

## N-2 炭素繊維充填好気性バイオリアクターを用いた 温室効果ガス抑制型養豚廃水処理技術の開発

○山下 恭広<sup>1\*</sup>・池本 良子<sup>2</sup>・河原 弘文<sup>3</sup>・長田 隆<sup>1</sup>  
荻野 暁史<sup>1</sup>・田中 康男<sup>1</sup>

<sup>1</sup> (独) 農業・食品産業技術総合研究機構 畜産草地研究所 (〒305-0901 茨城県つくば市池の台2)

<sup>2</sup> 金沢大学理工研究域環境デザイン学系 (〒920-1192 石川県金沢市角間町)

<sup>3</sup> 佐賀県畜産試験場 (〒849-2305 佐賀県武雄市山内町宮野23242-2)

\* E-mail: yamatkk@affrc.go.jp

### 1. はじめに

家畜排せつ物起源の温室効果ガス (GHG) 発生は、農業系排出量の約26%の寄与があるとされており、削減への期待が大きい。日本の家畜排せつ物管理区分においてはGHGであるメタン (CH<sub>4</sub>)、一酸化二窒素 (N<sub>2</sub>O) の主たる排出源の1つに汚水浄化が挙げられている。特に、N<sub>2</sub>Oの地球温暖化係数は二酸化炭素の298倍であると報告されている (IPCC 第4次評価報告書) ことから、N<sub>2</sub>O発生抑制技術の開発はGHG発生量削減に大きく貢献するものと考えられる。これまでの報告によると、汚水処理から発生するN<sub>2</sub>Oの発生要因としては、硝化過程においては、溶存酸素不足、有機物の過負荷、短い汚泥滞留時間 (SRT)、毒性物質の存在、低水温、高NH<sub>4</sub>-N条件が指摘されており、脱窒過程においては、投入汚水のCNが低い条件、pHが低い条件、ORPが高い条件が指摘されている (花木ら2001, Kampschreurら2009, 増田ら2009)。このように、発生因子が多岐にわたる一方で、処理水中にNO<sub>x</sub>-Nの蓄積が認められた場合にN<sub>2</sub>Oの発生が増大するという報告がされている (花木ら2001, Kampschreurら2009)。本研究においては、NO<sub>x</sub>-Nの蓄積

が少ない処理を目指して活性汚泥法とは異なる手法として生物膜法に着目し、炭素繊維を微生物担体として用いた養豚廃水処理試験を試みた。比較として活性汚泥処理との性能比較を行い、水質とともにGHG発生量の違いを評価した。

### 2. 実験方法

#### (1) 実験装置の概要及び運転条件

実験装置の概要を図1に示す。試験に使用した好気性バイオリアクターは、直径15cm、高さ約120cm、容積20Lの円筒形カラムを用い有効容積は10Lとし、リアクター下部から曝気を行う構造とした。炭素繊維リアクターには、直径5cm、高さ55cmのメッシュ円筒の周囲に図1に示すように直径7 $\mu$ m×幅0.5cm×長さ5cmの炭素繊維を4方向×11段となるように取り付けられたものをリアクター内に設置し、固定床型好気性バイオリアクターとした。一方、コントロールとして、所内活性汚泥処理施設の活性汚泥を種汚泥として投入した活性汚泥リアクターの運転も同時に行った。処理方式は回分式とし、6時間に1度、汚泥を沈降させるために曝気を25分間停止させた。

流入水は、所内の豚舎汚水を使用し、両リアクターに6時間に1度、リアクター下部から約400mLの汚水を投入するとともに、リアクター上部から処理水が流出するようにした。滞留時間は両リアクターともに平均約6日とした。両リアクターはそれぞれ馴養期間を経て試験を開始した。処理水は、リアクターから流出した液を30分静置し上澄み液を採水し水質分析を行った。運転は20°Cの恒温室で行い、曝気量は運転初期を除き1L/min (曝気強度6m<sup>3</sup>/m<sup>3</sup>h) で試験を行った。

