

(79) 無酸素条件下のメタン発酵グラニュール 充填槽における有機物除去・脱窒特性

渡邊 智秀^{1*}・森 俊輔¹・伊藤 司¹・丸尾 俊文¹

¹群馬大学大学院 社会環境デザイン工学専攻 (〒376-8515群馬県桐生市天神町1-5-1)

* E-mail: watanabe@ce.gunma-u.ac.jp

メタン発酵グラニュール充填槽に硝酸性窒素が供給された際のメタン生成と脱窒特性に対し、操作条件が反応槽の処理性能やグラニュールの活性に及ぼす影響を実験的に検討した。その結果、流入N/CODが0.2以下かつ流入負荷が20kg-COD/(m³・d)以下の範囲において、有機物除去と脱窒がそれぞれ除去率90%以上で安定的に達成できた。有機物除去は脱窒に伴う有機物酸化とメタン生成の両方が寄与しており、その程度は流入N/COD条件に依存した。反応槽への流入硝酸性窒素負荷が増大するとグラニュールの脱窒活性は高くなる一方でメタン生成活性は低下した。また、メタン発酵グラニュールには脱窒細菌が潜在し、外部から反応槽へ脱窒汚泥を植種しなくても短期間で脱窒能を発現させることが可能であった。

Key Words : denitrification, anoxic upflow sludge bed reactor, methanogenesis,

1. はじめに

UASB 反応槽は、グラニュール化した沈降性のよい汚泥でその保持量を非常に高く維持できるため、高濃度有機性排水を高速に処理する優れた方法のひとつとして広く利用されている。メタンガス回収に加え、活性汚泥法のように曝気が必要な好氣的処理法に比べて運転エネルギーの大幅な低減が可能であることも大きな特徴である。

このような高い有用性の一方で、被処理水に含有される窒素成分はアンモニア性窒素として処理水に残留するため、現状では、その程度に応じて循環式硝化脱窒プロセスのような窒素処理が別途必要になっている。しかし、メタン発酵槽には、易分解性の有機酸等が生成し、遊離酸も存在しないので、脱窒能を安定的にハイブリッド化できれば処理システムの槽構成が単純化されるとともに排水中の有機成分を脱窒の電子供与体として無駄なく活用しやすくなることも期待できる。

メタン発酵微生物と脱窒細菌は生育環境が異なり、硝酸性窒素のような酸化態窒素が共存する系では、メタン生成が強く阻害を受けることが指摘されている¹⁾。しかしながら、ろ材やビーズ状担体を充填したろ床に脱窒汚泥または脱窒汚泥とメタン発酵汚泥の混合物を植種してから脱窒条件に馴致すると、反応槽全体としてみたときに脱窒とメタン生成が同時に進行する状態が形成さ

れることが実証されている⁴⁾。また、メタン発酵グラニュールでも脱窒条件へ暴露していくと同様な状態が形成可能であると報告されている⁸⁾¹⁾。処理システムとして、硝化槽と組み合わせ硝化液を UASB 槽へ循環すると脱窒が進行することが報告されており¹²⁾、さらに亜硝酸型硝化槽や MBR との新規な結合システムの試みもなされている¹³⁾¹⁴⁾。一方、排水性状としては、下水のような低濃度排水の処理への適用も試みられ¹⁵⁾、低水温であっても5時間弱の短い滞留時間で安定的な有機性汚濁除去が実現可能であることや低 CN の被処理水では、従属栄養型脱窒に加えて、硫黄脱窒が重要な役割を果たすことがあると報告されている¹⁶⁾¹⁸⁾。さらに、脱窒可能なグラニュールの沈降性への影響因子や沈降性が良好なグラニュールを得るための操作方法についての検討も一部で行われている¹⁹⁾¹⁹⁾。

このようにメタン発酵と脱窒の単一槽化の潜在的な有用性のために、様々な応用が試みられてきている。しかし、脱窒能を有するメタン発酵グラニュールの形成過程、それが充填された反応槽の操作可能範囲や最適操作条件ならびに長期安定性といった基本的特性およびそれを担うグラニュール内の微生物群集構造は、性能評価や更なる応用の展開を図るための基礎として重要にも関わらず、研究ごとに処理対象の排水性状や操作条件が大きく異なり、また、それぞれが限定された範囲での結果である場

合が多く、未だ十分に明らかになっていないといえない。

本研究では、含窒素高濃度有機性排水に対する有効な循環式グラニュール充填槽—硝化槽システムの構築を念頭におき、適用可能範囲や高性能化に関与する知見を得ることを目的として、メタン発酵グラニュールから脱窒能を獲得するまでの変遷とグラニュールならびにそれを充填した反応槽の性能に及ぼす流入負荷条件の影響について実験的検討を行い、その基本特性を明らかにした。

