嫌気性流動床内の生物膜の物理性状に及ぼす上昇線流速の影響

荒 木 信 夫* 原 田 秀 樹** 桃 井 清 至**

Effects of Upflow Velocity on Physical Properties of the Biofilm in Anaerobic Fluidized Bed Reactors

Nobuo ARAKI*, Hideki HARADA** and Kiyoshi MOMONOI**

* Department of Civil Engineering, Nagaoka National College of Technology, Nisikatakai 888, Nagaoka, Niigata 940 Japan

** Department of Civil Engineering, Nagaoka University of Technology, Kamitomioka 1603-1, Nagaoka, Niigata 940 Japan

Abstract

Effects of upflow velocity on the biofilm physical properties in items of biofilm thickness, biofilm density and biomass per unit surface area of support particles were investigated by using lab-scale anaerobic fluidized bed reactors fed with a synthetic wastewater (a mixture of skim milk and sucrose; $2,000 \text{ mg-COD} \cdot \text{l}^{-1}$). Four identical reactors were operated for a period of 100 days in parallel at different upflow velocities, i. e., 4, 7, 14 and $25 \text{ m} \cdot \text{hr}^{-1}$. The initial biofilm formation process was categorized into three types.

For the runs at 14 and $25 \text{ m} \cdot \text{hr}^{-1}$, direct adhesion of inoculum sludge onto the carrier surface took place promptly, and the biofilm thickness developed up to $200 \mu\text{m}$ within only 1 to 2 days, and then decreased eventually to $100 \mu\text{m}$. On the contrary the biofilm density increased consistently up to $10.2 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-3}$ and 4.4 , respectively.

As for the run at $7 \text{ m} \cdot \text{hr}^{-1}$, the biofilm thickness increased gradually to $100 \mu\text{m}$ with an increase in the biofilm density up to $14.4 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-3}$. Granulated sludge in the size ranging 1 to 5mm and containing several carriers was formed at the lowest upflow velocity of $4 \text{ m} \cdot \text{hr}^{-1}$.

The occurrence of initial adhesion led to shorten the period for which the biomass per unit surface attained the saturation values. The biofilm density was a more useful factor to determine the biomass per unit surface.

Key words: anaerobic treatment, biofilm formation, fluidized bed reactor, start-up, upflow velocity

1. はじめに

嫌気性付着増殖型反応器は、微生物の自己固定化現象を巧みに利用することにより増殖速度の小さい微生物を高濃度に培養し、高速に排水を処理するものである。これらの反応器内に滞留する汚泥の形態は3つに

大別できる。すなわち、UASB法¹⁾では微生物が高密度に集塊したグラニュール汚泥が形成し、固定床法²⁾では付着担体の空隙が微生物を捕捉し、膨張床法や流動床法^{3)~5)}では担体の表面に付着増殖した生物膜が形成することによって反応器内の微生物が高濃度に保持されている。これらのプロセスは上昇流形式をとるもの

* 長岡工業高等専門学校土木工学科 〒940 新潟県長岡市西片貝町888

** 長岡技術科学大学建設系 〒940 新潟県長岡市上富岡町1603-1

-4, 25m・h⁻¹)である。

2.2 実験方法

流動床型反応器のスタートアップは、種汚泥として都市下水処理場中温消化汚泥 (15,600mg-VSS・l⁻¹) を投入し (植種後の反応器内汚泥濃度=2,540mg-VSS・l⁻¹), Table 1 に示したショ糖+スキムミルクを主成分とする人工基質を用いて運転を開始した。この人工基質の COD_{cr} (以後 COD と略す) 濃度は, 2,000mg・l⁻¹ である。運転開始時の有機物負荷は 0.5g-COD・l⁻¹・d⁻¹ であるが, その後 COD 除去率が80%以上を維持するように段階的に増加させ, 5 g-COD・l⁻¹・d⁻¹ まで上昇した。流動床が反応器上部まで展開し生物膜付着担体が分離槽に堆積した Run-3 では, 流動床の上昇流速を一時的に低下させて分離槽に堆積した生物膜付着担体を最上部のサンプリング口より引き抜き, 未付着担体を追加投入した。生物膜厚, 膜密度といった生物膜の物理性状は, 生物膜の性状が安定するまでの100日以上に渡って定期的に測定した。また, 流動床軸方向の生物膜の変化を評価するために, 有機物負荷が 5 g-COD・l⁻¹・d⁻¹ に達して処理状況が安定した運転開始100日以降に, 反応器軸方向の三ヵ所から生物膜を採取して物理性状の測定を行った。Run-2, 3 では, 急激な容積負荷の上昇を行い, 汚泥負荷の上昇および有機物の除去率の低下による生物膜内の優先菌種の変化が生物膜の物理性状に与える影響を検討した。まず, 運転102日に反応器軸方向の生物膜の物理性状の測定を行い, 基質供給速度を増大することにより負荷をそれまでの2倍の10g-COD・l⁻¹・d⁻¹ に上昇して11日間運転し, 運転113日に軸方向からサンプリングした生物膜について同様の測定を行った。

