

循環型社会形成推進科学研究費補助金 総合研究報告書概要版

- ・研究課題名＝埋立地メタンを利用した温室効果ガス変換型の浸出水処理システムの開発
- ・研究番号 ＝ K 2 1 3 7、K 2 2 1 0 0

- ・国庫補助金精算所要額（円）＝10,673,000（総計）

- ・研究期間（西暦）＝2009～2010

- ・代表研究者名＝ 伊藤 司（群馬大学）

- ・共同研究者名＝ 天谷賢児（群馬大学）

・研究目的（400字）＝ 埋立地ガスの主成分の1つであるメタンは温室効果ガス排出の観点から発生抑制が必要であるが、日本の準好気性埋立地から発生するメタンは、欧米の嫌気性埋立地に比べて、ガス中のメタン割合が低いため燃焼用には利用し難い。そこで、埋立地メタンを浸出水窒素処理のエネルギー源として有効利用することで、埋立地メタンの排出削減と省エネルギーと低コスト化の両立を目指した新規メタン脱窒リアクターを開発することを目的とする。無酸素条件下でメタンを利用して脱窒反応を行うメタン脱窒反応は、嫌気条件下でメタンを電子供与体として硝酸イオンを窒素ガスへ変換する反応であるが、メタン脱窒反応を用いた処理に関する研究論文は報告されておらず、本研究では、この嫌気性メタン脱窒反応を初めて人為制御下に置いた反応装置を開発する。

・研究方法（800字）＝ 【メタンマイクロバブル発生装置およびこれを組み込んだリアクター開発】 振動多孔板を用いた微細気泡発生リアクターは、バイオリアクター本体、エアポンプ、発振機、オプトニクス精密社製の振動多孔板とアンプからなる（図1）。振動多孔板は、噴孔径4～8 μm、噴孔のピッチ間隔は100～150 μmの千鳥配置である（図2）。エアポンプからの気体は、振動多孔板を通り微細気泡化される。振動は発振機の信号をアンプで増幅して圧電素子に送ることで与えられる。約15種類の構造の異なる振動多孔板に対して発振機の周波数を80～170 kHzの間で変化させ、最も微細な気泡が発生するよう周波数および通気流量を変化させた。振動多孔板は多孔板が1枚のものと2枚が重ねてあるものがあり、2枚重ねのものは上面下面ともに凸があるもの、上面だけ凸部があるもの、2枚とも平面のもの、2枚の多孔板の間に厚さ50 μmのスペーサーメッシュを挟んだものに分けられる。振動多孔板の噴孔にはノズルの向きがあり、上下の多孔板のノズルの向きによっても構造を分類する。多孔板1枚のものは上に凸であり、ノズルが上向きであるが、噴孔の数や配置が異なるものを用いた。リアクターの微細気泡化の性能は、総括酸素移動容量係数 K_La から求めた酸素移動効率 E_A により評価した。 【メタン脱窒微生物の培養とメタン脱窒反応の活性化条件】 嫌気性グラニュールを用いて嫌気性メタン脱窒菌の培養を行った。サンプルの培養は嫌気条件下で行い、気相部分にメタンガス、液相部分に硝酸塩を主要基質とした人工培地を用い、定期的に培地交換する半回分培養により行った。培地の硝酸性窒素濃度は300 mg-N/Lに調整した。培養期間中、気相中のメタンおよび窒素はガスクロマ

トグラフィーにより、液相中の硝酸等はイオンクロマトグラフィーによって測定した。測定結果から、メタン酸化速度、脱窒速度、窒素同化速度を求めた。

・結果と考察（400字）＝ 微細気泡化により多孔板の性能を評価した結果、C10（1枚で孔径8 μm でノズル上向き、多孔板の中心部にのみ孔）の振動多孔板で約40%の高い酸素移動効率を得られた（通常のエアレーションは10~20%）（表1、図3）。また、発生する気泡径を気泡の上昇速度よりストークス式から求めたところ40~50 μm の微細気泡であった。これはマイクロスコープと画像解析による気泡径分布の解析の結果からも確認できた（図4）。マイクロスコープでは約10 μm の微細気泡まで確認できた。高い酸素移動効率は振動多孔板による微細気泡が小さいため泡の上昇速度が遅く、気泡と水の接触時間が長かったためであると考えられる。また、振動を与えていない気泡や散気球の気泡は、気泡径が大きく、上昇速度も速く気泡と水との接触時間が短いため酸素移動効率が振動多孔板の1/2~1/15であった。

