

下水道における温暖化ガス（一酸化二窒素） 排出量の季節変動に関する調査

栗田貴宣・松橋 学・田嶋 淳

1. はじめに

地球温暖化対策計画において、温室効果ガスの排出量を2030年に26%減（2013年度比）とすることが目標とされている¹⁾。下水道から排出される温室効果ガス排出量については20%削減が目標とされており²⁾、現状を把握することに加え、省エネルギー化による二酸化炭素削減技術や、水処理及び汚泥処理において導入しやすい一酸化二窒素（以下「 N_2O 」という。）排出抑制技術が必要である。

温室効果ガスの中でも N_2O の温室効果は二酸化炭素の約298倍と言われており、生物学的な水処理プロセスや汚泥処理プロセスにおいて排出が確認されている。汚泥処理プロセスにおいては、汚泥焼却の温度を上げるにより排出抑制が可能であることが明らかになっている。一方で、水処理のアンモニアを亜硝酸を経て硝酸まで酸化する硝化プロセスにおいて N_2O が多く発生することは確認されているが、発生メカニズムについては関与する微生物と温度などの環境因子が複数存在しているために不明な点が多く、排出抑制対策は明確に提示されていない。

本研究では、他の水処理方式と比較して高い N_2O 発生が確認されており、全国で広く採用されている標準活性汚泥法および疑似嫌気好気活性汚泥法（以下「疑似AO法」という。）について、下水処理場における N_2O 排出量の季節変動の有無を把握することを目的とした現地調査の結果について報告する。なお、疑似AO法は、標準活性汚泥法の躯体を利用して工夫運転を実施することで嫌気好気活性汚泥法を再現する処理方法を指す。また、本報告では、標準活性汚泥法の中でも担体投入による微生物量の十分な保持による N_2O 排出量への影響を調査するため、担体を投入した担体投入型標準活性汚泥法（以下「担体標準法」という。）を対象とした。

2. 下水処理プロセスにおける N_2O 排出量の実態調査

2.1 調査概要

国土交通省国土技術政策総合研究所（以下「国総研」という。）では2008年から全国32処理場にて年1回、標準活性汚泥法、嫌気好気活性汚泥法、循環式硝化脱窒法、嫌気無酸素好気法などを対象とした排出量実態調査を行っており、標準活性汚泥法及び嫌気好気活性汚泥法からの排出量が比較的多い傾向にあることを確認している³⁾。しかしながら、年1回の調査であることから季節変動の有無については未確認である。本研究では担体標準法（東海地方のA処理場）及び疑似AO法（関東地方のB処理場）について実下水処理場から排出される N_2O の実態調査を年間4回ずつ実施した。

2.2 調査方法

調査対象処理場において、水処理プロセスにおける N_2O 排出量の実態を把握するため、流入水から処理水までの各反応槽から排出される N_2O 量を調査した。調査は24時間調査とし、同採取地点において4時間に1回のガス採取及び採水を実施（計7回）し、平均値をそれぞれの調査時の値とした。ガス態の N_2O 測定用のサンプルとして、反応槽水面にガス捕集器を設置し、捕集バックに採取した。嫌気槽からの採取については、ガス捕集

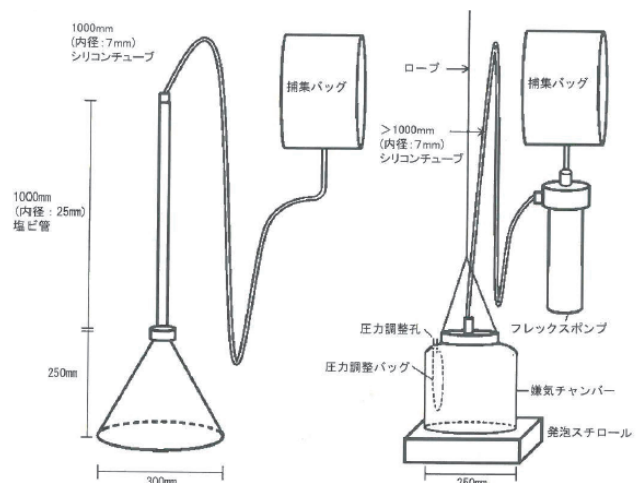


図-1 サンプルング装置概要（左：好気用、右：嫌気用）

表-1 単位流入水量あたりのN₂O発生量 (A処理場)

	最初沈殿池	曝気槽1	曝気槽2	曝気槽3	最終沈殿池
秋季(2018.10)	0.20	46.7	70.8	103.6	0.30
冬季(2018.11)	0.04	11.7	6.9	5.6	0.05
春季(2019.6)	0.06	13.0	13.3	22.6	0.80
夏季(2019.8)	0.02	16.6	26.0	65.0	0.02

