

(36) 循環式USB-亜硝酸型硝化プロセスによる 含窒素高濃度有機性排水の処理特性

渡邊 智秀¹*・植原 啓介¹・森 俊輔¹・伊藤 司¹・高峯 真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

USB槽と多孔性担体を投入した亜硝酸型硝化槽を組み合わせた処理プロセスの含窒素高濃度有機性排水処理特性を実験的に検討した。その結果、流入N/COD比(重量基準)が0.08~0.56、流入COD負荷が約30kg-COD/(m³・d)まで、流入TN負荷が約4kg-N/(m³・d)までおよび硝化液循環比11までの条件下で亜硝酸型硝化の進行ならびに95%以上の溶解性COD除去率と硝化液循環比に対応したTN除去率が達成可能であった。また、COD除去は専らUSB槽で進行し、USB槽へ流入するNO₂⁻-N/COD比が増大するにつれて、脱窒に伴うCOD除去の割合が増大し、メタン発酵による除去の割合は低下したが、両過程が寄与することで高COD除去率に維持されることがわかった。なお、流入N/COD比が0.42を超えると低負荷条件であっても亜硝酸性窒素が残留してCOD除去率が低下することがあり、メタン生成が阻害されている可能性が示唆された。

Key Words : anoxic upflow sludge blanket, nitrification, methanogenesis, denitrification

1. はじめに

嫌気性汚泥中でメタン生成を担っているメタン生成古細菌は、硝酸性窒素やその生物学的脱窒過程の中間代謝物である亜硝酸性窒素、一酸化窒素等の酸化態窒素に強く阻害を受ける¹⁾。その一方で、メタン発酵槽やUASBへ硝酸性窒素を有機物とともに連続通水し時間が経過すると、反応槽全体では、見かけ上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も報告されている²⁾。これは、槽内で酸化態窒素が阻害の閾値以下となるような環境が新たに形成されることによると考えられる。採取されたグラニュール汚泥からは、*Thauera* 属³⁾、*Alcaligenes* 属⁴⁾および*Acidovorax avenae*等の従属栄養性脱窒細菌が多数検出されている⁵⁾。また、グラニュール表面より内部に脱窒細菌が古細菌とともに存在していることも観察されており⁶⁾、馴致の過程で微生物群集の構造が遷移したことが示唆されている。このような状態が槽内で安定的に維持されれば、排水中の有機成分の脱窒への無駄のない活用とメタン回収が可能で槽構成が単純化された効率的処理システムへの発展が期待される。

このような観点から特に、汚泥保持性能が優れているUASB槽を脱窒環境にしてupflow sludge blanket (USB)槽とし、循環式硝化脱窒方式で硝化槽と組み合わせて運転を行

う処理システムの基本特性やそのような槽構成を念頭においたUSB槽単独での脱窒と有機物分解特性がこれまでに種々検討されてきた⁷⁻¹²⁾。例えば、山崎らはUSB槽と接触酸化槽を組み合わせた処理システムを模擬都市下水へ適用し、低水温条件下で5時間弱の短い滞留時間でも安定的な90%以上の有機成分除去や硝化液循環比2において約65%のTN除去率を達成して、良好な運転が可能であることを報告している^{13,14)}。

循環式USB-硝化プロセスが有する課題のひとつは、低有機物/窒素比の排水への適用性にある。ひとつの対応策として、完全硝化となるように運転された硝化槽で生成する硝酸性窒素を経由するの比べ、最大で必要酸素を25%、脱窒での必要電子供与体を40%低減可能な亜硝酸性窒素を経由する処理に関心が持たれている^{15,16)}。近年、USB槽と亜硝酸型硝化槽を組み合わせたプロセスで下水を想定したN/COD比が約0.25の人工排水を処理し、高いCOD除去率が得られるとともに完全硝化の場合に比べメタン生成量が増大することが報告されている¹⁷⁾。また、埋立浸出水処理への適用も試みられている¹⁸⁾。しかしながら、USB槽と亜硝酸型硝化槽を組み合わせた処理システムの特性や性能改善に関する検討はまだ十分であるとはいえない。特に、これまでは下水のような低濃度有機性排水が主な対象になっており、優れた汚泥

