家畜排せつ物の処理過程における温室効果ガス排出削減技術の開発 -炭素繊維担体を用いた生物膜法による温室効果ガス緩和技術-

白石誠・水木剛・山下恭広*1・長田隆*1

Relaxation Technology of the Greenhouse Gas emission from Manure Management -Greenhouse Gas Relaxation Technology by the Aerobic Bioreactor using the Carbon Fiber-

Makoto SHIRAISHI, Takeshi MIZUKI, Takahiro YAMASHITA * and Takashi OSADA *

要 約

温室効果ガス(GHG)の発生は家畜ふん尿処理施設からも確認されており、特に温室効果の高い一酸化二窒素(N_2O)は浄化処理施設から多く発生し、その削減方法の開発が急務となっている。このような中、炭素繊維を用いた生物膜法による汚水浄化とGHG対策に対応した新技術が開発された。

そこで、新技術を実規模レベルへつなげるため、有効容積 0.7m^3 の曝気槽を用いて一般的な活性汚泥法と削減効果を検討したところ、炭素繊維に付着した生物膜内で消化・脱窒が速やかに進行した結果、 N_2O の排出が 61.6% 削減されるととも処理水中のT-Nの削減も確認され、GHG 削減と浄化に有効な技術と確認できた。

キーワード: 温室効果ガス、一酸化二窒素、メタン、生物膜法、炭素繊維

緒 言

近年、温室効果ガス(GHG)の発生量増加 に伴う気温の上昇や集中豪雨等による農作物や人 的な被害が顕在化してきた。

このような状況の中、気候変動に関する政府間パネル(IPCC)第5次報告書では、温暖化に対する緩和対策等が行われないと 2100 年には1986 \sim 2005 年平均に対し最大 4.8 $^{\circ}$ 上昇するとしている $^{1)}$ 。

GHGの排出は畜産経営からも認められており、2014年度における家畜ふん尿処理区分からの温室効果ガス排出量は一酸化二窒素 (N_2O) が4,494kt- CO_2 等量、メタン (CH_4) が2,361kt- CO_2 等量であり、我が国のGHG総排出量のそれぞれ 0.3%、 $0.2\%を占めている^2$ 。また、1990年度の排出量と比較すると N_2O は 5.8%の増加、 CH_4 は29.6%の減少となっている 2)。

N₂Oについては、温室効果が特に高く、二酸化炭素 (CO₂) の 298 倍とされており、特に浄化処理からの排出係数は養豚で 2.70% (g-N₂O-N/g -N)、酪農・肉牛共通で 5.00% (g-N₂O-N/g-N)

と処理区分の中でも最も高い²⁾ため、N₂Oに対する早急な対策が必要である。

浄化処理施設から排出されるN₂Oの対策としては、間欠曝気の効果が認められている³⁾。しかし、現地において導入する場合、施設設計値の把握や運転管理等の適切な実施を行わないと処理水質の悪化などにつながる恐れがある。

このような中、曝気槽中に炭素繊維を担体として投入し、硝化脱窒を速やかに進行させて N_2O の排出を削減する生物膜法が Yamashita ら 4)により開発された。

そこで、現地施設において実証試験を行うに先立ち、容積 $1 m^3$ の試験装置を開発し、養豚排水を用いて炭素繊維を担体とした生物膜法が N_2O 等のGHG発生に及ぼす影響について調査した。

材料及び方法

- 1 試験方法
- (1) 試験装置及び試験区分

図1(模式図)および図2(実物画像)に示した試験装置を用い、当所の養豚ゾーン内(飼養頭数250頭)で実施した。

白石・水木・山下・長田:家畜排せつ物処理過程における温室効果ガス排出削減技術の開発 一炭素繊維担体を用いた生物膜法による温室効果ガス緩和技術ー

曝気槽に使用した容器は 1 m^3 (縦 $90\text{cm} \times$ 横 $90\text{cm} \times$ 高さ 124.5cm) で有効容積を 0.7m^3 とした。そして、ガスの採取のため上部に天蓋を設置し、天蓋の中心部に穴を開けて内径3 mm のガス採取用PTFE(フッ素樹脂製)チューブを挿

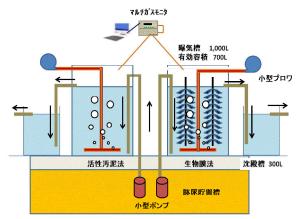


図1 試験装置(模式図)



図2 試験装置(実物画像)

