究では、室温条件における下水処理の可能性を検討してきた。システムの実用化に向けた技術を確立するために、(1) 流入下水の水温による影響の評価、(2) 下水成分による影響の評価、(3) リン除去を目的とした凝集剤添加運転、(4) 分離膜の運転方法や設計指標の確立などを研究し、システム制御の最適化を図る必要がある。

### 2. 研究の目的

本研究は、低炭素社会に対応した革新的下水処理システムを開発することを目的として、嫌気性処理、機能性分離膜、凝集剤を融合させることで、水質確保とエネルギー回収の両立を実現できる創エネルギー型下水処理システムの研究を行う。嫌気性古細菌群を分離膜によって高濃度に保持することで、下水処理の省エネルギー化、下水からの直接的なエネルギー回収、余剰汚泥の削減などの利点を持ちながら、良好な水質も確保できるといふ、これまでなかった低炭素対応型革新的な下水処理システムを開発する。目的を達成するため、次のような具体的研究内容を設定した。

#### (1) 研究1：温度と滞留時間の影響

嫌気性膜分離(AnMBR)法を用いた下水処理における温度と滞留時間の影響を検討することを目的として、溶解性人工下水の連続処理実験を行い、温度が処理性能、物質収支、膜性能に及ぼす影響を評価した。また、AnMBR を用いた下水処理に及ぼす温度、滞留時間、汚泥濃度の影響について実験データ

に基づく動力的解析を行い、得られた動力学定数を用いて異なる操作条件における処理水質のシミュレーションを行った。

#### (2) 研究2：下水成分による影響の評価

下水中には多くのトイレトパーパーと様々な合成洗剤が含まれるので、それらの嫌気性分解性をはじめ、メタンへの転換率および膜運轉への影響が懸念される。本研究では人工下水に代表的な界面活性剤である LAS と AE を選んで、それによる処理性能への影響を評価した。

#### (3) 研究3：膜種類の影響に関する検討

本システムに最適な分離膜の選定を目的として、平膜、中空糸膜等の複数種の膜を用いた連続実験を実施し、比較評価を行った。

#### (4) 研究4：膜ファウリングの制御

嫌気性膜分離(AnMBR)法を用いた下水処理を行う場合に、膜ファウリング現象とその制御方法を把握する必要がある。本研究では膜ファウリングを引き起こす因子として、微生物代謝産物 SMP と細胞外高分子物質 EPS の挙動に注目し、その生成量と運轉条件の関係を解析した。

### 3. 研究の方法

#### (1) 実験装置

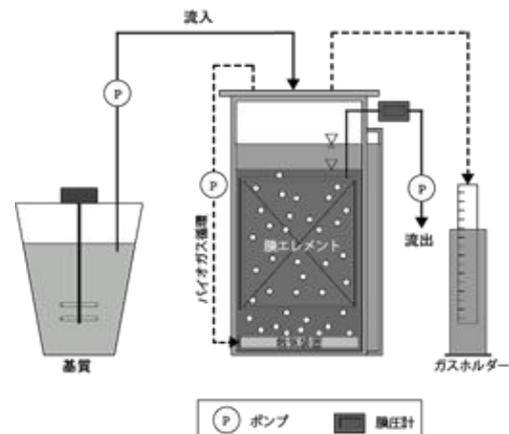


図1 リアクターの概要図(平膜)

本研究では、浸漬型嫌気性膜分離装置を用いた。装置概要図を図1に示す。反応槽の有効容積は6L、分離膜としてKubota平膜を用いた膜総表面積は0.116 m<sup>2</sup>で膜材質は塩素化ポリエチレン、膜の公称孔径は0.2 μmである。反応槽内気相部のバイオガスをエアポンプによって循環させ、反応装置下部から散気して反応槽内の攪拌を行うとともに、膜の物理的な洗浄の効果を持たせた。発生したガスはガスホルダー内部に回収し、ガス生成量の算出に用いた。反応槽内の温度は反応槽外周部のウォータージャケットで所定の温度に制御した。また本実験では種植汚泥として下水処理場の嫌気性消化汚泥を人工下水

で馴致したものをを用いた。初期の反応槽内汚泥濃度 (以降 MLSS) は 10 g/L 程度とした。

## (2) 実験材料と条件

本研究では具体的に4つの課題についてそれぞれ実験的研究を行った。具体的な実験方法と材料は次の通りであった。

### 研究1

本研究では都市下水をモデルとした人工下水を用いた。図1のようなラボスケールの反応槽を用いて連続処理実験を行った。実験では水理学的滞留時間 (HRT) を 48 h から開始し、24 h、12 h、6 h と段階的に短縮させた。また実験温度を 25、20、15、10 度の4つの条件で行った。

