

Anammoxプロセスに適したリアクターの検討

今 城 麗*** 徳 富 孝 明* 古 川 憲 治***

Evaluation of Various Reactor Types for the Anammox Process

Urara IMAJO***, Takaaki TOKUTOMI* and Kenji FURUKAWA***

* Kurita Water Industries Ltd., 7-1 Wakamiya, Morinosato, Atsugi city, Kanagawa 243-0124, Japan

** Dept. of Civil and Environmental Engineering, Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University, 2-39-1 Kurokami, Kumamoto city, Kumamoto 860-8555, Japan

*** Dept. of Civil Engineering and Architecture, Kumamoto University, 2-39-1 Kurokami, Kumamoto city, Kumamoto 860-8555, Japan

Abstract

To evaluate the effectiveness of various reactor types for anaerobic ammonium oxidation (anammox), four types of reactor, a sequencing-batch reactor, a fixed-bed reactor with nonwoven carriers, a fluidized-bed reactor with tube-shaped attachment carriers, and a fluidized-bed reactor with methanogenic granules as carriers, were examined. While activity in the sequencing-batch reactor occasionally decreased markedly, a stable nitrogen removal was maintained for 200 days in the fixed-bed and fluidized-bed reactors. It appeared that the biofilm mode was not inhibited by oxygen due to the high biomass density and the existence of oxygen-consuming microorganisms on the biofilm surface. However, overgrowth on the nonwoven and tube-shaped carriers sometimes resulted in gas entrapment and the floatation of carriers. After 173 days of operation, the maximum nitrogen removal rate of the fluidized-bed reactor using methanogenic granules as carriers was $2.87 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$, which was the highest among these four reactors. Considering biomass attachment and hydrodynamic mixing characteristics in addition to treatment efficiency, the use of methanogenic granules as attachment carriers in a fluidized-bed reactor appeared to be the most effective for the anammox process.

Key words : anammox, anaerobic ammonium oxidation, ammonium, nitrite, denitrification

1. はじめに

近年、水環境の富栄養化防止の観点から窒素規制が強化され、窒素除去のニーズは高まっている。窒素除去方法には対象排水に応じて物理化学的方法、生物学的方法のいくつかの選択肢があるが、種々雑多な成分の排出が予想される下水処理場や工場排水の処理には生物学的方法が使用されることが多い。生物学的方法は、アンモニア酸化細菌および亜硝酸酸化細菌を用いて好気条件で $\text{NH}_4\text{-N}$ を酸化する硝化工程と、脱窒細菌を用いて嫌気条件で $\text{NO}_2\text{-N} \cdot \text{NO}_3\text{-N}$ を窒素ガスに還元する脱窒工程とを組み合わせた硝化/脱窒法が最もよく知られており実施例も多い。しかし、硝化工程においては排水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ を完全に硝化するための曝気動力とアルカリ添加、また脱窒工程においては脱窒反応の電子供与体となる有機物としてのメタノール添加のコストが高いことが指摘されている。

オランダ・デルフト工科大学の研究グループにより発表されたAnammox（嫌氣的アンモニア酸化：ANAerobic AMMonium OXidation）は、無酸素条件下で $\text{NO}_2\text{-N}$ を電子受容体として $\text{NH}_4\text{-N}$ を酸化し、ヒドラジンを中間生成物として窒素ガスへ変換する、既知の生物の窒素代謝経路とは全く異なる、微生物による酸化還元反応であり、代謝経路および菌体の増殖を加味した反応式は以下のように表されている^{1)~9)}。

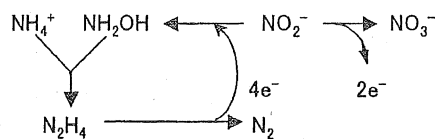
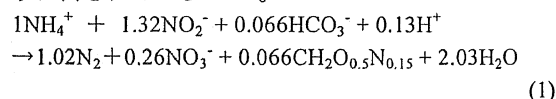


Fig. 1 The metabolic pathway of ANAMMOX process

* 栗田工業（株）技術開発センター 〒243-0124 神奈川県厚木市森の里若宮7-1

** 熊本大学大学院自然科学研究科環境共生科学専攻 〒860-8555 熊本市黒髪2丁目39-1

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

流入する $\text{NH}_4\text{-N}$ の約半量を $\text{NO}_2\text{-N}$ へ酸化する部分亜硝酸化プロセスとAnammoxプロセスの組合せによって窒素除去を行うことにより、従来の硝化/脱窒プロセスと比較して、理論必要酸素量は約6割、硝酸除去のための有機物添加量は約9割の低減が可能である。また硝化反応、Anammox反応ともに独立栄養性微生物による反応であるため、発生汚泥量も約8割の低減が見込める¹⁰⁾。

