

アナモックス菌が自生する養豚廃水処理施設に
おける窒素除去の変動要因

アナモックス菌が自生する養豚廃水処理施設における窒素除去の変動要因

静岡県畜産技術研究所中小家畜研究センター 石本史子

1 はじめに

窒素低減対策が求められる畜産廃水処理においては、原水の BOD/N 比が低いケースも多く、硝化脱窒法は曝気にかかる電気代や薬品代にかかるコストが大きくなることなどもあり、普及はあまり進んでいない。一方、1990 年代に発見されたアナモックス法は、廃水中のアンモニアと亜硝酸を基質としてアナモックス菌が窒素ガスを産生するもので、アンモニアの酸化にかかる曝気量の削減と有機物の添加が不要なため、硝化脱窒法より低コストで運転が可能であることから、養豚廃水へのアナモックス法の適用が期待される。

アナモックス法による窒素除去を行うにあたっては、アナモックス菌を大量に確保することが必要である。養豚廃水処理施設においては、アナモックス菌が広く存在すること (Waki et al. 2010) や複数の施設でのアナモックス菌バイオフィルムの発生 (Suto et al. 2017) が報告されている。そのように自生するアナモックス菌を効果的に利用することにより、窒素除去の高度化に寄与できる可能性がある。

当センターの養豚廃水処理施設は、その発生が報告された施設の一つであり、アナモックス菌の集積を確認して以降、数年にわたりこの施設の運転と排水処理の状況、およびアナモックス菌バイオフィルムの状態について調査を行っている。今回は、この施設におけるアナモックス菌バイオフィルムの発生要因の検証と、窒素除去率の変動にかかる環境要因について説明する。

2 センター養豚排水処理施設の概要

当センターの養豚廃水処理施設は平成元年に設置されたもので、800 頭前後の養豚廃水を連続式により処理を行っている。施設の概要を図 1 に示す。豚舎から流入する汚水 (一部ふん尿混合汚水を含む) は、原水槽から固液分離スクリーンを経た後、調整槽に一時貯留され、流量調整を行う分水ますを経由して曝気槽に投入される。最も容積の大きい第 1 曝気槽が処理のメインであり、そこで活性汚泥処理を行った後、第 1 沈殿槽から第 2 曝気槽 (接触酸化槽)、第 2 沈殿槽を経て処理水が放流される。曝気槽の MLSS は平均で 10,800 mg/L 前後と高濃度で運転されており、F/M 比 (Food/Microorganisms ratio) は平均 0.03 kg BOD/汚泥 kg・日と低く、汚水滞留時間 (HRT) は 80 時間前後と、低負荷の条件下で長時間ばっ気を行うことにより処理を行っている。また、汚泥滞留時間 (SRT) は 25 日以上と長い。

2012年に、この施設でアナモックス菌のバイオフィームが発生していることを発見した。バイオフィームは第1曝気槽以下の各槽で発生しており、特に第1曝気槽の水面下の壁面は赤いバイオフィームで広く覆われていることが目視で確認された。さらに沈殿槽では、冬季を中心に水面に赤いグラニューールの浮上が観察された。これらのアナモックス活性を測定したところ、壁面に付着したバイオフィームで $115 \mu\text{mol/g-IL/hr}$ 、浮上グラニューールで $346 \mu\text{mol/g-IL/hr}$ と、高いアナモックス活性のあることを確認している (Suto et al. 2017)。

