

第2章 搾乳牛ふん尿処理起源の温室効果ガス低減技術の評価と適応手法の開発

1. 高水分ふん尿混合物の堆肥化処理からの抑制

ア 研究目的

搾乳牛ふん尿処理過程からは、温暖化ガス (Greenhouse gas:GHG) である CH_4 , N_2O が排出される (Brown et al., 2008; Davidson, 2009)。 CH_4 , N_2O は CO_2 と比較してそれぞれ 14, 310 倍の温室効果を持つことが知られており、また N_2O はオゾン層破壊に関与している (Ravishankara et al., 2009) ことから、その排出量削減が喫緊の課題である。2008 年度のわが国における家畜排泄物管理に伴う CH_4 および N_2O の排出量はそれぞれ 2,328 Gg- $\text{CO}_2\text{eq.}$, 4,768 Gg- $\text{CO}_2\text{eq.}$ であり、その内乳牛ふん尿由来は 1,878 Gg- $\text{CO}_2\text{eq.}$, (80.7%), 619 Gg- $\text{CO}_2\text{eq.}$ (13.0%) を占める。

堆肥化過程における N_2O はふん尿中の有機窒素化合物が分解されて生成する $\text{NH}_4\text{-N}$ が硝化・脱窒過程を経る際の副産物あるいは中間代謝産物として生成される (Kampschreur et al., 2009)。また、 CH_4 は有機物が嫌気条件下で CH_4 生成古細菌によって分解されることにより生成される (Demirel et al., 2005; Reeve, 1992)。特に CH_4 生成は酸素によって容易に阻害されることから、通気条件の改善

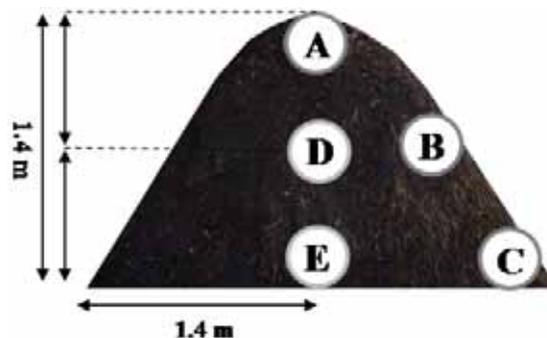


図2 - 1 堆肥サンプリングポイント

による CH_4 生成の阻害は排出量抑制の有効な手段として期待される。

そこで本研究では、北海道においてよく副資材として利用される低質乾草を用い、搾乳牛堆肥化過程における温室効果ガス排出の低減効果について実験的に検討した。また、 N_2O の排出メカニズムについて N_2O 分子内安定同位体比解析および堆肥中の窒素循環に関連する微生物群を標的とした分子生物学的手法を用いた検討を行った。

イ 研究方法

1) 堆肥化試験

表2 - 1 堆肥の化学組成

Time	Pile	Run	Weight	TS	VS	$\text{NO}_2\text{-N}$	$\text{NO}_3\text{-N}$	NH_4	TKN	C/N
			kg	%	%TS	mg/kgTS	mg/kgTS	mg/kgTS	gN/kgTS	
I	-	1	2790	27.0(0.7)	82.7(0.2)	17.8(0.7)	8.3(10.3)	512.2(107.3)	28.9(1.0)	18.8(0.9)
I	-	2	2770	24.7(0.3)	74.8(0.6)	2.3(2.2)	7.9(5.6)	843.1(48.9)	26.9(0.3)	19.6(0.3)
F	-	1	840	50.4(0.9)	68.8(0.1)	38.6(7.4)	1783.8(41.7)	47.4(7.8)	34.2(0.6)	10.9(0.1)
F	-	2	970	53.9(0.7)	62.1(1.4)	138.4(11.6)	243.8(5.7)	121.6(15.4)	33.5(0.7)	12.3(0.0)
I	C	3	4,040	19.2 (0.1)	86.1 (0.4)	0.0 (0.0)	2.5 (0.5)	5190.0 (55.0)	25.0 (0.7)	22.8 (0.0)
I	C	4	4,280	20.5 (0.2)	84.7 (0.3)	0.0 (0.0)	68.9 (1.8)	4646.3 (164.7)	27.6 (0.3)	24.2 (0.2)
I	C	5	4,060	22.7 (0.6)	82.3 (1.1)	0.0 (0.0)	0.0 (0.0)	3497.5 (51.0)	24.2 (0.6)	22.2 (0.2)
I	T	3	4,460	26.3 (0.4)	87.8 (0.4)	0.0 (0.0)	4.1 (0.9)	3322.6 (145.7)	23.4 (1.9)	22.8 (0.2)
I	T	4	4,700	28.3 (0.1)	87.0 (0.3)	0.0 (0.0)	40.1 (0.9)	2929.3 (34.0)	20.8 (1.0)	23.0 (0.1)
I	T	5	4,480	31.2 (0.7)	87.1 (0.8)	0.0 (0.0)	0.0 (0.0)	2288.0 (10.4)	21.6 (0.7)	27.5 (1.7)
F	C	3	1,550	26.5 (0.4)	74.0 (1.5)	30.3 (5.0)	19.1 (10.9)	1306.2 (252.6)	43.8 (0.5)	13.0 (0.0)
F	C	4	1,710	24.8 (0.6)	70.0 (2.9)	0.0 (0.0)	0.0 (0.0)	1353.1 (75.1)	32.3 (1.7)	13.0 (0.1)
F	C	5	2,280	24.3 (0.2)	75.1 (0.4)	61.2 (8.6)	0.0 (0.0)	451.1 (0.6)	26.7 (0.6)	16.3 (0.0)
F	T	3	1,270	45.2 (0.2)	73.5 (0.7)	75.6 (5.4)	56.7 (4.4)	870.2 (59.1)	32.6 (0.8)	12.7 (0.1)
F	T	4	1,190	52.7 (0.9)	69.1 (0.6)	44.3 (1.6)	52.6 (0.2)	460.9 (3.3)	30.0 (0.0)	12.0 (0.1)
F	T	5	1,480	47.6 (0.4)	73.7 (0.9)	57.4 (7.5)	60.4 (2.5)	375.5 (21.7)	29.1 (0.1)	13.6 (0.2)

I: 堆肥化開始時; F: 堆肥化終了時; C: 対照区; T: 試験区; TS: total solids; VS: volatile solids; EC: electrical conductivity; TKN: total kjeldahl nitrogen; C/N; carbon/nitrogen ratio.

搾乳牛ふん（水分 80-82%：対照区）、重量比 10% 乾草混合による水分調整搾乳牛ふん（水分 73-75%，試験区）を 2.5 t (Run 1-2) あるいは 4 t (Run 3-5) 堆積し 2 週間に一度の頻度で切り返しを行った。（Run 1: 5/29-8/11, 2008; Run 2: 9/2-11/14, 2008; Run 3: 7/21-9/17, 2009; Run 4: 5/27-7/21, 2010; Run 5: 9/15-11/10, 2010）

①堆肥から揮散する温室効果ガスについて、ダイナミックチャンバー法 (Osada & Fukumoto, 2001) および IPD (Infrared photoacoustic detector) を用い各種ガス (CH_4 , N_2O , NH_3 , CO_2) の連続モニタリングを行った。また、得られた N_2O サンプルについて、GC-IRMS による分子内安定同位対比解析を行った (Yoshida & Toyoda, 2000)。

②水分調整区堆積物の頭頂部、表層、中心部よりそれぞれサンプリングを行い (図 2-1)、TS (total solids), VS (volatile solids), C/N 比、全窒素を測定した。また、水抽出液について $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ を測定した。

③ 16S rRNA 遺伝子、アンモニア酸化酵素遺伝子 (*amoA*) を標的とした定量 PCR を行い、堆肥中各部位における総細菌数および β -プロテオバクテリアに属するアンモニア酸化細菌 (AOB) 数を推定した (Kowalchuk et al., 1999)。

