

B-5 1 CH₄, N₂O のインベントリーの精緻化と開発中核技術の内外への普及

(3) バイオ・エコシステムを活用した生活系・事業場系排水の CH₄, N₂O 抑制対策中核技術の汎用化と普及に関する研究

③CH₄, N₂O 放出抑制のための水生植物等を活用した処理手法の運転操作・管理条件の確立化に関する研究

独立行政法人国立環境研究所

循環型社会形成推進・廃棄物研究センター バイオエコエンジニアリング研究室

稻森 悠平・水落 元之、岩見徳雄、板山朋聰

桂 萍 (EFF : 平成 12, 13 年度)

朱南文 (EFF : 平成 14 年度)

平成 12-14 年度合計予算額	5,396 千円
(うち、平成 14 年度予算額	1,399 千円)

[要旨]

人工湿地処理は点源および面源から排出される排水を処理する有望な低コスト処理法として世界各地、特に開発途上国で広く用いられているが、特に中国では水質汚濁に対する重要な生態工学（エコエンジニアリング）的排水処理手法と位置づけられている。人工湿地処理システムを持続的に運用できるか否かは、流入する有機物および窒素等の汚濁負荷を如何に高効率でガス最終生成物に変換できるかが鍵となっている。これらのガス生成物には温室効果ガスである CH₄, N₂O が含まれ、これらのガスは地球温暖化要因のおよそ 24%を占めるものと考えられている。

本研究では、これらの点を鑑み、湿地処理システムとして代表的な地下浸透方式と自由水面方式に注目して、これらの排水処理特性と温室効果ガス排出特性を検討した。その結果、地下浸透型（SF）人工湿地は廃水処理において自由水面型（FWS）よりも良好な排水処理性能と高い安定性を示すと共に、CH₄, N₂O 排出量も低くなる傾向を示した。これらの違いは、ORP（酸化還元電位）および CH₄, N₂O の垂直濃度の測定から、湿地内の嫌気域が CH₄ 発生の原因であり、また、FWS 湿地と SF 湿地は、土壤の酸化還元電位との関係が同じであることに起因することが明らかになった。さらに、SF 湿地においては水面上の乾いた土層が CH₄ の減少に対して重要な役割を果たし、その結果 CH₄ の排出が少なくなるものと考えられた。湿地における硝化作用の分布に関する検討結果から、FWS 湿地と SF 湿地の両湿地において根圈域が硝化の重要な場であることが明らかになった。また、硝化プロセスは、FWS 湿地では N₂O 排出の重要な要因の 1 つであること、また SF 湿地では N₂O 排出の重要な要因ではないことも明らかになった。これらの事実は FWS 湿地の構造では SF 湿地と比較して ORP の分布が CH₄, N₂O の生成・排出に適した条件に合致していることを示している。同時に、水中ガスと CH₄ 酸化細菌（methanotrophic bacteria）の分布から、構造上、SF 湿地では CH₄ 酸化細菌が湿地上部に分布し、湿地内部で生成・排出される CH₄ の削減に大きく寄与していると考えられた。

本研究では、これらの検討を踏まえて、水生植物種、湿地媒体の種類、湿地水位ならびに水量・汚濁負荷などの処理システムの運用パラメータが人工湿地における汚染物質除去と温室効果ガス排出に及ぼす影響を調べるために、それぞれをパラメーターとした実験計画法による検討を行った。その結果、化学的酸素要求量(COD)除去に対しては、湿地媒体と水量・汚濁負荷が湿地の性能を決定する重要な因子であると認められた。湿地媒体が異なると、媒体の比表面積と有機質分解速度が異なる事から自明な結果であるが、CH₄、N₂O 排出量に関しては水生植物種の違いが大きな影響を与えることが明らかになった。

次に、CH₄、N₂O に関する植栽植物の刈り取りの影響を検討した結果、伐採を行った地点では伐採直後に明らかな CH₄ 排出の上昇が検出され、その後 CH₄ 排出量は低下し、伐採しなかった地点よりも少なくなった。10°C 以下の条件では CH₄ 排出量は再度、伐採をしなかった地点よりも高くなるものの全体としての排出量は低く、水中に高い CH₄ 濃度が観察された。一方、N₂O はいずれの湿地システムでも伐採直後に低下したが、FWS 湿地では数日間近辺よりも高い濃度を示した。FWS 湿地とは逆に、SF 湿地ではヨシを伐採した地点からの N₂O 排出量は常に低い傾向を示した。

[キーワード:]

自由水面型人工湿地、地下浸透型人工湿地、CH₄・N₂O 排出、硝化、CH₄酸化細菌

1. はじめに

温室効果ガス（GHG）排出の寄与率に関して、排水処理は CH₄ 総排出量の 7%、N₂O 総排出量の 19% を占めると推定されているが、世界最大の発展途上国である中国は世界全体の温室効果ガス排出量の 10.2% を占めている上に、水質汚染は深刻さを増している。排水処理が普及するにつれて、CH₄、N₂O 排出の抑制は中国の考慮すべき環境問題の一つとなる可能性がある。したがって、中国にとって汚濁物質の除去と GHG の排出に配慮した適切な排水処理技術の開発は将来的に重要となり得る。

人工湿地は比較的に低コストであり、エネルギーや維持費があまりかからないため、中国にとって非常に将来性のある生態工学的技術であり、中国によく見られる地方の広大な敷地に生じる雑多で、分散していて、比較的に小規模な汚水を処理するには望ましい選択肢である。しかも、自然湿地を復活させてさまざまな動植物に生息地を提供するビオトープ形成のための補助手段にもなることが指摘されている。

このように人工湿地は中国の特に地方での排水処理システムとして有望な選択肢であるが、原理的に CH₄、N₂O の排出が考えられるメタン発酵、硝化・脱窒の各反応プロセスを内包し、これらの反応の場となる嫌気と好気の条件が負荷条件により大きく変動する。しかしながら負荷条件等の運転操作条件と CH₄、N₂O 排出量の関係についての知見は極めて少ないのが現状である。本研究は上記の点に鑑み、中国の実情を考慮して、人工湿地として代表的な自由水面方式（FWS）と地下浸透方式（SF）に着目し、モデルプラントを用いて運転操作条件と CH₄、N₂O 排出量の関係を明らかにし、高い排水処理性能を実現するとともに地球温暖化のリスクを抑制できるような人工湿地の設計、建設、および運用方法を導き出すことを目的に実施した。さらに、人工湿地の設計、運転に係る基本的なパラメーターを設定し、実験計画法に基づいた設計および運転管理条件の最適化を検討した。また、人工湿地

の重要な保守手段として人工湿地内の伐採が処理性能および CH_4 、 N_2O 排出に及ぼす影響も合わせて検討することにより環境低負荷型人工湿地処理システムの構築を図った。

2. 実験方法

2. 1 パイロット規模の人工湿地

図1に示すように、パイロット規模の人工湿地として $5 \text{ m} \times 0.5 \text{ m} \times 0.9 \text{ m}$ の長方形のコンクリート・タンクを2基使用した。両人工湿地の能力は $50\text{L} \cdot \text{d}^{-1}$ であり、その HRT（水理学的滞留時間）は6日であった。川砂を湿地媒体とし、FWS湿地には30 cmの深さで、SF湿地には60 cmの深さで投入した。水位は、FWS湿地では媒体表面の上10~15 cm、SF湿地では媒体表面の下10~15 cmに維持した。人工湿地に一般的な *Phragmites communis*（ヨシ）を植栽植物として植え付けた。ビニル・フィルムで作ったガス・チャンバを、湿地（No. 1~No. 5）内に1 mおきに設置した。2年間の運用後、A地点とB地点（図1を参照）のヨシを刈り取り、水処理性能および温室効果ガス排出量を調査し、刈り取りの影響を検討した。

