

## 回分式活性汚泥を用いた乳牛ふん尿処理過程における環境負荷ガス発生

澤 本 卓 治<sup>1)</sup>・加 藤 博 美<sup>2)</sup>・北 畑 小百合<sup>1)</sup>  
川 村 英 輔<sup>2)</sup>・干 場 信 司<sup>3)</sup>

The production of gaseous pollutants  
from sequencing batch reactors used to treat dairy cattle wastewater

Takuji SAWAMOTO<sup>1)</sup>, Hiromi KATO<sup>2)</sup>, Sayuri KITABATAKE<sup>1)</sup>, Eisuke KAWAMURA<sup>2)</sup> and Shinji HOSHIBA<sup>3)</sup>  
(Accepted 11 January 2011)

### 1. はじめに

畜産業は牛乳、肉、卵およびそれらの加工品など、美味しく高品質の食品を供給する産業である。しかし、畜産業から発生する主な廃棄物である家畜ふん尿は、悪臭や河川の汚濁、湖沼の富栄養化、地下水汚染、衛生害虫の発生、温室効果ガス発生などの環境問題を発生させている。また、家畜ふん尿は産業廃棄物であると同時に肥料資源や燃料資源などとしての価値もあり、上述の環境問題を低減させながらどのように処理するかが問われている(羽賀2002)。

家畜ふん尿の処理方法はいくつかの種類に大別される。それは、堆肥化、貯留、浄化といったものであるが、各々の方法においても画一的なものではなく、地域や現場の状況に応じた処理が行われている。本報告では、神奈川県酪農家で用いられている回分式活性汚泥法による浄化の現場を調査対象とした。1970年に水質汚濁防止法が制定され、1日の排水量が50 m<sup>3</sup>を超える豚房施設と牛房施設に対して、公共水域への放流水質が規制された。畜産の大規模化と都市化が同時進行していた神奈川県では、県内の環境保全と安定した畜産経営の両立を目的として、300 m<sup>2</sup>以上の豚房施設、200 m<sup>2</sup>以上の牛房施設に対して、1日の排水量に関係なく、公共水域への放流水質を規制する「水質汚濁防止法」の上乗せ条例が定められた。このような経緯から神奈川県では畜産農家における活性汚泥法による汚水処理の導

入が先進的であり、広く用いられている(本多2004)。

このような水質汚濁防止・低減の必要性とともに、現在では温室効果ガス排出の削減についても求められている。長田(2010)によれば、国内最大の有機性廃棄物である家畜排せつ物中には、年間排出量1042万トンの有機物と67万トンの窒素排出が算定されており(2004年度)、この家畜排せつ物起源の温室効果ガス排出として、メタン(CH<sub>4</sub>)は年間233万トン、亜酸化窒素(N<sub>2</sub>O)は年間477万トン(いずれも二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)換算:2008年度)と見積もられている(国立環境研 GIO 2010)。これらの総量は国内発生量の0.59%に相当であった。これらの排出量は、ふん尿処理手法ごとに含有する有機物と窒素ならびに排出係数を用い、全区分を積算して見積もられる(長田 2010)。例えば、乳用牛の排せつ物管理に伴う N<sub>2</sub>O 排出係数(排出された N<sub>2</sub>O-N/処理排泄物に含有する全 N)では、既往の国内外の測定事例を根拠として、貯留(0.10%)や強制発酵(0.25%)などは低く、堆積発酵(2.40%)や浄化(5.0%)は高く設定されている(国立環境研 GIO 2010)。

このうち本報告の調査対象は「浄化」のカテゴリーに属する。上述した浄化の N<sub>2</sub>O 排出係数(5.0%)は、1つの報告(Osada 2003)を根拠としている。この報告は国内で実施されたものである。しかし、豚の汚水浄化を実験室レベル(汚水処理量は約3L)で行って得られたものであり、乳牛ふん尿が対象で

<sup>1)</sup> 酪農学園大学酪農学部酪農学科土壌環境学研究室

Soil and Environmental Science, Department of Dairy Science, Faculty of Dairy Science, Rakuno Gakuen University, Ebetsu, Hokkaido, 069-8501, Japan

<sup>2)</sup> 神奈川県農業技術センター畜産技術所(旧:神奈川県畜産技術センター)

Livestock Industry Technology Station, Kanagawa Agricultural Technology Center, Ebina, Kanagawa, 243-0417, Japan

<sup>3)</sup> 酪農学園大学酪農学部酪農学科家畜管理学研究室

Farm Animal Management, Department of Dairy Science, Faculty of Dairy Science, Rakuno Gakuen University, Ebetsu, Hokkaido, 069-8501, Japan

はなく、また酪農家の現地レベルで行った実験ではない。このことは、上記の排出係数の不確かさが小さくなく、今後、様々なふん尿や実験室および現場レベルにおいて測定を積み重ね、排出係数を精緻化する必要があることを示している。

本稿では、以上のような背景のもとで神奈川県2戸の酪農家で実施した調査結果を報告する。いずれも回分式活性汚泥法による乳牛ふん尿の浄化であるが、異なった型の曝気槽を使用していた。両者を比較しながら、これらの2つの曝気槽における環境負荷ガス発生(CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, およびアンモニア(NH<sub>3</sub>))の実態を報告することが本稿の目的である。

## 2. 材料と方法

### 調査対象

表1に調査対象とした施設の概要を示す。いずれも同じ生物処理(好気性微生物・活性汚泥法)による回分式であるが、一方はスクリュータイプによる表面機械曝気法を用いたオキシデーション・ディッチ型(以下、O型)、他方はシンプレックス法による表面機械曝気法を用いたユニット型(以下、Y型)である。これらの回分式活性汚泥法では、①曝気槽へ貯留された汚水(畜舎でふん尿分離された汚水)の投入(この際、粗大有機物を除くために振動篩を通過)および希釈水の投入、②曝気、③曝気停止により活性汚泥を沈殿、④曝気槽の上澄液を放流、の工程を24時間で行うものである。実際の曝気時間はO型で21時間、Y型では14.5~17.0時間であった。Y型の曝気時間が短かったのは希釈水の投入に時間がかかっていたためである。全体写真を図1および図2に示す。O型については、本多(2004)が

詳細に紹介している。

O型を設置している酪農場の飼養頭数は39頭と神奈川県においては中規模の牧場であった。周辺は工業団地や、同規模の酪農場もあった。稼働年数は2006年5月現在で1年間であった。本O型の特徴としては、処理容量が比較的大きく45頭までの乳牛ふん尿汚水を処理可能である。一方、Y型を設置している酪農場の飼養頭数は19頭と小規模な牧場であった。酪農場が位置している場所は住宅街であった。稼働年数は2006年5月現在で3年間であった。本Y型の特徴としては、設置面積が小さく25頭までの乳牛ふん尿汚水を処理可能である。

調査は2006年7月、10月、および12月に実施した。O型は、2006年7月22日、同年10月8日から9日、同年12月23日から24日に調査した。Y型においては2006年7月19日から20日、同年10月6日から7日、同年12月21日から22日に調査した。流入原水である乳牛ふん尿の固液分離後の汚水(以下「汚水」とする)、曝気中の曝気槽混合液(以下「混合液」とする)、曝気停止し活性汚泥を沈殿させている時間帯の上澄液(以下「上澄液」とする)、および活性汚泥沈殿後に河川に放流される上澄液(以下「処理水」とする)の各段階において、以下に述べる測定等を実施した。混合液については、数時間間隔で測定等を実施した。

### 水質と溶存温室効果ガス濃度

水質に関する測定項目は表2にまとめて示した。以下の手順で、汚水、混合液、上澄液、および処理水の溶存温室効果ガス濃度を測定した。

1. (準備) 30 mLバイアル瓶(日電理化学株式会社 SVF-30・ブチルゴム栓)と20 mLバイアル瓶(同SVF-20)を真空ポンプ(HITACHI VR6G)

表1 酪農家と処理施設の概要

内 容	単 位	A酪農家	B酪農家
乳牛飼養頭数	[頭]	39	19
曝気槽の形状		オキシデーション・ディッチ型(O型)	ユニット型(Y型)
曝気方法		スクリュータイプ	シンプレックス法
稼働年数	[年]	1	3
汚水貯留槽の大きさ	[m <sup>3</sup> ]	6.8	2.5
曝気槽の大きさ	[m <sup>3</sup> ]	40.5	15.0
曝気槽への汚水の流入量(A)(設計値)	[m <sup>3</sup> /d]	3.7	1.1
希釈水の流入量(B)(設計値)	[m <sup>3</sup> /d]	7.4	4.9
処理水の放流量(A+B)	[m <sup>3</sup> /d]	11.0	6.0
HRT(水理学的滞留時間)	[d]	11	13
BOD容積負荷(設計値)	[kg/(m <sup>3</sup> d)]	0.35	0.45
実際の曝気時間	[h/d]	21	14.5-17.0

両型とも生物的処理は好気性微生物処理であり、運転方法は回分運転である。活性汚泥微生物の働かせ方は長時間曝気法であり、表面機械曝気法を用いている。



図1 A酪農家において稼働していたオキシデーション・ディッチ型(O型)の曝気槽。混合液が大気と接している部分(金網部)の面積は8.04 m<sup>2</sup>であった。

