〈論文〉

不織布担体の好気性微生物付着機構に関する研究

油 科 嘉 則* 長 谷 川 潤*

Studies of Aerobic Microbial Attachment Mechanism on Nonwoven Fabrics Carriers

Yoshinori YUSHINA* and Jun HASEGAWA*

* Research & Development Center, Chiyoda corporation, 3-13 Moriya-cho, Kanagawa-ku, Yokohama 221 Japan

Abstract

In a wastewater treatment process using attached microorganisms, microbial carriers such as plastic resins, porous ceramics, sands etc. have conventionally been employed. Since the performance of the biological wastewater treatment has been regarded as a function of the concentration of microorganisms in a reactor, microbial carriers have been focused on to increase the specific surface area. The fluidized bed process^{1),2)} using small particles is one example of the application.

Nonwoven fabrics made of plastic resin are considered highly effective microbial carriers because of the attachment of microorganisms on each thread as well as microbial growth in three dimensional intertwisted spaces. However, there have been few reports on the application of nonwoven fabrics as aerobic microbial carriers.

Experimental studies have been conducted to clarify the features of attachment of microorganisms to nonwoven fabrics by the initial phase filtration test, the initial phase bio-attachment test in a reactor and the continuous biofilm growth test.

The highest concentration of attached microbes has been found to be attainable in a specific range of the opening length rather than over a specific surface area. The composition difference of the attached microbes compared with the suspended microbes had a great effect on the kinetic constants.

Key words: microbial carrier, nonwoven fabrics, aerobic microbial attachment, microbial composition, kinetic constants

1. はじめに

生物膜法は高濃度に微生物を維持でき運転管理が容易であり、浸漬濾床法、流動床法、回転円板法など排水処理分野に広く適用されている。本法では生物膜を形成させるために微生物担体として、砂、活性炭等の粒子をはじめとしてポーラスなセラミックまた合成樹脂を素材とする板、糸、粒子等が使用されている。合成樹脂板の担体では比表面積を大きくするために形状について種々の工夫が成されてきている。また微小粒

状担体を使用した流動床式生物処理装置^{1,2)}は担体の比表面積を大きくとることによって微生物の保持量を高くした高性能バイオリアクターの一例である。このように生物膜法においては担体の比表面積をいかに大きくするかに力が注がれてきた経緯がある³⁾。

本研究では微生物担体として合成樹脂の不織布を使用する試みを行った。不織布は一本一本の繊維が織りなす複雑な立体空間を作っている。不織布の比表面積を糸の表面積の和としてとらえると、合成樹脂不織布は比表面積が大きくかつ素材の占める充填率が低い特

* 千代田化工建設株式会社研究開発センター 〒221 横浜市神奈川区守屋町3-13

微を有している。したがって、糸表面への微生物付着および不織布の立体空間での微生物増殖により、高濃度微生物集積が期待でき微生物担体としての応用が考えられる。

しかし、好気性条件下での不織布担体の微生物付着機構（初期汙過、生物膜形成、微生物増殖、剝離）において、微生物の集積が不織布担体を構成する糸の比表面積に関係するのか、不織布の目開き間隔によるのか、さらに集積した微生物の組成は浮遊微生物とはどのように異なるのかについては明らかになっていない部分が多い。

そこで、本研究では担体として不織布を使用した場合の好気性微生物の付着および担体特性との関係について多面的に検討を行った。すなわち、不織布担体への微生物付着特性を解明するために好気性条件下でタンパク系排水と各種目開き間隔を有する不織布担体を使用して、1)不織布の初期汙過特性、2)不織布の立方格子モデルを使用した比表面積、目開き間隔と微生物付着濃度の関係、3)微生物組成の経時変化、4)付着および浮遊微生物の基質分解の動力学的解析などを実験的に調べた。この結果、有用な知見を得たのでここに報告する。

2. 実験装置および実験方法

2.1 初期汙過テスト

不織布の初期汙過テスト装置のフローシートをFig. 1に示す。2.3 微生物付着実験で使用するのと

Fig. 1 Flow sheet of filtration test.

同じ不織布を一边100mmの立方体として初期汙過テストに供試した。Table 1に不織布の性状を示すが、目開き間隔および比表面積は不織布の立方格子モデルを使用した計算値である。本テストは使用した不織布の目開き間隔が0.54~4.7mmの範囲にあり、不織布の微生物付着機構のうち初期汙過が不織布の表面あるいは層内部にて行われているかを把握するために行った。流入水SS濃度として $190\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の微生物を含む曝気槽内の液を使用して、汙過槽内の液通過速度 $10\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ で通液し装置内の液体が置き変わる2分後の処理水のSS濃度を分析した。

