

B-2. メタン・亜酸化窒素の放出源及び放出量の解明に関する研究

(7) 下水処理場からの放出量の解明に関する研究

研究代表者 建設省土木研究所 竹石 和夫

建設省 土木研究所

下水道部 新下水処理研究官 竹石 和夫

三次処理研究室 鈴木 穰

汚泥研究室 松原 誠

平成2-6年度合計予算額 21,448千円

(平成6年度予算額 4,090千円)

〔要旨〕 メタン・亜酸化窒素の下水処理プロセスからの放出量について調査を行った。

単独浄化槽での放出量調査（夏期・秋期）を実施し、過年度の結果（冬期）とあわせて国内での総放出量を試算した。高分子系流動焼却炉において運転条件の変動に伴う N_2O の放出挙動を調査した。また汚泥溶融炉からの N_2O 放出実態を調査したが、その排出係数は他の焼却プロセスと比べ無視できる程度であった。これまでに得られた結果を総括し、下水処理場からの CH_4 、 N_2O の放出量を国内、全球のそれぞれについて試算した。

〔キーワード〕 CH_4 、 N_2O 、下水処理、下水汚泥、単独浄化槽

1. 序

CH_4 、 N_2O の放出源及び放出量についてはいくつかの見積もりがなされているが、その範囲は大きくふれており精度の高い推定がなされていないのが現状である。今後これらのガスの放出量について、予想される放出・吸収源の抽出、及び放出源での測定を積み重ねていく必要があり、また放出メカニズムの解明と放出抑制策の確立も重要となってくる。

下水処理場において、 CH_4 は嫌気条件下で発生し、 N_2O は水処理の硝化・脱窒過程、および汚泥処理の焼却過程で発生する。しかしこれら温室効果ガスの下水処理場からの放出について測定された例は少なく、いわば1つのミッシングソースであったと考えることができる。

2. 研究目的

本研究では、下水処理場からの CH_4 、 N_2O の放出量について、各処理プロセスごとに測定を行いその排出係数を求めるとともに、下水処理プロセスからの総放出量を日本及び地球全体について見積もることを目的としている。

本年度は、夏期と秋期の単独浄化槽からの CH_4 、 N_2O の放出量、高分子系流動焼却炉および汚泥溶融炉からの N_2O の放出量について調査を行った。またこれまで得られた成果を総括し、下水処理場および単独浄化槽からの CH_4 、 N_2O の総放出量の試算を行った。

3. 平成6年度の研究成果

3. 1 単独浄化槽からのメタン・亜酸化窒素の放出量

3. 1. 1 研究方法

浄化槽の処理人口は、平成3年度末で3,389万人と総人口の27.3%を占める。浄化槽総設置数は、平成3年度末で約700万基であり、この内し尿処理のみを行う単独浄化槽が672万基と大多数を占める。本年度は、単独浄化槽から夏期および秋期に排出される CH_4 および N_2O について調査を行った。

沈殿分離室、接触曝気室、沈殿室から構成される単独浄化槽3基について、接触曝気室から排出されるガスの量と濃度、および沈殿分離室内のガス濃度変化を測定することにより、浄化槽からの CH_4 、 N_2O 、 CO_2 排出量を把握した。また、処理水のDOC、IC、

$\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度も測定した。なお、夏期の調査は2時間間隔の通日で行い、秋期については、夏期調査をもとに1日の平均的なデータが得られる時刻を選定し、その時刻に調査を行った。

調査対象とした浄化槽の処理条件を表1に示す。各浄化槽は、冬期の調査時以来、槽内汚泥の引抜きおよび清掃は行っていない。調査当日の水温は、夏期の場合で21℃、秋期の場合で17℃であった。

3. 1. 2 研究結果

夏期調査におけるNo.3浄化槽について、接触曝気室から排出されるガス中の CH_4 、 N_2O 、 CO_2 濃度の経時変化を図1に示す。 CO_2 、 N_2O 濃度はある程度安定しているのに対し、 CH_4 濃度は、流入水量が増加すると思われる就寝前および朝に高くなる傾向を示す。 CO_2 および N_2O の大部分が接触曝気室で生成されと考えられるのに対し、 CH_4 は沈殿分離室で生成され、それがトイレ排水流入によって接触曝気室に押し出されて、曝気により気相中に放出されと考えられるため、このような変動を示すものと推察される。

