



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	メタン資化細菌を利用したトリクロロエチレン (TCE) 汚染地下水の原位置実証試験
Author(s)	北川, 政美; 長谷川, 武; 江口, 正浩 他
Description	第9回衛生工学シンポジウム (平成13年11月1日 (木) -2日 (金) 北海道大学学術交流会館) . 5 リスク評価と環境修復 . 5-7
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 9, 250-255
Issue Date	2001-11-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7181
Type	departmental bulletin paper
File Information	9-5-7_p250-255.pdf



5-7

メタン資化細菌を利用したトリクロロエチレン(TCE)汚染地下水の原位置実証試験

○北川 政美、長谷川 武 (荏原製作所)、江口 正浩 (オルガノ)、河合 達司 (鹿島建設)、中村 寛治 (栗田工業)、岡村 和夫 (清水建設)

1. はじめに

トリクロロエチレン (TCE) 等の塩素系溶剤による土壌・地下水汚染の広がりには国内外において大きな問題となっている。汚染土壌・地下水の浄化方法として揚水曝気や土壌ガス吸収法が適用されているが、低濃度レベルでの浄化効率の低さや経済性から、より効果的で低コストな分解処理技術の開発が望まれている。自然界には TCE 等を分解する能力を持つ微生物が生息しており、こうした微生物を利用したバイオレメディエーション技術が注目され、多くの研究開発が進められてきた。しかし、ラポレベルでは顕著な分解効果を示しても実際の汚染サイトでの適用性や有効性、および実施に伴う環境への影響などについての知見は少なく、未だ実用化には至っていない。こうした現状を打開し、バイオレメディエーション技術の有効性と環境に及ぼす影響の科学的データの蓄積を図ることを目的に、平成7年度から平成12年度にかけて千葉県君津市内の実汚染サイトを対象に、原位置バイオレメディエーション技術の研究開発が旧通商産業省 (現 経済産業省) の管轄の基、国のプロジェクトとして NEDO (新エネルギー・産業技術総合開発機構) を母体として RITE ((財) 地球環境産業技術研究機構) で実施されてきた。このプロジェクトでは土着のメタン資化細菌を利用したバイオスティミュレーションとトルエン資化性細菌である *Ralstonia eutropha* KT-1 株を用いたバイオオーグメンテーションの二つの原位置処理試験を行った。ここでは、バイオスティミュレーション実証試験の成果について報告する。

2. 研究開発の目標と体制

本プロジェクトでは、

- ①原位置バイオレメディエーション技術の有効性の確認、②ブラックボックス的に扱われてきた“バイオ”の寄与の解明、③適用時における環境への影響、を把握することを目標に、具体的な研究開発テーマとして TCE を対象に、
 - (1) 分解微生物の探索、分解遺伝子の解析、及び育種改良
 - (2) 帯水層を対象とした土壌・地下水汚染の微生物処理技術の開発
 - (3) 微生物分析技術の開発

等を行ってきた。また、その実施においては、国、大学、自治体が共同研究メンバーとして加わった官民一体の組織で進められた。

3. 実証試験サイトの概要

試験サイトはかつて某機械加工工場で使用していた油脂洗浄剤の TCE が段丘堆積層を経て第一帯水層である砂質層 (厚さ 5-10m) に浸透して地下水汚染を引き起こした場所である。工場の近傍には民家が多く、その西側は市街地に通じている。第一帯水層の下は堅く厚い難透水性の泥質砂岩があり、南西側は段丘斜面を経て川に通じている。地下水汚染が発見された後、市では工場近傍に対策井を設置し、6年以上にわたる揚水曝気処理により地下水濃度は数百 $\mu\text{g/L}$ 以下まで低下していた。このサイトは地質構造が比較的単純であること、第一帯水層の下は厚い難透水層で覆われ、かつ地下水が河川側に流出していることから実証試験実施においてフェイルセーフが働き、かつ TCE 濃度が低レベルであり、生物学的な浄化に適していることから実証試験サイトに選ばれた。

