<論文>

嫌気性流動床の造粒物形成に及ぼす操作因子の影響

柴 崎 和 夫* 小 林 茂* 足 利 伸 行*

Affect of the Operational Conditions on Sludge Pelletization in the Anaerobic Fluidized-Bed Reactor

Kazuo SHIBAZAKI*, Shigeru KOBAYASHI* and Nobuyuki ASHIKAGA*

* Water Environment Engineering, Heavy Apparatus Engineering Lab., Toshiba-cho 1, Fuchu-city, Tokyo 183 Japan

Abstract

For the purpose of reducing the anaerobic fluidized-bed reactor start-up period by increasing the initial biomass concentration, the operational conditions and mechanism of the pelletizing seed sludge were investigated by using laboratory- and bench-scale equipments.

It has been revealed that the factors that affect the pelletization process are the concentration of the recycled sludge, the upflow rate of the sludge recycle in the reactor and the distribution of the carrier material diameter. In addition, it has been found that the pellets (2 to 5 mm in diameter) can be formed within several tens of hours by limiting these factors within an appropriate range. During the pelletization process, the needle-shaped matter was first formed with the sludge adhering in a broom shape to the upper side of each carrier, and then they were merged and rolled while incorporating the recycled sludge. The pelletization process took place physically rather than by biomass growth.

The initial biomass concentration in the reactor could be made to be 4,000 to 8,000 mg VSS·l⁻¹, due to pellet formation.

Key words: methane fermentation, fluidized-bed reactor, start-up, mechanism of sludge pelletization

1. はじめに

下水汚泥の処理や、し尿処理に代表される従来の嫌気性処理法は、滞留時間を10～20日程度と非常に長く必要とするわりには処理効率が悪く、廃水処理の分野ではほとんど普及しなかった。しかし、嫌気性細菌の付着固定化や自己造粒化を応用したバイオリアクターが開発され^{1)～5)}、嫌気性処理法の有効性を認識させた。この結果、世界的規模で嫌気性バイオリアクターに関する研究が進められ、近年高濃度有機性廃水を対象として、徐々に実用化されつつある段階になってきた^{6)～10)}。

嫌気性バイオリアクターのなかでも嫌気性流動床は、i)比表面積が大きく^{11),12)}、菌体を高濃度に保つことができる^{6),13)}、ii)廃水と菌体の接触が非常に良好なため処理効率が高い⁶⁾、iii)廃水中のSSや増殖菌体による閉塞が少ない、iv)廃水の性状異常(有機物濃度の急変、阻害物の混入など)に対して耐性が大きいなどの特長を持っている。これに対し、定格負荷運転を行えるまでのスタートアップ期間が長いという大きな欠点があり¹⁴⁾、4～8カ月の長期間を要すると言われて¹¹⁾。

嫌気性流動床のスタートアップ期間を短縮させる一つの有効な方法は、スタート時からリアクター内に菌

* (株)東芝重電技術研究所水環境技術担当 〒183 東京都府中市東芝町1番地

体を高密度に保持させることである。このためには、浮遊性である種汚泥を加工して上向流に打ち勝つ沈降速度を持たせ、ウォッシュアウトを防ぐことが考えられる。スタート時は、この加工した菌体によって廃水処理を行い、その間に担体への菌体付着を促進する。

本研究では、上述した基本的な考えに基づいて嫌気性流動床が持つ造粒作用を応用して、投入する種汚泥を短時間（数十時間）のうちに造粒化し、上向流速以上の沈降速度を有する菌体造粒物を形成させる方法について検討を行った。特に、造粒化させるための操作条件および造粒メカニズムの検討を行ったものである。

2. 実験

2.1 実験装置

小型カラム装置およびベンチスケール装置の二種類の実験装置を用いた。実験は主に小型カラム装置で行い、ベンチスケール装置では小型カラム装置で得られた結果がスケールアップした装置に適用できるか否かの検討を行った。

Fig. 1 にベンチスケール装置のフローを示したが、小型カラム装置も同様である。有効容積は、小型カラム装置で1.8l、ベンチスケール装置で120lである。循環液はリアクター下部から流入させ、上向流でリアクター内を流動し、処理水槽へオーバーフローさせた。処理水槽からは循環ポンプによって、リアクター下部に循環した。リアクター内の流動性を良好に維持するために、それぞれのリアクター下部には細孔から循環液を流出させる噴流構造を持たせてある。またベンチスケール装置では、担体の流動性をさらに良好に維持させる目的でピケットフェンスを設置し、1 r.p.m.で回転させた。担体は大きさ0.05~0.3mmの分布をもつ

