

亜酸化窒素・メタンの発生抑制方法の検討 (II)

—豚ふん堆肥化過程から発生するアンモニア、亜酸化窒素及びメタン濃度—

白石 誠・脇本進行・滝本英二・小林 宙・長田 隆*

Examination of method to restrain methane and nitrous oxide
—Regulation of ammonia, nitrous oxide and methane emission from
composting of pig manure—

Makoto SHIRAIISHI, Nobuyuki WAKIMOTO, Eiji TAKIMOTO, Hiroshi KOBAYASHI and Takashi OSADA

要 約

家畜ふん尿の堆肥化に伴う環境負荷ガス発生状況の把握を目的に、肥育豚舎から搬出されるふん尿の堆肥化を容積 13m³ のチャンパー内で行い、発生するアンモニア、亜酸化窒素、メタンの実態を調査して揮散量を推定した。また、初発水分を変更することによる発生抑制効果について検討した。

- 1 アンモニアの発生は、発酵温度の上昇と連動して検知され、そのピークは発酵温度より若干遅れていた。また、発酵温度の上昇が停止するとアンモニアの発生も低下した。
- 2 亜酸化窒素については、堆肥化中期以降に発生が認められたが、これはアンモニアの硝化と脱窒過程で発生したものと考えられた。
- 3 メタンの発生は堆肥化初期に多く、これは堆積直後が嫌気状態であったためと考えられた。
- 4 豚ふん堆肥化過程からの揮散量はアンモニア 149.9 ~ 254.1g/kg-TN、亜酸化窒素 12.3 ~ 37.2g/kg-TN、メタン 1.0 ~ 1.6g/kg-VS と推定された。
- 5 含水率が 60 % の低水分区は 65 % の高水分区よりアンモニア、メタンの発生は明らかに低く、低水分とすることの有効性が認められたものの、亜酸化窒素に関しては、温暖期が高水分区、寒冷期は低水分区が低く、季節により異なる結果となった。

キーワード： 豚ふん、堆肥化、アンモニア、メタン、亜酸化窒素

緒 言

近年、アンモニア、亜酸化窒素、メタン等の環境へ及ぼす影響が問題視されている。特に地球温暖化に関わる問題は大きく取り上げられており、削減目標を掲げた気候変動枠組条約第 3 回締約国会議(COP3: 京都会議) や気候変動に関する政府間パネル(IPCC) などにより国際的に議論されている。このような地球温暖化に最も寄与している物質は二酸化炭素(CO₂)であり、温暖化要因の約 90 % を占めると考えられている¹⁾。しかしながら、地球温暖化の原因となる物質はCO₂のみではなく、メタン(CH₄)、亜酸化窒素(N₂O)、フロン類なども少量で温暖化に大きく影響するといわれている。また、アンモニア(NH₃)について

は酸性雨の原因ともなり環境に与える影響は大きい。

畜産経営においては、温暖化に寄与するCH₄、N₂Oは、畜舎内やふん尿処理施設から普遍的に発生していることが確認されている^{2, 5)}。

我々はこれまで、畜産経営から発生するNH₃、N₂O、CH₄等の環境負荷ガスについてその発生量や抑制方法を検討してきた。前報⁶⁾において肥育牛舎から搬出されるふん尿の堆肥化を行い、発生するNH₃、N₂O及びCH₄の実態を調査し、堆積物の窒素、有機物量から堆肥化過程での発生量を推定した。さらに水分含量の相違による抑制効果について検討し、低水分とすることで発生が抑制できることが確認された。

本報では、肥育豚ふんの堆肥化を温暖期と寒冷

期に行い、前報と同様にその過程から発生する NH_3 、 N_2O 及び CH_4 量を推定するとともに含水率を低く設定することによる抑制効果について検討した。

材料及び方法

1 測定システム

測定は前報⁶⁾と同様に図1に示すようなシステムを用いた。すなわち、高さ2.2m、直径3m、容積 13m^3 のチャンパーを屋内に設置して行った^{2, 7)}。このチャンパーは(独)畜産草地研究所において揮散物質の定量的な測定を目的として開発された装置である。骨組みは腐食しにくい金属性のパイプを用い、シートはウレタン樹脂でコーティングされたシートを用いている。チャンパー内の換気は外部に設置されたインバータ制御による吸引機により行われ、チャンパー下部と床面の間(数cm)から新鮮空気が吸引され、上部から排出される。チャンパー上部から吸引された空気は、エレファントホースより



