

## 嫌気性アンモニア酸化 (Anammox)プロセスにおける亜酸化窒素の挙動ならびに制御に関する研究(継続)

Behaviors and control of nitrous oxide in anaerobic ammonia oxidation (Anammox) process

京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻 准教授 西村 文武

### (研究計画ないし研究手法の概略)

Anammoxを用いた廃水からの窒素除去法は、近年実装が広く検討され、実プラントの運用も世界中で進められている。Anammox細菌が嫌気性の独立栄養性であることから、従来の生物学的硝化脱窒法と比較して曝気に必要なエネルギーが6割近く、有機物添加量も9割程度削減が可能であると見積もられ、省資源・省エネルギー型廃水処理技術への適応が期待されている。一方で、Anammox自身には亜酸化窒素( $N_2O$ )の生成経路を代謝過程で有しないとされているものの、Anammox反応を適用した実廃水処理施設からは、比較的多量の $N_2O$ の発生が確認されている。しかし、Anammoxリアクター内の生物群集による $N_2O$ 発生に及ぼす環境因子の影響について、直接的に調査・検討したものは多くはない。昨年度はチオシアン酸イオンの影響について調査し、環境変化が $N_2O$ 発生に一定期間影響を与えることを明らかにした。本年度は、Anammox反応を、実下水処理プロセス、とりわけメインストリームに導入する場合を想定し、流入下水に含有されるアンモニア性窒素濃度レベルの人工廃水を用いて、Anammox反応槽から $N_2O$ 発生特性に及ぼす環境因子の影響について調査した。とりわけ操作条件としての温度影響について、長期的な影響調査ならびに評価を行った。

### 研究方法

用いたリアクターの外観を図1に示す。内径4.1cm、高さ18.4cmの亚克力製の円筒形容器をリアクターとし

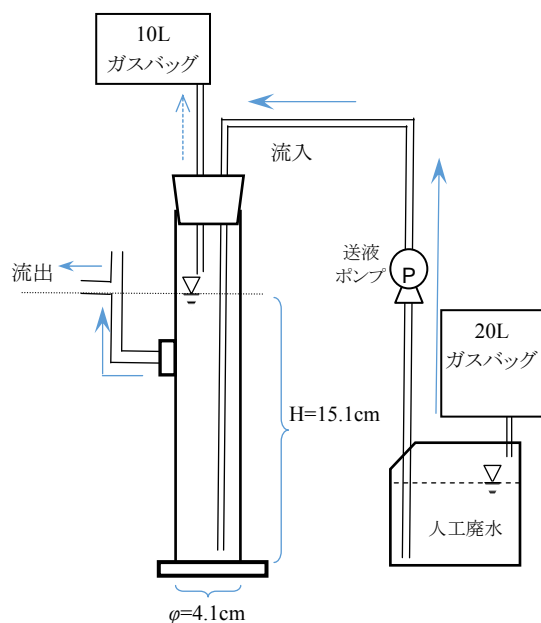


図1 リアクター外観

表1 リアクター運転条件

担体	不織布(6×6×150 mm)
充填率	32%(体積比)
容積	200mL
DO	<0.8mgO <sub>2</sub> /L
HRT	2h
pH	7.0
温度	表2に示す
流入水	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> を50mgN/L含む人工無機廃水

表2 リアクター運転温度条件

リアクター1	55 °C
リアクター2	45 °C
リアクター3	35 °C
リアクター4	25 °C
リアクター5	15 °C

て用いた。上部はシリコン栓で覆蓋した。シリコン栓には二本のガラス管を設置し、一本はリアクター底部への廃水導入用として、もう一本は発生したガスを捕集するためのガスバッグ接続用として用いた。リアクター内部には微生物の付着増殖用の担体として、6×6×150 mmのサイズに成形した不織布を12本投入・設置した。見掛けの充填率は32.4%になる。同様のリアクターを5セット用意し、各々に実験室で以前から集積培養していたAnammox汚泥を植種し、至適温度および至適pHである35°C、pH7.0の条件で2ヶ月間以上連続通水して、Anammox反応を発現・安定化させた。その後植種開始から98日目に、5つのリアクターを各々表1に示す運転条件ならびに表2に示す温度条件として、継続して運転を行い、温度変化後の廃水処理特性およびN<sub>2</sub>O発生特性を調査した。リアクターの温度制御は温度制御された水浴中にリアクターを設置することで行った。

