

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

岩手大学 学生会員 ○菅野健人、瀬川奈未  
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)摂取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))よりも凝集または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、酸化剤のコストや環境への二次問題が問題となっている。

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)の酸化と、流入水に鉄を添加したAsの連続除去について検討した。また、連続実験前に活性汚泥から集積培養したAs(III)酸化能力を有する細菌について、pH、DO、水温別のバッチテストを実施した。

## 2. 実験方法

### 2-1 亜ヒ酸酸化細菌の集積培養と菌の特性

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100mg/L含む)1Lに、秋保温泉浄化センターから採取した活性汚泥100mLを植種し、1週間間隔で植え継ぎした。集積した菌について、As(III)酸化速度に及ぼすpH、DO、水温の影響を回分実験により検討した。pHは塩酸または水酸化ナトリウム溶液でpH4-10に調整した。DOは①DOあり・菌なし、②DOあり・菌あり、③DOなし・菌あり、に分類し、DOなしについては常時窒素曝気することによりDOを0にした。水温は室温を変え、水温が15、20、25、30℃になるように調整した。

また、集積した菌を連続培養の植種源として用いた。

### 2-2 連続実験装置

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3cm、体積は約21.2cm<sup>3</sup>、空隙率は約0.98であり、この円筒形のスポンジを25個吊り下げた。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100mg/L)を流入させ、自然落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0.5mg/Lとし、流入するFe(II)の濃度を5mg/Lと25mg/Lとして、25℃の恒温室内でHRTを2hとして連続実験を行った。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。試料は孔径0.2μmのメンブランフィルターでろ過し、HPLC-ICP/MCでろ液のAs(III)とAs(V)の測定を行った。またFeはフェナントロリン吸光光度法により測定を行った。

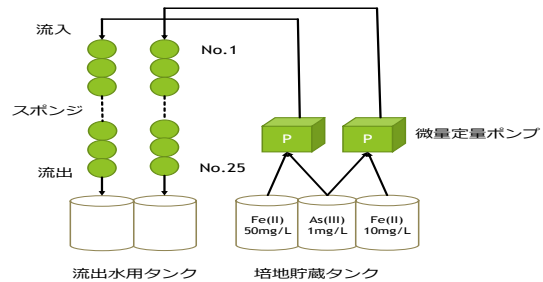


図-1 実験装置の概略図

## 3. 結果および考察

図-2に培地のpHを4から10まで変化させた場合のAs(III)濃度の経時変化を示した。pH7では、As(III)100mg/Lが4日で酸化され、次にpH6が14日で酸化された。pH5では26日間かけて緩やかに酸化し、pH8は16日間のラグがあったが、その後5日間で酸化した。pH4,9,10では酸化されなかった。

図-3にDO別As(III)濃度の経時変化を示した。DOがあっても菌を植種しなければAs(III)は酸化されず、菌を植種してもDOがなければ酸化されなかった。よって、本研究で集積した菌は好気性菌であることが分かった。

図-4に温度別As(III)濃度の経時変化を示した。水温が30℃のとき最も早く酸化され、15℃のときは酸化されなかった。

上記から、pH7、水温30℃、DOありのとき、最も効率よく酸化することが分かった。

キーワード:ヒ素、亜ヒ酸酸化細菌、スポンジ担体

連絡先:岩手大学(盛岡市上田4-3-5 TEL・FAX 019-621-6449)

