

高負荷型し尿処理施設から排出する 温室効果ガス「亜酸化窒素ガス」 の実態調査について

(社)日本環境衛生施設工業会 技術委員会 副委員長 河窪 義男

(アタカ工業㈱ 環境プラント事業本部 環境企画部 部長)

1. はじめに

我が国は、1997年の京都議定書において温室効果ガスの総排出量を1990年（基準年）比で6%削減することを約束した。この目標値達成のために国内において様々な対策が行われているが、2002年度における我が国の温室効果ガスの排出量は、基準年比で7.6%の増加となっている。このように温室効果ガスの排出量削減の目標達成は非常に厳しい状況にあるが、国、地方公共団体、事業者及び国民が一体となって、約束達成を目指す必要がある。このような状況の中で、多くの自治体が、地球温暖化対策推進法に基づく温室効果ガスの排出抑制のための実行計画を定め、対策を進めている。これらの自治体の実行計画の中で、廃棄物処理事業から排出される温室効果ガスの割合が高く、かつ増加傾向にあり、この分野の排出削減対策が重要な課題となっている。

さらに、負荷変動が激しく、異物の混入が多く、また技術の進歩が著しい廃棄物処理施設からの温室効果ガスの排出量の算定については、実測値を基にした排出原単位の定期的な見直しと精度向上が求められる。

これまでの調査では、高負荷型し尿処理施設は、他の廃水処理と比較して特に亜酸化窒素（以下：「N₂O」と記す）の排出割合が高い施設とされている。一方、高負荷型し尿処理施設が

登場して既に20年以上が経過し、安定運転のための施設構造ならびに維持管理の技術は初期に比較して確実に向かっており、約10年前の調査を基にしたN₂O排出係数も見直す時期に来ている。

本調査では現在の高負荷型し尿処理施設においてN₂Oの排出量の実態を調査し、最新のN₂O排出原単位を提示するとともに、さらなる排出量削減を目指してN₂O発生の要因を考察するものである。

2. 調査対象施設

本調査では高負荷型である高負荷脱窒素処理方式（以下：「高負荷」と記す）、膜分離高負荷脱窒素処理方式（以下：「膜分離」と記す）、浄化槽汚泥対応処理方式（以下：「浄化対応」と記す）において、処理規模、浄化槽汚泥混入率の違いを考慮して36施設を選定して調査対象とした。調査施設の概要を表1に示す。選定では、主反応槽が単一槽または複数槽、曝気方式や原水投入方式が間欠的または連続的等を考慮した。処理規模は8～320m³/dの範囲である。

3. 試料採取及び分析法

排ガスは生物反応槽全体からのN₂O排出量を把握するため、各処理槽の排気ダクトの集結箇所からCO₂トラップ、水分トラップを経由して容量20Lのテドラー・バッグに採取した。また、採

表1 調査対象施設の概要

No.	竣工年	処理方式	処理能力 [m ³ /日]	処理量 [m ³ /日]			浄化槽汚泥比率 [%]	槽数	メタノール添加
				し尿	浄化槽汚泥	(混合投入)			
1	1990	高負荷	100	21.6	61.4	-	74	複数	無
2	1990	高負荷	41	-	-	36.0	27	複数	無
3	1991	高負荷	80	42.4	45.5	-	52	单一	無
4	1991	高負荷	145	-	-	100.2	24	複数	有
5	1994	高負荷	217	-	-	144.0	17	複数	無
6	1995	高負荷	75	-	-	75.0	33	複数	無
7	1996	高負荷	70	53.0	24.0	-	31	複数	有
8	1997	高負荷	200	26.6	121.5	-	82	複数	有
9	1982	高負荷	100	-	-	48.0	7	单一	無
10	1983	高負荷	40	1.3	23.7	-	95	複数	有
11	1985	高負荷	110	-	-	110.0	14	複数	無
12	1987	高負荷	320	-	-	227.0	41	複数	無
13	1988	高負荷	80	-	-	98.0	90	单一	有
14	1992	膜分離	70	-	-	70.0	16	複数	有
15	1992	膜分離	85	-	-	89.0	93	单一	有
16	1994	膜分離	45	13.7	12.2	-	47	複数	有
17	1996	膜分離	38	15.9	27.8	-	64	单一	無
18	1996	膜分離	65	-	-	65.0	12	複数	有
19	1998	膜分離	62	20.0	40.0	-	67	複数	有
20	1998	膜分離	30	-	-	11.5	87	複数	無
21	1998	膜分離	94	67.2	30.0	-	31	複数	無
22	1999	膜分離	90	-	-	95.0	77	複数	無
23	2000	膜分離	175	-	-	134.4	41	複数	有
24	2000	膜分離	22.3	-	-	23.3	41	複数	有
25	2000	膜分離	260	0	244.8	-	100	複数	有
26	2000	膜分離	8	-	-	6.0	19	複数	無
27	2002	膜分離	72	50.2	0.0	-	0	複数	有
28	1992	浄化対応	20	6.0	16.8	-	74	複数	無
29	1994	浄化対応	109	14.4	139.2	-	91	複数	有
30	1998	浄化対応	50	-	50.0	-	94	複数	有
31	2000	浄化対応	35	-	-	41.4	77	单一	無
32	2000	浄化対応	296.8	72.0	200.0	-	74	複数	有
33	2000	浄化対応	110	15.0	110.0	-	88	複数	有
34	2002	浄化対応	81	39.8	74.1	-	65	複数	有
35	2003	浄化対応	80	27.0	66.6	-	71	複数	有
36	2003	浄化対応	25	3.6	14.4	-	80	複数	有