我々は、運転コストの大幅な低下が期待できる有望な窒素除去法としてAnammoxに着目し、活性汚泥からのAnammox微生物の集積培養を試み、工業排水処理プラントの脱窒汚泥および養豚排水と下水の混合処理プラントの硝化脱窒汚泥から、それぞれ種類の異なるAnammox微生物を培養することに成功した¹⁰⁾。

Anammox反応を実際の窒素処理プロセスに適用するためには、Anammox汚泥の窒素除去速度、運転条件など多くの事項を明らかにする必要があるが、まず最も適したリアクター形状を選定することが必要である。生物リアクターの形状には浮遊増殖型、固定床型、流動床型、自己造粒型等がある。浮遊増殖型は生物担体が不要であり、最も簡単な設備で実施可能である。しかし、沈殿槽あるいは単一槽の場合は沈殿時間が必要であり、流入SS量が多いと処理に必要な微生物のSRTが確保されず系内に保持できなくなるという欠点を有する。固定床・流動床は微生物を担体表面に固定化するため増殖速度の遅い微生物を利用する場合に適しており、流入SSにも対処可能である。また沈殿槽が不要であるという利点を持つ。負荷は担体表面積に比例するため、一般的に固定床より流動床の方が高い負荷を期待できる。しかし、設備面では装置形状が複雑になり、また担体のコストが必要となるという欠点がある。自己造粒型は流動床型よりもさらに高い負荷が期待でき、また担体の必要もないという利点を有するが、処理を担う微生物が自己造粒能を有していなければならず、造粒には長い時間が必要と考えられる。造粒促進のための手段として、カルシウム、マグネシウム、重金属といった無機成分の添加や、タンパク質加水分解物、ポリマーの添加、また核となる微小な物質を用いる方法が提案されている^{11~16)}。しかしAnammox微生物に適用した場合に要する期間は不明であるため、本研究では、メタン菌グラニューールの表面にAnammox微生物を付着させて擬似Anammoxグラニューールとした。

本研究の目的は、集積培養によって得られたAnammox微生物を用い、Anammoxプロセスの実用化へ向けて最適なリアクター形状についての検討を行うことである。浮遊増殖型、固定床型、担体の異なる2種類の流動床型の培養装置を用いて長期連続培養を行い、容積負荷、処理の安定性について比較を行った。

2. 実験方法

2.1 種汚泥

種汚泥には、硝酸排水を処理する工業排水処理プラントの脱窒汚泥を回分培養し、Anammox微生物を約1年間集積培養したものを用いた¹⁰⁾。この汚泥のアンモニア除去速度は、 $0.260\text{g NH}_4\text{-N} \cdot \text{g Protein}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ であった。

2.2 実験装置

浮遊増殖型リアクターとして沈殿槽を有しないシーケ

ンシャルバッチ方式の浮遊型リアクター、固定床型リアクターとして不織布を充填した上向流リアクターを用いた。流動床型リアクターとしては、プラスチック筒状担体を付着担体とする上向流リアクターと、UASBリアクターから採取したメタン菌グラニューールを付着担体とする上向流リアクターを選択した。Anammox微生物は酸素への暴露により阻害を受けるという性質が報告されているため、全ての実験において酸素の混入を避けるため、気相部に常時窒素パージを行った¹⁷⁾。それぞれのリアクターの運転条件をTable 1に、図をFig. 2に示す。

シーケンシャルバッチリアクターには容量3lのジャーファーマンターを用いた。レベルセンサーを設置して、基質流入・反応、沈殿、上澄み排出のサイクルを13~40時間、20分、15分に設定した。

固定床リアクターの担体に用いた不織布（日本バイリン）は、多孔性のポリエステル製で厚さ7mm、径6cmの8枚花弁の菊花状に成型されており、リアクターの運転に先立ちAnammox活性を有する汚泥の懸濁液に浸漬した状態で窒素曝気を行って汚泥を付着させた。基質はリアクター下部から添加した。処理水の一部を循環させ、上向流速を確保するとともに高濃度亜硝酸による阻害を防いだ。

筒状担体リアクターの担体には比重1.3、径4mm×高さ4mm、比表面積 $1500\text{m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$ の筒状プラスチック（筒中シート防水）を用いた。運転前に担体と汚泥懸濁液を混合した状態で7日間回分培養した。リアクターには不織布リアクターと同じものを用い、基質の添加方法、処理水の循環方法も同様にした。

