

◆ 温暖化ガス対策特集 ◆

下水処理場からの温室効果ガスの排出特性

重村浩之* 與儀和史** 平出亮輔*** 鈴木 穂**** 酒井憲司*****

1. はじめに

地球の温度は、日射エネルギーと地表面から宇宙に放散される放射エネルギーとのバランスによって決定されており、大気中に赤外線を吸収する成分が増加すれば地球が温暖化する。この赤外線吸収成分としては、二酸化炭素(CO_2)が代表的であるが、メタン(CH_4)や一酸化二窒素(N_2O)などのガスも大気中の濃度は低いものの、単位重量当たりの赤外線吸収能が大きく(100年間において、 CO_2 を1とすると CH_4 :21、 N_2O :310)、また近年の増加割合も大きいことから、温室効果ガスとして注目を集めている。

下水道施設において、近年の調査によると¹⁾、下水処理および汚泥処理の過程で CH_4 、 N_2O の放出が報告されている。今後の下水道の普及拡大を考えると、下水処理システムからの CH_4 、 N_2O 放出量はさらに増加することが予想される。下水道が地域単位のみならず地球規模の環境保全にも貢献するには、温室効果ガスの下水道システムからの排出を抑制する対策技術の確立が急務と言える。

そこで、本研究では、排出抑制策を確立するための第1段階として、下水処理プロセスからの CH_4 、 N_2O 排出特性について調査を行った。

CH_4 については、下水処理場の水処理系内での CH_4 生成源およびその排出特性を明らかにするため、実下水処理場での CH_4 排出量調査、各プロセスのサンプルを用いた回分実験^{注1)}、および CH_4 取扱を検討するためのパイロットプラント実験を行った。また、 N_2O については、標準活性汚泥法(以下、標準法)の生物反応タンクからの N_2O 排出量とその排出特性を把握するため、3箇所の処理場での現地調査と、パイロットプラント実験を行った。

2. CH_4 の排出特性2.1 実処理場からの CH_4 排出量処理場の水処理系からの CH_4 排出量および排

出特性を把握するため、3箇所の処理場で水処理プロセスからの CH_4 排出量を測定した。

2.1.1 調査方法

現地調査を行った3処理場の処理条件等を表-1に示す。水理学的滞留時間(HRT)、汚泥滞留時間(SRT^{注2)})に大きな差があり、HRT、SRTとともに、B処理場で他の処理場よりもかなり小さく、負荷が大きい状態であった。

表-1 調査対象処理場の概要

| 処理場名 | A | B | C |
|-----------------------------|----------------|----------------|--|
| 流量(m^3/d) | 2697 | 10065 | 6365 |
| 下水の収集方式 | 分流 | 合流 | 分流 |
| 処理法 | ステップ流入式活性汚泥法 | 標準法 | 嫌気 ^{注4)} -好気 ^{注5)} 法 |
| 汚泥消化 | 無 | 無 | 有 |
| 流入水 CODcr ^{注3)} | 365 mg/ ℓ | 393 mg/ ℓ | 308 mg/ ℓ |
| エアタンク溶存酸素(DO) | 1.1 mg/ ℓ | 3.2 mg/ ℓ | 2.3 mg/ ℓ |
| HRT | 9.3h | 5.3h | 10.5h |
| SRT | 19.3d | 6.7d | 13.0d |

各プロセスから気相への CH_4 のフラックス^{注6)}を求めるために、浮遊式のガス採取器具を水面に浮かべてガスのサンプリングを行った(図-1)。最初沈殿池等、曝気をしていない箇所では、チャンバーを水面に浮かべて0分後と3分後のガス採取器具内のガスを、エアーポンプを使ってガス採取用バッグに採取し、両者の CH_4 濃度の差から発生フラックスを求めた。好気タンクでは、水面からガス採取器具に吹き上がってくるエアレーション空気を、前・中・後の3カ所でガス採取用バッグ

注1) 実験中に外部からの流入および外部への流出を伴わない実験のこと。この対照語が連続実験である。

注2) 処理プロセス内に活性汚泥が存在する平均の滞留時間のこと。処理プロセス全体に存在する活性汚泥量を、1日当たりに系外に流出する活性汚泥量で割って求められ、活性汚泥法の管理指標として重要なものである。