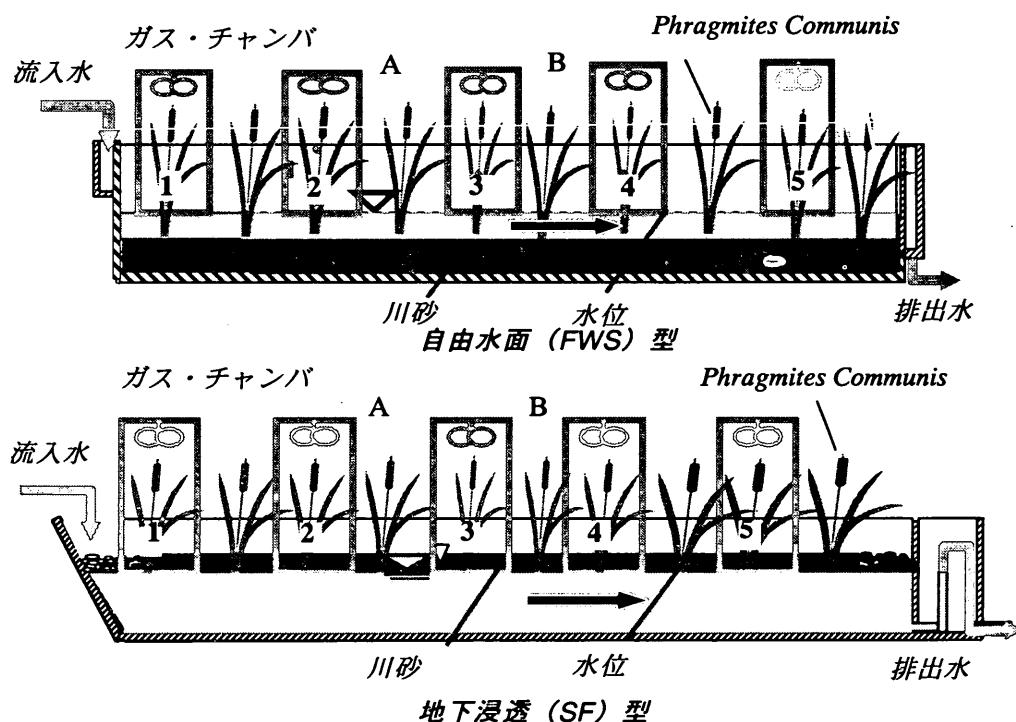


図1 パイロット規模の人工湿地の模式図

2. 2 実験計画法によるパラメーター解析

人工湿地における水質処理性能および CH_4 、 N_2O 排出特性に影響を及ぼす重要かつ基本的なパラメーターとして湿地媒体、植栽する植物の種類、湿地の水位および湿地への水量負荷を考え、表1に示した組み合わせによりそれぞれの影響を検討した。ここで、湿地媒体としては一般的用いられる川

砂と礫を、植栽する植物の種類としては 4 種類の水生植物 (*Cyperus alternifolias* (カヤツリ)、*Vetiveria zizanioides* (ベチバー)、*Typha Orientalis* (コガマ) と *Phragmites australis* (ヨシの 1 種)) をそれぞれ選択した。湿地の水位および水量負荷は現実の運転条件に即して、媒体表面の上 10 cm とその下 10 cm (前者は 10 cm、後者は -10 cm と表示)、および異なる水量負荷 (5 cm/d と 10 cm/d) を用いた。

表 1 パラメーター解析実験における組合せ

トレール No.	要素			
	植物種	媒体の種類	水位 (cm)	水圧負荷 (cm/d)
1	<i>Cyperus alternifolias</i>	砂	10	10
2	<i>Cyperus alternifolias</i>	礫	-10	5
3	<i>Vetiveria zizanioides</i>	砂	10	5
4	<i>Vetiveria zizanioides</i>	礫	-10	10
5	<i>Typha Orientalis</i>	砂	-10	5
6	<i>Typha Orientalis</i>	礫	10	10
7	<i>Phragmites australis</i>	砂	-10	10
8	<i>Phragmites australis</i>	礫	10	5

本検討では図 2 に示した、8 個のカラム (300 mm × 900 mm) を使用して、表 1 の組み合わせにしたがって検討した。4 種類の水生植物をカラム内に植え付け、植栽の安定後にサンプリング等を開始した。また、人工湿地カラムには、直径 30 cm、高さ 2.2 m のビニール・チャンバを用いてそれぞれのカラムから出るガスを採取した。この実験で使用した設備を図 2 に示した。

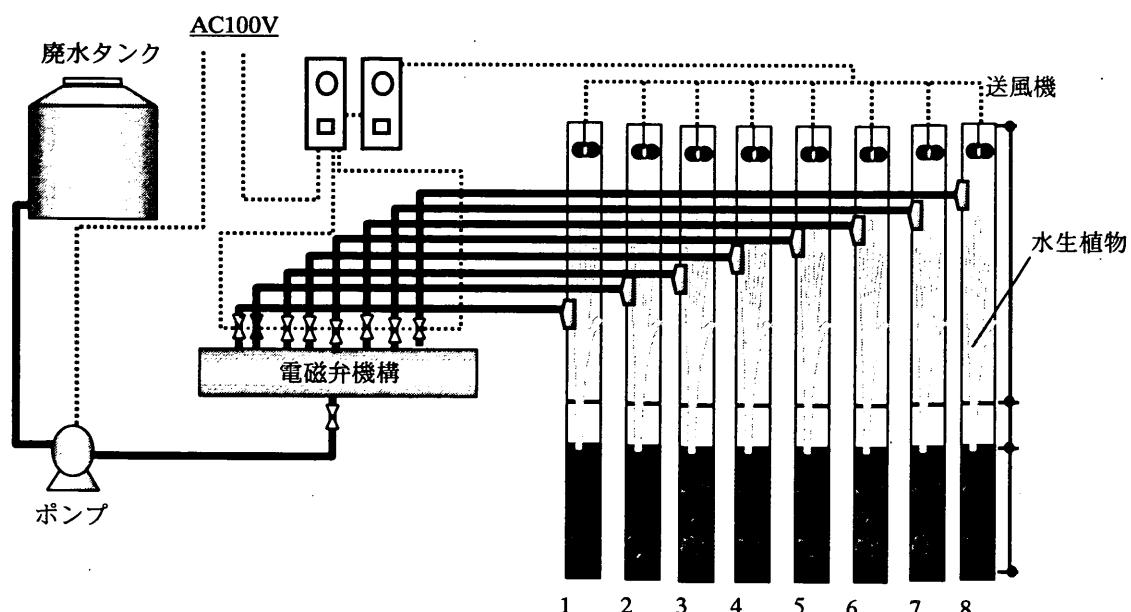


図 2 パラメーター解析に用いた実験装置の模式図

3. 研究結果

3. 1 水質処理特性

2年間の運転における COD、BOD₅（生物化学的酸素要求量）、SS（浮遊物質）、T-N（全窒素）、T-P（全リン）の平均除去率を図3に示した。

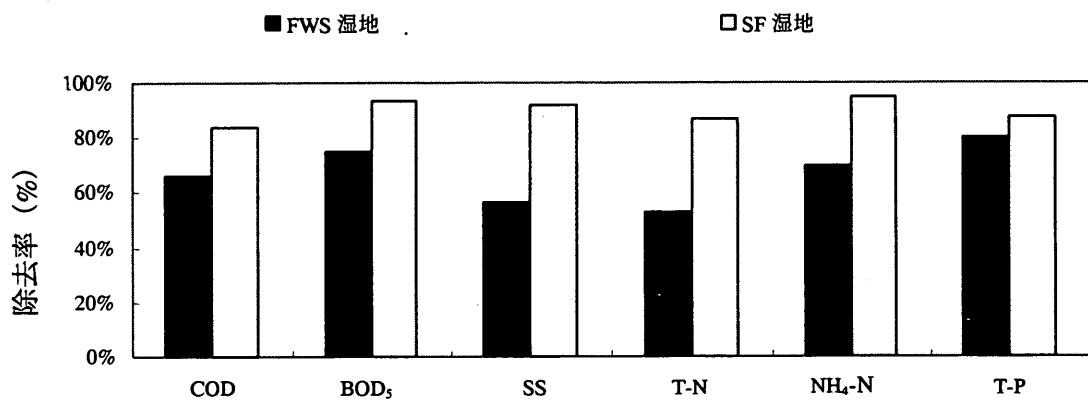


図3 2つの人工湿地の汚染物質平均除去率

SF湿地と比較して、FWS湿地におけるCOD、BOD₅、T-NおよびNH₃-Nの平均除去率は約15%～25%低かった。また、FWSのSS除去率は、SF湿地と比べて35%も低かった。同時に、SF湿地におけるCOD、T-NおよびT-P除去率はおよそ35%変動し、その他は20%未満しか変動しなかったが、冬期間はFWS湿地の性能が低くなるため、汚染物質除去率はすべて約40%から90%まで大きく変動する。したがって、水質処理性能から見て、SF湿地の優位性が示された結果となった。

