

(特別講演)

環境浄化への微生物工学的アプローチ

－ 充填塔式汙床法による廃水処理 －

九州大学農学部食糧化学工学科 上 田 誠之助

現在、食品工場などから排出される有機性廃水の処理法としては、活性汚泥法、散水汙床法などの生物学的処理法が普及している。いずれの処理法も、浄化効率、運転操作法、維持管理法、運転設備費などの点から、一長一短があり、また両方とも、かなり広大な設置面積を必要とする。我が国における食品工業の多くは、中小企業的性格が強く、廃水処理に対して十分な投資ができないのが現状で、上記両方の使用を困難にしている。充填塔は土地利用上、経済的であり、構造が簡単で、建設、運転に要する費用が安価であるなどの理由から、これまで化学工業における蒸溜、吸収などの操作に広く利用されてきた。

演者らは従来の散水汙床より高さと径の比はるかに大きい充填塔を利用して、生物膜による処理法について検討した。本研究では散水汙床法について過去にえられている工学的知見と充填塔式汙床法との比較検討ならびに改良について微生物工学的面からの検討を、さらにこれまで殆んど知られていなかった生物膜バクテリアフローラについても検討を行なった。

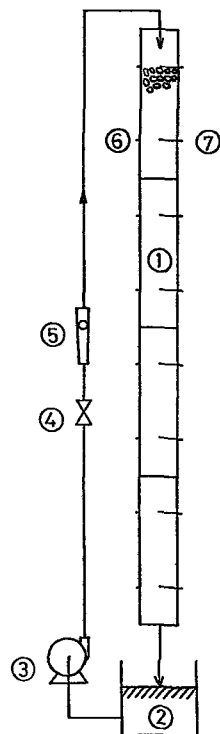
1. 充填塔式汙床法における設計、運転パラメータと浄化効率

1.1 実験方法

1.1.1 実験装置：本実験に用いた実験装置の概略を図1.1に示した。内径100 mm（厚さ5 mm）、高さ1.6 mの透明アクリル円筒をシエルとして用いた。このシエル内に汙材として、河石（平均 $16 \times 20 \times 27$ mm）を充填した（充填部深さ1.5 m、空隙率0.68）。内径13 mmの塩ビ管を汙床中心に設け、充填汙材の頂部5 cmの所から廃水を散水した。シエル上部10 cmから20 cmおきに処理水試料を採取するため、水平方向に 5° 傾斜させた長さ80 mm、内径18 mmの塩ビ導管（汙床内部50 mmは半切りにし、とい状）を、また、同じ位置の反対側には、通風のため、径16 mmの開孔部を各々計8ヶ設けた。なお、廃水の流入部を除き、配管はすべて、内径9 mmの塩ビ管で行なった。流量はロータメータにより測定し、流量調節にはスクリー式コックを用いた。

1.1.2 温度：実験はすべて室温下（生物膜付着期間中は $15 \sim 20^\circ\text{C}$ 、COD除去実験中は $20 \sim 25^\circ\text{C}$ ）で行なった。

1.1.3 廃水：グルコース、ペプトン、リン酸第1カリを各々、 $100 \sim 500 \text{ mg}/\ell$ になるように水道水にとかし、これをpH調整をすることなく（pH 5.5）、合成廃水として使用した。本合成廃



- 1) Packed column
- 2) Batch tank
- 3) Pump
- 4) Screw cock
- 5) Rota meter
- 6) Hole for natural-draft ventilation
- 7) Hole for sampling

図1.1 実験装置概略図

水のCOD KMnO_4 は約 $100 \sim 500 \text{ mg/l}$ であった。付着期間中は初発COD 500 mg/l のものを、また、除去実験では、 $100 \sim 500 \text{ mg/l}$ を使用した。

