

下水処理プロセスからの CH_4 、 N_2O の
放出とその削減手法に関する研究

1998

水落元之

①

下水処理プロセスからの CH_4 、 N_2O の
放出とその削減手法に関する研究

筑波大学大学院
農学研究科
応用生物化学専攻

水落元之

目 次

第1章 緒論	
1-1 本研究の背景および目的	1
1-2 本研究論文の概要	3
第2章 温室効果ガス対策の現状と下水処理プロセスにおける CH ₄ 、N ₂ O 放出削減に係る既往研究	
2-1 温室効果の機構と対策	5
2-1-1 温室効果と地球温暖化の機構	5
2-1-2 温室効果ガスとしての CH ₄ 、N ₂ O の概要	6
2-1-2-1 CH ₄	7
2-1-2-2 N ₂ O	7
2-1-3 温室効果における CH ₄ 、N ₂ O の意義	8
2-2 下水処理プロセスの概要	10
2-2-1 水処理プロセス	12
2-2-2 汚泥処理プロセス	14
2-3 下水処理における CH ₄ 、N ₂ O の生成	21
2-3-1 生物学的硝化プロセス	21
2-3-2 生物学的脱窒プロセス	22
2-3-3 メタン発酵プロセス	24
2-3-4 燃焼プロセス	24
2-4 まとめ	27
第3章 水処理プロセスにおける CH ₄ 、N ₂ O の放出量および放出特性と活性汚泥の処理条件との関係	
3-1 はじめに	30
3-2 実験方法	31
3-2-1 調査対象処理場の概要	31
3-2-2 試料の採取および分析方法	31
3-3 結果および考察	34
3-3-1 流入下水および処理水の水質特性	34
3-3-2 CH ₄ の処理工程からの放出特性	39
3-3-3 N ₂ O の処理工程からの放出特性	44

3-3-4	活性汚泥法と生物学的窒素リン除去法との CH_4 、 N_2O の放出特性の比較解析	53
3-3-4-1	CH_4 の放出に関する比較	53
3-3-4-2	N_2O の放出に関する比較	56
3-3-5	水処理プロセスからの CH_4 、 N_2O の年間放出量	61
3-4	まとめ	61
第4章	水処理プロセスの生物学的嫌気好気活性汚泥法における N_2O の放出特性と制御のための操作条件の解析	
4-1	はじめに	64
4-2	実験方法	65
4-2-1	実験装置	65
4-2-2	実験条件	65
4-2-3	試料の採取および分析方法	67
4-3	結果および考察	67
4-3-1	SRT 変動条件下における窒素除去特性および N_2O 放出特性	67
4-3-2	DO 変動条件下における窒素除去特性および N_2O 放出特性	76
4-3-3	水処理プロセスにおける CH_4 、 N_2O 対策と富栄養化対策両面からの評価	80
4-4	まとめ	83
第5章	下水汚泥焼却プロセスからの N_2O の放出特性と制御手法の解析	
5-1	はじめに	84
5-2	実験方法	85
5-2-1	調査対象焼却炉	85
5-2-2	試料の採取および分析方法	85
5-3	結果および考察	85
5-3-1	下水汚泥焼却炉からの N_2O の放出量および放出特性の解析	85
5-3-2	下水汚泥焼却に伴う N_2O の年間放出量の推定	91
5-3-3	下水汚泥焼却に伴う N_2O の年間放出量の将来予測	95
5-3-4	下水汚泥の焼却における N_2O 放出特性からみた削減手法	98
5-4	まとめ	102
第6章	下水汚泥の嫌気性消化・熱乾燥プロセスの効率化による CH_4 、 N_2O 放出抑制の解析	
6-1	はじめに	104

6-2	実験方法	106
6-3	結果および考察	106
6-3-1	既設の嫌気性消化・乾燥プロセスの実態調査およびエネルギー評価	106
6-3-2	熱利用効率の優れたモデルプロセスの構築に関する検討	112
6-3-3	汚泥乾燥へのごみ焼却廃熱の利用に関する検討	118
6-3-3-1	ゴミ焼却廃熱の利用実態と問題点	118
6-3-3-2	ゴミ焼却廃熱量と汚泥乾燥に必要な熱量の関係	121
6-3-4	下水汚泥肥料化のエネルギー評価	123
6-3-5	汚泥処理プロセスにおける CH_4 、 N_2O 削減対策としての循環利用の適正化に関する解析評価	126
6-3-5-1	我が国の窒素収支および汚泥性状からの検討	126
6-3-5-2	循環利用促進のための政策課題等の検討	129
6-4	まとめ	131
第7章 総括、今後の課題および展望		
7-1	本研究の総括	133
7-1-1	水処理プロセスにおける CH_4 、 N_2O の放出特性と制御	133
7-1-2	汚泥処理プロセスにおける CH_4 、 N_2O の放出特性と制御	135
7-1-3	CH_4 、 N_2O の削減量の評価	137
7-2	課題及び展望	138
—参考文献—		141
—発表論文—		155
—謝辞—		156

第1章 緒論

1-1 本研究の背景および目的

地球の総人口は産業革命以来急増を続け、その増加傾向はエネルギー消費傾向に一致する。特に 1950 年代からの石油消費の急増に呼応するように、人口爆発といわれる増加を続けている。このように、近代における人間生活そのものが化石燃料に維持されてきたと考えられる。確かに、化石燃料の利用の効率化が生活の向上をもたらしたことは論を待たない。しかし、過去においては、食料生産の大きさが人口の大きさを決めてきたが、化石燃料の使用により、人口の増加が食料生産の大きさを決める関係に逆転しつつある¹⁻¹⁾。人口増加と化石燃料消費が相補的な関係を持ち、人口と化石燃料消費が爆発的に増加する状況が作られている。このような状況を背景として、自然システムの持続可能な産出量の限界が突破され、水不足、河川の枯渇、放牧地の劣化、土壌の侵食・砂漠化、森林の消失、水質・大気汚染、地球の温暖化等の問題が深刻化しつつある¹⁻²⁾。これらの問題は個々に独立した問題ではなく、すべてが相互に関係を持っている。特に地球温暖化は単に気候帯の変化をもたらすだけでなく、現行の気候システムに攪乱を与えることにより、洪水、熱波、寒波等のいわゆる異常気象の引き金と考えられている¹⁻³⁾。

温暖化とは、温室効果が加熱されることによりもたらされる現象である。太陽からの入射エネルギーは地表面を加熱し、熱放射として宇宙へ放射される。ここで大気層に存在する一部微量ガスが熱放射を吸収し、毛布のような働き (Blanketing effect) により温室効果をもたらす。つまり温室効果は緑の地球の根幹であるが、近年、主要な熱放射を吸収するガス (温室効果ガス: GHG) である二酸化炭素 (CO_2)、メタン (CH_4)、亜酸化窒素 (N_2O) 等の大気中濃度が上昇し、地球温暖化が進行している。 CH_4 、 N_2O の産業革命以来の温暖化への寄与率は 25% と見積もられているが、温室効果の能力がそれぞれ CO_2 の 20-30 倍、200-300 倍と高く、特に N_2O の寿命は 120 年と長く、長期にわたり温室効果への影響が持続されるため¹⁻⁴⁾、削減対策は緊急を要している。また、1997 年 12 月に京都で

開催された気候変動枠組み条約第3回締約国会議（COP3）では、CO₂のみならず CH₄、N₂O、ハイドロフルオロカーボン類（HFCs）、パーフルオロカーボン類（PFCs）、六フッ化硫黄（SF₆）にも削減目標が設定された¹⁻⁵⁾。これらの削減は地球温暖化係数（GWP）を用いて、すべての温室効果気体に対する削減目標を設定するバスケット・アプローチの採用を前提としており、可能性のある放出源について、放出量と放出特性の解明および削減技術の開発が急務である。しかし、CO₂に次ぐ主要な温室効果気体である、CH₄、N₂Oの放出源の特定および放出量の見積精度がCO₂に比べて著しく低いことが大きなネックになっている。

ところで、我が国の食に関する窒素収支で考えると年間 1696×10^9 g の窒素が農地を含む環境へ放出されている。そのうちの約40%が人間から放出される生活排水として放出されている¹⁻⁶⁾。また、ここで窒素の大部分は有機物として放出されている。現在、これら生活排水の55%は下水処理場で処理をされており、下水処理の運転操作条件あるいは環境条件によってCH₄、N₂Oの大きな放出源となる可能性がある。しかし、1994年度の放出見積についても、N₂Oについては推定されておらず、CH₄については推定はされているものの、推定精度は極めて不十分である¹⁻⁷⁾。したがって、下水処理において運転操作条件の違いによるCH₄、N₂Oの放出量の把握および削減手法の検討は極めて重要である。

我が国の食料を中心とした窒素収支のアンバランスによる大量の窒素の環境への放出は湖沼、内湾等の閉鎖性水域で富栄養化を進行させ^{1-8,9,10)}、藻類の異常増殖によるカビ臭¹⁻¹¹⁾、ミクロキスチン等の藻類産毒¹⁻¹²⁾、魚類のへい死、浄水場での凝集阻害¹⁻¹³⁾など多くの問題を誘引している。したがって、今後、下水処理においては富栄養化の原因物質である窒素の除去が必須である。また、発生する汚泥については、農耕地等へ循環させることが窒素収支の改善に重要である。本研究ではこれらの背景を鑑み、下水処理に伴うCH₄、N₂Oの放出および削減手法を富栄養化対策と有機物の循環利用に関連させ、検討することを目標とした。

1-2 本研究論文の概要

本研究では、下水処理の運転操作条件の違いによる CH_4 、 N_2O の放出実態の解明と、その削減手法を富栄養化対策と発生する汚泥の循環利用の効率化の関連において検討を行った。その結果、水処理プロセスでは嫌気条件と好気条件の適正な組み合わせで、 CH_4 、 N_2O の放出が抑制され、富栄養化対策とリンクし得ることが示された。また、発生する汚泥の循環利用の促進が、汚泥処理プロセスにおける CH_4 、 N_2O の放出抑制に効果的であり、循環共生型社会の創造とも連動し得ることが示唆された。

本論文は全7章から構成されている。以下、各章の概要を述べる。

第1章では、本論文の研究の背景および目的として、地球温暖化問題と水環境改善問題との関連等について述べた。また、本論文の意義および論文概要についてまとめた。

第2章では、温室効果の仕組み、地球温暖化の現状、GHG としての CH_4 、 N_2O の特徴についてまとめた。次に、下水処理の概要と現状を整理し、下水処理で CH_4 、 N_2O の生成・放出が考えられる、硝化、脱窒、メタン発酵、燃焼過程における CH_4 、 N_2O の生成・放出機構と制御に関する既往の研究についてまとめ、本研究の解決すべき対策を明らかにした。

第3章では、実際の下水処理場において、一般的な活性汚泥法における硝化促進運転の有無等の操作条件の違い、および温暖期と寒冷期の温度条件の違いと CH_4 、 N_2O の放出量と放出特性との関係について比較解析を行った。また水域における富栄養化が一向に改善されない現状では、下水処理における富栄養化対策は必須である。したがって、嫌気処理と好気処理の組み合わせで富栄養化の原因物質である窒素・リン除去を行う処理からの、 CH_4 、 N_2O の放出量と放出特性を一般的な活性汚泥法である好気単独処理との比較において評価・解析を行った。

第4章では、下水処理では富栄養化対策として硝化・脱窒反応の組み合わせで窒素除去を行うため、運転操作条件によっては N_2O の生成、放出の増大が懸念される。したがって、運転操作条件が N_2O 発生特性および窒素除去能等に及ぼす影響を明らかにするために、汚泥滞留時間 (SRT) および好気槽から嫌気槽への循環により、持ち込まれる溶存酸素 (DO) の嫌気槽での N_2O 放出に及ぼす影

響を検討した。

ここで第3章、第4章の検討結果および既往研究を基に水処理プロセスからの CH_4 、 N_2O 放出抑制について整理した。

第5章では、我が国の汚泥焼却の割合が高く、これまで下水汚泥焼却炉から、他の廃棄物焼却炉等に比べ高濃度の N_2O が測定されていることから^{14,15)}、下水汚泥焼却に伴う N_2O の放出量を焼却炉の種別及び下水汚泥の脱水助剤に注目して調査した。次にこの調査結果を基に、日本における下水汚泥焼却に伴う N_2O 放出量を求め、将来における放出量を予測した。

第6章では、焼却される汚泥からの N_2O の放出割合に比べ下水汚泥を肥料として農地へ施用した場合の放出割合が著しく低いことから、下水汚泥の肥料化プロセスを N_2O の放出削減手法と捉え、肥料化に必要な発酵プロセスからの CH_4 の有効利用が図れる嫌気性消化・乾燥プロセスについて、主として熱収支の効率化を検討した。まず消化・乾燥を行っていた既存の処理場の実態を調査し、それをもとに熱利用効率の優れたモデルプロセスを提案した。さらに、乾燥プロセスでのゴミ焼却排熱の利用実態を調査、解析し、消化乾燥汚泥の肥料価値を肥料製造エネルギー消費の点から化成肥料と比較し、評価した。

ここで第5章、第6章の検討結果および既往研究を基に汚泥処理プロセスからの CH_4 、 N_2O 放出抑制について整理した。

第7章では本研究論文の第3章から第6章における検討より得られた結果について総括し、下水処理プロセスからの CH_4 、 N_2O 放出抑制手法について、取りまとめを行うとともに、その抑制効果を評価した。また、今後の課題および展望等について述べた。

第2章 温室効果ガス対策の現状と下水処理プロセスにおけるCH₄、 N₂O放出削減に係る既往研究

2-1 温室効果の機構と対策

2-1-1 温室効果と地球温暖化の機構

人類の発展は自然との闘いの歴史であり、まず道具の使用により第一段階の発展を迎えた。続いて「火」を得ることにより次の発展を迎えるが、当初は木質を暖房、調理あるいは防敵の目的で使用した。次に化石燃料の発見、火からのエネルギー獲得を実現し、産業革命を経て化石燃料の大量消費が開始された。それとともに人口は急激に増加していった。特に産業革命以降の人口増加はまさしく化石燃料消費にリンクしており、現在の人間生活そのものが化石燃料消費の上になり立っているといても過言ではない²⁻¹⁾。また、化石燃料によりもたらされた人口増加が更に化石燃料消費を加速している。確かに化石燃料の道具としての使用により、文明の急速な進歩と、それに伴う平均寿命の進捗等が自然の猛威の前に打ち震えていた人類に大きな幸せを与えたことは論を待たない。しかし、このような相補的な関係が成立する人口増加と化石燃料消費の増大が現在、地球の自然システム崩壊へ大きな影響を与えつつあり、多くの分野において持続可能産出量の限界が踏み越えられ、廃棄物を吸収する自然界の能力が放出に追いつかなくなりつつある。例えば、海洋漁場の衰退、地下帯水層の枯渇、広範な水不足と河川の枯渇、土壌の劣化および侵食、森林の消失、大気および水環境の慢性的な汚染、地球の温暖化等があげられる²⁻²⁾。特に地球の温暖化は、主として人間活動によるCO₂、CH₄、N₂O等のGHGの大気中への蓄積によって引き起こされるが、地球温暖化による気候変動は、これら崩壊しつつある自然システムに追加的ストレスを与えるとともに、自然システムに密接に連動している社会経済システムにも大きな影響を与える。特に農業では現在の穀物帯の移動が予想されており、現在の国際的な農業・経済システムに大きな影響を与えると考えられている²⁻³⁾。また、GHG濃度は環境生態系と様々な相互関係を持ち、自然システム崩壊により濃度増加が加速される場合もある。GHGの放出は単に燃焼のような工業活動

だけではなく、生物活動にも起因しているため、GHGの増加が温暖化に原因し、温暖化がGHGの増加に原因する連鎖的な関係が考えられる。このように地球温暖化現象は、単に地球表面が暖まるというだけではなく、人類の生存そのものに大きく影響を与える現象と考えられる。

大気圏外で太陽に面した 1m^2 の面積に注ぐエネルギー量は $1370\text{W}\cdot\text{sec}^{-1}$ であり、地球が球形であり、半分の夜であることを考えると大気圏外での平均入射は $342\text{W}\cdot\text{m}^2\cdot\text{sec}^{-1}$ となる。ここで雲あるいは地表面の反射により入射したエネルギーの約31%が宇宙へ戻され、入射と反射の差の $235\text{W}\cdot\text{m}^2\cdot\text{sec}^{-1}$ が地球表面を暖める。しかしここで入射エネルギーと同じ量が宇宙へ放射される。入射が主として可視光なのに対して、放射は赤外部における長波放射（熱放射）で行われ、放射光が表層で吸収されない場合の地表面温度は約 $-19\text{ }^\circ\text{C}$ となる。しかし実際の地表面平均温度は $15\text{ }^\circ\text{C}$ であり、中緯度地方の高度5km付近の気温が $-19\text{ }^\circ\text{C}$ である^{2,4)}。

大気圏外へ出ていく赤外放射は一部を除いて大気によって吸収され、再度上下に放射される。乾燥地球大気の99%を占める酸素および窒素はこれら赤外放射に対して透明であるが、残りの水蒸気(H_2O)、 CO_2 および CH_4 、 N_2O を代表とする数種の微量気体は地表面からの赤外放射を吸収し、あたかも毛布のような役割を果たし、温室効果と呼ばれている。したがって温室効果は「緑の地球」の根源となるものである。しかし、南極の氷床コアに閉じこめられていた空気の分析結果によると、産業革命以来の人間活動の活発化により地表面からの赤外放射を吸収するGHGの大気中濃度は急速に増加しており^{2,5,6)}、温室効果の増大が指摘されている。

地球の温暖化の最大の問題点は、単に温度上昇による植生の変化とそれに伴う生態系の変化ではなく、その変化に対する人間生態系の応答であり、人間社会に国境と民族が歴然と存在し、多くの地域紛争の種が点在していることを考えるとGHGの抑制による温暖化の防止は、人類にとって重要な達成事項であると同時に人類存亡の大きなハードルと考えることができる。

2-1-2 温室効果ガスとしての CH_4 、 N_2O の概要

温室効果の概念から考えると地表面から放射される赤外スペクトルに対して光学的な吸収のあるガスはすべてGHGと見なすことができる。以下に本研究で対

象とした、 CH_4 、 N_2O の概略を示す。

2-1-2-1 CH_4

CH_4 は近年その存在が重要視されてきた微量 GHG である。 CH_4 は成層圏で OH ラジカルと反応して H_2O を生成する。 CH_4 の最終酸化物は CO_2 であるが、 CO_2 も GHG である。大気中の寿命は約 15 年といわれており CO_2 よりも短いが、温室効果のポテンシャルは CO_2 を 1 としたときに 20 ~ 30 倍に相当する。それ故、放出した CH_4 を回収・有効利用できない場合は、 CO_2 へのガス質転換が重要である。大気中の濃度は、産業革命以前には 0.8ppmv であったが、1994 年で 1.72ppmv と 2 倍以上の値となっている。その濃度は、1980 年代に年平均 0.9 % の割合で増加していたが、1990 年代になり、ほぼ横ばいとなったが、ここ数年間は再び増加に転じている²⁻⁷⁾。 CH_4 の自然界からの放出は沼沢地等からが最も大きい、シロアリによる CH_4 の放出も報告されている。人為的な CH_4 の放出源としては、まず化石燃料に関連して石炭の採掘、天然ガス、石油精製業、そしてこれらの燃焼が挙げられる。牛、羊等の腸内発酵によっても CH_4 が放出し、その約 90 % が家畜に由来するという報告もある。水田（稲作）からの CH_4 放出も報告されており、それは気候、施肥状況、灌漑による水田土壌の酸化還元状態等による影響が大きく、これらの因子は非常に広くかつ複雑に相互作用しあっている²⁻⁸⁾。一方、 CH_4 の吸収、すなわち大気中からの除去は、そのほとんどが対流圏および成層圏における OH ラジカルとの反応による。しかしながら、各々の放出源および吸収源について、 CO_2 に比べ十分に定量化されておらず、算出・評価の精度の向上が必須である。

2-1-2-2 N_2O

N_2O は、 CH_4 同様に微量 GHG と呼ばれ、近年注目されはじめたガスである。大気中における寿命が 120 年と長く、温室効果への影響が長期にわたることからも重要な GHG である。成層圏で紫外線によって光化学分解され、その際にオゾン層の破壊を引き起こす。成層圏に存在する、NO に代表される NO_x は N_2O から生成され、その存在量のバランスは、成層圏におけるオゾンの存在量に影響を及ぼす。また N_2O は、大気中における寿命が 120 年と長く、100 年間で積算した温

室効果のポテンシャルは CO_2 の約 300 倍となる。大気中における濃度は、産業革命以前には 288ppbv であったが、1994 年において 312ppbv であり、近年の年変化率は 0.25 % である。自然界の海洋や土壌からの N_2O の放出は、生態系における窒素の物質循環の一部として構成されており、その大部分が土壌や水中に棲息する細菌等の代謝活動に由来する。人為的な放出源のひとつとして、農耕地への窒素肥料の施用が挙げられ、施用された窒素肥料は、土壌中に棲息する細菌等の作用により、土壌の酸化還元状態等の状況によっては N_2O へ変換される。窒素肥料の施用は広く行われており、 N_2O の大きな放出源である可能性も指摘されている²⁻⁹⁾。また、山火事等のバイオマス燃焼も N_2O の大きな放出源とされている。産業活動に起因する N_2O の放出源としては、自動車等の交通機関、化石燃料等の燃焼、アジピン酸の製造および排水処理等が挙げられる。一方、成層圏における波長が 180-230nm 程度の紫外線による光化学分解が主要な吸収源である。しかしながら、 CH_4 同様にこれらの放出源および吸収源については、解明されていない点も多いために定量化も不十分なのが現状であり、さらなる調査検討が必要であるとされている。

2-1-3 温室効果における CH_4 、 N_2O の意義

GHG は、大気中における寿命等の物理化学的性質が個々のガスによって大きく異なるため、これらの諸性質、そして該当する期間において累加する温室効果等を考慮した、GHG の放射強制力に対する指標が考え出されている。IPCC は、これらの指標として地球温暖化係数 (GWP=Global Warming Potential) を定義している²⁻¹⁰⁾。GWP とは、単位質量の気体が大気中に放出されたことにより生ずる放射強制力を時間積分して得られる指標であり、目的とするガスの GWP を、基準となるガス (CO_2) の同様な積分値との相対比で算出したものである。

CH_4 、 N_2O の GWP 値を Table2-1 に示す²⁻¹¹⁾。 CH_4 、 N_2O は CO_2 に比べ、1 分子あたりの放射強制力が大きいことから CO_2 に対して GWP は、例えば積算期間 100 年でそれぞれ 21、280 倍となる。また、GWP はガスの寿命と密接に関係するため、特に対流圏で主たる分解過程がなく、その寿命が成層圏と対流圏の大気の移動に依存し、120 年と考えられている N_2O では、積算期間 500 年の GWP でも 170 倍と影響が長期にわたることが分かる。したがって CH_4 、 N_2O の放出量の増大は

Table 2-1 A summary of Global Warming Potential (GWP) of CH₄ and N₂O²⁻¹¹⁾

Species	Global Warming Potential		
	20 years	100 years	500 years
CO ₂	1	1	1
CH ₄	56	21	6.5
N ₂ O	280	310	170

短期的な影響に止まらず、その影響が長期にわたるといふ特色を有しており、その対策は緊急な課題である。人為起源放出源で見ると CO₂ の放出は化石燃料の燃焼に起因することが明らかであり、その削減には経済成長との関係が常に議論される。しかし、CH₄、N₂O については燃焼、廃棄物処理に付随するものであり、運転操作条件の変更で大幅に削減される可能性もあり、COP3 で示された GHG 削減目標の 6-8% の中では重要な位置づけになりうる可能性がある。したがって、CH₄、N₂O の放出源に対する質と量および対策技術に関する研究は今後の GHG の削減および削減によりもたらされる温暖化防止に対して重要な位置づけになるものと考えられる。

2-2 下水処理プロセスの概要

下水道法の定義によると下水は雨水と、生活および事業所に起因する汚水に大別され、汚水の大部分は生活系排水である。一般的には汚水を下水とする場合が多い。古来、尿尿を肥料として最大限活用してきた我が国では、欧米、特にヨーロッパ諸国に比べ下水道への取組は比較的新しく、コレラ等の伝染病の予防を目的とした東京、大阪、横浜市等の下水道建設を受け、1901 年に最初の下水道法が施行された。当初の下水道の機能は収集と排除であったが、大正から昭和にかけて処理場の建設が開始された。これに伴い、1935 年に下水試験法、1938 年に放流下水の水質基準が定められ、下水道制度が整備されていく。第二次世界大戦を挟み 1958 年に下水道法が改定され、大都市を中心として下水管渠と下水処理場の整備が進められ、1970 年の水質汚濁防止法、1978 年の総量規制制度の導入により下水処理場からの放流水が監視されるとともに、下水道の水質保全に果たす役割が重要となった。さらに 1984 年に制定された湖沼水質保全特別措置法では下水道が重要な施策として位置づけられた。また、水道水源の保全を目的として 1994 年に制定された「水道原水水質保全事業の実施の促進に関する法律」および「特定水道利水障害の防止のための水道水源域の水質の保全に関する特別措置法」（いわゆる水源 2 法）においても同様な位置づけがなされている²⁻¹²⁾。

Fig.2-1 に我が国における下水道人口普及率の経年変化を示す。普及率の増加は年間ほぼ 1-1.5% で推移してきたが、この 10 年間は約 2% と増加率の増大が見られ、公共事業費の伸びと密接に関連している。1996 年度における普及率は 55%

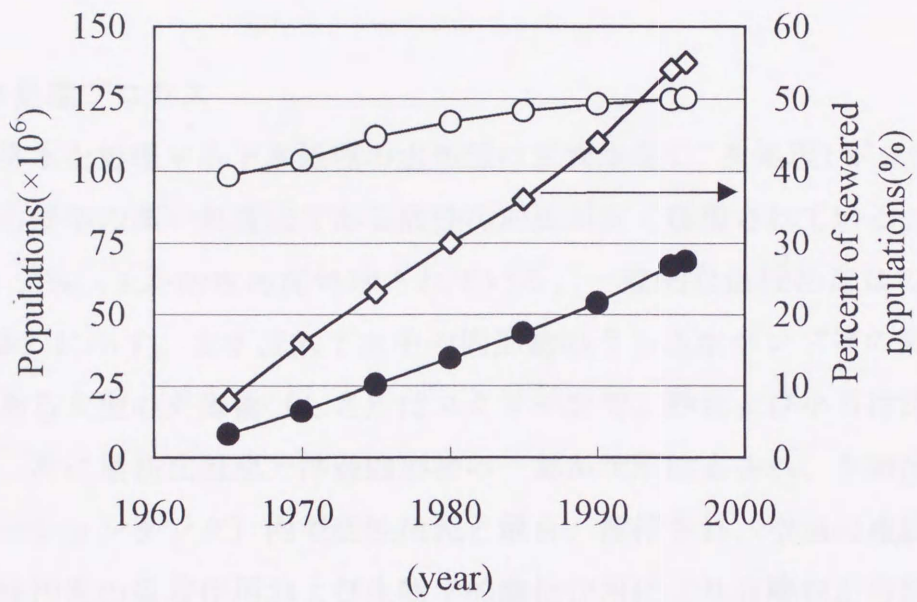


Fig.2-1 Annual change of the populations, the sewerage populations and the percent of sewerage populations²⁻¹³ :

○Populations, ●Sewerage populations,
◇Percent of sewerage populations

であるが、人口 100 万人以上の政令都市における普及率が 97%に対し、人口 5 万人以下の市町村での普及率は 18%と非常に低く²⁻¹³⁾、今後はこれらの市町村での整備が中心となり、小規模な処理場が急増するものと考えられる。

下水道は主として管渠、ポンプ場、処理場で構成されるが、特に大量の有機物および窒素を収集し、生物処理する処理場において CH_4 、 N_2O の放出が予想される。下水処理プロセスは水処理プロセスとその処理により放出する汚泥を処理する汚泥処理プロセスに大別され、以下にその概要を述べる。

2-2-1 水処理プロセス

有機性排水を処理する下水処理の水処理は生物処理（二次処理）が主流であり、その中でも効率の高い処理法である活性汚泥法が広く採用されている。我が国では下水の 95%以上が活性汚泥処理されている。一般的な活性汚泥法の処理フローを Fig.2-2 に示す。まず流入下水中の固形物のうち送水ポンプ等の障害となる可能性のある大型の夾雑物（しき）はスクリーンで、砂および小石は沈砂池で除去される。次に最初沈殿池で浮遊固形物の一部が沈殿除去され、生物反応タンク（エアレーションタンク）内で活性汚泥と混合、攪拌され、空気の連続供給下において活性汚泥の吸着作用および生物学的酸化作用により有機物が分解除去される。最初沈殿池では生物処理が終了した活性汚泥と処理水を沈降分離し、処理水は消毒後、放流される。一方沈降した活性汚泥の一部は、返送汚泥として生物反応槽へ循環され、タンク内の汚泥濃度を保つことにより連続的な処理が可能となる。返送汚泥以外の汚泥は余剰汚泥として汚泥処理プロセスで処理される。

我が国ではこれまで、一般的な活性汚泥法（いわゆる標準活性汚泥法）の運転条件は下水中の有機物のみを除去するように設定されていた。しかし、湖沼、内湾等の環境基準達成率が依然として低く、それが富栄養化の進行、顕在化による内部生産に起因しており、原因物質としての窒素、リンの大部分が生活排水に由来することから、主として生活排水を処理する下水処理では窒素およびリンの除去（高度処理）が今後必須となる。生物処理による窒素除去の原理は下水中の窒素を好気条件下の硝化作用で NO_3^- とし、嫌気条件下の脱窒作用で N_2 として除去することである。一方、リンの除去は、嫌気条件下で活性汚泥からのリン酸 (PO_4^{3-}) の吐き出し、続く好気条件下で過剰摂取による活性汚泥へのポリリン酸としての

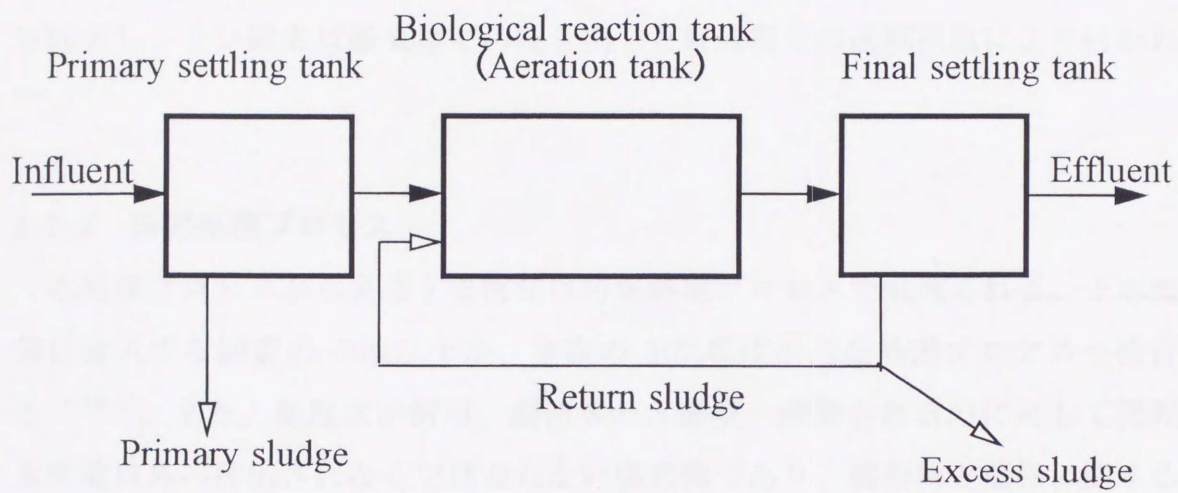


Fig. 2-2 Schematic flow diagram of the typical activated sludge process

蓄積により行われる。また、PAC 等の凝集剤を生物処理の最後に添加し、リンを除去する方法も用いられている。いずれにしても従来の好気処理へ適正な嫌気処理を組み込むことが必要である。Fig.2-3 に下水処理において代表的な窒素・リン除去プロセスである凝集剤添加嫌気・好気活性汚泥法（凝集剤添加 AO 法）および嫌気、無酸素、好気活性汚泥法（A₂O 法）の概略を示す。凝集剤添加 AO 法は好気槽から嫌気槽への硝化液の循環で窒素を除去し、好気槽に添加される凝集剤でリンを除去する。A₂O 法は好気槽から無酸素槽へ循環を行うことにより窒素を除去し、リン除去は嫌気槽での吐き出しと好気槽での過剰摂取により行われる²⁻¹⁴⁾。

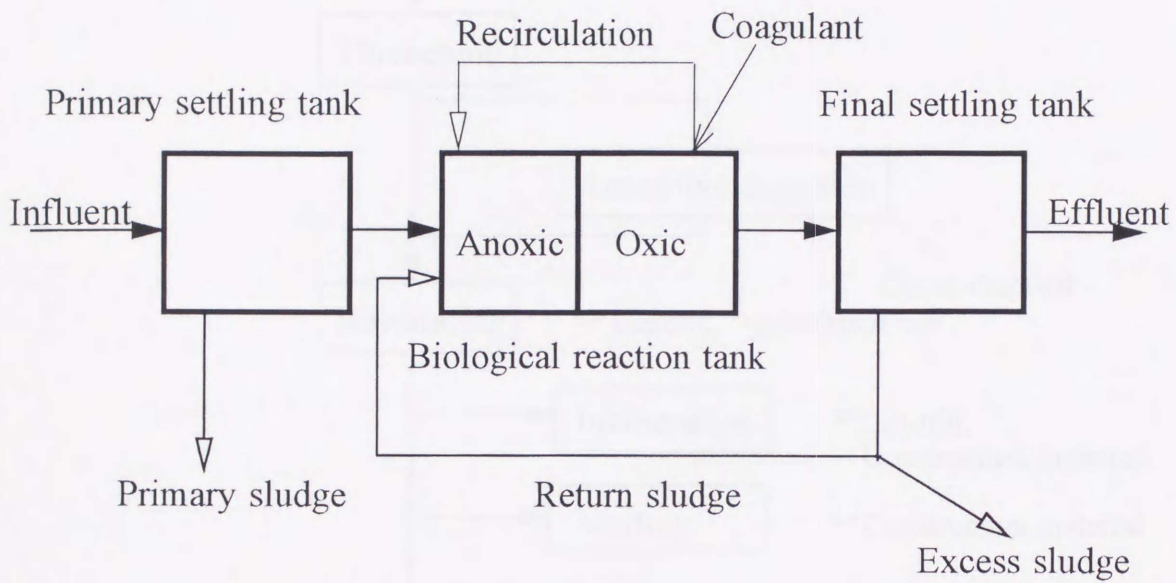
2-2-2 汚泥処理プロセス

水処理プロセスから発生する汚泥は汚泥処理プロセスで処理される。下水処理場に流入する炭素の 50%以上が、窒素の 30%程度が汚泥処理プロセスへ移行する^{2-15,16,17)}。また、処理水が河川、湖沼等の水環境へ放流されるのに対して汚泥は水環境以外へ排出されなくてはならない廃棄物であり、廃棄物と清掃に関する法律（廃掃法）上は産業廃棄物として扱われる。したがって下水処理の計画においては汚泥処理が重要な位置づけとなる。Fig.2-4 に汚泥処理フローを示す。

初沈汚泥および余剰汚泥の固形物濃度は 1%以下であり、まず濃縮操作により減容化を図る。これまでは重力濃縮法が多用されてきたが、分流式下水道の普及と生活様式の変化による、汚泥中の有機物含量の増加に伴い、特に余剰汚泥の濃縮性が悪化しており、沈降性に優れた初沈汚泥を重力で、余剰汚泥を機械的に遠心分離で濃縮する分離濃縮操作が広く用いられている²⁻¹⁸⁾。分離濃縮操作で得られる濃縮汚泥の固形物濃度は 3-4%程度であり、水処理プロセスからの発生汚泥は 1/3-1/4 程度に減容される。濃縮操作が不十分であれば後続の嫌気性消化、脱水プロセスでの処理量の増加等の影響が生じ、汚泥処理プロセス全体に影響を及ぼすことから、濃縮プロセスは最も重要なプロセスである。

嫌気性消化プロセスは従来、汚泥の減量および安定化の上で重要なプロセスであり、かつ肥料化プロセスとして重要なプロセスであった。一般的な消化日数は 20-30 日、消化温度は 35-40 °C の中温消化が広く採用されている。しかし、安定化、減量化プロセスとしての焼却プロセスが技術的に安定したことから、近年、

(a) AO with chemical precipitation process



(b) A₂O process

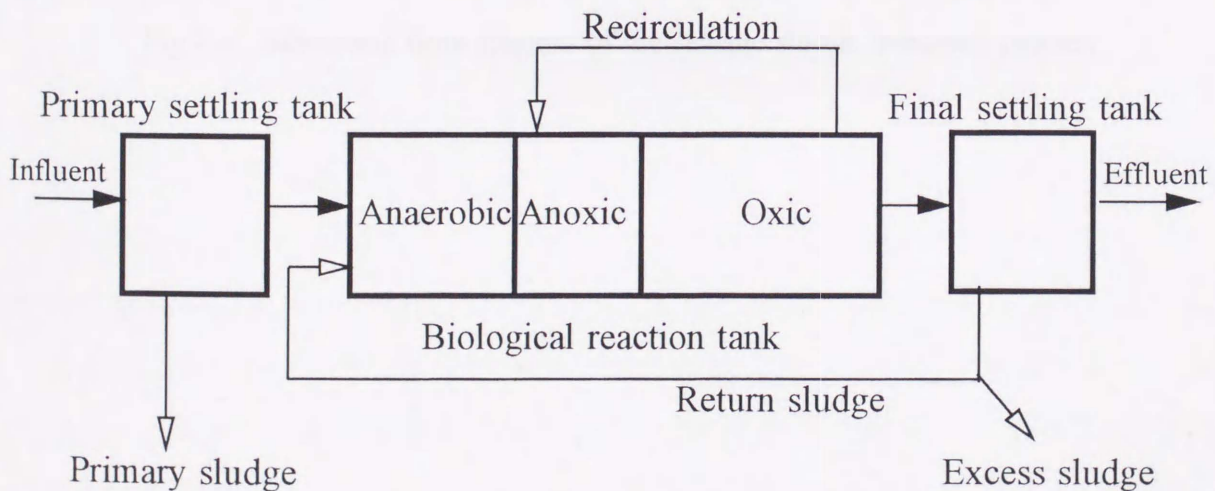


Fig. 2-3 Schematic flow diagram of the typical biological nutrient removal process,
(a) Anoxic-oxic (AO) with chemical precipitation process,
(b) Anaerobic-anoxic-oxic (A₂O) process²⁻¹⁴

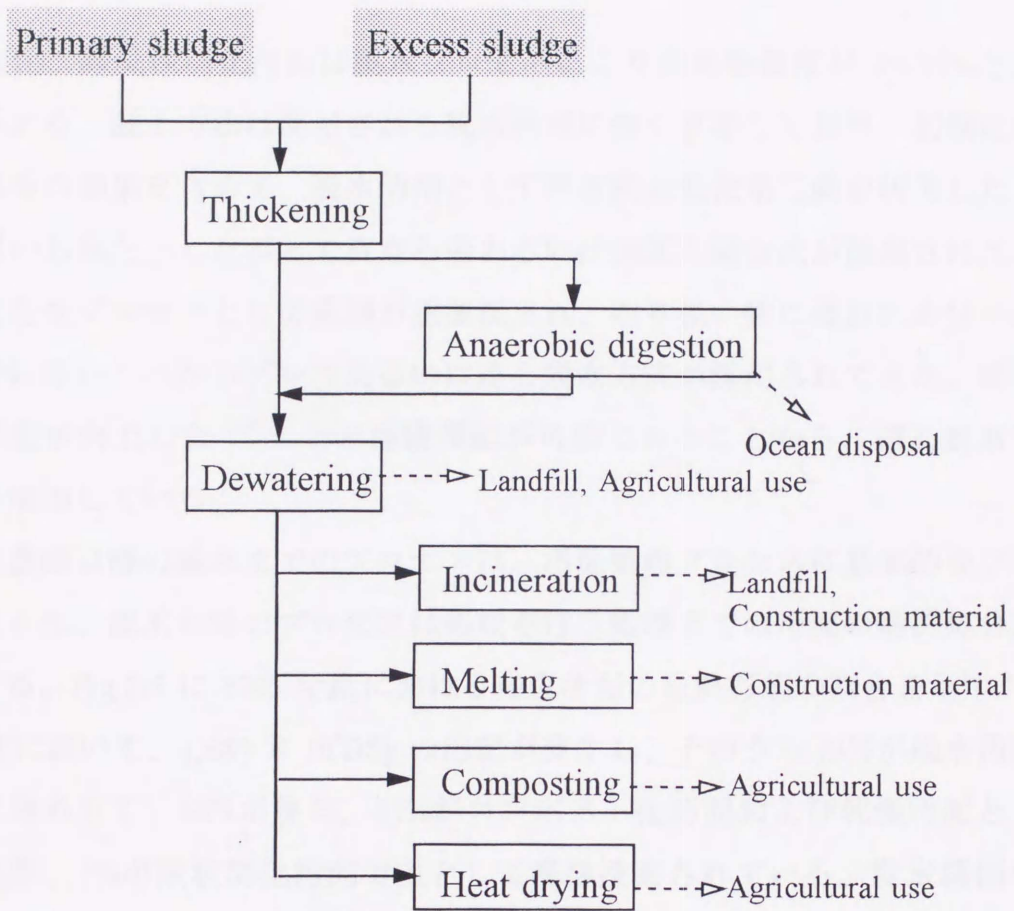


Fig.2-4 Schematic flow diagram of the sewage sludge treatment process

採用が減少している。しかし、現在、我が国では嫌気性消化プロセスで発生する CH_4 の約30%が有効利用されずに焼却処分されており²⁻¹⁹⁾、これら CH_4 の有効利用を図ることで下水処理プロセス総体としてGHG削減につながると考えられる。

濃縮汚泥、嫌気性消化汚泥は脱水プロセスにより固形物濃度が20-25%と大きく減容される。脱水方法は使用される脱水助剤に強く依存しており、初期は病原菌の死滅等の効果を含めて、脱水助剤として消石灰と塩化第二鉄を併用したものが広く用いられた。したがって真空ろ過あるいは加圧ろ過方式が採用された。しかし、安定化プロセスとして焼却が重要視され、取り扱い性に優れた高分子凝集剤の開発に伴い、ベルトプレスあるいは遠心脱水方式が採用されてきた。最近では脱水性能が向上した²⁻²⁰⁾ことと連続運転が可能であることから、遠心脱水方式の採用が増加している。

ここで濃縮以降の脱水までのプロセスは、汚泥処理プロセスに基本的なプロセスと考えられ、脱水以降のプロセスは処理を行う処理場での汚泥の最終処分形態に依存する。Fig.2-5に1995年度における発生汚泥の最終形態の割合を示す²⁻²¹⁾。1995年度において、 $1,689 \times 10^9 \text{DSg}$ の汚泥が発生し、そのうち23%が脱水汚泥で主として埋め立て、66%が焼却、11%がコンポスト化汚泥および乾燥汚泥として緑農地利用、1%が液状消化汚泥で主として海洋投棄されている。欧米諸国の焼却処分と緑農地利用割合は、それぞれ20-40%および30-50%程度である²⁻²²⁾。したがって我が国の汚泥処分状況の特徴として焼却割合の高さと、緑農地利用の低さがあげられる。

焼却プロセスは水処理プロセスからの発生汚泥を1/500程度に減容が可能であり、最終処分として埋め立て処分を考える上で非常に有効なプロセスである。下水汚泥焼却炉は多段炉、流動床炉に大別される。それぞれの構造をFig.2-6およびFig.2-7に示す²⁻²³⁾。多段炉は通常6-8段の炉床を持ち、脱水汚泥は炉頂部から供給され、格段の炉床上で解砕されながら下段への落下を繰り返して順次、乾燥、燃焼および冷却の過程に移行する。通常の燃焼温度は700-900℃である。流動床炉は空気により流動する加熱された砂状の燃焼媒体により、近年、汚泥が燃焼され、燃焼温度は800℃付近である。近年、高分子凝集剤での脱水が増加するとともに、それらの焼却に適した流動床炉が増加しており、焼却炉の更新時にもほと

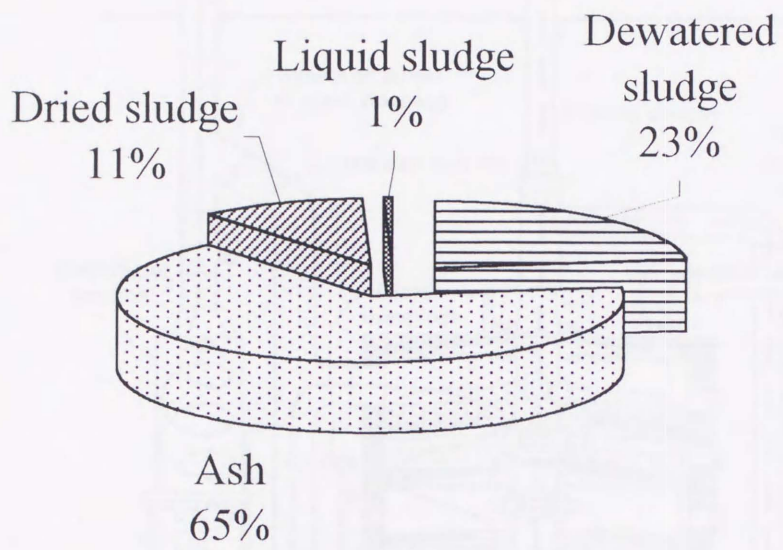


Fig.2-5 Final form of sewage sludge based on generated sludge from the sedimentation tank²⁻²¹⁾

