

(36)

新規の多段型高温 UASB リアクターによる 超高速廃水処理装置の実現化

— アルコール蒸留廃水の高速処理特性と高濃度生物保持能の評価 —

Realization of Super High-Rate Anaerobic Wastewaters Treatment by A Novel Multi-staged Thermophilic UASB Reactor

Treatment Performance of an Alcohol Distillery Wasterwater and High Biomass Retainment

原田 秀樹*、珠坪 一晃*、大橋 晶良*、関口 勇地*、多川 正*

Hideki HARADA, Kazuaki SHUTSUBO, Akiyoshi OHASHI, Yuji SEKIGUCHI, Tadashi TAGAWA

ABSTRACT: In this study a super high-rate anaerobic wastewaters treatment process, which can exceed a loading $100 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$, was realized by emergence of a novel multi-staged thermophilic UASB reactor. A laboratory-scale multi-staged UASB reactor was operated at 55°C by feeding an alcohol distillery wastewater for a period of nine months. The reactor successfully reached an extremely high loading of $100 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ (at a HRT of only 2.4 h for the influent strength of $10\,000 \text{ mgCOD} \cdot \text{l}^{-1}$) after 80 days operation, and afterwards allowed stably this loading rate with 85 to 90% COD removal over six months. The reactor accommodated finally $40\,000 \text{ mgVSS}$ per liter reactor volume, corresponding to sludge-basis loading of $3.4 \text{ kgCOD} \cdot \text{kgVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$.

Installation of multiple number of GSS (Gas-Solid Separator) devices along reactor height functioned very adequately for promptly exclusion of biogas from generation site (sludge bed), lessening liquid turbulence and resulting in abatement of cell shear-off from granules surface. Vial activity tests of thermophilically-grown sludge revealed that propionate-fed methanogenic activity was relatively low, 1/4 of acetate-fed activity and only 1/23 of hydrogen-fed activity. This finding suggests that breakdown of propionate is mostly subject to be a rate-limiting step in the anaerobic organic degradation processes. Withdrawal of generated biogas from the lower portion of multi-staged UASB reactor proved to be also effective for lowering hydrogen partial pressure in the lower reactor portion so that propionate degradation can be enhanced.

KEYWORDS: Anaerobic Wastewater Treatment, Multi-staged UASB, Super high-rate bioreactor, Thermophilic UASB process, Granulation

1 はじめに

現在、UASB (上昇流嫌気性スラッジブランケット) 法による廃水処理プロセスは、アグロインダストリー系廃水等を中心に広く適用されてきているが、ほとんどのフルスケールプラントは、中温度域 (35°C) もしくは無加温で運転されており、高温 (55°C) 廃水の処理に適用された例は極めて少ない¹⁾。これは、高温域におけるグラニュール形成に関する知見が著しく乏しく、反応器運転管理手法が確立されていないためである。しかしながら、高温性メタン生成細菌は、中温菌と比較して数倍高い活性を持つことから、高温UASB法においても良好なグラニュール汚泥が形成されれば高い処理能力が期待できる。

そこで、著者らの実験室では、これまでにいくつかの高温 (55°C) UASBリアクターのスタートアップ実験を行って、高温UASBグラニュールの生態学的特性や形成メカニズムに関して有用な知見を蓄積してきた。植種汚泥として高温消化汚泥を、供給基質として人工廃水 (シクロロース + VFA 混合基質) を用いた高温UASB

* 長岡技術科学大学 環境システム工学系

(Department of Environmental Systems Engineering, Nagaoka University of Technology)

リアクターでは、最終的に容積負荷 $45\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ を許容した²⁾。また、植種源として中温グラニュール汚泥、供給廃水としてアルコール蒸留廃水を用いた実験系では $30\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ を発揮した³⁾。しかしながら、高負荷条件下での運転では、以下のような問題点が見いだされた：(1) 過大な生成ガスによる上昇線流速により、保持汚泥のウォッシュアウトが生じる（汚泥流出量が、汚泥増殖量を上回る）という物理的な問題により、反応器の安定的な運転が困難になる、(2) プロピオン酸の分解が律速となり易く、処理水中への蓄積が生じる。

これらの問題は、他の高温UASB実験においても多く観察されている^{4), 5), 6), 7), 8)}。これまでの研究成果からも高温培養汚泥は $3.7\text{gCOD}\cdot\text{gVSS}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ という、非常に高い負荷を許容できることが分かっており²⁾、仮に反応器容積当たり、 $30\text{gVSS}\cdot\text{l}^{-1}$ の汚泥が保持できれば、生物処理では前代未踏のCOD容積負荷 $100\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ を許容することが可能になる。このような超高速廃水処理プロセスの実現のためには、上記(1)、(2)の問題解決が必要不可欠となる。

そこで、本研究では、これらの問題を解決すべく、反応器高さ方向の数カ所から生成バイオガスの原位置での回収が可能な新規の多段化UASB反応器を開発し、アルコール蒸留実廃水を供した長期連続処理実験によってその処理性能を検討した。とくに、高負荷運転条件下での保持汚泥性状（沈降性、粒径、メタン生成活性）、反応器高さ方向のガス生成速度とガス組成等の挙動を把握することによって、本装置の高濃度生物保持能と超高速処理性能の有効性を評価した。

