

冬期と夏期における稲わら混合水田土壌を用いた下水処理水中の窒素除去実験

NITROGEN REMOVAL EXPERIMENTS FROM TREATED SEWAGE WATER USING PADDY SOIL MIXED RICE STRAW IN WINTER AND SUMMER

土方栄示¹・広城吉成²・神野健二³

Eiji HIJIKATA, Yoshinari HIROSHIRO and Kenji JINNO

¹学生会員 九州大学大学院工学府 都市環境システム工学専攻 (〒819-0395福岡市西区元岡744)

²正会員 工博 九州大学准教授 工学研究院環境都市部門 (〒819-0395 福岡市西区元岡744)

³正会員 工博 九州大学教授 工学研究院環境都市部門 (〒819-0395 福岡市西区元岡744)

To develop an effective re-use method of treated sewage water for agricultural water, nitrogen removal column experiment was carried out in winter and summer. Two columns were prepared. First column was nitrification column, which was packed with gravel. Treated sewage water was aerated for 4~6 hours. Second column was denitrification column, which was packed with paddy soil mixed rice straw. Rice straw was used as a source of organic matter. At first treated sewage water was poured into nitrification column and effluent water from nitrification column was injected into denitrification column. The experimental results showed that nitrogen removal was significant in the summer. However it was difficult to obtain sufficient amount of water due to the biological clogging. On the other hand, nitrogen removal was not significant during the winter. During the winter permeability decrease was lower than summer. This study indicated that rice straw was useful carbon source to remove nitrogen inexpensively and sustainably.

Key Words : *nitrogen removal, paddy soil, rice straw, treated sewage water, biological clogging*

1. はじめに

現在、渇水など緊急時における農業用代替水源や地下水涵養のために下水2次処理水（以下、下水処理水）の再利用が注目されている。しかし、日本では下水処理水の再利用は現在約1.4%しか行われておらず¹⁾、ほとんどの下水処理水は河川や海洋などに放流されているのが現状である。下水処理水を再利用するためには、使用目的に応じた水質に改善する必要がある。特に下水処理水を農業用水として再利用する場合、下水処理水中に存在する窒素成分が農作物の生育に悪影響を及ぼすため事前に除去する必要がある²⁾。一般的に湛水した水田土壌は表面の数ミリが酸化的環境となり、硝化菌によりアンモニア態窒素($\text{NH}_4\text{-N}$)が硝酸態窒素($\text{NO}_3\text{-N}$)に酸化される。水田土壌表面の数mm以深では還元的环境となり、脱窒やマンガン、鉄水和酸化物の還元が生じる³⁾。微生物による酸化還元反応により、下水処理水中の窒素成分を窒素ガスとして脱窒させることで、下水処理水中から窒素を

除去できる。一方、水量に着目すると、水田土壌は一般的に透水性が小さく、多量の下水処理水を地下涵養させるのは困難である。

古賀⁴⁾は、炭素源として透水性の高いおが屑を水田土壌に混合し下水処理水を湛水させることにより、水田土壌の透水性を改善し、かつ下水処理水中の窒素を除去できることを示唆した。川西ら^{5) 6)}は、土壌と稲わらを充填したカラムに硝酸態窒素を含む溶液を供給する窒素除去実験を行った。この実験により、稲わらを投入した土壌では脱窒が主な除去のメカニズムとなり、稲わら投入部を嫌気条件に保つことで土壌浸透水から窒素除去をするための脱窒の有機源として稲わらを利用できることを示した。硝化菌や脱窒菌の活性は温度に依存する^{7) 8)}。そのため、夏期と冬期で稲わら混合水田土壌の窒素除去能が大きく変化すると考えられる。また、微生物の増殖や代謝生成物の集積などにより、バイオクロッキングが発生し、土壌の透水性が低下する^{9) 10)}。Osamaら¹¹⁾は、おが屑混合水田土壌への下水処理水浸透実験を行い、おが屑混合土壌中の物質輸送およびバイオクロッキングの

モデルを構築した。土壌の透水性は水量の確保に大きく影響するため、バイオクロッキングの進行を評価することは重要である。

現在、窒素除去法として多くの手法が提案されているが、運用コストや管理の困難さなどの課題がある^{12), 13)}。そのため簡易かつ低コストに下水処理水から窒素を除去することが課題となっている。

