

部分亜硝酸化と Anammox の組み合わせによる
新規窒素除去プロセスの開発

(課題番号 16310061)

平成 16 年度～平成 18 年度科学研究費補助金 (基盤研究 (B))

研究成果報告書

平成 19 年 4 月

研究代表者 古川 憲治

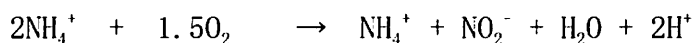
(熊本大学大学院自然科学研究科教授)

はしがき

1995年にオランダのデルフト工科大学から報告された「嫌気性アンモニア酸化 (Anaerobic ammonium oxidation: Anammox)」は、これまでの窒素固定→アンモニア化→硝化→脱窒→に加わる新規な窒素代謝経路で、この反応を排水処理に適用することができれば、極めて経済的で地球環境に優しい窒素除去システムを構築できることから大きな注目を集めている。しかし、Anammox 汚泥の集積培養が極めて難しいことから、その実用化への道のりは険しいと考えられてきた。

研究代表者の古川は、菊花状のポリエステル製不織布を活用する上向流カラムリアクタによる Anammox 汚泥の集積培養法を確立し、我が国で始めて、世界でも3番目に Anammox 汚泥の集積培養に成功した。更に、Anammox 汚泥の菌叢解析を行い、グラニュール状で生育する Anammox 細菌群の表層をブロック形成細菌である *Zoogloea ramigera* 類縁菌がフィルム状にカバーすることで、Anammox 細菌が溶存酸素、有機物からの阻害を受けることなく生育していることを明らかにした。

Anammox 反応は、比較的高濃度の $\text{NH}_4\text{-N}$ を含有する嫌気性消化脱離液、ゴミ埋立地浸出水等の処理への適用が考えられている。Anammox 反応をこれら排水の窒素除去に適用するには、Anammox に先立って排水に含まれる $\text{NH}_4\text{-N}$ の約半量を $\text{NO}_2\text{-N}$ に酸化する次式に示す部分亜硝酸化処理が必要となる。



これまでに、し尿の経済的な窒素除去法として亜硝酸化処理の適用が考えられてきたが、その反応制御が難しいことから亜硝酸化反応を利用する窒素除去法はそれ程広く普及するに至っていない。流入 $\text{NH}_4\text{-N}$ の半量を $\text{NO}_2\text{-N}$ に酸化する部分亜硝酸化処理は、Anammox 反応が出てくるまでは全く考えられなかった処理方法であり、この部分亜硝酸化処理を長期間安定して行うことのできる処理技術の確立が求められている。

本研究では、部分亜硝酸化処理の運転条件の確立と、部分亜硝酸化処理した処理水を Anammox 処理する処理システムの開発を最終目的に研究を実施した。

まず、部分亜硝酸化処理の運転条件を、網目状アクリル繊維性担体を活用したリアクタで実験的に検討した。 $\text{NH}_4\text{-N}$ 容積負荷 $0.5\text{kg-N/m}^3/\text{d}$ の条件で、処理温度 35°C 、リアクタ内 pH を 7.5-7.7 に維持すると部分亜硝酸化処理できることを明らかにした。この決定した運転条件で部分亜硝酸化処理の長期間安定性を検討する過程で、一槽で $\text{NH}_4\text{-N}$ が除去できることを見出し、この処理方法を Single

Stage Nitrogen Removal using Anammox and Partial Nitritation (SNAP) 法と命名した。また、養豚排水を嫌気性メタン醗酵した脱離液を対象に、四方に突起した構造のアクリル繊維性担体を活用する揺動床リアクタにより部分亜硝酸化処理できるかどうか検討した。養豚排水の嫌気性メタン醗酵処理した脱離液のように高濃度の $\text{NH}_4\text{-N}$ を含有する排水であれば、排水自身の持つ高い pH が原因で NH_3 濃度が高くなり、この NH_3 で亜硝酸酸化細菌の活性が阻害され、温度、pH を調整することなく部分亜硝酸化処理できることを明らかにした。

これまで得られた研究成果から、部分亜硝酸化と Anammox を組み合わせた $\text{NH}_4\text{-N}$ 除去法としては、個別に反応を行う 2 槽式と 2 つの反応を同一反応槽で行う 1 槽式が考えられる。どちらを採用するかは、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度、SS 濃度によって決まってくる。

