

(20) 都市下水処理場活性汚泥における蓄積基質の挙動

BEHAVIOR OF STORAGE MATERIAL IN ACTIVATED SLUDGE
TREATING MUNICIPAL WASTEWATER

花田 茂久*、佐藤 弘泰**、味埜 俊**、松尾 友矩*

Shigehisa HANADA, Hiroyasu SATOH, Takashi MINO, Tomonori MATSUO

ABSTRACT ; The Activated Sludge Model No.3 (ASM No.3) proposed by the IAWQ Task Group includes the process of storage of organic substrates. But, it is not experimentally verified that the storage of organic substrates has principal significance in actual activated sludge processes. Moreover, the parameters for the storage of organic substrates in ASM No.3 are not selected on experimental bases. In this research, polyhydroxyalkanoate (PHA) is assumed as the principal storage product, and the capacity of storage of PHA in activated sludges obtained from seven full scale plants in Tokyo, including conventional activated sludge processes as well as those designed for nutrient removal, was examined. Sodium acetate was fed under either aerobic or anaerobic conditions to the activated sludges, and the behavior of internally stored PHA was measured. It was experimentally demonstrated that under the aerobic condition the storage process significantly affect the substrate uptake rate not only in activated sludges from the anaerobic-aerobic process for biological enhanced phosphate removal but also in those from conventional activated sludge processes. Parameters for storage (the synthesis rate constant : k_{STO} and the aerobic yield of synthesized product per S_S : Y_{STO,O_2}) were about 0.7 to 1.3 gCOD/gCOD · d and about 0.6 to 0.7 gCOD/gCOD, respectively.

KEYWORDS ; IAWQ Activated Sludge Model No.3, polyhydroxyalkanoate(PHA), storage of organic substrates, substrate uptake rate

1. はじめに

生物学的廃水処理プロセスにおいて、微生物が基質を蓄積することにより、その摂取速度を上げ、競合に勝つという戦略が一般的に存在する可能性があることはこれまでも指摘されてきた¹⁾。例えば廃水からの生物学的リン除去法である嫌気好気活性汚泥法では、ポリリン酸蓄積細菌が優占することにより高率のリン除去が可能になる。本法では廃水中の有機基質と汚泥（微生物）が嫌気条件下で接触するために嫌気条件下で有機物をより速く摂取できる微生物が優占する。ポリリン酸蓄積細菌はポリリン酸をエネルギー源として、摂取した基質を PHA(polyhydroxyalkanoate)というポリマーの形で蓄積することができるので、嫌気

*東京大学大学院工学系研究科都市工学専攻

(Department of Urban Engineering, Graduate School of Engineering, the University of Tokyo)

**東京大学大学院新領域創成科学研究科環境学専攻

(Department of Environmental studies, Graduate School of Frontier Sciences, the University of Tokyo)

条件下での基質摂取速度が大きく、従ってこのプロセスでの他の微生物との間の基質に対する競合に勝てるのである²⁾。しかしながら標準活性汚泥法の処理機構を説明する際には基質蓄積はほとんど考慮されていないのが現状である。このような状況のもとで国際水環境学会（IAWQ）のタスクグループは基質蓄積のプロセスを含んだ活性汚泥数学モデル Activated Sludge Model (ASM) No.3 を作成した³⁾。ASM No.3 は、IAWQ タスクグループが既に発表していたモデル（ASM No.1, No.2）の問題点を修正し、今後の活性汚泥モデルの構築・拡張のためのコアモデルとして位置づけているものであり、基質蓄積プロセスの導入が、その特徴の1つになっている。しかし基質蓄積が活性汚泥中での有機物除去において現実 to 有意な現象であるかどうかは実験的には十分確認されておらず、また ASM No.3 の基質蓄積プロセスの速度パラメータはシミュレーションによるフィッティングから仮に求められたものであって、実験的なデータによって裏打ちされたものではない。

そこで本研究では活性汚泥内の蓄積物質として PHA を考え、まず実際の下水処理場の汚泥の基質蓄積の有無を確認し、さらにその PHA 蓄積能力を測定する実験を行った。すなわち東京都内の7つの下水処理場から採取した汚泥に基質として酢酸ナトリウムを与え、嫌気・好気それぞれの条件で PHA の挙動を調べ、PHA 合成速度、PHA 消費速度を測定し、ASM No.3 の基質蓄積プロセスの速度パラメータを求めた。

