

北海道大学工学部 正員 井上雄三 正員 神山桂一

1. はじめに 一般に微生物反応プロセスのモデルとして, Monod モデル (あるいは Michaelis-Menten 型モデル) が用いられているが, これは微生物が酵素反応を中心として反応を進めていることから得られた経験的モデルである。一方, 微生物の基質消費反応は, 极めて低濃度まで 0 次で進行するとして, 微生物集塊内での反応を伴う拡散理論から微生物反応プロセスを表現している報告もある。^{1), 2)} 他に一次反応モデルで扱かわれているものもあるが, 基本的には Michaelis-Menten 型 (以下 MM 型と略す) に含まれる。本報では, これらの 2 つのモデルを比較検討し, MM 型モデルのパラメータの物理化学的意味とその特性を明らかにするものである。

2. 理論的考察 (1) 拡散モデル 廃水処理をも含めて微生物反応プロセスの微生物反応体の形状には, 球形, 球殻, 円筒, 平板などがあるが, ここでは最も単純な平板形生物膜反応プロセスについて報告する。具体的に言うと, 回転円板法および平板近似の可能なチューブ接触酸化法, メタン発酵法などがあるが, 定常拡散モデルが成立するものとして考察を行なう。反応の全過程は(1)境界層での基質の移動, (2)生物膜内での消費を伴う拡散輸送で表わされる。従って, 基礎式は(1), (2)式で与えられる。ここで, U_r は生物膜単位湿潤体積当りの基質消費速度であり, 濃度に依存せず一定値をとる (0 次反応)。境界層における基質フラックス N_L は単位生物膜表面積当りの基質除去速度 ($N = v(-dc/dt)/A$) に等しくなる。ここで, K_L は境界層における物質移動係数で $K_L = D_L/s$ で表わされる。生物膜内では, 図-1 に示したように臨界濃度分布 (C) を境界に, (a), (b) 2 つの濃度分布が存在するので, 境界条件(a) $dc/dx|_{x=x_0} = 0$, $C(x=x_0) = C_S$, (b) $dc/dx|_{x=x_a} = 0$, $C(x=x_a) = 0$, $C(x=0) = C_S$ で解き, 生物膜表面におけるフラックスで表現すると, (3)~(6) 式が得られる。

但し, K_F は, 渡辺ら⁴⁾が定義した見かけの生物膜内物質移動係数である。また, E は基質の消費に有効な生物膜の割合を示し, (7) 式で与えられる。次に境界層における物質収支により $N_L = N_F$ となるから, 除去フラックスは, (8) 式で与えられる。ここで $K_{(1)}$ は見かけの総括物質移動係数と定義され, (9) 式で与えられる。以上のようにして 0 次反応を伴う拡散モデルが示されたわけであるが, 一般に微生物反応プロセスに応用されている生物膜の厚さには分布があり, 均一系とは見なしづらい。従って均一系のモデルで分布系の現象を正しく表現するには限界を生じてくるものと思われる。加藤⁵⁾は均一系の

$N_L = K_L \cdot (C_L - C_S)$ (1) $D_F \frac{d^2 C}{dx^2} = U_r$ (2)
 $N_F(a) = U_r \cdot x_a = K_F(a) \cdot C_S$ (3) $K_F(a) = U_r \cdot x_a / C_S$ (4)
 $N_F(b) = (U_r \cdot x_a) E = K_F(b) \cdot C_S$ (5)
 $K_F(b) = (U_r \cdot x_a) E / C_S = (U_r \cdot x_a / \sqrt{C_S}) / K_L$ (6)

$E = x_a / x_d = v/v_m$ (7)
 $N = K_{(1)} \cdot C_L$ (8) $K_{(1)} = (1/K_L + 1/K_F)^{-1}$ (9)

$$R = R_m \frac{C_L}{K_m + C_L} \quad (10)$$

$$N = \frac{N_{max}}{K_m + C_L} \cdot C_L = \left(\frac{1}{N_{max}} + \frac{1}{K_m} \right)^{-1} \quad (11)$$

$$N = V \cdot R / A, \quad N_{max} = V \cdot R_m / A \quad (12)$$

$$\left(\frac{1}{K_L} + \frac{1}{K_F} \right)^{-1} = \left(\frac{1}{N_{max}} + \frac{1}{K_m} \right)^{-1} \quad (13)$$