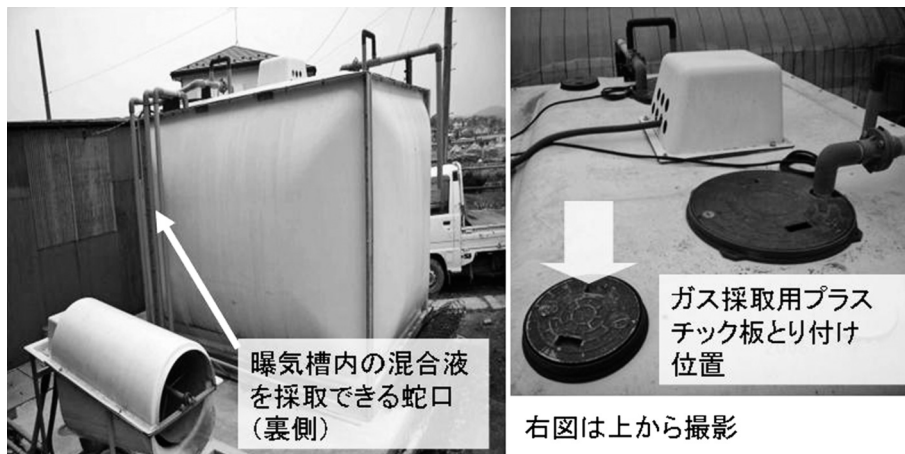


図2 B酪農家において稼働していたユニット型(Y型)の曝気槽。

表2 水質に関する測定項目

項目	測定機器等
気温と湿度	スティック型湿度計 (testo 605-H1)
水温	デジタル温度計 (kaise SK-6825)
pH	pHメーター (HORIBA D-54)
EC (電気伝導度)	ECメーター (東亜電波工業株式会社 CM-14P)
ORP (酸化還元電位)	ORPメーター (東亜電波工業株式会社 HM-12P)
DO (溶存酸素濃度)	DOメーター (東亜電波工業株式会社 DO-14P)
SV (活性汚泥の容積)	SV測定用シリンダー 30分静置
透視度	透視度計 (ST-30)
BOD (生物化学的酸素要求量)	アクタク BODセンサー
COD (化学的酸素要求量)	公定法 (下水試験方法)
SS (浮遊固形物)	公定法 (下水試験方法)
T-N (全窒素)	島津製作所 TOC計
T-P (全リン)	ペルオキシニ硫酸カリウム分解法

気温から透視度までは現地で測定し、BODからT-Pまでは実験室で測定した。

で真空にした。30 mL バイアル瓶には約 2 気圧で  $N_2$  ガスを充填した。

- (現地作業) 50 mL シリンジ (NIPRO 製ルーチップ, 最大容量 60 mL) で試料を約 35 mL 採取し, 三方コックと針 (ジエールサイエンス株式会社 ロック型横穴針) を装着した後, 試料を一部捨て 30 mL とした。次に, 上記 30 mL バイアル瓶に針を差し, 30 mL の  $N_2$  ガスを 50 mL シリンジ内に入れ, 三方コックを閉じ約 3 分間振とうさせた。その後, シリンジ気相中の気体を 20 mL 真空バイアル瓶に採取した。
- (ガス分析) 20 mL バイアル瓶中の  $CH_4$ ,  $N_2O$ , および  $CO_2$  濃度 ( $C_G$  (ppm)) をガスクロマトグラフ (島津製作所 GC-14B, 検出器 FID と TCD, キャリヤーガス=He), および別のガスクロマトグラフ (島津製作所 GC-14B, 検出器 ECD, キャリヤーガス=Ar+ $CH_4$  混合ガス) を用いて測定した。

以下の方法で溶存ガス濃度を計算した。すなわち, 試料溶液の温度から各温室効果ガスの溶解度 (Bunsen の吸収係数)  $\alpha$  ( $cm^3 cm^{-3}$ ) を求め (日本化学会 1984), 以下の式から, サンプルの液相中のガス質量  $M_L$  ( $\mu g$ ) を求めた。

$$M_L = \alpha \times (C_G/10^6) \times V_L \times \rho \times 10^6$$

ここで,  $(C_G/10^6)$  は成分気体の分圧 (atm) であり,  $V_L$  は液相の体積 ( $30 cm^3$ ) であり,  $\rho$  は各温室効果ガスの標準大気密度 ( $g cm^{-3}$ ) ( $CH_4$  では  $0.717 \times 10^{-3}$ ,  $N_2O$  では  $1.978 \times 10^{-3}$ ,  $CO_2$  では  $1.977 \times 10^{-3}$ ) である。次に, 気相中のガス質量  $M_G$  ( $\mu g$ ) を以下の式により求めた。

$$M_G = \rho \times (C_G/10^6) \times V_G \times (273.15/(273.15 + T_G)) \times 10^6$$

ここで,  $V_G$  は気相の体積 ( $30 cm^3$ ) であり,  $T_G$  はセルシウス温度 ( $^{\circ}C$ ) であり現地における気温とした。ブランク (空試験) のガス濃度 ( $C_B$  (ppm)) を用いガス質量  $M_B$  ( $\mu g$ ) を以下の式によって求めた。

$$M_B = \rho \times (C_B/10^6) \times V_G \times (273.15/(273.15 + T_G)) \times 10^6$$

最後に, 以下の式によって溶存温室効果ガス濃度  $C_D$  ( $\mu g L^{-1}$ ) を求めた。

$$C_D = (M_L + M_G - M_B) / (V_L / 1000)$$

O 型曝気槽混合液面から大気に排出される温室効果ガスフラックス

O 型曝気槽の混合液および上澄液の液面から大気に排出される温室効果ガスを測定するために, 液面と水平になる場所にチャンバーを 1 つ設置した。図 1 に設置位置を示した。チャンバーの概要を図 3 に示す。数時間間隔で測定を実施したが, 測定ごとに以下の手順を実施した。すなわち,

- チャンバー上部から液面までの高さを測定した。(おおむね 52 cm 程度であった。)
- チャンバーが密閉状態になるように, チャンバーの上部にシリコンシート (図 3 ②) を置き, その上にプラスチック製のふた (図 3 ③) を置き, クリップで固定した。
- シリンジを用いて, ふたを置いた瞬間のチャンバー内の大気を, 20 mL の真空バイアル瓶に約 40 mL 採取し, これを 0 分後とした。また, この時のチャンバー内の温度も記録した。
- チャンバーにふたをかぶせてから 2 分後, 4 分後, 8 分後, 16 分後, 32 分後において, 0 分後と同様にチャンバー内の大気を採取し, チャンバー内の気温を記録した。

上述と同様のガスクロマトグラフを用いて  $CH_4 \cdot N_2O \cdot CO_2$  濃度を分析した。 $CH_4 \cdot N_2O \cdot CO_2$  フラックス  $F$  ( $mg m^{-2} h^{-1}$ ) は次の式で求めた (八木 1997)。

$$F = \rho \times H \times (\Delta c / \Delta t) \times (273 / T_c) \times 1000$$

ここで,  $H$  はチャンバーふたから液面までの高さ (m),  $\Delta c / \Delta t$  は 0 分後から 32 分後までの各ガスの

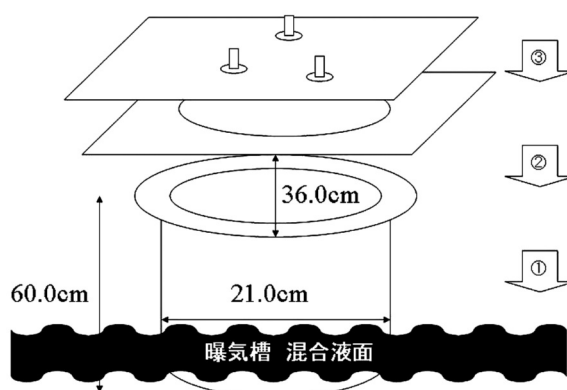


図 3 O 型曝気槽の混合液面から発生するガスフラックスを測定するために設置したチャンバーの構造。

平均濃度変化 ( $\text{ppm h}^{-1} = 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ m}^{-3} \text{ h}^{-1}$ ),  $T_c$  はチャンパー内温度 (0 分後から 32 分後までの平均値) (K) である。フラックス値, 曝気槽開口部の面積 ( $8.04 \text{ m}^2$ ), および測定時刻から大気への排出量の積算値を計算した。

0 型曝気槽混合液面から大気に排出される  $\text{NH}_3$  フラックス

上記の温室効果ガスフラックスを測定した後, チャンパー上部のふたをいったん取り除き, チャンパー内空気を十分に周辺大気と混合させた後, 同じチャンパーとふたを用いて以下の手順で  $\text{NH}_3$  フラックスを測定した。すなわち, チャンパー (内半径  $0.105 \text{ m}$ ) の上に, アンモニア用装置 (図 4) を設置し, ミニポンプ (SIBATA MP-3) を稼働させ, 流量計 (KOFLOC RK-1650) で流量を  $3.0 \text{ L min}^{-1}$  に調節した。30 分後にミニポンプを停止させ, ホウ酸溶液を回収した。なお, ホウ酸溶液は  $200 \text{ mL}$  であり, 7 月は 2% ホウ酸溶液, 10, 12 月は感度を上げるために 1% ホウ酸溶液を用いた。

これとは別にブランクのホウ酸溶液に  $\text{NH}_3$  水を滴下し pH を測定し, 滴下  $\text{NH}_3\text{-N}$  量と pH の関係式を求めておき, 回収したホウ酸溶液の pH を測定することで, 現地でホウ酸溶液が吸着した  $\text{NH}_3\text{-N}$  量  $M_{\text{NH}_3\text{-N}}$  (mg N) を求めた。以上から,  $\text{NH}_3$  フラックス  $F_{\text{NH}_3}$  ( $\text{mg N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ) は次の式でもとめた。フラックス値, 曝気槽開口部の面積 ( $8.04 \text{ m}^2$ ), および測定時刻から  $\text{NH}_3$  揮散量の積算値を計算した。

$$F_{\text{NH}_3} = M_{\text{NH}_3\text{-N}} / (S \times D)$$

ここで,  $S$  はチャンパーの断面積 ( $0.105^2 \pi \text{ m}^2$ ) であり,  $D$  はポンプ稼働時間 ( $30 \text{ min} = 0.5 \text{ h}$ ) である。

