

令和 5 年 6 月 28 日現在

機関番号：13102

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H00641

研究課題名(和文)嫌氣的硫黄酸化と電子伝達を活性化した生物学的水処理技術の構築

研究課題名(英文) Establishment of biological water treatment technology by activated anaerobic sulfur oxidation and electron transfer

研究代表者

山口 隆司 (Yamaguchi, Takashi)

長岡技術科学大学・工学研究科・教授

研究者番号：10280447

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、嫌氣的硫黄酸化反応と、電子伝達促進微生物固定化技術とを、水処理において新たな電子伝達活性化制御の基盤とし、低温下水にも適用可能な次世代水資源循環システムを構築することにある。本研究の成果として未知な事象である「嫌氣的硫黄酸化」に関する電子伝達に関わる反応メカニズムの解明と、低温条件下での嫌氣的硫黄酸化還元への制御に関する知見収集が大幅に進む実績を得た。今後は、これまで得られた知見を元に社会実装に向けた実証試験を実施していく。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、申請者オリジナルの技術である未解明反応「嫌氣的硫黄酸化」反応について、その反応メカニズムの解明と低温条件下での嫌氣的硫黄酸化還元への制御に関する知見を得られた。これら、地球全体の窒素動態を把握するにも大きく貢献すると考えられその学術的意義や社会的意義は大きい。さらに、これらの知見を廃水処理技術として展開することで、低温でも運転可能な水処理装置の開発が可能になり、開発途上国などへの応用も可能になる。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to establish a next-generation water recycling system applicable to low-temperature sewage by using anaerobic sulfur oxidation and the electron-transfer promoting microbial immobilization technology. As a result of this research, we have achieved significant progress in elucidating the reaction mechanisms involved in electron transfer related to "anaerobic sulfur oxidation," which is an unknown phenomenon, and in collecting knowledge on the control of anaerobic sulfur oxidation/reduction under low-temperature conditions. In the future, we will conduct demonstration scale experiment for social implementation based on the knowledge obtained so far.

研究分野：環境衛生工学

キーワード：嫌気性処理 硫黄動態 微生物処理

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

水資源の適正な利用・再生・循環は、生命の維持、人間活動に不可欠である。しかし、途上国では排水は垂れ流しで、水系由来疾病が乳児・幼児死亡率の8割に至っており(2014、WHO)、排水処理は喫緊の課題となっている。生物学的排水処理法は、好気性処理法と嫌気性処理法には大別される。好気性処理のひとつである標準活性汚泥法は、処理水質は良好であるが(生物学的酸素要求量 BOD 15 mg/L、浮遊性物質濃度 SS 25 mg/L 以下)、浸漬曝気と汚泥処理のエネルギー消費が膨大である問題を有する(国内電力消費の0.6%相当。0.45kWh/排水 1m³)。一方、嫌気性処理は、曝気不要、汚泥排出が少ない等の優れた特徴を有し、今日、嫌気性処理を主とした水処理技術の開発が精力的に行われている(蘭 Rebac ら; ブラジル Haandel ら; ミシガン大 Raskin ら)。嫌気性処理の問題としては、排水中の硫酸塩の還元により生ずる硫化物(HS⁻)がBODとして残留することや低温で微生物が失活することで、処理水質が好気性処理に比べて良好でないことがある。これらの問題に対し、申請者は、独自の嫌氣的硫黄酸化反応(嫌気条件下で硫化物が硫酸塩にまで酸化する反応)を発見しており、この嫌氣的硫黄酸化の促進制御により、硫化水素を硫酸塩に酸化することで水質を向上させることに成功している。加えて、近年注目されている直接異種間電子伝達を促進する新規ゲル担体を開発し、従来の伝導担体に比べてメタン生成活性を7倍程度(メタン生成古細菌保持割合では10倍)高めることに成功している。こうした新しい微生物制御により低温下水にも適用可能な嫌気性処理を主とする水処理システムの創生が求められている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、嫌氣的硫黄酸化反応と、電子伝達促進微生物固定化技術とを、水処理において新たな電子伝達活性化制御の基盤とし、低温下水にも適用可能な次世代水資源循環システムを構築(することにある。独自に発見した嫌氣的硫黄酸化反応は、ユニークな硫黄動態で、脱硫、炭素固定およびメタンエネルギー生成が同様に起きる反応であり、その機構解明を硫化物と蟻酸の電子伝達に着目して推進し、硫化物除去による水質向上と低温での活性維持に貢献する。また、電子伝達促進微生物固定化技術に関しては、独自開発のメタン生成速度をワンオーダー高める新規伝導性ゲル担体に着目し、その高効率の電子伝達の機構を解明・促進することで高い生物活性を發揮する技術を開発する。水処理技術としての開発目標は、従来の標準活性汚泥法と比較して、処理水質が同程度で、省エネルギー、低汚泥排出、低CO₂排出(何れも従来比7割削減)という特徴を有するシステムとする。本研究では異なる温度域で運転したUASBのプロファイルと比較することで、温度による影響を評価した。