本報では、安価で手に入りやすく、C/N比が高い稲わらを脱窒のための有機源に適していると考え、透水性の改善のため稲わらを水田土壌に混合させた。著者らは下水処理水の再利用を安価で簡便に行うために、稲わらと水田土壌を用いて、気温が大きく異なる冬期と夏期において稲わら混合土壌浸透実験を行い、気温変化による窒素濃度や浸透量の経時変化を比較し、稲わら混合土壌の窒素除去能力を水質、水量の点から検討し、渇水時における下水処理水の農業用水としての再利用の可能性について評価した。

2. 実験概要

図-1に実験装置概略を示す。本実験は福岡県前原下水管理センターにて、冬期（2008年12月3日～2009年1月23日）と夏期（2009年7月7日～8月10日）の二回に分けて屋外で行った。下水処理水は前原下水管理センターの最終放流水を用いた。下水処理水中の窒素成分を除去するために以下のような装置を作成した。硝化カラムは、アンモニア態窒素を硝化させ、硝酸態窒素に酸化させる。次に、脱窒カラムは、硝酸態窒素を含んだ下水処理水を稲わら混合水田土壌に浸透させ、脱窒作用を利用して、

硝酸態窒素を窒素ガスに還元する。水田土壌は九州大学伊都キャンパス内の休耕田から採取した。硝化カラム、脱窒カラムともに雨水や日光を防ぐため、カラム上部をアルミホイルで覆った。

（1）硝化カラム

まずカラムの大きさに対し十分曝気できるエアープンプ（田口電機、ジャンボ）の送気口を硝化カラム底面に設置し、硝化カラムに空気を送り込めるようにした（図-1中のA）。さらに生物膜を固定するための担体（砂利、粒径約5mm～10mm）を15cm厚に詰めた。下水処理水を硝化カラムへ流入させ、エアープンプにより空気を供給し、曝気によるエアレーションを行った。硝化カラム内での滞留時間が4～6時間になるようにコックで流量を調節した。硝化カラムを1ヶ月程度連続運転し、生物膜を成長させ硝化が十分生じる状態にした後、硝化カラムから流出した処理水を脱窒カラム上部に導入した。

（2）脱窒カラム

風乾させた水田土壌と2～3cm程度に裁断した稲わらを水田土壌：稲わら＝7：3（体積比）で混合した（以下、混合土壌）。水田土壌と稲わらは棒で突きながらメスシリンダーに詰めて、密な状態で量った体積を基準にした。図-1のように脱窒カラムに混合土壌を充填した。このとき、混合土壌内を飽和状態にするため、脱窒カラム下部から少しずつ混合土壌を詰めつつ、同時に下部から下水処理水を流入させた。混合土壌内の水の流れが一樣になるように、カラム下部に帯水部を設けた。混合土壌を詰めた後、脱窒カラム上部から硝化カラムから流出した処理水を流入させ、混合土壌へ浸透させた。冬期は水頭差

