

VII-215

分離膜表面に付着した生物膜の動力的解析

北海道大学大学院 正員 木村 克輝 フェロー 渡辺 義公
正員 岡部 聡 学生員 佐藤 久

1. はじめに

筆者らは、回転平膜表面に硝化細菌を含む生物膜を保持しながら膜ろ過を行い、アンモニアの酸化と厳密な固液分離を同時に達成できる浄水処理プロセスを提案している。先に渡辺らが構築した生物膜モデルを用いて、平膜表面に保持した生物膜の硝化特性を動力的に解析した結果、筆者らが提案するプロセスにおいては、膜ろ過に伴う生物膜への物質移動の促進、処理水を生物膜底部から得ることなどによって、低濃度アンモニアの酸化が非常に効率的に行われていることを示した¹⁾。

一方で、生物膜断面の形状観察、生物膜内部における基質濃度分布測定が可能となるなど、近年の生物膜関連分野における研究手法の進歩・発達にはめざましいものがある。これらの手法を用いた研究成果によれば、生物膜の構造は不連続かつ極めて不均一なものであり²⁾、従って生物膜全てを均一な連続体とみなして解析を行っていた従来の生物膜モデルは現象を正確に表現し得ないという見解が広く受け入れられつつあるようである。

筆者らが既報で行った解析も、生物膜を均一な連続体と仮定したモデルを用いたものであるため、前述したような観点からみれば、その解析結果の妥当性を無条件に主張することはできない。しかしながら、回転平膜表面において、膜ろ過によって強制的に引きつけられて形成される生物膜は、通常観察される自然発生的な生物膜と異なり、連続的で、均一な構造を有している可能性もある。

本報では、回転平膜表面に保持した生物膜断面の形状観察、微小電極による生物膜内部のアンモニア濃度分布の測定等を行い、筆者らが既報で用いていた一次元連続生物膜モデル適用の妥当性について検討した結果を述べる。

2. 実験方法

まず、回転平膜表面に十分な硝化活性を持つ生物膜を形成させるための連続ろ過運転を行った。運転開始に先立ち、微生物懸濁液を全量ろ過することで膜表面に微生物を固定した。このときの微生物固定量は 0.61 g-SS/m^2 であった。微生物固定後、水道水に塩化アンモニウム、無機炭素を主体とする基質を混合したものをろ過原水として、膜透過水 $F_h \times 0.8 \text{ m}^3/\text{d}$ 、回収率90-95%、膜回転数50rpmに設定して連続運転を開始した。連続運転を850時間継続した後、平膜を付着生物膜ごとカッターナイフで切り出し、一部の試料についてはOCTコンパウンドを用いて包埋後、マイナス20度で凍結させて生物膜構造の固定を行い、一部の試料については微小電極を用いた生物膜内アンモニア濃度分布測定に供した。構造を固定した生物膜試料は、マイクロームによるクライオセクションングを行った後に顕微鏡を用いた断面形状観察に供した。

3. 実験結果と考察

図-1に連続ろ過運転における吸引圧力とアンモニア性窒素濃度の経時変化を示す。ろ過運転継続に従って吸引圧力は緩やかに上昇した。処理水中のアンモニア性窒素濃度は徐々に減少し、約300時間経過時以降は良好なアンモニアの硝化が観察された。図-2に連続運転終了時における生物膜断面観察の結果を示す。下水処理等において形成される生物膜の場合と異なり、本実験で回転平膜表面に形成された生物膜は、緻密で均一な構造を有していたことが図-2より明らかである。したがって、本実験で形成された生物膜については、均一な連続体を仮定した従来の生物膜モデルが適用できるものと考えられる。

生物膜モデルを用いた計算の過程で、最も重要なパラメータとして挙げられるのが生物膜の基質消費活性 r ($\text{g-NH}_4^+-\text{N/m}^3/\text{h}$)である。既報では、 r の決定を回分基質消費試験の解析から行ったが、この方法では、 r の決定にある程度の恣意性が介在することを否定できない。本研究では、より客観的に r を決定するために、回分基質消費試験におけるゼロ次基質消費フラックス F^0 と、生物膜厚 L の間に存在する関係 $F^0 = r \cdot L$ より r を求めることとした。 L としては図-2の画像解析から平均値として求めた $87 \mu\text{m}$ 、 F^0 として連続運転終了直前に行った回分試験より求めた $0.08 \text{ g-NH}_4^+-\text{N/m}^2/\text{h}$ を用いた。これらの値より r として $920 \text{ g-NH}_4^+-\text{N/m}^3/\text{h}$ を得た。この r を用いて、式(1)で表される一次元生物膜モデルにより、生物膜内部におけるアンモニア性窒素濃度分布を計算した。

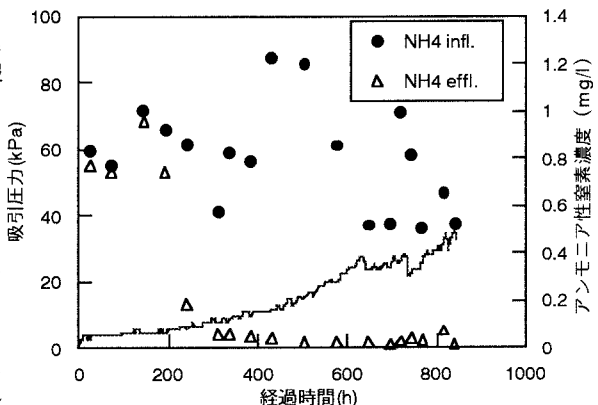


図-1 吸引圧力・アンモニア濃度経時変化

キーワード：膜、生物膜、アンモニア、微小電極、生物膜モデル

連絡先：〒060-8628 札幌市北区北13西8 tel 011-706-6266/fax 011-706-7890

$$C = \frac{r}{2D} z^2 - \frac{rL}{D} z + C_s \dots (1)$$

ここで、 C ：生物膜中アンモニア性窒素濃度（ g/m^3 ）、 D ：拡散係数（ m^2/h ）、 z ：生物膜表面からの深さ（ m ）、 C_s ：生物膜表面におけるアンモニア性窒素濃度（ g/m^3 ）である。この計算によって求められる生物膜内部のアンモニア性窒素濃度分布と、微小電極によって実測した生物膜内部のアンモニア性窒素濃度分布を比較することで、式（1）で表されるモデル適用の妥当性評価を試みた。