2.3 分析方法

流動床内の生物膜の物理性状は次のように評価した。生物膜厚は, 生物膜付着担体 (以後バイオフィークルと呼ぶ) と超音波によってその生物膜を剝離した

担体の実体顕微鏡写真を撮影し, それぞれの平均粒径測定値の差から求めた。担体単位表面積あたりの生物膜付着量 (以後生物膜単位付着量と呼ぶ) は, 担体から剝離した生物膜重量を被剝離単体の総表面積 (担体個数×平均粒径から算出した担体一個の表面積) で除して求めた。また, 生物膜密度は剝離生物膜重量をバイオフィークルと担体の粒径差から算出した総生物膜容積で除して求めた。

物理性状の測定方法は, まず, 生物膜厚の測定のために生物膜を剝離しないようにサンプリング口からシリンジを用いて静かに試料を採取し, その直後に生物膜密度と生物膜単位付着量を測定する試料をサンプリング口のcockを開いて遠沈管に採取した。生物膜厚の測定は, 水を張ったシャーレに採取したバイオフィークルを展開し, 実体顕微鏡写真を撮影した後に超音波 (プランソン250) によって生物膜を剝離し, 再度写真を撮影した。バイオフィークルと生物膜剝離担体の平均粒径は, 実体顕微鏡写真の担体200個以上の長径と短径を実測し, その径を持つ回転楕円体の体積と同じ体積を持つ球の粒径として求めた⁹⁾。生物膜密度と生物膜単位付着量を測定するための試料は, 試料重量 (A) を測定した後に生物膜を超音波によって担体から剝離し, 剝離乾燥生物膜重量 (600°C揮発重量, B) と試料中の剝離担体の105°C乾燥重量 (C) を求めた。この試料中に含まれる担体の個数は, 剝離担体の全乾燥重量を担体1個当たりの乾燥重量 (0.5938μg, 粒子の乾燥密度1.019g・cm⁻³×平均径を持つ球体積) で除して算出した。また, 流動床容積当たりの MLVSS 当量は, 生物膜の湿潤密度を水の密度と同じと仮定して以下の式で算出した。(本実験系での最大生物膜密度0.016g・cm⁻³の場合でも生物膜乾燥密度が1.3g・cm⁻³と仮定すると湿潤密度は1.004g・cm⁻³である)

$$MLVSS (g \cdot l^{-1}) = B / (A / \rho_F - C / \rho_F + C / \rho_S)$$

3. 実験結果と考察

3.1 反応器の運転状況

Fig. 2 に, Run-1 ~ 4 の容積負荷と溶解性 COD 除去率の経日変化を示す。それぞれの Run は, COD 除去率が80%以上の値を維持するように負荷上昇を行い, 除去率が低下した場合は負荷を一時的に低下させて運転を行った。Run-1, 2 では, 段階的な負荷上昇を行っても急激なメタン転換効率の低下はなく, 運転開始40~50日で 5 g-COD・l⁻¹・d⁻¹ の負荷に達した。Run-3 では, 負荷は 5 g-COD・l⁻¹・d⁻¹ に達したものの, 余剰汚泥を引き抜いた直後は除去率が80%以下に低下した。また, Run-4 は, 反応器内の生物保持量が小さかったために, 3 g-COD・l⁻¹・d⁻¹ の容積負荷を許容するに

Table 1 The composition of a feed solution

Composition	mg・l ⁻¹
SUCROSE	1200
SKIMMED MILK	700
NH ₄ Cl	172
K ₂ HPO ₄	36
NaHCO ₃	1500
Na ₂ SO ₄ ・7H ₂ O	107
MgCl ₂ ・6H ₂ O	33.3
MnSO ₄ ・4H ₂ O	15
FeCl ₂	5
CuSO ₄ ・5H ₂ O	5
CaCl ₂ ・2H ₂ O	36.8
CoCl ₂ ・6H ₂ O	1.2
Na ₂ MoO ₄ ・2H ₂ O	1