3. 研究の方法

UASB リアクター

本実験で使用したUASBリアクターは、総容積13.7Lとした。リアクターの保持汚泥には、都市下水の処理履歴があるグラニュール汚泥を使用した。模擬糖蜜排水は、糖蜜を200mg-COD_{Cr}/L、硫酸ナトリウムを2.0mMとなるように添加し、pHを7.5-8.0に調節し、HRTが8時間となるようにリアクター下部から供給した。リアクターは、17-18で500日以上継続して連続運転した。ただし357-390日の間は28-30で運転した。また、440日目以降からは9-10に設定し、運転を行った。

分析方法

pH、水温、ORPの測定には、pH/ORPメータ(TPX-999Si、東興化学研究所)を用いた。有機酸、炭酸塩、および硫酸塩濃度の測定は、キャピラリー電気泳動(Agilent 7100、Agilent technology)を用いて行った。COD_{Cr}濃度は、サンプルを酸性に調節し、窒素パーズして硫化物を飛ばした後にHACH社のMethod 8000に基づいて測定した。溶存硫化物濃度については、下水試験方法のヨウ素滴定法に準じて測定した。

4. 研究成果

図-1にUASBリアクターの水質プロファイルを示す。有機酸の内、乳酸塩、ギ酸塩およびロピオン酸塩は検出限界以下(0.1mg/L)であった。

COD除去率は、10で46%、17で46%、30で71%であり、17以下でCOD除去率の低下を確認した。また、10・17のUASB内に酢酸塩が蓄積していることが分かった。そのことから17以下の温度条件では酢酸資化性菌の活性が低下し、COD除去率が低下することが示唆された。

硫酸塩の動態は、10では、硫酸塩が2.2mMで流入し、高さ0.1mで硫酸塩が0.4mMまで減少後、リアクター高さに沿って増加して、0.9mで1.8mMになった。17では、硫酸塩が2.5mMで流入し、高さ0.1mで硫酸塩が0.9mMまで減少後、大きく変動せず、0.9mで0.7mMになった。30では、硫酸塩が2.4mMで流入し、減少し続け0.9mで0.1mMだった。また、硫化物は硫酸塩濃度に応じて変化していた。そのことから、リアクター下部(0.1m)までは、どの条