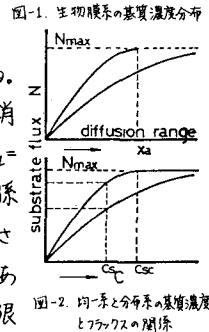
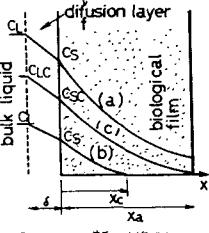
$$K_L = N_{max}/K_m \quad (14) \quad K_F = N_{max}/C_L \quad (15) \quad K_m = N_{max}/K_L \quad (16)$$

$$C_L = \frac{1}{2} (C_S + \sqrt{C_S^2 + 4K_m \cdot C_S}) \quad (17)$$

$$K_F = 2N_{max} / (C_S + \sqrt{C_S^2 + 4K_m \cdot C_S}) \quad (18)$$

$$G_L = C_S \cdot E^2 + (C_{LC} - C_S) E \quad (19)$$

$$K_L = V/A \cdot v_m / (C_{LC} - C_S) \quad (20)$$



A: 全生物膜表面積 (m^2),
 $C, C_L, C_{LC}, C_S, C_{SC}$: 基質濃度 (m^3/m^3), D_F : 生物膜内拡散係数 (m^2/hr), E : 有効率 ($-$), K_F : 生物膜内物質移動係数 (m^3/hr),
 K_L : 境界層の物質移動係数 (拡散係数, 境界層厚さ)
 (m^2/hr) , $K_{(1)}$: 見かけの総括物質移動係数 (m^3/hr),
 N : 除去フラックス ($g/m^2/hr$),
 S : サブトラクタ,
 F : 生物膜, N_{max} : 最大除去フラックス ($g/m^2/hr$), K_m : 飽和定数 (m^3/m^3), U_r : 単位湿潤体積当りの除去速度 ($m^3/m^3/hr$), V : 槽容積 (m^3), v : 0 次反応速度, v_m : 最大除去速度 ($m^3/m^2/hr$),
 x_a, x_C : 生物膜厚さおよび $C=C_0$ における膜厚深さ

(2) MM 型モデル 微生物体の形状が異なつ

ても、またその代表長さ（例えば生物膜厚）が著しく違っていても、液本体の基質の減少パターンがMM式に酷似していることは周知のところであり、かつ驚くべきことである。以下に前述のモデルと比較することによってMMモデルのパラメータを解き明し、その物理化学的な意味を考察する。液本体における基質濃度の減少速度（除去速度）は、式(10)で表わされるが、これを式(12)で示される除去フラックスで表わすと、式(11)を得る。この式は式(8)の形と全く同一となり、かつ互いに等しいので、(13)式が成立する。また(13)式で $C_L \rightarrow 0$ とすると、 $K_F \rightarrow 0$ 、 $N_{max}/C_L \rightarrow 0$ 、また $C_L \gg K_m$ とすると $1/K_L \ll 1/K_F$ 、 $1/(N_{max}/K_m) \ll 1/(N_{max}/C_L)$ となることから、(14)、(15)式が成立する。従って、(16)式から飽和定数 K_m は、最大除去フラックス N_{max} と境界層における物質移動係数 K_L の比で決まる物理化学定数となることがわかる。(16)式によって K_m は実験的に容易に求められるので K_L も簡単に求められる。一方、(15)式は生物膜の物質移動係数を表わしている。今、 $C_s = (K_L/(K_L + K_F)) \cdot C_L$ を用いて式中の C_L を生物膜表面濃度 C_s に変換すると、(17)、(18)式が得られる。(18)式は $C_s \ll K_m$ あるいは $C_s \gg K_m$ になると、それぞれ $(N_{max} \cdot K_L)^{1/2} \cdot C_s^{1/2}$ 、 N_{max}/C_s となり、生物膜表面濃度 C_s の $-1/2$ 乗と -1 乗に比例する式を与える。これは拡散モデルから得られた(6)、(8)式と同形になる。

