

硫酸塩還元細菌と硫黄脱窒細菌を組み合わせた 窒素除去に関する研究 -微生物の相互作用について-

金沢大学工学部土木建設工学科

池本良子・小森友明

金沢大学大学院土木建設工学専攻

○金井一人

金沢大学工学部土木建設工学科 4年

井出康行

1.はじめに

近年、海域の窒素りんの環境基準の設定や水道水源保全2法の成立にみられるように、閉鎖水域の富栄養化防止のための廃水処理における窒素除去の必要性がますます高まっている。自然界には還元型硫黄主を酸化してエネルギーを得ることのできる硫黄脱窒細菌の存在が知られている。筆者らは発泡ポリプロピレン担体を用いて硫酸塩還元細菌と硫黄脱窒細菌を処理槽内に共存させることにより、系内に硫黄のサイクルを形成し、有機物除去と脱窒を効率的に行うことを報告した。そこで本研究では、腐卵瓶を用いた回分実験を行い、硫酸塩還元槽、硫黄脱窒槽に存在する細菌の相互作用について検討した。

2.実験装置と実験方法

実験装置の概要を図1に示す。硫酸塩還元槽及び硫黄脱窒槽は、高さが30cm直径10cmの円筒形で（容積2.356L）、高さ約2/3まで発泡ポリプロピレン担体を充填した上向流生物ろ過装置とした。発泡ポリプロピレン担体の充填率は24.3%で、両槽共に水理学的滞留時間(HRT)を6時間に設定した。表1に示す人工廃水を用い、硝化槽からの返流水を想定して、硝酸ナトリウムをRun1では250mg/L、Run2では500mg/Lとなるように硫黄脱窒槽の下部から流入することにした。

週に2回、硫酸塩還元槽の流入水、流出水、硫黄脱窒槽の下部及び流出水を採取して水質分析を行った。分析項目はメンブレンフィルターろ液について硫酸塩、硝酸塩の測定を行い、硫化物は原液を用いた。また、Run2の運転終了後、両槽内の増殖した微生物を用いて、以下のような回分実験を行った。増殖した微生物を遠心分離により濃縮し、MLSS濃度が1000mg/Lとなるように100mLの腐卵瓶に投入し、基質を満たし、空気が混入しないように密栓した後、20度の恒温室で攪拌培養を行う。その後、一定時間おきにサンプルを取り出し、混合液の硫化物とろ液の水質分析を行った。回分実験に用いた基質は、人工廃水の無機物に表2に示したペプトン、酢酸、硫酸塩、硝酸塩、硫化物、モリブデンを組み合わせて添加したもの用いた。

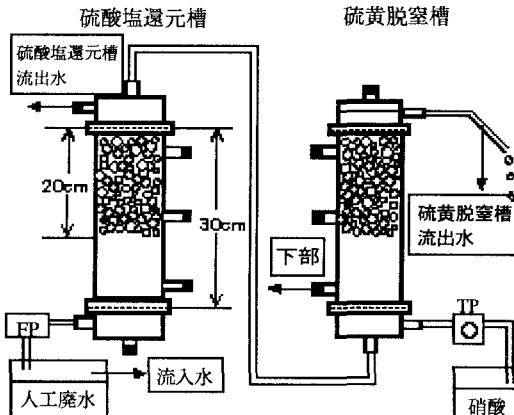


図1 実験装置概要図

表1 人工廃水の組成 (mg/L)

	RUN1	RUN2
運転日数	47日	12日
CH ₃ COOK	200	200
Polypepton	400	400
Yeast Extract	40	40
NaHCO ₃	71	71
KCL	174	174
MgSO ₄ · 7H ₂ O	157	157
CaCl ₂	51	51
KH ₂ PO ₄	91	91
MgCl ₂	61	61
NaNO ₃	250	500

表2 回分実験で添加した基質

(mg/L)	硫黄脱窒槽			硫酸塩還元槽		
	実験1.2	実験3.4	実験5	実験6	実験7	実験8
CH ₃ COOK	300	300	300	200	200	200
Polypepton	200	200	200	400	400	400
MgSO ₄ · 7H ₂ O			1254	627	157	157
NaNO ₃	411	411				
Na ₂ S · 9H ₂ O		488				
Na ₂ MoO ₄ · 2H ₂ O			960		960	

3. 実験結果と考察

3.1槽内の水質変化

図2は、硫酸塩還元槽の流入水、流出水、硫黄脱窒槽の下部及び流出水に含まれる硫酸塩濃度の経日変化を表したものである。運転開始から25日目以降から硫酸塩還元槽で硫酸がほとんど還元され、硫黄脱窒槽で再び増加した。

