

B-16 地球温暖化抑制のためのCH₄、N₂Oの対策技術開発と評価に関する研究
(6) CH₄、N₂Oの抑制のための生活排水系のバイオ・エコエンジニアリングシステム
による対策技術

研究代表者 国立環境研究所 地域環境研究グループ
開発途上国環境改善(水質)研究チーム 稲森悠平

環境庁国立環境研究所

地域環境研究グループ 開発途上国環境改善(水質)研究チーム 稲森悠平、水落元之
(委託先) 東北大学工学部 須藤隆一
東北学院大学工学部 遠藤銀朗

平成7-9年度合計予算額 67,280千円
(平成9年度予算額 22,779千円)

[要旨]

本研究では、温室効果ガスCH₄、N₂Oの生活排水系からの発生抑制のための対策技術開発と評価に関する検討を行った。N₂Oに関してはまず、実生活排水処理施設におけるN₂O放出量の実態調査を行ったが、その結果、好気処理工程の硝化反応時に大きなN₂O放出量が認められ、処理の状況によっては大量のN₂Oが環境中に放出される可能性が考えられた。そこで、生物学的硝化反応に着目してN₂O生成に及ぼす運転操作条件等の影響について検討した。その結果、硝化反応時においては水中のNO₃⁻の蓄積およびpHの低下に伴いN₂Oの発生速度が増大すること、そして嫌気の脱窒工程の組み込みとその最適制御が重要性であること等が明らかとなった。これらの知見から、N₂O発生および富栄養化の抑制可能な高効率硝化・脱窒バイオリアクターの開発を目的として、代表的な嫌気好気処理プロセスの一手法である間欠ばっ気活性汚泥法に対して、好気および嫌気の各工程の最適操作条件についてベンチスケールおよびパイロットスケールでの実験的検討を行った。その結果、ばっ気方式に関して好気/嫌気の時間設定の自動制御を行うDO制御間欠ばっ気活性汚泥法は、N₂O発生抑制および高度窒素除去が可能であり、さらに、凝集剤を添加することによって高度なリン除去が可能となることが明らかとなった。これらのことに関しては畜舎排水の処理等においても同様の成果が得られ、本法は地球温暖化の防止および閉鎖性水域の水環境の修復・改善を図る上で非常に有効な手段となる可能性が示された。

CH₄に関しては、生活排水等の流入により人的汚染を受けた湿地からのCH₄の発生とその抑制対策技術について検討を行った。その結果、植生の違いによりCH₄放出量に大きな違いがあること、また、CH₄放出には時間変動や季節変動があることが明らかとなった。さらに、湿地に生息する土着のCH₄酸化細菌を5株分離培養することができ、これらの菌株の機能強化と湿地帯の水環境修復への適用の可能性が示された。

[キーワード] 地球温暖化ガス抑制、メタン (CH₄)、亜酸化窒素 (N₂O)、排水処理、
バイオ・エコエンジニアリング

1. 序

地球温暖化は人間活動の活発化に伴う温室効果ガスの環境中への過剰な放出に起因する。排水

処理に関連して発生する温室効果ガスとしてはCO₂、CH₄、N₂Oがあげられ、これらのガスは1997年12月に京都で開催された温暖化防止京都会議（COP3）においても削減対象ガスとして定められている。特にCH₄、N₂OはCO₂に比較して温室効果のポテンシャルが非常に大きく、その発生を抑制することは、地球温暖化防止に向けて大きな意義を有するといえる。その場合、各発生源ごとの効果的な水処理対策技術開発が必要とされるが、各々の処理に共通する反応原理の解析とその汎用化が重要となってくる。また、温室効果ガスの発生抑制技術と窒素等の富栄養化制限物質の除去技術を高次元で確立することにより、世界規模での地球温暖化対策および水環境修復が強力に推進可能となると考えられる。本研究では上記の点を鑑み、バイオ・エコエンジニアリングシステムを活用した、生活排水とその処理プロセス等におけるCH₄、N₂O発生抑制対策技術の研究開発を目的として検討・評価を行った。

2. 研究目的

本研究では、平成7～9年度を通じて下記の項目について研究開発することを目的として検討を行った。

- (1) 生活排水処理プロセスにおけるN₂O発生および富栄養化の抑制可能な高効率硝化脱窒バイオリアクターの開発
- (2) 高濃度の豚舎排水の効率的な処理および温室効果ガス発生量を削減可能なプロセスの開発
- (3) 人為的汚染を受けた湿地帯からのCH₄放出量の把握方法の確立およびCH₄酸化細菌の分離培養と機能解明に関する開発

3. 生活排水処理プロセスにおけるN₂O発生および富栄養化の抑制可能な高効率硝化脱窒バイオリアクターの開発に関する検討

3.1 単位プロセスとしての硝化反応におけるN₂O生成機構および影響因子に関する検討

生物学的排水処理において窒素等の栄養塩類除去を目的とした場合、好気条件と嫌気条件とを組み合わせ、好気条件下で硝化反応を、嫌気条件下で脱窒反応を進行させて、流入排水中の窒素を最終的には窒素ガス（N₂）として大気中への放出を効果的に行わせる必要がある。これまでに実施してきた実生活排水処理施設における実態調査等の結果から、N₂Oは硝化反応の過程において大きな発生量が認められている。また、排水からの生物学的窒素除去は硝化反応が律速因子となることから、まず硝化反応におけるN₂O発生に関する検討を行った。

実験は、図1に示すような有効容積2.0lの円筒型のばっ気槽を単槽で使用した活性汚泥法の処理装置を用いて行った。使用した活性汚泥は、本実験の温度条件と同じ20℃の恒温室内で、活性汚

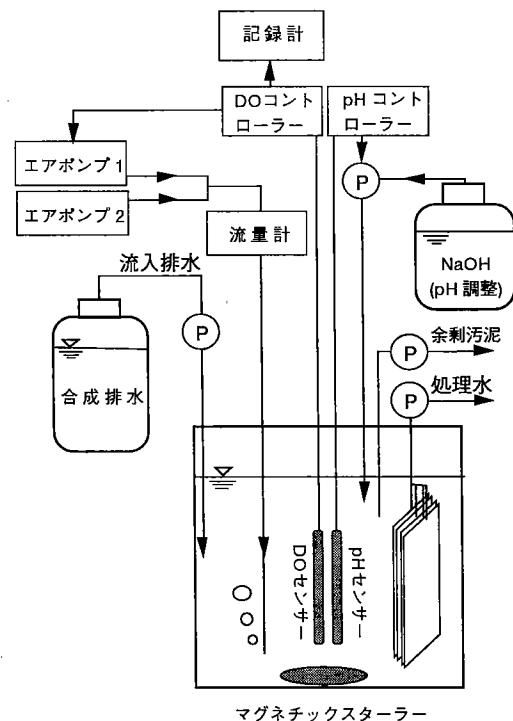


図1. 生物学的硝化反応におけるN₂O発生に関する因子解明のための実験装置

泥法の実験装置を用いてあらかじめ馴養したものである。生物処理反応槽内に、この馴養した活性汚泥をMLSSが約2,000mg l⁻¹となるように導入し、T-N 40mg l⁻¹ (Organic-N, NH₄-N, NO₂-N, NO₃-Nがそれぞれ15, 25, 0, 0mg l⁻¹) の組成の、生活排水を模した合成排水をHRTが8時間になるように連続供給した。なお、処理水の引き抜きは平膜フィルターを用いて行った。

