

汚泥付着固定化材を用いた染色廃水からの窒素除去

Nitrogen Removal from Dye-Industry Wastewater Using a Novel Nonwoven Support-Surrounded Cell Reactor

山際秀誠¹、高辻 渉¹、中岡元信¹、古川憲治²

¹和歌山県工業技術センター／〒649-6261 和歌山市小倉60

²熊本大学工学部環境システム工学科／〒860-8555 熊本市黒髪2-39-1

YOSHINOBU YAMAGIWA¹, WATARU TAKATSUJI¹, MOTONOBU NAKAOKA¹,
and KENJI FURUKAWA²

¹Industrial Technology Center Wakayama Prefecture/60, Ogura, Wakayama city, 649-6261, Japan

²Department of Civil Engineering and Architecture, Faculty of Engineering, Kumamoto University
/2-39-1, Kurokami, Kumamoto city, 860-8555, Japan

Abstract

Dye-industry wastewaters contain high levels of organic nitrogen derived from urea. Thus, effective nitrogen removal methods are needed to meet regulatory standards prior to discharging effluent to receiving water bodies. A novel nonwoven support-surrounded cell (SSC) process was developed and continuous treatment experiments were conducted using a bench-scale SSC reactor. Nitrification efficiencies of the SSC treatment process using activated-sludge seeds from domestic and dye-industry wastewater treatment plants were about 22% and 55%, respectively. These efficiencies, though, could not be maintained more than 20 days. By adding NaHCO₃ as an inorganic carbon source, nitrification efficiency could be improved to about 62%, but this could not be maintained more than 25 days. In addition, dye chemicals and dye-reduction inhibitors added to the influent wastewater had no effect on nitrification and denitrification reactions. High nitrification efficiencies, however, could be maintained for more than 100 days by supplementing phosphorus to the influent wastewater. Using a synthetic dye wastewater supplemented with inorganic carbon, phosphoric acid, and organic carbon at 1.5 times of total-nitrogen, a total-nitrogen removal efficiency of about 56% was obtained.

Key words: nonwoven, dyeing wastewater, nitrification, denitrification

1. 緒言

瀬戸内海等の閉鎖性水域の水質保全を目的として、1979年より化学的酸素要求量 (COD) を対象に4次にわたり総量規制が実施されてきた。しかし、現在でも環境基準の達成率の向上には結びついていない。この原因の一つとして、これらの閉鎖性水域における富栄養化の要

因物質 (窒素およびリン) の存在が課題となっている。このため、第5次水質総量規制において総合的な汚濁負荷削減対策を推進することになり、従来のCODに加え、窒素およびリンについても総量規制の対象になった。これにより尿素を大量に使用している捺染染色業では、廃水からの窒素除去が大きな問題となっている。染色廃水中には尿素由来の有機態窒素が多く含まれるため、これ

を物理化学的に処理するにはまず有機態窒素をアンモニア態窒素に変換しなければならない。さらに、染色廃水中には窒素以外にも多くの有機物が含まれているため、生物処理も必要となる。生物処理法による窒素除去では、好気処理による硝化と嫌気処理による脱窒を組み合わせた方式で行うのが一般的である。硝化菌は増殖速度が遅いため曝気槽中での汚泥滞留時間を長くする必要があり、このため固定化法^{1,2}や膜分離法³などが検討されている。また、硝化菌と脱窒菌を同時に固定化することにより、好気条件下で硝化・脱窒を行う方法⁴も研究されている。しかし、染色業では活性汚泥法のみで廃水処理を行っている企業が多く、脱窒のための新規嫌気槽の設置や好気槽から嫌気槽への返送運転の維持費など、中小企業にとって脱窒プロセスは大きな負担となる。

