

B-12 嫌気好気生物ろ床によるトリクロロエチレンの除去に関する研究

金沢大学工学部土木建設工学科

池本良子・小森友明

金沢大学大学院環境基盤工学専攻

○奥村綾・高梨朋子

堀田倫宏

1. はじめに

近年、環境汚染の一つとしてトリクロロエチレン(TCE)やテトラクロロエチレン(PCE)などの有機塩素系化合物による土壤・地下水汚染が深刻な問題となっており、これら有機塩素系化合物を分解し除去する技術が求められている。本研究室では、嫌気好気条件で馴養された排水処理微生物にTCE分解能があること、TCE分解能の高い微生物は硫酸塩還元・硫黄酸化の活性が高く、その中で硫酸塩還元細菌はTCE分解に直接関わっていないことを報告するとともに、硫黄酸化との関連を指摘した。生物ろ床装置を用い、連続的にTCEを流入させることによりTCE除去能を測定するとともに、装置内微生物を用いた回分実験を行ない、微生物のTCE分解能およびその機構について検討した。

2. 実験装置と実験方法

2. 1 実験装置

実験装置の概要を図1に示す。本装置は高さ30cm直径10cmの円筒形カラム(容積2.580L)を2本つなげたものである。上槽には高さ約1/3まで発泡ポリプロピレン坦克を充填し(充填率17.5%)、下部からエアーポンプによる曝気を行ない好気条件とした。下槽では全体に坦克を充填し(充填率36.3%)、嫌気条件とした。装置下部よりペプトンを主体とする基質を流入させ、水理学的滞留時間(HRT)は6.5時間とした。

2. 2 実験方法

1) TCE分解実験：好気槽内の坦克付着微生物を取り出し、坦克から剥離した後、遠心分離器により固液分離し、最終SS1000mg/Lとなるようにバイアル瓶に投入し基質を混合し20mlとした。基質として、図1に示す基質から酵母エキスおよびペプトンを除いた無機基質、無機基質に酵母エキス20mg/Lを加えた基質、無機基質にチオ硫酸ナトリウム7.8mg/Lを加えた基質の3種類を用いた。TCE(0.1mg/Lメタノール)を1μl添加し恒温室内(20°C)で横倒し振とう培養した。経時的にヘッドスペースガスクロマトグラフ法によりTCE濃度を測定するとともに、硫酸塩濃度を測定した。

2) 繰り返しTCE分解実験：1)の条件で23時間振とう培養した後、バイアル瓶内の微生物基質混合液を遠心分離して固液分離し、微生物をバイアル瓶に戻してTCEの添加を繰り返した。上澄み液は水質分析した。この過程を7~17日間継続して行なった。

3) TCE連続添加実験：装置運転開始から2ヶ月経過し充分に生物膜が形成された後、基質中にTCEを最終濃度で1mg/Lとなるように4日間添加し、連続的に通水した。経時に各槽の流入水・流出水中のTCE濃度を測定するとともに硫酸塩濃度、TOCの分析を行った。また排ガスのTCE濃度の測定も行なった。

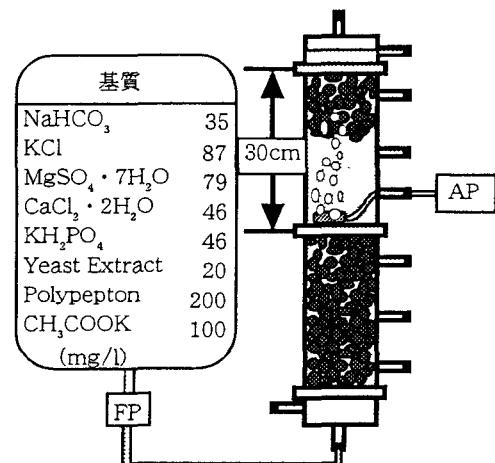


図1 装置概要図

3. 実験結果と考察

運転開始から2週間後に行なった水質分析の結果を図2に示す。硫酸は嫌気槽で減少し好気槽で増加、酢酸は嫌気槽で増加し好気槽で減少していた。嫌気槽では硫酸塩還元が、好気槽では硫黄酸化が優先的に起こっており、好気槽内微生物が生物膜内に硫黄粒を蓄積させていることを確認した。そこで装置内の微生物を用いてTCE分解能を測定した。図3はTCE分解実験におけるTCE濃度および硫酸塩濃度の経時変化を示したものである。無機基質を用いた場合、TCEが一次反応的に減少し、生物膜内に蓄積された硫黄粒の酸化により硫酸塩が増大していることがわかる。基質にチオ硫酸を加えると、無機基質の場合よりも硫酸塩の増加量は多くなるが、TCE分解速度はほぼ同じとなっている。