図-3に計算の結果と実測値をあわせて示す。計算にあたって、 D は文献値を、 C_s は微小電極による測定値の平均値を用いた。図-3より、モデルによる計算値と、微小電極による実測値は、よく一致することがわかる。計算に用いた r の持つ客観性と、図-3の結果から、本実験で形成されたような緻密な生物膜については、均一な連続体を仮定した従来の生物膜モデル適用は妥当であるといえる。

次に、連続運転時のアンモニアフラックスについて考察した。図-4に様々な液本体アンモニア性窒素濃度に対して生物膜モデルより計算したアンモニアフラックス（ $r=920$ ）と、連続実験時において実測したアンモニアフラックスを示す。ここで連続実験時のフラックスとしては、安定したアンモニア硝化が観察された300時間以降のデータのみを用いている。

本処理法においては、膜ろ過に伴って生物膜への物質移動が促進されるため、生物膜モデルで計算されるフラックスよりも連続運転時のアンモニアフラックスは高くなることが予想されたが、図-4より明らかにように、実測アンモニアフラックスの方がモデルで計算したアンモニアフラックスよりも低くなってしまっている。これは、生物膜モデル適用の妥当性あるいはモデルに使用した r の値の客観性が否定されているのではなく、図-4に示したような低濃度域においてはアンモニアの硝化がゼロ次反応で進行しない、ということが表現されたと考えられる。

連続実験で形成された生物膜の1次アンモニア消費速度定数を704（ $1/\text{h}$ ）と推定し（紙面の都合で過程の詳細は省略）、モデル中の反応項をゼロ次から1次に変更して再度計算を行った。図-4に示す通り、1次反応として扱った場合は、計算値よりも実測フラックスの方が高くなり、連続運転時における膜ろ過に伴う移流の効果が表現することができた。

4. まとめ

本研究では、一次元連続生物膜モデル適用の妥当性を、回転平膜表面に付着した硝化細菌生物膜を対象として検討した。微小電極を用いた測定より、本研究で対象としたような非常に緻密かつ均一な構造を有している生物膜については、モデルの適用が妥当であることが示された。また、連続実験で扱ったような低濃度領域の解析にあたっては、モデル中の反応項を1次反応として記述する必要性が示された。

参考文献

- 1) 木村・渡辺・大熊（1996）：回転平膜表面に付着した生物膜による低濃度アンモニア性窒素の硝化特性、土木学会論文集 No.552 7-1, pp. 43-52
- 2) 岡部・内藤・渡辺（1998）：FISH法を用いた都市下水生物膜内におけるアンモニア酸化細菌の空間分布の解析、水環境学会誌 Vol. 22, No. 3, pp. 25-32

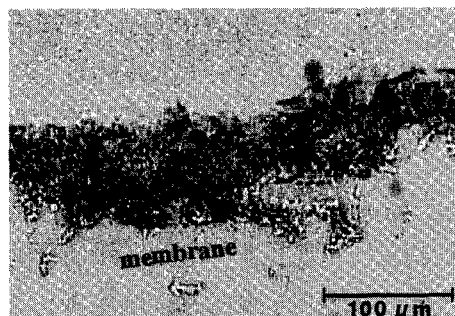


図-2 回転平膜表面付着生物膜の垂直断面

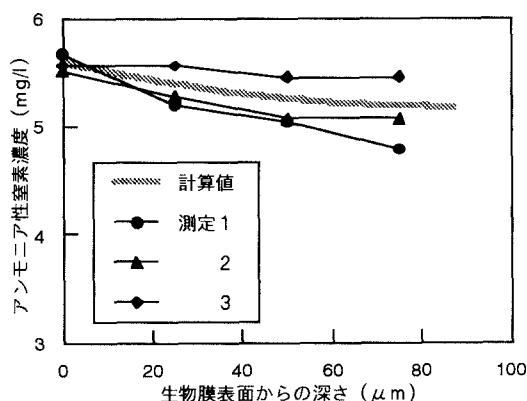


図-3 計算値と微小電極による測定値の比較

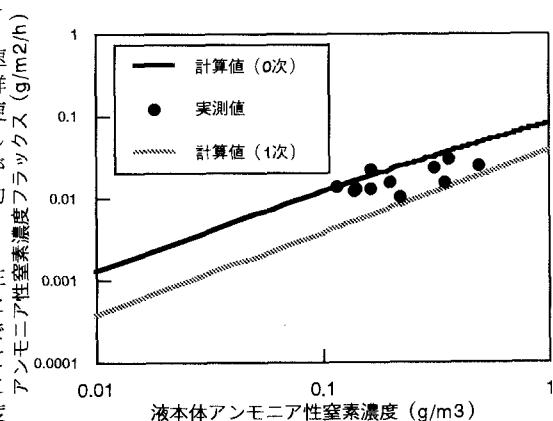


図-4 計算によるアンモニアフラックスと実測値の比較