

令和 5 年 6 月 6 日現在

機関番号：15501  
研究種目：基盤研究(C) (一般)  
研究期間：2020～2022  
課題番号：20K04749  
研究課題名(和文) 発電菌の制御と導電性下水管とを組合せた下水管内の革新的硫化水素発生抑制技術の開発  
  
研究課題名(英文) Innovative mitigation technology of hydrogen sulfide in sewer pipe by combination of electricity producing bacteria and conductive concrete  
  
研究代表者  
今井 剛 (IMAI, TSUYOSHI)  
  
山口大学・大学院創成科学研究科・教授  
  
研究者番号：20263791  
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、導電性コンクリートを用いた発電菌の制御により下水管内の硫化水素を抑制する技術を開発することである。本研究の結果、導電性コンクリートを用いた発電菌の制御により水中の硫化水素を大幅に抑制できることがわかった。また、導電性コンクリートでは実験後の汚泥堆積物に元素硫黄が含まれており、硫化水素から元素硫黄への酸化反応が確認できた。つまり、導電性コンクリート壁内に電子の伝達経路が形成され、嫌気的環境にありながらも水面近傍に存在する酸素を電子受容体として利用して硫化水素を酸化・抑制できることが分かった。さらに発電菌が硫化物を生物学的に酸化して減少させていることがわかった。

#### 研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果として嫌気的な下水管の底層部にありながら水面近傍に存在する酸素を電子受容体として底層部の硫化水素を酸化・抑制できる発電菌による硫化水素の酸化メカニズムを解明し、また分子生物学的手法によりこの発電菌の主なものが *Geobacter* sp. であることを明らかにした本研究の学術的な意義は大きい。現在管路施設の維持管理を行う上で大きな問題となっているのが下水管内で発生する硫化水素に起因する下水管の腐食である。本研究の成果により更新コストと維持管理コストを抑え、かつ硫化水素に対して高耐久かつ強靱性のある下水道施設が実現でき、もって持続可能な社会の実現に寄与できることが本研究の社会的意義である。

研究成果の概要(英文)：The objective of this study was to develop a new technology to mitigate the concentration of hydrogen sulfide in sewer pipe by controlling electricity-producing bacteria (EPB) with using conductive concrete. Experimental results showed that the concentration of hydrogen sulfide significantly decreased by controlling EPB with using conductive concrete. Also found was that elemental sulfur was observed after experiment in sludge for conductive concrete, whereas this phenomenon was not observed for ordinary Portland cement. These results demonstrated that conductive concrete provides an electron pathway from deposited sludge in the bottom of sewer pipe to oxygen dissolved in surface water and as a result, the electron generated from hydrogen sulfide oxidation in anaerobic environment was accepted by oxygen via conductive concrete. Experimental results also showed that EPB could decrease the concentration of hydrogen sulfide, meaning hydrogen sulfide was biologically oxidized by EPB.

研究分野：衛生工学、環境工学

キーワード：発電菌 導電性コンクリート 硫化水素 下水管 下水道の長寿命化 導電性材料 メタゲノム解析 *Geobacter* sp.

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

現在、下水管路施設の維持管理を行う上で大きな問題となっているのが下水管内で発生する硫化水素に起因する下水管（コンクリート）の腐食である（図1参照）。そこで、管路施設内における硫化水素の発生を抑制する技術が強く求められている。近年では、薬剤を添加する方法や曝気を行う方法等も提案されている（下水道協会「下水道施設計画・設計指針と解説」）が、継続的な維持管理コストが必要という問題点が未解決である。

