

畜産排水処理過程における亜酸化窒素の放出

東北大学工学部 学生員 ○片山悦治郎, 藤田泰広
東北大学大学院 正会員 西村 修, 山田一裕
須藤隆一

1. はじめに

人口増加, 食生活の西洋化に伴い食肉需要も急激に増加した。食肉のうち豚の飼養動向については1991年以降, 飼養総頭数は約1,000万頭を保ったまま現在に至っているが, 飼養農家戸数が年々減少の一途をたどっている。その結果一戸あたりの飼養頭数が増加し, 一戸あたりからの排水量も増大した。豚舎排水は窒素濃度が非常に高く, さらにその大部分をアンモニア態窒素($\text{NH}_4\text{-N}$)が占めるという特徴を持っている。排水処理における窒素除去では, 生物学的硝化・脱窒反応が行われているが, その反応過程において, 副生成物, もしくは, 中間生成物として地球温暖化ガスの一つである亜酸化窒素(N_2O)が生成されることが知られており, 豚舎排水においては窒素濃度が高いことからその処理過程で生成される N_2O の量も多くなるのではないかと考えられる。

そこで, 豚舎排水の窒素除去法として嫌気好気回分式活性汚泥法に着目し, 原水性状としての C/N 比とリン除去のための操作条件としての凝集剤添加の有無が N_2O 放出にどのような影響を及ぼすかを明らかにするために室内実験を行い検討した。

2. 実験方法

2.1 実験装置

実験は, 嫌気好気回分式活性汚泥法において図1に示すように攪拌, 曝気, 流入, 排水を設定して行った。装置は容量4Lのものを4槽用い, 25℃の水槽の中に設置した。表1に示すような4つの実験系で実験を行った。C/N 比については大きく分けて, C/N 比が約2のRunA, RunBとC/N 比が約3のRunC, RunDである。好気条件のときの曝気量は 2.5L/min で一定で, MLSS は 3,000mg/L に調節している。

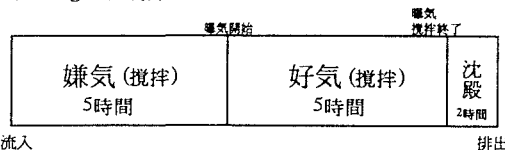


図1 運転条件

2.2 実験条件

実験条件は表1に示す。ここでC/N 比はBOD/T-N 比を用いる。BOD/T-N 比の調節は原水にデンプンと硫酸アンモニウムを添加することによって行った。また凝

集剤の添加量については, Al/P 質量比が0.5となるように調節し曝気開始と同時に添加した。

表1 各系の流入水の性状および運転条件

	Run A	Run B	Run C	Run D
BOD(mg/L)	2734	2850	3871	3839
T-N(mg/L)	1411	1430	1454	1334
BOD/T-N比	1.9	2.0	2.7	2.9
凝集剤	なし	あり	なし	あり

2.3 測定項目

溶存態 N_2O およびガス態 N_2O は, ヘッドスペース法によって測定した。水質については, 下水試験法に基づき T-N, DT-N, $\text{NO}_x\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NH}_4\text{-N}$ について分析を行った。また pH, DO 濃度, ORP と, 流入水および処理水中の BOD についても測定を行った。

3. 結果および考察

3.1 N_2O 発生に及ぼす C/N 比の影響

嫌気時については, 表2および図3で示すように, C/N 比が約2のRunAとRunBがC/N 比が約3のRunCとRunDで N_2O 発生の状態が分けられ, 表2に示すようにC/N 比約2のRunA, Bのほうが N_2O を多量に生成した。ここで嫌気時での $\text{NO}_3\text{-N}$ の減少の割合を脱窒率と

表2 嫌気, 好気状態での N_2O (単位 $\mu\text{g-N}$)

	Run A	Run B	Run C	Run D
嫌気終了時 N_2O 蓄積量	3073	3405	192	0
好気時全 N_2O 放出量	65105	78760	8233	4934

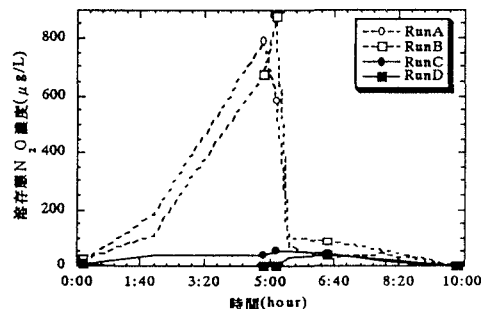


図3 溶存態 N_2O 濃度

すると, 表3で示すようにC/N 比の小さなRunA, Bでは脱窒率が小さかった。これはC/N 比が小さかったことにより従属栄養細菌である脱窒細菌の活動が鈍り, 脱窒が進行できなかったためと考えられる。このこと

が嫌気時 N_2O を多量に発生させた原因の一つと考えられる。また畜舎排水を投入した直後から、嫌気終了までの NO_3-N の濃度を平均すると、表 3 で示すような結果となった。これは C/N 比約 2 の RunA, B で脱窒が完全に行われなかった結果、馴致の過程で NO_3-N が蓄積し、この NO_3-N の蓄積も脱窒作用を抑制し N_2O を多量に生成させたと思われる。

