<論 文>

PAC 添加活性汚泥法における活性炭の効果

谷 口 日出雄* 西 嶋 渉** 村 上 昭 彦*
 岡 田 光 正** 細 見 正 明*

Effects of the Powdered Activated Carbon on an Activated Sludge Process

Hideo TANIGUCHI*, Wataru NISHIJIMA**, Akihiko MURAKAMI*,
 Mitsumasa OKADA** and Masaaki HOSOMI*

* Department of Chemical Engineering, Tokyo University of Agriculture and Technology, 2-24-16, Nakamachi, Koganei-shi, Tokyo 184 Japan

** Laboratory of Environmental Chemistry, Faculty of Engineering, Hiroshima University, 1-4-1, Kagamiyama, Higashihiroshima-shi, Hiroshima 724 Japan

Abstract

Laboratory scale continuous-flow activated sludge reactors were operated using synthetic wastewater containing phenol as a toxic organics, m-aminobenzoic acid (m-ABA) as a refractory organics and inorganic nutrients to clarify the effects of powdered activated carbon (PAC) on removal of the toxic and refractory organics. The performance of the activated sludge system operated with the addition of PAC was compared with that of the system operated with the addition of bentonite (BEN), the system operated with the addition of raw material of PAC (NAC) having no ability to adsorb and the system of conventional activated sludge (AS).

Concentrations of DOC, phenol and m-ABA in the effluent of the reactor with PAC were much lower than those when other adsorbents were used. Especially, the m-ABA were not detected ($< 0.2\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$) in the effluent from the reactor with PAC, while those for BEN, NAC and AS were 80, 75 and 80 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$, respectively. Because contribution of adsorption of m-ABA on PAC to the removal of m-ABA was negligible, m-ABA was considered to be removed through biodegradation. Thus, biodegradation activity to phenol and m-ABA were much improved by the addition of PAC.

The microbial compositions in these systems were also determined by viable counts using nutrient broth medium, phenol-selective medium, and m-ABA-selective medium and by quinone profiles, respectively. As results, the microbial compositions in these systems were almost the same, irrespective of the difference in support media. Therefore, improvement of the biodegradation activity with the addition of PAC would be explained from the increase of individual bacterial activity due to the addition of PAC to activated sludge.

Key words: activated sludge, powdered activated carbon (PAC), phenol, refractory organics, biodegradation activity

* 東京農工大学工学部物質生物工学科 〒184 東京都小金井市中町2-24-16

** 広島大学工学部環境基礎学講座 〒724 広島県東広島市鏡山1-4-1

1. はじめに

産業の発展にともない、有機汚濁物質や栄養塩類のみならず種々の有害化学物質も環境中に排出されるようになってきた。これらの化学物質を含む排水の処理に活性汚泥法を適用する場合、排水中の生物活性阻害物質や難分解性物質等の除去は、きわめて困難である。この改善策として、活性汚泥の曝気槽に吸着作用を有する粉末活性炭 (PAC) を添加する方法 (PACT 法) が、米国やヨーロッパで行われている¹⁾。

PACT 法における活性炭の添加効果はその吸着作用によると考えられている場合が多く、繊維および石油精製工業などの廃水処理における BOD, COD 除去率の改善^{1)~6)}、鉄鋼廃水中のフェノール類、チオシアン、シアン化合物等の生物活性阻害物質の除去率の向上^{7),8)}、ショックロードや毒物に対する安定性の増進^{9),10)}などの例が多数報告されている。

一方、活性炭の添加によるチオシアン、シアン化合物の除去において、生物酸化の促進に伴う処理水中のアンモニア性窒素濃度の上昇⁷⁾や、活性炭固定化微生物と遊離の微生物を用いたフェノール分解の比較実験の結果、固定化微生物のみで分解が生じ微生物が増殖した¹¹⁾ことが確認されている。また、活性汚泥では分解し得ない難分解性物質の処理において、その除去量は、活性炭の吸着量を遥かに上回る値を示した²⁾という報告など、活性炭は吸着作用のみならず、共存する活性汚泥微生物群の生物活性の向上に有効に作用するとの見方もある。しかしながら、活性炭が活性汚泥微生物群に与える影響については研究例が少なく¹²⁾、活性汚泥微生物群の生物相や微生物活性等に関し、処理水質の向上ともあわせて科学的に検討した例はない。

