

(7) UASB 法におけるグラニューールの早期形成手法に関する研究

ENHANCED GRANULATION IN UASB REACTORS AT OVER
LOADING CONDITION

今井 剛*, 周 偉麗*, 荒井 大*, 浮田正夫*, 関根雅彦*, 樋口隆哉*

Tsuyoshi IMAI*, Weili ZHOU*, Dai ARAI*, Masao UKITA*, Masahiko SEKINE* and Takaya HIGUCHI*

ABSTRACT; The objective of this study was to enhance the process of granulation in the anaerobic reactor using the method of over loading. At over loading, the oversupplied substrate is supposed to stimulate the microorganisms to excrete extracellular polymer, which acts as a bridge between the small flocculent sludge particles. It helps to develop the granular sludge so that the granulation process could be achieved in a relatively shorter time. In this study, the over loading was applied according to the thought that the biomass can be kept better at a fixed flow rate while the coagulation of sludge can be easier at unchanged substrate concentration. As a result, granulation was achieved in about 30 days while about 90 days were necessary when the reactor runs at the ordinary low loading rate. It is found that the content of extracellular polymer increased after the over loading was applied and then decreased gradually after the formation of granular sludge. The specific gravity of wet sludge changed in the same trend with the variation of extracellular polymer content in the sludge. Besides, the sludge particle size distribution changed from a normal distribution to a bimodal distribution and the coefficient of variation came to be a quantitative parameter to assess granulation at over loading condition.

KEYWORDS; enhanced granulation, extracellular polymer (ECP), over loading, particle size distribution, UASB.

1. はじめに

上向流嫌気性スラッジブランケット (Upflow Anaerobic Sludge Blanket : UASB) 法は、沈降性の優れた粒径 0.5 ~ 2mm 程度の微生物の自己造粒体であるグラニューールを形成させ、反応槽内で高濃度な生物保持を可能にする高速メタン発酵バイオリアクターとして、食品・飲料産業等における中高濃度の有機性廃水処理に広く用いられている^{1)~4)}。この処理法はメタンガスを生成させ、曝気を必要としない創資源・省エネルギー型的高速廃水処理法⁵⁾として、循環型社会を目指そうという昨今、特に注目されている廃水処理法である。

UASB法の長所は、処理を直接担う菌の集合体であるグラニューールを高密度にその槽内に保持できることである(グラニューール汚泥を写真1に示す)。一方、その短所はグラニューール形成までに長期間を要することである^{6)~8)}。通常、この期間は廃水種にもよるが100日程度である。このことからグラニューールを早期に形成させることがUASB法のスタートアップにおける重要なキーポイントとなる。しかしながら、そのグラニューール形成過程が未だ十分に明らかでない。

そこで本研究ではグラニューール形成のプロセス解明とその早期形成手法について検討した。本研究の目標は30日前後のグラニューールの早期形成である。さらにグラニューールの形成時期をはじめ、グラニューール形成に関わる各項目(グラニューール形成に不可欠とされる細胞外ポリマー^{9)~11)}、汚泥の凝集性及びその沈降性等)について経日的な変化を数値的に把握することで、グラニューール形成の評価を定量的に行った。

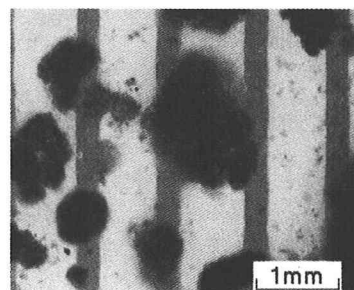


写真1 グラニューール汚泥

* 山口大学工学部社会建設工学科 (Department of Civil Engineering, Yamaguchi University)

表1 基質組成表 (10000mg-COD/L)

グルコース基質		スキムミルク基質		無機栄養塩類	
グルコース	9.4 (g/L)	スキムミルク	9.3 (g/L)	A	(NH ₄) ₂ HPO ₄ 350 (g/L)
A	2.0 (mL/L)	A	-	B	KCl 75.0 (g/L)
B	10 (mL/L)	B	-		NH ₄ Cl 85.0 (g/L)
C	1.0 (mL/L)	C	-		FeCl ₃ 6H ₂ O 42.0 (g/L)
NaHCO ₃	4.0 (g/L)	NaHCO ₃	4.0 (g/L)		MgCl ₂ 6H ₂ O 81.0 (g/L)
K ₂ HPO ₄	4.0 (g/L)	K ₂ HPO ₄	4.0 (g/L)		MgSO ₄ 7H ₂ O 25.0 (g/L)
酵母エキス	0.10 (g/L)	酵母エキス	0.10 (g/L)	C	CoCl ₂ 6H ₂ O 1.80 (g/L)
					CaCl ₂ 6H ₂ O 150 (g/L)

2. 実験条件及び方法

本研究で用いた UASB 装置の概略を図 1 に示す。UASB 装置は反応槽と装置頂部にある生成ガス-処理水-汚泥を分離する三相分離器からなり、反応槽は直径92mm、高さ1500mm、反応容積は10.52Lである。装置内の高さ方向の菌相分布及び水質分布を把握できるように、装置下部から1～11までサンプリングポートが設置してある。また、流入基質は装置下部から槽内に投入され、装置上部より流出される。生成されたガスは三相分離器の上部から脱硫装置、ガスメーターを経て系外へ排出される。装置下部から投入される基質は表 1 にしたがひ、グルコース (表 1 左) 及びスキムミルク (表 1 中) をそれぞれ主な炭素源として、2 種類の pH 緩衝剤、数種類の栄養塩 (表 1 右) を用いて作成したものを適宜希釈して使用した。

採取したサンプルについて、総有機炭素量 (TOC)、揮発性脂肪酸 (VFA)、浮遊物質 (SS)、揮発性浮遊物質 (VSS)、粒度分布、比重、細胞外ポリマー等を測定した。

