

内含 22-7

博士論文審査報告書

Mathematical modeling and analysis of the reaction kinetics and dynamics
of the three-phase fluidized bed biofilm reactor for wastewater treatment

三相流動槽を用いた排水処理プロセスにおける反応速度論と動特性
の数学的モデリングおよび解析

アオレセニア ジョセフ
Joseph Auresenia

応用化学専攻 化学工学研究

2002 年 7 月

環境保全に対する世界的関心が高まる中で、とりわけ水環境の保全が社会的に強く要望されている。生活排水や産業廃水に関する排出基準は世界的に強化される傾向にあるために、効率が高く経済的な生物学的排水処理技術への期待が高まっているのが現状である。生物学的排水処理技術の一つの手法として担体表面に付着増殖させた微生物膜を利用した三相流動槽が注目されている。三相流動槽は、(1)高密度に微生物が保持可能であること、(2)優れた物質移動特性をもつことなどの点から生活排水や産業廃水から汚染物質や栄養塩類を除去するために用いられてきた。しかしながら、三相流動槽は活性汚泥法に比べて複雑な要素から構成されており、設計操作因子の詳細については多くの不明確な点が残されているのが現状である。

生物学的排水処理では、排水の流入量・流入成分とその濃度・温度などの様々な環境の変動が伴い、その度に処理装置の最適操作条件も変化する。しかしながら、コンピューター化が進む現在においても、高効率化や安定化を保つための最適操作は経験的なものに基づいている。高効率な排水処理装置を設計し、安定にかつ最適に運転管理を行うためには、装置内の生物化学反応速度論や負荷変動に対する動特性についての知見が重要となる。

このような観点から本論文では、完全混合流型三相流動槽を用いた生活模擬排水の処理プロセスを取り上げ、安定した運転管理を行うための動特性について検討している。2種類の非定常操作（回分式とステップ変動式）における装置の動特性を実験的に調べ、得られた結果から速度論モデルを立てて反応速度定数を算出し、装置内の生物反応機構と動特性の解明を行っている。

本論文は8章で構成されている。以下に各章の概要を述べる。

第1章では、各種生物膜法の操作条件と性能の比較を行い、生物膜内部への基質の拡散と生物反応、微生物の増殖機構、速度論モデルおよび反応速度定数についての従来の知見を整理するとともに、本研究で取り上げた三相流動槽の概要についてまとめ、本論文の意義・目的を明らかにしている。

第2章では、連続式三相流動槽のスタートアップ時における粒子状担体表面への微生物の付着過程について検討している。新規担体を装置に投入した後、生物膜の付着量と処理速度との関係を経時的に調べ、反応速度定数の変化を生物膜成長段階ごとに比較している。さらにスタートアップ時における装置の最適な操作条件を明らかにするために、流入水量と流入濃度を装置ごとに変化させた実験を行っている。その結果、流入する有機炭素濃度(TOC)毎に、付着微生物の増殖速度を高め、浮遊汚泥発生量を抑えるための装置内水理学的滞留時間の最適条件を得ている。本章により、生物膜の担体への付着過程と固定化技術についての知見が得られ、連続式三相流動槽のスタートアップ時における最適操作条件を明らかにしている。

第3章では、回分式の非定常操作として、初期基質濃度を変化させ、生物

処理実験を行い、非定常反応速度の検討を行っている。成分基質として生物化学的酸素要求量 (BOD_5) を、微生物量として付着微生物の強熱減量 (MLVSS) を経時的に測定し、得られたデータの速度論解析として、実験データを基質濃度に対する微生物の比消費速度に変換し、微生物の比増殖速度式として 5 種類のモデル式を用いて非線形回帰分析を行っている。相関係数と標準誤差で各モデルを比較評価したところ、内生呼吸型維持代謝と高濃度基質による阻害を考慮した速度論モデルが実験結果と最も良く適合することを明らかにしている。本章により、限定成分基質が 1 種類のみである場合には、速度論モデルと反応速度定数は初期基質濃度と初期微生物濃度の相対比によって決まることを明らかにしている。

