

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：12101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14056

研究課題名(和文) 中部太平洋環礁のためのエネルギー自立型生活排水処理手法の開発

研究課題名(英文) Development of energy self-sufficient domestic wastewater treatment technology for Pacific atolls

研究代表者

藤田 昌史 (Fujita, Masafumi)

茨城大学・工学部・准教授

研究者番号：60362084

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,100,000円

研究成果の概要(和文)：エアカソード型MFCを用いて、都市下水に海水を混入させて処理運転を行ったところ、都市下水のみの場合よりもMFCの内部抵抗が1/20、電力出力が1,000倍改善できた。海水混入により浮遊系微生物は有機物摂取能力が都市下水のみの場合よりも抑制されることが、電力出力の改善に関係したことがわかった。次に、正極槽に気体透過膜を導入し、受動的に輸送される酸素を利用して硝化反応を行い、生成した硝酸または亜硝酸を電子受容体として利用する二槽式MFCを運転した。コークス炉模擬廃水を対象とした場合、外部エネルギーを一切用いずに曝気時の約34%の硝化性能を発現し、出力密度62mW/m<sup>2</sup>を達成できた。

研究成果の概要(英文)：An air-cathode MFCs treating municipal wastewater containing seawater showed 80% or more of organic matter removal within 48h. Polarization curves showed that the internal resistance was reduced 20 times and maximum power density was improved to be 1,000 times under the presence of seawater. The municipal wastewater containing seawater inhibited organic matter uptake by suspended bacteria in the anode chamber. In contrast, hydrolysis and fermentation processes were not affected. To achieve simultaneous removals of organic matter and nitrogen without using any external energy, double-chamber MFC in which a gas permeable membrane was introduced into cathode chamber was operated with fed of synthetic coke-oven wastewater. Without any external energy, nitrification occurred, which was equal to one-third of nitrification rate in aeration. The double-chamber MFC generated the highest power density of 62mW/m<sup>2</sup>.

研究分野：水環境工学

キーワード：微生物燃料電池 下廃水 海水 酸素透過膜 有機物・窒素除去

1. 研究開始当初の背景

中部太平洋には約 400 の環礁（リング状の珊瑚礁）が存在するが、気候変動などのグローバルな問題と生活排水を主な原因とする沿岸汚濁・汚染により、底生有孔虫などが生息できなくなり砂生産力が低下するローカルな問題が複合的に作用している。その結果、国土維持の危機にある (Yamano, H. *et al.* 2005)。申請者は、ツバル国フナフチ環礁の高人口密度地域を対象として現地調査を行ってきた。66%の住居が保有する Septic tank（腐敗槽）の底部が密閉されていないうえに、環礁の地盤は透水性が極めて高いことから、生活排水が引き潮時に地中を通じてラグーン海岸（環礁の内側の海岸）に流出しており、これが主要な沿岸水質汚濁・汚染の原因であることを見出した (Fujita, M. *et al.* 2013)。これを踏まえて、満ち潮時にボトムレス Septic tank に浸入する海水を利用した排水処理手法を検討してきた (王ら 2014; 藤田ら 2012)。海水中には硫酸塩が豊富に含まれることから、硫酸塩還元による有機物除去を行うものであり、海水存在下でも有機物除去率 85%以上を達成できることを見出した。環礁国は電力事情が乏しいことから、エネルギーを投入せずに窒素除去を含めた処理効率の向上をどのように実現するかが次の研究段階になる。

2. 研究の目的

以下の三点を明らかにする。

- 1) 〈陰極槽〉有機物の嫌気分解と硫酸還元によるハイブリッド発電の機構と最適条件
- 2) 〈陽極槽〉ガス透過膜を用いた酸素の受動透過による硝化の最適条件と硝酸イオンの電子受取による電力出力効率
- 3) 〈全体〉エネルギー自立型排水処理装置のパフォーマンスとフィージビリティ評価

3. 研究の方法

3-1. ガス透過膜を導入した二槽式微生物燃料電池による創エネ型の有機物・窒素除去手法の開発 (図 1)

