

Evaluation of nitrous oxide emission during ammonia retention from simulated industrial wastewater by microaerobic activated sludge process

周 心怡（京都大学大学院地球環境学堂・特定研究員）

この度は、栄誉ある2023年度論文奨励賞（廣瀬賞）を授与いただき、誠にありがとうございました。ご推薦、ご選考くださった先生方、お世話になりました日本水環境学会の関係各位に御礼申しあげます。受賞対象論文は、共著者藤原拓先生、日高平先生、西村文武先生、中西智宏先生、寺田昭彦先生、堀知行様とともに完成しました。共著者皆様のご指導とご貢献に深く感謝いたします。以下では、受賞対象論文を簡単に紹介させていただきます。

窒素循環では、大気中の窒素ガス（ N_2 ）をアンモニア（ NH_4^+-N ）に固定し、廃水処理中に NH_4^+-N を N_2 に変換します。 NH_4^+-N の生成と除去の両方にかかるエネルギー消費を削減するため、微好気活性汚泥法（MAS）が提案されました。このプロセスは、廃水中の有機物を除去しながら、低い溶存酸素（DO）およびpH制御下で硝化を抑制することにより、 NH_4^+-N を処理水中に保持することを目指しています。しかし、これらの条件はMAS中の N_2O 排出量の評価に不確実性をもたらします。本研究では、三槽式ベンチスケールMASシステムを構築し、高 NH_4^+-N 濃度の人工廃水を用いて、 NH_4^+-N 保持およびTOC除去性能を調査しました。さらに、 N_2O 排出量を評価し、反応速度および機能遺伝子の存在量に基づき、想定しうる N_2O 排出経路を考察しました。

64日間の運転期間中、MASの各反応槽で曝気を行い、第二槽（R2）および第三槽（R3）でDOが0~1 mg L⁻¹の範囲に制御されました。また、二系列を同時に運転し、R2ではpHが6.2（S1）および6.8（S2）に制御されました。

両系列において流入TOCの90%以上が除去され、炭素収支の結果、CO₂排出が主にTOC除去から生じており、酸性条件で無機炭素の放出もあることが示されました。一方、いずれのpH条件においても、流入TNのうち80%以上が流出水中に NH_4^+-N の形態で保持されました。窒素収支により、窒素ロスが主に余剰汚泥によるものであり、 N_2 の排出はほとんどないことが示されました。これらの結果は、設定したpH条件でDOが1 mg L⁻¹未満の場合、MASが十分なTOC除去および NH_4^+-N の保持を実現できることを示しました。

流入TNに対する両系列の N_2O 転換率は0.467%から3.62%であり、従来の活性汚泥法の転換率と同様でした。硝化抑制条件でも大量の N_2O 排出が見られたことから、各反応槽における N_2O 排出に関して、窒素反応速度および窒素関連の機能遺伝子とともに検討しました。

第一槽（R1）は主にTOCが除去される反応槽であり、 N_2O 排出も検出され、各系列の N_2O 排出総量の約2%を占めました。R1の N_2O 排出速度はNO_x生成速度と負の

相関がありました。返送汚泥に含まれるNO_x-Nを考慮すると、R1の N_2O は脱窒の中間生成物であり、 N_2 に還元されずに曝気にともない排出されたと考えられました。窒素収支によると窒素ガスのロスがほとんどないことも、この推測を支持しています。S2-R1の N_2O 排出速度は*nirS*遺伝子の存在量と正の相関があり、S2-R1では*nirS*を保有する脱窒菌がNO₂⁻-Nの還元を支配し、S1-R1では*nirK*と*nirS*がともにNO₂⁻-Nの還元に参加していることを示しました。*nirS*と*nosZ*の共存頻度が高いため、*nirS*型脱窒菌は*nirK*型より少ない N_2O を生成する傾向があります。その結果、*nirS*型脱窒菌が支配しているS2-R1では、より低い N_2O 排出速度が観察されました。

R2は各系列の主な N_2O 排出源であり、総排出量の79.9%（S1）および69.0%（S2）を占めました。R2の N_2O 排出速度はNO_x生成速度と正の相関がありました。R2ではNO₂⁻-NがNO_x-Nの主な形態であるため、 N_2O が主にNO₂⁻-N還元によって生成されたことが示唆されました。一方、R2における N_2O 排出速度がNO_x-N生成速度と同様であり、これは硝化が制限されないまたは促進される場合よりかなり高いものでした。窒素還元機能遺伝子の存在量が*amoA*より10~100倍大きいことを考慮すると、曝気のあるR2におけるNO₂⁻-N還元による N_2O 排出は、硝化菌だけでなく、脱窒菌により行われていると推測されました。その結果、硝化反応がDOとpHの制御により制限されたとしても、脱窒菌が多量に存在するため、大量の N_2O が排出されました。

R3では硝化がさらに進行し、 N_2O 排出量が総量の8.11%（S1）と11.8%（S2）を占めました。 N_2O 排出速度は、両系列で*nirK*存在量と正の相関があり、S1-R3では*nirS*および*nosZ*-Iと正の相関があり、S2-R3では*nosZ*-IIと負の相関がありました。NO_x-N生成速度との相関はS2-R3でのみ示され、*nirK*および*nirS*との相関は、R3からの N_2O 排出が主にNO₂⁻-N還元によるものであることを示唆しています。R3の酸化還元電位は正であり、脱窒はほとんど生じないと予想されることから、 N_2O 排出は硝化菌によるNO₂⁻-N還元の生成物であると考えられました。

本研究では、MASが十分なTOC除去とともに NH_4^+-N の保持を達成しましたが、 N_2O 排出が検出され、各槽の N_2O は様々な経路によって排出されることが確認されました。以上の結果は、硝化抑制条件での N_2O 削減に関するさらなる調査の重要性を示しています。

最後に、本研究はNEDOムーニョット型研究開発事業のプロジェクトJPNP18016の助成を受け実施致しました。ここに記して感謝の意を表します。