本研究では、高濃度の排水処理の場合について、吸着性のない担体を添加した場合と比較することによって、PACT 法において PAC の持つ吸着作用が、生物阻害性物質および難分解性物質の処理に及ぼす影響を明らかにすると同時に、活性汚泥微生物群の生物相および有機物分解活性に及ぼす影響を明らかにすることを目的として検討を行った。

2. 実験方法

2.1 実験系

担体の持つ吸着能および親水性、疎水性の違いが処理水質に及ぼす影響を明らかにするために、吸着能を持つ粉末活性炭 (Darco G-60) を活性汚泥に添加した PAC 系 (PAC)、親水性で吸着能のほとんどないベントナイト (アルドリッチ社製) を添加した BEN 系 (BEN)、対照として担体無添加の活性汚泥系 (AS) の

Table 1 Experiments cases

Run series	Reactor name	Support media	Particle size (mesh)
A	PAC	Powdered activated carbon	230~325
	BEN	Bentonite	230~325
	AS	---	---
B	PAC	Powdered activated carbon	230~325
	NAC	Non-adsorbable carbon	230~325
	AS	---	---

Table 2 Composition of the synthetic wastewater

Component	Concentration[mg l ⁻¹]	
	I	II
Phenol	3500	3500
m-Aminobenzoic acid	250	250
NH ₄ Cl	1000	1000
KH ₂ PO ₄	240	240
NaHCO ₃	700	720
MgSO ₄ · 7H ₂ O	70	70
CaCl ₂	14	14
FeCl ₃ · 6H ₂ O	0.88	0.88
TOC	2700	2800

I : Series.A(0~63rd day)

II : Series.A(64th day~), Series.B

A 実験系列と、PAC 系 (PAC)、疎水性で吸着性のほとんどない PAC の原料炭 (クラレケミカル社製) を添加した NAC 系 (NAC)、および活性汚泥系 (AS) の B 実験系列を設定した。これらの系列をまとめて Table 1 に示した。微生物の付着面積を等しくするために、平均粒度 230~325mesh の活性炭、ベントナイトおよび原料炭を用いた。活性炭添加量は $1,500\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、ベントナイト、原料炭の添加量はそれぞれ活性炭と同容積 ($2,040\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$, $1,800\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$) になるように添加した。汚泥の引き抜き (平均 $0.4\text{l} \cdot \text{d}^{-1}$) に伴う担体の減少分 (平均 $500 \sim 580\text{mg}$) はそのつど追加した。

2.2 人工排水

実験に使用した人工排水の組成を Table 2 に示す。A 実験系列では、運転開始後 63 日目まで (第 I 期) はフェノール $3,500\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ (TOC = $2,700\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$) を唯一の炭素源とする人工排水を供給した。それ以降 (第 II 期) は、前述の人工排水に難分解性物質である m-アミノ安息香酸 (m-ABA) $250\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ を追加した人工排水に切り替えた。B 実験系列では、A 実験系列の第 II 期の人工排水を供給した。

実験に使用する際には、オートクレーブ (120°C , 20 min) で予め滅菌した 5 倍濃度の濃縮液を、水道水で所定濃度に希釈して反応槽に供給した。

2.3 植種汚泥

A 実験系列に用いた植種汚泥は、流入水中にフェ

Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus

ノールを含まない都市下水処理施設の返送汚泥を用いた。植種は、初期の MLVSS 濃度が $3,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ となるように反応槽に汚泥を投入した。また、B 実験系列では、A 実験系終了時の活性汚泥系 (AS) の汚泥を分種した。

2.4 実験装置および操作

実験装置の概略図を Fig. 1 に示す。反応槽はアクリル製の円筒型 (内径 142mm) で、実働体積は 5 l である。流入排水は、既報¹³⁾の方法で人工排水濃縮液を流入調製ユニットで所定濃度に希釈した後、15分に1回反応槽に供給した。反応槽内は、底部から常時十分な曝気を行うことにより、 $2\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以上 DO レベルを維持すると同時に槽内の攪拌を行い完全混合とした。固液分離には流出口に設けたフィルター (プリダストン製エパーライトスコットフォーム) を用いた。

