

VII-244

廃棄物のpH,硝酸及び有機成分が脱窒からの亜酸化窒素生成に及ぼす影響

東京大学工学系都市工学専攻 学生会員 黄 善 振

東京大学先端科学技術研究センター 正会員 花木 啓祐

1. はじめに

廃棄物埋立地において窒素成分の変化が起きる際に、温室効果ガスである亜酸化窒素(N_2O)が生成する可能性がある。しかし、そのような現象を把握するための研究は十分にされていない。

そこで、本研究では廃棄物埋立地内部で起こる脱窒及びそれによって生成される N_2O を、ごみの有機成分と硝酸及びpHと関連させ、その傾向及び発生特性を調べたのでその結果を報告する。

2. 実験材料と方法

本実験では北海道長沼町堆肥生産センターからの2次発酵済みコンポスト(CP)とドッグフード(DF)及び水溶性でんぷん(ST)を一定の比率で混ぜた人工ごみを実験材料として用いた。コンポストの原材料の成分は生ごみと野菜残渣が約37%、もみがらと汚泥が約63%であった。ドッグフードは市販品であり、その化学組成は、蛋白質48%、灰分14%、脂肪14%、繊維質5%、水分18%、他にミネラルが微量含まれている。C/N比はCPとDFでそれぞれ16.2と10.9であった。

表.1に試料の種類と条件を示した。四種類の試料に対して15個ずつの68mlバイアルを用意し、含水率50%に合わせた試料を2g(wet)入れる。脱窒反応が起こるように、試料を入れたすべてのバイアルの内部をアルゴンガスで完全に置換した後、ゴム栓とアルミニウムキャップで密栓してから25°Cの恒温室で反応させた。約1日間隔でガス成分と抽出液中のアンモニア態及び硝酸態窒素、pHなどの分析を行った。

3. 実験結果及び考察

図. 1- 4は12日間の窒素化合物の濃度変化を示している。Substrate-1では、硝酸はあまり変化せず、12日目まで $4.4 \mu\text{g-N/g}$ (DryBase)の N_2O 生成を示した。それ以外のSubstrate-2,3,4の N_2O 濃度は4日目から急増し、6日目にはそれぞれ107、146、933 $\mu\text{g-N/gDB}$ の最高値を示したが、すぐに減少しはじめ9日目以降 N_2O はほとんど消失した。すべての試料で亜硝酸は低濃度の範囲でやや増加してから減少する傾向を示した。なお、最初それぞれ1600,1300,1970 $\mu\text{g-N/gDB}$ であったSubstrate-2,3,4の硝酸濃度は、最大 N_2O 生成期の前後から急激に減少し、Substrate-2は10日目まで340 $\mu\text{g-N/gDB}$ になった。一方、Substrate-3とSubstrate-4の硝酸は各々10日目、8日目でなくなった。Substrate-4ではアンモニアはほとんど変化がなかったが、その他では6日目前後から増加する傾向を示した。

図.5-6は、 CO_2 とpHの変化を示している。Substrate-2, 3, 4の CO_2 発生量は5-6日目から増加し、12日目で各々1923, 2849, 2758 $\mu\text{g-C/gDB}$ であった。Substrate-1の CO_2 変化は12日目までほとんどなかった。

[表.1] 試料の成分と条件

Substrate	C/N ratio	Compounds (as DB) CP : DF : ST
Substrate-1	12.6 (C: 40.04 %, N: 3.18 %)	2 : 1 : 0 (0.67 g : 0.33 g : 0.00 g)
Substrate-2	17.7 (C: 39.91 %, N: 2.26 %)	4 : 1 : 2 (0.57 g : 0.14 g : 0.29 g)
Substrate-3	21.2 (C: 40.34 %, N: 1.90 %)	4 : 1 : 4 (0.44 g : 0.12 g : 0.44 g)
Substrate-4	22.3 (C: 38.91 %, N: 1.74 %)	2 : 0 : 1 (0.67 g : 0.00 g : 0.33 g)

[表.2] 試料の全炭素、全窒素及びC/N比

	Substrate-1	Substrate-2	Substrate-3	Substrate-4
Carbon at [mg-C/g DB]	[mg-C/g DB]	[mg-C/g DB]	[mg-C/g DB]	[mg-C/g DB]
0 day	400.41	399.12	403.44	389.11
4 day	400.40	394.39	397.49	385.52
6 day	400.09	392.93	396.03	383.64
10 day	401.28	392.25	396.23	381.20
Nitrogen at [mg-N/g DB]	[mg-N/g DB]	[mg-N/g DB]	[mg-N/g DB]	[mg-N/g DB]
0 day	31.80	22.59	18.99	17.42
4 day	31.20	21.64	17.00	15.42
6 day	31.08	21.11	16.26	14.60
10 day	30.43	18.81	14.70	13.35
C/N ratio at [-]	[-]	[-]	[-]	[-]
0 day	12.6	17.7	21.2	22.3
4 day	12.9	18.2	23.4	24.7
6 day	12.9	18.6	24.4	26.1
10 day	13.2	20.9	27.0	28.5

