

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19（共通）

科学研究費助成事業 研究成果報告書



令和元年6月24日現在

機関番号：12701

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2018

課題番号：15K12223

研究課題名（和文）微生物燃料電池と嫌気性アンモニア酸化を組み合わせた次世代下水処理法の開発

研究課題名（英文）Development of a new domestic wastewater treatment process combining a microbial fuel cell and an anaerobic ammonium oxidation process

研究代表者

新田見 匡 (NITTAMI, Tadashi)

横浜国立大学・大学院工学研究院・特別研究教員

研究者番号：20377089

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：都市下水の有機物の処理に微生物燃料電池を適用する場合、都市下水に海水を添加することで、処理時の発電効率が向上することを明らかにした。また嫌気性アンモニア反応への塩分濃度の影響を調べることで、微生物燃料電池で処理した海水含有都市下水からの窒素除去に、嫌気性アンモニアプロセスを適用するための基礎的な知見を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

活性汚泥法を主体とした現行の廃水処理システムにおいて、通気動力と余剰汚泥の低減、および栄養塩の除去は喫緊の課題である。本研究ではそれらの問題を解決するための新たなプロセスを提案し、都市下水処理に適用するための基礎的な知見を得た。

研究成果の概要（英文）：The authors showed that addition of sea water to domestic wastewater could improve the efficiency of power generation associated with the decomposition of organic carbon in a microbial fuel cell (MFC). The authors also investigated the influence of salinity concentration on an anaerobic ammonia oxidation (anammox) system, which suggested how combining anammox process with MFC for treatment of domestic wastewater containing sea water can be developed.

研究分野：環境生物化学工学

キーワード：環境技術 水質汚濁・土壤汚染防止・浄化 反応・分離工学 微生物燃料電池 バイオリアクター

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

活性汚泥法を主体とした現行の廃水処理システムにおいて、通気動力と余剰汚泥の低減、および栄養塩の除去は喫緊の課題である。近年、活性汚泥法に代わる新たな廃水処理法として、微生物燃料電池（MFC）が注目を集めている。MFCでは微生物が有機物を分解処理すると同時に、有機物分解に伴って発生する還元力を電気として回収することができる。またMFCは嫌気処理プロセスであるため、活性汚泥法など従来の好気処理プロセスに比べ、通気動力と余剰汚泥の発生量が少ない。しかしMFCでは廃水からの窒素などの栄養塩類の除去は想定されておらず、別途その除去について対処が必要である。

廃水中の窒素の除去法として近年注目を集めているのが、嫌気性アンモニア酸化（AX）である。AXもMFCと同様に嫌気主体の処理プロセスであるため、従来の硝化脱窒活性汚泥法に比べ、通気動力と余剰汚泥の発生量が少ない。しかしAXでは廃水中の有機物を処理することができない。そこで代表者らはMFCとAXを融合した廃水処理プロセス（MFC-AX）を考案した。

2. 研究の目的

MFCは従来、養豚廃水、澱粉廃水、醸造廃水など、有機物濃度や電気伝導度(EC)が高い廃水への適用が検討されてきた。都市下水などECの低い廃水に適用した場合、MFCの内部抵抗が高くなり、有機物分解に伴う発電効率が制限されるためである。そこで本研究では海水を添加することで都市下水のECを増大し、下水処理におけるMFCの発電効率を向上させることを目指した。また海水を添加した都市下水からAXで窒素を除去することを想定し、下水中の塩分濃度がAX反応に与える影響について評価することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 海水を添加した都市下水を処理するMFCの開発

MFC装置の運転

有効容積550mLのエアカソード型のMFC装置(図1)を作製し、都市下水($EC = 0.8 \pm 0.07 mS/cm$)および海水を添加した都市下水($EC = 6.2 \pm 0.16 mS/cm$)の処理実験をそれぞれRun 0、Run 1として行った。MFCに植種する微生物は、Run 0では都市下水処理施設の活性汚泥、Run 1では海水を添加した下水で馴養した実験室の活性汚泥とした。