Y 型における各温室効果ガスと  $\text{NH}_3$  濃度

密閉型においては構造上開放的でないために, フラックスを測定するチャンパーを設置できなかった。ここでは, 曝気槽ヘッドスペース内のガス採取

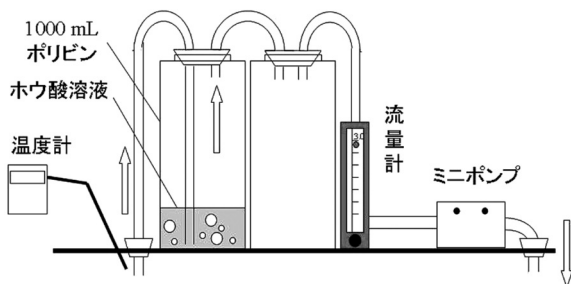


図 4 アンモニア揮散 (O 型) およびアンモニア濃度 (Y 型) を測定するために設置した装置の構造。

を行い, その濃度を測定した。すなわち, 図 5 に示すようなプラスチック板をメンテナンス用の開口部 (通常はふたが置かれている) に乗せた。シリンジを用いて,  $20 \text{ mL}$  真空バイアルにヘッドスペース内のガスを約  $40 \text{ mL}$  採取し, 実験室において, 上述と同様のガスクロマトグラフを用いて  $\text{CH}_4 \cdot \text{N}_2\text{O} \cdot \text{CO}_2$  濃度分析した。

$\text{NH}_3$  濃度については, 上述のプラスチック板に図 4 の装置を接続し, O 型における  $\text{NH}_3$  フラックスの測定方法と同様の操作で,  $M_{\text{NH}_3\text{-N}}$  (mg N) を求めた。ヘッドスペースの  $\text{NH}_3$  濃度  $HS_{\text{NH}_3\text{-N}}$  (mg  $\text{NH}_3\text{-N L}^{-1}$ ) は次の式で求めた。

$$HS_{\text{NH}_3\text{-N}} = M_{\text{NH}_3\text{-N}} / (R \times D)$$

ここで,  $R$  はポンプの流量 ( $3.0 \text{ L min}^{-1}$ ) である。なお,  $\text{NH}_3$  濃度の結果は,  $\mu\text{g NH}_3\text{-N L}^{-1}$  単位で示した。

### 3. 結 果

#### 水質と溶存温室効果ガス濃度

O 型および Y 型における污水, 混合液, 上澄液, および処理水の水質の測定結果をそれぞれ表 3 および表 4 に示す。気温および水温は 7 月で最も高く, 12 月で最も低かった。曝気槽型の違いによる温度の違いは季節変動と比較して大きいものではなかった。どちらの污水も pH は  $8.5 \sim 9.1$  の弱アルカリ性であった。しかしながら, 混合液の pH には違いが認められた。すなわち, O 型では曝気にともない pH が低下し, 処理水の pH は  $6.4 \sim 7.0$  の弱酸性から中性を示した。特に 12 月は曝気開始直後から  $6.5$  程度の低い pH で推移した。これに対し, Y 型では O 型と比較して pH 低下が小さく, 処理水の pH は  $7.8$  程度の弱塩基性を示した。

混合液の ORP と DO については曝気槽型による

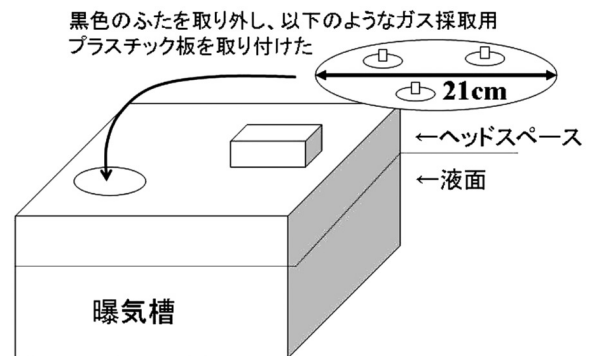


図 5 Y 型曝気槽に設置したプラスチック板の構造。

表3 O型曝気槽の水質

時刻	対象	曝気経過時間	気温 [°C]	湿度 [%]	水温 [°C]	pH	EC [mS/m]	ORP [mV]	DO [mg/L]	SV [%]	透視度 [cm]	BOD [mg/L]	COD [mg/L]	SS [mg/L]	T-N [mg/L]	T-P [mg/L]
7月22日 曝気開始1:30																
0:00	汚水	-1.5	22	96	22	8.7	>1999	-451	0.3			14550	3219	3340	3228	58.1
2:30	混合液	1.0	21	92	23	7.7	139	-32	0.4	35	2.5	232	40	158	93	3.7
4:30	混合液	3.0	21	95	23	7.1	134	71	0.4	40	3.0	119	48	126	90	3.6
7:30	混合液	6.0	23	93	24	6.8	125	88	0.4	40	3.0	122	36	86	85	3.7
12:30	混合液	11.0	26	77	25	7.0	118	100	5.2	35	4.0		28	106	84	3.4
17:30	混合液	16.0	25	79	25	7.0	118	156	5.3	37	3.5		28	104	85	3.3
22:20	上澄液	21.0	23	92	25	7.0	119	187	5.4	35	3.5	103	40	80	86	3.7
23:25	処理水	22.0	22	92	25	7.0	120	160	5.3		7.5	81	32	94	85	3.6
10月8~9日 曝気開始22:40																
21:00	汚水	-1.7	19	59	21	8.8	3450	-499	0.5			14500	4225	2644	5438	86.0
23:40	混合液	1.0	16	68	21	7.3	137	40	0.4	90	3.5	141	40	60	102	3.1
1:40	混合液	3.0	16	61	21	6.8	133	66	0.8	95	3.5	130	28	32	101	3.1
4:40	混合液	6.0	15	66	21	6.4	125	102	2.8	95	5.5	119	32	58	96	2.9
9:40	混合液	11.0	22	46	22	6.9	123	81	7.3	54	4.0	110	30	72	98	3.0
14:40	混合液	16.0	26	36	25	6.9	122	91	8.4	70	2.0	54	36	98	99	3.0
19:25	上澄液	21.0	21	58	23	6.8	123	175	7.9	97	4.0	49	32		99	3.1
20:40	処理水	22.0	19	68	22	6.9	126	183	5.4	0	7.5	34	30	92	98	3.0
12月23~24日 曝気開始22:00																
19:00	汚水	-3.0	8	77	11	9.1	5780	-495	1.7			8900	4426	7966	5541	90.9
23:00	混合液	1.0	7	74	17	6.5	128	70	5.5	40	5.0	130	181	168	144	4.2
1:00	混合液	3.0	7	72	17	6.3	128	84	7.7	35	5.0	125	174	74	133	4.9
4:00	混合液	6.0	6	81	16	6.3	127	84	8.4	35	5.0	114	135	68	123	3.5
9:00	混合液	11.0	10	56	16	6.3	127	101	8.4	35	5.0	90	139	246	118	4.5
14:00	混合液	16.0	13	46	17	6.1	132	132	8.0	50	3.5	84	179	170	139	4.5
18:40	上澄液	21.0	10	61	17	6.2	133	133	7.0	30	4.0	62	171	140	142	4.5
20:00	処理水	22.0	9	53	17	6.4	136	145	6.6	0	8.5	36	155	126	132	3.7

違いが大きかった。すなわち、O型のORPとDOはそれぞれ-32~+187 mVおよび0.4~8.4 mg/Lであったのに対し、Y型ではそれぞれ-397~-298 mVおよび0.2~3.5 mg/Lとであり、おおむねO型は好氣的でありY型は嫌氣的であった。O型のDOは、7月の曝気開始11時間後と10月の6時間後に大きな上昇が認められたが、12月にはそのような変化が認められず曝気開始1時間後で既に高い値を示していた。O型のORPはどの月も曝気経過にともない上昇した。一方、Y型のORPとDOは曝気経過にともなう上昇は判然としなかった。

BOD, COD, SS, T-N, およびT-Pに関しては、汚水ならびに希釈水投入後の曝気開始直後において大きな低下が認められ、それ以降はあまり大きな低下が認められずに推移した。ただし、O型のBODについては曝気経過とともに明らかな低下が認められた。各曝気槽における水質浄化について、T-NとBODについて表5に示す。T-Nの除去率はO型では92~95%、Y型では54~60%であった。BODの除去率はO型では98%以上、Y型では73~88%で

あった。このように今回の事例に限ってはO型の浄化能の方が高い結果であった。

O型およびY型における汚水、混合液、上澄液、および処理水中に溶存した温室効果ガスの濃度を図6(D, E, F)に示す。汚水中のこれらの溶存ガス濃度は、どちらの酪農家においてもおおむね同程度の値を示したが、混合液中のこれらの濃度は曝気槽のタイプによって大きな違いが認められた。溶存CH<sub>4</sub>濃度については、O型の濃度は大気平衡レベルの10倍程度の過飽和であったのに対し、Y型の濃度は1000倍以上の値であり、曝気槽による違いが顕著であった。溶存N<sub>2</sub>O濃度については、Y型の濃度は大気平衡レベルもしくはそれ以下であったのに対し、O型の濃度は、大気平衡レベルからその1000倍もの大きな変動を示した。この変動であるが、7月のピークは曝気開始6時間後、10月のピークは同3時間後であった。これらの時刻は混合液のORPとDO濃度が大きく上昇する直前の時刻に相当した。これに対し、12月では曝気開始直後に溶存濃度が大きく上昇し、それが放流時まで維持されていた。な