実験のパラメーターは、DO濃度、水中のNO₃-N濃度およびpHとした。実験系は通気量の設定を変えることにより、DO濃度を0.5, 1.0, 2.0, 4.0mg l⁻¹の4系を設定し、pHは7.0に設定した。これらの4系に対して合成排水を連続供給し、DOの硝化反応およびN₂O発生に及ぼす影響について検討した(段階I)。次に、この合成排水に対してNO₃-N濃度がそれぞれ40mg l⁻¹、80mg l⁻¹増加するように段階的にKNO₃を添加して流入させ、NO₃-N濃度の及ぼす影響について検討した(段階II)。さらに、はじめの合成排水を流入させつつ、反応槽内のpH値を7.0から6.0, 5.0へと段階的に変化させてpHの及ぼす影響について検討を行った(段階III)。これらの実験条件についてまとめると表1に示すとおりである。

試料の採取は発生ガスおよび処理水等について行った。ガス試料については大気中へと放出されるものおよび反応槽内の活性汚泥懸濁液中に溶存しているものの2種類について採取した。また、水質分析のための試料については、流入原水および反応槽内活性汚泥懸濁液を採取した。採取した試料の分析は、水質項目については下水試験方法(1984)に準じて行い、N₂OはECD-GCを用いて行った。

得られた結果としては、水質からみた場合、DO濃度が0.5mg l⁻¹程度であっても十分に硝化反応は進行し、NO₃⁻の蓄積による反応への影響も観察されず、硝化率はいずれの系においても90%以上の値が得られた。反応槽内のDOおよびNO₃-N濃度とN₂O発生速度との関係は図2に示すとおりである。N₂O発生速度はNO₃-Nの低濃度領域においてはDOの値に関わらずほぼ同程度の値をとったが、NO₃⁻の蓄積に伴って全ての系において発生速度は大きくなり、その値はDO値の高い系ほど大きくなった。

また、水中のpHの硝化反応への影響も観察されず、全ての実験系において硝化率は90%以上が得られ、硝化速度にも影響はみられなかった。反応槽内のDOおよびNO₃-N濃度とN₂O発生速度との関係は図3に示すとおりである。また、N₂O発生速度は、pHが7.0および6.0の条件下におい

表1. 生物学的硝化反応に伴うN₂O発生およびその抑制機構の解明に関する実験条件

段階 I	段階 II	段階 III
DO濃度設定値 変動影響解析	NO ₃ -N蓄積 影響解析	pH値変動 影響解析
DO値 (mg l ⁻¹)	段階 I の条件下、 流入原水中	段階 I の条件下、 ばっ気槽中
0.5	NO ₃ -N; 40mg l ⁻¹ ,	pH; 6.0,
1.0	NO ₃ -N; 80mg l ⁻¹	pH; 5.0
2.0	に変化	に変化
4.0		

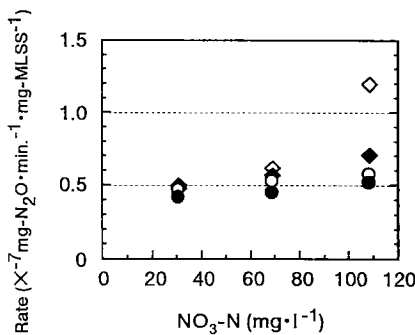


図2. DOおよびNO₃-N蓄積のN₂O発生に及ぼす影響

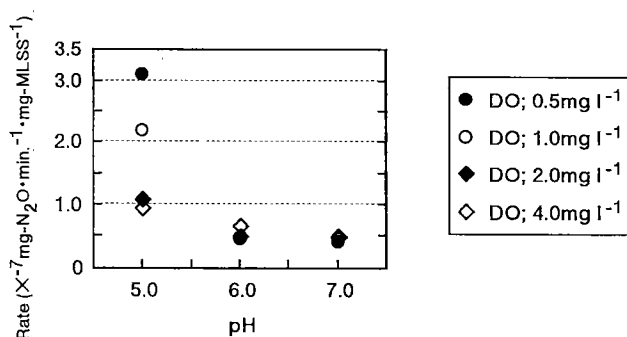


図3. DOおよびpHのN₂O発生に及ぼす影響

てはDO値に関わらずほぼ同程度の値をとったが、pHを5.0まで低下させると全ての系において発生速度は急激に増大した。すなわち低pHは N_2O 発生量の増大に大きな影響を及ぼすことから、pHは重要な維持管理因子であり、pH低下を抑制することは N_2O 発生を抑制する上で極めて重要であることが明らかとなった。

これらのことを総合的に検討評価すると、硝化反応における N_2O 発生を抑制するためには、特にpHの制御が重要であることが示唆された。一般に硝化反応の進行に伴いpHは低下し、脱窒反応の進行に伴いpHは上昇する。生物学的排水処理においては、NaOH等の添加によりpHの低下を防止するといった方法も採られているが、嫌気工程を組み込み、好気および嫌気の各工程を適切に制御することにより、硝化反応および脱窒反応を効率的に進行させ、脱窒反応の進行による NO_3^- 濃度の低減とともに、pHの低下を抑制することが重要であると考えられた。

3.2 DO制御間欠ばっ気活性汚泥法による N_2O 抑制、窒素除去のための最適操作因子解明のための基礎的検討

基本単位プロセスとしての硝化反応に関する検討結果に基づき、代表的な嫌気/好気処理プロセスの1つである間欠ばっ気活性汚泥法に対して、嫌気および好気の各工程の最適操作条件について、従来のタイマー制御方式とDO自動制御方式との比較検討を行い、窒素除去能、 N_2O 発生抑制能等について解析評価を行った。実験は、生活排水の処理を想定した間欠ばっ気活性汚泥法の装置2系を用いて行った。ばっ気攪拌の制御方式としては、Run1としてDO制御、Run2としてタイマー制御の各方式の間欠ばっ気活性汚泥法を用いた。実験装置は5.4lのばっ気槽および2.5lの沈殿槽から構成され、沈殿槽において沈降分離した汚泥は、ポンプによりばっ気槽へと返送される仕組みになっている。実験装置については図4に示すとおりである。流入排水は $BOD\ 200\text{mg l}^{-1}$ 、 $T-N\ 40\text{mg l}^{-1}$ (Organic-N, NH_4-N , NO_2-N , NO_3-N がそれぞれ15, 25, 0, 0mg l^{-1})、 $T-P\ 5\text{mg l}^{-1}$ であるような合成排水を使用し、HRTは12時間、ばっ気槽内MLSSは約 $3,000\text{mg l}^{-1}$ 、汚泥返送率は50%となるように設定した。また、実験は 20°C 恒温室内で行った。

