

氏名	おおとも しょうへい 大友 渉平
授与学位	博士 (生物資源科学)
学位授与年月日	令和5年3月23日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項 (注 課程博士: 1、論文博士: 2)
研究科専攻	秋田県立大学大学院生物資源科学研究科 博士後期課程 生物資源科学専攻
学位論文題目	生活排水の無終端水路反応槽における亜酸化窒素の動態と抑制技術の構築に関する研究
指導教員	教授 宮田 直幸
論文審査委員	主査 教授 宮田 直幸 副査 教授 木口 倫, 准教授 高階 史章 学外 教授 伊藤 歩 (岩手大学)

論文内容要旨

生活排水を処理する下水処理場では、窒素化合物の生物学的除去過程で亜酸化窒素 (N_2O) が生成する。 N_2O は高い温室効果を有し、オゾン層破壊物質でもあるため、生物反応槽における抑制技術の構築が重要な課題である。一般的な押し出し流れ方式や回分方式の生物反応槽では、フルスケールプラントを対象として N_2O 抑制技術の研究が行われているが、中小規模の処理場で最も採用数が多い無終端水路反応槽では、 N_2O 排出の実態は不明で、その抑制技術も構築されていない。そこで本研究では、無終端水路反応槽における N_2O 動態を明らかにし、 N_2O 排出抑制を可能とする運転条件を確立することを目的とした。本研究で得られた成果は以下のように要約できる。

(1) 下水処理場における DN_2O 排出量評価の重要性

我が国の下水処理場の温室効果ガスインベントリでは、主として生物反応槽からのガス態 N_2O (GN_2O) 発生量が計上されているが、溶存態 N_2O (DN_2O) は計上されていない。2013年9月及び12月に中規模下水処理場とその放流先河川で N_2O 排出の一体的な調査を行った結果、特に12月は DN_2O に関連した排出量が全 N_2O 排出量の15%を占めていた (図1)。その内の59% (全排出量の9%) は放流過程でガス化していたと推察され、下水処理や放流過程において DN_2O は無視できない項目であり、その実態解明が重要であることが示された。

(2) 無終端水路反応槽における N_2O 生成機構の解析

秋田県大曲処理センター (大仙市) で稼働している反応槽を対象とし (図2)、2017年7月と11月に DN_2O 等窒素化合物の消長と硝化・脱窒に関わる活性汚泥細菌群の機能遺伝子転写量を定量した。なお対象とした反応槽では、排水流入地点とその対側にそれぞれ縦軸型攪拌機 (1号、2号) が設置され、約3時間間隔で1台ずつ交替で稼働していた。槽内の水質分析の結果 (表1)、2017年11月では NH_4^+ 酸化、即ち硝化が進行し NO_2^- 脱窒が停滞する中で DN_2O が蓄積したと推察された。このとき、アンモニア酸化酵素をコード

する *amoA* の mRNA 転写量が多く、従属栄養細菌の亜硝酸還元酵素をコードする *nirS* 及び *nirK*、 N_2O 還元酵素をコードする *nosZ* (clade II type) の各転写量が少ない傾向にあったことが判明した (図 3)。本調査により、対象とした無終端水路反応槽では、主として硝化菌脱窒経路で DN_2O が生成し、同時に従属栄養脱窒による N_2O 還元が停滞することで DN_2O 濃度が上昇すると推察された。