表4 Y型曝気槽の水質

時刻	対象	曝気経過時間	気温 [°C]	湿度 [%]	水温 [°C]	pH	EC [mS/m]	ORP [mV]	DO [mg/L]	SV [%]	透視度 [cm]	BOD [mg/L]	COD [mg/L]	SS [mg/L]	T-N [mg/L]	T-P [mg/L]
7月19~20日 曝気開始4:00																
19:00	汚水	-9.0	22	84	24	8.5	>1999	-458	0.4			15100	2414	4360	2609	14.2
2:00	混合液	-2.0	21		22	8.0	420	-332	0.4		3.5	821	193	806	218	1.1
5:00	混合液	1.0	22	92	22	7.9	474	-376	0.3	60	2.0	832	225	936	236	1.2
7:00	混合液	3.0	23	83	23	7.9	476	-380	0.2	54	2.5	505	221	396	229	1.2
10:00	混合液	6.0	24	78	23	7.9	475	-371	0.3	50	2.5	525	205	278	233	1.1
14:00	混合液	10.0	26	68	24	7.9	473	-382	0.3	50	2.0	489	201	214	232	1.2
18:40	上澄液	14.7	24	79	24	7.8	477	-364	0.3	20	2.0		189	304	229	1.0
19:50	処理水	15.8	24	81	24	7.8	481	-293	0.3		2.0	431	189	212	228	1.1
10月6~7日 曝気開始4:00																
19:00	汚水	-9.0	18	85	20	8.6	2230	-450	1.2			12150	2213	832	2879	8.8
2:00	混合液	-2.0	19	71	19	8.3	409	-372	1.1		4.0	680	201	118	225	0.8
5:00	混合液	1.0	18	73	19	8.2	414	-397	0.8	98	1.5	658	185	76	224	0.7
7:00	混合液	3.0	19	83	19	8.1	413	-388	0.8	98	1.5	712	185	140	213	0.6
10:00	混合液	6.0	22	63	20	8.0	414	-384	0.7	97	1.5	702	177	88	212	0.7
14:00	混合液	10.0	29	44	22	8.0	412	-368	0.7	90	2.5	582	177	114	217	0.5
18:30	上澄液	14.5	21	59	22	7.8	412	-359	0.6	0	3.0	540	169		212	0.5
19:50	処理水	15.8	18	68	20	7.8	416	-345	0.6		3.0	626	169	120	221	0.8
12月21~22日 曝気開始3:00																
20:00	汚水	-7.0	11	65	13	8.8	4110	-433	1.7			7250	5030	7156	3015	25.5
0:30	混合液	-2.5	10	66	14	8.5	281	-289	3.5		2.5	156	191	244	186	1.6
4:00	混合液	1.0	11	63	14	8.4	352	-396	1.7	95	1.5	378	291	488	281	6.9
6:00	混合液	3.0	9	71	14	8.3	354	-396	1.5	95	2.0	368	287	390	233	2.4
9:00	混合液	6.0	10	64	14	8.2	355	-383	1.4	95	2.0	362	236	372	241	2.8
14:00	混合液	11.0	13	54	14	8.0	335	-357	1.5	95	3.5	178	199	392	245	2.4
19:30	上澄液	16.5	9	72	13	7.8	356	-340	1.5	0	2.0	151	246	628	237	3.9
21:00	処理水	18.0	8	76	14	7.9	354	-295	1.6	0	3.0	167	277	726	244	4.7

表5 各タイプの曝気槽における水質浄化

水質項目		O型			Y型		
		7月	10月	12月	7月	10月	12月
全窒素 (T-N)	汚水 [kg/d]	11.9	20.0	20.4	3.0	3.3	3.4
	処理水 [kg/d]	0.9	1.1	1.5	1.4	1.3	1.5
	浄化量 [kg/d]	10.9	18.9	18.9	1.6	2.0	2.0
	浄化率 [%]	92	95	93	54	60	57
生物化学的酸素要求量 (BOD)	汚水 [kg/d]	53.5	53.4	32.8	17.2	13.9	8.3
	処理水 [kg/d]	0.9	0.4	0.4	2.6	3.8	1.0
	浄化量 [kg/d]	52.6	53.0	32.4	14.6	10.1	7.3
	浄化率 [%]	98	99	99	85	73	88

設計上における曝気槽への汚水の流入量, 希釈水の流入量(表1), および実測の各濃度(表3, 4)から計算した。

お、混合液のORPとDO濃度も曝気開始直後から高く維持されていた。溶存CO<sub>2</sub>濃度については、O型の濃度は曝気後半に低下したが、Y型では逆に上昇した。O型の濃度変動は、N<sub>2</sub>Oとよく似た推移を示した。すなわち、7月と10月のピークはN<sub>2</sub>Oと同期していた。

O型曝気槽混合液面から大気に排出される温室効果ガスフラックス

O型曝気槽の混合液および上澄液の液面から大気に排出される温室効果ガスフラックスをチャンバー法によって測定した。チャンバー内の温室効果ガス濃度変化の一例を図7に示す。どのガス種において

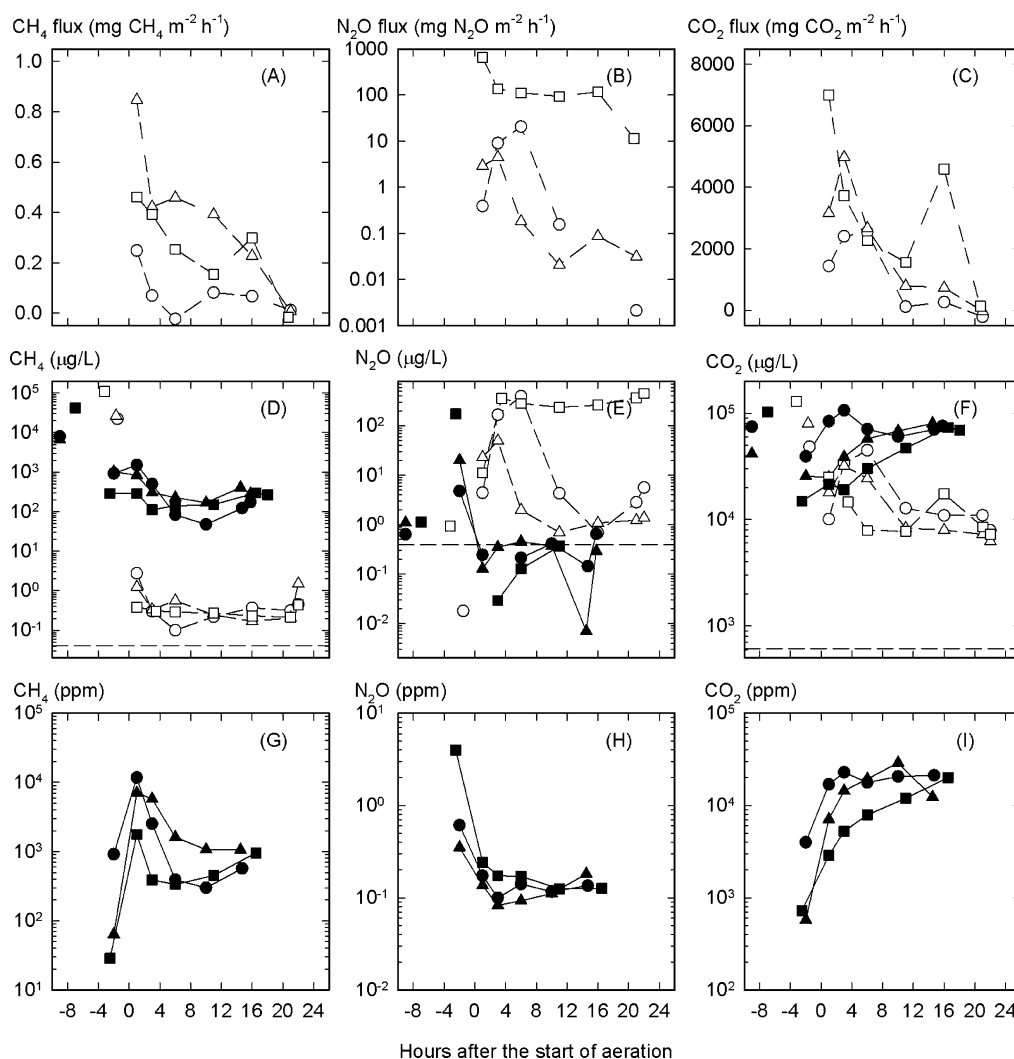


図6 曝気開始後の経過時間と温室効果ガスの動態。(A)～(C)はO型混合液表面から大気へのフラックスを示す。(D)～(F)はO型およびY型混合液中の溶存温室効果ガス濃度を示す。最も早い時間におけるプロットは汚水中の溶存温室効果ガス濃度である。図中の点線は通常大気と純水が平衡にある場合の溶存濃度である。(G)～(I)はY型曝気槽のヘッドスペース中の温室効果ガス濃度を示す。○はO型の7月, △はO型の10月, □はO型の12月, ●はY型の7月, ▲はY型の10月, ■はY型の12月を示す。

