

畜産廃水のアナモックス処理

誌名	畜産の研究 = Animal-husbandry
ISSN	00093874
著者名	和木,美代子
発行元	養賢堂
巻/号	67巻7号
掲載ページ	p. 751-756
発行年月	2013年7月

農林水産省 農林水産技術会議事務局筑波産学連携支援センター
Tsukuba Business-Academia Cooperation Support Center, Agriculture, Forestry and Fisheries Research Council
Secretariat



畜産廃水のアナモックス処理

— 活性汚泥処理水への適用の可能性 —

和木美代子*

1. はじめに

河川・湖沼等公共用水域や地下水の窒素汚染は深刻な問題であり、日本の年間消費化学肥料窒素の約1.5倍の窒素を含む家畜排泄物はその主要な汚染原因の1つであると考えられている。また公共用水域への排水水に関して水質汚濁防止法におけるアンモニア、アンモニウム化合物、亜硝酸化合物および硝酸化合物、以下硝酸性窒素類では一律排水基準が100mg/Lに定められているが、これに対して、畜産農業ではH25年6月まで900mg/Lの暫定基準が適用されており、その後は700mg/Lの値が検討されている(平成25年4月末現在パブリックコメント中)。このような状況において、健全な水環境の構築および法令対応の点から、畜産廃水からの窒素除去対策が求められている。

汚水からの窒素を除去する一般的な手段は、まずアンモニアを硝化反応により亜硝酸または硝酸に酸化し、その後脱窒反応によって窒素ガスを発生させ汚水中から除去を行うことである(図1)。しかしながら、畜産廃水は有機炭素/窒素比が低いことから、脱窒反応の際に必要な電子供与体(有機炭素)が不十分であり、外部電子供与体の添加無しでは従来の汚水処理手法による完全な窒素除去は困難である場合が多い。

アナモックス反応はこのような汚水からの窒素除去を可能とする1990年代にヨーロッパで見つかった新規微生物反応である¹⁾。アンモニアと亜硝酸という無機窒素化合物同士のカップリングで窒素ガスを作る(図1)。詳細には1モルのアンモニアと1.3モルの亜硝酸を消費し、1モルの窒素ガスと約0.3モルの硝酸を生産する。分類上はPlanctomycetes門に属する*Candidatus Brocadia*等の5つの属が提案されている。窒素除去に有機炭素を必要としない

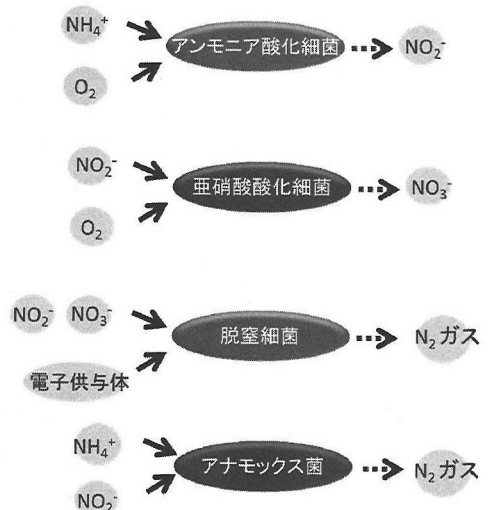


図1 微生物による窒素代謝反応

ため、有機炭素/窒素比の低い、畜産廃水を含む各種汚水の窒素除去への応用が期待され、工場廃水処理等への利用に向けて研究が進みつつある²⁾。その一方で未だ菌の単離はされておらず、自然界での生息条件も不明である等、多くの謎が残されている。

筆者らは、前述の理由で窒素除去が不十分であった、畜産廃水の活性汚泥処理の後処理としてアナモックス処理を利用するための研究を行っている。畜産現場においてアナモックス処理を導入するための重要な課題として、アナモックスリアクターを構築するためアナモックス菌を増やす元となるアナモックス種汚泥の入手、および亜硝酸・アンモニアを基質として含む無機塩の合成培地が最適であると考えられているアナモックス菌をそれと異なる実廃水でどのように利用するか、が挙げられる。本稿ではこれらの課題について筆者らが検討した結果について紹介する。

* (独) 農業・食品産業技術総合研究機構 畜産草地研究所
資源環境研究グループ (Miyoko Waki)

2. 畜産廃水処理現場におけるアナモックス菌の存在とその特徴

アナモックス菌の存在が最初に見いだされたのは食品工場廃水の処理施設の汚泥であった。その後、海洋、湖沼、河川の底泥、污水处理施設の汚泥等、自然界の様々な場所でアナモックス菌の存在が見つかったが、これらの場所でも必ず存在するものではなく、その存在傾向は明らかとなっていない。