2．実験方法

実験に使用した活性汚泥を表1に示す。嫌気好気活性汚泥法は嫌気槽と好気槽を組み合わせることによって廃水中のリンを取り除けるようにしたシステムであり、A₂O 法はさらに無酸素槽を組み込むことによって窒素化合物をも取り除くことを可能にしたプロセスである。また疑似嫌気好気活性汚泥法は流入端付近の空気量をしばって、標準活性汚泥法を嫌気好気法にやや近づけたプロセスである。

本研究ではこの7つの汚泥に基質として 50mgC/l の酢酸ナトリウムを投与し、嫌気条件下、好気条件下それぞれにおける酢酸ナトリウムの摂取および蓄積を調べる2種類のバッチ実験を行った。バッチ実験に用いた装置を図1に示す。

表1 実験に使用した活性汚泥

処理場	処理方式	実験 No.
M	標準活性汚泥法	1
S	標準活性汚泥法	2
K	嫌気好気活性汚泥法	3
	疑似嫌気好気活性汚泥法	4
N	標準活性汚泥法	5
	嫌気好気汚泥法	6
	A ₂ O 法	7

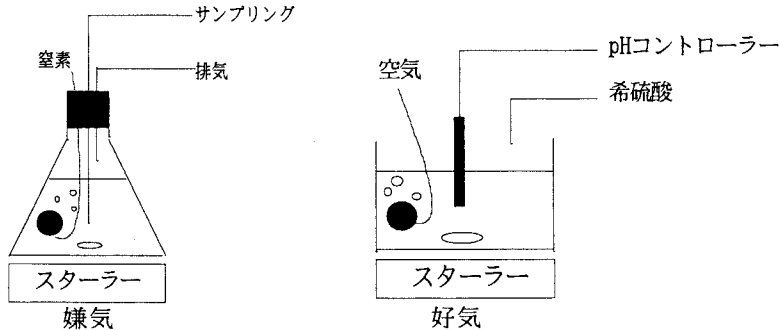


図1 バッチ実験に用いた装置

嫌気バッチ実験においては、各処理場から採取した汚泥 1000ml をしばらくの間静置した後、硝酸の影響を除くために上澄みの大部分を捨て、さらに遠心分離にかけて残りの上澄みを除去した。そして無機塩類として $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 151mg/l (最終濃度)、 KCl 70mg/l、 $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 22mg/l を加えた後、水道水で 500ml にした。これを図 1 の嫌気バッチ実験装置に入れた。嫌気バッチ実験に先立ってまずふたをせずに 30 分間スターラーで攪拌することにより曝気し、好気的に上澄み中のリン酸を完全に吸収させ、続いて溶存酸素を追い出すために 20 分間窒素曝気を行った。そして基質 (酢酸ナトリウム 50mgC/l) を加えて嫌気バッチ実験を開始した。実験は 180 分行き、サンプリングは基質投入前、0 分、15 分、30 分、45 分、60 分、90 分、120 分、180 分に各 10ml ずつおこなった。実験中は排気口を閉じて嫌気状態を保ち、サンプリング時のみ酸素の侵入を防ぐために排気口を開けて窒素パージをおこなった。

好気バッチ実験においては、上澄みの交換は行わず、各処理場から採取した汚泥 500ml をそのまま図 1 の好気バッチ実験装置に入れて、エアポンプで空気を常に供給した。基質 (酢酸ナトリウム 50mgC/l) を加えた後、15～30 分ごとにサンプリングを行い、240 分または 300 分後までの挙動を追跡した。試料は毎回 10ml ずつ採取した。好気バッチ実験の場合は曝気を続けると液の pH が上がってくるので、実験中は pH コントローラーを用いて pH を 7.0～7.2 に保った。

このような 2 種類のバッチ実験を行い、得られたサンプルを遠心分離により上澄みと汚泥に分け、上澄み中の TOC、リン酸、酢酸、汚泥中の PHA 濃度を測定した。

上澄み中の TOC は TOC-500 (島津製作所) で測定し、リン酸、酢酸は CIA (Capillary Ion Analyzer、Waters) で測定した。また汚泥中の PHA は佐藤らの方法⁴⁾によって測定した。

3. 実験結果と考察

3. 1 標準活性汚泥の好気条件での PHA 蓄積能力

図 2 は S 処理場標準活性汚泥を用いて好気条件で行ったバッチ実験の結果である。上澄み中の酢酸は最初の 75 分で吸収され、その間に汚泥中の PHA 濃度は上がっている。そして上澄み中から酢酸がなくなったら汚泥中の PHA 濃度は下がっている。このことから考えて汚泥中の微生物は上澄み中に酢酸があるときは酢酸を摂取してその一部を PHA として蓄積し、上澄み中から酢酸がなくなったら PHA を分解して増殖などに使っていることがわかる。

