

(69) Expanded Granular Sludge Bed (EGSB) リアクター による実下水処理特性の評価

大河原 正博^{1*}・西山 桂太¹・山口 隆司¹
珠坪 一晃²・井町 寛之³・原田 秀樹⁴・大橋 晶良⁵

¹長岡技術科学大学 環境システム工学専攻 (〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町1128-3)

²国立環境研究所 水土壤環境研究領域 (〒350-8506 茨城県つくば市小野川16-2)

³海洋研究開発機構 極限環境生物圏研究センター (〒237-0061 横須賀市夏島町2-15)

⁴東北大学 土木工学専攻 (〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉6-6-06)

⁵広島大学 社会環境システム専攻 (〒739-8527 広島県東広島市鏡山1丁目4番1号)

* E-mail: kawara@stn.nagaokaut.ac.jp

本研究では低温・低濃度有機性排水の嫌気性処理に関して研究実績のあるEGSBリアクターの下水処理への適用性評価を目的とし、都市下水の常温条件下での連続処理実験を行った。EGSBリアクターではグラニューク汚泥を植種し、排水循環により高い線流速を与えること、及び初沈通過前の下水を用いたため、SS由来のCOD除去性能が不安定であった。そこで、前段に簡易な沈殿槽を設けて運転を継続した。その結果、COD除去性能は安定し、水温によらずHRT 2時間の条件下で全COD除去率44%を定常的に発揮した。保持汚泥については、水温や有機物負荷の低下に伴い汚泥量と活性の低下を招くが、約500日間の運転後においても、植種汚泥量の3割程度の汚泥が残存していた。

Key Words : EGSB reactor, municipal sewage, methane fermentation, Sewage temperature

1. はじめに

嫌気性排水処理システムのひとつであるUASB (Upflow Anaerobic Sludge Blanket) 法は、これまでに多くの産業排水処理に適用されてきた¹⁾²⁾。UASB法で安定した処理性能を得る鍵は、生物膜の高密度集合体であるグラニューク汚泥をリアクター内に形成・維持し、長いSRT (Sludge Retention Time) を実現することにある。これにより、排水の高速処理が可能となり、多くの中・高濃度有機性排水の処理に適用されてきた (中・高温条件下)。しかし、我々の日常生活から排出される有機性排水や工業排水の多くは、低有機物濃度 (<1500 mgCODcr・L⁻¹) であり、かつ15~20℃と低温である³⁾⁴⁾。低温・低濃度有機性排水のメタン発酵処理を行う場合、低温条件下においてメタン生成細菌の活性が低下したり⁵⁾⁶⁾、バイオガス生成量が少ないため、ガス攪拌によるスラッジベッドの攪拌が期待できないなど⁷⁾⁸⁾の問題が挙げられる。また、ブラジルやインドなどの温暖な地域では都市下水処理にUASB法

が用いられているが、下水処理UASB槽ではグラニュークの形成は生じず、5~19時間と比較的長い処理時間での嫌気性処理が行われている⁹⁾。

一方EGSB (Expanded Granular Sludge Bed) リアクターは、処理水循環により高い上昇線流速 (4~10 m・h⁻¹) を与えて汚泥と排水との接触を促し⁷⁾¹⁰⁾¹¹⁾¹²⁾、メタン発酵不適条件下 (低温・低有機物濃度排水種) においても、排水の高効率処理を行うことのできるシステムである。実際、低有機物濃度の排水処理にEGSBリアクターを適用し、高い処理効率が得られたという報告もなされている¹³⁾¹⁴⁾¹⁵⁾。また、EGSBリアクターはUASBリアクターに比べて許容負荷が大きいこと、メタン発酵不適条件下においても排水の高効率処理ができることなどの理由から、その適用例は増加しており、1998年以降EGSBリアクターはUASBリアクターの導入基数を上回った¹⁶⁾。

そこで本研究では、低有機物濃度であり常温で排出される実下水の処理にEGSBリアクターを適用し、長期間における連続処理実験を行った。連続処理実験による実

下水のメタン発酵処理特性の調査とともに、リアクター保持汚泥の性状の把握（物理的性状やメタン生成活性等の評価）により、EGSBリアクターの都市下水への適用可能性を評価をした。

2. 実験方法

(1) 実験装置及び運転条件

Figure 1に本実験で使用したEGSBリアクターの概略図を示す。リアクターは高さ4.4 m、（カラム：4 m、GSS：0.4 m）、カラム内径0.13 m（GSS内径：0.3 m）、全容積71 L（カラム：53 L、GSS：18 L）であり、長岡中央浄化センター（新潟県長岡市）に設置して実下水の連続処理実験を行った。供給排水はスクリーン通過後の分流水を用いた。リアクターは温度制御せず、常温条件で運転を行った。植種汚泥は産業排水処理実プラントから採取した中温グラニュール汚泥を用い、1670 gVSS植種した。処理水の一部を循環させることにより反応槽内に $6 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ の上昇線流速を与えた。スタートアップ時からHRTを短縮することで段階的に負荷を上昇させ、定常時のHRTは2時間とした（平均有機物負荷： $4.1 \text{ kgCODcr} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$ ）。また、流入下水中のSS濃度の軽減を目的とし、運転開始後218日目に前段に沈殿槽を設置した。沈殿槽の寸法は、 $W82.5 \text{ cm} \times D51 \text{ cm} \times H121.5 \text{ cm}$ 、有効容積は300 Lであり、HRTは5.6時間とした。沈殿槽の構造は図示した通りである。