(3) 無終端水路反応槽における N_2O 動態の解析

無終端水路反応槽での DN_2O 動態を明らかにするため、上記の処理施設において、2017年5月から2019年3月まで非連続の長期モニタリング調査を、2019年10月から11月に連続モニタリング調査を実施した。その結果、長期的には排水流入側の1号攪拌機稼働時に DN_2O 濃度が大きく変動し ($<0.001\sim 0.54$ mgN/L)、 NH_4^+ 濃度と負の相関関係が ($R^2 = 0.38$ 、 $p < 0.01$)、 NO_2^- 濃度とは正の相関関係が示された ($R^2 = 0.66$ 、 $p < 0.01$)。短期的な DN_2O 濃度の経時変化では、概して流入有機物 (生物化学的酸素要求量 (BOD)) 負荷が低い時間帯に DN_2O 濃度が増加する傾向が見られた (図 4)。上記 (2) の調査で DN_2O 濃度の上昇は高 DO 濃度時の硝化脱窒によることを明らかにしていたが、加えて、有機物負荷の低い時間帯は DO 消費量が低下し従属栄養性脱窒が停滞するため、 DN_2O 濃度の増加を引き起こしたと推察された。以上より、 DN_2O 濃度は短期的には、主に流入有機物負荷と攪拌機の回転速度 (=DO 供給量) の影響を大きく受けて変動することが示された。また、 DN_2O 濃度に連動して、 N_2O 排出係数も大きく変動することが明らかになった。

(4) 無終端水路反応槽における N_2O 抑制に向けた攪拌方法の検討

DN_2O 生成抑制と窒素除去の観点から最適な攪拌方法を導出することを目的に、2020年10月から11月に現地で種々の攪拌条件を検討した。また、無終端水路反応槽への適用実績がある活性汚泥モデルに大曲処理センターの反応槽構造を組み込み、流入窒素量、流入有機物量、攪拌条件 (DO 濃度分布) をパラメータとした DN_2O 生成のシミュレーション解析を行った。現場試験により、排水流入地点側の1号攪拌機の停止時に DN_2O 生成量が有意に減少し、全 N_2O 排出量を抑制できたことから (図 5)、流入地点を無酸素にして脱窒を促進させることの有効性が確認された。シミュレーション解析でも、 N_2O 排出係数の平均値は2号攪拌機稼働時の方が低い値を示した (1号稼働: 1.27%、2号稼働: 0.79%)。一方で、現場データより、1号攪拌機を稼働した場合でも、流入有機物負荷が高ければ、 DN_2O 濃度の上昇を抑制できることが示された (図 6)。

(5) 無終端水路反応槽における N_2O 抑制運転の検証

以上の研究結果を総括し、大曲処理センターの無終端水路反応における N_2O 抑制に向けた最適な攪拌方法を提案し、2022年5月から8月に実証試験を行った。具体的には、攪拌機を1台ずつ稼働させたが、2号攪拌機の稼働時間を増やし、さらに流入有機物負荷量が低下する朝方の回転速度 (酸素供給能力) を低下させた。また、1号攪拌機は、流入有機物負荷が高い夜間帯に稼働させることとした。その結果、1号攪拌機稼働時に DN_2O 濃度のわずかな増加がみられたが、2号攪拌機稼働時は概ね濃度増加が抑制されていた (図 7)。2019年調査時の N_2O 排出量と比較すると、中央値で79%の減少が確認され、 N_2O 排出係数は9.0%から1.8%と大きく減少した。この際、無機態窒素化合物の除去率は平均84%となり、通常運転時と同程度の高い窒素除去性能を維持していたことが確認された (表

2)。

本研究では、下水処理場の N₂O 排出管理において DN₂O 成分を評価することの重要性を示すとともに、無終端水路反応槽での DN₂O 生成機構と排出動態を明らかにした。調査対象とした無終端水路反応槽では、NH₄⁺酸化の促進時に硝化菌脱窒により DN₂O 濃度が上昇するが、排水流入地点が低 DO 濃度となるように攪拌運転を行うことで、流入有機物を利用した従属栄養脱窒を促し、DN₂O の蓄積を抑制できることが示された。また、DN₂O は主として流入有機物負荷が低い時間帯に増加するため、2 台の攪拌機の稼働時間を考慮することで、DN₂O 発生量を制御できることも示された。これらの研究成果を踏まえ、無終端水路反応槽の攪拌機の効果的な運転方法を提示し、実証試験により N₂O 排出量を 79%削減できることが示された。無終端水路反応槽は中小規模の下水処理施設で多く採用されていることから、今後、本研究で提案した運転方法を適用することにより、下水道分野の温室効果ガス削減に寄与することが期待された。

