〔3〕流動床式嫌気性排水処理法*

松 井 三 郎 依 田 元 之

1. はじめに

流動床は、1914年頃に米国のスタンダードオイル社により石油の接触分解に用いられたのが、その工業的利用の始まりとされている。その後、石油化学、化学工業の分野で応用が進み、現在では接触反応だけでなく、焼却、乾燥、吸着等、各種単位操作に利用されている。一方、流動床が固液系の生物反応に応用されたのは1970年代以降で、排水処理分野では、好氣的 BOD 除去¹⁾、アンモニア性窒素の硝化、脱窒²⁾、に用いられている。メタン生成細菌を用いた嫌気性処理に流動床が適用されたのは70年代の後半のことで、折からの原油価格上昇による省エネ指向を背景に、以来実用化の動きが急速に進展している。特に、産業排水処理の分野では、米国、オランダではすでに実装置が稼働しており、わが国でも、今秋以降、3カ所において実装置が稼働を開始することになっている。

2. 嫌気性流動床の特徴と要点

2.1 特 徴

嫌気性流動床（以下AFBと略す）は、図1に示すよ

Saburo Matsui

昭和41年 京都大学工学部卒業
47年 テキサス大学オースチン
大学院 Ph.D
50年 金沢大学工学部助教授
62年 京都大学工学部教授
Ph. D

〔趣 味〕 絵画鑑賞 テニス

Motoyuki Yoda

昭和53年 東京大学工学部卒業
同年 栗田工業㈱
57年 University of Massa-
chusetts, Environmental
Engineering 修士過程修了
〔趣 味〕 フライフィッシング

うに、珪砂などの粒状担体を反応槽内に充填し、これに上昇流速を与えることによって充填層の展開、流動を行い、担体表面上に付着増殖する嫌気性細菌群により有機物の分解を行うものである。流動床法は粒状担体を流動状態で用いるため、1)担体の比表面積が大きいため($\sim 10^4 \text{m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$)、リアクター内に高濃度の菌体を維持できる。2)担体は常に流動しているので、固定床のような閉塞がない。3)固液の接触が十分に、かつ均一に行われるため、保有微生物全体が有効に機能できる。4)固定床と比較して生物膜が薄く($\sim 200 \mu\text{m}$ 程度)、生物膜内への基質の透過拡散が律速にならないため、下水などの低濃度排水にも適用できる。などの特徴がある。

その反面、これらの性能を十分に発揮させるためには、流動床の流動状況を常に良好に維持すること、付着生物膜厚を適切に維持することなどが重要であり、担体の選定（表面、粒径、密度等）および上昇流速の設定と制御、余剰生物膜の制御方法、下部の注水構造などの要素について最適化を図る必要があり、また嫌気汚床法に比べて流動化のための動力費が高くなる。

2.2 担体の選定

AFBの担体としては、実験的には砂、粒状活性炭、セラミックス等様々なものが用いられているが、実装置ではコストが重要な要素となるため使用できる素材は限定される。担体の性状のなかで、生物膜の付着性に大きな影響を与えるのが、粒子のマクロ的な形状と表面構造である。たとえば、球状活性炭のように表面に凹凸の少ない球型の粒子では生物膜の発達が遅い³⁾、天然ゼオライトなどのように表面に数～数十ミ

図1 嫌気性流動床の概念図

* Wastewater Treatment with Anaerobic Fluidized Bed,
昭和62年8月11日受理

クロンの凹凸があり、しかも不規則な形状の粒子は生物膜の発達が早いことが報告されている⁴⁾。

2.3 最適生物膜厚の制御

流動床の生物膜は、菌体の増殖に伴って徐々に膜厚が増加し、流動床の展開層高も経時的に上昇する。なお、嫌気性細菌は増殖速度が極めて遅いため、膜厚の増加は非常に緩慢ではあるが、槽内の菌体濃度を長期的に維持するためには、余剰生物膜を剥離する必要がある。従来、流動床の膜厚制御方法としては、攪拌機やポンプによる機械的な剥離操作が行われているが²⁾、嫌気性生物膜の場合は、剥離後の担体を反応槽に戻しても生物膜が再び増加するのに長時間を要するため、剥離条件、剥離操作法に工夫が必要である。

