

微生物膜バイオリアクターによる汚濁水の浄化 —発泡ガラスの固定化担体としての利用—

村上和雄* 渡邊快記* 白鳥秀幸** 根本明** 斉藤丈士**

女屋秀明** 関裕司** 浅見保子** 飯塚弘***

Purification of Polluted Water with a Microbe Membrane Bioreactor —The use as the immobilization support of the foaming glass—

MURAKAMI Kazuo, WATANABE Hayaki, SHIRATORI Hideyuki, NEMOTO Akira, SAITOU Takeshi,
ONAYA Hideaki, SEKI Yuji, ASAMI Yasuko, IIDUKA Hiroshi

1. はじめに

ガラス瓶、ガラス製品、ガラスくずなどガラス関連の廃棄物は年間約 600 万トンが排出されている。無色、茶色のワンウェイ瓶のリサイクルは、2002 年現在、83.3%と高い再利用率で、さらにその率は年々高くなっている。無色・茶色以外のビン(その他のビン)の再利用率は低かったが、最近、無駄なく利用するということで新しい製品・利用法が検討されている。軟弱地盤への盛り土や埋め戻し材、屋上緑化の排水用材料として粉碎された廃ガラスに発泡剤を加え、焼成炉で発泡させた発泡ガラスが利用されている。

筆者らは多孔質焼結体^{1)~6)}やウレタン⁷⁾などに微生物を固定化した微生物膜バイオリアクターを作製し、極めて汚濁された河川水の浄化に効果があることを報告している。微生物膜バイオリアクターは嫌気性微生物が固定化された担体を充填した嫌気性リアクターと、好気性微生物が固定化され担体を充填した好気性リアクターからなる浄化システムである。本システムは汚濁水を2種のリアクターに送液するだけで汚濁水を浄化する省エネルギー、省資源、化学薬品無使用、低コストの装置である。本報では、

上記の発泡ガラスを微生物固定化担体に利用した時の汚濁水の浄化効果とシステムの運転条件⁸⁾などを検討したので報告する。

2. 実験

2.1 水質汚濁の測定

- (1) BOD: 米 Hach 社製 BODTrackCB-3 型により測定。
- (2) COD: 工業用水試験法 JISK0102 に従った。
- (3) 全リン: 工業用水試験法 JIS モリブデン青法に従った。
- (4) 全窒素: 工業用水試験法 JIS カドミウム還元法に従った。

2.2 固定化担体

使用した発泡ガラスは矢崎総業が製造したもので、その仕様を表1に、物性を表2に示した。

本研究で微生物固定化担体を使用した発泡ガラスは発泡度の最も高い L1 と発泡度の比較的低い L3 である。

発泡ガラス (L2) の主成分は70%が酸化ケイ素、24%がカルシウムとナトリウムの酸化物である。

比較対象とする建設材料製造の碎石砕砂工程で生じる微粒土を焼結した発泡焼結体の化学組成と物性を表3、4に示した。多孔質焼結体の主成分はやはり酸化ケイ素で60.8%、ついで酸化アルミニウム18.4%である。

* 東京家政大学環境分析研究室

** (株) 内山アドバンス中央技術研究所

*** 矢崎総業 (株)

表 1 発泡ガラスの仕様

品番	絶乾比重	吸水率	粒径(ミリ)	呼称	用途
L1	0.3～0.6	30%以上	25以上	大粒	緑化資材
			10～25	中粒	土壌改良材
			4～10	小粒	
L2	0.4～0.5	30%以下	2～75		土木軽量資材
L3	0.6～0.9	10%以下	2～75		土木軽量資材
L4	1.0～1.6	5%以下	2～75		土木軽量資材

表 2 発泡ガラス L2 の物性（土木用）

□主成分	SiO ₂	70%
	Na ₂ O	13%
	CaO	11%
□比重	0.4 ～ 0.5 （1.5 程度のものも製作可）	
□吸水率	30% 以下（土木用独立気泡タイプ）	
□透水性	3×10 ⁻² ～ 1 cm/sec	
□密度	0.3 ～ 0.4t/m ³	
（締固め時）		