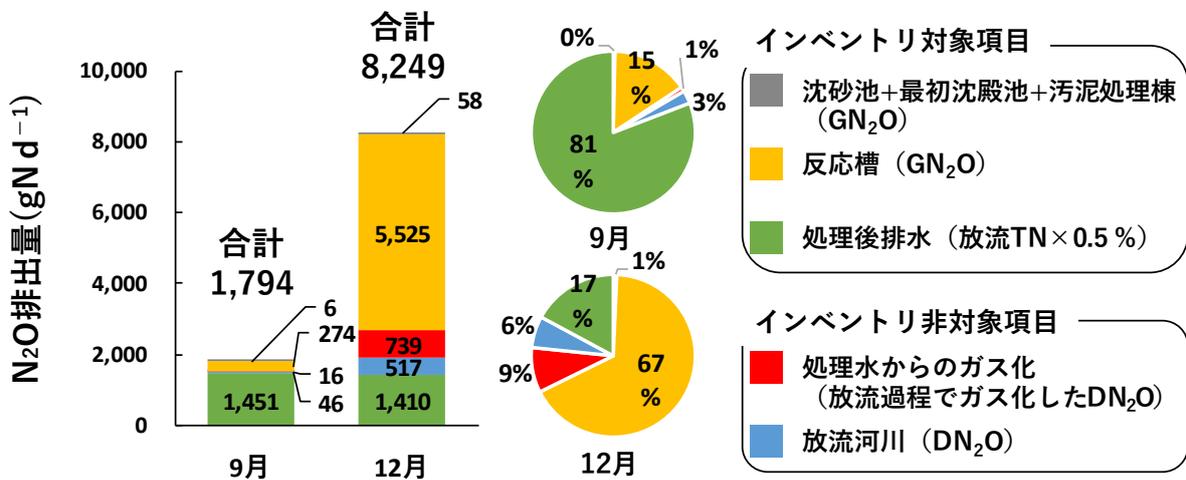


図 1. 下水処理場と放流河川における N₂O 動態の一体的調査結果

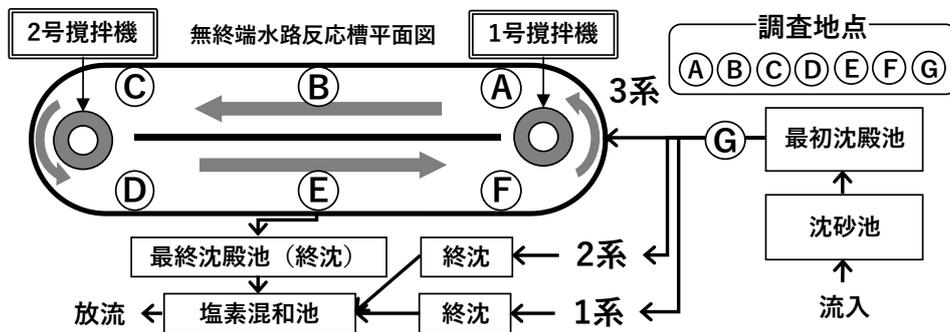


図 2. 大曲処理センターの水処理工程と調査地点

表 1. 大曲処理センター無終端水路反応槽での水質調査結果 (2017年)

		2017年7月20日			2017年11月29日		
		反応槽 流入水 (G地点)	反応槽6地点の平均値		反応槽 流入水 (G地点)	反応槽6地点の平均値	
			1号稼働時	2号稼働時		1号稼働時	2号稼働時
水温	°C	22.7	22.1	22.6	15.4	15.2	15.4
DOC	mg L ⁻¹	55.9	6.2	6.6	46.4	4.7	5.2
NH ₄ ⁺	mgN L ⁻¹	17.6	8.8	11.0	33.5	1.2	3.1
NO ₂ ⁻	mgN L ⁻¹	<0.01	0.03	0.02	0.03	1.54	0.16
NO ₃ ⁻	mgN L ⁻¹	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02	0.01
DN ₂ O	μgN L ⁻¹	1.1	0.9	0.6	2.4	191.6	39.9
DO	mg L ⁻¹	—	0.39	0.37	—	0.66	0.51