実験装置のばっ気制御方式については、一方のRun1においてはばっ気槽内のDO濃度が連続的に計測されている。好気工程のばっ気開始後、ばっ気槽内のDO値が 3.0mg l^{-1} に達するまでばっ気は継続される。DO値が 3.0mg l^{-1} に達するとばっ気が停止され、DO濃度は低下してくる。そしてDO値が 0.5mg l^{-1} にまで低下した時点から、嫌気工程のタイマーが60分間作動する。これを1サイクルとして、好気および嫌気のサイクルが周期的に繰り返される。他方のRun2においては1サイクルが好気工程60分および嫌気工程60分に固定されており、タイマー制御により好気および嫌気の各工程が同様に周期的に繰り返される。

各実験系における、ばっ気槽から大気中への N_2O 放出速度およびばっ気槽内の溶存 N_2O 濃度の経時変化については図5に示すとおりである。大気中への N_2O 放出速度は、Run1においては好気工程の時間経過に伴って N_2O 放出速度、溶存 N_2O 濃度ともに増大し、好気工程の中間期にそれぞれ最大値となった。なお、嫌気工程時においては N_2O 放出速度は好気工程時の1/10程度となり、さらに溶存 N_2O 濃度は嫌気工程の時間経過に伴い減少し続けた。また、Run2においては、大気中への N_2O 放出速度は

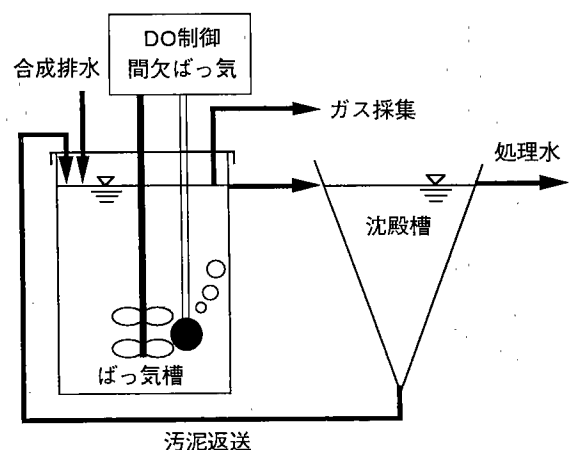


図4. N_2O 抑制、N除去型DO制御間欠ばっ気活性汚泥法基礎実験装置

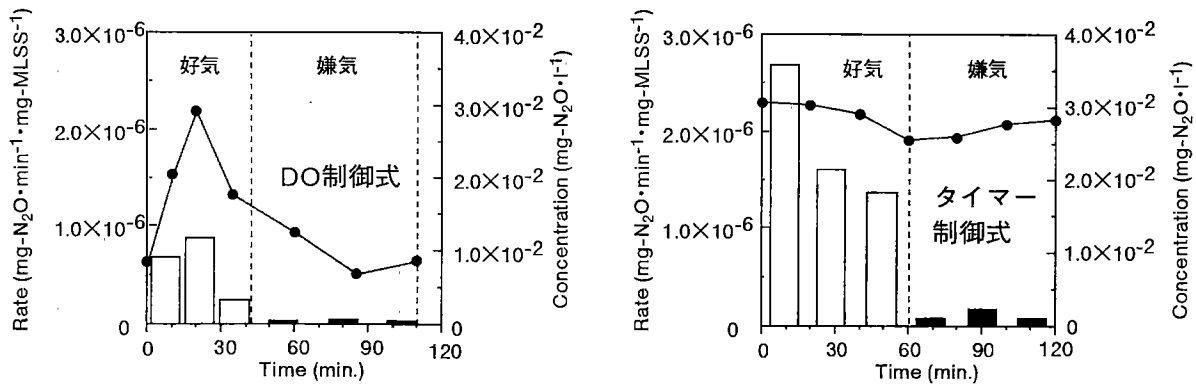


図5. 間欠ばっ気方式と大気中へのN₂O発生速度および溶存N₂O濃度との関係

嫌気工程時に比較して好気工程時に大きな値を示したが、その値はRun1の2~3倍の大きさとなった。また、Run1と異なりN₂O放出速度、溶存N₂O濃度ともに好気工程時の初期に最大値をとった。そして好気工程の時間経過に伴って、N₂O放出速度、溶存N₂O濃度ともにその値が減少し、好気工程終了時に溶存N₂O濃度は最小値となった。嫌気工程においてはRun1同様にN₂O放出速度は好気工程時の1/10程度であったが、Run1と比較するとやはりその値は2~4倍の大きさであった。さらに、Run2においては、嫌気工程時のN₂O放出速度は嫌気工程の中間期においてその他の時間帯よりも大きな値を示した。溶存N₂O濃度は、Run1とは対照的に嫌気工程の時間経過に伴いその値が増大した。

各実験系におけるばっ気槽内活性汚泥懸濁液中の窒素濃度の経時変化については図6に示すとおりである。Run1、Run2ともに好気工程時にNH₃-N濃度が減少し、NO₄-N濃度が増大した。また、嫌気工程時にはNO₃-N濃度が減少した。この現象は、好気工程時には硝化反応が、嫌気工程時には脱窒反応が進行していることを示している。NO₂-Nの蓄積はいずれの処理系においても観察されなかった。窒素除去率としては、Run1すなわちDO制御方式が62.5%、Run2すなわちタイマー制御方式が56.9%であった。水質も考慮しつつN₂Oの放出特性を考察すると、DO制御方式は、好気および嫌気の各工程を最適な時間配分に制御することが可能であり、効率的な硝化・脱窒反応の進行により窒素除去能の向上とN₂O発生の抑制が可能となったものと考えられる。これに対してタイマー制御方式においては、本実験装置に関しては酸素供給効率が高かったために嫌気条件が不十分となり脱窒反応の進行が阻害され、DO制御方式に比較してN₂O発生量の増大と窒素除去率の低下を招いたものと考えられた。また、タイマー制御方式は負荷変動等に対する対応も含めてばっ気槽内の嫌気および好気の状態を最適に制御することは困難であると考えられる。