表 3 多孔質焼結体の物性

粒径 (mm)	10月15日
絶乾比重	0.70～0.80
表乾比重	0.85～0.95
容積重量 (g/cm ³)	0.43～0.51
実績率 (%)	62.0～64.0
吸水率 (%)	15.0～17.0
B.S 強度 (t)	4.0～6.5

表 4 多孔質焼結体（発泡焼結体）の化学組成

材料	原料	焼結体
水分	20.5	—
Ig-loss	6.6	0.2
SiO ₂	60.8	67.5
Al ₂ O ₃	18.4	18.5
Fe ₂ O ₃	4.8	4.8
CaO	1.3	0.9
MgO	2.5	2.8
SO ₃	0.12	0.11
Na ₂ O	1.18	1
K ₂ O	4.1	3.6

2.3 微生物膜バイオリアクター

図1と、写真1は本研究で使用された微生物膜バイオリアクターの概略図と全景である。内径70mm、長さ400mmの2本のアクリルパイプに発泡ガラスを密に充填し、シリコンチューブで直列に接続した。発泡ガラスは2種充填し、二つのリアクターシステムを作成した。左側のパイプは密封され、空気との接触が遮断された嫌気状態、右側は最下部のエアストーンを通して空気が送られ好気状態になっている。送液は2つのアクリルパイプをつなぐシリコンチューブにローラーポンプをセットして行った。アクリルパイプの外側は外とう管を設け、恒温水を流してリアクター内の温度を一定に保てるようにした。

微生物膜バイオリアクターのAシステムは固定化担体に発泡ガラス L1 を、Bシステムは発泡ガラス L3 を充填したものである。

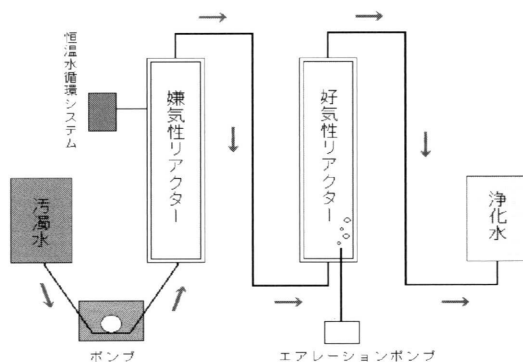


図 1. 微生物膜バイオリアクターの概略図

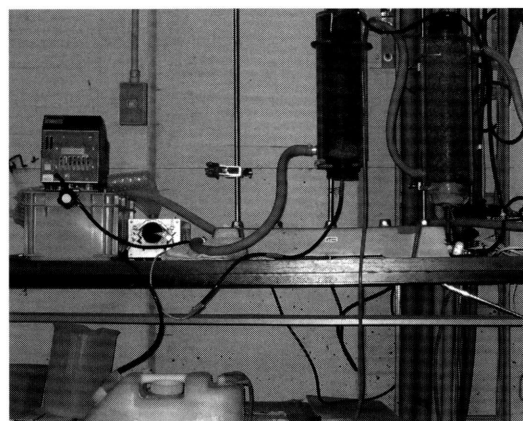


写真 1 微生物膜バイオリアクターの全景

2.4 嫌気性・好気性微生物の発泡ガラスへの固定化

固定化担体への微生物の固定化は、浄化する河川の汚濁水を流し続けると、河川水に棲息する微生物が担体上に固定化される。多孔質焼結体の場合は4週間程度で固定化したが、発泡ガラスの場合、一ヶ月以上、汚濁水を流し続けても、見かけ的にも微生物が固定化したように見えなかった。そして、微生物を増殖させるために微生物増殖剤を汚濁河川水に添加した。

2.5 試料（汚濁河川水）

試料とした汚濁河川水は千葉県浦安市を流れる長さ750m足らずの堀江川の河川水を用いた。この地域は急激に都市化が進み、住民も急増した。行政も対応して下水道を整備したが、下水道を利用する住民が少ないため処理されずに水路を経て堀江川に生活雑排水が流入している。夏には、河川からの悪臭で悩まされていたが、3年前から、隣の境川の河川水を流入させ、汚濁水を薄めているのが現状である。図2には2006年5月9日から12月27日まで週1回の割合で、定点観測した堀江川の水質BOD、CODの汚濁状況を示した。