実験は $25\pm 2^\circ\text{C}$ の恒温室内で行い、排水の供給量は $1\text{ l}\cdot\text{d}^{-1}$ 、MLVSS は $3,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に設定した。この運転条件で TOC 容積負荷は、第 I, II 期でそれぞれ、 0.54 , $0.57\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ 、また、TOC 汚泥負荷はそれぞれ 0.18 , $0.19\text{kg}\cdot\text{kg}\cdot\text{MLVSS}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ である。

2.5 実験方法

実験はまず A 系列から始め、植種した汚泥を Table 2 の I に示すフェノールを唯一の炭素源とする人工排水で約 1 ヶ月間馴養した。処理能が安定した 37 日目に活性炭およびペントナイトをそれぞれ汚泥に添加し、フェノール分解能の変化について検討した。さらに難分解性物質の処理能を明らかにするために、64 日目以降は Table 2 の II に示す m-ABA を加えた人工排水を供給した。

A 実験系終了後、比較担体に原料炭を用いた B 系列の実験を開始した。植種汚泥は、A 実験系列の活性汚泥系の汚泥を分種した。Table 2 の II に示す人工排水

を供給して、生物量が $3,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に達し、活性炭および原料炭をそれぞれ汚泥に添加した時点を 0 日とした。

2.6 分析方法

処理水については、溶存有機炭素濃度 (DOC)、フェノール濃度、浮遊物質濃度 (SS)、m-ABA 濃度および $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度を、また、反応槽内の混合液については、活性汚泥浮遊物質 (MLSS)、活性汚泥有機性浮遊物質 (MLVSS)、pH、汚泥容量指標 (SVI)、担体濃度を定期的に測定した。m-ABA の測定には、アゾ色素生成による芳香族第一アミンの定量法¹⁴⁾を用いた。なお、PAC 系、NAC 系の炭量と MLVSS の測定は、汚泥および活性炭の揮発率の差を利用した Arbuckle *et al.* の方法¹⁵⁾を用いた。ペントナイト濃度は MLSS から MLVSS と AS 系の無機分とを差し引いた値とした。その他の分析方法は、主として下水試験方法¹⁶⁾に準じて行った。DOC、フェノールおよびアンモニア性窒素濃度の測定には、処理水をグラスファイバー濾紙 (Whatman GF/C) で濾過したサンプルを用いた。DOC の分析は、全有機炭素分析計 (島津製作所 TOC-500 型) を使用した。

m-ABA に対する活性炭の吸着能は、 25°C における吸着等温線により評価した。吸着等温線の作成は、日本工業規格¹⁷⁾に準拠した。

2.7 微生物特性

2.7.1 分解活性

フェノールおよび m-ABA の分解活性は、本研究では、 25°C における汚泥単位重量当りの分解速度として、以下に述べる方法で求めた。まず、各系列から引き抜いた活性汚泥を $3,000\text{r.p.m.}$, 5 min で遠心分離し、汚泥濃度が約 $2,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ になるように、得られた沈殿を懸濁した。フェノール濃度が $200\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ になるように希釈した人工排水 (I) に m-ABA を $50\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ を添加した混合液 70ml を作成し、これに懸濁した。懸濁液は 100ml 三角フラスコ中で常時曝気し、定期的に懸濁液中のフェノール、m-ABA 濃度を測定することによって分解活性を決定した。ただし、PAC 系においては、PAC の吸着作用による基質の減少が考えられる。このため、塩化第二水銀を $10\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 添加することによって生物活性を抑え¹⁸⁾、活性炭の吸着作用のみによる基質の減少速度を同時に測定 (PAC- HgCl_2 系) した。PAC 系の基質減少速度から PAC- HgCl_2 系の基質減少速度を差し引いた値を PAC 系の分解活性とした。

2.7.2 生物相の評価

活性汚泥中の微生物相の一つの評価方法として、選択寒天培地を用いた生菌数測定を行った。培地は基質

濃度をそれぞれ $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ にしたフェノール選択培地, m-ABA 選択培地, DNB 培地 (pepton $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$, meat extract $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$, NaCl $50\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$, agar $15\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, pH7.0) の3種類とした。フェノール選択培地, m-ABA 選択培地は, それぞれフェノール, m-ABA を唯一の炭素源とし, 栄養塩は人工排水を1/35に希釈したものを用いた。反応槽から採取した汚泥は, 氷冷しながらホモジナイザーで300r.p.m., 1 min 処理し, さらに超音波細胞破碎機による分散処理(80W, 3 min)を施した後, 直ちに $10^4\sim 10^7$ 倍に滅菌生理食塩水で希釈した。希釈したサンプルを上記の各培地に0.1ml/塗布し, 25°C で2週間培養した。出現したコロニーは, 実体顕微鏡によりカウントし, 単位 MLVSS 当りの生菌数とした。