これらのことから、N₂O発生抑制および窒素等の栄養塩類の高度除去を目標とした生活排水処

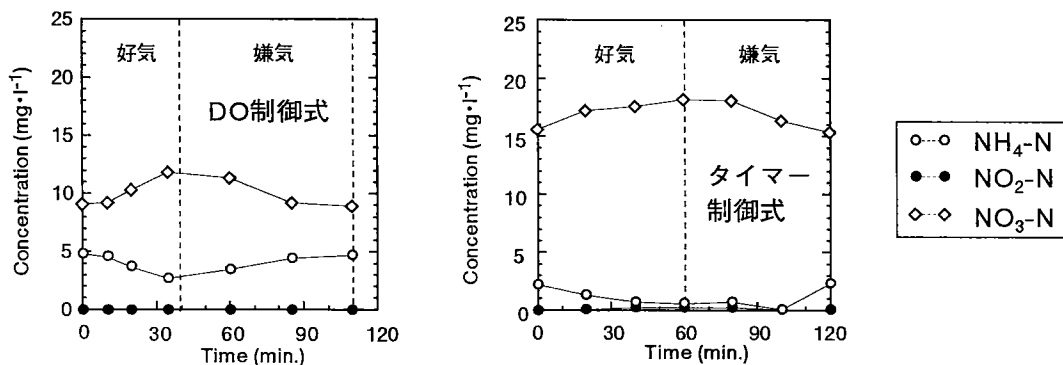


図6. 間欠ばっ気方式とばっ気槽内水質との関係

理に対して、DO制御間欠ばつ気活性汚泥法が有効な手法であることが示唆されたが、ここで得られた結果は合成排水を用いたベンチスケールでの検討に基づくものであるため、本処理プロセスの実生活排水処理への適用に関する検討評価がさらに必要であると考えられた。

3.3 N₂O放出および富栄養化抑制型高効率硝化脱窒プロセスの実用化に関する検討

N₂O放出抑制型DO制御間欠ばつ気活性汚泥法の実施設への適用に関して、N₂Oの発生抑制と窒素の同時除去の達成と、やはり富栄養化の制限因子であるリン除去とを連動させるために、凝集剤添加DO制御間欠ばつ気活性汚泥法の実処理実験プラントを用いて検討を行った。さらに、生活系排水の処理における硝化・脱窒反応を含めた窒素除去能およびN₂O放出特性およびその抑制能と同時に、流入窒素過負荷条件下における処理能の検討も行った。

本研究に用いた実験施設の概要を図7に示す。本実験施設は茨城県内の団地に設置してあるDO制御間欠ばつ気活性汚泥法実験プラントであり、凝集剤添加も可能な生活排水処理の実プラントである。本プラントの設計規模は、ばつ気槽容積12m³、同HRT19時間、最終沈殿槽HRT3時間、処理対象人員75人、処理水量15m³ day⁻¹である。間欠ばつ気はプロワおよび水中攪拌機によって行い、好気および嫌気の1サイクルを120分とし、連続計測した反応槽内のDOおよび水温の値をもとに呼吸速度・硝化速度等の演算を行い、各工程の時間配分を決定する仕組みになっている。

また、リンの物理化学的除去を目的として、ポリ硫酸鉄 (FeSO₄) をばつ気槽内に添加し、かつ最適凝集範囲に設定できるように、pH自動調整装置により水酸化ナトリウムが添加された。なお凝集剤は、既往の研究に基づき活性汚泥の微生物活性に対して影響を及ぼすことのない添加量で使用されている。

流入原水は、団地の生活排水を処理している合併処理浄化槽の最初沈殿池から採水した排水を用いたが、その組成としてはNH₄-NおよびT-N濃度がそれぞれ17および30mg l⁻¹程度であり、NO₂-NおよびNO₃-Nはほとんど検出されなかった。また、T-P濃度およびBODの値は、それぞれ4.0および150mg l⁻¹程度であった。

その結果としては、ベンチスケールでの検討結果と同様に嫌気工程時に比較して好気工程時に大きなN₂O放出速度が観察され、その値はばつ気槽全体で好気および嫌気工程時でそれぞれ244.2および60.9mg day⁻¹となり、溶存態での処理系外への流出は、92.1mg day⁻¹であった。窒素に関するばつ気槽内の水質からは、好気工程時の硝化反応の進行および嫌気工程時の脱窒反応の進行が観察された。N₂O発生抑制を含めた処理能を連続ばつ気活性汚泥法と比較した結果は表2に示すとおりである。本処理プロセスは、DO計測によるばつ気攪拌の最適制御により、連続ばつ気活性汚泥法に対して、N₂O放出量および転換率の効果的な低減が可能であることが確認された。

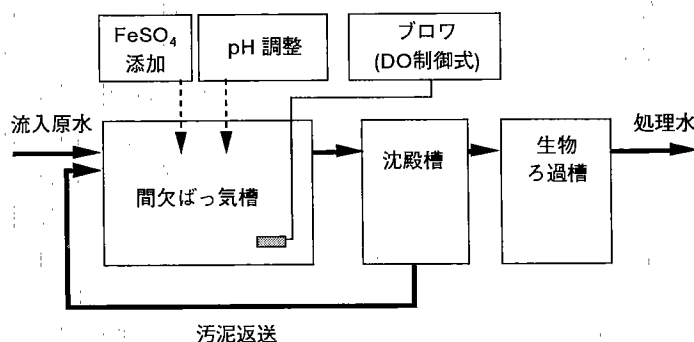


図7. N₂Oおよび富栄養化抑制型高度排水処理プロセスのベンチスケール装置

表2. 活性汚泥法における窒素収支の比較

処理方法	窒素除去率 (%)	N ₂ O転換率 ⁽¹⁾ (%)	N ₂ O転換率 ⁽²⁾ (%)
凝集剤添加間欠ばつ気活性汚泥法	84.4	0.05	0.06
標準活性汚泥法	5.1	1.23	24.3

(1) 流入窒素あたり、窒素換算したもの
(2) 除去窒素あたり、窒素換算したもの

また、流入窒素負荷を高めた場合には、好気工程、嫌気工程ともに N_2O 放出速度は増大し、特に $0.035\text{kg-T-N kg-MLSS}^{-1}\text{ day}^{-1}$ の条件下では急激に増大した。流入窒素負荷の N_2O 放出速度に及ぼす影響については図8に示すとおりである。これらのことから流入および除去窒素あたりの N_2O 転換率を算出すると、窒素負荷が $0.021\text{kg-T-N kg-MLSS}^{-1}\text{ day}^{-1}$ 以下の時はそれぞれ0.05および0.06%程度であったが、負荷を $0.035\text{kg-T-N kg-MLSS}^{-1}\text{ day}^{-1}$ に高めた場合、その値は0.66および1.13%へと急激に増大した。流入窒素負荷と硝化率および窒素除去率との関係については図9に示すとおりである。流入窒素負荷を高めていった場合、窒素除去率および硝化率の低下がみられるレベルよりも高負荷条件下において、 N_2O 放出量の増大の生じることがわかった。すなわち、窒素除去が高度に達成可能であるような適切な負荷条件下で処理を行う限り、 N_2O 放出抑制を同時に達成できることが明らかとなった。