Fig. 1 Experimental equipment flow diagram

珪砂（真比重2.6、かさ比重1.6）を用い、実験開始時にリアクター有効容積の20%（かさ容積）充填した。

2.2 実験方法

メタン発酵細菌の造粒化に影響を与える因子は、i) 担体の粒子径分布、ii) 循環汚泥濃度、iii) 汚泥循環時のリアクター内上昇速度であると考え、これらの因子の影響について実験を行った。

2.2.1 担体粒子径分布の調整（担体洗浄）

担体の粒子径分布を調整するために、湿式分級の要領で担体洗浄を行った。すなわち、リアクター内に担体を充填し、処理水槽を水道水で満たしながら循環ポンプによって所定量の水道水をリアクターへ流入させた。この際リアクターをオーバーフローする担体を含んだ水道水は系外へ排出した。担体洗浄は小型カラム実験では、リアクター内上昇速度（LV）を0~50m・h⁻¹で変化させ1.5時間行った。ベンチスケール実験では、8.5および12.75m・h⁻¹とし4時間行った。このような担体洗浄によって、リアクター上部には上澄域が形成された。

2.2.2 造粒物形成

担体洗浄後、処理水槽に種汚泥を投入してリアクターと処理水槽の間を循環させ、種汚泥が造粒化していく過程を観察した。種汚泥は初期循環汚泥濃度（X）が所定量になるように投入した。Xは小型カラム実験では500, 1,000, 2,000, 3,000, および5,000mg・vss・l⁻¹、ベンチスケール実験では、2,500, 3,000, 3,500および4,000mg・vss・l⁻¹の条件で実験を行った。また、汚泥循環時のLVは、小型カラム実験では5, 10および15m・h⁻¹で変化させ、ベンチスケール実験では8.5m・h⁻¹に固定して実験を行った。各条件での実験は約一週間で終了させ、その間基質の流入は全く行わなかった。水温は30℃に調整して実験を行った。また種汚泥は、都市下水処理場の消化汚泥（消化槽の水理学的滞留時間は約90日）を8メッシュのふるいできょう雑物を除去したものを用いた。この種汚泥は、分散状態でフロック形成はほとんどしていなかった。また3,000mg VSS・l⁻¹に希釈した種汚泥の界面沈降速度は2.0m・h⁻¹であった。

2.3 担体粒子径分布の測定

担体洗浄後にリアクター内に残った担体、および実験終了後に針状物や造粒物にとりこまれた担体の粒子径分布を測定した。測定に際してはサンプルの担体約200個を均一に広げて写真撮影し、その写真を画像解析装置にかけて、円相当径分布、平均値、中央値などの測定を行った。

2.4 細菌数測定

小型カラム実験装置で造粒物を形成させ、その中に

Table 1 Composition of the basic media used for enumeration of anerobic bacteria (per liter)

Components	Acid producing bacteria	Acetoclastic methanogenic bacteria	Hydrogenophilic methanogenic bacteria
Energy sources			
Glucose	5.0g	—	—
Peptone	2.0g	—	—
Beef extract	2.0g	—	—
CH ₃ COONa	—	3.0g	—
H ₂ (80%)+CO ₂ (20%)	—	—	2atm
NaCl	3.0g	—	—
KH ₂ PO ₄	—	0.4g	0.4g
K ₂ HPO ₄	—	0.4g	0.4g
NH ₄ Cl	—	1.0g	1.0g
MgCl ₂ ·6H ₂ O	—	0.1g	0.1g
Mineral solution ^{a)}	—	10ml	10ml
Vitamin solution ^{b)}	—	10ml	10ml
Yeast extract	—	0.5g	0.5g
NaHCO ₃	6.0	6.0g	6.0g
Cysteine·HCl·H ₂ O	0.5g	0.5g	0.5g
Na ₂ S·9H ₂ O	0.25g	0.25g	0.25g
Resazurine	0.002g	0.002g	0.002g
PH	7.20	7.20	7.20