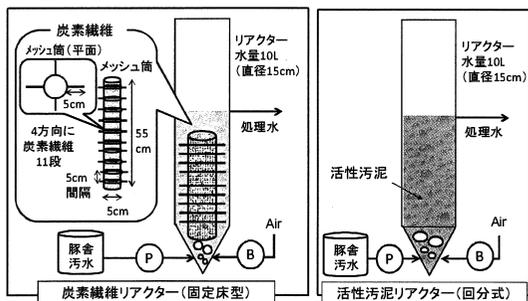


図1 実験装置の概要

## (2) 分析方法

採取した上澄み液は、BODは自動測定装置（Hach Company, BOD Trak, USA）を用いて測定を行った。SSは下水試験方法（日本下水道協会1997）に基づいて測定した。TOC及びTNは、全有機体炭素計（Shimadzu, Co. Ltd, TOC-V CSN, TNM-1）を用いて測定を行った。また、上澄み液を0.45 $\mu$ mメンブレンフィルター（MILLIPORE, IC Millex-LH）でろ過した後、陰イオンクロマトグラフィー（TOSOH, IC-2010, TSKgel Super IC-Anion HS）を用いてNO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-Nの濃度を、陽イオンクロマトグラフィー（DIONEX, DX-120, IonPac CS12A column, USA）を用いてNH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Nの測定を行った。アンモニア（NH<sub>3</sub>）、N<sub>2</sub>O、CH<sub>4</sub>のガス測定は、マルチガスモニター（LumaSense Technologies, Innova 1412 Multi Gas Monitor, USA）を用いて行った。pH、DO、ORP（山形東亜DKK, YUSBシリーズ）は、リアクターの水面下10cm付近を連続的に測定した。

## 3. 実験結果及び考察

### (1) 実験装置の水質変化

表1に流入水及び処理水質が安定した後（運転73～176日）の炭素繊維リアクター処理水と活性汚泥リアクター処理水の水質の概要を示す。流入水のNH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Nは平均165 mg/Lであったのに対し、炭素繊維リアクターの処理水では平均9.3 mg/L、さらに処理水のNO<sub>3</sub>-Nは平均14 mg/Lであった。このことから、硝化と脱窒が進行し窒素除去が行われていたと推察された。一方、活性汚泥リアクター処理水では、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Nは平均21 mg/L、NO<sub>3</sub>-Nは平均183 mg/Lであり、硝化は正常に機能していたことがわかる。また、両リアクターともにNO<sub>2</sub>-Nの蓄積はほとんど認められなかった。これらの結果から、炭素繊維リアクターは、活性汚泥リアクターよりも硝酸塩の蓄積を抑制できることが示唆された。

### (2) 実験装置のガス発生量

図2に炭素繊維リアクターと活性汚泥リアクターから発生したNH<sub>3</sub>、N<sub>2</sub>O、CH<sub>4</sub>のガス濃度変化を示す。炭素繊維リアクターでは、NH<sub>3</sub>は0.2 mg/day、N<sub>2</sub>Oは0.3 mg/day、CH<sub>4</sub>は10.0 mg/dayの発生量であるのに対し、活性汚泥リアクターでは、NH<sub>3</sub>は0.2 mg/day、N<sub>2</sub>Oは23.5 mg/day、CH<sub>4</sub>は7.1 mg/dayの発生量であった。炭素繊維リアクターは、活性汚泥リアクターよりも98%以上N<sub>2</sub>O発生を抑制可能であることが示された。

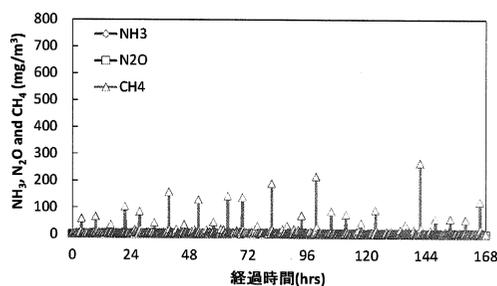
投入汚水窒素当たりのN<sub>2</sub>O発生量はそれぞれ、炭素繊維リアクターでは0.0003 gN<sub>2</sub>O-N/gTN-load、活性汚泥リア