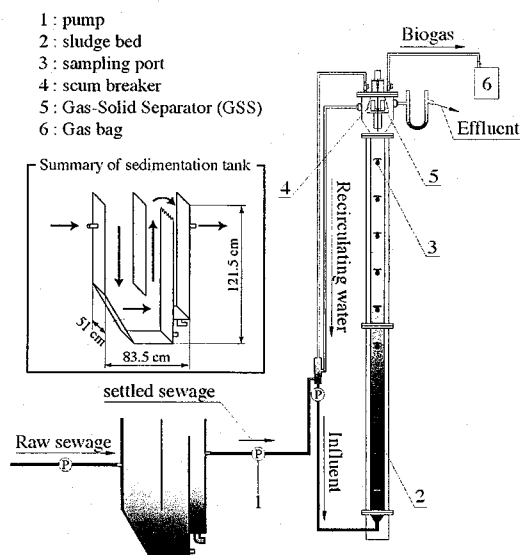


Figure 1 Schematic diagram of EGSB reactor used in this study

(2) 分析項目

a) 水質分析

リアクターの性能評価のために経時的に流入・流出水をスポットでサンプリングし、水質（SS、VSS、COD_{Cr}、等）、バイオガス生成量、ガス組成の分析を行った。

COD_{Cr}濃度の測定には、多項目水質分析計（DR-2500, HACH）を用い、SS・VSS濃度の測定には孔径 $0.45 \mu\text{m}$ のガラス繊維濾紙（GB-140, ADVANTEC）を用いた。ガス生成量の測定は、ガスバッグに生成バイオガスを収集した後、脱硫塔を介して湿式ガスメーターによって測定した。ガス組成（メタン）の分析には、TCDを備えたガスクロマトグラフ（GC-8A, Shimadzu）を使用した。

b) 溶存メタン測定

容量122 mLセラムバイアル瓶に気泡が混入しないよう処理水を緩やかにサンプリング・密栓した後、溶液20 mLをシリンジで引き抜いて窒素交換し、ヘッドスペースを設けた（液量102 mL）。次に 25°C に設定したウォーターバスにバイアル瓶を設置し、100 rpmで1時間程振とうし、気液平衡状態にした後、気相部のメタン濃度をTCD-GCで測定し、以下の計算式(1)～(2)でバイアル気相、液相におけるメタン量を求めた。(1)と(2)の和が処理水102 mL当たりの溶存メタン量となる。なお、計算式(2)の0.0301は、 25°C 、1 atmにおけるメタンの溶解度である。

CH_4 in gas phase (mL-CH₄)

$$= \frac{CH_4 (\%) }{100} \times 20 \text{ mL} \quad (1)$$

CH_4 in liquid phase (mL-CH₄)

$$= \frac{CH_4 (\%) }{100} \times (122-20) \text{ mL} \times 0.0301 \quad (2)$$

c) 保持汚泥の物理的性状調査

リアクター保持汚泥のサンプルについて、汚泥濃度（MLSS、MLVSS）及び汚泥沈降指標（SVI）の測定を定期的に行った。汚泥濃度及び汚泥沈降指標の測定は下水試験方法に準じて行った。また、EGSBリアクター運転開始後484日目に保持汚泥のCN比を測定した。CN比の測定はCN coder（MT-700, YANACO社）を用いて行った。

d) メタン生成活性試験

保持汚泥のメタン生成活性は植種汚泥（0日目）、運転開始後123日目、179日目、296日目、591日目に、Port 2より採取した保持汚泥について測定した。活性測定温度は 10°C 、 20°C 、 35°C とし、試験基質として酢酸、プロピオン酸、水素を用いた。供試汚泥は25 mMリン酸バッファーで基質洗浄を行い、ホモジナイザーで均一に分散（10,000 rpm、約30秒間）させた後、容量122 mLセラムバイアル瓶に分注した。試験は、レシプロカルシェーカーで振とう条件120 rpmのもと、バイオガス組成と生成量を

経時的に測定し、その結果から単位汚泥量 (gVSS) 当たりのメタン生成活性を求めた。

e) PCR-DGGE法による保持汚泥の菌叢解析

保持汚泥の微生物群集構造を調査するために、DGGE法 (Denaturing Gradient Gel Electrophoresis, 変性剤濃度勾配電気泳動法) による解析を行った。

汚泥試料はEGSBリアクター運転開始後363日目にPort 2より採取した。汚泥試料からのDNA抽出は、ビーズビーター法により行った。汚泥試料を鋳型 (50 ng/reaction) として真正細菌 (Domain Bacteria) とメタン生成細菌群 (古細菌, Domain Archaea) について特異的な16S rRNA遺伝子を標的としたPCR (Polymerase Chain Reaction) 増幅を行った。PCR増幅用のプライマーは、真正細菌については341F-GC, 534R¹⁹⁾を、古細菌についてはARC357F-GC, ARC691R¹⁹⁾をそれぞれ用いた。

電気泳動はDCode™ (BioRad) を用い、変性剤の濃度勾配を適宜変更して、200 V, 60°Cで約4時間の電気泳動を行い、試料中に存在する微生物群のバンドを同時検出した。検出された代表的なバンドの切り出しを行い、塩基配列の決定を行った後、既知微生物の塩基配列との同一性を比較し、汚泥中に存在する微生物群集を同定した。

3. 実験結果及び考察

(1) EGSBリアクターによる下水の連続処理実験

Figure 2にEGSBリアクターによる下水の連続処理実験の結果を示す。運転期間中の季節変動に伴い、下水水温は9°Cから27°Cと大きく変動した (Figure 2 (c))。EGSBリアクターはHRT5時間で運転を開始し、HRTを短縮することで段階的に有機物負荷を上昇させ、運転開始後26日目にはHRT2時間で平均有機物負荷4.1 kgCODcr・m³・day⁻¹に達した。

