

令和 2 年 5 月 25 日現在

機関番号：13301

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2018～2019

課題番号：18K19874

研究課題名(和文)2流路1槽型新規アナモックスリアクターによるアンモニア排水の処理

研究課題名(英文)Nitrogen removal by a 2 inflow nitritation/anammox reactor

研究代表者

池本 良子(Yamamoto-Ikemoto, Ryoko)

金沢大学・地球社会基盤学系・教授

研究者番号：40159223

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,800,000円

研究成果の概要(和文)：2流路1槽型アナモックスリアクターを提案し、繊維フィルターとスポンジを生物付着短担体として実験的検討を行った。まず、アナモックス微生物を集積した後、AOBを集積したスポンジ担体を投入した場合、窒素除去率(NRR)の増加は認められなかった。一方、AOBスポンジを添加した後、基質中の亜硝酸濃度を段階的に下げる方法で立ち上げた場合、NRRは既報の値の範囲内である0.5kgN/m³dayに達した。微生物叢解析の結果、前者で立ち上げたリアクターではAOBの存在量が少なかったのに対し、後者ではフィルター表面のAOBが増加した。NRRの増加のために、炭素繊維シートを検討したが、有効性は認められなかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

2流路1槽型アナモックスリアクターを提案し、繊維フィルターとスポンジを担体として実験的検討を行った。アナモックス微生物を集積した後、AOBを集積したスポンジ担体を投入した場合、窒素除去率(NRR)の増加は認められなかった。一方、AOBスポンジを添加した後、基質中の亜硝酸濃度を段階的に下げる方法で立ち上げた場合、NRRは既報の値の範囲内の0.5kgN/m³・dayに達した。微生物叢解析の結果、前者で立ち上げたリアクターでは、AOBの存在量が少なかったのに対し、後者では、フィルター表面のAOBが増加した。NRRの増加のために、炭素繊維シートを用いて再実験したが、有効性は認められなかった。

研究成果の概要(英文)：A new nitritation/anammox reactor was proposed and the reactor performance was examined using a laboratory scale reactor equipped with a fiber filter and a sponge. The substrate was added to inner of the filter (Line 1) and bottom of the reactor (Line 2). Two kinds of start-up procedures were compared. When the reactor was operated using ammonium and nitrite, then the AOB rich sponge was added, the nitrogen removal rate (NRR) did not increase. On the other hand, when the nitrite concentration was decreased step by step after addition of AOB rich sponge, NRR was reached to 0.5 kgN/m³.day, which was in the range of previous research. The results of microbial community analysis showed that the abundance of AOB was lower than the abundance of anammox in Run 1, and Run 2 during the start-up period. On the other hand, the abundance of AOB in the biofilm attached on the filter increased in Run 2. Although a new filter made by a carbon fiber sheet was examined, NRR did not increase.

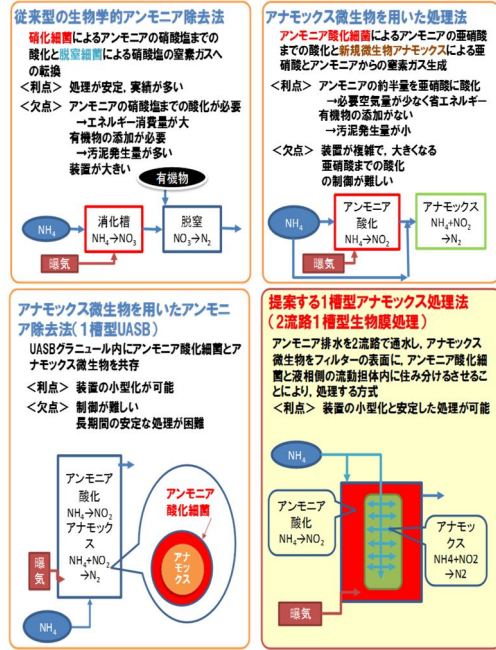
研究分野：環境工学

キーワード：アナモックスリアクター 2流路1槽型 窒素除去速度 アンモニア酸化細菌 アナモックス細菌

1. 研究開始当初の背景

閉鎖水域の富栄養化防止のみならず、公共用水域の水質保全のためには、下排水処理における窒素除去はきわめて重要な課題である。従来型の硝化脱窒に基づく窒素除去法では、アンモニアを硝酸にまで酸化する必要があるために、曝気に要するエネルギーが大きい、有機物が不足する場合にはその添加が必要である、大量の余剰汚泥が発生するといった欠点があった。近年、亜硝酸とアンモニアにより直接窒素ガスを生成することのできる嫌氣的アンモニア酸化微生物(アナモックス微生物: ANAMMOX)が発見され、本微生物を利用することにより、従来型の硝化脱窒と比較するときわめて省エネルギーなアンモニア排水の処理が可能であるために、その開発が急速に進んでいる。