図1 測定装置

吸引機に導入され、直径10cm、長さ1mの塩ビパイプを通して屋外へ排気される。換気量は、吸引機の吐出側でピトー管により測定し、1時間あたり 130m^3 となるように制御した。排気は吸引機直前で採取し、内径3mmのPTFEチューブを通して測定機器へ導入した。このチャンパー内で堆積繰り返し方式による堆肥化を行った。

2 試験区分

試験区分を表1に示した。

使用した豚ふんは、当センターの肥育豚舎(スクレーパー)内で3~4日程度堆積されていたものを用い、搬出時の水分は約70~75%であった。これにオガクズを添加し水分を65%(高水分区)と60%(低水分区)に調整した。

また、試験期間については、温暖期が9月から11月、寒冷期が2月から5月であった。

堆積量は、温暖期が300kg、寒冷期は250kgであった。

3 堆肥化方法

搬出された豚ふんとオガクズを十分混合攪拌した後チャンパー内に堆積した。切り返しは、原則週1回とし、ガスの発生量及び発酵温度が低下してからは2週間に1回とした。また、切り返しごとに、堆積物のサンプリングと堆積量の計測を行った。堆積期間は、発酵温度の低下、堆肥中のBODなどから決定した。

表1 温暖期及び寒冷期試験における区分

区分	含水率 (%)	豚ふん量 (Kg)	水分調整材 (kg)
温暖期			
高水分区	65	300	35
低水分区	60	300	85
寒冷期			
高水分区	65	250	77
低水分区	60	250	151

4 測定方法

(1) 発酵温度等の測定

堆積物の発酵温度は、表面から内部20cm及び堆積物内部床面から上部20cmの2カ所で測定した。また、各試験ともチャンパー内部の温度、チャンパー排気の温度及び設置場所の屋内と野外の温度を1時間毎に測定した。

(2) ガスの測定

環境負荷ガスとして、 NH_3 、 N_2O 及び CH_4 を測定した。測定機器はInfrared Photoacoustic Detector (IPD, INNOVA, 光音響マルチガスモニター1312及びマルチポイントサンプラー1309)を用いて連続的に測定した^{2, 7)}。

(3) 固形物の測定

固形物の測定は、試験開始時、繰り返し時および終了時に行った。水分は、通風乾燥機で80℃、24時間の乾燥により求めた。pHは、10倍量の2NKCLで希釈したものをガラス電極により、窒素はケルダール法、アンモニア態窒素、硝酸・亜硝酸態窒素は2NKCLで抽出後プレムナー法により、BODは直読式BODセンサーにより、また、強熱減量による減少量を有機物に読み変え、強熱残留物を灰分とした。

結果及び考察

1 発酵温度

堆積物表面から内部20cmの発酵温度を図2及び図3に示した。

温暖期試験では、高水分区、低水分区とも堆積

後急速に発酵し、試験期間中の最高温度は高水

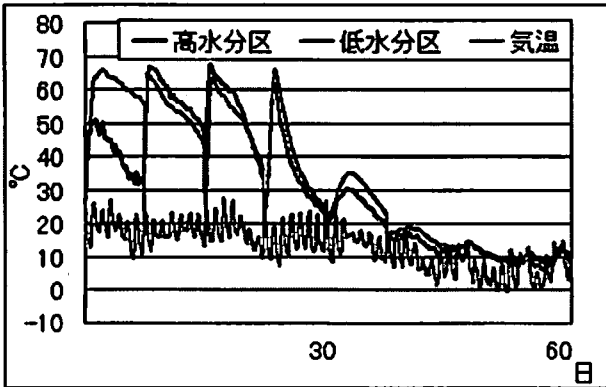


図2 発酵温度 (温暖期試験)