筆者らはまず畜産廃水処理現場でアナモックスリアクターを構築するために、リアクターで汚泥を増やす元となる、アナモックス菌を含む種汚泥の採取場所の探索を行った。安定同位体を用いた高感度アナモックス活性測定法を用いて畜産廃水処理施設 20 軒において調査した結果、約半数の施設の活性汚泥からアナモックス活性が検出され、汚水中の pH が中性域であることや硝酸・亜硝酸が存在することが活性の指標となることが示された^{3,4)} (図 2, 3)。これらの指標を用いて畜産現場からアナモックス菌を含む種汚泥の採取が可能であると言える。

さらに、調査で見いだされた活性の高い施設内のアナモックス活性の分布について詳細に調べた⁵⁾。当該施設は、セラミック担体を用いた固定床の活性汚泥施設であり、3段階の曝気槽からなる。アナモックス活性は第3の曝気槽のバイオフィームにおいて突出して高いことが明らかとなった(図 4)。第3槽では BOD が除去されて硝化反応が進んでおり、またわずかながらアンモニアも残存していた。溶存酸素濃度は高かったものの、バイオフィーム内では他の微生物による酸素消費により溶存酸素濃度が低下していた可能性があり、アンモニア酸化反応または硝酸還元反応によって生じた亜硝酸を用いてアナモックス菌が生息できたと考えられた。このような施設においては非常に高い濃度の

アナモックスを含む種汚泥が採取できる可能性がある。また、この施設由来の汚泥におけるアナモックス活性に対する、種々の物理化学的条件の影響を調べた結果、アナモックス活性は 6.7-7.2 の pH、35℃の温度が最適であり、10mM 以下の亜硝酸、32mM 以下のアンモニアには阻害を受けないがこれら以上の濃度では活性が低下することが明らかとなった。またこの汚泥のクローン解析を行った結果、アナモックス菌である *Candidatus Jettenia asiatica*, Planctomycete KSU-1, *Ca. Brocadia caroliniensis* に 95-98%近縁なクローンが見いだされた。

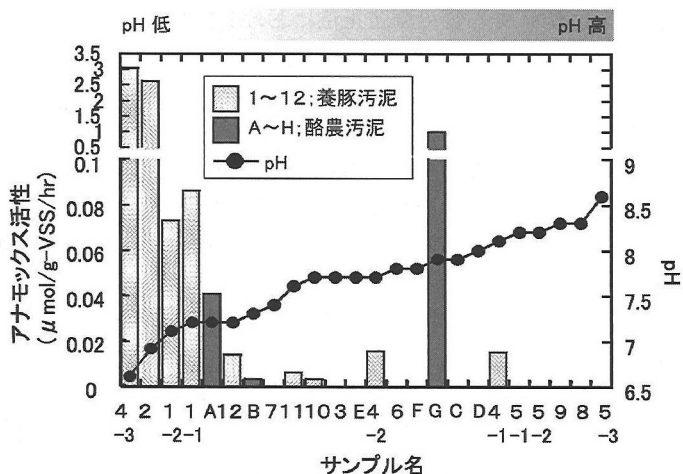


図2 養豚・酪農農家由来のアナモックス活性に対する pH の影響 (文献 3, 4)より作成)

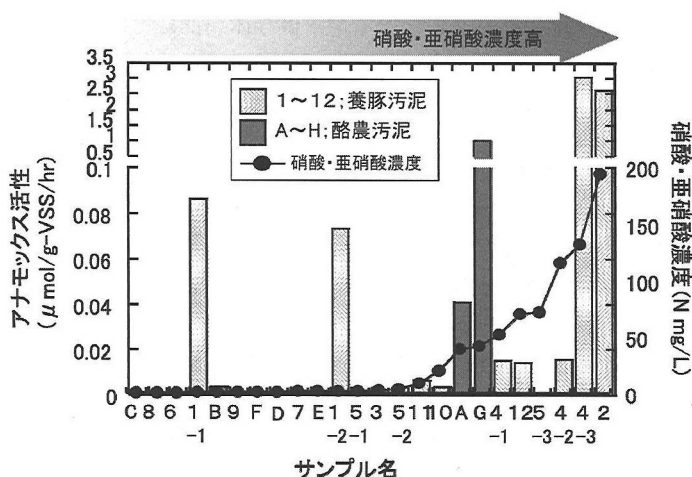


図3 養豚・酪農農家由来のアナモックス活性に対する硝酸・亜硝酸濃度の影響 (文献 3, 4)より作成)

