硫黄充填反応槽を用いた嫌気性処理後の 畜舎汚水の窒素除去と脱色

Decoloration and Nitrogen Removal of Swine Wastewater
After Anaerobic Treatment Using the Sulfur Filling Up Reactor

陳 昌淑、田中康男

農業技術研究機構畜産草地研究所資源化研究室／〒305-0901 茨城県稲敷郡茎崎町池の台2

CHANG-SUK JIN, YASUO TANAKA

Waste Recycling Lab., Dept. of Livestock Industry Environment, National Institute of Livestock and
Grassland Science/2 Ikenodai, Kukisaki-cho, Inashiki-gun, Ibaraki 305-0901, Japan

Abstract

An innovative upflow sulfur filling up reactor was developed to remove nitrogen of swine wastewater after anaerobic treatment. This reactor consisted of a high DO upper layer filled with polyester unwoven cloth media and a low DO lower layer filled with sulfur pellet containing calcium ($S^0 + CaCO_3$ pellet). Anaerobically treated swine wastewater was supplied to the reactor from the middle layer. Overflow from the top of the reactor was partially recirculated to the bottom of the reactor, and the remainder was finally fed to a gravity settling tank. Removal efficiencies of NH_4^+-N and T-N were affected by the circulation ratio, and maximum removal (63% for NH_4^+-N , 42% for T-N) was observed at a circulation of 2. Accumulation of $NO_2^- - N$ was observed at a circulation ratio of more than 2, but no accumulation of $NO_3^- - N$ was observed at any circulation ratio. Free ammonia concentration in influent and effluent was estimated to range from 4.9 to 100 mg/l (average : 34.9 mg/l). Free ammonia would inhibit oxidation of $NO_2^- - N$. On the other hand, free nitrous acid was less than 0.2mg/l, and it was not inhibited oxidation of $NO_2^- - N$.

The effluent $SO_4^{2-} - S$ concentration correlated with the decoloration rate ($r = 0.757$), suggesting a relationship between sulfur oxidation and color removal.

Key Words : swine wastewater, sulfur oxidation reaction, decoloration, nitrification, denitrification

1. はじめに

豚舎からの排水は、窒素濃度が非常に高く除去が困難といった問題を抱えている¹⁾。窒素除去法としては硝化・脱窒による生物学的方法が最も実用的であるが、既存の硝化工程ではアンモニア (NH_3) を硝酸 (NO_3) まで酸化するための酸素供給に多くのエネルギーを要する。

硝化に必要な酸素を供給するためのエネルギーを低減するためには硝化を亜硝酸 (NO_2) で停止させ亜硝酸から脱窒されるようにすることも効果がある^{2,3)}。そのためには、亜硝酸酸化反応を抑制し亜硝酸を蓄積させることが必要である。亜硝酸酸化反応に影響を及ぼす因子としては遊離アンモニア (FA, Free Ammonia, NH_3) 濃度、遊離亜硝酸 (FNA, Free Nitrous acid, HNO_2) 濃度、温度、

pH、SRTなどがあり、特に大きな影響を与えているのはFA濃度である⁴⁾。FA濃度が0.1–10mg/lの範囲では、アンモニアから亜硝酸までの反応は進むが、亜硝酸から硝酸までの反応は抑制される⁴⁾。畜舎汚水は高濃度のアンモニアを含んでいるので、何らかの方法で高いpHを保てばFA濃度が高くなり、亜硝酸酸化反応を抑制できる可能性がある。

しかしながら、畜舎汚水の場合C/N比が低い場合が多く硝化までは進行したとしても脱窒が不十分になる場合が多い。特に嫌気性処理を導入した場合にはC/N比が低下するため脱窒はさらに不利となる。脱窒のための電子供与体としてメタノールを添加する方法もあるが適切な注入量の制御が困難でしかも毒性があるため処理水に残存すると問題になる。硫黄酸化脱窒菌は、無酸素状態で還元硫黄化合物 (S^0 , S^{2-} , $S_2O_3^{2-}$, $S_4O_6^{2-}$, SO_3^{2-}) を硫酸イオン (SO_4^{2-}) に酸化する際に、硝酸性窒素 (NO_3^- -N) または亜硝酸性窒素 (NO_2^- -N) を窒素ガス (N_2) に脱窒することから、低C/N比の排水を生物学的に脱窒処理するとき、有機炭素源のかわりに硫黄を利用する技術が検討されている⁵⁾。しかし、硫黄酸化反応で SO_4^{2-} が生成するとpHが下がりFA濃度が下がるので亜硝酸酸化抑制の面では不利となる。pHを高く保つには炭酸カルシウム ($CaCO_3$) などの添加が効率的であるが、硫黄と $CaCO_3$ を別々に添加しようとすると適切な添加量の調整が難しい。この点を克服する素材として硫黄と炭酸カルシウムがパッチ状になるように混合し造粒された材料 ($S^0 + CaCO_3$ pellet⁶⁾) が開発されており、その適用が効果的である可能性がある。

