

東京大学大学院新領域創成科学研究科
社会文化環境学専攻

2016 年度
修 士 論 文

下水の間欠接触酸化処理における
スポンジ担体の干出による酸素供給効果の検討

Oxygen Supply by Exposure of Sponge Media to Air
in Alternate Contact Oxidation Process for Wastewater Treatment

2017 年 1 月 23 日提出
指導教員 佐藤 弘泰 准教授

黒木 雄介
Kuroki, Yusuke

目次

1 はじめに.....	1
1-1 背景.....	1
1-2 目的.....	2
1-3 論文の構成.....	2
2 既往の知見の整理.....	4
2-1 間欠接触酸化法による下水処理.....	4
2-1-1 有機物除去の原理.....	4
2-1-2 微生物担体への酸素供給.....	5
2-2 関連する文献のレビュー.....	6
2-2-1 管路内下水浄化技術.....	6
2-2-2 微生物による有機物の一時貯蔵.....	8
2-2-3 付着微生物を用いた下水処理技術.....	10
2-3 まとめ.....	13
2-3-1 既存の微生物膜法との比較.....	13
2-3-2 間欠接触酸化法の特徴.....	13
2-3-3 本研究の意図と位置づけ.....	15
3 担体の内部空間の構成の検討.....	16
3-1 担体の体積の測定.....	16
3-1-1 ガラスビーズ法の原理.....	16
3-1-2 方法.....	17
3-1-3 測定精度の確認のための実験.....	17
3-2 微生物担体中の微生物量の測定.....	19
3-2-1 アルカリ分解/TN法の原理.....	19
3-2-2 TNの捕捉率の確認のための実験.....	20
3-2-3 本研究で適用する方法.....	21
3-3 担体の内部空間を占める要素の分類.....	21
3-3-1 現象面から見た分類.....	22
3-4-2 保水性の強さからの分類.....	24
3-4-3 実際の測定における分類.....	24
3-4 担体の内部空間の構成を記述するための指標.....	25
3-5 まとめ.....	26

4 共通する実験方法	27
4-1 手法上の留意点	27
4-2 装置と運転方法	27
4-2-1 装置構成	27
4-2-2 人工下水	29
4-2-3 運転方法	29
4-3 分析手法	30
4-3-1 人工下水中の有機物濃度の測定	30
4-3-2 空気の体積と酸素量の換算	30
4-3-3 気相中の酸素濃度の測定	31
4-3-4 微生物担体の内部空間の構成	31
4-3-5 微生物担体中の微生物量の測定	32
5 実験	33
A 干出時間の違いによる有機物除去への影響	34
A-1 方法	34
A-1-1 担体の内部空間の構成	34
A-1-2 通常運転時の有機物除去	34
A-1-3 異なる干出時間を設定した条件での有機物除去	34
A-2 結果と考察	34
A-3 まとめ	37
B 酸素供給経路の違いによる有機物除去への影響	38
B-1 方法	38
B-1-1 担体の内部空間の構成	38
B-1-2 通常運転時の有機物除去	38
B-1-3 酸素供給経路の一部を制限した条件での有機物除去	38
B-2 結果と考察	39
B-3 まとめ	42
C 微生物による酸素消費と有機物除去	43
C-1 方法	43
C-1-1 担体の内部空間の構成	43
C-1-2 通常運転時の有機物除去	43
C-1-3 微生物による酸素消費の測定	43
C-2 結果と考察	44
C-3 まとめ	48

D	担体の状態の時系列的変化	49
D-1	方法	49
D-1-1	気液交換率および閉塞率の時系列的変化	49
D-1-2	微生物量の測定	49
D-1-3	微生物担体の目視観察	49
D-2	結果と考察	49
D-3	まとめ	53
E	担体への物理的酸素供給速度の測定	54
E-1	原理	54
E-2	方法	55
E-3	結果と考察	56
E-4	まとめ	58
6	総合的考察	59
6-1	検討結果についての概観	59
6-2	酸素供給量のモデル化	60
6-3	間欠接触酸化法の活用と課題	62
6-4	検討手法上の制約と課題	63
7	おわりに	66
	参考文献	67
	謝辞	71

1 はじめに

1-1 背景

日本の下水道は現在、施設の老朽化、人口減少、自治体の財政状況の悪化といった厳しい状況に直面し、大きな転換期を迎えている。国土交通省が 2014 年に打ち出した新下水道ビジョンでは、効率的な維持・管理を徹底しながら、省エネ・創エネによって下水道の新しい価値の創造を目指すことが謳われている¹⁾。

日本で最も一般的に用いられている下水処理法は、微生物と下水とを反応槽中で混合して汚濁物質を除去する活性汚泥法である。有機物のみならず窒素・リン除去を同時に行う高度処理技術も開発され、活性汚泥法は急速な技術的發展を遂げてきた。しかしながら活性汚泥法の最大の問題点は、微生物が有機物を利用するのに必要な酸素を供給するため、エアレーションに多大な電力を必要とすることである。地球温暖化問題が注目され始めて久しく、上述のように下水道分野においても省エネが強く求められている。そんな中、活性汚泥法に比べてエアレーションに動力を要しない代替案として、付着微生物を用いた下水処理技術が見直されつつある。

付着微生物を利用して無曝気で有機物除去を促進できる方法として、著者並びに著者の所属する味埜・佐藤研究室では、間欠接触酸化法による下水処理を提案している²⁾。間欠接触酸化法は、微生物による有機物の一時貯蔵プロセスを利用して、微生物担体を下水と空気に交互に接触させることで有機物を酸化的に除去する方法である。有機物除去機構や酸素収支、物質輸送の現象などについて知見の蓄積が十分になされれば、曝気動力を用いない間欠接触酸化法はより広く活用される可能性がある。第 2 章で述べるように、味埜・佐藤研究室と積水化学工業株式会社は管路内で下水を浄化する技術（浄化管）を開発している。浄化管では、下水管の内部に設置した微生物担体を間欠的に下水に接触させ、間欠接触酸化法による下水浄化をおこなっている。

間欠接触酸化法を検討する上で特に重要な視点は、微生物担体への酸素供給の確保であると考えられる。なぜなら、微生物への十分な酸素供給が確保できなければ、有機物除去性能の低下につながり、この技術の最大の利点が失われてしまうからである。したがって、微生物担体への酸素供給経路を整理し、酸素供給と有機物除去との関係を明らかにすることは、間欠接触酸化法の応用のためにもきわめてクリティカルな点であると言える。加えて、付着微生物を用いた他の下水処理技術との類似性を踏まえて、間欠接触酸化法における微生物担体への酸素供給を検討することで得られる知見を付着微生物による下水処理技術に対してより一般に活用できる可能性もある。

そこで本研究は、間欠接触酸化法における微生物担体への酸素供給の影響を明らかにすることを目標とした。また、反応の場となる微生物担体の内部空間は一般に気・液・固相

が混在する複雑な状態にあるため、その状態を適切に把握・記述することも重要である。加えて、間欠接触酸化法に関してはそもそも調査のための具体的な手法の前例がないうえ、様々な手法上の制約も存在する。その点を踏まえ、本研究を通じて間欠接触酸化法についての検討手法を提示することも必要である。

1-2 目的

前節の背景を踏まえ、間欠接触酸化法における微生物担体の状態を適切に記述する手法を検討した上で、微生物担体への酸素供給についてその機構や処理への影響を調べること、またそれらの検討を通じて間欠接触酸化法に関する研究手法を確立することを目標として、本研究の目的を以下のように設定した。

- 目的 1) 微生物担体内部の空間構成を推定・記述する方法、考え方を整理する。
- 目的 2) 微生物担体の干出時間および微生物担体への酸素供給経路の違いによる酸素供給量の違いが、有機物除去に与える影響を明らかにする。
- 目的 3) 微生物担体による酸素消費を実測し、有機物除去との関係を示す。
- 目的 4) 微生物のいない担体において、物理的な最大酸素供給量を測定する。
- 目的 5) 間欠接触酸化法における干出による微生物への酸素供給について簡単なモデル化を行う。
- 目的 6) 一連の実験・考察を通して間欠接触酸化法に関する検討手法を提示し、その上で今後の検討にあたり手法上の制約や克服すべき課題を整理する。

1-3 論文の構成

以上の目的を踏まえ、本論文は図 1-1 に示す構成とした。詳細は次のとおりである。

まず第 1 章で研究の背景と目的を示した。次に第 2 章では、間欠接触酸化法に関連する既往の知見を整理し技術の特徴を述べる。第 3 章では、間欠接触酸化法のすべてのプロセスの場である担体の内部空間の構成を把握・記述する手法について検討する(目的 1)。第 4 章では、第 5 章の実験に共通する方法をまとめる。第 5 章では、担体の干出による酸素供給効果を調べるための一連の実験について述べる(目的 2~4)。実験は以下の 5 つのパートからなる：A)干出時間の違いによる有機物除去への影響、B)酸素供給経路の違いによる有機物除去の影響、C)微生物による酸素消費と有機物除去、D)担体の状態の時系列的変化、E)担体への物理的酸素供給速度の測定。第 6 章では検討の結果をまとめ総合的考察を行う(目的 5~6)。最後に第 7 章で結論と今後の展望を述べる。

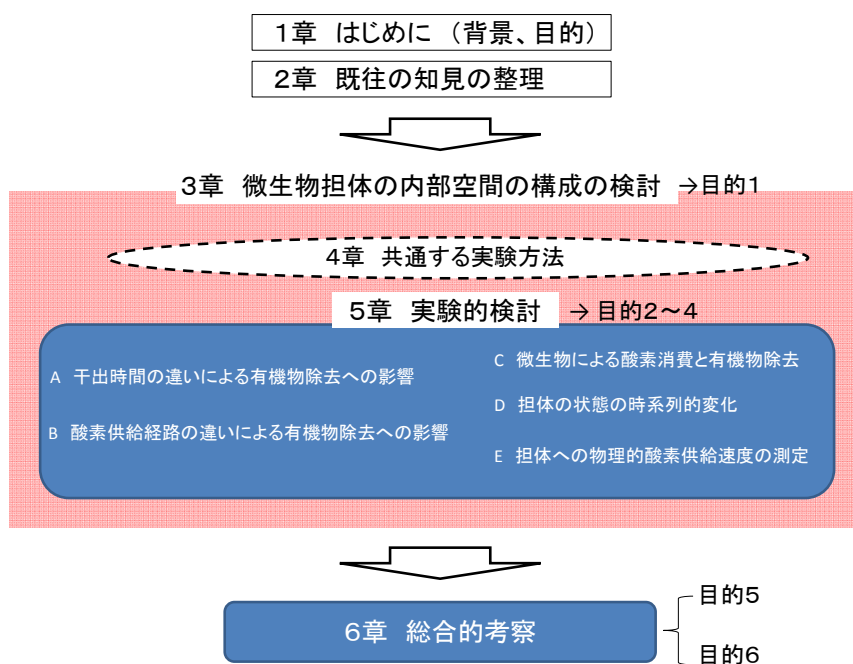


図 1-1 本論文の構成および目的との対応関係

2 既往の知見の整理

本章では、まず 2-1 で間欠接触酸化法の原理や考え方について整理する。そして、2-2 において、間欠接触酸化法に関わるいくつかの重要な側面について、既往の文献から得られた知見を整理する。最後に、2-3 で文献レビューによって得られた知見を参考にしながら間欠接触酸化法の特徴をまとめ、改めて本研究の意図を述べる。

2-1 間欠接触酸化法による下水処理

まず、本研究の主題である間欠接触酸化法による下水浄化技術について、有機物除去の原理、特徴、微生物担体への酸素供給について述べ、これまでに行った検討を整理する。

2-1-1 有機物除去の原理

間欠接触酸化法による有機物除去の原理を図 2-1 に示した。間欠接触酸化法において有機物除去を担うのは、スポンジ担体に付着・増殖した微生物である。この微生物担体が下水と空気とに交互に接触すると、次のようなプロセスが生じると考えられる。

- 1) 微生物担体が下水に浸漬しているとき、微生物は下水中の有機物を非酸化的に摂取し一時的に貯蔵する。
- 2) 微生物担体が空気に干出しているとき、微生物は空気との接触により供給される酸素を用いて、下水浸漬時に一時的に貯蔵した有機物を酸化分解して利用する。

このように、浸漬時における有機物の一時貯蔵と干出時における酸化分解をくり返すことで、動力曝気を行うことなく微生物による有機物除去を促進するのが、間欠接触酸化法の基本原理である。黒木ら(2015)²⁾は、1cm 角のスポンジ担体に微生物を馴致し、それらを人工下水と空気とに交互に接触させる運転をつづけ、担体中の一時貯蔵物質の経時変化を測定する実験を行った。そして、担体中の一時貯蔵物質は下水への浸漬中に増加し、その後担体が干出している間に徐々に減少したことを報告した。この結果は、微生物が下水と空気に交互に接触する条件下で、間欠接触酸化法の原理が実際にはたらくことを確認したものである。

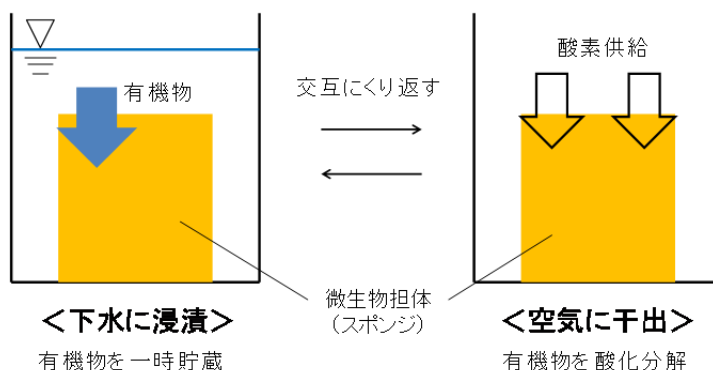


図 2-1 間欠接触酸化法による有機物除去の原理

2-1-2 微生物担体への酸素供給

間欠接触酸化法において、微生物担体への酸素供給は重要なポイントの一つであると考えられる。なぜなら、無曝気で有機物除去を促進する上で、酸素供給の不足は有機物除去性能の低下に直結すると考えられるからである。また、酸素の欠乏による嫌気化は、硫化水素の発生につながる可能性もある。

図 2-2 に、微生物担体への酸素供給と有機物除去の関係性をあらわした概念図を示した。一般には担体が下水と空気に触れる時間の間隔は必ずしも一定であるとは限らないが、この図では簡単のため、一定の時間間隔で浸漬・干出をくり返すとした。担体への酸素供給が十分なとき(青線)、浸漬時に微生物により貯蔵された有機物は十分に酸化分解され、次の浸漬時に微生物は有機物を摂取し再び貯蔵する。干出時、酸化分解の律速となるのは微生物の酸素消費活性である。一方、微生物が酸素を十分に利用できない場合(赤線)、酸素供給速度が律速となり、微生物は貯蔵した有機物を十分に酸化分解できないまま再度下水に浸漬すると考えられる。微生物が単位量あたりに貯蔵できる有機物量には上限があるので、酸素供給が不十分な状態がつづき有機物貯蔵量が上限に達すると、下水に浸漬してもそれ以上有機物を摂取できなくなる。その結果、有機物除去性能が低下すると予想される。したがって、間欠接触酸化法により安定した有機物除去を行うためには、微生物担体への酸素供給を十分に確保する必要がある。そのために、酸素供給機構について検討することが重要である。

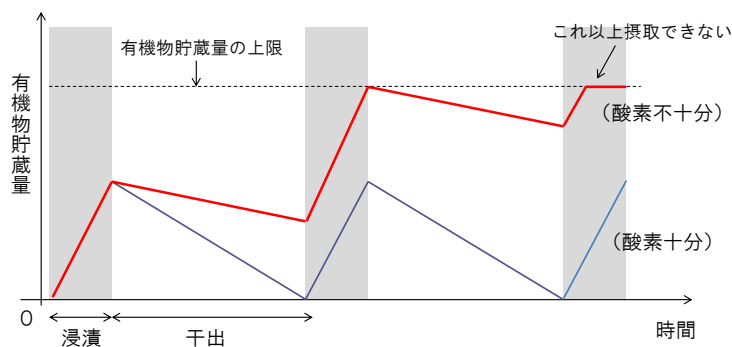


図 2-2 微生物担体への酸素供給と有機物除去の関係の概念図

図 2-3 に示したように、微生物担体への酸素供給経路は、大きく分けて、1)下水中の溶存酸素(Dissolved Oxygen = DO)による供給、2)干出中の空気の分子拡散、3)担体から水が抜ける際の空気の移流効果、の3通りに分類できる。一般に水の飽和酸素濃度は8~10mgO/L程度であり、しかも下水中ではDOが飽和濃度よりも少ない場合が多い。それに対して空気の密度を1.29g/Lとすれば、空気の体積あたりの酸素含有率はおよそ300mgO/Lである。したがって、微生物担体に十分な酸素供給を行うためには、微生物がよく空気に接触でき

るようにし、空気中からの酸素供給を促すことが重要だと考えられる。黒木ら(2016)³⁾は、微生物担体からの排水を促すことで酸素供給を促進し、間欠接触酸化法による有機物除去への影響を調べる実験を行った。この報告では、酸素供給量の違いによる明確な違いは見られなかったものの、いくつかの検討手法上の重要な課題を挙げている。

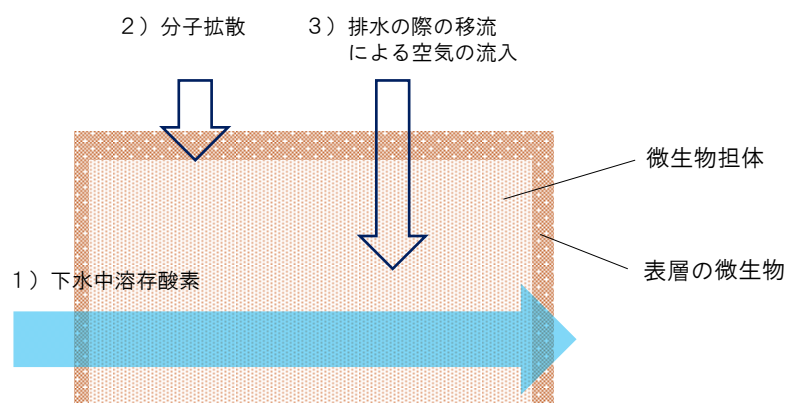


図 2-3 微生物担体への酸素供給経路

2-2 関連する文献のレビュー

本節では、間欠接触酸化法に関連する文献から得られる知見を整理する。まず第 1 項において、間欠接触酸化法を応用した下水処理技術である管路内下水浄化についての研究を見る。次に第 2 項において、間欠接触酸化法の原理に深く関係する有機物の一時貯蔵についての研究をレビューする。第 3 項では、間欠接触酸化法と類似性の高い下水処理技術として付着微生物を用いた処理法についてまとめる。

2-2-1 管路内下水浄化技術

間欠接触酸化法を応用した新しい下水処理技術の一つとして、松坂ら(2014)⁴⁾によって提案された管路内下水浄化技術がある。これは、管内に微生物担体を設置し下水浄化能力を付与した下水管＝浄化管を用いて、下水の流下と同時に有機物除去を促進する技術である。図 2-4 に管路内下水浄化技術における有機物除去の原理を示した。浄化管内部に設置された微生物担体は、流下する下水の流量変動にともない下水への浸漬と空気への干出を交互にくり返す。すると、2-1 で述べたように、微生物は下水への浸漬時に有機物を貯蔵し、干出時に酸化分解する。すなわち、間欠接触酸化法により下水中の有機物除去が促進されると予想される。また、間欠接触酸化法の条件を確保し、加えて下水の流下が妨げられることを防止するため、浄化管の内部は 2 層構造になっている(図 2-5)。この構造は、流量が一定以上になるときのみ下水が越流して担体が浸漬する仕組みになっている。

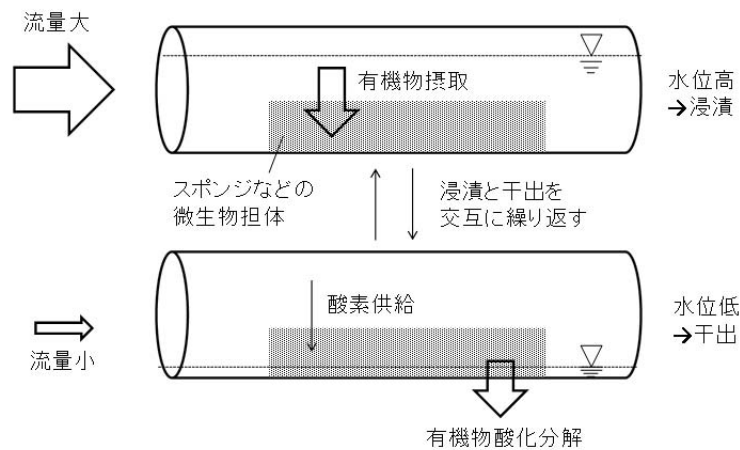


図 2-4 管路内下水浄化技術の原理

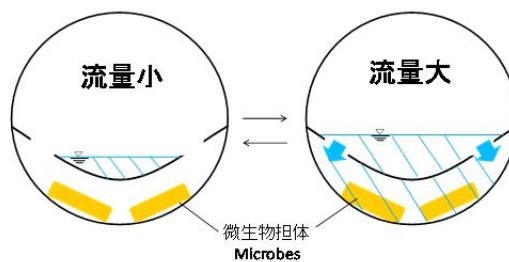


図 2-5 浄化管の内部構造

管路内下水浄化の有機物除去性能を検討するため、パイロットスケールでの実験も継続して行われている。Shoji *et al.*(2015)⁵⁾は、管路内下水浄化のパイロット実験の結果をもとに、有機物除去性能と酸素収支について詳細な検討を行っている。この報告によれば、浄化管の長さあたりの有機物除去性能は COD（化学的酸素要求量）除去速度として 12～39gCOD/m/d であり、PAC（ポリ塩化アルミニウム）の添加による凝集沈殿処理と組み合わせることにより、3.5 時間の循環運転で BOD（生物化学的酸素要求量）20mg 以下まで浄化することができたと述べられている。玉木ら(2016)⁶⁾は総延長約 1km の実証設備により 9 ヶ月間の連続運転を行い安定した処理水質を得られたことを報告しており、また庄司ら(2016)⁷⁾は浄化管による処理水および微生物担体を試料として微生物相解析を行った結果を報告している。こうした実験的検討に加えて、黒木ら(2016)⁸⁾は管路内浄化技術の検討を行う上で重要な指標を整理した上で、微生物担体への酸素供給についての考え方を提示している。

このように管路内浄化技術の研究はいくつかの切り口から実用化に向けて行われているが、そもそも通常の下水管渠において下水の流下にもなう有機物濃度の低下が起きるこ

とは、多数の既往研究により明らかにされていた。例えば、下水道管きょ学研究会 (1998)⁹⁾ によるレビューでは、4時間の滞留時間で26%のBOD低下が報告されていることや、1985年には3時間の滞留時間で20%のCOD低下が報告されていることなどを述べている。また、Raunkjear *et al.* (1995)¹⁰⁾ は、自然流下管内での下水の輸送によって炭水化物や酢酸塩、タンパク質を主としたCODの減少が見られたことを報告しているし、Chen *et al.* (2001)¹¹⁾ は溶存態有機物の減少を調査し、自然流下管内において、18分の流下で14%、40分の流下で55%の溶存態有機物濃度の減少を報告している。こうした研究を背景に、Hvitved-Jacobsen (2001)¹²⁾ は下水管渠と処理場とを一つの処理系統として捉えることの重要性を強調した上で、下水管渠内での様々な反応について整理し書籍にまとめている。

