

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 -

白石 誠・長田 隆*・滝本英二・脇本進行・北村直起・奥田宏健

Method of controlling generation of nitrous oxide and methane

Makoto Shiraishi, Takasi Osada, Eiji Takimoto, Nobuyuki Wakimoto, Naoki Kitamura and Kouken Okuda

要 約

肥育牛舎から敷料とともに搬出されるふん尿の堆肥化を容積13m³のチャンバー内で行い、発生するアンモニア、亜酸化窒素、メタンの実態を夏期と冬期について調査するとともに水分含量の相違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、そのピークはほぼ発酵温度と同時間帯であった。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、堆積直後より発生が認められたが、これはふん尿が牛舎内で微生物による硝化作用を受けていたため、堆積により嫌気状態となり発生した。
- 3 メタンの発生は、そのほとんどが堆肥化初期に集中したが、堆積直後が嫌気状態であったためと考えられた。
- 4 含水率が低い水分調整区からの亜酸化窒素、メタンの発生は明らかに低かったことから、適正な水分調整により発生抑制が図れることが示唆された。

キーワード： 肥育牛、堆肥化、アンモニア、亜酸化窒素、メタン

緒 言

畜産経営における大きな問題として、ふん尿の処理過程におけるアンモニアなど悪臭の発生があげられる。これらの悪臭問題は、畜産経営に起因する苦情のうち約6割を占めており、その対策が急務となっている。このような状況のなか、畜産農家等に対して、家畜ふん尿の適正な管理と利用を促すため、「家畜排せつ物の管理の適正化及び利用の促進に関する法律」が平成11年7月に成立した。この法律では、家畜ふん尿などの河川への流出や地下水への浸透等を防止し、環境への負荷削減を図るための管理基準を定めている。また、近年、地球温暖化に関わる問題がクローズアップしてきている。地球温暖化の原因物質としては、二酸化炭素が最も知られており、温暖化要因の約90%を占めている¹⁾。

さらに、メタン、亜酸化窒素、ハロカーボン類なども少量で温暖化に大きな影響を与えるといわれ、各温室効果ガスの地球温暖化をもたらす効果の程度を二酸化炭素の当該効果に対する比で表した地球温暖化指数(GWP100年値)はメタン21、亜酸化窒素310といわれている²⁾。亜酸化窒素については、温室効果ガスであるだけでなくハロカーボン類とともに成層圏オゾンを分解する物質の一つともいわれている³⁾。このような温室効果ガスは、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が⁴⁾、調査例が少なく特にガス発生の実態については不明である。これまで、亜酸化窒素、メタンなどは、各畜種別の畜舎内濃度⁵⁾や豚ふんの堆肥化⁶⁾、搾乳牛ふんの堆肥化⁷⁾などでそれぞれ異なる発生パターンが報告されている。しかし、温室効果ガス等の発生は、外気温や堆肥化時の水分含量等によっても相違すると考えられるが、実測した調査例は少ない。そこで、我々は、肥育牛舎から敷料とともに搬出されるふん尿の堆肥化を夏期と冬期に行い、発生するアンモニア、亜酸化窒素およびメタンの実態を調査するとともに、水分含量の相違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

図1に示した高さ2.2m、直径3m、容積13m³のチャンバーを屋内に設置した⁸⁾。このチャンバーは(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品質シートを用いている。チャンバー内の換気は外部に設置されたインバータ制御による送風機により行われ、チャンバー下部と床面の間(数cm)から新鮮空気が吸引され、上部から排出される。チャンバー上部から吸引された空気は、エレファントホースにより送風機に導入され、直径10cm、1m塩ビパイプを通して屋外へ排気される。換気量は、送風機の吐出側でピトー管により測定し、1時間当たり130m³となるように制御した。排気は送風機直前で採取し、内径3mmのPTFEチューブを通して測定機器へ導入した。このチャンバー内で堆積切り返し方式による堆肥化を行った。