2.4 下部の注水構造

AFBの装置的特徴として、担体と流体が均一に、しかも十分に接触できる点があげられる。このような理想的な流動状態を作り出し、維持するために、流動床下部の注水構造が果たす役割は大きい。注水構造として具備すべき要件は、1)均一な注水が可能なこと、2)排水中のSS、微生物等による閉塞が起こらないこと、3)圧力損失がなるべく小さいこと、4)耐久性に優れていること、5)万一閉塞した場合でも比較的容易な手段で回復できること、などがあげられる。

3. 嫌気性流動床の適用例

3.1 産業排水処理への適用例

1970年の後半以降、実験室規模では種々の産業排水を対象として検討例が数多く報告されているが、実装置における運転状況は、米国、オランダでの事例が2件報告されているにすぎない。米国のDorr-Oliver社⁵⁾は直径6.1m、高さ12.5mのリアクター4塔(2塔直列×2系列)よりなる嫌気性流動床システムをBOD₅約6,500mg・ℓ⁻¹の大豆処理排水に適用し、13kgCOD_{Cr}・m⁻³・d⁻¹の槽負荷において処理水BOD₅約1400mg・ℓ⁻¹を得ている。また、オランダのGist社⁶⁾は、自社の工場排水に2段式のAFB(390m³×2)を適用し、1982年2月より処理を開始している。また、1985年には同規模の装置を増設している。同システムの対象排水は、発酵廃液(COD_{Cr}4,000～5,000mg・ℓ⁻¹)で、生分解性の有機物は原水濃度の約50%程度、装置の最大負荷は50kgCOD_{Cr}・m⁻³・d⁻¹(実質除去負荷はその半分)となっている。なお、担体は0.1～0.4mmの砂で、15～20m・h⁻¹の上昇急速で展開させている。

一方、わが国では、ようやく今秋から実規模AFBが3カ所で稼働する予定となっているため、ここでは、そのうちの1つである化学排水処理用装置の概要と、小型試験機による試験結果について紹介する。

表1 塩ビ製造排水水質

項 目	A系排水	P系排水
pH	(—)	12.6
SS	(mg・ℓ ⁻¹)	Tr
COD _{Cr}	(mg・ℓ ⁻¹)	6,380
COD _{Mn}	(mg・ℓ ⁻¹)	1,550
TOC	(mg・ℓ ⁻¹)	2,880
BOD	(mg・ℓ ⁻¹)	2,600
有機酸(ギ酸)	(mg・ℓ ⁻¹)	13,400
硫酸塩(SO ₄ イオン)	(mg・ℓ ⁻¹)	3.4
電気伝導率	(mS・cm ⁻¹)	60.0
蒸発残留物	(mg・ℓ ⁻¹)	35,700
Naイオン	(mg・ℓ ⁻¹)	12,700

この嫌気性流動床は、塩化ビニル製造排水処理用のものである。同排水には、表1に示すように、COD_{Cr}約6,400mg・ℓ⁻¹のA系排水(96m³・d⁻¹)と、COD_{Cr}100mg・ℓ⁻¹のP系排水(730m³・d⁻¹)の2系統があり、A系排水中にはギ酸ソーダ、ホルマリン、メタノール等が含まれている。従来は、全量を活性汚泥処理していたが、今回、AFBでA系排水のみを処理し、その処理水とP系排水を合わせて活性汚泥処理する方式に変更している。

実装置の負荷を決定するために行った小型試験装置は、AFB(直径5cm、高さ35cm、有効容量620mℓ)と、後処理用活性汚泥(有効容量2.5ℓ)よりなり、それぞれ平均で15.6kgCOD_{Cr}・m⁻³・d⁻¹、および0.67kgCOD_{Cr}・m⁻³・d⁻¹の負荷条件により約3週間の連続運転が行われた。なお、AFBの水温は35℃、好気性処理は室温で行われた。その結果は表2に示すように、嫌気性処理、好気性後処理ともに処理水質は安定しており、AFBにおいて原水COD_{Cr}の約90%が、また、好気性後処理まで含めると99%が除去されている。原水中の有機物のほとんどが、ギ酸、ホルマリン等であるが、嫌気性処理水中にはこれらの成分は全く検出されなかった。

A系排水はpHが10～13と極めて高いため、実装置

表2 小型試験装置による塩ビ製造排水の処理結果
(単位 mg・ℓ⁻¹)

	A系原水	嫌気性処理水	後 処 理 水
槽負荷	—	15.6 kgCOD・m ⁻³ ・d ⁻¹	0.67 kgCOD・m ⁻³
COD _{Cr}	全	6,380	781
	溶解性	—	669
TOC	全	2,880	204
	溶解性	—	171
BOD ₅	全	2,600	426
	溶解性	—	359

