〈論 文〉

好気性付着生物膜の形成過程

—酸素消費速度と膜構造による解析—

Development of Attached Biofilm

—Analyses in terms of Oxygen Consumption Rate and Biofilm Structure—

海 野 肇*

Hajime UNNO

橋 本 直 樹**

Naoki HASHIMOTO

明 畠 高 司*

Takashi AKEHATA

Abstract

Development process of biofilm, attaching on surfaces of various kinds of substratum, i.e., polyvinylchloride, glass and polypropylene, each being treated chemically so as to prepare different surface roughness, was analyzed in the light of oxygen consumption rate and spacial structure of biofilm.

The spacial structure of biofilm was complicated in that the biofilm surface attached on the substratum surface was not uniform and the vertical structure was not homogeneous, sometimes vacant space existing within the biofilm. From the oxygen consumption activity the formation of biofilm is considered to be composed of two processes in series, i.e., a monotonous development of biofilm and a random process in which separation and reformation of biofilm occurred on different surfaces at the same time. However, the microscopical analysis of structure revealed that even in the initial biofilm development the attachment and detachment of biofilm constituents occurred locally.

Among the factors experimented the liquid flow velocity showed most significant effect on the biofilm development as that the biofilm obtained under the fluid velocity of $15 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ was stabler and thicker than the one obtained under the liquid flow rate of $5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$. Substratum of hydrophobic nature seemed to be the most ineffective for the initial biofilm development, but in the random process mentioned above its effect became insignificant. The surface roughness of substratum was effective for the initial biofilm development independently of liquid flow rate, but the biofilm developed on the rougher surface was apt to detach easily compared with the one formed on smooth surface.

Key words: attached biofilm development, biofilm structure, substratum material, surface roughness, oxygen consumption rate

1. 緒 言

固体壁面に付着する微生物群の代謝機能を利用するいわゆる生物膜法による廃水処理は旧くから行なわれており、その研究も多い。とくに最近は大規模処理施設の必要性から生物膜法に関する関心が高くなっている。しかし、その支持体材料の選定、設計ならびに運転操作に関する基礎的な知見は十分ではなく、経験に負うところが少なくない。

付着微生物膜（以後単に生物膜と記す）の基質除去

特性に関する研究は多い^{1)~4)}。これらの研究では廃水本体から生物膜内への基質の拡散および代謝産物の拡散放出を基本とし、反応速度や物質移動抵抗を考慮して基質除去特性を論じているものが大部分である。これらの解析では生物膜は均質で一様な膜と仮定している。しかしながら、この仮定が実際の膜構造とどの程度符合しているかに関する検討はほとんどない。実際の生物膜プロセスでは余剰汚泥の発生から明らかなように生物膜の剝離現象が生じており、巨視的にも、均

* 東京工業大学大学院総合理工学研究科 化学環境工学専攻 〒227 横浜市緑区長津田町4259番地, Dept. of Environmental Chemistry and Engineering, Tokyo Institute of Technology, 4259 Nagatsuta, Midori-ku, Yokohama 227

** 旭硝子株式会社 〒230 横浜市鶴見区末広町1-1, Asahi Glass Co., LTD, 1-1, Suehiro-cho, Tsurumi-ku, Yokohama 230

一で様な膜が常に存在するとは考えにくい。

生物膜の形成過程およびこれに関連する研究^{5~7)}も最近多くなっている。とくに、固体表面と生物体の相互作用に関する基礎的な研究が進んでいる。しかし、固体表面の性質として表面荷電^{8~11)}、疎水性の程度^{8,12~14)}、表面の粗さ^{13,15)}などの影響、付着生物膜の性質として微生物そのものや生物の生産物質^{11,16,17)}の影響、また、操作条件としての液流速^{5,18,19)}の影響が検討されているが、生物系の複雑さの故にまだ統一的な見解に至ってはいない。

本論文では、生物膜の形成過程において、まず生物膜の代謝機能を酸素消費速度で把握し、続いて膜構造の変化過程に注目して生物膜の立体構造を実験的に把握し、生物膜の形成過程と生物膜を付着させる支持体(以後単に支持体と記す)の材質、表面粗さおよび液流速などの因子について検討を加えた。