### 研究2

本実験では、ベースとなる投入基質として都市下水をモデルとした溶解性成分のみから成る人工下水に界面活性剤 (AE: 5mg/L、LAS: 2.5mg/L) と SS 成分としてトイレトペーパーを 100mg/L 添加し、連続処理実験を行った。また、図1の実験装置の水理学的滞留時間 (HRT) は 48h、24h、16h、12h、8h と変化させて実験を行った。評価方法としては、阻害要因を添加していない人工下水界面活性剤を添加した人工下水、SS 成分を添加した人工下水による連続処理実験の結果と比較することでその処理性能を把握した。

### 研究3

膜種類の影響を検討するために、中空系膜を用いた浸漬型嫌気性膜分離装置の概要図を図2に示す。反応槽の有効容積は 7.5 L、分離膜として住友電気工業製の中空系膜を用いた。膜総表面積は 0.1m<sup>2</sup> で膜材質は PTFE、膜の公称孔径は 0.2 μm である。研究1や2と同じく反応槽内気相部のバイオガスをエアポンプにより循環させ、攪拌と膜洗浄に用いた。また、HRT は 8h に固定して平膜と中空系膜を用いた場合の処理性能の違いを評価した。

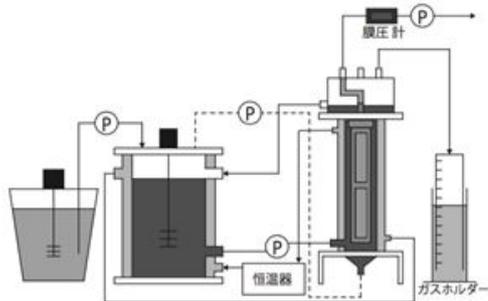


図2 リアクターの概要図 (中空系膜)

### 研究4

SMP と EPS はそれぞれ微生物代謝産物、細胞外高分子物質というもので、微生物の代謝によって生成される物質である。これらは環

境の変化によって生成するとも言われ、膜ファウリングの原因物質の一つと考えられている。

## 4. 研究成果

### (1) 研究1の成果

AnMBR を用いた下水処理における温度と滞留時間の影響を検討することを目的として、溶解性人工下水の連続処理実験を行い、温度が処理性能、物質収支、膜性能に及ぼす影響を評価した。その結果、以下のような知見が得られた。15 °C の温度条件において HRT 12 h で良好な処理水質、高いメタンガス回収率が得られたのに対し、10 °C では低負荷においても処理性能やメタン回収率が著しく低下した。膜性能の評価及び回分ろ過実験の結果より、室温域と低温域における膜ファウリングの変化は微生物代謝産物が大きく関与していると考えられる。

室温域ではケーキ層による可逆的ファウリングが膜性能低下の主な原因であるため、ケーキ層を除去できるシステムを構築することで膜を交換することなく長期間の連続処理が可能になる。温度が低下するに従い、SMP や EPS といった微生物代謝産物の生成量が増加し、膜ファウリングが起きやすいことが示された。メタン生成活性試験より 10 °C の温度条件で酢酸資化性と水素資化性のメタン生成活性はそれぞれ 0-0.03, 0.01-0.02 g-COD/g-VSS/day と 25 °C の温度条件の活性値と比較して (酢酸, 水素 : 0.17-0.54, 0.25-0.32 g-COD/g-VSS/day), ワンオーダー以上活性が低下したことから、10 °C での生物学的処理は非常に困難であることが示された。

AnMBR を用いた下水処理に及ぼす温度、滞留時間、汚泥濃度の影響について実験データに基づく動力学解析を行い、得られた動力学定数を用いて異なる操作条件における処理水質のシミュレーションを行った。その結果、嫌気性膜分離法による下水処理は、温度と HRT の影響を受け、同一 HRT 条件で温度が低くなるほど、あるいは同一温度条件で HRT が短いほど分解率は低下した。また、シミュレーションモデル式から 10 °C の温度条件において汚泥濃度を高濃度に維持することで高い有機物除去率が達成できることを明らかにした。

### (2) 研究2の成果

下水には多くのトイレトペーパーが含まれることを考慮して、人工下水に SS 成分としてトイレトペーパーを 100mg/L 添加して連続処理実験を行ってトイレトペーパーの添加による処理水質、汚泥生成量およびバイオガス生成への影響を把握した。トイレトペーパーはほとんど分解され、バイオガスになることを確認した。

