

平成30年6月25日現在

機関番号：82101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K16208

研究課題名(和文)人工湿地法による廃棄物埋立地浸出水における難分解性有機窒素の除去メカニズムの解明

研究課題名(英文) Removal mechanism of recalcitrant organic nitrogen from landfill leachate by constructed wetlands

研究代表者

尾形 有香(Ogata, Yuka)

国立研究開発法人国立環境研究所・資源循環・廃棄物研究センター・特別研究員

研究者番号：50714200

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：廃棄物埋立地浸出水に含まれる有機態窒素の特徴づけを行うとともに、人工湿地における有機態窒素の除去特性およびメカニズムの解明を行った。有機態窒素の分子量分布は、3kDa以下が5割以上を占めており、長期分解試験の結果、生分解性が低いことが確認された。一方、人工湿地によって、有機態窒素は高効率(70～80%)で除去可能であるが、非植栽の場合、除去率は26%に低下した。植物、微生物のみでは、有機態窒素の明確な除去は確認されなかったが、有機態窒素の高分子化が確認された。人工湿地による有機態窒素の除去メカニズムは、ろ材によるろ過作用に加え、植物体による有機態窒素の高分子化が関与していることが示唆された。

研究成果の概要(英文)：This study evaluated the characteristics of organic nitrogen in waste landfill leachate. Also, the characteristics and mechanisms of removal of organic nitrogen by constructed wetlands (CWs) were evaluated. The results of molecular weight distribution of organic nitrogen showed that the fraction of less than 3 kDa was major (over half). The long-term degradation test indicated that organic nitrogen in landfill leachate was persistent. On the other hand, CWs effectively removed the organic nitrogen (removal ratio: 70～80%) although CW without plant showed lower removal ratio (26%). There was no obvious removal of organic nitrogen by plant and microorganism. However, higher molecular weight distribution of organic nitrogen was occurred by plant. It suggests that the removal mechanisms of organic nitrogen by CWs was related to filtration by medium in addition to the function of high-molecular weight by plant.

研究分野：生態工学

キーワード：最終処分場 廃棄物埋立地浸出水 人工湿地 有機態窒素 分子量分布

1. 研究開始当初の背景

廃棄物埋立地浸出水の処理において、特に窒素成分は、埋立終了後も継続的に排出されることから、重要な処理対象物質として世界的に認識されている。近年、浸出水中に含まれる有機態窒素が、活性汚泥法や硝化脱窒法を用いた生物学的処理法によって、除去されずに処理水に残存することが指摘されはじめた。埋立地浸出水中に含まれる有機態窒素には、易分解性有機態窒素のみならず、残留性の難分解性有機態窒素が含まれていると考えられるが、その実態についてほとんど明らかとされていない。浸出水中の有機態窒素の実態を明らかとし、低コスト・省エネルギーにて除去可能な処理方法を検討することは、長期に渡る適正な浸出水管理法を構築する上で重要である。

本研究では、省エネルギー、低コストかつ維持管理が容易な人工湿地法による浸出水処理に着目した。人工湿地とは、ろ材による吸着や過作用等の物理化学的除去と微生物による分解、植物体による吸着、吸収等の生物学的除去を兼ねそろえた排水処理技術である。これまで、主に欧米において、生活排水の栄養塩類の除去として広く実用されてきた。一方、実用例は少ないものの、近年、埋立地浸出水中の窒素除去を対象とした研究が積極的に進められており、注目を浴びている。

我々の研究グループでは、人工湿地を活用した、持続可能な浸出水管理システムの開発を進めており、実最終処分場での実証試験を通じて、人工湿地の適用可能性の評価を実施している¹⁾。興味深いことに、これまでの検討において、人工湿地によって、浸出水中の有機態窒素を除去できることが確認された。