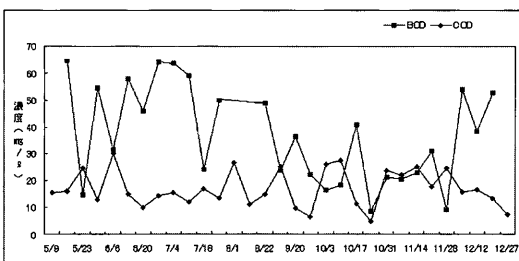


図2 堀江川のBOD、CODの経日変化

BODの濃度は、最大で64.6 mg/L、最小で8.53 mg/Lであった。年平均は38.8 mg/L、夏平均（5月～9月）は44.1 mg/L、冬平均（10月～12月）は27.9 mg/Lであった。BODは、夏のほうが冬よりも濃度が高かった。

BODは水質汚濁に係る環境基準項目となっ

ており、生活環境の保全に係る項目として、河川における基準が、その河川の利用形態等を考慮した類型（自然環境の保全を要する水域に適用される最も厳しいAA類型から大都市の河口付近のE類型まで）ごとに定められている。堀江川のBOD平均値は、E類型の基準値よりも3倍以上高く、極めて汚濁された河川水であると言える。この周辺は、下水道を利用している家庭が少なく、食物を含む生活雑排水が大量に流れ込んでいるのでBODが高くなっていると考えられる。

CODの濃度は、最大で30.0 mg/L、最小で4.88 mg/Lとなった。年平均は16.9 mg/L、夏平均は16.2 mg/L、冬平均は18.2 mg/Lとなった。季節による違いはあまりみられない。

3年前から隣の河川水を流入させているが、その効果を数値的に示すと、流入前後のBODは流入前35～140 mg/L、流入後8.5～64.6 mg/Lである。また、CODは流入前20～48 mg/L、流入後4.9～30.0 mg/Lであり、明らかに他の河川水による希釈効果が現れている。

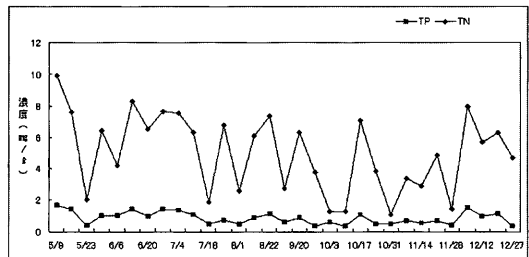


図3 堀江川の全リン、全窒素の経日変化

図3はBOD、COD測定と同じ期間における堀江川の全リン（TP）、全窒素（TN）の汚濁状況を示した。TPの濃度は、最大で1.68 mg/L、最小で0.35 mg/Lとなった。年平均は0.86 mg/L、夏平均は0.97 mg/L、冬平均は0.71 mg/Lとなった。

TNの濃度は、最大で9.88 mg/L、最小で1.08 mg/Lとなった。年平均は5.07 mg/L、夏平均は5.77 mg/L、冬平均は3.97 mg/Lとなった。

TP、TNともに環境基準を大幅に上回ってお

り、極めて汚濁された河川であると言える。

3. 結果及び考察

3.1 発泡ガラス担体への微生物の固定化

写真2～5はシステムA、Bとそれらの好気性リアクターである。発泡ガラスへの微生物の固定化は汚濁河川水をリアクターに通水続ける



写真2 微生物膜バイオリアクター
Aシステム (担体L1)