我々はポリエステル製不織布を活性汚泥の固定化担体として用いる固定化材を開発し、このシステムを曝気槽に投入することによって、合成下水からの窒素除去が可能となる廃水処理システムを開発した^{5,7}。この固定化材による染色廃水の連続硝化・脱窒処理システムを構築するために合成染色廃水を用いて染色廃水中の各成分が処理に及ぼす影響について詳細に調べた。

2. 実験材料及びに方法

2.1 供試汚泥

和歌山市の和歌川終末処理場および和歌山市の染色業(A社)の廃水処理設備から採取した返送汚泥をそれぞれ希釈して使用した。和歌川終末処理場では生活廃水と化学工場廃水を標準活性汚泥法により処理している。また、A社の廃水処理設備では捺染工程から排出される染色廃水を標準活性汚泥法により処理を行っている。

2.2 不織布

日本バイリーン(株)製のポリエステル製不織布MB-T9-P(ポリエステル繊維を4ビニルピリジンスチレンコポリマー4級化塩に含浸処理することでポリエステル繊維をプラスに荷電させている厚み9mmの不織布)を用いた。

2.3 固定化材(Support Surrounded Cell: SSC)

Fig. 1に使用した固定化材を示す。不織布はSSCの両面に3枚ずつセットし、フレームで保持体に固定した。SSCの側面に取り付けた不織布の面積は50cm²(10cm×5cm)、SSCの水平方向の内部断面積は17.5cm²(5cm×

3.5cm)であった。廃水および空気は不織布を通してのみSSC内部に入ることが可能となるように設計している。

2.4 供試廃水

Table 1に使用した合成染色廃水(TOC=118~250mg/l、TN=167~218mg/l、TP=0.3~0.7mg/l)の組成を示す。有機態炭素の濃度はでんぶんで調整した。無機態炭素の濃度を变化させるために炭酸水素ナトリウムの添加量を変化させた。染料については染色工場で使用されている反応染料の内、赤、青、黄について代表的なものを使用した。また、処理に及ぼすミネラル分の影響を調べるためにTable 2の合成染色廃水を用いた。

2.5 SSCを用いた連続硝化・脱窒試験

供試汚泥と合成染色廃水を曝気槽(縦9cm、横29cm、深さ19cm、容積3.85l)に添加した後にSSCを投入し、1日間空気曝気(1.5~4l/min)することで汚泥を不織布に付着固定化させた。その後、空気曝気を行いなが

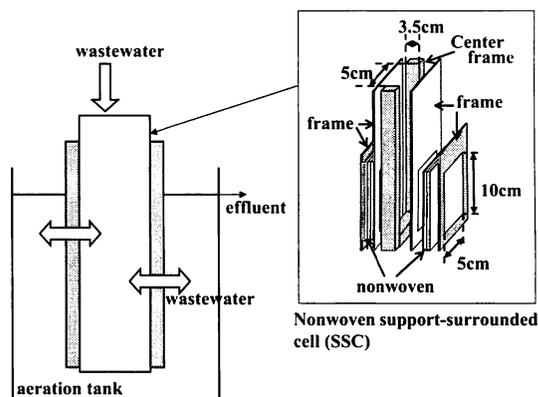


Fig. 1 Schematic diagram of nonwoven support-surrounded cell (SSC)

Table 1 Composition of synthetic dyeing wastewater

Components	Concentration
Urea	0.40 g/l
NaHCO ₃	0~0.40 g/l
Sodium Alginate (5%)	1.72 g/l
Starch	0~0.80 g/l
m-Nitrobenzensulfonic acid sodium (20%)	0.20 g/l
Cibacron Red P-B (33%)	6.0 mg/l
Procion Blue P-GR (40%)	5.2 mg/l
Kayacron Yellow P-M3R (33%)	6.0 mg/l
Tap water	1.0 l

