

令和 5 年 5 月 22 日現在

機関番号：53301

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2022

課題番号：18K13861

研究課題名(和文) 硫黄サイクル、鉄サイクルおよびANAMMOXを活用した酪農排水の新規処理法の開発

研究課題名(英文) Novel wastewater treatment process based on sulfur cycle and anammox reaction

研究代表者

小杉 優佳 (kosugi, yuka)

石川工業高等専門学校・環境都市工学科・助教

研究者番号：70804821

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：排水の窒素除去法として硝化脱窒法が広く利用されているが、硝化のためのエネルギー消費が大きいなどの課題がある。本研究では、有機性排水の新規窒素除去法として、硫黄サイクルを活用した処理法にANAMMOXを組み込んだSRDAPNプロセスを提案する。低濃度である都市下水では、有機物除去率97%、窒素除去率76%を達成した。汚泥生成量は極めて少なく、省エネルギーな処理方法であることが確認された。高濃度の酪農排水への適用性を検討した結果、嫌気槽では硫酸塩還元が主に進行し、無酸素槽ではANAMMOX細菌により窒素が除去された。本プロセスは、窒素除去率が高く省エネルギーな処理方法であることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、ANAMMOXを排水処理のメインフローに活用する点が特徴である。さらに、硫酸塩還元細菌と硫黄脱窒細菌による硫黄サイクルと組み合わせる点が独創的である。これらの細菌の共存系に着目し窒素除去率の向上を目指す。本処理法は、従来の酪農排水処理と比較してきわめて省エネルギーな方法であり、窒素除去率も高いことから、実用化されれば今後の酪農排水対策として有効である。

研究成果の概要(英文)：Nitrification-denitrification process is the most widely used for nitrogen removal in wastewater. However, this process has some disadvantages, such as high energy consumption for air supply in the nitrification step, the need for addition of organic matter for denitrification, and high sludge generation. Therefore, development of an energy saving nitrogen removal process is expected. The purpose of this study is to develop the new nitrogen removal SRDAPN process using sulfur cycle and anammox reaction to treat municipal wastewater and dairy wastewater.

High organic and nitrogen removal efficiency were achieved in this process. Microbial community analysis showed that sulfate reducing bacteria and methanogens coexisted in the anaerobic column. In the anoxic column, anammox bacteria were coexisting with heterotrophic denitrifying bacteria and sulfur denitrifying bacteria. These results indicated that SRDAPN process was useful as energy saving nitrogen removal process.

研究分野：水環境工学

キーワード：窒素除去 ANAMMOX 酪農排水

## 1. 研究開始当初の背景

水環境における富栄養化は、排水中に含まれる窒素や処理水に残存した窒素が閉鎖性水域に流入することで、水質や水生生物に悪影響を及ぼす。水環境を改善するためには、排水中の窒素を除去する必要があり、窒素除去法として硝化脱窒法が広く利用されている。しかしながら、本処理法では、硝化のためのエネルギー消費が大きく、脱窒のために有機物添加が必要、汚泥生成量が多いことなどの課題があげられる。したがって、排水処理には省エネルギーな窒素除去法の開発が期待されている。

近年、硫酸塩還元反応と硫黄脱窒反応を組み合わせた硫黄サイクルを活用した処理法として、sulfate reduction, sulfur denitrification and nitrification (SRDN) プロセス(図 1)<sup>1)</sup>や sulfate reduction, autotrophic denitrification, and nitrification integrated (SANI) プロセス<sup>2)</sup>が提案されている。SRDN プロセスは、嫌気・無酸素・好気槽で構成されており、硫黄顆粒の蓄積により安定した窒素除去が確保され、嫌気槽での硫酸塩還元反応によって汚泥生成量が抑制される省エネルギーな処理法である。一方、窒素除去法として、アンモニアと亜硝酸から直接窒素ガスを生成するANAMMOX(anaerobic ammonium oxidation)細菌が近年注目されている。このANAMMOX 反応は、高濃度なアンモニア排水への処理法として期待されており、有機物が不要であるためエネルギー消費は従来の脱窒プロセスと比較して低いことが予想される。