2. 実験

2.1 実験手順

生物膜法による廃水処理の性能は当該基質の消費速度、すなわち、代謝能力で決まる。一般に好気性微生物の代謝能力は酸素消費量で表わせるので、本実験では測定方法が容易な酸素消費速度によって生物膜の性能を表わす。また、生物膜は幾何学的に最も単純な平面に形成させて、その立体的な局所構造を沈水型対物レンズを用いた顕微鏡により測定し、上記の酸素消費速度と生物膜の構造との関係を解析する。

2.2 実験装置および方法

装置の概略を Fig. 1 に示す。装置は生物膜形成部、曝気槽および沈降槽より成る。曝気槽(容積20 l)には濃縮基質(グルコース: $10\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, ポリペプトン: $10\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, KH_2PO_4 : $1\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$)と稀釈水(水道水)を連続的に供給して実験系内のBODが大略 $200\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ になるように調整した。沈降槽(内径450mm, 容積17 l)は二重管構造になっており、ここで大きな浮遊物質を除去した。

溶存酸素濃度は $5\sim 6\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に維持した。液中の懸濁粒子の状態は適時に採取して吸光度(600nm)を測定した。

実験はすべて 20°C の恒温室内で行なった。また、実験は廃水処理施設(東京工業大学・長津田キャンパス)の曝気槽から採取した上澄液を系内に満たして開始した。

生物膜形成部は Fig. 1 (B) に示すアクリル樹脂製の矩形($25\times 25\text{mm}$)管で、図に示すように6箇所に支持体の試験片($25\times 100\text{mm}$)が設置できるようにしてある。支持体は着脱可能で、その生物膜形成面が管路の内壁と同一面になるようにはめ込まれている。流路内

Fig. 1 Experimental apparatus.

の速度分布の影響を一樣にするために、各試験片の設置場所の 100mm 上流にステンレス網(針径 0.6mm , 格子間隔 3.2mm)を設置してある。また、液流速は、生物膜形成に影響を及ぼすと考えられる液本流の流動状態¹³⁾を層流域から乱流域にわたる $5\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ と $15\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の二種類について実験を行なった。それぞれの相当 Reynolds 数は1250と3750である。

酸素消費速度の測定 酸素消費速度は、所定の時刻に試験片を取り外して Fig. 2 の装置に装着し、溶存酸素濃度の経時変化を測定して求めた。この際の封入液には装置内を循環している液を孔径 $0.45\mu\text{m}$ のメンブランフィルタでろ過したものに基質を添加して BOD=

Fig. 2 Measurement apparatus of oxygen consumption.

221mg・l⁻¹に調整し、空気中の酸素で飽和させたもの(DO=9.0mg・l⁻¹)を用いた。なお、膜面近傍の液の平均流速は大略1 cm・s⁻¹である。

支持体の調整 用いた支持体の種類とその調整方法の概略を **Table 1** に示す。材質は硬質ポリ塩化ビニル(PVC)、ソーダガラス(G)およびポリプロピレン(PP)の3種類で、それぞれについて表面処理をしないものと化学的に処理したものを用意した。また、各支持体の表記方法は **Table 1** に示すとおりである。

化学処理による支持体の表面構造の変化は表面粗さ計(東京精密製: Surfcom 5A)で把握した。その結果の一例を **Fig. 3** に示す。この変化はいずれの材質についても類似である。 **Table 2** は **Table 1** の方法で調整し

た支持体の表面の粗さを JIS B0601-1982 に従って表示したものである。

3. 実験結果および考察

3.1 酸素消費速度による生物膜の評価

Fig. 4 は表面処理を施さない平坦な表面に形成させた生物膜の膜単位面積当りの酸素消費速度 R の経時変化である。実験開始と共に R は単調に増加し、いずれの場合も400時間前後から増減の激しい変化を示している。ポリ塩化ビニル、ガラスの場合は大略類似の挙動を示している。一方、ポリプロピレンの場合は他の二つに比べて若干低い値を示しているが、600時間程度以降では三者ともに大差はない。酸素消費速度は活性な生物量の尺度と考えられ、とくに初期付着量は大きく活性の有る生物のみとみなせるから、上述の変化は膜の生物量と平行的な変化と考えられる。この点に関しては後に示す生物膜の構造と関連して再度検討する。

Fig. 4 の場合の支持体の表面粗さは **Table 2** に示す

Table 1 Experimental conditions and preparation method of supporting substratum

〈Experimental condition〉			
Substratum	polyvinyl-chloride	glass	poly-propylene
treatment method			
flow rate $U(\text{cm} \cdot \text{s}^{-1})$	i	ii	iii
5.0	PVC(0-0) PVC(100-5) PVC(1000-5)	Glass(0)	PP(0)
15.0	PVC(0-0) PVC(1000-5)	Glass(0) Glass(30)	PP(0) PP(5)

〈procedure of substratum treatment〉

i) PVC(a-b): polyvinylchloride

CLEANING → GELATION → ROUGHENING
 H_2SO_4 : 50vol% benzene
 343K a hr. H_2SO_4 : 40vol%
 30min. CrO_3 : saturated
 b min.