Table 2 Composition of synthetic wastewaters

Components	Synthetic wastewaters			
	A	B	C	D
Urea	0.40 g/l	0.40 g/l	0.40 g/l	0.40 g/l
NaHCO ₃	0.40 g/l	0.40 g/l	0.40 g/l	0.40 g/l
Sodium Alginate (5%)	1.72 g/l	1.72 g/l	1.72 g/l	1.72 g/l
Starch	0.20 g/l	0.20 g/l	0.20 g/l	0.20 g/l
K ₂ HPO ₄	173 mg/l	173 mg/l	173 mg/l	—
KH ₂ PO ₄	68 mg/l	68 mg/l	68 mg/l	—
H ₃ PO ₄ (85%)	—	—	—	7.4 mg/l
MgSO ₄ ·7H ₂ O	10 mg/l	10 mg/l	10 mg/l	—
CaCl ₂ ·2H ₂ O	2 mg/l	2 mg/l	2 mg/l	—
MnSO ₄ ·4~6H ₂ O	3 mg/l	3 mg/l	3 mg/l	—
FeSO ₄ ·7H ₂ O	3 mg/l	3 mg/l	3 mg/l	—
Cibacron Red P-B (33%)	—	6 mg/l	6 mg/l	6 mg/l
Procion Blue P-GR (40%)	—	5.2 mg/l	5.2 mg/l	5.2 mg/l
Kayacron Yellow P-M3R (33%)	—	6 mg/l	6 mg/l	6 mg/l
m-Nitrobenzenesulfonic acid sodium (20%)	—	—	0.20 g/l	0.20 g/l
Tap water	1.0 l	1.0 l	1.0 l	1.0 l

ら滞留時間 1 日で合成染色廃水を連続的に SSC 内部に供給した。試験装置の模式図を Fig. 2 に、また試験条件を Table 3 に示した。

2. 6 分析方法

アンモニア態窒素 (NH₃-N) はインドフェノール青吸光度法により定量した (Japanese Standards Association, 1998)。酸化態窒素 (NO_x-N、硝酸態窒素 (NO₃-N) + 亜硝酸態窒素 (NO₂-N)) は銅・カドミウムカラム還元-ナフチルエチレンジアミン吸光度法により定量した (Japanese Standards Association, 1998)。全窒素 (TN)、全炭素 (TC) および無機態炭素 (IC) は酸化触媒処理付属のガスクロマト装置 (SUMIGRApHGCT-12、㈱住化分析センター製) で測定した。有機態炭素 (TOC) は全窒素から無機態炭素を差し引いて求めた。pH、溶存酸素濃度 (DO)、酸化還元電位 (ORP) は、それぞれ DKK・TOA (株) の HM-20P、DO-21P、RP-20P で測定した。

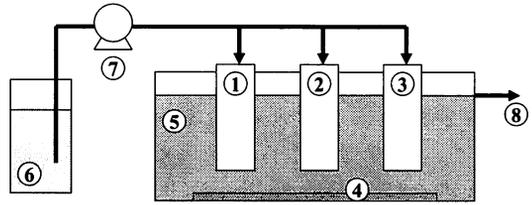


Fig. 2 Schematic diagram of bench scale reactor using SSC
①-③; SSC, ④; aeration instrument, ⑤; aeration tank, ⑥; influent storage tank, ⑦; feed pump, ⑧; effluent

Table 3 Experimental conditions for continuous treatment of synthetic dyeing wastewater

	RUN1	RUN2	RUN3	RUN4	RUN5
Seed sludge	W	A	A	A	A
Initial MLSS (mg/l)	2,500	5,000	4,000	2,000	2,600
Aeration (l/min)	4.0	1.0	4.0	2.0	2.0
Addition place	①,②	①,②	①	①	①,②,③
Inf.T-N (mg/l)	218	211	170	167/179	199
Inf.TOC (mg/l)	118/179/ 243	167/226	149/217	148	170/210/ 250/310
Inf.IC (mg/l)	22	25	61	66	70

