

## B-16 地球温暖化抑制のための CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O の対策技術開発と評価に関する研究

### (3) CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O の抑制のための生活系排水のバイオ・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 工学研究科	西村修
	東北学院大学 工学部	遠藤銀朗
	筑波大学 応用生物化学系	松村正利

平成 10-11 年度合計予算額 41,090 千円  
(平成 11 年度予算額 20,094 千円)

#### 【要旨】

本研究では、CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O 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。生物学的窒素除去の単位プロセスとしての硝化反応においては、水温の低下、流入窒素負荷の増大に伴い硝化能の低下、N<sub>2</sub>O 発生速度および転換率の増大が生じ、特に低水温時において窒素負荷の影響が大きく現れることがわかった。また、硝化率が十分に高く維持されるようにすれば、硝化過程における N<sub>2</sub>O 発生も同時に抑制可能であることがわかった。

有用硝化脱窒細菌 *A. faecalis* の包括固定化担体による間欠ばっ気法への導入により、N<sub>2</sub>O 転換率を増大させることなく硝化能および窒素除去能の双方の向上の達成の可能性が明らかとなった。また、既存活性汚泥反応槽と三相流動層反応槽の窒素除去および N<sub>2</sub>O を放出特性を評価した結果、*A. faecalis* 固定化担体の充填量の多い三相流動層反応槽の N<sub>2</sub>O 発生量は 1/5 に低下し、窒素除去率は平均約 5% 高くなることがわかった。

銅を含有する N<sub>2</sub>O 還元酵素の窒素還元に及ぼす影響は著しく、3ppm 程度の添加によって、発生する N<sub>2</sub>O 濃度は高速度脱窒下においても 3ppm 程度に抑制された。また、ポリエチレンイミンで架橋された多孔性セルロース担体の銅吸着能力は優れており、この特性は今後銅の直接添加を嫌う地下水の硝酸除去に新たな手法になるものと考えられた。

豚舎排水処理過程における N<sub>2</sub>O 発生原単位は下水処理過程における値に比べて大きくなったが、これは豚舎排水処理の過程で一時的に NO<sub>2</sub>-N が蓄積するためであることが示唆された。すなわち排水処理の過程で N<sub>2</sub>O の生成を抑制するためには NO<sub>2</sub>-N を蓄積させないことが重要であり、適切な嫌気好気時間の設定等による硝化と脱窒のバランスのよい進行が有効であると考えられた。

人為的汚染を受ける湿地帯からの CH<sub>4</sub> および N<sub>2</sub>O の放出量は大きな季節変動が観察され、これらは CH<sub>4</sub> 酸化あるいは植生による吸収活性、脱窒反応や窒素化合物吸収等の、湿地生態系における微生物や植物による有機物や窒素代謝の変動等に起因するものと考えられた。また、湿地底泥等から得られた CH<sub>4</sub> 酸化細菌と脱窒細菌の集積培養を用いた室内実験によって、湿地微生物生態系の活用は、人為的汚染を受ける湿地からのこれらのガスの削減技術となる可能性が示された。

嫌気ろ床・土壌トレンチの処理水の水質は日本の建設省と厚生省等の再利用水の水質基準を十分に満足しており、再利用水としてのリサイクルの期待できることがわかった。また、通気を行うことにより CH<sub>4</sub> および N<sub>2</sub>O の発生量を非通気の場合の約半分に抑制可能であり、通気条件の適正化によ

りこれらのガスの抑制効果がさらに向上する可能性が示唆された。

**【キーワード】** 温室効果ガス抑制, メタン (CH<sub>4</sub>), 亜酸化窒素 (N<sub>2</sub>O), バイオエンジニアリング,  
エコエンジニアリング

## 1. 序

地球温暖化の原因となる温室効果ガスとして CO<sub>2</sub> が重要な位置づけにあったが、これに加え CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O が 1997 年 12 月に京都で開催された温暖化防止京都会議 (COP3) において削減対象ガスとして定められた。特に CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O は CO<sub>2</sub> に比較して温室効果のポテンシャルが非常に大きく、近年ではこれらの微量ガスの地球温暖化への寄与率が高まっていることから、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る。このことは、CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O の重要な対策分野である水処理・水環境分野にもあてはまり、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、生活排水系とその処理プロセス等における CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O 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 10, 11 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) 生物学的排水処理における硝化活性および N<sub>2</sub>O 生成速度に及ぼす水温・窒素負荷の影響に関する解析評価
- (2) 有用硝化脱窒細菌の包括固定化担体の導入による窒素除去プロセスの高度化および N<sub>2</sub>O 発生抑制効果に関する研究
- (3) 微量金属添加による高効率脱窒プロセスの開発と N<sub>2</sub>O 発生抑制効果に関する研究
- (4) 畜舎排水処理プロセス等における N<sub>2</sub>O 発生特性の実態調査と発生削減対策技術の研究開発
- (5) 人為的汚染をうける湿地からの CH<sub>4</sub> および N<sub>2</sub>O の発生量の評価とその抑制対策技術の開発
- (6) CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O 発生抑制型の嫌気ろ床・土壌トレンチ排水処理プロセスの開発

## 3. 生物学的排水処理における硝化活性および N<sub>2</sub>O 生成速度に及ぼす水温・窒素負荷の影響に関する解析評価

硝化および脱窒の各反応からなる生物学的窒素除去プロセスにおいては、硝化反応が反応全体の律速となることが多く、その進行が阻害されることにより N<sub>2</sub>O 発生量が増大することが知られている。このことから、硝化反応単位プロセスにおいて、水温および流入窒素負荷が N<sub>2</sub>O 発生も含めた硝化反応に及ぼす影響等について検討を行った。

### 3.1 実験方法

実験は、容積 2L の単槽のばっ気槽を 10, 20 および 30℃ の恒温槽に 2 系ずつ合計 6 系設置し、活性汚泥法による検討を行った。供試排水には、はじめは全窒素 (T-N) 40mg・L<sup>-1</sup>, 有機性-N, NH<sub>4</sub>-N

および  $\text{NO}_2\text{-N}$ ,  $\text{NO}_3\text{-N}$  がそれぞれ 15, 25 および 0  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  である, 生活排水を模した合成排水を用い, この組成を基本として設定値を適宜変更した。処理水の引き抜きには平膜フィルターを用い, pH は 7.0 に調整し, 溶存酸素 (DO) の確保のために十分なばっ気を行った。それぞれの温度条件に対し, 単位 MLSS あたりの流入窒素負荷の設定をそれぞれ 2 種類の方法で行った。一方は, 活性汚泥濃度 (MLSS) を 2,000  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 水理的滞留時間 (HRT) を 8 時間に固定し, 段階的に流入原水濃度を高くすることにより窒素負荷を増大させた。これを 10, 20, 30 $^{\circ}\text{C}$ の順に Run1, Run2, Run3 (実験系 A) とする。もう一方は, MLSS を 500  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 流入窒素濃度を T-N 40 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  に固定し, 段階的に HRT を短くすることにより窒素負荷を増大させた。これを 10, 20, 30 $^{\circ}\text{C}$ の順に Run4, Run5, Run6 (実験系 B) とする。ここで, 各段階での実験系 A および B の単位 MLSS あたりの窒素負荷は同一となるようにした。また, MLSS を設定値に維持するために, 適宜余剰汚泥の引き抜きを行った。なお, 窒素負荷の設定値は, はじめ 0.06 $\text{kg}\cdot\text{N}\cdot\text{kg}\cdot\text{MLSS}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$  (stage1) とし, その後 0.12 (stage2), 0.16 (stage3), 0.24 (stage4) (単位はそれぞれ  $\text{kg}\cdot\text{N}\cdot\text{kg}\cdot\text{MLSS}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$ ) の順に増大させ, 硝化および  $\text{N}_2\text{O}$  生成の反応速度等を解析した。以上の実験条件をまとめると Table 1 に示すとおりである。

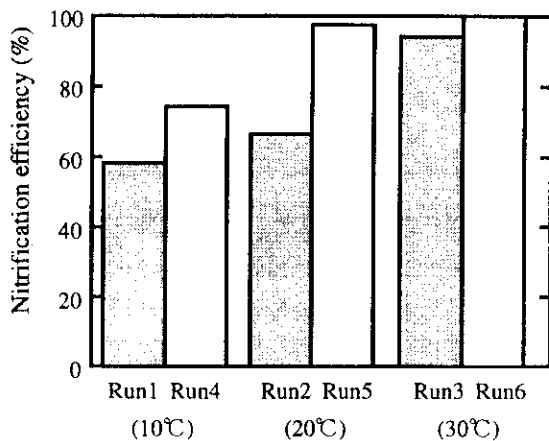
### 3.2 結果および考察

#### 3.2.1 硝化反応と $\text{N}_2\text{O}$ 発生に及ぼす水温の影響

実験系 A の stage1 (以後実験条件 A-1), 実験系 B の stage1 (以後実験条件 B-1)の水質等がそれぞれ安定した後の硝化反応と  $\text{N}_2\text{O}$  発生に及ぼす水温の影響について解析を行った。水温の影響としては, Fig. 1 に示すように実験条件 A-1 での硝化率の平均値は Run1, 2, 3 の順に, それぞれ 58, 66, 91%となった。また, 実験条件 B-1 につい

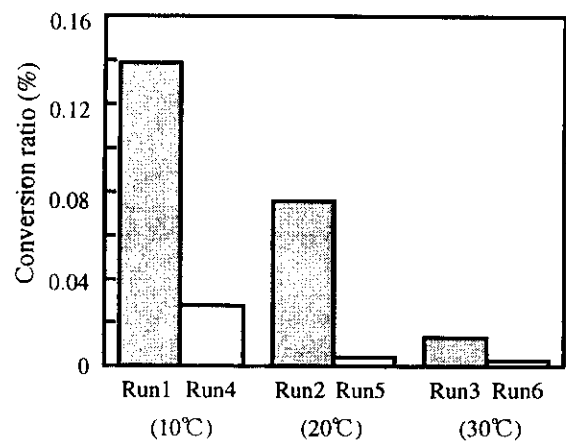
**Table 1** Experimental condition

Operating condition			1	2	3	4	
(Run)	Water temp. ( $^{\circ}\text{C}$ )	MLSS ( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )	HRT (h)				
			T-N concentration ( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )				
			TN-MLSS Load ( $\text{kg}\cdot\text{N}\cdot\text{kg}\cdot\text{MLSS}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$ )				
A	1	10	2,000	8	8	8	8
	2	20	2,000	40	80	107	160
	3	30	2,000	0.06	0.12	0.16	0.24
B	4	10	500	32	16	12	8
	5	20	500	40	40	40	40
	6	30	500	0.06	0.12	0.16	0.24



**Fig. 1** Nitrification efficiency at various water temperature

Columns  $\square$  and  $\square$  denote experimental condition A and B.