2 実験方法

2.1 UASB リアクター

Fig.1 に実験に用いたUASB反応器の概要図を示す。反応器は、高さ84.5cm、内径 $15\times 10\text{cm}$ （最大断面）の矩形断面であり、GSS (Gas-Solid Separator) を含む反応部は階段状に折れ曲がった形状となっている。反応器高さ方向には、7.5cm おきに8つのGSSが設けてある。この反応器の特徴的な点は、多段に設けたGSSによって、生成したバイオガスを発生原位置でいち早く系外に排除することにより、生成バイオガスによる上昇線流速の低減（反応器への汚泥保持）と、反応器内の水素分圧の低減（プロピオン酸の分解が進行し易い環境条件の確保）を積極的に行うところにある。反応器は全容積 8.0 l （液相部）であり、容積負荷とHRTの算定は 8.0 l を基準として行った。反応器内の温度は、ウォータージャケットにより 55°C に制御した。生成バイオガスは、鉄ベレットを充填した脱硫カラムを通過させたものを湿式ガスメーターに送り、発生ガス量の測定を行った。

2.2 供給廃水

連続実験には、アルコール蒸留廃水原液（ $\text{COD}_{\text{Cr}}=420\text{gCOD}\cdot\text{l}^{-1}$ ）を水道水で希釈し、 $\text{COD}_{\text{Cr}}3000\text{mgCOD}\cdot\text{l}^{-1}$ に調整したものに、無機栄養塩類（ NH_4Cl : $37\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、 KH_2PO_4 : $33\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、 $\text{MgCl}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$: $13\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、 $\text{CaCl}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$: $33\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ ）を添加したものをを用いた。なお、実験期間を通じて、無機塩の添加量は一定とした。流入 COD_{Cr} （以降CODは、 COD_{Cr} を示す）濃度は、連続実験期間中 3000 、 6000 、 8000 、 $10000\text{mgCOD}\cdot\text{l}^{-1}$ の4段階に設定した。なお、反応器運転開始後157日目以降は、工場側のアルコール製品の季節的生産切り替えのため供給廃水種（アルコール蒸留廃水の種類）が変化している。

2.3 植種汚泥

リアクターへの植種は、既報³⁾の高温UASB実験保持グラニュール汚泥（培養基質：アルコール蒸留廃水、容積負荷 $30\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ ）を 4°C で約一年間保存したものを、 384gVSS （ $48\text{gVSS}\cdot\text{l}^{-1}$ 、 $\text{VSS/SS}=0.68$ 、 $\text{SVI}=21\text{ ml}\cdot\text{gVSS}^{-1}$ ）反応器に投入し、数時間静置させた後に 55°C で廃水の供給を開始した。

2.4 メタン生成活性試験

メタン生成活性は、植種汚泥（0日目）、運転開始後51日目（ $40\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ ）、131日目（ $100\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ ）、254日目（ $100\text{kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ ）の保持汚泥について、 55°C 温度条件下で測定した。試験基質には、酢酸、プロピオン酸、水素（ $\text{H}_2:\text{CO}_2=80:20$, 1.4atm ）の各基質を用いた。バイアルの振とうにはロータリーシェーカー（ 130rpm 、振とう半径 5cm ）を用い、各条件につき2本ずつ測定を行った³⁾。

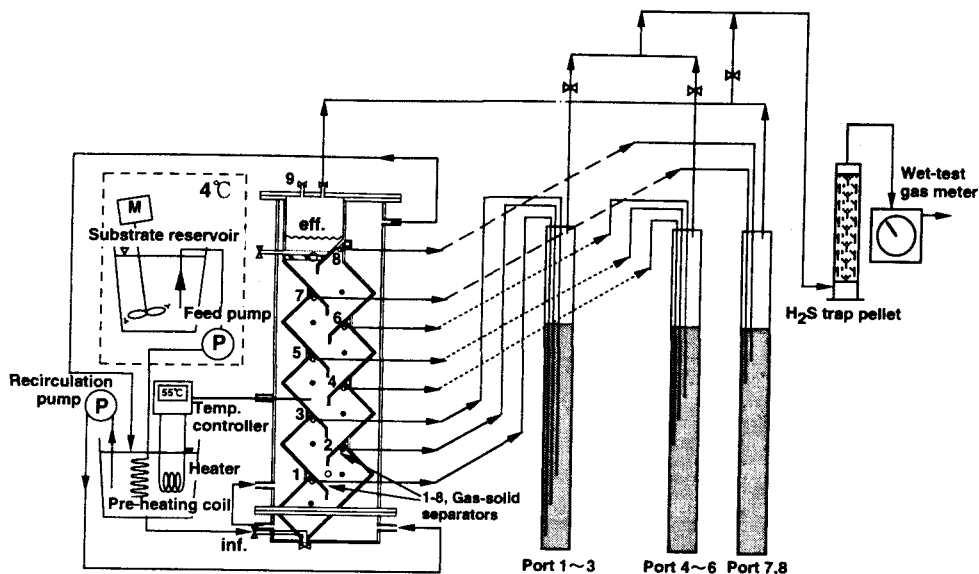


Fig.1 Experimental setup of a thermophilic upflow anaerobic multi-staged reactor.

