

平成 30 年 5 月 20 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K12615

研究課題名(和文) アナモックスと従属栄養脱窒反応を融合した機能性担体流動床型窒素除去技術の研究

研究課題名(英文) Development of new nitrogen removal technology by fusing anammox and heterotrophic denitrification reaction

研究代表者

北條 俊昌 (Hojo, Toshimasa)

東北大学・工学研究科・助教

研究者番号：10708598

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、アナモックス付着膜膨張床においてアナモックス細菌と従属栄養脱窒細菌の共生による高効率窒素除去技術の開発を試みた。窒素負荷を変化させた長期間の連続実験を行い、窒素負荷や微生物代謝物によるプロセスの安定性、アナモックスグラニュール形成への影響を明らかにし、反応の化学両論式を提案することができた。高負荷条件において、窒素除去率は約88%、最大比アナモックス活性は0.68gN/gVSS/d、アナモックスグラニュールの沈降速度は263.1m/h以上となり、本研究で開発したアナモックス付着膜膨張床は高窒素負荷に適するアナモックスプロセスであることが示された。

研究成果の概要(英文)：The possibility of Anammox attached film expanded bed reactor applied for high nitrogen loading rate is investigated in a continuous experiment. At the high nitrogen loading rate, the TN removal efficiency reached around 88%, and maximum specific Anammox activity showed 0.68 gN/gVSS/d. The Anammox granule formed in the reactor showed very good settleability with a settling velocity over 263.1 m/h. It was revealed that Anammox attached film expanded bed reactor is suitable for high nitrogen loading rate.

研究分野：環境保全工学

キーワード：アナモックス反応 従属栄養脱窒反応 窒素負荷

1. 研究開始当初の背景

新規の窒素代謝経路である嫌気性アンモニア酸化 (Anammox) による窒素除去技術が注目を集めている中、Anammox による窒素除去技術の省エネルギー化に向けた技術革新のブレークスルーポイントは Anammox 細菌を高濃度に保持することにあると考えられている。これまでの新しい試みとして、嫌気性グラニュールを生物担体として導入した Anammox の設計により、高濃度窒素含有廃水を対象とした実験を通して従来の想像を超えた卓越した処理ポテンシャルが達成可能であることを発見した。しかし Anammox 反応による未脱窒の NO_3^- が処理水中に残存し窒素除去率が低下するため、Anammox プロセスと従属栄養脱窒を組み合わせることが可能であれば安定した高い窒素除去率を得ることができると考えられる。そこで本研究ではこれらの新しい知見を生かし、Anammox 細菌と従属栄養型グラニュールを融合することによる省エネルギー排水処理システムの創成を試みる。

2. 研究の目的

本研究は、低炭素社会に必要な革新的省エネルギー・省資源型排水処理システムを開発することを目的として、機能性微生物保持担体と制御条件の融合デザインにより新規 AAFEB (Anammox attached film expanded bed) 型 SAD (Simultaneous Anammox and Denitrification) プロセスを開発して従来の窒素排水処理技術を根本的に変えようとする試みである。本研究で注目した機能性グラニュールの培養はリアクター内に安定して高い汚泥濃度を維持できるため、従来の硝化脱窒法の 10 倍以上の速度で窒素除去を行う事ができる。また Anammox 反応と従属栄養脱窒反応を組み合わせた窒素除去プロセスの最適化を図ることが可能となり、単一 Anammox 反応より窒素除去率の向上が可能となる。本研究によって開発される排水処理技術は、Anammox プロセスとの新規融合を通して生物学的窒素除去技術の革新を狙うものである。具体的には以下の点について検討を行う。

(1) 担体流動床 AAFEB 処理システムの構築

Anammox プロセスでは、高速処理のため排水の流速が速いため Anammox 細菌が反応槽から流出しやすい課題がある。また本研究室既存の UASB 型 Anammox リアクターではグラニュールが「肥大化」したような現象が見られた。肥大化したグラニュールは内部に発生ガスを内包しやすく、沈降速度が低下しやすい他、原水の負荷変動に伴って一斉流出を起こしやすい問題がある。

