

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) 東北7都府県地域における CH₄、N₂O 抑制のための汚水・汚泥の適正処理技術開発に関する研究

② CH₄、N₂O 抑制のための有機系廃棄物の循環処理技術の開発

研究代表者 地域環境研究グループ 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
何 耀武(EFF)

平成 10 年～11 年度合計予算額 4,919 千円
(平成 11 年度予算額 2,414 千円)

[要旨] 高温好気発酵法による亜酸化窒素 (N₂O) とメタン (CH₄) の排出について、中国でその発生の急増に対する処理が大きな課題となっている家庭からの生ごみを対象として実験室規模で検討を行った。N₂O は、すべての実験で、コンポスト化の初期段階で発生がピークに達した。発酵排ガス中の N₂O レベルは、生ごみの処理量に比例して増加するものの、ほぼ 2 日で大気バックグラウンド濃度付近まで減少した。本処理法では一般的に反応促進剤としてコンポストを添加するが、コンポストの添加により N₂O 発生は処理の初期段階だけではなく後期段階にも増加し、発生曲線に 2 つのピークが認められた。発酵排ガス中の N₂O 濃度と発酵残さ物中の NO₂-濃度の間には相互関係が見られ、N₂O の前駆体が NO₂-であることが示唆され、亜硝酸塩の添加実験により確認された。亜硝酸塩の添加はコンポストを添加した系、添加しない系いずれの場合においても極度に高い N₂O の発生を誘引したことから、コンポスト添加の有無による N₂O 発生メカニズムの違いはないものと考えられた。実際にコンポストを添加した処理においては NO₂-の蓄積が認められたがコンポストを添加しない処理の場合には、NO₂-の蓄積はほとんど認められず、窒素のほとんどがアンモニア (NH₃) として揮散した結果と考えられた。したがって、本処理法において N₂O を抑制するには NO₂-が蓄積しない運転操作条件が重要である。

生ごみの投入方法も、N₂O 発生に影響し、生ごみの投入を分散させることにより一回の処理量を一度に投入するバッチ投入に比べ発生量が抑制されることが明らかになった。また、生ごみ組成中の炭素濃度が高いほど N₂O の発生ピークが遅れる傾向にあり、アンモニア化成の期間に影響することが示唆された。

一方、CH₄ は、コンポストを添加した処理においてのみ検出された。コンポストの添加は発酵を促進するものの有機物としてのコンポストの投入により有機物負荷が増加し、反応槽内部での嫌気ゾーンの形成が促進され、CH₄ の発生が大きくなると考えられた。

[キーワード] 亜酸化窒素、メタン、家庭生ごみ、高温好気発酵処理、生ごみ処理

1. はじめに

メタン (CH₄)、亜酸化窒素 (N₂O) は二酸化炭素 (CO₂) に次ぐ主要な温室効果ガス (GHG) であり、近年、対流圏での濃度の急激な増加による温室効果への影響の増大が懸念されている。これらの排出のメ

カニズムと排出量を左右する要素について (Williams ほか, 1992 年; Wu ほか, 1995 年; Paul ほか, 1993 年) と同様に、 N_2O と CH_4 の排出源と排出量の推定および対策技術の開発についても研究が行われた (Inamori ほか, 1991 年, Tanaka ほか, 1994 年) が、従来は水田、畜産からの CH_4 排出量の全体に占める割合が大きいと考えられていた事から農業システムに多くの注意が向けられていた。しかし、近年、廃棄物処理分野の持つ GHG、特に CH_4 、 N_2O の排出ポテンシャルの大きさからその排出源における排出量の推計および対策技術開発に関して大きな関心が寄せられている。一般的に生物分解が主な分解メカニズムである固体の廃棄物や廃液の処理では、好気性の状態にしておいてさえも、 CO_2 同様 CH_4 が相当量排出されると報告されている。さまざまな廃棄物処理施設、特に廃水処理施設 (Frette ほか, 1997 年)、焼却炉 (Tanikawa ほか, 1995 年)、および施肥化施設 (Czepiel ほか, 1996 年; Mahimairaja ほか, 1995 年) からの N_2O 排出に関して、報告されているが、これらの気体 (特に N_2O) の生成・排出メカニズムに関する知識は非常に限られており、種々雑多な廃棄物処理施設による精度高い排出量の推計は現時点においてまだ困難である。

家庭生ごみは、家庭からの主要な廃棄物であり、一般的には、埋め立て、焼却、コンポスト化等によって処理され、最終処分される。これらの処理技術からは原理的に GHG が排出するが、特に埋め立ておよびコンポスト過程における CH_4 の生成、排出に関して報告が成されており (Borjesson および Svensson, 1997 年; Boltze および de Freitas, 1997 年; Liu および Kunz, 1981 年; Akesson および Nilsson, 1998 年; Kjeldsen および Fischer, 1995 年; Wang ほか, 1997 年)、排出量は地球全体からの CH_4 排出量の 4 ~ 15% を占めるものと推定されている (Tsujiimoto ほか, 1994 年)。しかしながら、固体廃棄物を生物処理した場合の N_2O の生成、排出に関しては知見が非常に少ない。Tsujiimoto らは埋立処分場からの N_2O 発生について報告しており (1994 年)、Czepiel ほかは、有機系廃棄物のコンポスト化過程における N_2O 排出を検討し、 N_2O 排出量は発酵時間、堆積厚、発酵温度および湿度に大きく依存することを示した (1996 年)。

高温好気発酵法は、コンポスト化に比べ有機物の分解効率が高い手法であり、埋立処分や焼却処理に比べ、特に小規模分散型の優れた手法であると期待されている。しかし、そのような人工的な環境からのガス発生については知られていない。上記の点に鑑み、本研究では中国での分散型の生ごみ処理手法としての普及が期待される高温好気発酵法による CH_4 、 N_2O 排出量および排出特性を明らかにし、 CH_4 、 N_2O 抑制のための運転操作条件の最適化を図ることを目的とする。