件でも硫酸還元反応が確認されていたが、10 の条件では、硫酸還元後に硫黄の酸化反応が起きることが分かった。

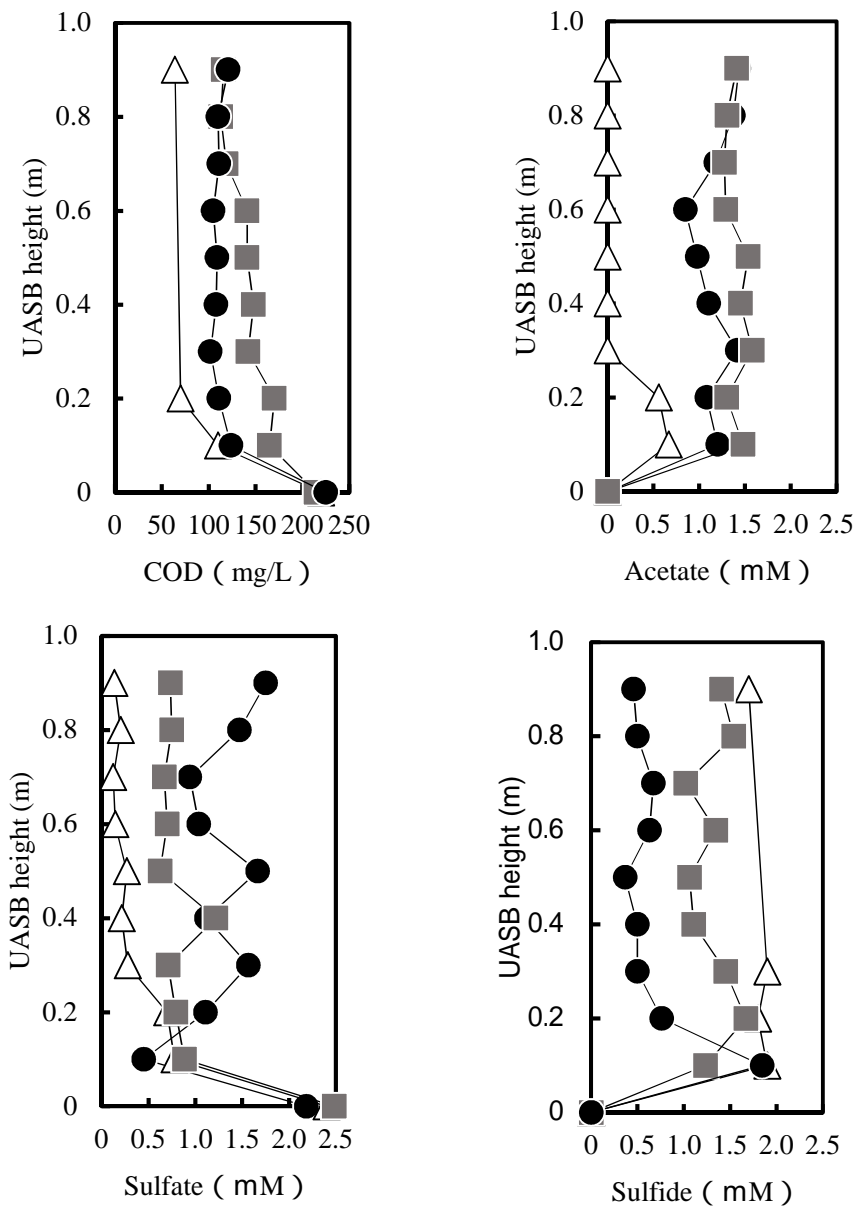


図-1：UASB リアクターの水質プロファイル（ :10 , :17 , :30 ）

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kirishima Yoshihiro, Choeisai Pairaya, Khotwieng Watcharapol, Hatamoto Masashi, Watari Takahiro, Choeisai Krit, Panchaban Piyanuch, Wong-asa Thotsaphon, Yamaguchi Takashi	4. 巻 9
2. 論文標題 Efficiency of high rate treatment of low-strength municipality sewage by a pilot-scale combination system of a sedimentation tank and a down-flow hanging sponge reactor	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Technology	6. 最初と最後の頁 1~10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/09593330.2021.1882584	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 Nomoto Naoki, Nakamura Yoshinobu, Danshita Tsuyoshi, Hirakata Yuga, Watari Takahiro, Hatamoto Masashi, Nakamura Minoru, Yamaguchi Takashi	4. 巻 3
2. 論文標題 Characteristics of organic removal for supermarket wastewater treatment with an anaerobic baffled reactor and efficacy evaluation of changing HRT	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Environmental Technology	6. 最初と最後の頁 1~12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/09593330.2022.2045362	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 Aoki Masataka, Oshiki Mamoru, Iwagaki Mizuki, Hatamoto Masashi, Yamaguchi Takashi, Araki Nobuo	4. 巻 10
2. 論文標題 Draft Genome Sequence of <i>Cytophagales</i> sp. Strain WSM2-2, Isolated from Garden Soil	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Microbiology Resource Announcements	6. 最初と最後の頁 e01238-20
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1128/MRA.01238-20	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 Asano Kenya, Watari Takahiro, Hatamoto Masashi, Yamaguchi Takashi	4. 巻 6
2. 論文標題 Development of UASB?DHS system for anaerobically-treated tofu processing wastewater treatment under ambient temperature	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Technology	6. 最初と最後の頁 1~10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/09593330.2021.1938242	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 Watari Takahiro, Kotcharoen Wilasinee, Omine Takanori, Hatamoto Masashi, Araki Nobuo, Oshiki Mamoru, Mimura Kazuhisa, Nagano Akihiro, Yamaguchi Takashi	4. 巻 19
2. 論文標題 Formation of denitrifying granules in an upflow sludge blanket reactor with municipal sewage and sodium nitrate feeding	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Environmental Technology & Innovation	6. 最初と最後の頁 100861 ~ 100861
