

下水処理の過程で排出される一酸化二窒素に関する実態調査

石井淑大・重村浩之

1. はじめに

日本全体で排出される温室効果ガス（GHG）の約0.5%は下水道事業により排出されており¹⁾、下水道事業においてもGHG排出量の削減が求められている。一酸化二窒素（ N_2O ）は、二酸化炭素の約300倍の温室効果を持っており、人為由来の主要なGHGの一つとされている。下水道事業全体におけるGHG総排出量の内、汚泥焼却により排出される N_2O が約20%、水処理に伴い排出される N_2O が約8%を占めるとされている¹⁾。このため、下水道事業から排出されるGHGとして、 N_2O 由来の排出量は無視できないものである。汚泥焼却については、高温・高性能な焼却炉の導入により N_2O の排出量が削減可能であると報告されている一方で、水処理由来の N_2O については、その生成要因が明らかではなく、有効な排出抑制方策が取られていない現状である²⁾。

国総研下水処理研究室では、 N_2O 排出量の実態を正確に把握し、 N_2O の排出を抑制する方策を提案するため、過去10年以上にわたって実下水処理場において調査を行い、データを蓄積してきた。本稿では、下水処理場における工夫運転により、水処理による N_2O 排出量を抑制できないか検討するために、過年度から調査対象としてきた下水処理場における N_2O 排出量の実態調査結果について、特に2021年度の結果を中心に報告する。

2. 水処理における N_2O の生成

水処理に由来する N_2O は、流入下水に含まれているアンモニア態窒素が、下水処理場における活性汚泥中の微生物の働きにより硝化（アンモニア態窒素が硝酸態窒素等に酸化されること）、脱窒（硝酸態窒素等が窒素ガスに還元されること）される際の副生成物および中間生成物として排出される³⁾。その生成経路や関与する微生物群につい

ては、実験室レベルでの解明が進んでいるものの、実下水処理場においては、流入下水の水質、水温、活性汚泥中の微生物叢、処理方式、曝気方式、溶存酸素量（DO）、降雨等の影響が複雑に関与しており、 N_2O の生成量を決定する要因については特定できていない。そのため、 N_2O の排出量は処理方式ごとに定められた排出係数に処理水量をかけることで推定しているが⁴⁾、その推定結果は実態と乖離している可能性が指摘されている。

3. 調査方法

3.1 調査対象とする下水処理場

日本国内の下水処理場における一系列（以下「系列A」と呼ぶ。）を調査対象とした。系列Aは、日本において広く普及している処理方法である標準活性汚泥法（以下「標準法」という。）の躯体を用いているが、栄養塩類（窒素、リン）の除去率向上を目的として、工夫運転により、一部反応槽で曝気を抑制する擬似嫌気好気活性汚泥法（以下「擬似AO法」という。）として運転している。すなわち、生物反応槽を水流方向に4分割した時の最初の区画において、曝気風量を通常の2分の1から3分の1程度に減少させることで、擬似的な嫌気槽としている。なお、本下水処理場の処理区域は一部合流式下水道となっている。

3.2 試料の採取日時および採取地点

2021年度の調査は、2021年10月7日（第1回）と11月11日（第2回）の2回実施した。1回目の調査日の前5日間は処理場の最寄りの地域気象観測所において降雨が観測されなかったが、2回目の調査の2日前には41mm/dayの降雨が観測された。そのため、2回目の調査日の朝時点で下水の流入水量が降雨前と比べて1.4倍程度に増加しており、硝化状況に変化がある可能性が考えられた。

試料の採取は、 N_2O 排出量の時間変動を考慮し、各調査日において昼12時から翌日の昼12時まで4

時間に1回、計7回実施した（12時、16時、20時、24時、翌日4時、8時、12時）。なお、複数の採取地点で順番に試料採取を行ったため、実際の採取時刻は、地点により数分～数十分の遅れが生じている。

N₂O排出量の空間的変動を考慮し、図-1の通り、最初沈殿池、反応槽の4ヵ所、最終沈殿池の計6地点で気体試料の採取を行った。反応槽では、水流方向に4分割した際の各区画で採取し、擬似嫌気槽で1地点、好気槽で3地点とした。また、この6地点に加え、返送汚泥の反応槽への流入直前の地点の計7地点で水試料を採取した。

