

II-43 固定生物膜メタン発酵槽の効率化に関する研究

北海道大学 正 井上雄三 正 神山桂一

1. はじめに

嫌気性方式による下廃水処理法が好気性処理方式の代替処理法として利用されるようになるには、処理水質はもちろんのこと反応槽内の有機物除去速度が十分に大きく、かつ物質移動抵抗が十分に小さい反応槽の開発が最も重要である。前者は生物膜タイプの相分離メタン発酵槽によって達成できると思われる。後者は充填材の形状や槽内の水理学的な状態と大きく関係しているが、それらの影響の程度はよく分かっていないのが現状である。本報はここ数年間筆者らが取り組んできたこれらの問題^{1) 2)}をまとめたものである。

2. 理論的考察

解析にあたってまず生物膜反応槽の基本的な取扱について述べる。本報で取扱う反応槽はハニカムチューブが充填された固定生物膜反応槽であるが、近似的に平板として取扱うことができる³⁾。反応槽は完全混合と仮定する。また、微生物を用いた浄化プロセスの場合、回分実験でも疑似定常状態として解析が可能である³⁾。一方、生物膜反応槽における浄化プロセスは、(1) 液本体から生物膜表面への基質の輸送過程、(2) 生物膜内での有機物の微生物体内への摂取(代謝分解)と拡散輸送過程、によって表される不均一現象である。この場合、不均一反応過程の空間分割は図-1のように表され、液本体、拡散境界層、及び生物膜層からなる。

反応項については、一次、0次反応、或は Michaelis-Menten モデルなどがあるが、ここでは0次反応モデルとして取扱うことにし、これ以上の議論は他の機会に譲ることにしたい。

(1) 生物膜反応槽の基質除去モデル

図-1のシステム分割に従って各空間における定常状態での保存式を立てると、

$$C_L = \text{Const.} \quad \dots\dots (1) \quad N_L = -K_L \cdot (C_L - C_s) \quad \dots\dots (2)$$

$$D_F \cdot d^2 C_L / dX^2 = U_r \quad \dots\dots (3)$$

となる。生物膜内では図-1に示したような臨界濃度分布(c)を境にして(a)、(b)二つの濃度分布、即ち基質の完全浸透と不完全浸透が存在する。従って、(a) $X=0: C=C_s, X=X_a: dC/dX=0$ (b) $X=0: C=C_s, X=X_c: dC/dX=0$

のもとに(3)式を解き、これを生物膜表面($X=0$)における基質フラックス F_N で表現すると次の様になる。

$$N_{Fa} = U_r \cdot X_a = K_{Fa} \cdot C_s \quad \dots\dots (4) \quad K_{Fa} = U_r \cdot X_a / C_s \quad \dots\dots (5)$$

$$N_{Fb} = U_r \cdot X_c = K_{Fb} \cdot C_s \quad \dots\dots (6) \quad K_{Fb} = U_r \cdot X_c / C_s = U_r \cdot X_a / \sqrt{C_{sc} \cdot C_s} \quad \dots\dots (7)$$

$$X_a = \sqrt{2D_F \cdot C_{sc} / U_r} \quad \dots\dots (8) \quad X_c = \sqrt{2D_F \cdot C_s / U_r} \quad \dots\dots (9)$$

定常状態では生物膜表面と液本体における基質除去フラックスは等しいので(10)式が成立する。

$$C_s = C_L \cdot K_L / (K_L + K_F) \quad \dots\dots (10)$$

式(2)および(10)から除去フラックスは次式で与えられる。

$$N_r = -K \cdot C_L \quad \dots\dots (11) \quad K \equiv (1/K_L + 1/K_F)^{-1} \quad \dots\dots (12)$$

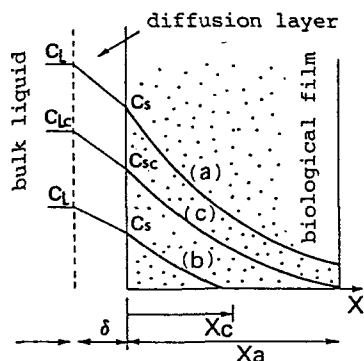


Fig. 1. Conceptual basis for biofilm model.