4. バイオスティミュレーション実証試験

4. 1 背景

バイオスティミュレーションは、汚染された地質環境中に土着分解微生物の増殖を図り、もって汚染物の分解をエンジニアリング的に促進させる技術である。今まで TCE 汚染地下水に適用された実証試験としては、米国、Moffet Field¹⁾ や Savannah River²⁾での実証試験、および千葉市サイトで行われたケース³⁾ 等が報告されていた。しかし、マスバランスがとりやすい室内実験と異なり、開放系である屋外での実証試験は、地質、水文等さまざまな因子の影響を受けるためその解析が困難で、定量的な評価が必ずしも十分にはなされていなかった。微生物挙動についてもデータが少なく、かつ微生物生態系に及ぼすデータもほとんど報告されていなかった。本プロジェクトでは、室内試験結果を基に、実際の汚染サイトでの実証試験を行うことで有効性の定量的な評価と微生物の挙動把握を目的に実施した。

4. 2 分解微生物

TCE 分解は、メタン、トルエン、フェノールなどを資化する細菌が共代謝的に行うことが知られている。試験サイトの土壌や地下水にはこれらの炭素源を資化する微生物が数個 $\sim 10^5$ CFU/(g-soil) 及び数個 $\sim 10^2$ CFU/mL 程度生息していた。また、その集積培養体は TCE 分解能

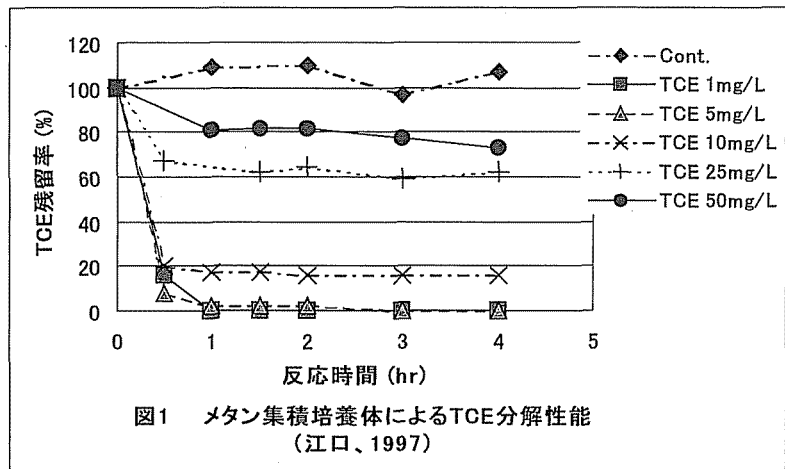


図1 メタン集積培養体によるTCE分解性能 (江口、1997)

を有していた (図 1 参照)。更に現地土壌、地下水から TCE 分解微生物の単離を試みた結果、幾つかの株が単離できた。単離された株の中には、従来 TCE 分解能が高いと言われている *Methylosinus trichosporium* OB3b や *Burkholderia cepacia* G4 に匹敵するものも見出された。

4. 3 土カラム試験

実証試験を模擬した帯水層中での TCE 分解特性を調べるため、ガラスまたはステンレス製のカラムに汚染現場から採取した土壌を詰め、TCE を含む現地地下水を通水した土カラム試験を実施した。炭素源としてメタン、トルエン、フェノールをそれぞれのカラムに添加し、炭素源を添加しないものをコントロール系として TCE 除去特性を比較した。カラム内の滞留時間は揚水時の地下水流速に相当する値 (30cm/d) に設定し、かつ流入 TCE 濃度 0.5 \sim 1.0mg/L の条件で連続もしくは半バッチ運転を行った。

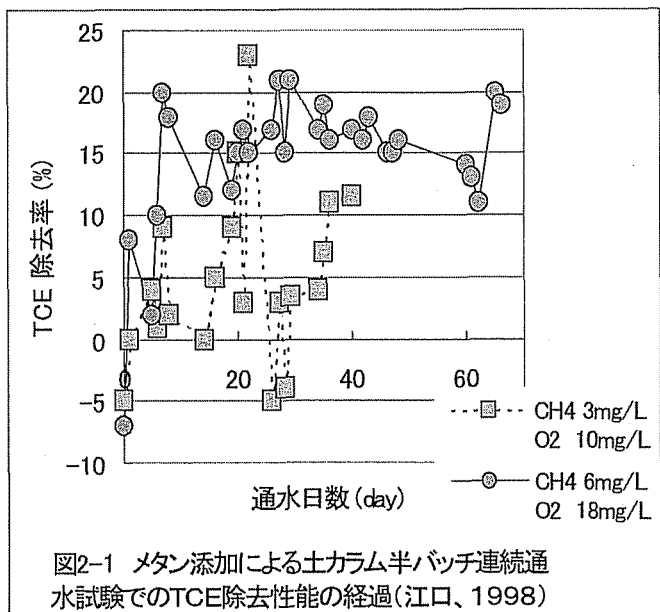


図2-1 メタン添加による土カラム半バッチ連続通水試験でのTCE除去性能の経過(江口、1998)

