

循環自己造粒・生物膜プロセスにおける グラニュール化特性

稻森悠平*・孔 海南**・中西 弘***・須藤隆一****

本プロセスにおける自己造粒化は、 $100\mu\text{m}$ 位になるまでは単独に生長し、その後これら的小さなグラニュールが數十個程度粘着することにより、UASBプロセスのグラニュールより大きな平均粒径にまで生長することがわかった。TOC除去率は約97%，T-N除去率は約70%程度の処理性能が得られた。スタートアップ後処理性能が安定するまでの所要期間はUASBプロセスより長くなるが、種グラニュールを接種することにより、短縮できることが確認された。

Key Words : UASB, aerobic biofilter, Start up, seeding sludge, granulation property, advanced treatment, recirculating system.

1. はじめに

上向流嫌気性スラッジブランケット(Upflow Anaerobic Sludge Blanket)法は、微生物の自己造粒作用を活用した新しい生物処理法であり、大きな脚光をあびているのは周知の事実である^{1)～9)}。しかし、本プロセスは有機物を高負荷条件で除去することは可能であるが、湖沼、内湾等の閉鎖性水域の富栄養化の制限要因である窒素等の栄養塩類を除去できないという短所を有している。これから排水対策を考える上では有機物と同時に栄養塩類の除去が必要である¹⁰⁾。

現在までに、開発されてきた嫌気と好気を組み合わせた硝化脱窒循環の高度処理プロセスとしては嫌気・好気活性汚泥プロセス、嫌気好気高濃度活性汚泥・膜分離プロセス、嫌気・好気包括固定化プロセス、嫌気ろ床・接触曝気循環プロセス等があげられる。これらのプロセスは生活排水、下水等の低濃度排水を低負荷運転した場合に大きな効果が発揮され、高負荷運転あるいは高濃度排水を対象とする場合には新たなプロセスでの対応を図る必要がある。なお、従来のUASBプロセスは完全嫌気性処理プロセスであり、硝化脱窒を行う上では、好気処理プロセスと組み合わせて循環を行う必要がある。その場合、生理・増殖特性の違う脱窒細菌とメタン細菌がグラニュール内で共存して造粒することができるかどうか、循環した時に、好気プロセスからの多量のDOの高い処理水による、流入原水の希釀効果による影響、また、自己造粒タンクの底部のグラニュールの脱窒、上部のグラニュール

のメタン発酵が安定して維持できるかどうか等を検討しなければならない。しかしながら、今まで、グラニュール内に脱窒細菌とメタン細菌が共存して造粒が行われることと循環脱窒法のグラニュールの形成能に及ぼす影響に関する知見はほとんど得られていない。このことから、このような基礎的知見の蓄積は必須であると考えられる。

本研究では、上記の点を鑑み、室内規模のベンチスケールの循環自己造粒・好気性セラミックス充填ろ床プロセスにおいて、常温(20°C)下におけるグラニュールの造粒機構、造粒過程等の造粒特性およびグラニュール化に必要とされる期間に及ぼす種汚泥の影響を明らかにすることを目的として検討を行った。

2. 方 法

(1) 実験装置

実験装置の概要是Fig.1に示すとおりである。本実験装置は、嫌気性自己造粒法のUASBプロセスと好気性生物膜法のセラミックス充填好気性ろ床から構成されている。自己造粒プロセスは、原水タンク、自己造粒反応タンク、ガス収集部分、原水流入ポンプ、攪拌部分から構成されている。自己造粒反応タンクは、内径60mm、高さ1m、実容積が2.8lの直胴部とその上に2.8lの固液気相分離部からなり、攪拌機に連結した羽根で1.r.p.mで自己造粒反応タンク内を緩速攪拌できるようになっている。原水は、原水ポンプで自己造粒反応タンク下部から上向流で送られる。直胴部では、グラニュールは緩やかな流動状態で原水と接触して浄化が進行し、固液気相分離部でグラニュールとガス、処理水に分離される。グラニュール汚泥は直胴部の底部にまで戻り、メタンガスはガス収集部で収集され、処理水は固液気相分離部の上部の出口から流出する。好気性ろ床は、内径90mm、高さ0.88mm、実容積が5.6lの直胴部とその上に2.8lの沈澱槽から構成され

* 正会員 理博 国立環境研究所 地域環境研究グループ 総合研究官 (〒305 つくば市 小野川18-2)