K は境界層における基質の拡散輸送と生物膜内での反応と拡散輸送を表すもので総括反応係数⁵⁾と一般に呼ばれている。このモデルの正しさは既に渡辺ら⁴⁾によって検証されている通りである。

一方、微生物による有機物の除去反応は、総括反応速度で表すと Michaelis-Menten 式に極めてよく一致することが知られている⁶⁾。図-2は生物膜メタン発酵槽と回転円板反応槽の回分除去曲線であり、実測値と MM 式はほとんど一致している。そこで不均一反応をマクロモデルで表現し、総括反応速度式として、MM 式と全く同形の式を用い、次式のように表すことにする。

$$R_T = R_{\max} \cdot C_L / (K_m + C_L) \quad \dots\dots\dots (13)$$

上式を単位生物膜面積当りの除去速度として表すと次のようになる。

$$N_T = -N_{\max} \cdot C_L / (K_m + C_L) \quad \dots (14) \quad N_{\max} = V \cdot R_{\max} / A \quad \dots\dots (15)$$

上式は(11)式と全く同じ形に整理され次式のようにになる。

$$N_T = -K' \cdot C_L \quad \dots\dots (16) \quad K' \equiv (1/(N_{\max}/K_m) + 1/(N_{\max}/C_L))^{-1} \quad \dots\dots (17)$$

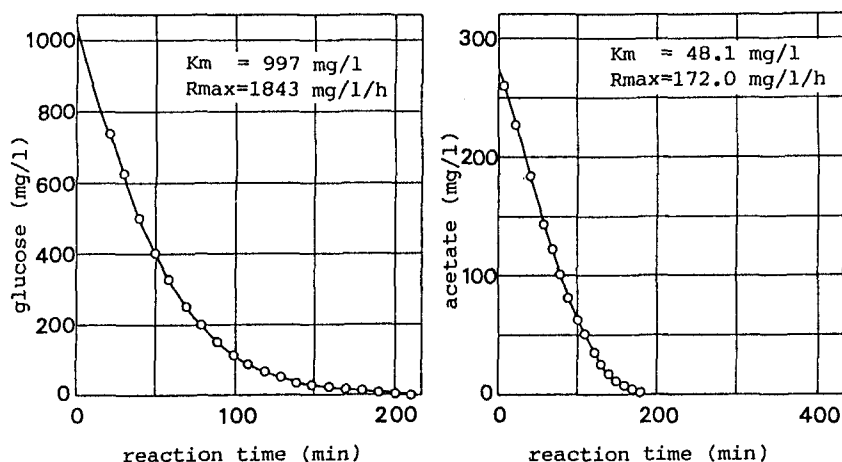


Fig. 2. Comparison between the experimental data and the callulation results with the Monod type model in batch process using the attached biofilm. methane fermentor (a) and the rotating disk reactor (b). (a) temp.:35 C, circulation flow rate:10l/min, substrate:acetate. (b) temp.:15 C, rotating speed:1 rpm, substrate:glucose.

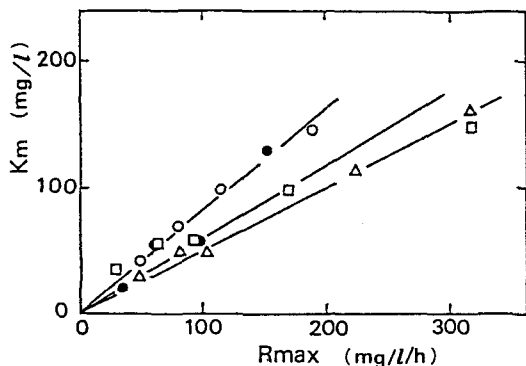


Fig. 3. Relation between $R_{\max}$ and K_m in the attached biofilm methane fermentor. packed media; O honeycomb, Δ multistage type honeycomb, $\square$ surfpac, $\bullet$ ringlace.

