

氏名	フアムドゥイドン PHAM Duy Dong
本籍（国籍）	ベトナム
学位の種類	博士（農学）
学位記番号	連研第715号
学位授与年月日	平成30年3月23日
学位授与の要件	学位規則第5条第1項該当課程博士
研究科及び専攻	連合農学研究科 生物環境科学
学位論文題目	Development of treated municipal wastewater reuse system to cultivate rice for animal feeding toward sustainable water and nutrient circulation（持続可能な水・栄養塩循環を目指した飼料用米栽培のための都市下水処理水再利用システムの開発）
学位審査委員	主査 山形大学教授 渡部 徹 副査 佐々木 由佳（山形 准教授）、颯田 尚哉（岩手 教授）、 坂元 君年（弘前 准教授）

論文の内容の要旨

One of the biggest challenges facing the world today is feeding the continuously growing population in the scene of climate change and water pollution. Serving as a stable food source for more than half of the world's population, rice is cultivated in at least 95 countries across the globe and consumes around 50% of the worldwide irrigation water. Recently, municipal wastewater for rice irrigation has been adopted as an effective measure in many countries for recycling nutrients and water resources and avoiding the discharge of pollutants from sewage effluents to surface water bodies.

The objective of this study was to develop a proper cultivating system of rice for animal feed with continuous irrigation of treated municipal wastewater (TWW). Firstly, the study has evaluated nitrogen (N) removal from TWW, rice yield and grain quality, and accumulation of heavy metals in paddy soil and rice grains. Secondly, the capacity of generating electricity from the paddy field irrigated with TWW has been assessed by installing a microbial fuel cell (MFC) system which utilized the organic matter source in TWW. Thirdly, the need of phosphorous (P)-fertilizer for the rice cultivation under TWW irrigation was also evaluated in two seasons. In addition, the emission fluxes of two major greenhouse gases, namely methane (CH₄) and nitrous oxide (N₂O), were also evaluated.

The experiments were conducted in three farming seasons from 2015 to 2017, using a bench-scale apparatus which consist of a simulated paddy field with an area of 0.18 m² and influent and effluent tanks. Bekoaoba, a large-grain-type high-yield rice variety was selected to transplant in six treatments (called runs) in 2015 and 2016 seasons, and in four treatments in 2017 season with different cultivation conditions. Among these, one run was used as the control, in which the paddy soil was supplemented with N-P-K composite fertilizers and irrigated with tap water as seen in normal paddy fields. The other runs

were served continuously with TWW taken from a municipal wastewater treatment plant in Tsuruoka, Yamagata, Japan, which employs the standard activated sludge process followed by chlorine disinfection. Two types of TWW irrigation at different directions were applied. One was bottom-to-top irrigation, in which TWW was supplied from the underdrain pipe at the bottom of the field, infiltrated the paddy soil layer upward and then flowed into the effluent tank. The other was top-to-top irrigation, in which TWW was pumped to the surface of the rice field and discharged from the top at the other side of the field. The MFC system was constructed using electrodes (0.6 m x 0.3 m) made of carbon graphite felt. The electrodes were connected to a circuit using copper cables and the voltage generated from the MFC system was recorded every 10 min using a logger.

During the experiments, the qualities of the irrigation water in the influent and effluent tanks, relevant to total nitrogen (TN) and N-components, total organic carbon (TOC), dissolved oxygen (DO), pH, electrical conductivity (EC), temperature, and oxidation-reduction potential (ORP), were monitored routinely. The growth of rice plants, the whole plant dry biomass, and grain yield were also examined using the standard methods. The quality of rice was evaluated based on the protein content of grains. In addition, the contents of TN and total phosphorous (TP) in the soil before and after the experiment were evaluated. As harmful substances primarily concerned in TWW irrigation, the concentrations of heavy metals (Cr, Mn, Ni, Zn, Cu, Mo, Cd, and Pb) in water, rice and soil were analyzed using an inductively coupled plasma mass spectrometer (ICP-MS). Furthermore, CH₄ and N₂O gases samples were collected once a week with the manual static chamber and then analyzed using gas chromatography.