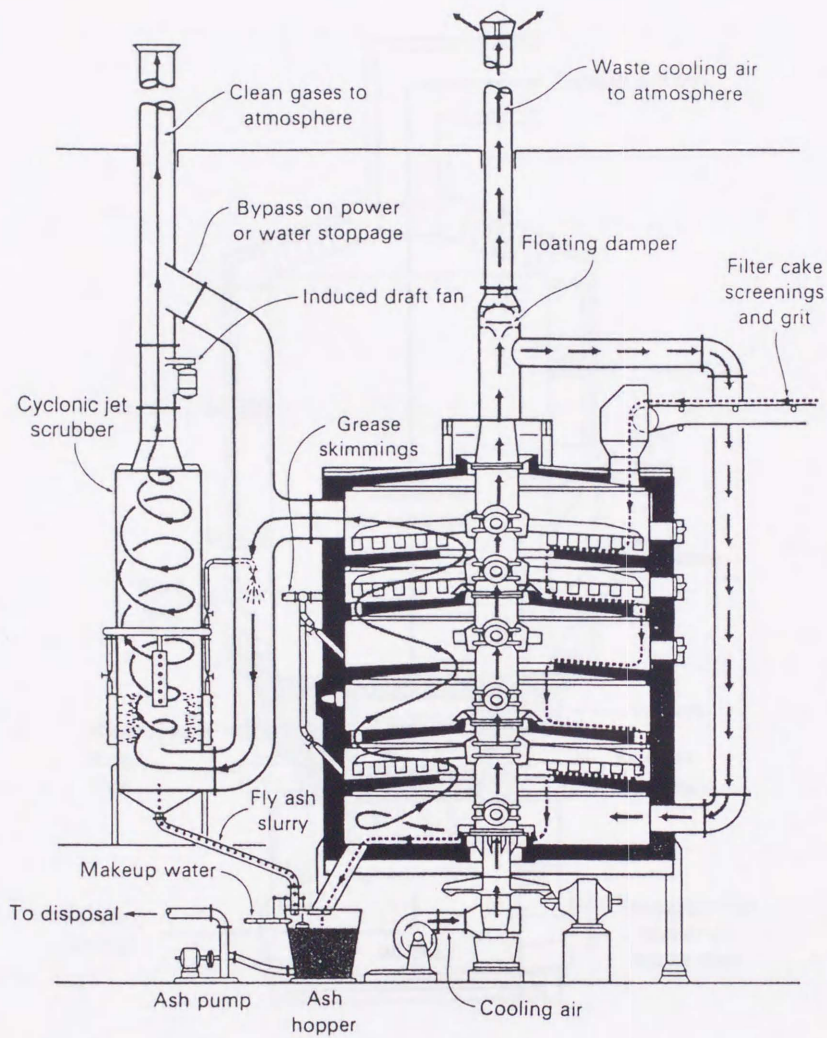


Fig. 2-6 Typical structure of multiple-hearth incinerator²⁻²³⁾

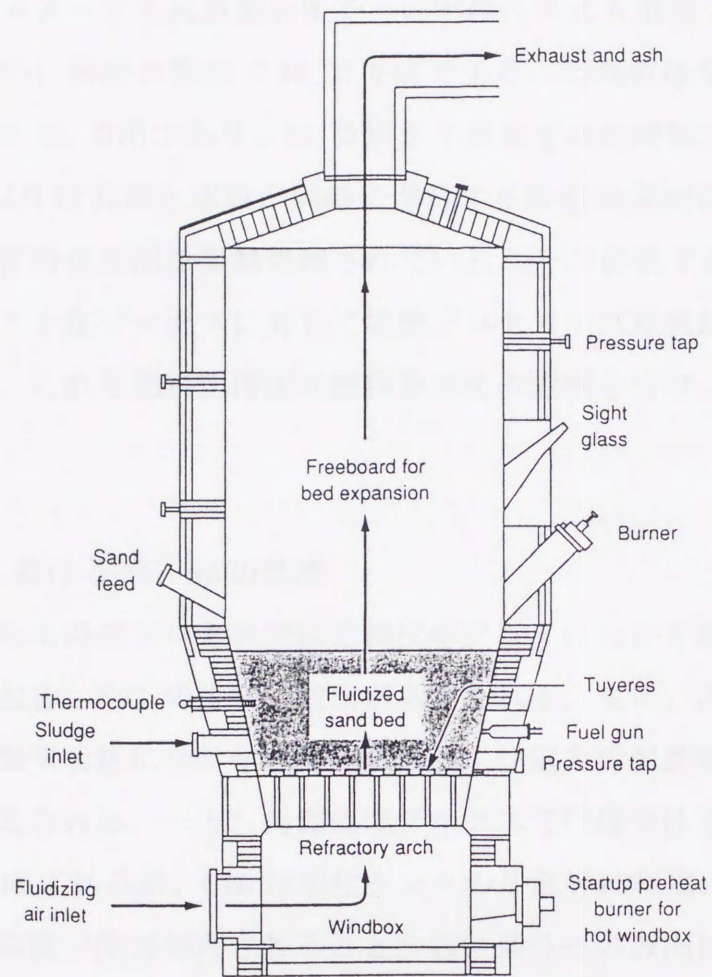


Fig. 2-7 Typical structure of fluidized-bed incinerator²⁻²³⁾

んどが流動床炉へ更新され、将来的には焼却炉の大部分が流動床炉になると予想される。

コンポスト化プロセスあるいは乾燥プロセスが汚泥の肥料化プロセスである。我が国では緑農地利用率が低く、コンポスト化施設は1995年度で32カ所に止まっている。横型スクープ方式が最も多く、いずれの方式も堆積した脱水汚泥の下部から通気を行い、発酵日数は7-10日程度である。汚泥乾燥施設も同様の理由から1995年度で25カ所であり、11カ所が小規模下水処理場での天日乾燥床である²⁻²⁴⁾。その以外は乾燥と造粒が同時に進行する直接熱風回転乾燥機が多く採用されている。肥料化汚泥は発酵処理されていることが必須であり、発酵プロセスであるコンポスト化プロセスに対して乾燥プロセスでは嫌気性消化プロセスと組み合わせられる。これら肥料化汚泥は肥料取締法の規制を受け、特殊肥料として扱われる。

2-3 下水処理における CH_4 、 N_2O の生成

下水処理のうち水処理プロセスでは生物反応タンクにおいて操作条件によっては硝化と脱窒が起き、 N_2O の生成、放出が考えられる。また、汚泥を長時間にわたり滞留させ、嫌気状態になりやすい沈殿池および重力汚泥濃縮槽では、 CH_4 の生成、放出が考えられる。一方、汚泥処理プロセスでは嫌気性消化プロセスから大量の CH_4 が生成されるが、 CH_4 は消化タンクの加温等に利用され、過剰の CH_4 は余剰ガス燃焼装置で焼却処理されることから、系外への放出はないと考えられる。これまで汚泥焼却炉から比較的高濃度の N_2O の放出が知られており^{2-25,26)}、燃焼プロセスにより N_2O が生成する。以下に CH_4 、 N_2O 生成に係る反応プロセスについて述べる

2-3-1 生物学的硝化プロセス

硝化反応は、排水等に含有される有機態の窒素がアンモニア (NH_4^+)、ヒドロキシルアミン (NH_2OH) を経て、亜硝酸 (NO_2^-) あるいは、さらに酸化されて NO_3^- になる反応であり、主として独立栄養硝化細菌が反応に関与する^{2-27,28,29)}。 NH_2OH から NO_2^- への反応過程で、環境条件によっては N_2O を多量に生成する^{2-30,31)}。また、これら細菌は NO_2^- から N_2O への還元酵素を持つことが知られており、低酸

素分圧下で反応が進行することから N_2O 生成への寄与の大きさが指摘されている^{2-32,33,34)}。

こうした独立栄養型の硝化反応に加えて、近年では好気条件下で硝化・脱窒を行う *Alcaligenes faecalis* 等による従属栄養型の硝化反応も報告されている²⁻³⁵⁾。従属栄養型の硝化細菌は独立栄養型硝化細菌に比較して比増殖速度もはるかに大きく、かつ、微生物集団の中で大きな割合を占めることから、こうした従属栄養型の硝化反応と、それに伴う N_2O の生成も無視できないものと注目され始めている。なお、硝化反応に伴う N_2O の生成については、硝化阻害が起こる条件下で NO_3^- へ反応が進まず、途中で代謝系が N_2O へシフトすること等が考えられるが、まだ不明な点が多い。

2-3-2 生物学的脱窒プロセス

脱窒反応は、通常分子状酸素のない条件下で NO_3^- あるいは NO_2^- 等の結合酸素を呼吸源として、有機炭素源としての BOD をエネルギー源に脱窒微生物が利用し、 N_2O あるいは N_2 に還元する代謝反応である^{2-36,37)}。*Pseudomonas denitrificans* 等の多くの細菌が脱窒活性を示すことが知られており、こうした NO_3^- や NO_2^- を還元し、その最終形態として N_2 を生成するような働きをもつ細菌を総称して脱窒細菌と呼んでいる。

脱窒反応で N_2O は、その中間代謝物質であり、適正な環境条件下で N_2O 還元酵素により N_2 まで還元される。この N_2O 還元酵素は O_2 の存在により活性が阻害されることが報告されており²⁻³⁸⁾、特に土壌等の微好気的な環境下では脱窒反応が N_2O で終了し、そのまま環境中へ放出される可能性が高い。

また、菌類による脱窒反応に伴い N_2O が生成することも報告されている²⁻³⁹⁾。菌類は、土壌中や活性汚泥中にも多く存在することから、これらの菌類による N_2O の生成も無視できない可能性がある。特に菌類は N_2O を N_2 に還元する酵素系が欠落している種が多く、 N_2O を大量に生成することが知られている。祥雲らの報告²⁻⁴⁰⁾によれば、不完全菌の一種である *Fusarium oxysporum* を用いた実験で、初期添加された NO_3^- は 100 % N_2O として回収された。Fig.2-8 に生物学的硝化および脱窒反応とそれに伴う N_2O 生成に関し、反応経路の概略を示した。

N_2O は酵素反応である硝化、脱窒反応に伴って生成されるが、酵素反応での代

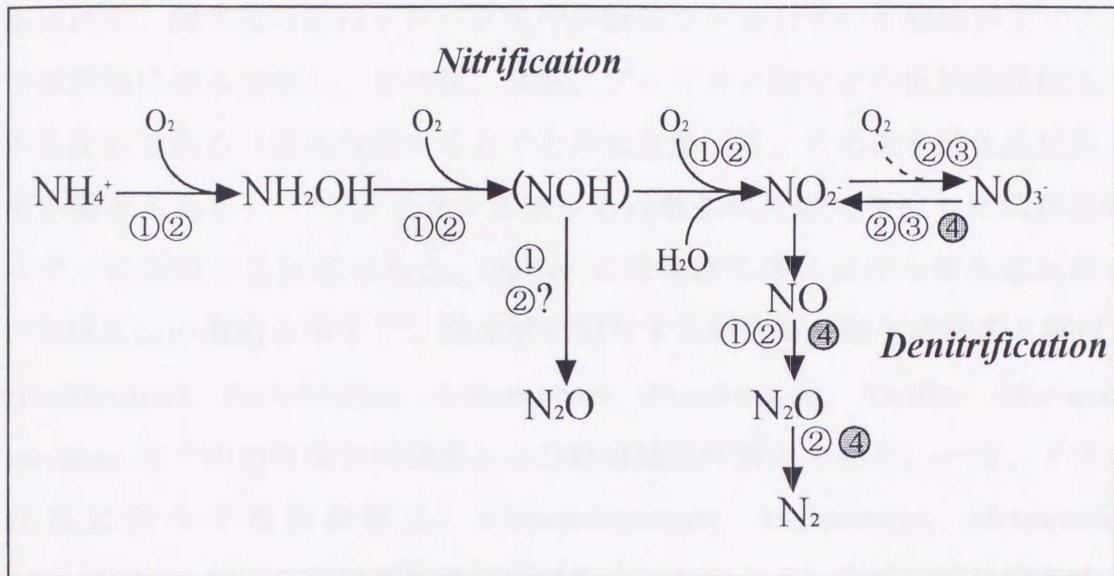


Fig. 2-8 Possible ways of N_2O evolution from the activated sludge process under aerobic and anaerobic conditions :

- ① Autotrophic ammonia oxidizers like *Nitrosomonas europaea*,
- ② Heterotrophic nitrifier with aerobic denitrification function like *Alcaligenes faecalis*,
- ③ Autotrophic nitrite oxidizers like *Nitrobactor winogradskyi*,
- ④ Heterotrophic denitrifier like *Pseudomonas aeruginosa*

謝に重要な役割を果たしているのが補酵素を構成する金属であり、脱窒系では Cu イオンのコントロールによる N_2O 放出制御の可能性が示されている。²⁻⁴¹⁾

2-3-3 メタン発酵プロセス

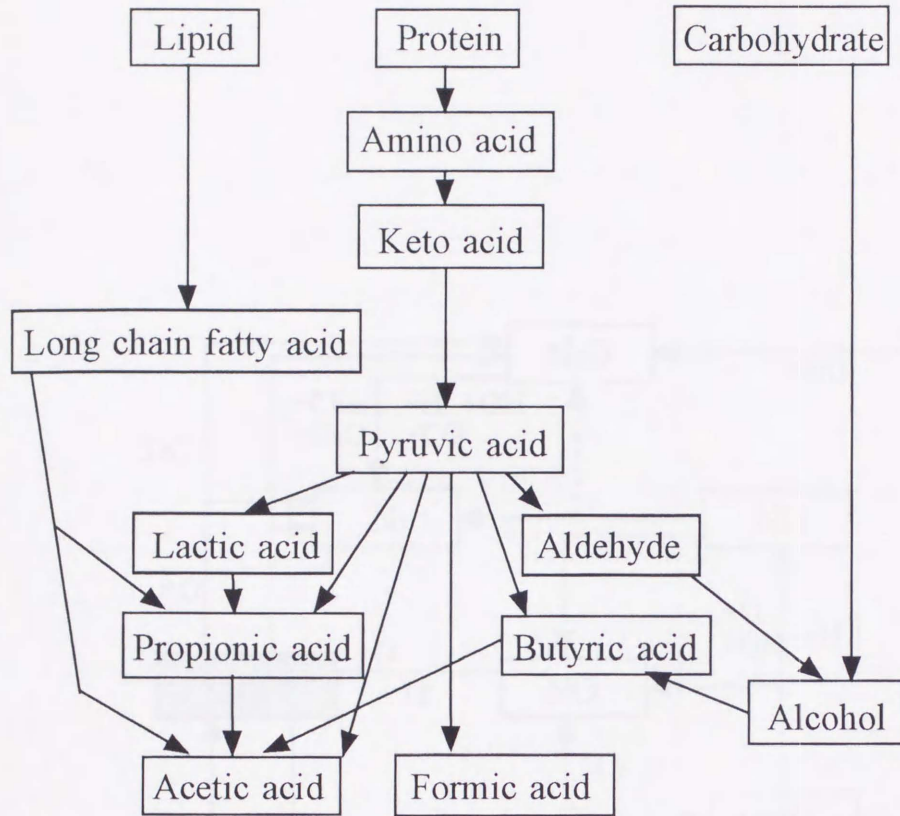
嫌気性処理における有機物の代謝過程は酸生成反応とメタン生成反応の 2 つに大別される。酸生成反応はタンパク質や多糖類など高分子の有機物がまずアミノ酸や単糖類に加水分解し、その後、酢酸、プロピオン酸などの低級脂肪酸まで代謝する反応である（加水分解するまでを加水分解反応、その後を酸生成反応と区別する場合もある）^{2-42,43,44)}。メタン生成反応は酸生成反応で生成した低級脂肪酸がメタンに変換する反応である。Fig.2-9 に嫌気性処理における酸生成反応とメタン生成反応の概略を示す²⁻⁴⁵⁾。酸生成に関与する細菌群は酸生成細菌と呼ばれ、*Corynebacterium*, *Lactobacillus*, *Actinomycetes*, *Pseudomonas*, *Bacillus*, *Micrococcus*, *Clostridium* などの通性嫌気性細菌および絶対嫌気性細菌である。一方、メタン生成反応に関与する細菌群は、*Methanobacterium*, *Metanococcus*, *Metanosarcina*, *Metanospirillum* などの絶対嫌気性細菌である。このメタン生成反応に関与する微生物群の増殖速度および代謝活性は、酸生成反応に関与する微生物群のその数分の 1 以下であることが知られている。したがって、有機物の嫌気性処理における律速はメタン生成反応であると考えられている。つまり嫌気性処理を効率よく行うためにはメタン生成反応の速度を考慮した適切な操作条件の設定が必要であり、酸生成反応の過度な進行による pH の低下によって起こるメタン生成反応の阻害はよく知られている。

2-3-4 燃焼プロセス

燃焼プロセスでの N_2O 生成は主として石炭燃焼について研究が行われているが、 N_2O の生成は揮発性の強い窒素成分を出発とする気相反応と揮発性の低い Char による気固反応に大別される^{2-46,47,48)}。 N_2O 生成機構を Fig.2-10 に示す²⁻⁴⁶⁾。

燃焼過程の初期において揮発性の強い窒素成分は、 NH_3 または HCN として放出され、 HCN は O ラジカルと反応して NCO が生成し、 NO ラジカルとの反応により N_2O が生成する。これらの反応は燃焼温度に強く依存しており、 N_2O の生成は $700^\circ C$ から $750^\circ C$ で最大となりそれ以下の温度では HCN 以降の反応が遅くな

(a) Acid fermentation



(b) Methane fermentation

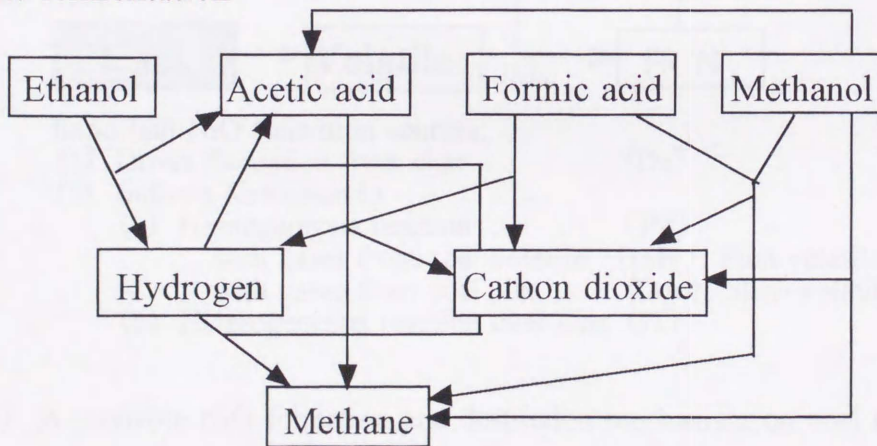
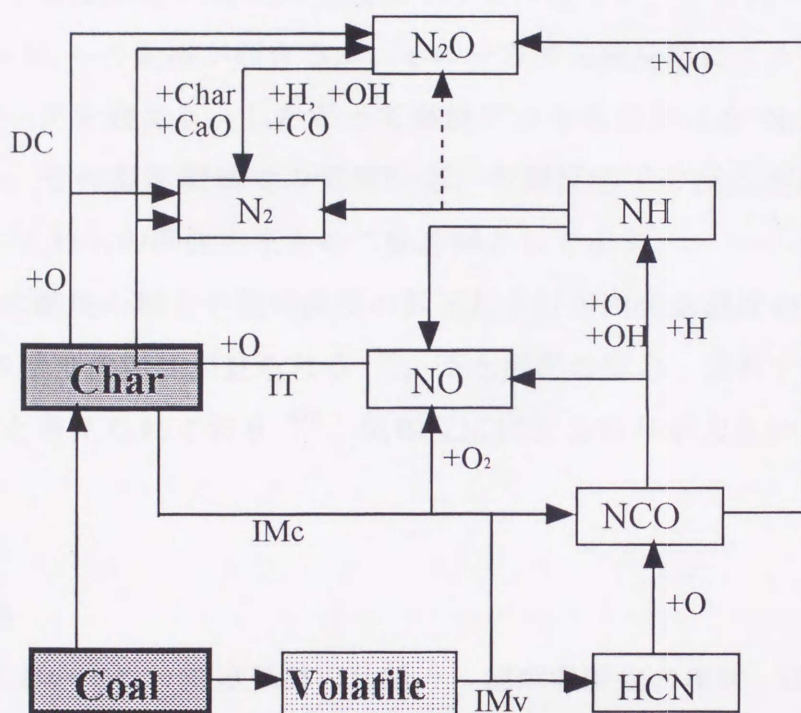


Fig. 2-9 Chemical reaction pass way on the anaerobic daigestion for sewerage organic materials²⁻⁴⁵⁾



- Important N_2O formation sources;
- (1) Direct formation from char (Dc)
 - (2) Indirect formation in
 - (a) Homogeneous reactions (IM)
 - with gases from coal volatile (IMv): First volatile
 - with gases from coal char (IMc): Slow volatile
 - (b) Heterogeneous reaction over char (IT)

Fig. 2-10 A probable N_2O formation and destruction mechanism on coal combustion²⁻⁴⁶⁾

り、燃焼ガス中の HCN 濃度が増加する。また、750 °C以上の温度では NCO が O ラジカル、OH ラジカルと反応し、NO の生成が NO ラジカルとの反応による N₂O の生成に卓越するようになる。さらに、800 °C以上の温度では生成された N₂O が H ラジカル、OH ラジカルとの反応により N₂ へ変換される。揮発性の低い Char 中の窒素は直接、酸素ラジカルと反応して N₂O を生成する。また、気相反応で生成した NO が Char 粒子表面で O ラジカルと反応する気固反応によっても N₂O は生成される。この気固反応も反応温度に強く依存しており、800 °C付近で最大となる。つまり気相反応では N₂O 生成は 750 °C付近でピークを迎え、800 °C以上では N₂O から N₂ への変換が起きるが、その一方で気固反応による N₂O 生成は 800 °C付近でピークを迎える。したがって燃焼プロセスにおける N₂O 生成は温度に強く依存し、その温度領域での気相反応、気固反応での反応速度に依存する。Fig.2-11 に、これらの関係をまとめて概念図として示す。

下水汚泥の燃焼の場合も焼却温度の低下および炉内酸素濃度の低下により排ガス中の HCN 濃度の増加が見られる²⁻²⁵⁾。下水汚泥の場合、含有する窒素の大部分は揮発成分と考えられており²⁻⁴⁹⁾、気相反応による寄与が大きいものと考えられる。

2-4 まとめ

第 2 章においては、温室効果の仕組み、地球温暖化の現状、GHG の種類と特徴、地球温暖化における CH₄、N₂O 対策の重要性についてまとめ、地球温暖化に関する問題点およびその対策等の重要性について整理した。また、下水処理プロセスを水処理プロセスと汚泥処理プロセスに大別し、概観するとともに今後の方向性について整理した。次に、下水処理プロセスからの CH₄、N₂O 放出機構について、生物学的硝化・脱窒プロセス、メタン発酵プロセスおよび燃焼プロセスを取り上げ、既往の知見の整理を行った。

その結果、下水処理プロセスでは水処理、汚泥処理プロセスいずれにおいても多量の有機物および窒素を処理することから、CH₄、N₂O の潜在的放出ポテンシャルの高い放出源と考えることができた。特に水処理プロセスでは今後、水域の富栄養化対策のために、嫌気と好気処理を組み合わせた窒素およびリンの除去を行う AO、A₂O 法による処理が大きく普及するものと予想される。したがって、処

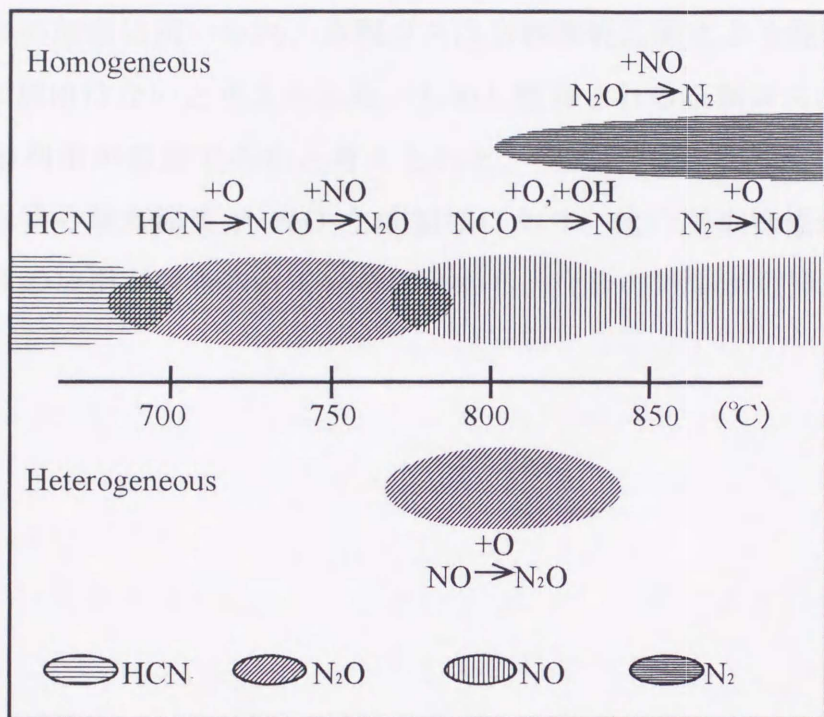


Fig. 2-11 Schematic diagram of the relationships between temperature and N_2O formation and decomposition on the coal combustion process

理プロセスに硝化、脱窒、メタン発酵の各プロセスが内在することとなり、操作条件によっては CH_4 、 N_2O 放出の増大が懸念され、その生成機構、放出実態を把握し、対策を講ずることが重要であることが明らかになった。

一方、下水処理プロセスに投入される有機物の約 50%以上、窒素の 30%程度が汚泥として水処理プロセスから汚泥処理プロセスへ移行する。ここで汚泥処理プロセスの内、嫌気性消化プロセスは CH_4 生産プロセスであるが、その一部は消化タンクの加温に用いられ、余剰ガスは余剰燃焼装置により焼却処分されるため、 CH_4 の放出はないと考えられる。しかし焼却される余剰ガスは全体の 30%を占め、有効利用が重要であると考えられた。現在、汚泥の 60%以上が焼却されており、現状の焼却温度が N_2O 生成領域にあり、他の廃棄物焼却炉に比べて高濃度の N_2O の放出が報告されていることから、今後の対策が重要と考えられた。

第3章 水処理プロセスにおける CH_4 、 N_2O の放出量および放出特性と 活性汚泥の処理条件との関係

3-1 はじめに

下水処理プロセスは沈殿、エアレーション、汚泥濃縮といった処理工程に嫌気、硝化、脱窒反応を内在しており、処理される窒素および有機物量の大きさから CH_4 、 N_2O の潜在的な放出源である。COP3において CH_4 、 N_2O が削減対象となり、下水処理プロセスからの放出量と放出特性の特定が急務であるが、すべての処理プロセスにわたる測定例が少なく^{3-1,2,3)}、放出量、放出特性と処理条件との関係において、これまで検討がなされていない。ところで、下水処理プロセスは、一連の水処理プロセスと汚泥処理プロセスに大別される。前者が生物処理を主とするのに対して後者は脱水、焼却等の物理化学処理が主体となる。本章では、一般的な活性汚泥法における硝化促進運転の有無の操作条件の違い、および温暖期と寒冷期の温度条件の違いが CH_4 、 N_2O の放出量と放出特性に及ぼす影響について明らかにすることを目的とした。

この際、一般的な活性汚泥法に加えてAO法と A_2O 法を組み入れた処理場において各処理法における CH_4 、 N_2O の放出量と放出特性についても解析を行った。

3-2 実験方法

3-2-1 調査対象処理場の概要

A、B 処理場では、いずれも流入下水の 90%以上が生活排水に由来し、排除方法は分流式である。Fig.3-1 にそれぞれの処理場の処理フローを示したが、A 処理場は流入するすべての下水を活性汚泥法で処理を行っており、B 処理場は流入下水の約 50%を活性汚泥法で、約 25%を生物学的脱窒・脱リン法 (A_2O 法) で、残りは凝集剤添加脱リン生物学的脱窒法 (凝集剤添加 AO 法) で処理を行っている。

調査対象とした処理施設は、活性汚泥法では最初沈殿池、エアレーションタンク、最終沈殿池および汚泥濃縮タンクであり、 A_2O 法では最初沈殿池、反応タンク、最終沈殿池である。 A_2O 法の反応タンクは Fig.2-5 に示したように嫌気槽、無酸素槽、好気槽より構成される。また、B 処理場の最初沈殿池の越流水では、エアレーションタンクおよび反応タンク流入時に流入量が調整され、6 カ所ある最終沈殿池はすべて同じ条件で運転が行われるため、活性汚泥法と A_2O 法ともに共通とした。汚泥濃縮タンクについては汚泥処理プロセスに属する処理施設であるが、水処理プロセスからの一連のプロセスとして本章で取り扱うとした。なお、それぞれの処理場における活性汚泥法および A_2O 法の平均的な運転操作条件を Table3-1 にまとめて示す。

また、調査日および前日は降雨がなく、流入水量の増加などの降雨による影響は認められなかった。なお、A-1 については実験条件が整わず CH_4 のみの検討を行った。

3-2-2 試料の採取および分析方法

A 処理場では 1992 年 2 月 (A-1) および 8 月 (A-2) に、B 処理場では 1992 年 11 月 (B-1) および 1993 年 9 月 (B-2) に通日試験を行った。A-1、A-2、B-2 では活性汚泥法での処理工程のみを対象としたが、B-1 では活性汚泥法の処理工程と同時に系列処理を行っている A_2O 法の処理工程も対象とし、その違いを比較解析した。以下、B-1 において活性汚泥法の処理工程を B-1 と、 A_2O 法の処理工程を B-1 (A_2O) とする。それぞれの測定時における流入水量は A-1, A-2, B-1, B-1 (A_2O), B-2 それぞれ一日当たり 30,060, 33,986, 46,538, 7,767, 52,100 m^3 であり、水温はそ

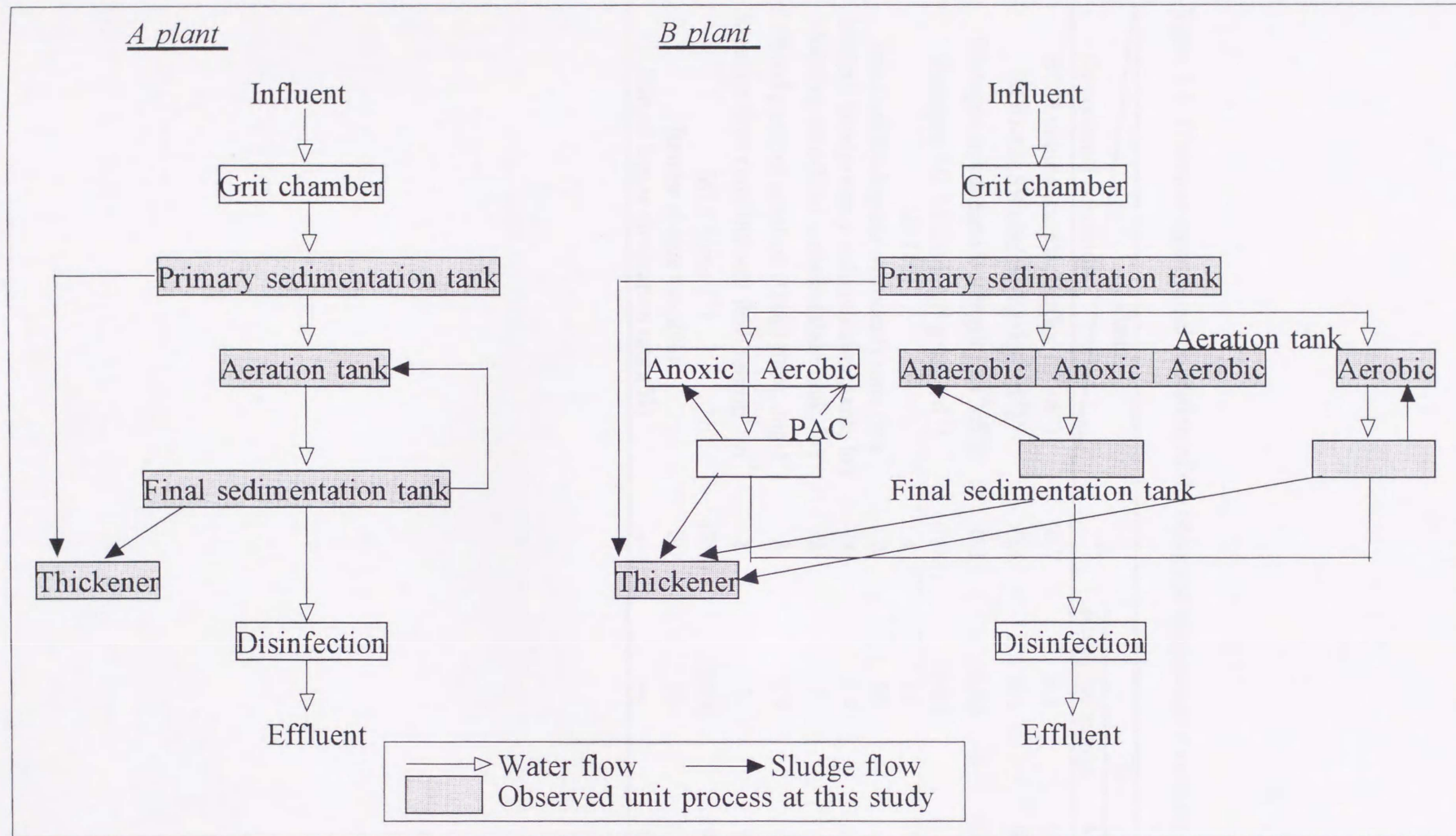


Fig.3-1 Outline of the observed municipal wastewater treatment plant

Table 3-1 Common operational condition of the observed wastewater treatment plant

Operational condition	Plant	B	
	A	Activated sludge	A ₂ O
BOD volumetric loading(kg·m ⁻³ ·d ⁻¹)	0.7	0.3	0.3
BOD-MLSS loading(kg·kg ⁻¹ ·d ⁻¹)	0.4	0.1	0.1
Nitrogen volumetric loading(kg·m ⁻³ ·d ⁻¹)	0.1	0.04	0.04
Nitrogen-MLSS loading(kg·kg ⁻¹ ·d ⁻¹)	0.06	0.02	0.02
SRT(d)	4	14	17
Aeration(Biological treatment) time (hr)	7	10	12
Settling time(primary sedimentation tank, hr)	3	4.5	4.5
Settling time(final sedimentation tank, hr)	3	5	5
DO(end point of aeration (Oxic) tank, mg·l ⁻¹)	3	3.5	2
Aeration flow rate/ Influent flow rate(m ³ ·m ⁻³)	8	5	6
MLSS(mg·l ⁻¹)	1800	2400	2900
Return sludge ratio(%)	30	50	110
Mixed liquor circulation ratio(%)	---	---	50

れぞれ 13, 24, 20, 20, 24 °C であった。

沈殿池およびエアレーションタンクでの測定方法を Fig.3-2 に示す。最初沈殿池および最終沈殿池では内容積約 2l、底面積 260cm² のフロート付きチャンバーを投入し、沈殿池の表水面上に一定時間浮遊させ、投入時および一定時間後の濃度の差から放出量を求めた。エアレーションタンクでは押し出し流れを考慮し、流下方向に向かって A 処理場では 6 点、B 処理場では 8 点でエアレーションタンク表面に吹き上がってくるエアレーション空気を直接捕集し、その CH₄、N₂O 濃度および処理場で測定されているエアレーション風量から放出量を求めた。なお、A₂O 法の処理工程の内、反応タンクの嫌気槽および無酸素槽の測定方法は沈殿池の測定方法に準じ、好気槽での測定方法はエアレーションタンクの測定方法に準じたが、測定点は 6 カ所とした。汚泥濃縮タンクは、上部に覆蓋が施されており、発生する気体（臭気）は臭気対策のため、外気で希釈して排気ダクトにより大気中に放出されており、これを捕集し、その CH₄、N₂O 濃度および排気風量から放出量を求めた。試料は 3 時間毎に採取した。今回調査した A、B 処理場における測定点の概略を Fig.3-3 に示す。

BOD、T-N、NH₄⁺、NO₃ 等の水質項目は下水試験方法³⁻⁴⁾に準じて分析した。流入下水、エアレーションタンク混合液等の CH₄ および N₂O の溶存濃度はヘッドスペース法で測定した。また、試料中の CH₄ は FID 付ガスクロマトグラフィーで、N₂O は ECD 付ガスクロマトグラフィーでそれぞれ分析した。なお、N₂O の分析については低濃度の分析精度に大きな影響を与える、共存する酸素(O₂)、CO₂ および水分の影響を除くために、ガスクロマトグラフィーにプレカット機構および検量管の前部に過塩素酸マグネシウムとソーダアスベストを充填したプレカラムによる吸着機構を設けた。CH₄ および N₂O の測定条件を Table 3-2 に示す。

3-3 結果および考察

3-3-1 流入下水および処理水の水質特性

調査時における流入下水と処理水の水質を Table3-3 に示す。処理水の BOD 濃度は、A-1, A-2, B-1, B-1(A₂O), B-2 で、それぞれ、9.5, 14, 1.2, 1.2, 1.1mg・l⁻¹ となり、B-1, B-1(A₂O), B-2 については、低負荷の運転条件を反映した非常に

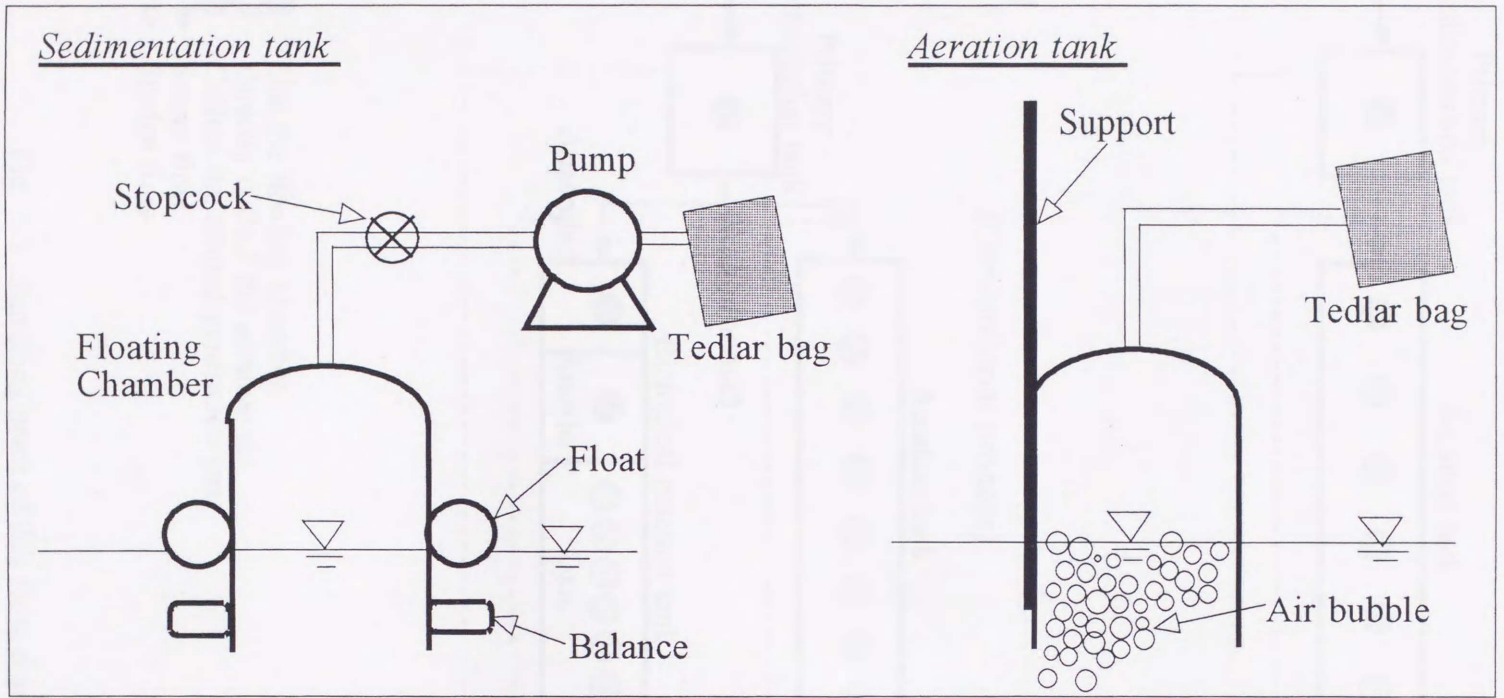
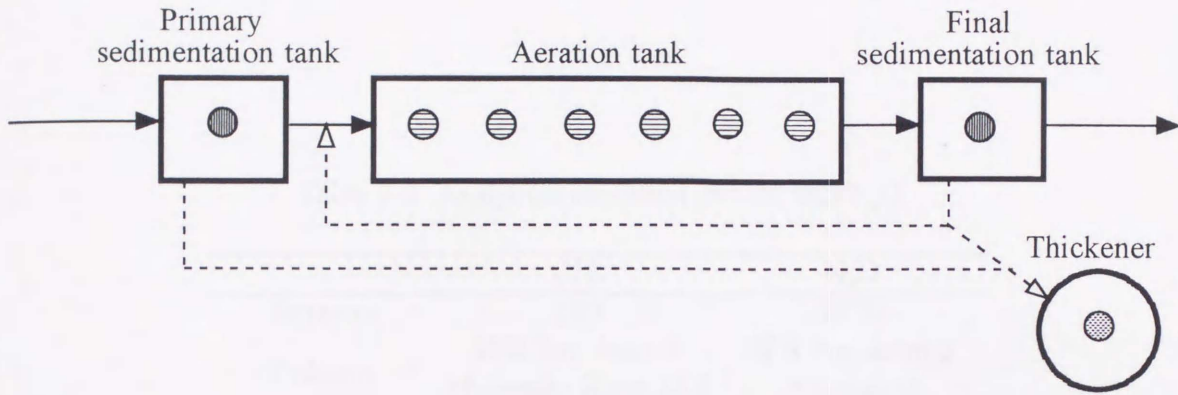
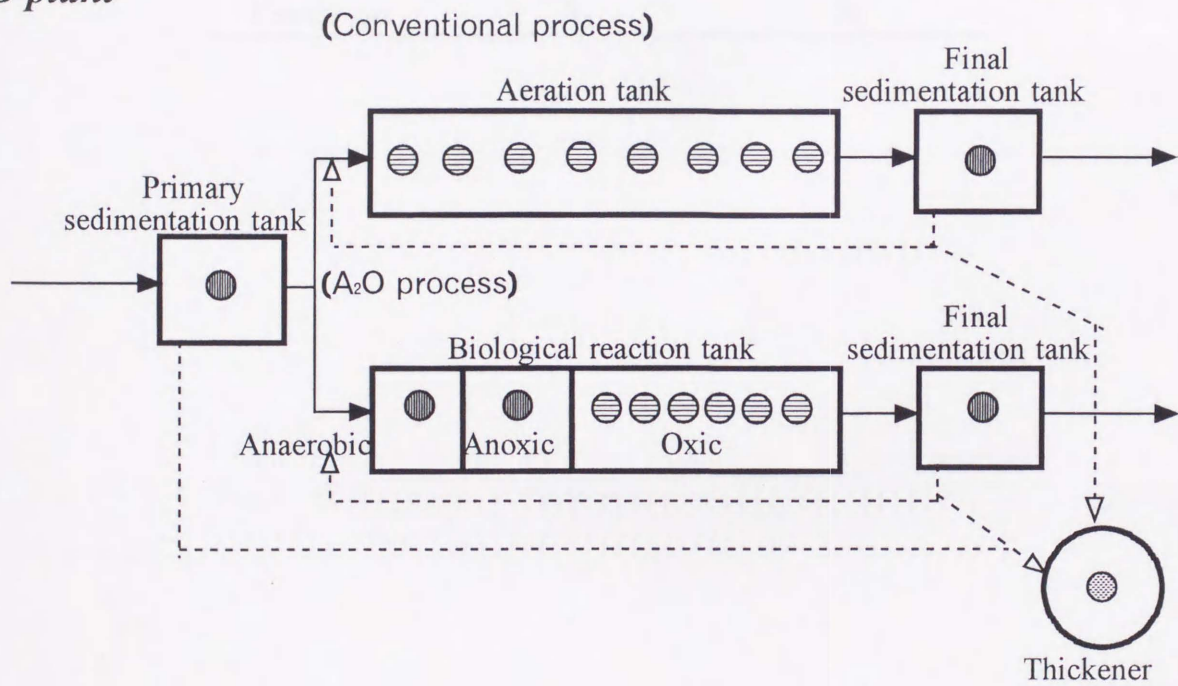


