

B-5-1 温室効果ガスの人為的排出源・吸収源に関する研究

(2) CH₄、N₂O の排出・吸収に関する研究

①汚水、廃棄物の CH₄、N₂O 収支に関する現地調査

研究代表者 国立環境研究所地球環境研究グループ 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 水落元之

平成 10 年度予算額 3,705 千円

[要旨]

温室効果ガスの汚水・廃棄物からの人為的排出ポテンシャルを明らかにする上では、生活活動、産業活動に関連する活動量を知る必要がある。食料自給率の低い我が国においては、大量の窒素あるいは有機物を食料あるいは飼料の形で輸入し、それらが、汚水、廃棄物として環境に排出されている。したがって、これら排出される窒素、有機物が排出される過程での処理の運転操作条件および、環境へ排出された後での形態変化によっては汚水、廃棄物系は CH₄、N₂O の排出ポテンシャルの高い、排出源である可能性が高い。しかし、我が国の CH₄、N₂O インベントリーでは汚水、廃棄物系の推計範囲および推計精度が極めて低いことが指摘されている。本研究ではこのような状況を鑑み、既設の下水処理場において調査を行い、N₂O の排出実態および、それを基に生成経路について検討した。その結果、N₂O の発生量原単位は人間一人あたり 8.33 ~ 11.2 (mgN₂O-N/capita/day)、流入水 1m³あたり 21.2 ~ 29.2 (mgN₂O-N/m³inflow) となつたが、放流水に溶存した形で排出される N₂O-N 量が、全体の約半分を占めている場合もあり、放流水に溶存している N₂O がガス態となって排出される可能性が示唆された。また、NO₂-N 蓄積速度が大きいほど N₂O 生成速度も大きくなり、NH₄-N 濃度が NO₂-N または NO₃-N 濃度に対して相対的に高い場合は N₂O 生成速度は増加し、逆に低い場合に N₂O 生成速度は減少した。したがって、好気条件下における N₂O 生成のほとんどが NH₄酸化および NO₂還元により、このうち NO₂ の異化的還元反応が主要な機構であることが示唆された。このような知見は我が国の汚水・廃棄物の生物処理の最適操作条件を確立する上での基盤になるものと考えられる。

[キーワード] メタン、亜酸化窒素、汚水処理、廃棄物処理、生物学的硝化・脱窒反応

1. はじめに

1997 年 12 月に京都で開催された気候変動枠組み条約第 3 回締約国会議 (COP3) では、CO₂のみならず CH₄、N₂O、ハイドロフルオロカーボン類 (HFCs)、パーフルオロカーボン類 (PFCs)、六フッ化硫黄 (SF₆) にも削減目標が設定された。これらの削減は地球温暖化係数 (GWP) を用いて、すべての温室効果気体に対する削減目標を設定するバケット・アプローチの採用を前提としており、可能性のある排出源について、排出量と排出特性の解明および削減技術の開発が急務である。しかし、CO₂ に次ぐ主要な温室効果気体である、CH₄、N₂O の排出源の特定および排

出量の見積精度が CO₂ に比べて著しく低いことが大きなネックになっている。

既往文献によると我が国の食糧供給と消費過程における窒素の流れは 1992 年において $1,696 \times 10^9\text{g}$ の窒素が供給され、そのうち $829 \times 10^9\text{g}$ (50%) が飼料を含む食料であり、 $829 \times 10^9\text{g}$ (36%) が化学肥料である。供給された窒素は農業、畜産、食品加工を経て、 $689 \times 10^9\text{g}$ (40%) が生活排水として、 $367 \times 10^9\text{g}$ (22%) が家畜糞尿として、 $337 \times 10^9\text{g}$ (20%) が化学肥料の溶脱として環境へ排出されていた。つまり、食糧自給率の低い我が国では食料を中心としただけでも多量の窒素が汚水、廃棄物として環境に排出され、それらが閉鎖性水域を中心とした富栄養化の原因ともなっている。一方、気候変動枠組条約に基づく第二回日本国報告書では 1994 年度で我が国の N₂O 排出量は $110 \times 10^9\text{g}$ (窒素ベースで $70 \times 10^9\text{g}$) と報告されている。したがって食糧供給と消費過程だけで考えても汚水、廃棄物系は排出される窒素の処理過程あるいは放流後での N₂O への変換割合によっては我が国の排出量全体に対しても非常に大きな排出量を持つ排出源となりうる。しかし、第二回日本国報告書においては汚水廃棄物系からの CH₄、N₂O の排出量の推計精度および推計範囲は非常に低いと評価されている。

食糧供給と消費過程における窒素の流れにおいては 40% もの窒素が生活排水となっているが、我が国の下水処理で一般的な標準活性汚泥法は有機物の除去のみを目的として施設設計および運転管理が行われている。したがって、処理プロセスに流入する窒素は処理過程において N₂O の生成、排出が考えられる硝化および脱窒作用を受けることはなく、これらの処理プロセスからの N₂O 排出は原理的にあり得ない。しかし、このような運転管理下においても微生物による硝化活性の高まる夏期などの高水温期には部分的な硝化が生じ、多量の N₂O が生成、放出することが報告されている。一方、湖沼、内湾などの閉鎖性水域での富栄養化が顕在化する状況では生活排水等の処理プロセスにおける富栄養化の原因物質としての窒素およびリンの除去は必須である。ここで窒素除去は原理的に N₂O の生成、排出が起きる硝化反応と脱窒反応の組み合わせにおいて行われ、不十分な硝化および脱窒が進行する場合には N₂O の放出が増大するとの報告もある。したがって下水処理プロセスは処理過程で処理される窒素の N₂O への転換割合によっては N₂O の排出ポテンシャルの高い排出源と考えることができる。