** 工博 国立環境研究所 外国人共同研究員

*** 正会員 工博 山口大学教授 工学部社会建設工学科

**** 正会員 理博 東北大学教授 工学部土木工学科

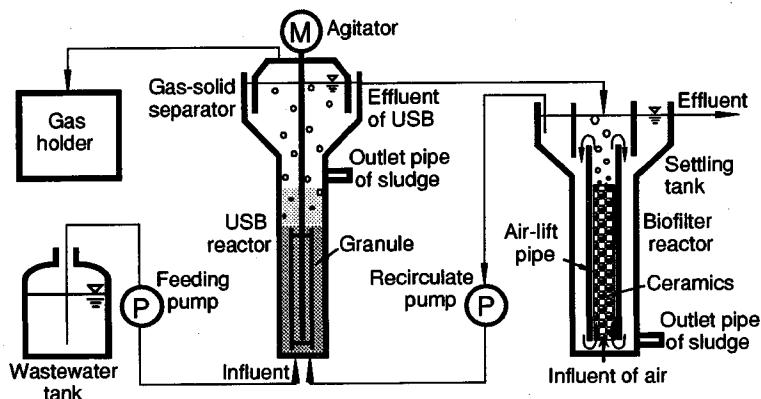


Fig.1 Schematic diagram of treatment process

ている。直胴部の中にはエアリフト管が設置され、二重管構造となっており、エアリフト管内に、直径4~6mmのセラミックス担体が充填されている。空気はエアリフト管下部から送られ、気泡の上昇流により、水がエアリフト管の内外に循環するようになっている。なお、吹き込み空気量は好気ろ床のDOが約 $2\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以上になるように調整した。自己造粒反応タンクの流出水は好気性ろ床の上部から流入し、セラミックス担体の表面の生物膜で硝化が行われ、沈澱槽で分離された後に、自己造粒反応タンクに循環し、最終処理水は好気性ろ床の沈澱槽から流出するようになっている。なお、実験装置は20°Cの恒温室に設置した。

(2) 人工排水

人工排水の組成はTable1に示すとおりである。基質としてはグルコース、グルタミン酸等を主成分とし、TMS剤と無機塩類を含んでいる。この濃縮人工排水を水道水で約TOC $1,400\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、T-N $250\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ になるように希釈して用いた。なお、TMS剤の組成はTable2に示すとおりである。

(3) 運転条件

運転条件はTable3に示すとおりである。実験開始時に、種汚泥としては、RUN1、2において、下水処理場から採取した約MLSS $17,000\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の消化汚泥を2.01添加した。RUN3、4において、RUN1、2と同じ消化汚泥の1.81添加は共通であるが、各RUNの総添加後のMLSSが同じなるように、RUN3では、UASBプロセスの反応タンクから採取したメタン細菌を主として含有する種グラニュールをMLSS約34,000 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に調整して0.11を接種し、RUN4では循環自己造粒・生物膜プロセスの自己造粒反応タンクの底部から採取された脱窒細菌とメタン細菌を主として含有する種グラニュールをMLSS約34000 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に調整して0.11接種した。なお、RUN1は非循環系、RUN2、3、4は循環系とし、循環比4設定し、Table3に示すように原水濃度を約TOC700m

Table 1 Composition of medium

Constituent	$\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$
Glucose	2,800
Na-Glutamate	1,000
NH ₄ Cl	645
KCl	100
MgCl ₂ ·6H ₂ O	100
KH ₂ PO ₄	100
FeSO ₄ ·H ₂ O	80
CaCl ₂ ·2H ₂ O	180
NaHCO ₃	4,000
TMS	$2\text{ml}\cdot\text{l}^{-1}$
TOC	1,400
BOD	1,220
T-N	250
T-P	10

Table 2 Composition of TMS

Constituent	$\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$
H ₃ BO ₃	50
ZnCl ₂	50
CuCl ₂ ·2H ₂ O	40
MnCl ₂ ·4H ₂ O	500
(NH ₄) ₂ MoO ₄	50
AlCl ₃	30
CoCl ₂ ·6H ₂ O	150
NiCl ₂ ·6H ₂ O	100
HCl	2ml
H ₂ O	1,000ml

g·l⁻¹からTOC $1,400\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ まで徐々に高め、かつ、HRTを80時間から8.4時間まで徐々に短くして、Fig.11に示すように負荷量を段階的に上昇させて検討を行った。なお、有機物、窒素負荷量はカラム部分の容積当たりに換算して求めた。

Table 3 Operational conditions

RUN No.	Seed of sludge MLSS($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$) $\times 1$	Circu lation	circu lation	Rate of	Concentration	Loading		HRT (h)
				TOC ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$)	T-N ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$)	TOC ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$)	T-N ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$)	
1	D.S17,000 $\times 2.0$	without	—	700~1,400	125~250	0.2~4.0	0.04~0.70	80~8.4
2	D.S17,000 $\times 2.0$	with	4	700~1,400	125~250	0.2~4.0	0.04~0.70	80~8.4
3	D.S17,000 $\times 1.8+$ UASB.G34,000 $\times 0.1$	with	4	700~1,400	125~250	0.2~4.0	0.04~0.70	80~8.4
4	D.S17,000 $\times 1.8+$ C.USB.G34,000 $\times 0.1$	with	4	700~1,400	125~250	0.2~4.0	0.04~0.70	80~8.4

D.S : Digested sludge. UASB.G : Granule of UASB process.
C.USB.G : Granule of Circulation USB process.