2. 研究の目的

本研究では、浸出水中の有機態窒素に関する基礎的知見を得るため、有機態窒素の分子量分布を解析するとともに、長期分解試験を実施し、生分解性の評価を行う。加えて、実最終処分場に構築した人工湿地を用いて、浸出水処理試験を実施し、人工湿地における有機態窒素の除去特性を明らかとする。また、ろ材、植物体および微生物による作用が浸出水中の有機態窒素の除去に及ぼす影響を評価し、人工湿地における有機態窒素の除去メカニズムを明らかとする。

3. 研究の方法

(1) 埋立地浸出水中の有機態窒素の特徴づけ

浸出水中の有機態窒素濃度は、全窒素濃度から、アンモニア態窒素、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素濃度の差を求め、算出した。有機態窒素の分子量分布は、浸出水を限外ろ過膜デバイスに添加し、遠心分離することで分画した後、有機態窒素濃度を測定した。長期分解試験は、浸出水を Duran 瓶に添加し、100 日間、振盪培養を行った。経時的に培養液を採取し、有機態窒素濃度を測定した。

(2) 人工湿地における埋立地浸出水中の有機態

窒素の除去特性

実最終処分場に構築したパイロットスケールの人工湿地 (縦 2 m, 横 1 m, 高さ 1 m) を用いて、浸出水処理試験を実施し、処理水を得た。また、植栽無しの条件および植物体の地上部が枯死した条件において、同様の処理水試験を実施した。処理水中の有機態窒素濃度および分子量分布は (1) と同様に測定した。

(3) ろ材、植物体および微生物が浸出水中の有機態窒素除去に及ぼす影響の評価

ろ材を用いた吸着試験は、固液比 1.7-100 の条件となるように、それぞれ、ろ材と浸出水を三角フラスコに添加し、振盪した (28 , 200 rpm)。24 時間後の上清中の有機態窒素濃度を測定した。

植物体自身による吸着・吸収作用を調べるため、無菌植物体を作成した。無菌植物体を培養した Duran 瓶に、0.20 μm のフィルターでろ過した浸出水を加え、静置培養を行った。試験期間中、培養液を採取し、有機態窒素濃度を測定した。対象系として、フィルターろ過した浸出水のみを添加した非植栽系を作成し、同様に処理試験を実施した。なお、操作は、無菌状態を維持するため、クリーンベンチ内で実施した。

また、微生物が存在する系として、フィルターろ過を施していない浸出水を用いて、上記と同様に、植栽系および非植栽系を作成し、浸出水処理試験を実施した。試験期間中、経時的に浸出水中の有機態窒素濃度を測定するとともに、分子量分布を解析した。

4. 研究成果

(1) 埋立地浸出水中の有機態窒素の特徴づけ

本試験で対象とした埋立地浸出水は、サンプリング日に関わらず、窒素成分の大半 (60 - 90 %) が有機態窒素として存在していることが確認された。図 1 に、浸出水中の有機態窒素の分子量分布を示す。浸出水中の有機態窒素は、3kD 以下の画分が最も高く、5 割以上を示した。次いで 0.45 μm 以上の画分、30kD-0.45 μm 画分、3kD-10kD 画分となり、10kD-30kD 以下の画分の割合が最も低かった。

図 2 に長期分解試験の結果を示す。試験期間中、有機態窒素濃度の穏やかな低下が確認されたものの、100 日後において、68% の有機態窒素の残存が確認された。埋立地浸出水中の有機態窒素は、その大半が、難分解性の特性を有することが示された。

(2) 人工湿地における埋立地浸出水中の有機態窒素の除去特性

人工湿地における有機態窒素の除去能力を調べた結果、高効率 (83%) で除去可能であることが明らかとなった (図 3)。一方、植物体の地上部が枯死している状態では、有機態窒素の除去率が低下 (39%) することが確認された。