入、測定機器内のポンプにより吸引した。なお、 採取されなかった曝気のガスは天蓋等の隙間から 排出される構造とした。

供試汚水は、スクレーパーによりふん尿分離された豚尿汚水を用いた。

汚水の投入量はBOD容積負荷が 0.3kg/m³/日となるよう設定し、1日1回口径 40mm のポンプ (170L/min、揚程 6m、0.15kw) を用いて 90L 投入した。曝気は下部から散気管により行い、1時間当たり 4.8m³ で 23時間連続曝気、その後 1時間曝気を停止し沈殿、曝気停止 45 分後に汚水を投入・排出する回分式とした。なお、水理学的滞留時間 (HRT) は8日間である。

試験区分を表1に示した。

生物膜法を試験区、代表的な浄化処理法である活性汚泥法を対照区とし、汚水及び処理水等の成分とGHGであるN2O等の調査により両法がGHG発生に及ぼす影響を比較検討した。

表 1 試験区分

	処理方法	供試汚水	処理量	BOD容積負荷
試験区	生物膜 _ (炭素繊維)	豚尿排水	90L/d	0.3kg/m ³ /d
対照区	活性汚泥 二			

なお、生物膜法は微生物膜表面が好気性、内部が嫌気性となり硝化脱窒が速やかに進行するため N₂Oの排出抑制が期待できる。生物膜の担体には Yamashita ら⁴⁾ が用いた炭素繊維を利用した。

炭素繊維はアクリル樹脂や石油、石炭からとれるピッチ等の有機物を繊維化した後、特殊な熱処理工程を経て作られる微細な黒鉛結晶構造をもつ繊維状の炭素物質である⁵⁾。本試験に供試した炭素繊維は、軽くて腐蝕せず、繊維が水中で広がり表面積が拡大され吸着浄化能力を高める特徴がある(図3)。



図3 炭素繊維担体

(2) 測定方法及び測定項目

1)ガスの測定

測定に供するガスは、前述したとおり天蓋等に挿入したPTFEチューブを通して測定機器へ導入し、GHGとして N_2O 及び CH_4 、悪臭成分としてアンモニア(NH_3)をマルチガスモニター及びマルチポイントサンプラーにより、数分~15分間隔で連続的に測定した。

 N_2O 、 CH_4 及び NH_3 の排出量については、曝気量と曝気槽へ導入される新鮮空気及び曝気による排気ガスの濃度差異 (mg/m^3) から求めた。

2)水質の測定

投入汚水、曝気槽内、処理水について週1回 以上サンプリングを行い測定した。測定方法 は、pH、電気伝導度(EC)はガラス電極 法、化学学的酸素要求量(COD)が過マンガ ン酸カリウム 30 分加熱法、生物化学的酸素要 求量 (BOD) はアジ化ナトリウム変法、浮遊物質 (SS) はガラス繊維濾紙法、活性汚泥浮遊物 (MLSS) は遠心分離法、ケルダール窒素 (Kj-N) はケルダール分解法、全窒素 (T-N)、全リン (T-P) はペルオキソニ硫酸カリウムで分解後吸光光度法、アンモニア態窒素 (NH4-N)、硝酸・亜硝酸態窒素 (NO $_{2}$ -N (硝酸態窒素)、NO $_{3}$ -N (硝酸態窒素) はブレムナー法を用いた。また、強熱減量 (VS) は蒸発乾固後 400 ℃で灰化した。なお、分析方法は主に下水道試験法(社団法人日本下水道協会 1997)を用いた。

3) 曝気槽内の性状調査

曝気槽内の性状を調査するため水面下 30 cm で pH、溶存酸素 (DO)、水温をセンサーにより計測し、データを保存するデータロガーにより 10 分間隔で記録した。

4)調査期間

試験は2015年4月~5月に実施した。

結果及び考察

1 環境条件と汚水性状

気温、水温及びDOの推移を図 $4\sim6$ に示した。

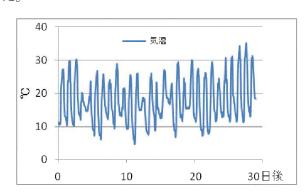


図4 気温の推移

気温は、試験期間中 10 \mathbb{C} \sim 30 \mathbb{C} の間で推移し、20 日目以降緩やかに上昇する傾向を示した。試験期間中の平均気温は 17.7 \mathbb{C} 。最高温度は 35.2 \mathbb{C} 、最低気温は 4.8 \mathbb{C} であった。