保持能やメタン回収能の有効性をより発揮しやすいと考えられる高濃度有機性排水の処理特性に関わる知見はほとんど明らかとなっていない。

そこで本研究では、含窒素高濃度有機性排水への適用を念頭において、安定的な操作可能範囲や高性能化に関与する知見を得て適用性を評価することを目的として、循環式 USB-亜硝酸型硝化プロセスによる有機物および窒素処理に及ぼす操作条件の影響を実験的に検討した。

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。実験装置は、内径8cmで有効液容積が約5LのUSB槽と内径13cmで有効液容積が約3Lの硝化槽で構成されている。被処理水はUSB槽から供給され、硝化槽を経て排出されるが、硝化液は所定流量でUSB槽へ返送される。USB槽には、見かけの充填容積が槽容積の約30%となるようにグラニューールを充填した。また、反応槽での上向線流速が約1.5m/hとなるように液循環をして槽内を撹拌した。一方、硝化槽には硝化細菌の保持を目的として、約2.5mm角の多孔性PVA担体が、見かけ容積基準で槽容積の約35%となるように投入されている。また、槽内はプロペラ型撹拌機で担体が十分に浮遊した状態となる程度に液撹拌した。なお、各反応槽を恒温水槽内に設置して、水温が約30℃となるように制御した。

実験期間中、USB槽では上部の管径が拡張したトラップ部およびグラニューールを保持している底部の分散板の下部、硝化槽では処理水出口に設けたトラップ部において堆積した汚泥を随時に取り除き、詰まり等による運転トラブルをできるだけ回避した。

(2) 連続処理実験

循環式USB-亜硝酸型硝化プロセスによる連続処理実験に先立ち、USB槽において脱窒とメタン生成、硝化槽において亜硝酸型硝化がそれぞれ安定的に進行する状態を形成させた。その後、図-1のように接続した。

USB槽では、まず実産業排水の商用UASB処理槽から採取した中温嫌気性グラニューールを充填し、約10kg-COD($\text{m}^3 \cdot \text{d}$)でグルコースが主要な有機成分となる基質を供給した。良好にメタン発酵が進行することを確認してから、流入N/COD比が0.1(約1kg-N($\text{m}^3 \cdot \text{d}$))となるように硝酸性窒素の供給を開始して約2ヶ月間馴致した。なお、グラニューールは粒径が1~3mm程度で、見かけの充填容積基準濃度は約60g-VS/Lであった。

硝化槽には、実下水処理施設の活性汚泥を種汚泥として研究室で完全硝化型で運転している硝化処理槽へ約

1ヶ月間浸漬しておいた所定量の担体を投入した。その後、炭酸アンモニウムを窒素源とし、微量無機塩類等が添加されたアンモニア性窒素含有水を連続供給して、流入窒素負荷を0.3から約3kg-N($\text{m}^3 \cdot \text{d}$)(槽容積基準)まで徐々に増大しながら、亜硝酸型硝化へ遷移させた。なお、槽内は撹拌機で担体が浮遊状態となるように撹拌し、槽内pHは7.6、液本体DO濃度は約3.0mg/Lに制御した。

循環式USB-亜硝酸型硝化プロセスの連続処理実験では、表-1に示した成分を含有する人工排水を用い、表-2に示した操作条件となるように流入CODおよびTN濃度、水理学的滞留時間(HRT)ならびに硝化液循環比を順次変更した。各条件下で定期的に採水して、COD、形態別窒素ならびにTNの測定や槽内のpH等の計測を行い、主として溶解性成分の挙動に基づいて処理特性を評価した。また、実験条件を変更してからシステム全体のHRT以上の時間が経過してCODやTNの分析値が連続してそれぞれ概ね一定になったところで定常状態に達したと見なし、生成ガス量とガス組成の測定を行った。

