

氏 名	小 松 敏 宏
授 与 学 位	博 士 ( 工 学 )
学位授与年月日	平成 6 年 3 月 25 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 1 項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 土木工学専攻
学 位 論 文 題 目	膜分離を導入した嫌気性酸発酵に関する研究
指 導 教 官	東北大学教授 野池 達也
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 野池 達也      東北大学教授 須藤 隆一 東北大学教授 西野 徳三

## 論 文 内 容 要 旨

高度経済成長時代にわが国の各地で発生した深刻な公害問題はようやく鎮静化しつつあるが、湖沼・内湾等の閉鎖系水域における水質汚濁は慢性化し様々な問題を引起こしている。

このような問題を解決する上でその排出源における処理という問題は極めて重要である。しかし、その排出源に対し好気性処理法や物理化学的な処理法を用いた場合、エネルギーを消費し続けその排出源の持つエネルギーを回収することはできない。そこで、エネルギーの回収能力のある嫌気性処理法を用いることが適切であるが、この嫌気性処理法は様々な環境因子に制限されやすい。従って、この処理法を有効に活用するためにはその因子の影響力を十分に考慮に入れなければならない。例えば、増殖速度という点についてみれば嫌気性条件下でエネルギーを菌体が十分に使用できないため増殖が遅く従来の反応槽では長い水理学的滞留時間(HRT)を必要とする。

しかし、近年の研究によって様々なタイプの反応槽が考案され、HRTと汚泥滞留時間を分離して制御するろ床法、流動床あるいはUASB法など方法が開発されてきた。これらの反応槽は嫌気性微生物の増殖という点に着目し、それを克服するために開発された。また嫌気性処理法に関与する菌体の特性が明らかにされるにつれて有機物を分解する場合、最も分解が遅い分解を担っている菌体の最適条件下で分解させ、処理効率を上昇させるという微生物学的な最適化を行なう二相嫌気性消化法などの手法も存在する。

そこで本研究では、増殖速度の点と微生物学的な最適化を同時に可能化するため、主に食品あるいは医療などの分野で用いられてきた膜分離による微生物の濃縮という手法と二相嫌気性消化における最適化を組合せて実験を行ない、これまで嫌気性処理法では成すことのできなかつた領域にま

で、同法の応用を行うことを目的とした。

次に本研究の手法である膜分離を導入した反応槽の特徴を他の反応槽と対比しながら述べる。

UASB法や生物膜法（ろ床、流動床など微生物を担体上に付着させて処理を行なう方法）などでも処理水中に若干の浮遊物質を含んでいるが、膜分離法においてはそれが全く阻止できる。また、膜分離法は他の処理法と比べ反応槽自体の改変を行わずに利用可能である。さらに、膜の選択透過性によって廃水中に存在する有機物を完全無機化することも可能であろう。

しかし、膜分離を導入した反応槽の研究が始まってからまだ日が浅く、従って、反応槽内にどのような物質が蓄積し、また、その蓄積した物質が菌体にどのような影響を与えるかについても明白にされていない。

さらに、導入する膜自体の性能によっても様々に反応槽内の挙動が変化するものと考えられる。

また、膜分離を導入した反応槽に対する研究は、未だ膜の透過性能の研究が最も多い。

そこで本論文は、二相嫌気性消化法の酸発酵段階に対して膜分離を導入した場合の反応槽の挙動について検討したものである。

本論文は以下の内容で7章により構成されている。

第1章「総論」では本論文の背景、意義および内容について述べている。

第2章「嫌気性消化および膜分離に関する従来の研究」では嫌気性消化法の概要について述べ、そこに関与している細菌群の微生物学および生化学的特性に関する今までに得られている知見、膜分離に関する歴史および機構さらにこの膜分離の排水処理における応用および本論文における研究課題について整理を行っている。

第3章「膜分離型反応槽におけるグルコースの嫌気性酸発酵に関する研究」では膜分離による処理特性変化として高率嫌気性消化との比較、膜分離を行なった反応槽におけるHRT変化に対する挙動、膜分離を導入した反応槽における初期から定常状態に至るまでの挙動を検討した。

