

Anammox 菌を用いた豚舎排水中の窒素除去技術に関する研究

浅岡丈楽・宮下理・大窪敬子¹⁾・脇本亘²⁾・埴和靖俊・笠井勝美²⁾

1) 茨城県県北農林事務所 2) 茨城県農林水産部畜産課

Study on nitrogen removal technology in swine wasted water using Anammox bacteria

Jyouraku ASAOKA, Nori MIYASHITA, Takako OHKUBO, Wataru WAKIMOTO,
Yasutoshi HAGA and Katsumi KASAI

要 約

嫌気性アンモニア酸化細菌 (Anammox 菌) を豚舎排水の窒素除去に利用する際の最適条件についてラボスケールでの検討を行った。今回の試験により、Anammox 菌が高い窒素除去能力を発揮できる環境は反応槽中の水温 20～30℃、保定担体として反応槽内に菊花状不織布を投入した場合であることが判明した。また、実際の豚舎排水の浄化処理に Anammox 菌を利用する際には、従来の浄化方法である活性汚泥法によって一度処理を行った豚舎排水の高度処理として利用することで、さらなる窒素除去が可能であることが示唆された。

キーワード : Anammox 菌 窒素除去 水温 保定担体

緒 言

茨城県は養豚算出額全国第 6 位 (平成 30 年度) と養豚業が非常に盛んな地域であり、県内では約 55 万頭の豚が飼育されている。しかし、その約半数は霞ヶ浦流域で集中的に飼育されており、そこから排出される豚舎排水は霞ヶ浦の水質汚濁の原因の一つであるとされている。この状況を受け、茨城県では霞ヶ浦流域内の全事業所について、「茨城県霞ヶ浦水質保全条例」により排水中の全窒素・全リン濃度に厳しい河川放流基準を定めており、この基準値を順守しなければ河川放流ができない。この規制は、霞ヶ浦流域の養豚場にも適用されているが、都市下水と比較して全窒素・全リン濃度の高い養豚排水において、本条例の基準値を従来の浄化方法だけでクリアするには多大な労力とコストがかかる。そのため、現状、流域内の養豚農家については河川放流が困難な状況となっており、浄化処理を行った豚舎排水は、農地還元や蒸発散処理を行っている例がほとんどである。しかし、過剰施肥による環境負荷が懸念される昨今、豚舎排水処理の分野において、新たな浄化処理技術の開発は必要不可欠である。

窒素の浄化処理については、工業排水処理の分野において嫌気性アンモニア酸化 (Anaerobic ammonium oxidation: Anammox) 細菌の利用が注目されている。従来の窒素除去方法である活性汚泥法は、曝気によって排水中に酸素を送り込み、アンモニア態窒素を硝酸

態窒素に硝化させたのち、脱窒菌の働きにより、硝酸を窒素ガスに変換し、脱窒を行うものである。一方、この Anammox 菌は、アンモニア態窒素と、硝酸態窒素の前駆物質である亜硝酸態窒素を約 1 : 1 の割合で消費して脱窒を行う菌であることから、硝化のための曝気を必要とせず、その分安価な窒素除去技術であるとされている (図 1)。しかし、豚舎排水は工業排水とは異なり、季節によって水温、水量、水質が大きく変動するなどの点から、Anammox 菌に最適な運転方法は未だ見つかっておらず、この技術の畜産分野での実用化は未だ実現していない。

そこで、本研究では茨城県畜産センター養豚研究所から排出された豚舎排水を用いて、Anammox 菌を豚舎排水の窒素除去に利用する際の最適な条件について検討した。なお本試験で使用した Anammox 菌は、須藤ら¹⁾の先行研究により発見された、県内養豚農家の豚舎排水処理施設に自生していた菌株を培養したものを使用した。(図 2)

