

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 7 日現在

機関番号：34315

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H01897

研究課題名(和文) 従属栄養脱窒とAnammoxを組み合わせた都市下水からの窒素除去プロセスの開発

研究課題名(英文) Development of a nitrogen removal process using simultaneous anammox and denitrification from domestic wastewater

研究代表者

惣田 訓 (Soda, Satoshi)

立命館大学・理工学部・教授

研究者番号：30322176

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 17,170,000円

研究成果の概要(和文)：従属栄養脱窒と嫌気性アンモニア酸化(Anammox)の同時反応(SAD)による窒素除去性能を検証するため、固定化した活性汚泥とAnammox汚泥を導入した連続式リアクターを構築した。硝酸40mg-N/Lとアンモニア30mg-N/Lを含む廃水を20℃、滞留時間24時間で通水した。硝酸は、従属栄養脱窒によって亜硝酸となり、アンモニウムとともにAnammoxで除去された。SADプロセスは、低C/N比0.5-1.0において全窒素除去率40-60%、高C/N比1.0-1.75において全窒素除去率40-90%を示した。常温で広いC/N比におけるSADプロセスの高い能力を示すことができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

日本には、都市下水処理場が既に2100ヶ所以上あるものの、大半が窒素除去能力は不十分であり、建設費からしても、新設は容易ではない。SADプロセスは、循環式硝化脱窒プロセス(約30)、嫌気無酸素好気プロセス(約40)、ステップ流入式多段硝化脱窒プロセス(約25)に加え回分式プロセス(約70)を経済的で高性能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。標準活性汚泥プロセス(約600)も窒素除去型に更新する必要がある。本研究成果より、脱窒槽に必要なAnammox汚泥量、冬季における無加温の限界温度、ステップ流入比の運転条件などが推測できる。

研究成果の概要(英文)：This study investigated nitrogen removal by the simultaneous anaerobic ammonium oxidation (anammox) and heterotrophic denitrification (SAD) process in a lab-scale continuous reactor inoculated with immobilized activated sludge and immobilized anammox sludge at various organic carbon/nitrate (C/N) ratios. Synthetic wastewater containing nitrate 40 mg-N/L, ammonium 30 mg-N/L was fed to the reactor operated at 20 degree and at hydraulic retention time of 24h. Nitrite reduced from nitrate by heterotrophic denitrification was accumulated and removed with ammonium. The SAD process removed nitrate and ammonium effectively (T-N removal, 40-60%) by the high anammox contribution under low C/N ratios (0.5-1.0). At high C/N ratios of 1.0-1.75, the SAD process maintained T-N removal 40-90% with predominance of heterotrophic denitrification. Results demonstrated that the SAD process performs high nitrogen removal effectively from wastewater at ambient temperature with widely different C/N ratios.

研究分野：環境工学

キーワード：窒素除去 アナモックス 従属栄養脱窒 C/N比 常温

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

嫌気性アンモニア酸化反応 (Anammox) は、嫌気条件下でアンモニアと亜硝酸を窒素ガスとして除去するものであり、従来の硝化脱窒プロセスと比較し、硝化に要する電力や脱窒の炭素源を削減できるため、Anammox によってエネルギー自立型の廃水処理システムが構築できることが期待されている。ただし、Anammox の基質である亜硝酸は、一般的な廃水には含まれていないため、前処理としてアンモニアの部分亜硝酸化が必要となる。そこで、亜硝酸化と Anammox を二つの反応槽で別個に行う SHARON プロセスや、一つの反応槽で両反応を行う CANNON プロセスが開発されている。しかし、水環境の富栄養化防止には都市下水からの窒素除去が課題であるにも関わらず、下水の低濃度窒素を部分亜硝酸化することが困難であるため、Anammox を利用する試みは極めて少ない。