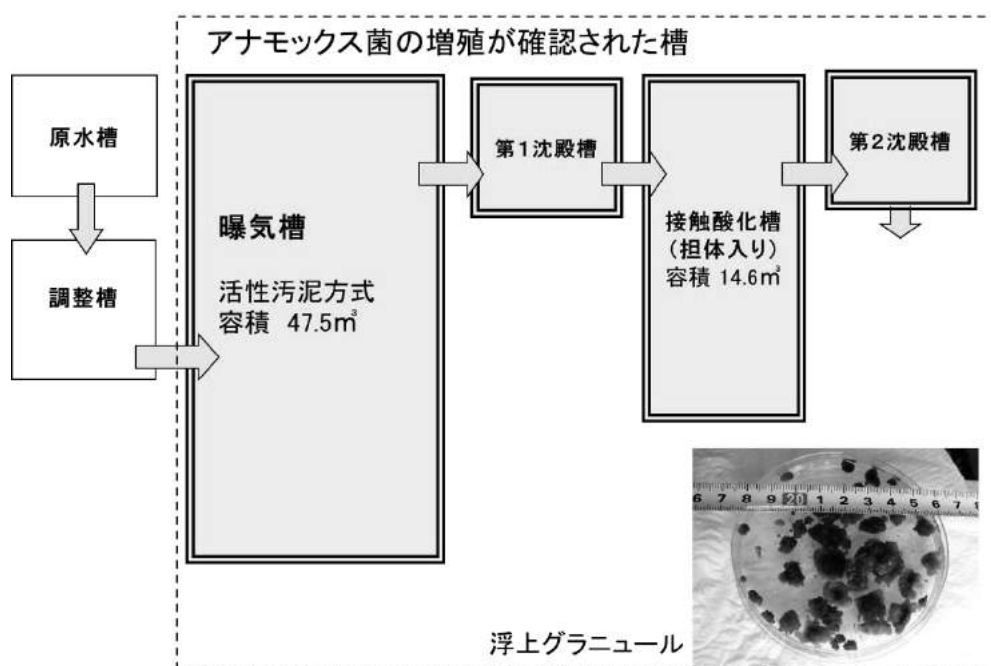


図1 センター養豚廃水処理施設の概図

3 廃水処理施設においてアナモックス菌が集積される要因の調査

2016年4月から2018年3月にかけて、当センターの養豚廃水処理施設において、アナモックス菌の集積される要因について調査を行った。第1曝気槽を中心として、各槽内のpH、溶存酸素量(DO)、全窒素および無機態窒素(アンモニア態窒素： $\text{NH}_4\text{-N}$ 、亜硝酸態窒素： $\text{NO}_2\text{-N}$ 、硝酸態窒素： $\text{NO}_3\text{-N}$)濃度、流入水および処理水のBODについて測定を行った。その結果、流入汚水のBODは平均 $1104 \pm 513 \text{ mg/L}$ 、全窒素濃度は $629 \pm 198 \text{ mg/L}$ 、うち無機態窒素は $457 \pm 128 \text{ mg/L}$ であった。BOD/N比は 1.78 ± 0.58 であり、低かった。処理水では、BOD(C-BOD)は $44 \pm 27 \text{ mg/L}$ まで減少しており、平均BOD除去率は95%で、有機物の酸化分解処理は良好に行われていると判断された。第1曝気槽における無機態窒素濃度は $146 \pm 92 \text{ mg/L}$ で、除去率は $68 \pm 17\%$ であった。流入水のBOD/N比が低いにも関わらず窒素除去率が高いのは、アナモックス菌の寄

与があるためと推測された。第2沈殿槽を経た処理水の全窒素および無機態窒素除去率は、それぞれ $75 \pm 14\%$ 、 $72 \pm 16\%$ であり、窒素除去は主に第1曝気槽で行われていると考えられた。また、第1曝気槽における無機態窒素の内訳は $\text{NH}_4\text{-N}$ が $92.2 \pm 65.2 \text{ mg/L}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ が $42.8 \pm 58.3 \text{ mg/L}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が $13.4 \pm 29.7 \text{ mg/L}$ であり、 $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が同時に存在する状況であった。曝気槽の pH の月平均値は 6.9 から 7.9 の範囲で推移し、平均は 7.35 ± 0.49 であった。DO は $0.31 \pm 0.39 \text{ mg/L}$ と低い値で推移した。これらの結果を表1に示す。