浄化槽から排出される炭素および窒素の量を、排出形態ごとに図2～5に示す。処理水に溶存して流出する物質の量は、水量原単位50L/人/dを用いて算出した。

炭素については、夏期における CO_2 の排出量が秋期のそれを大きく上回り、排出原単位の21gC/人/dよりも大きい。これは、夏期までに沈殿分離室に蓄積した固形性有機物が、高水温下で嫌気性分解を受けて可溶化し、接触曝気室に流入したためであると考えられる。 CH_4 に関しては、夏期のNo.2槽および秋期のNo.2、No.3槽について、データの一部がサンプリングミスにより欠損しているが、測定されているデータを用いて排出量を求めると、表2のようになる。接触曝気室からの放出量が沈殿分離室のそれよりも多く、また水温が夏期から秋期に低下するに伴い放出量が減少する。

窒素については、各槽で処理の特徴が異なっており、No.1槽は硝化無進行、No.2槽は夏期のみ硝化進行、No.3槽は常に硝化進行の系である。これは、浄化槽に対する有機物負荷の差異が原因であると考えられる。硝化が夏期のみに急激に進行するNo.2槽では、約100ppmとかなり高濃度の

表1 浄化槽の処理条件

浄化槽 No	No. 1	No. 2	No. 3
槽の型式	6人槽	7人槽	7人槽
槽の容積(m^3)	1.28	1.41	1.41
使用人数(人)	3	4	3
曝気量(L/min) [夏期]	16	24.5	28
" [秋期]	24	23.5	28

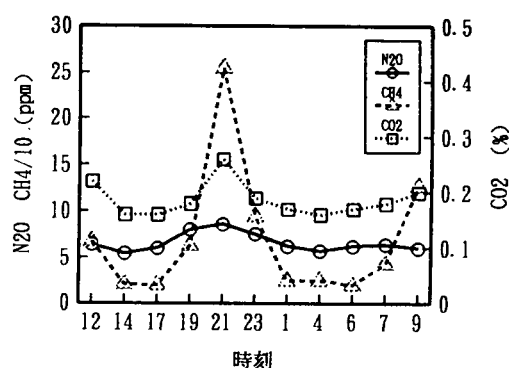


図1 接触曝気室からの放出ガス濃度の経時変化 (No.3浄化槽)

N₂Oが放出される。硝化の進行しないNo.1槽や、常に硝化が起きているNo.3槽では、このような高濃度のN₂Oは測定されなかったことから、硝化が急激に進行するような場合に多量のN₂Oが放出される可能性がある。夏期のNo.2槽のデータは、特殊なケースと考えられることから、以後の放出量算定には用いないこととした。表2に、調査データを平均して求めたN₂O排出量を示す。しかし、高水温期における放出量については、不確定的要素が大きいことに注意する必要がある。

以上のデータおよび昨年度のデータから、日本全国の浄化槽から放出されるCH₄、N₂Oの量を計算すると、表3のようになる。1年間の放出量は、CH₄で7.7Gg、N₂Oで1.2Ggと試算される。

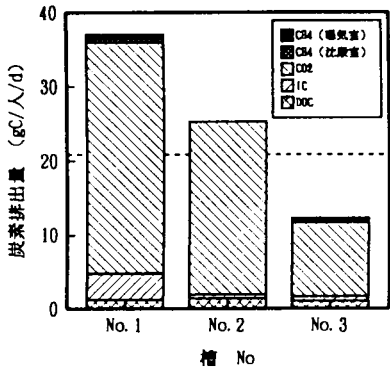


図2 形態ごとの炭素排出量
(夏期 [高水温])

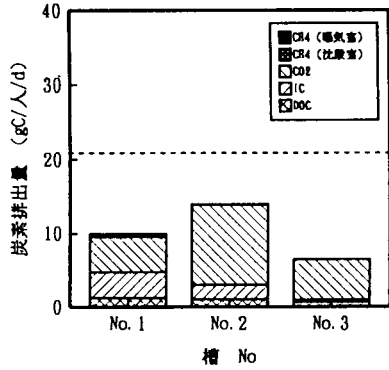


図3 形態ごとの炭素排出量
(秋期 [中水温])