2. 実験

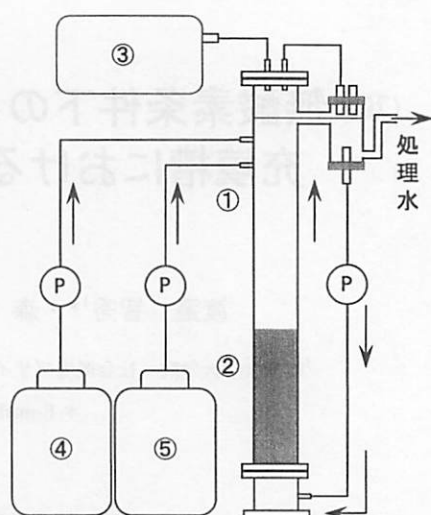
(1) 実験装置

連続処理実験装置の概略を図-1に示す。反応槽は、内径8cmで有効液容積が約1.4Lの透明塩化ビニル樹脂製であり、ガス捕集用のアルミニウムバッグや液循環用のチューブポンプ等が接続されている。槽内には、有機性産業排水処理のための実規模UASB反応槽から採取した中温メタン発酵グラニュールを見かけ容積基準で充填率が約30%となるように投入した。脱窒実験に先立って約4ヶ月間、有機性人工排水の有機物濃度を徐々に増大しながら連続供給してグラニュールの馴致と活性の平準化をした。有機性人工排水は、主要有機成分としてグルコースを用い、りん酸二水素カリウム0.4g/L、りん酸水素二カリウム0.4g/L、炭酸水素ナトリウム6.0g/L、硫化ナトリウム九水合物0.025g/L、酵母エキス0.2g/Lおよび塩化アンモニウム0.2g/L（いずれも総通水量で換算した流入濃度としての値）に加えて、微量無機塩類とビタミン類を添加し、さらにpHが約7となるように調整した。この有機性人工排水の全窒素はほとんどがアンモニア性窒素で約55mg/Lであった。水温は、反応槽を恒温水槽内に設置して、30℃となるように制御した。

(2) 連続処理実験

予め研究室内で活性汚泥を植種源として酢酸を唯一の有機炭素源に用いて1年間以上連続培養されてきた脱窒汚泥約50mg-VSをグラニュールが充填された反応槽に植種した系（R1）、グラニュール以外の植種は一切なかった系（R2）ならびに対照系として、脱窒汚泥の植種も硝酸性窒素の供給もしない通常のUASB型運転の系（RR）の3種類の反応槽を用意した。なお、R1への植種は硝酸性窒素の通水を開始する直前に実施した。いずれの反応槽も上向流速が約1.5～2.0m/hとなるようにチューブポンプで液循環をさせた。

実験は、表-1に示した操作条件となるように所定濃度に調整した有機性人工排水と硝酸塩水溶液を同流量で連続通水して実施した。第一段階として、流入COD負荷が一定の下で徐々に硝酸性窒素の流入負荷を増大させた。



①反応槽、②グラニュール充填層、③ガスバッグ、④基質容器（有機性人工排水）、⑤基質容器（硝酸塩水溶液）、P：チューブポンプ

図-1 実験装置の概略

表-1 操作条件の概略

期間 [d]	HRT [d]	流入COD 濃度 [g/L]	流入硝酸性窒素 濃度 [g/L]		
			R1	R2	RR
0-38	1	3.0	0.1	0.1	0
39-57			0.3	0.3	
58-91			0.5	0.5	
92-160			0.6	0.6	
161-334	1	3.0	0.3	0.6	
335-368	0.83	3.0	0.3	0.6	
369-387	0.67	3.0	0.3	0.6	
388-409	0.5	3.0	0.3	0.6	
410-438	0.5	1.5	0.15	0.3	
439-462	1	3.0	0.3	—	

※流入濃度は、総通水量に対する値で表記

後述のようにこの最初の160日間でR1とR2におけるCODおよびTN除去速度に明確な相違が認められなかった。そのため、処理性能の点で両槽は見かけ上等しい状態であると判断し、これ以降は、流入水の硝酸性窒素とCODの比（以下、N/CODと記して重量基準の比で表す）をそれぞれ一定に設定した上で流入負荷を徐々に変化させてその影響を検討した。各実験条件で定期的に採水し、COD、形態別窒素ならびにTNを測定するとともに、槽内のpH等の測定も行った。また、水質が定常状態に達した後で生成ガス量とガス組成の測定も行った。

なお、グラニュールのVSは実験期間を通じ、見かけ充填容積基準で約60g-VS/Lで概ね一定であり、各反応槽には、約25g-VS/reactorのグラニュールが保持されていた

と推算された。また、本研究では、流入負荷や除去速度は、見かけのグラニュール充填容積基準で表記した。

(3) グラニュールの活性試験

各反応槽からグラニュールを採取しそのメタン生成および脱窒活性を調べるために、容積約120mLのバイアル瓶を用いた回分活性試験を実施した。採取したグラニュールは、新鮮な基質溶液で何度も十分に洗浄を繰り返してから直ちに使用することで、グラニュールに付着した反応槽内の浮遊汚泥等の影響をできるだけ取り除いた。

メタン生成活性試験は、約21g-COD/Lに調整された無機塩ならびに微量栄養塩類を含む基質溶液を用いた（硝酸性窒素の含有なし）。有機炭素源には、グルコースまたは酢酸を用い、それらの利用特性を検討した。脱窒活性試験には、上記の基質溶液へ200mg-N/Lとなるように硝酸カリウムを添加して用いた（N/COD=約0.1）。初期pHはいずれも約7に調整した。