さらに、有機物濃度の低下だけでなく、管渠内での微生物のはたらきについても複数の既往研究がある。Srinanthakumar and Amirtharajah (1983)¹³⁾ は河川の自浄作用に関する研究で、浅い人工流路を用いた循環実験の結果、BODの低下は付着性の微生物によるはたらきが支配的で、それに比べて浮遊微生物の寄与は小さかったことを報告している。あるいは、Chen and Leung (2000)¹⁴⁾ は下水管内での酸素利用に関する研究で、下水中よりも堆積物中での酸素利用速度が優っていたと述べている。これらの結果は、管渠内の下水処理において、管内に付着・形成されたバイオフィルムの役割が大きいことを示唆している。Marjaka *et al.* (2003)¹⁵⁾ は、下水管内に形成されるバイオフィルムを観察したところ、バイオフィルムは高密度で嫌気的な層と低密度で好気的な層とに分かれており、その厚みは合計で2.5~5mmであったと報告している。このうち好気的な層では、溶存酸素濃度と全有機態炭素 (TOC) の減少が見られたと述べている。

このように、下水管渠内で有機物濃度が低下する現象については複数の報告があり、またそこでの微生物のはたらきについての知見もあった一方で、有機物除去を積極的に利用する具体的な試みはこれまでなかった。管路内下水浄化技術は、間欠接触酸化法の原理を応用することで、自浄作用ともいえる下水管内での有機物濃度の低下を人工的に促進し、長大なストックである下水管路網の価値を高めることを目指す技術であると捉えることができるだろう。

2-2-2 微生物による有機物の一時貯蔵

2-1で述べたように、微生物が下水中の有機物を一時的に貯蔵するプロセスは、間欠接触酸化法において重要なはたらきを担っている。微生物による有機物の一時貯蔵プロセスについては、主に活性汚泥法による下水処理に関連して多くの既往研究がある。

下水処理の過程で微生物による有機物の一時貯蔵が起こることは以前から知られており、例えばコンタクトスタビライゼーションとよばれる活性汚泥法の変法¹⁶⁾は、実質的に一時貯蔵プロセスを用いたものである。しかし、有機物の一時貯蔵プロセスがよく知られるよ

うになったのは、生物学的リン除去プロセスにおいてであろう。代表的なリン除去法として用いられる嫌気-好気法では、嫌気条件下での有機物の一時貯蔵およびリンの放出、その後好気条件下での一時貯蔵物質の酸化分解およびポリリン酸の蓄積、という機構が明らかにされている。この際、有機物が微生物に一時貯蔵される代表的な形態としては、ポリヒドロキシアルカン酸(PHA, 図 2-6)や、PHA の一種であるポリ(3-ヒドロキシ酪酸)(PHB)などがよく知られている。生物学的リン除去に関連した一時貯蔵に関する研究は最近でも行われており、例えば Rodgers and Wu (2010)¹⁷⁾ は、生物学的リン除去プロセス中で活性汚泥の PHB 生成能力を調査し、細菌の乾燥重量あたり最大 50% の PHB 含有率が見られたことを報告している。

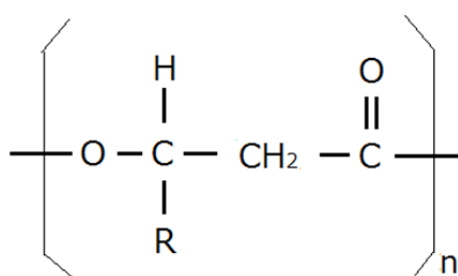


図 2-6 典型的な PHA の構造式

R には CH₃ や CH₃CH₂ などが該当する

1990 年代後半以降、生物学的リン除去以外の活性汚泥処理においても、有機物の一時貯蔵が注目されるようになった。van Loosdrecht *et al.* (1997)¹⁸⁾ は、溶存有機物の微生物による一時貯蔵および好気条件下での酸化分解というプロセスが起こることに言及し、活性汚泥法における一時貯蔵の重要性を強調するとともに、間欠的に基質が供給される SBR などでは、ポリマーの生成が促進されると報告した。あるいは Majone *et al.* (1999)¹⁹⁾ は、基質の流入量が定常でないようなダイナミックな環境下では、増殖の制約条件がなくても有機物貯蔵が行われると述べている。微生物による下水中有機物の利用経路として一時貯蔵の役割が示されてきた結果、国際水協会 (IWA) の活性汚泥モデル No.3 (ASM3) にも、微生物による有機物の一時貯蔵がプロセスの一つとして組み込まれた²⁰⁾。また、押木ら (2009)²¹⁾ は、微生物による有機物の一時貯蔵物質プロセスを利用した効率的な下水処理法 (FAREWELL プロセス) を提案している。これは、活性汚泥法で発生する余剰汚泥を下水処理系に戻し、高負荷な条件下で下水中の有機物を一時貯蔵させてから汚泥処理系に送ることで、曝気量削減とバイオマス回収量を増大するというものである。酢酸を炭素源とした実験を行い、FAREWELL プロセス導入によって、曝気量を約 1 割削減、バイオマス回収量を約 3 割増加させられると試算している。

一時貯蔵の代表的な形態である PHA に着目した研究も数多く行われている。Lee

(1996)²²⁾は PHA が生物分解性プラスチックの原料となることに注目し、PHA の構造や代謝に関する多数の既往研究を整理している。Sato *et al.* (1998)²³⁾は PHA の回収効率を向上させるための実験を行い、微好気条件の導入によって PHA 含有率を最大 62%まで高めることができたことを報告している。Takabatake *et al.* (2002)²⁴⁾ は、東京の 4 つの下水処理場から 18 の活性汚泥サンプルを採取し、酢酸を炭素源として PHA の生成能力を調査した結果、達成された最大 PHA 含有率は平均 18.8% (6.0% ~ 29.5%) であったと報告している。押木ら (2009)²⁵⁾は PHA 生成についての既往の実験結果を整理した上で、標準活性汚泥法またはオキシデーションディッチ法を採用している 7 ヶ所の都市下水処理場から採取した活性汚泥を用いて、PHA の生成を調査した。その結果、オキシデーションディッチ法に比べ標準活性汚泥法の汚泥では PHA 濃度の激しい増減が見られたこと、溶解性 COD の除去に対して PHA の生成が大きく寄与する場合とまったく寄与しない場合の両方が見られたことを報告している。さらに Morgan-Sagastume *et al.* (2014)²⁶⁾は実際の下水と人工的に調製した下水を用いて PHA の生成を調べた結果、易分解性有機物では PHA が生成されたが遅分解性有機物では PHA 生成が見られなかったと述べている。また、揮発性脂肪酸が豊富な人工廃水では 52%の PHA 含有が見られる一方、実廃水に対しても feast-famine な環境 (短時間の基質豊富な状態の後に十分な時間の基質欠乏状態を与えるというサイクルを繰り返すような環境) で培養された微生物群は、34%の PHA 含有率を示したことを報告している。

以上のように有機物の一時貯蔵に関する研究は豊富に存在するものの、そのほとんどが活性汚泥法における研究である。間欠接触酸化法はもとより、付着微生物を用いた方法において一時貯蔵物質に注目した研究はなく、間欠接触酸化法に関して検討を行う上では今後重要な課題となりうる。

2-2-3 付着微生物を用いた下水処理技術

間欠接触酸化法に類似性のある技術として、本項では、付着微生物を用いた下水処理法(以下「微生物膜法」と呼称)のうち、微生物が空気に直接さらされる状況が生じうるものに関しての既往研究をレビューする。

微生物膜法を含む好気性の生物処理の発展の経緯については、北川(2010)²⁷⁾が分かりやすくまとめている。古くから用いられてきた微生物膜法のひとつとして、散水ろ床法がある。散水ろ床法は、砕石や砂利などをろ材として敷き詰めた装置に下水を散水することで、ろ材の表面に付着・増殖した微生物膜による下水の処理を促す処理方法であり、下水は回転する散水機から散水される。散水機の通り過ぎた後、短い時間だがろ床は空気にさらされる。Seguret *et al.*(1999)²⁸⁾は、散水ろ床法を採用している実処理場で滞留時間などの測定を行い、モデルによる水質予測結果との整合性を検証しているし、Kornaros and

Lyberatos(2006)²⁹⁾は、有機系の染料を含む廃水処理に散水ろ床法が適用できるかを検証し、生物分解性の有機物について高い除去性能を示したことを報告している。Daigger *et al.*(2011)³⁰⁾は、このような散水ろ床法に関する知見を整理し、散水ろ床法に用いられる担体や、微生物反応のための酸素供給、硝化反応の進行などについて言及している。日本では、国内初の近代下水処理場である三河島下水処理場において散水ろ床法が用いられるなど、下水道の普及初期には一般的に使われていた。だが、ろ床バエの発生などの問題点もあって、活性汚泥法の急速な普及にともなって徐々に採用する処理場が減少し、現在ではほとんど利用されていない。しかし、下水処理の省エネ化を目指す近年の傾向を背景に、新たな形で散水ろ床法を利用する技術も提案されている。例えば、国土交通省の下水道革新的技術実証事業(B-DASH プロジェクト)の一環として高知市、メタウォーター株式会社が共同で開発・実証実験を行っている無曝気循環式水処理技術では、生物ろ過と散水ろ床法を組み合わせることで、曝気に要する電力を大幅に削減可能であることを報告している。

31)

散水ろ床法に類似した処理技術として、近年研究開発が行われている DHS(Down-flow Hanging Sponge)法がある。DHS 法は、円筒状の反応装置に充填した多数のスポンジに下水を流下させることで、スポンジ上の付着微生物のはたらきにより下水中の有機物除去を促進する方法である。Onodera *et al.* (2014)³²⁾は UASB 法(Upflow Anaerobic Sludge Blanket)の後段処理として DHS 法を導入するプロセスを提案している。同じグループによる研究で、UASB-DHS 法において微生物相解析を行った結果や、DHS リアクターでの水の流れと酸素の供給特性についての検討についても報告されている^{33) 34)}。また、途上国の水環境が厳しい一方で活性汚泥法の導入が種々の要因から困難であることを指摘し、機械的エアレーションを用いない点、オペレーションが簡単な点などの DHS 法の特徴が途上国での導入に適していると述べている³⁴⁾。

散水ろ床法以外に代表的な微生物膜法の一つとして、1970 年頃から普及した回転円板法が挙げられる。回転円板法は、微生物を付着させた円板状の担体を下側が下水に浸漬した状態で回転させることにより、微生物を下水と空気に交互に触れさせて下水処理を促進する方法である(図 2-7)。Patwardhan(2003)³⁵⁾は、回転円板法に関する様々な研究をレビューし、使用される担体、流体力学的理論、エネルギー消費、微生物膜の界面における現象、微生物膜の剥離、処理性能への影響因子、水質予測モデル、装置設計、といった様々な知見についてまとめている。そして、回転円板法の特徴として、回転速度に依存せず微生物膜上の界面面積を大きくできるために、エネルギー消費量が活性汚泥法などに比べて小さく抑えられること、などの利点を挙げている。また、最近では Hassard *et al.*(2015)³⁶⁾も回転円板法に関連する既往の研究を整理し、上記のような利点を述べるのに加えて、回転円板法における窒素・リン除去の試みなどの最新の知見についても言及している。

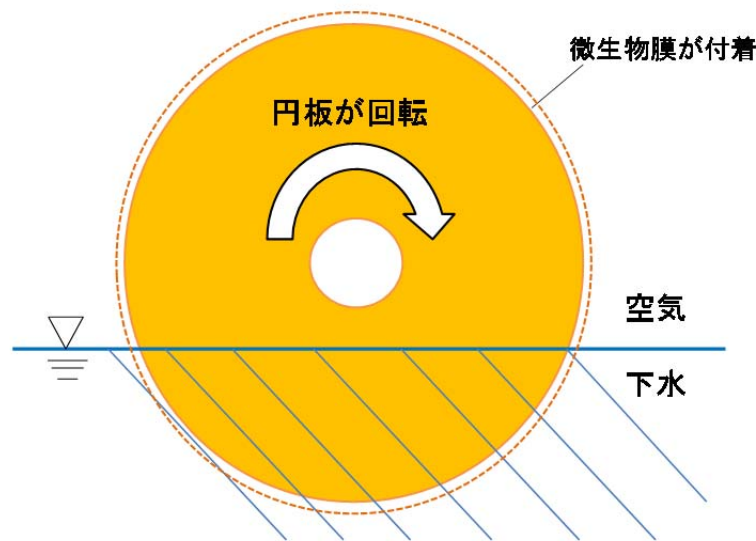


図 2-7 回転円板法の概略図

回転円板法に関するトピックとしては、酸素供給機構や物質輸送についての研究も複数見られる。渡辺ら(1983)³⁷⁾は、回転円板法が化学工学分野と污水处理分野の双方で用いられていることを述べ、比較的回転速度が小さい場合の酸素供給機構について、微生物膜が存在する場合としない場合とに分けてモデル化と実験的検討を行っている。西留ら(1997)³⁸⁾は、回転円板の付着微生物膜における輸送現象について、濃度勾配による拡散だけでなく液相における移流を考慮に入れたモデルを提示し、有機物濃度および酸素濃度分布のシミュレーションと実測値を比較している。Kubsad *et al.*(2004)³⁹⁾は回転円板法における酸素輸送に関して物理的、生物学的な知見が十分でないことを指摘し、Kim and Molof(1982)³⁷⁾のモデルをもとにした新しいモデルを用いて、総括酸素移動容量係数 $K_L a$ が高い精度で予測できたことを報告している。

微生物膜法による下水処理技術は、活性汚泥法に対して比較的低エネルギー・低コストの代替案として提案・研究されることが多く、実際に使用されている例もある。しかし、日本では集約化・処理の高度化の方向性の中で、1980年代以降実処理のレベルではあまり積極的に活用されてこなかった。しかし、散水ろ床法に関連して述べたように、下水処理についても省エネ志向が高まる中で、新たな処理方法や既存技術の適切な組み合わせによる利用方法がいくつも提案され、微生物膜法が再注目されつつある。間欠接触酸化法をこうした中で適切に位置付けることで、実処理レベルへの応用や、検討により得られる知見の微生物膜法一般への応用が可能になるだろう。次節では、本章のまとめとして、散水ろ床法や回転円板法と間欠接触酸化法の類似点や相違点に触れ、間欠接触酸化法の特徴を述べる。

2-3 まとめ

間欠接触酸化法も前節に見たような付着性微生物を用いた下水処理技術に分類される。ここまでのレビューを踏まえ、第 1 項では散水ろ床法や回転円板法と間欠接触酸化法との類似点と相違点について述べる。そして第 2 項では間欠接触酸化法の特徴を整理する。そして第 3 項で、既往の知見を踏まえたうえでの本研究の意図と位置づけを改めて述べる。

2-3-1 既存の微生物膜法との比較

散水ろ床法では基本的に浸漬/干出というようなプロセスの区分はなく、定常運転に近い形で処理を行っている。しかし実際には担体上の微生物は常に下水に触れている状態ではなく、下水に接触する時間と空気に触れる時間とに分かれていると予想される。その意味で、間欠接触酸化法のプロセスに近い現象が起きている可能性は十分にあるだろう。散水ろ床法に類似した DHS 法でも同様に、担体としてスポンジを用いる点も含めればさらに類似性は高い。ただし、上に述べたようにこれらの方法では浸漬/干出の明確な区分はなく、また有機物貯蔵の観点から反応機構を追究したような研究は見られない。

回転円板法では、担体表面に付着した微生物膜が、円板の回転によって下水への浸漬と空気への干出フェーズを交互にくり返す。この運転は間欠接触酸化法のプロセスと類似性が高く、実際、下水に浸漬と干出にともなって有機物の一時貯蔵と酸化分解のプロセスがはたらいっている可能性はある。そうした意味では、既存技術の中で間欠接触酸化法に最も近い処理法と考えられ、例えば有機物除去機構や性能の評価指標といった点で知見を活かすことができる可能性がある。

そうした類似性の一方で、大きな相違点を 2 つ挙げることができる。1 つは担体の違いである。運転時間の違いである。回転円板法の回転速度は 0.7~2.0rpm⁴⁰⁾あるいは 1~10rpm³⁵⁾といった速度であり、毎分 1 回以上浸漬と干出をくり返す運転である。一方間欠接触酸化法では、少なくとも数分のオーダーで浸漬と干出のフェーズが生じることを想定しており、一時貯蔵と酸化分解の時間が明確に意識されている。もうひとつは、酸素供給機構の違いである。両方法ともに干出時の酸素供給を想定している点は共通だが、回転円板法では微生物の薄膜への分子拡散による酸素の溶解を期待している。対して間欠接触酸化法では、干出により担体から水が抜ける際に空気が担体中に流入する機構を想定しており、設計思想が異なることが分かる。

2-3-2 間欠接触酸化法の特徴

前項の比較を踏まえつつ、本項では間欠接触酸化法の技術的特徴を、微生物担体に関する特徴と運転上の特徴に分けて述べる。また、間欠接触酸化法と関連性の高い管路内浄化技術への適用を意識した視点からも言及する。

a) 微生物担体：スポンジを用いることによる特徴

付着微生物を用いる下水処理技術では、当然ながら微生物が付着するための担体を用意する必要がある。間欠接触酸化法においては微生物付着担体として、ポリエチレンやポリウレタンなどの素材でできた連続気泡のスポンジを想定している。スポンジは内部に多数の微細気泡による空隙を有し、それによって、大きな表面積により微生物を高密度で保持できる(微生物量の確保)、表面張力および毛管現象による高い保水性を有する(下水と微生物との接触時間の確保)、といった特徴を持つ。その一方で、微生物の生長により過度な閉塞が生じると、物質交換や酸素供給の効率が大幅に低下し、有機物除去が滞って内部の嫌気化を招く恐れがある。閉塞により酸素供給が不十分になる可能性がある、という点は間欠接触酸化法の最大の懸念事項の一つであり、今回微生物担体への酸素供給に注目した研究を行う理由の一つでもある。

さらに、間欠接触酸化法における微生物担体の大きな特徴は、内部空間が非常に複雑であり、しかも固相・液相・気相がそれぞれ空間の一部を占めて混在していることである。特に、鉛直方向の水の抜け方の差によって顕著に内部の状態に偏りが生じると考えられる。すなわち、スポンジの上の方では水が抜けやすく、一方底面では水抜けが悪い。それにより、活性汚泥法のような比較的均一な系に比べて、種々の反応が生じる前提となる状態を適切に把握することはより難しい。一方で担体空間の複雑さと不均一さは、原生動物をはじめとした高次の生物を含む多様な生態系の形成を促す可能性がある。その場合、食物連鎖によって汚泥量が適切に保たれ閉塞状況が緩和されることや、難分解性有機物など汚濁物質の多様性に対して許容範囲が広がることなど、間欠接触酸化法の価値を高めるような効果が期待できるかもしれない。

b) 運転上の特徴：浸漬/干出のフェーズ区分

間欠接触酸化法の利点は、動力曝気を行わずに有機物除去を促進する点である。そのために、「有機物と酸素をともに下水中から供給する」という考え方ではなく、「まず浸漬により微生物に有機物を摂取させる」「干出により酸素を供給し酸化分解を促す」というように、2つのフェーズを明確に分離する発想で設計されていることが、間欠接触酸化法の最大の特徴と言える。この浸漬/干出という明確なフェーズ区分は、3つの意味を持っている。1つは、有機物の「摂取・貯蔵」と「酸化分解」を時間的に分離することにより、有機物除去に要する時間の実質的な短縮を可能にしていること。2つ目は、空気との接触による酸素供給の効率化。3つ目は、有機物貯蔵能力の高い微生物の優占を促すこと、である。間欠接触酸化の2つのフェーズに起こる現象理解、知見の蓄積がより進むことで、こうした設計思想や独自性を最大限に活かすことができる。

c) 管路内浄化技術への適用

間欠接触酸化法は元々管路内下水浄化における浄化管への適用を強く意識しており、そ

れが技術の特徴となっている面が大きい。浄化管による有機物除去の最大の要請は、不規則に自然流下してくる下水に対して、制御なしに、すなわち置いておくだけである程度の有機物除去を実現することである。その要請が、微生物を保持するための担体、間欠的な下水の流入による浸漬/干出のフェーズ区分、といった特徴につながっている。そうした意味で、本研究は浄化管による下水処理機構を抽出して詳細に検討するものであるとすることができる。

2-3-3 本研究の意図と位置づけ

間欠接触酸化法のプロセスは「浸漬による有機物貯蔵」「干出による酸素供給を利用した酸化分解」の 2 つのフェーズから成り立っている。このうち前項で触れたように、活性汚泥法や他の微生物膜法の技術と比べてより特徴的なのは後者であろうと思われる。特に浄化管への適用を念頭に置くと、酸素不足になる状況は容易に想像でき、その場合有機物除去性能の低下と硫化水素の発生を招くと予想される。したがって、担体の干出による微生物への酸素供給効果を検討しておくことは、間欠接触酸化法の活用に向けて重要な課題である。加えて、間欠接触酸化法における有機物除去や酸素の供給・消費といった現象を理解するためには、それらのプロセスが起こる複雑な場である担体の内部空間がどのような状態にあるかを押さえなければならない。そこで、担体の状態を把握・記述するための手法についても検討が必要である。

3 章から 6 章の検討は以上のような事情・背景にもとづいている。間欠接触酸化法は特にその干出フェーズのはたらきにおいて特徴的であるが、担体の内部空間や担体中への酸素供給に関する検討は、他の技術に対しても応用可能な場合もあるかもしれない。

3 担体の内部空間の構成の検討

前章に述べたように、間欠接触酸化法においてはプロセスの場となる微生物担体の内部空間はきわめて複雑になると考えられる。したがって、スポンジ担体の内部空間の構成、すなわち内部に存在する各要素(水、空気、微生物)がそれぞれ空間内に占める割合を可能な範囲内で把握し適切に記述することは、間欠接触酸化法における種々の現象を捉える上で非常に重要である。そこで本章では、担体の内部空間の構成を把握するために必要な基本的な手法を提示し、内部空間の構成を記述するための指標を検討する。なお、ここでは担体として連続気泡ポリエチレンスポンジを用いた。

3-1 担体の体積の測定

スポンジ担体の体積はきわめて基本的な情報である一方で、スポンジ特有の性質により体積を正確に把握するのは難しく、したがって測定方法を確立する必要がある。今回は、以下に記すガラスビーズ法によるスポンジ担体の測定方法の適用を試みることにした。本節ではその原理と方法、および適用のために必要な予備試験について述べる。

3-1-1 ガラスビーズ法の原理

上に述べたように、スポンジの体積を把握するにあたっては、測定を困難にする特徴がいくつかある。例えば、内部に水を保持する空間を有しているために、剛体のように押しのけた水の体積によって体積を測定することはできない。また、サンプルによって形状が異なることが予想されるため、各辺の長さを測る方法も一般的には使えない。あるいは、スポンジの平均的な密度を用いて質量から体積を求める方法も考えられる。この方法は微生物の生長していないスポンジには適用できるが、微生物担体に対しては微生物の付着量によって密度が変わってしまうため適用できない。

そこで今回は、ガラスビーズを用いてスポンジの体積を測定する方法(ガラスビーズ法)を考案した(図 3-1)。これは、容積一定の容器にスポンジとガラスビーズを隙間なく充填し、その重さを測定することにより、スポンジにより押しつけられたビーズの量からスポンジの体積を算出する方法である。この方法の利点は、簡易に、スポンジの形状によらず、また内部空間の影響を受けずに測定可能なことである。