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.eti.2020.100861	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 Nguyen Thu Huong, Watari Takahiro, Hatamoto Masashi, Sutani Dausike, Setiadi Tjandra, Yamaguchi Takashi	4. 巻 19
2. 論文標題 Evaluation of a combined anaerobic baffled reactor?downflow hanging sponge biosystem for treatment of synthetic dyeing wastewater	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Environmental Technology & Innovation	6. 最初と最後の頁 100913 ~ 100913
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.eti.2020.100913	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 Sitthi Sitthakarn, Hatamoto Masashi, Watari Takahiro, Yamaguchi Takashi	4. 巻 6
2. 論文標題 Enhancing anaerobic syntrophic propionate degradation using modified polyvinyl alcohol gel beads	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Heliyon	6. 最初と最後の頁 e05665 ~ e05665
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.heliyon.2020.e05665	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 -

〔学会発表〕 計6件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 桑原大輝, 山口隆司, 幡本将史, 渡利高大
2. 発表標題 糖蜜を処理するUASBリアクターの水質プロファイルに対する温度の影響
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会 (2021年度)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 桑原 大輝、幡本 将史、渡利 高大、山口 隆司、荒木 信夫
2. 発表標題 低温UASBリアクターの硫黄動態に与える温度の影響
3. 学会等名 第76回土木学会年次学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 野間拓也、幡本将史、渡利高広、山口隆司
2. 発表標題 低温 UASB リアクターにおける中間代謝物の動態調査
3. 学会等名 第55回日本水環境学会年会（2020年度）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 桑原大輝、山口隆司、幡本将史、渡利高大
2. 発表標題 低温環境における UASB リアクターの処理性能の評価
3. 学会等名 第55回日本水環境学会年会（2020年度）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 野間 拓也、幡本 将史、渡利 高大、山口 隆司、荒木 信夫、川上 周司、青木 仁孝
2. 発表標題 低温・低有機性排水を処理するUASBリアクター内の硫黄・炭素動態
3. 学会等名 令和2年度土木学会全国大会第75回年次学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 桑原大輝, 山口隆司, 幡本将史, 渡利高大
2. 発表標題 低温環境における糖蜜廃水の嫌気的処理の評価
3. 学会等名 第38回 土木学会関東支部新潟会研究調査発表会(2020)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

長岡技術科学大学環境社会基盤工学専攻·技術科学イノベーション専攻 水圏土壌環境研究室
<https://www.ecolabnagaokaut.com/publications>
 長岡技術科学大学研究者総覧
<https://souran.nagaokaut.ac.jp/view?l=ja&u=107>

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	幡本 将史 (HATAMOTO MASASHI) (20524185)	長岡技術科学大学・工学研究科・准教授 (13102)	
研究分担者	押木 守 (OSHIKI MAMORU) (90540865)	北海道大学・工学研究院・准教授 (10101)	
研究分担者	渡利 高大 (WATARI TAKAHIRO) (90800540)	長岡技術科学大学・工学研究科・助教 (13102)	

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