これらの検討結果から、凝集剤添加DO制御間欠ばつ気活性汚泥法は、温室効果ガス N_2O の発生抑制と、富栄養化制限物質である窒素およびリンの同時除去とを高度に達成することが可能であり、さらに、ある程度の負荷変動に対しても対応が可能であることが明らかとなった。よって本処理プロセスは、地球温暖化防止および水環境の改善を図る上で極めて有効な手法であると考えられた。

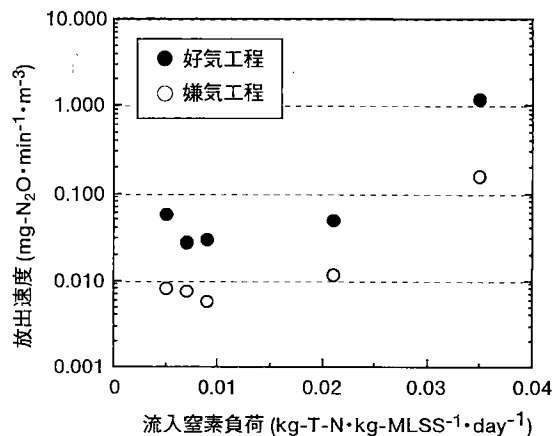


図8. 流入窒素負荷が大気中への N_2O 発生速度に及ぼす影響

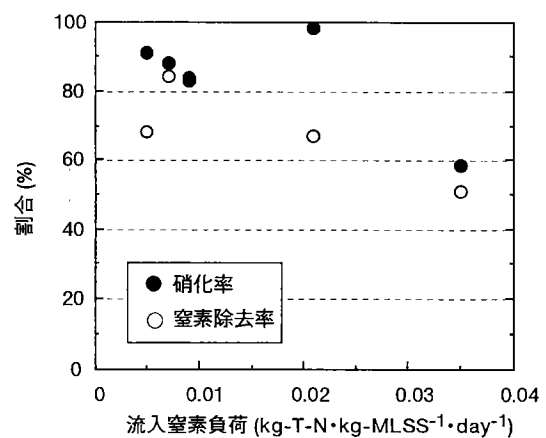


図9. 流入窒素負荷と窒素処理能との関係

4. 高濃度の豚舎排水の効率的な処理および温室効果ガス発生量を削減可能なプロセスの開発に関する検討

4.1 農村集落排水処理施設における N_2O 発生特性とその削減可能性に関する検討

水処理における CH_4 、 N_2O 対策としては、湖沼等の富栄養化防止についても考慮しつつ各種の高度処理プロセスの研究開発を行っていく必要がある。その場合、生活系排水対策としては下水道や浄化槽の研究開発とその普及があげられるが、農村地域においては普及が遅れているのが現状である。また、水処理における大きな CH_4 、 N_2O 放出源としては生活系排水の他に食品工業排水や畜舎排水等の各種産業系排水があげられるが、特に高濃度に有機物および窒素を含むこれらの排水については今後もデータの収集と発生抑制対策技術の研究開発が重要な位置づけにある。そこで本研究では CH_4 、 N_2O による地球温暖化の対策技術の確立を目的として、生活系排水である農村集落排水処理施設および畜舎排水処理施設からの CH_4 や N_2O の発生特性を調査・解析した。

まず、農村集落排水処理施設における温室効果ガス発生特性について、宮城県仙台市にあるKクリーンセンターにおいて実態調査を行った。このセンターの排水処理システムは嫌気性ろ床法と接触ばつ気法を組み合わせたJARUS(企型と呼ばれる方式であり、1日の流入汚水量は 243m^3 である。流入原水の性状は、SS、BODはおよそ 100mg l^{-1} 前後と下水に比較して低く、T-Nにつ

いては 30mg l^{-1} 程度であった。

調査結果としては、SS、BODおよび窒素除去率はそれぞれ約90、80および25%であり窒素除去率が低かった。それぞれの工程ごとの窒素の形態変化としては、嫌気槽では流入原水に含まれるタンパク質等の有機物の嫌気分解によると考えられる $\text{NH}_4\text{-N}$ の濃度上昇が認められた。一方、好気槽では $\text{NH}_4\text{-N}$ の硝化による $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度上昇が生じており、特に $\text{NO}_2\text{-N}$ の蓄積が認められ、亜硝酸型の硝化が起っていた。Kクリーンセンターの原水の特性から考えると、硝化に必要なアルカリ度は理論値にほぼ等しく余裕がないため、硝化過程でのアルカリ度の減少が亜硝酸型での硝化となった原因と考えられた。

このような処理工程からの N_2O の発生に関しては、ばっ気槽において 3.6ppmv の濃度で発生が観察されたが、これを流入窒素あたりの転換率に換算すると約3.6%になる。濃度的には従来下水処理施設等で報告されていた数値と同程度ではあるものの、転換率は高めであり、窒素除去量（脱窒量）あたりでは約14%に達した。亜硝酸型での硝化が起こる場合の N_2O の発生量は高くなり、転換率として30%程度にもなるという知見が得られているが、農村集落排水処理施設においても同様の現象がみられ、発生抑制のためには原水の特性に依じた適切な処理プロセスの選択、運転管理が重要であると考えられた。

4.2 豚舎排水処理施設における N_2O 発生特性とその削減可能性に関する検討

豚舎排水処理施設からのガス発生特性の調査は宮城県栗原郡高清水町にあるS牧場の排水処理施設において行った。当養豚場は子豚からの一貫生産体制をとっており、母豚、子豚、成長途中の豚、成豚などそれぞれの豚ごとに豚舎が異なっている。排泄物については肥育豚舎には糞尿分離タイプ、分娩、離乳舎には糞尿混合タイプが採用されているが、いずれにおいても最終的に糞と尿は分離され、糞は堆肥舎に運ばれ堆肥化され、尿は流量調整槽に送られた後、複合ラグーン方式によって処理が行われる。豚舎全体からの排水量は1日あたり約 100m^3 であるが、これを3回に分けてラグーンに投入し処理を行うため1サイクルあたりの污水投入量は約 33m^3 となる。なお、処理プロセスの概要については図10に示すとおりである。

流入原水のBODは $2,000$ から $4,000\text{mg l}^{-1}$ の間であったが、T-Nの濃度は $1,000$ から $1,500\text{mg l}^{-1}$ であるため、C/N比としては2.0を若干上回る程度であった。また、窒素のほとんどは $\text{NH}_4\text{-N}$ であった。しかし、処理水についてはおよそ4月から10月までは良好な値を示し、BODは約 20mg l^{-1} 、T-Nについては 100mg l^{-1} 程度と、複合ラグーンでは有機物の除去のみならず窒素も高度に除去されることがわかった。しかし秋季から冬季にかけては処理性が低下し、有機物に関しては 100mg l^{-1} 前後であるものの、窒素に関しては 200mg l^{-1} を超える値も認められ、処理水中の窒素はほとんどが $\text{NH}_4\text{-N}$ であったことから水温の低下による硝化活性の低下が窒素除去能の低下を引き起こしたと考えられた。