(mg-N₂O/m³)

器(図-1)を2台使用し、0分用と20分用を同時に設置した。それぞれ設置から0分および20分後のサンプルを捕集バックへ捕集し、0分のものをバックグラウンドとして、0分と20分の濃度差を排出量の算出に用いた。

溶存態のN₂O測定用のサンプルは、あらかじめ22mLバイアル瓶に20%グルコン酸クロルヘキシジン溶液160μL(最終濃度0.26%)、超純水9mLを添加し、密栓したものを準備し、液体サンプル3mLをシリンジで注入して冷蔵保存した。サンプル注入は内部圧力を大気圧にするために、注射針を刺した状態でサンプル注入量と同体積の気体がバイアル外へ排出されるようにして行った。ブランク試料として、大気のみをバイアルを3本、超純水のみを添加するものを3本作成した。

水質分析用のサンプルは、採取後速やか(20分以内)にガラス繊維ろ紙にてろ過し、溶存有機物濃度、溶存無機窒素濃度、リン濃度の測定を行った。また、採取後にMLSS濃度、SV30の測定を実施した。

N₂Oガス分析は電子捕獲検出器(ECD)付きガスクロマトグラフ(ガスクロマトグラフGC-8A、SHIMADZU社製)を用いて濃度測定を行った。溶存有機物濃度については、TOC-5000(SHIMADZU社製)にて測定を行った。溶存無機窒素(NH₄-N、NO₂-N、NO₃-N)及び全窒素濃度は、自動比色分析装置QuAAtro2-HR(BL-TEC社製)を用いて測定した。

3. N₂O排出量調査結果

3.1 担体標準法から排出されるN₂O (A処理場)

担体標準を採用しているA処理場において、2018年10月30～31日(秋)、2018年11月27～28日(冬)、2019年6月27～28日(春)、2019年8月20～21日(夏)の合計4回調査を実施した。表-1に各サンプリング箇所の単位流入水量あたりのN₂O排出量を示す。図-2に各槽における各態窒素

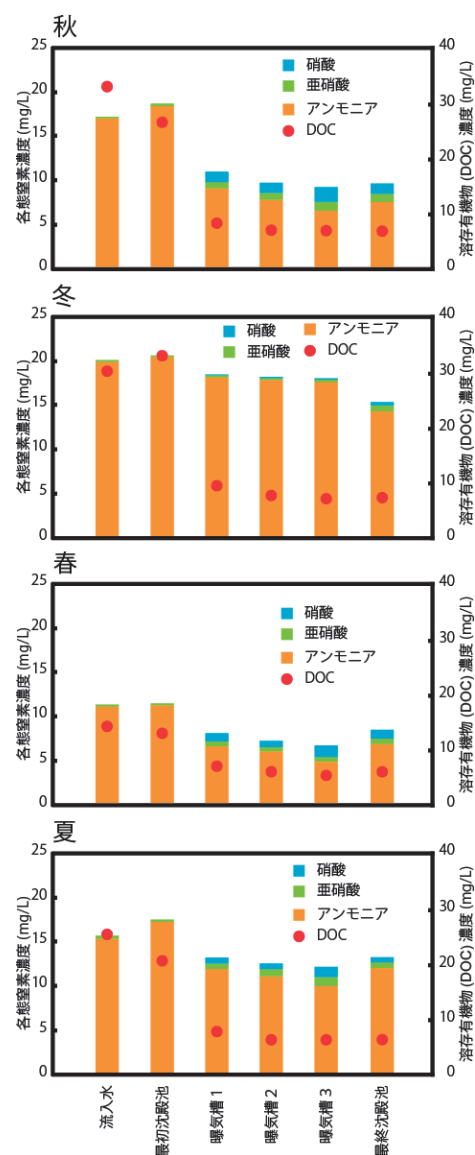


図-2 各槽における各態窒素濃度および溶存有機物濃度 (A処理場)

濃度および溶存有機物濃度(DOC)を示す。曝気槽は連続した一つの槽であるが、曝気槽前部を曝気槽1、中部を曝気槽2、後部を曝気槽3とした。サンプリング時の最終沈殿池における溶存有機物濃度は10mg/L以下であることから、溶存有機物除去は正常に行われており、年間を通して安定していることを確認した。曝気槽3での亜硝酸濃度は秋季0.9、冬季0.2、春季0.5、夏季1.0mg-N/L