MFCの発電性能と有機物処理性能の測定

MFCの発電性能は、出力-電流曲線、および電圧-電流曲線により評価した。外部抵抗にかかる電圧より、MFCの電流密度と出力密度を算出した。またMFCの有機物処理性能を調べるために、MFC流入水と同処理水の全有機炭素を測定した。

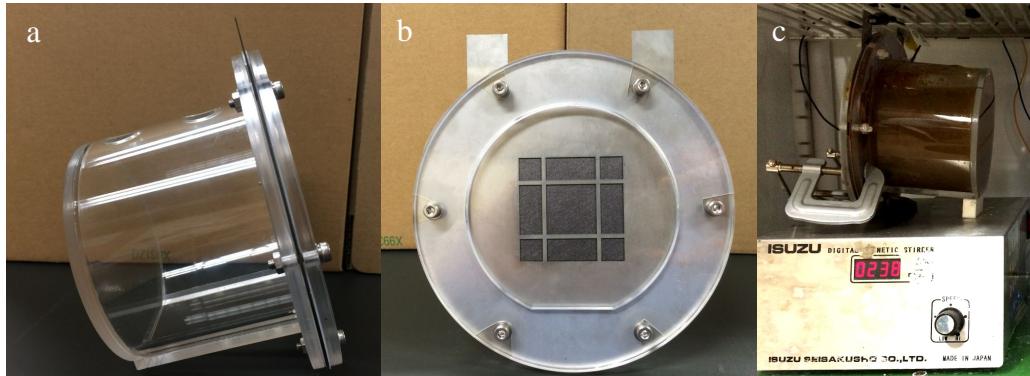


図1 作製したエアカソード型MFC装置：a) 負極槽、b) 隔膜、c) MFC装置による下水処理の様子。

(2) 海洋性AX細菌“*Candidatus Scalindua*”による海水添加培地からのアンモニア除去試験

“*Ca. Scalindua*”の集積培養

“*Ca. Scalindua*”が優占する複合微生物試料をポリプロピレン製の不織布担体に塗布して上向流カラムリアクター(容積980mL)に設置し、人工海水にアンモニウム塩と亜硝酸塩を添加した培地を連続供給して、“*Ca. Scalindua*”の集積培養を行った(図2)。

異なる塩分濃度における“*Ca. Scalindua*”のAX活性の測定

小型の上向流カラムリアクター(容積100mL)を複数用いて塩分濃度の違いによる“*Ca. Scalindua*”のAX反応(式(1))の活性を比較した。集積した“*Ca. Scalindua*”を塗布した不織布を各リアクターに浸漬し、と同様の培地(塩分濃度3.00%)を添加してAX活性が安定するまで馴養した。次に培地中の塩分濃度をそれぞれ0.00%、0.75%、1.50%、2.25%、2.60%、3.00%、3.50%、4.00%に設定して運転を140-150日継続し、AX活性への影響を調べた。

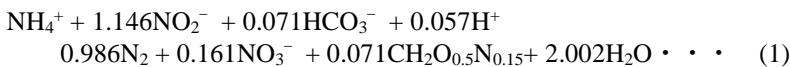




図 2 “*Ca. Scalindua*”の集積培養に用いた上向流カラムリアクター：a) 植種した複合微生物試料、b) 不織布担体、c) 上向流カラムリアクター。

4. 研究成果

(1) 海水を添加した都市下水を処理する MFC の性能

出力 - 電流曲線(図 3)より、都市下水に海水を添加した Run 1 の最大出力密度は約 4 mW/m^2 を示した。これは海水を添加しなかった Run 0 の最大出力密度 0.02 mW/m^2 の 200 倍程度の値であった。電圧 - 電流曲線を用いて装置の内部抵抗を算出した結果、Run 0、Run 1 の内部抵抗はそれぞれ $31, 1.8 \text{ k}\Omega$ であった。したがって都市下水に EC の高い海水を添加することで、装置の内部抵抗が改善され、高い出力密度が得られたものと考える。なお Run 0、Run 1 ともに、有機物の除去率は 80% 以上を示した。