取時にダクトにおける誘引風量をピト一管で測定した。原水として主反応槽に投入するし尿と浄化槽汚泥を、また、処理液として反応槽混合液を採取した。分析は試料を現地または実験室に持ち帰った後速やかに行った。間欠投入・間欠曝気方式の施設があるため、各サンプルは、1

サイクル毎に3回採取し、平均値を測定値とした。分析項目は、排気ガスのN₂O、原水および処理液のBOD、T-N、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-Nである。N₂Oは基本的に電子捕捉検出器(ECD)を検出器としてガスクロマトグラフ法で分析した。また、一部は検出器を熱伝導度差

表2 ガス分析結果

No.	投入 T-N 濃度 [mg/L]	誘引風量 [m ³ /h]	N ₂ O 濃度 [ppmv]				N ₂ O 排出係数 [kg·N ₂ O/m ³ ·処理量]	N ₂ O 転換率 [% N ₂ O-N/T-N]
			(1回目)	(2回)	(3回目)	平均値		
1*	1,260	1,944	<20	<20	<20	-	-	-
2*	1,200	5,220	<20	<20	<20	-	-	-
3	2,320	598	10.1	16.2	-	13.2	4.22×10 ⁻³	1.16×10 ⁻¹
4	1,700	2,010	13	12	63	29.3	4.11×10 ⁻²	1.54
5*	940	1,608	<20	<20	<20	-	-	-
6	1,730	3,834	12	23	-	17.5	4.22×10 ⁻²	1.56
7	1,850	7,850	32	29	25	28.7	1.38×10 ⁻¹	4.77
8	1,650	563	0.6	0.5	0.6	0.57	1.02×10 ⁻⁴	3.92×10 ⁻³
9	3,340	180	11	4.5	5.3	6.9	1.24×10 ⁻³	2.36×10 ⁻²
10	2,630	4,650	1	0.7	2	1.2	1.05×10 ⁻²	2.55×10 ⁻¹
11	1,990	3,168	83	-	-	83	1.13×10 ⁻¹	3.61
12	1,510	5,540	0.4	-	-	0.4	4.60×10 ⁻⁴	1.94×10 ⁻²
13	1,500	2,735	0.92	0.86	0.77	0.85	1.12×10 ⁻³	4.74×10 ⁻²
14	1,860	1,786	0.3	0.3	-	0.3	9.62×10 ⁻³	3.29×10 ⁻¹
15	670	6,295	0.1	0.57	1.43	0.70	2.33×10 ⁻³	2.22×10 ⁻¹
16	2,080	125	2.0	1.1	1.2	1.43	3.27×10 ⁻⁴	1.00×10 ⁻²
17	1,550	748	0.8	0.7	0.7	0.73	5.89×10 ⁻⁴	2.43×10 ⁻²
18	1,840	3,920	18	13	-	15.5	4.41×10 ⁻²	1.52
19	1,020	5,940	0.2	0.8	0.9	0.63	2.80×10 ⁻³	1.75×10 ⁻¹
20*	720	121	<20	<20	<20	-	-	-
21*	1,560	1,780	<20	<20	<20	-	-	-
22	340	4,860	4.4	-	-	4.4	1.06×10 ⁻²	2.01
23	2,100	858	2.7	2.5	1.9	2.37	7.12×10 ⁻⁴	2.16×10 ⁻²
24	650	362	0.9	1	-	0.95	6.95×10 ⁻⁴	6.88×10 ⁻²
25	580	2,668	1.3	1.3	1.4	1.33	6.15×10 ⁻⁴	6.75×10 ⁻²
26*	4,500	8,400	<20	<20	<20	-	-	-
27	2,100	1,100	5.5	5.6	5.5	5.53	5.11×10 ⁻³	1.55×10 ⁻¹
28*	1,120	306	<20	<20	<20	-	-	-
29	640	330	1.5	1.1	1	1.2	1.22×10 ⁻⁴	1.22×10 ⁻²
30	400	4,341	0.69	0.39	0.57	0.55	2.25×10 ⁻³	3.58×10 ⁻¹
31	970	82	1.9	2.1	2.4	2.13	1.99×10 ⁻⁴	1.32×10 ⁻²
32	840	18,380	2	3	3	2.67	6.29×10 ⁻³	4.81×10 ⁻¹
33	500	4,531	3.4	-	-	3.4	5.81×10 ⁻³	7.45×10 ⁻¹
34*	1,540	10,800	<20	<20	<20	-	-	-
35	820	544	0.4	0.6	0.7	0.57	1.38×10 ⁻⁴	1.07×10 ⁻²
36	1,100	4,816	0.3	0.33	0.69	0.44	5.55×10 ⁻³	3.21×10 ⁻¹

