

原 著

界面活性剤をコーティングした粉末硫黄と炭酸カルシウム粒からなる  
新規脱窒用粉末資材と土木用市販ノッチタンクによる養豚排水の  
硫黄脱窒実証試験

長谷川輝明<sup>1</sup>・田中康男<sup>2</sup>・笠原和久<sup>3</sup>・長田隆<sup>4</sup>

<sup>1</sup>千葉県畜産総合研究センター、千葉県八街市 289-1113

<sup>2</sup>一般財団法人畜産環境整備機構 畜産環境技術研究所、福島県西白河郡 961-8061

<sup>3</sup>加藤産商株式会社、東京都中央区 103-8228

<sup>4</sup>国立研究開発法人農研機構畜産研究部門、茨城県つくば市 305-0901

**要 約** 養豚排水の高性能脱窒処理を検討するため、簡易構造の実規模リアクターと硫黄脱窒用に開発した粉末資材を利用して約1年間の実証試験を行った。資材は、粉末硫黄をベースに炭酸カルシウムと界面活性剤を配合して作製した。また、リアクターには、土砂沈殿分離用として内部が3つに分画されている市販のノッチタンクを用いた。養豚活性汚泥処理施設の後段に2m<sup>3</sup>容量のリアクターを設置し、資材を500kg充填した。活性汚泥処理水を原水としてリアクターに連続流入させ、資材層を通過後に流出させた。資材見かけ容積（投入時点）あたりの水理的滞留時間は0.3~1.5日、資材単位重量当たりの窒素負荷量は0.2~1.2kg/ton・資材・日で試験を行った。リアクター内の水温は5.5~30.6℃の範囲で推移した。なお、窒素除去率を上げるためリアクターの改良を行いながら試験を進め、(1)基本構造リアクター (SPEC-1)、(2)逆洗機能付加リアクター (SPEC-2)、(3)塩ビ筒付加リアクター (SPEC-3) の3タイプのリアクターを試作した。このうち、SPEC-3での窒素除去率が最も高く、原水硝酸態窒素の平均244.6mg/Lに対し、処理水硝酸態窒素は平均88.5mg/Lで、その平均除去率は64.6%であった。また、窒素負荷量、水温、および資材層の損失水頭が除去率に影響することが推測され、これら3因子の条件が適当な場合は水温5~10℃でも90%以上の良好な除去率が得られたことから、加温無しで通年処理できる可能性が示唆された。

キーワード: 脱窒作用, 粉末硫黄, 硫黄脱窒作用, 養豚排水

受領日: 12.09.2017. 受理日: 20.10.2017.

日本畜産環境学会誌 No17 (1) pp26-35. 2018

緒 言

養豚排水に係る環境問題では、排水中に含まれる「アンモニア、アンモニウム化合物、亜硝酸化合物および硝酸化合物」（以後、硝酸態窒素等と称す）への対応が近年では重要

な課題となっている。硝酸態窒素等は水質汚濁防止法で排水基準が定められており、畜産では一般排水基準（100mg/L）の達成が困難とされることから、2019年6月までは暫定排水基準として600mg/Lが適用されている。環

## 硫黄脱窒処理実証試験

境省の取りまとめによると、調査した養豚農家681戸の硝酸性窒素等の測定結果からは、一般排水基準未満は477戸、100mg/L以上500mg/L未満は182戸、500mg/L以上は22戸であった[1]。この結果に基づくならば、仮に一般排水基準まで強化された場合、少なくとも3割程度の農家で何らかの窒素低減対策に取り組む必要が生ずることになる。

このような背景をふまえ、我々はこれまで硫黄脱窒法を活用した窒素低減技術に取り組んできた[2~7]。硫黄脱窒法とは、*Thiobacillus denitrificans* などの独立栄養細菌の一種である硫黄酸化脱窒細菌が、無酸素条件下で硫黄を酸化しながら硝酸態窒素 ( $\text{NO}_3^-$ -N) や亜硝酸態窒素 ( $\text{NO}_2^-$ -N) を窒素ガスに還元する働きを利用したものである。なお、硫黄脱窒法では以下の反応式に従い、窒素が除去されることが報告[8]されている。

$$\text{NO}_3^- + 1.1 \text{S} + 0.4 \text{CO}_2 + 0.76 \text{H}_2\text{O} + 0.08 \text{NH}_4^+ \rightarrow 0.08 \text{C}_5\text{H}_7\text{O}_2\text{N} + 0.5 \text{N}_2 + 1.1 \text{SO}_4^{2-} + 1.28 \text{H}^+$$