- a) Contains, in grams per liter of distilled water; nitrilotriacetic acid, 4.5; FeCl₂·4H₂O, 0.40; CoCl₂·6H₂O, 0.12; AlK(SO₄)₂, 0.01; NaCl, 1.0; CaCl₂, 0.02; Na₂MoO₄, 0.01; MnCl₂·4H₂O, 0.10; ZnCl₂, 0.10; H₃BO₃, 0.01; CuSO₄·5H₂O, 0.01; NiCl₂·6H₂O, 0.02
- b) Contains, in milligrams per liter of distilled water; biotin, 2; folic acid, 2; pyridoxine HCl, 10; thiamine HCl, 5; riboflavin, 5; nicotinic acid, 5; DL—calcium pantothenate, 5; vitamin B₁₂, 0.1; p—aminobenzoic acid, 5; lipoic acid, 5

含まれる酸生成菌、酢酸資化性メタン生成菌および水素資化性メタン生成菌の細菌数を MPN 法で測定した。小型カラム実験装置において、担体洗浄時の LV を $15\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ 、汚泥循環時の LV を $10\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 X を $4,000\text{mg}\cdot\text{vss}\cdot\text{l}^{-1}$ の条件で形成した造粒物を、嫌気的に引き抜いてサンプルとした。

各細菌群の計数に用いた培地組成を **Table 1** に示した。この培地組成は李らの報告¹⁵⁾を参考にして決定した。試料の分散は Chartrain and Zeikus¹⁶⁾の方法に従い、サンプルをバイアル瓶に封入した後ヴォルテックスミキサーで 2 分間振動を行った。培養温度は 37°C で、30 日間培養した。酸生成菌およびメタン生成菌の増殖の判定は、李ら¹⁵⁾および Chartrain and Zeikus¹⁶⁾の報告に基づいて行った。また各細菌の MPN (最確数) は 5-5-5 法¹⁷⁾の最確数表より算定した。

3. 結 果

3.1 造粒物形成に影響を及ぼす因子

種汚泥を処理水槽に投入してリアクターとの間を循環させると徐々に肉眼で数珠を判別できる「汚泥塊」になった。形成される汚泥塊の形状は経時的に変化したが、最終的な形状は実験条件によって異なり、i) フロック状、ii) 針状、iii) 粒状に大別できた。これらを **Fig. 2**～**Fig. 4** に示した。**Fig. 2** のフロック状のものは活性汚泥フロックと同様な形状で、複数の小さい担体が付着していた。**Fig. 3** の針状のもの (針状物) は、一つ一つの担体の上部 (流れの下流側) にほうき状に汚泥が付着していた。**Fig. 4** の粒状のもの (造粒物) は、汚泥が粒状になり締まったもので、担体は内部に入り込み外からは認められなかった。また針状物や造粒物は担体層界面付近から形成し、徐々にリアクター全般に広がった。

Fig. 2 Photograph of shape of flocs in the reactor

Fig. 3 Photograph of shape of needle-shaped matters in the reactor

Fig. 4 Photograph of shape of pellets in the reactor

3.1.1 小型カラム実験

(1) 初期循環汚泥濃度と汚泥循環時の LV の影響
初期循環汚泥濃度 (X) と汚泥循環時の LV との影響を明らかにするために、担体洗浄時の LV を $15\text{ m}\cdot\text{h}^{-1}$ に固定した実験を行った。この結果を Fig. 5 に示した。この図から明らかなように、 X および汚泥循環時の LV が小さいとフロックあるいは針状物でとど

Fig. 5 Effect of concentration of recycled sludge and linear velocity used for sludge recirculation on the formation of pellets

Fig. 6 Schematic diagram of sludge layer profile in the reactor

まり、逆に X および汚泥循環時の LV を大きくするにつれて造粒物が形成される傾向にあった。形成された造粒物の大きさは $2\sim 5\text{ mm}$ 程度であった。 X をより大きくすると形成される造粒物は大きくなり、かつ形成されるまでの時間は長くなる傾向にあった。 LV が $10\sim 15\text{ m}\cdot\text{h}^{-1}$ の場合、 X が $2,000\text{ mg}\cdot\text{vss}\cdot\text{l}^{-1}$ では造粒物は $1\sim 2$ 日で形成されたが、 X が $5,000\text{ mg}\cdot\text{vss}\cdot\text{l}^{-1}$ では 3 日程度を要した。