図1 測定装置

2 試験区分

試験区分を表1に示した。使用した肥育牛ふんは、当センター内の検定牛舎内で14日程度経過した敷料(オガクズ)込みのもので、搬出時の水分は約60%であった。これは、適正な堆肥化を行う上で牛ふんの堆肥化スタート時の水分である72%⁹⁾より低いため水分調整の必要性がなく、これを水分の調整を行わない無調整区に、これに対し、オガクズで水分を55%に低下させた調整区を設定した。また、試験時期は、夏期が6月から8月、冬期が11月から1月であった。

表1 夏期及び冬期試験における試験区分

区 分	含水率 (%)	敷料込ふん尿量 (kg)	水分調整材 (kg)
無調整区	60	300	-
調整区	55	300	80

3 堆肥化方法

無調整区については、搬出された肥育牛ふんを十分混合攪拌した後の300kgを、チャンバー内に堆積した。調整区は、搬出された肥育牛ふん300kgに水分が55%となるよう夏期及び冬期ともオガクズを80kg添加した。

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た堆肥化後期は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などから決定したが、約50日前後であった。

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、各試験ともチャンバー内部の温度と測定部位の排気の温度及びチャンバー設置場所の気温を1時間毎に測定した。

(2) ガスの測定

環境負荷ガスは、アンモニア、亜酸化窒素およびメタンを測定した。測定機器は、光音響技術による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⁸⁾。

(3) 固形物の測定

固形物の測定は、試験開始時および切り返しごと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2NKClにより1:10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及びアンモニア態窒素、硝酸・亜硝酸態窒素を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、強熱減量を測定し有機物及び灰分とした。

結 果

1 発酵温度

堆積物表面から内部20cmの部位の発酵温度を図2及び図3に示した。

夏期試験では、無調整区、調整区とも堆積後急速に発酵し、試験期間中の最高温度は無調整区で71.4、調整区で68.3であった。3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。また、堆肥化前半では無調整区が、後半では調整区が若干高く推移する傾向を示した。なお、試験期間中の気温は15~30で推移し、平均は22.5であった。

冬期試験においても堆積後急速な発酵がおり、試験期間中の最高温度は無調整区で69.9、調整区で70.9であった。冬期試験では、夏期試験より早く発酵温度の低下が始まり、2回目の切り返し以降温度上昇が緩やかとなった。また、夏期試験と同様に堆肥化前半では無調整区が、後半では調整区が若干高く推移する傾向を示した。なお、試験期間中の気温は-4~15で推移し、平均は4と夏期試験に比べ18程度低い結果であった。