* TCD 検出器を用いた施設は全て検出下限以下となつたため、N₂O 排出係数、N₂O 転換率を算出していない。

検出器(TCD)として測定した(表2参照)。NH₄-Nはインドフェノール法で、NO₂-N、NO₃-Nは高速液体クロマトグラフ法(HPLC)で、T-Nは過硫酸カリウムによる酸化後に紫外線吸光光度法で、BODは直接希釈法で分析した。

4. 結果

調査施設で採取した試料中のN₂O濃度に採取場所での誘引風量を乗じてN₂O排出量を求め、これを採取日のし尿投入量で除して「N₂O排出係数」を計算した。さらに、N₂O排出量の投入

表3 調査施設のN₂O排出係数、N₂O転換率の中央値

(データ数；28)

処理方式	N ₂ O排出係数 [kg·N ₂ O/m ³ ·処理量]			N ₂ O転換率 [%]		
	中央値	平均値	標準偏差	中央値	平均値	標準偏差
高負荷	0.0074	0.034	0.051	0.19	1.1	1.7
浄化対応	0.0023	0.0029	0.0029	0.32	0.28	0.28
膜分離	0.0023	0.0071	0.013	0.16	0.42	0.68
<全体>	0.0026	0.016	0.033	0.17	0.64	1.2

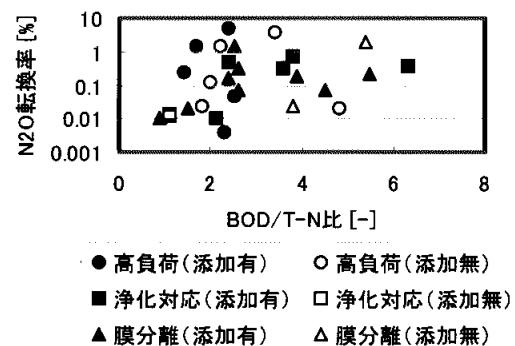
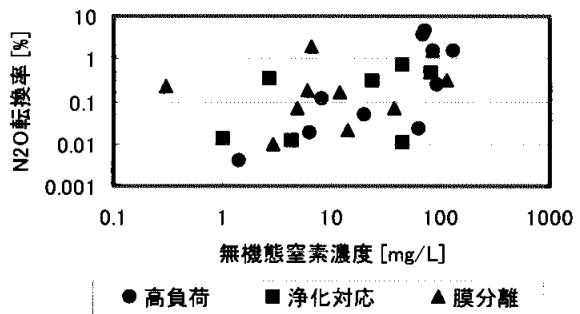
原水の窒素分に対する比（以下、「N₂O転換率」という）を算出した。