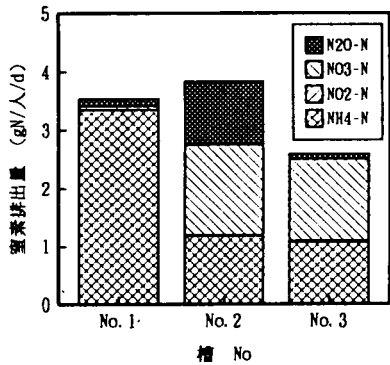


図4 形態ごとの窒素排出量
(夏期 [高水温])

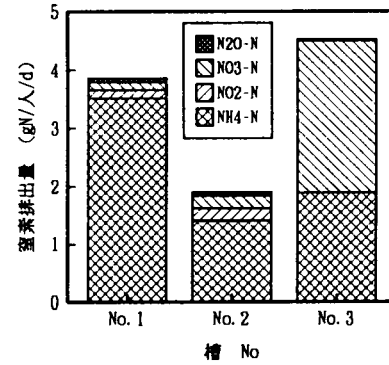


図5 形態ごとの窒素排出量
(秋期 [中水温])

表2 CH₄、N₂Oの排出量および流入負荷に対する転換率

	CH ₄				N ₂ O	
	排出量(gCH ₄ /人/d)			転換率 CH ₄ -C TOC	排出量 (gN ₂ O /人/d)	転換率 N ₂ O-N T-N
	沈殿	曝気	計			
高水温期	0.37	0.60	0.97	3.5%	0.16	1.1%
中水温期	0.13	0.30	0.43	1.5%	0.083	0.6%
低水温期	-	-	0.46	1.6%	0.058	0.4%

表3 単独処理浄化槽からのCH₄、N₂O放出量
(日本全国)

期間	CH ₄ (Gg)	N ₂ O(Gg)
高水温期 (6~9月)	4.0	0.7
中水温期 (4, 5, 10, 11月)	1.8	0.3
低水温期 (12, 1, 2, 3月)	1.9	0.2
年間	7.7 Gg/y	1.2 Gg/y

3. 2 汚泥焼却炉からの亜酸化窒素の放出量

3. 2. 1 実施設高分子系流動焼却炉における実験

これまでの調査結果より、汚泥焼却炉の中でも高分子系流動炉の N_2O 排出係数が大きいことが明らかとなっている。そこで実施設（処理能力：160t/day）の高分子系流動炉を用いて、運転条件の変動に伴う N_2O の放出挙動を調査し、その削減を行うための運転条件についての検討を行った。

焼却炉運転条件を炉内酸素濃度 5～14%、フリーボード温度 730～850℃の範囲で 12 通り設定した。運転条件の変更は、投入汚泥量を固定し流動空気量と補助燃料量を調節することにより行った。試料採取はサイクロン出口で行い、 N_2O 、 NO_x 、HCN、 NH_3 、 O_2 、 CO_2 、CO および流量を測定した。供試汚泥は含水率 82%、強熱減量 83%、固形物中窒素含有率 5.5% であった。

炉内酸素濃度及び炉内各部温度と N_2O 放出量との関連について検討したところ、特にフリーボード温度の影響が顕著であり、温度の増加に伴い N_2O 放出量は減少した（図 6）。これは高温の場合ほど N_2O が分解しやすいためと考えられる。また、これまでに調査した他の高分子系流動炉の結果も本図とよく一致することが確かめられた。ここで、 N_2O 放出量の単位には投入汚泥量の影響を受けない N 変換率 ($\text{gN-N}_2\text{O/gN-汚泥}$) を用いている。

