

DHS リアクターにおける嫌氣的メタン酸化脱窒反応による亜酸化窒素発生量の評価

長岡技術科学大学・院 学生会員 ○津場 大輔

長岡技術科学大学・院 非会員 吉田悠亮 根本笙 正会員 牧慎也 幡本将史 山口隆司

1. 目的

排水中の窒素化合物は富栄養化の原因である．そのため，下水処理場ではこの窒素化合物を除去するために生物学的窒素除去法が用いられている．この生物学的窒素除去法はアンモニアが亜硝酸・硝酸へと酸化される硝化反応と，硝酸・亜硝酸が窒素へと還元される脱窒反応に分けられる．この脱窒反応は水素供与体である有機物の投与が必要であり，有機物投与には多大なコストがかかる．また，上記の硝化・脱窒反応では二酸化炭素の約 300 倍以上の温室効果を有する亜酸化窒素 (N_2O) が生成されることから，亜酸化窒素の削減が求められている．そこで，本研究では嫌氣的メタン酸化脱窒反応に着目した．

嫌氣的メタン酸化脱窒反応とは，硝酸および亜硝酸を電子受容体としてメタンを酸化する脱窒反応である¹⁾．本反応は亜酸化窒素を経由せず窒素ガスが生成されるため，温室効果ガスである亜酸化窒素を削減できる新たな脱窒プロセスとして注目されている．現在，嫌氣的メタン酸化脱窒反応に関する研究は基礎研究から実用化を目指した研究まで幅広く行われている．しかし，嫌氣的メタン酸化脱窒微生物を集積培養したリアクターにおいて微量の亜酸化窒素の生成が報告されているにも関わらず²⁾，嫌氣的メタン酸化脱窒反応と亜酸化窒素発生量の関連性についての報告はない．そこで本研究では，下降流懸垂型スポンジ担体 (DHS) リアクターを用いて嫌氣的メタン酸化脱窒微生物の集積培養を行い，嫌氣的メタン酸化脱窒反応による窒素除去性能と亜酸化窒素発生量を評価することを目的とした．

2. 実験方法

2. 1. 培養装置

嫌氣的メタン酸化脱窒微生物の培養には G3 型スポンジ担体を容積 8.47 L 投入したカラム容積 14.1 L の DHS リアクターを用いた(図-1)．植種源には嫌氣的メタン酸化脱窒微生物の集積培養をしている回分式リアクターの汚泥を用いた．

2. 2. 培養条件

DHS リアクターの基質には無機合成培地¹⁾を用い，窒素源として硝酸及び亜硝酸を約 20 mg-N/L の濃度で添加した後，アルゴンでパージを行い無酸素状態にした．DHS リアクターにはメタンを 10 mL/min で流入させた．運転 41 日目から 52 日目に水理学的滞留時間 (HRT) を 24 時間から 12, 6 時間に短縮を試みた．運転 112 日目以降から窒素消費速度を増大させるために基質に還元剤を投与した．硝酸・亜硝酸個々における亜酸化窒素発生量を計測するために，運転 52 日目から 183 日目にかけて硝酸と亜硝酸を個別に添加した．DHS リアクターの運転条件は温度 35℃，pH7.0 から 8.0，HRT 6, 12, 24 時間と設定した．

2. 3. 分析条件

DHS リアクターの流入水と流出水の硝酸及び亜硝酸の濃度は高速液体クロマトグラフ (SPD-10A, Shimadzu) を用いて測定した．DHS リアクター内のガスのメタン濃度の計測には TCD 検出器を設置したガスクロマトグラフ (GC-8A, Shimadzu) を， N_2O 濃度の計測には ECD 検出器を設置したガスクロマトグラフ (GC-2014, Shimadzu) を用いて測定した．

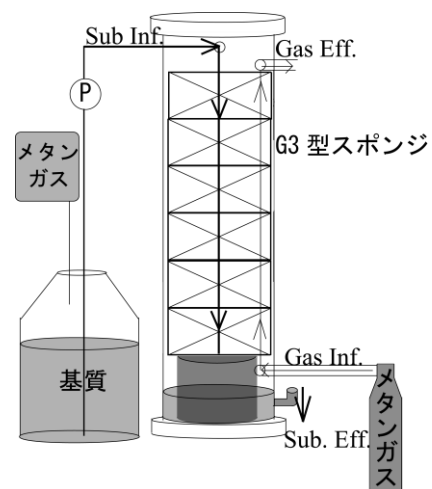


図-1 DHS リアクター概略図

キーワード 亜酸化窒素，嫌氣的メタン酸化脱窒，脱窒，DHS リアクター，

連絡先〒940-2136 新潟県長岡市上富岡町 1603-1 長岡技術科学大学 水圏土壌環境研究室 TEL 0258-46-6000

3. 実験結果及び考察

3. 1. 窒素消費速度

DHS リアクターの硝酸・亜硝酸消費速度経日変化を図-2 に示す。培養開始直後より DHS リアクターでは硝酸及び亜硝酸の消費が確認されたことから嫌氣的メタン酸化脱窒反応が起きていることが示唆された。運転 41 日目から 52 日目に HRT を 24, 12, 6 時間と短縮した。結果, DHS リアクターの亜硝酸消費速度は HRT12 時間で最大亜硝酸消費速度 (平均 $4.2 \pm 1.4 \text{ g-N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$) を示し, 硝酸消費速度は HRT6 時間で最大硝酸消費速度 (平均 $7.5 \pm 4.8 \text{ g-N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$) を示した。運転 183 日目から硝酸・亜硝酸の両方を基質に添加した。その結果, 亜硝酸消費速度は減少せずに $4.9 \pm 2.1 \text{ g-N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ を示したが, 硝酸消費速度は $1.5 \pm 1.5 \text{ g-N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ と減少する傾向を示した。既報では嫌氣的メタン酸化脱窒微生物は硝酸よりも亜硝酸を電子受容体として優先的に用いることが報告されており³⁾, 本結果も同様に亜硝酸を電子受容体として優先的に使用されたことが考えられた。

