

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 31 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009 ～ 2011

課題番号：21310055

研究課題名（和文）

ハイブリッド型アナモックスリアクタの開発とそのスケールアップに関する研究

研究課題名（英文）

Studies on development and scale up of hybrid anammox reactor

研究代表者

古川憲治（FURUKAWA KENJI）

熊本大学・大学院自然科学研究科・教授

研究者番号：60029296

## 研究成果の概要（和文）：

容量6Lの改良型ハイブリッド anammox リアクタを建造した。リアクタ下部には攪拌機を設置し、グラニュール状の anammox 汚泥を緩速攪拌（50-100rpm）する。リアクタの上部にはポリエステル製不織布を設置し、微細な anammox 汚泥を担体に付着させリアクタからの anammox 汚泥のウォッシュアウトを防いだ。

最終的に 27.3kg-N/m<sup>3</sup>/d という高い窒素容積負荷で、75%の窒素除去率が得られ 20.7 kg-N/m<sup>3</sup>/d のこれまでの窒素除去法の 10 倍を超える高い窒素除去速度を達成することができた。

## 研究成果の概要（英文）：

An improved hybrid anammox reactor with 6.0 L volume was newly constructed. Mechanical stirrer was installed in the lower part of reactor and gently stirred anammox granular sludge with 50 to 100 rpm. Polyester non-woven strip was installed at the upper part of reactor. Fine anammox granular sludge was attached on the nonwoven and the washout of anammox sludge could be prevented successfully.

Maximum volumetric nitrogen removal rate of 20.7 kg-N/m<sup>3</sup>/d was finally obtained under volumetric nitrogen loading rate of 20.7 kg-N/m<sup>3</sup>/d with extremely short HRT of 0.4 hours.

## 交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	6,000,000	1,800,000	7,800,000
2010年度	4,500,000	1,350,000	5,850,000
2011年度	3,100,000	930,000	4,030,000
年度			
年度			
総計	13,600,000	4,080,000	17,680,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境技術・環境材料

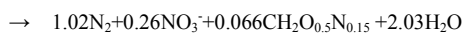
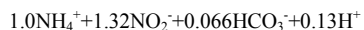
キーワード：窒素除去、アナモックス、ハイブリッドリアクタ、機械攪拌、造粒特性

## 1. 研究開始当初の背景

従来の窒素代謝経路に加わる、次式に示す

新規の独立栄養性の窒素代謝経路「嫌気性アンモニア酸化」（anaerobic ammonium

oxidation : anammox、アナモックス) が 1995 年にオランダのデルフト工科大学の研究グループから報告された。



anammox 反応を排水に含まれる  $\text{NH}_4^+$  の除去に適用するためには、 $\text{NH}_4^+$  の約半量を  $\text{NO}_2^-$  に酸化する部分亜硝酸化 (Partial Nitritation: PN) が前処理として必要になる。PN と anammox を組み合わせた (PN+anammox) 法では硝化に要する酸素供給量を半減できるばかりか、脱窒段階での外部炭素源の補填や硝化液の循環が必要でなくなるので、anammox が大きな注目を集め、これまで多くの anammox 反応を活用する新規窒素除去法に関する研究開発が行われてきた。

当初の研究では、培養の難しい anammox 汚泥を迅速に集積培養するかに焦点があてられたことから、もっぱら合成無機排水が処理対象排水とされた。anammox の集積培養法が確立されてからは、高濃度の  $\text{NH}_4^+$  を含有する消化脱離液、ごみ埋め立て地浸出水、畜産排水、食品排水、水溶性天然ガス製造プラントからの排かん水などの実排水を使った研究がなされるようになった。2002 年にはオランダ・ロッテルダム の Dokhaven 下水処理場の余水からの  $\text{NH}_4^+$  の除去に容量  $75\text{m}^3$  の anammox 実プラントが建造され、その後欧州ではこれまでに 10 基近くの実施設が建設され、稼働中である。

これまで反応を行うリアクタとしては、anammox 細菌の生育特性を生かした Sequential Batch Reactor (SBR)、固定床リアクタ、流動床リアクタの他、流動担体に anammox 汚泥を付着させるリアクタ、anammox 汚泥を PEG、PVA 等の高分子で包括固定化して活用する固定化リアクタ等が開発されている。我々の研究室では、簡単に anammox 汚

泥の集積培養が可能なポリエステル製の不織布を微生物担体として用いる上向流固定床式 anammox リアクタを開発し、 $5\text{--}7\text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  の窒素除去速度 (Nitrogen Removal Rate : NRR) が達成できることを報告している。ガスリフト型の流動床 anammox リアクタ、包括固定化 anammox ペレットを用いる攪拌型 anammox リアクタでは  $10\text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  を越える高い NRR が報告されている。