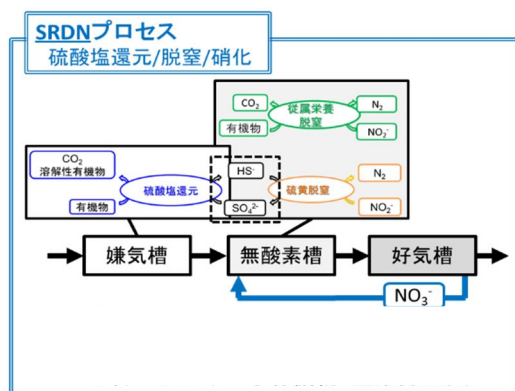


図 1 SRDN プロセスフロー

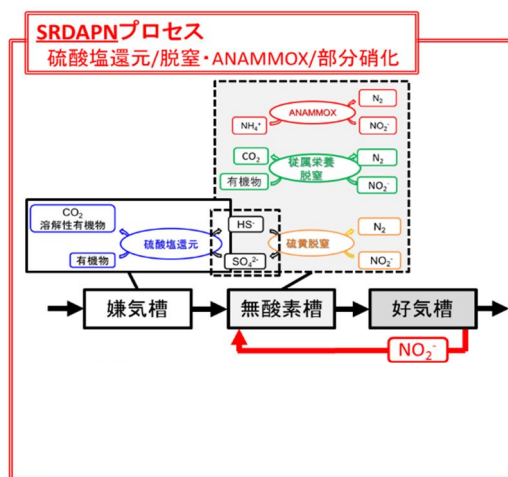


図 2 SRDAPN プロセスフロー

## 2. 研究の目的

本研究では、有機性排水の新規窒素除去法として、硫黄サイクルを活用した処理法にANAMMOX 反応を組み込んだ「Sulfate reduction, Denitrification/Anammox and Partial Nitrification (SRDAPN) プロセス」を提案する。本処理法は、嫌気-無酸素-好気部から構成されており、嫌気部では硫酸塩還元反応により有機物除去と汚泥生成量の抑制、好気部では部分硝化により曝気エネルギーの削減、無酸素部ではANAMMOX 反応による窒素除去率の向上が期待できる。新しいSRDAPN プロセスの適用性を検討するため、下水のような低濃度排水および酪農排水のような高濃度排水を用いた連続処理実験と菌叢解析を行い、処理性能を評価した。

### 3. 研究の方法

#### (1) SRDAPN プロセスの無酸素槽内の窒素フローと微生物叢<sup>3)</sup>

装置は嫌気槽と無酸素槽を組み合わせ、槽内には担体として炭素繊維を充填した。都市下水を模擬した人工下水を嫌気槽下部から連続的に添加し、続く、無酸素槽には好気槽からの模擬返流水を添加した。Run 1 では、SRDN プロセスを想定して硝酸塩を、Run 2 では SRDAPN プロセスを想定して亜硝酸塩をそれぞれ模擬返流水として用いた。模擬返流水の流量は、流入流量の 1/10 に調整し、滞留時間は嫌気槽 1.5 時間、無酸素槽 3.0 時間とした。槽内の水温は、18-22°C で運転を行った。週 1 回、各槽の流入水と流出水を採取し、水質分析を行った。運転終了後、無酸素槽から生物膜を採取し、Miseq による菌叢解析を行った。

#### (2) SRDAPN プロセスの処理性能<sup>4)</sup>

(1) で使用した嫌気無酸素槽の後段に好気槽を設置し、スポンジ担体(1cm<sup>3</sup>)を充填した。装置全体の滞留時間は 11.7 時間に設定した。運転期間中の水温は、18-22°C に保った。Period 1 および 2 では、好気槽を十分曝気し、流入流量に対する好気槽からの循環率を、Period 1 では 2Q に、Period 2 および 3 では 3Q に設定した。Period 3 では、好気槽で部分硝化反応を促進するために空気を抑制した。週 1 回、各槽の流入水と流出水を採取し、水質分析を行うとともに、運転終了後、嫌気槽および無酸素槽内の生物膜を採取し、菌叢解析を行った。

