

下水処理プロセスにおける 一酸化二窒素排出量実態調査及び抑制対策

道中敦子・重村浩之・山下洋正

1. はじめに

下水道事業から発生する温室効果ガス(GHG)は、施設におけるエネルギー消費に起因する二酸化炭素(以下「CO₂」という。)だけでなく、水処理や汚泥処理の工程からメタンや一酸化二窒素(以下「N₂O」いう。)が発生することが特徴的である。特にN₂OについてはCO₂の約300倍の温室効果を持つことから対策が求められている。生活排水に含まれる有機物や栄養塩は下水処理プロセスにより生物処理されるが、そのうち、窒素成分が生物処理を受ける際に、副産物や中間物質としてN₂Oが処理プロセスから発生する。その発生メカニズムや排出実態は依然として不明な点が多く、抑制対策は明確に提示されていない。そこで、本研究では、下水処理プロセスからのN₂O排出量の実態を把握するとともに、抑制手法について検討した。

2. 下水処理プロセスにおけるN₂O排出量の実態調査

異なる下水処理プロセスにおけるN₂O排出量の実態を整理することを目的として、実下水処理場を対象に現地調査を実施した。

2.1 調査方法

標準活性汚泥法(以下「標準法」という。)、嫌気好気法(以下「AO法」という。)、嫌気無酸素好気法(以下「A2O法」という。)、循環式硝化脱窒法、MBR法等の様々な下水処理プロセスについて、計18カ所の実下水処理場にて現地調査を計37回実施した。N₂O排出量は同一処理場内でも反応槽間や測定時刻で変動が大きいことが報告されている¹⁾ことから、本調査では、24時間調査とし、同じ採取場所にて2時間に1回サンプリングを行うことを基本とした(計12回)。平均値を各調査時の値とした。処理場反応槽から発生

するガス試料は、ガス捕集器(図-1)を用い、ロート部を水面部付近に固定することで採取した。曝気をしている槽では好気槽用サンプリングチャンバーを使用し水面から曝気により放出される気体を採取した。曝気をしていない槽(嫌気槽、無酸素槽、最初沈殿池、最終沈殿池)では、嫌気槽用フロートチャンバーを使用し、0分及び20分静置後、チャンバー内の気体をポンプにより採取しその差を発生量とした。採集時の様子を写真-1に示す。反応阻害剤としてグルコン酸クロルヘキシジン溶液を添加した(最終濃度:0.26%)ヘッドスペース用のバイアル瓶に、採取した液体試料を密閉し溶存態N₂O測定に用いた。それぞれ採取したガス及び液体試料は、電子捕獲検出器(ECD)付ガスクロマトグラフ(島津,GC-8A)を用い、N₂O濃度を測定した。ECDでは導入部及び検出部温度を250℃、カラム温度を80℃に設定し、キャリアガスにはAr+CH₄(5%)を使用した。溶存態N₂O濃度はヘッドスペース法(温度40℃、恒温時間150分)により分析を行った。

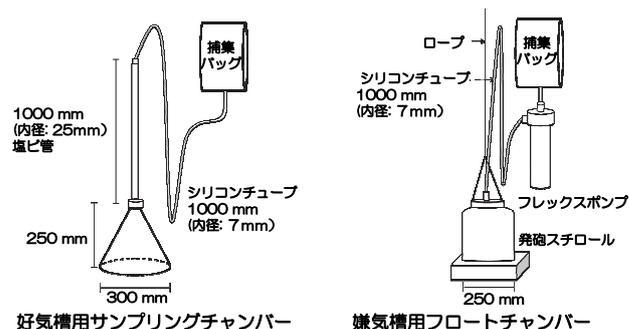


図-1 ガス捕集器



【好気槽にて】

【嫌気槽にて】

写真-1 現地ガス試料採集の様子

Field Survey on Nitrous Oxide Emissions from Wastewater Treatment Plant and a Bench-scale Experiment for Reduction Method by Aeration Restriction in Conventional Activated Sludge Process

