

11. その他の予算による研究
[下水処理研究室]

1. 下水道施設を活用した CH₄、N₂O の排出抑制中核技術の 汎用化と普及に関する研究

国土交通省 国土技術政策総合研究所 下水道研究部

下水処理研究室長

中島 英一郎

下水処理研究室

中島 智史・平出 亮輔

平成 12～14 年度合計予算額 17, 149 千円

(平成 14 年度予算額 5, 533 千円)

[要旨]

下水処理場の水処理プロセスと汚泥焼却プロセスから排出されるメタン(CH₄)および亜酸化窒素(N₂O)について、その排出制御技術の信頼性と安定性の評価に必要な実験を行った。研究では、水処理プロセスと汚泥処理プロセスの2つに分けて行った。

水処理プロセスでは、CH₄に関して嫌気、無酸素槽のある嫌気-好気法、循環型硝化脱窒法(循環法)と標準活性汚泥法(標準法)の対照実験を行い、抑制効果を検討した。結果としては、循環法で抑制効果が高く、嫌気-好気法と標準法はほぼ同程度の抑制効果であった。

N₂O に関しては、硝化速度と発生するガスの関係について検討を行った。実験は、パイロットプラントを長期間運転し、硝化状態を確認しながら、ガス濃度の測定を行った。結果としては、処理が不安定な時期や硝化抑制から硝化促進へ移行する期間に排出量が多いことがわかった。N₂O の生成を低く抑えるためには、まず、良好な処理状態を維持する必要がある結果となった。全国の総排出量は、0.75 Gg-N₂O/year であった。

汚泥処理プロセスは、下水汚泥焼却炉に関する N₂O 排出量調査を行った。流動床式汚泥焼却炉の実機において N₂O の連続測定を 11 回行った。結果としては、測定期間中の N₂O 排出濃度が時間的に変動し、その幅も処理場により異なることがわかった。これにより、N₂O 排出濃度はフリーボード部の温度の影響が最も大きく、温度から N₂O 排出係数の推定が可能であることも確認できた。次にその結果と 16ヶ所の処理場から運転データを基に、N₂O 排出濃度の推定値を計算でもとめた。そのデータを元に全国の流動床式汚泥焼却炉からの N₂O 総排出量を求めたところ、3.6 Gg-N₂O/year であった。本調査における N₂O 連続測定は、産業技術総合研究所つくば西事業所エネルギー利用部門クリーン燃料研究グループと共同で実施した。

[キーワード] 温室効果ガス、汚泥焼却、メタン、亜酸化窒素、下水処理

1. はじめに

下水道は生活環境の向上と公共用水域の水質保全のための重要な社会資本であり、その普及拡充に向けて積極的な取り組みがなされている。下水処理により水域への汚濁物の排出量は削減されているが、処理にともない温室効果ガスが排出されていることも事実である。下水道から排出される温室効果ガスとしては、バイオマス由来の二酸化炭素(CO₂)を除くと、汚泥焼却に伴う N₂O、下水処理に伴う CH₄、および電力や燃料、薬品等の使用に伴う CO₂が主なものである。

今後予想される下水道の普及拡充や下水汚泥焼却の増加は、下水道からの温室効果ガスの排出増加をもたらす可能性が高い。このため、下水処理場における温室効果ガスの排出を制御する技術の確立と普及が急がれる。

2. 研究目的

下水処理場における温室効果ガスの主な排出源は、電力や燃料に由来する CO_2 と、水処理に由来する CH_4 と N_2O 及び汚泥焼却に由来する N_2O である。本研究は、下水の処理過程で生成する CH_4 及び N_2O の排出を抑制する対策技術の確立・普及とその評価を目的としている。

研究は、水処理プロセスと汚泥処理プロセスに分けて行い、水処理プロセスでは、嫌気槽や無酸素槽の導入による CH_4 排出の制御効果の把握・評価と、硝化状態ごとの N_2O 排出量原単位の精緻化を目的とし、汚泥処理プロセスでは、汚泥焼却炉からの N_2O 排出抑制のための燃焼温度制御の安定化手法を確立するとともに制御効果を評価することを目的とする。また、得られた成果は「下水道における地球温暖化対策マニュアル」に反映させ、普及拡充に資するものである。

3. 水処理プロセスから排出される CH_4 、 N_2O の排出抑制中核技術の検討

下水処理場には、常時、嫌気的な状態で大量の有機物を含有した下水が流入してくる。特に下水が嫌気的な状態で滞留する圧送管路やポンプ場内、最初沈殿池などでは、メタン生成細菌が十分に活動できる環境が整っており、多くの CH_4 が生成されている。このため、下水中には高濃度の CH_4 が溶存しており、下水処理場に流入後、反応槽内のエアレーションにより大気中へ気散する。しかも、運転条件や気温によっては、下水中の窒素分が反応槽内の硝化、脱窒反応を受け、中間生成物である N_2O が生成される場合もある。このように、温室効果ガスとしての効果が高い CH_4 (CO_2 の 20 倍) や N_2O (CO_2 の 310 倍) が、処理場から発生している事実がある。しかし、これらの温室効果ガスに関する研究は進んでおらず、排出量や排出特性・抑制手法に関しても、現在推薦できる技術が無いのが現状である。

水処理プロセスに関しては、 CH_4 、 N_2O の排出量や排出特性を検討し、温室効果ガス排出抑制手法に関して研究を行った。 CH_4 に関しては、反応槽の 1 槽目にノンエアレーションの嫌気槽・無酸素槽を設置した処理法である嫌気・好気法・循環法と、これまで多くの処理場で採用され、日本では最も基本的な処理法である標準法との対照実験を行い、 CH_4 抑制効果に関して検討を行った。 N_2O については、硝化反応による生成を対象に、実験施設を長期間運転し、硝化状態を変化させながら排出ガス量の測定を行い、硝化速度の違いによる N_2O 排出特性に関する検討を行った。以下に、その検討結果を示す。

3. 1 CH_4 に関する検討

微生物由来の CH_4 生成には、酸素のない無酸素状態もしくは、硝酸もない嫌気状態の環境と有機物が必要である。まず、嫌気的な環境では、嫌気性細菌が有機物を水素・炭酸ガス・酢酸に分解する。その後、メタン生成細菌が水素・酢酸を使って、 CH_4 と炭素ガスを生成する。よって、下水のような嫌気的であり、かつ有機物を多量に含む条件下では、メタン生成細菌が活発に活動し、大量の CH_4 を生成していると考えられる。その後、生成された CH_4 は液中に溶存し、加圧状態からの開放や攪拌、エアレーションの作用を受け、大気中に排出される。特に、下水処理場はかなりの量の空気を使ってエ

アレーションを行っているため、反応槽内で溶存 CH₄ が大気中に排出されやすいと考えられる。しかも一般的に使用されている標準法は、全槽エアレーションであるため、流入下水中の溶存 CH₄ を直ちに排出してしまうことになる。

このため、当検討では、前段にノンエアレーション槽の嫌気、無酸素槽が組み込まれた処理法である嫌気-好気法、循環法に注目し、標準法との対照実験を行い、CH₄ 抑制効果の検討を行った。実験では、完全覆蓋型実験装置を使用した。以下に実験の詳細を示す。

3. 1. 1 実験施設

完全覆蓋型実験施設の簡易図(循環法)と施設写真を図-1, 2に示す。実験施設は、茨城県霞ヶ浦浄化センター内の湖北総合実験施設に設置した。実験装置は、全容量 12L の小型の下水処理装置である。それぞれ 3L の塩ビ管を、4 連つなぎ合わせた実験装置であり、後段にアクリル製の最終沈殿池(容量 8L)が設置してある。流入下水は、茨城県霞ヶ浦浄化センターに流入する生下水を使用し、湖北総合実験施設内の最初沈殿池(初沈)で 1 次処理したものを使用した。水量の調節にはチューブポンプを使用し、連続して下水を流入させた。通常は、エアーストーンで全槽エアレーションを行い、標準法の運転を行っているが、第 1, 2 槽のエアレーションを停止させることで、嫌気槽や無酸素槽に運転を切り替えることが可能である。嫌気、無酸素槽の攪拌には、マグネットスターラーを使用した。反応槽は、蓋を閉めると完全に覆蓋され、第 1 反応槽上部に 1 ヲ所のみに排出口が設置してある。通常は、処理状況を確認するため蓋をせず、サンプリング前日に蓋を閉めるものとする。それぞれの実験条件を表-1 に示す。嫌気-好気法の SRT が低いことに関しては、測定日前日に MLSS 濃度が高くなり過ぎ、前日に汚泥の引抜きを多めに行ったためである。通常は表示の SRT に近い値に設定してある。

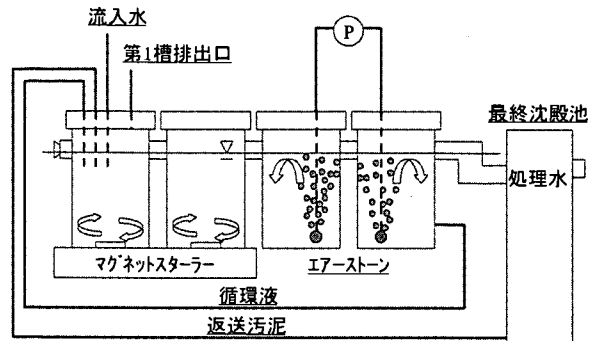


図-1 完全覆外型実験施設簡易図(循環法)

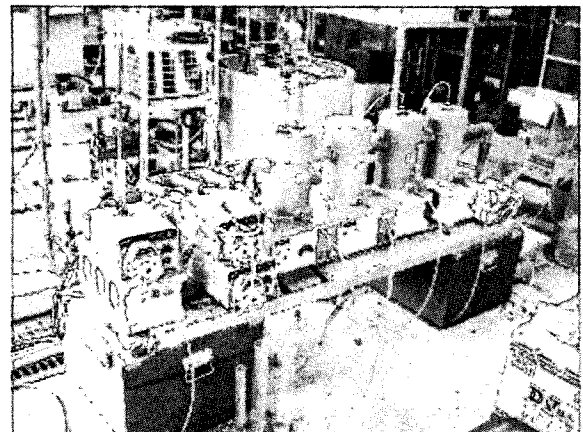


図-2 完全覆外型実験施設の写真

表-1 実験条件

	HRT (h)	SRT (d)	A-SRT (d)	返送率	循環率	曝気風量 (l/min)
循環法	10 (9.5)	20 (20)	10 (10)	1.0 (1.05)	1.5 (1.52)	1 (1)
嫌-好気法	10 (10)	20 (7.5)	10 (3.75)	1.0 (1.00)	0.0 (0.00)	1 (1)
標準法	10 (10)	10 (7.5)	10 (7.5)	1.0 (1.00)	0.0 (0.00)	2 (2)

※ () 内が調査当日の測定値

3. 1. 2 実験方法

実験では、24 時間調査を実施した。サンプリング開始時刻は 12:00 であり、その後 3 時間に一回のペースでサンプリングを行った。サンプリングは、気体 CH₄ サンプルと液体 CH₄ サンプル、および一般水質分析用に 100ml のサンプルを採取した。

気体 CH₄ サンプルは、第 1 反応槽排出口から直接 1L のテトラバッグを接続し、サンプリングを行

った。その他に、通常時の大気中の CH₄ 濃度を測定するため（エアレーションにより液中から気体中に移行した CH₄ 濃度のみを計算するために測定する）に、実験中に 1 回のブランクガスをテトラバッグに採取した。調査終了後、速やかに実験棟へ運送し、ガス濃度の測定を行った。測定には、FID/GC を使用した。

液体 CH₄ サンプルは、流入下水と処理水を採水した。サンプリング手順としては、一度フランビンに採水し、その後、事前に固定用（微生物の活動を止める）の試薬を入れ、蓋をしたバイヤルビンに、シリンジを使いサンプルをゆっくり挿入した。保管に関しては、調査中は湖北総合実験施設内の冷蔵庫を使用し、固定用試薬には 20% グルコン酸クロロヘキシジン溶液を使用した。調査終了後、速やかに実験棟へ運送し、ガス濃度の測定を行った。測定には、FID/GC を使用し、ヘッドスペース法で測定を行った。

一般水質分析用のサンプルは、現場で採水後、固定用の塩酸（水で 2 倍に希釈）を添加し、冷蔵庫に保管した。水質測定項目は、COD_{Cr}・T-N・T-P・NH₄-N・NO₂-N・NO_x-N（NO₂-N+NO₃-N）・PO₄-P である。その他に、水温・pH についても測定を行った。

3. 1. 3 結果

実験の結果として、水質の平均値を表-2 に示す。流入水については、各処理法ともほぼ同じような値であった。処理水は、COD_{Cr} が標準法と嫌気-好気法でほぼ同程度、嫌気-好気法のみ処理水に NH₄-N が残留している結果であった。これは、嫌気-好気法でのエアレーション時間が 5 時間程度と短く、水温が低いために硝化が促進されず NH₄-N 濃度が高くなったと考えられる。また、嫌気-好気法実験終了時に、嫌気槽の PO₄-P を測定したところ、1.8 mg/l 程度の低い値を示した。このため、嫌気槽のりんの放出も良好に行えていない状態であった。

次に、CH₄ 測定結果を表-3 に示す。流入水中の CH₄ 量は各処理法ごとに若干違うものの、比率では循環法に高い CH₄ 抑制効果があった。排出 CH₄ 量自体も、循環法は標準法の 1/2 程度であり、3 つ処理法の中で最も抑制効果があった処理法である。しかし、標準法・嫌気-好気法に関しても、若干ではあるが CH₄ 抑制効果があることが確認できた。これは、返送汚泥率が通常より高いため、返送汚泥が第 1 槽に流入するまでに脱窒が最後まで進まず、液中に NO₃-N が残留した状態で第 1 槽に流入した。このため、第 1 反応槽内で若干脱窒反応が進み、抑制効果が発生したと考えられる。上でも書いたとおり、実験時、嫌気-好気法の嫌気槽でのりんの放出状態が悪かったこと（NO₃-N は、嫌気槽のりん放出の阻害物質となるため）と、表-2 より、標準法・嫌気-好気法両方ともに、流入下水に比べ処理水中の T-N が通常より低い値であったため、反応槽内で脱窒反応の進行があったと予想できる。この結果から、無酸素槽の脱窒が CH₄ 抑制には効果的である。脱窒反応が CH₄ にどのような影響を与えているか、詳細は不明だが、脱窒反応のエネルギー源として、CH₄ が消費されたとも考えられ

表-2 処理法別水質結果

	循環法		嫌気-好気法		標準法	
	流入水	処理水	流入水	処理水	流入水	処理水
水温(°C)	21.1	16.3	13.5	9.7	14.8	8.7
COD _{Cr}	278	14	267	31	253	28
T-P	3.12	0.60	3.37	1.05	3.41	1.51
T-N	29.50	9.47	30.98	12.57	31.53	20.30
NH ₄ -N	20.30	0.19	23.45	5.06	23.12	0.07
PO ₄ -P	1.62	0.28	2.05	0.83	1.94	1.20
NO ₃₋₂ -N	0.10	7.41	0.26	6.15	0.08	17.24
NO ₂ -N	0.01	0.01	0.22	1.67	0.07	0.64

※ 単位がないものは mg/l とする。

表-3 CH₄ 検討結果

	循環法	嫌-好気法	標準法
流入水中CH ₄ 量(mg/m ³)	617.5	431.3	550.9
処理水中CH ₄ 量(mg/m ³)	5.0	0.5	0.0
排出CH ₄ 量(mg/m ³)	195.0	335.2	424.6
比率(処理+排出/流入)	0.32	0.78	0.77

る。今後、脱窒反応が CH_4 に与える影響に関して検討を行う必要がある。

3. 2 N_2O に関する検討

下水処理過程において、流入下水中に含まれる $\text{NH}_4\text{-N}$ の一部は、アンモニア酸化細菌や亜硝酸酸化細菌により $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ に酸化（硝化）される。また、生物学的窒素除去プロセスでは、脱窒細菌を利用し $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ を N_2 に還元し大気中に放出する脱窒反応を使用する。図-3 に、硝化・脱窒反応の簡易図を示す。図で示してあるとおり、 N_2O は硝化・脱窒のどちらの過程からでも生成される中間生成物である。このうち硝化過程における N_2O の生成は、我が国において広く普及している下水処理法である標準法やオキシデーションディッチ法（以下、OD 法）でも、運転方法や水温などの条件によって硝化が進行することから、その対策が重要と考えられる。

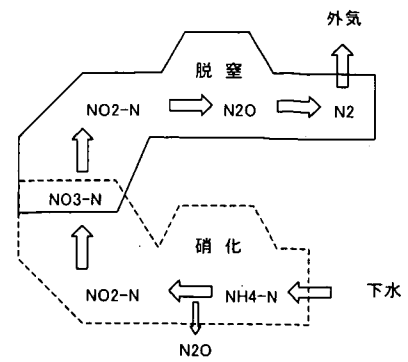


図-3 硝化・脱窒反応の簡易図

このため、当検討では、硝化と N_2O 生成に関する特性の調査を目的に、長期間標準法でパイロットプラントを運転し、硝化状態を確認しながら、排出 N_2O 濃度の測定を行った。以下に、実験の詳細を示す。

3. 2. 1 実験施設

パイロットプラント実験施設の簡易図と写真を図-4,5 に示す。パイロットプラントは、湖北総合実験施設内に設置してあるものを使用した。パイロットプラントは、全容量 10m^3 の水深 2m の施設である。反応槽内をそれぞれ 2m^3 ごとの5槽に分割しており、後段に最終沈殿池（終沈）が設置してある。流入下水は、茨城県霞ヶ浦浄化センターに流入してくる生下水を使用し、湖北総合実験施設内の初沈で1次処理したものを使用する。

実験時には、流入水量 $1.25\sim 2.00\text{m}^3/\text{h}$ 、HRT $5\sim 8\text{h}$ 、返送汚泥率 50% 、MLSS $1,500\text{mg/l}$ 、曝気風量 $10\text{m}^3/\text{h}$ の実験条件を基本条件とし、処理の状態や季節により若干条件を変更して運転を行った。なお実験では、高温期・低温期に SRT を制御して、硝化が反応槽内で完了するように運転を行う場合（硝化促進）と、硝化の進行を抑制した運転（硝化抑制）の条件で運転を行い、硝化状態と水温の違いによる N_2O 生成量の比較を行った。しかし、高水温期の硝化抑制条件に関しては、長期実験中には行っていない。それは、通常、高水温期は汚泥の活性が良くなり、硝化が進んでしまうため、硝化抑制状態に運転を変更するには、処理

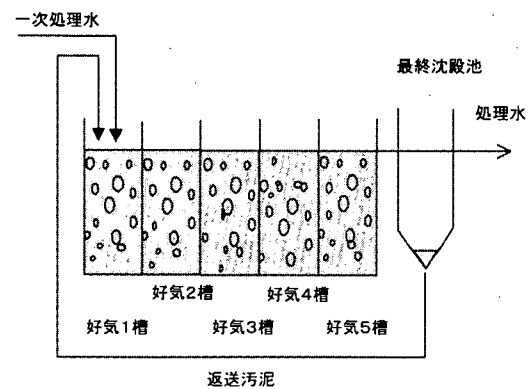


図-4 パイロットプラントの簡易図

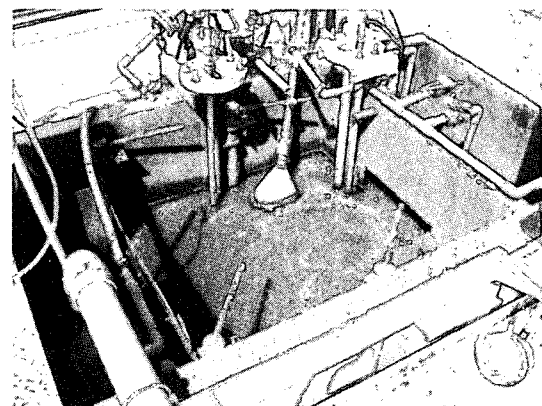


図-5 パイロットプラント反応槽の写真

が行える限界の状態にしなければいけないため、維持管理上危険な運転状態となる。このため、長期測定実験が終了した後、別途条件設定をし、夏期に実験を行った。表-4に各RUNの実験期間および運転条件を示す。

表-4 実験期間の運転条件

RUN	期間	運転条件
1	1年目 4月22日 ~ 翌年 2月 9日	硝化促進
2	2年目 4月11日 ~ 7月 3日	硝化促進
3	2年目10月 4日 ~ 翌年 1月31日	硝化抑制

3. 2. 2 実験方法

実験は、2年間（他の実験でプラントを使用する場合を除き）行い、週に1回のサンプリングを行った。サンプリングは、気体 N₂O サンプルと液体 N₂O サンプル、および一般水質分析用サンプルを採取し、現場で水温、pH、Do、ORP の測定を行った。

気体 N₂O サンプルは、各5反応槽それぞれに設置してあるロートから、1L テトラバッグに採取する。その他、ブランクガスも現場で1検体を採取する。液体 N₂O サンプルは、流入下水・返送汚泥・各5反応槽のサンプルを採水する。サンプリング時には、一度フランビンに採水し、その後、サンプルと固定用試薬（20%グルコン酸クロルヘキシジン溶液）をバイヤルビンに入れ、蓋をして密閉する。サンプリング終了後は、速やかに実験棟に運送し、ECD/GC で濃度測定を行う。液体サンプルに関しては、ヘッドスペース法で測定を行う。

その他の項目に関して、一般水質分析用サンプルとして、流入下水・返送汚泥・各5反応槽のトータルサンプルと溶解性サンプルを採水する。溶解性サンプルに関しては、現場で簡易ろ過キットを使用し、GF/B でろ過を行う。両サンプルとも最後に固定用の塩酸（水で2倍に希釈）を添加し、冷蔵庫で保管した。測定項目としては、流入下水のT-COD_{Cr}、流入下水・返送汚泥・各5反応槽のD-COD_{Cr}、NH₄-N、NO₂-N、NO_x-N、PO₄-P をそれぞれ測定する。現場での水温、pH、Do、ORP の測定は、各5反応槽ごとに行った。

3. 2. 3 結果

結果として、全期間（高水温期・硝化抑制以外）の N₂O 生成量と水温、MLSS を図-6 に示す。図中の N₂O 生成量とは、気体として反応槽から排出されるものを「気相中」、反応槽の5槽目で採取した液中に含有されているもの、すなわち液相中に溶解した形で反応槽から排出されるものを「液相中」とし、気相中と液相中の和（＝「N₂O 総量」）を水処理過程で生成される N₂O 量とした。図より、データにはばらつきがあるが、全期間にわたって N₂O が排出された。排出量としては、期間平均で 100mgN₂O-N/m³ 程度であり、期間最大値は 450mgN₂O-N/m³ であった。期間中は、管理状態や処理の状態により、反応槽内での N₂O 生成量はかなり変動する結果であった。

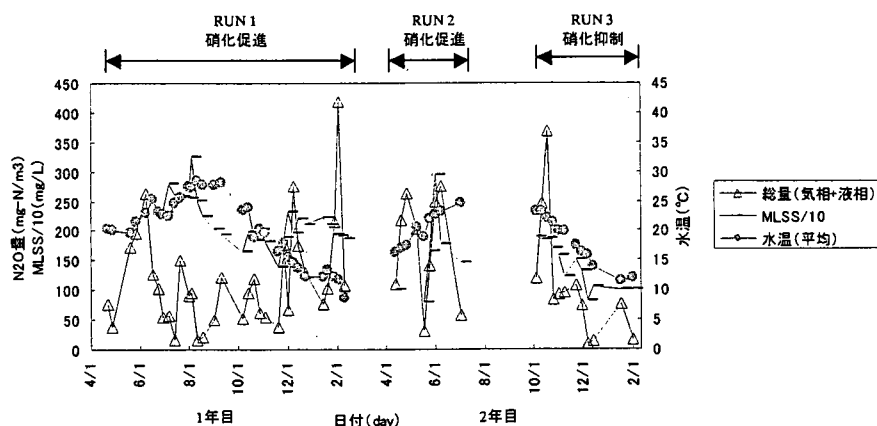


図-6 N₂O 生成量、水温、MLSS の変化

表-5 に、処理が安定している時期の高水温・低水温期の N_2O 排出量の平均値を示す。 N_2O 生成量は、高水温期に比べ低水温期に多く、特に硝化促進のときに最大値を示した。

表-5 硝化状態と水温の関係

測定期間	硝化状態	排出 N_2O 量 (mg N_2O -N/ m^3)
高温期	抑制	1.8
	促進	18.3
低温期	抑制	14.0
	促進	55.3

高水温期の硝化抑制に関しては、反応槽内の Do がほとんど無く、処理状態として特別な状態であるため、一概にはできないが、基本的には硝化反応の中間生成物であるため、硝化が促進すればある程度の N_2O が生成されると考えられる。特に、低水温期になると、汚泥中の微生物の活性が弱くなり、硝化に時間がかかるため、中間生成物の N_2O の生成が増加してしまう傾向にある。しかし、上で記載したとおり、処理の状態によりかなりの変動があり、期間最大値を示した処理状態の悪い時期に比べ、処理が良好で安定している期間の排出量は、低い値であると考えてよい。次に、各期間の処理状態ごとの排出特性に関して、4つの期間に分け、詳細を説明する。