The results of the experiments indicated that bottom-to-top irrigation had improved the performance of rice cultivation with the grain yield of 14.1 t/ha, the dry mass of 16.2 t/ha, and the protein content in the brown rice of 14.6 %, which were markedly higher than those achieved in top-to-top irrigation. Throughout the 3-season experiments, N removal efficiencies in bottom-to-top irrigation (ranging from 79 to 93%) have been found to be much greater than those obtained in the treatments using top-to-top irrigation (42-63%). No accumulation of the harmful metals in the paddy soil was found after three growing seasons under TWW irrigation, except for an increase of Cu in the experimental soil in 2015 season. This was probably resulted from the oxidation of the copper wire used for MFC system rather than the effect of TWW irrigation. Those metals' content levels in the harvested rice grains were also lower than the permissible limits of the international standards. The electric output from the MFC system in 2015 season was much lower than that reported in normal paddy fields, probably due to the poor connection between the cables and the electrodes. However, it remained to be low in 2016 season even when the connection was modified using graphite rods instead of the copper cables. CH₄ emission was not found in 2015 season, probably due to the inhibitory effect of Cu in the experimental soil. This gas was detected in the following two seasons from all the runs but the fluxes were much lower than those observed in normal paddy fields. The first measurement of N₂O in 2017 season revealed it was emitted in all runs, and that the

emission fluxes from the runs applied with TWW irrigation were significantly higher than the run using tap water irrigation. The combined global warming potential (GWP) was found to be significantly increased in the treatments of TWW application using top-to-top irrigation, while decreased in the runs using bottom-to-top irrigation, as compared with that in the tap-water-irrigation treatment.

This study implied that bottom-to-top irrigation enhanced N removal efficiency from TWW. High yield and quality of brown rice could be achieved under continuous irrigation of TWW from bottom-to-top without application of any chemical fertilizer. TWW irrigation decreased CH₄ emission but increased N₂O emission from the paddy fields, resulting in increased combined GWP. No accumulation of the harmful metals was found in the harvested grains and the experimental soils after the three-cropping seasons under the continuous irrigation of TWW. Electric output from the MFC system under the continuous irrigation of TWW was lower than that previously reported from normal paddy fields as well as the paddy fields under circulated irrigation of TWW. From all mentioned results, the bottom-to-top irrigation of TWW could be recommended to be applied to the real paddy fields. Although there was no building up of the heavy metals in the experimental soils and brown rice through the three-farming seasons, continuous monitoring of heavy metals in the soil and brown rice in every season is highly recommended to avoid long-term accumulation or accidental contamination. Beside the cultivation of rice for animal feed, further studies should be conducted to cultivate rice for other beneficial purposes. The content of P in the soil would be decreased after a long-term TWW irrigation without P-fertilization, which consequently could decrease the rice yield and quality. Thus, P content in the soil should be evaluated after harvesting in each season. In addition, further studies on the efficiency of power generation of the MFC system utilizing C source in TWW are highly recommended. With a high removal efficiency of N from TWW revealed in this study, paddy fields would be considered a step in a wastewater treatment process. To avoid the adverse effect of hazardous materials in raw wastewater, paddy fields should be established as an advanced treatment after normal treatment processes such as activated sludge process.

【和訳】

今日の世界が直面している大きな課題の一つは、気候変動と水質汚濁の中で増え続ける人口に食料を供給することである。米は、世界人口の半分以上にとっての主食であり、世界の灌漑用水の 50%程度を消費しながら、少なくとも 95 ヶ国で栽培されている。近年、水田での都市下水灌漑が、栄養塩と水資源のリサイクルと、下水処理水から表流水への汚濁物質の流出の防止のための有効な手段として、多くの国々で導入されている。

本研究の目的は、都市下水処理水 (TWW) の連続灌漑による適切な飼料用米栽培システムを構築することであった。この研究では第一に、TWW からの窒素除去、米の収量と品質、そして、土壌と米への重金属の蓄積を評価した。第二には、TWW を灌漑した水田での発電の可能性を、TWW に含まれる有機物を利用する微生物燃料電池 (MFC) を導入することで調べた。第三には、TWW 灌漑のもとでの水稲栽培におけるリン酸肥料の必要性を 2 年間に渡って

評価した。さらに、2つの主要な温室効果ガスであるメタンと亜酸化窒素の発生量も評価した。

栽培実験は、表面積 0.18m²の模擬水田、流入水と放流水のタンクからなるベンチスケールの実験装置を用いて、2015～2017年の3年間に渡って行われた。粒が大きく高収量タイプの品種である「べこあおば」を、2015年と2016年の実験では栽培条件の異なる6つ（2017年の実験では4つ）の処理区（Runと呼ぶ）に移植するために選んだ。これらのうち、1つのRunは対照区として、通常の水田で見られるように土壌に窒素、リン酸、カリの化学肥料を与え、水道水で灌漑を行った。他のRunでは、標準活性汚泥プロセスと塩素消毒を採用している山形県鶴岡市の下水処理場から採取したTWWを連続灌漑した。2つのタイプのTWW灌漑を適用した。1つは「Bottom-to-top灌漑」であり、TWWは水田土壌に設置した暗渠から供給され、土壌を上向きに透過した後、放流水タンクに流れ出る。もう一つは「Top-to-top灌漑」であり、TWWは水田の表面に供給され、反対側の表面から放流される。MFCシステムは、カーボングラファイトフェルト製の電極（0.6 m x 0.3 m）を用いて構築された。この電極は銅線を用いて電気回路に接続され、MFCシステムで生み出された電圧を10分間隔でロガーを用いて記録した。