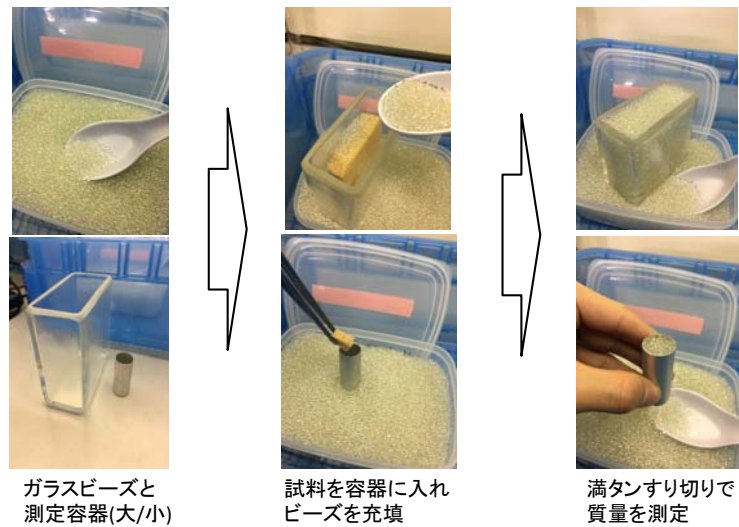


図 3-1 ガラスビーズ法によるスポンジ体積の測定の様子

3-1-2 方法

ガラスビーズ法の操作手順の詳細を以下に記す。なお、実験に用いたガラスビーズは、三商ガラスビーズ No.2(粒径 1.5~2.5mm)であった。

- 1) 使用するガラスビーズの比重を測定する。
- 2) 測定に使用する適当な大きさの容器にガラスビーズを充填し、その重さとガラスビーズの比重から容器の体積を算出する。
- 3) スポンジ試料を容器に入れ、隙間の生じないようにガラスビーズを充填し、合計の重さを測定する。
- 4) 2)および 3)の結果から、スポンジ試料の有無による重さの差を求め、それによりスポンジの体積を算出する。

3-1-3 測定精度の確認のための実験

ガラスビーズ法による測定の精度をたしかめるため、適当な大きさのスポンジを用意してガラスビーズ法により体積を測定し、各サンプルについて測定の平均値に対する標準偏差の割合を求めた。今回の測定では、2種類の大きさの容器を用い、各容器に対して3つのスポンジ片を用意し、それぞれガラスビーズ法で5回ずつ体積の測定を行い、平均値と標準偏差を求めた。その結果を表 3-1 に示す。

表 3-1 ガラスビーズ法によるスポンジ体積の測定結果

	サンプル	測定値(mL)	平均値(mL)	標準偏差(mL)	標準偏差/平均値(%)
容器大	1	98.61	97.28	1.05	1.08
		95.94			
		96.61			
		97.28			
		97.94			
	2	97.20	96.40	0.56	0.58
		96.53			
		96.53			
		95.87			
		95.87			
	3	91.75	92.02	0.37	0.40
		91.75			
		92.42			
		91.75			
		92.42			

	サンプル	測定値(mL)	平均値(mL)	標準偏差(mL)	標準偏差/平均値(%)
容器小	4	1.23	1.10	0.074	6.78
		1.07			
		1.04			
		1.09			
		1.06			
	5	1.06	0.98	0.062	6.30
		0.99			
		1.00			
		0.96			
		0.89			
	6	1.01	0.97	0.047	4.92
		1.00			
		0.96			
		0.96			
		0.89			

体積が 90~100mL 程度のスポンジ(サンプル 1~3)については、標準偏差が平均値に対して 1%程度に収まっており、高い精度で測定が可能であると言える。また、体積が 1mL 程度の比較的小さなスポンジ片(サンプル 4~6)の測定では、サンプル 1~3 に比べればややばらつきが大きいものの、平均値に対して標準偏差が数%程度であり、ガラスビーズ法を適用できると判断した。

3-2 微生物担体中の微生物量の測定

活性汚泥法において、微生物量は主に MLSS の測定により行われる。均一なサンプルが容易に得られるため、常時モニタリングする指標となっている。一方間欠接触酸化法では、担体への微生物の付着状態が不均一である上、微生物だけを担体から剥離することは難しく、担体中の微生物量を把握することは活性汚泥法に比べきわめて困難である。そこで、以下に述べるアルカリ分解/TN 法による微生物量の推定方法の適用を試みることにした。本節ではその原理と方法、および微生物担体サンプルへの適用にあたり測定精度をたしかめるための実験について述べる。

3-2-1 アルカリ分解/TN 法の原理

アルカリ分解/TN 法の測定の概要を図 3-2 に示した。微生物試料を水酸化ナトリウム水溶液などの強アルカリの中で加熱すると、加水分解によりタンパク質を構成していた窒素が液相に溶出する。したがって、加熱分解後の溶液中の全窒素(TN)を測定し、微生物菌体の典型的な分子式を仮定すれば、TN の測定値から微生物の乾燥重量を見積もることが可能である。この方法を用いれば、担体から微生物を剥離することなく、担体ごとサンプリング・前処理を行って分析を行うことができる。また、本研究で用いるスポンジはポリエチレン製であり、加水分解を受けない。そこで今回はアルカリ分解/TN 法を微生物担体に対して適用することを考案した。すなわち、微生物担体の一部を切り出し、微生物菌体を担体ごとアルカリ溶液中で加熱処理し、溶液中の TN を測定することにより、担体中の微生物量を算出することができる。ただし、担体の一部を切り出し破壊的に測定する方法であるため、頻繁な測定が難しいことが留意点として挙げられる。

さらに、微生物の含水率および微生物の湿潤状態での比重を仮定することにより、乾燥重量から湿潤状態での質量および体積を推定することもできる。ただしその際には、汚泥含水率の設定により推定値に大きな誤差が生じることに注意が必要である。

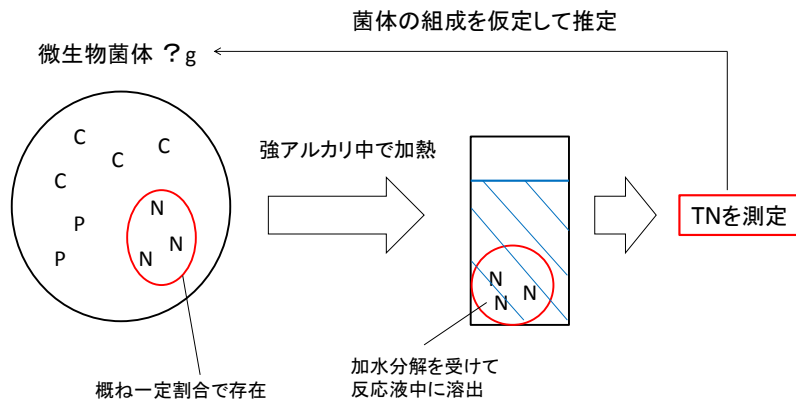


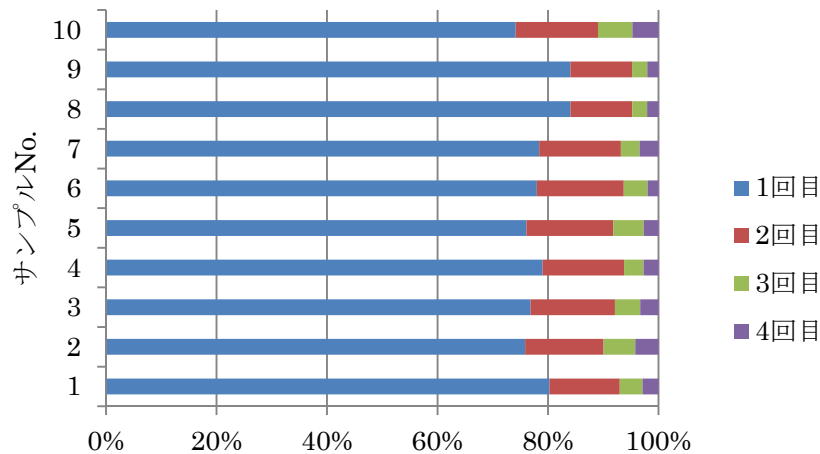
図 3-2 アルカリ分解/TN 法による微生物量の推定方法の概要

3-2-2 TN の捕捉率の確認のための実験

アルカリ分解/TN 法による測定において懸念されるのは、担体内部に微生物が存在するため、TN を十分に分解、検出しきれないことである。そこで、測定精度をたしかめるため以下のような実験を行った。

- 1) 本研究で実際に測定する試料の体積はおよそ $1\sim 2\text{cm}^3$ なので、それに類似した大きさとして、 1cm 角のスポンジ担体を 10 個用意し、微生物を増殖させた。これを十分に乾燥させ、測定試料とした。
- 2) 2N 水酸化ナトリウム溶液 2.5mL の入った容量約 15mL のガラス試験管に 1) の試料をそれぞれ入れ、超純水 5mL を加えて攪拌する。
- 3) 2) の試験管を 105°C のオーブンで約 1 時間加熱する。
- 4) 3) の試験管をオーブンから取り出し、放冷する。
- 5) スポンジ担体をよく絞ってから取り出す。
- 6) 4) に 5N 硫酸 1mL を加え中和する。その後超純水 1.5mL を加え全量を 10mL とする。
- 7) 6) の溶液を適宜希釈して TN 測定用サンプルとし、島津 TOC-V(TN 測定ユニット付)により TN を測定する。
- 8) 5) で取り出したスポンジ担体中の TN を、2)~6) の手順で再び測定する。この TN の測定を合計 4 回くり返す。

アルカリ分解/TN 法による TN の測定を 4 回繰り返し、各回の測定値が合計値に占める割合を求めた。その結果を図 3-3 に示す。10 個のサンプルいずれにおいても、1 回目の測定で 4 回合計値の 8 割前後の値を示している($79.0\pm 3.3\%$)。そこで今回は、1 度目の測定値に係数 $1.27(=1/0.79)$ を掛け合わせることで、TN の測定値とすることとした。



各測定回のTN測定値 / 測定合計値 (%)

図 3-3 測定回数と TN の補足率

3-2-3 本研究で適用する方法

前項の検討を踏まえ、本研究において採用したアルカリ分解/TN 法による担体中の微生物量の推定手順を、以下に示す。なお、微生物菌体中における窒素含有率は、質量比で 0.12 とした⁴²⁾。

- 1) 微生物担体を 1~2cm³ 程度の大きさを切り出し、軽く水を切ったあと、後に測定値を担体の体積あたりに換算するため、ガラスビーズ法により体積を測定する。
- 2) 2N 水酸化ナトリウム溶液 2.5mL の入った容量約 15mL のガラス試験管に 1) で採取した微生物担体試料を入れ、超純水 5mL を加えて攪拌する。
- 3) 2) の試験管を 105°C のオーブンで約 1 時間加熱する。
- 4) 3) の試験管をオーブンから取り出し、放冷する。
- 5) 4) に 5N 硫酸 1mL を加え中和する。その後超純水 1.5mL を加え全量を 10mL とする。
- 6) 5) の溶液を適宜希釈して TN 測定用サンプルとし、島津 TOC-V(TN 測定ユニット付) により TN を測定する。3-2-2 より、この測定値に 1.27 をかけ、反応液の容量をかけ合わせて試料中の TN の値とする。
- 7) 6) の結果を 1) で測定した体積の値を用いて、担体体積あたりの TN 量を求める。
- 8) 担体体積あたりの TN 量を微生物菌体中の窒素含有率 0.15 で除して、担体中の微生物の乾燥重量とする。
- 9) 微生物の含水量および比重を仮定し、8) の結果から微生物の湿潤状態での重さと体積を算出する。

3-3 担体の内部空間を占める要素の分類

担体の内部空間の構成を把握するための考え方は、空間を占める要素の分類方法によっ

て異なる。そこで、第 1 項では保水効果の要因となる現象での分類、第 2 項では保水性の強さから見た分類を行い、第 3 項では実際の測定時において把握するレベルでの内部空間構成要素の分類を考える。

3-3-1 現象面から見た分類

ある状態での微生物担体内部の空間を占める要素としては、「スポンジ担体の素材」「水および微生物」「空気」の 3 つに分類される。

a) スポンジ担体の素材

今回使用したスポンジの素材であるポリエチレンによって占められる空間は、およそ 3% 程度である(4 章で述べる)。すなわち、見かけ上の体積のうち、約 97% が内部空間として以下の要素に占められることになる。

b) 毛管現象により保持される水

ストローやガラス管などの細い管(毛細管)を液体に浸すと、その液体自身の表面張力により、毛細管をつたって液面が上昇する。これを毛管現象(または毛細管現象)という。スポンジが水を吸い上げるのも、スポンジ内部に存在する多数の微細な空隙により毛管現象がはたらくためである。毛管現象による液面上昇高さは、次の式で表されることが知られている。

$$H = \frac{2T\cos\theta}{\rho gr}$$

H : 液面上昇高さ(m) T : 表面張力(N/m) θ : 接触角(rad)
 ρ : 液体の密度(kg/m³) g : 重力加速度(m/s²) r : 管の内径(m)

毛管現象による液面上昇高さは表面張力に比例し、液体の密度と毛細管の内径に反比例する。この式から分かるように、毛管現象による保水効果は水の量ではなく液面高さによって表されるので、同じ状態のスポンジを用いる限り、その置き方に関わらず H は一定である。すなわち、底面積が大きくなるようにスポンジを置けばスポンジ中に保持される水量は大きくなるし、スポンジ底面から高さ H までの体積が小さくなるように傾ければ、その分余剰な水は抜けていく。この性質は、間欠接触酸化法における担体の状態を考える上で注意すべき重要な点であると言える。

c) 表面張力により保持される水

毛管現象による吸い上げ高さよりも高い位置でも、スポンジから完全に水が抜けるわけではない。この水はスポンジの表面張力によって保持されており、静置した状態において

簡単に抜けていくことは通常ないと考えられる。

d) 微生物菌体により保持される水

担体に生長する微生物は、通常高い割合で水を含んだ湿潤状態で存在する。その含水率は概ね8割以上であり⁴³⁾、高い保水性を有するため、容易には排除されない。

e) 水と空気とが交換可能な空間

排水時に担体から水が抜けて生じた空間には、外部から空気が流入する。この空気の体積が、そのときの担体の状態において、担体静置時に通常水と空気が交換可能な空間の大きさであると言える。したがって、微生物担体への酸素供給を考える上では、この体積を把握することは重要である。

これらの要素を図3-4に示した。スポンジ担体中に微生物が存在しない場合、担体の内部空間を占める要素は、スポンジの素材、表面張力により保持される水、毛管現象により保持される水、水と空気が交換可能な空間、となる(図3-4左)。毛管現象のはたらく高さまでは水が吸い上げられ保持されるが、高さがそれ以上の場所では概ね表面張力による水の保持が支配的となる。よって、気液交換率は垂直方向の高さにより変化すると予想される。

微生物が生息している担体の場合、担体の内部空間を占める要素は、スポンジの素材、表面張力により保持される水、毛管現象により保持される水、微生物菌体により保持される水、水と空気が交換可能な空間、に分類できる(図3-4右)。微生物が存在しないときと同様に、毛管現象により水が保持される高さに応じて、垂直方向に空間構成の差が生じる。一方、担体内に微生物が生長することにより担体内部の空隙が減少するため、毛管現象により保持される水量は担体内部の微生物量と負の相関を持つと予想される。したがって、担体内部の空間構成は、微生物量および底面からの高さの関係によって決定されることができると考えられる。

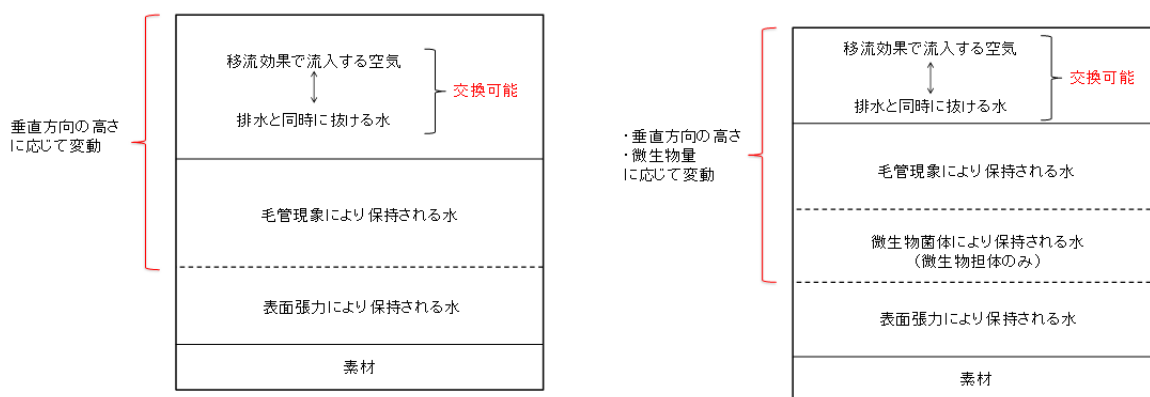


図 3-4 担体内部の空間構成の概念図 (現象面での分類)
(左：微生物なし 右：微生物あり)

3-4-2 保水性の強さからの分類

前項ではスポンジ担体による保水効果の要因となる現象から分類を行ったが、実際には表面張力による保水効果 / 毛管現象による保水効果 / 微生物菌体による保水効果を測定の上で厳密に分離・区別することは難しい。そこで、スポンジ担体中の水の残り方から内部空間の構成要素を分類したのが図 3-5 である。まず排水と同時に抜ける水が一定量あり、これが空気と交換される。次に、排水後の担体を斜めに傾けたり違う向きに転倒させることで、さらに水が抜ける。これは主に毛管現象により保持されていた水が、吸い上げ高さの基準面が変わったことにより抜けるものである。それでも残存する水の一部は、強く絞る、遠心分離を行う、という強い力を加えることでさらに脱水される。これは、スポンジの内部空間表面を覆う水分が排水されることよると予想される。ただし、それでもスポンジ担体は完全に乾くわけではなく、最後は数日乾燥させることでようやく乾燥状態になる。最後まで残留している水は、微生物およびスポンジの表面張力によって強力に保持されていると考えられる。

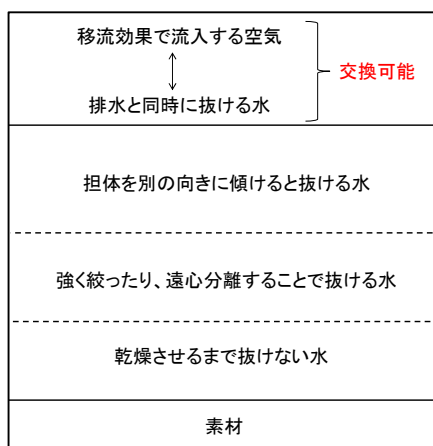


図 3-5 担体内部の空間構成の概念図（保水性からの分類）

3-4-3 実際の測定における分類

スポンジ担体内部の空間は前の 2 項に述べたような構成であると考えられるが、実際には、静置された状態で担体中に保持されている水の内訳を上記のように区別して測定することは、不可能ではないが通常困難である。そこで、本研究における微生物担体の内部空間の構成の把握は、図 3-6 に示すような形でより簡易的に行うのが適当であると考えられる。なぜなら、今回のように微生物担体への酸素供給に焦点を当てた研究においては、排水時に水と空気とが交換される空間の割合を把握することこそが最も重要であり、一方で液相により占められる空間はひとまとめに扱うのが妥当と言えるからである。

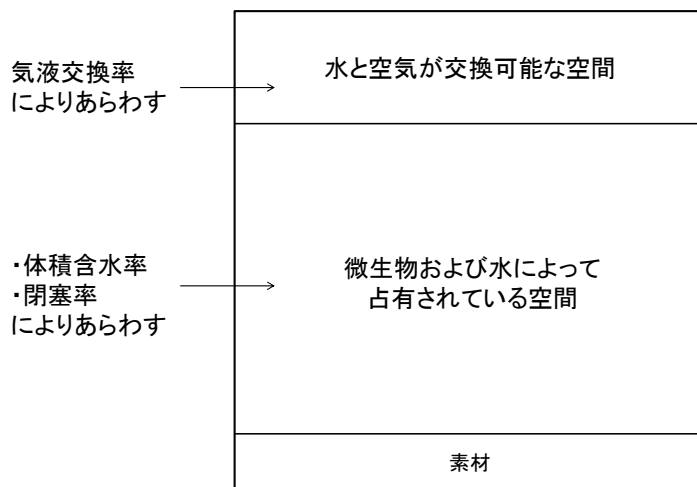


図 3-6 担体内部の空間構成の概念図（実測時の分類）

3-4 担体の内部空間の構成を記述するための指標

前節で述べたような内部空間の構成は、適切な指標を用いて記述する必要があり、そのためには活性汚泥法などの下水処理技術とは異なる指標を定義し用いなければならない。そこで本節では、担体の含水量および体積含水率、気液交換率、閉塞率を、担体の状態を記述するための指標として定義する。

3-4-1 含水量、体積含水率

下水が排水されたあとも、一定程度の水が担体内に保持される。微生物の乾燥質量を無視すれば、排水直後の微生物担体の重さを測定することにより、担体の体積に対してどの程度の量の水が担体内部に保持されているかを把握することができる。そこで、含水量および体積含水率を以下のように定義する。

$$\text{含水量(g)} = \text{排水直後の担体質量(g)} - \text{乾燥時の担体素材の質量(g)}$$

$$\text{体積含水率} = \frac{\text{含水量(g)} \div \text{水の密度(g/cm}^3\text{)}}{\text{担体の体積(cm}^3\text{)}}$$

担体それぞれの含水量および体積含水率は、担体の重さを測ることにより非破壊的かつ容易に測定が可能であり、担体の状態を表現するための簡便で重要な指標の一つとなる。

3-4-2 気液交換率

排水時に担体から水が抜ける際に担体内部に移流効果により流入する空気量を把握す

ることは、微生物への酸素供給の観点からきわめて重要性が高い。そこで、担体からの排水後に空気によって占められる体積が担体内部の空間全体に占める割合を気液交換率とよぶこととし、次の式で定義する。

$$\text{気液交換率} = 1 - \frac{\text{担体の体積}(\text{cm}^3) \times \text{体積含水率}}{\text{担体の体積}(\text{cm}^3) \times \text{担体の空隙率}}$$

気液交換率が大きいほど、排水時に水が抜け空気によって置換される空間の割合が大きいことを意味する。したがって、微生物担体への酸素供給に直接関わる重要な指標として考えることができる。なお、今回用いたスポンジ担体の空隙率は 0.97 であった。

3-4-3 閉塞率

微生物担体内部の閉塞状況を表現する指標として、担体の閉塞率を考える。閉塞率の定義の方法は、各担体の体積に対しての閉塞度合いとして定義する方法と、微生物の非存在下での値を基準として定義する方法とがありうるが、本論文においては後者を取り、閉塞率を以下のように定義する。

$$\text{閉塞率} = 1 - \frac{\text{気液交換率}}{\text{微生物のいないスポンジ担体における気液交換率}}$$

微生物のいないスポンジ担体を測定対象の微生物担体と概ね同じ状態で設置し、気液交換率を測定する。その値に対する気液交換率の割合を閉塞率と定義する。すなわち、ここでの閉塞率は、微生物のいない状態のスポンジであれば水と空気が交換可能であった空間のうち、測定条件下では液相によって占められ空気の流入が妨げられている空間の割合を意味している。気液交換率が大きいほど閉塞率は小さく、閉塞率が大きいほど気液交換率は小さくなる。

3-5 まとめ

本章では、間欠接触酸化法における種々のプロセスが起こる「場」である微生物担体の内部空間について、基本的な測定手法の提示、空間を占める要素の整理、状態を記述するための指標の定義を行った。活性汚泥法とはまったく異なる環境下での有機物や酸素の挙動を把握し考察するためには、これらの検討はきわめて重要である。以下の章における一連の実験では、本章で定義した指標を用いて微生物担体の内部空間の構成を分析、記述し、有機物濃度や酸素濃度などの測定結果と合わせて考察を加えるものとする。

4 共通する実験方法

本章では、第 1 節で間欠接触酸化法について検討するための実験手法上の留意点について述べた上で、第 2 項および第 3 項で第 5 章に述べる一連の実験に共通する方法について説明する。

4-1 手法上の留意点

間欠接触酸化法についての詳細な検討を試みるための方法論として、「処理水の水質を分析する」、「微生物担体での酸素収支を測定する」、「微生物による貯蔵物質を測定する」、「硫化水素やメタンなど微生物反応による生成物を測定する」、「微生物相解析により生態系をマイクロに解析する」、などの手法が考えられる。これに対して手法上の大きな課題は、担体の内部状態の違いにより試料間のばらつきが大きいこと、そして活性汚泥法などと異なり付着微生物に直接注目する場合には非破壊測定が難しいこと、が挙げられる。さらに、検討のための指標が必ずしも確立されていない点もきわめてクリティカルな課題である。