本研究においては、実験全体を通して AE

は90%以上除去できたが、LASは50%前後にとどまった。AEに関してはHRTを短縮しても良好な処理が行えたのに比べ、LASはHRTの短縮に伴い除去率が低下した。このことから、AEは短い滞留時間でも良好に除去できることがわかった。一方LASは短い滞留時間では除去が困難であることが言える。今回はAEとLASという2種類の界面活性剤を同時に添加したが、AE添加系、LAS添加系と比較してもCOD除去率に大きな差は現れなかった。このことから、両方を同時に添加したことによる微生物の阻害性は無視できるほど小さいということが言える。しかし、界面活性剤の除去という点では、AEは良好な除去が可能であることがわかったものの、LASに関しては処理水に半分近くが残存してしまうという結果が得られた。

### (3) 研究3の成果

本システムに最適な分離膜の選定を目的として、平膜、中空系膜等の複数種の膜を用いた連続実験を実施し、比較評価を行った。塩素化ポリエチレン製のMF平膜(膜の公称孔径は $0.2\ \mu\text{m}$ )とPTFE製の中空系膜(公称孔径は $0.2\ \mu\text{m}$ )について同じ条件で比較した。中空系膜を用いて界面活性剤・SS含有人工下水を処理した結果、有機物除去性能や界面活性剤除去性能は平膜と同程度であり、膜リアクターの形態による除去率の違いはないことがわかった。また、膜圧増加速度は平膜での実験時よりも小さかったことから、中空系膜のほうが安定したフラックスを得やすいことが示唆された。

### (4) 研究4の成果

本研究では膜ファウリングを引き起こす因子として、微生物代謝産物SMPと細胞外高分子物質EPSの挙動に注目し、その生成量と運転条件の関係を解析した。これらの物質は酸化剤やクエン酸洗浄により洗浄できることが分かった。

最終的にシステム総合評価として各実験条件における処理水質、汚泥発生量、バイオガス生成量および膜フラックスを解析して水量、汚泥、ガスを含めた物質収支を把握したとともに、処理能力 $10000\text{m}^3/\text{日}$ の下水処理場に対するケーススタディーを活性汚泥法と比較を行った。

## 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8件)

Rong Chen, Yulun Nie, Yisong Hu, Rui Miao, Tetsuya Utashiro, Qian Li, Manjuan Xu, Yu-You Li, Fouling behaviour of soluble microbial products and extracellular polymeric substances in a submerged

anaerobic membrane bioreactor treating low strength wastewater at room temperature, *Journal of Membrane Science*, 査読あり、531, 2017, 1-9

<http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2017.02.046>

Yulun Nie, Hiroyuki Kato, Toshiki Sugo, Toshimasa Hojo, Xike Tian, Yu-You Li, Effect of anionic surfactant inhibition on sewage treatment by a submerged anaerobic membrane bioreactor: Efficiency, sludge activity and methane recovery, *Chemical Engineering Journal*, 査読あり、Vol.315, 2017, 83-91

<http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2017.01.022>

Rong Chen, Yulun Nie, Hiroyuki Kato, Jiang Wu, Tetsuya Utashiro, Jianbo Lu, Shangchao Yue, Hongyu Jiang, Lu Zhang, Yu-You Li, Methanogenic degradation of toilet-paper cellulose upon sewage treatment in an anaerobic membrane bioreactor at room temperature, *Bioresource Technology*, 査読あり、Vol.228, 2017, 69-76

<http://dx.doi.org/10.1016/j.biortech.2016.12.089>

Yulun Nie, Qigui Niu, Hiroyuki Kato, Toshiki Sugo, Xike Tian, Yu-You Li, Efficient methanogenic degradation of alcohol ethoxylates and microbial community acclimation in treatment of municipal wastewater using a submerged anaerobic membrane bioreactor, *Bioresource Technology*, 査読あり、Vol.226, 2017, 181-190

<http://dx.doi.org/10.1016/j.biortech.2016.11.128>

Ryoya Watanabe, Yulun Nie, Shintaro Takahashi, Shintaro Wakahara, Yu-You Li, Efficient performance and the microbial community changes of submerged anaerobic membrane bioreactor in treatment of sewage containing cellulose suspended solid at  $25\ \text{oC}$ , *Bioresource Technology*, 査読あり、Vol.216, 2016, 128-134

<http://dx.doi.org/10.1016/j.biortech.2016.05.049>

渡邊亮哉、菅生俊樹、若原慎一郎、李玉友、嫌気性膜分離法を用いた下水処理性能の評価 HRTと温度の影響、**用水と廃水**、査読あり、Vol.57(No.5), 2015, 374-385

