

活性汚泥の基質除去・代謝に関する動力学モデル

KINETIC MODEL OF SUBSTRATE REMOVAL
AND METABOLISM BY ACTIVATED SLUDGE

森山克美*・粟谷陽一**・久米秀俊***

By Katsumi MORIYAMA, Youichi AWAYA and Hidetoshi KUME

1. はじめに

活性汚泥法は、都市下水をはじめ種々の廃水処理に利用されている。その浄化機構の研究、解析手法は、BOD₅、MLSS 等の実測データを基礎とした現象論的なものからしだいに速度論的な解析法へと移ってきた。

これらの研究過程において、浄化反応の支配因子を微生物外部の液相中基質濃度としたモデルとして Monod¹⁾の式を利用した一相説や、Eckenfelder ら²⁾の二相説等が提案されてきた。さらに、浄化反応を担う活性汚泥の構成成分が、基質除去に伴う活性汚泥内基質蓄積のため変動し、このことが液相中基質除去や汚泥の沈降性に影響を及ぼすという機構を上記の一相説、二相説等に加えたモデルが、主としてグルコースを基質とした研究結果をもとにして提案されてきた^{3)~7)}。

一方、Walters ら⁸⁾も種々の基質を用いて活性汚泥の基質蓄積についての研究を行い、グルコース・酵母抽出物を基質としたときは、活性汚泥内に炭水化物、PHBの蓄積を認めた。しかしながら、速度論的な検討はされていないが、基質の種類によっては基質蓄積が認められないことや、すべての活性汚泥システムで必ずしも基質蓄積は生じないであろうことを述べている。また、益永ら⁹⁾もグルコース、キシロース等の糖類を用いた実験で、キシロースを基質とした場合、グルコースの場合ほどの基質蓄積のないことを報告している。

このように基質の違いによっては、汚泥内基質蓄積を含め、基質の除去、代謝過程の速度論上の支配要因が変化することが予想される。このことは、処理システムの運転操作条件や基質の生物分解性、微生物の培養環境としての基質の一般的性状等に対応した微生物種の優占

化、および微生物個体の基質に対する馴致等によるものとも考えられる。活性汚泥による浄化過程のモデル化にあたっては、このことを考慮しなければならないと考えられる。

以上のような点について考察するため、本研究では炭水化物系基質としてグルコース、タンパク質系基質としてペプトンを用い、これらを生物分解性の異なる基質とし、馴致程度の異なる活性汚泥による基質除去の実験を行った。本研究は、このような実験における活性汚泥による基質除去・代謝過程のモデル化を行い、基質の違いによる基質除去速度、代謝速度の変化、および活性汚泥内基質蓄積量の変化に検討を加え、さらに、活性汚泥法による都市下水処理場の活性汚泥および最初沈殿池流出下水を用いて行った回分実験の結果との対応を試み、都市下水の浄化機構に検討を加えたものである。

2. 実験による浄化過程の検討

(1) 実験方法

実験には、下水処理場返送汚泥を表-1に示す基質濃度、F/M比で培養した活性汚泥を用いた。F/M比は、

表-1 前培養基質組成(水道水 1 l 当たり)

| 汚泥名 | グルコース培養汚泥 | グルコース・ペプトン混合基質培養汚泥 |
|------|--------------------------------------|-----------------------------|
| F/M比 | 0.2 | 0.3 |
| 基質 | グルコース 1000 mg | グルコース 450 mg ペプトン 750 mg |
| 窒素源 | NH ₄ Cl 400 mg | NH ₄ Cl 300 mg |
| 無機塩類 | KH ₂ PO ₄ | 75 mg |
| | K ₂ HPO ₄ | 260 mg |
| | NaCl | 13 mg |
| | MgSO ₄ ·7H ₂ O | 100 mg |
| | CaCl ₂ ·2H ₂ O | 75 mg |
| | FeCl ₃ ·6H ₂ O | 0.5 mg |

* 正会員 工修 鹿児島工業高等専門学校助手 土木工学科

** 正会員 工博 九州大学教授 工学部水工土木工学科

*** 正会員 工修 運輸省

表-2 分析項目と分析方法

| 分析項目 | 分析方法 |
|----------|--|
| 液相中グルコース | アンスロン硫酸法 |
| 液相中タンパク質 | Lowry-Folin 法 |
| 汚泥内炭水化物 | アンスロン硫酸法 |
| 汚泥内タンパク質 | 前処理後 ¹⁰⁾ , Lowry-Folin 法 |
| DNA | 前処理後 ¹¹⁾ , Diphenylamine Burton 変法 ¹²⁾ |
| MLSS | 0.45 μ m membran filter 法 |
| TOC | 全有機炭素測定装置 |
| TN | 全窒素測定装置 |

表-3 ペプトン分析結果 (mg/l)

| ペプトン | タンパク質 | TOC | TN | COD _{cr} |
|------|-------|-----|----|-------------------|
| 100 | 58 | 43 | 13 | 138 |

COD_{cr}/MLSS 比である。培養は、1日1回の fill and draw 方式で行った。実験時には、前培養基質投与後 24 時間経過した汚泥を 20°C の無機塩溶液（組成は表-1 の無機塩類と同じ）で洗浄したものを用いた。実験は回分式で行い、基質の除去特性、基質の活性汚泥内蓄積、生物増殖の関連を調べた。前培養、本実験ともに 20°C の恒温室で行った。分析項目、分析方法は表-2 に示す。

タンパク質は牛血清アルブミン、DNA は仔牛胸腺 DNA、汚泥内炭水化物はグルコースをそれぞれ標準物質とした。生菌数と DNA 濃度は、必ずしも一義的に対応しないが、浄化過程を担う活性物質質量を表わすものとして DNA 濃度を測定した。

汚泥内基質蓄積量の変化を検討するには、ある基準物の単位量当たりの基質蓄積量という表示が必要である。基準物としては、その値に蓄積量が含まれず、生物量の指標であることが条件となる。従来の研究において基質にタンパク質を含まない場合においては、汚泥内タンパク質を基準としたもの^{9), 8)}や、糖を基質とした場合、MLSS 濃度から汚泥内糖類蓄積量を引いた残りを基準としたもの⁷⁾がある。また、宗宮ら⁹⁾は、活性汚泥においては、DNA 濃度が生物量を示す指標として有効であることを報告している。以上のこと、および本研究に用いた基質にタンパク質が含まれることから、本研究では、汚泥内基質蓄積量の変化を検討するにあたり、基準物として DNA を採用した。