2.2 立方格子モデルによる目開き間隔の算出

不織布が同一の糸の太さよりなる立方格子空間により構成されたとした立方格子モデルにより目開き間隔を算出した。立方体の不織布担体の一边の長さ l を分割数 n で除したものが立方格子の一边の長さ β であり、Fig. 2に示すように β は糸の太さ d と目開き間隔 α の和となる。ここで L は不織布担体を構成する糸の総延長、 W はその重量、 γ は不織布素材の真密度、 ε は不織布の素材の充填率である。

$$\beta = l \cdot n^{-1} \quad (1)$$

$$L = \beta \cdot 3n \cdot (n+1)^2 \quad (2)$$

$$(1), (2) \text{より} \quad n = L^{0.5} \cdot (3l)^{-0.5} - 1 \quad (3)$$

$$W = 0.25\pi d^2 \cdot L \cdot \gamma \quad (4)$$

$$\varepsilon = W \cdot l^{-3} \cdot \gamma^{-1} \quad (5)$$

式(1)~(5)より目開き間隔は式(6)で表される。

$$\alpha = (2 \cdot (3\pi)^{-0.5} \cdot \varepsilon^{0.5} \cdot d^{-1} \cdot l^{-1})^{-1} - d \quad (6)$$

不織布担体の一边の長さ l より糸の太さ d が十分小さい場合は次式(7)にて表される。

$$\alpha \approx (0.5 \cdot (3\pi)^{0.5} \cdot \varepsilon^{0.5} - 1) \cdot d \quad (7)$$

一方、比表面積 a は不織布担体を構成する糸の全表面積を不織布担体の体積にて除した値として求められる。

$$a = \pi d \cdot L \cdot l^{-3} = 4 \cdot \varepsilon \cdot d^{-1} \quad (8)$$

2.3 微生物付着実験

Fig. 3に実験装置のフローシートを示す。基質としてはペプトン・魚肉エキスを主体とした合成排水を使用した。その組成および性状をTable 2に示す。曝気槽は外径680mm、高さ660mmのコーン部を有する円筒

Table 1 Characteristics of five different nonwoven fabrics carriers.

Carrier number	Thread diameter (mm)	Void ratio	Opening length* (mm)	Specific surface area* (m^{-1})
1	0.66	0.965	4.7	220
2	0.66	0.940	3.5	370
3	0.25	0.961	1.7	630
4	0.25	0.941	1.3	950
5	0.08	0.962	0.54	1950

*: Calculated value

Fig. 2 Three dimensional lattice model for nonwoven fabrics.

型で外周に沈殿部が設けられ中心に曝気用のドラフトチューブがある。曝気槽全容積は135lでそのうち外周の沈殿部は70lである。

この曝気槽内に Fig. 4 に示す不織布担体のホルダー、合成樹脂板サンプルおよび糸状サンプル各5セットをそれぞれ円周方向に並べ、垂直に設置した。実験に使用したホルダーは5種類の不織布(大きさ70mm×90mm, 厚さ10mm)間に10mmの水路部を設け、装置内の水流が均一になるようにした。また Table 1 に示したようにポリ塩化ビニリデン製不織布担体の性状は目開き間隔0.45~4.7mm, 空隙率0.94~0.96, 糸の太さ0.08~0.66mmであった。同様に、合成樹脂板サンプルは大きさ40mm×158mm, 厚さ3mmの Table 3 に示すテフロン, ポリプロピレン, ナイロン6, ポリエチレン, ポリ塩化ビニルの平滑な合成樹脂板5枚を1セットとした。表中の接触角は10 μ lの蒸留水を各サンプル表面に滴下し、その液滴形状より算出した^{4,5)}。さらに、付着微生物の走査型電子顕微鏡写真(SEM)観察用に合成樹脂製の長さ100mmの糸を同様にセットした。

流入排水はBOD約350mg $\cdot$ l⁻¹濃度で流量3l $\cdot$ h⁻¹で曝気槽へ供給した。実験は常温で行い、pH制御は行わなかった。本実験中定期的に流入水, 流出水のBOD, COD_{Mn}, SSを測定した。ペプトン・魚肉エキス基質を用いて1ヵ月馴養した活性汚泥を、初期MLSS濃度2,000mg $\cdot$ l⁻¹に調製して、Fig. 3 に示す装置に供給し、不織布ホルダー、板、糸を浸漬し実験を開始した。不織布は1セットづつを6週間まで順次取り出し付着微

A: Raw water tank E: Nonwoven fabrics
B: Aeration tank F: Effluent
C: Receiving tank G: Air
D: Feed pump

Fig. 3 Flow sheet of experimental apparatus.

Table 2 Characteristics of synthetic waste water.

