

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24651069

研究課題名(和文) 中低温古細菌と機能性分離膜の融合デザインによる新規排水処理技術の研究

研究課題名(英文) New technology of wastewater treatment using combined design of low-temperature archae and functional membrane

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) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：嫌気性処理と膜分離技術を組み合わせた膜分離メタン発酵法を開発した。本研究では、25℃において2種類の人工下水を用いた連続処理実験を行い、処理性能に及ぼす水理的滞留時間(HRT)の影響を評価した。HRT 12 hにおいて、溶解性人工廃水リアクター及び浮遊物質(SS)含有人工廃水リアクターの膜透過水の化学的酸素要求量(COD)、生物化学的酸素要求量はそれぞれ34, 11 mg/L, 19, 8 mg/Lであった。流入COD 100%の内、72, 65%がメタンに変換され、高いメタン収率であった。また反応槽における古細菌と真正細菌の群集構造を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：A submerged anaerobic membrane bioreactor (SAMBR) combining anaerobic digestion and membrane separation was developed. A lab-scale SAMBR treating two kinds of synthetic wastewater were continuously operated at a room temperature to investigate the effect of hydraulic retention time (HRT) on the treatment performance. At HRT of 12 hours, the chemical oxygen demand (COD) and biochemical oxygen demand of effluents in the soluble synthetic wastewater and suspended solids contained synthetic sewage were 34, 11 mg/L, 19, 8 mg/L, and 72, 65% of input COD was converted to methane respectively. Based on the cloning analysis of Archaeal community, the acetate-utilizing Methanosaeta accounted for 70% in the soluble synthetic wastewater reactor. In contrast, about suspended solids (SS) contained synthetic wastewater reactor, Methanosaeta and hydrogen-utilizing Methanoregula were detected at the same rate.

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境技術・環境材料

キーワード：下水処理 嫌気性消化 メタン発酵 膜分離 バイオマス 水質 メタン生成古細菌 群集構造

1. 研究開始当初の背景

膜分離活性汚泥法 (Membrane Bioreactor : MBR) は、下水や工場排水を微生物により処理し、その後膜ろ過を行う手法である。膜を使用することで既往の水処理手法より小さなスペースで活性汚泥を分離できることから、近年の水処理技術の中で多大な注目を集めている。しかし、活性汚泥法はプロセス全体で必要とされるエネルギーコストが高い、余剰汚泥の生成量が多い、温室効果ガスの排出等の問題点が挙げられる。

一方で、嫌気性処理技術は曝気の必要がなく、汚泥発生量が少ないため、省エネルギーな処理が期待されるだけでなく、発生したバイオガスをエネルギー源として利用が可能であるため、創エネルギーの効果も期待できる。この流れにおいて近年、膜分離技術と嫌気性処理を組み合わせた膜分離メタン発酵法プロセスの開発が注目を集めている。膜分離メタン発酵法は焼酎粕やアルコール発酵廃液のような高濃度有機性廃水の処理において、いくつかの研究が行われており、既に実用化されているが、都市下水のような低濃度で流量の多い廃水に対しては実用化されていない。また、膜分離メタン発酵法による都市下水処理の研究は嫌気性処理に有利な中温条件 (37 °C 付近) における検討が多く、室温条件での研究報告は非常に少ない。実際の流入下水の温度は中温条件以下であり、室温または低温条件での処理性能を把握する必要がある。

2. 研究の目的

本研究で注目した機能性分離膜による完全な固液分離は、従来困難とされてきた条件において嫌気性古細菌の確実な保持を可能とし、安定した嫌気性処理システムを実現する。また嫌気性古細菌群を選別デザインし、嫌気性処理がこれまで苦手としていた低温条件でも有利に機能するように設計することで、汚泥発生量の低減及びバイオガス生成量を増加させ、既存の処理技術とは一線を画する革新的省エネルギーシステムを達成する。本研究によって開発される排水処理技術は、新材料とバイオテクノロジーの新規融合を通して生物学的排水処理の革新を狙うものである。

具体的には、本研究では、膜分離メタン発酵法を下水処理に適用させるための知見の収集を目的として、ラボスケールの反応槽を用いて室温条件で2種類の人工下水の連続処理実験を行った。

3. 研究の方法

本研究に用いた実験装置の概要を図1にまとめる。反応槽の有効容積は6Lであり、内部に分離膜 (Kubota 平膜) を一枚設置した。実験では2種類の人工廃水を用いて水理学的滞留時間 (HRT) を段階的に短縮するこ

とで、処理性能に及ぼす HRT の影響を評価した。他にも、汚泥発生量や物質収支、さらに従来の標準活性汚泥法と比較しての膜分離メタン発酵法の有用性を検討した。さらに、微生物群集構造解析により、どのような微生物が存在するのか、膜分離メタン発酵法は従来のメタン発酵と比べて、特徴のある微生物群集を形成するのかを検討した。