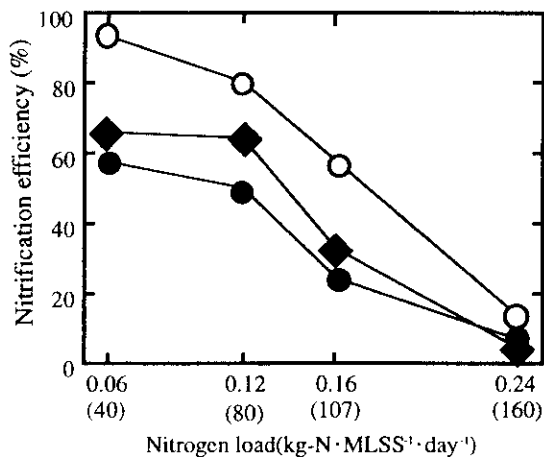
**Fig. 2** Conversion ratio from nitrogen in the influent to  $\text{N}_2\text{O-N}$

Symbols,  $\square$  and  $\square$  denote the experimental conditions A and B, respectively.

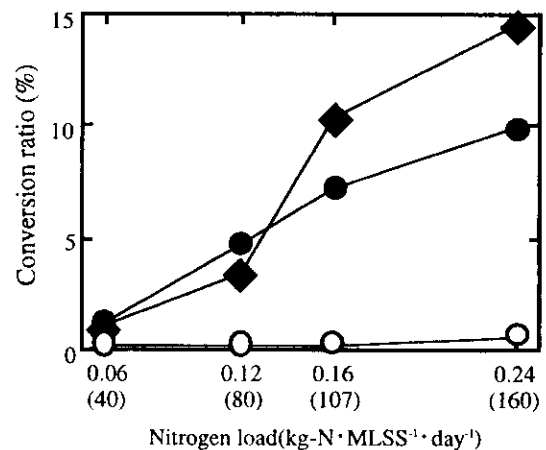
ては Run4, 5, 6 の順に、それぞれ 74, 97, 99%となり、それぞれの負荷条件下で低水温の実験系ほど硝化率は低下した。各実験系における流入窒素の  $N_2O$  への転換率はそれぞれ Fig. 2 に示すとおりである。水温が低いほど大気中、および溶存態としての  $N_2O$  放出速度は大きくなり、窒素の  $N_2O$  への転換率も増大した。これは、低水温条件下では硝化細菌の活性が低く、硝化反応の進行が阻害され、 $NH_2OH \rightarrow NO_2-N$  から  $NH_2OH \rightarrow NOH \rightarrow N_2O$  へと代謝経路が変化し、反応の副生成物である  $N_2O$  に転換する割合が増大したものと考えられた。つまり、水温を微生物反応が最適に進行するように保つことにより、硝化反応の効率的な進行と  $N_2O$  発生の抑制の両立が可能となることが示唆された。

### 3.2.2 硝化反応と $N_2O$ 発生に及ぼす流入窒素負荷の影響

実験系 A における流入窒素負荷の硝化率に及ぼす影響としては、Fig. 3 に示すように、それぞれの水温条件下で、実験条件 A-1, A-2, A-3, A-4 の順に流入窒素負荷が高くなるほど硝化率が低下した。特に、窒素濃度が  $160mg \cdot L^{-1}$  の条件下においては水温に関係なく硝化率は 10%前後まで低下した。 $N_2O-N$  の硝化された窒素に対する割合をみると、流入窒素負荷が高くなるほど増大する傾向がみられた(Fig. 4)。さらに、硝化反応がある程度進行するような流入窒素濃度が  $T-N 80mg \cdot L^{-1}$  以下の条件では、低水温時ほどその影響が大きき現れた。これは、過度の窒素負荷によって  $NO_3$  が生成する硝化速度が低下し、それによって  $N_2O$  が生成する副反応の速度が増大したものと推察された。一方、Run3 ( $30^\circ C$ ) においては、流入窒素濃度を増大させた場合に大幅な硝化率の低下は生じるが、 $N_2O$  転換率に関してはその増大の程度は他の 2 系に比較して著しく低くなっている。これは、硝化およびそれに伴う  $N_2O$  生成反応は微生物代謝反応であるが故に、これらの生物の至適温度とされる  $25 \sim 30^\circ C$  の条件下においては酵素活性、代謝活性も高く窒素負荷の影響を受けにくかったものと考えられる。さらに、この Run3 の結果から、窒素負荷の増大に伴い、まず硝化速度の低下が生じ、続いて  $N_2O$  生成速度の増大が生じることが考えられる。つまり、硝化能が十分に維持されてい



**Fig. 3** Relationship between the inflow nitrogen concentration and the nitrification efficiency at experimental condition A. Each value in the parentheses shows the inflow nitrogen concentration ( $mg \cdot L^{-1}$ ), respectively. Symbols, ●, ◆ and ○ denote the Run1, Run2, and Run3, respectively.



**Fig. 4** Relationship between the inflow nitrogen concentration and the conversion ratio from nitrified nitrogen to  $N_2O-N$  at experimental condition A. Each value in the parentheses shows the inflow nitrogen concentration ( $mg \cdot L^{-1}$ ), respectively. Symbols, ●, ◆ and ○ denote the Run1, Run2 and Run3, respectively.

る限り、同時に  $N_2O$  発生抑制も可能であると考えられる。これらのことから、MLSS が  $2,000\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、HRT が 8(h)の条件下では、T-N  $80\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  以上の過度の流入窒素負荷は硝化反応の進行が不十分になるだけでなく、 $N_2O$  の発生抑制に対しても適切な条件ではないと考えられた。

また、実験系 B において HRT の影響としては、それぞれの水温条件下で、実験条件 B-1, B-2, B-3, B-4 の順に HRT が短くなるほど硝化率が低下した。例えば、 $10^\circ\text{C}$  の場合は HRT が 32, 16, 12, 8(h)と短くなるに伴い、硝化率は 67, 62, 59, 32(%)と低下した。また、HRT が短くなるほど  $N_2O$  放出速度、流入窒素の  $N_2O$  への転換率および  $N_2O$ -N の硝化された窒素に対する割合はそれぞれ高くなる傾向がみられた。

#### 4. 有用硝化脱窒細菌の包括固定化担体の導入による窒素除去プロセスの高度化および $N_2O$ 発生抑制効果に関する研究

生物学的窒素除去は硝化および脱窒の各反応の効率的な進行により達成されるが、細菌の一種で硝化能と脱窒能の両方の生理学的特性を有する *Alcaligenes faecalis* の包括固定化担体の生物処理反応槽への導入による処理プロセスの高度化・効率化について、間欠ばつ気活性汚泥法および三相流動層法に関して検討を行った。

##### 4.1 実験方法

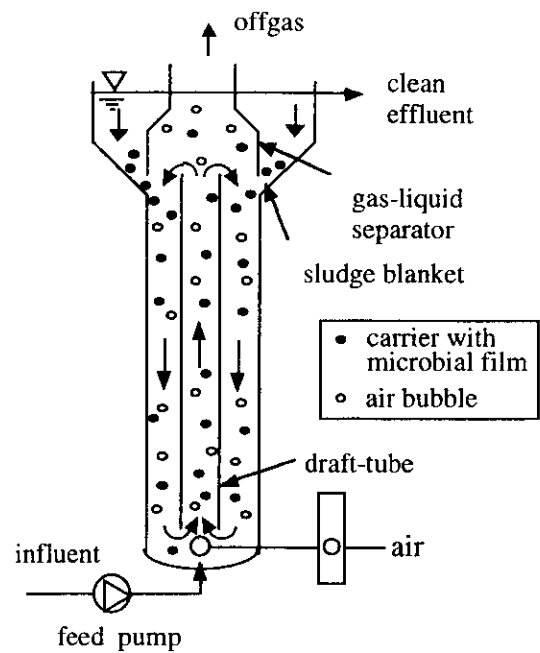
有効容積 5.4L の円筒型のばつ気槽と同 2.5L の沈殿槽から構成される、間欠ばつ気活性汚泥法の実験装置を用い、硝化細菌を優占化させた活性汚泥を包括固定化した場合と、*A. faecalis* を固定化した場合の、窒素除去特性と  $N_2O$  発生特性等について比較解析を行った。実験には実生活排水を使用し、HRT は実験開始時には 8 時間に設定し、最終的には 4 時間まで負荷を増大させた。汚泥返送率は 50%とし、好気工程時の DO 値は、最初  $4.0\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  以上となるように設定し、適宜変更した。実験条件は Table 2 に示すとおりであり、条件は A, B, C, D, E の順に HRT, DO, 嫌気/好気 of 各工程の時間配分の設定条件を変更した。実験系は、硝化細菌を優占化させた活性汚泥（以下、硝化活性汚泥）を包括固定化したポリエチレングリコール (PEG) 担体をばつ気槽容積の 10%導入した系 (Run 1)、および *A. faecalis* を  $1\times 10^{11}\text{CFU}\cdot\text{担体 cm}^{-3}$  となるように包括固定化した PEG 担体をばつ気槽容積の 10%導入した系 (Run 2) とした。また、運転開始時に MLSS を  $2,000\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  に設定して包括固定化担体を接種した。水温は実験期間全体を通して  $20\sim 23^\circ\text{C}$  に維持するようにした。

また、Fig. 5 に示すような三相流動層の排水処理装置を用い、*A. faecalis* の導入量を変えた場合等における窒素除去特性と  $N_2O$  発生特性等について比較解析を行った。実験装置は厚さ 3mm の円筒アクリル製であり、有効容積 1.8L で内部に直径 3.6cm のドラフトチューブを通して空気が供給される構造になっている。完全混合型の流動層反応槽内の流体が上昇する上向槽と下向する下向槽の面積比は 1:2.16 である。反応槽の直径は 6.4cm、高さ/直径の比は 10.9 である。実験には、下水処理場の返送汚泥を 60 mesh ( $\phi 0.24$ ) で夾雑物をふるいにかけて反応槽に投入した。運転初期は反応槽内の固定化微生物の形成を高めるためにバッチ方式とした。pH は 7 以上に保持し

Table 2 Experimental condition

Condition	A	B	C	D	E
HRT; (h)	8	6	4	4	4
Oxic/Anoxic; (min./min.)	60/60	60/60	60/60	60/60	90/30
DO; ( $\text{mg L}^{-1}$ )	4.0	4.0	4.0	1.0	1.0

て運転を継続した。実験には、生活排水を模した合成排水を用い、HRT を 8~4 時間まで徐々に短縮させながら計 18phase の運転を行った。反応槽の内部には *A. faecalis* を PEG により固定化した担体と粒径 0.71~0.84mm 程度の粒状活性炭を導入した。まず、下水処理場の返送汚泥を 60 mesh ( $\phi 0.24$ ) で夾雑物をふるいわけて反応槽に投入した。運転初期は反応槽内の固定化微生物の形成を高めるためにバッチ方式とした。pH は 7 以上となるようにし、HRT を 8~4 時間まで徐々に短縮させながら計 18phase の運転を行った。反応層は従来の活性汚泥システム、固定化した担体を注入した活性汚泥システム、および流動床システムの 3 種類を設定した。実験装置の運転条件は **Table 3** に示すとおりである。