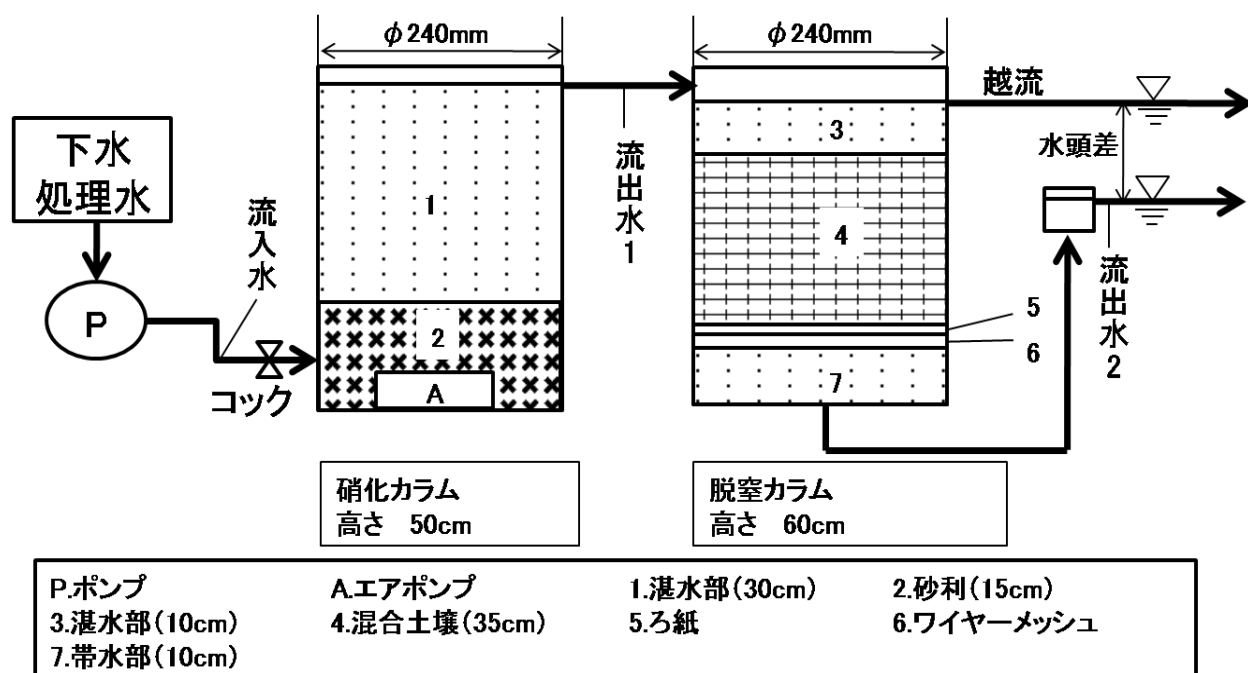


図-1 実験装置概要

を10cmで固定し、夏期では実験開始時は水頭差を10cm、10日目から24日目までは20cm、25日目以降は35cmとした。

(3) 測定および分析項目

硝化カラムに流入させる下水処理水（以下、流入水）、硝化カラムから流出した処理水（以下、流出水1）、脱窒カラムから流出した処理水（以下、流出水2）の溶存酸素濃度（DO）、電気伝導度（EC）、pH、標準酸化還元電位（標準ORP）、水温をそれぞれ測定した。DOの測定はDO計（Lutron, DO-5509）を、ECの測定は電気伝導度計（HORIBA, ES-14）を、pHの測定はpH計（HORIBA, B-212）を、標準ORPおよび水温はORP計（HORIBA, ES-14）を用いて測定した。気温は気象庁のホームページより前原市の日別平均気温のデータを用いた。混合土壌の透水係数は流出水2の流量を測定し、ダルシーの式（ $Q=khA/L$ 、 Q ：流量、 k ：透水係数、 h ：水頭差、 A ：カラムの断面積、 L ：土壌厚）を用いて計算した。

流入水、流出水1、流出水2において、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度を分析した。分光光度計（HACH, DR/2400）を用いて、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度をSalicylate Methodにより、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度をChromotropic Acid Methodにより分析した。これらの分析では、前処理として試料を $0.45\mu\text{m}$ のフィルターを用いてろ過を行い、溶存態のみを分析した。

3. 結果および考察

(1) 混合土壌の透水係数の変化

冬期と夏期の気温と混合土壌の透水係数の経時変化を図-2に示す。冬期では実験開始直後に透水係数が減少したが、その後増減を繰り返し、10日目以降からはほぼ一定（約 $4 \times 10^{-3} \text{cm/sec}$ ）となった。夏期では実験開始から減少を続けた。透水性を高めるために25日目で水頭差をさらに15cm大きくさせ、透水係数は一時的に増加したが、27日目以降からは再び透水係数が減少した。冬期では透水係数の最小値が実験開始時の約10分の1倍であるのに対し、夏期では最小値が実験開始時の約100分の1倍であり、夏期と冬期で透水係数の減少率に大きな差があった。また、夏期では5日目以降、脱窒カラムの混合土壌表面から気泡が出ているのを確認した。これは、微生物による還元反応で発生した炭酸ガスや窒素ガスと考えられる。この気泡が間隙に滞留することや、バイオフィロミングの進行が、透水係数を減少させた原因と考えられる。稲わら混合土壌浸透による窒素除去（脱窒）を行う場合、夏期では透水性が大きく低下するため、浸透水量を確保するためには混合土壌厚や水頭差を適切に設定する必要があることが分かった。また、本実験における透水係数は断面平均流速をもとに計算したが、夏期