W: activated sludge from a domestic wastewater treatment plant in Wakayama city

A: activated sludge from a treatment plant of the dye industry

3. 結果と考察

3. 1 合成染色廃水の連続硝化・脱窒試験

まず、和歌川終末処理場の活性汚泥を用いて Table 1 に示した合成染色廃水の連続硝化・脱窒試験を行った。初期 MLSS は 2,500 mg/l、原水中の全窒素濃度 (Inf.TN) は 218 mg/l であった。一方、原水の有機態炭素濃度 (Inf.TOC) は 118 mg/l、179 mg/l、234 mg/l の 3 段階に変化させた。原水は固定化材の 2 カ所 (Fig. 2 の ①と ②) に投入した (Table 3, RUN 1)。処理成績を Table 4 の RUN 1 に示した。運転時間が 15 日目までは処理水中の窒素濃度は平均で全窒素 (Eff.TN) が 202 mg/l、酸化態窒素 (Eff.NO_x-N) が 32 mg/l であった。また、窒素除去率は平均 7% であり、この時の硝化率は平均 22% であった。これらの値は高辻ら²⁾の合成下水を用いて硝化・脱窒を行った場合の窒素除去率 75%、硝化率 90% を大きく下回る結果になった。

これは、染色廃水中に含まれる染料や還元防止剤などが都市下水汚泥中の硝化菌の活性を阻害しているためと考えられた。

RUN 2では染色工場廃水処理設備から採取した汚泥を用いて、連続硝化・脱窒試験を行った。初期MLSSは5,000mg/l、Inf.TNは211mg/lであった。Inf.TOCは167mg/lと226mg/lに2段階に変化させた。原水は固定化材の2カ所 (Fig. 2の①, ②) に投入した。処理成績をTable 4のRUN 2に示した。20日目頃までのEff.TNは平均160mg/lで窒素除去率は24%、Eff.NOx-Nは64mg/lで硝化率は55%でほぼ一定となり、ともにRUN 1よりも高くなった。これらの結果より、供試汚泥としては、染料や還元防止剤といった物質に対して馴養されている染色工場廃水処理設備の汚泥の方が有利であることが確認された。また、RUN 1では15日目頃から、RUN 2では20日目頃からEff.NOx-Nの値が徐々に減少し、処理液中のアンモニア濃度 (Eff.NH₄-N) が増加し、硝化活性の低下が認められた。この結果、処理水pHはRUN 1ではpH8.4から8.8に、RUN 2ではpH7.5から8.4まで上昇した。この低い硝化活性は、栄養源不足もしくは廃水中の成分が硝化菌に悪影響を及ぼしているものと考えられる。

TOCに関する処理成績をTable 5に示した。RUN 1, RUN 2ともに試験期間中はEff.TOCが40mg/l以下で、80~90%のTOC除去率が得られ、従来法の活性汚泥法と同等の処理が可能であることが判明した。また、RUN 1, RUN 2でTOC濃度を上げてC/N比を変化させた場合にもTOCはよく除去されたが、脱窒に対する効果は認められなかった。これには、C/N比を変化させたときに既に汚泥の硝化能力が低下していたことが原因している。

3.2 無機態炭素添加による硝化・脱窒への影響

合成染色廃水に硝化菌の栄養源となる無機態炭素 (炭酸水素ナトリウム) を添加した系での連続硝化・脱窒試験を実施した (Table 3, RUN 3)。初期MLSSは4,000mg/l、Inf.TNは170mg/lであり、Inf.TOCを149mg/lと217mg/lの2段階に変化させた。原水は固定化材の1カ所 (Fig. 2の①) に投入した。処理成績をTable 4のRUN 3に示した。運転時間が25日目まではEff.TNは平均149mg/lで窒素除去率は12%、Eff.NOx-Nは84mg/lで硝化率は62%であった。RUN 2と比較して、硝化率が高くなったのは無機態炭素の添加により独立栄養細菌である硝化菌の活性が上がったためと考えられる。一方で、窒素除去率が低くなったのは、廃水の投入箇所がRUN 3では1カ所であるのに対し、RUN 2では2カ所であるため、RUN 2の方