**Fig. 5** Three-phase fluid layer bioreactor

**Table 3** Experimental conditions

Reactor No.	1	2	3	4	5	6
System	AS	AS	FB	FB	FB	FB
Carrier	NO	IAF	IAF	IAF	IAF	AC
Packing rate, %	NO	10	10	20	30	30
HRT, hr	4~8					

AS: Activated Sludge, FB: Fluidized Bed, IAF: Immobilized *A. faecalis*, AC: Activated Carbon

## 4.2 結果および考察

### 4.2.1 間欠ばつ気活性汚泥法における *A. faecalis* の導入と硝化・脱窒特性との関係

HRT が 8~6 時間の条件下 (実験条件 A および B) においては、いずれの系においても 90% 以上の高い硝化率が得られたが、HRT が 4 時間の条件下ではともに硝化率は低下した。しかし、Run 1 および Run 2 いずれにおいてもそれぞれ 60% 程度の値が維持された。これは、*A. faecalis* および硝化細菌の優占化した活性汚泥を導入した効果によるものと考えられた。また、各実験系における HRT が 8~6 時間の条件下では、Run 1 と Run 2 のいずれにおいても 70~80% の窒素除去率が得られたが、HRT 4 時間の条件下では窒素除去率は低下し、Run 1 および Run 2 とともに、硝化率と同様にいずれも 60% 程度の値となった。このように、*A. faecalis* の固定化は、硝化活性汚泥の固定化の場合と同等の効果の得られることがわかった。

### 4.2.2 間欠ばつ気活性汚泥法における *A. faecalis* の導入と $N_2O$ 発生特性との関係

$N_2O$  の発生特性について比較評価したところ、流入窒素あたりの  $N_2O$  転換率については、HRT

が 8~6 時間の条件下ではいずれの系にも差はみられず、0.3~0.4%程度の値であった。しかし、それ以上に窒素負荷を上げると両系ともに  $N_2O$  転換率は増大し、約 0.6%に達した。このことから、*A. faecalis* および硝化細菌の優占化した硝化活性汚泥の導入において、窒素除去能のみならず  $N_2O$  転換率にも大きな差はみられないことがわかった。このように、生活排水処理の場合には、*A. faecalis* および硝化活性汚泥の包括固定化法においては HRT を 6 時間程度まで高めても良好な処理能を達成可能なことがわかった。なお、*A. faecalis* の導入手法の最適化を図る上では、さらに運転操作条件等についての検討評価を進めていくことが必要と考えられる。

#### 4.2.3 三相流動層法における *A. faecalis* の導入と硝化・脱窒特性との関係

三相流動層実験装置においては、供試微生物は十分に馴致させた後、反応槽の全体容積の 2/3 程度を充填し回分式で合成排水を流入させ、10 日後より連続運転を開始した。反応槽の微生物の MLSS 濃度は  $2,500\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  に維持し、また活性炭を入れた反応槽の連続運転時の MLSS 濃度は  $5,000\sim 6,000\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  に保持した。

Table 4 に HRT が 8 時間の場合の運転結果を示した。既存の活性汚泥法の場合  $0.18\sim 0.09\text{kg NH}_4^+-\text{N}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$  の窒素負荷量で 8.3~17.2%の T-N 除去率を示し、固定化担体を 10%導入した活性汚泥法の場合は T-N 除去率が 23.2%まで増加した。また固定化した担体を 10%入れた流動反応槽の場合は 27.2%の T-N 除去率を示した。担体の充填率との関係については、充填率を 10%にして実験を行った流動反応槽の場合  $0.18\sim 0.09\text{kg NH}_4^+-\text{N}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day}^{-1}$  で 15.4~27.2%の T-N の除去率を示したが、充填率を 30%に増加させた場合には同じ負荷量で 31.8~47.8%の除去率を示した。また活性炭を導入した流動反応槽の場合は 21.3~43.3%の高い除去率を示したが、これは活性炭表面に生物膜が形成されて MLSS が  $5,500\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  で維持されたので高い除去率が得られたものと考えられる。

*A. faecalis* 固定化担体を導入した流動反応槽の、担体充填率と  $N_2O$  発生量との関係は、充填率が 10%の場合には  $N_2O$  発生速度は  $0.16\text{mg}\cdot\text{N}_2\text{O}\cdot\text{hr}^{-1}$  であったが、充填率を 30%に高めると  $0.01\text{mg}\cdot\text{N}_2\text{O}\cdot\text{hr}^{-1}$  へと急激に低下した。また除去窒素あたりの  $N_2O$  転換率は 10~30%の担体充填率に対して 9.86~0.15%であった。

Table 4 Summary of operating results during the steady state condition

Parameter	Reactor No.					
	AS <sub>NO</sub>	AS <sub>10</sub>	FB <sub>10</sub>	FA <sub>20</sub>	FA <sub>30</sub>	FA <sub>30ac</sub>
TN removal efficiency (%)	17.2	23.2	27.2	42.1	47.8	43.3
Effluent nitrate concentration (mg L <sup>-1</sup> )	18.9	19.5	21.3	23.2	24.7	23.4
TN removal loading rate <sup>1)</sup>	0.023	0.034	0.037	0.058	0.065	0.057
$N_2O$ emission rate (mg $N_2O$ hr <sup>-1</sup> )	0.28	0.22	0.16	0.04	0.05	1.03
$N_2O$ conversion ratio (%) <sup>2)</sup>	3.15	2.42	1.84	0.21	0.05	1.03
$N_2O$ conversion ratio (%) <sup>3)</sup>	29.24	15.21	9.86	0.74	0.15	3.71

1) Unit;  $\text{kg TN}_r \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}^{-1}$

2)  $N_2O$  conversion ratio from the input nitrogen to emitted  $N_2O$ -N

3)  $N_2O$  conversion ratio from the removed nitrogen to emitted  $N_2O$ -N

Fig. 6 に、各反応槽における T-N 除去率と N<sub>2</sub>O 発生速度を示した。T-N 除去率が高まるほど N<sub>2</sub>O 発生速度は低下することがわかった。また、N<sub>2</sub>O 発生速度は、活性汚泥法、活性炭を導入した流動反応槽、*A. faecalis* 固定化担体導入流動反応槽の順に小さくなった。さらに、*A. faecalis* を固定化担体導入流動反応槽においては、担体充填率が高い処理系ほど T-N 除去率は高まり N<sub>2</sub>O 発生速度も低下することがわかった。これらのことから、*A. faecalis* が T-N 除去率と N<sub>2</sub>O 発生速度に関係があることが明らかになった。Fig. 7 に流入窒素負荷に対する N<sub>2</sub>O 転換率を示した。窒素負荷が高くなるにつれて N<sub>2</sub>O 発生速度と N<sub>2</sub>O 転換率が増加したが、これは窒素除去能と関係があるものと考えられた。

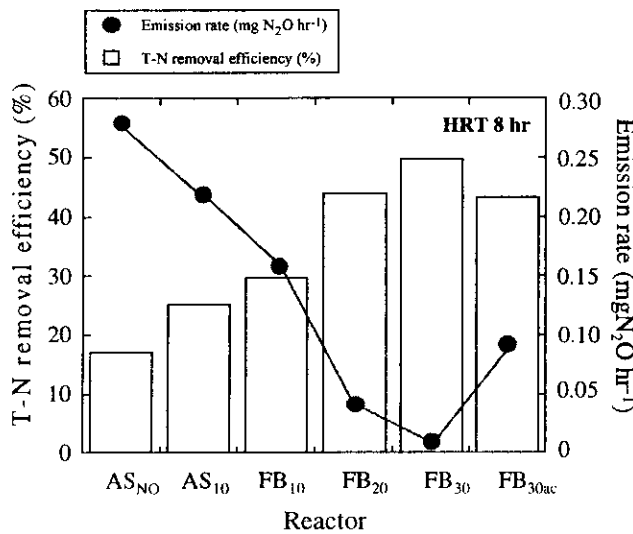


Fig. 6 T-N removal efficiency versus N<sub>2</sub>O emission rate at each.

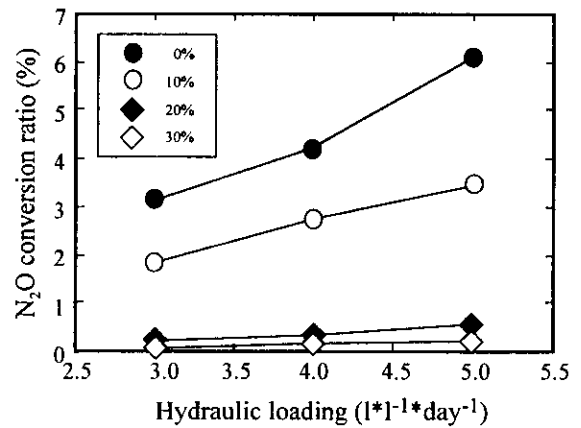


Fig. 7 N<sub>2</sub>O conversion ratio versus hydraulic loading

## 5. 微量金属添加による高效率脱窒プロセスの開発と N<sub>2</sub>O 発生抑制効果に関する研究

これまでの研究により、多孔性セルロース担体を用いた固定化脱窒プロセスにおいて 20kg-N·m<sup>3</sup>-carrier·d<sup>-1</sup> の高速度脱窒が達成されたが、固定化微生物を用いた窒素除去プロセスにおける N<sub>2</sub>O 発生に関する研究は不十分であると考えられる。処理の高速度化に伴う N<sub>2</sub>O 発生特性の変化を明らかにすることは極めて重要であることから、固定化脱窒プロセスにおける N<sub>2</sub>O 発生特性とその抑制方法についての検討を行った。

### 5.1 実験方法

固定化担体には、3mm 角、平均孔径 500 μm の荷電型多孔性セルロース担体を用い活性汚泥を種菌として吸着固定した。実験装置には、浮上性担体を破損させることなく均一に分散出来るジェットポンプ型リアクターを用い、これに液容積基準での容積比 20% となる担体を投入した。電子供与体にはメタノールおよびイソプロパノールを用い、その濃度は理論要求量の 120~160% の範囲で変化させた。一方、硝酸態窒素濃度は 40 mol·m<sup>-3</sup> 一定として窒素負荷量は給液の平均 HRT を変化させることによって調整し、N<sub>2</sub>O 発生に及ぼす窒素負荷の影響を検討した。また、微量金属 Fe, Mn, Mo, Cu の影響についても検討した。