嫌気性のメタン脱窒菌の集積培養状況の指標としてメタン酸化速度、脱窒速度を求めた。培養液容積あたりのメタン酸化速度は1.1 mmol/L/day、硝酸減少速度は0.4 mmol/L/dayであった（表2、図5）。これまでの報告例とは逆に亜硝酸は反応を阻害した。pHは8以下、硝酸塩濃度は100~200 mg-N/Lで高い硝酸塩減少活性が得られた。

・結論（400字）＝ 【メタンマイクロバブル発生装置およびこれを組み込んだリアクター開発】 振動多孔板を用いた微細気泡発生装置を組み込んだバイオリアクターの開発に世界で初めて成功した。平均気泡径が約50 μm の安定的な微細化を達成できた。酸素移動効率 E_A は24~41%と高い溶解効率を示した。空気流量はわずか1~3 mL/minであり、極めて低流量のためポンプ等を含めた装置の超小型化が実現できた（1L水槽部分を除くと手のひらサイズ）。 【メタン脱窒微生物の培養とメタン脱窒反応の活性化条件】 開発したリアクターでは連続的にガス供給が行え、ガス粒子の滞留時間が長いため、嫌気状態を維持しやすく、微生物培養が良好に行え、同時に水質モニタリングも容易に行うことができるようになった。培養液容積あたりのメタン酸化速度は1.1 mmol/L/day、硝酸減少速度は0.4 mmol/L/dayであった。これまでの報告例とは逆に亜硝酸は反応を阻害した。pHは8以下、硝酸塩濃度は100~200 mg-N/Lで高い硝酸塩減少活性が得られた。

