

## 竹粉を利用した畜産汚水の窒素低減技術

瀧澤秀明<sup>1)</sup>・星野佑太<sup>1)</sup>・鈴木良地<sup>2)</sup>・堤公生<sup>3)</sup>・豊島浩一<sup>1)</sup>

**摘要**：竹粉には、硝酸態窒素を含む畜産汚水の脱窒工程に必要な有機物と、脱窒細菌の一種であるクレブシエラ属菌が適度に含まれており、畜産汚水の窒素低減に有効な資材と考えられるため、竹粉の窒素低減能力（脱窒能）と、竹粉を畜産汚水に利用した場合の脱窒効果を調査した。

硝酸カリウム溶液を使用した模擬汚水 1 L 中に 50 g の竹粉を浸漬使用し、脱窒試験を実施して、竹粉の脱窒能を調査した。その結果、竹の産地や竹粉の調製方法によって差がみられるものの、脱窒能の高い竹粉では試験開始 96 時間後に硝酸態窒素が 280mg/L 程度低減された。

また、この脱窒能は処理温度の影響を受けやすく、水温 15℃以下では著しく低下した。

120 L の脱窒槽に 4 kg の竹粉を浸漬使用した畜産汚水の処理装置を製作し、水温を 25℃に維持して 3 週間連続で脱窒試験を実施した。その結果、試験期間中、汚水中の硝酸態窒素を 115 mg/L 程度低減できた。

以上の結果から、竹粉は畜産汚水の窒素低減に有効な資材であることが示唆された。

**キーワード**：畜産汚水、竹粉、脱窒、クレブシエラ属菌

## 緒言

水質汚濁防止法では畜産排水の窒素の排水基準は、2023 年まで 130 mg/L の暫定値が適用されているが、将来に向けてより一層の低減が求められている。しかしながら、畜産農家において環境対策は生産コストの上昇を招き収益性を圧迫しており、浄化槽に新たな高額投資をすることが困難な状況にある。そのため、畜産排水の処理過程における窒素処理負荷を低減するための簡易技術の開発が必要である。

一方、県内には竹林が 2400 ha あり、毎年 12 万 t もの竹が発生しているが、竹の利用促進が進んでおらず、新たな利用場面が求められている。畜産現場においては、飼料<sup>1)</sup>や堆肥化副資材<sup>2)</sup>としての利用の他に竹粉に付着した微生物群の脱窒効果により、嫌気的条件下では畜産汚水に含まれる硝酸態窒素等の除去能力が高まる<sup>3)</sup>という報告がある。

そこで今回、竹粉の脱窒能の特性と竹粉を利用した畜産汚水の連続式脱窒装置による脱窒能の持続性について知見を得たので報告する。

## 材料及び方法

### 1 竹粉試料

竹粉の由来による脱窒能の差を確認するため、産地の違う竹粉を用意して試験を実施した。供試した竹粉の来歴を表 1 に示した。竹は放置竹林で問題視されている代表的な品種であるモウソウチクを使用した。愛知県内（岡崎市：A、長久手市：B、日進市：E）で伐採した竹は樹木粉碎机 GS220G（株式会社大橋、佐賀）で粉碎後、6 mm のスクリーンを通しパウダー状にし、3 週間自然乾燥したものを保存して適宜使用した。三重県内（桑名市：C 及び F、伊勢市：D）で伐採された竹は現地で粉碎し 500 L トランスバッグに充填して当試験場まで運搬後同様の処置を実施した。なお、竹粉 D は当試験場到着時には既に発酵しており品温の上昇があった。竹粉の脱窒能調査には竹粉 A～E を、水温の違いが竹粉の脱窒能に及ぼす影響には竹粉 F を、畜産汚水の連続式脱窒試験には竹粉 E をそれぞれ使用した。

### 2 竹粉の脱窒能調査

#### (1) 試験方法

使用汚水は硝酸カリウム (KNO<sub>3</sub>) 溶液（模擬汚水）を用いた。模擬汚水 1 L をビーカーに入れて、そこに不織布製のだしパックに充填した竹粉 50 g を浸漬させて、25℃に設定したインキュベーター MIR-154、(パナソニックヘルスケア株式会社、群馬)または MIR-554(三洋電機株式会社、東京)内に静置後、経時的(0、24、48、72、