人工湿地処理における有機態窒素の分子量分布の変化を図 4 に示す。人工湿地処理過程における有機態窒素の分子量分布の変化は、植物体

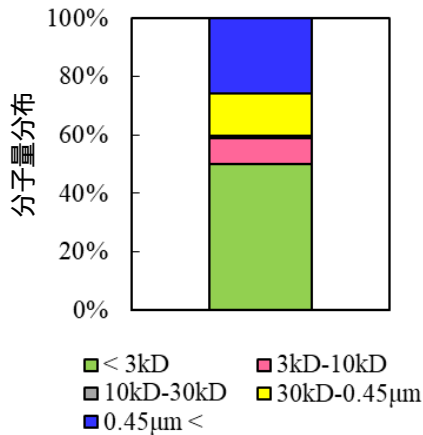


図1 浸出水中の有機態窒素の分子量分布

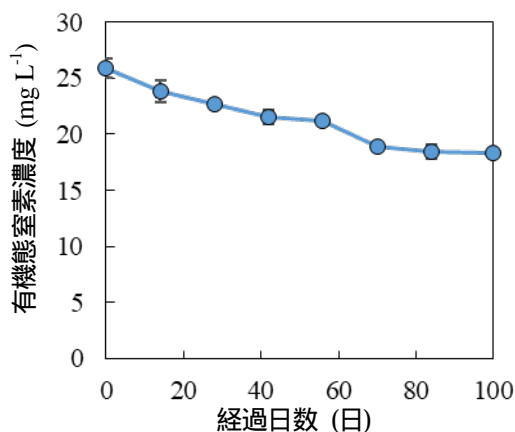


図2 長期分解試験における有機態窒素濃度の変化

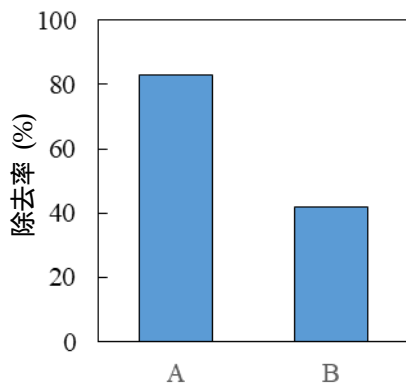


図3 人工湿地による有機態窒素の除去
[A: 植物体の状態が良好, B: 植物体が枯死]

の状態が良好である条件の方が (A)、植物体が枯死している条件よりも (B)、顕著であった。A においては、流入水と比べて、3kD 以下の画分、0.45 µm 以上の画分、および 10kD-30kD の画分の割合が低下した一方、3kD-10kD の画分と 30kD-0.45µm の画分の割合が増加した。特に、3kD-10kD の画分の増加は顕著であり、流入時は 9%であったのに対して、流出時では 35%に増加した。一方、B においては、3kD 以下の画分の割合については変化が見られず、0.45 µm 以上の

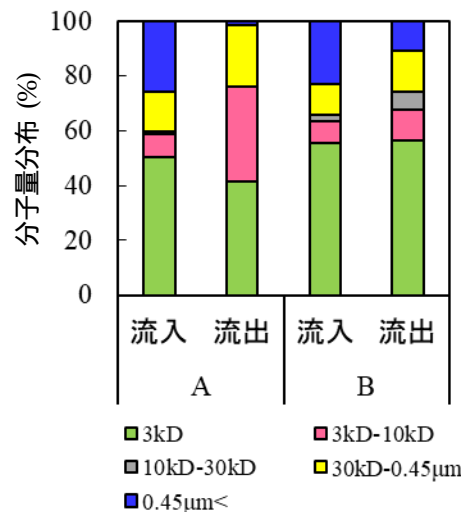


図4 流入水および人工湿地処理水における有機態窒素の分子量分布
[A: 植物体の状態が良好, B: 植物体が枯死]

画分が減少したのに伴い、若干ではあるが、その他画分の割合の増加が確認された。以上のことから、植物体の活性状態は、人工湿地における有機態窒素の除去率および処理水中の有機態窒素の分子量分布に影響を及ぼすことが示された。

(3) ろ材が人工湿地における浸出水中の有機態窒素除去に及ぼす影響

植栽無し的人工湿地における浸出水中の有機態窒素の除去率を調べたところ、26%であった。一方、ろ材を用いた吸着試験においては、有機態窒素濃度の低下は確認されず、ろ材の有機態窒素の吸着能力は極めて低いことが示された。よって、ろ材が、人工湿地における有機態窒素の除去に及ぼす作用として、吸着作用は極めて低く、ろ過作用が主要な除去機構であることが示唆された。