これまでに、固定床式 anammox リアクタ、グラニュール状の anammox 汚泥を活用する SBR リアクタ、包括固定化 anammox リアクタなど、anammox 細菌の特性を生かしたリアクタの高機能型の開発が盛んに行われるようになってきている。

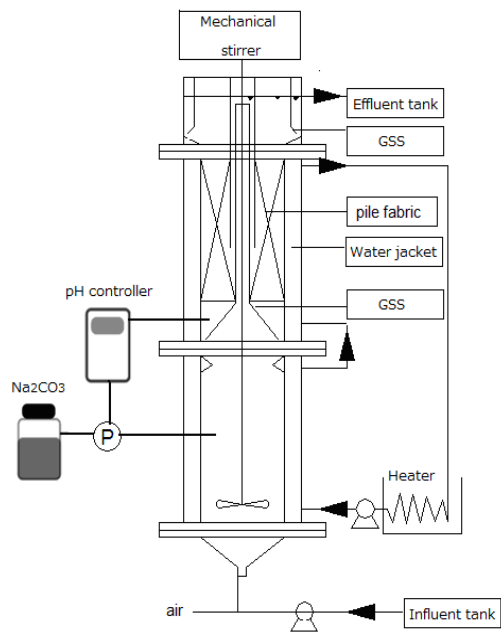
## 2. 研究の目的

上向流固定床式 anammox リアクタを長期運転すると、不織布上で増殖して大きく造粒した anammox グラニュールが不織布担体から脱落し、リアクタの下部のコーン部に高濃度に蓄積し、それが窒素除去に大きく貢献する。このアナモックス汚泥の増殖特性を生かしたハイブリッド型 anammox リアクタを研究室で新たに開発した。

ハイブリッド型 anammox リアクタの下部を攪拌機でグラニュール状のアナモックス汚泥を緩速攪拌 ( $50\text{--}100\text{rpm}$ ) する。リアクタの上部には不織布などの微生物付着固定化担体を設置して微細な anammox 汚泥を担体に付着させ、リアクタからのウォッシュアウトを防ぐとともに、窒素除去率のさらなる向上を期待している。このハイブリッド型 anammox リアクタでどの程度の高い NRR が達成可能なかを明らかにするとともに、このリアクタのスケールアップに関係する要因を明らかにすることを主目的にこの研究をスタートさせた。

### 3. 研究の方法

直径 120mm、容量 6.0L のアクリル製のカルムリアクタを建造した。底部から 250mm までのリアクタ下部は 2 枚の攪拌翼で緩速攪拌した。底部から 250–500mm までのリアクタ上部には見かけ容量 1.5L の 10 枚に短冊状の不織布を設置した。リアクタ下部から 260mm と 520mm の場所に 2 つの GSS を設置した。



図—1 ハイブリッド型 anammox リアクタの模式図

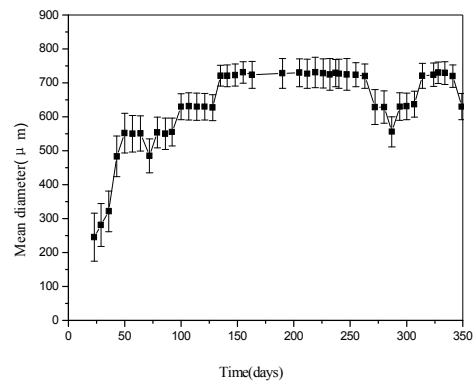
リアクタの温度を 33–37°C に制御した。pH は 7.0–7.4 に維持した。研究室で培養している造粒した anammox 汚泥 24.8g をリアクタ投入し試験を開始した。

### 4. 研究成果

#### (1) グラニューールの粒径変化

合成無機廃水を使った連続処理試験で、このハイブリッド型 anammox リアクタの NRR が 22 kg-N/m<sup>3</sup>/d に達すること、リアクタ下部の流動部を機械攪拌しても

anammox グラニューールが破壊されないという新しい知見を得た。機械攪拌によって、anammox グラニューールの粒径が小さく、均一となることから、anammox 反応の結果生じる窒素ガスを抱きかかえてグラニューールが浮上して系外に流亡する現象が少なくなる。その結果、流動部の anammox 汚泥濃度が低下することがなく、安定した処理が可能になることを認めている。図—2 に示すように平均粒径 0.7mm の沈降性に優れた anammox グラニューールをリアクタ下部の流動部に安定して維持することができた。