バイアル瓶は、ブチルゴム栓とアルミキャップで密栓するとともにヘリウムガスでヘッドスペースを十分に置換をした。また、30℃に調整された振とう恒温水槽へ浸漬して約60rpmで往復振とうした。定期的に採水等を行い、形態別窒素、酢酸、生成ガス量ならびにガス組成等の経時変化を測定した。脱窒ならびにメタン生成速度は、濃度減少やメタン生成量に経時的な直線性が認められる実験開始からの期間での平均速度として算出した。

(4) 分析方法

溶解成分の測定には、孔径0.45μmのメンブレンフィルタのろ液を供した。CODの分析は、*standard methods*に準じた二クロム酸カリウムを酸化剤とした比色法の測定キットを用いた（Hach社製、DR-2010）²⁰。アンモニア性窒素はネスラー法で測定した。硝酸性窒素と亜硝酸性窒素は、イオンクロマトグラフィ（横河アナリティカル、IP-7000）を用い、TNは下水試験方法に従った²¹。酢酸は、FID付きガスクロマトグラフィ（島津製作所、GC-8APF）

を用いて測定した。ガス組成は、TCD付きガスクロマトグラフィ（島津製作所、GC-8AIT）を用い、主として窒素、メタン、二酸化炭素ならびに酸素の測定を行った。その他の必要となった水質や汚泥の測定は下水試験方法に準拠した²¹。

4. 結果および考察

(1) 脱窒汚泥植種の効果

脱窒汚泥を添加したR1と添加しなかったR2の実験開始からのTN除去速度の経日変化を図-2に示す。開始から約3週間後には、両反応槽におけるTN除去速度はほとんど同じになっており、それ以降も流入硝酸性窒素濃度を段階的に増大することに対応して、TN除去速度は増大していったが、両槽に明確な差はなかった。本実験では、測定機器の都合で初期段階における状況を捉えられなかったため、同様な植種条件で別途、スタートアップ実験を行った。その際のCODおよびTN除去率の経日変化を図-3(a)および(b)にそれぞれ示す。脱窒汚泥を外部から植種したRS1では、1日後にはすでにCOD除去率およびTN除去率ともに90%以上に達していた。これに対してRS2では、同様な除去率まで達するのに5日間要した。従って、反応槽のTN除去性能という視点では、脱窒汚泥を外部から植種してもその効果は1週間程度以内に限定されることが示唆された。なお、Etcheberryらも同様な傾向を報告している²²。

実験開始から30日後にR1およびR2から採取したグラニュールの比活性を比較して図-4に示す。比メタン生成活性と比脱窒活性はいずれも脱窒汚泥の植種の有無によらずそれぞれほぼ等しかった。このことから、単に反応槽内の液本体中で浮遊汚泥として脱窒細菌が増殖することにより、反応槽での脱窒が見かけ上進行しているというのではなく、グラニュール表層または内部に存在する脱窒細菌が脱窒を行っていると考えられた。長期に硝酸

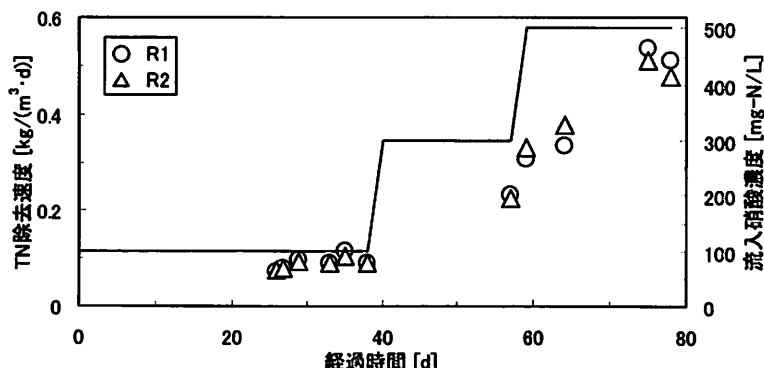


図2 スタートアップにおけるTN除去速度の経日変化（R1:脱窒汚泥の植種あり、R2:植種なし）

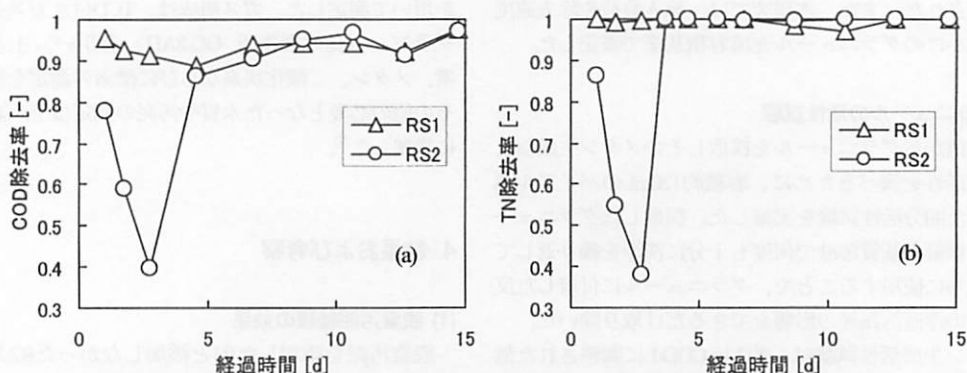


図3 スタートアップにおける反応槽の除去率の経日変化、(a): COD 除去率、(b): TN 除去率
(流入 COD 負荷: $10 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 、流入硝酸性窒素負荷: $2 \text{ kg}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ 、RS1: 脱窒汚泥の植種あり、RS2: 植種なし)