留まった。Run-2, 3は102日から負荷をそれまでの2倍の $10\text{g-COD}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ に上昇して11日間運転を行った。その結果、Run-2ではCOD除去率は70%を維持しメタン生成量は急激に増大したが、Run-3はCOD除去率が35%まで低下し系内に有機酸が蓄積する過負荷状態を招いた。これは、両Runでの反応器内の生物保持量が異なるために、汚泥負荷に大きな差が生じたことが原因である。反応器内の生物保持量を流動床MLVSSと流動床容積から推定し、容積負荷 $10\text{g-COD}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ 運転時の汚泥負荷を算定すると、Run-2では $2.0\text{g-COD}\cdot\text{g-VSS}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ 、Run-3では $5.2\text{g-COD}\cdot\text{g-VSS}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ であった。

Fig. 2 Time course of loading rates and COD removals for Run-1 to Run-4

Fig. 3 Changes in biofilm thickness

3.2 生物膜形成期の物理性状の変化

Fig. 3に、Run-2, 3, 4における生物膜厚の経日変化を示す。Run-3, 4の生物膜厚は、運転開始10日には $200\mu\text{m}$ 程度まで急上昇した。この生物膜は、種汚泥が上昇流環境下でフロックを形成し、担体の表面の一部に辛うじて吸着したものである。その後、生物膜は運転の継続によって $100\mu\text{m}$ 程度にまで徐々に減少した。Run-2の生物膜厚は、運転開始60日まで $50\mu\text{m}$ 程度で増加しなかったが、容積負荷が $5\text{g-COD}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ に達すると徐々に増大した。一方、 $4\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ の低線流速条件 (Run-1) では、反応器内の汚泥は個々の担体表面に均一の厚さの生物膜を形成せず、担体を数個取り込んだ粒径 $1\sim 5\text{mm}$ のグラニュールを形成した。そのためRun-1では、生物膜厚等の物理性状の測定を行うことができなかった。生物膜厚の制御は流動床法の課題であるが、本実験系ではいずれの生物膜も100日の運転で $100\mu\text{m}$ で平衡に達し、上昇流速による平衡時生物膜厚の差異は認められなかった。

Fig. 4に、生物膜密度の経日変化を示す。生物膜密度は、いずれのRunも運転の継続に伴って数倍に上昇し、6～8週間でそれぞれ $14.4\text{mg-VSS}\cdot\text{cm}^{-3}$ (Run-2)、 $10.2\text{mg-VSS}\cdot\text{cm}^{-3}$ (Run-3)、 $4.4\text{mg-VSS}\cdot\text{cm}^{-3}$ (Run-4)で平衡値に達した。また、Run-1の生物膜密度は、運転89日目に測定したグラニュールの平均粒径 ($2.37\text{mm}\pm 0.89\text{mm}$, $n=132$) と超音波で剝離した汚泥重量から算定したところ $24.1\text{mg-VSS}\cdot\text{cm}^{-3}$ であった。これまでに嫌気性流動床内で形成した生物膜の密度は最大 $150\text{mg-VSS}\cdot\text{cm}^{-3}$ と本実験系の十倍の値が報告されている³⁾。Characklisら¹⁰⁾は好気条件で運転するケモスタットとその微生物混合液を細管内に一定方向、一定流速で循環して管内に生物膜を形成させるシステムと2重管の内部の管を回転させて管壁に生物膜を形成させるシステムを用いて生物膜密度に

Fig. 4 Changes in biofilm density

影響を及ぼす主要因を検討した結果、生物膜密度は、生物膜表面の流体剪断力と膜内への基質 Flux ($\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$) が増加するに従って上昇すると報告している。しかし、本実験では Fig. 4 から明らかなように、膜密度は上昇流速が大きくなるにつれて、すなわち流体剪断力が大きくなるにつれて小さくなっており、Characklis らとは逆の傾向を示した。同様に、生物膜内への基質 Flux に関しても、同じ容積負荷で同等の除去率を示した Run-2 と 3 の生物膜密度は異なった値を示しており、決定的な要因ではない。流動床では、近隣のバイオパーティクル同士は常に衝突を繰り返しており、上昇流速の小さい Run-1, 2 では流動床の空間率は小さく、衝突回数が著しく増加することになる。このことから考えると、流動床内の生物膜の密度は、膜表面の流体剪断力よりもバイオパーティクル同士の衝突による物理的な刺激によって増大するものと推測される。