写真3 Aシステム
好気性リアクター

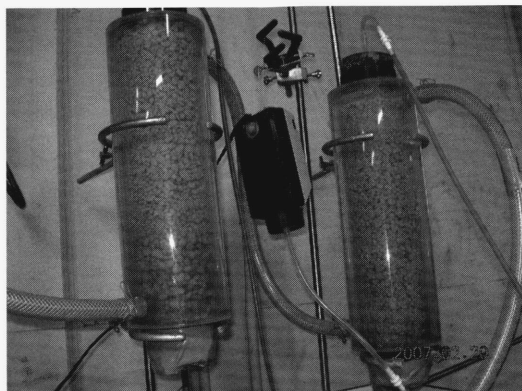


写真4 微生物膜バイオリアクター
Bシステム (担体L3)



写真5 Bシステム
好気性リアクター

ことで、河川に棲息する微生物を固定化させた。

微生物の固定化時間はそれとかなりの時間を要した。多孔質焼結体の場合1ヶ月で微生物が固定化されているとわかったが、発泡ガラスの場合は、同じ期間では視覚的に観察できなかった

た。そして、L1の固定化には2ヶ月近い日数を要した。また、L3への固定化はさらに視覚的にわからず、3ヶ月近く要した。微生物の固定化を促進させるために田代興業(株)(京都府京田辺市)製イコニン(サポニン溶液)を河川水に数滴/20Lの割合に添加した。しかし、その効果は判断できなかった。

3.2 BOD成分の除去試験

図4はシステムAによる、運転温度30℃のときの汚濁河川水流量のBOD除去率への影響を示した。流量103～198ml/hの範囲では、ほぼ90%と良好な除去率を示した。流量103ml/hのときに最も除去率が高くなった。これは、微生物との接触時間が長いためである。また流量を大きくしたときの除去率の低下はこの流量範囲では見られなかった。BODの原因物質は、家庭から排出される食物、洗顔、洗濯などに使用された排水に含まれる物質である。河川水中に棲息する微生物を固定化したためBOD成分が高い効率で分解されたものと考えられる。

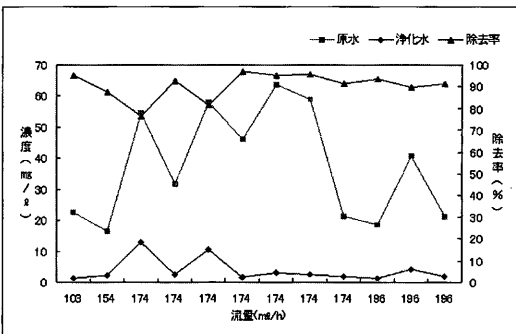


図4 システムAによる河川流量のBOD除去率への影響

図5はシステムBによる、運転温度30℃のときの汚濁河川水流量のBOD除去率への影響を示した。システムBの固定化担体への微生物の固定化量が目視的には少ないように感じられたが良好な除去率と考えられる。この結果から、見た目に色が変わってなく微生物の固定化がないように見えても、システムAと同じ程

度に固定化されていると考えられる。

システムA、Bに使用したポンプの性能が異なるためシステムAで200ml/h以下の除去率、システムBでは160～450ml/hの除去率の結果である。システムA、Bのデータから、200ml/h以下では除去率は90%前後、流量の増大とともに低下していきそれでも450ml/hまでは80%以上の高除去率を示している。この結果から、流量450ml/hまでは80%以上の高除去率を示すことがわかった。

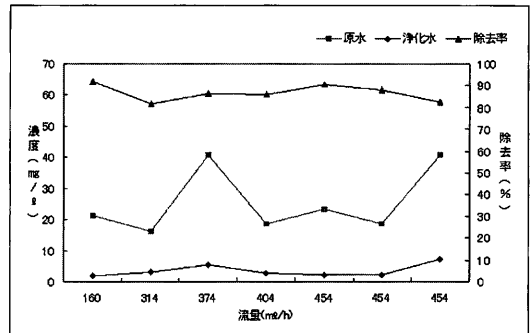


図5 システムBによる汚濁河川水流量のBOD除去率への影響

3.3 COD成分の除去試験

図6はシステムAによる、運転温度30℃のとき、河川流量のCOD除去率への影響を示した。河川水の状態により、データのバラツキが見られる。図7は繰り返し測定(5回)を行った流量のCOD除去率への影響を示した。