Peptone	310	BOD	350
Fish meat extracts	170	COD	90
Sucrose	40	SS	50
Na ₂ HPO ₄	35	TOC	170
CaCl ₂	35		
NaCl	18	Protein	181
Urea	9	Carbohydrate	4
MgSO ₄	5	Nucleic acid	3

unit : mg $\cdot$ l⁻¹

生物重量, 微生物組成を分析した。また合成樹脂板, 糸を適宜取り出し各々付着微生物重量測定, SEMを撮影した。

一連の連続実験の間に、第6週目の各不織布への付着微生物と曝気槽内の浮遊微生物を採取し、2種類の微生物と連続実験で使用した基質を用いて回分テストを行い、DOCを指標とした基質除去に関する動力的解析を行った。

2.4 分析項目

分析項目としては、以下に挙げるものをカッコ内の分析法で分析した。流入水, 流出水のpH(ガラス電極法), BOD(JISK0102-1986, 21), COD_{Mn}(同, 17), SS(同, 14.1), TOC(燃焼-非分散系赤外線式ガス分析法)および微生物組成の分析⁶⁾はタンパク質(Lowry法), 炭水化物(フェノール硫酸法), 核酸(Schneider法による分解抽出のUV吸収定量法)によった。担体付着のSS, VSSは担体サンプルを蒸留水中で剥離し、MLSS, MLVSS測定(下水道試験法, 1984年版)に準拠した。さらに、SEMによる付着微生物ならびに浮遊微生物の観察も行った。

Fig. 4 Nonwoven fabrics holder.

3. 実験結果

3.1 初期汚過テスト

Table 4 に不織布の初期汚過テスト結果を示す。5 種類の目開き間隔の異なる不織布の初期汚過の SS 除去率は 28～86% であった。テスト中最も目開き間隔が小さい担体 No. 5 においては不織布の流入側に SS 層が形成され表層汚過が進行していることが観察された。一方、他の 4 種類の担体では SS 層の形成はなく、表層汚過は観察されなかった。

3.2 微生物付着実験

Fig. 5 にペプトン・魚肉エキス基質合成排水の処理運転結果を流入水、流出水の BOD, COD_{Mn}, SS の経時変化として示す。実験期間中の水温は 20～24℃ であり平均水温は 23℃ であった。また、曝気槽内はドラフトチューブ流出水 DO が 6 mg・l⁻¹ 以上と好気状態が保たれ、pH 範囲は 7.0～8.0 であった。平均容積負荷 0.4g-BOD・l⁻¹・d⁻¹ にて運転し、流出水 BOD 濃度 21 mg・l⁻¹、平均 BOD 除去率 93% とほぼ安定した処理が行われた。不織布への付着物は薄茶色を呈し、やや粘性であった。発生汚泥の引抜きは本実験期間中実施しなかった。

Fig. 6 に不織布担体の付着微生物濃度を VSS 濃度として表し、目開き間隔の影響と経過時間による推移

Table 3 Contact angle of plate samples.

Material	Contact angle*
Teflon	104°
Polypropylene	92°
Nylon 6	88°
Polyethylene	86°
Polyvinyl chloride	73°

*: measured by water drops method

Table 4 Effect of opening length on initial filtration.

Carrier number	Opening length*(mm)	Effluent SS (mg・l ⁻¹)	Removal percentage(%)
1	4.7	137	28
2	3.5	117	38
3	1.7	77	60
4	1.3	50	74
5	0.54	26	86

Influent SS= 190 mg・l⁻¹, Filter depth= 100mm

*: Calculated value

Fig. 5 Changes in BOD, COD and SS vs. time.

を 3 次元グラフとして示す。第 1 週目では、一番小さい目開き間隔の担体 No. 5 が最も高い付着 VSS 濃度を示し初期汚過特性結果と同様の傾向を表している。

第2週目以降、目開き間隔1.3mmの担体 No. 4 が最高付着 VSS 濃度を達成し、第6週目まで継続して最高値を保った。このことから不織布担体の目開き間隔に最も微生物が高濃度に付着しやすい至適範囲が存在することがわかった。すなわち、本実験で採用した平均容積負荷 $0.4\text{g-BOD}\cdot\text{l}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ の条件下では目開き間隔1.3mm 近傍の不織布担体が最高の VSS 付着濃度を示した。

付着微生物と浮遊微生物の組成がどのように経時的

Fig. 6 Profile of microbial attachment on nonwoven fabrics carriers.

変化してくるのかを検討した結果を一括して Table 5, 6 に示す。微生物の組成はタンパク質、炭水化物、核酸、脂質、灰分として表されるが、本実験ではタンパク質、炭水化物、核酸について分析し各成分濃度および VSS, MLVSS 当りの各成分の比率を求めた。付着微生物ではタンパク質濃度の変化が VSS 濃度の変化に影響を与えており、また核酸濃度は余り大きな変化はなかった。付着微生物の VSS/SS 比は0.81以上と高い値であった。浮遊微生物について、MLVSS/MLSS 比は0.40~0.76であり液中に含まれる塩分などが影響を与えている。付着微生物の VSS に対してのタンパク質、炭水化物、核酸の比率の合計はおおよそ90%を示した。一方、浮遊微生物の MLVSS に対しての3成分の比率の合計は70%であった。これは MLVSS には液中の色度成分などの生物難分解物質等が含まれているためと考えられる。

3.3 回分テスト

不織布担体に付着した微生物と曝気槽内の浮遊微生物を遠心分離し濃縮されたものを用いて、ペプトン・魚肉エキスを基質液の溶解性有機炭素 (DOC) の減少を経時的に測定した結果を Fig. 7 に示す。回分テスト開始時の VSS 濃度は付着微生物($370\text{mg-VSS}\cdot\text{l}^{-1}$)と浮

Table 5 Results of attached microbial composition analysis as a function of time.