2. 方法

2. 1 実験装置

すべての実験で、内容積 18 リットルの円筒形リアクターを使用した。装置の概略を Fig.1 に示すが、内部は投入された生ごみと通気性および微生物の住みかの確保のための発酵助材であるおがくずの完全な分散、混合を図るために攪拌ファンを備え、高トルクモーターにより緩やかに 0.8 rpm/min で攪拌した。また、通気の均一化のためにリアクター底部に穴のあいた板を設け、通常は乾燥重量 1 kg の生ごみ当り $0.7\text{L}/\text{min}^{-1}$ で通気を行った。冬期は通気空気による熱損失およびリアクター表面からの熱伝導による熱損失を避けるために、通気空気の電気ヒーターによる加熱とリアクターを断熱チャンバーで覆った。実験中の反応生成物および発酵助材の漏出を防ぐためにリアクター底部にバンチングボードを上面に持つくぼみを設けた。

リアクターは直天秤の上におき、反応に進行に伴う重量変化を連続的に記録された。また、リアクター

内の温度は内部に埋め込んだサーミスターによって連続的に測定された。

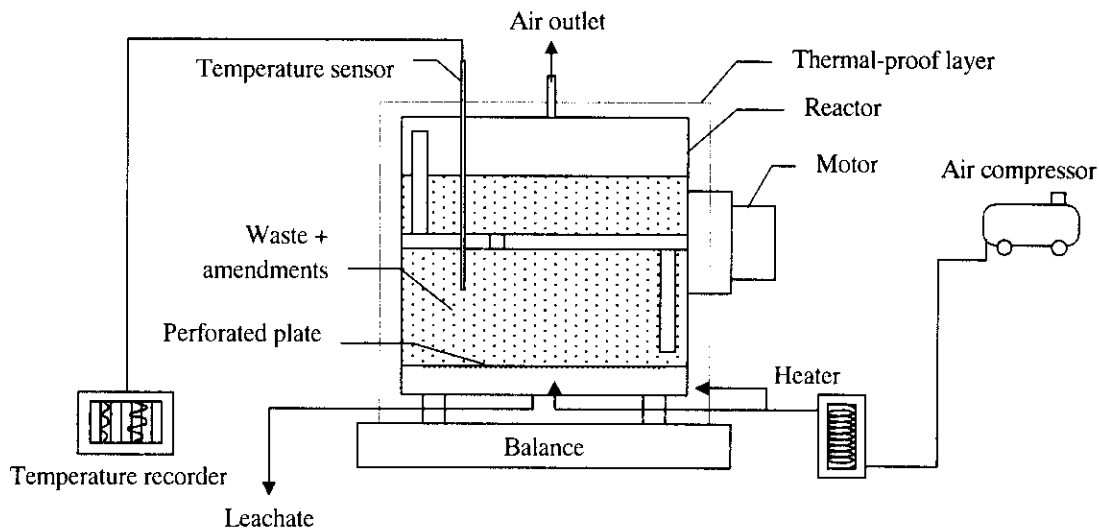


Fig. 1 Diagram of the experimental apparatus

2. 2 供試した生ごみ組成と発酵助材

本研究で用いた生ごみは、Table 1 に示した日本における標準的な生ごみの組成に合わせて作成し、実験に供した。この内、卵の殻については、高温好気発酵の反応プロセスに関与しないと考えられたため、用いなかった。鳥の骨、魚、および米は使用する前に調理した。ディスポージャー (Emerson Electric Co. 製 米国) で粉碎後、冷蔵庫において4℃で保存した。最終的な供試生ごみの主要元素組成は炭素、約45%、窒素約2%、リン約0.02%となった。本研究ではリアクターへの生ごみの投入量や投入方法に関して種々の条件を設定し検討を行った。1サイクルで処理する生ごみを分割して投入する1日1回投入パターンでは、490gの生ごみを毎日、実験終了まで投入した。バッチ投入パターンは1サイクルの処理を行う生ごみを初期に全て投入するが、低負荷実験では3,920gの生ごみを、高負荷実験では7,350gの生ごみを投入した。

投入した生ごみの塊に空気が分散して供給されるように、また分解を促進するために、発酵助材としておがくずを、反応促進剤としてコンポストを使用した。反応速度およびCH₄、N₂O排出に対するこれらの影響を比較するために、おがくずとコンポストの添加量を変化させた。様々なリアクター内で、おがくずとコンポストの割合を変化させたが、おがくずの添加量はリアクター当たり1,500gに固定し、コンポストの添加量を変化させた。

Table 1. Composition of food waste (g-person⁻¹·day⁻¹)

Component	Chicken bone	Fish	Apple	Banana peel	Grape peel
Amount	20	25	25	25	25
Component	Cabbage	Carrot	Rice	Tea residue	Egg shell
Amount	45	45	25	10	5

2. 3 サンプルと分析

CH₄とN₂Oの濃度を測定するために、さまざまな時間隔で、リアクターの上部にある排気口から、ガスサンプルを集めた。N₂OはECD付きガスクロマトフで分析し、分析条件はキャリアガスにCH₄-Arガスを用い、ポラパックQを充填したSUSカラムで検出器とオープンの温度はそれぞれ340℃と80℃であった。CH₄はFID付きガスクロマトフで分析し、分析条件はキャリアガスに高純度窒素ガスを用い、モレキュラーシーブを充填したSUSカラムでオープンの温度は60℃であった。ガスサンプル中の酸素(O₂)、CO₂、NH₃はガス検知管を用いて分析した。

リアクターのさまざまな場所から、さまざまな時間隔で、発酵残渣をサンプリングし、NH₄-N、NO₃-N、NO₂-N、T-Nを分析したが、約2gのサンプルを土壌肥料試験法に準じて20ml M KCl溶液を用いて、30分間シェーカーで抽出し、4000rpmで10分間遠心分離した後、上澄みをグラスファイバーのフィルター(0.4mm)を用いてろ過した。得られた溶液中の各イオン態窒素とT-Pの濃度を、TRAACS-800による自動比色法(automated colorimetric methods)によって分析した。