→ CLEANING → WASHING
 HCl : 10vol% tap water

ii) Glass (c): glass

CLEANING → ROUGHENING → WASHING
 NaOH : 5wt% boiling HF: 15vol%
 30min. c min. tap water

iii) PP(d): polypropylene

CLEANING → PRETREATMENT →
 Aceclean A-220*: 5wt% Surf PP*: 300cm³
 323K H_2PO_4 : 200cm³
 7min. 323K
 10min.

→ WASHING → ROUGHENING → CLEANING →
 hot water tap water H_2SO_4 : 40vol%
 300~313K CrO_3 : saturated
 343K d min.

→ WASHING
 tap water

* products of Okuno Seiyaku Co.

Fig. 3 Examples of substratum surface roughness. (Vertical and horizontal scales show the roughness and the horizontal length, respectively.)

Table 2 Surface roughness of substratum (JIS B0601-1982)

substratum	key	roughness (μm)
polyvinylchloride	PVC(0-0)	0.0660
	PVC(100-5)	0.263
	PVC(1000-5)	0.844
glass	Glass(0)	0.020
	Glass(30)	0.524
polypropylene	PP(0)	0.093
	PP(5)	0.284

Fig. 4 Effect of substratum material on oxygen consumption rate of biofilm ($U=5\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$).

ように三者とも小さく、最初に付着するであろう微生物の大きさに比べて十分に滑らかである。したがって、Fig. 4の初期における差は材質が関係していると考えられる。微生物膜の初期形成は何らかの形で微生物が支持体表面に付着することであり、これは、微生物表面と固体表面の相互作用力が関係する。ポリプロピレンは他の二つに比べて疎水性が強く、(疎水性の強さの順序はポリプロピレン>ポリ塩化ビニル>ガラスである) Fig. 4における生物の初期付着では親水性の大きいものがより付着し易いという結果を示している。

Fig. 5は表面処理をしないポリ塩化ビニル支持体を

用いて同一条件下で実験を繰り返した時に測定される酸素消費速度 R の再現性を示す。Fig. 5-A の場合は Fig. 4 と同様に400時間迄は良い再現性を示す。このことは、400時間程度までは生物膜は安定な初期形成過程を持つことを意味している。一方、400時間以降では何らかの要因で生物膜の活性がランダムに変化することを意味している。この変化の要因としては、i) 形成された生物膜が剥離、再形成を繰り返す、あるいはii) 生物膜を構成する生物自身の活性が変化する、の二つが考えられるが、この点に関しては3.2節で検討する。Fig. 5-Bは表面処理をしたポリ塩化ビニルの場合であるが、ここでは、生物膜形成初期の安定な過程は100時間程度迄である。初期過程から後のランダムな過程へ移行する時点での R の値は Fig. 5-A と大略同一である。すなわち、液流速 $U=5\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ では表面が粗い支持体表面上での生物膜の初期形成過程からランダムな過程への移行はほぼ同一の生物膜量で生じている。

Fig. 6は液流速が $U=15\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合の生物膜形成過程における無処理支持体上の生物膜が示す酸素消費速度 R の経時変化である。 $U=5\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合と比べて R の増加速度は著しく大きく、支持体の材質の違いが生物膜の形成速度に影響しているように見える。疎水性の最も強いポリプロピレンは $U=5\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合と同様、生物膜形成速度が最も小さい。一方、最も親水性の強いガラスが必ずしも活性な生物膜の形成に有効ではない。生物膜の初期形成過程に及ぼす支持体表面の化学的性質の影響を親水性あるいは疎水性の観点だけから見ると、活性の高い生物膜を得るには適当な親水性と疎水性の強さのバランスが必要と考えられる。

Fig. 5 Reproducibility of biofilm oxygen consumption rate.

Fig. 6 Effect of substratum material on oxygen consumption rate of biofilm ($U=15\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$).