発生ガスの採取はこの処理能の低下しはじめた時期に行ったが、その結果は図11に示すとおりである。回分式の嫌気・好気工程の好気工程であるばっ気時に採取したガス試料中の N_2O 濃度は約 100ppmv に達し、ばっ気終了までその濃度は維持された。これはばっ気開始とともに硝化が始まり、硝化の進行につれて N_2O の発生量が増加したものである。このラグーンにおけるばっ気

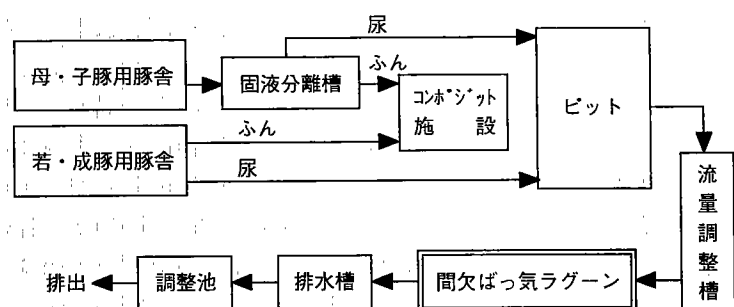


図10. 豚舎および豚舎排水処理施設

量は $30,000\text{m}^3 \text{ day}^{-1}$ であり、これらのことを考慮しつつ流入原水の N_2O 転換率を算出すると3.6%となった。

これらの結果をもとに、ばっ気槽のHRTを12時間とし、好気および嫌気の時間配分（時間/時間）をそれぞれ4/8、6/6および8/4に設定した3系の実験系と、対照系としての連続ばっ気の実験系の合計4系の実験系を用いてベンチスケールでの検討を行った。その結果、連続ばっ気系においては亜硝酸型の硝化反応が進行し、他の処理系と比較して顕著な N_2O の発生が観察された。また、8/4系においてもやや硝酸の蓄積がみられ、亜硝酸型の硝化反応が進行するほど N_2O 発生量も増大する傾向がみられた。

これらのことから、窒素除去を進めつつ N_2O の発生を抑制するためには、生活系排水の項目においても考察したように、嫌気・好気条件の組合せとその適正化が重要であると考えられた。そして、豚舎排水処理施設における実態調査結果もふまえて総合的に考察すると、複合ラグーン方式は有機物・窒素濃度の高い豚舎排水を処理するには優れた方式であると考えられる。これからはさらに、特に冬季間の硝化・脱窒反応が適切に進行し温室効果ガスの発生が抑制可能であるような、嫌気・好気工程等の運転操作条件の適正化等に関する検討評価が重要であると考えられる。

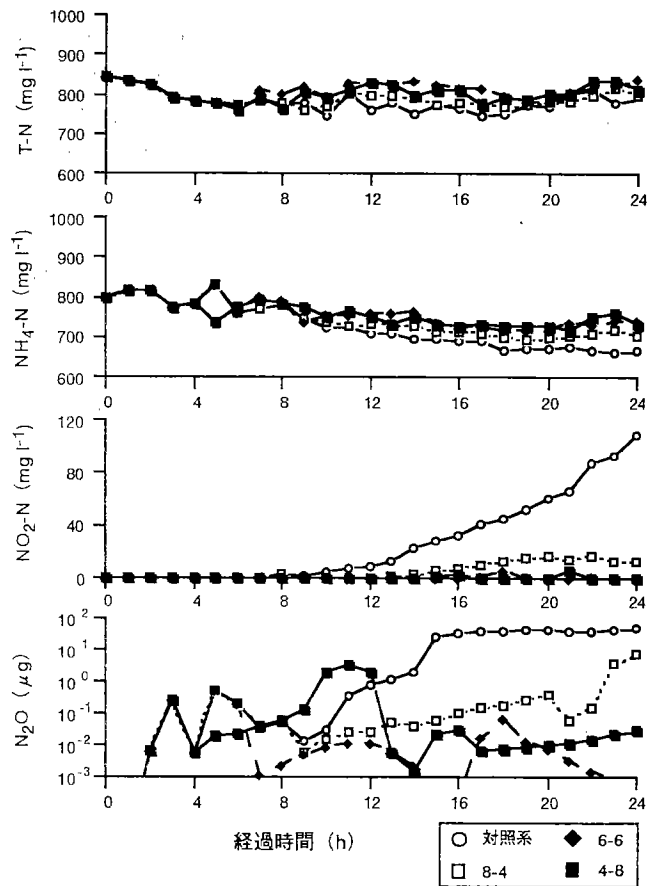


図11. ラグーンにおける水質および N_2O 発生量の経時変化

5. 人為的汚染を受けた湿地帯からの CH_4 放出量の把握方法の確立および CH_4 酸化細菌の分離培養と機能解明に関する開発に関する検討

5.1 湿地帯における植生・土壌・底泥の特質と CH_4 放出量との関係に関する検討

CH_4 は別名沼気とも呼ばれているように、有機物を多量に含む湖沼の底泥等から発生していることは古くから知られている。なかでも水深の浅い湿地帯は陸水帯としても広い面積を有しており、とくに人間活動の活発な地域に隣接する湿地帯では生活排水等の流入による有機汚濁のために、 CH_4 と N_2O の活発な発生がなされていると推測される。しかしながら、定量的な評価とそれに基づく発生抑制対策についての検討はごく限られた例にとどまっていることから、本研究ではまず、人為的汚染を受けている湿地を対象として CH_4 、 N_2O の放出の実態調査を実施するとともに、湿地帯の植生・土壌・底泥の特質と CH_4 放出量との関係について検討評価を行った。

対象研究フィールドとして設定した湿地より発生する CH_4 を実測に基づいて量的に把握するためには、湿地の底泥や植生等により異なる条件の観測地点を設定して湿地全体からの CH_4 発生量が推定できるような評価手法を採用する必要がある。本研究では宮城県北部に位置しラムサール条約の指定湖沼である伊豆沼を調査対象湿地とした。