以上の背景から、微生物学的手法によるメンテナンスフリーな下水管内の硫化水素発生抑制は可能であるのか、という本研究課題の核心をなす学術的「問い」に至った。

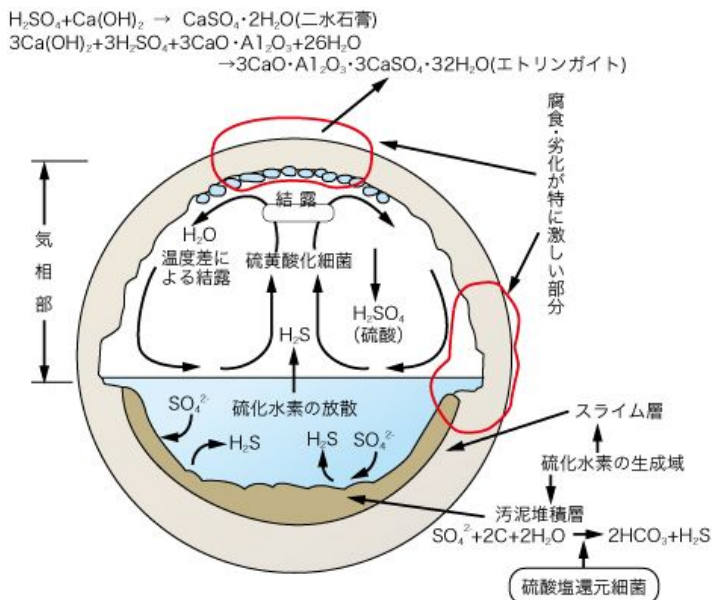


図1 下水管の腐食機構の概念図（下水道事業団 HP より引用）

2. 研究の目的

本研究は「発電菌（電子放出菌とも呼ばれる）」の適切な制御と「導電性を付与したコンクリート下水管」との組み合わせにより、下水管内において硫化水素の発生抑制を実現できる革新的技術を開発することを目的とする(以下の図2参照)。

可能性2 導電性炭素に吸着された硫化水素の化学的酸化

ステップ3：酸素による電子の受取り  
 $O_2 + 4e^- + 4H^+ \rightarrow 2H_2O$

ステップ2：高導電性の下水管による電子の伝達

可能性1 導電性炭素による吸着

ステップ1：導電性炭素による硫化水素の吸着  
 硫化水素を抑制

可能性3 電子放出菌による酸化

ステップ3：酸素による電子の受取り  
 $O_2 + 4e^- + 4H^+ \rightarrow 2H_2O$

ステップ2：高導電性の下水管による電子の伝達

ステップ1：電子放出菌による硫化水素の酸化  
 $H_2S \rightarrow S + 2H^+ + 2e^-$   
 硫化水素を抑制

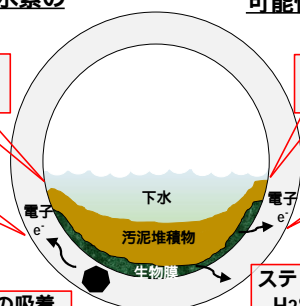


図2 本研究で提案する革新的な下水管内における硫化水素の発生抑制技術の概念図

3. 研究の方法

本研究（図2参照）を遂行するために、下記に示す研究内容を段階的・相補的に遂行する。  
 研究内容1：高い導電性を有するコンクリート下水管の開発（R2-3年度）

コンクリートに導電性物質（炭素粉や鉄粉（磁性粉）、鉄鋼スラグ等を計画）を適量混入し、安価なコンクリートをベースとしながらも高い導電性を有するコンクリート下水管を開発する（H29年度から共同研究を行っている下水管製造会社の中川ヒューム管工業（株）がテストピース製作を担当することを内諾済み）。テストピースは、図3に示すような板状供試体（分割型：電圧が測定できるため、実際に電流が流れているかを確認できる）、コップ型供試体（一体型：電圧は測定できないが、実際の下水管を模したもので硫化水素の発生抑制効果を確認できる）、コップ型供試体の上端から5cm程度のところに約1cmのエポキシ樹脂層をサンドイッチ状に挟み、電子伝達経路を遮断したもの（硫化水素が化学的に酸化されるか、生物学的に酸化されるかを明らかにすることができる）を準備する。

研究内容2：発電菌による硫化水素の発生抑制条件の把握（R2-R4年度）

図3に示すようなラボスケール実験装置（ここでは板状供試体を使った例）により、下水管内を模擬した環境を実験室内に再現し、上記の導電性コンクリート下水管（テストピース：板状供試体）を使用した場合に、発電菌が下水管内で増殖・定着し電流が流れるかを確認し、確実に導電性コンクリートが電子の伝達経路となっていることを明らかにする。次に、コップ型供試体（実際の下水管を模したもの）を用いて板状供試体と同様の実験を行うことにより、導電性コンクリート下水管により、確実に硫化水素の発生抑制ができることを明らかにする。さらに、コッ