に発生した気泡は実流速に影響を与えていることが懸念される。実流速は土壌中の滞留時間に係わる要素であり、クロッキングや気泡発生による断面平均流速と実流速の変化の違いを知る必要があることが示唆された。

(2) pH、ORPの変化

冬期と夏期の流入水、流出水1、流出水2のORPの経時変化を図-3に示す。冬期と夏期ともに流入水と流出水1のORPの差はあまり見られなかった。冬期の流出水1と流出水2のORPは、14日目まではほとんど差が見られなかったが、15日目以降は流出水2が流出水1よりも小さくなった。夏期では実験開始直後から流出水2のORPが流出水1に比べ大きく減少した。脱窒が生じるORPの目安は $+100\text{mV} \sim +400\text{mV}$ とされている⁵⁾。冬期では実験開始時は流出水のORPが $+400\text{mV}$ より高くなった。12日目以降からは $+400\text{mV}$ より低くなったが、夏期ほど大きな減少はみられなかった。夏期では流出水2のORPが実験開始直後からほぼ $+100 \sim +200\text{mV}$ の間で安定した。

冬期と夏期のpHの経時変化を図-4に示す。冬期では流入水、流出水1、流出水2においてほとんど差が見られなかった。夏期では流入水と流出水1はほぼ同程度のpHであったが、流出水2はpH6弱と弱酸性を示し、流入水、

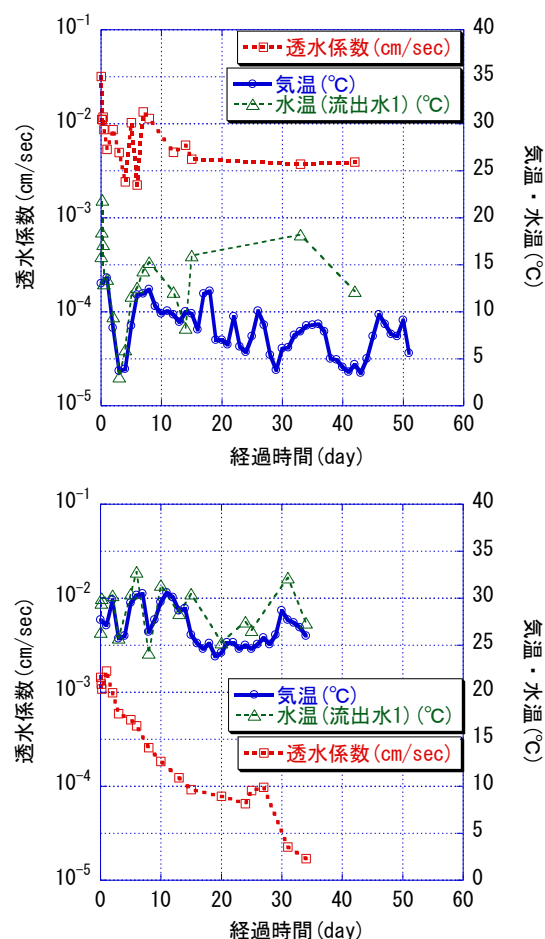


図-2 透水係数と気温・水温の経時変化
(上図：冬期、下図：夏期)

流出水1より小さくなった。夏期の流出水2のpHが流入水、流出水1より小さくなったのは、微生物の代謝により発生した炭酸ガスが、混合土壌を浸透する間に処理水に溶け込んだためと考えられる。冬期では流出水1と流出水2のpHがほとんど変わらず、ORPも夏期に比べ変化が小さいことから、冬期では微生物活動が活発でなかったと考えられる。

(3) 窒素濃度の変化

冬期と夏期の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度と $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の和の経時変化を図-5に示す。

$\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は冬期と夏期両方で流入水に比べ流出水1が低くなり、硝化カラムでの硝化が確認された。一方、湛水させた稲わら混合土壌では硝化はほとんど起こっていなかった。冬期の実験開始40日目以後数日間において降雪があるほどの低気温状況下が続いた。その後の51日目では流入水と流出水1の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度がほとんど変化しなかった。これは、微生物活動に支障が生じ、硝化菌が活動しなくなったためと考えられる。夏期では実験開始から6日目までは、流出水1に比べ流出水2の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が高くなった。混合土壌浸透におけるアンモニア態窒素濃度増加の理由は有機物の分解によるアンモニア態窒素の生成などが考えられるが、本実験結果からではそのメ