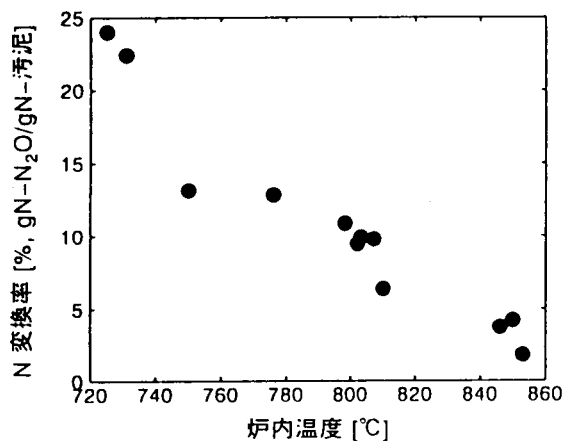


図 6 炉内温度と N_2O 放出量

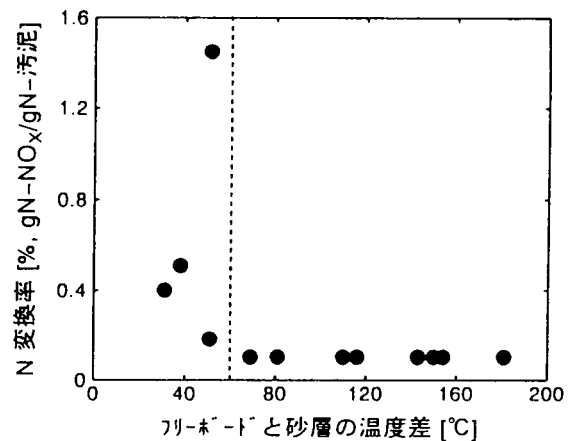


図 7 フリーボードと砂層の温度差と NO_x 放出量

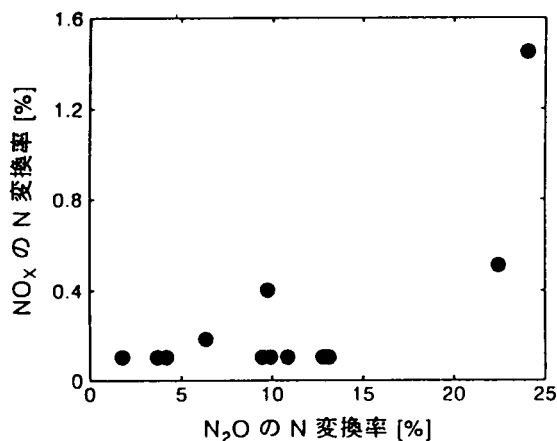


図 8 N_2O 放出量と NO_x 放出量の関係

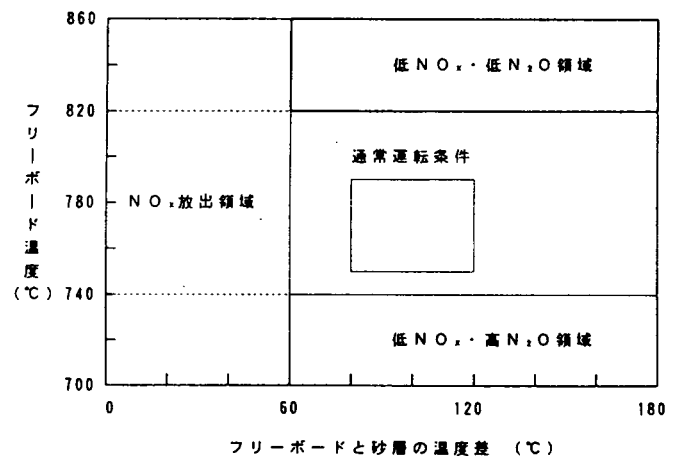


図 9 N_2O と NO_x の放出挙動

一方、NO_xは多くの実験条件において十分に除去され測定下限以下であったが、酸素濃度が約12%以上、炉内温度差がおおよそ60℃以下の場合に放出されることがわかった（図7）。焼却炉内において生成したNO_xは、HCN、NH₃等の還元性ガスとの反応により除去されることが考えられるが、酸素が豊富で燃焼が炉の下部で完結してしまうような条件においては、この還元除去のプロセスが十分に機能しないものと推察できる。

以上の結果より、N₂OとNO_xの放出量の関係は、一般にいわれているような負の相関にはならなかった（図8）。よって高分子系流動炉の場合、運転条件の設定によりNO_xを増加させずにN₂Oのみを減少させることが可能である。具体的には炉内温度差を60℃以上に保ったままフリーボードの温度のみを上昇させるような運転を行えばよい（図9）。しかし、焼却温度を上げることは炉の早期劣化やCO₂放出量の増大につながり、総合的な温暖化への影響やコスト等の観点からの再評価が必要である。

3. 2. 2 汚泥熔融炉からの放出実態

汚泥熔融により処理される汚泥量は、平成4年度で総発生活泥量（固形物ベース）の3.2%を占め、今後も増加する傾向にある。熔融炉にはいくつかの種類があるが、ここでは代表的な2つのタイプ（コークスベッド炉、表面熔融炉）についてN₂O放出量を調査した。