表-3 にペプトンの分析結果を示す。フェノール硫酸法による炭水化物、および、ネスラー法によるアンモニア態窒素は検出されなかった。

(2) グルコース培養汚泥による実験結果 (Run-1)

実験開始時の MLSS は、約 450 mg/l である。実験結果を図-1~3 に示す。図-1, 2 によると、グルコースは、初期に零次反応的に液相中から除去され、同時に単位 DNA 当たり汚泥内炭水化物 P_g/X は急激に増加

する。X は DNA 濃度 (mg/l)、 P_g は汚泥内炭水化物濃度 (mg/l) であり、生物構成成分と液相から除去され汚泥内に蓄積された基質の和である。X および P_g は、懸濁液 1 l 当たりの量である。初発グルコース濃度 100, 200 mg/l

の場合、液相中グルコース濃度がほぼ零になった時点で P_g/X が最大値に達し、以後、その値は緩やかに減少している。初発グルコース濃度 400, 600 mg/l では、液相中グルコース除去速度は、 P_g/X が最大値に近くなると急激に低下し、 P_g/X がおおよそ一定値を保っている時間内は一定である。その後、液相中グルコースが消失した頃から P_g/X は減少している。以上の現象は、従来の研究^{9), 7)}において言及されているように、液相から除去された基質の大部分は、代謝される前に汚泥内に蓄積され、この蓄積物が液相中基質の除去過程に影響を与えていることを示している。

以上のような基質の汚泥内蓄積とその代謝が生じている間の DNA の変化を図-3 に示す。初発グルコース濃度 100, 200 mg/l の場合、 P_g/X が初期値に近くなると DNA の増加は停止している。初発グルコース濃度

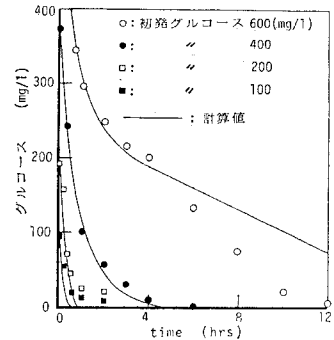


図-1 液相中グルコースの変化 (Run-1)

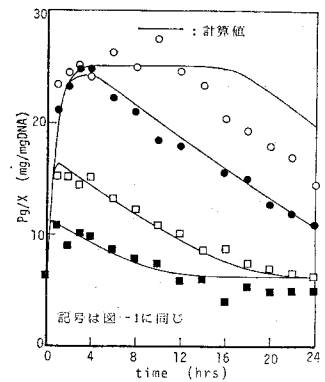


図-2 汚泥内炭水化物の変化 (Run-1)

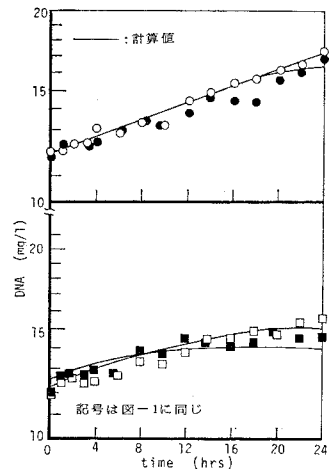


図-3 DNA の変化 (Run-1)

400, 600 mg/l では、回分実験中には P_g/X が初期値まで低下せず、その間、DNA は増加を続けている。すなわち、活性汚泥微生物の増殖は、液相中基質の影響を直接には受けず、汚泥内蓄積基質が、その直接の支配因子であることがわかる。

(3) グルコース・ペプトン混合基質培養汚泥による実験結果 (Run-2)

Run-2 は、グルコース・ペプトン混合基質を用いて都市下水処理場返送汚泥を培養してゆく過程での活性汚泥微生物の基質除去、代謝過程の変化と最終的に馴致された時点での浄化過程を検討するために行った実験である。

回分実験に用いた基質は、グルコース 150 mg/l、タンパク質 140 mg/l (ペプトンとしては 250 mg/l である) の混合基質である。このグルコース・ペプトン混合基質を用いた場合、グルコース除去の結果としての汚泥内炭水化物とペプトン除去の結果としての汚泥内タンパク質の二種が汚泥内蓄積物となる。実験開始時の MLSS は、およそ 500 mg/l とした。

実験結果を図-4~6 に示す。図-4 に示すように、汚泥内蓄積物の炭水化物に着目すると、培養経過日数 20 日以内で、 P_g/X の挙動はそれ以降と変わりなくなる。20 日間の培養で、図-2 に示す

Run-1 の結果と同様、グルコースを汚泥内に炭水化物として蓄積するようになることがわかる。単位 DNA 当たりのグルコース除去速度は、培養前、および培養経過日数 20 日以降でそれぞれ約 16 mg/mgDNA/day, 500~600 mg/mgDNA/day であった。

汚泥内に蓄積されたタンパク質の変化を図-5 に示す。 P_n は汚泥内タンパク質濃度 (mg/l) であり、 P_g と同様、生物構成成分と液相から除去され汚泥内に蓄積された基質の和である。基質投与前の P_n/X の値が培養経過日数 20 日で半減し、また、液相中基質のタンパク質は、汚泥内に蓄積されるようになる。このとき、液相中タンパク質の除去速度は、図-6 に示すように、20 日間の培養により培養前に比較して速くなっている。その除去過程は、Run-1 の初発グルコース濃度 400, 600 mg/l の場合と同様、初期の 30 分間に急速な除去があり、 P_n/X の増加に伴い除去速度が低下することが認められる。培養経過日数 40 日になると、液相中タンパク質の除去過程は 20 日のそれと同様であるが、 P_n/X の最大値がやや低下してくる。培養経過日数 70, 150 日になると、 P_n/X の最大値がさらに低下し、液相中タンパク質の除去は、液相中タンパク質濃度に関する一次反応で表示できるようである。液相中タンパク質の実験開始時の単位 DNA 当たり除去速度は、培養前、培養経過日数 150 日で、それぞれ約 12 mg/mgDNA/day, 70 mg/mgDNA/day であった。

以上の実験結果が示すように、活性汚泥の培養が進むと、グルコースを基質とした場合は汚泥内基質蓄積物が生じ、タンパク質ではグルコース基質の場合より、はるかに低レベルの汚泥内蓄積物しか生じないようになる。

活性汚泥による基質の浄化過程が、液相からの基質除去過程と汚泥内での基質代謝過程からなると考えれば、両過程の反応速度の大小関係によって汚泥内基質蓄積量が決まることになる。グルコースとタンパク質の違いによって汚泥内基質最大蓄積量に差が生じるのは、液相からの基質除去速度は、グルコースで 500~600 mg/mgDNA/day, タンパク質で約 70 mg/mgDNA/day と大きな差があるが、汚泥内に取り込まれたグルコース、タンパク質の代謝速度は、基質除去速度ほどの大きな差はないことを示していると考えられる。