表-2 単位流入水量あたりのN₂O発生量（B処理場）

	最初沈殿池	嫌気槽	曝気槽1	曝気槽2	曝気槽3	最終沈殿池
秋季(2018.10)	0.01	0.2	6.8	33.5	14.1	0.1
冬季(2018.12)	0.01	0.0	0.5	8.8	31.3	0.1
春季(2019.6)	0.09	0.7	0.4	3.6	96.4	0.9
夏季(2019.8)	0.60	1.7	1876.0	4267.0	5921.0	18.8

(mg-N₂O/m³)

であり、硝酸濃度は秋季1.7、冬季0.1、春季1.2、夏季1.0mg-N/Lであることから、秋季においてわずかに硝化が観察されるものの、年間を通して硝化プロセスはほとんど進行しない未硝化型であり、窒素の形態は変化していないことを確認した。

表-1から分かるようにサンプリング調査の結果、N₂Oの発生場所はほとんどが曝気槽であった。サンプリング時の単位流入水量あたりのN₂O発生量は秋季で一番高く、最大で103.6mg-N₂O/m³であった。また、冬季におけるN₂O排出はほとんど無かった。亜硝酸が存在している場合にN₂Oが発生することは先行研究と同様の傾向であった³⁾。N₂O転換率（除去された流入窒素のN₂Oへの転換率）は、秋季0.81、冬季0.23、春季0.65、夏季1.14%であった。これらのN₂O転換率は過去の調査で実施した標準法の躯体を利用した工夫運転によって硝化脱窒法を再現する疑似硝化脱窒法（0.05～0.33%）や疑似AO法（0.07～0.37%）と比較するとやや高い値であった⁴⁾。

3.2 疑似AO法から排出されるN₂O（B処理場）

疑似AO法を採用しているB処理場において、2018年10月16～17日（秋）、2018年12月13～14日（冬）、2019年6月20～21日（春）、2019年8月27～28日（夏）の合計4回調査を実施した。表-2に各サンプリング箇所から排出されたガス態N₂O濃度を示す。嫌気槽及び曝気槽は連続した一つの槽であるが、曝気を制限している範囲を嫌気槽、曝気槽前部を曝気槽1、中部を曝気槽2、後部を曝気槽3とした。図-3に各槽における窒素濃度および溶存有機物濃度（DOC）を示す。

サンプリング時の最終沈殿池における溶存有機物濃度は10mg/L以下であり、年間を通して安定した有機物除去が行われていることが確認できた。窒素除去は秋季において観察され、冬季及び春季にはほとんど除去されず、夏季に再び除去されるようになった。曝気槽3での亜硝酸濃度は秋季0.2、冬季0.4、春季1.0、夏季6.7mg-N/Lであり、硝酸