AAFEB 法は嫌気性グラニュールを核として Anammox グラニュールの形成と高濃度保持により、高負荷、高濃度の窒素含有廃水を

処理できる優れた排水処理技術である。本研究ではこれまで Anammox プロセスが困難であった工業廃水などの高濃度窒素含有廃水の処理に挑戦し、安定したシステムの構築を目指す。本プロセスの確立により Anammox プロセスの適用範囲が大幅に拡大され、既存の排水処理システムを一新する可能性を持つ。

(2) AAFEB リアクターにおける Anammox 反応と従属栄養脱窒反応を組み合わせた窒素除去プロセス (SAD) の開発

SAD プロセスではアンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、有機炭素が同時に存在するが、このようなケースは一般的な脱窒槽内で見られるため、Anammox 細菌を脱窒槽で維持することができれば、流入水の C/N 比が低い場合でも、その寄与により高効率な窒素除去プロセスにアップグレードできる可能性がある。また特定微生物系を構築するための反応条件の確立が必要である。

3. 研究の方法

高濃度、高窒素負荷条件下における担体流動床 AAFEB 処理システムを開発し、安定した処理性能を達成するためには高性能脱窒共生体の獲得及びその制御が鍵となる。そのため高い活性を有する Anammox 細菌の集積およびその最適な運転条件について検討する。また機能性生物担体における発生した従属栄養脱窒反応と Anammox 反応を組合せた新規 AAFEB 型 SAD プロセスの立ち上げや制御技術を検討するために、ラボスケールの実験装置を用いた影響因子の検討が必要である。また長期運転の実験結果を基に各運転条件における処理効果や省エネルギー効果の定量化評価を行う。各検討項目の研究方法は以下の通りである。

(1) AAFEB 反応槽を用いた高性能脱窒共生体の形成実験

図-1 に示すラボスケール UASB 反応装置槽に嫌気性グラニュールを接種し、AAFEB 反応槽を用いて長期連続処理実験を行い、その処理特性や管理ノウハウ等の基礎的知見を獲得する。また嫌気性グラニュール汚泥を核とした Anammox グラニュールの形成と崩壊メカニズムを示す。長期連続運転では特に Anammox グラニュールの形成過程の確認とその能力の評価及び窒素負荷、HRT、pH などの運転条件が Anammox グラニュール強度に及ぼす影響に着目し、高濃度窒素含有廃水の処理特性を明らかにする。

(2) 回分実験における基質濃度、有機物濃度、pH などの条件による Anammox 運転の安定性の検討

本研究では脱窒効率向上を目的とした反応条件 (基質濃度、pH、有機物濃度等) を把握

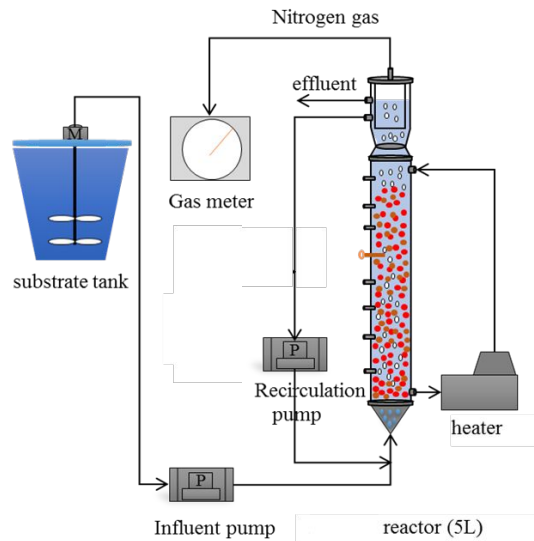


図-1 本研究に使用した UASB 型反応装置

するために、回分試験を行う。また Anammox 細菌と従属栄養型脱窒細菌の相互競合・共生関係を究明するための活性実験も行う。長期連続実験の運転によるリアクター内に形成した Anammox グラニユールの解析に回分試験は不可欠となる。