1.1.4 種菌の種類と付着方法：散水汙床の種菌には活性汚泥、汙床生物膜、下水などが用いられる。本実験では、下水処理場の返送汚泥を種菌とした。汚泥 10 g (wet) を合成廃水 4 l に混ぜ、 600 ml/min で2日間循環した。以後は毎日、合成廃水を取り替え、接種せずに 600 ml/min で循環し（約1ヶ月間）、付着を行った。

1.1.5 有機物負荷と浄化能力：通常の散水汙床法の場合と同様に、有機物負荷は塔単位容積当たり、1日に負荷される有機物量（ $\text{kg COD/m}^3 \cdot \text{day}$ ）として表示した。生物膜装着期間中は、約 $0.17 \text{ kg COD/m}^3 \cdot \text{day}$ ，実験中は廃水の散水量と流入廃水のCOD濃度とから計算した。また塔の浄化能力は、単位容積当たり1日に除去した有機物量（ $\text{kg COD/m}^3 \cdot \text{day}$ ）として表わした。有機物浄化能力と有機物負荷との比が有機物浄化効率（COD浄化効率，COD除去率， $\% \text{ COD removal}$ ）となる。

1.2 実験結果

1.2.1 バッチ（再循環式あるいは回分式）処理：菌付着後、約1ヶ月経過した汙床を用い、バッチ処理中のバッチ槽内のCODの変動を調べた。結果を図1.2に示した。付着時の操作条件（初発COD 500 mg/l ， 4 l ， 600 ml/min ）では約4時間で除去可能なCOD

は殆んど除かれた（82%）が、それ以後はむしろCODは上昇した。同じバッチ量と循環量で、初発COD約

200 mg/l の合成廃水の場合は、約3時間でCODは約80%除去された。次に3時間々隔、1時間々隔と処理時間を短くして、半連続的にバッチ処理を繰り返した。前者では80～90%，後者では75～85%のCOD浄化効率が維持できた。

1.2.2 水量負荷の浄化効率に及ぼす影響：初発CODが200と 500 mg/l の合成廃水を用い、水量負荷 $18 \sim 110 \text{ m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{day}$ にわたって浄化効率への影響を調べた。結果を図1.3に示した。図より明らかなように、いずれの場合にも、水量負荷がますと、浄化効率は減少した。

1.2.3 有機物負荷の浄化効率に及ぼす影響：水量負荷をパラメータとして（ $36 \sim 110 \text{ m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{day}$ ），流入廃水のCOD濃度（初発COD $100 \sim 500 \text{ mg/l}$ ）の影響について調べた。有機物の浄化能力を有機物負荷に対してプロットしたのが図1.4である。水量負荷が高くなるにつれて、データのばらつきは大きくなるが、いずれの水量負荷の場合にも、ある負荷値までは、ほぼ直線関係にあって、この区間では、COD負

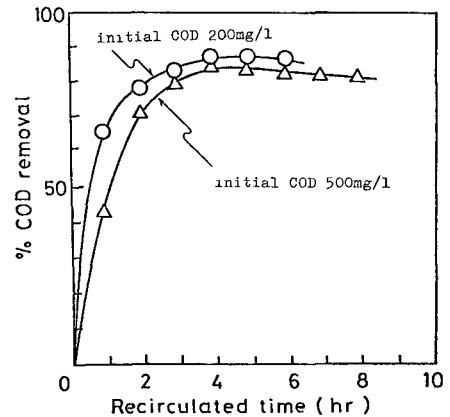


図1.2 回分処理中の処理液のCODの変動

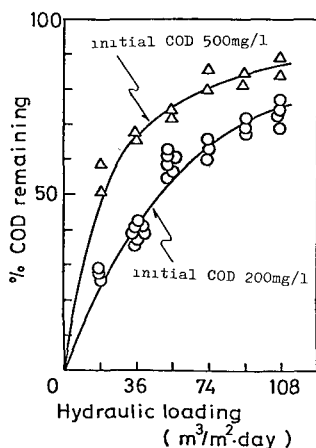


図1.3 水量負荷の浄化効率に及ぼす影響

荷の大小にかゝりなく、COD除去率（浄化効率）は一定であることがわかった。また、この限界負荷値以上に有機物が負荷されても、もはや浄化能力は向上せず、COD除去率は低下し、塔の浄化能力は平衡状態に達した（約 4.5 kg COD/m³・day）。