Table 4 Median diameter and MLVSS of the granule

RUN No.	Circu lation	Median diameter (mm)	MLVSS ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$)
1	without	0.78	39,000
2	with	0.89	53,900
3	with	1.01	52,100
4	with	1.12	55,200

グラニュールの平均粒径については、反応タンクの上部あるいは底部の10カ所よりサンプルを各々5ml 均一にとり、よく混合してから、混合液3ml を試料とした。なお、グラニュールの観察は、光学顕微鏡と走査型電子顕微鏡写真(SEM像)により行った。

3. 結果および考察

(1) グラニュールの造粒特性

実験開始後19週間の間において、負荷量を段階的に0.2kgTOC· $\text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ 、0.04kgT-N· $\text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ から4kgTOC· $\text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ 、0.72kgT-N· $\text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ まで上昇させた。各RUNで形成されたグラニュールの平均粒径とMLVSS はTable4に示すとおりである。各RUN のグラニュールの平均粒径は上部(汚泥層の表面から10cm下までの区域)で、非循環系と循環系とともに、0.5 mm以下で大きな差は認められなかったが、底部(底面から10cm上までの区域)で、非循環系のRUN1では0.78mmであり、循環系のRUN2,3,4では各々0.89, 1.01, 1.12mmであり、循環系の平均粒径が非循環系より大きいのが観察された。なお、同一負荷量で運転したにもかかわらず、循環系のRUN2,3,4の間でグラニュールの平均粒径がRUN2<RUN3<RUN4の順で大きくなつた理由は、異なる種汚泥を添加したことによるものと考えられる。

各RUNの反応タンクの底部のグラニュールのMLVSSは、非循環系と循環系のいずれとも高かったが、非循環系のRUN1が約39,000mg· l^{-1} であり、循環系のRUN2,3,4が各々約54,000mg· l^{-1} , 52,000mg· l^{-1} , 55,000mg· l^{-1} であり、循環系のグラニュールの方が非循環系より高まる傾向にあることがわかった。

Fig.2 と Fig.3 は19週間後の非循環系RUN1と循環系RUN2の自己造粒反応タンクの底部のグラニュールの表面の10,000倍の微生物相の走査型電子顕微鏡写真(SEM像)である。Fig.2 の非循環系RUN1のグラニュールの表面の微生物は、形態学的に見ると、直径約0.5μmと1μm程度の分

裂状態の球菌と長さ約1μmの短桿菌の2種類から構成されており、通常の嫌気性UASBプロセスと同様の運転を行っていることから、メタン発酵に関する酸生成菌と*Methanotherrix*属の細菌を主としているものと推定される。それに対して、Fig.3 の循環系RUN2のグラニュールの表面の微生物は、上記のメタン発酵に関する球菌と短桿菌以外に、多數の長さ約3μmの節状長桿菌が存在し、3種類から構成されることが確認された。循環系の自己造粒タンクの底部において脱窒反応をうけて溶存酸素と硝酸性窒素が消失した後に、嫌気的条件が形成され、メタン発酵がおこることから考えると、これらの節状長桿菌が脱窒に関与する微生物ではないかと推定される。

(2) グラニュールの造粒過程

グラニュールの造粒過程については、Fig.4 に示すように、三段階に分けて検討した。すなわちスタートしてから、発生ガス中のメタンガスの含量が50%以上でかつ、発生量が安定化するまでの「メタンガス発生段階」(methane gas producing stage), メタンガス発生段階から顕微鏡下で約数十μm程度小さいグラニュールの核が形成はじめるのが観察される時までの「グラニュールの核の形成段階」(nuclear producing stage), グラニュールの核の形成段階からグラニュール化が終了するまでの「グラニュール形成段階」(granulation stage)にわけて観察した。グラニュール化の終了の判断基準は、負荷量4.0kgTOC· $\text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ 、0.72kgT-N· $\text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ で、①安定した処理性能が得られること、②顕微鏡下でグラニュールの造粒が良好に行われていること、③形成したグラニ

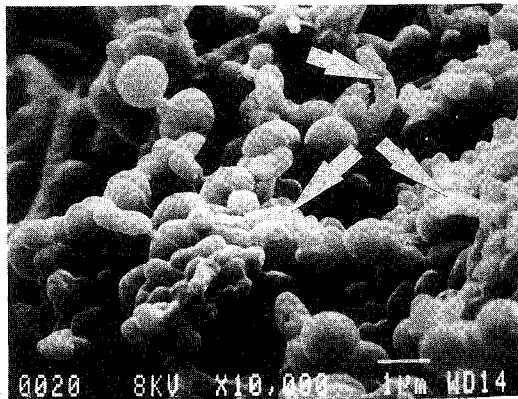


Fig.2 SEM of the granule obtained from non-circulated USB reactor of RUN 1 (magni.10,000)

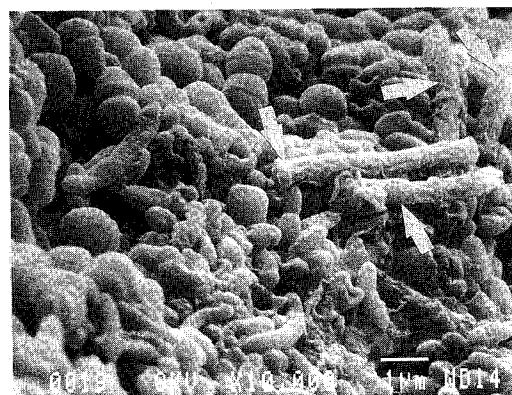


Fig.3 SEM of the granule obtained from circulated USB reactor of RUN 2 (magni.10,000)

