土木学会第53回年次学術講演会（平成10年10月）

Ⅶ-44

廃棄物埋立地における亜酸化窒素（N_2O）の発生メカニズムに関する研究（1）

福岡大学工学部　学生員○谷口　正和　　正　員　立藤　綾子
正　員　松藤　康司　　フェロー　花嶋　正孝

1. はじめに

昨今，地球温暖化が深刻な社会問題となっており、各分野における温室効果ガスの発生量の把握とその抑制対策の確立が急務となっている。本研究は、温室効果ガスのうち埋立地における発生形態がほとんど解明されていないN_2Oの発生メカニズムを明らかにし、埋立地におけるN_2Oの削減方法を見い出すことを目的としている。本報では、埋立廃棄物が不燃物主体であることを考慮し、有機物の少ない環境におけるN_2Oの生成メカニズムについて、脱窒菌、硝化菌及び鉄酸化細菌による生物的反応と焼却灰中に含有される種々の金属による化学的反応の両面から検討を行った。

2．実験条件及び実験方法

実験装置は、直径300mm，高さ1300mmの塩化ビニル製円筒で，準好気性構造を有する小型模型槽3基を用いた（図1）。各槽に焼却灰を各々116kg充填した。また、3基のうち1基には降雨として蒸留水(ブランク槽）を、もう1基には脱窒反応を見るために300 mg N /Lの硝酸塩溶液（A槽）を、残りの1基には硝化反応を見るために300 mg N / Lアンモニウム塩溶液（B槽）を散布した。各槽から1週間又は2週間に1回採取した浸出水について、脱窒菌、鉄酸化細菌、アンモニア酸化細菌及び亜硝酸酸化細菌の計測をＭＰＮ法により行った。また、各種形態窒素濃度及び水量を計測すると同時に、亜酸化窒素ガス（N_2O）濃度を測定した。

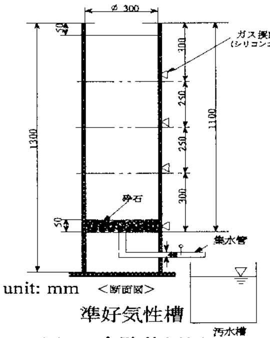

図1　実験装置図

3．実験結果及び考察

3-1　窒素の減少量と各種形態窒素の変化及びN_2Oの発生

まず、各槽における270日間の窒素収支を見てみると、硝酸塩散布槽（A槽）及びアンモニウム塩散布槽（B槽）共に、推定消失量は、散布量の約41%及び71%であった（表1）。次に、発生ガスのN_2O濃度を見てみると、A槽は充填初期から20ppm～150ppmと高濃度で検出されており、N_2Oの生成が確認された。一方、B槽は充填後165日目以降にN_2Oの発生が認められたものの、それ以前では全く検出されなかった。また、浸出水中の窒素成分の形態変化においても、A槽では充填直後から散布されたNO_3^--Nが埋立槽内でNO_3^--N → NO_2^--N → NH_4^+-Nへと変換されている（図3)。これに対して、B槽は散布したNH_4^+-Nが充填後172日目にNH_4^+-N → NH_2OH → NO_2^--N → NO_3^--Nへわずかに変化したが、それ以前では他の形態窒素への変換は起きなかった。これらの事から，A槽では消失した窒素量のほとんどがNO_3^--N → N_2O → N_2の還元反応によって脱窒しているものと予想される。B槽は165日目以降徐々にNH_4^+-N → NH_2OH → N_2Oの酸化反応によって脱窒しているが、散布したNH_4^+-Nのほとんどはそのままアンモニアガスとして消失したものと考えられる。

表1　各槽における窒素消失量

項目	ブランク槽	A槽	B槽
散布量（mg）	0	26416	26056
浸出水量(mg)	287.9	15700	7644
消失量（mg）	-287.9	10716	18412

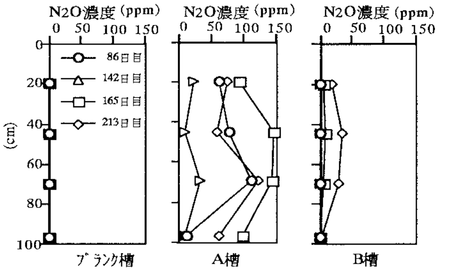

図2　埋立槽内のN2O濃度分布の経時変化

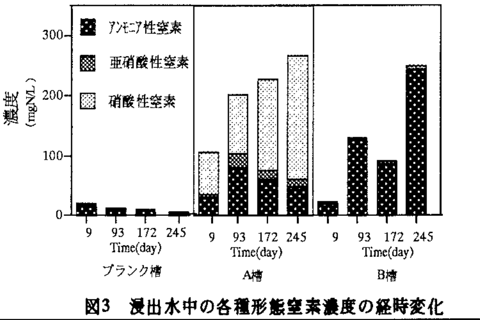

図3　浸出水中の各種形態窒素濃度の経時変化

3-2　生物的反応によるN_2Oの生成

A槽及びB槽で確認されたN_2O生成に微生物が関与しているかをN_2Oの生成に関与する各種細菌数の経時変化から検討し

<キーワード>　N_2Oの生成メカニズム、生物的反応、化学的反応、埋立地
<連絡先>　〒814-0180　福岡市城南区七隈8-19-1　福岡大学工学部土木工学科　谷口　正和
TEL（092）863-8238　FAX　(092）863-8243

