

令和 5 年 5 月 18 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19H00776

研究課題名(和文) バイオ燃料電池駆動型エネルギー自立式Anammox MECシステムの開発

研究課題名(英文) Development of a MFC driven anammox MEC system for self-sustaining wastewater treatment

研究代表者

岡部 聡 (Okabe, Satoshi)

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：10253816

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,700,000円

研究成果の概要(和文)：嫌気性アンモニア酸化(Anammox)プロセスの鍵は、前段の部分硝化(NH_4^+ を NO_2^- まで酸化する)プロセスの安定化・高効率化である。本研究では、前段にBOD除去を担うバイオ燃料電池(MFC)を設け、MFCで発生する電圧を用いて生物電解セル(MEC)のアノード電極電位を制御することで、アンモニア酸化細菌(AOB)がアノード電極を電子受容体として NH_4^+ を NO_2^- まで酸化し、Anammox細菌が生成された NO_2^- と NH_4^+ を窒素ガス(N_2)へ変換する、MFCを補助電源とする新規部分硝化(PN)-Anammox 生物電解セル(MEC)システムの開発を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

低炭素循環型社会構築のためには、汚泥発生量及び曝気量の削減を図り、下水処理システムのさらなる高効率化・省エネルギー化が求められている。本部分硝化(PN)-Anammox 生物電解セル(MEC)システムは、酸素曝気及び外部からの電子供与体の供給を必要としないため、従来の硝化-脱窒プロセスと比べて、曝気動力の削減(最大62%)、外部炭素源の添加が不要、余剰汚泥発生量の削減(最大70%)、地球温暖化ガス(N_2O および NO)発生量の削減が大幅に可能であり、環境にやさしい新規省エネ型高効率窒素除去プロセスとして期待できる。

研究成果の概要(英文)：The key to the anaerobic ammonia oxidation (Anammox) process is the stabilization and efficiency of the partial nitrification (oxidation of NH_4^+ to NO_2^-) process in the first stage. In this study, a microbial fuel cell (MFC), which is responsible for BOD removal, is installed in the first stage, and the voltage generated by the MFC is used to control the anode electrode potential of a microbial electrolysis cell (MEC), so that ammonia oxidizing bacteria (AOB) can oxidize NH_4^+ to NO_2^- with the anode electrode as an electron acceptor and anammox bacteria convert the produced NO_2^- and remaining NH_4^+ to nitrogen gas (N_2) using the anode electrode as an electron acceptor. A novel partial nitrification (PN)-Anammox bioelectrolysis cell (MEC) system was developed using MFC as an auxiliary power source.

研究分野：環境工学

キーワード：嫌気性アンモニア酸化(Anammox)プロセス 部分硝化 バイオ燃料電池 生物電解セル 電位制御 省エネ型高効率窒素除去プロセス

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、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

現在、我が国の総電力消費量の約 0.7% (約 72 億 kWh) が下水処理に消費されている (その主な内訳は、汚泥処理・処分に約 30-50%、活性汚泥法の曝気に 30% である)。従って、低炭素循環型社会構築のためには、汚泥発生量及び曝気量の削減を図り、下水処理システムのさらなる高効率化・省エネルギー化が求められている。Anammox (嫌気性アンモニア酸化) 反応は、嫌気条件下で亜硝酸(NO_2^-)を電子受容体としてアンモニア(NH_4^+)を直接窒素ガス(N_2)へ変換する微生物反応である。Anammox プロセスは、酸素曝気及び外部からの電子供与体の供給を必要としないため、従来の硝化-脱窒プロセス (消費エネルギー: $4.6 \text{ kWh kg-N}^{-1}$) と比べて、曝気動力の削減 (最大 62%)、外部炭素源の添加が不要、余剰汚泥発生量の削減 (最大 70%)、地球温暖化ガス (N_2O および NO) 発生量の削減が可能であり、環境にやさしい新規省エネ型高効率窒素除去プロセス (Anammox プロセスのエネルギー消費量: $1.16 \text{ kWh kg-N}^{-1}$) として期待され、嫌気性アンモニア酸化 (Anammox) プロセスは、省エネ型窒素除去プロセスとして工場排水や嫌気性消化脱水ろ液などの処理に適用が始まっているが、都市下水処理のメインストリームへの適用は一向に進んでいない。都市下水メインストリーム処理への適用の鍵は、前段の部分硝化 (NH_4^+ を NO_2^- まで酸化する) プロセスの安定化・高効率化である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、都市下水処理のメインストリームへの適用を目的としたバイオ燃料電池 (MFC) を補助電源とした MFC-部分硝化-Anammox 生物電解セル (MEC) システムを構築することである。この統合型 MFC-MEC 処理システムは、完全に無曝気、かつ、発生汚泥量の削減も可能であり、従来の部分硝化-Anammox プロセスよりも大幅に消費エネルギーを削減できる。