また, 微生物の化学的分類法であるキノンプロファイル法¹⁹⁾を用いて生物相を評価した。装置から引き抜いた汚泥を直ちに凍結乾燥し, 凍結乾燥粉体からキノンを有機溶媒 (クロロホルム: メタノール = 2 : 1, V/V) によって抽出した。抽出物中のキノンは薄層クロマトグラフィー (TLC) により精製した後, 高速液体クロマトグラフィー (Shimadzu LC3A) でキノン組成を分析した。

3. 実験結果および考察

3.1 処理特性

処理水中のフェノール濃度は, 馴養期間を除き, すべての系列で $3\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下を維持した。

Fig. 2 に A, B 系列の処理水中 DOC 濃度の経日変化を示す。上段の A 系列における運転開始直後の DOC 濃度の増加は, 馴養初期のフェノール濃度の上昇によってもたらされたと考えられるが, その後は全系とも $20\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後で安定し, 担体を添加した37日目以降も系間における有意な差はなかった。難分解性物質の m-ABA を人工排水に加えた64日目以降, 全系で DOC 濃度は上昇した。その後, PAC 系の DOC 濃度は $20\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後に低下したが, 他の2系列では DOC 濃度の減少はみられず, $140\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後と高い値を示した。下段の B 系列において, PAC 系の DOC 濃度は A 系列の場合と比較しやや高いものの $40\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後で安定した。一方, NAC 系, AS 系の DOC 濃度は $120\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後と高い値を示した。

A 系列の64日目に, $250\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の m-ABA を加えた人工排水 (II) に切り替えた。Fig. 3 に A, B 系列における処理水中の m-ABA 濃度の経日変化を示す。A 系列において m-ABA 流入直後, 全系で処理水中の m-ABA 濃度は $100\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後まで上昇した。PAC 系では, 80日目以降は, $1\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下を維持した。一方,

Fig. 2 Time course of effluent DOC concentration in Series A and in Series B

Fig. 3 Time course of effluent m-aminobenzoic acid (m-ABA) concentration in Series A and in Series B

Fig. 4 Comparison of DOC derived from m-ABA in the effluent and effluent DOC

BEN系, AS系ではばらつきが大きいものの処理水中の m-ABA 濃度は $80\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後の高い値を示した。B 系列においても PAC 系の処理水中の m-ABA 濃度は $1\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下を維持した。一方, NAC系, AS系の処理水中の m-ABA 濃度は $75\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後の高い値を示した。A 系列の BEN系, AS系と比較して, B 系列の NAC系, AS系の処理水中の m-ABA 濃度がやや安定しているのは, スタート時までの m-ABA に対する汚泥の馴養によるものと考えられる。

Fig. 4 は処理水中の m-ABA 濃度を DOC 濃度に換算した値と, 実際の処理水中 DOC 濃度とを比較した結果を示す。A 系列では, m-ABA 添加直後を除く 100 日目以降の値で比較すると, BEN系, AS系の処理水中 DOC 濃度は m-ABA の DOC 換算値に比べて $90\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度高い $140\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後の値を示した。m-ABA の流入濃度 $250\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ を DOC に換算すると $153\text{mg}\text{DOC}\cdot\text{l}^{-1}$ となり, 処理水中の DOC 濃度とほぼ一致する。なお, 残存フェノールによる寄与は高々 $2\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度である。これより, BEN系, AS系では流入した m-ABA は全く分解を受けないか, 分解を受けた場合も無機化まで至らず, 中間生成物として残存していると推定される。一方, PAC系では処理水中に m-ABA はほとんど検出されず, DOC 濃度も m-ABA 添加前と大差ない値を示した。m-ABA はほぼ完全に生分解により除去されたと考えられる。なお, 吸着による除去量は後述のように最大でも 16% 程度である。B