アナモックス菌の至適 pH は 6.7 から 8.3 であることが報告されている (Strous et al. 1999)。また、アナモックス菌自体は偏性嫌気性菌であるが、1つの槽の中でアンモニアの一部を酸化し、アナモックス反応と従属栄養脱窒による窒素除去を同時に進行させる SNAD (Simultaneous partial nitrification, anammox and denitrification) プロセスにおいては、たとえば DO は $< 0.5 \text{ mg/L}$ (Daverey et al, 2015) であると報告されている。以上のことから、当施設においては DO 及び pH がアナモックス菌の生育に適した範囲にあること、アナモックス反応の基質となる $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_2\text{-N}$ が存在すること、また SRT が 25 日以上と長いことで、倍加速度が 11 日 (Strous et al. 1998) と遅いアナモックス菌の槽内での増殖時間が確保されることが、アナモックス菌の集積を可能にしている要因と考えられた。

表1 アナモックス菌バイオフィーム発生要因と考えられた項目

項目	測定結果	アナモックス菌が好む既知の条件
pH	6.9~7.9	pH 6.7~8.3
溶存酸素濃度	0.31mg/L	< 0.5mg/L (一槽型アナモックス処理の場合)
無機態窒素	アンモニアと亜硝酸又は硝酸が存在	アナモックス反応の基質であるアンモニアと亜硝酸があること
汚泥滞留時間	25日以上	菌の倍加速度(11日)より長い
BOD除去率	95%	有機物が少ない

4 窒素除去率に及ぼす要因の調査

(1) 水温の影響

無機態窒素除去率 (以下「窒素除去率」と略す) と曝気槽の水温の変動を図2に示す。水温は 10°C から 34°C の間で推移し、年間平均水温は 22.8°C であった。窒素除去率は曝気槽の水温の上下におおむね一致する形で推移し、水温が 15°C

以下に下がる 1~2 月の除去率は低迷する傾向にあった。水温が高くなる夏期においては、最高温度となる 8 月よりも、その前後の時期の窒素除去率のほうが高い傾向が認められた。5°C ごとの階層に分けて窒素除去率を計算し、Steel-Dwass 検定により有意差検定を行ったところ、15-19.9°C から 30°C 以上の各階層間では有意差を認めなかったが、15°C 未満では他の温度帯より有意に除去率が低かった。以上のことから、最低限で 15°C 以上の水温を確保することにより、窒素除去の安定化を図ることができる可能性があると考えられた。

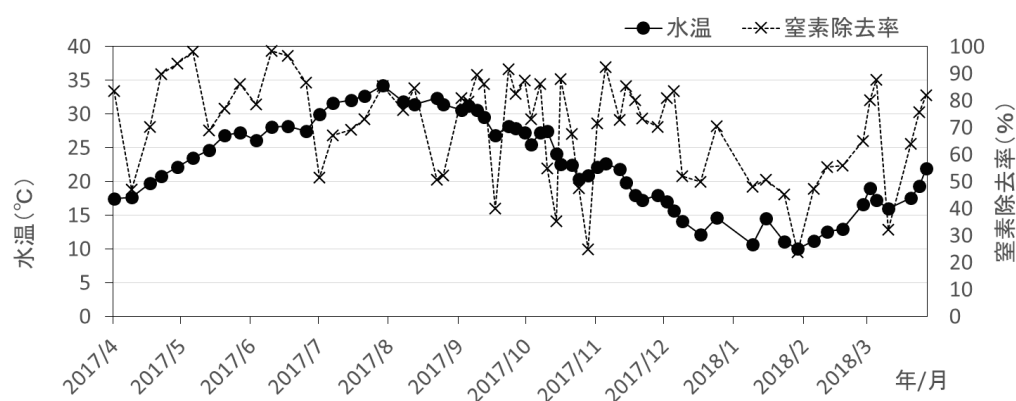


図 2 水温と窒素除去率の関係 (2017 年度)