プ型供試体の電子伝達経路を遮断したもの（エポキシ樹脂層を挟んだもの）で同様の実験を行うことにより、下水管底部で発生した硫化水素が化学的に酸化されるか、生物学的に酸化されるかを把握することで、そのメカニズムを明らかにする。

**研究内容3：硫化水素を硫黄に酸化する発電菌の集積培養方法の確立（R2-R4年度）**

研究内容2でその存在を確認する発電菌に関して、遺伝子工学的手法（PCD-DGGE 法や次世代シーケンサー）等を用いてそれらを同定するとともに、発電菌の微生物学的性質を把握し、その集積培養方法を確立する。

**研究内容4：実下水を用いたパイロットスケール試験（R4年度）**

最終年度には実際の下水を用いて、下水処理場にてパイロットスケールでの試験を行い、実際に硫化水素の発生抑制効果を検証することで、本法の有効性を明らかにする。

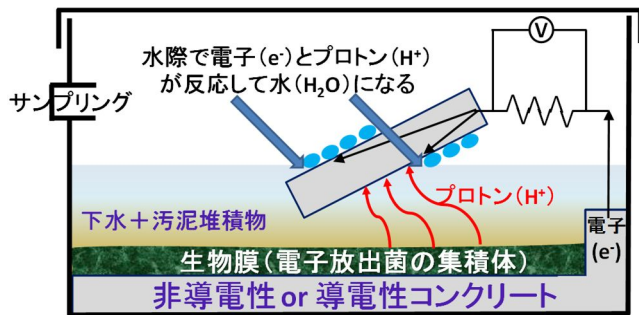


図3 ラボスケール実験装置の概略

**4. 研究成果**

**R2年度の研究成果**

実験の結果、市販の導電性コンクリート（商標名：サンアース）を用いることにより水中の硫化水素を大幅に抑制できることが明らかとなった（図4）。その抑制効果は66日間の実

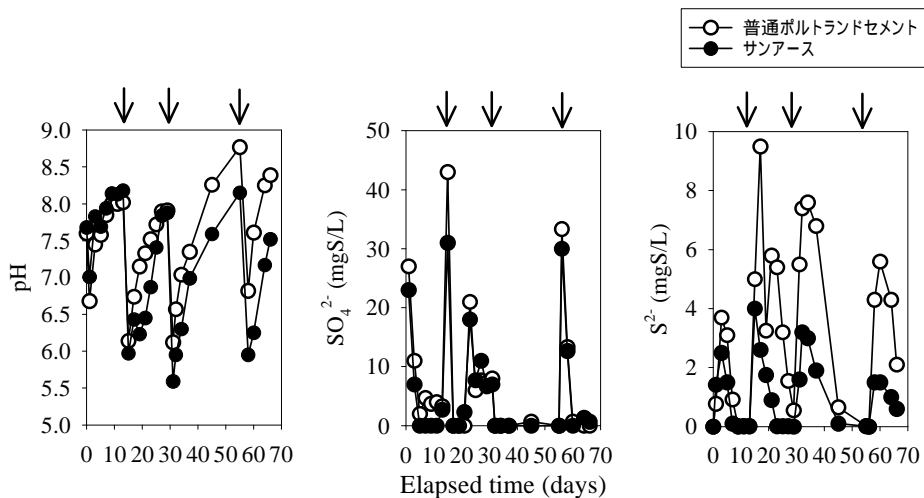


図4 導電性コンクリート（サンアース）供試体を用いた硫化水素抑制実験の結果

験期間中持続し（図4）、本手法による硫化水素の抑制効果の持続性が示された。導電性コンクリートを用いた実験後の汚泥堆積物に元素硫黄が含まれており、硫化水素から元素硫黄への酸化反応が確認できた（図5）。すなわち、導電性コンクリート壁内に電子の伝達経路が形成され、嫌気的環境にありながらも水面近傍に存在する酸素を電子受容体として利用して硫化水素を酸化・抑制できることが明らかとなった。硫化水素の抑制のメカニズムとして導電性コンクリート内の導電性物質（炭素粉）への硫化水素の吸着効果は多少の寄与はあるものの、それがメインではないことが示された。硫化水素の抑制に大きな寄与がある硫化水素の酸化においては、近年微生物燃料電池への活用が着目されている発電菌（電子放出菌）による生物学的酸化が主なメカニズムと考えられた。