実験の期間を通して、灌漑用水の水質（全窒素と無機窒素成分、総有機炭素、溶存酸素、pH、電気伝導度、水温、酸化還元電位）を流入水と放流水のタンクで定期的にモニタリングした。水稻の生長もモニタリングし、収穫後には、総乾物重と収量を標準法によって調査した。収穫された米の品質については、粗タンパク含量にもとづいて評価した。施肥の必要性を明らかにするために、土壌中の全窒素および全リンの含有量も実験の前後で測定した。TWW灌漑に対する主たる懸念として、灌漑用水、米、そして土壌の重金属（Cr、Mn、Ni、Zn、Cu、Mo、Cd、Pb）の濃度を誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS）によって分析した。さらに、週に一度、静的チャンバーを用いてガス試料を収集し、その中のメタンと亜酸化窒素の濃度をガスクロマトグラフィーによって分析した。

実験の結果は、Bottom-to-top灌漑が水稻栽培のパフォーマンスを向上させることを示した。収量、乾物重、粗タンパク質含量はそれぞれ最大で14.1 t/ha、16.2 t/ha、14.6%であり、それらはTop-to-top灌漑で達成された値よりも著しく高かった。3年間の実験を通して、Bottom-to-top灌漑での窒素除去効率（79～93%）は、Top-to-top灌漑で得られる効率（42～63%）よりもずっと高かった。TWW灌漑のもとで3年間の実験で連続使用された水田土壌には、有害金属は蓄積していなかった。唯一、2015年の実験では、土壌中の銅の含有量が増加した。これは、TWW灌漑の影響ではなく、MFCシステムに用いられていた銅線が腐食した結果であろう。収穫された米のそれらの金属レベルは、国際的な基準の許容上限値を下回っていた。2015年の実験におけるMFCシステムからの電気出力は、通常の水田で報告されている値よりもずっと小さかった。これはおそらく、電極と銅線との接続不良による。ただし、銅線の代わりにカーボンロッドを用いて両者の接続を改善した2016年の実験でも、その出力は低いままであった。

2015年の実験では、おそらく土壌中の銅による細菌活動の阻害のために、メタン放出は見られなかった。土壌中の銅含有量が低下した2016年と2017年の実験では、すべてのRunでメタンが検出されたが、その放出フラックスは通常の水田での観測よりもずっと小さかった。2017年の実験では初めて亜酸化窒素の測定を試み、すべてのRunでその放出が確認された。TWWを灌漑したRunにおけるその放出フラックスは、水道水を灌漑したRunのそれよりも明らかに大きかった。合計した地球温暖化ポテンシャル（GWP）は、TWWのTop-to-top灌

溉によって、水道水を灌漑する場合と比較して増加することが分かった。一方で、TWWのBottom-to-top灌漑ではGWPは減少した。

本論文は、Bottom-to-top灌漑がTWWからの窒素除去を促進することを示した。玄米の高い収量や高い品質は、TWWのBottom-to-top灌漑によって無施肥で達成された。TWW灌漑は、水田からのメタンの放出を減らしたが、亜酸化窒素の放出を増やし、合計したGWPを増加させた。収穫された米や水田土壌には、TWWの連続灌漑による3年間の栽培の後でも、有害金属の蓄積が見られなかった。TWWの連続灌漑のもとのMFCからの電気出力は、通常の水田やTWWを循環灌漑する水田からの報告値よりも小さかった。