次に汚泥の MLSS 当たりの PHA 合成速度を計算した。PHA 濃度が増加しているときには PHA の合成と消費が同時に起こっていると考え、PHA の蓄積に関する反応速度式は次のように表せる。

$$\frac{dX_{\text{PHA}}}{dt} = r_A - b \quad \cdots \cdots \text{式 (1)}$$

$\frac{dX_{\text{PHA}}}{dt}$: PHA 濃度増加速度(mgC/l・分) r_A : PHA 合成速度(mgC/l・分)

b : PHA 消費速度(mgC/l・分)

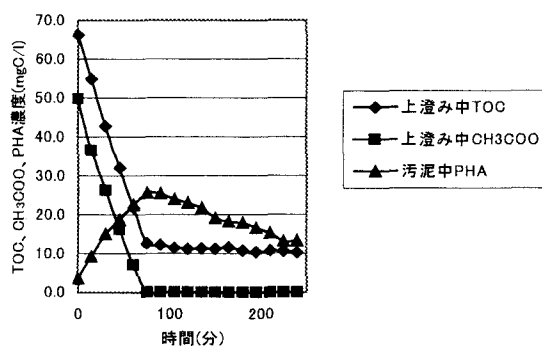


図 2 S 処理場標準活性汚泥を用いたバッチ実験の結果 (好気)

PHA 濃度が増加しているときの濃度変化と PHA 濃度が減少しているときの濃度変化がそれぞれ直線近

似できる場合、PHA 濃度増加速度は PHA 濃度増加直線の傾きで表され、PHA 消費速度は PHA 濃度減少直線の傾きで表される。よって PHA 合成速度は 2 つの直線の傾きをたし合わせることによって求めることができる。計算にあたっては $1\text{gMLSS}=1.5\text{gCOD}$ と仮定し、単位を $\text{gCOD/gCOD} \cdot \text{d}$ に換算した。こ

のような計算を行って得られた MLSS 当たりの PHA 合成速度を表 2 に示す。表 2 から標準活性汚泥の MLSS 当たりの PHA 合成速度と嫌気好気活性汚泥の MLSS 当たりの PHA 合成速度はほとんど変わらないことがわかる。よって標準活性汚泥の PHA 蓄積能力は嫌気好気活性汚泥の PHA 蓄積能力と同程度であると推測できる。

表 2 各汚泥の好気条件における MLSS 当たりの PHA 合成速度

汚泥	MLSS 当たりの PHA 合成速度 ($\text{gCOD/gCOD} \cdot \text{d}$)
M 処理場標準活性	0.94
S 処理場標準活性	0.83
N 処理場標準活性	0.62
K 処理場嫌気好気	0.84
N 処理場嫌気好気	0.57
N 処理場 A_2O	0.52
K 処理場疑似嫌気好気	0.63

3. 2 PHA 合成速度と基質摂取速度との関係

微生物が摂取した基質はすべて PHA として蓄積されるわけではない。一部は微生物の増殖に使われ、また一部は CO_2 となって大気中に放出される。図 3 は各汚泥の基質摂取速度と PHA 合成速度との関係を示したものである。基質摂取速度は上澄み中の酢酸の濃度変化を直線とみなしてその傾きから算出したもので、単位は PHA 合成速度、基質摂取速度ともに $\text{gCOD/gCOD} \cdot \text{d}$ に換算している。両者の関係はほぼ比例関係であり、回帰直線（図 3 の点線： $y=0.4535x$ で表される。）の傾き（0.4535）から、微生物が摂取した基質から PHA が合成される割合は約 45% であると推察される。