が廃水中のTOCを水素供与体として利用する効率が高く、より脱窒が進行し易くなるためである。また、25日目以降Eff.NOx-Nが減少し、40日目ではRUN 1,2と同様に、Eff.NOx-Nが10mg/l以下まで下がりEff.NH₄-Nが増加した。無機態炭素の添加は硝化活性を改善する効果は認められたが、その効果を長期間、安定して維持することができなかった。

3.3 硝化・脱窒に及ぼす廃水成分の影響

Table 1に示した合成染色廃水を用いた連続硝化・脱窒処理試験では処理開始後20日前後で硝化活性の低下が確認された。この原因を明らかにする目的で、Table 2に示した活性汚泥微生物の増殖に必要なミネラル分を入れた合成染色廃水を使い、ミネラル成分の硝化・脱窒活性に及ぼす影響について検討した。実験条件はTable 3のRUN 4に示した。初期MLSSは2,000mg/l、Inf.TNは

Table 4 Treatment results of nitrogen removal for synthetic dyeing wastewater (RUN1-3)

	RUN1	RUN2	RUN3
Steady-state period	5-15days	5-20days	5-25days
Eff.NOx-N	32 mg/l	64 mg/l	84 mg/l
Eff.NH ₄ -N	80 mg/l	69 mg/l	23 mg/l
Eff.T-N	202 mg/l	160 mg/l	149 mg/l
Nitrification efficiency *	22 %	55 %	62 %
Nitrogen removal efficiency #	7 %	24 %	12 %
effluent pH	8.4	7.5	7.6
40days after			
Eff.NOx-N	5 mg/l	4 mg/l	6 mg/l
Eff.NH ₄ -N	114 mg/l	116 mg/l	56 mg/l
Eff.T-N	140 mg/l	137 mg/l	91 mg/l
Nitrogen removal efficiency	36 %	35 %	46 %
effluent pH	8.8	8.4	8.9

*Nitrification efficiency = $[(\text{Eff.NOx-N} + (\text{Inf.T-N} - \text{Eff.T-N})) / \text{Inf.T-N}]$
#Nitrogen removal efficiency = $[(\text{Inf.T-N} - \text{Eff.T-N}) / \text{Inf.T-N}]$

Table 5 Treatment results of TOC removal for synthetic dyeing wastewater (RUN1-3).

	RUN1	RUN2	RUN3
Steady-state period	5-15days	5-20days	5-25days
Inf.TOC	179 mg/l	167 mg/l	149 mg/l
Eff.TOC	36 mg/l	14 mg/l	17 mg/l
TOC removal efficiency	80 %	92 %	89 %
40days after			
Inf.TOC	243 mg/l	226 mg/l	217 mg/l
Eff.TOC	26 mg/l	28 mg/l	38 mg/l
TOC removal efficiency	89 %	88 %	82 %

167mg/l(74日目以降179mg/l)であり、原水の投入は1カ所 (Fig. 2 の①) とした。Fig. 3 に連続硝化・脱窒試験の形態別窒素濃度の経日変化を、Fig. 4 に形態別炭素濃度の経日変化を示した。染料および還元防止剤(m-ニトロベンゼンスルホン酸ナトリウム)を含まず、リン源や微量元素がリッチな条件下(区間A: Fig. 3 中0~32日目)では、処理開始後から約14日ではほぼ定常状態になり、Eff.TNは平均157mg/lで窒素除去率6%、Eff.NOx-Nは平均102mg/lで硝化率73%となり、30日を越えても硝化活性が低下することはなかった。次に、染料を添加することによる影響(区間B: Fig. 3 中32~62日目)および還元防止剤の添加による影響(区間C: Fig. 3 中62~74日目)について検討した。これらの区間では、Eff.TNは平均158mg/lで窒素除去率5%、Eff.NOx-Nは平均100mg/lで硝化率65%となり、染料と還元防止剤は共に汚泥の硝化・脱窒活性に大きく影響しないことが確認された。また、この期間中の原液中のリン濃度(Inf.TP)と処理液中のリン濃度(Eff.TP)は両者共に約40mg/lでほとんど消費されていなかった。このことから、Table 4 に示したRUN 1 からRUN 3 までの処理試験において、硝化活性が低下するのは、染料や還元防止剤の影響ではなく、