これまでの成果として、硫黄脱窒用のリアクターおよび資材を新たに開発し、その処理効果について明らかにしてきた。

脱窒リアクターには、市販の土木用土砂沈殿分離タンク（以後、ノッチタンクと称する）の転用が適当であることを実証した[5]。このタンクは汎用品のため安価であり、かつタンク内部は隔壁板により分画されていることから、流入水は上下迂流式で自然流下し、底面に充填した資材と効率よい接触が図れる。農業用途に流通している土壌pH調整用粉末硫黄（硫黄分99%以上、200メッシュパス）と組み合わせた場合、窒素負荷量 0.55kg-N/ton-S・日の条件で80%程度の除去性能が得られることを明らかとした。さらに、脱窒活性が低下しやすい冬期においては、外気温よりも高めに維持されていることが多い汚水処理施設の曝気槽内の液温を、リアクターの加温に利用することで通年を通して

活性を維持できるシステムを開発した[5]。

資材に関しては、上記の土壌pH調整用粉末硫黄が脱窒処理に高い効果を発揮したものの、撥水性を有することから、界面活性剤を添加して事前に親水化処理する必要があった。また、脱窒活性の進行に伴い増加する硫酸イオン ( $\text{SO}_4^{2-}$ -S) によって処理水のpHが低下することから、重曹などのアルカリ剤を適宜添加する必要もあり、作業負担およびシステムが複雑になる懸念がある。一方で、加熱溶解硫黄に炭酸カルシウム粉末を混合し、冷却固化後に破砕した碎石状の硫黄脱窒専用資材が既に市販されているが、粉末硫黄と比較して比接触面積が小さく、また特殊な成形加工にコストを要する点が実用面での課題となっている。そこで、我々は粉末硫黄に常温で界面活性剤と炭酸カルシウムを配合した新たな粉末状資材を開発し、この資材を用いたラボ試験では窒素負荷量 0.57kg-N/ton-S・日の条件で高い除去性能が得られることを明らかにした[7]。

本研究ではこの技術の実用化を目指して、ノッチタンクを転用した実規模リアクターと開発した資材の組み合わせによる処理効果を検証し、その実用性について検討を行った。

### 材料および方法

#### 1. 資材

粉末硫黄（硫黄分 99.5%、150 メッシュパス）をベースに、炭酸カルシウムと界面活性剤を配合し、混練機で調製することで 150~200 メッシュパスの粉末状の資材を作製した[7]。各原料の配合割合は、粉末硫黄 48.5%、炭酸カルシウム 48.5%、界面活性剤 3%とした。

#### 2. 試験装置

リアクターには、2m<sup>3</sup>容量（高さ 100cm×幅 200cm×奥行 100cm）のノッチタンク（内田橋

# 硫黄脱窒処理実証試験

リース株式会社、愛知) を用いた (図 1)。リアクター内部は、上部または下部に流路を有する隔壁板により 3 区画 (第 1~第 3 区画) に分けられ、第 1 区画に流入した水は上下迂流式で自然流下し排出される。そのため、第 1 区画と第 2 区画に硫黄資材を充填することで、流入水との効率よい接触が可能となる。硫黄資材は試験開始時に 200 kg、その後 5 日目に 20 kg、37 日目に 220 kg、182 日目に 40 kg、327 日目に 20 kg を追加投入して、合計 500 kg (見かけ容積 560L) を投入した。

供試の原水として、養豚農家の污水处理施設から排出される活性汚泥処理水を用いて、リアクターの第 1 区画に流入量 254~515mL/分、資材容積あたりの水理学的滞留時間 (以下 HRT) 0.3~1.5 日で連続的に流入させた。また、窒素負荷量は 0.17~1.20kg/ton-資材・日の範囲で試験を行った。なお、リアクター内の水温制御および硫黄酸化脱窒細菌の植種は行わなかった。

リアクターの運転は 2016 年 6 月 1 日から 2017 年 5 月 8 日までの 341 日間行った。

### 3. 分析方法

pH はガラス電極法によって測定した。生物化学的酸素要求量 (BOD) は自動測定装置

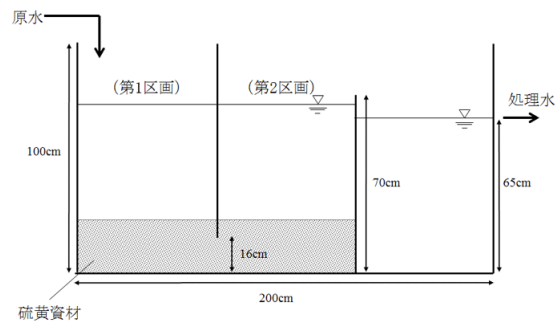


図 1. リアクター (SPEC-1) の概要

(B. O. D. Sensor ; VELP SCIENTIFICA, ITALY)、浮遊物質 (SS) はガラス繊維ろ紙法でそれぞれ測定した。アンモニア態窒素 ( $\text{NH}_4^+\text{-N}$ )、 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$ 、リン酸態リン ( $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ ) は、イオンクロマトグラフィー (SCL-10Avp (陰イオン用: IC-A3 カラム、陽イオン用: IC-SC1 カラム) ; 島津製作所、京都) によりそれぞれ測定した。また、色度は下水試験方法 [9] に準じて、孔径 0.45  $\mu\text{m}$  のフィルターでろ過した後に分光光度計 (390 nm) (CL-720 ; 島津製作所、京都) を用いて測定した。なお、吸光度の色度への変換は公定の標準液を用いた検量線により行った。