$U=15\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ では、いずれの場合も $U=5\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合に膜の形成過程に変化が生じ始めたと思われた R の値 ($R=0.4\times 10^{-5}$) を越えても R はさらに安定に増加する傾向を示している。この流速増加に伴う付着生物膜活性の著しい増加は、膜を構成する微生物および物質の支持体表面への付着力の強さあるいは生物膜同士の付着力の強さに関係していると考えられる。流速が大きくなると膜表面に作用する剪り応力が增大して付着力の弱い微生物の付着を妨げ、生物相の一種の選択が行なわれてより強固な生物膜が形成され、結果的に $U=5\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合より密で活性の高い生物膜が形成されていることが考えられる。一方、 U の増大と共に生物膜表面近傍の基質ならびに酸素の物質移動境界層厚みが減少することは当然考えられ、そのため生物膜表面における酸素のフラックスが増加して有効な生物膜部分が厚くなり、その結果生物膜の活性が増加したことも考えられる。これらの二点に関しては後に膜構造との関連で再検討する。

Fig. 7 は支持体 PVC について生物膜活性におよぼす支持体の表面の粗さと流量の影響との関係を示したものである。支持体表面が滑らかな程流速の影響は大きく、 U の増大で生物膜の性能は著しく増大する。表面が粗い支持体でも U の増加と共に性能の向上が認められるものの、滑らかな面の支持体の場合に比べてその程度は小さく、 $U=5\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合と表面粗さの影響は逆転している。PVC(1000-5) の表面粗さは平均で $0.844\mu\text{m}$ であり、大きな粗さは数 μm に達している。このため、幾何学的な大きさから見て、微生物あるいは膜を構成する懸濁固体がこの部分に捕捉さ

Fig. 7 Effect of substratum surface roughness on oxygen consumption rate of biofilm.

れ、これを基盤として生物膜が形成されていると考えられる。支持体表面の凹部に捕捉される生物膜構成成分は先に述べた流速による選別にはあまり関係ないと考えられるので、付着力の強さは $U=15\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合に滑らかな面へ付着した生物膜に比べて劣っていると考えられる。その結果が Fig. 7 の $U=5$ および $15\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ に於ける表面粗さの影響の逆転現象として現れたものとみなせる。

Fig. 8 はガラス支持体およびポリプロピレンの場合の $U=15\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ における酸素消費速度 R の影響を示したものである。図中の G(30) は表面粗さが $0.524\mu\text{m}$ でかなり粗く Fig. 7 と同様の傾向を示している。一方、PP(5) の場合は表面の粗さが $0.284\mu\text{m}$ で G(30)、PVC(1000-5) に比べて小さく、微生物捕捉の影響が小さかったものと考えられるが、ポリプロピレンの疎水性の強さとも関係している可能性があり、今後さらに検討する必要がある。

3.2 付着生物膜の構造による生物膜の評価

Fig. 9 は PVC(0-0) の場合の支持体表面の生物体付着状態を観測した結果の一例である。図は支持体表面から順次顕微鏡の焦点の位置を変化させてそこで認められる生物体の存在領域を写真撮影し画像処理をして領域表示したものである。図から明らかな様に、生物は膜面に一様に付着するのではなく、かなりの凹凸状に付着している。したがって、従来の生物膜の解析における膜構造を一様とした扱いでは、Fig. 9 のような不均一体を何らかの等価な一様な膜に置き換えてその特性を表わしていることになり、注意すべき点と思われる。以下では、生物膜の形成過程に及ぼす生物

Fig. 8 Effect of substratum material and surface roughness on oxygen consumption rate of biofilm.

付着の状況がどのように変化するかを支持体試験片の中央部の流れに沿った断面での分布として把握し、膜構造の経時変化を検討する。

Fig. 10 は $U = 5 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合の PVC (0-0) と PVC (1000-5) の膜構造の経時変化の例である。表面の滑らかな支持体の方が粗いものより付着速度が遅く、定性的に Fig. 5 の酸素消費速度と一致している。いずれの場合も、何等かの要因で生物が付着すると、それを核として生物のコロニーが形成され次第に膜状になっていく。しかし、この過程は必ずしも単調ではなく、単調な酸素消費速度の増加が認められた400時間迄の間でも、生物膜の構造は単調な変化をするのではなく、局所的にはかなり速い時点で生物体の脱離・再生が生じている。すなわち、再現性の高い生物膜形成

Fig. 9 Distribution of biofilm thickness.