その結果、メタンを添加した系では20%前後の除去率が、また、フェノール、トルエンを添加した系では50%以上の除去率が長期的に得られた(図2)。一方、添加した炭素源はほぼ完全に消費され、同時に処理水中に各資化性細菌の増殖も認められた。

4. 4 実証試験

(1) 利用微生物

土カラム試験で炭素源や栄養源を整えることでTCEが安定して除去できたことから実証試験の実施が可能と判断した。土カラム試験結果ではトルエンやフェノールを炭素源とした芳香族資化性細菌の方がTCE除去に有効であったが、トルエンやフェノール自身有毒性があり、かつ試験サイトは民家の近傍で行うため安全性を考慮してメタン資化性細菌を利用した実証試験を行うことにした。

(2) 試験方法

従来なされてきた実証試験は、メタンガスを水平井戸に直接吹き込んだSavannah River Siteの試験を除くと、一つの注入井からメタンと酸素の溶解水を交互に間欠的に注入するもの(間欠注入: Moffet Field¹⁾)と、メタンと酸素の溶解水を別途の井戸から注入するもの(多点注入: 千葉サイト³⁾)があった。後者

の二つはいずれも注入井での微生物増殖による井戸閉塞を抑え、汚染された地下水帯に広く分解微生物の増殖を図ろうとしたものである。試験サイトでのトレーサ試験結果を基に、これらの方法の混合特性をシミュレーションで検討した結果、多点注入ではメタンと酸素の混合が不十分であることが示された。一方、McCartyらがおのEdwards空軍基地で行なった上下二層の汚染帯水層の地下水をポンプで内分循環させたシステムは⁴⁾、その効果や実用性を高く評価できるものであった。そこで本プロジェクトでもこの考え方を取り入れ、かつ試験サイトの単元層汚染適用時に定量的評価ができるように図3に示す地下水循環方式を採用した。この方式は、揚水した汚染地下水にメタンと酸素を交互に溶解させて注入井から帯水層に再注入するもので、注入された地下水が帯水層内で揚水井に向かって流れる過程でメタンと酸素の混合が起こり、メタン資化性細菌の増殖とTCE分解が行われるようにした。この方式では、注入井

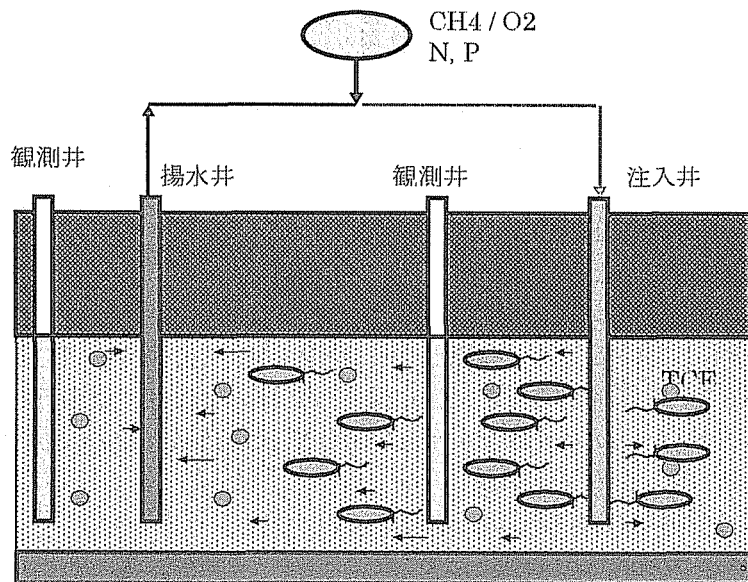
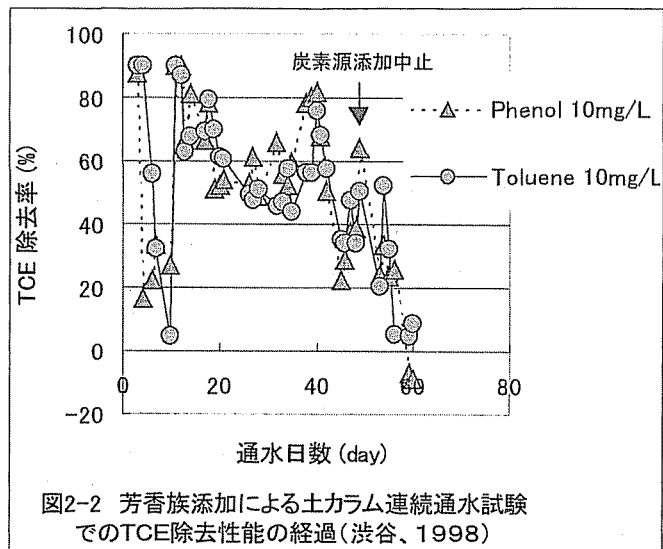