カニズムは把握できなかった。

$\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は冬期では実験開始直後は流出水2が流出水1より小さくなったが、3日目から8日目までは流出水1と流出水2で大きな差が見られなかった。3日目から8日目までの間はORPも高くなっていることや、3日目、4日目の気温が低かったことから、微生物の働きに支障が生じ、脱窒が進行しなくなったためと考えられる。とくに6日目では一時的に流出水2が流出水1より大きくなった。これは、低温状況下で脱窒が進行しなかったことや、土流入水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が低下することで、土壌を浸透した処理水と流入水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度に差ができたためと考えられる。夏期では実験開始直後から流出水2の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が減少し、3日目に降は 2.5mg/L を下回った。また20日目の脱窒割合は80%を下回ったが、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は概ね80%が除去された。一方、透水係数は減少し続けクロッキングは進行していると考えられる。夏期と冬期両方で流出水1に比べ流出水2の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が減少したが、夏期は冬期に比べ $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の減少量が大きくなった。この理由として、夏期は冬期に比べ気温が大きく微生物が増殖しやすかったことが考えられる。また冬期と夏期の20日目付近の流入水、流出水1、流出水2の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の増減量から、冬期は夏期に比べ硝化は十分進んでいるが脱窒が進まず窒素除去の効率が悪いことが分かった。夏期と冬期

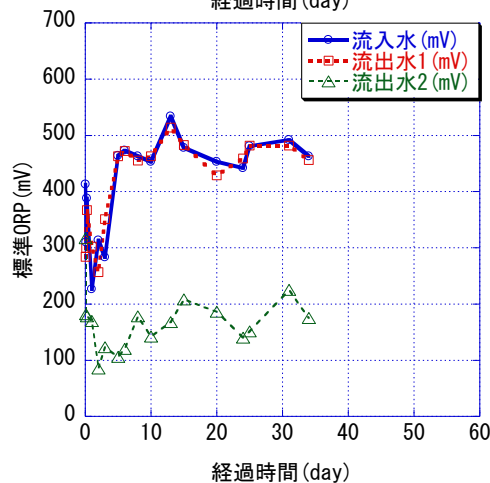
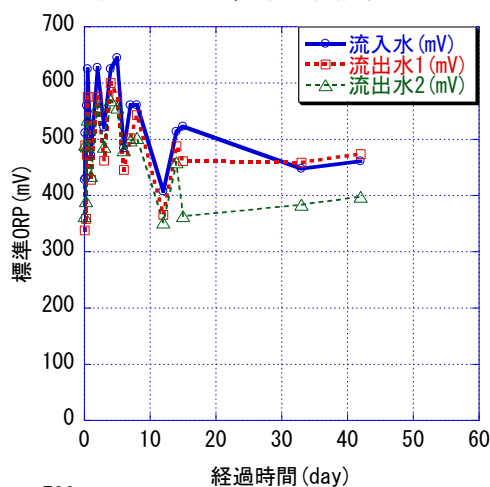


図-3 標準ORPの経時変化
(上図：冬期，下図：夏期)

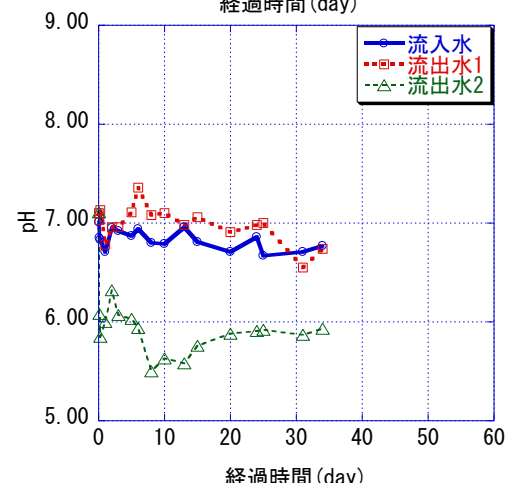
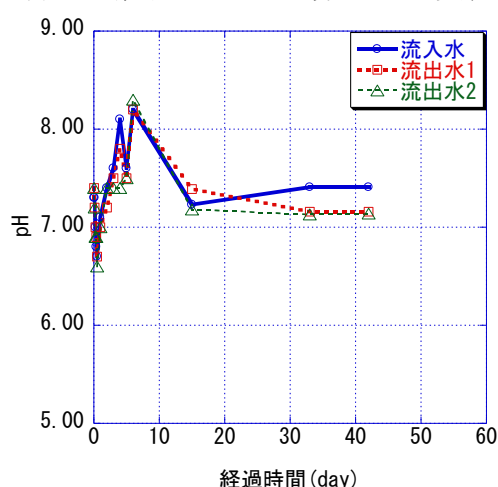