栄養源不足であると考えられるが、リンとしての添加量はごく少量でよいものと考えた。そこで、実用化を考慮してRUN 1~3の試験で用いた合成染色廃水にリン源としてリン酸のみを添加(Inf.TP=2mg/l)し硝化・脱窒試験を行った(区間D: Fig. 3 中74日目以降)。その結果、Eff.TNは平均164mg/l(Inf.TN=179mg/l)で窒素除去率8%、Eff.NOx-Nは平均131mg/lで硝化率82%となった。このときのリンの消費もほとんど認められず、Inf.TP、Eff.TPともに2mg/l程度であった。このことから、高い硝化活性を長期安定的に維持するためには、少量のリン源の添加が不可避であるがその量は数ppmで良いことが判った。処理期間中の各態炭素の挙動をFig. 4 に示した。試験中を通して高いTOCの処理効率が維持されること、硝化菌の活性が高い期間では、硝化菌の栄養源となるICの消費も大きいことが確認された。

3. 4 硝化・脱窒効率の検討

以上の結果から、合成染色廃水にリン源を投入することによって、高い硝化活性が長期安定的に維持できることが確認された。そこで、Table 1 に示した合成染色廃水にリン源としてリン酸(Inf.TP=2mg/l)を追加した

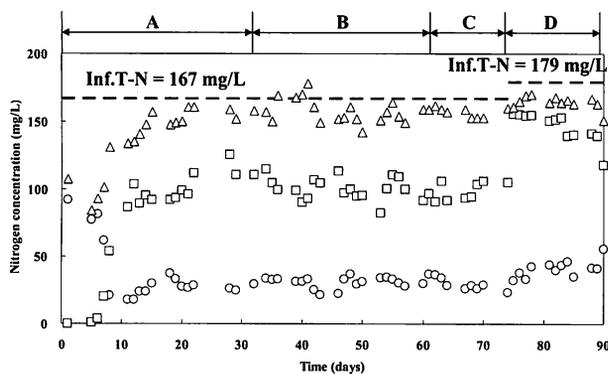


Fig. 3 Changes in effluent nitrogen concentration during continuous treatment of synthetic dyeing wastewaters with various influent compositions (RUN4)
Experimental conditions: seed sludge, activated sludge from a treatment plant of the dye industry; initial MLSS, 2,000 mg/l; temperature, 30 °C; aeration, 2.0 l/min; nonwovens, MB-T9-P; IC, NaHCO₃
Symbols: ○, effluent NH₄-N; □, effluent NOx-N; △, effluent TN; --, average of influent TN

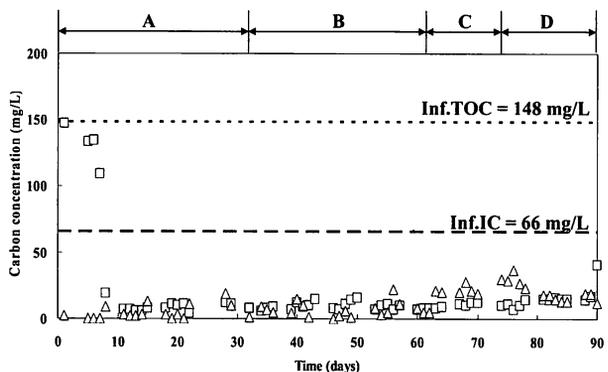


Fig. 4 Changes in effluent carbon concentrations during continuous treatment of synthetic dyeing wastewaters with various influent compositions (RUN4)
Symbols: □, effluent IC; △, effluent TOC; --, average of influent IC; ---, average of influent TOC