注3) 重クロム酸カリウムを酸化剤として用いて測定した化学的酸素要求量。水の有機物汚濁指標。

注4) 溶存酸素も硝酸・亜硝酸も存在しない状態。生物学的リム除去を行うために必要な条件の一つ。

注5) 溶存酸素が存在する状態。

注6) 単位面積を単位時間当たりに通過する物質量。

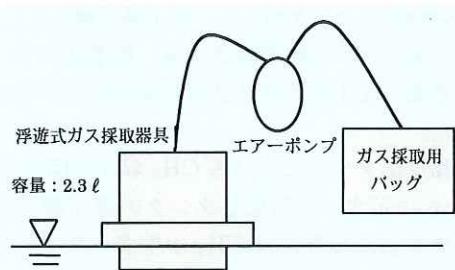


図-1 ガスのサンプリング(曝気をしていない槽)に捕集した。

CH_4 濃度は水素炎イオン化検出器(FID)付ガスクロマトグラフを使って測定した。また、各プロセスから液体試料を採取し、CODcr 濃度および各態窒素濃度を測定した。

2.1.2 調査結果

図-2 に、水処理系の各プロセスにおける CH_4 排出量を示す。いずれの処理場でも、他のプロセスと比べて、生物反応タンクからの CH_4 排出量が多かった。この理由としては、最初沈殿池流出水中の CH_4 の放出、および生物反応タンク内の部分的な嫌気部での CH_4 の生成が考えられる。 CH_4 排出量を処理場間で比較すると、夏冬ともに、B 処理場が圧倒的に大きく、続いて A 処理場、C 処理場の順であった。他の処理場よりも生物反応タンクの HRT および SRT が短く、有機物質負荷が高くなっていた B 処理場において(表-1)、 CH_4 排出量が大きくなつたと考えられる。

2.2 CH_4 生成能力の評価

生物反応タンクで排出される CH_4 の発生源を調べるために、表-1 に示す下水処理場内の各プロセスから採取された試料の CH_4 生成実験を行つた。対象処理場は、前項の 3 処理場である。

70ml 容量のゴム栓付瓶に、 CH_4 生成用基質の酢酸(添加後の CODcr = 1000mg/l)を添加した液体試料を封入し、約 10 日間ほど恒温振とう培養槽内で培養した。各試料につき同じものを 5 個作成し、経時に 1 個ずつゴム栓付瓶を開け、液中の CH_4 濃度を測定した。液中の CH_4 濃度は FID 付ガスクロマトグラフを使って、ヘッドスペース法で測定した。

各処理場における結果を図-3 に示す。生物反応タンクの活性汚泥混合液では、どの処理場のサンプルも CH_4 が生成されていることがわかつた。一方、流入水中では CH_4 が生成されず、流入水