フロック、針状物あるいは造粒物が形成され、リアクター上部に上澄液ができて循環汚泥がほとんどなくなると、それらの形状変化はストップした。すなわち LV が $5\text{ m}\cdot\text{h}^{-1}$ で X が $2,000\text{ mg}\cdot\text{vss}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下の場合には汚泥層にはフロックのみが形成し、リアクター上部には上澄液が形成した。この状態を模式的に表したのが Fig. 6-a である。また、 LV が $10\text{ m}\cdot\text{h}^{-1}$ で X が $1,000\text{ mg}\cdot\text{vss}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下では、汚泥層の下部には針状物が、汚

泥層上部にはフロックが形成し、その上部には上澄域が形成した (Fig. 6-b 参照)。LV が $10\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ 以上で X が $2,000\text{mg}\cdot\text{vss}\cdot\text{l}^{-1}$ 以上の場合には造粒物が形成した (Fig. 6-c 参照)。これらの造粒物は、前段として針状物が形成し、その後徐々に造粒化したが、 X が小さい実験条件では針状物が形成した時点で循環汚泥がほとんどなくなり、それ以後の進行はストップした。

(2) 担体洗浄の影響 (担体粒子径分布の影響)

担体洗浄時の LV の影響を明らかにするために、 X を $2,000\text{mg}\cdot\text{vss}\cdot\text{l}^{-1}$ 、汚泥循環時の LV を $10\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ の条件にして、担体洗浄時の LV を 5, 10, 20, 30, $50\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ の 5 段階に変化させて実験を行った。その結果、すべての条件で造粒物が形成することが分かった。また、担体洗浄時の LV が 0, 15, $50\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ の場合、担体洗浄後にリアクター内に残存した平均担体粒子径 (円相当径) は、それぞれ 126, 161, $227\mu\text{m}$ であった。洗浄時の LV を大きくするにつれて小さい粒子径の担体はウォッシュアウトされ、平均粒子径はより大きい方に移行することが確認できた。

このように、担体粒子径分布は相当異なったにもかかわらず、造粒物形成には影響を及ぼさないことが分

かった。

3.1.2 ベンチスケール実験

前節で述べた小型カラム実験と同様に、ベンチスケール実験においても造粒物形成に及ぼす X と担体洗浄時の LV の影響について検討した。各実験条件において、汚泥塊の形状変化がストップした最終形状の結果を Fig. 7 に示した。この図から明らかなように、担体洗浄時の LV が $8.5\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ の場合には X にかかわらず針状物あるいは肥大化した針状物が形成し、LV が $12.75\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 X が $2,500\text{mg}\cdot\text{vss}\cdot\text{l}^{-1}$ の場合には肥大化した針状物が形成し、LV が $12.75\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 X が $3,000\text{mg}\cdot\text{vss}\cdot\text{l}^{-1}$ 以上では造粒物が形成した。 X が大きいほど造粒物が形成されやすい傾向にあった。この傾向は小型カラム実験と同様であった。しかし造粒化は担体洗浄時の LV に影響され、小型カラム実験と異なる結果であった。

3.2 造粒物形成の過程

小型カラム実験によって、担体洗浄時の LV を $15\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 X を $3,000\text{mg}\cdot\text{vss}\cdot\text{l}^{-1}$ 、汚泥循環時の LV を $10\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ の条件で造粒物を形成させた時の形成過程を綿密に観察した。観察は拡大倍率 8~15 倍のルーペで行い、適宜接写写真撮影を行った。Fig. 8 は、処理水槽に種汚泥を投入して循環を開始してから造粒物が形成されるまでの過程をスケッチしたものである。以下 Fig. 8 に従って造粒過程を説明する。

投入した種汚泥の循環を開始すると、循環汚泥に付着して一部の担体は担体層から汚泥層へ移行した。投入した種汚泥は循環している間にフロック状になり、その上に乗ったように担体が付着した (3 時間後)。そのフロックはしだいに小さく分割され、一個ずつの担体にほうき状に汚泥が付着するようになった (針状物)。この際、汚泥は担体の上側 (流れの下流側) に付着した (7.5 時間後)。その後ほうき状の汚泥はより強固に担体に付着するようになり、その付近に流動している循環汚泥を取り込みながら汚泥密度を増して、肥大化した針状物となった (27 時間後)。1~1.5mm 程度の肥大化した針状物同士は会合し (循環汚泥を介する場合もある)、循環汚泥を取り込みながらゆっくりローリングして (31 時間後)、徐々に丸味を帯びるようになった (46 時間後)。さらに循環汚泥を取り込みながら、より球状になり、かつ大きくなって造粒物が形成された (73 時間後)。また循環汚泥がすべて造粒物に取り込まれ、循環ライン中に汚泥がなくなると造粒過程の進行は停止した。