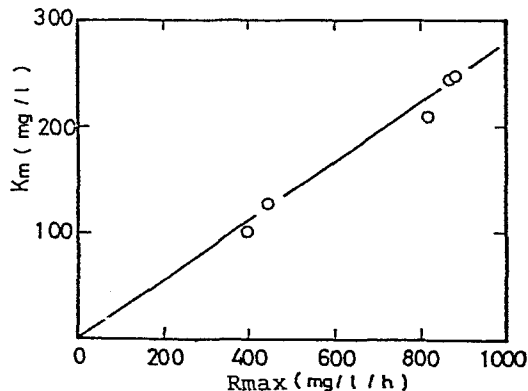


Fig. 4. Relation between $R_{\max}$ and K_m in the aerobic rotating disk reactor.

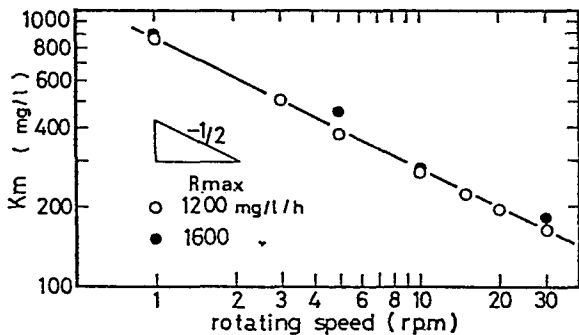


Fig. 5. Relation between rotating speed and K_m in the rotating disk reactor.

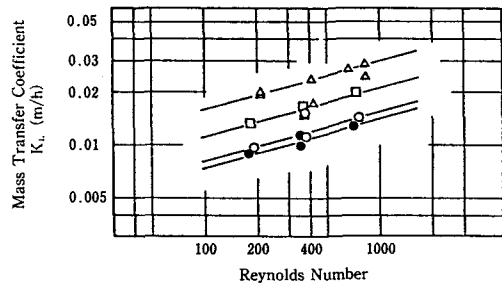


Fig. 6. Influence of the shape of packed media on the mass transfer coefficient. packed media; $\circ$ honeycomb, Δ multistage type honeycomb, $\square$ surfpac, $\bullet$ ringlace

(17)式の二つの項は、式の形から解釈すればあたかも拡散境界層と生物膜内の反応と拡散輸送を表す項と考えられ、従って定常拡散モデルに酷似していることは容易に納得のいくことである。とすれば、 $K \equiv K'$ と置いてもそれほど許されない誤りではないであろう。

そこで $C_L \rightarrow 0$ とすると $1/K_F \rightarrow 0$, $1/(N_{max}/C_L) \rightarrow 0$, また $C_L \rightarrow \text{大} \gg K_m$ とすると、 $1/K_F$, $1/K_L \ll 1/K_F$, $1/(N_{max}/K_m) \ll 1/(N_{max}/C_L)$ となることから、両辺の第一項、第二項は各々 しいと置くことが可能である。よって、

$$K_L = N_{max} / K_m \quad \dots\dots\dots (18) \quad K_F = N_{max} / C_L \quad \dots\dots\dots (19)$$

(18)式は、飽和定数 K_m がフラックスと物質移動係数という物理化学的に意味のある二つのパラメータで定義されていることを示すものである。

(18)式から K_m と N_{max} との間には原点を通る直線関係があるはずである。また、境界層の物質移動係数は $K_L = D/\delta$ と定義されるので、回転円板では境界層厚さが回転速度の $1/2$ 乗に比例することから K_m は回転速度の $-1/2$ 乗に比例するものと思われる。図-3、4、5はメタン発酵槽と回転円板反応槽(好気性)についてこれらの関係を示したもので、上式の妥当性が検証されたことを示している。

(2)除去効率に影響を与える因子

完全混合反応槽における除去率は、定常状態において槽内の物質収支を取ることによって次のように表される。

$$Q \cdot C_i - Q \cdot C_e + A \cdot N_r = 0 \quad \dots (20) \quad r = 1 - C_e/C_i = 1 - 1/\{1 + K \cdot (A/Q)\} \quad \dots (21)$$