沈殿槽設置前はEGSBリアクターのカラム上部に未分解SSの蓄積が生じ、突発的にSSの流失が観察されたた

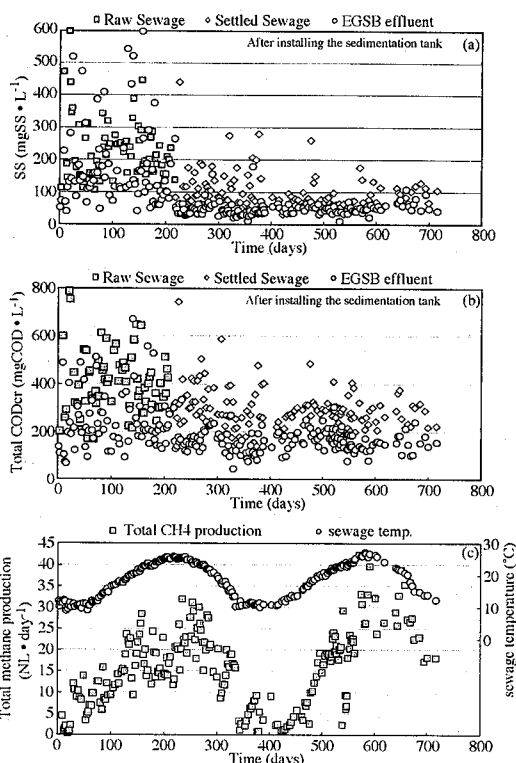


Figure 2 Time course of each performance. (a) SS conc. , (b) Total COD conc. , (c) sewage temp. and Total methane production)

め処理水質が不安定であった。固形性の有機物を多く含む下水などのメタン発酵処理を行う場合、低温条件下での加水分解反応が律速となり^{20) 21) 22) 23)}、それらがリアクター内に蓄積したり未分解で排出される¹⁹⁾ことが本研究においても確認された。本研究のように、グラニュール汚泥を利用した嫌気処理法による固形性有機物を含む下水の処理においては、ブロック状の汚泥を利用する既往のUASB法と比較して、固形性有機物の捕捉能が低いことが考えられる。また、EGSB法では、処理水循環により高い上昇線流速を与えているため、流入固形物の排

Table 1 Summary of each performance (after setting up the sedimentation tank)

Analysis item	Unit	Sewage temp. < 20°C				Sewage temp. > 20°C			
		Raw sewage	Settled sewage	EGSB eff.	Removal efficiency (%)	Raw sewage	Settled sewage	EGSB eff.	Removal efficiency (%)
Total BOD	mgBOD・L ⁻¹		160 (65)	105 (43)	34.2		176 (61)	115 (57)	34.8
Soluble BOD	mgBOD・L ⁻¹		69 (28)	43 (23)	36.6		92 (29)	50 (30)	45.5
Total CODcr	mgCOD・L ⁻¹	407 (193)*	272 (86)	153 (46)	43.8	594 (592)	292 (88)	167 (43)	43.0
Soluble CODcr	mgCOD・L ⁻¹	151 (58)	143 (45)	102 (36)	28.7	176 (59)	166 (42)	99 (38)	40.1
SO ₄ ²⁻	mgSO ₄ ²⁻ ・L ⁻¹		36 (7)	0 (0.3)	99.7		28 (5)	1 (1)	98.1
SS	mgSS・L ⁻¹	286 (295)	95 (56)	48 (23)	49.9	294 (303)	95 (57)	50 (21)	47.1
VSS	mgVSS・L ⁻¹	219 (149)	76 (47)	39 (22)	49.1	245 (265)	73 (42)	41 (20)	44.2
Temp.	°C		14.1 (3)	14.2 (3)			23.6 (2)	23.7 (3)	
pH	-		7.4 (0.4)	7.2 (0.2)			7.2 (0.4)	7.1 (0.2)	
DO	-		1.1 (1)	0.3 (0.2)			0.5 (0.6)	0.1 (0.1)	
ORP	mV		-75 (88)	-277 (25)			-190 (78)	-290 (27)	
Biogas prod.	NL・day ⁻¹			1.8 (2.0)				9.0 (5.9)	
Methane %	%			28.2 (20.2)				62.3 (13.2)	

*Standard deviations were presented in parentheses.

出が生じやすく²⁴⁾、一旦セルロースなどを含むSSが保持汚泥と結合すると、系外に排出されてしまう傾向にあった。

未分解SSの蓄積は処理水の水質を不安定にし、連続処理性能の評価を困難にするため、流入下水（スクリーンのみ通過）のSSを低減させて未分解SSの蓄積を防ぐことを目的として、運転開始後219日目にリアクター流入部に沈殿槽を設けた。沈殿槽設置後は、流入水のSS濃度だけでなく処理水のSS濃度も安定した。また、リアクター内での未分解SSの蓄積も見られなくなった。

一方、同様の下水を処理しているUASBリアクターでは、HRT6時間で全COD_{Cr}除去率は60%以上を達成しており、沈殿槽無しでも突発的なSSの流失により処理性能が不安定になることは無かった²⁵⁾。

Table 1に沈殿槽設置後の水質分析の結果を示す。全COD_{Cr}の除去率に関しては、流入下水の水温の変化に関わらず43～44%であった。一方、溶解性COD_{Cr}除去率については、流入下水の水温が20℃以上の時期は平均で44.1%であるのに対し、流入下水の水温が20℃以下の時期は28.7%と著しく低下し、流入下水の水温の変化は溶解性COD_{Cr}成分の除去に大きく影響することが分かった。低温期（20℃以下）においては、固形性有機物の可溶化が抑制され流入溶解性COD_{Cr}濃度が低い傾向にあること、また保持汚泥の活性が水温に応じて減少する傾向にあること（Figure 7参照）が、溶解性COD_{Cr}除去率の悪化の原因だと考えられる。

メタン生成量（処理水中に溶解しているメタンを含む）の変化（Figure 2 (c)）は、水温の変化に依存して増減し、水温が15℃を下回るとメタン生成量は極端に低下した。一方、夏期（水温25℃以上）におけるメタン生成量は30 NL・day⁻¹に達し、良好なメタン生成が行われた。なお、生成ガスにはメタン、窒素、二酸化炭素が含まれており、それぞれ濃度は約70%（v/v）、25%（v/v）、5%（v/v）であった（水素は検出されず）。