基質の違いによって汚泥内基質最大蓄積量に差が生じるのは、以上のように液相からの基質除去速度は基質の違いにより大きな差があるが、活性汚泥内に取り込まれた基質の代謝速度は、液相中基質の種類にあまり依存しないことを示していると考えられる。

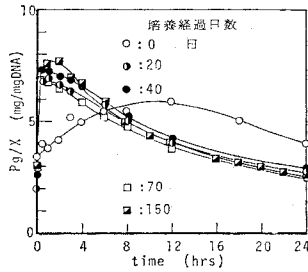


図-4 汚泥内炭水化物の変化 (Run-2)

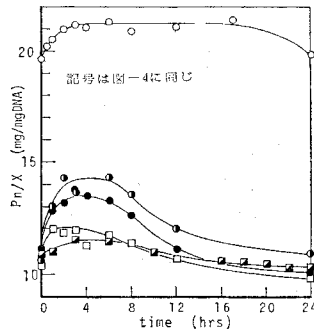


図-5 汚泥内タンパク質の変化 (Run-2)

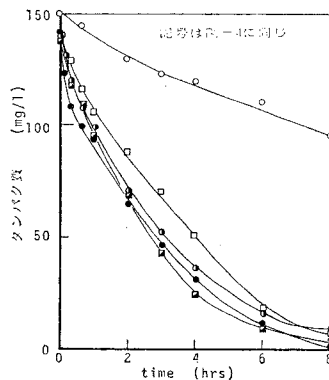


図-6 液相中タンパク質の変化 (Run-2)

(4) グルコース・ペプトン混合基質培養汚泥による
ペプトン基質除去の実験結果 (Run-3)

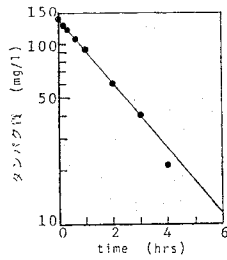
ペプトンを基質として用いた場合の DNA の増加と汚泥内蓄積基質(汚泥内タンパク質)との関係は、Run-2 ではグルコースが共存していたため不明である。そこで、基質としてペプトンのみを用いた実験を行った。

基質の初濃度はタンパク質 140 mg/l (ペプトンとしては 250 mg/l) である。実験開始時の MLSS はおよそ 450 mg/l である。実験結果を図-7~9 に示す。汚泥内基質蓄積量は、実験条件の負荷率を考慮しても、Run-1 のグルコース基質の場合に比較して低レベルで最大値に達している。この結果、液相中タンパク質の除去過程では、Run-1 でみられ

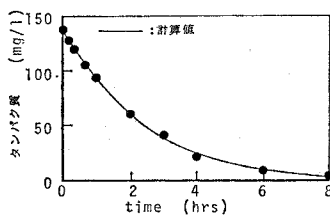
たような汚泥内蓄積物による除去速度の低下という現象は観察されず、液相中タンパク質の除去は、それに関する一次反応で近似できることが図-7 (a) からわかる。しかしながら DNA の増加速度は、Run-1 と同様、 P_n/X が初期値に近くなると緩やかになっており、活性汚泥微生物の増殖は汚泥内蓄積基質に支配されていることが図-8, 9 からわかる。

3. 浄化機構とそのモデル化

前章では、基質としてグルコース、ペプトンを用いて



(a) Run-3



(b) Run-3

図-7 液相中タンパク質の変化

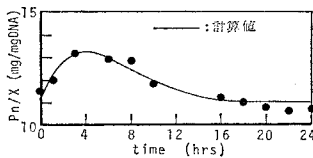


図-8 汚泥内タンパク質の変化 (Run-3)

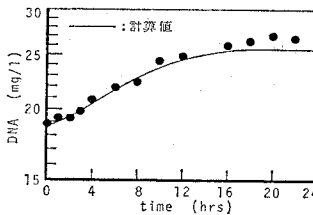


図-9 DNA の変化 (Run-3)

活性汚泥による浄化過程について、実験による検討を加えた。その結果、基質の違いにより液相からの基質除去速度に影響を与えるほどの汚泥内基質蓄積を生じるとき、汚泥内基質蓄積は生じるが、基質除去に顕著な影響を与えるには至らない場合があることを示した。また、活性汚泥微生物の指標である DNA は汚泥内基質蓄積が存在する間は増加を続けており、このことから、DNA の増加は汚泥内蓄積基質に依存することが示された。以上の結果を踏まえ、活性汚泥による基質除去とその代謝、活性汚泥微生物の増殖という一連の反応のモデル化を試み、Run-1, 3 の実験結果をシミュレートするために必要なパラメーターの決定を行う。

(1) 液相からの基質除去

Run-1~3 の結果によれば、液相からの基質除去特性は、液相からの基質除去速度と汚泥内基質代謝速度との相対的な関係により、定性的に次の2つに分類できる。

㊸ 基質除去速度が汚泥内基質代謝速度に比べ著しく大きい。この結果、基質の汚泥内蓄積が生じ、これが液相からの基質除去速度を低下させる。すなわち、基質除去速度の支配因子として、飽和定数と液相中基質濃度の関係以外に汚泥内基質蓄積量を考慮しなければならない。

㊹ 基質除去速度と汚泥内基質代謝速度に㊸の場合ほどの大きな差がない。この場合、汚泥内基質蓄積量は、㊸に比較して低レベルであり、これが液相からの基質除去速度に影響を及ぼすには至らない。基質除去速度は、飽和定数と液相中基質濃度によって定められる。

㊸の場合を表わすモデルとしては、種々の定式化がなされている^{5), 7)}。合田ら⁵⁾は、液相中基質の除去速度は汚泥内基質蓄積容量と基質蓄積量との差(蓄積物の不飽和量)に支配されるとし、益永ら⁷⁾は、除去速度が汚泥内蓄積物により阻害されると考え、その阻害効果を直線で近似している。これらは表現は異なるものの、いずれも液相からの基質除去速度は、蓄積容量に対する蓄積物の不飽和量に比例するとしている。ここでは、このことを参考にして次式を用いる。

$$\frac{1}{X} \frac{dC}{dt} = -\frac{\hat{v}_c(C/K_c)}{1+(C/K_c)} \left(1 - \frac{A}{A_T}\right) \dots\dots\dots (1)$$

X: DNA 濃度 (mg/l)

C: 液相中基質濃度 (mg/l)