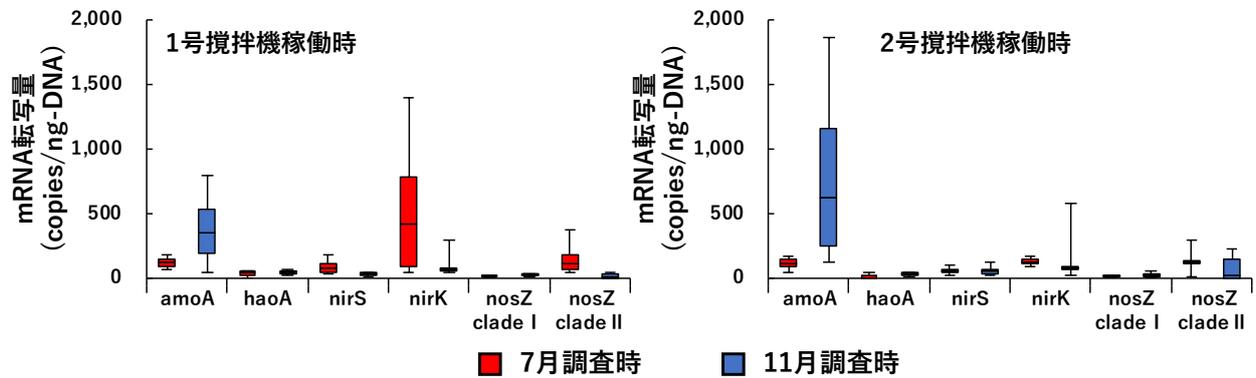


図 3. 2017年調査時の機能遺伝子転写量解析結果

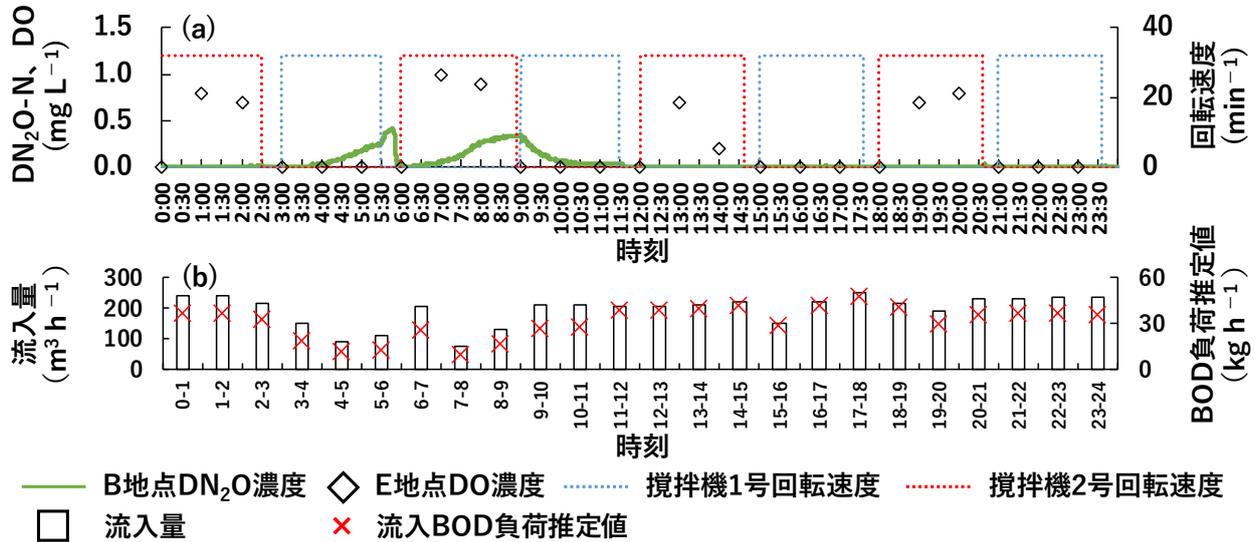


図 4. 2019年連続モニタリング調査時の代表的な (a) DN₂O 濃度、DO 濃度 (b) 流入量、流入 BOD 負荷推定値 (調査日: 11/11、地点 B、E は図 2 参照)