性窒素や遊離酸素が存在しない底泥等の嫌気性環境から脱窒細菌が容易に検出されることも報告されていることから²⁹⁾、UASB内のグラニュールには脱窒細菌が潜在しており、外部から植種しなくても脱窒条件が整うと比較的に増殖可能であることが示唆された。

(2) 流入N/COD比の影響

流入COD負荷が約 $10 \text{ kg-COD}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ で一定の条件を例として、流入N/CODが除去率へ及ぼす影響を図-5に示す。N/CODが0.2以下までの範囲では、硝酸性窒素の流入の有無や多少によらず、COD除去率はそれぞれの条件での定常状態において常に90%以上に維持された。一方、TN除去はN/CODが0.1以上では90%前後で推移したが、0.03の場合には50%以下と著しく小さかった。形態別窒素測定から、アンモニア性窒素濃度が流入水で約 55 mg/L であったのに対して、処理水は平均で約 80 mg/L へ上昇していることがわかった。嫌気性処理槽へ硝酸性窒素が流入する際に、 $\text{NO}_3^-/\text{N}/\text{COD}$ が概ね0.02程度以下になるとアンモニアへの還元が進行すること、揮発性有機酸に比べてグルコースのような糖が共存するとアンモニア化が進行しやすいことをAkunnaらは報告している^{24), 25)}。従って、本実験の人工排水の有機成分はグルコースが主体であったため、低N/COD条件では、槽内で流入硝酸性窒素のアンモニア化が生じ、脱窒への利用が制限されたことが影響していると考えられた。また、この操作条件では、流入水の全窒素に占める硝酸性窒素の割合が約0.65 ($= 100 \text{ mg-N/L} / (100 + 55) \text{ mg-N/L}$) と小さいことも低除去率の一因であると考えられた。

図-5に示した各実験条件の定常状態におけるメタンガスならびに窒素ガスの平均生成速度と流入N/CODの関係を図-6に示す。図中には、異化的脱窒反応の化学量論に基づいて流入硝酸性窒素が完全脱窒されるものと仮定して計算した窒素ガス生成量を点線で併記した。N/CODの上昇、すなわち、流入硝酸性窒素負荷の増大に対応して、

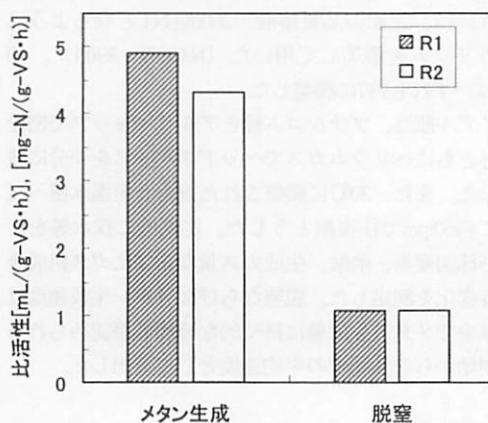


図4 異なる反応槽から採取したグラニュールの比活性

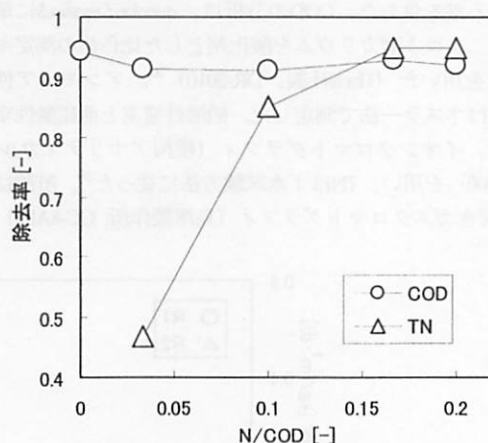


図5 流入N/COD比と除去率の関係 (流入COD負荷: $10 \text{ kg-COD}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ の場合)

窒素ガス生成速度が大きくなる一方で、メタン生成速度は低下した。窒素ガス生成量は、みかけのTN除去率が著しく小さかった場合 (N/COD=0.03) を除いて、化学量論に基づいた計算値と概ね等しくなった。つまり、反

応槽の液相中で減少した窒素成分のほぼすべてが窒素ガスへ転化されていたといえる。また、COD除去速度がほぼ一定な状況で(図-5) N/COD比の増大につれて脱窒速度が上昇しているので、脱窒に伴う有機物酸化によるCOD除去が比例的に増大しているといえる。

メタン生成速度データを最小自乗法で直線近似($r^2=0.99$)して外挿し、メタン発生がゼロとなる流入N/CODを推算すると約0.22となった。概ねこの比よりも大きな値となる流入条件で長期に運転を継続されるとメタン生成が著しく制限された状態が続くことになるので、グラニューールの微生物群集の変化や物理形状の崩壊等が生じる可能性があると考えられる。