系列においても A 系列と同様の傾向を示した。

このように無添加の活性汚泥 (AS系) 中では, 難分解性物質である m-ABA は十分処理されず, 処理水中に中間生成物と考えられる多量の有機物が残ったが, これは吸着能を持たないベントナイトの添加 (BEN系) および原料炭の添加 (NAC系) によっては改善されなかった。また, 吸着能のない担体では親水性, 疎水性によって有意の差はないと思われる。一方, 吸着能を持つ PAC を添加すること (PAC系) によって m-ABA および DOC はほぼ完全に除去できることがわかった。

Fig. 5 に実験に使用した PAC の 25°C におけるフェノール, m-ABA に対する吸着等温線を示した。PAC 系における m-ABA の反応槽内濃度は A, B 系列ともに 100 日目以降の平均値で約 $0.2\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり, この時 m-ABA に対する吸着容量は Fig. 5 から外挿すると約 $70\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ である。汚泥の引き抜きに伴う PAC の損失分については新しい PAC を添加することによって補った。添加量 (A 系列: 平均 $0.58\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$, B 系列: 平均 $0.50\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$) から反応槽内での PAC の滞留時間を計算すると A, B 系列でそれぞれ 13, 15 日であった。汚泥の引き抜きに伴って反応槽内から取り出される PAC が, m-ABA だけを吸着し, $0.2\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の濃度に対して吸着平衡に達していると仮定すると, 1 日に PAC によって吸着除去される m-ABA 量は $40\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$ となり, 1 日に供給される m-ABA $250\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$ の

Fig. 5 Freundlich adsorption isotherms for phenol and m-ABA at 25°C, X/m : amount adsorbed, C : equilibrium concentration

内、 $40\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$ がPACの吸着作用によって除去されたことになる。実際にはフェノール、生物の代謝産物、中間生成物等も競合吸着していると考えられるので、吸着によるm-ABAの除去量は $40\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$ より低い値になると考えられ、m-ABAの除去に対するPACの吸着の寄与は16%以下である。このことから、PAC系における高いm-ABA除去能は、吸着の効果は小さく、微生物の分解活性が強く関与していると考えられる。

3.2 微生物特性

3.2.1 分解活性

A系列における運転開始後130日目、およびB系列における65日目の各系から取り出した汚泥のフェノール分解活性、m-ABA分解活性をTable 3に示す。A系列のBEN系とAS系およびB系列のNAC系とAS系でのフェノール分解活性、m-ABA分解活性はそれぞれほぼ等しいことがわかった。A、B系列共にPAC系の分解活性は他の2系に比べて高く、A系列ではフェノールで約10倍、m-ABAでは約7倍の値を示した。B系列ではその比は低いもののフェノールで約4倍、m-ABAでも約4倍の値を示した。吸着能を持つPACの添加はフェノールおよびm-ABAの生分解活性を増加させる効果を示した。対照として行ったPAC-HgCl₂系では基質の減少は起こらなかった。分解活性から求めた装置内のフェノール除去速度は、最も活性の低いA系列のAS系でも $7,560\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$ となり、装置の負荷($3,500\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$)を大幅に上回った。このことが、処理水フェノール濃度が常に低く維持され、系間で相違が生じなかった理由と考えられる。一方、分解活性から求めた装置内のm-ABA除去速度は、A系列の

Table 3 Phenol and m-aminobenzoic acid degradation activities of activated sludges

Time	Reactor name	Degradation activity [$\text{mg}\cdot\text{mg-MLVSS}^{-1}\cdot\text{hr}^{-1}$]	
		Phenol	m-ABA
Series A 130th day	PAC	$2.0\times 10^{-1}(0.0)$	$3.1\times 10^{-3}(0.0)$
	BEN	2.3×10^{-2}	4.6×10^{-4}
	AS	2.1×10^{-2}	4.9×10^{-4}
Series B 65th day	PAC	$1.5\times 10^{-1}(0.0)$	$2.3\times 10^{-3}(0.0)$
	NAC	4.4×10^{-2}	5.9×10^{-4}
	AS	3.5×10^{-2}	6.8×10^{-4}