なお、本研究において流入負荷や除去速度は、特に断

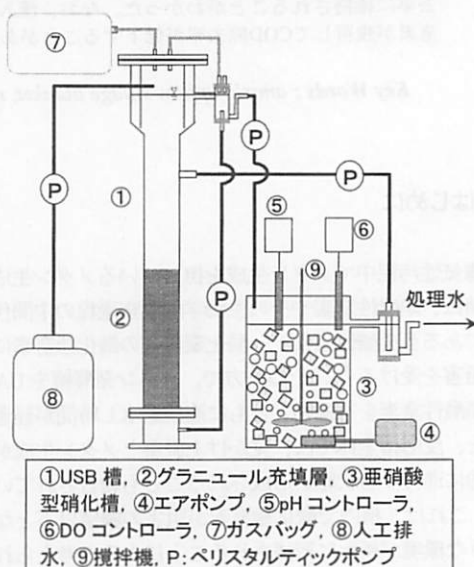


図-1 実験装置の概略

表-1 人工排水の組成

成分等	濃度 [g/L]
グルコース	4.5~30 (COD換算)
炭酸アンモニウム	2.5または5.0 (窒素換算)
りん酸二水素カリウム	0.4
りん酸水素二カリウム	0.4
塩化アンモニウム	0.2
酵母エキス	0.2
炭酸水素ナトリウム	6.0
硫化ナトリウム九水和物	0.025
微量無機塩類	—
ビタミン類	—

表-2 操作条件の概要

期間 [d]	COD [g/L]	TN [g/L]	NCOD [-]	流量 [L/d]	循環比 [-]
0-38	15	5.0	0.33	0.75	5.7
39-117	15	5.0	0.33	0.75	8.3
118-142	15	5.0	0.33	0.75	11
143-152	15	5.0	0.33	0.75	5.7
153-215	15	5.0	0.33	0.75	4.0
216-250	15	5.0	0.33	0.75	8.3
251-321	8.0	2.5	0.31	1.5	4.0
322-349	8.0	2.5	0.31	1.5	6.0
350-376	8.0	2.5	0.31	2.0	4.0
377-395	8.0	2.5	0.31	2.5	4.0
396-425	8.0	2.5	0.31	3.0	4.0
426-546	8.0	2.5	0.31	1.5	9.0
547-564	10	2.5	0.25	1.5	9.0
565-586	12	2.5	0.21	1.5	9.0
587-611	15	2.5	0.17	1.5	9.0
612-639	20	2.5	0.13	1.5	9.0
640-667	25	2.5	0.10	1.5	9.0
668-718	30	2.5	0.08	1.5	9.0
719-746	8.0	2.5	0.31	1.5	9.0
747-770	6.0	2.5	0.42	1.5	9.0
771-802	4.5	2.5	0.56	1.5	9.0

※ 期間は2つの槽を連結してからの経過日数を表す。

らない限り、USB槽における見かけのグラニール充填容積基準で表記した。

(3) 分析方法

本研究では採水試料を孔径約1 μ mのガラス繊維ろ紙(Whatman製、GF/B)でろ過してからCOD、TNならびにアンモニア性窒素の分析に供した。CODは、ニクロム酸カリウムを酸化剤とし、*standard methods*¹⁹⁾に準じた比色法による測定キット(Hach社製、DR-2800)を用い、付属の測定プロトコルに従って分析した。同様にしてアンモニア性窒素は、ネスラー法による測定キットを用いて測定した。TNは下水試験方法に従った²⁰⁾。硝酸性窒素と亜硝酸性窒素は、孔径0.2 μ mのメンブレンフィルタのろ液を用い、イオンクロマトグラフィ(横河アナリティカル、IP-7000)で測定した。USB槽からの生成ガスはアルミニウムバッグで捕集し、水上置換法で計量した。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。その他の水質や汚泥の分析等は下水試験方法²⁰⁾に準拠した。

4. 結果および考察

(1) 連結前における各槽のスタートアップ

USB槽と接続前の硝化槽のスタートアップ時における

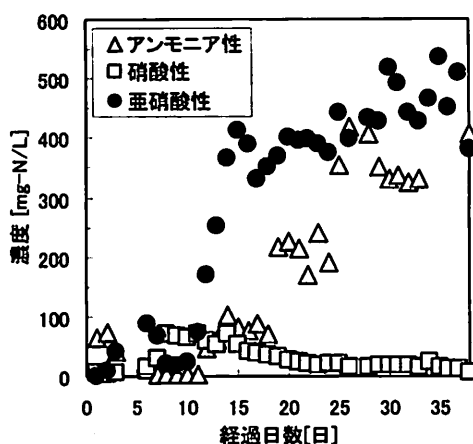


図-2 硝化槽の立ち上げにおける形態別窒素の経日変化

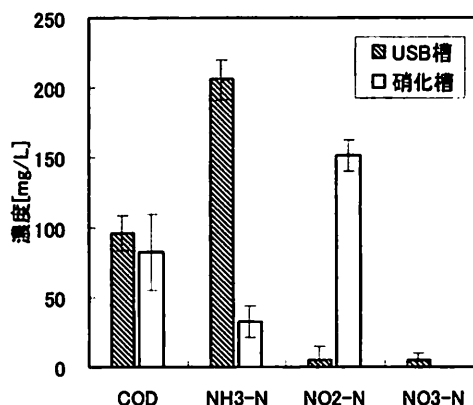


図-3 各槽における定常状態でのCODと形態別窒素の例
(流入COD濃度: 12g/L, 流入NCOD比: 0.21,
硝化液循環比: 9)