次に、上記の実験と同一の担体を用い、メタノールを電子供与体として銅の含有および非含有合成排水によって約1ヶ月間連続脱窒処理（窒素負荷； $2.8\text{kg-N}\cdot\text{m}^{-3}\text{carrier}\cdot\text{day}^{-1}$ ）を行い、処理系を安定化させた。次いで、銅含有および非含有排水で訓養された30mLの固定化担体をそれぞれ300mLの滅菌した銅含有および非含有排水に移し、回分実験によって銅の有無による脱窒能および $\text{N}_2\text{O}$ 発生特性の違いを調べた。また、銅非含有排水によって訓養した固定化菌体を銅含有排水に移し、繰り返し回分処理によって脱窒能及び $\text{N}_2\text{O}$ 発生の過渡状態における変化を調べた。さらに、この繰り返し回分実験の終了時に菌体内部における銅の含有量を調べた。

さらに、銅含有排水を用い、pHを6.0~8.0に、温度を $30^\circ\text{C}$ から $1.0^\circ\text{C}\cdot\text{day}^{-1}$ の速度で $10^\circ\text{C}$ まで低下させ、これらの操作条件と $\text{N}_2\text{O}$ 発生特性との関係を調べた。

## 5.2 結果および考察

### 5.2.1 固定化脱窒プロセスにおける $\text{N}_2\text{O}$ 発生特性

メタノールおよびイソプロパノールを電子供与体とした場合、それぞれの主要な脱窒細菌は *Hyphomicrobium*、*Pseudomonas* と考えられる。これらの電子供与体を用い、窒素負荷  $15, 20\text{kg-N}\cdot\text{m}^{-3}\text{-carrier}\cdot\text{day}^{-1}$  における気相部 $\text{N}_2\text{O}$ 濃度およびその発生量を Fig. 8 に示した。図から明らかなように、負荷量の増加に伴って $\text{N}_2\text{O}$ 濃度、発生量ともに増大した。また、イソプロパノールの場合では、メタノールの場合に比較して4倍も高い値が記録された。また、 $\text{N}_2\text{O}$ 発生に及ぼす微量元素の影響を調べた結果、 $\text{FeSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$  (1 ppm),  $\text{MnSO}_4\cdot \text{H}_2\text{O}$  (0.35 ppm),  $\text{Na}_2\text{MoO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$  (0.5 ppm) の添加量を100%とし、この添加量を50%まで削減すると、メタノールを電子

供与体とする場合では窒素除去率は急激に低下し、 $\text{N}_2\text{O}$ 濃度も増加した。その後、微量元素の添加量を増やしても窒素除去率は容易には回復しなかった。しかし、硫酸銅を $3\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 程度になるように添加した結果、除去率の著しい回復が見られ、 $\text{N}_2\text{O}$ 濃度も実験開始時の1/13に低下した。イソプロパノールを電子供与体とした場合、微量元素の50%低下によって窒素除去率の低下はさほど顕著ではないが、 $\text{N}_2\text{O}$ 濃度は39倍にも上昇した。この場合も、銅の添加によって窒素除去率の回復と $\text{N}_2\text{O}$ 濃度の低下が観測された。以上の結果から、 $\text{N}_2\text{O}$ の発生は脱窒菌の種類によって著しく異なること、また銅の添加がその抑制および窒素除去能力改善に顕著な効果を示すことが明らかとなった。

### 5.2.2 $\text{N}_2\text{O}$ 発生抑制における銅の添加効果

銅含有および非含有排水で訓養された固定化微生物による硝酸還元およびフラスコ気相部 $\text{N}_2\text{O}$ の

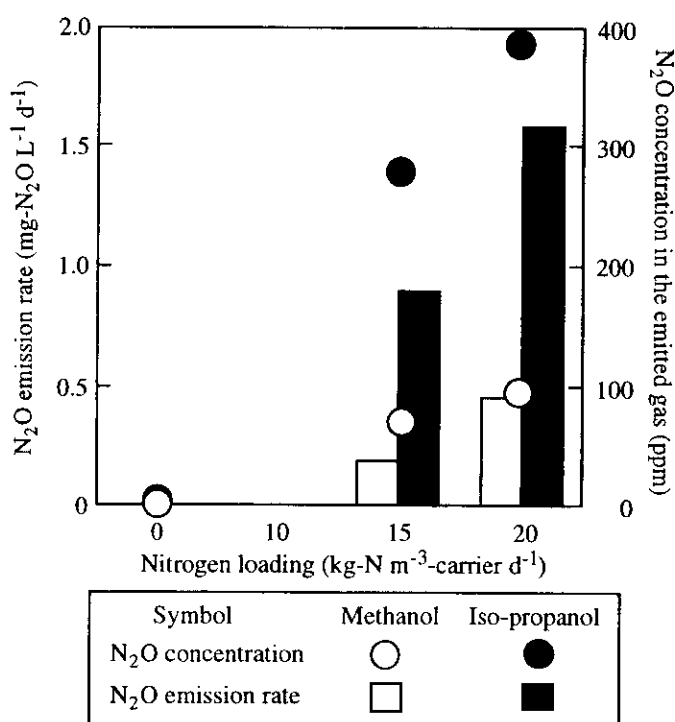


Fig. 8 Influences of the nitrogen loading and the carbon sources on  $\text{N}_2\text{O}$  emission.

濃度変化をについては、銅含有排水での硝酸還元能は非含有のそれに比して高く、また実験開始時に蓄積された N<sub>2</sub>O も速やかに還元された。一方、非含有排水の固定化菌体では、硝酸がほぼなくなるまで気相部における N<sub>2</sub>O は存在し続けた。銅非含有排水で馴化した固定化菌体を銅含有排水に移した場合の過渡的变化をみると、硝酸の還元速度については顕著な変化は認められなかったが、N<sub>2</sub>O の濃度については著しい変化が認められた。移行直後の N<sub>2</sub>O の最大濃度は 8×10<sup>3</sup> ppm であったが、7 回目の回分処理においては 0.2ppm と激減した。また、本繰り返し回分処理実験終了後の固定化菌体について銅の存在部位を検討した結果、菌体に取り込まれた銅の 70%は細胞膜および細胞壁に存在していること、さらに多量の銅が担体に吸着していることが明らかになった。

### 5.2.3 N<sub>2</sub>O 発生に及ぼす pH および温度の影響

N<sub>2</sub>O 発生に及ぼす pH および温度の影響について Table 5 および 6 にそれぞれ示した。pH の低下に伴って、硝酸除去率は差ほど変化しないが、pH 6.0 での N<sub>2</sub>O の濃度は pH 8.0 での 7 倍となった。また、温度低下の影響は硝酸除去率、N<sub>2</sub>O 濃度ともに影響し、それぞれ 30°C における 20% 減、30 倍となった。銅含有排水における最適操作条件は、窒素除去率および N<sub>2</sub>O 濃度の観点から 30°C、pH 8.0 である。この条件下での N<sub>2</sub>O 濃度は 3ppm 前後で、還元窒素の 3.2×10<sup>-4</sup> %が N<sub>2</sub>O に変換されることがわかった。

**Table 5** Influence of pH on denitrification activity of copper including wastewater

pH	Nitrate conc. (ppm-N)	Nitrite conc. (ppm-N)	Nitrogen Removal efficiency (%)	N <sub>2</sub> O conc. (ppm(v/v))	Conversion ratio to N <sub>2</sub> O gas (%)
8.0	0.499	0.179	98.3	2.98	0.000293
7.5	0.895	0.261	97.1	9.10	0.000884
7.0	0.610	0.0660	98.3	10.7	0.00105
6.5	0.291	0.0199	99.2	13.1	0.00190
6.0	0.0899	0	99.8	21.3	0.00213

**Table 6** Influence of temperature on denitrification activity of copper including wastewater

Temp (°C)	Nitrate conc. (ppm-N)	Nitrite conc. (ppm-N)	Nitrogen Removal efficiency (%)	N <sub>2</sub> O conc. (ppm(v/v))	Conversion ratio to N <sub>2</sub> O gas (%)
30	0	0.16	99.9	3.16	0.000316
25	14.6	0.96	94.5	5.85	0.000553
20	6.97	0.54	97.3	6.23	0.000606
15	7.74	0.59	97.0	11.0	0.00107
12	29.3	0.34	89.4	269	0.0240
10	59.8	0.43	78.5	92.7	0.00728

## 6. 畜舎排水処理プロセス等における N<sub>2</sub>O 発生特性の実態調査と発生削減対策技術の研究開発

排水処理過程として下水処理施設および豚舎排水処理施設を対象とした N<sub>2</sub>O 発生に関する実態調査を行い、その発生特性について解析を行った。下水処理は排水処理において大きな割合を占めており、今後窒素除去を考慮した処理の普及が見込まれることから、その発生量の把握が最も重要である。また豚舎排水は窒素を高濃度に含む事からその除去過程において発生する N<sub>2</sub>O の量も多くなると考えられ、現場に設置したパイロットプラントを用いて N<sub>2</sub>O の発生を抑制する手法を検討した。

### 6.1 実験方法

調査対象とした下水処理施設では処理方法として標準活性汚泥法+砂ろ過法を、豚舎排水処理施設ではばっ気式ラグーン法（低負荷・半回分活性汚泥法）を採用していた。また豚舎排水処理として嫌気・好気回分式活性汚泥法を採用したパイロットプラントにおいても調査・実験を行った。調査毎に水質分析用試料と発生ガスについてサンプリングを行った。

### 6.2 結果および考察

#### 6.2.1 下水処理施設の N<sub>2</sub>O 放出特性

調査結果から得られた N<sub>2</sub>O 発生量は人間 1 人 1 日あたりの発生量が 8.33~11.2 (mgN<sub>2</sub>O-N·capita<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>)、流入水 1m<sup>3</sup> あたりの発生量が 21.5~29.2 (mgN<sub>2</sub>O-N·m<sup>-3</sup>inflow) であり、いずれの値も文献値よりも大きくなった (Table 7)。各装置ごとの N<sub>2</sub>O 発生量に関して、下水処理場において同様な調査を行った既往の文献では、N<sub>2</sub>O の放出の大部分はばっ気槽からであった。しかし本調査においてはいずれの調査時においても沈砂池から大きい放出量が求められた。このように既往の文献では N<sub>2</sub>O の放出が見られないばっ気槽以外で N<sub>2</sub>O が多量に検出されたために、最終的に得られた値が大きくなったが、これは本調査を実施した処理施設の構造が大きな影響を及ぼしているものと考えられた。すなわち、本調査においては沈砂池からのガスサンプリングは脱臭ダクトから行っているが、ダクトによって装置内の気相部分が吸引される際、装置内の水に対して負圧がかかることになるため、溶存している N<sub>2</sub>O が大気中に放出されやすい環境になっていると考えることができる。また、この施設では沈砂池に返流水として汚泥濾過水、余剰汚泥、生汚泥を流入しているため、これらの返流水が及ぼす水質の変化が沈砂池からの N<sub>2</sub>O の大量放出にあたえた影響も考えられる。また、ばっ気槽から多量の N<sub>2</sub>O が放出される理由については、ばっ気槽内における N<sub>2</sub>O の生成は流下方向に多くなり、それに伴い N<sub>2</sub>O の放出速度が大きくなっていることから、硝化または脱窒反応により生成された N<sub>2</sub>O がばっ気によって大気中に放出されやすくなっている可能性がある。このように、