も、ほぼ直線的な濃度上昇が認められた。前述したように、0分後から32分後までの平均濃度変化を用いてフラックスを計算した。

フラックスの結果を図6(A, B, C)に示す。曝気開始後、どのガス種のフラックスも大きな変動が認められた。CH<sub>4</sub>フラックスは $-0.023 \sim 0.847 \text{ mg CH}_4 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ の範囲を示し、曝気開始直後から低下した。10月のフラックスが最も高く、7月のフラックスが最も低い傾向であった。N<sub>2</sub>Oフラックスは $0 \sim 654 \text{ mg N}_2\text{O m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ の範囲を示し、7月と10月では曝気開始数時間後にピークを示した。これらのピーク時刻は前述した混合液中の溶存N<sub>2</sub>O濃度のピーク時と一致していた。12月のフラックスは曝気開始直後が最も高くその後低下し、7月および10月

と比較すると10倍から1000倍程度も高い値で推移していた。CO<sub>2</sub>フラックスは $-211 \sim 7000 \text{ mg CO}_2 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ の範囲を示し、7月と10月では曝気開始数時間後にピークを示し、12月では曝気開始直後が最も高かった。これらのピーク時刻は前述した混合液中の溶存CO<sub>2</sub>濃度のピーク時と一致していた。12月の曝気開始16時間後のようなフラックスの一時的な上昇が認められるが、おおむね曝気前半のフラックスが後半のそれよりも高い傾向を示し、調査月による違いは認められないようであった。

混合液中の溶存温室効果ガス濃度と混合液表面から大気への温室効果ガスフラックスの関係を図8(A, B, C)に示す。一部のはずれ値を除いて考えると両者には正の有意な相関関係が認められた。



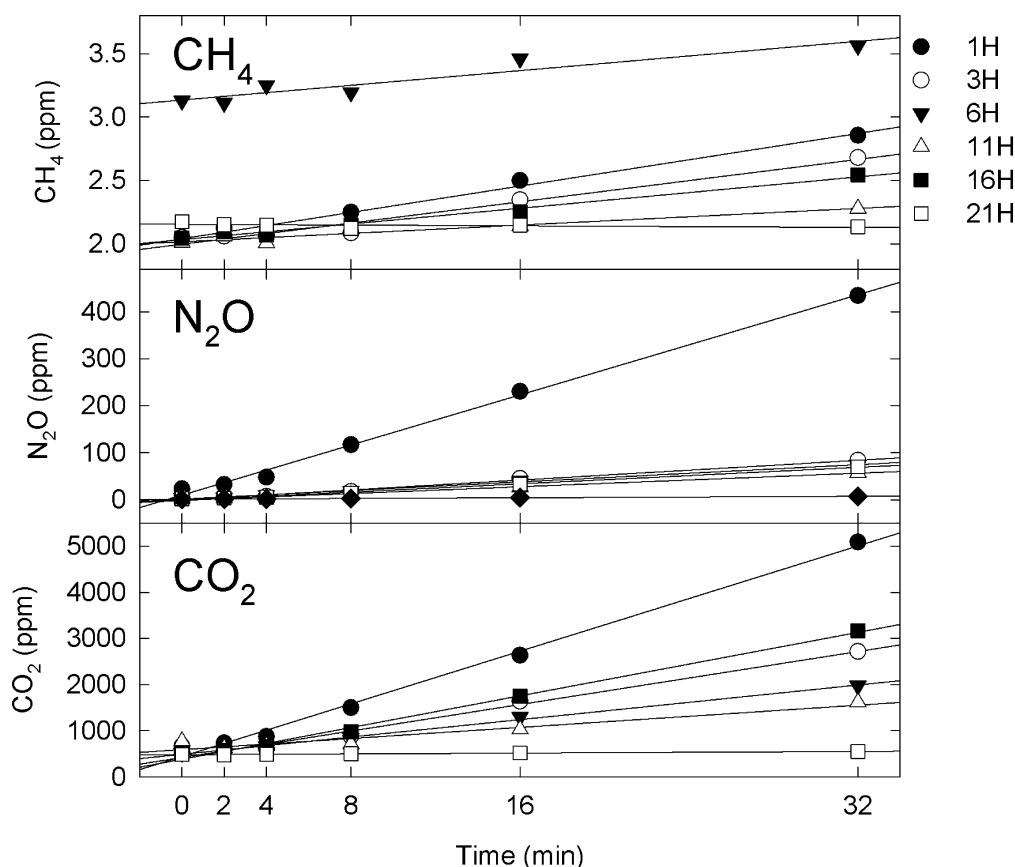


図7 O型曝気槽に設置したチャンバー内の温室効果ガス濃度変化の例(12月)。凡例に示すように、曝気開始から、1、3、6、11、16、21時間後に実施した。

O型曝気槽混合液面から大気に排出されるNH<sub>3</sub>フラックス

O型の曝気槽混合液面から大気に排出されるNH<sub>3</sub>フラックスの結果をpHの推移とともに図9(A, C)に示す。NH<sub>3</sub>フラックスは0.0~10.6 mg NH<sub>3</sub>-N m<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>の値の範囲を示し、曝気開始後のpH低下に伴ってNH<sub>3</sub>フラックスの低下が認められた。また、混合液pHが高い7月はNH<sub>3</sub>フラックスが高く、混合液pHが6.5以下であった12月のNH<sub>3</sub>フラックスは低い傾向を示した。このように混合液pH値が高いほどNH<sub>3</sub>フラックスは高い傾向を示した。

Y型曝気槽のヘッドスペースにおける温室効果ガスとNH<sub>3</sub>濃度

Y型曝気槽のヘッドスペースにおける温室効果ガス濃度の推移を図6(G, H, I)に示す。CH<sub>4</sub>濃度は曝気開始直後に大きく上昇し、その後低下する傾向を示した。曝気開始以降の濃度は300~11700 ppmの範囲を示した。これは、通常の大気CH<sub>4</sub>濃度である1.8 ppm(IPCC 2009)のおおよそ150~5800倍に相当するものである。N<sub>2</sub>O濃度は曝気開始直後

に大きく低下し、その後0.08~0.24 ppmのほぼ一定値を示した。これは、通常の大気N<sub>2</sub>O濃度である0.32 ppm(IPCC 2009)よりも低い濃度であった。CO<sub>2</sub>濃度は曝気開始から終了時まで上昇した。曝気開始以降の濃度は2900~29000 ppmの範囲を示した。これは、通常の大気CO<sub>2</sub>濃度である380 ppm(IPCC 2009)のおおよそ7.6~76倍に相当するものである。

Y型曝気槽における混合液中の溶存温室効果ガス濃度とヘッドスペース中の温室効果ガス濃度の関係を図8(D, E, F)に示す。両者には正の有意な相関関係が認められた。

Y型の曝気槽ヘッドスペース中におけるNH<sub>3</sub>濃度の結果をpHの推移とともに図9(B, D)に示す。NH<sub>3</sub>濃度は0.32~13.4 μg NH<sub>3</sub>-N L<sup>-1</sup>の値の範囲を示し、曝気開始後のpH低下とともにNH<sub>3</sub>濃度の低下が認められた。曝気前半の混合液pHは12月が最も高く7月が最も低い傾向を示した。これに対し、NH<sub>3</sub>濃度はその逆を示した。O型曝気槽では、混合液pH値が高い調査月ほどNH<sub>3</sub>フラックスが高かったが、これとは逆の傾向を示した。

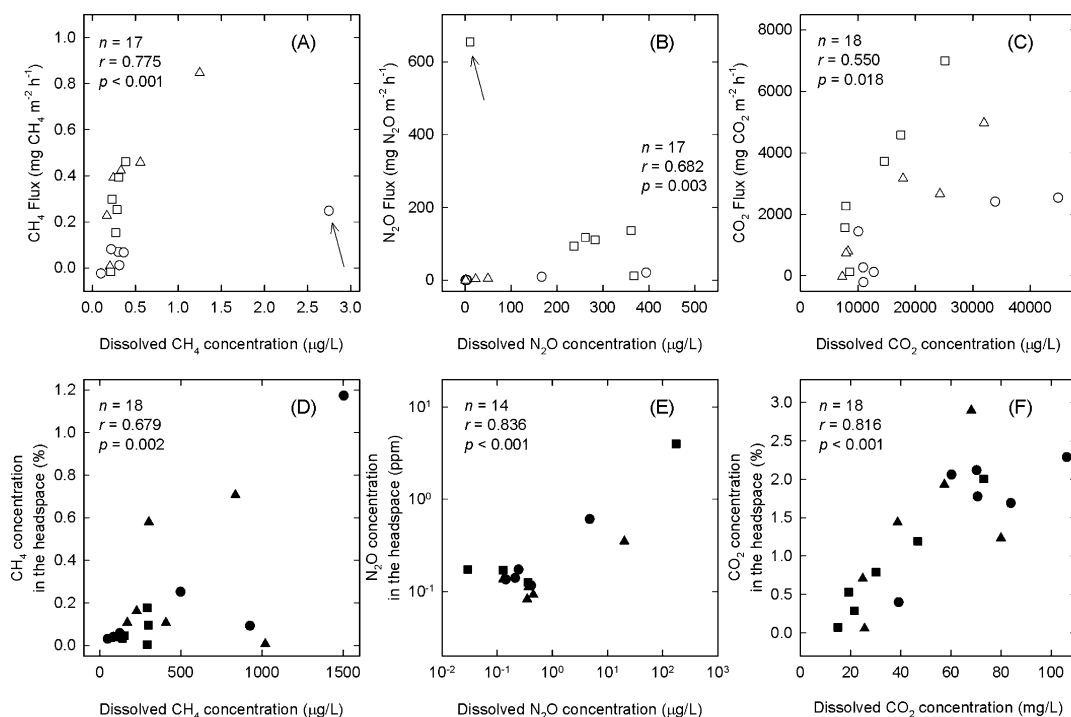


図8 溶存温室効果ガス濃度とO型曝気槽における温室効果ガスフラックス(A~C)の関係, および溶存温室効果ガス濃度とY型曝気槽ヘッドスペース中の温室効果ガス濃度の関係(D~F)。凡例は, 図6と同じである。矢印の値ははずれ値として統計検定から除外した。(E)における統計検定は常用対数変換値について実施したものである。