また、アナモックス法の適用における至適水温は 37°C (Egli et al. 2001) とされ、これは当施設の最高水温より高いが、年平均水温に近い 20°C のリアクターで集積されたアナモックス菌には、低温での活性が高いものがあることが報告されている (Park et al. 2017)。当施設においても、低温に強いアナモックス菌の存在が期待されることから、現在詳細な調査を行っているところである。

(2) 一過性の急激な窒素除去の低下をひきおこす短期的な変動要因

窒素除去率を月平均値で比較すると、春夏期の窒素除去率は 70% 以上と良好であるが、週単位で分析した場合には、20 ポイント以上の一過性の除去率の大幅な低下が散見された (図 3)。このような変動を避けることができれば、平均窒素除去率はより向上する。そこで、窒素除去率の安定化を図る目的で、この変動の発生要因について調査を行った。

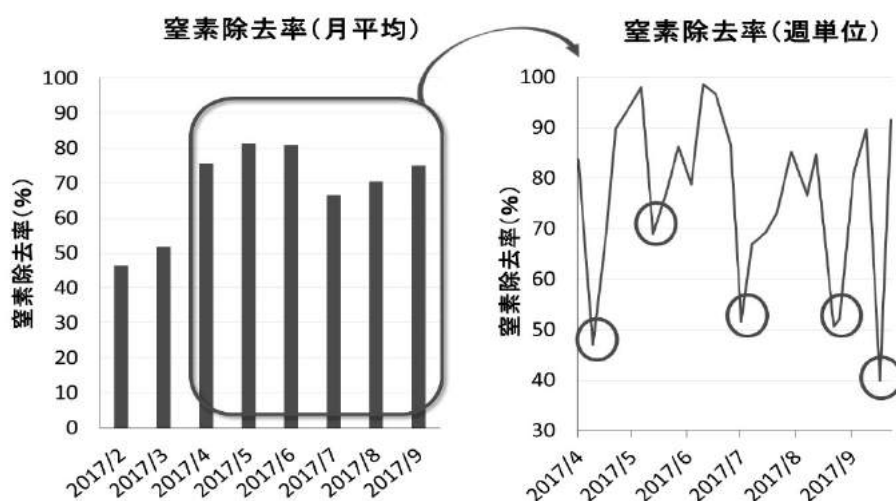


図3 2017年春夏期の窒素除去率の推移

全調査期間のうち、平成29年の4月～9月のデータから、前回の測定から窒素除去率が20ポイント以上低下したデータを抽出し、DO、pH等の要因との関連について解析を行った。また、アナモックス反応の阻害因子とされる遊離亜硝酸(FNA)及び遊離アンモニア(FA)濃度について、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、pHおよび水温から Anthonisen の式 (Anthonisen et al.1976) により算定し、それらの影響についても解析した。

調査期間において、窒素除去率が急激に20ポイント以上低下する状態は5回確認された。そのうち2回は、DOが0.5 mg/L以上に急上昇したのと同時にpHが至適範囲より低い6.5以下へ急激に下降するとともに、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の上昇が認められた。また、 $\text{NO}_2\text{-N}$ が蓄積してpHが下降したことで、FNAの濃度の上昇(0.32 mg/L以上)も認められた。以上のことから、このパターンでは、DOの上昇と硝化が促進されたことによる $\text{NO}_2\text{-N}$ の蓄積、およびそれに伴うpHの下降といった要因により、アナモックス反応が阻害された可能性が考えられた。また、FNA濃度の上昇もアナモックス反応の阻害要因となった可能性が考えられた。

一方で、そのようなDOの上昇やpHの下降がないにもかかわらず除去率が低下するパターンも3回認められた。このパターンでは、pHは8.0以上を示すとともに $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が急激に上昇した一方で、 $\text{NO}_2\text{-N}$ は検出されなかった。すなわち、このパターンでは、DOとpHはアナモックス反応の至適範囲内にあったものの、酸素供給量の不足により $\text{NH}_4\text{-N}$ の $\text{NO}_2\text{-N}$ への酸化が進まなかったことで、アナモックス反応の基質である $\text{NO}_2\text{-N}$ が律速となり、窒素除去率が低下した可能性が考えられた。