(4) 植物体および微生物が浸出水中の有機態窒素除去に及ぼす影響

植物体自身による吸着・吸収作用を調べるため、無菌植物体を用いた浸出水処理試験を実施したところ、有機態窒素濃度の低下は確認されなかった。また、浸出水中土着微生物による分解および植物・微生物の相互作用が有機態窒素の除去に及ぼす影響を調べるため、微生物分解を加味した非植栽系および植物・微生物共生系による浸出水試験を実施した結果、全ての系において、有機態窒素の明確な除去は確認されなかった。ろ材が存在しない条件下では、植物体による吸収・吸着作用や微生物分解、または、植物・微生物共生による作用によって、浸出水中の有機態窒素の除去は進行しないことが明らかとなった。

(5) 植物体および微生物が浸出水中の有機態窒素の分子量分布に及ぼす影響

図5Aに、無菌処理を行った浸出水処理試験に

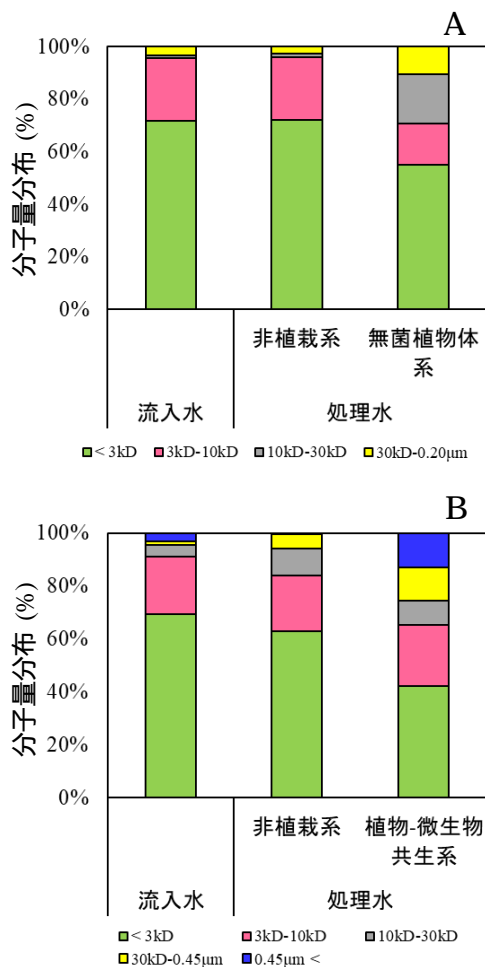


図 5 浸出水処理試験における流入水と処理水の有機態窒素の分子量分布 [A: 無菌条件, B: 有菌条件]

における、流入水と非植栽系および無菌植物体系の処理水の有機態窒素の分子量分布を示す。非植栽系では、流入水と処理水において、分子量分布の変化は確認されなかったが、無菌植物体系においては、分子量分布の変化が確認された。流入水と比較して、処理水では、3kD 以下および 3kD-10kD の画分が低下する一方、10kD-30kD および 30kD-0.20 μm の画分の割合が増加した。

微生物が存在する有菌条件では、非植栽系よりも植物 - 微生物共生系の処理水の方が、流入水と比較して、分子量分布の変化が顕著であった (図 5 B)。非植栽系では、3kD 以下および 0.45 μm 以上の画分が減少する一方、10kD-30kD および 30kD-0.45 μm の画分の割合が増加した。植物 - 微生物共生系においては、3kD 以下の画分が低下する一方、10kD-30kD、30kD-0.45 μm、および 0.45 μm 以上の画分の割合が増加した。