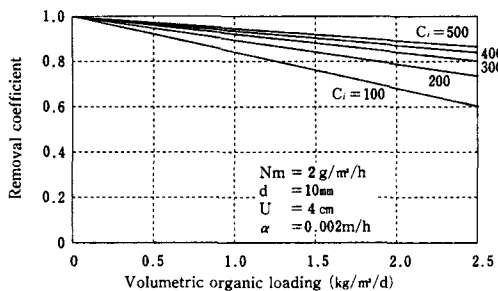
C_i , C_e はそれぞれ流入、出濃度であるが、完全混合槽では $C_e = C_L$ となる。(22)式は除去率を与える式ではあるが、定常拡散モデルから得られる(5)、(6)、(7)式では、 K も C_e も求められないので除去率を予測することができない。ところが、 N_{max} と K_m は後述のパラメータ推定から求められるので(18)、(19)式を(21)式に代入することにより除去率を予測することが可能になる。即ち、

$$C_e^2 + Z \cdot C_e - (N_{max}/K_L) \cdot C_i = 0 \quad \dots (22) \quad Z \equiv N_{max}/K_L + (A/Q) \cdot N_{max} - C_i \quad \dots (23)$$

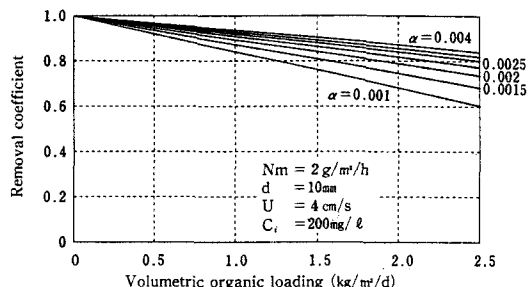
のように C_e に関する2次方程式がえられ、これを解くと次式のようなになる。

$$C_e = (-Z + \sqrt{Z^2 - 4(N_{max}/K_L)C_i}) / 2 \quad \dots (24)$$

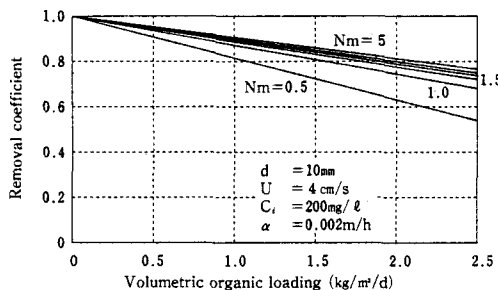
従って、放流水の残存基質濃度、即ち除去率に影響を与えるパラメータは、最大除去フラックス N_{max} 、拡散境界層の物質移動係数 K_L 、充填材の有効表面積 A 、流入水量 Q 、及び流入基質濃度 C_i である。これらのパラメータのうち設計及び操作変数となるものは K_L , A , Q である。 A は直接的に総括除去速度に影響を与えるが、反応槽内の流れにも影響を与える。一方、物質移動係数は反応槽内の流れに大きく影響される。また、充填材の形状は表面積と関連しながら槽内の流れに大きな影響を与える。今まで、ハニカム等の円管束充填材を平板として取扱ってきたが、物質移動の流体力学的特性を論じる場合には、円管として取扱うのが



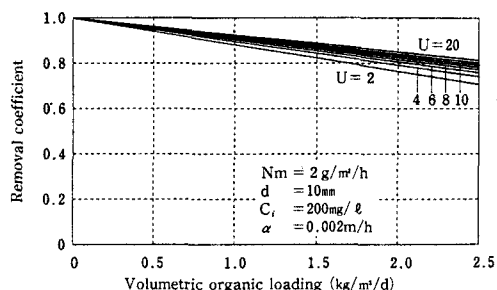
(a) effect of influent substrate concentration



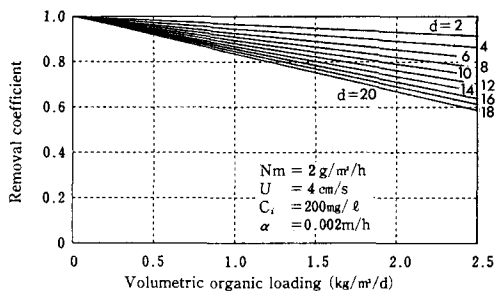
(d) effect of characteristic value α (defined by eq.(27) and (28))



(b) effect of maximum substrate removal flux



(e) effect of superficial velocity of fluid



(c) effect of characteristic diameter

Fig. 7. Sensitivity analysis of each parameter by simulation.