ここで述べた結果から、実際の水田にTWWのBottom-to-top灌漑を適用することが推奨される。3年間の実験を通して、水田土壌や玄米への重金属の蓄積は無かったが、長期での蓄積や偶発的な汚染を回避するために、土壌や玄米中の重金属の継続的なモニタリングは不可欠である。本研究で構築した栽培システムを、飼料用米以外の用途の米の栽培に適用することは興味深い。土壌中のリン含有量は、長期に渡り無施肥でTWW灌漑を続けることで低下し、結果として、米の収量や品質が低下するかもしれない。よって、毎年の栽培の後には、土壌中のリン含有量を評価すべきである。加えて、TWW中の炭素源を利用するMFCシステムの発電効率に関するさらなる研究も強く推奨される。TWWからの高い窒素除去効率を考慮すると、水田は下水処理プロセスの1つのステップとみなすことができるだろう。その際、生下水に含まれる有害物質の影響を避けるため、水田は活性汚泥プロセスのような通常処理に続く三次処理ステップに、硝化・脱窒処理のような高度な処理技術の代替として、位置づけられるべきである。

論文審査の結果の要旨

水田での都市下水灌漑は、栄養塩と水資源のリサイクルと、下水処理水から表流水への汚濁物質の流出防止のための有効な手段として、多くの国々で導入されている。本研究では、都市下水処理水(TWW)の連続灌漑による適切な飼料用米栽培システムの構築を目指し、表面積0.18m²の模擬水田、流入水と放流水のタンクからなるベンチスケールの実験装置を用いた栽培実験(品種:べこあおば)を行った。実験では、標準活性汚泥プロセスと塩素消毒で処理されたTWWを、2つの方法で模擬水田に連続灌漑した。すなわち、「Bottom-to-top灌漑」では、TWWは水田土壌に設置した暗渠から供給され、土壌を上向きに透過した後、放流水タンクに流れ出る。「Top-to-top灌漑」では、TWWは水田の表面に供給され、反対側の表面から放流される。本論文で得られた結果を以下にまとめる。

1. TWWのBottom-to-top灌漑により水稻栽培のパフォーマンスが向上した。収量、乾物重、粗タンパク質含量はそれぞれ最大で14.1 t/ha、16.2 t/ha、14.6%であり、それらはTop-to-top灌漑の結果よりも著しく高かった。しかも、この数値は、窒素、リン酸、カリのいずれの肥料も与えない条件で達成されたものである。
2. Bottom-to-top灌漑でのTWWからの窒素除去効率(79~93%)は、Top-to-top灌漑での除去効率(42~63%)よりも高かった。

3. 水田にカーボングラファイトフェルト製の電極 (0.6 m x 0.3 m) を用いた微生物燃料電池 (MFC) システムを導入し、連続灌漑される TWW 中の有機物を基質とした発電を試みたが、その発電量は通常の水田で報告されている値より低かった。

4. TWW 灌漑のもとで3年間の実験に継続使用された水田土壌には、有害金属は蓄積していなかった。唯一、2年目の実験では、MFC システムを構成する銅線が腐食し、土壌中の銅の含有量が増加した。

5. 水田からのメタンの放出フラックスは通常の水田での観測値よりもかなり小さかった。一方、亜酸化窒素の放出フラックスは、水道水を灌漑した対照系よりも明らかに増加した。2つのフラックスから計算した地球温暖化ポテンシャルは、TWW の Top-to-top 灌漑では対照系よりも増加するが、Bottom-to-top 灌漑では逆に減少した。

以上のように、本論文は、TWW の連続灌漑による飼料用米栽培システムで得られる米の収量と品質、そして地域環境や地球環境に対する負荷に関する貴重なデータを報告し、同システムの構築とその普及を考える上で重要な新しい知見を提供している。よって、本審査委員会は、「岩手大学大学院連合農学研究科博士学位論文審査基準」に則り審査した結果、本論文を博士(農学)の学位論文として十分価値のあるものと認めた。

学位論文の基礎となる学術論文

主論文

1. Dong Duy Pham, Sumiko Kurashima, Nobuo Kaku, Atsushi Sasaki, Jian Pu, Toru Watanabe. Bottom-to-top continuous irrigation of treated municipal wastewater for effective nitrogen removal and high quality rice for animal feeding. *Water Science and Technology: Water Supply*, in press, DOI: 10.2166/ws.2017.190

参考論文

1. Toru Watanabe, Takuma Mashiko, Rizki Maftukhah, Nobuo Kaku, Dong Duy Pham, Hiroaki Ito. Nitrogen removal and power generation from treated municipal wastewater by its circulated irrigation for resource-saving rice cultivation. *Water Science and Technology*, 75(4), 898-907, 2017
2. 渡部徹, 倉島須美子, Pham Duy Dong, 堀口健一, 佐々木貴史, 浦剣, 下水処理水の連続灌漑による飼料用米の栽培とその栄養特性, 土木学会論文集 G (環境), 72(7), III_505-III_514, 2016