Fig.3-2 Schematic diagram of sample collection for the sedimentation and the aeration

A plant



B plant








-  Use the floating chamber
-  Directly collect the aeration air
-  Collect the diluted generation gas
-  Sewer flow
-  Sludge flow

Fig. 3-3 Sampling point of this field observation

Table 3-2 Analytical condition of CH₄ and N₂O

	CH ₄	N ₂ O
Detector	FID	ECD
Column	SUS 2m, 4mm ϕ Molecular Sieve 13X	SUS 2m, 4mm ϕ Porapak Q
Detector temp.	120°C	300°C
Column temp.	80°C	60°C
Carrier gas	N ₂	N ₂

Table 3-3 Influent and effluent water quality at each field observation

		Water quality(mg·l ⁻¹)			
		BOD	T-N	NH ₄ ⁺ -N	NO ₃ ⁻ -N
A-1	Influent	269	37.5	20.2	0.7
	Effluent	9.5	32.5	28.1	0.02
A-2	Influent	183	29.6	22.4	0.2
	Effluent	14	28	25.2	0.7
B-1	Influent	192	32.2	19.7	0
	Effluent	1.2	11.4	0.4	11
B-1(A ₂ O)	Effluent	1.2	5.9	0.03	6.1
B-2	Influent	93	20.6	14.1	0
	Effluent	1.1	9.3	0.3	8.1

良好な処理水質が得られた。処理水の窒素形態は各処理場の運転操作条件を顕著に反映していた。つまり、A-1, A-2 では、BOD-MLSS 負荷が $0.4\text{kg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{日}^{-1}$ および SRT が 4 日程度と硝化が抑制された運転が行われ、大部分が NH_4^+ であった。逆に B-1, B-2 では、BOD-MLSS 負荷が $0.1\text{kg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{日}^{-1}$ および SRT が 14 日と硝化促進運転が行われ^{3-5,6)}、大部分が NO_3^- であった。ここで流入下水中および処理水中の T-N 濃度は、A-1 で 37.5 と $32.5\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、A-2 で 29.6 と $28\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、流入下水と処理水の濃度に大きな差はみられなかった。しかし B-1 で 32.2 と $11.4\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、B-2 で 20.6 と $9.3\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、流入下水に対して処理水の濃度が大きく減少する傾向にあった。一般的な活性汚泥法では流入下水中の T-N の 30%程度が最初沈殿池汚泥および余剰汚泥として除去され^{3-7,8)}、次に処理水中の NO_3^- の一部は返送汚泥としてエアレーションプロセスに持ち込まれ、溶存酸素濃度 (DO) が低いエアレーションタンク入口付近において返送汚泥量に応じて脱窒除去される。このプロセスを考慮すると、A-1, A-2 では、処理水中の T-N の大部分が NH_4^+ であり、汚泥返送に伴う窒素除去が期待できないこと、最初沈殿池に返流される汚泥処理プロセスからの T-N の返流負荷により最初沈殿池での除去分が相殺されるためと考えられた。

一方、B-1, B-2 では、処理水の T-N の大部分が NO_3^- であることから、汚泥返送に伴う脱窒および BOD-MLSS 負荷が比較的低いことから内生脱窒により T-N が減少したものと考えられた³⁻⁹⁾。ところで、窒素除去を目的としている B-1 (A_2O) は、処理水の T-N 濃度が $5.9\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、流入下水に対して窒素除去率が 82% と非常に良好な処理結果が得られた。反応タンクの流入、流出における T-N 除去率は 73%であった。また、全体の除去率から見ると全体の T-N 除去率 82%のうち反応タンクにおける除去率の占める割合は 50%であった。さらに、脱窒が進行する無酸素槽出口における NO_3^- -N は平均で $0.2\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ で NO_2^- も認められず、処理水の大部分が NO_3^- であることから、B-1 (A_2O) においては、非常にスムーズに硝化・脱窒が進行していたものと考えられた。

3-3-2 CH_4 の処理工程からの放出特性

ここではまず、我が国で最も一般的な活性汚泥法で処理を行っていた A-1, A-2, B-1, B-2 について比較検討を行う。

各処理工程からの CH_4 の放出量を流入下水 1m^3 当たりで Table3-4 に示した。いずれの測定においても、エアレーションタンクおよび汚泥濃縮槽からの放出量が卓越しており、全体の放出の 90%以上を占めた。また、最終沈殿池からの放出量は、A-1, A-2, B-1, B-2 で、それぞれ、0.6, 0.7, 0.01, $0.01\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と非常に小さく、全体としては無視できる量であった。高濃度の有機物を長時間にわたり滞留する汚泥濃縮タンクでは、嫌気状態が生じやすく、 CH_4 放出量が大きくなると考えられが、本来好气的条件に保たれるエアレーションタンクについてはタンク内での生成は考えにくい。おそらく、流入下水および汚泥処理プロセスから最初沈殿池に戻される汚泥返流水に溶存する CH_4 と最初沈殿池で発生・溶存する CH_4 がともにエアレーションタンクに流入し、エアレーションにより再度、放出されるためと考えられた。Fig.3-4 に、A-1 におけるエアレーションタンク内での溶存 CH_4 の挙動を示す。 CH_4 はエアレーションの進行に伴い減少し、エアレーションタンク内での減少量から計算された CH_4 放出量は $4.3\text{kg}\cdot\text{日}^{-1}$ 、エアレーション空気中の CH_4 濃度とエアレーション空気量から計算された CH_4 放出量は $4.0\text{kg}\cdot\text{日}^{-1}$ となり、お互いにほぼ一致した。この傾向は、すべての処理の測定において認められた。最も大きな放出量となった B-2 における流入下水、エアレーションタンク流入水および処理水の溶存 CH_4 濃度の経時変化を Fig.3-5 に示す。流入下水中の溶存濃度は、 $170\text{-}280\ \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度の経時変化を示すが、最初沈殿池での沈殿工程を経ることにより $570\text{-}1,500\ \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ と流入下水中の溶存濃度に比べ、溶存濃度は約 5 倍に増加した。このエアレーションタンク流入時に溶存濃度が増加する傾向、つまり最初沈殿池での溶存濃度の増加はすべての測定において認められた。

A-1, A-2 における水温は 13 および $24\ ^\circ\text{C}$ であったが、流入下水中の溶存 CH_4 濃度はそれぞれ $40\text{-}170$, $40\text{-}150\ \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ と明確な差が認められなかった。しかし、エアレーションタンクからの放出量を決定するエアレーションタンク流入水濃度は、それぞれ、 $100\text{-}180$, $180\text{-}350\ \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 、汚泥濃縮槽からの放出量は、それぞれ、 48 , $441\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と明確な差が認められた。同様に、B-1, B-2 における水温は 20 および $24\ ^\circ\text{C}$ であり、流入下水中の溶存 CH_4 濃度は $110\text{-}350$ および $170\text{-}280\ \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ と明確な差は認められなかったが、エアレーションタンク流入水の溶存濃度は $170\text{-}500$ および $570\text{-}1,500\ \mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 、汚泥濃縮槽からの放出量は 194 および $272\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と水温の

Table 3-4 Release amounts of methane per 1m³ of wastewater influent

Release amounts of CH ₄ (mg·m ⁻³ wastewater influent)				
	Primary sedimentation tank	Aeration tank	Final sedimentation tank	Thickener
A-1	16	145	0.6	48
A-2	51	328	0.7	441
B-1	8	253	0.01	194
B-2	1.5	815	0.01	272

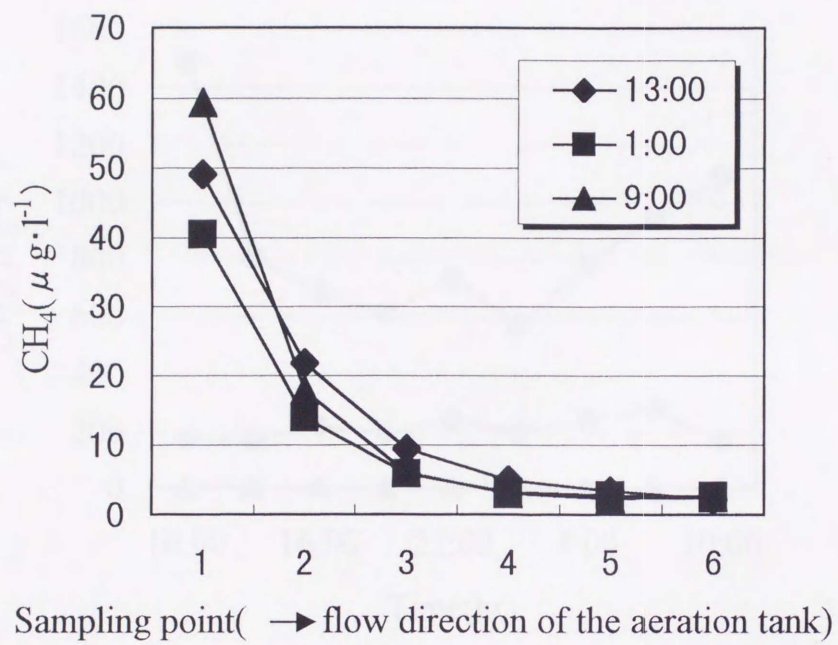


Fig.3-4 Change of dissolved methane concentrations in the aeration tank

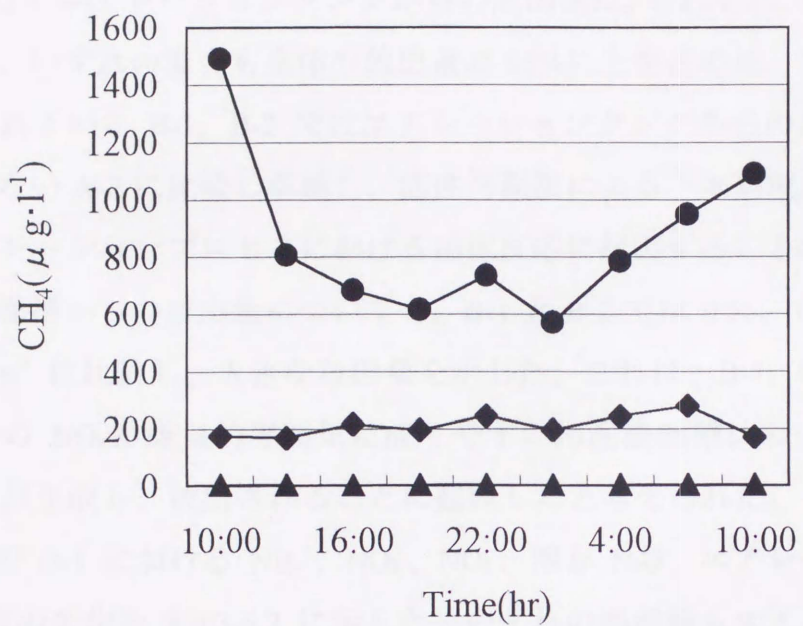


Fig.3-5 Diurnal variation of dissolved methane concentration in influent to each tank :

- ◆ Influent to the primary sedimentation tank
- Influent to the aeration tank
- ▲ Treated effluent

違いによる明確な差が認められた。

3-3-3 N₂Oの処理工程からの放出特性

ここではまず、CH₄の場合と同様に A-1, A-2, B-1, B-2 について比較検討を行う。

各処理工程からの N₂O の放出量を流入下水 1m³ 当たりで Table 3-5 に示した。A-2, B-1, B-2 のエアレーションタンクからの放出量は、それぞれ、1.2, 17.9, 20.3mg・m⁻³ であり、いずれの場合も全体の放出量の 95%以上を占めた。また、硝化促進運転が行われていた B-1, B-2 ではエアレーションタンクからの放出量が硝化の進行していない A-2 に比較し卓越し、活性汚泥法による下水処理から放出される N₂O はエアレーションプロセスにおける硝化反応に起因することが明らかとなった。汚泥濃縮槽からの放出量についても、B-1 と B-2 では 0.56, 1.2mg・m⁻³ と A-2 の 0.02mg・m⁻³ に比較し、大きな放出量を示した。これは、B-1, B-2 で引き抜き余剰汚泥中の NO₃⁻ が嫌氣的雰囲気になりやすい汚泥濃縮槽において脱窒される過程で N₂O が生成し、放出されることに起因したと考えられた。

A-2 および B-1 における NH₄⁺、NO₂⁻、NO₃⁻、溶存 N₂O、エアレーション空気中の N₂O 濃度の変化を Fig.3-6,7 に示した。いずれの処理場もエアレーションタンク内は近似的に押し出し流れの状態であり、流下方向への距離は反応の時間的経過を示す。A-2 では、硝化がほとんど進行せず後半部分でごく僅かに NH₄⁺濃度の減少が認められ、それに伴って混合液中およびエアレーション空気中に微量の N₂O の存在が認められた。一方、B-1 では、時間の経過とともに NH₄⁺濃度が減少し、NO₃⁻濃度が増加し、最終的には硝化がほぼ完全に進行している。混合液中の N₂O 濃度は、プロセスの進行に伴って一旦増加し、その後減少し再度増加する傾向を示し、エアレーション空気中の N₂O 濃度は混合液中の N₂O 濃度とほぼ同様な傾向を示した。エアレーションタンク前段での放出は、返送汚泥中に含まれる N₂O のエアレーションによる追い出し、および汚泥返送により持ち込まれる NO₃⁻ の DO が低くなるエアレーションタンク入口付近での脱窒に起因するものと考えられ、後半の放出は NH₄⁺および NO₃⁻濃度の変化から明らかのように硝化に起因するものと考えられた。

Fig.3-8,9 に B-1, B-2 における N₂O 放出量の経時変化を示す。B-1 では 22:00

Table 3-5 Release amounts of nitrous oxide per 1m^3 of wastewater influent

Release amounts of N_2O ($\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ wastewater influent)				
	Primary sedimentation tank	Aeration tank	Final sedimentation tank	Thickener
A-2	0	1.2	0.01	0.02
B-1	0.01	17.9	0.02	0.56
B-2	0.01	20.3	0.02	1.2

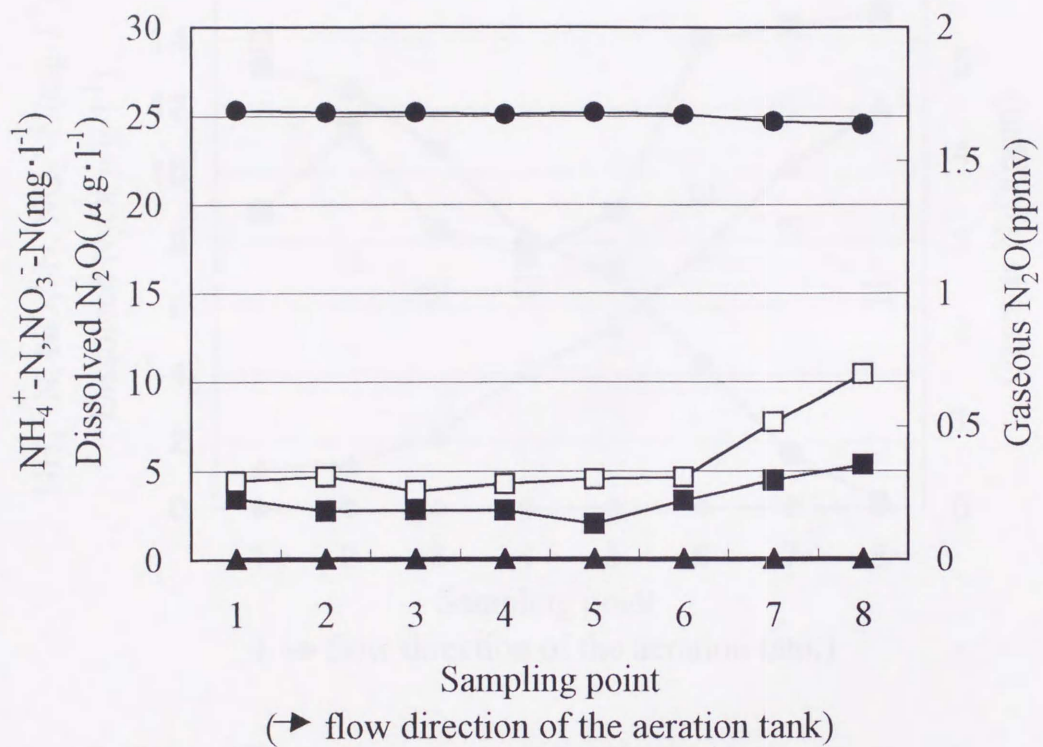


Fig.3-6 Change of ammonium, nitrate, nitrite, dissolved nitrous oxide and gaseous nitrous oxide concentration at the aeration tank(A-2) :

- Dissolved N₂O
- NH₄-N
- ▲ NO₃-N
- Gaseous N₂O

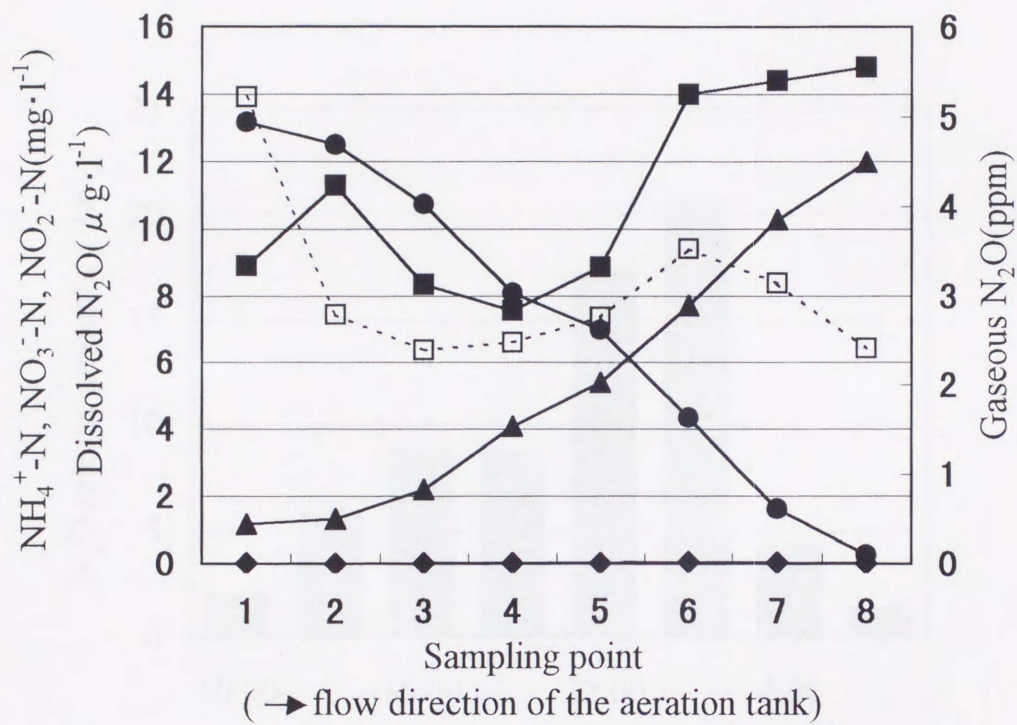
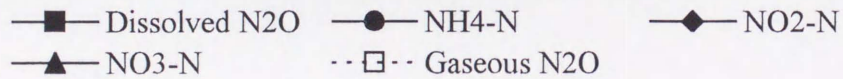


Fig.3-7 Change of ammonium, nitrate, nitrite, dissolved nitrous oxide and gaseous nitrous oxide concentration at the aeration tank(B-1) :



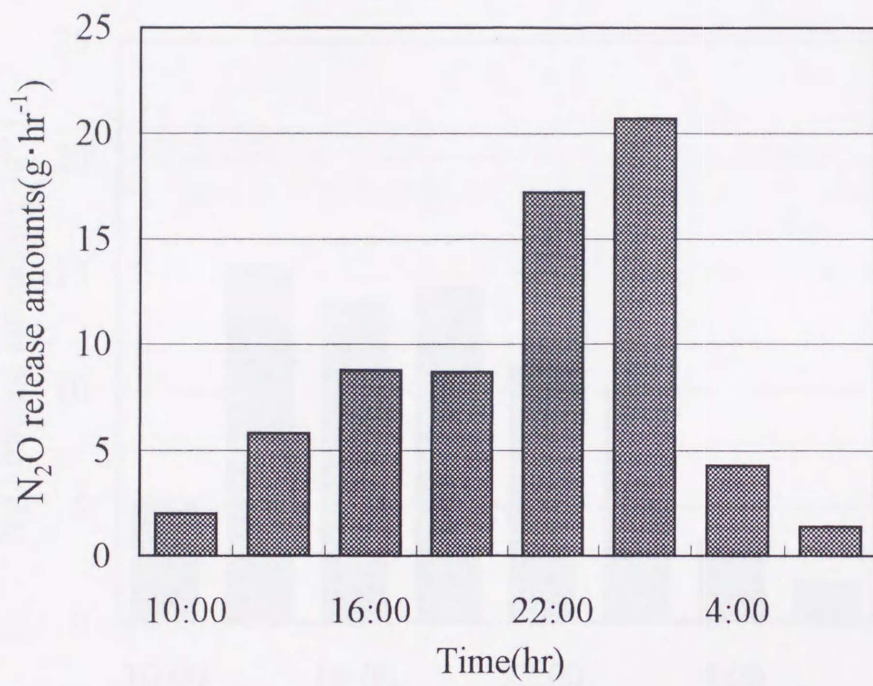


Fig.3-8 Diurnal variation of nitrous oxide released from the aeration tank(B-1)

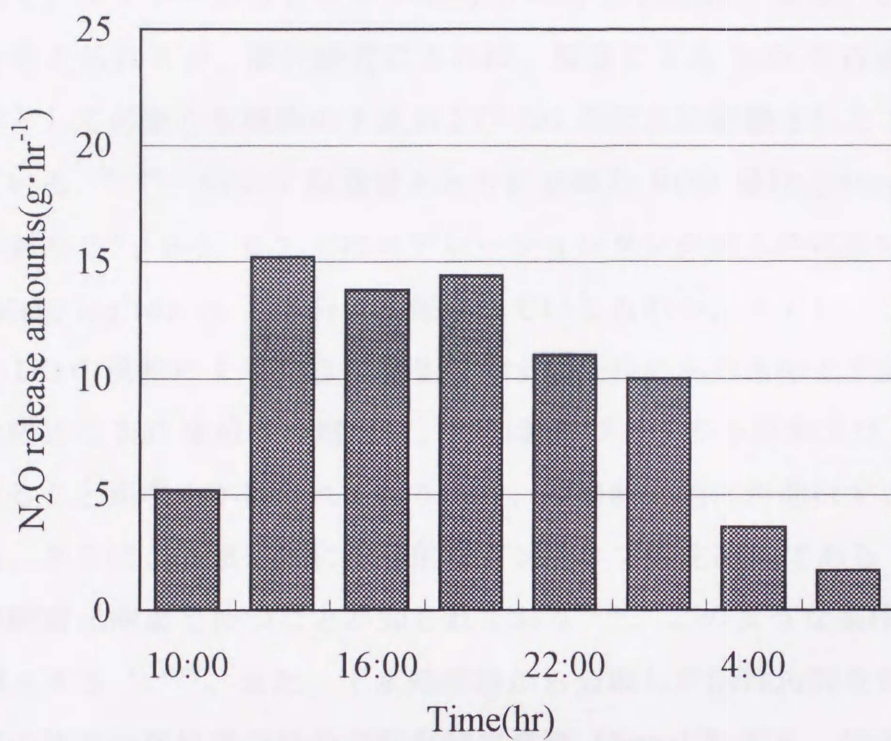


Fig3-9 Diurnal variation of nitrous oxide released from the aeration tank(B-2)

～1:00 に、B-2 では 13:00 ～ 19:00 に約 $20\text{g}\cdot\text{hr}^{-1}$ および $14\text{g}\cdot\text{hr}^{-1}$ を示すピークを持つ日変化を示した。次に、B-1, B-2 における N_2O 生成量と NO_3^- 生成量の関係を Fig.3-10,11 に示した。ここで NO_3^- 生成量とは、エアレーションタンクへの流入水量と処理水の NO_3^- 濃度の積であり、 NO_3^- の放流量を示す。また、B-1, B-2 では、プロセスでの硝化反応がほぼ 100% 進行しているために、 NO_3^- 生成量は汚泥返送による窒素除去を考慮する必要があるが、定性的には NH_4^+ 負荷量と考えることができる。

ところで、エアレーションタンクからの N_2O の放出は、脱窒、硝化両方に起因すると考えられるが、既往研究によれば、脱窒による N_2O 生成量の増加は水素供与体として必要な有機物の不足および DO の存在に影響されることが明らかにされている^{3-10,11,12)}。 NO_3^- -N 脱窒量あたりに必要な BOD 量は $2.86\text{mg}\cdot\text{mg}^{-1}\text{NO}_3^-$ -N とされており³⁻¹³⁾、B-1, B-2 ではエアレーションタンク流入時において、それぞれ 25, $40\text{mg}\cdot\text{mg}^{-1}\text{NO}_3^-$ -N と十分に確保されているものの、エアレーションによる連続的な DO の供給により N_2O が発生しやすい条件にあるものと予想される。一方、硝化による N_2O 生成量の増大は、SRT および DO の不足および pH の低下に影響されることが明らかにされており^{3-14,15)}、亜硝酸型硝化が進行する操作条件と一致する。さらに、下水処理に一般的なアンモニア酸化細菌である *Nitrosomonas* 属は亜硝酸還元酵素を持つことが知られており³⁻¹⁶⁾、このような条件下で NO_2^- を N_2O へ還元する^{3-17,18,19)}。また、下水処理場から分取した活性汚泥を用いた研究では、通常の活性汚泥処理の場合の溶存酸素濃度 ($3\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$) でも、硝化に伴う N_2O の生成は NO_2^- の還元への寄与が大きく、 NO_2^- が蓄積する条件で生成量が増大することが報告されている³⁻²⁰⁾。また、亜硝酸酸化細菌による NO_2^- から NO_3^- への酸化反応は、 NO_3^- の蓄積により阻害されるとともに、pH6 以下では反応が停止するだけでなく、 NO_3^- から NO_2^- への還元反応が起きる^{3-16,21)}。ここで、アンモニア酸化細菌による NH_4^+ からの NO_2^- への酸化反応は、pH5.5 程度でも大きな影響を受けないので、アンモニア酸化細菌と亜硝酸酸化細菌が共存する通常系においても pH6 以下では NO_2^- が蓄積すると考えられている。

本研究ではエアレーションタンクに NO_2^- の蓄積は認められず、処理水の pH はいずれも 6.5-7.0 であった。また、処理水質からみると NO_3^- 濃度は一日を通してほぼ一定しており、生成量は主として流入水量に影響されていた。したがって、

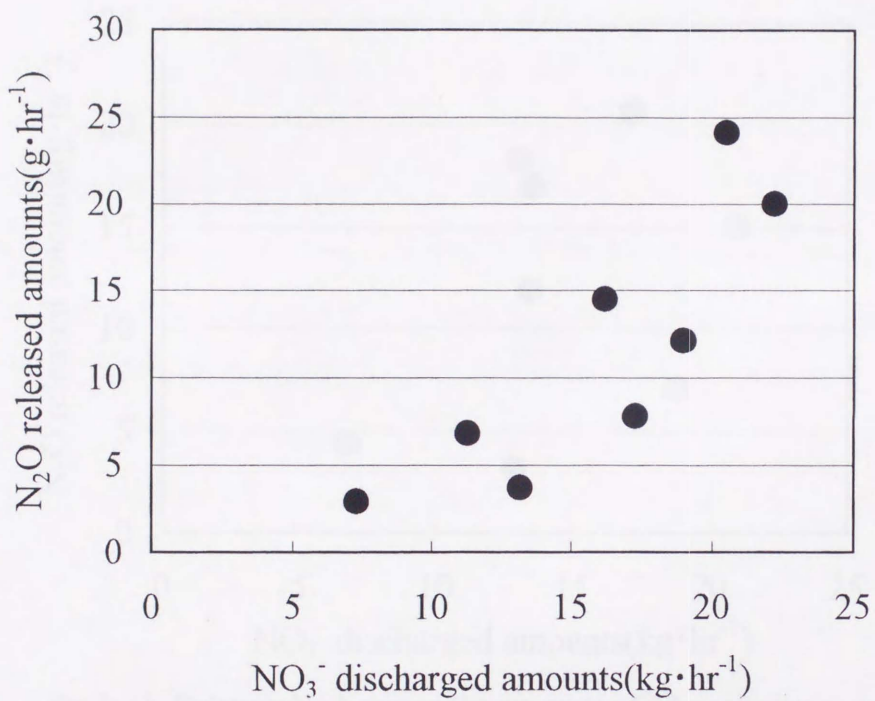


Fig.3-10 Relationship between the amounts of released nitrous oxide from the aeration tank and the amounts of discharged nitrate to effluent(B-1)

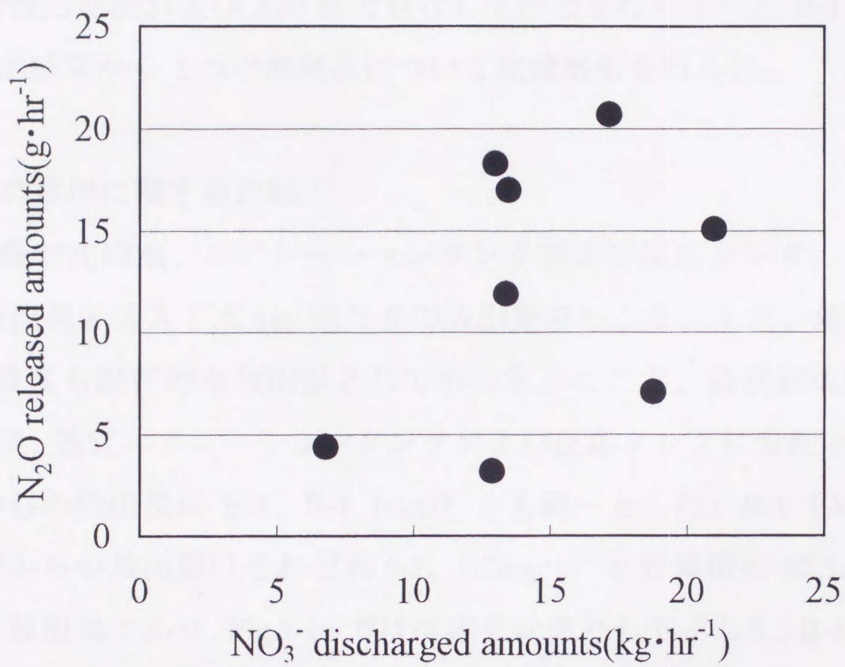


Fig.3-11 Relationship between the amounts of released nitrous oxide from aeration tank and the amounts of discharged nitrate to effluent(B-2)

Fig.3-10,11 に示した NO_3 生成量と N_2O 生成量の関係は活性汚泥の内部の極めて微視的な部分の硝化速度の増加に伴う DO の減少および pH の低下、または NO_3 濃度の増加による NO_2 の酸化抑制の結果として現れていると考えられた。そして、これは、既往研究に示された N_2O 生成が促進される条件を満たしている範囲にあるためと考えられた。

3-3-4 活性汚泥法と生物学的窒素リン除去法との CH_4 、 N_2O の放出特性の比較解析

ここでは活性汚泥法および A_2O 法で並行して処理を行っていた B-1 および B-1 (A_2O) の測定結果から 2 つの処理法について比較解析を行った。

3-3-4-1 CH_4 の放出に関する比較

Fig.3-12 に最初沈殿池、エアレーションタンクおよび反応タンク、最終沈殿池からの CH_4 放出量を流入下水 1m^3 当たりの放出量で示した。また、処理水中に溶存する CH_4 濃度も潜在的な放出量として示した。ここで、最初初沈池からの越流水は、越流後、適宜エアレーションタンクおよび反応タンクに分配されるため、最初沈殿池からの放出量は B-1、B-1 (A_2O) とも同一とした。B-1 (A_2O) の嫌気槽、無酸素槽からの放出量はそれぞれ 0.5 、 $0.2\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と好気槽の $85.3\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と比べ無視できる放出量であり、Fig.3-12 では反応タンクとして示した。B-1、B-1 (A_2O) とも最初沈殿池、最終沈殿池からの放出量および処理水の溶存濃度に比べ、反応タンクからの放出量がそれぞれ 253 、 $86\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と卓越していた。しかし、嫌気工程を含む B-1 (A_2O) からの放出量が、好気工程のみの B-1 の $1/3$ 程度となった。

3-3-2 でエアレーションタンクからの CH_4 の放出量は、エアレーションタンク流入水中に溶存する CH_4 濃度に依存することを示した。Fig.3-13 に B-1 (A_2O) における嫌気槽、好気槽流入水中および処理水中に溶存する CH_4 濃度の時間変化を示す。ここで嫌気槽へ流入する溶存 CH_4 濃度は最初沈殿池越流水が同じため、B-1 のエアレーションタンクへ流入する濃度と同じである。好気槽流入水中の CH_4 濃度は $25\text{--}52\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と、嫌気槽流入水の CH_4 濃度 $193\text{--}359\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ に比べ非常に低い濃度であった。また、処理水中の濃度は $1\text{--}2\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と、好気槽に流入した溶存 CH_4 がエアレーションによりほぼ完全に大気中へ放出されていることが分った。ここで B-1 (A_2O) では、好気槽の終端から無酸素槽へ循環を行うため、循環水によ

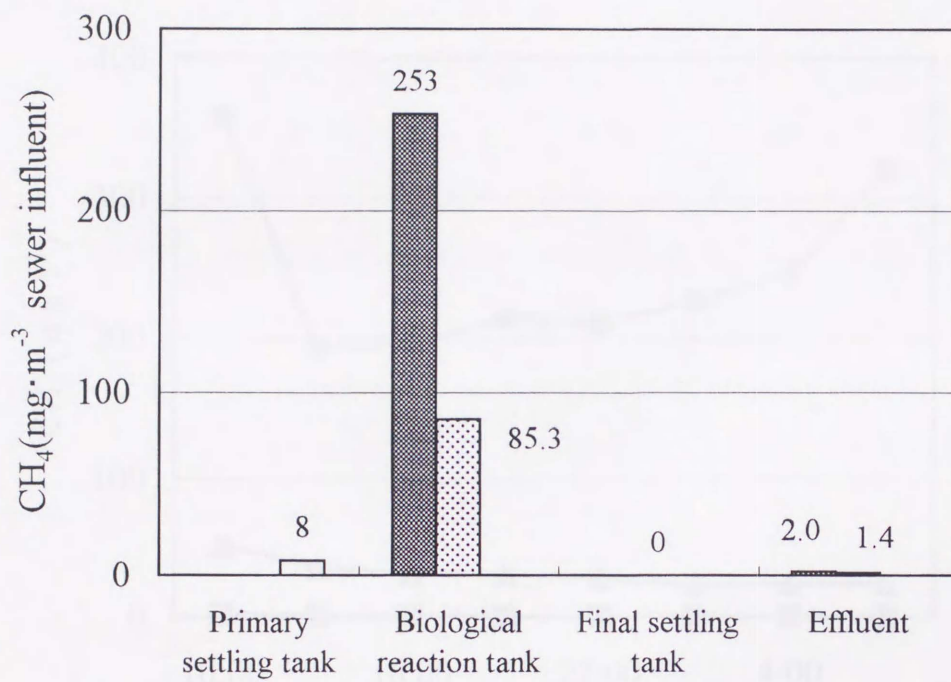


Fig.3-12 Comparison of release amounts of CH₄ per 1m³ of wastewater influent with the activated sludge and the A₂O process :
 ■ Activated sludge ▨ A₂O

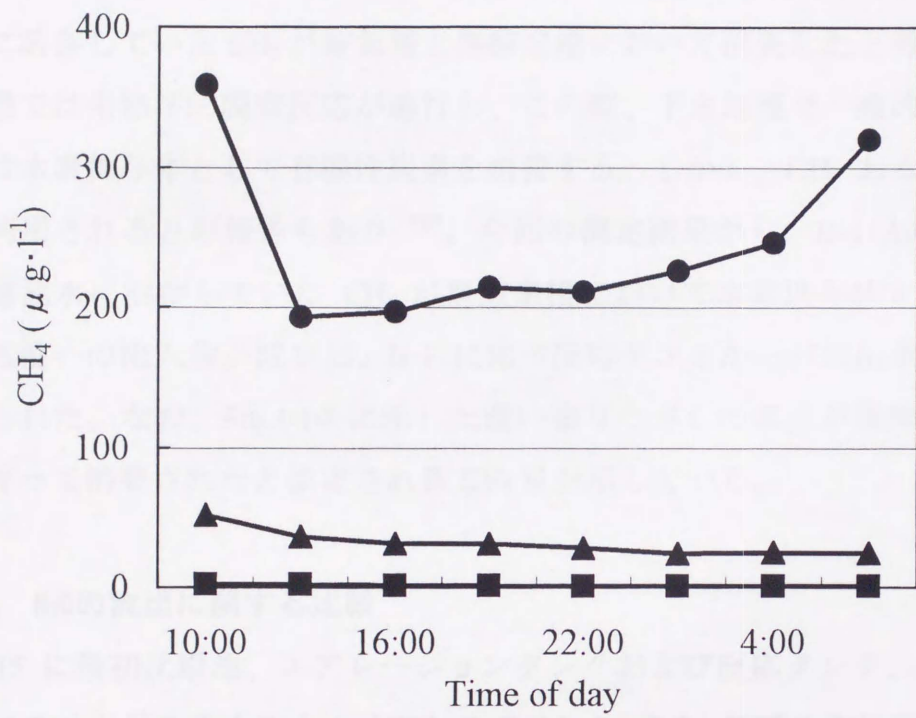


Fig.3-13 Diurnal variation of dissolved CH_4 concentration in influent of the anaerobic tank(●), influent of oxic tank(▲) and treated effluent(■) at B-1(A_2O)

り、無酸素槽に続く好気槽の流入水中の CH_4 濃度が、見かけ上希釈され、濃度が低くなったものと考えられた。そこで、Fig.3-13 に示した CH_4 濃度、返送汚泥中の CH_4 濃度、循環水量、返送汚泥量および流入水量から、Fig.3-14 に溶存 CH_4 のエアレーションプロセスへの流入量の経時変化を流入下水量あたりで示した。好気槽への流入量は $58\text{-}112\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と嫌気槽への流入量の $198\text{-}362\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と比較しほぼ $1/3$ 程度となった。ここで Fig.3-12 に示したように嫌気槽および無酸素槽からの CH_4 放出は無視できる程度である事を考えると、B-1 (A_2O) では最初沈殿池流出水中に溶存していた CH_4 が嫌気槽と無酸素槽において消失したと考えられた。無酸素槽では生物学的脱窒反応が進行し、この際、下水処理で一般的な従属栄養性脱窒は水素供与体として有機性炭素を消費する。しかし、 CH_4 あるいは一酸化炭素も利用されるとの報告もあり³⁻²²⁾、今回の測定結果から、B-1 (A_2O) では最初沈殿池越流水に溶存していた CH_4 が無酸素槽において水素供与体として消費され、好気槽への流入量が減少し、B-1 に比べ反応タンクからの放出量が減少したと考えられた。なお、Fig.3-14 に示した濃い塗りつぶしの部分が無酸素槽の脱窒反応に伴って消費されたと推定される CH_4 量を示している。

3-3-4-2 N_2O の放出に関する比較

Fig.3-15 に最初沈殿池、エアレーションタンクおよび反応タンク、最終沈殿池からの N_2O 放出量を流入下水 1m^3 当たりで示した。また、処理水中に溶存する N_2O 濃度も潜在的な放出量として示した。B-1、B-1 (A_2O) とともに最初沈殿池からの放出は認められなかった。また、B-1 (A_2O) において、嫌気槽および無酸素槽から N_2O の放出が認められず、好気槽からのみの放出となった。 N_2O も CH_4 と同様に B-1 (A_2O) からの放出量が $2.2\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ と B-1 の $17.9\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ に比べ少なく、 $1/8$ 程度となった。また、 N_2O の水への溶解度は CH_4 の 20 倍程度であり³⁻²³⁾、処理水中の残存割合も、処理水中の溶存濃度を含めた反応タンクからの全放出量に対して B-1 で 25%、B-1 (A_2O) で 33%となった。

Fig.3-16 に B-1、B-1 (A_2O) のエアレーションタンクおよび反応タンクからの放出量の経時変化を流入水量あたりで示す。B-1、B-1 (A_2O) とともに 1:00 付近にピークを示す日変化を示した。Fig. 3-17 に、Fig. 3-10 に示した B-1 における N_2O 生成量と NO_3^- 生成量の関係に B-1 (A_2O) の結果を加えて示した。B-1 (A_2O) で

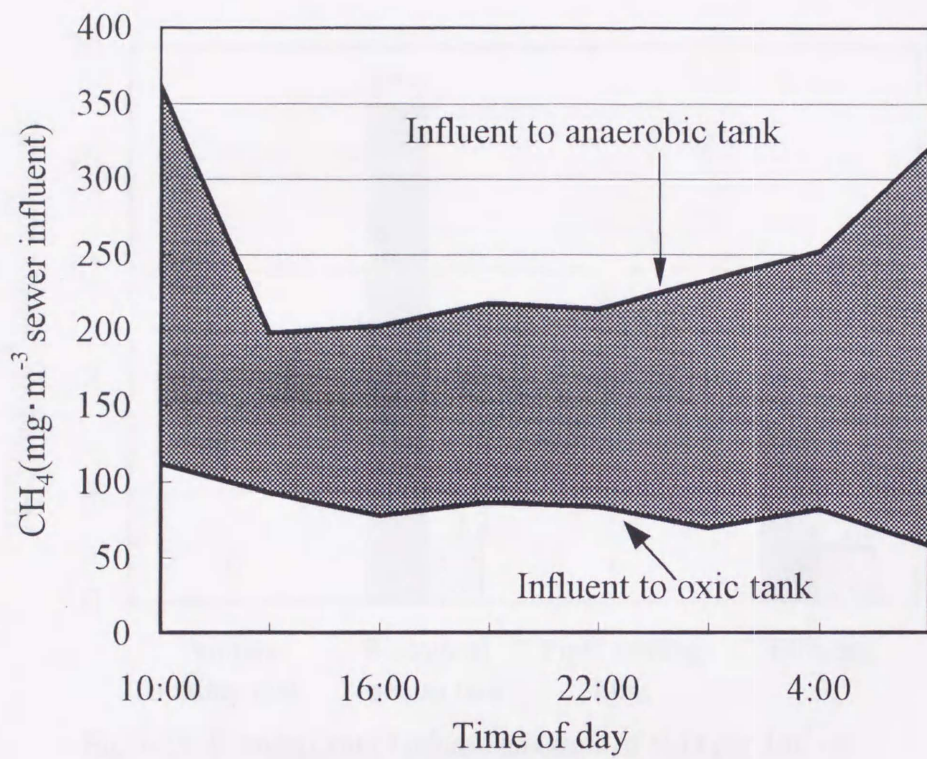


Fig.3-14 Diurnal variation of corrected amounts of CH₄ inflow to the anaerobic and oxic tank, where the dark zone was estimated to be consumed at anoxic tank as a donor of denitrification

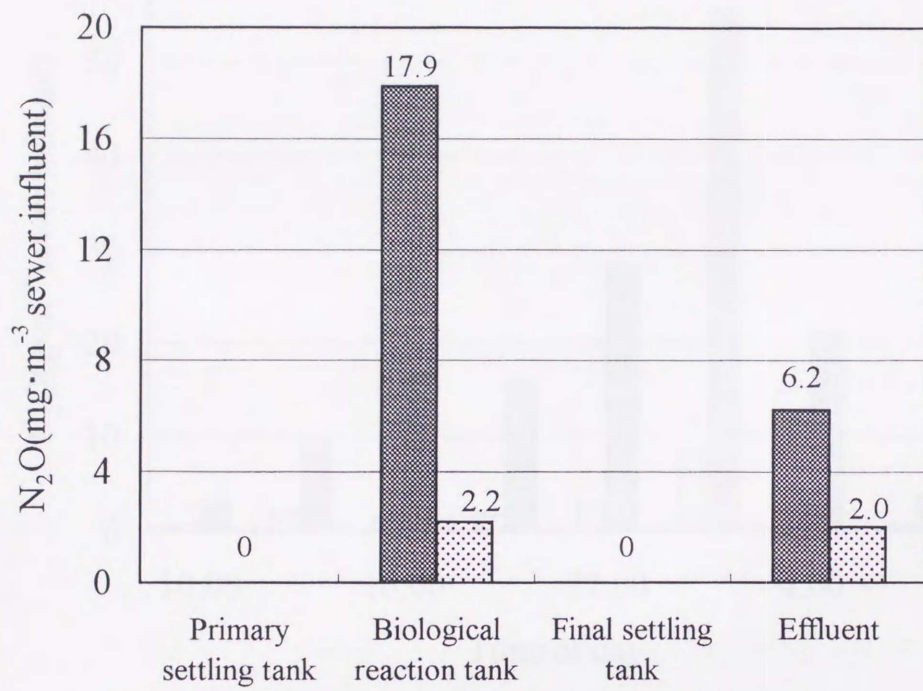


Fig.3-15 Comparison of release amounts of N_2O per $1m^3$ of wastewater influent with the activated sludge and the A_2O process :

■ Activated sludge ▨ A_2O

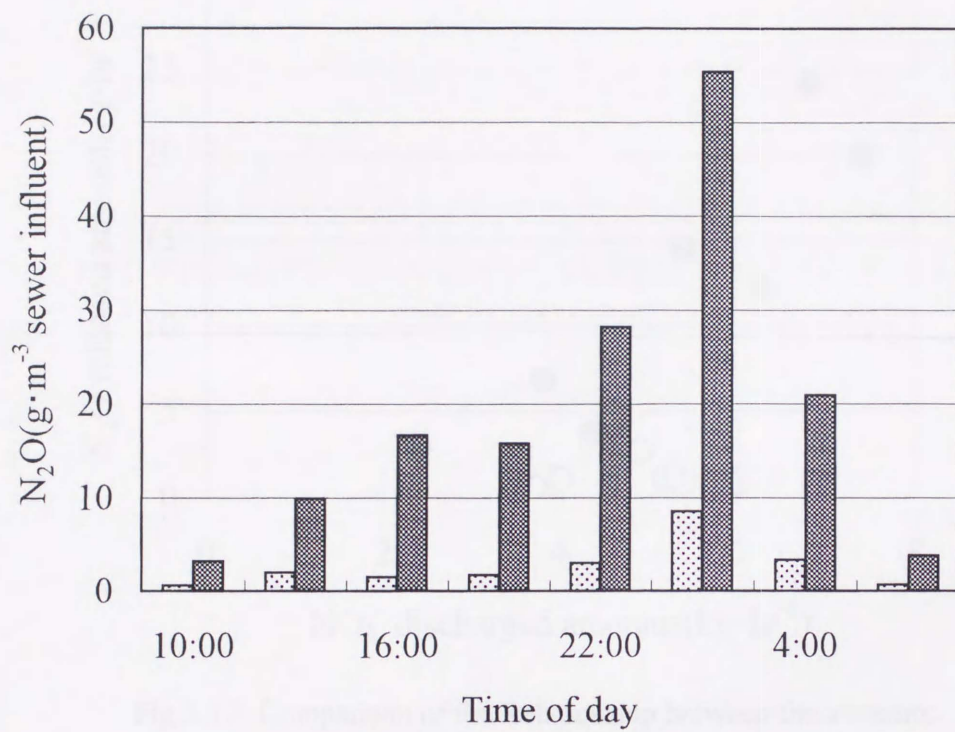


Fig.3-16 Comparison of the diurnal variation of N₂O released from the aeration (oxic) tank of two processes :

■ Activated sludge, □ A₂O

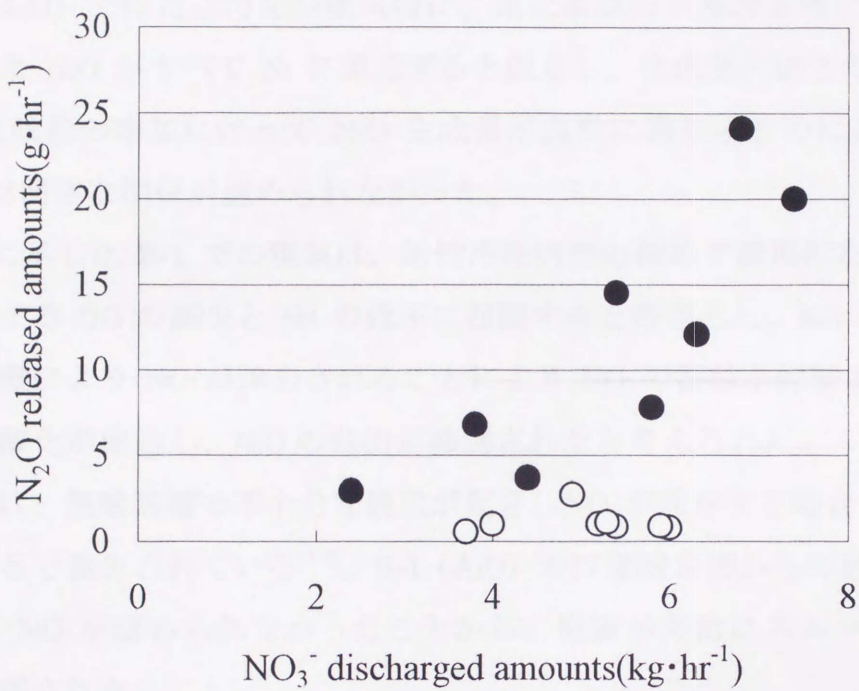


Fig.3-17 Comparison of the Relationship between the amounts of released nitrous oxide from aeration tank and the amounts of discharged nitrate to effluent of Activated sludge(●) and A₂O(○) process.

