生物膜理論の発展と特に内生脱窒反応のモデル化

岩井 重久*

1. はじめに

生物膜法は当初、有機物酸化に有効な方法として発展してきたが、単一槽における有機物と窒素の同時除去が可能な方法としても注目されている。この同時除去の原理は、広く認められるようになってきた“曝気条件下における脱窒”¹⁾と基本的には同じものであり、曝気によりDOが高い部分では有機物酸化と硝化が、また無酸素または低DO域（生物膜法では膜の深部）では脱窒が生じるというものである。生物膜法におけるこうした現象は経験的によく知られているが、それを可能にする技術上の進歩は生物膜理論の発展に負うところが大きい。

以下では、生物膜による基質除去モデルについて述べるとともに、内生脱窒反応のモデル化について言及したい。

2. 生物膜による有機物除去モデル

初期の生物膜モデルは、Velz²⁾のように生物膜装置を一つの完全混合槽ととらえ、経験的なモデル式（例えば $Se/So = \exp(-kt)$ 、 So ；基質流入濃度、 Se ；基質流出濃度）を表現するものであった。その後、著者ら³⁾もオーバーオールな観点からではあるが生物膜反応槽内の有機物除去速度を Monod 形式で直接に記述した。1960年代後半からは、膜内外における反応物質（有機物）の輸送過程と膜内での微生物代謝反応とを合わせたモデルが La Motta⁴⁾、Harremoes⁵⁾、渡辺ら⁶⁾により提示された。このモデルで生物膜表面におけるその濃度で近似した場合、次のような結果が得られる。

① 有機物の除去反応が有機物濃度について一次反応の場合、有機物の除去フラックスも液本体の有機物

濃度について一次となる。

② 有機物の除去反応が劣次反応でかつ有機物が膜の深部まで完全浸透している場合、有機物除去フラックスは液本体の基質濃度についても零次となる。

③ 上記②で有機物が不完全浸透の場合、有機物除去フラックスは液本体の有機物濃度について $(1/2)$ 次となる。

一方、Atkinsonら⁷⁾は、膜内の生物反応をも Monod 型式で表す一連の研究を行った。Williamsonら⁸⁾及び Rittmannら⁹⁾は、さらに生物膜表面の拡散層による物質移動抵抗を考慮したモデルを提示し、とくに後者は Shallow な生物膜と Deep な生物膜に関して有機物除去フラックスの解析解を用いたモデルを發展させ、生物膜厚さにかかわらず適用できるモデルを提案している。さらに、有機物除去に酸素律速現象を考慮する必要性が認識されると、反応項に有機物と酸素の影響を考慮したダブル Monod 型式 $\left[\frac{dS}{dt} = -K \prod_{i=1}^2 \left\{ \frac{C_i}{K_{si} + C_i} \right\} \right]$ 、 K_s ；Monod 飽和定数、 K ；最大比基質反応速度定数、 $i = 1, 2$ ；（例えばそれぞれ有機物、溶存酸素を意味する）を用いるモデル（Harrisら¹⁰⁾）、が提示されるようになった。

3. 生物膜による有機物と窒素の同時除去モデル

生物膜による有機物と窒素の同時除去をモデル化する場合、上記の従来の基質除去モデルと同様に下記の3つのプロセスの定式化を行う必要がある。

- ① 液本体から生物膜内への物質輸送
- ② 生物膜内における物質輸送
- ③ 生物膜内における生物反応

有機物と窒素の同時除去では、有機物、酸素、 NH_4-N 、 NO_x-N （ $NO_2-N + NO_3-N$ ）、アルカリ度の各物質が互いに関連し、上記②ではこれらの物質の輸送を、③では反応における各物質の関連性を考慮しながらそれらの反応の進行を総合的に表現しなければ

* 京都大学名誉教授，IAWPRC 名誉会員
Shigehisa IWAI

ならない。例えば、硝化においては $\text{NH}_4\text{-N}$ 、酸素、アルカリ度が同時に関与するため、寺島ら¹¹⁾は硝化に関する反応式をトリプル Monod 型式 $\left[\frac{dS}{dt} = K \prod_{i=1}^3 \left\{\frac{C_i}{(K_{si} + C_i)}\right\}\right]$ で表している。この場合の生物反応表現は、反応速度を最大比反応速度定数及び各細菌の活性度に影響を及ぼす環境条件下で表したものと見える。一方、このモデルの適用に当たっては好気性従属栄養菌、硝化菌、脱窒菌が膜全体に十分に混在することが前提となる。増田ら¹²⁾は膜内細菌分布に関し、回転円板付着生物膜を膜の深さ方向にスライスした薄片につき生菌数を計数したところ、上記の各細菌がともに膜内に十分混在していることを見いだした。また、陳ら¹³⁾も浸漬型付着生物膜に関し、同様の方法により、全体として各菌が膜内に十分に混在していることを明らかにした。この場合、反応条件が整えば、膜内のあらゆる場所において有機物酸化、硝化と脱窒反応が同時に進行しうることになる。さらに陳ら¹⁴⁾は上記の①～③を考慮し、膜内及び膜外における10個の数式(各基質の拡散及び反応に関するもの)を構成した。これら数式の解析はきわめて複雑であるため、数値解析により各水質項目の膜内濃度分布が計算され、同モデルが水質項目の膜内外での挙動(例えば、膜内深さ方向への各水質項目の濃度変化及びその変化の膜内DO濃度依存性)を十分に表現しうることが示された。