図3 地下水循環法の概要

から揚水井に向かう一度の通過時（ワンパス）の TCE 除去率が低くても繰り返しこの操作を行うことで試験エリア内の TCE 濃度が徐々に低下し、やがては基準値以下を達成することが期待できた。土カラムで地下水循環を模擬した試験では約 2 ヶ月半で TCE が $200 \mu\text{g/L}$ から $30 \mu\text{g/L}$ まで低下した。

実証試験場所は工場直下にある民家の庭を借りて行った。井戸配置を図 4 に示す。M5 を揚

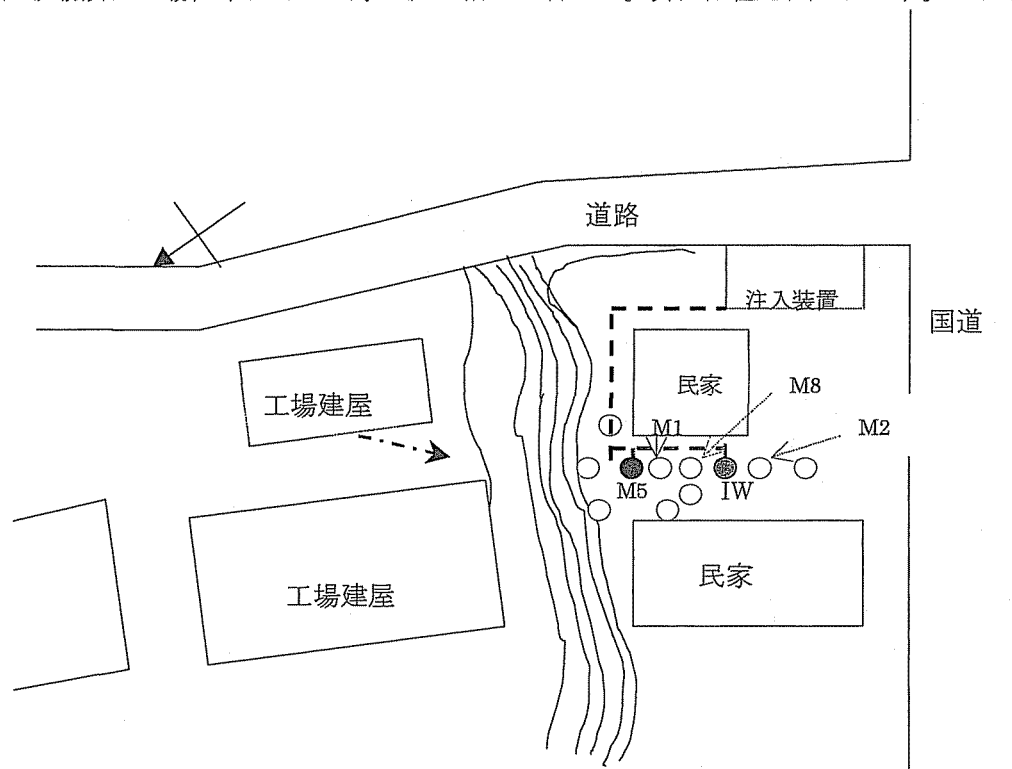


図 4 バイオスティミュレーション実証試験の井戸配置

水井に、そこから 2.25m はなれた IW を注入井とし、他はモニタリング井として使用した。試験サイトの帯水層厚さ（砂層）は 5 m、地下水位は GL-1m にあった。表 1 に実証試験の注入条件を示す。