### 結果および考察

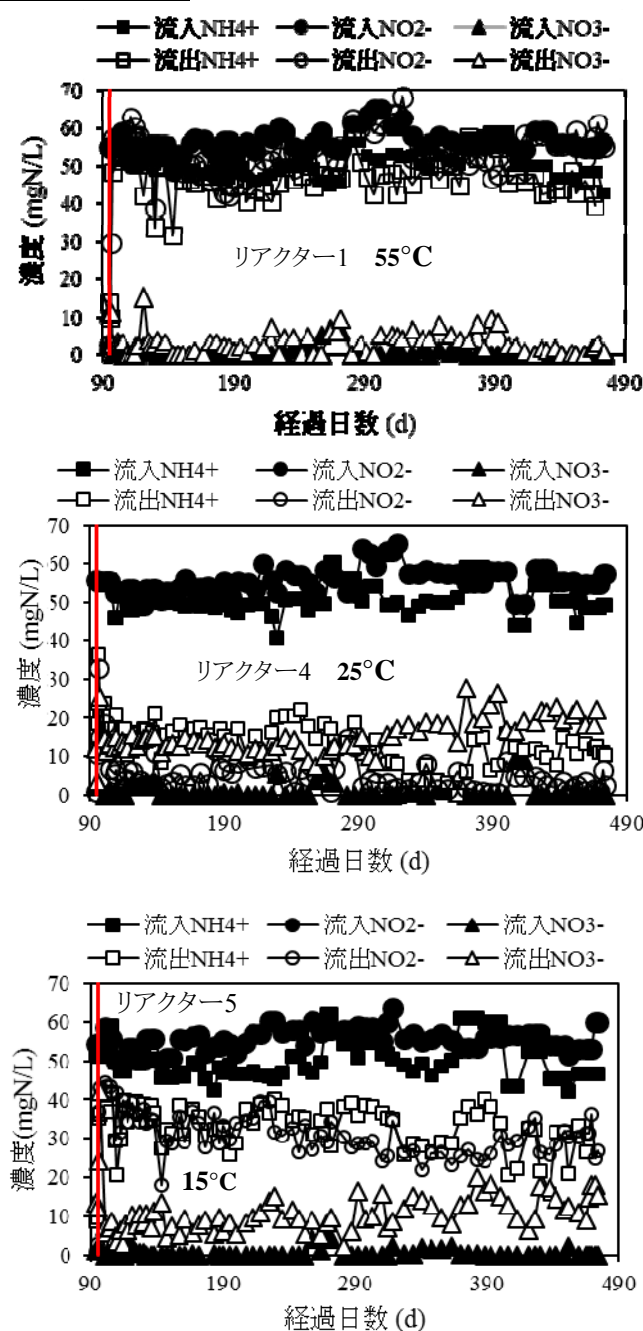


図2 処理結果(上からリアクター1,4および5)

図2にリアクター1, 4, 5の流入水ならびに流出水中の各態窒素濃度の経日変化を示す。温度条件を変化させないリアクター3以外は、温度変化後において流出水中の窒素濃度が増加した。特に55°Cに設定したリアクター1ではアンモニア性窒素と亜硝酸性窒素濃度が急激に50mgN/Lまで増加した。45°Cに設定したリアクター2ではアンモニア性窒素と亜硝酸性窒素濃度が徐々に上昇し137日目には45mgN/Lまでに増加した、リアクター5と同様な状態となり、これらの温度条件下ではAnammox反応は維持できずに停止する結果となった。それに対して温度条件を最適値よりも低下させたリアクター4(設定温度25°C)、リアクター5(設定