水温については気温とほぼ同様な傾向を示し、

20 日目以降緩やかに上昇した。試験期間中の平均水温は試験区で $20.2 \, ^{\circ}$ 、対照区 $20.8 \, ^{\circ}$ 。最高水温は試験区で $27.4 \, ^{\circ}$ 、対照区 $27.7 \, ^{\circ}$ 、最低水温は $14.9 \, ^{\circ}$ 、 $25.1 \, ^{\circ}$ であり、両区ともほぼ同様な傾向で、活性汚泥の活動に影響を与える $10 \, ^{\circ}$ 以下の日はなかった。

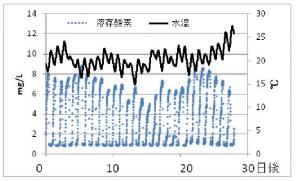


図5 試験区のDOと水温の推移

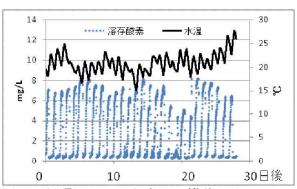


図6 対照区のDOと水温の推移

DOについても、試験区及び対照区とも同様な傾向を示している。試験区で平均 3.7 mg/L、対照区で平均 3.7 mg/L、対照区で平均 3.1 mg/L とほぼ同様な結果であった。また、曝気停止直前のDOは $4.0 \sim 8.0 mg/L$ まで上昇しているが、曝気停止・汚水投入時には、DO濃度が急激に低下し、浄化処理で必要とされる1 mg/L 以下となった。この時点で急激な脱窒が行われ、 N_2 Oが多量に排出される可能性が考えられる。なお、p Hの推移は図に示さなかったが、試験期間中試験区で 7.51、対照区が 7.08 と対照区で若干低く、試験区は、生物膜での硝化脱窒により硝酸・亜硝酸性窒素の蓄積が少なくなったためではないかと考えられた。

表2に試験期間中の汚水の性状を示した。

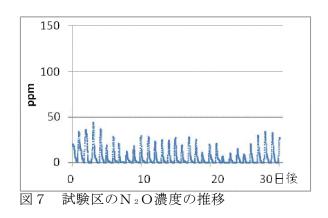
+	_	1. 尼尼巴田 十
表	2	水質調杏

	7 4 7 7 1914									
'-	рН	COD	BOD	T-N	NH 4-N	NO 2-N	NO 3-N	V S	BOD/N	COD/N
原水	7. 13	1, 473. 9	3, 163. 3	1, 148. 5	885.0	0.3	1. 2	3, 080. 0	2.75	1. 31
試験区	6. 74	196.8	26. 2	166. 3	4.7	57. 2	78. 9	720.0	_	_
除去率	_	86.7	99. 2	85. 5	99.5	_	_	76.6	_	_
対照区	6.61	198. 7	20.3	180. 7	10.6	46. 0	116. 4	720.0	_	_
除去率	_	86. 5	99. 3	84.2	98.8	_	_	76.6	_	-

投入原水の平均BOD濃度は3,163.3mg/Lであ ったが、処理水では試験区、対照区とも 20mg/L 台まで低下し、除去率は 99%と高い処理効果を得 た。T-Nについては、投入原水が 1,148.5mg/L、処理水では両区とも 85%前後の除 去率が得られていた。一方、NOx-Nについて は、試験区で 136.1mg/L、対照区では 208.4mg/L と対照区において蓄積がより多く認められた。こ れが、前述したとおり対照区のpHがより低下し ている原因と考えられた。また、期間中の投入汚 水のBOD/N比は2.75と低く、脱窒に必要とさ れる3以下であった。N2Oの発生は、BOD/ N比、COD/N比⁶⁾に影響を受けるといわれて いる。BOD/N比は前述したように 2.75、C OD/N比も 1.31 と低く、N₂Oが発生しやすい 条件であったと考えられる。

2 温室効果ガス

図7および8にN2Oの推移を示した。



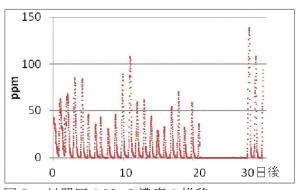


図8 対照区のN₂O濃度の推移

N₂Oの排出は、両区とも高排出期と無排出期が認められた。炭素繊維を用いた試験区は、常に50ppm 以下で推移し、最大でも 44.8ppm、平均6.1ppm であった。一方、活性汚泥法である対照区では、試験区に比べ排出される濃度が高く、50ppm を超えて排出されることもしばしばであった。また、最大濃度は試験終了間際に認められた