3. 研究の方法

部分硝化-Anammox MEC が必要とする電圧は低電圧 ($< 1.0 \text{ V}$) であるため、MFC を補助電源として使用可能であるかを検証するために、低 MFC 出力電圧 ($< 0.4 \text{ V}$) を昇圧・増幅・蓄電できる電気回路 (LVBR) を設計・作製し、その性能を評価した。

アンモニア酸化細菌 (AOB) は、アノード電極を電子受容体として NH_4^+ を NO_2^- へ酸化できるか? さらに、MFC を部分硝化-Anammox MEC の補助電源として用いることは可能か? の問いに答えるために、本研究では二槽式 MFC 駆動型 $\text{PN}(\text{NH}_4^+ + \text{O} \rightarrow \text{NO}_2^-)$ -Anammox ($\text{NH}_4^+ + \text{NO}_2^- \rightarrow \text{N}_2$) MEC システムを構築し (図 1)、集積培養したアンモニア酸化細菌 (AOB) および Anammox 細菌を植種し、人工基質を用いて連続運転を行った。MEC アノードでは AOB がアノードを電子受容体として NH_4^+ を NO_2^- に酸化し、カソードでは生成した NO_2^- を用いて Anammox 細菌が NH_4^+ を N_2 に酸化する。両電極間の電位差が不十分であるため、AOB のアノード呼吸による NH_4^+ 酸化を促進するためには、ポテンシostat を用いてアノード電極の標準還元電位を $0.2\text{-}1.0 \text{ V}$ (vs SHE) の範囲で制御した。MEC アノード電極電位が NH_4^+ 酸化速度および電流量に及ぼす影響を評価した。

部分硝化-Anammox MEC で生じる窒素除去メカニズムを解明するために、MEC カソードおよびアノード電極上のバイオフィルムを採取し、細菌群集構造および ^{15}N トレーサー実験を行って、窒素代謝経路の推定を行った。 $^{14}\text{NH}_4^+$ と $^{15}\text{NO}_2^-$ を MEC に添加し、 $^{29}\text{N}_2$ および $^{30}\text{N}_2$ の生成速度を GC-MS で測定し、この生成速度の比から寄与率を求めた。

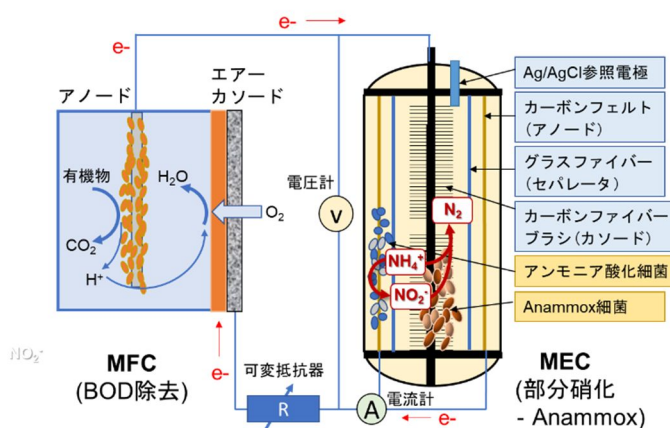


図 1 MFCを補助電源とした部分硝化-Anammox MECシステムの概要図

4. 研究成果

バイオ燃料電池(MFC)によりエネルギー密度の極めて低い下水から電気エネルギーを直接回収・利用するため、低MFC出力電圧を昇圧・増幅・蓄電できる電気回路(LVBR)を設計・作製した。市販の昇圧・増幅器は動作電圧や最大出力電圧が高くMFCの出力電圧に適合しないため使用できなかった。本研究では、動作電圧が低く(0.2V以下)、最大出力電圧を任意に設定可能な自励振動トランジスタ+AC/DC電圧増幅回路+蓄電ユニットから構成される低MFC電圧用昇圧・増幅・蓄電電気回路(LVBM)を設計・作製し、その性能を評価した。その結果、下水からMFCで得られた電圧(ca. 0.4 V)を電圧反転無しに4.4~6.8 Vまで昇圧することに成功した(図2)。さらに、出力電圧はAC/DC電圧増幅器の個数に比例して増加した。