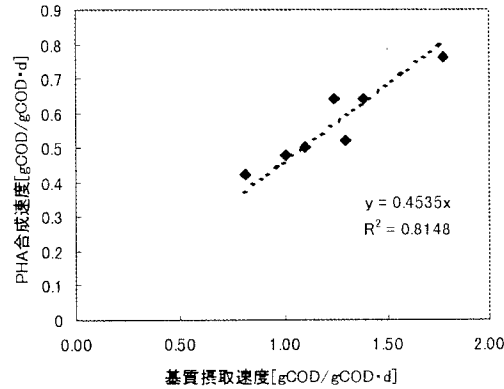


図 3 基質摂取速度と PHA 合成速度との関係

3. 3 好気条件と嫌気条件での結果の比較

(1) 嫌気好気活性汚泥

図 4 は K 処理場嫌気好気活性汚泥を用いて嫌気条件、好気条件それぞれの条件で行ったバッチ実験の結果である。好気条件の結果は S 処理場標準活性汚泥の好気条件の結果とほぼ変わらない。嫌気条件では、時間とともに上澄み中の酢酸濃度が減少し、また上澄み中のリン酸濃度が増加し、それとともに汚泥中の PHA 濃度も増加している。これは嫌気条件下で細胞内のポリリン酸を分解してエネルギーを得て、そのエネルギーで基質を摂取し PHA を合成するポリリン酸蓄積細菌が働いているからであると推測できる。

次に嫌気条件と好気条件での MLSS 当たりの PHA 合成速度を比較した。嫌気条件での PHA 合成速度は上澄み中のリン酸の濃度が増加している間（K 処理場嫌気好気活性汚泥の場合は最初の 90 分間）の汚泥中の PHA 濃度の変化を直線近似し、その傾きから算出した。嫌気条件の場合、PHA の消費は起こっていないので、消費のことを考える必要はない。単位は $\text{gCOD/gCOD} \cdot \text{d}$ に換算した。その結果を表 3 に示す。K 処理場嫌気好気活性汚泥の MLSS 当たりの PHA 合成速度は嫌気条件で $0.28\text{gCOD/gCOD} \cdot \text{d}$ 、好気条件で $0.84\text{gCOD/gCOD} \cdot \text{d}$ となり、好気条件での PHA 合成速度は嫌気条件での PHA 合成速度の 3 倍にもなる

ことがわかった。また K 処理場嫌気好気活性汚泥以外の汚泥についても表 3 で示すように好気条件での PHA 合成速度が嫌気条件での PHA 合成速度に比べて非常に大きいことがわかった。好気条件下では PHA の消費が同時に起こっているにも関わらず好気条件での PHA 合成速度の方が大きいのは酸素呼吸によって得られるエネルギーがポリリン酸を分解して得られるエネルギーよりもはるかに大きいからであると推察される。

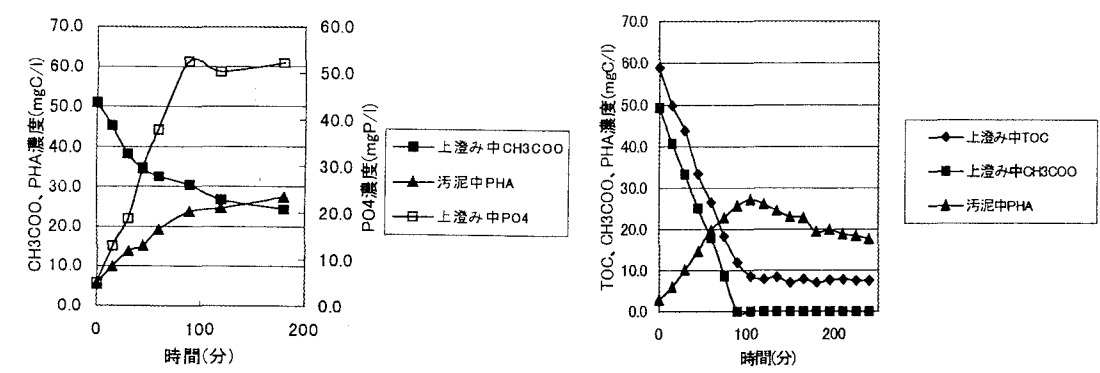


図 4 K 処理場嫌気好気活性汚泥を用いたバッチ実験の結果

表 3 各嫌気好気活性汚泥の嫌気・好気それぞれの条件における MLSS 当たりの PHA 合成速度

汚泥	嫌気条件での PHA 合成速度 (gCOD/gCOD・d)	好気条件での PHA 合成速度 (gCOD/gCOD・d)
K 処理場嫌気好気	0.28	0.84
N 処理場嫌気好気	0.14	0.57
N 処理場 A ₂ O	0.10	0.52
K 処理場疑似嫌気好気	0.10	0.63