(2) 連続運転期間中のCOD_{Cr}収支（沈殿槽設置後）

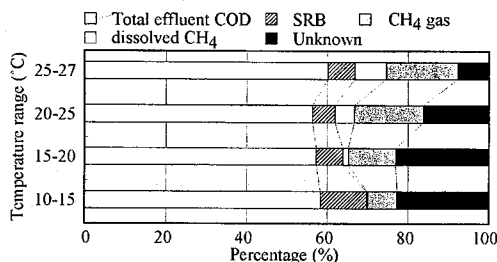


Figure 3 Mass balance based on influent COD at each temperature within EGSB reactor

Figure 3にEGSBリアクターによる実下水の連続処理実験期間におけるCOD_{Cr}の収支を外気温（流入下水の水温）別に計算した結果を示す。Figure 3のSRBは硫酸還元細菌によるCOD消費の割合を表しており、硫酸塩還元反応によるCOD除去量は、以下の計算式(3)により計算した。

$$SRB \text{ (gCOD/day)} = \frac{(\text{Inf. } SO_4^{2-} \text{ (gS/L)} - \text{Eff. } SO_4^{2-} \text{ (gS/L)})}{2 \times \text{Flow rate (L/day)}} \quad (3)$$

この結果より、流入COD_{Cr}量に対する処理水COD_{Cr}量の割合は、連続処理実験で示したとおり水温に依らず、57～59%とほぼ一定であった。硫酸塩還元細菌によるCOD_{Cr}の消費の割合は、水温が低いほど多くなっていることが確認できる。流入下水中の硫酸塩は水温に関わらずほぼ完全に消費されているが、水温が低いほど流入下水中の硫酸塩濃度が高まることに依ると考えられる（Table 1参照）。生成されたメタンの割合は水温が低下するに従い低くなる傾向にあり、その大部分が処理水中に溶存しているため、ガスとして回収できていないことが判明した。特に冬場はガスとして回収できるメタンは皆無であり、生成されたメタンのほぼ全量が処理水中に溶け込んでいる形となった。また、水温の高い夏場におけるCOD_{Cr}収支は90%に達したものの、水温の低い冬場の収支は80%未満となり、未知のCOD_{Cr}成分が増える結果となった。本研究では水温の低い冬場に流入下水のORPの増加が見られ、これがCOD_{Cr}の収支に影響している可能性が考えられる。流入下水のORP増加の一因としては、流入下水中の溶存酸素（DO）が増加することが挙げられる（Table 1参照）。一般的に排水の嫌気性処理（メタン発酵）に適しているORPは-260 mV以下とされているが、水温が20℃以下では流入下水のORPは平均で-75 mVであり、最高で50 mVまで達した。これまでに筆者らの別途の研究により、流入水のORPの変化によるメタン生成量の変化が示唆されているため²⁶⁾、今後流入水のORP上昇がメタン生成やメタン酸化等に及ぼす影響を調査する必要がある。

(3) 保持汚泥の物理的性状の調査

Figure 4に総保持汚泥量と単位汚泥濃度（gVSS）当たりの有機物負荷、及びSVIの推移を、Figure 5にEGSBリアクター高さ方向の汚泥濃度及びC/N比の変化を示す。

EGSBリアクターの総保持汚泥量は、沈殿槽設置前の期間は運転の継続に伴って減少し続ける傾向にあり、それに伴い単位汚泥当たりの有機物負荷も増加した。これは連続処理実験の結果でも示したように、未分解のSSがリアクター内に蓄積し、保持汚泥と共にウォッシュアウトした結果である。リアクター高さ方向の保持汚泥濃

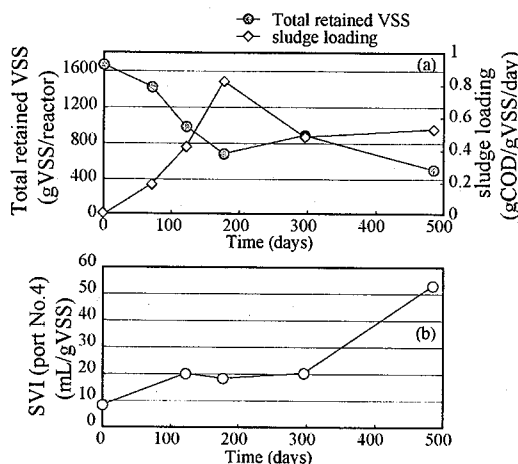


Figure 4 Time course of retained sludge properties. (a) Total retained VSS, Sludge loading, (b) SVI

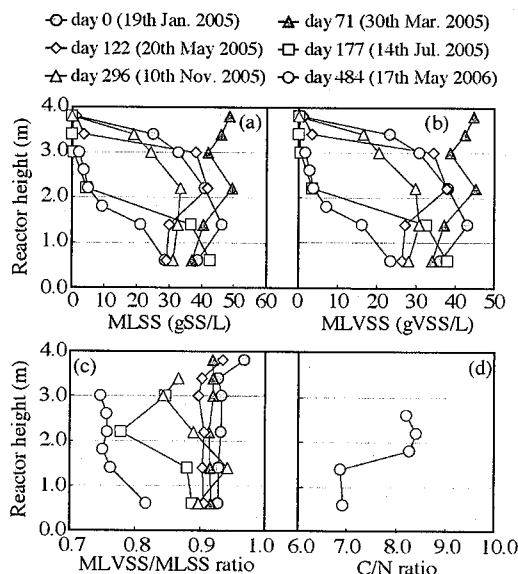


Figure 5 Physical properties of retained sludge in EGSB reactor. (a) MLSS profiles, (b) MLVSS profiles, (c) MLVSS/MLSS ratio profiles, (d) C/N ratio profiles