#### (3) SRDAPN プロセスの酪農排水処理への適用<sup>5)</sup>

嫌気槽と無酸素槽を組み合わせ、槽内には担体として炭素繊維を充填した。嫌気槽には模擬酪農排水を下部から流入させた。無酸素槽には嫌気槽からの流出水と好気槽から部分硝化を仮定した亜硝酸塩を下部から流入させた。装置は有機物負荷(Run 1, 2 : 2.7kg, Run 3 : 5.3 kg, Run 4 : 6.3kg)と温度(Run 1, 2 : 20°C, Run 3, 4 : 25 °C)条件をそれぞれ変えて運転した。週 1 回、各槽の流入水と流出水を採取し、水質分析を行った。期間中に各槽から微生物を採取し、菌叢解析を行った。

### 4. 研究成果

#### (1) SRDAPN プロセスの無酸素槽内の窒素フローと微生物叢

硝酸塩を添加した無酸素槽では、従属栄養脱窒反応と硫黄脱窒反応が進行し、これらの脱窒細菌が検出された。亜硝酸塩を添加した無酸素槽では、脱窒反応に加えて ANAMMOX 反応が進行し、除去された亜硝酸塩の 32% が ANAMMOX 反応によって消費された。槽内には、従属栄養脱窒細菌、硫黄脱窒細菌に加えて、ANAMMOX 細菌の共存が確認された。この結果は、SRDAPN プロセスが都市下水のような低濃度排水処理へ適用可能であることを示している。

## (2) SRDAPN プロセスの処理性能

好気槽からの循環率を3QとしてSRDAPNプロセスの運転を行った結果、有機物除去率97%、窒素除去率76%を達成した。嫌気槽では、有機物のほとんどが除去され、硫酸塩還元細菌と酢酸資化性のメタン菌が共存していた。無酸素槽では、流入した亜硝酸塩は脱窒反応とANAMMOX反応によって除去された。除去された窒素のうち、ANAMMOX反応が24.3%を担っていた。槽内には、脱窒細菌とANAMMOX細菌(17.0-18.1%)の共存が確認された。SRDAPNプロセスは、運転期間中に汚泥の引き抜きも必要なく、省エネルギーな有機物および窒素除去プロセスとして有用であることを示した。

## (3) SRDAPN プロセスの酪農排水処理への適用

高濃度の酪農排水を対象にした場合においても、下水を用いた場合と同様の反応がみられ、嫌気槽では硫酸塩還元細菌とメタン菌、無酸素槽では脱窒細菌とANAMMOX細菌の共存が確認できた。嫌気槽で十分に有機物を除去し、無酸素槽の有機物負荷を $0.5\text{kgC}/\text{m}^3\cdot\text{day}$ 以下に抑えることにより、高いアンモニア除去率を得ることができた。アンモニア除去率33%の時に、無酸素槽上部において、ANAMMOX細菌が9.6%検出された。運転期間中に装置からの汚泥の引き抜きは必要なく、高濃度な有機物および硫酸塩を含む排水においてもANAMMOX細菌の共存が可能であり、SRDAPNプロセスが適用可能であることを示した。

## 5. まとめ

硫黄サイクルとANAMMOX反応を活用したSRDAPNプロセスは、有機物および窒素除去率が高く、汚泥生成量の少ない省エネルギーな有機物・窒素除去法であることを示した。無酸素槽内では、ANAMMOX細菌は他の脱窒細菌と共存し、窒素除去率の向上に期待できる。これまでのSRDNプロセスやSANIプロセスと比較しても、省エネルギーな処理法であることが明らかとなった。さらに、酪農排水のような高濃度排水への処理法としても適用可能であることを示した。