① 硝化促進運転における N_2O 排出特性

図-7 に、RUN1 (1年目 4月22日～翌年2月9日) における N_2O 生成量、および、反応槽内の硝化状態を表すため、5槽目の NH_4 -N、 NO_x -N 濃度を示す。

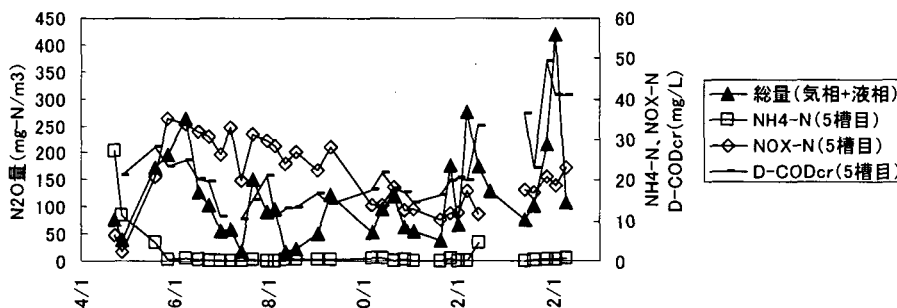


図-7 RUN1 における N_2O 総量と処理状況

実験開始初期は、MLSS が低く硝化が

進みにくい状態であったが、徐々に MLSS を上げ、SRT を大きくすることで活性汚泥中の硝化細菌量を増加させ、硝化促進条件に移行させた。その結果、5月には処理水の NH_4 -N が低下し、硝化がほぼ完全に行われるようになった。この期間の N_2O 生成量は、運転条件変更後増加しており、その後、硝化が進むようになると低い値となった。

7月～9月は、夏季の高水温期にあたり、MLSS を若干下げ気味で運転を行ったが、処理水に NH_4 -N が残存せず、 NO_x -N も高い値で維持され、硝化が安定して進行していた。この期間、硝化は第2もしくは第3槽目で完了しており、活性汚泥の硝化活性はかなり高い状態であった。 N_2O 生成量も低い値に落ち着いていた。図-8 に、この期間における硝化の進行状況を示す。なお図中の IN+RS は、反応槽流入水 (IN) と返送汚泥 (RS) から計算した混合液中の濃度である。

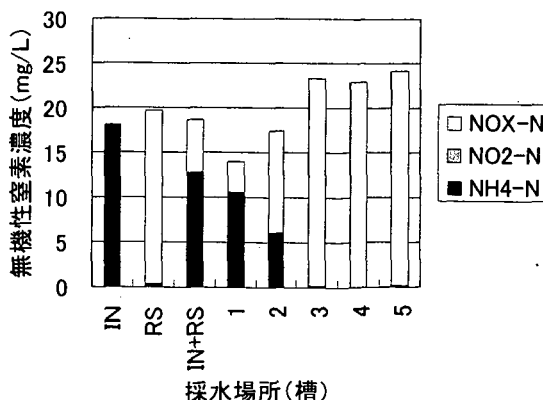


図-8 反応槽内の硝化の進行状況 (水温 26℃)

10月～翌年2月の秋・冬季にかけては、徐々に水温が低下したことで活性汚泥の硝化活性が低下し、処理水中に NH_4 -N が残るようになってきた。このため、MLSS を 2,000 mg/l まで引き上げて運

転を行ったところ、処理水の状態が安定した。その後、汚泥を引抜きすぎたため、翌年1月からMLSSが下がり、処理状態が再び悪化した。このとき、処理水の溶解性(D)-CODcrは、最高で約50 mg/l (通常20) まで上昇した。硝化およびN₂Oの生成量をみると、処理の悪化した期間においてNO_x-Nが低下し、N₂O生成量が増加している。しかし、秋・冬季においても処理状態が良好な期間においては、夏季に比べ若干高い値ではあるもののN₂O生成量は低い値で安定していた。図-9に翌年1月27日の硝化の進行状態を示す。

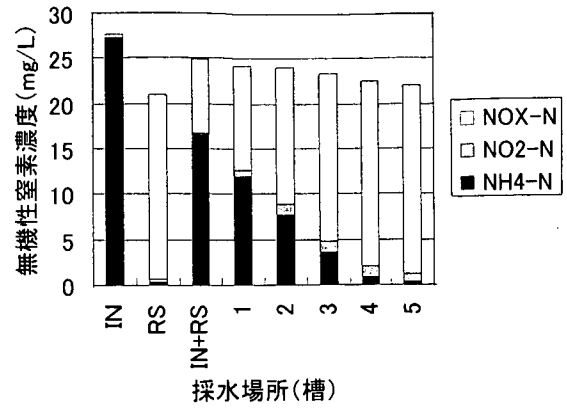


図-9 反応槽内の硝化の進行状況 (水温 12℃)

ここで、図-10にRUN1の全期間のN₂O総量とNO₂-N濃度の関係を示す。図より、N₂O総量が多い場合、NO₂-N濃度も高い値を示す傾向にある。これは、N₂OおよびNO₂-Nがどちらも硝化過程の中間性生物であるため、生成量の傾向が似ていると考えられる。特に、水温が低い冬季や、MLSS低下時の処理状態が悪化した場合に、NO₂-Nが上昇し、N₂O総量も増加することが多い。

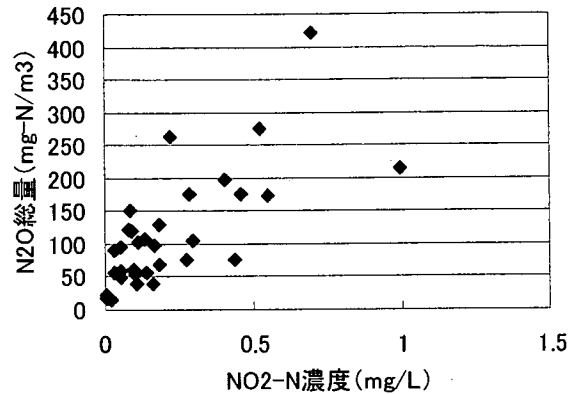


図-10 硝化促進時のN₂OとNO₂-Nの関係

RUN1の結果、良好に硝化が進んでいる状態で運転を行った場合、N₂O生成量は低い値で安定する。しかし、急激にMLSSを低下させSRTの減少を招いた場合や、冬季の水温が低い期間に十分なMLSSを保持できない場合には硝化が完全には進まない状態が生じ、中間生成物であるNO₂-N濃度が上がり、このようなケースでN₂O生成量がかなり上昇することがあることがわかった。

② 硝化抑制運転におけるN₂O排出特性

図-11に、RUN3 (2年目10月4日～翌年1月31日)における処理状況を示す。実験開始時は、MLSSが高い状態であったため、徐々にMLSSを下げSRTを低下させた。その結果、11月から処理水中のNH₄-Nが上昇し、12月にはほぼ硝化が進行しない状態に落ち着いた。N₂O生成量も、12月以降低い値に安定しており、流入下水量当たりの生成量は平均約27 mgN₂O-N/m³であった。しかし、翌年1月17日のデータをみると、処理水中のNO_x-Nが若干上昇しており、それに合わせてN₂O生成量が増加している。これらのことから、硝化抑制条件で運転を行う場合、反応槽

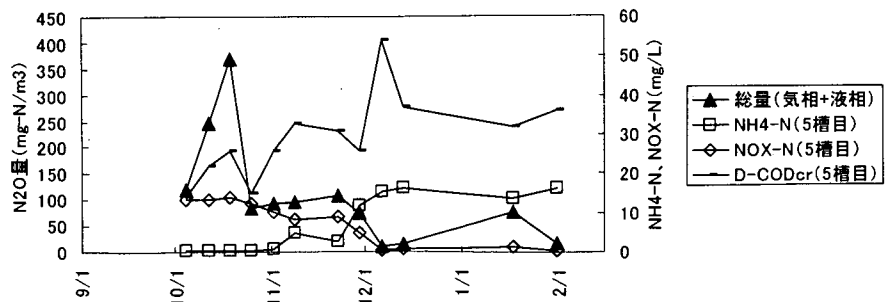


図-11 RUN3におけるN₂O総量と処理状況

の第5槽においても $\text{NO}_x\text{-N}$ が検出できない状態では N_2O 生成量は低い値に安定するが、 $\text{NO}_x\text{-N}$ が掲出されるような状態

では N_2O 生成量が増加することあることがわかる。

③ 硝化促進から硝化抑制

ここで、運転条件が硝化促進から硝化抑制に移行していた2年目10月の処理状況を図-12に示す。

反応槽の状態としては、MLSSがまだ十分低くせず、1,800 mg/l程度とやや高い値であるため、硝化がほぼ完全に進んでいる(図-11参照)。しかし、処理水中のD-COD_{Cr}はやや高い傾向が見られる。同じような現象は、1年目6月～7月にも発生している(図-7参照)。この場合も、硝化促進条件での運転に移行し、硝化がほぼ完全に進んでいる状態であるにもかかわらず N_2O 生成量が一時的に増加している。なお、実験期間を通じ N_2O 生成量が大きくなっている時期には処理水中の $\text{NO}_2\text{-N}$ の濃度が上昇しており、これらの期間においても $\text{NO}_2\text{-N}$ の上昇が認められた。

また、これらの期間は、水温が低温期から高温期、または高温期から低温期への変わり目に当たり、活性汚泥中の微生物相が変化していることが考えられる。

以上のことから、 N_2O 生成量の増加は、人為的な操作により硝化が不完全な形で生じ、処理水中に $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_x\text{-N}$ が存在するような条件下だけでなく、見かけ上 $\text{NO}_x\text{-N}$ への硝化が完全に進んでいても、 $\text{NO}_x\text{-N}$ 中の $\text{NO}_2\text{-N}$ の割合が大きくなるような条件でも生じることが推定される。また、季節の変わり目において活性汚泥の性状が変化する時期には、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 型の硝化が進むことで、 N_2O 生成量が増加するものと考えられる。実際、2年目10月の $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度は平均0.27 mg/lとなり、夏季の平均値0.04mg/lに比べ、かなり高い値であった。なお、今回の実験では、水温が約22℃の頃に $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度と N_2O 生成量の増加が観察された。

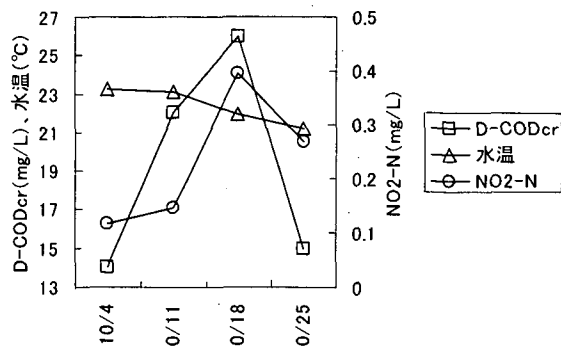


図-12 水温変動期の処理状況の例

④ 硝化抑制から硝化促進

次に、RUN2 (2年目4月11日～7月3日)では、実験開始前にMLSSが約1,000 mg/lでSRTを小さく保っていたため、活性汚泥中の硝化細菌数はかなり

少ない状態であったと考えられる。この状態から、硝化促進条件に移行するためMLSSを2,000 mg/l程度まで引き上げた。この期間における処理状況を図-13に示す。

$\text{NH}_4\text{-N}$ をみると、期間の半ばにやや上昇が見られるもののほぼ0 mg/lに近く、硝化はほぼ順調に進行していたものと推定される。一方、 N_2O 生成量は、一時的に低下した時期はあるものの高い状態で推移し、RUNの終了時点では低下している。このような現象が生じる原因について、初期は硝化

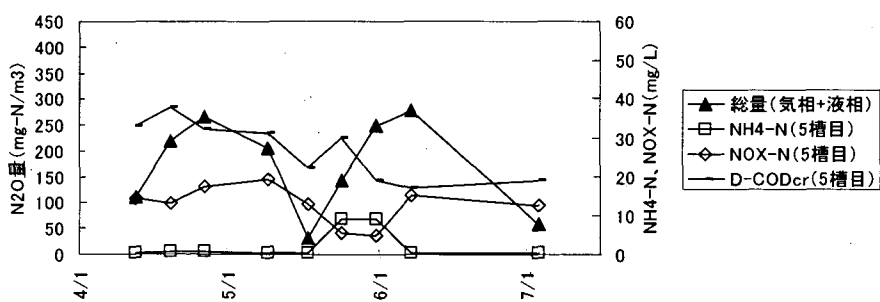


図-13 RUN2における N_2O 総量と処理状況

に關与する微生物の量が少なく、次第に増加する過程において、そのバランスが変化するため、硝化の中間生成物である N_2O や NO_2-N の濃度が高くなるのではないかと考えられる。その後、MLSS を引き上げるため、引抜きを行わないことで硝化細菌が少しずつ増加していき、最終的に硝化細菌数が安定すると、 N_2O や NO_2-N の濃度は減少する。実際、この期間の平均 NO_2-N 濃度は 0.21 mg/l であり、かなり高い値であった。

ここで、当検討の結果を使い、全国の水処理過程から排出される N_2O 総排出量を計算する。平成 13 年度年間の全国総処理水量は 130 億 m^3 程度である。すべての処理場が硝化促進で運転を行っていると考えると、排出係数を $36.8 \text{ mgN}_2\text{O-N}/m^3$ (高水温と低水温の平均値) とする。総 N_2O 排出量は $0.75 \text{ Gg-N}_2\text{O}/\text{year}$ となる。

3. 3 まとめ

CH_4 に関しては、特に循環法に高い抑制効果があることが確認できた。標準法に比べると、 CH_4 排出量は 1/2 程度に抑えられる。しかも、嫌気-好気法・標準法においても若干ではあるが CH_4 抑制効果が認められた。これは、返送汚泥中に NO_3-N が残留していたために、第 1 反応槽内で脱窒反応が若干発生し、抑制効果が現れたと考えられる。この結果から、無酸素槽の脱窒が CH_4 抑制には効果的である。脱窒反応が CH_4 にどのような影響を与えているか、詳細は不明だが、脱窒反応のエネルギー源として、 CH_4 が消費されたとも考えられる。

N_2O に関しては、データは期間中大きくばらついているが、全期間にわたって N_2O が排出された。排出量としては、期間平均で $100 \text{ mgN}_2\text{O-N}/m^3$ 程度であり、期間最大値は $450 \text{ mgN}_2\text{O-N}/m^3$ であった。期間中は、管理状態や処理の状態により、反応槽内での N_2O 生成量はかなり変動する結果であった。しかし、処理が安定している期間は、 N_2O 生成量を低く保つことが可能であり、その量は高くても $55.3 \text{ mgN}_2\text{O-N}/m^3$ であった。一般に、硝化細菌の増殖速度は水温の影響を強く受け、低水温期には硝化が抑制され、逆に高水温期には促進される傾向がある。近年、下水処理施設の省エネルギー等を目的とした硝化抑制運転や、窒素の除去を目的とした生物学的硝化脱窒プロセスが普及しているが、このような処理では水温に応じた適切な運転管理により、不完全な硝化が進行するような状況を生じさせないことが必要である。

4. 汚泥処理プロセスから排出される温室効果ガスに関して

亜酸化窒素 (N_2O) は温暖化ガスの一種であると同時にオゾン層破壊ガスでもあり、その低減が急務となっている。ここ 10 年来の研究により、人為的発生源が特定され、固定燃焼装置もその有力な発生源の一つであることが明らかになってきた¹⁾。特に、窒素分が多く含まれる下水汚泥の焼却施設からの発生源が大きいことが指摘されている。この中でも、近年主流となっている流動層 (床) 形式の焼却炉は低温燃焼を特徴とするため N_2O の排出量が大きい。

IPCC (Inter governmental Panel for Climate Change) は加盟各国政府に対し国内から排出される温暖化ガスの発生状況の報告を求めている。温暖化ガス排出量の推定に必要な排出係数 (Emission factor) については実測値がある場合はその値を使用し、ない場合については IPCC が公表する推奨値を使用することを求めている²⁾。しかしながら、固定発生源から排出される N_2O の実測値、推奨値は共に長期の連続測定に基づいた値ではなく、いわゆる grab sampling による方法で測定された値が未だに多く採用されているのが現状で、代表点としての精度に難点がある。

本研究では流動層下水汚泥焼却炉から排出される N_2O を精度良く推定するための基礎資料として、2 週間程度の連続測定に基づいてその排出係数を決定することを試みた。次にこれらの実地調査から得られた焼却炉のパラメーターと N_2O の排出特性の関係を利用して、下水汚泥焼却炉の運転データ記録から N_2O の排出量を予測する手法を開発し、精度良く排出係数を推定した。

4. 1 下水汚泥焼却炉の長期連続モニターによる N_2O 排出係数の決定

4. 1. 1 測定対象施設と測定法

平成 12 年度から 14 年度までの 3 年間で測定の対象とした焼却炉は 6 基で、すべて流動層形式の焼却炉であり、その主要緒元および測定時の汚泥分析値を表-6 に示す。以降各焼却炉を表-6 に示す A, B, C, D, E, F の名称で示すことにする。測定は 3 基については複数年行ったので、全測定回数は 11 回となる。それぞれの測定は B1 (B 焼却炉の第 1 回測定) の様に示すこととする。焼却処理する汚泥は全ての施設で高分子系凝集剤を使用し脱水したものであり、測定期間中の組成の平均値を表-7 に合わせて示す。汚泥組成に特に大きな相違は認められなかった。ただし、B 焼却炉では消化汚泥を別途投入しており、夜間から早朝にかけて焼却されている。

各施設で機器構成は若干異なるが、一例として B 焼却炉のフローシートを図-14 に示す。各焼却炉ともサイクロンで粗粉灰を分離した後、スクラッパーで洗浄し、バグフィルターまたは電気集塵機により灰を捕集している。汚泥の投入は全ての焼却炉で流動層上部から投下する方式である各焼却炉とも最近稼働し始めた施設であり、設計・建設業者は全て異なるものの、ほぼ同様な設計となっている。

N_2O 濃度分析のためのガスは焼却炉運転管理のための排ガスモニタリング用の分析計へのサンプリングラインを利用してサンプリングを行った。サンプリングしたガスは、フィルター、水分除去器

表-6 測定対象焼却炉および汚泥分析値一覧

Incinerator	Measurement	A			B			C			D		E	F
		A	B1	B2	B3	C1	C2	C3	D1	D2	E	F		
Measuring period		Jan-01	May-00	Dec-01	Sep-02	Dec-00	Aug-01	Oct-02	Sep-01	Feb-03	Mar-01	Nov-01		
Capacity t-WS/day		90	50			250			100		200	200		
Co-firing fuel		Heavy oil	Heavy oil			Town gas			Heavy oil		Heavy oil	Heavy oil		
Analytical data of sludge wt%	C	37.34	37.90	43.16	29.81	46.61	40.02	37.78	40.93	35.44	51.44	46.43		
	H	5.40	4.51	6.22	5.03	5.50	4.72	5.86	6.00	5.75	6.51	6.86		
	N	5.96	5.17	5.48	4.12	5.48	4.70	4.41	5.51	4.59	5.14	5.82		
	S				1.04			0.69		0.50				
	Ash	29.62	26.40	20.21	27.77	14.89	17.70	16.91	26.88	19.28	13.36	19.42		
Water content wt%		79.76	80.60	79.81	78.50	78.61	77.86	77.68	80.98	78.75	76.42	81.71		

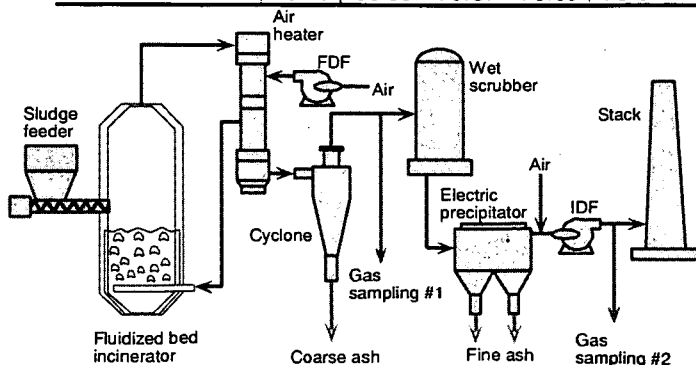


図-14 典型的な汚泥焼却炉簡易図

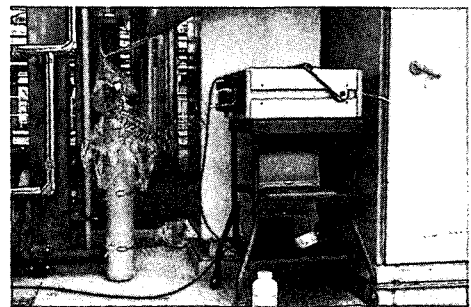


図-15 GC による分析の様子

を通過させた後、分析計に導入した。排ガス中の N₂O の分析は平成 12 年度については赤外吸収式連続分析計（堀場製作所 VIA-510 型）を用い、平成 13、14 年度については赤外分析計より簡便な小型ガスクロマトグラフ（Agilent technology M400）を用いて N₂O を分析した（図-15 にガスクロマトグラフによる測定中の様子を示す）。連続分析期間中は適宜校正ガスによる校正を実施し、分析値の精度を保った。ガスクロマトグラフによる分析では、10 分間隔でガスをサンプリングし分析し、分析結果は計算機に記録した。ガスのサンプリング位置は、施設により異なりサイクロンの後段と煙突入り口の 2 通りとなった。後者の位置では、焼却炉出口ガスに白煙防止のため空気が混入され希釈されるので、煙突入り口位置における酸素濃度もしくは二酸化炭素濃度と、焼却炉のモニタリングで測定されているサイクロン出口における酸素濃度または二酸化炭素濃度を用いて希釈率を計算し、N₂O の測定値を補正した。

$$C_{N2O, furnace} = \frac{21.0 - C_{O2, furnace}}{21.0 - C_{O2, stack}} C_{N2O, stack} \quad (1)$$

$$C_{N2O, furnace} = \frac{C_{CO2, furnace}}{C_{CO2, stack}} C_{N2O, stack} \quad (2)$$

ここで、

$C_{CO2, furnace}$: 焼却炉出口での CO₂ 濃度

$C_{CO2, stack}$: 煙突入り口での CO₂ 濃度

$C_{O2, furnace}$: 焼却炉出口での O₂ 濃度

$C_{O2, stack}$: 煙突入り口での O₂ 濃度

$C_{N2O, furnace}$: 計算された焼却炉出口での N₂O 濃度

$C_{N2O, stack}$: 測定された煙突出口での N₂O 濃度

データ解析のためのプロセスデータは各焼却炉より提供されたものをそのまま用いた。

4. 1. 2 測定結果および考察

各測定全期間における焼却炉の排出 N₂O の濃度変化の一例として平成 12 年度と 13 年度に実施した 8 測定における、N₂O 濃度（O₂ 6%換算値）の変化を図-16 に示す。この際、明らかに異常運転（供給停止、焼却炉温度の低下等）に起因すると思われるデータは除外した。図-16 に示されるように各焼却炉とも 100～300 時間程度の測定時間であるが、N₂O 濃度はかなり変動していることが分かる。特に

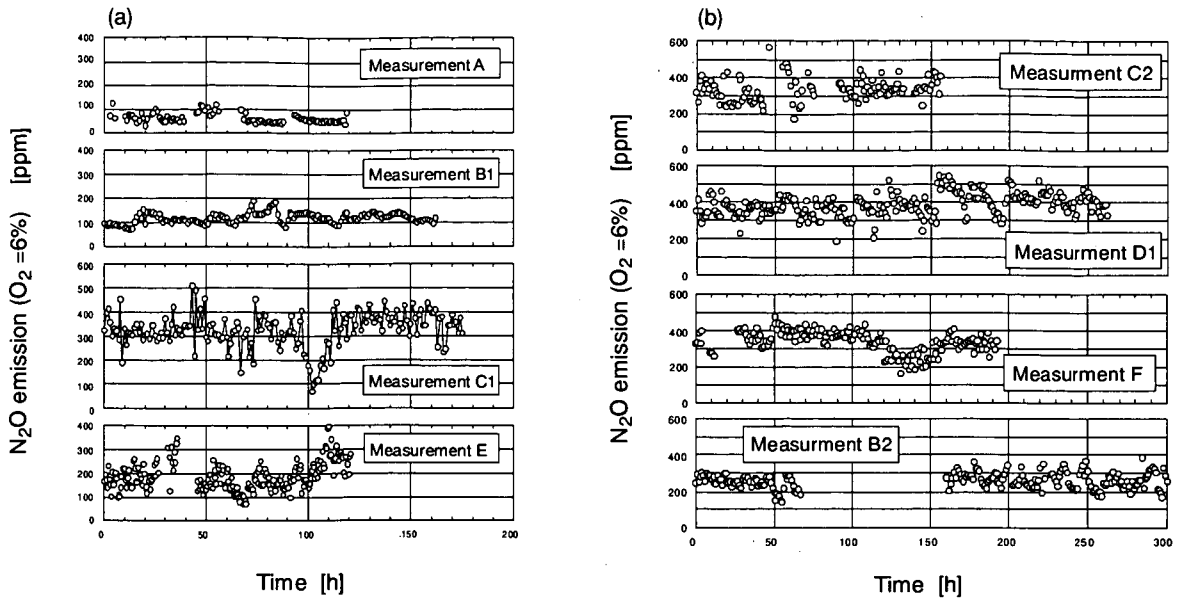


図-16 各測定期間における N₂O 濃度の変化

C1 および E 測定での変動が大きかった。また、N₂O 濃度の絶対値も焼却炉によってかなり異なることも示されている。焼却量の小さい A および B 焼却炉での N₂O 排出濃度は 100ppm 前後の比較的低い値を示したが、C、D および F 焼却炉では 200ppm を越える高い濃度の N₂O が観測された。特に、C 焼却炉では測定全期間の平均値でも 300ppm を上回る N₂O が排出されていた。