**R3年度の研究成果**

導電性材料として金属系材料の四酸化三鉄と炭素系材料の粒状アセチレンブラックを選定して、硫化水素発生抑制実験を行った結果から、新規導電性材料として粒状アセチレンブラックの有効性が明らかとなった（図6）。R2年度に硫化水素の発生抑制効果を示した市販の導電性コンクリート（商標名：サンアース）を用いた硫化水素の発生抑制実験をおこない、その経日的な菌叢変化をPCR-DGGE法および次世代シ

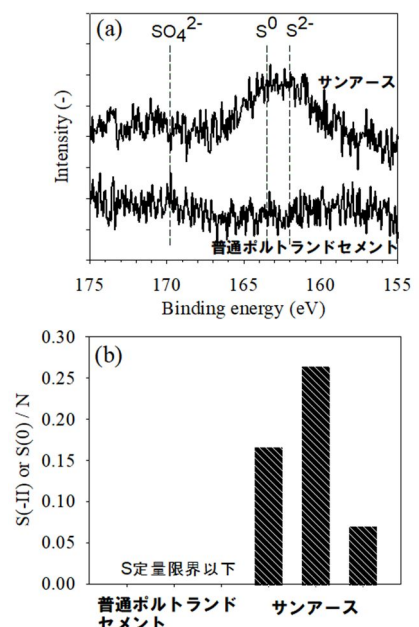
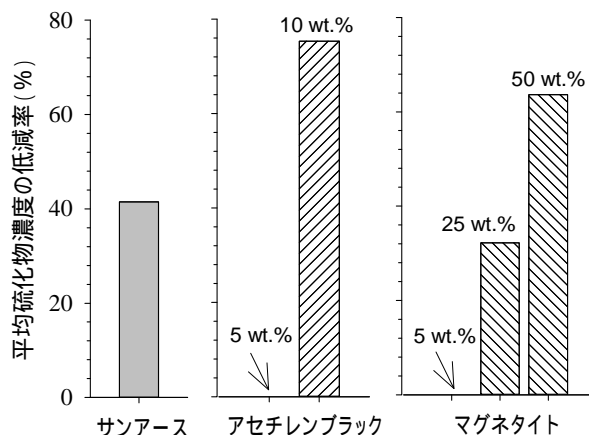


図5 (a)通電終了後の堆積物泥層に含まれる硫黄の2p3/2スペクトル、(b)S/Nの比

ーケンサーによるメタゲノム解析により把握した結果、どちらの解析手法からもアノード電極の極近傍で発電菌 (*Geobacter* sp. と *Pelobacter* sp.) の集積が確認された (図7)。次世代シーケンサーによる定量解析から、特に *Geobacter* sp. が多く集積していることが明らかになった。上記の結果から、硫化水素の発生抑制実験と発電菌の分子生物学的手法による菌叢解析を通して、導電性コンクリートを用いた電子伝達経路の提供による硫化水素の発生抑制に生物学的酸化が寄与している根拠が示された。