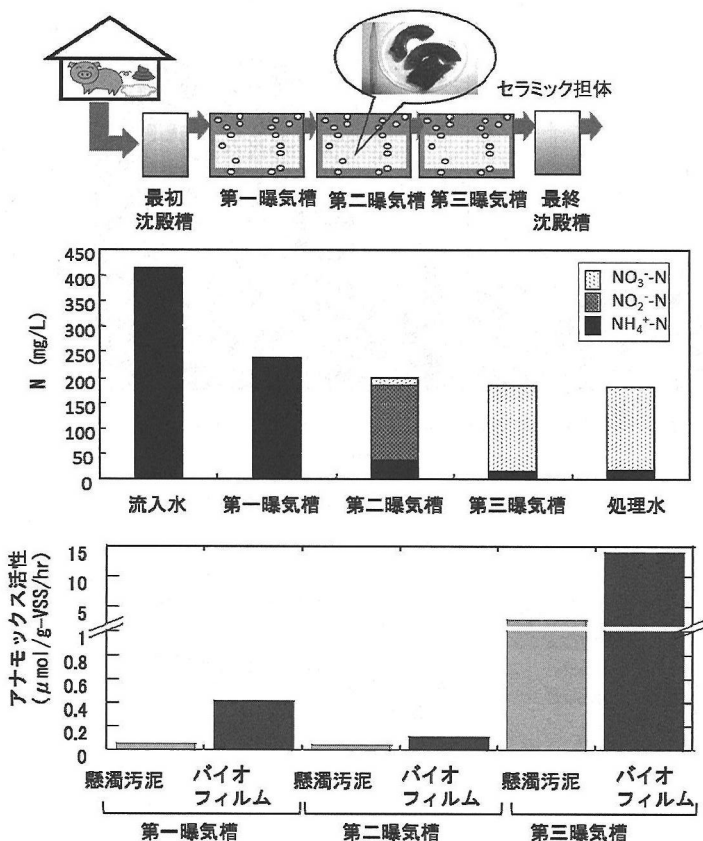


図4 養豚廃水処理施設におけるアナモックス活性の分布(文献5)より作成)

3. アナモックス菌の増殖と硝酸還元・アナモックス反応に対する電子供与体の影響

アナモックス菌の生息には亜硝酸・アンモニアを基質として含む無機塩の合成培地が最適であると考られているが、畜産現場では必ずしもそれに近似した汚水が得られるわけではない。筆者らが養豚農家の活性汚泥処理装置からの処理水の窒素組成について調査した結果、処理水中硝酸性窒素類濃度が100mg/L以上あり、pHが8以下の場合、窒素成分はアンモニアと、硝酸または亜硝酸の混合状態で排出される事例が多いことが明らかとなった(図5)⁶⁾。亜硝酸とアンモニアの組み合わせの場合、アナモックス反応にそのまま適用可能であるが、運転状況が不安定な畜産現場においてこの組み合わせを維持するのは容易ではないと考えられる。硝酸とアンモニアの組み合わせからの窒素除去において、脱窒細菌による硝酸還元反応とアナモックス反応を組み

合わせることで対応できる可能性がある(図6)。硝酸を還元するのに電子供与体が必要であるが、その必要量は脱窒により硝酸を窒素ガスにする場合の理論上は5分の1となる。

筆者らが硝酸とアンモニアを含む畜産廃水の活性汚泥処理水を用いて畜産農家由来のアナモックス種汚泥を馴養した結果、実廃水では嫌気状態での脱窒によりpHが上昇する傾向にあるが、それを中性域のpHに保つことでアナモックス菌を容易に増殖させられることが示された⁷⁾。さらに小型連続処理装置を用いて、畜産廃水の活性汚泥処理水を用い、酸素除去無し、室温程度の温度といった、簡易な条件での運転を行った⁸⁾。汚泥の約3ヶ月間の運転により、硝酸とアンモニアの減少が徐々に増加し、0.09kg N/m³/dayで定常状態になり、また同時にアナモックス活性は種汚泥中のアナモックス活性は1000倍ほどの増加が確認された。この現象は、実廃水に含まれるわずかなBODを脱窒細菌が利用し、硝酸還元反応を起こし、それによって生じた亜硝酸