(3) 全調査期間における pH、DO と窒素除去率の変動に関する考察

短期調査において窒素除去率の変動に影響を及ぼしていると考えられた pH および DO について、窒素除去率の変動との通年の比較を行うとともに、それぞれに設けた階層ごとに窒素除去率を計算し、Steel-Dwass 検定により有意差検定を行った。

DO においては、0.5 mg/L 以上に上昇したときに窒素除去率が急激に低下する傾向を認めた (図 4)。0.1 mg/L ごとの階層別の比較では、0.20 mg/L 以下の階層での除去率が 70%以上と最も高く、>0.4 mg/L では有意に除去率が低下した。

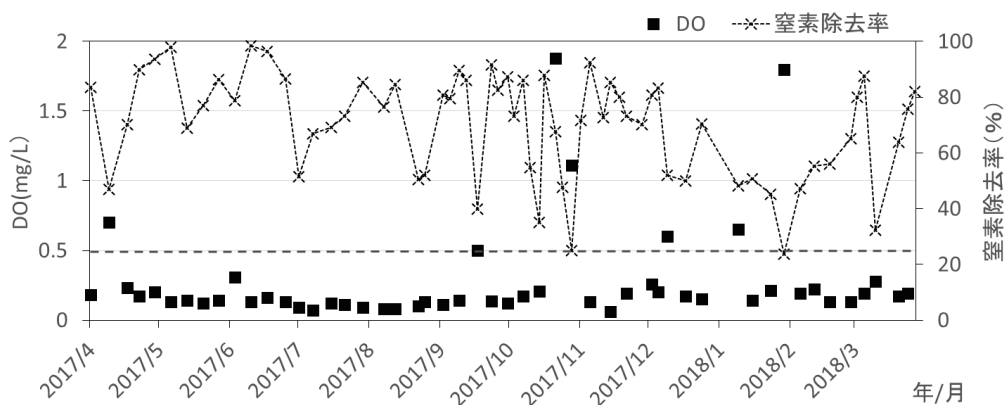


図 4 DO と窒素除去率の関係 (2017 年度) 点線は 0.5mg/L を示す

pH においては、急激な窒素除去率の低下は pH が 6.7 未満に低下したときや、または 8.0 以上に上昇したときに多く認められた (図 5)。0.5 以下の階層別の比較では、7.00 から 7.99 の間で除去率が 70%以上と高く、<6.5 では有意に除去率が低下した。また ≥ 8.00 では有意差は認められなかったが、やや除去率が低下する傾向が認められた。