測定全期間の N₂O 濃度の平均値、これから求めた N₂O 排出係数と汚泥中の N 分の N₂O への転換率を表-7 に示す。今回得られた排出係数は湿汚泥基準で、350~1,416 g-N₂O/t-WS、平均値 792 g-N₂O/t-WS、乾燥汚泥基準で 1,672~6,643 g-N₂O/t-DS、平均値 3,755 g-N₂O/t-DS であった。容量を加味した加重平均値は、それぞれ 866 g-N₂O/t-WS、4,024 g-N₂O/t-DS となった。また、表-7 に示されるように、N₂O 濃度の変動幅は平均値に対しマイナス側でほぼ 50%、プラス側で 50~100%となる。従って、下水汚泥焼却炉からの N₂O 排出係数を決定する場合は短時間のサンプリングにより測定した N₂O 濃度より求めた排出係数では、必ずしもその焼却炉の排出係数を代表しないおそれが十分あることを改めて確認した。

IPCC が公開しているガイドライン²⁾にある流動層型下水汚泥焼却炉からの N₂O 排出係数の最新の推奨値は、800 g-N₂O/t-DS (ドイツ)、100-1,500 g-N₂O/t-DS (イギリス) である。IPCC の推奨値は、今回の測定値に比べやや小さい値となっている。日本からの報告値は 300~1,530 g-N₂O/t-WS が採用

表-7 測定結果の一覧

Incinerator Measurement	A	B			C			D		E	F	Mean Capacity weighte d mean		
		A	B1	B2	B3	C1	C2	C3	D1				D2	
Measuring period	Jan-01	May-00	Dec-01	Sep-02	Dec-00	Aug-01	Oct-02	Sep-01	Feb-03	Mar-01	Nov-01			
Mean N ₂ O emission, O ₂ =6%	64	119	270	153	325	311	275	392	319	181	338			
Conversion of N in sludge to N ₂ O, %	1.62	2.25	4.55	3.33	5.42	5.95	4.11	7.36	6.74	3.35	7.31			
Emission factor, g- N ₂ O/t-WS	Mea	307	359	792	470	1,007	1,087	636	1,213	1,033	726	1,080	792	866
	Min.	150	207	401	272	239	632	191	600	380	257	522	350	363
	Max.	971	554	1,558	748	1,592	1,440	1,637	1,955	1,456	2,260	1,405	1,416	1,555
Emission factor, g- N ₂ O/t-DS	Mea	1,520	1,830	3,770	2,188	4,700	4,400	2,848	6,400	4,863	2,880	5,910	3,755	4,024
	Min.	750	1,040	1,910	1,265	1,190	2,560	855	3,160	1,790	1,020	2,850	1,672	1,697
	Max.	4,900	2,780	7,410	3,482	7,520	5,830	7,333	10,300	6,853	8,970	7,690	6,643	7,134

されているが、この値はほぼ今回の測定と同等になる。ドイツや英国の報告に比べ我が国における N_2O 排出係数はかなり高い値となっている。この原因は、使用する凝集剤、炉の運転条件等が異なるためであると推測されるが、今後調査する必要がある。

次に各焼却炉でかなり異なる N_2O 排出量を示した原因について考察する。汚泥性状については、表-6 に示すように 6 カ所の焼却施設で大きな相違は認められなかった。 N_2O 発生量に密接に関係する汚泥中の N 分についても、4.12~5.96% でほぼ同等であった。従って、 N_2O 排出量の差は汚泥性状によるものではないと考えられる。大きな要因としては、空気比と焼却炉の温度が考えられる。既往研究より、汚泥中の N 分の N_2O への転換率は空気比が高いほど、燃焼温度が低いほど高くなることが知られている。そこで、測定期間中の運転状況の変化が比較的大きく、 N_2O が高かった C 焼却炉について詳細な検討を行った。

図-17 に C 焼却炉における測定期間中の、排ガス酸素濃度、流動層温度、フリーボード部の代表温度および N_2O 濃度の時間変化を示す。図-17 から N_2O の濃度変化に最も大きな影響を与えている操作因子は排ガス出口酸素濃度とフリーボード温度であることが分かる。下水汚泥焼却炉では、下水汚泥の含水率が高いため流動層では下水汚泥の乾燥・熱分解と固定炭素分の燃焼が主体となり、フリーボードでは流動層で放出された揮発分燃焼が活発に生じるため、一般に流動層よりも数十℃程度高温になるのが普通である。C 焼却炉においては、約 100℃フリーボードが高温となっていた。この 2 種の温度のうち、 N_2O の排出量と密接に関連しているのはフリーボード温度であることが図-17 に示されている。 N_2O の生成は主として揮発分中の N 化合物を起源として気相で生じる反応であることが、既往研究³⁾でほぼ明らかになっている。 N_2O の生成側の代表的な反応経路は



である。同時に N_2O の気相における代表的な消滅反応は



である。さらに N_2O 生成の競合反応として



が挙げられる。素反応速度の解析から高温域では N_2O の生成反応(3)~(6)よりも、 N_2O の消滅反応(7)~(9)および競合反応(10), (11)が卓越するため、急激に N_2O 濃度が低下することが明らかにされている。

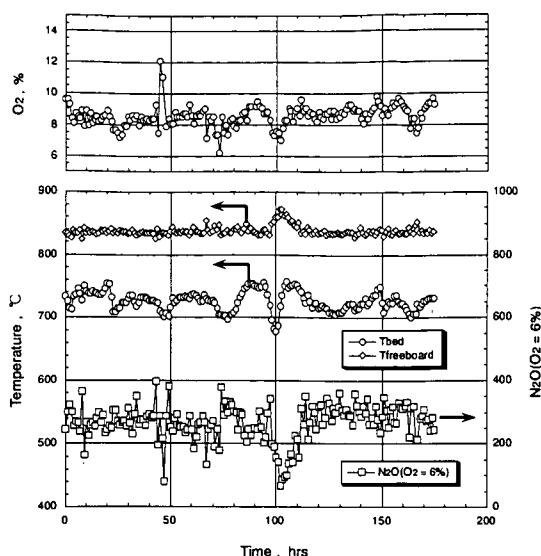


図-17 温度、 N_2O 、酸素濃度の経時変化

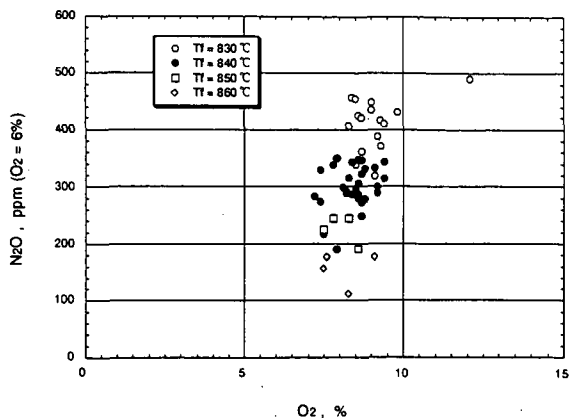


図-18 排ガス中の O₂ 濃度と N₂O の関係

下水汚泥の場合可燃分は殆どが揮発分の形で放出され、チャーの形で燃焼する部分は極わずかである。このため、N₂O の生成反応が主として生じるのはフリーボード部となり、この部分では前述の反応が生じていると考えられる。従って、焼却炉出口における N₂O 濃度は、この気相反応が生じているフリーボード部の条件でほぼ決定されると予想される。この予想を確認するため、より詳細な解析を行った。図-18 に C 焼却炉の 1 時間毎のデータより、フリーボード

温度が等しい (±3℃以内) データを抽出し排ガス中酸素濃度の N₂O への影響を示した。排ガス中酸素濃度の変化は小さいため、N₂O への影響は顕著ではないが、どのフリーボード温度においても、排ガス中酸素濃度の増加に伴い N₂O が上昇することが示されている。図-19 には同様に C 焼却炉の 1 時間毎のデータより、排ガス中酸素濃度がほぼ等しいデータ (±0.2%以内) を抽出し、フリーボード温度の N₂O への影響を示した。図-19 より明瞭にフリーボード温度の低下に伴い急激に N₂O 濃度は増加することが分かる。フリーボード温度の N₂O への影響は図-18 との比較より、排ガス中酸素濃度の影響より大きいことがわかる。他の焼却炉についてもほぼ同様な依存性を得た。上記の排ガス中酸素濃度および燃焼温度に対する依存性は実験室規模の燃焼装置を使用した既往研究と同様である⁵⁾。

上記解析は一つの焼却炉について、フリーボード温度と N₂O 排出濃度の関係を調べたものであるが、国内 36 基の流動層下水汚泥焼却炉において、測定時の焼却炉ガス流路における最高温度 (通常フリーボード部の最高温度とみなしてよい) と下水汚泥中の N 分の N₂O への転換率の関係が報告されている⁵⁾。その結果を図-20 に示す。図-20 は規模、運転時の空気過剰率等に関わらず、単純に汚泥中 N 分の N₂O への転換率をガス流路中の最高温度で整理したものであるが、良い相関を示している。これは、図-18,19 に示されるようにフリーボード温度が N₂O 濃度を支配的に決定しているためと考えられる。図-21 に今回連続測定した 6 焼却炉のフリーボード温度と汚泥中 N 分の N₂O への転換率の関係を示す。今回測定した 6 箇所の焼却炉におけるフリーボード温度と汚泥中 N 分の N₂O への転換率はかなりの変動を示し、図-20 に代表されるような一つの曲線上には乗らなかった。しかしながら測定対象のうち、フリーボード温度と汚泥中 N 分の N₂O への転換率の関係で他と異なる傾向を示した 2 カ

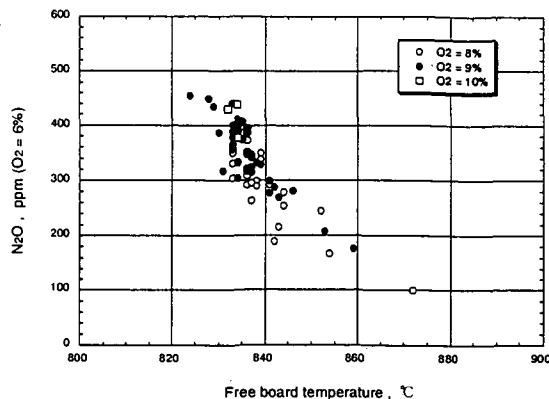


図-19 フリーボード温度と N₂O の関係

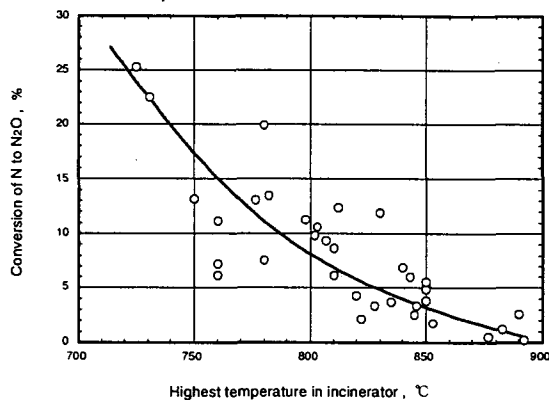


図-20 32 焼却炉における N₂O 転換率に関して

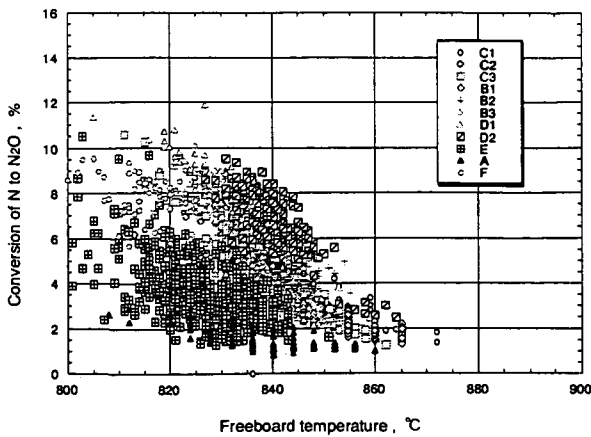


図-21 全測定の N₂O 転換率と FB 温度の関係

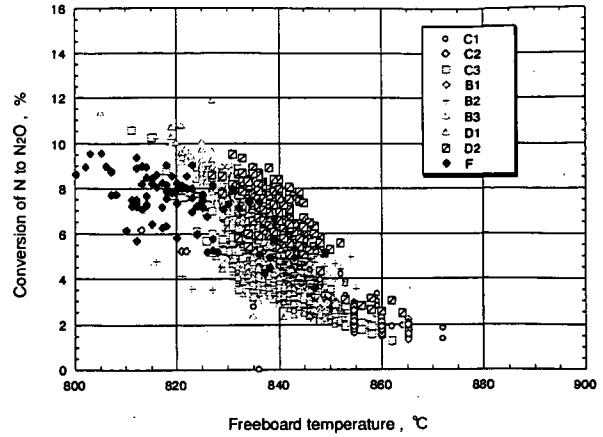


図-22 4 施設での N₂O 転換率と FB 温度の関係

所、すなわち A,E 炉を除くとかなり良い相関が得られた。図-21 から A,E 炉での結果を除いてプロットした結果を図-22 に示す。A,E 炉を除く 4 炉については、フリーボード温度と汚泥中 N 分の N₂O への転換率に良好な相関が認められる。すなわち、相関曲線からの誤差の範囲は大きいものの、全体としてはある曲線状に分布していると判断される。A,E 炉に関しては、この相関曲線が他の 4 炉と異なるデータとなっている。原因としては、フリーボード温度の記録にあると考えられる。実炉規模ではフリーボードの水平方向の温度分布が存在し、炉中央部の温度と壁近傍の温度は異なる。A,E 炉ではフリーボード温度をやや過小に測定したと考えられる。

以上の検討からフリーボード温度に対する汚泥中 N 分の N₂O への転換率の依存性は各焼却炉により多少異なるものの、概ね図-20 に示される相関曲線に一致した傾向を示していると判断した。表-7 に示されるように、N₂O 排出係数が個々の焼却炉で異なるのは単に、焼却炉の運転時のフリーボード温度が異なるためであるということになる。表-7 に示される様に C,D 焼却炉で N₂O 排出係数が大きく、A,B 焼却炉で小さくなったのは、C,D 焼却炉は低いフリーボード温度で運転され、A,B 焼却炉は高いフリーボード温度で運転されていたためと判断される。

フリーボード温度の変動の原因であるが、次の様に考えられる。石炭を燃料とする流動層ボイラーでは炉内温度はほぼ一定に制御されるが、燃料の組成が不均一な都市ゴミや下水汚泥の流動焼却炉ではフリーボード温度はどうしても変化してしまう。下水汚泥そのものは比較的均質なものであるが、供給時の含水率はかなり変化する。このため、一定量の切り出しによる供給では可燃分と水分の割合が変化するため、必然的に炉内温度の擾乱を生じる。このような下水汚泥焼却

炉の運転状況を表す典型的な例として、平成 13 年度に行った測定で、焼却炉のプロセスデータより得られる、排ガス中 O₂ 濃度 (炉出口) とフリーボード温度との関係を図-23 に示す。4 焼却炉とも重油や都市ガスにより助燃しているがその助燃量は運転記録によると概ね一定である。また、

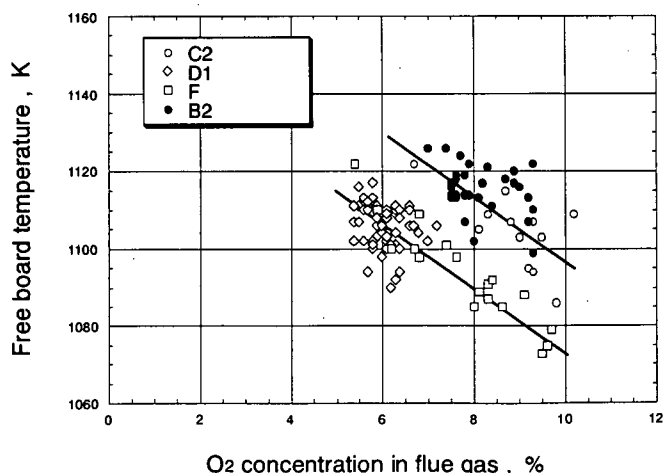


図-23 FB 温度と排ガス中の O₂ 濃度の関係

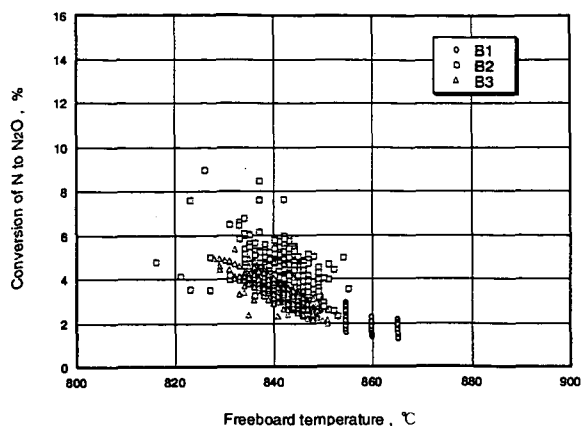


図-24 B 焼却炉の N₂O 転換率と FB 温度

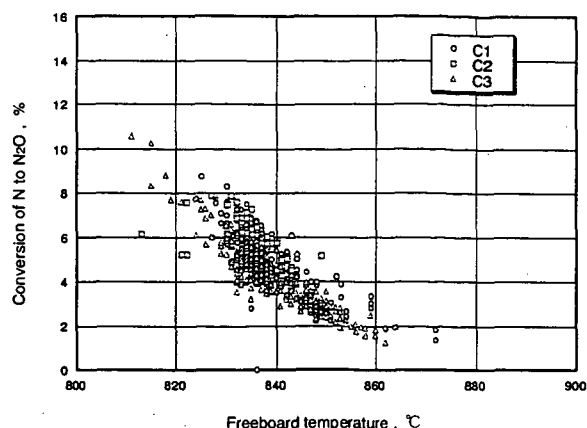


図-25 C 焼却炉の N₂O 転換率と FB 温度

燃焼用空気の流量も一定に保たれている。そのため、可燃分投入量が減少すると、空気過剰率が上昇し排ガス中の O₂ 濃度は増加し、同時にフリーボードの温度が低下する。これは、可燃分の減少は水分の増加を意味し、必然的にフリーボード温度が低下するためである。この空気過剰率とフリーボード温度の関係は炉の運転状況、炉の構造等で変化し、一意的ではない。焼却炉による相違は、フリーボードでの温度分布、滞留時間等の差異等焼却炉固有の要因であると考えられる。

次に、N₂O 排出係数の季節による変化を調べた結果を述べる。表-7 に示される N₂O 排出係数で、B 焼却炉のデータのうち、B1 (5月) および B3 (9月) は夏季、B2 (12月) は冬季のものである。同様に C1 (12月)、C2 (8月)、C3 (10月) も冬季と夏季のデータが混在している。C 焼却炉では N₂O 排出係数で比較した場合、ほとんど同一で季節変化は認められなかった。一方、小型の焼却炉である B 焼却炉では、測定時期により異なる排出係数を示し、見かけ上季節変化も認められた。しかしながら、夏季 (B1 と B3) でも排出係数は大きく異なっており、純粋な季節変動とは言い難く、単に運転状態が時期により異なるため、N₂O の排出係数が異なったことを示していると思われる。これらの結果を検討するため、B 焼却炉および C 焼却炉の測定データを詳細に比較検討した。図-24,25 に B 焼却炉および C 焼却炉の、N₂O 排出濃度とそのときのフリーボード温度との関係を示す。図-25 より明らかのように、C 焼却炉においては、冬季でも夏季でもフリーボード温度は同一のレンジで変化しており、結果的に N₂O 排出濃度も同一のレンジにあることが分かる。これに対し、B 焼却炉では、測定時期によりフリーボード温度が異なる温度レンジとなっている。特に B1 ではフリーボードの温度域が高温側に偏っており、このため低い N₂O 転換率となっている。この様に測定時期によりフリーボードの温度域が異なるため、N₂O 排出濃度が測定時期により大きく異なると判断できる。しかしながら、N₂O 排出濃度のフリーボード温度に対する依存性は、測定時期に依存せずほぼ同一であることも示されている。従って、各運転時期において同様な温度レンジにフリーボード温度を維持したならば、同一の N₂O 排出濃度となり、N₂O 排出係数も等しい値を示したと考えられる。ただ、容量の小さい焼却炉では外気温や汚泥性状の変化により運転状態が影響を受けやすいのは事実であり、小容量の焼却炉でフリーボード温度が運転時期によりかなり異なる可能性は多いように思われる。

下水汚泥では N 分が高いため、前述のように熱分解時に多量の HCN が揮発分中に放出される。この HCN が N₂O の出発物質の一つであり N₂O の前駆体である NCO を生成している。HCN はこの他、NO や最終的には N₂ になる部分も多い。我が国においては下水汚泥の流動焼却炉の運転は、排ガス中に未反応の HCN を残存させないように、通常フリーボード温度を 830~860°C に管理する方法が採用

されることが多い。このため、こうした運転管理を行っている焼却炉では汚泥中の N 分の N_2O への転換率は図-20 より 2~3%程度と予想される。これは、排出係数に換算して 1600~2500 $g\cdot N_2O/t\cdot DS$ となる。

4. 1. 3 まとめ

平成 12 年度から 14 年度の 3 年間に 6 カ所の下水汚泥焼却炉に対し、 N_2O 排出量の 1 週間から 2 週間の長期連続モニター延べ 11 測定を実施した。この測定の結果 6 施設の N_2O 排出係数は、湿汚泥基準で、350~1,416 $g\cdot N_2O/t\cdot WS$ 、平均値 792 $g\cdot N_2O/t\cdot WS$ であった。また、 N_2O 濃度の変動幅は平均値に対しマイナス側でほぼ 50%、プラス側で 50~100%となり、変動幅は大きかった。従って、下水汚泥焼却炉からの N_2O 排出係数を決定する場合は短時間のサンプリングにより測定した N_2O 濃度より求めた排出係数では、必ずしもその焼却炉の排出係数を代表しないおそれが十分あることを改めて確認した。IPCC が公開しているガイドラインにある流動層型下水汚泥焼却炉からの N_2O 排出係数との比較では、今回の測定値は数倍大きかった。しかしながら、日本からの報告値とは概ね一致した。IPCC の推奨値に比べ我が国における N_2O 排出係数はかなり高い値となったが、今後調査する必要がある。同一の焼却炉に対する複数回にわたる測定結果から、 N_2O 排出量は測定期間により変化する可能性が認められたが、この原因は焼却炉のフリーボード温度の運転温度域が時期により異なることが主原因であることを確認した。しかし、汚泥中 N 分の N_2O への転換率とフリーボード温度の関係はほぼ同一であった。また、6 施設のうち、4 施設の汚泥中 N 分の N_2O への転換率とフリーボード温度の関係は、ほぼ同一の曲線上にあり、これは過去に得られた 36 施設での汚泥中 N 分の N_2O への転換率と煙道最高温度との関係とほぼ一致した。

4. 2 焼却炉の運転データの解析により N_2O 排出係数を推定する方法の検討

6 施設における連続測定結果から、ある下水汚泥流動焼却炉で年間 N_2O 排出量を代表する N_2O 排出係数を求めるには、運転記録データより N_2O 排出量を決定しているフリーボード温度の記録を抽出し、そのデータから N_2O 排出係数を求める方法により概略の N_2O 排出濃度を推定できることが確かめられた。少なくとも、短期的な測定で決定された N_2O 排出係数を用いて、 N_2O のインベントリーを計算するよりは長期の運転データから排出係数を決定する方法の方がより高い精度を有すると思われる。この考え方にに基づき、実際の下水汚泥焼却炉の運転データから、 N_2O 排出量に決定的な影響を及ぼすフリーボード最高温度データを基に、 N_2O 排出濃度を推定し、排出係数を決定することを試みた。