Fig. 5 に、生物膜単位付着量の経日変化を示す。生

Fig. 5 Changes in attached biomass per unit surface area

Fig. 6 Changes in MLVSS ($\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$) based on reactor volume

物膜単位付着量は上昇流速が大きい方が安定した値に達する期間が短く、Run-3, 4 では20日程度であるが、Run-2 では70日まで徐々に上昇を続けている。運転初期に膜厚の大きい生物膜を形成した系 (Run-3, 4) では、より早く多くの生物膜量を保持でき、生物膜の成長に必要な負荷の増大が達成できることになる。生物膜単位付着量は、生物膜密度×生物膜厚で求められる値であるが、グラフの傾きから判断して生物膜単位付着量 (Fig. 5) は、生物膜厚 (Fig. 3) よりも膜密度 (Fig. 4) に強く依存して変化するものであった。

Fig. 6 に、流動床容積あたりの MLVSS の経日変化を示す。Run-3 の MLVSS は20日程度の運転で $3,200 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、Run-4 では運転開始当初から $2,000 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 程度の平衡値を示した。両 Run では、極めて短い期間で MLVSS が平衡値に達しているが、MLVSS の平衡後も生物膜厚は減少し、逆に膜密度は上昇することによって生物膜の高密度化が40日程度まで進行している。上昇流速の小さい Run-2 では最大 $10,000 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、グラニュールベッドを形成した Run-1 では、運転開始70日に $13,000 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ に達した。流動床の MLVSS は、上昇流速に依存する流動床の空間率 (= (流動床容積 - 総バイオパーティクル容積) / 流動床容積) によって変化するために、上昇流速が大きくなるにつれて MLVSS は小さな値となっている。

3.3 上昇流速が生物膜形態におよぼす影響

Fig. 7 に、流動床展開高さの経日変化を示す。Run-3, 4 では、循環ポンプの作動開始と同時に種汚泥フロックの担体表面への初期吸着現象が発生することにより、流動床は運転開始2～4日目には反応器最上部の分離槽まで展開した。一方、Run-2 では、急激に膜厚の大きい生物膜が形成することなく、流動床は負荷の増大に伴って徐々に展開し、約70日の運転で最上部まで展開した。Run-1 の流動床は、沈降性の良好なグラニュールを形成したために $5 \text{ g-COD} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ の

Fig. 7 Changes in fluidized bed height

負荷では反応器上部までベッドが展開することはなかった。Run-3, 4で発生した種汚泥フロックの吸着現象は柴崎ら¹¹⁾もラボスケールおよびベンチスケールの嫌気性流動床のスタートアップ期に観察しており、担体として用いたケイ砂の表面に運転一日足らずで針状の生物膜が形成し、数日の運転で1~3 mmの造粒物に変化したことを報告している。この現象は、吸着といった界面現象と同時に流動粒子の周囲の流体力学的な要因が大きく関与しているものと考えられる。以後、Run-3, 4で発生した初期吸着現象を初期生物膜形成作用と呼び、Run-1や2で発生した界面現象が主体の初期吸着と区別して議論を進めることにする。

本実験系で観察された流動床内の生物膜の初期形態は、Fig. 8に示したように上昇流速の違いによって次の三つに大別できた。空間率が静止充填時と大きく変化しないような上昇流速の小さい条件(A)では、担体同士が接触しているため死領域が存在し、いくつかの担体を包含するように生物膜が形成する(Run-1)。上昇流速を条件(A)よりも大きく設定すると(条件(B)), それぞれの担体の周りに流れが発生するものの空間率が小さいために担体同士の衝突や摩擦が激しく、吸着した生物膜は剝離してしまう。そのために生物膜は、密度の上昇に伴って膜厚が増大するものとな

る(Run-2)。さらに上昇流速が大きい条件(C)では、担体の一部に密度の小さい種汚泥フロックが吸着することにより急速に膜厚の大きい生物膜が形成し、膜密度の上昇と同時に膜厚が減少するものである(Run-3, 4)。条件(C)の初期生物膜形成作用は、大きい流速条件で発生することと初期吸着が発生する部位や初期吸着した生物膜の形状から判断すると、担体の周囲で境界層の剝離が発生して流動担体の後部にウェーク(Wake)を生じ、このウェーク内で種汚泥がフロックを形成し、滞留する間に担体表面に吸着したものと考えられる。