3 実験結果および考察

3.1 反応器処理特性

Fig.2に多段型高温UASBリアクターによるアルコール蒸留廃水の処理状況を示した。容積負荷の上昇は、HRTの短縮と、流入COD濃度の階段的増加により行っており、約80日という短期間で、 $6.7 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ から $100 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ という超高負荷にまで上昇させることが可能であった (Fig.2a参照)。 $100 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ 許容時のHRTは2.4時間、汚泥負荷は $3.4 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ (115日目)であった。 $100 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ 達成後も、約6ヶ月もの長期間、安定的な運転が可能であり、本研究で開発した多段型高温UASBリアクターの超高速嫌気性処理プロセスとしての有効性が実証された。COD除去率は、廃水切り替え前 (156日まで) は、ほぼ91-94%を維持して良好なCOD除去が行われていた。また、除去されたCODのメタン転換率は90-92%であった。運転開始後157日目以降、供給アルコール蒸留廃水の種類が変更され (図中に破線で示す)、それに伴いCOD除去率は、92-93%程度からいったん80%にまで低下したが、その後、徐々に回復し以降83-85%で安定的な運転を継続した。このCOD除去率の低下は、主に廃水中の色度成分 (難分解性成分) が増加したためと考えられる。

Fig. 3に処理水中のVFA濃度の経日変化を示した。容積負荷を $67 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ に上昇させた頃 (60日目) から、徐々に流出VFA濃度が上昇し始めるが、廃水種切り替え前の $100 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ 負荷許容時 (80日~156日)の流出VFA濃度は、酢酸、プロピオン酸ともに $150\text{--}200 \text{ mgCOD} \cdot \text{l}^{-1}$ 程度であり、非常に良好な除去が行われている。廃水種を切り替えた157日目以降、処理水中のVFA濃度に大きな変化が観察された。流出酢酸濃度は、 $100\text{--}150 \text{ mgCOD} \cdot \text{l}^{-1}$ から、 $50\text{--}100 \text{ mgCOD} \cdot \text{l}^{-1}$ へと減少したのに対し、流出プロピオン酸濃度は、 $150 \text{ mgCOD} \cdot \text{l}^{-1}$ から、 $300\text{--}650 \text{ mgCOD} \cdot \text{l}^{-1}$ へと増加した。この様な、プロピオン酸の蓄積現象は、他の糖系廃水処理高温UASBにおいても、よく観察されている。^{6), 7), 9)} 既報の従来型の高温UASBリアクターで同一種のアルコール蒸留廃水連続処理実験を行った結果では、最大許容容積負荷 $30 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ ではほぼ同じレベルのプロピオン酸の蓄積 ($600\text{--}650 \text{ mgCOD} \cdot \text{l}^{-1}$) を観察した³⁾。多段型UASBリアクターを用いた本実験系では、従来型UASBの3倍以上の容積負荷 ($100 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$) で運転されているにもかかわらず、同程度の流出プロピオン酸濃度が維持されていた。これは、多段型UASBリアクターでは、生成バイオガスを発生原位置付近ですみや