**Table 7** Emission factor of N<sub>2</sub>O at the sewage treatment facilities

	Emission rate per person (mgN <sub>2</sub> O-N capita <sup>-1</sup> day <sup>-1</sup> )	Emission per unit inflow (mgN <sub>2</sub> O-N m <sup>-3</sup> inflow)	Conversion ratio to N <sub>2</sub> O-N * (%)
Research			
Jul.	11.2	29.2	0.06
Dec.	8.33	21.5	0.05
Reported value	0.75-5.58	1.4-24.1	<0.08

\* per T-N inflow

処理施設からの N<sub>2</sub>O 放出特性は処理プロセスや反応槽等の構造により大きな影響を受けるものと考えられ、放出量を削減する上では処理システムを総合的に構築・評価することが重要であると考えられた。

### 6.2.2 豚舎排水処理施設の N<sub>2</sub>O 放出特性

処理系外に放出される N<sub>2</sub>O 量を、ばっ気時、非ばっ気時そして放流水の 3 種類に分類して調査したところ、いずれの調査においてもばっ気時における放出量が卓越しており全体の放出量のほとんどを占めていることがわかった。このことから、ばっ気時における N<sub>2</sub>O の放出抑制が全体の N<sub>2</sub>O 抑制に対する大きな要因となることが明らかであると考えられる。ばっ気時に放出量が卓越した理由として、ばっ気時には硝化反応が進行し、その際に N<sub>2</sub>O が生成されていること、また生成された N<sub>2</sub>O (DN<sub>2</sub>O) がばっ気によりガス態として放出されやすくなっていることが挙げられる。流入水 1m<sup>3</sup> あたりの N<sub>2</sub>O 放出量については Table 8 に示すとおりである。ばっ気式ラグーン法 (以下実施設) では  $9.41 \times 10^2 \sim 1.65 \times 10^5$  (mgN<sub>2</sub>O-N·m<sup>-3</sup>inflow), 嫌気・好気回分式活性汚泥法 (以下パイロットプラント) では  $2.05 \times 10^4 \sim 9.11 \times 10^4$  (mgN<sub>2</sub>O-N·m<sup>-3</sup>inflow) であった。7 月の調査時における実施設の放出量が非常に少ない結果となったが、この調査時は処理状態が悪く NH<sub>4</sub><sup>+</sup>酸化率も他の調査時に比べて非常に小さな値であった。すなわち N<sub>2</sub>O の生成経路の一つである硝化反応がほとんど進行しなかったため、N<sub>2</sub>O が生成されなかったものと考えられる。排水処理に由来する豚 1 頭 1 日あたりの N<sub>2</sub>O-N 発生量は実施設では  $27.1 \sim 3.85 \times 10^3$  (mgN<sub>2</sub>O-N·head<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>), パイロットプラントでは  $2.93 \times 10^2 \sim 1.30 \times 10^3$  (mgN<sub>2</sub>O-N·head<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>), また流入 T-N あたりの N<sub>2</sub>O-N への転換率は実施設では 0.08~14.9%, パイロットプラントでは 0.93~2.40% であった。下水処理との比較はこれらの運転条件や処理規模が全く異なるために単純に比較することはできないが、流入水 1m<sup>3</sup> あたりの N<sub>2</sub>O-N 発生量や、流入 T-N あたりの N<sub>2</sub>O-N への転換率などは豚舎排水処理の方がかなり大きな値となっている。そのため排水処理から発生される N<sub>2</sub>O-N 量のうち、大きな割合を豚舎排水が占めている可能性がある。また微生物量あたりの N<sub>2</sub>O 発生量を、反応槽における単位 MLSS あたりの発生量として算出したところ、豚舎排水処理実施設では  $4.97 \times 10^{-6} \sim 7.07 \times 10^{-4}$  (mgN<sub>2</sub>O-N·mgMLSS<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>), パイロットプラントでは  $1.07 \times 10^{-4} \sim 5.31 \times 10^{-4}$  (mgN<sub>2</sub>O-N·

**Table 8** Emission factor of N<sub>2</sub>O at the swine wastewater treatment

	Emission rate per pig (mgN <sub>2</sub> O-N head <sup>-1</sup> day <sup>-1</sup> )	Emission per unit inflow (mgN <sub>2</sub> O-N m <sup>-3</sup> inflow)	Conversion ratio to N <sub>2</sub> O-N * (%)	Emission rate per MLSS (mgN <sub>2</sub> O-N mgMLSS <sup>-1</sup> day <sup>-1</sup> )
Swine wastewater treatment (Actual facilities)				
Jul.	27.1	9.43x10 <sup>2</sup>	0.08	4.97x10 <sup>-6</sup>
Oct.	3.85x10 <sup>3</sup>	1.65x10 <sup>5</sup>	14.9	7.07x10 <sup>-4</sup>
(Pilot plant)				
Jul.	1.30x10 <sup>3</sup>	9.11x10 <sup>4</sup>	2.40	5.31x10 <sup>-4</sup>
Aug.	4.55x10 <sup>2</sup>	3.18x10 <sup>4</sup>	1.59	2.08x10 <sup>-4</sup>
Oct.	2.93x10 <sup>2</sup>	2.05x10 <sup>4</sup>	0.93	1.07x10 <sup>-4</sup>
Sewage treatment (Investigation)				
	8.33-11.2	21.5-29.2	<0.06	6.06x10 <sup>-6</sup> -2.21x10 <sup>-5</sup>

\* per T-N inflow

mgMLSS<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>), 下水処理施設では  $6.06 \times 10^{-6} \sim 2.21 \times 10^{-5}$  (mgN<sub>2</sub>O-N·mgMLSS<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>) となった。豚舎排水処理実施 7 月の調査では硝化の進行がほとんど見られなかったため、この値を除外とすると、下水処理施設の値に比較して豚舎排水処理の値の方が大きいことがわかる。すなわちこのことは単位微生物あたりの N<sub>2</sub>O 発生量が大きいということを意味しており、豚舎排水処理プロセスは一般下水処理に比較して高い N<sub>2</sub>O 発生ポテンシャルを有している可能性が考えられる。

### 6.2.3 好気工程での N<sub>2</sub>O 発生特性

豚舎排水処理パイロットプラントにおける N<sub>2</sub>O 放出速度と無機態窒素の濃度の関係について考察すると、7、8、10 月のいずれの調査においても嫌気または沈殿工程における N<sub>2</sub>O の放出はほとんど観察されなかった。好気工程においては NH<sub>4</sub>-N 濃度の減少と NO<sub>3</sub>-N 濃度の上昇が見られた。また、NO<sub>2</sub>-N については途中蓄積が見られるものの最終的には消費されたため硝化の進行は良好だったともいえる。NO<sub>2</sub>-N 濃度と N<sub>2</sub>O 放出速度については NH<sub>4</sub>-N 濃度の減少と同時に NO<sub>2</sub>-N 濃度、N<sub>2</sub>O 放出速度の上昇が起こり、さらにこれらはほとんど同じ時刻にピーク値を示しており、8 月の調査時においてはばっ気開始直後に急激な N<sub>2</sub>O 放出速度の上昇が見られるが、これは嫌気工程での溶存態 N<sub>2</sub>O の蓄積、ばっ気開始による大気中への物理的な放出に起因するものであると考えられる。

7 月および 8 月の調査時においては、運転条件には相違はないが N<sub>2</sub>O 放出速度には違いが見られた。好気状態における N<sub>2</sub>O の生成を促進する因子としては、高 C/N 比、低 DO 濃度、低 pH、短 SRT 等が挙げられる。本調査における流入水の C/N 比は、TOC/T-N として 7 月は 2.31、8 月は 1.22 と 7 月の方が大きかった。また、調査日における BOD 容積負荷も、設定値は 0.2 (kgBOD·m<sup>-3</sup>·day<sup>-1</sup>) であったが実際には 7 月が 0.26、8 月が 0.11 (単位はそれぞれ kgBOD·m<sup>-3</sup>·day<sup>-1</sup>) と 2 倍以上となり、7 月の調査時において有機炭素源が多かったことがわかる。このように C/N 比が高い、すなわち窒素量あたりの炭素量が相対的に多い場合には、従属栄養細菌の活動が活発になり独立栄養細菌の活動を抑制するという報告があることから、一般的に硝化細菌は独立栄養細菌であるため、それにより硝化反応の進行は不安定になったと考えられる。しかし、脱窒細菌でもある *Alcaligenes faecalis* は同時に従属栄養性の硝化細菌でもあり、独立栄養性の硝化細菌に加えてこの菌がまず NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の酸化を行うが、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>酸化細菌については NH<sub>4</sub><sup>+</sup>酸化細菌よりも強く阻害を受けやすいこと、通常の硝化においても NO<sub>2</sub><sup>-</sup>還元反応は NO<sub>2</sub><sup>-</sup>酸化反応と同時に進行していること、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>還元反応は従属栄養の反応であることなどの知見から NO<sub>2</sub><sup>-</sup>酸化細菌が阻害を受けているときは還元反応が優勢な反応になり N<sub>2</sub>O の生成が促進されるものと考えられる。また NO<sub>3</sub>-N の生成については、8 月調査時ではばっ気開始と同時に NO<sub>3</sub>-N の濃度が上昇しているのに対して、7 月の調査時にはばっ気開始から NO<sub>3</sub>-N の濃度が上昇するまでタイムラグがあることから NO<sub>2</sub><sup>-</sup>酸化細菌の活性が抑制されていた可能性が考えられる。

### 6.2.4 嫌気工程での N<sub>2</sub>O 発生特性

嫌気工程における N<sub>2</sub>O 発生に影響を及ぼす諸因子については多く報告されているが、この工程における N<sub>2</sub>O の挙動についての解析はほとんどなされていない。8 月と 10 月の調査時において、嫌気工程が始まると同時に DN<sub>2</sub>O の蓄積が生じ、そしてさらに 10 月の調査時には、その蓄積していた N<sub>2</sub>O がその後減少し始めるのが確認された。嫌気工程での N<sub>2</sub>O 発生量に影響を与える因子である pH、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、DO の結果からはこれらの因子が N<sub>2</sub>O の生成に影響を及ぼしているような変化は見られなかった。そこで NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N らの経時変化との関係を見てみると、8 月調査時はまず NO<sub>3</sub>-N 濃度が減少し始め、その減少が無くなると同時に DN<sub>2</sub>O-N 濃度が上昇し始める。NO<sub>2</sub>-N に関しては嫌気工程開始から終了まで徐々に減少している。次に 10 月調査時には、まず NO<sub>2</sub>-N が減少し始めそれに伴い DN<sub>2</sub>O-N 濃度の上昇が見られる。その間 NO<sub>3</sub>-N 濃度はほぼ一定であるが、NO<sub>2</sub>-N 濃度の減少が弱まると同時に DN<sub>2</sub>O-N 濃度の減少、NO<sub>3</sub>-N 濃度の減少が見られる。脱窒経路を考えると