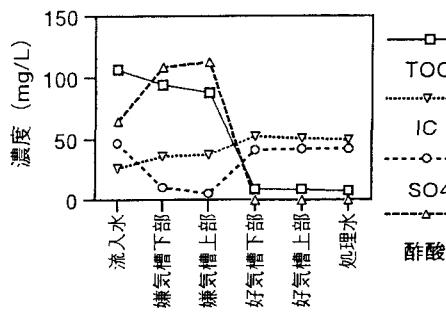


図2 水質分析結果

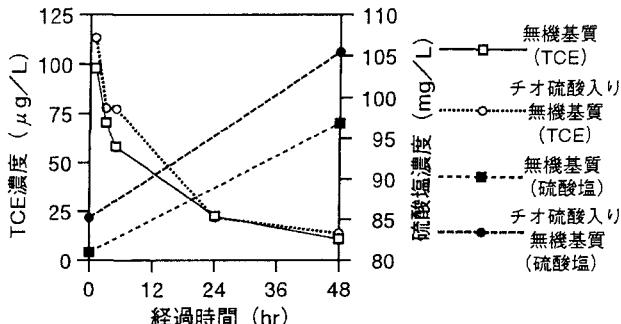


図3 TCE分解実験時のTCE濃度と硫酸塩濃度の経時変化

表1は、好気槽内微生物を曝気し蓄積硫黄粒を酸化した後TCE分解を行った場合と、未処理の場合のTCE分解速度を比較したものである。硫黄粒の減少により、TCE分解能が低下することがわかった。

表1 TCE分解速度と硫酸塩増加速度との関係

	基質の種類	無機基質	酵母エキス	チオ硫酸塩
曝気	TCE分解速度 ($\mu\text{g}/\text{L}\cdot\text{h}$)	17	9	4
なし	硫酸塩増加速度 ($\text{mg}/\text{L}\cdot\text{h}$)	3.65	3.86	3.65
曝気	TCE分解速度 ($\mu\text{g}/\text{L}\cdot\text{h}$)	7	5	5
あり	硫酸塩増加速度 ($\text{mg}/\text{L}\cdot\text{h}$)	0.48	0.35	0.54

図4は、繰り返しTCE分解実験におけるTCE濃度および硫酸塩濃度の経日変化を示したものである。無機基質を用いた場合には、5日目以降、硫酸塩の増加が認められなくなり、TCEの分解も停止した。チオ硫酸塩を添加した基質を用いた場合には、チオ硫酸塩の酸化により硫酸の増加は継続したが、TCE分解能は無機基質の場合と同様に、5日目から停止した。一方、嫌気槽流出水を用いた場合には硫酸塩の増加

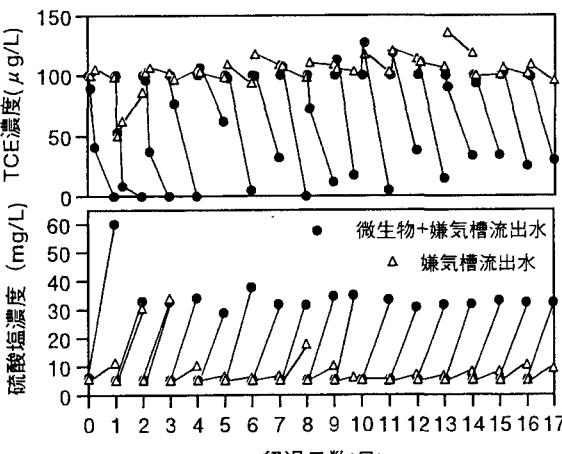
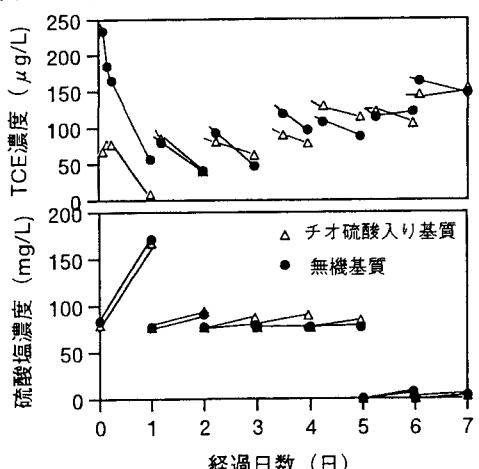


