- 課題名 1B-1103 養豚排水処理と多収(飼料)米生産の環境低負荷型コベネフィットシス テムの構築
- 課題代表者名 細見 正明 (東京農工大学 大学院工学研究院 応用化学部門 教授)
- 研究実施期間 平成23~25年度
- 累計予算額 84,740千円(うち25年度26,074千円) 予算額は、間接経費を含む。
- 本研究のキー 高温乾式メタン発酵、多収米飼料イネ、C/N比、温室効果ガス、水環境負荷、養豚排水処 ワード 理

研究体制

- (1)乾式メタン発酵プロセスの最適設計及び運転管理手法の確立(東京農工大学)
- (2) 温室効果ガス抑制型の発酵残さの施肥方法及び水田管理方法の確立(東京農工大学)
- (3) 発酵残さを用いた多収米の生産評価(東京農工大学)
- (4)システムの物質・エネルギー収支の解析(東京農工大学)

研究概要

1. はじめに(研究背景等)

平成22年度の環境省中央環境審議会水質部会における排水規制の見直し作業の中で、結果的にはこれま で通り、家畜排水の暫定基準は900 mg/L(これはほとんど無処理で排水できるレベル。一方通常の工場排水な どに適用される一律排水基準は100 mg/L)が据え置かれた。畜産業の経済的な状況は理解できるものの、その 設定根拠があいまいで、無処理に近い排水基準値は、他の産業と比べて非常に甘く、水質汚濁防止法の趣旨 から問題であるとの意見が噴出し、次の見直し期限(3年以内)には、大幅な排水規制の強化が予想される(実 際に、水質汚濁防止法の省令の一部改正に基づき、平成25年7月に900 mg/Lに強化された)。年間約90000万 トンの家畜排せつ物の3割を占める養豚業は、農地を所有しないことが多く、農地還元が困難であった(乳用牛・ 肉用牛経営農家は自己保有地があり、農地還元が実施可能である)。したがって、排水規制強化の影響を受け るのは、我が国最大の家畜産業である養豚業排水である。

これに応えるため、養豚業では、飼料の供給も含めた豚の飼育とふん尿処理とを切り離して、ふん尿処理だけ に限って、最適化しようとする(部分最適化)。その結果、従来型の養豚排水の活性汚泥法をはじめとした排水 処理技術と豚糞のコンポスト化によるリサイクルでは、処理コストとともに温室効果ガスの排出量が増大すること になる(図(1)-1左)。また、輸入飼料の高騰化をはじめ、口蹄疫などの問題もあり、養豚業の置かれている状 況は大変厳しい状況にある。そこで、養豚業全体とそれを取り巻く環境(飼料の供給体制も含めて)を考慮する ことで、低コスト型の排水処理、エネルギー回収及び温室効果ガス削減を同時に満たすコベネフィットアプローチ に着目する(図(1)-1右)。具体的には、休耕田や転作水田に多収米である飼料イネを植栽し、肥料として家 畜排水を利用した新たな低コスト型の排水処理対策と飼料イネの給餌としての利用、メタン回収による温暖化 対策からなる。例えば、牛の場合、飼料イネ全体をホールクロップサイレージとして給餌に用いた耕畜連携が、埼 玉県をはじめすでに多くの市町村で試みられている。しかし、養豚業農家においては、自己の農地を保有してい ない場合が多く、豚ふん尿の肥料としての利用は限定されている。さらに、多収米を利用する場合、牛とは異なり、 豚はモミしか飼料とすることができないので、稲ワラ・モミ殻が不要となり、これらを有効利用する必要がある。



図1 従来型の養豚システム(左図)および乾式メタン発酵と多収米を用いたコベネフィットシス テム(右図)

2.研究開発目的

豚ふん尿の処理・利用法としてメタン発酵法が注目されている。メタン発酵には、従来から下水汚泥などの 消化に使用されてきた湿式メタン法(含水率>90%)と新規の乾式メタン法(含水率<85%)とがある。湿式メタン 法は、これまでにエネルギー回収法として広く用いられているが、含水率が高い状態で発酵を行うため、高濃度 の有機物や窒素・リン等を含む消化液が大量に発生し、その処理に多くのエネルギーを消費するという問題点 があった。

一方、乾式メタン発酵法は含水率が低いことから、消化液処理が不要であり、発酵残さは肥料として利用でき る可能性を秘めており、優れた利点をもつと期待される。しかし、乾式メタン発酵法では有機物濃度が高いため、 アンモニアによるメタン発酵阻害が起こりやすい点や高温発酵のための加温方法、汚泥の供給方法や完全混合 のための撹拌方法、最適な負荷量、スタートアップの迅速化、長期安定運転管理技術など様々な研究課題は 残されている。さらに、メタン発酵プロセスから発酵残さを肥料として利用した作物生産プロセスまでシステム全体 の効率や環境負荷を考慮して最適なメタン発酵条件を見出す研究はまだ行われていない。従って、様々な処理 条件で乾式メタン発酵の特性を調べることが必要となる。特に、メタン発酵プロセスにおいて、炭素や窒素の挙 動や物質収支の解明も重要であり、発酵残さは肥料として多収米の栽培に適するか調べる必要がある。さらに、 多収米イネは食用のイネよりも高い窒素吸収性、耐倒伏性、高バイオマス生産力を有するという特 徴があるが、過度の発酵残さの多収米水田への施用は、倒伏リスクの他に温室効果ガスの発生や地下への 浸透により地下水汚染を引き起こすことも懸念される。これらの影響を最小限にするために、発酵残さの成分や 最適な施用量の把握、水管理及び水田の浄化能力を引き出す方法を明らかにする必要がある。

そこで、本研究は休耕田及び転作水田で、多収米を栽培し、収穫したモミを豚の配合飼料とし、未利用バイオ マスである稲ワラ・モミ殻を炭素源と希釈材として、豚ふん尿と混合し、高温乾式メタン発酵特性を詳細に解析し、 豚ふん尿の処理を図る。高温乾式メタン発酵プロセスからメタンガスを回収して、エネルギー利用(ガスコジェネ 発電、高温乾式メタン装置の加温)を行う。さらに、発酵残さを肥料として多収米を栽培する際には、水田の水管 理によりメタン及び亜酸化窒素の放出量を削減することによって、豚ふん尿と稲ワラ・モミ殻の乾式メタン発酵処 理、飼料自給率の向上、エネルギー回収を同時に満たす環境低負荷型コベネフィットシステムを構築する。この ためのサブテーマを以下に示す。

(1)乾式メタン発酵プロセスの最適設計及び運転管理手法の確立

- (2) 温室効果ガス抑制型の発酵残さの施肥方法及び水田管理方法の確立
- (3) 発酵残さを用いた多収米の生産評価
- (4)システムの物質・エネルギー収支の解析

3.研究開発の方法

(1)乾式メタン発酵プロセスの最適設計及び運転管理手法の確立

豚ふん尿と稲ワラの高温乾式メタン発酵効率を評価するために、異なる混合比(C/N比=9(豚ふん尿のみ)、 20、30および45(稲ワラのみ))で基質を添加したした際のメタン発酵ポテンシャルを、自動メタン生成ポテンシャ ルテストシステムを用いて検討した。また、安定同位体でラベルした稲ワラを用いて高温乾式メタン発酵におけ る炭素および窒素収支の解明を試みた。

当初は養豚モデル地域である茨城県鉾田市でパイロットスケールリアクターを構築する予定だったが、東

日本大震災の影響により困難になったため、乾式メタン発酵プロセスの連続運転の可能性を評価するため、 20 Lスケールのバイオリアクターを構築し、約2年間の長期培養試験を実施し、最適な運転管理方法を検討 した。

(2)温室効果ガス抑制型の発酵残さの施肥方法及び水田管理方法の確立

発酵残さを水田に施肥した際の環境負荷(温室効果ガスおよび窒素溶脱)に関する知見は全くない。 従って、室内実験において、発酵残さ施肥量(0、150、300および450 kg-N/ha)および異なる水管 理(常時湛水および間断灌漑)により多収米飼料イネを栽培し、地下への浸透量およびメタンや亜 酸化窒素の放出速度を評価した。

さらに、間断灌漑による環境負荷抑制効果を実証するために、茨城県行方市の実際の農家の水田に て、発酵残さによる多収米飼料イネを栽培した。化学肥料100 kg-N/haを施肥し、水管理として常時湛 水を行ったものをC系(Control)とした。これに対し、発酵残渣300 kg-N/haを施肥し、常時湛水を行っ たものを(MC系)、発酵残渣300 kg-N/haを施肥し、間断灌漑を行ったもの(MI系)を設定し、温室効 果ガス排出および窒素溶脱量を計測した。

また、安定同位体を用いて、多収米飼料イネ水田における硝化速度の定量を、¹⁵N希釈法により実施した。さらに、発酵残さを施肥した土壌の脱窒速度を定量するために¹⁵N₂希釈法を提案し、脱窒 測定を試みた。

(3) 発酵残さを用いた多収米の生産評価

多収米飼料イネ生産における乾式メタン発酵残さの肥料効果を明らかにするために、ポット試験お よびライシメータ試験を通して化学肥料や堆肥、湿式メタン発酵消化液による多収米飼料イネ栽培成 績および環境負荷(温室効果ガス、窒素溶脱および土壌およびイネへの重金属の蓄積)の比較を行っ た。ポット試験では、化学肥料(高度化成、N::K=14:14:14)、堆肥および湿式のメタン発酵消化液お よびをそれぞれ30 g-N/m²施肥し、高温乾式メタン発酵残さを15、30および45 g-N/m²施肥した。ライシ メータ試験では、化学肥料、堆肥、湿式メタン発酵消化液および高温乾式メタン発酵残さをそれぞれ 30 g-N/m²施肥し、3年間の連用試験を実施した。

(4)システムの物質・エネルギー収支の解析

原単位法を用いて、1000頭の養豚における従来法(豚舎、分離ふんの堆肥化処理施設および分離尿の排水処理施設)および提案法(豚舎、豚ふん尿の高温乾式メタン発酵施設および多収米飼料イネ水田)の導入および運営における物質・エネルギー・コスト・温室効果ガスの収支解析を実施し、提案する循環型豚ふん尿処理システムを評価した。

4. 結果及び考察

(1) 乾式メタン発酵プロセスの最適設計及び運転管理手法の確立

C/N比が8(豚ふん尿のみ)、20、30および45(稲ワラのみ)の原料をそれぞれ回分で高温乾式メタ ン発酵し、Gompertzの式より算出したメタン発酵特性を図2に示す。稲ワラ(C/N比=45)は豚ふん尿 (C/N比=9)よりも遅延期が短く、最大メタン生成速度が大きかった(図2(a)および(b))。つ まり、稲ワラは豚ふん尿よりも分解速度が速いということが示唆された。また、図2(c)より稲ワ ラは豚ふん尿よりメタン生成ポテンシャルが大きかった。豚ふん尿に稲ワラを混合した系(C/N=20お よび30)においては、稲ワラの添加量が多いほど、つまりC/N比が高いほど分解速度が速く、メタン生 成ポテンシャルが大きかった。以上より、豚ふん尿に多くの稲ワラを投入することで、分解速度、さ らにはメタン生成量も上昇し、高効率に豚ふん尿を処理することが可能であるということが明らかと なった。

図3に20Lバイオリアクターにおける511日間の連続培養におけるバイオガス生成量の推移を示す。 C/N比を高くすることで(豚ふん尿と稲ワラを混合することで)、バイガス生成が持続した。C/N比=8 では、リアクター内のアンモニア濃度がメタン発酵の阻害濃度(3000 mg-N/kg-w.w.)を超えていたこ とから、豚ふん尿と稲ワラの混合により発酵阻害を抑制できることが考えられた。さらに、C/N比が高 いほど汚泥滞留時間(SRT)を短縮でき(基質の負荷を大きくすることができる)、C/N比20では、SRT=30 日、C/N比30では、SRT=20日が最適運転条件であることが分かった。



図 2 異なる C/N 比における(a)遅延期、(b)最大メタン生成速度および(c)メタン生成ポ テンシャル



図3 20 Lリアクターにおけるバイオガス発生量の推移

(2) 温室効果ガス抑制型の発酵残さの施肥方法及び水田管理方法の確立

ポット試験における、異なる窒素負荷による発酵残さの施肥および異なる水管理による多収米飼料 イネ栽培の結果、栽培期間中のCH4排出量は発酵残さ負荷量の増加に伴い増加する傾向が見られた。一 方、間断灌漑系の増加の割合は同じ負荷量の常時湛水系よりも小さく、300および450 kg-N/haの実験 系において、間断灌漑を行うことによって常時湛水より59%と80%の温室効果ガスが削減できたことが わかった。ポット底部における溶脱無機態窒素濃度は、発酵残さを施肥したポットの法が対照系(発 酵残さなし)よりも高かった。一方で、間断灌漑系における濃度は常時湛水系よりも低かった。その 結果、累積溶脱量も間断灌漑系が低くなるという結果となった。これらの結果は、間断灌漑により発 酵残さを施肥した多収米飼料イネ栽培における環境負荷を抑制できることを示唆している。

茨城県行方市の実際の農家の水田にて、発酵残さにより多収米飼料イネを栽培した結果、C系は110 kg C/ha、MC系は464 kg C/ha、MI系は300 kg C/haとなった。C系に対し、MC系では4.2倍、MI系では2.7倍 のCH₄が排出され、発酵残さ施肥は慣行の栽培手法よりも温室効果ガスが高くなることがわかった(図 4)。N₂0の排出はみられなかった。間隙水中の窒素濃度は、慣行系より高窒素負荷の発酵残さ系の方 が低く、乾式メタン発酵残渣による多収米飼料イネ栽培における水環境負荷は、慣行の栽培方法(化 学肥料および常時湛水)よりも小さいことが示唆された。しかし、窒素収支を評価した結果、MI系に おけるイネによる窒素吸収はMC系よりも低く、間断灌漑により硝化脱窒が促進され、イネに吸収可能 な窒素が不足したと考えられた。

間断灌漑が硝化速度に及ぼす影響を¹⁵N希釈法により評価した結果、間断灌漑系における硝化速度は 常時湛水系より数倍高くなることが明らかとなった。一方、¹⁵N₂ガス希釈法による脱窒測定は、大気中 のN₂ガスの混入により正確な計測ができず、今後の課題とした。





図4 栽培期間中における積算CH₄排出量(茨城県行方市)



図5 栽培期間中の溶脱窒素量(茨城県行方市)

(3) 発酵残さを用いた多収米の生産評価

ポット試験では、乾式メタン発酵残さを施用したポットにおいて初期生育が若干抑制された。したがって、乾式 残さは植物に対する生育抑制効果を有することが確認された。しかし、移植後1ヶ月以降は生育抑制はみられな くなり、むしろ残さ添加量が多いポットほど、イネの生育は良好になった。最終的な乾物生産量はポット試験での 収穫時の乾物収量は、化肥区に比べ乾式15区は劣ったが、乾式30区、乾式45区と残さ施用量が多くなるほど 収量が高まったことから、乾式残さの肥料効果を確認することができた。

ライシメータ試験でもタカナリは良好な生育を示し、乾式30区は化学肥料をはじめとするその他の肥料と同程 度の乾物生産量を示した(図6)。化学肥料と湿式消化液は基肥と追肥2回の合計3回の施肥を行ったのに対し、 乾式発酵残渣区では基肥の1回しか施肥していない。それにも関わらず同程度の肥料効果を示したことは、乾 式発酵残さに含まれる有機態窒素が栽培期間中徐々に無機化され、イネに対する追肥として機能したと考えら れた。

ライシメータ試験における温室効果ガス排出の調査では、栽培期間中の累積CH₄発生量は、年次変動がある ものの、化学肥料に比べ堆肥、湿式消化液および乾式発酵残さは高いCH₄発生量となった(図7)。この結果は、 茨城県行方市における実際の水田での結果(図4)と一致した。また、ライシメータ試験3年間のほとんどの栽培 期間において、浸透水中の硝酸態窒素濃度は1 mg/L以下だった。従って、窒素が硝酸性窒素として溶脱するリ スクはほとんどないといえる。銅および亜鉛は、化学肥料に比べて発酵残さ施用により、それぞれ10倍および4倍 以上が添加された。しかし、収穫物に含まれる銅および亜鉛濃度に有意な差はなかった。土壌においては、両重 金属ともに増加が認められたが、数十年の連用により土壌環境基準を超過することはないと考えられた。



図 6 ライシメータ試験における多収米(タカナリ)の乾物生産量 (2013年の堆肥区は乾式残さ+スラグ区)



図7 ライシメータ試験における多収米(タカナリ)栽培時のメタン発生量

(4)システムの物質・エネルギー収支の解析

物質およびエネルギー収支解析の結果、C/N比=20および30の場合、多収米飼料イネ水田はそれぞれ34および84 ha必要になることがわかった。この結果、発酵残渣を肥料として水田に施肥した際の窒素負荷量は、C/N 比=20および30でそれぞれ244および158 kg-N/haとなった。

システムにおける環境負荷を比較したところ、年間の水環境への窒素負荷は従来法の排水処理施設は3.8 t-N/年に対し、提案法の多収米飼料イネ水田はC/N比=20および30でそれぞれ0.33および0.54 t-N/年だった。 温室効果ガス排出は、従来法では豚ふん尿の処理過程における温室効果ガス排出が支配的だった。一方、提 案法では水田の水管理を間断灌漑にすることで、正味の温室効果ガス排出量を従来法に比べC/N比=20およ び30で73および74%削減可能であることが示された。

システムの経済性を評価した結果、1000頭規模では養豚農家および水田農家の両業者が最低限必要な所得 を確保できないことがわかった。しかし、規模を7000頭に拡大し、水田への補助金を活用することで経済的に成 り立つことがわかった。さらに、表1に示すように、養豚の規模7000頭以上、各ユニット間(豚舎、乾式メタン発酵、 飼料イネ水田)の距離10 km、本研究が提案している温室効果ガス削減型の水田管理方法である間断灌漑を 行い、水田への補助金がある場合には、経済性だけでなく環境負荷の面でも従来法より有利になることがわか った。以上より、提案する循環型豚ふん尿処理システム全体の物質・エネルギー収支の関係を明確化し、経済 性および環境負荷の両面からシステムが実現可能な条件を解明することができた。

	システム	収入	収入 支出	
	従来法	21683	19835	1849
(),,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,	提案法(C/N比=20)	54097	40646	2460
	提案法(C/N比=30)	98784	69119	2234
	システム	排出量	削減量	正味
温室効果ガス	従来法	2731	0	2731
(t-CO ₂ eq/年)	提案法(C/N比=20)	3731	3220	511
	提案法(C/N比=30)	6719	6392	326
	システム		排出量	
水環境負荷 (t−N/年)	従来法		26.8	
	提案法(C/N比=20)	2.4		
	提案法(C/N比=30)		3.8	

表1 養豚 7000 頭規模の収支結果

5. 本研究により得られた主な成果

(1)科学的意義

本研究では、豚ふん尿および稲ワラの高温乾式メタン発酵を効率的かつ連続的に行うための運転条件を 明らかにするとともに、高温乾式メタン発酵における炭素・窒素収支を明らかにした。アンモニア阻害を防ぐた めに稲ワラの混合により調整したC/N比20ではSRT=30日、またC/N比30ではSRT=20日が、最適運転条件で あることが分かった。乾式メタン発酵残渣を肥料として実際の水田で初めて多収米飼料イネを栽培し、水 環境負荷および温室効果ガス排出量を定量的に明らかにできた。多収米飼料イネの生育期間を通して、発 酵残さを施肥した水田の浸透水中のNO₃⁻⁻N濃度は低く、地下水汚染のリスクはきわめて低いと考えられる。 発酵残さを施肥した多収米飼料イネ水田における窒素浄化能を評価する上で、脱窒の計測は重要である。 土壌をかく乱することなく脱窒を計測する手法は未だ提案されていないため、本研究で提案した¹⁵N₂ガス希釈 法は発酵残さを施肥した水田における脱窒量の評価に有効な手法と考えられる。しかし、本研究で示したよう に、本手法を脱窒量の計測に応用するには外気窒素による汚染の回避などまだ克服すべき課題があること がわかった。

乾式メタン発酵残さには化学肥料およびその他の肥料と同等の肥効があることが明らかになった。さらに、 豚ふん尿および稲ワラ由来の乾式メタン発酵残さは、天然由来有機肥料であるという点から、農家にとって 利用しやすく、乾式メタン発酵-多収米飼料イネ栽培システムへの適用可能性が示された。ただし、温室効果 ガス排出の点では、高温乾式メタン発酵を施肥した水田は化学肥料による栽培よりも数倍のメタンを排出す るため、間断灌漑など削減策を講じることが重要である。

本研究で得られた各種数値および文献値から、乾式メタン発酵および多収米飼料イネ水田による豚ふん 尿処理システムにおける物質・エネルギー、経済収支および環境負荷を明らかにした。特に、従来システムよ りも低水環境負荷および低温室効果ガス排出でかつ経済的にも成り立つ条件を提示できたことは養豚排水 処理と多収(飼料)米生産の環境低負荷型コベネフィットシステムを構築する上で意義深い。

(2)環境政策への貢献

く行政が既に活用した成果>

地域バイオガスシステム構築事業を茨城県鉾田地区に申請する作業において、環境省水・大気環境局地下 水・地盤環境室において、本研究で提案したシステムが参考にされた。最終的には、茨城県側が申請を断念し た。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究から、豚ふん尿と稲ワラを混合して高温乾式メタン発酵することで、豚ふん尿処理が可能となることが示された。本成果は、稲ワラや豚ふん尿などバイオマスの有効活用・バイオマスエネルギー生産につながることから、農林漁業バイオ燃料法や、地域循環型バイオガスシステム構築モデル事業などに活用可能と考えられる。

高温乾式メタン発酵残さを施肥した水田土壌からの温室効果ガス発生の特性を始めて明らかにした。本研究 で得られたデータは、発酵残さを施肥した水田土壌の温室効果ガス排出量算定における知見を提供するものと 考えられる。また、発酵残さを施肥した多収米飼料イネ水田における窒素溶脱量は、畜産地域に本システムを 適用した際の水環境への窒素負荷を推定する上で有用と考えられる。 豚ふん尿および稲ワラ由来の乾式メタン発酵残さは、天然由来有機肥料であるという点から、発酵残さを活用 した多収米飼料イネの環境保全型農業の促進につなげることができると考えられる。また、乾式メタン発酵への 稲ワラの適用は、未利用バイオマスの利用促進につながるだけでなく、稲ワラの水田へのすきこみによるメタン排 出量の増加を抑制する上でも効果があり、我が国の農林水産分野の温室効果ガス排出抑制技術として利用可 能と考えられる。

本研究にて提案するシステムは、従来の養豚システム(豚舎、堆肥化および排水処理)代わる新しい養豚システムを提案するものである。オフセット・クレジット制度に活用できると考えられる。従来の豚肉生産や豚ふん尿処理システムと比べ、メタン発酵プロセスによるメタンの回収や水田における温室効果ガス排出の削減効果、自給飼料の 生産による輸入飼料量の削減によって二酸化炭素削減クレジットの創出が期待できる。また、回収したメタンによる コジェネ発電などエネルギーの有効利用より、さらなるクレジットの創出が可能と考えられる。