$N_2O$  の生成には  $NO_3^-$  の還元反応よりも  $NO_2^-$  の還元反応の方が大きく影響する。また  $NO_2^-$  還元酵素は誘導酵素であるので活性の誘導・向上には当然  $NO_2^-$  が必要となる。そのためあらかじめ  $NO_2-N$  が蓄積していた 10 月調査時では  $NO_2^-$  還元酵素の活性が速やかに誘導され  $NO_2-N$  濃度は減少し、そしてある程度  $N_2O$  が蓄積された後に  $N_2O$  還元酵素が誘導されて  $DN_2O-N$  濃度が減少していったものと考えられる。 $NO_2-N$  濃度の減少が弱まったのは  $NO_3-N$  濃度の減少により  $NO_2-N$  が生成されたためと考えられるが、最初一定の値を維持していた  $NO_3-N$  濃度がなぜ途中から減少したのかについては不明であり、より詳細な解析が必要であると考えられる。

また、8 月調査時について着目すべき点は、 $NO_3-N$  濃度が  $NH_4-N$  濃度よりも高く蓄積していることである。8 月調査では嫌気工程が始まり  $NO_3^-$  の還元は認められているが、それに伴う  $NO_2-N$  や  $DN_2O-N$  濃度の上昇は見られない。この理由は 2 つ考えられ、その第 1 は菌体合成に必要な  $NH_4-N$  濃度が相対的に不足しているため、脱窒である異化的還元ではなく同化的還元が生じた可能性である。そして第 2 の理由は、脱窒の進行が良好であったため見かけ上  $NO_2-N$  や  $DN_2O-N$  の蓄積は見られなかった可能性である。しかしいずれのケースにしても途中で  $NO_3-N$  濃度の減少が弱まり  $DN_2O-N$  濃度が増加したかについては説明は困難である。これについては、 $NO_3^-$  の蓄積により脱窒の代謝が破壊または阻害されるという報告もあるため、例えば同化的還元の必要がなくなった段階でも、絶対量として  $NO_3-N$  濃度が高かったために  $NO_3-N$  の存在が脱窒反応の律速となって  $N_2O$  が増加していった可能性も考えられる。

### 6.2.3 $N_2O$ 生成経路

下水処理施設、豚舎排水処理施設いずれの施設においてもばっ気状態で多くの  $N_2O$  の生成が確認されたため、いくつかの仮定の下好気条件下における  $N_2O$  生成経路として Fig. 9 のような経路を想定し、この経路に基づき収支計算を行い解析を行った。Fig. 10 は  $NH_4-N$  酸化速度/ $NO_2-N$  酸化速度比 (a/b 比) と  $N_2O$  放出速度の関係である。a/b 比が大きいほどすなわち  $NO_2-N$  の蓄積が大きくなるほど  $N_2O$  放出速度も大きくなることから、 $N_2O$  の生成には  $NO_2^-$  が必要であることがわかる。また豚舎排水処理における a/b 比はばらついているのに対して下水処理場における a/b 比はほとんど 1 であることから、豚舎排水処理と下水処理との  $N_2O$  発生量の差は窒素負荷の違いではなく、 $NO_2-N$  の蓄積があるかないかの違いであることがいえる。従来の見解では窒素除去がうまくいくと  $N_2O$  の発生は抑えられるといわれている。処理水の水質だけを見ると畜舎排水処理も下水処理も同程度の窒素除去が行われている。しかし下水処理過程では  $NO_2-N$  の蓄積は見られなかったのに対し、豚舎排水処理では最終的に

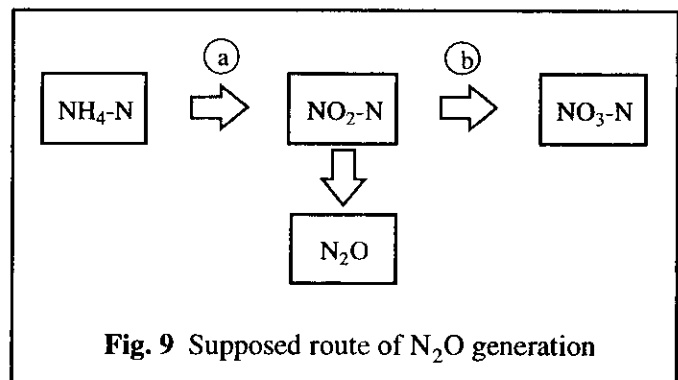


Fig. 9 Supposed route of  $N_2O$  generation

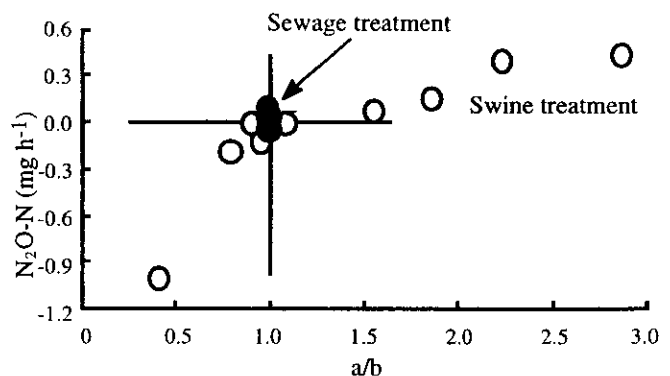


Fig. 10 Relationship between the ratio of oxidation rate of  $NH_4-N$  and  $NO_2-N$ , and  $N_2O$  emission rate

は消費されるものの、一時的に  $\text{NO}_2\text{-N}$  の蓄積が見られるという違いがある。すなわち  $\text{N}_2\text{O}$  の生成を抑制するためには結果の水質ではなく、その途中で  $\text{NO}_2\text{-N}$  を蓄積させないことが重要であることが示唆された。この条件、すなわち  $\text{NO}_2\text{-N}$  の蓄積を抑える条件を考察すると、嫌気条件での脱窒反応において  $\text{NO}_2\text{-N}$  も  $\text{N}_2\text{O}$  も中間生成物であり十分な時間が確保できれば  $\text{N}_2$  まで還元されること、好気条件での硝化反応においてはアンモニア減少（酸化）と硝酸の増加が同時に起こるのが望ましく、かつ脱窒工程の嫌気時間を十分に確保することが効果的であると考えられる。しかし放出量の小さい下水処理過程からの  $\text{N}_2\text{O}$  濃度も大気中の数十倍になる場合もあり、その削減可能性については今後さらに検討していく必要がある。

## 7. 人為的汚染をうける湿地からの $\text{CH}_4$ および $\text{N}_2\text{O}$ の発生量の評価とその抑制対策技術の開発

湿地からの  $\text{CH}_4$  および  $\text{N}_2\text{O}$  の放出量について、一部人為的汚染を受ける宮城県北部に位置する伊豆沼を対象湿地とする現地調査に基づきデータを収集するとともに、放出量の年間変動および放出のメカニズムについて解析した。またこの調査研究では、湿地から発生する  $\text{CH}_4$  および  $\text{N}_2\text{O}$  の発生量を削減するための湿地植生や微生物の利用についても技術的検討を行った。さらに、湿地帯における  $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  発生量を削減するための湿地微生物群集の利用方法について検討を行うために、湿地生態系に生息する  $\text{CH}_4$  酸化細菌および脱窒細菌の集積培養を得た上で、これを湿地生態系を模擬したジャー型またはバイアル型マイクロコズムを導入して  $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  の削減効果を評価した。

### 7.1 実験方法

この調査研究では、部分的に人為汚染を受けている宮城県栗原郡の伊豆沼湿地を対象として、2年間に亘って湿地から放出される  $\text{CH}_4$  量を評価するための現地調査研究を行って年間放出量を推定した。調査では植生のあるなしおよび植生の種類ごとに測定地点を定め、月1回の頻度で  $\text{CH}_4$  放出量に関するデータを得た。

また、平成10年度および11年度の調査として、同上の伊豆沼湿地を対象として、湿地から放出される  $\text{N}_2\text{O}$  評価のための現地調査研究を行った。この調査でも月1回の頻度で年間を通して  $\text{N}_2\text{O}$  放出量に関するデータを得た。

また、湿地土着の  $\text{CH}_4$  酸化細菌の活性促進または集積培養  $\text{CH}_4$  酸化細菌の湿地生態系への導入による  $\text{CH}_4$  放出量抑制技術の開発を行うために、湿地微生物生態系を模擬したジャー型マイクロコズムを用いた室内実験を行った。

さらに、湿地土着の脱窒細菌による  $\text{N}_2\text{O}$  の分解活性の促進または脱窒細菌の湿地への導入による放出量抑制の可能性を探索するために、伊豆沼湿地より採取した底泥および土壌を培養源として脱窒細菌を集積培養し、バイアル実験によってその集積培養による  $\text{N}_2\text{O}$  の  $\text{N}_2$  ガスへの還元による除去の特性を調べた。

### 7.2 結果および考察

#### 7.2.1 $\text{CH}_4$ 放出量の把握

2年間にわたり月1回の24時間現地測定調査を実施した結果について Table 9 に示す。伊豆沼湿地における単位面積当たりの  $\text{CH}_4$  の放出量は湿地植生（無植生を含む）によって異なることが知られた。植生帯としてのマコモ群生陸域湿地からの  $\text{CH}_4$  放出量が最も多く  $1\text{m}^2$  あたり  $3.86\text{g}\cdot\text{year}^{-1}$ （1日あたりの平均発生量は  $0.0106\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ ）と推定された。ヨシ群生陸域湿地からの  $\text{CH}_4$  発生量は  $0.867\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{year}^{-1}$ （1日あたりの平均発生量は  $0.00237\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ ）と推定された。また、伊豆沼の植生面積としては最も大きい面積を占めるハス群生湿地からの  $\text{CH}_4$  放出量が多く  $0.910\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{year}^{-1}$ （1日あたりの平均発生量は  $0.00249\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ ）と推定された。無植生水面湿地からの  $\text{CH}_4$  放出量は

**Table 9** Relationship between the vegetation and CH<sub>4</sub> emission

Vegetation	Total gas emission from the bottom sediments (mL·m <sup>-2</sup> sediment)				CH <sub>4</sub> content (%)
	Spring	Summer	Autumn	Winter	
Water oat and ditch reed	630	7,110	1,650	110	40.4
Lotus	1,020	2,940	760	320	8.7