この限界COD負荷値は水量負荷が増加すると、直線的に増した。

1.2.4 塔長の浄化効率に及ぼす影響：初発COD約200mg/ℓの合成廃水を、200ml/min(36m³/m³・day)で流下させ、各塔長のサンプリング孔より試料を採取し、塔長と浄化効率の関係につき調べた。結果を図1.5に示した。図より明らかなように、充填塔長に対する浄化率は、これまでの散水汙床法と同じく一次の速度式に従って向上する。

1.2.5 強制通気の影響：生物膜が塔の運転中 過剰に増殖し、汙床内の一部が閉塞することがあった。このため、channelling, ponding, poolingが生じ、同時に不快臭が発生した。初発COD約200mg/ℓの合成廃水200ml/minの流下実験において、空気、酸素ガス、窒素ガスを気液向流式に強制通気（約90m³/m³・day）し、6時間流下後の流出液の溶存酸素濃度、COD浄化効率、臭気について調べた。結果を表1.1に示した。いずれのガスの場合も、COD浄化効率に大きな差はみられなかったが、空気、酸素カスを通気した場合は、不快臭は感じられず、また、流出廃水中の溶存酸素濃度が0になると、明らかに臭気が発生した。この結果はRhameらの報告と一致した。自然通気の場合には、流出水中には殆んど溶存酸素を検知できず、また、不快臭を伴うことから、塔内の一部で嫌氣的分解が進行していると思われた。しかしながら、浄化効率に影響がないのは、流入廃水中に8～9mg/ℓの溶存酸素が存在しているため、あるいは、自然通気の汙床では、嫌気状態でも、有機物を除くことのできる通性嫌気性菌がかなり存在し、これが浄化に関与しているためと推察した。

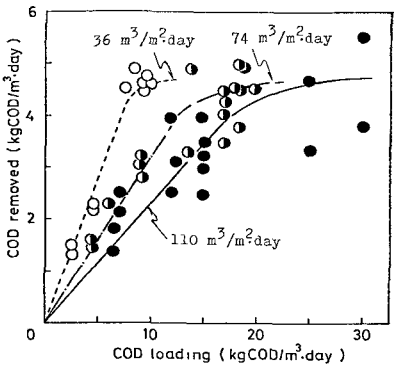


図1.4 有機物負荷の浄化効率に及ぼす影響

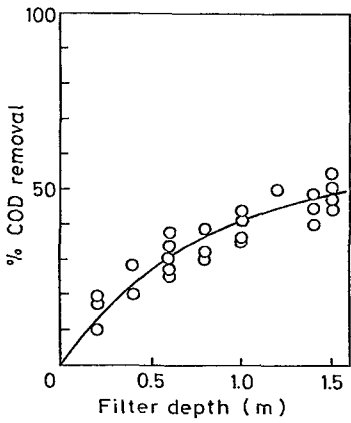


図1.5 塔長の浄化効率に及ぼす影響

表1.1 強制通気の影響（水量負荷＝36m³/m³・day, COD負荷＝5kg COD/m³・day）

	Air			O ₂	N ₂
Rate of ventiration (m ³ /m ² ・day)	0	100	150	100	100
Dissolved oxygen (ppm)	0.0	2.5	3.5	10.0	0.0
COD removal efficiency (%)	45-55	50-55	50-55	43-47	45-55
Odors	+	-	-	-	+