表 1 実証試験の注入条件

揚水・注入水量	1.5 L/min.
注入濃度	CH_4 : 10mg/L O_2 : 30mg/L
注入サイクル	メタン→無添加→酸素・N,P→無添加→メタン

(3) 試験結果

初めに地下水循環による影響エリアの確認や TCE 濃度の安定性、均一化を行うため、実証試験と同一操作条件でメタン、栄養塩の添加をしないでトレーサー物質(Br)のみ添加したコントロール試験を約 1 ヶ月実施した。エリア内の各観測井の TCE 濃度が均一化され、濃度が安定したことを確認後、メタン 10mg/L、酸素 30mg/L の間欠注入を約 3 ヶ月間運転した。その後、メタン、栄養塩の添加を停止し、循環のみの試験を再度行った（図 5 参照）。

その結果、

- 1) 運転開始後、1 週間で注入井近傍のメタンは完全に消費され、酸素濃度も減少した。

- 2) 注入井 TCE 濃度に対し、近傍観測井及び揚水井 TCE 濃度は 20~30 $\mu\text{g/L}$ 低下した。しかし、TCE 濃度は 160~170 $\mu\text{g/L}$ で安定し、これ以上低下する傾向がなかった。
- 3) メタン注入を停止すると TCE 濃度は速やかに注入濃度と同じ値に戻り、除去能は失われた。
- 4) メタン注入と共にメタン資化性細菌が試験エリア内に有意に増加した ($10^0 \sim 10^2 \rightarrow 10^3 \sim 10^4 \text{ cells/mL}$)。しかし、全菌数 ($10^5 \sim 10^6 \text{ cells/mL}$)、生菌数 ($10^4 \sim 10^5 \text{ cells/mL}$) に大きな変化はなかった。また、注入停止と共にメタン資化性細菌数は減少した。

以上の結果、メタン注入により、メタン資化性細菌が増殖し、TCE 分解が定常的に行われることを確認した。またメタンの消費と TCE の分解は注入井近傍 1m 以内で起こっていた。表 2 に注入井から各観測井までにワンパスで通過したときの TCE 除去率、及び消費メタン当たりの TCE 分解量の計算結果と土カラム試験での値を示す。

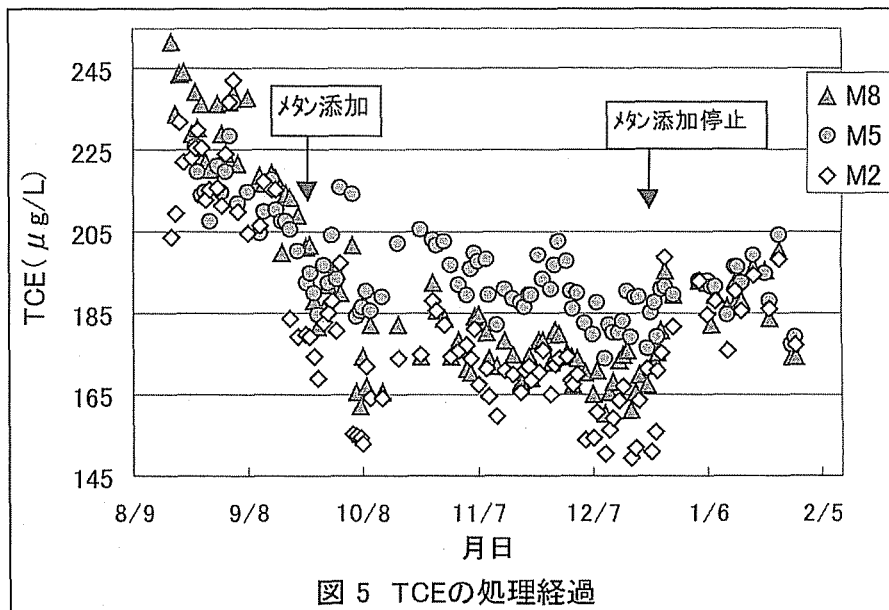


図 5 TCE の処理経過

表 2 土カラム試験と実証試験での TCE 除去性能比較

試験	ワンパス TCE 除去率 (%)	消費メタン当たりの TCE 分解量 ($\Delta \text{TCE mg} / \Delta \text{CH}_4 \text{ g}$)	備考
土カラム試験	16	10~18	O_2 : 20mg/L, CH_4 : 4.5mg/L TCE: 0.3mg/L
第一回実証試験	11	8~30	O_2 : 30mg/L, CH_4 : 10mg/L TCE: 0.2mg/L