Carrier number	Time (week)	Protein (g·l ⁻¹ ·carrier)	Carbohydrate (g·l ⁻¹ ·carrier)	Nucleic acid (g·l ⁻¹ ·carrier)	SS (g·l ⁻¹ ·carrier)	VSS (g·l ⁻¹ ·carrier)	Protein /VSS	Carbohydrate /VSS	Nucleic acid /VSS	SUM.*	VSS/SS
1	1	1.33	0.41	0.12	2.09	2.07	0.64	0.20	0.06	0.90	0.99
	2	2.41	0.62	0.22	4.03	3.47	0.69	0.18	0.06	0.93	0.86
	3	2.28	0.61	0.17	4.14	3.35	0.68	0.18	0.05	0.91	0.81
	4	3.73	1.17	0.28	6.90	5.64	0.66	0.21	0.05	0.92	0.82
	5	3.73	1.17	0.28	6.90	5.64	0.66	0.21	0.05	0.92	0.82
	6	2.75	0.73	0.12	4.14	3.44	0.80	0.21	0.03	1.04	0.83
2	1	0.99	0.33	0.10	2.09	1.74	0.57	0.19	0.06	0.82	0.83
	2	2.72	0.65	0.23	4.30	3.78	0.72	0.17	0.06	0.95	0.88
	3	2.18	0.65	0.16	4.34	3.51	0.62	0.19	0.05	0.86	0.81
	4	5.46	1.52	0.36	9.39	7.88	0.69	0.19	0.05	0.93	0.84
	5	5.46	1.52	0.36	9.39	7.88	0.69	0.19	0.05	0.93	0.84
	6	3.41	0.82	0.17	5.34	4.40	0.78	0.19	0.04	1.01	0.82
3	1	2.78	0.87	0.24	4.85	4.30	0.65	0.20	0.06	0.91	0.89
	2	3.73	1.12	0.37	6.64	5.73	0.65	0.20	0.06	0.91	0.86
	3	6.40	1.65	0.44	10.44	8.71	0.73	0.19	0.05	0.97	0.83
	4	5.44	1.43	0.41	9.66	7.99	0.68	0.18	0.05	0.91	0.83
	5	5.44	1.43	0.41	9.66	7.99	0.68	0.18	0.05	0.91	0.83
	6	4.35	1.04	0.20	7.28	5.98	0.73	0.17	0.03	0.93	0.82
4	1	1.90	0.64	0.18	3.28	3.05	0.62	0.21	0.06	0.89	0.93
	2	4.13	1.33	0.41	7.69	6.69	0.62	0.20	0.06	0.88	0.87
	3	5.05	1.81	0.44	10.39	8.78	0.58	0.21	0.05	0.84	0.85
	4	4.92	1.52	0.42	10.13	8.56	0.57	0.18	0.05	0.80	0.85
	5	4.92	1.52	0.42	10.13	8.56	0.57	0.18	0.05	0.80	0.85
	6	4.86	1.20	0.23	7.43	6.21	0.78	0.19	0.04	1.01	0.84
5	1	2.68	0.97	0.25	5.71	5.15	0.52	0.19	0.05	0.76	0.90
	2	4.07	1.24	0.34	6.88	6.05	0.67	0.20	0.06	0.93	0.88
	3	4.51	1.46	0.35	8.85	7.36	0.61	0.20	0.05	0.86	0.83
	4	3.85	1.30	0.32	8.08	6.71	0.57	0.19	0.05	0.81	0.83
	5	3.85	1.30	0.32	8.08	6.71	0.57	0.19	0.05	0.81	0.83
	6	2.98	0.78	0.14	4.75	4.02	0.74	0.19	0.03	0.96	0.85

*: SUM. = (Protein + Carbohydrate + Nucleic acid) / VSS

Table 6 Results of suspended microbial composition analysis as a function of time.

Time (week)	Protein (mg·l ⁻¹)	Carbohydrate (mg·l ⁻¹)	Nucleic acid (mg·l ⁻¹)	MLSS (mg·l ⁻¹)	MLVSS (mg·l ⁻¹)	Protein /MLVSS	Carbohydrate /MLVSS	Nucleic acid /MLVSS	SUM.*	MLVSS/MLSS
1	374	137	54	1120	853	0.44	0.16	0.06	0.66	0.76
2	172	53	20	538	319	0.54	0.17	0.06	0.77	0.59
3	95	27	13	348	203	0.47	0.13	0.06	0.66	0.58
4	48	12	6	279	112	0.43	0.11	0.05	0.59	0.40
6	84	21	9	340	137	0.61	0.15	0.07	0.83	0.40