### 2. 研究の目的

我々は Anammox を下水処理に応用する方策として、従属栄養脱窒と Anammox の同時進行プロセス (Simultaneous Anammox and Denitrification; SAD) を提案している。低アンモニア濃度の下水では、化学的に不安定な亜硝酸を蓄積させる亜硝酸化が容易ではないため、従来通り硝酸まで完全硝化した後、Anammox 細菌と従属栄養細菌 (脱窒細菌) を共存させた SAD 槽において、従属栄養細菌によって硝酸を亜硝酸に還元し、それを下水中のアンモニアとともに Anammox によって除去するものであり、既存の下水処理施設から容易にアップグレードできる利点がある。

アンモニア態窒素 ( $\text{NH}_4\text{-N}$ ) 濃度が低い下水では、亜硝酸態窒素 ( $\text{NO}_2\text{-N}$ ) を維持することは容易ではないため、硝酸態窒素 ( $\text{NO}_3\text{-N}$ ) にまで完全に硝化した後、Anammox 細菌と従属栄養脱窒細菌を共存させた脱窒槽において、従属栄養細菌によって  $\text{NO}_3\text{-N}$  を  $\text{NO}_2\text{-N}$  に還元し、それを下水の  $\text{NH}_4\text{-N}$  とともに Anammox によって除去するため、通常の脱窒が制限されてしまう低 C/N 比においても、効率的に窒素除去が期待できる。本研究では、C/N 比が及ばず窒素除去への影響を明らかとすることを目的とし、常温 (20 ) における SAD リアクターを用いた合成下水の連続処理を行った。

### 3. 研究の方法

ポリビニルアルコール (PVA) ゲルによる包括固定をした Anammox 汚泥と PVA の表面に付着固定をした活性汚泥を用いた。SAD プロセスの構築前に、各 PVA ゲル担体を用いた連続リアクターにおいて、20 における十分な Anammox 活性と脱窒活性を確認した。

上記 2 種の汚泥を容積 1500mL のリアクターに充填し、合成下水の連続処理を水理学滞留時間 (HRT) 24 時間、20 で行った。第 1~6 期までのその運転条件を表 1 に示す。合成下水中の窒素源である  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度、 $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度は変えず、酢酸ナトリウム濃度によって C/N 比を調整した。またリアクターの外観を図 1 に示す。

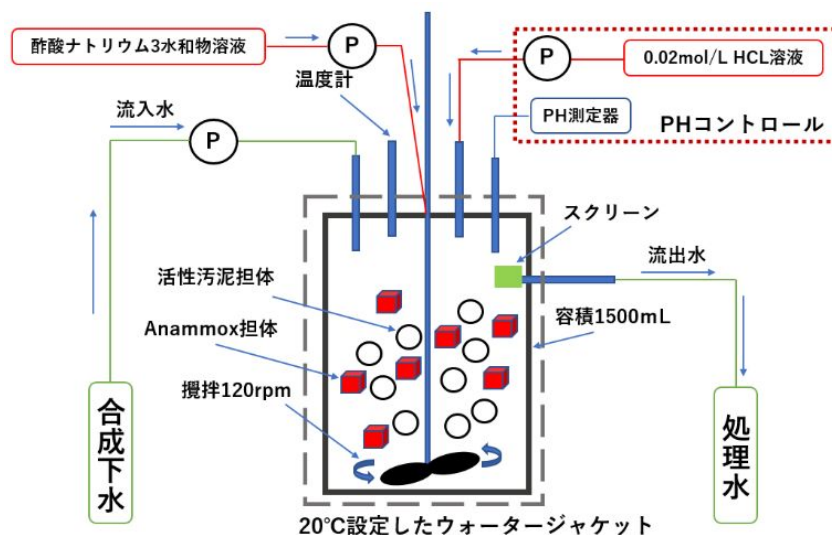


図 1 リアクター外観

表1 リアクターの運転条件

	運転日数 (日)	NH <sub>4</sub> -N (mg/L)	NO <sub>3</sub> -N (mg/L)	CH <sub>3</sub> COONa (mg/L)	C/N 比 (-)
第1期	0-15	30	40	40	1.00
第2期	16-31	30	40	50	1.25
第3期	32-45	30	40	60	1.50
第4期	46-62	30	40	70	1.75
第5期	63-81	30	40	20	0.50
第6期	82-108	30	40	30	0.75