メタン菌グラニューールを担体とする流動床リアクターには、上部に気液分離部を有する内径100mm、高さ760mm、容積6.4lの上向流リアクターを用いた。担体としてビール工場排水を処理している実装置から採取したメタン菌グラニューールを2.0l投入した。メタン菌グラニューールからの有機物溶出とそれに伴う従属栄養脱窒反応が懸念されたため、実験開始前に、無酸素条件下で $10 \sim 300\text{mg N} \cdot \text{l}^{-1}$ の NaNO_2 および $0 \sim 1000\text{mg N} \cdot \text{l}^{-1}$ の NaNO_3 を含む無機合成培地を NO_x の消費がほぼなくなるまで通水した。リアクターの前段には、Anammox汚泥を6ヶ月間培養していた容量1.5lの不織布リアクターを設置し、この処理水に含まれる $2 \sim 10\text{mg SS} \cdot \text{l}^{-1}$ のAnammox微生物を上向流リアクターの植種源として用いた。この植種は運転開始から111日目まで行った。基質は別途底部から添加した。処理水の一部を循環させ、上向流速を確保するとともに高濃度亜硝酸による阻害を防いだ。

全ての実験において、基質にはTable 2に示す合成培地を用いた。各リアクターの前に設置した前処理槽において、濃縮合成培地を窒素曝気によりDOを下げた水道水で希釈し、その後炭酸ガスによりpHを7.5に調整した。

2.3 分析方法

アンモニアは下水試験方法(1997)に従い比色法で測定した¹⁸⁾。亜硝酸および硝酸はイオンクロマトグラフ(ICS-A23, Yokogawa)により測定した。タンパク濃度はFolin-Ciocalteu's試薬を用いたLowry法により測定した。

3. 実験結果

3.1 培養結果

Table 1 The conditions of reactors

	Sequencing-batch reactor	Fixed-bed reactor with nonwoven carriers	Fluidized-bed reactor with tube-shaped attachment carriers	Fluidized-bed reactor with methanogenic granules as carriers
Working volume	2.4~2.7 l	20 l (φ 200mm)	20 l (φ 200mm)	6.4 l (φ 100mm)
Biomass carrier	—	Non-woven Area of non-woven 2.4 m ²	Tube-shaped carriers (φ 4mm, Height 4mm, density 1.3) Volume of carrier 8 l	Methanogenic granules from a full-scale EGSR reactor that treated brewery wastewater (φ 0.9 - 1.2 mm) Volume of carrier 2 l
Influent conc.	NH ₄ -N: 300~750 mg N·l ⁻¹ , NO ₂ -N: 270~710 mg N·l ⁻¹	NH ₄ -N: 90~840 mg N·l ⁻¹ , NO ₂ -N: 90~980 mg N·l ⁻¹	NH ₄ -N: 90~920 mg N·l ⁻¹ , NO ₂ -N: 90~1120 mg N·l ⁻¹	NH ₄ -N: 65~510 mg N·l ⁻¹ , NO ₂ -N: 68~700 mg N·l ⁻¹
HRT	5.1~15.2 day	16.2~37.9 h	16.9~44.0 h	7.7~34.7 h
Agitation	45 rpm	4.0 m·h ⁻¹ (Up-flow)	9.0~9.5 m·h ⁻¹ (Up-flow)	1.7~1.8 m·h ⁻¹ (Up-flow)
Temperature	32 °C	30 °C	30 °C	30 °C
Influent pH	7.5	7.5	7.5	7.5