3. 結果と考察

3. 1 本研究における実験の再現性について

高温好気発酵法の実験の再現性を本研究における1日1回投入およびバッチ投入の2種類の実験パターンの繰り返し実験で、O₂濃度の時間変化および温度特性で検証した。おがくずだけを用いた1日1回投入する(以後、DAP(daily addition pattern)とする)パターンでは2回の試行のそれぞれで、6日目までに40-46度のピークに達し、10日目以降は安定した温度特性を示した。排気中のO₂レベルは、まず15%まで減少し、その後少しずつ回復し11日目には約19%になった。おがくずにコンポストを加え、生ごみを初期にバッチ投入する(以後、SAP(single addition pattern)とする)パターンでは温度について2回の試行それぞれで、5日目に43-44℃のピークに達し、その後漸減し、10日後には32℃くらいまで低下した。排気中のO₂濃度はDAPより大きく13%にまで減少し、その後11日目に19%まで徐々に増加した。DAP、SAPそれぞれのパターンの2回の試行で、実験期間中の平均温度の違いは、2℃以下であり、酸素濃度の違いは0.5%以下であった。以上の温度と酸素の特性の評価の結果から、本研究においてリアクターを含む高温好気発酵法の実験システムはシステムとしての再現性を有しているものと考えられ、種々の実験条件による結果の相違は意味のあるものと考えられた。

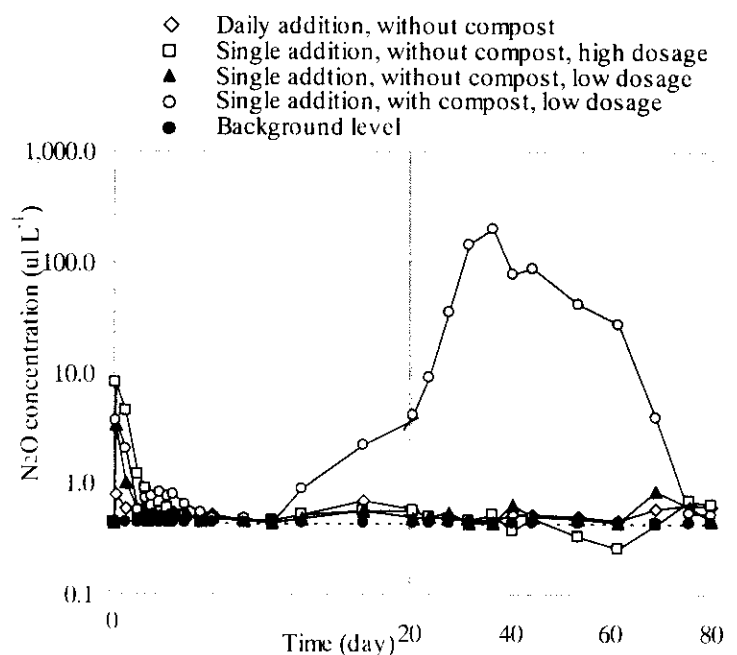


Fig. 2 Nitrous oxide emission from aerated composting system

3. 2 N₂O と CH₄ の排出特性

生ごみの高温好気発酵反応過程における、N₂O 排出濃度の変動を Fig.2 に示す。全ての系で最初の日小さなピークが認められた。排ガス中の N₂O 濃度は、DAP、SAP-少量投入、SAP-多量投入でそれぞれ 0.79、3.32、8.11ppmv と増加し、N₂O 排出量はリアクターへの生ごみ投入量と明らかな相関関係を示した。2 日後、コンポストを添加しなかった全ての系で、N₂O 濃度は、0.53ppmv とほぼ大気バックグラウンドレベル近傍まで減少し、排出量は生ごみ投入時に見られるスパイク的な濃度増加を無視すれば、1 時間当たり 2.4ul となった。

コンポストを添加した SAP の場合 (○のパターン)、Fig.2 に示したように二山の N₂O ピークが観測された。最初のピークはコンポストを添加しない系におけるピークと同時に現れ、コンポストを添加しない系でのピークより約 1ppmv 高い濃度を示した。2 番目のピークは、12 日目付近から増加を開始し、N₂O 濃度は 36-40 日目に 203ppmv までに漸増後、

処理サイクルの終了まで緩やかにバックグラウンド濃度 (0.32ppmv) 付近まで減少した。このような現象はコンポストを添加した SAP にのみ認められた現象であり、その他の系では認められなかった。

Fig.3 に CH₄ の排出特性を N₂O の場合と同様に実験系別に示したが、コンポストを添加しない系では、高温好気発酵処理に伴う排出は認められず、負荷量に関係なくバックグラウンド濃度 (1.8ppmv) の近傍であった。しかし、コンポストを添加した SAP (●のパターン) では実験開始から 2 日後から CH₄ 濃度が急増し、20 日目付近でピークを示し、800ppmv という高濃度となった。これらの結果は、コンポストの添加により、リアクター内での有機物量が増加し、かつ酸化反応の速度も増加することにより、リアクター内のおがくずと生ごみの混合物中に嫌気領域が発達することに起因するものと考えられた。

3. 3 N₂O 排出とリアクター内部での窒素化合物の関係

既往研究では、N₂O の排出量は、反応過程における窒素のイオン形態とその存在量に大きく依存していることが判明している。したがって、今後、アンモニウム塩、硝酸塩を含む窒素化合物の投入量の増加により施肥土壌 (Cates と Keeney, 1987 年; Burford と Bremner, 1975 年; Boustany ほか, 1997 年) およびと高温好気発酵を含むコンポスト化プロセス (Mahimairaja, 1995 年) からの N₂O 発生は飛躍的に増加する可能性を有している。このような背景から本研究では発酵過程における窒素の形態変化と N₂O 排出フラックスとの関係を明らかにするために検討を行った。その結果、排気中の N₂O 濃度と発酵残さ中の NH₄⁺-N、NO₂⁻-N および T-N の間には明確な相関関係を見出すことはできなかった。NO₂⁻-N についてもコンポスト添加が無い場合では同様に相関は認められなかったが、コンポストを添加した系では発酵残さ中の濃度と排気ガス中の N₂O 濃度の間に Fig.4 に示したような顕著な相関が認められた。これらの現象は NO₂⁻-N が N₂O 生成の前駆体であることを示唆しており、Fig.5 に示したように発酵中に亜硝酸ナトリ