\hat{v}_c : 液相中基質の単位 DNA 当たり最大除去速度定数 (mg/mgDNA/day)

K_c : 液相中基質に関する飽和定数 (mg/l)

A: $A = P/X - P_0/X_0$ で示される単位 DNA 当たり汚泥内蓄積基質量 (mgA/mgDNA)

A_T : 汚泥内基質代謝がない場合の A の最大値

(mgA/mgDNA)

P : 汚泥内炭水化物濃度 (P_g) または、汚泥内タンパク質濃度 (P_n) として測定される活性汚泥内成分濃度であり、生物構成成分と液相から除去され汚泥内に蓄積された基質の和 (mg/l)

P_0 : P の初期値 (mg/l)

X_0 : X の初期値 (mg/l)

式 (1) の $(1-A/A_T)$ は蓄積物の不飽和量を意味する。

⑥の場合は、 A が低レベルのため基質除去に及ぼす A の影響がなくなるので次式となる。

$$\frac{1}{X} \frac{dC}{dt} = -\frac{\hat{\nu}_c(C/K_c)}{1+(C/K_c)} \dots\dots\dots(2)$$

ただし、式 (1),(2) の右辺は C と K_c の相対的な大きさにより、 C に関する零次、あるいは、一次になり得る。

Run-1 の結果を用いて、式 (1) に検討を加える。 $C \gg K_c$ が成立するとき、式 (1) は次式となる。

$$\frac{1}{X} \frac{dC}{dt} = -\hat{\nu}_c \left(1 - \frac{A}{A_T}\right) \dots\dots\dots(3)$$

Run-1 において、式 (3) の左辺と A の関係を求めたものが図-10 である。これによると初発グルコース濃度 100 mg/l の場合 A の値が 4 程度になると、また初発グルコース 200 mg/l の場合は A の値が 10 程度になると A の値に関係なく $-dC/dt/X$ が低下している。このことは、液相中基質濃度の低下が除去速度に影響していることを示している。一方、初発グルコース濃度 400, 600 mg/l の場合、 $-dC/dt/X$ が A のみで定まっており、これらの各点は $C \gg K_c$ を条件とした式 (3) を満足していると考えられ、 A の増加につれて単位 DNA 当たりの基質除去速度が減少することが明らかであり、おおむね式 (3) で現象を表示し得ると思われる。Run-1 では、 $A_T=19$ mgA/mgDNA, $\hat{\nu}_c=1000$ mg/mgDNA/day となる。

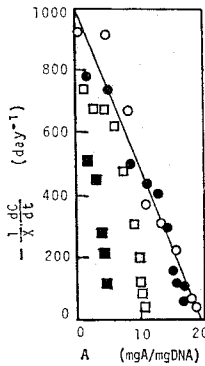


図-10 基質除去速度と汚泥内炭水化物蓄積量の関係(Run-1)

K_s は本実験からは求められないため、炭素源として炭水化物を用いたときの値^{(3),(4)}を参考にして 20 mg/l とした。

Run-3 では、基質除去は一次反応であるから、次式を用いる。

$$\frac{1}{X} \frac{dC}{dt} = -V \cdot C \dots\dots\dots(2)'$$

$V: V=\hat{\nu}_c/K_c$ (1/mg/l/day)

式 (2)' を初期条件 [$C=C_0, t=0$] で解くと、 $V=\ln$

$(C_0/C)/X \cdot t$ となり、図-7 (a),(b) のデータ、 $t=3$ h ($=3/24$ day), $C_0=140$ mg/l, $C=40$ mg/l, $X=19$ mg/l で $V=0.53$ 1/mg/l/day となる。

(2) 活性汚泥内蓄積基質の収支式

基質が液相から除去され汚泥内に移行する速度と汚泥内での代謝速度との差が、 P/X の時間変化となる。したがって、 A の代謝速度は、液相中の基質がほぼ消失した後の A の減少速度から求められる。

図-11 (a) に、液相中グルコースが消失した後の A と dA/dt との関係を示す。この図によれば、 dA/dt は A についての Michaelis-Menten 型関数で近似し得ることが推察される。しかしながら、Lineweaver-Burk プロット法では、各点の精度が著しく異なることになり、Michaelis-Menten 型関数の妥当な 2 定数を決定するのは困難である。このため、図-11 (a) から 2 定数の値を推定した。一方、液相中基質が消失した後の A の代謝に関する Michaelis-Menten 型関数を次式とする。

$$-\frac{dA}{dt} = \frac{\hat{\nu}_A \cdot A}{K_A + A} \dots\dots\dots(4)$$

$\hat{\nu}_A$: 汚泥内蓄積基質の最大代謝速度定数 (mgA/mgDNA/day)

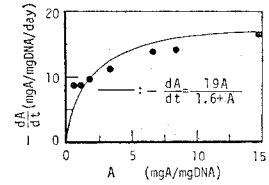
K_A : 汚泥内蓄積基質に関する飽和定数 (mgA/mgDNA)

式 (4) を初期条件 [$A=A_0, t=0$] で解くと

$$t = \frac{K_A}{\hat{\nu}_A} \ln(A_0/A) + \frac{1}{\hat{\nu}_A} (A_0 - A) \dots\dots\dots(5)$$

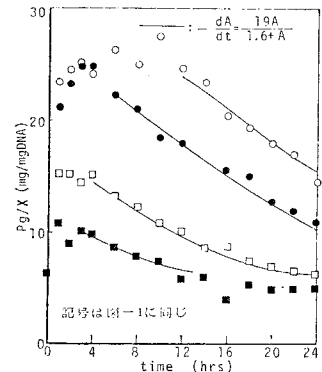
となる。液相中基質が消失した時刻を $t=0$ 、そのときの A を A_0 とし、

この値と図-11 (a) から推定した $K_A, \hat{\nu}_A$ の値を式 (5) に代入すると、 A と t の関係が求まる。Run-1 についてこの結果が



(a) Run-1

図-11 (b) の実線である。 $K_A=1.6$ mgA/mgDNA, $\hat{\nu}_A=19$ mgA/mgDNA/day のとき A の実測値によく一致した。また、この 2 定数を用いて、Michaelis-Menten 型関数として dA/dt と A の関係を求めた結



(b) Run-1

図-11 $\hat{\nu}_A, K_A$ の決定

果が、図-11 (a) の実線である。

そこで、 P/X の収支式として、次式を用いる。

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{P}{X} \right) = -ar \frac{1}{X} \frac{dC}{dt} - \frac{\hat{\nu}_A \cdot A}{K_A + A} \dots\dots(6)$$

a : 汚泥内蓄積基質 1 mg を形成するのに必要な液相中基質量 (mg) を表わす換算係数 (mg 液相中基質/mg 汚泥内蓄積基質)

r : 汚泥内基質代謝がない場合に、液相中基質の除去により生成される汚泥内蓄積基質の除去された基質に対する割合 (—)