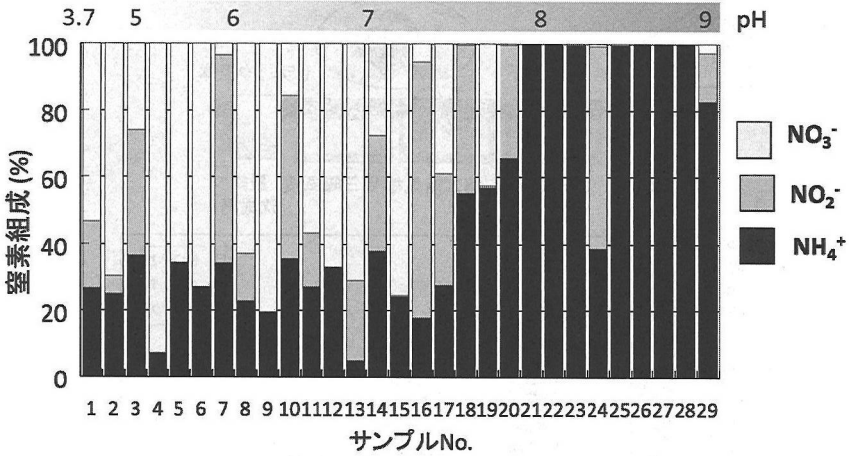


図5 養豚廃水の活性汚泥処理水中の窒素組成割合(硝酸性窒素類濃度 100mg/L 以上の場合)(文献6)より作成)

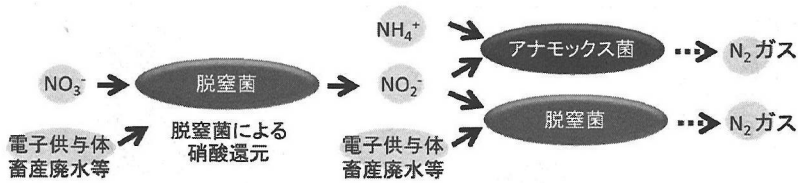


図6 硝酸還元反応とアナモックス反応の組み合わせによる窒素除去

をアナモックス菌が利用していたと考えられる。この反応を用いて装置の窒素除去性能を上げるためには、硝酸還元反応に必要な電子供与体を適切に添加する必要があることから、微生物による硝酸還元を利用可能な種々の電子供与体の利用についてバッチ試験により検討した⁹⁾。養豚廃水原水を電子供与体として用いた場合、ごくわずかな当該汚水の

添加により硝酸およびアンモニア存在条件下のアナモックス反応は、亜硝酸およびアンモニア存在条件下と遜色無いレベルまで回復した(図7)。しかしながら、過剰量の汚水の添加は、脱窒活性の急激な増加を引き起こした。この現象は、連続処理装置においてはアナモックス細菌の装置からの流出を引き起こすことから、養豚廃水原水を用いる場合はその

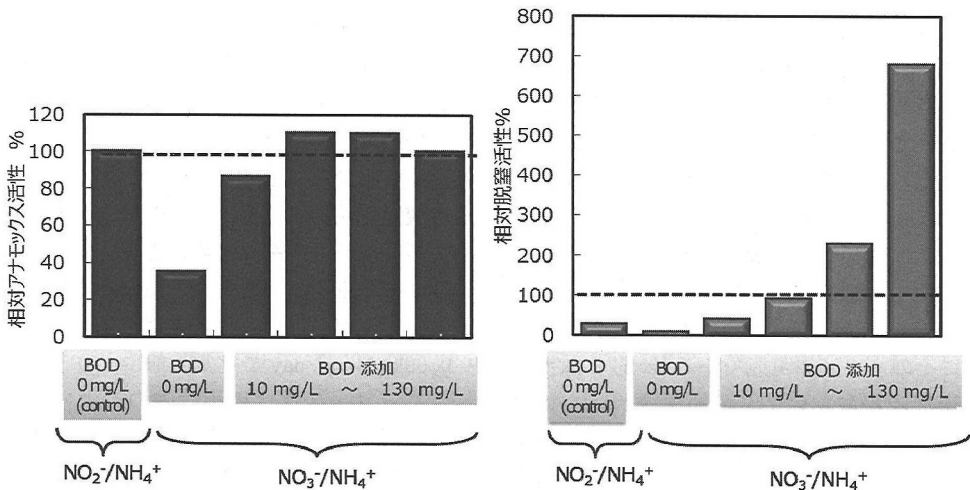


図7 硝酸還元・アナモックス反応に対する養豚廃水原水の影響(文献9)より作成)

