

嫌気性アンモニア酸化（Anammox）汚泥の調製に関する研究

熊本大学大学院 学生会員 ○吉田憲治
 熊本大学工学部 ASCE 会員 Rouse, J.D.
 栗田工業株式会社 今城 麗
 熊本大学工学部 正会員 古川憲治

1. はじめに

近年、脱窒リアクタ内部での窒素収支の検討からアンモニアの嫌気酸化（Anammox）が提案され⁽¹⁾、新たな窒素変換の経路（図 - 2）として注目されている。本研究では実験室で馴養している脱窒活性汚泥を種汚泥として調製した Anammox 汚泥を用いて行った Anammox 集積培養と、不織布を Anammox 汚泥の付着担体として活用したりリアクタの連続実験の結果について報告する。

2. 実験材料並びに方法

供試汚泥としてはメタノールを脱窒の炭素源とする脱窒培地で長期間 fill and draw 法にて馴養している脱窒汚泥を使用した。Anammox 汚泥の培養には表 - 1 に示す組成の培地を使用した。

表 - 1 Anammox 培地組成

成分	濃度
NaNO ₂	0 ~ 300mg-N/L
NH ₄ Cl or (NH ₄) ₂ SO ₄	0 ~ 300mg-N/L
KH ₂ PO ₄	54mg/L
KHCO ₃	125mg/L
Micro Fe / EDTA ^{#1}	1ml/L

#1 Micro Fe / EDTA 組成...FeSO₄・7H₂O 9g, EDTA・2Na 5g

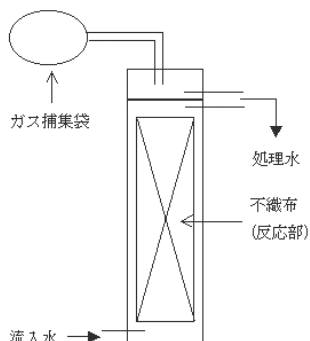


図 - 1 連続実験装置

集積培養は、表 - 1 に示す培地と 1.8L の Jar Fermentor を用いて温度 35℃、pH8.0、90rpm の緩速攪拌、静置培養の条件で行った。2.6 ~ 6.4mM の硫酸アンモニウム溶液、1.3 ~ 3.8mM の亜硝酸ナトリウム溶液の添加により消費されたアンモニア・亜硝酸を補った。また、実験開始 9 日後からは 300ml の PVA ゲルビーズ（クラゲール）を担体として加えて行った。無機培地及び微量元素の不足を防ぐため、培地の半量を 15 日間隔で交換した。

連続実験には図 - 1 に示す容量 2.51L、直径 9cm の円筒型のガラス容器を使用した。Anammox 馴養汚泥 5.0g を菊花状のゼオライト担持ポリエステル不織布（日本バイリーン）を層状に充填した担体（1,700cm²）に付着固定化させた。流入量は上向流にて 7 ~ 10L/d の流量で供給し、培養は室温（20 ~ 30℃）で行った。流入水の NH₄-N、NO₂-N 濃度を变化させ、流入水、処理水の NH₄-N、NO₂-N、NO₃-N を分析することでその変化を追跡した。

3. 理論

従来の知見では NH₄⁺ は好気条件下硝化菌によって NO₂⁻、NO₃⁻ に独立栄養的に酸化され、生成した NO₃⁻ は酸素の存在しない条件下(anoxic)で従属栄養の脱窒菌によって N₂ に脱窒される。

Anammox 反応は NH₄⁺ の還元で NO₂⁻ を電子供与体として使う反応で自由エネルギーの減少による発エルゴン反応であることから、理論的には Anammox 反応によって細菌の生育に必要なエネルギーを供給することができる。（図 - 2）

キーワード 嫌気性アンモニア酸化、Anammox、アンモニア、亜硝酸、汚泥調製
 連絡先 〒860-8555 熊本市黒髪 2 丁目 39-1 熊本大学工学部環境システム工学科
 Tel&Fax 096-342-3544 Email 007d9571@gsst.stud.kumamoto-u.ac.jp

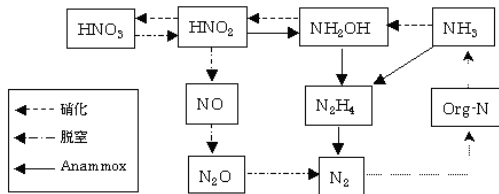
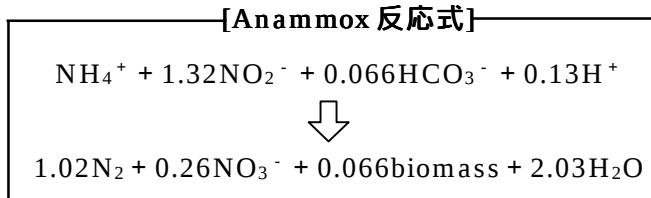