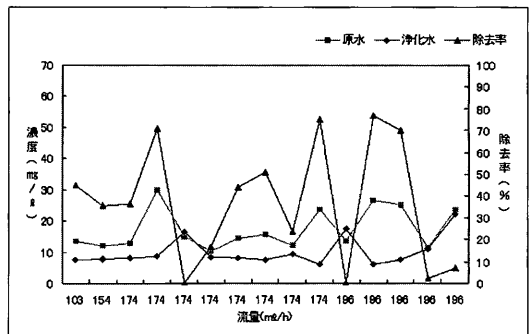


図6 システムAによる河川流量のCOD除去率への影響

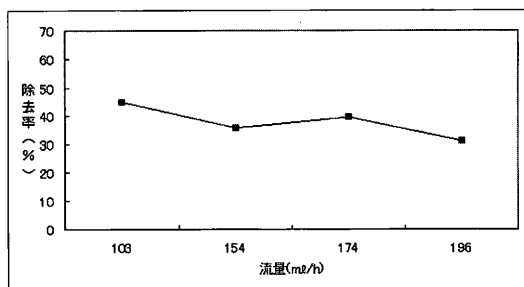


図7 システム A による河川流量の COD 除去率への影響 (繰り返し測定)

図7から、COD 除去率は流量 103ml/h で 45% 前後で、流量の増大とともに除去率は低下した。これも微生物の接触時間に関係すると考えられる。

図 8、9 はシステム A と同様 110 ~ 450ml/h での流量の COD 除去率への影響と特定の流量における除去率の繰り返し試験の結果である。

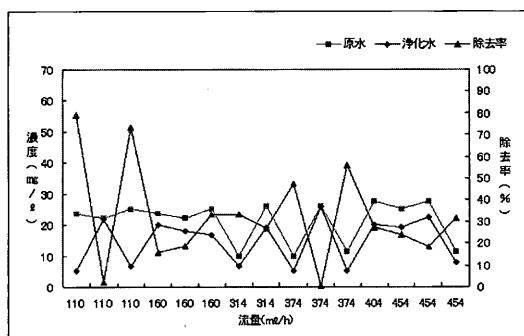


図8 システム B による河川流量の COD 除去率への影響

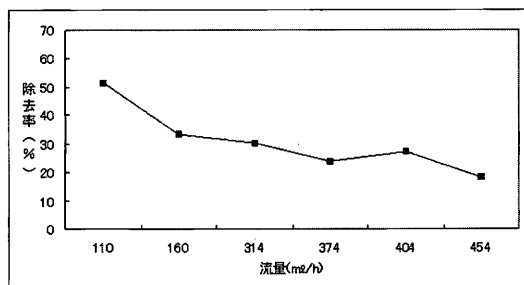


図9 システム B による河川流量の COD 除去率への影響 (繰り返し測定)

図9の結果から、L1 と比べる 100ml/h で除去率約 50% の同程度の除去率を示したが、

200ml/h では除去率約 30% と除去率は 20% の低下であった。システム A では同様な流量変化で 10% の低下から見ると L3 の低下率が大きい。これは、発泡度の高いほど微生物の固定化量が多いことを示している。

固定化担体を多孔質焼結体に用いた場合 (他河川水を流入させる以前) の除去率は、河川水流量 150ml/h の時、約 85% , 200ml/h の時が 75% 程度であった。この差は、他河川水流入で、堀江川に棲息する微生物に変化が見られたと予想される。それまでは、COD 成分を分解する微生物が棲息していたが、流入後はその微生物が住めなくなった。また、他河川流入後の多孔質焼結体を担体とするリアクターでも除去率 50% 前後であることから、COD 成分分解微生物が棲息しなくなったといえる。COD 成分を分解する微生物を見つけ出し固定化すれば高効率の COD 除去率が得られると考える。

3.4 全リン (TP) の除去試験

図 10、11 は、システム A、B の河川流量の全リン除去率への影響を示した。

システム A は、流量 103 ~ 196ml/h で 10 ~ 15%、システム B 流量 110 ~ 450ml/h で除去率 12% 前後とほぼ一定であった。