Fig. 9は、初期生物膜形成作用の様子とその後生物膜の成長する過程を示したものである。初期生物膜形成作用は、まず反応器内に上昇流を与えると1~4日程度で投入した種汚泥フロックが流動担体のウェーク発生部に吸着する。次に、この吸着したフロックは、1~2週間の運転で担体全体を被覆するように成長するが、生物膜は担体の一方方向に片寄った状態にある。4週間程で生物膜は滑らかな表面となるが、バイオフィームは完全な球形でなく楕円回転体を呈するものが多い。Fig. 10は、Run-3における初期生物膜

Fig. 8 Schematics of the mechanism of initial formation as a function of upflow velocity

Fig. 9 Schematics of the progress of biofilm formation in case of the occurrence of initial adhesion and deposition (Run-3 and Run-4)

Fig. 10 Photographs of biofilm for Run-3.

(A)32nd hours after start-up; (B)14th day after start-up

Fig. 11 Changes in unevenness of sphericity, in terms of the ratio of long/short diameter of biofilm particle

Fig. 12 Profiles of biofilm thickness, biofilm density and attached biomass per unit surface area along reactor height.

○; Run-2 at 102 day, ●; Run-2 at 113 day,
□; Run-3 at 102 day, ■; Run-3 at 113 day,
△; Run-4 at 106 day.

形成作用の様子である。写真(A)は、循環ポンプを作動後32時間経過した流動床内を撮影したものであるが、担体の流れ方向の後部(担体の上部)に担体の数倍の容積を持つ生物膜が付着しており、流動床の空間率も大きくなっている。写真(B)は、運転開始10日目に採取したバイオフィークルの実体顕微鏡写真である。生物膜は担体表面の全体を被覆しているが、生物膜の密度は小さく担体が透けて見える状態である。

Fig. 11 に、バイオフィークルの長径と短径の比の径日変化を示す。初期生物膜形成作用の発生した Run-3, 4 では、長短径比は2.5から1.25にまで徐々に減少しており、細長いフロックを吸着した担体が次第に丸いバイオフィークルに変化している様子が伺える。この生物膜は、担体の一方に片寄って付着するので流れ方向(重力方向)に回転することがなく、バイオフィークルは流れ方向に長径を持つ楕円回転体となる。楕円回転体は同体積の球に比べて小さな抵抗係数を持つことから、流動床の空間率を低下させ流動床容積あたりの生物量 MLVSS を増大させることになる。初期生物膜形成作用の発生しない Run-2 では、長短径比は1.1程度から変化しなかった。

3.4 流動床軸方向の生物膜の変化

Fig. 12 に、Run-2, 3 の運転102日(負荷 $5 \text{ g-COD} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$) と113日(負荷 $10 \text{ g-COD} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$) および Run-4 の運転106日(負荷 $2 \text{ g-COD} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$) における反応器軸方向の生物膜厚、膜密度と生物膜単位付着量の変化を示す。生物膜厚および生物膜単位付着量は、いずれの条件においても反応器下部から上部へと大きくなる傾向を示している。これは、流動床の持つ分級効果により、生物膜厚の増加に伴って沈降速度の減少し

Fig. 13 Profiles of MLVSS based on reactor volume along reactor height.

○; Run-2 at 102 day, ●; Run-2 at 113 day,
□; Run-3 at 102 day, ■; Run-3 at 113 day,
△; Run-4 at 106 day.

たバイオフィークルが流動床上部へと移動することを示している。生物膜密度は、負荷上昇前の Run-2、3 の運転102日と Run-4 の運転106日では生物膜の肥厚化の進んだ反応器上部が軸方向の三測点中最も大きな値を示した。Fig. 13 に、反応器軸方向の MLVSS の変化を示す。MLVSS は、上昇流速の違いによる空間率の変化によって各 Run の値に差はあるものの、反応器軸方向では下部から上部へと僅かに上昇する傾向を示している。しかし、生物膜厚 (Fig. 12, a) や生物膜単位付着量 (Fig. 12, c) に比較すると軸方向の変化の割合は小さい。反応器上部では膜厚の増大によって生物膜単位付着量が大きい値を示しているが、反応器上部のバイオフィークルは沈降速度が低下しているために流動床の空間率が上昇し、MLVSS の軸方向の変化を小さくしている。