2.2 N₂O転換率と窒素除去率の関係

N₂Oは、硝化過程における副生成物や脱窒過程における中間体として、排水中のアンモニア態窒素（以下「NH₄-N」という。）が生物処理される過程において生成されることから、下水処理における窒素除去と密接な関係があると考えられる。そこで、各処理場のN₂O転換率と窒素除去率の関係について図-2に整理した。N₂O転換率は、窒素損失量あたりの系外に排出されるガス態N₂O量及び処理水中の溶存態N₂O量の総和として算出した。A2O法や循環式硝化脱窒法など窒素除去を目的とした高度処理やMBR法を行っている処理場では、いずれも窒素除去率が高く、N₂O転換率が比較的小さい傾向が示された。一方、標準法やAO法で運転している処理場では、全体としてN₂O転換率にばらつきが大きく、関係性は確認できなかった。しかし、そのうち高い窒素除去率を示した処理場（約80%以上）では、窒素除去を目的とした高度処理と同様に低いN₂O転換率を示しており、N₂O発生量が小さいことが示唆された。

2.3 流入窒素負荷とN₂O転換率の関係

N₂O生成については、流入NH₄-N濃度（窒素負荷）に正比例するという報告²⁾がある一方で、流入量の変動とN₂O濃度に明確な関係は見られないとの報告³⁾もあり実態は不明である。そこで、現地調査の結果をもとに、流入NH₄-N濃度とN₂O転換率の関係を調べた結果を図-3に示す。

図-2にて窒素除去率によって差が見られたことから、窒素除去を目的とした高度処理及びMBR法について（図-3a）、窒素除去率が低い（除去率70%以下）標準法及びAO法について（図-3b）分けて整理した。窒素除去を目的とした高度処理では流入NH₄-N濃度に関わらず、N₂O転換率が低いことから、流入負荷変動に影響されず排出量が抑えられることが示唆された。一方、標準法とAO法では、特異的に高い値を示した処理場（6.7%）が1点確認された。このとき、処理水中の亜硝酸濃度が2.5mg/Lだった。このような硝化が不完全となり、亜硝酸が系内に蓄積する場合にN₂O排出量が大きくなることが報告されており⁴⁾、特異的にN₂Oが発生しやすい状況だったと考えられる。特異的に高い転換率を示した1点を除くと、流入NH₄-N濃度と相関が見られたグループ、流入NH₄-Nに影響せず転換率が低いグループに

分かれた。正比例関係が確認されたグループがあることから、標準法やAO法では、流入窒素負荷に比例してN₂O排出量が大きくなる傾向があるといえる。一方で、流入NH₄-Nに影響せず、転換率が低く抑えられているグループが確認されたことから、運転方法や条件によっては発生量が抑えられる可能性が推測された。しかしながら、N₂O転換率が低いグループにおいて、共通点は確認できず、今回の結果からは、関係する環境因子の抽出及び抑制因子の同定には至らなかった。N₂Oの発生は、環境条件だけでなく、微生物相によっても変化することから、メカニズムを解明することが今後の課題である。