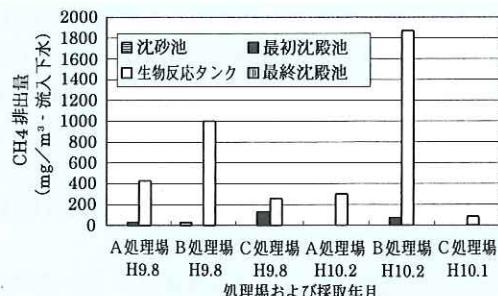


図-2 各処理場の水処理系の各プロセスにおける CH_4 排出量

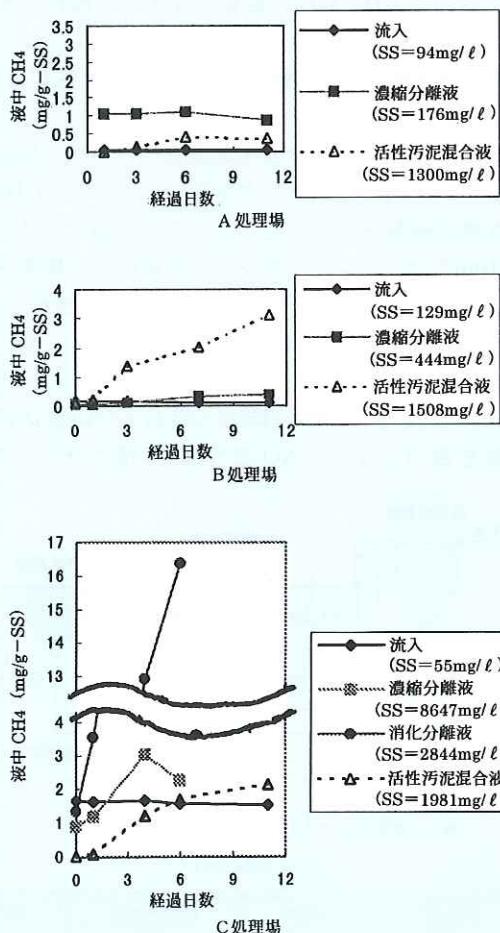


図-3 CH_4 生成実験の結果

の CH_4 生成能力は低いことがわかつた。

実験開始後 0~6、7 日の活性汚泥混合液の CH_4 生成能力は、B および C 処理場において、ともに 0.28mg/(g-SS·d) であった。B、C 処理場を比較すると、生物反応タンク内に嫌気タンクの存在する C 処理場の方が生物反応タンクからの CH_4 排出量が少なかつた(図-2)。生物学的りん除去プロ

セスにおいて、嫌気タンク内でりん蓄積菌がCH₄生成細菌の基質となる酢酸を利用するため、生物学的りん除去プロセスを採用していないB処理場では酢酸を利用するりん蓄積細菌が多く含まれていないと考えられるので、CH₄を生成しやすい状況になっていたと考えられる。嫌気タンクのCH₄排出抑制効果について次項で検討した。

なお、C処理場では、汚泥濃縮タンクおよび汚泥消化タンクの分離液から相当量のCH₄が生成されており、汚泥処理プロセスの返流水も水処理系におけるCH₄放出に影響を与える可能性があると考えられる。

2.3 標準活性汚泥法と嫌気一好気法におけるCH₄収支の比較

平成9年8月における現地調査において、生物反応タンク内に嫌気タンクを設けることで、CH₄の生成が抑制されていた。そこで、反応タンク容量10m³のパイロットプラントを用いて、標準法および嫌気一好気法(以下、AO法)の運転を行い、両者の処理法でのCH₄生成量を比較した。図-4にパイロットプラントの概略図を示す。また、実験条件を表-2に、測定時の水温および活性汚泥濃度を表-3に示す。AO法では、5槽に分かれてい

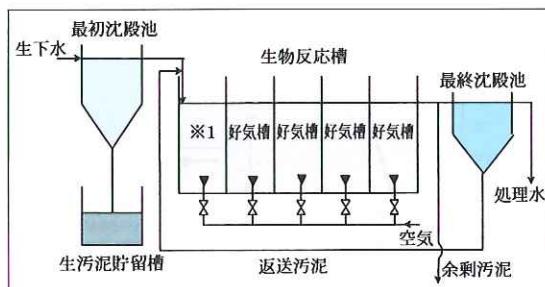


図-4 パイロットプラントの概略図
※1：標準法のとき好気槽、AO法のとき嫌気槽

表-2 実験条件

| 流入量 (m ³ /h) | HRT (h) | 汚泥返送比 (-) | SRT (d) |
|----------------------------|------------|--------------|------------|
| 1.45 | 6.9 | 0.41 | 7.7 |

表-3 水温およびMLSS^{注7)}濃度

| | 水温 (°C) | MLSS (mg/ℓ) |
|-----|---------|-------------|
| 標準法 | 12.9 | 2,100 |
| AO法 | 13.7 | 2,210 |