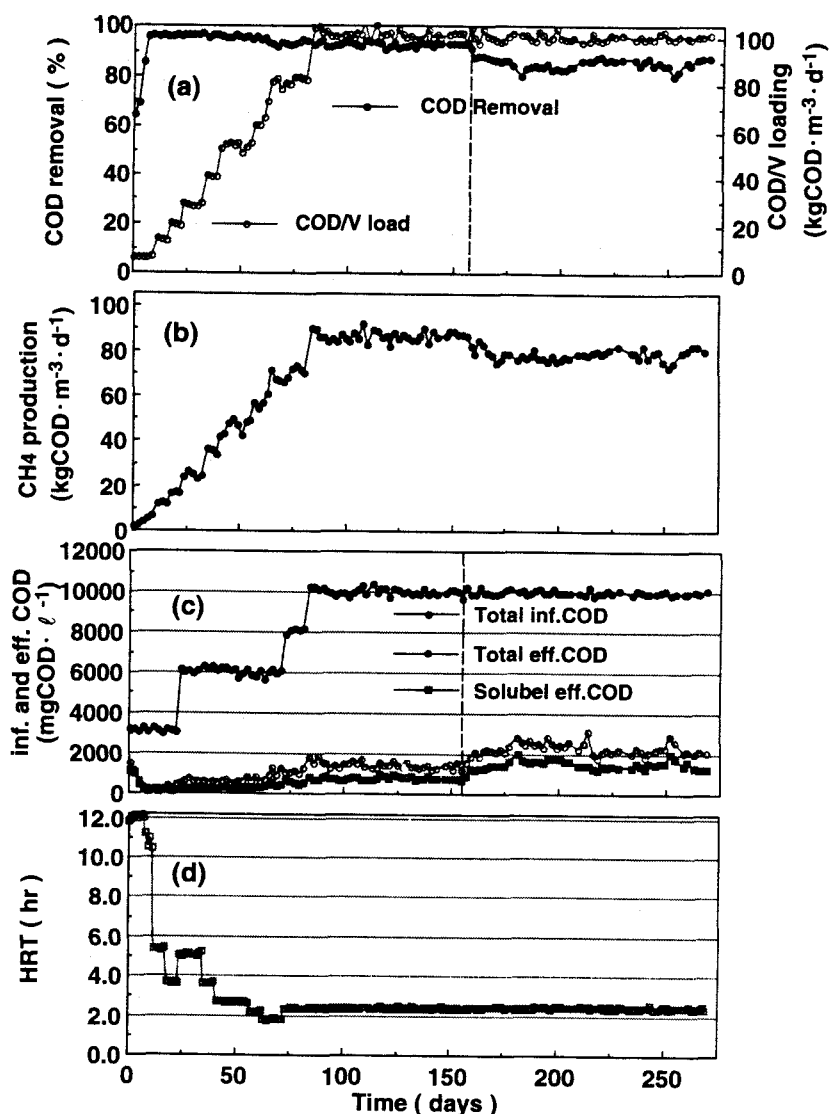


Fig.2 Process performance of thermophilic UASB reactor treating an alcohol distillery wastewater at 55°C.

かに排除することによって、スラッジベッド部の水素分圧を従来型UASBと比較してより低く保つことに有効に作用していたものと考えられる（後述 Fig.8-1 を参照）。

3.2 グラニュレーションの進行とその影響因子

Fig. 4 に流出 VSS 濃度の経時変化を示した。流出 VSS 濃度は、負荷の上昇に伴い増加し、容積負荷 $100 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ 時には、 $800\text{--}900 \text{ mgVSS} \cdot \ell^{-1}$ に達している。この時の、ガス生成速度は $500 \ell \cdot \text{d}^{-1}$ (35°C) と非常に高く、反応器最大断面における上昇線流速（流入流量と、ガス生成速度の総和を $15 \times 10 \text{ cm}$ で除した値）は約 $1.6 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ に達している（最も断面積が小さくなる GSS 末端部 [$3.9 \times 10 \text{ cm}$] では、 $6.1 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ ）。本研究において開発した UASB 反応器は、反応器高さ方向の数カ所から生成バイオガスを排除出来る機構になっているので、反応器上部の上昇線流速（上昇ガスによる効果を考慮した）は、この値よりもかなり低く抑えられているものと考えられる。

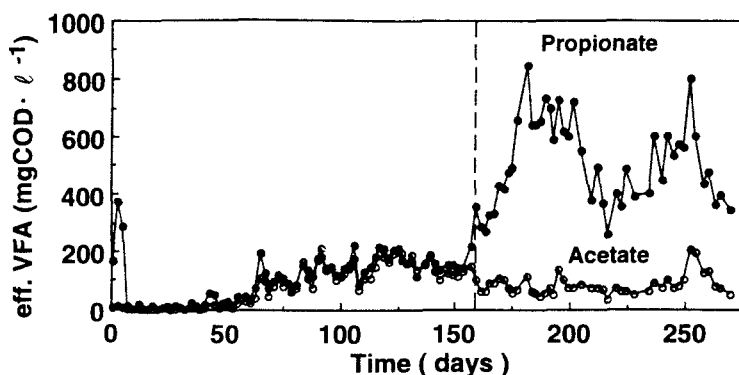


Fig.3 Changes in effluent VFA concentration.

廃水種の切り替え後（157日目以降）は、流出VSS濃度は一時的に $600\text{--}800\text{ mgVSS}\cdot\ell^{-1}$ に上昇するが、その後は、 $400\text{--}600\text{ mgVSS}\cdot\ell^{-1}$ 前後で安定的に推移した。既報での従来型の高温UASB実験系³⁾においては、最大容積負荷 $30\text{ kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ 時には流出VSS濃度は $400\text{--}600\text{ mgVSS}\cdot\ell^{-1}$ に達していた。本研究で用いた高温UASBではその3倍以上の超高負荷運転（ $100\text{ kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ ）にもかかわらず、GSS（固液分離部）の多段化配置による生成バイオガスの反応器外への引き抜きによる上昇流速の低減効果によって、流出VSS濃度の低減（高温グラニュールの反応器への保持）が可能であったといえる。なお、実験期間を通じて、流出VSSのほとんどが、整った形のグラニュール状の汚泥であった。これは、グラニュール内部で生成されたバイオガスが放出されず、その結果、浮上・流出したものと考えられる。

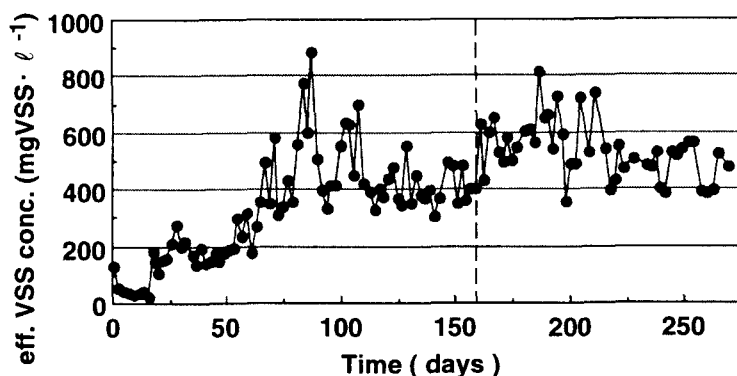


Fig. 4 Changes in effluent VSS concentration.