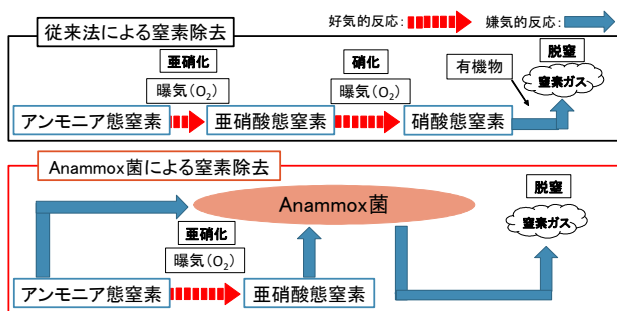


図1 従来法と Anammox 菌による窒素除去反応の比較



図2 培養中の Anammox 菌

試験1 窒素除去に最適な水温の検討

Anammox 菌の活性が最も高くなる水温は、20~30℃付近であるということが既往の研究^{3) 4)}により明らかになっているが、使用する菌株によって、至適水温の上限は30℃~35℃と多少のぶれがみられることが判明している。よって、今回は、本試験で使用する Anammox 菌が窒素除去を行う際の最適な水温を検討した。

1 材料および方法

本試験では、供試汚泥として、Anammox 汚泥 5 g を使用した。この菌株を 100mL ビーカーに添加し、それぞれ 10℃、20℃、30℃、40℃の温度条件でアンモニア態窒素と亜硝酸態窒素を 1 : 1 の割合で含む人工排水 100mL と 24 時間反応させた。

2 調査項目

反応開始時と反応後の人工排水について、イオンクロマトグラフ (ICS-1100, サーモフィッシャーサイエンティフィック株式会社, 東京) を用いて排水中のアンモニア態窒素, 亜硝酸態窒素, 硝酸態窒素濃度を測定した。

3 結果

反応開始時と反応後の無機態窒素成分濃度を図3に示した。反応開始時と比較して、水温 10℃の条件では反応後も無機態窒素成分濃度に変化はほぼ見られなかった。一方、水温 20℃、30℃の条件では、反応後に無機態窒素成分濃度が低減しており、それぞれ 41.4%と 68.2%の除去率を示していた。しかし、水温が 40℃まで上昇すると、窒素は除去されるものの、除去率が

30.2%まで低下することが確認された。

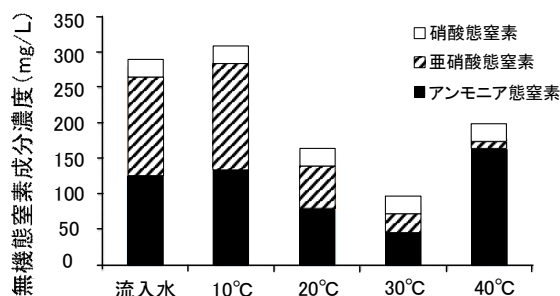


図3 反応開始時および各水温条件で反応後の平均無機態窒素成分濃度

試験2 最適な保定担体の選定

Anammox 菌を反応槽に投入する際には、菌体が反応槽外に流亡するのを防ぐため、槽内に保定担体を添加することが一般的である。今回は、添加した保定担体の種類が Anammox 菌の窒素除去能力に与える影響を検討するため、次の3種類の保定担体を用いて比較試験を行った。

1つ目は、Anammox 菌を実験室内で集積培養する際によく用いられる「菊花状不織布」、2つ目は、実際の浄化処理施設に自生している Anammox 菌が付着していることの多い「コンクリート」、3つ目は、Matsumoto ら⁴⁾の研究により、活性汚泥を槽内に高濃度に保持できることが明らかとなった「炭素繊維」を用いて試験を行った。それぞれの保定担体の外観を図4に示した。なお、本試験は、Anammox 菌を曝気槽に直接添加投入する場合を想定して行った。