④ 16S rRNA 遺伝子を標的とした PCR-DGGE 法により、堆肥中各部位における細菌群集を調べた (Muyzer et al., 1993)。

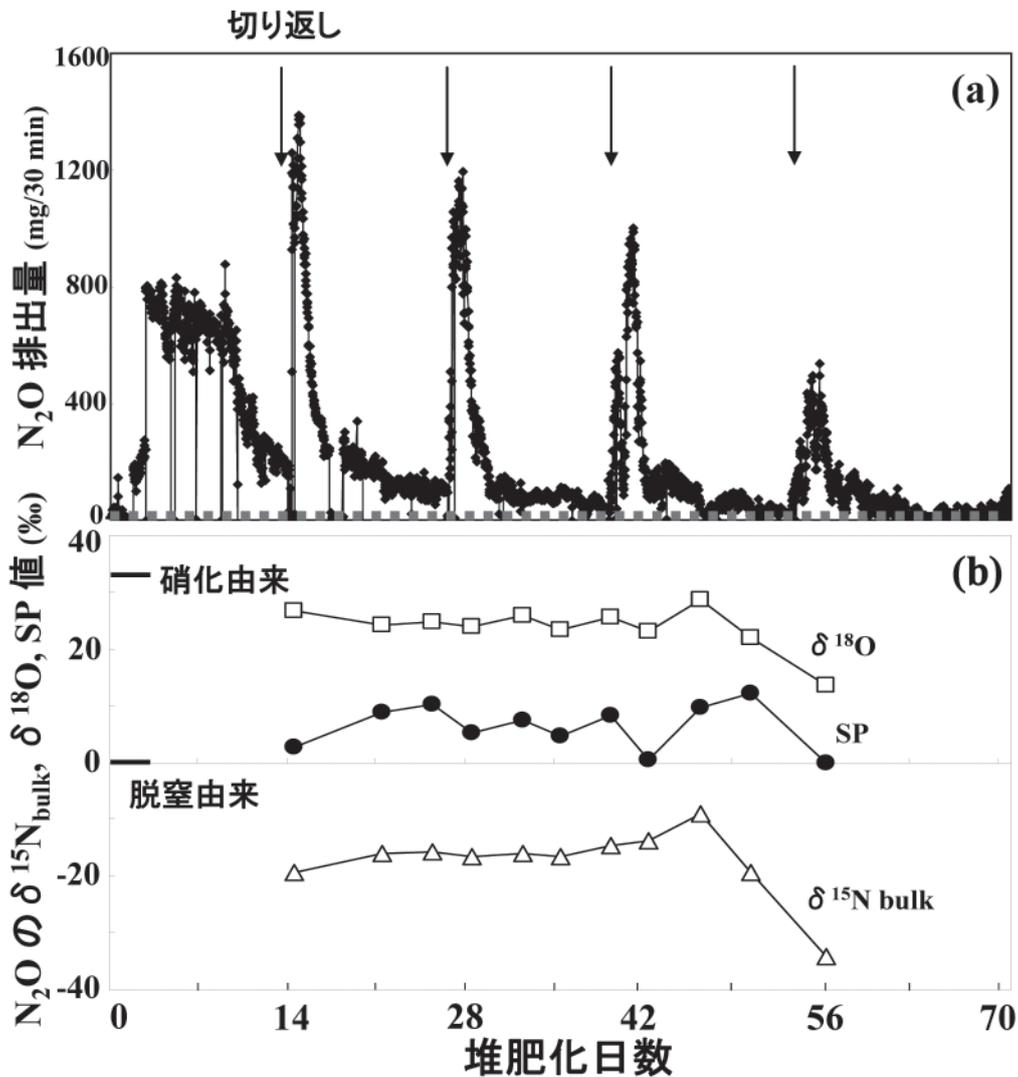


図 2 - 2a N_2O 排出パターンの推移

図 2 - 1b N_2O $^{15}\text{N}_{\text{bulk}}$, ^{18}O , SP (site preference) の推移

堆肥の化学組成を表 2 - 1 に示す。

ウ 結果及び考察

1) 重量比 10% の乾草混合による GHG 低減効果

CH₄ 排出は両区とも堆積直後および切り返し直後すぐに始まった。試験区の排出極大値はそれぞれ試験区で Run 3: 5.7, Run 4: 9.2, Run 5: 41.0 g/h であり、コントロール (Run 3: 43.6, Run 4: 36.9, Run 5: 80.0 g/h) に比べて低い排出推移を示した。堆肥化試験開始時の有機物 (VS) に占める CH₄ 排出の割合は、試験区で 5.4 ± 1.4 g/kgVS とコントロール (20.8 ± 1.3 g/kgVS) に比べ顕著に低く、重量比 10% 低質乾草混合による排出低減効果は 74.3% に達した。N₂O 排出は堆肥化中期から後期にかけての排出が主体であり、これまでに報告されているように (Maeda et al., 2010)、切り返し直後の排出が特に顕著であった。堆肥化試験開始時の窒素 (TKN) に占める N₂O-N の排出割合は、試験区で 2.7 ± 0.4 g N₂O-N/kgNinitial とコントロール (7.4 ± 2.6 g N₂O-N/kgNinitial) と比較して顕著に低く、重量比 10% 低質乾草混合による排出低減効果は 62.8% に達した。

N₂O の SP (site preference) 値、δ¹⁵N、δ¹⁸O 安定同位対比についての測定結果を図 2 - 2 b に示す。SP はいずれも低い値 (0.0 ~ 12.0‰) を示し、Sutka et al (Sutka et al., 2006) の示す脱窒時に生成する N₂O の値 (0‰) と近かった。特に、切り返し直後の N₂O の SP 値は低く (2.0 ± 2.3, n=4)、切

り返し間の N₂O の SP 値 (8.7 ± 2.4, n=7) と比べて有意に低かった (P<0.01)。このことから、堆肥化過程、特に切り返し直後に生成している N₂O は脱窒由来の比率が極めて高いことが示唆された。

2) 切り返し直前における堆肥各部位ごとの NH₄⁺-N, NO₂⁻-N, NO₃⁻-N 偏在

Run 1, Run 2 について堆肥の部位ごとにサンプリング (図 2 - 1) し、それぞれ NH₄⁺-N, NO₂⁻-N, NO₃⁻-N について測定した結果を図 2 - 3 に示した。頭頂部のサンプル (A) において顕著な NO₂-N および NH₄⁺-N の蓄積が確認された。また、Run 1 では表層 (B, C) から NO₃-N が多く検出されたのに対して、Run 2 ではこのような傾向が認められなかった。一方で、Run 1 と Run 2 の両方で、中心部 (D) および底部 (E) からは堆肥化終了時サンプルを除いて NH₄⁺-N しか検出されなかった。これらの現象は 2 週間に一度の切り返しごとに繰り返され、同様の傾向を示した。このことから、堆肥の表層、特に頭頂部において活発な硝化が起こっていることが明らかになった。

3) 堆肥の部位ごとの全バクテリアおよびアンモニア酸化菌 (AOB) 存在量

16S rRNA 遺伝子および *amoA* 遺伝子のコピー数を元に定量を行った (図 2 - 4)。16S rRNA 遺伝子は、堆肥のどの部位においても堆肥乾物 1g あたりおおよそ 1 × 10¹¹ copy 程度存在していた。これ

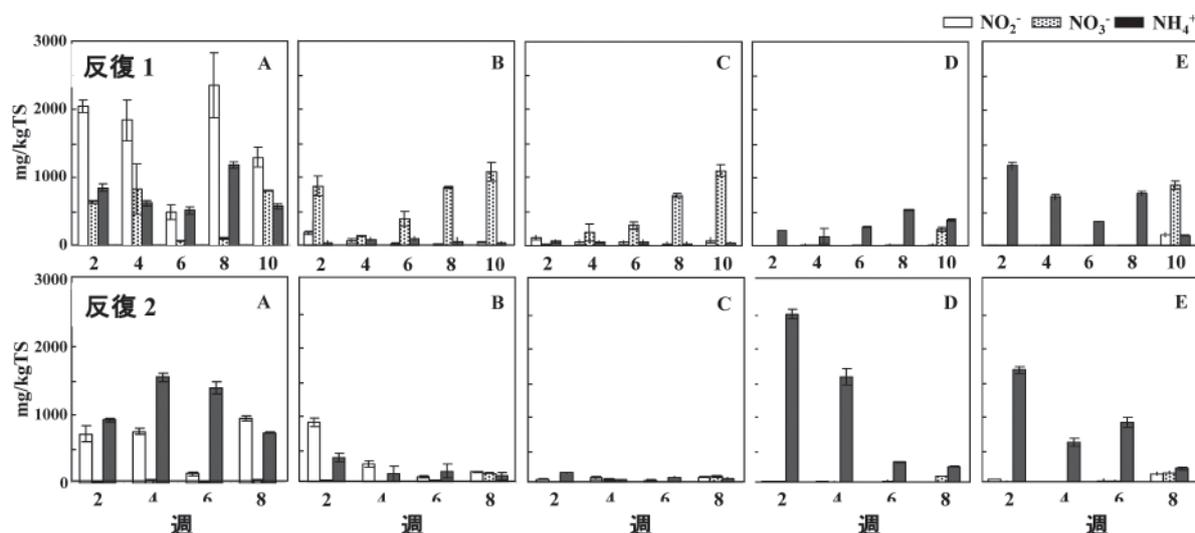


図 2 - 3 各サンプリングポイントにおける切り返し直前の NH₄⁺-N, NO₂⁻-N, NO₃⁻-N の推移

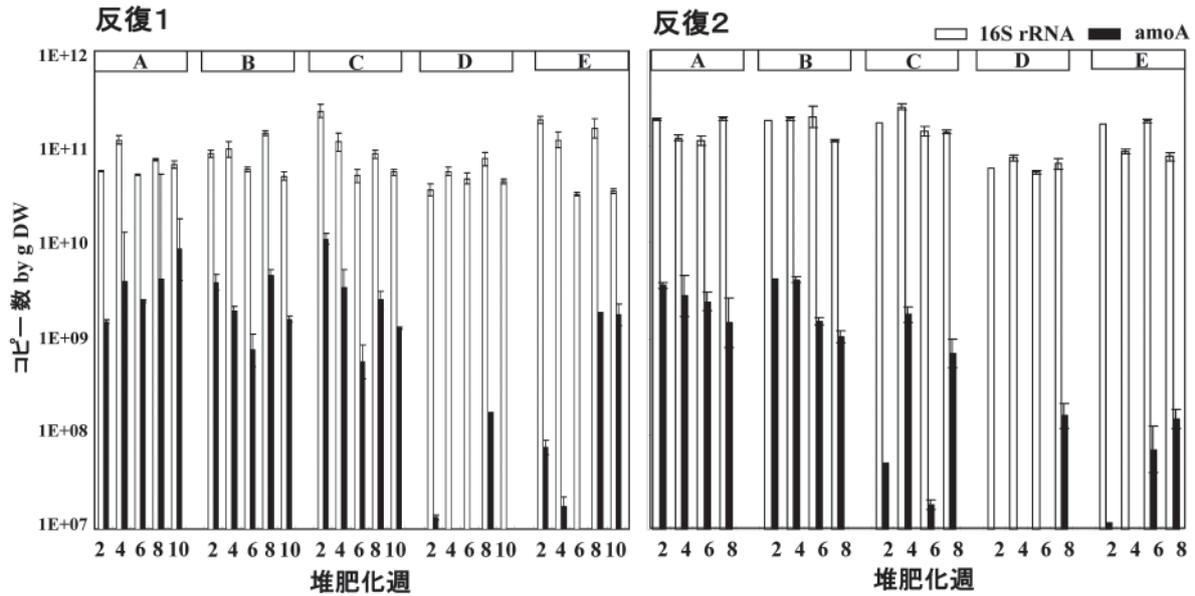


図 2 - 4 各サンプリングポイントにおける 16S rRNA, *amoA* 遺伝子コピー数の推移

に対し、*amoA* 遺伝子は特に堆肥表層 (A,B, および C) で顕著に多く、およそ 1×10^9 copy/ gDW 程度であった。一方で、特に堆肥化初期から中期にかけて、堆肥中心部 (D) および底部 (E) からは殆ど検出することが出来なかった。このことから、堆肥中の AOB は特に表層に集中して存在していることが示唆された。