ANAMMOX をアンモニア排水処理に応用するためには、アンモニアの一部を亜硝酸にまで酸化するプロセスが必要であり、これらをそれぞれ別々の槽を用いて行う2槽型の処理法と、アンモニア酸化細菌(AOB)とANAMMOXを同一反応槽に共存させて処理する1槽型の処理法が提案されている。これまで1槽型装置としてUASB装置固定床を用いてグラニュールや生物膜の表面にAOBを、内部にAMOを集積する方法が提案されているが、操作因子がエアレーションのみであることから、長期にわたる安定した処理が困難であり、1槽で処理可能なアナモックスリアクターの開発が望まれている。



2. 研究の目的

本研究では、ANAMMOXの付着担体として過用の荒いフィルターを用い、その内側と、フィルターの外側の曝気反応槽の二つの流路から排水を供給2流路1槽型というこれまでにない新しいリアクターを開発することを目的とする

3. 研究の方法

図-1に示す実験装置を2系列作成し、表1に示す方法で、運転を行った。装置は、透明アクリル製の箱型で、底部は角錐型になっている。装置中央部に円筒型のプラスチック製ろ材を設置し、種汚泥として、研究室で培養を行っているANAMMOXグラニュールを装置に投入した。期間Iでは培養時と同様の基質を、流路1から円筒担体内部に添加した。期間IIでは流路1から亜硝酸を、装置底部の流路2から硝酸を添加し、両濃度を500mg/Lまで段階的に増加させた、別に、活性汚泥を種汚泥として、スポンジ担体を用いて亜硝酸化を行い、担体にAOBを集積した。期間IIIではAOBが増殖したスポンジ担体を本装置に投入し、両流路からアンモニア基質を供給するとともに、弱い曝気を開始した。槽内DOが0.15-0.2mg/Lになるように、空気量を調整した。期間IVでは、滞留時間を12時間に短縮した。Run2では、期間Iは同様に、ANAMMOXグラニュールの担体への付着を目指して、流路1からANAMMOX用の基質を添加した。期間IIでは、AOBが付着したスポンジを槽内に投入し、曝気を開始した。基質中の亜硝酸塩濃度を段階的に低下させるとともに、アンモニア濃度を段階的に増加して、ANAMMOXとAOBの共存を目指した。期間IVでは、Run2と同様に、滞留時間を短縮した。

流入水および流出水を週1回の頻度で採取し、水質分析を行うとともに、16SrRNA遺伝子を標的とした菌叢解析をMiseqにより行った。

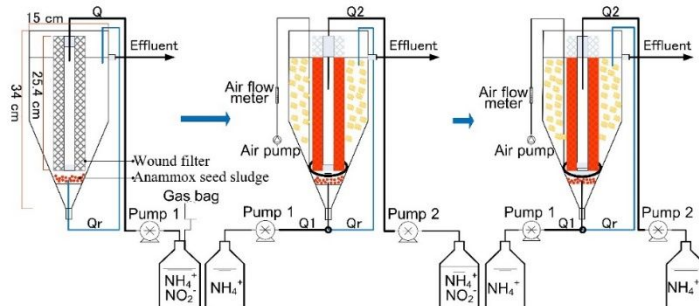


図-1 実験装置の概要

表-1 運転条件

Run	Period No	Time (d)	HRT (h)	Airflow rate (L/min)	Nitrogen concentrations in each medium (mg - N/L)						NLR (kg-N /m ³ ·d)
					Line 1		Line 2		Average		
					NH ₄ ⁺	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂ ⁻	
1	I	0-53	24	-	100	100	-	-	100	100	0.20
	II	54-270	24	-	0	200-500	300-500	0	100-250	150-250	0.25-0.50
	III	271-390	24	0.15-0.20	500	0	500	0	500	0	0.50
	IV	391-430	12	0.20	500	0	500	0	500	0	1.00
	V	431-497	12	0.10	400	0	400	0	310	40	0.80
2	I	0-53	24	-	100	100	-	-	100	100	0.20
	II	54-270	24	0.18	0	100-0	300-400	0	150-200	50-0	0.2
	III	271-390	24	0.20	0	500	500	0	500	0	0.50
	IV	391-430	12	0.20	0	500	500	0	500	0	1.00
	V	431-497	12	0.2	0	400	400	0	500	0	0.80