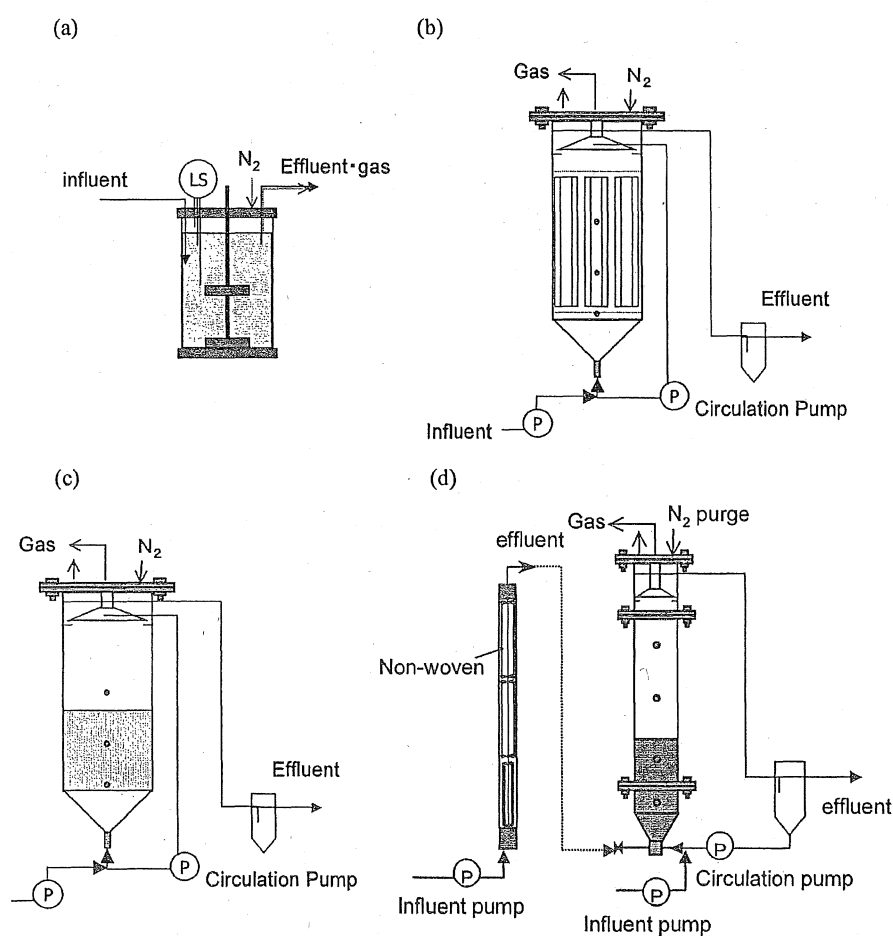


Fig. 2 Experimental device for continuous cultivation; (a) sequencing-batch reactor, (b) fixed-bed reactor with nonwoven carriers, (c) fluidized-bed reactor with tube-shaped attachment carriers, (d) fluidized-bed reactor with methanogenic granules used as carriers

Table 2 Composition of medium for cultivation

(NH ₄) ₂ SO ₄	424 ~ 3960mg
NaNO ₂	444 ~ 4830mg
KHCO ₃	500mg
KH ₂ PO ₄	27.2mg
CaCl ₂ · 2H ₂ O	180mg
MgSO ₄ · 7H ₂ O	120mg
Trace element I	1ml
Trace element II	1ml
Tap water	1l

Trace element I (g·l⁻¹)

EDTA	5
FeSO ₄ · 7H ₂ O	9.14

Trace element II (g·l⁻¹)

EDTA	15	NaMoO ₄ · 2H ₂ O	0.22
ZnSO ₄ · 7H ₂ O	0.43	NiCl ₂ · 6H ₂ O	0.19
CoCl ₂ · 6H ₂ O	0.24	NaSeO ₄ · 10H ₂ O	0.21
MnCl ₂ · 4H ₂ O	0.99	H ₃ BO ₄	0.014
CuSO ₄ · 5H ₂ O	0.25		

Table 3に各リアクターにおけるアンモニア除去量に対する亜硝酸除去量および硝酸生成量の比率の実験期間中の平均値を示す。メタン菌グラニューールを担体とした上向流リアクターにおいては、メタン菌グラニューールの自己消化によると推察されるアンモニアの増加と亜硝酸の消費がなくなった54日目以降の平均値を示す。全てのリアクターにおいて、報告されているAnammox反応の比率に近い値が確認され、リアクター内でAnammox反応が起きていることが示唆された。Fig. 3に4種類のリアクターの容積当たり窒素除去速度の経時変化を示す。シーケンシャルパッチリアクターの試験期間中の最大窒素除去速度は $0.25 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。開始後33日間は除去速度の上昇が見られたが、35日目に活性が急激に低下し槽内に基質が残留した。槽内を希釈して再度運転を開始したところ再び上昇傾向が見られたが、 $0.15 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ 付近で上昇傾向が見られなくなった。そこで新たにAnammox微生物を含む汚泥を添加して運転を継続したが、その後も上昇傾向は見られず、一時的な活性低下も見られるなど処理は不安定であった。この間SS濃度は $1 \sim 8 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であり汚泥の急激な流出はなかった。70日目には汚泥の活性が失われ、その後も数日間低い活性が続いたため、実験を終了した。