次に NO_2-N の生成と水質の経時変化を図 4 に示す。 NO_2-N は嫌気時に RunA, B で常に 10mg/L から 20mg/L 蓄積しているのに対し、RunC, D で常に 10mg/L 以下となっている。このことから RunA, B において脱窒が良好に行われていないと考えられ、またその蓄積自体が脱窒反応を阻害し N_2O の生成を促進させたことを表している。

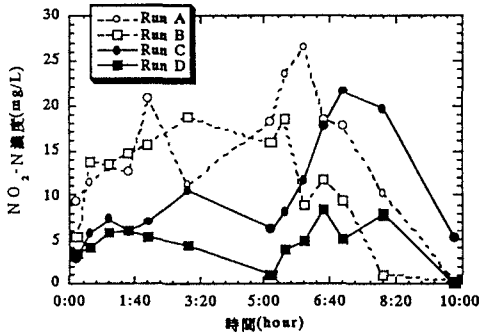


図4 NO_2-N 濃度

表 3 脱窒率および嫌気時の NO_3-N 濃度

	Run A	Run B	Run C	Run D
脱窒率 (%)	35.0	17.3	61.4	95.4
嫌気時の NO_3-N 濃度(mg/L)	143.2	206.0	41.3	11.3

好気時の N_2O の発生の状態を図 5 に示す。放出された N_2O の全体量は C/N 比約 2 の RunA, B と、C/N 比約 3 の RunC, D で大きな放出量の違いがみられた。しかし、図 5 で示すように RunA, B では曝気開始時に高濃度にガスが放出されている。これは、嫌気時に溶存態として蓄積された N_2O が曝気によりガス態 N_2O として放出されたからであると思われる。

次に、好気時における水質中の窒素の形態変化を図 6 に示す。今回は窒素および BOD の除去が一番良好であった RunD に注目する。 NH_4-N の減少は曝気開始後 1 時間から始まりそれに伴い NO_2-N , NO_3-N , 溶存態 N_2O も増加し始める。しかしその後 NO_3-N が増加し続けるのに対し NO_2-N , 溶存態 N_2O は曝気開始後 2 時間でピークがくるとその後減少し始める。同様の傾向が RunC でも示された。また RunA, B では NO_3-N が曝気開始 30 分～1 時間後には増加し始め、蓄積していた NO_2-N , NH_4-N ,

溶存態 N_2O がともに減少し続けた。このことから、全ての反応槽で硝化反応が起きていることがわかった。RunA, B で N_2O の生成および放出にピークが表れなかったのは硝化によるピークと、嫌気時の溶存態 N_2O の蓄積が放出されることによるピークが重なったためと思われる。これらのことから硝化反応では NO_2-N が生成するときに N_2O が生成していると考えられまた、 NO_3-N の蓄積自体も N_2O の生成に影響を及ぼしているのではないかと考えられる。ここで RunA, B で硝化が早く始まったのは、有機炭素源が少なかったことで従属栄養細菌の活動より独立栄養細菌である硝化細菌が活発化したためと考えられる。

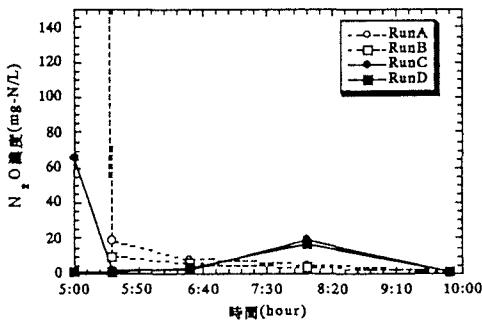


図5 好気時の大気への N_2O 放出濃度

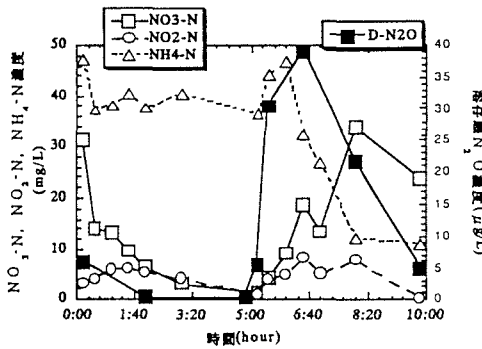


図6 RunD の水質および溶存態 N_2O 濃度

3.2 N_2O 発生に及ぼす凝集剤の影響

凝集剤を添加すると微生物の活性がおち、硝化反応に影響が出ることが知られているが、今回の実験においては N_2O の発生に顕著な特徴は表れなかった。

4. まとめ

C/N 比が低いと脱窒反応が抑制され、多量の N_2O が生成するという結果となった。その嫌気時に蓄積していた N_2O は曝気開始後短い時間で放出される結果となった。硝化反応では N_2O の生成に NO_2-N が関係していることがわかった。