#### R4 年度の研究成果

下水管の内側に導電性材料を混入させたセメントペーストをライニングする方

図6 サンアースおよび新規導電性コンクリートの使用により得られた普通ポルトランドセメントに対する硫化物の低減率

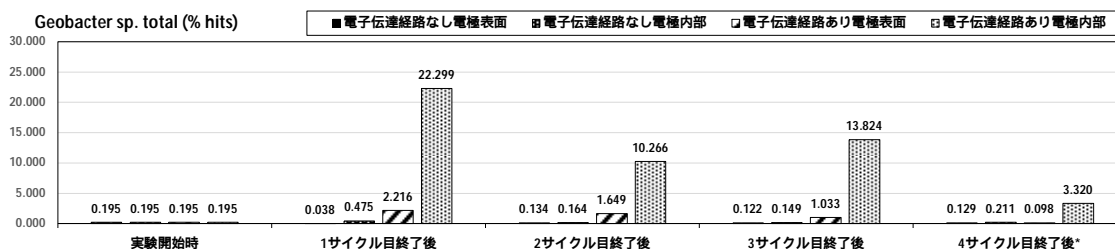


図7 次世代シーケンサーによる16Sメタゲノムの解析結果から抽出・整理した代表的な電子放出菌 (*Geobacter* sp.) の各サイクルごとの変化

法について検討した上で、粒状アセチレンブラック (DB) と四酸化三鉄 (MTB) の2つの導電性材料を用いて2 mm、5 mm、10 mmのライニング厚で硫化水素抑制実験を行った。実験結果からライニングの場合は前年度に硫化水素抑制効果が高かった粒状アセチレンブラック (配合比50wt%)ではなく、四酸化三鉄 (配合比50wt%)の方が硫化水素抑制効果が明確に高く、その効果は2 mm>10 mm>5 mmの順となった (図8)。また、実スケールで実下水を用いたパイロットスケール実験の結果から、実下水では微生物の生育に必要な基質が少ないところでは硫化水素の抑制効果が出にくい、硫化水素の発生しやすい基質が多いところでは約半分ほどに抑制でき、その実用性が示されたと考えられる。

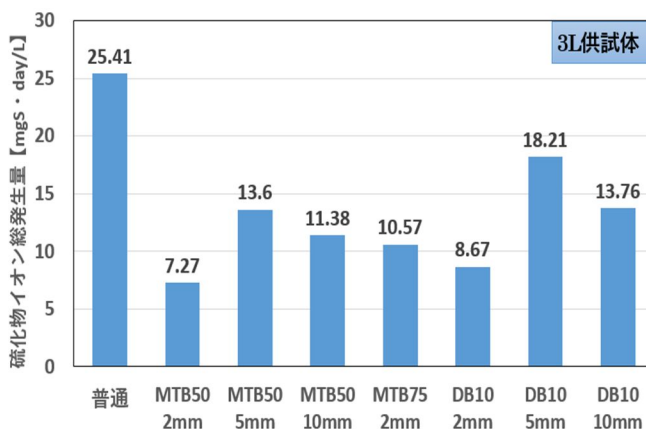


図8 粒状アセチレンブラック (DB) と四酸化三鉄 (MTB) の2つの導電性材料をライニングした場合の硫化物の低減率

研究期間を通じて実施した研究成果をまとめると、ライニングにより内壁に導電性を付与したコンクリート下水管により、硫化水素発生抑制が可能であることがパイロットスケール実験によって明らかになり、下水管内において硫化水素の発生抑制を実現できる技術を開発するという本研究の目的を達成したと考えられる。

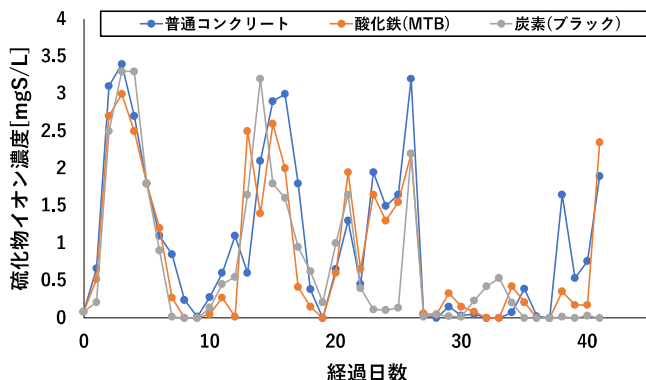


図9 実サイズの下水管マンホール0号に粒状アセチレンブラック (DB) と四酸化三鉄 (MTB) の2つの導電性材料をライニング (5 mm) した場合の硫化物の低減率