3.3 汚泥塊に取り込まれた担体量とその粒子径分布

小型カラム実験において、最終的な形状がフロック、

Fig. 7 Effect of concentration of recycled sludge and linear velocity used for carrier-size classification on the formation of pellets

Fig. 8 Pelletization process

Table 2 Amount of carrier taken into sludge layer

Form	a (g carrier)·(g carrier) ⁻¹	b (g carrier)·(g VSS) ⁻¹
Pellet	2.3×10^{-3}	< 1
Needle matter	4.1×10^{-2}	5~10
Floc	1.6×10^{-2}	1~3

a = $\frac{\text{Weight of carrier taken into sludge layer}}{\text{Initial weight of carrier}}$

b = $\frac{\text{Weight of carrier taken into unit weight of sludge}}{\text{Initial weight of carrier}}$

Fig. 9 Mean diameter of carrier taken into the sludge layer

針状物あるいは造粒物である各汚泥塊をリアクターから取り出し、これらに取り込まれた担体量を測定した。すべての実験条件での結果を平均したものを Table 2 にまとめた。この表から、各形状の汚泥塊に取り込まれた担体量はかなり少ないこと、そして形状によって取り込まれた担体量は異なることが明らかになった。さらに、単位汚泥量当たりの担体取り込み量も形状によって異なり、造粒物、フロック、針状物の順に大きくなることが分かった。さらに、汚泥塊に取り込まれた相体の平均粒子径を Fig. 9 に示した。造粒物に取り込まれた担体の平均粒子径は、それ以外の形状の場合に比べ大きい傾向にあった。しかし、造粒物が形成しなかった場合でも、汚泥循環時 LV が $15\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ と大きい場合には、取り込まれた担体の平均粒子径は造粒物が形成した場合と同様であった。このことから、汚泥塊に取り込まれる担体の大きさは、形成される汚泥塊の形状によって決まるのではなく、 X や汚泥循環時

Table 3 Number of bacteria in the pellet

Acid producing bacteria	Acetoclastic methanogenic bacteria	Hydrogenophilic methanogenic bacteria
$4.9 \times 10^6 \text{MPN} \cdot \text{ml}^{-1}$ ($3.5 \times 10^6 \text{MPN} \cdot \text{mg VSS}^{-1}$)	$1.1 \times 10^5 \text{MPN} \cdot \text{ml}^{-1}$ ($7.9 \times 10^4 \text{MPN} \cdot \text{mg VSS}^{-1}$)	$1.1 \times 10^5 \text{MPN} \cdot \text{ml}^{-1}$ ($7.9 \times 10^4 \text{MPN} \cdot \text{mg VSS}^{-1}$)

LV 等の条件によって決まるものと考えられる。

3.4 汚泥塊の VSS 濃度

各実験条件において最終的に形成された汚泥塊の VSS 濃度の測定を行った。汚泥塊の VSS 濃度は X に大きく依存し、当然ながら X が大きいほど汚泥塊の VSS 濃度は大きくなる傾向にあった。造粒物が形成した時には汚泥層の VSS 濃度は $4,000 \sim 8,000 \text{mg} \cdot \text{vss} \cdot \text{l}^{-1}$ と高濃度化できた。

3.5 細菌数の測定

造粒物中の各種細菌数を MPN 法で計数した結果を Table 3 に示した。この表から明らかなように、酸生成菌が $10^6 \text{MPN} \cdot \text{ml}^{-1}$ 、酢酸資化性メタン生成菌および水素資化性メタン生成菌が $10^5 \text{MPN} \cdot \text{ml}^{-1}$ のオーダーで存在した。これらの菌数は、李らの報告¹⁵⁾よりも一桁から二桁小さい値であった。これは、実験に供した種汚泥が、都市下水処理場から運搬して約 4 カ月間冷暗所に保存したものであったためと考えられる。