の AFB では 3 基の pH 検出器とコントロールユニットからなる pH 調整システムが設けられ、原水を pH 6～8 に調整した後に、AFB の循環ラインに流入させている。流動床の負荷は $15 \text{ kgCOD}_{\text{Cr}} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ 、リアクターの直径は 3 m、高さは 9 m、有効容量は 45 m^3 の鋼板製である。担体には粒径 $0.2 \sim 0.4 \text{ mm}$ のゼオライト系のものが用いられている。なお、本装置は、10 月から計画負荷で稼働する予定となっている。

3.2 都市下水処理への適用例

嫌気性流動床の特徴の 1 つとして、下水などの低濃度有機排水に適用できるという点があげられる。しかし Jewell ら⁷⁾、Kugelman ら⁸⁾の実験例をみると、AFB を都市下水に適用した場合、SS 成分は良好に除去されるが、原水水質や運転条件の違いなどによって、有機成分の除去率には大きな差異が生じている。特に、わが国の下水は欧米の下水と比べて BOD 濃度が低く、BOD と比較して SO_4^{2-} 濃度が高いので、これらの点は、AFB を都市下水処理に適用する際の重要な検討項目となる。

著者らが、昭和 59 年 1 月より昭和 60 年 2 月まで、東京都町田市町田下水処理場で初沈下水の処理を行ったベンチスケール実験から以下の基礎的な知見が得られている⁹⁾。

- 1) AFB を下水処理に適用することは可能であるが、処理水中の還元イオンを酸化すると同時に、残留する有機物 ($\text{BOD}_5: 20 \sim 50 \text{ mg} \cdot \ell^{-1}$) を除去するために、後処理として好気性処理が必要である。
- 2) AFB の滞留時間を 20 分まで短縮しても、硫酸還元だけが進行して揮発性脂肪酸が蓄積されるという現象は観察されなかった。従って、下水の嫌気性処理では、メタン生成よりも酸生成が律速段階になっている。
- 3) 流動床内に流入した下水中の SS 成分は、流動床上部において、担体を核としてペレット状に造粒される。これらの SS 性有機物の一部は、水中に溶出し、最終的にはメタンに分解される。

また、昭和 60 年 7 月からは、建設省のバイオフォークス WT で、同処理場内に $20 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 規模のパイロットプラント (直径 1 m、高さ 6.75 m) が設置され、現在まで約 2 年間にわたって実証試験が行われているので、その一部を紹介する。図 2 は、昭和 61 年 5 月から翌年 4 月まで行った実験の処理フローである。AFB の有効滞留時間は 3.5 h で、リアクター内上昇流速を $7 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ としているため循環水量と原水量は 7 : 1 となっている。後処理システムは、減圧脱硫装置と好気性生物ろ過からなっており、AFB の処理水の一部を用いて、空塔容量に対する滞留時間をそれぞれ 1 h に設定して運転された。なお、脱硫装置は内部にサドルロ

図2 嫌気性流動床による下水処理実証試験フロー
東京都町田市下水処理場(昭和61年5月～昭和62年4月)

クを充填し、450 torr の減圧下で上部から嫌気性処理水を散水する構造になっている。

表 3 に、AFB の平均処理水水質を 20°C 以上と 20°C 以下の 2 つの運転条件に分けて示した。嫌気性流動床の処理水の SS は、水温が 20°C 以上では平均 $14 \text{ mg} \cdot \ell^{-1}$ であったが、 20°C 以下になると $37 \text{ mg} \cdot \ell^{-1}$ に上昇している。BOD₅ は、水温 20°C 以上の期間は平均 $27 \text{ mg} \cdot \ell^{-1}$ で、除去率 74% であったが、 20°C 以下では $67 \text{ mg} \cdot \ell^{-1}$ (溶存 HS^- 除去後は $41 \text{ mg} \cdot \ell^{-1}$) に上昇し、除去率は 46% に低下している。COD_{Cr}、TOC 等も同様の傾向を示しており、水温の低下により嫌気性細菌の活性が低下し、SS およびコロイダル成分の捕捉、造粒作用も不十分