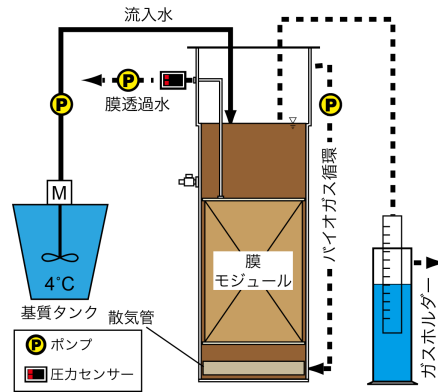


図1 実験装置の概要

4. 研究成果

(1)処理性能に及ぼす HRT および SS の影響  
表1に各リアクターの HRT 毎の処理性能の結果をまとめた。溶解性人工下水リアクターでは、HRT 48 h、24 h、12 h、6 h における膜透過水の平均 COD 濃度はそれぞれ 21、29、34、70 mg/L、平均 COD 除去率はそれぞれ 92、92、94、87%であった。HRT 48 h、24 h、12 h における膜透過水の平均 BOD 濃度はそれぞれ 12、13、11 mg/L で、平均 BOD 除去率はそれぞれ 95、96、97%であった。次に SS 含有人工下水リアクターでは、HRT 48 h、24 h、12 h、6 h における膜透過水の平均 COD 濃度はそれぞれ 16、21、19、31 mg/L、平均 COD 除去率はそれぞれ 92、94、94、92%であった。HRT 48 h、24 h、12 h における膜透過水の平均 BOD 濃度は全て 8 mg/L で、平均 BOD 除去率はそれぞれ 93、96、95%であった。両方のリアクターで HRT が 6 h に短縮されると一時的に処理水質が悪化したが、これは急に負荷を上げたことが原因であり、その後は徐々に処理性能が改善された。HRT12h の条件では、良好な処理水質を得ることができた。

表1 各 HRT での処理性能のまとめ

|       | HRT                | h                                      | 48     | 24      | 12      | 6       |
|-------|--------------------|--|--------|---------|---------|---------|
| 溶解性   | 有機物負荷              | kg-COD m <sup>-3</sup> d <sup>-1</sup> | 0.22   | 0.44    | 1.02    | 2.12    |
|       | COD                | mg L <sup>-1</sup>                     | 21 ± 2 | 29 ± 12 | 34 ± 21 | 70 ± 15 |
|       | COD 除去率            | %                                      | 92 ± 3 | 92 ± 3  | 94 ± 4  | 87 ± 3  |
|       | BOD                | mg L <sup>-1</sup>                     | 12     | 13      | 11 ± 2  | -       |
| SS 含有 | BOD 除去率            | %                                      | 95 ± 2 | 96      | 97 ± 1  | -       |
|       | 有機物負荷              | kg-COD m <sup>-3</sup> d <sup>-1</sup> | 0.16   | 0.34    | 0.65    | 1.52    |
|       | COD                | mg L <sup>-1</sup>                     | 16 ± 3 | 21 ± 7  | 19 ± 5  | 31 ± 14 |
|       | COD 除去率            | %                                      | 92 ± 6 | 94 ± 3  | 94 ± 3  | 92 ± 3  |
| BOD   | mg L <sup>-1</sup> | 8                                      | 8 ± 5  | 8 ± 1   | -       |         |
|       | BOD 除去率            | %                                      | 93     | 96 ± 2  | 95 ± 5  | -       |

(2) 汚泥生成量と物質収支の評価

HRT 12 hにおける各リアクターの汚泥生成量を算出した。汚泥生成量はVSSの増加量を除去CODの総量で除することにより算出した。溶解性、SS含有リアクターのHRT 12 hにおける除去CODあたりの汚泥生成量はそれぞれ0.1、0.11 g-VSS/g-CODremとなった。除去CODあたりの汚泥生成量の単位を換算し、汚泥転換率を算出すると、それぞれ15%、17%となった。なお、SS含有リアクターに関しては、分解されなかったセルロースも含まれているため、汚泥の割合が大きくなったと考えられる。一般的な標準活性汚泥法における除去CODあたりの汚泥生成量は0.3~0.6 g-VSS/g-CODremであると言われている。以上の結果より、SAMBRの汚泥生成量は従来の標準活性汚泥法の3~4割程度となることが確認された。