*: SUM. = (Protein + Carbohydrate + Nucleic acid) / MLVSS

遊微生物 ($88\text{mg-VSS}\cdot\text{l}^{-1}$) とでは異なっている。その際の初期比 DOC 除去速度 ($\text{g-DOC}\cdot\text{g}^{-1}\text{-VSS}\cdot\text{h}^{-1}$) は付着微生物では 0.57 であるのに対して浮遊微生物では 1.05 と 1.8 倍の値を示している。また両ケースとも DOC 濃度 $23\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ にて反応が進行しなくなった。これは連続処理実験結果とほぼ同じ処理結果であり、魚肉エキスの色度成分由来の DOC と思われる。

4. 考 察

4.1 不織布の初期汚過特性

Fig. 8 に不織布の初期汚過テストにおける SS 除去率に与える目開き間隔の影響を示す。流入水 SS 濃度 C_{in} と流出水 SS 濃度 C_{eff} の関係については一般に清澄汚過の SS 除去式として岩崎⁷⁾の式(9)が用いられている。

$$C_{eff}\cdot C_{in}^{-1} = \exp(-\lambda\cdot Z) \quad (9)$$

ここで、 λ は阻止率であり Z は汚層厚さを示す。清澄汚過の SS 除去の主因子は、水流による汚材または被汚過 SS 粒子表面への SS 粒子の接触でありその際の水路の代表長さとして目開き間隔 α を採用し、阻止率を目開き間隔 α の逆数として表す。この際係数 k は接触効率を示す指標であると考えられる。

$$C_{eff}\cdot C_{in}^{-1} = \exp(-k\cdot\alpha^{-1}\cdot Z) \quad (10)$$

Fig. 8 中に示す実線は $k=1.6\times 10^{-2}$ の場合の計算線であり目開き間隔 $\alpha=0.54\text{mm}$ の不織布担体の場合を除き、実験値と良く符合している。 $\alpha=0.54\text{mm}$ の場合、計算結果ではおよそ 95% の除去率となるが実験結果では 86% となっており、その差異は他の場合と比較して大きい。この理由は、一般に SS 除去機構には汚材表面にケーキと称する SS 層が形成され SS を捕集す

る表層汚過と汚材内部の空隙に SS を捕集する深層汚過の二つのタイプがあるが、不織布担体の目開き間隔によってどちらのタイプになるかが決定されるためと考えられる。

Fig. 8 に示すように深層汚過が行われた担体 No. 1~4 (目開き間隔 $1.3\sim 4.7\text{mm}$) については式(10)に合致したが、表層汚過が観察された担体 No. 5 (目開き間隔 0.54mm) では、汚材表面への SS 粒子の抑留に伴い不織布担体の目開き間隔がさらに小さくなり、一種のふるい作用が働くものの抑留物の剝離がおり、式(10)の計算線より下回ったと考えられる。

4.2 微生物付着濃度と比表面積、目開き間隔の関係

微生物付着が不織布担体の糸の表面にてのみ起こると仮定すると不織布の付着 VSS 量を比表面積で除して単位面積当りの付着 VSS 量が求められる。不織布担体の糸の比表面積と付着 VSS 量の関係を Fig. 9 に示す。この結果を見ると担体の比表面積が大きくなれば付着 VSS 量が大きくなるという一律的の関係はないことがわかる。第 1 週目では比表面積約 600m^{-1} まで比例関係にあるが、第 4 週目では比表面積 400m^{-1} まで比例関係が認められるにとどまっている。

一方、本実験の接触角 $73\sim 104^\circ$ の 5 種類の平滑な板状サンプルで求めた単位面積当りの付着量は、材質による有意差はなかったので平均付着量として表し Table 7 に示す。この理由は好気性微生物の場合バイオポリマーの生成が多く固体表面の材質の差が影響されにくかったと考えられる。また平均付着量は 1 週間までは経時的に増加したがそれ以降はサンプル採り上げの際、付着物が容易に剝離した。板状サンプルの 7

Fig. 7 Batch test results using attached and suspended microbes.

Fig. 8 Effect of opening length on SS removal.

日目の平均付着量は $12\text{g-SS}\cdot\text{m}^{-2}$ 、 $10\text{g-VSS}\cdot\text{m}^{-2}$ であった。

一般に文献で報告されている担体への微生物付着量は基質の種類、濃度、負荷によりかなり大きな変動がある。Costa Reis らのアルコール蒸留廃液希釈排水の浸漬戸床法による高濃度廃水 ($\text{BOD}=2700\text{--}3250\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$) の好気性処理 (COD_{cr} 負荷 $3.3\text{--}15.4\text{Kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$) では付着量 $33\text{g-SS}\cdot\text{m}^{-2}$ が得られており⁸⁾、また回転円板では4ステージ処理で付着量は1段目より37.5, 31.7, 16.3, $11.7\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ であった³⁾と計算結果が示されている。さらに富永らはハニカムチューブを用いた水道原水中のケイ藻の除去で生物膜量が $2.8\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ であったことを報告している⁹⁾。