#### 4. 考 察

##### 曝気槽型による混合液水質の違い

O型とY型の曝気槽において混合液の水質の違いが認められた。特に, pH, ORP, およびDOの違いが大きかった。ORPとDOについては曝気による混合液中の酸素(O<sub>2</sub>)濃度と直接関係する指標であるために, 曝気方式や曝気槽形状などの違いによるものと考えられる。前述したようにO型はスクリュウタイプによる曝気で混合液は曝気槽を強制的に循環させられていた(図1)。一方, Y型ではシンプレックスによる曝気で, 混合液の流れをきちんと目視することはできなかったが, 混合液はO型のように曝気槽内を大きく循環しているようには見えなかった(図2)。また, Y型では希釈水の投入に時間がかかっていたため, 曝気時間が短かった(表1)こともこのような違いを生じさせた一因ではないかと推察される。

pHの違いもこの曝気の違いによる可能性が高い。通常の曝気槽ではふん尿に多量に含まれるアンモニア態窒素(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)は曝気で供給される酸素(O<sub>2</sub>)と反応し, 複数の段階(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>→NH<sub>2</sub>OH→NO<sub>2</sub><sup>-</sup>→NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)を経て硝酸まで酸化される。これは活性汚泥中の微生物による硝化という化学反応であるが, 反

応をまとめて簡潔に記せば, 「NH<sub>4</sub><sup>+</sup>+2O<sub>2</sub>→NO<sub>3</sub><sup>-</sup>+H<sub>2</sub>O+2H<sup>+</sup>」であり, 水素イオン(H<sup>+</sup>)が生成する。すなわち, 十分な曝気による酸素の供給はpHの低下をもたらすと考えられる(西村ら2009)。よって, 前述したような曝気の違いによってpHの違いが生じたものと推察される。なお, Y型を使用していた酪農家さんによれば, 希釈水の投入時間を短くするような改善を後日実施したと伺っている。このような曝気, pH, ORP, DOの違いにより, O型とY型のガス生成・発生が異なっていたと考えられるが, 次節ではこのことについて考察する。

##### 曝気槽型による混合液中の溶存ガスの違い

溶存CH<sub>4</sub>濃度は曝気槽による違いが顕著であった。すなわち, Y型における濃度が高い値を示した。この違いはDOおよびORPの違いによってもたらされたものと推察される。一般的にCH<sub>4</sub>細菌は絶対嫌気性生物であるために嫌氣的であるほど活性が高くなる。そのため, DOとORPが低くより嫌氣的であったY型曝気槽の溶存CH<sub>4</sub>濃度が高かったと考えられる。なお, おおむね好氣的であったO型曝気槽においても, 溶存CH<sub>4</sub>濃度は通常の大気平衡濃度の10倍程度の過飽和であった。このことは, 混合液はヘテロな状態で嫌氣的部位が存在しており, そこでCH<sub>4</sub>生成が生じていたことを示唆している。

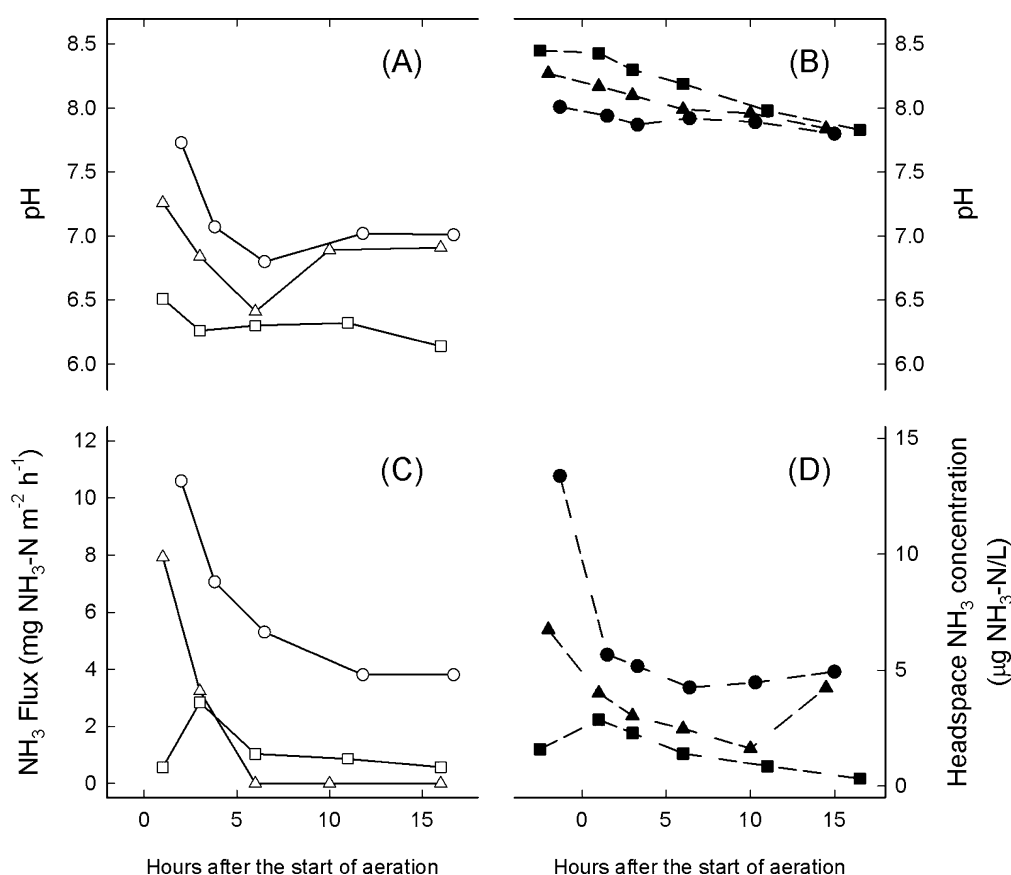


図9 曝気開始以降における混合液 pH とアンモニアの動態。(A)および(C)は、それぞれO型における混合液 pH およびアンモニア揮散を示す。(B)および(D)は、それぞれY型における混合液 pH およびヘッドスペース中のアンモニア濃度を示す。凡例は、図6と同じである。

溶存  $N_2O$  濃度も曝気槽による違いが顕著であった。特に曝気開始後においてはその違いが顕著であり、O型では常に大気平衡濃度よりも高かったのに対し、Y型ではそれ以下であった。一般に  $N_2O$  は微生物による硝化作用（前述）の副生成物として生成する。さらに、脱窒作用の中間生成物としても生成あるいは消失する。脱窒反応は硝酸態窒素 ( $NO_3^-$ ) が逐次的に窒素ガスまで還元される ( $NO_3^- \rightarrow NO_2^- \rightarrow NO \rightarrow N_2O \rightarrow N_2$ ) もので、反応式を簡潔に記せば「 $4 NO_3^- + 4 H^+ + 5 CH_2O \rightarrow 2 N_2 + 5 CO_2 + 7 H_2O$ 」である。これは硝化と異なり嫌気条件下で進行し有機物が必要という特徴がある。乳牛ふん尿のように高濃度の  $NH_4^+$  が存在する条件（本稿ではその値を示していないが、本多（2004）等を参照）では硝化による  $N_2O$  に加え、硝化によって生じた  $NO_3^-$  の脱窒による  $N_2O$  の生成（と消失）が考えられる。前述したような曝気や DO 等の水質の違いを考えれば、O型では硝化による  $N_2O$  の生成が主要であったと推察される。一方、Y型の溶存  $N_2O$  濃度が低かったのは硝化の程度が小さく、硝化によって  $N_2O$

が生じたとしても嫌气的であったためその  $N_2O$  が脱窒で消失したためではないかと推察される。

溶存  $CO_2$  濃度は曝気開始後の変化において曝気槽による違いが認められた。すなわち、O型では曝気経過時間とともに濃度が低下したがY型では上昇した。これは、O型においてはDOが曝気前半で低かったことから考えると、曝気で供給された酸素を使用した有機物酸化が曝気前半で（後半ではなく）主に生じ、これによって生じた  $CO_2$  によって曝気前半の溶存濃度が高かったのであろう。これに対し、Y型では有機物酸化が継続的に生じており、構造的に開放的でないため生成した  $CO_2$  がヘッドスペースから大気への排出が抑制されたことが、曝気後半にかけても高い溶存  $CO_2$  濃度をもたらしたのかもしれない。

#### O型における環境負荷ガスフラックス

$CH_4$ 、 $N_2O$ 、 $CO_2$  といった温室効果ガスフラックスには、混合液中の溶存ガス濃度とチャンバー法によって測定されたフラックスには正の有意な相関が認められた。溶存ガス濃度がいずれも大気平衡レベ