形態別窒素の経日変化を図-2に示す。100mg/Lの流入アンモニア性窒素濃度(硝化槽容積基準で約0.3 kg-N/(m³·d))で一定とした最初の9日間に、一旦、亜硝酸蓄積の兆候があった。しかし、すぐに完全硝化へ戻ったため、10日目から流入濃度を徐々に上昇させた。その結果、400mg-N/Lにした11日目以降に亜硝酸性窒素の急激な蓄積が認められ、16日目には流入濃度600mg/Lの約2/3が亜硝酸性窒素として蓄積する状態が形成された。これ以降も流入濃度を1g/Lまで徐々に増大すると、亜硝酸性窒素濃度がさらに上昇する一方で、硝酸性窒素濃度は低下した。そこで、安定的な亜硝酸型硝化状態へ移行したと判断してUSB槽と接続した。

一方USB槽は、硝酸性窒素を導入し始めてから約10日間で脱窒率が約90%に達し、以降は概ね同様な除去率で推移した(図は省略)。また、COD除去率は硝酸性窒素供給の有無によらず、90%以上に維持されていた。渡邉ら⁹⁾は、外部から脱窒汚泥を植種することなく1週間程

度以内で嫌気性グラニュールに脱窒能を発現することが可能であると報告している。本実験でも概ね同様の経過で、脱窒とメタン生成が進行している状態が形成された。

(2) 循環式処理プロセスにおける各槽内の状況

良好に処理が進行している場合を例として、各槽での有機物および形態別窒素の状況を図-3に示す。図の条件では、流入COD濃度が約12g/Lであるのに対して、USB槽内は約100mg/Lであり、十分に低減されていることがわかる。COD濃度は硝化槽でさらに若干減少する傾向があった。これは硝化槽で有機物分解が起きていることを示唆し、その程度は、後述のように有機物の流入負荷に依存した。硝化槽への負担が小さい条件で運転されている場合には、システム全体の溶解性COD除去に対する硝化槽での除去が占める割合は数%程度以下で（図の条件では約2%）、USB槽内でほとんど除去された。

形態別窒素の変化に関し、USB槽と硝化槽の両槽におけるアンモニア性窒素濃度の差に概ね相当する亜硝酸性窒素が硝化槽で蓄積する一方で、硝酸性窒素はほとんど存在しない状態が形成されていることがわかる。すなわち、本研究の硝化槽で亜硝酸型硝化は、安定的に進行した。また、亜硝酸性窒素はUSB槽内でほとんど検出されず、硝化槽で生成した亜硝酸性窒素は、USB槽内で脱窒されたものと考えられた。

(3) 硝化液循環比の処理への影響

流入負荷が一定での硝化液循環比と除去率の関係を図-4に示す。図中の理論値（TN）とは、硝化槽へ流入したアンモニア性窒素の全量が亜硝酸へ硝化されて脱窒槽（ここではUSB槽）へ流入し、その全量が完全脱窒すると仮定した際に処理システムにおける窒素収支から算出されたTN除去率を表しており、次式で記述される。

$$\eta_{TN} = \frac{R}{R+1} \quad (1)$$

ここで、 η_{TN} はTN除去率、 R は硝化液循環比（流入水量に対する硝化液循環量の比）をそれぞれ表す。図よりTN除去率の実測値は、硝化液循環比の増大に伴って上昇し、10を超える高循環比になると理論値に比べて若干低下する傾向が見受けられたものの、本実験の範囲では、概ね理論値と同様な値となることがわかった。

このように硝化液循環比は、USB槽における脱窒の進行と連動することになるので、脱窒の電子供与体となる有機物の消費にも影響が強く及ぶことが予想された。しかし、実験の範囲では硝化液循環比によらず溶解性COD除去率は95%以上のほぼ一定に維持された。