図-5と図-6に示した反応槽の各操作条件の定常状態において採取したグラニューールの比脱窒活性ならびに比メタン生成活性を図-7(a)および(b)にそれぞれ示す。グラニューールの比脱窒活性は、反応槽への硝酸性窒素流入負荷の増大とともに明らかに大きくなっていることがわかる。これは、グラニューール内の脱窒細菌が利用可能な硝酸性窒素量が增大して相対的な存在量が増えたことに起因するものと推察される。メタン生成活性は、反応槽の流入N/COD比が0.1程度までは対照系(RR)から採取したグラニューールとの差がほとんどなかった。しかし、それを超えると急に低下しはじめ、0.2条件では、対照系の25~50%程度まで活性が落ち込んだ。反応槽への硝酸性窒素流入負荷の増大に対応して脱窒速度が上昇すると、結果的にメタン生成に利用可能な有機物量が制限される。そのため、グラニューール内におけるメタン生成古細菌の存在量が減少して速度が低下すると推察される。また、硝酸性窒素の残留濃度が上昇して、メタン生成活性が阻害された可能性も考えられる。

(3) グラニューールの比活性に対する炭素源の影響

図-7(a)において、活性試験での炭素源の相違に着目すると、連続通水実験の開始当初における0.1までの低N/COD比条件下では、反応槽へ供給されているグルコースを炭素源とした場合に比脱窒活性が高いことがわかる。しかし、0.17以上になると酢酸を炭素源とした比脱窒活性が急に増大して、その大小関係は逆転した。このことから、硝酸性窒素流入負荷の増大または硝酸性窒素流入開始からの時間経過(約80 d)の中で、グラニューール内で酢酸酸化性の脱窒細菌が安定的に存在できるよう変化を生じたことが示唆された。本実験のグラニューールは、グルコースの分解産物である酢酸を酢酸酸化性のメタン生成古細菌と競合しつつ脱窒に利用される系が発達していると推察される。Etcheberryらは、メタン発酵グラニューールを出発として硝酸性窒素を長期間供給した後のグラニューールから酢酸酸化性である*Thauera*属の脱窒細菌を頻度高く検出している²⁰。本実験系でも脱窒細菌の多

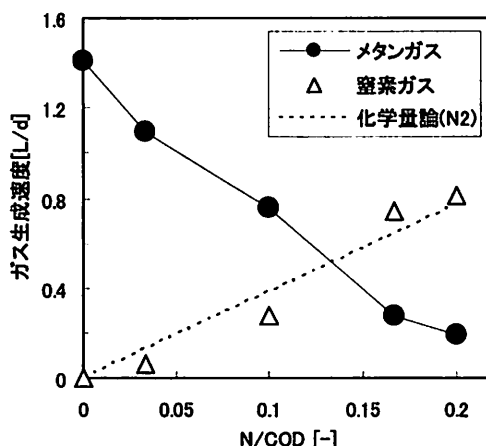


図-6 流入 N/COD 比とガス生成速度の関係 (図-5の実験条件における結果)

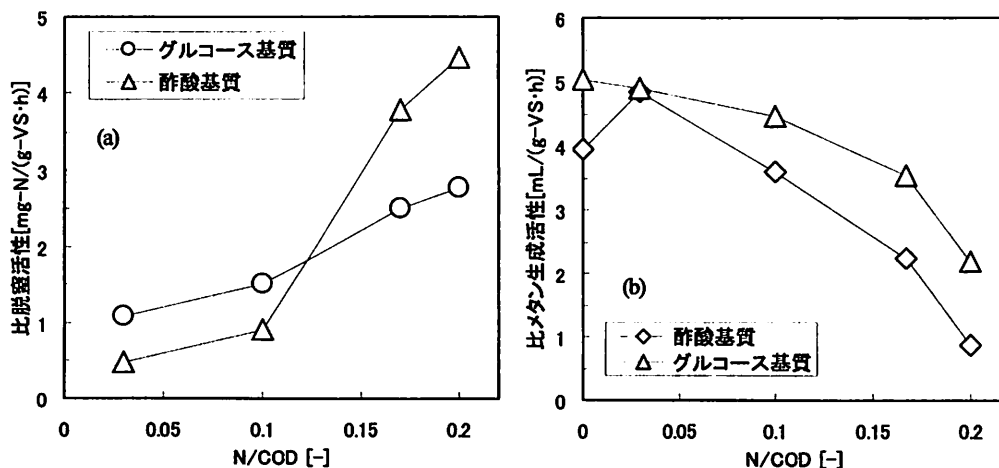


図-7 異なる流入 N/COD 条件下で反応槽から採取したグラニューールの活性、(a) 脱窒活性、(b) メタン生成活性

様性を今後明らかにしていく必要がある。

(4) 反応槽の処理性能に及ぼす流入CODおよび硝酸性窒素負荷の影響

流入COD負荷に対する除去速度および除去率を図-8(a)に示す。また、それらの流入N/COD条件に対応した硝酸性窒素流入負荷に対するTN除去速度ならびに除去率の関係を図-8 (b)に示す。実験の範囲では、流入N/COD比の系列ごとに流入負荷に比例した除去速度が得られた。除去率は、流入N/COD比の系列間で若干の相違が生じる傾向が見受けられるものの、いずれの条件においても90%以上に維持された。TN除去もCODと同様に流入負荷に概ね比例して除去速度が増大しており、除去率も流入N/COD比が0.2以下で流入負荷が $4\text{kg-N}/(\text{m}^3\cdot\text{d})$ までの範囲において、安定的に90%以上に維持されることがわかった。