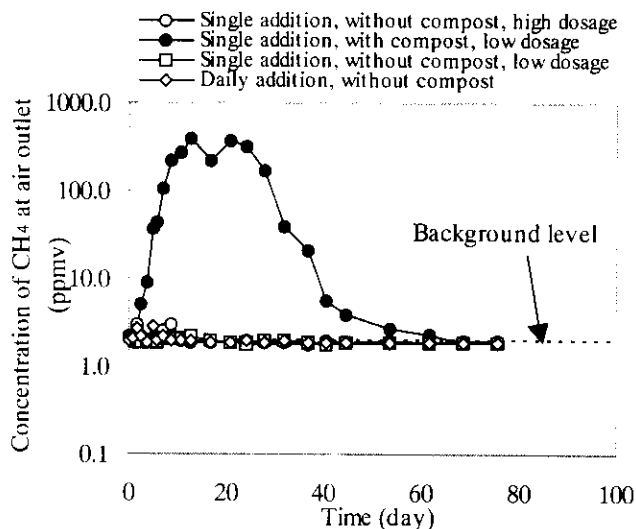


Fig. 3 Methane production from aerated composting system

ウムをリアクター内に添加する (NO₂-N ショック) 事により N₂O 濃度は鋭敏に増加した。既往研究では、活性汚泥法のような排水の好気性処理において硝化反応が起きる場合には、本研究結果と同様に NO₂-N の蓄積により N₂O 排出量が急増することが知られている。

(Schulthess ほか, 1994, 1995 年; Wild ほか, 1994, 1995 年; Zheng ほか, 1994 年)。これらの N₂O 排出量と NO₂-N 濃度の相関は、N₂O 生成が NO₂-N の濃度レベルに依存することを示しており、高温好気発酵を含むコンポスト化プロセスにおいても NO₂-N から N₂O への生成経路が存在することを示している。

Fig.5 に示したように亜硝酸塩を添加した場合はコンポストの添加の有無に関わらずに N₂O 排出量が急増しており、コンポストの添加は N₂O の生成に影響するものの前駆体としての存在ではなく、前駆体はあくまで NO₂ であることを示している。反応過程において、コンポストを添加しない系では、8 日目以降に大きな発生は検出されず、発酵残さ中にも NO₂-N の蓄積は認められなかった。一方、Fig.6 に示したようにコンポストを添加しない系では、添加した系に比べ NH₃ の排出量が増大しており、生ごみに含まれる窒素が NH₃ として揮散し、系外に持ち去られるものと考えられた。したがって、今後、本手法における N₂O 抑制手法を検討する上で、形態変化を踏まえた窒素収支を検討していくことが重要である。

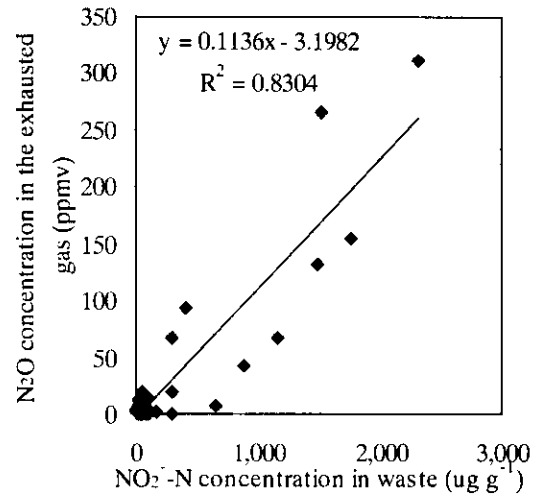


Fig. 4 Correlation between N₂O emission and nitrite content in waste mixture

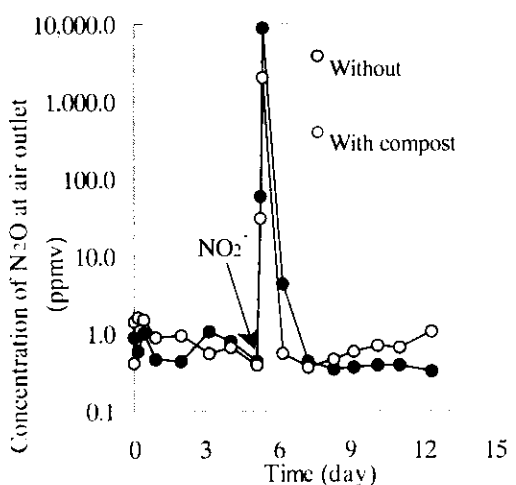


Fig. 5 Effect of nitrite shock on N₂O emission during aerated composting

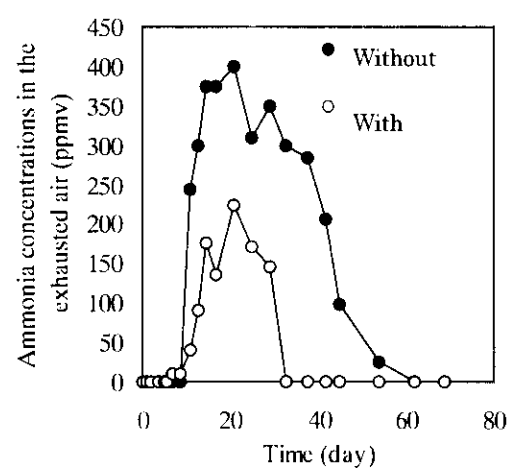


Fig. 6 Ammonia volatilization during aerated composting

3. 4 炭素成分の N₂O 排出への影響

既往研究では排水処理システムからの N₂O 排出に関して、脱窒に必要な水素供与体として利用可能な炭素源の有無が排出量に大きく影響することが知られており、系内の有機物の炭素と窒素の割合が不適當の場合に、N₂O 生成が増加することが報告されている。(Inamori ほか, 1994 年; Hanaki ほか, 1990 年)。本研究では Fig.7 に示したようにコンポストの添加の有無に関わらず、N₂O 生成と溶解性有機物と窒素の