3. 2 CH₄、N₂O排出の経時変化

SFおよびFWS湿地からのCH₄、N₂O排出の経時変化を図4に示した。

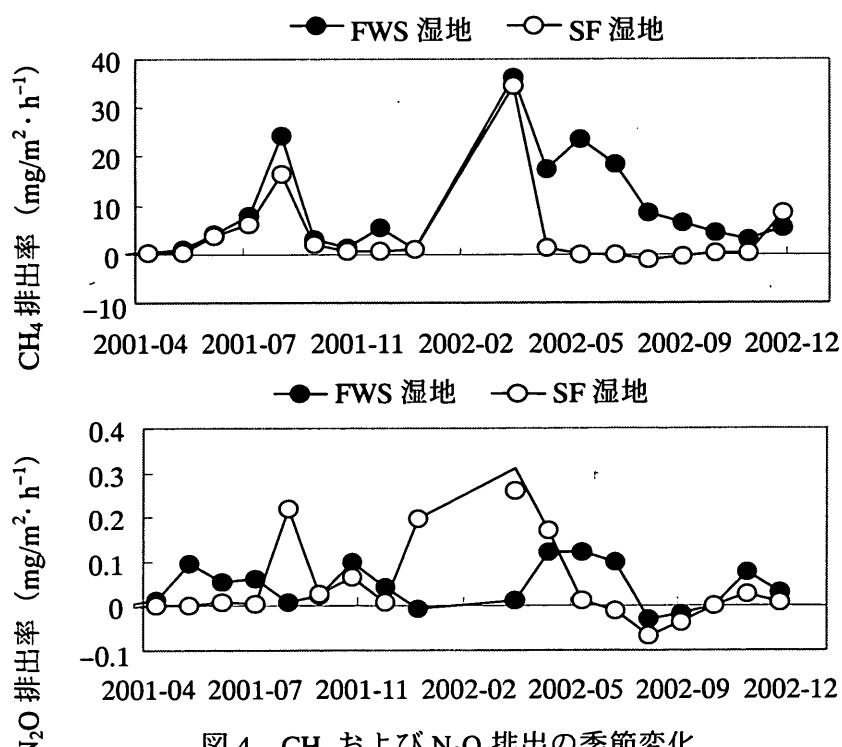


図4 CH₄およびN₂O排出の季節変化

CH_4 排出に関しては、ヨシ植栽後最初の年に 2 つのピークがあった。1 つは 7 月から 9 月にかけての暑夏に出現し、もう 1 つはヨシの萎れ始め直後の 11 月に出現した。その傾向は両湿地間で類似していたが、SF 湿地における排出は FWS 湿地におけるよりも低かった。2 年目に入ると、 CH_4 排出ピークは両湿地とも 4 月に出現した。ピークは、SF 湿地では急速に低下し始め、6 月以降は CH_4 排出は低い状態が継続したが、FWS 湿地では、ピークは 10 月に入るまで 6 カ月間続いた。 CH_4 の夏のピークは、その季節の高気温および有機物除去に伴う酸素の高消費と相関があり、最初の年と比較して、高気温による高いピークは早く出現した。また、2 年目では SF 湿地の湿地上面において、 CH_4 排出が有効に低減されることが明らかになった。

N_2O 排出に関しては、FWS 湿地では全観測期間を通して 4 つのピークが観察された。2 つのピークは、4 月から 6 月の間に出現した。残り 2 つのピークは植物が萎れ始めた直後に観察された。SF 湿地では 3 個のピークが出現し、1 年目には最初の 2 つは 8 月と 11 月に短い期間だけ出現した。他のピークは、1 年目の終わりに現れて翌年の 4 月まで続いた。夏になると、 N_2O 排出は負に転じた。 N_2O 排出に関しては、植物の成長に対する反応は明らかではなかったが、1 年目の 12 月から翌年の 4 月までの期間を除いて、SF 湿地での N_2O の排出は FWS 湿地よりも常に低い傾向を示した。

3. 3 人工湿地での溶存ガスの分布

図 5 に、2 つの人工湿地の深度別の溶存 CH_4 の濃度を示す。その結果、FWS 湿地の砂地表面と SF 湿地の底部で CH_4 量が最大となった。溶存 CH_4 の量は FWS 湿地の砂媒体部分では低下したが、その原因は植栽した植物の根量が多くなり酸素移動が盛んになったことに起因すると考えられた。これに反して、SF 湿地の CH_4 濃度は湿地の底から表面に向かって低下していった。湿地の砂表面近くでは、 CH_4 の濃度は表面の乾いた土層を通過後非常に低くなる。この結果から、SF 湿地の構造は垂直方向に拡散する CH_4 濃度を低下させるのに好都合であると考えられた。

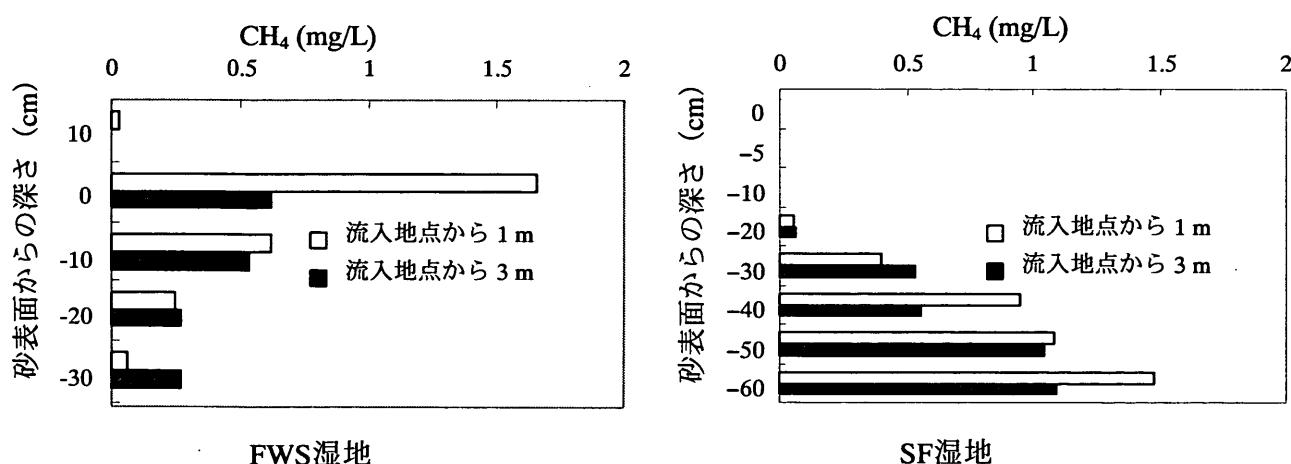


図 5 FWS 湿地および SF 湿地における溶存 CH_4 の垂直分布

一方、溶存 N_2O については図 6 に示すように、FWS 湿地では溶存 N_2O の濃度は流入地点近くでより低く、溶存 N_2O の最大ピークは流入地点から 3 m の砂表面で観測された。SF 湿地では、 N_2O ピークは砂表面より 20 cm 低い位置で認められ、その値は流入地点から 1 m と 3 m の位置でお互いに非常に似通っていた。