は嫌気槽への汚泥返送と硝化液の循環により NO_3^- が除去されるため、返送あるいは循環された NO_3^- は 100%脱窒除去されるとして、除去量を返送汚泥量、消化液循環量から求め、処理水中の NO_3^- 濃度と流入水量から求められる生成量に加えた。

また、 N_2O は嫌気条件下あるいは無酸素条件下で N_2 に還元される³⁻²⁴⁾。したがって B-1 (A_2O) では返送汚泥が嫌気槽に、硝化循環液が無酸素槽に流入するため、流入した N_2O がすべて N_2 に還元すると仮定し、生成量に加えた。B-1 の場合は NO_3^- 生成量の増加に伴って N_2O 生成量が急激に増加するのに対して、B-1 (A_2O) では明確な関係が認められなかった。

Fig.3-10 に示した B-1 での現象は、活性汚泥内部の極めて微視的な部分での速度の増加による DO の減少と pH の低下に起因すると推察した。B-1 (A_2O) では硝化液の循環により NO_3^- が除去されることにより NO_3^- の蓄積が抑制され、 NO_2^- から NO_3^- への酸化が促進し、 N_2O の放出が抑制されたと考えられた。

A_2O 法では、無酸素槽で不十分な脱窒が起き、 NO_3^- が残存する場合に N_2O 放出量が増大すると報告されている³⁻²⁵⁾。B-1 (A_2O) では無酸素槽からの放出は無く、流出水中に NO_3^- が認められなかったことから、脱窒が非常にスムーズに進行していたと予想された。

3-3-5 水処理プロセスからの CH_4 、 N_2O の年間放出量

活性汚泥法として標準法に着目して、Table3-4,5 に示した流入下水量当たりの CH_4 、 N_2O 放出量を原単位として、我が国の下水処理場からの CH_4 、 N_2O の年間放出量を計算した。下水道統計¹⁹⁾によると 1995 年度の下水道普及率は 54%であり、2 次処理された下水の総量は $1.04 \times 10^{10} \text{m}^3$ であった。したがって 1995 年度の我が国の下水処理場からの放出量は本研究結果を単純平均して求めると、 CH_4 が $6.7 \times 10^9 \text{g}$ および N_2O が $2.5 \times 10^8 \text{g}$ と推計された。ここで、 N_2O 放出量は硝化の程度に大きく影響されると考えられるが、今後は下水処理において、 NH_4^+ の排出が規制強化され、B 処理場のように十分に余裕の持った硝化促進運転により硝化がすべて進行されるものとして計算した。

3-4 まとめ

本章では我が国で一般的な活性汚泥法で処理を行う下水処理場からの CH_4 、 N_2O の放出量と放出特性を硝化促進運転の有無を考慮した 2 カ所の処理場で、それぞれ温暖期と寒冷期について調査・研究を行った。更に今後、富栄養化の原因物質である窒素・リン除去法として採用が増加すると考えられる、好気処理と嫌気処理を組み合わせた、 A_2O 法における CH_4 、 N_2O の放出量と放出特性を好気単独処理である活性汚泥法と比較し、解析を行ったが、得られた成果は以下にまとめるとおりである。

1) 活性汚泥法で処理を行う下水処理場における調査解析結果

- (1) CH_4 はエアレーションタンクおよび汚泥濃縮槽からの放出が卓越していた。前者は流入下水中に含まれる CH_4 に汚泥沈殿部分等が嫌気になりやすい最初沈殿池で生成される CH_4 と汚泥返流水に含まれる CH_4 が加わり、エアレーションタンクに流入し、エアレーションにより追い出されることに起因しており、後者は長時間高濃度の有機物を貯留することに起因すると考えられた。
- (2) CH_4 の放出量は水温の影響を受け、A 処理場では 13°C に比べ 24°C が 3.9 倍に、B 処理場では 20°C に比べ 24°C が 5.2 倍となった。
- (3) N_2O はエアレーションタンクからの放出が卓越しており、その放出量はプロセスの硝化の有無に大きく依存していた。エアレーションタンク内の NH_4^+ 、 NO_3^- 、 N_2O 各濃度の挙動から、硝化が進行している場合、その放出は返送汚泥中の N_2O のタンク内への持ち込み、汚泥返送により持ち込まれる NO_3^- のエアレーションタンク前段での脱窒およびタンク内の硝化反応に起因すると考えられた。
- (4) N_2O の放出量はエアレーションプロセスでの NO_3^- 生成量に対して比例的に増加する傾向が見られた。
- (5) 今回の調査結果をもとに、我が国の下水処理場からの 1 年間の CH_4 、 N_2O 放出量は、1995 年度でそれぞれ $6.7 \times 10^9\text{g}$ および $2.5 \times 10^8\text{g}$ と推定された。

2) 活性汚泥法と A_2O 法の比較解析結果

- (1) A_2O 法における CH_4 、 N_2O の水処理プロセスからの放出は活性汚泥法と同様にエアレーションを行う好気槽からの放出が卓越していた。

(2) A_2O 法からの CH_4 の放出量は活性汚泥法からの放出量の約 1/3 程度となった。これは A_2O 法では、最初沈殿池の越流水が反応タンクに流入し、嫌気槽および無酸素槽を通過する間に溶存する CH_4 濃度が減少したことに起因しており、無酸素槽で進行する脱窒反応の水素供与体として消費されたと推測された。

(3) A_2O 法からの N_2O の放出量は、活性汚泥法からの放出量の約 1/8 程度となった。活性汚泥法においては N_2O 生成量が NO_3^- 生成量に比例して増加するのに対して、 A_2O 法では明確な増加が認められず、硝化反応における NO_3^- の蓄積の程度が N_2O 生成量に大きな影響を与えると考えられた。

第4章 水処理プロセスの生物学的嫌気好気活性汚泥法における N_2O の放出特性と制御のための操作条件の解析

4-1 はじめに

第3章では一般的な活性汚泥法で処理を行う下水処理場の水処理プロセスからの CH_4 、 N_2O の放出量と放出特性を現場調査をもとに検討した。 CH_4 の放出はエアレーションタンクで卓越していたが、活性汚泥法は好気処理のため、 CH_4 はエアレーションタンクでの反応で生成、放出されるのではなく、流入下水に溶存していた CH_4 に嫌気になりやすい最初沈殿池で生成した CH_4 が加わり、エアレーションにより追い出され、放出されることが明らかになった。特に放出量に対する最初沈殿池の影響が大きなことが示された。 A_2O 法のような、嫌気と好気処理の組み合わせにより削減の可能性も同時に示された。一方 N_2O はエアレーションタンクでの硝化・脱窒反応に起因して生成、放出されることが明らかになった。今回の調査では硝化が進行していない事例とほぼ100%進行した事例について示した。また、 A_2O 法と活性汚泥法の比較では嫌気処理と好気処理の組み合わせが、富栄養化抑制型でかつ温室効果ガス放出抑制型の処理プロセスになる可能性を示した。しかし、今後水域の富栄養化対策として重要なこれらのプロセスは硝化・脱窒反応の組み合わせで窒素除去を行うため、処理条件によっては N_2O の生成、放出の増大が懸念される。しかし、運転操作条件と N_2O の生成、放出に関する十分な知見が得られておらず、その知見集積は重要である。

本章では、基本的な硝化・脱窒プロセスであるAO法について、運転操作条件として重要な汚泥滞留時間(SRT)の硝化・脱窒の各反応とそれに伴う N_2O 放出に及ぼす影響、硝化液の循環により好気槽から嫌気槽へ持ち込まれるDOの脱窒と N_2O 放出に及ぼす影響について検討した。

4-2 実験方法

4-2-1 実験装置

Fig.4-1 に実験装置を示す。本装置は段階的な生物反応の進行に基づいて解析するために、槽容積 8l の脱窒槽 2 槽（排水の流入側から嫌気 1 および 2 槽とする）、および硝化槽 4 槽（同様に好気 1, 2, 3 および 4 槽とする）から構成される。実排水処理施設内に 2 系設置し、供試排水には実排水処理施設の流入排水を用いた。好気 4 槽から硝化液を嫌気 1 槽に循環させ、沈殿槽から嫌気 1 槽へ汚泥を返送した。好気 1 槽に DO 計、好気 4 槽に DO 計と pH 計を設置し、10 分ごとに DO 濃度および pH を自動測定した。SRT は、好気 4 槽から余剰汚泥を引き抜き、制御した。なお、実験条件により 2 系の装置の運転方法は変更したが、SRT および DO 値の設定の違いにより、実験条件ごとに Run 1-Run 5 とした。

4-2-2 実験条件

①N₂O放出に及ぼすSRTの影響

流入原水の性状は NH₄⁺-N が 25mg・l⁻¹ 前後、NO₂⁻-N および NO₃⁻-N がほぼ 0mg・l⁻¹、T-N が 30-40mg・l⁻¹、PO₄³⁻-P および T-P はそれぞれほぼ 3 および 6mg・l⁻¹ であった。また DOC、BOD、COD はそれぞれ 30-40mg・l⁻¹、100-180mg・l⁻¹、70-120mg・l⁻¹ であった。装置の基本的な運転操作条件を、水理的滞留時間（HRT）8h、硝化液の循環比 1.0、汚泥返送率 50%とし、まず SRT を 40 日に設定して汚泥を馴養した。実験開始 73 日目から 205 日目までの間、SRT を 20 日 (Run 1) と 10 日 (Run 2) に制御し、SRT の影響を検討した。

②N₂O放出に及ぼすDOの影響

実験開始 206 日目以降、2 系の処理装置の SRT を 20 日に設定し、両系で好気 4 槽内の DO 濃度を 1.0, 2.0 および 3.0mg・l⁻¹ に段階的に設定し（各段階ごとに Run 3, 4 および 5 とする）、嫌気槽へ持ち込まれる DO 濃度の脱窒反応および N₂O 放出に及ぼす影響を検討した。DO 濃度は DO コントローラーを介して、エアレーションのオン・オフで制御した。DO 濃度が 4-6mg・l⁻¹ の範囲は連続したエアレーションにより DO 濃度が 4mg・l⁻¹ 以上確保されていた Run 1 の測定値を用いた。な

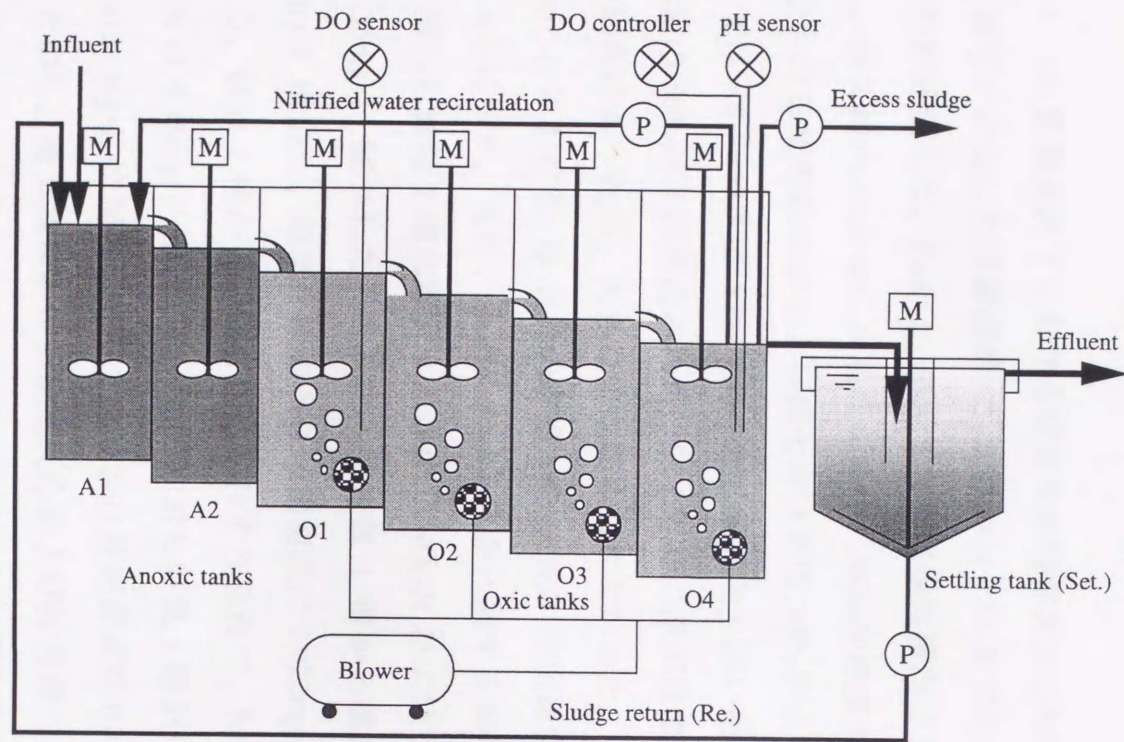


Fig. 4-1 Scheme of the experimental apparatus for biological anoxic-oxic activated sludge process

お、Table 4-1 に、これまでの実験条件をまとめて示す。

4-2-3 試料の採取方法および分析方法

試料の採取及び分析方法は第3章と同様であるが、試料の採取は嫌気、好気の各槽で行った。

4-3 結果および考察

4-3-1 SRT変動条件下における窒素除去特性および N_2O 放出特性

水質等が安定した実験開始 73 日目から 136 日目までの測定値から窒素除去特性を解析評価した。Run 1、Run 2 ともに嫌気槽内で NO_3^- -N および T-N 濃度が減少し、好気槽内では NH_4^+ -N 濃度が減少、 NO_3^- -N 濃度が増大した。Run 1 (SRT20 日)における窒素除去率および硝化率は平均、48%および 90%であり、Run 2 (SRT10 日)では 46 %および 87%であった。両系とも高い硝化率を示し、窒素除去率は理論値の 50%がほぼ達成された。SRT20 日の系が窒素除去率、硝化率ともに若干高い傾向にあったが、大きな差は認められなかった。

Run 2 における 73 日目の各槽からの N_2O 放出速度と溶存 N_2O 濃度の変化を Fig. 4-2 に示す。また、各槽における窒素に関する水質変化を Fig. 4-3 に示す。嫌気 1 槽から嫌気 2 槽に移行する過程で NO_3^- -N および T-N は、それぞれ 0.90 および $1.36\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 減少した。これに対し嫌気 1 槽から嫌気 2 槽で溶存 N_2O 濃度は $0.14\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 増加し、嫌気 2 槽の N_2O 放出速度は $0.022\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$ であった。

一方、好気 1 槽から好気 2 槽に移行する過程で、 NH_4^+ -N は $4.28\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 減少し、 NO_3^- -N は $4.35\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 増加した。これに対し好気 1 槽から好気 2 槽で溶存 N_2O 濃度は $0.412\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 増加し、好気 2 槽の N_2O 放出速度は $0.119\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$ であった。これらのことから、嫌気槽における脱窒反応および好気槽における硝化反応のいずれの過程でも N_2O が放出する可能性があることが明らかであり、好気槽からの N_2O 放出速度は嫌気槽の約 4.5 倍となったことから、好気槽での硝化反応に伴う N_2O 制御が抑制対策上重要であることが示唆された。

Fig. 4-4 に SRT を 10 日と 20 日に設定した Run 1、Run 2 の嫌気槽および好気槽からの N_2O 放出速度の経日変化を示す。なお、この放出速度は、嫌気槽全体、

Table 4-1 Experimental condition

	SRT (days)		DO (mg L ⁻¹)*		
	20	10	1.0	2.0	3.0
Run	1	2	3	4	5

* SRT; 20 days

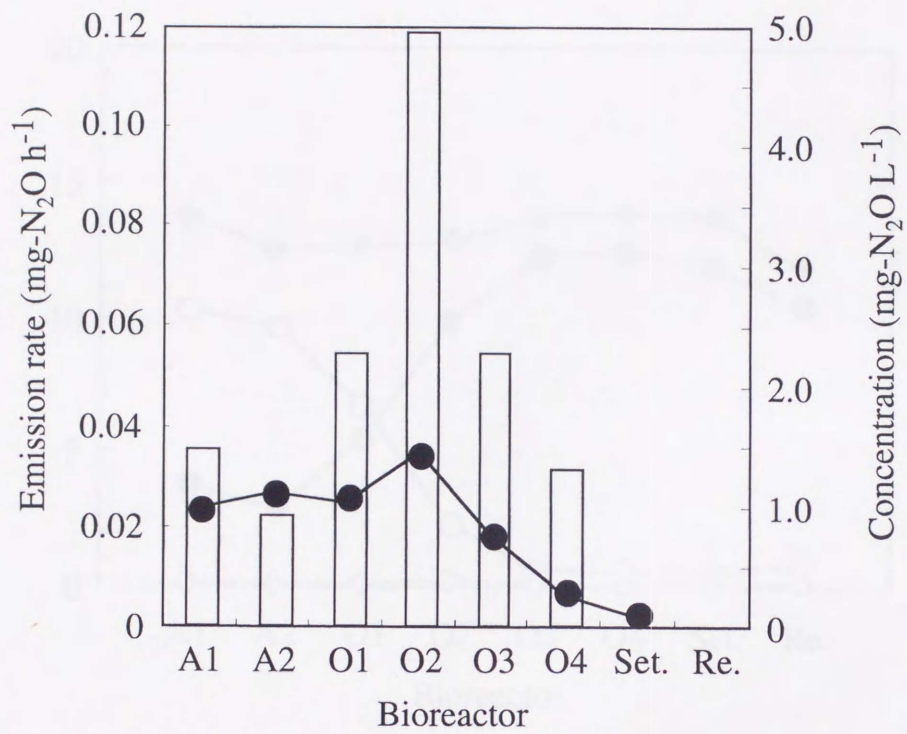


Fig. 4-2 N₂O emission rate into the atmosphere and dissolved N₂O concentration at run 2
 Symbols □ and ● denote the emission rate and the concentration, respectively.

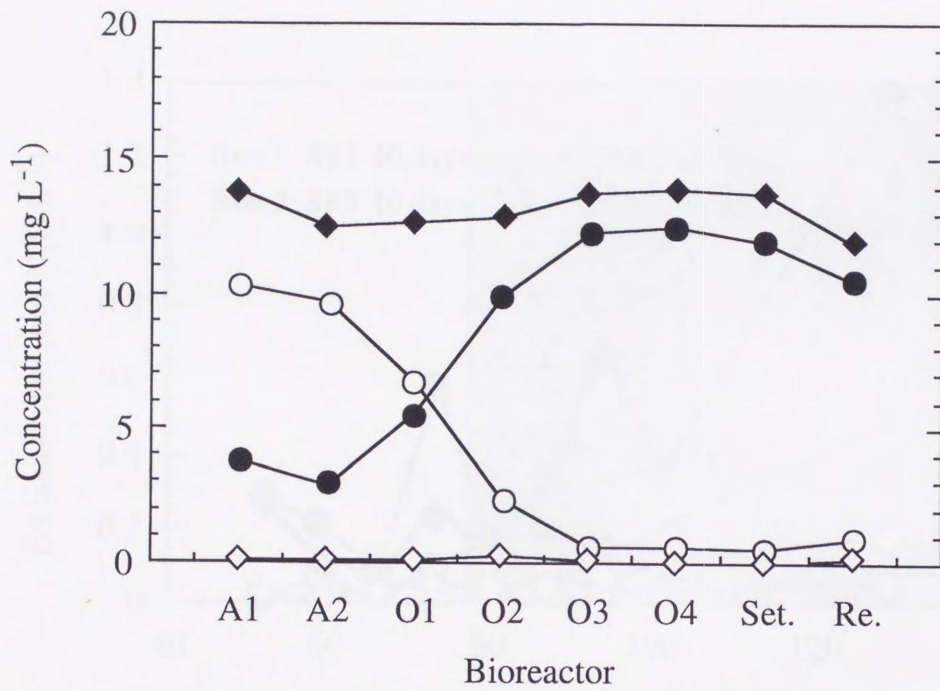


Fig. 4-3 Nitrogen concentration in each bioreactor at run 2
 Symbols ○, ●, ◇ and ◆ denote the concentration
 of NH₄-N, NO₃-N, NO₂-N and T-N, respectively.

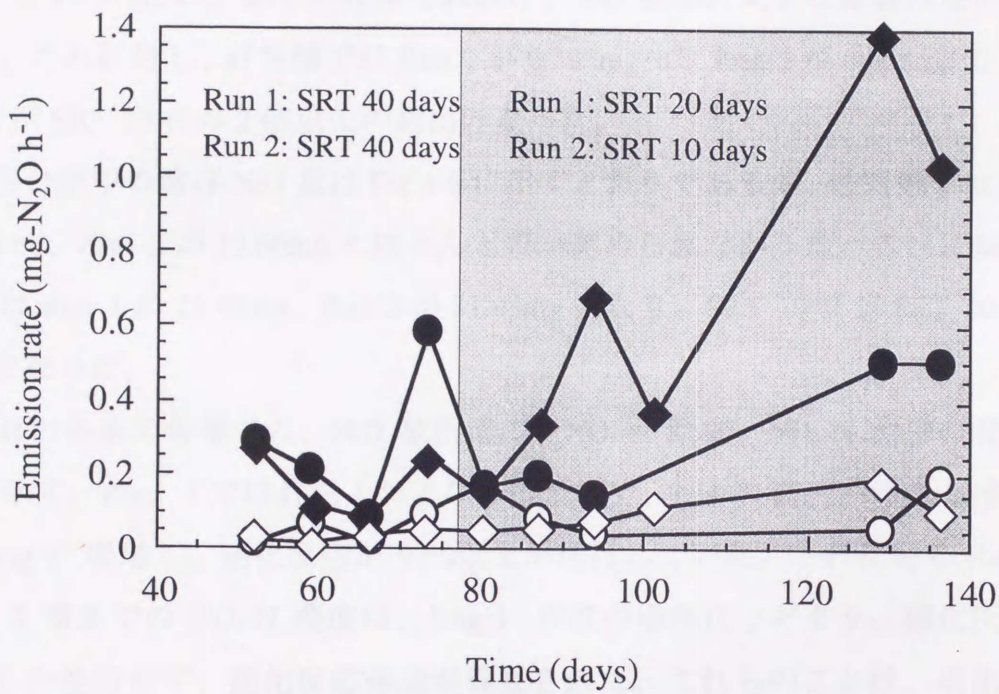


Fig. 4-4 Relationship between SRT and N₂O emission rate into the atmosphere
 Symbols ○, ●, ◇ and ◆ denote the total emission rate from whole anoxic and oxic tanks at run 1, and those at run 2, respectively.

好気槽全体それぞれからの速度である。SRT の設定を変えた後、1 週間程度は N_2O 放出速度にほとんど差はみられなかった。しかし、94 日目より Run 2 の放出速度が増大し始め、特に 100 日目以降、Run 1 との差が顕著となった。Fig.4-5 に各系の嫌気槽および好気槽における平均の放出速度を示す。嫌気槽からの放出速度は、Run 1 が $0.087\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$ 、Run 2 が $0.099\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$ となり、ほとんど差が認められなかった。SRT が短い場合に脱窒反応時の N_2O 放出量が増大することが知られているが^{41,2)}、10 日程度の SRT が確保されれば、 N_2O 放出に大きな影響はないと考えられる。これに対し、好気槽では Run 1 が $0.307\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$ 、Run 2 が $0.658\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$ と、SRT 10 日が SRT 20 日の 2 倍以上の放出となった。

また、混合液中の溶存 N_2O 量は Fig.4-6 に示すとおりであるが、嫌気槽では、Run 1 が 13.81mg 、Run 2 が 13.66mg とほとんど差が認められなかった。これに対し、好気槽では Run 1 が 21.40mg 、Run 2 が 31.05mg となり、SRT 10 日が SRT 20 日の約 1.5 倍となった。

129 日目の各系の各槽での、 N_2O 放出速度、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の変化を Fig.4-7 に示す。Run 1 では好気 1 および 2 槽までで、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が嫌気 2 槽に比べ、約 $8\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 増加し、硝化反応が 90%以上が進行していた。これに対し Run 2 では好気 2 槽までの $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は、 $5\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度の増加にとどまり、硝化反応が 60%程度しか進行せず、硝化反応律速が観察された。これらのことは、硝化反応の反応速度の大きさが、 N_2O 放出速度の大小を支配する要因となっていることを示している。なお、 NH_4^+ →ヒドロキシルアミン(NH_2OH)→ NO_2^- → NO_3^- と進行する硝化反応では、生じた NH_2OH は NH_2OH 酸化還元酵素の働きにより、中間体である HNO を経て NO_2^- へと酸化される⁴³⁾。このような代謝系において、環境条件によっては NH_2OH → HNO → N_2O の反応の進行が考えられるが、硝化反応が抑制されている場合に N_2O の放出量が増大したということは、硝化反応の律速条件下では NH_2OH → N_2O の反応への代謝が強まったことを意味している。これらのことから、同一窒素負荷条件のもとで SRT が短く MLSS 濃度が低い時は、硝化反応に関与する単位バイオマスあたりの窒素負荷が高まり、硝化反応が阻害され、 N_2O 生成反応代謝経路へ移行するが、SRT を長く MLSS 濃度を高く保持することにより、硝化反応に対する単位バイオマスあたりの窒素負荷が低減されて硝化律速が解除され、 N_2O 放出の抑制が可能であることが示唆された。

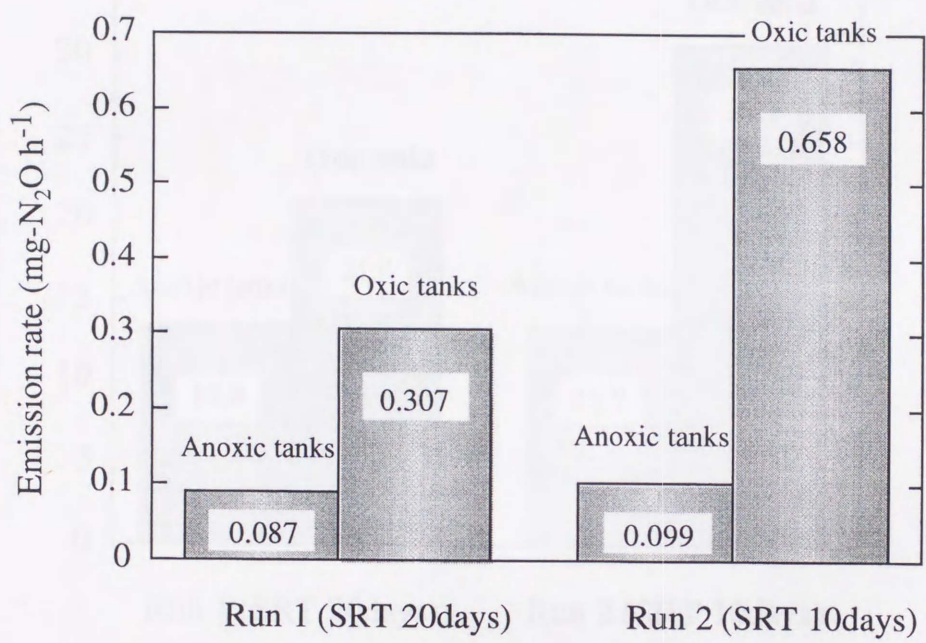


Fig. 4-5 Average value of N₂O emission rate into the atmosphere

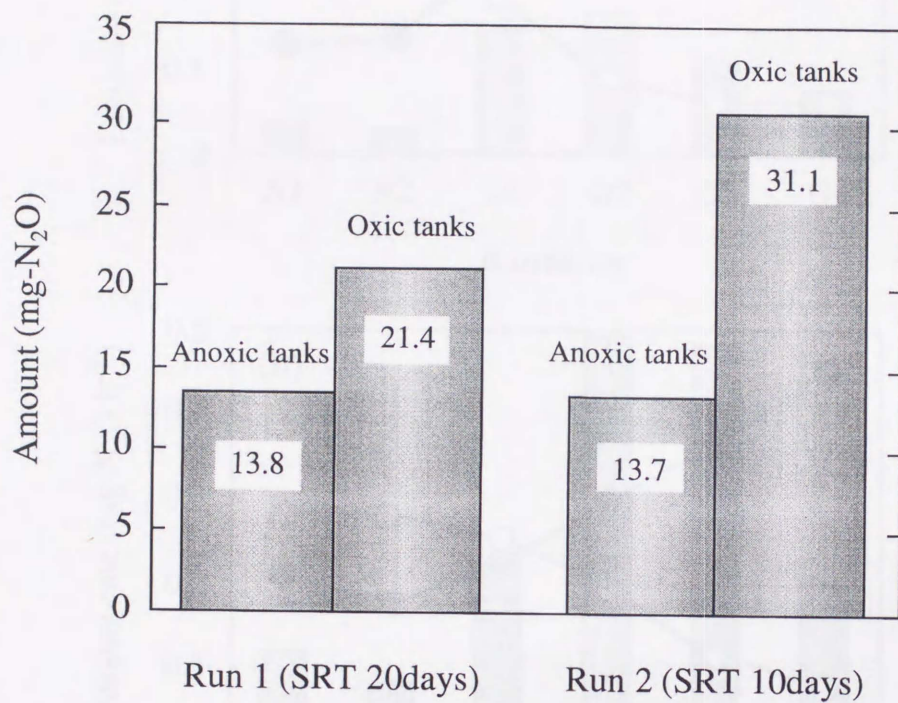


Fig. 4-6 Total amount of dissolved N₂O in both anoxic and oxic tanks

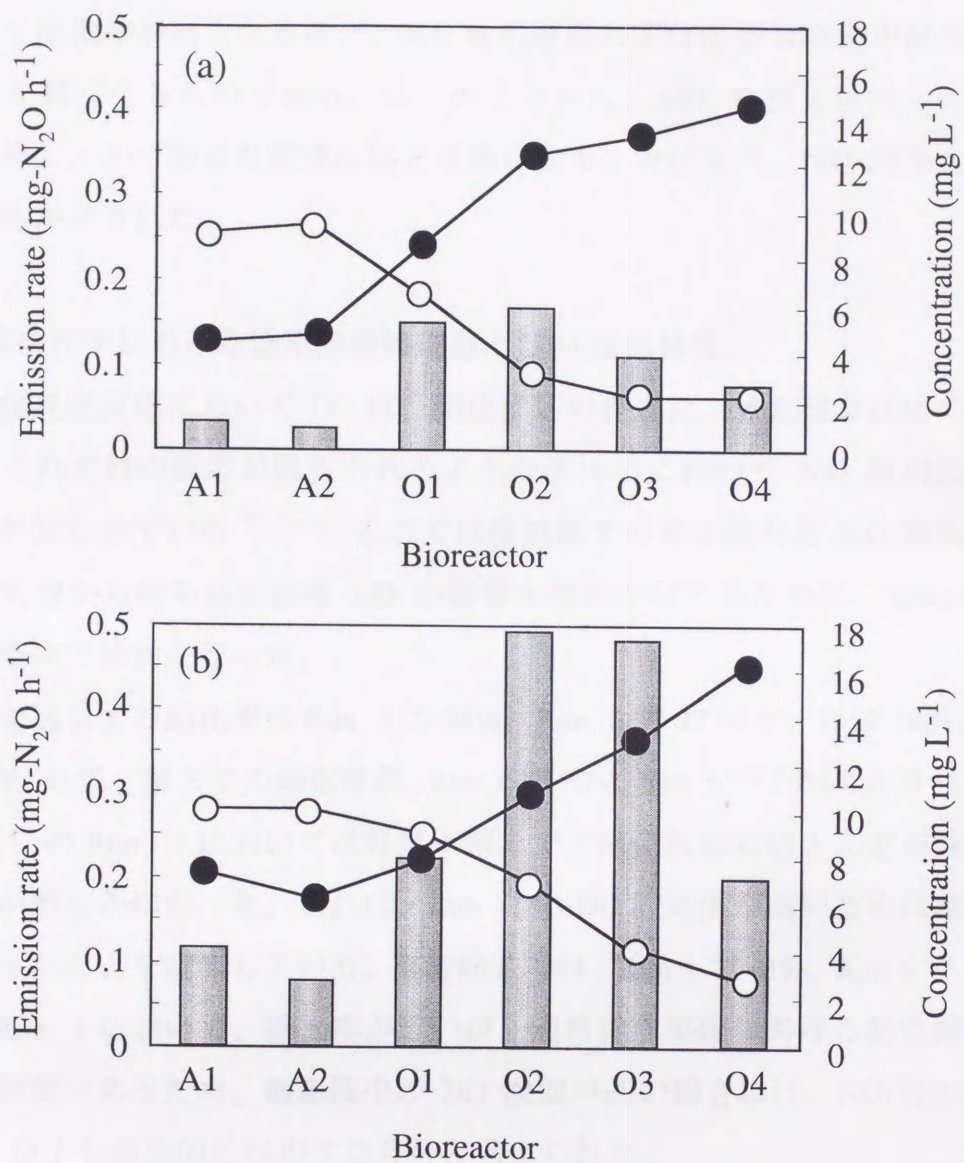


Fig. 4-7 Time course of water quality and N₂O emission rate into the atmosphere at run 1 (a) and run 2 (b)

Symbols ○, ● and ■ denote NH₄-N, NO₃-N and the emission rate, respectively.

Fig.4-8 に硝化率と N_2O 放出速度の関係を、Fig.4-9 に硝化率と好気槽全体の溶存 N_2O 量の関係を Run 1, 2 についてそれぞれ示した。これらの結果は、硝化律速が解除されて硝化率が高くなるほど、 N_2O 放出速度および溶存 N_2O 量が減少するという考えを裏づけるものである。以上のことから、SRT を長く設定して硝化率を高く維持し、かつ適正な脱窒反応と連動させることにより、 N_2O 放出を抑制できる可能性が示された。

4-3-2 DO変動条件下における窒素除去特性および N_2O 放出特性

生物学的硝化脱窒反応において DO は、硝化反応の促進に、また脱窒反応の抑制に作用し、それぞれの反応が阻害されるような条件下において N_2O 放出量が増大することが知られている^{44~7)}。ここでは嫌気槽での窒素除去と N_2O 放出量に対する、好気槽から持ち込まれる DO の影響を明らかにするために、Table4-1 に示した実験条件で検討を行った。

好気槽全体を通しての硝化率は Run 1 で 98%、Run 5 で 97% と、ほぼ 100% であった。この時、好気 1 槽までの硝化率は、Run 1 で 90%、Run 5 で 76% であり、DO 濃度が約 $6\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の Run 1 においては好気 1 槽までで硝化反応のほとんどが進行していることが明らかになった。これは、Run 1 の DO 設定値が高いために硝化活性が高くなったことを意味している。窒素除去率は、Run 1 で 41%、Run 5 で 53% であった。Run 1 において、除去率が低い、通常排水処理における脱窒細菌は通性嫌気性細菌であるため、循環液中の DO 濃度が高い場合には、 NO_3^- 等の結合酸素より O_2 分子を優先的に利用するためと考えられた。

Fig.4-10 に循環液中の DO 濃度と嫌気 1 槽からの N_2O 放出速度の関係について示す。DO を $1.0\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に設定した Run 3 では硝化率は 85% 以上であり、DO の低下による硝化反応への顕著な影響は認められなかった。

DO 濃度が $6\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度と高い場合、放出速度は約 $0.10\text{mg}\cdot\text{N}_2\text{O}\cdot\text{h}^{-1}$ に達し、DO 濃度が $2\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下の場合の放出速度は $0.02\text{mg}\cdot\text{N}_2\text{O}\cdot\text{h}^{-1}$ 以下となった。これは、脱窒反応の進行に際して N_2O 還元酵素は O_2 に対して不安定なため⁴⁸⁾、硝化液の循環による DO 持ち込み量が多いとき N_2O 還元の阻害が起こり、反応が N_2O でとまるものと考えられた。以上のことより循環液による DO の持ち込みの抑制が、嫌気槽における N_2O 放出の抑制を行う上で極めて重要な操作因子となるこ

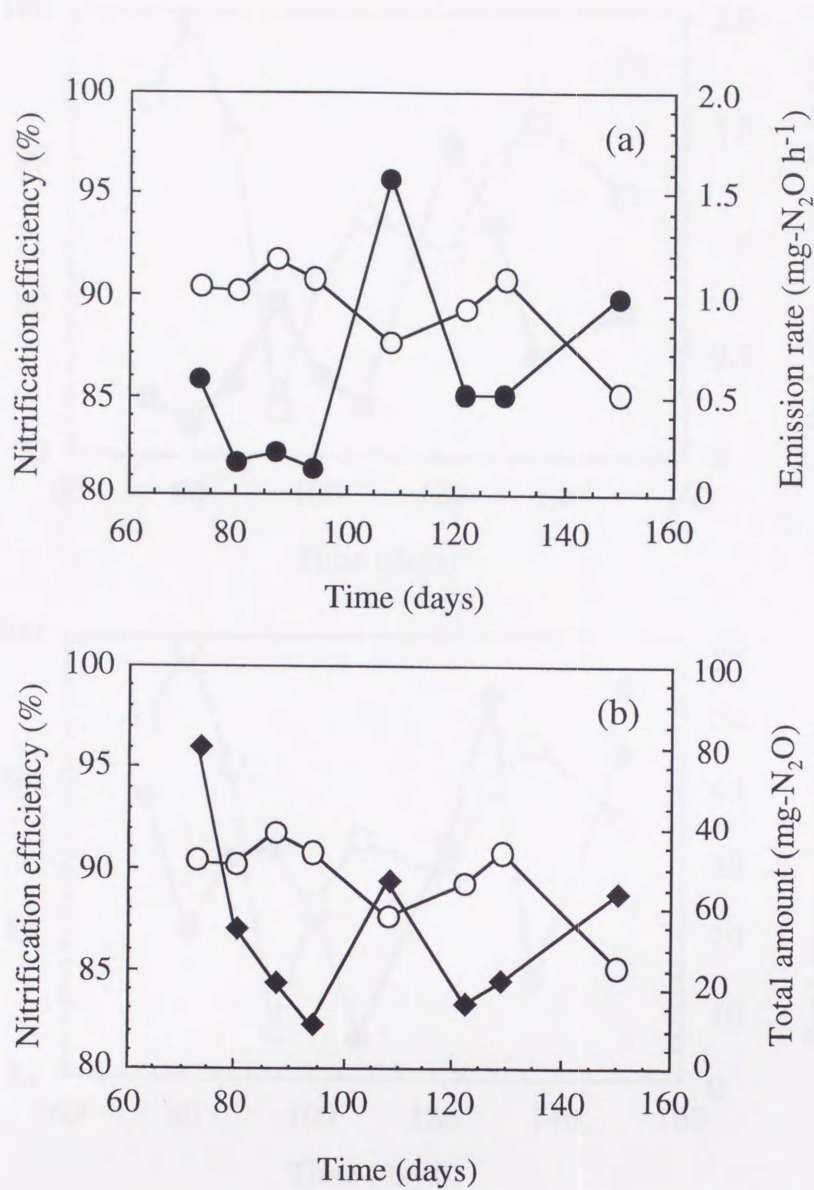


Fig. 4-8 Relationship between nitrification efficiency and N₂O emission rate into the atmosphere (a), and relationship between nitrification efficiency and total amount of dissolved N₂O in oxic tanks (b), at run 1

Symbols ○, ● and ◆ denote the nitrification efficiency, the emission rate and the total amount, respectively.

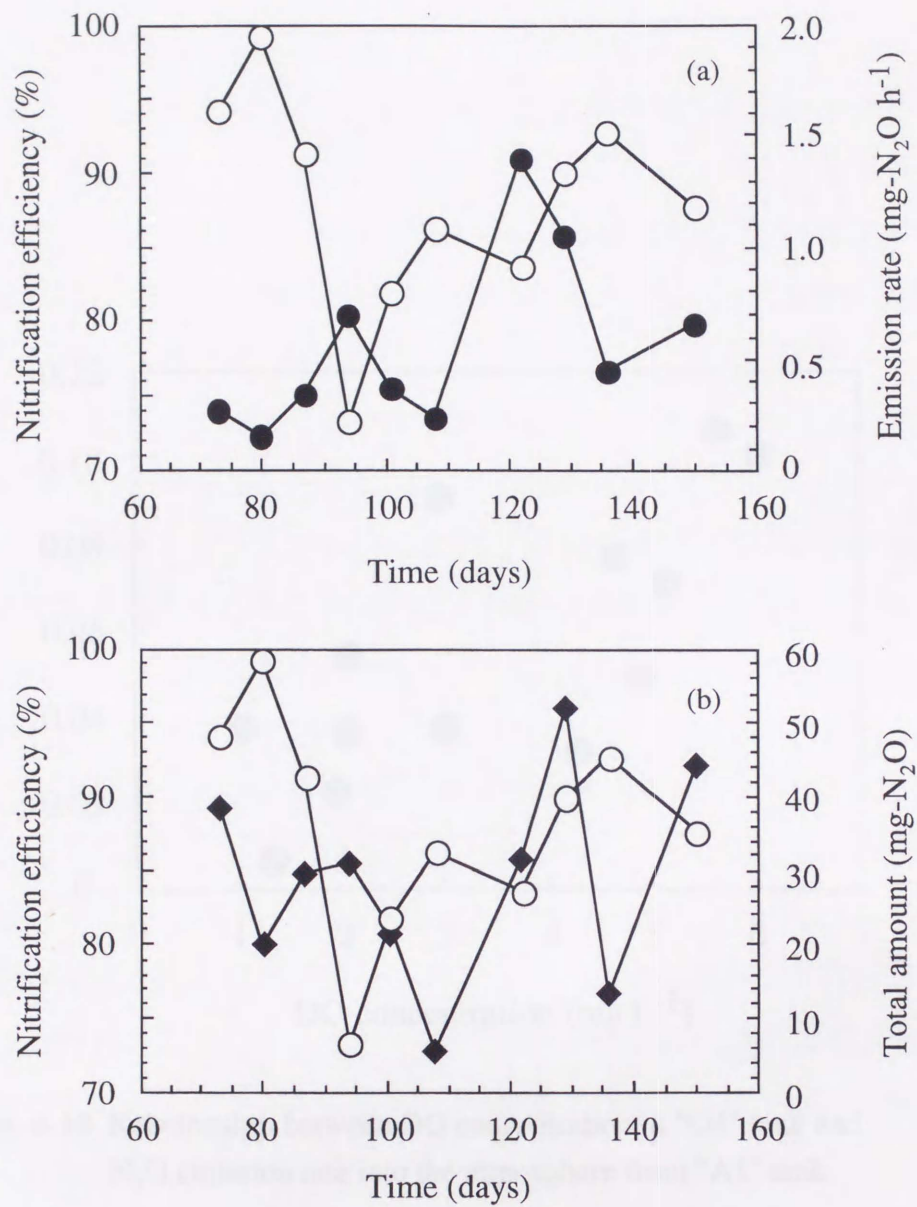


Fig. 4-9 Relationship between nitrification efficiency and N₂O emission rate into the atmosphere (a), and relationship between nitrification efficiency and total amount of dissolved N₂O in oxic tanks (b), at run 2
 Symbols ○, ● and ◆ denote the nitrification efficiency, the emission rate and the total amount, respectively.