Run-2、3 は運転102日から負荷をそれまでの2倍の $10\text{g-COD}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ に上昇して11日間運転を行った。負荷上昇後の運転113日における Run-2、3 の生物膜厚 (Fig. 12, a) は、反応器上部の値の増大が著しい。生物膜密度 (Fig. 12, b) は、メタン生成が阻害されなかった Run-2 では負荷上昇による大きな変化は認められなかったが、COD 除去率が35%まで低下した Run-3 では、反応器上部の値が急激に低下した。その結果、Run-2 の MLVSS (Fig. 13) は、生物膜単位付着量の上昇によって軸方向平均 $6,400\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ から $7,920\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に増大した。一方、Run-3 では、膜密度の変化に比較して膜厚が増大したために流動床の空間率が上昇し、MLVSS は軸方向平均 $4,090\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ から $3,060\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に減少した。特に流動床上部の生物膜ではこの傾向が顕著であり、膜厚は11日間で $50\mu\text{m}$ も増大したが、膜密度は $16.8\text{mg-VSS}\cdot\text{cm}^{-3}$ から $12.1\text{mg-VSS}\cdot\text{cm}^{-3}$ と急激な低下を示した。過負荷を受けた生物膜を顕微鏡で観察すると、それまでの滑らかな表面が毛羽立つように変化し、生物膜が膨化する様子が確認できた。

3.5 生物膜厚と流動床の空間率の関係

流動床排水処理プロセスでは、付着担体を投入し上昇流を与えることによって流動床を形成させるが、微生物が担体表面に付着して生物膜を形成すると流動床はさらに展開する。これは、生物膜が成長することによってバイオフィークルの物理性状が変化するためである。流動床の空間率 ϵ は、上昇流速 u とバイオフィークルの静水中での終端沈降速度 u_t の関数として、一般に Richardson と Zaki¹²⁾ の式で示される。

$$u/u_t = \epsilon^n \quad (1)$$

ϵ : 流動床の空間率 (-)

u : 流体の空塔時上昇速度 ($\text{cm}\cdot\text{sec}^{-1}$)

u_t : 粒子の終端沈降速度 ($\text{cm}\cdot\text{sec}^{-1}$)

n : Richardson の指数 (-)

Richardson と Zaki は、 n 値が粒子沈降レイノルズ数 (Re_p) によって変化することを見だし、次のような関係を導いている。

$$n = 4.65 + 20 D_p / D_t \quad (Re_p < 0.2)$$

$$n = (4.4 + 18 D_p / D_t) Re_p^{-0.03} \quad (0.2 < Re_p < 1)$$

$$n = (4.4 + 18 D_p / D_t) Re_p^{-0.1} \quad (1 < Re_p < 200)$$

$$n = 4.4 Re_p^{-0.1} \quad (200 < Re_p < 500)$$

$$n = 2.4 \quad (500 < Re_p)$$

また、球形粒子の終端沈降速度 u_t は粒子沈降レイノルズ数の範囲によって次のような近似式で計算できる¹³⁾。

$$Re_p < 1$$

$$u_t = \frac{g D_p (\rho_h - \rho_F)}{18 \mu_F} \quad (2)$$

$$Re_p = 1 \sim 500$$

$$u_t = \left\{ \left(\frac{4}{225} \right) \frac{(\rho_h - \rho_F)^2 g^2}{\rho_F \mu_F} \right\}^{1/3} D_p \quad (3)$$

ρ_h : 粒子のみかけ密度 ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)

ρ_F : 流体の密度 ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)

μ_F : 流体の粘度 ($\text{dyn}\cdot\text{sec}\cdot\text{cm}^{-2}$)

D_p : 粒子の粒径 (cm)

g : 重力加速度 ($\text{cm}\cdot\text{sec}^{-2}$)

この式中で生物膜の成長に伴って変化するのはバイオフィークルの粒径 D_p と密度 ρ_h である。バイオフィークルは、担体と生物膜の二重層構造であり、密度 ρ_{pw} は以下の式で示される¹⁴⁾。

$$\rho_{pw} = \frac{\rho_h + [(1 + L/D_p)^3 - 1] \rho_{bw}}{(1 + L/D_p)^3} \quad (4)$$

$$\rho_{bw} = \frac{\rho_{bd}(\rho_{bdd} - \rho_F)}{\rho_{bdd}} + \rho_F \quad (5)$$