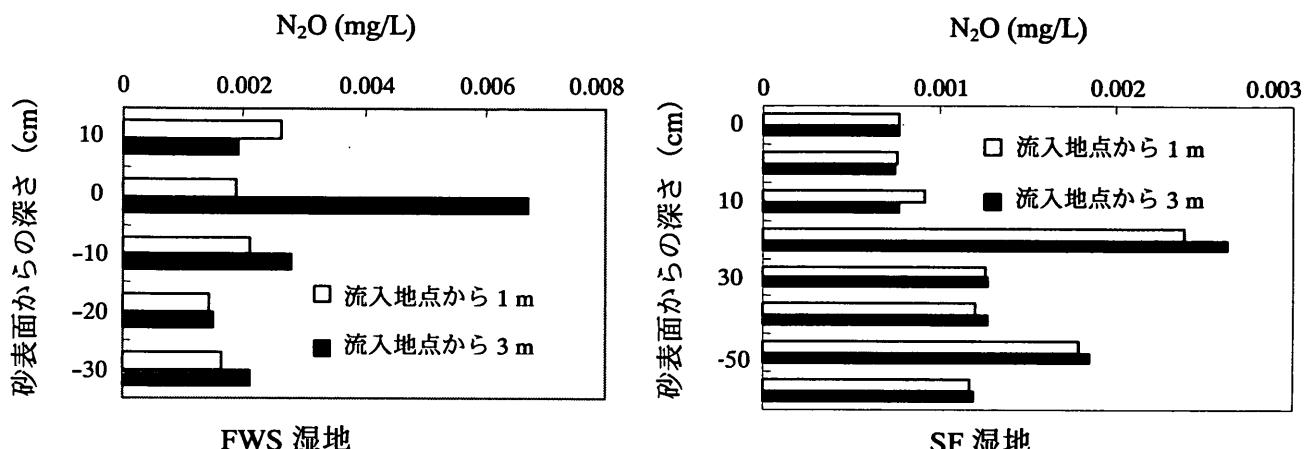
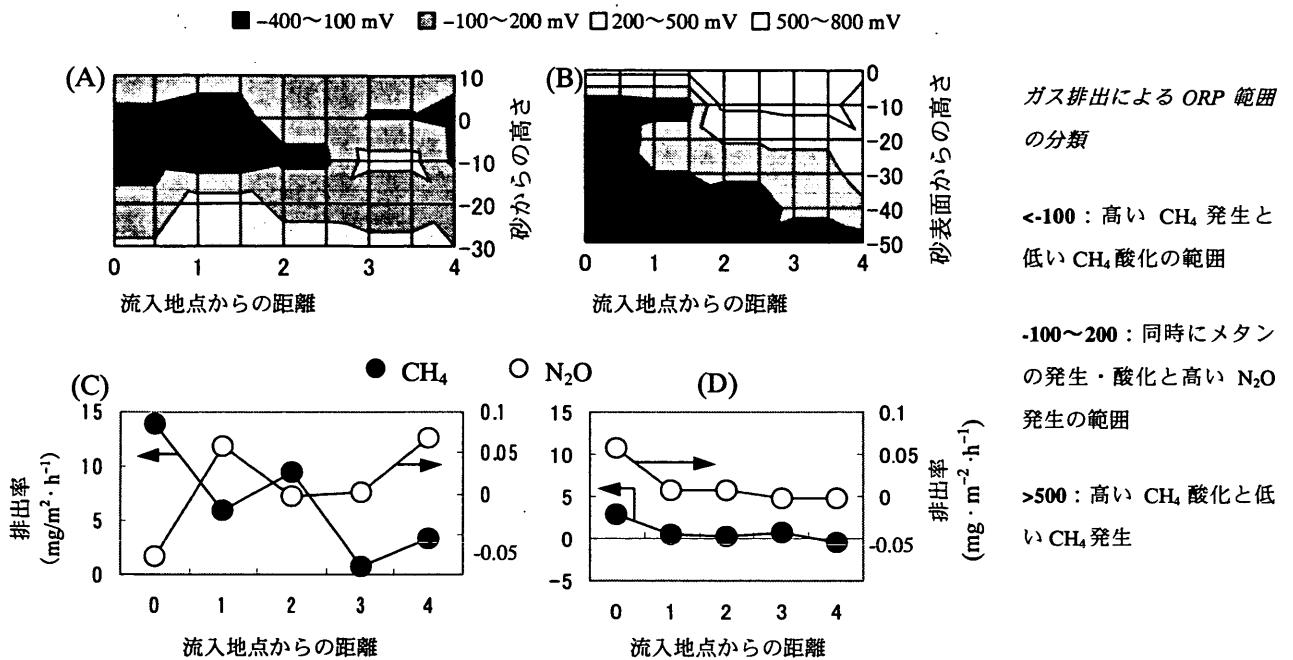


図 6 FWS 湿地および SF 湿地における溶存 N_2O の垂直分布

それぞれの人工湿地で CH_4 、 N_2O 排出量を比較すると、FWS と SF の湿地で正反対の傾向が認められた。FWS 湿地では、 N_2O 排出量は CH_4 排出量の増加とともに増加し、その後減少に転じた。SF 湿地では、 N_2O 排出量は CH_4 排出量の増加に従って常に増加する傾向を示した。 CH_4 の生成・排出は、その地点の嫌気ポテンシャルを示すが、 N_2O の場合は硝化の好気性プロセスと脱硝の嫌気性プロセスの両方がその発生の一因となる。 N_2O 排出が CH_4 排出と同じ傾向を示したときは嫌気性プロセスが関係し、反対の傾向の場合は好気性プロセスが考えられる。この結果から、FWS 湿地では、好気性と嫌気性の両方のプロセスが関わり、SF 湿地の場合は嫌気性プロセスだけが関わったことになるものと考えられた。

3. 4 人工湿地内部での ORP の分布

両人工湿地内部の ORP の分布を図 7 に示した。ここで、ORP と、 CH_4 、 N_2O 排出量の関係を整理するために、参考文献に従って ORP を以下のように 3 群に分けた。低い CH_4 酸化と高い CH_4 発生の範囲 (<-100 mV)、同時に CH_4 の発生・酸化と高い N_2O 発生の範囲 (-100 mV~200 mV)、高い CH_4 酸化と低い CH_4 発生の範囲 (>500 mV)。図 7 で示すように、湿地内の ORP の計測結果から、<-100 mV 群の ORP は主に FWS 湿地の砂地表面および SF 湿地の流入点近くで発生することがわかった。 CH_4 排出率は<-100mV 群の ORP 出現に対応して変化した。総 CH_4 排出の 75% は SF 湿地の最初の 1 m で発生し、90% は FWS 湿地の最初の 3 m で発生した。 N_2O 排出は-100~200 mV 群の ORP の出現と相関して変化することがわかった。FWS 湿地では、この群の ORP 領域が SF 湿地におけるよりもはるかに高い比率を占めており、これが FWS 湿地で N_2O 排出濃度が高い理由である。 CH_4 排出に関しては、SF 湿地の水面より高い土壌における CH_4 濃度の垂直方向の変化を調べた結果、この層では CH_4 濃度が明らかに低下することが観察された。>500 mV 群の ORP はこの層で普通に発生し、このことが SF 湿地で CH_4 排出が低い主な理由であると推定した。



(A) FWS 湿地における ORP 分布 (B) SF 湿地における ORP 分布 (C) FWS 湿地における水の経路に沿ったガス排出率の変化 (D) SF 湿地における水の経路に沿ったガス排出率の変化

図 7 FWS および SF 湿地における ORP およびガス排出率の分布

FWS 湿地では、異なる地点での CH₄ 測定の結果、溶存 CH₄ は ORP 値の増加に伴い低下することがわかり、FWS 湿地では ORP が 200 mV に達すると CH₄ がゼロに減少することが予想された。同じ低下は SF 湿地でも観測されたが、ORP が約-100~0 mV に達すると CH₄ 排出はほぼゼロに低下する。この結果も、SF 湿地は CH₄ 排出のポテンシャルが低いことを示唆した。