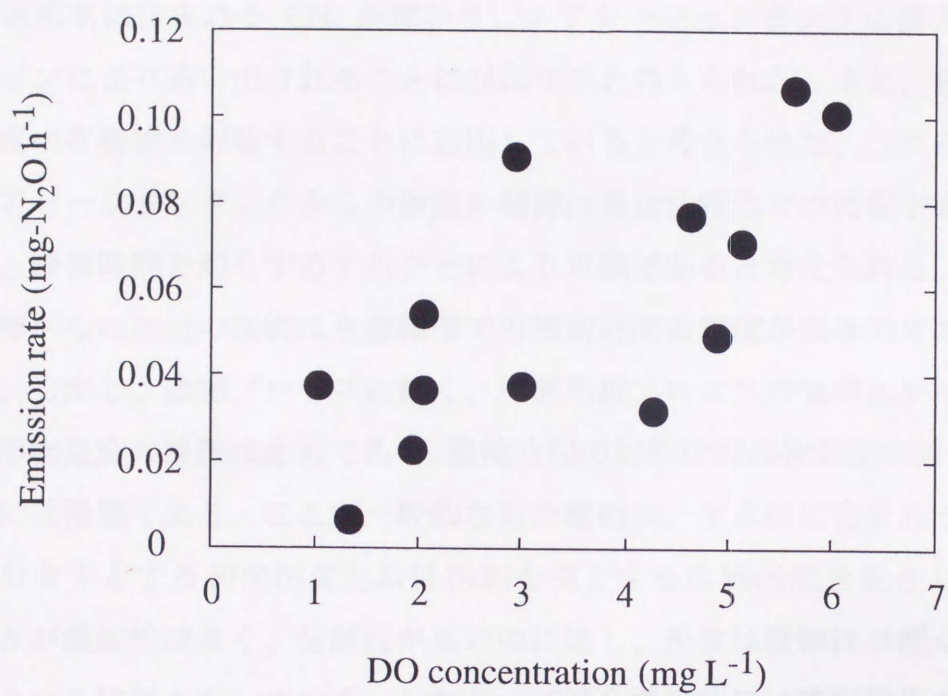


Fig. 4-10 Relationship between DO concentration in "O4" tank and N₂O emission rate into the atmosphere from "A1" tank

とが明らかとなった。

4-3-3 水処理プロセスにおける CH_4 、 N_2O 対策と富栄養化対策両面からの評価

実処理場での実態調査から CH_4 はエアレーションタンクおよび汚泥濃縮槽からの放出が卓越することを示した。前者は流入下水中に含まれる CH_4 に汚泥沈殿部分等が嫌気になりやすい最初沈殿池で生成される CH_4 と汚泥処理プロセスからの返流水に含まれる CH_4 が加わり、エアレーションタンクに流入し、エアレーションにより追い出されることに起因すると考えられた。また、後者は長時間高濃度の有機物を貯留することに起因していると考えられた。これらの結果から、エアレーションタンクからの放出の制御は最初沈殿池での汚泥引き抜き回数を上げ、滞留時間を短くすることにより可能であると考えられる。また、汚泥濃縮槽からの放出の制御にも濃縮槽での滞留時間の短縮が効果的であると考えられる。しかし、濃縮プロセスに続く、汚泥処理プロセスの効率化から、濃縮汚泥の固形物濃度の確保は必須であり、濃縮時間の短縮は固形物濃度の減少を招き、現実的には困難である。ここで一般的な重力濃縮は、下水中に含まれる排泄物等の固形物を主とする初沈汚泥と活性汚泥を主とする余剰汚泥を混合して行われる。前者が濃縮性は良く、分解性が高いのに対し、後者は濃縮性が悪く、分解性が低いという特徴を有している。したがって混合濃縮時には濃縮操作の後半に初沈汚泥の分解にともなうガス発生により、汚泥浮上の現象が見られ、汚泥の重力濃縮における濃縮性悪化の一因となっている。これらの対策として、初沈汚泥と余剰汚泥を別々に重力濃縮する方法が提案されている⁴⁹⁾。回分実験によると、水温 25℃ の条件で初沈汚泥は 4 時間程度で濃縮平衡に達するのに対して、余剰汚泥の場合は 12 時間程度必要である。ガス発生は初沈汚泥の場合、濃縮開始から 3 時間程度は CO_2 が主として発生し、その後は CH_4 が増加する。一方余剰汚泥は最初の 6 時間程度は脱窒による N_2 が主として発生し、その後 20 時間程度はガス発生が認められないと報告されている。混合濃縮の一般的な濃縮時間は 20-24 時間程度である。したがって初沈汚泥と余剰汚泥を個別に濃縮し、それぞれの汚泥の濃縮特性に合わせた滞留時間をとることにより、濃縮性の確保とともに CH_4 の削減が図れるものと考えられる。

さらに A_2O 法と活性汚泥法の比較調査から、 CH_4 が無酸素槽で脱窒反応の水素

供与体として消費され、放出量が削減する可能性が示された。

一方、 N_2O は水処理プロセス内の消化、脱窒反応に起因して生成、放出することを明らかにしてきた。また、本章では硝化反応での N_2O 生成に対する SRT の影響が大きいことが示された。富栄養化対策手法である AO、 A_2O 法のように硝化の促進が前提である処理法では硝化細菌の系内保持は必須であり、SRT は重要な運転制御因子である。この場合、硝化が起きる好気槽のみの固形物滞留時間である A-SRT が用いられる。SRT と A-SRT の関係は次式で示される。

$$\theta_{xA} = \theta_x \cdot t_A / t \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで

θ_{xA} : A-SRT

θ_x : SRT

t_A : 好気タンク滞留時間

t : 生物反応タンク滞留時間

であり、硝化細菌を系内に保持するには次式の関係が満足されなくてはならない。

$$\theta_{xA} = 1 / \mu \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここで

μ : 硝化細菌の比増殖速度

であり、これを満足する、硝化に必要な θ_{xA} と水温 T の関係は次式として示されている⁴⁻¹⁰⁾。

$$\theta_{xA} = 20.6e^{(-0.0627T)} \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで流入水の T-N 濃度は一般的な $40mg \cdot l^{-1}$ としている。

今回の実験の場合、SRT 10 日は A-SRT で 6.6 日、SRT 20 日は 13.3 日であった。実験中の水温範囲 (24-26 °C) では硝化を満足する A-SRT は (3) 式より 5-6 日である。今回の結果では SRT 10、20 日のいずれの場合も消化率は 90% 以上と良好であり、(3) 式の結果を支持している。また、それぞれの N_2O 放出量は流入下水 $1m^3$ あたり 125mg および 65mg であった。

既往の研究によると、不十分な硝化が進行し NO_2^- が蓄積される場合は流入下水 $1m^3$ あたり 330-1,500mg という大きな放出量になることが知られている^{4-11,12)}。不十分な硝化が進行する原因としては、A-SRT の確保が不十分であることが考えられる。A-SRT の大小は硝化細菌の多少と考えることができ、A-SRT が非常

に不十分な場合はアンモニア酸化細菌に比べ、pH 等の環境条件の影響を受けやすい亜硝酸酸化細菌の増殖が影響され、 NO_2^- が蓄積され易くなり、これまで示した N_2O の生成条件を満たしやすくなるものと考えられる。今回の SRT 10 日、20 日いずれの場合も硝化を満足する A-SRT が確保されてはいるが、SRT 10 日では A-SRT は計算上確保されてはいるものの、余裕がないことも原因し、硝化細菌あたりの負荷量の差により N_2O 放出量にも違いが認められたと考えられた。これは Fig. 3-9 ~ 12 に示した B-1、B-2 における N_2O 放出量が経時変化を示し、それらが硝化量の増減に起因している結果からも推測される。

また、活性汚泥法と A_2O 法との比較において、 N_2O 放出量が A_2O 法で 1/8 程度となり、Fig. 3-17 に示したように、B-1、B-2 で認められた硝化量と放出量の関係が認められないことから、連続的に進行する脱窒反応により NO_3^- が除去され、 NO_2^- から NO_3^- への反応がよりスムーズに進行し、 N_2O の生成が抑制されたものと推察した。なお、B-1、B-1 (A_2O)、B-2 における A-SRT はそれぞれ 14、10、14 日であり、硝化に対して十分に確保されていた。

下水処理を含めた生活排水の活性汚泥処理に伴う N_2O 放出量に関する既往研究は非常に少ないが、団地排水の処理施設で系列処理が行われていた硝化促進活性汚泥法と間欠曝気活性汚泥法からの放出量を比較検討し、間欠曝気活性汚泥法での放出量が 1/20 程度になることが報告されている⁴¹³⁾。また、畜産排水の活性汚泥処理では、硝化促進運転から間欠曝気運転に切り換えることにより N_2O の放出量が 1/50 になると報告されている⁴¹⁴⁾。同様に尿尿の無希釈硝化脱窒処理でも硝化、脱窒が不完全な場合は N_2O の放出が増大することが知られている^{4-15,16,17)}

以上のことから、水処理プロセスからの N_2O 放出量は硝化に対して十分に余裕を持った A-SRT (SRT) を確保し、硝化細菌あたりの窒素負荷を低減することで削減され、さらに適正な嫌気条件の組み込みにより削減が可能であることが示された。また、好気槽から嫌気槽への DO の持ち込みが大きくなると N_2O 放出量が増加することを示したが、下水道の運転管理指針では、AO 法の運転操作条件として、脱窒のスムーズな進行のために好気槽末端の DO 濃度を $1.5\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度に制御し、DO の持ち込みを抑制することが示されている⁴¹⁸⁾。したがって、嫌気処理と好気処理の組み合わせにおける効率的な生物学的窒素・リン除去と CH_4 、 N_2O 抑制は、その運転操作条件において矛盾が無く、十分にリンクしうるものと考えら

れた。

しかし、A-SRT に十分な余裕があった SRT 20 日の場合の N_2O 放出量は $65\text{mg}\cdot\text{m}^3$ であり、水温条件の同じであった第 3 章で示した好気単独処理の B-2 における $20.3\text{mg}\cdot\text{m}^3$ より大きな放出量となり、負荷条件等の違いによる両者の硝化細菌数の違いの影響等が考えられた。

4-4 まとめ

本研究では、循環式硝化脱窒法における窒素除去特性、 N_2O の放出特性および放出抑制のための運転操作条件を解明することを目的とした解析・評価を行い、得られた結果は以下のようにまとめられる。

- (1) 生物学的硝化脱窒プロセスで N_2O は硝化過程において多量に放出され、放出量は脱窒過程に比較して約 4.5 倍となった。
- (2) 硝化反応の進行に伴う好気槽からの N_2O 放出量は、SRT 10 日では SRT 20 日の約 2 倍に達したことから、SRT を十分に長く保持することにより硝化反応時の N_2O 放出を抑制可能であること、すなわち、硝化率を高く維持することが N_2O 放出を抑制するために重要であることがわかった。
- (3) AO 法は硝化液循環方式であるため、嫌気槽からの N_2O の放出は、好気槽の DO 濃度の影響を受け、 $1\text{-}6\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ の範囲で、DO 濃度の上昇とともに比例的に増加した。今回の実験条件では DO、 $2\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ でも十分な硝化率が得られたことから、好気槽の DO の適正制御により脱窒に伴う放出が抑制されることが示された。
- (4) 本研究および既往の活性汚泥法による下水処理を含む生活排水の処理プロセスからの CH_4 、 N_2O 放出に関する研究結果から、硝化が非常にスムーズに進行する場合は N_2O の放出が抑制されること、さらに嫌気条件を適正に組み込み、硝化、脱窒が効率的に機能する運転操作条件が確保された場合は、さらに N_2O の放出が抑制されると同時に、閉鎖性水域の富栄養化原因物質としての窒素、リンの効率的な除去が達成され、生活排水処理の分野における CH_4 、 N_2O 削減対策と富栄養化対策がリンクしうるものと考えられた。

第5章 下水汚泥焼却プロセスからの N_2O の放出特性と制御手法の解析

5-1 はじめに

第3, 4章では水処理プロセスにおいて一般的な活性汚泥法の処理による CH_4 、 N_2O の放出実態および、今後、水域の富栄養化対策として普及が考えられる嫌気と好気を組み合わせた処理法からの放出を活性汚泥法との比較において検討し、操作条件との関係を明らかにした。また、これらの検討結果から水処理プロセスでの CH_4 、 N_2O 放出削減手法を明らかにした。

我が国では1995年度に乾燥重量で $1,689 \times 10^9 g$ の下水汚泥が発生しており⁵⁻¹⁾、その発生量は下水道普及率の増加率にあわせて増大している⁵⁻²⁾。発生した下水汚泥の63%が焼却処理されており、我が国の下水汚泥処理にシめる焼却処理の割合はヨーロッパ諸国の平均11%およびアメリカ合衆国の25%⁵⁻³⁾と比較しても非常に高い割合となっている。また、焼却処理されない下水汚泥の内、20%が脱水汚泥として埋め立て処分されている。しかし、我が国における埋め立て処分地の慢性的な不足を考えると、下水汚泥処理における焼却処理の割合は今後さらに増加していくと予想される。

一方、これまで下水汚泥焼却炉では、他の廃棄物焼却炉等に比較して、高濃度の N_2O が測定されている^{5-4,5)}ことから、本章では下水汚泥焼却に伴う N_2O の放出量を、焼却炉の種別および下水汚泥の脱水助剤の違いに注目して調査した。次にこの調査結果をもとに、我が国における下水汚泥焼却に伴う N_2O 放出量を算出し、将来の放出量を予測した。

なお、汚泥処理プロセスの内、嫌気性消化プロセスは CH_4 生産プロセスであるが、発生した CH_4 は消化タンクの加温等に利用され、余剰ガスは余剰ガス焼却炉で焼却処分されるため、 CH_4 の環境への放出は、ほぼないと考えられる。我が国では1995年度に、濃縮汚泥容積ベースで発生汚泥の約40%が嫌気性消化されているが、生成する CH_4 の30%が余剰ガスとして焼却処分されている。したがって、余剰ガスを乾燥プロセス等へ有効利用することで、下水処理プロセス総体としてのGHGの削減、および汚泥のリサイクルの促進に繋がることから重要と考えられる。

5-2 実験方法

5-2-1 調査対象焼却炉

下水汚泥の焼却炉の種別は多段炉と流動床炉に大別され、近年では流動床炉の採用が増加している。下水汚泥は脱水汚泥の状態では焼却されるが、脱水の際に用いられる凝集剤は、高分子凝集剤と、主として水酸化カルシウム ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) と塩化第二鉄 (FeCl_3) を併用する石灰系凝集剤に大別される。最近では維持管理の容易さから高分子凝集剤の使用が増加している。以下、高分子凝集剤を用いて脱水した汚泥を高分子系脱水汚泥、石灰系凝集剤で脱水した汚泥を石灰系脱水汚泥とする。以上の点を考慮し、11 処理場の 14 基の焼却炉について実態を調査した。調査を行った焼却炉について炉の種類と焼却されていた脱水汚泥の種類の間係を Table5-1 に示す。

5-2-2 試料の採取および分析方法

排ガスは炉の出口付近および排ガス処理の影響も検討するため、排ガス処理装置通過後の煙突の出口付近で採取した。排ガス試料の採取、排ガス量の測定および排ガス中の O_2 、 CO 、 CO_2 、 NO_x 、および HCN の分析は JIS の分析法に準じて行った^{5.6)}。 N_2O は ECD 付きガスクロマトグラフィーで分析した。ここで N_2O 分析用の排ガス試料は、サンプリングバッグ (テドラーバック) で保存中に、排ガス中に共存する H_2O 、 SO_2 および NO がバックの内表面上で反応し、 N_2O が生成されること^{5.7,8)}を避けるために、 $\text{Mg}_2(\text{ClO})_4$ とソーダアスベストを通して、 H_2O と SO_2 を除去しながら採取した。採取方法を Fig.5-1 に示す。 N_2O の分析は第 3、4 章と同様であるが、排ガス中の N_2O 濃度が高濃度の場合は検量線の直線範囲 (0-20ppmv) まで適選、希釈した。調査した焼却炉に投入されていた脱水汚泥の強熱減量 (VS)、水分含量および窒素含量は下水試験法^{5.9)}に準じて求めた。

5-3 結果および考察

5-3-1 下水汚泥焼却炉からの N_2O の放出量および放出特性の解析

Table5-2 に測定結果を示す。表に示した N_2O 濃度は煙突の出口における濃度で

Table 5-1 The relationship between the types of incinerators surveyed and the type of sludge cake incinerated in them

Type of Incinerator	Type of sludge cake	
	Polymer	Lime
Multiple-hearth	3	3
Fluidized-bed	6	2

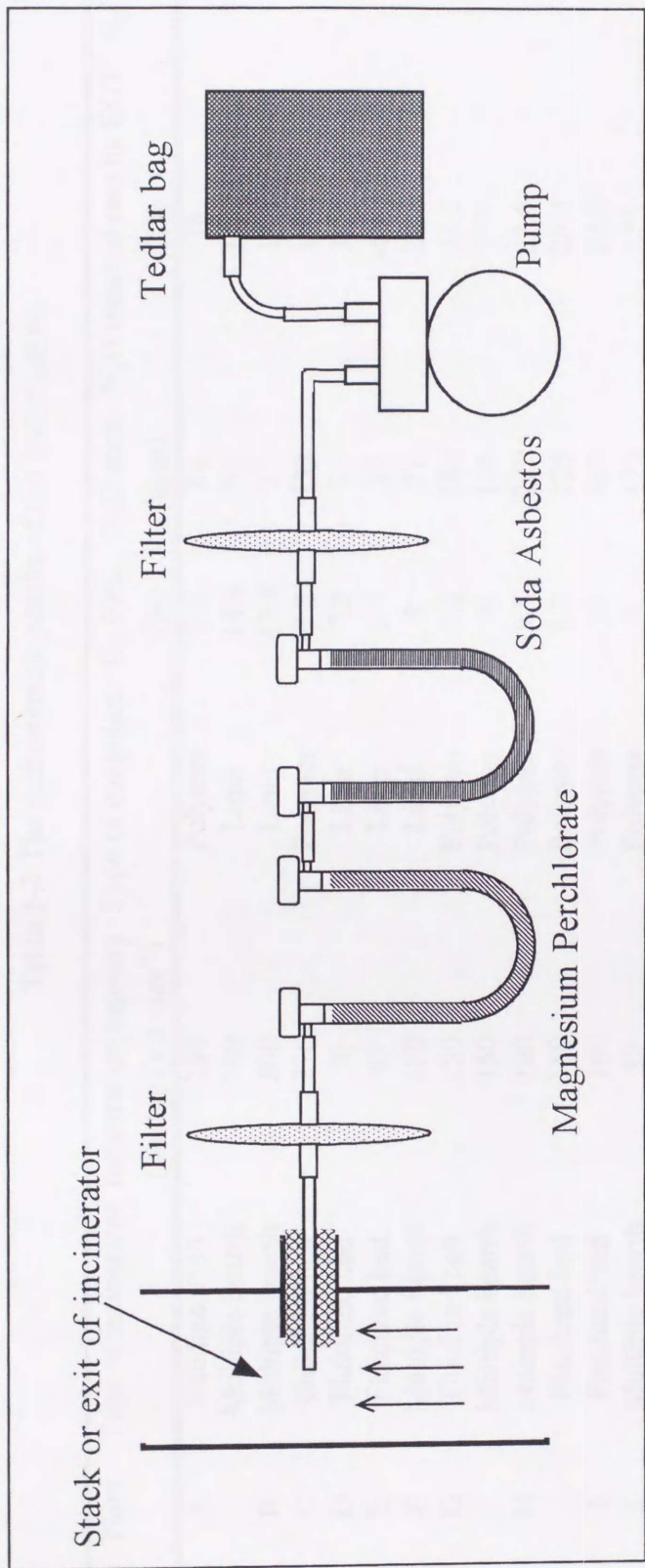


Fig. 5-1 Sampling method for N_2O analysis

Table 5-2 The measurement results of this investigation

Plant	Type of incinerator	Incineration capacity (Sludge DSt·day ⁻¹)	Type of coagulant	O ₂ conc. (%)	N ₂ O conc. (ppm)	N ₂ O removal rate by EGT* (%)	N ₂ O conversion rate (%)
A	Fluidized bed	250	Polymer	7.3	88	18	6.1
	Multiple hearth	300	Lime	14.4	99	15.7	5.9
B	Multiple hearth	300	Lime	17.4	37	12.1	3.2
C	Fluidized bed	210	Polymer	7.2	131	19.2	6.8
D	Fluidized bed	50	Lime	7.2	31	38.5	3.5
E	Fluidized bed	45	Lime	5.5	37	-68.3	1.3
F	Multiple hearth	150	Lime	8	97	29.8	2.1
G	Fluidized bed	150	Polymer	7.3	384	21.5	13.5
	Multiple hearth	150	Polymer	9	105	***	6.5
H	Multiple hearth	100	Polymer	9.8	220	27.6	6.7
	Fluidized bed	150	Polymer	8.9	225	26.4	9.4
I	Fluidized bed	160	Polymer	10	430	23.8	18
J	Multiple hearth	30	Polymer	7	120	***	7
K	Fluidized bed	110	Polymer	12	280	***	12.9

*EGT: Exhaust Gas Treatment system

ある。N₂O 濃度は高分子系脱水汚泥の焼却の場合が 88-430ppmv と石灰系汚泥の場合の 31-99ppmv と比べ高濃度を示した。また、高分子系脱水汚泥の場合は流動床炉が多段炉に比べ高濃度を示す傾向にあった。N₂O 変換率とは燃焼過程で、N₂O が空気中の窒素(N₂)から熱的生成されないものとして、炉に投入され、焼却された脱水汚泥中の窒素分の N₂O への変換割合を示したものである。排ガス中の N₂O 濃度と同様に高分子系脱水汚泥の焼却の場合が 5.9-18%と、石灰系汚泥の場合の 1.3-3.5%に比較して高い割合を示した。特に流動床炉で高分子系脱水汚泥を焼却した場合に 6.1-18%と高い割合を示す傾向にあった。Fig.5-2 に N₂O と NO_x の変換率の関係を示す。ここで NO_x の変換率は N₂O の変換率と同様に求めた。高分子系脱水汚泥を焼却している流動床炉の場合は、排ガス中の NO_x 濃度も 5ppmv 以下と非常に低く、その結果として NO_x への変換率も 0.1-0.5%と N₂O への変換率に比べ非常に低い値となった。反対に石灰系脱水汚泥を焼却している流動床炉の NO_x 濃度は、それぞれ 100, 200ppmv と高く、変換率も 2.5, 3.0%となり、N₂O への変換が NO_x への変換へトレードオフした結果となった。一般的な流動床炉における下水汚泥の焼却温度は 800 °C 付近である。燃焼反応による N₂O 生成に関して研究が進んでいる、石炭燃焼プロセスの既往研究では、800 °C 付近で揮発性の強い N 成分から気相均一反応で、HCN、NCO を経て選択的に N₂O が生成されることが知られている^{5-10,11)}。また下水汚泥に含まれる窒素成分の大部分は、800 °C 付近の温度領域で揮発することが知られている⁵⁻¹²⁾。

この反応経路は酸化物質の存在により NCO から NO の生成が優勢になるといわれている。石炭の流動燃焼の場合、脱硫のために炉内に投入される酸化カルシウム(CaO)が酸化物質として作用し、N₂O の生成が抑制され、反対に NO の生成が促進されることが報告されている⁵⁻¹³⁾。石灰系汚泥の場合、Ca(OH)₂ の平均的な含有率は約 30%であり、これらが焼却過程で CaO に変化し、酸化物質として作用したものと考えられた。高分子系汚泥を焼却した多段炉の場合、流動床炉に比較し、NO_x への変換率が 1.3-1.9%と高くなった。炉の構造上、多段炉は流動床炉に比べ焼却温度のコントロールが難しく、固形物当たりの発熱量が高い高分子系脱水汚泥では、汚泥が実際に燃焼している部分で部分的な温度上昇が生じ、Thermal NO_x が生成され、見かけ上、NO_x への変換率が高くなるものと考えられた。

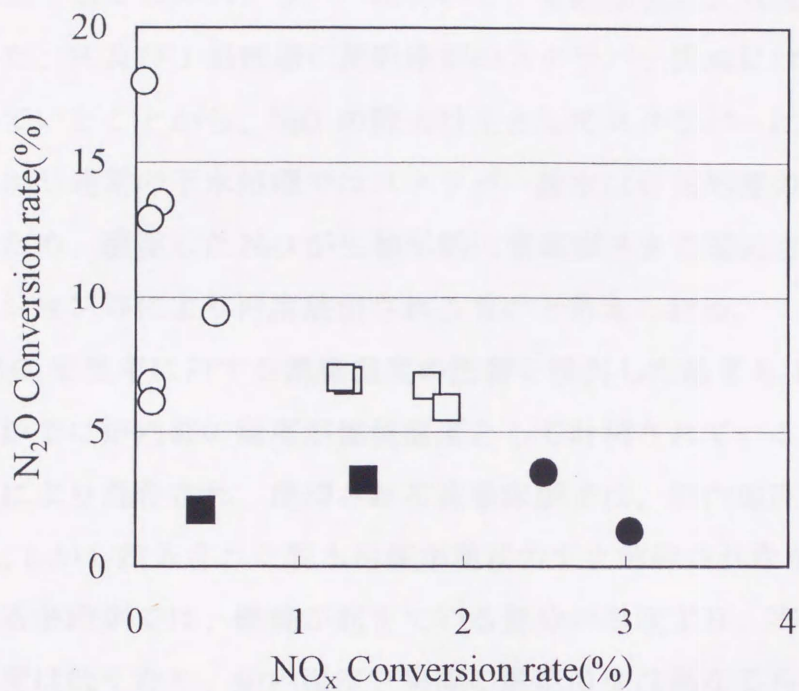


Fig.5-2 Relationship between conversion rate of N₂O and NO_x. Symbols: ○, fluidised bed (polymer cake); ●, fluidised bed (lime cake); □, multiple-hearth (polymer cake); ■, multiple-hearth (lime cake)

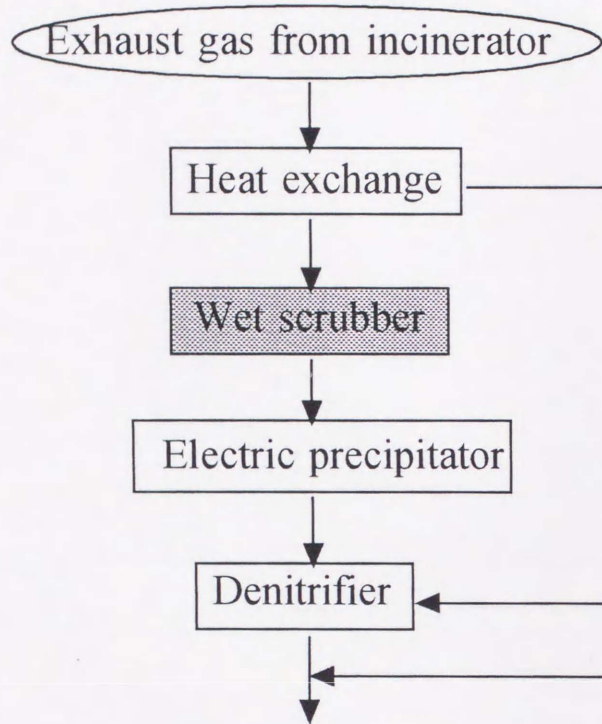
排ガス処理効率とは排ガス処理プロセスによる N_2O の除去率であり、排ガス処理プロセスでの N_2O 減少量の比率である。E 処理場の結果がマイナスになった例を除いてほぼ 10-30%の範囲であった。Fig.5-3 に多段炉、流動床炉に一般的な排ガス処理プロセスの流れを示す。 N_2O は水に対する溶解度が比較的高いため、流動床炉、多段炉いずれの場合も排ガス中の粉塵あるいは SO_2 、 HCl などの酸性ガスを除去するためのスクラバーにおいて、気液接触により除去されたと考えられた。また、H 及び J 処理場の流動床炉のスクラバー排水には減少相当量の N_2O が溶存していたことから、 N_2O の除去は主としてスクラバーによるものと推定された。しかし通常の下水处理ではスクラバー排水は好気処理の水処理プロセスに戻されるため、溶存した N_2O が生物学的に窒素ガスまで還元されることはなく、エアレーション等により再度放出されるものと考えられる。

次に N_2O 変換率に対する燃焼温度の影響を検討した結果を Fig.5-4 に示す。なお、焼却炉では炉内部の温度が燃焼温度として計測されているが、汚泥が砂状の流動媒体により混合され、焼却される流動床炉では、炉内温度は燃焼温度にほぼ一致する。しかし投入された脱水汚泥が塊状のまま解砕されながら底部へ移動し、焼却される多段炉では、燃焼が起きている部分の温度より、実際に計測されている炉内温度は低くなり、炉内温度と実際の燃焼温度は異なるものと考えられる。また今後、流動床炉が増加していくものと考えられることから、Fig.5-4 では流動床炉の結果のみを示した。測定された燃焼温度は 770-860 °C の範囲であったが、高分子系流動床炉では焼却温度の上昇と共に変換率が低下する傾向が認められた。石炭流動燃焼の場合、 N_2O の生成が 730 °C 付近で最大になるという報告⁵⁻¹⁴⁾があり、下水汚泥の流動燃焼の場合も同様な傾向にあると考えられた。

5-3-2 下水汚泥焼却に伴う N_2O の年間放出量の推定

日本では 1995 年度で 241 基の下水汚泥焼却炉が稼働しており、そのうち 142 基が流動焼却炉、64 基が多段炉、12 基がロータリーキルン、20 基が階段式ストーカー炉であり、その他が 3 基であった⁵⁻¹⁵⁾。Table5-2 に示した調査結果から、焼却炉の種別と焼却される脱水汚泥の種別による N_2O 変換率を決定し、Table5-3 に示した。ここで N_2O の変換率は調査結果を単純平均したものをを用いた。これを基に汚泥焼却を行っている各処理場からの放出量を次式により求め、その総和と

Mutiple hearth



Fluidized bed

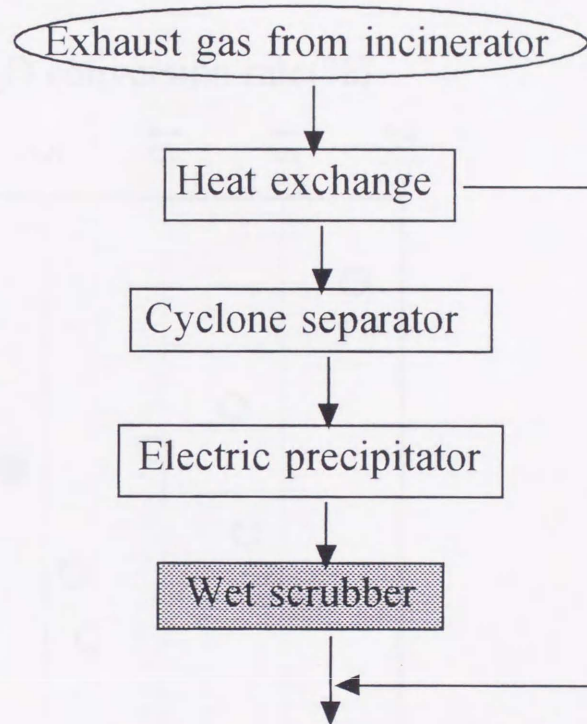


Fig.5-3 General exhaust gas treatment process for multiple hearth and fluidised bed incinerator

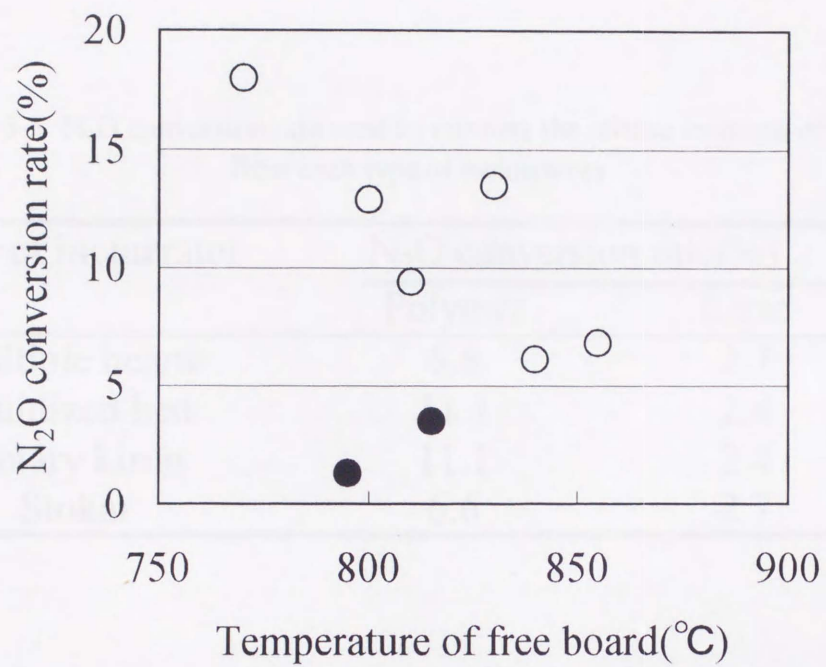


Fig.5-4 The effects of incineration temperature on the N₂O conversion rate of investigated fluidized bed incinerators. Symbols: ○, polymer cake; ●, lime cake

Table 5-3 N₂O conversion rate used to estimate the release amounts of N₂O from each type of incinerators

Type of incinerator	N ₂ O conversion rate(%)	
	Polymer	Lime
Multiple hearth	6.6	2.7
Fluidized bed	11.1	2.4
Rotary kirun	11.1	2.4
Stokar	6.6	2.7

して日本における年間放出量を求めた。なお、ロータリーキルンおよび階段式ストーカー炉については今回調査を行わなかったが、その焼却方式から N_2O の変換率はそれぞれ流動床炉および多段炉と同じとした。

$$\begin{aligned} \text{放出量} = & (\text{1年間に焼却された脱水汚泥量}) \times (1 - \text{脱水汚泥含水率}) \\ & \times (\text{窒素含有率}) \times (\text{N}_2\text{O変換率}) \end{aligned}$$

ここで脱水汚泥焼却量および含水率は下水道統計⁵⁻¹⁶⁾によった。窒素含有率は全国 59 カ所の下水処理場の脱水汚泥の調査結果から導かれた脱水汚泥の VS と窒素含有量との関係式^{5-17,18)}から求めた。また、VS は下水道統計によった⁵⁻¹⁹⁾。Fig.5-5 に流動床炉、多段炉、ロータリーキルンおよび階段炉からの放出量を高分子凝集剤、石灰系凝集剤の別に示した。また、Fig.5-6 に炉の種類別の放出割合を示した。今回の調査結果から排ガス処理装置、特にスクラバーで燃焼により生成される N_2O の 10-30%が削減されることが明らかになったが、スクラバー排水に吸収された N_2O は水処理プロセスから再度放出される可能性があるので、年間放出量の推定においては排ガス処理装置での削減を考慮しなかった。1995 年度の日本における下水汚泥焼却に伴う N_2O の放出量は窒素ベースで 4.03×10^9 g と推定され、そのうちの 77%が流動床炉から放出されていた。また 1995 年度の処理人口は 6,683 万人である⁵⁻²⁰⁾ので、処理人口 1 人当たりの汚泥発生量が同じであると仮定すると、発生する汚泥を焼却した場合の 1 人当たりの年間 N_2O 放出量は 96g となった。1997 に IPCC に日本から報告された温室効果ガスの吸収・排出目録である「気候変動に関する国際連合枠組み条約に基づく第 2 回日本国報告書」⁵⁻²¹⁾によると 1994 年度における日本での人為的な N_2O の排出量は窒素ベースで 70×10^9 g と推定されており、推定年度が下水汚泥焼却炉が 1995 年度、日本全体が 1994 年度と違っているものの、1 年間で双方の推定量に大きな差がないものとして、下水汚泥焼却の全体に占める割合は約 6%となった。

5-3-3 下水汚泥焼却に伴う N_2O の年間放出量の将来予測

温室効果ガスの削減量を決定した 1997 年 12 月の COP3 では、2008-12 年を目標期間として、1990 年を基準年とする削減率が決定された。1995 年度の下水道

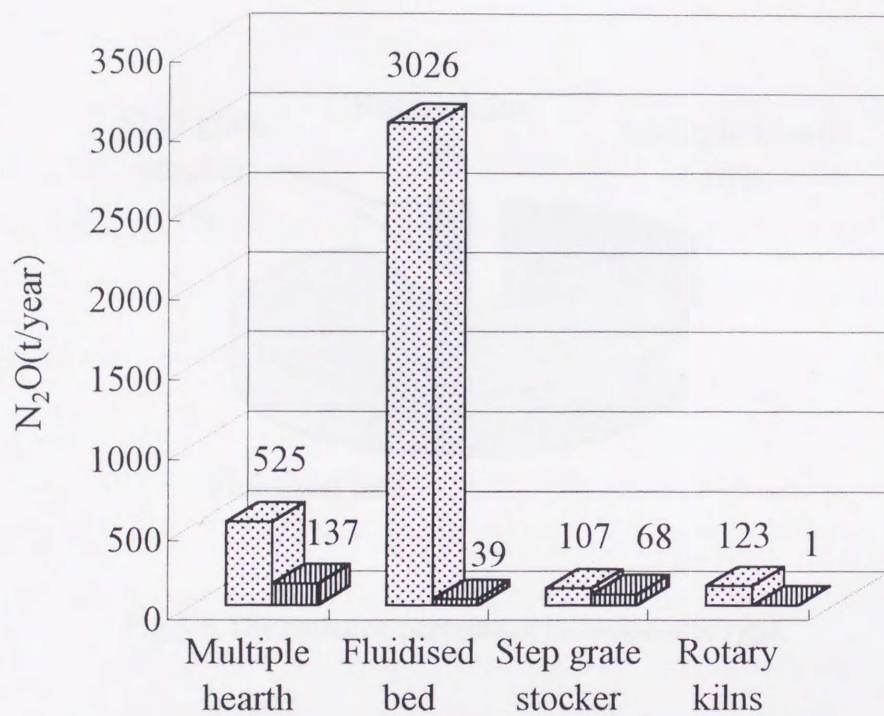




Fig.5-5 The release amounts of N₂O from fluidized bed incinerators, multiple-hearth incinerators, rotary kilns, and step grate stocker incinerators organized by polymer cake and lime cake in Japan FY 1995. Symbols:  polymer cake;  lime cake

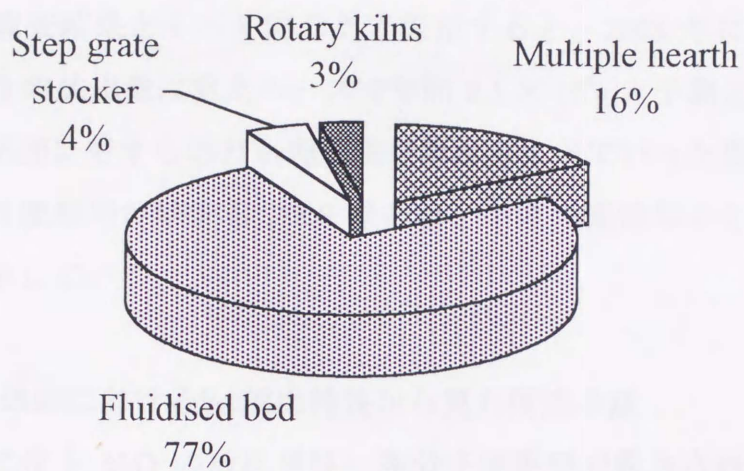


Fig.5-6 The emission percentage by incinerator type.