キーワード : 亜酸化窒素、脱窒、pH、C/N比、硝酸

〒113 東京都文京区本郷7-3-1

TEL: 03-3812-2111 (Ext) 6242

FAX: 03-3602-1377

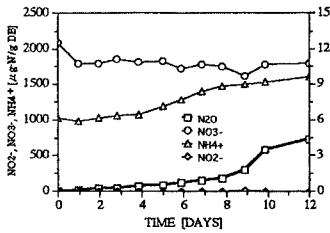


Fig.1 Cumulative N2O and Nitrogen compounds concentrations of Substrate-1 (C/N=12.6)

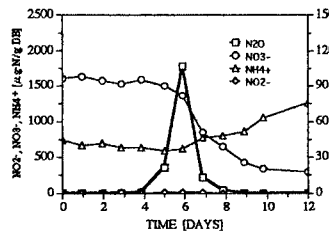


Fig.2 Cumulative N2O and Nitrogen compounds concentrations of Substrate-2 (C/N=17.7)

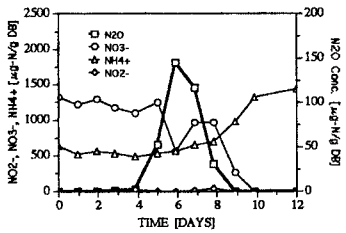


Fig.3 Cumulative N2O and Nitrogen compounds concentrations of Substrate-3 (C/N=21.2)

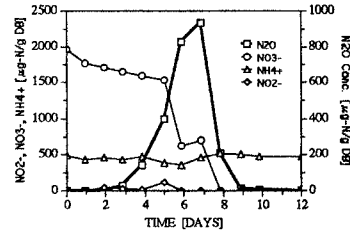


Fig.4 Cumulative N2O and Nitrogen compounds concentrations of Substrate-4 (C/N=22.3)

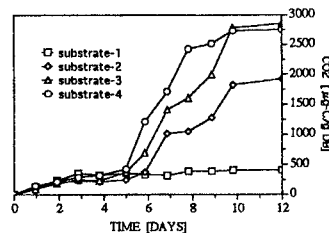


Fig.5 CO2 variations of Substrate 1 - 4

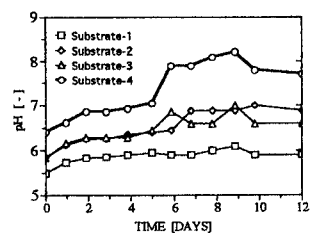


Fig.6 pH variations of Substrate 1 - 4

pHについては、Substrate-1, 2, 3 は弱酸性範囲での反応であったが、Substrate-4におけるpHは6.4から8.2まで上昇した。表.2は0, 4, 6, 10 日目の全炭素、全窒素 及びC/N比を示している。ほぼ変化がなかった Substrate-1を除くと、全炭素の量は約 700-800 $\mu\text{g-C/gDB/day}$ 、窒素は約400 $\mu\text{g-N/gDB/day}$ の速度で減少した。その結果Substrate-2, 3, 4 のC/N比は各々3.2、6.8、6.2 ずつ増加した。

Knowles et al.(1982)は脱窒速度をpHと関連させ、pHが適定範囲であるpH7-8より低くなると窒素酸化物還元酵素(特に N_2O 還元酵素)が阻害を受け脱窒速度が遅くなる($\text{N}_2\text{O}/\text{N}_2$ は増加)と報告している。本実験においてpHが適定範囲内であったSubstrate-4では、硝酸消費速度が示しているように脱窒が活発に起こっており、最もpHが低かったSubstrate-1では脱窒がほとんど起こっていないことが分かった。

本研究の結果は、低いpHで脱窒が影響を受けていることを示唆しているが、基質成分の差がかなり異なる点には注意が必要である。すなわち、コンポストとドッグフードのみのSubstrate-1では、そもそもこれらの炭素成分の分解が遅いということも脱窒速度が小さかった理由のひとつであろう。一方、Substrate-3の場合には分解が速いと考えられるでんぷんが多く含まれているため、脱窒速度が大きく、また亜酸化窒素の一時的な蓄積も顕著に見られたと考えられる。

実験を通じて炭素と窒素の変化の比較を行ったが、特に炭素成分の違いによる影響が大きく、指標として用いられるC/N比で N_2O の生成を評価あるいは予測することは困難であった。

本実験から脱窒による N_2O の生成は、特に廃棄物の場合、単純に全炭素と全窒素の量あるいは初期硝酸の量などで評価するのは難しいことが分かった。

4. まとめ

Substrate-1における脱窒は、硝酸濃度が最も高いにも関わらず、6以下という低いpHによって阻害された。Substrate-4からの高い N_2O 発生量は、十分な硝酸と炭素源及び最適pHによる早い脱窒速度に起因したと思われる。Substrate-2, 3の N_2O 発生及び硝酸消費量はほぼ同じであった。

本実験で用いた基質成分のように、実際に埋立られるごみ成分の種類及びその量は時期、場所によって異なり、それに起因するごみのpH変化、有機物の生分解性、硝酸体窒素などが埋立地からの N_2O 発生に影響を与えることが分かった。

5. 参考文献

- ・ Knowles, R : Denitrification , Microbiol. Rev. , Vol.46 , pp. 43-70 , 1982