## 参考文献

- 1) Yamamoto-Ikemoto, R., Komori, T., 2003. Effects of C/N, C/S and S/N ratios on TOC and nitrogen removal in the sulfate reduction-sulfur denitrification process. *Journal of Water and Environment Technology* 1(1), 7-12.
- 2) Tsang, W. L., Wang, J., Lu, H., Li, S., Chen, G. H., van Loosdrecht, M., 2009. A novel sludge minimized biological nitrogen removal process for saline sewage treatment. *Water Science and Technology* 59(10), 1893-1899.
- 3) Kosugi, Y., Matsuura, N., Liang, Q., Yamamoto-Ikemoto, R., 2019. Nitrogen flow and microbial community in the anoxic reactor of "Sulfate Reduction, Denitrification/Anammox and Partial Nitrification" process. *Biochemical Engineering Journal* 151, 107304.
- 4) Kosugi, Y., Matsuura, N., Liang, Q., & Yamamoto-Ikemoto, R., 2020. Wastewater treatment using the "sulfate reduction, denitrification/anammox, and partial nitrification (SRDAPN)" process. *Chemosphere* 256, 127092.
- 5) Kosugi, Y., Matsuura, N., Honda, R., Yamashita, T., Yamamoto-Ikemoto, R., 2022. Effects of organic carbon and sulfide on the anammox reaction in the anoxic column in the SRDAPN process for treating high-strength wastewater. *Journal of Environmental Management* 307, 114459.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kosugi Yuka, Matsuura Norihisa, Honda Ryo, Yamashita Takahiro, Yamamoto-Ikemoto Ryoko	4. 巻 307
2. 論文標題 Effects of organic carbon and sulfide on the anammox reaction in the anoxic column in the SRDAPN process for treating high-strength wastewater	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Management	6. 最初と最後の頁 114459 ~ 114459
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jenvman.2022.114459	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kosugi Yuka, Matsuura Norihisa, Liang Qiaochu, Yamamoto-Ikemoto Ryoko	4. 巻 256
2. 論文標題 Wastewater Treatment using the “Sulfate Reduction, Denitrification/Anammox and Partial Nitrification (SRDAPN)” Process	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 127092
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.chemosphere.2020.127092	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kosugi, Y., Matsuura, N., Liang, Q., & Yamamoto-Ikemoto, R.	4. 巻 151
2. 論文標題 Nitrogen flow and microbial community in the anoxic reactor of “Sulfate Reduction, Denitrification/Anammox and Partial Nitrification” process	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Biochemical Engineering Journal	6. 最初と最後の頁 107304
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.bej.2019.107304	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 小杉優佳
2. 発表標題 硫黄サイクルとANAMMOXを活用したSRDAPNプロセスによる有機物と窒素除去
3. 学会等名 令和2年度日本水環境学会中部支部研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小杉優佳, 松浦哲久, 池本良子
2. 発表標題 硫黄サイクルとANAMMOX反応を活用した排水処理法(SRDAPNプロセス)の酪農排水処理への適用
3. 学会等名 第55回日本水環境学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Satea J. HASAN, Yuka KOSUGI, Norihisa MATSUURA, Ryo HONDA, Ryoko YAMAMOTO-IKEMOTO
2. 発表標題 Dairy Wastewater Treatment by Sulfate Reducton, Denitrification/Anammox and Partial Nitrification (SRDAPN) Process
3. 学会等名 Water and Environment Technology Conference 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuka KOSUGI, Qiachu LIANG, Norihisa MATSUURA, Ryoko YAMAMOTO-IKEMOTO
2. 発表標題 Wastewater Treatment by Sulfate Reduction, Denitrification /Anammox and Partial Nitrification (SRDAPN) Process
3. 学会等名 8th IWA Microbial Ecology and Water Engineering Specialist Conference (MEWE)2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小杉優佳, 松浦哲久, 本多了, 池本良子
2. 発表標題 硫酸塩還元 脱窒/ANAMMOX 部分硝化(SRDAPN)プロセスによる酪農排水処理
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuka Kosugi, Qiaochu Liang, Ryoko Yamamoto-Ikemoto and Norihisa Mastuura
2. 発表標題 Nitrogen Removal and microbial community in Sulfate Reduction, Denitrification/Anammox and Partial Nitrification (SRDAPN)
3. 学会等名 IWA World Water Congress & Exhibition 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小杉優佳, Satea J. HASAN, 松浦哲久, 本多了, 池本良子
2. 発表標題 硫酸塩還元 - 脱窒/ANAMMOX 部分硝化 (SRDAPN) プロセスの酪農排水処理への適用
3. 学会等名 第53回日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

〔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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------