本研究では上記の点を鑑み、窒素除去を目的とし、硝化促進および汚泥返送による窒素除去運転を行っている下水処理プロセスについて現地調査を行い、その結果をもとに N₂O の生成経路について考察を行った。

2. 研究方法

2. 1 調査対象下水処理場

調査は宮城県内にある下水処理場において 1998 年 7 月および 12 月に行った。この処理場は一級河川を放流先とする公共下水道であり、処理方法として標準活性汚泥法+砂ろ過法を採用している。排除方式は分流式である。平成 8 年度における処理状況は、処理面積 1684.0ha、処理人口 39.6 千人、処理水量 13204 (m³/day 平均) となっている。この処理施設におけるフローシートを図 1 に示す。

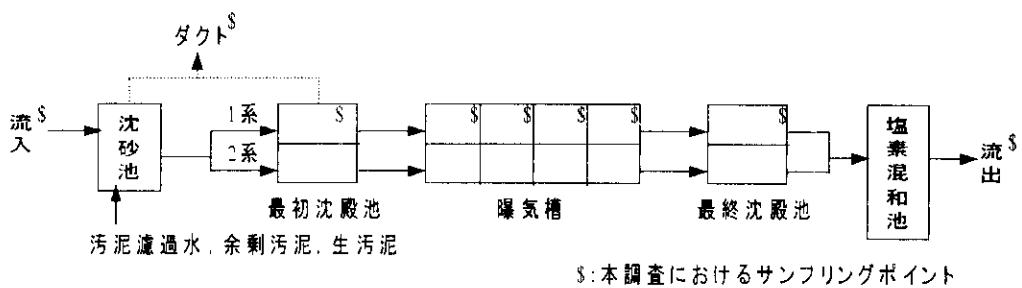


図1 調査対象下水処理場の処理フロー及びサンプリング地点

2. 2 サンプリングおよび分析方法

サンプリングは水質分析用試料と発生ガスについて行った。水質分析用試料のサンプリングは沈砂池（流入ゲート室）、最初沈殿池、曝気槽、最終沈殿池そして放流渠において行い、さらに曝気槽においては流下方向に4～5点サンプリングポイントを設けサンプリングを行った。発生ガスについては流入ゲート室、沈砂池、最初沈殿池、曝気槽、最終沈殿池においてサンプリングを行った。曝気槽においては水質分析用試料同様にサンプリングポイントを流下方向に4点設けた（図1）。流入ゲート室、曝気槽、最終沈殿池からのサンプリングの際にはガス回収用のチャンバーを用いた。また、沈砂池、最初沈殿池においては脱臭ダクトから直接サンプリングを行った。水質の分析は下水試験方法に基づき、水中の溶存ガスについてはヘッドスペース法でそれぞれ分析した。なお、N₂Oの分析はGC-ECDで行った。

3. 結果および考察

3. 1 下水処理プロセスからのN₂O排出実態

7月、12月のいずれも硝化がほぼ100%進行しており、処理水のT-N濃度も7月、12月それぞれ8.6、9.2mg/lと、流入の43.4、42.9mg/lに対して良好な除去が行われていた。

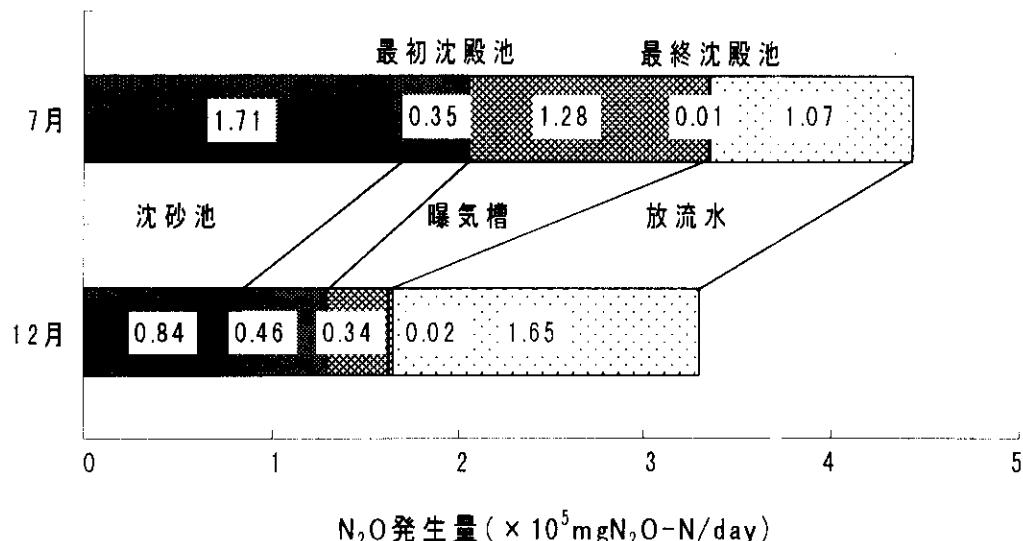


図2 各処理工程からのN₂O発生量

下水処理場における本調査結果より得られた系外に排出される N_2O の排出量および排出割合を図2に示す。既往文献では示されていなかった沈砂池および最初沈殿池から比較的大きな排出が見られるが、汚泥処理工程からの返流水等の影響を受けているものと考えられ、今後の調査が必要である。