表3 パイロットプラントによる下水処理実証試験結果
原 水…初沈下水
処理水…嫌気性流動床処理水

(単位 $\text{mg} \cdot \ell^{-1}$)					
運転期間		5/下～10/末		11～4/上	
水温($^\circ\text{C}$)		20以上		20以下	
		原 水	処 理 水	原 水	処 理 水
SS		70.3	14.3	79.9	37.0
透視度(cm)		—	21.0	—	12.7
BOD	Tot.	102	26.7	125	66.6
	Sol.	45.2	11.4	43.3	27.4
					(41.1)*
					(17.2)*
COD _{Cr}	Tot.	253	96.2	299	163
	Sol.	109	58.9	101	66.6
COD _{Mn}	Tot.	77.6	42.1	91.5	66.5
	Sol.	37.7	27.2	40.4	37.2
TOC	Tot.	65.6	20.0	82.7	35.5
	Sol.	32.1	12.2	31.3	16.4
SO_4^{2-}		49.9	5.5	50.5	4.8
HS^-		—	9.5	—	18.1

(* : HS^- 除去後の BOD)

図3 冬期における嫌気性処理水の後処理結果

なっているものと思われる。しかし、図3に示すように、後処理システムを組み合わせることにより、最終処理水は平均で、SS $10.7\text{mg}\cdot\ell^{-1}$ 、BOD₅ $14.5\text{mg}\cdot\ell^{-1}$ などとなっており、冬期でも安定した処理が行われることが明らかとなっている。また、減圧脱硫装置により、脱硫後の残留 HS⁻ は平均 $1.3\text{mg}\cdot\ell^{-1}$ まで低下しているため、嫌気性処理水を直接好気性後処理した場合のように処理水が白濁することなく、最終処理水の透視度は30cm以上に維持されている。

4. 今後の課題と将来展望

嫌気性流動床は、まだ開発の歴史も浅く、実装置における経験も豊富とはいえない。しかし、近年、流動床に関する基礎的な研究が進められ、装置的な特性も次第に明らかにされている。また、応用面ではわが国においても産業排水処理分野で実装置化されたことから、将来的には、有力な排水処理プロセスの1つとして位置づけられるものと期待される。特に産業排水処理分野では、好気性処理法と比較して動力費と、污泥処理費が削減できるため、嫌気性細菌により分解可能な排水であれば、嫌気性流動床による前処理を行い、後処理として好気性処理を行う方式が多くなるものと予想される。

一方、都市下水処理の分野では、建設費は活性汚泥法も嫌気性流動床+後処理でも大差ないが、維持管理費では、活性汚泥法を1.0とした場合、嫌気性処理では $1\text{千}\text{m}^3\cdot\text{d}^{-1}$ 規模で0.77、 $1\text{万}\text{m}^3\cdot\text{d}^{-1}$ 規模では0.68と

いう試算も行われており¹⁰⁾、経済的に十分採算性のある処理方式といえる。また、設置面積の点でも嫌気性流動床法は有利である。例えば、 $1\text{万}\text{m}^3\cdot\text{d}^{-1}$ 規模の設置面積を比較すると、活性汚泥法1.0に対して、嫌気性処理法では0.8と予想され¹⁰⁾、新規用地取得の困難な都市部の処理場では、嫌気性流動床を設置することにより処理場内の敷地の有効利用を図ることができる。

嫌気性処理法は、下水の処理水質の安全性という面からも導入する意義があると考えられる。近年、トリハロメタン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン等の有機ハロゲン化合物による水道水源、地下水等の汚染が懸念され、都市下水中にもこれらの物質が含まれている。これらの有機ハロゲン化合物の多くは、生物に対して阻害性を示し、活性汚泥などによる生分解を受けにくい。しかし、ジクロロエチレン、テトラクロロエタン、ペンタクロロフェノール等の物質については、嫌気性細菌で分解できることが示されており^{11),12)} 下水中の有機ハロゲン化合物の制御という視点からも嫌気処理が注目される。ただし、有機ハロゲン化合物の分解については、反応経路や酵素系も十分に明らかにされていないため、今後の研究課題として捉えるべきであろう。

また、下水処理を目的とした場合、流動床方式は担体を流動させるための動力が比較的大きいため、これを低減すること、処理水に溶存しているメタンが全生成量の2/3程度を占めるため、これを効率的に回収すること、などが今後の技術的課題といえる。上述の減圧脱硫法は、その1つの解決策といえるが、今後は、処理水から還元イオウを除去するだけでなく、これを電子供与体として、硫黄脱窒法などの高度処理プロセスとして有効利用することが、嫌気性処理を組み入れた下水処理のトータルシステムとして、望ましい姿といえよう。