添加量は厳密に制御する必要があると考えられた。そこで、菌体構成の主成分とならない無機系の電子供与体として、水素および鉄の利用を検討した。水素の添加は、硝酸およびアンモニア存在条件下でのアナモックス反応を高める効果があり、過剰量の添加によっても脱窒活性の急激な増加は見られず、また亜硝酸・アンモニア存在下でのアナモックス活性に対する阻害も見られなかった(図8)。無機系の電子供与体は、脱窒菌の急激な増殖を引き起こさずに硝酸還元・アナモックス反応を保持できると考えられた。しかしながら、畜産現場において水素を利用することは制約が多いため、水素を発生させる間接的な電子供与体として鉄を用いることを試みた。

鉄の添加は、硝酸およびアンモニア存在条件下でのアナモックス反応を高める効果が確認された(図9)。しかしながら、原因は不明であるが、亜硝酸・アンモニア存在下でのアナモックス活性に対する阻害が現れ、組成の変動する畜産実廃水への適用にはさらなる検討が必要であると考えられた。今後は、硝酸還元・アナモックス反応に用いる電子供与体として、当該反応を保持できる、脱窒菌の急激な増加を引き起こさない、基質条件が変動しても阻害効果を示さない、現実的に取り扱い可能であると言った必要条件を満たすために、反応条件等の検討を行う予定である。

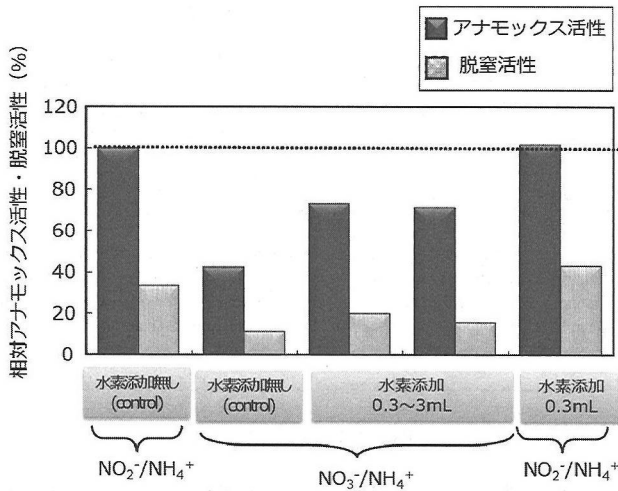


図8 硝酸還元・アナモックス反応に対する水素の影響(文献9)より作成

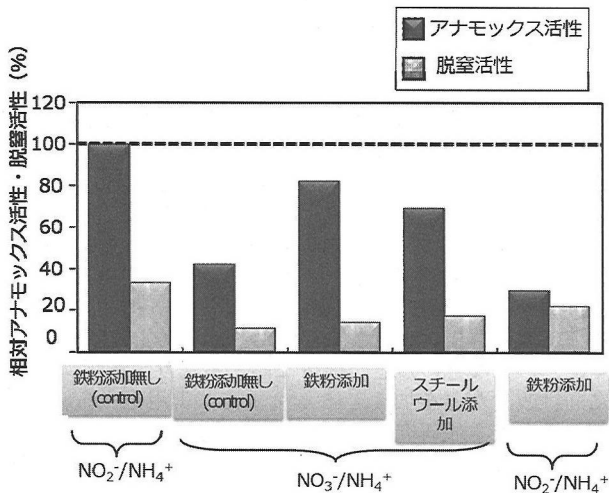


図9 硝酸還元・アナモックス反応に対する鉄の影響(文献9)より作成

4. まとめ

現在までの研究で、畜産農家からアナモックス種汚泥が採取可能であること、および畜産廃水においてひとまずのアナモックス処理が可能であることが示された。今後本反応を実用化につなげるためには、処理装置の性能の向上と亜硝酸化または硝酸還元・アナモックス反応の制御方法の問題を解決する必要がある。アナモックス反応が畜産農家において簡易な手段で利用できるようになれば、浄化槽の法規制への対応のみならず、脱臭廃水処理や堆肥化過程での窒素除去等多面的に応用できる可能性があり、広範囲での畜産環境問題への貢献が期待される。

謝 辞

本研究は環境省公害防止等試験研究費(H21-23)およびJSPS 科研費(若手研究B 24780326)の助成を受けて実施した。記して謝意を表します。

参 考 文 献

1) van de Graaf, A. A., P. de Bruijn, L. A. Robertson, M. S. M. Jetten, and J. G. Kuenen, Autotrophic growth of anaerobic ammonium-oxidizing micro-organisms in a fluidized bed reactor. *Microbiology-UK*, (1996). 142: p. 2187-2196.