こうした点を念頭に置いて、まず分析の前提となる微生物担体の状態は、第 3 章に述べたような指標を用いて、実験ごとに非破壊的に把握・記述した。その上で、本研究では間欠接触酸化処理による処理水中の有機物濃度と、微生物担体への酸素供給および微生物の酸素消費に焦点を絞り実験、検討を行った。破壊的測定となる微生物量の測定は、一連の実験の最後に目視による観察と合わせて行う事とした。

4-2 装置と運転方法

4-2-1 装置構成

a) スポンジ担体

スポンジ担体として、ポリエチレン製、連続気泡のスポンジ（積水化学工業社製）を用いた。実験に用いるスポンジ担体試料として、2cm 厚のスポンジをおよそ 7cm 四方に切断し、4 つ重ねて束ねたものを作成した(図 4-1)。担体を 4 層に重ねたものとしたのは、3 章にも述べたように微生物の付着状況や保水性、閉塞状況などが垂直方向に大きく異なると予想されるので、担体試料を垂直方向に分割して実験や解析を行うことを可能にする意図がある。

こうしたセットを 3 つ作成し、それぞれ 1 系、2 系、3 系と呼ぶこととした。また、各系のスポンジ担体は、上から下に向かって 1 層目、2 層目、3 層目、4 層目と順に数えることとする。例えば、1 系の上から 2 段目の担体は、1 系の 2 層目と呼ぶこととする。

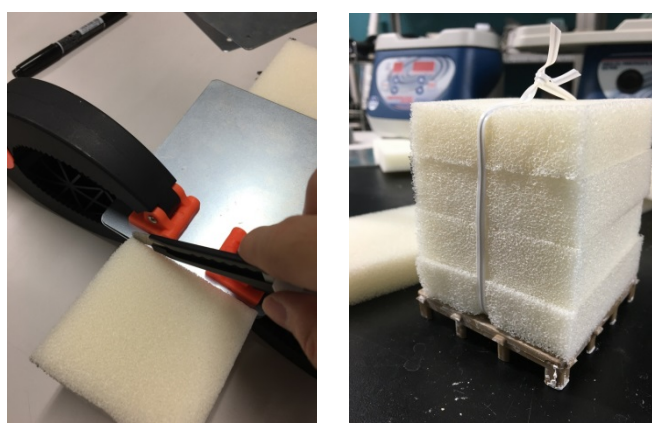


図 4-1 スポンジの切断の様子(左)とスポンジ担体試料(右)

各スポンジ担体の質量およびガラスビーズ法によって測定した体積を表 4-1 に示した。スポンジの平均密度は 29.5g/L であった。またポリエチレンの比重を 0.92 として計算したスポンジの空隙率は 96.8% であった。

表 4-1 1系～3系の各スポンジ担体の質量と体積

	1系		2系		3系	
	質量(g)	体積(mL)	質量(g)	体積(mL)	質量(g)	体積(mL)
1	2.69	91.7	2.70	93.7	2.84	99.7
2	2.71	94.3	2.76	95.7	2.92	100.3
3	2.73	91.0	2.81	94.3	2.81	91.7
4	2.64	89.0	2.80	93.0	2.84	93.7
計	10.8	366	11.1	377	11.4	385

上
↑
↓
下

b) 装置

図 4-2 に実験装置の概略図と運転中の写真を示した。容量約 1.2L の容器の底に水切り用のマットを敷き、その上に a) で用意したスポンジ担体を設置した。この装置を 3 つ用意し、それぞれ 1 系、2 系、3 系と呼ぶこととした。

これらのスポンジ担体に活性汚泥を用いて微生物を植種し、そこにポンプを用いて人工下水を一定の時間間隔で流入させ、その後排水する操作をくり返した(4-1-3)。なお、本論文中では以下特別な記載の無い限り、人工下水を担体の設置された容器に入れる操作を「流入」、担体を人工下水に浸けておく操作を「浸漬」、人工下水を担体のある容器から出す操作を「排水」、担体を空気にさらしておく操作を「干出」と呼ぶこととする。

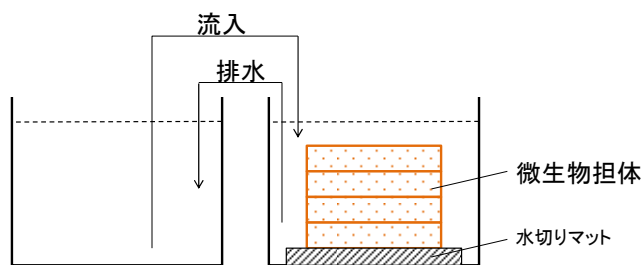


図 4-2 装置の概略図(左)と装置の運転の様子(右)

4-2-2 人工下水

a) 基質原液の組成

人工下水の調製のため、基質原液 1 および 2 を以下のように調製した。

・基質原液 1

無水酢酸ナトリウム 70g、酵母エキス 10g、塩化カリウム 21g、塩化カルシウム 2 水和物 6.6g、硫酸マグネシウム 7 水和物 55g、塩化アンモニウム 40g を水道水 5L に溶かし、オートクレーブにより滅菌した。

・基質原液 2

グルコース 50g、リン酸水素 2 カリウム 18g をイオン交換水 5L に溶かした。

b) 人工下水の調製

基質原液 1 および 2 それぞれ約 120mL を水道水 5L に溶かし人工下水とした。有機物濃度は、全有機体炭素(TOC)濃度として約 200mgC/L となる。なお、有機物濃度をあらわす指標については、次節で説明を加える。

4-2-3 運転方法

a) リアクターの運転

通常運転時における人工下水の流入・排水の運転間隔を表 4-2 に示した。流入 2 分→浸漬 6 分→排水 2 分→干出 10 分の 20 分を 1 サイクルとし、このサイクルを 1 日 72 回繰り返す運転を基本運転として行った。また、適宜人工下水中の溶存酸素濃度を測定した。なお、浸漬時間に対して干出時間を長く取っているのは、低酸素下における微生物の有機物摂取は比較的素早く進行するのに対し、貯蔵した有機物を酸化分解するのにより多くの時間を要すると予想したからである。

表 4-2 通常運転時における 1 サイクル中の運転時間

操作	流入	浸漬	排水	干出	サイクル合計
時間	3 分	5 分	2 分	10 分	20 分

b) 人工下水の交換頻度、馴致

各系に対して前述の人工下水 800mL を用意し、それを 1 日程度用いて前項の運転をくり返し行った。概ね 1 日に 1 回新しい人工下水を調製し交換した。実験に際しては、上記の運転を 1 週間以上つづけて馴致した微生物担体を使用した。

4-3 分析手法

本節では、次章以降の実験に共通する分析手法について述べる。

4-3-1 人工下水中の有機物濃度の測定

人工下水中の有機物濃度の測定は、図 4-3 に示すように、各サイクルの干出時間の終わりに人工下水を適宜サンプリングし、サンプル中の TOC 濃度を測定することにより行った。TOC の測定には島津製 TOC-V を用いた。また実験結果の考察にあたっては、TOC 濃度を適宜生物化学的酸素要求量(BOD)や化学的酸素要求量(COD)に換算した。

有機物濃度をあらわす主な指標としては、TOC、BOD、COD の 3 種類がある。TOC は試料中に有機物として存在する炭素の全量を測定するもので、単位は炭素量(mgC または mgC/L)として表す。簡易・迅速に測定が可能であることから本研究での主な測定指標とした。BOD は生物により利用可能な有機物の量を生物反応による酸素要求量としてあらわした指標であり、微生物により酸化的に利用される有機物量を最も直截にあらわしているが、測定に通常 5 日間を要する。本研究では BOD の測定は行わないが、除去された TOCのうち酸化分解されたと割合を仮定し、TOC を BOD に換算する計算を考察の一部で行っている。COD は酸化剤によって酸化される有機物量を酸素要求量として示すものである。COD については、本研究では測定を行わなかった。

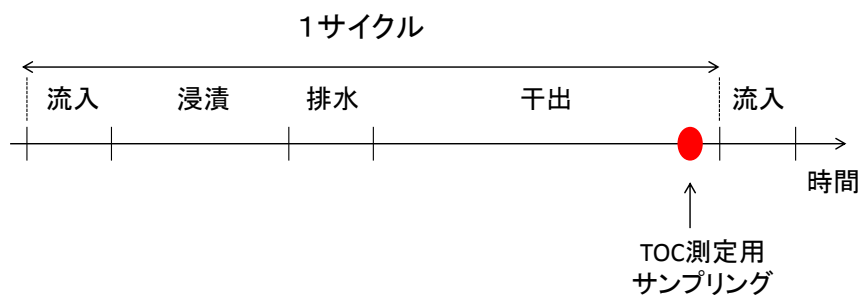


図 4-3 TOC 測定用の人工下水サンプルの採取

4-3-2 空気の体積と酸素量の換算

3 章で述べたように、担体体積に気液交換率をかけることで担体中に流入する空気の体積を求められるが、それを酸素の量に換算する必要がある。標準状態での気体の体積を 22.4L/mol、空気中の酸素濃度を 21%、酸素 O₂ の分子量を 32 として計算すると、標準状態の空気 1L あたりに含まれる酸素の質量は 0.3g/L となる。したがって、空気の体積に 0.3

をかけることで酸素の質量に換算する。

4-3-3 気相中の酸素濃度の測定

気相中の酸素濃度は、PreSens社製の蛍光式酸素濃度センサーFibox3によって測定した(図4-3)。酸素の存在下で特定の蛍光物質に特定波長の光を照射するとき生じる消光現象を応用した原理である。Fibox3の特徴は、蛍光チップ(センサー)を設置し蛍光を照射するだけで、気相中の酸素濃度を簡易・非破壊的に測定できること、また、蛍光チップは本体とは完全に分離されたものであることである。特に、密閉された空間の酸素濃度を、外部からリアルタイムでモニターできる点で利便性が高い。なお、この酸素濃度センサーは、社会文化環境学専攻の鯉淵准教授より貸与いただいた。

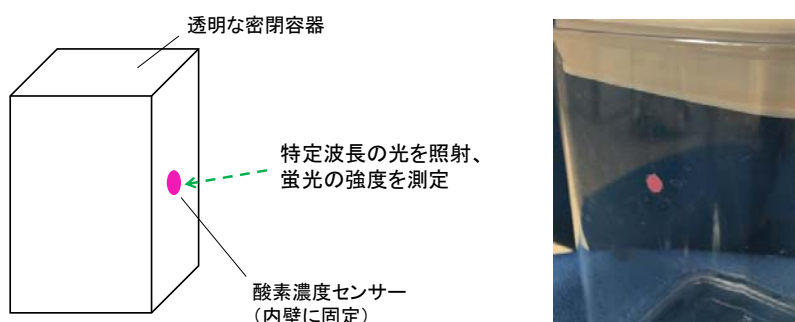


図4-4 Fibox3による気相中酸素濃度測定
(左：概略図 右：センサーの写真)

4-3-4 微生物担体の内部空間の構成

実験条件下における微生物担体の内部空間の構成については、すでに第3章で検討したような方法で、各章の実験ごとに把握・記述した。また微生物担体の閉塞率を求める基準として、微生物を植種していないスポンジ担体における体積含水率および気液交換率の測定値を表4-3に示した。また、それを図示したものが図4-5である。これらは、4層に重ねたスポンジ担体について、上から1層ずつそれぞれの内部空間の構成を記述しているものである。上の層ほど空気と交換可能な空間が大きく、下層にいくほど常に水に占有されている空間の大きいことが視覚的に理解できる。

表4-3 微生物の付着していないスポンジ担体における体積含水率と気液交換率

層(上から)	質量(g)	体積(mL)	含水量(g)	体積含水率	気液交換率
1	2.86	100.2	19.1	0.19	0.80
2	2.93	100.3	21.1	0.21	0.78
3	2.86	99.6	45.1	0.45	0.53
4	2.93	99.6	66.1	0.66	0.32

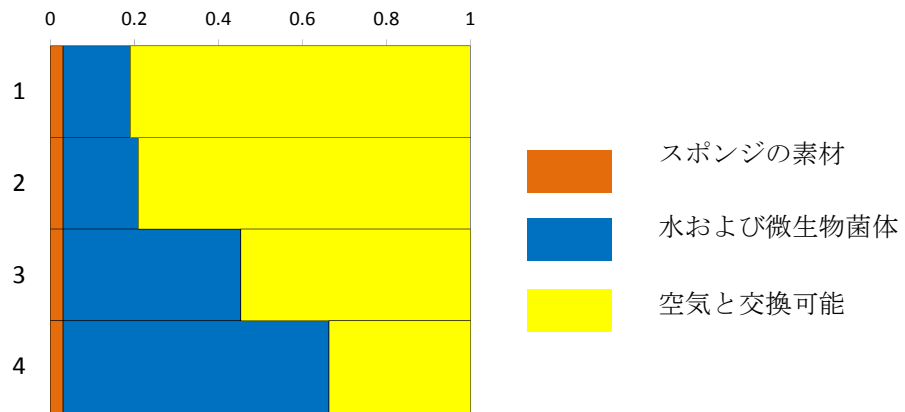


図 4-5 微生物の存在しないスポンジ担体での内部の空間構成

4-3-5 微生物担体中の微生物量の測定

微生物担体中の微生物量は本来担体の状態を知る上で重要な指標であるが、前述のように非破壊測定が困難なことから、一連の実験の最後にだけ、3章に示したアルカリ分解/TN法により測定することとした。

5 実験

間欠接触酸化法のプロセスの場となる担体の内部空間について第3章で検討し、第4章では本章の各実験に共通する方法について述べた。本章では、1章に述べた目的を達成するために行った一連の実験A~Eについて、それぞれ方法および結果と考察を述べる。

各章の説明に入る前に、図5-1に全運転期間における各実験の実施時期を記載した。2016年8月に稼働を始めた後、適宜水質分析等を行いつつ4章に述べた方法で運転を行った。そして、2016年9月に実験Aを行った。その後基本的には通常運転で馴致を行い、実験Bを12月上旬に行った。実験Bの後1週間の間3系は表面をビニールで被覆していたが、その後ビニールを外して通常運転に戻した。その後、12月下旬に実験C、およびDを行った。この間の担体内部の空間構成の推移などについては実験Dの項目にて詳しく述べる。また実験Eは微生物の馴致が不要であるため、他の実験とは独立して行われた。

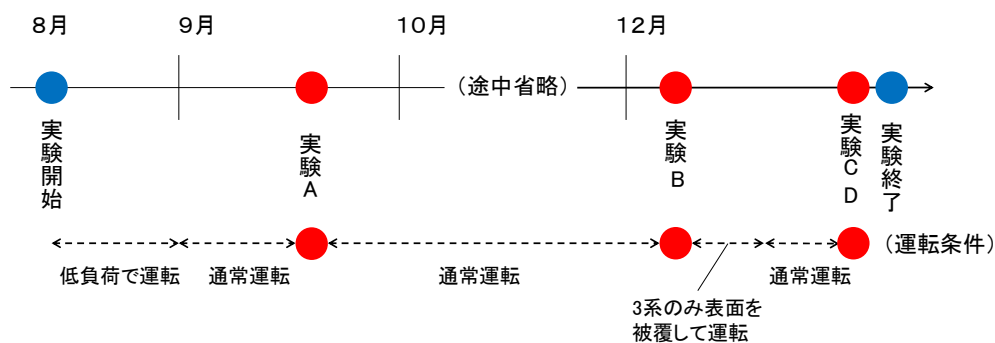


図 5-1 実験を実施した時期と装置の運転条件

A 干出時間の違いによる有機物除去への影響

先に述べたように、間欠接触酸化法においては、担体の干出による微生物への酸素供給の効果が大きいと予想される。したがって、微生物担体の干出時間の長短は酸素供給量に直接関わり、その結果有機物除去に影響をおよぼす可能性がある。そこで本節では、系ごとに異なる干出時間を設定した条件で運転を行った際の人工下水中の有機物濃度の推移を測定し、担体の干出時間が有機物除去に与える影響を調べた。

A-1 方法

A-1-1 担体の内部空間の構成

実験を行う際の担体の状態を把握するため、次節の定常時における測定を行う直前に担体の含水量を測定し、気液交換率を求めた。また、微生物の存在しないスポンジ担体での気液交換率を用いて、微生物担体の閉塞率を算出した。

A-1-2 通常運転時の有機物除去

実験を行うにあたり、4-2-3 に示した通常運転を行った際のそれぞれの系での有機物除去を把握するため、人工下水を交換して運転を開始した後、4-3-1 に述べた方法により、TOC 濃度の推移を測定した。

A-1-3 異なる干出時間を設定した条件での有機物除去

前項の測定を行った後十分に下水中の有機物濃度が低下してから、人工下水を交換し、3 つの系で異なる運転間隔を設定して運転を行った(表 5A-1)。そして、前項の通常運転時の測定と同様に人工下水のサンプリングを行い、人工下水中の TOC 濃度の推移を測定した。

表 5A-1 各系に設定した運転間隔

	流入	浸漬	排水	干出	サイクル合計
1系	3分	0分	2分	15分	20分
2系	3分	5分	2分	10分	20分
3系	3分	15分	2分	0分	20分

A-2 結果と考察

まず、含水量の測定により推定した担体の内部空間の構成を図 5A-1 に示した。微生物の存在しないスポンジ担体と比較して、微生物の生長により各層における含水量が増加し、気液交換率が低下していることが分かる。1~3系の間では大きな傾向の差はなく、気液交換率は上の2層で0.6~0.7程度と高く、3層目で低下し、最下段では0.1程度となっている。これは主に毛管現象のはたらきによるものと推測できる。

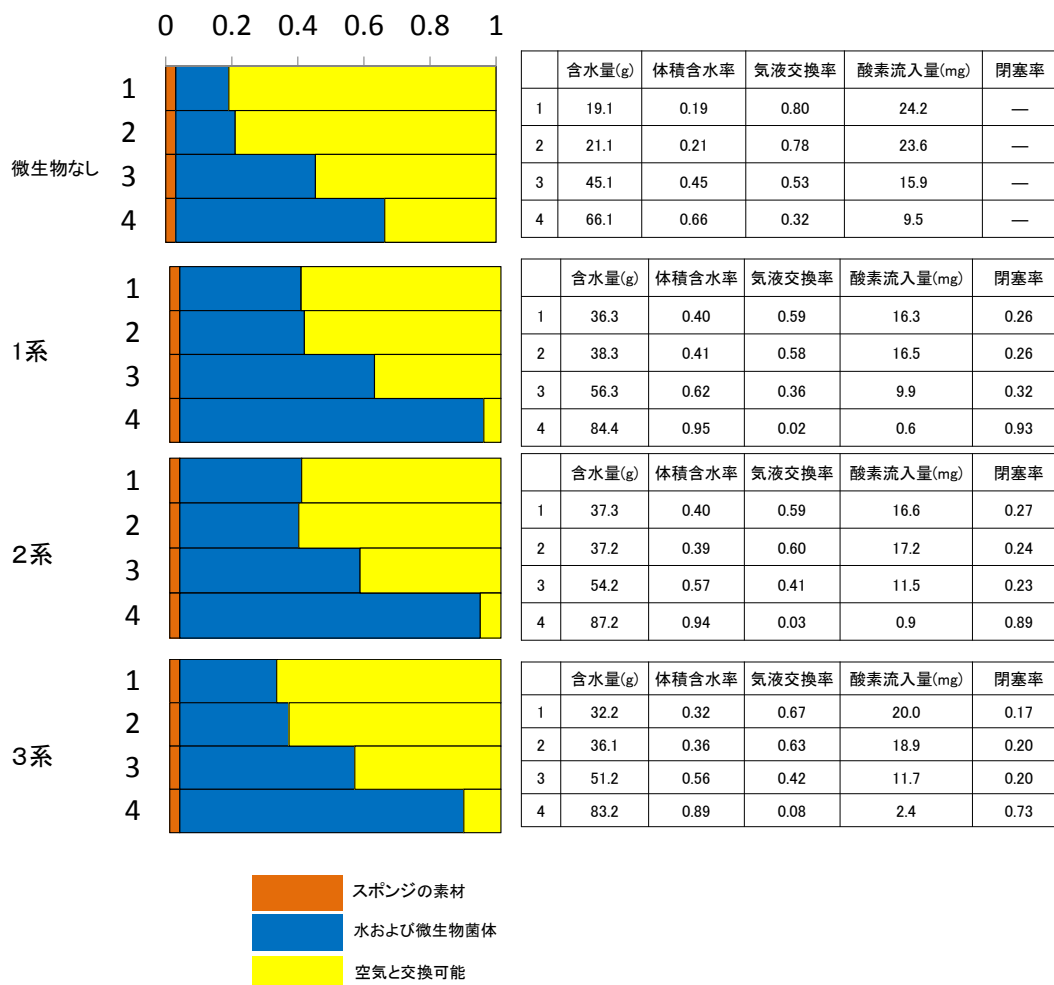


図 5A-1 実験 A における微生物担体の内部空間の構成

通常運転時の TOC 濃度の推移と、異なる干出時間を設定したときの TOC 濃度の推移を、それぞれ図 5A-2、図 5A-3 に示す。通常運転時の測定では、1~3 系の間で有機物除去速度にほとんど差は見られなかった。これは、図 5A-1 で見た担体の内部空間の構成が概ね同様であったことと整合する。測定開始後 2 時間での有機物除去速度は、TOC 除去速度として、1 系 : 131 mgC/担体 L/h、2 系 : 137 mgC/担体 L/h、3 系 : 134mgC/担体 L/h、であった。仮に除去された有機物のうち半分が微生物に同化され半分が酸化分解されたとすれば、各系での担体体積における BOD 除去速度は 64~70mgO/担体 L/h 程度と算出できる。これに比べて、担体内部への酸素流入量は 135~165mgO/担体 L/h であるから、有機物除去量に対して十分な酸素供給量であったと言える。

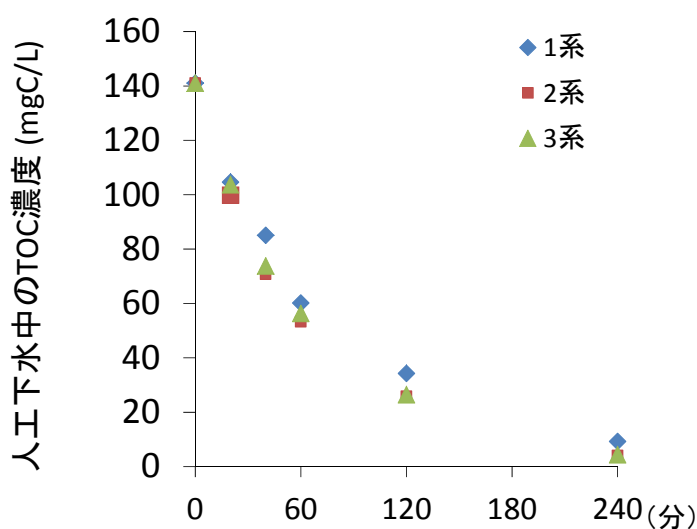


図 5A-2 通常運転時の TOC 濃度の推移 (実験 A)