実証試験ではメタンと酸素はパルス注入をしているが混合時の濃度はメタン 4mg/L、酸素 12mg/L となり、土カラムと同等レベルの注入条件になる。土カラム試験に比べ、除去率は若干低下しているが消費メタン当たりの TCE 除去率はほぼ同等の値を示した。即ち、実証試験においてもカラム試験と同等レベルの性能が得られることを確認した。一方、当初 TCE 濃度が環境基準値以下まで低下することを期待したが達成できなかった。この理由は、その後トレーサー物質の挙動解析から、注入した地下水の約 50% が系外に流出し、上流部から新たな TCE が供給されたことに起因することが確認された。高濃度の汚染域が地下水流れの上流部にあり、高濃度汚染を取り込むように設定したこと、注入、揚水による試験エリア内で人工的に作られた地下水流速は、自然状態での地下水流れ (3~5cm/d) に比べ、ワンオーダー以上速くなることから、周囲地下水流れの影響は少ないだろうと当初考えた。しかし、透水係数と自然状態での地下水水位レベルを基に揚水、注入を行った流れモデルの解析結果は、自然状態での地下水の

流れは無視できず、注入した地下水が揚水井に回収される割合は大きく影響した。逆に、循環地下水の回収率が 100%に近い値になるように井戸配置を決めれば施工エリア内の TCE 濃度は環境基準以下にまで到達できることが期待された。そこで、井戸配置を変えた試験をその後何度か試みた。しかし、周囲崖工事やその他の出来事で長期に継続した試験ができず、短期的な試験を繰り返した。この間、周囲 TCE 濃度の低下や自然状態での地下水流れの変動等も生じたが、TCE 濃度条件が異なっても同等レベルの除去率が得られ、最終的には環境基準値レベルでの除去性能も確認した。

5. 実用化への展望

土カラム試験と実証試験では流入条件が同じであれば同等の除去性能が得られることが示された。このことは土カラムのようなトリタビリティ試験を実施することで処理効果や処理期間を予測することが可能であることを意味する。実証試験の経過において濃度によらずワンパスでの除去率が一定に近い値を示したことから、この仮説を基に浄化期間やコストを試算することもできる。試算結果は設定条件によって大きく変わるが従来の揚水曝気やエアースパージングと同等レベルでの実施が可能であると試算された。一方、地下水循環法の適用では、自然状態での地下水流れや透水係数、地質条件、汚染物質等にもよっても影響されることから適用範囲はある程度限定される。しかし、有機塩素系溶剤による汚染は深い地層まで汚染されているケースも多く、掘削等が困難であることからこうした原位置浄化技術の適用は今後も重要になる。こうした施工では流れモデルや溶質輸送モデルの解析が有効であるが、現場の地質パラメータの実測と検証が必要となる。また、今後、吸脱着反応や生物反応項も含めた解析とその有効性の検証も必要となる。

6. 謝辞

本プロジェクトは RITE 土壌汚染等修復プロジェクト参加メンバーが共同して実施したものである。本実証試験実施においては君津市や地元住民の方々の甚大な御協力をいただいた結果、初めて実施でき、貴重なデータや成果が得られたものである。末尾ではありますが御協力いただいた皆々様に心から謝意を表します。

文献

- 1) McCarty, P. L. et al., GROUND WATER, 29 (2), 239 - 250 (1991)
- 2) Hazen et al., Thirty-Third Hanford Symposium on Health and the Environment, Nov. 7-11(1994)
- 3) 水上春樹 ほか、地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会 講演集、75 - 78 (1995)
- 4) McCarty, P. L. et al., ENVIRONMENTAL SCIENCE & TECHNOLOGY, 32 (1), 88 - 100 (1998)