2. 回分処理方式における浄化速度

2.1 充填塔式汙床法の運転法には、1回流下のみで処理する連続方式（1回流下方式）、廃水貯槽を設け、一定量を再循環して処理する回分方式、両者の中間型の3方式が考えられる。回分方式は廃水のCOD濃度が高い場合、1回流下で十分な処理を行なうに必要な高さの汙床がつかれない場合や廃水量が少なく、十分に時間をかけて処理ができる場合などに有効な処理法である。連続方式の場合、浄化効率に影響を及ぼす主なパラメータは汙床の高さと散水量であり、ほとんどの設計式には、この2つのパラメータのみが組み込まれている。回分方式の場合、浄化効率に影響を及ぼす主なパラメータは運転操作時間、再循環流量、バッチ槽に入れる廃水量の3つである。本研究では、充填塔式汙床法での回分処理方式について、浄化効率に及ぼす上記3種のパラメータの影響について調べ、回分処理方式での浄化速度、設計方式などについて検討を行った。

2.2 実験方法

2.2.1 操作条件：本研究で使用した

実験装置の概略図を図2.1に示す。平均直径25mmのガラス球、約400個を汙材として、77cmの充填深さになるように充填した。実験期間中、室内の温度は22℃に、廃水の初温度は20℃とした。汙床内を好氣的に維持するため、約90m³/m²・dayの強制通気を気液向流式に行なった。合成廃水のpHは7.0に調節した。バッチ式処理実験では、初発CODが400~500mg/ℓになるように調節した。

2.2.2 接種：活性汚泥より分離した

1菌株（*Vibrio* sp. A 6株）を接種菌として使用した。

2.2.3 バッチ式処理実験法：バッチ量2~12ℓ，再循環流量9.2~238m³/m²・day（50~1,300ℓ/min）

の範囲で行なった。

2.3 実験結果と考察

2.3.1 実験期間中の浄化能力の変動：回分処理

実験は、運転開始後、約30~70日間にわたって、毎日行なった。この期間中の塔汙床の浄化能力の変動は図2.2の通りであった。図より明らかなように、バッチ量4ℓ，再循環流量110m³/m²・dayでの浄化能力は2~3kg COD/m²・dayと変動は比較的少なく、単位汙床容積当たり活性状態にある生物膜量は殆んど平衡状態に達したと判断した。