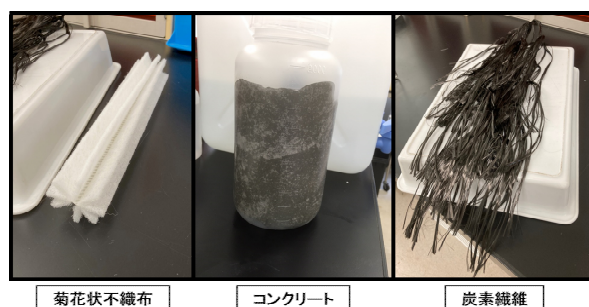


図4 保定担体外観

1 材料および方法

供試汚泥は、Anammox 汚泥 50 g と本県養豚研究所の豚舎排水処理施設から採取した活性汚泥 250mL を混合した混合汚泥を使用した。供試汚水は、本県養豚研究所のベルトスクリーン式固液分離機によって固体分を取り除いた豚舎排水を 48 時間曝気処理し、亜硝酸態窒素濃度を高めた排水（亜硝化液）を使用した。試験装

置は、1 L の反応槽内に保定担体と混合汚泥を投入したものを使用した。

試験は、保定担体として菊花状不織布を添加し供試汚泥として活性汚泥のみを投入した対照区、菊花状不織布を添加し混合汚泥を投入した試験区①、コンクリートを添加し混合汚泥を投入した試験区②、炭素繊維を添加し混合汚泥を投入した試験区③に計4区にて実施した。

運転方法は、亜硝化液 250mL と混合汚泥を反応槽内で 22 時間曝気攪拌した後、1 時間静置し、分離した上澄み 250mL と新しい亜硝化液 250mL の入れ替えを行う回分運転を行った。なお、本試験は 25°C に設定した恒温槽内で行った。試験期間は 2018 年 4 月 17 日から 2018 年 7 月 30 日の 105 日間実施した。

2 調査項目

反応槽に投入した亜硝化液と、槽内からの排出液についてサンプリングを行い、試験 1 と同様にイオンクロマトグラフを用いてアンモニア態窒素、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素濃度を測定した。

3 結果

試験期間中の平均無機態窒素成分濃度を図 5 に示した。すべての区において無機態窒素成分濃度は亜硝化液と比較して減少しており、反応槽内で窒素除去反応が発生していたことが確認された。また、試験期間中の平均無機態窒素除去率は、対照区において 49.6% を示しており、これは活性汚泥由来のみの窒素除去量であると考えられた。次に、各試験区の具体的な窒素除去率は、試験区①で 66.3%、試験区②で 57.9%、試験区③で 59.1% を示しており、菊花状不織布を用いた試験区①の窒素除去率が最も高い値を示していた。全試験区において、窒素除去率は対照区を超えており、反応槽内では、活性汚泥由来の窒素除去反応以外にも Anammox 菌による窒素除去反応が発生していたと考えられた。

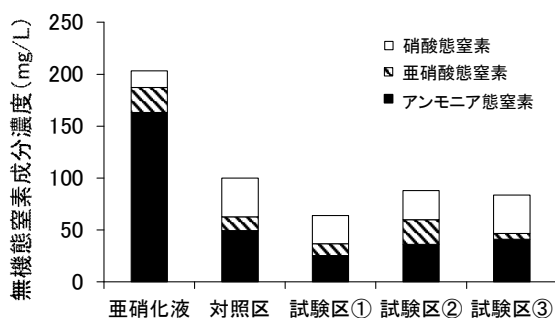


図 5 亜硝化液および試験区からの排出水中の平均無機態窒素成分濃度

試験 3 Annammox 菌の投入に適した排水処理段階の検討

1 固液分離液を用いた検証

養豚研究所のベルトスクリーン式固液分離機によって固体分を取り除いた豚舎排水（以下固液分離液）を反応槽の流入水に用いた場合の窒素除去性能について検証を行った。なお、本試験は、試験 2 と同様、曝気槽に Anammox 菌を直接投入する場合を想定して行った。