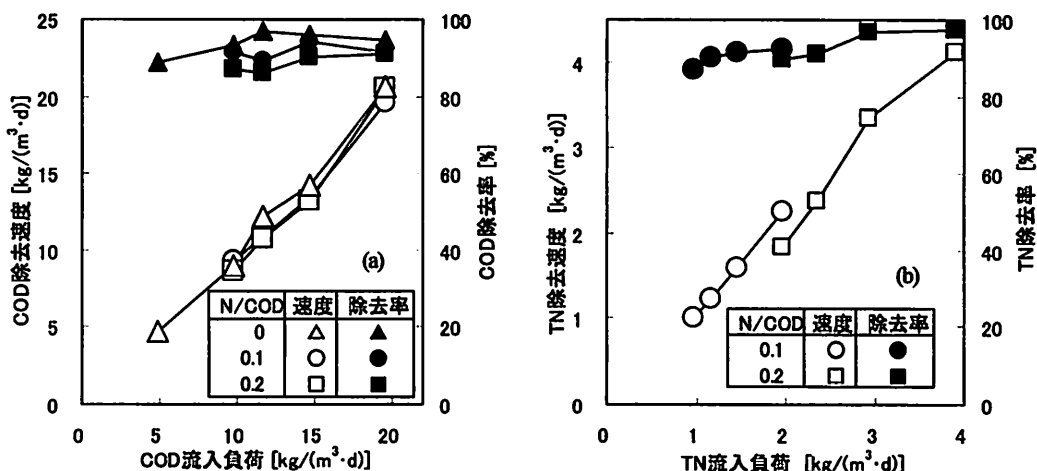


図-8 流入負荷に対する除去率ならびに除去速度、(a): COD 除去、(b): TN 除去

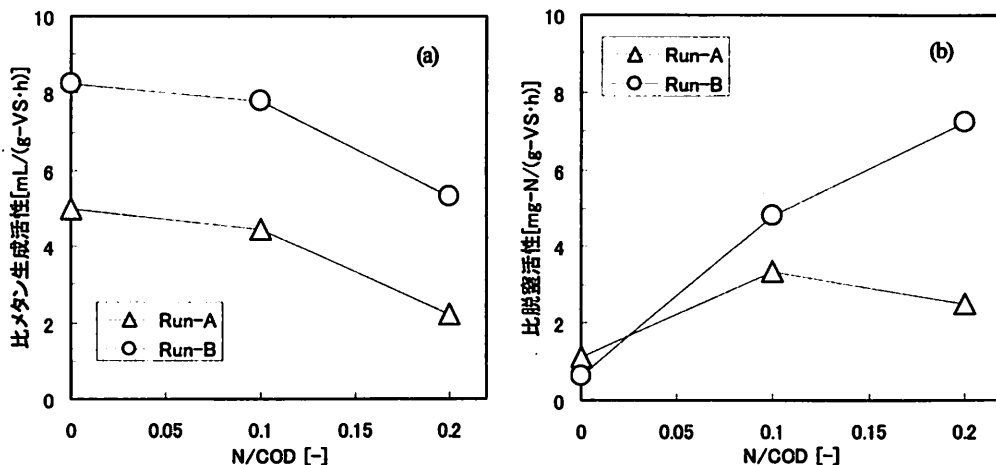


図-9 グラニュールの比活性に及ぼす反応槽での流入負荷条件の影響、(a): メタン生成、(b): 脱窒活性 (Run-A: $10\text{kg-COD}/(\text{m}^3\cdot\text{d})$, Run-B: $20\text{kg-COD}/(\text{m}^3\cdot\text{d})$)

異なる流入COD負荷で操作されている反応槽から採取したグラニュールのメタン生成比活性と比脱窒活性を図-9(a)および(b)に示す。流入N/CODによらず、流入負荷が大きな条件の反応槽 (Run-B) からのグラニュールは常に比メタン生成活性が高かった。また、比脱窒活性も同様の傾向であった。流入負荷の増大に応じてグラニュール内における脱窒細菌やメタン発酵微生物の存在量が全体的に増大したことに起因していると考えられた。

なお、Run-Aの比脱窒活性が図-7と異なる傾向を示したが、両者に約半年間の時間経過の相違があり、それによる何らかの影響や測定誤差等が考えられるものの、現段階でその原因の詳細は不明である。

(5) COD除去に対するメタン生成の寄与

流入COD負荷が $20\text{kg-COD}/(\text{m}^3\cdot\text{d})$ の場合を例として、流入N/COD条件ごとに定常状態におけるCOD除去に対す

るメタン生成の寄与の程度を図-10に示す。ここでメタン生成の寄与率とは、COD収支から算出した実測メタンガス量の液側有機物除去量に対する割合である。硝酸性窒素が供給されていない対照系 (RR, N/COD=0) では、当然ながら90%以上がメタン生成に伴うCOD除去となったのに対して、N/CODが0.1では約50%、0.2では約20%となり、N/CODの増大に対応して低下した。なお、これらの値は、それぞれTN除去量から算出した脱窒での有機物消費量との間で概ね収支がとれていた。