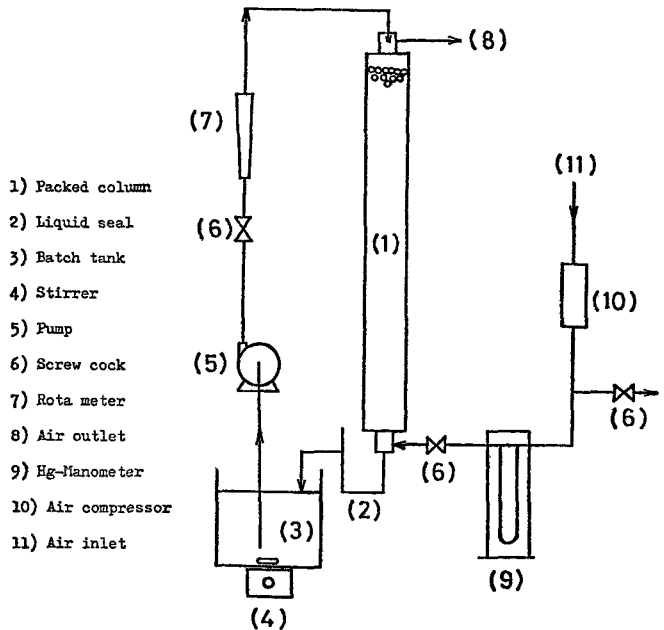


図2.1 実験装置概略図

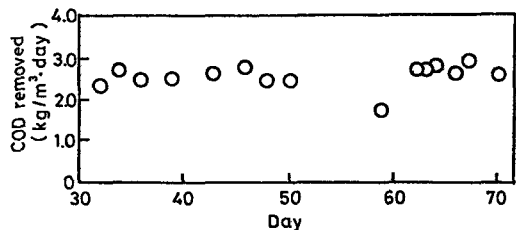


図2.2 回分処理実験期間中の浄化能力の変動

2.3.2 浄化速度および浄化能力の推算：以後の解析では、初発COD＝C_t (kg/m³)，バッチ量＝V_b (m³)，再循環流量＝Fr (m³/m²・day)，運転操作時間＝t (hr)，時間tでのバッチ槽中の廃水のCOD＝C_t (kg/m³)とした。図2.3にV_b＝5×10⁻³m³(5ℓ)，Fr＝183m³/m²・day(1,000mℓ/min)での回分処理実験での結果を示した。本図より回分処理での廃水の浄化速度はバッチ槽中の廃水のCOD濃度に依存していることがわかる。すなわち、バッチ槽中の残存COD濃度C_tは運転操作時間tと関係づけることができる。一次速度式が適用できると仮定すると、次式(2.1)が成立する。

$$-dC/dt = k_1 \cdot C_t \quad \cdots \cdots (2.1)$$

有機性廃水の生物学的処理では、比較的低濃度のCODレベルでの除去反応が多く、活性汚泥法における回分方式や、散水汙床法での連続方式の場合などには、一次反応速度式がよく適用されている。

塔汙床中の活性生物膜量が平衡に達した場合、任意の操作条件下で、(1)式を積分すると、log(C_t/C₀)＝－k₂t(ただしk₁＝2.3k₂)となる。

図2.3の結果を本式によってプロットすると図2.4となる。本実験に使用した合成廃水のCODは90～95%までしか生物的処理では除かれない。図2.4からC_t/C₀<0.1では除去速度に遅退効果がみられ、(2.1)式は適用できない。(2.1)式は、回分処理方式での、この塔床の浄化能力を迅速に推算できることを示している。すなわちC_t/C₀＝0.1(COD除去率90%)のときの塔の浄化能力Cap(kg COD/m²・day)は次式となる。

$$Cap = 21.6 \cdot C_0 \cdot V_b / (t_{0.1} \cdot V_f) \\ = 21.6 \cdot k_2 \cdot C_0 \cdot V_b / V_f \quad \cdots \cdots (2.2)$$

ここでt_{0.1}(hr)はCODが90%除去されるに要する運転時間であり、V_f(m³)は汙床容積である。以下で使用する浄化能力は、すべて実験開始後、約1時間以内のk₂より(2.2)式に従って回帰的に算出した推算値である。

2.3.3 再循環流量の浄化能力に及ぼす影響：バッチ量を4ℓとし、再循環流量を9.2～238m³/m²・day(50～1,300mℓ/min)までかえて、浄化能力に及ぼす再循環流量の影響を調べた。その結果を図2.5に示す。再循環流量が110m³/m²・dayまでは、再循環流量に応じて塔汙床の浄化能力は著しく向上した。