TOCは全有機炭素計 (島津製作所製 TOC-5000)、VFAはガスクロマトグラフ (島津製作所製 GC-8APF)、SS、VSSは Standard Method¹²⁾、粒度分布はレーザー回折・散乱式粒度分布測定装置 (堀場製作所製 LA-920)、比重は下水試験法¹³⁾により測定した。細胞外ポリマーは冷温抽出¹⁴⁾後に糖 (Anthrone 法)、タンパク質 (Lowry-Folin 法) の和として定量した。

本研究では、グラニュールの形成の判断基準として、0.5mm 以上の径の菌の凝集体が顕微鏡観察により確認され、かつメジアン径が 0.1mm を超えるあるいは変動係数 (3.2.1 で詳述) が 1 を超えた場合とした。

3. 実験結果及び考察

3.1 グラニュールの早期形成手法の確立に関する検討

3.1.1 種汚泥の違い及び投入基質の違いがグラニュール形成に及ぼす影響に関する検討

UASB法のスタートアップを行う際に異なる種汚泥を使用した場合あるいは異なる基質を用いた場合は、グラニュール形成に要する期間に差があるものと考えられる。そこで、3基の UASB 装置を用いて、これら考えられる 2 つの要因の影響に関するスタートアップ実験を行った。運転条件を表 2 に示す。表中の低負荷

表 2 種汚泥の違い、投入基質の違いがグラニュール形成に及ぼす影響の把握実験に用いた運転条件

低負荷型				低負荷型				低負荷型			
汚泥：分散汚泥		基質：グルコース		汚泥：消化汚泥		基質：グルコース		汚泥：消化汚泥		基質：スキムミルク	
run	経過日数 day	基質濃度 mg-COD/L	流量 L/day	run	経過日数 day	基質濃度 mg-COD/L	流量 L/day	run	経過日数 day	基質濃度 mg-COD/L	流量 L/day
1	0 ~ 15	500	5	1	0 ~ 15	500	5	1	0 ~ 14	500	5
2	15 ~ 25		10	2	15 ~ 25		10	2	14 ~ 28		10
3	25 ~ 39	1000		3	25 ~ 39	1000		3	28 ~ 38	1000	
4	39 ~ 57	2000		4	39 ~ 57	2000		4	38 ~ 57	2000	
5	57 ~ 84			20	5	57 ~ 84		20	5	57 ~ 73	
6	84 ~ 104	4000	6		84 ~ 104	4000	6	73 ~ 100	4000		

種汚泥の違い ←→ 投入基質の違い

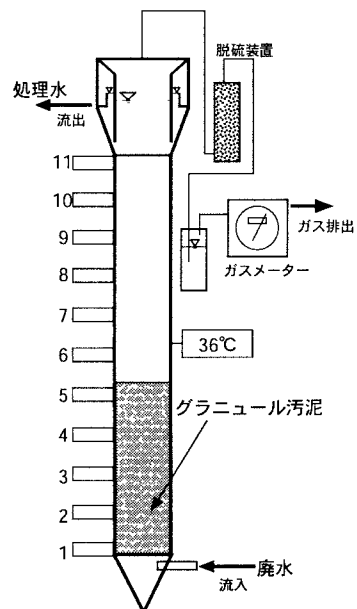


図 1 UASB 装置概略図

型とは、運転全体における容積負荷を低く設定し、良好な除去率を維持させながら、基質濃度と流量を段階的に上昇させる従来型のスタートアップ方法である。1基目について、種汚泥は既に別のプラントで形成されたグラニュール汚泥を再び浮遊状の菌へと分散させたものを3L用いた。なお、グラニュール汚泥の分散は気相を窒素で置換したミキサーを用いて行った。基質はグルコースである。2基目及び3基目について、それぞれの種汚泥は宇部市東部浄化センターから採取した消化汚泥を6L用いた。用いた基質はそれぞれグルコースとスキムミルクである。1基目と2基目及び3基目の汚泥投入量の差は、反応器あたりの初期投入汚泥量をほぼ等しくするためである。

実験結果より3基の装置について、グラニュール形成にはいずれの場合においても約90日間の長期間を要した。したがって、種汚泥及び投入基質の違いがグラニュール形成に及ぼす影響は、低負荷運転時には小さいと考えられる。また運転途中に、汚泥の周辺に細胞外ポリマーが付着しているのが確認された(運転開始後55日目付近)。この細胞外ポリマーが顕著に増加した後、凝集過程すなわちグラニュール形成が進行した。このことから細胞外ポリマーをいかに早期に増加させるかが、グラニュールを早期に形成させる要因の一つと考えられる。また、実体顕微鏡による観察から、どのスタートアップ実験においても「汚泥の増殖→細胞外ポリマーの顕著な増加→凝集→沈降」のグラニュール形成プロセスを経ることが確認された。各装置における運転前後の鉛直VSS濃度の経日変化を図2に示す。グラニュール形成までの特徴としては、分散汚泥でのスタートアップ実験での運転開始前後の汚泥分布は装置下部からサンプリングポートNo3付近において変化は確認されなかったが、装置下部の汚泥量は増加していた。これは、分散された汚泥を再び凝集させるには、槽内汚泥のみでグラニュール形成が十分であることを示している。基質がグルコース、種汚泥が消化汚泥の場合は、運転開始前後についてサンプリングポートNo5からNo.2まで汚泥量が減少していた。これはグラニュールを形成する際に、不必要な汚泥がウォッシュアウトしたことにより、または凝集・沈降したことにより、槽内汚泥量が減少したと考えられる。基質がスキムミルクで種汚泥が消化汚泥の場合は、ほとんど汚泥分布に変化がなかった。装置下部において鉛直VSS濃度が減少しているのは、発生ガスの影響と考えられる。