本研究では高濃度のフェノールと NH<sub>4</sub>-N を含有するコークス炉模擬廃水(フェノール系廃水)を処理対象とした。

3-1-1. ガス透過膜の酸素供給性能の評価

密度と硬度、原料の異なる 8 種類のシリコン膜(a-h)を用いて有効容積 1L の装置を作成した。N<sub>2</sub> ガスで脱気した水を装置に流入させ、水面と外気が接触しないように密閉した。30℃の恒温槽で各時間における溶存酸素(DO)濃度を測定し、下水試験方法 (日本下水道協会 1997) に従い、総括酸素移動容量係数(K<sub>La</sub>)を算出した。また、K<sub>La</sub> 算出後、DO=0 の際の酸素供給速度を算出した。そして、NH<sub>4</sub>-N を 1g 硝化するのに 4.57g の酸素が必要となることから、供給された酸素がすべて硝化に使われると仮定して理論的な硝化速度を算出した。

3-1-2. 気体透過膜を用いた硝化手法の評価

有効容積 600mL の装置を作成し、3-1 により選定したシリコン膜を導入した。そして、予め集積した硝化汚泥を接種しシリコン膜に付着させた。流入水には 3-1-3 の処理水を用いた。付着微生物の

み存在する系と、浮遊微生物が共存する系、両系において各時間における NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N を定量し、硝化速度を算出した。また、膜表面に好気性微生物が存在することで酸素移動速度が増加することが知られている (Virdis *et al.* 2010)。酸素が受動的に輸送される場合、この効果がさらに期待できる。そこで、硝化汚泥を付着させた膜を用い、初期 NH<sub>4</sub>-N 濃度を 20、40、600mgN/L としたときの硝化速度、初期 NH<sub>4</sub>-N 濃度を 600mgN/L とし槽内を曝気したときの硝化速度を算出し、上述の理論値と比較した。

3-1-3. MFC 装置の運転

(1) エアカソード型 MFC

本研究ではエアカソード型 MFC を用いた。有効容積 500mL の装置に鉄鋼プラントの汚泥を植種し、温度 30℃、外部抵抗 1kΩ、初期 pH=7.5 とした。負極にはカーボンフェルト、正極には白金触媒を塗布したカーボンペーパー (0.5mgPt/m<sup>2</sup>)、陽イオン交換膜にはナフィオン膜を用いた。一般に、フェノール系廃水は 2-4 倍に希釈してから、生物学的処理が行われる (Sueoka *et al.* 2009)。特に、沿岸部では希釈に海水を用いることから、本研究では流入水の 68%(v/v)を海水とした。模擬廃水の組成は既報 (Shoji *et al.* 2014) と同様とした。

(2) 二槽式 MFC

(1)の負極槽を二槽式 MFC の負極槽に移行した。負極槽の運転条件は(1)と同様とし、正極槽には硝酸溶液(500mgNO<sub>3</sub>-N/L)を流入させた。そして、正極槽に気体透過膜を導入した後、負極槽の排水を流入させ、有機物・窒素の同時除去について検討した。

3-1-4.MFC 装置の発電性能と有機物・窒素除去の評価

(1) 発電性能

発生電圧は 5 分間隔でデータロガーを用い測定した。得られた電圧と外部抵抗から、オームの法則を用い電流と出力を算出した。発電特性は出力-電流曲線、電圧-電流曲線により評価した (Watanabe 2008)。最初に、5.1kΩ の外部抵抗を接続し、安定した電圧が得られた後、外部抵抗を徐々に小さくし(5.1kΩ-10Ω)、各々の電圧を測定した。

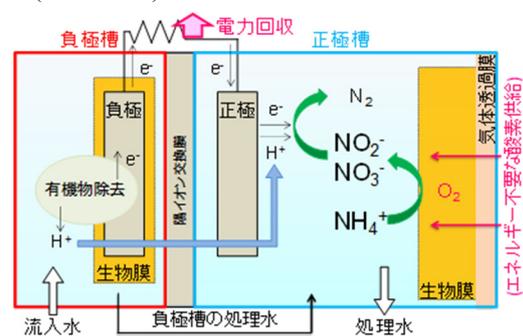


図 1 気体透過膜を導入した MFC の概念図

(2) 有機物・窒素除去性能

各時間における DOC を測定し、有機物除去速度を算出した。二槽式の運転において、硝酸溶液を流入させた系では NO<sub>3</sub>-N 濃度を、負極槽の処理水を流入させた系では NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N 濃度を分析した。また、クーロン効率(以下、CE)を算出した。