求められたN₂O排出係数およびN₂O転換率を、N₂O濃度および投入全窒素濃度と共に表2に示す。なお、検出器にTCDを用いて分析した試料は一様にN₂O濃度が検出限界以下であったため、N₂O排出係数とN₂O転換率の算出は行わず、解析にも用いなかった。し尿処理施設のN₂O濃度を測定する際には、TCDではなくECDが望ましい。

TCDを用いて測定した施設を除き、調査施設の全てでN₂Oの生成が確認されたが、既報にあるような数千 ppmvオーダーではなく、最大でも数十 ppmvオーダーであった。また、施設毎の平均N₂O濃度はおよそ3桁の広い範囲および非対称に分散していた。そのため、代表値としては、データを小さい順に並べた時、ちょうど中央(50%)にくる値である中央値（メディアン）を採用した。表3に各処理方式および調査施設全体のN₂O排出係数とN₂O転換率の中央値と平均値を示す。調査した高負荷型し尿処理施設全体でのN₂O排出係数とN₂O転換率の中央値は、それぞれ0.0026 kg·N₂O/m³·処理量、0.17%であった。

5. 考 察

BOD/T-NとN₂O転換率の関係を図1に示す。N₂O転換率とBOD/T-Nまたメタノール添加有無の間に明確な関係はみられない。一般に、脱窒素工程で窒素に対して有機物の不足している

図1 BCD/T-N比とN₂O転換率の関係図2 無機態窒素濃度とN₂O転換率の関係

条件では、N₂Oが発生しやすいとされている。し尿処理施設においても COD/T-Nの小さい施設でN₂O転換率の高いことが報告されており、NO₃⁻からN₂までの完全な脱窒に必要な有機物は、COD/NO₃-Nとして3.5～4.5程度と言われている。今回の調査した施設において、投入物のBOD/T-Nは0.8～7.8（中央値は2.5）であり、BODとCODの違いを考慮しても有機物不足の施設がある。しかし、実施設においては反応槽へのメタノール添加等の対策が適切に実施されているため、脱窒素工程は安定に維持され、投入物のBOD/T-N比はN₂O転換率に影響を与

えていないと考えられる。

廃水処理における N_2O 発生は、さまざまな因子による影響が複合された結果であると考えられるが、反応槽内の硝化と脱窒のバランスが崩れたときに生じると考えられている。反応槽内の硝化と脱窒の直接的な指標である無機態窒素濃度と N_2O 転換率との関係を図2に示した。

全体として無機態窒素濃度が高くなるほど N_2O 転換率が高くなる傾向があった。 $\text{NH}_4\text{-N}$ から $\text{NO}_3\text{-N}$ に転換する反応が $\text{NO}_3\text{-N}$ から N_2 に転換する反応より速い状態、つまり硝化が優勢な状態では $\text{NO}_3\text{-N}$ の蓄積が生ずる。この場合でも脱窒反応は進行しているが、中間生成物として生成される N_2O の N_2 への還元よりも $\text{NO}_3\text{-N}$ からの N_2O 生成が速くなったときに N_2O が蓄積し、放出される。逆に脱窒が優勢な状態では $\text{NH}_4\text{-N}$ が蓄積する。脱窒が優勢となる低DO条件下での N_2O 生成の促進が報告されており、脱窒由来の N_2O 生成が大きい場合 (N_2O 転換率 20%以上)、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 蓄積は N_2O 発生に大きな影響を及ぼさないとの報告もある。一方、好気(硝化)工程において $\text{NH}_4\text{-N}$ 由来の N_2O 発生が全体の 34%を占めるとの報告もあり、本調査のように N_2O 転換率が最大でも 4.77%と低い場合、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 蓄積の影響は $\text{NO}_3\text{-N}$ と同様に無視できないと考えられる。

本調査は実施設を対象としており、室内試験のように環境条件や操作条件を一定にすることができず、硝化と脱窒反応のどちらが N_2O 生成の原因であるかを明確にするには至っていない。しかし、上記の結果から、現在の高負荷型し尿処理実施設において N_2O 発生に影響している因子は、一般に言われるような処理方式や有機物不足ではなく、反応槽内の無機態窒素濃度であることが示唆される。