0.507g·m<sup>-2</sup>·year<sup>-1</sup>（1日あたりの平均発生量は 0.00139g·m<sup>-2</sup>）と推定された。これらの調査データに基づく CH<sub>4</sub> 放出量の推定値より、伊豆沼の水面湿地（3.87×10<sup>6</sup>m<sup>2</sup>）からの CH<sub>4</sub> の年間放出量は全体で約 2.8 トンと見積もられた。これは標準状態で約 3,860m<sup>3</sup> の CH<sub>4</sub> ガスが1年間に伊豆沼水面より大気に放出されると推定されることを示している。

また、伊豆沼からの CH<sub>4</sub> 放出は季節的に大きく変動することが知られた。最も放出量が多いのは10月および11月の晩秋であり3月および4月の春期にもやや増加がみられたが、7月、8月、9月にはむしろ CH<sub>4</sub> の吸収がみられ、この時期は CH<sub>4</sub> 酸化あるいは植生による吸収活性が高まると考えられた。

### 7.2.2 N<sub>2</sub>O 放出量の評価

2年間にわたり月1回の24時間現地測定調査を行った結果より、伊豆沼湿地からの N<sub>2</sub>O の放出量は、ヨシ群生陸域で 6.02mg·m<sup>-2</sup>·year<sup>-1</sup> と最も多く、次いでマコモ群生陸域湿地が 4.75mg·m<sup>-2</sup>·year<sup>-1</sup> と推定された。伊豆沼の水面からの N<sub>2</sub>O の放出量は無植生湿地で 0.63mg·m<sup>-2</sup>·year<sup>-1</sup>、ハス群生地地で 0.45mg·m<sup>-2</sup>·year<sup>-1</sup>、ショウブ群生地地で 0.51mg·m<sup>-2</sup>·year<sup>-1</sup> と推定された。伊豆沼における N<sub>2</sub>O の放出量は CH<sub>4</sub> のそれに比較して約3オーダー少ないと推定された。また CH<sub>4</sub> の放出量とは逆に、一般に底泥層の発達した地点での放出量が少ないことが知られた。これは底泥層における脱窒反応等による N<sub>2</sub>O の分解除去が同時に進行していることによるものと考えられる。

また、N<sub>2</sub>O の放出量は伊豆沼水面湿地のいずれの植生地でも（無植生地を含む）5月および6月と12月にピークを示した。このような N<sub>2</sub>O 放出量の年間変動は、N<sub>2</sub>O の生産量の変動するだけでなく、湖沼水および湖沼底泥における脱窒反応や窒素化合物吸収等の微生物や植物による窒素代謝の変動によって影響されるものと考えられる。すなわち、このことから、湿地内での有機物の分解が活発となる6月頃に N<sub>2</sub>O の放出が一旦増大し、水温の低下に伴って硝酸塩や亜硝酸塩からの脱窒反応活性が低下する冬季に再度 N<sub>2</sub>O の放出が増大する変動パターンをとると推察された。

### 7.2.3 集積培養した CH<sub>4</sub> 酸化細菌による CH<sub>4</sub> の削減効果の評価

微生物による CH<sub>4</sub> 酸化を活用して湿地からの CH<sub>4</sub> 放出量を削減することを検討するために、伊豆沼湿地の底泥より CH<sub>4</sub> 酸化細菌の集積培養と分離培養を行った。マコモ群生地底泥およびハス群生地底泥より形態的に異なる3種の CH<sub>4</sub> 酸化細菌を分離できたが、これらの純培養を大量に得ることはできなかった。したがって、これらの細菌の集積培養（混合系）を得た上でこの CH<sub>4</sub> 酸化細菌集積培養による CH<sub>4</sub> 酸化活性を測定した。集積培養を4回繰り返した結果得られた培養の CH<sub>4</sub> 酸化速度は、約 0.80gCH<sub>4</sub>·g<sup>-1</sup>集積培養菌体<sup>-1</sup>であった。

### 7.2.4 脱窒細菌による N<sub>2</sub>O 削減効果の評価



湿地土着の脱窒細菌による  $N_2O$  の分解活性の促進または脱窒細菌の湿地への導入による放出量抑制の可能性を探索するために、伊豆沼湿地より採取したハス植生水面湿地底泥およびヨシおよびマコモ植生陸域土壌を培養源として脱窒細菌を集積培養し、この集積培養 100mL を 700mL のバイアルビンに封入してアルゴンガスでヘッドスペースガスを置換した嫌気性バイアル実験によって、その脱窒細菌集積培養による  $N_2O$  の  $N_2$  ガスへの還元による除去の特性を調べた。反応温度は 25℃とした。得られた集積培養 100 mL あたりの  $N_2O$  除去速度は、ハス植生底泥からの集積培養では  $0.83\text{mg}\cdot\text{day}^{-1}$ 、ヨシ植生土壌からの集積培養では  $1.59\text{mg}\cdot\text{day}^{-1}$ 、マコモ植生土壌からの集積培養では  $0.76\text{mg}\cdot\text{day}^{-1}$  であった。ヨシ植生陸域湿地における脱窒細菌の集積培養による  $N_2O$  除去能が高かったことから、脱窒細菌の種の違いや細菌の培養密度の違いによって  $N_2O$  の除去能が異なることが示唆された。

## 8. $CH_4$ , $N_2O$ 発生抑制型の嫌気ろ床・土壌トレンチ排水処理プロセスの開発

嫌気ろ床・土壌トレンチ処理プロセスの処理能向上と  $CH_4$ ,  $N_2O$  発生抑制の最適操作条件等の確立を目的として実証試験を行った。また、中国における土壌トレンチ処理施設の調査結果との比較検討を行った

### 8.1 実験方法

嫌気ろ床の HRT が 24 時間、毛細管法の集水式処理施設で、水量負荷が  $100\sim 200\text{L}\cdot\text{day}^{-1}$  であるような、嫌気ろ床・土壌トレンチの実験装置を用いた。土壌トレンチでは土壌の通気性を改善するために火山灰土壌と粉殻が 9:1 の比率になるように混合した通気性土壌を使用した。実験系は、土壌中の微生物反応部分において非通気系、強制通気系および自然通気系の 3 系を設定した。

### 8.2 結果および考察

冬季における処理能としては、BOD が  $9.6\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、BOD 除去率 96%で、流入水の窒素負荷 T-N は  $43\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、処理水の T-N  $11.3\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  で除去率は 74%、流入水の T-P は  $4.6\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、処理水の T-P  $0.16\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  で、除去率 97%、流入水の SS は  $355\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、処理水の SS は  $4.2\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  で、除去率 99%となった。

$CH_4$  および  $N_2O$  放出速度の平均値はそれぞれ  $1.75\sim 3.07\text{g}\text{CH}_4\cdot\text{m}^{-3}$  と  $0.50\sim 1.01\text{g}\text{N}_2\text{O}\cdot\text{m}^{-3}$  であった。強制通気系と自然通気系ともに通気系は無通気系(対照系)と比べると  $CH_4$ ,  $N_2O$  放出量は約半分に削減され、また、無通気系の ORP は継続して低下する傾向にあるため、通気系の  $CH_4$ ,  $N_2O$  の抑制効果はさらに向上する傾向があるものと考えられる。

また、日中両国の土壌トレンチ処理施設からの  $CH_4$ ,  $N_2O$  の発生特性について比較すると、日本側の土壌トレンチ処理施設の ORP は 11 月の約 420~435mv から 1 月の 221~325mv まで低下した理由により  $CH_4$ ,  $N_2O$  放出速度は、それぞれ 11 月の  $0.45\sim 0.48\text{g}\text{CH}_4\cdot\text{m}^{-3}$  と  $0.42\sim 0.72\text{g}\text{N}_2\text{O}\cdot\text{m}^{-3}$  から 1 月の  $2.66\sim 5.14\text{g}\text{CH}_4\cdot\text{m}^{-3}$  と  $0.55\sim 1.18\text{g}\text{N}_2\text{O}\cdot\text{m}^{-3}$  まで上昇する傾向がみられた。すなわち、土壌トレンチ処理施設はスタートから 3 ヶ月の立ち上がり後に、水質処理性能が安定したが、ORP は引き続き低下し、特に無通気系の  $CH_4$  の発生量が急激に増大することがわかった。中国側の土壌トレンチ処理施設の地温は 8 月の約 25℃から 11 月の 4.6℃ 以下まで低下した理由により  $CH_4$ ,  $N_2O$  放出速度は、それぞれ 8 月の  $1.85\sim 3.38\text{g}\text{CH}_4\cdot\text{m}^{-3}$  と  $1.95\sim 2.40\text{g}\text{N}_2\text{O}\cdot\text{m}^{-3}$  から 10 月の  $0.20\sim 0.40\text{g}\text{CH}_4\cdot\text{m}^{-3}$  と  $0.10\sim 0.20\text{g}\text{N}_2\text{O}\cdot\text{m}^{-3}$  まで急激に低下する傾向がみられた。また、平成 8 年度の実態調査段階と同じように、今回の中国側の土壌トレンチ処

理施設からの  $\text{CH}_4$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  放出速度は日本側と比べて少なく、強制通気系においてはそれぞれ日本側の 72%と 49%程度と少ないこと、無通気系においては  $\text{CH}_4$  放出速度が 66% $\text{CH}_4$  で少ないが、 $\text{N}_2\text{O}$  放出速度が逆に 134%で多いことがわかった。その理由については中国側の土壤トレンチが冬季 1m 以上の凍結層を避けるために 1.8m と深い場所に地下設置し、深い土壤層および微生物によるガスの吸収、分解、酸化が起こるからではないかと考えられた。