図-4 pHの経時変化
(上図：冬期，下図：夏期)

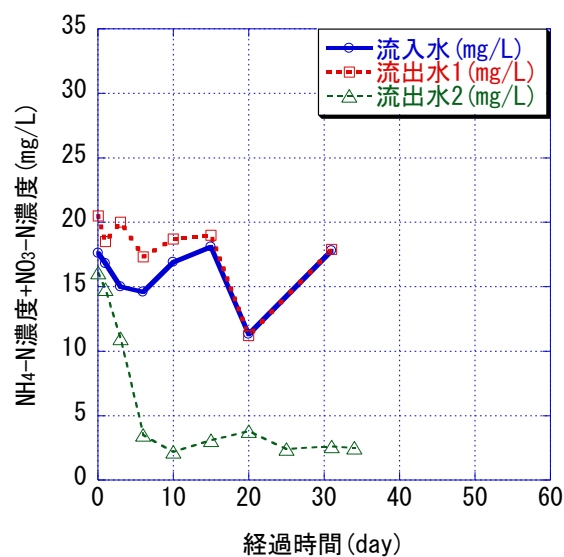
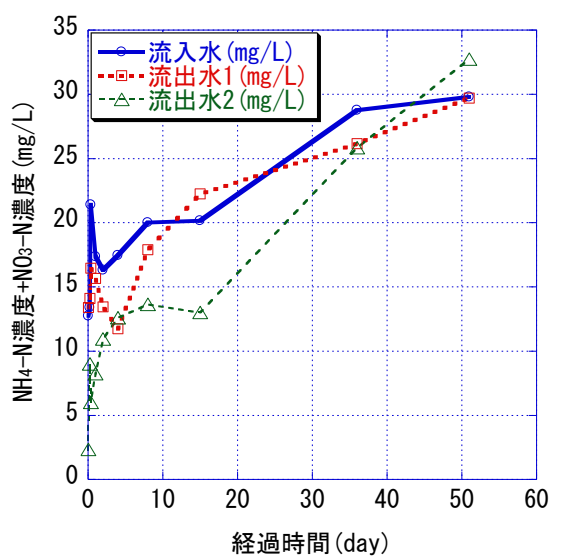
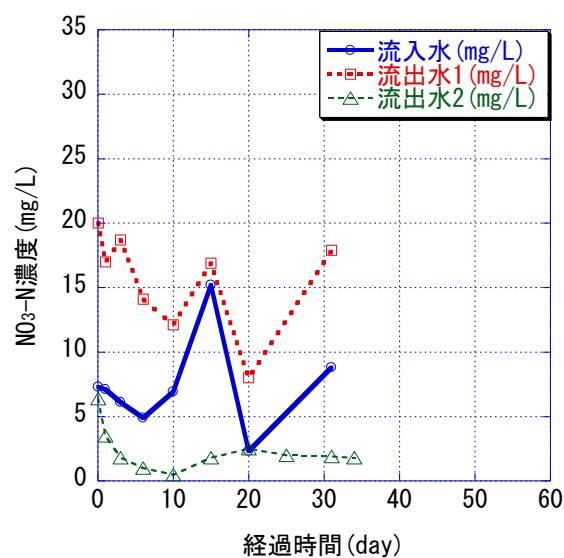