ここで生活排水処理に由来する人間1人1日あたりの $\text{N}_2\text{O-N}$ の発生量は7月の調査結果では11.2 ($\text{mgN}_2\text{O-N/capita/day}$)、12月の調査結果では8.33 ($\text{mgN}_2\text{O-N/capita/day}$)、流入水 1m^3 あたりの $\text{N}_2\text{O-N}$ 発生量は7月の調査結果では29.2 ($\text{mgN}_2\text{O-N/m}^3\text{inflow}$)、12月の調査結果では21.5 ($\text{mgN}_2\text{O-N/m}^3\text{inflow}$)、さらに流入T-Nあたりの $\text{N}_2\text{O-N}$ への変換率は7月の調査結果では0.06%、12月の調査結果では0.05%（文献値0.001～0.05%）となった。いずれもこれまでの文献値に比べ、大きく試算されているが、既往文献では N_2O の排出が見られなかった曝気槽以外からも N_2O が検出されたことによるものだと考えられた。

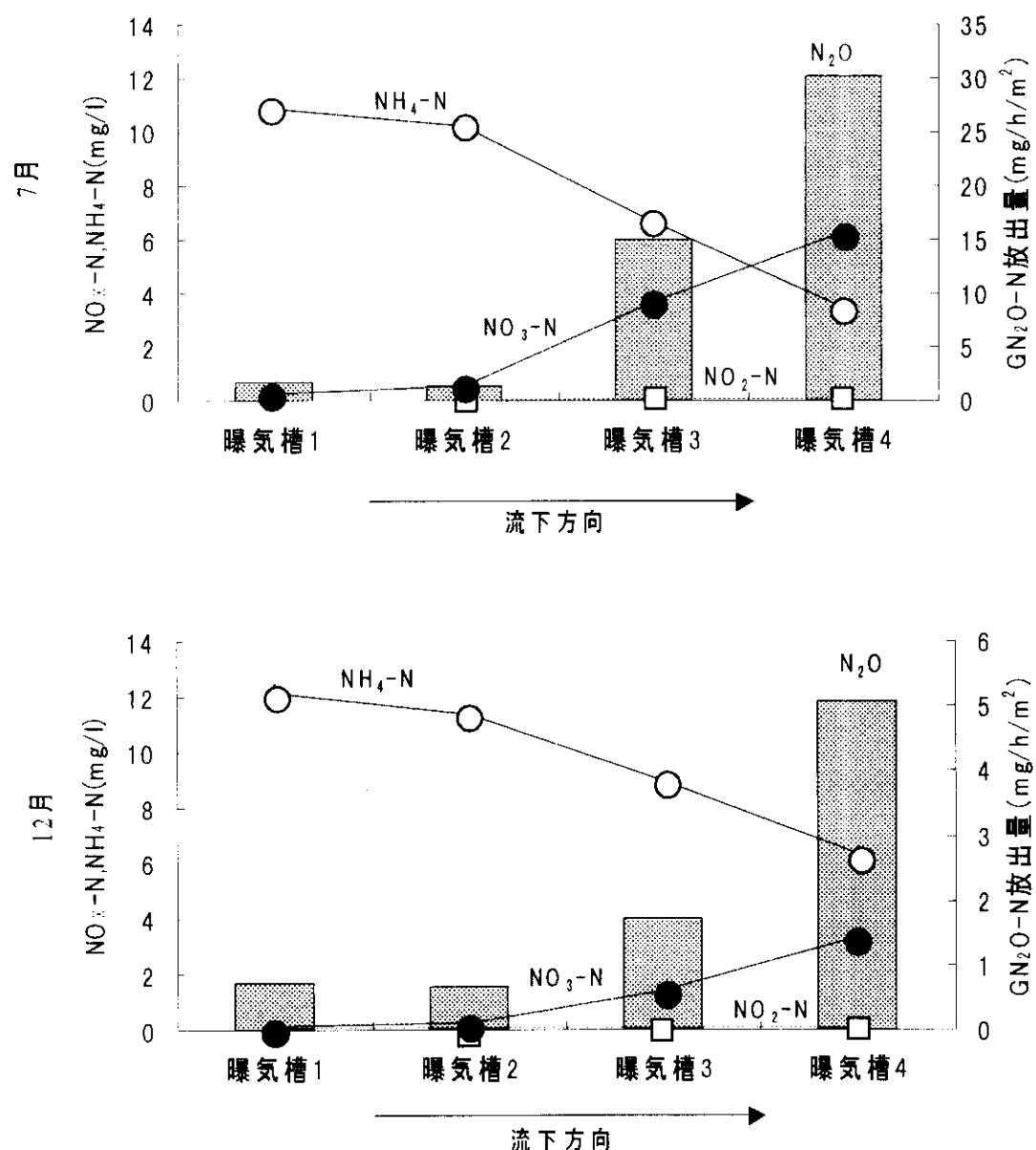
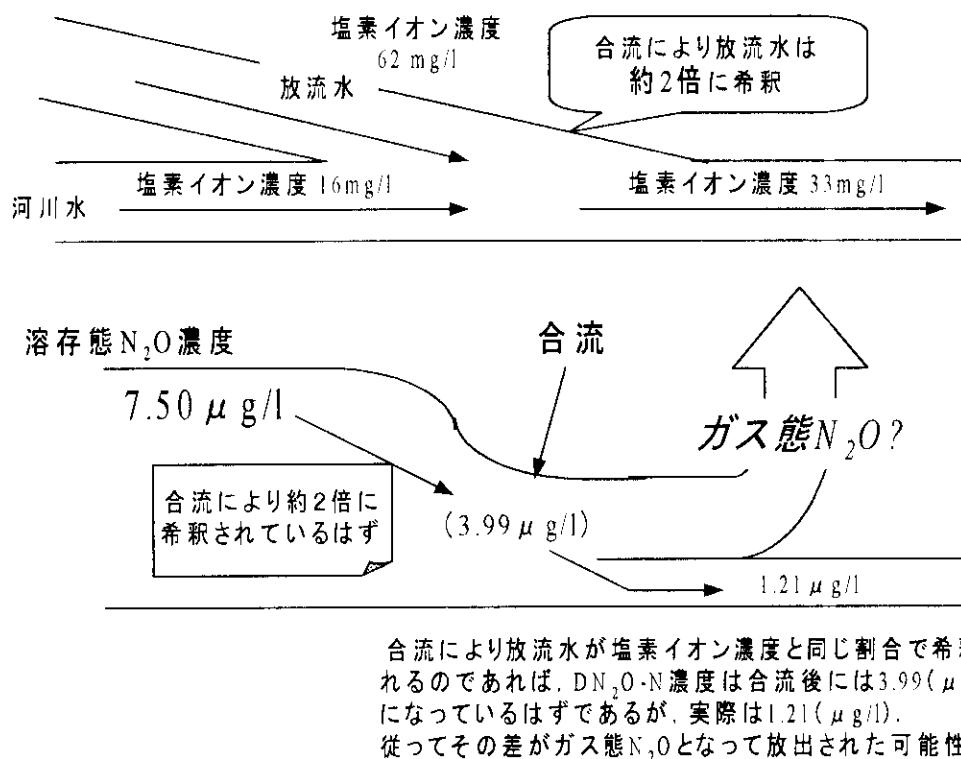


