

## 畜舎排水中の硝酸性窒素除去のための硫黄－カルシウム資材及び独立栄養細菌を組み合わせた脱窒法（SLAD法）の検討

福岡県農業総合試験場 畜産環境部 手島信貴

### 1 はじめに

家畜ふん尿を含む汚水は、一般的に活性汚泥法により浄化処理後放流または液肥利用されています。放流される畜舎排水中の硝酸性窒素類（硝酸性窒素+亜硝酸性窒素+0.4×アンモニア性窒素）は、水質汚濁防止法により排水基準値が定められており、その一律排水基準値は100mg/Lですが、現在のところ暫定基準値（2010年6月まで）として900mg/Lが適用されています。この基準は、特定事業場からの排水に対して排水量に関係なく適用されることから、暫定基準が撤廃された後は、新たに硝酸性窒素類の除去設備を導入しなければならない畜産農家が増加すると考えられます。

一般的な脱窒方法は、汚水中の有機物や添加メタノール等のBOD源を利用して脱窒させる方法です。一方、硫黄－カルシウム資材及び独立栄養細菌を組み合わせた脱窒法（Sulfur and Limestone Autotrophic Denitrification：以下SLAD法に略）は、硫黄酸化脱窒細菌（*Thiobacillus denitrificans*等）の働きを利用した脱窒法で、硫黄を酸化し硝酸性窒素および亜硝酸性窒素を窒素ガスに還元して除去する方法です。硫黄と炭酸カルシウム等を混合した脱窒用の固形資材がいくつか開発されています。この方法は、固形資材と処理対象水を接触させるだけの単純な方式であるため、設備投資が少なく管理も容易であることが利点です。一方、低水温や生物膜の蓄積等により脱窒能力が低下することから、浮遊物質（SS）等を含む畜舎排水を対象とした場合、年間を通じて硝酸性窒素類を一律排水基準値以下に維持するためのSLAD法の処理条件を明らかにすることが求められています。そこで、小型の硝酸性窒素除去装置を試作し場内試験を行い、水温やSS等が脱窒能力に及ぼす影響や、コストに大きく影響する脱窒用資材の消費量について検討したので紹介します。

### 2 試験概要

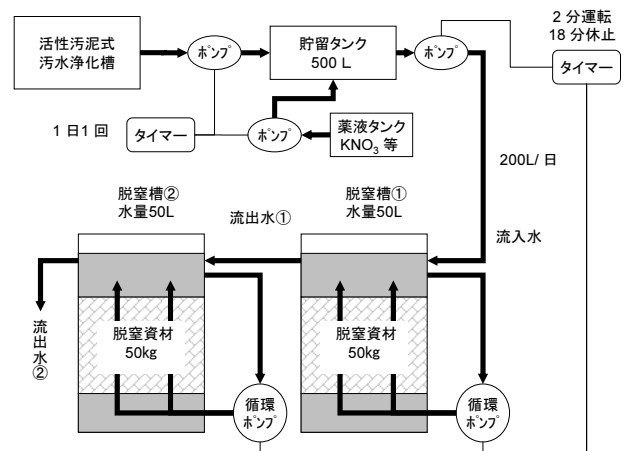
試験は2006年7月から2007年2月までの217日間、当場内において自作した硝酸性窒素除去装置を用いて行いました。装置への流入水は場内から発生する養豚汚水を回分式活性汚泥法により浄化処理したもの（放流はしていない）を用いました。



25mm

写真1 脱窒用資材

脱窒用資材は硫黄粉末と炭酸カルシウム等を有機バインダーと共に圧縮成型した直径5mm、長さ10～25mm程度の円柱型、容積重1.0kg/L、硫黄含有量30～45%のもの（商品名：パチルエースYS-BR、日鉄環境エンジニアリング株式会社製、写真1）を用いました。