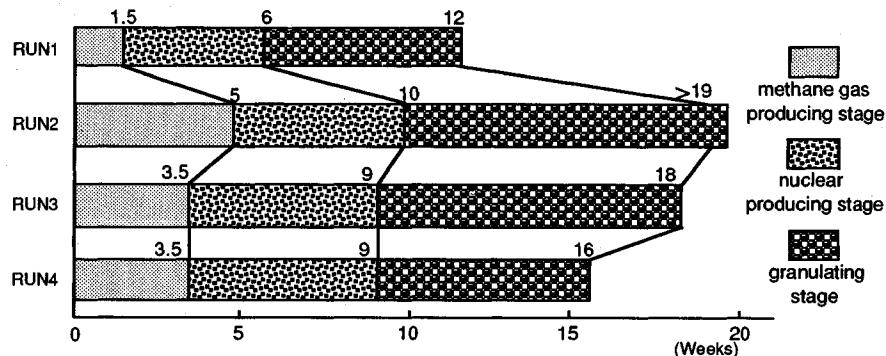


Fig.4 Relationship between kinds of seeding sludge, operational conditions and term of individual stage

ュール量が自己造粒反応タンクのベット部の高さを指標として、20cm以上になることの三条件から判断した。

各RUNの造粒に要する期間との関係はFig.4に示すとおりである。非循環系の消化汚泥のみ種汚泥として添加したRUN1では、約1~2週目にメタンガスの含量が50%以上でかつ、発生量が安定するのが認められ、約6週間後にグラニュールの核の形成が認められ、約12週間後にグラニュール化が終了した。同じ消化汚泥のみ添加した循環系のRUN2では、約5~6週目に「メタンガス発生段階」が認められ、約12週間後に「グラニュールの核の形成段階」が認められ、約19週間後に処理性能が安定するのが認められたが、形成されたグラニュールのベット部の高さがまだ約16cmで20cmまでに達成していなかった。このことにより、循環系でのグラニュール化は非循環系よりかなり遅れ、特に「メタンガス発生段階」と「グラニュール形成段階」が非循環系より遅れるのが確認された。循環系「メタンガス発生段階」が長くなる原因是、循環比4での好気プロセスから流出水の循環により、流入水の有

機物濃度が非循環系の約 $\text{TOC} 1,400 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ から約 $350 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ と約1/5に希釈され、自己造粒タンクの底部に溶存酸素が持ち込まれ完全嫌気性の $\text{DO} 0 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ の状態から約 $\text{DO} 1 \sim 2 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ の状態に、ORPが-360mVから約+100mV以上までに上昇したために、嫌気性メタン細菌の増殖適正条件から逸脱したからではないかと考えられる。また、循環系の「グラニュール形成段階」が長くなる原因は、嫌気性のメタン細菌の造粒に要する期間に比べて、生理・増殖特性の違う脱窒細菌とメタン細菌とが共存した相互作用系が形成され、各菌の単独の最適条件が保たれないと仮定される。

循環系の種グラニュールを接種したRUN3、4ともに、約3~4週目に「メタンガス発生段階」が認められ、RUN2より約2週間程度の短縮の可能なことが認められた。また、RUN3の「グラニュール形成段階」が約8週間程度必要としたのに対して、メタン細菌以外に脱窒細菌等の含有される種グラニュールを接種したRUN4の「グラニュール形

成段階」では、さらに、2週間程度の短縮が可能となり、16週間後にグラニュール化が終了した。循環系でメタン細菌と脱窒細菌の共存する種グラニュールが接種されたことにより、循環という場に順化した共存グラニュールが効果を発揮したからではないかと考えられる。

これらのことから、自己造粒プロセスと好気性生物膜プロセスとを組み合わせた循環系では、グラニュール化に要する期間がかなり長くなるが、メタン細菌と脱窒細菌と共存した循環系自己造粒グラニュールを接種することにより、グラニュール化に要する期間が短縮でき、このように、植種源はグラニュール化の短縮に極めて重要な役割を演ずることがわかった。

(3) グラニュールの造粒機構

Fig.5はスタート時の循環系RUN2の自己造粒反応タンク内に、接種した下水処理場から採取した消化汚泥の100倍の光学顕微鏡写真である。これらの消化汚泥は活性汚泥と同様なフロック状態を示していた。Fig.6は12週間後の同じRUN2の自己造粒反応タンク内に、形成された約20~40 μm 程度のマイクログラニュールの200倍の光学顕微鏡写真である。これらのマイクログラニュールが、循環系では約100 μm 程度の小さい卵形のグラニュールに成長するものと考えられた。

Fig.7は14週間後の同じRUN2の自己造粒反応タンクの底部に、形成されたマイクログラニュールの200倍の光学顕微鏡写真である。これらのマイクログラニュールは、長径が約100 μm 、短径が約50 μm で卵形で、循環系グラニュールではこのような形態で成長し循環系特有のマイクログラニュールになるものと考えられた。

Fig.8は、19週間後にグラニュール化終了時の循環系RUN2の自己造粒反応タンクの底部のグラニュールの100倍の全体像の走査型電子顕微鏡写真(SEM像)である。このグラニュールは、長径が約0.96mm、短径が約0.82mmで卵形で、表面に多数の約100 μm 程度の小さい卵形の隆起物が遍在するのが観察された。

