## DHS リアクターを用いた亜ヒ酸酸化細菌による亜ヒ酸の連続酸化に関する研究

岩手大学 学生会員 〇瀬川奈未、高橋知大 岩手大学 正会員 石川奈緒、伊藤歩、海田輝之

### 1. はじめに

バングラデシュやインドなどの地域では、地下水に含まれるヒ素(As)による健康被害が深刻となっており、Asの除去処理が必要である。地下水中のAsは通常、亜ヒ酸(As(III))の形態で存在し、As(III)はヒ酸(As(V))よりも凝集や吸着による処理効率が低い。そのため、酸化剤を用いてAs(III)をAs(V)に酸化してから凝集または吸着処理が行われるが、酸化剤のコストが問題となる。

そこで本研究では、経済的な地下水中の As 除去手法の 開発を目的として、DHS(Down-flow Hanging Sponge)に亜 ヒ酸酸化細菌を固定化したバイオリアクターによる As(III)の連続酸化について検討した。

# 2. 実験方法

#### 2-1 亜ヒ酸酸化細菌

本研究では、As(III)をAs(V)に酸化するために亜ヒ酸酸化細菌を利用した。培地(Weeger らの培地成分のうち有機炭素源である乳酸ナトリウムを除いたもので、As(III)を100 mg/L含む)1 Lに、秋保温泉浄化センターから採取した活性汚泥100 mLを植種し、1週間間隔で植え継ぎした。それを3ヶ月間繰り返したものを連続培養の接種源として用いた。pHは、塩酸又は水酸化ナトリウム溶液にて7.0前後に調整した。

### 2-2 実験装置

亜ヒ酸酸化細菌の付着担体として、円筒形のスポンジを用いた。図-1に実験装置の概略図を示す。スポンジは直径約3 cm、長さ約3 cm、体積は約21.2 cm³、空隙率は約0.98であり、この円筒形のスポンジを25個釣り下げた。微量定量ポンプとシリコンチューブにより上部から上記の培養液(As(Ⅲ)濃度100 mg/L)を流入させ、自然流下させて底部から流出させた。このリアクターを2台準備し循環式の回分培養を2回行い、スポンジに細菌を固定化した。

次に、それぞれのリアクターに流入させるAs(Ⅲ)濃度 を前述の培地を希釈することにより、1.0 mg/Lと0.5 mg/L とし、25 ℃の恒温室内でHRTを3 h、2 h、1 h、0.5 h と変 化させ連続酸化実験を行った。流入水はリアクター上部 の滴下部から直接採水し、流出水はリアクター底部から 直接採水した。さらに、リアクターの鉛直方向での形態 別As濃度の変化を把握するために、シリンジを用いて任 意のスポンジから試料を採取した。試料は孔径0.2 µmの メンブランフィルターでろ過し、HPLC-ICP/MSでろ液の As(Ⅲ)とAs(V)の測定を行った。その後、細菌数の測定の ために任意のスポンジを絞り、内部の液を100 mLまたは 200 mLに希釈し、トーマ血球盤を用いて顕微鏡観察を行 った。なお、リアクターの水理学的滞留時間(HRT)は、ト レーサーとしてNaCl  $(2.0 \times 10^5 \text{ mg/L})$  1 mLをリアクター の上部から滴下し、流出水中の電気伝導度を経時的に測 定し、 $\delta$  応答法により求めた。

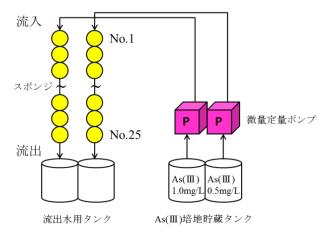


図-1 実験装置の概略図

### 3. 結果および考察

図-2と図-3に流入As(III)濃度を1.0 mg/L、0.5 mg/Lとした場合の流入水と流出水の形態別As濃度の経時変化を示す。なお、図中の縦の破線はHRTを変化させた時点を示している。HRT 3 hにおいて初期に流出するAs(V)濃度が

高くなっているのは、回分培養の際にAs(III)濃度を100 mg/L に設定し循環したことで、それがスポンジ内に残留していたためと考えられる。図-2から、HRT 3~1 hでは95.9%以上のAs(III)がAs(V)に酸化されているのに対し、HRT 0.5 hでの最大酸化率は95.6%であった。また、図-3からは、HRT 3~1 hで96.0%以上の酸化率に対し、HRT 0.5 h での最大酸化率は95.0%であった。

図-4に鉛直方向でのAs(III)濃度の変化を示す。両方のリアクターの結果から、それぞれのHRTにおいて97%以上のAs(III)をAs(V)に酸化するのに要するスポンジの数は、HRT 3 hでは4個、HRT 2 hでは5個、HRT 1 hでは10個、HRT 0.5 hでは22個であった。

図-5にスポンジごとの細菌数の変化を示す。両リアクターとも、上部のスポンジほど細菌が多く存在しており、また、流入As(III)濃度1.0 mg/Lの場合では0.5 mg/Lの場合よりもさらに細菌数が多かった。図-4と図-5から、リアクター上部でのAs(III)の酸化反応には細菌数が影響していることがわかった。

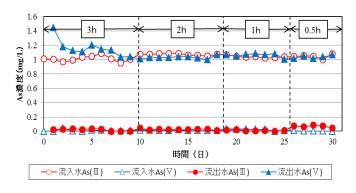


図-2 流入水と流出水の形態別 As 濃度の経時変化 (流入 As(Ⅲ)= 1.0 mg/L)

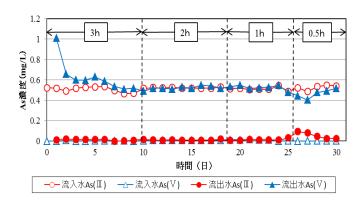


図-3 流入水と流出水の形態別 As 濃度の経時変化 (流入 As(Ⅲ)= 0.5 mg/L)

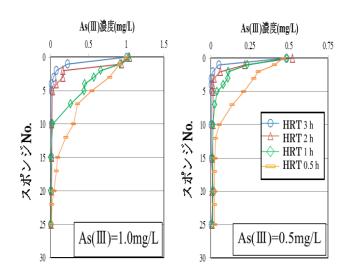


図-4 各 HRT における鉛直方向の As(Ⅲ)濃度変化

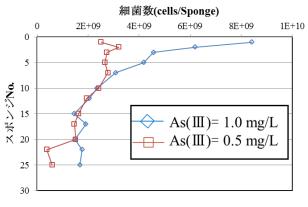


図-5 鉛直方向の細菌数の変化

# 4. まとめ

本研究の条件下では、亜ヒ酸酸化細菌の固定化担体として円筒形のスポンジを用いたとき、流入As(III)濃度が1.0 mg/L程度であれば、HRT 3~1 hにおいてほぼ全てのAs(III)を連続的にAs(V)に酸化処理可能なことが示された。HRT 0.5 hにおいては、流入As(III)濃度1.0 mg/L、0.5 mg/Lとした場合、最大As(III)酸化率はそれぞれ95.6%、95.0%という結果が得られた。また、HRT 3~1 hではスポンジがさらに少なくてもAs(III)の連続酸化処理が可能であると推定されるが、HRT 0.5 hではスポンジ25個が適当であった。さらに、DHSリアクターでは、曝気を一切行わなくても亜ヒ酸酸化細菌をスポンジに固定することにより連続酸化処理が可能であることが明らかになった。

#### 謝辞

本研究は、JSPS 23360230の助成を受けたものです。