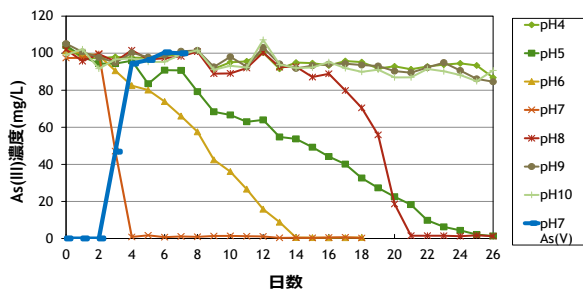


図-2 pH 別 As 濃度の経時変化

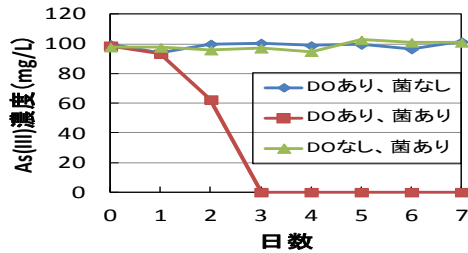


図-3 DO 別 As(III)濃度の経時変化

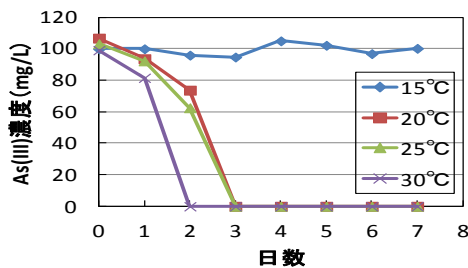


図-4 温度別 As(III)濃度の経時変化

図-5 に流入 As(III)濃度を 0.5mg/L、流入 Fe(II)濃度を 5mg/L、25mg/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①は Fe(II)は添加せず、②では添加した。また、②において図-5 中の試験方法変更と書かれた 34 日目以降、As(III)と Fe(II)を別々に流入させることにより、流入前の As と Fe との培地貯蔵タンク内での共沈を防いだ。①では、流入 As(III)の 94.3%以上が As(V)に酸化されていた。②では、試験方法を変更してから、流入 Fe(II)濃度が 25mg/L では最大 100%、平均 94.7%の As を除去できた。流入 Fe(II)濃度が 5mg/L では、Fe 濃度が低いため流出水で As(V)が残留していたが、実験の後半では除去率が高くなった。

図-6 に実験開始より 52 日目の、スポンジごとの As 濃度と Fe(II)濃度の変化を示す。両リアクターとも No.1 のスポンジで As(III)が As(V)に酸化されていた。流入 Fe(II)濃度が 5mg/L では、No.25 のスポンジの時点で 0.14mg/L の As(V)が残留していた。流入 Fe(II)濃度が 25mg/L では、スポンジ No.25 の時点で 92.7%の As が除去されていた。鉛直方向の Fe(II)濃度について、流入 Fe(II)濃度が 25mg/L(実濃度は 20.5mg/L)では、スポンジに流入してから No.3 のスポンジまでに 16~17.5mg/L に

低下し、その後一定になった。流入 Fe(II)が 5mg/L(実濃度は 2.3mg/L)では、スポンジ No.1~25 を通過する間に 1~0.5mg/L まで緩やかに低下した。流出水の Fe(III)濃度は 0.1mg/L 以下であったため、流入 Fe(II)濃度が 25mg/L では、約 3.65mg/L の Fe(III)がスポンジ内に残留し、流入 Fe(II)濃度が 5mg/L では、約 1.6mg/L の Fe(III)が残留したことになる。よって、流入 Fe(II)濃度が 25mg/L の方が、Fe(III)の残留率が高いため、As の除去率が高くなったと考えられる。

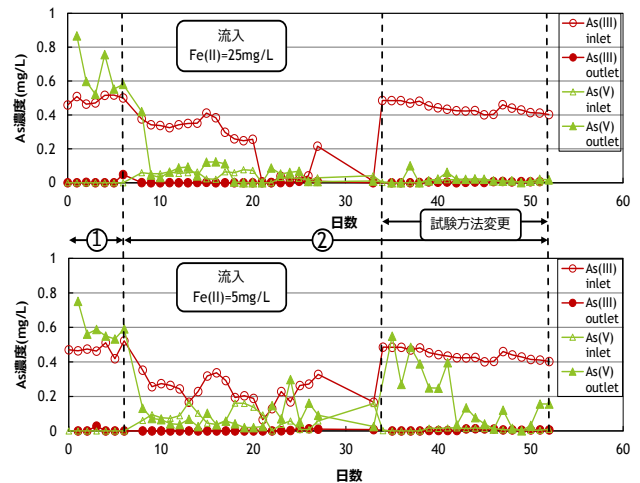


図-5 流入水と流出水の形態別 As 濃度の経時変化

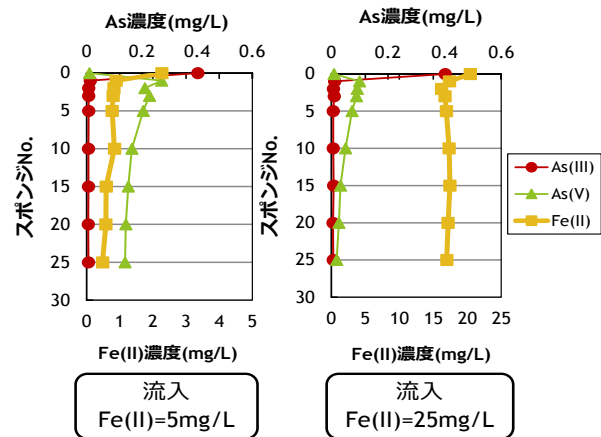


図-6 鉛直方向の形態別 As 濃度と Fe(II)濃度の変化

#### 4. まとめ

本研究の条件下では、亜硝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 0.5mg/L、流入 Fe(II)濃度が 25mg/L で HRT が 2h であれば、ほぼすべての As を連続的に酸化し、除去可能なことが示された。流入 Fe(II)濃度が 5mg/L では As(III)の連続酸化はされるが、As の除去率は 60%程度であった。鉛直方向の As 濃度の変化から、流入 Fe(II)濃度が 25mg/L ではスポンジは 25 個が適当であった。さらに、DHS リアクターでは曝気装置を一切行わなくても As が連続処理され、低コスト化が可能である。

#### 謝辞

本研究は、JSPS 23360230 の助成を受けたものです。