ルより高い過飽和であったため、混合液と大気との濃度勾配がフラックスを生じさせていたと考えられる。

CH<sub>4</sub> フラックスは曝気開始直後に高くその後大きく低下した。この理由として、ORP と DO の推移から混合液が嫌気の状態から好気の状態にシフトしたためであると考えられる。10月のフラックスが最も高いが、ORP, DO, BOD, もしくは溶存 CH<sub>4</sub> 濃度を他の月と比較しても特に大きな違いはないため、この理由は不明である。1日あたり（1工程あたりの）CH<sub>4</sub> 排出量は 0.011~0.062 g CH<sub>4</sub> の範囲であった（表6）。

N<sub>2</sub>O フラックスは7・10月と12月で異なる推移を示した。前述したように7・10月では混合液の DO が大きく上昇する直前の時刻に溶存 N<sub>2</sub>O 濃度が上昇し、これに同期して N<sub>2</sub>O フラックスのピークが認められた。この原因として、曝気開始直後では多量の有機物が存在しており、従属栄養細菌による溶存酸素の消費のために DO が低く推移し、硝化菌が溶存酸素を巡る競争に負け、硝化能が立ち上がらなかった（西村ら 2009）可能性がある。そして、この従属栄養細菌による溶存酸素の消費が緩慢になったことにより、硝化菌が溶存酸素を獲得でき硝化が生じたため、これによる N<sub>2</sub>O の生成、溶存 N<sub>2</sub>O 濃

度の上昇、N<sub>2</sub>O フラックスの上昇が生じたのではないと思われる。また、12月では汚水の BOD が7・10月よりも低いことから、この溶存酸素を巡る競争があまり生じなかったため、曝気開始直後から DO が高く推移し、硝化が曝気開始直後から高いレベルで生じていたのかもしれない。1日あたり（1工程あたりの）N<sub>2</sub>O 排出量は 0.147~25.38 g N<sub>2</sub>O の範囲であり、変動が大きかった（表6）。

本報告では無機態窒素 (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) の推移を提示できなかったが、このような項目も含めて詳細に検討することができれば、より高い確度でのメカニズム推定もしくは発生量変動の原因を明らかにできるだろう。なお、西村ら（2009）は豚汚水の活性汚泥法において、好気性脱窒の可能性を考察している。

CO<sub>2</sub> フラックスはどの月もおおむね同様の推移を示した。すなわち、曝気前半で高く後半で低い推移を示し、混合液の溶存 CO<sub>2</sub> 濃度と関係が認められたことから、前節で考察したように曝気で供給された酸素を使用した有機物酸化が曝気前半で主に生じたためであろう。1日あたり（1工程あたりの）CO<sub>2</sub> 排出量は 165~504 g CO<sub>2</sub> の範囲であった（表6）。

一般的に、pH が高くアンモニウム態窒素 (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) 濃度が高いほど NH<sub>3</sub> フラックスは高いが、曝気開始後の推移ならびに月別の NH<sub>3</sub> フラックスはこの傾向を示した。なお、曝気開始後の低下は混合液の NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 濃度の低下による可能性もある。1日あたり（1工程あたりの）NH<sub>3</sub> 揮散量は 0.146~0.712 g N の範囲であった（表6）。

以上の4種の環境負荷ガスのうち NH<sub>3</sub> 以外は温室効果ガスであるために、地球温暖化係数 (GWP) を用いて相対的な評価を行うことができる。GWP は、瞬間的な単位質量の排出から特定期間の放射強制力の積算値を比較し、さまざまな温室効果ガスの排出に伴う気候への影響可能性を比較するのに役立つ尺度である。表6には CO<sub>2</sub> に換算した温室効果ガス発生量を示す。1日あたり（1工程あたりの）CO<sub>2</sub> 等価換算排出量は 343~8017 g CO<sub>2</sub>eq の範囲であった。この大きな変動は N<sub>2</sub>O 排出量の大きな変動によるものであった。ガス種寄与割合では N<sub>2</sub>O もしくは CO<sub>2</sub> の割合が高かった。CH<sub>4</sub> の割合は高くても 0.4% であり、N<sub>2</sub>O の 32分の1以下 (10月) であった。以上のことから、O型曝気槽ではこの2種のガスが重要であることが明らかとなった。

#### 処理水経由の温室効果ガス排出

放流された処理水中にも過飽和で温室効果ガスが溶存していた。この過飽和で溶存した温室効果ガス

表6 O型曝気槽表面から大気への温室効果ガス排出と NH<sub>3</sub> 揮散量

調査月	ガス	積算時間 [h]	積算値 [g]	CO <sub>2</sub> 等価換算 [gCO <sub>2</sub> eq]	割合 [%]
温室効果ガス排出					
7月	CH <sub>4</sub>	21	0.011	0.2	0.1
	N <sub>2</sub> O	21	0.854	252.9	60.5
	CO <sub>2</sub>	21	164.6	164.6	39.4
	合計			417.7	100.0
10月	CH <sub>4</sub>	21	0.062	1.4	0.4
	N <sub>2</sub> O	21	0.147	43.6	12.7
	CO <sub>2</sub>	21	297.5	297.5	86.8
	合計			342.5	100.0
12月	CH <sub>4</sub>	21	0.041	0.9	0.0
	N <sub>2</sub> O	21	25.38	7511.5	93.7
	CO <sub>2</sub>	21	504.5	504.5	6.3
	合計			8017.0	100.0
アンモニア揮散					
7月	NH <sub>3</sub>	16	0.712		
10月	NH <sub>3</sub>	16	0.193		
12月	NH <sub>3</sub>	16	0.146		

CO<sub>2</sub> 等価換算には、地球温暖化指数として、CH<sub>4</sub>=23 xCO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O=296 xCO<sub>2</sub> を用いた。

は放流後の流下過程において脱ガスによって大気に排出されると考えられる。過飽和溶存分の濃度と放流量の積から1日あたり（1工程あたりの）排出量を計算し、表7に示す。

O型曝気槽においては、混合液表面から大気への排出量（直接排出：表6）と処理水経由の排出量（間接排出：表7）を比較することができる。N<sub>2</sub>Oについて直接/間接比は5~15であった。一方、CO<sub>2</sub>等価換算した3種の温室効果ガス合計値についての直接/間接比は4.3~5.2で大きな変動は認められなかった。なお、木持ら（1998）は生活排水を間欠曝気活性汚泥処理した場合、N<sub>2</sub>Oの直接/間接比は3程度と報告している。以上のことから、処理水経由の溶存ガス排出はメインではないものの一定の割合を占めると考えられ、無視できないものであると考えられる。

Y型曝気槽においては、処理水経由の溶存ガス排出は主にCO<sub>2</sub>で構成（>90%）されていた。CO<sub>2</sub>等価換算した3種の温室効果ガス合計値は447~474 g CO<sub>2</sub>eq/dと変動が小さかった。O型曝気槽の変動が大きいことと、飼養頭数や汚水量が異なっていることとため単純な比較はできないが、Y型の処理水経由の溶存ガス排出はO型と同程度もしくはそれよりも大きいものであった。これは、Y型の曝気槽のヘッドスペースが開放的でないために、処理水経由の排出量が高まったことによるのかもしれない。

窒素浄化量とN<sub>2</sub>O排出量

表8にN<sub>2</sub>OおよびNH<sub>3</sub>排出量とその浄化された窒素量との比を示す。O型曝気槽の混合液面から大気へ排出（直接排出）されたN<sub>2</sub>O-Nは浄化された

全窒素（T-N）の0.005~0.085%に相当した。この値は、前述した実験室レベルでの豚汚水浄化で求められたN<sub>2</sub>O排出係数5.0%（Osada 2003）と比較して極めて低い値であるが、以下の2例と比較しうる値である。すなわち、Osada（2003）によれば、間欠曝気を行うとN<sub>2</sub>O排出係数は0.05%以下に抑制されること報告しており、西村ら（2009）は豚舎排水を間欠曝気回分式活性汚泥で処理した場合、N<sub>2</sub>O排出係数が0.0028~4.64%であったとしている。これらの例は豚の汚水を用いた間欠曝気であるのに対し、本報告では乳牛ふん尿を用いた連続曝気であるために単純に比較はできない。しかしながら、本報告と既往の事例は、汚水の種類や処理方法あるいは同じ汚水や処理方法内においても大きな変動があることを示している。今後、様々な条件で測定が積み重ねられ、N<sub>2</sub>O排出の変動要因が明らかにされ、排出量削減と効率的な浄化が行われることを期待したい。

本報告の不確実性と今後の課題

最後に本報告での不確実性について述べる。まず、曝気槽への汚水と希釈水の流入量として設計値を用いて計算を行っている点である。これは、現場における実際の値を測定する方法がなかったためである。実際の値はいくぶん設計値と異なっていた可能性もあり、そのことによる計算値の誤差がありうる。

次に、O型曝気槽における混合液表面からのガスフラックスの測定である。チャンバーを1ヶ所のみしか設定できなかったことによる誤差が考えられる。これは曝気槽開口部の全体を今回設置したチャンバーが代表しているか？ということである。本来

表7 処理水に過飽和で溶存して排出された温室効果ガスの量

調査月	ガス	O型			Y型		
		排出量 [g/d]	CO <sub>2</sub> 等価換算 [gCO <sub>2</sub> eq/d]	割合 [%]	排出量 [g/d]	CO <sub>2</sub> 等価換算 [gCO <sub>2</sub> eq/d]	割合 [%]
7月	CH <sub>4</sub>	0.005	0	0	1.049	24	5
	N <sub>2</sub> O	0.058	17	18	0.002	0	0
	CO <sub>2</sub>	80	80	82	450	450	95
	合計		98	100		474	100
10月	CH <sub>4</sub>	0.016	0	1	1.700	39	8
	N <sub>2</sub> O	0.011	3	5	-0.001	0	0
	CO <sub>2</sub>	62	62	95	429	429	92
	合計		66	100		468	100
12月	CH <sub>4</sub>	0.004	0	0	1.598	37	8
	N <sub>2</sub> O	4.963	1469	95	-0.002	-1	0
	CO <sub>2</sub>	73	73	5	411	411	92
	合計		1542	100		447	100