汙床の単位容積当たりの生物膜量がすべて有効

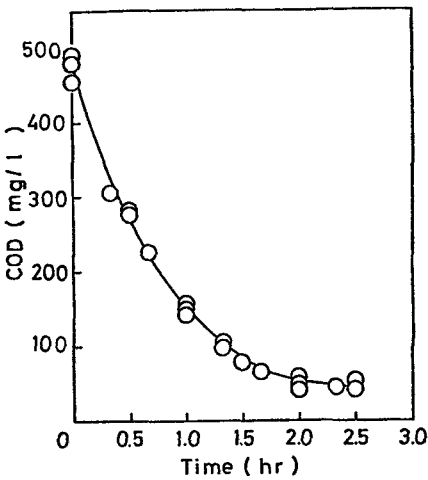


図2.3 回分処理の経過

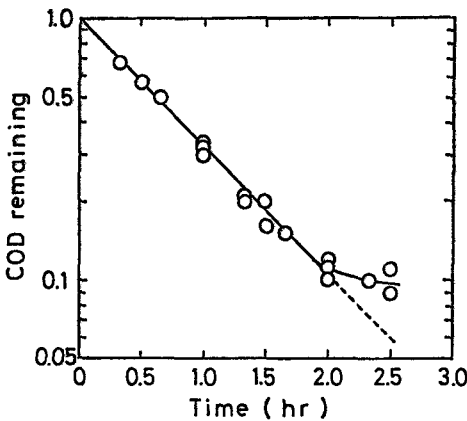


図2.4 回分処理方式における浄化速度の解析

濡れ面積として浄化に関与しているとするれば、浄化能力は、再循環流量、バッチ量には関係なく一定であると考えられている。従って、上記のような著しい浄化効率の変動は塔汙床内の全活性生物膜のうちの一部が浄化に関与し、 $110\text{ m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{day}$ 以下の再循環流量では、付着している生物膜のすべてが有機物の除去に有効な濡れ面積として利用されているとは考えられない。一般に、汙床内部のすべての生物膜に均一に廃水を散水することは不可能で、利用効率の高い循環流量を選んで塔を運転する必要がある。

2.3.4 接触回数の影響：廃水と汙床内生物膜との単位時間当たりの接触回数 $n(\text{hr}^{-1})$ は、再循環流量 $Fr(\text{m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{day})$ とバッチ量 $Vb(\text{m}^3)$ によってきまる。

$$n = Fr \cdot Af / 24 \cdot Vb \quad \cdots \cdots (2.3)$$

ここで $Af(\text{m}^2)$ は汙床断面面積である。(2.2)式における見かけの浄化速度定数 k_2 と単位時間当たりの接触回数 n とをプロットしたのが図2.6である。図より

$$110 \leq Fr \leq 238,$$

$$4 \times 10^{-3} \leq Vb \leq 12 \times 10^{-3} \text{ で } k_2 \text{ と } n \text{ とは ほぼ}$$

直線関係 ($k_2 = 0.036 n$) にあることがわかる。

この関係を(2.1)式に適用すると

$$\begin{aligned} \log(Ct/C_0) &= -k_2 \cdot t \\ &= -0.036 n \cdot t \quad \cdots \cdots (2.4) \\ &= -0.036 Fr \cdot Af \cdot t / 24 Vb \end{aligned}$$

$$\cdots \cdots (2.5)$$

$$= -0.036 N \quad \cdots \cdots (2.6)$$

ここで N は運転操作時間 t までに廃水が塔汙床内の生物膜と接触した全回数を示している。

($N = nt$) 図2.6と同じ関係を(2.6)式によって解析したのが図2.7である。

(2.5)式は設計に便利な形であり、(2.6)式は回分方式での浄化速度が生物膜との全接触回数に依存していることを示している。

(2.6)式を微分方程式の形にすると次式(2.7)