Fig.9はFig.8と同じRUN2の自己造粒反応タンクの底部に形成されたグラニュールを「多重臨界点乾燥」で前処理し、部分的に表面構造を破壊したグラニュールの内部の85倍の全体像の走査型電子顕微鏡写真(SEM像)である(白い線の内側が一つのグラニュールの内部を示している)。この写真より、白い矢印に示すように、表面構造の破壊された部分から覗いて確認できるが、グラニュールの内部にも約100 μm 程度の小さい卵形のグラニュールが密集して存在するのが観察される。それに対して、非循環系のRUN1の自己造粒タンクは通常の嫌気性UASBプロセスで運転していることから、グラニュールの形状は、丸形で表面が均一で緻密な構造であるのが観察される。

循環の有無とグラニュールの造粒機構との関係は、

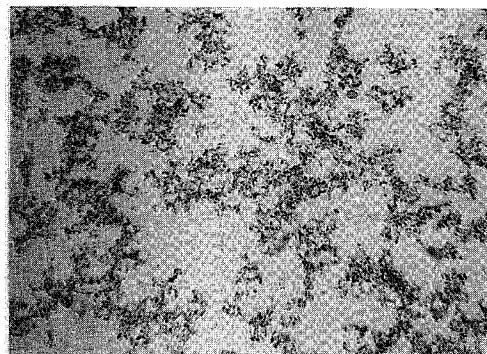


Fig.5 Photograph of the granule obtained from circulated USB reactor of RUN 2 in start (magni.100)

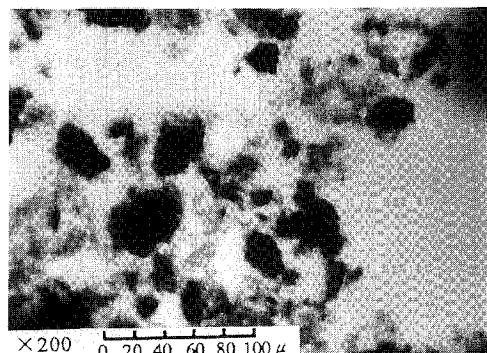


Fig.6 Photograph of the granule obtained from circulated USB reactor of RUN 2 after 10 weeks (magni.200)

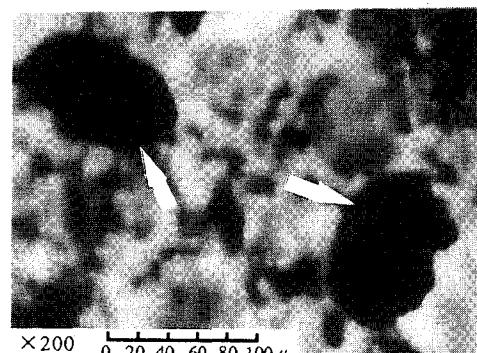


Fig.7 Photograph of the granule obtained from circulated USB reactor of RUN 2 after 14 weeks (magni.200)

Fig.11に示すとおりである。通常の嫌気性UASBプロセスで運転している非循環系のRUN1の造粒機構は、「グラニュールの核の形成段階」に消化汚泥と種グラニュールを核とし、約数十 μm 程度のマイクログラニュールが形成され、「グラニュール形成段階」にその表面で細菌が増殖

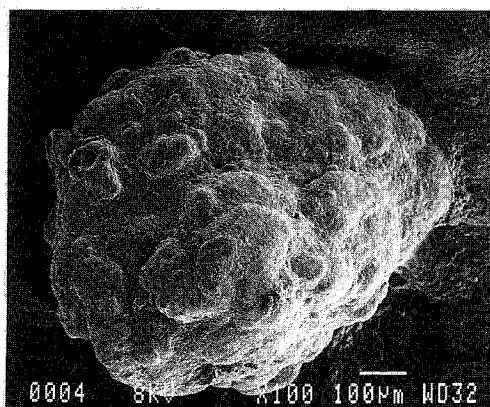


Fig.8 SEM of the granule obtained from circulated USB reactor of RUN 2 (magni.100)

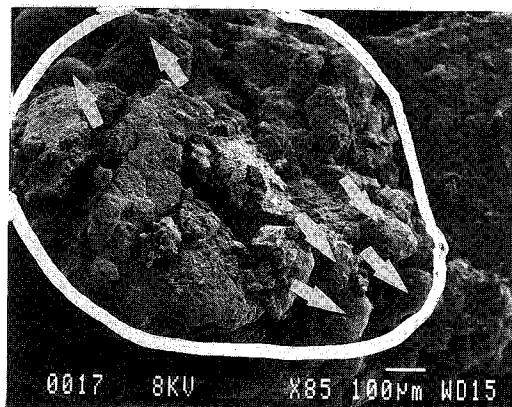


Fig.9 SEM of the granule obtained from circulated USB reactor of RUN 2 (magni. 85)