### 3-2. 海水を投入した都市下水処理型微生物燃料電池における浮遊系微生物の機能

#### 3-2-1. MFC 装置の運転

MFC には様々なタイプがあるが、本研究では曝気動力が不要なエアカソード型 MFC を用いる。陰極に付着した微生物は下水中の有機物から電子を取り出し、陽極に渡す。その結果、プロトン ( $H^+$ )、 $CO_2$  が生成する。電子は回路を流れて陽極に到達するが、陽極で受動的に供給される  $O_2$  と陰極から陽イオン交換膜を通じて供給される  $H^+$  と反応して、 $H_2O$  が生成する (Logan 2008)。このように電気回路が成立することから、外部抵抗で電力を回収することができる。

本研究では有効容積 550 mL の MFC を 3 台運転した。2 台は海水を利用した生物学的廃水処理装置 (王ら 2014) を植種源として、流入水として都市下水と海水を投入した (Run-1、Run-2)。1 台は都市下水処理施設から採取した活性汚泥を植種し、都市下水を流入させた (Run-0)。3 台装置の都市下水の有機物負荷を揃えるために、Run-1 と Run-2 の排水工程では Run-0 より海水投入量分だけ多く排水した。装置の陰極はカーボンクロスを利用し、陽極には白金触媒を塗布したカーボンペーパー ( $0.5 \text{ mg-Pt/cm}^2$ ) を用いた。水温は  $30^\circ\text{C}$  とした。

MFC の発生電圧はデータロガー (GRAPHTEC, GL220) で定期的に (5 min 間隔) に測定した。電圧と接続した外部抵抗値からオームの法則により電流、出力を算出した。出力密度の算出は、陰極の面積 ( $25 \text{ cm}^2$ ) に基づいて行った。

#### 3-2-2. MFC の有機物除去

MFC の有機物除去能力を検討ために、装置に流入する都市下水と 1 日運転後の排水をサンプリングし、TOC 計 (TOC-V CSH、SHIMADZU) で分析を行った。

#### 3-2-3. MFC の発電性能

##### (1) 最大出力と内部抵抗

本研究では出力-電流曲線、電圧-電流曲線を構築して、MFC の最大出力と内部抵抗を評価した (Logan 2008)。評価試験は最初に  $50 \text{ k}\Omega$  の外部抵抗を接続し電圧が安定した後、抵抗値を徐々に減少させ ( $50 \text{ k}\Omega \sim 100 \Omega$ )、電圧を測定した。得られた電圧値よりオームの法則を基に電流密度、出力密度を算出した。

##### (2) 電力量

電気エネルギーの観点から MFC の発電性能を検討するために、電力量 (W) を用いる (He 2012)。電流を時間で積分したものを陰極の面積で割ることで算出した。

##### (3) クーロン効率

CE は、陰極槽の有機物が全て分解された場合に生じる電子のクーロン量に対する実際に外部回路で回収した電子のクーロン量の割合を示すパラメータである。MFC のクーロン転換率を表す (Logan 2008)。また、流入水と処理水の COD は COD 測定キット (HACH) を用いて分析した。

#### 3-2-4. 浮遊系微生物が出力に与える影響の評価 微生物の有機物代謝は複雑のプロセスである。

都市下水には微生物に分解されにくい遅分解性有機物 ( $X_s$ )、一部の微生物が分解できる易分解有機物 ( $S_f$ ) と生物分解性の高い低級脂肪酸 ( $S_A$ ) が含まれる。 $S_A$  は電子生成微生物に直接発電に利用できるが、都市下水にはごく少量しか存在しない。 $S_A$  は都市下水に多く含まれる  $X_s$  が微生物の細胞外加水分解、そして微生物の発酵作用のもとで作られる。この時 MFC の発電効率は加水分解速度、発酵速度に大きく影響されると予想できる。効率的に  $X_s$  を  $S_A$  低分子化させるために浮遊系微生物の利用が考えられるが、MFC の発電にどのような影響を与えるか不明である。

本研究では都市下水処理型 MFC の電気生成に浮遊系微生物が働く機能を検討するには、MFC から浮遊系微生物を除いた場合と、浮遊系微生物を戻した場合に分けて応答実験を行った。応答実験の基質は酢酸 (分解されやすい) 及び都市下水 (遅分解有機物が含まれる) を用いてそれぞれ検討を行った。