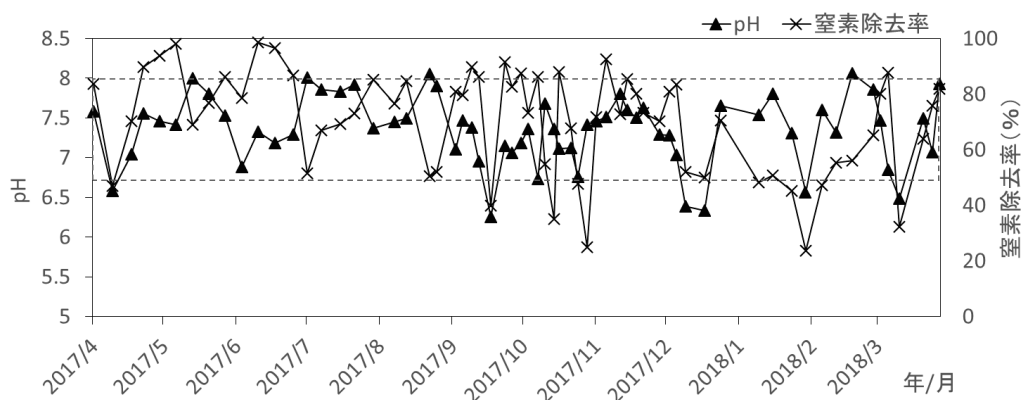


図 5 pH と窒素除去率の関係 (2017 年度) 上下の点線はそれぞれ pH8.0 と 6.7 を示す

5 まとめ

アナモックス菌が存在する当センターの養豚廃水処理施設において、水温 15℃以上、DO 0.4 mg/L 以下、pH 7.0~8.0 の条件を確保することで、安定した窒素除去が得られる可能性が示された。また、窒素除去率を安定させるには、DO と pH をこの条件で安定させるための曝気コントロールが必要であると考えられた。

以上の結果を踏まえ、本年度からは、この施設に DO 制御装置を導入し、曝気量を調整することで窒素除去の安定化をはかる試験を行っていく。

謝辞

本研究は生研支援センター「イノベーション創出強化研究推進事業 (28008A)」の支援を受けて行った。

参考文献

- Anthonisen, A. C., Loehr, R. C., Prakasam, T. B.S., Srinath, E. G. (1976). Inhibition of nitrification by ammonia and nitrous acid. *Journal of Water Pollution Control Federation* 48(5), 835-853
- Daverey, A., Chen, Y. C., Dutta, K., Huang, Y. T., & Lin, J. G. (2015). Start-up of simultaneous partial nitrification, anammox and denitrification (SNAD) process in sequencing batch biofilm reactor using novel biomass carriers. *Bioresour. Technol.*, 190, 480-486.
- Egli, K., Fanger, U., Alvarez, P.J.J., Siegrist, H., van der Meer, J.R., Zehnder, A.J.B. (2001) Enrichment and characterization of an anammox bacterium from a rotating biological contactor treating ammonium-rich leachate. *Arch Microbiol.*, 175 (3), 198-207
- Park, G., Takekawa, M., Soda, S., Ike, M., Furukawa, K. (2017). Temperature dependence of nitrogen removal activity by anammox bacteria enriched at low temperatures. *J. Biosci. Bioeng.*, 123 (4), 505-511.
- Strous, M., Heijnen, J. J., Kuenen, J. G., Jetten, M. S. M., 1998. The sequencing batch reactor as a powerful tool for the study of slowly growing anaerobic ammonium-oxidizing microorganisms. *Appl. Environ. Biotechnol.* 50 (5), 589-596
- Strous, M., Kuenen, J. G., Jetten, M. S. M., 1999. Key physiology of anaerobic ammonium oxidation. *Appl. Environ. Microbiol.* 65 (7), 3248-3250.
- Suto, R., Ishimoto, C., Chikyu, M., Aihara, Y., Matsumoto, T., Uenishi, H., Yasuda, T., Fukumoto, Y., Waki, M. (2017). Anammox biofilm in activated sludge swine wastewater treatment plants. *Chemosphere*, 167.

Waki M, Yasuda T, Suzuki K, Sakai T, Suzuki N, Suzuki R, Matsuba K, Yokoyama H, Ogino A, Tanaka Y, Ueda S, Takeuchi M, Yamagishi T, Suwa Y. (2010). Rate determination and distribution of anammox activity in activated sludge treating swine wastewater. *Bioresour Technol.* 101(8) 2685-2690.

本資料より転載・複製する場合は国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構の許可を得てください。

畜産研究部門 令1-4資料

令和元年度家畜ふん尿処理利用研究会資料

編集・発行 国立研究開発法人 農業・食品産業技術総合研究機構 畜産研究部門
企画管理部企画連携室

Tel.029-838-8292、 Fax.029-838-8606

〒305-0901 茨城県つくば市池の台2

発行日 令和元年10月31日

印刷所 朝日印刷株式会社 つくば支社