また畜舎汚水は、様々な処理により汚濁成分を排水基準まで除去しても、茶褐色の着色が除去できない場合が多く^{7,8)}、放流の際に問題となることが多い。最近、排水の色に関する関心が高くなり規制を強化しようとする動きがあり⁹⁾、畜舎汚水の脱色処理についても今後重要性を増してくる可能性が高い。現在の脱色処理技術としては、凝集剤を用いる凝集沈殿法、活性炭を用いる吸着法、オゾン・フェントン反応・電気分解などによる酸化法などがある。しかし、凝集沈殿法は凝集沈殿物が生成されるのでその沈殿物を処理することが必要となる。また活性炭吸着法は活性炭の吸着能の限界を超えると、活性炭交換と使用済み活性炭の廃棄問題が生じる。さらに酸化法は処理コストが高いという問題を抱えている^{7–10)}。

本研究では、1槽で亜硝酸までの硝化と硫黄による脱窒を目指して、上部には好気ゾーン、下部には $S^0 + CaCO_3$ pelletを充填した無酸素ゾーンを設けた反応槽を

用いて、嫌気性処理後の畜舎汚水処理を処理特性に強く影響する可能性がある循環比に焦点を置いて検討した。また、脱色の可能性についても検討した。

2. 実験方法及び材料

2.1 実験装置

1槽で亜硝酸までの硝化と硫黄による脱窒を効率良く行わせることを目指して、2種のプラスチックろ材と $S^0 + CaCO_3$ pelletを充填した反応槽を考案した。反応槽の有効総容量は28lであり、反応槽の上部にはポリエステル編みチューブと不織布の外層フィルターで構成された固定ろ材 (見かけ容量: 10l)、最下部には2kgの $S^0 + CaCO_3$ pellet (粒径5–20mm、見かけ容量: 5l)、また中間には反応槽上部のDOが $S^0 + CaCO_3$ pellet層に拡散することを防ぐため1片3–5cmのサイコロ状のポリウレタンフォームの浮遊性ろ材 (見かけ容量: 10l) を配置した。不織布の固定ろ材層の直下に散気管を設置し、散気管の下から原水を流入させた。通気量は10l/minであった。処理水は上部の流出口から沈澱槽に入るが、この間に循環経路を設け、循環水は反応槽の最下部から流入させた (Fig. 1)。反応槽内の水温はテープヒーターを利用して20℃を保つようにした。運転はHRTを2.16日 (流入排水量: 0.54l/hr) に固定して循環比を0, 1, 2, 4, 8に変えながら行った。

2.2 原水

原水としては豚舎汚水をHRT 2日のUASBリアクターで嫌気性処理したものを用いた。

Fig. 1 Flowsheet of experimental apparatus.

2. 3 植種源

反応槽への微生物の植種には以下の方法で培養した汚泥を用いた。畜舎污水处理施設の活性汚泥 (MLSS: 約 6,000mg/l) を NH_4Cl 3.5g, NaHCO_3 10.5g, および BOD 希釈水 1 l (MgSO_4 1 ml, FeCl_2 1 ml, CaCl_2 1 ml, H_3PO_4 1 ml, 水道水 1 l) からなる硝化菌培養培地¹¹⁾ に懸濁させ、DO 濃度約 3 mg/l を維持するように曝気した。1 日 1 回、30 分間沈殿させてから 1/2 の上澄みを捨て同量の新しい培地を添加した。pH は 8.0-8.5、水温は約 20℃ に維持した。約 2 ヶ月間馴養させた後、不織布ろ材に付着させた。