1) 材料および方法

使用した試験装置の外観および反応槽の構造を図 6 に示した。

供試汚泥は、Anammox 汚泥 180mg と本県養豚研究所から採取した活性汚泥 9L を混合した汚泥を使用し、供試汚水は、本県養豚研究所の固液分離液を使用した。固液分離液の易分解性有機物濃度

(Biochemical Oxygen Demand : BOD) および、無機態窒素濃度を表 1 に示した。

試験装置は、18L の反応槽内に保定担体として菊花状不織布を添加したものを使用し、設置区は、供試汚泥に活性汚泥のみを使用した対照区と、混合汚泥を使用した試験区にて実施した。運転方法は、試験 2 と同様に回分運転を行い、1 日の排出液量および投入液量を 9L として運転を行った。試験期間は、2018 年 12 月 5 日から 2018 年 12 月 25 日の 20 日間実施した。

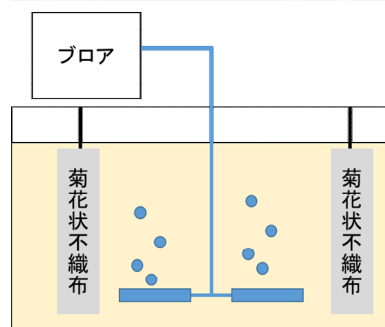


図 6 試験装置外観および反応槽構造

表 1 固液分離液の BOD 濃度

項目	単位	固液分離液
BOD	mg/L	839
アンモニア態窒素	mg/L	480
亜硝酸態窒素	mg/L	2
硝酸態窒素	mg/L	8

※試験期間中に採材した排水の平均値

2) 調査項目

反応槽に投入した固液分離液と、反応槽からの排出液について毎日 15 時にサンプリングを行った。採取したサンプルについては、試験 1, 2 と同様、イオンクロマトグラフを用いてアンモニア態窒素、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素濃度を測定した。BOD については、BOD センサーキット (株式会社 ACTAC) を使用して測定を行った。

3) 結果

試験期間中の平均無機態窒素成分濃度を図 7 に示した。固液分離液と比較すると、対照区、試験区の排出液中の無機態窒素濃度は減少していた。しかし、除去率は、対照区と試験区でそれぞれ 20.7% と 23.0% を示しており、両区でほとんど違いが見られなかった。また、今回使用した固液分離液には、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素がほとんど含まれておらず、無機態窒素組成はアンモニア態が主体の排水であることが確認できた。

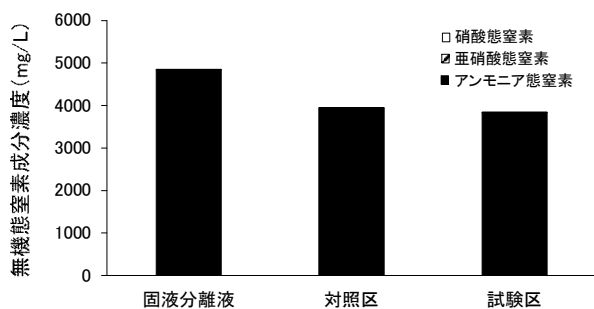


図 7 流入水および各区からの排出液中の平均無機態窒素成分濃度

2 実排水を用いた検証

養豚研究所に既設の豚舎排水浄化処理施設から排出された処理水を反応槽への流入水に用いた場合の窒素除去性能について検証を行った。なお、本試験は、従来法による浄化処理の高度処理として Anammox 菌を利用する場合を想定して行った。

1) 材料および方法

反応槽での豚舎排水の流路を図 8 に、試験装置の外観および構造を図 9 に示した。

供試汚泥は、Anammox 汚泥 10 g を使用し、供試汚水は、本県養豚研究所の豚舎排水処理施設から排出された処理水を使用した。処理水の BOD 濃度および無機態窒素成分濃度を表 2 に示した。

試験装置は、500mL の反応槽内に保定担体として菊花状不織布を添加したものを使用し、設置区は、Anammox 汚泥を投入しない対照区と、Anammox 汚泥を投入した試験区にて実施した。