### 4. 研究成果

#### 4-1. ガス透過膜を導入した二槽式微生物燃料電池による創エネ型の有機物・窒素除去手法の開発

##### 4-1-1. 気体透過膜の酸素供給性能

対照系の DO が上昇しなかったことから、装置は密閉された状態であり酸素はシリコーン膜を介してのみ供給されたといえる。その他の膜についても同様の実験を行い ( $n=3$ )、算出した  $K_{La}$  を図 2 に示した。膜 e の  $K_{La}$  が  $1.8 \text{ d}^{-1}$  と最も高く、他の膜の  $K_{La}$  と明確な差が見られた ( $p < 0.01$ )。この膜に硝化細菌が十分に付着したとき、理論的に算出される硝化速度は  $387 \text{ mgN/m}^2/\text{d}$  と見積もられた。

##### 4-1-2. $K_{La}$ と膜の物性の関係

各々の膜の  $K_{La}$  と膜の密度と硬度、原料の関係を調べた。原料が粘土状である膜 e、f、g に着目すると密度、硬度が小さくなると  $K_{La}$  が大きくなる傾向があることがわかった。一方、原料が液状である膜は密度、硬度ともに  $K_{La}$  との対応は見られずほぼ一定の値となった ( $p > 0.005$ )。このことから、槽内への酸素供給を目的とした場合、原料が粘土状のシリコーンであれば膜の密度、硬度が小さくなるほど酸素供給性能が高くなる傾向があることがわかった。液状のシリコーンでは、密度と硬度が異なっているにも関わらず  $K_{La}$  がほぼ同じ値となったが、その理由は含有されるフィルターにあると考えられた。酸素透過能に最も影響を与えるフィルターはシリカであるといわれ、一般に、シリカ量が増加すると酸素透過能は減少し、硬度が増加する。液状のシリコーンはシリカ以外のフィルターによって、密度と硬度が調節されたため、 $K_{La}$  の値にほとんど変化が見られなかったと考えられた。以降の実験では、最も酸素供給性能が高かった膜 e を用いた。

##### 4-1-3. 酸素の受動透過による硝化の速度

付着微生物のみ存在する系では、硝化速度は  $52.5 \text{ mgN/L/d}$  であり、浮遊微生物が共存する系とほぼ同様の硝化速度 ( $56.6 \text{ mgN/L/d}$ ) であった。このことから、受動的に輸送された酸素はほとんど付着微生物に消費されていると判断された。4-1-1 の結果から理論的に計算された硝化速度は  $3.0 \text{ mgN/L/d}$

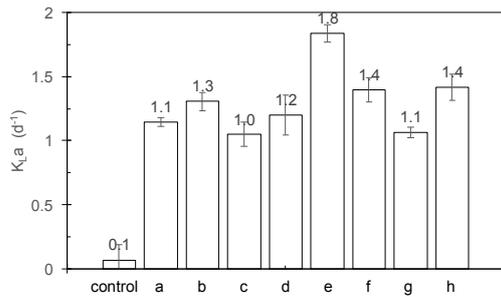


図2 各膜の  $K_{1a}$

であったが、実際には約18倍の硝化速度が得られた。鈴木ら(1991)は、膜表面に好気性微生物が付着すると、酸素移動速度が1.5-2.0倍になることを明らかにしたが、本研究ではさらに高い値が得られた。これは期待されていたとおり、付着微生物が呼吸を行うことで槽内の酸素が消費され、槽内と外気の酸素濃度勾配が大きくなり酸素の受動的な輸送が促進されたためだと考えられた。また、継続して運転を行うと槽内に  $\text{NO}_2\text{-N}$  が蓄積する傾向が見られた。これは、微生物の付着できる面積に制限がある状況で、亜硝酸酸化細菌よりアンモニア酸化細菌が優先的に酸素を消費するためだと考えられた。

#### 4-1-4. 初期 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度と硝化速度の関係

図3に初期  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度を20、40、600mg/Lとしたときの硝化速度、初期  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度を600mg/Lとし槽内を曝気したときの硝化速度を示した。酸素を能動的に供給し、DOが制限されない状態における硝化速度は153mgN/L/dであった。このことから、気体透過膜を用いた酸素供給方法は、外部エネルギーを全く使用していないにも関わらず、曝気時の約34%もの酸素を供給できていたことになる。また、膜を用いた酸素供給方法は曝気に比べると供給される酸素量が大きく制限されることも明らかとなった。初期  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度が高くなるにつれ、得られる硝化速度が大きくなったことから、付着微生物により多くの酸素が槽内に誘導されたと考えられた。