本研究の堆肥表層サンプルより得られた *amoA* と CTO primer で増やした β -*proteobacteria* の AOB 由来の 16S rRNA 遺伝子について系統樹を作成した (図 2 - 5) (Purkhold et al., 2000)。その結果、得られた配列は *amoA*, 16S rRNA の両方とも、*Nitrosomonas europaea* クラスターに属する配列のみであったことから、堆肥表層において特定のグループの AOB のみがアンモニア酸化に寄与していることが示唆された。

4) 堆肥の部位ごとの 16S rRNA DGGE バンドパターンおよび PCA 解析

(Principal component analysis)

結果を図 2 - 6、2 - 7 に示した。中心部由来の DNA サンプルは、特に堆肥化初期 (2-4 週) においてゲルの下半分にバンドが集中する特徴的なパターンを示した (図 2 - 6)。PCA の結果から、堆肥化初期の中心部および底部のバンドパターンは他と著しく異なることがわかる (図 2 - 7)。一方で、

堆肥化開始から 6 週間には表層や切り返し後サンプルから得られたバンドパターンに近くなった。

中心部由来の特に強いシグナルを示したいくつかのバンド (L-Q) については、その殆ど (5/6) が *Bacilli* に属していた。また、50-60°C の高温を示した底部サンプルから検出された最もシグナルの強いバンドも中心部とは異なる種類の *Bacilli* であったことから、高温部においては主に *Bacilli* に属する細菌群が優占していることが示唆された。これらのバンドは堆肥化の進行と共に弱くなり、堆肥化後半のサンプルからは検出されなくなった。また、50-70°C と高温であった中心部および底部より *Clostridium* に属するバンドが強いシグナルで検出された (P, S, W)。

一方で、表層由来サンプルにおいては堆肥化の開始から終了までそれほど大きく菌叢が変化することはなかった (図 2 - 6)。強いシグナルを示したバンド (c-1) はいずれも *bacteroides*, *crostridia* あるいは *alpha, gamma-proteobacteria* に属している中温細菌由来の配列であった。フルスケールの堆肥化処理においては、*Bacilli* に属する微生物群は堆肥中心部の高温部のみで優占的であり、表層に近い中温域の部分では *bacteroides*, *crostridia* あるいは *proteobacteria* が優占するなど、部位ごとに異なる環境に応じてそれぞれ異なる微生物群集が棲み分けしていることが明らかとなった。表層における硝化・脱窒に寄与しているグループは、これらの *bacteroides* や *proteobacteria* が

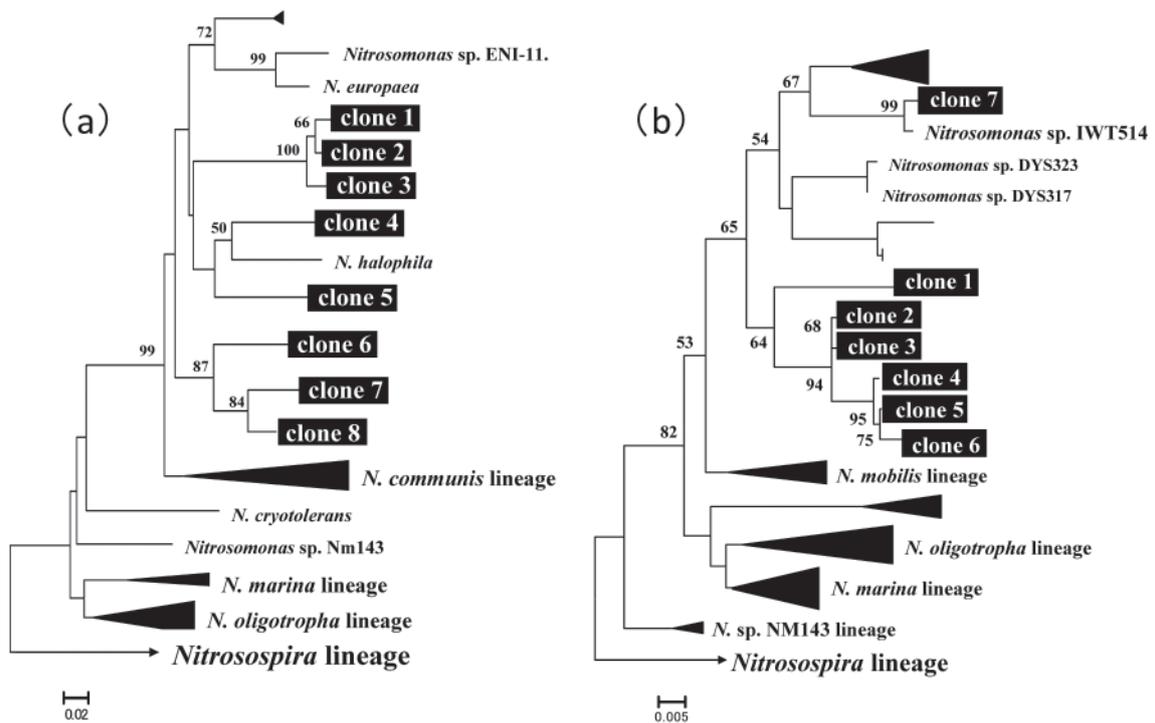


図 2 - 5 表層より得られたアンモニア酸化菌由来 16S rRNA (a), *amoA* (b) 遺伝子配列の系統樹

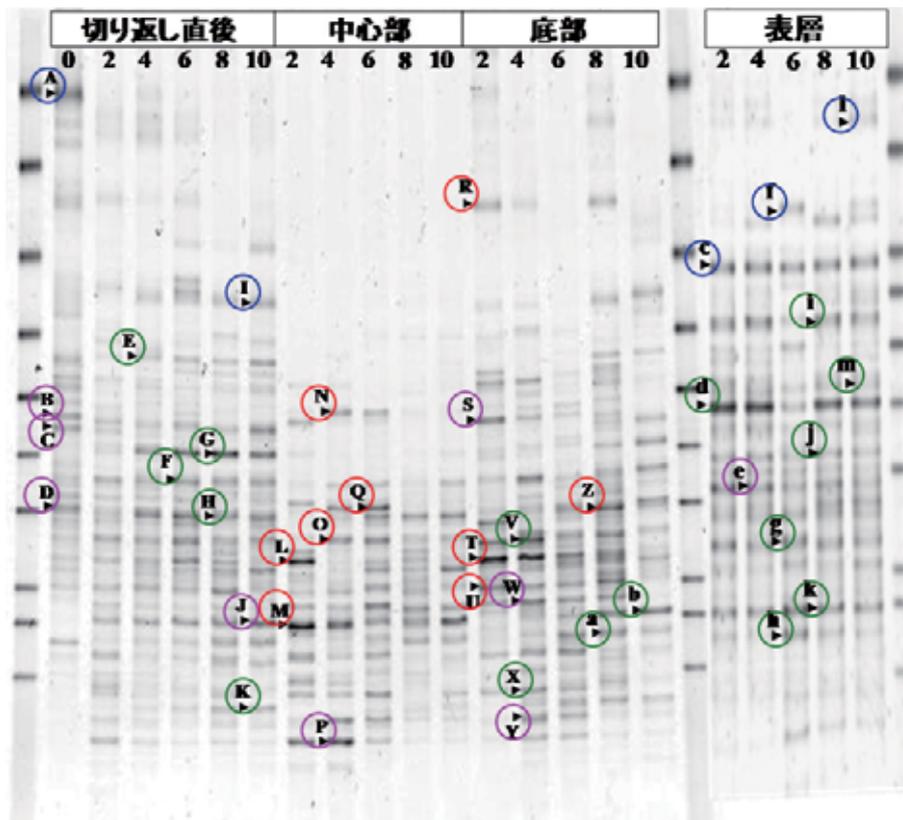


図 2 - 6 各サンプリングポイントにおけるバクテリア群集の推移 (16S rRNA 遺伝子の DGGE 解析結果)

