

令和 6 年 6 月 7 日現在

機関番号：51401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H03637

研究課題名（和文）生成ポテンシャルの評価を基軸とした亜酸化窒素の突発的発生現象の機構解明

研究課題名（英文）Elucidation of the mechanism of sudden generation of nitrous oxide based on evaluation of production potential

研究代表者

増田 周平（Masuda, Shuhei）

秋田工業高等専門学校・その他部局等・准教授

研究者番号：70552157

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究ではN₂Oの生成機構解明を目的として、生成ポテンシャル評価手法に関する検討を行うとともに、実処理施設におけるN₂O発生抑制手法に関する検討を行った。その結果、実験的検討に基づき、N₂Oの生成ポテンシャルを定義する手法を開発した。さらに、N₂Oの生成ポテンシャルと実処理場におけるN₂O発生量の間に正の相関があることを明らかにした。また実処理場において、攪拌とDO制御によりN₂O発生量を削減することに成功した。さらに、連続データに対してトレンド解析を適用し、N₂Oトレンドには数週間単位の中期的変動が存在すること、さらにその変動が降水量や流入量変化に依存することを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

亜酸化窒素（N₂O）は、強力な温室効果ガスであり、水処理プロセスからの削減が求められている。特に、プロセス中に突如として濃度が急上昇する現象 - 突発的発生 - は、N₂Oの生成機構の解明と削減手法の開発のために重要な現象である。本研究では、N₂Oの生成機構を明らかにするとともに、実下水処理場においては降水量や流入量の変化に応じた曝気運転の順応的管理を行うことで、N₂Oの発生抑制が可能になることが明らかにした。特に、本研究では実処理場におけるN₂O発生量を運転方法の創意工夫により削減することに成功しており、その成果は他の処理場にも応用が可能であると考えられ、その社会的意義は大きいと考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we investigated methods for evaluating the N₂O generation potential and also investigated methods for suppressing N₂O generation in actual sewage treatment plant with the aim of elucidating the N₂O generation mechanism. The results revealed that the dominant factors for the sudden generation of N₂O were the distribution of dissolved oxygen in the reactor and the supply of organic matter from the inflow sewage. Furthermore, by applying trend analysis to continuous data, we showed that there are medium-term fluctuations in N₂O trends on a scale of several weeks, and that these fluctuations depend on changes in precipitation and inflow pattern. It was also revealed that there is a positive correlation between the N₂O production potential and the amount of N₂O generated in an actual sewage treatment plant.

研究分野：水環境工学

キーワード：温室効果ガス 下水処理 亜酸化窒素 活性試験 現地調査 カーボンニュートラル 季節調整法 時系列解析

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

地球温暖化問題を背景に、水処理プロセス由来の温室効果ガス (GHGs) 排出量の削減が強く求められている。水処理プロセス由来の GHGs の中でも、CO₂ の 265 倍もの温室効果を持つ亜酸化窒素 (N₂O) の発生量は、年間およそ 60 万 t-CO₂ に相当し、電力消費、污泥焼却に次いで 3 番目に高い割合を占める。しかも、電力消費や污泥焼却では、GHGs の削減方策が一定の効果を挙げているのに対し、水処理プロセスでは有効な削減方法は確立されておらず、その開発が急務とされている。こうした技術開発のためには、実処理場の N₂O の発生挙動の把握、および発生機構の解明に向けた基礎的研究が必要不可欠である。

一方で、実処理場における N₂O 発生は時間的変動が大きく、中でも短時間における N₂O 濃度の急激な上昇 (突発的発生) は、時として数時間で数十倍に至る。しかしその機構は未解明であり、最新の IPCC の GHGs 算定法でもその現象は考慮されておらず、排出量算定の重大なミッシングソースとなっている。したがって、N₂O の突発的発生の機構解明は、水処理プロセスにおける N₂O 排出量の精緻化と同時に、その排出量削減手法の開発につながることを期待される。