また、夏期、冬期試験ともに堆積物の上部と下部では、平均で6~10程度上部が高い傾向を示し、チャンバー内部や排気の温度についてはあまり差が認められなかった。

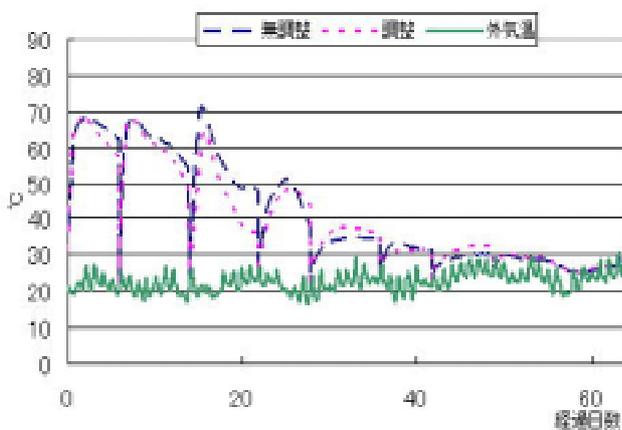


図2 夏期試験

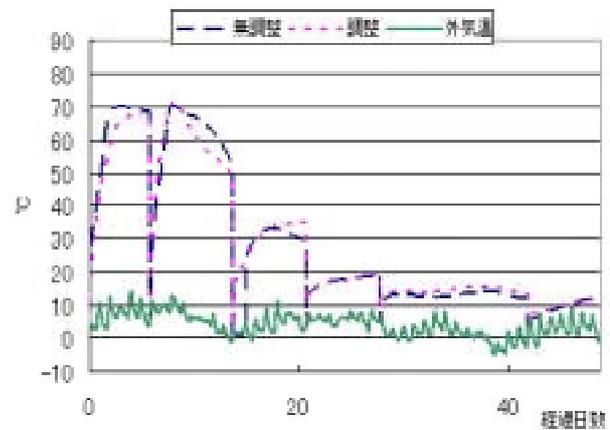


図3 冬期試験

2 アンモニア

アンモニアの推移を図4に示した。

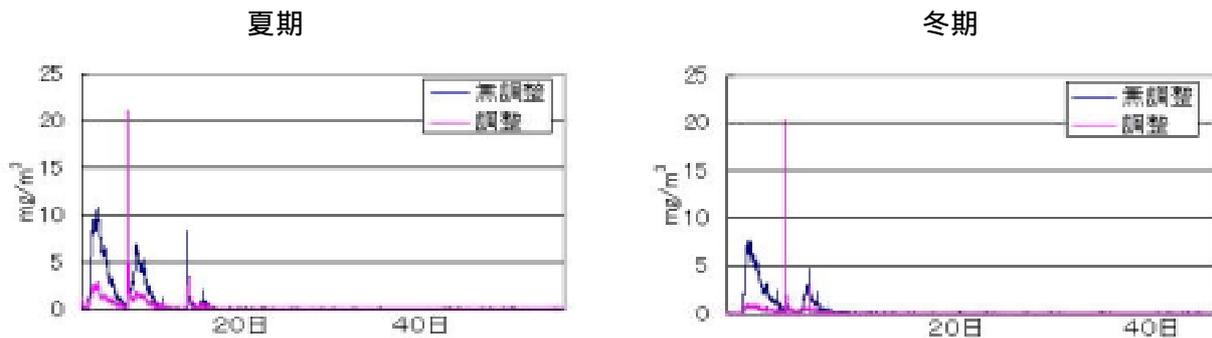


図4 アンモニアの推移

夏期試験の無調整区では、試験開始24時間後から検出され、48時間後に10.00mg/m³とピークを迎え、以後低下した。以降は切り返し直後に増加したが、3回目の切り返し後は増加傾向を認めず、発酵温度と連動した。期間中の平均濃度は0.56mg/m³であった。調整区についても、同様な傾向を示したが、濃度は無調整区より明らかに低く、平均は0.20mg/m³であった。

冬期試験の無調整区では、試験開始36時間後から検出され、54時間後に7.60mg/m³とピークを迎えたのち低下した。以降は切り返しごとに増加したが、2回目以降は増加傾向を認めず、発酵温度と連動した。期間中の平均濃度は0.34mg/m³であった。

調整区についても、同様な傾向を示したが、夏期試験と同様に無調整区より明らかに低く、平均は0.07mg/m³であった。

3 亜酸化窒素

亜酸化窒素の推移を図5に示した。

夏期試験の無調整区では、試験開始直後から高く検出され、1回目の切り返し後に $20.87\text{mg}/\text{m}^3$ と期間中の最大濃度となった。以降は切り返しごとに増加するパターンを示したが、3回目の切り返し後は増加傾向を認めなかった。期間中の平均濃度は $1.12\text{mg}/\text{m}^3$ であった。調整区についても同様な傾向を示したが、濃度は無調整区より若干低く推移し、最大値は $20.08\text{mg}/\text{m}^3$ で平均は $0.86\text{mg}/\text{m}^3$ であった。

冬期試験の無調整区においても、夏期試験と同様な傾向を示した。すなわち、試験開始直後から高濃度に検出され、1回目の切り返し後に $17.28\text{mg}/\text{m}^3$ と最大濃度となったのち、切り返しごとに増加するパターンを示し、3回目の切り返し後は増加しなくなった。期間中の平均濃度は $0.88\text{mg}/\text{m}^3$ であった。調整区についても、無調整区より若干低く推移するという夏期試験と同様な傾向を示し、最大値は $11.06\text{mg}/\text{m}^3$ で平均は $0.67\text{mg}/\text{m}^3$ であった。