割合 (DOC/T-N) の間に相関関係は認められなかったが、DOC/T-N の割合が 5 より小さな条件で N_2O 排出濃度が非常に大きくなる傾向が見られた。さらに、コンポストを添加した系において通常通り初期に生ごみを投入し、5 日目と 14 日目にそれぞれ同じ分量の生ごみを添加比率を同じにしたおがくずとコンポストと共にリアクターに投入した。その結果、Fig.8 に示したように通常のバッチ投入におけるコンポストを添加した系で現れた後半のピークは 33 日遅れて出現した。これらの結果は生ごみの再投入により、生ごみ中の有機性窒素の NH_4^+N 化に遅れが生じ、後続の硝化反応による形態変化のステップが遅れたためと推測された。したがって、高温好気発酵法においては投入方法をバッチからより連続的 (毎日投入または数回投入 (廃棄物を数日に一度に投入する)) にしていくことが、抑制手法として重要であることを示している。しかしながら、コンポスト化過程において N_2O の排出が抑制されたとしても、製品としてのコンポストからの施肥による排出抑制手法が整備されなくては廃棄物処理 (本研究では生ごみ) 総体としての排出抑制に繋がっていかないことから、今後の検討が必要である。

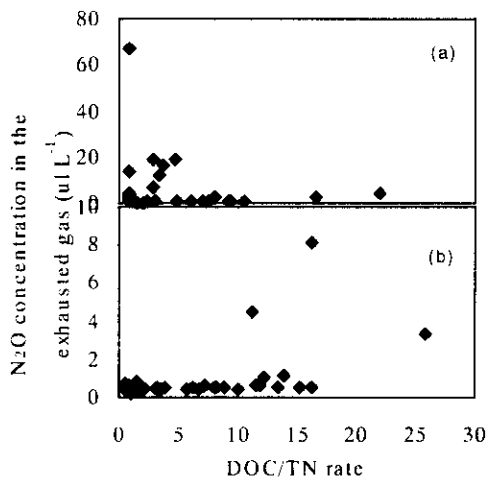


Fig. 7 Relation between N_2O emission and DOC/N rate in waste mixture; (a) with compost; (b) without compost

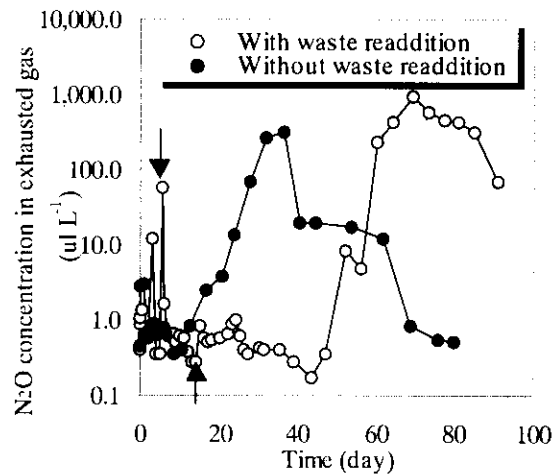


Fig. 8 Effect of waste re-addition on N_2O emission; arrows show the waste re-addition point

3. 5 通気量と CH_4 、 N_2O 排出量の関係

高温好気発酵法では、通気は、単に処理性能と臭気の制御にとってだけではなく、GHG 排出にとっても重要である。Fig.9 に示す通り、通気量が 0.70 から 1.40 および $2.10 L \cdot min^{-1} \cdot kg^{-1}$ (生ごみの乾燥重量) まで増加すると、 N_2O 生成も大きく増加する傾向が認められた。その増加は通気量 1.40 から $2.10 L \cdot min^{-1} \cdot kg^{-1}$ への増加において、より顕著であった。通気量が増加すると、空気による追いだし効果 (air-stripping effect) が強くなり、発酵過程で生成した N_2O は生成後速やかに追い出され、後続の反応を受けない。これが、通気量を多くした場合に N_2O 排出量が増大する原因と考えられる。Fig.10 に示したようにコンポストを添加した系において、通気量を 0.70 から 0.56 および $0.14 L \cdot min^{-1} \cdot kg^{-1}$ へとそれぞれ減じた場合、 N_2O 排出の 2 番目の大きなピークは認められなくなり、結果として 1 処理サイクルにおける N_2O 排出量は大きく減少した。これらの通気量の少ない処理では、反対に NH_3 の排出量が増加する傾向が見られたことから、 NH_3 として揮散することにより、多くの窒素が N_2O の前駆体ができる前に系外に排出された事を示しており、通気量を低くすることが、 N_2O 発生をコントロールすることへのアプローチとなる事を示

している。しかし、通気量の減少は脱窒反応を促進することとなり、酸素が微量に存在する微好気条件化では脱窒により大量の N_2O が生成、排出することが知られており (van Kessel ほか, 1993 年)、有機物分解速度も低下するので、これらの現象を考慮した通気量の適正化が非常に重要である。

一方、通気量の低い条件では CH_4 排出量が増加したことから今度はこのような N_2O と CH_4 のトレードオフの関係も踏まえた抑制手法の開発が必要である。