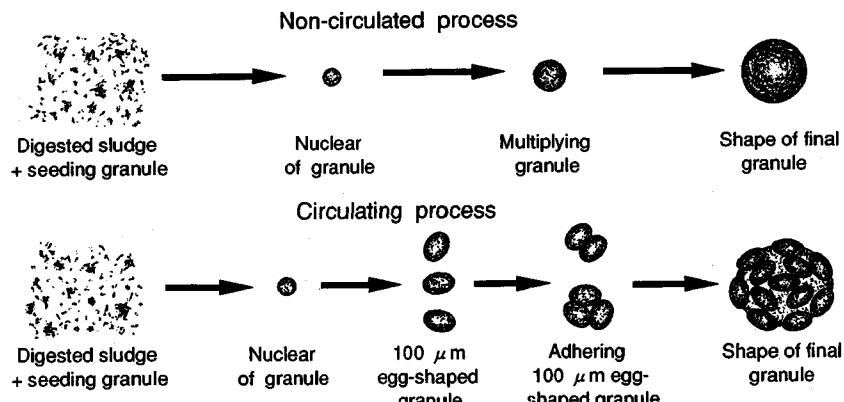


Fig.11 Relationship between circulated , non-circulated process and granulation mechanism

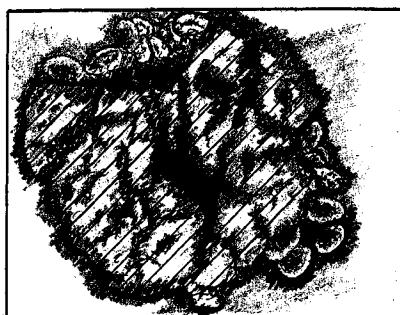


Fig.10 Schematic diagram of SEM of Fig.9

注: Fig.10はFig.9 の表層構造が破壊されたグラニュールの模式図である。斜線部分の表層構造に大きな「亀裂」が生じ、左上と右下部分の表層構造がさらに「脱落」が生じているがこの内部に約100 μm程度の小さいグラニュールの密集存在するのが観察された。

殖し、グラニュールが徐々に約1～数mm程度大きくなるのが観察された。しかし、それに対し、循環系のRUN2では、非循環系RUN1と同じように「グラニュールの核の形成段階」に消化汚泥と種グラニュールを核とし、約20～40 μm程度のマイクログラニュールが形成され、「グラニュールの核の形成段階」にこれらのマイクログラニュールを核として約100 μm程度の小さい卵形のグラニュールが形成され、これらの小さいグラニュールがさらに増殖して大きくなるのではなく、約100 μm程度に成長したグラニュールがお互いに粘着されることにより大きくなり、数十個ぐらいが粘着されて循環系のグラニュールが形成されるのが観察された。このように、循環系、非循環系の違いにより造粒機構は大きく異なることが明らかとな

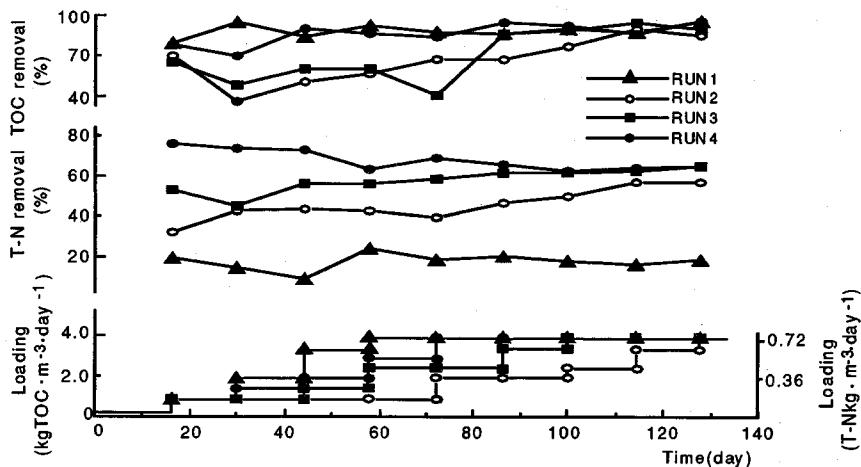


Fig.12 Relationship between loading of organic substances, nitrogen and removal TOC, T-N

った。

自己造粒法の「グラニュール」の造粒機構は、生物化学、物理的いろいろな因子が複雑に絡み合って顕現した一つのユニーク増殖機構であり、今までほとんど解明されていない」と言っている¹¹⁾。本プロセスの循環系の上記のようなグラニュール化の主な機構は、自己造粒タンクの底部に4倍量の循環水がもどることにより、基質の濃度が約1/5程度に希釈され、グラニュールの内部への基質拡散に影響が生じ、グラニュールがそれ以上に大きくなることができないこと^{12), 13), 21)}、また、グラニュールの造粒機構と大きな関連があるものとして細胞外ポリマーとの関係があげられるが、脱窒細菌とメタン細菌と共に存して造粒化が行われることにより、各菌群の分泌するバイオポリマーが卵形グラニュール形成に関与しているのではないかと推定される。

(4) プロセスの処理性能

RUN1~4はTable3に示す運転条件でスタートしたが、各RUNの負荷量を段階的に上昇させた時のTOCとT-N除去率の経日変化についてはFig.12に示すとおりである。各RUNのグラニュール化に要する期間は各々異なっているが、各RUNともに19週間経過後に終了した。