6. 研究成果の主な発表状況(別添.作成要領参照)

(1)主な誌上発表

<査読付き論文>

 S. Zhou, H. Iino, Y. Nakashimada, M. Hosomi: Water Science & Technology, 66(2),438-444 (2012) "Evaluation of anaerobic biodegradability of forage rice straw fertilized with livestock waste"

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない

(2)主な口頭発表(学会等)

- S. Zhou, H. Iino, Y. Nakashimada, M. Nishikawa, M. Hosomi: The 8th IWA International Symposium on Waste Management Problems in Agro-Industries, Cesme, Turkey, Jun. 22-24, 2011. "Production of Forage Rice and Anaerobic Digestion Characteristics of Forage Rice Straw"
- 2) M. Hosomi, K. Suzuki, R. Kanai, S. Riya, S. Zhou, A. Terada : 3rd International Congress on Sustainability Science and Engineering, Ohio, U.S., 2013 "Dry Thermophilic Anaerobic Digestion Process of Swine Manure and Rice Straw: Towards a Sustainable Swine Manure Treatment System Based on Forage Rice Paddy."
- 3) M. Hosomi, K. Suzuki, R. Kanai, S. Riya, S. Zhou, A. Terada : International Conference on Recent Advances in Pollution Control and Resource Recovery for the Livestock Farming Industry, Jiaxing, China, 2013 "Sustainable Treatment System for Waste from Livestock Farming Industry Based on Dry Thermophilic Anaerobic Digestion Process and Forage Rice Paddy Field."
- 4) S. Zhou, R. Kanai, K. Suzuki, S. Riya, A. Terada, M. Hosomi : International Conference on Recent Advances in Pollution Control and Resource Recovery for the Livestock Farming Industry, Jiaxing, China, 2013 "Dry-thermophilic anaerobic co-digestion of swine manure mixed with forage rice straw."
- 5) 鈴木一弘、周勝、寺田昭彦、細見正明:第14回化学工学会学生発表会(2012) 「豚ふん尿と稲ワラを用いた高温乾式メタン発酵特性の解明」
- 6) 鈴木一弘、周勝、寺田昭彦、細見正明:第64回日本生物工学会大会(2012)「豚ふん尿と稲ワ ラを用いた高温乾式メタン発酵プロセスの開発」
- 7) 鈴木一弘,周勝,寺田昭彦,細見正明:化学工学会 第78年会(2013)「豚ふん尿と稲ワラを 用いた高温乾式メタン発酵プロセスの開発および循環型豚ふん尿処理システムの実現可能性」

7.研究者略歴

課題代表者:細見 正明 大阪大学工学部卒業、博士(工学)、 現在、東京農工大学大学院工学研究院 教授

研究分担者 ※研究分担者とは応募申請書に記載された研究者、または、研究体制変更理由書により環境省から承認された研究 者を指す。

1) 利谷 翔平

東京農工大学工学府応用化学専攻博士後期課程修了、博士(工学)、 当時 日本学術振興会特別研究員、現在、東京農工大学工学部 助教

2) 豊田 剛己

名古屋大学農学研究科農芸化学専攻博士後期課程修了、博士(農学) 現在、東京農工大学大学院農学研究員 教授

- **以仁、**米尔辰エ**八子**八子阮辰子 町九貝
- 3)秋澤 淳

東京大学工学系研究科電気工学専攻博士後期課程修了、博士(農学)

現在、東京農工大学生物システム応用化学府 教授

4) 周 勝

東京農工大学工学府応用化学専攻博士後期課程修了、博士(工学)、

当時 東京農工大学工学部 助教、 現在、上海市農業科学院 教授

5) 下ケ橋雅樹

東京大学工学系研究科化学工学専攻博士後期課程修了、博士(工学)、

当時 東京農工大学工学部 特任准教授、 現在、国立保健医療科学院 主任研究官

1B-1103 養豚排水処理と多収(飼料)米生産の環境低負荷型コベネフィットシステムの構築

(1) 乾式メタン発酵プロセスの最適設計及び運転管理手法の確立

東京農工大学 大学院工学研究院 細見正明

平成23~25年度累計予算額:36250千円

(うち、平成25年度予算額:13383千円)

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

サブテーマ(1)では豚ふん尿と稲わらの高温乾式メタン発酵処理法の確立を目的とする。具体的には、豚ふん尿と稲わらの混合比(C/N比)の調整による乾式メタン発酵特性の評価および半 連続のリアクターを構築し、連続運転した際のC/N比および原料供給速度の最適化を行った。

異なるC/N比における回分試験の結果、C/N比を高くすることで、分解速度、さらにはメタン生成量も上昇し、高効率に豚ふん尿を処理することが可能であることが分かった。また、回分試験において¹⁵Nでラベルされた稲ワラを用いて発酵を実施したところ、発酵後の¹⁵Nの量が減少することが確認された。このことから、投入した汚泥中の窒素は、遊離アンモニアとして気相中に排出される可能性が示唆された。

豚ふん尿と稲ワラの高温乾式メタン発酵の連続運転の可能性を探るため、スケールアップした 20 Lリアクターによる半連続試験(反復回分培養試験)を511日間実施した。C/N比8(豚ふん尿の み)、20および30で汚泥滞留時間(SRT)を変更しながら培養を続けた結果、C/N比8では連続運転 が不可能であることがわかった。一方、C/N比20および30ではそれぞれSRTが30日および20日が連 続運転する上で最適であることが明らかとなった。

[キーワード]

養豚排水処理、高温乾式メタン発酵、飼料イネ、稲ワラ、豚ふん尿、C/N比

1. はじめに

年間約9000万トンの家畜排せつ物の3割を占める養豚業は、農地を所有しないことが多く、農地 還元が困難であった(乳用牛・肉用牛経営農家は自己保有地があり、農地還元が実施可能である)。 従って、排水規制強化の影響を受けるのは、我が国最大の家畜産業である養豚業排水である。こ れに応えるため、養豚業では、飼料の供給も含めた豚の飼育とふん尿処理とを切り離して、ふん 尿処理だけに限って、最適化しようとする(部分最適化)。その結果、従来型の養豚排水の活性 汚泥法をはじめとした排水処理技術と豚糞のコンポスト化によるリサイクルでは、処理コストと ともに温室効果ガスの排出量が増大することになる(図(1)-1)。また、輸入飼料の高騰化を はじめ、口蹄疫などの問題もあり、養豚業の置かれている状況は大変厳しい状況にある。そこで、 本研究では養豚業全体とそれを取り巻く環境(飼料の供給体制も含めて)を考慮することで、低 コスト型の排水処理、エネルギー回収及び温室効果ガス削減を同時に満たすコベネフィットアプ ローチに着目する(図(1)-2)。具体的には、休耕田及び転作水田で、多収米を栽培し、収 穫したモミを豚の配合飼料とし、未利用バイオマスである稲ワラ・モミ殻を炭素源と希釈材とし て、豚ふん尿と混合し、高温乾式メタン発酵を行い、豚ふん尿の処理を図る。高温乾式メタン発 酵プロセスからはメタンガスを回収して、エネルギー利用(ガスコジェネ発電、高温乾式メタン 装置の加温)を行う。さらに、乾式メタン発酵残さは多収米の肥料として用い、栽培する際には 水田の水管理によりメタン及び亜酸化窒素の放出量を削減することによって、豚ふん尿と稲ワ ラ・モミ殻の乾式メタン発酵処理、飼料自給率の向上、エネルギー回収を同時に満たす環境低負 荷型コベネフィットシステムを構築する。



図(1)-1 従来型の養豚システム



図(1)-2 乾式メタン発酵と多収米を用いたコベネフィットシステム

2. 研究開発目的

豚ふん尿の処理・利用法としてメタン発酵法が注目されている。メタン発酵には、従来から下 水汚泥などの消化に使用されてきた湿式メタン法(含水率>95%)(図(1)-3)と新規の乾 式メタン法(含水率<85%)(図(1)-3)とがある。湿式メタン法は、これまでにエネルギ ー回収法として広く用いられているが、含水率が高い状態で発酵を行うため、高濃度の有機物や 窒素・リン等を含む消化液が大量に発生し、その処理に多くのエネルギーを消費するという問題 点があった。



図(1)-3 湿式および乾式メタン発酵残渣の比較(左:湿式、右:乾式)

一方、乾式メタン発酵法は含水率が低いことから、消化液処理が不要であり、発酵残さは肥料 として利用できる可能性を秘めており、優れた利点をもつと期待される。しかし、乾式メタン発 酵法では有機物濃度が高いため、アンモニアによるメタン発酵阻害が起こりやすい点や高温発酵 のための加温方法、汚泥の供給方法や完全混合のための撹拌方法、最適な負荷量、スタートアッ プの迅速化、長期安定運転管理技術など様々な研究課題は残されている。

そこで、本研究では豚ふん尿と稲わらの高温乾式メタン発酵処理法の確立を目的とした。具体 的には、豚ふん尿と稲わらの混合比(C/N比)の調整による乾式メタン発酵特性の評価および半連 続のリアクターを構築し、連続運転した際のC/N比および原料供給速度の最適化を検討した。

3. 研究開発方法

(1) 豚ふん尿と稲ワラ・モミ殻との混合物の乾式メタン発酵特性の評価

1) 乾式メタン発酵の原料

乾式メタン発酵実験に使う種汚泥は穂高クリーンセンター(長野県安曇野市)高温乾式メタン 発酵の発酵残渣を用いた。豚ふん尿は(株)林牧場(群馬県勢多郡新里村より提供していただいた ものを用いた。(株)林牧場では豚ふんと豚尿を分離しているので、肥育豚における豚ふんと豚 尿の発生原単位の比に基づいて(それぞれ1.9、3.5 kg/頭/日)豚ふんと豚尿の重量比を1.9:3.5 で混合したものを豚ふん尿として用いた。飼料イネは、C/N比による評価およびメタン発酵におけ る炭素・窒素収支を調査するために、¹⁵Nで標識した肥料で栽培したリーフスターの穂部分を取り 除いた葉と茎部分を用いた。



図(1)-4 種汚泥(左)、豚ふん尿(中)、飼料イネのワラ(右)

2) 乾式メタン発酵実験装置

乾式メタン発酵特性の評価は自動メタンポテンシャルシステム (Automated Methane Potential Test System(AMPTS)、Bioprocess Control製)を用いて行った。このシステムは、15本のサンプルを同時に培養し、実験データを自動で記録することができるシステムである。このシステムは、3つのユニットから構成されており、ユニットA、ユニットBおよびユニットCはそれぞれサンプル培養ユニット、CO,固定ユニットおよびガス容量測定装置である。

自動メタンポテンシャルテストシステムのユニットAの500 mLデュラン瓶に種汚泥200 gおよび 混合基質(豚ふん尿、稲ワラおよび含水率調整水)50 gを投入した。また、対照として混合基質 を投入しない系を設定した。そして、システム内をN₂で置換することで嫌気状態にし、55℃で30 日間回分培養を行った。



図(1)-5 自動メタンポテンシャルテストシステム

3) 乾式メタン発酵の解析方法

混合基質を投入した系のメタンガス生成量から、混合基質を投入しない系(対照系)のメタン ガス生成量を差し引き、基質由来の正味の累積メタンガス生成量を求めた。この累積メタンガス 生成量を以下のGompertzの式にフィッティングすることにより、異なる系におけるメタン発酵特 性をまとめ、比較を行った。(Gompertzの式:回分試験におけるメタン発酵のモデル式)

 $M = P \times \exp \left[-exp\left\{\frac{R_m \times e}{P}(\lambda - t) + 1\right\}\right]$

ここで、M: 累積メタンガス生成量[mL/g-VS]、λ: 遅延期[day]、P: メタン生成ポテンシャル [mL/g-VS]、R_m: 最大メタン生成速度[mL/(g-VS/day)]、e: 自然対数の底2.718である。

フィッティングはMicrosoft Excelのsolver関数を用いて、式からの計算値と実験値の平方誤差の和が最小となるP、R_x、 λ を求めた。



図(1)-6 Gompertzの式による累積メタン生成量のフィッティング例

4)回分実験-C/N比の検討

実験系は、基質を投入しない種汚泥200gのみ系(Blank、対象)と種汚泥200gに混合基質50gを投入する系を設定した。各系では3連で行った。また、混合基質を投入した系では、豚ふん尿と稲ワラの混合比としてC/Nは、9(豚ふん尿のみ)、20、30および45(稲ワラのみ)となるように、豚ふん尿、稲ワラおよび水の重量をそれぞれ投入した(表(1)-1)。なお、用いた稲ワラは、小型超高速粉砕機(Wonder Blender WB-1、大阪ケミカル(株))を用いて粉砕し、10 mesh(2.5 mm四方の網目)のふるいを用いて10 mesh以下になるまで粉砕したものである。

	種汚泥	豚ふん尿	稲ワラ	水	基質	VS	含水率
	[g]	[g]	[g]	[g]	[g]	[g]	[%]
Blank	200	_	_	-	_	_	-
9(豚ふん尿のみ)	200	50.00	0	0	50	3.56	91.05
20	200	41.2	8.8	0	50	9.37	76.66
30	200	16.37	11.25	22.37	50	9.4	76.66
45(稲ワラのみ)	200	0	12.87	37.13	50	9.41	76.66

表(1)-1 実験系(豚ふん尿と稲ワラの混合比(C/N比)の検討)

5) 回分実験―炭素・窒素収支の解明

投入した汚泥中の炭素は、バイオガス(メタンおよび二酸化炭素)および汚泥中に分配される ものと考えられる。そこで、発酵前の汚泥、発酵後の汚泥、メタンガス、および二酸化炭素ガス の炭素量をそれぞれ算出することで挙動および収支を解明した。

窒素の挙動および収支を解明するために¹⁵Nで標識された稲ワラを用いた。培養に先立ち、各原料(種汚泥、稲ワラ、豚ふんおよび豚ふん尿)の¹⁵N存在比を調べたところ、稲ワラの¹⁵N存在比は約27%であった。種汚泥、豚ふんおよび豚ふん尿の¹⁵N存在比は約0.37%であり、¹⁵Nの自然存在比と ほぼ同等だった(表(1)-2)。従って、稲ワラ中の窒素は十分¹⁵Nにより標識されたと考えら れる。

(4)の培養前後、混合汚泥(種汚泥、稲ワラ、豚ふんおよび豚ふん尿)を採取した。採取したサンプルは絶乾後、すり鉢ですりつぶした後、同位体比質量分析計(EA1112-DELTA V PLUS ConFlo ⅢSystem, Thermo Fisher Scientific)にて窒素および炭素含有率および¹⁵N存在比を計測した。

表(1)-2	原料の ¹⁵ N存在b	七とNおよびC含有	「率
サンプル	¹⁵ N存在比[%]	N 含有率[% d.w]	C 含有率[% d.w]
種汚泥	0.370	1.55	33.8
稲ワラ(1⁵N 標識リーフスター)	26.5	0.659	38.0
豚ふん	0.369	3.46	45.5
豚ふん尿	0.369	3.66	44.4

(2) 豚ふん尿と稲ワラの半連続高温乾式メタン発酵(20 L リアクター)

1) 最適C/N比およびSRTの評価

本実験では、バイアル瓶規模の実験から20Lのリアクター(汚泥10 kgを含む)にスケールアップし、連続試験を行い、豚ふん尿と稲ワラの混合比(C/N比)およびSRT(Sludge Retention Time:

汚泥滞留時間)を検討した。具体的には、豚ふん尿のみであるC/N比=8、豚ふん尿に稲ワラを混合 するC/N比=20および30の3系のそれぞれにおいて、SRTを段階的に短縮させて連続試験を行い、C/N 比およびSRTの検討を行った。また、乾式メタン発酵での物質収支(炭素・窒素を含む)を把握す ることで、実験データの信頼性、乾式メタン発酵での物質の流れ、また各C/N比・SRTでの物質収 支の違いを解明した。さらには、湿式メタン発酵および乾式メタン発酵の既往の研究との運転性 能を比較・評価した。

a 原料

使用した種汚泥は、厨芥類、紙類および草木・木片類を処理対象として高温乾式メタン発酵を 運転していた穂高クリーンセンター(長野県安曇野市)の発酵残渣である。実験で使用する前に 発酵不適物であるプラスティックを取り除いた。豚ふん尿は、茨城県鉾田市の養豚農家から排出 される豚ふん尿を使用した。この養豚農家では豚ふんと豚尿を分離して排出している。そこで、 肥育豚における豚ふんと豚尿の発生原単位が、それぞれ1.9、3.5 kg/頭/dayであることから、豚 ふんと豚尿の重量比を1.9:3.5で混合したものを豚ふん尿として使用した。稲ワラは、(独)農 業環境技術研究所(茨城県つくば市)の水田にて栽培した飼料イネ品種であるタカナリを用いた。 実験で使用する前に天日干しにて自然乾燥させ、穂部分を取り除いた葉と茎部分を5cm程度に裁断 した。各種原料の性状を表(1)-3に、写真を図(1)-7に示す。

測定項目	種汚泥	豚ふん	豚尿	稲ワラ
$TS^{a)}$ [%,w.w]	21.35	25.49	4.59	92.29
VS ^{b)} [%,w.w]	11.64	17.59	2.37	69.79
炭水化物 ^{。)} [%, perVS]	N. A ^{f)}	73.73	6.34	93.16
タンパク質 ^{d)} [%,perVS]	N. A ^{f)}	20.17	61.60	4.35
脂質 ^{e)} [%,perVS]	N. A^{f}	6.10	32.05	2.49
TOC [mg/kg-w.w]	58100	117600	10760	355800
TON [mg/kg-w.w]	3500	5678	2336	4861
アンモニア態窒素 [mg/kg-w.w]	2098	2004	3035	_
pH [-]	8.7	8.4	7.8	_
n-吉草酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	0.00	0.00	_
iso-吉草酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	0.00	8.13	_
n-酪酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	0.00	20.80	_
iso-酪酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	16.10	7.83	_
プロピオン酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	44.20	49.03	_
酢酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	0.00	167.57	_

表(1)-3 原料の性状

a) TS: Total Solid 蒸発残留物(105℃、2h乾燥した際に残留した量=固形物量)

b) VS: Volatile Solid 強熱減量(600±25 ℃、1 h強熱した際に減少した量=有機物量)

c)炭水化物:デンプンおよびセルロースの総和(炭水化物=VS-タンパク質-脂質)

d) タンパク質: 全有機窒素 (TON) に窒素-タンパク質換算係数6.25を乗じたもの

e) 脂質: ソックスレー抽出 (エタノール: ベンゼン=1:2) により可溶化した量

f) N.A: Not Analyzed 未分析



図(1)-7 原料の写真(a: 種汚泥、b: 稲ワラ、c: 豚ふん、d: 豚尿)

b 実験系

実験系を表(1)-4に示す。C/N比をパラメーターとして、豚ふん尿のみであるC/N比=8、豚 ふん尿に稲ワラを混合するC/N比=20および30の3系をそれぞれ培養した。表(1)-4中の混合基 質(豚ふん、豚尿、稲ワラおよび水)はSRT1サイクルあたりの投入量であり、設定したSRTに応じ て投入量を決定した。ただし、豚ふん尿のみであるC/N比=8を除き、発酵中の汚泥TSが20%程度に なるように、C/N比=20および30は混合基質TSが27%となるように設定した。

C/N比 [-]	8	20	30
豚ふん [kg]	3.52	2.88	1.41
豚尿 [kg]	6.48	5.28	2.63
稲ワラ [kg]	0.00	1.84	2.40
水 [kg]	0.00	0.00	3.56
TS [%,w.w]	10.50	27.00	27.00
VS [%,w.w]	7.08	19.35	19.57
TOC [mg/kg-w.w]	48350	105400	104800
TON [mg/kg-w.w]	3512	3762	2583
アンモニア態窒素 [mg/kg-w.w]	2672	2177	1079

表(1)-4 実験系(SRT 1サイクルあたり)

c 培養方法

本培養に先立ち、種汚泥中の発酵に関与する微生物を馴養することと、種汚泥中の未分解基質 を無くす目的で55℃、嫌気条件下で30日間程度前培養を行った。

本実験で使用したラボリアクターおよびラボリアクターを使用した培養の流れを図(1)-8 および図(1)-9にそれぞれ示す。前培養した種汚泥をもとに、設定したSRTに応じて汚泥の引 き抜きおよび混合基質の投入を行った。汚泥の引き抜きは、ガス生成による汚泥の減量分および 混合基質の投入量を考慮し、リアクター内の汚泥が10kgとなるように行った。混合基質の投入は、 設定C/N比に応じて行った。次に、リアクターのヘッドスペースを窒素(1L/min、20 min)で置換 することで嫌気状態にした。その後、恒温槽を用いて55°Cで培養を行った。これらの一連の操作 を2、3、4日間隔のいずれかで反復回分的に繰り返すことで連続培養を行った。その際、バイオガ ス発生量の測定、バイオガスおよび汚泥のサンプリングを行い、図(1)-9に示す分析項目を 分析した。



図(1)-8 ラボリアクターの写真



図(1)-9 ラボリアクターを使用した培養の流れ

2) 含水率の検討

1)では、投入基質含水率が73%となるように水を投入して培養を行った。しかしながら、水を 投入することで、発酵槽容積の増大、加温・運搬エネルギーの増大などのデメリットが生じると 予想される。そのため、投入基質含水率を低下させる検討が必要と考えられる。しかしながら、 投入基質の含水率の検討を行った知見は非常に少ない。そこで本章では、C/N比=30において、投 入基質含水率を73、68、63、58%と段階的に低下させて連続試験を行い、投入基質含水率の検討を 行った。また、各含水率における物質収支(炭素・窒素を含む)を把握し、実験データの信頼性 を確認し、乾式メタン発酵での物質の流れ、また各含水率での物質収支の違いを解明した。

本実験では、(1)で述べたC/N比=30おけるSRT=20日での引き抜き汚泥を使用した。豚ふん尿 および稲ワラは、(1)と同じものを使用した(表(1)-5)。

五 1				
測定項目	種汚泥	豚ふん	豚尿	稲ワラ
$TS^{a)}$ [%,w.w]	17.58	25.49	4.59	92.29
VS ^{b)} [%,w.w]	7.94	17.59	2.37	69.79
炭水化物 ^{c)} [%, w.w]	N. A ^{f)}	73.73	6.34	93.16
タンパク質 ^{d)} [%, w.w]	N. A ^{f)}	20.17	61.60	4.35
脂質 ^{e)} [%, w.w]	N. A ^{f)}	6.10	32.05	2.49
TOC [mg/kg-w.w]	63890	117600	10760	355800
TON [mg/kg-w.w]	3131	5678	2336	4861
アンモニア態窒素 [mg/kg-w.w]	1345	2004	3035	_
pH [-]	8.8	8.4	7.8	_
n-吉草酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	0.00	0.00	_
iso-吉草酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	0.00	8.13	_