(3) 長期運転における高基質濃度による AAFEB 型 SAD プロセスと Anammox グラニユールの強度への影響の検討

SAD プロセスではアンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、有機炭素が同時に存在するが、このようなケースは一般的な脱窒槽内で見られるため、Anammox 細菌を脱窒槽で維持することができれば、流入水の C/N 比が低い場合でも、その寄与により高効率な窒素除去プロセスにアップグレードできる可能性がある。また特定微生物系を構築するための反応条件の確立が必要である。連続実験において、TN 濃度を増加させることによって窒素負荷を変化させ、処理水質、汚泥生成量、Anammox グラニユールの強度に及ぼす基質濃度と窒素負荷の影響を検討する。また Anammox 反応により生成した硝酸性窒素の濃度を増加させることで微生物が増殖と減少を繰り返し、代謝により SMP や EPS などの有機物が増加すると、これらは有機炭素源として従属栄養生物の増長を促進できる。この時の SAD プロセス運転特性について検討する。

(4) 長期運転における有機物濃度(SMP、EPS)による AAFEB 型 SAD プロセスへの影響の検討

実験期間における反応槽の運転状況により、適切に有機物及び硝酸性窒素を添加することで、これらの要素が反応に及ぼす影響を検討する。また、硝酸性窒素や有機物の添加の有無による処理性能への影響も評価する。

(5) SAD プロセスによる窒素除去過程の数式化と運転管理方式のさらなる最適化

ここまでで得られた研究成果に基づき、AAFEB 型 SAD プロセスの数式化・モデル化を行う。また、各運転条件における窒素除去と微生物の群集変化への影響をシミュレーションする。窒素除去効率の最大化、汚水処理費用の削減、水処理プラントの緊急措施の増強、汚水浄化性能を保障しつつ運転管理コストの抑制などを同時に可能とする運転管理手法の開発に有用な指針を提供する。

(6) 混合培養系微生物の群集変化について Anammox 細菌と従属栄養細菌の群集構造を解析する

AAFEB 反応槽における長期運転期間における混合培養系微生物の群集変化について Q-PCR、FISH、SEM などの分子生物学的手法を用いて主要な Anammox 細菌と従属栄養細菌の群集構造を解析し、反応系で優位に機能している微生物群の特定を行う。

4. 研究成果

(1) AAFEB 型 SAD プロセスの運転性能評価

UASB 反応槽に嫌気性グラニユールを接種して AAFEB 反応槽を立ち上げ、窒素負荷を 5 から 40gN/L/d に上昇させた長期連続実験を行った。窒素負荷によらず TN 除去率は常に Anammox 反応の理論的最大値(89%)に近い値を維持した。低窒素負荷条件では Anammox 細菌と従属栄養細菌の共存により脱窒が進行し NH_4^+ と NO_2^- 、 NO_3^- と NH_4^+ の反応比は Anammox 反応の理論値に比べて低かったが、高窒素負荷条件では Anammox 反応の優占により反応比も理論値に近くなった。

(2) 基質濃度が及ぼす Anammox 運転の安定性の検討

基質の窒素濃度を変えた活性試験の結果、窒素負荷の上昇に従い Anammox 汚泥の最大比活性の値は 0.37 から 0.68gN/gVSS/d に上昇し、基質濃度への耐性が高くなった。Anammox 細菌が長期連続実験により高窒素負荷環境に馴致されたこと、グラニユール汚泥の VSS/SS の増加から汚泥内の微生物群集密度が増加したことが考えられた。

(3) 高基質濃度による Anammox グラニユールへの影響

長期運転と窒素負荷の上昇に伴い槽内 VSS 濃度は 49.8 から 62.1g/L に増加した。槽内で培養された Anammox グラニユール汚泥の沈降速度は $263.1 \pm 26.9\text{m/h}$ 以上に維持することができ、従来の Anammox グラニユールと比べて高い沈降性能を有し高い上向流速においても槽内の微生物量の保持が可能であった。