Run-1 ではグルコース、Run-2 では牛血清アルブミンという標準物質を用いて、液相中基質、汚泥内蓄積基質を測定しているの、これら両基質間の換算係数 a は $a=1$ と考えてよく、以下の式では a を省略する。

右辺第1項は、液相から除去された基質のうち、 $0 \sim 1$ の定数 r で示される割合だけが、汚泥内基質蓄積に寄与することを表わしている。式(6)に r を導入したのは、以下の理由による。

Run-1 の汚泥内蓄積基質の代謝速度は、図-11 (a), (b) に示した式のように、 A に関する Michaelis-Menten 型の式で表示できる。初発グルコース濃度 600 mg/l の実験で A が一定値を保つ最大値のとき、図-11 (a), (b) に示すように、その代謝速度は約 19 mgA/mgDNA/day と考えてよい。一方、実験開始直後における液相中グルコースの除去速度と汚泥内炭水化物の増加速度との差として求める代謝速度は、200~300 mgA/mgDNA/day である。このような代謝速度の増加現象は、益永ら⁷⁾も認めており、 P/X の収支を考えるうえで考慮しなければならない要素である。

汚泥内蓄積物量を確実に表わし得ている MLSS の

変化(図-12)に着目しても、除去基質量の7割程度しか MLSS として増加していないことが、Run-1 で認められた。残りの3割あるいは、先の代謝速度の増加分は、活性汚泥微生物の自己酸化を考慮しても大きすぎる値であり、Michaelis-Menten 型としての A の代謝以外に液相から基質が除

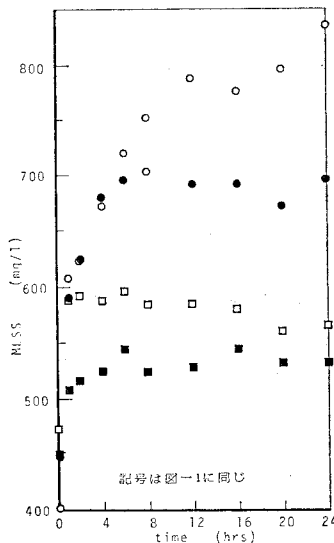


図-12 MLSS の変化 (Run-1)

去されるときに、その除去量に比例して、除去された基質の一部が代謝されていることを示唆している。これを「基質除去に伴う基質代謝」とよぶことにする。

Run-1 における r を求めるために、式(6)を次ように書き換える。

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{P}{X} \right) = -\frac{1}{X} \frac{dC}{dt} + (1-r) \frac{1}{X} \frac{dC}{dt} - \frac{\hat{\nu}_A \cdot A}{K_A + A} \dots\dots(7)$$

式(7)の右辺第2項は液相中基質除去に伴う基質代謝を表わしている。 X の変化が微小な範囲では、式(7)は次式となる。

$$-\frac{1}{X} \frac{d(C+P)}{dt} = -(1-r) \frac{1}{X} \frac{dC}{dt} + \frac{\hat{\nu}_A \cdot A}{K_A + A} \dots\dots(8)$$

Run-1 において、式(8)の右辺第2項が $\hat{\nu}_A$ に近似できる範囲で、反応槽内の全基質の代謝速度を表わす左辺の項と右辺

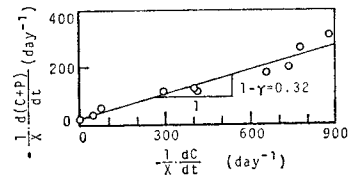


図-13 r の決定 (Run-1)

第1項の $-dC/dt/X$ の関係を求めたものが図-13 である。Run-1 では、 $1-r=0.32$ を傾きとした直線に近似でき、液相から除去された基質の約 30% が、除去に伴って代謝されていることを示している。

以上の検討の結果、Run-1 の場合、 $\hat{\nu}_A=19$ mgA/mgDNA/day、 $K_A=1.6$ mgA/mgDNA、 $r=0.68$ (—) となった。

Run-3 における A の代謝速度も Michaelis-Menten 型関数を仮定して、Run-1 と同様な方法で求めた結果、 $\hat{\nu}_A=14$ mgA/mgDNA/day、 $K_A=1.6$ mgA/mgDNA となった。Run-3 では、 $A \gg K_A$ が成立しないため、Run-1 のように式(8)を用いて r を決定することができない。しかしながら、 r は液相から除去されたペプトンに対する MLSS の増加量の割合としておおよその値が求まる。

図-14 に Run-3 における MLSS の変化を示す。これによると液相中ペプトン 250 mg/l が除去されることにより、MLSS が 130~145 mg/l 程度増加している。このことから、 $r=0.6$ (—) とする。

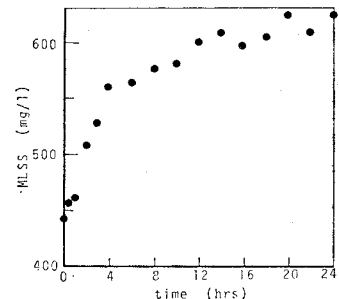


図-14 MLSS の変化 (Run-3)

(3) 微生物の収支式

活性汚泥微生物の増殖は、汚泥内基質代謝に連動し、自己酸化は微生物濃度に関する一次反応で表現できるとする。本論文では、DNA で微生物量を表示するので、微生物の収支式として次式を用いる。

$$\frac{1}{X} \frac{dX}{dt} = Y \frac{\hat{v}_A \cdot A}{K_A + A} - k_d \dots \dots \dots (9)$$

Y: 汚泥内蓄積基質の代謝により生成される DNA の割合 (mgDNA/mgA)

k_d : DNA の自己分解速度定数 (day⁻¹)