二槽式MFC駆動型PN-Anammox MECシステムを構築し、実際の都市下水を用いた連続運転を実施した。MFC電力によりPN-Anammox MECシステムのアノードとカソードの電位差を+800 mV vs. SHEに制御した時、最大NH₄⁺性窒素除去速度151±42 g-NH₄⁺-N m⁻³ d⁻¹および全窒素除去速度95±42 g-TN m⁻³ d⁻¹を達成した(図3)。この値は、電位差を制御しない場合(Off)の約15倍、一般的な硝化-脱窒プロセス(BNRプロセス)の除去速度21~58 g-NH₄⁺-N m⁻³ d⁻¹の約3倍高い値であった。以上の結果から、PN-Anammoxプロセスの電圧を制御することによりNH₄⁺性窒素の除去率を促進できることが明らかとなった。

オープンサーキットおよびクロードサーキットバッチ実験により、MFC駆動型部分硝化(PN)-Anammox MECシステムにおいて、アノード呼吸によるNH₄⁺の酸化(アノード電極を電子受容体とする)と従属栄養性脱窒が同時に起こることが明らかになった。原位置¹⁵Nトレーサー試験と微生物群集解析により、この本MECシステムでは、TN除去はAnammoxと従属栄養性脱窒の両方によって達成されていることが明らかとなった。

以上の結果より、電力密度の極めて低い都市下水から回収される限られた電力を有効活用するこの統合型部分硝化(PN)-Anammox MECシステムは、曝気や外部からの炭素やガスの供給が不要であり、エネルギー消費量を大幅に削減することができる高効率の窒素除去システムになり得る可能性が示された。

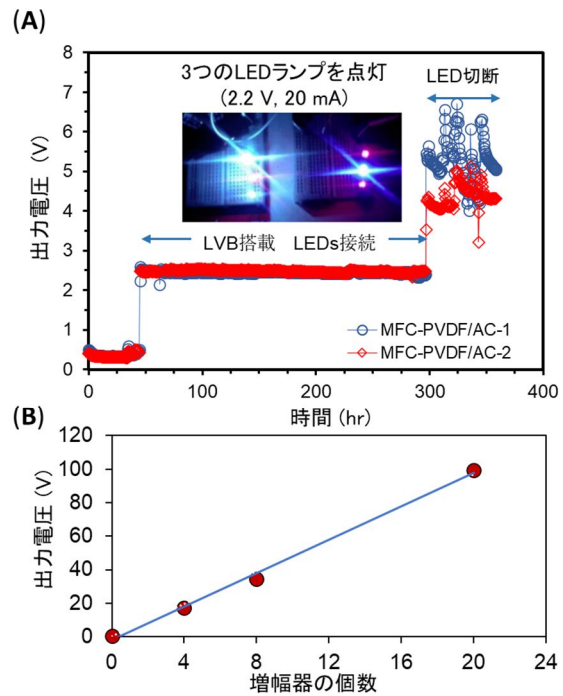


図2 自励発振型トランジスタをベースとするMFC低電圧昇圧回路(LVBによる昇圧結果(A)、出力電圧とAC/DC電圧増幅器の個数の関係(B))

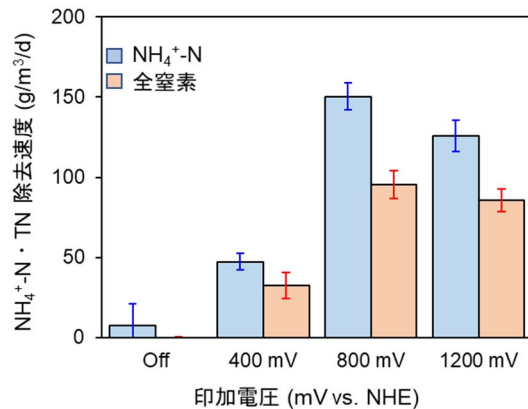


図3 印加電圧とNH₄⁺-N、全窒素除去速度の関係

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Okabe Satoshi, Kamigaito Atsushi, Kobayashi Kanae	4. 巻 15
2. 論文標題 Maintenance power requirements of anammox bacteria "Candidatus Brocadia sinica" and "Candidatus Scalindua sp."	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The ISME Journal	6. 最初と最後の頁 3566 ~ 3575
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41396-021-01031-8	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 Koffi N' Dah Joel, Okabe Satoshi	4. 巻 274
2. 論文標題 Bioelectrochemical anoxic ammonium nitrogen removal by an MFC driven single chamber microbial electrolysis cell	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 129715 ~ 129715
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemosphere.2021.129715	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 Joel Koffi N'dah, Okabe Satoshi	4. 巻 348
2. 論文標題 Effect of poised cathodic potential on anodic ammonium nitrogen removal from domestic wastewater by air-cathode microbial fuel cells	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Bioresource Technology	6. 最初と最後の頁 126807 ~ 126807
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.biortech.2022.126807	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 Oshiki Mamoru, Gao Lin, Zhang Lei, Okabe Satoshi	4. 巻 37
2. 論文標題 NH ₂ OH Disproportionation Mediated by Anaerobic Ammonium-oxidizing (Anammox) Bacteria	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Microbes and Environments	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1264/jsme2.ME21092	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