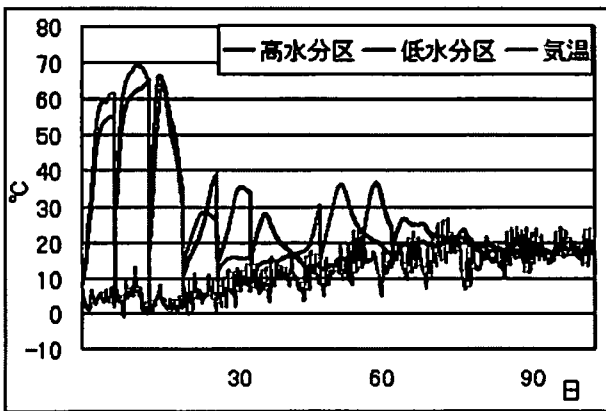


図3 発酵温度 (寒冷期試験)

分区で 67.5℃、低水分区で 66.0℃であった。4 回目の切り返し以降は両区とも温度の上昇が緩やかとなった。発酵温度の上昇は、低水分区が速やかで、堆肥化前半では低水分区が、後半では高水分区が若干高く推移する傾向を示した。これは、初発水分の差によるものと考えられ、65%より 60%とすればより発酵が速やかに行われる。また、両試験区の期間中平均発酵温度は、高水分区で 30.9℃、低水分区で 33.5℃であり、低水分が高水分区より高い発酵温度が得られていた。このことから、良好な発酵を得るためには初期水分の調整がより重要と考えられる。なお、試験期間中の屋内気温は -0.5 ~ 28℃で推移し、平均は 13.3℃であった。

寒冷期試験においても、堆積後急速な発酵がおり、発酵温度は温暖期試験と同様低水分区が速やかに上昇した。試験期間中の最高温度は高水分区で 66.4℃、低水分区で 69.3℃であった。また、寒冷期試験では、温暖期試験より早く発酵温度の低下がおり、3 回目の切り返し以降温度上昇が緩やかとなった。これは、堆積後の屋内気温が温暖期試験に比べ 10℃程度低かったことが影響していると考えられた。また、

高水分区は低水分区より 3 回目の切り返し以降温度低下が遅くなり、発酵が遅延する傾向が認められた。このことは、温暖期試験同様、初発水分の調整が重要であることを示している。

また、温暖期、寒冷期試験ともに堆積物の上部は下部と比べて平均で 1 ~ 5℃程度上部が高い傾向を示したが、チャンパー内部や排気温度については試験区による差は認められなかった。

2 アンモニア

アンモニアの推移を図 4、5 に示した。

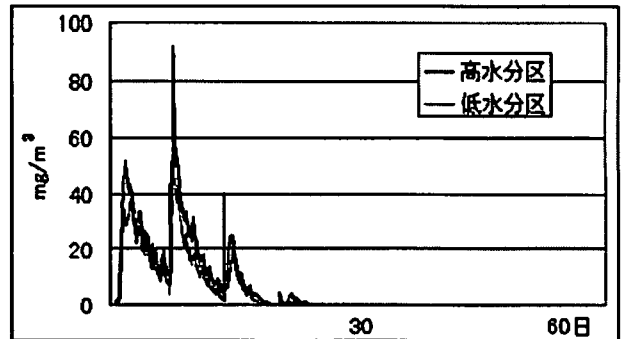


図4 アンモニアの推移 (温暖期試験)

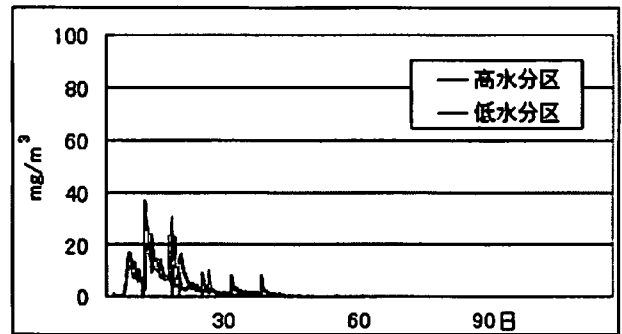


図5 アンモニアの推移 (寒冷期試験)