そこで同一環境条件下で行われた本実験の不織布担体と板状サンプルの付着量を比較すると、比表面積 220m^{-1} の不織布担体では1週目では $9.4\text{g-VSS}\cdot\text{m}^{-2}$ とほぼ同じ値であり、不織布担体として比較的小さい比表面積 200m^{-1} 程度では両者一致がみられた。しかし不織布担体の比表面積が大きくなるにつれて表面積当りの付着量は少なくなり、 600m^{-1} では約 $6\text{g-VSS}\cdot\text{m}^{-2}$ 、 2000m^{-1} では約 $2.5\text{g-VSS}\cdot\text{m}^{-2}$ と著しく減少した。この現象は比表面積の増大に伴い、目開き間隔が小さくなり不織布担体の表層でのSS捕捉が起り、この表層戸過により不織布担体内部は十分に利用されていないためであると考えられる。この傾向は4週目の結果についてもあてはまる。

このように比表面積が増加しても全付着VSS量は大きくならない例として、粒状戸材を用いた生物膜戸

過法で推定比表面積約 $60\text{--}180\text{m}^{-1}$ の例¹⁰⁾が、またメカニズムは異なると思われるが、浸漬戸床法で比表面積 (範囲 $1000\text{--}2000\text{m}^{-1}$) が増大するとBOD除去速度が低下することも報告されている¹¹⁾。

Fig. 6 に示したように不織布担体の目開き間隔に最も微生物が高濃度に付着しやすい至適範囲が存在することがわかった。この理由は、目開き間隔が大きい場合は不織布担体の微生物付着機構の第一段階である初期戸過性能が劣るが不織布担体内部への微生物付着の機会は増加する。一方目開き間隔が小さい場合は表面戸過が進行しやすくなり、不織布担体内部での微生物付着の進行が遅くなるためである。したがって、目開き間隔を変えることにより両者を満足する至適範囲が存在してくることがわかる。このように担体の目開き間隔が微生物付着機構の初期戸過および微生物増殖を支配している重要な因子であることが判明した。

4.3 微生物のSEM観察結果

Fig. 10 に単繊維表面上に付着する微生物の走査型顕微鏡写真 (SEM) を示す。本サンプルは浸漬1週間の状態の生物膜形成初期段階を示しており、微生物が繊維表面に付着するために粘性物質 (バイオポリマー) を分泌し糸状に見える。また、Fig. 11 には浸漬6週間の不織布上の付着微生物を示すが、生物膜形成完了し微生物とバイオポリマーとが複雑に層を成しており、流入水中のSSと思われるものが取り込まれているのがわかり、付着VSS量が必ずしも微生物量を表現していないことが示唆される。両観察結果より単層付着段階では微生物が主体となり付着しているが、徐々に複層化してくるにつれ微生物、バイオポリマー、排水中のSSが渾然一体となった複合物が形成されていることが観察された。Fletcher, M. は単層生物膜と複層化した生物膜とは起りえる反応や捕捉機構が全く異なるため、両者の差異を認識することが重要であると述べている¹²⁾。次に、浮遊微生物を戸紙に戸過して撮影したSEMをFig. 12に示す。微生物がフロックを形成するための粘性物質が微生物の周りに観察でき、付着微生物とは異なり流入水中のSS等はフロックに取り込まれていない。また非フロック性の微生物はSEMのサンプル固定化操作の際に流失した¹³⁾と考

Table 7 Average attached biomass on five plate samples.

Time (day)	Average attached biomass ($\text{g-VSS}\cdot\text{m}^{-2}$) ($\text{g-SS}\cdot\text{m}^{-2}$)		VSS/SS
1	-	0.89	-
3	3.68	3.81	0.96
7	10.03	12.00	0.84

Fig. 9 Relationship between specific surface area and VSS concentration.

Fig. 10 SEM of initially attached microbes on a single thread surface.

Fig. 11 SEM of attached microbes on nonwoven fabrics.

えられる。

4.4 微生物組成の比較

付着微生物と浮遊微生物の SEM 観察結果が異なったため、両者の微生物組成について検討した。Table 5, 6 に示したように、付着微生物の核酸/VSS の全不織布担体の平均値は5.0%であるが、浮遊微生物の場合は核酸/MLVSS の平均値は6.1%である。浮遊微生物の測定には MLVSS を用いたため前述のように MLVSS 中に色度成分等由来の MLVSS が存在し、実際の核酸/VSS の値は6.1%より高くなると推定され、浮遊微生物は付着微生物より核酸の含有率がさらに高くなると思われる。

この点を明確にするために、微生物の組成はタンパク質、炭水化物、核酸の各成分が主体になっているので、この3成分を総計して各成分の百分率として Table 8 にまとめた。各担体間での付着微生物の組成の有意差は認め難いが、付着微生物の3成分の経時変化をみるとタンパク質割合は増加し、炭水化物割合は変化が余りなく、核酸割合は減少傾向を示しているのがわかる。全担体の平均付着微生物の組成はタンパク質：炭水化物：核酸=73.1：21.3：5.6であるのに対して浮遊微生物の組成は70.8：20.5：8.8と核酸割合が異なった値を示した。この結果より付着微生物のタンパク質割合の経時的増加は付着微生物がバイオポリマーを分泌し担体に粘着しているために起り、それに応じて核酸割合は経時的に減少したと考えられる。こ

Fig. 12 SEM of suspended microbes on filter paper.