(2) 標準活性汚泥

図 5 は S 処理場標準活性汚泥を用いて嫌気条件で行ったバッチ実験の結果である。汚泥中の PHA 濃度の増加は非常に小さく、S 処理場標準活性汚泥は嫌気条件ではほとんど PHA を蓄積しないことがわかる。表 4 に示したように他の標準活性汚泥でも同様の結果が得られている。嫌気好気法では嫌気条件下で細胞内のポリリン酸を分解して PHA を蓄積できるポリリン酸蓄積細菌に加えて、細胞内のグリコーゲンを分解することによりエネルギーを得て有機基質を嫌氣的に PHA に変換して蓄積する能力を持つ「グリコーゲン蓄積細菌」⁵⁾ - 「G バクテリア」とも呼ばれる⁶⁾ - が出現する可能性があることが指摘されている。嫌気条件下では標準活性汚泥の PHA 蓄積能力は小さかったことから、ポリリン酸蓄積細菌、グリコーゲン蓄積細菌とも標準活性汚泥中には少なかったことが推察される。

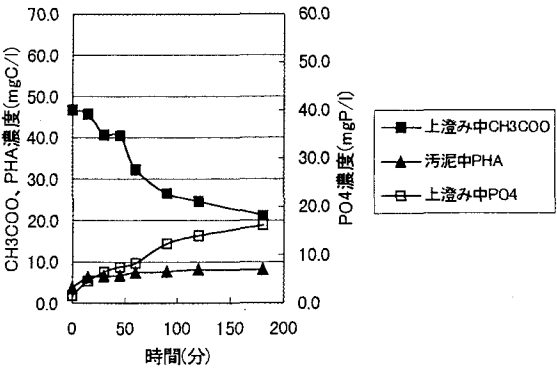


図 5 S 処理場標準活性汚泥を用いたバッチ実験の結果（嫌気）

表4 各標準活性汚泥の嫌気条件における MLSS 当たりの PHA 合成速度

汚泥	MLSS 当たりの PHA 合成速度 (gCOD/gCOD・d)
M 処理場標準活性	0.06
S 処理場標準活性	0.05
N 処理場標準活性	0.03

3. 4 ASM No.3 のパラメーターの決定

はじめに述べたとおり、ASM No.3 の基質蓄積プロセスに関するパラメーターはシミュレーションによるフィッティングから仮に求められたものであって、実験的なデータによって裏打ちされたものではない。本研究では今回得られた実験結果から以下の方法で ASM No.3 の基質蓄積プロセスに関するパラメーターを算出した。

ASM No.3 における好気条件下での基質蓄積プロセスの反応速度式は次のように表されている。

$$V = k_{STO} \cdot (S_O/K_O + S_O) \cdot (S_S/K_S + S_S) \cdot X_H \quad \cdots \cdots \text{式 (2)}$$

V : PHA 合成速度 (gCOD/m³・d) k_{STO} : PHA 合成速度定数 (gCOD/gCOD・d)

S_O : 溶存酸素濃度 (gO₂/m³) K_O : S_O の飽和定数 (O₂/m³) S_S : 易分解性有機物濃度 (gCOD/m³)

K_S : S_S の飽和定数 (gCOD/m³) X_H : 従属栄養微生物量 (gCOD/m³)

K_O は S_O に対して十分に小さく、 K_S は S_S に対して十分に小さいと仮定するとこの式は次のように書き換えられる。

$$V = k_{STO} \cdot X_H \quad \cdots \cdots \text{式 (3)}$$

k_{STO} は V (PHA 合成速度) を X_H (従属栄養微生物量) で割ることによって算出されるが、MLSS 分全てが従属栄養微生物ではないので k_{STO} の値を求めるには MLSS 当たりの PHA 合成速度を、MLSS に対する従属栄養微生物の割合で割らなければならない。山本ら⁷⁾は汚泥の中には不活性バイオマスが約 20%、硝化細菌が約 5%、残りの約 75%が従属栄養細菌であると推定している。ここではこの値を使うことにする。この時 $X_H = 0.75 \cdot \text{MLSS}$ であり、これを用いて k_{STO} を算出することができる。

また PHA 収率を表すパラメーター Y_{STO,O_2} (gCOD/gCOD) はバッチ実験で合成された PHA の量を利用された基質量で割ることによって求められる。前述したとおり、PHA 濃度が増加しているときには PHA の合成と消費が同時に起こっているので、バッチ実験で合成された PHA の量は PHA 濃度が最大になるときまでの PHA 濃度増加量に、そのときまでに消費されたはずの PHA の量を加えたもので表される。これを基質投入量で割ることによって Y_{STO,O_2} は求まる。以上のような計算方法で求めた k_{STO} 、 Y_{STO,O_2} の値を表 5 に示す。