図-3 で初発グルコース 600 mg/l の DNA は、およそ 4~16 時の区間では片対数紙上でほぼ直線上に並ぶ。このことから、DNA の増殖は、この区間では対数増殖期にあると考えてよく、比増殖速度 $\mu = dX/dt/X = \text{一定}$ となり、式 (9) の右辺第 1 項も $Y\hat{v}_A$ と考えてよい。このとき初期条件 [$X=X_0, t=0$] で上式を解くと $\mu = \ln(X/X_0)/t$ の関係が成立する。先の 4~16 時の区間においてこの関係から μ を求めると約 0.4 day⁻¹ となった。 k_d の値は、本実験から求めることはできないが、一般に 0.05~0.09 day⁻¹ 程度の値であり¹⁵⁾、式 (9) に $dX/dt/X = 0.4 \text{ day}^{-1}$ 、 $\hat{v}_A = 19 \text{ mgA/mgDNA/day}$ および k_d 値として 0.05~0.09 を代入して Y を求めると 0.024~0.026 となり k_d の違いによる Y の値の変化は、わずか 8% 程度である。以上のことより、ここでは k_d 値として 0.05 day⁻¹ を用い、 $Y = 0.024 \text{ mgDNA/mgA}$ とする。

Run-3 における Y は以下のように求められる。DNA の最大比増殖速度を Run-1 の場合と同様に求めると約 0.6 day⁻¹ となる。このとき式 (9) における A は、実験結果 (図-8) より約 2 である。 k_d は Run-1 と同様、0.05 day⁻¹ を仮定し、これらの値を式 (9) に代入して $Y = 0.084 \text{ mgDNA/mgA}$ を得る。

4. モデルによる数値シミュレーションとその結果

(1) Run-1 について

Run-1 のシミュレーションに用いた定数値を表-4 に示す。表-4 の値と回分実験の初期値を式 (1)、(6)、(9) に与えて、現象をシミュレートした結果を図-1~3 に実線で示す。初発グルコース濃度 100, 200, 400 mg/l

表-4 Run-1 の計算に用いた定数値

| | |
|-----------------------------------|-----------------------------------|
| $\hat{v}_c = 1000$ (mg/mgDNA/day) | $\hat{v}_A = 19$ (mgA/mgDNA/day) |
| $K_c = 20$ (mg/l) | $K_A = 1.6$ (mgA/mgDNA) |
| $r = 0.68$ (-) | $k_d = 0.05$ (day ⁻¹) |
| $A_T = 19$ (mgA/mgDNA) | $Y = 0.024$ (mgDNA/mgA) |

表-5 Run-3 の計算に用いた定数値

| | |
|----------------------------------|-----------------------------------|
| $V = 0.53$ (l/mg/l/day) | $K_A = 1.6$ (mgA/mgDNA) |
| $r = 0.6$ (-) | $k_d = 0.05$ (day ⁻¹) |
| $\hat{v}_A = 14$ (mgA/mgDNA/day) | $Y = 0.084$ (mgDNA/mgA) |

の場合、液相中基質、 P_g/X 、DNA のいずれも実験値とほぼ一致した。しかし、初発グルコース濃度 600 mg/l の場合、 P_g/X が一定値に達した後の液相中基質、 P_g/X が実験値との一致をみなかった。この原因については次のように考えられる。初発グルコース濃度 600 mg/l の実験では、 P_g/X が一定値を保っている間は、単位 DNA 当たり基質除去速度 $dC/dt/X$ は一定であり、A の代謝速度は最大値 19 mgA/mgDNA/day と考えられる。これらの条件から式 (6) で r を求めると、その値は 0.3~0.4 程度であり、初期の $r = 0.68$ の約 1/2 に変化している。以上のことから、Run-1 でシミュレーションの結果と一致しなかった初発グルコース濃度 600 mg/l については、汚泥内基質蓄積量 A がある値に達すると、r が小さくなることを示した結果とも考えられる。しかしながら、一定限度以下の負荷条件では、r を一定値と考えて支障ないことが、初発グルコース濃度 100, 200, 400 mg/l のシミュレーションの結果で示された。

(2) Run-3 について

Run-3 のシミュレーションに用いた定数値を表-5 に示す。シミュレーションの結果を図-7(b)、図-8, 9 に示す。液相からの除去速度と汚泥内基質代謝速度との相対的な関係により、汚泥内基質蓄積が低レベルを示すような基質の除去、代謝機構は、提示したモデルでシミュレートできると考えられる。すなわち、低レベルの汚泥内蓄積基質は、微生物増殖の支配因子とはなるが、液相中基質除去に著しい影響を及ぼすことはない。このため、液相中基質除去速度は、式 (2)、(2)' あるいは、液相中基質濃度に関する零次反応式で表示できる。

5. 基質除去過程および代謝過程の反応速度比

本研究の結果、活性汚泥内基質蓄積量によって基質除去過程が異なることが示された。活性汚泥による基質浄化過程が連続反応であることから、活性汚泥内基質蓄積量は、基質除去過程と代謝過程の反応速度の相対的な大小関係により規定される。この反応速度の相対的な大小関係を示す指標として、基質除去過程と代謝過程との反応速度比を考える。

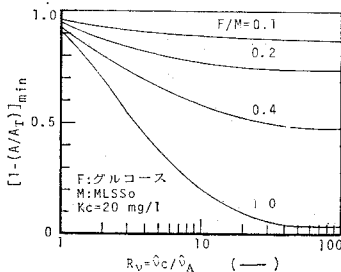
基質除去速度は、液相中基質濃度、飽和定数、あるいは汚泥内基質蓄積量によっても、また、汚泥内基質代謝速度は基質蓄積量によって時々刻々変化するもので、反応速度比も変化する。そこで、反応速度比の代表値として

$R_v (= \hat{v}_c / \hat{v}_A)$ を用いることにする。ただし、基質除去速度が一次反応式で表示される場合、対象とする废水の一般的な最大基質濃度における単位 DNA 当たり基質除去速度を \hat{v}_c とする。このことは、 R_v として考慮し得る最大の値を想定することであり、その基質のもつ汚泥内基質蓄積現象の可能性を最大に評価することになる。

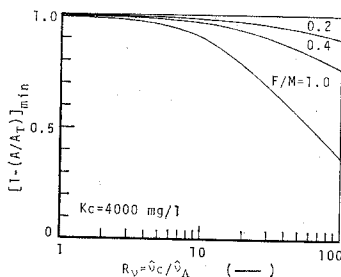
Run-1, 3 の結果によれば、グルコースでは $R_v \approx 50$ 、ペプトンでは基質除去速度が一次反応で示されているので、 \hat{v}_c として実験開始直後の ν_c の値を用いた場合 $R_v \approx 6$ である。このように反応速度比、すなわち基質除去過程と代謝過程の反応速度の相対的な大小関係は、一定の生物相については基質特有の値となる。グルコースのように R_v が 50 程度を示す基質除去過程のモデルとしては、汚泥内基質蓄積を考慮した従来の動力学モデル²⁷⁾は有効であるが、 R_v の小さい基質の場合へ適用するには限界があると考えられる。