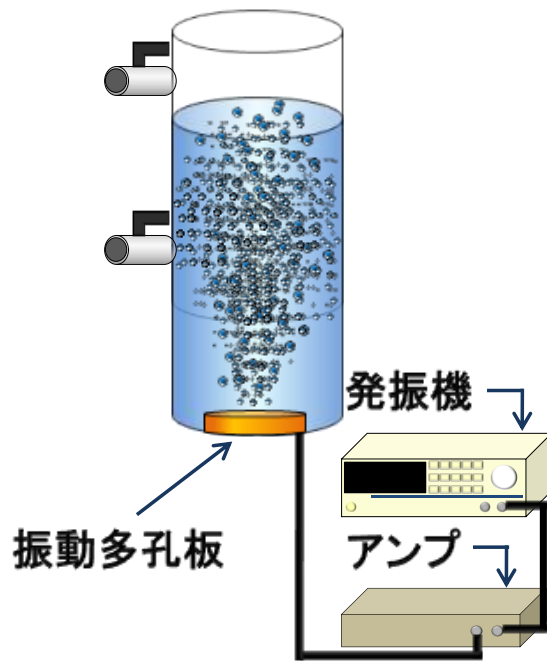


図1 振動多孔板を用いた微細気泡化バイオリアクターの構成

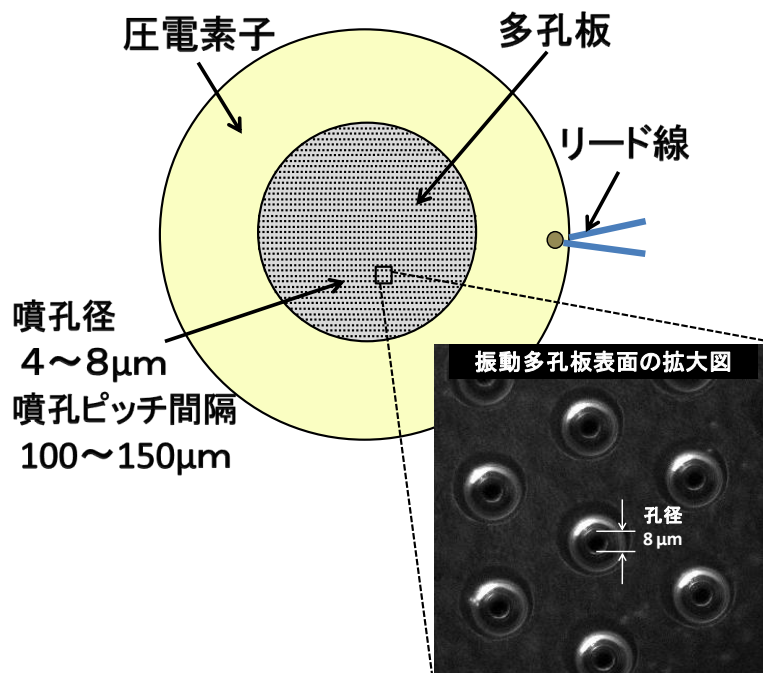


図2 振動多孔板の概要図と多孔板表面の顕微鏡写真

表1 選定した多孔板の断面図、ノズルの向き、孔径、ピッチ間隔

多孔板 NO	断面図	ノズルの向き	孔径	ピッチ間隔
2			8μ m	150μ m
C10			8μ m	150μ m
1列			8μ m	150μ m
BM4			4μ m	140μ m

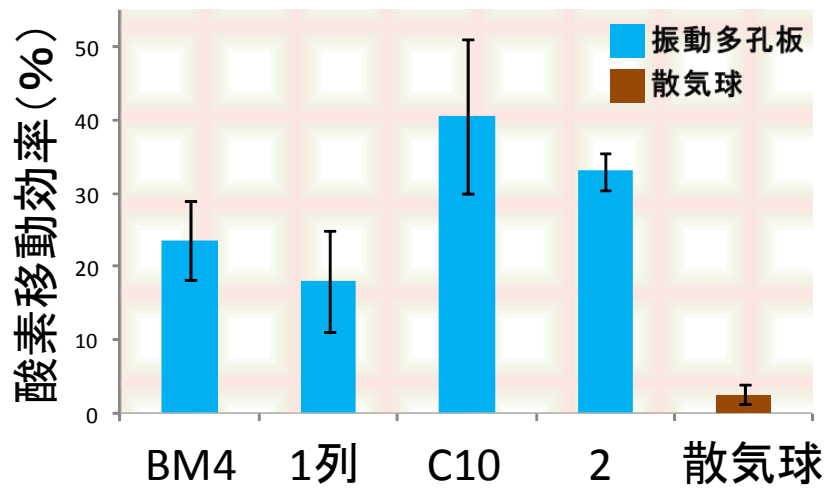


図3 選定した多孔板による微細気泡化で得られた酸素移動効率

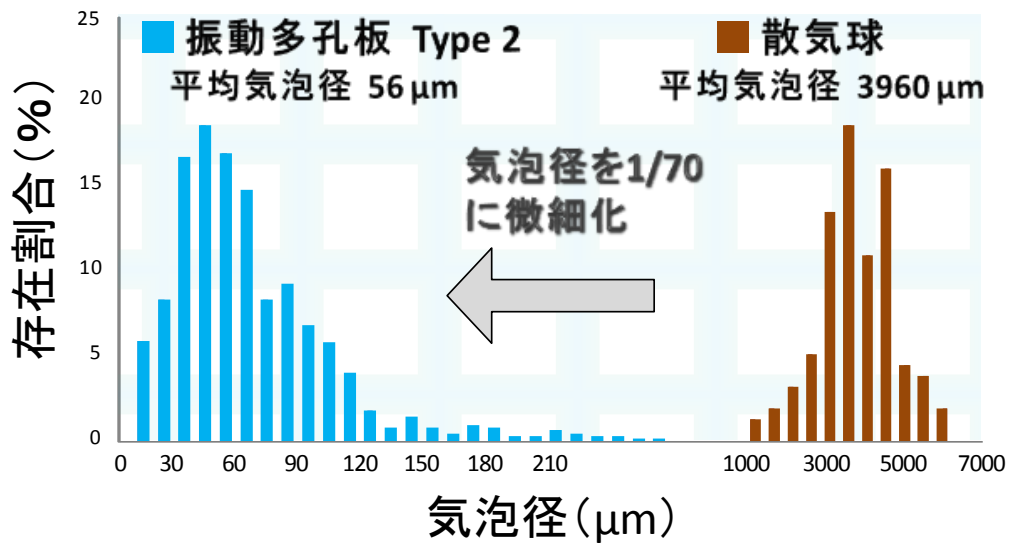


図4 振動多孔板Type 2 で得られた気泡径分布 (青棒)
散気球により得られた気泡径分布 (赤棒、但しスケールが異なる)