ρ_{pw} : バイオフィークルの密度 ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)

ρ_{bw} : 生物膜の湿潤密度 ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$,
wet weight/wet volume)

ρ_{bd} : 生物膜の密度 ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$,
dry weight/wet volume)

ρ_{bdd} : 生物膜の乾燥密度 ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$,
dry weight/dry volume)

L : 生物膜厚 (cm)

Fig. 14 は、式(1)～式(5)を用いて生物膜厚の増加に伴う流動床の空間率 ϵ の推移を示したものである。流動床の空間率 ϵ は、 ρ_F 、 μ_F については清水の値、 $\rho_{bdd} =$

Fig. 14 Prediction of fluidized bed void ϵ as a function of biofilm thickness. Calculation was made according to Eqs. (1) to (5), by use the values presented in Table 2

Table 2 Physical properties, i. e. diameter and density, of biofilm-support carrier and upflow velocity used in the calculation for prediction of fluidized bed void ϵ (given in Fig. 14)

	Case1*	Case2	Case3	Case4	Case5
Diameter (cm)	0.048	0.020	0.080	0.048	0.048
Density ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)	1.418	1.418	1.418	2.000	2.500
u ($\text{m}\cdot\text{hr}^{-1}$)	14.0	4.1	28.0	28.3	39.0

*:Run-3

$1.3\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$, $\rho_{ba}=0.015\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ と仮定し、Table 2 に示した担体の粒径、密度、流動床内の空塔上昇流速の条件のもとに算出した。流動床の空間率は、生物膜の付着が開始すると上昇する。これは、膜厚が小さい領域では膜厚の増加効果がバイオパーティクルの密度低下に効いてくるためである。生物膜厚がある値以上に大きくなると空間率は最大値に達してから逆に低下する。これは、バイオパーティクルの密度低下よりも粒径の増加効果が卓越してバイオパーティクルの沈降速度を大きくするためである。本実験の Run-3 の条件 (Case 1) では、最大空間率に達する生物膜厚は $190\mu\text{m}$ である。すなわち、担体に薄い生物膜が付着し次第に膜厚が増大するものとする、膜厚が $190\mu\text{m}$ に成長するまでは流動床の空間率は上昇し展開率が大きくなるが、生物膜が $190\mu\text{m}$ 以上に成長すると空間率は逆に減少することを示している。本実験で得られたバイオパーティクルの形状は、Fig. 11 に示したように回転楕

円体を呈しているために、ここで計算した空間率は実際の流動床よりも大きな値を示している。しかし、長期間の運転を行った場合、バイオパーティクルは衝突により次第に球形を呈するものになる。したがって、生物膜厚の肥厚による流動床の空間率の変化を推定するにはバイオパーティクルの形状は球形と仮定しても差し支えない。

流動床法では、担体種の選択は反応器の処理能力を左右する重要な設定条件とされている。一定上昇流速条件で流動床内 MLVSS の増大を図るには、より小さな生物膜厚で膜厚の増加効果がバイオパーティクルの沈降速度の上昇に卓越する担体条件が有利となる。球形粒子の沈降特性を決める物理性状は密度と粒径である。生物膜の付着による流動床空間率の上昇を小さく抑える条件は、粒径を小さくすることであり (Case 2)、担体の密度条件を違えても生物膜厚の増加による流動床空間率の上昇はそれほど変化しない (Case 4, 5)。したがって、せいぜい $200\mu\text{m}$ にしか膜厚が増加しない嫌気性生物膜では、粒径の小さな担体を用いるほうが生物膜の付着によって流動床空間率の上昇が小さく、一定流速条件で MLVSS の増大を図ることが可能となる。

4. ま と め

上昇流速を $7\sim 25\text{m}\cdot\text{hr}^{-1}$ の範囲で四段階に変化させた四系列の嫌気性流動床型反応器をスタートアップし、反応器内に形成する生物膜の物理性状の変化を追跡した。また、急激な負荷上昇が生物膜の物理性状に与える影響について検討した結果、以下の結論が得られた。

1) 生物膜の形成は、上昇流速によって大きく3つの形態に分類できる。すなわち、①上昇流速の小さい系では、担体を数個含んだグラニュールの形成、②上昇流速が中程度の系では、担体表面にほぼ均一の薄膜が形成し、その後膜厚と膜密度が一貫して上昇し、平衡に達する生物膜の形成、③上昇流速の大きい系では、初期生物膜形成作用によって運転初期に膜厚の大きい生物膜 ($200\mu\text{m}$) が形成し、その後膜厚は減少しながら、逆に密度は徐々に上昇して平衡に達する生物膜の形成の三形態である。