Fig. 5 に、SVI と保持汚泥の平均粒径の経日変化を示した。反応器保持汚泥のSVIは最終的には約 $17\text{ ml}\cdot\text{VSS}^{-1}$ に達しており、実験期間を通じて十分な沈降性が維持された。保持汚泥の平均粒径（個数基準）は、運転開始後約1ヶ月後には植種グラニュール汚泥の一部が崩壊したことにより、 0.77 mm 前後にまで減少した。それ以降、グラニュールの膨化が生じたことにより 0.91 mm まで増加するが、最終的にはグラニュレーションが進行し汚泥密度が増加したことにより、粒径は 0.7 mm 程度となった。

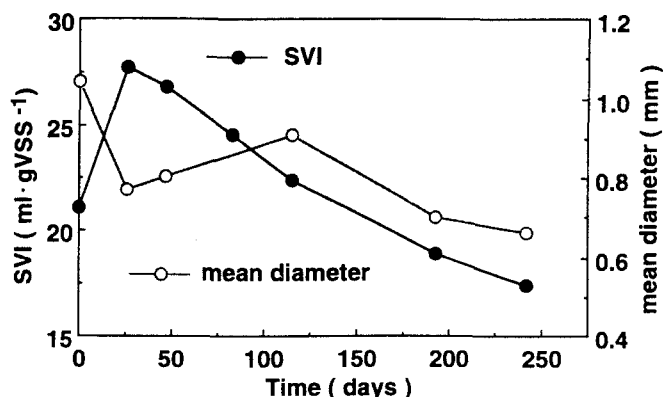


Fig. 5 Changes in SVI and Mean diameter of the retained sludge (port No.5, 39.5cm).

Fig. 6 に、反応器高さ方向の汚泥濃度プロファイルの経日変化を、Fig. 7 には Fig. 6 のプロファイルより求めた反応器汚泥保持量と、COD-汚泥負荷の経日変化を示した。運転開始時のスラッジベッド部の汚泥濃度は $60\,000\text{--}70\,000\text{ mgVSS}\cdot\text{l}^{-1}$ であったが、運転開始後 47 日目には $20\,000\text{--}30\,000\text{ mgVSS}\cdot\text{l}^{-1}$ に急激に減少している。その後汚泥の沈降性の改善に伴い、ベッド汚泥濃度は $45\,000\text{--}50\,000\text{ mgVSS}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度にまで上昇し、 $100\text{ kgCOD}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ 許容時にも十分な汚泥濃度を確保することが可能であった。なお、最終的な反応器体積 1 l 当たりの汚泥濃度は、 $39\,700\text{ mgVSS}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。COD-汚泥負荷は、容積負荷の上昇と保持汚泥量の減少により、運転開始後 115 日目には最大 $3.4\text{ gCOD}\cdot\text{gVSS}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ にまで上昇するが、最終的には保持汚泥量が増加したことにより $2.5\text{ gCOD}\cdot\text{gVSS}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ となった (242 日目)。以上の結果より、多段型 UASB 反応器では、高い活性を持つ高温グラニュール汚泥を高濃度に保持出来たことにより、廃水の超高速処理が実現可能であった。

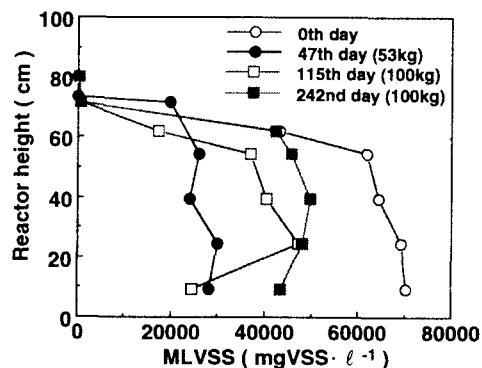


Fig. 6 Profiles of MLVSS concentration over the reactor height.

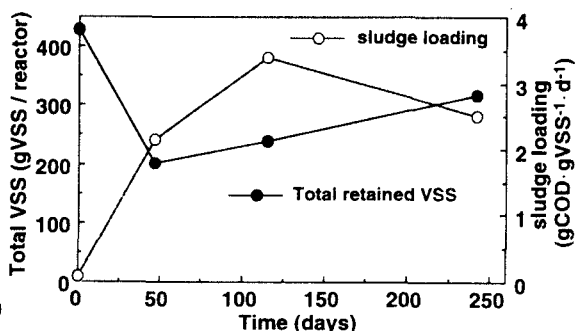


Fig. 7 Changes in total biomass retainment and COD sludge loading.