Table 1. Conditions of the calculation for the sensitivity analysis of the parameters affecting removal coefficient.

Parameter	unit	range	fixed value
Maximum removal flux	g/m ² /h	0.5~5.0	2
Characteristic diameter	mm	2~20	10
Superficial velocity	cm/h	2~20	4
Characteristic value α	m/h	0.001~0.004	0.002
Inluent substrate conc.	mg/l	100~500	200
Ratio of packing volume to reactor molume	(-)	(-)	0.5

適当である。円管内層流の物質移動係数は次式で与えられる^{7) 8)}。

$$K_L = 2.04 \left(\frac{D}{2R} \right) \left(\frac{R}{L} \right) \cdot Sc^{1/3} \cdot Re^{1/3} \quad \dots (25)$$

円管内の物質移動係数は平板と異なり、レイノルズ数の1/3 乗に比例することが分かる。

3. 結果と考察

(1) パラメータ N_{max} 及び K_L の算定

(13)式で $R = -dC/dt$ と置いて積分して得られた式をもとに探索法から、 N_{max} , K_m を求め、(19)式から K_L を求めた。(25)式を一般的な充填材に対して適用できるようにするために次式のように置き、物質移動係数 K_L に関しては流れと形状の影響を検討した。

$$K_L = \alpha \cdot Re^n \quad \dots (26) \quad \alpha = 2.04 \left(\frac{D}{2R} \right) \left(\frac{R}{L} \right) \cdot Sc^{1/3} \quad \dots (27)$$

図-6は K_L をレイノルズ数との関係で表したものである。充填材の形状などの特性を表す特性値 α は充填材によって大きく変わっていることが分かる。一方、指数 n の値は0.28となり、円管における理論値 1/3

と近い値となった。これからも(25)式の正しさが検証されたことになる。また、円管束状充填材と異なる充填材についても円管として取扱って差し支えないことを示している。

(2) 除去率に影響を与えるパラメータの感度解析

理論的考察の中で除去率に影響を与えるパラメータが N_{max} , K_L , A , C_i であることを明らかにした。ここではこれらのパラメータが実験によって得られた値の範囲でどの程度の影響の大きさを持っているのかを示す。設計及び操作因子との関係から、 K_L については(26)式、 A , Q については以下の式のように表し、より適切なパラメータを選定した。

$$A = 4 V_f / d \quad \dots\dots(28) \quad Q = (V/C_i) \cdot L_o \quad \dots\dots(29)$$

従って、感度解析のために選定されたパラメータは最大除去フラックス N_{max} 、代表径 d 、充填材の特性値 α 、及び流入濃度である。それぞれのパラメータの値は実験値を基に表-1のように与えた。除去率と容積負荷の関係をシュミレーションした結果をそれぞれ図-7 (a, b, c, d, e)に示す。これらの図から以下のことが明らかになる。除去率に大きな影響を与えるパラメータは充填材の代表径 d 即ち表面積、次に充填材の特性値 α であり、流速 U 、 N_{max} はそれほど大きな影響を与えない。このことは最大除去フラックスがいくら大きくても残存基質の濃度が低濃度になってくると拡散境界層における物質移動抵抗の影響が大きくなり、これが律速段階になってしまうからである。以上の結果は低濃度廃水のメタン発酵処理に対して重要な示唆を与えてくれる。即ち、除去効率を向上させるためには、表面積が大きく、かつ α の大きな充填材が必要になる。しかしながら、表面積を大きくすると代表径を小さくするしなければならない。そうすると生物膜の肥厚化による閉塞の問題を無視することはできなくなるので、負荷によって限界代表径を変えなければならなくなる。