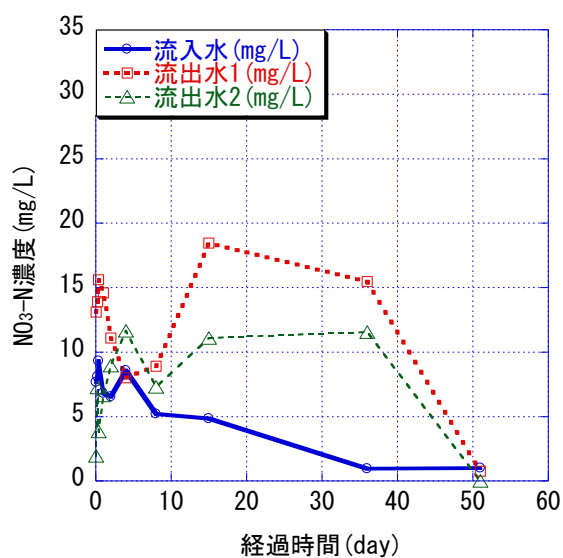
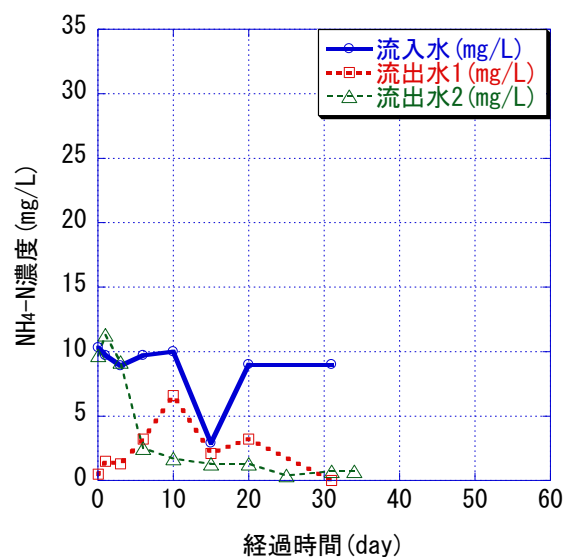
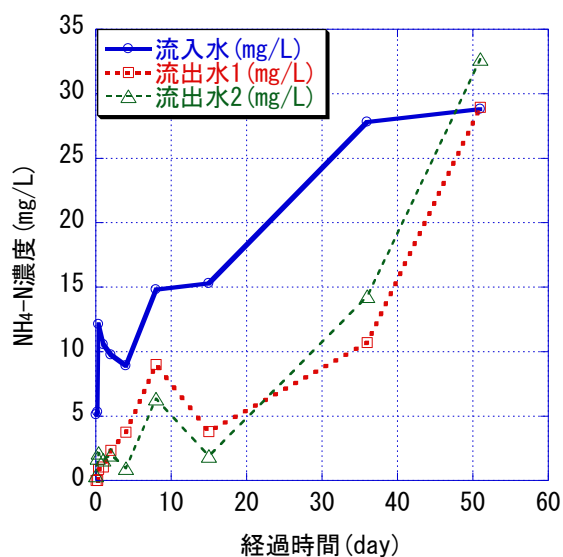