このことから、N/COD比が比較的小さな排水の場合、脱窒での消費があっても有機成分に余剰が生じることになるが、本法では、メタン発酵が同一槽内のグラニュール中で並行して進行するため、後段の好氣的処理に負荷を与えずにメタン生成を経由した効果的な低濃度までの有機成分除去が可能になることが示唆された。

4.まとめ

循環式硝化脱窒への応用を念頭においたメタン発酵グラニュール充填槽に有機成分に併せて硝酸性窒素を導入することによる単一槽での同時的有機物除去および脱窒に対し、流入負荷条件の処理性能やグラニュール活性に及ぼす影響等の基本的特性を実験的に検討して、以下の知見を得た。

- ・ 流入N/CODが0.2以下で流入負荷が $20\text{kg-COD}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$ (流入硝酸性窒素負荷としては $4\text{kg-N}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$) までの条件下において、安定的な除去率90%以上のCOD除去ならびに脱窒を単一槽で達成できることがわかった。COD除去に対して、脱窒に伴う有機物の酸化分解のみならず、メタン生成もN/COD比に応じて寄与することがわかった。
- ・ 反応槽内への流入硝酸性窒素負荷の増大に伴いグラニュールの脱窒活性は高くなった。また、時間経過や流入負荷の増大に伴い、人工排水の主有機成分であるグルコースに比べて酢酸を炭素源とした比脱窒活性が大きくなり、グラニュール内では、酢酸資化性の脱窒細菌が増殖して安定的に保持されるようになったことが示唆された。
- ・ 反応槽への流入N/CODは、0.1程度以下では必ずしもメタン生成活性に大きな影響があるとはいえなかったが、それを超えると急激に低下する傾向が認められた。
- ・ メタン発酵グラニュール内には脱窒細菌が潜在しており、外部から脱窒汚泥を植種することなく1週間程度以内に脱窒能を発現することが可能であった。

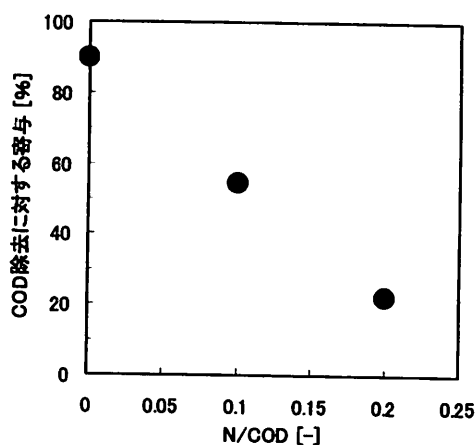


図-10 反応槽のCOD除去に対するメタン生成の寄与に及ぼす流入N/CODの影響
(流入COD負荷: $20\text{kg-COD}/(\text{m}^3 \cdot \text{d})$)

今後は、得られたグラニュールで同時的な脱窒とメタン発酵を可能にしている微生物群集の構造や機能を明らかにするとともに、本プロセスを硝化プロセスと組み合わせることでシステムの処理特性を把握する予定である。

謝辞：本研究は、群馬県地域結集型研究開発プログラムならびに科学研究費補助金（課題番号：20560501）の援助のもとに行われた。記して謝意を表す。

参考文献

- 1) Tugtas A.E. and Pavlostathis S.G.: Inhibitory effects of nitrogen oxides on a mixed methanogenic culture, *Biotech. Bioeng.*, Vol. 96, No. 3, 444-455 (2007)
- 2) Kluber H.D. and Conrad R.: Effects of nitrate, nitrite, NO and N_2O on methanogenesis and other redox processes in an rice field soil, *FEMS Microbiol. Ecol.*, Vol. 25, 301-318 (1998)
- 3) Chen K.C. and Lin Y.F.: The relationship between denitrifying bacteria and methanogenic bacteria in a mixed culture system of acclimated sludges, *Wat. Res.*, Vol. 27, No. 12, 1749-1759 (1993)
- 4) Lin Y.F. and Chen K.C.: Denitrification and methanogenesis in a co-immobilized mixed culture system, *Wat. Res.*, Vol. 29, No. 1, 35-43 (1995)
- 5) Jun H.B., Park S.M., Park J.K., Choi C.O. and Lee J.S.: Nitrogen removal in an upflow sludge blanket (USB) reactor combined by aerobic biofiltration systems, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 49, No. 5-6, 191-197 (2004)
- 6) Hanaki K. and Polprasert C.: Contribution of methanogenesis to denitrification with an upflow filter, *J. Water Pollut. Control Fed.*, Vol. 61, No. 9, 1604-1611 (1989)
- 7) 黒田正和, 島 秀有, 梶原 豊: メタン発酵菌および脱窒菌固着微生物による有機物・硝酸性窒素同時除去に関する基礎的研究, 衛生工学研究論文集, Vol. 24, 231-239 (1988)
- 8) Hendriksen H.V. and Ahring B.K.: Integrated removal of nitrate and carbon in an upflow anaerobic sludge blanket (UASB) reactor. Operating

performance, *Wat. Res.*, Vol. 30, No. 6, 1451-1458 (1996)

9) Jenicek P., Zabranska J. and Dohanyos M.: Adaptation of the methanogenic granules to denitrification in anaerobic-anoxic USSB reactor, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 45, No. 10, 335-340 (2002)

10) Franco A., Roca E. and Lema J.M.: Granulation in high-load denitrifying upflow sludge bed (USB) pulsed reactors, *Wat. Res.*, Vol. 40, 871-880 (2006).