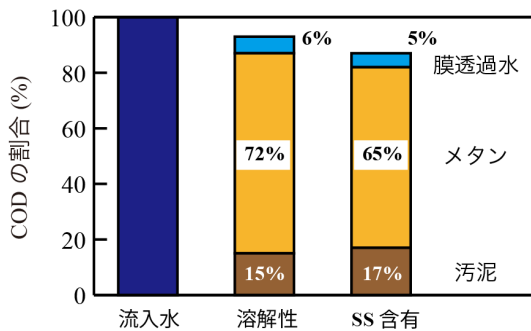


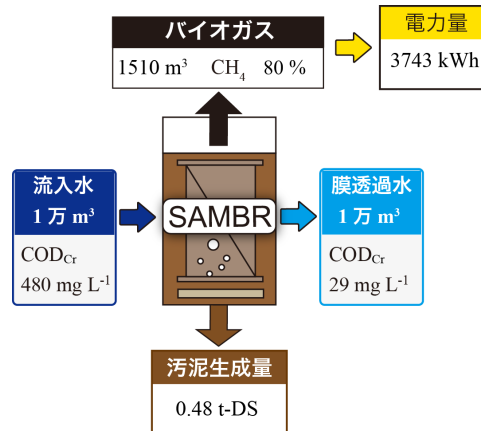
図2 HRT 12 hにおけるCOD物質収支

HRT 12 hにおける各リアクターのCOD物質収支を図2に示す。投入したCODを100%とし、膜透過水中のCOD、メタンガス、生成された汚泥の割合を算出した。発生メタンガス量は、発生バイオガス量を測定し、ガス組成からメタンガス量を求め、さらに化学量論より1 gのCODは0.35 Lのメタンガスと等価であること(21)を用いて算出した。生成された汚泥の割合は除去CODあたりの汚泥生成量より算出した。その結果、溶解性人工廃水リアクターでの投入COD 100%に対して、膜透過水6%、メタンガス72%、汚泥15%となった。またSS含有人工廃水リアクターに関しては、膜透過水5%、メタンガス65%、汚泥17%であった。膜分離メタン発酵法を用いた低濃度廃水処理は高いメタン収率であったことが示された。

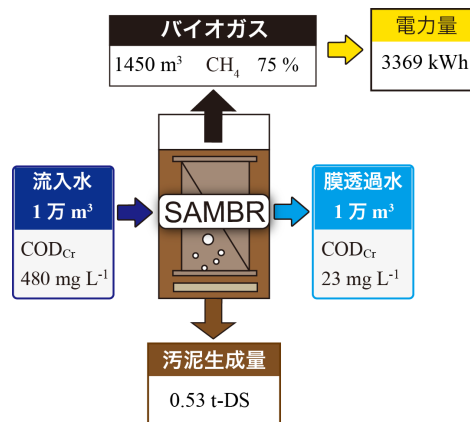
(3) 従来の下水処理プロセスとの比較

図3に1万m<sup>3</sup>の下水を膜分離メタン発酵法で処理した場合のケーススタディを示す。従来の下水処理プロセスにおいて、1万m<sup>3</sup>の下水を処理した際、2.36 t-DSの下水汚泥が生成されると報告されている(初沈汚泥と余剰汚泥の割合は50:50とする)。また、これらの汚泥を嫌気性処理した場合、およそ1085 m<sup>3</sup>のバイオガス(メタン、60%)が生成され、1.32 t-DSの消化汚泥が排出される。

また、生成したバイオガスを電力換算すると、2017 kWhの電力に換算される(発電効率は0.30とする)。



(a) SS含有系リアクターの結果



(b) 溶解性リアクターの結果

図3 SAMBRによる下水処理のケーススタディ(処理規模1万m<sup>3</sup>/日)

膜分離メタン発酵法に関しては、溶解性リアクターにおいて下水1万m<sup>3</sup>に対して、バイオガスが1510 m<sup>3</sup>(メタン、80%)生成され、汚泥が0.48 t-DS発生することが示された。SS含有リアクターに関しては、下水1万m<sup>3</sup>に対して、バイオガスが1450 m<sup>3</sup>(メタン、75%)生成され、汚泥が0.53 t-DS発生することが示された。また、発生したメタンガスを電力換算すると、溶解性、SS含有リアクターそれぞれ、3743 kWh、3369 kWhの電力に変換されることが示された。これは、活性汚泥法で発生した下水汚泥を嫌気性処理した際に出るバイオガスから算出された電力量の1.5倍以上の値であった。膜分離メタン発酵法を用いた場合の下水汚泥生成量は、標準活性汚泥法のおよそ1/4程度であり、汚泥生成量の削減が期待できることが示された。これらの結果から、膜分離メタン発酵法により良好な水質、効率の良いエネルギー回収、汚泥生成量の削減が同時に実現する可能性が示唆された。