<sup>1)</sup> 畜産研究部 <sup>2)</sup> 環境基盤研究部 <sup>3)</sup> 畜産研究部(現農業大学校)

表 1 供試竹粉一覧

産地	試験年度	粉砕場所	発酵
A 愛知県岡崎市	2017	愛知県農業総合試験場	なし
B 愛知県長久手市	2017	愛知県農業総合試験場	なし
C 三重県桑名市	2017	現地	なし
D 三重県伊勢市	2017	現地	あり
E 愛知県日進市	2018	愛知県農業総合試験場	なし
F 三重県桑名市	2017	現地	なし

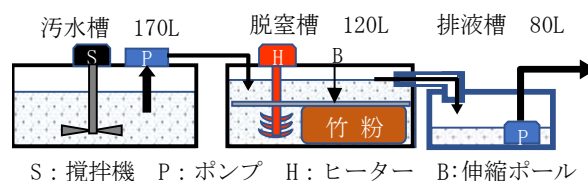


図 1 連続式脱窒装置の概要

96 時間後)に採水した。1 回の採水量は 10 mL とした。模擬汚水の硝酸態窒素 ( $\text{NO}_3\text{-N}$ ) 濃度は 35 mg/L とした。更に今回供試した中で最も脱窒能が高いと考えられた竹粉 E は、脱窒能の上限を調査するために  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度 70、140、280、420 mg/L による試験を実施した。

(2) 調査項目

採水した試料は下水処理法<sup>4)</sup>に従い、pH、溶存酸素量 (DO)、亜硝酸態窒素 ( $\text{NO}_2\text{-N}$ ) 及び  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度と全有機体炭素 (TOC) 濃度の分析を実施した。pH はガラス電極法によりマルチ水質 MM-60R (東亜ディーケーケー株式会社、東京) を用いて測定した。DO は光学式 DO 計 FOD Multi3510 型 (WTW 社、ドイツ) を用いて測定した。また、0.45  $\mu\text{m}$  孔径メンブランフィルターディスミック 25CS045AN (アドバンテック 東洋株式会社、東京) で試料をろ過した後、 $\text{NO}_2\text{-N}$  及び  $\text{NO}_3\text{-N}$  ( $\text{NO}_x\text{-N}$ ) 濃度と TOC 濃度を測定した。 $\text{NO}_2\text{-N}$  濃度は N-(1-ナフチル)エチレンジアミン吸光度法及び  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度は銅・カドミウム還元-ナフチルエチレンジアミン吸光度法により土壌用オートアナライザーモジュール (ビーエルテック株式会社、東京) を用いて測定した。TOC 濃度は TOC 計 TOC-5000A、(島津製作所、京都) を用いて測定した。

2017 年度に採材した竹粉 A~D は、鈴木ら<sup>5)</sup>の方法により、DNA を抽出して、リアルタイム PCR によりクレブシエラ菌 (*Klebsiella pneumoniae* 及び *K. oxytoca*) の定量を実施した。

3 水温の違いが竹粉の脱窒能に及ぼす影響

(1) 試験方法

竹粉による脱窒能に及ぼす水温の影響を調査するために試験を実施した。インキュベーターの設定温度は 10°C、15°C、20°C、25°C、30°C、35°C の 6 段階を設定した。試験方法は竹粉 F30 g を使用した以外は試験 1 と同様とした。

(2) 調査項目

採水した試料は試験 1 と同様の方法で pH、DO、 $\text{NO}_x\text{-N}$ 、TOC の分析を実施した。

4 畜産汚水の連続式脱窒試験

(1) 試験方法

竹粉による脱窒能の持続性を調査するために、畜産汚水の連続式脱窒装置を用いて試験を実施した。装置の概要を図 1 に示した。装置は愛知県農業総合試験場畜産研究部内の浄化処理施設 (浄化施設) に併設した。試験期間は 2019 年 1 月 8 日~1 月 28 日 (21 日間) 実施した。装置は汚水貯留槽 (汚水槽)、脱窒槽及び排水槽から構成さ