温暖期試験の高水分区では、試験開始 8 時間後から検出され、24 時間後には 51.78mg/m³ とピークを迎え、以後低下した。以降は切り直し直後に増加する傾向を示したが、4 回目の切り直し後は増加傾向を認めず、発酵温度と同様な傾向を示した。試験期間中最大濃度は 1 回目の切り直し後の 91.67mg/m³、期間中の平均濃度は 6.87mg/m³ であった。低水分区についても、同様な傾向を示したが、濃度は高水分区より低く、試験期間中最大濃度は 1 回目の切り直し後の 60.40mg/m³、平均は 4.96mg/m³ であった。

寒冷期試験の高水分区では、試験開始 60 時間後から検出され、78 時間後に 16.71mg/m³ とピークを迎えたのち低下した。以降は切り直しごとに増加したが、6 回目以降は増加傾向を認めず、試験期間中の最大濃度は温暖期試験の高

水分区と同様1回目の切り返し後の $37.17\text{mg}/\text{m}^3$ 、期間中の平均濃度は $2.08\text{mg}/\text{m}^3$ であった。

低水分区については、高水分区と若干異なる傾向を示した。すなわち、切り返し後にアンモニアが増加する傾向は同様であるが、低水分区では4回目の切り返し後、増加傾向を認めなくなり、平均は $1.52\text{mg}/\text{m}^3$ であった。また期間中の最大濃度についても2回目の切り返し後の $30.70\text{mg}/\text{m}^3$ であった。

アンモニアの発生は、前報⁶⁾と同様、発酵温度の上昇と連動して検知され、各試験とも、試験開始後発酵温度の上昇に若干遅れてアンモニアが検出される傾向を示した。また、切り返し後は発酵温度に遅れることなく発生し、発酵温度が上昇しなくなるとアンモニアの発生も減少した。また、発生量の違いはあるものの、季節に関係なく水分含量を60%とした低水分区の方が発生は少なく、より低い水分で発酵させればアンモニアの排出を抑制できると考えられた。

3 亜酸化窒素

亜酸化窒素は、大気中にも存在することから測定値から外気の測定値を差し引いた値を図5、6に示した。

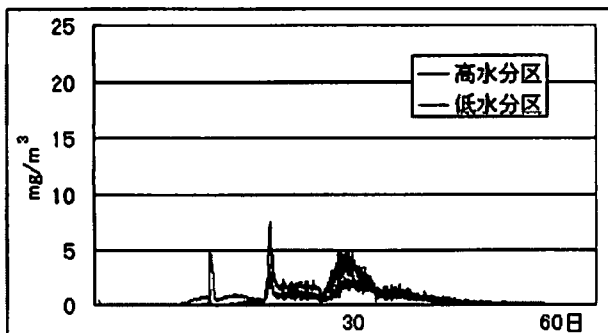


図5 亜酸化窒素 (温暖期試験)

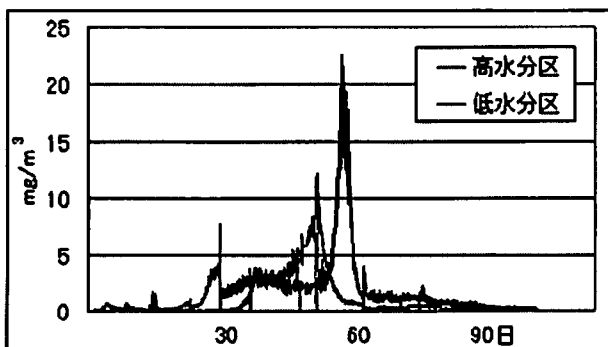


図6 亜酸化窒素 (寒冷期試験)

温暖期試験の高水分区では、3回目の切り返し後アンモニアの低下に伴い発生し、 $3.98\text{mg}/\text{m}^3$ と期間中の最大濃度となった。以降は堆肥化終了時まで発生が続き、平均濃度は

$0.45\text{mg}/\text{m}^3$ であった。低水分区では、高水分区より早く、1回目の切り返し後アンモニアが低下を始めてから検出されはじめた。最大濃度は、高水分区と同様に3回目の切り返し後で $7.53\text{mg}/\text{m}^3$ 、以後高水分区と同様な傾向を示したが、より高い濃度で検出された。期間中の平均濃度は $0.78\text{mg}/\text{m}^3$ であった。