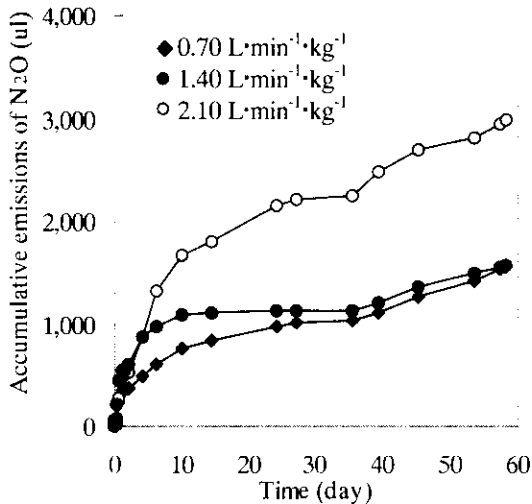


Fig. 9 Effect of aeration rate on N_2O emission from treatments without compost

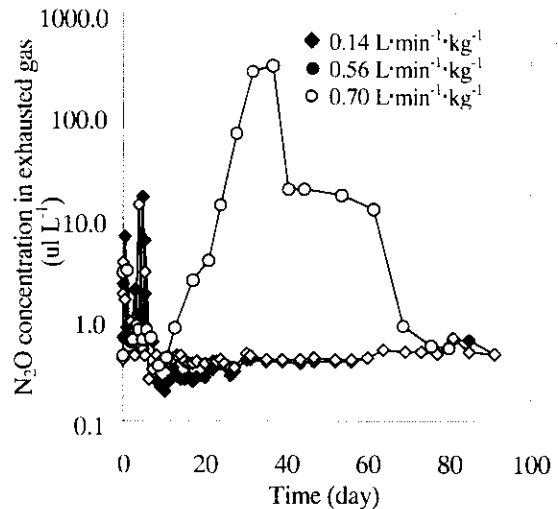


Fig. 10 Effect of aeration rate on N_2O emission from treatments with compost

3. 6 高温好気発酵法における CH_4 、 N_2O 生成、排出メカニズムについての考察

コンポストを添加しない系では 2 つのメカニズムによって最初の N_2O の排出ピークが生じたと考えられる。一つは、おがくず内では様々な種類の微生物が不均衡に存在している事である。一般的に有機性窒素化合物からの NH_4-N 、 NO_2-N への硝化反応はそれぞれの反応段階において様々な微生物が関与する。

(Williams ほか, 1992 年)。硝化反応の各段階に関わる様々な微生物が不均衡にバイオチップ内に存在するために、 N_2O や NO_2 のような中間生成物が残ってしまう事になるかも知れない。初期段階における N_2O の排出ピークについてのもうひとつのメカニズムとしては生ごみ中の微生物の独自の代謝があるかも知れない。予備的な実験において、生ごみからは $4^\circ C$ で保存していても N_2O の排出があり、初期の N_2O 生成、排出が生ごみに由来する微生物活動に起因する可能性がある。これらの生ごみ由来の微生物は、発酵温度の低い初期では死滅せずに活動し、 N_2O の最初のピークをもたらした可能性がある。しかし、反応温度の上昇に伴い、これらの微生物は消滅したか、高温菌により駆逐されたものと考えられた。

コンポストを添加した系では、コンポストを添加なかった系に比べて、初期における N_2O 排出量が多かった。既往文献によるとコンポスト肥料 (composted manure) からの高濃度の N_2O の排出が示されており (Kuroda ほか, 1996 年; Mahimairaja ほか, 1995 年)、これらの事実からも排出量の増加は説明可能である。以上より発酵初期における N_2O のピークは添加したコンポストからの N_2O 排出と生ごみ由来の微生物による N_2O 生成が加味した現象であると考えられた。

2 番目のピークはコンポストを添加した系においてのみ認められた。Fig.2 に示したようにコンポストを添加した系の N_2O 排出量は、2 倍の負荷量のコンポスト無添加の場合よりも多く、負荷量の増加による効果を上回るような N_2O 生成、排出の経路がある事を示している。コンポストを添加したケースの後期段階

における N_2O と NO_2^- の相互関係が確実であることを考えると、 N_2O の前駆体は NO_2^- である。しかし、 N_2O 排出量を増加させるような系内での NO_2^- の蓄積は通常、無酸素および嫌気条件化で起きることが知られている。本研究でも Fig.3 に示したようにコンポストを添加した場合に CH_4 排出量の増加が認められ、低酸素レベル環境が存在している事を示している。これらは通気をしたにも拘わらず、直径数 μm から 4-5 mm の範囲のおがくずと発酵残さの中に無酸素または嫌気性の微生物環境が存在していることを示唆している。同じような微生物環境の効果が、これまでに行われた好気性土壌についての研究 (Goodroad と Keeney, 1984 年; Parkin, 1987 年) で報告されている。したがってこのような低酸素条件化において硝化細菌あるいは脱窒菌による NO_2^- からの N_2O への還元反応が 36-40 日目の 2 番目のピークの原因のひとつと考えることが可能である。硝化反応と脱窒反応の同時進行は土壌による研究 (Goodroad および Keeney, 1984 年; Parkin, 1987 年) および排水処理での研究 (Schulthess ほか, 1994, 1995 年; Wild ほか, 1994, 1995 年; Zheng ほか, 1994 年) で報告されている。

脱窒反応が 2 番目のピークの原因だとすると既に報告されている (Burford と Bremner, 1975 年; Cabrera ほか, 1994 年) 通り、 N_2O 生成は利用可能な炭素の量に比例するべきである。なぜなら脱窒細菌のほとんどは、エネルギーを得るために有機炭素に依存している従属栄養細菌生物であるからである。Fig.12 にコンポストを添加した系での DOC の経日変化を示したが、DOC 濃度は 15 日目あたりで最小となる。しかし Fig.2 において、 N_2O 排出量は DOC 濃度が低くなる 12 日目より増加し始めているおり、従属栄養性の脱窒細菌の代謝に一致しない。したがって、本研究においては独立栄養性の硝化細菌が NO_2^- を N_2O に変える主たる微生物であると思われる。

本研究では微生物群についての情報に欠けるため、どの微生物群が N_2O 発生で中心的役割を果たしたかを直接特定する事は難しい。しかし、 NO_2^- の蓄積を急激に進行させた微生物がコンポスト中に存在したの は確実である。一方、コンポストを添加しない系では、微好気条件が系内に存在したかも知れないが、 NO_2^- の蓄積がないために N_2O の大量の生成、排出は認められなかった。