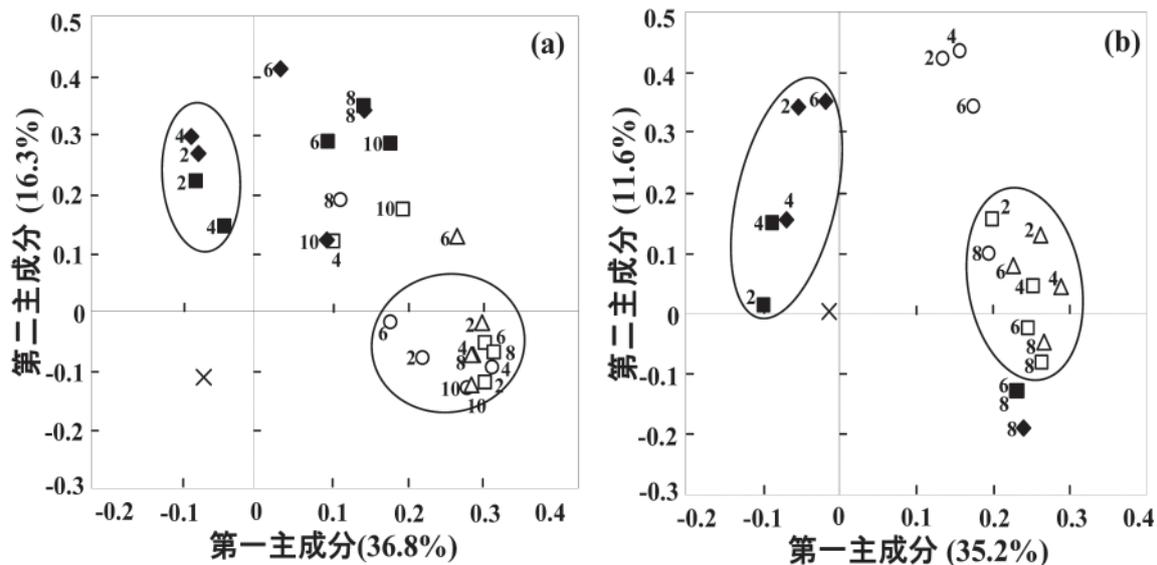


図2 - 7 バクテリア群集の主成分分析結果 a: 反復1、b: 反復2

主体のバクテリア群集であると考えられる。

エ 今後の課題

乾草混合によって N_2O 排出も大幅に低減できることが明らかになったが、その低減メカニズムは不明である。更なる GHG 低減策の確立のためより詳細な検討が必要である。

オ 要約

本研究では、搾乳牛ふん尿堆肥化過程において低質乾草投入による温室効果ガス排出低減効果について、 CH_4 で 74.3%、 N_2O-N で 62.8% の排出低減可能であることを明らかにした。また、堆肥化過程における切り返し直後の N_2O 排出モデルとして、表層において蓄積された NO_2-N 、 NO_3-N が切り返しによって誘導される脱窒過程で生成されるという機構について明らかにした。堆肥表層における NO_2-N 、 NO_3-N と AOB の存在量が符合していたことから、堆肥表層における硝化には *Nitrosomonas-like* AOB が関与している可能性が高い。高温となる中心部および底部では *Bacillus*、*Clostridium* の優占が認められ、表層では *proteobacteria* や *bacteroides* に属する中温菌が主要な細菌群であるという明確な傾向が認められた。堆肥中の微生物群集は温度域の異なる部位で明確に異なり、特に初期では層状構造を示していることが示された。

カ 参考文献

- Brown, S., Kruger, C., Subler, S. 2008. Greenhouse gas balance for composting operations. *Journal of environmental quality*, 37 (4) , 1396.
- Davidson, E. 2009. The contribution of manure and fertilizer nitrogen to atmospheric nitrous oxide since 1860. *Nature Geoscience*, 2 (9) , 659-662.
- Demirel, B., Yenigun, O., Onay, T. 2005. Anaerobic treatment of dairy wastewaters: a review. *Process Biochemistry*, 40 (8) , 2583-2595.
- Kampschreur, M., Temmink, H., Kleerebezem, R., Jetten, M., van Loosdrecht, M. 2009. Nitrous oxide emission during wastewater treatment. *Water research*.
- Kowalchuk, G., Naoumenko, Z., Derikx, P., Felske, A., Stephen, J., Arkhipchenko, I. 1999. Molecular analysis of ammonia-oxidizing bacteria of the β subdivision of the class Proteobacteria in compost and composted materials. *Applied and Environmental Microbiology*, 65 (2) , 396-403.
- Maeda, K., Morioka, R., Hanajima, D., Osada, T. 2010. The impact of using mature compost on nitrous oxide emission and the denitrifier community in the cattle manure composting process. *Microbial Ecology*, 59 (1) , 25-36.
- Muyzer, G., De Waal, E., Uitterlinden, A. 1993.

Profiling of complex microbial populations by denaturing gradient gel electrophoresis analysis of polymerase chain reaction-amplified genes coding for 16S rRNA. *Applied and Environmental Microbiology*, 59 (3) , 695-700.

Osada, T., Fukumoto, Y. 2001. Development of a new dynamic chamber system for measuring harmful gas emissions from composting livestock waste. *Water Sci Technol*, 44 (9) , 79-86.

Purkhold, U., Pommerening-Roser, A., Juretschko, S., Schmid, M., Koops, H., Wagner, M. 2000. Phylogeny of all recognized species of ammonia oxidizers based on comparative 16S rRNA and amoA sequence analysis: implications for molecular diversity surveys. *Applied and Environmental Microbiology*, 66 (12) , 5368-5382.

Ravishankara, A., Daniel, J., Portmann, R. 2009. Nitrous oxide (N₂O) : the dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century. *Science*, 326 (5949) , 123.

Reeve, J. 1992. Molecular biology of methanogens. *Annual Reviews in Microbiology*, 46 (1) , 165-191.

Sutka, R.L., Ostrom, N.E., Ostrom, P.H., Breznak, J.A., Gandhi, H., Pitt, A.J., Li, F. 2006. Distinguishing nitrous oxide production from nitrification and denitrification on the basis of isotopomer abundances. *Applied and Environmental Microbiology*, 72 (1) , 638-644.

Yoshida, N., Toyoda, S. 2000. Constraining the atmospheric N₂O budget from intramolecular site preference in N₂O isotopomers. *Nature*, 405 (6784) , 330-4.

(前田高輝)

2. スラリー管理からの抑制

ア 研究目的

酪農の経営規模が大型化するのに伴いフリーストール牛舎の導入事例が増加し、また、ふん尿からのエネルギー利用（メタン発酵）が温暖化抑制技術と位置づけられて推奨されている事もあり、牛舎から発生する高水分ふん尿の管理をスラリー処理で行う農家が北海道を中心に増えつつある。しかし、スラリーを有機性肥料として利用できる十分な牧草地や作物栽培農地を見つけることが難しく、また、スラリー貯留時の環境負荷を懸念して導入が進んでいないのが現状である（白石ら、2009）。欧州の酪農の大部分が採用している方式ではあるが我が国での導入は少数に止まり、混合状態で牛舎から搬出されるふん尿を効果的に管理できる他の処理方法も見あたらない。スラリーとしてふん尿を扱う処理システムは、固液分離を基本にした処理方式に比べて単純であり、窒素やりんなどの肥料資源の有効利用の点でも長所が多い。地球環境を新たに考慮し、総合的に環境に優しい農業本来の循環物質を展開する上でスラリー処理の問題点である貯留時の GHG 発生抑制は不可欠である（湊ら 2009a、2009b、長田ら 2009c、2010b）。本研究課題では易分解性有機性を含有する嫌氣的になりやすいスラリー管理、とりわけ期間の長い貯留時における温室効果ガス発生抑制に効果的な管理方法を検討する。

イ 研究方法

1) 国内のスラリー貯留槽の調査

貯留槽起源の温室効果ガス発生抑制試験の基礎的情報を得るために、酪農家のスラリー貯留状況や物性の情報を収集した。道内を中心に 40 カ所酪農家のスラリー貯留状況を調査し、物性などの情報を収集した。また、西南日本で導入事例の見られる地下ピット型の貯留実態についても補足的に調査を行った（長田 2009a）。