寒冷期試験においては、温暖期試験とは一部相違した傾向を示した。高水分区、低水分区とも試験開始後、早期に検出され、高水分区では3回目の切り返し後、低水分区では2回目の切り返し以降高い値で検出された。また、各区の最大値は高水分区で $22.64\text{mg}/\text{m}^3$ 、低水分区で $12.19\text{mg}/\text{m}^3$ であった。また、期間中の平均値は高水分区で $1.47\text{mg}/\text{m}^3$ 、低水分区で $1.25\text{mg}/\text{m}^3$ であり、低水分区が高かった温暖期試験と異なる結果となった。

前報⁶⁾の肥育牛ふんによる堆肥化では、亜酸化窒素の発生は堆肥化直後から顕著であったが、本試験では異なる傾向であった。豚ふんの堆肥化過程で発生する亜酸化窒素については、FuKumotoら⁷⁾が堆積切り返し方式による堆肥化試験の報告を行っているが、豚ふんを堆肥化した場合、アンモニアの発生と発酵温度が低下し始めた堆肥化中期の切り返し後に発生するとしており、本試験でも同様に堆肥化中期において高い値で検出されている。

堆肥化における亜酸化窒素の生成については、窒素化合物が速やかに無機化されて NH_4^+ になり、さらに好気的な状態で処理を続けると NO_2^- を経由し NO_3^- まで酸化され、この過程で N_2O が生成される。また、好気条件下で安定している NO_3^- が無酸素状態におかれると、脱窒過程を経て N_2O や N_2 を生成するといわれている⁹⁾。これらのことから、豚ふん堆肥化時の亜酸化窒素は、窒素化合物の無機化が進行した中期以降に発生すると考えられた。

4 メタン

メタンについても亜酸化窒素同様、測定値から外気の測定値を差し引いた値を図7、8に示した。

温暖期試験については、高水分区、低水分区とも、試験開始直後から高く検出され、3回目の切り返し以降はほぼ同濃度で推移した。期間中の最大値はそれぞれ $13.24\text{mg}/\text{m}^3$ 、 $11.97\text{mg}/\text{m}^3$ 、平均濃度は $0.95\text{mg}/\text{m}^3$ 、 $0.82\text{mg}/\text{m}^3$ であり、低水分区が若干低い値で推移した。

寒冷期試験についても、高水分区、低水分区ともほぼ同様な傾向を示したが、温暖期試験と

違い、高い値で検出されず、ほぼ同程度で推移し、期間中の最大値はそれぞれ 3.98g/m³、3.94mg/m³、平均濃度は 0.25mg/m³、0.19mg/m³ であり、低水分区が若干低い値で推移した。

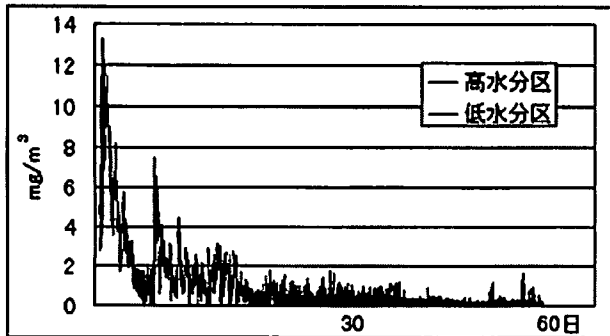


図7 メタン (温暖期試験)

堆肥化過程からのメタン発生は、堆積したふんの中心部は嫌気性となる可能性が高く、堆積中にメタン発酵が進行してメタンの発生がおこる

とされている⁸⁾。

これらのことから、気温の高い温暖期試験が堆積物内部でより嫌気状態となり、発生量が増

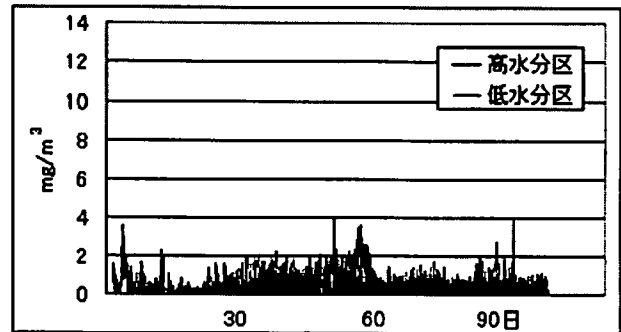


図8 メタン (寒冷期試験)