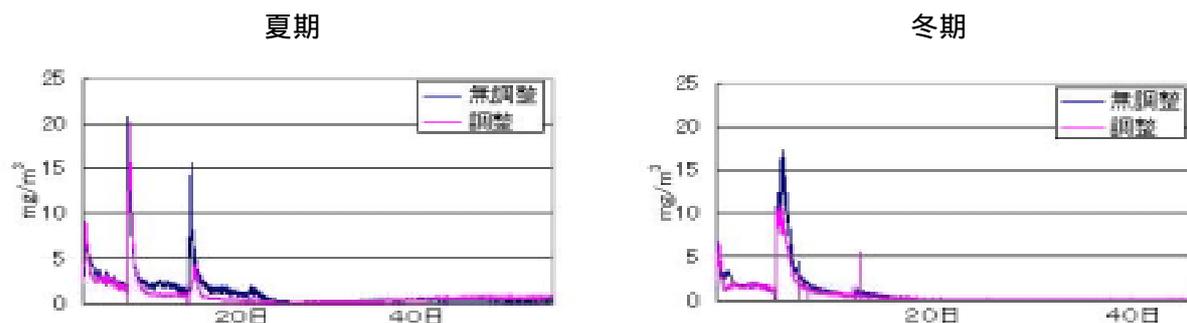


図5 亜酸化窒素の推移

4 メタン

メタンの推移を図6に示した。

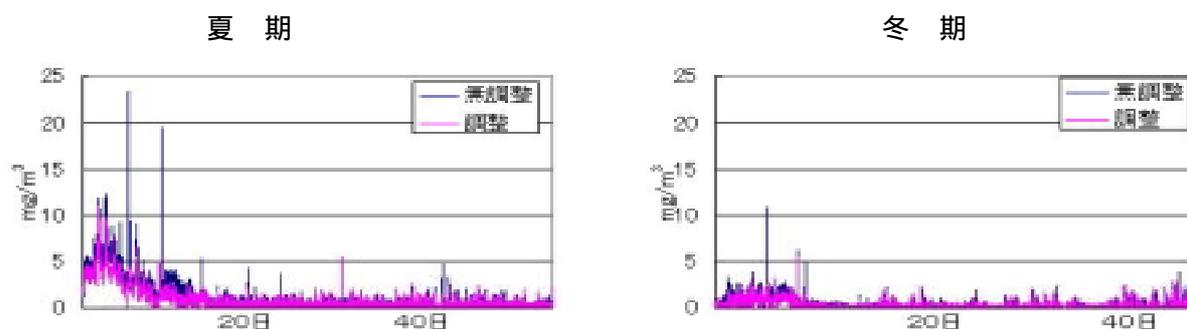


図6 メタンの推移

夏期試験の無調整区では、試験開始直後から高く検出され、2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 $23.38\text{mg}/\text{m}^3$ 、平均濃度は $1.04\text{mg}/\text{m}^3$ であった。調整区についても、同様な傾向を示したが、濃度は無調整区より若干低く推移し、最大値は $10.98\text{mg}/\text{m}^3$ で平均は $0.78\text{mg}/\text{m}^3$ であった。

冬期試験の無調整区では、夏期試験と同様な傾向を示したがその濃度は低く、2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 $10.89\text{mg}/\text{m}^3$ 、平均濃度は $0.20\text{mg}/\text{m}^3$ であった。調整区についても、同様な傾向を示したが、濃度は無調整区より若干低く推移し、最大値は $5.39\text{mg}/\text{m}^3$ で平均は $0.11\text{mg}/\text{m}^3$ であった。

5 固形分

固形分を表2に示した。試験期間は発酵温度の推移から、夏期試験を約2週間程度長く行った。

試験開始時の水分は、無調整区が夏期、冬期両試験とも 61.7% 、調整区はそれぞれ、 57.6% 、 55.9% であったが、試験終了時には、夏期試験がより低下しており、試験終了時には、無調整区で 45.7% 、調整区は 41.9% であった。pHは試験開始時にはアルカリを示していたが、終了時点では中性付近にあった。窒素とBODは試験開始時で、夏期試験が高く、より多くの有機物を含んでいた。特にBODについては、試験終了時に夏期試験が冬期試験より低い値であった。