図—2 anammox グラニューールの粒径経日変化

#### (2) 処理挙動

335 日間ハイブリッド型 anammox リアクタを運転した。この間流入 T-N 濃度 100–600 mg/L に段階的に高めるとともに、HRT を 8 時間から 0.4 時間に段階的に下げた図—3 には試験期間中の処理挙動を示した。処理期間中、T-N 除去率は 75–85% で推移した。窒素負荷 27.3 kg-N/m<sup>3</sup>/d で、20.7 kg-N/m<sup>3</sup>/d という高い NRR を達成することができた。その時の流入水の NH<sub>4</sub>-N と NO<sub>2</sub>-N 濃度は 300–350 mg/L で、HRT は 0.4 時間と非常に短く、開発したハイブリッド型 anammox リアクタの優れた窒素除去能力を確認することができた。

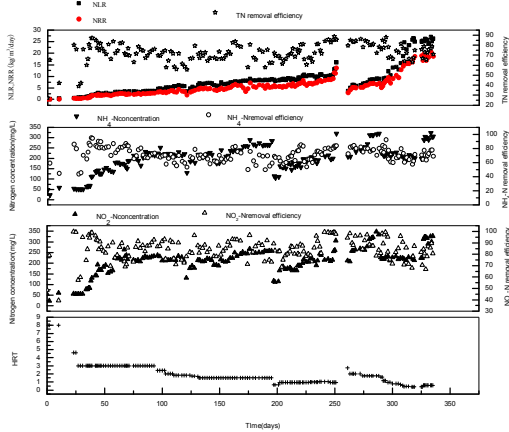


図-3 anammox処理の経日変化

図-4には連続処理期間中のanammox汚泥の濃度とSS濃度の経日変化それと、anammoxグラニュールの細胞外ポリマー含有量の変化を示した。リアクタ下部のanammoxグラニュールの流動部でのanammox汚泥濃度は20-25g/Lにも高まり、これが今回の処理試験で高い窒素除去速度が達成できた大きな理由の一つとなっている。また、anammoxグラニュールの沈降性が極めて良好で、高いanammox汚泥濃度を安定して維持できた。anammoxグラニュールの造粒に關与する細胞外ポリマーについて検討した結果、anammoxグラニュールは蛋白質が主体となる細胞以外ポリマーを最大で10%程度も有していることが明らかになった。

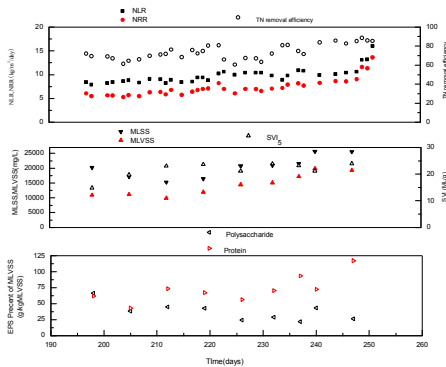
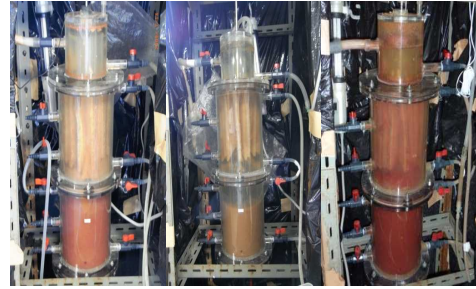


図-4 anammox汚泥の特性

### (3) 汚泥色相の変化



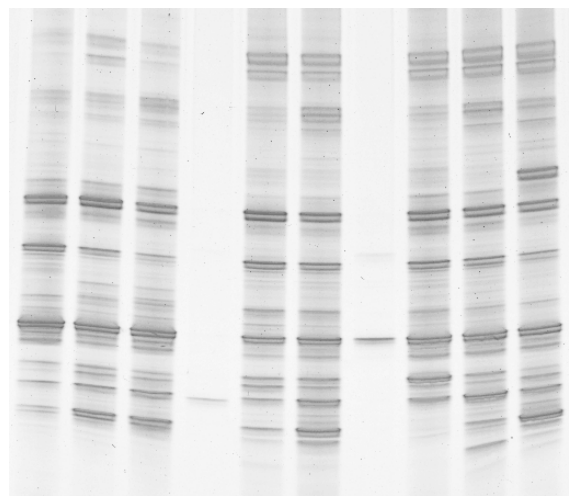
0日目 132日後 250日後

図-5 anammox汚泥の色相変化 図-5にはハイブリッド型anammoxリアクタのanammox汚泥の色相の変化を示した。処理が進むに連れて、汚泥の色相が濃い紅色に変化し、anammox汚泥の集積が進んでいることがわかる。

### (4) 菌叢の変化

種汚泥で優先したanammox細菌はKSU-1株とKU2株であった。両株とも培養期間中anammoxグラニュール汚泥中から検出されるが、KSU-1株の方が、KU2株よりも優占種であることがわかる。このことは、高い窒素負荷域ではKSU-1株が優占しやすいというこれまでの研究室の結果と一致する。