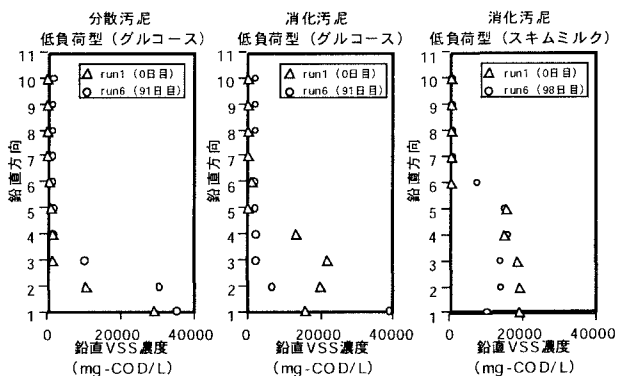


図2 各装置における鉛直VSS濃度分布の経日変化

3.1.2 グラニュール早期形成のための槽内高負荷状態の維持に関する有効性の検討

従来、グラニュールを形成させる際には、良好な処理効率を維持させつつ行われてきた(一般的に除去率は90%以上が目安とされている)が、その形成には長期間を要した。そこで、槽内を過負荷状態にする、すなわち除去率を意図的に70%付近まで低下させることで、これまでの通常の増殖とは異なり、汚泥を過剰に増殖させ、グラニュール形成期間が短縮できるかどうかを検討するための、高負荷型の実験を行った。また、3.1.1の低負荷型においては基質濃度ならびに流量の上昇が不規則に設定されていたため、それぞれが汚泥の増殖、またグラニュール形成にどのような影響を与えるのかが不明であった。したがって、それらを把握するために、流量一定のもと基質濃度を段階的に変化させる濃度変化型と流入濃度一定のもと流量を段階的に変化させる流量変化型に分けてスタートアップ実験を行った。両装置ともに種汚泥として消化汚泥を使用し、基質は全てグルコースを用いた。運転条件を表3に示す。2基の装置について、運転全体を通して低負荷型よりも高負荷型の方が除去率は低かったが、グラニュール形成までに要する期間の短縮が達成できた(形成までに60日程度)。これは、運転条件を意図的に過負荷状態にすることで、グラニュール形成期間の短縮が可能になったものと考えられる。槽内を過負荷状態にすることで、なぜグラ

表3 グラニュールの早期形成のための槽内高負荷状態の維持実験に用いた運転条件

run	経過日数	濃度変化型		流量変化型	
		基質濃度	流量	基質濃度	流量
	day	mg-COD/L	L/day	mg-COD/L	L/day
1	0 ~14	2000	10	10000	1
2	14 ~28	5000			5
3	28 ~42	10000			10
4	42 ~65	20000			20

ニュール形成期間の短縮が可能になるかについては、3.1.3でさらに検討を行う。

両装置内において増殖した汚泥が、運転条件によって槽内に保持されやすいか否かを把握するため、槽内上部の浮遊汚泥を採取し、その活性度¹⁵⁾を調べた。これは槽内で発生したガスにより巻き上げられ、槽上部に浮遊している菌であり、このため処理水とともに排出された可能性が高いものである。

図3に槽上部（図1のサンプリングポートNo.11が該当する）の浮遊汚泥に関する運転全体を通した活性度¹⁵⁾の比較を示す。この図から、ほぼ全ての流量変化型における活性度が濃度変化型より高かったことがわかる。このことから流量変化型の方が高活性な菌を槽外に流出させた可能性が高い。したがって、汚泥を保持しやすいのは、流出する汚泥だけに注目すれば濃度変化型の方が適していると考えられる。しかし、図4の流出VSS濃度の経日変化から、濃度変化型の方が流量変化型より流出VSS濃度がrun4において高くなっていることがわかる。これは浮遊汚泥を槽内に保持しやすい濃度変化型について一見矛盾しているように考えられるが、グラニュールを形成する際に必要とされない低活性な汚泥が槽外に流出していると考えられる。また、図5の装置下部における活性度の比較から、運転終了時において、槽内下部に存在していた菌（保持菌）について、濃度変化型は流量変化型よりも活性度が大きかったことがわかる。以上から流量一定のもと基質濃度を段階的に上げていくことはグラニュールを形成する際に必要な汚泥を槽内保持することに適し、さらにその汚泥の増殖に適した設定であると考えられる。