N₂O の発生機構に関連する既往研究では、環境条件との因果関係の解析や、現場の環境条件を模した微生物のラボスケール活性試験などが行われている。しかし、N₂O 生成と水質や硝化脱窒活性などとの関係性は明確ではなく、新たなアプローチが必要であると考えられる。一方で、申請者らは最新の取組みにおいて、実処理場の突発的発生は短期的な環境条件 (降水による負荷変動、基質・DO 濃度変動など) の影響を強く受ける可能性を見出し、突発的発生は特定の環境条件下で N₂O の生成ポテンシャルが最大限発揮されている状態を意味するものと推測した。しかしこれまでに、N₂O の生成ポテンシャルと実際の発生量の関係性に着目した研究はなされていない。そこで申請者らは、N₂O の生成ポテンシャルと実際の N₂O 生成量の乖離要因に着目した新たなアプローチをとることで、N₂O の突発的発生の機構を明らかにできると考えた。

2. 研究の目的

本研究の目的は N₂O 生成ポテンシャルの定義・評価を基軸として、水処理プロセス由来の N₂O の突発的発生機構を解明することである

3. 研究の方法

(1) N₂O 生成ポテンシャル評価手法の新規開発¹⁾

新たな評価手法を開発するにあたり、N₂O の測定手法に関する基礎的検討を行った。N₂O を測定する方法はガス態 (GN₂O) と溶存態 (DN₂O) の 2 つの異なる形態を測定する方法がある。そこで、活性汚泥を用いた室内試験において両者を同時に測定し、量的関係性を確認した。

また、N₂O の発生量は基質および DO 条件に依存することから、アンモニア性窒素のみを添加した系 (Run A) と、それに加え亜硝酸性窒素を添加した系 (Run B) を設定するとともに、各系において DO を 4 段階 (DO = 0, 0.5, 1.0, 1.5 mg/L) に設定し、N₂O への影響を評価した。さらに得られた結果を基に、N₂O 生成ポテンシャルと実処理場における N₂O 発生量を比較した。

(2) N₂O の突発的発生現象の再現と時系列解析^{2,3)}

無終端水路を有する実処理場をフィールドとして、様々な運転条件を試行し、N₂O の突発的発生現象の再現と抑制、および時系列解析に関する検討を行った。運転条件の設定にあたっては、攪拌機の強度と稼働時間の影響に注目し、N₂O 濃度の変動特性を評価した。DN₂O (N₂O Wastewater Controller, Unisense) およびアンモニア性窒素 (VARiON Plus 700IQ, WTW) の濃度を連続的にモニタリングするとともに、DO や水質もあわせて測定し、因果関係について解析した。

また、N₂O には日内スケールでの短期的変動に加え、季節変動のような長期的な変動が存在する。そのため、連続データを獲得したとしても、日内変動の大きさゆえに変動トレンドを補足することが困難である。そこで時系列データ解析の一つである季節調整法に着目し、DN₂O の連続データに適用することで中長期的トレンドを抽出した。

4. 研究成果

(1) N₂O 生成ポテンシャル評価手法の新規開発¹⁾

検討の結果、構築した実験系において、GN₂O と DN₂O の両者には高い正の相関が確認された (図 1)。一方で、センサーを用いた DN₂O の測定は採水や外部の振動の影響とみられるノイズが見られ、安定的なデータの取得には GN₂O の測定が適していると判断された。以上をふまえ、ガス態の測定を基本とした評価手法の開発に着手した。

また、各系列における実験結果を図 2 に示す。これより、Run B の発生量は Run A を大きく上回るとともに、DO が 1 mg/L の場合に N₂O の卓越した発生が見られた。また、両系間の発生ピークの形態は異なっており、その要因として、Run B における硝化菌脱窒の進行が推察された。以上をふまえ、Run B の条件を基本とした N₂O 生成ポテンシャルを定義した。

N₂Oの生成ポテンシャルと実処理場の発生量を比較した結果、両者には高い相関が認められ(図3)、N₂O生成ポテンシャルを測定することで実際の処理場におけるN₂O発生量を推定できる可能性が示された。