れる。汚水は浄化施設の最終沈殿槽から水中ポンプ P152 (マキタ株式会社、安城) で汲み上げて、洗濯ネットくずよけメッシュタイプ角型大 (東和産業株式会社、海南) により、夾雑物を除去したものに  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度を調整するために  $\text{KNO}_3$  を汚水 1 L 当たり 1 g 添加して供試した。貯留槽は 170 L 容コンテナ (内寸 640 mm×545 mm×485 mm) を使用した。攪拌機の動力はギヤヘッド 5GN5K を装着したスピードコントロールモーター PSH540-401P (オリエンタルモーター株式会社、東京) を使用した。攪拌はシャフトに直径 80 mm のステンレス製攪拌翼傾斜パドル (パドル) を装着して使用した。脱窒槽は汚水槽と同様のコンテナの上部に排水用の穴を設け、汚水量を 120 L に維持した。脱窒槽内には竹粉 E 4 kg (容積約 28 L) を不織布に包んで、竹粉が完全に汚水中に浸漬するよう伸縮ボールにより底面に固定した後、汚水を脱窒槽に満たして試験を開始した。なお、竹粉の使用量は予備試験において 1 日当たり 100 mg/L 程度の  $\text{NO}_x\text{-N}$  濃度低減に必要な最少量を考慮して決定した。試験期間中は汚水槽からシリコンチューブ (内径 6 mm×外径 8 mm) を接続した小型耐薬ギヤポンプ GPU-2 (アズワン株式会社、大阪) により 2 時間毎に汚水を 2 L 供給した。なお、送液はデジタルプログラムタイマー PT50DW (リーベックス株式会社、川口) を用いて制御した。脱窒槽内の水温はサーモスタット付き投げ込みヒーター LYBES110 (ジャスト株式会社、東京) を 25°C に設定して使用した。また、槽内に汚水槽と同様の攪拌機を設置した。

(2) 調査項目

汚水槽からの採水は汚水を追加した直後に実施した (計 6 回)。また、脱窒槽からの採水は試験期間中計 12 回実施した。採水した試料は試験 1 と同様の方法で pH、DO、 $\text{NO}_x\text{-N}$ 、TOC の分析を実施した。また、気温及び脱窒槽内の水温を小型温度計 (株式会社ティアンドデイ、松本) により自動計測した。

結果及び考察

1 竹粉の脱窒能調査

(1) 竹粉別  $\text{NO}_x\text{-N}$  濃度の推移

汚水中 DO 濃度は試験開始時には 7.0~10.0 mg/L であったが、竹粉 A、B、C、E は試験開始 1 日後に、竹粉 D は 3 日後に、それぞれ脱窒が起こる条件<sup>6)</sup>とされる 0.2 mg/L 以下に低下した。脱窒細菌は DO が共存する条件下においては  $\text{NO}_x\text{-N}$  よりも酸素を優先的に利用することから脱窒は基本的には無酸素の状態において進行する<sup>6)</sup>。

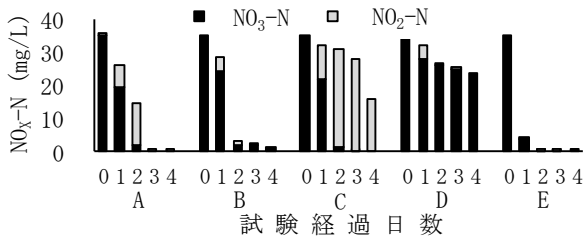


図 2 竹粉別 NO<sub>x</sub>-N 濃度の推移

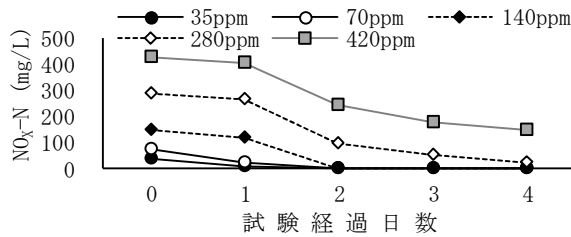


図 3 NO<sub>x</sub>-N 濃度の推移(竹粉 E)