Fig. 10 Time change of vertical biofilm structure.

の初期過程でも、酸素消費速度のような巨視的な特性を通して見ると確定論的に見える生物膜現象も微視的に見ると確率論的な過程である。また、300~400時間になると、支持体表面近傍に空洞部分が観察されるようになり、これが膜の剝離に繋がることが分る。Fig. 10 に示した過程は観測点を変化させると類似ではあるが異なった変化過程が得られる。そこで、生物膜の構造特性を把握する必要がある。

支持体表面から一定の距離 y にある平面を考える。この面内にある生物の存在領域の面積を Fig. 9 と同様のデータから算出し、支持体表面積に対する生物体存在領域の割合を生物体被覆率 $\psi(y)$ と定義し、 $\psi(y)$ の時間変化として膜の構造変化を表わす。Fig. 11 はポ

リ塩化ビニル支持体で $U = 5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ および $15 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の場合の $\psi(y)$ の経時変化を示す。図では時刻 T における $\psi(y)$ の分布の原点を時刻座標 T に置き ψ 軸を T 座標に重ねて表示してある。 $\psi(y)$ の分布は時間と共に次第に広がると同時に分布の高さが大きく (100% 近く) なって生物膜の成長と共に支持体表面が生物膜に覆われて行く過程が分る。分布の幅が突然に減少した処 (例えば Fig. 11-1 の A5~6) および分布の高さが突然に減少した処 (例えば Fig. 11-1 の B2~3) は剥離が発生したことを示している。 $U = 5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の場合には $\psi(y)$ の分布のピークは 100% に達することは少なく、常に生物が付着していない面が残っていることを示している。一方、 $U = 15 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の場合は $U = 5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の場合に比べて分布の広がり非常に広く、厚い生物膜の形成を示すと同時に、120 時間程度ではほぼ 100% 支持体表面が被覆されてしまう。これらの結果から、酸素の消費速度の増加に関する 3.1 の考察から予測された二つの要因、すなわち、活性の高い生物膜の形成と付着生物量増加の内、付着生物膜量の増加が大きな比率を占めているとみなせる。

Fig. 11 の結果をさらに巨視的な量と関連づけるために式(1)で求めた平均生物膜厚さ L について検討する。

$$L = \int_0^{\infty} \psi(y) dy \quad (1)$$

Fig. 12 に平均生物膜厚さ L の経時変化を示した。

Figs. 4~8 の結果と照合すると L の経時変化は酸素消費速度 R の経時変化と非常に良い対応関係を示している。すなわち、実験範囲内では、生物膜の機能 R は生物量と対応しているとみなせる。この点をさらに検討するため、 R と L の関係を $U = 5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ と $U = 15 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ について示したものが Fig. 13 である。い

れの場合も L が小さな範囲では R は L と共に直線的に増加し、ある L の値以上で R は一定値を示すようになる。 R が増加域から一定値を示す領域に移行する

Fig. 12 Time change of mean biofilm thickness.

Fig. 11 Time change of biofilm coverage distribution over substratum surface.

膜厚 L_m は、平均的に見て、 $U = 5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の場合は $70 \mu\text{m}$ 、 $U = 15 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の場合は $200 \mu\text{m}$ である。この限界 L_m は、生物膜を均質に生物がつまった等価な生物膜とみなした時、生物膜相における有効な膜厚さすなわち酸素が支持体表面まで拡散する限界の厚さを意味する。 $U = 5$ および $15 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ で L_m が異なっていることは、すでに述べたような生物膜の活性が生物量によるだけでなく形成された生物膜によっても異なっている可能性が高いことを示している。すなわち、液流速が大きい程活性の高い強固な膜が形成され易いことである。このことから、廃水処理における生物膜操作では、速い液流速で運転することができれば生物膜の特性の向上が期待できる。

なお、 $L = 0$ 、すなわち付着生物膜が無くても酸素消費速度 R が 0 でない有限な値が観測されている。これは支持体を酸素消費速度測定装置にセットする際実験装置内の液本体中から付着して持ち込まれた生物体、あるいは $0.45 \mu\text{m}$ のフィルターでは完全に除去しきれ