クターでは0.03 gN<sub>2</sub>O-N/gTN-loadであった。日本国温室効果ガスインベントリ報告書（NIR）2012年によると豚舎汚水の浄化におけるN<sub>2</sub>O排出係数は0.05 g-N<sub>2</sub>O-N/gNとされていることから、本試験における炭素繊維リアクターはN<sub>2</sub>O発生を大幅に削減できることが示された。一方、投入汚水有機物当たりのCH<sub>4</sub>発生量は、炭素繊維リアクターでは0.0039 gCH<sub>4</sub>/gTOC、活性汚泥リアクターでは0.0029 gCH<sub>4</sub>/gTOCであった。前述のNIRにおける豚舎汚水の浄化のCH<sub>4</sub>排出係数は0.00019 g-CH<sub>4</sub>/g有機物であり、本試験のCH<sub>4</sub>発生量はやや高めを示した。CH<sub>4</sub>の地球温暖化係数は二酸化炭素の25倍（IPCC 第4次評価報告書）であり、N<sub>2</sub>Oよりも影響は少ないものの、削減は今後の課題である。

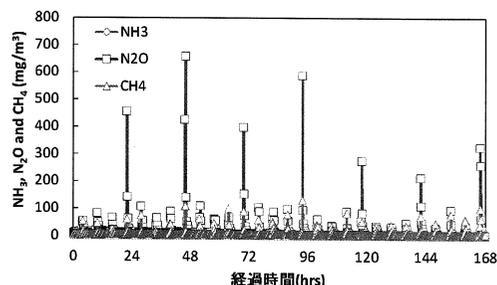
表1 流入水及びリアクター処理水の水質データ

	流入水	炭素繊維 リアクター 処理水	活性汚泥 リアクター 処理水
MLSS (mg/L)	-	-	5253±1128
BOD (mg/L)	1838±272	65±21	111±42
SS (mg/L)	1438±337	90±28	341±169
TOC (mg/L)	1126±190	78±21	199±71
TN (mg/L)	296±43	29±13	218±47
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N (mg/L)	165±28	9.3±1.9	21±16
NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N (mg/L)	0.0±0.0	0.2±0.5	0.2±0.3
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N (mg/L)	0.9±2.1	14±14	183±32

(mean ± SD)



(a) 炭素繊維リアクター



(b) 活性汚泥リアクター

図2 リアクターの発生ガス濃度（運転130～136日）

### 3) 汚水投入による実験装置の水質及び発生ガスの挙動

図3に炭素繊維リアクターと活性汚泥リアクターの汚水投入後における水質及び発生ガスの変化の典型例を示す。両リアクターの $\text{CH}_4$ の発生は、6時間に1度行われる汚水投入直後に高いピークを示した。一時的にDOの低下が認められ、これに伴いORPが低下したことでメタン発酵が進行したものと考えられる。図3 (a)の炭素繊維リアクターでは、汚水投入後180分で $\text{NH}_4\text{-N}$ が完全に消失した。硝化に伴う $\text{NO}_2\text{-N}$ はほとんど蓄積されなかった。発生ガス測定では、 $\text{CH}_4$ の発生は認められたものの $\text{NH}_3$ や $\text{N}_2\text{O}$ は数 $\text{mg/m}^3$ 以下で推移していた。一方、図3 (b)の活性汚泥リアクターでは、 $\text{NH}_4\text{-N}$ が減少していたことから、硝化が進行していたと考えられるが $\text{NO}_2\text{-N}$ は約160  $\text{mg/L}$ で推移し濃度変動はほとんどなかった。本試験では $\text{NH}_4\text{-N}$ の減少に見合う $\text{NO}_3\text{-N}$ の増加が認められなかったことから、脱窒が同時に起こっていた可能性が示された。DOが汚水投入後350~360分にかけて低下しているのは回分方式による運転を行っている関係で、処理水がリアクターから排出される前に曝気を一時的に停止していたことによる影響である。発生ガス測定では、DO及びORPの低下時に $\text{N}_2\text{O}$ の発生が増大していたが、硝化過程、脱窒過程のどちらによる発生なのかは今後、さらなる解析が必要である。