表(1)-5 原料の性状

n-酪酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	0.00	20.80	-
iso-酪酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	16.10	7.83	_
プロピオン酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	44.20	49.03	-
酢酸 [mmol/kg-w.w]	0.00	0.00	167.57	_

a) TS: Total Solid 蒸発残留物(105℃、2h乾燥した際に残留した量=固形物量)
b) VS: Volatile Solid 強熱減量(600±25 ℃、1h強熱した際に減少した量=有機物量)
c) 炭水化物: デンプンおよびセルロースの総和(炭水化物=VS-タンパク質-脂質)
d) タンパク質: 全有機窒素(TON) に窒素-タンパク質換算係数6.25を乗じたもの
e) 脂質: ソックスレー抽出(エタノール: ベンゼン=1:2)により可溶化した量

f) N.A: Not Analyzed 未分析

実験系を表(1)-6に示す。投入基質含水率をパラメータとして、投入基質含水率を73、68、 63および58%の順番に1つのリアクターで培養した。表(1)-6中の混合基質(豚ふん、豚尿、 稲ワラおよび水)はSRT1サイクルあたりの投入量であり、設定したSRTに応じて投入量を決定した。 また、全ての含水率において、C/N比は30、有機物負荷量は10.0 kg-VS/m³-sludge/dayと固定した。 有機物負荷量を固定するために、含水率73、68、63および58%ではそれぞれSRT=20、24、27および 31 dayで培養した。

投入基質含水率 [%]	73	68	63	58
C/N比 [-]	30	30	30	30
有機物負荷 [kg-VS/m ³ -sludge/day]	10.0	10.0	10.0	10.0
SRT [day]	20	24	27	31
豚ふん [kg]	1.42	1.73	1.94	2.21
豚尿 [kg]	2.62	3.18	3.57	4.07
稲ワラ [kg]	2.40	2.92	3.27	3.72
水 [kg]	3.56	2.17	1.22	0.00
VS [%,w.w]	20.15	24.51	27.46	31.25
TOC [mg/kg-w.w]	104800	127700	143200	163000
TON [mg/kg-w.w]	2583	3145	3527	4016
アンモニア態窒素 [mg/kg-w.w]	1079	1312	1471	1675

表(1)-6 実験系(SRT 1サイクルあたり)

4. 結果及び考察

(1) 豚ふん尿と稲ワラ・モミ殻との混合物の乾式メタン発酵特性の評価

1) C/N 比が豚ふん尿と稲ワラとの乾式メタン発酵におよぼす影響 投入VSあたりの累積メタンガス生成量の経日変化を図(1)-10に示す。



図(1)-10 投入 VS あたりの累積メタンガス生成量の経日変化

図(1) -10を Gompertz の式にフィッティングすることでパラメータを算出し、C/N 比 の違いによるメタン発酵特性の評価を行った。算出した遅延期(λ)、最大メタン生成速度 (R_m)およびメタン生成ポテンシャル(P)を、それぞれ図(1) -11に示す。図中の小文字の アルファベットは、各パラメータの平均値の差を統計的に検定した結果を示している。アル ファベット文字が異なれば、平均値において有意に差があることを示している。稲ワラ(C/N 比=45) は豚ふん尿(C/N 比=9) よりも遅延期が短く、最大メタン生成速度が大きいことが分 かった(図(1) -11(a) および(b))。つまり、稲ワラは豚ふん尿よりも分解速度が速 いということが示唆された。また、図(1) -11(c) より稲ワラは豚ふん尿よりメタン 生成ポテンシャルが大きいことが分かった。豚ふん尿に稲ワラを混合した系(C/N=20 および 30) においては、稲ワラの添加量が多いほど、つまり C/N 比が高いほど分解速度が速く、メ タン生成ポテンシャルが大きいということがわかった。

豚ふん尿に多くの稲ワラを投入することで、分解速度、さらにはメタン生成量も上昇し、 高効率に豚ふん尿を処理することが可能であるということが分かった。



図(1)-11 異なる C/N 比における(a)遅延期、(b)最大メタン生成速度および(c) メタン生成ポテンシャル

2) 豚ふん尿と稲ワラとの乾式メタン発酵における炭素・窒素収支の解明

表(1) - 7に示すように、炭素収支については投入前の炭素量を100として、メタン発酵処 理後の汚泥、回収したメタン、二酸化炭素の割合をそれぞれ%で表示した。C/N比=20、30および 45における炭素収支は89%から92%把握することができ、各C/N比による分配割合、つまり炭素 挙動を把握することができた。また、投入した炭素がバイオガス(メタン+二酸化炭素)に分配し た割合は、可分解有機物の割合や有機物の分解率と言い換えられるが、C/N比=20、30および45 では、それぞれ38、49、58%である。したがって、C/N比が高いほど、つまり稲ワラの添加量が多 いほど有機物の分解率が上昇することがわかった。

	汚泥(後)	メタン	二酸化炭素	合計(収支)	
C/N比=9(豚ふん尿のみ)	_	24	16	_	
C/N比=20	54	23	15	92	
C/N比=30	40	29	20	89	
C/N比=45(稲ワラのみ)	32	35	23	90	

表(1)-7 投入炭素の分配割合(%)

窒素収支については、投入前の汚泥中の全窒素量とメタン発酵後の汚泥中の全窒素量を棒 グラフで示した(図(1)-12)。データにばらつきはあるものの、メタン発酵後の汚泥中 の全窒素量は減少する傾向が認められた。これを確認するため、図(1)-13に示すよう に、¹⁵N で標識した稲ワラを添加した C/N 比=20、30 および 45 では、メタン発酵後の¹⁵N 量の減少が確認された(Blank 対照系および豚ふん尿のみの C/N 比 9 の場合は変化していな い)。稲に同化された¹⁵N は、主にタンパク質など有機体窒素の形態で存在していると考えら れる。メタン発酵の過程で、有機体窒素はアミノ酸を経て NH4⁺まで無機化される。従って、 ¹⁵N の減少は、発酵中に生成した¹⁵NH4⁺が遊離アンモニア(¹⁵NH3)として気相中に排出さ れる可能性を示唆している。NH4⁺は肥料として重要な成分である。従って、仮に遊離アンモ ニアとして揮散していたとすると、本システムの多収米飼料イネ栽培に影響する。今後の課 題は、この遊離アンモニアの定量により、肥料成分の損失を明らかにすることである。



(2) 豚ふん尿と稲ワラの半連続高温乾式メタン発酵(20 L リアクター)

1) 最適C/N比およびSRTの評価

a C/N比=8 (豚ふん尿のみ)

C/N比=8(豚ふん尿のみ)における培養結果のグラフを図(1)-14および図(1)-15に 示す。C/N比=8では、SRT=40日(基質投入速度0LR=1.8 kg-VS/m³-sludge/day)で培養を開始した。 培養初期に有機酸の蓄積(10日目のプロピオン酸濃度64 mmol/kg-w.w、55日目の酪酸濃度50 mmol/kg-w.w)が見られたが、これはメタン発酵のスタートアップ時に生じるショックロードであ り、しばらく運転することで資化された。その後、酪酸濃度の資化と同時に、55日目からプロピオン酸の蓄積が見られた。これらの有機酸の過度の蓄積の結果、25日目までは順調なバイオガス 生成が見られたが(25日目のバイオガス発生量625 Nm³/t-VS、メタンガス発生量407 Nm³/t-VS)、 25日目以降から急激にバイオガス発生量が低下した。120日目まで培養を続けたが、プロピオン酸 は資化されず(平均39 mmo1/kg-w.w)、バイオガス生成はほとんど見れらなかったため、培養を 停止した。以上より、豚ふん尿のみを基質として培養したC/N比=8では連続運転が不可能であるこ とがわかった。

バイオガス発生量が低下した原因として、アンモニアによるメタン発酵阻害が考えられる。高 温域(55℃)のメタン発酵において、アンモニアによるメタン発酵阻害が生じると報告されてい るアンモニア態窒素濃度は3000 mg-N/kg-w.w以上である。培養初期から汚泥中のアンモニア態窒 素濃度は3000 mg-N/kg-w.w(平均3300 mg-N/kg-w.w)に達していたことから、アンモニアによっ てメタン発酵阻害が生じたと考えられる。しかしながら、使用した豚ふん尿のアンモニア態窒素 濃度は2672 mg-N/kg-w.wであり(表(1)-4)、アンモニア阻害濃度に達していない。汚泥中 のアンモニア態窒素濃度が3000 mg-N/kg-w.wに達した原因としては、使用した豚ふん尿のTON(有 機態窒素)が無機化したことによるものである。使用した豚ふん尿のTONは3512 mg-N/kg-w.w(表 (1)-4)、汚泥中のTONは平均2840 mg-N/kg-w.wであり、豚ふん尿中の約20%のTONである670 mg-N/kg-w.wがアンモニアに無機化したことがわかる。つまり、使用した豚ふん尿のアンモニア態 窒素濃度2672 mg-N/kg-w.wに、TONの約20%が無機化され生じたアンモニア態窒素濃度670 mg-N/kg-w.wが加わり、汚泥中のアンモニア態窒素濃度3300 mg-N/kg-w.wとアンモニア阻害濃度に 達したことでメタン発酵が阻害されたと考えられる。

しかしながら、アンモニアによるバイオガス発生量は約50%減少するという報告が多数ある。本 実験では、バイオガス発生量が90%以上減少しており、既往の報告とは、異なるものとなった。そ の原因としては、リアクター内にメタン発酵に関わる微生物群を保持できなかった、つまりwash outが考えられる。種汚泥として乾式メタン発酵由来のものを使用し、豚ふん尿のみを基質として 培養したことで、培養中に汚泥のTS濃度が減少したことがわかる。つまり、乾式メタン発酵から 湿式メタン発酵に切り替わり、反復回分操作上の引き抜きにより汚泥(メタン発酵に関わる微生 物群)を過剰に引き抜いてしまい、バイオガス発生量が大幅に減少したと考えられる。



図(1)-14 C/N比=8(豚ふん尿のみ)における培養結果-1。(a)設定したSRTおよびOLR、(b)
 投入VSあたりのガス発生量、(c)アンモニア態窒素濃度およびpH、(d)各種有機酸濃度



図(1)-15 C/N比=8(豚ふん尿のみ)における培養結果-2。(a)設定したSRTおよびOLR、(e) TS・VS濃度、(f) TOC・TON濃度

b C/N比=20

C/N比=20における培養結果のグラフを図(1) - 16および図(1) - 17に示す。C/N比=8(豚 ふん尿のみ)の系と同様に、SRT=40日(0LR=5.0 kg-VS/m³-sludge/day)の培養初期にショックロードが生じ、有機酸の蓄積が見られたが(10日目のプロピオン酸濃度86 mmol/kg-w.w、50日目の酪酸濃度30 mmol/kg-w.w)、しばらく運転することで資化された。その後、121日目まで培養したが、有機酸は全く検出されず、VS分解率は平均49%で、安定的なバイオガス生成が見られた(バイオガス発生量は平均546 Nm³/t-VS、メタンガス発生量は平均302 Nm³/t-VS)。

C/N比=8(豚ふん尿のみ)と違い、豚ふん尿に稲ワラを混合することで発酵汚泥中のアンモニア 態窒素濃度が低下し(平均1860 mg-N/kg-w.w)、アンモニアによるメタン発酵阻害が生じると報 告されているアンモニア態窒素濃度は3000 mg-N/kg-w.w以下で保つことができ、安定的なバイオ ガス生成を得られることがわかった。

121日目からは、SRT=30日 (OLR=6.7 kg-VS/m³-sludge/day) に変更した。63日間培養したが、 SRT=40日と同様に有機酸が全く検出されることなく、VS分解率は平均48%で、安定的なバイオガス 生成が見られた (バイオガス発生量は平均535 Nm³/t、メタンガス発生量は平均293 Nm³/t)。

184日目からは、SRT=25日 (0LR=8.0 kg-VS/m³-sludge/day) に変更した。変更時に1度だけ、基 質を設定値の1.5倍過剰、つまり1.5倍の有機物負荷量を投入してしまった。その結果、有機酸が 蓄積し、ガス発生量が低下し始めた。その後、73日間培養したが、有機酸の資化は見られず、257 日目では酢酸濃度178 mmol/kg-w.w、プロピオン酸濃度55 mmol/kg-w.wと過度な蓄積が見られた。 その結果、VS分解率およびガス発生量はSRT=40および30日と比較して40%低下した(VS分解率は平 均34%、バイオガス発生量は平均340 Nm³/t、メタンガス発生量は平均178 Nm³/t)。

257日目からは、有機酸の資化を進行させバイオガス発生量を回復するために、SRT=25日よりも 有機物負荷量が小さいSRT=30日に変更した。しかし、27日間培養後も、酢酸および酪酸の資化が 進行しないだけでなく、酪酸も蓄積し始め(284日目の酪酸濃度43 mmo1/kg-w.w)、バイオガス発 生量が回復することはなかった。

そのため、284日目からは、混合基質の投入を停止し、有機酸が資化されるのを待った。その結果、酢酸濃度が著しく資化されたが、プロピオン酸および酪酸は全く資化することはなく、さら に吉草酸が蓄積を始めた。混合基質の投入を停止してから117日間が経過したが、有機酸が資化し ないため、培養を停止した。



図(1)-16 C/N比=20における培養結果-1。(a) 設定したSRTおよびOLR、(b) 投入VSあたり のガス発生量、(c)アンモニア態窒素濃度およびpH、(d)各種有機酸濃度



a) 設定したSRTおよびOLR、(e) TS・VS濃度およびVS分解率、(f) TOC・TON濃度

c C/N比=20'

C/N比=20において、SRT=30日からSRT=25日に変更した際に基質を設定値の1.5倍過剰に投入して しまいバイオガス発生量の低下を引き起こしてしまった。そのため、SRT=25日以下のSRTで連続培 養が可能であるのかを検討できなかった。そこで、C/N比=20、SRT=30日で90日間安定的にバイオ ガス発生量(データは省略)を得られた汚泥を種汚泥として、C/N比=20、SRT=25日で培養を開始 した。以後、この系をC/N比=20'とした。

C/N比=20'における培養結果を図(1)-18に示す。SRT=25日(OLR=8.0kg-VS/m³ sludge/day) で18日間培養を行った。その結果、有機酸が蓄積し(18日目の酢酸濃度33 mmol/kg-w.w、プロピ オン酸17 mmol/kg-w.w)、バイオガス発生量はSRT=30日の場合(540 Nm³/t-VS)の約40%減少した 状態で推移した(バイオガス発生量の平均334 Nm³/t-VS、メタンガスの平均173 Nm³/t-VS)。した がって、C/N比=20と似たような傾向となった。

以上より、C/N比=20でのSRT=25日においてバイオガス発生量が40%減少したことは、基質投入量 を1.5倍過剰にしてしまったことが主要な原因ではなく、SRT=25日は処理速度として不可能である ことが主要な原因であると考えられる。つまり、有機酸の消費速度よりも生成速度が上回り有機 酸が蓄積し、結果としてガス発生量が低下したことが考えられる。したがって、C/N比=20での SRT=25日においては、有機酸の消費、つまり酢酸生成段階やメタン生成段階が律則であるという ことが考えられる。また、C/N比=20ではSRT=30日(0LR=6.7 kg-VS/m³-sludge/day)が限界SRTであ り、SRT=30日で運転を行うことが最も処理速度が速く、効率的であることがわかった。



図(1)-18 C/N比=20'における培養結果。(a) 設定したSRTおよびOLR、(b) 投入VSあたりの ガス発生量、(c)アンモニア態窒素濃度およびpH、(d)各種有機酸濃度

d C/N比=30

C/N比=30における培養結果のグラフを図(1)-19および図(1)-20に示す。C/N比=8(豚 ふん尿のみ)および20の系と同様に、培養初期にショックロードが生じ、有機酸の蓄積が見られ たが(7日目のプロピオン酸濃度83 mmol/kg-w.w、31日目の酪酸濃度21 mmol/kg-w.w)、しばらく 運転することで資化された。その後、121日目まで培養したが、有機酸は全く検出されず、VS分解 率は平均53%で、安定的なバイオガス生成が見られた(バイオガス発生量の平均569 Nm³/t-VS、メ タンガス発生量の平均297 Nm³/t-VS)。

C/N比=20と同様に、豚ふん尿に稲ワラを混合することで発酵汚泥中のアンモニア態窒素濃度が 低下し(平均1060 mg-N/kg-w.w)、アンモニアによるメタン発酵阻害が生じると報告されている アンモニア態窒素濃度は3000 mg-N/kg-w.w以下で保つことができ、安定的なバイオガス生成を得 られることがわかった。

121日目から184日目までの63日間をSRT=30日 (OLR=6.7 kg-VS/m³-sludge/day)、184日目から 257日目までの73日間をSRT=25日 (OLR=8.0 kg-VS/m³-sludge/day)、257日目から328日目までの 77日間をSRT=20日 (OLR=10.0 kg-VS/m³-sludge/day)で培養した。その結果、SRT=40日と同様に 有機酸が全く検出することなく、VS分解率は平均で52%で、安定的なバイオガス生成が見られた(バ イオガス発生量は平均553 Nm³/t-VS、メタンガス発生量は平均288 Nm³/t-VS)。

しかしながら、328日目以降にガスメータの故障によりバイオガス発生量の測定を正常にできな くなったため、混合基質の投入を停止した。

378日目からは、SRT=20日(OLR=10.0 kg-VS/m³-sludge/day)で培養を再開した。457日目までの79日間を培養したが、257日目から328日目までのSRT=20日と同様に有機酸が全く検出することなく、VS分解率は平均51%で、安定的なバイオガス生成が見られた(バイオガス発生量は平均553 Nm³/t-VS、メタンガス発生量は平均285 Nm³/t-VS)。

457日目から511日目までの54日間をSRT15日 (OLR=13.3 kg-VS/m³-sludge/day)で培養を行った。 その結果、有機酸は全く検出することはなかったが、SRT=15日以前と比較してVS分解率は7%減少 し(VS分解率は平均44%)、バイオガス発生量は10%減少した(バイオガス発生量は平均486 Nm³/t-VS、 メタンガス発生量は平均242 Nm³/t-VS)。

511日目から529日目までの18日間をSRT=12日(0LR=16.6 kg-VS/m³-sludge/day)で培養を行っ た。その結果、有機酸は全く検出することはなかったが、SRT=12日よりもさらにバイオガス発生 量は10%減少した(バイオガス発生量の平均437 Nm³/t-VS、メタンガス発生量の平均221 Nm³/t-VS)。 よって、さらなるSRTの短縮によってSRT=40、30、25および20日と同様の安定かつ高いバイオガス 発生量は得られないと予想し、培養を停止した。

SRT=15日以下にした場合では、有機酸が全く検出されず、VS分解率およびバイオガス発生量が 低下したことから、C/N比=20で律則となった有機酸からメタンへの段階(酢酸生成段階・メタン 生成段階)が律速となっているのではなく、有機酸よりも高分子の成分から有機酸への分解、つ まり加水分解段階が律速となっていることがわかった。また、C/N比=30ではSRT=20日(OLR=10.0 kg-VS/m³-sludge/day)が限界SRTであり、SRT=20日で運転を行うことが最も処理速度が速く、効率 的であることがわかった。

また、C/N比=20および30での限界SRTは、それぞれSRT=30日(OLR=6.7 kg-VS/m³-sludge/day)、 SRT=20日(OLR=10.0 kg-VS/m³-sludge/day)と、異なった結果になったが、それは豚ふん尿と稲ワ ラの分解速度の違いによるものではないかと考えられる。豚ふん尿は稲ワラよりも分解速度が非常に遅く、豚ふん尿の処理量が多いC/N比=20では限界SRTが長くなったのに対し、稲ワラの処理量が多いC/N比=30では限界SRTはより短くなったものであると考えられる。



図(1) -19 C/N比=30における培養結果-1。(a) 設定したSRTおよびOLR、(b) 投入VSあたりのガス発生量、(c)アンモニア態窒素濃度およびpH、(d)各種有機酸濃度



図(1)-20 C/N比=30における培養結果-2 (a) 設定したSRTおよびOLR、(e) TS・VS濃度およびVS分解率、(f) TOC・TON濃度

e 物質収支

各C/N比・SRTにおける物質収支を把握することで、実験データの信頼性を確認し、乾式メタン 発酵における物質の流れの違いを解明した。また、物質収支は重量基準、炭素基準、窒素基準の3 つの基準で評価した。

投入した原料および乾式メタン発酵により生じた発酵残渣およびバイオガス(メタンガスおよ び二酸化炭素ガス)の重量収支を計算した。各C/N比・SRTにおける重量収支を図(1)-21に 示す。ただし、縦軸は、1日あたり汚泥1m³あたりの重量を表している。また、原料および発酵残渣 の重量は、それぞれ反復回分操作での投入量および引き抜き量から計算した。メタンガスおよび 二酸化炭素ガスの重量は、体積にそれぞれの密度717、1976g/m³を乗じることで計算した。本実験 では、汚泥の体積を一定に保ちつつSRTを短縮した。理論的にはSRTを短縮するとSRTの短縮比に反 比例して重量は増加する。例えば、SRT=40日から30日に短縮した場合、SRTの短縮比は30/40とな り、SRT短縮による重量はSRT=40日の時の40/30倍となる。図(1)-21での計算結果は、理論 的な計算と一致していることがわかる。

次に、各C/N比・SRTにおける原料(図(1)-21のinput)を100%として重量収支を計算した (図(1)-22)。図(1)-22より、重量収支は97~100%と十分に把握することができた。

次に、発酵残渣およびバイオガス(メタンガスおよび二酸化炭素)の総和、つまりoutputの総 和を100%として計算した(図(1)-23)。図(1)-23より、バイオガス発生量が著しく低 かったC/N比=8(豚ふん尿のみ)においては、原料のうち2%がバイオガス化し、残りの98%が発酵 残渣として引き抜かれたことがわかる。また、C/N比=20において、ガス発生量が安定的に発生し たSRT=40および30日では、13%がバイオガス化し、残りの87%が発酵残渣、SRT=40および30日より もバイオガス発生量が約40%低下したSRT=25日では、8%がバイオガス化し、残りの92%が発酵残渣 として引き抜かれたことがわかる。したがって、バイオガス発生量の減少と重量収支の結果は似 た傾向を示した。最後に、C/N比=30において、安定かつ高いバイオガス発生量が得られたSRT=40、 30、25および20日では、15%がバイオガス化し、85%が発酵残渣、SRT=40、30、25および20日では、15%がバイオガス化し、85%が発酵残渣、SRT=40、30、25および20日より もバイオガス発生量が10%減少したSRT=15日では、11%がバイオガス化し、89%が発酵残渣として引 き抜かれたことがわかる。したがって、C/N比=20と同様にバイオガス発生量の減少と重量収支の 結果は似た傾向を示した。以上より、重量収支においては、培養結果(経時変化)の現象と似た 傾向を示したため、培養結果(経時変化)の結果は信頼性の高いものであることが証明できた。





図(1)-22 各C/N比・SRTにおける重量収支(図(1)-21のinputを100%)



図(1) - 23 各C/N比・SRTにおける重量収支(図(1) - 22のoutputの総和を100%)