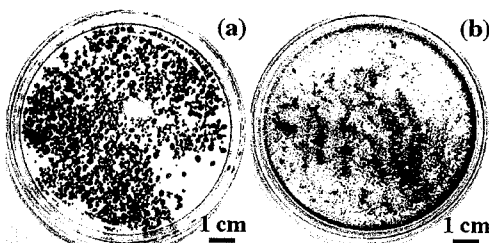


Figure 6 Picture of retained sludge. (a) seed sludge (day 0), (b) day 484

度 (Figure 5(a)) を見てみると、運転開始後71日目にはリア

クター上部まで汚泥が存在しているが、122日目、177日目と運転を継続するに従いリアクター上部から経時的に汚泥濃度が減少していることが確認できる。

沈殿槽設置後においては、多少の増減はあるものの、ほぼ一定の汚泥量を安定して保持できている。しかし、保持汚泥量 (濃度) はリアクター運転開始時と比べて約2分の1から3分の1以下にまで減少しており、MLVSS/MLSS比も運転の継続にともなって小さくなった (MLVSS成分の減少=菌体の減少, Figure 5, (c)) ことから、保持汚泥の分解あるいは流失が示唆された。Figure 6には保持汚泥の写真を示した。グラニュール汚泥 (Figure 6 (a)) を植種源として用いたが、運転開始後484日目には蓄積したSSとともに粒径の減少したグラニュール汚泥が確認できる (Figure 6 (b))。また、保持汚泥には、セルロースなどの未分解のVSS成分も含まれており、保持汚泥中での微生物の存在率推定のため、運転開始後484日目にリアクター高さ方向で、保持汚泥のCN比を測定した。植種したグラニュール汚泥のCN比は、52であった。流入SS (初沈汚泥) の30% (w/w) 程度はセルロースであり、SSの蓄積が生じるとCN比が増加することになる。また、微生物の存在率の低下もCN比の増加の要因となる。運転開始後484日目の汚泥は、リアクター底部でのCN比が7程度であり、上部では8強と高くなる傾向にあったことから、リアクターの上部に行くにつれて微生物の存在率の低下を確認することができた。リアクター上部におけるセルロースの蓄積も考えられるが、MLVSSの値がリアクター上部で極端に減少しているため、その寄与は小さいと考えられる。一方、同一の下水を処理しているUASBリアクターの保持汚泥のCN比は、高さ方向で大きく変化せず、どの季節においても7~8強の範囲であった。

(4) メタン生成活性

Figure 7に各基質供与条件下での保持汚泥のメタン生成活性 (10℃, 20℃, 35℃) を示す。本実験の結果より、全ての基質、即ち酢酸資化性メタン生成細菌、プロピオン酸分解細菌、水素資化性メタン生成細菌のいずれの細菌群の活性についても運転の継続に伴って低下する傾向が見られた。例えば運転開始後591日目においては、酢酸基質及びプロピオン酸基質の10℃における活性は、ほぼゼロであった。

一方で、川崎らの研究によると、20℃の条件下において低濃度人工排水で長期間馴致したEGSBリアクター保持汚泥のメタン生成活性は、運転の継続に従い低温域の値も含めて増加する傾向にあった¹⁵⁾。また、20℃条件下でのメタン生成古細菌の分離培養例も報告されている²⁰⁾。

本研究でリアクターの運転を継続するに従い全ての基

◆ day 0 (19th Jan. 2005) □ day 123 (21st May 2005)
 ▲ day 179 (16th Jul. 2005) ○ day 296 (10th Nov. 2005)
 ◇ day 591 (1st Sep. 2006)

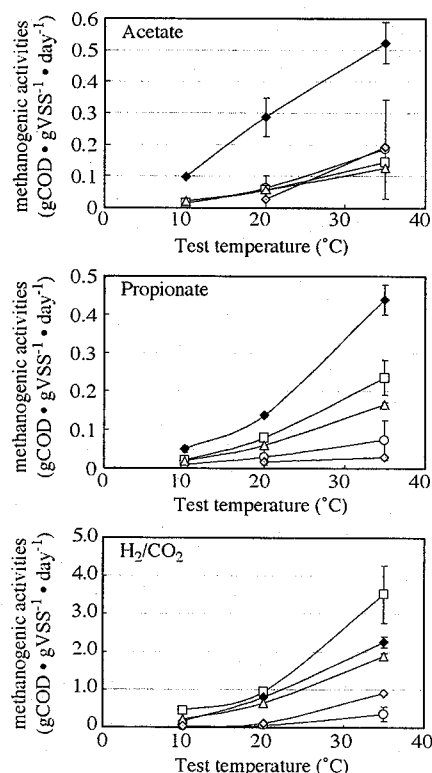


Figure 7 Temperature dependency of methane producing activities of the retained sludge

質において活性が低下した理由として、流入下水中には微生物にとって十分な量の基質が存在しておらず (VFA などの易分解成分もごく僅か)、また HRT の短縮によっても満足な有機物負荷を与えることが出来ず (溶解性の有機物負荷 $19 \text{ kgCOD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$)、メタン発酵細菌群の増殖や、生物膜の維持が困難な環境であったことが挙げられる。

Table 2 に植種汚泥 (day 0)、運転開始後 296 日目、591 日目の保持汚泥の 35°C のメタン生成活性に対する各温度 (20°C , 10°C) での活性値との比を示す。酢酸基質については活性の減少と共に 35°C に対する 20°C , 10°C の値も減少する傾向にあった。一方でプロピオン酸基質については 35°C に対する 20°C , 10°C の活性比は、運転の継続に伴

い増加していることが確認できた。しかし、植種汚泥のプロピオン酸資化メタン生成活性は、 35°C で $0.11 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ であるのに対し、運転開始後 591 日目の時点では $0.03 \text{ gCOD} \cdot \text{gVSS}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ にまで減少していた。このことから、中温域に活性のピークがある汚泥にもかかわらず、プロピオン酸基質については中温域の活性が大幅に減少したことにより 35°C に対する 20°C , 10°C の活性比が増加したものと考えられる。一方、 H_2/CO_2 基質は運転開始後 296 日目の時点では 35°C に対する 20°C の活性比は半減しているものの、運転開始後 591 日目にはほぼ変わらない値となった。