このグラニュール化の終了した時期における各RUNのTOC,T-N除去性能と発生ガス特性は、Table5に示すとおりである。実験期間中の自己造粒反応タンクにおけるTOC除去率の経日変化はFig.12に示すように、「メタンガス発生段階」と「グラニュールの核の形成段階」では、非循環系と循環系、種グラニュール接種系と非接種系とともに不安定状態を呈したが、「グラニュール形成段階」に入ると、いずれにおいても約70%以上の高い除去率を示した。グラニュール化の終了した時期において、循環

Table 5 TOC,T-N removal and property of gas production

Cir No	TOC re moval %	T-N re moval %	Gas pro duction $m^3 \cdot kg^{-1} TOC$	N_2 (%)	CH_4 (%)	CO_2 (%)	N_2O (%)
1 without	97.2	20.1	1.26	2.0	68.0	30.0	0.0
2 with	97.4	68.0	1.30	7.2	53.3	39.5	0.0
3 with	98.5	69.0	1.37	8.1	58.7	33.2	0.0
4 with	97.6	71.2	1.40	7.8	58.9	33.3	0.0

系では、循環比4で好気性ろ床の流出水が循環され、流入水の濃度が非循環系の約1/5程度に希釈されるにもかかわらず、TOC除去率は非循環系と大差のないことが観察された。なお、循環系の自己造粒反応タンクにおいては脱窒反応での有機物消費も行われているが、TOC除去率は非循環系と同程度であった。好気性ろ床の処理水は、非循環系と循環系ともに、総TOC除去率が約97%以上で、TOC30mg·l⁻¹以下の安定した水質が得られた。T-N除去率の経日変化から見た場合、T-N除去能は非循環系と循環系において「メタンガス発生段階」、「グラニュールの核の形成段階」と「グラニュール形成段階」の三段階の造粒過程で傾向は異った。すなわち、非循環系RUN1のT-N除去率は、常に約20%前後であり変化はなかったが、循環系RUN2,3のT-N除去率は、初期は約40%であったのに対し徐々に上昇する傾向を示した。脱窒細菌等の含有される種グラニュールを接種したRUN4のT-N除去率は、窒素負荷量の低いのスタート時から高い除去能を示した。なお、循環系の各RUNのT-N除去率は、グラニュール化の終了時にはいずれも約70%を示した。このように、循環系の窒素除去能が非循環系に比べて著しく高まり循環

自己造粒の効果が確認された。好気性ろ床における流出水の窒素の形態をみると、非循環系と循環系ともに、NO₂-N としての窒素が9割ぐらいを占め、セラミックス担体を用いた好気性ろ床は高濃度硝化菌を保持し、高い硝化能を得る上で効果的なことがわかった。また、循環系の自己造粒反応タンク流出水の窒素の形態をみると、ほぼ全部NH₄-N としての窒素が検出され、脱窒が効果的に行われていることがわかった。

グラニュール化が終了した時に、有機物、窒素負荷量が4kgTOC·m⁻³·day⁻¹、0.72kgT-N·m⁻³·day⁻¹において、非循環系RUN1 では、ガス発生量は約1.26m³·kg⁻¹TOC(流入)、発生ガス中のCH₄ 含有率は約68%，N₂含有率は約2.0%，CO₂ 含有率は約30% であったが、循環系RUN2,3,4 では、ガス発生量は各々約1.30~1.40m³·kg⁻¹TOC程度で、発生ガス中のCH₄ 含有率は約53.3~58.9%，N₂含有率は約7.2~8.1%，CO₂ 含有率は約33.2~39.5% 程度であった。これらの循環系と非循環系をガス含有率等から比較すると、循環系では非循環系より、CO₂ とN₂のガス含有率が高まり、CH₄ のガス含有率は減少するのが観察された。

4. まとめ

本研究は循環自己造粒・生物膜プロセスにおける造粒および処理性能についてベンチスケール実験により検討を行ったものであるが、得られた成果は以下のようにまとめられる。

- (1) 本プロセスにおけるグラニュールは、平均粒径がUASBプロセスより大きく、MLVSS が50,000mg·l⁻¹の濃度になるまで造粒し反応槽内に保持できることがわかった。
- (2) 本プロセスのグラニュール化に要する期間はUASBプロセスより長くなるが、種グラニュールを接種することにより、かなり短縮できることが確認された。
- (3) 本プロセスのグラニュールの構成微生物の中で節状長桿菌が脱窒に関与している細菌と推定された。
- (4) 本プロセスのグラニュールは当初約100μm位の大きさになるまでは単独に生長するが、その後これらの約10μmの小さい卵形のグラニュールが数十個程度粘着してグラニュール化が行われることが観察された。
- (5) UASBプロセスのTOC除去率は約90%，T-N除去率は約20%程度であったが、本プロセスにおいては、総TOC 除去率は約97%，総T-N 除去率は約70% 程度で、安定した高度な処理性能の得られることがわかった。

参考文献

- 1) 須藤隆一： 微生物固定化法による排水処理、産業用水調査会、東京、1988年。
- 2) Lettinga,G., Van Velsen,A.F., Hobma,S.W., W.deZeeuw and A.Klapwijk : Use of the upflow sludge blanket (UASB) reactor concept for biological wastewater treatment

especially for anaerobic treatment. Biotechnology and Bioengineering, 22, pp.699-734, 1980.