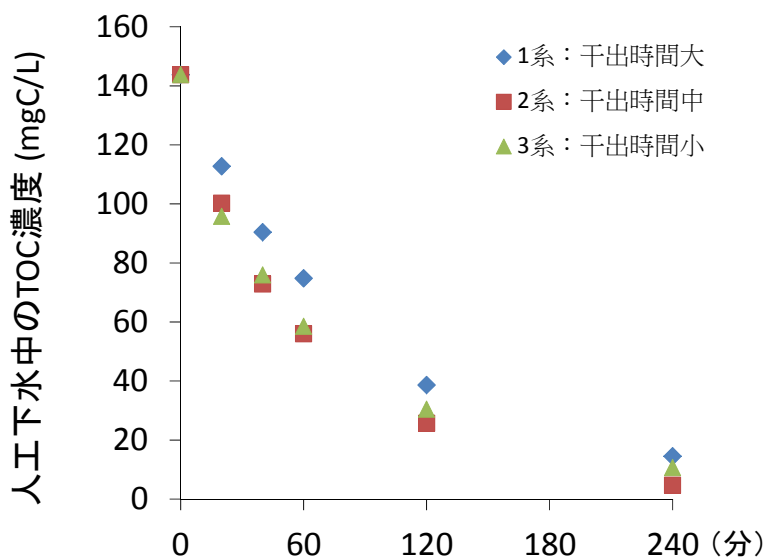


図 5A-3 異なる干出時間を設定した条件での TOC 濃度の推移

図 5A-3 に示したように、各系に異なる干出時間を設定した運転においても、TOC 濃度の推移は通常運転と概ね変わらない傾向であった。測定開始後 2 時間での有機物除去速度は、TOC 除去速度として 130~140mgC/担体 L/h であった。

特に、ごく短い干出時間であった 3 系においても、他の 2 系とほぼ同様の有機物除去性能を示していることは注目に値する。この実験の条件下では、3 系の微生物担体はサイクル最後の排水後から次のサイクルの流入までの間の 1~2 分程度の時間だけ空気にさらされていた。したがって、3 系における酸素供給はほとんど、排水にともなう空気の移流効果によるものであったと推測される。このことは、2 つの可能性を示唆している。1 つは、短い干出時間で一気に酸化分解を行えるだけの酸素消費速度を微生物が有していた可能性である。

上に述べたのと同様に、人工下水中から除去された有機物のうち半分が酸化分解されたと仮定すると、3系の担体体積において1サイクルでおよそ20mgBODに相当する有機物を酸化分解した計算となる。微生物による通常の酸素消費速度を考えると、見積としてはやや大きすぎるかもしれない。

もう一つ考えられるのは、微生物担体内部の有機物貯蔵量の増加によって有機物除去速度が保たれていた可能性である。上記と同様の仮定をして、人工下水の初期濃度から微生物担体に対する1日あたりのBOD容積負荷を計算すると、0.15kgBOD/担体 m³/dとなる。これは活性汚泥法における一般的な値である0.3~0.8kgBOD/m³/dよりやや低い程度であり、微生物担体に保持されている微生物の濃度が活性汚泥法と同程度以上であれば、比較的有機物負荷の低い運転条件であったと言える。その場合、下水中に有機物が豊富に存在している間は有機物の酸化分解よりも一時貯蔵が優先され、下水中の有機物濃度が下がって以降徐々に酸化分解が行われたことが考えられる。この考察は、仮に干出時間が十分でなかった場合でも、下水が担体から排水される際の空気の流入があり、かつ負荷が過剰でなければ、間欠接触酸化法による有機物除去は安定して進みうることを示唆している。

A-3 まとめ

実験Aでは、微生物担体の干出時間が有機物除去に与える影響を調べた。実験結果と考察から、次の結論を得た。

- 1) 各系の微生物担体に異なる干出時間を設定した場合においても、有機物除去への明確な影響は見られなかった。
- 2) 1)の結果と微生物担体の内部空間の構成から、干出時間が短い場合においても、空気の移流効果による担体内部への酸素供給が十分であれば有機物除去が促進されうることが示唆された。

B 酸素供給経路の違いによる有機物除去への影響

微生物担体の干出時間だけでなく、微生物への酸素供給経路の差異も有機物除去に影響を及ぼす可能性がある。第 2 章で述べたように、微生物担体への酸素供給経路は、溶存酸素からの供給、干出時における空気中からの分子拡散、排水時の空気の移流効果による流入、の 3 通りに分けて考えることができる。本章の実験では、酸素供給経路の一部もしくは全部を制限して運転を行った際の人工下水中の有機物濃度の推移を測定し、酸素供給経路が有機物除去に与える影響を調べた。

B-1 方法

B-1-1 担体の内部空間の構成

実験を行う際の担体の状態を把握するため、次節の定常時における測定を行う直前に担体の含水量を測定し、気液交換率を求めた。また、表 4-3 に示した微生物の存在しないスポンジ担体での気液交換率を用いて、微生物担体の閉塞率を算出した。

B-1-2 通常運転時の有機物除去

系ごとに異なる条件を設定した実験を行う前に、通常運転時の各系での有機物除去を見るため、実験 A に述べたのと同様の方法で人工下水中の TOC 濃度の推移を測定した。

B-1-3 酸素供給経路の一部を制限した条件での有機物除去

前項の測定を行った後十分に下水中の有機物濃度が低下してから、人工下水を交換し、3 つの系で異なる条件を設定して運転を行った(図 5B-1)。1 系では、担体を人工下水に浸けたまま静置し、酸素供給をすべて遮断した状態にした。2 系は、通常運転と同じ条件で運転した(酸素供給経路の制限なし)。系 3 は、担体の底面以外の表面をすべてビニールで覆い、上部に小さな空気穴を開けた状態で運転した。これにより、3 系では人工下水の出し入れにより排水時の空気の移流効果ははたらく一方、担体表面での空気との接触による分子拡散の効果を遮断した条件とした。以上の条件設定のもとで、前項の通常運転時の測定と同様に人工下水のサンプリングを行い、人工下水中の TOC 濃度の推移を測定した。

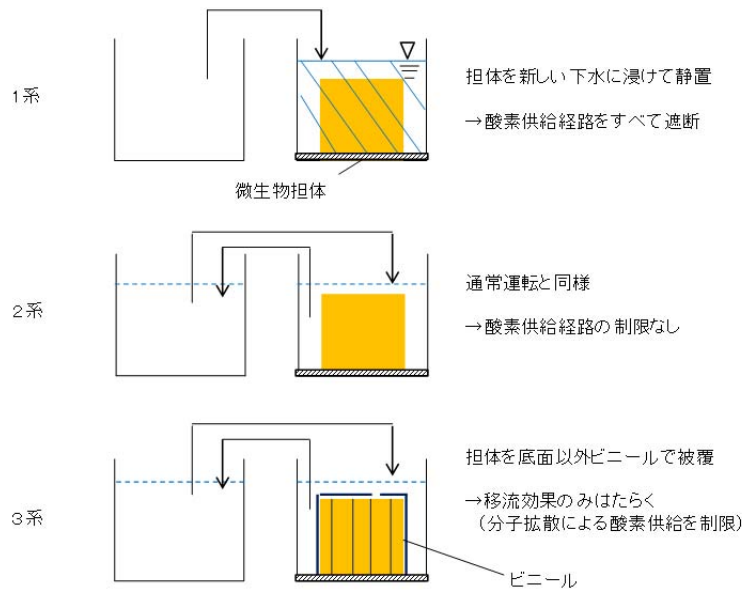


図 5B-1 実験 B における各系の実験条件

B-2 結果と考察

まず、この実験における担体の内部空間の構成を図 5B-2 に示す。上層から下層に向かって気液交換率が低下している傾向は 5 章のときと同様だが、図 5A-1 と比較すると、1~3 層目の微生物担体で気液交換率が低下していた。これは、5 章の実験を行ったときよりも微生物量が増加したためと考えられる。

次に、通常運転時の TOC の推移と、異なる酸素供給条件を設定したときの TOC 濃度の推移を、それぞれ図 5B-3、図 5B-4 に示す。TOC の初期濃度から計算した BOD 容積負荷は、除去された有機物の半分が酸化分解されたとすると、 $0.23\text{kgBOD}/\text{担体 m}^3/\text{d}$ であった。通常運転時の測定では、1~3 系における TOC 濃度の推移は概ね同様の傾向を示したが、TOC 除去速度は 1 系： $131\text{mgC}/\text{担体 L/h}$ 、2 系： $149\text{mgC}/\text{担体 L/h}$ 、3 系： $158\text{mgC}/\text{担体 L/h}$ であり、やや数値に差が見られた。また、5 章の実験の際の通常運転における測定値と比較すると、2 系と 3 系では $10\sim 20\text{mgC}/\text{担体 L/h}$ 程度高い数値であった。この原因としてまず考えられるのは微生物量の増加であるが、一方で最も気液交換率が高く微生物による閉塞が少ないと思われる 3 系で最も高い数値を示していることから、微生物量と酸素供給量のバランスによって左右されるものと推測される。

図 5B-4 からは、図 5B-3 と合わせて次の 3 点が読み取れる。

- 1) 酸素供給経路を遮断した系(1系)では、下水中の TOC 濃度が下げ止まりしている。
- 2) 供給経路に制限のない系(2系)と、表面をビニールで被覆した系(3系)との間で、TOC 濃度の推移にほとんど差は見られなかった。

3) 図 5B-2 と比較して、図 5B-3 では 2 系および 3 系の有機物除去速度が小さかった。(2 系 : 110mgC/担体 L/h、3 系 : 108mgC/担体 L/h)

1)については、新しい下水を流入後しばらくは微生物による嫌氣的有機物摂取によって TOC 濃度が減少するが、酸素供給経路が断たれているために一時貯蔵した有機物を酸化分解することができず、有機物貯蔵量の上限に近づくとつれて有機物摂取が起こりづらくなると解釈できる。ただし、測定開始から 2 時間の間の TOC 除去速度は 40mgC/担体 L/h という値を示しており、酸素のない条件下でも微生物による有機物の嫌氣的摂取がそれなりに大きなポテンシャルを持っているとも言える。

2)の点に関しては、空気中からの酸素供給経路に関して、分子拡散による効果と空気の移流による効果との比較として説明できる。すなわち、少なくともこの実験の条件下においては、担体からの排水時の空気の移流による酸素供給が支配的であったために、担体表面の被覆の有無に関わらず 2 系と 3 系とで概ね同様の TOC 除去速度を示したと考えられる。ただし、有機物の除去量に対して酸化分解された割合に差があった可能性はある。

一方 3)に関しては、人工下水の初期 TOC 濃度は 2 つの実験で同程度であり、また 2 系と 3 系が同様に低い値であったことから、実験条件による影響である可能性も低い。原因としては、過負荷になった可能性と、それ以外の外的要因がありうる。前者については、下水を新調し実験をはじめるときで、微生物担体によって貯蔵された有機物が十分に酸化分解されていなかったことは考えられる。また外的要因としては、図 5B-4 の実験の際に水温が極端に低かった、などの可能性は考えられる。いずれにしても、処理時間が短くなったり、微生物の活性が低下した場合には、結果的に過負荷な状況が生じて処理性能が低下した可能性は考えられるだろう。

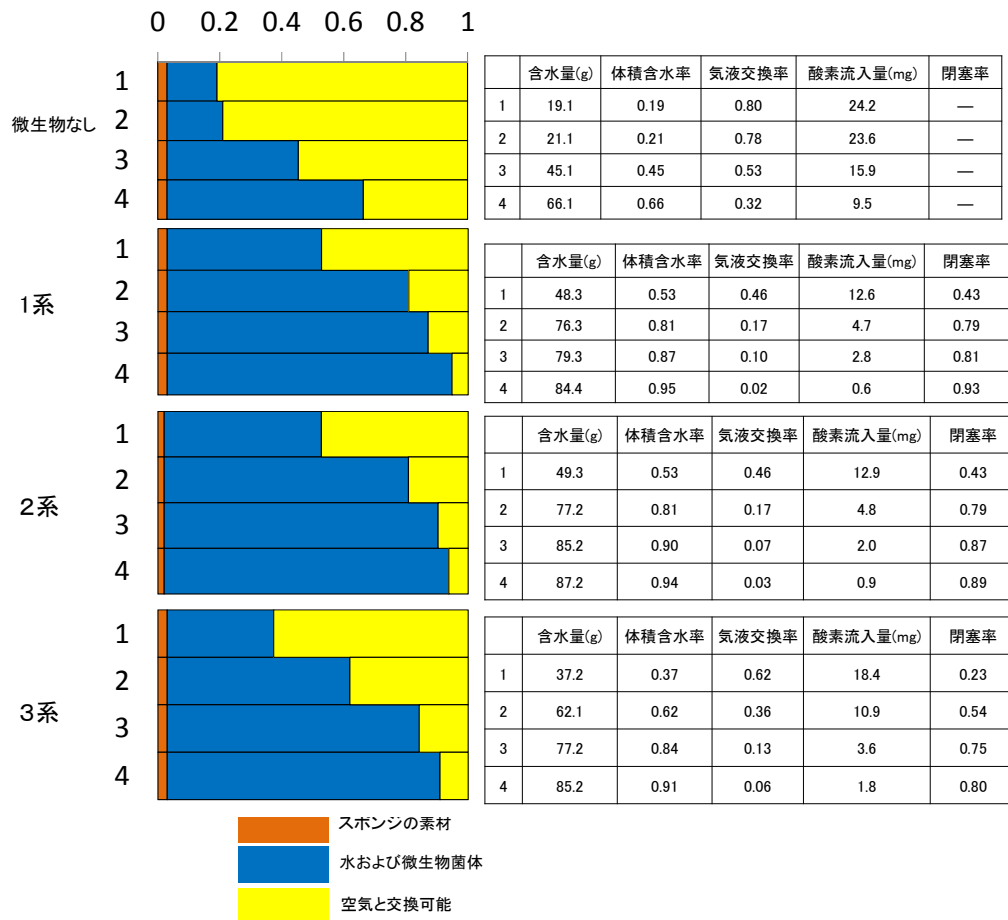


図 5B-2 実験 B における微生物担体の内部空間の構成

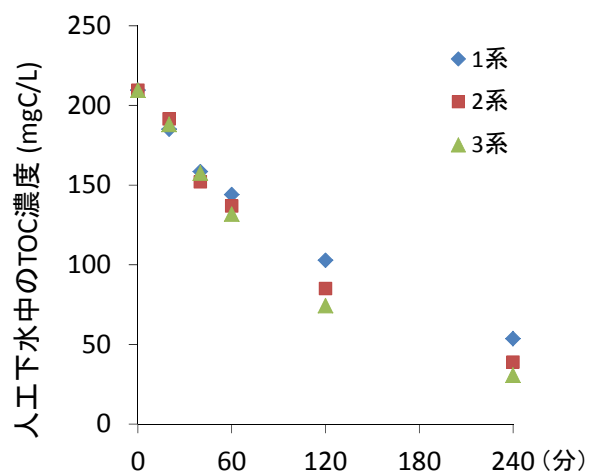


図 5B-3 通常運転時の TOC 濃度の推移 (実験 B)

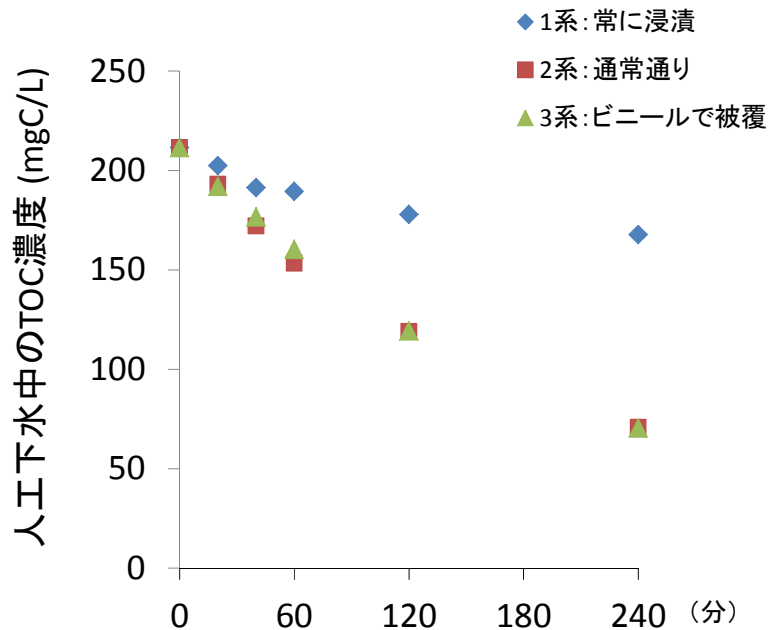


図 5B-4 異なる酸素供給条件下での TOC 濃度の推移

B-3 まとめ

本章では、微生物担体への酸素供給経路の違いが有機物除去に与える影響を調べた。実験結果と考察から、次の結論を得た。

- 1) 酸素供給経路を完全に遮断した系においては、測定開始後しばらくは嫌氣的有機物摂取による有機物除去が進んだものの、酸化分解ができず下げ止まりした。
- 2) 表層での空気との接触を遮断した系では、酸素供給経路を制限しない系と変わらない有機物除去能力を示した。このことから、排水時の空気の移流効果による酸素供給が支配的であったことが示唆された。
- 3) 一方で、2系、3系ともに、通常運転時の測定に比べて3分の2程度の有機物除去速度であった。はっきりとした原因は分からないが、前のサイクルで貯蔵した有機物の分解が不十分であった、水温の低下などにより微生物の活性が低下していたなど、実験時において相対的に有機物負荷が高くなっていた可能性がある。

C 微生物による酸素消費と有機物除去

実験 A および実験 B では、酸素供給に関する条件の違いによる有機物除去への影響を調べた。しかし、本来は微生物担体による有機物除去と同時に、微生物によって酸素がどのように利用されているかを押さえることが望ましい。そこで本章では、微生物による酸素消費の実測を試み、有機物除去との関係性を検討した。

C-1 方法

C-1-1 担体の内部空間の構成

実験を行う際の担体の状態を把握するため、次節の定常時における測定を行う直前に、実験 A および実験 B と同様に担体の体積含水率、気液交換率、および閉塞率を算出した。

C-1-2 通常運転時の有機物除去

酸素消費速度の測定を行う前に、通常運転時の各系での有機物除去を見るため、実験 A および実験 B に述べたのと同様の方法で人工下水中の TOC 濃度の推移を測定した。

C-1-3 微生物による酸素消費の測定

a) 密閉容器内気相中での酸素消費

各系の微生物担体を新しく調製した人工下水に 5 分間浸漬させ、その後人工下水を排水した。そして各系の微生物担体をそれぞれ容積約 900mL の容器内に密閉した。密閉容器には、パール金属社製、レバーDE 簡単ロックシステムコンテナ 0.9L を用いた。そして、4-3-3 に述べた方法で容器内気相中の酸素濃度の推移を測定した(図 5C-1)。結果は気相中の酸素量に換算して示すが、換算の際には、容器の容積 900mL のうち微生物担体により 400mL が占められるため、容器中の気相を 500mL として計算した。また、浸漬前後の人工下水中の TOC 濃度を測定し、その差分からこの実験時の微生物担体による有機物除去量を求めた。

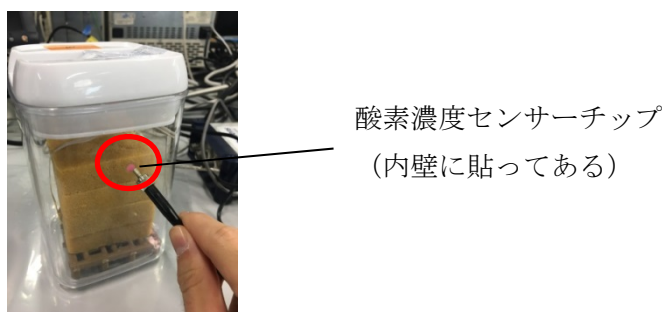


図 5C-1 微生物担体を封入した容器中での気相中酸素濃度推移の測定

b) 各層表面での酸素濃度の推移

4 層に重なった微生物担体の垂直方向での酸素消費の違いを見るため、それぞれの担体の表層での酸素濃度の推移を測定した。a)の実験と同様に各系の微生物担体を新しく調製した

人工下水に 5 分間浸漬させ、その後排水した。そして、図 5C-2 のように微生物担体を一つずつビニールの上に並べ、その表面に酸素濃度センサーを設置して、上からガラス板を置くことで酸素濃度センサーを密閉した。ガラス板の両端には各 300g のおもしを乗せてガラス板を固定した。

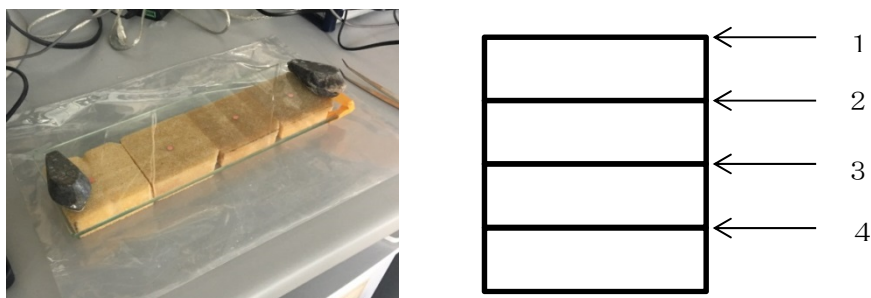


図 5C-2 微生物担体表層での酸素濃度推移の測定
(左：測定の様子 右：測定した層と番号の対応関係)

C-2 結果と考察

微生物担体の内部空間の構成を図 5C-3 に、通常運転時の TOC 濃度推移を図 5C-4 に示した。図 5A-1 や図 5B-2 と比較して、いずれの担体においても気液交換率が低下し閉塞率が上昇していることが分かる。特に 1 系、2 系では、最上段の担体においても気液交換率が 0.2 程度であり、微生物担体全体にわたって閉塞が進行している。一方、3 系の微生物担体では最上段の担体の気液交換率が 0.5 であり、他の 2 つの系とは状態が異なっていると言える。原因ははっきりとは分からないが、6 章の実験の後、3 系は 1 週間ほど表面を被覆していた。それが何らかの影響を与えた可能性はある。

測定開始後 2 時間での TOC 除去速度は、1 系：81mgC/担体 L/h、2 系：98mgC/担体 L/h、3 系：130mgC/担体 L/h であった。この結果は、微生物担体の気液交換率および酸素流入量と結びつけて考えることができる。1 系および 2 系においては微生物担体の上段において微生物量が大きく、気液交換率が小さい。それに対して 3 系では、微生物量は下層の方が大きく、最上段では気液交換率が大きい。その結果、微生物担体全体での 1 回の排水にともなう酸素流入量は、1 系：13.4mgO、2 系：14.3mgO、3 系：25.1mgO であった。これに対して、各系における 1 サイクルあたりの有機物除去量は、これまでと同様に有機物の半分が酸化分解されたと仮定すれば、1 系：13mgBOD/cycle、2 系：16mgBOD/cycle、3 系：22mgBOD/cycle であり、概ね酸素流入量の値と整合性がある。この考察は、排水時の酸素流入が有機物除去にとって重要であり、微生物担体の閉塞によって酸素供給が不足した結果として有機物除去能力が低下する可能性があることを裏付けるものである。