のように微生物の組成変化から付着微生物と浮遊微生物とは動力学的に異なると推定された。

4.5 動力学定数の比較

浮遊微生物が微生物フロックとして存在していることが SEM 観察により理解されたが、この浮遊微生物

Fig. 13 Kinetic constants obtained from the relationship between DOC and specific DOC removal rate.

Table 8 Characteristics of microbial composition ratio.

Microbes	Carrier number	Time (week)	Protein (%)	Carbohydrate (%)	Nucleic acid (%)
Attached	1	1	71.5	22.0	6.5
		2	73.9	19.2	6.9
		3	74.7	19.8	5.5
		4	72.0	22.6	5.4
		6	76.4	20.3	3.3
Attached	2	1	69.6	23.2	7.2
		2	75.5	18.0	6.5
		3	72.9	21.6	5.5
		4	74.3	20.8	4.9
		6	77.5	18.6	3.9
Attached	3	1	71.5	22.4	6.2
		2	71.5	21.4	7.1
		3	75.4	19.4	5.2
		4	74.7	19.7	5.6
		6	77.7	18.7	3.6
Attached	4	1	69.6	23.6	6.8
		2	70.3	22.6	7.1
		3	69.2	24.7	6.1
		4	71.7	22.2	6.1
		6	77.3	19.0	3.7
Attached	5	1	68.7	24.9	6.4
		2	72.0	22.0	6.0
		3	71.3	23.1	5.6
		4	70.4	23.7	5.9
		6	76.6	19.9	3.5
Suspended		1	66.3	24.2	9.5
		2	70.3	21.6	8.1
		3	70.3	20.0	9.7
		4	73.3	18.3	8.4
		6	73.5	18.4	8.1

は活性が低下し担体より剥離したものか、活性が高く浮遊状態で生育しているのかを検討するために回分テストにより、動力学定数を求めた結果を Fig. 13 に示す。DOC 濃度が $23\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ にて反応が進行しなかった点より Monod 式に生物難分解物質濃度 S_N を考慮した式(11)により動力学定数を算出した。

Fig. 14 Changes in nucleic acid ratio in microbes vs. time.

$$V = V_{MAX} \cdot (S - S_N) \cdot (K_N + S - S_N)^{-1} \quad (11)$$

ここで S : 基質濃度
 V : 比反応速度
 V_{MAX} : 最大比反応速度
 K_N : 飽和定数
 S_N : 生物難分解物質濃度

この結果を見ると浮遊微生物と付着微生物では飽和定数が各々 $46\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、 $15\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ とほぼ同レベルであり、生物難分解物質を除いた基質に対する親和性は高かった。最大比 DOC 除去速度は浮遊微生物では $0.135\text{g-DOC}\cdot\text{g}^{-1}\text{-VSS}\cdot\text{h}^{-1}$ 、付着微生物では $0.047\text{g-DOC}\cdot\text{g}^{-1}\text{-VSS}\cdot\text{h}^{-1}$ となり浮遊微生物と付着微生物の比は 2.8 倍であった。両テストとも完全混合状態で実施され、微生物フロックの大きさもほぼ同等に調整したため、両者の差異は基質の拡散律速とは考えられない。SEM 観察結果でもわかるように付着微生物中には SS も含有し不活性物質が付着 VSS 量に含まれていることも反応速度の低下の一因と考えられる。

一方、Table 8 の浮遊微生物と付着微生物の組成分析結果の核酸割合に差異がある点に注目し、両者の核酸割合の経時変化を Fig. 14 に示す。第 1 週目より、核酸割合は浮遊微生物のほうが高いが、付着微生物では

時間の経過とともに核酸割合が低下してきている。第6週目の両者の核酸割合の比は浮遊微生物は付着微生物の2.3倍であった。両微生物の最大比DOC除去速度の比率は2.8倍であったことから核酸割合の比が真の微生物量の比を表していると考えられる。この点について、李らは嫌気性消化においてDNAを用いて微生物量を算定することを提案している¹⁴⁾。

以上のように、生物膜法での浮遊微生物は活性が高く浮遊、生育していることがわかった。しかしながら、一般に生物膜法の反応槽内における付着微生物量と浮遊微生物量を比較すると2桁違うため、生物膜法での反応速度は付着微生物濃度により決定させることとなる。

5. ま と め

不織布担体の好気性微生物の付着機構について実験的検討を行い次のことがわかった。

1) 不織布の目開き間隔により表層汙過および深層汉過の初期汉過特性が支配され、また、生物膜形成、微生物増殖の過程に影響を与えた。

2) 不織布の比表面積の小さい範囲では2次元の板状サンプルの微生物付着量と整合性があった。しかし、さらに大きな比表面積の範囲では微生物付着量は比例的に増加せず、最大の微生物付着量はある限定された不織布の目開き間隔の範囲に存在することが判った。