4. 生物膜による内性脱窒反応の機構とモデル化

周知のように、脱窒反応の進行には有機炭素源が必要である。しかしながら、脱窒に必要な有機炭素が不足する場合においても窒素が除去される現象が見られる¹⁵⁾。とくに、液層内DO濃度が低い(1 mg/ℓ以下)では、液相内有機炭素がほとんどない場合についても酸化態窒素の除去が観察されている¹⁶⁾。これは微生物体由来する有機物(二次基質)を利用する内生脱窒反応であると考えられ、微生物濃度が高い生物膜法においては浮遊法以上に顕著な現象となっている。陳ら¹⁶⁾は、内生脱窒反応に利用される有機物の由来を実験的に明らかにすることを試みるとともに、内生脱窒反応のモデル化に取り組んだ。その概要を箇条書きにすると以下の通りである。

(1) グルコースと酢酸アンモニウムを主成分とする人工下水により培養した活性汚泥(生物膜を構成する微生物と活性汚泥とは本質的に同等と考え、ここでは活性汚泥を用いている)3日間空曝気した後、pH 4及びpH 7の条件下でそれぞれさらに空曝気(DO ≒

5 mg/ℓ)としてCODcr及びMLSS濃度の経時変化を調べた。その結果、微生物の代謝反応に影響を与えないpH 7では反応内CODcrの増加がわずかであるのに対し、その代謝反応が抑制されるpH 4ではほぼ直線的に増加し、単位MLSS (mg/ℓ)当りの増加量は約0.22mgCODcr/mgMLSSとなった。また、炭水化物あるいはCODcrで表わされる有機物について分子量1万以下のものが50～60%を占めることが明らかとなった。

この実験に基づく二次基質の生成速度 $\left(\frac{dS}{dt}\right)_{ly}$ (mgCOD/ℓ・day)は、
$$\left(\frac{dS}{dt}\right)_{ly} = P(1-f) \cdot b \cdot M$$
により表される。ここで、P(微生物体のCODcrへの換算係数(mgCODcr/mgMLSS))、f(微生物体中分解生有機物の占める割合(-))、b(微生物のLysis定数(day⁻¹))、M(MLSS濃度(mg/ℓ))、であり、同研究では、P=1.26(mgCOD/mgVSS)、b=0.45(ℓ/day)、f=0.08の値が得られている。

(2) 生物膜を付着させた浸漬型回転円板装置に一定量のNaOHと栄養塩のみを添加し、槽内pHを7、槽内DOレベルを1 mg/ℓに制御して槽内CODcrとNO₃-Nの経時変化を調べたところ、外部からの有機物の供給がないにもかかわらず、槽内NO₃-Nは時間とともにほぼ直線的に減少した。この結果を本稿第3章で示した有機物と窒素の同時除去モデルに、上述の内生脱窒の項を加えた基質除去モデルよりシミュレーションすると、両者はほぼ一致した。

(3) 以上の結果を総合すると、微生物体からはLysis反応により二次基質が生成され、これは脱窒反応等微生物の代謝活動に利用されること、二次基質の生成速度は微生物に対して一次式で、また定常状態(M=一定)では零次式で表せること、さらに、内生脱窒反応は二次基質を考慮した有機物と窒素の同時除去モデルによりうまく記述されることが明らかとなった。

5. おわりに

本稿では、生物膜モデルの発展と有機物と窒素の同時除去モデル、さらに内生脱窒反応をも組入れたモデルについて述べた。このようなモデルは近年、益々複雑化する方向にあるが、それを解析する手法もまた進歩し、生物膜内外の現象を詳細に記述することが可能になってきている。今後はさらに、生物膜を構成する各種細菌を構造化したモデルが開発されていくものと期待される。内生脱窒については従来、現象としては