4. 研究成果

図2にHRT、NO<sub>3</sub>-NおよびNO<sub>2</sub>-N濃度、NH<sub>4</sub>-N濃度、全有機炭素(TOC)濃度、TNおよびTOC除去率、図3にTN除去率およびAnammox寄与率、NH<sub>4</sub>-NおよびNO<sub>3</sub>-N除去率を示す。

第1期は、各態窒素の除去量が変動したが、10日目から安定し、NH<sub>4</sub>-N除去率は71.7%、NO<sub>3</sub>-N除去率は43.4%、TN除去率は51%、Anammox寄与率は88%であった。第2期では、NH<sub>4</sub>-N除去率が80%、NO<sub>3</sub>-N除去率57.3%に向上した。TN除去率は55%であり、第1期と同程度であったが、Anammox反応が活発になり、その寄与率が95%となった。第3期では、NH<sub>4</sub>-N除去率が86.4%、NO<sub>3</sub>-N除去率が67.5%となった。TN除去率が77%に急増し、Anammox寄与率は87%となり、Anammoxよりも従属栄養脱窒のほうに優位性が現れたと考えられる。第4期では、NH<sub>4</sub>-N除去率が89.8%、NO<sub>3</sub>-N除去率が97%、TN除去率が90%にさらに高まったが、Anammox寄与率は86%に低下した。

第5期への移行後、前期間までの高い活性が残っており、窒素除去率が高いままであったが、徐々に活性が低下し、70日目から安定した。NH<sub>4</sub>-N除去率は81.6%と大きくは低下しなかったものの、NO<sub>3</sub>-N除去率が45%にまで激減した。これは、従属栄養脱窒にとって必要な有機炭素源が十分に添加されなかったことが原因であると考えられる。第6期では、NH<sub>4</sub>-N除去率が83.4%、NO<sub>3</sub>-N除去率が39.3%となった。やはり、従属栄養脱窒に必要な有機炭素源が少なく、硝酸態窒素の除去が進まなかったと考えられる。第5期以降はNO<sub>3</sub>-N除去量が減少したことによりTN除去率も減少したが、NH<sub>4</sub>-N除去率が依然高いままであったため、計算上のAnammox寄与率が100%を超えてしまった。そのため、Anammox寄与率が最大となるC/N比を正確に検証することはできなかった。すなわち、従属栄養脱窒細菌による硝酸還元が制限される低C/N比において、溶存酸素濃度が低い条件でも活性を示す好気性アンモニア酸化細菌が、Anammox細菌にNO<sub>2</sub>-Nを供給している可能性が示唆された。