発生ガスの採取方法としては、底泥・陸域湿地・水面湿地ともにビニールチャンパーを設置し、

これを用いてガスの採取を行った。採取したガス試料は、 CH_4 についてはFID-GCを用いて、 N_2O についてはECD-GCを用いて分析を行った。

湿地の植生と底泥中に抑留された CH_4 ガス量との関係については表3に示すとおりである。植生の違いによって1日あたりに底泥中に抑留される CH_4 の量は大きく異なることが知られた。すなわち、ショウブ群生湿地底泥は比較的大きな CH_4 の発生が観察されたが、有機物含量の高いハス群生地の底泥からは CH_4 の発生量はそれほど大きくはなかった。また、発生ガス量は季節的に大きく変動することがわかった。これらの結果は湿地群生植物の種類によって湿地底泥の CH_4 生成あるいは発生後の酸化分解の様子が異なることを示すものと考えられる。このことから、 CH_4 生成または酸化促進の可能な湿地植生を利用して、人為的な汚染を受ける湿地からの CH_4 の放出を制御できる可能性が考えられた。

表3. 伊豆沼湿地底泥に抑留されたガス量と湿地植生との関係

調査地域の植生	1日で底泥に抑留されたメタンガス量 (mg- CH_4 底泥- m^{-2} day $^{-1}$)			
	5月14-15日	8月7-8日	10月16-17日	12月18-19日
ショウブ群生域	18	112	129	0
ハス群生域	22	26	69	9
無植生域	9	15	41	0

陸域湿地であるマコモ群生陸域における CH_4 の放出量の年間変動を図12に示す。これよりマコモ群生陸域湿地では秋季に CH_4 放出量が增大することが知られた。一方、ヨシ群生陸域における CH_4 の放出は年間を通じて微量であった。また、夜間においては二酸化炭素の放出と CH_4 の放出が同一傾向でみられたが、昼間においては二酸化炭素ほどではないがマコモ群生域で CH_4 の吸収傾向がみられ、昼夜や日照の時間帯による CH_4 放出に変動があることが知られた。

水面湿地に関しては湖水内の代表的植生であるハス群生区とショウブ群生区および植生のみられない無植生区において水面より放出される CH_4 を測定したが、得られた結果の例としてハス群生水域における CH_4 の放出量の年間変動を図13に示す。これよりハス群生湿地でも10月と11月の秋季に CH_4 放出量が增大することが知られた。ただし、単位面積当たりの放出量の最大値はマコモ群生陸域湿地の1/6程度であった。

測定した湿地からの CH_4 の放出で最も量的に多かったのは、陸域湿地であるマコモの群生地であった。マコモ群生地の土壌は調査した地点の中では最も有機物含有率が高く、特にマコモが倒伏する秋季に有機物含有量が增大した。また、この有機物含有量の増大する秋季に CH_4 の放出量も大きく増大している。一方、測定した湖沼水面湿地の中で最も CH_4 放出量の多かった区域はショウブ植生地であった。水面湿地の底泥で最も有機物含有率が高かったのがハス群生

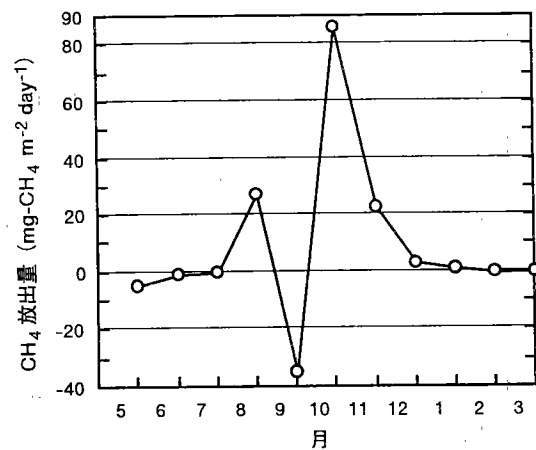


図12. マコモ群生陸域湿地における1日あたり CH_4 放出量

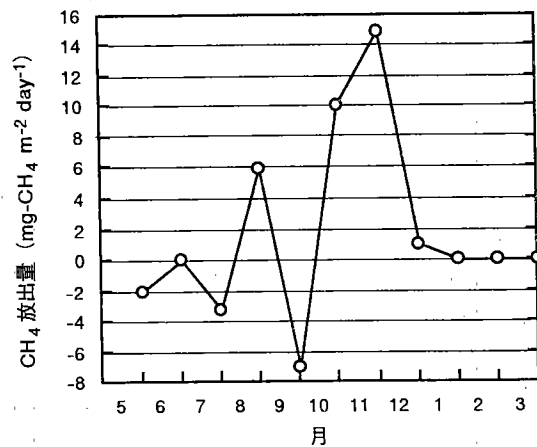


図13. ハス群生水面湿地における1日あたり CH_4 放出量

地であったにも拘わらず、またハス群生地からの放出ガス量がきわめて多かったにも拘わらずCH₄の放出量が少なかったということは、ハス群生地の底泥におけるCH₄の生成が少ないかまたは生成されたCH₄の酸化分解が活発になされていることを示すものと考えられる。

以上のことから、湿地においては人為的汚濁物質の流入蓄積とともに栄養塩の供給による植生の繁茂によって底泥や土壌に有機物が蓄積され、これを分解することによってCH₄が生成・放出されると考えられる。このことは、植生を利用してCH₄酸化細菌の増殖と活性化を促進し、生態工学的に湿地からのCH₄の放出を抑制できる可能性を示唆している。

5.2 湿地に生息する土着CH₄酸化細菌の集積培養および単離培養とCH₄放出量の削減対策への応用の可能性についての検討

伊豆沼湖沼内数地点の底泥サンプルおよび同湖沼のマコモ群生陸域土壌を土着CH₄酸化細菌の分離源として、バイアルビンによる集積培養および嫌気ジャー中での平板純粋培養を行ったが、本研究を通して5株のCH₄酸化細菌を分離することができた。しかし、今回純粋分離したCH₄酸化細菌は増殖速度が遅く、大量に培養することが困難であった。したがって、集積培養によるこれらのCH₄酸化細菌の大量培養と、人為的汚濁を受ける湿地への導入利用の可能性等について、今後さらに研究を行う必要があると考えられる。また、湿地植生を利用した、CH₄酸化細菌の現場での増殖促進手法についても検討を行う必要があると考えられる。

6. 引用文献

- 1) IPCC (1992): Climate Change 1992 -The Supplementary Report to The IPCC Scientific Assessment-, Cambridge University Press.
- 2) 陽捷行編 (1994) : 土壌圏と大気圏、朝倉書店.
- 3) IPCC (1995): Climate Change 1995 -Impacts, Adaptation and Mitigation of Climate Change-, Cambridge University Press.
- 4) 松本聰編 (1995) : 微生物のガス代謝と地球環境、学会出版センター.
- 5) 環境庁地球環境部監修 (1996) : IPCC地球温暖化第二次レポート、中央法規.
- 6) 長田隆外 (1994) : 豚糞の堆肥化過程から発生するNH₄、N₂O、CH₄の原単位、日本土壌肥料学会講演要旨集、vol. 40、pp. 192.
- 7) 農文協編 (1995) : 畜産環境対策大事典.
- 8) (社) 畜産技術協会 (1997) : 畜産における温室効果ガスの発生抑制第二集.
- 9) R.S. Oremland, and C. W. Culbertson (1992): Importance of methane-oxidizing bacteria in the methane budget as revealed by the use of a specific inhibitor., Nature, 356, 421-423.
- 10) P.I. Boon, and A. Mitchell (1995): Methanogenesis in the sediments of an Australian freshwater wetland: Comparison with aerobic decay, and factors controlling methanogenesis., FEMS Microbiology Ecology, 18, 175-190.
- 11) Catalogue of Bacteria & Bacteriophages, 18th edition, American Type Culture Collection, (1992).