今回供試した竹粉の多くは、添加開始直後から汚水中の DO を利用して、試験開始 1 日後まで NO<sub>x</sub>-N を利用する嫌気性条件に移行していたと考えられた。

竹粉別 NO<sub>x</sub>-N 濃度の推移を図 2 に示した。試験開始 1 日後から脱窒が起こり NO<sub>x</sub>-N のほとんどが低減するもの(竹粉 E)から、試験終了時まで NO<sub>x</sub>-N の多くが残存するもの(竹粉 D)まで、脱窒の程度は竹粉により差がみられた。残存した NO<sub>x</sub>-N の内訳をみると NO<sub>3</sub>-N のまま残存するもの(竹粉 D)と NO<sub>2</sub>-N に還元されて残存するもの(竹粉 C)があった。

脱窒工程では、脱窒細菌の硝酸呼吸、あるいは亜硝酸呼吸を利用し、窒素ガスを大気中に揮散して汚水中の窒素が低減する。その過程で NO<sub>3</sub>-N は NO<sub>2</sub>-N に一旦還元されて、その後窒素ガスに還元される。そのため、脱窒能が高い竹粉は NO<sub>3</sub>-N の NO<sub>2</sub>-N への還元と NO<sub>2</sub>-N から窒素ガスへの還元が連続的に行われていると考えられる。一方脱窒能が低い竹粉は、NO<sub>3</sub>-N の NO<sub>2</sub>-N への還元があるものの、NO<sub>2</sub>-N から窒素ガスへの還元が少ないものや、更には NO<sub>3</sub>-N の NO<sub>2</sub>-N への還元が少ないものと考えられた。

更に今回供試した竹粉のうち脱窒能が最も高いと考えられた竹粉 E について、NO<sub>3</sub>-N 濃度を高めて試験を実施したところ、最大で 280 mg/L 程度の NO<sub>x</sub>-N 濃度の低減があった(図 3)。

試験終了時の pH を表 2 に示した。試験終了時の pH は竹粉サンプル D を除いて試験開始時より上昇した。これは脱窒工程において、脱窒菌の呼吸によって炭酸ガスが発生し、そのため炭酸イオンや炭酸水素イオンが遊離されるためと考えられた。一方、竹粉サンプル D の pH が 4.2 と低下した。これは竹粉調整時に発酵が進んでおり、既に pH が酸性になっていたことが原因と考えられた。脱窒の至適 pH 領域については、様々な報告<sup>6-9)</sup>があるが、いずれも中性から弱アルカリ性にあり、弱酸性の pH 域は脱窒細菌にとって不適な環境と考えられた。

(2) TOC の推移

表 2 竹粉別試験終了時 pH

試験開始時	A	B	C	D	E
5.9	6.2	7.5	7.2	4.2	6.9

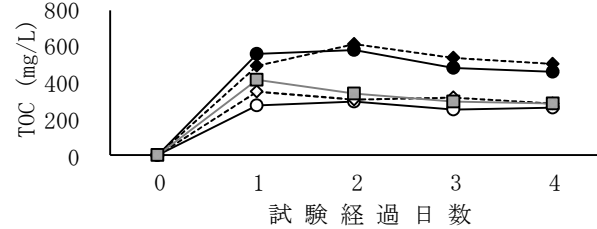


図 4 竹粉別 TOC の推移

表 3 竹粉別クレブシエラ属菌数

	CFU/ g			
	A	B	C	D
	85286	64767	14360	3248

竹粉別 TOC 濃度の推移を図 4 に示した。試験開始時の竹粉投入前には 0 mg/L であった TOC 濃度は試験開始後 1 日目に増加したが、209.3~671.2 mg/L と最大と最小でおよそ 3 倍の差があった。また、試験終了時の TOC 濃度は試験開始 1 日後より漸減する傾向があった。脱窒細菌の多くは、有機物を利用する従属栄養細菌に属し、嫌気性条件下において亜硝酸、硝酸が存在するとそれらを利用して有機物分解を行う脱窒能を有する<sup>10)</sup>。このことから、有機物が存在しない模擬汚水中に易分解性有機物を含有している竹粉を添加することで、TOC 濃度が増加して脱窒が起こる条件になったと考えられた。また、模擬汚水中の継時的な TOC 濃度の減少は、脱窒細菌の呼吸時に TOC が利用されて炭酸ガスに置換したためと考えられた。