4. 研究成果

Run 1 では、期間 2 において、アナモックス反応が両論的に進行した。フィルター表面に ANAMMOX 細菌特有の赤褐色の生物膜が形成されていることが、観察された。期間 III において、AOB を添加して曝気を開始すると、アンモニアの低下が認められ、亜硝酸や硝酸の蓄積はほとんど認められなかった。期間 IV において、滞留時間を短縮することにより高負荷としたが、除去率の大幅な低下は認められず、窒素除去速度 (NRR) はやや増加したものの、0.1 kgN/m³·day 以下と低い値を示した。一方、Run 2 では、期間 II において、AOB を添加して、曝気を開始、段階的に亜硝酸濃度を減少させることにより、部分硝化とアナモックス反応が同時に進行した。アンモニア除去率は Run 2 よりも高く、滞留時間を増加した期間 IV において、窒素除去速度 0.5kgN/m³·day を達成した。これは、一般的に高濃度アンモニア排水を対象とした 1 槽型アナモックスリアクターの窒素除去速度の範囲内であった。

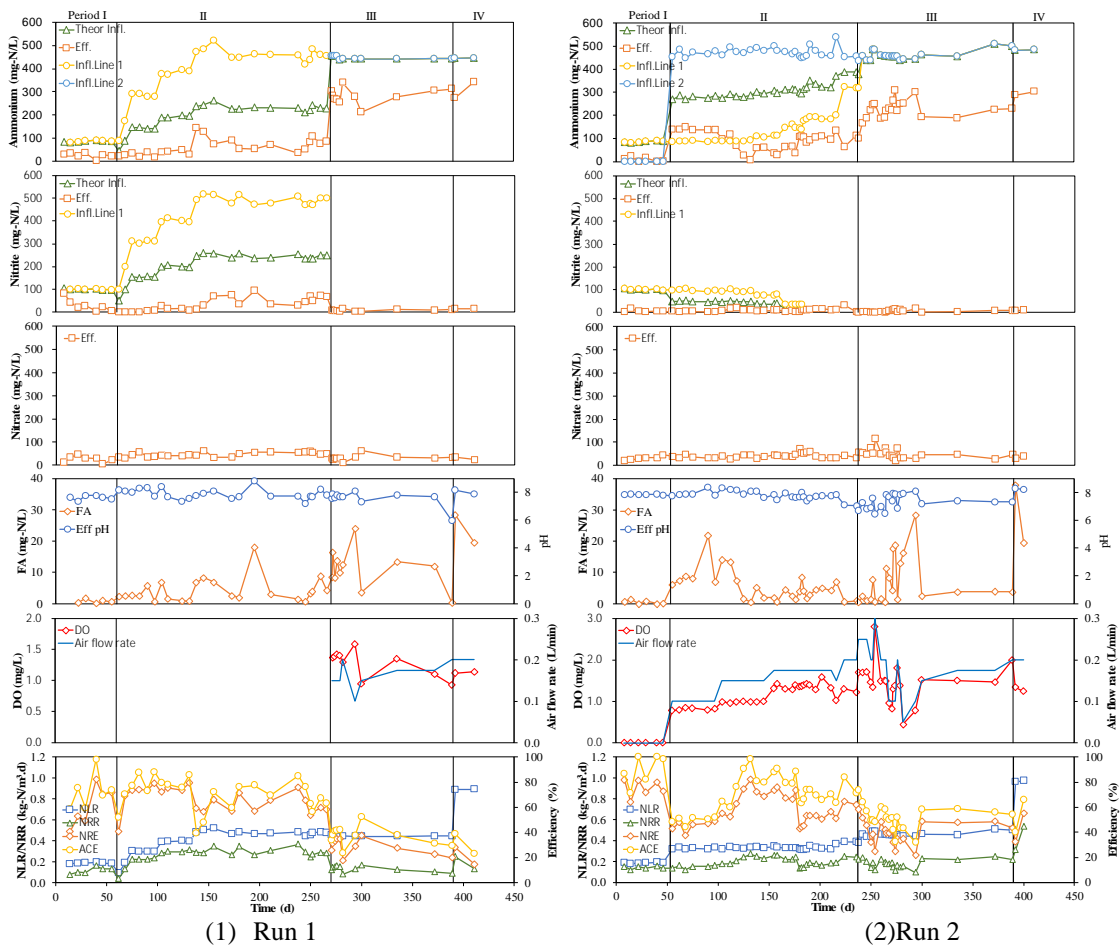


図-2 水質および除去速度の経日変化

図-3は、種汚泥として用いた ANAMMOX グラニュールおよび、スポンジ担体の生物膜と、リアクター内の生物膜の微生物の門レベルでの解析結果を示している。アナモックスグラニュールでは、Planctomycetes 門および Chlorobi 門、Proteobacteria 門で 90%以上を占めた。スポンジでは、Proteobacteria 門が優占的であった。一方、培養後のリアクター内には、Planctomycetes 門と Chkloroblexi 門および Chlorobi 門が多く検出された。