国が公表している温室効果ガス排出量算定方法では、1994年に行われた調査結果より、し尿処理施設における N_2O 排出係数を、高負荷およ

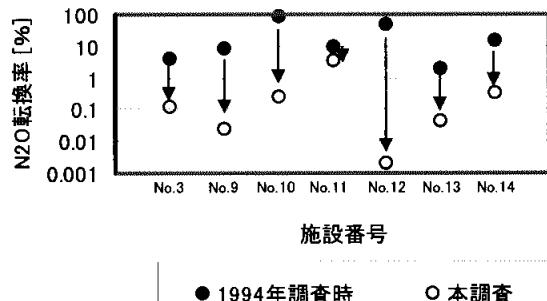


図3 N_2O 転換率の比較

び膜分離の 15 施設の平均値を用いて $0.45 \text{ kg-N}_2\text{O/m}^3\text{-処理量}$ としている。今回の調査では、その後新方式として加わった浄化対応を含め、排出係数は平均値で $0.016 \text{ kg-N}_2\text{O/m}^3\text{-処理量}$ 、中央値で $0.0026 \text{ kg-N}_2\text{O/m}^3\text{-処理量}$ であり、1/10 以上小さい。図3に1994年と今回(2003年)同一施設で求められた N_2O 転換率を比較した。なお、比較に N_2O 転換率を用いたのは、投入されるし尿および浄化槽汚泥の両時期における投入比と質の変化の影響を緩和するためである。

図は全ての施設で1994年と比較して2003年で N_2O 転換率が $1/3 \sim 1/25000$ に大きく低下していることを示している。その原因として、1994年当時はし尿処理に高負荷型脱窒素処理が導入されて間もない時期であったため、運転管理が未成熟であり、窒素除去性能を安定維持できていなかった可能性が考えられる。現在は当時よりも以下のようないくつかの施設構造や運転技術の改善が図られており、安定した維持が為されている。硝化脱窒処理性能を左右するものとして、①入口負荷変動、②曝気・攪拌各工程の時間比率、③曝気風量などが挙げられる。①に関しては、貯留槽の大型化(投入量 2 ~ 3 日分)により、投入基質の量・質的変動が緩和されている。②、③については、硝化反応および脱窒反応の指標である $\text{NH}_4\text{-N}$ や $\text{NO}_3\text{-N}$ のオンライン計測や携帯型検出器による現場計測技術の進歩、曝気装置やインバータ制御による曝気風量や原水投入量の適正化、さらにファジィ制御などの運

表4 高負荷型し尿処理施設からの温室効果ガス排出量

	従来の原単位を用いた場合		本調査のN ₂ Oの原単位を用いた場合	
建設・運転・解体 (膜分離) kg-CO ₂ eq/kL	84±23	廃棄物研究財団発行 液状廃棄物処理 LCA 研究会： し尿・浄化槽汚泥処理に係る施 設のライフサイクルインベン トリー分析に関する技術資料	84±23	廃棄物研究財団発行 液状廃棄物処理 LCA 研究会： し尿・浄化槽汚泥処理に係る施 設のライフサイクルインベン トリー分析に関する技術資料
水処理に伴って発生す るCH ₄ による影響 kg-CO ₂ eq/kL	0.105	環境省温室効果ガス排出量算 定方法検討会： 廃棄物分科会報告書 (H14/8)	0.105	環境省温室効果ガス排出量算定 方法検討会： 廃棄物分科会報告書 (H14/8)
水処理に伴って発生す るN ₂ Oによる影響 (高負荷及び膜分離) kg-CO ₂ eq/kL	139.5		0.806	今回調査結果
合計 kg-CO ₂ eq/kL	223.6±23		84.9±23	

転制御技術の進歩によって、工程の最適化が図られている。1994年当時は負荷変動に対して不安定な施設もあったが、上記のような改善・進歩により、高負荷および膜分離方式のし尿処理施設においては、窒素除去率98%以上を入口性状変動に対して恒常的に維持するに至っている。先に議論したN₂O発生に影響する有機物不足や硝化と脱窒反応のバランス等の因子が以上のように改善され、し尿処理施設のN₂O転換率が1994年当時より大きく低下したものと考えられる。

