

論文の内容の要旨

生物・環境工学 専攻
平成 14 年度博士課程 進学
氏 名 須甲武志
指導教官名 宮崎毅

論文題目 バイオベンティング処理における土壤中の揮発性有害物質移動に関する研究

はじめに

2003 年の土壤汚染対策法の施行や汚染された土地の資産価値や売却価格の低下により、人々の土壤汚染への関心が高まっている。特に、油による汚染は、ガソリンスタンドのタンクからの漏洩など、もっとも身近に起こりうるものの 1 つである。油汚染浄化技術の 1 つにバイオベンティング技術がある。これは汚染された土地に掘った井戸から、空気もしくは酸素を土の不飽和領域に送り込み、そこに棲息する微生物を活性化させ、汚染物質の分解を促し、微生物分解により発生した二酸化炭素や汚染物質の揮発成分を別の井戸から取り出す技術である。しかし、バイオベンティングに関して触れている研究はまだ少なく、大部分が砂質土壤を用いた研究であり、わが国に広く分布する火山灰土を用いた研究は多くない。また、土壤のガス移動に関して、揮発と微生物分解を同時に扱った研究もあまり見当たらない。そこで、本研究の目的を汚染土壤への強制的通気による汚染物質の移動、除去の過程を、拡散・移流・微生物分解・揮発の各側面から検討し、それらを総合してバイオベンティング処理中の汚染物質の挙動を把握することとした。

ガソリンスタンドのタンクのからの漏洩による油汚染を考えた場合、土壤への汚染は表層ではなく、地下数メートルの部分に起こることが予想される。本研究ではそのような事態を想定し、土壤試料として、立川ローム土を使用した。用いた土壤は東京都西東京市の東京大学田無農場から採取したものをを用いた。また、油は混合物であるため、油を使つての定量化は簡単ではない。そこで、本研究では灯油や軽油に含まれる物質であるドデカンを用いて実験を行った。

実験はすべて 30°C、RH50%の恒温恒湿チャンバー内で行った。

バッチ試験

ドデカンの微生物分解特性を調べるため、ドデカンを含む試料を入れた密閉容器を複数作成し、容器内圧力、 $O_2 \cdot CO_2$ ガス濃度、微生物数、ドデカン除去率の経時変化を調べた。実験は、初期ドデカン濃度および容器内初期 O_2 濃度を変化させた。初期ドデカン濃度の異なる条件に関して、ドデカン濃度が高いほどおおむねドデカン除去率は高く (Fig. 1)、微生物数は実験前に比べ、最大で2倍程度の増加であった。初期 O_2 濃度の異なる条件に関して、高い O_2 濃度の試料ほど高い除去率を示し (Fig. 2)、微生物数は O_2 濃度の高い条件で実験前の2.5~3倍に増加した。また、嫌気状態とされる O_2 濃度2%試料でも、50日間で20%のドデカンが分解された。

初期ドデカン濃度の異なる条件のドデカン除去率のデータを利用して、1次反応モデルを応用し、以下の分解量と初期ドデカン濃度の関係式をフィッティングにより導出した。

$$C_{rem} = C_{ini} \{1 - \exp(-0.0135t)\} \quad (1)$$

ここで、 C_{rem} はドデカン除去率、 C_{ini} は初期ドデカン濃度、 t は時間である。

揮発量測定実験

ドデカンの揮発特性を調べるため、内径7.5cm、高さ2cmのアクリルリングに試料を詰め、下部より8日間通気を行う条件と、通気を行わず静置した条件とで、揮発したドデカンガス濃度の経時変化を調べた。その結果、通気を行う場合、揮発したドデカンは、飽和濃度に達しないことが分かった。それに対し通気しない条件ではドデカンガス濃度は、時間とともに低下した (Fig. 3)。

また、ドデカンガス濃度から試料中のドデカン除去率を見積もるため、下式を用いて揮発によるドデカン除去量を推測したところ、実験後に計測したドデカン除去率と推測した累計除去率がおおむね一致した。

$$m_{evap} = \frac{1}{2}(C_{i1} + C_{i2})Q_a \quad (2)$$

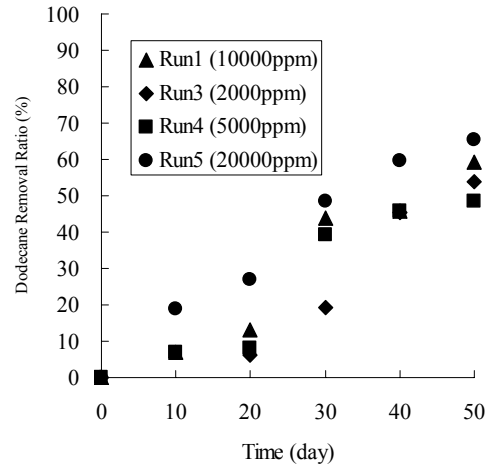


Fig. 1 ドデカン除去率の経時変化 (バッチ試験, 初期ドデカン濃度の異なる条件)