文 献

- 1) Jewell, W.J. and Cummings, R.J. (1974) An optimized biological waste treatment process for oxygen utilization, Paper presented at the 47th Annual Conf. Water Poll. Control Fed., Denver Colo.
- 2) Jeris, J.S., Owens, R.W., Hickey, R., and Flood, F. (1977) Biological fluidized-bed treatment for BOD and nitrogen removal, *Jour. Water Poll. Control Fed.*, **49**, No5. 816-831.
- 3) 古米弘明, 松本明人, 松本順一郎, 活性炭を用いた嫌気性流動床におけるメタン生成について, 第23回下水道研究発表会講演集.
- 4) Yoda, M., Shin, S.W., Watanabe, A., Watanabe, M., Kitagawa, M. and Miyaji, Y. (1986) Anaerobic fluidized bed treatment with a steady-state biofilm, The 13th IAWPRC Biennial International Conf. Rio de Janeiro, 17-22.

- 5) Sutton, P.M. and Huss, D.A. (1984) Anaerobic fluidized bed biological treatment : Pilot to full-scale demonstration, Presented at the Water Poll. Control Fed. Conf. New Orleans, Louisiana.
- 6) Enger, W.A. (1984) "Full-Scale Performance of a Fluidized Bed in a Two-Stage Anaerobic Waste Water Treatment at Gist-Brocades", Proc. of Water Treatment Conf. *Anaerobic Treatment : A Grown-up Technology*, Amsterdam, The Netherlands, 15-19.
- 7) Jewell, W.J., Switzenbaum, M.S., and Morris, J.W. (1981) Municipal wastewater treatment with the anaerobic attached microbial film expanded bed process, *Jour. Water Poll. Control Fed.*, **53**, 482.
- 8) Kugelman, I.J., Heidman, J.A., and Brown, D. (1982) Anaerobic treatment of municipal wastewater, Paper presented at the 55th Annual Conf. Water Poll. Control Fed., St Louis.
- 9) 依田元之, 服部美和子, 宮地有正 (1986) 嫌気性流動床による下水処理(1)—嫌気性条件における下水中の浮遊性固型物の造粒と分解—, 下水道協会誌, **23**, No264.
- 10) 松井三郎, 依田元之, 田籠勝美, (1985)嫌気性流動床法, 回転円板法, 標準活性汚泥法の建設, 維持管理の経済比較と下水処理のエネルギー自立の検討, 月刊下水道, **8**, No14.
- 11) Bouwer, E.J. and McCarty, P.L. (1983) Transformation of 1-and 2-carbon halogenated aliphatic organic compounds under methanogenic conditions, *Appl. Env. Microbiol.* **45**, No. 4.
- 12) Salkinoja-Salonen, M.S., Hakulinen, R., Valo, R., and Apajalahti, J. (1983) Biodegradation of recalcitrant organochlorine compounds in fixed film reactors, *Wat. Sci. Tech.*, **15**.

「水質汚濁研究」編集委員会

編集委員長 松尾友矩 (東大・工)

編集企画委員長 浦野紘平 (横国大・工)

編集査読委員長 松尾友矩 (東大・工)

編集企画委員 大垣真一郎 (東大・工), 大久保俊治 (日本上下水道設計), 大久保泰宏 (西原環境衛生研究所), 小倉紀雄 (東京農工大), 海賀信好 (東芝), 梶原成元 (環境庁), 川本克也 (横国大・工), 工藤一郎 (東大・薬), 国包章一 (国立公衆衛生院), 中島淳 (千葉県水保研), 中杉修身 (国立公害研・編集企画副委員長), 中村文雄 (山梨大・工), 中室克彦 (摂南大・薬), 南家捷成 (神鋼ファウドラ), 西井戸敏夫 (東京都環境科学研), 西口泰夫 (建設省), 森澤真輔 (京大・工), 横尾和伸 (厚生省), 米澤義堯 (工技院・公資研)

編集査読幹事 井口潔 (神奈川県), 大垣真一郎 (東大・工), 金子光美 (摂南大・工), 鈴木基之 (東大・生産研), 須藤隆一 (国立公害研), 藤原正弘 (厚生省)

編集査読委員 岡田光正 (東京農工大), 佐藤和明 (建設省・土研), 田井慎吾 (国立公害研), 高木兵治 (農水省・農環技研), 高村義親 (茨城大・農), 野池達也 (東北大・工), 番匠賢治 (工技院・公資研), 藤木素土 (筑波大・社医), 三上栄一 (工技院・微工研)