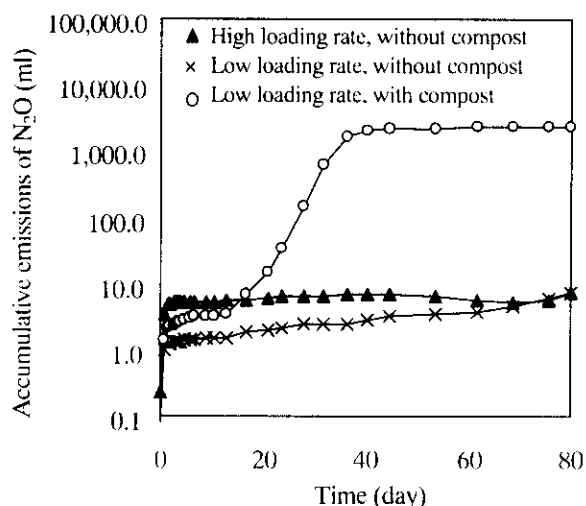


Fig. 11 Cumulative N_2O emission in compost-applied and non-compost treatments

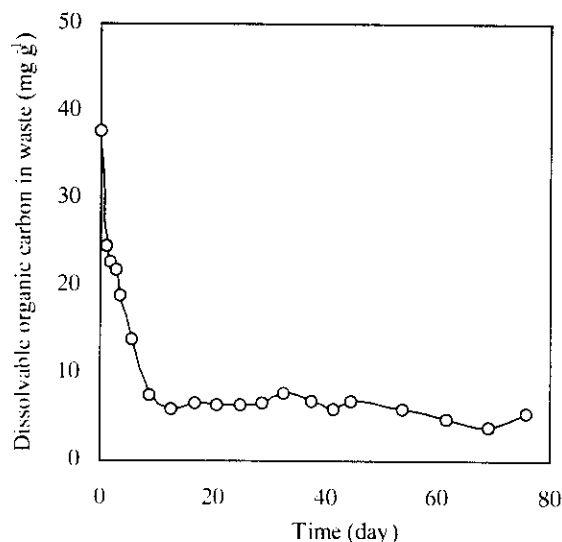


Fig. 12 Change of dissolved organic carbon with time in compost-applied treatments

4. 結論

本研究では、高温好気発酵法による CH_4 、 N_2O の排出特性を運転操作条件との関係で検討した。コンポストを添加しない処理においては、 N_2O 発生曲線はひとつのピークを示した。 N_2O は主として処理の初期に発生し、最初の日のうちにピークに達し、2日後、 N_2O の濃度レベルは大気バックグラウンド濃度近傍の 0.5ppm まで減少した。一方、コンポストを添加した系では、発生曲線は2つのピークを示した。初期の段階でのピークのほかに、後半でもう一度、高濃度の排出が認められ、36-40日目あたりでに最高点に達した。処理1サイクルにおける N_2O 排出量のほとんどが、12日目からの排出量で説明できる。コンポストを添加した系では、排気ガス中の N_2O 濃度とリアクター内部の発酵残さ中の NO_2^- 濃度の間に強い相関関係があることが認められた。この関係は、亜硝酸塩の添加実験により確認され、 NO_2^- から N_2O への N_2O 生成プロセスが存在する事を示している。これらの反応には硝化細菌が強く関与しているものと考えられた。

通気量を増加させると、空気による追だし効果 (air-stripping effect) により、 N_2O 生成が増加する傾向が認められた。コンポストを添加した場合における N_2O 排出量の 80%以上は、通気量を $0.14 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1} \text{ kg}^{-1}$ に減らすことにより削減可能であったが、 CH_4 の生成、排出が大きく増加し、 N_2O 発生減少の効果を相殺する結果となった。一方、低通気時に増加するアンモニアの揮散は臭気問題を引き起こすことは明らかである。

CH_4 は、コンポストを添加した系においてのみ検出され、排出量の増加は有機物としてのコンポストの添加による環境条件の嫌気化に主として起因しているものと考えられた。また、これらの嫌気条件の形成は微好気条件で行われる独立栄養細菌群による脱窒反応により N_2O の増加が示されたことから、 CH_4 、 N_2O 抑制のために今後はこれらの条件の適正化を図る必要がある。

5. 参考文献

1. Åkesson M, Nilsson P. Material dependence of methane production rates in landfills. *Waste Manage & Res* 1998; 16(2): 108-118.
2. Boltze U, de Freitas MH. Monitoring gas emissions from landfill sites *Waste Manage & Res* 1997; 15: 463-476.
3. Börjesson G, Svensson BoH. Seasonal and diurnal methane emissions from a landfill and their regulation by methane oxidation. *Waste Manage & Res* 1997; 15(1): 33-54.
4. Boustany RG, Crozier CR, Rybczyk JM, Twilley RR. Denitrification in a south Louisiana wet forest receiving treated sewage effluent. *Wetlands Ecol Manage* 1997; 4: 273-283.
5. Burford JR, Bremner JM. Relationships between the denitrification capacities of soils and total, water-soluble and readily decomposable soil organic matter. *Soil Biol Biochem* 1975; 7: 389-394.
6. Cabrera M, Chiang S, Merka W, Pancorbo O, Thompson S. Nitrous oxide and carbon dioxide emissions from pelletized and non pelletized poultry litter incorporated into soil. *Plant Soil* 1994; 163: 189-196.
7. Cates Jr RL, Keeney D.R. Nitrous oxide production throughout the year from fertilized and manured maize fields. *J Environ Qual* 1987; 16(4): 443-447.
8. Czepiel P, Douglas E, Harriss R, Crill P. Measurements of N_2O from composted organic wastes. *Environ Sci Technol* 1996; 30(8): 2519-2525.
9. Frette L, Gejlsbjerg B, Westermann P. Aerobic denitrifiers isolated from an alternating activated sludge system. *FEMS Microbiol Ecol* 1997; 24: 363-370.
10. Goodroad LL, Keeney DR. Nitrous oxide production in aerobic soils under varying pH, temperature and water content. *Soil Biol Biochem* 1984; 16(1): 39-43.