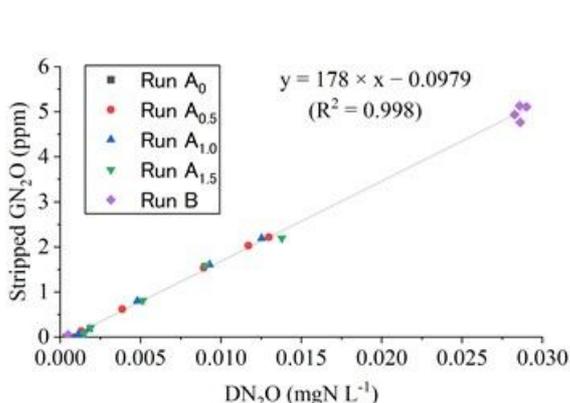


図1 DN₂OとGN₂Oの関係

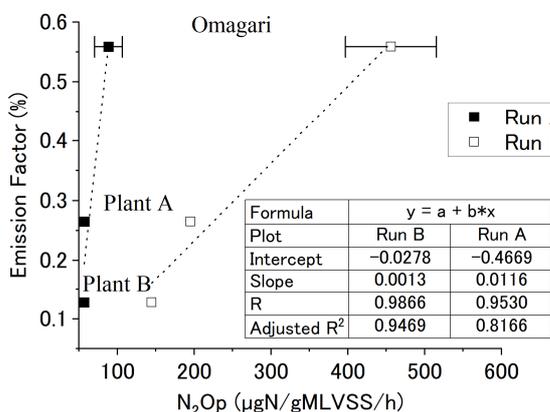


図3 N₂O生成ポテンシャルと実発生量の関係

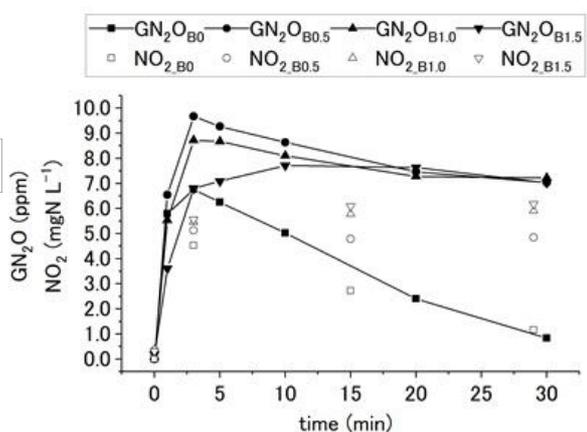
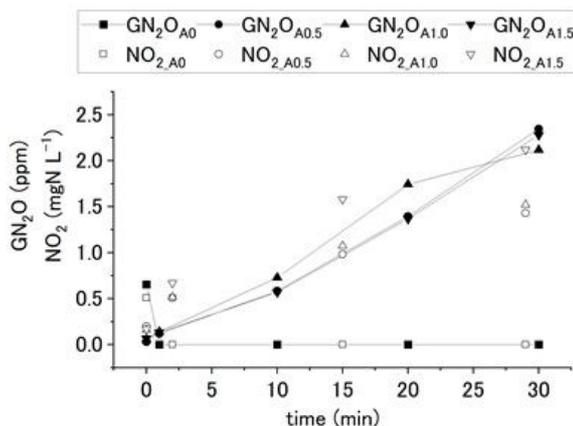


図2 異なる基質・DO条件におけるN₂O発生量

(2) N₂Oの突発的発生現象の再現と解析²⁾

図4に、無終端水路におけるDN₂OとDOの日周変動を示す。これより、DN₂O濃度は一日を通して一様ではなく、ある特定の時刻においてN₂Oの突発的発生が見られることが確認された。さらに突発的発生現象は、攪拌機の稼働条件を変えることで発生時間が異なることが明らかになった。その要因として、攪拌機の稼働によるDOの変動の影響が大きく、DOの増加は硝化反応の促進と脱窒の停滞により、N₂O濃度の上昇に寄与していると考えられた。

特に、無酸素エリアと適切なDO濃度の好気エリアを同時に達成する攪拌条件においては、窒素除去率は74%、N₂O排出係数は0.31%となり、N₂Oの抑制が可能であった。N₂Oの生成には外的要因として流入下水量の影響が大きく、流入下水に含まれる有機物をN₂O還元効率に活用することで、N₂Oの抑制が可能になることが示された。