汚泥が凝集し、粒径が増加すること

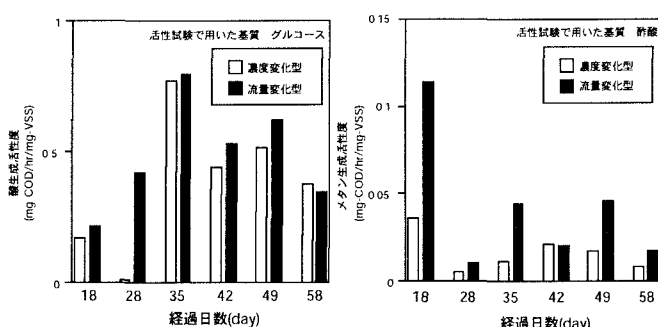


図3 両装置上部に存在している菌（流出菌）の活性度の経日変化

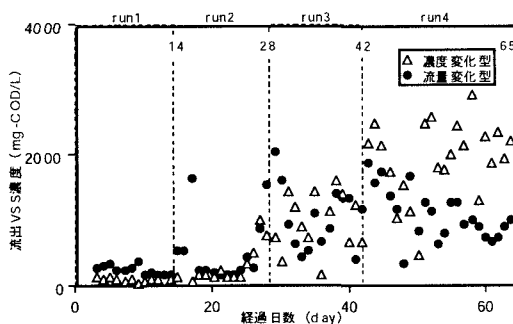


図4 両装置における流出VSS濃度の経日変化

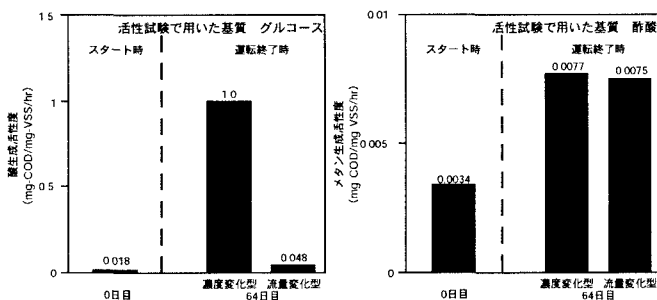


図5 両装置下部に存在している菌（保持菌）の活性度の比較

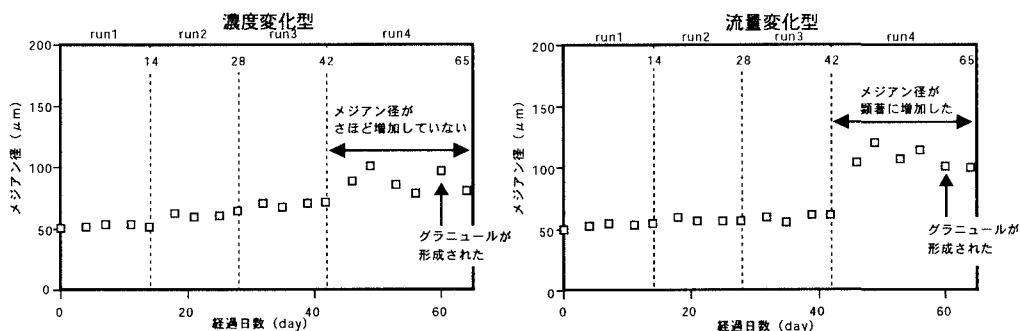


図6 両装置における粒度分布に関するメジアン径の経日変化

を確認する手段として、装置下部における汚泥の粒度分布を測定し、そのメジアン径（これは累積分布曲線の50%累積値に相当する径のことである）を求めた。メジアン径の経日変化を図6に示す。ここでは、メジアン径の増加が粒径の増加であるとみなした。両装置ともにrun1からrun3まではメジアン径にさほど変化はなかった。しかし、run4において流量変化型では、メジアン径が顕著に増大したことがわかる。このため基質濃度一定のもと流量を段階的に上げることはグラニュール形成の際の、増殖した汚泥、細胞外ポリマー等の凝集に適した設定であると考えられる。

以上の結果から、流量一定のもと基質濃度を段階的に上昇させる運転設定は、グラニュール形成に必要な汚泥を槽内で増殖・保持させやすく、一方、基質濃度一定のもと流量を段階的に上昇させる運転設定は、増殖した汚泥や細胞外ポリマーを凝集させやすいという特徴を有することがわかった。

3.1.3 グラニュール形成のさらなる高速化に関する検討

3.1.2よりグラニュール早期形成のために必要なことは、槽内を過負荷状態に維持し菌の増殖を促進させる、また流量を上げて増殖した菌の凝集を促進させる等のそれぞれの特徴に応じた適切な運転条件設定を行うことであることが明らかとなった。そこで、3.1.2で得られた結果を踏まえて、濃度変化型及び流量変化型の特徴に注目し、運転前半は流量一定のもと基質濃度を段階的に上昇させ、後半は基質濃度一定のもと流量を段階的に上昇させる設定（運転条件混合型）のグラニュール早期形成のための実験を行った。また3.1.2

表4 グラニュール形成高速化に用いた運転条件

run	経過日数	運転条件混合型		run	経過日数	高負荷連続型		run	経過日数	高負荷連続型	
		基質濃度	流量			基質濃度	流量			基質濃度	流量
	day	mg-COD/L	L/day		day	mg-COD/L	L/day		day	mg-COD/L	L/day
1	0 ~ 14	2000	5	1	0 ~ 4	2000	5	1	0 ~ 4	2000	5
2	14 ~ 28	10000		2	4 ~ 8	10000		2	4 ~ 8	10000	
3	28 ~ 42	5000	10	3	8 ~ 15	30000		3	8 ~ 15	30000	
4	42 ~ 65		20	4	15 ~ 19	8000	20	4	15 ~ 19	8000	20
				5	19 ~ 40		40	5	19 ~ 40		40