図-5 NH₄-N濃度、NO₃-N濃度、NH₄-N濃度+NO₃-N濃度の経時変化

(左図：冬期、右図：夏期)

* 定量下限値以下 (NH₄-N濃度<0.4mg/L, NO₃-N濃度<0.2 mg/L) の値は0 mg/Lとして図中にプロットした

で稲わらを実験開始時に土壌に混合するだけで、1カ月にわたる脱窒反応が確認され、稲わらが脱窒反応に対し持続性の高い炭素源であることが示された。土壌における微生物の酸化還元反応は土壌内の滞留時間に大きく影響を受ける。本実験では、透水係数の変化や気泡の発生が実流速および滞留時間の変化に影響を与え、脱窒量に影響している恐れがある。

$\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度と $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の和の変化では、冬期は実験開始時から36日目までは流出水2が流入水を下回り、窒素を除去できた。51日目では $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が0に近く、窒素の形態がほとんど $\text{NH}_4\text{-N}$ と考えられ、混合土壌浸透では窒素除去ができなかった。夏期は $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度と $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の和が実験開始から流出水2が流入水を下回り、6日目以降からは5mg/L以下を維持し、約10mg/Lの窒素除去が可能となった。

4. まとめ

混合土壌を用いて下水処理水中の窒素除去を行う際、冬期では混合土壌が高い透水性を示したが、水温、気温の低下により微生物活動に支障をきたし、特に事前に硝化ができていない場合、窒素除去の効率が低下することが分かった。夏期では、混合土壌により窒素を十分除去することができたが、混合土壌(脱窒カラム)の透水係数の減少による浸透水量の低下が激しく、水頭差を変化させて対応しても期待すべき水量が得られなかった。稲わら混合水田土壌では一般の水田土壌に比べて高い透水性を得られたが、微生物活動が激しくなるとクロッキングにより透水性の低下が著しくなることが示された。しかし、1ヶ月以上の脱窒が確認され、稲わらが安価かつ持続性の高い有機源として利用できることが明らかになった。

地球温暖化が原因とされる異常気象のなかで短期の非常に強い豪雨や長期にわたる渇水に対応するために、水源の多様化および安定的な確保が課題となっている。本報はその解決の第一歩ではあるが、農業用水源としての下水処理水の再利用を検討したものである。稲わら混合土壌浸透による下水処理水の再利用は、まだ改善すべき点はあるが、十分可能性があることが示された。個別の課題は以下に述べる。

土壌浸透による処理では透水性が低いと、流量や混合土壌内の滞留時間を調整することが困難になる。混合土壌内の滞留時間が小さすぎると脱窒量が減少する恐れがあり、逆に大きすぎると土壌に含まれる鉄やマンガンが過剰に溶出し、水質を悪化させる可能性がある。適切な滞留時間を維持するためには、クロッキングの進行を制御し透水性の過剰な低下を抑制する必要がある。クロッキングを制御するためには、まず懸濁物質や微生物の増殖、微生物の代謝で発生するガスなどクロッキングがど

のように進行し、透水性の変化に影響を与えるかを把握しなければならない。今後は、稲わら混合水田土壌においてクロッキングによる透水性の低下のメカニズムを明確にする実験を行い、透水性を確保するための改善策を検討したい。

謝辞：本研究にあたり実験場所、下水処理水を提供してくださった前原下水管理センターの皆様、稲わらの提供および実験協力をしてくださった九州大学工学部4年生野崎佑一郎君（現、鹿児島県庁）に厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 国土交通省：下水処理水の再利用の在り方を考える懇談会、資料3、<http://www.mlit.go.jp/common/000037487.pdf>, 2008
- 2) 農林省公害研究会：農業（水稻）用水基準および水産環境水質基準について、昭和44年度公害研究会報告、pp.22-25, 1970
- 3) 久馬一剛：最新土壌学、朝倉出版、pp.157-177, 1997.
- 4) 古賀亮太：有機土壌および大鋸屑・竹チップを混合させた土壌による下水処理水の脱窒効果についての検討、九州産業大学大学院工学研究科修士論文、2007.
- 5) 川西琢也、姜 志恒、稲垣道弘、清水宣明、林 良茂：稲わらを利用した土壌浸透水からの窒素除去、水環境学会誌、Vol.18(12), pp.993-1000, 1995.
- 6) 川西琢也、姜 志恒、稲垣道弘、清水宣明、林 良茂：稲わら投入方法が土壌浸透水からの窒素除去に及ぼす影響、水環境学会誌、Vol.20(5), pp.347-351, 1997.
- 7) 稲森悠平、富永和樹、木持 謙、水落元之、戎野棟一、持村正利：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窒素負荷の影響、水環境学会誌、Vol.24(2), pp.97-102, 2001.
- 8) 市岡孝雄、佐来栄治、加藤 進、澤 智代、木村俊夫、菅原 庸：微生物の機能を利用した水質浄化（第3報）、三重県環境科学センター研究報告、Vol.19, 1999.
- 9) 宮崎毅：環境地水学、pp.96-108, 2000.
- 10) 細尾 誠、畠 俊郎、桑野玲子：地盤の透水性と微生物の関係に関する実験的検討、土木学会第64回年次学術講演会、VII-203, 2009.
- 11) Osama Eljamal, 神野健二、細川土佐男：Development of biological treatment model with biological clogging processes in porous media, 地下水学会誌、vol.50(4), pp.275-290, 2008.
- 12) 今城 麗、徳富孝明、古川憲治：Anammoxプロセスに適したリアクターの検討、水環境学会誌、Vol.28, pp.185-190, 2005.
- 13) 畑中千秋、水野康平、幡手泰雄：中空糸型バイオリアクターによる都市下水の高度処理、環境資源工学、Vol.52, pp.167-171, 2005.