(3) N₂O発生の時系列解析³⁾

1か月間の測定期間において取得したDN₂Oデータについて正規性を確認したところ、正規性は棄却された。そこで、季節調整法を用いて現系列データをトレンド成分、季節成分、および残余成分の3つの成分に分解した。なお、季節調整にあたってはノンパラメトリックな手法の一つであるSTL分解を適用した。

STL分解により得られた各成分の内訳を図5に、DN₂O濃度、水温、および流入量の各トレンドデータと降水量の結果を図6に示す。これより、DN₂O濃度は日内変動が排除されることで、中期の変動としてのトレンドを抽出することができた。また、流入量トレンドは降雨後に増加する傾向が見られ、特に多量の降雨が見られた際には流入量トレンドの増加も観測された。DN₂Oトレンドに影響を及ぼす要因として、降雨および曜日の違いによる流入量の変動が支配的であることが示唆された。

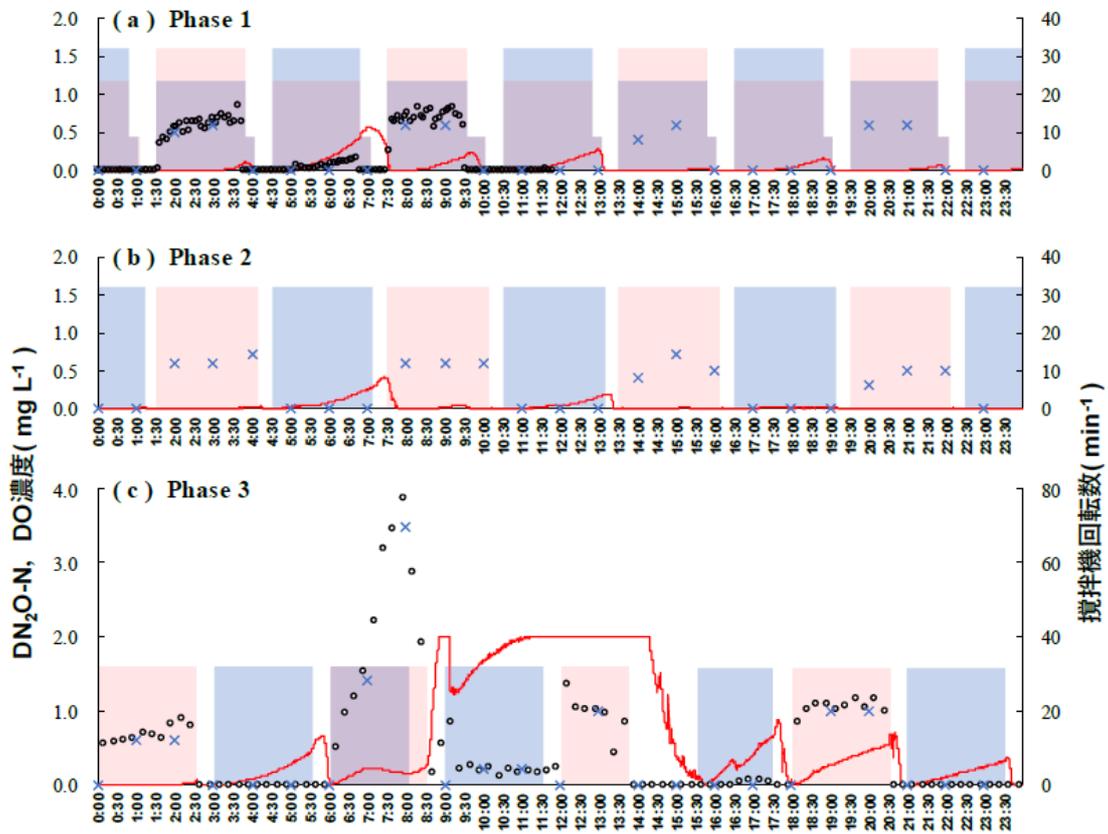


図4 無終端水路における DN_2O とDOの日周変動

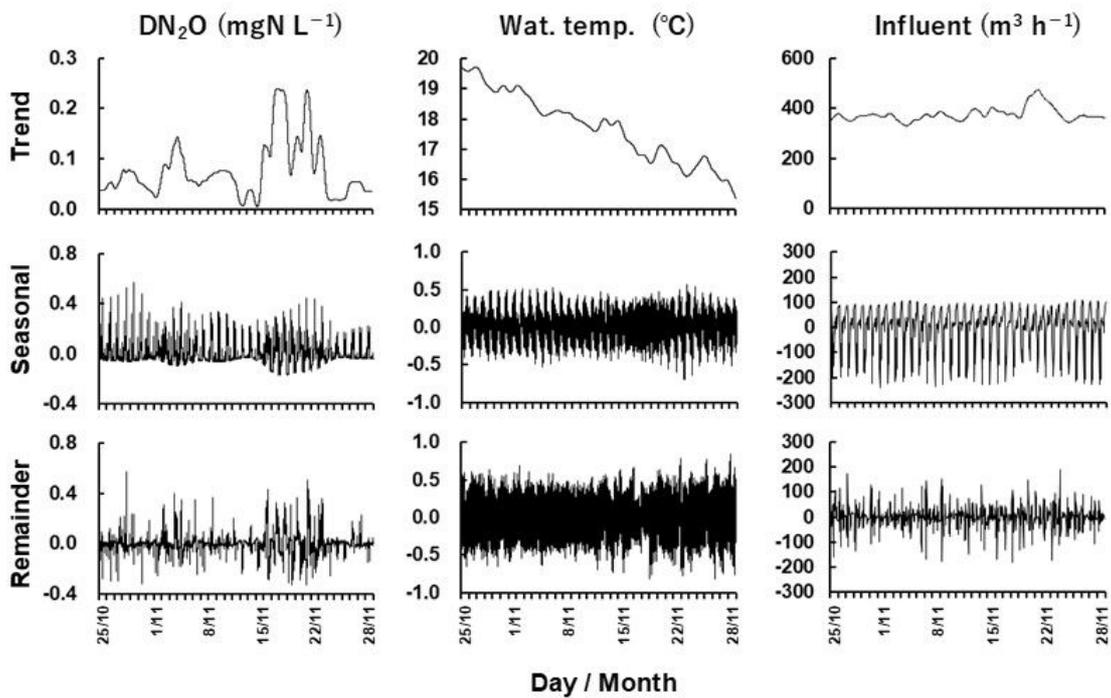


図5 季節調整法の適用結果

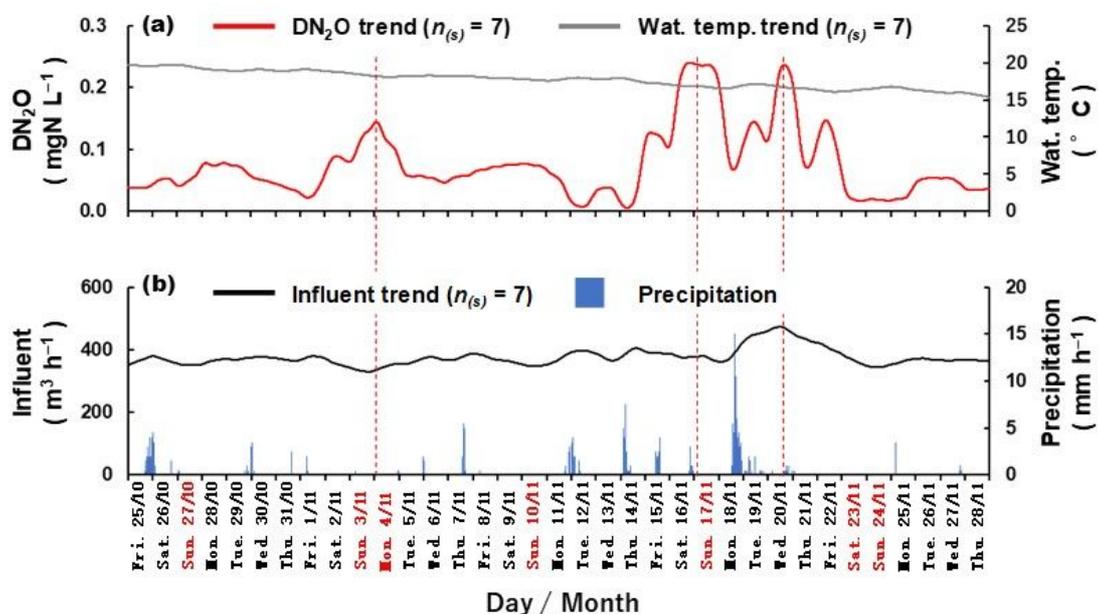


図6 DN₂O と流入量トレンドと降水量の関係

(4) 成果のまとめ

本研究では、下水処理プロセスから発生する N₂O の生成ポテンシャルを新たに定義し、その値に基づく実処理場由来の N₂O 発生量の推定手法の可能性を示した。また実処理場において攪拌と DO 制御を基本とした検討を行い、N₂O の突発的発生を抑制することに成功した。さらに、N₂O の時系列解析を行い、従来は明確な認識が困難であった N₂O の中期的変動を抽出するとともに、それが流入量の変動に強い影響を受けていることを明らかにした。

<引用文献>

Shuhei Masuda*, Shohei Otomo, Toshimasa Hojo, Akihiko Terada, Juhyun Kim, Yu-You Li, Fumiaki Takakai, Naoyuki Miyata: Development of simple activity test for estimation of nitrous oxide production from sewage treatment process. *Journal of Bioscience and Bioengineering*, 査読中