← 基質はグルコースを使用 除去率は70%まで低下 → ← 基質はスキムミルクを使用 除去率は60%まで低下 →

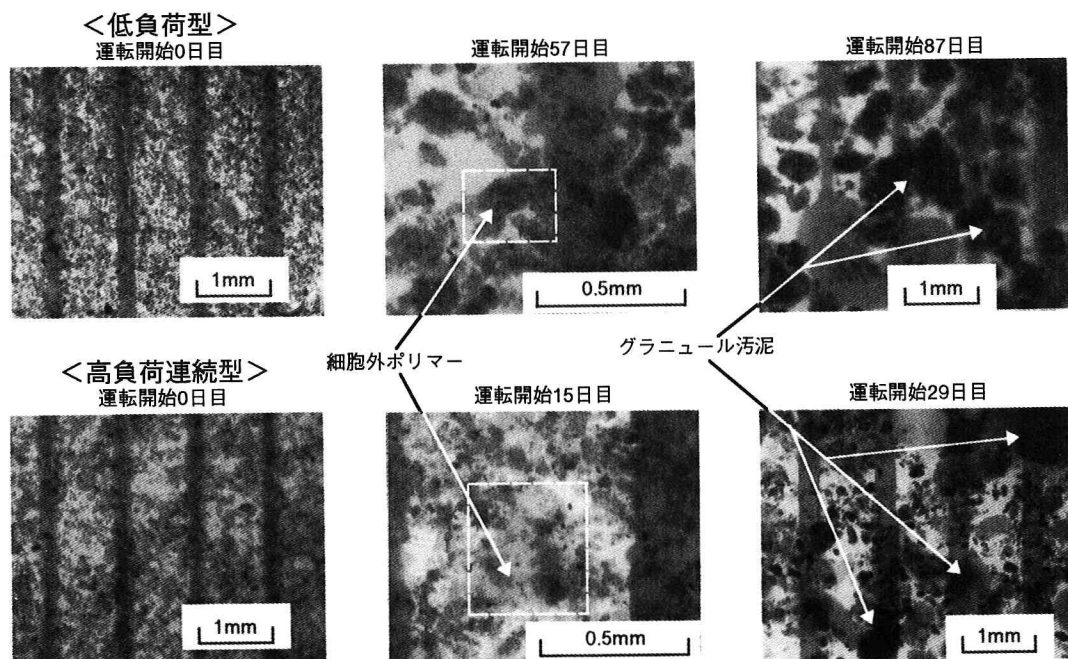


写真2 各汚泥の経日変化（低負荷型、高負荷型ともグルコース基質）

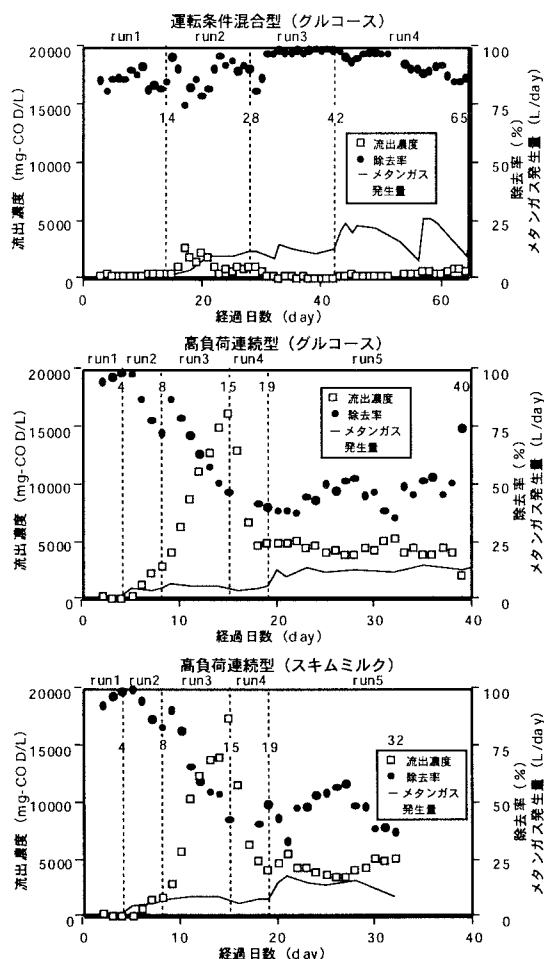


図7 各装置における流出濃度と除去率およびメタンガス発生量の経日変化

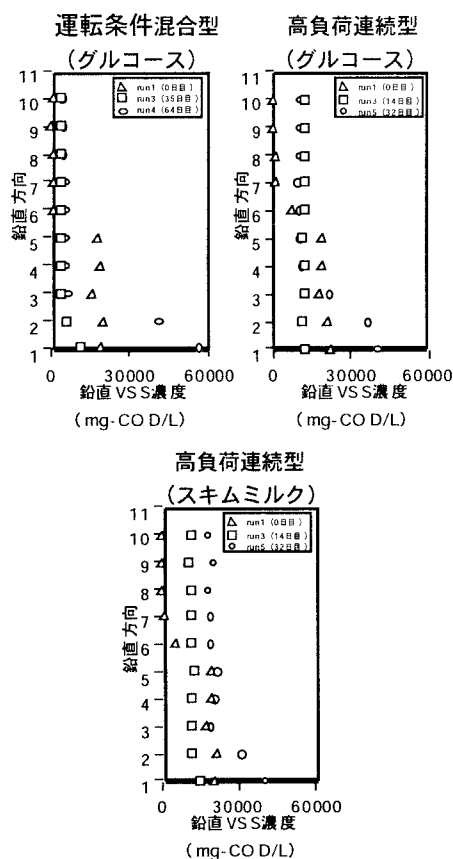


図8 各装置における鉛直VSS濃度の経日変化

の過負荷条件の場合と比べて、運転をさらに意図的に高負荷（除去率を60％程度まで低下させる）にすることでグラニュール形成期間をさらに短縮させる（高負荷連続型：グルコース基質）ことを試みた。加えて、これまでの実験では基質としてグルコースを用いたが、ここでは、異なる基質でもグラニュール形成の促進が同様に可能かどうかについても検討（高負荷連続型：スキムミルク基質）した。用いた実験装置は3基である。種汚泥は全て消化汚泥6Lを使用し、基質はグルコースとスキムミルクを用いた。3基の運転条件を表4に示す。運転条件混合型について、運転の前半では、細胞外ポリマーの顕著な増加が確認されるまで基質濃度のみを上昇させ、後半では流量のみを上昇させる設定にすることで、グラニュール形成が促進されることが確認された。この運転条件混合型においてグラニュール形成に要した期間は60日程度であり、一方、高負荷連続型（グルコース基質）では、反応槽内をさらに高負荷に保つことによって、グラニュール形成期間を30日程度まで短縮させることができた（写真2を参照）。このように適切な運転条件の設定を行うことで、グラニュールを早期に形成可能であることが明らかとなった。なお基質がスキムミルクの低負荷型ではグラニュールは形成された（3.1.1を参照）が、今回の高負荷連続型（スキムミルク基質）の場合では細胞外ポリマーが顕著に増加した後、凝集は行われるが、その後ペースト状に崩壊し、凝集体はグラニュールとして保持されなかった。各装置における流出濃度と除去率及びメタンガス発生量の経日変化を図7に示す。高負荷連続型（グルコース基質）においてはrun3及びrun4に除去率が低下したが、グラニュールが形成されるにつれて除去率が回復した。しかし、スキムミルク基質では凝集物のペースト状崩壊が確認された時期に除去率が低下した。各装置における鉛直VSS濃度分布の経日変化を図8に示す。全装置において運転開

表5 グラニュール形成時期ならびに細胞外ポリマー形成時期による評価に関する運転条件

低負荷型				高負荷連続型			
run	経過日数 day	基質濃度 mg-COD/L	流量 L/day	run	経過日数 day	基質濃度 mg-COD/L	流量 L/day
1	0 ~ 14	500	5	1	0 ~ 4	2000	5
2	14 ~ 28			2	4 ~ 8	10000	
3	28 ~ 40			3	8 ~ 15	30000	
4	40 ~ 56	2000	10	4	15 ~ 19	8000	20
5	56 ~ 70			5	19 ~ 40		40
6	70 ~ 88	4000	20				

