

H-5

アンモニア酸化細菌の亜酸化窒素の生成に及ぼす無酸素状態時間の影響
Effect of anoxic time on nitrous oxide production by ammonia-oxidizing bacteria

○池ヶ谷祥吾¹, 齋藤利晃², 吉田征史²
*Shogo Ikegaya¹, Toshiaki Saito², Yukihito Yoshida²

Abstract: In order to reduce the nitrous oxide (N₂O) emission produced by ammonia-oxidizing bacteria (AOB), we focused on the previously exposed condition just before aerobic time. Concretely, three AOB-dominant sludge pretreated with different previous conditions, i.e. consecutive aeration without anoxic time, 90 min of anoxic time and 180 min of anoxic time, were compared with N₂O production in the subsequent aerobic time. The interesting findings were obtained as follows. The sludge pretreated with anoxic conditions showed the increased N₂O conversion ratio. And also, the longer anoxic time AOB had, the more N₂O AOB produced. On the contrary, the highest N₂O conversion ratio was obtained from the sludge with consecutive aeration. These results suggest that the previously exposed condition clearly affects N₂O production by AOB and their metabolic responses.

1. 研究背景及び目的

近年、温室効果ガスの増加に伴い地球温暖化の問題が深刻化している。そのため、この問題を引き起こす温室効果ガスの削減が急務とされており、その中でも、亜酸化窒素は、二酸化炭素の265倍の温室効果を有し、かつ温室効果ガスにおける排出量の約7%を占めていることから、水処理過程で排出される二酸化炭素や亜酸化窒素も無視できないものとなっている。しかし、その生成抑制手法は未だ確率されていないため今後も研究を進めていく必要がある。

下水処理過程での硝化工程において亜酸化窒素の生成に影響を与える因子として主に溶存酸素濃度(DO)が知られている。既存の研究に、好気条件を与え続けると亜酸化窒素の生成が減少するとの報告があり、無酸素状態の制御が生成抑制の鍵であると考えた。

そこで本研究では、通常のサイクル後に窒素ガスを吹き込み、無酸素状態を経験させ好気回復時の亜酸化窒素生成挙動を調べ、AOBのN₂O生成メカニズムの解明と最適運転手法の提案に繋がる基礎的知見の収集を試みた。

2. 実験方法

2-1. 運転条件

実験には、有効容積4Lの回分式反応槽を用い、サイクル初期に60mgN/Lのアンモニア態窒素を含む無機栄養塩を800mlで流入させ、サイクルの終わりに等量の処理水を排水した。回分工程は、曝気120分、沈殿・排水60分の1日8サイクル(HRT15h)で構成し、概ねpH=7.05±0.05、水温20℃に制御して硝化汚泥を培養した。本実験における実験系をFigure1に示す。無酸

素90分系(Ax-90)及び無酸素180分系(Ax-180)では、通常のサイクルに窒素ガスを20ml/minで90分もしくは180分吹き込み、無酸素状態を経験させ、好気回復時の亜酸化窒素生成挙動を調べた。また、対照系として無酸素工程を挟まない連続系を用意した。

2-2. 試料採取

N₂O試料は、ガス態N₂O(gN₂O)及び溶存態N₂O(dN₂O)を測定した。前者は、反応槽上部の排ガスラインから気体を採取し、後者は、反応槽よりガラスシリンジに汚泥を10mL取り、2分間振盪後に気相部より採取し、どちらもGC/ECDにて測定した。

溶存態無機窒素は、反応槽より汚泥を採取し、孔径0.45µmのメンブレンフィルターでろ過し、アンモニア態、亜硝酸態、硝酸態の窒素を液体クロマトグラフィーにて測定した。

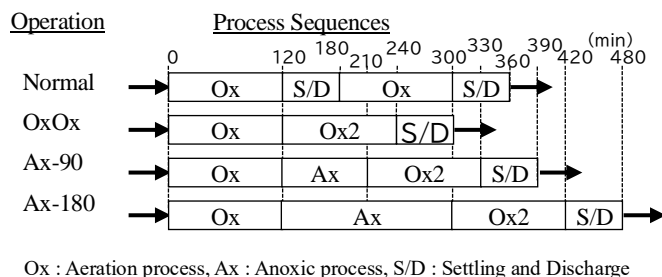


Figure1. Operations and process sequences

3. 結果と考察

3-1. N₂O及びイオン系について

対照系としての無酸素工程を挟まない連続系(OxOx)のN₂OデータをFigure1に示す。好気(Ox)サイクル後に基質を投入後、沈殿排水を行わずに連続して好気工程(Ox2)を行った。gN₂Oは緩やかに上昇、dN₂Oは緩

1 : 日大理工・院(前)・土木 2 : 日大理工・教員・土木

やかに減少し一定の N₂O 濃度を示した。前サイクルでの排水に伴い、反応槽の気相部が室内の空気で置換されているためサイクル開始時から 40 分付近までの gN₂O と dN₂O との相関に乱れが生じている可能性がある。亜硝酸濃度平均(mg-NL⁻¹)と DO(%)はそれぞれ 17.3±0.9, 3.82±0.2 であった。