部分亜硝酸化処理、Anammox 処理ともに、菌体濃度が高まり反応が立ち上がれば、反応速度がこれまでの硝化、脱窒反応速度の 5-10 倍にも高まることから、極めてコンパクトな $\text{NH}_4\text{-N}$ 除去リアクタの構築が可能となる。我が国の Anammox 研究に関する研究レベルは極めて高く、部分亜硝酸化と Anammox を組み合わせた実プラント我が国でも昨年立ち上がったことから、Anammox を活用する実プラントの適用例が急速に増えると予想される。省エネで、地球環境に優しい新規窒素除去技術として Anammox 反応を活用する処理方法が普及することを大いに期待したい。

熊本大学大学院自然科学研究科
古川 憲治

研究組織

研究代表者：古川 憲治（熊本大学大学院自然科学研究科教授）
研究分担者：藤井 隆夫（崇城大学生物生命学部応用生命科学科教授）
川越 保徳（熊本大学大学院自然科学研究科助教授）
西山 孝（崇城大学生物生命学部応用生命科学科講師）

交付決定額（配分額）

（金額単位：千円）

	直接経費	間接経費	合計
平成 16 年度	5,100	0	5,100
平成 17 年度	5,400	0	5,400
平成 18 年度	4,100	0	4,100
総 計	14,600	0	14,600

研究発表

（1）学会誌

- ・ 今城麗、安井英斉、石田浩昭、藤井隆夫、杉野浩幸、古川憲治：活性汚泥からの ANAMMOX 微生物の集積培養、水環境学会誌、Vol. 27, No. 6, pp. 413-418 (2004)
- ・ 古川憲治：嫌気性アンモニア酸化 (Anammox) の発見とその後の研究開発動向、水環境学会誌、Vol. 27, No. 7, pp. 2-7 (2004)
- ・ 今城麗、徳富孝明、古川憲治：Anammox プロセスに適したリアクターの検討、水環境学会誌、Vol. 28, No. 3, pp. 185-190 (2005)
- ・ Pham Khac Lieu, Ritsuko Hatozaki, Hayato Homan and Kenji Furukawa: Single-Stage Nitrogen Removal Using Anammox and Partial Nitrification (SNAP) for Treatment of Synthetic Landfill Leachate, *Japanese J. of Water Treatment Biology*, Vol. 41, No. 2, pp. 103-112 (2005)
- ・ Pham Khac Lieu, Hayato Homan, Atuhiro Kurogi, Uasunori Kawagoshi, Takao Fujii and

- Kenji Furukawa: Characteristics of Sludge from Single -Stage Nitrogen Removal Using Anammox and Partial Nitritation(SNAP), *Japanese J. of Water Treatment Biology*, Vol.42, No.2, pp.53-64(2006)
- Kenji Furukawa, Pham Khac Lieu, Hiroyuki Tokitoh and Takao Fujii, Development of Single-stage Nitrogen Removal Using anammox and Partial Nitritation (SNAP) and its Treatment Performances, *Water Science & Technology*, Vol. 53, No.6, pp. 83-90(2006)
 - Tran Thi Hien Hoa, Luong Ngoc Khanh, Liu Zhijung, Takao Fujii, Joseph D. Rouse and Kenji Furukawa, Nitrogen removal by immobilized anammox sludge using PVA gel as biocarrer, *Japanese J. of Water Treatment Biology*, Vol.42, No. 3, pp.139-149(2006)
 - Taichi Yamamoto, Keita Takaki, Toichro Koyama and Kenji Furukawa: Novel Partial Nitritation Treatment for Anaerobic Digestion Liquor of Swine Wastewater Using Swim-Bed Technology, *J. Bioscience and Biotechnol.*, Vol.102, No.6, pp. 497-503(2006)
 - 古川憲治：実用化に入ってきた anammox 技術、Vol.70, NO.11, pp.608-611(2006)
 - Tran Thi Hien Hoa, Luong Ngoc Khanh, Liu Zhijung, Takao Fujii, Muneshige Kinoshita, Hiroyuki Okamoto and Kenji Furukawa, Anammox Treatment Performance using Malt Ceramics as a Biomass Carrier, *Japanese J. of Water Treatment Biology*, Vol.42, No.4, pp.159-168(2006)
 - Munetaka Shimamura, Takashi Nishiyama, Hiroyuki Shigetomo, Takeshi Toyomoto, Yuka Kawahara, Kenji Furukawa and Takao Fujii, Isonlation of Multiheme Protein with Features of a Hydrazine-Oxidizing Enzyme from an Anaerobic Ammonium-Oxidizing Enrichment Culture, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 73, NO.4, pp.1065-1072(2007)
 - Sen Qiao, Yingjun Cheng, Zhijun Liu, Yasunori Kawagoshi, Aya Fujimoto, Toichro Koyama and Kenji Furukawa: Anammox Treatment Potential in an Up-Flow Column Reactor uing a Novel Acrylic Fiber Biomass Carrier, *Japanese J. of Water Treatment Biology*, Vol.43, No.1, pp.31-41(2007)