(3) クレブシエラ属菌数の違いが窒素低減に及ぼす影響

供試した竹粉のクレブシエラ属菌数を表 3 に示した。竹粉によってクレブシエラ属菌数に差があり、中でも発酵した竹粉 D 中のクレブシエラ属菌数は最少であった。これは発酵時の品温の上昇や酸化によりクレブシエラ属菌数が抑制されたことが原因と考えられた。また、クレブシエラ属菌数が多い竹粉ほど脱窒能が高い傾向があった。溝添らは養液排水において脱窒能を示した竹粉由来の微生物群の遺伝子解析を行った結果、優占種のほとんどがクレブシエラ属菌と推測されたと報告している<sup>3)</sup>。今回の結果からも同様に、竹粉に含まれるクレブシエラ属菌数が脱窒能に関与している可能性が示唆された。また、竹のサンプル(地域)によってクレブシエラ属菌数に差があることから、生育環境の違いが影響していると考えられた。

2 水温の違いが竹粉の脱窒能に及ぼす影響

水温別 NO<sub>x</sub>-N 濃度の推移を図 5 に示した。水温が 30℃ 以上になると脱窒能が上昇して 15℃ 以下になると著しく低下することを確認した。脱窒活性の最適水温について

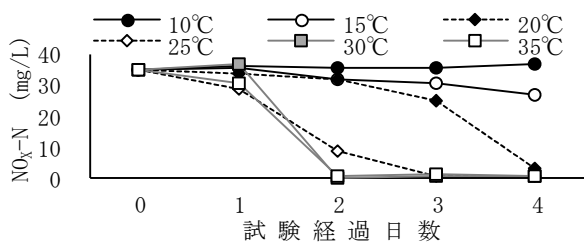


図5 水温別 NO<sub>x</sub>-N の推移

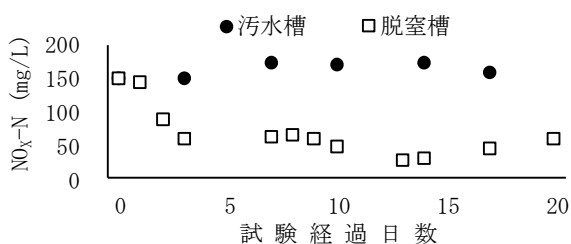


図6 連続脱窒試験における NO<sub>x</sub>-N の推移

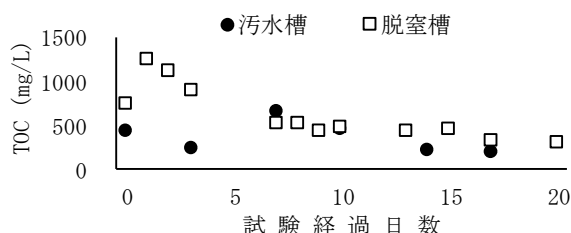


図7 連続脱窒試験における TOC の推移

ては 37~39°C<sup>7)</sup>、30~36°C<sup>8)</sup> といずれも高温であり、また 20°C に対して 10°C では約 50% の活性という報告もあるため<sup>10)</sup>、水温の低い冬期においては、脱窒時に汚水を加温する必要性が考えられた。

### 3 養豚浄化槽汚水の連続式脱窒試験

試験期間中の気温は -3.7~12.2°C、脱窒槽内の水温は 20.4~27.1°C であった。脱窒槽内 DO 濃度は試験開始時が 9.3 mg/L であったが 1 日目以降試験期間中は 0.2 mg/L 以下であり嫌気性を維持していた。pH は汚水 7.9~8.4 に対して脱窒槽は 7.6~8.4 で推移しており、試験開始 3~4 日目に 8.4 と上昇があった以外は脱窒による上昇はほとんどなかった。