5. おわりに

固定生物膜メタン発酵槽の効率化について理論及び実験の両面から考察を加えた。その結果、以下の様な結論が導かれた。

(1) 固定生物膜メタン発酵槽の除去効率に影響を与える主要なパラメータは、最大除去フラックス、拡散境界層の物質移動係数(充填材の特性値、流速)及び表面積であるが、低濃度廃水の場合その影響の程度は表面積が一番大きく、次に充填材の物質移動の特性値である。流速や最大除去フラックスは除去効率にそれほど大きな影響を与えない。

(2) 通常の充填材では円管束モデルで流れが表現でき、物質移動係数がレイノルズ数の 0.28 乗に比例するという結果が得られた。これは円管内物質移動の理論値にほぼ等しい値である。

記号

A : 充填材表面積	(m^2)	L_o : 容積負荷	($kg/m^3/h$)
C : 生物膜内の基質濃度	(mg/l)	Q : 流入水量	(m^3/h)
C_e : 流出水の残存基質濃度	(mg/l)	R : 円管の半径	(m)
C_i : 流入水の基質濃度	(mg/l)	R_T : 総括反応速度	($mg/l/h$)
C_L : 液本体の基質濃度	(mg/l)	Re : Reynolds Number	(-)
C_s : 生物膜表面の基質濃度	(mg/l)	R_{max} : 最大反応速度	($mg/l/h$)
C_{sc} : 基質が生物膜最深部に丁度		r : 除去率	(-)
到達したときの生物膜表面濃度	(mg/l)	Sc : Shumit Number	(-)
D : 水中での基質の分子拡散係数	(m^2/h)	U : 空筒速度	(m/h)

De : 生物膜内での基質の分子拡散係数	(m^2/h)	Ur : 生物膜単位湿潤体積当りの基質分解速度	($\text{g}/\text{m}^3/\text{h}$)
d : 代表径	(mm)	V : 槽容量	(m^3)
K, K' : 総括反応係数	(m/h)	Vf : 充填材の充填体積	(m^3)
K _F : 生物膜内での反応と拡散輸送を表す係数	(m/h)	X : 生物膜表面からの深さ	(mm)
K _m : 飽和定数	(mg/l)	X _a : 生物膜厚	(mm)
N _F : 生物膜表面での基質フラックス	($\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$)	X _c : 基質侵入深さ	(mm)
N _L : 境界層での基質フラックス	($\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$)	α : 充填材の物質移動に関する特性値	(m/h)
N _{max} : 最大基質除去フラックス	($\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$)	δ : 拡散境界層の厚さ	(mm)
N _r : 液本体からの基質除去フラックス	($\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$)		
N _T : 総括基質除去フラックス	($\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$)		
L : 充填材の長さ	(m)		

参考文献

- 1) Henze M. and Harremoës P. : Anaerobic Treatment of Wastewater in Fixed Film Reactors. - A Literature review Wat. Sci. Tech. 15 (1983)
- 2) 井上、神山 : 嫌気性消化法による下水処理に関する基礎的研究 下水協 22, No. 255 (1985)
- 3) 原田 : 嫌気性スラッジブランケット (UASB) 法による下 wastewater 処理 下水協 22, No. 255 (1985)
- 4) 井上他 : 廃水処理における微生物反応の速度論的考察 土木学会年講 II 38 (1983)
- 5) 井上他 : 固定生物膜メタン発酵槽の効率化について - 充填材形状の影響 - 土木学会年講 II 40 (1985)
- 6) 井上他 : 嫌気性固定床を用いたメタン発酵槽の基礎的研究 衛生工学研究討論会講演論文集 16 (1980)
- 7) 渡辺他 : 回転円板法の浄化機構に関する研究 (I) - 固定生物膜反応の動力学 - 下水協 15, No. 172 (1978)
- 8) Atkinson : Biochemical Reactors Pion Limited (1974)
- 9) 伊藤、松尾 : 非定常解析による回転円板付着生物膜への物質移動の評価 衛生工学研究論文集 19 (1983)
- 10) 三谷 : 固定生物膜メタン発酵槽の効率化に関する研究 - ハニカム型充填材における積層の効果 - 北海道大学工学部卒業論文 (1985)
- 11) Levich, V.G. : Physicochemical Hydrodynamics. Prentice-Hall Inc. (1962)