そこで、基質除去が式 (1) で表示されると仮定して、 K_c , R_v , 回分過程の初期 F/M 比の違いによる式 (1) 右辺の $[1 - (A/A_T)]$ の最小値 $[1 - (A/A_T)]_{\min}$ の変化を数値実験により求めた。この最小値とは、単位 DNA 当たり汚泥内蓄積基質量 A が最大に達したときの値であり、このとき単位 DNA 当たりの液相からの基質除去活性が最小になることを意味する。

数値実験には、式 (1), (6), (9) を用い、式中の各定数は、 K_c , \hat{v}_c を除き表—4 の値とした。 $K_c = 20 \text{ mg/l}$ および $K_c = 4000 \text{ mg/l}$ について F/M 比を 0.1 ($K_c = 20 \text{ mg/l}$ の場合のみ), 0.2, 0.4, 1.0 とし、各 F/M について R_v を 1~100 まで適当な間隔で変化させた。以上



図—15 R_v と $[1 - (A/A_T)]_{\min}$ の関係 ($K_c = 20 \text{ mg/l}$)



図—16 R_v と $[1 - (A/A_T)]_{\min}$ の関係 ($K_c = 4000 \text{ mg/l}$)

の各定数および初期 F/M 比の条件で Run-1 のシミュレーションと同様に数値実験を行い、その数値実験中における $[1 - (A/A_T)]_{\min}$ を求めた。その値と与えた条件 (K_c , 初期 F/M 比, R_v) との関係求めた。この結果が図—15, 16 である。図—16 は、 $C \ll K_c$ という条件で基質除去速度が一次反応に近似できる場合を想定したものである。

同一の F/M 比でも R_v が小さくなるほど、また基質除去が一次反応近似になるほど $[1 - (A/A_T)]_{\min}$ の値が 1 に近づくことが、両図よりわかる。

以上の考察の結果、基質除去過程は、飽和定数、F/M 比、および反応速度比 R_v の値で予測できると考えられる。

図—16 に示すように飽和定数が高く、基質除去過程が一次反応として取り扱え、 R_v の値が 10 程度以下の基質の場合、汚泥内基質蓄積の基質除去速度に及ぼす影響は、ほとんどないと考えてよい。ペプトンでは R_v が 6 程度であり、Run-3 の数値計算に汚泥内基質蓄積を考慮しない基質除去速度式を用いることの妥当性が説明できる。

6. 都市下水処理場返送汚泥と都市下水を用いた回分実験 (Run-4)

以上の知見をもとに、活性汚泥法による都市下水処理の浄化過程に検討を加えるため、都市下水と処理場返送汚泥による回分実験を行った。

(1) 実験方法

実験には、都市下水処理場 (標準活性汚泥法、処理水量 3 万 t/日) の返送汚泥と最初沈殿池流出水を用いた。雨水流入による影響を避けるため晴天が続いた日を選んで試料採取を行った。試料採取時刻は、最初沈殿池流出水の日間水質変動を事前に計測し、 COD_{cr} , TOC が最大と考えられる時刻とした。実験は 20°C で、溶存酸素律速にならぬ条件で行った。分析方法は、一部を除き表—2 と同じである。

(2) 実験結果と考察

表—6 に返送汚泥、最初沈殿池流出水の分析結果を示す。SS および VSS を除く返送汚泥の分析項目は、返送汚泥固形物についての分析結果を返送汚泥の懸濁液 1 l 当たりの値として表示したものである。最初沈殿池流出水の浮遊性成分についても同様、沈殿池流出水 1 l 当たりの値である。

図—17~19 に実験結果を示す。基質として着目した液相中の各水質項目は、いずれも Run-3 で示され

表-6 返送汚泥・最初沈殿池流出水分析結果

| 分析項目 | 返送汚泥 | | 最初沈殿池流出水 (mg/l) | |
|-------------------|-----------|-----------|--------------------|-------|
| | 濃度 (mg/l) | 対DNA比 (-) | 浮遊性成分 (0.45 μm 以上) | 溶解性成分 |
| SS | 5210 | 40.7 | 97 | — |
| タンパク質 | 2280 | 17.8 | 38 | 33 |
| DNA | 128 | — | 1以下 | — |
| 炭水化物* | 720 | 5.63 | 13 | 10 |
| COD _{er} | 5350 | 41.8 | 146 | 123 |
| TN | 328** | 2.56 | 5.7** | 38 |
| TOC | 1420** | 11.1 | 41** | 76 |
| VSS | 71(%) | — | — | — |

*: フェノール硫酸法 (グルコース基準)
 **: 超音波破砕後, TN, TOC 分析計で測定

たタンパク質の場合よりもさらに緩やかな速度で除去されている。表-6 に示すように、最初沈殿池流出水には 100 mg/l 程度の浮遊物があり、これによって汚泥内蓄積物の対 DNA 比は若干の誤差を含む。しかし、この浮遊性成分の代謝速度が、溶解性基質のそれと比較して遅いことを考えれば、図-18 に示す各汚泥内蓄積物の対 DNA 比は、溶解性基質の除去、代謝を反映すると考えられる。

図-18 によれば、TOC/X の値には若干の蓄積の影響がみられるものの、Run-1, 3 での基質蓄積よりはるかに小さい量である。その他の成分は、わずかに減少したものはあるが、基質除去による蓄積を示したものはない。この間、DNA は図-19 に示すように、5~6 時間の時間遅れの後、約 2 mg/l の増加が観察された。

以上のように、都市下水の活性汚泥による浄化過程は汚泥内基質蓄積レベルの低い微生物反応である。このた

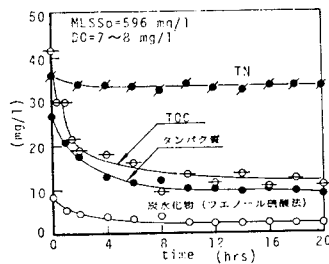


図-17 液相分析結果 (Run-4)

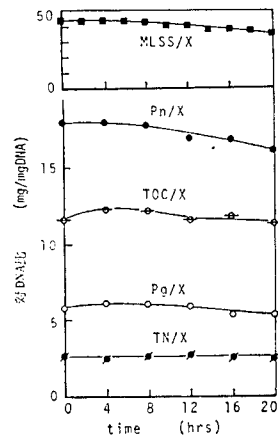


図-18 活性汚泥分析結果 (Run-4)

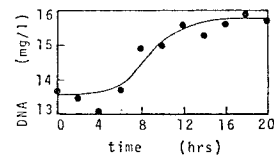


図-19 DNA の変化 (Run-4)