2. 4 分析方法

BOD は HACH 社の BOD TRACK 自動測定器を用いて 5 日法により、 COD_{Cr} は HACH 社の重クロム酸法 COD 測定システム (DR/700 Colorimeter & COD Reactor) を用いて測定した。全窒素 (T-N) と全リン (T-P) はサメキ工業製フローインジェクション分析装置 (T-N/T-P 計) を用いて測定した。この装置において T-N は 140℃ 過硫酸カリウム分解の後塩酸酸性下での吸光度により、また T-P は 140℃ 過硫酸カリウム分解の後モリブデンブルー法による 880nm 吸光度測定により定量される。 NH_4^+-N はフローインジェクション法 (Aquatec 5400 Analyzer, Foss Tecator, AQUATEC 社) によって測定した。T-N、T-P、 NH_4^+-N は懸濁物 (SS) を含んでいる原液を 50 倍に希釈して分析した。 NO_2^--N 、 NO_3^--N 、 $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ 、そして $\text{SO}_4^{2-}-\text{S}$ は試料を 50 倍に希釈しミリポア HA フィルターでろ過してからイオンクロマトグラフィー (IC 7000, Yokogawa 社) で分析した。着色度は 15000rpm、5 分間遠心分離して SS を除去した後、着色度計 (NDR-2000, 日本電色工業社) を用いて分析した。この機器は「希釈法-XYZ 濃度と検量線」を使用する方法で着色度を測定する¹²⁾。また溶存酸素 (DO 計)、水温、pH (pH 計) も測定した。

3. 実験結果及び考察

3. 1 原水の性状

UASB 処理前の豚舎汚水と実験の原水として用いた UASB 処理水の性状を Table 1 に示した。汚水と UASB 処理水を比べると、平均的に BOD 93%、 COD_{Cr} 87%、T-N 11%、T-P 73% の低下が見られた。流入水の NH_4^+-N は T-N の約 88% を占めており、BOD/T-N は 0.46、 COD_{Cr}

/T-N は 1.9 と非常に低い。BOD/T-N が 3 以上でないとは脱窒が十分に進行しない¹³⁾ ということから考えると、この値はかなり低く、電子供与体の添加無しでは充分な脱窒は期待できない。着色度は流入水の平均値が 2455 で濃い茶褐色であった。

3. 2 反応槽内の DO 濃度の分布

本法において反応槽内の DO 濃度の制御は重要である。下部の無酸素ゾーンの DO 濃度が高くなると硫黄による脱窒効果は減少するからである。

循環比別に測定した DO の垂直分布の結果によると、散気管より上部 (43cm 以上) では 2-6 mg/l 以上の DO が測定されたが、散気管より下部 (43cm 以下) では DO が急激に激少し 30cm では 1.3-2.7 mg/l の低い値を示した。なお、 $\text{S}^0 + \text{CaCO}_3$ pellet 層直上位置 (13cm) の DO は、循環比 8 で 0.9 mg/l ~ 1.5 mg/l、循環比 4 で 0.9 mg/l、循環比 2 では 0.4 mg/l ~ 0.6 mg/l で、循環比の高いほど上昇する傾向が見られた。この結果から反応槽の中間部分から通気することで、上下部の DO 濃度をある程度制御できることが確認された。反応槽をさらに高くすれば、ポリウレタンフォームの浮遊性ろ材を設置しなくてもより確実に上下部の状態が分かれると考えられる。

3. 3 窒素成分の変化

流出水の水質を Table 2 に、循環比と窒素化合物濃度の関係を Fig. 2 に示した。最大除去率は循環比 2 で T-N が 41.7%、 NH_4^+-N が 62.7% であった。循環比 2 では硫黄酸化反応に由来すると考えられる $\text{SO}_4^{2-}-\text{S}$ 濃度が最も

Table 1 Characteristics of raw wastewater and influent of the reactor.

Analysis Item	Raw water		Influent	
	Range	Average	Range	Average
pH (-)	6.4-7.8	—	7.3-8.4	—
Color (U)	ND	ND	1833-3350	2455
BOD (mg/l)	1410-12960	5361	146-800	375
COD_{Cr} (mg/l)	3730-31270	12823	865-2404	1538
T-N (mg/l)	314-1480	909	684-967	806
NH_4^+-N (mg/l)	174-900	603	562-832	711
NO_3^--N (mg/l)	0	0	4.2-5.1	4.6
NO_2^--N (mg/l)	0	0	0	0
T-P (mg/l)	104-432	292	55.9-124.5	78
$\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ (mg/l)	30-212	129	51.5-84.5	66
$\text{SO}_4^{2-}-\text{S}$ (mg/l)	ND	ND	10.0-21.5	13

Table 2 Water quality of effluent.