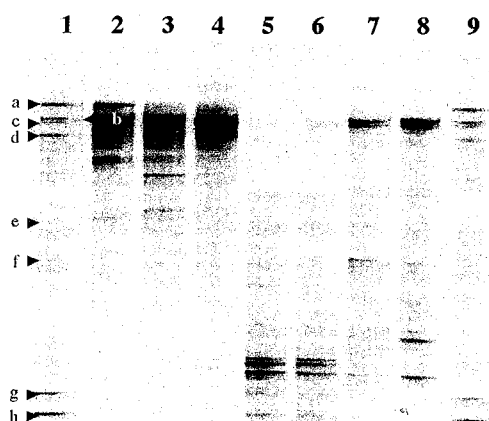
(5) PCR-DGGE 法による保持汚泥の菌叢解析

Figure 8 に PCR-DGGE 法による微生物群集解析の結果を、Table 3 に各レーンのサンプル名をそれぞれ示す。Figure 8 内 DGGE ゲルの a~h ((a) 真正細菌)、及び i~7 ((b) 古細菌) のバンドを切り出して塩基配列の決定を行った。本解析の結果より、未培養微生物のクローンに相同性の高い細菌の存在が目立った (Domain Bacteria では、バンド a, b, e, に相当し、Domain Archaea では全てのバンドが相当)。

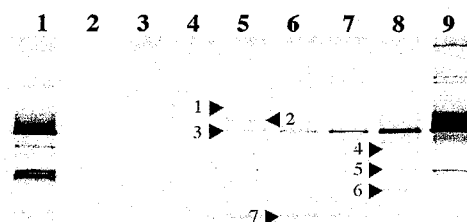
Domain Bacteria (真正細菌) ではバンド b, c は低濃度人工排水を供給している低温ラボスケール EGSB リアクター の保持汚泥²⁰、流入下水及び処理水中に目立って存在しており、崩壊したグラニュールなどの粒径の小さなサンプル (レーン 7, 8) にも存在していることが確認できた。これは、*Lactococcus* や *Anaerobivrio* 等の糖分解酸生成細菌に近縁であり、流入下水中に多く存在することが確認された。一方でバンド g, f は低濃度人工排水を供給している低温ラボスケール EGSB リアクター 保持汚泥²⁰、及び粒径の大きなサンプルに目立って存在していた。これは *Syntrophobacter fumaroidans* と相同性が 99% であり、VFA を資化すると共に硫酸塩還元に寄与している微生物であることが明らかとなっている²⁰。実下水中には十分な VFA は存在していないものの、硫酸塩還元率はほぼ 100% であり、中間代謝脂肪酸の分解にこれらの微生物の関与が高いものと思われる。また、実下水、沈殿槽通過後の下水、処理水、共に同様の傾向を示したバンドが検出されていることから、流入した微生物由来の SS はリアクター内を通過し、分解したり汚泥ベッドに捕捉されることなく系外へ排出されていることが分かった。

Table 2 Comparison of activity based on 35°C

Substrate	day 0			day 296			day 591		
	35/35	20/35	10/35	35/35	20/35	10/35	35/35	20/35	10/35
Acetate	1	0.55	0.19	1	0.34	0.08	1	0.14	-
Propionate	1	0.32	0.11	1	0.41	0.15	1	0.61	-
H_2/CO_2	1	0.36	0.07	1	0.13	0.07	1	0.12	0.05



(a) Domain Bacteria



(b) Domain Archaea

Figure 8 Result of DGGE analysis. (a) Domain Bacteria, (b) Domain Archaea

Table 3 Sample name of DGGE analysis.* Granular sludge grown in EGSB reactor fed with synthetic wastewater at 15°C (26)

Lane NO.	Sample name
1	Reference granular sludge*
2	Raw sewage
3	Influent (sewage after sedimentation)
4	Effluent of EGSB reactor
5	Retained sludge (2.5 mm < X)
6	Retained sludge (1.18 < X < 2.5 mm)
7	Retained sludge (0.5 < X < 1.18 mm)
8	Retained sludge (X < 0.05 mm)
9	Reference granular sludge*

Domain Archaea (古細菌) では切り出したバンドの全てが未培養微生物と同一性が高かったが、バンド2, 7は水素資化性メタン生成細菌として知られている *Methanomicrobiales* に近縁 (同一性97%) であり、バンド5, 6は酢酸資化性メタン生成細菌として知られている *Methanosaeta* に近縁 (同一性97%) であり、保持汚泥内にメタン生成細菌群の存在を確認できた。一方、流入下水中には古細菌の存在は確認されず、処理水での存在も少なかった ((b) レーン4)。

4. 結論

以下に各実験の結果について簡略にまとめた。

- 1) 都市下水の常温条件下、HRT2時間での連続処理の結果、高濃度で流入するSSを分解できず、有機物処理性能の不安定を導く結果となった。これは今までに報告されている結果と同様であった。
- 2) 前段に沈殿槽を設置した後は安定した処理を行うことが出来た。約500日間の連続運転による平均COD除去率は43~44%であり、水温の変化によるCOD除去率悪化等の影響は見られなかった。
- 3) メタン生成量は外気温の変動に応じて大きく変化し、冬場におけるメタンのガス化回収はほぼ皆無であった。
- 4) 生成されたメタンは、水温に関わらず大部分が処理水中に溶け込んでおり、ガスとして回収できていない事が判明した。特に冬場はガスとして回収できるメタンは皆無であり、生成されたメタンの全量が処理水中に溶け込んでいた。
- 5) EGSBリアクターの総保持汚泥量は、沈殿槽設置前の期間では運転の継続に伴って減少し続け、それに伴い汚泥当たりの有機物負荷も増加した。沈殿槽設置後は、多少の増減はあるものの汚泥を比較的安定して保持できた。しかし、結果的にはリアクター運転開始時と比べて約3分の1弱(4分の1強)まで減少した。
- 6) 保持汚泥のメタン生成活性は、リアクターの運転を継続するに従い低下した。これは下水中に十分な基質が存在していないことが挙げられる。また、長期間低温で運転しているにも関わらず、低温対応のメタン生成古細菌の集積化は確認できなかった。
- 7) PCR-DGGE法による下水や保持汚泥の菌叢解析結果より、流入下水に含まれる微生物等の固形成分は生物膜に捕捉されずに流出していることが分かった。また、保持汚泥内で硫酸塩還元性の中間代謝脂肪酸分解細菌やメタン生成細菌 (水素資化性、酢酸資化性) の存在が確認できた。