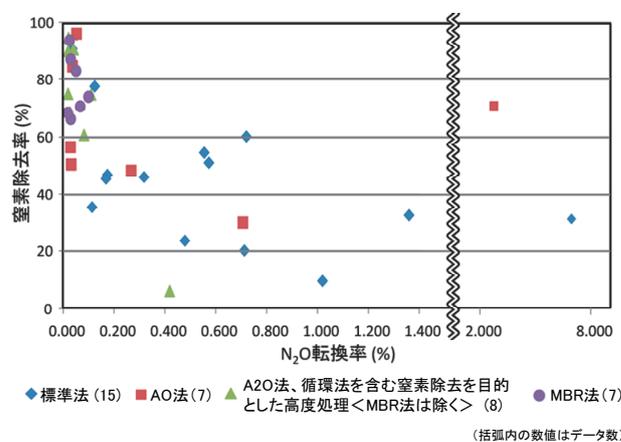


図-2 各処理場におけるN₂O転換率と窒素除去率の関係

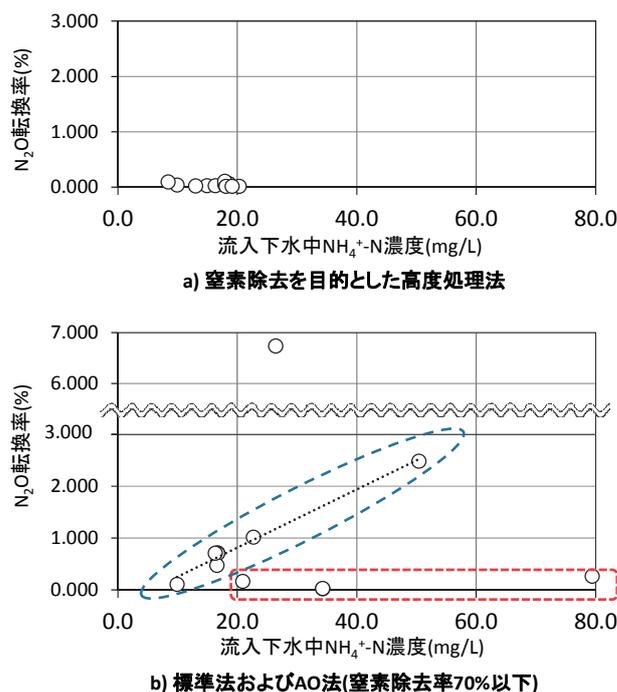


図-3 流入NH₄-N濃度とN₂O転換率の関係

3. ベンチスケールリアクターを用いたN₂O排出量抑制運転の検討

現地調査の結果から、国内の下水処理で最も一般的な処理方式である標準法におけるN₂O排出量が、窒素除去を目的とした高度処理に比べて大きくなること示された。また、標準法でも、運転方法や条件によっては発生量が抑えられる可能性が示された。そこで、運転条件とN₂O発生量の関係を調べるため、実下水処理を模倣し、生下水を連続的に受け入れたベンチスケールの連続式リアクターを用いた実験による調査を行った。

現地調査の結果より、嫌気槽・無酸素槽と比較して好気槽から発生するN₂O量がガス態・溶存態ともに格段に大きかったこと、窒素除去率が高い処理場では反応槽におけるN₂O転換率が低い傾向が示されたことを踏まえ、本研究では、標準法において、前段の曝気を抑えることで脱窒工程を取り入れた制限曝気運転によるN₂O排出量抑制効果について調べた。

3.1 調査方法

実験に用いた装置は、6槽の反応槽（6.6L×6槽、計39.6L）と最終沈殿池（13.2L）から構成された連続式リアクターであり、実下水処理場内に設置した。装置の模式図について図-4に示す。本装置は、各槽ごとで曝気風量を調節することができる。また、反応槽には覆蓋が付いており水面から発生するガスを採取できるようになっている。運転開始18日間は標準曝気運転を行い、その後前段2槽の曝気風量を制限して運転（制限曝気運転）した。リアクターの運転条件について詳細を表-1に示す。いずれの反応槽も完全混合にて運転を行った。運転期間全期間を通して、流入水量は一定となるように調節し、水学的滞留時間は約7時間で運転した。標準曝気運転時、制限曝気運転時それぞれの槽内温度及び固形物滞留時間は、16.1℃、11.5日、14.0℃、11.7日であり（期間平均）、ほぼ同等の条件で運転した。