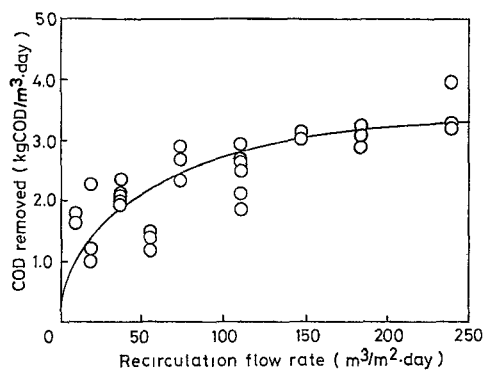


図2.5 再循環流量の浄化効率に及ぼす影響

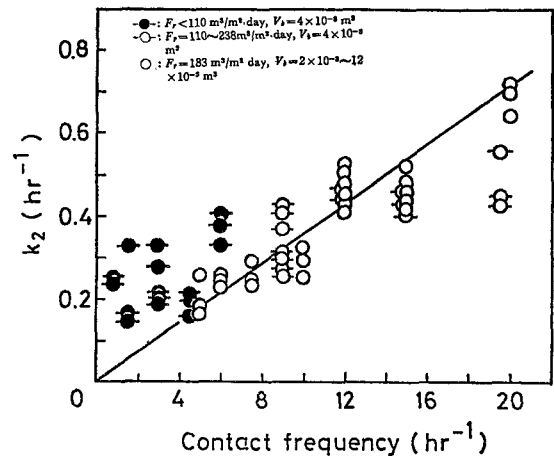


図2.6 接触回数と浄化速度定数との関係

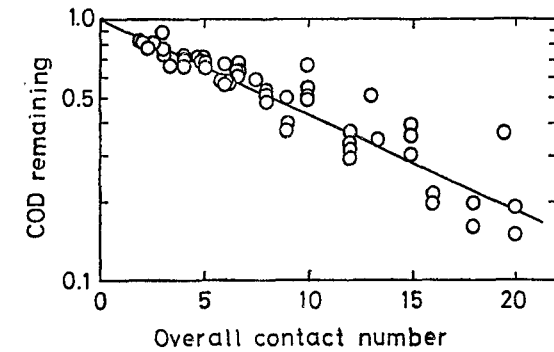


図2.7 全接触回数と浄化効率との関係

となる。

$$-dCt/dN = k_3 \cdot Ct \dots\dots\dots (2.7)$$

k_3 は浄化に関与する単位汚床断面積当たりの生物膜量の関数と考えられる。また、実験系での流動状態がピストン流であると仮定すると、(2.7)式は散水汚床法の一回流下処理方式について報告されている設計式と同形になっている。

3. 塔汚床における優勢バクテリアフローラの変遷

3.1 実験方法：充填塔の汚材にポリプロピレン製球形汚材(径約25mm)を、供試菌には *Flavobacterium* sp. S78 株を用いた。その他の実験方法、操作条件は研究2に準じた。

3.2 実験結果と考察

3.2.1 接種条件の検討：*Flavobacterium* sp. S78 株の初発菌量を 20mg/ℓ～200mg/ℓ までかえて、3日後、付着生物膜量とCOD浄化効率との関係を調べた。結果を図3.1に示した。図より明らかなように、初発菌体濃度が約50mg/ℓ以上であれば、付着菌体量にかかわらずCOD浄化率は一定となる。初発菌体量を100mg/ℓとし、水量負荷を約20～360m³/m²・dayと変化させて付着生育状態をみたのが図3.2である。COD浄化率は約300m³/m²・dayまで増加するが、それ以上ではほぼ一定である。しかし、付着生物膜量は300m³/m²・day以上の高水量負荷になると、かなり減少する。