図3 曝気槽における N_2O 放出と $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_3\text{-N}$ の挙動

図3に曝気槽における GN_2O 排出量と無機態N濃度の関係を表す。いずれの調査においても曝気槽のNo.2のポイントで排出される N_2O 量が減少しその後増加している。しかしこの減少量は僅かであるため測定誤差による可能性もあるが、実際に消費されているものだとしたら、曝気槽の前半部分はDOが低くなっているため、脱室により N_2O が消費されたことが考えられる。またこの図から $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の減少にあわせ GN_2O 排出量も増加していることがわかる。 N_2O の生成経路を考えた場合、 NH_4^+ 酸化と NO_2^- 還元の2つがあり、この結果からは $\text{NH}_4\text{-N}$ の酸化によって N_2O が生成されたと考えられるが、曝気槽内が好気状態になっている部分でもDO値は1(mg/l)前後であり、還元反応が行われている可能性は十分に考えられ、 NO_2^- の還元によって N_2O が生成されるという経路も十分に考えられる。槽内の水質および N_2O の挙動から、見かけ上 N_2O 生成過程として $\text{NH}_4\text{-N}$ の酸化過程が卓越していたことがいえる。しかしDOの値を見ても約1(mg/l)以下と低いため NO_2^- や NO_3^- が電子供与体として利用されることにより N_2O が生成されている可能性は十分に考えられる。よってこの N_2O 生成経路については今後さらなるデータ収集を行い検討を加えていく必要がある。

7月、12月の調査時の水温はそれぞれ22.5°Cおよび17°Cであり、 NH_4^+ 酸化速度および N_2O 生成速度には温度の依存性が強く認められた。



気液平衡時の DN_2O 濃度に対する、 DN_2O 実測値の値を表す飽和度(saturation factor)は、7月が9.69～64.7、12月が3.26～6.30と7月の値が大きくなっている。例えば飽和度が3.26ということは気液平衡状態に比べて3.26倍過飽和になっていることを表すので、本調査を通して曝気槽内に溶存している N_2O は過飽和状態になっていることがわかる。特に7月調査時の過飽和状態は著しいが、これは7月における N_2O 生成速度が大きいためと考えられる。本調査を通じて

曝気量に差はほとんどみられないが、この場合、 GN_2O は DN_2O が曝気により大気中へと排出されたと考えると、 DN_2O から GN_2O へ変換される割合は濃度の高低に関わらず同じになり、 N_2O 生成速度が小さい 12 月に比べ N_2O の蓄積速度が大きくなる。そのため 7 月における過飽和状態が著しくなったものと考えられた。