139.0ppm で平均濃度は 13.0ppm と試験区に対し 2倍以上であった。また、試験区には認められなかった傾向としては、試験開始後 20 日目以降無排出、もしくは極めて低濃度での排出が数日間認められその後多量に排出された。この傾向は、河原ら 7 が行った養豚汚水浄化処理施設での試験や酪農排水で実施した試験 8 、都市下水での循環方式の試験 9 でも認められており、河原らは、NO $_{2}$ の蓄積が多量排出に強く関与しているとしている。今回の試験では、対照区においてこのような傾向が認められたが、試験区においては認められなかった。これは、硝化脱窒が速やかに行われNO $_{2}$ が蓄積しなかったためと考えられた。

本試験での水質結果はは表2に示しているが、分析は週1回と少なく、低い排出期間中は分析が行えていない。このためか、処理水中の NO_2 -N蓄積には差が認められなかった。しかしながら、 NO_3 -Nの蓄積は試験区で少なかったことから、生物膜内において消化・脱窒がスムーズに進行し、無排出期と高排出期という特徴が出現しなかったと考えられた。

また、今回測定したGHGから次式により排出量を求め、その結果を図9に示した。

排出量 (mg/時) =

[1 時間ごとの平均排気濃度(mg/m³) - 1 時間ごと の平均導入濃度(mg/m³)]×排気量(m³/時)・・式 1

従来の活性汚泥法の N_2O 排出量は29.2 $g-N_2O-N/kg-N$ 、炭素繊維を用いた生物膜法では11.2 $g-N_2O-N/kg-N$ となった。Yamashitaら $^{4)}$ の20L規模の試験で得られた90%以上の N_2O の排出量削減は再現できなかったが、 $1 m^3$ 規模の試験においても炭素繊維を用いることにより、61.6%と高い削減効果が得られた。

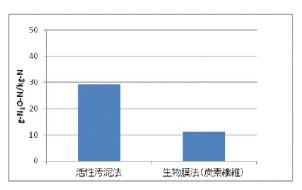


図9 N2O排出量の比較

なお、CH₄及び悪臭成分として測定したNH₃の排出量は少なく、生物膜法と活性汚泥法で大き

な差は認められなかった。

以上のことから、炭素繊維を担体として用いる 生物膜法は温室効果が高いN₂Oの削減に有効な 方法と考えられた。

今後農家への普及を図るためには実規模での試験が重要と考えられる。特に、新たに設置される浄化槽では設計段階で生物膜法の導入が検討できるが、既存の養豚場浄化槽では、活性汚泥法を用いている場合が多く、これに変えて、新たな施設整備を行うことは現実的ではない。このため、既存施設から発生するN2Oを削減するためには、浄化槽へ直接導入することが可能な炭素繊維担体を利用して、その削減効果を既存の実規模施設を用いて検討する必要がある。

引用文献

- 1)環境省(2014): I P C C 第 5 次報告書の概要一第1作業部会(自然科学的根拠).
- 2) 温室効果ガスインベントリオフィス (GIO) 編 (2016) : 日本国温室効果ガスインベントリ報告書, 第5章9-18
- 3)Osada T·Kuroda K·Yonaga Y (1995): Reducing Nitrous Oxide Gas Emissions from Fill-and-Draw Type Activated sludge Process. Water Research, 29, No6, 1607-1608.
- 4) Yamashita T• Yamamoto-Ikemoto R• Yokoyama H• Kawahara H• Ogino A• Osada T (2015): Mitigation of nitrous oxide (N_2O) emission from swine wastewater treatment in an aerobic bioreactor packed with carbon fibers. Animal
- Science Journal, 86,, 358-368) 5) JCMA 炭素 繊維協会.

http://www.carbonfiber.gr.jp/material/index.html

- 6) Hanaki K · Hong Z · Matsuo T (1992) : Production of Nitrous Oxide gas during Denitrification of Wastewater. Water Science and Technology , 26 , 5-6, 1027-1036.
- 7)河原弘文・脇屋裕一郎・永渕成樹・長田隆 (2012): Ⅱ.養豚排水処理における温室効果ガス排出削減技術の開発(第5報)一養豚汚水浄化 処理施設におけるN₂O排出特性の把握一. 佐賀 県畜産試験場試験研究成績書, 49, 38-43.
- 8) 白石誠・高取健治・水木剛・長田隆(2014): 酪農排水処理施設から発生する温室効果ガスの測 定. 日本畜産学会第 118 回大会講演要旨, 191 9) 花木啓祐・中村剛雄・松尾友矩・糸川浩紀

(2000):メタン,都市下水の硝化脱窒過程での 亜酸化窒素の発生.水環境学会誌,23,(12), 803-810. 白石・水木・山下・長田:家畜排せつ物処理過程における温室効果ガス排出削減技術の開発 - 炭素繊維担体を用いた生物膜法による温室効果ガス緩和技術-