スラリー調査の測定項目は以下の通り；

貯留状態のスラリー（0 20cm 深）

/ 温度（液温、周辺）、pH、ORP、EC

採取スラリーサンプル（1L 程度）

/ 固形分（MC/DM/VS）、窒素（TN、NH₄、NO_x）

2) 小型の試験装置の設計と試験方法の検討

スラリー管理方法の改善による温室効果ガス削減抑制の効果を検証するシステムを検討した。試験装置の貯留容積や妥当な設定条件の作出を、調査で得られたデータを元に行う。

3) 試作装置を用いたスラリー貯留からの GHG 測定試験

試作された 2 種の試験装置、すなわち、貯留最大

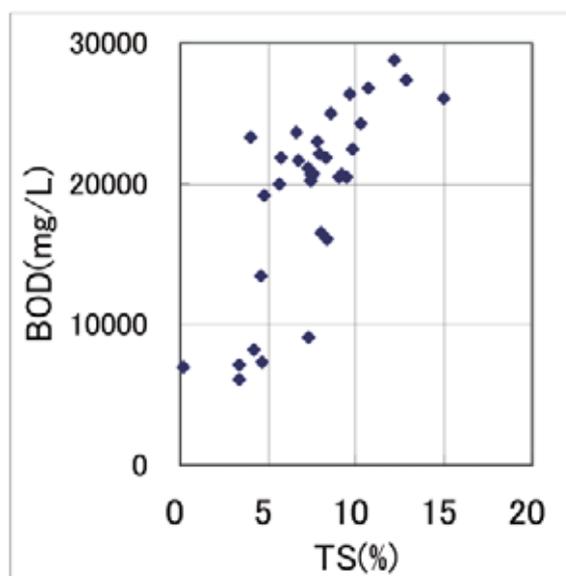


図 2 - 8 道内の酪農家貯留スラリーの BOD（生物化学的酸素要求量）と TS（乾物%）値

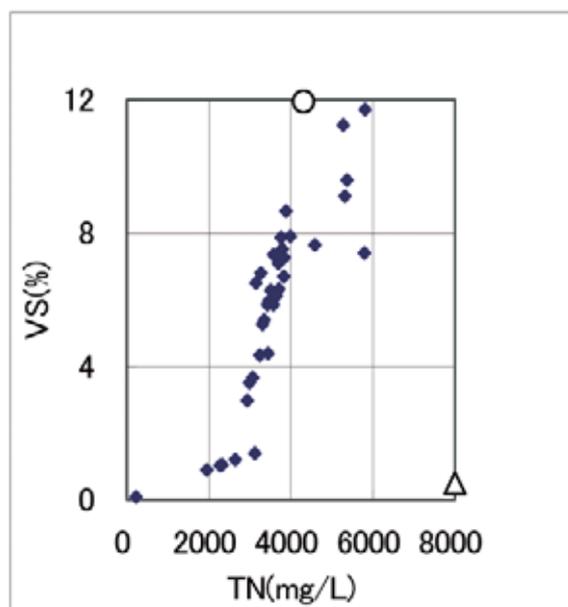


図 2 - 9 道内の酪農家貯留スラリーの VS（有機物%）と TN（全窒素%）値

容積 200L の試験装置、貯留最大容積 12.5L の恒温培養槽内で温度制御可能な試験装置を用いてスラリーからの温室効果ガス発生測定を行った。

ウ 結果及び考察

1) 国内のスラリー貯留槽の調査

スラリー貯留施設の多い道東を中心に国内 30 余事例を調査・分析した(図 2-8、図 2-9)。夏季(6-9月)と秋季(10-11月)の調査データによれば、貯留スラリーの平均像は pH 6.9、ORP -244mV、TS 7.6%、VS 5.8%、BOD 19,700mg/L、TN 3,710mg/L、NH₃-N 2,100mg/L であり、おおむねどの項目も 4 割程度の CV でばらついていた。固形分と易分解性有機物(BOD)の指標で見ると、TS 8%、BOD 25000mg/L 程度の濃厚なスラリーから、ふんの一部が堆肥化処理へ分離された比較的固形分の少ないスラリー(TS 4%程度、BOD 8000mg/L)に大きく分かれる(図 2-8)。また TS 4%程度、BOD 8,000mg/L の事例は VS が 1%未満であり、CH₄の発生ベースである有機物(VS)と N₂O の発生ベースである窒素(TN)の関係(図 2-9)から、固液分離を徹底させた、本州で多く見られる「尿だめ」と考えられる。この結果から、液状ふん尿の貯留は固形分濃度で大きく 2 つに分類されることが判った。また、固形分濃度によらず貯留物の ORP は深さ 10-15cm 程度でメタンが生成可能な還元電位に低下、品温は外気の日間変動に影響されず昼夜ほぼ一定で、夏季は 22°C 前後、秋季は 16°C 前後であった(図 2-10)。

上記のスラリー性状調査の結果と温室効果ガス発生の実態調査結果から実施施設におけるスラリー貯留性状の情報が得られた(図 2-11 に示すような道内調査農家の pH、ORP 変動事例、図 2-12: ORP 測定)。

さらに、西南日本の地下ピットの貯留ふん尿について 53 事例についてサンプルを各県より送付して頂き分析したところ、大きく地上型ピットの結果と異なるところがないと判った(表 2-2)。利用方法を基準に 3 種の貯留物に分類すると以下の通り：
①スラリー(糞尿混合)自然流化式牛舎などにおいて、ふんと尿が区分されことなく混合され、液状肥料としてそのまま利用しているもの。
②固液分離

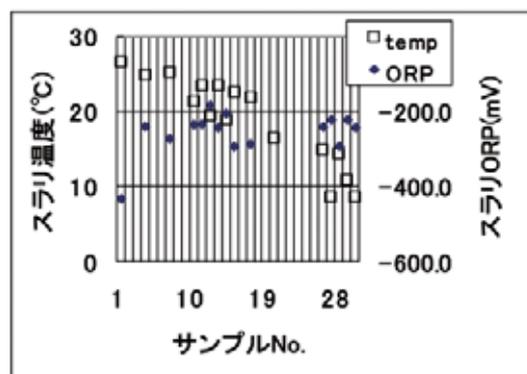


図 2 - 10 道内の酪農家貯留スラリーの温度と ORP 値

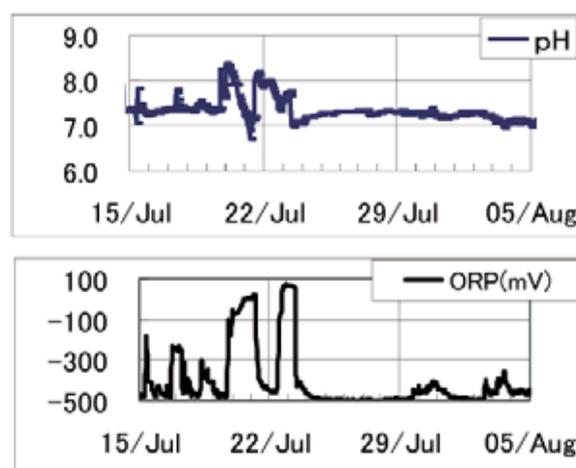


図 2 - 11 道内のある農家のスラリーの性状 (pH と ORP の変化)



図 2 - 12 道内の酪農家貯留スラリーの ORP 測定

液(分離固形物)ふんと尿が区分されことなく一旦混合され、その後、固液分離機を通して分離し、液状物を液状肥料として利用しているもの。
③尿(分離液状物)牛舎などにおいて、ふんと尿がおおむね区分され、その尿分を液状肥料として利用して

表 2 - 2 地上タンク（道内）と地下ピット（西
南日本）のスラリーの性状

地上タンクサンプル							
区分	サンプル数	TS(%)		VS(%)		T-N(%)	
		平均	S.D	平均	S.D	平均	S.D
スラリー	24	9.26	2.30	7.35	1.71	0.39	0.08
固液分離	5	4.99	0.81	3.83	0.67	0.31	0.02
尿	1	0.17		0.09		0.02	
地下ピットサンプル							
区分	サンプル数	TS(%)		VS(%)		T-N(%)	
		平均	S.D	平均	S.D	平均	S.D
スラリー	33	9.76	2.40	7.50	1.74	0.48	0.08
固液分離	9	4.98	1.69	3.65	1.52	0.36	0.10
尿	11	3.30	1.04	1.68	0.99	0.48	0.15

いるもの。この3種に今回行った調査サンプルの性状を区分してみると表2-2のようになる。道内地上型タンクと地下ピットの性状を比較しても大きく異なることはなかった。この課題では、主にメタン削減対象として重要なスラリーの平均像はTS 9.2 - 9.8%、VS 7.3 - 7.5%、TN 3,900 - 4,800mg/Lと想定した。

2) 小型の試験装置の設計と試験方法の検討

貯留スラリーからの温室効果ガスの実測事例や上記の調査で得られた貯留スラリーの実態を下記の様に整理し、2種の試験装置を試作した。

a) スラリーから発生する温室効果ガスの主体はメタンであり、VSが7%あり貯留期間が半年程度と推定されるスラリー貯留の事例では1頭の搾乳牛から排泄されるふん尿あたりCH₄ 100 g /dの発生と算定された。この発生量は畜体からのメタン発生の1/2 - 1/3程度であり、その発生抑制が要請される（湊ら 2009a）。また固形分の低いスラリーでは硝酸性窒素が検出される事例もあることから一酸化二窒素についても対策を検討する必要がある（湊ら、2009、長田ら、2009）。

b) 道内の調査農家において固形分の濃淡によらず、スラリーのわずか15cm深でメタン発生に十分な還元条件になっており、冬季でも10度程度下記には25度程度の温度条件である（図2-10、図2-11）。

c) このため、スラリー貯留からの温室効果ガス抑制の技術開発・評価装置は、以下のような性能が必要と考えられた。

<システム>

2Lあるいは200L程度の液容量のプラスチック容器、深さ30cm程度、上部に蓋・換気できる構造、温度、スラリー表層の構造等を制御要因として検討<スラリー>

9%程度のTS（DM）濃度の試料について評価試験を行う。必要に応じて4%程度のものにも測定を行う。



図 2 - 13 200L の試作試験装置

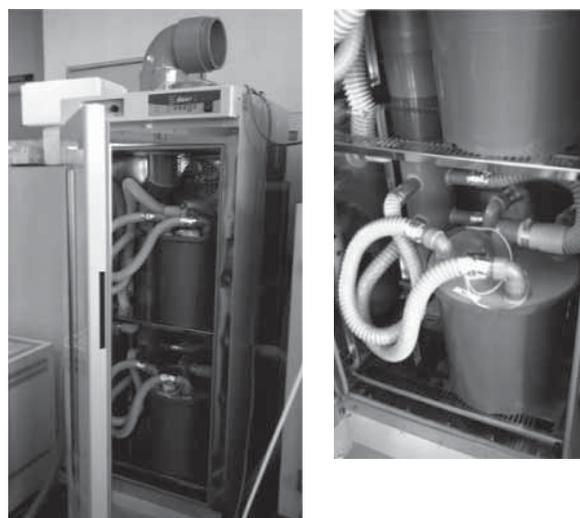


図 2 - 14 12.5L の試作試験装置

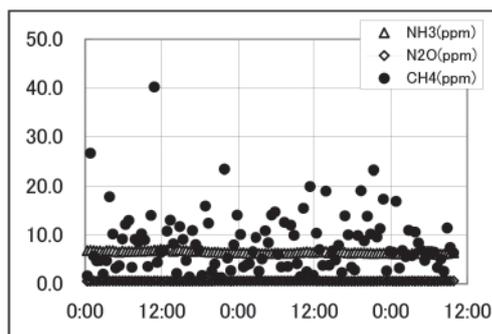


図 2 - 15 12.5L の試験装置からの温室効果ガス濃度変化

<分析頻度>

初発 / 中間 / 最終 (2-3 ヶ月)、ガスは 30 分程度のインターバルで継続測定

<試験装置>

・ 200L スラリー試験装置 (図 2 - 13)

貯留槽 / 200L の最大容量 (高さ 93cm* 直径 55cm)、スラリー深度 50cm での試験設定 (80cm 程度まで可能) / 上部に定量換気できる構造の蓋 (プラスチック性) / 換気装置: リングプロア VFC108P 0.5m³/min (実測最大)

・ 12.5L スラリー試験装置 (図 2 - 14)