不織布リアクターの体積当たり窒素除去速度は200日間ほぼ安定した上昇傾向を示した。運転期間中の最大窒素除去速度は $1.55 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。不織布には全体に赤

い微生物が付着した。生物膜の厚さは徐々に増加し、150日以降には不織布と不織布の間の一部に目詰まりが生じ、不織布全体が浮上する現象が見られた。Fig. 4は不織布に赤い汚泥が付着した状態の写真である。

筒状担体リアクター体積当たりの窒素除去速度は100日目まで対数増殖に近い上昇傾向を示したが、その後は緩やかな上昇傾向を示した。運転期間226日間の最大処理速度は $2.38 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ であり、試験期間中窒素除去能力が極端に低下することはなかった。運転期間が長くなるにつれ、筒状担体の浮上が観察された。浮上担体には筒の内部に気泡が見られたことから、Anammox反応により発生した窒素ガスの気泡が筒内部に貯め込まれたために浮上したと考えられる。浮上担体と沈降担体の微生物付着量を比較すると、浮上担体の方が沈降担体より2倍以上多かった(Fig. 5)。付着量が多くなると窒素ガスの発生量も多くなるため、担体の浮上につながると考えられる。

メタン菌グラニューールを担体とした上向流リアクター体積当たりの窒素除去速度は運転期間中安定した上昇傾向を示し、不織布リアクターからの植種を停止した111日目以降も継続して上昇した。運転期間中の最大処理速度は $2.87 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。この結果により、Anammox微生物はメタン菌グラニューール表面に固定化され増殖していることが示された。

Table 3 The ratio of nitrite removal and nitrate production to ammonium removal

	NO_2^- removal(-)	NO_3^- production(-)	Test period(days)
Sequencing-batch reactor	1.04	0.18	1~74
Fixed-bed reactor with nonwoven carriers	1.27	0.16	1~196
Fluidized-bed reactor with tube-shaped attachment carriers	1.46	0.17	1~226
Fluidized-bed reactor with methanogenic granules as carriers	1.32	0.03	54~186