第1図 硝酸性窒素除去装置概要

硝酸性窒素除去装置の概略を第1図、写真2に示しました。容量100Lの脱窒槽が2槽あり、それぞれに脱窒用資材を50kg（50L）ずつ充填しました。1日の処理水量は、約200L/日で、資材の見かけ容積当りの水理学的滞留時間（容積/時間流入量、以下HRTに略）は、12時間としました。脱窒槽内では、流入水を脱窒用資材に多く接触させるためポンプで循環させ、循環のための吸入口は槽の中央部、排出口は脱窒用資材の下部にそれぞれ配置しました。循環方法は、別の試験で得られたデータを基に、水量は23L/分（線速度14cm/min）、2分循環・18分休止の間欠循環としました。

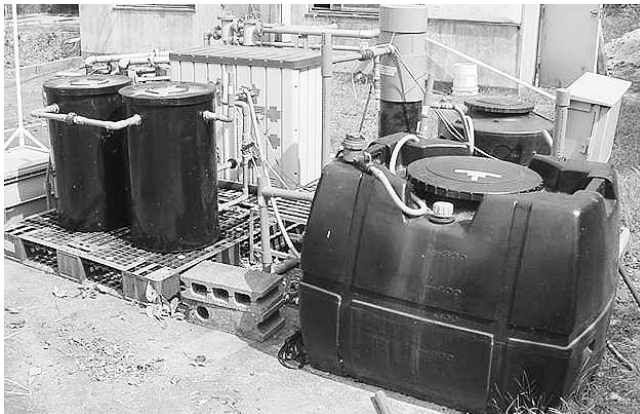


写真2 硝酸性窒素除去装置

流入水中の硝酸性窒素濃度は、それぞれ約200～1,000mg/Lになるように硝酸カリウム等で調整しました。なお、2007年1月17日以降は温度と脱窒能力の関係を確認するため、脱窒槽①の水温が15～18℃になるようにヒーターで加温しました。

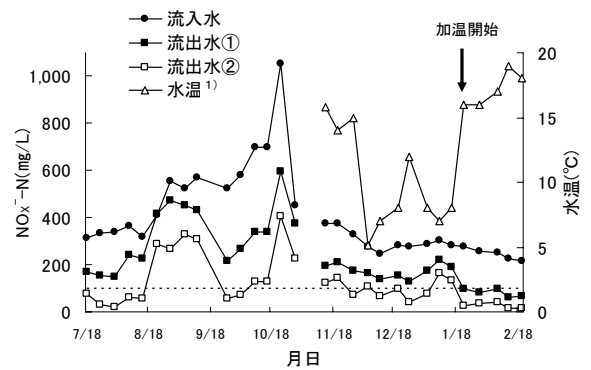
水温は脱窒槽①内で測定し、流入水、流出水①および流出水②の硝酸・亜硝酸性窒素（NO<sub>x</sub>-N）、硫酸イオンを測定し、流入水と流出水②の生物化学的酸素要求量（BOD）、SSを測定しました。

### 3 脱窒能力

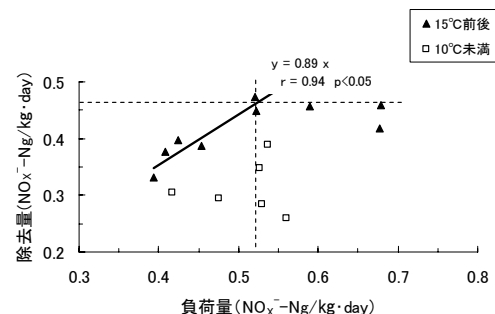
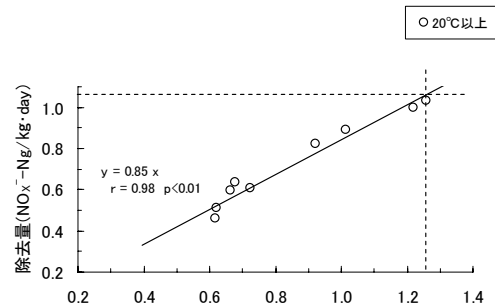
試験期間中の流入水、流出水①および流出水②の水質と水温を第2図に、脱窒能力を資材1kg・1日当りの硝酸性窒素重量で表したものを第3図に示しました。水温20℃以上では、窒素負荷量が約1.26g/kg・日以下では除去率85%（除去量約1.07g/kg・日）ですが、水温が15℃前後では脱窒能力は低下しやすく、負荷量が約0.52g/kg・日までは除去率89%（除去量約0.46g/kg・日）が可能ですが、負荷量がそれ以上にな