N₂O に関しては、溶存 N₂O の高いピークが FWS 湿地では砂地表面から 10 cm 低い所で、SF 湿地では 40 cm 低い所で観測された。各地点の ORP と溶存 N₂O との間には明瞭な関係は認められなかつた。FWS 湿地の地点を 2 つの部分、つまり根圏域と非根圏域に分ける。ヨシは水面よりも 20 cm 低く植えられたので、これより下の 20 cm の部分を根圏域とみなした。FWS 湿地においては砂表面より 10 cm 低い地点、SF 湿地では 30 cm 低い地点を根圏域とみなした。図 10 で示すように SF 湿地では N₂O の発生は非根圏域における NO₃-N 濃度と正の相関を示し、また根圏域における NH₃-N 濃度と同じ相関を示した。このことは、硝化プロセスが根圏域における N₂O 排出の原因となっているが、非根圏域では脱窒過程がその原因であることを意味する。この結果から、SF 湿地では前者の関係だけが存在するが、これは SF 湿地における主な N₂O 生成は脱窒過程に起因することを示唆している。

この結論を検証するため、FWS と SF 湿地の異なる地点での硝化速度を測定した。その結果、硝化速度は FWS 湿地では砂表面から 10 cm 以上低くなると増加し、SF 湿地では 30 cm 以上低くなると増加することがわかった。これらはまさに湿地の根圏域にあたることから、人工湿地内で生じる硝化過程にとって根圏域が重要な役割を担うことが示唆された。溶存 N₂O 濃度と硝化速度との関係を解析すると、SF 湿地では溶解 N₂O は硝化速度が増加すると減少することが明らかになった。しかし、FWS 湿地では硝化速度が 0.08 mg NO₃⁻ · g soil · h⁻¹ 未満のときに N₂O 濃度は増加する。硝化反応は厳

密な好気プロセスであるので、この結果は溶存 CH_4 、 N_2O の測定結果から推論された、硝化過程は FWS 湿地においては重要な N_2O 生成源であり SF 湿地ではそうではないとの推論を裏付けるものである。同様に脱窒過程は、SF 湿地では主な N_2O 生成源と推定された。

3. 5 人工湿地内の CH_4 酸化細菌の分布

両湿地内の溶存 CH_4 の測定結果から、湿地内部で生成・排出された CH_4 は湿地表面への移動過程で消費される事が明らかであり、 CH_4 酸化細菌の存在による酸化が考えられる。 CH_4 酸化細菌は 2 つの異なる生理学的グループに分類される。 CH_4 酸化細菌 I 型はリブロースモノリン酸経路を使って CH_4 の酸化により（メタノールを経由して）生成されたホルムアルデヒドを同化し、主に炭素 16 個の脂肪酸を含み、いくつもの細胞質内膜を有する。II 型の CH_4 酸化細菌はセリン経路を利用してホルムアルデヒドを同化し、細胞質内膜は細胞周辺部に配置され、主に炭素 18 個の脂肪酸を含む。本研究では、両湿地における CH_4 酸化細菌の分布を検出するために FISH 手法を使用した。I 型および II 型の CH_4 酸化細菌を識別できるプローブ MG-64 と MA-621 を全細胞ハイブリダイゼーションで使用した。プローブの配列および全細胞ハイブリダイゼーション法は、Bourne の著書 (D. G. Bourne, 2000) を参考にした。

CH_4 酸化細菌の分布を図 8 に示した。I 型および II 型の CH_4 酸化細菌を計数後、その数を合計した。FWS 湿地では、ヨシの根量が多く ORP が高い砂内部に CH_4 酸化細菌がより多く存在した。SF 湿地では、 CH_4 酸化細菌の数量は湿地内の ORP 分布と相関していた。砂地表面に近いほど CH_4 酸化細菌の割合は高くなかった。これらの傾向は溶存 CH_4 濃度と正反対であった。言い換えると水中の CH_4 濃度が低いほど CH_4 酸化細菌の割合は高い。これらの結果は、 CH_4 酸化細菌が CH_4 排出削減に重要な役割を果たすことを示している。SF 湿地では、 CH_4 酸化細菌の分布は CH_4 の拡散経路に正確に沿っており、 CH_4 は湿地からの排出過程で削減されることとなり、FWS 湿地と比較して SF 湿地での低い CH_4 排出量を規定している。

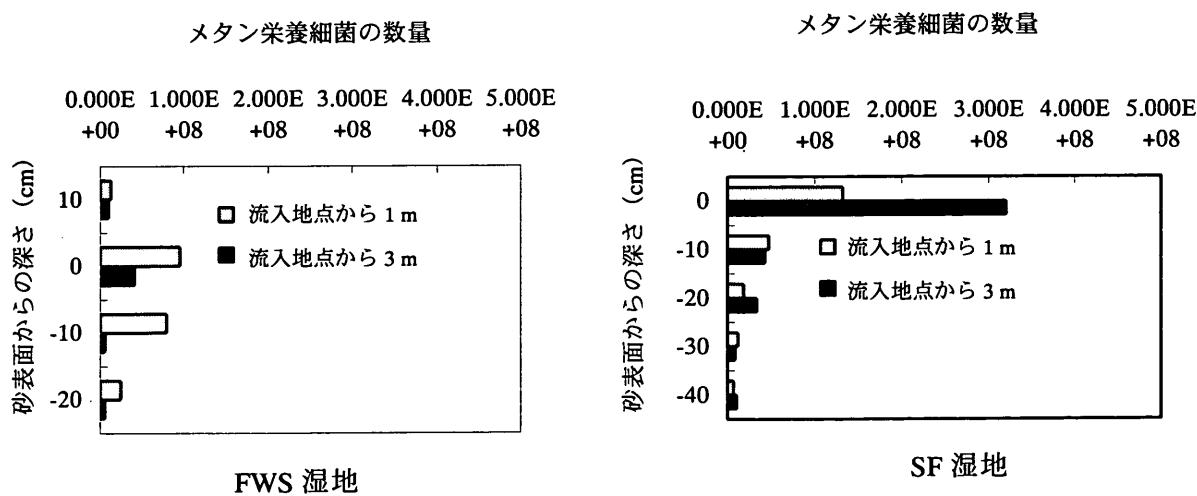


図 8 FWS および SF 湿地におけるメタン栄養細菌の分布

3. 6 ヨシ伐採が人工湿地性能に及ぼす影響

図9はヨシ伐採地点と非伐採地点におけるCH₄排出を示している。両湿地でCH₄排出ピークはヨシの伐採直後に現れた。その後19日目までは、FWS湿地ではヨシを伐採した地点のCH₄排出量はヨシを伐採しなかった地点よりも少なくなった。その後、ヨシ伐採地点のCH₄排出量は伐採をしなかった地点よりも高くなかった。ヨシの伐採直後を除いてSF湿地の傾向はFWS湿地の傾向とは逆であった。