表 8 N<sub>2</sub>O 排出および NH<sub>3</sub> 揮散量と浄化 T-N 量との比

曝気槽	調査月	測定項目	測定値		浄化T-N 量との比 [g/g]
			[g/d]	[g N/d]	
O型	7月	浄化T-N	—	10.9×10 <sup>3</sup>	—
		直接N <sub>2</sub> O	0.854	0.544	5.0×10 <sup>-5</sup>
		間接N <sub>2</sub> O	0.058	0.037	3.4×10 <sup>-6</sup>
		NH <sub>3</sub> 揮散	—	0.712	6.5×10 <sup>-5</sup>
		合計		1.293	1.2×10 <sup>-4</sup>
	10月	浄化T-N	—	18.9×10 <sup>3</sup>	—
		直接N <sub>2</sub> O	0.147	0.094	5.0×10 <sup>-6</sup>
		間接N <sub>2</sub> O	0.011	0.007	3.7×10 <sup>-7</sup>
		NH <sub>3</sub> 揮散	—	0.193	1.0×10 <sup>-5</sup>
		合計		0.293	1.6×10 <sup>-5</sup>
	12月	浄化T-N	—	18.9×10 <sup>3</sup>	—
		直接N <sub>2</sub> O	25.377	16.153	8.5×10 <sup>-4</sup>
		間接N <sub>2</sub> O	4.963	3.159	1.7×10 <sup>-4</sup>
		NH <sub>3</sub> 揮散	—	0.146	7.7×10 <sup>-6</sup>
		合計		19.458	1.0×10 <sup>-3</sup>
Y型	7月	浄化T-N	—	1.6×10 <sup>3</sup>	—
		間接N <sub>2</sub> O	1.5×10 <sup>-3</sup>	9.9×10 <sup>-4</sup>	6.1×10 <sup>-7</sup>
	10月	浄化T-N	—	2.0×10 <sup>3</sup>	—
		間接N <sub>2</sub> O	-5.8×10 <sup>-4</sup>	-3.7×10 <sup>-4</sup>	-1.9×10 <sup>-7</sup>
	12月	浄化T-N	—	2.0×10 <sup>3</sup>	—
		間接N <sub>2</sub> O	-2.3×10 <sup>-3</sup>	-1.5×10 <sup>-3</sup>	-7.5×10 <sup>-7</sup>

直接 N<sub>2</sub>O：曝気槽の混合液表面から大気への N<sub>2</sub>O 排出量

間接 N<sub>2</sub>O：処理水中に過飽和で溶存した N<sub>2</sub>O 排出量

NH<sub>3</sub> 揮散：曝気槽の混合液表面から大気への NH<sub>3</sub> 揮散量

であれば、多数のチャンバーを設置、あるいは曝気槽全体を覆うようなことができれば最良であった。Y型曝気槽でも同様なことができれば、曝気槽ヘッドスペースからもれ出るガスフラックス(直接排出)を測定することができた。しかしながら、立地条件や予算の制約でそのようなことは不可能であった。よって、本報告のチャンバー法に由来する定量的なデータについては、系統的な誤差が含まれている可能性がある。

最後に、本報告は浄化過程における環境負荷ガスの発生に着目しその結果について述べたが、総合的な評価の必要性もあろう。加藤ら(2007)は今回のふたつの施設の事例について、施設建設のコストとエネルギー、ランニングコストとエネルギー、施設建設と運用時の温室効果ガス排出、水域への富栄養化といった項目の評価を行っている。今後は本報告の結果や実際に使用している酪農家さんの評価なども加えた総合評価が必要であろう。

## 5. 要 約

回分式活性汚泥を用いた乳牛ふん尿処理過程における水質・温室効果ガス(CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>)・アンモニア(NH<sub>3</sub>)の発生を異なる2タイプの曝気槽において調査した。一方はオキシデーション・ディッチ型(O型)、他方はユニット型(Y型)の曝気槽である。畜舎でふん尿分離され、その汚水が曝気槽に投入されていた。これらの処理は、汚水投入・曝気・沈殿・放流を24時間で行うものである。調査は2006年7月、10月、および12月に実施した。

曝気槽混合液のORP, DO, pHの結果から、O型曝気槽はおおむね好氣的でありY型曝気槽では嫌氣的であった。この違いが混合液に溶存する温室効果ガスの濃度の違いを生み、さらに大気への排出に影響を与えていた。特にY型ではN<sub>2</sub>O発生が認められなかったのに対し、O型ではN<sub>2</sub>O排出が認められた。ただし、その変動は大きいものであった。O型ではN<sub>2</sub>OもしくはCO<sub>2</sub>、Y型ではCO<sub>2</sub>が発生

した主要な温室効果ガスであった。NH<sub>3</sub>の発生はpHに依存して変化した。

O型曝気槽から直接大気に排出したN<sub>2</sub>O量と除去された全窒素量との比(N<sub>2</sub>O-N/T-N)は $5.0 \times 10^{-6} \sim 8.5 \times 10^{-4}$ の広い範囲を示し、現在の乳牛ふん尿の浄化における排出係数(5.0%)よりも極めて低く、豚舎排水を間欠曝気回分式活性汚泥法で浄化した際の排出係数の事例と類似するものであった。

## 謝 辞

本研究は、2006年度酪農学園大学・酪農学園短期大学部共同研究の助成(採択No.1)を受けたものである。また、酪農学園大学と神奈川県畜産技術センターの「畜産・酪農場における污水处理システムの多面的評価」に関する共同研究の一部である。神奈川県内の酪農家さん2戸には現地調査の際に大変お世話になった。以上、ここに記して感謝いたします。

## 文 献

羽賀清典 2002. 第1章 畜産と環境, 畜産環境保全論, 養賢堂, 東京, 1-20.  
 本多勝男 2004. 自動回分式活性汚泥法, 畜産環境対策大事典 第2版, 農文協, 東京, 298-310.  
 IPCC編 2009. IPCC地球温暖化第四次レポート—気候変動2007—, 中央法規出版, 43-59.  
 加藤博美・田邊 眞・川村英輔・澤本卓治・干場信司・池口厚男 2007. 家畜排せつ物処理技術のLCAを用いた環境影響および経済性の評価, 平

成18年度試験研究成績書(畜産環境・経営流通・企画調整), 神奈川県畜産技術センター 資料18-1, 23-32.

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<sub>2</sub>O放出および窒素除去に及ぼす影響, 水環境学会誌, 21, 163-169.

国立環境研究所地球環境研究センター 温室効果ガスインベントリオフィス(GIO) 2010. 第6章 農業分野, 日本国温室効果ガスインベントリ報告書, 独立行政法人 国立環境研究所, 茨城県つくば市

日本化学会編 1984. 化学便覧, 改訂3版, 丸善, 東京, II-158.

西村 修・増田周平・五ノ井浩二・原田茂樹・水落元之・稲森悠平 2009. 豚舎排水を処理する回文式活性汚泥法におけるN<sub>2</sub>O発生特性, 日本水処理生物学会誌, 45, 13-22.

Osada T. 2003. Nitrous oxide emission from purification of liquid portion of swine wastewater, Greenhouse Gas Control Technologies, J. Gale and Y. Kaya (Eds.)

長田 隆 2010. 畜産に由来する温室効果ガス—特に家畜排せつ物起源の排出に関して—, 畜産の研究, 64, 357-361.

八木一行 1997. III. 8 温室効果ガス発生・吸収量, 土壌環境分析法, 土壌環境分析法編集委員会編, 博友社, 東京, 129-138.

## Summary

We measured the production of CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, and CO<sub>2</sub>, known greenhouse gases, and NH<sub>3</sub> from aerating tanks in sequencing batch (activated sludge) reactors. We examined the use of oxidation ditch (O-type) and unit (Y-type) reactors to purify dairy cattle wastewater, after solid-liquid separation, in a 24-h cycle that involved wastewater inflow, aeration, sedimentation, and effluent release. We repeated the measurements in July, October, and December 2006. The results of oxidation-reduction potential (ORP), dissolved oxygen (DO), and pH showed that the liquid in the O-type aerating tanks was aerobic, whereas that in the Y-type aerating tanks was anaerobic. Consequently, the two tank types displayed major differences in dissolved gas concentrations and associated gas flux from the surface of the liquid to the atmosphere. No N<sub>2</sub>O was produced from the Y-type reactor, whereas N<sub>2</sub>O was produced from the O-type reactor in amounts that varied considerably between the three months of measurement. The dominant greenhouse gases produced were N<sub>2</sub>O and CO<sub>2</sub> by the O-type reactor and CO<sub>2</sub> by the Y-type reactor. The production of NH<sub>3</sub> was closely related to the pH of the liquid. In the O-type reactor, the ratio of N<sub>2</sub>O emitted from the aerating tank to the total amount of nitrogen removed (N<sub>2</sub>O-N/T-N) ranged from  $5.0 \times 10^{-6}$  to  $8.5 \times 10^{-4}$ , much lower than the current emission factor of 0.050 used in the national greenhouse gas inventory for livestock wastewater purification. However, our findings are consistent with previous studies that used an intermittent aeration process to treat swine wastewater.