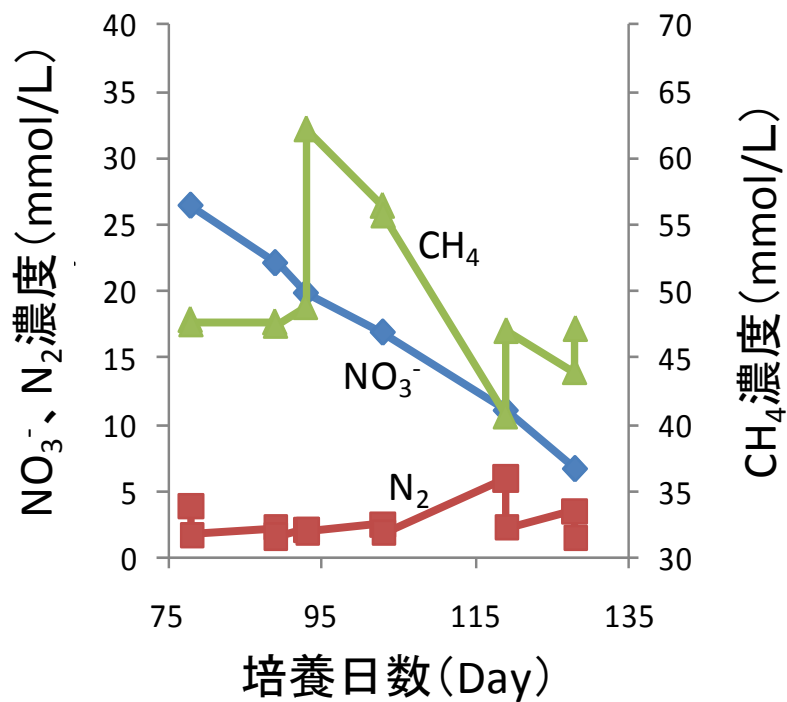
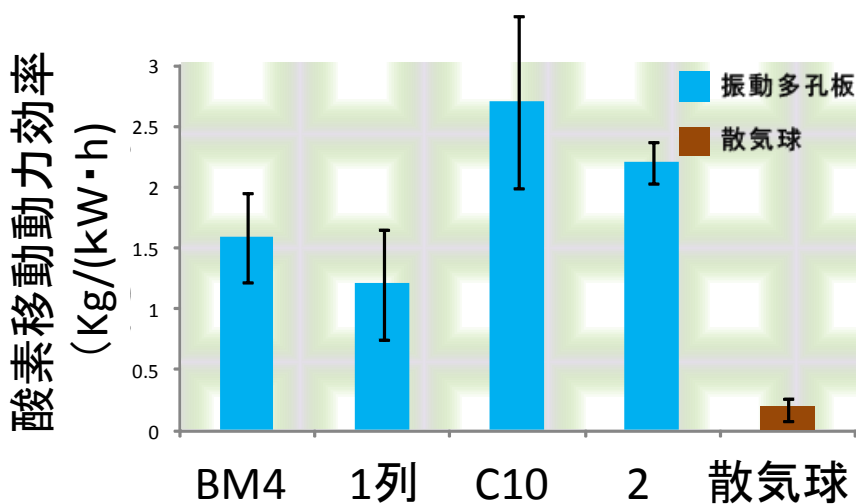


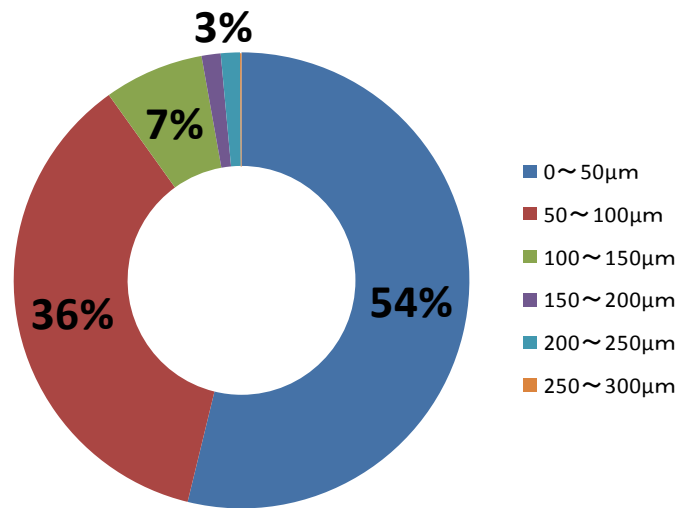
図5 培養系内の硝酸塩、窒素ガス、メタンガスの挙動
 窒素とメタンの濃度は気相中の変化量を培養液中での変化量と仮定して、液体中濃度で表している。このことにより硝酸塩との化学量論的な検討が容易になるためである。