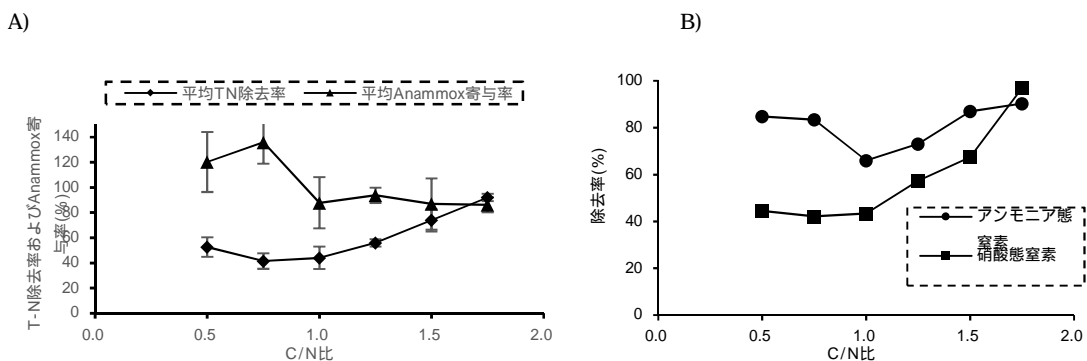


図2 A)TN 除去率および Anammox 寄与率、B)NH<sub>4</sub>-N および NO<sub>3</sub>-N 除去率

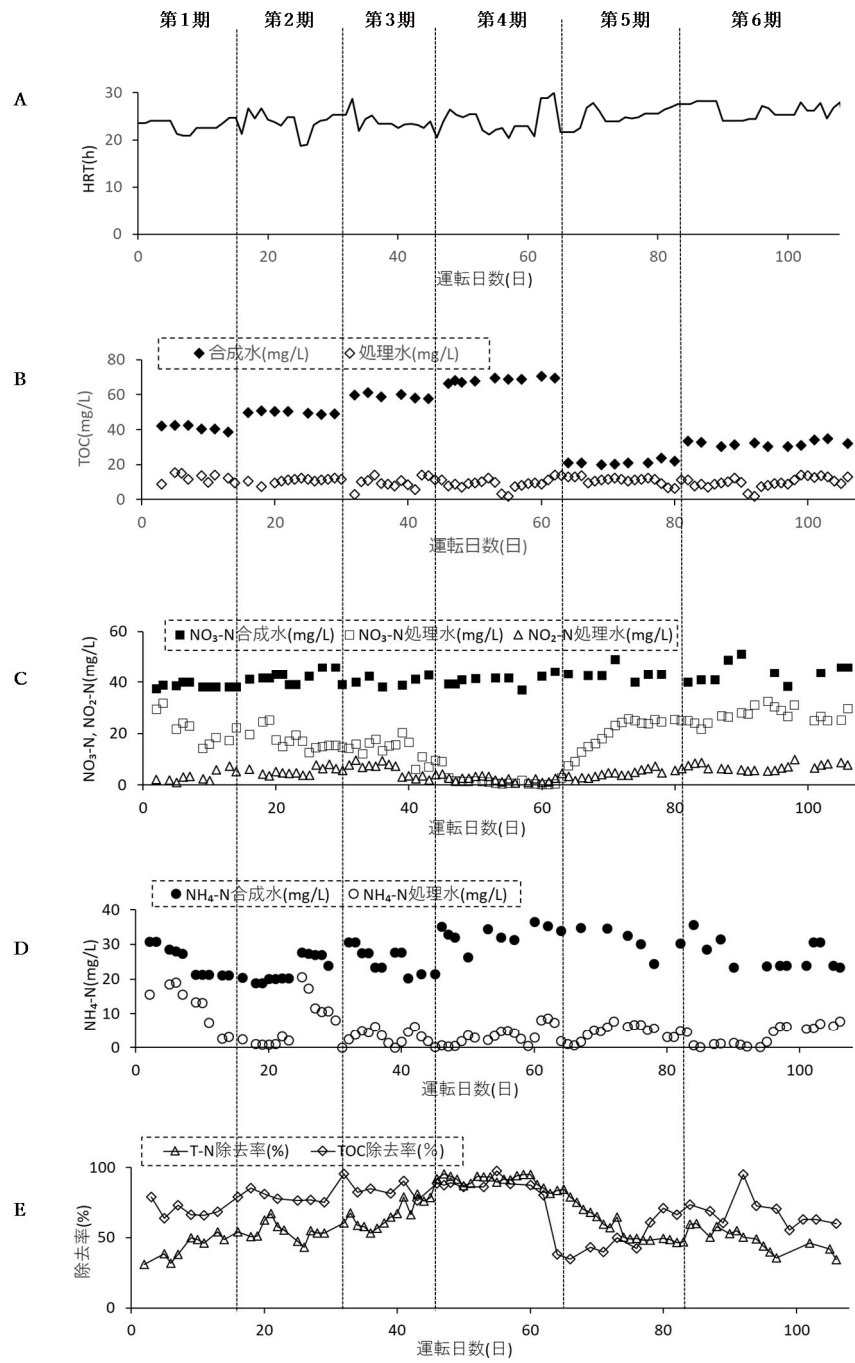


図3 SADリアクターによる窒素除去 . A)TOC 濃度、B)NO<sub>3</sub>-N および NO<sub>2</sub>-N 濃度、C)NH<sub>4</sub>-N 濃度、D)TN および TOC 除去率