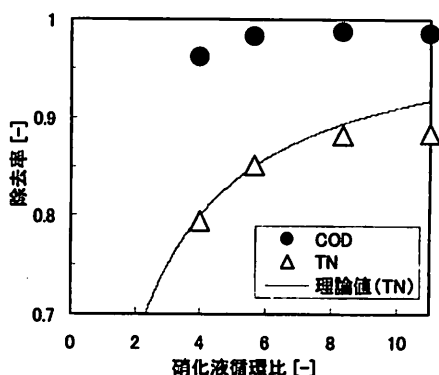


図4 除去率と硝化液循環比の関係（流入COD負荷：7.5[kg/(m³・d)]，流入N/COD比0.33）

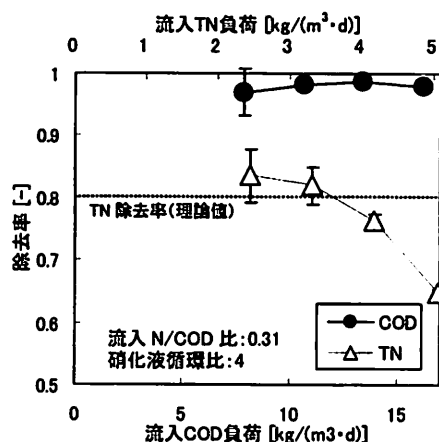


図5 流入負荷（流入濃度一定）と除去率の関係（流入N/COD比：0.31，硝化液循環比：4）

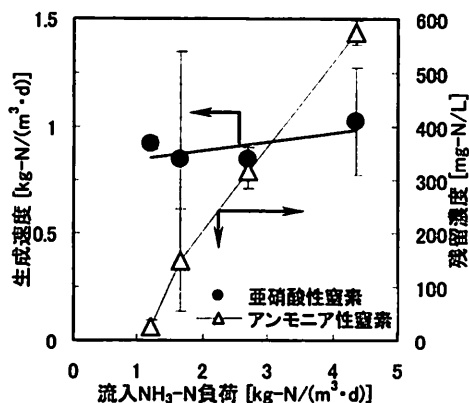


図6 硝化槽への流入アンモニア性窒素負荷の亜硝酸生成および残留アンモニア性窒素への影響

(4) 流入負荷（流入濃度一定での）の影響

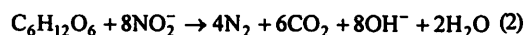
流入CODおよびアンモニア性窒素濃度を一定に保ちながら（流入N/COD比：0.31）、通水速度で流入負荷を

変更した場合における流入負荷と除去率の関係を図-5に示す。図中の破線は、式(1)から算出したTN除去率の理論値を表す。COD除去率が常に95%以上に維持されているのに対し、TN除去率は、流入TN負荷が約4kg-N/(m³・d)を越えると低下傾向が顕著となり、約5kg-N/(m³・d)に達すると理論値より20%低下した。

図-5の各実験条件におけるUSB槽から硝化槽への流入アンモニア性窒素負荷、亜硝酸生成速度（いずれも硝化槽容積基準）および硝化槽での残留アンモニア性窒素濃度の関係を図-6に示す。亜硝酸生成速度は、流入負荷によらず約0.9 kg-N/(m³・d)であった。また、残留アンモニア性窒素は、負荷に対して比例的に増大した。つまり、硝化槽の硝化能力を超えた負荷での操作になっていることがわかる。なお、図-5に示した処理システムへの流入TN負荷の範囲と本図の流入アンモニア性窒素負荷の範囲が異なるのは、硝化槽に残留したアンモニア性窒素がUSB槽では全く消費されないため、再び硝化槽へ持ち込まれることによる。USB槽へ硝化槽から流入した亜硝酸性窒素はほぼすべて消費されていたことを考慮すると（図は省略）、システム全体のTN除去率が窒素負荷の増大に伴って低下したのは、本研究で用いた硝化槽性能の制約によるものであるといえる。本研究の硝化槽では、多孔性担体が既に約35%投入されていること、液本体DO濃度が約3mg/Lとなるように制御されており、さらに高濃度での操作は、USB槽の無酸素環境へ影響を与えるとともに硝化槽での亜硝酸型硝化の安定性へ影響する可能性がある。従って、硝化槽容積をUSB槽に対して大きくすることが処理システム全体の性能を上げるための現実的な対応策であると現段階では考えられる。