表2 固形分の変化

	経過日数 (日)	水分 (%)	pH	Kj-N	NH ₄ -N	NO _x -N (mg/DMg)	有機物量	BOD
夏期試験								
無調整区	0	61.6	8.56	24.0	1.05	0.04	887.7	97.0
	63	45.7	6.22	24.0	0.57	0.09	849.1	11.2
調整区	0	57.6	8.43	20.0	0.84	0.02	919.5	84.0
	63	41.9	6.37	18.0	0.54	0.09	913.8	9.8
冬期試験								
無調整区	0	61.6	8.34	16.9	0.20	0.18	900.6	30.5
	49	56.1	7.56	23.7	0.81	0.27	881.3	19.1
調整区	0	55.9	8.43	14.1	0.34	0.14	930.2	25.3
	49	50.4	7.24	13.1	0.55	0.63	919.0	13.2

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及び有機物量1kg当たりの揮散量として表3に示した。

夏期試験では、堆積物中窒素1kg当たりのアンモニア揮散量は無調整区で36.7g、調整区で11.6gであった。同様に亜酸化窒素は、それぞれ15.9g、10.2gであった。メタン揮散量は有機物量1kg当たりで示したが、無調整区で2.1g、調整区で1.1gといずれも調整区の揮散量が低かった。

冬期試験の、アンモニア揮散量は無調整区で10.9g、調整区で1.5gであり、調整区の揮散量がかなり低かった。同様に亜酸化窒素は、それぞれ13.0g、11.2gであった。メタン揮散量は、無調整区で0.4g、調整区で0.2gといずれも調整区の揮散量が低く、揮散量に差はあるがいずれも調整区が低かった。

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)
夏期試験	無調整区	300	36.7	15.9	2.1
	調整区	380	11.6	10.2	1.1
冬期試験	無調整区	300	10.9	13.0	0.4
	調整区	380	1.5	11.2	0.2

考 察

肥育牛舎から敷料とともに搬出されるふん尿の堆肥化を夏期と冬期に行い、発生するアンモニア、亜酸化窒素およびメタンの実態を調査するとともに、水分含量の相違による抑制効果について検討した。

発酵温度は、夏期、冬期とも70 前後の温度が得られたが、冬期については切り返しによる温度上昇が早期に認められなくなった。原因としては、試験期間中の平均気温が4 と夏期試験に比べ18 程度低かったこと、さらには、牛舎内での蒸散が少なく、早めの敷料交換によりふん尿の混合割合が少なかったことが考えられた。

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た。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はじめ、そのピークはほぼ発酵温度と同時間帯であった。切り返し後は発酵温度に遅れることなく発生し、そのピークは発酵温度のピークと連動した。また、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。堆肥化による臭気の発生は、まず易分解性有機物の分解により硫黄化合物や低級脂肪酸類をはじめとする中性、酸性成分が大量に発生し、その後堆肥温度が上昇し酸性成分が分解されてpHが上昇するとアンモニアが一気に発生するといわれている¹⁰⁾。今回の試験では開始直後こそ、アンモニアの発生が若干遅れたものの、速やかに増加した。これは堆積物のpHが試験開始時点ですでに8.3~8.5とアルカリを示しており、牛舎内において、ふん尿の分解が起こりpHが上昇していたため早期にアンモニアが発生したと考えられた。

また、冬期は夏期に比べ発酵温度及びアンモニアの発生は少なく、温度も数時間遅れて上昇した。さらに、発酵温度も早期に低減する傾向を示した。これらは、冬期は外気温が4 と低くその影響を受けたこと、BOD、窒素成分などが少なかったことがその原因と考えられた。