本研究では、EGSBリアクターの都市下水処理への適用可能性の評価を行った。その結果、SSの分解こそ望めないが、保持汚泥にとって基質が貧困状態にあるにも関わらず、HRT2時間という高速運転条件下で、水温の影響に依らず安定したCOD_r除去性能を得ることが出来た。また、EGSBリアクターの前段に沈殿槽を設置することで、実下水処理における未分解SSの蓄積の問題が解決できた。しかしながら、分離したSSは何らかの処理を施す必要があるため、処理時間は長いSS捕捉能に優れ、運転操作が簡単なUASB法²⁹⁾に優位性があると考えられる。

一方、産業排水と家庭排水が混入するような溶解性CODの割合が比較的多い排水のEGSB法による無加温処理では、より高い処理性能を発揮できる可能性があり、技術の優位性が生かせるものと考えられる。

謝辞：本研究の一部は、新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の助成、及び地球温暖化対策事業（環境省）の助成を受け実施した。ここに記して感謝の意を表する。

参考文献

- 1) G. Lettinga : Sustainable integrated biological wastewater treatment, *Wat. Sci. Tech.* 33,85-98,1996.
- 2) 原田秀樹, 大橋晶良 : 高温条件下での嫌気性グラニューールの形成—“夢の超高速”嫌気性排水処理プロセスの実現化—, 水環境学会誌, 121, 635-639, 1998.
- 3) Gatze Lettinga, Salih Rebac, Sofia Parshina, Alla Nozhevnikova, Jules B. Van Lier, and Alfons J. M. Stams : High-rate Anaerobic Treatment of Wastewater at Low Temperatures. *Appl. Environ. Microbiol.* 65, 1696-1702,1999.
- 4) Salih Rebac, Jules B. van Lier, Piet Lens, Alfons J. M. Stams, Freddy Dekkers, Koer Th. M. Swinkels and Gatze Lettinga : Psychrophilic anaerobic treatment of low strength wastewaters. *Wat. Sci. Tech.* 39, 203-210,1999.
- 5) Salih Rebac, Jules B. van Lier, Piet Lens, Joost van Cappelen, Koen Th. M. Swinkels, and Gatze Lettinga : Psychrophilic (6-15 °C) High-Rate Anaerobic Treatment of Malting Wastewater in a Two Module Expanded Granular Sludge Bed System. *Biotechnol. Prog.* 14, 856-864,1998.
- 6) Gatze Lettinga, Salih Rebac and Grietje Zeeman : Challenge of psychrophilic anaerobic wastewater treatment. *TRENDS in Biotechnology* 19,363-370,2001.
- 7) D.Jeison and R. Chamy : COMPARISON OF THE BEHAVIOR OF EXPANDED GRANULAR SLUDGE BED (EGSB) AND UPFLOW ANAEROBIC SLUDGE BLANKET (UASB) REACTORS IN DILUTE AND CONCENTRATED WASTEWATER TREATMENT. *Wat. Sci. Tech.* 40,91-97,1999.
- 8) Jules B. van Lier, Salih Rebac and Gatze Lettinga : HIGH-RATE ANAEROBIC WASTEWATER TREATMENT UNDER PSYCHROPHILIC AND THERMOPHILIC CONDITIONS. *Wat. Sci. Tech.* 35, 199-206,1997.
- 9) M. Halalshah, Z. Sawajneh, M. Zu'bi, G. Zeeman, J. Lier, M. Fayyad and G. Lettinga : Treatment of strong domestic sewage in a 96 m³ UASB reactor operated at ambient temperatures: two-stage versus single-stage reactor, *Bioresour. Technology*, 118, 107-116, 2005.
- 10) Lucas Sughezzo, Grietje Zeeman, Jules B. van Lier, H. V. M. Hamelers and Gatze Lettinga : A REVIEW: THE ANAEROBIC TREATMENT OF SEWAGE IN UASB AND EGSB REACTORS. *Bioresour. Technology* 65,175-190,1998.
- 11) Richard M. Dinsdale, Freda R. Hawkes and Dennis L. Hawkes : ANAEROBIC DIGESTION OF SHORT CHAIN ORGANIC ACIDS IN AN EXPANDED GRANULAR SLUDGE BED REACTOR. *Water Research* 34, 2433-2438,2000.
- 12) M. T. Kato, L. Florencio and R. F. M. Arantes : Post-treatment of UASB effluent in an expanded granular sludge bed reactor type using flocculent sludge. *Wat. Sci. Tech.* 48, 279-284,2003.
- 13) Salih Rebac, Julia Ruskova, Sybren Gerbens, Jules B. van Lier, Alfons J. M. Stams, and Gatze Lettinga : High-Rate Anaerobic Treatment of Wastewater under Psychrophilic Conditions. *JOURNAL OF FERMENTATION AND BIOENGINEERING*. 80, 499-506,1995.
- 14) Kato, M. T., S. Rebac, and G. Lettinga : Anaerobic treatment of low-strength brewery wastewater in expanded granular sludge bed reactor. *Appl. Biochem. Biotechnol.* 76:15-32,1999.
- 15) 川崎達也, 大橋晶良, 原田秀樹, 珠坪一晃 : EGSB リアクターによる低濃度有機性排水の高速メタン発酵処理, 環境工学研究論文集, Vol.42, pp.39-49, 2005.
- 16) Franklin, R. J. : Full-scale experiences with anaerobic treatment of industrial wastewater. *Water Sci. Technol.* 44,1-6,2001.
- 17) Muyzer, G., S.Hottentrager, A.Teske, and C. Wawer : Denaturing gradient gel electrophoresis of PCR-amplified 16S rDNA - A new molecular approach to analyze the genetic diversity of mixed microbial communities. *Molecular Microbial Ecology Manual* 3.4.4, 1-23, 1996.
- 18) Takeshi Watanabe, Susumu Asakawa, Asumi Nakamura, Kazunari Nagaoka, and Makoto Kimura : DGGE method for analyzing 16S rDNA of methanogenic archaeal community in paddy field soil, *FEMS Microbiology Letters*, 232, 153-163, 2004.
- 19) Rebac, S., J. B. Van Lier, M. G. J. Janssen, F. Dekkers, K. T. M. Swinkels, and G. Lettinga : High-rate anaerobic treatment of malting waste water in a pilot-scale EGSB system under psychrophilic conditions. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology* 68,135-146,1997.
- 20) Zeeman, G., W. T. Sanders, K. Y. Wang, and G. Lettinga : Anaerobic treatment of complex wastewater and waste activated sludge - application of an upflow anaerobic solid removal(UASR) reactor for the removal and pre-hydrolysis of suspended COD. *Wat. Sci. Tech.* 35:121-128,1997.
- 21) Elmitwalli, T. A., V. Sklyar, G. Zeeman, and G. Lettinga : Low temperature pre-treatment of domestic sewage in an anaerobic hybrid or an anaerobic filter reactor. *Bioresour. Technol.* 82:233-9,2002.
- 22) Mahmoud, N., G. Zeeman, H. Gijzen, and G. Lettinga : Anaerobic sewage treatment in a one-stage UASB reactor and a combined UASB-Digester system. *Water Res.* 38:2347-57,2004.
- 23) Sanz, I., and F. Fdz-Polanco : temperature treatment of municipal sewage in anaerobic fluidized bed reactors. *Water Research* 24:463-469,1990.
- 24) A. R. M. van der Last and G. Lettinga : ANAEROBIC TREATMENT