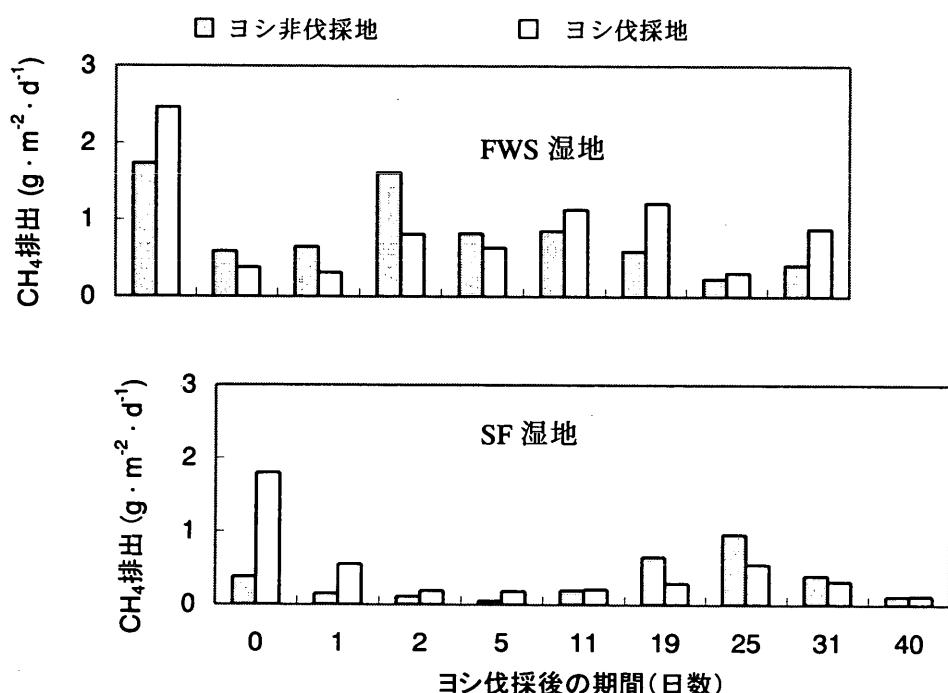


図9 ヨシ伐採地点およびヨシ非伐採地点における湿地別メタン排出

図10はヨシ伐採地点および非伐採地点におけるN₂Oの排出量を示している。CH₄排出と異なり、両湿地においてN₂O排出はヨシを伐採しなかった地点よりも伐採した地点で伐採直後に低かった。その後FWS湿地ではN₂O排出量はヨシ非伐採地点よりも伐採地点で多かった。これに対し、SF湿地ではヨシを伐採したすべての地点でヨシを伐採しなかった地点よりも低い傾向を示した。

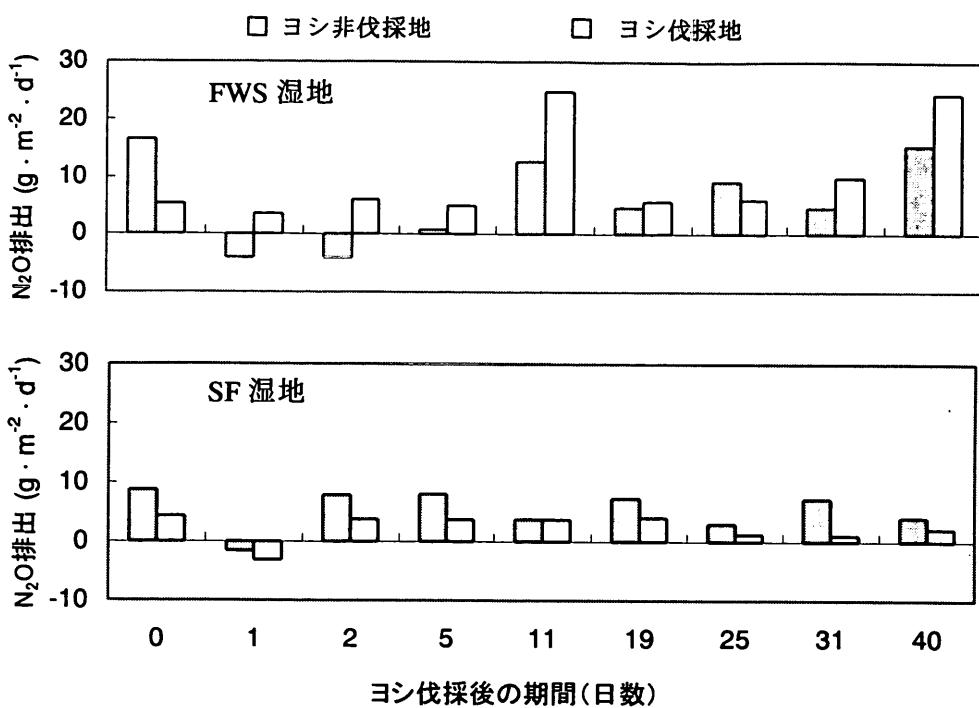


図 10 ヨシ伐採地点およびヨシ非伐採地点における湿地別 N₂O 排出

3. 7 パラメーター比較検討による運用要素の最適化

3. 7. 1 運用要素が汚染物質除去に及ぼす影響

最初に、汚染物質除去に関するあらゆる運用要素の重要性を分析し、その結果を図 11 に示す。水量負荷の偏差が最も高く、それが性能に最も影響することを意味している。植栽植物と湿地媒体の種類の影響は互いに非常に似ていた。NH₃-N 除去に関しては、これらの 4 つの要素はすべて明白な影響を結果に及ぼした。水量負荷が増加すると NH₃-N の除去率は低下する。川砂は、微生物が増殖する比表面積が大きいために礫より高い NH₃-N 除去率を達成した。Vetiveria と Phragmites は他の 2 種類の植物より優れた NH₃-N 除去率を示した。媒体表面より 10 cm 低い水位はより高い NH₃-N 除去率を示す。COD 除去と T-N 除去の結果にも同じ傾向が見られたが、その除去率の差は明白ではない。これは実験期間中の両湿地の高い COD および T-N 除去率によるものと推測され、明白な差は認められなかった。

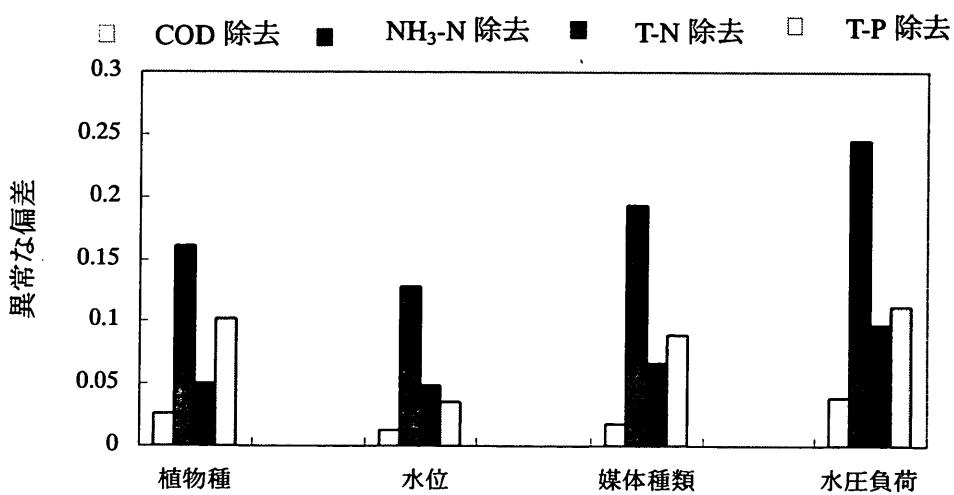


図 11 汚染物質除去に関する運用要素の重要性解析

3. 7. 2 運用要素がガス排出に及ぼす影響

図 11 の場合と同様に、 CH_4 、 N_2O 排出に関するあらゆる運用要素の重要性を解析した。図 12 に示すように、ガス排出に関しては植物の種類が最も重要な要素であることがわかったが、ここでは水位および湿地媒体の種類も考慮しなければならない。これらの検討結果から、*Typha Orientalis* および *Vetiveria zizanioides* を使用した場合に正の CH_4 排出が観測され、*Cyperus alternifolias* と *Phragmites australis* を使用した場合には CH_4 排出はなかった。既往研究によると、後者 2 種類の植物は大気から根部に酸素を転移する能力がより高く、十分な酸素の供給は CH_4 酸化細菌による CH_4 の酸化を補助する。この 2 種類の水生植物を用いたときの CH_4 酸化による削減ポテンシャルの大きさはこれで説明できる。 N_2O 排出に関しては、*Vetiveria zizanioides* が最も高い排出を示し、すべての植物が正の排出を示した。媒体の種類に関しては、礫の媒体がより高い CH_4 と N_2O の排出を示した。孔隙率は礫を湿地媒体として使用したときにより高く、礫媒体の孔隙率はガスの大気への運搬に好都合と推測される。水位に関しては、水位が湿地媒体表面よりも高いときにより高い CH_4 、 N_2O の排出率が観察された。また、水量負荷が高いほど、 CH_4 、 N_2O の排出も多い。