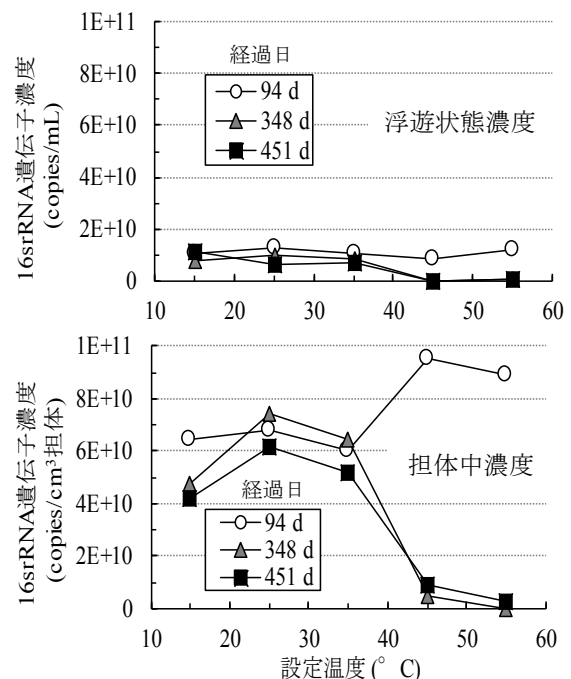


図3 アナモックス細菌濃度(経過日数別)

温度15°C)では窒素除去量は一時的には悪化するものの、徐々に回復する結果となった。リアクター4では115日目には、窒素の除去率が78%程度になるまで回復した。一方、リアクター5では、150日目あたりから、窒素除去が回復する結果となった。この時の窒素除去率は39.8~55%の範囲であった。リアクター全体としてはAnammoxの活性は半分程度になる結果となった。

温度条件が45°C以上で継続して運転すると、時間の差はあるものの、Anammox反応は回復することなく喪失する結果となった。一方、25°Cおよび15°Cの温度条件では、35°Cの条件と比較すると窒素除去率は低下するもののAnammox活性は維持される結果となった。ここで図3に各温度条件でのAnammox細菌濃度について、浮遊状態(グラニューール状態を含む)および不織布付着状態別に示す。図中の○印は、温度条件を35°Cから変化させる前の状況を表している。

45°C以上の条件では、ほぼリアクター中にAnammox細菌が存在しないことが示されている。また、35°C以下の条件では、Anammox細菌数は大きな差は無いことがわかる。代謝速度の差が反応(脱窒)速度の差となって現れていると考えられる。

菌叢解析の結果、リアクター3,4,5には少量の硝化細菌も存在することが明らかになった。リアクターを無酸素条件で運転していたことも影響して、β-AOB およびNOBの微生物量は少ない状態で推移していた。一方、全菌量に対するANAMMOX細菌の菌数の割合は21.1%~41.7%の範囲であった。温度が上昇でリアクター1、2には全菌量に対するβ-AOB およびNOBの菌数の割合は15.7%~46.6%であった。全菌量に対するANAMMOX細菌の菌数割合は18.9~53.1で高い範囲で変動していた。しかし、リアクター3、4、5内においては脱窒細菌も多く存在していた。N<sub>2</sub>Oの生成は脱窒細菌による脱窒反応の際に、リアクター内の水素供与体が不十分の条件となり、N<sub>2</sub>Oが生成したことがある推察された。