よく見られていたものの、その機構については十分に明らかとは言えなかった。しかし上述のように、微生物集団（汚泥）の自己分解反応が、「微生物の Lysis 反応とそれに由来する二次基質による汚泥の再合成反応とを含む総括的な反応」であることが生物膜についてもかなり実証されるようになった。この内生脱窒反応が有効に利用され、より効率的かつ低コストの処理技術を確立していくことは工学的にも重要であろう。

脱窒までを考えなくても、内生呼吸による Lysis が処理効果を評価する上に影響を与えることもありうる。岩井¹⁷⁾は生物酸化処理における理論の精密化を図り、内生呼吸作用をも組み入れた理論式を導き、し尿の好気性消化・活性汚泥処理の実際運転成績にこれを適用して、いわゆる収率定数と内呼吸定数とのそれぞれにつき、Lysis を無視した見掛けの定数値と、Lysis を考慮した固有の定数値とを分離して推定する方法を提案し、さらに必要酸素量や余剰引抜き汚泥量を厳密に推定する方法をも提案した。次の段階では、岩井¹⁸⁾の開発した循環曝気活性汚泥変法〔F D A 法として彦根市のし尿処理に適用されたのが世界で最初（1978年）であり、その翌年にケープタウンで下水処理に適用され、琵琶湖周辺やセーヌ川、ライン川支流等で最近多く用いられる〕の B O D・窒素の同時除去の機序〔同時・逐次反応が生じている〕を究めるために、本文で紹介した生物膜処理における新しい反応モデルや理論が大いに参考となると考える。

最後に、本稿において「生物膜モデルの概要」の一部及び「内生脱窒反応の機構とモデル化」について記述するに当たっては、陳光浩氏（現、ユニックス㈱）及び尾崎博明氏（現、京都大学工学部衛生工学科講師）の協力を得た。記して謝意を表したい。

引用文献

- 1) 石川；曝気条件下における窒素除去に関する研究，京都大学学位論文（1985）。
- 2) G. J. Velz；A Basic Law for the Performance of Biological Filter, Sewage Works, Journal, 20, 607（1948）。
- 3) 岩井，北尾，手島；曝気循環型ろ床による污水处理，第30回土木学会年次学術講演会講演概要（Ⅱ），526（1975）。
- 4) E. J. La Motta；Internal Diffusion and Reaction in Biological Films, Environmental Sci. & Tech., 10, 756（1976）。
- 5) P. Harremoes；The Significance of Pore Diffusion to Filter Denitrification, Jour. of WPCF, 48, 377（1976）。
- 6) 渡辺，石黒，西留；回転円板法の浄化機構に関する研究（Ⅰ），下水道協会誌，15，（172），24（1978）。
- 7) B. Atkinson and I. J. Davis；The Overall Rate of Substrate Uptake（Reaction）by Microbial Films：Part II—A Biological Rate Equation, Trans. Instn. Chem. Engrs., 52, 248（1974）。
- 8) K. Williamson and P. L. McCarty；A Model of Substrate Utilization by Bacterial Films, Jour. of WPCF, 48, 52（1976）。
- 9) B. E. Rittmann and P. L. McCarty；Model of Steady-State Biofilm Kinetics, Biotech. & Bioengr., 22, 2343（1980）。
- 10) N. P. Harris and G. S. Hansford；A Study of Substrate Removal in a Microbial Film Reactor, Water Research, 10, 935（1976）。
- 11) 寺島，尾崎，陳；生物膜による有機物と窒素の同時除去に関する基礎的研究，衛生工学研究論文集，23, 327（1987）。
- 12) 増田，渡辺，石黒；円板付着生物膜内細菌に関する研究，下水道協会誌，24（278），19（1987）。
- 13) 陳，尾崎，宮崎，寺島；浸漬型付着生物膜内の細菌に関する基礎的研究，第43回土木学会年次学術講演会講演概要集（Ⅱ），1085（1988）。
- 14) G. H. Chen, H. Ozaki, Y. Terashima；Modeling of Simultaneous Removal of Organic Substances and Nitrogen in a Biofilm, Wat. Sci. Tech., 21, 791（1989）。
- 15) 増田，渡辺，石黒；都市下水を用いた回転円板法による硝化脱窒同時反応に関する研究，第40回土木学会年次学術講演会講演概要集（Ⅱ），961（1985）。
- 16) 陳，尾崎，宮崎，寺島；生物膜における内生脱窒反応のモデル化について，第42回土木学会年次学術講演会講演概要集（Ⅱ），858（1987）。
- 17) 岩井重久；生物酸化処理の精密理論とその活性助剤添加の好気性硝化・活性汚泥法への適用例，環境技術，20, 631（1991）。
- 18) Iwai, S.；Nitrogen Control for The Partly Sewered Basin of Yodo River—Lake Biwa System, Wat. Sci. Tech., 14, 215（1982）。