### 結果および考察

試験期間中の原水の  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  は 251.7  $\pm$

表 1. 試験期間中の原水と処理水の水質性状

	SPEC-1		SPEC-2		SPEC-3	
	原水 (平均 $\pm$ 標準偏差)	処理水 (平均 $\pm$ 標準偏差)	原水 (平均 $\pm$ 標準偏差)	処理水 (平均 $\pm$ 標準偏差)	原水 (平均 $\pm$ 標準偏差)	処理水 (平均 $\pm$ 標準偏差)
pH	6.5~7.4	6.5~7.1	6.7~7.6	6.5~7.0	6.3~7.7	5.9~7.0
BOD(mg/L)	15.1 $\pm$ 12.5	19.7 $\pm$ 6.2	10.4 $\pm$ 7.9	20.1 $\pm$ 11.8	0.1 $\pm$ 0.4	1.4 $\pm$ 2.8
SS(mg/L)	3.5 $\pm$ 5.0	26.2 $\pm$ 49.2	2.2 $\pm$ 2.6	22.4 $\pm$ 9.1	7.1 $\pm$ 5.8	30.5 $\pm$ 14.2
$\text{NH}_4^+\text{-N}$	34.5 $\pm$ 75.6	34.5 $\pm$ 74.9	ND	0.2 $\pm$ 0.6	ND	ND
$\text{NO}_3^-\text{-N}$	291.1 $\pm$ 37.7	229.4 $\pm$ 85.1	215.4 $\pm$ 28.3	132.5 $\pm$ 52.1	244.6 $\pm$ 35.3	88.5 $\pm$ 58.3
$\text{NO}_2^-\text{-N}$	ND	2.1 $\pm$ 4.2	ND	3.9 $\pm$ 2.2	ND	0.1 $\pm$ 0.5
$\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$	50.5 $\pm$ 4.1	166.7 $\pm$ 140.8	42.2 $\pm$ 4.4	235.6 $\pm$ 125.4	53.9 $\pm$ 8.0	400.0 $\pm$ 115.3
$\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$	148.5 $\pm$ 20.3	134.2 $\pm$ 35.4	65.3 $\pm$ 16.8	53.3 $\pm$ 16.5	54.8 $\pm$ 24.5	43.5 $\pm$ 21.9
色度 ( $\lambda=390\text{nm}$ )	288.6 $\pm$ 24.2	274.9 $\pm$ 26.2	287.7 $\pm$ 20.5	235.0 $\pm$ 45.3	342.8 $\pm$ 55.4	270.4 $\pm$ 59.9

pHは範囲を示す

## 硫黄脱窒処理実証試験

43.9mg/L (平均±標準偏差) であり、 $\text{NO}_2^-$ -N、 $\text{NH}_4^+$ -N はほとんど検出されなかった (表 1)。また、BOD および SS は、それぞれ  $6.0 \pm 9.6\text{mg/L}$ 、 $5.1 \pm 5.4\text{mg/L}$  であり、活性汚泥処理過程において良好に有機物分解および硝化が行われていたといえる。以下、各仕様のリアクターごとに性能把握結果を示す。

### (1) 基本構造リアクター (SPEC-1)

基本構造のリアクター (図 1 : SPEC-1) による試験を 65 日間実施した。この試験期間中の原水流入量は  $365 \sim 515\text{mL/分}$ 、資材容積あたりの HRT は  $0.3 \sim 0.9$  日であった。また、窒素負荷量は  $0.25 \sim 1.20\text{kg/ton-資材} \cdot \text{日}$ 、リアクター内の水温は  $21.0 \sim 30.6^\circ\text{C}$  の範囲で推移した。