合成染色廃水を用いて連続硝化脱窒試験を行った。実験条件はTable 3のRUN 5に示した。初期MLSSは2,600 mg/l、Inf.TNは199mg/lであり、Inf.TOCを0～47日は170 mg/l、47～68日は210mg/l、68～86日は250mg/l、86日以降は310mg/lにそれぞれ変化させた。原水の投入は0～19日；1カ所 (Fig. 2の①)、19～33日；2カ所 (Fig. 2の①、②)、33日以降；3カ所 (Fig. 2の①、②、③)に変化させた。Fig. 5に形態別窒素濃度の経日変化を、Fig. 6に形態別炭素濃度の経日変化を示した。硝化率について、原水の投入箇所を増やした場合およびTOC濃度を変化させた場合共に、硝化率は85%程度でほとんど変化しなかった。硝化率が一定となるのは、原水の投入箇所を増加させた場合でも、硝酸菌が固定されている好気部の膜面積に変化がなく、硝化がTOCの濃度に依存しないためである。一方、脱窒率については、原水の投入箇所を増やすことで脱窒率が向上した。投入箇所が1カ所の場合Eff.TNが183mg/lで脱窒率8%、2カ所の場合Eff.TNが172mg/lで脱窒率14%、3カ所の場合Eff.TNが159mg/lで脱窒率20%と上昇した。原水の投入箇所を増やすことにより脱窒効率が向上するのは、嫌気部へのTOCの投入により分散されるため水素供与体としてのTOCの利用効

率が改善されたためであると考えられた。原水の投入箇所を3カ所としたままTOC濃度を増加させると、Inf.TOCが170mg/lの時Eff.TNは159mg/lで脱窒率20%、Inf.TOCが210mg/lの時Eff.TNは130mg/lで脱窒率35%、Inf.TOCが250mg/lの時Eff.TNは137mg/lで脱窒率31%、Inf.TOCが310mg/lの時Eff.TNは88mg/lで脱窒率56%になった。TOC濃度を変化させた場合にも脱窒率は増加する傾向にあるが、比例関係にはならなかった。この原因としては、TOCが脱窒に利用されるよりも早く、不織布表層部分の好気域で分解されてしまうためであると考えられた。以上の結果より、Inf.TNに対し約1.5倍量のTOC源を投入することにより、脱窒率50%以上を達成することが可能であることが判った。

4. まとめ

固定化材 (SSC) を設置したりアクターを用いて合成染色廃水の硝化・脱窒処理試験を行い、次の結果を得た。

1. 供試汚泥として終末処理場の活性汚泥を用いると、硝化率が22%と低く、また安定した処理を行うことは出来なかった。一方で、染色廃水に馴養されてい

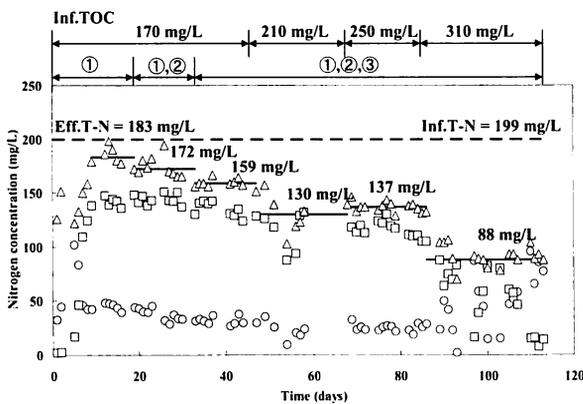


Fig. 5 Changes in effluent nitrogen concentrations during continuous treatment of synthetic dyeing wastewater with addition of NaHCO_3 and H_3PO_4 (RUN5)
Experimental conditions: seed sludge, activated sludge from a treatment plant of the dye industry; initial MLSS, 2,600 mg/l; temperature, 30 °C; aeration, 2.0 l/min; nonwovens, MB-T9-P; IC, NaHCO_3 ; TP, H_3PO_4
Symbols: ○, effluent $\text{NH}_4\text{-N}$; □, effluent $\text{NO}_x\text{-N}$; △, effluent TN; --, average of influent TN; —, average of effluent TN