表5 各汚泥の k_{STO} 、 Y_{STO,O_2} の値

汚泥	k_{STO} (gCOD/gCOD · d)	Y_{STO,O_2} (gCOD/gCOD)
M 処理場標準活性	1.25	0.68
S 処理場標準活性	1.11	0.70
N 処理場標準活性	0.83	0.66
K 処理場嫌気好気	1.12	0.76
N 処理場嫌気好気	0.76	0.58
N 処理場 A_2O	0.69	0.67
K 処理場疑似嫌気好気	0.85	0.71

表5から k_{STO} は約 0.7～1.3、 Y_{STO,O_2} は約 0.6～0.7 と決定できる。 k_{STO} については ASM No.3 で提案されている 5 と比べると小さい値であり、今後さらに検討が必要である。

4. まとめ

東京都内の7つの下水処理場の汚泥に 50mgC/l の酢酸ナトリウムを投与し、嫌気・好気それぞれの条件で PHA の蓄積について調べたところ、次のような知見が得られた。

- (1) 好気条件下では嫌気好気汚泥だけでなく標準活性汚泥も PHA を蓄積し、両者の MLSS 当たりの PHA 合成速度もほとんど変わらなかった。このことから標準活性汚泥が嫌気好気汚泥と同程度の PHA 蓄積能力を持ち、PHA が標準活性汚泥処理においても重要な役割を果たしていることがわかった。
- (2) 好気条件下では基質摂取速度と PHA 合成速度との関係はほぼ比例関係であり、また微生物が摂取した基質から PHA が合成される割合は約 45% であることが推測できた。
- (3) 嫌気好気汚泥は嫌気・好気どちらの条件でも PHA を蓄積するが、MLSS 当たりの PHA 合成速度を比べてみると好気条件での PHA 合成速度は嫌気条件での PHA 合成速度に比べて非常に大きいことがわかった。
- (4) 標準活性汚泥は嫌気条件下では PHA をほとんど蓄積しないことから、標準活性汚泥による好気的な PHA 蓄積はポリリン酸蓄積細菌や「G バクテリア」によるものではないことが推察された。
- (5) IAWQ 活性汚泥モデル No.3 (ASMNo.3) で定義された PHA 合成速度定数 k_{STO} (gCOD/gCOD · d) および PHA 収率 Y_{STO,O_2} (gCOD/gCOD) はそれぞれ約 0.7～1.3、約 0.6～0.7 と求められた。 k_{STO} については ASM No.3 で提案されている 5 と比べると小さい値であり、今後さらに検討が必要である。

謝辞

本研究を行うにあたり、試料を提供していただいた東京都下水道局、各下水処理場の方々に厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) M.C.M.van Loosdrecht, M.A.Pot and J.J.Heijnen : IMPORTANCE OF BACTERIAL STORAGE POLYMERS IN BIOPROCESSES. Wat.Sci.Tech.No.1, pp.41-47, 1997
- 2) T.MINO, M.C.M.VAN LOOSDRECHT and J.J.HEIJNEN : MICROBIOLOGY AND BIOCHEMISTRY OF THE ENHANCED BIOLOGICAL PHOSPHATE REMOVAL PROCESS. Wat.Res. Vol.32, No.11, pp.3193-3207, 1998
- 3) Willi Gujer, Mogens Henze, Mino Takashi, Mark van Loosdrecht : ACTIVATED SLUDGE MODEL NO.3. Wat. Sci. Tech. Vol. 39, No.1, pp. 183-193, 1999
- 4) 佐藤弘泰 : PHA の測定とその意味、環境微生物工学研究法、土木学会衛生工学委員会編、技報堂出版、

67-70(1993)

- 5) Mino T., Liu W. T., Kurisu F. and Matsuo T. : Modeling glycogen storage and denitrification capability of microorganisms in enhanced biological phosphate removal processes. *Water Sci. Tech.* 31(2), 25-34(1995a)
- 6) Cech J. B. and Hartman P. : Competition between polyphosphate and polysaccharide accumulating bacteria in enhanced biological phosphate removal systems. *Water Res.* 27, 1219-1225(1993)
- 7) 船水尚行、山本勝一郎、高桑哲男、北川義雄：栄養塩除去プラントシミュレーションのための下水質と汚泥質の推定、環境工学研究フォーラム講演集、117-120(1996)