2) 上昇流速 $7\sim 25\text{m}\cdot\text{hr}^{-1}$ では、平衡時生物膜厚は上昇流速の影響を受けずに $100\mu\text{m}$ で安定した。平衡時生物膜密度は、 $4.4\sim 14.4\text{mg-VSS}\cdot\text{cm}^{-3}$ で変化し、上昇流速が小さい系ほど大きな値を示した。

3) 種汚泥の担体への初期吸着により運転開始 1～4 日で膜厚の大きい生物膜が形成した系 (Run-3; $14\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$, Run-4; $25\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$) では、20日程度の運転で

生物膜単位付着量が安定したが、初期生物膜形成作用の起こらなかった系では約70日の運転が必要であった。

4) 流動床軸方向の生物膜厚は、反応器下部から上部へと大きな値を示した。生物膜密度と MLVSS は反応器上部で僅かに大きな値を示すものの、生物膜厚に比較して変化の割合は小さかった。

5) メタン生成が阻害されない範囲で急激な負荷上昇を行う (Run-2) と、生物膜厚の増加によって生物膜単位付着量が上昇し、流動床の MLVSS が増加する。しかし、負荷上昇によってメタン生成が阻害される過負荷状態 (Run-3) では、膜厚は上昇するものの膜密度が変化しないか低下傾向にあるため、MLVSS は低下した。

(原稿受付 1992年6月29日)

(原稿受理 1992年11月5日)

引用文献

- 1) 原田秀樹 (1988) 第7章スラッジブランケット (UASB) 法, 微生物固定化による排水処理 (須藤隆一編), 220-282, 産業用水調査会.
- 2) Young, J. C. and McCarty, P. L. (1969) The anaerobic filter for waste treatment, *Journal of Water Pollution Control Federation*, **41**, R160-R175.
- 3) Schraa, G. and Jewell, W. J. (1984) High rate conversions of soluble organics with a thermophilic anaerobic attached film expanded bed, *Journal of Water Pollution Control Federation*, **56**, 226-232.
- 4) Jewell, W. J., Switzenbaum, M. S. and Morris, J. M. (1981) Municipal wastewater treatment with anaerobic attached microbial film expanded process, *Journal of Water Pollution Control Federation*, **53**, 482-490.
- 5) Jeris, J. S. (1983) Industrial wastewater treatment using anaerobic fluidized bed reactor, *Water Science and Technology*, **15**, 169-176.
- 6) Hilton, M. G., Turner, R. J., Powell, G. E. and Archer, D. B. (1983) Methanogenesis from acetate by a mesophilic anaerobic filter, *Process Biochemistry*, **12**, 2-5.
- 7) 申錫雨, 依田元之, 渡辺敦, 渡辺美和子, 北川幹夫, 宮地有正 (1986) 嫌気性流動床における付着生物膜の動力学特性, 下水道協会誌, **23** (270), 47-55.
- 8) 荒木信夫, 原田秀樹, 桃井清至 (1992) 嫌気性流動床内生物膜の形成過程における微生物集積効果, 衛生工学研究論文集, **28**, 1-9.
- 9) Shieh, W. K., Sutton, P. M. and Kos, P. (1981) Predicting reactor biomass concentration in a fluidized bed system, *Journal of Water Pollution Control Federation*, **53**, 1574-1584.
- 10) Characklis, W. G. (1981) Fouling biofilm development: A process analysis, *Biotechnology and Bioengineering*, **23**, 1923-1960.
- 11) 柴崎和夫, 小林茂, 足利伸行, 西島衛 (1991) 嫌気性流動床における造粒物形成のメカニズム, 第25回水質汚濁学会講演集, 538-539.
- 12) Coulson, J. M. and Richardson, J. F.: *Chemical Engineering*, 2. (3rd ed.), p236, Pergamon Press, Oxford.
- 13) 白井隆 (1958) 流動層, p. 48, 科学技術社.
- 14) Atkinson, B., Black, G. M. and Pinches, A. (1981) The characteristics of solid supports and biomass support particles when used in fluidised beds, *Biological Fluidised Bed Treatment of Water and Wastewater* (P. F. Cooper and B. Atkinson Ed.), 75-107, Ellis Horwood Limited.