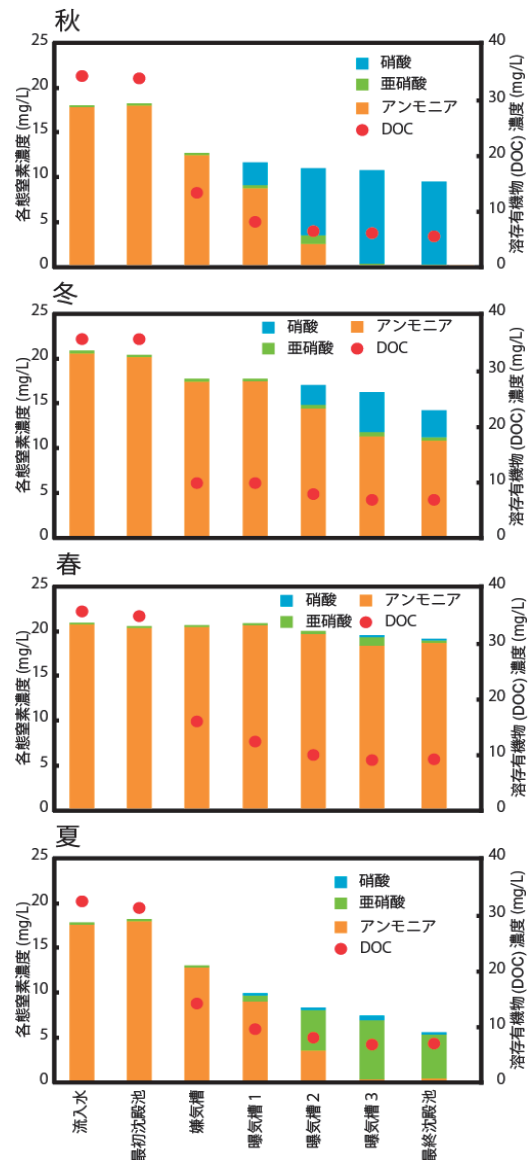


図-3 各槽における各態窒素濃度および溶存有機物濃度（B処理場）

濃度は秋季10.4、冬季4.4、春季0.1、夏季0.4mg-N/Lであった。このことから、窒素の形態は季節で大きく異なっており、秋季はほぼ全量が硝酸まで酸化される硝酸型であった。亜硝酸が0.5～1mg/L程度でもN₂O発生につながることを確認されており⁶⁾、このことを考慮すると冬季は一部が亜硝酸まで酸化される亜硝酸型であったと考えられた。また、春季は未硝化型、夏季は亜硝酸型と考えられた。

疑似AO法においては嫌気及び好気のステップがあるが、本調査の結果から N_2O は主に好気ステップである曝気槽からの放出であることを確認した。サンプリング時の単位流入水量あたりの N_2O 発生量は冬季から徐々に大きくなり、夏季において一番高く、最大で $5921 \text{ mg}\cdot\text{N}_2\text{O}/\text{m}^3$ であった。この値は過去の調査結果⁴⁾と比較しても非常に大きいものである。 N_2O 転換率は秋季0.25、冬季0.3、春季1.1、夏季54.3%であった。現行のAO法の N_2O 排出係数は $29.2\text{mg}\cdot\text{N}_2\text{O}/\text{m}^3$ であり⁵⁾、過去の調査ではAO法から特異的に高い排出は確認されておらず⁶⁾、同一処理場における N_2O 発生量が一年を通して大きく変動する可能性が示された。このことから年間平均を用いて N_2O 排出係数を算出することにより、 N_2O 排出実態をより正確に反映することが可能になると考えられる。

3.3 N_2O 発生因子の検討

A処理場及びB処理場における排出量の調査結果から、 N_2O 発生が生物反応、特に硝化が進行する曝気槽において顕著であることが明らかとなった。調査時の硝化の進行状況を硝酸型、亜硝酸型、未硝化型と区別すると、 N_2O 発生量は未硝化型及び硝酸型<亜硝酸型と整理でき、亜硝酸型が最も高いと報告している調査結果⁷⁾と一致する。原因は不明であるがB処理場において硝化の進行が年間を通して変化しており、これに伴って N_2O 排出量が大きく変動したことから、窒素除去を行う場合は硝化を担う微生物の安定的な保持が必要であると考えられる。今後微生物に関する情報収集を行うとともに、今回の調査以降に硝酸型や未硝化型に変わった際の N_2O 排出の傾向について再現性を確認する。また、得られた知見から N_2O 排出抑制可能な運転方法の提案をしたいと考える。

4. まとめ

本研究課題では、実下水処理場における強温室効果ガス N_2O の排出量調査を実施した。標準法及び疑似AO法を採用する処理場において季節ごとの N_2O 排出量が大きく変動することが確認され、硝化プロセスの進行の違いによる可能性が示された。今後、硝化を担う微生物情報取得を進め、 N_2O 排出抑制可能な運転方法の提案を実現したいと考える。

謝 辞

国総研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様方に心より感謝致します。

参考文献

- 1) 環境省：地球温暖化対策計画、2016
- 2) 道中敦子、重村浩之、山下洋正：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、土木技術資料、第60巻、第2号、pp.44~47、2018
- 3) 中島英一郎、中島智史、平出亮輔：下水道施設を活用した CH_4 、 N_2O の排出抑制中核技術の汎用化と普及に関する研究、国土技術政策総合研究所資料、第138号、pp.205~228、2013
- 4) 山下洋正、道中敦子、栗田貴宣：下水道における一酸化二窒素発生抑制型処理方法に関する検討、国土技術政策総合研究所資料、第1056号、平成30年度下水道関係調査研究年次報告書集、pp.51~58、2019
- 5) 国立環境研究所：日本国温室効果ガスインベントリ報告書、2020
- 6) 山下洋正、重村浩之、道中敦子：下水道における一酸化二窒素発生抑制型処理方法に関する検討、国土技術政策総合研究所資料、第1032号、平成28年度下水道関係調査研究年次報告書集、pp.43~52、2017
- 7) 住田裕、小池利和：下水道施設における温室効果ガス排出量実態調査、東京都下水道局技術調査年報、6・3、2000

栗田貴宣



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. AWATA Takanori

松橋 学



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
MATSUHASHI Manabu

田嶋 淳



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
TAJIMA Atsushi