(5) 流入N/COD比のTN除去への影響

流入TN負荷、HRTおよび硝化液循環比が一定の下で、流入COD濃度により流入N/COD条件を変更した場合のTNならびCOD除去の状況を図-7(a)に示す。TN除去率は、流入N/COD比が0.4を越えると若干低下の傾向があるものの、0.08～0.56の広範囲で概ね理論値と同等であった。本処理システムの硝化では、硝酸性窒素がほとんど生成しなかったことを考慮し（図-2参照）、異化的脱窒の総括反応式として式(2)を仮定すると、化学量論関係から算出される理論的N/COD比（質量基準）は0.58になった。



さらに、従属栄養性脱窒細菌については、一般に嫌気性微生物に比べて増殖速度が大きいことから、同化の影響を考慮してそれに伴う有機性炭素の消費を異化の40%とおけば²⁰⁾、0.42になる。従って、図においてN/COD比が

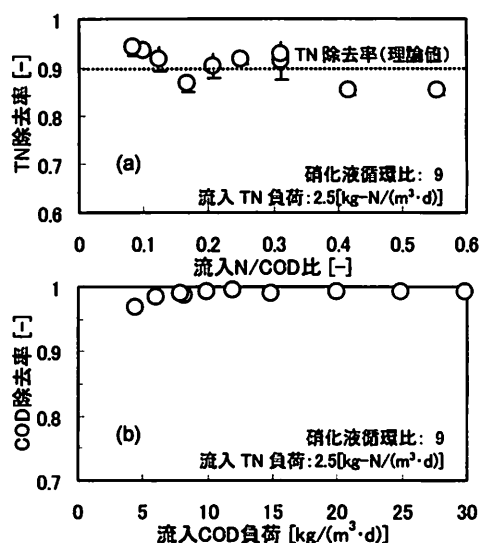


図-7 流入窒素負荷一定（2.5[kg-N/(m³・d)）の下における操作条件の除去率への影響（硝化液循環比：9）
(a): TN除去率と流入N/COD比の関係、(b): COD除去率と流入COD負荷の関係

0.4を超えた条件で、TN除去率が理論値よりも低下する傾向を示したのは、亜硝酸性窒素の完全脱窒に必要な有機物が不足する状況になったことによる影響を示唆していると考えられた。

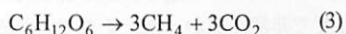
(6) 有機成分除去の特性

図-7(a)に示した実験での流入COD負荷とCOD除去率の関係を図-7(b)に示す。処理システム全体の溶解性COD除去率は、流入COD負荷が30kg-COD/(m³・d)までの範囲において98%程度で非常に高かった。そこで、処理システム内での有機物分解の内訳をさらに検討した。定常状態における各槽での溶解性COD濃度の差から算出したCOD除去量の処理システム全体での溶解性COD除去に占める割合と流入COD負荷の関係を図-8に示す。流入COD負荷が6から20 kg-COD/(m³・d)未満の範囲では、COD除去のほぼすべてがUSB槽内において生じていたといえる。しかし、20 kg-COD/(m³・d)以上になると、徐々に硝化槽での除去が進み、30 kg-COD/(m³・d)では、全体の20%にまで達した。すなわち、USB槽で分解や同化で除去を完了できない高負荷条件になると、残留した溶解性の有機成分が硝化槽において好氣的に生物分解されるようになる。このような状況は、硝化槽での酸素消費速度の増大に対応した曝気が必要となってエネルギー消費の増大を招くので、良好であるとはいえない。そのことを考慮すると、20 kg-COD/(m³・d)以下での操作が望ましいといえる。なお、本実験の範囲では条件によらず、USB槽から

常にメタンが検出されており、メタン生成古細菌は、汚泥の引き抜き等で系外へすべて排除されてしまうことなく、槽内に保持されていたと考えられた。

一方、6 kg-COD/(m³・d)未満の流入COD負荷条件でもUSB槽での除去割合が低下することがわかった。特に4.5 kg-COD/(m³・d)では約80%にまで落ち込んだ。本実験は、流入TN負荷が一定 (2.5 kg-N/(m³・d)) の下でCOD負荷を変更したため、例えば、4.5 kg-COD/(m³・d)の負荷条件では流入N/CODが約0.56となる。この条件では、上述したように亜硝酸性窒素の脱窒に必要な電子供与体が十分とはいえない環境が形成されている可能性が高く、実際に2.8~4.4mg/Lの亜硝酸性窒素がUSB槽内へ常に残留していた。亜硝酸性窒素は、低濃度でもメタン生成古細菌へ阻害効果を有するため¹⁾、USB槽内ではメタン生成が進行しにくい環境となり、残留した有機物が硝化槽へ流出したと推測される。また、低有機物負荷の運転で、槽内をメタン生成に十分適した嫌気的環境に維持し難くなった可能性も考えられる。