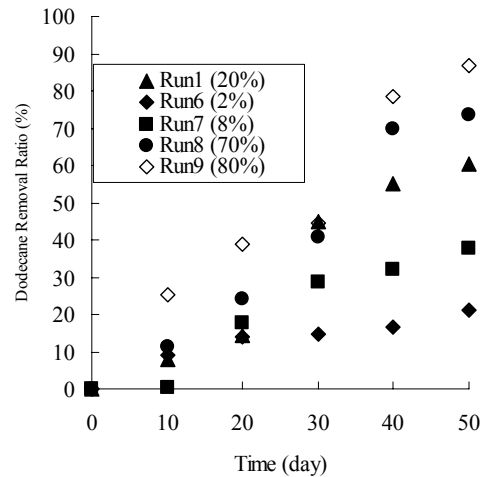


Fig. 2 ドデカン除去率の経時変化 (バッチ試験, 初期 O_2 濃度の異なる条件)

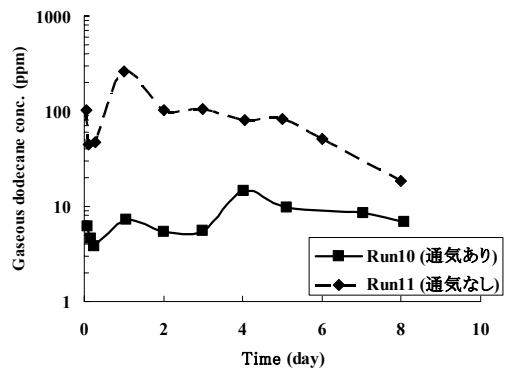


Fig. 3 ドデカンガス濃度の経時変化

ここで、 m_{evap} は時刻 t_1 から t_2 の期間の平均揮発量、 $C_{t_1} \cdot C_{t_2}$ は $t_1 \cdot t_2$ 時におけるドデカンガス濃度、 Q_a は通気した全空気体積(非通気の場合は全間隙体積)である。

カラム実験

通気による気相・液相中のドデカンや微生物の分布を調べるため、内径 7.5cm、高さ 20cm のアクリルカラムに、試料を充填したものを用意し実験を行った。通気は最大 50 日間行い、10 日毎にカラム内のドデカンガス濃度、通気終了後にドデカン除去量および微生物数を計測した。条件は Run12(含水比 90%・通気あり)、Run13(含水比 90%・通気なし)、Run14(含水比 120%・通気あり) の 3 つとした。

通気を行った Run12・Run14 はともに、通気を行わなかった Run13 よりドデカン除去率が 20%程度高かった(Fig. 4)。また、実験開始 30 日~50 日後の期間には、どの条件においてもドデカン除去速度が著しく低下した。ドデカンガスの濃度は、実験 10 日目が高く、それ以降は 10 分の 1 程度に低下した。Run12 において微生物数は、10 日後~30 日後はドデカンの分解により、実験前の 1.5~2.5 倍に増殖し、30 日後~50 日後にはドデカン濃度の減少により増殖が抑制された。Run14 では、空気流入口であるカラム下部で、ドデカン除去率・微生物数ともに顕著に増加した。

Run12 のカラムにおいて、ドデカン除去率および微生物数はほぼ一様な分布、ドデカンガス濃度はカラム下部から上部に向けて高くなる分布であった。このことから、揮発・微生物分解とも、カラム全層で活発に行われていると考えられた。Run13 のカラムでは、ドデカンの除去率およびドデカンガスの濃度はほぼ一様な分布、微生物数はカラム下部で増加、上部では初期値より減少する分布であり、さらに、含水比はカラム下部で高い値を示した。以上のことから考えると、重力による水分移動にドデカン・微生物が追随し、カラム下部で若干ドデカン濃度の高い環境が出来、カラム下部で微生物分解と拡散、カラム上部では拡散のみでドデカンの除去が行われているものと思われる。Run14 のカラムについては、ドデカンガスの濃度はほぼ一様な分布、ドデカン除去率および微生物数はカラム下部で大きくなる分布であった。これは、高い含水比により気相率が低下することによって微生物が O_2 を取り込みにくく、