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Vo Huy Thanh, Imai Tsuyoshi, Fukushima Masato, Promnuan Kanathip, Suzuki Tasma, Sakuma Hiraku, Hitomi Takashi, Hung Yung-Tse	4. 巻 20
2. 論文標題 Enhancing the Biological Oxidation of H <sub>2</sub> S in a Sewer Pipe with Highly Conductive Concrete and Electricity-Producing Bacteria	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 International Journal of Environmental Research and Public Health	6. 最初と最後の頁 1459 ~ 1459
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/ijerph20021459	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Imai Tsuyoshi, Vo Huy Thanh, Fukushima Masato, Suzuki Tasma, Sakuma Hiraku, Hitomi Takashi, Hung Yung-Tse	4. 巻 14
2. 論文標題 Application of Conductive Concrete as a Microbial Fuel Cell to Control H <sub>2</sub> S Emission for Mitigating Sewer Corrosion	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Water	6. 最初と最後の頁 3454 ~ 3454
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/w14213454	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 IMAI Tsuyoshi, MAENO Junichi, FUKUSHIMA Masato, YASUI Misato, SUZUKI Tasma, SAKUMA Hiraku, HITOMI Takashi	4. 巻 77
2. 論文標題 CONTROL OF HYDROGEN SULFIDE BY PROVIDING ELECTRON PASSWAY WITH HIGHLY CONDUCTIVE CONCRETE IN SEWER PIPE AND BACTERIAL FLORA ANALYSIS OF ELECTRICITY-PRODUCING BACTERIA	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Japan Society of Civil Engineers, Ser. G (Environmental Research)	6. 最初と最後の頁 III_111 ~ III_120
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2208/jscej.77.7_III_111	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 今井 剛, 福島 聖人, 鈴木 祐麻, 佐久間 啓, 人見 隆	4. 巻 44
2. 論文標題 導電性コンクリートを用いた下水管路の腐食防止技術	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 月刊下水道	6. 最初と最後の頁 13-16
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Fukushima M, Promunuan K, O-Thong S, Suzuki T, Imai T*	4. 巻 965
2. 論文標題 Hydrogen sulfide reduction by conductive concrete with MFCs strain	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 IOP Conference Series: Materials Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 012003 ~ 012003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1757-899X/965/1/012003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 FUKUSHIMA Masato, PROMNUAN Kanathip, YASUI Misato, SUZUKI Tsuma, IMAI Tsuyoshi*, SAKUMA Hiraku, HITOMI Takashi	4. 巻 76
2. 論文標題 DEVELOPMENT OF HIGHLY CONDUCTIVE CONCRETE TO ENHANCE BIOLOGICAL OXDATION OF HYDROGEN SULFIDE IN SEWER PIPE	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Japan Society of Civil Engineers, Ser. G (Environmental Research)	6. 最初と最後の頁 111_85 ~ 111_92
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2208/jscej.76.7_111_85	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

[学会発表] 計5件(うち招待講演 0件/うち国際学会 1件)

1. 発表者名 今井 剛, 尾崎 祐磨, 佐久間 啓, 人見 隆
2. 発表標題 下水管内における硫化水素の発生抑制を可能とする導電性コンクリートの開発
3. 学会等名 第22回環境技術学会年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 今井 剛
2. 発表標題 導電性コンクリートを用いた電子伝達経路の提供による下水管内における硫化水素の発生抑制と電子放出菌の菌叢解析
3. 学会等名 環境工学研究フォーラム(土木学会環境工学委員会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuma Osaki, Tsuyoshi Imai
2. 発表標題 Research on the suppression effect of hydrogen sulfide by sewer pipes lined with conductive substances
3. 学会等名 The 18th Young Scientist Seminar, Yamaguchi University
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Fukushima M, Promunuan K, O-Thong S, Suzuki T, Imai T*
2. 発表標題 DEVELOPMENT OF HIGHLY CONDUCTIVE CONCRETE TO ENHANCE BIOLOGICAL OXDATION OF HYDROGEN SULFIDE IN SEWER PIPE
3. 学会等名 International Conference on Engineering and Industrial Technology (ICEIT2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 福島聖人、Kanathip PROMNUAN、安井美智、鈴木祐麻、今井剛*、佐久間啓、人見隆
2. 発表標題 下水管内における硫化水素の生物学的酸化を 促進する高導電性コンクリートの開発
3. 学会等名 環境工学研究フォーラム (土木学会環境工学委員会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計0件

〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 硫酸腐食耐性コンクリート系管、コンクリート系管の硫酸腐食防止方法及び鉄筋の防食方法	発明者 田中 修司、今井剛、鈴木 祐麻、人見隆、佐久間 啓	権利者 T N K水道コンサルタント、山口大学、中川
産業財産権の種類、番号 特許、7100318	取得年 2022年	国内・外国の別 国内

〔その他〕

教員の研究紹介 山口大学工学部循環環境工学科  
<http://www.kankyo.yamaguchi-u.ac.jp/study/imai.html>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
タイ	タクシン大学	コンケン大学	