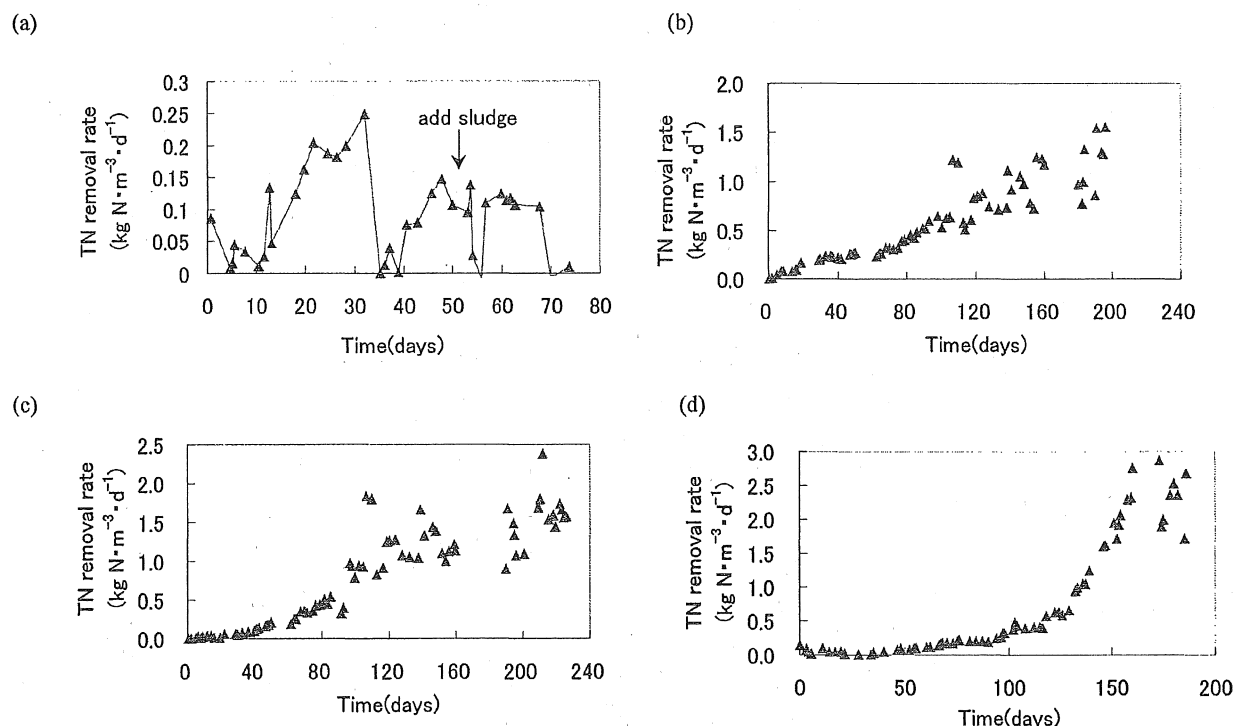


Fig. 3 The change of nitrogen removal rate of incubation in the four reactors; (a) sequencing-batch reactor, (b) fixed-bed reactor with nonwoven carriers, (c) fluidized-bed reactor with tube-shaped attachment carriers, (d) fluidized-bed reactor with methanogenic granules used as carriers



Fig. 4 Red biofilm attached on the nonwoven

4. 考察

試験期間中の各リアクターの最大窒素除去速度は、シーケンシャルパッチリアクターが $0.25 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ 、不織布リアクターが $1.55 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ 、筒状担体リアクターが $2.38 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ 、メタン菌グラニューールを担体とした上向流リアクターが $2.87 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。筒状担体リアクターの処理速度が不織布リアクターよりも大きかったのは担体表面積が大きいと考えられるが、表面積の差と比較すると処理速度の差は小さかった。これは、不織布の内部まで汚泥が入りこみ汚泥保持量が予想より多かったことと同時に、筒状担体の表面が有効に使われていないことが考えられる。Fig. 5からも担体への汚泥付着量にばらつきがあることがわかり、添加した担体全てが有効に使われていないことが示唆された。また、筒状担体の内側にAnammox反応により発生したガスが貯まることにより、担体が浮上する現象が見られたことから、担体の流出防止のためのスクリーンの設置や、発生したガスを担体から放出させるため攪拌方法を検討するといった対策が必要であると考えられる。不織布リアクターでは汚泥の付着量が経時的に増加し一部目詰まりが生じたことから、実装置への適用の際には定期的な付着汚泥の剥離・洗浄が必要であると考えられる。

一方、メタン菌グラニューールを担体とした上向流リアクターは、グラニューール表面がAnammox汚泥の固定化表面として有効に働き、試験期間中トラブルは見られなかった。試験後に取り出したメタン菌グラニューールは黒色から茶色に変化し、表面に赤いAnammox微生物の生物膜が付着しており、Anammox微生物のグラニューールとして扱える状態になっていた。自己造粒させるのではなく、嫌気グラニューールを担体として用いることにより、約5ヶ月の立ち上げ期間で自己造粒型のリアクターを作ることが可能であることがわかった。本実験では底部に流動性の低い空間があることが確認されたため、リアクター内部の流動性を良好に保ち、またリアクター容積に対するグラニューールの添加割合を増やすことによって、 $5 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ 以上といった高負荷を実現することも可能であると推測される。

実験から推測された各リアクターの汚泥保持可能量は、シーケンシャルパッチリアクターが約 $5 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$ 、不織布リアクターが約 $10 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$ 、筒状担体リアクターが約 $10 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$ 、メタン菌グラニューールを担体とした上向流リアクターが約 $50 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。長期運転により、グラニューールがAnammox

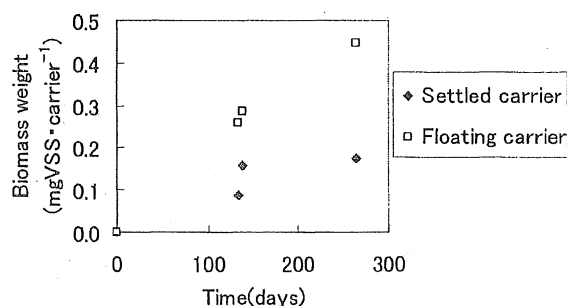


Fig. 5 Biomass weight attached on the settling tube-shaped carrier and the floating tube-shaped carrier

微生物を主体とするものに変化するとすれば、メタン菌グラニューールを担体とした上向流リアクターが最も高負荷を達成する可能性を有している。

処理の安定性については、浮遊増殖型のシーケンシャルパッチリアクターのAnammox活性が非常に不安定だったのに対し、固定床型の不織布リアクター、流動床型の筒状担体リアクター、メタン菌グラニューールを担体とした上向流リアクターの除去速度は安定した上昇傾向を示し、運転期間約200日の間に極端な活性の低下は見られなかった。温度、pHといった運転条件は4つのリアクターに違いがないため、安定性の違いの原因は、不定期に行ったリアクターのメンテナンス時に、リアクターの上部を開放した際に汚泥がわずかながら空気に暴露されたことによると推察された。本実験においては、浮遊型リアクターではリアクターの開口部が数分間空気に暴露された後には大きく活性が低下した一方で、不織布、筒状担体およびグラニューールをリアクターから取り出し、約1時間空気中に暴露させた後リアクターに戻した場合には活性低下がみられなかった。