下記試験用貯留槽は恒温装置内に設置される。

恒温槽 / 0-40 度 を 3 度程度の誤差で制御、貯留槽 / 12.5L の最大容量、スラリー深度 20cm での試験設定 (30cm 程度まで可能) / 上部に蓋・定量換気できる構造でプラスチック性、換気装置 / リングプロア VFC068P 5 30 L/min (浮き球流量計で流量制御)

d) 12.5L 試験装置に、TS 9%、VS 7.5%、TN 4,000mg/L のスラリー 8L を貯留して予備試験を行った。平均 10ppm のメタン濃度が貯留物から測

定され、削減効果の検証には、やや濃度が不足すると思われた (図 2 - 15)。このため、今回の削減方法試験Ⅱは 200L の試験装置を用いて検討を行う事とした。

3) 試作装置を用いたスラリー貯留からの GHG 測定試験

200L 容試験装置にスラリーを 80L 充填し発生ガス測定を開始したところ、全てのガス発生は、充填初期 1 ヶ月は非常に低く、削減の対象となるメタン発生は図 2 - 8 のように 4-5 週間後によく上昇する状況であった。削減試験は、その後 2 週間程度を経てメタン発生の安定を見て開始した (図 2 - 16) の 7/20-26 および 8/4-10)。

200L の試験装置を用いて GHG 削減試験を行ったところ、スカムの形成等のスラリー貯留物表層への蓋状物形成に関して明確に削減効果を確認できるものがなかった。

75L のスラリーを 2 ヶ月以上貯留してメタン発生が盛んになった定常状態でスラリー表層 15cm 深に 100mL の注水を 1 日 1 回行い酸化層の形成を促した。注入期 7 日間のメタンが対照区に比較し明確に低減することを確認した (図 2 - 16、削減率 31%、P<0.001)。

工 今後の課題

200L の試験装置を用いて行った試験で得られた注水による GHG 削減効果について追試による検証を行う。

オ 要約

国内スラリー貯留を調査し、液状ふん尿の貯留は

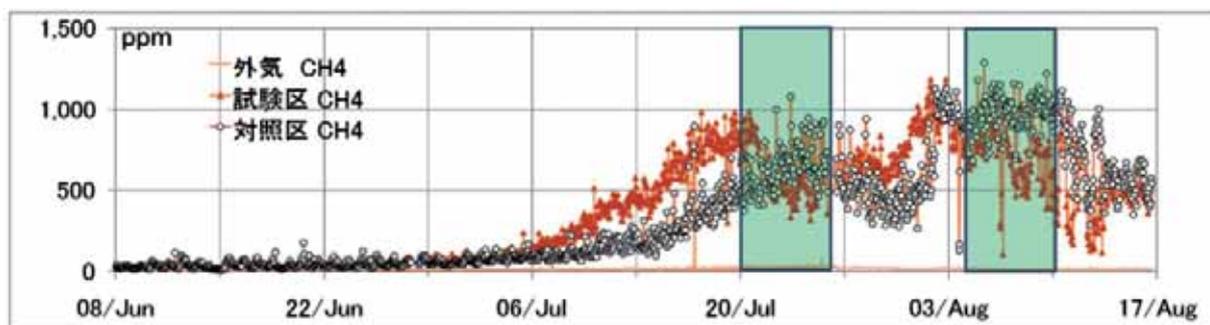


図 2 - 16 200L の試験装置から発生するメタン濃度の変化 (網掛け部分が削減方策の評価期間)

固形分濃度で大きく2つに分類した：固形分含有率が高いTS 9%、TN 4000mg/L、固形分が1%程度の「尿汚水」。固形分濃度によらず貯留物のORPは深さ10-15cm程度でメタンが生成可能な還元電位に低下、品温は外気の日間変動に影響されず昼夜ほぼ一定であった。200Lの試作試験装置を用いてTS 9%、VS 7.5%、TN 4,000mg/Lのスラリーを対象に削減効果の検討を行なった結果、表層下15cm程度に注水を毎日行う事でメタンの削減が計れる可能性を示唆する結果が得られた。

カ 参考文献

長田隆：家畜排せつ物起源の温室効果ガス定量測定、ぶんせき（日本分析化学会）、1-10、2010a

長田隆：畜産に由来する温室効果ガス、畜産の研究2月号（養賢堂）、1-10、2010b

長田隆、湊啓子、田村忠、原田泰弘、皆川啓子：小型チャンバーを用いたスラリー貯留からの温室効果ガス発生量の測定、日本畜産学会第110回大会講演要旨、152、2009a

湊啓子、田村忠、甲田裕幸、原悟志、山川政明、原田泰弘、皆川啓子・長田隆：乳牛ふん尿スラリー貯留施設から発生する環境負荷ガスの定量、日本畜産学会第110回大会講演要旨、152、2009a

白石誠、水木剛、梯洋介、原田泰弘、皆川啓子、長田隆：BOD容積負荷の相違が酪農排水処理施設から発生する環境負荷ガスに及ぼす影響、日本畜産学会第110回大会講演要旨、150、2009

長田隆：家畜排せつ物起源発生 of 把握と削減量証明、東京国際フォーラム、2009b

湊啓子：乳牛スラリーから発生する温室効果ガス測定チャンバーシステム、東京国際フォーラム、2009b

長田隆：畜産に由来する温室効果ガス、日本畜産環境学会シンポジウム、2009c

長田隆：家畜排せつ物処理施設からの温室効果ガス測定、TXテクノロジーショーケース、2010c

(長田 隆)

3. 汚水浄化処理からの抑制

ア 研究目的

乳牛舎から毎日発生する高水分ふん尿の管理は、地域環境保全を目的に悪臭や水質汚濁について取り組みが強化されてきた。近年の淡水資源枯渇から、人為的水資源汚染防止と保全強化の必要性が高まっている。飼養規模 50 頭の経営で毎日 1 m^3 程度発生する酪農雑排水は、利用性も低く、特に公共水系の水質汚染防止のために排水中の窒素やりん等の浄化処理を行う必要がある。このような汚水の処理では、一般に活性汚泥法などの生物学的処理法が適用されるが、不適切な管理のためにメタンや一酸化二窒素、アンモニアなどの温室効果ガス (GHG) が発生する危険性がある。日本国内はもちろん、高温多雨な気象条件であるアジアモンスーン地域では汚水浄化処理が集約的な農業展開には不可欠であり、この区分での温室効果ガス発生削減技術が求められている。易分解性有機性を含有する嫌氣的になりやすい汚水の温室効果ガス、特に汚水処理時に発生する一酸化二窒素に焦点を置いて、発生抑制に効果的な管理方法、具体的には曝気方法として養豚排水処理に用いられ (Osada ら、1991、金ら、1999)、窒素除去に効果的であるとされる (木持ら、1998) 間欠曝気法の導入を検討する。

イ 研究方法

1) 酪農雑排水の回分式処理における GHG 発生状況の確認

養豚の尿汚水に比して低濃度であるため、間欠曝気法の効果が現れにくいと考えられる酪農雑排水について、簡易な回分式の試験を行い、常時曝気運転と間欠曝気運転での GHG 発生状況を調査した。

①試験装置

曝気量、液温、攪拌速度を制御可能なジャーファーマンタ 2 基 (東京理科 MBF-500ME、図 2 - 17) を小型試験装置として用いた。

・処理対象原水及び種汚泥

当所内総合畜舎パーラーの作業排水およびパドックからの流出水が混合した酪農雑排水を、膜分離式活性汚泥法処理施設の沈砂槽から採取し、試験対象原水として用いた。また、同処理施設の活性汚泥槽から採取した汚泥を馴養し、種汚泥とした。

②測定

槽内環境については pH および ORP センサにより、発生ガスについては光音響マルチガスモニタ (INNOVA1412) によりアンモニア (NH_3) と一酸化二窒素 (N_2O) について連続的に計測した。投入原水及び試験開始・終了時には水質サンプルを採取し、全有機炭素 (TOC)、生物化学的酸素要求量 (BOD)、全窒素 (TN)、全リン (TP)、硝酸態窒素 ($\text{NO}_3\text{-N}$)、アンモニア態窒素 ($\text{NH}_4\text{-N}$) を測定した。

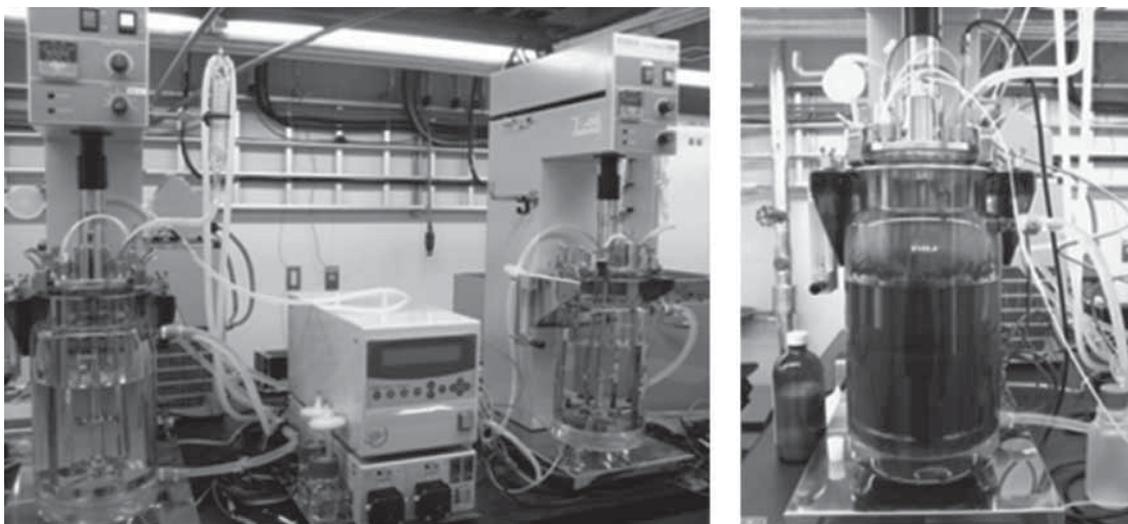


図 2 - 17 試験装置 (左) および活性汚泥槽 (右)