堀江川の微生物を固定化した微生物膜リアクターは、全リン除去は不得意である。堀江川には、リン分解微生物が多く棲息していないためと考えられる。

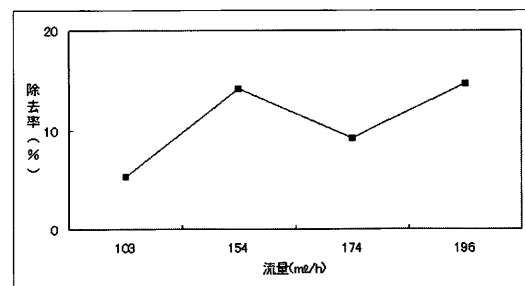


図10 システム A による河川流量の TP 除去率への影響

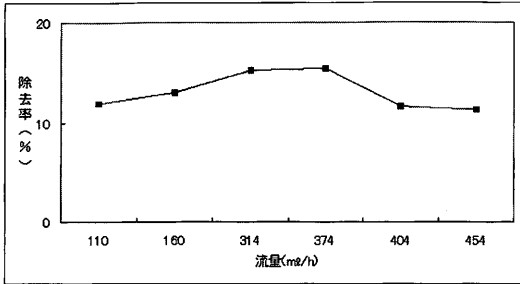


図11 システムBによる河川流量のTP除去率への影響

図10、11では、システムA、Bで除去率に差があるように見えるが、平均的には、流量110～450ml/hで除去率は10数%と見られる。

3.5 全窒素（TN）の除去試験

図12,13はシステムA、Bによる河川水流量の除去率への影響を示した。

河川水流量が低いとき（170ml/h以下）は、30%程度であるが、それより流量が高くなると、450ml/hまでは、50%前後の除去率である。この除去率は多孔質焼結体を担体としたときとほぼ同じである。

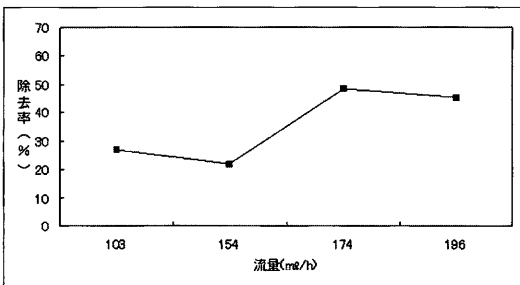


図12 システムAによる流量のTN平均除去率

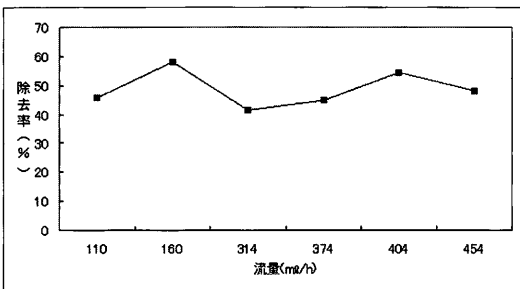


図13 システムBにおける流量のTN平均除去率

3.6 リアクター運転温度の除去率への影響

図の13～16は、流量に196ml/hに固定し、リアクター運転温度のBOD、COD、TP、TN除去率の影響を示した。除去率は固定化されている微生物活動の活発さに依存するのが一般的である。BOD、TP、TNの除去率は、35℃の時に最も高い除去率を示したが、CODの除去率は25℃の時に最も高く、温度上昇とともに減少、ほとんどゼロ%になっている。多孔質焼結体の場合はこのようなことはなく、35℃の除去率は30℃の時とほとんど同じであった。この違いは多孔質焼結体の場合は多孔質とは言え、表面は凹凸がたくさんあり（電子顕微鏡で観察）、そこに微生物が層状に固定化しているものと考えられる。