基質は全てグルコースを使用
汚泥は全て消化汚泥を使用

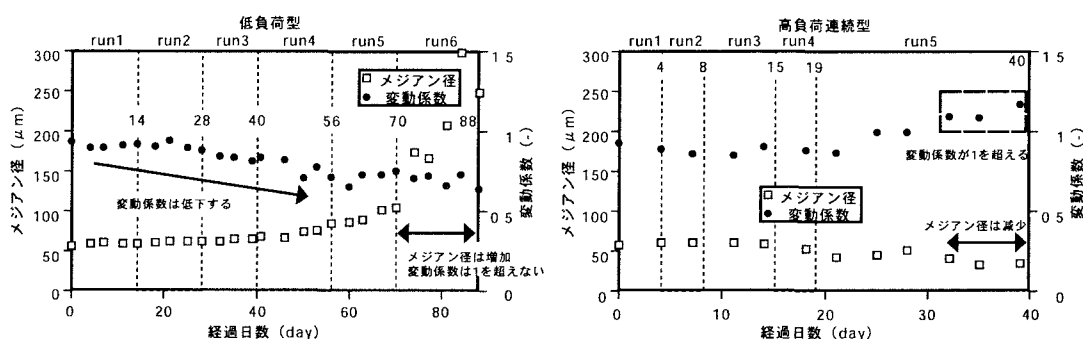


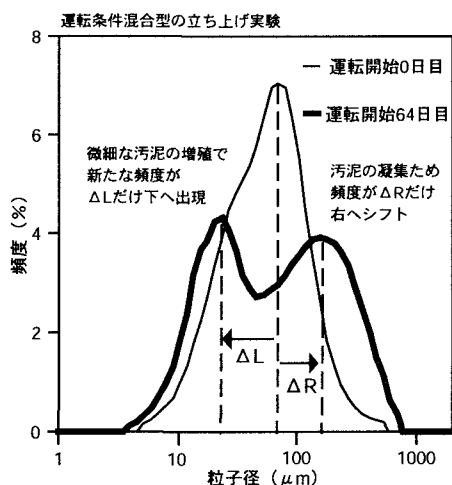
図9 両装置における粒度分布に関するメジアン径の経日変化

始からその終了にかけて、ガス発生により汚泥の捲き上がり確認された。そのため汚泥が槽内一様に分布していた。その後、グラニュール形成時期には装置下部において凝集した汚泥が沈降したため装置下部に多く分布したことが確認された。なお、スキムミルク基質の高負荷連続型については、装置下部に汚泥が蓄積されてはいるものの、それはグラニュール汚泥ではなく、前述のペースト状の汚泥であった。

3.2 グラニュール形成の定量的評価に関わる指標についての検討

3.2.1 汚泥の凝集性の定量的評価に関する検討

3.1において、グラニュールがいくつかのプロセスを経て形成されることを確認した。しかし、従来のように顕微鏡等による観察のみの評価では定量性がないため、数値による定量的な評価を試みた。具体的には、汚泥の凝集性について、メジアン径と変動係数の適用を検討した。このスタートアップ実験では、種汚泥として消化汚泥6Lを使用し、基質はグルコースを用いた。運転条件を表5に示す。両装置における粒度分布に関するメジアン径の経日変化を図9に示す。低負荷型の場合、運転当初は顕著な増加はみられなかったが、確実にメジアン径は増加した。そして、顕微鏡によるグラニュール形成の確認と時期を同じくして、メジアン径が顕著に増加しているのが確認された。こ



	運転開始0日目	運転開始64日目
メジアン径 (μm)	51.34	34.87
変動係数 (-)	0.884	1.10

図10 粒度分布に関する2つの頻度 (ピーク) の存在例

のことからメジアン径を用いたグラニュール形成の評価が可能であり、本研究ではその値が0.1mmを超えた場合とした。一方、高負荷連続型の場合は、顕微鏡によってグラニュールの形成が確認された時期からメジアン径が逆に低下した。したがって、この場合はメジアン径によるグラニュール形成の評価は困難であった。低負荷型の場合は、細胞外ポリマーが増加するプロセスと、増殖した汚泥等が凝集するプロセスが順次進行し、メジアン径が増加したと推測される。これに対し、高負荷連続型では槽内において、汚泥を過剰に増殖させながら、増殖した汚泥を凝集させるプロセスが同時に進行していると推測される。そのため図10からわかるように、グラニュール形成時期には運転開始時と比べて、頻度（ピーク）が明らかに右側ヘシフトしているのに対し、一方では増殖中の微細な汚泥が存在していることを示す粒子径の小さな頻度（ピーク）についても顕著な増加がみられた。この場合には、2つのピークが存在しているため、メジアン径による評価が困難であった。このような場合の特例として、変動係数の適用を試みた。これは算術標準偏差を算術平均径で除したものである。2つのピークが離れて存在する場合に変動係数は大きくなることから、それによる評価が可能であると考えた。顕微鏡により汚泥の凝集が確認された時期に変動係数は1を超えていた。したがって、本研究では変動係数によるグラニュール形成の定量的判断が可能であり、本研究ではその値が1を超えた場合とした。

以上のことから、凝集ならびにグラニュール形成時期の定量的判断をメジアン径によって行うことは可能であり、また過負荷運転により、測定結果に2つのピークが生じた場合には、変動係数による定量的判断が可能であることが明らかとなった。なお、3.1.2において変動係数を用いなかったのは、得られた結果において、メジアン径が順調に増加し、変動係数が1を超えなかったためである。