#### 4-1-5. MFC装置の発電性能と有機物・窒素除去の評価

##### (1) 発電性能

各運転条件における出力-電流曲線、電圧-電流曲線を図4に示した。正極槽に硝酸溶液を用いた二槽式の最大出力密度(62mW/m<sup>2</sup>)はエアカソード型(11mW/m<sup>2</sup>)の約6倍高くなり、電圧-電流曲線から内部抵抗を算出すると各々258Ω、470Ωであった。また、電子受容体に  $\text{NO}_3\text{-N}$  を利用できることがわかった。フェノール系廃水をMFCに適用した既往の研究(Luo *et al.* 2009; Song *et al.* 2014)より高い出力が得られたが、これは、流入水に海水が含まれることで、溶液の電気伝導度が改善され、内部抵抗が低下したためだと考えられた。また、一般に、MFCは二槽式にすると正極溶液が増える分、エアカソード型よりも内部抵抗が高くなる(Sevda *et al.* 2013)。しかし、本研究では逆の結果となった。CEは各々0.5%、2.7%であり、二槽式の方が高い効率で得られた。このような結果が得られた理由としては、好気性微生物の影響が挙げられる。エアカソー

ド型の運転から二槽式の運転に移行した際の電圧と酸化還元電位(ORP)の経時変化を調べた。二槽式の運転では得られた最大の電圧が約2倍となった。また、ORPの最小値はエアカソード型の運転では-360mV程度であったのに対し、二槽式の運転では-500mV程度まで減少した。このことから、エアカソード型の運転では酸素が完全に遮断できていないことがわかる。槽内に酸素が供給されると、好気性微生物が有機物を摂取し、相対的に発電微生物が獲得できる有機物量が減少する。よって、酸素の混入が遮断できた二槽式の運転の方が出力、CEともに高い値が得られたと考えられた。

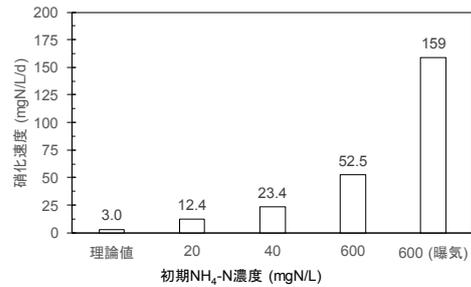


図3  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度と硝化速度の関係

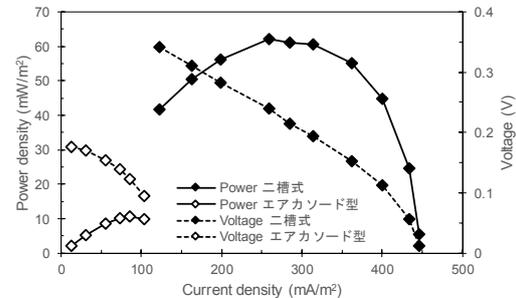


図4 出力-電流曲線と電圧-電流曲線

##### (2) 有機物・窒素除去性能

有機物除去速度はエアカソード型(99mgC/L/d)より、二槽式(71.7mgC/L/d)の方が遅くなった。これは、前述したように好気性微生物が摂取した有機物量が減少したためだと考えられた。また、二槽式MFCにおける正極溶液内の  $\text{NO}_3\text{-N}$  は、負極槽内の有機物の減少に伴い減少した。

#### 4-1-6. 二槽式 MFC 廃水処理手法の有効性の検討

負極槽内の有機物減少にともない、正極槽内の窒素が除去された。有機物除去速度は46.7mgC/L/dであり、二槽式の運転を続けることでさらに遅くなった。硝化速度は38.8mgN/L/d、電子の受容による窒素除去速度は4.0mgN/L/dであったことから、本処理プロセスでは電子受容による窒素除去速度が律速となることが明らかとなった。

有機物除去量は233mgCであり、すべて発電微生物が摂取したと仮定すると、放出される電子は0.091molとなる。一方、除去された窒素量は23.4mgNであり、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ ともに電子受容体となりえることから、受容した電子量は5.01~ $8.38 \times 10^{-3}$ molとなる。理論的に得られるCEは5.5~9.2%となるが、実際に外部回路で得られた電圧から算出した値は2.7%であった。このことから、放出された電子量は理論値の3-5割程度であり、これはエアカソード型の運転から移行した直後であ