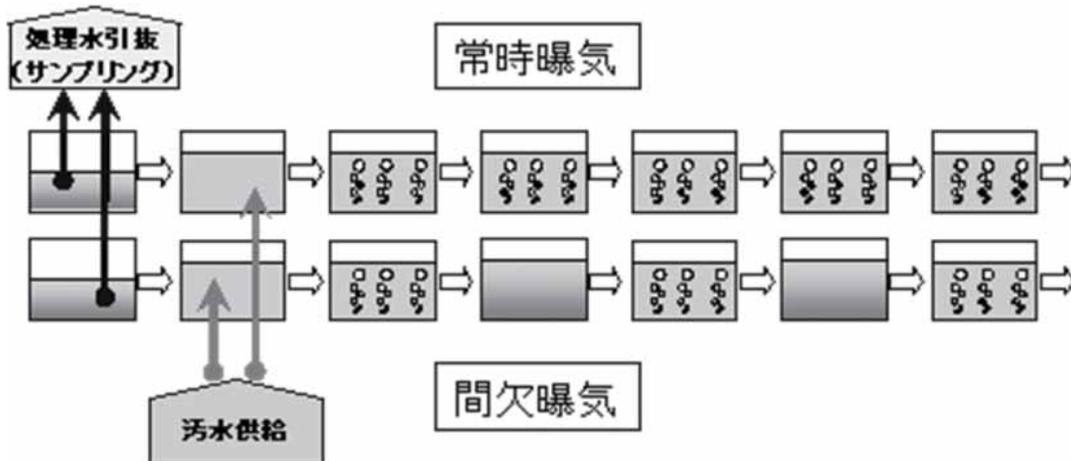


図 2 - 18 常時曝気と間欠曝気のサイクル

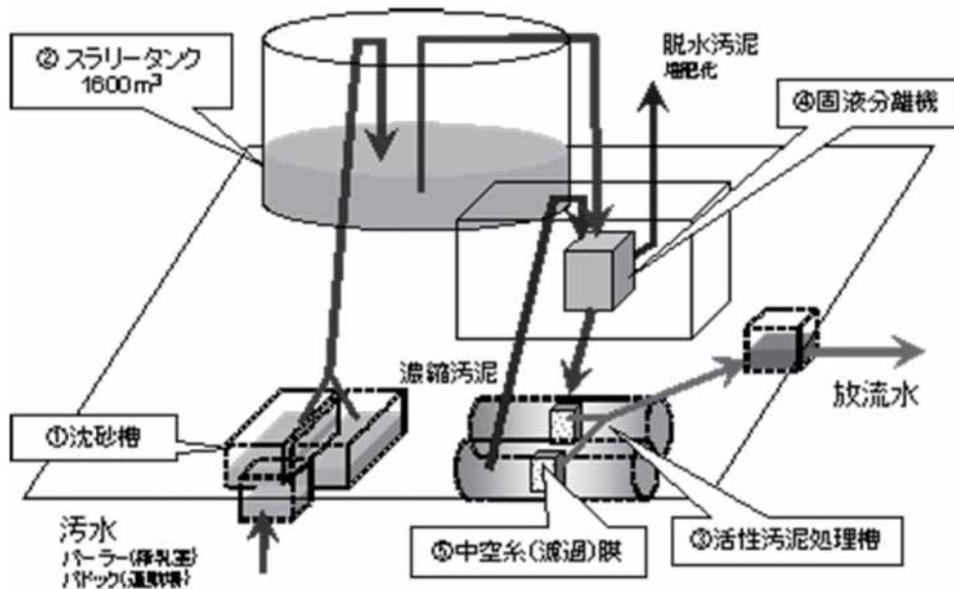


図 2 - 19 膜分離式活性汚泥法酪農雑排水処理プラント

2) 酪農雑排水の連続式処理における GHG 発生状況と間欠曝気運転の効果

実際の排水処理施設の運転を模して、汚水を連続処理して試験を行った。

①試験装置

1) と同様ジャーフエーメンタ 2 基を用いた。

②処理対象原水及び種汚泥

当所内総合畜舎パーラーの作業排水およびパドックからの流出水が混合した酪農雑排水を、膜分離式活性汚泥法処理施設の沈砂槽から採取し、攪拌により水質を均質化させ冷凍保存したものを試験対象原水として用い、日一回投入して連続式の処理を行った (図 2 - 18)。また、活性汚泥槽から採取した汚泥を馴養し、種汚泥とした。

③測定

槽内環境については pH および ORP センサにより、発生ガスについては光音響マルチガスモニタ (INNOVA1412) により一酸化二窒素とアンモニアについて連続的に計測した。投入原水及び試験開始・終了時には水質サンプルを採取し、TOC、BOD、TN、NO₃-N、NH₄-N を測定した。

3) 既存酪農雑排水処理施設への間欠曝気運転適用による GHG 低減効果の実証

小型試験装置にて得られた知見を、実規模の処理施設に応用して試験を行った。

①試験装置

通常は常時曝気運転を行っている所内の膜分離式

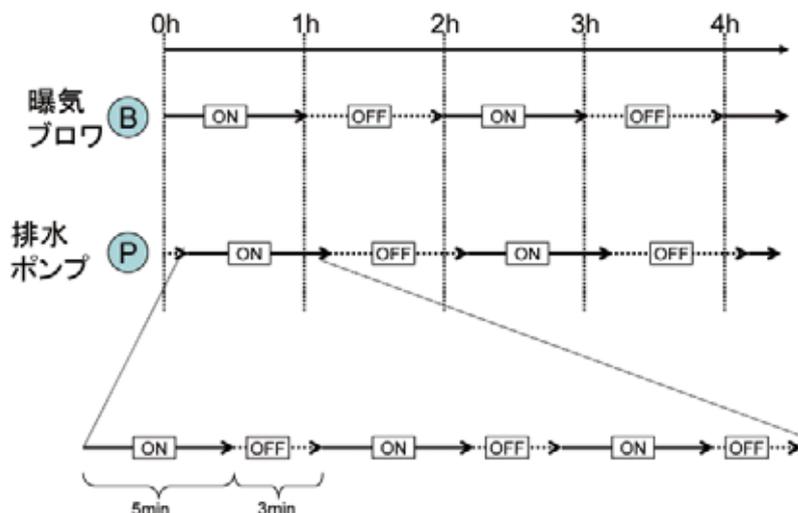


図 2 - 20 間欠曝気時のタイマーによるブロウ・ポンプ制御

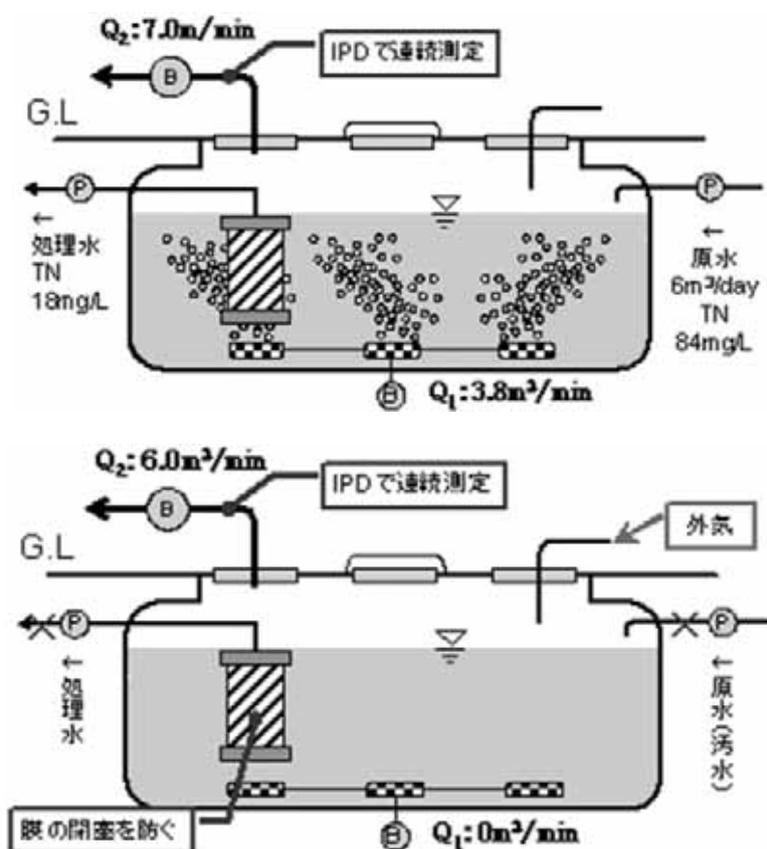


図 2 - 21 常時曝気時（上）と間欠曝気時（下）

活性汚泥法処理施設（図 2 - 19）を用い、曝気時間をタイマーにより制御して間欠曝気運転を行った（図 2 - 20）。試験期間中は、曝気槽上部の点検孔から、常にブロウにより排気を吸引し（図 2 - 21）、発生したガスの全量を採取した。

②測定

ブロウにて吸引した排気について、光音響マルチガスモニタにより一酸化二窒素とアンモニアについて連続的に計測した。処理施設の曝気槽直前の流量調整槽から原水のサンプルを採取、処理水サンプルは曝気槽直後の放流口から採取し、TOC、BOD、TN、NO₃-N、NH₄-N を測定した。