注7) 活性汚泥浮遊物質。反応タンク内の管理指標として用いられる。

いる生物反応タンクのうち、第1槽を嫌気とした。なお、測定は、処理条件設定後、標準法については2週間、AO法では3週間の期間をおいてから行った。

生物反応タンクにおけるCH₄収支を図-5および図-6に示す。生物反応タンクの第1槽において、標準法の場合にはCH₄が生成されているのに対し、AO法においては生成が見られていない。このため、標準法においては、流入水中の溶存CH₄に対して約1.7倍のCH₄が大気中に排出されていたが、AO法の場合は、流入と排出の量が同程度であった。AO法では、嫌気過程でポリリン酸蓄積細菌が酢酸の摂取について競合し、CH₄生成細菌の基質となる酢酸が消費されてCH₄排出が抑制された可能性がある。

標準法の生物反応タンク中でのCH₄の生成については、図-3の結果と合わせて、以下の検討を行った。図-5の標準法におけるCH₄生成速度は、第1槽において0.45mg/(g-SS·d)、全区画の平均で0.13mg/(g-SS·d)であった。CH₄発酵に利用可能な有機物の組成に違いがあるものの、前項の酢酸添加かつ嫌気状態で求めたBおよびC処理場のCH₄生成能力の値である0.28mg/(g-SS·d)より、図-5のパイロットプラント第1槽の値の方が大きかった。これより、好気状態でも、有機物負荷の高いところでは、かなりのCH₄生成能力を

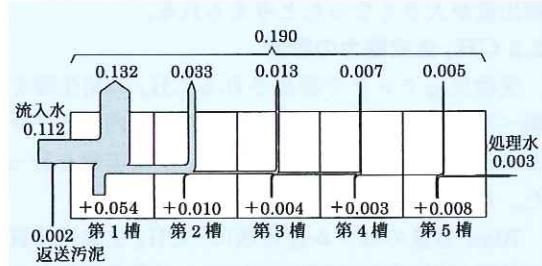


図-5 標準法におけるCH₄収支 (単位:gCH₄/m³)

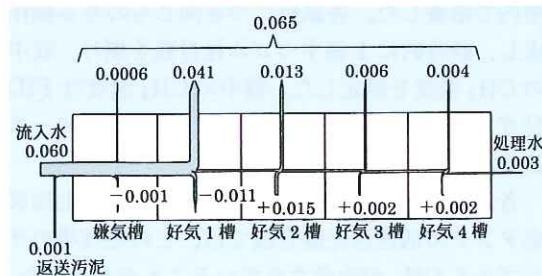


図-6 AO法におけるCH₄収支 (単位:gCH₄/m³)

有していると考えられる。

3. N₂O の排出特性

3.1 発生機構²⁾

硝化過程では、アンモニア酸化細菌の活動の副産物として N₂O が生成されている。その経路は 2 通りあると考えられる。一つは、好気的条件でアンモニア (NH_4^+) からニトロキシル (NOH) を経て生成される経路であり、もう一つは、硝化が起こっている系で部分的に、ほとんどあるいは完全な嫌気的条件となって亜硝酸 (NO_2^-) が還元されることで生成される経路である(図-7)。

脱窒過程では、硝酸 (NO_3^-) および亜硝酸が窒素分子 (N_2) へと還元される過程の中間生成物として N₂O が生成される(図-7)。

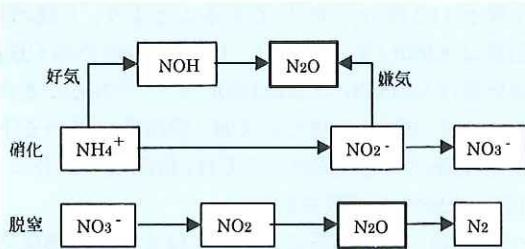


図-7 硝化・脱窒における N₂O 発生機構

3.2 生物反応タンクからの N₂O 排出量

水処理系において、N₂O はほとんど生物反応タンクから排出される³⁾。そのため、本研究では 2 章の表-1 に示す 3箇所の処理場において、生物反応タンクから排出するガスの N₂O 濃度を測定し、N₂O 排出量を算定した。測定時期は、A 処理場および B 処理場においては 2 月であり、C 処理場においては 8 月～3 月の間に 5 回測定した。N₂O 濃度は、電子捕獲検出器 (ECD) 付ガスクロマトグラフで測定した。