り、槽内に競合微生物が多く存在していたためだと考えられた。

また、4-1-3 で述べたように、継続して運転を行うことで正極槽内に NO<sub>2</sub>-N が蓄積する可能性が示唆された。NO<sub>3</sub>-N を電子受容体とする場合、1mol の NO<sub>3</sub>-N に対し 5mol の電子が必要となり、外部回路で回収できるエネルギーは 25.6kJ/gN となる。一方、NO<sub>2</sub>-N を用いる場合は 1mol の NO<sub>2</sub>-N に対して必要な電子は 3mol である。より少ない電子で窒素除去が達成できる反面、回収できるエネルギーは 20.0kJ/gN となる (Henze *et al.* 2008)。つまり、NO<sub>2</sub>-N を用いると処理水に残留する窒素濃度をより低くすることが可能となる。前述したように、選択的に NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N を生成できれば、高い出力を目的とした運転や高レベルの窒素除去を目的とした運転など、柔軟な水処理が本手法により実現できる。

#### 4-2. 海水を投入した都市下水処理型微生物燃料電池における浮遊系微生物の機能

##### 4-2-1. MFC の有機物除去

これまでに 3 台の MFC は 425 日間を運転してきたが、426 日目に陰極にある集電板 (発生した電子を回収する) から深刻な腐食が確認できた。この腐食によりこれまでのデータ及び発電する付着系微生物に与えた影響を把握しがたいことから、集電板及び陰極電極まで新しいものに交換して、最初から馴致を始めた。微生物はそれぞれ前の MFC の浮遊系微生物を利用した。

426 日目から装置を作り直して、運転開始したが、有機物除去のパフォーマンスに変わりがなかった。Run-1 と Run-2 に海水を投入してあるが、Run-0 と共に安定した下水処理を示しており、80%以上の有機物除去率を達成している。この結果から、本研究で用いる 3 台の MFC は下水処理装置として十分な処理機能を発揮していることがわかる。

##### 4-2-2. MFC の発電性能

すべての装置の出力が安定になった 25 日目に出力-電流曲線、電圧-電流曲線を実験で構築した。出力-電流曲線の結果より、海水を投入してある Run-1 と Run-2 の最大出力密度は、都市下水のみで運転する Run-0 より遥かに高かった。そのうち、海水の濃度がわずかに 4% の Run-1 の最大出力密度 (7.1 mW/m<sup>2</sup>) は Run-0 (0.0070 mW/m<sup>2</sup>) より 1,000 倍高かった。

前述したように、都市下水処理型 MFC の出力を大きく制限する要因のひとつは内部抵抗である。電圧-電流曲線を用いて装置の内部抵抗を算出したところ、Run-0 (30 kΩ) は一番高く、その次は Run-1 (1.4 kΩ)、Run-2 (0.5 kΩ) の順である。このように、海水を投入することにより、MFC の内部抵抗が小さくなり、出力が大きく改善できるとわかった。

##### 4-2-3. 浮遊系微生物が MFC の出力に与える影響

###### (1) 酢酸を電子供与体とする場合

本研究では、まず生物分解性の高い酢酸 (S<sub>A</sub>) を MFC に与える場合、浮遊系微生物が MFC に与える影響を検討した。酢酸は加水分解と発酵の最終産物であることから、応答実験で直接投与すると MFC の電気生成は加水分解や発酵の影響を受けないことになる。結果を図 5 に示す。

酢酸は微生物にとって分解されやすいので、MFC に投与するとそれをめぐり浮遊系微生物と付着系微生物の有機物競合が起こると予想される。しかし、クーロン効率の結果を見るとすべての系は、浮遊系微生物が存在するにも関わらず、付着系微生物のみの場合とほぼ同レベルの COD を消費して、同じレベルのクーロン量を出力した。つまり、付着系微生物は電気生成に利用する有機物がほぼ浮遊系微生物に奪われていない。その結果、浮遊系微生物の存在に関係なく、装置は同レベルの電力量 (電気エネルギー) を出力した (図 6)。