図4 繰り返しTCE分解実験時のTCE濃度と硫酸塩濃度の経日変化

もTCEの分解も17日間継続した。嫌気槽流出水には高濃度の硫化物が含まれており、硫化物の酸化に伴いTCEの分解が進行することが示唆された。図5に、無機基質および嫌気槽流出水を用いたTCE分解実験および繰り返しTCE分解実験より得られた硫黄酸化速度とTCE分解速度との関係を示す。ばらつきはあるが、硫黄酸化が活発な場合にTCEが分解される傾向が認められた。以上のことから、チオ硫酸から硫酸への酸化過程はTCE分解に関与していないが、硫黄粒もしくは硫化物の酸化に伴ってTCEの分解が起ると考えられた。図6は連続添加実験のTCE濃度の経日変化を示したものである。TCE添加中は嫌気槽でTCEが坦体に吸着され40～70%減少し、好気槽でほとんど消失した。TCE添加終了後も嫌気槽流出水中にTCEは検出されるが好気槽でほとんど消失していることから、好気槽内の微生物により分解されたと考えられた。処理水濃度は常に低く4日目ピーク時でも0.08mg/Lであり、TCE添加終了後は0.012mg/L以下となった。図7は硫酸塩濃度の経日変化である。TCE添加中も嫌気槽で硫酸還元により減少し、好気槽で硫黄酸化により増加した。硫酸塩濃度が好気槽、処理水において8時間後に低い値となったのは、滞留時間の6.5時間すぎ好気槽内へのTCEの影響が最大となったためと考えられるが、その後は硫黄酸化が復活し、TCEの毒性による影響は一時的なものであった。図8はTCE收支を経時的に示したものである。実験開始後は嫌気槽での坦体吸着量が多いが、徐々に吸着量が減少し好気槽での除去量が増加した。測定時間により異なるがTCE除去率は94%と高く、処理水中に4%存在し、大気中に放出された量はわずか2%であった。

4.まとめ

- 1) 硫黄酸化が優先的に起こっている好気槽坦体付着微生物は高いTCE分解能を示した。硫酸塩還元が優先的に起こっている嫌気槽流出水を基質とし、17日間（1日1回）1mg/LのTCE添加を繰り返しても分解能が継続した。
- 2) 好気槽微生物によるTCE分解は、硫黄酸化細菌による硫化物もしくは硫黄粒の酸化に伴うと推定された。
- 3) 嫌気好気性生物ろ床装置では、嫌気槽での坦体による吸着と好気槽での生物分解によりTCEが除去され、その除去率は94%であった。

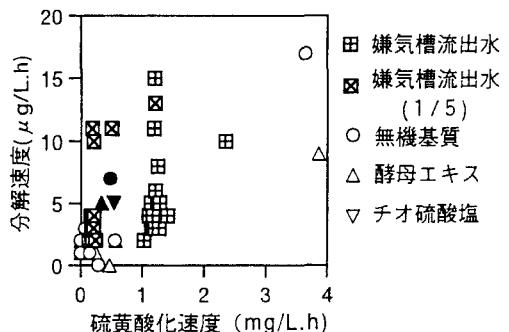


図5 硫黄酸化速度とTCE分解速度の関係

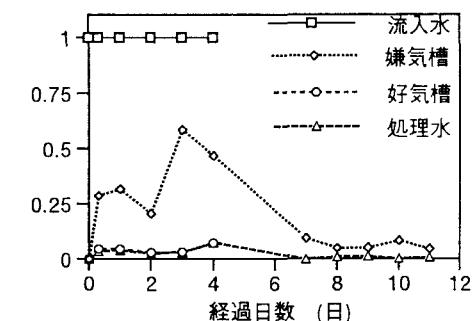


図6 TCE連続添加実験時のTCE濃度の経日変化

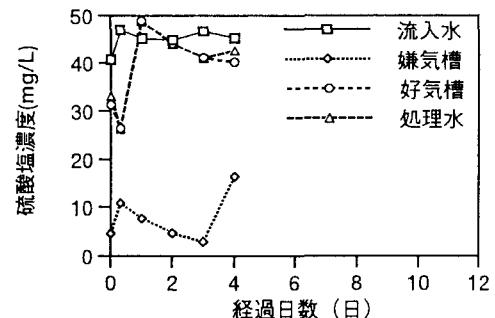


図7 TCE連続添加実験時の硫酸塩濃度の経日変化

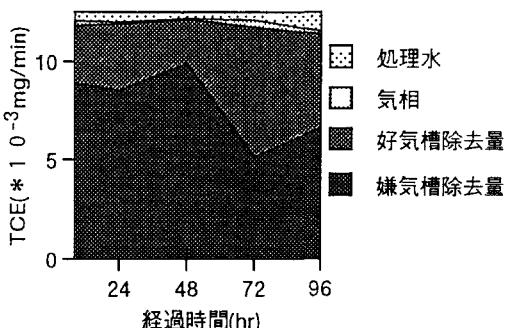


図8 TCE連続添加実験における除去量