4. 考 察

4.1 造粒化に影響を及ぼす因子

4.1.1 担体粒子径分布

小型カラム実験では担体洗浄時の LV によって洗浄効果が異なり、 LV を大きくするにつれて小さい粒子径の担体がより多くウオッシュアウトし、リアクター内にはより大きい粒子径分布をもつ担体が残留することが明らかになった。しかし造粒化実験では、担体洗浄時の LV には依存せず、汚泥循環時の LV および X だけを適正な範囲にすれば造粒化が行われた。一方、ベンチスケール実験では、担体洗浄時の LV によって造粒化は影響され、 $8.5 \text{m} \cdot \text{h}^{-1}$ の LV では造粒化が行えないという小型カラム実験とは異なった結果が得られた。この理由は、大型のベンチスケール実験装置は、小型カラム実験装置に比較して均一な流動状態をつくり出すことが難しく、デッドスペースや短絡流が生じやすいため洗浄効果が小さく、小さな担体がより多くリアクター内に残留したためと考えられる。このため汚泥循環時により多くの担体が汚泥に付着して汚泥層に移行し、一個ずつの担体に付着した汚泥量は少なくなり、造粒物まで進行せずに肥大化した針状

物で進行がストップしたものと考えられる。

4.1.2 初期循環時汚泥濃度 (X) および汚泥循環時 LV

Fig. 5 に示したように、 X および汚泥循環時 LV の条件に依ってブロックや針状物で進行がストップする場合や造粒物まで進行する場合があった。ブロックで進行がストップする場合は、 X が $2,000 \text{mg} \cdot \text{vss} \cdot \text{l}^{-1}$ と小さくかつ汚泥循環時 LV が $5 \text{m} \cdot \text{h}^{-1}$ と小さい場合であった。このような条件では、流動がより緩やかで、また汚泥同士のぶつかり合いの確率が小さいため、ブロックが形成しやすかつそれが崩壊しづらいためと考えられる。また汚泥循環時 LV を $5 \text{m} \cdot \text{h}^{-1}$ で X を大きくすると、汚泥同士のぶつかり合いによってブロック形成は妨げられ、汚泥は徐々に分割され針状物が形成する。針状物は担体の上側すなわち流れの下流側に汚泥がほうき状に付着したが、これはこの部分が流動の乱れによるせん断力が小さくかつ他の汚泥との接触が小さいためと考えられる。さらに X を大きくすると、取り込める汚泥量が増大するために針状物は肥大化し、つぎに肥大化した針状物同士が会合し、ローリングして造粒物まで進行したと考えられる。

また汚泥循環時 LV が $10 \sim 15 \text{m} \cdot \text{h}^{-1}$ と大きい場合でも、 X が $1,000 \text{mg} \cdot \text{vss} \cdot \text{l}^{-1}$ 程度以下の場合には、ブロックあるいは針状物で進行はストップした。このような条件では、汚泥層下部は流動によるせん断力が大きいためにブロック形成は妨げられ針状物が形成するが、汚泥層上部では担体層から離れるために流動によるせん断力が小さくなりブロックが形成したと考えられる。また汚泥循環時 LV は $10 \sim 15 \text{m} \cdot \text{h}^{-1}$ のまま X を大きくすると造粒物が形成した。この場合には、流動によるせん断力に加え、汚泥同士のぶつかり合いによってブロック化は防げられ、針状物がまず形成する。これらが循環汚泥を取り込みながらローリングによって造粒物まで進行したと考えられる。

4.2 造粒メカニズム

3.2 で述べた造粒過程の観察結果を中心に、造粒メカニズムについて考察した。

造粒過程は次の 4 段階から構成されると考えられる。

(第一段階)

循環汚泥が担体層から抜け出る際に、担体は汚泥に付着して、もしくはブロック上に乗っかって汚泥層に移行し、一つ一つの担体の上側(流れの下流側)に 0.5mm 程度の小さな汚泥が緩くほうき状に付着した針状物を形成する段階。

(第二段階)

針状物が循環汚泥を取り込み徐々に大きくなって肥

大化し、より強固に担体に付着するようになる段階。
(第三段階)

1～1.5mm に肥大化した針状物は、それ同士が会合して、循環汚泥を取り込みながらローリングし、徐々に丸味を帯びてくる段階。

(第四段階)

さらに循環汚泥を取り込みながらローリングして肥大化し締まっていき、造粒物として完成する段階。

上述した造粒過程において、第一段階で汚泥がほうき状に担体に付着することが最大の要件である。UASB 法では、細胞外バイオポリマーがグラニュール形成に重要な役割を果たしていることが報告されており^{17),18)}、本研究での針状物形成さらには針状物の汚泥取り込み(肥大化)にも細胞外バイオポリマーが関与していると考えられる。