表-4 に、各処理場の生物反応タンクからの N₂O 排出量、最初沈殿池流出水中の窒素の N₂O への転換率、生物反応タンク末端のアンモニア性窒素 ($\text{NH}_4\text{-N}$) 濃度、酸化態窒素 (NOx-N) 濃度および亜硝酸性窒素 ($\text{NO}_2\text{-N}$) 濃度を示す。B 処理場において、他の 2 処理場よりも N₂O 排出量、N₂O 転換率ともに相当高かった。この原因として考えられるのが、生物反応タンク末端での $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の高さである。図-7にも示しているように、N₂O は $\text{NO}_2\text{-N}$ とともに硝化反応の際に副産物として

表-4 各処理場の生物反応タンクでの N₂O 放出量および転換率、各態窒素濃度

| 処理場名 | A | B | C | |
|---|------------------------------|-------|-------|------|
| N ₂ O 放出量 (mg-N/m ³ -流入下水) | 9.0 | 316.5 | 19.3 | |
| N ₂ O 転換率 (%) | 0.016 | 0.64 | 0.056 | |
| タンク末端 | NH ₄ -N 濃度 (mg/ℓ) | 14.9 | 9.1 | 0.80 |
| | NOx-N 濃度 (mg/ℓ) | 3.7 | 0.49 | 8.8 |
| | NO ₂ -N 濃度 (mg/ℓ) | 0.19 | 0.47 | 0.03 |

生成される。そのため、硝化不十分の場合、N₂O と $\text{NO}_2\text{-N}$ がともに蓄積すると考えられる。

山根らの報告でも、生物反応タンク混合液中の $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度が大きくなると、N₂O 発生量原単位が大きくなるという相関が得られている²⁾。その他、SRT が短くなると N₂O 排出量が大きくなるという報告があり⁴⁾、これも B 処理場において N₂O 排出量の大きくなった原因と考えられる。

3.3 標準法パイロットプラントを用いた N₂O 排出量の季節変動

4 月から 6 月にかけて、気温が上昇するため、生物反応タンクでの硝化反応が進行し、 $\text{NO}_2\text{-N}$ が蓄積するので、N₂O ガスが出やすい環境にあると考えられる。そこで、標準法パイロットプラントで N₂O 排出量の経日変化を調べた。また、表-5 に、パイロットプラントの運転条件と反応タンク内の水温および窒素濃度等を示す。Case によって SRT には大きな差がある。

図-8 に、各 Case ごとの流下方向における N₂O 排出量の変化を示す。Case1 および Case2 においては排出量が少なく、その排出も反応タンクの下流側に偏っていたが、気温が上昇するにつれ、硝化反応が活発になっていくと排出量が大きくなっている。その排出も反応タンクの上流側に偏っていった。Case5 になると、ほとんど完全硝化が達成され、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の蓄積もなくなり、N₂O 排出量もかなり低下した。また、図-9 に反応タンク内の $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度を示す。Case2 では好気 5 槽で $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度が高くなっているが、好気 2 槽で N₂O 排出量が最大となっている Case3、および好気 1 槽で最大となっている Case4 においては、それぞれ好気 2 槽および好気 1 槽で $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度が最大となった。 $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の高いときに N₂O 排出量が大きくなるという結果は、前項の結果と一致している。また、図-10 にパイロットプラン

トの各区画における N_2O 排出量と $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の相関を示す。多少のばらつきはあるが、全般的に、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の高いときに N_2O 排出量が大きくなっている。