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 2件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 SODA SATOSHI、GIRI PARK、TAKEUCHI KAEDE、IKE MICHIIHIKO	4. 巻 56
2. 論文標題 Nitrogen Removal by Simultaneous Anammox and Denitrification under Low Temperature: Preliminary Batch Trials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Water Treatment Biology	6. 最初と最後の頁 91～97
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2521/jswtb.56.91	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 Zhang Li、Peng Yongzhen、Soda Satoshi、Huang Xiaowu、Wang Yifei、Zhang Yanan	4. 巻 213
2. 論文標題 Molecular-level characterization of stratified extracellular polymeric substances of anammox sludge and its adsorption preference to refractory dissolved organic matter	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Energy	6. 最初と最後の頁 118818～118818
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.energy.2020.118818	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 該当する

1. 著者名 Zhang Li、Wang Yueping、Soda Satoshi、He Xiaosong、Hao Shiwei、You Yue、Peng Yongzhen	4. 巻 318
2. 論文標題 Effect of fulvic acid on bioreactor performance and on microbial populations within the anammox process	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Bioresource Technology	6. 最初と最後の頁 124094～124094
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.biortech.2020.124094	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 該当する

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 吉田光太郎、尾田小太郎、Liu Zongpei、惣田訓
2. 発表標題 従属栄養脱窒とAnammoxを組み合わせた連続式脱窒リアクターに及ぼすC/N比の影響
3. 学会等名 2020年度土木学会関西支部年次学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 YANG Xiao、LIU Zongpei、吉田 光太郎、井坂和一、惣田訓
2. 発表標題 従属栄養脱窒と Anammox を組み合わせたラボスケール連続式リアクターによる常温窒素除去
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 吉田光太郎, 尾田小太郎, LiuZongpei, 惣田訓
2. 発表標題 従属栄養脱窒とAnammoxを組み合わせた窒素除去プロセスの開発 常温ラボスケールリアクターによる連続処理の検討
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 Satoshi Soda,Kaede Takeuchi,Giri Park, Michihiko Ike
2. 発表標題 Simultaneous anammox and denitrification in a batch mode under ambient temperature
3. 学会等名 The 4th International Anammox Symposium, IANAS2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Zongpei Liu, Kotaro Oda,Kazutoshi Kawasoe,Kazuichi Isaka, Satoshi Soda
2. 発表標題 Startup of nitrogen removal process by PVA-immobilized anammox sludge at ambient temperature
3. 学会等名 The 4th International Anammox Symposium, IANAS2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 劉宗沛、尾田小太郎、川添和俊、井坂和一、惣田訓
2. 発表標題 常温Anammox汚泥の包括固定化リアクターのスタートアップ
3. 学会等名 2019年度土木学会関西支部年次学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 尾田小太郎，惣田訓
2. 発表標題 常温Anammox汚泥を用いた窒素除去リアクターのリスタートアップ
3. 学会等名 平成30年度土木学会関西支部年次学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 川添和俊，LIU Zongpei，尾田小太郎，惣田訓
2. 発表標題 常温Anammox汚泥を用いた窒素除去リアクターのリスタートアップ
3. 学会等名 立命館大学琵琶湖 × 生物資源 × 食総合研究センター合同シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kotaro Oda, Zongpei Liu, Kotaro Yoshida, Satoshi Soda
2. 発表標題 Development of a nitrogen removal process combining heterotrophic denitrification and anammox -Continuous treatment at ambient temperature
3. 学会等名 The Water and Environment Technology Conference Online2020 (国際学会)
4. 発表年 2020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
研究分担者	井坂 和一  (Isaka Kazuichi)  (40543939)	東洋大学・理工学部・准教授   (32663)	
研究分担者	黒田 真史  (Kuroda Masashi)  (20511786)	大阪大学・工学研究科 ・助教   (14401)	
研究分担者	池 道彦  (Ike Michihiko)  (40222856)	大阪大学・工学研究科 ・教授   (14401)	

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
---------	---------