USB槽における有機物除去は主として、脱窒の電子供与体としての酸化分解とメタン生成が担っていると考えられる^{3,5)}。そこでこれらの影響をさらに検討した。USB槽での溶解性COD除去に対するメタン発酵と脱窒の占める割合とUSB槽への流入亜硝酸性窒素/COD比の関係を図-9に示す。なお、メタン発酵に伴う有機物除去は、式(3)に記した総括反応式に従って進行すると仮定し²⁾、実測したメタンガス生成量に基づいて除去量を計算した。また、脱窒に伴う有機物除去量は、上述した同化が考慮されたN/COD比の値 (0.42) に基づいて、槽内での亜硝酸性窒素減少量の実測値を利用して算出した。



図から、USB槽へ流入する亜硝酸性窒素とCODの比が増大するにつれて、脱窒に伴う有機物除去の割合が比例的に増大していることがわかる。また、これに対応するようにメタン発酵に伴う有機物分解による割合が低下した。また、ばらつきが若干見られるものの、両作用の合計が概ねUSB槽内での溶解性COD除去量に相当していた。これらから、USB槽では、流入する亜硝酸性窒素と有機物の比に応じて、脱窒とメタン発酵が進行することにより、広い流入濃度比の範囲で非常に高い除去率が達成されていたと考えられた。また、同化を考慮した計算の収支が概ねとれていたことから、溶解成分の汚泥への変換に伴う除去効果やそれに伴って系内で生じている現象をより詳細に把握していくために、汚泥の挙動を含めた検討を今後行っていく必要があると考えられた。

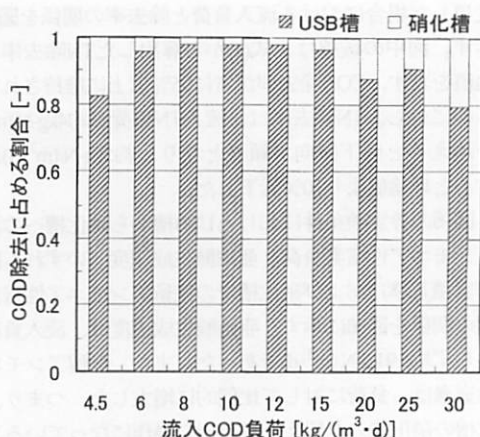


図-8 各槽でのCOD除去が全体に占める割合と流入COD負荷との関係

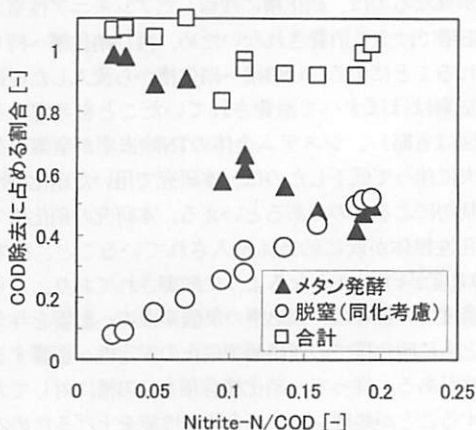


図-9 USB槽でのCOD除去に対するメタン発酵と脱窒の占める割合とUSB槽への流入NO₂⁻-N/COD比の関係

4.まとめ

USB槽と亜硝酸型硝化槽を循環式硝化脱窒方式となるように組み合わせた処理プロセスにおける含窒素高濃度有機性排水の処理特性について、以下の知見を得た。

- ・ 実験の範囲で流入N/CODが0.08~0.56、流入COD負荷が約30kg-COD/(m³・d)、流入TN負荷約4kg-N/(m³・d)および硝化液循環比11までの条件下において、溶解性COD除去率95%以上と硝化液循環比に対応したTN除去率の達成が可能であった。また、亜硝酸型硝化は安定的に維持された。
- ・ COD除去は専らUSB槽において進行するが、高負荷条件になると、全体での除去率は維持されるものの硝化槽での除去が無視できない程度へ増大するようになるので、曝気にかかるエネルギー消費や亜硝酸