4. 2. 1 データ解析の方法

北海道から九州までの全国 16 カ所、17 基の下水汚泥流動焼却炉の 2 週間分、1 時間毎の運転データを電子ファイルの形で入手し、解析を行った。記録期間は概ね平成 14 年 10 月~12 月である。17 基の主要緒元を表-9 に示す。すべて、高分子凝集剤を使用して脱水した下水汚泥を流動層形式で焼却する焼却炉である。規模は表-9 に示すとおり、まちまちで最小 30t/day から最大 250t/day までである。また、一部の焼却炉は終日運転ではなく、隔日もしくは数日毎の運転モードとなっている。計算に必要な汚泥の分析値は実際の汚泥が入手可能な場合にはその分析値を、得られない場合にはデフォルト値を定めてその値を用いた。 N_2O 排出濃度の推定に必要なフリーボード温度は、運転記録にあるフリーボード温度のうち、最高温度を示すものをそのまま用いた。1 基についてはフリーボード温度の実

表-9 運転データ解析対象下水汚泥焼却炉と汚泥分析値の一覧

識別記号	焼却能力 t-WS/day	助燃料		汚泥含水率(%)	強熱減量(%)	灰分(%)	汚泥分析値 dry wt%			
		No. 1	No. 2				N	C	H	S
A	140	A重油		79.20	75.47	24.53	4.25	32.28	5.21	0.67
B	100	A重油		82.91	66.90	33.10	4.86	29.88	4.88	1.23
C	110	A重油		81.26	78.94	21.06	4.98	34.23	5.61	0.77
D	90	A重油		74.44	74.50	25.50	4.60	33.00	5.30	0.80
E	210	A重油		79.45	84.12	15.88	4.25	37.52	5.89	0.48
F	250	A重油		78.50	74.50	25.50	4.60	33.00	5.30	0.80
G	250	A重油		78.50	74.50	25.50	4.60	33.00	5.30	0.80
H	120	A重油		78.50	74.50	25.50	4.60	33.00	5.30	0.80
I	80	A重油	消化ガス	78.71	59.15	40.85	4.28	26.71	4.32	0.92
J	120	灯油		65.69	61.60	38.40	2.78	27.62	4.51	0.20
K	110	灯油		78.50	74.50	25.50	4.60	33.00	5.30	0.80
L	90	都市ガス		79.15	82.94	17.06	4.39	34.34	5.50	0.61
M	45	A重油		79.31	80.73	19.27	5.00	36.55	5.74	1.07
N	60	A重油	消化ガス	78.50	74.50	25.50	4.60	33.00	5.30	0.80
O	30	A重油		81.67	79.97	20.03	6.17	34.74	5.68	1.00
P	30	A重油	消化ガス	81.70	79.50	20.50	5.90	33.53	5.55	1.09
Q	75	A重油	消化ガス	74.40	68.00	32.00	3.50	34.00	5.30	0.80

測値が記録されていないため、記録されていた流動層温度より推定(流動層温度より 30℃高温と仮定)した値を用いた。汚泥投入量、使用空気流量、使用補助燃料(A重油、灯油、都市ガス、消化ガス)量は運転データの値をそのまま用いた。ただし、運転記録のうち、起動・停止やトラブルにより汚泥の供給が停止している期間のデータは解析から除外した。

N₂O 排出濃度の推定で重要な、汚泥中 N 分の N₂O への転換率のフリーボード最高温度への依存性については、下記の 2 種類の依存性を仮定した。

$$\eta = A_0 + A_1 T_f \tag{12}$$

$$\eta = A_0 + A_1 T_f + A_2 T_f^2 \tag{13}$$

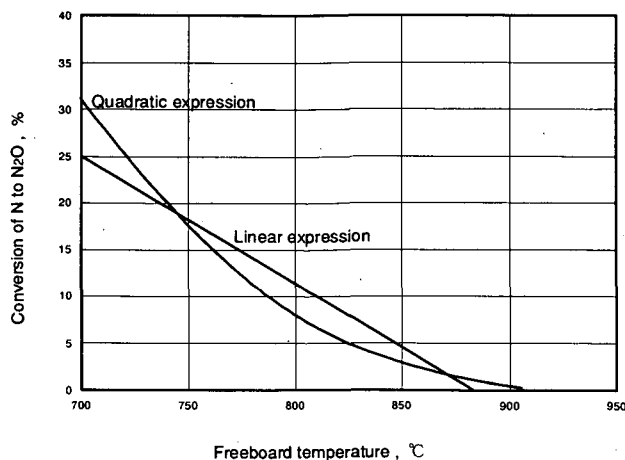


表-8 近似式の係数

Constant	Linear	Quadratic
A0	1.23E+02	6.78E+02
A1	-1.40E-01	-1.52E+00
A2	0.00E+00	8.57E-04

図-26 運転データ解析に使用した N₂O 転換率と FB 温度の関係

ここで、 η : 汚泥中 N 分の N_2O への転換率(%)

T_f : フリーボード最高温度 (°C)

A_0, A_1, A_2 : 係数

式(12)は、土木研究所報告⁷⁾にある汚泥中 N 分の N_2O への転換率をフリーボード温度に対し一次式で近似した式、式(13)は図-20 に示される 32 基の汚泥焼却炉の実地調査によって得られた汚泥中 N 分の N_2O への転換率のデータを最小自乗法により 2 次式で近似したものである。それぞれの近似式に使用した係数を表-8 に、それぞれの近似式における汚泥中 N 分の N_2O への転換率のフリーボード温度に対する依存性を、図-26 に示す。式(12)を利用したデータ解析では、 N_2O 濃度が 0 や負となるフリーボード温度が存在するため、フリーボード温度がこの温度以上となる場合には N_2O 濃度は 0 として計算した。式(2)では今回のデータでは、 N_2O 濃度がゼロや負になる領域は無く、そのまま計算した。今回解析の対象とした 17 基の下水汚泥焼却炉は基数で全国の流動焼却炉(315 基、平成 12 年)の 5.4%、焼却炉の合計焼却容量 1,910 t-WS/day は、全国の下水汚泥流動焼却炉の総焼却容量(年間 380 万トン、平成 12 年)の約 15%となる。

4. 2. 2 解析結果と考察

図-27 に運転データから抽出したフリーボード温度の変化の一例を示す。それぞれ、A、G、N 焼却炉の運転データより抽出したフリーボード温度の変化の様子である。すべての焼却炉で平均値より±10°C程度の温度変動が認められる。また、フリーボード温度の絶対値も焼却炉で大きく異なっている。A 焼却炉では 800°Cを下回っているが、G 焼却炉では 870°Cと比較的高温になっている。N 焼却炉は連続運転ではなく、数日おきの間欠運転となっている。図-27 は 3 基の例であるが、他の 14 基でもほぼ同様なフリーボード温度の変動が認められた。このように、 N_2O 排出濃度を決定すると考えられるフリーボード温度は焼却炉によって大きくことなり、解析からも裏付けられた。

次に、抽出したフリーボード温度と汚泥性状から N_2O の排出量を推定した結果を示す。表-10,11 に汚泥中 N 分の N_2O への転換率とフリーボード温度の関係を一次式と二次式で近似し、17 基の運転データを解析した結果を示す。汚泥中 N 分の N_2O への転換率とフリーボード温度の関係を一次式で近似した場合、17 基の平均 N_2O 濃度、湿ベース N_2O 排出係数、乾ベース N_2O 排出係数の平均値はそれぞれ 266ppm、942 g- N_2O /t-WS、4454 g- N_2O /t-DS となった。また、二次式で近似した場合はそれぞれ、196ppm、691 g- N_2O /t-WS、3271 g- N_2O /t-DS となり、一次近似式を使用した場合の方が高い排出係数を示した。これは、図-26 に示されるように一次近似式では 750~870°Cで二次近似式よりも汚泥中 N 分の N_2O への転換率を高く見積もるためである。以上は単純平均であるが、表-9 に示す各焼却炉の焼却容量を加味した加重平均値では、平均 N_2O 濃度、湿ベース N_2O 排出係数、乾ベース N_2O 排出係数の平均値は、一次式使用でそれぞれ 287ppm、981 g- N_2O /t-WS、4564

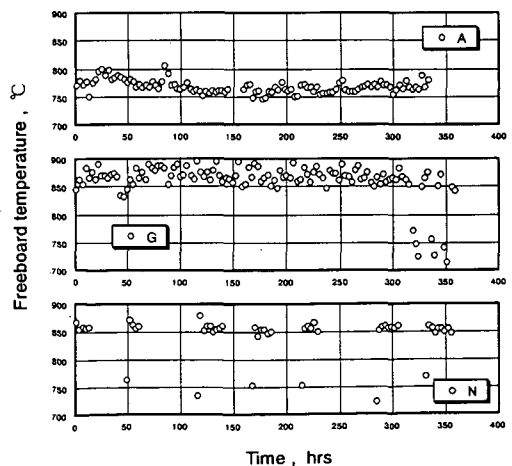


図-27 FB 温度変動の一例

g-N₂O/t-DS、二次式使用でそれぞれ214ppm、733 g-N₂O/t-WS、3419 g-N₂O/t-DSとなった。いずれの場合も、容量を加味した加重平均では単純平均に比べやや大きな値となるが、概ね単純平均と大差はない。近似式としては二次式によるものの方が精度が高いと考えられる。さらに、今回対象とした17基の焼却炉の総公称焼却容量(1910t-WS/day)に対する中央値である積算焼却容量955t-WS/dayに対するN₂O排出係数を調べるため、二次近似式を使用した場合の湿ベースN₂O排出係数と積算焼却容量をFig.15に図示する。図-28から総公称焼却容量の中央値に対するN₂O排出係数は

表-10 運転データ解析結果(1次近似式)

識別番号	平均層温度 ℃	平均FB温度 ℃	層との温度差 ℃	推定N2O濃度 ppm			N2O排出係数 g-N2O/t-WS			N2O排出係数 g-N2O/t-DS		
				平均	最低	最高	平均	最低	最高	平均	最低	最高
A	730	769	40	629	192	883	2,133	1,379	2,585	10,256	6,632	12,429
B	807	849	42	190	0	292	565	0	876	3,307	0	5,125
C		851		183	80	315	580	245	1,354	3,098	1,307	7,223
D	727	843	115	291	12	494	942	153	1,628	3,687	600	6,368
E		857		83	0	327	429	0	1,324	2,086	0	6,445
F	787	814	27	485	207	767	1,411	629	2,065	6,561	2,928	9,607
G	714	817	103	341	56	981	1,354	368	3,436	6,297	1,713	15,982
H	766	869	103	88	0	408	262	0	2,327	1,219	0	10,821
I	777	849	71	195	49	402	603	296	1,517	2,832	1,393	7,126
J	817	847	30	199	0	414	671	0	1,845	1,957	0	5,378
K		820		458	16	653	1,293	194	1,717	6,012	904	7,988
L	736	858	122	128	0	479	417	0	1,571	1,998	0	7,536
M	722	836	115	289	97	412	967	431	1,341	4,676	2,082	6,482
N	820	816	-4	265	131	338	1,361	716	1,913	6,331	3,332	8,898
O	806	847	41	120	48	266	796	297	2,014	4,345	1,619	10,985
P	804	815	12	374	158	643	1,515	592	2,659	8,277	3,236	14,528
Q	800	843	43	209	0	427	711	0	2,000	2,778	0	7,814
平均				266	62	500	942	312	1,893	4,454	1,514	8,867
標準偏差				151			498			2,496		
焼却能力加重平均値				287			981			4,564		

表-11 運転データ解析結果(2次近似式)

識別番号	平均層温度 ℃	平均FB温度 ℃	層との温度差 ℃	推定N2O濃度 ppm			N2O排出係数 g-N2O/t-WS			N2O排出係数 g-N2O/t-DS		
				平均	最低	最高	平均	最低	最高	平均	最低	最高
A	730	769	40	562	148	864	1,921	982	2,628	9,238	4,722	12,636
B	807	849	42	133	67	189	397	199	568	2,321	1,165	3,323
C		851		129	87	218	410	281	939	2,188	1,499	5,011
D	727	843	115	194	8	328	628	319	1,113	2,458	1,247	4,353
E		857		68	3	212	353	209	933	1,716	1,015	4,540
F	787	814	27	342	143	628	994	433	1,690	4,625	2,016	7,862
G	714	817	103	245	47	1,134	968	330	3,973	4,504	1,533	18,477
H	766	869	103	109	69	268	318	236	2,043	1,479	1,099	9,505
I	777	849	71	134	32	294	417	290	1,109	1,957	1,364	5,210
J	817	847	30	138	73	317	465	239	1,449	1,355	697	4,222
K		820		312	12	476	882	282	1,279	4,102	1,310	5,949
L	736	858	122	106	60	355	346	221	1,164	1,658	1,060	5,584
M	722	836	115	188	81	271	630	360	900	3,045	1,740	4,352
N	820	816	-4	182	92	245	935	477	1,502	4,347	2,216	6,986
O	806	853	47	75	42	392	528	281	3,450	2,883	1,533	18,821
P	804	815	12	260	115	582	1,060	431	2,404	5,792	2,354	13,136
Q	800	843	43	146	28	302	496	214	1,702	1,939	836	6,647
平均				196	65	416	691	340	1,697	3,271	1,612	8,036
標準偏差				123			407			2,023		
焼却能力加重平均値				214			733			3,419		

590 g-N₂O /t-WS となり、単純平均値や焼却容量加重平均値よりも小さな値となった。これは、図-28 に示されるように N₂O 排出係数の大きな焼却炉が全体の N₂O 排出係数を引き上げていることを示している。これは、さらに N₂O 排出係数の大きな焼却炉での N₂O 対策は、全国の下水汚泥焼却炉全体の N₂O 排出係数を引き下げることにより有効であることを示している。また、焼却容量とフリーボード最高温度、N₂O 排出係数の関係を図-29,30 に示すが、特に関係は認められない。このことは、焼却炉の大きさには無関係に焼却炉の運転状態は決められていることを意味している。

得られたデータの統計的な検討を行った。図-31 に汚泥中 N 分の N₂O への転換率を二次式で近似した場合の、湿ベースの N₂O 排出係数の頻度分布を示す。統計処理するためのデータ点数としてはまだ不足であることは明らかであるが、平均値 691 g-N₂O/t-WS、標準偏差 407 g-N₂O/t-WS で正規分布を仮定すると、平均値 ±σ に 16 基のデータがある。特に極端に排出係数の大きな値を示す 1 基を除外するとよりシャープな分布となる。正規分布の仮定にやや無理があるように思われるが、一応正規分布を仮定すると排出係数における不確実性は定義により、

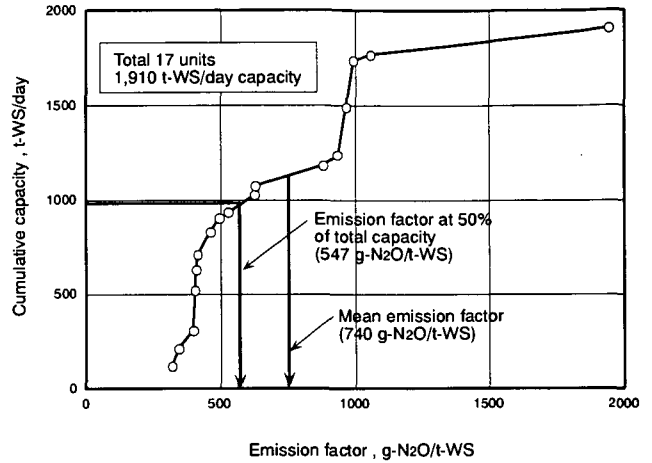


図-28 N₂O 排出特性と焼却容量積算値 (2次)

$$U_{EF} = \frac{E_{95}/2}{E_{mean}} \approx \frac{\sigma}{E_{mean}} = \frac{407}{691} = 0.589 \quad (14)$$

ここで、 U_{EF} : 排出係数の不確実性

E_{mean} : 排出係数の平均値 g-N₂O/t-WS

E_{95} : 95%信頼区間 (=1.98σ) g-N₂O/t-WS

σ : 標準偏差 g-N₂O/t-WS

となる。

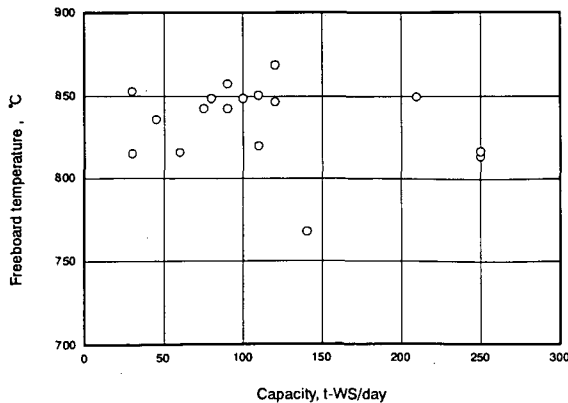


図-29 焼却容量とFB最高温度の関係

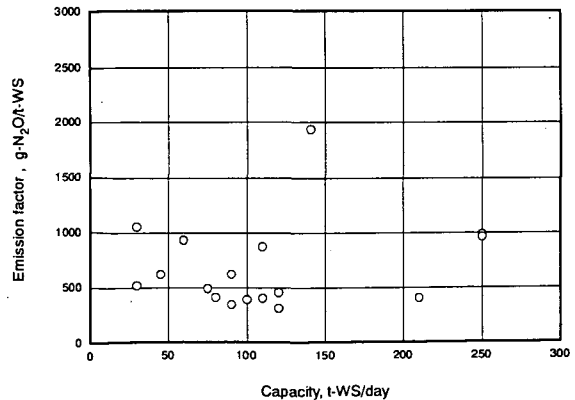


図-30 焼却容量と湿ベース N₂O 排出係数

今回の運転データ解析から得られた N_2O 排出係数の加重平均値、733 $g\text{-}N_2O/t\text{-}WS$ は表-7 に示される実地調査で得られた値である 866 $g\text{-}N_2O/t\text{-}WS$ と概ね一致する値となった。環境省は全国の流動層タイプの下水汚泥焼却炉からの N_2O のインベントリーの推定にあたって、排出係数を 839 $g\text{-}N_2O/t\text{-}WS$ としている⁸⁾が、運転データの解析結果とこの排出係数は概ね一致しており、環境省の推計値は概ね信頼できるものと判断される。環境省の N_2O インベントリー推計の手順に従って計算を試み、平成 13 年の高分子凝集剤を使用した脱水汚泥のうち、380 万トンが

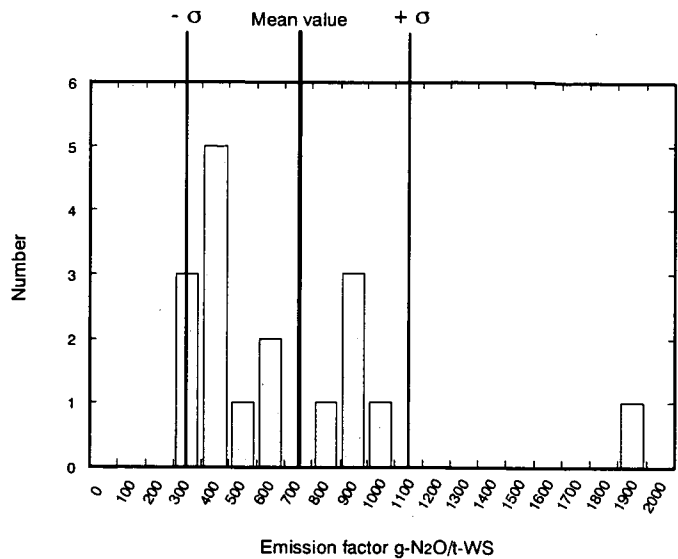


図-31 排出係数の出現頻度分布

流動層型の焼却炉で焼却処理されている。この活動量に、今回の運転データ解析で得られた焼却容量加重平均排出係数 733 $g\text{-}N_2O/t\text{-}WS$ を乗じると、 N_2O のインベントリーは 2.81 $Gg\text{-}N_2O/year$ となる。また、総焼却容量ベースでは、調査した 17 基で 1.5 $t\text{-}N_2O/day$ であり、全国の流動焼却容量の 15% 程度であることから、全国では潜在的には、3.6 $Gg\text{-}N_2O/year$ の N_2O 排出量があることも推定できる。

4. 2. 3 まとめ

全国 17 基の下水汚泥流動焼却炉の運転データを入手し N_2O の排出量に最も大きな影響を与えると考えられるフリーボード温度より、 N_2O 排出濃度を推定し、その炉の N_2O 排出係数を推計した。その結果、実炉のフリーボード温度の変動は大きく、長期間の運転の平均値から N_2O 排出係数を決定する必要があることを確認した。計算により得られた N_2O の排出係数は概ね、今回実測した焼却炉での値と一致した。この値は、環境種が N_2O インベントリーの推計に使用している排出係数の値ともほぼ一致しており、環境省の推計値は信頼できるものと判断される。

5. 本研究により得られた成果

水処理プロセスに関しては、標準法に比べ循環法で CH_4 抑制効果が高く、排出ガス量で 1/2 倍の効果がある。しかし、標準法・嫌気・好気法においても、若干ではあるが CH_4 抑制効果が確認できた。これは、返送汚泥中に $NO_3\text{-}N$ が残留していたために、第 1 反応槽内で脱窒反応が若干進行し、抑制効果が現れたと考えられる。この結果から、無酸素槽の脱窒が CH_4 抑制には効果的である。脱窒反応が CH_4 にどのような影響を与えているか、詳細は不明だが、脱窒反応のエネルギー源として、 CH_4 が消費されたとも考えられる。

N_2O に関しては、期間平均で $100mgN_2O\text{-}N/m^3$ 程度の排出があり、期間最大値は $450mgN_2O\text{-}N/m^3$ であった。期間中は、管理状態や処理の状態により、反応槽内での N_2O 生成量はかなり変動する結果であった。しかし、処理が安定している期間は、 N_2O 生成量を低く保つことが可能であり、その量は高くても $55.3mgN_2O\text{-}N/m^3$ であった。近年、下水処理施設の省エネルギー等を目的にした硝化抑制運転や、窒素の除去を目的とした生物学的硝化脱窒プロセスが普及

しているが、このような処理では水温に応じた適切な運転管理により、不完全な硝化が進行するような状況を生じさせないことが必要である。

汚泥処理プロセスに関しては、 N_2O 濃度は炉の運転状態で変化し、短時間のサンプリングにより決定した N_2O 排出係数は必ずしも炉の N_2O 排出量を示さないことが明らかになった。また、得られた N_2O 排出係数は湿汚泥基準で、350~1,416 g- N_2O /t-WS、平均値 792 g- N_2O /t-WS、乾燥汚泥基準で 1,672~6,643 g- N_2O /t-DS、平均値 3,755 g- N_2O /t-DS であった。容量を加味した加重平均値は、それぞれ 866 g- N_2O /t-WS、4,024 g- N_2O /t-DS となり、IPCC の推奨値に比べかなり大きな値となった。焼却炉においては、 N_2O 排出濃度は焼却炉のフリーボード温度でほぼ決定されることが確認された。この知見をもとに、全国 17 基の下水汚泥焼却炉の運転データを解析し、フリーボード最高温度から N_2O 排出濃度を推定し、排出係数を計算した。その結果、フリーボード最高温度の変動幅は実地調査した焼却炉と同様であり、 N_2O も大きく変動していると推定された。また、17 基の排出係数の平均値（容量勘案値）は 733g- N_2O /t-WS で、ほぼ実地調査した焼却炉の平均値と一致した。この値は、環境省が N_2O インベントリーの推計に使用している排出係数の値ともほぼ一致しており、環境省の推計値は信頼できるものと判断される。この数値と活動量である流動焼却炉による汚泥焼却量である 380 万トンより、流動焼却炉に対する N_2O のインベントリーは 2.81Gg- N_2O /year となる。また、総焼却容量ベースでは、調査した 17 基で 1.5t- N_2O /day であり、全国の流動焼却容量の 15%程度であることから、全国の流動焼却炉は潜在的には、3.6Gg- N_2O /year の N_2O 排出量があることも推定できる。

なお、本調査研究は、環境研究総合推進費により実施されたものである。

6. 引用文献

- 1) 玉置、他：環境技術、24、pp. 50、1995.
- 2) <http://www.ipcc-nggip.iges.or.jp/public/gp/gpgaum.htm>
- 3) kramlich,J.C、 et al. : Comb.and Flame、77、pp. 375、1989.
- 4) 鈴木、他：第 5 回日本エネルギー学会講演要旨集、pp. 77、1996.
- 5) 酒井、他：土木研究所資料「平成 11 年度下水道関係調査研究年次報告書集」、pp. 125、2000.
- 6) Yasuda,K. : Report of Kanagawa Environmental Research Center、vol. 16、pp. 49、Kanagawa Environmental Research Center、Kanagawa、1993.
- 7) 環境庁：「温室効果ガス排出量算定に関する検討結果 第 2 部廃棄物分科会報告書」、平成 12 年 9 月
- 8) 建設省都市局下水道部：「下水道における地球温暖化防止実行計画策定の手引き」、(社)日本下水道協会、平成 11 年.
- 9) 平成 13 年度版 下水道統計、(社)日本下水道協会、2003