め、汚泥内基質蓄積による除去速度の低下はきわめて少なく、飽和定数と液相中基質濃度によって、除去速度はほぼ決定されると考えて支障ない。

いま、Run-4 において汚泥内基質代謝速度が、Run-1~3 の結果に示されたように基質にあまり依存しないと考え Run-1, 3 と同程度の値として \hat{r}_A を 10~20 mgA/mgDNA/day と仮定する。一方、図-17 で除去速度の最も速い TOC に着目して、 \hat{r}_c を実験開始直後で求めると約 30 mgTOC/mgDNA/day となる。したがって、 R_c として 1.5~3 という値が推定される。このことから、都市下水の活性汚泥による浄化過程は汚泥内基質蓄積量の低い反応であることがうかがえる。

一方、活性汚泥微生物の増殖は、Run-1, 3 と同様、液相中基質濃度の影響を直接には受けず、汚泥内蓄積基質が、その支配因子であると考えられる。また、汚泥内基質蓄積が大きな変化を示さないことから、流入水の水量、水質変動を受ける都市下水処理では、液相からの基質除去速度は基質濃度に対応して変動するが、微生物増殖速度は、基質濃度に直接には影響されず、日変動に対してはほぼ一定に維持されると考えられる。なお、本実験においては、図-18 に示す汚泥内蓄積基質として着目した各成分の変化が微小であるため、液相からの基質除去に伴う基質代謝については定量的な把握はできなかった。

7. おわりに

本研究では、活性汚泥によるグルコースおよびペプトンの浄化過程を考察するにあたり、液相からの基質除去過程の汚泥内基質代謝過程に対する反応速度比に着目した。この結果、以下の知見を得た。

- (1) R_c は基質除去過程を定める重要な指標であり、生物相と基質によって定まる。
- (2) 基質除去過程のタイプは、飽和定数、F/M 比、反応速度比 R_c の値で決められる。
- (3) 飽和定数および F/M 比が定めれば、図-15, 16 に示すように R_c の値が大きくなるほど、活性汚泥内基質蓄積量が高くなり、これを考慮した基質除去速度式が有効である。また、 R_c の値が小さくなるほど、活性汚泥内基質蓄積量は低く、これが基質除去に影響を与えなくなり、基質除去速度は飽和定数と基質濃度によってほぼ決定される。
- (4) R_c の値は、グルコースで約 50、ペプトンで約 6 であった。グルコースの基質除去過程は活性汚泥内基質蓄積を考慮した基質除去速度式で表示でき、ペプトンの場合は、活性汚泥内基質蓄積を考慮することなく、飽和定数と基質濃度のみの関数で表示できる。

(5) 以上の結果をもとに、グルコースおよびペプトンの基質除去、代謝過程を表わすモデル式を提示し、これを用いた数値計算により、おおむね現象をシミュレートできた。

以上の知見をもとに、活性汚泥法による都市下水の浄化過程を実験的にシミュレートし、検討を加えた。この結果、

(6) 実験で採用したような高負荷率においてさえ、都市下水の活性汚泥による浄化過程では、汚泥内基質蓄積量がきわめて低い。このため標準活性汚泥法の通常の負荷率では、液相からの基質除去速度を低下させるほどの汚泥内蓄積基質を定量することはできず、基質除去は、飽和定数と基質濃度の関係によって支配されることが推察された。

以上の本研究で得られた知見をさらに要約すると以下のとおりである。

活性汚泥の基質除去・代謝に関する従来の動力学モデル^{3)~7)}では、同程度の F/M 比でも基質の違いによる汚泥内基質最大蓄積量の変化とその基質除去過程に及ぼす影響を必ずしも満足に説明できなかった。本研究では、従来の動力学モデルにおけるこのような問題点が、基質除去過程の汚泥内基質代謝過程に対する反応速度比という基質の違いによって変化する支配要因を考慮することにより説明できることを示した。

参 考 文 献

- 1) Monod, J. : The Growth of Bacterial Cultures, Annual Review of Microbiology, Vol. 3, pp. 371~394, 1949.
- 2) Eckenfelder, W.W., Jr., O'Connor, D.J. (岩井重久訳) : 廃水の生物学的処理, コロナ社, pp. 15~28, 1965.
- 3) Thabara, G.J., et al. : Effect of Dissolved Oxygen Concentration on the Metabolic Response of Completely Mixed Activated Sludge, J. WPCF, Vol. 41, No. 8, Part 2, pp. R 322~R 335, 1969.
- 4) Adams, C.E., Jr., et al. : Response of Activated Sludge to Organic Transient Loadings, Proc. of ASCE, SA2, pp. 333~352, April, 1970.
- 5) 合田 健・宗宮 功・津野 洋 : 基質除去ならびに代謝に関する動力学モデル, 土木学会論文報告集, No. 213, pp. 17~28, 1973.
- 6) George, T.K., et al. : Response of Completely Mixed Systems to Hydraulic Shock Loads, Proc. of ASCE, EE 5, pp. 593~606, October, 1973.
- 7) 益永茂樹・中西準子・楠井隆史・河崎哲久 : 活性汚泥における糖除去と汚泥中蓄積物, 土木学会論文報告集, No. 304, pp. 81~93, 1980.
- 8) Walters, C.F., et al. : Microbial Substrate Storage in Activated Sludge, Proc. of ASCE, SA 2, pp. 257~269, April, 1968.
- 9) 宗宮 功・河村清史・安福秀章 : 活性汚泥による都市下水中有機物質の代謝に関する研究 (II), 下水道協会誌, Vol. 17, No. 196, pp. 20~30, 1980.
- 10) 馬淵依子 : 活性汚泥中のタンパク質の定量について, 用水と廃水, Vol. 14, No. 11, pp. 56~59, 1972.
- 11) Herbert, D., et al. : Chemical Analysis of Microbial Cells, Methods in Microbiology, Vol. 5 B, pp. 324~325, Academic Press, 1971.
- 12) Burton, K. : A Study of the Conditions and Mechanism of the Diphenylamine Reaction for the Colorimetric Estimation of Deoxyribonucleic Acid, Biochem., Vol. 62, pp. 315~323, 1956.
- 13) 森山克美・久米秀俊・粟谷陽一 : 生物処理における基質組成が消費速度に及ぼす影響, 第 17 回衛生工学研究討論会講演論文集, pp. 132~137, 1981.
- 14) 山根恒夫 : 生物反応工学, 産業図書, p. 143, 1980.
- 15) Lawrence, A.W., et al. : Unified Basis for Biological Treatment Design and Operation, Proc. of ASCE, SA 3, pp. 757~778 June, 1970.

(1982.11.22・受付)