まず、膜分離型反応槽と従来型反応槽の比較検討を行なった結果より、膜分離型の反応槽は従来型の反応槽の約18倍もの菌体量を保持でき、精製揮発性脂肪酸の組成は膜分離を導入した反応槽は菌体が高濃度に蓄積されたために、プロピオン酸、酢酸、吉草酸、酪酸の順になり酪酸と酢酸を主体とする元の種汚泥とは全く異なった処理特性となり、反応槽に存在するMPN法による細菌の分布については基質がグルコースであるにも関わらず蛋白質分解能をもつ細菌が酸生成細菌とはほぼ同じオーダーで存在した。また、SRTを除く同一条件下で行なった酸発酵とは異なった細菌構成となった。

HRTの影響について検討を行なった結果より、反応槽内の菌体濃度はHRTの減少にともなって直線的な増加に留まり、VFAの挙動はHRTの減少に従ってより長鎖のものに変化していくことが明らかになった。MPN法による細菌数測定の結果、グルコースが基質であるにも関わらず、

どのHRTにおいても蛋白質分解能を持つ細菌は酸生成細菌数の約10倍以上存在するという結果を得た。

細菌の摂取より安定までの反応槽の挙動に関する検討を行なった結果より、膜分離型の反応槽においてはメタン生成細菌を含まない種汚泥を摂取した場合、汚泥接種より発酵生成物が種汚泥とほぼ同じで汚泥の蓄積の段階、汚泥蓄積にともなった発酵生成物の変化の段階、およびその後の定常状態に至る段階となるという結論を得た。

第4章「膜分離型反応槽におけるゼラチンの嫌気性酸発酵に関する研究」では膜分離型反応槽を用い蛋白質の一種であるゼラチンを基質としHRTを4 dayとした場合、基質の分解がどの様に進行し、反応槽内に蓄積する物質がどのような物質であるか、また、反応槽における菌体の挙動がどの様に実験初期より経時的に変化するかを検討した。さらに、それらの挙動がHRTを1.0 dayに変化させた場合にどの様に変化するかを検討した。

膜分離型反応槽を用いてタンパク質の分解実験を行なった結果より、反応槽内に蓄積する細菌はタンパク質を基質とした場合、初期より直線的増加の後ほぼ安定に達する。また、細菌増殖の速度はHRT=4.0 dayの場合は $43.7 \text{ mg-protein} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ でありHRT=1.0 dayの場合 $181.6 \text{ mg-protein} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ であった。膜分離によって細菌だけでなく高分子の物質も保持された。生成する揮発性脂肪酸は主に酢酸が生成し、その次にプロピオン酸が生成した。膜分離導入によって細菌の反応槽への保持だけではなく汚泥生成を減少させる効果があった。反応槽内に存在する高分子は基質ではなく細菌からの溶出物質であると考えられるという結論が得られた。

第5章「膜分離型反応槽における脂質の嫌気性処理に関する研究」では、まず、従来より阻害があるとされている脂質の一種であるパルミチン酸について、その存在形態の違いによる細菌への吸着量の違いを、ナトリウム塩の状態と脂肪酸そのままの状態と比較検討を行なった。さらに膜分離型反応槽を用い、基質にパルミチン酸を用いて分解実験を行ない通常分解が困難とされる脂質が膜分離によってどの程度分解され得るのか、また、この場合の菌体の活性および反応槽内液の膜分離特性に関して検討した。

まず、脂肪酸の存在形態による細菌への吸着量の違いに関する実験によって得られた結果より、脂肪酸の菌体への吸着はナトリウム塩の形態よりも脂肪酸そのままの状態の方が高いという結果が得られた。

膜分離型反応槽を用いて脂質の分解実験を行なった結果より、ガス組成はほぼ理論通りとなり、脂肪酸分解において律速段階は脂肪酸本体の分解でありそれに付随して起こるメタン生成ではなかった。菌体が高濃度で存在する場合は十分基質分解に作用しない菌体が存在するという結果が得られた。

基質を脂肪酸とした場合の反応槽内液のろ過特性を明らかにする実験結果より、実験初期においては溶解性高分子の蓄積が少ないために、菌体濃度が高い状態の場合においても透過流束の減少は見られないという結論が得られた。

第6章「膜分離型反応槽における動力学解析」では、第3章、第4章で反応槽内の細菌群の安定が非常に長い時間を必要とすることが判明したために通常の安定状態における反応槽の解析が困難となった。従って、反応槽の解析をより早い段階において検討するためにこれらの章で求められた実験データを用い、それぞれの基質およびそれぞれの状態において非定常動力学解析を行い増殖収率および死滅速度、また、最大比増殖速度および Contois 型モデルによる基質飽和定数を求めた。