3. 2. 亜酸化窒素発生量

硝酸・亜硝酸消費あたりの平均亜酸化窒素発生量を図-3 に示す。運転 83 日目から 200 日目までの硝酸・亜硝酸消費あたりの平均亜酸化窒素発生量は各々 0.0020 ± 0.0020 , 0.0014 ± 0.0013 (%) を示した。下水処理プラントにおける亜酸化窒素の排出量は流入窒素の 0.5 から 2.5 % と報告されており⁴⁾, 本結果から嫌氣的メタン酸化脱窒反応を用いることにより亜酸化窒素の発生を抑制できることが示唆された。運転約 110 日目から 180 日目にかけて, 硝酸・亜硝酸消費あたりの亜酸化窒素発生量は減少する傾向が示唆された。これは該期間において硝酸・亜硝酸消費速度が増大したが, 亜酸化窒素発生量はほぼ一定の値を示したためであると考えられた(図-4)。

4. 結論

本研究では, DHS リアクターを用いて嫌氣的メタン酸化脱窒微生物の集積培養を行い, 窒素除去性の評価と亜酸化窒素発生量を評価した。その結果, HRT6 時間で平均最大硝酸消費速度 $7.5 \pm 4.8 \text{ g-N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ を, HRT12 時間で平均最大亜硝酸消費速度 $4.2 \pm 1.4 \text{ g-N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ を達成した。また, 基質に硝酸・亜硝酸を同時に添加した結果, 硝酸消費速度は減少する傾向を示唆した。

嫌氣的メタン酸化脱窒反応を用いた DHS リアクターの硝酸・亜硝酸消費あたりの亜酸化窒素排出量は各々 0.0020 ± 0.0020 , 0.0014 ± 0.0013 (%) を示した。本結果から嫌氣的メタン酸化脱窒反応を用いることにより亜酸化窒素の発生を抑制できることが示唆された。また, 嫌氣的メタン酸化脱窒反応培養系からの亜酸化窒素発生量は窒素消費に関係なく一定の値を示すことが考えられた。

参考文献

- 1) Ettwing *et al.* (2008) *Environmental Microbiology*, 75, 3656-3662.
- 2) He *et al.* (2015) *Environmental Biotechnology*, 99, 10853-10860.
- 3) Ettwing *et al.* (2010) *Nature*, 64, 543-550.
- 4) Kampschren *et al.* (2009) *Water research*, 43, 409

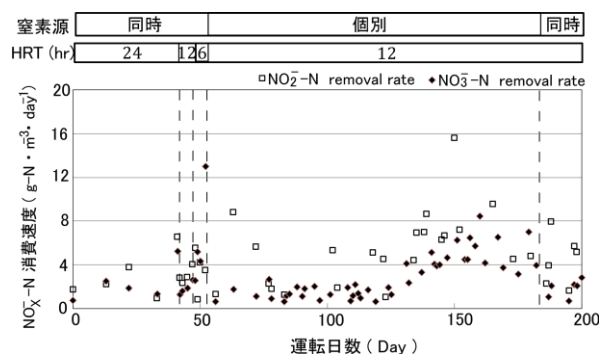


図-2 硝酸・亜硝酸消費速度の経日変化

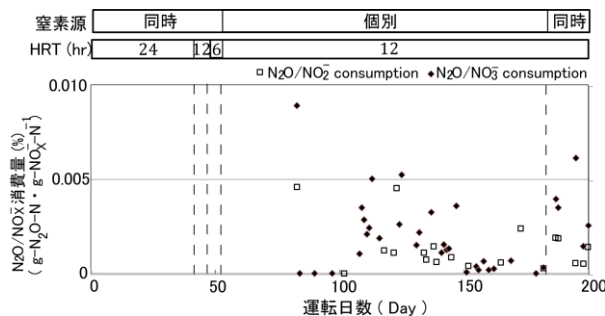


図-3 硝酸・亜硝酸消費あたりの亜酸化窒素発生量の経日変化

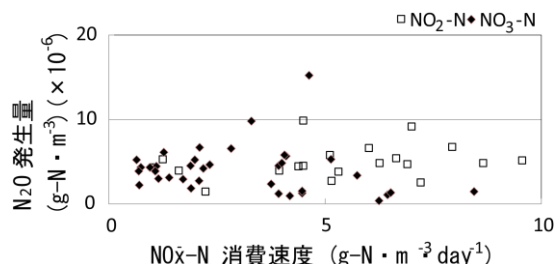


図-4 硝酸・亜硝酸消費速度と亜酸化窒素生成量