() : added HgCl₂

BEN系、AS系で、それぞれ $166, 176\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$ となり処理結果とほぼ一致したが、B系列では、NAC系、AS系で、それぞれ $214, 244\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$ とやや高い値を示した。PAC系ではA、B系列共に負荷($250\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$)を上回る $1,105, 830\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$ となり、処理結果を裏付けるデータが得られた。また、A、B系列のPAC系で負荷の3倍以上の除去速度が得られたことが、単にm-ABAを除去できただけでなく、無機化まで分解が進んだ原因と考えられる。以上のように分解実験で得られた値は、B系列のNAC系、AS系でやや高いものの処理結果を反映していた。

分解実験の結果、PAC系では、フェノールおよびm-ABAの分解活性が他系に比べかなり高いことが明らかとなった。Specchiaら²⁾およびChaoら⁷⁾もPACの添加によって有機物分解活性の増加が起こったと本実験と同様な結果を報告しており、活性炭の添加は、活性汚泥の微生物活性を促進する効果があると推定される。

3.2.2 微生物相の評価

Table 4は、A系列の活性汚泥の生菌数を、選択培地を用いた平板培養法により測定した結果である。いずれの系においても基質の流入直後に生菌数は増加し、特に、120日間でm-ABA資化菌は $10^2\sim 10^8\text{cells}\cdot\text{mg-MLVSS}^{-1}$ 増加した。PAC系、BEN系、AS系のいずれにおいても、それぞれの基質を資化する菌数はほぼ等しかった。運転開始後120日目の生菌数は、各培地とも $10^8\text{cells}\cdot\text{mg-MLVSS}^{-1}$ 程度の値となった。B系列においても同様の傾向を示した。

細菌のイソプレノイドキノン類をバイオマーカーとして各系列における微生物相の評価を行った。A、B各系列のメナキノン(MK)組成比の経日変化をFig. 6に示す。A系列の初期汚泥では、様々なMKが存在していたが、フェノール流入後安定したときには、MK-9が全系で優占し、その組成比はすべての系で約80%を示した。m-ABAの追加によってもその傾向に変化はなく、各系間にも大きな相違はなかった。ユビキノ

Table 4 Viable counts of bacteria in activated sludge with selective medium in Series A

Substrate		DNB			Phenol			m-Aminobenzoic acid		
Reactor		PAC	BEN	AS	PAC	BEN	AS	PAC	BEN	AS
Time (d)	0	1.3×10^8	1.3×10^8	1.3×10^8	7.2×10^7	7.2×10^7	7.2×10^7	6.3×10^5	6.3×10^5	6.3×10^5
	20	2.3×10^8	2.4×10^8	2.0×10^8	2.2×10^8	2.1×10^8	1.8×10^8	---	---	---
	60	1.7×10^8	1.6×10^8	2.1×10^8	1.7×10^8	1.5×10^8	1.2×10^8	3.2×10^6	3.3×10^6	3.4×10^6
	120	4.2×10^8	3.7×10^8	3.3×10^8	3.4×10^8	3.3×10^8	2.6×10^8	2.2×10^8	1.8×10^8	1.5×10^8

*Number of bacteria: cells · mg-MLVSS⁻¹

Fig. 6 Profile of the relative contents of menaquinones in each activated sludges

ンについても各系間に相違はなかった。B 系列では、MK-7, MK-8 の組成比がやや増加したが、MK-9 が全系で優占し、その組成比は全系とも安定したときに 70% 以上を示し、A 系列と同様に B 系列においても、各系間における大きな相違はなかった。

生菌数測定、キノン分析の結果から、A, B 系列における各々の系間で生物相、生菌数、フェノールおよび m-ABA 資化菌数に大きな違いはないことがわかった。これより PAC 系の分解活性が他の系よりも優っていた原因は、生菌数の増加もしくは生物相の相違によるものではなく、個々の細菌の分解活性の増加の結

果と考えられる。

また、A 系列において、m-ABA 追加後、m-ABA 資化菌数が 10^8 cells · mg-MLVSS⁻¹ まで増加し、希釈した普通寒天培地 (DNB) に成育した菌数の 1/2 程度になったにも拘わらず MK, ユビキノン組成の変化として表れなかったことから、m-ABA 資化菌の多くはフェノール資化菌が m-ABA 資化能を獲得することによって増加したのではないかと推定される。