付着して発電を行う微生物は電極呼吸微生物とも呼ばれる。MFC の発電メカニズムから考えると、電気生成微生物は直接酸素を利用しないが、外部回路を介して間接的に酸素を利用する代謝は、浮遊系微生物より効率よく S<sub>A</sub> を分解していることが考えられた。

以上を踏まえ、MFC では S<sub>A</sub> が多く存在する場合、付着する電子生成微生物の有機物摂取速度が速く、ほとんど付着系微生物に影響されず有機物利用して発電できると考えられる。

###### (2) 都市下水中の有機物を電子供与体とする場合

都市下水を MFC に投入する場合、浮遊系微生物が存在する時と、存在しないときの各装置のクーロン効率及び出力電力量の結果を図 7、図 8 に示す。

まず Run-1 と Run-2 に注目すると、浮遊系微生物が存在したほうがクーロン効率は高かった (COD 消費量は同レベル)。その理由について、浮遊系微生物が存在すると、都市下水中の X<sub>s</sub> が効率よく分解され、付着する電子生成微生物により多くの S<sub>A</sub> が供給されたことが考えられた。

一方、Run-0 のクーロン効率の結果は逆に、浮遊系微生物が存在する時に比べ、浮遊系微生物が存在しない時 MFC は少なめな COD を消費するにも関わらず、約 3 倍も大きなクーロン効率を示した。

3-2-4 (1) の結果及び有機物の変換過程を含めて Run-0 を考える。下水中の X<sub>s</sub> は細胞外加水分解が経てからでないと微生物に利用されない。例え X<sub>s</sub> が順調に S<sub>A</sub> まで分解されるとすると、3-2-4 (1) の知見より Run-0 のクーロン効率 (電力量も同様) は同じレベルになる。そのため、浮遊系微生物が存在する場合のクーロン効率の損失は S<sub>F</sub> から生じることになる。この損失は浮遊系微生物の中に S<sub>F</sub> が摂取できる微生物によるものだと考えられる。

これに対して、海水を添加した Run-1、Run-2 は浮遊系微生物が存在するにもかかわらず、クーロン効率に損失が生じないことは S<sub>F</sub> のロスが少ないことになる。その理由について考えると、前述したように微生物は塩分濃度が高くなると活性が落ちるとわかっている (Lefebvre *et al.* 2006)。これにより、Run-1、Run-2 において S<sub>F</sub> を摂取できる浮遊系微生物の活性が影響され、有機物摂取速度が遅くなることが考えられた。一方、浮遊系微生物の加水分解・発酵速度も塩分の影響により遅くなる可能性があるが、浮遊系微生物は MFC にいったほうが出力量とクーロン効率が高いという結果から、加水分解・発酵の機能はある程度保持されていることがわかる。