KU2 KSU-1



Days	189	216	251	272	276	288	307	325
NLR (kgm <sup>3</sup> /day)	4.86	5.76	13.64	5.52	6.22	6.96	12.82	18

図-6 ハイブリッドanammoxリアクタ  
での菌叢の変化

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① 古川憲治: Anammox のパワーに魅せられて、用水と廃水、Vol.53, No.4, pp.40-45(2011) (査読なし)
- ② Yongguang Ma, Daisuke Hira, Zhigang Li, Cheng Chen and Kenji Furukawa: Nitrogen removal performance of a hybrid anammox reactor, Bioresource Technology, Vol.102, p.6650-6656(2011) (査読あり)
- ③ 古川憲治: アナモックス処理の展望—アナモックス開発最前線—、環境技術、Vol.40, No.10, pp599-600(2011) (査読なし)

[学会発表] (計 10 件)

<国際学会>

- ① Yongguang Ma, Daisuke Hira, Kenji Furukawa: Development of hybrid CANON reactor for single-stage nitrogen removal, Proceedings of 1st International Conference on Green Environmental Technology 2011, Korean, Chinese and Japanese Session, pp.44-45, 2011.8/23 (Pusan, Korea)
- ② Yongguang Ma, Daisuke Hira and Kenji Furukawa: Nitrogen removal performance of newly developed hybrid anammox reactor, Proceedings of First International Anammox Symposium, pp.315-316(2011.5.20) (Kumamoto University, Japan)
- ③ Yongguang Ma, Daisuke Hira and Kenji Furukawa: Nitrogen removal performance of newly developed hybrid reactor, Proceedings of First International Workshop

on Environment, Energy and Innovative Technology in Minamata, p.63(2010.10.30) (Kumamoto University, Japan)

- ④ Yongguang Ma, Daisuke Hira and Kenji Furukawa: Nitrogen removal performance of newly developed hybrid reactor, Proceedings of The 3<sup>rd</sup> Joint Workshop between Kumamoto University, Pusan National University and Dalian University of Technology-Advanced Engineering Technology for Environment and Energy-, pp.33-34, 2010.8/20-21(Kumamoto University, Japan)
- ⑤ Yongguang Ma, Yanning Gao, Sen Qiao, Li Zhang and Kenji Furukawa: Development of hybrid anammox granular reactor. Proceedings of The 2<sup>nd</sup> Joint Workshop between Pusan National University and Kumamoto University-Advanced Engineering Technology for Environmental and Energy-, 2009.8/21 (Pusan, Korea)

<国内学会>

- ⑥ 馬永光、早上実花、古川憲治: Nitrogen removal performance of a hybrid anammox reactor、平成 23 年度廃棄物資源循環学会九州支部研究ポスター発表会、2011.5.14 (福岡大学)
- ⑦ 馬永光、早上実花、古川憲治: 一槽型ハイブリッド窒素除去リアクタの開発、平成 22 年度日本水環境学会九州支部研究発表会講演要旨集、pp. (2011, 3.14、福岡大学)
- ⑧ 早上実花、馬永光、古川憲治: 一槽型ハイブリッド窒素除去リアクタの開発、平成 22 年度土木学会西部支部研究発表会講演要旨集、CDROM、VII-41 (2011.3.5)
- ⑨ 馬永光、古川憲治: ハイブリットアナッ

モックスリアクタの窒素除去性能の研究、  
日本水処理生物学会誌、別巻 30 号、p.  
66(2010. 11. 13)

- ⑩ 古川憲治：「嫌気性アンモニア (anammox) を活用する高速窒素除去」、日本生物工学会シンポジウム「独立栄養的代謝の産業応用的基軸」での招待講演、第 61 回日本生物工学会大会講演要旨集、3 S8p05、p. 246(2009. 9. 23)

#### 【産業財産権】

○出願状況 (計 1 件)  
名称：廃水処理方法及び廃液処理装置  
発明者：古川憲治  
権利者：馬 永光  
種類：特願  
番号：2010-127141  
出願年月日：平成 22 年 6 月 2 日  
国内外の別：国内

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

古川 憲治 (FURUKAWA KENJI)  
熊本大学・大学院自然科学研究科・教授  
研究者番号：60029296

##### (2) 研究分担者：

藤井 隆夫 (FUJII TAKAO)  
崇城大学・生物生命学部生命科学化科・教授  
研究者番号：80165331

川越 保徳 (KAWAGOSHI YASUNORI)  
熊本大学・大学院自然科学研究科・准教授  
研究者番号：00291211

西山 孝 (NISHIYAMA TAKASHI)  
崇城大学・生物生命学部生命科学化科・准教授  
研究者番号：00425331