一方、流動によるせん断力によって汚泥と担体との付着は妨げられるため、第一段階で汚泥はせん断力のもっとも小さい担体の上側(流れの下流側)に必ず付着した。従って、担体の上側にも汚泥が付着できないほどの大きなせん断力を生じさせる流動を与えることは、造粒化には適当でないと言える。また第三段階では、肥大化針状物同士が会合することによって、それまで最下部にあった重心が偏心したためにローリングするようになったと考えられる。このローリングは造粒化プロセスにおいては重要な作用であり、ローリングすることによって循環汚泥を取り込み、丸味を帯びてくるようになると考えられる。同様に第四段階においても、丸味を帯びたものが肥大化し、締まって行くためにもローリング作用が大切であると考えられる。従って、造粒化プロセスにおいては、汚泥と担体との付着および会合した肥大化針状物のローリングが生ずるような流動を与えることが重要である。このため汚泥循環時の LV は造粒化のための重要な操作因子と考えられ、本実験では $5 \sim 15 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ で適正な流動状態が得られたものと考えられる。

さらに、第二段階から第四段階まで進行するためには、循環汚泥の存在が必要である。リアクター上部に上澄域が形成され、循環ライン中に汚泥がなくなると造粒化の進行はストップした。このため造粒化プロセスの各段階において適正量の汚泥が存在していることが大切であると考えられる。このため初期循環汚泥濃度も造粒化のための重要な操作因子であると考えられ、本実験では $2,000 \text{ mg} \cdot \text{vss} \cdot \text{l}^{-1}$ 以上が必要であった。

以上述べたように、造粒物は流動床リアクターが有している造粒作用を応用し、担体を核にして形成される。造粒物は数十時間という速さで形成されること、さらに造粒期間中は基質投入を行わないことから菌体

の増殖とはあまり関係なく、主に物理的作用によって造粒化が行われると言える。一方、UASB 法でのグラニュールは、沈降性の良い汚泥だけをリアクター下部に集積し、圧密と生成する発酵ガスによる穏やかなローリング作用によって形成すると考えられている。また、メタン生成菌の活発な増殖を促進することが大切で、グラニュール化には $0.6 \text{ kg} \cdot \text{COD} \cdot \text{kg} \cdot \text{vss}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ 程度以上の汚泥負荷が必要とされている¹⁹⁾。このように、本方法で形成する造粒物と UASB 法で形成するグラニュールとでは、その形成メカニズムには類似点はあるものの、菌体増殖の関与の点で異なっていると言える。

5. 結 言

初期菌体濃度を高め、嫌気性流動床のスタートアップ期間短縮を図るために、種汚泥を短時間で造粒化させる条件および造粒メカニズムについて検討した。その結果、次の知見が得られた。

1) 小型カラム装置(リアクター有効容積 1.8 l)による造粒化実験で、汚泥循環時 LV が $5 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ 、 X が $5,000 \text{ mg} \cdot \text{vss} \cdot \text{l}^{-1}$ の条件と、汚泥循環時 LV が $10, 15 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ 、 X が $2,000 \sim 5,000 \text{ mg} \cdot \text{vss} \cdot \text{l}^{-1}$ の条件で $2 \sim 5 \text{ mm}$ の大きさの造粒物が数十時間で形成されることが明らかになった。また用いた担体の粒子径分布は、造粒化には影響を及ぼさないことが明らかになった。

2) 大型のベンチスケール装置(リアクター有効容積 120 l)でも造粒物形成が確認できた。担体洗浄時 LV が $8.5 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ 、 X が $3,000 \sim 4,000 \text{ mg} \cdot \text{vss} \cdot \text{l}^{-1}$ の条件では肥大化針状物で進行がストップしたが、担体洗浄時 LV が $12.75 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ 、 X が $3,000 \sim 4,000 \text{ mg} \cdot \text{vss} \cdot \text{l}^{-1}$ の条件では $1 \sim 3 \text{ mm}$ の造粒物が形成された。

3) 造粒過程は次の四段階から構成されると考えられる。

- i) 投入した種汚泥の一部が担体の上側にほうき状に付着して針状物を形成する段階。
- ii) 針状物が循環汚泥を取り込み肥大化する段階。
- iii) 肥大化針状物同士が会合し、ローリングすることによって循環汚泥を取り込みながら丸みを帯びてくる段階。
- iv) さらに循環汚泥を取り込みながらローリングして造粒物として完成する段階。