Analysis Item		Circulation ratio				
		0	1	2	4	8
pH (—)	Range	8.2-8.3	8.3-8.5	7.6-8.1	7.8-8.0	8.2-8.4
Color (U)	Range	200-2405	2191-2484	1173-1900	1670-1717	1770-2615
	Average	2240.9	2385.2	1555.8	1684.3	2141.6
BOD (mg/l)	Range	180-250	190-290	54-230	83-150	62-280
	Average	200.5	235.4	162.1	107	181.2
COD _{Cr} (mg/l)	Range	1000-1307	937-1111	708-960	710-887	667-1162
	Average	1141.3	987.7	820.9	776.6	909.8
T-N (mg/l)	Range	640.0-794.5	813.0-920.0	400.0-600.0	558.0-570.8	598.7-733.9
	Average	708.1	858.2	515.3	563.7	675.1
NH ₄ -N (mg/l)	Range	570.0-763.5	720.5-805.0	259.8-460.3	335.6-529.5	455.5-686.0
	Average	657.1	752.5	354.2	397.9	593.6
NO ₃ -N (mg/l)	Range	4.6	4.4-6.3	4.6-5.3	4.9-5.1	4.6-5.1
	Average	4.6	4.9	4.8	4.9	4.8
NO ₂ -N (mg/l)	Range	0-8.0	0-7.0	16.0-155.0	130.0-178.0	0-101.5
	Average	3.8	1.0	98.1	147.6	57.1
T-P (mg/l)	Range	40.2-55.0	42.3-59.0	40.9-90.0	45.3-54.2	44.4-64.0
	Average	50.8	49.7	60.2	48.5	55.7
PO ₄ -P (mg/l)	Range	36.0-50.0	38.5-47.5	46.0-77.5	49.0-55.5	43.5-52.0
	Average	39.6	43.4	59.3	52	50
SO ₄ -S (mg/l)	Range	69.0-85.0	61.5-68.0	100.0-231.5	136.0-144.0	54.0-149.5
	Average	74.1	65.9	156.5	138.9	94

Fig. 2 Influence of circulation ratio on the concentration of nitrogenous compounds.

Symbol : ●, T-N (Inf.); ○, T-N (Eff.);
 ■, NH₄⁺-N (Inf.); □, NH₄⁺-N (Eff.);
 ◆, NO₃⁻-N (Inf.); ◇, NO₃⁻-N (Eff.);
 ▲, NO₂⁻-N (Inf.); △, NO₂⁻-N (Eff.)

高いこと、除去BOD量（平均213mg/l）と除去TN量（平均291mg/l）との比（ Δ BOD/ Δ T-N）は0.7であり有機物のみによる脱窒の場合の一般的なBOD必要量であるBOD/N比3に比較してかなり小さく有機物だけによる脱窒とは考えられないことなどから硫黄脱窒反応の寄与が推定できる。

NO₃⁻-Nは循環比と無関係に約5 mg/lの低い濃度であった。これに対して、NO₂⁻-Nの濃度は循環比によって

大きく変化した。循環比2以上では100mg/l前後の高濃度の蓄積があったが、1と0では検出されなかった。この結果は亜硝酸酸化反応が何らかの原因で阻害されていたことを示唆している。この阻害要因をAnthonisenら¹⁴⁾のNH₄⁺-NおよびNO₂⁻-N濃度とpHの関係を示したdiagramを用いて検討した結果、Fig. 3に示したように流入水および流出水の殆どが亜硝酸から硝酸への反応が抑制される0.1mg/l以上のFA濃度の範囲（4.9-100mg/l、平均：34.9mg/l）に入っていた。一方、FNAは0.2mg/l以下であり、FNAの影響は小さかったと推定される。従って、FAが亜硝酸酸化の阻害要因であった可能性が高いといえる。この結果より、今回の実験におけるNH₄⁺-N濃度とpHの条件では特に制御を行わなくても亜硝酸が蓄積することが確認された。

なお、NO₂⁻-NとSO₄²⁻-Sの生成量が多い場合でもpHの低下はあまりなかった。その理由としては、S⁰+CaCO₃ pelletの中の炭酸カルシウムが緩衝効果を発揮したと考えられた。よって今回用いた硫黄材料は適切な炭酸カルシウム含有率であったといえる。

*Thiobacillus denitrificans*による硫黄脱窒反応式として報告されている式(1)を用いて、SO₄²⁻-S生産量と脱窒量との関係を求めた。

Fig. 3 Estimation of free ammonia (FA) and free nitrous acid (FNA) concentration in influent and effluent.
Symbol: ●, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ (Inf.); □, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ (Eff.); △, $\text{NO}_2^-\text{-N}$ (Eff.)