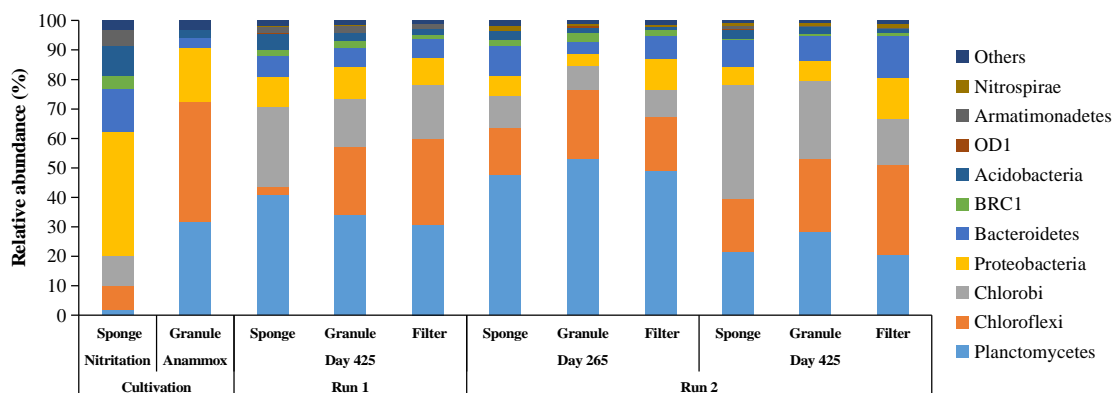


図-3 門レベルでの微生物叢解析結果

図-4、図-5は、属レベルの解析結果を微生物の機能ごとにまとめて示したものである。種汚泥の ANAMMOX グラニュール中の ANAMMOX 細菌、*Candidatus Brocadia* の割合は 25%程度であり、従属栄養性の脱窒細菌も 20%弱検出されている。長期の培養により、微生物の増殖が進み、脱窒細菌が共存していたと考えられる。一方スポンジ担体中は AOB である *Nitrospira* が 30%以上を占めていた。Run 1 では、図-4 に示すように、担体に付着した生物膜にも、スポンジ担体にも ANAMMOX が優占化し、AOB の割合は低かった。AOB の割合が低かったことが、窒素除去率が低い要因であったと考えられる。

一方、Run 2 では、期間 II においては、Run 1 と同様に、どの生物膜中にも ANAMMOX 細菌が優占化していた。期間 IV においてはフィルターやグラニュール中の AOB の割合が増加した。これは、ANAMMOX と AOB のフィルター素材への親和性が異なったため、もしくは、装置が小型であったことから、曝気が偏り、フィルター表面の方が、リアクター底部よりも好気的になったためと考えられる。また、脱窒細菌や NOB の増殖はほとんど認められなかった。当初に期待していたすみわけとは異なるものの、ANAMMOX と AOB をそれぞれ適所に住み分けることにより、安定した窒素除去が行われたと推定される。