また、下水処理場から系外に排出される N_2O のうち、処理水に溶存した形で排出される N_2O 量は多く、特に 12 月の調査では各装置から排出される N_2O 量の総和と同程度の量であることがわかる。図 4 に放流後の DN_2O の濃度変化と塩素イオン濃度の変化を表す。塩素イオン濃度の変化から放流水は放流先の河川と合流することにより約 2 倍に希釈されているが、 DN_2O 濃度は約 1/6 になっており、合流時に N_2O が大気中に排出されている可能性が示された。放流水中の N_2O 溶存濃度は曝気槽のどの部分で硝化が進行するかに依存しており、前半部分で進行すれば生成された DN_2O の曝気を受ける時間が長くなり、放流水中の濃度は少なくなる。いずれにしろ河川、湖沼、海域に放流後は N_2O の還元が考えられる嫌気条件にはなりにくいので処理水中の N_2O についても、今後のデータ収集は必要なものの下水処理場を N_2O の発生源とみた場合、放出量に加えていく必要がある。

3. 2 N_2O 生成経路の解析

本調査結果および、これまで行ってきた畜舎排水処理の結果を併せ、 N_2O の発生が顕著に認められた曝気工程における N_2O 生成経路を想定し、その経路に基づき N_2O の生成について検討を行った。また、 DN_2O と GN_2O の関係についてモデル式を用い理論値と実測値の比較を行った。

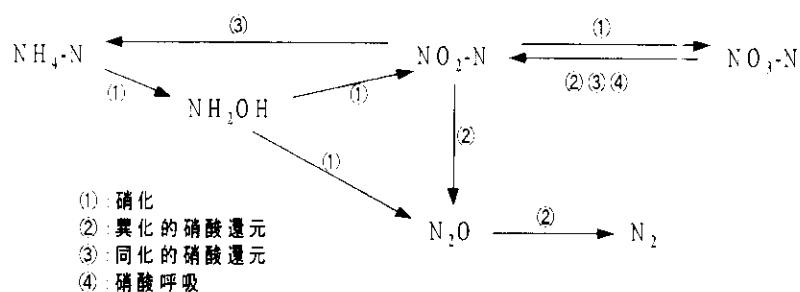


図5 N_2O の生成経路

曝気工程において考えられる N_2O の生成反応は NH_2OH の酸化反応と好気性脱窒による NO_2 の還元反応である。このように酸化反応と還元反応を同時に考慮する場合、例えば図 5 に示したように NO_2 の還元反応ではその $\text{NO}_2\text{-N}$ が $\text{NH}_4\text{-N}$ に由来するのか $\text{NO}_3\text{-N}$ に由来するのかを考慮に入れなければならない。実際の系では図のように様々な反応が組み合わさって N_2O が生成されるものと考えられるが、これを生成経路として採用した場合、收支計算を行う際の未知数が多くなり、結局計算不可の方程式が出来上がることになる。したがって、ここでは以下のようにいくつかの仮定を立てることで簡略化した生成経路を想定し、その想定した経路に基づき N_2O の生成について解析を試みた。

酸化・還元反応を考慮した曝気工程における N_2O 生成経路の想定の際に立てた仮定は以下の通りである。

- (1) NH_4^+ は生成されない
- (2) NH_4^+ の減少は NH_4^+ 酸化による

- (3) NO_2^- の生成は NH_4^+ 酸化による
 - (4) NO_2^- の減少は NO_2^- 酸化と NO_2^- 還元による
 - (5) NO_2^- の生成は NO_2^- 酸化による
 - (6) NO_2^- の還元は起こらない
 - (7) N_2O の生成は NH_4^+ 酸化と NO_2^- の好気性脱窒による
 - (8) N_2O の減少はガス態として系外に排出されることによる
- これらの仮定の下、想定した N_2O 生成経路を図 6 に示す。

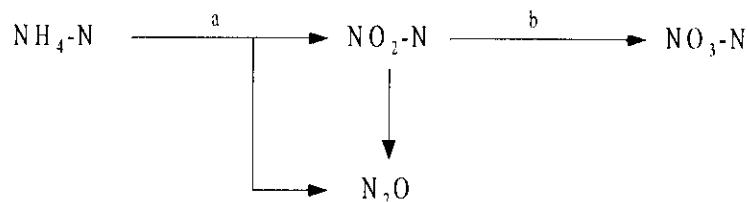


図6 N_2O 生成に係る想定した経路

この経路においては $\text{NH}_4^-\text{-N}$ から $\text{NO}_3^-\text{-N}$ までの酸化反応系におけるフラックスは決定できるものの、生成される N_2O については NH_4^+ 酸化により生成されたものなのか、 NO_2^- 還元により生成されたものなのかを特定することはできない。そこで N_2O 生成に関しては、 NH_4^+ 酸化による N_2O と NO_2^- 還元による N_2O の和を求め、それと $(\text{NH}_4^+ \text{酸化速度(a)}) / (\text{NO}_2^- \text{酸化速度(b)})$ 比との関係を見ることで生成経路の特定を試みた。畜舎排水での測定結果を合わせて図 7 に結果を示す。