3.2.2 細胞外ポリマーの顕著な増加時期の定量的評価

グラニュール形成において細胞外ポリマーは不可欠の存在である^{9)~11)}。これまで細胞外ポリマーは、抽出の後、主に糖とタンパク質濃度の和として定量されてきた¹⁴⁾。しかしながら、その増加過程をつぶさに観察した研究は少なく、細胞外ポリマー濃度との関連で、その増加過程について定量的な評価を行った研究はさらに少ない。そこで、細胞外ポリマーの増加過程に注目し、その顕著な増加時期の定量的な評価を行った。このスタートアップ実験は、3.2.1と同じもの（運転条件：表5）である。本研究では細胞外ポリマー濃度を、冷温抽出法¹⁴⁾によって抽出した検液のタンパク質及び糖濃度の測定値の和とした。細胞外ポリマーの顕著な増加は顕微鏡での観察の結果から、低負荷型ならびに高負荷連続型の、それぞれ運転開始から55日目、14日目であった。両装置における細胞外ポリマー含有率の経日変化を図11に示す。細胞外ポリマー含有率とは、サンプリングポートNo 1から採取した汚泥の細胞外ポリマー濃度をVSSで除したものとした。この図から低負荷型、高負荷連続型ともに、それぞれ顕著な細胞外ポリマー含有率の増加が確認され、その時期は顕微鏡で確認された細胞外ポリマーの顕著な増加時期と一致していた。図11から、細胞外ポリマーは低負荷運転の場合においては時間とともに蓄積され、一方の高負荷運転の場合は流量一定のもと基質濃度を段階的に上げることで早期に顕著な増加が生じることが確認された。また、一連のグラニュールの形成プロセスにおいて、細胞外ポリマーの顕著な増加後、グラニュールが形成される時期に細胞外ポリマー量は多少低下し、ある一定の量で安定していることが確認された。これは、このrun5においては負荷は上昇させているもののそれは流量の上昇によってであり、上昇線流速が大きく増加した（表5参照）ことから、菌同士が凝集をさらに行うことでその線流速に対応したものと考えられる。以上のことから、細胞外ポリマーが増加後に一旦低下した時期がグラニュール形成の時期と一致することから、細胞外ポリマー含有率をグラニュー

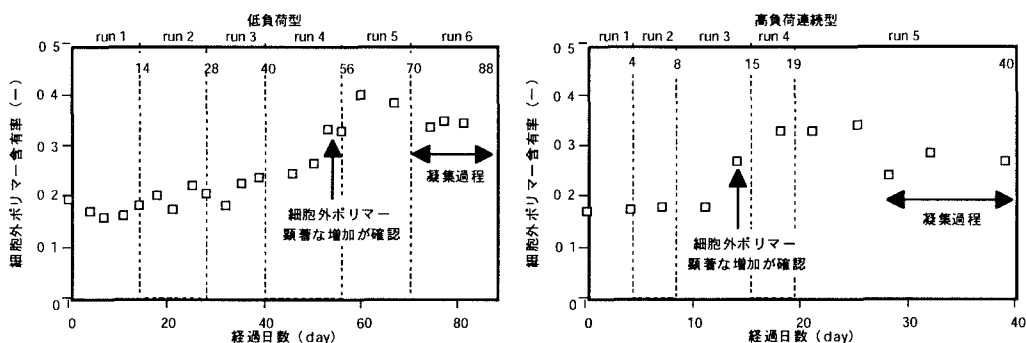


図11 両装置における細胞外ポリマー含有率の経日変化

ル形成の指標として用いることの可能性が示されたと考えられる。

3.2.3 汚泥の沈降性の定量的評価に関する検討

グラニュール形成プロセスにおいて、凝集された汚泥が沈降する過程は必ず確認される。しかし、これまでその定量的な評価はほとんどなされていなかった。そこで、比重値によるその評価を試みた。これは槽内に菌が存在し続けるためには、菌同士が凝集して、その粒径を増すか、比重を増す必要があると考えられるからである。このスタートアップ実験では、種汚泥として消化汚泥6Lを使用し、基質はグルコースを使用した。運転条件を表6に示す。なお、この実験は3.2.1及び3.2.2の実験とは

表6 沈降性の評価に関する実験に用いた運転条件

低負荷型				高負荷連続型			
run	経過日数 day	基質濃度 mg-COD/L	流量 L/day	run	経過日数 day	基質濃度 mg-COD/L	流量 L/day
1	0 ~ 14	500	5	1	0 ~ 3	2000	5
2	14 ~ 28			2	3 ~ 7	10000	
3	28 ~ 42	1000	10	3	7 ~ 15	30000	
4	42 ~ 56	2000		4	15 ~ 19	8000	20
5	56 ~ 75		20	5	19 ~ 36		40
6	75 ~ 85	4000					

基質は全てグルコースを使用

基質は全てグルコースを使用
汚泥は全て消化汚泥を使用

別の実験であり、先の実験の再現性を確認するためもあり、ほぼ同条件に設定した。ここでは上述のように汚泥の沈降性を代表するものとして、比重値を測定した。低負荷型について、細胞外ポリマーの顕著な増加ならびにグラニュール形成は顕微鏡による観察から、それぞれ55日目、80日目であった。高負荷連続型については、それぞれ運転開始から14日目、30日目であった。これらのことから、槽内を過負荷状態に維持することでグラニュールの形成期間が短縮されることが再度明らかになり、その再現性が確認されたと考えられる。低負荷型と高負荷連続型の比重値の経日変化を図12に示す。ここで比重値は、サンプリングポートNo1から採取した汚泥を用いて得られた数値を平均した（標準で4つ）ものを用いた。また、比重を測定する際に汚泥を急冷し発生ガスによる汚泥内のホールドアップを抑制した。この図から、全ての装置において、運転全体を通して比重値が1より大きかったことが確認され、グラニュール形成に関係なく、汚泥は装置下部に沈降しやすい傾向にあることがわかった。また、運転開始時に比較してグラニュールが形成された運転終了時の比重値が増加していることが確認された。これは装置下部で増殖した汚泥や細胞外ポリマー等が槽外への流出を防ぐために凝集することで比重値を増加させたことによるものと考えられる。このことから比重値が汚泥の沈降性の指標となる可能性が示されたと考えられる。また低負荷型、高負荷連続型はそれぞれrun6、run4において一時的に比重値が運転開始時期と同じ程度まで著しく低下した。これは3.2.2で得られた結果から、低・高負荷型運転で細胞外ポリマーの顕著な増加後、3.2.2におけるrun6とrun5においてグラニュール形成とほぼ同じ時期に細胞外ポリマー含有率が減少したこと、これにともなう細胞外ポリマー量の減少によって、比重値が減少したと考えられる。さらに高負荷連続型に関して、run3において比重値がグラニュール形成時期の値と同程度であった。これは装置下部から流入する基質が高濃度であったため、これに連動して比重値が増加したと考えられる（図12の基質の比重値を参照）。