1. 著者名 Koffi N ' Dah Joel、Okabe Satoshi	4. 巻 10
2. 論文標題 High voltage generation from wastewater by microbial fuel cells equipped with a newly designed low voltage booster multiplier (LVBM)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-75916-7	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 -

1. 著者名 Koffi N'Dah Joel、Okabe Satoshi	4. 巻 380
2. 論文標題 Domestic wastewater treatment and energy harvesting by serpentine up-flow MFCs equipped with PVDF-based activated carbon air-cathodes and a low voltage booster	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Engineering Journal	6. 最初と最後の頁 122443 ~ 122443
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cej.2019.122443	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 -

1. 著者名 Koffi N ' Dah Joel、Okabe Satoshi	4. 巻 274
2. 論文標題 Bioelectrochemical anoxic ammonium nitrogen removal by an MFC driven single chamber microbial electrolysis cell	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 129715 ~ 129715
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemosphere.2021.129715	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 -

1. 著者名 Okabe Satoshi、Shafdar Amrini Amalia、Kobayashi Kanae、Zhang Lei、Oshiki Mamoru	4. 巻
2. 論文標題 Glycogen metabolism of the anammox bacterium "Candidatus Brocadia sinica"	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The ISME Journal	6. 最初と最後の頁
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41396-020-00850-5	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 -

1. 著者名 Okabe Satoshi, Ye Shaoyu, Lan Xi, Nukada Keishi, Zhang Haozhe, Kobayashi Kanae, Oshiki Mamoru	4. 巻 3
2. 論文標題 Oxygen tolerance and detoxification mechanisms of highly enriched planktonic anaerobic ammonium-oxidizing (anammox) bacteria	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ISME Communications	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s43705-023-00251-7	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 -

[学会発表] 計8件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 市原りえ, N'Dah Joel Koffi, 植松実緒, 岡部 聡
2. 発表標題 AOB は電極呼吸によるアンモニア酸化が可能か?
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会 (2022年3月16日-18日, 富山大学)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 森本衣美, 小林香苗, 押木 守, 岡部 聡
2. 発表標題 海洋性アナモックス細菌 "Ca. Scalindua sp." の窒素および酸素同位体分別の解析
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会 (2022年3月16日-18日, 富山大学)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 塚田 麦, 小林香苗, 押木 守, 木庭 啓介, 岡部 聡
2. 発表標題 完全なアンモニア酸化 (COMAMMOX) 細菌 "Nitrospira inopinata" の窒素・酸素同位体分別の解析
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会 (2022年3月16日-18日, 富山大学)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木村祐哉, KOFFI Joel, 岡部 聡
2. 発表標題 MFC を用いたエネルギー自立型下水処理システムの構築
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会 (2022年3月16日-18日, 富山大学)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 市原りえ, N'Dah Joel Koffi, 植松実緒, 岡部 聡
2. 発表標題 バイオ燃料電池を補助電源とするMECシステムによる窒素除去プロセスの開発
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会 (2020年3月16日-18日, 岩手大学, 岩手)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小林香苗, 福島慶太郎, 大西雄二, 仁科一哉, 眞壁明子, 押木 守, 金田一智規, 木庭啓介, 岡部 聡
2. 発表標題 海洋性アナモックス細菌 "Ca. Scalindua sp." の窒素および酸素同位体分別の解析
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会 (2020年3月16日-18日, 岩手大学, 岩手)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 上園亮達, Zhang Lei, 小林香苗, 岡部 聡
2. 発表標題 塩分環境下におけるアナモックス細菌の生存戦略
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会 (2020年3月16日-18日, 岩手大学, 岩手)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 市原りえ、N'Dah Joel Koffi, 植松実緒、岡部聡
2. 発表標題 バイオ燃料電池を補助電源とするMEC システムによる窒素除去プロセスの開発
3. 学会等名 日本水環境学会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究分担者	北島 正章 (Masaaki Kitajima) (30777967)	北海道大学・工学研究院・准教授 (10101)	
研究分担者	佐藤 久 (Hisashi Satoh) (80326636)	北海道大学・工学研究院・教授 (10101)	
研究分担者	押木 守 (Mamoru Oshiki) (90540865)	北海道大学・工学研究院・准教授 (10101)	

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
---------	---------