(2) 国際会議

- Kenji Furukawa, Pham Khac Lieu, Hiroyuki Tokitoh, Ritusuko Hatozaki and Takao Fujii, Mass cultivation of anammox sludge and development of single-stage nitrogen removal using anammox and partial nitritation (SNAP) process, *Proc. of The Joint Conference of Korea Society on Water Quality and Korean Society of Water and Wastewater*, pp.3-14(2005)
- Kenji Furukawa, Hiroyuki Tokitoh, Pham Khac Lieu and Takao Fujii: Single-Stage

Nitrogen Removal Using Anammox and Partial Nitritation (SNAP), *Proc. of the International Water Association (IWA) Conference 2005, Xian*, pp. 1039-1047 (2005)

- Zhijun Liu, Tran Hhi Hoa, Masaharu Takuwa, Luong Ngoc Khanh and Kenji Furukawa: Nitrogen Removal Using Anammox Process in Different Biomass Carriers, *Proc. of the International Water Association (IWA) Conference 2005, Xian*, pp. 289-294 (2005)
- Pham Khac Lieu, Hiroyuki Tokitoh, Hayato Homan, Atuhiro Kurogi and Kenji Furukawa, Development of novel nitrogen removal process using anammox and partial nitritation and its application to landfill leachate, *Proc. of The 6th General Seminar of the Core University Program, "Environmental Science and Technology for Sustainability of ASIA"*, pp. 305-312 (2006)

(3) 国内口頭発表

- Tran Thi Hien Hoa, Liu Zhijiun, Luong Ngoc Khanh, Kenji Furukawa : Nitrogen Removal Using Attached Immobilized Anammox Sludge on PVA Gel Beads、日本水処理生物学会別巻 24 号、p. 86 (2004)
- 宅和正治、稲富泰彦、劉志軍、古川憲治 : 50L Anammox リアクタの迅速立上げに関する研究、日本水処理生物学会別巻 24 号、p. 87 (2004)
- Pham Khac Lieu, Hayato Homan, Kenji Furukawa : Single-stage Nitrogen Removal Using Anammox and Partial Nitritation (SNAP) for Treatment of Synthetic Leachate、日本水処理生物学会別巻 24 号、p. 88 (2004)
- 波戸崎律子、Pham Khac Lieu、古川憲治 : SNAP 法による $\text{NH}_4\text{-N}$ の除去特性、日本水処理生物学会別巻 24 号、p. 103 (2004)
- Tran Thi Hien Hoa、劉志軍、Luong Ngoc Khanh、古川憲治 : Nitrogen removal using attached immobilized Anammox sulge、平成 16 年度土木学会西部支部研究発表会講演概要集、pp. 965-966 (2005)
- 波戸崎律子、Pham Khac Lieu、古川憲治 : SNAP 法によるアンモニア性窒素の除去特性、平成 16 年度土木学会西部支部研究発表会講演概要集、pp. 979-980 (2005)
- 稲富泰彦、宅和正治、古川憲治 : 不織布を活用する Anammox リアクターのスケールアップに関する研究、平成 16 年度土木学会西部支部研究発表会講演概要集、pp. 985-986 (2005)
- 河野洋平、古川憲治 : CANON 法による窒素除去に及ぼす影響因子、平成 16 年度土木学会西部支部研究発表会講演概要集、pp. 981-982 (2005)
- 宝満隼人、Pham Khac Lieu、小山登一郎、古川憲治 : Anammox を活用する埋立地浸出水の窒素除去、平成 16 年度土木学会西部支部研究発表会講演概要集、pp. 861-862 (2005)
- 島村宗孝、杉野浩幸、古川憲治、藤井隆夫 : 嫌気性アンモニア酸化菌由来ヒドラジン酸化酵素の限定分解ペプチドのアミノ酸配列、平成 16 年度日本農芸化学会・西日本・

北海道支部合同大会講演要旨集、p. 30(2004)