実験期間中、1週間に2回、各槽から採水及びガス採取し、水質分析とN₂O分析を行った。水質分析は、採水後速やかにガラス繊維ろ紙にてろ過し、溶存態有機物、無機態窒素、MLSS濃度を測定した。採取した試料のガス態及び液中溶存態N₂O濃度は上述2.1と同様に測定した。

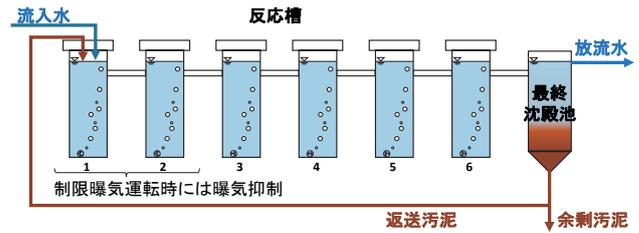


図-4 実験装置（ベンチスケールリアクター）

表-1 リアクター運転条件

| 曝気風量 (L/min) | 標準曝気運転 | | | | | | 制限曝気運転 | | | | | |
|--------------|------------|-----|-----|-----|-----|-----|------------|-----|-----|-----|-----|-----|
| | 反応槽タンク No. | | | | | | 反応槽タンク No. | | | | | |
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
| | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 0.1 | 0.1 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 |
| | | | | | | | 攪拌あり | | | | | |

表-2 流入水質と反応槽内MLSS濃度

| (期間平均) | | 標準曝気運転 | 制限曝気運転 |
|--------|----------------------------------|------------|-------------|
| | | Day 0 - 18 | Day 18 - 35 |
| 流入水質 | 浮遊物質SS (mg/L) | 369.0 | 410.0 |
| | 溶存態有機物D-TOC (mgC/L) | 30.7 | 32.7 |
| | 無機態窒素I-N (mgN/L) | 18.8 | 18.7 |
| | リン酸態リンPO ₄ -P (mgP/L) | 1.3 | 1.3 |
| 反応槽 | 活性汚泥浮遊物質MLSS (mg/L) | 2,575 | 2,846 |

3.2 結果及び考察

流入水は当該下水処理場の流入下水を沈殿処理したものを用いており、運転期間中の流入水質及び反応槽MLSS濃度を表-2に示す。運転期間35日間で、流入水質及びMLSS濃度に大きな変化はなく、運転方法変更前後にて同等であった。曝気を制限した場合、有機物処理能力が落ちることが懸念されたが、溶存態有機物除去率の期間平均値は標準運転時78%、制限運転時73%だった。いずれの運転方法も処理水濃度10mgC/L以下、除去率70%以上を維持しており同等の処理能力だった。

各運転期間に取得したデータ（馴致期間を除く）の期間平均を標準曝気運転及び制限曝気運転の代表値とした。異なる運転下での処理過程における無機態窒素の挙動を図-5に示す。どちらの運転においても末端槽にて完全硝化に至っていた。標準曝気運転では無機態窒素総量がほとんど変化しておらず、主に硝化反応が起こっていた。一方、制限曝気運転時には、無機態窒素総量の減少が観察され、硝化反応に加え脱窒反応が同時に起こっていることが推測された。窒素除去率を比較すると、それぞれ標準曝気運転時50.5%、制限曝気運転時67.2%であり、制限曝気運転では脱窒により窒素除去が促進されたと考えられた。

各運転時におけるN₂O排出量を図-6に示す。排出量の大きい反応槽において、溶存態・ガス態ともに制限曝気運転のほうが小さい値となっていた。流入水量あたりのガス態N₂O排出総量は、それぞれ標準曝気運転時541.0mgN/m³、制限曝気運転時29.5mgN/m³であり、制限曝気へ変更後に約95%大幅に減少する結果が得られた。このことから、曝気風量の制御により、N₂O排出量を低減できる可能性が示された。

