

# N-7 炭素繊維揺動型嫌気性ろ床による 都市下水の処理

○喜成 悠希子<sup>1</sup>・渡邊 明日香<sup>1</sup>・中木原 江利<sup>2</sup>・池本 良子<sup>2\*</sup>・櫻井 英二<sup>3</sup>

<sup>1</sup>金沢大学大学院自然科学研究科 (〒920-1192石川県金沢市角間町)

<sup>2</sup>金沢大学理工研究域 (〒920-1192石川県金沢市角間町)

<sup>3</sup>スプリング・フィールド有限公司 (〒921-8034石川県金沢市泉野町4-9-5)

\* E-mail: rikemoto@t.kanazawa-u.ac.jp

## 1. はじめに

高濃度有機性排水の処理法として、余剰汚泥発生量が少なく、メタンガス回収が可能な嫌気性処理が注目されている。しかし、都市下水のような低濃度排水に適用した場合、グラニューロや生物膜の形成が悪く、処理性能が低いことが知られている。一方、生物膜処理では、生物付着担体が処理性能を大きく左右することが知られている。炭素繊維は、生物付着性が良好であるだけでなく、処理槽内で炭素繊維が揺動することにより、排水と効率的に接触し処理性能の向上が期待できる。山下らは、炭素繊維担体を生物付着担体として充填した嫌気好気生物ろ床を染色排水処理に適用し、汚泥発生量が少なく良好な処理が可能であることを報告している<sup>1)</sup>。

そこで、本研究では、炭素繊維を充填した揺動型嫌気性ろ床装置を都市下水処理場に設置し、最初沈殿池越流水を用いた連続処理実験をおこない、その処理性能を評価した。さらに、実験室内に小型の嫌気性ろ床装置を設置し、人工下水を用いて連続運転を行い、反応槽内の微生物反応について検討した。また、処理槽内の汚泥からDNAを抽出し、微生物群集解析を試みた。

## 2. 実験方法

### (1) 実験装置と運転方法

図1に、下水処理場に設置したベンチスケールの嫌気性ろ床を、表1にそれらの運転条件を示す。嫌気性ろ床装置は容量185Lの円筒形で、内部に生物付着担体として図2に示す炭素繊維担体を8.4 m充填した。装置は必要に応じて循環ポンプにより循環を行うことにより、装置内の炭素繊維が揺れ動く構造とした。Run 1では同様の下水で1年間以上嫌気条件で馴致した汚泥を植種し、下部から合流地区を処理する系列の最初沈殿池越流水を滞留

時間6時間になるように通水した。Run 2では、装置を分流地区を処理する系列に移設するとともに、投入担体量を16.8 mに増加させた。週に一度、流入下水および流出水を採水し、現地で水温及び流量を測定した後、実験室に持ち帰り、水質を測定した。

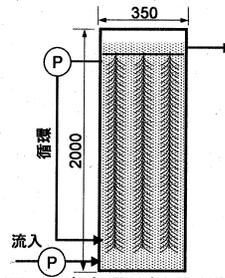


図1 炭素繊維揺動型嫌気性生物ろ床装置



図2 炭素繊維担体

表1 運転条件

	Run 1				Run 2	
	Period 1	Period 2	Period 3	Period 4	Period 1	Period 2
経過日数 (日)	0-85	86-106	107-246	247-281	0-57	58-
HRT (h)	6	6	3	6	8	3
循環比 (-)	2	0	0	0	0	0

### (2) 室内連続式実験

実験室内に図3のような小型の嫌気性ろ床装置2系列 (Run L1, L2)を20℃の恒温室内に設置し、下水処理場における連続処理実験と同様の汚泥を種植源として、連続運転を行った。装置は容量約1Lの円筒形で、内部には炭素繊維担体を充填した。実験に用いた基質を表2に、運転条件を表3に示す。Run L1ではプロピオン酸塩を添加し、プロピオン酸の分解経路を検討した。また、Run L2では実下水に近い組成であるペプトンおよび酢酸塩を添加することで、実下水の分解について検討した。週に一度流入水および流出水を採水し、水質を測定した。