加したものと考えられた。しかし、この温暖期のメタン発生も、順次切り返しを行うことにより堆積物内部が好気状態となり早期に低減することが確認された。

表2 固形物中の成分変化

	経過日数 (日)	水分 (%)	pH	Kj-N				有機物量 (mg/g-DM)	BOD
				NH ₄ -N	NO _x -N	NO _x -N	NO _x -N		
温暖期試験									
高水分区	0	63.8	7.56	34.3	6.29	0.04	887.8	72.2	
	56	35.4	8.30	23.4	0.82	0.46	838.6	6.2	
低水分区	0	57.8	7.50	25.5	4.69	0.11	915.2	59.9	
	56	32.3	8.34	17.6	1.17	0.53	873.0	7.2	
寒冷期試験									
高水分区	0	64.8	7.97	22.2	4.96	0.06	924.7	108.9	
	102	48.4	7.67	17.5	1.14	0.47	877.0	5.3	
低水分区	0	60.9	7.90	17.3	3.80	0.02	943.7	110.6	
	102	41.8	7.76	14.4	1.74	0.35	926.2	5.1	

5 固形分の成分変化

堆肥化中の固形成分変化を表2に示した。

試験期間は、気温の上昇に伴い再発酵が認められたため、寒冷期試験は約7週間程度長く行った。

試験開始時の水分は、温暖期試験の高水分区が63.8%、低水分区が57.8%、寒冷期試験では高水分区が64.8%、低水分区が60.9%であった。試験終了時には、温暖期試験の高水分区が35.4%、低水分区が32.3%、寒冷期試験では高水分区が48.4%、低水分区が41.8%であった。温暖期試験では寒冷期試験よりも試験期間が短かったにもかかわらず、水分の蒸散が高かったのは、外気温の影響を受けるとともに、微生物が活発な活動を行っていたためと考えられた。

pHは、試験開始時には中性を示していたが、

終了時点では温暖期試験でアルカリ性、寒冷期試験で中性付近にあった。堆肥化過程では、酸性、中性成分の分解に伴い、アルカリ性となりアンモニアが揮散し、その後腐熟の進行に伴い中性となる。今回の試験では、温暖期、寒冷期試験とも中性からアルカリ性へ、さらに中性へと移行したが、寒冷期試験では試験期間が長かったこともあり、より中性へと近づいていた。

窒素成分、有機物量、BODとも試験終了時にはかなり低減されている。窒素成分は、微生物による分解に伴いNH₄⁺となりアンモニアガスとして揮散及び硝化脱窒過程からのN₂O及びN₂としての揮散が考えられた。堆肥中NH₄-Nについては試験終了時には低下しており、逆にNO_x-Nは増加していることから、アンモニアから硝酸へと速やかに移行している。また、図4、5で示した温暖期試験と寒冷期試験のアン

モニア発生量の違いは、堆積混合物中の窒素量の差にも影響されていると考えられた。

微生物活動からの腐熟の指標の一つとなるB

ODについても温暖期、寒冷期試験の各試験区ともかなり低減しており、堆肥化は順調に終了したと考えられた。

表3 推定揮散量

		堆積量 (kg)	アンモニア (g/kg-TN)	亜酸化窒素 (g/kg-TN)	メタン (g/kg-VS)
温暖期試験	高水分区	335	235.8	12.3	1.6
	低水分区	385	169.3	21.3	1.0
寒冷期試験	高水分区	327	254.1	37.2	1.6
	低水分区	401	149.9	28.0	1.0

6 推定揮散量

各ガスの測定結果から1時間当たりの平均揮散量 (mg/時) を算出し、試験期間中の総揮散量を求めた。この結果を、堆積物の初発の窒素量 (TN) 及び有機物量 (VS) 1 kg 当たりの揮散量として表3に示した。

温暖期試験では、堆積物中TN 1 kg 当たりのアンモニア揮散量は高水分区で235.8g、低水分区で169.3gであった。同様に亜酸化窒素は、それぞれ12.3g、21.3gであった。メタン揮散量はVS 1 kg 当たりで示したが、高水分区で1.6g、低水分区で1.0gとなり、亜酸化窒素をのぞき低水分区の揮散量が低かった。