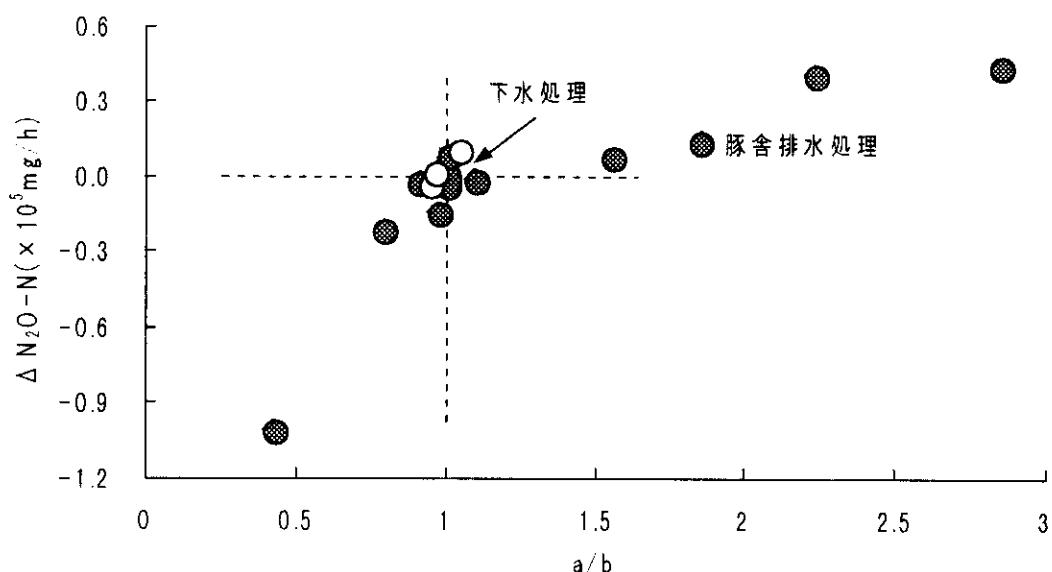


図7 NH_4^+ 酸化速度/ NO_2^- 酸化速度 (a/b) 比と N_2O 放出速度の関係

この図から a/b 比が大きくなるほど N_2O 生成速度が大きくなることがわかる。 a/b 比が大きいということは NH_4^+ 酸化速度が NO_2^- 酸化速度よりも大きいということなので、 NO_2^- が蓄積していることを表す。すなわちこの図から NO_2^- の蓄積速度が速いほど N_2O 生成速度も大きくなるとい

うことが言える。下水処理場の結果は a/b 比 1 で ΔN_2O がほぼ 0 の点に集中している。これは今回の測定結果では硝化がスムーズに進行しており、亜硝酸の蓄積が見られなかったことに起因しているが、このような活性汚泥法による下水処理においても運転操作条件によっては NO_2^- の蓄積が認められ、そのような条件下において N_2O の排出量が著しく増大することが知られている。この場合、 N_2O の生成原因として考えられるのが、 NH_2OH が関与している場合である。 NH_2OH は強い還元剤であるため、 NO_2^- を還元して N_2O を生成するという反応である。他方、 NO_2^- が蓄積するということはアンモニア酸化細菌に対して相対的に亜硝酸酸化細菌が阻害を受けているということであるので、この場合に好気性脱窒により NO_2^- 酸化反応よりも NO_2^- 還元反応が優位になり N_2O が生成されるという反応である。下水処理場の曝気槽は DO が 1 (mg/l) 程度であり、また畜舎排水処理においては好気時における N_2O 排出量の増加は DO が 0.5 (mg/l) と低い値を保ったままの時に見られているので、好気性脱窒によって N_2O が生成されている可能性は十分に考えられる。

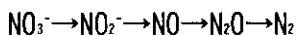
これらの反応は前者が化学反応、後者が生物反応であるが、いずれの反応が起こっているにしても、 N_2O の生成に NO_2^- が必要となる。

下水処理を含めた生活排水の活性汚泥処理に伴う N_2O 放出量に関する既往研究は極めて少ないので現状であるが、硝化促進型活性汚泥法と間欠曝気式嫌気好気活性汚泥法で並列処理を行った、団地排水の処理施設における放出量を比較検討し、間欠曝気活性汚泥法での放出量が 1/20 程度になることが報告されている。同様な比較で公共下水処理場における硝化促進型活性汚泥法と嫌気好気循環式活性汚泥法との比較においても放出量が 1/8 程度になると報告されている。また、標準活性汚泥法において硝化がごく僅かにしか進行しない場合においては N_2O の放出もごく僅かである事、不十分な硝化が進行し NO_2^- が蓄積される場合は流入下水 1m³あたり 330-1,500mg という大きな放出量になることが知られている。また、嫌気好気循環式活性汚泥法 (AO 法) における検討では SRT が硝化反応に対して確保されている場合でも、さらに SRT に余裕を持たせた場合において N_2O の放出量が低減されていることが知られている。さらに、畜産排水の活性汚泥処理において硝化促進運転から間欠曝気運転に切り換えることにより N_2O の放出量が 1/50 になると報告されている。

これらの事実は、硝化を速やかに進行させること、特に嫌気処理を組み合わせ NO_2^- を除去し、硝化反応時の NO_2^- 蓄積を押さえ、 NO_2^- から NO_3^- への反応を速やかに行わせることにより N_2O の生成が抑制されることを示しており、図 7 に示した畜産排水処理を含めた結果を裏付けており、硝化反応においては NO_2^- から NO_3^- への反応が N_2O 生成に対して重要であることが分かる。

一方、脱窒反応は異化的硝酸還元反応と同化的硝酸還元反応の二つの反応が考えられる。それぞれの反応について以下に示す。

異化的硝酸還元反応



結合酸素を利用する呼吸で窒素は N_2O あるいは N_2 として放出される。

同化的硝酸還元反応



NO_3^- は NH_4^+ まで還元され、菌体合成のため体内へ取り込まれる。

ここで NO_3^- の蓄積の関係と N_2O 排出の関係が認められた生活排水よりも有機物、窒素濃度等の高い、畜舎排水処理の結果をもとに考察を進める。好気性脱窒について考えると、これは好気状態で起こる異化的な硝酸還元反応と言い換えることができる、同じ硝酸還元反応である同化的硝酸還元反応が好気性脱窒として起こっている可能性は十分に考えられる。