2. 微生物群制御による内分泌かく乱物質の分解手法に関する研究

下水処理研究室 室長 中島 英一郎
研究官 齋野 秀幸

1. はじめに

都市活動によって排出される内分泌かく乱物質は下水道に流入しているため、下水処理で効果的に削減を図る必要がある。その多くは下水処理過程で除去されてはいるが、処理しきれない部分もある。一方、これらをよく分解する微生物が見出されており²⁾、それらを利用して既存施設の能力内で除去率を高めることができれば、好都合である。そこで本研究では、この特別な能力を有する微生物が活性汚泥のような複合微生物系の中で、どのような挙動をしているかを検討し、その能力を十分発揮させるために必要な事項を明らかにして、内分泌かく乱物質によるリスクを低減させる下水処理技術を確立しようとするものである。

2. 平成13年度の調査内容

平成13年度は12年度以前の調査によって活性汚泥から分離されたノニルフェノール資化性微生物について、希釈培養条件下のノニルフェノール除去特性を検討した。また、活性汚泥の運転条件とノニルフェノール分解性の関係を把握するため、室内実験による検討を行った。

ノニルフェノール資化性微生物9株によるノニルフェノール除去の経時変化を調べた結果、全ての株でノニルフェノールを含む培養液に菌浮遊液を接種した直後にノニルフェノールの吸着によると見られる液相中濃度の減少が見られた。その後、液相中濃度の減少が続いたが、培養開始後24時間～48時間の間は全ての株で一旦吸収したノニルフェノールの放出と見られる液相中濃度の上昇が観察された。その後は緩やかに変動しながら減少もしくは同一濃度の保持で推移した。このような結果から、ノニルフェノール資化性株の多くは、ノニルフェノールを吸着する能力は大きいものの、資化・分解能力は小さいものと推察された。

3. 平成14年度の調査内容

3.1 調査目的

本調査では、下水処理過程に内分泌かく乱物質分解微生物を適用することによって、既存施設の能力内で内分泌かく乱物質除去性能を高めることを最終的な目的としている。そこで、恒温実験室内に標準活性汚泥法の下水処理パイロットプラントを設置し、内分泌かく乱物質分解微生物の性能調査を行うことを想定している。平成14年度は、その性能調査実験を行うにあたって、パイロットプラントが有する内分泌かく乱物質除去性能を把握しておくとともに、MLSSと内分泌かく乱物質除去との関係について調査した。

3.2 調査方法

本調査は、20℃の恒温実験施設内に設置してある標準活性汚泥法の下水処理パイロットプラントを用いて行った。パイロットプラントの写真を図-1に、概要を図-2に示す。

流入水は実際の下水処理場の最初沈殿池越流水を週に2回もしくは3回補給し、それに17βエストラジオール（以下、E2）を添加し所定の濃度とした。なお、E2を添加した流入水は冷蔵保存できる（図-3）。

生物反応槽は、嫌気槽（200mL）、好気第1槽（300mL）、好気第2槽（250mL）、好気第3槽（250mL）の4槽から成っており、全体で1Lである。曝気はDOで制御されており、好気第1槽のDOが0.3mg/L以下で曝気を開始し、0.5mg/Lで停止するように設定されている。また、同じ生物反応槽が2系列用意してある。

流入水は、2系とも同じものである。

運転条件を表-1に示す。返送汚泥の返送率は約100%であり、汚泥の引き抜きは生物反応槽から直接引き抜いた。流入水の供給量は各系列あたり3L/日であり、HRTは8時間であった。

E2の添加量は9月19日～11月28日は1 μ g、11月29日～2月26日は10 μ gとした。採水は週に1度、内分泌かく乱物質添加後の初沈越流水、1系の処理水、2系の処理水の3箇所で行い、それぞれE2、E1を測定した。

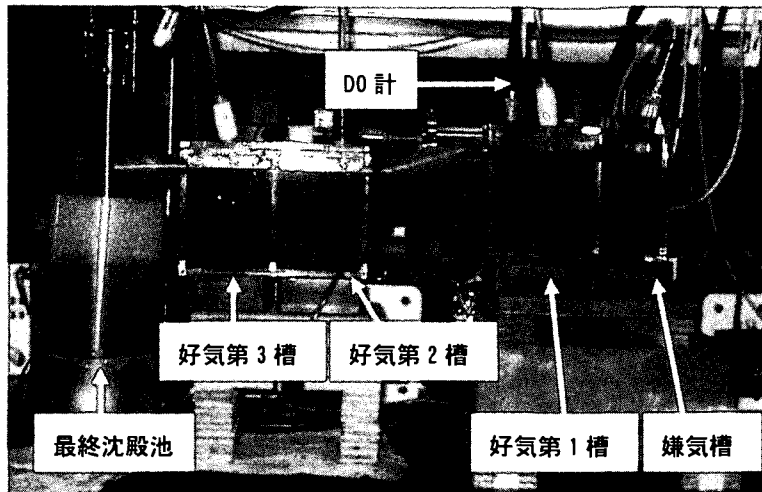


図-1 パイロットプラント

3.3 調査結果

3.3.1 連続実験によるE2、E1の除去特性

調査開始から、調査終了までの、原水中E2濃度、系列1の処理水中E2濃度、及び系列2の処理水中E2濃度を図-4に示す。E2添加は、9月19日に1 μ g/L、11月29日に10 μ g/Lの添加を開始した。また、12月26日から1月6日までは年末年始のためにパイロットプラントを停止した。1月7日から馴致運転を1ヶ月程度行い、2月14日からE2添加を再開した。

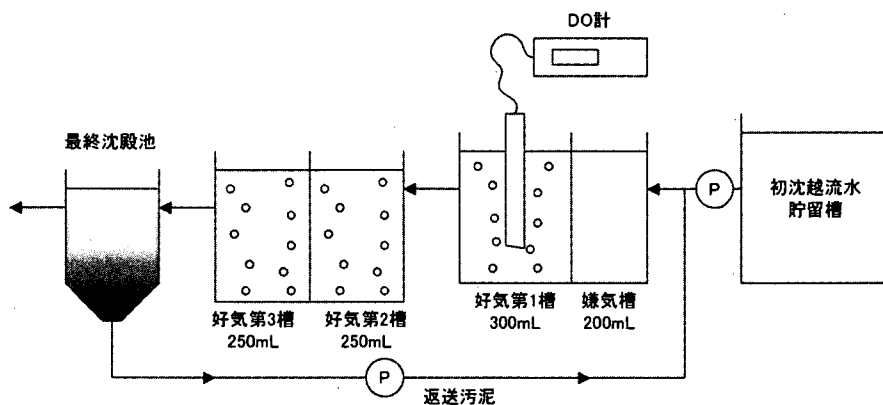


図-2 パイロットプラントの概要

流入水中のE2濃度は、1 μ g/Lもしくは10 μ g/Lとなるように添加したが、2月19日を除けば、いずれの場合も添加量よりは少ないE2が検出された。これは、初沈越流水に添加した直後からE2が分解されたためと考えられる。添加直後の初沈越流水貯留槽における分解率は1 μ g/Lの場合が平均で58%、10 μ g/Lの場合が平均で28% (2月19日のデータ (負の分

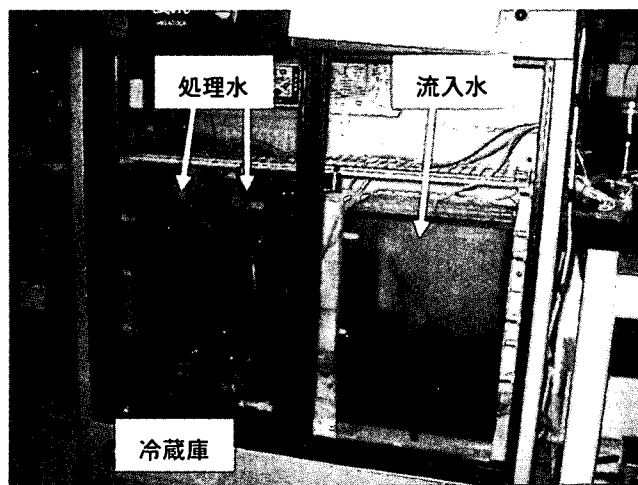


図-3 流入水、処理水の保存

表-1 パイロットプラントの運転条件

反応槽容量	嫌気槽	[mL]	200
	好気第1槽	[mL]	300
	好気第2槽	[mL]	250
	好気第3槽	[mL]	250
	全体	[mL]	1,000
流量	[mL/日]	3,000	
HRT	[時間]	8	
汚泥返送率	[%]	約100	
SRT	[日]	約10	
室内温度	[°C]	20	
DO	[mg/L]	0.3~0.5	

解率となった。)も含む。)であり、1 $\mu\text{g/L}$ の方が大きかった。

処理水中のE2濃度は、系列1、系列2ともにほぼ同じ傾向を示していた。また、E2添加量が増加すれば処理水中E2濃度も増加したが、除去率はE2添加量が増加したときほど高くなり、E2添加率が1 $\mu\text{g/L}$ のときには98%前後(95.9%~99.5%)であったのに対して、E2添加率が10 $\mu\text{g/L}$ のときには99.7%前後であった(99.54%~99.89%、馴致期間を除く。)。実測の流入水中E2濃度と処理水中のE2濃度の変動との間には関係が見られなかった。

図では示していないが、処理水中E1濃度と原水中E2、E1濃度との間にも明確な関係は見られなかった。

図-5は、MLSSと処理水中E2濃度、E1濃度を示す。この図では、MLSSとE2、E1濃度の関係を見るために、E2添加量を1 $\mu\text{g/L}$ とした9月19日~11月27日までのデータのみを示す。なお、E1の測定は10月24日から開始している。

図-5.a、図-5.bは、MLSSと処理水中E2濃度の関係を示し、それぞれ系列1、系列2のものを示している。SRTが長いほどE2の除去率は高い傾向がある³⁾ことやSRTが長いほどE2の分解は速やかに行われる⁴⁾などの報告があることから、MLSSが高いほどE2の除去率が高くなり、処理水中E2濃度が低くなることが予想されたが、その傾向は見られなかった。調査期間全体としては、MLSS及び処理水中E2濃度は増加傾向にあった。この原因として、E2濃度が1 $\mu\text{g/L}$ となるように添加し続けたが、この濃度は実際の下水よりもかなり高いので、処理しきれないE2が槽内を循環し、徐々に処理水中E2濃度が高くなったことが一つの可能性として考えられる。

図-5.c、図-5.dは、MLSSと処理水中E1濃度の関係を示し、それぞれ系列1、系列2のものを示している。処理水中E1濃度もMLSSとの関係が不明確であり、MLSSが高いほど処理水中E1濃度が低くなる傾向は確認できなかった。また、処理水中E1濃度もE2濃度と同様に、調査期間全体として見ると、増加傾向にあった。

図-6には、MLSSと処理水中のE2濃度との関係をプロットした。また、図-6に示すプロットは実測の流入水中E2濃度を0~0.2 $\mu\text{g/L}$ 、0.2~0.4 $\mu\text{g/L}$ 、0.4~0.6 $\mu\text{g/L}$ 、0.6~0.8 $\mu\text{g/L}$ 、1.0 $\mu\text{g/L}$ 以上に分けてある(0.8~1.0 $\mu\text{g/L}$ はなかった。)。流入水中E2濃度が0.8 $\mu\text{g/L}$ 以下のプロットでは、MLSSと処理水中E2濃度には相関が全く見られない。一方、流入水中E2濃度が1.0 $\mu\text{g/L}$ 以上のプロットでは、処理水中E2濃度が0.035 $\mu\text{g/L}$ を超える二点を除外すれば、MLSSが増加するほど処理水中のE2濃度が減少する傾向が見られる。なお、プロット全体で見てもMLSSと処理水中E2濃度には相関があるように見えるが、流入水中E2濃度が0.8 $\mu\text{g/L}$ 以下と1.0 $\mu\text{g/L}$ 以上では添加E2量が異なるため、これらの関係はMLSSと処理水中E2濃度だけでは評価はできない。

図-7には、図-6と同様にMLSSと処理水中のE1濃度との関係を示し、プロットは流入水中のE2濃度ごとに分けた。結果はE1もE2と同様で、流入水中E2濃度が1.0 $\mu\text{g/L}$ 以下ではMLSSと処理水中E1濃度と

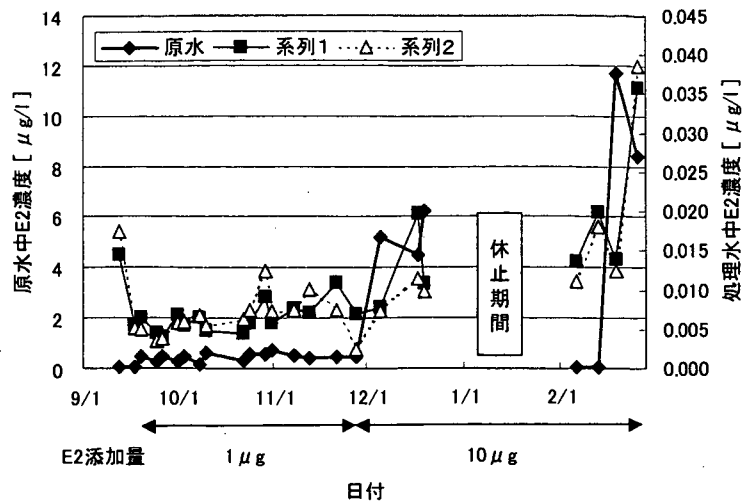


図-4 原水及び処理水中のE2濃度

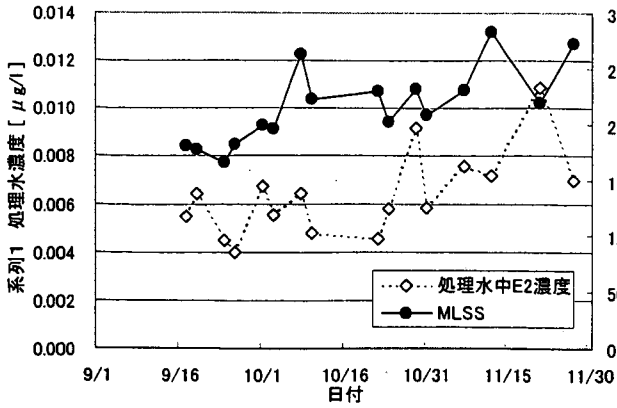


図-5.a MLSS と処理水中 E2 濃度 (系列 1)

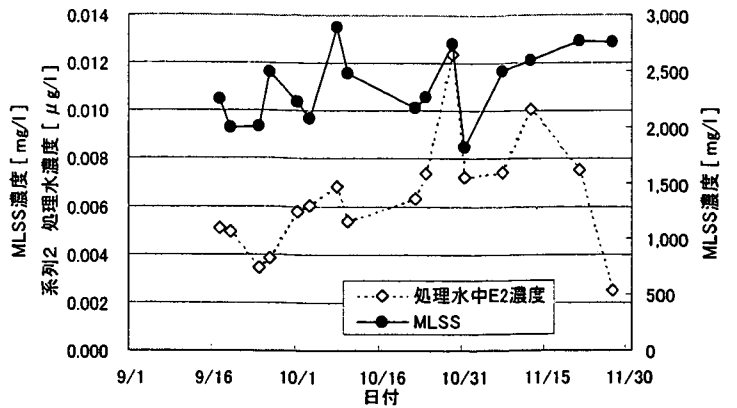


図-5.b MLSS と処理水中 E2 濃度 (系列 2)

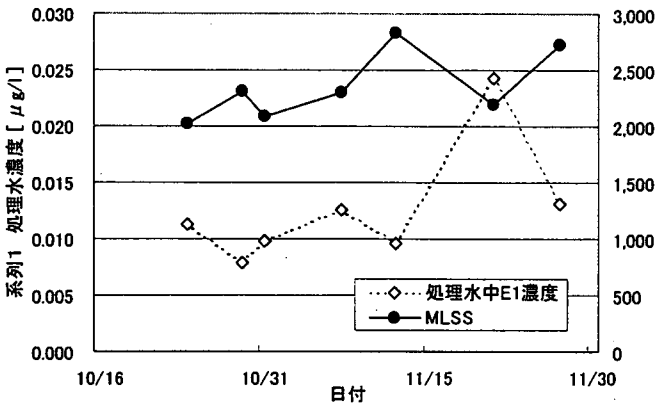


図-5.c MLSS と処理水中 E1 濃度 (系列 1)

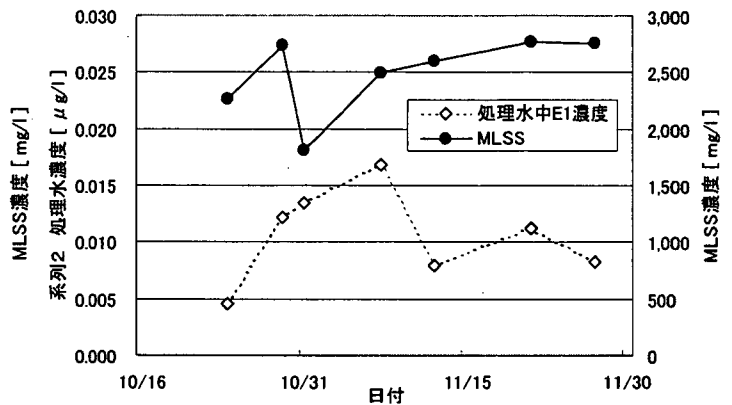


図-5.c MLSS と処理水中 E1 濃度 (系列 1)

図-5 MLSS と処理水中 E2、E1 濃度の関係

の間に相関は見られないが、流入水中 E2 濃度が $1.0 \mu\text{g/L}$ 以上では、MLSS が高くなるほど処理水中 E1 濃度が低くなる傾向が見られた。

なお、流入水中 E2 濃度のプロットの分け方が図-6 と図-7 では異なっているが、これは E2 の測定日が 9 月 17 日からであるのに対して、E1 の測定日が 10 月 24 日からとなっており、流入水中 E2 濃度の分布がそれぞれの場合で異なっていることによる。

図-6、図-7 から、流入水中 E2 濃度が $1.0 \mu\text{g/L}$ 以上では、MLSS 濃度と処理水中 E2、E1 濃度との間には負の相関があり、MLSS が高くなるほど処理水中 E2、E1 濃度が低くなっていた。

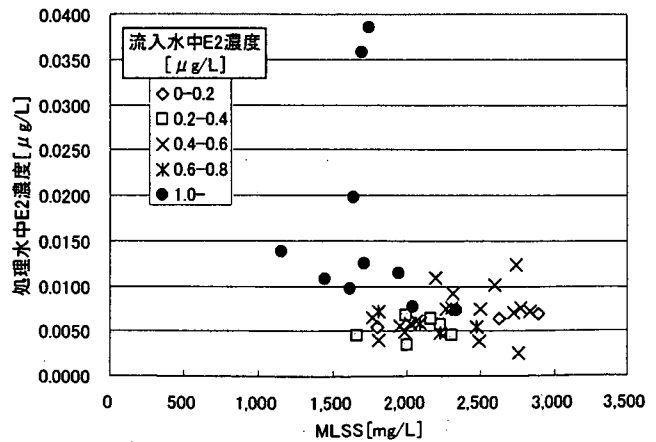


図-6 MLSS と処理水中 E2 濃度の関係

この関係は、流入水中 E2 濃度が $1\mu\text{g/L}$ 以下の場合でも見られるものと予想されるが、その場合、MLSS に関わらず E2、E1 が十分に除去されてしまい、それらの関係が見えなくなっているものと考えられる。

3.3.2 各槽ごとの処理特性

「3.3.1 連続実験による E2、E1 の除去特性」を行っている最中に、各処理槽での E2、E1 の除去特性を調べるために、各槽から活性汚泥を引き抜き、遠心分離ろ液中の E2、E1 濃度を測定した。ただし、嫌気槽では E2 は分解されないと言われている⁹⁾ために、嫌気槽以外の好気槽 1、好気槽 2、好気槽 3、及び処理水中の E2、E1 濃度を測定した。

表-2、及び図-8 に結果を示す。

E2 は好気第 1 槽で 99% 以上の除去率となり、好気槽流入後すぐに分解されていることがわかる。好気第 2 槽以降では除去率がさらに高まり、99.8% となりほぼ分解されていた。一方、E1 の除去率は好気第 1 槽では 1 系で 68.9%、2 系で 61.0%にとどまった。しかし、好気第 2 槽以降では E2 と同様に除去率が上昇し、96~97% 程度となっていた。

E1 は E2 よりも分解速度が遅いと言われている⁹⁾ため、E1 の除去率は E2 よりも低かったものと考えられる。しかし、本調査では高濃度の E2 の添加を行っており、高濃度の E1 が検出されることが予想されたが、好気第 1 槽での除去率が 60% 台となっただけで、高濃度の E1 が検出されることはなかった。

4. まとめ

平成 14 年度は、恒温室内の下水処理パイロ

ットプラントに E2 を添加して E2 の除去調査を行った。その結果、以下のことがわかった。

- 1) MLSS と処理水中 E2、E1 濃度の関係を調査した結果、E2 添加量が多い場合、MLSS が高いほど処理水中 E2、E1 濃度が低い傾向が見られた。ただし、E2 添加量が少ない場合には、MLSS に関わらず E2、E1 が除去され、これらの関係は確認できなかった。
- 2) 各反応槽における E2、E1 の除去状況について調査した。その結果、E2 は速やかに分解されたが、E1

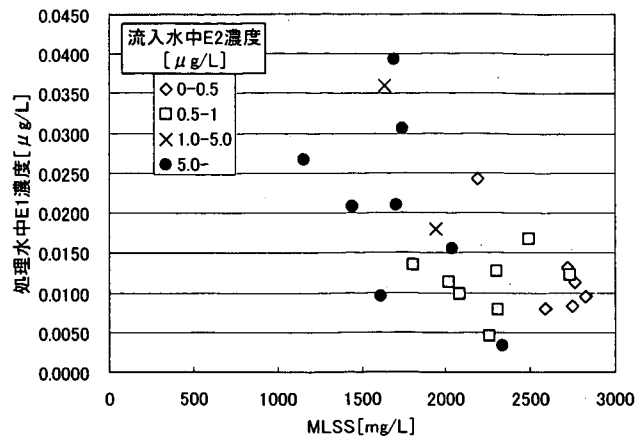


図-7 MLSS と処理水中 E1 濃度の関係

表-2 各反応槽内の E2、E1 濃度、及び除去率

	測定濃度 [$\mu\text{g/L}$]				除去率 [%]			
	E2		E1		E2		E1	
	1系	2系	1系	2系	1系	2系	1系	2系
流入水	11.89	11.89	0.752	0.752	—	—	—	—
好気第1槽	0.077	0.103	0.234	0.293	99.4	99.1	68.9	61.0
好気第2槽	0.023	0.028	0.020	0.025	99.8	99.8	97.3	96.7
好気第3槽	0.020	0.030	0.019	0.031	99.8	99.7	97.5	95.9
処理水	0.014	0.012	0.027	0.021	99.9	99.9	96.4	97.2

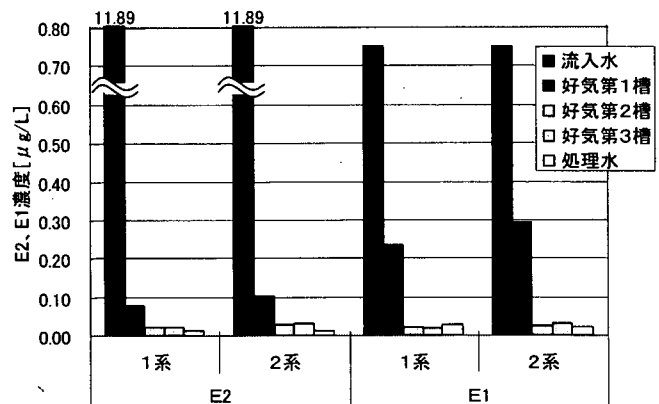


図-8 各反応槽での E2、E1 濃度

は分解がやや遅れた。また、添加 E2 量に対応するような高濃度の E1 生成は見られなかった。しかし、いずれも最終的には 95%以上の除去率が得られた。

平成 15 年度は、同じパイロットプラントを用いて、担体を添加するなどして内分泌攪乱物質の除去率を高める調査を行う予定である。

なお、本調査研究は、試験研究費により実施されたものである。

参考文献

- 1) 国土交通省都市・地域整備局下水道部「平成 12 年度 下水道における内分泌攪乱化学物質に関する調査報告書(案)」 pp.15-31、2001
- 2) 鈴木稔、小越眞佐司「E2 及び NP 分解微生物の探索結果」第 35 回日本水環境学会年会講演集、p.301、2001
- 3) 国土交通省都市・地域整備局下水道部「平成 12 年度 下水道における内分泌攪乱化学物質に関する調査報告書(案)」 pp.24-26、2001
- 4) 斎野秀幸、中島英一郎「SRT 制御による下水中内分泌かく乱物質の処理特性」第 39 回下水道研究発表会講演集、pp.62-64、2002
- 5) 田中美奈子、栗栖太、矢木修身、松尾友矩「エストロジオールおよび類縁物質の活性汚泥による分解とその経路」第 36 回日本水環境学会年会講演集、p.160、2002
- 6) 山縣弘樹、鈴木稔、重村浩之「活性汚泥処理による内分泌攪乱物質等の除去」第 35 回日本水環境学会年会講演集、p.67、2001

3. 生態系の観点からみた下水再生システムのあり方に関する研究

国土交通省

国土技術政策総合研究所 下水道研究部下水処理研究室

中島英一郎

竹歳健治

平出亮輔

研究期間 平成 13 年度～17 年度

平成 14 年度当初予算額 17,578 千円

(研究予算総額 37,573 千円)

Study on Wastewater Reclamation System for the River Ecosystem

(FY2001 ~ 2005)

Hideichiro Nakajima, Kenji Taketoshi and Ryosuke Hiraide

Wastewater and Sludge Management Division, Water Quality Control Department

National Institute for Land and Infrastructure Management

Ministry of Land, Infrastructure and Transport

As the sewerage system diffuses, the amount of wastewater to be treated increases proportionally. When treated wastewater is discharged to public water bodies, it has a serious impact on the ecosystem of the receiving water body that cannot be ignored. Treated wastewater is increasingly being re-used as landscaping water in urban areas in an attempt to restore the waterside environment lost by urbanization. Such places provide oases in cities for the growth of aquatic life.