以上のことから、無菌条件および有菌条件の両条件とも、植物体が存在することによって、有機態窒素の高分子化が進行することが示された。

(6) 人工湿地における浸出水中の有機態窒素の除去メカニズム

ろ材無しの条件では、浸出水中の有機態窒素

の除去は確認されなかったことから、人工湿地における有機態窒素の除去は、ろ材の存在が必要であることが明らかとなった。また、植栽有りの人工湿地における有機態窒素の除去率 (70-80%) は、植栽無しの条件 (26%) よりも、高かったことから、植物の存在によって、人工湿地における有機態窒素の除去が向上されることが示された。一方、植物体を用いた浸出水試験の結果、有機態窒素の明確な除去は見られなかったが、有機態窒素の高分子化が確認された。よって、植栽による人工湿地の有機態窒素の除去能力の向上のメカニズムの 1 つとして、植物体による有機態窒素の高分子化が関与している可能性が考えられる。

以上のことから、人工湿地における有機態窒素の除去メカニズムは、ろ材による過作用に加えて、植物体による有機態窒素の高分子化が関与していることが示唆された。

<引用文献>

Ogata Y., Ishigaki T., Ebie Y., Sutthasil N., Chiemchaisri C., Yamada M. (2015) Water reduction by constructed wetlands treating waste landfill leachate in a tropical region. *Waste Management*, 44, 164-171

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

Ogata Y., Ishigaki T., Ebie Y., Sutthasil N., Witthayaphirom C., Chiemchaisri C., Yamada M. (2018) Design considerations of constructed wetlands to reduce landfill leachate contamination in tropical regions. *Journal of Material Cycles and Waste Management*, 査読有り, in press

尾形有香, 石垣智基, 蛭江美孝, 山田正人 (2017) タイでの埋立地浸出水を対象とした人工湿地の適用可能性の評価. *環境技術*, 査読無し, 46 (11), 596-600

[学会発表] (計 7 件)

尾形有香, 石垣智基, 蛭江美孝, Sutthasil N., 山田正人, Witthayaphirom C., Chiemchaisri C. (2018) 人工湿地の水量削減と水質浄化を活用した熱帯地域の埋立地浸出水の管理. 平成 29 年度廃棄物資源循環学会関東支部研究発表会

尾形有香, 石垣智基, 蛭江美孝, Sutthasil N., 山田正人, Witthayaphirom C., Chiemchaisri C. (2018) 東南アジアにおける埋立地浸出水処理への人工湿地導入の実現可能性評価. 第 52 回日本水環境学会年会

Ogata Y., Ishigaki T., Ebie Y., Sutthasil N., Witthayaphirom C., Chiemchaisri C., Yamada M. (2017) Case study of reduction of overflow risk in landfill leachate by constructed wetlands in Thailand. The 21th Korea-Japan International Symposium of Korea Society of Waste Management

Witthayaphirom C., Chiemchaisri C., Chiemchaisri W., Ogata Y., Ebie Y., Ishigaki T., Yamada M. (2017) Remediation of Toxic Organic Compounds from Solid Waste Disposal by Permeable Reactive Barrier with Vegetation. The 3rd Symposium of International Waste Working Group Asian Regional Branch

Ogata Y., Ishigaki T., Ebie Y., Sutthasil N., Witthayaphirom C., Chiemchaisri C., Yamada M. (2017) The capacities of constructed wetlands on prevention of contamination by landfill leachate in Southeast Asia. 4th 3R International Scientific Conference on Material Cycles and Waste Management

Ogata Y., Ishigaki T., Ebie Y., Sutthasil N., Chayanid W., Chart C., Yamada M. (2016) Evaluation of the effect of constructed wetlands on prevention of contamination by landfill leachate in tropical region. 第 27 回廃棄物資源循環学会研究発表会

Ogata Y., Ishigaki T., Yamada M. (2016) In-depth inspection by analysis of microbial reaction to evaluate Carbon and Nitrogen behaviors in landfills. The 9th Intercontinental Landfill Research Symposium

〔その他〕

高校生も楽しめる資源循環・廃棄物研究情報誌
オンラインマガジン 環境/KannKann
<http://www-cycle.nies.go.jp/magazine/genba/201611a.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

尾形 有香 (OGATA Yuka)

国立環境研究所・資源循環・廃棄物研究センター・特別研究員

研究者番号：50714200