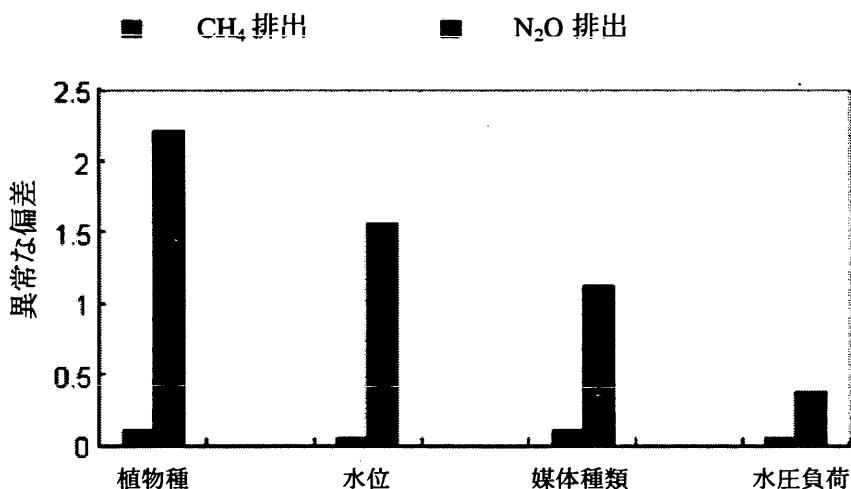


図 12 ガス排出に関する運用要素の重要性解析

4. 結論

代表的な人工湿地システムとして SF および FWS 湿地に注目して、パイロットスケールの処理装置を用いて両者の水質処理性能、 CH_4 、 N_2O 排出特性を運転管理手法との関係において比較検討した結果、以下の結論が得られた。

- (1) SF 湿地は FWS 湿地に比較して処理水質の安定性に優れ、 CH_4 、 N_2O 排出量も季節を通じて低い傾向を示し、その環境低負荷型としての優位性が確認された。したがって、維持管理上の多少の難しさはあっても、今後の処理方式として推薦されるべきものと考えられた。
- (2) 湿地内の嫌気域が CH_4 生成の原因であり、FWS 湿地と SF 湿地は、土壤の ORP との関係が同じであることがわかった。水面上の乾いた土層は、SF 湿地においては CH_4 削減の重要な役割を果

- たし、その結果 CH_4 の排出が少ない。SF 湿地の上面構造は CH_4 酸化細菌の定着、増殖に適しており、その結果として SF 湿地内の CH_4 の排出量が少なくなるものと推察された。
- (3) 根圈域は、FWS および SF の両湿地で硝化反応に対する重要な場所であることが証明され、硝化プロセスは、FWS 湿地での N_2O 発生の重要な要因の 1 つであること、また SF 湿地では N_2O 排出の明白な要因ではないことが明らかになった。
 - (4) 水量負荷は、人工湿地の汚染物質除去性能に最も影響する主要な要素であり、植物と湿地媒体の種類の影響は互いに非常に似た傾向を示した。 $\text{NH}_3\text{-N}$ 除去に関しては、これらの 4 つの要素はすべて明白な影響を結果に及ぼした。*Vetiveria* と *Phragmites* は他の 2 種類の植物より優れた $\text{NH}_3\text{-N}$ 除去率を示した。しかし COD と T-N の除去に関しては、すべての要素の影響が明白とは限らず、 CH_4 、 N_2O 排出に関しては植栽植物の種類が最も重要な要素であることが、*Cyperus alternifolias* と *Phragmites australis* は、 CH_4 排出の削減に適した植栽であると考えられた。
 - (5) FWS と SF 湿地からの CH_4 および N_2O の排出を、植物を伐採した地点と伐採しなかった地点で評価した結果、ヨシの伐採を行った地点では伐採直後に明らかな CH_4 排出の上昇が検出された。その後 CH_4 排出は低下してヨシを伐採しなかった地点よりも少なくなった。気温が 10°C より低くなると、 CH_4 排出は再び、伐採をしなかった地点よりも高くなった。 N_2O は両湿地でヨシの伐採直後に低下したが、FWS 湿地では数日間近辺よりも高い濃度を示した。FWS 湿地とは逆に、SF 湿地ではヨシを伐採した地点からの N_2O 排出量は常に低かった。

5. 参考文献

- (1) Aulakh, M.S., Rennie D.A. and Paul E.A. (1984). Acetylene and N-serve effects upon N_2O emissions from NH_4^+ and NO_3^- treated soils under aerobic and anaerobic conditions. *Soil Biol. Biochem.*, 16, 351-356
- (2) Chris F., Maurice A.L., Steve H. and Brian R. (1997). Nitrous oxide emissions and the use of wetlands for water quality amelioration. *Environ. Sci. Technol.*, 31, 2438-2440.
- (3) Crutzen, P.J. (1994). Global budget for non-CO₂ greenhouse gases. *Environ. Monitor. Assess.*, 31, 313-325
- (4) Danuta, L., Andrew, D. (1992). Tertiary wastewater treatment through constructed wetland ecosystems. *Env. Protection Eng.*, 18(1-2), 13-23.
- (5) Devai, I., and Delaune, R.D. (1996). Light hydrocarbon production in freshwater marsh soil as influenced by soil redox conditions. *Wat. Air. Soil. Pollut.*, 88, 39-46
- (6) Flessa, F., Dorsch, P. et al. (1996). Influence of Cattle wastes on nitrous oxide and methane fluxes in pastureland. *J. Environ. Qual.*, 25, 1366-1370.
- (7) Gale, P.M., Reddy, K.R. and Graetz., D.A.(1993). Nitrogen removal from reclaimed water applied to constructed and natural wetland microcosms. *Wat. Env. Res.*, 65(2), 162-168.
- (8) Gu X. -Sh. (1993). Mathematical modeling for biological wastewater treatment (in Chinese), Beijing, China, Tsinghua university publishing house.

- (9) Harberl, R. (1999). Constructed wetlands: a chance to solve wastewater problems in developing countries. *Wat. Sci. Tech.*, 40(3), 11-17.
- (10) Harremoes, P. (1997). Challenge of managing water and material balances in relation to eutrophication. *Wat. Sci. Tech.*, 37(3), 9-17.
- (11) Houghton, J.T., Meira F.L.G. et al (1996). Climate change 1995, The science of climate change: The second assessment report of IPCC on climate change, Cambridge, Cambridge University Press
- (12) J.T. Houghton, Climate change: The IPCC Scientific Assessment, Cambridge: Cambridge University Press, 1990
- (13) J.T. Houghton, L.G. Meira Filho et al., Climate change 1995, The science of climate change: The second assessment report of IPCC on climate change, Cambridge, Cambridge University Press, 1996
- (14) Knowles, R. (1992). Denitrification, *Microbial. Rev.*, 46(1), 43-70.
- (15) Guntenspergen, G. R., Stearns, F. and Kadlec J.A.(1989)Wetland vegetation: Constructed wetlands for wastewater treatment-municipal, industrial and agricultural, Donald A. H. (editor), Chelsea, Lewis publishers. Inc.
- (16) Nicholas, D.S. (1983). Removal of nutrients from treated municipal wastewater by wetland vegetation. *J. WPCF*, 55, 485-491
- (17) Patrick H.M., Ronald D. D. and William H.P. (1993). Methane and nitrous oxide emissions from laboratory measurement of rice soil suspension: effect of soil oxidation-reduction status. *Chemosphere*, 26(1-4), 251-260;
- (18) P.J. Crutzen, 1994, Global budget for non-CO₂ greenhouse gases, *Environ. Monitor. Assess.*, 31:313
- (19) Peter F.B. (1990). A mass balance method for assessing the potential of artificial wetlands for wastewater treatment. *Wat. Res.*, 24(6), 689-697.
- (20) Reed, C. S. and Ronald W. C. (1993). Natural systems for waste management and treatment, McGraw-Hill, Inc.
- (21) Reed, S.C. and Brown, D.S. (1992). Constructed wetland design-the first generation. *Wat. Env. Res.*, 64(6), 776-781.
- (22) Zhiping Zhang, 1998, Introduction of global emissions of greenhouse gases, *Chinese Journal of Ecology*, 17(1):73 (In Chinese)
- (23) Danuta, L., Andrew, D. (1992). Tertiary wastewater treatment through constructed wetland ecosystems. *Env. Protection Eng.*, 18(1-2), 13-23.
- (24) H.U.Neue, R.Wassmann, R.S. Lantin et al., 1996, Factors affecting methane emissions from rice fields, *Atmospheric Environment*, 30(10/11), 1751-1754
- (25) Hiroki Itokawa, Keisuke Hanaki and Tomonori Matsuo, 1996, Nitrous oxide emission surging nitrification and denitrification in a full-scale night soil treatment plant, *Wat.Sci. Tech.*, 34(1-2): 277-284
- (26) H. Zheng, K. Hanaki and T. Matsuo, 1994, Production of nitrous oxide gas during nitrification of wastewater, *Was. Sci.Tech.* 30(6): 133-141
- (27) Naohiro Yoshida, 1988, 15N-depleted N₂O as a product of nitrification, *Nature*, 335(6), 528-529