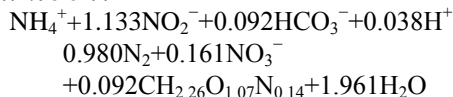
(4) 反応槽内の有機物が AAFEB 型 SAD プロセスに及ぼす影響

AAFEB 型 SAD プロセスの長期連続運転において処理性能に及ぼす有機物の影響を検討した結果、反応槽内の EPS が $89.6 \pm 48.3 \text{ mg/g-VSS}$ と高濃度ではグラニユールの沈降性が $35.0 \pm 0.8\%$ 低下し、VSS は $30.5 \pm 0.9\%$ 減少することを明らかにした。同じ窒素負荷条件で実験を行ったところ HRT を長くすることで槽内に SMP が蓄積し、基質の TN 濃度が 3500 mg/L では SMP は 100 mg/L 以上となり運転に障害が見られた。また窒素濃度を高くするほど比 Anammox 活性と基質による半数阻害濃度は低下し比脱窒活性が高く N_2O の生成量が多くなることを明らかにした。

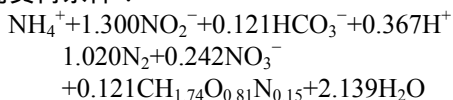
(5) SAD プロセスによる窒素除去過程の数式化と最適な運転管理方式の提案

窒素負荷が 5.0 から 60.0 gN/L/d において窒素除去率は $87.3 \pm 2.5\%$ に維持され、最大窒素除去速度 $44.9 \pm 0.3 \text{ gN/L/d}$ が得られた。本研究により低低負荷条件 (5.0 gN/L/d) および高負荷条件 (50.0 gN/L/d) における Anammox 反応の化学両論式を以下の通り新たに提示した。

低負荷条件：



高負荷条件：



また安定処理には (F/M)/SAA 比 (F : Food, M : Microorganisms, SAA : Specific Anammox Activity) を $66 \pm 7\%$ 以下とする必要性を明らかにした。

(6) 混合培養系微生物群の解析

SEM や FISH 等による解析の結果、核となる嫌気性グラニユールの周囲に Anammox 細菌を取り囲むようにして糸状性細菌や EPS が集合体を形成し大きなグラニユールの形成を促進していることが確認された。

以上の結果から、AAFEB 反応槽の高窒素負荷廃水の処理への適応可能性を明らかにした。また AAFEB 型 SAD プロセスの最適な運転条件および反応に及ぼす阻害影響、関与している微生物やグラニユール形成に係るメカニズムなどを明らかにし、従属栄養脱窒細菌との共生による高効率窒素除去技術の開発に寄与する有用な知見が得られた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 6 件)

Yuan Liu, Qigui Niu, Shaopo Wang, Jiayuan

Ji, Yu Zhang, Min Yang, Toshimasa Hojo, Yu-You Li, Upgrading of the symbiosis of Nitrosomanas and anammox bacteria in a novel single-stage partial nitritation-anammox system: Nitrogen removal potential and Microbial characterization, *Bioresource Technology*, 査読有, Vol. 244, 2017, pp. 463-472

<https://doi.org/10.1016/j.biortech.2017.07.156>

Shaopo Wang, Yuan Liu Qigui Niu Jiayuan Ji, Toshimasa Hojo, YuYou Li, Nitrogen removal performance and loading capacity of a novel single-stage nitritation-anammox system with syntrophic micro-granules, *Bioresource Technology*, 査読有, Vol. 236, 2017, pp. 119-128

<https://doi.org/10.1016/j.biortech.2017.03.164>

北條俊昌, 劉媛, 王少坡, 牛啓桂, 紀佳淵, 李玉友, 担体添加型一槽式 Anammox 反応槽における窒素除去特性の検討, 土木学会論文集 G(環境), 査読有, Vol. 72, No. 7, 2016, pp. 19-27

<https://doi.org/10.2208/jscej.72.III.19>

Yanlong Zhang, Haiyuan Ma, Qigui Niu, Rong Chen, Toshimasa Hojo, Yu-You Li, Effects of substrate shock on extracellular polymeric substance (EPS) excretion and characteristics of attached biofilm anammox granules, *RSC Advances*, 査読有, Vol. 6, 2016, pp. 113289-113297