3) 付着微生物と浮遊微生物のSEM観察結果より剝離した浮遊微生物はフロックを形成しており、一方付着微生物はバイオポリマー、排水中のSSとともに複雑な層を成していることが判った。

4) 微生物組成をタンパク質、炭水化物、核酸の含有率を用いて検討した結果、付着微生物と浮遊微生物の微生物組成の差異は、動力学定数に影響を与え、核酸割合の比が真の微生物量の比を表すことがわかった。

謝辞 本研究の遂行にあたり、当研究開発センターの

野村久志氏の尽力に心より感謝の意を表す。

(原稿受理 1990年4月19日)

参 考 文 献

- 1) Tsezos, M. and Benedek, A. (1980) Removal of organic substances by biologically activated carbon in a fluidized-bed reactor, *J. WPCF*, **52**, 528-586.
- 2) Shimodaira, C. and Yushina, Y. (1983) Biological waste water treatment with downflow fluidized bedreactor, *Proc. of the 3rd Pacific Chem. Eng. Congress*, **4** 237-242, Korean Institute of Chem. Engineers.
- 3) 洞沢勇編 (1982) 生物膜法, 思考社, 東京.
- 4) Dahlgren, C., Elwing, H. and Magnusson, K.E. (1986) Comparison of contact angles calculated from the diameter of sessile drops and submerged air bubbles in contact solid surface, *Colloids and Surfaces*, **17**, 295-303.
- 5) 森崎久雄, 服部黎子 (1986) 界面と微生物, 50-61, 学会出版センター, 東京.
- 6) 微生物研究法懇談会編 (1975) 微生物学実験法, 225-264, 講談社, 東京.
- 7) 岩崎富久 (1937) 濾過阻止率の計算, 土木学会誌, **24**, 8.
- 8) Costa Reis, L.G. and Sant'Anna Jr G.L. (1985) Aerobic treatment of concentrated wastewater in a submerged bed reactor, *Water Res.*, **19**, 1341-1345.
- 9) 富永昇一, 秋山広毅 (1983) 茨城県企業局における生物処理の実用規模実験, 用水と廃水, **25**, 62-70.
- 10) 久新正三郎, 東野宏昭, 野中信一 (1989) 生物膜汉過法における汉材粒径の違いによる処理性能比較実験, 環境技術, **18**, 102-104.
- 11) 池田康郎, 藤江幸一, 浦野紘平 (1989) 浸漬汉床による有機性排水の処理(第7報), 第23回水質汚濁研究会講演集, 49-50.
- 12) Fletcher, M. (1984) Comparative physiology of attached and free-living bacteria, *Microbial adhesion and aggregation*, ed. Marshall, K.C., 223-232, Springer-Verlag, New York.
- 13) Wheatley, A.D. (1981) Investigations into the ecology of biofilms in waste treatment using scanning electron microscopy, *Environ. Technol. Letters*, **2**, 419-424.
- 14) 李光浩, 野池達也 (1989), 嫌気性消化における微生物量と動力学定数算定, 下水道協会誌, **26**(9), 28-34.

論 文 要 旨

不織布担体の好気性微生物付着機構に関する研究

油科 嘉則* 長谷川 潤*

* 千代田化工建設株式会社研究開発センター

〈水質汚濁研究 Vol. 13 No. 7 (1990) pp. 431~440〉

生物膜法による排水処理において微生物担体として合成樹脂、セラミック、砂などが従来より用いられてきた。反応槽中の微生物濃度は生物処理性能に関与するため微生物担体はその比表面積を増加させることに重点が置かれてきた。微小粒状担体を用いた流動床法はその一例である。合成樹脂不織布は糸表面への微生物付着および繊維が織りなす立体空間での微生物の増殖により高効率な微生物担体と考えられる。しかしながら、好気性担体としての不織布の応用に関する報告は少ない。そこで不織布の初期戸過テスト、槽内での初期微生物付着テストおよび微生物増殖テストを実施し、不織布への好気性微生物付着機構を明らかにするために実験的検討を行った。その結果、付着微生物濃度に関して比表面積よりはむしろ不織布の目開き間隔に至適範囲が存在することが判った。また浮遊微生物と付着微生物の組成の差異が動力学定数に影響を与えた。

生物学的脱リン過程の二相生物モデルによるシミュレーション

尹 照熙* 鈴木 基之*

* 東京大学生産技術研究所

〈水質汚濁研究 Vol. 13 No. 7 (1990) pp. 441~448〉

嫌気・好気繰り返し法による生物学的脱リンにおける1サイクル中のリンおよび有機物の濃度変化を記述するために、汚泥がその脱リン特性に基づき、脱リン性微生物と非脱リン性微生物の二相から構成するものとし、有機物の濃度影響を考慮したモデルを提案した。

1サイクルの間のリンの放出、摂取挙動は脱リン性微生物、嫌気状態での投入有機物などに大きく影響される。また、槽内の有機物は嫌気状態で微生物によりほぼ摂取されている。実験による濃度変化の測定結果は、簡単なモデルにより、ほぼ正確に表し得ることが確認された。