300日経過までの、温度と窒素除去量、N<sub>2</sub>O発生量、窒素除去量に対するN<sub>2</sub>Oの変換割合を図4に示す。35°Cで温度条件を変更せずに継続して運転した条件が最も脱窒効率がよく、N<sub>2</sub>O発生量や窒素除去量に対するN<sub>2</sub>Oの変換割合も最も低い結果となった。一方、45°C以上の条件ではAnammox細菌はほぼ喪失したが、PCRを用いた微生物測定ではHeterotrophである脱窒菌の存在が示された。それらによると考えられる脱窒やN<sub>2</sub>Oの発生が観察された。25°C以下においても温度差が大きくなるほどリアクターの窒素除去効率が低下し、一方でN<sub>2</sub>Oの発生が多くなる傾向が示された。安定したリアクター運転を行うことが、N<sub>2</sub>Oの発生抑制に繋がると考えられた。

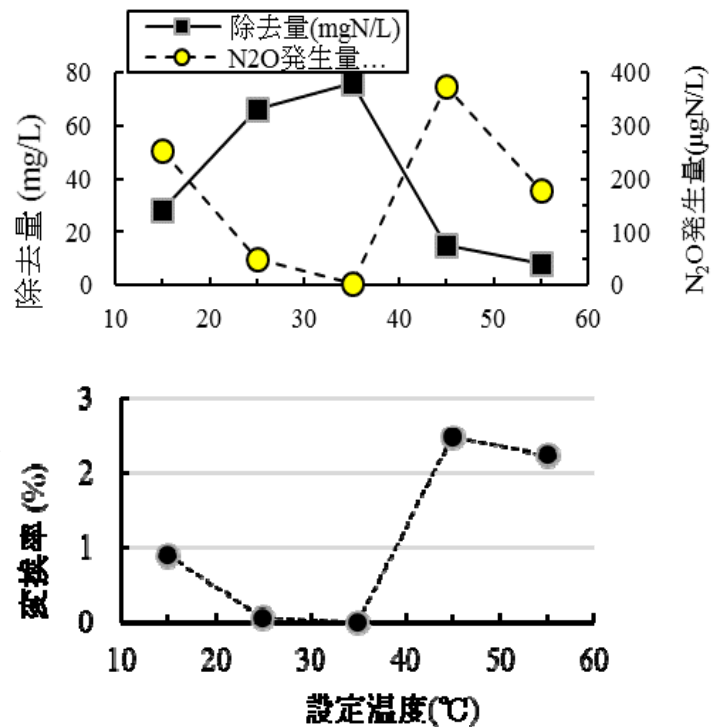


図4 温度と窒素除去量、N<sub>2</sub>O発生量、窒素除去量に対するN<sub>2</sub>Oの変換割合

### (実験調査によって得られた新しい知見)

本研究では、Anammox反応の下水中窒素除去法への適用を想定して、Anammox細菌を主とした混合微生物系における脱窒特性と $N_2O$ の発生に及ぼす温度の影響を調査・考察した。以下に得られた新規知見をまとめて示す。

- 温度条件が $45^{\circ}C$ 以上で継続して運転すると、時間の差はあるものの、Anammox反応は回復することなく喪失する結果となった。一方 $35^{\circ}C$ 以下では、Anammox細菌がリアクターに保持される結果となり、温度が低くなるとリアクター全体の窒素除去効率は低下するもののAnammox反応による脱窒は可能となることがわかった。
- 温度差が $35^{\circ}C$ から大きくなるほどリアクターの窒素除去効率が低下し、一方で $N_2O$ の発生が多くなり、窒素除去量に対する $N_2O$ の変換割合も大きくなる傾向にあることがわかった。安定したリアクター運転を行うことが、 $N_2O$ の発生抑制に繋がると考えられた。

### (発表論文)

西村文武、杜子昂、日高平、余龍暁、水野忠雄、楠田育成：アナモックス反応器による窒素除去、亜酸化窒素発生特性に及ぼす温度の影響，第19回日本水環境学会シンポジウム講演集(平成28年),p.6,2016.

李競、西村文武、杜子昂、日高平、楠田育成、水野忠雄：アナモックスを用いた窒素除去プロセスにおける亜酸化窒素発生特性，第54回下水道研究発表会講演集, 2017, 印刷中.