<http://dx.doi.org/10.1039/C6RA20097D>

Yanlong Zhang, Haiyuan Ma, Qigui Niu, Rong Chen, Toshimasa Hojo, Y.Y. Li, Effects of soluble microbial products (SMP) on the performance of an anammox attached film expanded bed (AAFEB) reactor: Synergistic interaction and toxic shock, *Bioresource Technology*, 査読有, Vol. 222, 2016, pp. 261-269

<https://doi.org/10.1016/j.biortech.2016.09.129>

張彦隆, 馬海元, 北條俊昌, 李玉友, AAFEB 型 Anammox プロセスの処理性能と汚泥特性解析, 土木学会論文集 G(環境), 査読有, Vol. 72, No. 7, 2016, pp. 9-17

<https://doi.org/10.2208/jscej.72.III.9>

〔学会発表〕(計 11 件)

白砂智将, 馬海元, 北條俊昌, 李玉友, 担体添加型一槽式アナモックスプロセスによる生ごみメタン発酵消化液の窒素除

去,第52回日本水環境学会年会,北海道大学,札幌市,2018.3

紀佳淵,佐久間智士,陳玉潔,大津秋人,北條俊昌,李玉友,嫌気性 MBR とアナモックスを用いた新規下水処理システムの実下水試験,第52回日本水環境学会年会,北海道大学,札幌市,2018.3

白砂智将,北條俊昌,李玉友,一槽式アナモックスプロセスによる生ごみメタン発酵消化液の窒素除去,第10回廃棄物資源循環学会東北支部&第5回日本水環境学会東北支部合同研究発表会,東北大学,仙台市,2018.1

郭延,牛啓桂,北條俊昌,久保田健吾,李玉友,一槽式アナモックスプロセスに及ぼす有機酸の影響,第20回日本水環境学会シンポジウム,和歌山大学,和歌山市,2017.9

白砂智将,馬海元,北條俊昌,李玉友,一槽式 Anammox プロセスによるメタン発酵消化液の窒素除去,第54回下水道研究発表会,東京ビッグサイト,東京,2017.8

張彦隆,馬海元,北條俊昌,李玉友,Anammox 付着膜膨張床の処理性能と汚泥特性解析,第53回環境工学研究フォーラム,北九州国際会議場,北九州市,2016.12

北條俊昌,劉媛,王少坡,牛啓桂,紀佳淵,李玉友,担体添加型一槽式 Anammox 反応槽における窒素除去特性の検討,第53回環境工学研究フォーラム,北九州国際会議場,北九州市,2016.12

馬海元,張彦隆,北條俊昌,李玉友,高い窒素除去速度 Anammox プロセスと汚泥特性についての研究,第28回環境システム計測制御学会(EICA)研究発表会,横浜市開港記念会館,横浜市,2016.10

Y.L. Zhang, H.Y. Ma, Q.G. Niu, R. Chen, T.Hojo, Y.Y. Li, Effects of soluble microbial products (SMP) on the performance of an anammox attached film expanded bed (AAFEB) reactor: synergistic interaction and toxic, 1st International Conference on Bioresource Technology for Bioenergy, Bioproducts & Environmental Sustainability, Meliá Sitges Hotel Congress Centre, Barcelona(Spain), 2016, October (Poster Session)

紀佳淵,劉媛,牛啓桂,北條俊昌,李玉友,自己造粒型一槽式アナモックス法によるアンモニア系排水の処理性能,第19回日本水環境学会シンポジウム,秋田県立大学,秋田市,2016.9

紀佳淵,劉媛,牛啓桂,北條俊昌,李玉友,一槽型アナモックスによる窒素除去プロセスの制御方法,第53回下水道研究発表会,ウイנקあいち,名古屋市,2016.7(ポスター発表)

6. 研究組織

(1)研究代表者

北條 俊昌 (HOJO, Toshimasa)
東北大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 10708598