$\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が $\text{NO}_3\text{-N}$ または $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度に対し相対的に高い場合、同化的還元を抑制し、相対的に低い場合には NO_3^- または NO_2^- が固定されるということになる。すなわち $\text{NH}_4\text{-N}/\text{NO}_3\text{-N} > 1$ の時には同化的硝酸還元反応が抑制されているため異化的硝酸還元反応が優位となり、その結果 N_2O が生成され、 $\text{NH}_4\text{-N}/\text{NO}_3\text{-N} < 1$ の時には同化的還元反応が優位となるため N_2O の生成は起こらないということである。また、この異化的硝酸還元と同化的硝酸還元について微生物の側面から見てみる。好気性脱窒を行う細菌として知られている *Alcaligenes faecalis* は酸素制限下で N_2O 生成速度が最大となるものの、好気状態では $\text{NO}_3\text{-N}$ を N 源として利用することができないと報告されている。すなわち $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が高いときには N 源として利用できる N が豊富にあるので異化的硝酸還元反応を行うが、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が低くなるということは菌体合成に利用できる N 源が不足してくるということなので異化的硝酸還元反応から同化的硝酸還元反応に転じるということである。そしてその反応が切り替わるポイントとして $\text{NH}_4\text{-N}/\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度比を適用すると今回の結果に当てはめることができる。すなわち好気性脱窒を行う細菌は相対的に $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が高い場合には異化的硝酸還元反応を、低い場合には同化的硝酸還元反応を行うということである。*Alcaligenes faecalis* を組み込み、嫌気、好気の操作条件の適正化を行うことにより、 N_2O が活性汚泥単独に比べ抑制されることが報告されており、*Alcaligenes faecalis* による同化的硝酸還元反応の進行とそれによる N_2O 抑制効果が考えられる。しかしこのことに関しては *Alcaligenes faecalis* 以外の好気性脱窒を行う細菌については知見が無く、また今回の調査においては活性汚泥中の微生物について検討しておらず、どのような微生物が反応に関与しているのか不明なため、上記のような現象が起こっている可能性があるという点でとどめ、今後の検討課題としたい。

現場調査において、系外に排出された N_2O のうち曝気時に排出される N_2O が大部分を占めていた。そしてさらに調査結果における DN_2O と GN_2O の経時変化がほとんど同じ様な形状を示すことから、排水処理の過程で排出される N_2O の大部分は、水中に溶存している N_2O が曝気等の外力により系外に排出されるか、気液平衡により系外に排出されると考えた。ここでは GN_2O の排出速度が DN_2O 濃度の関数であるモデル式を用いて GN_2O 排出速度の理論値を求め、これと実測値とを比較し DN_2O と GN_2O の関係について考察を加える。曝気槽におけるモデル式を以下に示す。

$$\gamma_{\text{N}_2\text{O}} = H_{\text{N}_2\text{O}} \cdot S_{\text{N}_2\text{O}} \cdot \left\{ 1 - \exp \left(- \frac{K_{L,\text{N}_2\text{O},\text{air}}}{H_{\text{N}_2\text{O}}} \frac{V_L}{Q_g} \right) \right\} \cdot \frac{Q_g}{V_L}$$

$\gamma_{\text{N}_2\text{O}}$: 単位体積水あたりの水面からの N_2O 放出速度 (mg/h/l)

$S_{\text{N}_2\text{O}}$: 溶存 N_2O 濃度 (mg/l)

$K_{L,\text{N}_2\text{O},\text{air}}$: N_2O 移動速度係数 (1/h)

$C_{\text{N}_2\text{O},\text{air}}$: 大気中 N_2O 濃度 (mg/l)

$H_{N_2O} : N_2O$ の Henry 係数 (-)

Q_g : 曝気流量 (l/h)

V_l : 水の容量 (l)