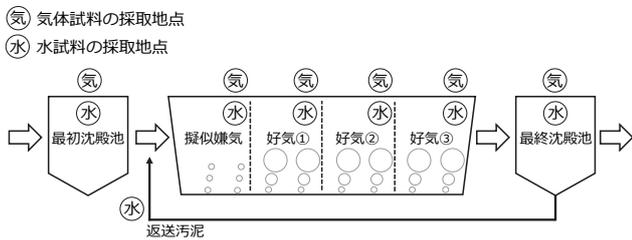


図-1 試料の採取地点

3.3 試料の採取方法

気体試料の採取は、ガス態N₂O濃度の分析のために行い、図-2の自作のガス捕集器を用いて行った⁵⁾。反応槽（曝気を行っている擬似嫌気槽を含む）では、漏斗状のガス捕集器を水面に密着させ、曝気により発生する空気を容量1Lのテトラバッグに採取した。一方で、多量の気体が排出されない最初沈殿池および最終沈殿池では、ポリ瓶の底を切り取った形状のガス捕集器を水面に密着させ、密着直後のポリ瓶内の空気と、ポリ瓶を20分間静置した後にポリ瓶内にたまった空気をテトラ

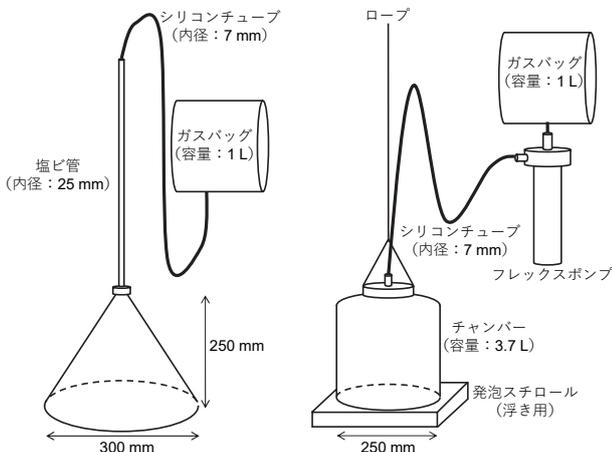


図-2 ガス捕集器の概要

（左：反応槽用、右：最初沈殿池および最終沈殿池用）

バッグに採取した。この20分間の差分により、N₂O排出量を算定した。

水試料は、水質分析用と溶存態N₂O濃度の分析用の2種類を採取した。水質分析用の水試料は、ひしゃくを用いて各地点につき1Lずつポリ瓶に採取した。溶存態N₂O濃度分析用の水試料は、あらかじめ活性汚泥の不活化剤を注入して密閉した、オートサンプラー用の試料瓶に、注射針で3mL採取した。なお、溶存態N₂O濃度のばらつきを考慮し、1地点につき3本の試料を採取した。

3.4 N₂Oの分析方法および排出係数の算出方法

ガス態N₂O濃度は、下水試験方法を参考に、ECD付きガスクロマトグラフを用いて測定した⁶⁾。分析により得られたガス態N₂O濃度に対して、反応槽については曝気風量に乗ずることにより、最初沈殿池および最終沈殿池については槽水面の面積とガス捕集器の接水部分の面積比に乗ずることにより、各槽から排出されるN₂Oの総量を計算した。それらの総量を処理水量で除すことにより、流入下水1m³を処理する際に排出されるN₂O量を表す、N₂Oの排出係数を算出した。

溶存態N₂O濃度は、ヘッドスペースオートサンプラーが接続されたECD付きガスクロマトグラフを用いて測定した。

3.5 水質等の分析項目および分析方法

試料採取の際に、現地で気温、気圧、水温、DO、pH、ORPを測定した。また、採取した試料を実験室へ運搬した後に、BOD、MLSS、MLVSS、SV30、SS濃度を測定した。測定方法はいずれも下水試験方法に則った。また、採取した試料を有効孔径1.0μmのろ紙でろ過した後、TOC計を用いてDOC濃度を分析した。同じくろ過した試料の各態窒素（アンモニア態窒素、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素）および全窒素の濃度を、自動比色分析機により測定した。全窒素の値と各態窒素の合計値との差分は有機態窒素と推定した。

4. 結果と考察

4.1 N₂O排出量の算出結果

本調査で採取した気体試料のN₂O濃度測定結果から算出した、1日当たりのN₂O排出量は、第1回が1.6kg/日、第2回が1.3kg/日であった。それぞれの調査日の処理水量で割ることにより、N₂O

の排出係数は、第1回は55.4mg-N₂O/m³、第2回は44.4mg-N₂O/m³であった。環境省および国土交通省が定める現行のN₂O排出係数は、標準法が142mg-N₂O/m³、嫌気好気活性汚泥法（以下「AO法」という。）が29.2mg-N₂O/m³となっている⁴⁾。水処理に伴い排出されるN₂Oは季節変動も大きいとされるが、本調査期間においては、標準法の躯体を擬似AO法として工夫運転することにより、N₂Oの排出量を削減できていた可能性がある。