続いて、重量収支と同様の方法で各C/N比・SRTにおいて、原料、発酵残渣およびバイオガス(メ タガスおよび二酸化炭素ガス)の炭素収支を計算した(図(1)-24)。ただし、原料および発 酵残渣の炭素量は、それぞれ表(1)-3の原料の性状および培養中のTOC濃度を用いて計算した。 重量収支で述べたように、連続試験では、汚泥の体積を一定に保ちつつSRTを短縮したため、理論的にはSRTを短縮するとSRTの短縮比に反比例して重量は増加する。図(1)-24での計算結果は、理論的な計算と一致していることがわかる。

次に、各C/N比・SRTにおける原料(図(1)-24のinput)を100%として炭素収支を計算した (図(1)-25)。図(1)-25より、炭素収支は101~112%と高い値となった。原因としては、 発酵残渣から3点をサンプリングしたが、発酵残渣が均一ではなかったことが考えられる。また、 炭素濃度の測定は、測定機器の仕様上で発酵残渣4 mgで行ったため、代表値をとれなかったこと が考えられる。しかしながら、炭素収支は十分に把握することができたと考えられる。

さらに、発酵残渣およびバイオガス(メタンガスおよび二酸化炭素)の総和、つまりoutputの 総和を100%として計算した(図(1)-26)。図(1)-26より、バイオガス発生量が著しく 低かったC/N比=8(豚ふん尿のみ)においては、原料のうち17%がバイオガス化し、残りの83%が発 酵残渣として引き抜かれたことがわかる。C/N比=20および30よりもバイオガス化の割合が著し低 くなった。また、C/N比=20において、バイオガス発生量が安定的に発生したSRT=40および30日で は、約47%がバイオガス化し、残りの約53%が発酵残渣、SRT=40および30日よりもガス発生量が約 40%低下したSRT=25日では、32%がバイオガス化し、残りの68%が発酵残渣として引き抜かれたこと がわかる。したがって、バイオガス発生量の減少と重量収支の結果がほぼ一致した。最後に、C/N 比=30において、安定かつ高いバイオガス発生量が得られたSRT=40、30、25および20日では、約49% がバイオガス化し、51%が発酵残渣、SRT=40、30、25および20日よりもバイオガス発生量が10%減 少したSRT=15日では、40%がバイオガス化し、60%が発酵残渣として引き抜かれたことがわかる。 したがって、C/N比=20と同様にバイオガス発生量の減少と重量収支の結果がほぼ一致した。以上 より、炭素収支においては、培養結果(経時変化)の現象と一致しており、培養結果(経時変化) の結果は信頼性の高いものであることが証明できた。


図(1)-25 各C/N比・SRTにおける炭素収支(図(1)-24のinputを100%)



図(1) - 26 各C/N比・SRTにおける炭素収支(図(1) - 25 のoutputの総和を100%)

最後に、投入した原料および乾式メタン発酵により生じた発酵残渣の窒素収支(アンモニア態 窒素とTON(有機態窒素)の総和)を計算した。各C/N比・SRTにおける窒素収支を図(1)-27 に示す。ただし、縦軸は、1日あたり汚泥1m³あたりの窒素量を表している。また、原料および発酵 残渣の窒素量は、それぞれ原料の性状(表(1)-3)、培養中のアンモニア態窒素濃度および 培養中のTON濃度を用いて計算した。重量収支で述べたように、連続試験では、汚泥の体積を一定 に保ちつつSRTを短縮したため、理論的にはSRTを短縮するとSRTの短縮比に反比例して重量は増加 する。図(1)-27での計算結果は、理論的な計算と一致していることがわかる。

次に、各C/N比・SRTにおける原料(図(1)-27のinput)を100%として窒素収支を計算した (図(1)-28)。図(1)-28より、C/N比=30におけるSRT=20日での窒素収支102%を除き、 全ての系で窒素収支が100%以下となった。特に、C/N比=20におけるSRT=40および30日では、窒素 収支はそれぞれ82および83%と著しく低くなった。また、各C/N比において培養期間全体で窒素収 支を計算した結果、C/N比=8、20および30では、それぞれ93、89および97%の窒素収支となり、不 明分はそれぞれ7、11および3%となった。これらの不明分は、反復回分操作上でリアクターを開放 し、汚泥と基質を混合していた際に揮散したアンモニアガスである考えられる。

もし、アンモニアガスが揮散せずに汚泥中にとどまった場合、汚泥中のアンモニア態窒素濃度 上昇し、C/N比=20および30ではアンモニア阻害濃度である3000 mg-N/kg-w.wを超過する可能性があ る。そこで、窒素収支の不明分がすべてアンモニアガスであるとし、それが汚泥中にとどまった 場合の汚泥中のアンモニア態窒素濃度を計算した。その結果、C/N比=20および30ではそれぞれ約 2600および1300 mg-N/kg-w.wとなり、アンモニア阻害濃度を超過することはなかった。よって、 上記の培養結果(経時変化)に影響はないものだと考えられる。

これらを定量的に証明するためには、バイオガス中のアンモニア濃度を測定し、正確な窒素収 支を把握する必要がある。また、アンモニアガスはメタン発酵プラント内での発電機を劣化させ る物質であり、高濃度の場合は処理されるものである。そのためにも、アンモニアガスを測定し、 正確な窒素収支を把握する必要がある。



図 (1) - 27 各C/N比・SRTにおける窒素収支



図(1)-28 各C/N比・SRTにおける窒素収支(図(1)-27のinputを100%)

f 既往の研究との比較

乾式メタン発酵および湿式メタン発酵の既往の研究と本研究との処理性能を比較した(図(1) -29)。湿式メタン発酵は家畜排せつ物を対象としたもののみを記載した。図(1)-29の 横軸は有機物負荷量、縦軸は投入原料あたりのメタンガス発生量を表しており、両方とも値が大 きいほど処理性能が高いことを意味する。図(1)-29より、有機物負荷量が多くなるにつれ てメタンガス発生量も多くなっていることがわかる。また、湿式メタン発酵は乾式メタン発酵よ りも有機物負荷量が小さく(6kg-VS_{add}/m³/day以下)、メタンガス発生量も少ないことがわかる(40 m³-CH₄/t-原料 以下)。一方、乾式メタン発酵は湿式メタン発酵よりも有機物負荷量が高く(3-10 kg-VS_{add}/m³/day)、それに比例してメタンガス発生量が多くなっていることもわかる(20-120 m³-CH₄/t-原料)。以上より、乾式メタン発酵は湿式メタン発酵よりも高有機物負荷で高効率に処 理が可能であるということがわかる。

次に、本研究におけるC/N比=20および30と乾式メタン発酵の既往の研究を比較した。C/N比=20 においては、メタンガス発生量は乾式メタン発酵の中では平均的な値となっている。これは、原 料のVS分解率により影響される。家畜排せつ物は都市ごみよりもVS濃度やVS分解率が低く、原料 あたりのメタンガス発生量は低くなるものである。処理対象が同じ、つまり家畜排せつ物、農業 残渣のものと比較すると、同等レベルのメタンガス発生量が得られていることがわかる。一方、 有機物負荷量でも、処理対象が同じ家畜排せつ物、農業残渣のものと同等レベルであることがわ かる。以上より、C/N比=20では、同じ処理対象の既往の研究と同等レベルの処理性能であること がわかった。

C/N比=30においては、メタンガス発生量は乾式メタン発酵の中では平均的な値となっているが、 C/N比=20で述べた通りであり、同じ処理対象のものと同等レベルであるがわかる。一方で、有機 物負荷量は、同じ処理対象ものより約1.3倍多くすることができ、乾式メタン発酵全体でも非常に 高い値となった。以上より、C/N比=30では、乾式メタン発酵全体の中でも非常に処理性能が高く 培養することができたことがわかった。



図(1)-29 処理性能の比較(有機物負荷量-投入原料あたりのメタンガス発生量)

(乾式 (家畜排せつ物、農業残さ: Ganesh et al. (2013)、Mumme et al. (2010);乾式 (都市ご み):Gallert et al. (1997)、kim and Oh (2011)、Montero et al. (2008)、Fdez-Guelfo et al. (2011)、Yabu et al. (2011)、Bolzonella et al. (2003)、Zeshan et al. (2012)、NEDO (2010); 乾式 (下水汚泥):Duan et al. (2012)、Nakashimada et al. (2008);湿式 (家畜排せつ物): Moller et al. (2007)、Masse et al. (2000)、Masse et al. (2003)、Lansing et al. (2010)、 Francese et al. (2000)、Kaparaju and Rintala(2005)、Boe et al. (2009)、Aring et al (2001)、 Marason et al. (2001)、Harikishan et al. (2003)、Nielsen et al. (2004)、Demirer et al. (2005)、 Rico et al. (2011)、Karim et al. (2007)、Mladenovska et al. (2003))

図(1)-29の横軸の有機物負荷量には、非分解性の有機物も含まれている。そこで、有機 物負荷量にVS分解率を乗じて分解性有機物負荷量を算出し、それを横軸として処理性能を比較し た(図(1)-30)。C/N=20においては、有機物負荷量基準のものと変化せず、乾式メタン発酵 の中では平均的であり、同じ処理対象のものと同等レベルの処理性能であることがわかった。

一方、C/N比=30においては、同じ処理対象のものよりは分解性有機物負荷量が大きく、処理性 能が高い。本研究で得られた分解性の有機物負荷量に対するメタンガス発生量は、都市ごみを対 象とした場合よりはすこし劣る結果となったが、乾式メタン発酵全体としては、非常に高い処理 性能で培養することができたと考えられる。



図 (1) - 30 処理性能の比較(分解性有機物負荷量-投入原料あたりのメタンガス発生量) (乾式(家畜排せつ物、農業残さ:Ganesh et al. (2013);乾式(都市ごみ):Gallert et al. (1997)、 kim and Oh (2011)、Montero et al. (2008)、Yabu et al. (2011)、NEDO (2010);乾式(下水 汚泥):Duan et al. (2012)、Nakashimada et al. (2008);湿式(家畜排せつ物):Moller et al. (2007)、Masse et al. (2000)、Masse et al. (2003)、Lansing et al. (2010)、Nielsen et al. (2004)、Demirer et al. (2005)、Rico et al. (2011)、Mladenovska et al. (2003))

2) 含水率の検討

a バイオガス生成

含水率を検討した実験系における培養結果のグラフを図(1)-31および図(1)-32に 示す。0日目から61日目までの61日間については、投入基質含水率73%(SRT=20日)で培養した。 この培養条件は、1)で述べたC/N比=30と同条件であり、培養結果も同様に有機酸は全く検出さ れず、VS分解率は平均42%で、安定的なバイオガス生成が見られた(バイオガス発生量は平均 573Nm³/t-VS、メタンガス発生量は平均296 Nm³/t-VS)。

61日目から135日目までの74日間については投入基質含水率68%(SRT=24日)、135日目から191 日目までの56日間については投入基質含水率63%で培養した。その結果、投入基質含水率73%と同 様に、有機酸は全く検出されず、VS分解率は平均48%で、安定的なバイオガス生成が見られた(バ イオガス発生量の平均563Nm³/t-VS、メタンガス発生量の平均283 Nm³/t-VS)。また、投入基質含 水率63%では発酵汚泥の含水率は73%まで減少したが、発酵汚泥の含水率が73%と低い状態でも安定 かつ高いガス発生量を得られることがわかった。

191日目から205日目までの14日間を水無添加の投入基質含水率58%(SRT=31日)で培養した。その結果、バイオガス発生量が低下し始めた。また、205日目に有機酸が蓄積し始めた(酢酸濃度10 mmol/kg-w.w、プロピオン酸9 mmol/kgw-w)。したがって、投入基質含水率58%は安定的なバイオガス生成が行われる限界を超えていると示唆された。一方で、生ごみおよび紙ごみを対象とした乾式メタン発酵において投入基質含水率40%が限界の含水率であるという報告がある。

以上のようにバイオガス発生量が低下し始めた原因としては、汚泥の含水率を低下させたこと により、1)流動性が悪くなり微生物と基質との接触効率が低下したこと、2)投入基質中の稲ワ ラの割合が多くなり体積基準での基質負荷量が増大し微生物と基質との接触効率が低下したこと、 の2点が考えられる。後者については、稲ワラのかさ密度を測定し、体積基準での基質負荷量とガ ス発生量の関係性を調査することで原因を解明することができると考えられる。



図(1)-31 含水率検討系における培養結果-1。(a)設定した投入基質含水率およびSRT、(b) 投入VSあたりのガス発生量、(c)アンモニア態窒素濃度およびpH、(d)各種有機酸濃度



図(1)-32 含水率検討系における培養結果-2。(a) 設定した投入基質含水率およびSRT、(e) TS・VS濃度およびVS分解率、(f) TOC・TON濃度

b 物質収支

各投入基質含水率における物質収支を把握することで、実験データの信頼性を確認し、乾式メ タン発酵での物質の流れの違いを解明した。また、物質収支は重量基準、炭素基準、窒素基準の3 つの基準で把握した。

投入した原料および乾式メタン発酵により生じた発酵残渣およびバイオガス(メタンガスおよ び二酸化炭素ガス)の重量収支を計算した。各投入基質含水率における重量収支を図(1)-3 3に示す。ただし、縦軸は、1日あたり汚泥1m³あたりの重量を表している。また、原料および発酵 残渣の重量は、それぞれ反復回分操作での投入量および引き抜き量から計算した。メタンガスお よび二酸化炭素ガスの重量は、体積にそれぞれの密度717および1976 g/m³を乗じることで計算した。 本実験では、汚泥の体積を一定に保ちつつSRTを増加させたため、理論的にはSRTを増加させると SRTの増加に反比例して重量は減少する。例えば、SRT=20日から24日に増加させた場合、SRTの増 加比は24/20となり、SRT増加による重量はSRT=40日の時の20/24倍となる。図(1)-33での計 算結果は、理論的な計算と一致していることがわかる。

次に、各投入基質における原料(図(1)−33)を100%として重量収支を計算したところ(図 (1)−34)、重量収支は99~101%と十分に把握することができた。



図(1)-33 各投入基質含水率における重量収支



図(1)-34 各投入基質含水率における重量収支(図(1)-33のinputを100%)

次に、発酵残渣およびバイオガス(メタンガスおよび二酸化炭素)の総和、つまりoutputの総 和を100%として計算した(図(1)-35)。これより、投入基質含水率73、68および63%におい て、投入した原料のうちバイオガス化したのはそれぞれ13、15および18%ということがわかる。投 入基質含水率73%の投入した原料のうち固形分を1とすると、投入基質含水率68および63での固形 分はそれぞれ1.2および1.4となる。理論的には、固形分の量にバイオガス化する量は比例するた め、バイオガス化する量は、投入基質含水率73%を1とすると、投入基質含水率68および63%では1.2 および1.4となる。これは、重量収支での計算結果と一致している。以上から、重量収支において は、培養結果(経時変化)と一致しており、培養結果(経時変化)の結果は信頼性の高いもので あることが証明できた。

重量収支と同様の方法で投入基質含水率において、原料、発酵残渣およびバイオガス(メタガ スおよび二酸化炭素ガス)の炭素収支を計算した(図(1)-36)。ただし、原料および発酵残 渣の炭素量は、それぞれ表(1)-5の原料の性状および培養中のTOC濃度を用いて計算した。本 実験では、有機物負荷量を一定にして培養を行ったため、理論的には全ての投入基質含水率にお ける炭素量は同じになる。図(1)-36での計算結果は理論と一致していることがわかる。

次に、各投入基質含水率における原料(図(1)−36のinput)を100%として炭素収支を計算 した(図(1)−37)。図(1)−37より、炭素収支は98~103%と十分に把握することができ た。



図(1)-35 各投入基質含水率における重量収支(図(1)-34のoutputの総和を100%)



図(1)-36 各投入基質含水率における炭素収支



図(1)-37 各投入基質含水率における炭素収支(図(1)-36のinputを100%)

また、発酵残渣およびバイオガス(メタンガスおよび二酸化炭素)の総和、つまりoutputの総 和を100%として計算した(図(1)-38)。図(1)-38より、全ての投入基質含水率におい て、投入した原料のうち53%がバイオガス化し、残りの47%が発酵残渣として引き抜かれたことが わかる。これは、1)で述べたC/N比=30の炭素収支の結果とほぼ一致した。以上より、炭素収支 においても、重量収支と同様に培養結果(経時変化)と一致しており、培養結果(経時変化)の 結果は信頼性の高いものであることが証明できた。



図(1)-38 各投入基質含水率における炭素収支(図(1)-37のoutputの総和を100%)

投入した原料および乾式メタン発酵により生じた発酵残渣の窒素収支(アンモニア態窒素とTON (有機態窒素)の総和)を計算した。各投入基質含水率における窒素収支を図(1)-39に示 す。ただし、縦軸は、1日あたり汚泥1m³あたりの窒素量を表している。また、原料および発酵残渣 の窒素量は、それぞれ表(1)-5の原料の性状、培養中のアンモニア態窒素濃度および培養中 のTON濃度を用いて計算した。炭素収支で述べたように、本実験では、有機物負荷量を一定にして 培養を行ったため、理論的には全ての投入基質含水率における窒素量は同じになる。図(1)-39での計算結果は、理論と一致していることがわかる。

次に、各投入基質含水率における原料(図(1)-39のinput)を100%として窒素収支を計算 した(図(1)-40)。図(1)-40より、窒素収支は93~99%を把握することができた。こ れは、1)で述べたC/N比=30の窒素収支の結果とほぼ同等のものとなった。しかしながら、1) においても述べたようにアンモニアガスを考慮していないため、正確な窒素収支を把握すること はできておらず、アンモニアガスの測定が必要であると考えられる。



図(1)-39 各投入基質含水率における窒素収支



図(1)-40 各投入基質含水率における窒素収支(図(1)-39のinputを100%)

5. 本研究により得られた成果

(1)科学的意義

本研究では、豚ふん尿および稲ワラの高温乾式メタン発酵を効率的かつ連続的に行うための運 転条件を明らかにした。その過程で、高温乾式メタン発酵における炭素・窒素収支を明らかにし た。

本サブテーマでは、高温乾式メタン発酵における炭素の分配を異なるC/N比で明らかにしただけ でなく、¹⁵Nでラベルされた多収米稲ワラを高温乾式メタン発酵することで、窒素の行方もトレー スした。メタン発酵における窒素動態の研究はほとんど行われていない。本研究で提案するシス テムでは、乾式メタン発酵残さを肥料として多収米飼料イネ水田に施肥するため、肥料成分のひ とつである窒素の動態をこのように明らかにすることは非常に意義深いと考えられる。

(2)環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究から、豚ふん尿と稲ワラを混合して高温乾式メタン発酵することで、豚ふん尿処理が可 能となることが示された。本成果は、稲ワラや豚ふん尿などバイオマスの有効活用・バイオマス エネルギー生産につながることから、農林漁業バイオ燃料法や、地域循環型バイオガスシステム 構築モデル事業などに活用可能と考えられる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7.研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

※雑誌名は正確に、欧文誌の場合は雑誌の正式な略称で記載すること(IF等の検索の際、支障をきたすため)。

<論文(査読あり)>

 S. Zhou, H. Iino, Y. Nakashimada, M. Hosomi: Water Science & Technology, 66(2), 438-444 (2012) "Evaluation of anaerobic biodegradability of forage rice straw fertilized with livestock waste"

<査読付論文に準ずる成果発表>(対象:社会・政策研究の分野)

特に記載すべき事項はない

<その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない

(2) 口頭発表(学会等)

- S. Zhou, H. Iino, Y. Nakashimada, M. Nishikawa, M. Hosomi: The 8th IWA International Symposium on Waste Management Problems in Agro-Industries, Cesme, Turkey, Jun. 22-24, 2011. "Production of Forage Rice and Anaerobic Digestion Characteristics of Forage Rice Straw"
- 2) S. Zhou, R. Kanai, K. Suzuki, S. Riya, A. Terada, M. Hosomi : International Conference on Recent Advances in Pollution Control and Resource Recovery for the Livestock Farming Industry, Jiaxing, China, 2013 "Dry-thermophilic anaerobic co-digestion of swine manure mixed with forage rice straw."
- 3) 鈴木一弘、周勝、寺田昭彦、細見正明:第14回化学工学会学生発表会(2012) 「豚ふん尿と稲ワラを用いた高温乾式メタン発酵特性の解明」
- 4) 鈴木一弘、周勝、寺田昭彦、細見正明:第64回日本生物工学会大会(2012)「豚ふん尿と 稲ワラを用いた高温乾式メタン発酵プロセスの開発」
- 5) 鈴木一弘,周勝,寺田昭彦,細見正明:化学工学会 第78年会(2013)「豚ふん尿と稲ワ ラを用いた高温乾式メタン発酵プロセスの開発および循環型豚ふん尿処理システムの実現 可能性」

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない

(4) シンポジウム、セミナー等の開催(主催のもの)

特に記載すべき事項はない

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない

(6) その他

特に記載すべき事項はない

8. 引用文献

吉田 隆:家畜排せつ物の処理・リサイクルとエネルギー利用、壮光舎印刷株式会社、p. 189-191 (2004)

(2) 温室効果ガス抑制型の発酵残さの施肥方法及び水田管理方法の確立

東京農工大学 大学院工学研究院

細見正明

東京農工大学 大学院工学研究院

利谷翔平

(前 東京農工大学 大学院工学研究院 周 勝)

(現 上海市農業科学院 周 勝)

平成23~25年度累計予算額:24816千円

(うち、平成25年度予算額:7821千円)

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

本サブテーマでは、メタン発酵残さを施肥した多収米飼料イネ水田における環境負荷(温室効 果ガスおよび窒素溶脱)の評価およびその削減対策の評価を実施した。また、本研究のモデル地 域である茨城県の現状から、豚ふん尿を乾式メタン発酵で処理する以外に、豚ふん尿を固液分離 した後の液体部分を利用して多収米の栽培も行い、環境負荷の削減を試みた。

ポット試験において、発酵残渣の窒素負荷を150,300,450 kg-N/haとし、各負荷量に対して常 時湛水および間断灌漑の2種類の水管理を施した。その結果、常時湛水では発酵残さ負荷量の増加 とともにCH₄排出量が増加したのに対し、間断灌漑では増加量が小さく、常時湛水に50%以上の温室 効果ガス(CO₂等量)を抑制できた。N₂0はいずれの系においてもCO₂等量では無視できるレベルだ った。窒素溶脱量は、間断灌漑の実施により常時湛水より低くなる傾向が認められた。

乾式メタン発酵残渣を施肥した水田の圃場実験を行った結果、栽培期間中の累積CH₄排出量は慣 行栽培(100 kg-N/haの化学肥料)(C系)の110 kg-C/haに対し、発酵残さ施肥(300 kg-N/ha) および慣行水管理(中干し)(MC系)を実施した系は464 kg-C/haだった。一方、発酵残さ施肥お よび間断灌漑を実施した系(MI系)では、300 kg-C/haだった。N₂0の発生はいずれの系でも見られ なかった。また、栽培期間中の窒素溶脱量は、C系の7 kg N/haに対し、MC系(4.6 kg N/ha)およ びMI系(3.8 kg N/ha)は低かった。以上より、間断灌漑を実施することで、乾式メタン発酵残さ を施肥した多収米飼料イネ栽培における環境負荷を低減できることが示された。一方、間断灌漑 を実施した系では多収米飼料イネの窒素吸収が低く、脱窒による窒素の損失が考えられた。