人口普及率は54%であり⁵⁻²⁰⁾、下水道普及率は最近10年間では年間1.5-2%の割合で増加している。今後、仮に2%の増加率で増加するとして、2008年の下水道人口普及率は79%と推定される。現在、発生下水汚泥の60%以上が焼却処理されているが、埋め立て処分地確保の逼迫した状況等を考えると、今後、焼却処理の割合が急増していくものと考えられる。一方、現在、発生下水汚泥の約10%がコンポストあるいは乾燥汚泥として緑地あるいは農業利用されている。ここで2008年において下水道人口普及率が79%、コンポストおよび乾燥汚泥としての利用割合が現在と同様に10%、残りの発生汚泥がすべて焼却され、 N_2O 変換率等の条件が今回の調査結果とすべて同じだと仮定すると、2008年における下水汚泥焼却に伴う N_2O の放出量は窒素ベースで年間 8.5×10^9 gと予測される。これは現状のまま汚泥処理に対する焼却処理の依存度が高まっていった場合には、温室効果ガスの削減目標期間が始まる2008年には、下水汚泥焼却からの排出量が2倍になることを示している。

5-3-4 下水汚泥の焼却における N_2O 放出特性から見た削減手法

下水汚泥焼却に伴う N_2O の放出量は、高分子凝集剤で脱水された汚泥を流動床焼却炉で焼却する場合に大きくなることが明らかになった。脱水プロセスでは当初、 $Ca(OH)_2$ と $FeCl_3$ を併用する無機系脱水助剤を用いていたが、 $FeCl_3$ が強酸性であり、腐食性が強いため、配管等の腐食の維持管理上の問題から、高分子系凝集剤が多く用いられるようになってきた。また、無機系凝集剤の場合、添加量が30-50%と多く、凝集剤は燃焼せず、灰として残るため、減量化を主目的とした焼却プロセスには不適である。さらに、高分子系脱水汚泥は無機系脱水汚泥に比べ粘着性が強く、上段から下段に向けて自然落下により燃焼炉床を移動する多段炉では解砕されずに、炉床あるいは壁面への粘着、炭化固化等の障害が発生する。したがって、高分子系汚泥の焼却には砂状の熱媒体により投入された汚泥が瞬時に解砕、分散、燃焼される流動床炉が最適となる。また、無機系汚泥を流動床炉で焼却する場合は N_2O 放出量は低いが、 CaO の酸化触媒効果で排ガス中の NO_x が高濃度となり、特に総量規制対象地域においては NO_x の排出基準を越える場合がある。

1995年度において稼働中の焼却炉の約60%が流動床炉である。また、Fig.5-7

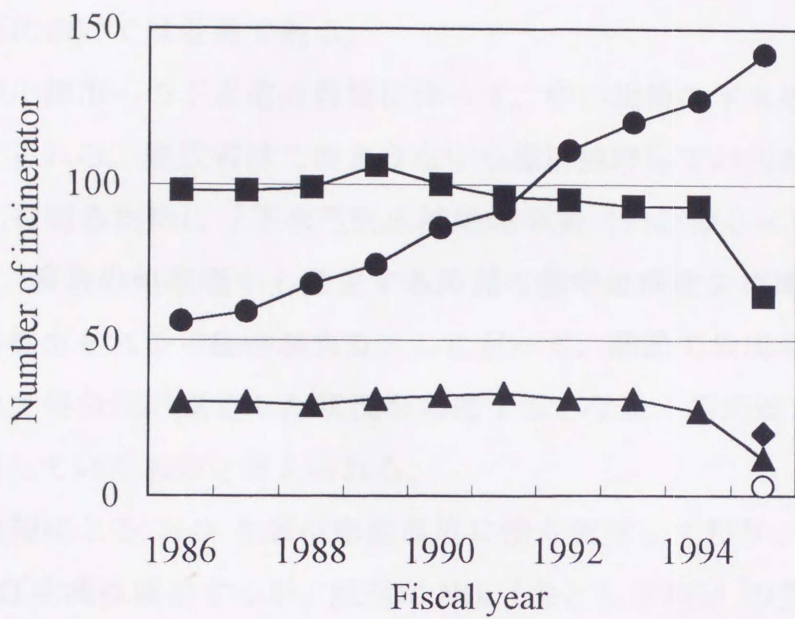


Fig. 5-7 Annual Change of operated Incinerator in Japan;
 —■— Multiple-hearth —●— Fluidized-bed —▲— Rotary kiln
 —◆— Storker —○— Others

にここ 10 年間における焼却炉の種別の稼働状況を示したが、流動床炉の稼働数が年々増加しているのに対して、多段炉の稼働数は大きく減少している。これは単に新設の焼却炉に流動床炉が採用されているだけでなく、東京、大阪、名古屋等の早期に焼却プロセスを採用し、ひとつの処理場に複数の炉を所有する大規模な処理場において、多段炉が流動床炉に更新されているためでもある。このように処理プロセスの効率化という点では高分子系脱水汚泥と流動床炉の組み合わせが現時点においては最適である。

今後、中小都市への下水道の普及に伴って、中小規模の下水処理場が増加するものと考えられる。建設省はこのような中小規模処理場での汚泥処理の効率化および適正化を図るために「下水汚泥広域処理事業（いわゆるエースプラン）」を推進し⁵⁻²²⁾、複数の処理場から発生する汚泥の集中処理化を指導しており、焼却処理が一層推進される可能性がある。したがって、前節で放出量を予測したように、埋め立て処分地の逼迫した状況を考慮すると今後、汚泥焼却に伴う N_2O 放出量は増加していくものと考えられる。

流動床焼却による N_2O 生成は燃焼温度に強く依存しており、燃焼温度の上昇により、 N_2O 生成は減少するが、反対に NO_x （主として NO ）の生成が増加する。これは気相反応において反応中間体である NCO を経る NO への反応経路が N_2O への反応経路に対して卓越することと、熱的 NO_x (Thermal NO_x) の生成が増加するためである。実炉を用いた実験では燃焼温度を 800 から 880 $^{\circ}C$ とした場合、 N_2O 生成量は約 1/3 になるが、 NO_x の生成は約 4 倍になると報告されている⁵⁻²³⁾。特に大規模な下水汚泥焼却炉が稼働している東京、大阪、横浜等では NO_x の環境基準達成率が 1995 年度で 77.5% と全国平均の 97.5% に比べて低いこと、冬期において高濃度な状況が出現する⁵⁻²⁴⁾ ことから排出基準内といっても排出量の増加は好ましくない。また、含水率が 80% と高含水率な下水汚泥の焼却では蒸発潜熱が大きく、汚泥自身の熱量だけでは燃焼が維持できない。したがって、燃焼温度の上昇は、焼却プロセスでの燃料消費の増加をもたらす。また、焼却温度の上昇はシステム全体の耐用年数等に影響があると予想され、空気予熱器の電熱チューブ等の損傷が進む可能性が指摘されている⁵⁻²³⁾。

一方、触媒を用いる削減手法も検討されている。Rh/ZnO を担持したゼオライト系触媒を用いた実験では O_2 が 3.3%、 N_2O が 430ppmv の条件で 700 $^{\circ}C$ において

ほぼ 100%の N_2O 分解効率が得られた⁵⁻²⁵⁾。しかし、実際の下水汚泥焼却炉の排ガス条件に近い SO_2 が 450ppm 共存した場合は触媒活性が完全に失活し、その後 SO_2 の共存のない場合でも活性が復活せず、恒久的な失活が起きることが明らかになった。このように触媒は被毒が大きな問題であり、またプロセスへ導入する場合は導入場所が問題となる。700 °C の場合は熱交換器の手前への設置となり、除塵前の排ガスと接触するため、活性に対する粒子の影響も懸念される。しかし、除塵後の設置となると排ガス温度が低下しており、700 °C までの再加熱が必要であり、再度エネルギーの投入が必要である。

これまで述べてきたように下水汚泥焼却炉における N_2O 対策は重要であると考えられるが、運転操作条件の変更あるいは触媒を用いた排ガス処理としての削減は限界があるものと考えられる。したがって、下水汚泥の処理プロセスとして焼却以外のプロセスを選択する必要がある。

窒素の施肥に伴う N_2O 変換率は施肥方法により違いはあるものの 0.5-2%程度であるとされている^{5-26,27,28)}。下水汚泥の施用に伴う変換率は 0.5%以下とされている^{5-29,30,31)}。また、同様の有機質資材である家畜糞尿の施用における変換率も、大きく施用方法に依存するが 0.5-1%程度とされている^{5-32,33,34)}。これは本研究で得られた高分子系汚泥の流動焼却における変換率と比べ、非常に低い変換率である。

下水汚泥の肥料化プロセスは嫌気性消化・乾燥およびコンポスト化プロセスである。前者は CH_4 の生産プロセスとの組み合わせであり、 CH_4 の有効利用が図れ、原理的に N_2O の発生は考えられない。後者は好気プロセスのため CH_4 の放出は少ないと考えられる。 N_2O についてはバッチ方式の試験により、反応の初期と後期に放出が認められるものの変換率は 0.3%以下とされている⁵⁻³⁵⁾。

我が国においては中世以降、下肥利用が開始されており、18 世紀末には、ほぼ全国に普及したと考えられている³⁻³⁶⁾。また、下水道の初期において、下水汚泥は貴重な肥料資源として取引がなされていた。しかし、化成肥料の流通、あるいは下水処理が行われる都市近郊での農耕地の減少から、下水汚泥の農業利用が衰退してきた。しかし、近年有機農業の見直しが行われ、農耕地への一定の有機資材の投入の必要性が認識されていること、我が国の現状では大量の窒素を輸入し、大量の窒素を環境へ放出することにより水域の富栄養化が引き起こされていることを考慮すると、下水汚泥焼却に伴う N_2O 排出抑制のひとつの方策として

下水汚泥の緑農地利用（緑農地還元）の効率化が窒素リサイクルの観点からも有効かつ重要であると考えられる。

5-4. まとめ

11 処理場の 14 基の下水汚泥焼却炉からの N_2O の放出実態を焼却炉の種類と焼却される脱水汚泥の脱水の際に用いられる脱水助剤の種類の違いに注目して調査し、以下の結果が得られた。

- (1) 焼却された下水汚泥中の窒素分の N_2O への変換率は高分子系脱水汚泥を焼却する場合は 5.9-18%と石灰系脱水汚泥の場合の 1.3-3.5%と比較して高く、特に流動床炉で高分子系脱水汚泥を焼却した場合に 6.1-18%と高い割合を示す傾向にあった。
- (2) 石灰系脱水汚泥の場合は変換率が炉の種別に依らず低く、脱水助剤として脱水汚泥中に含まれる $Ca(OH)_2$ が燃焼過程で CaO に変化し、酸化剤として作用した影響と予想された。特に流動床炉の場合は N_2O への変換が NO_x への変換に置き変わった。
- (3) 流動床炉の場合、今回調査した焼却炉の燃焼温度 770-860 °Cの範囲で N_2O の変換率は燃焼温度と逆相関の関係が認められた。
- (4) 1995 年度の日本における下水汚泥焼却に伴う N_2O 放出量は窒素ベースで 4.03×10^9 g であると推定され、その 77%が流動床炉から排出されていた。
- (5) 下水道人口普及率が現在の増加率と同様に年間 2%で増加し、発生汚泥の緑地および農業利用の割合が現在と同じ 10%であり、それ以外はすべて焼却されると仮定すると、COP3 で決定された温室効果ガスの削減目標期間の始まる 2008 年には下水汚泥焼却からの放出量は窒素ベースで 8.5×10^9 g と試算された。
- (6) 焼却温度の上昇により N_2O の放出は抑制されるが、 NO_x の増加あるいは焼却炉本体の耐用年数の低下が懸念され、運転操作条件の変更による削減には限界があることが示された。ここで下水汚泥を肥料として農地へ施用した場合、施用された窒素からの N_2O への変換率は 0.5%以下であると考えられている。したがって、今後の主流となる高分子汚泥を流動床炉で焼却した場合の変換率 11%に比べ非常に低く、農地への循環利用の促進が N_2O 削

減に効果的であると考えられた。

4.0 放牧管理の事例

4.1 放牧管理

放牧管理とは、放牧地を適切に利用し、放牧動物の健康と生産性を向上させることを目的とする。放牧地は、放牧動物の飼料源として重要な役割を果たしている。放牧地を適切に管理することは、放牧動物の健康と生産性を向上させるために不可欠である。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。

放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。

放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。

放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。放牧地を適切に管理するためには、放牧動物の健康と生産性を向上させるための適切な放牧管理を行う必要がある。

第6章 下水汚泥の嫌気性消化・熱乾燥プロセスの効率化によるCH₄、 N₂O放出抑制の解析

6-1 はじめに

第5章では下水汚泥焼却に伴うN₂Oの放出特性を明らかにするとともに、我が国の下水汚泥処理に占める焼却割合の大きさから、将来的には大きな放出源となり得ることを示した。また、燃焼温度の上昇等の運転操作条件の変更による削減には限界があり、下水汚泥に含有される窒素のN₂Oへの変換率の違いから、下水汚泥を肥料として農地へ循環利用することが、N₂O削減対策の上で重要なことを明らかにした。

下水汚泥の肥料化プロセスはコンポスト化プロセスと、嫌気性消化・乾燥プロセスである。もちろん、脱水汚泥のまま、緑農地利用される場合があるが、施用時の取り扱い性の悪さから、近年、その利用は減少している。ここで、肥料の需要には季節性が強いこと、施用時の取扱性から、長期の保存に耐え得る含水率(10-20%)でかつ、形状が機械撒き可能な粒状であることが必要である。また、リサイクルに対するエネルギーの低減が重要である。

一般的な消化・乾燥プロセスは熱プロセスであり、消化ガスの有効利用が図れ、下水処理プロセスの総体でGHGの削減が可能である。また、ゴミ焼却廃熱等の環境へ捨てられていた熱の利用も可能である。また、加熱乾燥であるので、生物反応プロセスであるコンポスト化プロセスと比べ、最終的な含水率の調整が容易であり、400-600℃という高温での乾燥操作のため、汚泥中に混在するミニトマト等の種子、あるいは病原細菌の死滅が効率的に達成される。さらに乾燥機の形状によっては乾燥過程における造粒が可能である⁶⁻¹⁾。一方コンポスト化プロセスの場合、コンポスト化反応終了後に造粒する必要がある⁶⁻²⁾、再度のエネルギー投入が必要である。

嫌気性消化プロセスから生じる消化汚泥は、これまで肥料として緑農地利用されてきた実績があり^{6-3,4)}、下水道黎明期から肥料としての価値が評価されており^{6-5,6)}、肥料取締法上の特殊肥料のうちおでい肥料に該当する。近年、下水おでい肥料として、成分等に関して推奨基準が設定されている⁶⁻⁷⁾。

さらに嫌気性消化プロセスは汚泥処理プロセスのうち脱水機あるいは乾燥機に問題が発生した場合に嫌気性消化タンクが汚泥貯留槽として機能し、システム全体として汚泥のオーバーフローが回避できる利点を有しており、下水処理場の維持管理上においては非常に重要な機能を有している。

本章では、処理プロセスの維持管理上の優位性を考慮し、下水汚泥の肥料化プロセスとして嫌気性消化・乾燥プロセスを取り上げ、まず第一に消化・乾燥を行っている既存の処理場のエネルギー消費および熱収支の実態について調査し、その結果から熱利用効率の優れたモデルプロセスについて提案を行った。さらに、未利用エネルギーの利用として、ゴミ焼却廃熱利用について検討し、これらの結果をもとに、嫌気性消化・乾燥汚泥の肥料価値を肥料製造エネルギー消費の点から評価した。

6-2 実験方法

既存の下水汚泥消化乾燥プロセスおよびゴミ焼却廃熱の利用に関する検討では、運転状況を運転日報等から調査し、それぞれについての年平均の物質収支を求め、それをもとに熱収支を算定した。モデルプロセスの熱収支の計算に必要な汚泥濃度等の数値は日本における処理実績において最も一般的な数値を用い、それを条件として与えることにより物質収支を求めた。なお、本章においては各検討項目がひとつの完結した課題となっているため、検討内容の把握を容易にするため、詳細な前提条件および計算に必要な設定値は結果および考察で各項目ごとに示した。

6-3 結果および考察

6-3-1 既設の嫌気性消化・乾燥プロセスの実態調査およびエネルギー評価

調査を行った処理場の概要を Table6-1 に、また汚泥処理プロセスのフローを Fig.6-1 に示す。本処理場は政令指定都市のベットタウンに位置し、流入下水のほぼ 100%が生活排水であった。発生汚泥の全量を嫌気性消化後、乾燥しており、消化ガスを乾燥機の熱源に用いていた。しかし消化タンクの加温には、主として重油を使用していた。乾燥機は稼働実績の多い熱風直接回転乾燥機であり、乾燥汚泥は直径 2-4mm 程度の粒状である。Fig.6-2 に乾燥汚泥の状態を示す。乾燥汚泥は近隣する牧草地あるいはゴルフ場に主として用いられており、生産される乾燥汚泥のすべてが有効利用されていた。また余剰汚泥は遠心濃縮し、消化タンクへの投入汚泥濃度を 4 %以上に保つことで、18-26 倍と高倍率の消化ガス発生倍率を得ていた。消化ガス発生倍率とは消化ガスの投入汚泥量(m^3)に対する発生消化ガス量(m^3)の割合である。また、濃縮汚泥の VS は 85%であり、嫌気性消化反応の活性を示す、消化プロセスへ投入された汚泥の VS 当たりのガス発生量は $0.58m^3 \cdot kg\text{-VS}^{-1}$ であった。

Table6-2 に処理汚泥量当たりの消費エネルギーを示す。ここで電力および A 重油は外部よりプロセスへ投入されたエネルギーであり、消化ガスは内部生産されたエネルギーである。Table6-2 で示した個々の消費エネルギーを発熱量に換算したものを Fig.6-3 に示す。ここで電力の発熱量は発電熱効率を $38.1\%^{6-10)}$ として

Table6-1 The outline of the observed wastewater treatment plant

Collection system	Separate sewer system		
Treatment process	Conventional activated sludge process		
Dry weather flow	12,000m ³ · day ⁻¹		
Sludge treatment	Thickening	Primary sludge Excess sludge	Gravity Centrifuge
	Anaerobic digestion	Temperature Period Digester heating	36°C 34 days Steam injection
	Dewatering	Method Coagulant	Belt press Polymer
	Heat Drying	Dryer Inlet temperature Exit temperature Deodorization	Direct rotary dryer 700°C 200°C Combustion

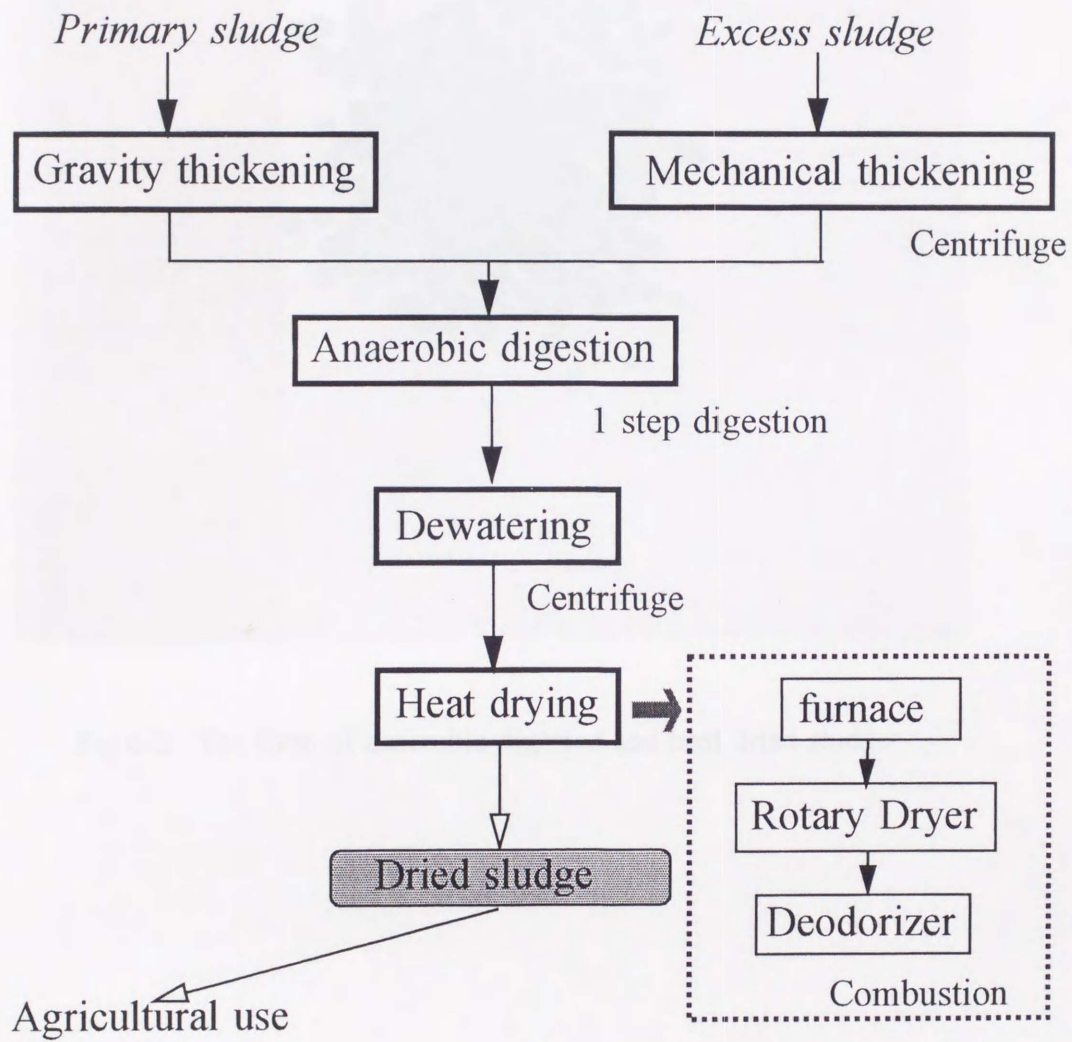


Fig.6-1 Flow diagram of sludge treatment process of observed wastewater treatment plant

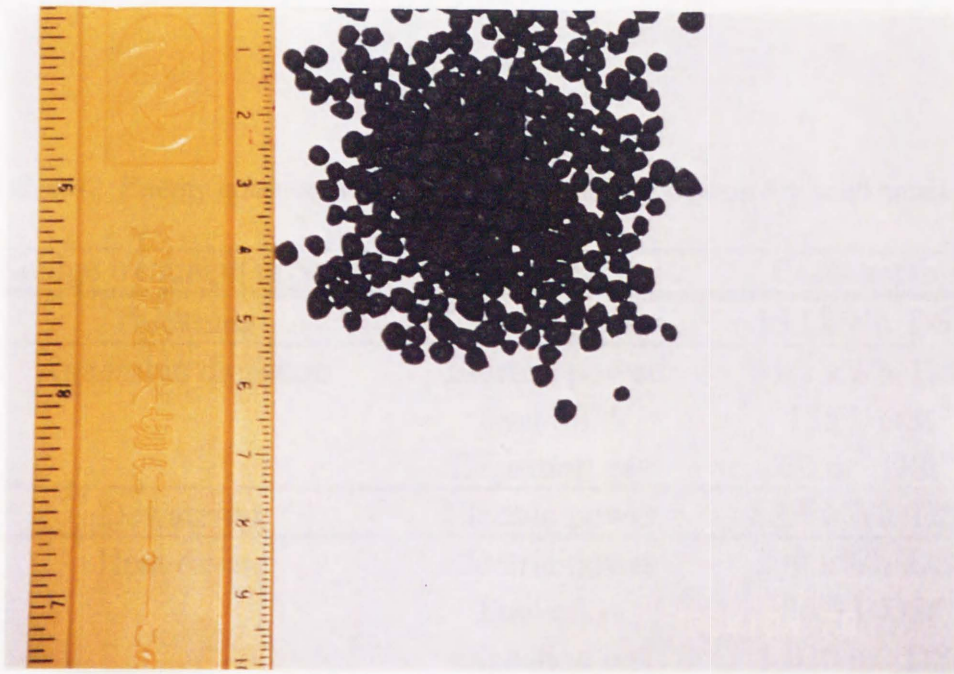


Fig.6-2 The form of anaerobic-digested and heat dried sludge

Table6-2 Energy consumption per treated sewage sludge on dry solid bases

Sludge treatment prpcess	Kind of energy	Consumption
Thickning	Electric power	152 kWh·DSt ⁻¹
Anaerobic digestion	Electric power	51.7 kWh·DSt ⁻¹
	Fuel oil A	125 l·DSt ⁻¹
	Digestion gas	60 m ³ ·DSt ⁻¹
Dewatering	Electric power	82.1 kWh·DSt ⁻¹
Heat drying	Electric power	269 kWh·DSt ⁻¹
	Fuel oil A	86.3 l·DSt ⁻¹
	Digestion gas	1,020 m ³ ·DSt ⁻¹

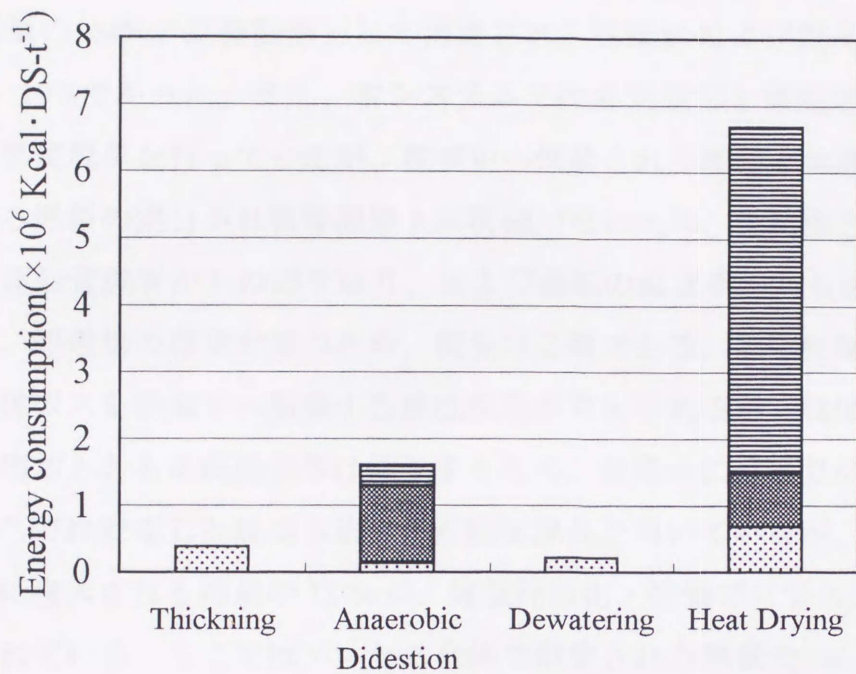


Fig. 6-3 The condition of energy consumption on each unit sewage sludge treatment process per treated dry solid at H wastewater treatment plant : Electric power Fuel oil A digestion gas

2,250kcal・kWh⁻¹、A 重油 9,300kcal・l⁻¹、消化ガス 5,100kcal・m⁻³ とした。汚泥処理プロセス全体で 8.8×10^6 kcal・DSt⁻¹ のエネルギーが消費されており、そのうち電力、A 重油による外部からのエネルギー投入は 3.4×10^6 kcal・DSt⁻¹ であった。これは全体の消費エネルギーの 39%にあたり、このうち A 重油が 60%であった。

Fig.6-4 に嫌気性消化・乾燥プロセスの年平均の熱収支を示す。乾燥機へ投入された熱量の 64%が蒸発潜熱として消費され、熱風炉および脱臭炉の熱損失はそれぞれ 10%であった。また、本システムでは臭気成分を燃焼処理する脱臭炉を用いて燃焼脱臭を行っていたが、脱臭炉へ供給される燃料と乾燥機の熱風炉へ供給される燃料の案分が日報等記録上は明確でないため、乾燥機と脱臭炉の燃料の配分は運転管理者からの聞き取り、および運転の温度条件から決定し、Fig.6-4 に示した。処理場の環境対策のため、脱臭は必須である。加熱乾燥プロセスの場合、乾燥排ガスを熱風炉へ循環する燃焼脱臭が考えられるが、乾燥用熱風中の水分含率の増加とともに乾燥効率は低下するため、循環率には限界がある。したがって、ここでは安定した脱臭方法である燃焼脱臭を用いているが、脱臭に、乾燥プロセスに投入される熱量の 32%が、嫌気性消化・乾燥プロセス全体では 27%が消費されている。ここではプロセス全体で消費される熱量の 69%を消化ガスで賄っているため、脱臭の段階での消費熱量が大幅に削減されれば、嫌気性消化プロセスを含めたプロセス全体の必要熱量を消化ガスで賄うことが可能であり、Fig.6-3 から明らかなように汚泥処理プロセス全体としても外部エネルギーの投入割合を 16%低減可能である。

6-3-2 熱利用効率の優れたモデルプロセスの構築に関する検討

嫌気性消化・乾燥プロセスを採用している実際の下水処理場の実態調査結果から、乾燥プロセスで燃焼脱臭を行う場合は、脱臭に、乾燥そのものに必要な熱量の約 50%に相当する熱量が消費され、かつ乾燥排ガスの大部分が蒸発潜熱で占められていることが明らかになった。したがってプロセスの熱収支の効率化には脱臭に必要な熱量の低減および潜熱の回収・利用が重要である。

ここでは、これらの問題点の解決方法として乾燥排ガスをスクラバーで洗浄し、潜熱を 60℃程度の温水として回収し、その温水により消化タンクの加温を行い、スクラバー洗浄後は排ガス温度が低下するため、排ガス中に含まれる臭気成分

Furnace Rotary dryer Deodorizer (combustion)

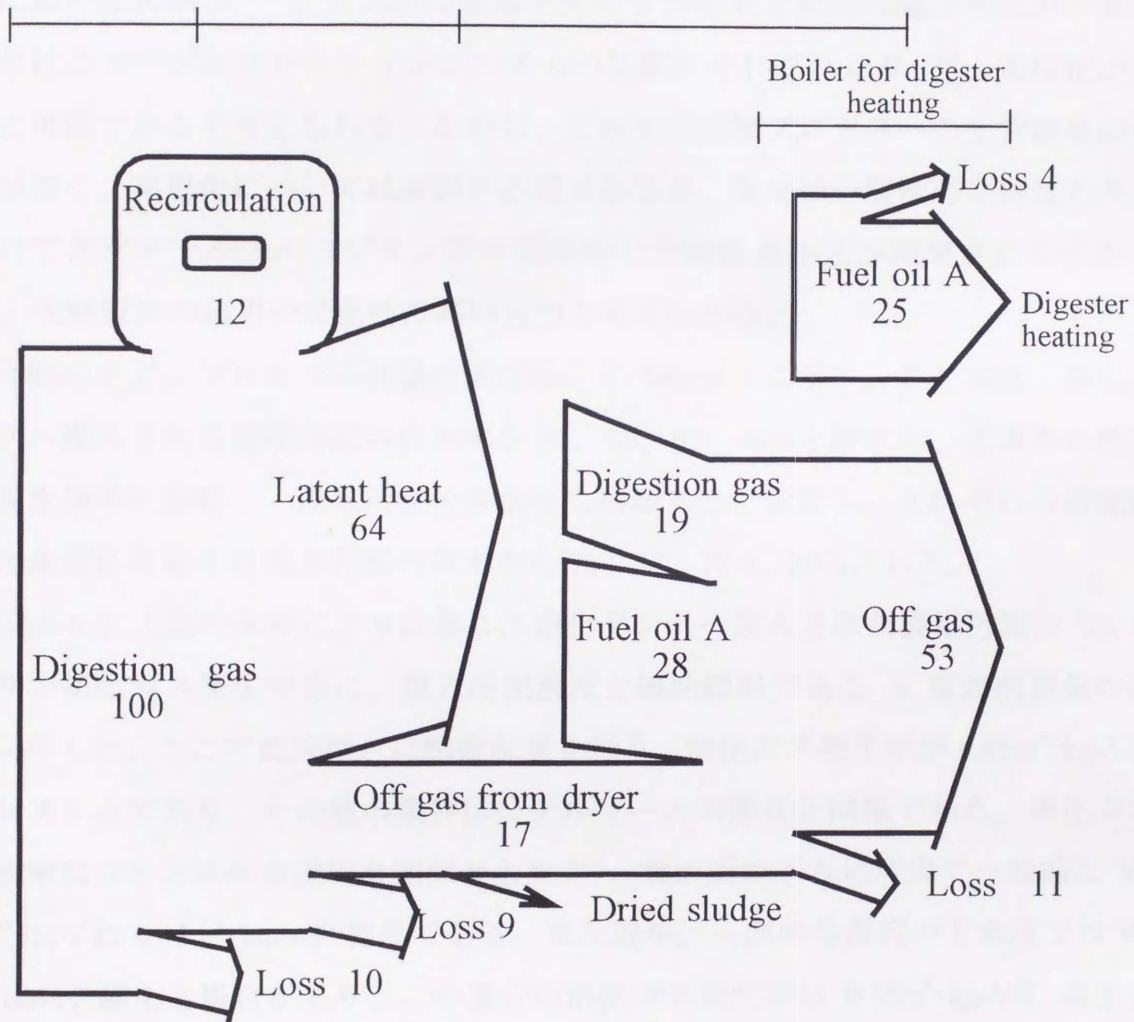


Fig.6-4 The heat balance diagram of the anaerobic digestion-heat drying process at the H plant

の生物脱臭が可能であると考え、システムを仮定し、熱収支的に自立する条件を検討した。ここで熱収支の自立とは嫌気性消化プロセスからの消化ガスで、乾燥および消化タンクの加温に必要な熱量がすべて賄える状況を指している。今回検討したシステムの概要を Fig.6-5 に示す。ここで乾燥排ガスのスクラバーは下水汚泥焼却炉の排ガス洗浄スクラバーで通常使用されており、スクラバー排水として回収された温水からの熱回収は下水汚泥焼却炉のスクラバー排水を地域温水供給に用いた実例が⁶⁻¹¹⁾、また熱交換器を介する消化タンクの加温は消化ガス発電におけるコージェネレーションシステムの実績がそれぞれあり⁶⁻¹²⁾、実用化が十分に可能であると考えられる。しかし、これまで乾燥プロセスへの生物脱臭の適応が無く、実用化については検討が必要であるが、従来難分解性悪臭物質と考えられてきたメチルメルカプタン等の効率的な生物脱臭手法が開発されつつあり⁶⁻¹³⁾、生物脱臭の適用の可能性は高いものと考えられる。

今回のモデルプロセスの計算の設定条件を Table6-3 に示す。ここでは、消化タンクへ投入される濃縮汚泥の含水率を 95、96、97、98%と設定し、含水率の増加が脱水効率に影響し、脱水汚泥の含水率も増加すると仮定し、それぞれの濃縮汚泥含水率に対応する脱水汚泥の含水率を 76、77、78.5、80%とした。

Fig.6-6 に上記の条件により計算した消化タンクへ投入された濃縮汚泥の VS あたりの消化ガス発生率毎に、投入汚泥濃度と補助燃料である A 重油消費量の関係を示した。ここで従来型とは燃焼脱臭を行う、消化ガス発生率が $0.45\text{m}^3\cdot\text{kg}\cdot\text{VS}^{-1}$ のシステムであり、その他の条件はモデルケースの場合と同様である。消化ガス発生率は VS とほぼ直線的な関係があり⁶⁻¹⁴⁾、我が国の下水処理場で一般的な VS が 75%では $0.45\text{m}^3\cdot\text{kg}\cdot\text{VS}^{-1}$ 程度である。また近年、一部の分流式の下水道では VS が 80%を越える場合があり、この場合の消化ガス発生率は $0.55\text{m}^3\cdot\text{kg}\cdot\text{VS}^{-1}$ 以上となる。

今回のモデルでは日平均汚水水量 $50,000\text{m}^3$ の処理場を想定しており、処理人口は約 20 万人である。この規模の都市は山形市、高崎市、松本市等の地方中堅都市にあたり、都市域と農地が比較的近接した状況が見られる。したがって、肥料化汚泥の需要も充分にあるものと期待される。

従来型の場合、濃縮汚泥含水率が 95-98%に変化するにつれて重油消費量も $50\text{-}64\text{kg}\cdot\text{hr}^{-1}$ と増加する。しかし、今回想定したモデルプロセスでは消化ガス発

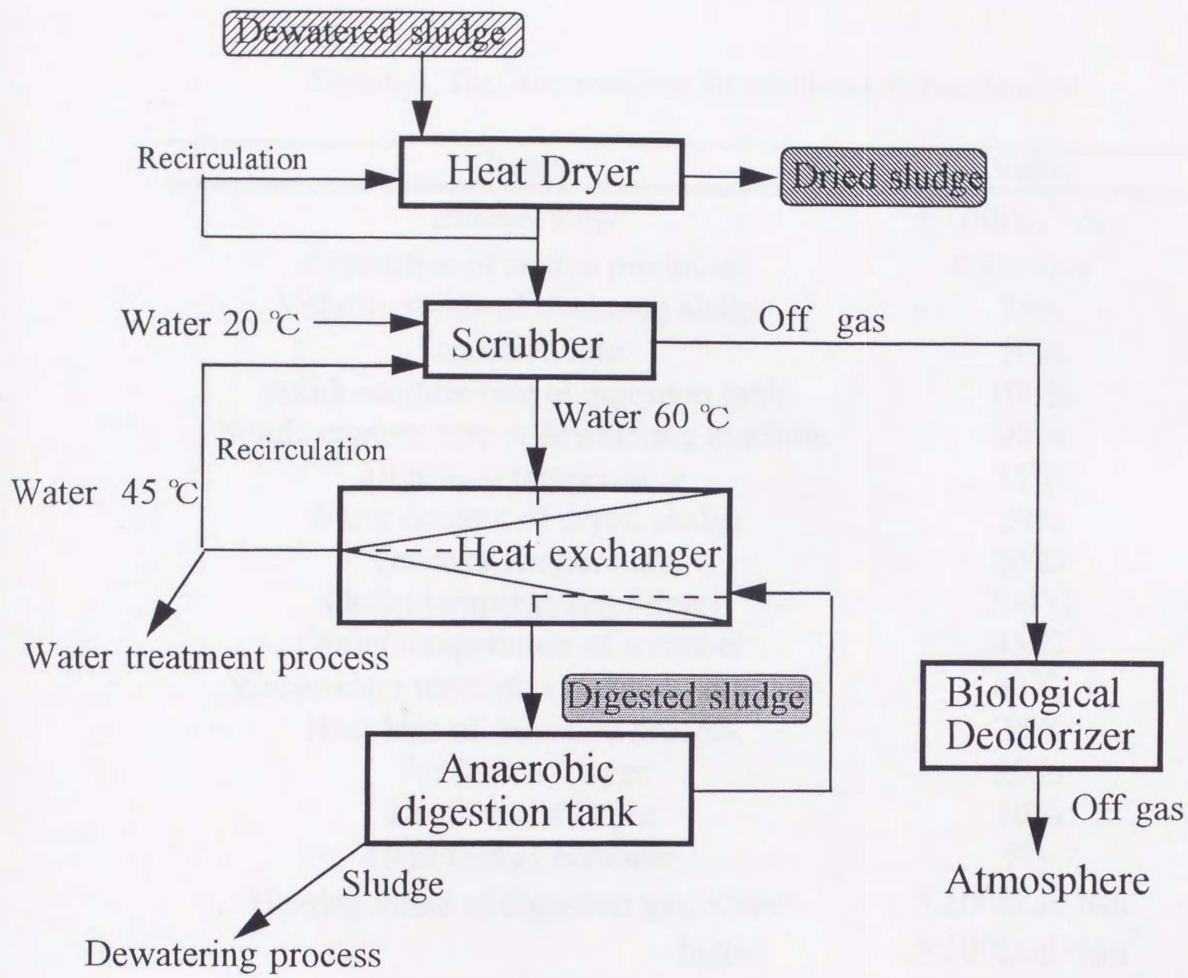


Fig.6-5 Schematic diagram of advanced anaerobic digestion-heat drying process for improvement of heat balance

Table 6-3 The basic condition for calculation of heat balance

Items	Value
Influent flow	$50,000\text{m}^3 \cdot \text{day}^{-1}$
Quantities of sludge produced	$7.65\text{t} \cdot \text{day}^{-1}$
Volatile solids of thickening sludge	75%
Digeation ratio	50%
Solids capture rate at digestion tank	100%
Solids capture rate at dewatering machine	98%
Digestion temperature	35°C
Water content of dried sludge	20%
Outdoor temperature	20°C
Outlet temperature of dryer	200°C
Outlet temperature of scrubber	45°C
Wastewater teperature through scrubber	60°C
Heat loss of digestion process	25%
Air leak at Dryer	20%
Heat loss of Dryer	10%
Heat loss of scrubber	5%
Heating value of digestion gas, lower	$5,100\text{kcal} \cdot \text{Nm}^3$
higher	$5,500\text{kcal} \cdot \text{Nm}^3$
Heating value of fuel oil A, lower	$10,100\text{kcal} \cdot \text{kg}^{-1}$
higher	$10,800\text{kcal} \cdot \text{kg}^{-1}$
Specific heat : Dry gas	0.24
Specific heat : Steam	0.45
Specific heat : Dewatered sludge	0.2

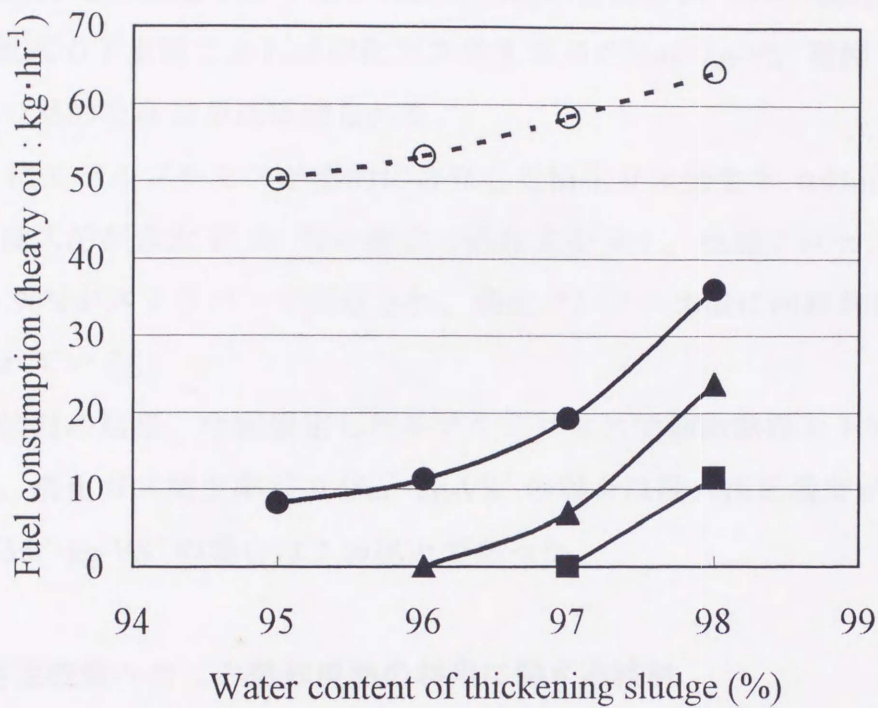


Fig. 6-6 The relationship between fuel consumption and water content of thickening sludge putted into the anaerobic digestion tank by each digested gas generation ratio :

● — 0.35m³·kg-VS-1 ▲ — 0.45m³·kg-VS-1
 ■ — 0.55m³·kg-VS-1 - ○ - Conventional

生率が $0.45\text{m}^3\cdot\text{kg}\cdot\text{VS}^{-1}$ で、濃縮汚泥含水率が 98% の場合は重油消費量が $24\text{kg}\cdot\text{hr}^{-1}$ であり、従来型に比べ消費量が 63% 削減された。また、濃縮汚泥含水率 96% で重油消費量がゼロとなり、嫌気性消化プロセスから発生する消化ガスの熱量のみでプロセス全体の熱量を賄えた。近年、汚泥の濃縮性が悪化しており⁶⁻¹⁵⁾、重力濃縮で発生汚泥の濃縮を行う場合の濃縮汚泥の含水率は 98-97% 程度である。しかし、分流式の下水道であれば消化ガス発生率が $0.55\text{m}^3\cdot\text{kg}\cdot\text{VS}^{-1}$ 程度であるので、プロセスの熱的な自立がほぼ図られる。

Fig.6-7 にモデルプロセスが熱的に自立した消化ガス発生率 $0.45\text{m}^3\cdot\text{kg}\cdot\text{VS}^{-1}$ 、消化タンク投入汚泥含水率 96 % の場合の熱収支を示す。乾燥プロセスに投入された熱量の 90% がスクラバーで回収され、消化タンクの加温に回収熱量の約 10 % が利用されている。

上記の検討の結果、今回想定したモデルプロセスで補助燃料を不要とするための条件は、消化ガス発生率が $0.45\text{m}^3\cdot\text{kg}\cdot\text{VS}^{-1}$ の場合は投入汚泥濃度が 4 % 以上であり、 $0.55\text{m}^3\cdot\text{kg}\cdot\text{VS}^{-1}$ の場合は 3 % 以上であった。

6-3-3 汚泥乾燥へのごみ焼却廃熱の利用に関する検討

6-3-3-1 ゴミ焼却廃熱の利用実態と問題点

プロセスの熱収支の自立には、スクラバーによる潜熱の回収、熱交換器による消化タンクの加温および生物脱臭法の検討等が必要であり、従来のプロセスに比べ、システム的に複雑となる。しかし、ごみ焼却廃熱等の、本来は環境に捨てられていた未利用エネルギーが利用可能であれば、システムの単純化が図られる。F 県 H 市ではゴミ焼却の廃熱で消化汚泥の乾燥を行っており、その実態について調査し問題点を抽出した。

調査を行ったゴミ焼却場は低位発熱量 $1,310\text{-}2130\text{Kcal}\cdot\text{kg}^{-1}$ のゴミを準連続燃焼式ストーカー炉で日平均 60t 焼却していた。また連続運転でないため、発電は行われていなかった。Fig.6-8 にゴミ焼却-汚泥乾燥プロセスの概略図を示す。ここでは $800\text{-}900\text{ }^{\circ}\text{C}$ のゴミ焼却排ガスの一部を汚泥乾燥機（熱風直接回転乾燥機）に導入し、乾燥を行い、乾燥排ガスを再度ゴミ焼却炉へ返送することによって、脱臭を行っている。ただし、ゴミ焼却炉と下水処理場が違う場所にあるため、脱水

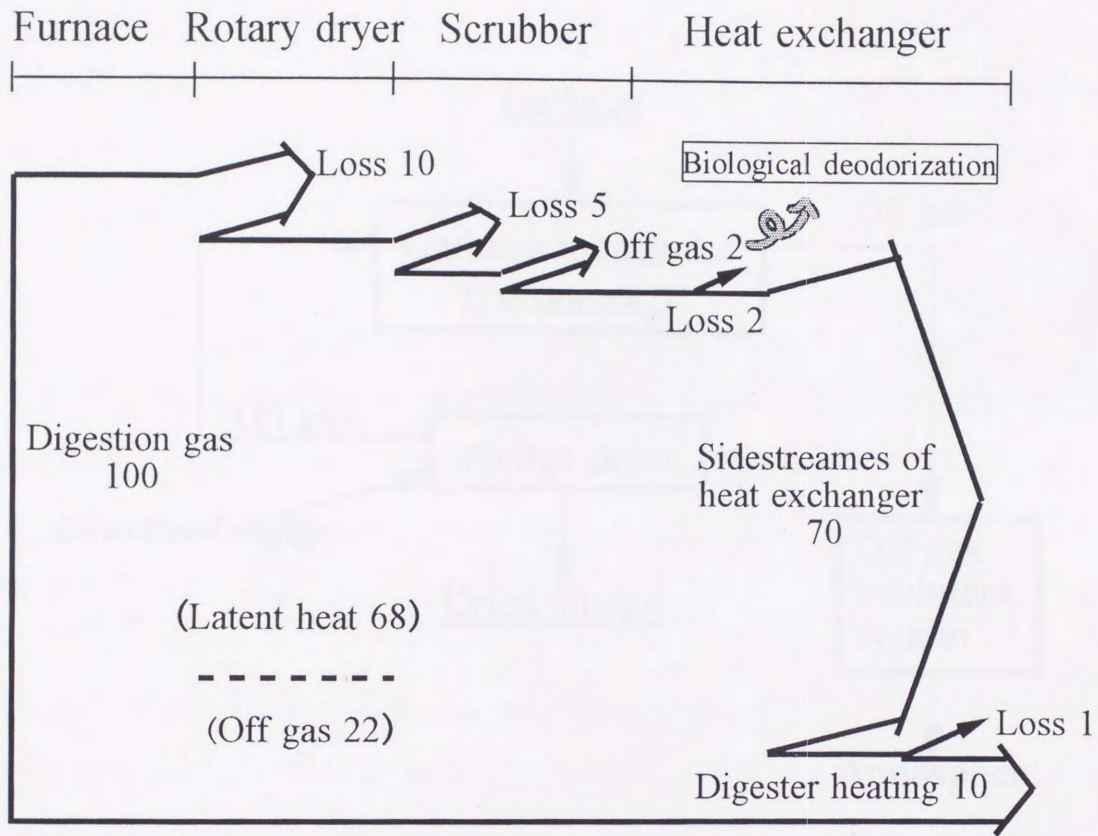


Fig.6-7 The heat balance diagram of the model anaerobic digestion-heat drying process when the heat is needed for the process is satisfied by digestion gas.