N₂Oは地球温暖化係数が310と大きいため、その排出量の大小が施設からの温室効果ガス発生量の評価に大きな影響を与える。温室効果ガス排出量算定方法に関する検討結果によると、下水終末処理場からのN₂O排出係数は、0.00016 kg·N₂O/m³である。今回得られた高負荷型し尿処理施設の排出係数は平均値で0.016 kg·N₂O/m³・処理量、中央値で0.0026 kg·N₂O/m³・処理量であり、終末処理場に比較して1桁以上大きいが、両者の処理方式に原理的な違いは無く、投入窒素濃度に100倍以上の違いがあることが原因と考えられる。下水の窒素濃度も季節変動や地域によって変動するが、「下水道施設設計画・設計指針と解説」より代表的な数値を36 mg·N/Lとすると、終末処理場のN₂O転換率は、0.282% (kg·N₂O-N/kg·N)となる。今回得ら

れた高負荷型し尿処理施設のN₂O転換率は、平均値で0.64%、中央値で0.17%であることから両者に大きな違いはない。以上より、廃水処理施設に用いるN₂O排出原単位には、投入物または排水量を分母とする従来の排出係数ではなく、投入窒素量を分母とするN₂O転換率が適切である。

高負荷型し尿処理施設からの温室効果ガスの排出量について、従来の温室効果ガス排出量算定方法の排出係数と本調査で得られた排出係数(中央値)を用いた場合の温室効果ガス排出量の違いを表4に示す。本調査のN₂Oの原単位を用いた場合のCH₄、N₂Oの発生に伴う温室効果ガス発生量は0.806 kg·CO₂eq/m³・処理量(=0.806 kg·CO₂eq/kL)となり、高負荷型し尿処理施設からの温室効果ガス排出におけるN₂O発生による寄与は建設・運用・解体による寄与に比較して相対的に小さいといえる。

6. まとめ

高負荷型のし尿処理施設における最新のN₂O排出係数を提示するため、36施設において排出されるN₂O濃度等を測定し、以下の知見を得た。

- 現在の高負荷型し尿処理施設におけるN₂O排出係数とN₂O転換率の代表値(中央値)としてそれぞれ0.0026 kg·N₂O/m³・処理量、

- 0.17% が得られた。
2. 現在の高負荷型し尿処理施設において N_2O 発生に影響している因子は、主に反応槽内の無機態窒素濃度であることが示唆された。
 3. 1994年に行われた調査結果と比較して N_2O 排出係数は 1/10 以上低下しており、負荷変動を吸収するような施設構造や運転技術の改善がその原因と考えられた。
 4. 廃水処理施設に用いる N_2O 排出原単位には、投入物または排水量を分母とする従来の排出係数ではなく、投入窒素量を分母とする N_2O 転換率を用いるのが適切である。

以上は、水質汚濁防止のための窒素除去を本来の目的としたし尿処理技術の進歩が、結果として温室効果ガスである N_2O 排出の大幅な削減に繋がったことを示す。また、これまで廃水処理分野の中で、特に高濃度の有機物を扱う高負荷型施設の温室効果ガス排出への寄与が大きいとされていたが、平均的には下水処理等の他の廃水処理施設と同レベルまで改善されたことを示すものである。しかし、個別施設の排出係数の範囲は未だ大きく、反応槽内の無機態窒素濃度の制御等の改善により、さらなる排出削減は可能と考えられる。

謝辞

本報告書は「都市清掃 第260号」(全国都市清掃会議 機関誌)に掲載された「高負荷型し尿処理施設における亜酸化窒素排出係数に関する考察」より抜粋して記載した。ここで、上記論文の執筆者である山田正人氏(国立環境研究所)、大村友章氏(三菱重工業)の労に感謝します。

さらに、本調査に協力した日本環境衛生施設工業会の会員企業 9 社は以下の通りである。

協力企業：浅野工事、アタカ工業、荏原製作所、クボタ、栗田工業、住友重機械工業、西原環境テクノロジー、三井鉱山(現三井造船)、三菱重工業(いずれも調査時の社名にて記載)

最後に、本調査に御協力頂いた自治体の方々に深く感謝いたします。