それぞれの条件で、非定常動力学分析によって増殖収率および死滅速度の決定を行い、その定数を用いて細菌の一般的な増殖モデルである Monod 型の最大比増殖速度および基質飽和定数を求めようとしたが、このモデルには実験データが適合できず細菌が高濃度で存在する場合に用いられる Contois 型のモデルを用い最大比増殖速度および基質飽和定数を求めた結果より、すべての条件において、膜分離によって通常より低い増殖速度となっている。膜分離によって細菌の死滅速度が減少し、一度生成した細菌は予想以上に長時間反応槽内に保持されるという結論が得られた。また、得られた数値を以下に示す。

非定常の動力学による諸数値

基 質	HRT	増殖収率 $Y_t$	死滅速度 $k_d$	最大増殖速度 $\mu_{max}$	飽和定数 $K_{s\mu}$
グ ル コ ー ス	0.5	0.026	0.032	0.22	0.012
グ ル コ ー ス	1.0	0.053	0.038	0.11	0.0045
グ ル コ ー ス	2.0	0.011	0.006	0.027	0.020
ゼ ラ チ ン	1.0	0.041	0.095	0.041	0.023
ゼ ラ チ ン	4.0	0.047	0.010	0.033	0.059

第7章「総括および結論」では本研究において得られた知見を総括している。

## 審査結果の要旨

近年、嫌気性消化法の効率化のために、同法を構成する酸生成相およびメタン生成相の二相に分離して、それぞれを担う細菌群の基質分解および増殖特性の最適条件において操作を行う二相嫌気性消化法に関する研究が進められているが、その実用化のためには酸生成相の菌体と処理水の分離方法が大きな課題とされている。本論文は、嫌気性消化の酸生成相の反応槽に、膜分離を導入し、菌体を処理水と分離し、菌体濃度を高めると共に、処理特性および優先細菌種の変化について基礎的検討を行ったもので、全編7章からなる。

第1章は総論であり、本研究の背景および目的について述べている。

第2章では嫌気性消化の物質代謝機構、酸生成細菌およびメタン生成細菌の微生物学および生物化学的特性に関する既往の研究成果をまとめると共に膜分離の排水処理への応用について述べ、本研究を行うに至った必然性を論じている。

第3章では、酸生成相の反応槽に膜分離を導入し、メタン生成細菌を含まない細菌群を接種し、基質としてグルコースを用いて処理特性および優先細菌種の変化について検討を行い、膜分離型反応槽は、従来型の反応槽の約18倍もの菌体量を保持でき、菌体濃度はHRTの減少に伴って直線的に増加し、揮発性脂肪酸(VFA)濃度はプロピオン酸>酢酸>吉草酸>酪酸の順となる、基質がグルコースであるにも係わらず細菌、全HRTにおいてタンパク質分解細菌が約10%以上存在するなどの重要な知見を得ている。

第4章では、基質としてタンパク質であるゼラチンを用いた場合、反応槽内に蓄積する菌体量は、処理開始時により直線的に増大した後に安定する、膜分離において菌体だけでなく、高分子の物質も保持される。また、生成するVFAは主に酢酸であり、低濃度のプロピオン酸および酪酸も生成するなどの新しい知見を得ている。

第5章では、基質として分解が困難とされる脂質であるパルミチン酸を用いた場合、脂肪酸はナトリウム塩の形態よりも脂肪酸そのものの状態の方が吸着しやすく、脂肪酸分解における律速段階は、脂肪酸本体の分解でありメタン生成ではないこと、また、菌体が高濃度で存在する場合には、基質分解には作用しない菌体が存在することを明らかにしている。

第6章では、定常状態に達するまでの期間が長い膜分離型反応槽の処理特性に関して非定常動力学解析を行い、膜分離導入により菌体の増殖速度、死滅速度および増殖収率が減少するが、増殖した菌体は長時間反応槽内に保持されることを見いだしている。

第7章は結論である。

以上要するに本論文は、二相嫌気性消化法の酸生成相に膜分離を導入して菌体と処理水を分離し、反応槽内に高濃度の酸生成細菌を保持することによる物質分解特性および細菌群の挙動について基礎的検討を行ったもので、環境工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。