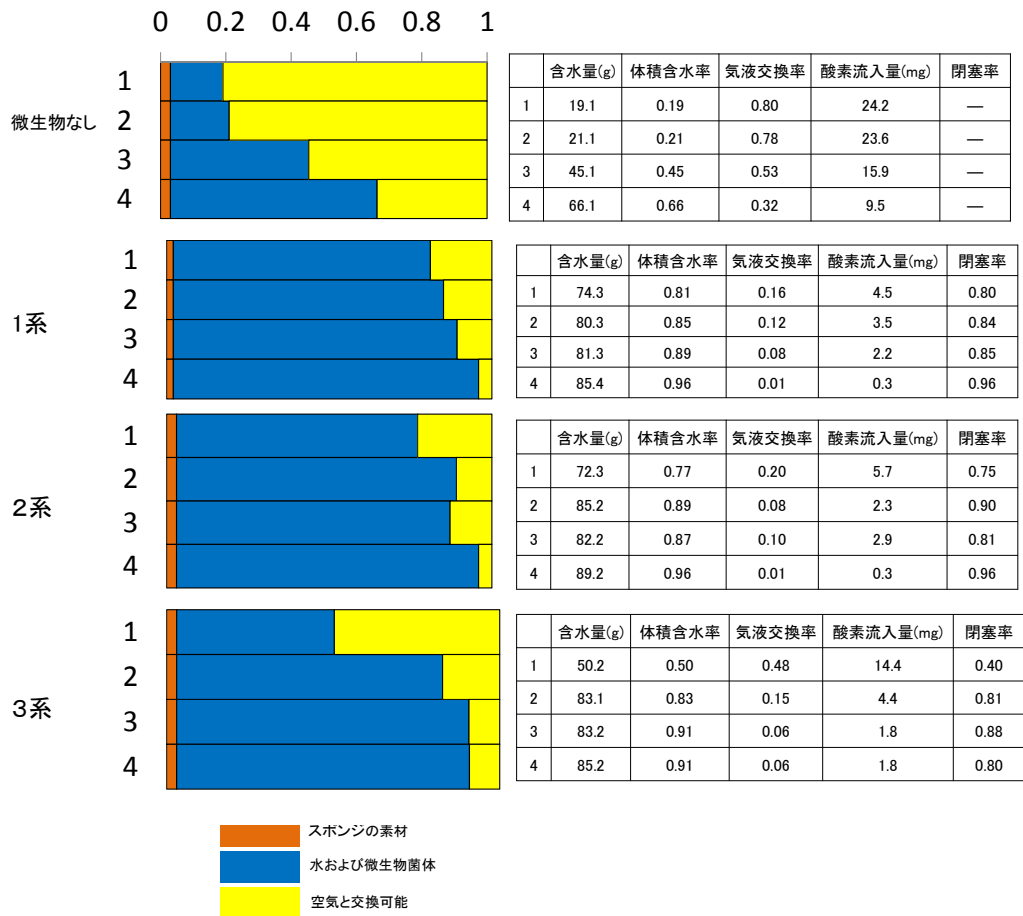


図 5C-3 実験 C における微生物担体の内部空間の構成

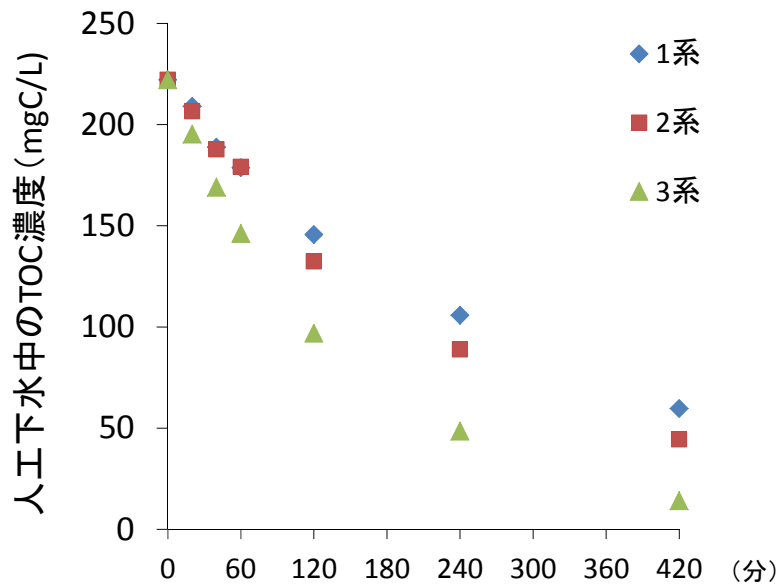


図 5C-4 通常運転時における TOC 濃度の推移 (実験 C)

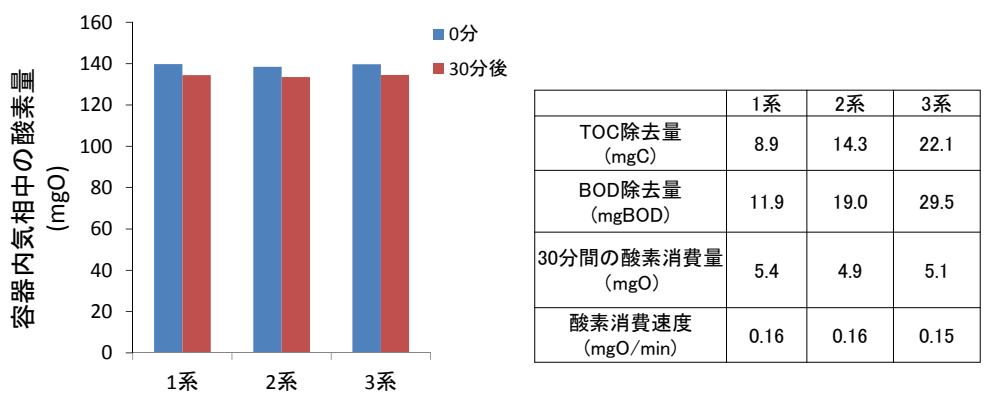
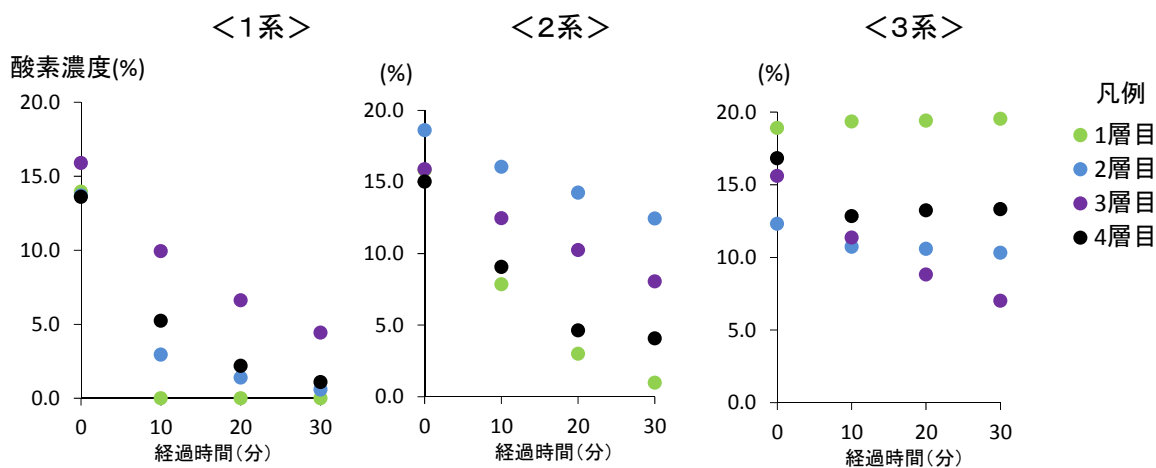


図 5C-5 密閉容器内の気相中酸素濃度の推移と有機物除去量



	1系	2系	3系
TOC除去量 (mgC)	6.8	8.6	14.2
BOD除去量 (mgBOD)	9.1	11.5	19.0

図 5C-6 各担体表面での酸素濃度推移と系全体での有機物除去量

次に、密閉容器中での酸素消費量を、この測定時の有機物除去量とともに図 5C-5 に示した。有機物量は TOC と BOD 換算の両方で示している。有機物除去量や担体内部への酸素流入量の違いにも関わらず、1~3 系の間で密閉容器中の酸素濃度の減少速度はほとんど等しかった。この結果の解釈の上では、留意すべき点が 2 つ挙げられる。1 つは、運転を行っている装置ではなく、別の密閉容器に移動させて測定していることによる環境の違いである。微生物担体を移動する際の操作などにより多少の影響が生じる可能性があり、本来は運転装置自体をそのまま密閉できることが望ましい。

もう 1 つの点は、こちらがより重要だが、この実験で実測している酸素消費速度は主に分子拡散による酸素供給によるものだと考えられる点である。微生物担体内部への移流効

果による空気の流入は、基本的に排水操作と同時に生じるとみてよい。したがって、排水後に微生物担体を容器内に密閉した場合、空気の移流により内部に供給され消費される酸素については直接測定できない。したがって、この分の酸素量を考慮に入れて考察する必要がある。くり返しになるが、担体内部への酸素流入量は、1系：13.4mgO、2系：14.3mgO、3系：25.1mgOであった。いずれの系においても、密閉容器中で使用された量の数倍の酸素が、排水と同時に担体内部に流入している計算である。仮に微生物担体内部に流入した酸素がすべて微生物によって素早く使用されたとしたら、実際の酸素消費量には系の間で差があると考えられる。また実験時のBOD除去量は、1系：11.9mg、2系：19.0mg、3系：29.0mgであった。これに対して30分間の容器内気相中の酸素消費量1系：5.4mgO、2系：4.9mgO、3系：5.1mgOと小さく、また通常の運転での干出時間はさらに短い10分間であったことを考えれば、やはり有機物除去には空気の移流により流入する酸素が大きく寄与していると見るのが妥当であろう。

図5C-6には、各担体の表面で測定した酸素濃度推移と、実験時の系全体での有機物除去量を示した。図5C-5の結果が主に分子拡散による酸素量を見ていたと考えられるのに対して、図5C-6に示した担体表面での酸素濃度推移の結果は、より担体内部の酸素消費の実態に近い意味を持つと考えられる。すなわち、1層目を除いて本来は担体の内部に位置する部分の表面で酸素濃度を測定するため、担体内部の微生物による酸素消費速度の測定を意図している。一方で測定時には設置するとき空気に触れるため、実際の酸素消費量を測定するというより、いわば微生物の酸素消費速度のポテンシャルを見ているといえる。図5C-6を見ると、酸素濃度の減少速度は系ごとあるいは層ごとに違いがあり全体として明確な傾向を断定することは難しい。ただ、いくつか特徴を挙げるができる。1層目の酸素濃度推移を各系で比較すると、1系は10分以内に0になり、2系でも30分でほぼ0に下がっている一方、3系では減少が見られなかった。また、担体内部への酸素流入が少なかった1系で酸素濃度の減少が速く、3系で遅い傾向にあった。

担体試料の真ん中あたり、すべての系で酸素濃度の低下が見られた3層目の数値を用いて量的な比較を試みる。担体内部への酸素の合計流入量はそれぞれ、1系：10.5mgO、2系：11.3mgO、3系：22.3mgOで、一方30分間での各系表面での酸素濃度の低下は、1系：11.5%、2系：7.8%、3系：8.6%だった。仮に3層目の酸素濃度の減少速度が担体内部に流入した酸素の消費速度の平均を示しているとするれば、担体内部での30分間の酸素消費量は、1系：5.7mgO、2系：4.2mgO、3系：9.1mgOとなる。仮に分子拡散による酸素の供給量が図5C-5と同じだとすると、1系と2系で同程度、3系で2倍程度の値ということになる。もちろんきわめて大雑把な計算をしているためその点は留意が必要だが、空気の移流による酸素供給が支配的であるというこれまでの実験結果を考えると、空気の移流効果と分子の効果と同程度という結果は意外なものである。この原因として、閉塞が進んだことにより酸素の流入量が減少したことで両者の効果が同等程度になり、全体として酸素消費速度

が落ち込んだことが考えられる。

また、そもそも実際の運転時の干出時間が 10 分であることを考えると、BOD 除去量に対して酸素消費の推定量が少なかった。この点については、実験 A とも関連するが、酸素の存在下における微生物の有機物貯蔵を考える必要があるかもしれない。微生物による有機物の一時貯蔵は、酸素の供給によってさらに促進されることがある。例えばポリリン酸蓄積細菌の場合、非酸化的な有機物摂取ポリリン酸の放出により生成した ATP を用いて行うが、ポリリン酸を放出しきると ATP がつくれなため有機物摂取は進まない。しかしその状態で酸素が少しでも供給されると、酸素を利用して効率的に生成された ATP を用いて、微生物はさらに優先的に有機物摂取を行う。つまり、酸化分解による直接的な酸素消費以上に、酸素存在下での有機物貯蔵能力の向上が有機物除去を促進している可能性があるのではないだろうか。この点については、間欠接触酸化法の機構の重要な点であると考えられるため、さらなる詳細な検討が必要である。

C-3 まとめ

実験 C では、微生物担体による有機物除去と酸素消費の関係性について検討した。実験および考察から、以下の結論を得た。

- 1) 最上層の担体まで閉塞が進んでいた 1 系、2 系に比べ、上層の気液交換率が比較的高かった 3 系の方が、有機物除去速度が大きかった。この結果から、閉塞による担体内への酸素流入量の低下が有機物除去性能を低下させることが示唆された。
- 2) 担体内部に供給された酸素の消費量を概算すると、この実験での空気の移流による酸素供給効果は分子拡散によるものと同程度~2 倍程度であるという結果だった。閉塞の進行によって酸素の流入量が減少し、全体として酸素消費速度が落ち込んだ可能性がある。
- 3) 有機物除去量に対して、推定した酸素消費量が少ない結果であった。これは酸素供給が必ずしも有機物の酸化分解の増加にすぐにはつながらず、むしろ好氣的な有機物貯蔵を増加させている可能性が考えられる。

D 担体の状態の時系列的変化

微生物担体への間欠接触酸化による運転を開始してから終了するまでの間の微生物担体の状態を時系列的に整理する。また、実験を終わる直前に微生物担体の目視観察および微生物量の測定を行った結果についても考察する。

D-1 方法

D-1-1 気液交換率および閉塞率の時系列的変化

担体の内部空間の構成の時系列変化を見るため、指標の代表として実験 A,B,C における各担体の気液交換率および閉塞率を示し、微生物担体への有機物負荷や酸素供給との関係性などを検討する。

D-1-2 微生物量の測定

各微生物担体の一部をはさみで切り出し、アルカリ分解/TN 法により微生物量を推定した。なお、サンプルはそれぞれの微生物担体ごとに 3 つずつ採取して測定し、平均値および標準誤差を求めた。また、測定値のばらつきを押さえるため、担体の表層に付着している微生物は洗い流してからサンプルを採取した。

D-1-3 微生物担体の目視観察

微生物量の測定に先立ち、微生物担体を各層ごとに並べて一覽し、目視による担体の状態の観察を行い、定性的な特徴について整理する。

D-2 結果と考察

まず図 5D-1 に実験 A、B、C における担体の気液交換率を、図 5D-2 に閉塞率を示した。いずれの系の担体においても、気液交換率は徐々に低下し、閉塞率は上昇する傾向にあった。運転の継続に従って微生物の増殖により担体の閉塞が進行したものと考えられる。気液交換率の低下の傾向には、垂直方向に差があることが読み取れる。1 層目では実験 A と実験 B の間(約 3 ヶ月間)よりも実験 B から実験 C の間(約 2 週間)で閉塞の進行が大きく、2 層目と 3 層目では、実験 A から実験 B の間で閉塞の進み具合が大きい。閉塞率も同様の傾向が見えて、2 層目と 3 層目は実験 A と B の間に閉塞の進行が大きいのに対し、1 層目の閉塞は実験 B と C の間の進行度合いが大きい。4 層目については、どの系も実験 A の時点で気液交換率が低く閉塞率が高いため、それ以降はあまり変化していない。この変化の傾向は、閉塞の進行が担体全体で均一に進むのではなく、むしろ下層から順に閉塞していくことを示唆しており、興味深い結果だと言える。ただし、3 系はやや傾向が異なり、他に比べて閉塞率があまり高くなかった。

有機物負荷量と微生物の増殖の関係性を考えることもできる。担体への有機物負荷量は、

TOC として約 400mgC/担体 L/d であった。これを COD に換算すると、およそ 1.1gCOD/担体 L/d である。微生物の増殖収率 0.5、COD/SS 変換率を 1.4 とすれば、1 日に増加する微生物量は 0.39gSS/担体 L/d 程度と計算できる。微生物の湿潤状態での比重を 1.0(g/cm³)、汚泥含水率を 90%と仮定すれば、湿潤状態の汚泥として 1 日に 4mL/担体 L 程度の微生物の増殖が起こることになる。増殖した全量が担体中に保持されるとすれば、1 日に担体体積の 0.4%ずつ、1 ヶ月でおよそ 12%にあたる分の微生物が増加すると推定できる。もちろん実際には微生物の剥離現象もあるし、微生物による閉塞が進むと毛管現象による保水効果が小さくなるため、微生物量の増加と閉塞の進行は単純なイコールではない。しかし、このようなオーダーで微生物量が増えていく実験系であったという理解は重要である。つまり、実験 A から実験 C までの約 3 ヶ月で閉塞状況が進んだのは、担体体積の 4 割程度に相当する湿潤状態での微生物量の増加があったと考えれば自然であるし、さらに長期的な実験を行えば、より閉塞が進行することが予想される。

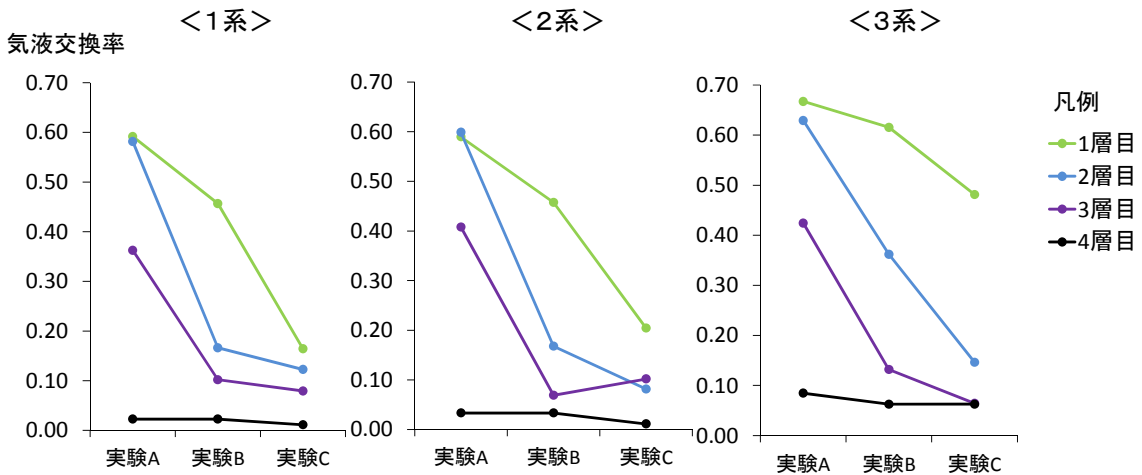


図 5D-1 実験 A~C における各担体の気液交換率

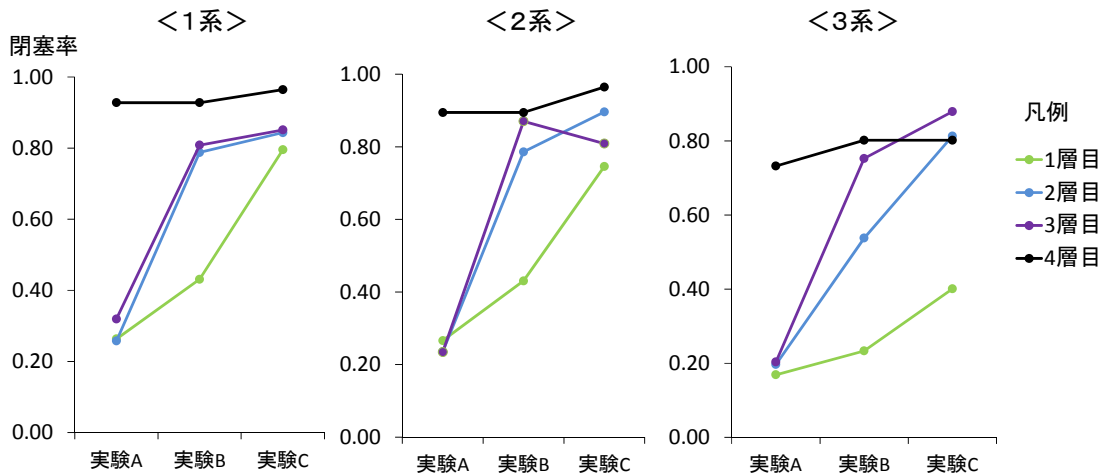


図 5D-2 実験 A~C における各担体の閉塞率

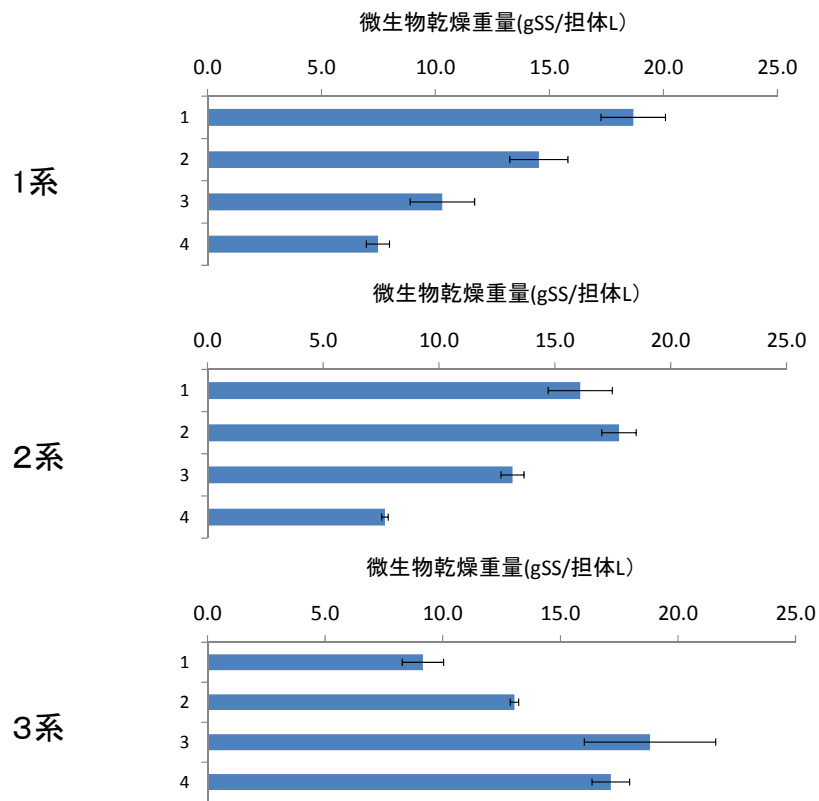


図 5D-3 担体中の微生物量乾燥重量の測定

図 5D-3 に担体中の微生物量の測定結果を示した。微生物量の測定は事件 C の直後に行ったため、概ね実験 C のときの微生物量を示していると言える。担体体積あたりの微生物乾燥重量は 5~15g/担体 L で、活性汚泥法における標準的な MLSS の値(2~3g/L)に比べて高い値を示した。これは、スポンジ担体の微生物保持能力の高さを示していると言える。各系の傾向を見ると、1系および2系では微生物担体の上段において微生物量が大きい一方、3系においては上段よりも下段で微生物量が大きく、明確な傾向の違いが見られる。特に最上段の担体において1系と2系が10g/担体 L 以上の微生物量なのに対して3系ではその半分程度であることは、図 5C-3 で3系のみ最上段の気液交換率が高く閉塞率が低かったことと一致している。1系と2系で下層の微生物量が小さく、また酸素供給量も少なかったと推定されることは、有機物除去特性に関係するかもしれないきわめて興味深い結果である。なぜなら、実験 C における1系、2系の微生物担体の下層では有機物の摂取および酸化的な利用が十分になされず、有機物除去が上層の担体に偏っていた可能性を示唆しているからである。有機物除去傾向の垂直方向での分布は今回の実験からは明確でないが、間欠接触酸化法による下水処理にとって重要な視点であるため、今後の詳しい検討が必要である。