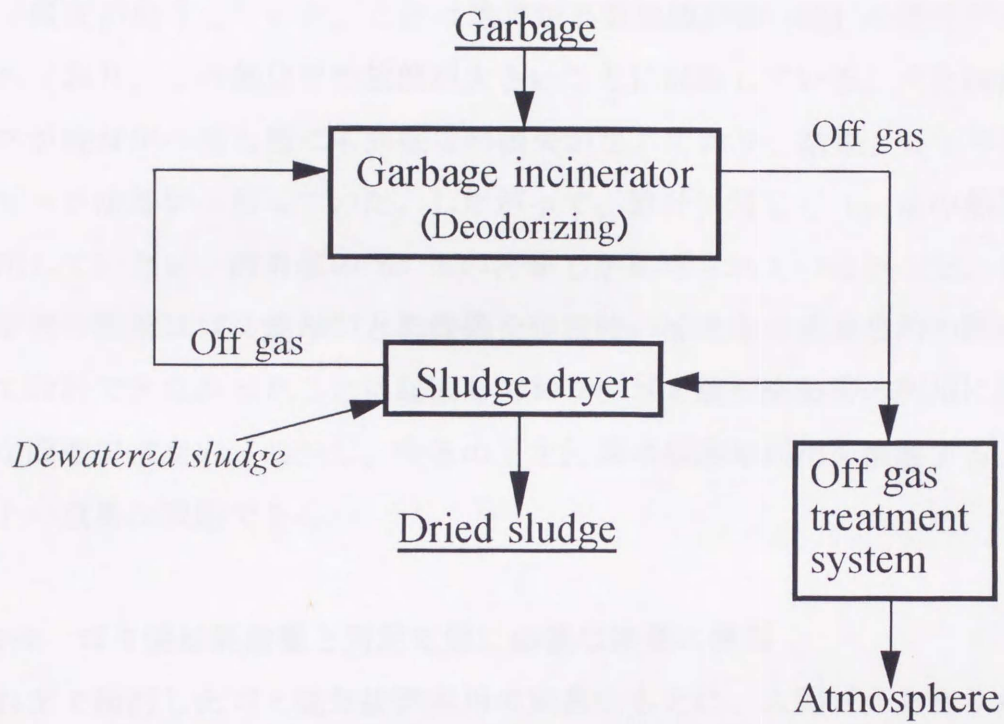


Fig. 6-8 Schematic diagram of effectively use of waste exhaust heat from garbage incinerator for the heat drying process of sewage sludge

汚泥は乾燥施設までトラック輸送されていた。

Fig.6-9 にゴミ焼却-汚泥乾燥プロセスの年平均の熱収支を示す。焼却炉の出口でゴミ焼却排ガスの熱量の 54 %が乾燥機に導入されているが、乾燥機に導入されるダクト内で約 40 %の熱損失が生じている。つまりゴミ焼却炉から引き抜かれる排ガス温度は平均で 890 °Cであるが、乾燥炉へ導入される時点で、平均 510 °Cまで温度が低下していた。これは焼却炉と乾燥機が約 50M の屋外ダクトで連結されており、この部分での放熱が大きいことに起因している。また同様に乾燥排ガスが焼却炉へ戻る際にも同様な熱損失が生じており、結果として平均 90 °Cの排ガスが焼却炉へ戻っていた。したがって、設計に対して 1.6 倍の熱量を乾燥に利用していたが、設計値の 63 %の汚泥しか処理されていなかった。しかし、この事例の問題はゴミ焼却炉と乾燥機を建設時の補助金の使途目的の問題で一体として設計できなかったことに起因しており、ゴミ焼却廃熱等の利用に関する本質的な問題ではない。しかし、今後の下水汚泥の緑農地利用を推進する上では、政策上の重要な課題である。

6-3-3-2 ゴミ焼却廃熱量と汚泥乾燥に必要な熱量の関係

これまで検討したゴミ焼却排熱利用の実態をもとに、人間一人あたりが排出するゴミと汚泥の熱的な関係を検討した。1995 年度でわが国の下水汚泥の総量は乾物で $1,690 \times 10^9$ g であり、処理人口普及率は 54 %であった⁶⁻¹⁶⁾。1995 年度の総人口は 12,526 万人であるので一人一日あたりの汚泥排出量は 68g であった。ここでは消化汚泥を対象としているので、VS を 75 %、消化率を 50 %と仮定すると汚泥排出量は 43g となる。ここで脱水汚泥の含水率を 80 %、乾燥汚泥の含水率を 20 %と仮定すると蒸発必要水分量は 161g となり、蒸発潜熱は 96kcal である。一方、人口一人あたり一日のゴミ排出量は 1,110g であり⁶⁻¹⁷⁾、含水率を加味した正味の発熱量は都市間で大きな差があるものの平均、 $1,500\text{kcal} \cdot \text{kg}^{-1}$ である⁶⁻¹⁸⁾ので、一人あたり一日の発熱量は 1,665kcal となる。ここでゴミ焼却炉での熱損失を 20 %、乾燥効率を 60 %、焼却炉からの熱の引き抜き可能な割合を H 市の実績から 50 %と仮定すると、人口一人一日あたりの蒸発可能水分量は 665g となる。したがってゴミ焼却排熱を利用することにより計算上は汚泥を十分に乾燥可能である。

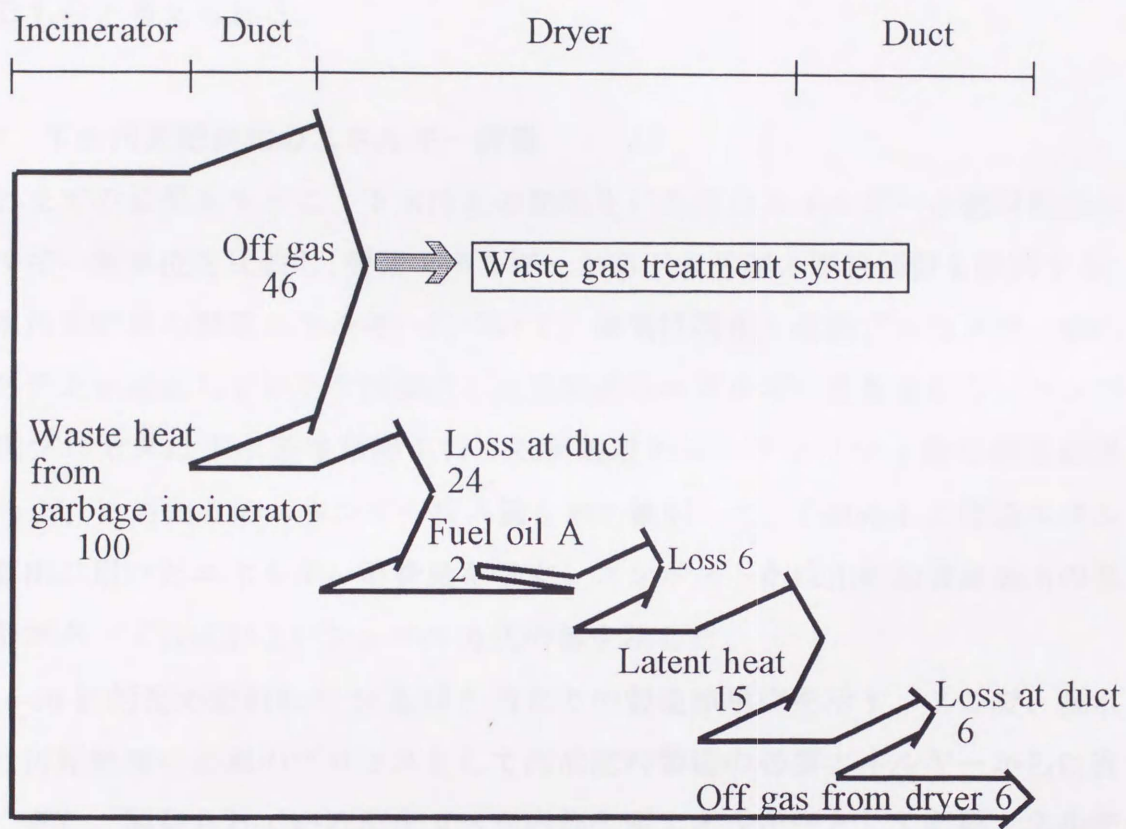


Fig.6-9 The heat balance diagram of the sewage sludge heat drying system using waste heat from the garbage incinerator (F Prefecture, H City)

今後、中小の処理場の建設が増加することが予想され、汚泥処理の集中化が検討されている。また、ゴミ焼却においてもダイオキシン対策から間欠的な運転が行われていた、中小の焼却場が連続運転が可能な大規模処理場に統合されることは必須である⁶⁻¹⁹⁾。この場合、廃熱利用として発電が行われるが、乾燥には発電後の質の低下した蒸気が十分に利用可能である。したがって生活系固形廃棄物処理施設として汚泥処理とゴミ処理が統合されることにより、相互の熱利用が可能になるものと考えられる。

3-3-4 下水汚泥肥料化のエネルギー評価

これまでの結果をもとに、下水汚泥の肥料化に必要なエネルギーと肥料製造のエネルギー原単位を比較し、製造エネルギーから下水汚泥の肥料価値を検討する。

下水汚泥肥料の製造エネルギーについて、嫌気性消化・乾燥プロセスは一般的なシステムを採用していた今回調査した処理場のエネルギー消費量から、コンポスト化プロセスは下水道事業団が行った実施設のユーティリティ費の調査結果⁶⁻²⁰⁾から N, P 当たりのエネルギー投入量を求め検討した。Table6-4 に製造エネルギー算出に用いたエネルギー消費量を示す。コンポスト化は比較的实施箇所が多い横型スクープ方式およびショベル方式の値を示した。

Fig.6-10 に汚泥の肥料化の N 及び P 当たりの製造原単位を示す。ここで、脱水までは汚泥処理の必須のプロセスとして汚泥肥料製造の必要エネルギーからは省いた。また、消費されている消化ガスも内部生産エネルギーとして必要エネルギーからは省いたが、嫌気性消化過程で消費されている A 重油は乾燥過程が無ければ消化ガスで十分に賄うことが可能なので、ここでは乾燥プロセスに必要なエネルギーと考えて肥料製造エネルギーに加えた。消化ガス、A 重油および電力の発熱量は Fig.6-3 と同様とした。また、汚泥中の窒素及びリン含有率をそれぞれ 5%と 2%とした。また、図中に示した化成肥料の製造エネルギーは既往文献によった⁶⁻²¹⁾。

化成肥料の製造エネルギーは N, P あたりそれぞれ 16 および $4.8 \times 10^3 \text{kcal} \cdot \text{kg}^{-1}$ と報告されている。これに対して従来型の嫌気性消化・乾燥プロセスでは N, P あたり、それぞれ 58 および $145 \times 10^3 \text{kcal} \cdot \text{kg}^{-1}$ であり、化成肥料に対して N で 3.6 倍、P に対して 30 倍となった。また、コンポスト化プロセスにおいても横型ス

Table6-4 Energy consumption of each fertirization process for sewage sludge

	Electric power (kWh·DSt ⁻¹)	Fuel oil A (l·DSt ⁻¹)
Anaerobic digestion-Heat drying (H treatment plant)	321	211
Composting		
Scoop	1060	
Shavel	680	5.5

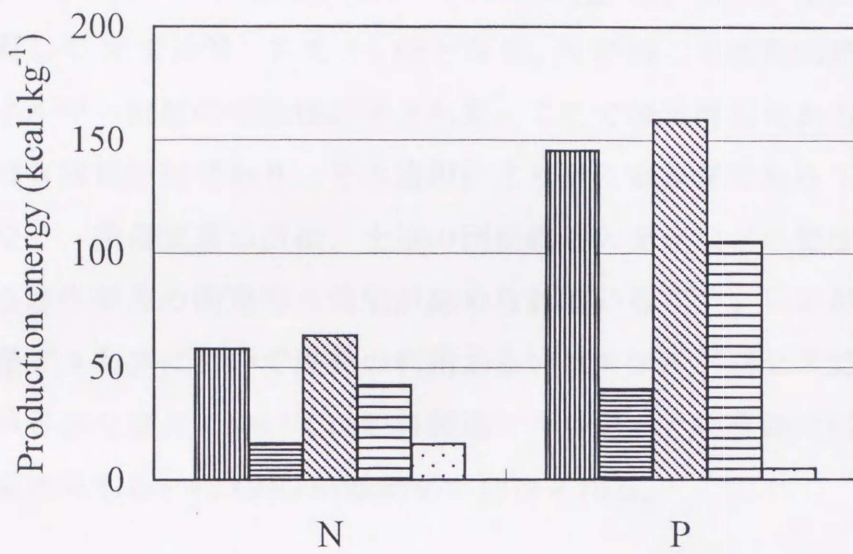


Fig. 6-10 Production energy of each sewage sludge fertilizer as N and P :

- Heat Drying Conventional
- Heat Drying Extra heat source
- ▨ Composting Scoop
- Composting Shovel
- ▤ Chemical fertilizer

クープ方式で N で 4 倍、P で 33 倍となり、横型スクープ方式に比べ機械動力エネルギー消費が少ないと考えられるショベル方式で N で 2.6 倍、P で 22 倍となった。ここで H 市のようなゴミ焼却廃熱等の利用が可能な場合、および嫌気性消化・乾燥プロセスの熱収支の自立が可能な場合は、N、P に対する製造エネルギーが、それぞれ 16.1 および $40.3 \times 10^3 \text{kcal} \cdot \text{kg}^{-1}$ と、なり、化成肥料製造エネルギーに対して N で同等、P で 8.4 倍となり、N に関しては化成肥料と同等までの製造エネルギー削減の可能性が示された。ここで嫌気性消化あるいはコンポスト化汚泥は有機質肥料であり、その施用により単に栄養素である N、P のみの供給だけでなく、微量元素の供給、土壌の団粒構造の発達などの物理性状の改良、施用による連作障害の回避等の効果が認められている^{6-22,23)}。したがって、嫌気性消化・乾燥プロセスにおいて廃熱の利用あるいはモデルプロセスで示した熱収支的に自立が可能な場合においては肥料製造エネルギーという側面においてもエネルギー削減効果あるいは GHG 削減効果が期待される。

6-3-5 汚泥処理プロセスにおける CH_4 、 N_2O 削減対策としての循環利用の適正化に関する解析評価

6-3-5-1 我が国の窒素収支および汚泥性状からの検討

川島によって示された我が国の食糧供給と消費過程における窒素の流れを Fig.6-11 に示す⁶⁻²⁴⁾。1992 年において $1,696 \times 10^9 \text{g}$ の窒素が供給され、そのうち $829 \times 10^9 \text{g}$ (50%) が飼料を含む食料であり、 $829 \times 10^9 \text{g}$ (36%) が化学肥料である。供給された窒素は農業、畜産、食品加工を経て、 $689 \times 10^9 \text{g}$ (40%) が生活排水として、 $367 \times 10^9 \text{g}$ (22%) が家畜糞尿として、 $337 \times 10^9 \text{g}$ (20%) が化学肥料の溶脱として環境へ放出される。これに対して 1955 年では $776 \times 10^9 \text{g}$ の窒素が供給され、 $104 \times 10^9 \text{g}$ (13%) が飼料を含む食料、 $533 \times 10^9 \text{g}$ (70%) が化学肥料であった。また、 $409 \times 10^9 \text{g}$ (53%) が生活排水として、 $13 \times 10^9 \text{g}$ (2%) が畜産排水、 $221 \times 10^9 \text{g}$ (28%) が化学肥料の溶脱として環境へ放出されていた⁶⁻²⁵⁾。

日本の総人口は 1955 年で 8,900 万人、1992 年で 12,400 万人であり、約 1.4 倍に増加している。ここで環境へ放出される窒素の一部は農地等で肥料として循環利用されているが、Fig.6-11 では考慮されていない。しかしリサイクル率を 1960

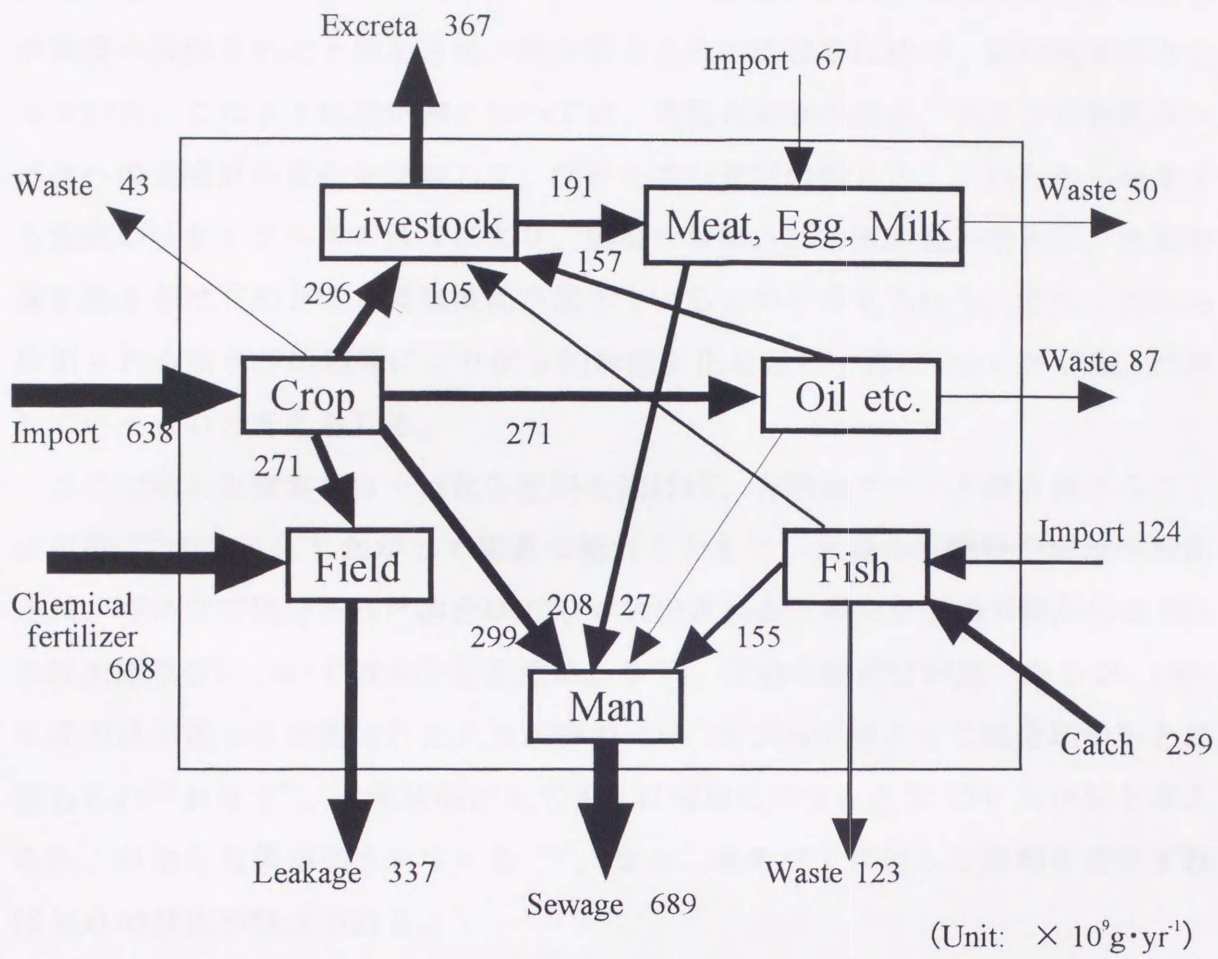


Fig.6-11 Food supply represented by nitrogen flow in Japan in 1992⁶⁻²⁵⁾

年で 59%、1987 年で 24%とする報告もあり^{6-26,27)}、これを 1955、1992 年にそれぞれ当てはめたとして、1955 年および 1992 年では 320×10^9 g、 1290×10^9 g の窒素が環境へ放出されたと推定され、約 4 倍と人口の増加率に比べ、高い増加率となっている。このように我が国においては、食糧自給率の低さ、および動物性タンパクへの食嗜好の変化を反映して、飼料を含む食料の輸入と、これらから発生する窒素のリサイクル率の低下により、環境へ放出される窒素量が増大し、水域の富栄養化をはじめとする環境攪乱が起きているものと考えられる。また、これら放出される窒素が処理等により化学的形態変化を起こす際に N_2O が生成、放出していくものと考えられる。

ここで示した窒素フローは化学肥料を除けば、有機物フローと置き換えることが可能⁶⁻²⁸⁾である。したがって窒素の流れとともに、大量の有機物が環境へ放出され、埋め立て処分された場合は CH_4 が放出される。埋め立て処分地からの CH_4 の放出原単位については大きな誤差があり⁶⁻²⁹⁾、正確な推定は困難であるが、1994 年度の我が国から放出された人為起源の CH_4 の 24%が埋め立て処分地からと見積もられており⁶⁻³⁰⁾、全地球的に見ても人口増加に伴う大きな CH_4 放出源と考えられ、早急な対策が望まれている⁶⁻³¹⁾。また、埋め立てに対して焼却を選択すれば N_2O の放出が懸念される。

下水汚泥処理はこのような人間の食を中心とした窒素、有機物フローの中に位置しており、これまでの検討から CH_4 、 N_2O 対策には肥料化が最も効率的であり、肥料費の削減にもつながることは明らかである⁶⁻³²⁾。

下水汚泥肥料は肥料取締法上、特殊肥料として扱われ、汚泥乾物 1kg あたりヒ素 (As) 50mg 以下、カドミウム (Cd) 5mg 以下、水銀 (Hg) 2mg 以下の基準が設定されている。また、コンポスト化汚泥は「おでい堆肥」、乾燥汚泥は「おでい肥料」にそれぞれ分類される。下水汚泥の緑農地へ利用に関して重金属含有量が問題となってきたが、肥料化汚泥の原料となる脱水汚泥中に含まれる As、Cd、Hg 濃度の最近の測定結果では、50-55 サンプルの結果でそれぞれ平均 6.44、2.09、 $0.88\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ と基準を十分に下回る結果となっている。また、農村集落排水処理施設からの脱水汚泥の測定結果では As、Cd、Hg 濃度がサンプル数 16 でそれぞれ平均 4.15、2.42、 $0.62\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ と同様な結果が示されている^{6-33,34,35)}。したがって肥料取締法による重金属濃度の基準は、肥料化の問題とはならないと考えられる。む

しる下水汚泥中には人間由来の亜鉛 (Zn) が、 $800\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 程度と比較的高濃度に含まれ、地域によっては母材の形質として土壌の Zn 濃度が $100\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 以上の場合もあり⁶⁻³⁶⁾、「農用地における土壌中重金属等の蓄積防止に係る管理基準とその運用」で示された農用地土壌中の Zn 濃度基準 $120\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ が下水汚泥肥料施用の制限となる場合がある。

農地への窒素の投入は、窒素過多による作物への影響、農地からの流出水中の窒素濃度が水道基準である $10\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ を越えない等を考慮し、作物による窒素回収率を 50%と仮定すると、年間 $200\text{-}250\text{kg}\cdot\text{N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ が適切であると考えられている^{6-37,38)}。これは現在の農耕地面積を $4 \times 10^6\text{ha}$ とした場合、年間 $800\text{-}1,000 \times 10^9\text{g}$ の窒素が投入可能なことを示している。

Fig.6-11 によると 1992 年における生活排水からの窒素放出量は $689 \times 10^9\text{g}$ であるが、通常の活性汚泥法では流入する窒素の 30%程度が汚泥に移行する^{6-39,40,41)}。したがって生活排水から窒素放出量のうち肥料化が可能な部分は $207 \times 10^9\text{g}$ となる。また、家畜ふん尿についても同様に考えると、Fig.6-11 に示した、すべての食料に係る消費されて放出される肥料化が可能な窒素のリサイクルが窒素収支上は可能となる。しかし、化学肥料を有機質肥料に置き換えることで成立するリサイクルであり、機械撒きのための粒状化、流通性を確保するために低含水率による長期の保存性および貯蔵時の高密度の確保、施用時の安全性を確保するために病原菌および種子の完全な死滅、価格の上昇を抑えるために肥料化エネルギーコスト低減等が必須条件として考えられる。

本研究で示した、下水汚泥消化・乾燥プロセスは熱プロセスであり、低含水率化、高温乾燥による病原菌等の死滅が容易であり、回転乾燥機を用いることにより、乾燥過程での造粒が可能である。また、プロセスの効率化、肥料化エネルギーコストの低減が可能である。

6-3-5-2 循環利用促進のための政策課題等の検討

下水汚泥を含む有機質肥料は肥料取締法で特殊肥料として Cd、Hg、As の含有量のみの規制が設けられている。これまでのように、ある特定された地域での循環利用の場合は、循環される地域における経験的な品質評価 (評判) のみで問題は無いと考えられる。しかし、広範囲での流通を考えた場合、有機質肥料は化学

肥料と違い、その成分が一樣ではないことから、有機物の土壌改良効果を考慮した総合的な品質規制と品質の表示義務が必要である。1994年に全国農業共同組合中央会（全農）から「有機質肥料等推奨基準に係わる認証要項」により肥料製造者が基準に基づき品質表示を行い、自己認証することが提案された。内容的には、原料の表示、品質表示を要する基準項目として有機物含有率、炭素一窒素比、窒素全量、リン酸全量、カリウム全量、アルカリ分、銅・亜鉛濃度および幼植物試験が示されている。全農の提案は、有機質肥料の流通および利用の拡大の面からは大きな前進であるが、あくまで事業者による自己認証であり、分析数値の更新期間も3年と長く、基準そのものが形骸化される可能性が大きい。そこで法的な強制力が望まれ、循環共生時代における肥料取締法の改訂が望まれる。

下水汚泥の場合、Hgの特殊肥料としての基準、 $2\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ を越える場合があり、循環利用の障害となっている場合がある。生活排水の場合、Hgの排出源は医療機関であり、これら機関で除外施設等が整備されれば、問題が無くなる場合が多い。しかし、除外施設の設置および維持管理には資金の投入が必要であり、公的補助等に関して明確なガイドラインが必要である。

今後ダイオキシン対策のためゴミ焼却炉は連続運転が基本となり、地方に分散している準連続炉⁶⁻⁴²⁾の統合、集中化が図られると考えられる。一方、下水処理場も大都市での整備が終了し、今後は、中小規模の処理場が増加し、汚泥処理の効率化のために集中処理が増加する⁶⁻⁴³⁾と考えられている。したがって、将来においては集中大規模化する下水汚泥処理施設とゴミ処理施設のハイブリット化を図り、地域におけるエネルギー・リサイクルセンターとして位置づけていく必要がある。このような場合は、スケールメリットの発揮されやすい熱乾燥プロセスの導入が有利であり、当該地域における浄化槽汚泥の受け入れ、畜産排水の受け入れも含めて、嫌気性消化タンクを中心とした循環が形成される。このような循環の形態は過去における「肥溜め」の形態に他ならないが、現代の循環利用として評価し、活用していく必要がある。

一方、極めた分散された特定環境保全公共下水道のような場合は、維持管理上、消化ガスの取り扱いを含めた、熱プロセスの導入は困難であると考えられ、堆肥盤等による野積方式の堆肥化プロセスの導入が有利と考えられる。したがって、下水汚泥の肥料化では処理規模による方式の選択が重要である。

下水処理は公共事業であるため、生産された汚泥肥料についても、既存業者への影響あるいは当該行政区域以外への流通への配慮から、販売流通が自主規制される傾向にあった。このような背景から、肥料製造への行き詰まりが見られる場合がある。また、下水道における循環利用は公共事業費の導入を前提とした、採算を考慮しないものが多く、継続が困難になりつつあるものがある。このように循環利用には公共事業としての限界あるいは障害があり、今後は下水処理分野の民営化を視野に入れ、発生する廃棄物の循環利用に市場原理の導入が必要であると考えられる。

6-4 まとめ

下水汚泥の肥料化、緑農地利用を目指した嫌気性消化・乾燥プロセスについて検討した結果、以下の点が明らかになった。

- (1) 既存処理場の消化-乾燥プロセスを調査した結果、従来型の熱風乾燥機では脱臭に乾燥で消費されるエネルギーの約 50%が必要になることが明らかになった。
- (2) 乾燥プロセスの熱収支の改善を図るためにスクラバーによる温水回収、回収温水による消化タンクの加温、スクラバー通過後の乾燥排ガスの生物脱臭といったシステムを仮定し計算を行ったところ、補助燃料を不要とするための条件は、消化ガス発生率が $0.45\text{m}^3\cdot\text{kg-VS}^{-1}$ の場合は投入汚泥濃度が 4 % 以上であり、 $0.55\text{m}^3\cdot\text{kg-VS}^{-1}$ の場合は 3 % 以上であった。
- (3) 汚泥乾燥へのゴミ焼却排熱の利用の実例について調査した結果、焼却炉と乾燥機をひとつのシステムとして設計を行えば非常に有効な手段であることが判明した。今回調査した運転実績から、人間一人当たりの放出するゴミの熱量で、一人当たりの放出する消化汚泥を十分に乾燥可能であると試算された。
- (4) 汚泥肥料の製造エネルギーと化成肥料の製造エネルギー比較した結果、N 当たりで消化乾燥汚泥で約 2 倍、コンポスト化汚泥で約 3-4 倍となり、P 当たりでは消化乾燥汚泥で約 20 倍、コンポスト化汚泥では約 20-30 倍程度となった。しかしゴミ焼却廃熱等が利用できる場合には N 当たりの必要熱量は化成肥料と同等となり、下水汚泥を窒素肥料として使用することによる窒素肥料製造エネルギーの削減効果が期待できる結果となった。

(5) 下水汚泥を農地へ循環利用する場合、従来は含有する重金属濃度が問題であったが、最近の調査結果からは肥料取締法により、規制されている Hg、As、Cd について問題がないことが示された。むしろ我が国の農地における窒素の受け入れ限界が問題であり、これまで示されている 1992 年における食料の共受給における窒素収支によれば、環境へ放出される窒素のすべての循環利用が可能と考えられるが、今日の農業形態を考えれば、化成肥料と比較した取り扱い性、経済性の向上が重要であると考えられた。

第7章 総括、今後の課題および展望

7-1 本研究の総括

CH₄、N₂O は CO₂ に次ぐ主要な GHG であり、その放出源および放出量の推定精度が非常に低いのが現状である。また、CO₂ を基準とし、一定期間を想定した相対的な放射効果を表す値である GWP は積算期間を 100 年とした場合で CH₄ が 21、N₂O が 310 と大きく、今後の放出状況によっては温暖化に大きな影響を与える。特に N₂O は大気中での寿命が 120 年と長く、温暖化への寄与が長期にわたり持続するため、緊急な削減対策が必要である。

COP3 において CO₂、CH₄、N₂O、HFCs、PFCs、SF₆ を対象ガスとして個々の GWP を用いて、GHG の総体として削減を行う削減目標の設定がなされた。しかし削減戦略の策定には CH₄、N₂O の放出源および放出量の推定精度の低さが大きなネックになると考えられている。下水処理プロセスは大量の有機物および窒素を処理しており、CH₄、N₂O の生成、放出が考えられる硝化、脱窒、メタン発酵、燃焼の各プロセスが内在していることから CH₄、N₂O の潜在的放出ポテンシャルの高い放出源と考えられる。しかし、1997 年度に気候変動に関する国際連合枠組条約事務局に提出された、GHG の放出・吸収に関する報告書（第 2 回日本報告書）では下水処理プロセスからの N₂O 放出量についてはデータの不足から記載を見送った。また、CH₄ 放出量については記載がなされたものの精度は低いと自己評価されている。本研究でこのような背景から CH₄、N₂O の潜在的な放出ポテンシャルが高いと考えられる下水処理プロセスからの放出および削減手法に関して検討を行った。

7-1-1 水処理プロセスにおける CH₄、N₂O の放出特性と制御

一般的な活性汚泥法ではエアレーションタンクおよび汚泥濃縮槽からの CH₄ の放出が卓越していた。前者は流入下水中に含まれる CH₄ に汚泥沈殿部分等が嫌気になりやすい最初沈殿池で生成された CH₄ と汚泥返流水に含まれる CH₄ が加わり、エアレーションタンクに流入し、エアレーションにより追い出されることに起因している。これは、エアレーションタンク流入水中の溶存 CH₄ の時間

あたりの流入量とエアレーションタンクからの放出量がほぼ一致することからも支持された。したがって水処理プロセスにおける CH_4 の削減は沈殿池での汚泥の滞留時間を短縮することであり、汚泥の引き抜き回数を多くすること等が考えられる。また、好気単独処理の活性汚泥法と嫌気処理と好気処理を組み合わせた、生物学的窒素・リン除去プロセスである A_2O 法との比較で、 A_2O 法からの CH_4 の放出量が約 1/3 程度となることが認められた。これは A_2O 法では最初沈殿池の越流水が反応タンクに流入し、嫌気槽および無酸素槽（脱窒槽）を流下する間に、溶存する CH_4 が無酸素槽で進行する脱窒反応の水素供与体として消費された可能性が示された。

一般的な活性汚泥法では、 N_2O はエアレーションタンクからの放出が卓越しており、その放出量はプロセスの硝化の有無に大きく依存していた。エアレーションタンク内の NH_4^+ 、 NO_3^- 、 N_2O 各濃度の挙動から、プロセスで硝化が進行している場合は、その放出は返送汚泥中の N_2O のタンク内への持ち込み、汚泥返送により持ち込まれる NO_3^- のエアレーションタンク前段での脱窒、およびタンク内の硝化反応に起因すると考えられた。また、 N_2O の放出量はエアレーションプロセスでの NO_3^- 生成量に対して比例的に増加する傾向が見られた。このように N_2O はエアレーションタンク内の硝化および脱窒反応に起因して生成、放出されることが明らかになった。今回調査を行った処理場では硝化促進運転により硝化がほぼ 100% 進行していた。しかし、硝化が不十分に進行した場合には今回の調査結果の 20-80 倍の N_2O が放出するとの報告がある。さらに、 A_2O 法と活性汚泥法との比較において N_2O の放出量は 1/8 程度となり、放出量の削減に対する嫌気の組み込みの効果が認められた。これらのことから、スムーズな硝化の進行と適正な嫌気条件の組み込みが、 N_2O の放出抑制に重要と示唆された。

A_2O 法のような生物学的栄養塩除去プロセスは、富栄養化対策として今後、重要な位置づけにあるが、窒素除去のために硝化と脱窒の組み合わせで運転されることから、操作条件によっては特に N_2O 放出量の増加が懸念される。したがって基本的な生物学的窒素除去プロセスである AO 法について操作条件と N_2O 放出の関係を検討した。その結果、硝化反応の進行に伴う好気槽からの N_2O 放出量は、SRT10 日の場合が SRT20 日の約 2 倍に達したことから、SRT を十分に長く保持し、硝化率を高く維持することが N_2O の放出抑制に重要であることが明ら

かになった。また、嫌気槽からの N_2O の放出は、好気槽から持ち込まれる DO 濃度に影響された。したがって、好気槽の DO 濃度を硝化反応に影響が無い範囲で制御することで、嫌気槽からの放出が低減されると考えられた。

以上より、本研究および既往の研究結果から、嫌気条件を適正に組み込み、硝化、脱窒が効率的に機能する運転操作条件が確保された場合は、 N_2O の放出が抑制されることが明らかになった。また、このような条件下では CH_4 放出削減の可能性が示され、さらに、閉鎖性水域の富栄養化原因物質である窒素、リンの効率的な除去が達成され、生活排水処理の分野での CH_4 、 N_2O 削減対策と富栄養化対策がリンクしうるものと考えられた。

7-1-2 汚泥処理プロセスにおける CH_4 、 N_2O の放出特性と制御

汚泥濃縮槽からの CH_4 の削減は、初沈汚泥と余剰汚泥の濃縮特性および分解特性の違いに注目し、沈降性に優れるが分解性が高い初沈汚泥と、分解性は低いが沈降性の悪い余剰汚泥を分離して個々に濃縮する手法⁷⁻¹⁾が有効と考えられた。

汚泥処理プロセスの内、嫌気性消化プロセスはメタンの生産プロセスであるが、発生したメタンは消化タンクの加温等に利用され、余剰ガスは余剰ガス燃焼装置により焼却処分されるため、基本的にメタンの放出は無いと考えられる。しかし、現在、下水汚泥の嫌気性消化プロセスで発生した CH_4 の約 30%が有効利用されずに焼却処分されており、この部分の有効利用を図ることが、下水処理プロセスからの総体としての GHG 削減に繋がる。現在、発生する下水汚泥の約 60%以上が焼却処分されており、諸外国の事例と比べても、非常に高い水準にあるのが特徴である。

N_2O の放出量は焼却炉のタイプと焼却される脱水汚泥の脱水助剤の違いに影響され、焼却された下水汚泥中の窒素分の N_2O への変換率は、高分子系脱水汚泥を焼却する場合は 5.9-18%と、石灰系脱水汚泥の場合の 1.3-3.5%と比較して高く、特に流動床炉で高分子系脱水汚泥を焼却した場合に 6.1-18%と高い割合を示す傾向にあった。石灰系脱水汚泥の場合は変換率が炉の種別に依らず低く、脱水助剤として脱水汚泥中に含まれる $Ca(OH)_2$ が燃焼過程で CaO に変化し、酸化剤として作用した影響と予想された。特に流動床炉の場合、 N_2O への変換が NO_x への変換にトレードオフする結果となった。現在、脱水および焼却プロセスでの維持

管理性の良さから、高い N_2O 転換率が認められた高分子系脱水汚泥と流動床炉の組み合わせが増加しており、今後 N_2O 放出量の増加が懸念された。しかし、一般的な焼却温度である 800°C 付近は、燃焼プロセスでの N_2O 生成の至適温度付近にあたる。 N_2O の生成は燃焼温度に非常に強く依存しており、燃焼温度の上昇により N_2O の生成が低減されるが、 NO_x の生成が増加し、炉本体の耐用年数に影響があると考えられている。したがって運転操作条件の変更による放出削減には限界があると考えられた。

下水汚泥を肥料として農地へ施用した場合も N_2O は生成、放出されるが、施用された窒素の N_2O への転換率は 0.5% 以下と報告されている。下水汚泥は、これまで有機質肥料として利用されており、焼却プロセスから肥料化プロセスへの転換が重要な N_2O 削減対策であると考えられた。一般的に、廃棄物のリサイクルには多大なエネルギー消費を伴う場合があり、肥料化におけるエネルギー消費の把握および低減は資源の循環利用として非常に重要である。

有機物を肥料として用いる場合には、易分解性有機物の減量が必須であり、肥料化プロセスはコンポスト化プロセスと嫌気性消化・乾燥プロセスである。本研究では嫌気性消化プロセスから発生する CH_4 の有効利用が図れる、原理的に N_2O の生成が無い点に注目して嫌気性消化・乾燥プロセスを取り上げ、肥料化プロセスとしてのエネルギー消費の低減を図るために、プロセスの熱収支の改善を中心に検討を行った。その結果、熱収支の改善により消化プロセスで発生する消化ガスのみで乾燥プロセスに必要な熱量を賄うことが可能であることが明らかになった。また、汚泥乾燥へのゴミ焼却排熱の利用の実例について調査した結果、焼却炉と乾燥機をひとつのシステムとして設計を行えば、非常に有効な手段であることが判明した。今回調査した運転実績から、人間一人当たりの放出するゴミの熱量で、一人当たりの放出する消化汚泥を十分に乾燥可能であると試算された。

汚泥肥料の製造エネルギーと化成肥料の製造エネルギー比較した結果、N 当たりで消化乾燥汚泥で約 2 倍、コンポスト化汚泥で約 3-4 倍となり、P 当たりでは消化乾燥汚泥で約 20 倍、コンポスト化汚泥では約 20-30 倍程度となった。しかしゴミ焼却廃熱等が利用できる場合には、N 当たりの必要熱量は化成肥料と同等となり、現実的なりサイクルが可能となる。

7-1-3 CH₄、N₂Oの削減量の評価

本研究結果から、1995年度における、水処理プロセスからの N₂O 放出量を 2.5×10^8 g と推定した。しかし、調査時において硝化が非常にスムーズに進行しており、本研究で示された N₂O の放出が抑制される条件が整っていたと思われ、放出量を過小評価している。これまで明らかにしてきたように N₂O の生成は硝化の程度に大きく影響される。一般的な活性汚泥法による処理は BOD の除去を目的としたもので、SRT の設定も 5 日程度と短く、条件によっては不十分な硝化が起きる可能性がある。全国の下水处理場の硝化の程度を考慮し、N₂O の年間放出量を 2.7×10^9 g とする試算もあるが⁷⁻²⁾、適正な硝化・脱窒運転を行うことにより、その大部分の削減が可能であると考えられる。また汚泥処理プロセスでは、焼却プロセスによる N₂O の放出を 4.0×10^9 g と推定した。ここで焼却されていた汚泥をすべて農地利用とし、施肥による転換率を 0.5% とすると、N₂O の年間放出量は 0.25×10^9 g となり、計算上は 3.8×10^9 g 程度の削減が可能となる。水処理プロセスで 2.7×10^9 g という放出量の試算が正しいとすると、汚泥処理プロセスでの放出量を合わせて 6.3×10^9 g 程度の削減が可能となる。

CH₄ については 1995 年度における放出量を 6.7×10^9 g と推定したが、最初沈殿池における汚泥管理および初沈汚泥と余剰汚泥の分離濃縮を行うことで削減が期待される。さらに、適正な嫌気条件の組み込みによる削減効果も期待される。現在、発生汚泥の約 20% が脱水汚泥で埋め立て処分されている。下水汚泥成分の 50% が炭素、1995 年度の発生汚泥量が $1,689 \times 10^9$ g とすると、埋め立てられた炭素は 169×10^9 g となる。ここで通常、埋め立てられた炭素の 50% が CH₄ へ変換するものと考えられている。したがって、埋め立てられた下水汚泥からは炭素ベースで 85×10^9 g の CH₄ が放出されたと推計された。

畑地等への有機物施用時の CH₄ への変換率は 1% 程度と見積もられており⁷⁻³⁾、N₂O 同様、肥料化による循環利用の促進により、埋め立てに伴い放出される CH₄ の大部分が削減可能となる。また、肥料化において嫌気性消化・乾燥プロセスを用いることにより、発生する CH₄ の有効利用が図られ、下水処理プロセス総体としての GHG 削減が期待される。

7-2 課題および展望

下水道は重要な社会資本であり、その整備の拡充により良好な衛生環境が保持されており、今後とも整備の推進が期待される。また、水環境の保全にも大きな役割を有しており、今後は閉鎖性水域の富栄養化対策として BOD のみならず、窒素、リンの除去が積極的に推進されていくものと考えられる。一方で GHG の増加による地球の温暖化が進行し、温暖化による気候帯の変化に伴う、植生の変化、異常気象の発生等を原因とする社会不安の増大が懸念されている。下水処理プロセスは大量の有機物および窒素を処理しており主要な GHG である CH_4 、 N_2O の潜在的放出ポテンシャルの高い放出源と考えられ、本研究では放出量、放出機構、削減手法について検討を行った。その結果、 CH_4 、 N_2O の削減に向けて一定の方向性は示せたが、真に下水道を環境と共生した社会資本とするための課題を以下に示す。

- (1) 富栄養化対策と CH_4 、 N_2O 削減対策がリンクしうることを示したが、硝化、脱窒、メタン発酵の各プロセスを内在する AO あるいは A_2O 法等の生物学的窒素・リン除去プロセスについて、実処理施設での長期間にわたる調査事例が無く、水温等の環境因子、あるいは降雨の影響等の外的因子と CH_4 、 N_2O 放出の関係を明らかにする必要がある。
- (2) 今後、水域の富栄養化対策として下水処理プロセスでの AO、 A_2O 法の普及は重要であるが、一般的な活性汚泥法と比べると処理時間が長くなるため、エネルギー消費が増加し、施設容積も増加する。したがって単に CH_4 、 N_2O の削減効果のみならず、エネルギー消費および施設容積の増加に伴う CO_2 放出の増大をライフサイクルアセスメント (LCA) 手法を用いて算出し、下水処理プロセスからの GHG の放出を総合的に評価する必要がある。
- (3) 本研究では活性汚泥法に代表される浮遊汚泥による処理プロセスについて検討を行ったが、AO、 A_2O 法では反応時間および装置容積の削減を目標とし、反応タンク内での微生物濃度を高めるために、流動担体をタンク内へ投入する手法が開発されつつあり^{7-4,5)}、一部実用化されている^{7-6,7)}。このような手法は、既設の土地利用が制限される処理場の窒素・リン除去プロセス化には非常に有効であり、今後普及していくものと考えられる。しかし、これらプロセスから CH_4 、 N_2O 放出には知見が無く、削減手法も含めて検討する必要がある。