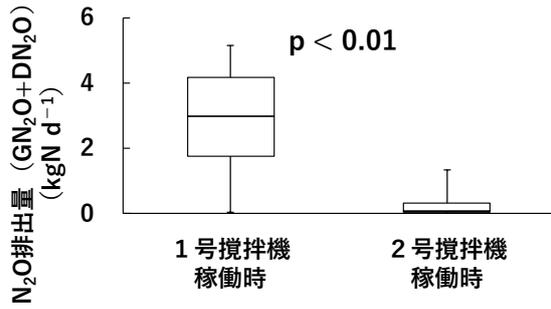


図5. 2020年調査時の稼働攪拌機別 N_2O 排出量

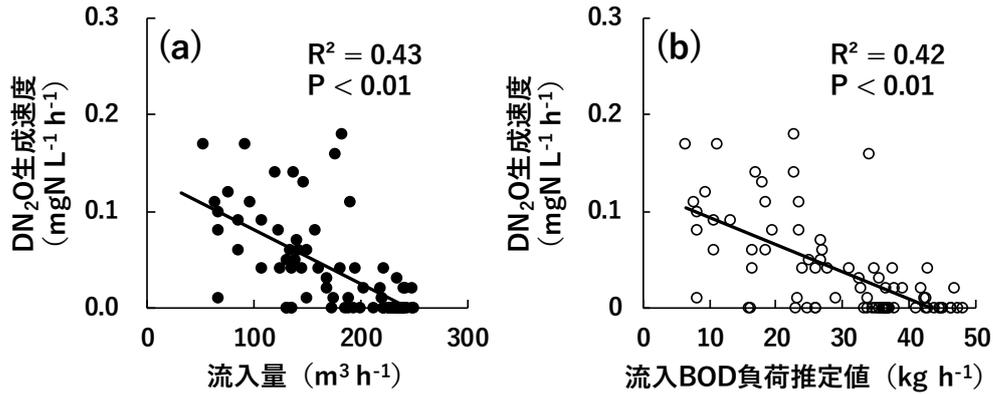


図6. 1号攪拌機稼働時の(a)流入量(b)流入BOD負荷推定値と DN_2O 生成速度との関係

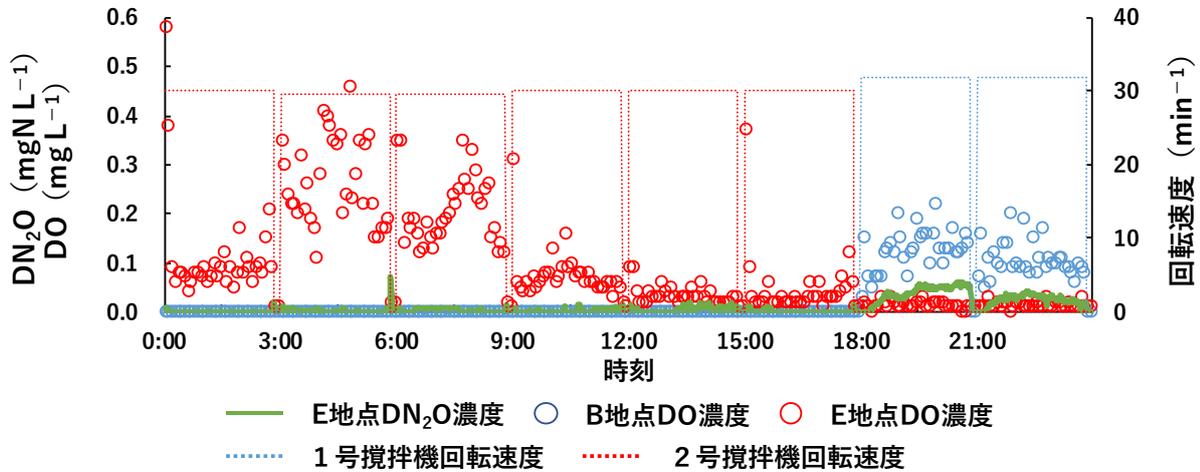


図7. 2022年 N_2O 抑制運転時の DN_2O 濃度経時変化 (調査日7/26、地点B、Eは図2参照)