表2 培養系内のメタン酸化速度、硝酸減少速度

メタン酸化速度 (mmol/L/day)	硝酸減少速度 (mmol/L/day)
1.1	0.4

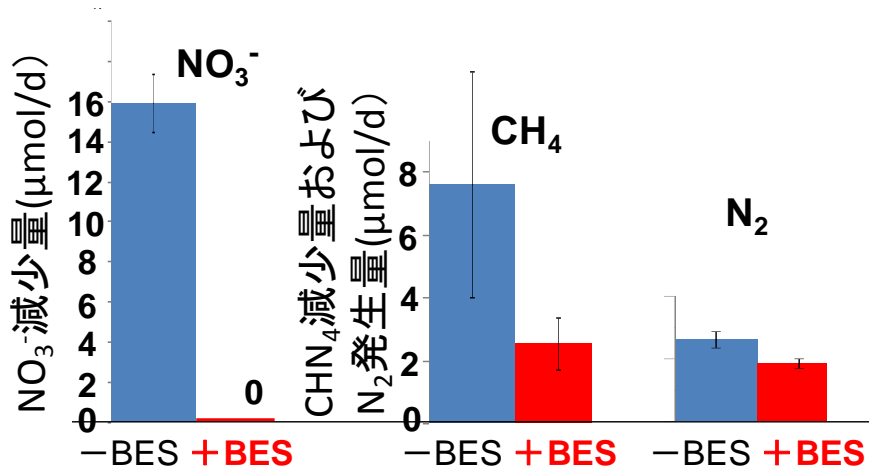


補足図1 選定した多孔板による微細気泡化で得られた酸素移動動力効率
 排水処理施設に用いられる一般的なポンプの酸素移動
 動力効率 (1.5kg/ (kW · h)) より1.8倍程度高い値