4. ま と め

本研究では、PACT 法において PAC の持つ吸着作

用が活性汚泥微生物群の有機物分解活性に及ぼす影響について検討した。その結果、次のような結論を得た。

1) 活性汚泥へ吸着能を持つ PAC を添加することによって、吸着能を持たない BEN 系、NAC 系および AS 系に比べて、処理水中の DOC 濃度は $1/7 \sim 1/4$ 程度に抑制でき、難分解性物質である m-ABA はほぼ完全に除去できた。

2) PAC 系のフェノール分解活性、m-アミノ安息香酸分解活性は、対照系とした BEN 系、NAC 系および AS 系と比較してかなり高い値を示した。各反応槽内のフェノール資化菌数、m-ABA 資化菌数および細菌相に大きな違いはないことから、PAC 添加は個々の細菌の有機物分解活性を促進する効果があると推定された。

(原稿受付 1992年11月6日)

(原稿受理 1993年4月23日)

引用文献

- 1) Specchia, V. and Gianetto, A. (1984) Powdered activated carbon in an activated sludge treatment plant, *Water Research*, **18**, 133-137.
- 2) Specchia, V., Ruggeri, B. and Gianetto, A. (1988) Mechanisms of activated carbon bioremoval, *Chem. Eng. Comm.*, **68**, 99-117.
- 3) Grieves, C.G., Crame, L.W. and Venardos, D.G. (1980) Powdered versus granular carbon for oil refinery wastewater treatment, *Journal of Water Pollution Control Fed.*, **52**, 483-497.
- 4) Donald, W.S., Herbert, E. K., Tien, T. and Suresh, N. (1979) Response of biological reactors to the addition of powdered activated carbon, *Water Research*, **14**, 1225-1231.
- 5) Schultz, J. R. and Keinath, T. M. (1984) Powdered activated carbon treatment process mechanisms, *Journal of Water Pollution Control Fed.*, **56**, 143-151.
- 6) Ng, A., Stenstrom, M.K. and Marrs, D.R. (1987) Nitrification enhancement in the powdered activated carbon-activated sludge process for the treatment of petroleum refinery wastewater, *Journal of Water Pollution Control Fed.*, **59**, 199-211.
- 7) Chao, Y.M., Yeh, T. F. and Shieh, W.K. (1986) PAC-activated sludge treatment of a steel mill coke-plant wastewater, *Journal of Water Pollution Control Fed.*, **58**, 333-338.
- 8) Richards, D.J. and Shien, W.K. (1986) PAC/Prednitrification activated sludge treatment of steel mill coke-plant wastewater, *World Congress III of Chemical Engineering*, Tokyo, Vol. III, 584-587.
- 9) Thibault, G.T. et al. (1977) PACT performance evaluated, *Hydrocarbon Process.*, **56**, 143-146.
- 10) Kim, B.R. and Cognata, M.B. (1990) PAC addition as a means of regenerating GAC in a GAC fluidized-bed reactor, *Water Research*, **24**, 103-109.
- 11) Bettmann, H., Ehrhardt, H.M. and Rehm, H.J. (1984) Degradation of phenol by immobilized microorganisms, *Eur. Congr. Biotechnol.*, **3**, 27-33.
- 12) 西嶋涉, 東條光峰, 岡田光正, 村上昭彦 (1992) 生物活性炭による低濃度有機化合物の分解除去, *水環境学会誌*, **15**, 683-689.
- 13) 岡田光正, 須藤隆一, 寺菌克博 (1985) 回分式活性汚泥法による窒素, リン, 及び有機物の同時除去に関する研究, *水質汚濁研究*, **8**, 729-736.
- 14) Pesez, M., et al. (1974) Colorimetric and fluorimetric analysis of organic compounds and drug, **210**, Marcel Dekker.
- 15) Arbuckle, W.B. and Griggs, A.A. (1982) Determination of biomass MLVSS in PACT sludges, *Journal of Water Pollution Control Fed.*, **54**, 1553-1557.
- 16) 日本下水道協会 (1984) 下水試験方法.
- 17) 日本工業規格 JIS K1474-27.
- 18) Jean-Michel, L., James, P.H., Mark, M.C. and Joel, M. (1989) Effects of ultrafiltration membrane composition, *Journal AWWA*, **81**, 61-67.
- 19) 林奇剛, 片山葉子, 岡田光正, 村上昭彦 (1993) 回分式活性汚泥法における脱リンを担う微生物に及ぼす水質および運転変動の影響, *水環境学会誌*, **16**, 29-36.