寒冷期試験の、アンモニア揮散量は高水分区で254.1g、低水分区で149.9gであり、低水分区の揮散量が低かった。同様に亜酸化窒素は、それぞれ37.2g、28.0gであった。メタン揮散量は、温暖期試験とほぼ同じで高水分区で1.6g、低水分区で1.0gといずれも低水分区の揮散量が低かった。

以上のことから豚ふん堆肥化過程で発生した環境負荷ガスは、アンモニア149.9～254.1g/kg-TN、亜酸化窒素12.3～37.2g/kg-TN、メタン1.0～1.6g/kg-VSと推定された。

また、水分調整による抑制効果については、前報⁵⁾の肥育牛ふんでは、アンモニア、亜酸化窒素、メタンの3ガスについて、全て低水分とした区が低い結果であったが、豚ふんにおいては、亜酸化窒素のみ異なる結果となった。すなわち、温暖期試験においては、低水分区の発生量が21.3gと高水分区の12.3gより高く、逆に寒冷期試験においては、低水分区の発生量が37.2gと高水分区の28.0gより低い結果となった。堆肥化過程においては、長田ら⁴⁾が、通気量を上げることによりメタンと亜酸化窒素の抑制が可能としており、Fukumotoら⁷⁾は、堆積量が小さいほど発生が少ないとしている。この

ことは前報⁶⁾で得られた含水率を下げ低水分として堆肥化することにより抑制が図れることと一致していたが、豚ふんについては、当てはまらない結果となった。これは、亜酸化窒素の発生が、アンモニアの揮散量の違いや、水分蒸散の速度等にも影響されているのではないかと考えられるが、詳細は不明であり今後さらに検討する必要がある。また、温暖期より寒冷期の発生量が多い理由として、外気温などの影響により十分な発酵が行われていなかったため、内部が嫌気状態になり、NO₃⁻の脱窒過程で発生したものと考えられた。

メタンについては、アンモニアと同様に、低水分区が温暖期、寒冷期にかかわらず発生が抑制されており、これは、前報と同様の結果であった。

以上のように、堆肥化初発時水分を低く設定することによる発生抑制を試みたところ、温暖期の亜酸化窒素以外は抑制効果が認められ、その有効性が確認された。今後は亜酸化窒素の発生についてより詳細な検討を加える必要がある。

引用文献

- 1) 赤池学・長野裕紀乃・金谷年展(1999)：正しいエネルギー。TBSブリタニカ, 75.
- 2) 長田隆(2002)堆肥化過程で発生する環境負荷ガスの測定。農業技術, 57, 9, 412-415.
- 3) 長田隆・猫本健司・白石誠・石橋誠・原正之・干場信司・鈴木一好・羽賀清典・代永道裕(2004)：畜舎内のアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の濃度。におい・かおり環境学会誌, 35, 1, 1-7.
- 4) 長田隆・羽賀清典・黒田和孝(1997)：家畜ふん尿の処理過程における環境負荷ガスの発生。第8回廃棄物学会研究発表会講演論文集, 346-349.
- 5) 白石誠・長田隆・脇本進行・内田 啓一・古川

陽一・谷田重遠・奥田宏健(2003)岡山県内の酪農場から発生する環境負荷ガス実態調査. 岡山総セ研報, 14, 71-75.

6) 白石誠・長田隆・滝本英二・脇本進行・北村直起・奥田宏健(2004)亜酸化窒素・メタンの発生抑制方法の検討-肥育牛ふんの堆肥化過程から発生するアンモニア・亜酸化窒素・メタン濃度-. 岡山総セ研報, 15, 70-75.

7) Yasuyuki Fukumoto, Takasi Osada, Dai Hanajima, Kiyonori Haga (1998) : Patterns and

quantities of NH₃, N₂O and CH₄ emissions during swine manure composting without forced aeration-effect of compost pile scale. *Biore-source Technology*, 89, 109-114.

8) 社団法人畜産技術協会編(2001) : 畜産における温室効果ガスの発生抑制第五集, 77-81

9) 社団法人畜産技術協会編(2001) : 畜産における温室効果ガスの発生抑制第五集, 82-89