Anammox微生物の酸素による阻害は可逆性であるが、空气中酸素分圧0.5、1.0、2.0%で飽和した培地においては $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ ともに減少せず、完全な無酸素状態とすることが必要であるという報告がある¹⁷⁾。生物膜が酸素に暴露された場合の酸素の透過厚さは以下の式で表される。

$$\delta = \sqrt{\frac{2 \cdot D_{O_2} \cdot C_{O_2}}{q_{O_2} \cdot C_x}} \quad (2)$$

$$D_{O_2} = 2.5 \times 10^{-3} (\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1})$$

δ : 酸素浸透厚さ (mm)

D_{O_2} : 酸素の拡散係数 ($\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)

C_{O_2} : 水溶液中酸素濃度 ($\text{g O}_2 \cdot \text{l}^{-1}$)

C_x : 生物膜密度 ($\text{g VSS} \cdot \text{l}^{-1}$)

q_{O_2} : 酸素消費速度 ($\text{g O}_2 \cdot \text{g VSS}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$)

生物膜がAnammox微生物のみから成るならば q_{O_2} の値は0であり、酸素は生物膜最奥部まで完全に浸透する。しかし、生物膜表面に酸素を消費する硝化菌あるいは従属栄養細菌が存在していれば、生物膜の内部は嫌気性に保たれ、酸素による阻害を防止できる。実際に、不織布に付着した生物膜中の微生物を解析した結果、Anammox微生物とともに*Zoogloea ramigera*類縁菌が存在したという事例が藤

井らによって示されており、生物膜として存在することで Anammox 微生物が安定化していることが示唆されている¹⁹⁾。

生物膜密度もまた浸透厚さに大きく影響する。フロック状汚泥と担体に付着した生物膜では、生物膜の密度には大きな差があると考えられ、フロック状汚泥では僅かな酸素の混入でも影響を受けるが、汚泥密度の高い生物膜の状態では多少の酸素の混入は活性低下を引き起こすことはないと考えられる。

酸素の阻害を受け活性が低下すると、Anammox 微生物の窒素除去速度が低下し、処理しきれないアンモニアと亜硝酸が系内に残存する。原水を処理水によって希釈するプロセスを組んでいる場合、希釈効果がなくなり、原水注入部は高濃度の亜硝酸に暴露され、Anammox 微生物は亜硝酸の濃度阻害によりさらに活性が低下する。したがって、安定した処理を行うには酸素による阻害の防止は必須条件である。浮遊増殖型の場合には酸素の混入を厳密に防ぐ設備が必要となり、処理設備の簡易さという利点が失われることから、実際の処理への適用は難しいと考えられる。

5. まとめ

4種類のリアクターを用いた実験により、Anammox 微生物を用いた連続培養には、浮遊増殖型、固定床型、流動床型いずれのリアクターも用いることが可能であるが、酸素混入による活性低下を防ぎ、安定した処理を行うには生物膜型である固定床型、流動床型の方が良いことが示された。リアクター容積負荷は担体表面積が大きい流動床型が最も大きく、特にメタン菌グラニュールを担体としたリアクターでは最大 $2.87 \text{ kg N} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ を達成した。リアクター内の流動状態と担体添加量を検討することにより、より高い負荷が期待できると考えられる。メタン菌グラニュールは Anammox 微生物がその表面に固定化されることにより Anammox 微生物のグラニュールとして扱い得る可能性が示唆され、自己造粒させるよりも短期間で立ち上げ可能であることが示された。今後は実際の排水処理への適用のため、メタン菌グラニュールを担体とした上向流リアクターの最適運転条件の検討を行う予定である。

(原稿受付 2004年8月20日)

(原稿受理 2004年11月27日)