亜酸化窒素については、堆積直後より発生が認められた。アンモニアが、発酵温度の上昇に遅れて増加したのに比べ、亜酸化窒素は、堆積直後から発生している。亜酸化窒素の発生については、Fuku

motoら⁶⁾が本試験と同様のシステムにおいて、豚ふんを用いた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ことが確認されており、堆積直後から発生した本試験の結果とは異なる。また、長田ら⁵⁾は、各畜種別の畜舎において、季節ごとの発生状況を調査しているが、肥育牛舎においては大気濃度の2倍以上濃度が継続して観測されたとしている。ふん尿処理過程における、窒素化合物の変化は主として微生物の作用によるものであり、アンモニアの酸化、還元時に生成されるといわれている¹¹⁾。以上のことから、本試験における亜酸化窒素の発生は、牛舎内で微生物による硝化作用を受けていたふん尿を、チャンパー内に堆積したことから、嫌気状態となり脱窒過程において発生したものと考えられた。また、その後の発生については、微生物による窒素の硝化及び切り返しによる嫌気部分での脱窒によるものと考えられた。

メタンについては、そのほとんどが堆肥化初期に集中している。このガスは、ふん尿を嫌気分解した場合に多量に発生するといわれ、特に堆肥化過程では堆積したふんの中心部が嫌気性となる可能性が高いことから堆積中にメタン発酵が進行して発生する¹¹⁾とされる。今回は堆積初期に集中していること、また、上述した亜酸化窒素の発生等から堆積直後に内部が嫌気状態となり発生したものと考えられた。また、夏期、冬期とも2回目の切り返し以降発生が低減しており、堆肥化の進行に伴い好気的な条件が整ったものと考えられる。

試験期間中の総揮散量については、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、試験開始時の堆積物中窒素量1kg及び有機物量1kg当たりとして示したが、夏期試験、冬期試験も同様な傾向を示している。すなわち、アンモニア、亜酸化窒素、メタンの3ガスについて、全て水分調整区が低い結果であった。畜産において亜酸化窒素やメタンガスの発生量把握やその抑制に取り組んだ試験は少ない。赤井ら¹²⁾は、牛尿の散布による草地からの亜酸化窒素の発生抑制として硝酸化成抑制剤であるジシアンジアミドを用いたところ亜酸化窒素の発生量をかなり抑制できたとしている。堆肥化過程においては、長田ら¹³⁾が、通気量を上げることによりアンモニアの発生が増加するもののメタンと亜酸化窒素の抑制が可能であるとしている。また、Fukumotoら⁶⁾らは、堆積量が小さいほど発生が少ないとしている。いずれも堆肥化過程においては好気的な条件を高めることにより抑制が図れることを示唆している。われわれは、水分調整の相違による抑制効果を検討したところ、含水率が低い水分調整区からの発生が明らかに低かった。これらのことから、堆肥化過程で発生するアンモニア、亜酸化窒素、メタンの発生を抑制するためには、嫌気部分をできるだけ排除し好気的な条件を作り出すことが重要であり、適正な水分調整を行うことにより発生抑制が図れると考えられた。

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ﾌﾞﾘｯｸ,75.
- 2) 社団法人畜産技術協会編(2000)：畜産における温室効果ガスの発生抑制第五集,129.
- 3) 鶴田治雄(2000)：地球温暖化ガスの土壌生態系との関わり3．人間活動による窒素化合物の排出と亜酸化窒素の発生環境負荷ガスの発生.土肥誌,71,4,554-564.
- 4) 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.岡山総畜セ研報,14,71-75.
- 5) 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.
- 6) 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. Bioresource Technology, 89, 109-114.
- 7) Tadashi TAMURA, Takehiko KATAYAMA and Kiyunori HAGA(1999)：Emission Patterns of Malodorous and Greenhouse Gases from the Pile-type Composting of Cattle Manure, Anim.Sci.J,70(4),235-239.
- 8) 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.
- 9) 財団法人畜産環境整備機構(2003)：畜産環境アドバイザー養成研修会資料(堆肥化施設の設計・審査技術),70.
- 10) 社団法人中央畜産会編(1988)：畜産における臭気とその防止対策.33-44.
- 11) 社団法人畜産技術協会編(2000)：畜産における温室効果ガスの発生抑制第五集,63-81.
- 12) 赤井直彦・石橋英二・大家理哉・森次真一(2001)：牛尿への硝酸化成抑制剤添加が草地からの環境負荷に及ぼす影響.土肥誌,72,2,206-213.
- 13) 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.