型硝化の安定的維持の点から望ましいとはいえない。一方、低負荷条件であっても、流入N/COD比が0.42を超える条件では、USB槽での除去率が低下し、脱窒に要する有機物の不足から亜硝酸性窒素が残留してメタン生成が阻害されることや嫌気環境の維持が困難になることが影響している可能性が示唆された。

- USB槽における有機物除去は、流入してくる亜硝酸性窒素の有機物に対する相対的な負荷の増大に伴い、脱窒に伴う割合が増大し、メタン発酵に伴う割合は低下した。しかし、これらが見かけ上、常に並列的に進行するため、広い流入N/COD比の範囲で高いCOD除去率が達成されることがわかった。

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) 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)
- 3) Hendriksen H.V. and Alhring 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)
- 4) 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)
- 5) 渡邊智秀, 森俊輔, 伊藤司, 丸尾俊文: 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, 環境工学研究論文集, Vol. 46, 665-672 (2009)
- 6) Etcheberry C., Ernazquin M.L., Cabezas A., Pianzola M.J., Mallo M., Lombardi P., Otonello 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)
- 7) 森俊輔, 伊藤司, 渡邊智秀: 単一槽型メタン発酵・脱窒処理槽内グラニュールの微生物群集構造, 第43回日本水環境学会年会講演集, p.433 (2009)
- 8) 上村基成, 荒木信夫, 濱口威真, 山崎慎一, 珠坪一晃, 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)

- 9) Borzacconi L., Otonello 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)
- 10) Jeniock 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)
- 11) 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)
- 12) 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)
- 13) 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)
- 14) 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, Vol. 62, No.1, 9-16 (2006)
- 15) Ma Y., Peng Y., Wang S., Yuan Z. and Wang X.: Achieving nitrogen removal via nitrite a pilot-scale continuous pre-denitrification plant, *Wat. Res.*, Vol. 43, 563-572 (2009)
- 16) Ruiz G., Jeison D., Rubilar O., Ciudad G. and Chamy R.: Nitrification-denitrification via nitrite accumulation for nitrogen removal from wastewaters, *Bioresour. Technol.*, Vol. 97, 330-335 (2006)
- 17) 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)
- 18) 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)
- 19) American Public Health Association, American Water Works Association, Water Environment Federation.: Standard methods for the examination of water and wastewater (20th ed.) (1998)
- 20) (社) 日本下水道協会: 下水試験方法 (1997年度版) (1997)
- 21) Rittmann B.E. and McCarty P.L.: Environmental Biotechnology: Principles and Applications, pp. 497-534, McGraw-Hill, New York (2001)

(2010. 5. 21 受付)

Organic and nitrogen removal in an upflow sludge blanket (USB) combined with an nitrification reactor
for an high-strength organic wastewater containing ammonium

Tomohide WATANABE¹, Keisuke UEHARA¹, Shunsuke MORI¹, Tsukasa ITO¹ and Makoto
TAKASAKI¹

¹Dept. of Civil and Environmental Engineering, Gunma University

Effect of operational conditions on organic and nitrogen removal in an upflow sludge blanket (USB) combined by an nitrification reactor with porous supporting media for an high-strength organic wastewater was investigated experimentally. Soluble COD removal efficiency was attained to be over 95 % and the TN removal occurred effectively depending on the recycle ratio of nitrified liquor to the influent wastewater under the experimental conditions within less than 0.56 of the influent TN/COD ratio by mass, less than 30 kg-COD/(m³·d) of influent COD loading by the apparent packed granule volume basis, less than 4 kg-N/(m³·d) of influent ammonium nitrogen loading and less than 11 of recycle ratio of nitrified liquor to the influent wastewater. The organic removal occurred exclusively in the USB reactor. Both methanogenesis and denitrification effectively consumed organic matter in the USB reactor. The contribution of methanogenesis for the organic removal decreased with an increase in the influent nitrite/COD ratio to the reactor. It was suggested that the COD removal efficiency deteriorated when the influent TN/COD ratio by mass was over 0.42 even at a low loading. This seemed to be caused by the inhibition of methanogenesis by the residual nitrite.