大友渉平, 葛西誠, 柴田悟, 高階史章, 宮田直幸, 増田周平: 無終端水路反応槽の溶存態亜酸化窒素連続データに対する季節調整法の適用, *水環境学会誌*, 印刷中

大友渉平, 柴田悟, 李玉友, 高階史章, 宮田直幸, 増田周平: 攪拌方法の最適化による無終端水路反応の槽における N₂O 排出抑制戦略 -実処理場での連続測定と実証試験-, *土木学会論文集 G (環境)* 77(7)71-82, 2021

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 OTOMO Shohei, SHIBATA Satoru, LI Yu-You, TAKAKAI Fumiaki, MIYATA Naoyuki, MASUDA Shuhei	4. 巻 77
2. 論文標題 STRATEGY FOR CONTROLLING NITROUS OXIDE EMISSION IN OXIDATION DITCH REACTOR BY OPTIMIZATION OF STIRRING METHODOLOGY: CONTINUOUS MONITORING AND LARGE-SCALE EXPERIMENT IN FULL-SCALE SEWAGE TREATMENT PLANT	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Japan Society of Civil Engineers, Ser. G (Environmental Research)	6. 最初と最後の頁 111_71 ~ 111_82
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2208/jscej.77.7_111_71	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Otomo Shohei, Terada Akihiko, Li Yu-You, Nishitoba Kazuya, Takakai Fumiaki, Okano Kunihiro, Miyata Naoyuki, Masuda Shuhei	4. 巻 19
2. 論文標題 Long-term Assessment of N<sub>2</sub>O Emission Factor in Full-scale Oxidation Ditch Reactor Considering Spatiotemporal Distribution	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Water and Environment Technology	6. 最初と最後の頁 139 ~ 152
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2965/jwet.20-145	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 大友 渉平, 葛西 誠, 柴田 悟, 高階 史章, 宮田 直幸, 増田 周平	4. 巻 査読受理
2. 論文標題 無終端水路反応槽の溶存態亜酸化窒素連続データに対する季節調整法の適用	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 水環境学会誌	6. 最初と最後の頁 未定
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計13件（うち招待講演 2件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 大友 渉平, 柴田 悟, 田村 英輔, 伊東 賢洋, 李 玉友, 高階, 史章, 岡野 邦宏, 宮田 直幸, 増田, 周平
2. 発表標題 無終端水路反応槽を有する下水処理場における亜酸化窒素排出抑制運転の実証試験
3. 学会等名 第57回日本水環境学会年会 2023年3月15日
4. 発表年 2022年 ~ 2023年