そこで、間断灌漑が硝化に及ぼす影響を¹⁵N希釈法により評価したところ、間断灌漑を実施する ことで水田土壌の硝化速度の上昇が確認された。また、窒素収支を明らかにする上で重要な脱窒 速度について、土壌やイネをかく乱することなく脱窒を計測する手法である¹⁵N₂希釈法を提案し、 バイアル試験およびポット試験において実施した。しかし、いずれも大気のN₂の混入により正確な 計測はできなかった。

[キーワード]

多収米飼料イネ水田、乾式メタン発酵残さ、水管理、メタン、亜酸化窒素、窒素収支

1. はじめに

本研究において提案する環境低負荷型コベネフィットシステムでは、高温乾式メタン発酵槽に て発生する残さを多収米飼料イネの肥料として利用する。多収米飼料イネは、食用イネよりも高 い窒素吸収性、耐倒伏性、高バイオマス生産力を有するという特徴があるが、過度の発酵残さ の多収米水田への施用は、倒伏リスクの他に温室効果ガスの発生や地下への浸透により地下水汚 染を引き起こすことが懸念される。

図(2)-1に、発酵残さを施肥した多収米飼料イネ水田における炭素および窒素挙動を示す。 土壌中において、発酵残さ中の有機物は土壌微生物のはたらきにより低分子量の有機物に分解さ れる。残さ中の有機体窒素は、土壌微生物のはたらきによりNH₄+に分解される(無機化)。これら 分解により生じた有機物およびNH₄*の動態は、水田が湛水状態あるいは落水状態(表面水が張って いない状態)により異なる。特に大きな違いは、土壌微生物によるメタン発酵および硝化・脱窒 に見られる。湛水土壌において、有機物はメタン生成古細菌のはたらきにより最終的にCO₂および 温室効果ガスであるCH₄に変化する。落水土壌においては、有機物はCO₂にまで分解される。また、 大気から土壌中へと流入する酸素によりメタン生成古細菌は活性を失うため、メタンは生成され ない。一方、無機化により生じたNH₄*は、落水状態においては硝化細菌のはたらきによりNO₃~にま で変化し、還元的な部位で脱窒作用を受ける。この硝化および脱窒の過程で、オゾン層破壊物質 でありかつCO₂の298倍の温室効果能を有する亜酸化窒素(N₂0)が生じる。湛水土壌においては、 根圏の酸化的な環境で硝化細菌のはたらきによりNO₃~へと変化する。生じたNO₃~は、還元的な環境 において脱窒細菌によりN₂にまで脱窒される。

水田はCH₄の主要な排出源とされているため、多収米飼料イネ水田への発酵残さの多量施肥によるCH₄排出の増加が懸念される。また、無機化により多量のNH₄⁺が生じた場合、飼料イネが吸収できなかった分が溶脱し、地下水汚染を引き起こすことも懸念される。吸着態窒素として土壌に残留する恐れがある。しかし、乾式メタン発酵残さを水田に施用した例はこれまで報告されていないため、発酵残さ施肥の環境負荷を明らかにする必要がある。また、発酵残さ施肥に伴う環境負荷を抑制することも、コベネフィットシステム全体の環境負荷に影響すると考えられる。



図(2)-1 発酵残さを施肥した水田の異なる水環境における炭素および窒素挙動

2. 研究開発目的

本研究では、環境負荷抑制型の多収米飼料イネ管理方法の確立を目的とする。発酵残さ施肥に 伴う環境負荷を抑制するために、本研究では水田の水管理のひとつである間断灌漑に着目した。 間断灌漑は、湛水状態および落水状態を交互に繰り返す水管理手法である。前述の通り、落水状 態ではCH4生成の抑制、湛水状態では窒素の除去がなされる。従って、本手法を多収米飼料イネ栽 培に適用することで、温室効果ガス排出および水環境への負荷を同時に抑制できることが期待さ れる。

そこで、発酵残さ施肥および水管理が多収米飼料イネ水田からの温室効果ガス排出および窒素 挙動におよぼす影響を明らかにする。まずは、ポット試験により発酵残さ施肥および水管理の効 果を明らかにする。ついで、実際の水田においても調査を実施し、発酵残さ施肥による環境負荷 を慣行栽培と比較するとともに、水管理による環境負荷削減の実証を行う。さらに、発酵残さを 施肥した多収米飼料イネ水田における窒素浄化能を評価するために、安定同位体を用いた脱窒評 価法を提案し、実施する。

3. 研究開発方法

(1)発酵残さ施肥および水管理が温室効果ガス排出および窒素溶脱におよぼす影響(ポット試 験系)

1)実験系

本研究では多収米飼料イネに異なる負荷量の乾式メタン発酵残渣および異なる水管理のもとで 温室効果ガス排出の評価を行い、適切な発酵残渣の利用方法を提案することを目的とした。

発酵残渣の窒素負荷は150,300,450 kg-N/haとし、各負荷量に対して常時湛水および間断灌 漑の2種類の水管理を施し、計6つのポットで評価を行った。また、発酵残渣や化学肥料を一切 加えていない0 kg-N/ha常時湛水のポットを設け、対照系(コントロール系)とした。

,				
処理区	水管理	残渣投入量[g]	窒素負荷 [kg-N/ha]	炭素負荷 [kg-C/ha]
C150	常時湛水	35.34	150	2650
I150	間断灌漑	35.35	(慣行)	2000
C300	常時湛水	70.68	300	5200
I300	常時湛水	70.68	(慣行の倍)	5500
C450	間断灌漑	106.03	450	7050
I450	常時湛水	106.02	(慣行の倍)	7930
CO	常時湛水	0	0	0

表(2)-1 各処理区における水管理、残渣投入量および窒素、炭素負荷

本研究では下部に排水口の付いたポットに市販の砂利および農業環境技術研究所より採取した 水田土壌を充填して水田とみなした。ポットは高さ 505.0 mm、内径 224.35 mm の円筒形である。 円筒上部の表面積が 1/25 m²になるように設計した(図(2)-2)。

ポットの構成として、下から砂利 5 cm、粘土層 10 cm、作土層 20 cm、の順に充填した。粘土 層は作土層の土壌に水をくわえ、手でこねることで作成し、作土層は篩にかけ稲わらや根等の余 分な炭素源を取り除き粒径 2 mm 以下のものを使用した。粘土層と作土層で計約 20 kg の土壌を使 用した。作土層および粘土層の含水率はそれぞれ 6.9 w/w%、32.6 w/w%だった。



肥料として用いた乾式メタン発酵残渣は、基質の C/N 比を 20、SRT(汚泥滞留時間)30 日、の 条件下で豚ふん尿と稲わらを発酵させたものを用いた。発酵後の残渣は含水率を低下させ、残渣 の悪臭を軽減させるために、ステンレス製のバットに広げ好気条件下で風乾させた。風乾後は粗 粉砕した後、各窒素負荷になるように残渣を秤量しジップパックに保存した。施肥時は残渣をジ ップパックから水田土壌に広げ、土壌深さ 10 cm まで残渣が均質に混ざるように、手で土壌と残 渣を混合した。

2) サンプリングおよび分析

ポットから排出される CH₄ 及び N₂0 ガスはクローズドチャンバー法を用いて捕集し、各ガスの 排出速度を算出した。クローズドチャンバー法とはアクリル製の覆い(図(2)-3)を稲に被 せて密閉し、ガス濃度の時間変化より各ガスのフラックスを求める手法である。本実験では、高 さ 1002.0 mm 直径 223.95 mm の円筒状(体積 39.2 L)のアクリル製チャンバーを用いた。チャン バーにはサンプリングロが 3 つあり、チャンバー内温度を測定する温度計、チャンバー内を大気 圧に保つためのテドラーバッグ、およびチャンバー内の気相攪拌用のファンを装着した。チャン バーとポットの間にゴム製の0リングをかませ、ゼムクリップで4か所を止めて密閉状態とした。 チャンバー内の気体の採取方法として、チャンバーのサンプリングロの一つにルアーコネクタを 装着しルアーコネクタから 50 ml テルモシリンジを用いて気体を採取した。採取した後テルモシ リンジの先端に針を装着し、予め脱気しておいた 30 ml ガスクロバイアルに 50 ml 封入し保存し た。本実験ではクローズドチャンバー法の密閉時間を 20 分として、0,10,20 分の時にチャンバー 内の気体を採取し保存した。

採取した気体は GC-FID を用いて CH₄ガス濃度を、GC-ECD を用いて N₂0 ガス濃度を分析した。分 析後各ガスにおいて 0 から 10 分および 10 から 20 分のガス濃度の時間変化を算出し、それぞれの 値の平均値をガス濃度時間変化とした。ここで誤差を補正するため 0,10,20 分の 3 点の R²値が 0.900 未満のもの、或いは同じサンプルを 3 回分析した際の変動係数よりも 20 分間の変異が低い ものは排出速度を0とした。

算出したガス濃度変化を次の式に代入することで、ガス排出速度を算出した。

$$F = \frac{\triangle C}{\triangle t} \times \frac{V}{V_0} \times \frac{T_0}{T} \times M \times \frac{1}{A}$$

ここで、 $F: フラックス [g·m^{-2}·h^{-1}]$ 、: $\angle C / \angle t$ ャンバー内濃度変化速度 [ppmv h⁻¹]、V:密閉体積 [m³]、 V_0 :標準状態で理想気体1 molが占める体積0.0224 m³ mol⁻¹、 T_0 :273 K、T:チャンバー内温度 [K]、M:モル質量 [g mol⁻¹]、A:チャンバー断面積 [m²]である。

土壌中の酸化還元状態(土壌Eh)を把握するため、飼料イネの移植時に各ポットの土壌深さ5 cm に白金電極を挿入した。土壌Ehの計測は、白金電極およびEh計を用いて実施した。

また、ポット底部より浸透水を定期的に採取し、無機態窒素(NH₄⁺、NO₂⁻およびNO₃⁻)濃度をイ オンクロマトグラフィーにより計測した。

(2) 乾式メタン発酵残さを施肥した多収米飼料イネ水田における環境負荷低減(実水田系)

1)実験サイト

乾式メタン発酵残渣を施肥した水田の水環境負荷および温室効果ガス排出量の把握とともに、 水管理による温室効果ガス排出量削減効果を現場レベルで確認するために圃場実験を行った。 2013年、図(2)-4に示す茨城県行方市の一般農家が有する水田(30 m × 32.6 m)に、1 m × 3 m の小区画を波板を用いて、9区画調製した(図(2)-4)。水田の土性は砂質壊土(Sandy Loam) で粒系組成は粗砂65.0%、細砂16.9%、シルト4.2%、粘土13.8%だった。実験期間は飼料イネの栽培 期間である5月29日(移植後日数0日目)から10月3日までの127日間であり、追肥は行わなかった。 飼料イネの品種はタカナリを使用した。



図(2)-4 実験サイト(左)および試験圃場(右)の様子

2)実験系

飼料イネ水田からの温室効果ガス排出量の栽培法による違いを評価するために、3種類の実験系 を設定した(表(2)-2)。まず、従来の非循環型養豚システムにおける飼料イネ栽培の慣行 法を参考に、化学肥料100 kg-N/haを施肥し、水管理として常時湛水を行ったものをC系(Control) とした。これに対し、発酵残渣300 kg-N/haを施肥し、常時湛水を行ったものをMC系(Methane fermentation residue & Continuous flooding)、発酵残渣300 kg-N/haを施肥し、間断灌漑を行 ったものをMI系(Methane fermentation residue & Intermittent flooding)とした。各実験系に つき、3つの小区画を割り当て、実験を実施した。

	表	(2) - 2	実験系	
		С	MC	MI
肥料		化学肥料	発酵残渣	発酵残渣
水管理		常時湛水	常時湛水	間断灌漑
窒素負荷量	(kgN/ha)	100	300	300
炭素負荷量	(kgC/ha)	0	5496	5496

3) サンプリングおよび分析

栽培期間中、各小区画より排出される温室効果ガス排出速度(フラックス)は、クローズドチャンバー法により測定した。また、飼料イネ移植時に土壌深さ5 cmおよび15 cmに埋設したポーラスカップを用い、定期的に土壌間隙水を採取した。採取した水は、溶存有機炭素濃度(DOC)、無機態窒素(NH₄⁺、NO₂⁻およびNO₃⁻)濃度測定に供した。

飼料イネ収穫時、各小区画における収量を把握するために、1m²分のイネ(18株、根を含む)を 各区画から採取した。採取した飼料イネは、風乾後重量を測定した。また、収穫したイネとは別 に各区画からイネを1株採取し、葉、茎、穂、根に分離し、元素分析計を用いて窒素含有率を測定 した。また、水田の浸透速度を把握するために、水位計を各小区画中央に設置し、水位を常時モ ニタリングした。

(3) 安定同位体を用いた発酵残渣を施肥した水田の脱窒速度の評価

1) 硝化速度の評価

水田における窒素除去において、硝化および脱窒反応は重要である。間断灌漑を実施した場合、 土壌と大気が接触するため、酸化部位が拡大しNH4*の硝化が進み、結果的に脱窒反応を促進すると 考えられる。そこで、本研究では間断灌漑が硝化反応に及ぼす影響を明らかにするためのポット 試験を実施した。水田土壌を充填したポットを調製し、多収米飼料イネを植栽し、栽培を開始し た。窒素肥料の施肥は、飼料イネ移植前の基肥として50 kg-N/ha、栽培期間中の追肥として200 kg-N/haを2回施肥した。従って、合計450 kg-N/haの窒素を施肥した。水管理は、常時湛水系およ び間断灌漑系の二種類をおこなった。

水田のような硝化反応と脱窒反応が同時に起こる場では、硝化反応により生成した硝酸は脱窒 反応により消費され、硝酸態窒素の蓄積からは硝化活性を求めることはできない。そこで、本研 究では¹⁵N同位体希釈法を採用した。以下に¹⁵N同位体希釈法の原理および計算式(Koike and Hattori、 1978)および実験方法を示す。 図のように有機窒素、¹⁴NH₄⁺、¹⁴NO₃⁻のプールができ、Z、Yをそれぞれの過程の速度と仮定する と以下の2つの式が得られる。

N_2 - N_1 =Z- Y	[1]
$N_2 X_2 - N_1 X_1 = Z X_n - Y X$	[2]

Y: 硝酸態窒素(Y)の消費速度

Z: 硝酸態窒素(Zn)の生成速度

N1,2:時間 t1(培養開始時),t2(培養終了時)時の硝酸態窒素の濃度 X1,2:時間 t1,t2時の硝酸態窒素中の¹⁵N含有率 X:時間 t1,t2間の硝酸態窒素中の¹⁵N存在比の平均値 Xn:自然レベル¹⁵N存在比(0.37%) NO₃-N濃度および、¹⁵N存在比を求め、[1]、[2]式を連立して解くこと



● 実験方法

で硝化活性を求める。

- 1. 追肥前、追肥 5 日後、14 日後に土壌サンプラーでポットから表層 1~2 cm の土壌を採取した。また、田面水がある場合には田面水も採取した。
- 図採取した土壌2gを壁面にできるだけ付着しないように試験管に入れ、(1日間培養用,t₂)。
 また、50 mlの遠沈管にもそれぞれの土を2gずつ入れた。(培養開始時の分析用,t₁)。
- 図(2) -5 の①のように田面水がある表層のサンプルには、t₂, t₁用両方に田面水 5ml を 加え、カラムと同様の条件にした。
- 各サンプルに 120 mg-N/L の Na¹⁵NO₃溶液を 0.5ml 加え、培養開始時の分析用(t₁)のサン プルはすぐに 0.01 M の塩化カリウム溶液を加えて 1 時間振とうし、土壌中の NH₃-N,NO_x-N を抽出した。
- 5. 1日間培養用(t₂)のサンプルを 30℃の恒温培養室で静置して1日間好気培養した。
- 6. 培養したサンプル 0.01 M の塩化カリウム溶液を加えて 1 時間振とうして抽出し、遠心分離 により土壌を沈降させ、抽出液を取り出した。
- 7. 抽出液をイオンクロマトグラフィーで分析してアンモニア態窒素、硝酸態窒素の量を測定した。また、抽出液中のアンモニア態窒素、硝酸態窒素をアンモニア拡散法でガラス繊維ろ紙に吸着させ、同位体質量分析装置(IRMS)で分析し、硝酸態窒素中の¹⁵N存在比を測定した。
- 8. 上記の計算式で硝化活性を求めた。

2)¹⁵N₂希釈法による脱窒速度測定の提案

脱窒の産物であるN₂ガスは、大気中ガスの78%を占める。従って、土壌における脱窒計測におけ る課題は、如何に大気中の窒素ガスと脱窒より生成される窒素ガスとを区別するかにある。アセ チレン(C₂H₂)阻害法や¹⁵Nトレーサー法など各種測定法が考案され、実施されてきた。しかしこれ らの手法は、微生物活性の阻害や系のかく乱など克服すべき課題が存在する。また、堆肥や発酵 残さなどは容易に¹⁵Nによる標識ができない。また、人工的にアンモニア性窒素を系に加えるため、 自然な状態での脱窒量を見積っているとは言い難い。ましてや発酵残さに含まれる有機体窒素と して添加することは困難である。このように、より正確な脱窒計測法の発展のためには土壌を撹 乱せずに自然な状態での測定法が必要である。

本研究では、反応基質を¹⁵Nで標識せずに環境中の生成物の変化速度を測定する¹⁵N希釈法に注目 した。本手法では、¹⁵Nで標識された生成物(¹⁵N0₃⁻)を予め水中に一定量添加しておく。水中に元々 存在する基質(¹⁴NH₄⁺)が生成物(¹⁴N0₃⁻)に変化すると、水中の生成物(¹⁵N0₃⁻と¹⁴N0₃⁻)の¹⁵N存在 比が変化する。この¹⁵N存在比の変化を利用して物質の変化速度(この場合、硝化速度)を決定で きる。¹⁵N希釈法は、環境水中の硝化速度の測定に応用されている。本研究では、この¹⁵N希釈法に 着想を得て、¹⁵N₂ガスを用いた¹⁵N₂ガス希釈法を提案する。具体的には、水-イネ-土壌系をチャンバ ーで囲い、最初にチャンバー気相中の窒素をヘリウムと酸素ガスで置換し、¹⁵N₂を一定量添加して おく。脱窒により気相内に¹⁴N₂が増加すると、結果として¹⁵N存在比が変化する。この¹⁵N存在比変化 から脱窒速度を求める。すなわち、水-イネ-土壌系を撹乱せずに自然な状態での脱窒速度の評 価が可能となる。

¹⁵N希釈法による脱窒速度の評価法を以下に述べる。¹⁵N₂ガス希釈法(図(2)-5)では、まず、 気相をHe/0₂で置換し、¹⁴N₂濃度を下げる。その後、¹⁵N₂を気相に添加し、一定時間置くことで、脱 窒により発生する¹⁴N₂により気相中の¹⁵N存在比が低下する。脱窒量は、¹⁵N希釈法(Koike and Hattori (1978))を参考に、気相中全N₂量と¹⁵N存在比の変化を考慮した式より決定される。

$$P_{N_2} = \frac{C_0(x_1 - x_2)}{t(x_n - x_2)}$$

ここで、 C_0 : チャンバー内の窒素濃度 [g/L]、 x_n : 自然界の¹⁵N存在比 [-]、 P_{N2} : 窒素流入量 [g/L]、 x_1 , x_2 : それぞれt = t_1 および t_2 のときの¹⁵N存在比である。



2)¹⁵N₂希釈法と¹⁵Nトレーサー法による脱窒速度測定の比較

今回考案した¹⁵N希釈法により脱窒量が測定可能かどうか、従来法である¹⁵Nトレーサー法と比較 することで検討した。実験系を表(2)-3に示す。 土壌スラリーをバイアル瓶に調製し、脱 気およびArガス通気を実施し、バイアルヘッドスペース内を無酸素状態にするとともにN₂を除去し た。¹⁵N₂希釈法のバイアルヘッドスペースには、純N₂ガス、¹⁵N₂ガスおよびArガスを添加し、気相¹⁵N₂ 濃度が約20%となるように調製した。¹⁵Nトレーサー法、ブランク、アセチレン添加およびアセチレ ン無添加系のバイアルヘッドスペースの気相には、¹⁵N₂希釈法のバイアルと同様の全N₂濃度となる ように、純N₂ガスおよびArガスを添加した。その後、各バイアルに脱窒の基質となるグルコースお よび¹⁴N0₃⁻-Nを添加し、培養を開始した。なお、¹⁵Nトレーサー法のバイアルでは¹⁵N存在比99%の ¹⁵N0₃⁻-Nを添加した。培養0日後および27 日後に、¹⁵Nトレーサー法、¹⁵N₂希釈法およびブランク系か ら採取したガスのN₂濃度をGC-MSにより、¹⁵N₂存在比をIR-MSにより計測し、脱窒量を推定した。ア セチレン添加および無添加系においては、バイアル内の脱窒の進行を確認するため、適宜サンプ リングおよびGC-ECDによるN₂0の定量を実施した。

実験系	処理の内容	評価内容		
¹⁵ Nトレーサー法	¹⁵ NN0 ₃ を土壌に添加	一般的な脱窒測定法		
¹⁵ N ₂ 希釈法	¹⁵ N₂をヘッドスペースに添加	¹⁵ Nトレーサー法と脱窒速度比較		
ブランク	空の瓶に ¹⁵ N ₂ を添加	漏れによる ¹⁵ N ₂ 濃度変化の確認		
アセチレン添加	アセチレン添加	脱窒が起こる		
アセチレン無添加	無添加	タイミングの確認		

表(2)-3 バイアル実験 実験系

3) 発酵残渣を施肥した多収米飼料イネにおける脱窒の評価

発酵残さによる多収米飼料イネ栽培における脱窒量を把握するために、ポット試験による¹⁵N希 釈法を実施した。ポットおよびチャンバーは、図(2)-2および図(2)-3と同様のものを 使用した。ポットに水田土壌を充填し、発酵残渣を300 kg-N/ha相当施肥した後、多収米飼料イネ を1株移植し、栽培を開始した。栽培中、適宜¹⁵N₂希釈法により脱窒速度を定量した。ポット試験 における¹⁵N₂希釈法の手順を以下に示す。

チャンバーをポットにかぶせた際の密閉性を高めるために、ポットとチャンバーの接続部分に シリコングリスを塗り、さらにシリコンリングをはさんだ。チャンバーをかぶせ、クリップでポ ットとチャンバーをはさんだ。Ar/0₂をチャンバーに5 L/minの流速で40 min通気させ、チャンバー 内のN₂濃度を低下させた。50 mLシリンジで¹⁵N₂ガス(¹⁵N存在比99.9%)を120 mL添加した。ポット 密閉から0,24,48時間後に、チャンバーより20 mlのガスを採取し、脱気した10 mlバイアル瓶に 注入・保存した。採取したガスのN₂濃度をGC-MSにより、¹⁵N₂存在比をIR-MSにより計測し、脱窒量 を推定した。図(2)-6に1ポットにて¹⁵N希釈法を実施している様子を示す。