SPEC-1 期間中の処理水の  $\text{NO}_3^-$ -N は  $229.4 \pm 85.1\text{mg/L}$  (平均除去率 28.3%) であった (表 1)。試験開始 37 日目に資材 220kg を追加投入後は、処理水の  $\text{NO}_3^-$ -N は最少  $105.3\text{mg/L}$  まで低下したものの、一般排水基準には達しなかった (図 2)。SPEC-1 で脱窒性能が上がらなかった要因には、初期投入時の資材量が十分でなかったため、資材層が隔壁板下部まで達しておらず、資材と接触せずに液が流下してしまったことがある。一方、資材追加後は資材層厚が上昇し、圧密化が生じたことで水が通過しにくくなり、資材との十分な接触が図れなかったためと考えられた。実際、37 日目以降は第 1 区画の水面が次第に上昇し、隔壁上部から越流がみられるようになった。原水と資材を十分に接触させるためには、資材層の上面が隔壁下端以上になるとともに、資材層の圧密化を防ぐ工夫が必要と考えられた。

### (2) 逆洗機能付加リアクター (SPEC-2)

資材層の圧密化や流入水の短絡流の形成を防ぐことを目的に、SPEC-1 の構造に資材逆洗機能を備え付けたリアクターを新たに試作

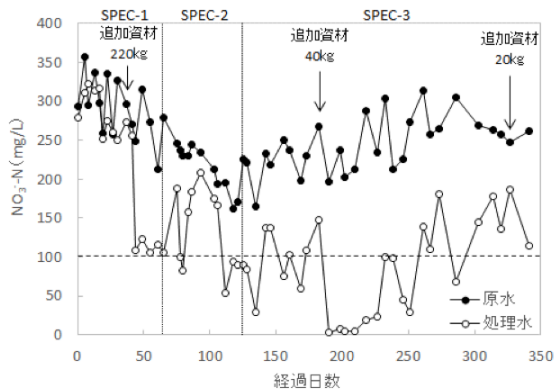


図 2. 試験期間中の原水および処理水の  $\text{NO}_3^-$ -N の推移

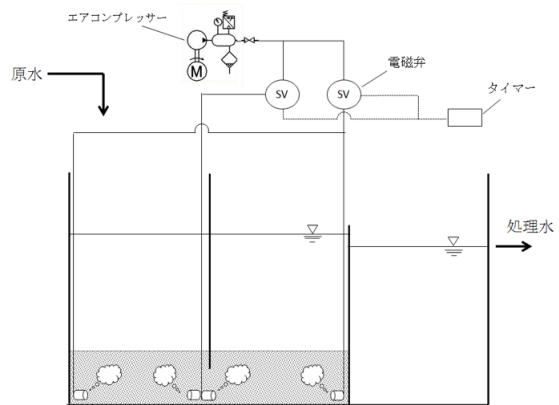


図 3. リアクター (SPEC-2) の概要

した (図 3 : SPEC-2)。逆洗には、 $\phi 6\text{mm}$  ワンタッチ管継手 (エルボ ; SMC 株式会社、東京) を吹込みノズルに用い、コンプレッサーで短時間空気を噴射することで定期的逆洗を行った。ノズルは第 1 区画と第 2 区画を隔てる隔壁と底面の間隙部 (以後、隔壁間隙部と称する) に 2 個、第 1 区画の壁側底面に 2 個、第 2 区画の壁側底面に 2 個の合計 6 個を設置した。なお、これらのノズルからエアを同時に噴射した場合、隔壁間隙部周辺の資材が吹き飛ばされ間隙が生じ、原水は資材と接触することなく第 2 区画に流入する恐れがあったことから、各ノズルの接続ラインに電磁弁を取り付けて、タイマー制御により順次逆洗を行った。最初に隔壁間隙部に設置したノズルから 1 日 1 回 5 秒間の逆洗を行い、その 1 分後に第 1 および第 2 区画の壁側底面

## 硫黄脱窒処理実証試験

に設置したノズルから5秒間逆洗を行った。これにより、最初の逆洗で吹き飛ばされた資材を隔壁間隙部に戻す効果を期待した。なお、逆洗実施中に舞い上がった資材の流出を防ぐため、原水の流入を最初の逆洗実施5分前から1時間自動停止し、資材が再び沈降した状態で流入を再開するシステムとした。

SPEC-2 期間中の原水流入量は317~354mL/分、資材容積あたりのHRTは1.0~1.1日であった。また、窒素負荷量は0.18~0.28kg/ton-資材・日、リアクター内の水温は22.5~28.5℃の範囲で推移した。その結果、この期間中の処理水のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nは132.5±52.1mg/L(平均除去率38.9%)まで低下した。この仕様により、試験開始112日目には処理水のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nは最少53.5mg/Lまで低下したものの、全体として十分な除去性能を得ることができなかった(図2)。逆洗により資材の圧密化を防ぐことは可能であったが、逆洗で拡散した資材を隔壁部周辺に再集積させることが難しく、資材が戻らない場合は隔壁下部に空洞が生じてしまい、場合によってはSPEC-1よりも性能は低下する結果となった。