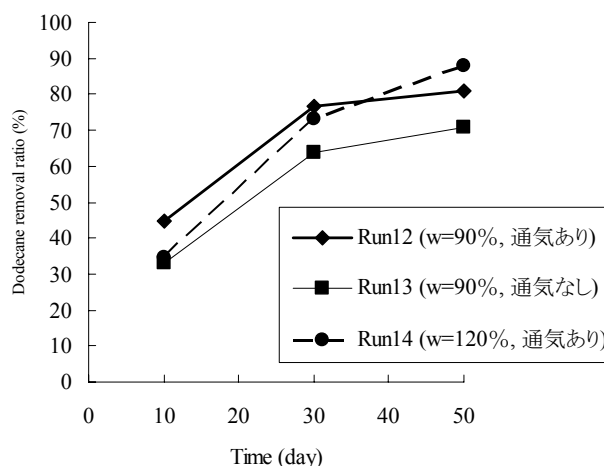


Fig. 4 ドデカン除去率の経時変化
(カラム試験)

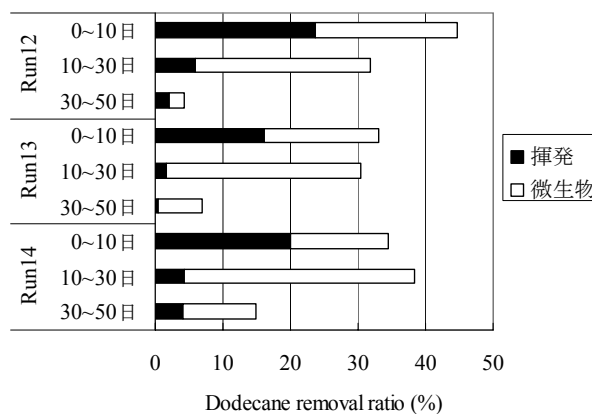


Fig. 5 ドデカン除去率の揮発と微生物分解の寄与の割合

O₂を取り込みやすいカラム下部で増殖し、ドデカンの分解を活発に行うものと考えられる。

通気による微生物分解の寄与の割合と分解促進効果

カラム実験で得られたドデカン除去率を、(2)式を用いて揮発成分を求め、それを全除去率から引いて微生物分解成分を求めた。その結果を Fig. 5 に示す。実験開始～10 日目は、試料中に棲息する微生物がドデカンのある環境に馴れるために時間が必要であったため、揮発が総除去量の 50 %以上を占めた。10 日～30 日目は、微生物分解が活発であり、総除去量の 80%近くを占めた。しかし、30 日～50 日目には、ドデカン濃度の減少により揮発・微生物分解、両要素のドデカン除去率が低下することが分かった。また、含水比の異なる 2 条件の計算結果を比較すると、含水比の大きい試料では、気相率が小さいため、ドデカンの揮発が起ころづらく、微生物分解が汚染除去に占める割合が高かった。

また、微生物分解成分については、(1)式を用いて算出した分解量との比較を行った。その結果を Table 1 に示す。実験開始 30 日間はカラム実験のほうが計算値より高い分解量を示し、この差が通気の効果であると考えられた。しかし、30 日～50 日の期間では実験値は計算値より低くなった。

Table 1 分解式による計算値とカラム実験の実測値の比較

微生物によるドデカン除去率		分解量 計算値	カラム実験 実測値
通気あり W=90%	0~10 日	12.62%	21.07%
	10~30 日	13.07%	25.83%
Run12	30~50 日	5.58%	2.28%

結論

ドデカンを含む立川ローム土壌への強制的な通気の結果、ドデカンの除去特性について以下のことが分かった。

- 異なるドデカン濃度試料による、立川ローム土壌に棲息する微生物の分解特性から、1 次反応モデルを用いて微生物分解量を初期ドデカン濃度と時間で表すことができた。
- 通気時には、揮発したドデカンガスは飽和せずに輸送されることが分かった。
- 強制的通気を行った土壌中のドデカンの気相中・液相中の分布を把握した。その結果、時間が経過するにつれ、ドデカンの分解速度が大きく低下することが分かった。
- ドデカンの除去率を揮発成分と微生物分解成分に分けて評価し、さらに微生物分解式を用いて、通気による O₂ 供給によるドデカン分解の促進効果を評価した。
- 立川ローム土壌への通気による油汚染除去は、現場含水比よりも低い含水比(90%)にすることで高い除去率が達成できる。また、現場含水比に近い含水比(120%)でも、期間はかかるが高い除去率を達成できることが分かった。

今後の課題としては、以下のものが挙げられる。

- 実験期間中の微生物種変化の追跡
- 移流分散方程式を用いたモデルの構築
- フィールド適用のための不均一性のある土層に関する考慮