Aquatic biota, including algae, aquatic insects, and fish that live in these artificially restored waterside areas are mainly species known to survive in somewhat polluted waters. This means that a genuinely good living environment has yet to be restored, as the objectives of the wastewater reclamation system are limited, with primary emphasis on BOD, hygienic safety, and appearance (coliform count, SS, chromaticity, etc.). In fact, when treated wastewater is discharged to rivers and channels, wastewater is simply given advanced treatment using sand filtration or other similar processes. There have been few cases where more advanced treatment is employed to remove nitrogen or phosphorus or apply disinfection by ozone or ultraviolet light. Also, it has not been fully clarified yet what impact or effect such highly advanced treatment processes have on aquatic life.

Further knowledge is needed on wastewater treatment methods and treatment levels necessary to create good habitats for aquatic life at artificial watersides to which treated wastewater is discharged.

Aiming to restore and create genuinely good habitats for aquatic life at receiving waters, we studied the relationship between aquatic biota, including algae, benthos, and fish, and environmental factors, including the quality of treated wastewater and hydraulic conditions at wastewater receiving waters, and propose an ideal form of wastewater reclamation system acceptable for the ecosystem in terms of effectiveness and economy.

1 はじめに

下水道の普及に伴って、下水処理水の量も増加し、1年間で琵琶湖のおよそ半分の容積にあたる約130億 m^3 （平成12年度現在）もの下水処理水が、日本全国で放流されている。

そのため、流域で下水道が普及した都市域の河川では、多摩川のように河川水量の大半が下水処理水で占められているところも出てきている。そのような河川では、河川の水質や水理特性等が下水処理水の性状や排出状況に大きく左右され、さらには水辺環境や周辺の生態系まで影響を及ぼすことが懸念されている。

一方、下水処理水を有用な水資源として着目することで、水源に乏しい地域においては、すでに都市用水として再生利用が行われている。また、近年では失われた水辺環境の再生を求める声が強くなり、下水処理水を修景用水として再利用することで、水辺環境を整備する事例も増加している。東京都の玉川上水などもこの例であり、涸れ川になっていた水路に高度処理を施した下水処理水を流すことで、水辺を復活させている。このようにして下水処理水を活用して創出された水辺環境は、水生生物をはじめとした様々な生物が生息する貴重な空間としても位置付けられている。

しかしながら、下水処理水の放流先となっている河川や下水の再生利用で創出される水路等で見られる藻類や水生昆虫、魚類等といった水生生物相は、ある程度汚濁を受けた水域で見られる種が主となっており、水生生物の良好な生息環境が実現できていないのが現状である。これは、下水処理や下水再生システムの設定目標が、BODや衛生学的な安全性、外観に関する水質項目（大腸菌群数やSS、色度等）に限られているためである。そのため、水路などで下水処理水が再生利用される場合でも、砂ろ過レベルの高度処理を行う程度にとどまっており、窒素・りん除去プロセスやオゾン・紫外線消毒等といったさらに高度な処理プロセスを採用している事例は少なく、また、それらのプロセスの水生生物への影響や効果が、十分解明されていないのが現状である。

そのような状況もあり、下水処理水により形成された水辺環境が、良好な水生生物の生息環境であるために必要な下水処理方式や処理レベル（窒素・りん除去や消毒のあり方）等に関する知見が求められている。

その一方で、主として小規模な下水処理場では、既存の高度処理技術を適用することが経済的に困難

であることが多い。そのため、それらに代わり得る植生浄化や土壌浸透等といった自然浄化能を活用した水質浄化手法の適用性や、それらの浄化手法が放流先の水生生物相に与える影響等の評価も併せて望まれているところである。

2 研究目的

本研究では、下水処理水の放流先において、水生生物の良好な生息環境を再生、創出するために、藻類、底生動物、魚類等といった水生生物相と、下水処理水の水質や放流先の水理条件等の環境要因の関係を明らかにし、生態系の観点から効果的かつ経済的な下水再生システムのあり方を提示することを目的とする。

3 既往事例の収集

昨年度から実施している水路実験で得られた知見は、あくまで理想的な試験環境での成果であり、必ずしも実際の下水処理水放流先で生じている現象を再現できているか保証はない。そこで、現在までの既往調査事例や既往研究と、本研究の成果を比較することで、再現性の検証を行うことを考えた。

本年度は、現在までの既往調査事例や既往研究の収集・整理を行い、検証に用いることが可能な事例を選別した。

3-1 研究の傾向

水生生物に対する下水処理水の影響に関する研究事例は、約20年前頃から見受けられるようになってきた。最近20年間の研究事例を、JICSTデータベースで検索して整理した結果を図-3.1に示す。

初期の事例では、ノリ養殖への影響やユスリカの発生等、問題に対する原因追及を主眼としていた事例が主であったが、1980年代後半からは、下水処理水の再利用による水辺環境の創出が行われはじめたこともあり、そのような箇所における水生生物の実態調査事例が増加するようになった。1990年代半ばからは、下水道普及率の向上や環境意識の高まりを受け、下水処理水の再利用事例に加え、下水処理水の放流先河川など公共用水域における水生生物への影響について調査する事例が増加してきた。また、同時期から消毒や化学物質の毒性について、実態調査や毒性試験を行う事例も大幅に増加してきている¹⁾²⁾³⁾⁴⁾。

しかし、調査研究事例数は大幅に増加しているものの、その大半が現地での実態調査か、ラボレ

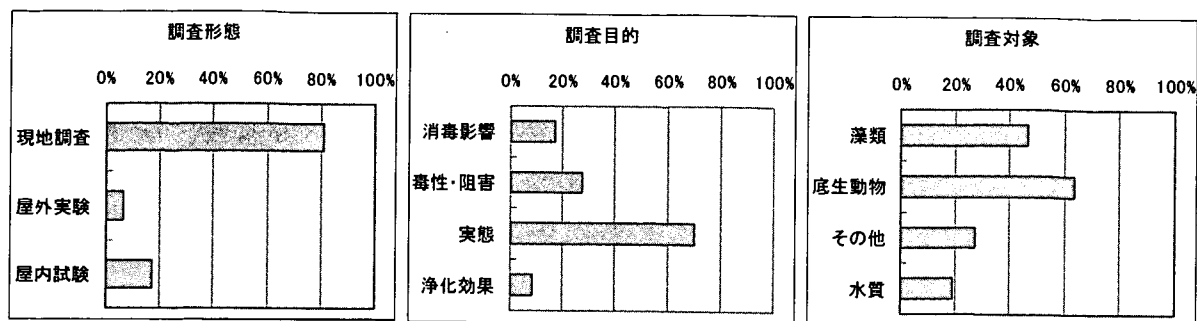


図-3.1 既往研究事例の分類（総文献数：47件）

表-3.1 主な影響要因と水生生物との関係

ベルでの毒性試験であった。そのため、下水処理水の性状と形成される水生生物との関係に関して、影響要因を分離して検討したり、定量的に評価した事例は見られなかった。

消毒	塩素消毒では特定の緑藻類(クロロピオン)が特徴的に生育する 塩素消毒と比べてオゾン消毒では多様性が高くなる 紫外線消毒と比べて塩素消毒では多様性が低下する
栄養塩	栄養塩濃度の高い水域の方が、藻類の生物量が小さくなった。 NP比と付着藻類優占出現種との関係はみられない
アンモニア	底生動物種によっては濃度が高くなると出現が規制される
溶存酸素	生物種によって生息する水域の溶存酸素濃度に違いがみられ、生物種毎に必要な溶存酸素レベルを得られる可能性がうかがわれた 多様性指数や個体数、汚濁指数とDO濃度の間に明確な関係はみられない
水温	水生昆虫において、種別の適水温を得られる可能性がうかがえた 多様性指数や個体数、汚濁指数と水温の間に明確な関係はみられない 付着藻類については、高水温域では藍藻類が多くなり、低水温域では珪藻類が多くなることがうかがわれる

3-2 既往の知見と問題点

既往研究のうち、大規模な調査事例として、独立行政法人土木研究所と自治体等との共同研究が挙げられる⁵⁾。これらの調査結果をもとに、下水処理水の性状と水生生物との関係について、主な影響要因と得られた知見を表-3.1にまとめた。

その結果、定性的な知見は得られつつあるが、実態調査や現地実験を中心として検討している以上、環境条件が均一にならないことや影響要因ごとに条件を制御することが難しいことから、その地点での特性は把握できても、影響要因の定量的かつ一般的な評価は現段階では困難だと考えられた。

4 水路実験

本年度も、昨年度に引き続き、下水処理水の水質が水生生物相に与える影響を検討するため、ラポベルでの実験を行った。

具体的には、屋内に設置した実験水路において、下水処理方式や処理水質の異なる下水処理水を流下させる対照実験を行い、水路に形成される水生生物相の差異を把握して、処理水質と水生生物相の関係を調査した。

4-1 実験方法

4-1-1 実験水路

実験水路は、実験施設の屋内に設置することで、

自然条件の影響を排除して、実験条件をほぼ均一に保つようにした。実験水路の構造は、長さ2m、幅が50mm及び95mmの2種類のステンレス製水路をそれぞれ6連ずつ設置し、供給水量や流速等の様々な条件に対応できるようにしている。

また、各水路の上流側には付着藻類試験に供する付着板を、下流側には底生生物試験を行うための礫材を設置できるような構造とした。その他、実験用の試験水や薬液を供給するためのポンプ類、生物の成長に欠かせない光量を確保するための照明等で構成される。図-4.1に、実験に用いた実験水路の写真を示す。

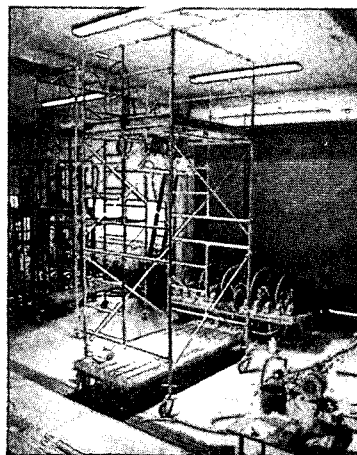


図-4.1 実験水路

4-1-2 河床材料

1) 付着藻類用基板

下水処理水中に生息し得る生物のうち、付着藻類及び底生動物の生育状況に重点をおいた分析を行った。

実験水路本体はステンレス製であり、付着藻類が生育する環境としては適切ではない。そこで、付着藻類の生育場所として、**図-4.2**に示すような人工的な基板を水路内に設置することにした。

設置する基板としては、付着藻類の定量採取用に通常用いられている素焼きの陶器板を用いることにした。また、大きさは水路幅に合わせて、4.5 × 9cm のものと、9 × 9cm のものの2種類を用意した。

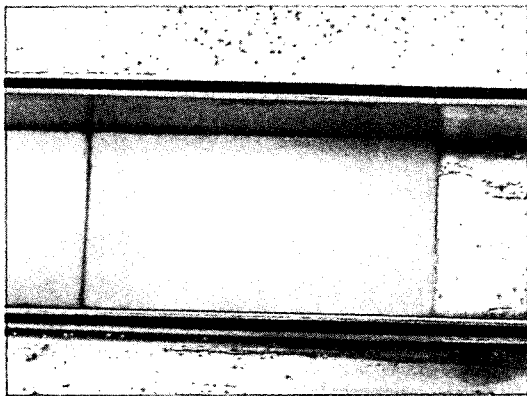
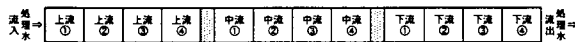


図-4.2 付着藻類用基板（素焼き板）

これらの板を、各水路の上流側と中流側、下流側の3ブロックに、それぞれ基板4枚をセットとして、**図-4.3**に示すように計12枚ずつ設置した。



各水路とも上中下流の各ブロックに4枚ずつ計12枚を設置

図-4.3 付着板の配置イメージ

2) 底生動物用河床材料

各実験の終了時に底生動物の分析を行い、各実験ケースにおける環境条件毎の底生動物の違いを把握することにした。

そこで、水路内に底生動物の生息空間を構成する必要があることから、水路の下流側区間（距離80cm）に礫材を投入して微小な空間を創り、底生動物等の生息空間を確保した。

礫材の大きさは、水路の幅が5.0cm または

9.5cm、深さが約5cmであることから、礫の密度と形成される間隙の空間を考慮して、**図-4.4**に示すような径2~3cmの碎石を用いることとした。



図-4.4 水路に設置した礫

これらの礫を、**図-4.5**に示すように、付着基板とほぼ同じ高さまで水路下流側区間に充填した。

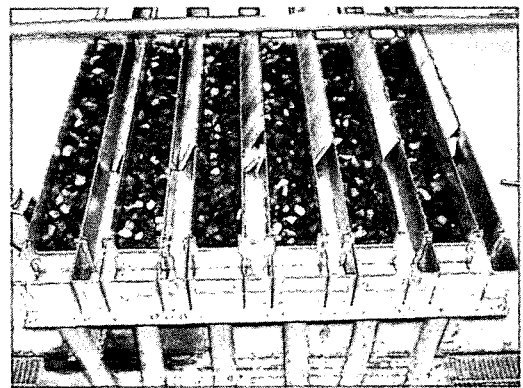


図-4.5 底生動物用礫設置状況

4-1-3 実験条件

本年度の実験では、①下水処理水の栄養塩類濃度と、付着藻類及び底生生物との関連性、②下水処理水の塩素消毒レベルと、付着藻類及び底生生物との関連性の2種類の要因に着目して、実験条件を設定した。

1) 実験期間

当初の実験予定では実験期間を4週間としていたが、1回目の栄養塩濃度との関連性を検討する実験では、栄養塩レベルを比較的低濃度に設定したこと、実験時期が冬季だったこともあり水温が低かったことから、付着藻類の生育が想定よりも遅く、実験期間を6週

間に延長した。

また、2回目の塩素消毒レベルとの関連性を検討する実験でも、冬季の実験で、水温の影響が予想されたため、恒温水槽を用いて試験水を摂氏 20 度まで加温した。それにより、付着藻類は想定どおり生育し、実験期間も当初予定の4週間で実験が完了した。

2) 対象試験水

本年度の水路実験で用いた試験水は、以下の原水を調製することで作成した。なお、詳細な設定条件は次項で述べる。

①実下水処理場の高度処理水

標準活性汚泥法、嫌気無酸素好気法及び凝集剤添加循環硝化脱窒法による各下水処理水の混合水に、急速砂ろ過処理を施したものをを用いた。なお、試験水として用いた処理水は、消毒プロセス前から引水しているため、未消毒である。

②上水

実験施設に供給されている一般的な上水を用いた。なお、塩素消毒が施されているため、チオ硫酸ナトリウム溶液を適量添加して、塩素を中和してから試験水として供した。

3) 水質条件

各実験ごとに、試験水の水質条件の設定は以下のとおりとした。

①第1回実験

下水処理水の栄養塩類濃度と、付着藻類及び底生生物との関連性を検討するために、表-4.1のとおり水質条件を設定した。

なお、本年度の実験では、栄養塩が比較的低濃度域の状況を観察するため、水路 A から水路 F1 までの試験水は、前項で示した実下水処理場の高度処理水を、上水で 10 倍希釈した上で、栄養塩を添加して調製したものをを用いた。

表-4.1 第1回実験の水質条件

水路	下水処理水	調製水質
A		NO ₃ -N=5mg/L, PO ₄ -P=0.05mg/L
B		NO ₃ -N=5mg/L, PO ₄ -P=0.1mg/L
C	実下水処理場 高度処理水の 10倍希釈水	NO ₃ -N=5mg/L, PO ₄ -P=0.5mg/L
D		NO ₃ -N=2mg/L, PO ₄ -P=0.5mg/L
E		NO ₃ -N=1mg/L, PO ₄ -P=0.5mg/L
F1		原水のまま
F2	実下水処理場 高度処理水	原水のまま

栄養塩濃度の調製方法は、硝酸ナトリウム (NaNO₃: 分子量 84.99) およびリン酸水素二カリウム (K₂HPO₄: 分子量 174.18) の高濃度溶液を調製の上、薬液タンクに貯蔵し、ここから定量ポンプで必要量を混合タンクに送り処理水と攪拌混合することで行った。

図-4.6に、栄養塩を処理水に混合する装置を示す。

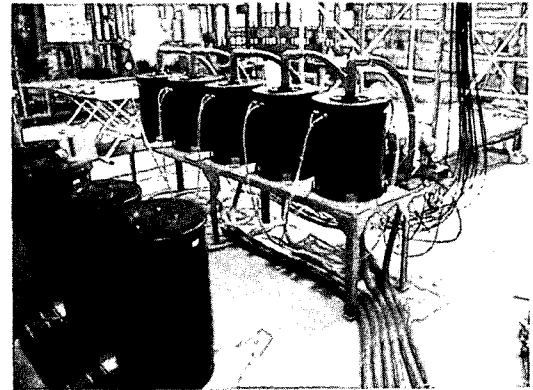


図-4.6 栄養塩濃度調節混合槽

②第2回実験

下水処理水の塩素消毒レベルと、付着藻類及び底生生物との関連性を検討するために、表-4.2のとおり水質条件を設定した。

表-4.2 第2回実験の水質条件

水路	下水処理水	調製水質
A		残留塩素濃度 5mg/L
B		残留塩素濃度 3mg/L
C	実下水処理場 高度処理水	残留塩素濃度 1mg/L
D		残留塩素濃度 0.3mg/L
E		残留塩素濃度 0.1mg/L
F		原水のまま

なお、残留塩素濃度の調製方法は、栄養塩濃度の調製と同様に、次亜塩素酸ナトリウム (NaClO: 分子量 74.44) の高濃度溶液を調製の上、薬液タンクに貯蔵し、ここから定量ポンプで必要量を混合タンクに送り処理水と攪拌混合することで行った。

4) 水理条件

第1回・第2回実験ともに 5cm 幅水路で実験を行った。水理条件は以下の通りとした。

<第1回実験>

流速: 10cm/sec 水深: 3cm、水量: 9L/min

<第2回実験>

流速：8cm/sec 水深：2.5cm、水量：6L/min

4-1-4 分析試料の採取

1) 試料採取

前述した条件により、試験水を水路に流下させることで形成された付着藻類及び底生動物を分析定量するため、分析用試料の採取を行った。また、試験水の水質を把握するため、水質分析用試料の採水を併せて行った。

①付着藻類

試験水毎に藻類の生育速度が大きく異なることから、水路毎に試料採取の間隔を変更して試料の採取を行った。

・採取間隔

<第1回実験>

水路 A・B・E・F1:

実験開始から 12・15・24・27 日後

水路 C・D・F2:

実験開始から 12・15・19・24・27 日後

<第2回実験>

水路 A・B:

実験開始から 14・21・28 日後

水路 C・D:

実験開始から 14・21・24・28 日後

水路 E:

実験開始から 7・14・21・24 日後

水路 F:

実験開始から 7・14・17・24 日後

・採取位置

採取位置は、初期の生育量が少ない状態での試料を分析するため、図-4.7に示す採取位置に設定して初期の採取量を増やした。

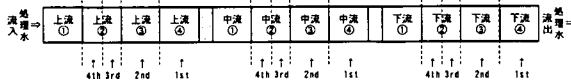


図-4.7 付着物採取位置 (4回採取の場合)

従って、各水路ごとの採取面積は

$$1 \cdot 2 \text{ 回目} : 4.5 \times 9 \times 3 = 121.5 \text{cm}^2$$

$$3 \cdot 4 \text{ 回目} : 4.5 \times 4.5 \times 3 = 60.75 \text{cm}^2$$

であった。

②底生動物

・採取間隔

試験終了時に 1 回採取した。

・採取位置

各水路の下流側の礫を全て水路から取りあげてバケツのなかに移し、礫間に生息する生物を洗い落とす。その後、目合い 0.5mm のフルイを用いて生物を選び分け分析に供した。底生動物の採取面積は、

$$4.5 \times 80 = 360 \text{cm}^2$$

であった。

③水質分析

・採取間隔

<第1回実験>

原則として週 3 回採取した。

<第2回実験>

原則として残留塩素は週 2 回、その他の項目は週 1 回採取した。

・採取位置

<第1回実験>

各水路の最上流部で採取した。

<第2回実験>

残留塩素分析用試料は各水路の最上流部採取した。その他の項目の試料については、同じ原水を用いていることから、受水槽から直接、原水を採取した。

2) 試料保存・運搬

採取した付着物試料のうち、3 分の 1 を付着藻類用の分析試料として、3 分の 2 をクロロフィル a の分析用試料として分割した。

さらに、付着藻類および底生動物用の試料はホルマリンを 10% (v/v) になるように添加することで固定し、持ち帰って分析に供した。

また、クロロフィル a 用の試料は、採取後に冷蔵状態で分析室まで搬送し、分析に供した。

水質分析試料に関しては、溶解性項目の試料について、採水後に GF/B ろ紙でろ過を行った。また、窒素・リン分析試料は採水後直ちに硫酸で固定を行った。すべての水質分析試料は保存処理等が終わり次第、冷蔵状態で分析室まで搬送し、分析を行った。

4-1-5 分析

1) 生物分析

採取試料は、以下の方法で分析を行った。

・クロロフィル a :

河川水質試験方法 (案) ⁷⁾ 58.4.1 による単波長法により測定した。

・付着藻類 :

試料をよく混合した後、全容量を測定し、その後一定量を取って顕微鏡によって観察

し、同定及び計数した。生物が多い場合には、全容量を測定した後、その一部を更に希釈してから同定と計数を行った。表記は単位面積当たりの細胞数(cells/cm²)として表す。

・底生動物：

泥やゴミ等から生物を分離するソーティングを行った後、実体顕微鏡を用いるなどして観察、同定を行った。また、計数(定量)には、単位面積あたりの個体数(個体/m²)として算出した。

2) 水質分析

採水した試料は、各水質項目毎に以下の方法に基づいて水質分析を行った。

・COD_{Cr}：

HACH 社 DR/2000 分析計を用いた簡易分析法(JIS 準拠、USEPA 認可)で測定した。

・窒素

河川水質試験方法(案)⁷⁾ 53に記載の自動分析法及び総和法により測定した。

・リン

河川水質試験方法(案)⁷⁾ 54による自動分析法及びペルオキシ二硫酸カリウム分解吸

光光度法により測定した。

・残留塩素

HACH 社 DR/700 分析計を用いた簡易分析法で測定した。

4-2 実験結果と考察

4-2-1 第1回実験(栄養塩の影響検討)

1) 付着藻類

①生物量の変化

栄養塩濃度の違いによる、生育する付着藻類の生物量変化をクロロフィル a 及び付着藻類の総細胞数を指標として比較した。表-4.3にそれらの分析結果を、図-4.8に経時変化のグラフを示す。その結果、栄養塩濃度によって藻類の増殖量に差が見られた。

そこで、実験期間内における付着藻類のクロロフィル a 及び総細胞数の最大値と、栄養塩濃度の関係を検討した結果を図-4.9に示す。

今回設定した栄養塩の濃度範囲では、リンについては濃度依存的な変化が見られたものの、逆に窒素については明確な変化が見られなかった。

②増殖速度の変化

・初期増殖速度

図-4.9では、試験開始から初期の増殖時において、増殖速度に違いが見られた。そこで、実験開始から最初に生物分析を行った12日目までの増殖速度を計算した。なお、一般的な増殖速度(μ)は生物量の対数値の差分を経過時間で除することになるが、今回の場合は開始時の生物量は0であるため、対数化は不可能であるから、生物量の実数値の差分を経過時間で除した値を増殖速度(M)として、比較を行った。その初期増殖速度(M)を図-4.10に示す。