なかった浮遊生物などによると考えられる。

すでに見てきたように現実の生物膜は均一でも一様でもない。したがって、厚く形成された生物層の部分（たとえば、 $U = 5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の場合 $L_m > 70 \mu\text{m}$ ）では膜の内部で酸素の枯渇部分の生ずる可能性がある。この点を検討するために、生物膜の表面（すなわち外部水に接している部分）から L_m までが酸素が存在して好氣的に活性であるとみなし、Fig. 9 の例に示した生物量の分布において、生物相の突起部分を高さ L_m の円柱群を積み重ねた構造とみなしてその側面からも L_m の深さまでは酸素が十分存在する部分として生物膜の全体積に対する好気部分の体積の割合 η を求めてみた。Fig. 14 は活性生物相の体積比率 η の経時変化の例である。生物膜付着開始後の初期過程では生成する生物膜はすべて有効に機能しているが、 $U = 5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の場合は 400–500 時間後には有効でない部分が発生し、その後再び回復している。これは生物膜の剝離が生じて、膜厚が薄くなり生物膜の再生が行なわれたためである。一方、 $U = 15 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の場合は 100 時間後から η が減少し始めるものの実験範囲では回復は認められない。これは厚い強固な生物膜が形成されて生物膜の剝離が生じにくくなり、膜内部への酸素供給が不十分になったためと考えられる。このように剝離しにくい生物膜は好気性処理生物膜としては必ずしも全面的に有効ではないと考えられるが、脱窒などの嫌気性処理をも期待する場合には有効になる可能性がある。もし、通性嫌気性菌の強固な生物膜を形成した上に好気性菌の安定な膜を形成させることが出来ればいわば一種の複合微生物膜として機能させ得る可能性があり、今後検討してみる価値が有ると考えられる。

Fig. 13 Relationship between oxygen consumption rate and biofilm thickness.

Fig. 14 Effectiveness of biofilm.

4. 結 言

材質の異なる平らな支持体表面上に生成させた生物膜について、その生物膜活性を酸素消費速度で評価し、あわせて生物膜の物理的構造を立体的に把握し、それらの経時変化を解析して相互の関係を検討した結果、以下の結論を得た。

- 1) 付着生物膜の物理的構造は凹凸が激しく空洞なども生成し、均一でも一様でもない。
- 2) 生物膜の形成過程は巨視的には単調な膜形成過程と剝離再生を繰り返すランダムな過程から成る。微視的にみると、生物膜形成の初期の過程でも微視的な生物膜の成長・脱離が生じている。
- 3) 支持体表面が十分滑らかな場合、液流速が小さい場合は親水性の弱い支持体では付着生物膜の生成速度が遅いが、液流速が大きくなると疎水性と親水性が適度であるもの（ポリ塩化ビニル）が速い生物膜形成速度を示した。
- 4) 液流速が大きき場合の方が、より速やかに、安定で厚く、かつ活性の高い膜が形成される。また、表面が滑らかな支持体のほうが強固で活性の高い生物膜が形成される。