結果を表4に示す。汚泥熔融炉の排出係数はおよそ10gN₂O/tと見積もられるが、これは高分子系流動炉のおおよそ1/100程度であり、総放出量を算定する際には無視できる大きさと考えられる。熔融炉の排出係数が小さい原因として、炉内温度が高くN₂Oが分解すること、及び石灰系汚泥（もしくは塩基度調整剤）を含んでいることが考えられる。

表4 熔融炉からのN₂O放出量

処理場	炉形式	処理能力 [tDS/日]	投入汚泥量 [t-キ/時]	炉内温度 [℃]	炉出口排ガス性状			排出係数 [gN ₂ O/t-キ]
					O ₂ [%]	NO _x [ppm]	N ₂ O [ppm]	
A	コークスベッド	10	高分子：1.5 石灰系：0.7	1,300	4.4	82	3.1	16.6
B	表面熔融	25	高分子：4.0 *	1,300	10.0	94	1.3	7.3

* 塩基度調整剤として石灰を混入

4. 下水処理場からのメタン・亜酸化窒素の放出量の見積もり

4. 1 国内放出量

これまでに得られた結果より平成4年度の年間総放出量を算定した。基礎統計資料として下水道統計（平成4年度版）を使用した。CH₄の排出係数は冬期夏期の平均値を用いた。水処理からのN₂Oの排出係数はエアレーションタンクのみを考慮した。その値は硝化の進行の程度により異なるが同様に平均値を用いた。汚泥処理からのN₂Oの排出係数は汚泥焼却のみを考慮し、炉形式、凝集剤により4つのタイプに分けて排出係数を適用した。

試算結果を表5に示す。ここで留意しなければならない事項は以下の通りである。

- 1) CH₄と水処理からのN₂Oについては、排出係数がラフな平均値であるため試算の精度が低いと考えられる点。特にN₂Oについては、水処理の過程における微妙な条件の違いにより排出係数が大きく変動するため、生成メカニズムの解明も含めてさらに調査が必要と考えられる。

表5 メタン・亜酸化窒素の国内放出量の試算値（平成4年度）

温暖化ガス	処理水量 焼却汚泥量	排出係数	排出係数 の範囲	放出量 [t/y]
CH ₄	11×10 ⁹ m ³ /y	730 mgCH ₄ /m ³	260～1210	8,030
N ₂ O (水処理)	11×10 ⁹ m ³ /y	10 mgN ₂ O/m ³	1～20	110
N ₂ O (汚泥処理)	3.39×10 ⁶ t/y	* gN ₂ O/t	330～1200	2,830

* 高分子流動炉：1200, 高分子多段炉：750, 石灰系：300, その他：750

- 2) 嫌気性消化プロセスにおいて生成する CH₄ は全量 CO₂ に転換するものとして考慮していない点。これに対し EPA 等における放出量の見積もり¹⁾は、嫌気性消化プロセスより生成する CH₄ のみを対象としており、試算方法が大きく異なっている。なお調査対象とした2処理場はともに嫌気性消化を実施していた。
- 3) N₂O 放出量の大半は汚泥焼却によること。焼却による N₂O 放出量の年間増加率は約 5% と計算されるが、これは焼却総量の増加と高分子流動炉の比率の増加が原因である（図10）。