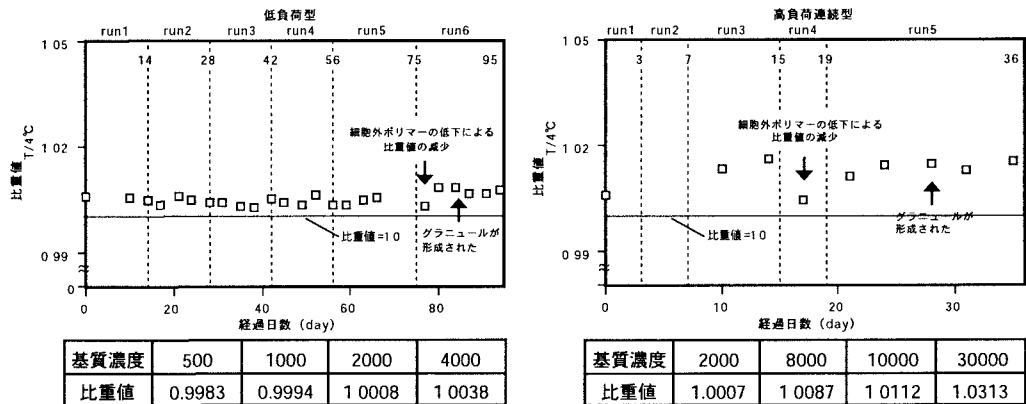


図12 両装置における槽内汚泥の比重値の経日変化と各濃度における基質の比重値
(全ての比重値は4℃における値として換算済み)

4. まとめ

本研究で得られた結果をまとめると以下の通りである。なお、この結果はグルコースを基質として用いた場合のものである。

- (1) グラニュール形成に関してこれまで長期間（通常で100日程度）を要したが、槽内を過負荷状態に維持し、細胞外ポリマーの顕著な増加までは基質濃度を上昇させ、その後、グラニュール形成まで流量を上昇させて負荷の上昇を行うことでグラニュールの早期形成（要した期間は30日）が可能となった。
- (2) メジアン径と変動係数を用いることで、グラニュール形成時期の定量的評価が可能になった。
- (3) 細胞外ポリマー含有率によって、細胞外ポリマーの顕著な増加時期及びグラニュールの形成時期に関する評価が可能となった。
- (4) 比重値が汚泥の沈降性に関する指標となる可能性が示され、それを用いた槽内の汚泥の状況の把握が可能となった。

謝辞

本研究を実施するにあたり、本学修了生の荒金光弘君に多大な助力を得た。ここに記して深甚なる謝意を表する。

参考文献

- 1) Lettinga, G., Velsen, A. F. M., Hobma, S. W., Zeeuw, W. and Klapwijk, A.: Use of upflow sludge blanket (USB) reactor concept for biological wastewater treatment, especially for anaerobic treatment *Biotechnology and Bioengineering*, Vol.22, pp.699-734, 1980.
- 2) 原田秀樹: 嫌気性スラッジブランケット (UASB法) による下・廃水処理、下水道協会誌、Vol.22, No.255, pp.67-77, 1985.
- 3) 依田元之: わが国における UASB 法の利用動向、食品と開発、Vol.26, No.3, 1992.
- 4) Lettinga, G., Field, J., van Lier, J., Zeeman, G., and Hulshoff Pol, L. W.: Advanced anaerobic wastewater treatment in the near future, *Wat. Sci. Tech.*, Vol.35, No.10, pp.5-12, 1997
- 5) 多川 正, 原田秀樹, 高橋弘希, 大橋晶良, 関口勇地: 新規の多段型 UASB 反応器による脂質・タンパク質含有廃水の高温嫌気性処理パイロットプラント実験, 環境工学研究論文集, Vol.36, pp.431-441, 1999
- 6) Chen Jian, Lun Shi-yi: Study on mechanism of anaerobic sludge granulation in UASB reactors. *Wat. Sci. Tech.*, Vol.28, No.7, pp.171-178, 1993.
- 7) Hickey, R.F., Wu, W.M., Veiga, M.C. and Jones, R.: Start-up, operation, monitoring and control of high-rate anaerobic treatment systems, *Wat. Sci. Tech.*, Vol.24, No.8, pp.207-255, 1991.
- 8) Hulshoff Pol, L.W., De Zeeuw, W.J., Velzeboer, C.T.M. and Lettinga, G.: Granulation in UASB reactors, *Wat. Sci. Tech.*, Vol.15, No.8/9, pp.291-304, 1983.
- 9) R. El-Mamouni, R. Leduc, J. W. Costerton and S. R. Guiot: Influence of the microbial content of different precursory nuclei on the anaerobic granulation dynamics. *Wat. Sci. Tech.* Vol.32, No.8, pp.173-177, 1995.
- 10) J. E. Schmidt, B.T. Ahring: Extracellular polymers in granular sludge from different upflow anaerobic sludge blanket (UASB) reactors. *Appl. Micro. Biotech.*, Vol.42, No.2/3, pp.457-462, 1994.
- 11) J. W. Morgan, C.F. Forster, and L. Evison: A comparative study of the nature of biopolymers extracted from anaerobic and activated sludges. *Wat. Res.*, Vol.24, No.6, pp.743-750, 1990.
- 12) American Public Health Association: Standard Method for the Examination of Water and Wastewater, 18th Edition. Washington, D. C., 1992.
- 13) 下水試験法: (社) 日本下水道協会編, 1997.
- 14) 久場隆広, 古米弘明, 楠田哲也: 細胞外ポリマーの簡易抽出法に関する検討, 土木学会第29回環境フォーラム講演集, B-21, pp.114-116, 1992
- 15) Takahiro KUBA, Hiroakifurumai and Tetsuya KUSUDA: A kinetic study on methanogenesis by attached biomass in a fluidised bed. *Wat. Res.*, Vol.24, No.11, pp.1365-1372, 1990.