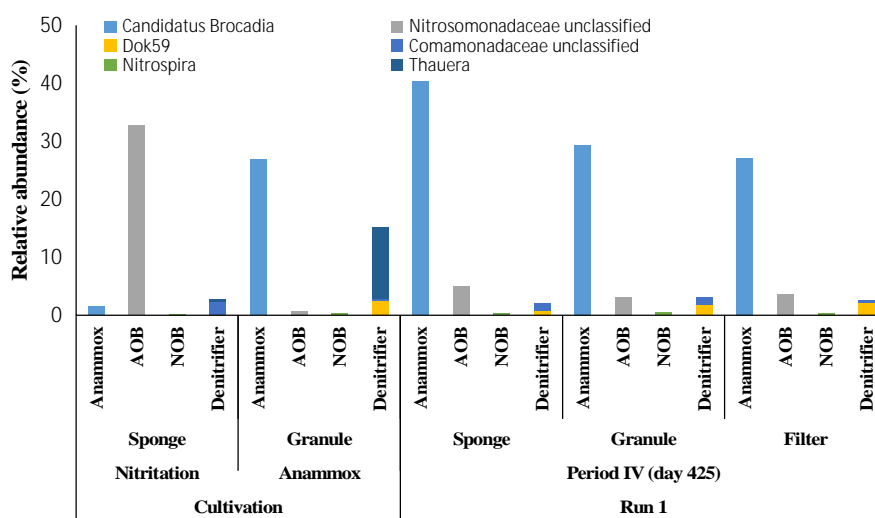


図-4 微生物の機能別の属レベルでの存在割合 (Run 1)

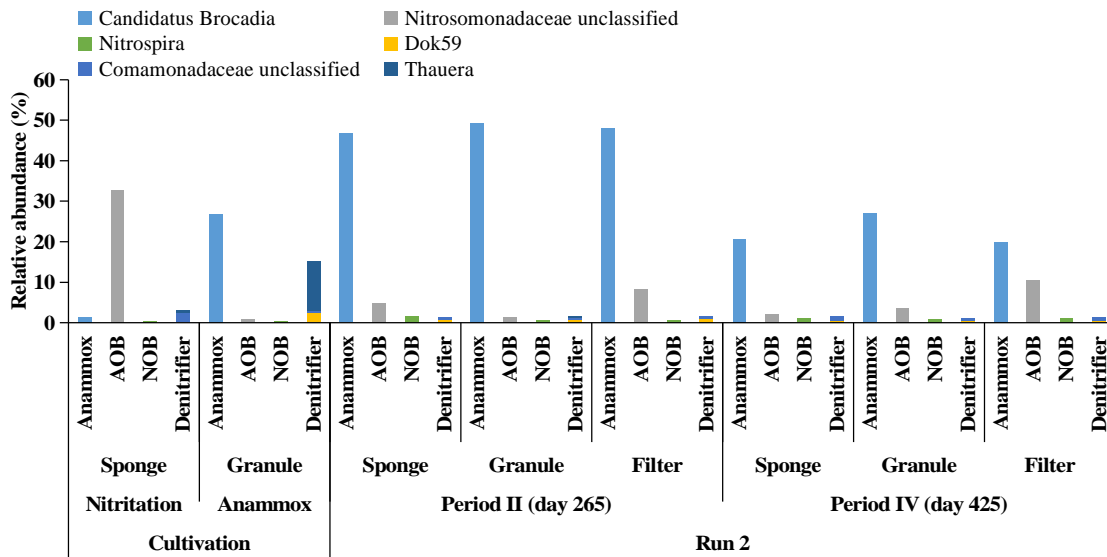


図-5 微生物の機能別の属レベルでの存在割合 (Run 2)

5. まとめと今後の課題

提案した2流路1槽型のアナモックスリアクターでは、担体ごとに異なる微生物叢が形成され、安定した窒素除去が可能であることが示されたが、窒素除去速度を従来法よりも向上させることはできなかった。

そこで、炭素繊維シートで自作した円筒型フィルターを用いて、同様の実験を行ったが、炭素繊維シートの微生物付着性が悪く、アナモックス微生物を集積することはできなかった。しかし、その過程で、AOBが炭素繊維気相部や表面で増殖すること示唆されたことから、微生物付着能の高いムカデ型の炭素繊維をリアクター上部から懸垂する、無曝気槽型アナモックスリアクターを考案し、現在実験的検討を行っているところである。

5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Zulkarnaini, Qin Yujie, Ryoko Yamamoto-Ikemoto, Norihisa Matsuura	4. 巻 16
2. 論文標題 One-Stage Nitrification/Anammox Process Using a Biofilm Reactor with Two-Inflow	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Water and Environment	6. 最初と最後の頁 106-114
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.2965/jwet.17-050	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	本多 了 (Ryo Honda) (40422456)	金沢大学・地球社会基盤学系・准教授 (13301)	
研究分担者	松浦 哲久 (Norihisa Matsuura) (90771585)	金沢大学・地球社会基盤学系・助教 (13301)	