本処理場の流域は一部合流式下水道であるため、降雨の影響によりN₂Oの排出量および排出係数が増加する可能性が考えられた⁷⁾。しかし本調査では、調査5日前まで降雨が観測されなかった第1回よりも、調査2日前に41mm/日の降雨が観測された第2回の方が、N₂Oの排出量および排出係数ともに約20%小さかった。第2回の41mm/日の降雨は、N₂Oの排出量に影響を与えないか、与えたとしても2日後には影響が小さくなっていることが推測される。

4.2 N₂O排出量の時間的変動

本調査におけるN₂O排出係数の時間変動を図-3に示す。第1回、第2回とも、N₂Oの排出係数は夕方16時に最も高くなり、朝8時に最も低くなっていた。この時間変動は、流入下水中の窒素負荷が時間変動しているために生じていると考えられる。N₂O排出係数の最小時と最大時の差は、第1回、第2回ともに約10倍であった。N₂Oの排出量が時間変動しており、単発の試料採取ではN₂O排出量の実態を把握することが困難であることが改めて確認された。

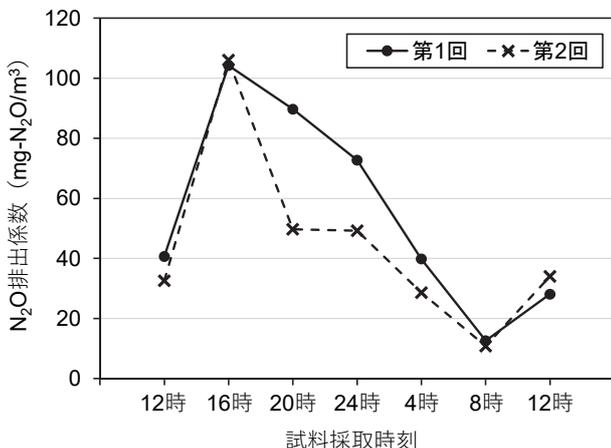


図-3 N₂O排出係数の時間変動

4.3 N₂O排出量の空間的変動

本調査における、各試料採取地点でのN₂O排出係数を図-4に示す。なお、図-4の値は、それぞれの調査日における7回の試料採取の平均値である。各槽におけるN₂O排出係数は、好気槽の初段から増加が開始し、好気槽の中段で最大になっている。これは、好気槽において硝化が進むことに伴い、副生成物としてN₂Oが排出されているためと推定される。最初沈殿池および擬似嫌気槽、最終沈殿池におけるガス態N₂Oの排出量は、好気槽と比較して小さく、それぞれ全排出量の1%以下であった。最初沈殿池および擬似嫌気槽においては、まだ硝化が進んでいないためN₂Oが生成されていないと考えられる。また、最初沈殿池および最終沈殿池では曝気がされていないため、溶存態N₂Oが存在していたとしても、大気中への放出が限定的であると考えられる。

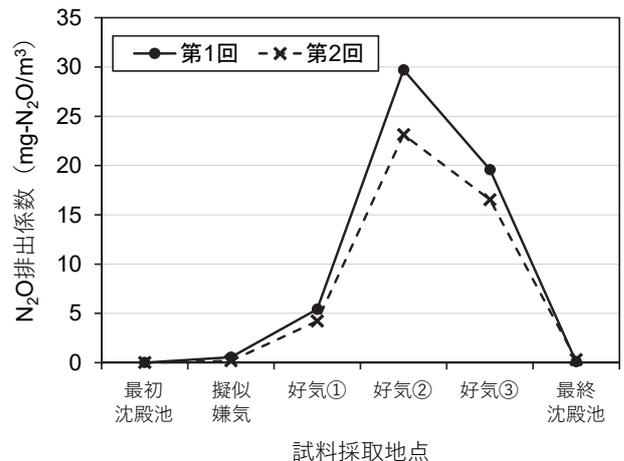


図-4 N₂O排出係数の空間的変動

4.4 N₂O排出量と窒素濃度との関係

図-5に、本調査における各態窒素濃度の分析結果を示す。なお、図-5の値は、それぞれの調査日における7回の試料採取の平均値である。系列Aは、本調査の期間、アンモニア態窒素を硝酸態窒素に変化させる硝化促進運転を基本としており、第1回、第2回の調査日ともに、流入下水中のアンモニア態窒素が好気槽で硝化され、反応槽前後での硝化率（硝酸態窒素に変化した割合）は95%以上であった。図-4と合わせて見ることで、硝化の進行に伴いN₂Oが排出されていることが分かる。