李玉友、小林拓朗、若原慎一郎、嫌気性膜分離(AnMBR)法による有機性廃棄物・排水の高効率処理の技術開発と応用、**用水と廃水**、査読あり、Vol.57(No.4), 2015, 305-315

渡邊亮哉、菅生俊樹、若原慎一郎、李玉友、嫌気性膜分離法(AnMBR)を用いた人工下水処理性能に及ぼす温度の影響、**水環境学会誌**、査読あり、Vol.37(No.5),

## 〔学会発表〕(計 13 件)

歌代哲也, 陳榮, 鹿野滉平, 李玉友, 嫌気性膜分離法を用いた下水処理に及ぼす下水組成の影響, **第 51 回日本水環境学会年会**, 2017.03.15-17, 熊本大学, 熊本市  
Rong Chen, Yunlun Nie, Yisong Hu, Rui Miao, Tetsuya Utashiro, Qian Li, Manjuan Xu, Yu-You Li, The fouling behavior of SMP and EPS in a submerged anaerobic membrane bioreactor treating municipal wastewater, *The 5th IWA Regional Conference on Membrane Technology*, 2016.08.1-25, Kunming, China

Yulun Nie, Xike Tian, Zhaoxin Zhou, Yu-You Li, Impact of food to microorganism ratio and alcohol ethoxylate dosage on methane production in treatment of low-strength wastewater by a submerged anaerobic membrane bioreactor, *The 5th IWA Regional Conference on Membrane Technology*, 2016.08.1-25, Kunming, China  
歌代哲也, 陳榮, 聶玉倫, 李玉友, 嫌気性 MBR による下水処理に及ぼす界面活性剤とトイレトペーパーの影響, **第 53 回下水道研究発表会**, 2016.07.26-28, ウィンク愛知, 名古屋

菅生俊樹, 歌代哲也, 聶玉倫, 李玉友, 嫌気性 MBR による下水処理における界面活性剤(AE)の分解と影響, **第 50 回第 50 回日本水環境学会年会**, 2016.03.16-18, アスティとくしま, 徳島県徳島市

歌代哲也, 菅生俊樹, 聶玉倫, 李玉友, 嫌気性 MBR を用いた下水処理における界面活性剤とトイレトペーパーの影響, **第 50 回日本水環境学会年会**, 2016.03.16-18, アスティとくしま, 徳島県徳島市

Yulun Nie, Toshiaki Sugo, Tetsuya Utashiro, Yu-You Li, Effects of Surfactant on AnMBR for Wastewater Treatment, *The 6th IWA-ASPIRE Conference & Exhibition*, 2015.09.20-24, Beijing, China

菅生俊樹, 歌代哲也, 聶玉倫, 李玉友, 界面活性剤が嫌気性 MBR を用いた下水処理に与える影響, **第 18 回日本水環境学会シンポジウム**, 2015.09.14-15, 信州大学, 長野市

歌代哲也, 菅生俊樹, 聶玉倫, 李玉友, 嫌気性 MBR による下水処理に及ぼす界面活性剤の影響, **第 52 回下水道研究発表会**, 2015.07.28-30, 東京ビッグサイト, 東京

菅生俊樹, 渡邊亮哉, 若原慎一郎, 李玉友, 凝集剤添加型嫌気性膜分離法を用いた下水処理法の評価, **第 48 回日本水環境学会年会**, 2015.03.17-19, 東北大学, 仙台市

渡邊亮哉, 菅生俊樹, 若原慎一郎, 李玉

友, 嫌気性膜分離法による都市下水低温処理の性能評価, **第 48 回日本水環境学会年会**, 2015.03.17-19, 東北大学, 仙台市

砂庭崇之, 渡邊亮哉, 高橋慎太郎, 李玉友, 嫌気性膜分離法を用いたセルロース含有人工下水の処理に及ぼす水温の影響, **第 48 回日本水環境学会年会**, 2015.03.17-19, 東北大学, 仙台市  
渡邊亮哉, 菅生俊樹, 李玉友, 若原慎一郎, 嫌気性膜分離法を用いた下水処理における温度の影響, **第 51 回下水道研究発表会**, 2014.07.22-24, 大阪アカデミア, 大阪市

## 〔図書〕(計 0 件)

## 〔産業財産権〕

## 出願状況(計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

## 取得状況(計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
取得年月日:  
国内外の別:

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

## (1) 研究代表者

李玉友 (LI, Yu-You)  
東北大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 30201106

## (2) 研究分担者

北條 俊昌 (HOJU, Toshimasa)  
東北大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号: 10708598

久保田 健吾 (KUBOTA, Kengo)  
東北大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 80455807

## (3) 連携研究者

( )

研究者番号：

(4)研究協力者

( )