運転方法は、処理水を反応槽に 24 時間連続で流入させて運転を行い、処理水の槽内滞留時間は 3 日間とした。また、反応槽は、内部の水温が 20℃ になるように加温を行った。試験期間は、2018 年 2 月 20 日から 2019 年 2 月 26 日の 371 日間実施した。

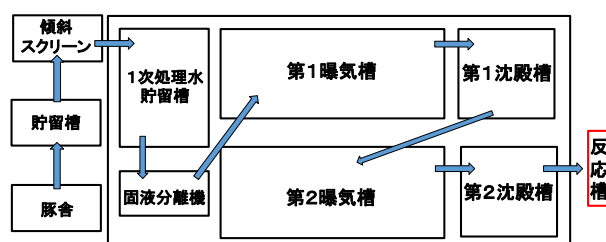


図 8 反応槽までの豚舎排水流路

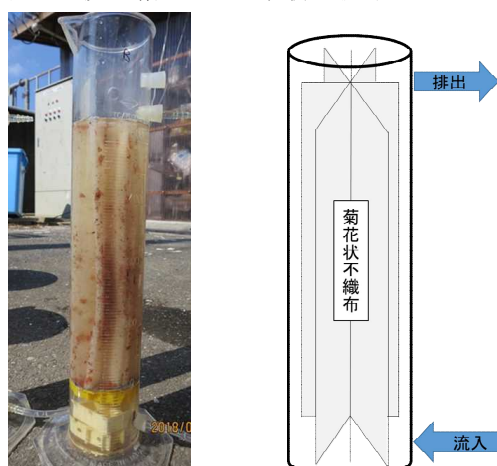


図 9 試験装置外観および構造

表 2 処理水の汚水成分濃度

項目	単位	処理水
BOD	mg/L	62
アンモニア態窒素	mg/L	125
亜硝酸態窒素	mg/L	30
硝酸態窒素	mg/L	62

※試験期間中に採材した排水の平均値

2) 調査項目

反応槽への流入水と、排出液について週に 1 度サンプリングを行った。採取したサンプルについては、全窒素濃度と BOD の測定を行った。全窒素濃度については、multi N/C 3100 (株式会社アナリティクイ

エナジャパン)、BOD については、BOD センサーキット (株式会社 ACTAC) を使用して測定を行った。

3) 結果

試験期間中の平均全窒素濃度を図 10 に示した。対照区は、流入水と比較して全窒素濃度がほとんど変化していなかったことが確認されたが、試験区では 20.0% の全窒素が除去されていたことから、試験区の反応槽内では、Anammox 菌由来の窒素除去反応が発生していたと考えられた。本試験の結果から、処理水を反応槽の流入水に使用することで、Anammox 菌による窒素除去反応を発生させることが可能であることが確認できた。

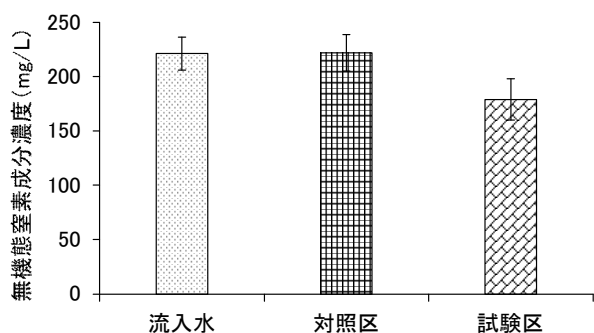


図 10 流入水および各区からの排出液中の全窒素濃度 (平均±標準誤差)

考 察

試験 1 において、今回使用した Anammox 菌の至適温度は 20~30℃ であるということが判明した。この結果は、和木ら²⁾、高木³⁾の研究で示されている Anammox 菌の至適温度と概ね同等の結果であった。しかし、これら既往の研究でも、至適温度の上限は、使用する菌株によって 30~35℃ と多少上下することが認められているため、Anammox 菌を浄化処理に利用する際は、前もって至適温度の検討を行う必要があると考えられた。