3.3 GSS (固液分離装置) の多段化配置による反応器系内の水素分圧の低減効果

Fig. 8 -1 に、各負荷条件下における反応器高さ方向の生成バイオガス中の水素分圧 (含有率) の経日変化を、Fig. 8 -2 には、炭酸及びメタン分圧の経日変化を示した。なお、反応器高さ方向のガス組成は、反応器下部 (ポート 1 ~ 3)、中央部 (ポート 4 ~ 6)、上部 (ポート 7 ~ 8) の 3 カ所で測定した。

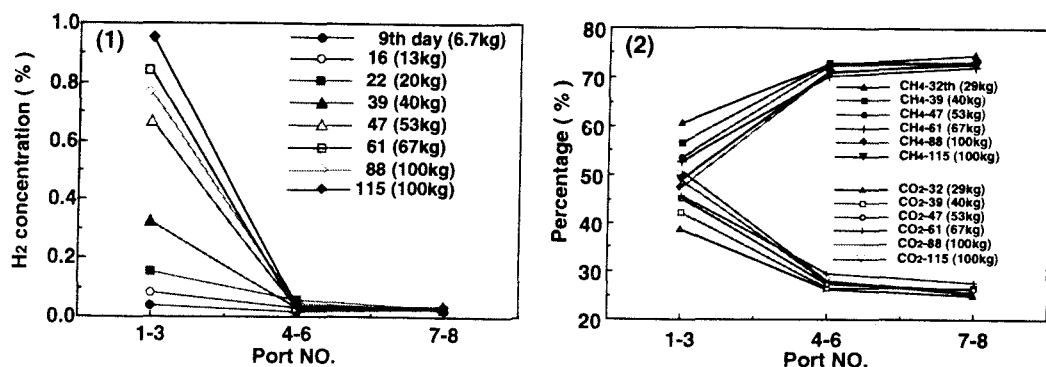


Fig.8 Profiles of hydrogen, CH₄ and CO₂ percentages in the biogas along reactor height.

これより、反応器下部（ポート1～3）では水素分圧が高く保たれているのに対し、反応器中央部（ポート4～6）、及び上部（ポート7～8）では急激に水素分圧が低くなっていることが確認できる（Fig.8-1）。また負荷の上昇に伴い、反応器下部における水素分圧は徐々に上昇し100 kgCOD・m⁻³・d⁻¹時には、0.95%（947Pa）と、非常に高い分圧に達している。反応器中央部や上部においても、水素分圧の上昇は観察されたが、増加量はごくわずかであった。100 kgCOD・m⁻³・d⁻¹許容時の、反応器中央部、上部の水素分圧は、0.023-0.043%（運転開始後115日目）であり、非常に低いレベルで維持されていた。既報の高温UASB実験では、最高負荷許容時の反応器気相部の水素分圧は、それぞれ0.6-0.8%²⁾、0.15-0.3%³⁾であり、本装置（多段化UASB）の水素分圧（反応器中央部・上部）よりもかなり高い値であった。

反応器高さ方向のCO₂分圧は、H₂分圧と同様に反応器高さ方向で徐々に減少する傾向にあるが、CH₄分圧は高さ方向で徐々に増加する傾向にあり、反応器下部では主に酸生成が、上部ではメタン生成が中心に行われている様子が分かる（Fig.8-2）。

Fig. 9 -1 に反応器高さ方向のCOD濃度プロファイルを示した。流入CODは、反応器ポート3～5（高さ25cm～40cm）までにそのほとんどが除去されている。またVFAプロファイルでは、ベット下部では酢酸が高濃度に存在し、ベット中央部から上部にかけてはプロピオン酸の方がより多く存在していた。反応器下部では水素生成を伴う酸生成反応が活発に行われており、そのために水素分圧が高くなったものと考えられる。

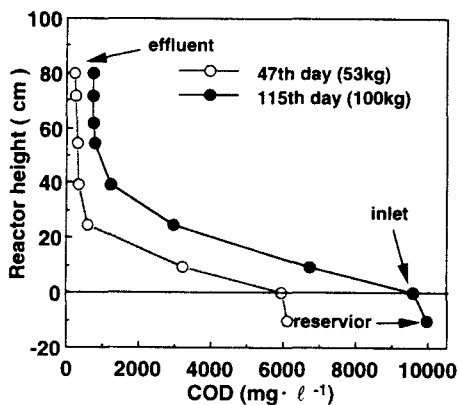


Fig.9-1 Profiles of COD concentration over reactor height.

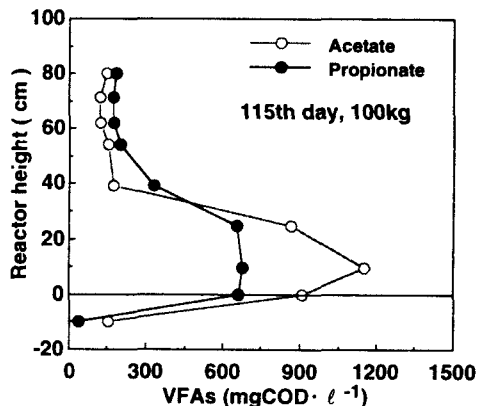


Fig.9-2 Profiles of VFA concentration over reactor height.