最後に、実験に用いた微生物担体をばらして並べた写真を図 5D-4 に示す。目視によって得られた主な観察結果は、以下のとおりである。

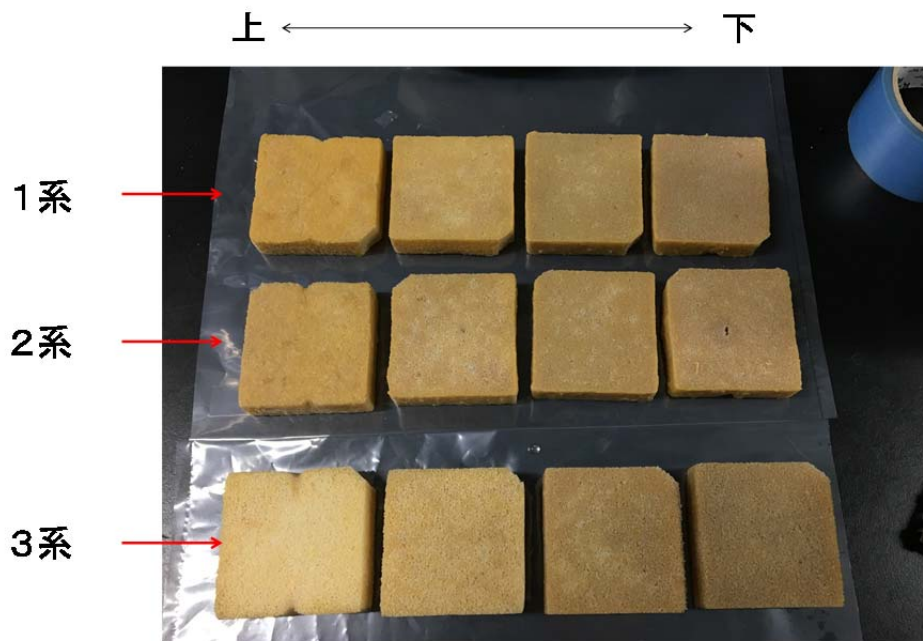
1) 垂直方向の色の違い

最も顕著な特徴は、担体の上層から下層に向けて色が変化していることである。上層ほど肌色に近い明るい色で、下層にいくほど茶色っぽい暗い色をしている傾向が、いずれの系の微生物担体においても見られた。その要因のひとつとして考えられるのは、上層と下層での酸素流入状況の違いである。微生物に対する酸素供給が有機物負荷に対して慢性的に不足すると、嫌気化が進行し硫酸還元による硫化水素の発生が起こる可能性がある。その際には、硫化物の黒色によって担体が黒ずんでくることが予想される。今回は完全に黒っぽく見える部分はなく硫化水素臭もなかったため活発な硫酸還元はなかったと思われるが、担体の閉塞状況や酸素供給量の差が見た目上にも差を生んでいたのかもしれない。

2) 1~3系の間での違い

上下方向の色の変化はいずれの系においても類似した傾向が見られたが、特に1層目(最上段)の微生物担体の様子には系ごとに違いがあった。1層目の担体の様子は、1系では表面に1mmに満たない程度の微生物膜が付着してべとついている印象があり、2系でも1系よりやや表面の付着が少ないようには見えるが概して1系と同じようにみえた。一方、3系の1層目は色が明るく白い部分もあり、担体表面に微生物膜の付着は見られなかった(図 7-8 の b と c を参照)。こうした観察結果は微生物量の測定結果とも一致する(ただし、表面の微生物膜は除去してから微生物量測定用の試料を採取した)。

1層目では1系、2系と3系との間で見た目にははっきりと差があったが、2層目以降では各系とも似たような状態に見えた。しかし、微生物量の測定結果を見ると、4層目では1系と2系が6gSS/担体L程度なのに対し3系では14gSS/担体Lと倍以上の開きがあった。これは担体内部での微生物密度の違いであると考えられ、分子拡散の効果によって酸素の届きやすい表層部と酸素供給のされづらい担体内部では微生物の生長状況も大きく異なるのかもしれない。



a) 微生物担体すべて



b) 1系 1層目



c) 3系 1層目

図 5D-4 実験後の微生物担体の目視による観察

D-3 まとめ

- 1) いずれの担体においても気液交換率の低下と閉塞率の上昇が見られたが、その推移は担体全体の中で均一ではなく、特に垂直方向に差があることが分かった。
- 2) 微生物量の測定の結果、1系と2系では上層の担体で微生物量が大きかったが、3系では下層の担体の微生物量が大きかった。有機物除去量や酸素の流入量と合わせて考えると、1系と2系の下層では酸素不足によって微生物の増殖速度が低下した可能性がある。
- 3) 微生物担体の目視観察により、特に垂直方向の色の違いがどの系にも見られた。一方で見た目の印象と微生物量の測定結果は必ずしも一致せず、これは担体の内部における微生物の付着状況の違いによると予想できる。

E 担体への物理的酸素供給速度の測定

本章 A~D では、微生物担体を用いて有機物除去および酸素消費について検討した。担体への酸素供給は担体内部の空間構成や微生物の活性に大きく影響される一方、物理化学的な制約も存在すると考えられる。そこで本章では、酸素との反応性が高い亜硫酸ナトリウム水溶液を微生物の付着していないスポンジ担体に間欠的に流入させ、物理化学的な酸素供給速度を検討した。

E-1 原理

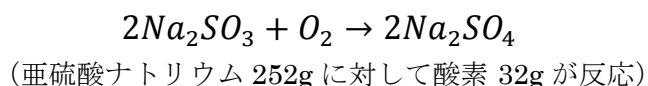
活性汚泥法においては、水中への酸素の溶解速度をあらゆる指標として総括酸素移動容量係数 $K_L a$ が用いられる⁴²⁾。酸素の水中への移動速度は、次式のように $K_L a$ を用いて酸素濃度の 1 次式として表現される。

$$\frac{dC}{dt} = K_L a (C_s - C)$$

ただし、 C ：溶存酸素濃度、 C_s ：測定温度における飽和溶存酸素濃度

$K_L a$ の値は、溶存酸素を 0 付近まで低下させた水にエアレーションを行い溶存酸素濃度の上昇を測定することで、実験的に求められる。そこで間欠接触酸化法の実験の場合も、干出による酸素供給効果を同様な指標で求めることができると望ましい。ただし、間欠接触酸化法における酸素供給は担体の内部に空気が侵入するものであり、溶存酸素として検出することは難しい。そこで、触媒の存在下で酸素との反応性がきわめて高い亜硫酸ナトリウムの溶液を用いて、以下のような方法を考案した。

亜硫酸ナトリウムを触媒とともに溶解させた水溶液中では、溶解した酸素はすぐさま以下の反応によって消費されるため、亜硫酸ナトリウムが溶液中に存在する限り溶存酸素濃度は 0mg/L に保たれる。



ここで、亜硫酸ナトリウム溶液を 4 章のような運転でスポンジ担体に間欠的に流入させることを考える。排水時に担体中に残った溶液は、空気の移流効果により流入した酸素と接触する。その際、接触表面積が大きいと、残存した溶液中の亜硫酸ナトリウムは担体中の酸素と反応して消費される。この運転をくり返すと、やがて亜硫酸ナトリウムがすべて反応して硫酸ナトリウムとなり酸素消費が止まるため、DO が検出される。亜硫酸ナトリ

ウムの初期濃度からその分解に必要な酸素量が分かるので、DO が検出されるまでに要したサイクル数とから、運転 1 サイクルあたりの酸素供給量が算出できる。

ただし、流入と排水の機械的な操作によってもある程度酸素が溶液中に供給されると考えられる。このとき、 $C=0$ から $dC/dt = K_L a \times C_s$ となるので、溶液中への酸素の溶解速度は一定と考えてよい。したがって、スポンジ担体を設置した実験系と担体のない対照系とで同じ操作で運転を行い、DO が検出されるまでのサイクル数の差を取れば、担体の干出による酸素供給効果を求めることができると考えられる。一方、対照系で DO 検出までに要したサイクル数から、その実験装置における溶存酸素からの酸素供給効果を知ることができる。

E-2 方法

a) 装置と測定器具

実験装置の概略を図 5E-1 に示した。実験系として、4-2-1 の方法で作成したスポンジ担体を、水切りマットを敷いたビーカーに設置して実験系の装置とした。また、対照系としてスポンジのないビーカーのセットも用意した。亜硫酸ナトリウム溶液は、超純水 800mL に亜硫酸ナトリウムを一定量(1g、10g、20g のいずれか)および触媒として塩化コバルト(II)6水和物を 10mg 程度添加したものを実験系と対照系にそれぞれ用意した。亜硫酸ナトリウムを溶かす間に空気中の酸素の溶け込みによる反応で実験系と対照系とで濃度に差が生じるのを防ぐため、両方の溶液をスターラーで攪拌しながら同時に亜硫酸ナトリウムを加え、概ね亜硫酸ナトリウムが溶け切ったところで塩化コバルト(II)6水和物を同時に加えた。また、溶液中の DO を測定するため、校正済みの DO 計(東亜ディーケーケー社、DM-32P)を 2 本用意し、運転中の溶液中の DO を測定した。

b) 実験

実験は上述した装置を用いて、亜硫酸ナトリウム溶液を一定の運転サイクルで実験系と対照系に同時に流入・排水し、排水操作後の溶液の DO を毎回測定した。そして、DO が検出されるまでに要したサイクル数を記録した。なお、DO 計の表示値が 0.5mg/L を越えた時点で DO が検出されたものとして扱った。

まず、運転サイクルの干出時間が結果に影響を与えないことを確認するため、超純水 800mL に亜硫酸ナトリウム 1g を溶かした溶液を用い、表 5E-1 のように干出時間を 0 分、1 分、2 分、3 分、5 分と変更して測定を行った。微生物試験よりも干出時間が短いのは、亜硫酸ナトリウムは触媒の存在下で酸素との反応性がきわめて高く、担体に供給された酸素は短い干出時間のうちにすべて亜硫酸ナトリウムとの反応によって消費されることが予想されるためである。次に、亜硫酸ナトリウムを 10g 溶かした溶液、20g 溶かした溶液をそれぞれ用意し、表 5E-1 の干出時間 1 分の条件 (流入 2 分/浸漬 0 分/排水 2 分/干出 1 分)

でそれぞれの濃度の溶液に対して同様の実験を行い、DO が検出されるまでのサイクル数を求めた。さらに、実験結果の整合性を検討するため、DO 検出以降の対照系における DO の推移から、流入・排水の操作による $K_L a$ を求めた。

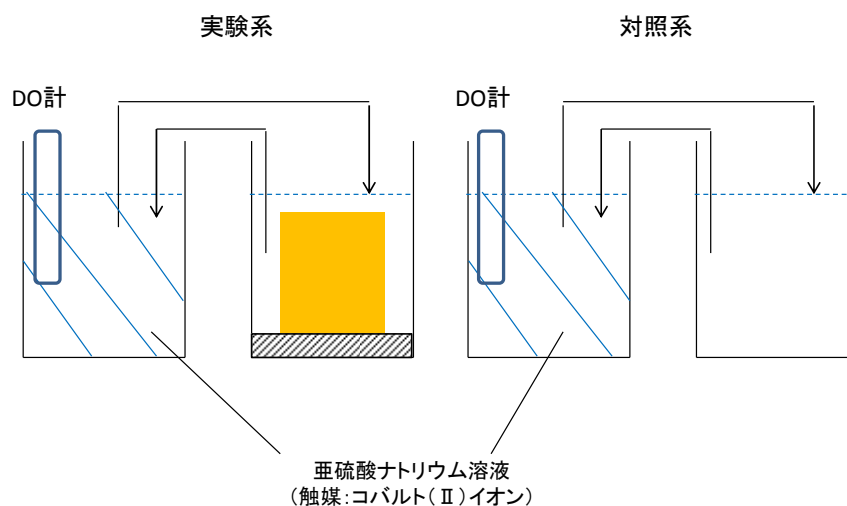


図 5E-1 実験装置の概要 (実験 E)

表 5E-1 亜硫酸ナトリウム 1g のときの実験条件

	流入	浸漬	排水	干出
条件 1	2 分	0 分	2 分	0 分
条件 2	2 分	0 分	2 分	1 分
条件 3	2 分	0 分	2 分	2 分
条件 4	2 分	0 分	2 分	3 分
条件 5	2 分	0 分	2 分	5 分

E-3 結果と考察

まず溶解した亜硫酸ナトリウムが 1g のとき、各運転条件において DO 検出までに要したサイクル数を表 5E-2 に示した。DO 検出までのサイクル数に対して干出時間の影響は見られなかった。これは、担体に保水された溶液中の亜硫酸ナトリウムと担体に流入した酸素とがきわめて短時間のうちに素早く反応するためと考えられる。要したサイクル数の平均値は、実験系で 10.2、対照系で 12.8 という結果だった。上述の反応式から亜硫酸ナトリウム 1g と反応する酸素量はおよそ 127mgO であり、超純水に最初含まれていた DO の消費を考えると、運転の間に酸素約 120mgO が亜硫酸ナトリウムと反応した。ここから、サイクルあたりに反応により消費された酸素量は、実験系で 11mgO、対照系で 8.8mgO である。したがって、スポンジ担体による酸素供給効果の平均値は、実験系と対照系の差をとって 1 サイクルあたり 2.2mgO と計算できる。一方、4-3-4 で求めた微生物のいないスポンジでの

結果を用いれば、排水にともない担体中に流入する酸素量は 73mgO であった。この 2 つの数字の間には大きな隔たりがあると言える。

担体中への空気の流入による酸素供給効果が予想に反して小さかったのは、次のような手法上の問題点が指摘できる。排水後にスポンジ中に残る亜硫酸ナトリウム溶液はおよそ 150mL であり、この中に含まれる亜硫酸ナトリウムは初期濃度で計算すれば 190mg 程度である。これは酸素約 23mgO に相当し、担体内部に流入する酸素量よりも少ない。さらに、空気の移流により供給される酸素量は毎回一定とみなせる一方、亜硫酸ナトリウム溶液の濃度はサイクルをくり返すたびに減少していく。その結果、毎回スポンジ中に残る亜硫酸ナトリウムの量が律速条件となって、酸素供給の効果を過小評価した可能性が高いと考えられる。

表 5E-2 DO 検出までに要したサイクル数 (亜硫酸ナトリウム 1g)

干出時間 (分)	実験系	対照系
0	11	14
1	10	12
2	10	14
3	10	12
5	10	12
平均	10.2	12.8

高い濃度の亜硫酸ナトリウム溶液での実験結果を表 5E-3 に示した。上述のように、濃度の高い亜硫酸ナトリウム溶液を用いることで、スポンジ担体による酸素供給効果をより適切に把握できる可能性がある。亜硫酸ナトリウムの溶解量が 10g のとき、DO 検出までに要したサイクル数は、実験系では 36、対照系では 44 だった。同様に亜硫酸ナトリウム 20g のとき、実験系で 52、対照系で 76 だった。ここからサイクルあたりの酸素供給量を求めると、添加量 10g のとき実験系で 35mgO、対照系で 29mgO、添加量 20g のとき実験系で 48mgO、対照系で 34mgO となる。またスポンジ担体によるサイクルあたりの酸素供給効果の平均は、添加量 10g のとき 6mgO、20g のとき 14mgO と算出できる。依然として担体中に流入する酸素量に比べて小さいが、亜硫酸ナトリウム濃度が高いほどスポンジ担体による酸素供給効果が大きく計算されるのは、スポンジ中に残る亜硫酸ナトリウムの量が律速条件になるまでにより時間がかかるからだと考えられる。また、少なくともスポンジ担体に一定程度の酸素供給効果があることは読み取れる。

一方で、対照系における酸素供給量が大きすぎるものが疑問である。この数字では、流入・排水の操作を 1 回行うだけで飽和濃度以上の酸素が溶液中に溶け込む計算であるが、それは現実的には考えづらい。実際、対照系で DO が検出されて以降の DO の推移から流

入・排水の機械的操作による $K_L a$ を求めると、 $K_L a=0.21(1/cycle)$ であった(図 5E-2)。これは 20°C 、 $\text{DO}=0\text{mg/L}$ の水に対して、1 サイクルで 2mg/L 程度の DO 上昇を生じる値であり、1 サイクル 30mgO という上記の結果とは整合しない。このような結果の原因として、触媒の劣化などにより亜硫酸ナトリウムが溶液中に残存したまま反応が止まってしまった可能性は考えうる。ただし、DO 検出後の溶液に塩化コバルト(II)6 水和物を再添加しても DO は低下しなかったため、触媒の劣化による反応速度の低下は考えづらい。これ以外の特殊な機構の存在の可能性等について本研究の中では考察できず、原因は分からなかった。よって、今後の手法上の検討課題として付記しておきたい。

表 5E-3 DO 検出までに要したサイクル数(亜硫酸ナトリウム 1,10,20g)

亜硫酸ナトリウム添加量(g)	酸素要求量(mgO)	実験系	対照系
1	120	10	12
10	1260	36	44
20	2530	52	75

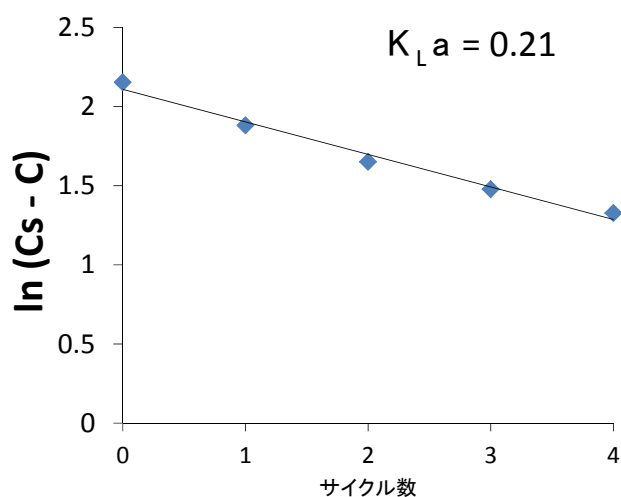


図 5E-2 対照系における流入・排水操作による $K_L a$ の測定

E-4 まとめ

本実験では、スポンジ担体への物理的な酸素供給速度を測定するため、酸素との反応性が高い亜硫酸ナトリウム溶液を用いた実験を行った。スポンジ担体を設置した実験系と対照系との比較から、スポンジ担体による酸素供給効果を物理化学的にも一定程度確認できた。一方で、対照系において予想を大きく上回る早さで DO が検出された原因は明らかでなく、今後の検討手法上の課題である。

6 総合的考察

本章では、ここまでの検討のまとめと総合的な考察を行う。まず 9-1 で、担体内部の空間構成の推定、微生物試験、物理化学的試験のそれぞれに関する検討について概観する。9-2 で、微生物担体への酸素供給について、より一般化した形での定式化を試みる。9-3 では、実験・検討の結果をもとに間欠接触酸化法の適用可能性や今後重点的に検討が必要と思われる項目をいくつか述べる。最後に 9-4 で、間欠接触酸化法を検討する上での手法上の制約や課題について整理する。

6-1 検討結果についての概観

まず第 3 章において、微生物担体の内部空間の構成を把握する方法、記述する指標について検討した。担体の含水量の測定をもとにした簡易的な推定・記述であるが、空気の移流効果による担体内部への酸素供給に注目する上で、ある程度適切に内部空間の状態を表現できたと考えている。実際、定義したいくつかの指標（体積含水率、気液交換率、閉塞率）を用いて担体の内部状態を第 5 章の各実験であらわした結果、担体の状態の違いと有機物除去の違いを結びつけて考察することができた。間欠接触酸化法について検討を進めていく上で、これはきわめて重要な前進である。一方で、よりミクロな現象理解のためには、担体中の水の残り方や流入した空気の担体内部での分布など、詳細な検討の余地は大いに残されている。

第 5 章では一連の実験により、担体の干出による酸素供給が有機物除去に与える影響や、微生物による酸素消費と有機物除去量の関係、物理的な酸素供給速度などの検討を行った。それらの結果を合わせて考えると、次のようにいくつかの興味深い示唆が得られた。

- 1) 微生物担体への酸素供給において支配的なのは排水にともなう空気の移流効果であり、さらに空気に干出する時間は短くても微生物による有機物除去は十分に促進されうる。
- 2) 担体の閉塞が進み酸素流入量が低下すると、有機物除去速度の低下が生じる。また、特に微生物担体の下層に酸素が行き届かなくなり、微生物の活性の低下や微生物量の減少の原因となりうる。
- 3) 下水中からの有機物除去量に関わらず、微生物の酸素消費速度は大きく変化しなかった。微生物担体への酸素供給は、場合によっては有機物の酸化分解よりも好氣的な有機物貯蔵を促進する可能性がある。
- 4) スポンジ担体により一定程度の酸素供給効果があることが物理化学的な方法での検討からも示された。

特に 3) の考察についてはさらなる実験によって検証が必要であるが、こうした考察は、間欠接触酸化法のきわめて重要な性質を示しているかもしれない。すなわち、干出時間を長く取ることよりもむしろ、閉塞の回避と水の交換回数を確保することに設計上重点をお

く方が、間欠接触酸化法による有機物除去を効率的に行うことができるかもしれない。

6-2 酸素供給量のモデル化

本節では、間欠接触酸化法における微生物担体への酸素供給について、より一般的な形での式を提示する。1日あたりの微生物担体への酸素供給量は1サイクルあたりの酸素供給量×1日のサイクル数として表されるので、1サイクルあたりの酸素供給量を定式化するのが便利である。1サイクルあたりの酸素供給量を、これまで見てきたように、空気の移流効果による供給+分子拡散による供給+下水中の溶存酸素による供給の和として考え、それぞれについて考察する。

a) 溶存酸素

本研究での実験では下水中の溶存酸素は概ね 0 に保たれており、特段考慮せずに考察を進めてきた。しかし、装置の構成によっては溶存酸素からの供給も重要な役割を果たす可能性がある。下水中への酸素の溶解機構は装置の形状によって異なり定式化は難しいが、5章 E で行ったような実験により 1 回のサイクルの操作による下水中への酸素の供給速度を実測することが可能なので、装置ごとに実験を行いその結果を用いるのが妥当である。

b) 分子拡散

干出中の空気との接触による分子拡散による酸素供給量は、担体の表面積（内部の細孔を含まない外表面の面積）、サイクルあたりの担体の干出時間、担体の内外の酸素濃度勾配、の関数として表わされる。基本的に有機物除去量に対して酸素が不足し、供給された酸素がすぐに消費される状況を考えれば、酸素濃度勾配は定数とおける。したがって、今回は具体的な式の中身には踏み込まないが、1サイクルあたりの分子拡散の効果による酸素供給量は、担体の表面積 A 、1サイクルあたりの干出時間 t を用いて、

$$O_2(\text{分子拡散})[g/cycle] = f(A, t)$$

A : 担体の見かけの表面積(cm^2) t : 1サイクルあたりの干出時間(min)

として定式化できるはずである。今回のように小さいスケールの場合は、5章の実験 C で行った実験のような形で、微生物による酸素消費速度として実測することが可能である。

c) 排水にともなう空気の移流効果

本研究では、空気の移流効果による担体中への酸素供給は、すべて排水と同時に起こるとみなして考察してきた。しかし正確には、排水操作の後も少しずつ下水は担体から抜けていくため、その際も酸素の供給が起こる。したがって定式化の際は、排水直後に一気に

流入する酸素と、その後ゆっくり水が抜けていく際に流入する酸素とに分けて考える。

排水操作と同時に流入する酸素供給量が担体の体積と気液交換率の関数となることは、気液交換率の定義から妥当であろう。一方それ以降の酸素供給量は、干出時間の関数、すなわち時間あたりに抜ける水の量×1サイクルあたりの干出時間、として表わされる。したがって、空気の移流効果による酸素供給量は気液交換率と干出時間の関数として考えられる。そこで、空気中の酸素含有量を 0.3gO/L、気液交換率を a、時間あたりに抜ける水の量を b とすれば、1サイクルのうちに空気の移流によって担体に供給される酸素量は、

$$O_2(\text{移流})[g/\text{cycle}] = (V \times a + b \times t) \times 0.3$$

V：担体の体積(cm³) a：担体の気液交換率
b：時間あたりに担体から抜ける水の量(mL/min)