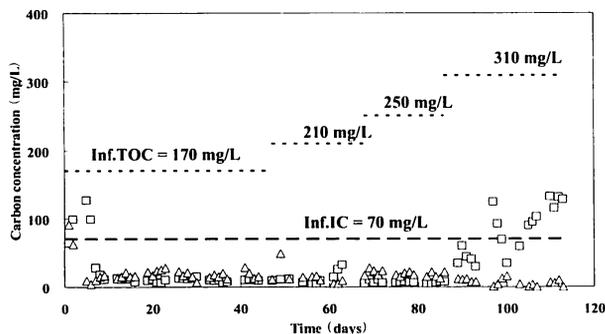


Fig. 6 Changes in effluent carbon concentrations during continuous treatment of synthetic dyeing wastewater with addition of NaHCO_3 and H_3PO_4 (RUN5)
Symbols: □, effluent IC; △, effluent TOC; --, average of influent IC; ---, average of influent TOC

- る染色業A社の活性汚泥を用いると、硝化率が55%に改善されたが、安定した処理は出来なかった。
2. 硝化菌の炭素源となる無機性炭素を添加することにより、硝化能力が向上し62%の硝化率が得られたが、やはり安定した処理は出来なかった。
 3. 合成染色廃水中に含まれる成分（染料および還元防止剤）は硝化・脱窒に大きな影響を与えず、硝化活性の低下は供試培地の栄養バランスが悪いことが原因で、高い硝化効率を長期安定的に維持するためには、合成染色廃水にリン源を添加すると大きな効果のあることが判った。
 4. リン酸を添加した合成染色廃水中に含まれるTNに対し、1.5倍量のTOC源を投入することにより、約56%の脱窒率を達成することができた。
- 2) T. Yu-Li: Inhibitor Evaluation with Immobilized *Nitrobacter agilis* Cells, Appl. Environ. Microbiol., 52, p.231 (1986)
 - 3) T. Tashiro, Y. Suwa, and T. Yamagishi: Ammonium oxidation by an activated sludge process with crossflow filtration, Hakkokogaku, 68, pp.31-34 (1990)
 - 4) E. Kokufuta, M. Yukishige, and I. Nakamura: Coimmobilization of *Nitrosomonas europaea* and *Paracoccus denitrificans* Cells Using Polyelectrolyte Complex-Stabilized Calcium Alginate Gel, J. Ferment. Technol., 65, pp.659-664 (1987)
 - 5) 高辻渉、阪井幸宏、中岡元信：和歌山県工業技術センター平成12年度研究報告、p.23
 - 6) 高辻渉、阪井幸宏、中岡元信：和歌山県工業技術センター平成13年度研究報告、p.23
 - 7) W. Takatsuji, M. Nakaoka, Y. Sakai, and K. Furukawa: Novel Nitrogen Removal Process Using Attached Activated Sludge, Japanese J. Wat. Treat. Biol., 38, pp.211-218 (2002)

参考文献

- 1) K. Furukawa, A. Ike, S. Ryu, and M. Fujita: Nitrification of $\text{NH}_4\text{-N}$ Polluted Sea Water by Immobilized Marine Nitrifying Sludge (AMNS), J. Ferment. Bioeng., 76, pp.515-520 (1993)
- (受付 2004.10.4)
(受理 2005.1.14)