- OF DOMESTIC SEWAGE UNDER MODERATE CLIMATIC (DUTCH) CONDITIONS USING UPFLOW REACTORS AT INCREASED SUPERFICIAL VELOCITIES. *Wat. Sci. Tech.* 25, 167-178, 1992.
- 25) W.Yoochatchaval, K.Nishiyama, M.Okawara, A.Ohashi, H.Harada, K.Syutsubo : Influence of effluent-recirculation condition on the process performance of EGSB reactor for treating of low strength wastewater : *Proceedings of Anaerobic Digestion*, 2007 (submitted).
- 26) K.Syutsubo, W.Yoochatchaval, H.Yoshida, K.Nishiyama, M.Okawara, H.Sumino, N.Araki, H.Harada, A.Ohashi : Changes of microbial characteristics of retained sludge during low-temperature operation of an EGSB reactor for low-strength wastewater treatment, *Proceedings of Anaerobic Digestion*, 2007 (submitted).
- 27) Hamsen, HJM., Van Kuijk, BLM., Plugge, CM., Akkermans, ADL., De Vos, WM., Stams, AJM. : Syntrophobacter fumaroxidans sp. nov., a syntrophic propionate-degrading sulfate-reducing bacterium, *International Journal of Systematic Bacteriology* 48, pp. 1383-1387, 1998.
- 28) Akio Tonouchi : Isolation and characterization of a motile hydrogenotrophic methanogen from rice paddy field soil in Japan, *FEMS Microbiology Letters*, 208, 239-243, 2002.
- 29) Madan Tandukar, A. Ohashi and H. Harada : Performance comparison of a pilot-scale UASB and DHS system and activated sludge process for the treatment of municipal wastewater, *Water Research*, 41, 2697-2705, 2007.

(2007.5.25 受付)

Evaluation of process of the Expanded Granular Sludge Bed (EGSB) reactor for performance treatment of municipal sewage

Masahiro OKAWARA¹, Keita NISHIYAMA¹, Takashi YAMAGUCHI¹
Kazuaki SYUTSUBO², Hiroyuki IMACHI³, Hideki HARADA⁴ and Akiyoshi OHASHI⁵

¹Dept. of Environmental Engineering, Nagaoka University of Technology

²Water and Soil Environment Division, National Institute for Environmental Studies

³Extremobiosphere Research Center, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology (JAMSTEC)

⁴Dept. of Civil and Environmental Engineering, Tohoku University

⁵Dept. of Social and Environmental Engineering, Hiroshima University

In this study, Expanded Granular Sludge Bed (EGSB) reactor, inoculated with mesophilic granular sludge, was applied to the treatment of municipal sewage, in order to investigate the process reliability. The EGSB reactor was operated at ambient temperature (9°C~27°C) for over 500 days with HRT of 2 hours, average OLR at 4.1 kgCOD · m⁻³ · day⁻¹ and 6 m · h⁻¹ of up-flow velocity. Suspended solid (SS)-COD removal efficiency showed an fluctuation due to the high upflow velocity by effluent recirculation in EGSB reactor, and influent sewage was not treated by primary-sedimentation. Consequently, the preliminary sedimentation tank had been installed just prior to inlet of the EGSB reactor and able to obtain the stability of influent SS concentration. As the result, the COD_{Cr} removal rate at HRT of 2 hours was maintained at 44% without any effects of inconstant ambient temperature. The decline of the temperature of sewage caused the decrease of the activity and amount of retained sludge. However, it is possible to retain the one-third of granular sludge from initial amounts after 500 days operation.