- (28) U.Skiba, K.J. Hargreaves et al., 1992, Fluxes of Nitric and Nitrous oxide form agricultural soils in a cool temperature climate, Amos. Environ., 26A(14):2477-2488
- (29) Frank C. Thornton and Ralph. J. Valente, 1996, Soil Emissions of Nitric oxide and nitrous oxide from no-till corn, Soil. Sci.Am.J., 60:1127-1133
- (30) Kerstin Robertson, 1994, Nitrous Oxide emissions in relation to soil factors at low to intermediate moisture levels, J. Environ. Qual., 23:805-809
- (31) G. Philip and James M. Tiedje, 1983, Denitrification and nitrous oxide production in success ional and old growth Michigan forests, Soil. Sci. Soc. Am. J., 48:383-389
- (32) Patrick H. Masschelley, Ronald D. DeLaune et al., Methane and nitrous oxide emissions from laboratory measurements of rice soil suspension: Effect of soil oxidation-reduction status, Chemosphere, 26(1-4), 251-260
- (33) K.Haider, A. Mosier et al., 1987, The effect of growing plants on denitrification at high soil nitrate concentrations, Soil. Sci.Soc.Am.J., 51:97-102
- (34) Boone, D.R., R.L.Johnson and Y. Liu. Methanogenesis-ecology, physiology, biochemistry & genetics. Chapman & Hall, New York.35-81, 1989.
- (35) Bosse, U., P. Frenzel, and P.Conrad. FEMS Microbiology Ecology.13:123-134,1993.
- (36) David G. Bourne, Andrew J.Holmes, Niels Iversen, J.Colin Murrell. FEMS Microbiology Ecology. 31: 29-38, 2000.
- (37) DenierVanderGon, H.A.C., and H.U.Neue. Biol. Fertil. Soils. 22: 359-366, 1996;
- (38) DenierVanderGon, H.A.C., and N. VanBreemen. Biogeochemistry. 21:177-190, 1993.

6. 国際共同研究等の状況

日中環境保護協定

- E1 中国の国情に合う排水処理プロセスの開発に関する研究
- E2 中国の国情に合う高効率低コスト新排水高度処理技術の開発に関する研究
- E3 中国の国情に合う土壤浄化法を組み込んだ生活排水処理システムに関する研究
- E10 中国太湖流域のバイオ・エコエンジニアリング導入による水環境修復技術開発に関する研究

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表（学術誌・書籍）

<学術誌（査読あり）>

- 1) Gui Ping, Huang Xia, Chen Ying and Qian Yi, Effect of operational parameters on sludge accumulation on membrane surfaces in a submerged membrane bioreactor, Desalination 151(2), 185-194

<学術誌（査読なし）> なし

<書籍> なし

<報告書類等> なし

(2) 口頭発表

- 1) P. Gui, R. Inamori, T. Iwami, T. Itayama, K. Xu, M. Mizuochi and Y. Inamori, Comparison of Wastewater Treatment Performance for Two Typical Types of Constructed Wetland Considering Water Resource Conservation, the II International Conference on Efficient Use and Management of Water for Urban Supply , 2 -4 April 2003, Canary Islands , Tenerife, Spain
- 2) Ping GUI, Ryuhei Inamori, Wenchang Zhu, Motoyuki Mizuochi, Yuhei Inamori, Sustainability and optimisation of treatments land use of wastewater for irrigation in Mediterranean countries, The 2nd International Symposium on Ecological Sanitation, April 7-11, 2003, Lubeck, Germany
- 3) P. Gui, R. Inamori, T. Iwami, K. Xu, M. Mizuochi and Y. Inamori, Comparison of wastewater treatment performance and greenhouse gas emissions from two typical types of constructed wetland, 6th IWA Strong N and Agro 2003, June 10-14, 2003, Seoul, Korea (Accepted, Oral)
- 4) P. GUI, R. Inamori, T. Iwami, W.C. zhu, L.W. Sun, K.Q. Xu, M. Mizuochi, Y. Inamori, Evaluation and Optimization of Constructed Wetland Performance Considering Potential of Resulting Algal Blooms, International Association for Great Lakes Research 46th Annual Conference & International Lake Environment Committee 10th World Lakes Conference, June 22-26, 2003, Chicago, U.S. A (Accepted, Oral)
- 5) P. Gui, R. Inamori, T. Iwami, K. Xu, W. ZHU, M. Mizuochi and Y. Inamori, PERFORMANCE AND OPTIMIZATION OF CONSTRUCTED WETLAND FOR DOMESTIC WASTEWATER TREATMENT, The 2nd International Toxic Algae Control Symposium, October 30-31, 2002, Tsukuba, Japan
- 6) Sun L.W., P. Gui, R. Inamori, N. Nada, S. Tsuneda, A. Hirata, M. Mizuochi, Y. Inamori. Distribution and community structure of methanotrophs in a constructed wetland wastewater system. Society of Wetland Scientists 23rd Annual Conference, June 2-7, 2002. Lake Placid, NY. USA.
- 7) P. Gui, R. Inamori, L-W Sun, W-C Zhu, N.W Zhu, L.W. Sun, M. Mizuochi, Y. Inamori, Optimization of Constructed Wetland Operation Based on Orthogonal Designed Investigation, 日本水処理生物学会第39回年会 2002年11月 埼玉
- 8) 稲森隆平・井上武雄・桂 萍・岩見徳雄・水落元之・稻森悠平：アシ・マコモ・ガマを用いた栄養塩類除去と温室効果ガス抑制特性、日本水処理生物学会第39回年会、2002年11月、埼玉
- 9) 孫 麗偉・桂 萍・稻森隆平・稻森悠平：人工湿地水浄化システムにおけるCH₄細菌とCH₄酸化細菌群集の解析・評価、日本水処理生物学会第39回年会、2002年11月、埼玉
- 10) P. Gui, R. Inamori, L-W Sun, W-C Zhu, H. Isoda, M. Mizuochi, Y. Inamori,, Characteristics of Methanotrophic Bacteria Separated from Constructed Wetland, 日本水環境学会第37回年会、2003年3月、熊本
- 11) N. Zhu, R. Inamori, P. Gui, L. Sun, Y. Inamori, M. Mizuochi, Effect of plants reaping on the emissions of CH₄ and N₂O in constructed wetland, 日本水環境学会第37回年会、2003年3月、熊本
孫麗偉・桂 萍・稻森隆平・稻森悠平：FISH手法を用いた人工湿地浄化システムにおけるCH₄細菌とCH₄酸化細菌群集の定量的解析・評価、日本水環境学会第37回年会、2003年3月、熊本

(3) 出願特許 なし

(4) 受賞等 なし

(5) 一般への公表・報道等 なし

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

本手法は開発途上国で需要が多い手法なので、JICA の集団研修等を通して成果の普及に努めている。また、中国清華大学との間で中国での実証化研究の共同実施を検討している。