

# 備蓄原油の生物学的脱窒プロセスに関する研究

菅 谷 和 夫\*

## Study on Biotransformation Process of Crude Oil under Storage

by Kazuo SUGAYA

本論文は、処理のための特別な期間を設けることを必要とせず、常温、常圧の低エネルギー条件下、原油から環境汚染物質の除去が行えると同時に、原油の品質向上も図ることが可能となる備蓄原油タンクを利用する生物学的脱窒プロセスの構築のための工学的検討、すなわち、概念的な計画、設計データの取得から工業規模での実現性の評価にわたる成果を論じている。まず、キノリンを含有窒素化合物のモデル物質として、その分解菌 *Comamonas* sp. TKV3-2-1 の培養特性ならびに原油中のキノリンの分解特性など、新規脱窒プロセス設計の基礎データを提示している。次に、原油備蓄タンクの構造に依存して決まると想定される2つの生物学的脱窒プロセス、すなわち、備蓄タンク外部に設置した槽において脱窒反応を行う外部リアクター方式によるプロセスならびに備蓄タンク内で直接反応を行う内部リアクター方式によるプロセスのそれぞれについて設計操作因子を解明するとともに、提案した2つの脱窒プロセスそれぞれの実用化を技術的および経済的側面から検討、考察した成果をまとめている。「備蓄原油の生物学的脱窒プロセスに関する研究」と題する本論文は全6章で構成されており、要旨は以下の通りである。

第1章は緒言であり、本研究の背景を記述するとともに、関連する既往の研究を概観し、本研究の目的を記述した。

第2章では、備蓄原油の生物学的脱窒プロセスの

構築において処理費用の低減のために特に重要となるキノリン分解菌、*Comamonas* sp. TKV3-2-1、の培養生産に関する検討結果について述べた。すなわち、阻害物質と想定されるアンモニアの菌の増殖への影響を最小限にするための培地希釈率の検討、希釈培地を用いたフィード培養および連続培養による脱窒菌、すなわちキノリン分解菌生産について検討を行い、培養液中のアンモニア濃度が700mg/dm<sup>3</sup>を超えないように調整した培地を用いる連続培養を行うことによって、比活性を一定に保ったまま、9g/dm<sup>3</sup>の菌体濃度の培養液を継続して得ることができること、また、原油の生物学的キノリン分解プロセスで使用する培養槽容量はフィード培養に用いる槽容量の1/7.5と、その大きさを大幅に低減できることを明らかにした。

第3章では、前章の培養生産で得られた脱窒菌を、備蓄タンクの外部に設置するバイオリアクターに用いる脱窒プロセス、いわゆる外部リアクター方式による原油脱窒プロセスについて検討した。まず、原油中の生物学的脱窒について検討を加え、キノリン分解菌 *Comamonas* sp. TKV3-2-1 は原油中のキノリンを水溶性物質に分解して窒素成分を除去することができ、その分解活性は1週間保持できるという成果を初めて見出した。ついで、本原油脱窒プロセスの構築において重要となる反応操作条件について調べ、キノリン分解反応は原油と菌体懸濁液の混合比率および攪拌回転数に影響され、バイオリアクター

\*新潟大学大学院自然科学研究科大学院生

現在 石川島プラントエンジニアリング㈱

〔新潟大学博士(工学) 平成17年3月23日授与〕

である通気攪拌型ファーメンターにおける脱窒反応では、原油比率が83%の条件下で $2\text{ kW/m}^3$ の比投入動力に相当する攪拌回転数が最適であることを明らかにした。さらに、原油と脱窒後の菌体懸濁液分離方法について検討し、反応後の原油と菌体懸濁液は分離板型遠心分離器で分離できることを確認するとともに、外部リアクター方式による原油中のキノリン分解プロセスは十分構築できるプロセスであることを明らかにした。

第4章では、より低コストでの脱窒処理が可能になると想定される、備蓄タンクそのものを反応場、すなわちバイオリアクターとして直接利用する方式、いわゆる内部リアクター方式による生物学的脱窒プロセスについて検討した。備蓄タンクでは、その設置構造上、生物学的脱窒のための反応温度をコントロールすることは困難であり、設置場所に依存して、微生物にとっては適当ではない低温で反応を行わざるを得ない場合がある。また、備蓄基地は防爆に対する安全対策上、空気を積極的に使用することは好ましくなく、現在の基準では備蓄基地で使用するガス中の酸素濃度には制限が加えられている。まず、反応温度の脱窒速度に及ぼす影響については、キノリンの分解反応は $10^\circ\text{C}$ でも可能であることを示すと同時に、本方式はタンク内温度が一定で $10^\circ\text{C}$ 以下になることがない、地下備蓄方式への適用が有望であることを指摘した。ついで、反応に必要な酸素を供給するためのガス中の酸素濃度は、安全上問

題ない5%以下でもキノリンが分解できることを明らかにした。さらに、備蓄タンクをバイオリアクターとして使用するには、スプレーを使用して、菌体を含む水を備蓄タンク内原油中に循環分散させる方法を採用することで、数ヶ月で脱窒、すなわち100%のキノリンを分解できることを確認した。

第5章では、第3章、第4章で得られた結果を用いて、実際の備蓄原油 $100,000\text{ m}^3$ を生物学的に脱窒処理する2つのプロセスの実現性と経済性について具体的に検討、評価を行った。外部リアクターを用いる脱窒プロセスでは $30\text{ m}^3$ の培養槽と容量 $250\text{ m}^3$ のバイオリアクターが必要であること、一方、備蓄タンクをバイオリアクターとして使用する脱窒プロセスの場合は容量 $60\text{ m}^3$ の培養槽が必要であることをそれぞれ明らかにした。同時に、これらの培養槽ならびにバイオリアクターは、既存のバイオプロセスで使用されている一般的な仕様であり、問題なく製作できることも指摘した。また、両プロセスでの処理コストは $1\text{ m}^3$ 当たり $2,000$ 円台であり、 $1\text{ m}^3$ 当たり $20,000$ 円台である現状の原油価格を考慮すれば十分に実現可能なプロセスであることを明らかにした。

第6章は総括であり、本研究で得られた知見をまとめるとともに、今後の展開について述べた。

終わりに、指導を賜った大川 輝教授に謝意を表します。