11) Quevedo M., Guynot E. and Muxi L.: Denitrifying potential of methanogenic sludge, *Biotechnol. Lett.*, Vol. 18, No. 12, 1363-1368 (1996)

12) Borzacconi L., Ottonello G., Castello E., Pelaez H., Gazzola A. and Vinas M.: Denitrification in a carbon and nitrogen removal system for leachate treatment: performance of a upflow sludge blanket (USB) reactor, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 40, No. 8, 145-151 (1999)

13) Peng Y., Zhang S., Zeng W., Zheng S., Mino T. and Satoh H.: Organic removal by denitrification and methanogenesis and nitrogen removal by nitrification from landfill leachate, *Wat. Res.*, Vol. 42, 883-892 (2008)

14) An Y., Yang F., Chua H.C., Wong F.S. and Wu B.: The integration of methanogenesis with shortcut nitrification and denitrification in a combined UASB with MBR, *Bioresour. Technol.*, Vol. 99, 3714-3720 (2008)

15) Tai C.S., Singh K.S. and Grant S.R.: Combined removal of carbon and nitrogen in an integrated UASB-Jet loop reactor bioreactor system, *J. Environ. Eng.*, Vol. 132, No. 6, 624-637 (2006)

16) 山崎慎一, 山口隆司, 荒木信夫, 原田秀樹: UASB-接触酸化下水処理システムによる有機物と窒素の同時除去特性, 土木学会論文集, No. 734/VII-27, 135-142 (2003)

17) 山崎慎一, 山口隆司, 荒木信夫, 角野晴彦, 原田秀樹: 2槽式UASB-接触酸化処理システムにおける有機物と窒素の除去特性, 土木学会論文集, No. 811/VII-38, 87-94 (2006)

18) 上村基成, 荒木信夫, 濱口威真, 山崎慎一, 殊坪一晃, 山口隆司: 2槽式UASB-接触酸化処理システムにおける脱窒素細菌群の動態解析, 環境工学研究論文集, Vol. 45, 389-397 (2008)

19) Cuervo-Lopez F.M., Martínez F., Gutiérrez-Rojas M., Noyola R.A. and Gomez J.: Effect of nitrogen loading rate and carbon source on denitrification and sludge settleability in upflow anaerobic sludge blanket (UASB) reactors, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 40, No. 8, 123-130 (1999)

20) American Public Health Association, American Water Works Association, Water Environment Federation: Standard methods for the examination of water and wastewater (20th ed.) (1998)

21) (社) 日本下水道協会: 下水試験方法 (1997年度版) (1997)

22) Etcheberry C., Erasoquin M.L., Cabezas A., Piarzola M.J., Mallo M., Lombardi P., Ottonello G., Borzacconi L. and Muxi L.: Sludge bed development in denitrifying reactors using different inocula-performance and microbiological aspects, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 45, No. 10, 365-370 (2002)

23) Jorgensen K.S. and Tiedje J.M.: Survival of denitrifier in nitrate-free anaerobic environments, *Appl. Environ. Microbiol.*, Vol. 59, No. 10, 3297-3305 (1993)

24) Akunna J.C., Bizeau C. and Moletta R.: Denitrification in anaerobic digesters: possibilities and influence of wastewater COD/N-NO_x ratio, *Environ. Technol.*, Vol. 13, 825-836 (1992)

25) Akunna J.C., Bizeau C. and Moletta R.: Nitrate reduction by anaerobic sludge using glucose at various nitrate concentrations: ammonification, denitrification and methanogenic activities, *Environ. Technol.*, Vol. 15, 41-49 (1994)

(2009. 5. 22 受付)

Integrated removal of organic matter and nitrate in an anoxic upflow sludge bed reactor

Tomohide WATANABE¹, Shunsuke MORI¹, Tsukasa ITO¹ and Toshifumi MARUO¹

¹Dept. of Civil and Environmental Engineering, Gunma University

Effect of operational conditions on the organic matter and nitrate removal rates in an anoxic upflow granular bed reactor and the methanogenic and denitrifying activities of the granular sludge were investigated experimentally. The reactor was initially inoculated with methanogenic granular sludge and was gradually acclimatized to anoxic condition by increasing nitrate concentration in the influent at a constant organic loading. Then the reactor was operated under various experimental conditions. The COD and denitrification efficiencies were attained to be over 90 %, when the influent loading rate was less than 20 kg-COD/(m³·d) and the influent nitrate nitrogen/ COD ratio by mass was less than 0.2. The specific denitrification activity increased with an increase in influent loading rate of nitrate, while the specific methanogenic activity decreased but remained in the granular sludge. The COD removal consisted of both the oxidation of organic matter as electron donor for denitrification and the methanogenesis. The methanogenic granular sludge could readily adapt to an oxic condition and obtain the denitrification activity without the external inoculation of denitrifying sludge to the reactor.