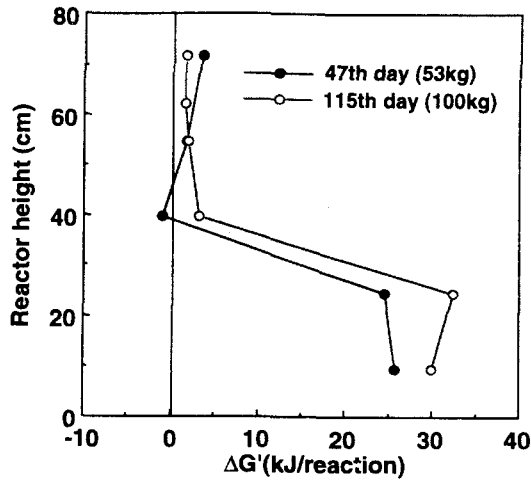


Fig. 10 Changes in free energy changes with regard to propionate-oxidation over reactor height.

プロピオン酸分解反応の進行の自発性は、系の水素分圧に大きく依存する。プロピオン酸分解反応の自由エネルギー変化は、以下の式より求めることが出来る¹⁰⁾。

$$\Delta G'(\text{kJ} \cdot \text{reaction}^{-1}) = +76.1 + 2.303 RT \log \frac{[\text{Ac}^-][\text{HCO}_3^-]\{\text{P}_{\text{H}_2}\}^3}{[\text{Pr}^-]}$$

Fig.10に、運転開始後47日目(負荷 $53 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$)、115日目(負荷 $100 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$)の反応器高さ方向におけるプロピオン酸酸化反応の $\Delta G'$ の変化を示した。 $\Delta G'$ 値の算定は上式に、実測したpH、酢酸濃度、プロピオン酸濃度、水素・炭酸分圧を代入することにより行った。これより、ポート1、3においてはプロピオン酸酸化反応の $\Delta G'$ は、プラスであり、プロピオン酸分解反応が阻害され易い状況にあったが、ポート5より上の部分では、 $\Delta G'$ はゼロ付近まで低下し、プロピオン酸分解反応が進行しやすい熱力学的条件が保たれていた。また、容積負荷の上昇により、 $\Delta G'$ 値は若干プラス方向にシフトするものの、反応器上部では、依然低い $\Delta G'$ 値の維持が可能であった。このことから、GSS(固液分離装置)を多段配置したUASB反応器では、生成ガスをいち早く系外に排除することにより、高COD負荷条件下でも反応器上部においてプロピオン酸の分解が進行しやすい熱力学的環境条件を作ることが可能であることが確かめられた。

3.4 保持汚泥のメタン生成活性

Fig.11に反応器保持汚泥のメタン生成活性の推移を示した。メタン生成活性試験は、バイアル振とう温度 55°C で、酢酸、プロピオン酸、 H_2/CO_2 の各基質について測定した。

植種汚泥は、 4°C で一年間保存したにもかかわらず、高いメタン生成活性を維持していた(酢酸: $1.73 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ 、 H_2/CO_2 : $4.9 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$)。しかしながら、プロピオン酸からのメタン生成活性は $0.049 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ と消化汚泥以下の活性値²⁾であった。

運転開始後131日目までは、COD負荷の上昇に伴い、いずれのバイアル基質に対しても活性値は増加する傾向を示した。運転開始後131日目には、酢酸基質では約1.7倍(対植種汚泥)プロピオン酸基質では11.3倍、 H_2/CO_2 基質では3.6倍に活性値が増加し、特にプロピオン酸からの活性の増加が顕著であった。最終的なメタン生成活性値は、酢酸基質: $2.9 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ (活性増加率1.7倍、対植種汚泥)、プロピオン酸基質: $0.69 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ (14倍)、 H_2/CO_2 基質: $16.2 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ (3.3倍)であり、高い活性を持つ高温グラニュール汚泥が形成された。酢酸、水素からのメタン生成活性は、代表的な中温グラニュールの値よりも数倍大きい^{10)、11)}。

しかしながら、このように、高温性のプロピオン酸分解細菌は、増殖が遅く、また活性値もメタン生成細菌よりも低い（酢酸基質メタン生成活性の1/4.2、水素基質メタン生成活性のわずか1/23）ことから、高COD負荷条件下では、分解律速となり易いことが分かる。このような生態学的特徴を有する高温培養汚泥の機能を強化する目的で、スラッジベッド部での水素分圧を低下させてプロピオン酸分解を促進させるには、本研究で提案するようなGSS（固液分離装置）を多段化配置して生成バイオガスをすみやかにベッド部から排除するリアクター形状が効果的であることが実証された。

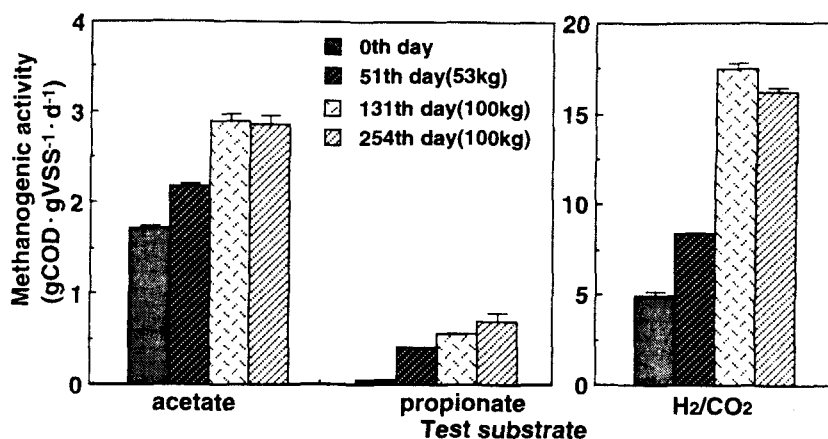


Fig. 11 Changes in methanogenic activities of the retained sludge cultivated in the thermophilic (55°C) UASB reactor.