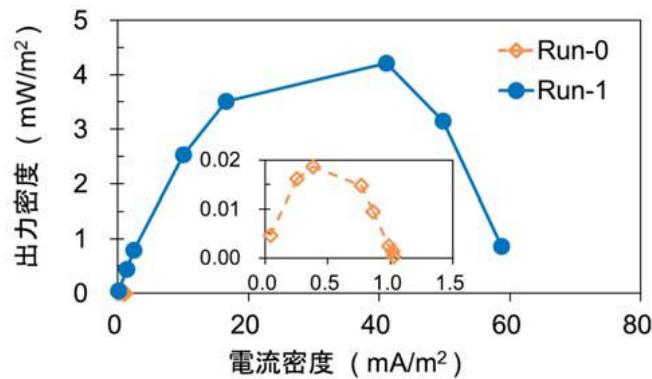


図 3 出力 - 電流曲線(王ら, 2016(学会発表の講演要旨)より転載)。

(2) “*Ca. Scalindua*”による海水添加培地からのアンモニア除去性能

集積培養した“*Ca. Scalindua*”の AX 活性

不織布担体を設置した上向流カラムリアクターによる“*Ca. Scalindua*”の集積培養を 800 日以上継続して行った。運転 180 日経過以降、リアクターによるアンモニウムイオンの除去率は約 70%、また亜硝酸イオンの除去率も約 80% を維持し、“*Ca. Scalindua*”による安定した AX 活性を示した。またアンモニウムイオンと亜硝酸イオンの消費量、および硝酸イオンの生成量の関係は、式(1)の物質量比 (1 : 1.146 : 0.161) に近い値を示した。

異なる塩分濃度における“*Ca. Scalindua*”の AX 活性

各塩分濃度条件における培養 140–150 日経過後の水質分析結果を表 1 に示す。塩分濃度を 2.25% 以上とした培養条件において、アンモニア性窒素と亜硝酸性窒素が約 8 割以上除去される結果を得た。また塩分濃度が 2.60% 以上の条件においては、AX の反応式(式(1))に従ったアンモニウムイオンと亜硝酸イオンの消費、および硝酸イオンの生成がおきていることを確認した。

表 1 各塩分濃度条件で培養した“*Ca. Scalindua*”のアンモニア性窒素と亜硝酸性窒素の除去率

塩分濃度	0.00%	0.75%	1.50%	2.25%	2.60%	3.00%	3.50%	4.00%
NH ⁴⁺ 除去率	0%	30%	20%	80%	90%	90%	90%	80%
NO ²⁻ 除去率	60%	0%	60%	80%	60%	90%	90%	80%

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計2件)

Wang Fengyu、Matsubara Hirokazu、Nittami Tadashi、Fujita Masafumi、Utilization of a Silicone Rubber Membrane for Passive Oxygen Supply in a Microbial Fuel Cell Treating Carbon and Nitrogen from Synthetic Coke-Oven Wastewater、Applied Biochemistry and Biotechnology、査読有、2019、DOI: 10.1007/s12010-019-02994-3

田中 孝国、フーレイチア、田中 昭雄、押木 守、金田一 智規、新田見 匡、不織布に塗布した海洋性 Anammox 細菌を用いた 反応装置の立ち上げ方法の検討、工業用水、査読有、648巻、2018、39–43

[学会発表](計10件)

田中 孝国、フーレイチア、半田 佳幹、押木 守、金田一 智規、新田見 匡、異なる塩分濃度下における海洋性 Anammox 細菌の脱アンモニウム能について、環境バイオテクノロジー学会 2018 年度大会、2018

Chia F.L.、Tanaka T.、Oshiki M.、Kindaichi T.、Nittami T.、The study of marine anammox bacteria using an upflow column reactor、The 6th International GIGAKU Conference in Nagaoka (IGCN2017)、2017

王 峰宇、藤田 昌史、新田見 匡、海水を投入した都市下水処理型微生物燃料電池による発電、第 50 回日本水環境学会年会、2016

6. 研究組織

(2)研究協力者

研究協力者氏名：藤田 昌史

ローマ字氏名：(FUJITA , masafumi)

研究協力者氏名：田中 孝国

ローマ字氏名：(TANAKA , takakuni)

研究協力者氏名：金田一 智規

ローマ字氏名：(KINDAICHI , tomonori)

研究協力者氏名：押木 守

ローマ字氏名：(OSHIKI , mamoru)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。