一方、発泡ガラスは無数の孔が奥深くまで存在、表面には微生物が固定されず、発泡ガラス

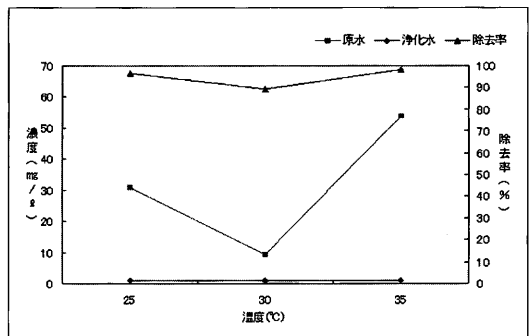


図14 システムAによる温度のBOD除去率への影響

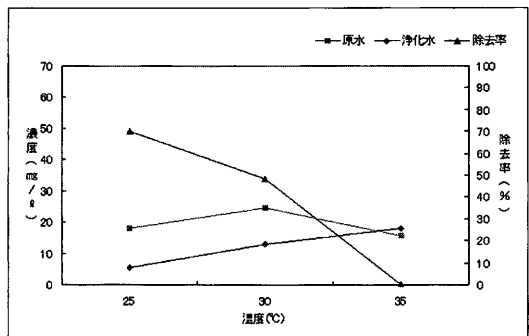
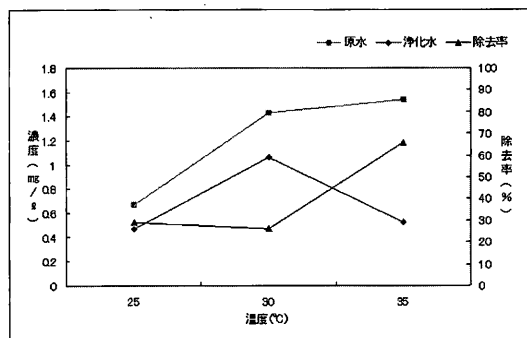


図15 システムAによる温度のCOD除去率への影響



16 システム A による温度の TP 除去率への影響

の内部に微生物が固定化されており、また、微生物の数が少ないと考えられる。さらに次の章で述べるが、温度上昇とともにアルカリ成分が溶出し pH が高くなり、COD を分解する微生物に影響を与えているとも考えられる。

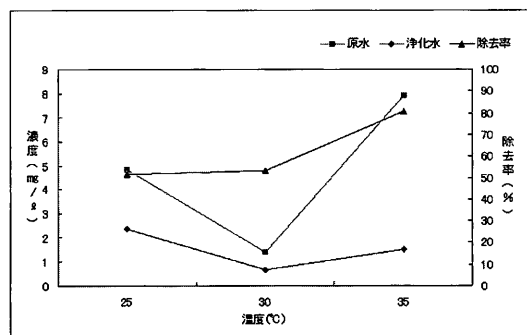


図17 システム A による温度の TN 除去率への影響

3.7 微生物膜バイオリアクター通過前後の汚濁水の pH

表 5 は、河川水の微生物膜バイオリアクター通過前後の pH の変化を示したものである。発泡ガラスの場合、pH が 1 前後大きくなり、多孔質焼結体は 0.5 前後大きくなっている。これは、発泡ガラスの組成が酸化ナトリウム、酸化カルシウムが多いのでこれらが溶出と考えられる。多孔質焼結体は酸化ケイ素、酸化アルミニウムで 80% を占め、アルカリ成分が少ないためと考えられる。

表 5 原水の微生物膜バイオリアクター通過前後の pH

採水日	原水の pH	バイオリアクター通過水 pH		
		S	A	B
11/21	7.5	8.2	8.6	8.7
11/28	8	8.6	8.4	8.6
12/5	7.9	8.4	8.2	8.4
12/12	7.8	8.4	8.3	8.6
12/19	7.8	8.9	8.3	8.7

S: 多孔質焼結体 A: 発泡ガラス L1 B: 同 L3

3.8 固定化された微生物の同定

表 6 には、通常の方法で発泡ガラスに固定化された微生物を同定した。

多孔質焼結体に固定化された微生物とは種類がかなり少ない。表面に固定化された微生物は少なくガラス内部に多く固定化されていたため、微生物を取り出すことがむずかしかった。表 7 には多孔質焼結体に固定化された微生物を示した。