た。硝酸塩散布槽（A槽）では、鉄酸化細菌、アンモニア酸化細菌、亜硝酸酸化細菌及び脱窒菌のいずれの細菌群も、実験期間中を通してほとんど検出されなかった(図4)。これらのことからA槽におけるN_2Oの生成は現在のところ生物的反応によるものではないと考えられる。一方、アンモニウム塩散布槽（B槽）ではN_2Oが検出され始めた充填後165日目以降、それまでほとんど検出されなかったアンモニア酸化細菌が増加傾向を示したことから、アンモニア酸化細菌によるN_2Oの生成が行われているものと予想される。以上のように、現段階では微生物のN_2O生成への関与は小さいと思われる。これは、廃棄物層内が焼却灰を充填したために、高アルカリ性環境（pH12前後）にあったことが原因と考えられる。

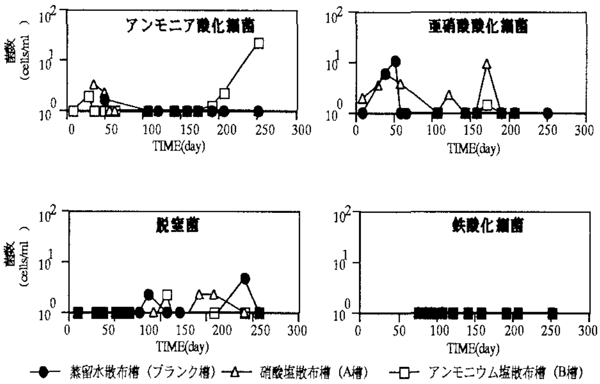

図4 各種細菌数の経時変化

3-3 化学的反応によるN_2Oの生成

小型模型槽のA槽で起きたN_2Oの生成が化学的反応によるものかを確認するために、バッチ振盪実験を行った。図5に示すように焼却灰50gと硝酸塩溶液（NO_3^--N200mg/L）200mLをフラスコに入れ、密栓をして、24時間振盪した後、N_2O及び各種形態窒素濃度の測定を行った。この時、生物反応を生じないように実験試料を滅菌したものについても同様に実験を行った。表2に実験結果を示す。まず、各種形態窒素濃度を見てみると、NO_3^-は30～40mgN/L減少しているのに対して、NO_2^-及びNH_4^+は振盪前に比べ各々8～19mgN/L、10～17mgN/L増加しており、小型模型槽同様に還元反応が確認された。N_2Oも37～108ppm検出された。また、いずれの項目においても滅菌の有無によって大きな差は認められなかった。以上のことから、A槽におけるN_2Oの発生は化学的反応によるものであると考えられる。

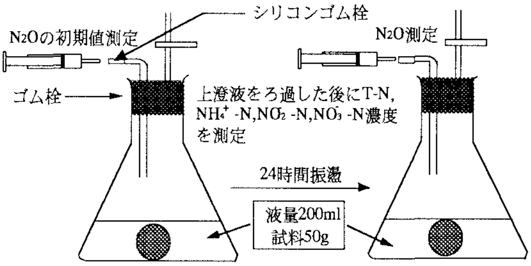

図5 バッチ振盪実験方法

表2 バッチ振盪実験結果

検体	T-N(mg/L) (前)	T-N(mg/L) (後)	NH_4^+ (mgN/L) (前)	NH_4^+ (mgN/L) (後)	NO_2^- (mgN/L) (前)	NO_2^- (mgN/L) (後)	NO_3^- (mgN/L) (前)	NO_3^- (mgN/L) (後)	N_2O(ppm) (前)	N_2O(ppm) (後)
無滅菌 1	195.7	176.9	0.06	14.1	0.01	16.3	187.7	167.5	0	108.0
無滅菌 2	195.7	178.8	0.06	12.1	0.01	18.5	187.7	156.1	0	44.2
無滅菌 3	195.7	178.5	0.06	15.0	0.01	17.1	187.7	158.4	0	41.9
平均	195.7	178.1	0.06	13.7	0.01	17.3	187.7	160.7	0	64.7
滅菌 1	195.7	185.8	0.06	13.3	0.01	8.37	187.7	150.4	0	37.3
滅菌 2	195.7	180.0	0.06	17.4	0.01	16.2	187.7	168.5	0	42.2
滅菌 3	195.7	177.4	0.06	10.3	0.01	13.8	187.7	142.3	0	63.3
平均	195.7	181.1	0.06	13.7	0.01	12.8	187.7	153.7	0	47.6

4. まとめ

本研究で得られた結果は以下の通りである。

(1) 硝酸塩散布槽（A槽）におけるN_2Oの生成は、焼却灰中に含有される金属類を触媒とした化学的還元反応によるものである。
(2) アンモニウム塩散布槽（B槽）におけるN_2Oの生成は、アンモニア酸化細菌による硝化過程で生じている。
(3) 焼却灰主体の埋立地におけるN_2Oの発生は、生物的酸化反応及び化学的還元反応の両反応によって起こる。

5. 今後の課題

本研究期間では、焼却灰の特性により微生物が生育し難い高pH環境にあったため、生物反応が起こりにくかったものと考えられる。今後は、pHを至適生育範囲内に調整し、生物的調査を行い、更に詳しくN_2Oの発生メカニズムを解明していく必要がある。

謝辞 本研究は、文部省科学研究「基盤研究（B）(2) NO.08455243」の一部である。

参考文献

1) Anaerobic, Nitorato-Dependent Microbial Oxidation of Ferrous Iron (R.J.Buresh and J.T.Moraghan)
2) Chemical Reduction of Nitrate and Nitrous Oxide by Ferrous Iron (R.J.Buresh and J.T.Moraghan)