### 4. まとめ

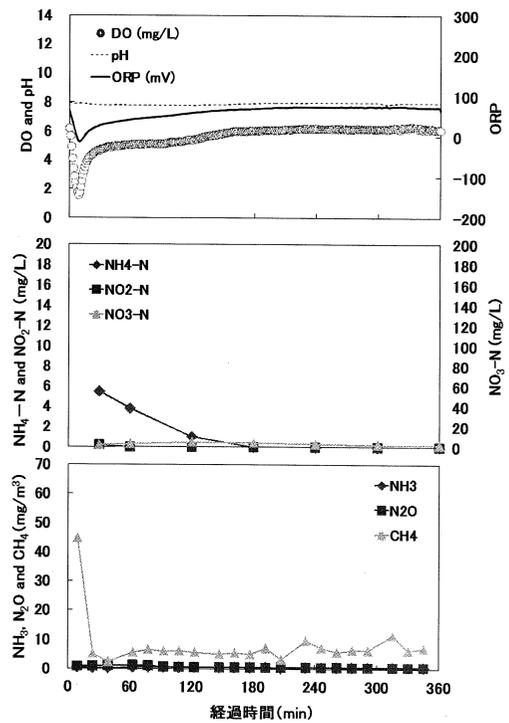
炭素繊維リアクターは処理水中の硝酸塩及び亜硝酸塩の蓄積が少ない傾向にあり、脱窒が良好に進行していたと推定された。一方、活性汚泥処理では、硝酸塩の蓄積が高濃度で推移していた。 $\text{NO}_x\text{-N}$ の蓄積によって $\text{N}_2\text{O}$ の発生量が増大するという報告があることから発生ガスの測定を行った結果、炭素繊維リアクターは、活性汚泥処理よりも顕著に $\text{N}_2\text{O}$ の発生量が少ないことが確認された。このことからGHG発生量削減が期待できる。

### 謝辞

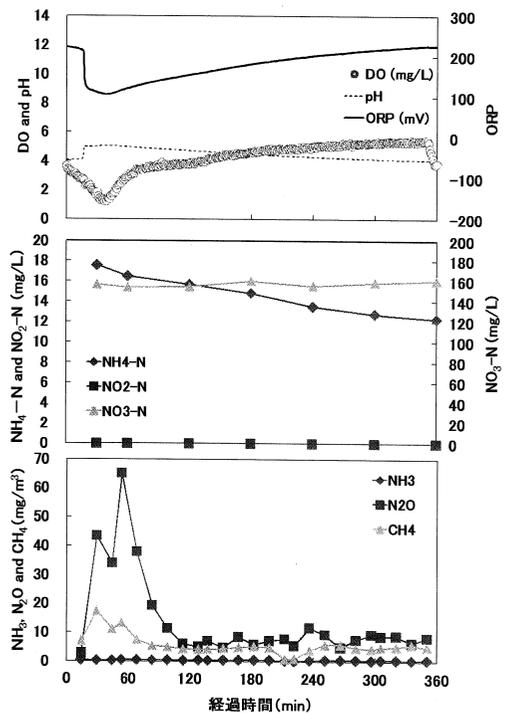
本研究は農林水産省委託プロジェクト研究「気候変動に対応した循環型食料生産等の確立のための技術開発」の成果である。

### 参考文献

- IPCC 第4次評価報告書:WG1, p. 33  
 花木ら(2001), 水環境学会誌, 24(7), pp. 473-476  
 Kampschreur et al. (2009), Water Research, 43(17), pp. 4093-4103  
 増田ら(2009), 水環境学会誌, 32(3), pp. 147-152



(a) 炭素繊維リアクター



(b) 活性汚泥リアクター

図3 リアクターの水質及び発生ガス濃度の変化の典型例 (運転131日目)