この式から求められる $\Delta\text{T-N}/\Delta\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$ の理論値は 0.43 であり、 $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$ は 0.39 である。

また、報告されているエネルギー取得だけを考えた場合の式は、式(2)であり、式(2)から求められた $\Delta\text{NO}_3^-\text{-N}/\Delta\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$ の理論値は 0.53 である。

しかし、亜硝酸からの硫黄脱窒に関して報告されている式はなかったので、式(3)を用いて検討した。

式(3)からの $\Delta\text{NO}_2^-\text{-N}/\Delta\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$ の理論値は 0.88 であった。

以上の理論値に対して、 $\Delta\text{T-N}/\Delta\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$ の実験値は、循環比 8 で 1.29、4 で 1.56、2 で 1.86、1 で 0.82、0 で 1.92 であり、理論値よりかなり高いことから、反応槽内の脱窒には、硫黄以外に BOD も関与したと考えられる。

一方、 ΔBOD の全てが脱窒に使われたと仮定し、さらに脱窒の BOD/N 比が 3 ~ 5 と仮定すると、 $\Delta\text{T-N}/\Delta\text{BOD}$ は 0.2 ~ 0.33 となる。この値は実験値の $\Delta\text{T-N}/\Delta\text{BOD}$ (循環比 8 で 0.55、4 で 0.79、2 で 0.45、1 で 0.68、0 で 0.54) よりかなり小さい値である。従って BOD だけによる脱窒は不可能であり、硫黄脱窒の関与は確実と思われる。

ただし、硫黄脱窒が硝酸からであるか、亜硝酸からで

あるかについては、上記のように BOD も脱窒に関与し、また単一反応槽の中で硝化と脱窒が同時に行われるため、 $\Delta\text{T-N}/\Delta\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$ などの比から判断することは困難であった。

通常、硝化過程での律速段階は $\text{NH}_4^+\text{-N} \rightarrow \text{NO}_2^-\text{-N}$ であり、 $\text{NO}_2^-\text{-N} \rightarrow \text{NO}_3^-\text{-N}$ の反応は素早く進行し、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ が蓄積されることはあまり起こらない。また脱窒においては、電子供与体の所用量の面から、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ からの脱窒が $\text{NO}_3^-\text{-N}$ からの脱窒より有利であり、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ に比較して $\text{NO}_2^-\text{-N}$ の脱窒の方が抑制されることは考えにくい。従って、今回の実験で $\text{NO}_2^-\text{-N}$ が蓄積したのは、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ が優占的に脱窒されたためと考えるよりは、硝化が亜硝酸までしか進まず、しかも脱窒活性が低い条件であったためと考える方が自然である。

また処理性能を向上するためには、硝化層、硫黄脱窒層の層厚の上昇といった構造面の改善や HRT、通気量等の運転条件の最適化を行うことが重要である。

3. 4 着色度の変化

着色度は循環比 2 のとき、最大 55% 減少した。平均脱色率は循環比 0 では 11.0%、1 で 8.3%、2 で 30.3%、4 で 20.1%、そして 8 で 21.0% であった。

脱色率と各物質との相関を調べた結果、殆どの物質の変化と脱色率との相関係数が 0.5 以下であるに対して、流出水の $\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$ が 0.757、流出水の pH が 0.637 であった。硫黄酸化反応によって $\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$ が生成され、それによって pH も変化したと考えられる。この結果から、硫黄酸化反応と脱色には緊密な関係のある可能性が示唆された (Fig. 4)。

Fig. 4 The relation between decoloration rate and produced sulfate concentration.

この関係の原因は明らかではないが、(1)硫黄から硫酸への酸化反応の中間体である亜硫酸の強い還元力によって脱色される。(2)硫黄酸化菌によるフミン質の分解によって脱色する。(3)pelletに含まれている炭酸カルシウムの凝集作用によって脱色される、などの可能性が考えられる。これらの点については現在実験的に検討中である。

4. まとめ

上部には好気ゾーン、下部には硫黄を充填した無酸素ゾーンを設けた反応槽を用いて、嫌気性処理後の畜舎汚水の窒素除去を循環比に焦点を置いて検討し、以下の結果が得られた。