4. まとめ

実下水処理場を対象としたN₂O排出量実態調査結果より、高度処理やMBR法では、窒素除去率が高く、N₂O排出量が低い傾向が示された。また、下水処理プロセスから排出される温室効果ガスの1つであるN₂Oの抑制対策として、高度処理化や窒素除去率を上げる運転が有効である可能性が示唆された。しかしながら詳細なメカニズムには不明な点も残っており、今後の課題である。メカニズムの解明を含め、様々な環境条件に合わせた適切な運転方法の確立に取り組んでいきたい。

謝 辞

国土技術政策総合研究所にて実施した現地調査や試料提供にあたり、ご理解とご協力を賜りました地方公共団体、下水処理場関係者の皆さま方に心より感謝いたします。

参考文献

- 1) Tsushima et al.: Nitrous Oxide Emitted from Actual Wastewater Treatment Plants with Different Treatment Methods, the Journal of Water and Environment Technology, Vol.12(2), pp.191-199,2014
- 2) Lotito et al.: Nitrous oxide emissions from the oxidation tank of a pilot activated sludge plant Water Research, Vol.46(11), pp.3563-3573, 2012

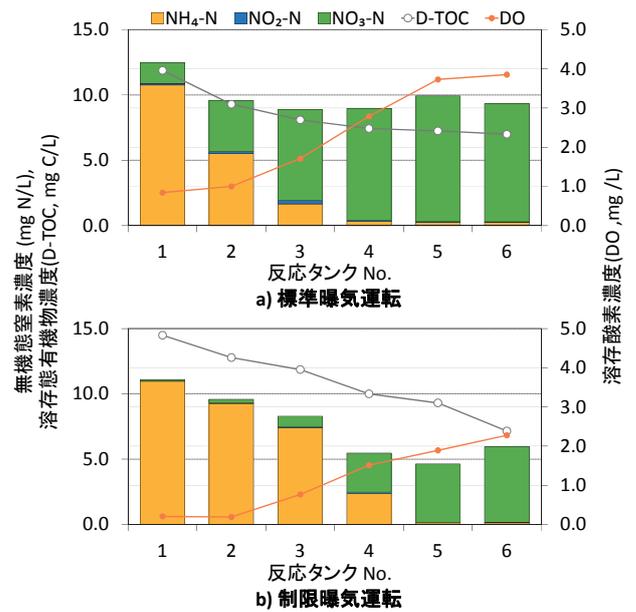


図-5 異なる運転時における各反応槽での無機態窒素濃度、溶存態有機物濃度及び溶存酸素濃度の挙動

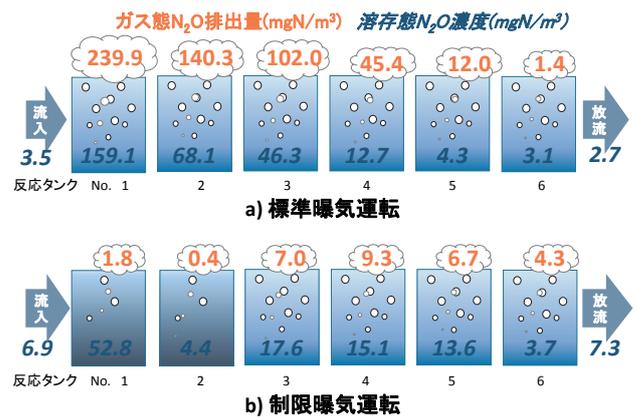


図-6 異なる運転時における各反応槽からのN₂O排出量

道中敦子



国土交通省国土技術政策総合研究所下水道研究部下水処理研究室 研究官、博士(環境学)
Dr. Atsuko MICHINAKA

重村浩之



研究当時 国土交通省国土技術政策総合研究所下水道研究部下水処理研究室主任研究官、現土木研究所先端材料資源研究センター 上席研究員
Hiroyuki SHIGEMURA

山下洋正



国土交通省国土技術政策総合研究所下水道研究部下水処理研究室長
Hiromasa YAMASHITA