図(2)-6¹⁵N希釈法 ポット

4. 結果及び考察

(1)発酵残さ施肥および水管理が温室効果ガス排出および窒素溶脱におよぼす影響(ポット試験系)

1) 温室効果ガス排出

ポット試験において、異なる施肥量及び水管理により CH_4 および N_20 フラックスの季節変動を 図(2) - 7および図(2) - 8にそれぞれまとめた。 CH_4 はどの N 負荷および水管理においても 中干し以前の栽培前期にフラックスが高く、 N_20 は中干し期に排出される傾向にあった。発酵残 渣を施肥した際に、移植から 10 から 30 日で CH_4 排出のピークがきて、その後中干し以降に CH_4 排出が激減するという傾向が分かった。また、同じ水管理の実験系において、発酵残さの施肥量 が高ければ高いほど、 CH_4 フラックスが高くなる傾向が見られた。水管理を比較すると、300 およ び 450 kg-N/ha において間断灌漑における CH_4 フラックスは常時湛水におけるフラックスよりも 低かった。

土壌中において、CH₄生成は還元的な状態で起こる。中干し前の土壌Ehの値は、いずれの系にお いても-400 mVに達しており、非常に還元的な状態だったと推察され(図(2)-9)、CH₄発酵が 起こりやすい環境だったと考えられる。一方、表(2)-1に示すように、発酵残さ施肥量の違 いにより投入有機炭素量にも違いが生じており、CH₄発生量に差が生じたと考えられる。中干し前、 常時湛水系と間断灌漑系では大きな土壌Ehの差は生じなかったものの(図(2)-9)、窒素負 荷量300および450 kg-N/haの系においてCH₄フラックスに差が生じた(図(2)-7)。これは、 間断灌漑により表面水が消失し、大気中の酸素が土壌中に流入し、土壌Eh計測部位(5 cm)より も浅い領域でCH₄生成の抑制あるいはCH₄酸化細菌によるCH₄酸化が生じたためと考えられる。中干 し期間中は、図(2)-9に示されるように、土壌Ehが+300~+500 mVにまで上昇した。これは、 中干しにより表面水が消失し、大気中の酸素が土壌中に流入し、土壌が酸化的になったことを示





図(2)-7 栽培期間中の(a)常時湛水系および(b)間断灌漑系における CH₄フラックス

一方、 N_20 は CH_4 とは異なり、中干し以後に排出される傾向が見られた(図(2) - 8)。移植 後 60 日まで、 N_20 フラックスは I450 を除いた全系において 0 で推移した。しかし、 CH_4 の排出が 観測されなくなった中干し期間(62~69 day)に入ると、 N_20 の発生が見られたが、N 負荷量によ る大きな違いは見られなかった。 N_20 の排出は、 CH_4 と比べて突発的に起こっていた。このメカニ ズムを明らかにするために、微小電極を用いて、発酵残さを施肥したポット表層の溶存 0_2 および 溶存 N_20 濃度分布を計測したところ、湛水時酸素濃度は土壌表面の所でほぼゼロとなるが、落水 に従って、土壌表層の酸素濃度が徐々に高くなり、落水 3 日後、表層から約 5 mm まで酸素が検出 された(図(2) - 1 0)。一方、湛水時 N_20 濃度が土壌表面でほぼゼロだったが、落水後、表層 から約 3 mm に N_20 のピークが検出された。以上から、落水することによって、土壌表面近傍に硝 化反応が進み、 N_20 が生成されたと考えられる。



図(2)-8 栽培期間中の(a)常時湛水系および(b)間断灌漑系における N₂0 フラックス







図(2)-10 発酵残さを施肥した土壌表層における溶存0,および溶存N,0濃度分布

図(2)-11に栽培期間中におけるCO₂等量のCH₄およびN₂0累積排出量を示す。図から明らか なように、N₂0排出が占める割合は全排出量の1.5%未満であり、発酵残さを施用した水田から排出 される温室効果ガスの大部分はCH₄だった。CH₄およびN₂0を合わせた累積CO₂等量排出は、常時湛水 の系においては負荷量の増加に伴い増加する傾向にあった。一方、間断灌漑系の増加の割合は同 じ負荷量の常時湛水系よりも小さく、300および450 kg-N/haの実験系において、間断灌漑を行う ことによって常時湛水より59%と80%の温室効果ガスが削減できたことがわかった。これらの結果 は、発酵残さを高負荷で施肥した多収米飼料イネ水田においては、間断灌漑を実施することで温 室効果ガスを削減できる可能性を示している。



2) 窒素溶脱

図(2) -12に栽培期間中におけるポット試験の浸透水中の無機態窒素 $(NH_4^+ + NO_2^- + NO_3^- - N)$ 濃度の推移を示す。無施肥のCOにおいて、無機態窒素濃度は栽培後期を除いてほとんどゼロだった(図(2) -12)。一方、発酵残さを施肥した系では、栽培初期から無機態窒素が浸透水に検出された(図(2) -12)。無機態窒素濃度はN負荷量に依存しておらず、中干し前は0~6 mg-N/L で推移した。中干し後、発酵残さを施肥した系における無機態窒素濃度は1 mg-N/Lにまで減少した。

C0における無機態窒素濃度との比較から、中干し前の浸透水中に検出された無機態窒素は発酵 残さに由来するものと考えられる。発酵残さは、土壌表層の0 cmから10 cmに施肥されたため、浸 透水において検出された無機態窒素は、発酵残さ中の有機体窒素が無機化されたものに由来する と考えられる。発酵残さ施肥系の無機態窒素濃度の時間変動に着目すると、間断灌漑系における 濃度の減少は常時湛水系におけるよりも早かった。中干しを実施した際、常時湛水系および間断 灌漑系にかかわらず、無機態窒素の大幅な減少が見られた(図(2)-12)。これは、中干し により有機体窒素の無機化および硝化反応が促進され、生成したNO₂⁻およびNO₃⁻が嫌気的な領域に おいて脱窒を受けたためと考えられる。従って、定期的に土壌面が大気に暴露される間断灌漑系 においてはこのような現象が常時湛水系よりも頻繁に起こっていたと考えられる。



図(2)-12 浸透水中の無機態窒素(NH₄⁺ + NO₂⁻ + NO₃⁻-N) 濃度

栽培期間中の累積無機態窒素溶脱量を表(2)-4にまとめた。C0における溶脱無機態窒素量 (11.6 g-N/pot)に対し、発酵残さを施肥した系では30.7-118 g-N/potと約3-10倍の無機態窒素 が流出した。これは、発酵残渣に由来する窒素と考えられる。溶脱無機態窒素量の窒素負荷量依 存性を調べるために、以下の式により発酵残さに由来する窒素の割合を算出した。

表(2)-4には、発酵残さに由来する溶脱窒素の割合も示した。同じ窒素負荷の常時湛水およ び間断灌漑系を比較すると、間断灌漑の方が発酵残さ由来の窒素割合が低い傾向となった。従っ て、間断灌漑は発酵残さを施肥した水田からの窒素流出抑制にも効果があることが示唆された。

表(2)	-4 栽培期間中	の溶脱無機態窒素量		
	溶脱無機態N量	発酵残さ由来割合		
	(g-N/pot)	(%)		
С0	11.6	-		
C150	116	14.3		
I150	30.7	2.6		

C300	118	7.3
I300	99.1	6.0
C450	118	4.9
I450	61.1	2.3

(2) 乾式メタン発酵残さを施肥した多収米飼料イネ水田における環境負荷低減(実水田系)

1) 温室効果ガス排出

図(2)-13に栽培期間中のCH₄フラックスを示す。水田から排出されるCH₄フラックスの報告 値は10~50 mg/(m²h)とされており、C系(コントロール)のフラックスはこの値の範囲に入って いる、もしくはそれよりも低かった。一般的な水田では稲わらのすき込みもしくは堆肥の施肥な どにより炭素量を2000~4000 kg-C/haとしている場合が多い。C系の栽培ではこういった操作によ る炭素の投入をしていないため、CH₄フラックスの値が低くなった。すなわち今回C系から排出され たCH₄はもともと土壌中に存在していた有機物が徐々に分解されたものによると考えられる。

C系と比較して発酵残渣を施肥したMC, MI系では高いフラックスが観測された。これは発酵残渣 中に含まれる有機物が分解されたためである。中干しにより土壌は酸化的な状態となり(図(2) -15)、CH₄フラックスは一気に低下したが、中干し終了後から徐々にCH₄フラックスが上昇した。 図(2)-14に示すように中干しにより、多くの有機物が酸化されたが、酸化されずに残存し た有機物やあらたにイネから浸出液として供給された有機物が再び湛水による嫌気条件下で分解 され、CH₄となって排出されたと考えられる。中干し後のCH₄フラックスを比較すると、MC系にくら ベMI系の方がより低い値で推移した。MI系における土壌Ehは、79日から上昇したのに対し、MC系 では低下した。これは、間断灌漑により土壌の還元化が遅れたためと考えられ、結果的にCH₄生成 も抑制されたと考えられる。



図(2) -13 栽培期間中のCH₄フラックス





図(2)-15 土壌Eh(土壌深さ5 cm)

栽培期間中の累積CH₄排出量を図(2) - 16に示す。C系は110 kg C/ha、MC系は464 kg C/ha、MI系は300 kg C/haとなった。C系に対し、MC系では4.2倍、MI系では2.7倍のメタンが排出された。 一般的に堆肥を施用した水田から排出されるメタン排出量は100~600 kg C/haであるため、本実 験における発酵残渣の施肥は堆肥施用をした場合と同様であると考えられる。また、発酵残渣施 肥を行ったMC、MI系の比較では、常時湛水を行ったMC系に対し、間断灌漑のMI系では35%の削減と なった。これより、一般的な飼料イネの栽培と比較して、発酵残渣の施肥ではメタン排出量は増 加するが、間断灌漑により削減可能ということが示された。



図(2)-16 栽培期間中における積算CH₄排出量

2) 窒素溶脱

図(2) -17に、深さ15 cmにおける間隙水中のNH₄⁺濃度を示す。いずれの系においても、NH₄⁺ 濃度は移植後22日目まで徐々に増加した。これは、移植前に土壌中に施肥した化学肥料(C系)お よび発酵残渣(MCおよびMI系)が分解し、NH₄⁺を放出しているためと考えられる。MCおよびMI系の 濃度がC系よりも小さいのは、発酵残渣に含まれる無機態窒素量が少ないためと考えられる。しか し、これらの窒素は中干し前に検出されなくなっており、飼料イネによる吸収などが影響したと 考えられた。中干し以降は、いずれの系においても全く検出されなかった。



図(2)-17 土壌深さ15 cmにおけるNH₄+濃度変化

栽培期間中に各小区画に設置した水位計から、算出した水田の浸透速度と、図(2)-17か ら溶脱窒素量(栽培期間中に地下に浸透した窒素量)を推定した(図(2)-18)。C系におけ る溶脱窒素量は、7 kg N/haであり、MC系(4.6 kg N/ha)およびMI系(3.8 kg N/ha)よりも高か った。この結果から、乾式メタン発酵残渣による多収米飼料イネ栽培における水環境負荷は、慣



行の栽培方法(化学肥料および常時湛水)よりも小さいことが示唆された。

3) 窒素収支

化学肥料および乾式メタン発酵残さで栽培した際の窒素収支を評価した。窒素収支は、肥料な ど区画に流入した窒素および、飼料イネによる吸収などにより区画外に流出した窒素から計算し た。

肥料+灌漑水+雨水+土壌無機化窒素 = 飼料イネ吸収+地下浸透+NH。揮散+脱窒

なお、窒素は有機体窒素と無機態窒素(NH₄⁺、NO₃⁻およびNO₂⁻)に大きく分けられる。微生物やイ ネが利用可能な窒素は無機態であるため、今回の計算では無機態窒素の収支を求めた。発酵残さ にはほとんどが有機体窒素だったので、土壌中で無機態窒素に変換される割合(無機化率)を20% として設定した。また、脱窒は実測していないため、収支の不明分から算出した。

窒素収支の結果を図(2)-19に示す。地下への浸透とアンモニアガスの揮散は全ての系で 10%未満と少なく、その環境負荷は少なかった。化学肥料系はほとんどがイネによって吸収され、 窒素が浄化されていた。また、全ての系で不明分が生じたため脱窒量とした。MCおよびMIでは、 300 kg-N/ha相当の発酵残さを施肥したにもかかわらず、100 kg-N/ha施肥したCよりも飼料イネに よる窒素吸収が低かった。この原因として、発酵残さを調製する際に乾燥したため、無機態窒素 のNH₄⁺がNH₃として揮散してしまい、有機体窒素しか残らなかったことが考えられる。間断灌漑を 実施したMIではイネの吸収が最も低かった。間断灌漑を実施することで、硝化脱窒が進行し、イ ネにとって利用可能な無機態窒素が不足したことが一因と考えられる。



図(2)-19 無機態窒素収支

窒素収支に見られたように、イネによる吸収は発酵残さを施肥した系で低かった。これは、収 量にも反映されている。図(2)-20に示すように、MCおよびMIは、Cよりも低い収量となった。 高温乾式メタン発酵と多収米飼料イネ栽培のコベネフィットシステムにおいて、豚への飼料供給 および高温乾式メタン発酵への稲ワラ供給に大きく影響する。窒素収支において、MI系の窒素吸 収量がMC系よりも低い原因は、間断灌漑による脱窒と考察された。しかし、脱窒は計測して求め られた値ではないので、実測により明らかにする必要がある。



図(2)-20 収穫した多収米飼料イネの各部位のバイオマス重量

(3) 安定同位体を用いた発酵残渣を施肥した水田の脱窒速度の評価

1)間断灌漑が硝化速度におよぼす影響

図(2)-21に異なる水管理における硝化速度の変化を示す。ポット表層での硝化活性は、 植栽期間を通して間断灌漑系が常時湛水系より高い値を示した。硝化速度の制限因子にはアンモ ニア態窒素濃度と酸素供給などがあり、間断灌漑系では落水時に土壌表層に酸素が供給されるた め硝化反応が促進されたと考えられる。

間断灌漑系では1回目、2回目の追肥後に硝化活性が高くなり、他の間断灌漑系でも追肥後に活性が高くなった。この理由としては、追肥によって大量のアンモニア態窒素が供給され土壌中に反応基質が十分に存在したこと、落水時に酸素が供給されたことが挙げられる。また、2回目の追肥前には中干しを行っており、土壌Ehが高く、酸素が土壌中に多く供給されている状態であったため、硝化活性が高くなったと考えられる。

また、間断灌漑系、常時湛水系共に3回目の追肥前には硝化活性が低くなった。この3回目の追 肥前の時期は飼料イネが出穂前の最も窒素を吸収する時期である。このため、土壌中に残存する アンモニア態窒素や、有機態窒素の無機化によって生成したアンモニア態窒素が飼料イネに吸収 され、反応基質が少なくなり、活性が低下したと考えられる。

本実験における最大硝化活性は間断灌漑系で48.7 µg-N/g-乾土/day、常時湛水系で 10.7µg-N/g-乾土/dayであった。この値は他の文献で¹⁵Nを用いて測定された水田の最大硝化活性が3~10 µg-N/g-乾土/day(長谷部、1985)であるのに対して間断灌漑系では5倍以上高い値であった。こ れは通常の水田と比較して窒素負荷が高いこと、間断灌漑により表層土壌が酸素と直接触れる落 水状態が存在することで硝化が促進されたものと考えられる。



2)¹⁵N₂希釈法と¹⁵Nトレーサー法による脱窒速度測定の比較

(2)では、発酵残さを施肥した多収米飼料イネ水田における収量低下の原因として、脱窒に よる窒素の損失が原因のひとつとして考えられた。そこで、発酵残さを施肥した土壌の脱窒を¹⁵N₂ 希釈法により評価した。表(2) - 5に実験結果を示す。¹⁵N の存在比が、x₁よりx₂のほうが濃く なったため、脱窒速度(N₂発生量)が負の値となった。この原因として考えられるのは、サンプリン グ法を破壊試験法で実施したため、各バイアルの差が大きく影響してしまったことも考えられる。 再実験では、破壊試験法ではなく、大きい三角フラスコなどにより培養を行う必要があると考え られる。また、サンプリング中に外気の高濃度の窒素のコンタミの影響も大きくなることが予想 される。従って、グローブボックスにArを満たし、その中で培養・サンプリング等を行うことで、 窒素のコンタミを防ぐ必要がある。

処理区	窒素初期濃 度 C ₀ [mgN/mL]	¹⁵ N 存在比 X ₁ [atm%]	¹⁵ N 存在比 X ₂ [atm%]	発生 ¹⁵ N 存在比 Xn [atm%]	N ₂ 発生量 [mgN/mL/d]
¹⁵ N 希釈法	0.22	11.73	15.66	0.37	-0.0019
¹⁵ N トレーサー法	0.18	0.61	1.52	99.6	0.000058

表(2)-5 予備実験 結果

3) 発酵残渣を施肥した多収米飼料イネにおける脱窒量の評価

図(2)-22 にポット試験における¹⁵N希釈法による脱窒速度を示す。通常の土壌の脱窒速度 は30 mg-N/m²/day程度であるが、今回の結果はその1000倍ほどの値となった。ばらつきも大きいこ とから、ポット試験では正しく脱窒速度が評価できていないことが考えられた。その原因として、 外気の窒素による汚染が考えられた。



図(2)-22¹⁵N希釈法による脱窒速度(図中のバーは標準偏差)

ポット試験における¹⁵N希釈法の結果が外気の窒素ガスによる汚染の影響か確認するために、密 閉試験を行った。土壌微生物による脱窒の影響を除外するため、空のポットに水を満たし、¹⁵N₂希 釈法による脱窒測定と同様の操作を行った。密閉試験の結果を以下に示す。


図(2)-23¹⁵N希釈法 密閉試験

今回は2つ(chamber 1および2)のチャンバーを試験した。図(2)-22と比較するため、脱窒 速度の単位に換算した。密閉試験の結果は図(2)-22の脱窒速度より小さい値となったが、 一般的な脱窒速度に比べて300-500倍高い値を取っているため、脱窒由来でない部分の窒素変化が 大きいことがわかった。

ポット試験において一般的な脱窒速度を10%の精度で捉える場合、0.4 mlの空気の混入しか許されない。また、チャンバー密閉中における外気の窒素ガスによる汚染だけでなく、サンプリング中にける窒素の混入も考えられる。今後は、どの部分での窒素の混入の影響が一番大きいかを確認し、その対策を考えていくことが必要である。

5. 本研究により得られた成果

(1)科学的意義

高温乾式メタン発酵残さを水田に施肥した例はこれまでに報告されておらず、本サブテーマで 得られたデータは初めてである。さらに、CO₂の約300倍の温室温室効果を有するN₂0の水田土壌中 における生成機構は未だ明らかにされていない。本研究では、発酵残さを施肥した水田土壌表層 のO₂およびN₂0濃度分布を計測することにより、落水後の突発的なN₂0生成のタイミングおよび位置 を特定することができた。このように落水後の水田土壌表層のN₂0濃度分布の計測は初めての試み であり、N₂0生成機構の解明に資するデータと考えられる。

乾式メタン発酵残渣を肥料として実際の水田で初めて多収米飼料イネを栽培し、水環境負荷および温室効果ガス排出量を定量的に明らかにできた。多収米飼料イネの生育期間を通して、発酵残さを施肥した水田の浸透水中のNO₃--N濃度は低く、地下水汚染のリスクはきわめて低いと考えられる。

発酵残さを施肥した多収米飼料イネ水田における窒素浄化能を評価する上で、脱窒の計測は重要である。土壌をかく乱することなく脱窒を計測する手法は未だ提案されていないため、本研究で提案した¹⁵N₂ガス希釈法は発酵残さを施肥した水田における脱窒量の評価に有効な手法と考え

られる。しかし、本研究で示したように、本手法を脱窒量の計測に応用するには外気窒素による 汚染の回避などまだ克服すべき課題があることがわかった。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない

<行政が活用することが見込まれる成果>

高温乾式メタン発酵残さを施肥した水田土壌からの温室効果ガス発生の特性を始めて明らかに した。本研究で得られたデータは、発酵残さを施肥した水田土壌の温室効果ガス排出量算定にお ける知見を提供するものと考えられる。

また、発酵残さを施肥した多収米飼料イネ水田における窒素溶脱量は、畜産地域に本システム を適用した際の水環境への窒素負荷を推定する上で有用と考えられる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない

7. 研究成果の発表状況

(1)誌上発表
<論文(査読あり)>
特に記載すべき事項はない
<査読付論文に準ずる成果発表>
特に記載すべき事項はない

<その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない

(2) 口頭発表(学会等)

特に記載すべき事項はない

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない

(4) シンポジウム、セミナーの開催(主催のもの)

特に記載すべき事項はない

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない

(6) その他

特に記載すべき事項はない

8. 引用文献

- 森昭憲(2010)家畜ふん尿の新処理・利用技術と課題:2.家畜ふん尿に含まれる重金属元素、日本土壌肥料学雑誌、81、413-418
- 長谷部亮(1990)水田圃場における硝化脱窒に関する研究-特に酸化層・還元層の分化とアンモニ ア酸化菌の生態について-、北陸農試報、32, 123-170
- Koike I. and Hattori A. (1978) Simultaneous determinations of nitrification and nitrate reduction in coastal sediments by a 15N dilution technique, Applied and Environmental Microbiology, 35(5), 853-857
- Nishio T. (1994) Estimating nitrogen transformation rates in surface aerobic soil of a paddy field, Soil Biology and Biochemistry, 26(9), 1273-1280

(3) 発酵残さを用いた多収米の生産評価

東京農工大学 大学院農学研究院 豊田剛己

平成23~25年度累計予算額:18102千円

(うち、平成25年度予算額:3860千円)

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

乾式メタン発酵と多収米を用いたコベネフィットシステムの構築において、多収米飼料イネ栽 培におけるモミおよび稲ワラの生産性は、自給飼料の供給可能量および乾式メタン発酵における メタンガス生成量ならびに処理可能豚ふん尿量を決定する上で重要である。本研究では、多収米 飼料イネ生産における乾式メタン発酵残さの肥料効果を明らかにする。発酵残さの肥料としての 価値を評価するために、化学肥料や堆肥、湿式メタン発酵消化液による多収米飼料イネ栽培成績 と比較を行った。また、乾式メタン発酵残さ施肥に伴う環境負荷を調査した。

ポット試験およびライシメータ試験ともに、多収米飼料イネの収量(モミおよび稲ワラ)を比 較したところ、乾式メタン発酵残さは化学肥料、堆肥および湿式消化液と同等の施肥効果が確認 された。

一方、乾式メタン発酵残さ施肥は、化学肥料施肥の数倍、堆肥および湿式消化液施肥と同等の CH₄を発生することがわかった。しかし、硝酸性窒素の流出はほとんど見られず、地下水汚染の危険はないと考えられた。また、重金属であるCuやZnの土壌および飼料イネへの蓄積も少ないこと が明らかとなった。

[キーワード]