ると除去量の増加は認められませんでした。さらに、水温が10℃未満では負荷量と除去量の間で一定の相関関係は認められず、平均除去量は約0.31g/kg・日でした。HRTが12時間の場合では、脱窒処理後に100mg/L以下を達成するための処理前濃度の上限は、水温20℃以上では615mg/L、水温15℃前後では320mg/L、水温10℃未満では220mg/L程度と考えられます。

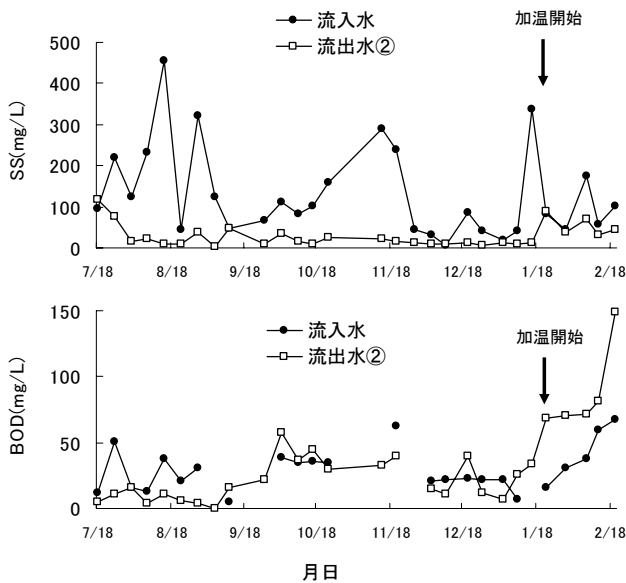
流入水と流出水②のSSとBODの変化を第4図に示しました。期間を通じて多量のSSが脱窒槽に流入しましたが、第2図のとおり脱窒能力の大幅な減少は見られませんでした。脱窒用資材へ付着した汚れの除去には定期的な逆洗が有効であり、本装置における脱窒槽内での循環による水流が、付着した汚れの除去に働き、逆洗と同様の効果をもたらしたと考えられます。



第2図 流入水・流出水の硝酸性窒素濃度および水温の変化  
8/18～9/18は装置の故障により能力低下  
7/18～10/30の水温は20℃以上



第3図 水温別の硝酸性窒素負荷量と除去量の関係

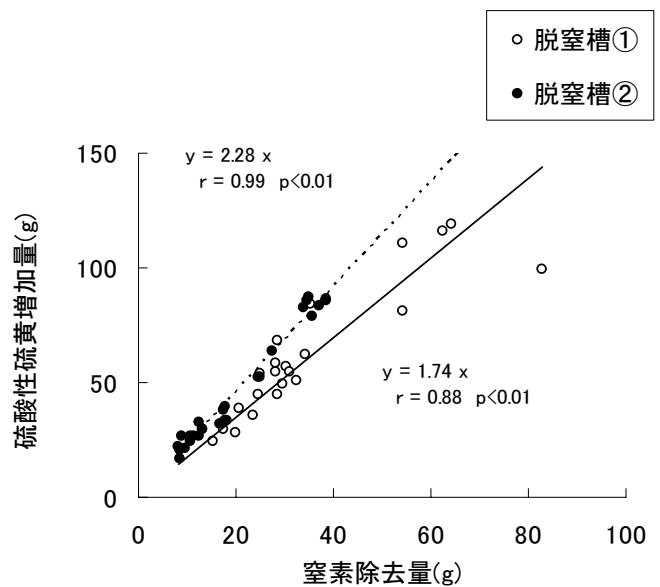


第4図 流入水と流出水②のSSとBODの変化

なお、加温開始後に脱窒用資材の崩壊と浮上が急激に起こり、流出水②のSS、BODが増加する傾向が認められました。この現象は、資材の消耗による膨軟化と加温による脱窒能力の急激な増加が重なり、窒素ガスの発生が一気に資材内部で起こったことが要因のひとつと考えられます。