表-4.3 付着藻類の分析結果

分析項目:クロロフィルa		μg/cm ²					
系列	栄養塩濃度(mg/L)		経過日数				
	NO3-N	PO4-P	12	15	19	24	27
A	4.65	0.031	0.03	0.25		2.84	1.94
B	5.35	0.081	0.13	0.50		12.66	17.59
C	4.89	0.420	3.91	7.65	19.53	11.55	27.59
D	2.28	0.556	1.62	5.84	15.16	20.27	25.03
E	1.11	0.496	0.56	4.40		20.13	23.10
F1	1.11	0.008	0.37	1.49		5.31	5.68
F2	5.43	0.055	0.57	4.00	11.74	14.98	44.13

分析項目:総細胞数		cells/cm ²					
系列	栄養塩濃度(mg/L)		経過日数				
	NO3-N	PO4-P	12	15	19	24	27
A	4.65	0.031	3,496	106,420		608,260	402,020
B	5.35	0.081	17,178	137,214		3,072,290	6,453,700
C	4.89	0.420	1,126,975	3,950,392	15,422,470	12,005,820	32,286,040
D	2.28	0.556	538,522	2,673,328	11,186,940	11,552,847	14,874,280
E	1.11	0.496	111,485	2,020,938		16,311,950	24,392,280
F1	1.11	0.008	101,114	2,411,128		8,125,705	8,847,370
F2	5.43	0.055	121,304	372,930	1,973,600	2,805,040	5,932,600

*栄養塩濃度は試験期間中に7回測定した平均値

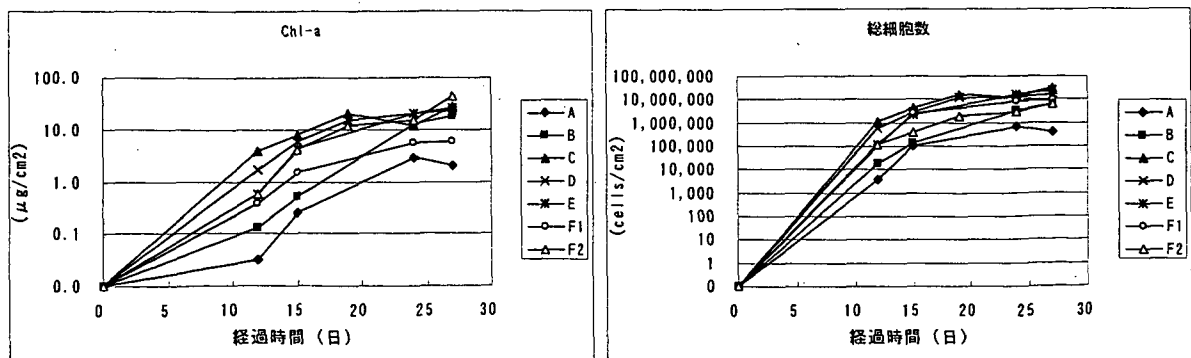


図-4.8 付着藻類生物量の経時変化

その結果、栄養塩濃度が
高いほど増殖速度は大き
くなった。

・増殖速度の変化

初期状態においては、
栄養塩濃度により増殖速
度に差が生じていたが、
全般的には増殖速度がど
のように変化するか比較
を行った。その結果を図-
4.11に示す。なお、この
比較には、生物量に対数
値を用いた一般的な増殖
速度 (μ) を用いた。

その結果、いずれの栄
養塩濃度ケースでも、初
期の増殖速度が高くなっ
ていたが、その後の変化
はまちまちであり、一定
の傾向を示すものはなか
った。多くのケースで、
増殖速度が高低を繰り返
すような動きが見られる
が、これは付着藻類が生
育した後、一部が剥離し、
そこにまた増殖するとい
った生育サイクルが生じ
ている可能性が考えられ
る。

③種構成の変化

・優占種

実験終了時での、付着
藻類の細胞数による優占
種の上位3種を表-4.4に
示す

栄養塩を添加した系列
A ~ E については、ほと
んどが緑藻類の
Scenedesmus で占められて
おり、栄養塩濃度による
違いは見られなかった。
ただし、処理水 100%と
した系列 F2 では、すべて珪
藻類で占められており、
処理水に上水を混合して
希釈した場合との違いが

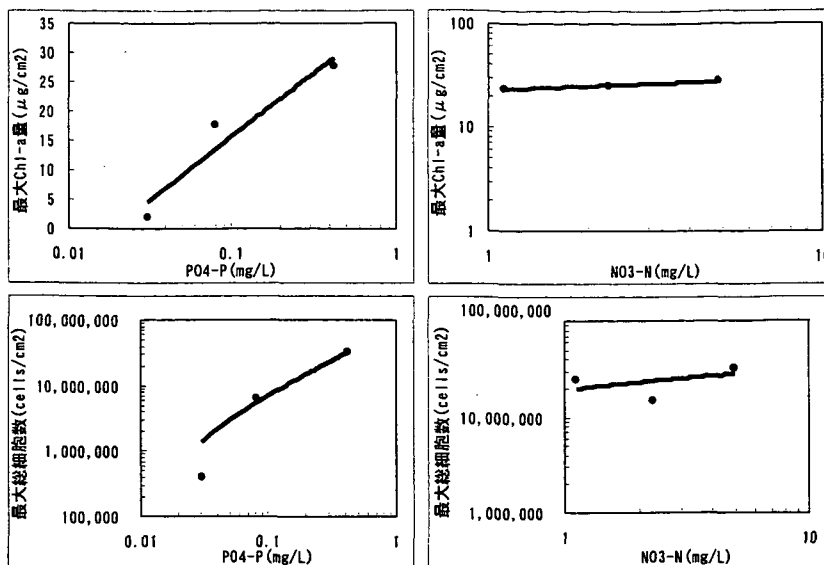


図-4.9 Chl-a及び総細胞数の最大値と栄養塩濃度の関係

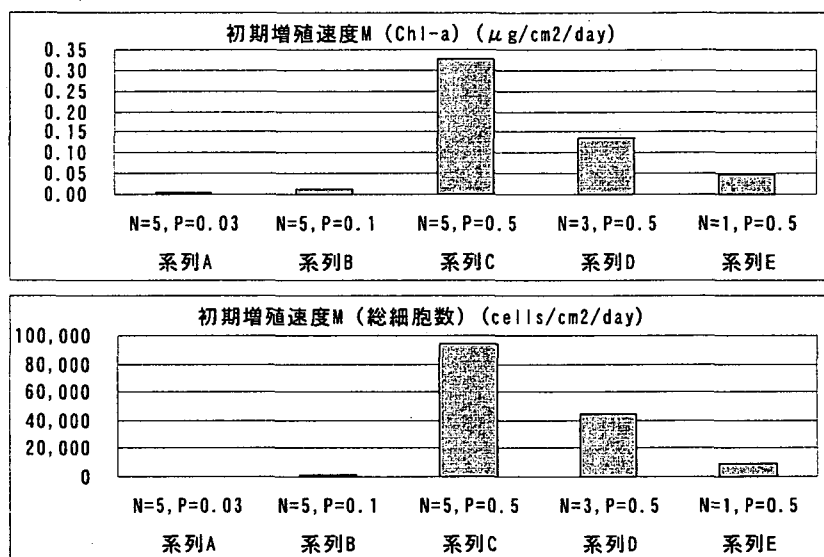


図-4.10 各栄養塩濃度ケース毎の初期増殖速度

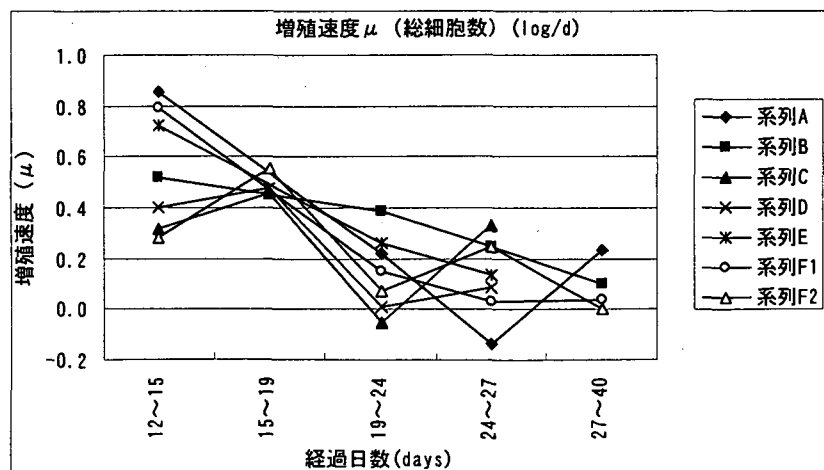


図-4.11 各栄養塩濃度ケース毎の増殖速度の変化

見られた。

また、経時的に藻類種の変化を示したグラフを図-4.12に示す。これらの変化と栄養塩濃度の関係は、リン濃度が高いほど緑藻類の占有率が高くなり、珪藻類の占有率が下がる傾向が見られた。窒素濃度については、変化

が小さく明確に影響は分離できなかった。

・多様性

以上より、栄養塩濃度により緑藻類の占有率が大きく変化することから、生物の多様性に与える影響も大きくなると考えられる。ここではshannonの多様性指数を用いて、多様性の変化を検討した。

図-4.13に多様性の経時変化を示す。

栄養塩濃度ケースによって、多様性に差が見られることから、多様性指数とリン・窒素濃度との関係を検討した結果、リン濃度が高くなると、多様性が低下する傾向が見られた。窒素濃度との明確な関連性は見られなかった。

2) 底生動物

最終日に行った底生動物調査の結果を表-4.5に示す。

表-4.4 付着藻類の優占種

	第1優占種		第2優占種		第3優占種	
系列A	緑藻類	Chlorococcaceae	緑藻類	<i>Scenedesmus spinosus</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus Acutus</i>
系列B	緑藻類	<i>Scenedesmus spinosus</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus sp. (cf. acutus)</i>	緑藻類	Chlorococcaceae
系列C	緑藻類	<i>Scenedesmus sp. (cf. acutus)</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus spinosus</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus Acutus</i>
系列D	緑藻類	<i>Scenedesmus sp. (cf. acutus)</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus acutus</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus Spinosus</i>
系列E	緑藻類	<i>Chlorella sp.</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus spinosus</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus Acutus</i>
系列F1	緑藻類	<i>Scenedesmus sp. (cf. acutus)</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus acutus</i>	藍藻類	<i>Lyngbya sp.</i>
系列F2	珪藻類	<i>Nitzschia amphibia</i>	珪藻類	<i>Navicula confervacea</i>	珪藻類	<i>Gomphonema Parvulum</i>

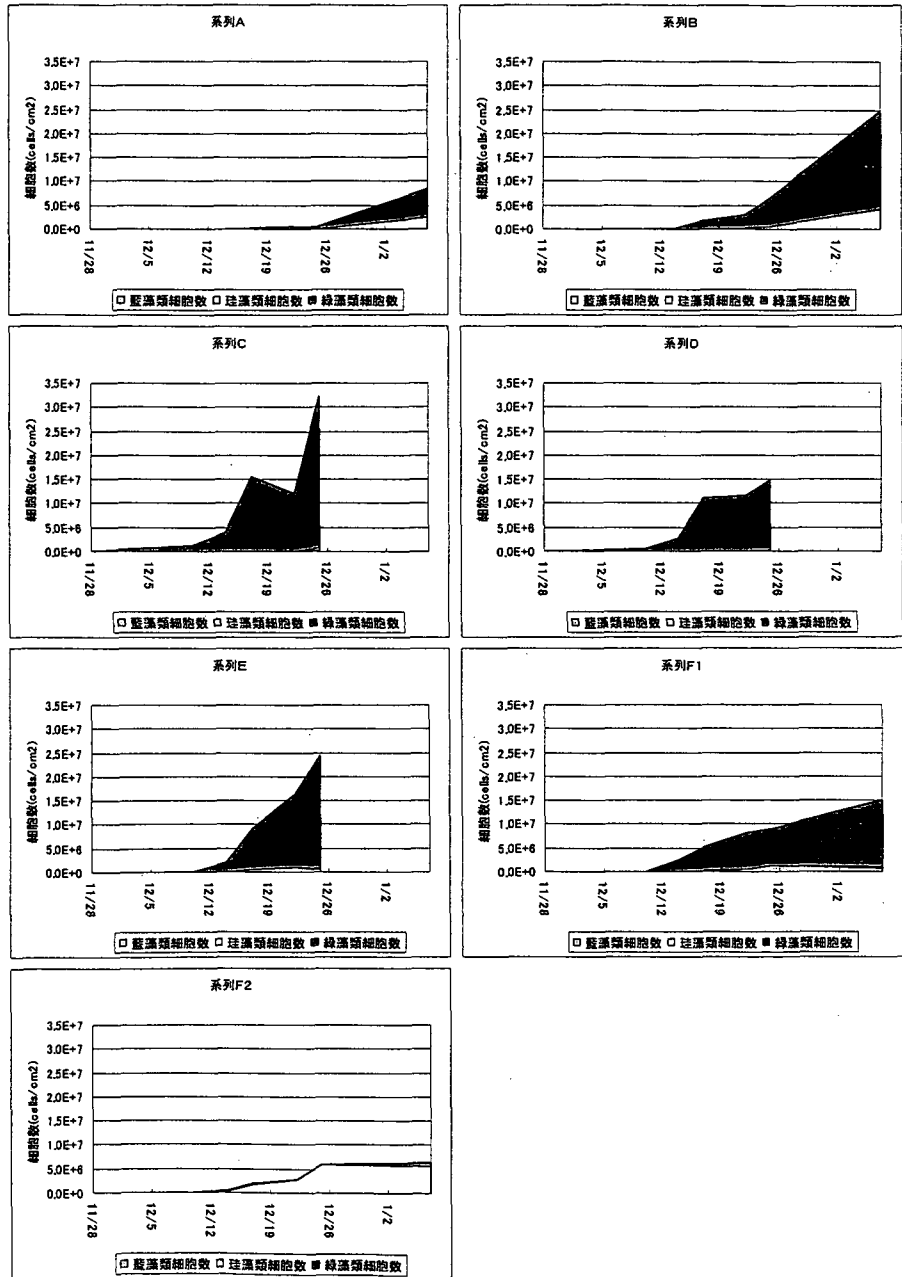


図-4.12 各栄養塩濃度ケース毎の藻類種の経時変化

処理水 100%の対照系列 F2 を除いては、底生動物はほとんど観察されなかった。これらの要因として、施設が屋内にあることと、上水による希釈に生物密度の減少によって、底生動物の供給量が少なくなったためだと考えられる。

そのため、今回の実験では、栄養塩濃度と底生動物相の関係を検討することができなかった。

今後、底生動物との関連性を検討していくためには、人為的に底生動物を外部から移入したり、屋外における実験が必要になると考えられる。

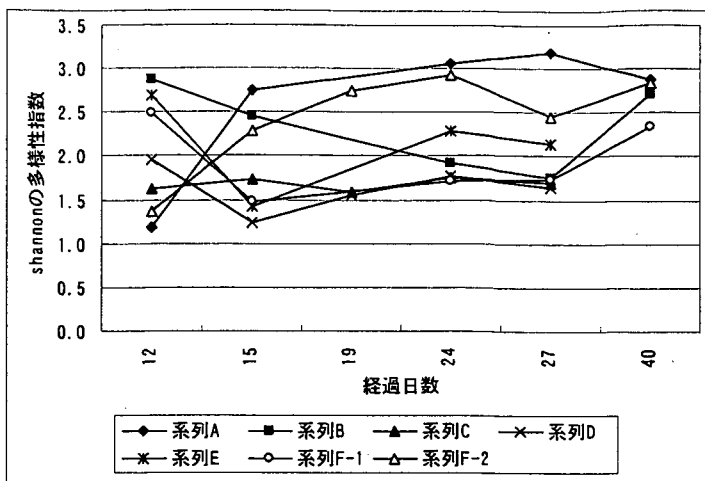


図-4.13 多様性指数の変化

表-4.5 底生動物の分析結果

調査水域：処理水下水路生物相実験 調査期日：平成14年12月25日

No. 門	綱	目	科	和名	学名	A-1		B-1		C-1		D-1	
						個体数	湿重量	個体数	湿重量	個体数	湿重量	個体数	湿重量
3 環形動物	ヒル	ウバヒル	グロソフィニ科	グロソフィニ科	Glossiphoniidae								
4		蛭	イソヒル	イソヒル科	Erpobdella lineata								
5			イソヒル科	イソヒル科	Erpobdellidae			83	0.28			28	0.00
6 節足動物	甲殻	ワラジムシ	アシムシ	アシムシ	Asellus hilgendorfi hilgendorfi								
8		昆虫	ユスリカ	ユスリカ属の一種 1	Chironomus sp. 1								
9				ユスリカ属の一種 2	Chironomus sp. 2								
14				ユスリカ科 蛹	Chironomidae pupa								
16 触手動物	コケムシ	掩喉	ハネコケムシ科	ハネコケムシ科	Plumatellidae								
種類数						0		1		0		1	
合計(個体, g/m)								83	0.28			28	0.00

No. 門	綱	目	科	和名	学名	E-1		F-1		F-2	
						個体数	湿重量	個体数	湿重量	個体数	湿重量
3 環形動物	ヒル	ウバヒル	グロソフィニ科	グロソフィニ科	Glossiphoniidae					13	0.00
4		蛭	イソヒル	イソヒル科	Erpobdella lineata					13	0.75
5			イソヒル科	イソヒル科	Erpobdellidae					888	8.75
6 節足動物	甲殻	ワラジムシ	アシムシ	アシムシ	Asellus hilgendorfi hilgendorfi					4813	13.50
8		昆虫	ユスリカ	ユスリカ属の一種 1	Chironomus sp. 1			83	0.00	675	0.88
9				ユスリカ属の一種 2	Chironomus sp. 2					13	0.00
14				ユスリカ科 蛹	Chironomidae pupa					200	0.50
16 触手動物	コケムシ	掩喉	ハネコケムシ科	ハネコケムシ科	Plumatellidae					*	0.13
種類数						0		1		8	
合計(個体, g/m)								83	0.00	6615	24.51

注：湿重量の0.00は0.01g未満を示す。
注：個体数の*は群体で出現したことを示す。
注：平成15年12月25日調査において、F-2を除く全測点でハネコケムシ科の外皮のみが確認された。

4-2-2 第2回実験
(塩素消毒の影響検討)

1) 付着藻類

① 生物量の変化

残留塩素濃度の違いによる、生育する付着藻類の生物量の変化を付着藻類のChl-aおよび総細胞数を指標として比較した。表-4.6にそれらの分析結果を、図-4.14に経時変化のグラフを示す。

このように、残留塩素濃度によって藻類の生物量に差がみられ、残留塩素濃度が高いケースでは、試験期間中には細胞数からは出現がみられたものの、Chl-aではほとんど検出されなかった。

表-4.6 付着藻類の分析結果

分析項目：クロロフィルa μg/cm²

系列	残留塩素濃度	経過日数						
		4	7	14	17	21	24	28
A	5mg/L	0.004		0.010		0.004		0.010
B	3mg/L	0.005		0.008		0.012		0.011
C	1mg/L	0.009		0.009		0.045	0.244	1.428
D	0.3mg/L	0.015		0.031		0.491	0.558	2.689
E	0.1mg/L	0.022	0.360	1.635		3.681	12.964	
F	0mg/L	0.166	0.534	21.783	35.699		33.007	

分析項目：総細胞数 Cells/cm²

系列	残留塩素濃度	経過日数						
		4	7	14	17	21	24	28
A	5mg/L	506		305		556		230
B	3mg/L	327		298		1,815		560
C	1mg/L	95		191		1,554	15,520	526,580
D	0.3mg/L	227		659		170,410	75,900	918,300
E	0.1mg/L	1,178	35,232	355,600			4,285,600	
F	0mg/L	26,562	72,528	4,918,360	5,232,750		7,102,620	

そこで、試験期間内における付着藻類のクロロフィルaおよび細胞数の最大値と、残留塩素濃度の関係を検討した結果を図-4.15に示す。

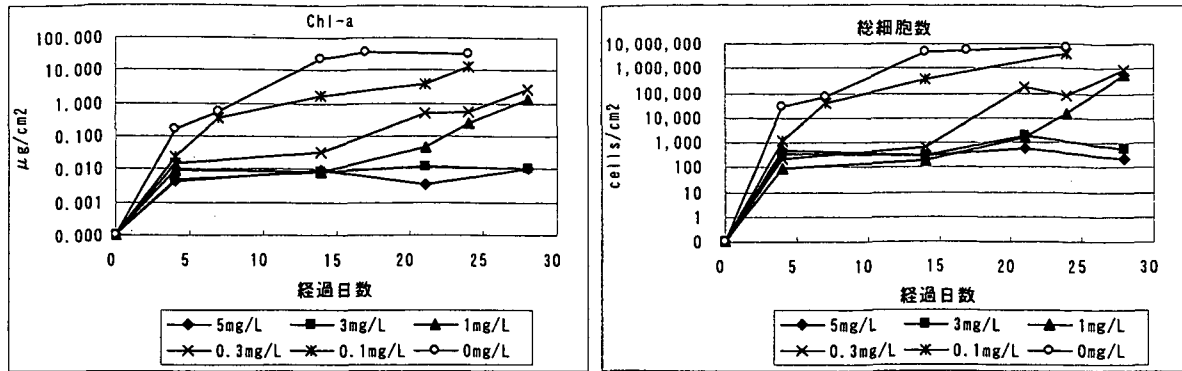


図-4.14 付着藻類生物量の経時変化

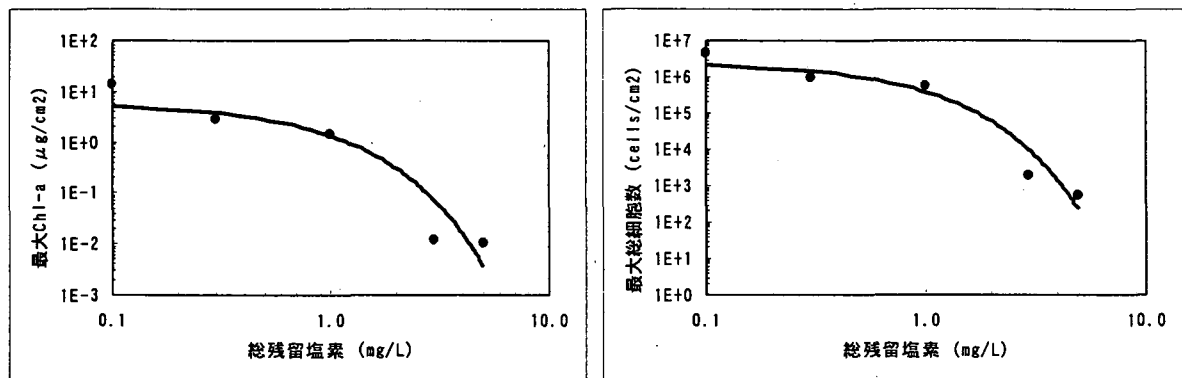


図-4.15 Chl-a及び総細胞数の最大値と残留塩素濃度の関係

このように、今回の濃度設定の範囲においては、残留塩素と最大生物量との間に、明確な関係が見られた。

②増殖速度の変化

次に、増殖速度が残留塩素濃度によってどのように変化するかを検討した。

・初期増殖速度

実験初期において増殖速度に差がみられた。そこで、初期における増殖速度(M)

を栄養塩濃度の場合と同じように計算した結果を図-4.16に示す。

この結果、クロロフィルaでは、残留塩素濃度が低いほど初期の増殖が大きいことがみられた。しかし、細胞数でみると必ずしも濃度依存的な傾向とはなっていなかった。

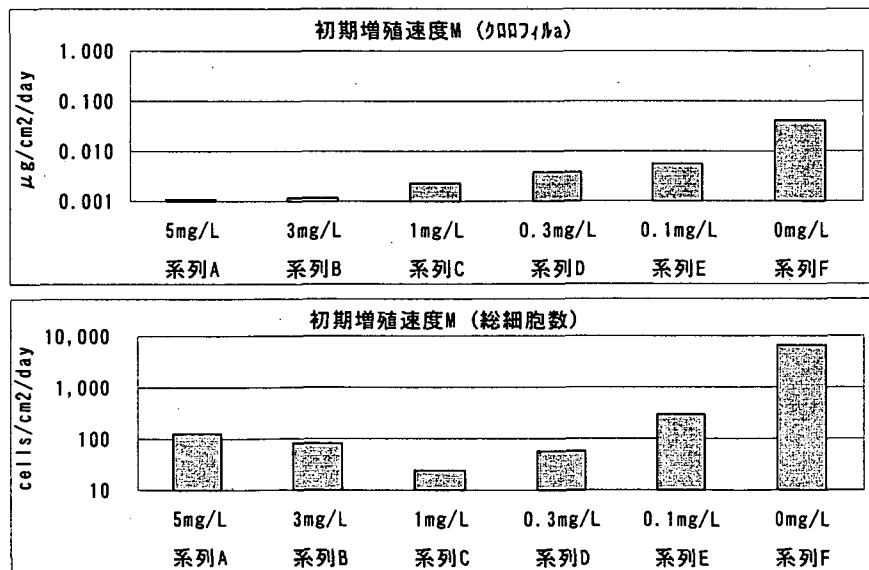


図-4.16 各残留塩素濃度ケース毎の初期増殖速度

・増殖速度の変化

初期状態においては、栄養塩濃度により増殖速度に差が生じていたが、全般的には増殖速度がどのように変化するか比較を行った。その結果を図-4.17に示す。ここでは、各測定期間の間での速度を比較するため、実数による増殖速度ではなく、一般的な対数化した増