4 結論

複数個のGSS（固液分離装置）を多段に配置した新規のUASB反応器を高温（55°C）条件下でアルコール蒸留廃水に適用したスタートアップ実験を行い以下のような知見を得た。

1. スタートアップ後約80日で、COD容積負荷は $100 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ の超高速負荷に到達し、長期間（6ヶ月）COD除去率85～90%の安定運転を許容した。多段化UASB反応器は生物保持能にすぐれ、反応器容量基準で $40000 \text{ mgVSS} \cdot \text{l}^{-1}$ の高濃度生物を保持しており、最大汚泥負荷は $3.4 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。
2. 多段化UASB反応器は発生ガスを生成原位置付近ですみやかに反応器系外に排除する機構を有している。そのため反応器内の水素分圧を低く維持して、プロピオン酸分解（酢酸生成）反応が有利になる。また、生成バイオガスの引き抜きによる上昇線速度の軽減が流出生物の低減にも有用であることが示された。
3. 保持汚泥のメタン生成活性値は、COD負荷の上昇（運転の継続）に伴い、いずれのバイアル基質においても増加する傾向を示した。最終的な活性値は、酢酸基質： $2.9 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ （活性増加率1.7倍、対植種汚泥）、プロピオン酸基質： $0.69 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ （14倍）、 H_2/CO_2 基質： $16.2 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ （3.3倍）であり、高活性な高温グラニュール汚泥が形成された。プロピオン酸分解活性は、酢酸利用メタン生成活性の1/4であり、水素利用メタン生成活性のわずか1/23の大きさであり、プロピオン酸の分解ステップが律速段階になる傾向が強い。

今後パイロット・スケール実験によって実証試験を実施しながら、より緻密な処理性能の把握を行っていく予定である。

参考文献

- 1) 上村繁樹, 原田秀樹: 上昇流嫌気性汚泥床 (UASB) 法による高温・高濃度排水処理に関する研究現況, 用水と廃水, 37, 23-30, 1995.
- 2) 珠坪一晃, 原田秀樹, 曾怡禎: 高温 UASB リアクター保持汚泥のグラニュール形成過程における構造的特性とメタン生成活性の推移, 環境工学研究論文集, 31, 57-67, 1994.
- 3) 珠坪一晃, 原田秀樹, 鈴木宏誌, 桃井清至, 大橋晶良: 高温 UASB リアクターによるアルコール蒸留廃水処理特性と保持微生物群の生態学的挙動, 環境工学研究論文集, 32, 201-212, 1995.
- 4) Uemura, S. and Harada, H., Microbial characteristics of methanogenic sludge consortia developed in thermophilic UASB reactor, Appl. Microbiol. Biotechnol., 39, 654-660, 1993.
- 5) Uemura, S. and Harada, H., Inorganic composition and microbial characteristics of methanogenic granular sludge grown in a thermophilic upflow anaerobic sludge blanket reactor, Appl. Microbiol. Biotechnol., 43, 358-364, 1995.
- 6) Wiegant, W. M., And Lettinga, G., Thermophilic anaerobic digestion of sugars in upflow anaerobic sludge blanket reactors, Biotech. Bioeng., 27, 1603-1607, 1985.
- 7) Wiegant, W. M., Claassen, J.A. and Lettinga, G., Thermophilic anaerobic digestion of high strength wastewaters, Biotech. Bioeng., 27, 1374-1381, 1985.
- 8) Van Lier, J.B., Grolle, K.C.F., Stams, A.J.M., de Macario, E.C., and Lettinga, G., Start-up of a thermophilic upflow anaerobic sludge bed (UASB) reactor with mesophilic granular sludge, Appl. Microbiol. Biotechnol., 37, 130-135, 1992.
- 9) Van Lier, J.B., Groeneveld, N., and Lettinga, G., Development of thermophilic methanogenic sludge in compartmentalized upflow reactors, Biotech. and Bioeng., 50, 115-124, 1996.
- 10) 珠坪一晃, 原田秀樹, 大橋晶良: 高温メタン発酵系における酢酸酸化・水素生成経由のメタン生成経路の生態学的意義, 環境工学研究論文集, 33, 205-214, 1996.
- 11) Harada, H., G. Endo, et al., High rate performance and its related characteristics of granuled sludge in UASB reactors treating various types of wastewaters. Proc. 5th Int. Symp. on Anaerobic digestion, Bologna, Italy, 22-26 May, Monduzzi Editore S.P.A., 1011-1020, 1988.
- 12) Lettinga, G., A. F. M. van Velsen, et al., Use of upflow sludge blanket (USB) reactor concept for biological wastewater treatment, especially for anaerobic treatment. Biotechnol. Bioeng. 22: 699-734, 1980.