### (3) 塩ビ筒付加リアクター (SPEC-3)

SPEC-1 および SPEC-2 の結果を受けて、リアクターには資材層の圧密化に対応可能で、かつ原水が確実に資材層を通過できるような構造が必要と考えられた。そこで、SPEC-1の構造を基本として、第1区画内に底部をノッチ状にした塩ビ筒(φ30cm、高さ200cm)を自立させ、筒内にも硫黄資材を充填する改良を行った(図4: SPEC-3)。この塩ビ筒の上方開放部から原水を流入させると、資材層が圧密しても筒内の水位が上昇することで確実に資材層を通過させることが可能となった。

SPEC-3 期間中の原水流入量は254~515mL/分、資材容積あたりのHRTは0.7~1.5日であった。また、窒素負荷量は0.17~

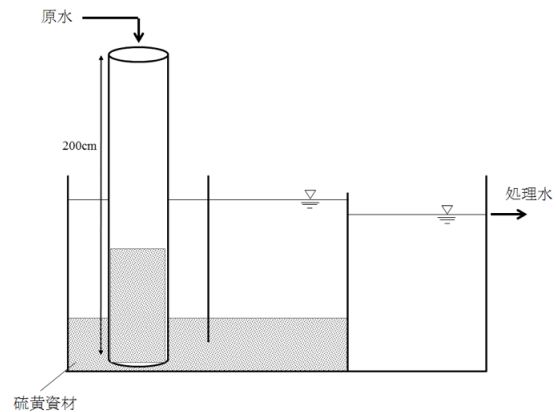


図4. リアクター (SPEC-3) の概要

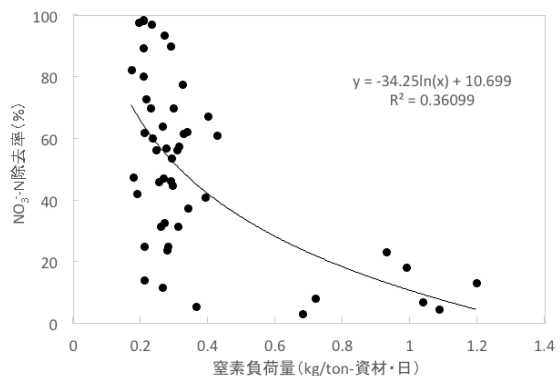


図5. 試験期間中の窒素負荷量とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N除去率の関係

0.40kg/ton-資材・日、リアクター内の水温は5.5~23.9℃の範囲で推移した。期間中の処理水のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nは88.5±58.3mg/L(平均除去率64.6%)まで低下し、試験区の中で最も高い除去性能が示された。特に、試験開始190日目にNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nの除去率は100%近くに達し、その後も継続して90%以上の高い除去率が維持された(図2)。なお、261日目以降は、資材の消耗に伴い脱窒性能が低下する傾向にあったが、期間中の処理水の平均NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nは一般排水基準以下を示し、このリアクター構造の有効性が明らかとなった。

次に、脱窒性能に影響を与える主要因を解明すべく、試験期間中の窒素負荷量とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N除去率との関係を図5に示した。長谷川ら[7]はこの資材を利用したラゴ試験にて、窒素負

## 硫黄脱窒処理実証試験

荷量 0.57kg-N/ton-資材・日以下の条件で高い除去性能を確認しており、今回の試験でも窒素負荷量 0.40kg-N/ton-資材・日以下の場合に 70%以上の除去率が示された。ただし、バラつきがかなり大きいことから、脱窒性能には窒素負荷量以外の要因も影響していることが推察された。

一般に硫黄脱窒活性は水温に大きく影響される。水温 15°C以上では実用的な活性が得られるとする一方、10°C以下では活性が顕著に低下することが知られている[5、10、11]。本試験による水温と脱窒性能との関係では、SPEC-1 期間中の平均水温は 25.6°C (21.0~30.6°C) であり、この期間中の平均 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 除去率は 28.3%であった。SPEC-2 期間中では、平均水温 26.2°C (22.5~28.5°C) に対してその平均 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 除去率は 38.9%であった。一方、SPEC-3 期間中の平均水温は 13.8°C (5.5~23.9°C) と低温であったにも関わらず、その平均 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 除去率は 64.6%であった。高温域で活性が上がらなかった要因は、水温が高い時期のリアクター構造 (SPEC-1 および SPEC-2) が適切でなかったためと考えられた (図 6)。この結果から、SPEC-3 のリアクターであれば水温 5~10°Cでも一定の性能が得られることが確認された。