ある。

- (4)本研究では汚泥処理プロセスからの N_2O 削減手法として、汚泥の施肥に伴う窒素の N_2O への転換率が、焼却プロセスの場合に比べ低いこと (0.5% : 11%) に注目し、下水汚泥の肥料化プロセスとして、 CH_4 の有効利用が図れる嫌気性消化・乾燥プロセスについて熱収支の効率化を検討した。今後、下水処理プロセスにおいて AO、 A_2O 法の窒素・リン除去プロセスの普及が重要であるが、汚泥処理として嫌気性消化プロセスを組み合わせると汚泥に蓄積されたリンが嫌気性消化プロセスで溶脱し、脱水プロセスの段階でろ液として水処理プロセスへ返流され、効率的なリン除去の阻害となることが知られている。しかし現在嫌気性消化プロセスへセルロース等を添加し、溶脱するリン濃度を削減する方法⁷⁻⁸⁾、あるいは溶脱したリンをリン酸アンモニウムマグネシウムとして回収する方法が開発されている⁷⁻⁹⁾。後者の場合はマグネシウムの供給がネックであったが海水を利用する方法が検討されている⁷⁻¹⁰⁾。このように下水処理プロセス全体として環境調和型システムを構築する必要がある。
- (5)本研究では活性汚泥法あるいはそれに準じた方法について検討を行ってきたが、開発途上国では電力事情の関係で土壌処理、ラグーン処理等のエアレーションを行わない処理方法が多く採用されている。土壌処理からは N_2O への転換率が 5-10%以上になることが知られている^{7-11,12)}。また、ラグーン処理等のエアレーションを行わない処理では、原理的に硝化、脱窒がスムーズに進行しないことが予想され、 N_2O の放出しやすい条件が満たされる可能性がある。また、負荷条件によっては容易に嫌気状態となり、 CH_4 の放出の増加が考えられる。したがって開発途上国の人口および人口増加率を考えると、地球規模で下水処理プロセスからの CH_4 、 N_2O 放出削減には、これら自然型処理手法に対する検討が重要である。
- (6)下水汚泥の肥料化プロセスは GHG 削減対策のみならず循環共生型社会の構築の面からも重要である。しかし、世界的に見て食料が輸出入されている現状では、窒素の国家間による過不足が生じている⁷⁻¹³⁾。したがって今後は下水汚泥のような有機質肥料となりうる物質の循環利用を、一国のみで検討するのではなく、グローバルな視点で循環利用を図る必要がある。この場合、世界標準的な品質基準の制定による安全性の確保が必須となる。

環境破壊という言葉が登場して久しいが、世界的に見た場合、環境が改善してるとは言い難い状況である。地球の温暖化、酸性雨、オゾン層の破壊、いわゆる「環境ホルモン」に象徴される微量な化学物質による汚染、人口増加とそれに伴う水域の汚濁進行による相乗的な水不足と水不足に起因する地域紛争の勃発⁷⁻¹⁴⁾、森林破壊と大規模な森林火災等、人間活動に原因する環境問題が多発している。下水処理プロセスは人間の排泄物を処理する「環境に優しい」プロセスであるが、操作条件あるいはシステム構成によっては GHG としての CH₄、N₂O の大きな放出源となる可能性もある。世界人口の大部分を占める開発途上国では生活排水の処理が非常に立ち遅れており、今後の普及のための技術協力は我々の責務である。しかし、単に水質の改善を目指すだけでなく、温暖化および有機質資源の循環利用を視野に入れた協力を推進する必要がある。

まさしく "Think globally, Act locally" のコンセプトが重要と考えられる。

参 考 文 献

第1章

- 1-1) 森島 賢、金井道夫、大賀圭治、小山 修、中川光弘, 世界は飢えるか, 農文協, 東京, pp17-18 (1995)
- 1-2) ヴィスター・R. ブラウン (編), 地球環境白書 1998-99, ダイヤモンド社, 東京, pp6-20 (1998)
- 1-3) 気象庁 (編), 地球温暖化の実態と見通し, 大蔵省印刷局, 東京, pp158-163 (1996)
- 1-4) 環境庁地球環境部 (監), IPCC 地球温暖化第二次レポート, 中央法規, 東京, pp24-31 (1996)
- 1-5) 第3回気候変動枠組条約締約国会議 (COP3) 「京都議定書」
- 1-6) 環境庁 (編), 京都議定書と私たちの挑戦, 大蔵省印刷局, 東京, pp39-42 (1998)
- 1-7) 川島博之, 食料の生産と水質汚濁, 用水と廃水, 37, 881-885 (1995)
- 1-8) 杉浦則夫, 霞ヶ浦におけるアノの発生と対策, 水環境学会誌, 17, 2-6 (1994)
- 1-9) 須藤隆一 (監), 環境庁水環境研究会 (編), 内湾・内海の水環境, ぎょうせい, 東京, pp87-106 (1996)
- 1-10) 川島博之, 東京湾流域における窒素の流れ—富栄養化と食料、農業—, 用水と廃水, 35, 790-794 (1993)
- 1-11) Sugiura, N., Nishimura, O., Inamori, Y., Oouchiyama, T., Sudo, R., Grazing characteristics of musty odor compound producing *Phormidium tenue* by a microflagellate *Monas guttula*, *Water Research*, 31, 2792-2796 (1997)
- 1-12) 彼谷邦光, アノの有毒物質の毒性について, 水環境学会誌, 17, 551-556 (1994)
- 1-13) 菅原 繁、黒川真弓、真柄泰基、胡 建英, *Microcystis spp.* コロニー由来の有機物質がカオリン粒子の表面電化に与える影響, 水道協会雑誌, 66 (749) 22-31 (1997)
- 1-14) 岩崎好陽、立市祐久、上野広行, 固定発生源からの N_2O 排出状況とその生成に関する考察, 大気汚染学会誌, 27, 85-91 (1992)
- 1-15) 安田憲二、高橋通正、矢島 巖、金子幹宏, 下水汚泥焼却に伴う亜酸化窒素の排出挙動, 廃棄物学会論文集, 5, 142-150 (1994)

第2章

- 2-1) 綿拔邦彦 (編), 100 億人時代の地球, 農林統計協会, 東京, pp1-16 (1998)
- 2-2) レスター・R. ブラウン (編), 地球環境白書 1998-99, ダイヤモンド社, 東京, pp6-20 (1998)
- 2-3) IPCC, Climate Change 1995 : Impacts, adaptation and mitigation of climate change ; Scientific technical analyses, Cambridge university press, New York, pp427-468 (1996)
- 2-4) IPCC, Climate Change 1995 : The science of climate change, Cambridge university press, New York, pp56-57 (1996)
- 2-5) A. Neftel, E. Moor, H. Oeschger and B. Stauffer, Evidence from polar ice cores for the increase in atmospheric CO₂ in the past two centuries, Nature, 315, 45-47 (1985)
- 2-6) D. M. Etheridge, G. I. Pearman and F. de Silva, Atmospheric trace gas variations as revealed by air trapped in an ice core from Law Dome, Antarctica, Annals of Glaciology, 10, 28-33 (1988)
- 2-7) E. J. Dlugokencky, L. P. Steele, P. M. Lang and K. A. Masarie, The growth rate and distribution of atmospheric methane, Journal of Geophysical Research, 99, 17021-17043 (1994)
- 2-8) 陽捷行 (編), 土壌圏と大気圏, 朝倉書店, 東京, pp 68-76 (1994)
- 2-9) H. Kawashima, M. J. Bazin and J. M. Lynch, Global N₂O balance and nitrogen fertilizer, Ecological Modelling, 87, 51-57 (1996)
- 2-10) IPCC, Climate Change 1992, Cambridge university press, New York, pp14-15 (1993)
- 2-11) IPCC, Climate Change 1995 : The science of climate change, Cambridge university press, New York, pp21-25 (1996)
- 2-12) 建設省都市局下水道部 (監), 平成 9 年日本の下水道, 日本下水道協会, 東京, pp7-11 (1997)
- 2-13) 平成 10 年下水道年鑑, 水道産業新聞社, 東京, pp66-63 (1998)
- 2-14) 橋本奨、須藤隆一 (編), 新しい活性汚泥法, 産業用水調査会, 東京, pp41-86 (1990)
- 2-15) 水落元之、落修一、佐藤和明, 下水汚泥のエネルギー利用に関する調査, 土木研究所資料, 3146, 173-184 (1992)
- 2-16) 建設省都市局下水道部、(社) 土木学会, 環境に優しい下水道のあり方に関

- する調査, pp29-36(1992)
- 2-17) 高橋正宏、鈴木穰, 微生物固定化法を用いた排水中からの窒素・りん除去法, 土木技術資料, 37(8) 32-37(1995)
- 2-18) 村上忠弘, 下水汚泥濃縮技術の動向, 月刊下水道, 13(12) 7-12(1990)
- 2-19) 落修一、中村栄一、尾崎正明, 地球温暖化対策における下水汚泥嫌気性消化法の役割, 第1回日本水環境学会シンポジウム講演集, 草津, pp149-150(1998)
- 2-20) 伊藤敏彦、竹内徹夫, 下水汚泥脱水技術の最前線, PPM, 1991(2) 35-43(1991)
- 2-21) 建設省都市局下水道部(監), 平成9年日本の下水道, 日本下水道協会, 東京, pp218(1997)
- 2-22) Matthews, P., (ed.) A global atlas of wastewater sludge and biosolids use and disposal, IAWQ scientific and technical report No.4, pp49-52(1997)
- 2-23) Metcalf & Eddy, Wastewater Engineering(3rd edition), McGraw-hill, New York, pp881-888(1990)
- 2-24) 日本下水道協会, 平成7年度版下水道統計要覧, pp83(1997)
- 2-25) 岩崎好陽、立市祐久、上野広行, 固定発生源からの N_2O 排出状況とその生成に関する考察, 大気汚染学会誌, 27, 85-91(1992)
- 2-26) 安田憲二、高橋通正、矢島 巖、金子幹宏, 下水汚泥焼却に伴う亜酸化窒素の排出挙動, 廃棄物学会論文集, 5, 142-150(1994)
- 2-27) 山中健生, 微生物のエネルギー代謝, 学会出版センター, 東京, pp151-174(1986)
- 2-28) 山中健生, 無機物だけで生きてゆける細菌, 共立出版, 東京, pp20-49(1990)
- 2-29) 山中健生, 入門生物地球化学, 学会出版センター, 東京, pp30-53(1992)
- 2-30) R. K. Hynes and R. Knowles, Production of nitrous oxide by nitrosomonas europaea : Effect of acetylene, pH and oxygen, Canadian Journal of Microbiology, 30, 1397-1404(1984)
- 2-31) Wu, X.L., Kong, H.N., Mizuochi, M., Inamori, Y., Xia, H. and Yi, Q. : Nitrous oxide emission from microorganisms, Japanese Journal of Water Treatment Biology, 31, 151-160(1995)
- 2-32) M. T. Downes, Aquatic nitrogen transformations at low oxygen concentrations, Applied Environmental Microbiology, 54, 172-175(1988)
- 2-33) M. Poth and D. D. Focht, ^{15}N kinetic analysis of N_2O production by Nitrosomonas

- europaea: an examination of nitrifier denitrification, Applied Environmental Microbiology, 49, 1134-1141 (1985)
- 2-34) L. A. Robertson, R. de Vos P. Cornelisse, R. Hadjoetomo, and J. G. Kuenen, Aerobic denitrification in various heterotrophic nitrifiers, Antonie van Leeuwenhoek, 56, 289-299 (1989)
- 2-35) I. C. Anderson, M. Poth, J. Hanstead, D. Burdige, A comparison of NO and N₂O production by the autotrophic nitrifier *Nitrosomonas europaea* and the heterotrophic nitrifier *Alcaligenes faecalis*, Applied Environmental Microbiology, 59, 3525-3533 (1993)
- 2-36) 山中健生, 入門生物地球化学, 学会出版センター, 東京, pp54-61 (1992)
- 2-37) 日本微生物生態学会 (編) 微生物の生態 19: 物質循環における微生物の役割, 学会出版センター, 東京, pp18-24 (1994)
- 2-38) P. Schulthess, P. Wild, and W. Gujer, Nitric and nitrous oxides from denitrifying activated sludge at low oxygen concentration, Water Science and Technology, 30, 123-132 (1994)
- 2-39) H. Shoun, D. H. Kim, H. Uchiyama, J. Sugiyama, Denitrification by Fungi, FEMS Microbiology Letter, 94, 277-282 (1992)
- 2-40) 祥雲弘文, カビも脱窒する—シクハム P-450nor の奇妙な性質と機能—, 蛋白質核酸 酵素, 39(3) 241-251 (1994)
- 2-41) M. Matsumura, H. Tsubota, O. Ito, P. C. Wang and K. Yasuda, Development of bioreactors for denitrification with immobilized cells, Journal of Fermentation and Bioengineering, 84, 144-150 (1997)
- 2-42) 稲森悠平、須藤隆一, 嫌気性処理の最近の動向 (I), 用水と廃水, 24, 179-192 (1982)
- 2-43) 稲森悠平、須藤隆一, 嫌気性処理の最近の動向 (II), 用水と廃水, 24, 203-312 (1982)
- 2-44) 野池達也, 嫌気性排水処理法の原理, 水質汚濁研究, 10, 652-656 (1987)
- 2-45) M. Henze and P. Harremoës, Anaerobic treatment of wastewater in fixed film reactions-A literature review, Water Science and Technology, 15, 1-101 (1983)
- 2-46) 守富 寛、鈴木善三、池田道隆、鈴木康一、鳥飼欣一, 化石燃料燃焼にお

ける亜酸化窒素の生成機構, 化学工学論文集, 20, 849-856 (1994)

2-47) M. Hupa, and P. Kilpinen, Gas phase formation and destruction of N_2O , 5th International Workshop on Nitrous Oxide Emissions, Tsukuba, Japan (1992)

2-48) G. G. Soete, Nitrous oxide from combustion and industry : Emission and control, International Workshop "Methane and nitrous oxide", Amersfoort, Netherlands (1993)

2-49) 鈴木善三、城戸伸夫, 下水汚泥の循環流動層燃焼, 平成8年度日本エネルギー学会大会講演要旨集, pp254-256 (1996)

第3章

3-1) W. Debruyne, M. Wevers and J. von Rensbergen, The measurement of nitrous oxide emissions from sewage systems in Belgium, Fertilizer Research, 37, 201-205 (1994)

3-2) E. Sumer, A. Weiske, G. Benckiser and J. C. G. Ottow, Influence of environmental conditions on the amount of N_2O released from activated sludge in a domestic wastewater treatment plant, Experientia, 51, 419-422 (1995)

3-3) P. Czepiel, P. Crill and R. Harris, Nitrous oxide emission from municipal wastewater treatment, Environment Science Technology, 29, 2352-2356 (1995)

3-4) 日本下水道協会, 下水試験方法 (1984)

3-5) 建設省都市局下水道部 (監), 下水道施設計画・設計指針と解説 1994年版, 日本下水道協会, 東京, pp35-37 (1994)

3-6) 日本下水道協会, 高度処理施設設計マニュアル (案), pp160-163 (1994)

3-7) 建設省都市局下水道部、(社) 土木学会, 環境に優しい下水道のあり方に関する調査, pp29-36 (1992)

3-8) 高橋正宏、鈴木穰, 微生物固定化法を用いた排水中からの窒素・りん除去法, 土木技術資料, 37(8) 32-37 (1995)

3-9) 森山克美、佐藤和明、原田良誠、北村武之, 硝化・内生脱窒法に関する研究, 土木学会衛生工学研究論文集, 24, 95-101. (1988)

3-10) K. Hanaki, H. Zheng and T. Matsuo, Production of nitrous oxide gas during denitrification of wastewater, Water Science and Technology, 26, 1027-1036 (1992)

3-11) 花木啓祐、H. Zheng、松尾友矩, 脱窒における一酸化二窒素生成と操作因子

- の関係, 下水道協会誌論文集, 30, 30-42 (1992)
- 3-12) P. Schulthess, P. Wild, and W. Gujer, Nitric and nitrous oxides from denitrifying activated sludge at low oxygen concentration, *Water Science and Technology*, 30, 123-132 (1994)
- 3-13) 栗林宗人(編), 下水道実務講座 7: 高度処理と再利用, 山海堂, 東京, pp192-194 (1989)
- 3-14) H. Zheng, K. Hanaki and T. Matsuo, Production of nitrous oxide gas during nitrification of wastewater, *Water Science and Technology*, 30, 133-141 (1994)
- 3-15) T. J. Goreau, W. A. Kaplan, S. C. Wosfy, M. B. Mcelroy, F. W. Valois, and N. S. W. Watso, Production of NO_2^- and N_2O by nitrifying bacteria at reduced concentrations of oxygen, *Applied Environmental Microbiology*, 40, 526-532 (1980)
- 3-16) 山中健生, 微生物のエネルギー代謝, 学会出版センター, 東京, pp151-174 (1986)
- 3-17) M. T. Downes, Aquatic nitrogen transformations at low oxygen concentrations, *Applied Environmental Microbiology*, 54, 172-175 (1988)
- 3-18) M. Poth and D. D. Focht, ^{15}N kinetic analysis of N_2O production by *Nitrosomonas europaea*: an examination of nitrifier denitrification, *Applied Environmental Microbiology*, 49, 1134-1141 (1985)
- 3-19) L. A. Robertson, R. de Vos P. Cornelisse, R. Hadjoetomo, and J. G. Kuenen, Aerobic denitrification in various heterotrophic nitrifiers, *Antonie van Leeuwenhoek*, 56, 289-299 (1989)
- 3-20) B. Gejlberg, L. Frette and P. Westermann, Dynamics of N_2O production from activated sludge, *Water Research*, 32, 2113-2121 (1998)
- 3-21) 山中健生, 入門生物地球化学, 学会出版センター, 東京, pp30-53 (1992)
- 3-22) B. P. Gayle, G. D. Boardman, J. H. Sherrad, and R. E. Benoit, Biological denitrification of water, *Journal of Environmental Engineering*, 115, 930-943 (1989)
- 3-23) 日本化学会編, 化学便覧 改訂2版, 丸善, 東京, pp769-771 (1975)
- 3-24) D. Endy, Biologically catalyzed reduction of nitrous oxide to nitrogen gas using wastewater treatment system, "Hazardous and Industrial Wastes" Proceedings of the twenty-seventh mid-atlantic industrial waste conference, 255-263 (1995)
- 3-25) 鈴木讓、落修一、中村栄一, 土木研究資料: 平成8年度下水道関係調査研

究年次報告書集, No.4012, 145-155 (1997)

3-26) 日本下水道協会, 平成7年度版下水道統計要覧, pp85-86 (1997)

第4章

- 4-1) K. Hanaki, H. Zheng and T. Matsuo, Production of nitrous oxide gas during denitrification of wastewater, *Water Science and Technology*, 26, 1027-1036 (1992)
- 4-2) 花木啓祐、H. Zheng、松尾友矩, 脱窒における一酸化二窒素生成と操作因子の関係, *下水道協会誌論文集*, 30, 30-42 (1992)
- 4-3) N. Igarashi, H. Moriyama, T. Fujiwara, Y. Fukumori and N. Tanaka, The 2.8 Å structure of hydroxylamine oxidoreductase from a nitrifying chemoautotrophic bacterium, *Nitrosomonas europaea*, *Nature Structure of biology*, 4, 276-284 (1997)
- 4-4) J. G. Thoma, A. K. Warren, C. W. Steven, B. M. Michael, W. V. Frederica and W. W. Stanley, Production of NO_2^- and N_2O by nitrifying bacteria at reduced concentration of oxygen, *Applied Environmental Microbiology*, 40, 526-532 (1980)
- 4-5) R. K. Hynes and R. Knowles, Production of nitrous oxide by *Nitrosomonas europaea* : Effect of acetylene, pH and oxygen, *Canadian Journal of Microbiology*, 30, 1397-1404 (1984)
- 4-6) D. J. Mckenney, C. F. Drury, B. M. Findlay, T. McDonnell and C. Gadjia, Kinetics of denitrification by *Pseudomonas fluorescens* : Oxygen effects, *Soil Biology and Biochemistry*, 26, 901-908 (1994)
- 4-7) K. J. P. Davis, D. Lloyd and L. Boddy, The effect of oxygen on denitrification in *Paracoccus denitrificans* and *Pseudomonas aeruginosa*, *Journal of General Microbiology*, 135, 2445-2451 (1989)
- 4-8) L. A. Hochstein, M. Betlach and G. Kritikos, The effect of oxygen on denitrification during steady-state growth of *Paracoccus halodenitrificans*, *Architectural Microbiology*, 137, 74-78 (1984)
- 4-9) 櫻井克信、白石 隆、大嶋吉雄、京才俊則、石川忠男, 余剰汚泥と初沈汚泥を分離した重力濃縮の評価, *下水道協会誌*, 27(308) 25-35 (1990)
- 4-10) 日本下水道協会, 高度処理施設設計マニュアル(案), pp169-170 (1994)
- 4-11) 高木克也, 伊藤久明, 佐藤和明, 下水道施設における地球温暖化ガスの実態

- 調査について, 第 32 回下水道研究発表会講演集, pp968-970(1995)
- 4-12) 山根 明, 関根富明, 平野裕司, エアレーションタンクから発生する一酸化二窒素についての調査研究, 第 34 回下水道研究発表会講演集, pp1129-1131(1997)
- 4-13) Y. Kimochi, Y. Inamori, M. Mizuochi, K. Q. Xu, and M. Matsumura, Nitrogen Removal and N_2O Emission in a Full-scale Domestic Wastewater Treatment Plant with Intermittent Aeration, *Journal of Fermentation and Bioengineering*, 86, 202-206 (1998)
- 4-14) T. Osada, K. Kuroda and M. Yonago, Reducing nitrous oxide gas emissions from fill-and-draw type activated sludge process, *Water Research*, 19, 1607-1608 (1995)
- 4-15) 糸川浩紀、花木啓祐、松尾友矩, 間欠曝気をおこなうし尿処理施設における硝化・脱窒過程からの亜酸化窒素の発生と制御, 環境工学研究論文集, 32, 311-320(1995)
- 4-16) H. Itokawa, K. Hanaki and T. Matsuo, Nitrous oxide emission during nitrification and denitrification in a full-scale night soil treatment plant, *Water Science and Technology*, 34, 277-284(1996)
- 4-17) 花木啓祐、松尾友矩、糸川浩紀, 亜酸化窒素の発生経路の解明, 排水の生物学的窒素除去実規模施設からの亜酸化窒素の発生の抑制に関する研究: 平成 6 年度～平成 8 年度科学研究費(基盤研究(A)(1)) 研究成果報告書, pp62-68(1997)
- 4-18) 日本下水道協会, 高度処理施設設計マニュアル(案), pp185(1994)

第5章

- 5-1) 建設省都市局下水道部(監), 平成 9 年日本の下水道, 日本下水道協会, 東京, pp218(1997)
- 5-2) 平成 10 年下水道年鑑, 水道産業新聞社, 東京, pp332-333(1998)
- 5-3) Matthews, P., (ed.) A global atlas of wastewater sludge and biosolids use and disposal, IAWQ scientific and technical report No.4, pp49-52(1997)
- 5-4) 岩崎好陽、立市祐久、上野広行, 固定発生源からの N_2O 排出状況とその生成に関する考察, 大気汚染学会誌, 27, 85-91(1992)
- 5-5) 安田憲二、高橋通正、矢島 巖、金子幹宏, 下水汚泥焼却に伴う亜酸化窒素

- の排出挙動, 廃棄物学会論文集, 5, 142-150(1994)
- 5-6) JISハンドブック 10: 環境測定, 日本規格協会, 東京, pp423-600(1997)
- 5-7) L. J. Muzio, M. E. Teague, J. C. Kramlich, J. A. Cole, J. M. McCarthy and R. K. Lyon, Errors in grab sample measurements of N_2O from combustion sources, JAPCA, 39, 287-293(1989)
- 5-8) R. K. Lyon, J. C. Kramlich, and J. A. Cole, Nitrous oxide: Sources, sampling and science policy, Environmental Science and Technology, 23, 392-393(1989)
- 5-9) 日本下水道協会, 下水試験方法(1984)
- 5-10) 守富 寛、鈴木善三、池田道隆、鈴木康一、鳥飼欣一, 化石燃料燃焼における亜酸化窒素の生成機構, 化学工学論文集, 20, 849-856(1994)
- 5-11) 鈴木善三、城戸伸夫, 下水汚泥の循環流動層燃焼, 平成8年度日本エネルギー学会大会講演要旨集, pp254-256(1996)
- 5-12) M. Hupa, and P. Kilpinen, Gas phase formation and destruction of N_2O , 5th International Workshop on Nitrous Oxide Emissions, Tsukuba, Japan(1992)
- 5-13) Y. Suzuki, H. Moritomi, N. Kido, M. Ikeda, K. Suzuki and K. Torikai, N_2O formation from char and heterogeneous reactions with char and CaO, 5th International Workshop on Nitrous Oxide Emissions, Tsukuba, Japan(1992)
- 5-14) G. G. Soete, Nitrous oxide from combustion and industry: Emission and control, International Workshop "Methane and nitrous oxide", Amersfoort, Netherlands(1993)
- 5-15) 日本下水道協会, 平成7年度版下水道統計要覧, pp82
- 5-16) 日本下水道協会, 平成7年度版下水道統計行政編, pp1156-1161(1997)
- 5-17) 村上忠弘、久保二郎、鈴木和美, 下水汚泥の脱水ケーキの熱的特性に関する考察(I), 下水道協会誌, 23(265) 38-47(1986)
- 5-18) 村上忠弘、久保二郎、鈴木和美, 下水汚泥の脱水ケーキの熱的特性に関する考察(II), 下水道協会誌, 23(266) 27-36(1986)
- 5-19) 日本下水道協会, 平成7年度版下水道統計行政編, pp1088-1155(1997)
- 5-20) 建設省都市局下水道部(監), 平成9年日本の下水道, 日本下水道協会, 東京, pp110(1997)
- 5-21) 環境庁編, 京都議定書と私たちの挑戦, 大蔵省印刷局, 東京, pp41-42(1998)

- 5-22)建設省都市局下水道部(監),平成9年日本の下水道,日本下水道協会,東京,pp116-118(1997)
- 5-23)中村栄一、鈴木穰、重村浩之、落修一、原田一郎,温室効果ガス排出抑制のための下水処理システム対策技術,環境庁地球環境研究総合推進費終了研究報告書:地球温暖化抑止のための CH_4 、 N_2O の対策技術開発と評価に関する研究,pp103-117(1998)
- 5-24)環境庁編,環境白書平成9年版:総説,大蔵省印刷局,東京,pp368-371(1998)
- 5-25)城戸伸夫、幡野博之、鈴木善三、守富寛,微量ガス抑制のための燃焼システム対策技術,環境庁地球環境研究総合推進費終了研究報告書:地球温暖化抑止のための CH_4 、 N_2O の対策技術開発と評価に関する研究,pp55-66(1998)
- 5-26)R. Conrad, W. Seiler and G. Bunse, Factors influencing the loss of fertilizer into the atmosphere as N_2O , *Journal of Geophysical Research*, 88, 6709-6718 (1983)
- 5-27)F. Slemr, R. Conrad and W. Seiler, Nitrous oxide emissions from fertilized and unfertilized soils in a subtropical region (Andalusia, Spain), *Journal of Atmospheric Chemistry*, 1, 159-169 (1984)
- 5-28)楊宗興、陽捷行,土壤生態系のガス代謝と地球環境 3:土壤からの亜酸化窒素発生,日本土壤肥料学会誌, 62, 654-661 (1991)
- 5-29)久保井徹、陽捷行、藤井國博、福士定雄,下水汚泥施用土壤からのガス発生: I. 火山灰土壤,国立公害研究所研究報告, 94,49-62 (1986)
- 5-30)久保井徹、広木幹也,下水汚泥施用土壤からのガス発生: I. 水田土壤,国立公害研究所研究報告, 94,63-78 (1986)
- 5-31)久保井徹,汚泥施用土壤から発生する N_2O :その発生要因・発生量・環境影響,国立公害研究所研究報告, 94,79-92 (1986)
- 5-32)松村昭治,畑土壤への家畜尿施用にともなう窒素揮散,日本土壤肥料学会誌, 59, 568-571 (1988)
- 5-33)S. Yamulki, S. C. Jarvis and P. Owen, Nitrous oxide emissions from exera applied in a simulated grazing pattern, *Soil Biology and Biochemistry*, 30, 491-500 (1997)
- 5-34)L. Dendooven, E. Bonhomme, R. Merckx and K. Vlassak, N dynamics and sources of N_2O production following pig slurry application to a loamy soil, *Biology Fertility and Soils*, 26, 224-228 (1998)

5-35) 落修一、渡部春樹、竹石和夫、下水汚泥のコンポジット化による亜酸化窒素ガスの発生、用水と廃水、38、662-667(1996)

5-36) 渡辺善次郎、近代日本都市近郊農業史、論創社、東京、pp9-12(1991)

第6章

6-1) 大中隆、汚泥乾燥造粒システムの概要、再生と利用、21(80) 53-59(1998)

6-2) 吉野満、岩倉国助、富山市の下水汚泥を原料とした粒状コンポジットの製造、再生と利用、19(71) 94-99(1996)

6-3) 地田修一、し尿の農業利用を近代化した消化処理技術をふりかえる(Ⅰ)、再生と利用、20(74) 106-110(1997)

6-4) 地田修一、し尿の農業利用を近代化した消化処理技術をふりかえる(Ⅱ)、再生と利用、20(75) 101-106(1997)

6-5) 金沢源太郎、トマト及びトマトに対する肥効試験(昭和11年)、汚物の資源利用Ⅰ—し尿の消化処理生産物の資源利用に関する研究—、(財)西原育英文化事業団、東京、pp1-4(1998)

6-6) 金沢源太郎、大麦に対する肥効試験(昭和12年)、汚物の資源利用Ⅰ—し尿の消化処理生産物の資源利用に関する研究—、(財)西原育英文化事業団、東京、pp5-8(1998)

6-7) 下水汚泥資源利用協議会：下水汚泥の農地・緑地利用マニュアル、pp245-259(1996)

6-8) 日本下水道協会、下水汚泥処理総合計画策定マニュアル、pp98-120(1992)

6-9) JISハンドブック10：環境測定、日本規格協会、東京、pp423-600(1997)

6-10) エネルギー・資源学会(編) エネルギー・資源ハンドブック、オーム社、東京、pp955(1996)

6-11) 荒木民雄、汚泥焼却施設の温排水を活用した地域温水供給システム、再生と利用、13、54-62(1990)

6-12) 石川忠男、下水汚泥消化ガスによる発電、空気調和・衛生工学、(58) 423-429(1984)

6-13) 赤塚幸三郎、岩井川幹男、北浦伸幸、西江雅一郎、牧村芳希、生物脱臭による難分解性悪臭物質の高度除去、第33回下水道研究発表会講演集、大阪、pp1096-1098(1996)

6-14) 佐藤和明、下水汚泥の嫌気性消化と消化ガスの有効利用、環境技術、10、254-264

(1981)

- 6-15) 村上忠弘, 下水汚泥濃縮技術の動向, 月刊下水道, 13(12) 7-12(1990)
- 6-16) 建設省都市局下水道部(監), 平成9年日本の下水道, 日本下水道協会, 東京, pp110(1997)
- 6-17) 1998年版廃棄物年鑑, 環境産業新聞社, 東京, pp37-41(1997)
- 6-18) 志垣政信編: 廃棄物の焼却技術, オム社, 東京, pp21-22(1995)
- 6-19) 志垣政信編: 廃棄物の焼却技術, オム社, 東京, pp82-86(1995)
- 6-20) 日本下水道事業団技術開発部, 下水汚泥のコンポスト化設備に関する技術調査, pp54(1986)
- 6-21) 越野正義, 農業生産における肥料に関するエネルギー投入について: 肥料製造に必要なエネルギー投入量, 日本土壌肥料学会誌, 63, 479-486(1992)
- 6-22) 坂本慶一, 有機農業とその現代的意義, 農業および園芸, 64, 104-109(1989)
- 6-23) 越野正義, 「有機農業」と化学肥料, 64, 117-122(1989)
- 6-24) 川島博之: 食料の生産と水質汚濁, 用水と廃水, 37, 881-885(1995)
- 6-25) 川島博之: 我が国における食糧供給と窒素循環, 日本環境科学会誌, 9, 27-33(1996)
- 6-26) 三輪睿太郎、岩本明久: 我が国の食飼料供給に伴う養分の動態, 土の健康と物質循環, 117-140, 博友社(1988)
- 6-27) 袴田共之: 農業における物質循環と地球環境問題, 再生と利用, 14, 28-39(1991)
- 6-28) 松本成夫、三輪睿太郎、袴田共之: 農村地域における有機物フローシステムの現存量とフロー量の推定法, システム農学, 6, 11-23(1990)
- 6-29) J. E. Bogner and K. A. Spokas, Landfill methane: rates, fates, and role in global carbon cycle, Chemosphere, 26, 369-386(1993)
- 6-30) 環境庁: 京都議定書と私たちの挑戦, pp39-40, 大蔵省印刷局(1998)
- 6-31) S. Keith and J. Bogner, Measurement and modeling on methane fluxes from landfills, Global Change News Letter, 31, 13-15(1997)
- 6-32) T. M. Schreeg and D. L. Jarrett, III, Biosolids cut fertilizer costs by \$200 an acre, Biocycle, 69-71(1996)
- 6-33) 増島博: 有機性廃棄物の緑農地施用と陸水水質の保全, 再生と利用, 20(77)

8-13(1997)

- 6-34) 落修一、平山孝浩、渡部春樹：下水汚泥緑農地利用製品全国調査結果の概要，再生と利用，19(73)13-19(1996)
- 6-35) 建設省土木研究所下水道部汚泥研究室：全国下水汚泥緑農地利用製品調査報告書，土木研究所資料 3289 号(1994)
- 6-36) 下水汚泥資源利用協議会：下水汚泥の農地・緑地利用マニュアル，pp77-79(1996)
- 6-37) 上沢正志：永続型農業と下水汚泥資源－窒素の循環利用を目指して－，再生と利用，19(71)8-18(1996)
- 6-38) 古畑哲：我が国農耕地における地力問題と有機物施用，再生と利用，18(67)37-45(1995)
- 6-39) 日本下水道協会：高度処理施設設計マニュアル(案)，pp165(1994)
- 2-40) 建設省都市局下水道部、(社)土木学会，環境に優しい下水道のあり方に関する調査，pp29-36(1992)
- 6-41) 高橋正宏、鈴木穰，微生物固定化法を用いた排水中からの窒素・りん除去法，土木技術資料，37(8)32-37(1995)
- 6-42) 日本環境衛生センター：平成9年度廃棄物処理事業施設年報，環境産業新聞社，東京，pp1-135(1998)
- 6-43) 建設省都市局下水道部：平成9年日本の下水道，日本下水道協会，東京，pp116-118(1997)

第7章

- 7-1) 櫻井克信、白石 隆、大嶋吉雄、京才俊則、石川忠男，余剰汚泥と初沈汚泥を分離した重力濃縮の評価，下水道協会誌，27(308)25-35(1990)
- 7-2) 山根 明，関根富明，平野裕司，エアレーションタンクから発生する一酸化二窒素についての調査研究，第34回下水道研究発表会講演集，pp1129-1131(1997)
- 7-3) 山本克巳，家畜糞尿から発生する亜酸化窒素及びメタンとその実態，畜産技術，1992年5月号，pp9-10(1992)
- 7-4) H. Emori, H. Nakamura, T. Sumino, T. Takeshima, K. Motegi and K. Tanaka, High rate and compact single pre denitrification process for retrofit, Water Science and Technology, 30, 31-40(1994)

- 7-5) 角野立夫、江森弘祥，包括固定化微生物担体を用いた高度処理技術，用水と
廃水，39, 24-29 (1997)
- 7-6) 江森弘祥、森直道、中村裕紀、青木正信、茂木勝之，包括固定化による硝化
促進型循環変法について，環境技術，21, 47-51 (1992)
- 7-7) 篠塚靖夫，既存施設の改造でやれる高度処理技術，月刊下水道，21 (6) 49-52
(1998)
- 7-8) 落修一、中村栄一、尾崎正明，地球温暖化対策における下水汚泥嫌気性消化
法の役割，第 1 回日本水環境学会シンポジウム講演集，草津，pp149-150 (1998)
- 7-9) 柿添泰宏，MAP の肥料効果に関する研究，第 35 回下水道研究発表会講演集，
pp1014-1016 (1998)
- 7-10) (財) 下水道新技術推進機構，新技術活用モデル事業⑭：海水を用いること
による MAP 製造と高品質肥料の製造－海水を利用したりん資源化技術－，
(財) 下水道新技術推進機構研究所報，pp49-51 (1998)
- 7-11) 孔海南、稲森悠平、水落元之，生活排水を処理する土壌トレンチからの地球温
暖化ガスの発生メカニズムの解析，日本水処理生物学会誌，別巻 17，pp13 (1997)
- 7-12) 孔海南、稲森悠平、水落元之，生活排水の土壌トレンチ処理プロセスからの地球温
暖化ガスの排出と ORP との関係，第 32 回日本水環境学会年回講演集，津田
沼，pp251 (1998)
- 7-13) 袴田共之：農業における物質循環と地球環境問題，再生と利用，14, 28-39
(1991)
- 7-14) レスター・R. ブラウン (編)：地球環境白書 1996-97，ダイヤモンド社，東京，pp79-85 (1996)

発 表 論 文

- (1) 水落元之、佐藤和明、稲森悠平、松村正利：メタン、亜酸化窒素の放出量および放出特性と活性汚泥法の処理条件との比較解析，水環境学会誌，21，849-855 (1998)
- (2) Mizuochi, M., Sato, K., Inamori, Y. and Matsumura, M. : Emission Characteristics of Greenhouse Gas N_2O from Sewage Sludge Incineration Process, Japanese J. Water Treat. Biol., 34, 267-277 (1998)
- (3) 水落元之、稲石高雄、市川雅英、大石 亮、木持 譲、稲森悠平：生物学的嫌気好気活性汚泥法における N_2O 発生に及ぼす SRT、DO の影響，水環境学会誌，印刷中 (1999)
- (4) 水落元之、佐藤和明、稲森悠平、松村正利：地球温暖化ガス CH_4 、 N_2O の標準活性汚泥法および嫌気・無酸素・好気法における放出量の比較解析，日本水処理生物学会誌，印刷中 (1999)

謝 辞

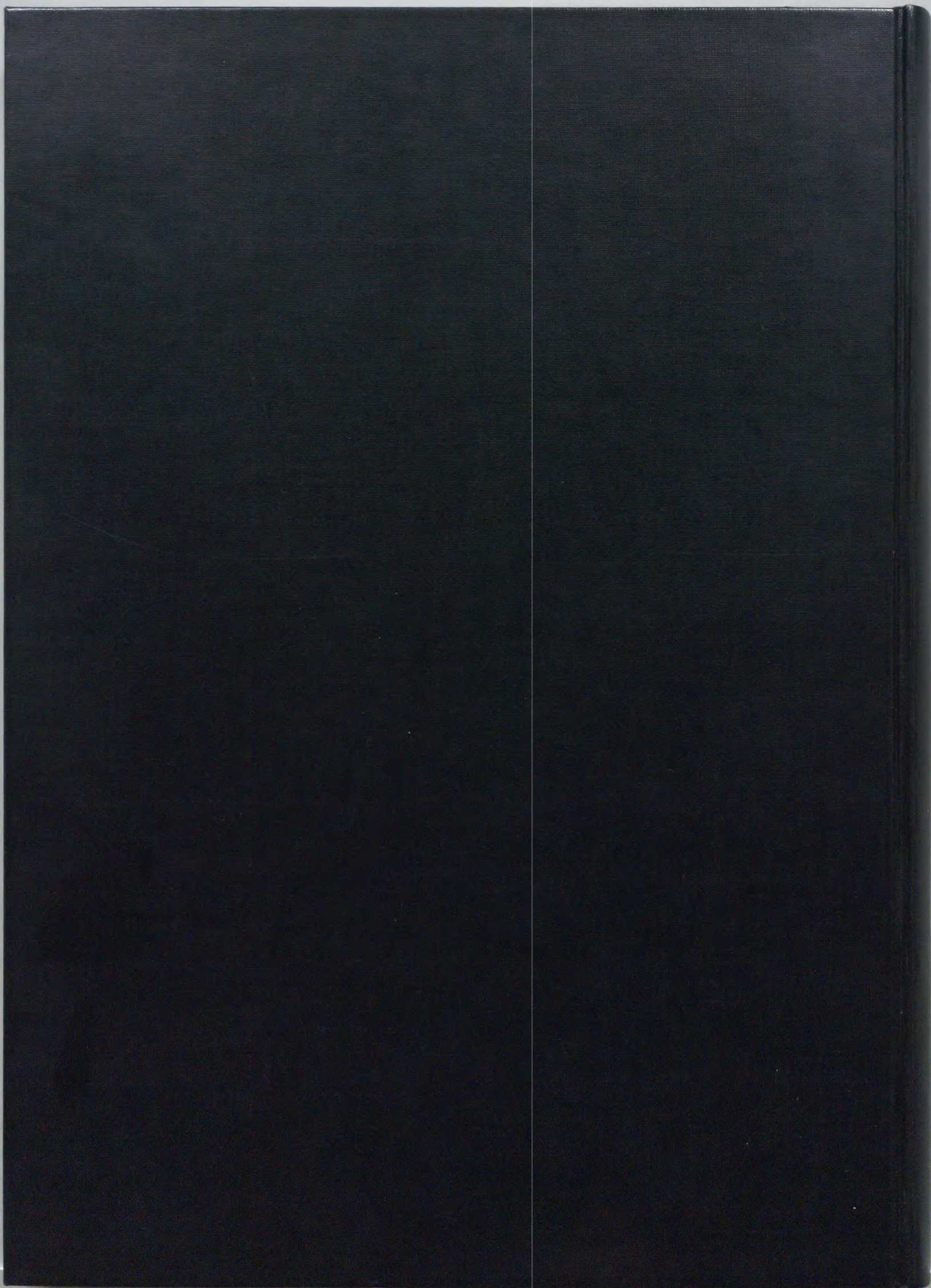
本研究の遂行にあたり、筑波大学農学研究科博士課程入学以来、終始、懇切なご指導および励ましをいただきました筑波大学教授松村正利先生、同教授前川孝昭先生、同教授祥雲弘文先生、同助教授東 照雄先生に謹んで感謝の意を表します。

本研究全般にわたり、貴重なご助言および有り余るご支援をいただきました国立環境研究所地域環境研究グループ稲森悠平総合研究官、筑波大学助教授杉浦則夫先生、東北大学助教授西村 修先生に深く感謝いたします。

大気環境分野で研究を行っていたにもかかわらず、水環境分野で研究を行いたいという私のわがままをお聞きいただき、建設省土木研究所下水道部で研究を行うチャンスを与えていただき、その後もご指導、ご鞭撻をいただいた東北大学教授須藤隆一先生、下水道分野では右も左も分からなかった私を暖かくお迎えいただき、手取り足取り懇切なるご指導を頂いた、河川環境管理財団安中徳二参与、建設省土木研究所京才俊則研究調整官、佐藤和明下水道部長をはじめとする下水道部の皆様に深く感謝いたします。

調査に際し、多大なる便宜を図っていただきました下水処理場の皆様に深く感謝いたします。また、研究全般にわたりご協力、ご尽力を頂きました、茨城県科学技術振興財団の木持 譲研究員に深く感謝するとともに、氏の協力なしには本研究の完遂はあり得なかったことを書き添えます。

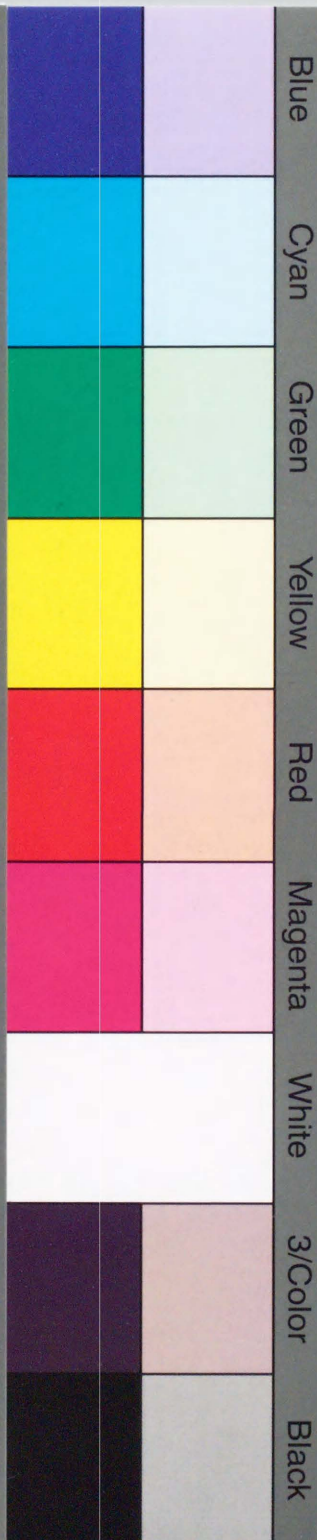
最後に、私を育て、教育の機会を与えてくれた両親、快く筑波大学大学院入学に賛成してくれた妻、裕子、論文完成まで色々と我慢をしてくれた3人の息子、祐太、直紀、温史に感謝します。



Inches 1 2 3 4 5 6 7 8
cm 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19

Kodak Color Control Patches

© Kodak, 2007 TM: Kodak



Kodak Gray Scale



© Kodak, 2007 TM: Kodak

A 1 2 3 4 5 6 **M** 8 9 10 11 12 13 14 15 **B** 17 18 19