乾式メタン発酵残さ、多収米飼料イネ、収量、肥料、環境負荷

1. はじめに

乾式メタン発酵と多収米を用いたコベネフィットシステムの構築において、多収米飼料イネ栽 培におけるモミおよび稲ワラの生産性は、自給飼料の供給可能量および乾式メタン発酵における メタンガス生成量ならびに処理可能豚ふん尿量を決定する上で重要である。通常、水稲栽培では 堆肥などの有機物と化学肥料を肥料としている。わが国の水稲栽培では、過度の生長による倒伏 を避けるために、窒素施肥量はせいぜい100 kg-N/haであり、バイオマスの生産量は少ない。一方、 多収米飼料イネは、通常の食用イネよりも高い窒素吸収性、耐倒伏性および高バイオマス生産性 を有するという特徴があるため、多肥栽培が可能である。本研究において提案するシステムでは、 乾式メタン発酵より発生する発酵残さを唯一の肥料として多収米飼料イネ栽培を実施することを 前提としている。しかしながら、これまでに豚ふん尿および稲ワラの乾式メタン発酵残さを単一 の肥料とする多収米飼料イネ栽培は報告例がなく、発酵残さによる多収米の生産性は不明である。

2. 研究開発目的

本研究では、多収米飼料イネ生産における乾式メタン発酵残さの肥料効果を明らかにする。発 酵残さの肥料としての価値を評価するために、化学肥料や堆肥、湿式メタン発酵消化液による多 収米飼料イネ栽培成績と比較を行う。

3. 研究開発方法

(1) 発酵残さが多収米飼料イネの生育および環境負荷におよぼす影響

1)肥料の種類および窒素施肥量の効果(ポット試験)

発酵残さの多収米品種タカナリに対する肥料効果を0.05 m²のポット(5反復)を用いて評価した。 発酵残さとしては長野県穂高広域施設組合から入手した乾式メタン汚泥を用いた。この時、比較 対象として化学肥料(高度化成、N:P:K=14:14:14)ならびに堆肥、湿式のメタン発酵消化液を用 いた。

多収米栽培時の施肥設計を表(3)-1に示す。施肥は6月中旬に行い、1-2週間後にイネの幼 苗を移植し、常時湛水条件下で栽培した。10月中旬に収穫、その後落水し、11月初旬に施肥を行 い、コムギを播種した。イネの収穫以降は灌水せず畑状態の水分条件とした。

収穫したイネは、茎葉部と穂部にわけて80℃で乾燥し、乾物収量を求めるとともに、粉砕後CN コーダーで窒素含量を測定し、収量と窒素含量から窒素吸収量を求めた。試験期間中、適宜チャ ンバー法にてガスを採取し、メタンおよび亜酸化窒素排出速度をそれぞれFID-GCおよびECD-GCを 用いて測定した。

(ポッ	ト試験 (0.05 m ²) 6月	~10月:飼料イネ	礻、11月~:コムギ)
処理区	肥料	窒素施肥量	施肥パターン
化肥30	化学肥料	30 g N/m^2	基肥、追肥2回
灰肥区	化学肥料+コムギ灰 (860g/m ²)	30 g N/m^2	基肥、追肥2回
湿式30	湿式メタン消化液	$30 \text{ g N}*1/\text{m}^2$	基肥、追肥2回
堆肥30	堆肥	$30 \text{ g N}*2/\text{m}^2$	基肥のみ
乾式15	乾式メタン発酵残さ	$15 \text{ g N*}3/\text{m}^2$	基肥のみ
乾式30	乾式メタン発酵残さ	$30 \text{ g N*}3/\text{m}^2$	基肥のみ
乾式45	乾式メタン発酵残さ	$45 \text{ g N*}3/\text{m}^2$	基肥のみ

表(3) - 1 イネ栽培における施肥設計

2) 発酵残さの連用が多収米生産に及ぼす影響(ライシメータ試験)

発酵残さの多収米品種タカナリに対する肥料効果を1 m²のライシメータ(3反復)を用いて評価 した。多収米栽培時の施肥設計を表(3)-2に示す。施肥は6月中旬に行い、1-2週間後にイネ の幼苗を移植し、常時湛水条件下で栽培した。ライシメータ試験では11月中旬に収穫し、それ以 降は無作付けの状態で灌水せず、畑状態のまま管理を続けた。なお、乾式メタン発酵残さを施肥 した水田からのCH4排出の削減を実施するために、2013年度のみ、堆肥区を乾式メタン発酵残さお よびスラグ区とした(乾式+スラグ区)。スラグは、製鉄の副産物であり、酸化鉄を含有している。 この酸化鉄が水田における還元化を抑制し、土壌中におけるメタン生成を抑制すると考えられて いる。

収穫したイネは、茎葉部と穂部にわけて80℃で乾燥し、乾物収量を求めるとともに、粉砕後CN コーダーで窒素含量を測定し、収量と窒素含量から窒素吸収量を求めた。試験期間中、適宜チャ ンバー法にてガスを採取し、メタンおよび亜酸化窒素発生速度をそれぞれFID-GCおよびECD-GCを 用いて測定した。

	11(0) 2				
処理区	肥料	窒素施肥量	施肥パターン		
化肥30	化学肥料	30 g N/m^2	基肥、追肥2回		
湿式30	湿式メタン消化液	30 g N*1/m ²	基肥、追肥2回		
堆肥30	堆肥	30 g N*2/m ²	基肥のみ		
乾式30	乾式メタン発酵残さ	30 g N*3/m ²	基肥のみ		
*1:アンモニア態窒素量(4.7 g NH ₄ -N/L, pH 6.9)で換算					

表(3)-2 イネ栽培におけろ施肥設計(ライシメータ)

*2:全窒素(26 mg/g)の50%が無機化されるとして換算

*3:無機態窒素量(2.6 mg/g)+有機態窒素(3.0 mg/g)の50%が無機化されるとして換算

湿式メタン消化液:豚糞尿原料(養豚農家)

堆肥:豚糞尿原料(太洋興産)

乾式メタン発酵残さ:生ゴミ原料(穂高広域施設組合)

(2) 発酵残さ施肥に伴う環境負荷の評価

試験期間中、サブテーマ(2)で記載した方法に準じて、ポット試験およびライシメータ試験 において、適宜チャンバー法にてガスを採取し、メタンおよび亜酸化窒素排出速度をそれぞれ FID-GCおよびECD-GCを用いて測定した。

また、水田からの窒素の地下水への溶脱については、ポット試験およびライシメータ試験にお いて、浸透水を採取し、地下水成分を分析することから、窒素溶脱量を評価した。

銅や亜鉛は飼料添加物として、特に豚の飼料に添加される。したがって、銅や亜鉛がメタン発 酵残さに含まれ、土壌中に蓄積し、多収米に吸収される可能性があることから、作物(茎葉部と 穂部)中の銅や亜鉛の全量分析を行った。さらに土壌中の分析には、交換態の銅および亜鉛を定 量するするため、0.1N塩酸抽出および1N酢安(酢酸アンモニウム)抽出による分析を実施した。

4. 結果及び考察

(1) 発酵残さが多収米の生育および環境負荷におよぼす影響

1)肥料の種類および窒素施肥量の効果(ポット試験)

乾式メタン発酵残さを施用して1週間後に苗を移植したポット試験では、乾式残さを多量に施用 した乾式45区で初期生育が若干抑制された。したがって、乾式残さは植物に対する生育抑制効果 を有することが確認されたが、移植後1ヶ月以降は生育抑制はみられなくなり、むしろ残さ添加量 が多いポットほど、イネの生育は良好になった。乾式残さのイネに対する初期の生育抑制効果は 湿重で3.7%添加した乾式30区ではみられなかった(図(3)-1)。別途行ったポット試験では、 乾式45区でも乾式残さを施用して2週間し経ってから苗を移植したところ、生育抑制効果は見られ なくなったので、施肥と苗の移植のタイミングを考慮すれば、乾式残さの生育抑制効果は容易に 回避できることがわかった。

ポット試験での収穫時の乾物収量は、化肥区に比べ乾式 15 区は劣ったが、乾式 30 区、乾式 45 区と残さ施用量が多くなるほど収量が高まったことから、乾式残さの肥料効果を確認することができた(図(3)-2)。



図(3)-1 ポット試験での収穫間近の様子



図(3)-2 各種有機物を肥料源とした多収米(タカナリ)の乾物生産量

2) 発酵残さの連用が多収米生産に及ぼす影響(ライシメータ試験)

ライシメータ試験の様子を図(3) - 3を示す。また図(3) - 4にH23年度のライシメータ試 験におけるタカナリの収穫物の乾物重、窒素含量および窒素吸収量を示す。ライシメータ試験で もタカナリは良好な生育を示し、乾式メタン残さ30区は化学肥料区と同程度の乾物生産量を示し た(図(3) - 4a)。湿式メタン消化液区では化学肥料と同様に基肥と追肥2回の合計3回の施肥 を行ったが、堆肥および乾式メタン残さ区は基肥の1回しか施用していない。それにもかかわらず ほぼ同等の収量が得られたことは、これら有機物の施用により土壌微生物バイオマスが高まると 同時に無機態窒素の一部が微生物バイオマスプールに貯えられ、それらが生育後半の窒素源とな ったと推定された。ところで、同一処理区でも0.05 m²のポットに比べ(図(3) - 2)、1 m²の ライシメータでは乾物生産量が3割以上低下したことから(図(3) - 4a)、圃場試験ではさら なる収量の低下が予想される。生産性の正確な評価には圃場試験が不可欠と考えられた。

一方、イネ体の窒素含量は、3回の施肥を行った化肥30区、湿式メタン消化液30区に比べると、 堆肥30区、乾式メタン残さ30区では若干低かったが、乾物生産量は高かったために単位面積当た りの窒素吸収量は化肥30区、堆肥30区、乾式メタン残さ30区間で差はみられなかった(図(3) -4a、b)。



図(3)-3 ライシメータ試験での生育最盛期



図(3)-4 ライシメータ試験において収穫されたタカナリの(a)収穫物の乾物重、(b)窒素 含量および(c)窒素吸収量

図(3)-5にライシメータ試験による3年間の乾物生産量を示す。この推移から、乾式メタン 発酵残さ、湿式メタン消化液ともに化学肥料と同程度の肥料効果を有することが明らかとなった (図(3)-3)。化学肥料と湿式メタン消化液は基肥と追肥2回の合計3回の施肥を行っている の対し、乾式メタン発酵残渣区では基肥の1回しか施肥していない。それにも関わらず同程度の肥 料効果を示したことは、乾式発酵残さに含まれる有機態窒素が栽培期間中徐々に無機化され、イ ネに対する追肥として機能したと考えられた。



図(3)-5 ライシメータ試験における多収米(タカナリ)の乾物生産量 (2013年の堆肥区は乾式残さ+スラグ区)

(2) 発酵残さ施肥に伴う環境負荷の評価

1) 多収米飼料イネ栽培における温室効果ガス排出(ポット試験)

イネの栽培期間中のメタンフラックスは、生育初期は、乾式30ならびに乾式45区で非常に高い 値となった(図(3)-6)。ついで、堆肥30区、乾式15区となった。施用した有機残さ中に含 まれる炭素含量が高いほどメタン発生量が高くなることが確認された。N₂0の発生は認められなか った。



2) 多収米飼料イネおよびコムギ栽培における温室効果ガス排出(ライシメータ)

図(3) - 7に、多収米飼料イネを栽培したライシメータにおけるCH₄フラックスを示す。栽培 期間中のメタンフラックスは、いずれの年度においても化学肥料区は一貫して低い値となり、い ずれの残さ添加区では高い値となった(図(3)-7)。有機物の施用に伴うメタン発生量の増加は、これまでの既存の知見と一致した。

茨城県行方市の実際の水田で実施した結果(図(2)-13)と同様、栽培初期に高いCH₄フラ ックスが乾式区で観測された。一方、この挙動は堆肥区でも観察されているが化肥区では観察さ れておらず、有機物を基肥として施肥した水田では共通して見られると考えられる。また、ライ シメータ試験の乾式30区におけるCH₄フラックスの最大値(約94 mg-C/m²/h)は、図(2)-13 よりも高い値となった。この原因として、浸透速度の違いが考えられる。ライシメータ試験では 浸透速度を1 mm/dayにしていたが、茨城県行方市の水田では約1 cm/dayと10倍近い浸透速度だっ た。浸透速度は、土壌中への溶存0₂の輸送に重要であり、土壌の還元化にも影響する因子である。 ライシメータ試験では浸透速度が小さかったため、土壌がメタンを生成しやすい状態だったと考 えられる。



(ADS:湿式区、DryBS:乾式区)

栽培期間中の累積CH₄発生量は、年次変動があるものの、化学肥料に比べ堆肥、湿式消化液および 乾式発酵残さは高いCH₄発生量となった。この結果は、茨城県行方市における実際の水田での結果 (図(2)-16)と一致する。また、乾式メタン発酵残さを施肥した水田は、従来水田で用い られる有機物である堆肥を施肥した水田とほぼ同等のメタン排出であることがわかった。通常、 堆肥をすき込んだ水田のメタン排出は稲ワラをすき込んだ水田よりも低い。これは堆肥化により 易分解性の有機物が除去されているためである。発酵残さも、高温乾式メタン発酵過程で易分解 性の有機物がメタンに変化したため、堆肥と同様水田にすき込んだ際のメタン生成が抑制された と推察される。

スラグを添加することにより有意差はなかったが(2013年度のみ)、乾式発酵残さ区のメタン 発生量が8%減少した(図(3)-8)。乾物生産量1kg当たりのメタン発生量を求めたところ、 化学肥料区の19gに対し、湿式消化液区では40g、乾式発酵残さ区では41gとなった。乾式+スラグ 区では35gとなり、乾式区に比べ乾物当たりのメタン発生量が15%低下し、スラグ添加によるメタ ン発生量の低減効果が示唆された。



図(3)-8 ライシメータ試験における多収米(タカナリ)栽培時のメタン発生量

3) 多収米飼料イネ栽培における窒素溶脱

イネの生育期間(2011年)を通して、浸透水中の硝酸態窒素濃度は一貫して0.5 mg/L以下と低い値を示した(図(3)-9)。2011年および2012年とも、浸透水中の硝酸性窒素は、2012年6月 (基肥を施肥したときのみ)を除けば、すべての処理区において、1 mg/1以下だった。従って、 窒素が硝酸性窒素として溶脱するリスクはほとんどないといえる。



4)作物中の銅および亜鉛

銅や亜鉛は飼料添加物として、特に豚の飼料に添加される。用いた肥料中にも化学肥料には1kg 当たり8mgの銅(施用量としては2mg/m²)と64gの亜鉛(14mg/m²)であったのに対し、湿式メタン 消化液には1L当たり4mgの銅(32mg/m²)と8mgの亜鉛(64mg/m²)、乾式メタン発酵残さには1kg当 たり21mgの銅(64mg/m²)と20mgの亜鉛(106mg/m²)が含まれていた。化学肥料に比べて発酵残さ 施用により、銅では10倍以上、亜鉛でも4倍以上が添加される計算となった。これらを施用した水 田で収穫されたイネ体の重金属含量は、銅に関してはサンプル間のバラツキがきわめて大きく正 しく分析できていない可能性は残るものの、処理区間に有意差は認められなかった(表(3)-3)。

一方、亜鉛についても、湿式メタン消化液区の亜鉛含量が他の処理区と比べ高くなったが、穂 部では処理区間の違いはなかった。土壌中の交換態含量は、亜鉛においては0.1N塩酸抽出画分の 含量が化学肥料区に比べて発酵残さ添加で有意に高くなり、湿式消化液あるいは乾式発酵残さの 添加で土壌中の交換態亜鉛含量が高くなることがわかったが、1N酢安(酢酸アンモニウム)抽出 画分ではむしろ減少した。銅では、湿式消化液と乾式発酵残さの添加により0.1N塩酸抽出画分の 含量が高くなったが、スラグを同時に添加することでこの増加の程度は緩和された。

欧州において土壌中の上限値が 1kg 土壌当たり Cu では 50~140mg、亜鉛で 150~300mg (Commission of the European Communities 1986) と定められている。また、日本の土壌環境基 準は 0.1N 塩酸抽出で銅 125mg である。本湿式消化液区は 8 年間施用されてきたが、それでも化学 肥料区の 42mg から 55mg へと 13mg 増加したにすぎず、数十年の連用により上限値を超える可能性 は極めて低いと考えられる。さらに化肥区の飼料添加物の上限値が 1kg 当たり銅で 125mg、亜鉛で 120mg と設定されているので(森昭憲, 2010)、イネへの吸収の点でもこの上限値を超える可能性 はきわめて低く、これらの重金属蓄積の観点から持続性の高い肥料と言える。

7_{12} (m m / la m)	化学肥料		湿式消化液		乾式発酵残さ		乾式+スラグ	
Zn (mg/kg)	平均值	SD	平均值	SD	平均值	SD	平均值	SD
茎葉部	29.1	2.3	32.7	3.0	31.8	4.8	27.0	1.6
穂部	22.9	6.9	23.5	2.4	20.5	4.2	22.1	3.7
交換態(0.1N塩酸)*	35.8	0.4	38.1	1.5	37.2	2.1	43.3	1.6
交換態(1N酢安)*	1.32	0.08	0.90	0.25	0.68	0.08	0.56	0.19
(11 (mg/lsg))	化学肥料 湿式消化液		化液	乾式発酵残さ		乾式+スラグ		
Cu (mg/kg)	平均值	SD	平均值	SD	平均值	SD	平均值	SD
茎葉部	5.7	0.5	4.3	4.3	6.1	4.9	10.4	8.1
穂部	8.2	9.4	6.9	2.6	6.3	4.3	9.8	7.0
交換態(0.1N塩酸)*	41.5	0.3	55.0	2.3	49.0	3.5	36.5	6.6
交換態(1N酢安)*	0.57	0.04	0.75	0.10	0.55	0.08	0.74	0.04

表(3)-3 イネ体の銅・亜鉛含量と土壌中のそれらの交換態含量(2013年度)

*土壤0-10cm、SD:標準偏差

5. 本研究により得られた成果

(1)科学的意義

乾式メタン発酵残さを肥料として施肥した際の肥料効果に関する研究はこれまでに報告されて いなかった。乾式メタン発酵残さには化学肥料およびその他の肥料と同等の肥効があることが本 研究より明らかになった。さらに、豚ふん尿および稲ワラ由来の乾式メタン発酵残さは、天然由 来有機肥料であるという点から、農家にとって利用しやすく、乾式メタン発酵-多収米飼料イネ栽 培システムへの適用可能性が示された。一方、本研究では発酵残さの施用によりイネの初期生育 抑制が観察されたため、そのメカニズムを明らかにし、対策を立てることが今後重要と考えられ る。

一方、環境の観点では、豚の飼料に添加される銅や亜鉛の土壌や飼料イネへの蓄積が少ないこ と、および硝酸性窒素の溶脱はほとんどないことから、持続性の高い肥料であると考えられる。 ただし、温室効果ガス排出の点では、高温乾式メタン発酵を施肥した水田は化学肥料による栽培 よりも数倍のメタンを排出するため、間断灌漑など削減策を講じることが重要である。

(2)環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない

<行政が活用することが見込まれる成果>

豚ふん尿および稲ワラ由来の乾式メタン発酵残さは、天然由来有機肥料であるという点から、 発酵残さを活用した多収米飼料イネの環境保全型農業の促進につなげることができると考えられ る。また、乾式メタン発酵への稲ワラの適用は、未利用バイオマスの利用促進につながるだけで なく、稲ワラの水田へのすきこみによるメタン排出量の増加を抑制する上でも効果があり、我が 国の農林水産分野の温室効果ガス排出抑制技術として利用可能と考えられる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

特に記載すべき事項はない

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない

<その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない

(2) 口頭発表(学会等)

- K. Toyota: China-Japan Bilateral International Symposium on Decontamination of Biogas Slurry in Paddy Field Ecosystem and Control of Agricultural Diffuse Pollution, Hangzhou, China, Dec. 8-9, 2011 "Biomass Production and lodging resistance of a whole crop rice variety (*Oryza sativa* L. Leaf star) and CH4 emission in a paddy field fertilized with biogas slurry"
- 2) F. Li and K. Toyota: China-Japan Bilateral International Symposium on Decontamination of Biogas Slurry in Paddy Field Ecosystem and Control of Agricultural Diffuse Pollution, Hangzhou, China, Dec. 8-9, 2011 "Effects of different agricultural wastes on greenhouse gas emission from and microbiological properties of soil fertilized with them"
- 3) ヌリバヌム アブドケリム、豊田剛己:2013年度日本土壌微生物学会(2013)「メタン発 酵消化液の土壌病害に及ぼす影響」
- 4) 下田千晶、豊田剛己、本林隆:2013年度日本土壌肥料学会(2013)「異なるメタン発酵消 化液を水田に施用した際の環境負荷の定量」

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない

(4) シンポジウム、セミナーの開催(主催のもの)

特に記載すべき事項はない

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない

(6) その他

特に記載すべき事項はない

8. 引用文献

- Commission of the European Communities (1986) Council directive (86/278/EEC) on the protection of the environment, and in particular of the soil, when sewage sludge is used in agriculture. 0JEC, 181, 6-12.
- 森昭憲(2010)家畜ふん尿の新処理・利用技術と課題:2.家畜ふん尿に含まれる重金属元素、日本土壌肥料学雑誌、81、413-418

(4) システムの物質・エネルギー収支の解析

東京農工大学 大学院工学研究院

秋澤 淳

東京農工大学 大学院工学研究院

細見正明

(前 東京農工大学 特任准教授 下ヶ橋雅樹)

(現 国立保健医療科学院 下ヶ橋雅樹)

平成23~25年度累計予算額:5572千円

(うち、平成25年度予算額:1010千円)

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

原単位法を用いて、1000頭の養豚における従来法(豚舎、分離ふんの堆肥化処理施設および分離尿の排水処理施設)および提案法(豚舎、豚ふん尿の高温乾式メタン発酵施設および多収米飼料イネ水田)の導入および運営における物質・エネルギー・コスト・温室効果ガスの収支解析を 実施し、提案する循環型豚ふん尿処理システムの優位性を明らかにした。

物質およびエネルギー収支解析の結果、C/N比=20および30の場合、多収米飼料イネ水田はそれ ぞれ34および84 ha必要になることがわかった。この結果、発酵残渣を肥料として水田に施肥した 際の窒素負荷量は、C/N比=20および30でそれぞれ244および158 kg-N/haとなった。

システムにおける環境負荷を比較したところ、年間の水環境への窒素負荷は従来法の排水処理 施設は3.8 t-N/年に対し、提案法の多収米飼料イネ水田はC/N比=20および30でそれぞれ0.33およ び0.54 t-N/年だった。温室効果ガス排出は、従来法では豚ふん尿の処理過程における温室効果ガ ス排出が支配的だった。一方、提案法では水田の水管理を間断灌漑にすることで、正味の温室効 果ガス排出量を従来法に比べC/N比=20および30で73および74%削減可能であることが示された。

システムの経済性を評価した結果、1000頭規模では養豚農家および水田農家の両業者が最低限 必要な所得を確保できないことがわかった。しかし、規模を7000頭に拡大し、水田への補助金を 活用することで経済的に成り立つことがわかった。以上から、養豚規模7000頭以上、水田を間断 灌漑で管理し、補助金を活用した場合、提案システムが経済的に成り立ちかつ環境低負荷型とな ることが明らかとなった。