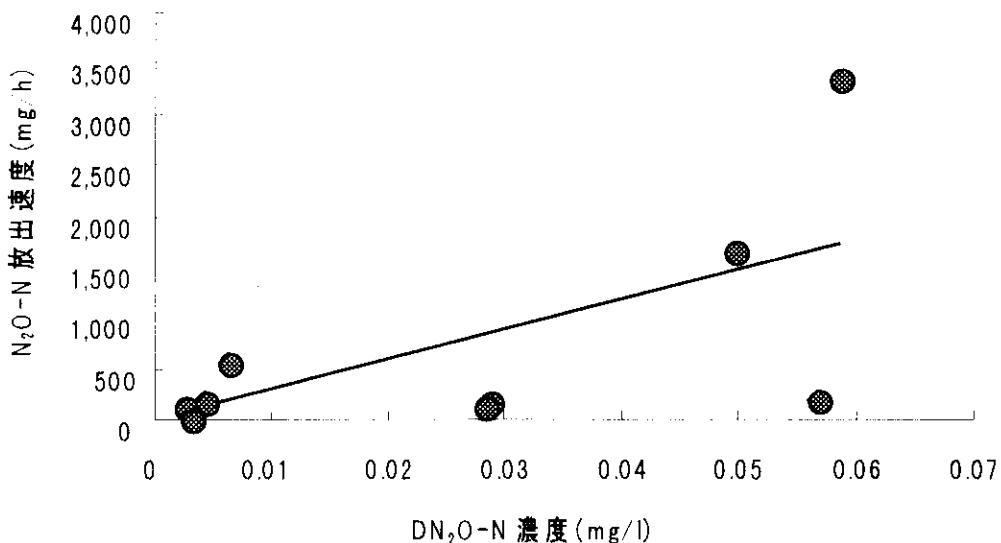


図8 下水処理施設におけるDN₂O濃度とGN₂O放出速度の関係

下水処理施設の曝気槽における溶存 N₂O-N 濃度と N₂O 排出速度の関係を図 8 に示す。図の回帰直線の傾きから K_{L,N_2Oa} を求めたところ、下水処理施設では 1.15 (day-1) となった。曝気時の K_{L,N_2Oa} は曝気装置の構造に依存することから、N₂O 発生抑制の観点から反応槽の設計段階でのシミュレーション手法の構築が必須である。

以上の K_{L,N_2Oa} 値を上式に用い GN₂O 排出量の理論値を求め、それぞれにおいて近似曲線を求め、その傾きの大きさを比較すると下水処理場では 1.24 ~ 2.48 となった。また、畜舎排水処理の結果からはサンプリングチャンバー面積と反応槽表面積の比が大きいほど 1 に近づくことが示されており、排出量の精度確保のためにはサンプリング手法についてもこのような視点から検討を行う必要がある。

4. 総まとめ

本研究では下水処理場での N₂O 排出実態の調査をもとに N₂O 生成経路について検討を行ったが、得られた成果は以下のようにまとめられる。

- (1) N₂O 発生量は装置毎においては沈砂池や最初沈殿池のダクトからの発生量が多く、これには返流水の水質が大きく影響している可能性が示唆された。
- (2) N₂O-N 系外排出量を処理施設内における工程毎で比べると、放流水に溶存した形で排出される N₂O-N 量が、全体の約半分を占めている場合もあった。
- (3) N₂O の発生量原単位は人間一人あたり 8.33 ~ 11.2 (mgN₂O-N/capita/day)、流入水 1m³ あたり 21.2 ~ 29.2 (mgN₂O-N/m³inflow) となった。
- (4) N₂O が放流水の溶存態からガス態となって排出される可能性が放流先における水質の変化か

ら示唆された。

(5) N_2O 発生量の調査間における差には水温の影響が大きく効いているものと考えられた。

(6) $\text{NO}_2\text{-N}$ 蓄積速度が大きいほど N_2O 生成速度も大きくなつた事から、 N_2O の生成に NO_2 が必要であることが確認された。

(7) N_2O 生成速度は $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が $\text{NO}_2\text{-N}$ または $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度に対して相対的に高い場合に増加し、逆に低い場合に減少することが確認された。

(8) 曝気工程における N_2O の生成には従属栄養性の微生物が関与している可能性が示唆された。

(9) N_2O 排出量が下水処理施設に比べ豚舎排水処理施設において高いのは、下水処理施設における流入窒素負荷が小さいことではなく、 NO_2 の蓄積が少ないと起因している可能性が示唆された。

(10) 好気条件下における N_2O 生成のほとんどが $\text{NH}_4\text{-N}$ 酸化および NO_2 還元により、このうち NO_2 の異化的還元反応が主要な機構であることが示唆された。

(11) GN_2O 排出速度はモデル式を用いた解析の結果、 DN_2O 濃度の関数である可能性が示唆された。

本研究および既往の研究結果から活性汚泥法で処理を行う排水処理プロセスにおいて N_2O の発生を抑制するには硝化が起きない操作条件あるいは硝化を促進し、さらに脱窒を促進する嫌気・好気の最適化された操作条件のいずれかを選択すれば良いと考えられる。しかし、閉鎖性水域における富栄養化が一向に改善されない現状では、その原因物質としての窒素、リンの大きな負荷排出源である下水道を含む生活排水処理における削減対策が不可欠なことは論を待たないところである。これまでの検討結果から嫌気・好気の最適化による効率的な生物学的窒素、リン除去プロセスの運転操作条件と N_2O の放出量が低減される運転操作条件の間に矛盾はなく、生活排水処理において富栄養化対策と温室効果ガスとしての N_2O 対策がリンクしうるものと考えられた。

…国際共同研究等の状況…

特になし

—研究成果の発表状況…

○水落元之、佐藤和明、稻森悠平、松村正利：メタン、亜酸化窒素の放出量および放出特性と活性汚泥法の処理条件との比較解析、水環境学会誌、21、849-855(1998)

○ Mizuuchi, M., Sato, K., Inamori, Y. and Matsumura, M. : Emission Characteristics of Greenhouse Gas N_2O from Sewage Sludge Incineration Process, Japanese J. Water Treat. Biol., 34, 267-277 (1998)

○水落元之、稻石高雄、市川雅英、大石 亮、木持 讓、稻森悠平：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、145-151(1999)

○水落元之、佐藤和明、稻森悠平、松村正利：地球温暖化ガス CH_4 、 N_2O の標準活性汚泥法および嫌気・無酸素・好気法における放出量の比較解析、日本水処理生物学会誌、印刷中(1999)