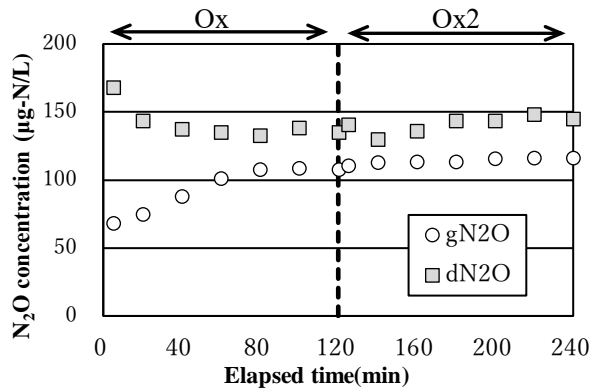


Figure2. N₂O concentration of OxOx

次に、無酸素系(Ax)の代表的なデータとして、通常サイクル後に窒素ガスを反応槽に投入し、無酸素状態を 180 分間経験させた後好気状態に回復させた N₂O データを Figure3 に示す。Ax-90 系と同様、無酸素条件下において、アンモニア酸化があまり見られないのに対し、N₂O 生成が見られた。無酸素系の dN₂O は、緩やかに上昇し、240 分付近でピークを迎えた。亜硝酸濃度平均 (mg-NL⁻¹)と DO(%)はそれぞれ Ox : 17.5±1.3, 3.12±0.1, Ox2 : 20.0±0.7, 0.99±0.2 であった。DO に差異がみられるため、DO が N₂O 生成に影響与えている可能性があると考えられる。

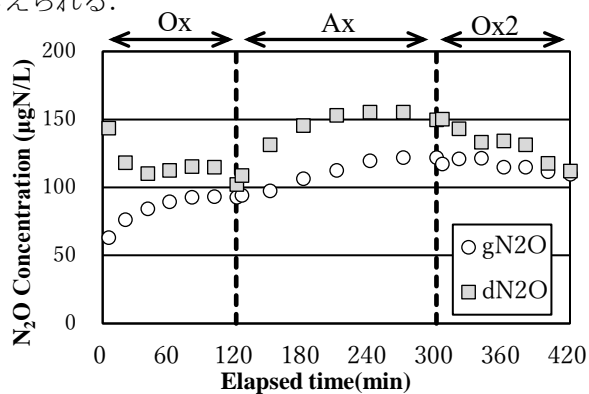


Figure3. N₂O concentration of Ax-180

酸素制限及び無酸素条件下において AOB は、NO₂⁻や NH₄⁺, H₂ などから電子を受け取り、N₂O を生成することが知られている^{[1][2]}。本研究では、無酸素条件下においてアンモニア酸化はあまり確認されなかった。そのため、無酸素条件下において N₂O 生成が生じた事は、

不思議な事象であるように思えた。本研究では、N₂O 転換率をアンモニア酸化速度に対する N₂O 生成速度から算出しているため、無酸素サイクルにおいて、過大に評価してしまっている可能性がある。そのため、無酸素条件下における N₂O 転換率モデルを見直す必要がある可能性が示唆された。

3-2. アンモニア酸化速度及び N₂O 転換率について

各実験系のアンモニア酸化速度と N₂O 生成速度、N₂O 転換率を各実験系の通常サイクルを基準とした比率を Table2 に示す。通常サイクルと比べ、無酸素サイクル後の好気回復サイクルは、アンモニア酸化速度が低く N₂O 転換率は高い値を示した。各実験系の連続及び好気回復サイクルにおいて転換率上昇の割合は、OxOx 系, Ax-180 系, Ax-90 系の順に高い値を示した。

Table1. Relative values of each biological index to those in Ox process for each operation

Operation	Process	Relative values of NH ₄ ⁺ oxidation rate	Relative values of N ₂ O Production rate	Relative values of N ₂ O conversion ratio
OxOx	Ox	1	1	1
	Ox2	0.93	1.28	2.69
Ax-90	Ox	1	1	1
	Ax	0.39	1.78	8.98
	Ox2	0.77	0.64	1.61
Ax-180	Ox	1	1	1
	Ax	0.11	1.93	35.63
	Ox2	0.80	0.69	1.67

4. 総括

本研究では、通常のサイクル後に窒素ガスを吹き込み、無酸素条件下や無酸素状態を経験させ好気に回復した際の亜酸化窒素生成挙動を評価することで、AOB の N₂O 生成メカニズムの解明と最適な運転手法の提案に繋がる基礎的知見の収集を試みた。

無酸素状態を経験することで、次サイクルにて転換率が上昇する結果が得られた。無酸素時間を長く取った好気回復サイクルの方が N₂O 転換率の上昇割合がより上昇していたが、両者よりも連続系の方が N₂O 転換率の上昇が確認された。このことから、前サイクルでの無酸素状態の経験が次サイクルの AOB による N₂O 生成と代謝に影響がある可能性が示唆された。今後も実験条件や測定項目を検討し詳細に研究を行い N₂O 生成メカニズムの解明と最適運転手法の提案を目指す。

5. 参考文献

[1] Yu *et al.*, Environ. Sci. Technol. 44,1313-1319,2010
 [2] Bock *et al.*, Arch. Microbiol.163,16-20,1995