第 4 章では、連続式の非定常操作として、流入水量および基質濃度をステップ状に変化させて生物処理実験を行い、非定常反応速度の検討を行っている。成分基質として BOD_5 を、微生物量として生物膜全表面積をそれぞれ経時的に測定した結果、基質濃度はピークを伴う曲線を描くことを、また、生物膜表面積はステップ変動前後で大きな変化は見られないことをそれぞれ示している。次に Monod 式をベースとした完全混合流型生物処理特性式で実験結果を整理し、ステップ変動前後の定常状態における速度定数を算出している。なお、非定常項を含む収支式を用いて実験結果をシミュレートすることを試みたが、1 次系速度論モデルによる解析ではステップ応答の実験結果をうまくシミュレートできず、少なくとも基質濃度に対してピークを伴う 2 次系システムの解析を行わねばならないことを明らかにしている。

第 5 章では、流入水量・基質濃度を一定とし、一方生物膜充填率を変えて第 4 章と同様のステップ応答実験を行い、非定常反応速度の検討を行っている。成分基質として TOC を、微生物量として MLVSS をそれぞれ経時的に測定している。第 4 章の 1 次系速度論モデルを 2 次系速度論モデルに改良するため、MLVSS の収支式を加えている。さらに、比増殖速度式に関して第 3 章と同じ 5 種類のモデル式を使い、シミュレートした結果、すべての比増殖速度式で定常時だけでなく非定常時のピーク高さもシミュレートできることを確認している。しかしながら、用いた 5 種類の速度論モデルではピークに達するまでの時間（すなわち時定数）が実験結果よりも小さく算出されたことから、正確に非定常時の生物処理過程をシミュレートするためにはさらに高次系の速度論モデルへと改良することの必要性を示している。

第 6 章では、成分基質として TOC とアンモニア態窒素 ($NH_4^+ - N$) の二種を取り上げ、回分式条件下で生物処理実験を行い、両成分の経時変化に関する非定常反応速度の検討を行っている。生活排水を処理する場合、生物膜内には様々な代謝機能を有する微生物が存在する。TOC は主に従属栄養細菌により消費され、アンモニア態窒素は主に独立栄養細菌により消費され

る。そこで、これらを考慮した 2 基質成分モデルを立てて、非線形回帰分析法で反応速度定数を算出し、数値積分法でシミュレートしている。内生呼吸型維持代謝を考慮することのほかに、高濃度基質による阻害に関して「TOC の酸化速度には $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ の阻害はないが $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ の酸化速度には TOC が阻害を与える」という速度論モデルが実験結果と最も良く適合することを明らかにしている。

第 7 章では、流入基質濃度をステップ変動させたときの応答をシミュレートする際に、第 5 章の速度論モデルをさらに発展させ、基質成分 (TOC) の生物膜および担体への吸着速度式を考慮した速度論モデルを新たに提案し、妥当性の検討を行っている。まず、攪拌式の吸着実験装置を用いて基質濃度を変化させ、生物膜および担体に対する平衡吸着量を測定した結果、吸着等温線はいずれも Freundlich 型に従うことを明らかにしている。つづいて、算出された吸着等温式と Monod 型の微生物増殖速度式とを組み合わせて速度論モデルを立て、異なる MLVSS におけるステップ応答実験データをシミュレートした結果、定常時における TOC 値だけでなく、非定常時における TOC 値のピーク高さおよびピーク到達時間までほぼ正確に予測できることを明らかにしている。さらに、このシミュレーションの際に用いた速度定数はすべての MLVSS についてほぼ等しい値であったことから、本速度論モデルの妥当性を確認している。このことは流入量・流入濃度等のステップ変動を伴う場合の非定常反応特性を明らかにするもので高く評価できる。

第 8 章は、本論文を総括している。

以上、本論文は、完全混合流型三相流动槽を用いた非定常実験から得られた結果を整理し、さらに、最適操作条件の導出に必要な速度論モデルと反応速度定数の算出法について検討した結果をまとめたものである。本成果に基づいた数学的解析手法が確立され、大型下水処理場、小規模生活系排水処理施設、事業場系排水処理施設、畜産系排水処理施設などへ導入されれば、流入量・流入濃度の変動を伴う実運転時においても安定にかつ最適に運転管理を行うことが可能となる。以上の成果は化学工学分野のみならず生物工学および水環境工学の分野においても高く評価される。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。

2002 年 6 月

審査員（主査）早稲田大学教授
早稲田大学教授
早稲田大学教授
早稲田大学助教授

工学博士（早稲田大学）平田 彰
工学博士（早稲田大学）酒井清孝
工学博士（早稲田大学）平沢 泉
工学博士（東京大学）常田 啓