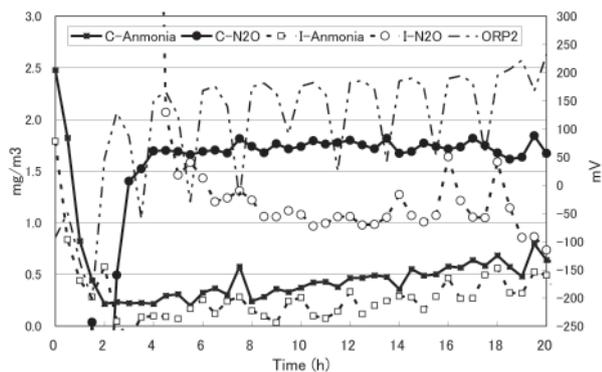


図 2 - 22 回分式処理時の常時曝気および間欠曝気における N_2O とアンモニアの発生
 常時曝気（慣行法）側
 アンモニア：○、 N_2O ：□、間欠曝気側
 アンモニア：○、 N_2O ：□、ORP：二点鎖線

ウ 結果及び考察

1) 酪農雑排水の回分式処理における GHG 発生状況の確認

試験装置の運転条件及びサンプリング、計測手法について検討し、評価系の構築について知見を得ることができた。回分式の処理を行い、慣行法である常時曝気運転に加え、間欠曝気運転（1時間曝気、1時間静置サイクル）を行った場合についてガス発生を観察した。間欠曝気運転の静置時には槽内 ORP は下降したが、曝気の再開とともに速やかに上昇し、それに伴い一酸化二窒素の発生が観察された。原水投入後3時間程度で常時曝気側では一酸化二窒素、アンモニアとも定常的に発生したが、間欠曝気側での発生はいずれも常時曝気側を下回った（図 2 - 22）。

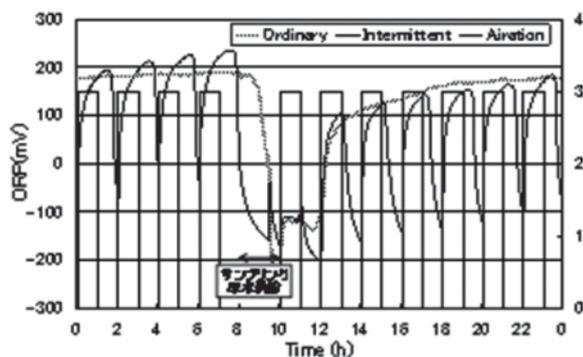


図 2 - 23 連続式処理時の活性汚泥槽日間稼働パターン

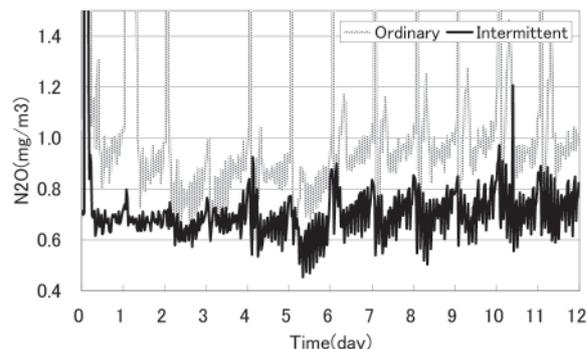


図 2 - 24 従来法常時曝気（薄線）および間欠曝気（濃線）における N_2O の発生

2) 酪農雑排水の連続式処理における GHG 発生状況と間欠曝気運転の効果

原水を一日一回投入、24時間経過後にいったん静置、汚泥を沈降させ、上澄水を処理水として排出する連続運転を行い、慣行法である常時曝気運転に加え、間欠曝気運転（回分式と同様に1時間曝気、1時間静置サイクル）を行った場合についてガス発生を観察した（図 2 - 23）。常時曝気運転による馴致運転の後、試験装置の一方を継続して常時曝気運転、他方を間欠曝気運転とし、さらに馴致を行った後の測定では、一酸化二窒素発生を見ると、間欠曝気側での発生は試験期間中常時曝気側を下回っており（図 2 - 24）、連続運転時でも間欠曝気による GHG 低減効果が見られることが明らかとなった。

3) 既存酪農雑排水処理施設への間欠曝気運転適用による GHG 低減効果の実証

膜分離式活性汚泥処理施設について、常時曝気を行う通常運転時と、タイマーを用いたの間欠曝気運転を行い、排気中の一酸化二窒素の濃度を計測した（図 2 - 25）。通常運転時に比較し、運転切り替え後処理が安定した期間では、間欠曝気運転により排気中一酸化二窒素濃度が顕著に低下し、40%程度の排出削減効果が認められた（図 2 - 26）。また、活性汚泥処理は好氣的な処理法であるため、処理水中には硝酸態となった窒素が残留しやすいが、常時及び間欠曝気時における処理対象原水及び処理水（放流水）中の窒素量を比較すると、間欠曝気時には窒素の削減率が高まっていた（図 2 - 27）。このことは、活性汚泥法による酪農雑排水処理における間欠曝気法の適用が、GHG 削減効果だけでなく、排水処理

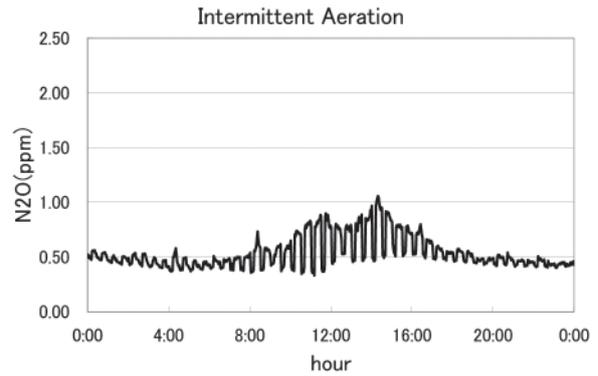
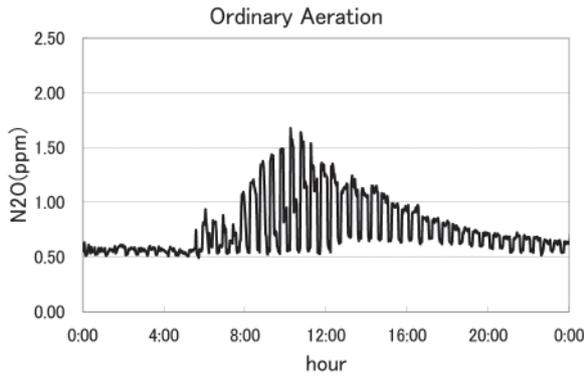


図 2 - 25 活性汚泥処理施設の常時曝気運転時（左）と、間欠曝気運転時（右）の日間 N_2O 排出

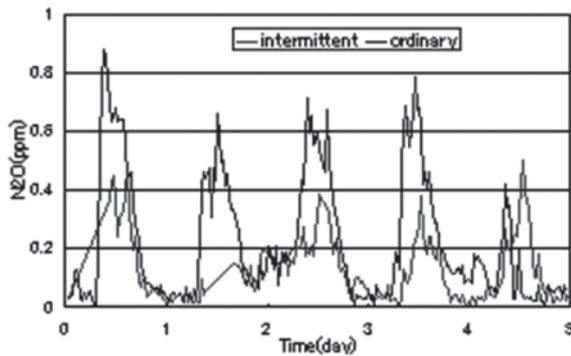


図 2 - 26 排水処理プラントの常時曝気運転時と間欠曝気運転時の排気中 N_2O

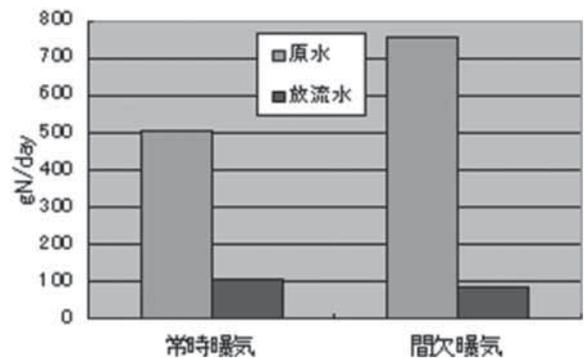


図 2 - 27 常時曝気及び間欠曝気運転時の原水および放流水中の窒素

における性能向上をももたらすということを示している。

エ 今後の課題

実施における活性汚泥槽の曝気は槽内の攪拌も兼ねており、間欠曝気運転の曝気停止時には、汚泥の沈降により配管系のトラブルや分離膜の閉塞などの機械的トラブルを起こす可能性がある（新井ら、1995）ので、検討が必要である。また、冬期間や原水濃度に著しい変動がある場合など、データの蓄積を進めてゆく必要がある。

オ 要約

小型試験装置および膜分離式活性汚泥施設による酪農雑排水の活性汚泥処理試験を行い、間欠曝気運転を適用することで、通常の常時曝気運転に比べ温室効果ガスの発生が顕著に低下することが明らかとなった。

カ 参考文献

- Osada T, Haga K, Harada Y (1991), Removal of nitrogen and phosphorus swine wastewater by the activated sludge units with the intermittent aeration process., Water Res. 25 (11), 1377-1388
- 木持謙, 稲森悠平, 松村正利 (1998) 間欠ばっ気活性汚泥法における流入窒素負荷の N_2O 放出及び窒素除去に及ぼす影響, 水環境学会誌 21 (3), 163-169
- 金主鉉, 酒村哲郎, 千葉信男, 西村修, 須藤隆一 (1999) 回分式間欠曝気活性汚泥法による豚舎排水の有機物・窒素除去に関するパイロットプラント実験, 水環境学会誌 22 (12), 990-996.
- 新井一仁, 長岡裕 (1995) 直接浸漬型膜分離活性汚泥法におけるモジュール形態および吸引サイクルの評価, 水環境学会誌 18 (4), 324-331

(森岡理紀)