- (1) 単一反応槽の中で上部の高いDOゾーンと下部の低いDOゾーンを形成することができた。
- (2) 窒素除去率は循環比2のとき最も高く、平均は32.5%、最大除去率は41.7%であった。
- (3) 循環比2以上では NO_3^- -Nの蓄積が見られたが、 NO_3^- -Nはすべての循環比で5 mg/l程度と低かった。流入水および流出水の殆どが亜硝酸から硝酸への反応が抑制される0.1mg/l以上のFA濃度の範囲(4.9-100 mg/l, 平均: 34.9mg/l)に入っていたことからFAによる阻害が亜硝酸蓄積の原因と思われる。
- (4) $\text{S}^0 + \text{CaCO}_3$ pelletに含まれる炭酸カルシウムは、pHを高く保つことによりFA濃度を高め、硝化を亜硝酸で止める効果を発揮したと推定された。
- (5) 生成した SO_4^{2-} -Sと脱色率の間で0.757の高い相関係数が得られ、硫黄酸化反応による脱色の可能性が示唆された。硫黄酸化反応と脱色との関係については今後さらに反応解明の研究を行う必要がある。

今回の実験では一槽式の反応槽で硝化・硫黄脱窒・脱色が可能であることを確認できたので、今後性能向上について検討する予定である。

謝 辞

本研究は、科学技術振興事業団のSTA Fellowship(1999. 10-2001. 9)によって実施された研究であり、謝意を表します。また $\text{S}^0 + \text{CaCO}_3$ pelletを御恵与頂いた東京農業大学の増島博教授と株式会社ニッチツ、分析等に助言と協力を頂いた、畜産試験場の羽賀清典先生、住谷啓子さん、鈴木一好さん、長田隆さん、和木美代子さんに厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 羽賀清典：畜産環境対策大事典、17-20、農文協(1995)
- 2) W. Bae, S. Back, K. Min, J. Jeong, J. Hong, and W. Lee : High strength nitrogen wastewater treatment using short-cut biological nitrogen removal process, 大韓環境工学会'99秋季学術研究発表会論文集 (I), 5-6(1995)
- 3) Hellinga, C., Schellen, A. A. J. C., Mulder, J. W., Loosdrecht, M. C. M., and Heijnen, J. J. : The SHARON Process : An Innovative method for nitrogen removal from ammonium-rich waste water, Wat. Sci. Tech., 37(9), 135-142 (1998)
- 4) Anthonisen, Z.H. and Randall, C.W. : The effect of organic compounds on biological phosphorous removal, Water Sci. Technol., 23, 585-594 (1991)
- 5) 橋本奨：バイオテクノロジー活用の高機能型活性汚泥法、技報堂出版、165-166 (1989)
- 6) 増島博、矢部琢磨、西村岳史、谷田貝敦：硫黄造粒物を用いた農地排水の脱窒処理、33回日本水環境学会年会講演集、256 (1999)
- 7) 市来秀之、渡辺輝夫、道宗直昭、増田信幸、河合勝弘：畜舎排水の紫外線による脱色法及びその装置、特開平10-085771 (1998)
- 8) 森達摩、崎元道男、森忠明：有色廃水の脱色方法、特開平10-156347 (1998)
- 9) 和田安弘、村松考人：和歌山市における染料含有排水への対応、水環境学会誌、20 (4), 16-19 (1997)
- 10) 海賀信好：染料含有排水における脱色技術の動向、水環境学会誌、20 (4), 10-15 (1997)
- 11) Alleman, J.E., Keramida, V., and Pantea-Kiser, L. : Light induced Nitrosomonas inhibition, Water Res., 22, 499-504 (1987)
- 12) 三好康彦：色度測定方法の現状と今後への対応、水環境学会誌、20 (4), 7-9 (1997)
- 13) Borhnke, B. Diering, B., and Zuckut, S.W. : Cost-effective wastewater treatment for removal of organics and nutrients, Water Eng. Manag., 144, 18-21 (1997)
- 14) Anthonisen, A.C., Loehr, R.C., Prakasam, T.B.S., and Srinath, E.G. : Inhibition of nitrification by ammonia and nitrous acid, J. Wat. Pollut. Control Fed., 48, 835-852 (1976)
- 15) Bisogni, J.J.Jr. and Driscoll, C.T.Jr. : Denitrification using thiosulfate and sulfide, Jour. Environ. Eng. Div., Proc. ASCE, 103, 593-604 (1977)
- 16) Roger, Y.S., Michael, D., and Edward A.A. : The microbial world, Prentice-Hall, Inc., USA, 214 (1970)

(受付 2001. 2. 7)

(受理 2001. 6. 8)