3.2.2 各種塔長の塔汚床の浄化特性：運転開始後、1ヶ月を経てから約1ヶ月間にわたって、水量負荷をパラメータに浄化特性を検討した。結果を図3.3に示した。

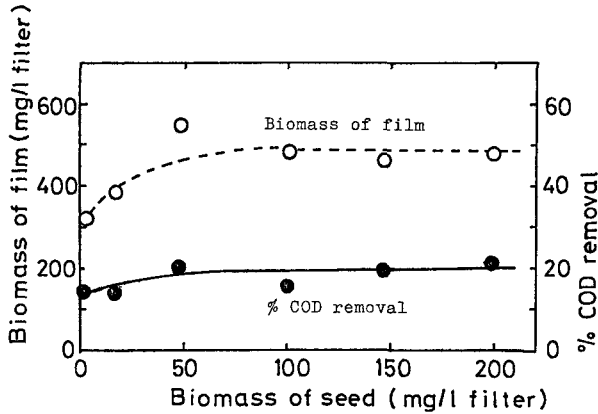


図3.1 接種時の接種菌体量の影響

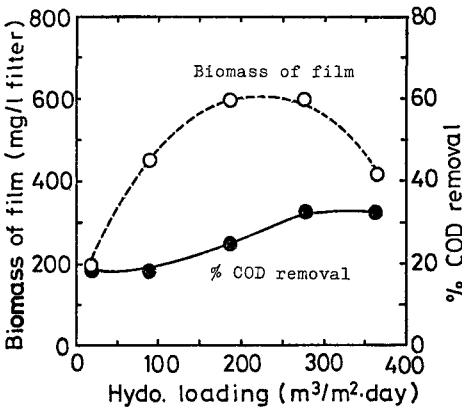


図3.2 接種時の水量負荷の影響

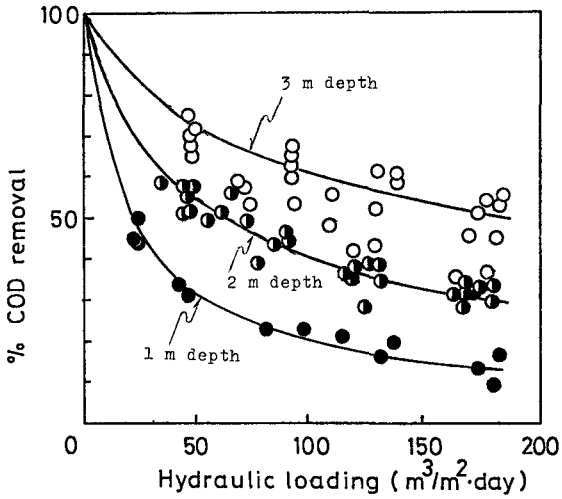


図3.3 3種の汚床の浄化特性

散水汙床法についてSchulzeは汙床深さと水量負荷とを変数とした設計式を報告している。

$$C_e/C_0 = 10^{-KD^m/Q^n} \dots\dots\dots (3.1)$$

(3.1)式は定性的には多くの人によって支持されている。なお、 C_0 、 C_e はそれぞれ流入、流出廃水のBOD濃度、 D は汙床深さ、 Q は水量負荷、 K 、 m 、 n は定数である。図3.3に示した実験結果を(3.1)式で解析した結果を図3.4に示した。すなわち、(3.1)式は次のようになる。

$$C_e/C_0 = 10^{-0.49 D^{1.34}/Q^{0.69}} \dots\dots\dots (3.2)$$

$m = 1$ ， $n = \frac{2}{3}$ が多くの研究者により支持されているが、本実験結果からは $m = 1.34$ ， $n = 0.69$ であった。以上のデータをCOD負荷とCOD浄化能力とでプロットしなおすと図3.5がえられ、COD浄化能力は汙床深さに依存せず、COD平面負荷のみに依存していることを示している。直線の勾配0.135は汙床深さを1 m増したときの浄化効率の増加率（13.5%）を示しており、縦軸切片、 $1.5 \text{ kg COD/m}^3 \cdot \text{day}$ は有機物の吸着による浄化能力とみなされている。

3.3.3 生物膜のバクテリアフローラ：各汙床におけるバクテリアの垂直方向での経時的変遷が認められた。

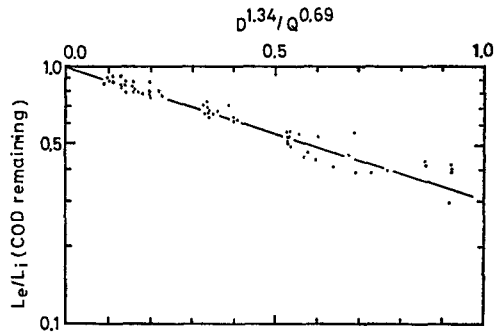


図3.4 Schulze, Howland
の設計式による浄化特性の解析

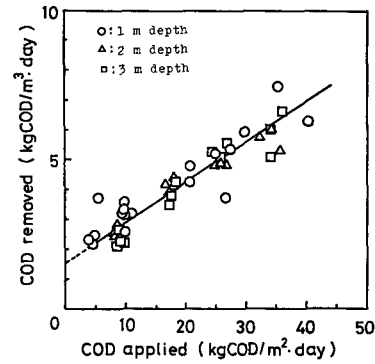


図3.5 COD平面負荷とCOD浄化能力との関係