- 井上剛志, 杉野浩幸, 古川憲治, 藤井隆夫: 嫌気性アンモニア酸化と部分亜硝酸化を用いた一段階窒素除去 (SNAP) リアクタ中の菌相解析, 平成 16 年度日本農芸化学会・西日本・北海道支部合同大会講演要旨集、p. 37(2004)
- T. Nishiyama, M. Shimamura, K. Furukawa and T. Fujii: A heme protein from an anaerobic ammonium-oxidizing biomass having the features conforming to those of a putative hydrazine-oxidizing enzyme, 29th Annual Meeting of the Molecular Biology Society of Japan, 1p-B-239(2006)
- 藤井隆夫、古川憲治: 嫌気性アンモニア酸化 (ANAMMOX) の反応機構と微生物複合システム解析、日本生物工学会大会講演概要集、p. 83(2006)
- 西山孝、川原優香、豊本健志、島村宗孝、古川憲治、藤井隆夫: Anammox 菌のヒドラジン酸化酵素遺伝子近傍の構造と転写解析、日本生物工学会大会講演概要集、p. 83(2006)
- 山本太一、古川憲治、高木啓太、小山登一郎: 部分亜硝酸化と Anammox を組み合わせた養豚廃水処理に関する研究、日本水処理生物学会誌、別巻 26 号、p. 13(2006)
- 稲富泰彦、秦浩平、山本洋充、藤井隆夫、古川憲治: Anammox 汚泥の大量調整プロトコルに関する研究、日本水処理生物学会誌、別巻 26 号、p. 14(2006)
- 秦浩平、古川憲治、藤井隆夫: Anammox リアクタ立ち上げにおける影響因子の検討、日本水処理生物学会誌、別巻 26 号、p. 23(2006)
- Sen Qiao, Kenji Furukawa, Toichiro Koyama: Studies on the start-up of anammox process using net type acrylic fiber biomass carrier、日本水処理生物学会誌、別巻 26 号、p. 26(2006)
- 宝満隼人、小山登一郎、古川憲治: 単一槽型 Anammox プロセス「SNAP 法」を活用した埋立地浸出水の窒素除去、日本水処理生物学会誌、別巻 26 号、p. 29(2006)
- Khanh Luong、古川憲治、Tran Thi Hien Hoa、岡本 裕行: モルトセラミックスを利用する Anammox リアクタの処理性能、平成 18 年度土木学会西部支部研究発表会講演要旨集 CO-ROM、pp. 981-872(2007)
- 檜原雄一郎、古川憲治、波戸崎律子: SNAP 処理に及ぼす運転操作因子の検討、pp. 873-874(2007)
- 劉成良、古川憲治: Anammox application to low strength ammonium containing wastewater, 平成 18 年度土木学会西部支部研究発表会講演要旨集 CO-ROM、pp. 875-876(2007)
- 喬 森、小山登一郎、古川憲治: 部分亜硝酸化を用いた消化脱離液の処理に関する研究、平成 18 年度土木学会西部支部研究発表会講演要旨集 CO-ROM、pp. 877-878(2007)
- 秦 浩平、稲富泰彦、古川憲治、西山 孝、藤井隆夫: Anammox リアクタの早期立ち上げに関する検討、平成 18 年度土木学会西部支部研究発表会講演要旨集 CO-ROM、pp. 893-894(2007)

- ・ 古賀絢三、秦 浩平、藤井隆夫、古川憲治：Anammox リアクタ立ち上げにおける影響因子の検討、平成 18 年度土木学会西部支部研究発表会講演要旨集 CO-ROM、pp. 895-896 (2007)
- ・ 山本太一、古川憲治、高木啓太、小山登一郎：Anammox プロセスを用いた養豚廃水の脱離液処理に関する研究、平成 18 年度水環境学会九州支部研究発表会講演要旨集、pp. 7-8 (2007)

(4) 講演資料

- ・ 古川憲治：Application of Anammox Technology for the removal of high strength Ammonium Polluted Wastewater and Swim Bed Technology for Advanced Wastewater Treatment、2007 中日土木工学分野学術共同セミナー講演集、(北京工業大学) (2007)

目 次

1. 実用化に入ってきた anammox 技術	1
2. Novel Partial Nitritation Treatment for Anaerobic Digestion Liquor of Swine Wastewater Using Swim-Bed Technology	5
3. Single-Stage Nitrogen Removal Using Anammox and Partial Nitritation (SNAP) for Treatment of Synthetic Landfill Leachate	13
4. Characterization of Sludge from Single -Stage Nitrogen Removal Using Anammox and Partial Nitritation(SNAP)	23
5. Nitrogen Removal by Immobilized Anammox Sludge Using PVA Gel as Biocarrer	35
6. Anammox Treatment Performance using Malt Ceramics as a Biomass Carrier	47
7. Anammox Treatment Potential in an Up-Flow Column Reactor using a Novel Acrylic Fiber Biomass Carrier	57
8. 嫌気性アンモニア酸化 (anammox) の発見とその後の研究 開発動向	69
9. Anammox リアクタの早期立上げとその影響因子の検討	75
10. SNAP 法を活用した埋立地浸出水の窒素除去	93
11. SNAP 処理に及ぼす運転操作因子の検討	111