（原稿受理 昭和61年 6 月20日）

引 用 文 献

- 1) K. Fujie, T. Furuya and H. Kubota (1979) Effectiveness factor of microbial film in aerobic reaction. *J. Fermentation Technology*, **57** (2), 99-106.
- 2) K. Fujie, T. Sekizawa and H. Kubota (1977) Mass transfer in the liquid phase with tubular waste water treatment contactor. *J. Fermentation Technology*, **55** (5), 532-543.
- 3) K. Williamson and P.L. McCarty (1976) A model of substrate utilization by bacterial films. *Journal W.P.C.F.*, **48** (1), 9-24.
- 4) *ibid.* (1976) Verification studies of the biofilm model for bacterial substrate utilization. *ibid.*, **48** (2), 281-296.
- 5) W.G. Characklis (1981) Fouling biofilm development : A process analysis. *ibid.*, **23**, 1923-1960.
- 6) 陳重男, 松本順一郎 (1981) 傾斜板散水ろ床における生物膜の増殖特性および酸素利用特性, 下水道協会誌, **18** (209), 15-21.
- 7) N. Zilver (1979) Biofilm development and associated energy losses in water conduits. M.S. Thesis, Rice University, Houston, Tx.
- 8) M. Fletcher and G.L. Loeb (1979) Influence of substratum characteristics on the attachment of a marine pseudomonas to solid surfaces. *Applied and Environmental Microbiology*, **37** (1), 67-72.
- 9) A. Harris (1973) Behavior of cultured cells on substrata of variable adhesiveness. *Experimental Cell Research*, **77**, 285-297.
- 10) N.G. Maroudas (1975) Adhesion and spreading of cells on charged surfaces. *J. Theor. Biology*, **49**, 417-424.
- 11) K.C. Marshall, R. Stout and R. Mitchell (1971) Mechanism of the initial events in the sorption of marine bacteria to surfaces. *J. General Microbiology*, **68**, 337-348.
- 12) S.C. Dexter, J.D. Sullivan, Jr., J. Williams III and S.W. Watson (1975) Influence of substrate wettability on the attachment of marine bacteria to various surfaces. *Applied Microbiology*, **30** (2), 298-308.
- 13) 北尾高嶺 (1980) “生物膜法”, (岩井, 楠本監・著) 産業用水調査会.
- 14) K.C. Marshall and R.H. Cruickshank (1973) Cell surface hydrophobicity and orientation of certain bacteria at interfaces. *Arch. Microbiology*, **91**, 29-40.
- 15) H. Heukelekian and E.S. Crosby (1956) Slime formation in polluted waters, II. Factors affecting slime growth. *Sewage and Industrial Wastes*, **28** (1), 78-92.
- 16) T.T. Eighmy, D. Maratea and P.L. Bishop (1983) Electron microscopic examination of wastewater biofilm formation and structural components. *Applied and Environmental Microbiology*, **45** (6), 1921-1931.
- 17) *ibid.* (1971) Selective sorption of bacteria from seawater. *Can. J. of Microbiology*, **17**, 1413-1416.
- 18) J.D. Bryers and W. Characklis (1981) Early fouling biofilm formation in a turbulent flow system : overall kinetics. *Water Research*, **15**, 483-491.
- 19) Bryers, J. and W. Characklis (1982) Processes governing primary biofilm formation. *Biotechnology and Bioengng*, **24**, 2451-2476.

論文要旨

好気性付着生物膜の形成過程—酸素消費速度と膜構造による解析—

海野 肇* 橋本直樹** 明畠 高司*

* 東京工業大学大学院総合理工学研究科 化学環境工学専攻, ** 旭硝子㈱

〈水質汚濁研究 Vol.9 No.10 (1986) pp.643~651〉

化学的な処理によって粗さの異なる表面を持った三種類(塩ビ, ガラス, ポリプロピレン)の支持体を調製し, その表面に形成させた生物膜の酸素消費特性と膜の立体的な構造について実験的に検討した。

生物膜の構造は内部に空隙を持つ複雑なもので, 平面的にも立体的にも一様ではない。生物膜の形成過程は, 巨視的には, 比較的再現性の良い初期過程と, 剝離・再生を繰り返すランダムな過程とから成るが, 顕微鏡的には初期過程でも, 剝離・再生が同時に進行している。

生物膜生成過程に及ぼす液流速の影響は大きく, 液流速 $15\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の下で形成された膜は $5\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ の場合のものより厚く, 安定であった。支持体材質の疎水性の相違の影響は, 初期形成過程で見られるが, ランダム過程では少ない。支持体の表面粗さの影響は初期およびランダムの両過程で見られた。

石炭変換排水に含まれる有機化合物の微生物分解性

横田 祐司* 石崎 紘三* 田中 重信* 松山 英俊*

* 工業技術院 北海道工業開発試験所

〈水質汚濁研究 Vol.9 No.10 (1986) pp.652~660〉

石炭液化排水に含まれる12種類の主要な有機化合物の微生物分解性を合成排水で馴養した活性汚泥を用いて検討した。実験対象とした化合物はフェノール, 3種のクレゾール異性体, シクロヘキサノール, 3,5-キシレノール, アニリン, *o*-トルイジン, ピリジン, α -ピコリン, キノリンおよびピロールである。その結果以下の知見を得た。

- 1) 各化合物の微生物分解が可能な限界濃度を測定した。限界濃度は化合物によって大幅に異なり, *o*-トルイジンおよび3,5-キシレノールの $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ からピリジンの $4,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ までの範囲にあった。
- 2) 複数の化合物が共存することにより, それぞれの化合物の微生物分解限界濃度は単独の場合に示した値より低くなり, 相乗的な阻害効果があることがわかった。
- 3) 微生物を高濃度の活性阻害化合物で馴養することにより, ある程度高い耐性力が得られることがわかった。