SPEC-3 のリアクター構造は、塩ビ筒に十分な高さを設け、資材層が圧密化しても水圧により浸透通過できるよう改善したことが大きな特徴である。現場の観察では、塩ビ筒内の水面位置が上昇するに伴い脱窒性能が向上する傾向がみられた。そこで、この水面位置の上昇幅 (以後、資材層の損失水頭と称し cm で表現する) を算出し、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 除去率との関係を図 7 に示した。その結果、資材層の損失水頭が大きいほど除去率は高くなる傾向が示された。この傾向は、損失水頭が高いときは短絡流が形成されておらず、資材と液とが密に接触するために生ずるものと考え

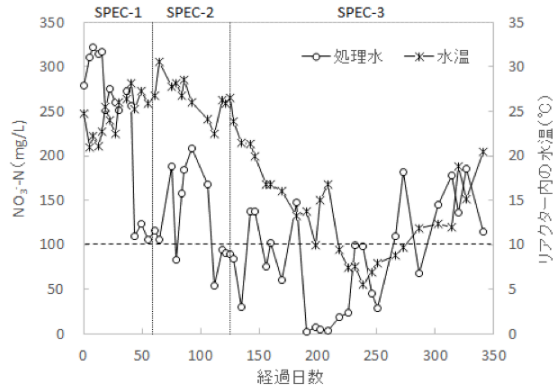


図 6. 試験期間中の処理水の NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N およびリアクター内の水温の推移

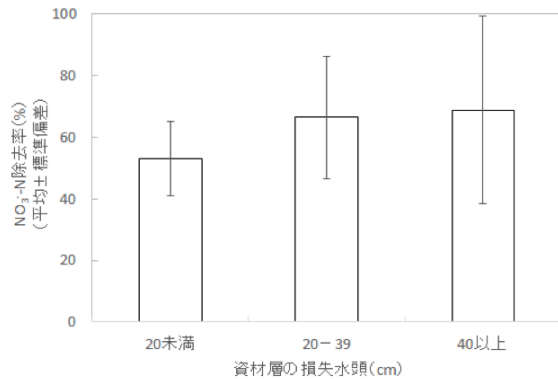


図 7. 試験期間中の資材層の損失水頭と NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 除去率の関係

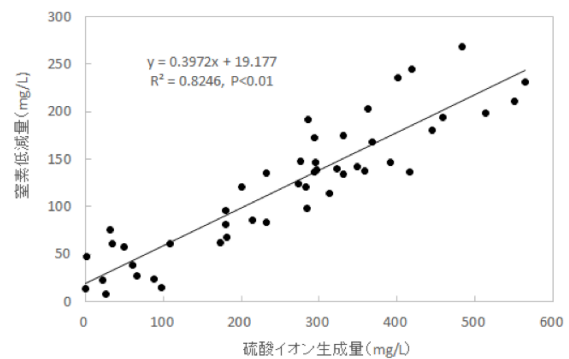


図 8. 試験期間中の硫酸イオン生成量と窒素低減量の関係

られた。

試験期間中の窒素低減量と硫酸イオン (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>-S) 生成量との関係を図 8 に示した。両者には高い相関が確認され (R<sup>2</sup>=0.8246、P<0.01)、窒素低減量に応じて硫酸イオン生

## 硫黄脱窒処理実証試験

成量も上昇することが示された。この結果より、本試験での脱窒が硫黄酸化に起因することは明らかである。なお、本試験の硫酸イオン生成量は最大 570mg/L 程度まで上昇したが、試験期間中の処理水の pH は 5.9~7.1 の範囲にあり、水質汚濁防止法の排水基準 (5.8~8.6、海域を除く) 以内であった (表 1)。資材に配合した炭酸カルシウムが中和効果を発揮したと考えられる。

一般に、養豚排水では着色が苦情を招く要因として問題視されている。本試験においては  $\text{NO}_3^-$ -N 除去率と脱色率の間に相関がみられ、除去率の上昇に伴い脱色率も上昇する傾向が示された (図 9)。Kelly ら[12]によると、硫黄酸化脱窒細菌による硫黄酸化の代謝経路において、亜硫酸塩が遊離の中間体として生ずることが報告されている。また、亜硫酸塩はその還元性によって食品の漂白剤として使用されている[13、14]。したがって、脱窒過程で生成した亜硫酸塩が脱色に寄与した可能性がある。硫黄脱窒反応の中間体として生成される亜硫酸塩が着色成分の分解に関与する可能性は、陳と田中[15]によっても指摘されている。さらに、この硫黄脱窒に伴う脱色は pH6.0 以上で効果が高まることも指摘している。本試験では処理水の pH は概ね 6.0 以上であったが、脱色率との相関は確認できなかった (図 10)。また、凝集沈殿によっても色度が低減することから[16]、資材に配合したカルシウム成分と着色成分の凝集反応が色度低減に関与した可能性もある。Migo ら[17]は、カルシウムは pH12 以上で着色物質の一つと考えられているメラノイジンを凝集させることを報告している。この知見より、カルシウムの存在が硫黄脱窒過程での脱色に関与している可能性が推測される。