図 - 2 窒素変換経路

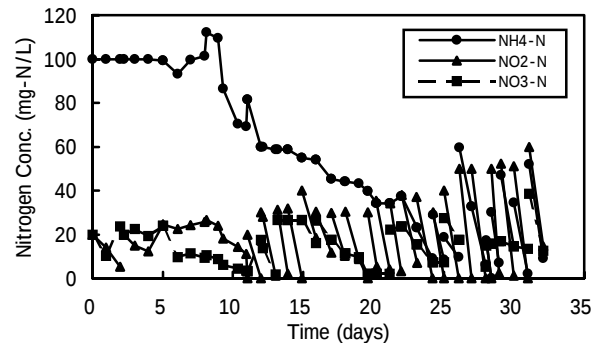
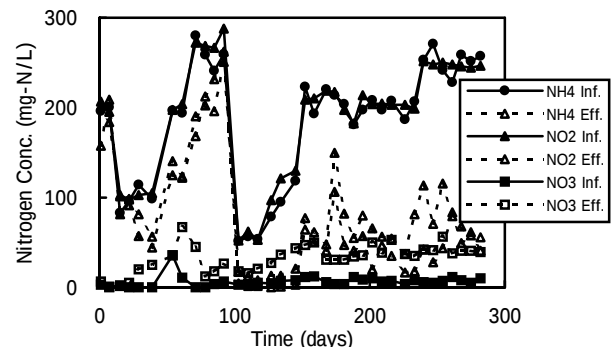
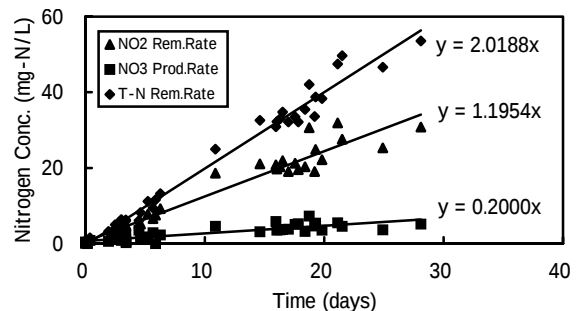


4. 実験結果及び考察

図 - 3 には集積培養による培養液中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度変化を示した。培養開始から 9 日後までほとんど変化が見られなかったが、9 日後に PVA ゲルビーズを担体として投入してから $\text{NO}_2\text{-N}$ の除去速度は高くなった。22 日後からは $\text{NH}_4\text{-N}$ の除去速度も高くなり、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の同時除去が確認できた。この集積培養では $\text{NO}_3\text{-N}$ が除去されている時も見られるが、これは $\text{NO}_2\text{-N}$ が消費されてしまった後 $\text{NO}_3\text{-N}$ が $\text{NO}_2\text{-N}$ の代わりに使われたと思われる。この結果より最終的に $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度をそれぞれ 1 日に約 40mg/L、50mg/L 除去することができた。

図 - 4 は Anammox 条件下で長時間馴養した脱窒活性汚泥を用いた場合の各態窒素の変動を示した。実験開始から $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度を 200mg/L に設定したが、この条件では窒素はほとんど除去されず、50mg/L の濃度に下げたところ除去率が上がり、それから段階的に負荷を上げた。流入水の $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度が 250mg/L でも良好な窒素除去が達成できた。最終的に $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度ともに 250mg/L の流入水の Total-N を 75% の効率で除去することができた。

図 - 5 には連続実験での $\text{NH}_4\text{-N}$ 除去速度に関する $\text{NO}_2\text{-N}$ 除去速度と $\text{NO}_3\text{-N}$ 生成速度の関係を示した。この結果、Mulder⁽¹⁾らの提唱しているものとほぼ同じ化学量論で反応の進行していることが明らかになった。

図 - 3 集積培養液中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の経時変化図 - 4 連続実験の流入水の $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の経時変化図 - 5 連続実験の $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、Total-N の反応比

5. まとめ

Anammox 集積培養には付着担体として PVA ゲルビーズを用いることが適していた。

Anammox 条件下で長時間馴養した汚泥をポリエステル不織布に付着固定させたりアクタを運転し、Anammox 反応を認めた。負荷量を段階的に高める方法で、高い窒素負荷条件下で 75% の Total-N 除去率が達成できた。

(参考文献)

(1) A. Mulder et al.: Anaerobic ammonium oxidation discovered in a denitrifying fluidized bed reactor, FEMS Microbiology, Vol.16, pp.177-188 (1995)