### (3) 微生物叢の解析

Run 1およびRun L1, L2の反応槽内の生物膜を採取し、

UltraClean Soil DNA kit (Mo Bio Laboratories, Inc, USA) を用いてDNA抽出をおこなった。抽出したDNAを用いて、16S rRNA遺伝子をターゲットとしたPCR-DGGE法による解析を試みた。また、特定の硫酸塩還元微生物グループの16S rRNA遺伝子に特異的なプライマーを用いて、PCRを行った。表4に実験に用いたプライマーを示す。

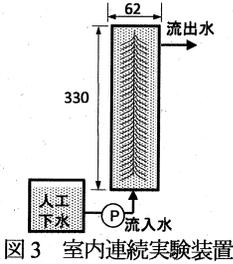


図3 室内連続実験装置

表2 基質組成 (mg/L)

	Run L1	Run L2
CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> COONa	130	0
Peptone	0	140
CH <sub>3</sub> COOK	0	35
NH <sub>4</sub> Cl	100	
KHCO <sub>3</sub>	35	
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	46	
CaCl <sub>2</sub>	50	
FeCl <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	0.25	
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	73	

表3 運転条件

	Period 1	Period 2	Period 3
経過日数 (日)	0-41	42-69	70-101
HRT (h)	6	3	6

表4 使用したプライマー

Primer	Sequence (5'-3') <sup>a</sup>	Specificity	Reference
Primer 2	ATT CC G CG G CTG CTG G	Most Bacteria	2
Primer 3 <sup>b</sup>	CCT ACG G GA GGC AGC AG		2
616V	AGA GTT TGA TYM TGG CTC	Most Bacteria	3
630R	CAK AAA GGA GGT GAT CC		3
Arc357F	CCC TAC GGG GCG CAG CAG		4
Arc691r	GGA TTA CAR GAT TTC AC	Archaea	4
DFM 140	TAG MCG GGG ATA ACR SYK G	Desulfotomaculum	5
DFM 842	ATA CCC SCW WCW CCT AGC AC		5
DBB 121	CGC GTA GAT AAC CTG TCG TCA TG	Desulfobulbus	5
DBB1237	GTA GKA CGT GTG TAG CCC TGG TC		5
DBM 169	CTA ATR CCG GAT RAA GTC AG	Desulfobacterium	5
DBM 1006 ATT	CTC ARG ATG TCA AGT CTG		5
DSB 127	GAT AAT CTG CCT TCA AGC CTG G	Desulfobacter	5
DSB 1273	CYY YYY GCR RAG TCG STG CCC T		5
DCC 305	GAT CAG CCA CAC TGG RAC TGA CA	Desulfonema-Desulfosarcina	5
DCC 1165	GGG GCA GTA TCT TYA GAG TYC	-Desulfococcus	5
DSV 230	GRG YCY GCG TTY CAT TAG C	Desulfovibrio	5
DSV 838	SYC CGR CAY CTA GYR TYC ATC	-Desulfomicrobium	5

<sup>a</sup>Ambiguities: R (G or A); Y (C or T); K (G or T); M (A or C); S (G or C); W (A or T)

<sup>b</sup>A 40-bp GC clamp was added to the 5' end (CGCCCCGCGCCCGCCCGCCCGCCCGCCCGCCCGCCCG) when the PCR product was used for DGGE analysis (Primer 3-GC and Arc357F-GC).