以上のように、今回の試験では硫黄脱窒による窒素除去率が 70% 以上の場合、メカニズムは確認できていないものの最大 36% の脱色

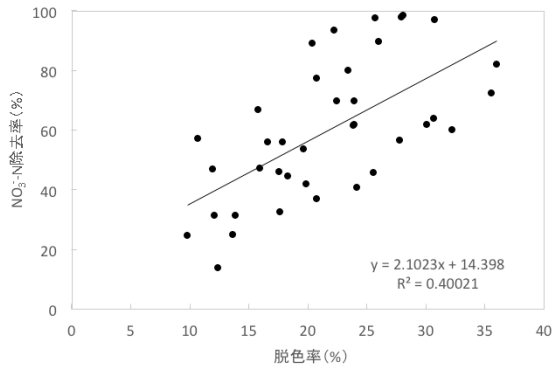


図 9. 試験期間中の脱色率と  $\text{NO}_3^-$ -N 除去率の関係

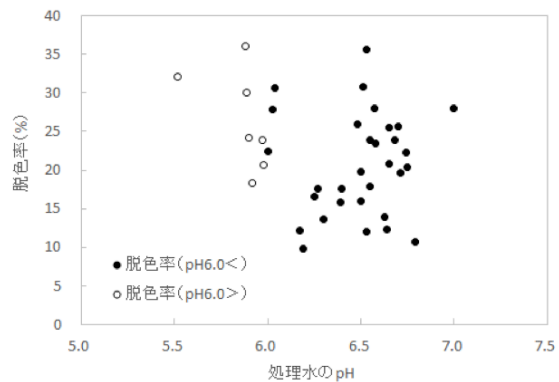


図 10. 処理水の pH と脱色率の関係

率が得られたことから、硫黄脱窒の導入は現場における色度除去対策の一助にもなる可能性があり、畜産排水に適した窒素除去法であることが示唆された。

なお、実用化にあたってはリアクターの第 1 区画の壁面を高くして、次区画に向けて段階的に低くする構造にすることで、さらに脱窒能力が効率的に発揮されるものと思われる。今後はこのようなリアクターを試作し、その実用性について検討を進めたい。

今後解決すべき問題点としては、長期間の稼働に伴い資材層の底部で部分的に固化が発生する点である。この点を改善できる資材仕様について今後さらに検討する予定である。

## 硫黄脱窒処理実証試験

### 総 括

今回の試験では、開発した資材との組み合わせにおいて SPEC-3 のリアクター構造が最も効果を発揮することが明らかとなった。なお、得られた知見は以下の3つである。

1. 既存ノッチタンクに塩ビ筒を導入することで処理性能が向上した。リアクターに高さを設けたことで、原水と資材層の確実な接触が図れた。

2. 水温 5~10°Cでも脱窒性能が維持された。これは、加温設備無しでも年間を通じて脱窒性能が発揮される可能性を示す。

3. 窒素除去と脱色との間に相関がみられた。よって、硫黄脱窒は外観改善でも効果が見込める。

### 文 献

[1] 環境省水・大気環境局水環境課 (2016) 畜産分野の暫定排水基準の見直しに係る検討結果：環境省，東京；[2016年8月31日引用]。Available from URL: <http://www.env.go.jp/press/files/jp/29578.pdf>

[2] 田中康男、長谷川輝明、杉本清美、山下恭広 (2013) 硫黄酸化脱窒細菌による畜舎排水窒素除去への微粉末硫黄の利用可能性：日本畜産学会報：84(3)：383-388.

[3] 長谷川輝明、杉本清美、山下恭広、田中康男 (2013) 土壌 pH 調整用粉末硫黄を利用した畜舎排水の脱窒処理実証試験：日本畜産学会報：84(4)：459-465.

[4] 長谷川輝明、田中康男 (2015) 水産用水槽を転用したバフドリアクターと土壌 pH 調整用粉末硫黄を利用した畜舎排水の脱窒処理技術：日本畜産学会報：86(1)：45-51.

[5] 長谷川輝明、田中康男 (2015) 簡易加温システムを備えた土砂沈殿分離タンク転用リアクターによる養豚排水用硫黄脱窒処理技術の開発：日本畜産環境学会会誌：14(1)：47-55.

[6] 長谷川輝明、田中康男 (2015) 固形硫黄を用いた畜舎排水の硝酸性窒素等の低減技術：日本畜産環境学会会誌：14(1)：56-66.

[7] 長谷川輝明、笠原和久、田中康男 (2016) 養豚排水の硫黄脱窒処理に利用する高性能資材の開発：日本畜産環境学会会誌：15(1)：44-50.