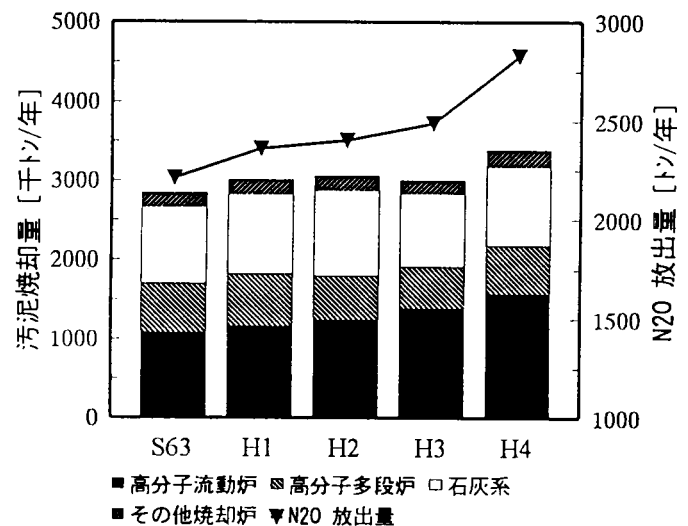


図10 汚泥焼却量とN₂O放出量の経年変化

表6 全球放出量の見積もりに用いた基礎統計データ

対象国	人口 [万人]	下水道 普及率 [%]	汚泥 発生量 [千tDS/y]	焼却 割合 [%]
Canada	2,652	70	-	-
USA	24,998	74	5,570	14
N. Zealand	339	42	-	-
Austria	771	72	250	37
Belgium	985	23	-	-
Denmark	514	98	150	28
Finland	499	76	-	-
France	5,644	68	900	20
Germany	7,948	86	2,750	10
Greece	1,005	10	-	-
Iceland	26	6	-	-
Ireland	350	11	-	-
Italy	5,766	61	800	11
Luxembourg	37	90	-	-
Netherlands	1,494	93	280	10
Norway	424	57	-	-
Portugal	1,053	21	-	-
Spain	3,896	53	-	-
Sweden	856	95	-	-
Switzerland	671	90	250	20
Turkey	5,869	1	-	-
UK	5,724	87	1,500	5
合計	71,521	-	-	-

全世界	529,200
割合 [%]	13.5

* 人口： 国連、人口統計年鑑による1990年の人口
 * 普及率： OECD, Environmental Data 1993.
 * 汚泥焼却： USAのみ、UNEP, Environmental Data Report 1993-94.
 他は、Korrespondenz Abwasser 1993. 1, 40. Jahrgang.

4. 2 全球放出量

以下の項目を無視して試算を行った。

- 1) 処理されずに環境中へ放出される排水。
 - 2) 下水処理場で処理されても統計データが利用できないもの。
 - 3) 処理水、処分汚泥の環境中での影響。
- 対象国は統計データが利用できる OECD 諸国に限定された。利用したデータは国別の人口、下水道普及率、汚泥発生量と焼却率である（表6）。さらに、排水量の原単位として 620 L/capita/day を、脱水汚泥の含水率として 75% を仮定した。試算結果を表7に示す。

CH₄ と水処理からの N₂O の排出係数は国内試算と同じものを用いた。汚泥処理からの N₂O の排出係数は平均的な高分子多段炉の値 750gN₂O/t を用いたが、日本での焼却率の高さを反映して国内比率が大きい。また今後は汚泥の海洋投棄の禁止、

埋立基準の強化等により日本以外の諸国でも汚泥焼却率が増加すると予想され、それに伴って N₂O 放出量も増加するものと考えられる。

表 7 メタン・亜酸化窒素の全球放出量の試算値（1990年）

温暖化ガス	処理水量 焼却汚泥量	排出係数	放出量 (日本以外) [Gg/y]	全球 放出量 [Gg/y]
CH ₄	106×10 ⁹ m ³ /y	730 mgCH ₄ /m ³	77	85
N ₂ O (水処理)	106×10 ⁹ m ³ /y	10 mgN ₂ O/m ³	1.1	1.2
N ₂ O (汚泥処理)	6.44×10 ⁶ t/y	750 gN ₂ O/t	4.8	7.6

5. まとめ

- 1) 夏期および秋期における単独浄化槽からの CH₄, N₂O の放出量を調査し、過年度の結果とあわせて日本国内での放出量について試算した。
- 2) 実稼働の高分子流動炉において運転条件の変動に伴う N₂O の放出挙動を調査し、N₂O, NO_x の放出量をともに抑制するための砂層温度、フリーボード温度を明らかにした。
- 3) 汚泥熔融炉からの N₂O 放出実態を調査した。排出係数は約 10gN₂O/t で他の焼却炉に比べ小さく無視できる程度であった。
- 4) これまでに得られた結果を総括し、下水処理場からの CH₄, N₂O の放出量を国内、全球のそれぞれについて試算した。

〔引用文献〕

- 1) U.S. EPA : Inventory of U.S. Greenhouse Gas Emissions and Sinks: 1990-1993, EPA 230-R-94-014, September 1994.

〔研究発表の状況〕

1. 水落, 松原, 竹石, 佐藤 : " 下水汚泥流動焼却炉からの N₂O 放出量 - 凝集剤と炉内温度の影響について -", 第 31 回下水道研究発表会講演集, pp. 658-660 (1994).
2. 松原, 水落 : " 下水処理場からの亜酸化窒素放出量調査 ", 環境衛生工学研究, Vol. 8, No. 3, pp. 63-68 (1994).