11. Hanaki K, Wantawin C, Gujer W. Effects of the activity of heterotrophs on nitrification in a suspended-growth reactor. *Wat Res* 1990; 24: 289-296.
12. Inamori Y, Hosomi M, Sudo R. Greenhouse effect gas control producing from wastewater treatment processes. *J Wat Waste* 1991; 34(1): 28-34 (in Japanese).
13. Inamori Y, Mizuochi M, Terunuma H, Yamamoto M, Makuta T, Utida T, Kimochi Y. Effects of anaerobic condition on biological nitrogen, phosphorus removal and inhibition of greenhouse effect gas by intermittently aerated activated sludge process. In: Proceedings of the 28th Annual Symposium of Japan Society on Water Environment, 1994; 278-279 (in Japanese).
14. Kjeldsen P, Fischer EV. Landfill gas migration-field investigations at Skellingsten landfill, Denmark. *Waste Manage & Res* 1995; 13: 467-484.
15. Kuroda K, Osada T, Yonaga M, Kanematu A, Nitta T, Mouri S, Kojima T. Emissions of malodorous compounds and greenhouse gases from com composting swine feces. *Bioresource Technol* 1996; 56: 265-271.
16. Liu AH, Kunz CO. Gas-flow model to determine methane production at sanitary landfills. *Environ Sci Technol* 1981; 15(4): 436-440.
17. Mahimairaja S, Bolan NS, Hedley MJ. Denitrification losses of N from fresh and composted manures. *Soil Biol Biochem* 1995; 27(9): 1223-1225.
18. Parkin TB. Soil microsites as a source of denitrification variability. *Soil Sci Soc Am J* 1987; 51: 1194-1199.
19. Paul JW, Beauchamp EG, Zhang C. Nitrous and nitric oxide emissions during nitrification and denitrification from manure-amended soil in the laboratory. *Can J Soil Sci* 1993; 73: 539-553.
20. Schulthess RV, Wild D, Gujer W. Nitric and nitrous oxides from denitrifying activated sludge at low oxygen concentration. *Wat Sci Technol* 1994; 30: 123-132.
21. Schulthess RV, Kuhni M, Gujer W. Release of nitric and nitrous oxides from denitrifying activated sludge. *Wat Res* 1995; 29: 215-226.
22. Tanaka M, Miyazaki M, Watanabe I. CH₄ and N₂O emission from waste disposal facilities in Japan, In: Minami K, Mosier A, Sass R, editors. CH₄ and N₂O Global Emissions and Controls from Rice Fields and Other Agricultural and Industrial Sources, Yokendo Publishers, Tokyo. 1994, pp. 181-186.
23. Tanikawa N, Imai T, Urano K. Characteristics of continuous analyzers for nitrous oxide in flue gas from municipal incinerators. *Sci Total Environ* 1995; 175: 189-198.
24. Tsujimoto Y, Masuda J, Fukuya J, Ito H. N₂O emissions at solid waste disposal sites in Osaka city. *J Air & Waste Manage Assoc* 1994; 44: 1313-1314.
25. van Kessel C, Pennock DJ and Farrell RE. Seasonal variations in denitrification and nitrous oxide evolution at the landscape scale. *Soil Sci Soc Am J* 1993; 57: 988-995.
26. Wang YS, Odle III WS, Eleazer WE, Barlaz MA. Methane potential of food waste and anaerobic toxicity of leachate produced during food waste decomposition. *Waste Manage Res* 1997; 15: 149-167.
27. Wild D, Schulthess RV, Gujer W. Structure modeling of denitrification intermediated. *Wat Sci Technol* 1995; 31: 45-54.
28. Wild D, Schulthess RV, Gujer W. Synthesis of denitrification enzymes in activated sludge: modeling with structure biomass. *Wat Sci Technol* 1994; 30: 113-122.
29. Williams EJ, Hutchinson GL, Fehsenfeld FC. NO_x and N₂O emissions from soil. *Global Biogeochem Cycles* 1992; 6(4): 351-388.
30. Wu XL, Kong HN, Mizuochi M, Inamori Y, Huang X, Qian Y. Nitrous oxide emission from microorganisms. *Japanese J Wat Treatment Biol* 1995; 31(3): 151-160.
31. Zheng H, Hanaki K, Matsuo T. Production of nitrous oxide gas during nitrification of wastewater. *Wat Sci Technol* 1994; 30(6): 134-141.

[研究成果の発表状況]

(1) 口頭発表

- ① Yaowu He, Yuhei Inamori, Motoyuki Mizuochi and Hainan Kong, Nitrous oxide generation and nitrogen transformation in aerated composting system, *The 34th Conference of Japanese Society on Water Environment*, 2000.3. Osaka, Japan (Accepted)
- ② Yaowu He, Motoyuki Mizuochi, Yuhei Inamori, Hainan Kong and Tieheng Sun, Investigation on the greenhouse gas emission from aerated compost of organic waste. *The 7th Symposium on Novel Bio-recycling Technology*, 2000.1. Osaka, Japan.
- ③ Yuhei Inamori, Yaowu HE, Motoyuki Mizuochi, Hainan Kong, Norio Iwami, 1999, Nitrous oxide emission from aerated composting of food waste, *Japanese Journal of Water Treatment Biology*, No. 19(supplement), pp.71.
- ④ Hainan Kong, Yaowu He, Yuhei Inamori, Motoyuki Mizuochi and Tieheng Sun, Aeration technique to control the emissions of CH₄ and N₂O from soil purification system. In *Proceedings of the 33rd Conference of Japanese Society on Water Environment*, 1999.3. Sendai, Japan.
- ⑤ Ikeda Ryoko, Higashi Teruo, Inamori Yuhei, Iwami Norio and He Yaowu, Analysis and assessment of treatment characteristics of johkaso wastes in thermophilic oxic process. In *Proceedings of the 33rd Conference of Japanese Society on Water Environment*, 1999.3. Sendai, Japan.

(論文発表)

- ① Yaowu He, Yuhei Inamori, Motoyuki Mizuochi, Hainan Kong, Norio Iwami and Tieheng Sun, Measurements of N₂O and CH₄ from the aerated composting of food waste, *Science of the Total Environment* (In press)
- ② Yaowu He, Motoyuki Mizuochi, Hainan Kong, Yuhei Inamori and Tieheng Sun, N₂O emissions from waste management systems, *Japanese Journal of Water Treatment Biology*, 35(2): 67-83.
- ③ Yuhei Inamori, Yaowu He, Motoyuki Mizuochi, Hainan Kong, Norio Iwami and Tieheng Sun, Treatment of food waste by composting and greenhouse gas generation, *Waste Management & Research* (In press)