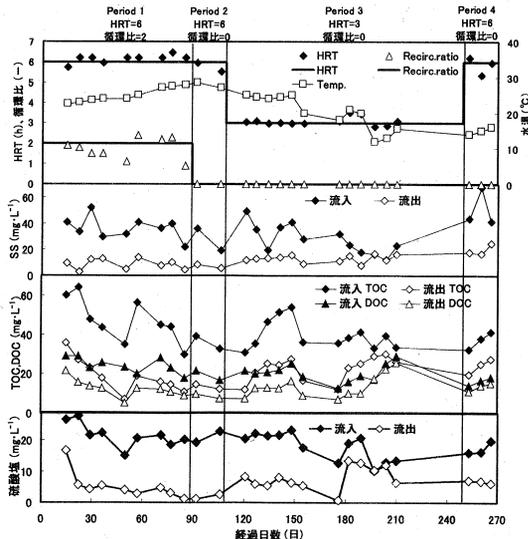


図4 Run 1の水質の経日変化

### 3. 実験結果と考察

#### (1) 処理水質の変化

図4, 5に水質の経日変化を示す。Run 1では、合流下水を受け入れる系列に装置を設置したために、天候によって流入水質が大きく変動し、降水量の多い冬季には流入水濃度が低下した。運転開始直後からSSおよびTOCは処理装置内で大きく低下し、滞留時間6時間のPeriod 1では、SSおよびTOC除去率はそれぞれ73%、66%を示した。循環比0に変更したPeriod 2でもほぼ同様の値を示した。滞留時間を3時間に短縮したPeriod 3では、初期は除去率は大きく変化せず、良好な処理性能を示したが、水温が低下するにつれ、処理水の水質が悪化し、水温が15°C前後になった200日目以降はSSおよびTOC除去率は17%、19%となった。再び滞留時間を6時間に延長したPeriod 4では、SS除去率58%、TOC除去率が35%程度まで回復した。冬期間の処理を考えると滞留時間は6時間以上は必要であると考えられる。図5にRun 2の水質の経日変化を示す。HRT 8時間のPeriod 1ではTOC除去率は62%を示した。HRT 3時間のPeriod 2では、SSおよびTOC除去率はそれぞれ60%、57%を示した。Run 1のPeriod 3の前半と比較すると、除去率が高い値を示していることから、炭素繊維の増量の効果があったものと考えられる。運転期間を通じて処理水のTOCは7~35mg·L<sup>-1</sup>であり、嫌気性処理であるUASBによる低濃度排水処理の事例と同程度の値を示した<sup>9)</sup>。

一方、Run 1, 2ともに、運転期間を通じて硫酸塩の低下が認められた。TOC除去率の低下したRun 1のPeriod 3後半において、硫酸塩還元量も減少していることから、TOC除去には硫酸塩還元が何らかの役割を果たしていると推定された。

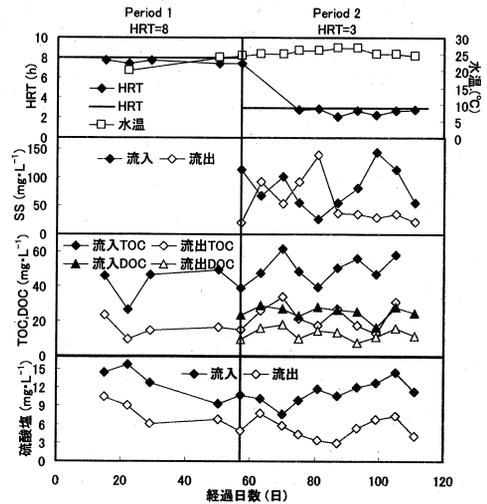


図5 Run 2の水質の経日変化

(2) 室内連続式実験

図6にRun L1の水質の経日変化を示す。プロピオン酸を添加したRun L1では、プロピオン酸塩および硫酸塩が減少し、酢酸塩が増加した。プロピオン酸の分解は硫酸塩還元微生物または水素生成細菌が行うが、硫酸塩の減少が見られるため、装置内では硫酸塩還元微生物による不完全酸化型の反応が進行したと考えられる。

図6にRun L2の水質の経日変化を示す。ペプトンと酢酸を添加したRun L2では、DOCおよび硫酸塩の減少が見られ、Run L1同様硫酸塩還元による有機物の分解が進行したと考えられる。HRTが6時間のPeriod 1では酢酸の増大は認められなかったが、3時間に短縮したPeriod 2で酢酸の蓄積が認められた。このことは、分解が酢酸を経由していることを示すものである。硫酸塩減少量は変化しなかったことから、ここでも硫酸塩還元微生物が酢酸の生成に関与していたものと推定できる。