- 2) 古川憲治, 井坂和一, 木村裕哉, 高木啓太, 奥田正彦, 徳富孝明, 岡本裕行, 福崎康博, 川久保裕貴, 中村安宏, 高瀬長武, 渡辺哲文, 後藤浩之, 葛南生, 秦良介, 佐久間博司, 山口晶, アナモックス(anammox)技術の開発と展望. *用水と排水*, (2011). 53(4): p. 284-328.
- 3) Waki, M., T. Yasuda, K. Suzuki, T. Sakai, N. Suzuki, R. Suzuki, K. Matsuba, H. Yokoyama, A. Ogino, Y. Tanaka, S. Ueda, M. Takeuchi, T. Yamagishi, and Y. Suwa, Rate determination and distribution of anammox activity in activated sludge treating swine wastewater. *Bioresour. Technol.*, (2010). 101(8): p. 2685-2690.
- 4) 和木美代子, 安田知子, 福本泰之, 黒田和孝, 川村英輔, 鈴木良地, 森岡理紀, 山岸昂夫, 諏訪裕一, 酪農廃水処理施設におけるアナモックス活性. 第45回日本水環境学会年會講演集, (2011): p. 677.
- 5) Yamagishi, T., M. Takeuchi, Y. Wakiya, and M. Waki, Distribution and characterization of anammox in a swine wastewater activated sludge facility. *Water Science and Technology*. in press.
- 6) 和木美代子, 安田知子, 福本泰之, 黒田和孝, 坂井隆宏, 鈴木直人, 鈴木良地, 松葉賢次, 鈴木一好, 養豚廃水の活性汚泥処理施設から排出される窒素の特性. *水環境学会誌* (2010). 33(4): p. 33-39.
- 7) Waki, M., T. Yasuda, K. Suzuki, K. Kuroda, A. Y. Fukumoto, T. Yamagishi, and Y. Suwa, Condition for enhancing anammox activity in sludge from livestock wastewater treatment facility. *Water Environment Technology Conference*, (2010): p. 3.
- 8) 和木美代子, 安田知子, 鈴木一好, 福本泰之, 黒田和孝, アナモックス反応を用いた畜産廃水活性汚泥処理水の窒素除去に関する研究. 日本水処理生物学会 第46回大会 講演要旨, (2009): p. 50.
- 9) Waki, M., T. Yasuda, Y. Fukumoto, K. Kuroda, and K. Suzuki, Effect of electron donors on anammox coupling with nitrate reduction for removing nitrogen from nitrate and ammonium. *Bioresour. Technol.*, (2013). 130: p. 592-598.

【農業畜産情報】

牧草, 麦, 大豆, 水稻直播・・・省力化へ汎用播種機 生研センター3カ年計画

農研機構・生研センターは、牧草や麦類、大豆、水稻などに使える高速汎用播種機の開発に乗り出した。実用化している飼料用トウモロコシの不耕起播種機をベースに高速、高精度の作業性能を維持しながら、汎用化に向けて改良。今年度から3カ年で実用化を目指す。

・高速・高精度めざす

コントラクター(作業受託組織)や農業生産法人など、大規模で多様な品目を栽培する生産者のニーズに応え、省力、低コスト化に貢献する狙い。この播種機では飼料用トウモロコシ、ソルガム、麦類、大豆、乾田直播の水稻などの対応を目指す。水稻以外では、不耕起播種に対応する。

作業スピードは既存の汎用播種機の約2倍となる1秒当たり1.5~2.5メートルが目標。種子を1粒ずつ高精度にまくことで、播種量を、条まきする場合の半分から5分の1程度に減らす。

ベースになる飼料用トウモロコシの不耕起播種機は、同センターと農機メーカーのアグリテックノ矢崎(兵庫県姫路市)が開発。今年4月に同社が発売した。1秒当たり2メートルと高速作業ができる。

同不耕起播種機を使い、すでに農研機構・東北農業研究センターや群馬県、大分県などで麦や大豆、水稻の播種試験を実施。これまでに、わらなどの残さが機械に詰まったり、播種深度が不安定になったりする課題が見つかった。課題解消に向け改良などを加え、15年度までに実用化する。

同センター畜産工学研究部の橋保宏主任研究員は「海外との競争にさらされる中で、いかに早く、コストを安く作業するかが求められる。その要請に応えられる播種機を開発したい」と意気込む。