[キーワード]

原単位法、温室効果ガス、水環境負荷、経済性、最適化

1. はじめに

サブテーマ(1)および(2)では、それぞれ豚ふん尿と稲ワラの高温乾式メタン発酵の最適 化および発酵残さを施肥した多収米飼料イネ水田における環境負荷の削減を実施した。一方、高 温乾式メタン発酵および多収米飼料イネ栽培は、提案するシステムの一部分に過ぎない。従って、 高温乾式メタン発酵の処理性能および多収米飼料イネ水田における収量・環境負荷を最適化した としても、プロセス全体の実現可能性や環境負荷およびコストの面で従来の養豚業よりも優位で あることを示すことができるわけではない。従って、豚舎、高温乾式メタン発酵および多収米飼 料イネ水田を含めた養豚システム全体で物質、エネルギーおよび経済収支を明らかにした上で、 システムの実現可能性、環境負荷および収益性を従来の養豚システム(豚舎、排水処理、堆肥化) と比較する必要がある。

2. 研究開発目的

原単位法を用いて、従来の豚ふん尿処理システムと提案する循環型豚ふん尿処理システムの両 方で物質・エネルギー・コスト・温室効果ガスの収支解析を行う。従来の豚ふん尿処理システム と比較し、経済性および環境負荷(水環境への窒素負荷量、温室効果ガス排出量)という両面か らシステムの実現可能性を評価する。また、システムが実現可能である条件を明らかにする。

3. 研究開発方法

本サブテーマにおいては1000頭の養豚における従来法および提案法における各種収支を解析した。従来法におけるシステムフロー(図(4)-1)は、豚舎内でふん尿分離後、ふんは堆肥化・ 尿汚水は活性汚泥処理、というものである。提案法におけるシステムフロー(図(4)-2)は、 豚舎より発生するふん尿混合スラリーに稲ワラを混合し、乾式メタン発酵処理を行う。発生する 発酵残渣は多収米飼料イネ水田へ施肥、収穫した籾部分は豚用配合飼料の10%を代替する、とした。



図(4)-1 従来法のシステムフロー



図(4)-2 提案法のシステムフロー

計算手順を図(4)-3に示す。まず、入力条件を設定した。従来法については、養豚の規模 (戸数)を入力条件として、肥育豚1000頭規模の養豚農家(1戸)の戸数を設定した。提案法につ いては、養豚の規模(戸数)に加えて、豚舎・高温乾式メタン発酵施設・多収米飼料イネ水田の 各ユニット間の距離、高温乾式メタン発酵の運転条件であるC/N(20 or 30)、飼料イネ水田への 補助金(有 or 無)、水田の水管理方法(常時湛水or 間断灌漑)を入力条件として設定した。 飼料イネ水田への補助金は、飼料自給率の向上、また経営の成立のために飼料イネ栽培へ国が補 助しているものである。また、水田の水管理方法とは、常時湛水および間断灌漑である。従来の 水管理方法である常時湛水に対して、水を間欠的に落水する間断灌漑を行うことで飼料イネ栽培 中の温室効果ガス排出量の削減が可能である。

入力条件を設定後、文献および実験から収集した原単位を用いて、物質、エネルギー、コスト および温室効果ガスの収支を計算した。従来法における計算は、豚舎、堆肥化処理施設、排水処 理施設に分類して行い、提案法における計算は、豚舎、高温乾式メタン発酵、多収米飼料イネ水 田、輸送プロセスに分類して行った。また、物質収支の計算は、消費および生成の両方を行い、 エネルギー、コスト、温室効果ガス収支の計算は、導入段階および運営段階の両方を行った。

評価方法は、経済性と環境負荷(水環境への窒素負荷量、温室効果ガス排出量)の観点で、従 来法と提案法を比較することで行った。ただし、水環境への窒素負荷量とは、従来法では排水処 理後の処理水の放流、提案法では飼料イネ水田における発酵残渣由来の窒素の地下浸透によるも のである。



図(4)-3 評価手順

4. 結果及び考察

(1)物質およびエネルギー収支

従来法および提案法(C/N比=20および30)における物質・エネルギー収支を図(4)-4に示 す。ただし、図(4)-4は、1年間あたりのものである。C/N比=20および30の両方において、高 温乾式メタン発酵の基質として投入する玄米はそれぞれ73,426 tと、生産される玄米のうち65, 92%を占めた。これは、豚ふん尿を処理するために必要な炭素源(稲ワラおよび玄米)を確保しよ うすると、多収米飼料イネ水田がそれぞれ34,84 haと莫大な面積を要することに起因する。また、 C/N比=30では、C/N比=20よりも炭素源が約2倍多く必要であるため、C/N比=20よりも約2倍必要と なる項目は、高温乾式メタン発酵施設の発酵槽(C/N=20:159 m³,C/N比=30:321 m³)、稲ワラの 輸送に必要な大型トラックの台数(C/N=20:1台,C/N比=30:2台)、発酵残さ輸送に必要なスラリ ータンカーの台数(C/N=20:3台,C/N比=30:6台)の3項目であり、またそれらの導入・運営にかか る物質・エネルギー量も2倍必要であることがわかった。一方で、回収できるバイオガスの量も約 2倍であるため、コ・ジェネ発電により回収できる電力・熱量は約2倍得られることがわかった。ま た、C/N比=20および30の両方において、コ・ジェネ発電により回収した熱量を高温乾式メタン発酵 に供給することで、高温乾式メタン発酵で必要な熱量をまかなえることがわかった。発酵残渣を 肥料として水田に施肥した際の窒素負荷量は、C/N比=20および30ではそれぞれ244,158 kg-N/ha だった。

以上より、提案法であるC/N比=20および30では、それぞれ多収米飼料イネ水田が34 haおよび84 haと莫大な面積を必要するが、水田面積を十分に確保することができれば、水田への窒素負荷量の観点からも十分に成立可能であることがわかった。



(養豚の規模1000頭、各ユニット間の距離10 km、1年間あたり)

従来法のシステムにおける炭素および窒素収支を図(4)-5に示す。炭素収支において、シ ステムへの流入は輸入飼料(172 t C)およびオガクズ(46 t C)だった。収支計算の結果、流入 した大部分の炭素は、豚舎における豚の呼気(CO₂)および堆肥として系外に排出されることがわ かった。一方、窒素収支においては、流入窒素の大部分が輸入飼料(11 t N)だった。各ユニッ トからの窒素流出として大部分を占めていたのは、豚舎の肥育豚(2.1 t N)、堆肥化施設の堆肥 (4.2 t N)、排水処理施設の処理水(3.8 t N)だった。排水処理施設においては、流入である 分離尿窒素に対して処理水窒素は47%のみであり、収支が合わなかった。これは、排水処理過程の 脱窒によるN₂生成を考慮していないためと考えられる。





図(4)-5 従来法における炭素(上)および窒素(下)収支

提案法のシステムにおける炭素および窒素収支を図(4) -6に示す。炭素収支において、高 温乾式メタン発酵への流入は、豚ふん尿、稲ワラおよび玄米であり、C/N比=20および30でそれぞ れ合計238および517 t Cだった。一方、流出はメタン発酵によるCO₂、CH₄および発酵残渣で、合計 は279および558 t Cであり、概ね収支はとれていると考えられた。一方、多収米飼料イネ水田に おいては、流入である発酵残渣に対して、生産される多収米飼料イネ(稲ワラおよび玄米の合計) およびその他の流出(CO₂、CH₄および地下浸透)の合計が高くなった。これは、イネの光合成によ る大気中CO₂の植物体への固定を考慮していないためである。窒素収支の高温乾式メタン発酵施設 においては、流入窒素に対して約30~40%の窒素が未確認となった。これは、発酵中のNH₄・の揮散 と考えられる。多収米飼料イネ水田では、発酵残渣として流入した窒素の45%および70%が多収米 飼料イネに吸収された。残りの窒素は、地下浸透および脱窒により環境中へ流出した。以上のよ うに、物質収支だけでなく、炭素および窒素収支の点からも、提案するシステムの実現可能性が 示唆された。



図(4)-6 提案法における炭素(上)および窒素(下)収支(高温乾式メタン発酵施設および多収米飼料イネ水田の収支において、括弧外の数字はC/N比=20、括弧内の数値はC/N比=30をそれぞれ示す。)

(2) システムの環境負荷の比較

従来法および提案法(C/N比=20および30)における水環境への窒素負荷量を図(4)-7に示 す。図(4)-7より、水環境への窒素負荷量は提案法のC/N比=30ではC/N比=20の1.6倍となった が、これは高温乾式メタン発酵により多くの原料を受け入れたため、発酵残渣の発生量が多くな り、多収米飼料イネ水田に施肥した発酵残渣の窒素量が1.6倍になったことによるものである。従 来法と比較すると、提案法であるC/N比=20および30ではそれぞれ91%、86%を削減可能であること がわかった。以上より、従来法のように畜産業に設定されている硝酸性窒素等の暫定排水基準700 mg-N/Lまでの処理を行うよりも、本研究が提案する循環型豚ふん尿処理システムにおける多収米 飼料イネ水田による窒素浄化能力を利用することの方が非常に優れており、提案法は水環境への 窒素負荷量という観点からは環境負荷低減型のシステムであることがわかった。





従来法および提案法(C/N比=20および30)における温室効果ガス排出量の結果を図(4)-8 に示す。図中には、水田の水管理方法である常時湛水および間断灌漑の場合をそれぞれ示した。 また、図中の正味とは、排出量から削減量を差し引いた正味の温室効果ガス排出量のことである。

従来法においては、排水処理施設の処理過程における温室効果ガス排出量が202 t-CO₂eq/年(全体の52%)、堆肥化処理施設の処理過程における排出量が64 t-CO₂eq/年(全体の16%)となっており、導入・運営段階も考慮に入れると、309 t-CO₂eq/年(全体の79%)であり、従来法においては 豚ふん尿の処理における温室効果ガス排出量が支配的であることがわかった。

提案法においては、水田の水管理方法として常時湛水を行った場合、C/N比=20および30の両方 において、多収米飼料イネ水田の栽培時における温室効果ガス排出量がそれぞれ651,1205 t-CO₂eq/年であり(それぞれ全排出量の67,68%に相当)、水田が温室効果ガス排出において支配 的であることがわかった。また、C/N比=30では、乾式メタン発酵施設、多収米飼料イネ水田、輸 送(発酵残渣)、輸送(稲ワラ)の項目でC/N比=20よりもそれぞれ約2倍となったが、これらは物 質・エネルギー収支で述べたように、炭素源(稲ワラおよび玄米)を約2倍必要とするためである。 一方で、温室効果ガス排出量の削減となる、コ・ジェネレーション発電により得られる電力・熱 および土壌への炭素貯留量もC/N比=20よりも2倍となっているが、これも同様の理由によるもので ある。正味の温室効果ガス排出量においては、従来法の390 t-C0₂eq/年に対し、提案法のC/N比=20 および30ではそれぞれ513,857 t-C0₂eq/年だった。従って、提案法において多収米飼料イネ栽培 を常時湛水で実施した場合、従来法よりも温室効果ガスを排出することがわかった。

一方、水田の水管理方法として間断灌漑を行った場合、C/N比=20および30において、多収米飼料イネ水田の栽培時の温室効果ガス排出はそれぞれ243,449 t-CO₂eq/年となり、常時湛水よりも63%削減することができることがわかった(それぞれ全体の43,44%までに減少)。その結果、正味の温室効果ガス排出量においては、C/N比=20および30でそれぞれ105,101 t-CO₂eq/年となり、従来法よりもそれぞれ73,74%削減することがわかった。

以上より、水田の水管理方法として常時湛水を行った場合は従来法よりも温室効果ガスを排出 してしまうのに対し、水田の水管理方法として間断灌漑を行った場合は従来法よりも温室効果ガ ス排出量を約73%削減することができ、水環境の窒素負荷と同様に温室効果ガス排出量という観点 からも提案法は環境負荷低減型のシステムであることがわかった。



(3) システムの経済性

従来法および提案法(C/N比=20および30)における経済性の計算結果を図(4)-9に示す。 図中には、水田への補助金なしおよび水田への補助金ありの場合をそれぞれ示した。また、図中 の所得とは、収入から支出を差し引いたものである。 従来法においては、堆肥化物の販売による収入65万円/年に対し、肥育豚の販売による収入が 3032万円/年(全体の98%)であり、肥育豚の販売が収入源として支配的だった。また、支出にお いては、飼料購入の2076万円/年(全体の73%)が支配的だった。収入から支出を差し引いた所得 は264万円/年(2640円/頭)となり、「肥育豚の生産費」(農林水産省,2011)の2836円/頭とほ ぼ一致する結果となり、計算結果が妥当であることが示された。

提案法において、C/N比=20では乾式メタン発酵、多収米飼料イネ水田、飼料および輸送にかか る支出額はそれぞれ2042、1596、1868および1067万円/年(それぞれ支出額全体の30、23、27およ び16%に相当)となり、乾式メタン発酵における支出額が支配的だった。C/N比=30では、乾式メタ ン発酵、多収米飼料イネ水田、飼料および輸送にかかる支出額はそれぞれ3479、3992、1868およ び2058万円/年(それぞれ支出額全体の30、34、16および16%に相当)となり、C/N比=20とは異な り多収米飼料イネ水田における支出額が支配的となることがわかった。

水田への補助金がない場合では、支出額と比較して、肥育豚の販売およびコ・ジェネ発電により 得られた電力の売電による収入は少なく、所得を創出することができなかった。一方、水田への 補助金がある場合では、C/N比=20および30の両方で所得を創出できた。

従来法では養豚農家のみを対象とした計算結果であるので、所得は養豚農家のみのものである が、提案法では養豚農家および水田農家を対象とした計算結果であるので、養豚農家の所得に加 えて、水田農家の所得を考慮しなければならない。そこで、最低限必要な水田農家の所得を計算 し、養豚農家の所得と水田農家の所得(264万円/年)を確保できるかを確認した。水田農家の所 得は、「米および麦類の生産費」(農林水産省,2011)より水田面積15ha以上の所得原単位46572 円/10aを用いて計算した。C/N比=20および30ではそれぞれ1567および3920万円/年となり、全体と してはそれぞれ1831,4184万円の所得が必要ということになる。図(4)-9より、C/N比=20お よび30における所得は、それぞれ833万円/年および2444万円/年となり、養豚農家と水田農家の 所得を確保することができないということがわかった。

養豚農家と水田農家の両業者が最低限必要な所得の確保は、養豚の規模を拡大することで達成 できると考えられる。そこで養豚の規模を1000から10000頭まで、各ユニット間(豚舎、乾式メタ ン発酵槽および水田)の距離を10~30 kmに変更した際の養豚農家および水田農家の所得を評価し た結果、7000頭規模以上、ユニット間距離10 kmおよび水田への補助金がある条件において養豚農 家および水田農家も所得が得られることが明らかになった(図(4)-10)。



図(4)-10 養豚の規模・各ユニット間の距離別の所得(補助金あり)

ここで、養豚規模7000頭、各ユニット間の距離10 kmとして水田の補助金がある条件で再度経済 収支を計算した(図(4)-11)。その結果、提案法のC/N比=20および30では従来法の所得(1849 万円/年)に対し、11602万円/年および27816万円/年多くの所得を創出させることが可能となった。 水田農家の所得は、「米および麦類の生産費」(農林水産省,2011)より水田面積15ha以上の所 得原単位46572円/10aおよびC/N比=20および30に必要な水田面積236 haおよび589 haを用いて計算 すると、C/N比=20および30ではそれぞれ10991万円/年および27431万円/年となった。従って、養 豚農家のみの所得はそれぞれ2460万円/年および2234万円/年となった。以上から、C/N比=20およ び30では従来法よりもそれぞれ611万円/年および385万円/年の所得の増加があることがわかった。



図(4)-11 養豚規模を拡大した場合の従来法および提案法における経済性 (養豚規模7000頭、各ユニット間の距離10 km)

表(4)-1に、養豚7000頭規模の収支結果をまとめた。養豚の規模7000頭以上、各ユニット 間(豚舎、乾式メタン発酵、飼料イネ水田)の距離10 km、本研究が提案している温室効果ガス削 減型の水田管理方法である間断灌漑を行い、水田への補助金がある場合にシステムが実現可能で あるということがわかった。この条件において、水環境への負荷量はC/N比=20および30では従来 法よりもそれぞれ約24.4,23.0 t-N/年(それぞれ91,86%)を低減することができ、温室効果ガ ス排出量はC/N比=20および30では従来法よりもそれぞれ約2200,2405 t-C0₂eq/年(それぞれ80, 88%)を低減できることがわかった。したがって、提案するシステムは水環境の窒素負荷および温 室効果ガス排出量の両面で従来法よりも環境負荷低減型のシステムであることがわかった。さら に、経済性の面においても、従来の養豚農家の所得を増加させることが可能であるとわかった。

以上より、提案する循環型豚ふん尿処理システム全体の物質・エネルギー収支の関係を明確化 し、経済性および環境負荷の両面からシステムが実現可能な条件を解明することができた。提案 する循環型豚ふん尿処理システムの実現に向けて、非常に大きな成果が得られたと考えられる。

衣(4) I 食称1000 與烷侯の收入相未							
776	システム	収入	支出	養豚農家 収益			
コスト (五田/年)	従来法	21683	19835	1849			
(刀口/平)	提案法(C/N比=20)	54097	40646	2460			
	提案法(C/N比=30)	98784	69119	2234			
	システム	排出量	削減量	正味			
温室効果ガス	従来法	2731	0	2731			
(t-CO ₂ eq/年)	提案法(C/N比=20)	3731	3220	511			
	提案法(C/N比=30)	6719	6392	326			
	システム		排出量				
水環境窒素負荷	従来法		26.8				
(t-N/年)	提案法(C/N比=20)		2.4				
	提案法(C/N比=30)		3.8				

表(4)-1 養豚 7000 頭規模の収支結果

5. 本研究により得られた成果

(1)科学的意義

サブテーマ(1)および(2)で得られた各種数値および文献値から、乾式メタン発酵および 多収米飼料イネ水田による豚ふん尿処理システムにおける物質・エネルギー、経済収支および環 境負荷を明らかにした。特に、従来システムよりも低水環境負荷および低温室効果ガス排出でか つ経済的にも成り立つ条件を提示できたことは養豚排水処理と多収(飼料)米生産の環境低負荷 型コベネフィットシステムを構築する上で意義深い。

(2)環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究にて提案するシステムは、従来の養豚システム(豚舎、堆肥化および排水処理)代わる新し い養豚システムを提案するものである。オフセット・クレジット制度に活用できると考えられる。従 来の豚肉生産や豚ふん尿処理システムと比べ、メタン発酵プロセスによるメタンの回収や水田におけ る温室効果ガス排出の削減効果、自給飼料の生産による輸入飼料量の削減によって二酸化炭素削減ク レジットの創出が期待できる。また、回収したメタンによるコジェネ発電などエネルギーの有効利用 より、さらなるクレジットの創出が可能と考えられる。

さらに、農畜産業における温室効果ガスの排出権取引市場が拡大していくにつれ、発展途上国 (特に共通の水田文化を持つアジア諸国)の農畜産業の温室効果ガス排出削減に向けたクリーン 開発メカニズム (CDM) に、本研究にて提案する環境低負荷型コベネフィットシステムの応用が考 えられる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

特に記載すべき事項はない

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない

<その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない

(2) 口頭発表(学会等)

- M. Hosomi, K. Suzuki, R. Kanai, S. Riya, S. Zhou, A. Terada : 3rd International Congress on Sustainability Science and Engineering, Ohio, U.S., 2013 "Dry Thermophilic Anaerobic Digestion Process of Swine Manure and Rice Straw: Towards a Sustainable Swine Manure Treatment System Based on Forage Rice Paddy."
- 2) M. Hosomi, K. Suzuki, R. Kanai, S. Riya, S. Zhou, A. Terada : International Conference on Recent Advances in Pollution Control and Resource Recovery for the Livestock Farming Industry, Jiaxing, China, 2013 "Sustainable Treatment System for Waste from Livestock Farming Industry Based on Dry Thermophilic Anaerobic Digestion Process and Forage Rice Paddy Field."

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない

(4) シンポジウム、セミナーの開催(主催のもの)

特に記載すべき事項はない

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない

(6) その他

特に記載すべき事項はない

8. 引用文献

農林水産省(2011)米及び麦類の生産費, http://www.e-stat.go.jp/SG1/estat/List.do?lid=000001108727 農林水産省(2011)肥育豚生産費,

http://www.e-stat.go.jp/SG1/estat/List.do?lid=000001108729

Development of Low Environmental Impact-systems to Attain Co-benefits Piggery Wastewater Treatment and Forage Rice

Production

Principal Investigator: Masaaki HOSOMI Institution: Institute of Engineering, Tokyo University of Agriculture and Technology 2-24-16 Naka, Koganei-shi, Tokyo 184-8588 Tel.: +81-42-388-7070 Fax: +81-42-388-7731 E-mail: hosomi@cc.tuat.ac.jp

[Abstract]

Key Words: Dry-thermophilic anaerobic digestion, Forage rice, Greenhouse gas emission, Water pollution, Piggery wastewater treatment, Swine manure treatment

This study proposes a sustainable swine manure treatment system, which includes application of forage rice and dry thermophilic anaerobic digestion. The system consists of three processes as follows: 1) forage rice is cultivated and fed to swinery, 2) straw is mixed with swine manure and co-digested by dry thermophilic anaerobic digestion to produce renewable energy, and 3) digested residue is applied to forage rice field as fertilizer.

Dry-thermophilic anaerobic digestion does not require the effluent treatment because of the resulting moisture content (80%), and composting can be done directly after the solids residue is stabilized. However, an important problem is caused by the low C/N ratio, which can lead to ammonia inhibition of the bacteria. Therefore, this study investigates the stability and feasibility of digesting swine manure while providng rice straw as the carbon source.

Dry-thermophilic anaerobic digestion of swine manure and rice straw at different C/N ratio (8, 20 and 30) and sludge retention time (SRT) showed that continuous biogas production could be achived in 30 days of SRT at 20 of C/N ratio and 20 days of SRT at 30 of C/N ratio in semi-batch reactor.

Application of digested residue into forage rice field managed by continuous flooding increased CH_4 emission. On the other hand, intermittent irrigation could mitigate CH_4 emission by 40%. However, the nitrogen balance showed that intermittent irrigation reduced N uptake by rice plant by nitrification and denitrification.

When digested residue was used to fertilize forage rice fields, the yield was comparable to what is observed when these fields are fertilized with chemical fertilizer, compost or anaerobically digested slurry. This means that the digested residue investigated in this research have fertilizer value that is equivalent to other well-established nutrient sources.

Finally, a feasibility study was conducted to clarify a condition that achives lower greenhouse gas emission and water environmental load compared with conventional pig farming system and economically possible system simultaneously. Material, energy and economical balances in conventional and proposed systems were calculated by the unit value method. The results showed that the proposed system could be economically and environmentally (i.e., lower greenhouse gas emission and nitrogen load to water environment) feasible with more than 7000 heads of pig farming scale and utilization of subsidy for rice farmer.