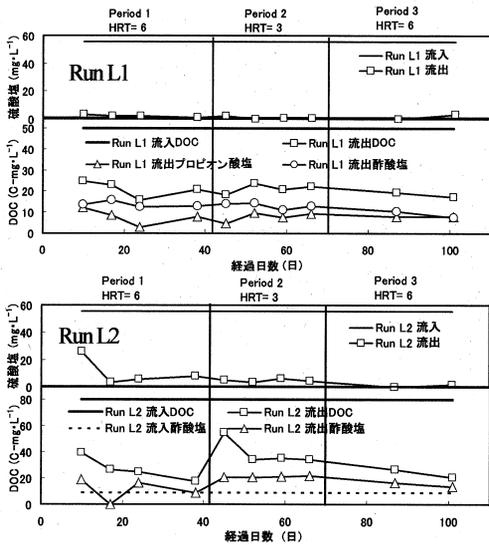


図6 Run L1, L2の水質の経日

(3) 微生物叢の解析

Run 1の生物膜(111, 240日目)およびRun L1, L2の生物膜から抽出したDNAに、16S rRNA遺伝子を標的としたPCR-DGGE法を適用した結果を図7に示す。シークエンス後のMEGA4による相同性解析の結果、A2, A8, A11, A14は*Arcobacter*の近縁種、A7, A9では*Flavobacterium* sp.の近縁種と推定された。また、A13, A18は硫酸塩還元微生物である*Desulfobulbus rhabdiformis* (95%), A17は*Desulfovibrio desulfuricans* (98%)の近縁種と推定された。Run 1の同じ位置にも薄いバンドがみられるため、Run 1にも同様の硫酸塩還元微生物が存在していたと考えられる。

次に、表4に示すプライマーを用いて6つの硫酸還元微生物グループの菌叢の探索を行った結果、いくつかの硫酸塩還元微生物が検出された。結果を表5に示す。Run 1

およびL1からは*Desulfobulbus*属の硫酸塩還元細菌が検出された。*Desulfobulbus*属は乳酸やプロピオン酸などの有機物から酢酸や二酸化炭素を生成する細菌として知られており、Run 1およびL1では、この細菌がプロピオン酸からの酢酸生成において重要な役割を果たしていたと考えられる。また、Run L2では*Desulfovibrio*属の硫酸塩還元細菌が検出された。多くの*Desulfovibrio*属は有機物を不完全に酸化する。Run L2においてHRT 3時間の間に酢酸が蓄積したのには、この微生物が関係していたものと推定される。HRT 6時間で酢酸の蓄積がなかったのは、生成された酢酸がメタン生成に利用され、もしくは硫酸塩還元微生物が水素を利用することにより酢酸の分解に関与していたかは不明であるが、Archaeaを標的としたPCR-DGGEでは、メタン生成菌が検出されなかったために、後者の可能性が高いと推定される。

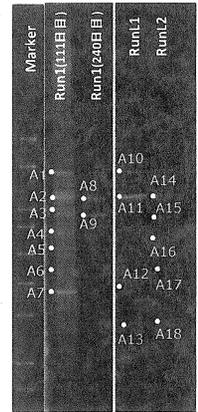


図7 電気泳動写真

表5 硫酸塩還元微生物の探索結果

	Primer pair							
	616V 630R	DFM140 DFM842	DBB121 DBB1237	DBM169 DBM1006	DSB127 DSB1273	DCC305 DCC1165	DSV230 DSV838	
Run 1-2	+	(+)	+	-	+	+	+	
Run 1-3	+	-	-	-	+	-	+	
Run L1	+	-	(+)	-	-	-	-	
Run L2	+	-	-	-	-	-	(+)	

+, A visible band of PCR products on an agarose gel.  
 (+), A weak band of PCR products on an agarose gel.  
 -, Negative hybridization signal in the presence or absence of band of PCR products on an agarose gel.

3. まとめ

炭素繊維揺動型嫌気性ろ床の処理水質は既存の低濃度排水の嫌気性処理実験と同程度の値を示した。

処理槽内生物膜からは不完全酸化型の硫酸塩還元微生物が検出された。これらの硫酸塩還元微生物が有機物分解において重要な役割を果たしている可能性がある。

謝辞

本研究の一部は、公益財団法人鉄鋼環境基金 一般研究助成の補助を受けて実施しました。

参考文献

- 1) Yamashita他(2006) Wat. sci. and Tech, 53 (11): 151-161
- 2) Muyzer他(1993) Environ. Microbiol. 59 (3): 695-700.
- 3) Juretschko他(1998) Appl. Environ. Microbiol., 64, 3042-3051
- 4) Watanabe他(2004) FEMS Microbiol. Lett. 232 (2), 153-163.
- 5) Daly他(2000) Microbiol. 146, 1693-1705.
- 6) 山崎他(1999) 土木学会第54回年次学術講演会講演概要集