図3は、Run2における硫酸塩還元槽の流入水、流出水、硫黄脱窒槽の下部、流出水に含まれる有機物、無機塩の濃度を示したものである。硫酸塩還元槽では硫酸塩が減少し硫化物が増加している。それに伴い蛋白質が酢酸に転換している。硫酸塩還元細菌が人工廃水中のペプトンを利用して酢酸を生成していたと考えられる。硫黄脱窒槽ではTOCが減少し、それに伴いICが増加した。硫黄脱窒槽の流出水で硫酸塩濃度が硫酸塩還元槽の流入水の濃度以上に増加し、硫化物もほとんど消費されている。硫黄脱窒槽では、硫黄脱窒細菌と有機性脱窒細菌の両方が活動していると考えられる。

3.2回分実験の結果

図4、5、6は、両槽内の増殖した微生物と人工廃水を用いた腐卵瓶による回分実験の一例を示したものである。

実験1、2では硝酸塩が急激に減少し、それに伴い酢酸の減少とICの増加が認められた。硫酸塩の増加は認められなかったので、硝酸塩の減少速度を1次反応として有機性脱窒速度を求めた。硫化物を添加した実験3、4ではゆっくりとした硝酸塩の減少に伴い硫酸塩が増加しており、このときの硝酸塩の減少速度から硫黄脱窒速度を求めた。実験5及び7では、硫酸塩が急激に減少し、硫酸塩の減少速度を0次反応として硫酸塩還元速度を求めた。モリブデンを添加(Mo+)した実験6及び8では硫酸塩の変化はほとんど見られなかった。回分実験6及び8において、モリブデンを添加すると酢酸塩の生成量が減少し、プロピオニ酸が増大する傾向が認められた。

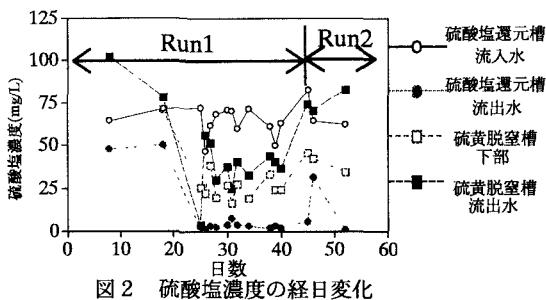


図2 硫酸塩濃度の経日変化

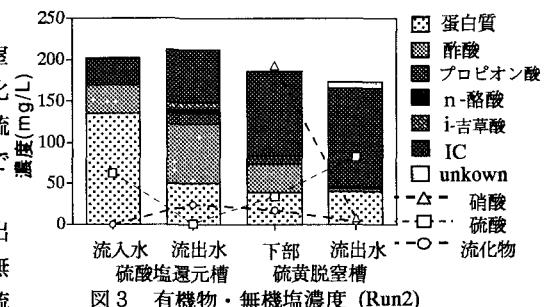


図3 有機物・無機塩濃度 (Run2)

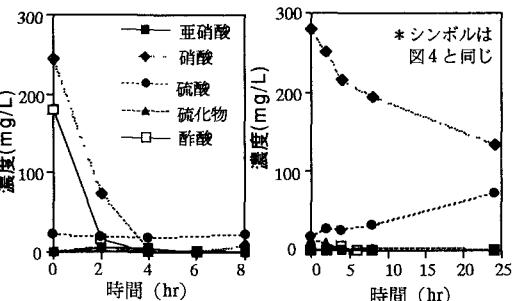
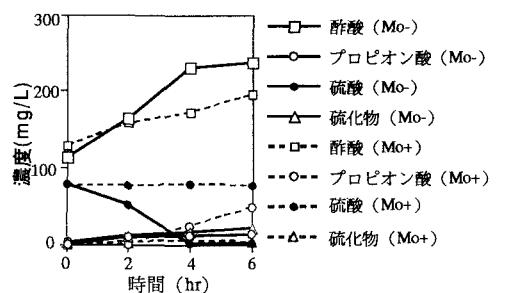
図4 回分実験の結果
(硫黄脱窒槽、実験2)図5 回分実験の結果
(硫黄脱窒槽、実験3)

図6 回分実験の結果 (硫酸塩還元槽、実験7、8)

表3 硫酸塩還元速度、脱窒速度

実験番号	硫黄脱窒速度定数 (1g/MLSS hr)	有機性脱窒速度定数 (1g/MLSShr)	硫酸塩還元速度定数 (mg-SO ₄ /gMLSShr)
1		0.194	
2		0.181	
3	0.012		
4	0.025		
5			3.147