(4) 微生物群集構造解析

#### 古細菌の群集構造

溶解性人工下水を与えたりアクターから採取した汚泥の古細菌クローンライブラリを解析した。64 クローン中5つの異なる OTU を持ち、全クローン中の 70.3%が酢酸資化性メタン生成古細菌である *Methanosaeta* であった。その他は、全て水素資化性メタン生成古細菌で、*Methanoregula* (25.0%)、*Methanobacterium* (3.1%)、*Methanospirillum* (1.6%)で構成された。また、SS 含有人工下水を与えたりアクターから採取した汚泥の古細菌クローンライブラリでは、72 クローン中6つの異なる OTU を持ち、全クローン中の 47.2%が酢酸資化性メタン生成古細菌である *Methanosaeta* であった。その他は、全て水素資化性メタン生成古細菌である *Methanoregula* (47.2%)、*Methanobacterium* (2.8%)、*Methanolina* (1.4%)、*Methanosphaerula* (1.4%)で構成された。

#### 真正細菌群集構造

溶解性人工下水を与えたりアクターから採取した汚泥の門レベルでの真正細菌クローンライブラリでは、125 クローン中に 54 の OTU を持ち、門レベルで分類すると 11 のグループに分かれている。また、unclassified の細菌が多く検出された (13 OTUs、24 clones)。主要なものは、*Firmicutes* (36.8%)、*Bacteroidetes* (17.6%)、*Proteobacteria* (10.4%) の3グループであった。溶解性では *Firmicutes* の *Clostridium* が最も多く検出された (23/125 clones)。*Clostridium* は偏性嫌気性細菌であり、メタン発酵においては加水分解、酸生成に関わる等様々な反応に関与している重要な細菌であると言われている。

SS 含有人工下水を与えたりアクターから採取した汚泥の門レベルでの真正細菌クローンライブラリでは、113 クローン中に 53 の OTU を持ち、門レベルで分類すると 8 つのグループに分かれている。また、unclassified の細菌が多く検出された (19 OTUs、32 clones)。主要なものは、*Bacteroidetes* (23.9%)、*Proteobacteria* (22.1%) の2グループであった。

#### 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 4 件)

渡邊亮哉、高橋慎太郎、砂庭崇之、若原慎一郎、李玉友、膜分離メタン発酵法を用いた人工下水の処理特性と微生物群集構造解析、下水道協会誌、査読有、Vol. 51 No. 617 (2014/03)、2014、105-116

渡邊亮哉、若原慎一郎、李玉友、嫌気性膜分離法による下水処理技術の現況と課題、用水と廃水、査読有、Vol. 55、No. 12、

2013、31-45

渡邊亮哉、高橋慎太郎、砂庭崇之、若原慎一郎、李玉友、浸漬型嫌気性膜分離法を用いた浮遊物質含有人工下水の処理性能と微生物群集構造解析、水環境学会誌、査読有、Vol. 36、No. 6、2013、157-164  
[https://www.jstage.jst.go.jp/article/jswe/36/6/36\\_157/pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jswe/36/6/36_157/pdf)

砂庭崇之、高橋慎太郎、若原慎一郎、李玉友、原田秀樹、浸漬型嫌気性膜分離法 (SAMBR) を用いた人工下水の処理性能、土木学会論文集 (環境)、査読有、Vol. 68、No. 7、2012、409-417  
[https://www.jstage.jst.go.jp/article/jscejer/68/7/68\\_III\\_409/pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jscejer/68/7/68_III_409/pdf)

#### 〔学会発表〕(計 6 件)

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、2014.03.19、仙台

渡邊亮哉、砂庭崇之、高橋慎太郎、若原慎一郎、李玉友、人工下水を用いた嫌気性膜分離法 (SAMBR) の処理性能、第 25 回環境システム計測制御学会 (EICA) 研究発表会、2013.10.30、仙台  
砂庭崇之、渡邊亮哉、高橋慎太郎、若原慎一郎、李玉友、嫌気性膜分離法 (AnMBR) を用いた都市下水の処理に及ぼす温度の影響、第 50 回下水道研究発表会、2013.08.01、東京

R. Watanabe、T. Sunaba S. Takahashi、S. Wakahara、Y. Y. Li、Treatment performance of synthetic municipal wastewater by submerged anaerobic membrane bioreactor (SAMBR)、13th World Congress on Anaerobic Digestion、P0910、2013.06.28、Spain・Santiago de Compostela

渡邊亮哉、砂庭崇之、李玉友、高橋慎太郎、若原慎一郎、浸漬型嫌気性膜分離法 (SAMBR) を用いた人工下水処理における微生物群集構造解析、第 47 回日本水環境学会年会、2013.03.13、大阪

砂庭崇之、李玉友、高橋慎太郎、若原慎一郎、浸漬型嫌気性膜分離法 (SAMBR) による下水の二次処理の可能性、第 49 回下水道研究発表会、2012.07.26、神戸

#### 〔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

( )

研究者番号：

##### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：