[成果発表]

(1) 口頭発表

- ① 木持 謙、松村正利、照沼 洋、水落元之、稲森悠平: Advanced Wastewater Treatment for Preventing Global Warming and Eutrophication of Closed Water Bodies, 6th International Conference on the Conservation and Management of Lakes-Kasumigaura '95, Ibaraki, (1995)
- ② 木持 謙、水落元之、呉 暁磊、稲森悠平、松村正利: 生物学的硝化反応における窒素負荷と N_2O 発生との関係、日本水処理生物学会第32回大会、大阪、(1995)
- ③ 木持 謙、松村正利、稲森悠平、水落元之、呉 暁磊: 高度排水処理技術による温室効果ガスの発生抑制、第3回生物利用新技術研究シンポジウム、大阪、(1995)
- ④ 木持 謙、水落元之、稲森悠平、松村正利: 生物学的硝化脱窒反応および N_2O 発生に及ぼすDOの影響と効果、第30回日本水環境学会年会、福岡、(1996)
- ⑤ 木持 謙、稲森悠平、水落元之、徐 開欽、松村正利: Effects of Anaerobic Condition on the Nitrogen Removal and the Greenhouse Gas Emission in Intermittent Aeration Activated Sludge Process, Water Quality International '96-18th Biennial Conference and Exhibition, Singapore, (1996)
- ⑥ 木持 謙、水落元之、稲森悠平、松村正利: 間欠曝気活性汚泥法の単位プロセスにおける N_2O 発生特性、日本水処理生物学会第33回大会、つくば、(1996)
- ⑦ 市川雅英、稲森悠平、木持 謙、前川孝昭: 生物学的窒素除去法における亜酸化窒素(N_2O)発生動力学モデル、日本水処理生物学会第33回大会、つくば、(1996)
- ⑧ 稲森悠平、木持 謙、水落元之、岡安智道、古屋 昇: 鉄塩凝集剤添加間欠曝気活性汚泥法における N_2O 発生特性、日本水処理生物学会第33回大会、つくば、(1996)
- ⑨ 木持 謙、松村正利、水落元之、稲森悠平: 温室効果ガス発生抑制のための間欠ばつ気活性汚泥法の最適操作条件、第4回生物利用新技術研究シンポジウム、大阪、(1996)
- ⑩ 木持 謙、水落元之、稲森悠平、松村正利: 生物学的硝化反応における N_2O 生成速度に影響を及ぼす環境因子の解析、第31回日本水環境学会年会、札幌、(1997)
- ⑪ 木持 謙、岡安智道、水落元之、稲森悠平、古屋 昇、戎野棟一、松村正利: Characteristics of N_2O Emission and Nutrients Removal from the Coagulant Dosed and DO Controlled Intermittent Aeration Activated Sludge Process, Asian Waterqual '97-6th IAWQ Asia-Pacific Regional Conference, Korea, (1997)
- ⑫ 水落元之、稲森悠平: 下水の標準活性汚泥法および嫌気・無酸素・好気法による処理に伴う CH_4 、 N_2O 放出量の比較について、日本水処理生物学会第34回大会、広島、(1997)
- ⑬ 木持 謙、水落元之、稲森悠平、松村正利: 生物学的硝化反応及び N_2O 生成に及ぼすDO、pH、硝酸の影響に関する速度論的解析、日本水処理生物学会第34回大会、広島、(1997)
- ⑭ 西村 修、水落元之、稲森悠平、秋葉道宏、東 雅伸、井澤博文: 生物膜法による脱窒過程での N_2O の発生に関する基礎的研究、日本水処理生物学会第34回大会、広島、(1997)
- ⑮ 小野寺健二、餘目仁志、及川貴、遠藤銀朗: 地球温暖化防止を目的とする湿地からのメタン生成量の調査とメタン酸化細菌の探索に関する研究、土木学会東北支部技術研究発表会、仙台、(1997)
- ⑯ 小野寺健二、佐藤文範、菊池順、遠藤銀朗: 伊豆沼におけるメタン発生量に関する調査研究、土木学会東北支部技術研究発表会、仙台、(1998)
- ⑰ 木持 謙、水落元之、稲森悠平、松村正利: 生物学的硝化反応における N_2O 生成速度に及ぼすDO、pH、硝酸蓄積の影響、第32回日本水環境学会年会、千葉、(1998)

- ⑱ 小野寺健二、遠藤銀朗：伊豆沼におけるメタン発生量と発生要因に関する調査研究、土木学会年次学術講演会、(1998, 10月発表予定、投稿済)

誌上発表

- ① 木持 謙、稲森悠平、松村正利：間欠ばっ気活性汚泥法における流入窒素負荷の N_2O 放出および窒素除去に及ぼす影響、水環境学会誌、21 (3)、pp. 163-169、(1998)
- ② 稲森悠平、木持 謙、水落元之、須藤隆一：地球温暖化防止への取組みの現状と CH_4 、 N_2O の排水処理施設からの発生抑制対策、用水と廃水、40 (4)、pp. 337-346、(1998)
- ③ 稲森悠平、木持 謙、水落元之：水処理分野から発生する CH_4 、 N_2O の対策(1) -地球温暖化と富栄養化の同時コントロールを目指した効果的技術の開発-、水、40 (4)、pp. 16-23、(1998)
- ④ 稲森悠平、木持 謙、水落元之：水処理分野から発生する CH_4 、 N_2O の対策(2) -地球温暖化と富栄養化の同時コントロールを目指した効果的技術の開発-、水、40 (5)、pp. 66-71、(1998)
- ⑤ 木持 謙、稲森悠平、古屋 昇、戎野棟一、松村正利：Characteristics of N_2O Emission and Nitrogen Removal in a DO Controlled Intermittent Aeration Activated Sludge Process, Japanese Journal of Water Treatment Biology, in press.
- ⑥ 木持 謙、稲森悠平、水落元之、徐 開欽、松村正利：Nitrogen Removal and N_2O Emission in a Full-scale Domestic Wastewater Treatment Plant with Intermittent Aeration, Journal of Fermentation and Bioengineering, in press.