## 9. 本研究で得られた成果

- (1) 水温の低下、流入窒素負荷の増大に伴い硝化能の低下、 $\text{N}_2\text{O}$  発生速度および転換率の増大が生じ、特に低水温時において窒素負荷の影響が大きく現れることがわかった。
- (2) 流入窒素負荷の増大に伴い、硝化率の低下、 $\text{N}_2\text{O}$  発生速度の増大の順に生じたことから、硝化率が十分に高く維持されるようにすれば、硝化過程における  $\text{N}_2\text{O}$  発生も抑制可能であることがわかった。
- (3) 有用硝化脱窒細菌 *A. faecalis* の包括固定化担体による間欠ばっ気法への導入により、 $\text{N}_2\text{O}$  転換率を増大させることなく硝化能および窒素除去能の双方の向上が達成可能なことがわかった。
- (4) *A. faecalis* は、硝化細菌の優占化した活性汚泥と同等に包括固定化系で効果を発揮し、生活排水を対象とした間欠ばっ気法において HRT を 6 時間程度まで高めても良好な処理能を達成できることがわかった。
- (5) 包括固定化された *A. faecalis* を添加した三相流動層反応槽においては、活性汚泥の系に比較して  $\text{N}_2\text{O}$  発生量を 20%程度削減できることがわかった。
- (6) 既存活性汚泥反応槽と三相流動層反応槽の窒素除去および  $\text{N}_2\text{O}$  放出特性を評価した結果、三相流動層反応槽の  $\text{N}_2\text{O}$  発生量は 1/5 に低下し、平均全窒素除去率は約 5%高くなることがわかった。
- (7) 銅を含有する  $\text{N}_2\text{O}$  還元酵素の窒素還元に及ぼす影響は著しく、3 ppm 程度の添加によって、発生する  $\text{N}_2\text{O}$  濃度は高速度脱窒下においても 3 ppm 程度であることがわかった。
- (8) ポリエチレンイミンで架橋された多孔性セルロース担体の銅吸着能力は優れており、この特性は今後銅の直接添加を嫌う地下水の硝酸除去に新たな手法になるものと考えられた。
- (9) 豚舎排水処理過程における  $\text{N}_2\text{O}$  発生原単位は下水処理過程における値に比べて大きくなったが、これは豚舎排水の窒素負荷が高いからではなく、豚舎排水処理の過程で一時的に  $\text{NO}_2\text{-N}$  が蓄積するためであることが示唆された。
- (10) 排水処理の過程で  $\text{N}_2\text{O}$  の生成を抑制するためには  $\text{NO}_2\text{-N}$  を蓄積させないことが重要であり、具体的には適切な嫌気好気時間の設定による硝化と脱窒のバランスのよい進行が有効であると考えられた。
- (11) 人為的汚染を受ける湿地帯からの  $\text{CH}_4$  放出量は大きな季節変動が観察され、晩秋に放出量は最大となり、夏季には  $\text{CH}_4$  の吸収がみられたが、これらは  $\text{CH}_4$  酸化あるいは植生による吸収活性等に起因するものと考えられた。
- (12) 人為的汚染を受ける湿地帯からの  $\text{N}_2\text{O}$  放出量は植生により差がみられ、また季節変動が観察されたが、これは  $\text{N}_2\text{O}$  の生産量の変動だけではなく、湖沼水および湖沼底泥における脱窒反応や窒素化合物吸収等の微生物や植物による窒素代謝の変動によって影響されるものと考えられた。
- (13) 湿地底泥等から得られた  $\text{CH}_4$  酸化細菌と脱窒細菌の集積培養を用いた室内実験によって、 $\text{CH}_4$  および  $\text{N}_2\text{O}$  の分解除去能力について明らかにし、湿地微生物生態系の活用による、人為的汚染を受ける湿地からのこれらのガスの削減技術の開発可能性が示された。
- (14) 嫌気ろ床・土壤トレンチの処理水の水質は日本の建設省と厚生省等の再利用水の水質基準を十分に満足しており、再利用水としてのリサイクルの期待できることがわかった。
- (15) 通気を行うことにより  $\text{CH}_4$  および  $\text{N}_2\text{O}$  の発生量を非通気の場合の約半分に抑制可能であり、

通気条件の適正化によりこれらのガスの抑制効果がさらに向上する可能性が示唆された。

#### 10. 参考文献

- 1) IPCC: *Radiative Forcing of Climate Change 1994* –Report to IPCC from the Scientific Assessment Working Group (WGI)-, Cambridge University Press, Cambridge, UK (1994)
- 2) IPCC: *Climate Change 1995 -Impacts, Adaptation and Mitigation of Climate Change-*, Cambridge University Press, Cambridge, UK (1995)
- 3) Anderson, I.C. and J.S. Levine: Relative Rates of Nitric Oxide and Nitrous Oxide Production by Nitrifiers, Denitrifiers and Nitrate Respirers, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol.51, pp. 938-945, (1986)
- 4) N. Igarashi, H. Moriyama, T. Fujiwara, Y. Fukumori and N. Tanaka: The 2.8 Å Structure of Hydroxylamine Oxidoreductase from A Nitrifying Chemoautotrophic Bacterium, *Nitrosomonas europaea*, *Nature Str. Biol.*, Vol. 4 (4), pp. 276-284 (1997)
- 6) Poth, M. and D.D. Focht: <sup>15</sup>N Kinetic Analysis of N<sub>2</sub>O Production by *Nitrosomonas europaea*: an Examination of Nitrifier Denitrification, *Appl. Environ. Microbiol.*, Vol.49, pp. 1134-1141 (1985)
- 7) Schulthess, R.v., M. Kuhni and W. Gujer: Release of Nitric and Nitrous Oxide from Denitrifying Activated Sludge, *Wat. Res.* Vol.29 (1), pp. 215-226, (1995)
- 8) E. Sumer, A. Weiske, G. Benckiser and J. C. G. Ottow, Influence of Environmental Conditions on the Amount of N<sub>2</sub>O Released from Activated Sludge in a Domestic Waste Water Treatment Plant, *Experientia*, Vol. 51, pp. 419-422 (1995)
- 9) C. Peter, C. Patric and H. Robert, Nitrous Oxide Emissions from Municipal Wastewater Treatment, *Environ. Sci. Technol.*, Vol. 29, pp. 2352-2356 (1995)
- 10) Itokawa, H., K. Hanaki and T. Matsuo: Nitrous Oxide Emission during Nitrification and Denitrification in a Full-Scale Night Soil Treatment Plant, *Wat. Sci. Tech.*, Vol.34 (1-2), pp. 277-284, (1996)
- 11) N. Bernet, N. Delgenes and R. Moletta, Denitrification by Anaerobic Sludge in Piggery Wastewater, *Environ. Technol.*, Vol.17, pp. 293-300 (1996)

#### 【国際共同研究等の状況】

日中環境保護協定による共同研究

#### 【研究成果の発表状況】

##### (1) 口頭発表

- 1) 木持 謙, 富永和樹, 角野立夫, 松村正利, 水落元之, 稲森悠平: *Alcaligenes faecalis* の導入による高効率硝化・脱窒バイオリアクターのプロセス開発, 第 34 回日本水環境学会年会, 2000 年 3 月, 京都
- 2) 金 正淑, 稲森悠平, 金 時浚: 三相流動反応槽による養殖場排水の窒素除去および N<sub>2</sub>O 発生特性, 日本水処理生物学会第 36 回大会, 1999 年 11 月, 大阪
- 3) 金 正淑, 稲森悠平, 金 時浚: 流動層生物膜法による低濃度排水の窒素除去および N<sub>2</sub>O 発生特性, 第 7 回生物利用新技術研究シンポジウム, 2000 年 1 月, 大阪
- 4) J. Kim, Y. Inamori, S. Kim: Effect of *Alcaligenes faecalis* on nitous oxide emission and nitrogen removal in three phase fluidized bed process, 第 34 回日本水環境学会年会, 2000 年 3 月, 京都

- 5) 水落元之, 稲森悠平, 木持 謙: 生活排水に係る温室効果ガス  $N_2O$  の排出ポテンシャルに関する考察, 日本水処理生物学会第 36 回大会, 1999 年 11 月, 大阪
- 6) 松村正利: 高度窒素除去のための硝化・脱窒微生物付着担体の開発, 日本水環境学会シンポジウム, 1998 年 9 月, 京都
- 7) 五ノ井浩二, 西村修, 須藤隆一, 水落元之, 稲森悠平: 畜舎排水処理における  $N_2O$  放出特性, 日本水処理生物学会第 35 回大会, 1998 年 11 月, 静岡
- 8) 片山悦治郎, 藤田泰広, 西村修, 山田一裕, 須藤隆一: 畜産排水処理過程における亜酸化窒素の放出, 平成 10 年度土木学会東北支部技術研究発表会講演概要, pp. 844-845, (1999)
- 9) 五ノ井浩二, 西村修, 須藤隆一, 水落元之, 稲森悠平: 畜舎排水処理過程からの亜酸化窒素の発生特性, 第 33 回日本水環境学会年会, 1999 年 3 月, 仙台
- 10) 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, 土木学会第 53 回年次学術講演会講演概要集, Vol.7, pp478-479, 1998 年 10 月
- 11) 近江栄助, 高橋善一, 遠藤銀朗: 湿地からの亜酸化窒素の発生調査に関する研究, 土木学会第 53 回年次学術講演会講演概要集, Vol.7, pp480-481, 1998 年 10 月
- 12) 孔 海南, 稲森悠平, 水落元之: 生活排水を処理する土壌トレンチからの  $CH_4$ ,  $N_2O$  ガスの発生抑制技術開発, 日本水処理生物学会第 35 回大会, 1998 年 11 月, 静岡
- 13) 孔 海南, 何 耀武, 稲森悠平, 水落元之, 孫 鉄行: 土壌トレンチからの  $CH_4$ ,  $N_2O$  ガスの通気法による発生抑制, 第 33 回日本水環境学会年会, 1999 年 3 月, 仙台
- 14) 孔 海南, 稲森悠平, 水落元之, 呂 錫武: 窒素・リン同時除去無循環嫌気ろ床・土壌トレンチの高度処理方式の開発, 第 34 回日本水環境学会年会, 2000 年 3 月, 京都

## (2) 論文発表

- 1) 稲森悠平, 富永和樹, 木持 謙, 水落元之, 戎野棟一, 松村正利: 生物学的排水処理における硝化活性および  $N_2O$  生成速度に及ぼす水温および流入窒素負荷の影響, (Submitted)
- 2) 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)
- 3) 水落元之, 稲石高雄, 市川雅英, 大石 亮, 木持 謙, 稲森悠平: 生物学的嫌気好気活性汚泥法における  $N_2O$  発生に及ぼす SRT, DO の影響, 水環境学会誌, 22 (2), pp. 145-151, (1999)
- 4) 稲森悠平, 呉 暁磊, 木持 謙: *Alcaligenes faecalis* の従属栄養性硝化・脱窒特性と  $N_2O$  抑制型高度窒素除去プロセスへの適用の評価, 水環境学会誌, 22 (11), pp. 904-909, (1999)
- 5) O. Ito, H. Tsubota and M. Matsumura: Effect of copper sulfate addition on nitrous oxide emission from high-speed, denitrification process using macro-porous cellulose carrier, (Submitted)
- 6) 金主鉉, 片山悦治郎, 藤田泰広, 山田一裕, 西村修, 稲森悠平, 須藤隆一: 凝集剤添加・回分式間欠曝気活性汚泥法による畜舎排水の高度処理と亜酸化窒素の放出特性, 環境工学研究論文集, 36, pp. 455-464, (1999)
- 7) k. Gonoj, O. Nishimura, M. Mizuochi, Y. Inamori and R. Sudo: The properties of  $N_2O$  production in swine wastewater treatment system, Asian Waterqual 99 Conference Reprint, pp. 753-758, (1999)