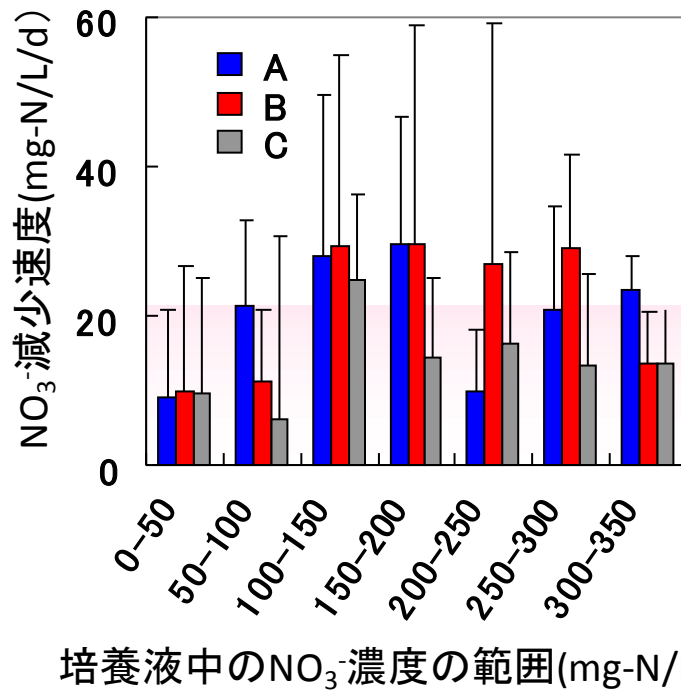


Type 2 気泡粒径分布

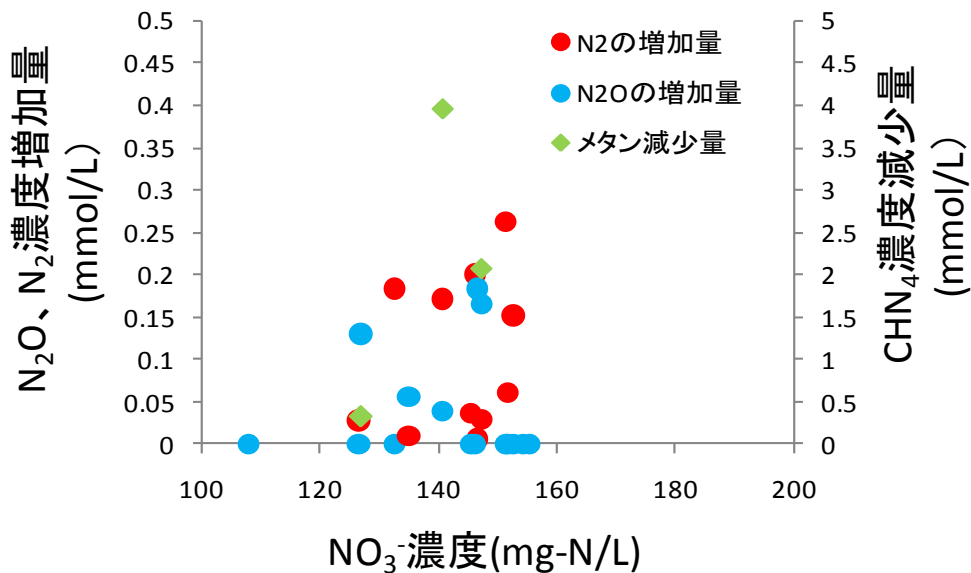
補足図2 振動多孔板Type 2 で得られた気泡径分布
気泡径50 μm以下が50%以上を占める



補足図3 BES (メタン生成阻害剤) による硝酸減少量、メタンの減少量、窒素発生量への影響
BESの添加はNO₃減少、CH₄減少、N₂発生を阻害する傾向が見られたため、メタン脱窒反応に古細菌が関与する可能性が示唆された。



補足図4 硝酸塩濃度範囲ごとの硝酸塩減少速度の分布
 硝酸塩濃度100~200 mg-N/Lで硝酸減少速度が大きい傾向が見られる。



補足図5 培養系内の硝酸性窒素濃度に対する亜酸化窒素増加量と窒素ガス増加量およびメタンガス減少量の関係

窒素とメタンの濃度は気相中の変化量を培養液中での変化量と仮定して、液体中濃度で表している。このことにより硝酸塩との化学量論的な検討が容易になるためである。窒素ガスと亜酸化窒素ガス増加が同時に見られ（図中の亜酸化窒素のほぼゼロに位置している点は実際には検出されていること、検出限界以上であることを示す）、硝酸塩の減少は同化のみではなく、脱窒反応が起こっていることを示す。また、反応系内には有機物がほとんどないがメタンの減少が見られ、メタン脱窒の可能性が示唆される。

英語概要

・研究課題名 = 「A novel leachate treatment system to reduce landfill greenhouse gas emissions by biological denitrification with methane by a novel bioreactor with microbubble generation by an ultrasonic oscillating porous board」

・研究代表者名及び所属 = ITO, Tsukasa (Gunma University)、
AMAGAI, Kenji (Gunma University)

・要旨 (200語以内) = We developed a novel denitrifying reactor for landfill leachate to reduce the emissions of landfill methane. Landfill methane is supplied into the reactor as an electron donor for methane-denitrifying microorganisms. Thus, this cost-effective environmental technology reduces the greenhouse gas emissions from landfill and treats leachate without adding external carbon sources. This project focused on a method development of cultivation technology for methane-denitrifying microorganisms and a system development of a methane supplying technology into the reactor with microbubble generation by an ultrasonic oscillating porous board. Methane oxidation rate and denitification rate of the reactor were 0.2 mmol/L/day and 0.04 mmol/L/day, respectively. Nitrite did not activate but inhibit the reactions. The developed reactor with microbubble generation by an ultrasonic oscillating porous board stably generated microbubbles of approx. 50 μm diameters. Oxygen transfer efficiency (E_A) of the reactor was 24-41% with 1-3 ml/min air flow rates. Thus, the microbubbles generator with pump was scaled down to the hand size. Then, the reactor was operated with methane gas instead of air. The reactor was kept anoxic with methane gas which was supplied into the reactor continuously. Growth of microorganisms attached on the reactor surface was immediately observed after the start-up the reactor with methane.

・キーワード (5語以内) = Reduce greenhouse gas emissions, Denitrification with methane, Microbubble, Ultrasonic Oscillating Porous Board