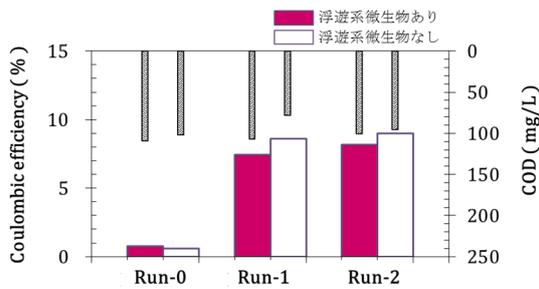


図 5 酢酸応答実験における各 MFC のクーロン効率

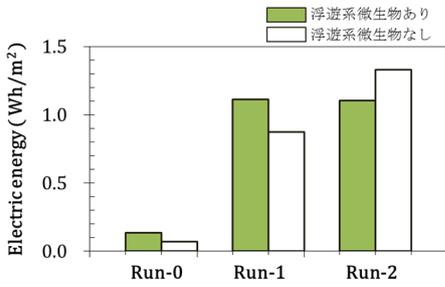


図 6 酢酸応答実験における各 MFC の出力電力量

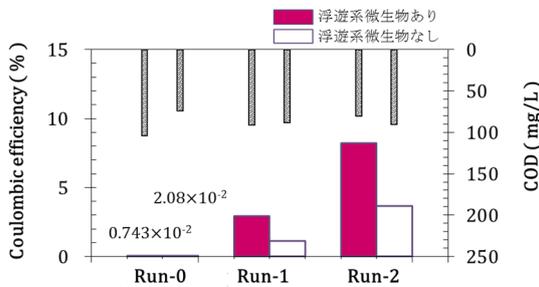


図 7 下水応答実験における各 MFC のクーロン効率

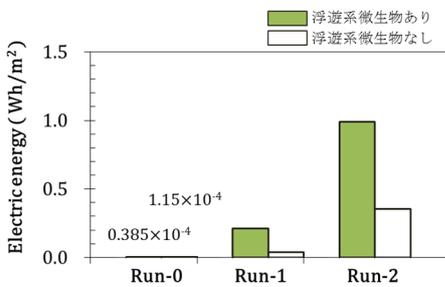


図 8 下水応答実験における各 MFC の出力電力量

都市下水処理型 MFC に海水を投入することにより、浮遊系微生物は有機物競合能力が落ちる一方、低めの加水分解速度と発酵速度を介して電子生成微生物に生物分解性の高い有機物を供給する機能を働いているメカニズムが考えられた (図 9)。

#### 4-2-4. 浮遊系微生物が MFC の発電への寄与

MFC では発電を担うのが主に付着系の微生物であるが、浮遊系微生物もメディアータと呼ばれる電子伝達剤を通して陰極に電子を渡すことができる (柿園 2009)。硫酸塩は電子伝達剤のひとつである (Ieropoulos *et al.* 2005)。その電子伝達のメカニズムは、陰極槽内の硫酸塩還元細菌が硫酸塩を摂取して硫化水素を放出する。この硫化水素 (H<sub>2</sub>S) は陰極電極で生物的酸化/非生物的酸化作用で硫黄

になると同時に 2 つの電子を電極に渡す。海水は豊富な硫酸塩 (~900 mg-S/L) を含有するため、海水の投入により Run-0 より Run-1 (55.1±10.3 mg-S/L)、Run-2 (91.3±12.6 mg-S/L) 内の硫酸塩濃度が高くなる。

MFC を利用して硫酸塩/硫化物から電子を回収する研究も報告されているが (Rabary *et al.* 2006; Lee *et al.* 2012; Sangcharoen *et al.* 2015)、高濃度で投入している。本研究ではクーロン効率の考え方で、各 MFC の硫酸塩除去から硫酸塩/硫化物が発電への寄与を試算したところ、有機物と比べると 1%しか発電に貢献しないとわかった。つまり、3 台の MFC は主に有機物を発電のエネルギー源として利用している。

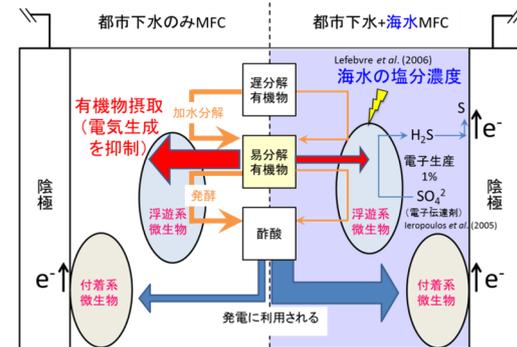


図 9 海水投入 MFC における浮遊系微生物の機能

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

①松原弘和, 王峰宇, 藤田昌史: 気体透過膜による受動的な酸素供給に基づく硝化手法 — コークス炉排水を処理する二槽式微生物燃料電池での検討 —, 用水と廃水, 59(6), 453-459, 2017. (査読有)

②藤田昌史, 王峰宇: 太平洋環礁国におけるエネルギー自立的な生活排水処理手法の開発, 用水と廃水, 58(10), 61-66, 2016. (招待論文, 査読無)

[学会発表] (計 2 件)

①松原弘和, 王峰宇, 藤田昌史: 気体透過膜を導入した二槽式微生物燃料電池による有機物・窒素の同時除去手法の検討, 第 51 回日本水環境学会年会, 453, 2017/03/15, 熊本大学 (熊本県熊本市)

②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, 84, 2016/03/18, 徳島大学 (徳島県徳島市)

[産業財産権]

○取得状況 (計 1 件)

名称: 海水を利用した下排水処理方法

発明者: 藤田昌史, 他

権利者: 国立大学法人茨城大学

種類: 日本国特許

番号: 特許第 5999598 号

取得年月日: 2016 年 9 月 9 日

国内外の別: 国内

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤田 昌史 (Fujita, Masafumi)

茨城大学・工学部・准教授

研究者番号: 60362084