この式のうち、前半の項は気液交換率の関数であり、後半は干出時間の関数である。今回の実験のようにサイクルあたりの干出時間がそれほど長くない場合、第 2 項はほとんど無視できる。一方、1サイクルあたりの干出時間が大きいときには、第 2 項も考慮する必要がある。

d) 担体への酸素供給量

以上を用いて、1日あたりの担体への酸素供給量は、次のように表せる。

$$\begin{aligned} O_2(\text{total, day}) &= N \times [O_2(\text{溶存酸素}) + O_2(\text{分子拡散}) + O_2(\text{移流})] \\ &= N \times [O_2(\text{溶存酸素}) + f(A, t) + \{(V \times a) + (b \times t)\} \times 0.3] \end{aligned}$$

N：サイクル数 A：担体の見かけの表面積(cm²) t：サイクルあたりの干出時間(min)

V：担体の体積(cm³) a：気液交換率 b：時間あたりに抜ける水の量(mL/min)

この式から、担体の体積を一定としたとき、間欠接触酸化法における酸素供給量を向上させるための方法は、

- ・ 1日あたりのサイクル数=下水と空気との交換回数を増やすこと
- ・ 気液交換率を高める=担体の閉塞を防ぐこと
- ・ 1サイクルあたりの干出時間を長く取ること
- ・ 体積あたりの表面積を大きく取ること
- ・ 下水中への酸素の溶解を促進すること

という形で整理できる。このうち、1日あたりのサイクル数と1サイクルあたりの干出時間

はトレードオフの関係にある一方、空気の移流効果による酸素供給量はサイクル数との掛け算によって増幅される。つまり効率的に酸素供給量を増加させるためには、実験結果からも示唆されたように、気液交換率を高く保ちながら 1 日あたりのサイクル数=下水と空気との交換回数を多く取ることが重要である。

6-3 間欠接触酸化法の活用と課題

今回の検討から明らかになったことを踏まえて、間欠接触酸化法を今後活用していく上で有用と思われる点や、今後注目すべき課題について述べる。

a) 微生物担体の閉塞

実験結果が示すように、担体の閉塞はやはり有機物除去に大きな影響を与える可能性が高い。このことは、直感的な予想とも合致する。担体の閉塞を防ぐにあたっては、形成される生態系の多様性がひとつの解決策になるかもしれない。2 章でも述べたように、多数の微細気泡を有する構造と垂直方向の変化による内部空間の状態の複雑さは、生態系の多様性を支える重要な要素になる可能性がある。微生物だけでなく原生動物など高次の生物が担体に繁殖すれば、食物連鎖のはたらきによって閉塞の解消に寄与することを期待できるし、難分解性物質の流入など基質の構成や負荷量の変動に対する柔軟性を高める効果もあるだろう。

b) スポンジ担体の素材や形状

本研究では触れなかったが、間欠接触酸化法における非常に重要な検討項目として、担体の素材および形状が挙げられる。今回スポンジ担体の素材として選んだポリエチレンは、非常に耐久性に優れた素材である。これは、浄化管への適用という観点から見るとかなり重要な点である。すなわち、比較的長期にわたって厳しい環境をメンテナンスなしで乗り切る必要があるという意味で、ポリエチレンは優れた素材である。一方で、構造が比較的密であり保水性が高いため、閉塞しやすい可能性はあるだろう。当然ながら担体の空隙率や保水性は素材によって大きく左右される。ある程度の微生物量を保持しながら、内部が完全に閉塞することのないような適当な素材を選定することは性能に直結する。また、担体の形状によっても水の保持のされ方などは大きく変わってくる。実験的検討に加えて、関わる指標を整理し、最適解を探ることが求められる。

c) 実環境への対応

本研究では人工下水を用いた実験を行ったが、実際の環境下での間欠接触酸化法のはたらきを調査することも重要である。それには、大きく分けて 2 つの意味がある。ひとつは、実下水に対する応答である。酢酸・グルコースを中心とした安定した基質を供給した今回の実験に対して、実下水中の有機物成分はより多様であり、容易に一時貯蔵されないよう

な遅分解性有機物も含まれる。また、それに応じて担体中の微生物相も人工下水による実験とは異なるだろう。もう一つは、油や大きな紙ゴミなどの流入に対しての応答である。分解が困難な流入物によって微生物担体が極度の閉塞状態に陥れば、有機物除去が進まず嫌気化が起きると予想される。そのような厳しい環境に対する特性を調査することは、特に途上国などでの適応を目指す上では不可欠であるといえる。

長期的な運転を行うことも重要な検討であろう。今回の実験は4ヶ月程度の運転期間であったが、さらに長期間運転をつづければ担体内部の閉塞がより進行する可能性が高い。特に実際の環境への適用を想定すれば、半年~1年のスパンでの運転の継続と状態の観察を行うことが必要になるだろう。

d) 管路内浄化技術への適用

第2章で述べたように、間欠接触酸化法は管路内下水浄化技術との関わりが深い。本研究の一連の検討についても、浄化管の原理を抽出したものと考えることができる。ただし、浄化管内のスポンジ担体の厚みは1~2cm程度であり、管路の勾配による高低差はあるものの、水の抜け方やそれにとまなう空気の流入の仕方は今回の実験と大きく異なっている。具体的に言えば、浄化管内の担体は垂直方向の高さが大きく水平方向には非常に長いので、水が抜けにくく空気が入りづらい条件が予想される。あるいは、浸漬/干出のフェーズは実験のように規則的ではないだろう。そうした意味では、今回の知見をそのまま管路内浄化技術に対して適用することはできない。

一方で、間欠接触酸化法に関して今回得られた知見には、さらなる一般化の余地がある。例えば、担体内部への空気の移流効果による酸素供給の重要性は、管路内浄化技術でも当てはまるポイントであり、今回定義した気液交換率のような適切な指標で担体の状態を記述すれば、設計に応用できる可能性がある。また、浸漬/干出のサイクル時間については、通常の管路ではたしかに予測・コントロールすることは難しい。しかし、例えばポンプを用いる揚排水機場の近くなどではある程度の水量変化が予測でき、間欠接触酸化法による処理性能を高める対策が取れるかもしれない。このように、本研究では間欠接触酸化法の原理を単純化して抽出したような実験を行ったが、一般化された記述方法や適応状況の設定などを考えることで、管路内浄化技術をはじめとした実際の処理方法への有意義な活用が可能になるだろう。

6-4 検討手法上の制約と課題

本論文中でも何度か言及したように、間欠接触酸化法について検討を行う上では活性汚泥法などとは異なる手法上の制約や課題が存在する。そうした制約・課題は、手法上の観点であると同時に、間欠接触酸化法の特長にも深く関わる重要な視点であるとも言える。そうした課題について総合的な考察の最後に整理を行い、今後の研究の足がかりとしたい。

間欠接触酸化法を活性汚泥法と比較した際の最大の特徴は、これまで何度か述べたように、系全体の状態が複雑で均一でないことである。複雑かつ不均一な系を扱う際には、「代表点の選定方法」と「基準化の方法」が重要になると考えられる。前者に関して、多くの場合試料の全量測定は困難なので、ある試料を用意しそれが全体の傾向を示しているとする必要がある。場合によっては大きな誤差が生じることもあるが、どの程度のオーダーで値がばらつくかをあらかじめ把握し、また適切に試料の分割を試みることが重要である。

基準化については、2つの意味合いを含んでいる。ひとつは、間欠接触酸化法の検討を行う中での統一基準としての意味合いであり、これは開発・設計・ミクロ的解析などの目的に応じて比較的容易に考えることができる。もう一つは、他の下水処理技術との比較を行うための基準化である。本研究では微生物担体への有機物負荷を、担体体積あたりのBOD負荷として換算することで活性汚泥法におけるBOD・容積負荷と比較した。これはある面で正当性を持つ一方、体積あたりの微生物量の違いを考えれば適切でない面もある。基本的には比較の目的に応じて適切な指標を選定するしかないが、ある程度の整理が必要なのは間違いない。一つ例を挙げれば、今回は「担体体積あたり」という基準を頻繁に利用した。これは、有機物除去量や含水量などの指標は担体の見かけの体積によるところが大きいと予想される点や、直感的にも理解しやすいという点を考慮したものである。一方で、よりミクロな現象面を考えれば、表面積あたりで考えるのが適切な場面もあるかもしれない。実際、付着微生物を用いた下水処理技術の一つである回転円板法では、BOD・面積負荷という指標が用いられることがある。また、「表面積」という表現も、見かけ上の表面積であるか、内部構造までを含む表面積であるかによって、まったく異なる意味合いを持つのは言うまでもない。ここで議論し尽くすことはできないが、指標の選択にそのような多様性があり、適切な考え方を適宜取ることがきわめて重要であることは、留意すべきであろう。

反応系の複雑さ、試料のばらつきに加えて、微生物担体に対しての非破壊測定が難しいことが制約条件として挙げられる。本研究の実験では、含水量を定常時測定項目として測定することで担体の状態をおおまかに把握することを試みたが、より正確に担体の状態を把握するには、微生物量や貯蔵物質量の測定を定常的に行いたい。特に前者は、活性汚泥法ではMLSSを常時モニタリングしていることから考えても、ぜひとも測定を行いたいところである。しかし、担体と微生物とを分離して扱うことは非常に困難であるため、今回のアルカリ分解/TN法のような破壊的測定にならざるを得ない面がある。

この課題を解決する方法は、大きく分けて「非破壊的分析手法の開発」と「実験系の組み方の工夫」とがある。すなわち、微生物量を非破壊的に把握するための方法を開発したり、それに代わる間接的な指標を用いることが出来れば望ましいが、それができないとしても、実験系の組み方によって問題を解決できる可能性もある。実際、今回の実験では微生物担体を4層に分割しておくことで、垂直方向の差をある程度考慮することができた。他には例えば、あらかじめアルカリ分解/TN法での測定に適したようなサイズで用意した

微生物担体を大量に充填するような形で実験系を組めれば、定常的な微生物量の測定（加えて一時貯蔵物質の測定）が可能になる。もちろん、通常の実験時における担体の固定方法など別の課題が生じることは当然想定されるため、検討の目的や対象とする指標などによって適切な実験系および測定手法を設定する必要がある。

以上のように考察してみると、重要な課題は結局のところ、微生物担体の内部空間という複雑な場を適切に把握・記述し、そこで起きる現象を解析する適切な手法を選択（あるいは開発）する、という点に集約されるように思われる。本研究でも一部取り組んだが、依然として不十分な部分もあり、今後の検討により手法が確立されていくことが期待される。

7 おわりに

本研究では、間欠接触酸化法における微生物担体への酸素供給について一連の検討を行った。その結果得られた結論は以下のとおりである。

- 1) 担体の体積含水率、気液交換率、閉塞率をそれぞれ定義し、これらの指標によって微生物担体の内部空間の構成を簡易に記述する手法を提示した。
- 2) 微生物担体への酸素供給は、排水にともなう空気の移流効果が支配的であることが示唆された。さらに、担体の干出時間が短い場合でも、水と空気との交換が行われることで微生物に酸素が供給され、有機物除去が十分に促進され得ることが分かった。
- 3) 担体の閉塞が進み酸素流入量が低下すると、有機物除去速度の低下が見られたり、微生物担体の下層に十分に酸素が供給されず微生物量が減少しうることが示唆された。
- 4) 物理的酸素供給速度は手法上のいくつかの問題から正確に測定できなかったが、スポンジ担体による酸素供給効果が物理化学的な実験によっても一定程度確認できた。
- 5) 微生物担体への酸素供給を溶存酸素、分子拡散、排水にともなう空気の移流、の各効果に分けて検討し、1日あたりの酸素供給量を表すモデル式を提示した。
- 6) 一連の検討を踏まえて、間欠接触酸化法の特徴や検討手法上の制約について整理し、今後の検討の上で重要な課題を示した。

第1章でも述べたように、日本の下水道はこれまでの考え方を転換しながら新しい価値を見出していかなければならない。そこでは、集約型・活性汚泥法中心の下水道システムに必ずしもこだわる必要はなく、むしろ微生物膜法などの技術の利用や分散型のシステム構築など、多岐にわたる選択肢の提示と活用が求められていくのではないだろうか。そのような、積極的な意味での下水道の多様化の中で、価値のある選択肢のひとつとして間欠接触酸化法を提示することができれば嬉しいことである。また、そのような大きな時代の流れに対して、本研究が少しでも貢献できることを願っている。

参考文献

- 1) 国土交通省下水道政策研究委員会 (2014) 新下水道ビジョン、
http://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewerage/mizukokudo_sewerage_tk_000307.html
- 2) 黒木雄介、佐藤弘泰、庄司仁、味埜俊、松坂勝雄、松原善治 (2015) 間欠接触酸化法による無曝気での有機物除去機構の解析, 第 49 回水環境学会年会講演集, 675
- 3) 黒木雄介、佐藤弘泰、味埜俊、松坂勝雄、松原善治、玉木聡史 (2016) 下水の間欠接触酸化処理における担体の干出条件の影響, 第 50 回水環境学会年会講演集, 83
- 4) 松坂勝雄、松原善治、佐藤弘泰、庄司仁 (2014) 管路内での間欠接触酸化による下水処理技術の開発, 第 51 回下水道研究発表会講演集, 646-648
- 5) Shoji T., Matsubara Y., Tamaki S., Matsuzaka K., Satoh H., Mino T. (2015) In-sewer treatment system of enhancing self-purification: performance and oxygen balance in pilot tests, *Journal of Water and Environment Technology*, **13** (2), 427-439
- 6) 玉木聡史、松原善治、松坂勝雄、佐藤弘泰、庄司仁 (2016) 管路内での間欠接触酸化による下水処理技術の開発(第 3 報), 第 53 回下水道研究発表会講演集, 980-982
- 7) 庄司仁、佐藤弘泰、味埜俊、須田亙、服部正平、玉木聡史、松原善治、松坂勝雄 (2016) 管路内での下水浄化における下水中の微生物群衆構造の変化, 第 53 回下水道研究発表会講演集, 518-520
- 8) 黒木雄介、佐藤弘泰、味埜俊、松坂勝雄、松原善治、玉木聡史 (2016) 管路内下水浄化技術における微生物担体中での酸素収支に関する検討, 第 53 回下水道研究発表会講演集, 983-985
- 9) 下水道管きょ学研究会 (1998) 下水管渠での下水処理の可能性について, 月刊下水道, **21** (10), 51-55
- 10) Raunkjear K., Hvitved-Jacobsen T., Nielsen H.P. (1995) Transformation of organic matter in a gravity sewer, *Water Environment Research*, **67** (2), 181-188
- 11) Chen G.H., Leung H.W.D., Huang J.C. (2001) Removal of dissolved organic carbon in sanitary gravity sewer, *Journal of Environmental Engineering*, **127** (4), 295-301
- 12) Hvitved-Jacobsen T. (2001) Sewer Processes – Microbial and Chemical Process Engineering of sewer networks – (日本語版: 越智孝敏他(訳) (2004) 下水道管渠内反応 – 生物・化学的処理施設として – 技報堂出版)
- 13) Srinanthakumar S., Amirtharajah A. (1983) Organic carbon decay in stream with biofilm kinetics, *ASCE Journal of Environmental Engineering*, **109** (1), 102-119
- 14) Chen G.H., Leung H.W.D. (2000) Utilization of oxygen in a sanitary gravity sewer, *Water Research*, **34** (15), 3813-3821
- 15) Marjaka W.I., Miyana K., Hori K., Tanji Y., Unno H. (2003) Augmentation of self-purification capacity of sewer pipe by immobilizing microbes on the pipe surface, *Biochemical Engineering Journal*, **15**, 69-75

- 16) Gujer W., Jenkins D. (1975) The contact stabilization activated sludge process – Oxygen utilization, sludge production and efficiency, *Water Research*, **9**, 553-560
- 17) Rodgers M., Wu G. (2010) Production of polyhydroxybutyrate by activated sludge performing enhanced biological phosphorus removal, *Bioresource Technology*, **101**, 1049-1053
- 18) van Loosdrecht M.C.M., Pot A.M., Heijnen J.J. (1997) Importance of bacterial storage polymers in bioprocesses, *Water Science and Technology*, **35** (1), 41-47
- 19) Majone M., Dircks K., Beun J.J. (1999) Aerobic storage under dynamic conditions in activated sludge processes. The state of the art, *Water Science and Technology*, **39** (1), 61-73
- 20) The IWA Task Group on Mathematical Modelling for Design and Operation of Biological Wastewater Treatment (2000) Activated sludge models ASM1, ASM2, ASM2d and ASM3 (日本語版：味埜俊(監訳) (2005) 活性汚泥モデル：ASM1, ASM2, ASM2d, ASM3
- 21) 押木守、佐藤弘泰、味埜俊 (2009) 微生物のもつ有機物貯蔵能力を利用した省エネルギー型排水処理法の提案, 用水と廃水, **51** (9), 737-745
- 22) Lee S.Y. (1996) Review Bacterial polyhydroxy – alkanoates, *Biotechnology and Bioengineering*, **49**, 1-14
- 23) Satoh H., Iwamoto Y., Mino T., Matsuo T. (1998) Activated sludge as a possible source of biodegradable plastic, *Water Science and Technology*, **38** (2), 103-109
- 24) Takabatake H., Satoh H., Mino T., Matsuo T. (2002) PHA (polyhydroxyalkanoate) production potential of activated sludge treating wastewater, *Water Science and Technology*, **45** (12), 119-126
- 25) 押木守、佐藤弘泰、小貫元治、味埜俊 (2009) 活性汚泥プロセスにおける有機性一時貯蔵物質の蓄積, 下水道協会誌, **46** (566), 126-137
- 26) Morgan-Sagastume F., Valentino F., Hjort M., Cirne D., Karabegovic L., Gerardin F., Johansson P., Karlsson A., Magnusson P., Alexandersson T., Bengtsson S., Majone M., Werker A. (2014) Polyhydroxyalkanoate (PHA) production from sludge and municipal wastewater treatment, *Water Science and Technology*, **61** (1), 177-184
- 27) 北川政美 (2010) 好気性生物処理技術の特徴と発展の流れ, エバラ時報, **228**, 13-22
- 28) Seguret F., Racault Y., Sardin M. (1999) Hydrodynamic behaviour of full scale trickling filters, *Water Research*, **34** (5), 1551-1558
- 29) Kornaros M., Lyberatos G. (2006) Biological treatment of wastewaters from a dye manufacturing company using a trickling filter, *Journal of Hazardous Materials*, **136**, 95-102

- 30) Daigger G.T., Boltz J.P. (2011) Trickling filter and trickling filter-suspended growth process design and operation: A state-of-the-art review, *Water Environment Research*, **83** (5), 388-404
- 31) 星川珠莉、橋本敏一、古澤和樹、明神晃、細木水敬、藤原拓、宮田篤、吉野正章、小越真佐司 (2016) 無曝気循環式水処理技術の省エネ・コスト削減効果について, 第 53 回下水道研究発表会講演集, 569-571
- 32) Onodera T., Tandukar M., Sugiyama D., Uemura S., Ohashi A., Harada H. (2014) Development of a sixth-generation down-flow hanging sponge (DHS) reactor using rigid sponge media for post-treatment of UASB treating municipal sewage, *Bioresource Technology*, **152**, 93-100
- 33) Kubota K., Hayashi M., Matsunaga K., Iguchi A., Ohashi A., Li Y.Y., Yamaguchi T., Harada H. (2014) Microbial community composition of a down-flow hanging sponge (DHS) reactor combined with an up-flow anaerobic sludge blanket (UASB) reactor for the treatment of municipal sewage, *Bioresource Technology*, **151**, 144-150
- 34) 大久保努、高橋優信、久保田健吾、原田秀樹、時田政輝、上村繁樹、前野一夫 (2015) 途上国のための新規下水処理装置 DHS におけるスポンジ担体の水の流れと酸素の取込特性の評価, 実験力学, **15** (1), 30-37
- 35) A.W.Patwardhan (2003) Rotating biological contactors: A review, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **42**, 2035-2051
- 36) Hassard S., Biddle J., Cartmell E., Jefferson B., Tyrrel S., Stephenson T. (2015) Rotating biological contactors for wastewater treatment – A review, *Process Safety and Environmental Protection*, **94**, 285-306
- 37) 渡辺義公、羅以健、チャラムラ タナンタセ (1983) 回転円板法の酸素供給機構, 衛生工学研究論文集, **19**, 83-92
- 38) 西留清、古賀憲一、荒木宏之、後藤田和由 (1997) 回転円板法の生物膜モデルと酸素濃度分布のシミュレーション, 環境工学研究論文集, **34**, 163-172
- 39) Kubsad V., Chaudhari S., Gupta S.K. (2004) Model for oxygen transfer in rotating biological contactor, *Water Research*, **38**, 4297-4304
- 40) Kim B.J., Molof A.H. (1982) The scale-up and limitation of physical oxygen transfer in rotating biological contactors, *Water Science and Technology*, **14**, 569-579
- 41) Mba D., Bannister R.H., Findlay G.E. (1999) Mechanical redesign of the rotating biological contactor, *Water Research*, **33** (18), 3679-3688
- 42) METCALF & EDDY, Inc., Tchobanoglous G., Burton F. L., Stensel H.D. (2004) *Wastewater Engineering: Treatment and Reuse* (4th Edition), McGraw-Hill, New York, The United States of America

- 43) Li N. (2012) Study on relationship between dewaterability and Bacterial Population in Activated Sludge, Doctorial dissertation, Department of Socio-Cultural Environmental Studies, The University of Tokyo
- 44) 日本下水道協会 (2012) 下水試験方法 2012 年度版、上巻、690-696

謝辞

修士研究を進め本論文をまとめるにあたり、多くの方々に様々な形でお世話になりました。この場を借りて、2年間に関わったすべてのみなさまに深く感謝申し上げます。

指導教員の佐藤弘泰准教授には、学部4年生後半から2年強にわたってお世話になりました。ご自身も大変お忙しい中、多大な時間と労力を割いてご指導くださった佐藤先生の後押しなくして、この修士論文はありません。また国際学会も含め学会発表の機会を多数いただき、貴重な経験ができました。とても研究熱心とは言えず扱いづらい生徒であったと反省ばかりですが、この2年間を無駄にしないよう今後も精進していくつもりです。

研究室のリーダーである味埜教授には、研究上のご指導をいただく機会こそ少なかったものの、懇親会などの場で言葉の端々に見える鋭い視点に毎回驚嘆するばかりでした。副指導教員の岡部教授には2回のミーティングのお時間をいただき、専門の外側の立場から非常に鋭いご指摘をいただきました。鯉淵准教授には、実験の重要なツールとなる酸素濃度センサーを快くお貸しいただきました。その他社会文化の先生方には、講義や演習、話壇セミナーなど様々な場で学びの機会をいただき、大変な刺激を得ることができました。また出身学部である都市工学専攻の先生方にも学会等で声をかけていただき、時にとっても有意義なアドバイスをくださりました。諸先生方のご指導、ご鞭撻に感謝いたします。

積水化学工業株式会社の松坂さん、松原さん、玉木さんには、管路内浄化技術の共同研究にあたってお世話になり、本研究に用いたスポンジ担体もご提供いただきました。直接一緒に研究を進める機会がなかったことは心残りでしたが、学会などの際に飲みに行くと、他愛ない話で盛り上がりながらも、目を輝かせて未来のことや技術への思いを語ってくださいました。それらはいずれも、僕にとって新鮮で忘れがたいものばかりでした。

研究室秘書の竹内さんには、日常の細かいことまで気にかけてくださり、柏での2年間を不自由なく過ごさせていただきました。研究につらさを感じるときでも、竹内さんの人柄に接すると自然と笑顔になれるような安心感があり、何度も癒されていました。研究室を離れられることは残念ですが、卒業後もお会いできる機会を楽しみにしています。

研究室同期の平野君には、研究室生活の様々な場面で助けを借りました。ともに研究する同級生のいることは大変心強かったです。また研究室の諸先輩方、新たに加わった後輩達、都市工学科環境系50期の同期、サークルの仲間など、研究の内外で本当にたくさんの人に支えられた2年間でした。

最後に、これまで24年間にわたって経済的にも精神的にもあらゆる面で僕を支え見守ってくれた両親に心からの感謝を記し、本論文の結びとさせていただきます。