参考文献

- 1) Van de Graaf, A.A., Mulder, A., Slijkhuys, H., Robertson, L.A. and Kuenen, J.G. (1990) Anoxic ammonium oxidation, *Proc. 5th European Congress on Biotechnology*, 1, 388-391.
- 2) Van de Graaf, A.A., Mulder, A., De Bruijn, P., Jetten, M.S.M., Robertson, L.A. and Kuenen, J.G. (1995) Anaerobic oxidation of ammonium is a biologically mediated process, *Appl. Environ. Microbiol.*, 61(4), 1246-1251.
- 3) Mulder, A., Van de Graaf, A.A., Robertson, L.A. and Kuenen, J.G. (1995) Anaerobic ammonium oxidation discovered in a denitrifying fluidized bed reactor, *FEMS Microbiology Ecology*, 16, 177-184.
- 4) Strous, M., Fuerst, J.A., Kramer, E.H.M., Logemann, S., Muyzer, G., Van de Pas-Schoonen, K.T., Webb, R., Kuenen, J.G. and Jetten, M.S.M. (1999) Missing lithotroph identified as new planctomycete, *Nature*, 400, 446-449.
- 5) Strous, M., Heijnen, J.J., Kuenen, J.G. and Jetten, M.S.M. (1998) The sequencing batch reactor as a powerful tool for the study of slowly growing anaerobic ammonium-oxidizing microorganisms, *Appl. Microbiol. Biotechnol.*, 50, 589-596.
- 6) Van de Graaf, A.A., De Bruijn, P., Robertson, L.A., Jetten, M.S.M. and Kuenen, J.G. (1997) Metabolic pathway of anaerobic oxidation on the basis of ^{15}N studies in a fluidized bed reactor, *Microbiology*, 143, 2415-2421.
- 7) Van de Graaf, A.A., De Bruijn, P., Robertson, L.A., Jetten, M.S.M. and Kuenen, J.G. (1996) Autotrophic growth of anaerobic ammonium-oxidizing micro-organisms in a fluidized bed reactor, *Microbiology*, 142, 2187-2196.
- 8) Strous, M., Van Gerven, E., Zheng, P., Kuenen, J.G. and Jetten, M. (1997) Ammonium removal from concentrated waste streams with the anaerobic ammonium oxidation (Anammox) process in different reactor configurations, *Wat. Res.*, 31(8), 1955-1962.
- 9) Strous, M., Kuenen, J.G. and Jetten, M.S.M. (1999). Key physiology of anaerobic ammonium oxidation. *Appl. Environ. Microbiol.*, 65(7), 3248-3250.
- 10) 今城麗, 安井英斉, 石田浩昭, 藤井隆夫, 杉野浩幸, 古川憲治 (2004). 活性汚泥からのANAMMOX微生物の集積培養, 水環境学会誌, 27(6), 413-418.
- 11) Yu, H.Q., Tay, J.H. and Fang, H.H.P. (2001) The roles of calcium in sludge granulation during UASB reactor start-up, *Wat. Res.*, 35(4), 1052-1060.
- 12) Shen, C.F., Kosaric, N., Blaszczyk, R. (1993) The effect of selected heavy metals (Ni, Co and Fe) on anaerobic granules and their extracellular polymeric substance (EPS), *Wat. Res.*, 27, 25-33.
- 13) Schmit, J.E., Ahring, B.K. (1993) Effects of magnesium on thermophilic acetate-degrading granules in upflow anaerobic sludge blanket (UASB) reactors, *Enzyme and Microbial Technology*, 15, 304-310.
- 14) Fang, H.H.P. (1994) Performance and granule characteristics of UASB process treating wastewater with hydrolyzed proteins, *Wat. Sci. Tech.*, 30(8), 55-63.
- 15) El-Mamouni, R., Leduc, R. and Guiot, S.R. (1998) Influence of synthetic and natural polymers on the anaerobic granulation process, *Wat. Sci. Tech.* 38(8-9), 341-347.
- 16) Yoda, M., Kitagawa, M. and Miyaji, Y. (1989) Granular sludge formation in the anaerobic expanded micro-carrier process. *Wat. Sci. Tech.*, 21, 109-122.
- 17) Strous, M., Van Gerven, E., Kuenen, J.G. and Jetten, M. (1997) Effects of aerobic and microaerobic conditions on anaerobic ammonium-oxidizing (Anammox) sludge, *Appl. Environ. Microbiol.*, 63(6), 2446-2448.
- 18) 日本下水道協会編 (1997) 下水試験方法, pp.162-163, 東京.
- 19) Fujii, T., Sugino, H., Rouse, J.D. and Furukawa, K. (2002) Characterization of the microbial community in an anaerobic ammonium-oxidizing biofilm cultured on a non-woven biomass carrier, *J. Biosci. Bioeng.*, 94(5), 412-418.