1. 発表者名 増田 周平
2. 発表標題 標準活性汚泥法における亜酸化窒素の発生抑制のための基本的考え方
3. 学会等名 第57回日本水環境学会年会 2023年3月15日
4. 発表年 2022年～2023年

1. 発表者名 瀬下景, 大友渉平, 金主鉉, 増田周平
2. 発表標題 下水処理場の生物反応槽における亜酸化窒素生成ポテンシャルの空間分布
3. 学会等名 第14回 廃棄物資源循環学会東北支部 & 第10回 日本水環境学会東北支部 合同研究発表会
4. 発表年 2022年～2023年

1. 発表者名 増田周平
2. 発表標題 秋田県における下水道関連研究事例～温室効果ガス削減と資源循環～
3. 学会等名 土木学会環境工学委員会 下水道の持続可能性向上に寄与する先端融合技術に関する調査小委員会 令和4年度「第一回研究交流会議」招待講演(招待講演)
4. 発表年 2022年～2023年

1. 発表者名 増田周平, 蛭江美孝, 小野寺崇, 寺田昭彦, 山崎宏史
2. 発表標題 下水処理水に含まれる溶存態温室効果ガスの排出係数に関する考察
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 増田周平, 北條俊昌, 大友渉平, 李玉友, 山崎宏史
2. 発表標題 水処理プロセスにおける亜酸化窒素濃度の時間変動ー連続モニタリングの比較ー
3. 学会等名 第58回下水道研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shuhei MASUDA, Makku KUSANAGI, Shohei OTOMO, Kazuya NISHITOBA, Juhyun Kim, Naoyuki MIYATA
2. 発表標題 Impact of Influent Load on Dissolved Nitrous Oxide Production in Actual Sewage Treatment Plant
3. 学会等名 5th IWA Specialized International Conference ' Ecotechnologies for Wastewater Treatment 2021' (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Makku KUSANAGI, Shuhei MASUDA, Shohei OTOMO, Kazuya NISHITOBA, Juhyun Kim, Naoyuki MIYATA
2. 発表標題 Contribution to Nitrous Oxide Production in Sewage Treatment Plant: Potential versus Temporary Conditions
3. 学会等名 5th IWA Specialized International Conference ' Ecotechnologies for Wastewater Treatment 2021' (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 増田周平
2. 発表標題 排水処理プロセスに由来する微量温室効果ガスに関する研究
3. 学会等名 第51 回ケミカルエンジニアリング交流会 2021年12月10日 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 草薙真久, 大友渉平, 柴田悟, 高階史章, 宮田直幸, 金主鉉, 増田周平
2. 発表標題 活性汚泥の生物活性試験に基づく下水処理場のN2O排出特性の解析
3. 学会等名 第55回日本水環境学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 関桃花, 大友渉平, 柴田悟, 高階史章, 増田周平
2. 発表標題 無終端水路反応槽におけるN2O 抑制運転の LCCO2削減効果
3. 学会等名 第15回 廃棄物資源循環学会東北支部 & 第11回 日本水環境学会東北支部 合同研究発表会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 柴田翔太, 大友渉平, 高階史章, 増田周平
2. 発表標題 硝化抑制運転型の標準活性汚泥法における亜酸化窒素の長期連続データ解析
3. 学会等名 第15回 廃棄物資源循環学会東北支部 & 第11回 日本水環境学会東北支部 合同研究発表会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 大友 渉平, 葛西 誠, 柴田 悟, 高階 史章, 宮田 直幸, 増田 周平
2. 発表標題 下水処理場の N2O 連続データに対する季節調整法の適用
3. 学会等名 第 58 回日本水環境学会年会
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	寺田 昭彦 (Akihiko Terada) (30434327)	東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・教授 (12605)	
研究 分担者	北條 俊昌 (Toshimasa Hojo) (10708598)	東北工業大学・工学部・准教授 (31303)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 協力者	大友 渉平 (Shohei Otomo)	秋田工業高等専門学校・技術教育支援センター・技術専門職員 (51401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------