## 4 脱窒用資材の消費量

脱窒用資材の消費量は、硫酸酸化脱窒細菌が脱窒の際に排出する硫酸イオンの増加量から推測することができます。本試験では、窒素除去量に伴う硫酸生硫黄増加量は、第5図のとおり、脱窒槽①、脱窒槽②では窒素1gに対してそれぞれ1.74g、2.28gであり、脱窒槽①の結果は、理論値の2.51gよりも資材の消費量が有意 ( $p < 0.01$ ) に少ない結果になりました。これは流入水のBOD値が高いことから、流入水中に含まれる有機物を脱窒槽①で消費し、有機物利用の脱窒反応が行われたと考えられます。流入水中の有機物が脱窒用資材の消費量低減に寄与する可能性が示されましたが、活性汚泥法処理後のBOD値は低く保たなければならないため、脱窒用資材の消費量は理論値を用いることが適していると考えられます。このことにより、 $1\text{m}^3$ の畜舎排水の硝酸性窒素濃度を $100\text{mg/L}$ 下げるために必要な脱窒用資材は、約 $0.56\sim 0.84\text{kg}$  (硫黄として $0.25\text{kg}$ )と考えられます。



第5図 硫黄増加量と窒素除去量の関係

## 5 施設規模決定目安

西南暖地の気候条件では、活性汚泥法の寒冷期の排水時水温は、処理水量 $10\text{m}^3/\text{day}$ 規模の連続式曝気槽において、平均 $11^\circ\text{C}$  (最低 $6.7^\circ\text{C}$ )との報告があり、寒冷積雪地でも脱窒槽を地下埋設にする等の対策を行えば水温の低下を最小にできるとの報告があります。これらのことから、規模決定には水温 $10^\circ\text{C}$ 時の脱窒能力 (約 $0.3\text{g}/\text{kg}\cdot\text{日}$ の窒素除去量)を用いるのが適していると考えます。例えば水量 $10\text{m}^3/\text{日}$ 、硝酸性窒素濃度 $250\text{mg/L}$ の畜舎排水を $50\text{mg/L}$ 程度まで処理するためには、 $10\text{m}^3/\text{日} \times (250 - 50)\text{mg/L} = 2,000\text{g}/\text{日}$ の窒素  $\div 0.3\text{g}/\text{kg}\cdot\text{日} = 6,667\text{kg} = 6,667\text{L}$ の脱窒資材が必要で、脱窒槽容積は、資材の2倍  $\div 14\text{m}^3$ が必要となります。しかし、この脱窒能力で設備規模を決定すると、脱窒能力が高い高温時では一律基準値に比べ必要以上の硝酸性窒素を処理してしまい、脱窒用資材の消費量が増加したり、硝酸性窒素飢餓により処理水の白濁化等が生じる恐れがあることから、水温によって脱窒槽の規模を増減できる等の対策が必要であると考えられます。

## おわりに

以上のように、硫黄-カルシウム資材及び独立栄養細菌を組み合わせた脱窒法 (SLAD法)における処理能力や資材の消費量について検討しました。脱窒用資

## 畜産環境技術情報

材のコストについては、この資材が量産化されていないため、今のところはっきりしたことが言えませんが、経費がかかることは間違いありません。この技術の活用場面は、ふん尿分離の徹底、希积水の確保、低たんぱく質飼料の利用、間欠曝気による脱窒等により、畜舎排水中の硝酸性窒素濃度をできる限

り下げることが基本としながら、一律基準を超えそうな場合であると考えられます。

本研究は、畜産新技術開発活用促進事業（社団法人畜産技術協会）「畜舎廃水処理における硫黄脱窒実用システムの開発」の中で終了した課題であり、関係者の方々に深謝します。