表2. 通常運転時と N_2O 抑制運転時の N_2O 排出量および N_2O 排出係数の比較

			2019年		2022年	
運転条件			通常運転	通常運転	抑制運転	
溶存態無機窒素除去率	%	平均値	86	89	84	
N_2O 排出量 (GN_2O+DN_2O)	$kgN d^{-1}$	最大値	36.7	40.5	54.4	
		中央値	8.4	5.5	1.8	
N_2O 排出係数	%	最大値	44.9	43.6	52.7	
		中央値	9.0	5.1	1.8	

論文審査結果要旨

本研究は無終端水路反応槽を用いた生活排水処理において、温室効果ガスである亜酸化窒素 (N_2O) の発生抑制技術を構築することを目的としている。一般的な押し出し流れ方式や回分方式の生物反応槽では、フルスケールプラントを対象として N_2O 抑制技術の研究が行われているが、中小規模の処理場で最も採用数が多い無終端水路反応槽では、 N_2O 排出の実態は不明で、その抑制技術も構築されていない。本研究では、主としてフルスケールプラントで調査した N_2O 排出動態とその生成機構を踏まえ、 N_2O 排出を抑制できる効果的な無終端水路反応槽の運転手法の提案を試み、以下の成果を得ている。

(1) 下水処理施設と放流先河川を対象とした調査により、溶存態 N_2O (DN_2O) が全 N_2O 排出の 15% を占め、処理水中の DN_2O 成分に着目することの重要性を提示した。

(2) 無終端水路反応槽内で NO_2^- 蓄積時に DN_2O 濃度が増加すること、このとき、活性汚泥の硝化関連遺伝子転写量 (硝化細菌 *amoA*) が増加する一方で、脱窒関連遺伝子転写量 (脱窒細菌 *nirS*, *nirK*, *nosZ*) が減少していることを明らかにした。これにより、対象とした無終端水路反応槽では、主に硝化菌脱窒経路で DN_2O が生成し、同時に従属栄養脱窒による N_2O 還元が停滞することで DN_2O 濃度が上昇する機構を提示することができた。

(3) 無終端水路内の 2 台の攪拌機の稼働状況によって、水路内の溶存酸素 (DO) 濃度が増減し、このことが硝化菌脱窒による DN_2O 生成に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。また、 DN_2O 濃度は流入有機物負荷と攪拌機の回転速度 (=DO 供給量) の影響を大きく受けて変動することを示した。

(4) 活性汚泥モデルを用いた水質シミュレーション及び現地調査を行い、排水流入地点を無酸素条件としその下流を適切な DO 濃度で維持すること、さらに、流入地点が好気条件でも有機物負荷量に基づいて DO 濃度を制御することで、 DN_2O 生成を抑制可能であることを提示した。

(5) フルスケールプラントで N_2O 抑制運転を試験し、従来の窒素除去性能を維持しながら、 N_2O 排出量の 79% 削減と N_2O 排出係数の大幅な低下 (9.0%→1.8%) を達成した。

フルスケールの無終端水路反応槽で N_2O 動態を詳細に研究した報告は無く、価値ある知見が得られている。無終端水路反応槽は世界中で使用されているが、特に我が国では地方都市での稼働数が多い。本研究で提案した N_2O 抑制運転手法は、既存の設備を改修することなく適用可能であるため、今後、下水道分野の温室効果ガス削減対策に寄与することが期待される。

先の予備審査会では、研究成果を他の処理施設に水平展開するためには水温や有機物負荷量等の影響を十分考察する必要があること、水路内での水質や遺伝子転写量の空間分布を提示して解析すること、ガス態 N_2O 量の算出式やデータの提示方法を検討すること、既往研究からの発展性について明示することなど、様々な意見が出された。審査会では、それらを踏まえて適切に学位論文の改訂が行われたことを確認した。また学位論文発表会では、研究成果や意義を分かり易く説明し、質疑に対して十分な回答を行った。

以上より、審査会では博士の学位を授与するに値すると判定した。