3. 拡散モデルとMMモデルの評価 (9)式において K_L の値が定まらないと K_F を計算できず、従って表面濃度も求められなくなり、(8)式の有効性が失なわれる。一般的には回分実験の低濃度の部分より求められているが、筆者らは、以下のようにしてより合理的に K_L を求め、(14)式から得られる値と比較した。(2)式より得られた解を有効係数Eで表わすと(19)式を得る。また濃度分布(C)で境界層における収支をとると、(20)式が成立する。表-1は以上のようにして得られたデータの一部を表にまとめたものである。ここで $K_L(D)$ は拡散モデル、 $K_L(M)$ はMMモデルの値であり、両者の違いはそれほど大きくなないことがわかる。図-3は酢酸基質のメタン発酵槽のバッチ実験の結果で、図-4はグルコース基質の回転円板槽の結果を示したものである。図中の実線は理論値、プロットは実験値を示す。両図ともに、拡散モデルよりもむしろMMモデルの方が実験値に一致していることがわかる。しかし、 $C_s - K_F$ プロットより拡散律速モデルでも表現されうることも示されている。次に(14)式の妥当性を検証するために、相対流速と最大除去フラックスをパラメータとして得られた実験結果を示す。相対流速は境界層厚さ s と $1/\sqrt{Rm}$ の関係があるから、 K_L は流速の $1/2$ 乗に比例する。従って(16)式から K_m は相対流速の $-1/2$ 乗に比例する。図-5は回転円板法において Rm と K_m の関係を示したもので、(16)式が正しいことを示している。以上の Rm （流速）- K_m 、 Rm - K_m の関係より、(14)式の正しさが示された。

しかしながら、MMモデルは次のような限界があることも理解しておかなければならぬ。即ち、本モデルは微生物集塊内の情報は全く取扱っていないモデルであるから、その情報を必要とするような場合（生物膜内で中間体が生成され、阻害作用が起る、あるいは逐次反応が生じる）には、その能力を超えることになる。

参考文献
 1) 井上・神山: 11回日本工学会研究討論会録集(1970)
 2) 小林・山川: 酸素 1, 42, 3 (1970)
 3) Hattori, T., Ishihara, H., and Nishizuka, K.: Proc. water Technol., 1965
 4) 田村・浦山・高見: 11回日本工学会研究討論会録集(1970)
 5) 加藤・久保・清: 滑水論文(1970)
 6) Leibler, L.C.: Physicochemical hydrodynamics, Prentice-Hall, 1973
 7) 稲谷: 33-2, 特許第363(1970)

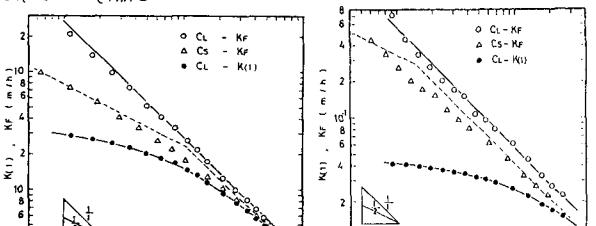


図-3 基質濃度と物質移動係数の関係（メタン発酵槽）

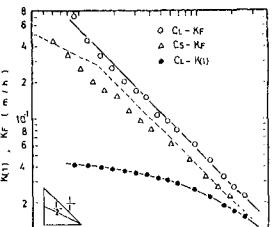


図-4 基質濃度と物質移動係数の関係（回転円板槽）

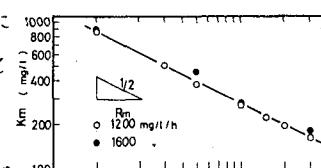


図-5 回転速度と飽和定数の関係（回転円板槽）

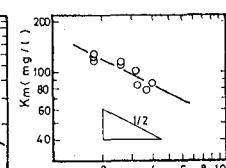


図-6 流速と飽和定数の関係（メタン発酵槽）

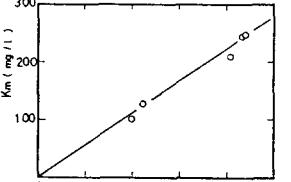


図-7 最大除去速度と飽和定数の関係（回転円板槽）