このように、造粒化は担体を核にして主に物理的作用によって行われ、菌体増殖はほとんど関与しない。

4) 造粒化することによって、初期汚泥濃度は $4,000 \sim 8,000 \text{ mg} \cdot \text{vss} \cdot \text{l}^{-1}$ と高濃度化することができた。

(原稿受付 1992年2月19日)

(原稿受理 1992年8月10日)

引用文献

- 1) Young J.C. and McCarty P.L. (1967) The anaerobic filter waste treatment, Proceedings of the 22nd Annual Purdue Industrial Waste Conference, 559-574.
- 2) Young J.C. and McCarty P.L. (1969) The anaerobic filter for waste treatment, *J. Water Pollution Control Federation*, **41**, R160-R173.
- 3) Switzenbaum M.S. and Jewell W.J. (1980) Anaerobic attached-film expanded-bed reactor treatment, *J. Water Pollution Control Federation*, **52**, 1953-1965.
- 4) Jewell W.J., Switzenbaum M.S. and Morris J.W. (1981) Municipal wastewater treatment with the anaerobic attached microbial film expanded bed process, *J. Water Pollution Control Federation*, **53**, 482-490.
- 5) Lettinga G., Van Velson A.F.M., Hobma S.W., de Zeeuw W. and Klapwijk A. (1980) Use of the upflow sludge blanket (USB) reactor concept for biological wastewater treatment, especially for anaerobic treatment, *Biotech. Bioeng.*, **22**, 699-734.
- 6) Heijnen J.J., Mulder A., Enger W. and Hoeks F. (1986) Review on the application of anaerobic fluidized bed reactors in waste-water treatment, *EWPCA Conference on Anaerobic Waste Water Treatment*, 161-173.
- 7) 川瀬三雄, 松岡慶二, 野村忠士, 村田直樹, 馬島剛 (1990) 嫌気性固定床の運転実績, 第24回水質汚濁学会講演集, 457-458.
- 8) Sutton P.M., Li A., Evans R.R. and Korchin S.R. (1982) Dorr-Oliver's fixed-film, suspended-growth anaerobic systems for industrial wastewater treatment and energy recovery, Proc. 37th Industrial Waste Conference, 667-675.
- 9) Bowker R.P.G. (1983) New wastewater treatment for industrial applications, *Environmental Progress*, **2**, 235-242.
- 10) Lettinga G., de Zeeuw W., Hulshoff Pol, L., Wiegant W. and Rinzema A. (1985) Anaerobic wastewater treatment based on biomass retention with emphasis on the UASB-process, 4th Int'l Symp. on Anaerobic Digestion, 279-301.
- 11) Henze M. and Harremoës P. (1983) Anaerobic treatment of wastewater in fixed film reactors-A literature review, *Wat. Sci. Tech.*, **15**, 1-101.
- 12) Jeris J.S., Owens R.W., Hickey R. and Flood F. (1977) Biological fluidized-bed treatment for BOD and nitrogen removal, *J. Water Pollution Control Federation*, **49**, 816-831.
- 13) Switzenbaum M.S. (1983) Anaerobic fixed film wastewater treatment, *Enzyme Micro. Technol.*, **5**, 242-250.
- 14) Rockey J.S. and Forster C.S. (1985) Microbial attachment in anaerobic expanded bed reactors, *Environmental Technology Letters*, **6**, 115-122.
- 15) 李玉友, 野池達也 (1989) 汚泥の嫌気性消化における細菌群の分布と物質分解特性—メタン生成菌とホモ酢酸生成菌を中心として—, 水質汚濁研究, **12**, 771-780.
- 16) Charttrain M. and Zeikus J.G. (1986) Microbial ecology of whey biomethanation: Characterization of bacterial trophic populations and prevalent species in continuous culture, *Applied and Environmental Microbiology*, **51**, 188-196.
- 17) Hulshoff Pol, L.W. (1989) The phenomenon of granulation of anaerobic sludge, *PhD thesis*, Agricultural Univ. of Wageningen.
- 18) Mahoney E.M., Varangu L.K., Cairns W.L., Kosaric N. and Murray G.E. (1987) The effect of calcium on microbial aggregation during UASB reactors start-up, *Water Science and Technology*, **19**, 249-260.
- 19) Hulshoff Pol, L.W., de Zeeuw W.J., Velzeboer C.T.M. and Lettinga G. (1983) Granulation in UASB-reactors, *Water Science and Technology*, **15**, 291-304.