NO<sub>x</sub>-N 濃度の推移を図 6 に示した。試験期間中の汚水槽内の NO<sub>x</sub>-N 濃度は 148.1~173.4 mg/L で推移した。一方脱窒槽内の NO<sub>x</sub>-N 濃度は、試験開始 1 日後から漸減し、試験開始 13 日後には 26.1 mg/L まで低下した。その後は漸増して試験終了時には 57.8 mg/L であった。その結果、NO<sub>x</sub>-N 濃度が安定した試験開始 4 日目以降の脱窒槽において汚水中の NO<sub>x</sub>-N 濃度を平均 115 mg/L 程度低減したと考えられた。TOC 濃度の推移を図 7 に示した。汚水槽内の TOC 濃度が 209.3~671.2 mg/L で推移したのに対して、脱窒槽内の TOC 濃度は試験開始直後が 1269.6 mg/L であったが、試験終了時には 310.3 mg/L まで漸減した。このことは竹粉から溶出する易分解性有機物は試験開始直後に多く、脱窒に利用される以外に液循環による排液槽への流亡が多く、経時的に減少することが原因

と考えられた。一般に窒素除去が順調に進むためには、汚水中の生物化学的酸素要求量/窒素比 (BOD/N 比) が 3 倍以上であることが必要とされているため<sup>8)</sup>、試験後半には竹粉から十分な有機物量が供給されなかったことが脱窒能低下の一因とも考えられた。

以上の結果から、NO<sub>x</sub>-N を含む畜産汚水中に竹粉を添加すると、有機物と脱窒能を有するクレブシエラ属菌が供給されて脱窒を促進すると考えられた。ただし、竹の産地や竹粉の調整法により脱窒能に差がみられ、特に発酵済みの竹粉は脱窒能が著しく低下するため、使用の際には品質を見極める必要がある。また、水温低下による脱窒能の低下が懸念されるため、冬期の脱窒では加温する必要がある。また、今回の試験は反復がなく、また竹粉以外の資材を用いていない。竹粉及びそれ由来する微生物群の脱窒効果を明確にするためには、さらに微生物群を除去した竹粉、またはその他の資材を用いた比較試験および反復試験が必要である。

今後は、竹粉を利用した連続脱窒装置における脱窒能持続性の確認と脱窒の効率化を図るため、竹粉投入量及び脱窒反応時間の検討や BOD/N 比改善のための炭素源供給効果について試験を実施する予定である。

### 引用文献

1. 室伏淳一, 西田武弘, 細田謙次, 松山裕城, エルデンバヤル, 塩谷 繁, 野田準一, 深澤 修, 三宅晃次. 牛における竹粉の栄養価. 静岡県畜試研報. 32, 10-12 (2006)
2. 中村和久, 瀧澤秀明, 柳澤淳二. 堆肥化副資材としての竹粉の特性の検出. 愛知県農総試研報. 48, 153-156 (2016)
3. 溝添暁子, 竹田智和, 里岡嘉宏, 西原基樹, 中田一則. 竹粉を利用した排水処理材の開発. 宮崎県工業技術センター・宮崎県食品開発センター研報. 53, 5-8 (2008)
4. 建設省都市下水道部・厚生省生活衛生局水道環境部. 下水道試験法 (上巻). 日本下水道協会. 東京. p. 1-812 (1997)
5. 鈴木良地, 高橋麗子, 瀧澤秀明, 浅見逸夫. PCR 法による牛舎内環境からのクレブシエラ属菌の検出. 愛知県農総試研報. 46, 7-13 (2014)
6. 北尾高嶺. 生物学的排水処理工学. コロナ社. 東京. p. 241-255 (2003)
7. 井出哲夫. 水処理工学-理論と応用-(第二版). 技報堂出版株式会社. 東京. p. 296-303 (1993)
8. 有馬 啓, 田村学造. 生物による環境浄化. 財団法人東京大学出版会. 東京. p. 159-174 (1980)
9. 吉村二三隆. これでわかる水処理技術. 工業調査会. 東京. p. 131-140 (2002)
10. 一般財団法人畜産環境整備機構. 畜産汚水の処理技術マニュアル-処理の基本から高度処理まで-. 一般財団法人畜産環境整備機構, 7-13 (2018)