硫酸塩還元槽	7	2.656

3.3 微生物相互作用の検討

表3に回分実験より求めた速度定数をまとめて示す。硫黄脱窒速度は、有機性脱窒速度の1/10程度であったが確認することができた。高濃度の有機物の中でも硫黄脱窒細菌は、有機性脱窒細菌と共に存していると考えられる。一方、硫酸塩還元速度は両槽とも同程度の値になった。硫黄脱窒槽にも、硫酸還元槽と同程度の硫酸塩還元細菌の活性があると考えられる。

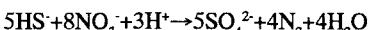
モリブデン無添加回分実験（実験5,7）における酢酸の増加量から、モリブデン添加の回分実験（実験6,8）における酢酸の増加量を差し引き、硫酸塩還元細菌が関与した酢酸の生成量を求めた。一方、モリブデン添加回分実験から硫酸塩還元細菌が関与しない酢酸の生成量を求め、硫酸塩還元槽における酢酸の増加量から差し引くことにより、槽内における硫酸塩還元細菌の関与した酢酸の生成量を求めた。この値と硫酸塩還元量の関係を図7に示す。図中の直線は、酢酸が次式に従って、プロピオン酸から硫酸塩還元細菌によって生成されたとした場合の理論線である。利用された硫酸塩と生成された酢酸塩は、ほぼこの理論線と一致している。このことから、両槽に生着した硫酸塩還元細菌は、プロピオン酸類似の有機物を利用して酢酸を生成していたと考えられる。



図8の□印は、酢酸・ペプトンを基質とする回分実験（実験1,2）における硝酸減少量と、酢酸減少量の関係を表したものである。酢酸を利用した脱窒反応は次式で表すことができる。



図中の直線は、酢酸を利用した脱窒の量論線を表したものであり、脱窒に使われた硝酸塩の減少量は酢酸の減少量とほぼ一致している。また、硫黄脱窒細菌は次式に示す反応により生育に必要なエネルギーを得ている。



硫黄脱窒槽における硫酸塩の増加量は、硫黄脱窒細菌が脱窒により生成した硫酸塩と考えられるので、上式より、硫黄脱窒細菌により消費された硝酸塩濃度を求めた。硫黄脱窒槽における硝酸塩の減少量からこの量を引くことにより、有機性脱窒細菌が利用した硝酸塩量が求められる。この値を図8の●印で示したが、酢酸を利用した脱窒の量論線と一致している。硫黄脱窒槽では、有機性脱窒細菌が主に酢酸を利用していたと考えられる。

以上のことより、硫酸塩還元槽で硫酸塩還元により蛋白質が酢酸に転換されることにより、硫黄脱窒槽では、安定した脱窒が可能であったと考えられる。また、無酸素条件の処理であるので、槽内の微生物の増殖速度は遅く、運転期間を通じて汚泥の引き抜きの必要はなかった。

4まとめ

1) 硫酸塩還元槽では硫酸塩還元細菌が、人工廃水中のペプトン由来のプロピオン酸もしくはプロピオン酸類似の有機物からの酢酸の生成に関与していた。

2) 硫黄脱窒槽では硫酸塩還元槽から持ち込まれた酢酸を有機性脱窒細菌が利用し、硫化物を利用した硫黄脱窒細菌の活動も活発に起こった。

3) 槽内の微生物の増殖速度は遅く、運転期間を通じて汚泥の引き抜きの必要はなかった。

<参考文献>池本良子、小森友昭、金井一人：硫酸塩還元菌と硫黄脱窒細菌を組み合わせた窒素除去に関する研究、土木学会第51回年次学術講演会講演概要集第7部、VII-33、1996

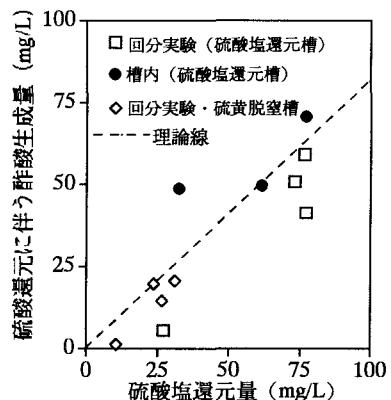


図7 硫酸塩還元量と酢酸生成量の関係

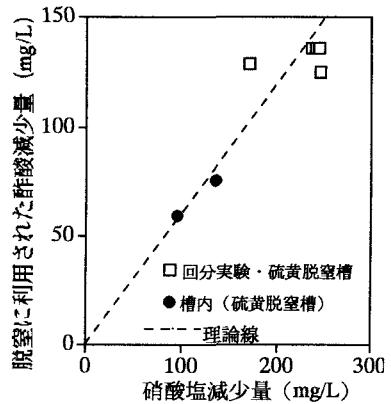


図8 硝酸塩減少量と酢酸減少量の関係