試験 2 において、窒素除去に適した保定担体が菊花状不織布であるということが判明した。宅和ら⁵⁾の研究から、菊花状不織布は、立体的な内部構造を持っており、Anammox 菌が菊花状不織布内部でも増殖可能であるため、高濃度の集積培養が可能であるということがすでに判明している。今回の試験では、菊花状不織布表面は活性汚泥に覆われるが、Anammox 菌は菊花状不織布の内部で増殖することで活性汚泥由来の窒素除去反応と Anammox 菌由来の窒素除去反応が同時に発生し、窒素除去能力が向上したのではないかと考えられた。他の 2 種類の保定担体については、菊花状不織布

とは異なり、保定担体内部に空間がないため、保定担体内部で Anammox 菌が増殖することができず、増殖速度の速い活性汚泥が槽内で優勢になってしまい、菊花状不織布を用いた場合ほど窒素除去能力が向上しなかったのではないかと考えられた。

試験 3 の結果から、反応槽に流入させる豚舎排水は、固液分離液ではなく、従来法によって一度処理した処理水を用いることが望ましいと判明した。和木ら³⁾や Jin ら⁶⁾の研究においてアンモニア態窒素および BOD は Anammox 菌の活性を阻害するとされているが、今回の試験に使用した固液分離液は、処理水と比較して、それらの濃度が高かったことから、Anammox 菌の活性が阻害されてしまったのではないかと考えられた。一方、従来法によりすでにアンモニア態窒素と BOD が概ね除去されている処理水においては Anammox 菌の反応が阻害されず、窒素除去反応が発生したのではないかと考えられた。

以上の結果から、Anammox 菌に適した環境を整えることで、実際の豚舎排水を用いても窒素除去反応が発生することが明らかとなった。また、この技術は、従来法の処理水を使用することが適していることから、従来法の高度処理技術としての活用が期待されるため、既設の浄化槽を改修することなく、後付けで反応槽の設置が可能であると考えられた。以上の点から、本技術は、すでに浄化処理施設を有している養豚農家を対象に普及を行うことが望まれるものの、本研究では未だ実規模での試験が行えていないため、今後は、実規模施設での検証試験が必要であると考えられた。

謝 辞

本研究の実施に当たっては、農研機構畜産研究部門の諸先生方に多くの助言をいただいた。また養豚研究所の職員には、豚舎排水処理施設および Anammox 反応槽の運転において多大なる協力をいただいた。なお、本研究は文部科学省が所管する特別電源所在県科学技術振興事業の研究課題として実施したものである。

参考文献

- 1) Suto R, Ishimoto C, Chikyu M, Aihara M, Matsumoto T, Uenishi M, Yasuda T, Fukumoto Y, Waki M : 2017. Chemosphere, 167, 300-307, Anammoxbiofilm in activated sludge swine wastewater treatment plants.
- 2) 和木美代子 : 2015, 畜産環境情報第 56 号, 窒素を除去するアナモックス菌-畜産における可能性 -, 1-14.
- 3) 高木啓太 : 2012, 熊本大学リポジトリ, 固定床型亜硝酸化/anammox プロセスの実行可能性に関する研究
- 4) Matsumoto S, Ohtaki O, Hori K : 2012, Environmental Science Technology 46, 10175-10181, Carbon Fiber as an Excellent Support Material for Wastewater Treatment Biofilms
- 5) 宅和正治・稲富泰彦・山本太一・古川憲治 : 2002, 日本水処理生物学会報第 38 号(2), 87-94
- 6) Jin R. C., G. F. Yang, J. J. Yu, and P. Zheng : 2012, Chem. Eng. J., 197, 67-79, The inhabitation of the Anammox process: A review
- 7) 押田敏雄・柿市徳英・羽賀清典 : 2002, 畜産環境保全論
- 8) 下水試験方法 (上巻) 2012 年版, 日本下水道協会, 東京