また、表-5より、Case1 から Case3 にかけて水

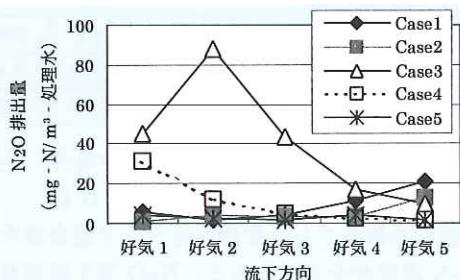


図-8 N_2O 排出量の流下方向における変化

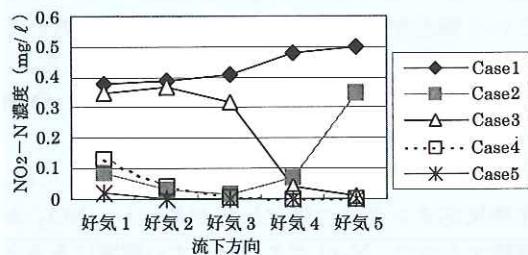


図-9 反応タンク内の $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度

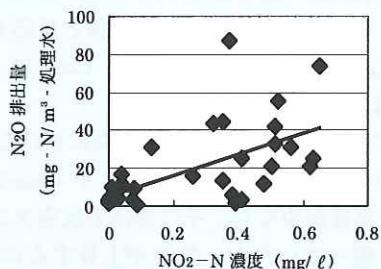


図-10 パイロットプラントの各区画における N_2O 排出量と $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の相関

表-5 パイロットプラントの運転条件および反応タンクの水温、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 NOx-N 、溶存酸素 (DO)

| Case No. | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 |
|------------------------------------|-----------------------------|------|------|------|------|
| 月日 | 4.22 | 4.27 | 6.8 | 6.30 | 7.14 |
| 流入水量 | 35.0~40.3 m ³ /d | | | | |
| HRT | 6.0~6.9時間 | | | | |
| SRT | 5.3 | 5.3 | 7.7 | 45.0 | 29.5 |
| 水温 (°C) | 20.4 | 20.0 | 23.3 | 23.8 | 24.7 |
| タンク末 $\text{NH}_4\text{-N}$ (mg/l) | 27.0 | 11.3 | 0.6 | 0.2 | 0.1 |
| タンク末 NOx-N (mg/l) | 6.5 | 2.3 | 34.0 | 26.2 | 19.7 |
| タンク内平均 DO (mg/l) | 1.3 | 0.8 | 3.0 | 3.1 | 4.8 |

温が約3°C程度しか上昇していないが、この期間中に硝化がかなり進行している。また、Case1~Case5にかけて、SRTも長くなっている。SRTを長くすると硝化細菌の増殖に有利な条件となるので、SRTの増加も硝化の進行に寄与していると考えられる。その結果、 N_2O 排出量が反応タンクの前半で多くなっていったと考えられる。

4. 国内の処理場からの $\text{CH}_4 \cdot \text{N}_2\text{O}$ 排出量の推定

今回の調査において、 CH_4 は、各処理場の水処理プロセスにおいて、平均703mg/m³流入下水の排出量となった(図-2より)。この値を用いて、日本の下水処理場の水処理プロセスからの CH_4 排出量を試算すると、平成8年度末の下水処理水量が117億m³/年⁵⁾であることより、 CH_4 排出量は8260t/年となった。国内全体での CH_4 排出量は840,000~1,550,000t/年⁶⁾であることより、日本(国内)全体での CH_4 排出量に占める下水処理場の水処理系からの CH_4 排出量の割合は、0.53~0.98%と試算された。

N_2O は、水処理系において、ほとんど生物反応タンクから放出される。3処理場の平均とAおよびC処理場の平均から求めた、国内の下水処理場の反応タンクからの N_2O の総排出量を表-6に示す。平均値を求めるときに、B処理場を含めるかどうかで平均値が1オーダー違った。また、前述の標準法パイロットプラント実験からのデータより、最も排出量の多い1ヶ月の N_2O 放出量の平均値は169[mg-N/m³流入下水]であり、その他の月の平均値は48[mg-N/m³流入下水]であった。5~6月と11~12月の季節の変わり目に N_2O 排出量が増加すると仮定すると、 N_2O 排出量の平均値は67[mg-N/m³流入下水]と算出された。パイロットプラントのデータは、夏に完全硝化・冬に