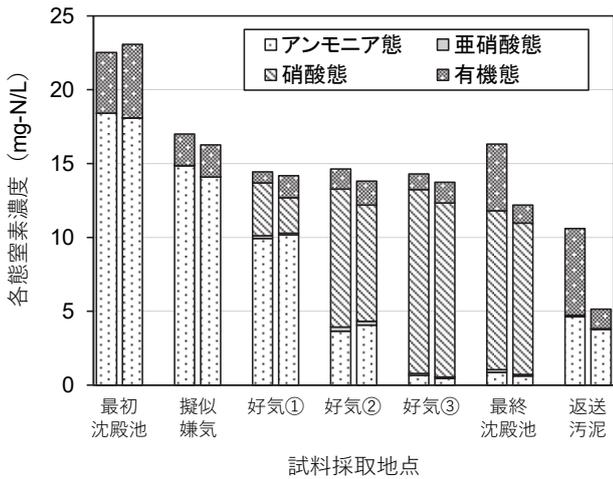


図-5 各態窒素濃度の測定結果 (それぞれ左が第1回、右が第2回)

4.5 過去の調査結果との比較

系列Aでは、2018年から計8回の調査を実施しており、本調査の結果と合わせた10回分のN₂O排出係数の算出結果を図-6に示す。図-6から、過去8回の調査中5回は、本調査と同様に標準法の排出係数よりも低い値が得られているが、2020年7月や2021年1月のように現行の標準法排出係数よりも高い値となることがあり、2019年8月のように、現行の20倍以上の排出係数が突発的に算出される場合もあった。これらの結果から、下水処理場におけるN₂O排出量の実態を把握するためには、年間を通じた継続的な調査が必要であることが改めて示された。

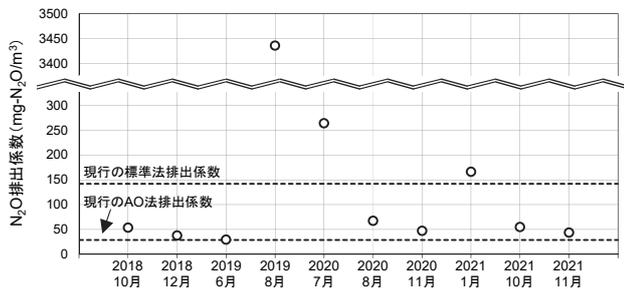


図-6 系列Aの過去調査におけるN₂O排出係数算出結果

5. まとめ

本調査から、擬似AO法で運転することにより、標準法よりもN₂O排出量を削減できる可能性が示唆された。また、41mm/dayの降雨ではN₂Oの生

成を増加させる影響は観測されなかった。下水処理場からのN₂O排出量の実態を把握するためには、時間変動や空間的な変動、さらには年間の変動を考慮した継続的な調査が必要であることが示された。

これらの調査結果を整理し、下水処理場からのN₂O排出削減対策の構築につなげていき、下水道事業におけるGHG排出量削減に貢献したいと考えている。

参考文献

- 1) 下水道技術開発会議エネルギー分科会：カーボンニュートラルの実現に貢献するための下水道技術の技術開発等に関するエネルギー分科会報告書、2022、
http://www.nilim.go.jp/lab/eag/pdf/202203_energy_bunkakaihoukokusyo.pdf (閲覧日：2023年8月8日)。
- 2) 増田周平：下水処理プロセスにおけるGHG排出の動向と対策、水環境学会誌、vol. 46(4)、pp.120~124、2023。
- 3) 寺田昭彦：硝化プロセスにおける亜酸化窒素の放出特性と生成機構、水環境学会誌、vol. 38(9)、pp. 334~339、2015。
- 4) 環境省、国土交通省：下水道における地球温暖化対策マニュアル、2016、
https://www.env.go.jp/earth/ondanka/gel/ghg-guideline/files/manual_sewer_201803.pdf (閲覧日：2023年8月8日)。
- 5) 道中敦子：下水処理運転方式の違いによるN₂O排出量の実態把握と抑制対策手法の検討、下水道協会誌、vol. 54(657)、pp. 24~26、2017。
- 6) 日本下水道協会：下水試験方法－2012年版－、pp. 791~794、2012。
- 7) 栗田貴宣、松橋学、田嶋淳：下水処理における一酸化二窒素発生量に影響を与える因子の検討、第58回下水道研究発表会講演集、pp.452~454、2021。

石井淑大



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(工学)
Dr. ISHII Yoshihiro

重村浩之



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
SHIGEMURA Hiroyuki