- 3) Hulshoff Pol, L.W., W.de Zeeuw, C.T.M.Velzeboer and G. Lettinga : Granulation in UASB reactors. Water Science Technology, 15, pp.291-304, 1983.
- 4) 原田秀樹・桃井清志・藤井伸夫・帆秋利洋： 上昇流スラッジブランケット反応器(UASB)による高速メタン発酵特性、衛生工学研究論文集, 23, pp.227-237, 1987.
- 5) 岡田光正・大久保卓也： 自己固定化法の浄化特性に及ぼす基質の影響、用水と廃水, 31, 1, pp.12-27, 1989.
- 6) 高橋正宏： 多段反転式バイオリアクター(MBR)の開発、バイオテクノロジーを活用した新排水処理システムの開発に関する調査報告書, pp.286-295, 1990.
- 7) 三島浩二・柄久保英二： 好気性活性汚泥法の自己固定化－好気性上向流汚泥床(AUSB)法の下水処理への適用、用水と廃水, 31, 1, pp.28-34, 1989.
- 8) 江本ふで子・明賀春樹： 上向流汚泥床(USB)法による脱窒の基礎研究結果、用水と廃水, 30, 2, pp.25-31, 1988.
- 9) Wu ,W.M., Hu,J.C., Gu,X.S., Zhao,Y., Zhang,H. and Gu, G.: Cultivation of anaerobic granular sludge in UASB reactors with aerobic activated sludge as seed. Water Research, 21, 7, pp.789-799, 1987.
- 10) 稲森悠平・須藤隆一： 生活・産業系排水対策の現状と窒素・リン削減を目指した高度処理技術の動向、公害と対策 27, 9, pp.25-31, 1991.
- 11) 原田秀樹： UASBリアクターにおける細胞外ポリマーの役割、環境微生物工学研究法、技報堂, pp.185-188, 1993.
- 12) N.Kosaric, R.Blaszczyk, L.Orphan and J.Valladres : The characteristics of granules from upflow anaerobic sludge blanket reactors. Water Research, 24, 12, pp.1473-1477, 1990.
- 13) J.T.C.Grotenhuis, J.C.Kissel,C.M.Plugge, A.J.M.Stams and A.J.B.Zehnder : Role of substrate concentration in particle size distribution of methanogenic granular sludge in UASB reactor. Water Research, 25, 1, pp.21-27, 1991.
- 14) 稲森悠平・孔海南・須藤隆一・大野茂： 自己造粒プロセスにおける有機物、窒素の除去と造粒及び発生ガスの特性水処理生物学会第27回大会講演要旨集, 1990.
- 15) Hai Nan Kong, Yuhei Inamori and Ryuichi Sudo: Relationship between granulation property and removals of organic substances and nitrogen in the UASB and USB process. 3RD IAWPRC regional conference on development and water pollution control, ASIAN WATERQUAL 91, SHANGHAI, 1991.
- 16) 孔海南・稻森悠平・中西弘・須藤隆一： UASB・セラミックス充填好気ろ床循環プロセスにおける有機物、窒素の除去特性、日本水環境学会第25回学会大会講演論文集, 1991.
- 17) 孔海南・稻森悠平・中西弘・須藤隆一： UASB・生物膜プロセスにおける循環の有無と造粒特性、日本水処理生物学會第28回大会講演論文要旨集, 1991.
- 18) 孔海南・稻森悠平・中西弘・須藤隆一： 循環自己造粒・生物膜プロセスにおける造粒および処理性能、日本水環境学会第26回学会大会講演論文集, 1992.
- 19) 孔海南・稻森悠平・中西弘・須藤隆一： 自己造粒プロセスによる高度処理、用水と廃水, 34, 10, pp.25-31, 1992.
- 20) 孔海南・稻森悠平・中西弘・須藤隆一： 循環UASB・生物膜法のグラニュールの脱窒活性と菌分布、日本水処理生物学會第29回大会講演論文要旨集, 1992.

- 21) 孔海南・稻森悠平・中西弘・須藤隆一: UASBプロセスにおける常温下有機物負荷量と造粒特性との関係, 日本水環境学会誌, 16, 1, pp. 46-54, 1993.
- 22) 孔海南・稻森悠平・中西弘・須藤隆一: 循環式嫌気好気自己造粒生物膜固定法における細菌相と脱窒活性, 日本水環境学会第27回学会大会講演論文集, 1993.
- 23) 孔海南・稻森悠平・中西弘・須藤隆一: 循環自己造粒・セラミックス充填好気ろ床における細菌相と処理特性, 環境工学研究論文集, Vol.30, pp.153-163, 1993.

(1993.6.29 受付)

GRANULATION PROPERTY IN USB·AEROBIC BIOFILTER RECIRCULATION TREATMENT PROCESS

Yuhei INAMORI, Hai Nan KONG, Hiroshi NAKANISHI and Ryuichi SUDO

The results obtained from this study were summarized as follows: (1) The granulation mechanism of this process included three steps, i.e., small granule of about $100 \mu\text{m}$ diameter were created at first, then they stuck together to increase in size, and finally granule of about 2mm diameter were formed; (2) The removal rates of TOC and T-N were nearly 97% and 70% respectively; (3) It was confirmed that, the Start Up of this process was longer than that of normal UASB process, but it could be significantly shortened by inoculating seeding sludge.