表-6 下水処理場の反応タンクからの N_2O 排出量

| 処理場 | A~Cの平均 | A,Cの平均 |
|---|---------------|---------------|
| N_2O 排出量原単位 (mg-N/m ³ ·流入下水) | 114.9 | 14.2 |
| N_2O 排出量 (t-N ₂ O/年) | 2,112 | 261 |
| 国内 N_2O 総排出量 ⁶⁾ (t-N ₂ O/年) | 60,000~94,000 | 60,000~94,000 |
| 国内 N_2O 排出量に占める 処理場水処理系 N_2O 排出量の割合 (%) | 2.2~3.5 % | 0.28~0.44 % |

不完全硝化となる、典型的な標準法の処理を代表しているものと考えられる。そのため、この平均値を採用して計算すると、日本の下水処理場の生物反応タンクからの N_2O 排出量は全体の 1.3~2.1%となり、やはり無視できない量になるとと考えられる。

これらの数値の大小については議論のあるところと考えられるが、排出を抑制するための、單一で有効な削減策がない現状では、あらゆる分野において、削減策を講じる必要があると考えられる。

5. まとめ

本研究では、下水処理場の水処理系において、 CH_4 および N_2O 排出量の測定および排出特性の検討を行った。検討結果を以下に示す。

(1) 実処理場での現地調査より、 CH_4 は主に生物反応タンクから排出しており、特に有機物負荷の高いところで CH_4 が多く生成された。また、回分実験によても、生物反応タンク内の活性汚泥の CH_4 生成能力を確認できた。しかし、嫌気タンクを設けることにより、 CH_4 の生成を抑制できた。嫌気過程でポリリン酸蓄積細菌が酢酸を摂取するため、 CH_4 生成細菌の基質となる酢酸が消費されて CH_4 排出が抑制された可能性がある。また、日本(国内)全体での CH_4 排出量に占める、下水処理場の水処理系からの CH_4 排出量の割合は、0.53~0.98%と試算された。

(2) N_2O 排出量は NO_2-N 濃度と大きく関連していた。季節変動や SRT の影響も受けると考えられた。標準活性汚泥法を用いたパイロットプラント実験からのデータより、日本(国内)全体

での N_2O 排出量に占める、下水処理場の水処理系からの N_2O 排出量の割合は、1.3~2.1%と試算された。

今後必要な検討項目として、①生物反応タンクの制御因子 (SRT、DO 等) を変化させたときの CH_4 および N_2O 排出量の変化および季節的変動、②生物学的高度処理法を用いたときの CH_4 排出抑制効果の詳細な検討、が挙げられ、この結果によって温室効果ガス排出抑制運転手法を確立する必要がある。

参考文献

- 竹石和夫、鈴木穢、松原誠：下水処理場からの放出量の解明に関する研究、地球環境研究総合推進費平成6年度終了研究成果報告集、環境庁企画調整局地球環境部、平成7年9月
- (財)下水道新技術推進機構：下水道の長期的技術開発に関する基礎調査、1996年度下水道新技術研究所年報、1/2巻、pp.45-52、1997.
- 竹石和夫、鈴木穢、松原誠：下水処理場からのメタン・亜酸化窒素の放出量の解明に関する研究、平成5年度下水道関係調査研究年次報告書集、建設省土木研究所、pp.105-110、1994.
- H. Zheng, K. Hanaki and T. Matsuo : 'Production of nitrous oxide gas during nitrification of wastewater', Water Science and Technology, Vol.30, No.6, pp.133-141, 1994.
- 建設省都市局下水道部：平成10年日本の下水道、(社)日本下水道協会、平成10年
- 京才俊則、水落元之：下水処理場からのメタン・亜酸化窒素の放出量の解明に関する研究、平成2年度下水道関係調査研究年次報告書集、建設省土木研究所、pp.85-90、1991.

重村浩之*



建設省土木研究所
下水道部三次処理
研究室研究員
Hiroyuki SHIGEMURA

與儀和史**



沖縄開発庁沖縄総合
事務局北部ダム事務所
調査設計第二課
(前 三次処理研究室)
Kazuhito YOGI

平出亮輔***



建設省土木研究所
下水道部三次処理
研究室
Ryosuke HIRAIDE

鈴木 穢****



同 三次処理研究室長
Yutaka SUZUKI

酒井憲司****



同 新下水処理研究官
Kenji SAKAI