表 6 発泡ガラスに固定された微生物

微生物	原水	嫌気性 リアクター	好気性 リアクター
藍藻	++	++	++
遊泳型原生動物	+	++	++
セン虫	+++	—	—
ゾウリムシ	+	—	—
ツリガネムシ	+	—	—
ケイ藻	+	—	—

表 7 多孔質焼結体に固定化された微生物⁶⁾

微生物	好気性	嫌気性
(細菌類)		
鉄細菌類		
Gallionella sp	++	++
Leptothrix orchracea	+	—
分類不能種	+	+
(藻類)		
Anabacna spp.	+++	+++
Homoeothrix janthina	++	++
Oscillatoria spp.	++	++
Phormidium sp.	+	+

(緑藻類)		
Dictyosphaerium sp.	+	+
Coelastrum sp.	+	+
Ankistrodesmus	+	-
分類不能種	+	-
(珪藻類)		
Achanthes	+++	+++
A.minutissima	+	++
A.spp.	+	+
Cymbella ventricosa	+	+
Navicula pupula	+	++
Nav.spp.	++	+
Nitzschia palea	+++	+++
Nit.spp.	++	++
合計	19 種	16 種

+++：多量に出現した種 ++：出現した種 +：少量に出現した種 -：未出現した種 ~ sp.：1 種 ~ spp：2 種

4. まとめ

微生物膜バイオリアクターの固定化担体への発泡ガラスの利用の可能性の検討であったが、種々のデータ（BOD、COD、TP、TN の除去率、流量と除去率の関係など）から、我々がこれまで検討してきた多孔質焼結体と同様に固定化担体として利用できると言える。ただ、焼結体と比べると微生物の発泡ガラスへの固定化速度が遅く、微生物の固定化量も少ないようである。しかし、各除去率は多孔質焼結体と同程度である。微生物の固定化量が少ないことは、除去率への温度の影響が大きいことが分かった。特に、COD 成分を分解する微生物への温度の影響が顕著で 35℃ 付近で除去率はほとんどゼロであった。これは、この温度近くになると発泡ガラスからのアルカリ成分の溶出量が多くなるためと考えられる。

本研究では、全リン、全窒素の除去の検討まで至らなかったが、リン、窒素を分解する微生物が検索できれば、微生物膜バイオリアクター

で十分浄化可能と考えられる。

本研究に取り組むことができたのは、矢崎総業（株）のバックアップがあってこそ、これらのデータが得られた。御社に深く御礼申し上げます。

また、これらの膨大なデータが得られたのは、東京家政大学環境分析研究室の卒業研究生佐藤 薫、山内英津子君たちの地道な汚濁水の採水、浄化実験、分析測定があります。学生諸君に感謝します。

文 献

- 1) 村上和雄、奈良禧徳、須藤絵美 第 10 回廃棄物学会講演論文集 323-324 1999.
- 2) 村上和雄、木村律子、奈良禧徳、須藤絵美 多自然研究 9-13 2000.
- 3) 村上和雄、福島由美子、石垣晶子、奈良禧徳、須藤絵美 第 11 回廃棄物学会講演論文集 402-403 2000.
- 4) 村上和雄、奈良禧徳、秋山堯、成田素子、須藤絵美 東京家政大学研究紀要 44,127-131 2004
- 5) 村上和雄、成田素子、斉藤丈士、女屋秀明、根本明、秋山堯 木浪美智子、須藤恵美、15 回廃棄物学会講演論文集 1352-1353 2004.
- 6) 村上和雄：ケミカルエンジニアリング 50、30-35 2006.
- 7) 成田素子、村上和雄、斉藤丈士、女屋秀明、根本明、白鳥秀幸、秋山堯、木南美智子、須藤恵美、中山中 日本家政学会誌 58、203-209 2007.
- 8) 村上和雄、成田素子、佐藤薫、山内英津子、斉藤丈士、白鳥秀幸、根本明、女屋秀明、浅見保子、飯島弘 第 18 回廃棄物学会講演論文集 2008.