[8] Sierra-Alvarez R, Beristain-Cardoso R, Salazar M, Gomez J, Razo-Flores E, Field JA (2007) Chemolithotrophic denitrification with elemental sulfur for groundwater treatment: *Water Science* : 41 : 1253-1262.

[9] 建設省都市局下水道部・厚生省生活衛生局水道環境部監修 (1997) 下水試験方法：日本下水道協会、東京.

[10] 新日鐵化学(株)技術開発本部開発企画部編 (2004) 硫黄カルシウム剤による脱窒方法：化学工業日報社、東京.

[11] 手島信貴、水田一枝 (2009) 硫黄-カルシウム資材および独立栄養細菌を用いた脱窒法 (SLAD 法) による畜舎排水中の硝酸性窒素除去技術：福岡県農業総合試験場研究報告：28：79-83.

[12] Kelly DP, Shergill JK, Lu WP, Wood AP (1997) Oxidative metabolism of inorganic sulfur compounds by bacteria: *Antonie Van Leeuwenhoek* : 71(1-2) : 95-107.

[13] 陳瑞雲 (1972) 亜硫酸塩の食品衛生学的研究 (第1報) 亜硫酸塩の微生物発育に及ぼす影響：日本衛生学雑誌：26(6)：467-474.

[14] 玉虫文一 (1972) 岩波理化学辞典：岩波書店：1106.

[15] 陳昌淑、田中康男 (2001) 硫黄酸化反応による畜舎汚水の窒素除去と脱色：用水と排水：43：1053-1059.

[16] ㈱東レリサーチセンター調査研究部 (2012) 水処理・水リサイクル技術の最先端：㈱東レリサーチセンター、東京.



## 硫黄脱窒处理実証試験

[17] Migo VP, Matsumura M, Del Rosario EJ,  
Kataoka H (1993) The effect of pH and  
calcium ions on the destabilization of

melanoidin : Journal of Fermentation and  
Bioengineering : 76(1) : 29-32.

**Demonstration experiments for sulfur-denitrification of swine wastewater in a notch tank commercially available for construction filled with novel agents consisted of fine sulfur powder and CaCO<sub>3</sub> particles coated with surfactant**

Hasegawa Teruaki<sup>1</sup> · Tanaka Yasuo<sup>2</sup> · Kasahara Kazuhisa<sup>3</sup> · Osada Takashi<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Chiba Prefectural Livestock Research Center, Yachimata 289-1113, Japan

<sup>2</sup>Institute of Livestock Industry's Environmental Technology, Nishishirakawa 961-8061, Japan

<sup>3</sup>Kato Sansho CO.,LTD., Tokyo 103-8228, Japan

<sup>4</sup>National Institute of Livestock and Grassland Science, Tsukuba 305-0901, Japan

A demonstration experiments of a novel sulfur-denitrification method was performed for about one year to develop a high performance denitrification process for swine wastewater. The novel agents consisted of fine sulfur powder coated with a surfactant and CaCO<sub>3</sub> particles. A commercially available baffled tank, so called a notch tank, for clarifying sand and mud from discharged water was used as a reactor. The reactor was separated into three parts by two baffle boards. About 500 kg of the agent was placed in a 2 m<sup>3</sup> reactor installed in a swine wastewater treatment facility. The swine wastewater was continuously fed into the reactor with a hydraulic retention time of 0.3 to 1.5 days. Nitrogen loading rates ranged from 0.2 to 1.2 kg-N/ton-agent/day, and water temperature in the reactor fluctuated from 5.5°C to 30.6°C. Three types of reactors including a fundamental structure reactor (SPEC-1), a reactor having a backwashing function (SPEC-2) and a reactor incorporated with a polyvinyl cylinder (SPEC-3) were tested. The SPEC-3 showed the highest nitrogen removal rate during the experimental period. The average nitrate nitrogen concentration was 244.6 mg/L in the influent and 88.5 mg/L in the effluent of the SPEC-3 (average removal rate of 64.6%). The nitrogen removal was specifically affected by the nitrogen loading rate, water temperature and the head loss of the material layer. Under optimal conditions of the three factors, high removal efficiency exceeding 90% was obtained by the SPEC-3 despite a low water temperature less than 10°C. The results suggest that the SPEC-3 reactor filled with novel agents effectively denitrificate swine wastewater throughout the year without an external heat supply.

**Key words** : denitrification, elemental sulfur, sulfur denitrification, swine wastewater.

**Corresponding:** Hasegawa Teruaki t.hsgw58@pref.chiba.lg.jp

Receipt of Ms: 12.09.2017. Accepted: 20.10.2017.

Journal of Animal Production Environment Science No17 (1) pp26-35. 2017