殖速度 (μ) を用いて比較を行った。

この結果、栄養塩濃度の場合と同様にいずれのケースも初期の増殖が高くなっていったが、その後の変化はまちまちであり、一定の傾向を示すものではなかった。

③種構成の変化

・優占種

実験終了時における、細胞数による優占種上位3種について、表-4.7に整理した。

・藻類の類別変化

栄養塩類の場合と同じように、残留塩素濃度の変化における最終状態の優占種は多くのケースで緑藻類で占められていたことから、藻類が試験開始からどのように類別に変化してきたかを検討した。

経時的に藻類種の変化を示したグラフを図-4.18に示す。

・多様性

以上でみてきたように、塩素が添加されないケースでは、藍藻類をはじめ複数の種が出現しているが、残留塩素濃度が高くなるに従って、緑藻類をはじめとして各ケース毎に単一の類が占める割合が大きくなることから、多様性へ与える影響も大きくなると考えられる。

そこで、shannon の多様度指数を用いて計算を行い、多様性の変化をみた。また、併せて試験の最終状態における付着藻類の多様性と残留塩素の関係を検討した。その結果を図-4.19及び図-4.20に示す。

残留塩素濃度の違いによって、多様性に違いがみられたが、その傾向についての濃度との関係は、3mg/Lでその前後の濃度より大きく離れて高くなるなど、濃度依存的な関係は明確にならなかった。

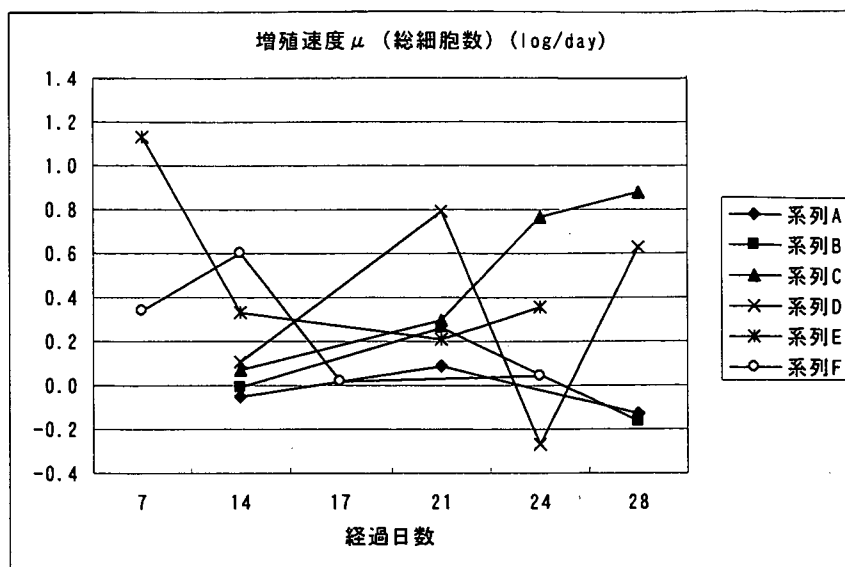


図-4.17 各残留塩素濃度ケース毎の増殖速度の変化

表-4.7 付着藻類の優占種

系列	第1優占種		第2優占種		第3優占種	
系列A	珪藻類	<i>Pinnularia</i> sp. (cf. <i>microstauron</i>)		-		-
系列B	珪藻類	<i>Navicula confervacea</i>	珪藻類	<i>Eunotia binuaris</i>	モドリムシ	<i>Euglena</i> sp.
系列C	緑藻類	<i>Chlorobion saxatile</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus</i> sp.	珪藻類	<i>Pinnularia</i> sp. (cf. <i>microstauron</i>)
系列D	緑藻類	<i>Chlorobion saxatile</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus</i> sp.	緑藻類	<i>Scenedesmus quadricauda</i>
系列E	緑藻類	<i>Chlorella</i> sp.	緑藻類	<i>Scenedesmus quadricauda</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus acutus</i>
系列F	珪藻類	<i>Navicula confervacea</i>	緑藻類	<i>Scenedesmus acutus</i>	珪藻類	<i>Pinnularia</i> sp. (cf. <i>microstauron</i>)

・毒性影響

残留塩素については、消毒剤として用いられていることなどから、毒性影響としての視点を取ることができる。

そこで、塩素添加無しの状態における試験最終状態の細胞数またはクロロフィルa濃度をコントロール（陰性対照）として、そこから、塩素の添加によってどの程度生育が減少したかを細胞数またはクロロフィルaの値を計算して、阻害率とした。計算された阻害率と、塩素濃度の関係を図-4.21に示す。

ここから、細胞数からみると約 0.2mg/L で生育が約 50%に阻害され、クロロフィルaからみると、同じく約 0.05mg/L で 50%が阻害されることがうかがえる。

しかし、通常の毒性反応で示されるS字曲線を想定した場合の低濃度域における反応は、今実験の設定範囲ではカバーできていないことがわかった。従って、今後はさらに低濃度における実験を行う必要がある。

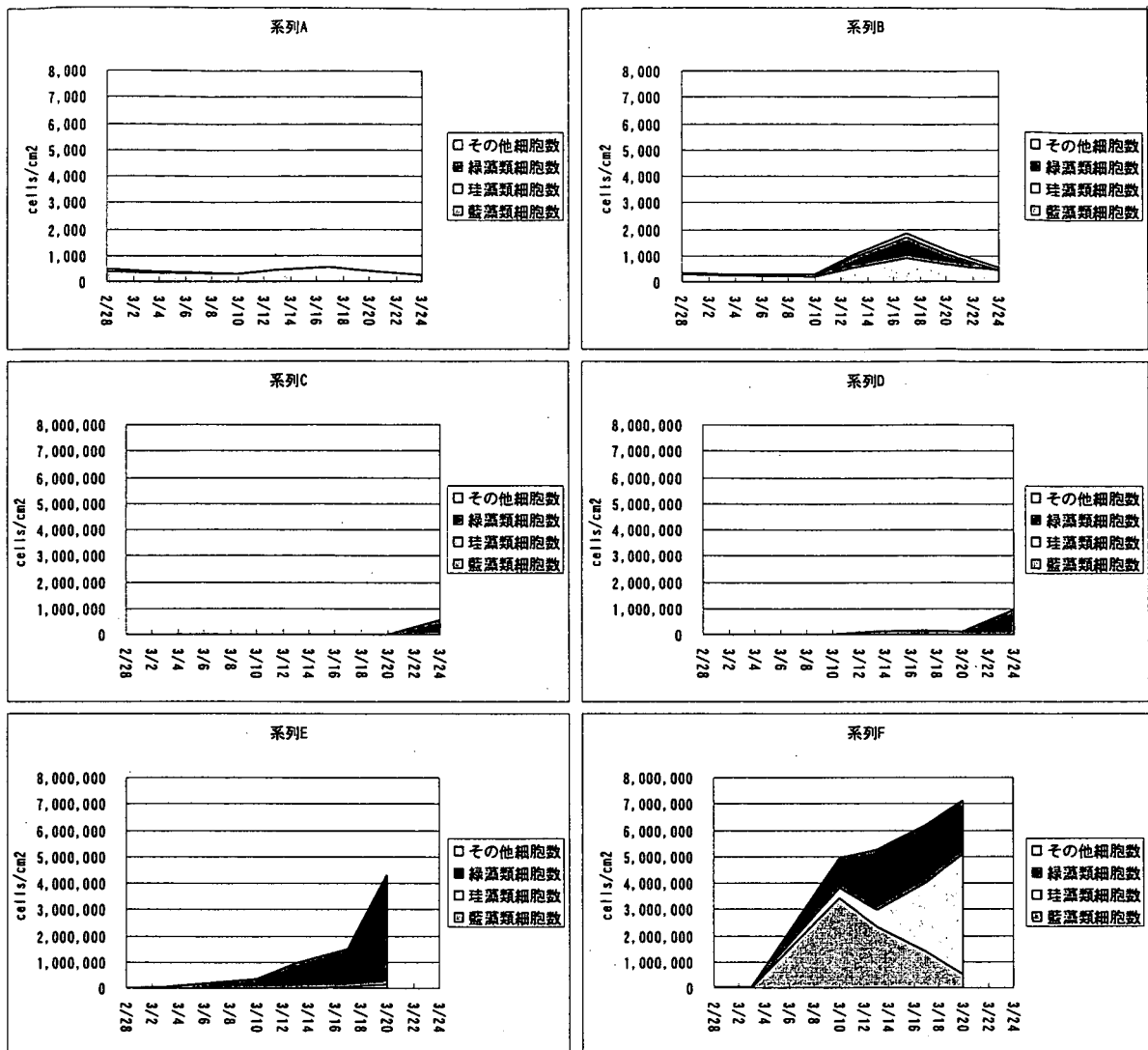


図-4.18 各残留塩素濃度ケース毎の藻類種の経時変化

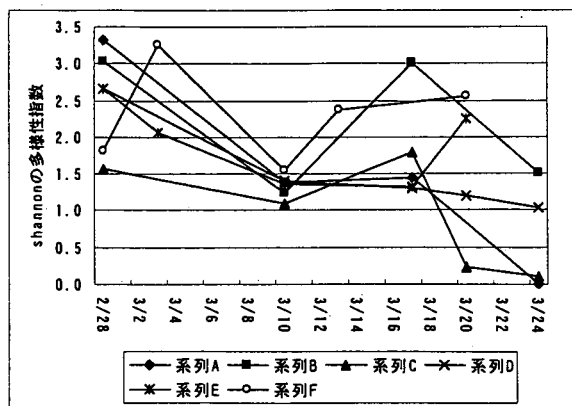


図-4.19 多様性指数の変化

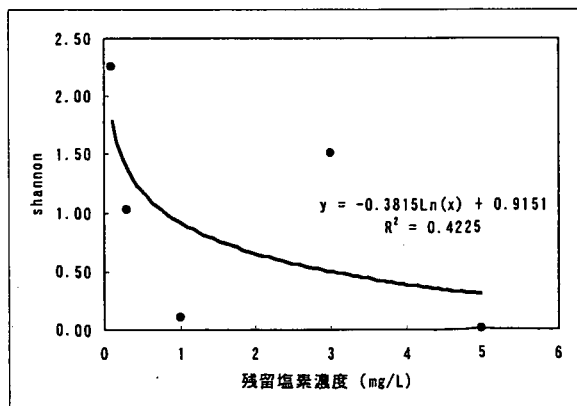


図-4.20 多様性指数と残塩濃度との関係

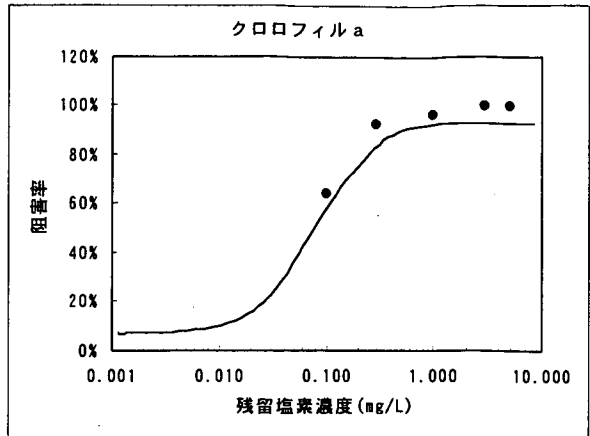
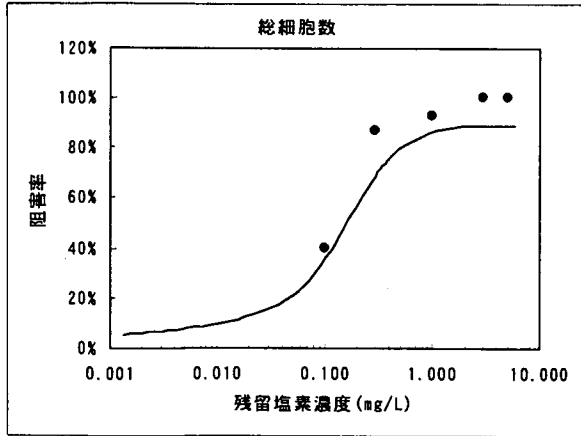


図-4.21 阻害率と残留塩素濃度との関係

表-4.8 底生動物の分析結果

調査水域：処理水下水路生物相実験

No.	門	綱	目	科	和名	学名	調査期日：平成15年3月24日					
							A	B	C	D	E	F
1	へん形動物	ウツムシ		ウツムシ科		Turbellaria	0	0	0	0	0	0
2	環形動物	ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Naididae	0	0	0	0	0	0
3		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Glossiphoniidae	0	0	0	0	0	0
4		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Erpobdella lineata	0	0	0	0	0	0
5		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Erpobdellidae	0	0	0	0	0	0
6	節足動物	ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Asellus hilgendorfi hilgendorfi	0	0	0	0	0	0
7		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Psychoda sp.	0	0	0	0	0	0
8		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Chironomus sp. 1	0	0	0	0	0	0
9		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Chironomus sp. 2	0	0	0	0	0	0
10		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Einfeldia sp.	0	0	0	0	0	0
11		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Tanytarsini	0	0	0	0	0	0
12		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Chironominae	0	0	0	0	0	0
13		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Orthopcladiinae	0	0	0	0	0	0
14		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Chironomidae pupa	0	0	0	0	0	0
15		ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Ephydriidae	0	0	0	0	0	0
16	触手動物	ウツムシ	ウツムシ	ウツムシ科		Plumatellidae	0	0	0	0	0	0
						種類数	0	0	0	0	0	0
						合計(個体数/g)						

注：平成15年3月24日調査においては、分析の結果、全測点でハネコケムシ科の外皮のみが、A、Bで動物破片が確認された以外、底生動物の出現は確認できなかった。

2) 底生動物

最終日に行った底生動物調査の結果を表-4.8に示す。

このように、全てのケースにおいて底生動物は観察されなかった。

なお、確認されたものは、全測点でハネコケムシ科の外皮のみが、系列A、Bで種同定不可能な動物破片が確認されるなど、痕跡のみであった。これは、栄養塩濃度調査と同様に、施設が屋内であるため、外からの加入が非常に少ないことが要因の可能性としてあげられる。

また、今回の実験の特徴としては、処理水中に混入していた底生動物についても塩素消毒の過程で死亡し水路に定着できなかったこと、また、冬季のため、処理水中に混入していた生物量が少なかったことなども要因として大きいと考えられる。このため、残留塩素濃度と底生動物相との関係を提示することはできなかった。

今後は、栄養塩濃度調査と同様に、外から人為的に底生動物を移植するなどして、その

影響を把握することも考えられる。

5 まとめ

5-1 栄養塩の影響

下水処理水中においても栄養塩、特にリン濃度の違いによって、付着藻類の生産量や種構成に違いが生じることが示された。

平成13年度調査の結果と合わせて、今調査の結果を解析した結果、リン濃度で0.3mg/Lを超えると、Chl-a量は飽和して最大となり、約0.03mg/Lで、最大量の半分程度に低下すると計算された。さらに、リン濃度で0.1mg/L、窒素濃度で1mg/Lを超えると初期の付着藻類量の伸びが大きくなった。従って、上記濃度を超える処理水が放流される水域においては、短期間に付着藻類が増殖することになると考えられる。

一方、藻類の種構成は、リン濃度の増加に伴って、緑藻類の占める割合が高くなり、相対的に珪藻類の占める割合が低下するという傾向がみられ、特にリン濃度が0.3mg/Lを超えると、ほとんどが緑藻類に占められる状況が示された。

また、リンおよび窒素ともに、濃度が高くなる

と種の多様性が減少する傾向がうかがわれた。ただし、窒素について濃度変化に対する多様性の変化の度合いは、リン濃度の変化に対する多様性の変化と比べて小さかったことから、付着藻類の種多様性に与える影響は、リン濃度の変化による要因の方が窒素濃度による変化よりも相対的に大きいと推測された。

5-2 塩素消毒の影響

今回の実験結果から塩素消毒に伴う水中の残留塩素の濃度によって、付着藻類の生産量や種構成に影響を生じることが確認できた。付着藻類の細胞数が、塩素無添加状態より対数値で半分になる残留塩素濃度は約 2.0mg/L、Chl-a 量が半分になる塩素濃度は約 1.0mg/L と計算された。

クロロフィル a では、残留塩素濃度が低いほど初期の増殖が大きいことがみられたが、今回設定した最低濃度の残留塩素レベルでも、残留塩素が藻類の増殖速度の影響を与えない濃度については確認できなかった。

また、付着藻類の種構成の変化については、塩素が無添加の場合に藍藻類-緑藻類-珪藻類のそれぞれが遷移していく状況が観察されたのに対して、塩素の添加された場合には残留塩素濃度に関わらず緑藻類が優占していた。しかし、増殖速度の場合と同様に、影響が生ずる残留塩素濃度が確認できなかったことから、今後、さらに設定濃度範囲を拡げた実験を行うなどして、繰り返しデータを蓄積する必要がある。

なお、本調査研究は、地球環境保全等試験研究費により実施されたものである。

6 参考文献

- 1) 仁科博之, 丸山俊朗, 三浦昭雄 : 都市下水 2 次処理水の養殖川に及ぼす影響について, 下水道研究発表会講演集, Vol.20th pp.486 - 488, 1983, 他
- 2) 服部潔 : 覆がい下水処理場に発生するユスリカ等水生こん虫の防除について, 下水道研究発表会講演集, Vol.22nd, pp.58 - 60, 1985, 他
- 3) 若林明子ら : 清流の復活に関する研究 III 野火止用水の水生生物, 東京都環境科学研究所年報, Vol.1987, pp.134 - 139, 1986, 他
- 4) 大村達夫 : 下水道システムに消毒はどこまで必要か, 月刊下水道, Vol.21, No.10, pp.24 - 27, 1998, 他

- 5) (財) 下水道新技術推進機構 : 下水処理水放流先水域に形成される生物相に関する調査研究, 2001 年度 下水道新技術研究所年報, 1/2 巻, pp.137-144, 2002
- 6) 生態系との共生をはかる下水道のあり方検討会編 : 生態系にやさしい下水道をめざして, 技報堂出版, 2001
- 7) 建設省河川局監修 : 河川水質試験方法 (案) 1997 年版, 技報堂出版, 1997
- 8) 中村栄一, 古賀俊行 : 河川の富栄養化に関する調査, 土木研究所資料 平成元年度下水道関係調査研究年次報告書集, 1990
- 9) 中村栄一, 長谷川清, 小森行也, 松宮洋介 : 河川における藻類増殖機構に関する調査, 土木研究所資料 平成 5 年度下水道関係調査研究年次報告書集, 1994

7 研究発表

- 1) 中島英一郎, 小越真佐司, 竹歳健治 : 生態系の観点からみた下水再生システムのあり方に関する研究, 国土技術政策総合研究所資料 平成 13 年度下水道関係調査研究年次報告書集, 2003.1
- 2) 竹歳健治, 中島英一郎, 平出亮輔 : 下水処理水中の栄養塩と形成される水生生物相との関連性調査, 土木技術資料, Vol.45, No.11, pp.60-65, 2003.11

4. 下水放流水による水辺利用地域の衛生学的指標に関する研究

下水処理研究室 室 長 中島 英一郎
主任研究官 山下 洋正
研 究 官 齋野 秀幸

1. はじめに

下水道の整備が進むにつれて、河川や沿岸域の水質が改善され、都市部においてもウォーターフロント再生が進められている。以前は、景観や水辺の散策が主であったが、身近な水辺そのものの利用が求められはじめている。しかしながら、水辺利用に伴う衛生学的な問題から、利用が制限されている場合がある。

一方、現在、水域における衛生学的な指標としては、排水基準の大腸菌群数、水浴場の糞便性大腸菌群数等が用いられているが、衛生学的な指標として適したものではなく、消毒後に最増殖するなど、糞便汚染の指標として疑問が持たれてきている。

これを受けて、厚生労働省では水道水質基準に関する省令を改正し、これまでは大腸菌群を指標としていたものを大腸菌に変更した。なお、これは平成 16 年 4 月 1 日から施行されることとなっている。

このため、本研究では従来の指標である大腸菌群と、腸球菌、大腸菌等の新たな指標を対象に、下水放流水の影響としての指標細菌の実態、消長について解明し、新たな衛生学的指標の妥当性を検討するとともに、従来の指標と新たな指標との相関について調査を行う。

2. 平成 14 年度の調査内容

2.1 目的

平成 14 年度は下水処理水中の各衛生学的指標についてなるべく多くのデータを収集し、それぞれの放流先水系での挙動について大まかな傾向を把握することを目的とした。そこで平成 14 年度は、河川を模した模型水路に消毒した下水二次処理水を放流させ、その中で各指標細菌の挙動を追う「模型水路実験」、及び実際の様々な下水処理水の放流先における各指標細菌の挙動を追う「現地調査」を行った。

2.2 調査方法

2.2.1 模型水路実験の方法

国土技術政策総合研究所湖北総合実験施設内に設置した模型水路を用い、水路内での指標細菌の挙動について検討を行った。模型水路の概要を図-1 に、模型水路の写真を図-2 に示す。模型水路は原水槽、原水供給ポンプ、循環水槽、循環水供給ポンプ及び水路から構成されている。水路は SUS で作られており、幅 20cm、長さ 30m の水路を 2 本直列に接続してあり、合計で 60m の長さがある。この水路はそれぞれのポンプを用いて供試水を一過式もしくは循環式で流下させること

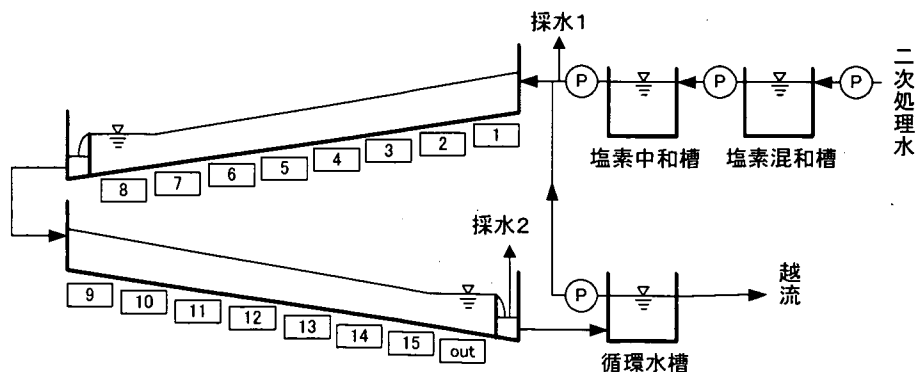


図-1 模型水路の概要

が可能である。また、水路は勾配を自由に設定することも可能である。

本実験の条件を表-1に示す。水路床には粒径がおよそ8~12mmの玉砂利を敷いた。水路勾配は2.33%とした。

また、供試水には実下水を用いた反応槽容量10m³の標準活性汚泥法パイロットプラントから得られた二次処理水を塩素消毒し、その後チオ硫酸ナトリウムで塩素を中和させたものとし、塩素注入率は2.0mg/L、接触時間は15分と設定した。

本実験では、供試水の流入量は設定できる最大値である15L/minと設定したが、乱流状態を作るため水路内を100L/minで循環させた。このとき、流入する供試水だけでは足りないため、流入水に供試水を循環させたものに加え、100L/minとした。このとき、供試水の一部は系外へ越流し、その流量は当然ながら15L/minである。供試水の水路への平均滞留時間はおおよそ68分であった。

以上の条件で、平成14年9月12日から平成15年3月12日まで6ヶ月間連続運転させた。

測定項目は、指標細菌として大腸菌群、糞便性大腸菌群、一般細菌、大腸菌、及び糞便性連鎖球菌とした。大腸菌の測定は、合成発色酵素基質培地(MERCK社製クロモカルト寒天培地)を用い、βガラクトシダーゼ活性とβグルクロニダーゼ活性の有無を形成集落の色調により判別した(大腸菌のコロニーは青色となる。)。大腸菌群、糞便性大腸菌群は下水試験方法に準じてデソキシコール酸塩培地により、一般細菌は同じく下水試験方法に準じて標準寒天培地により、糞便性連鎖球菌は同じく下水試験方法に準じてm-エンテロコッカス寒天培地により測定した。また、同時に一般水質項目として、水温、pHを測定した。

2.2.2 現地調査の調査方法

現地調査では、なるべく多様性のある水系から試料を集めることを目的として、表-2に示す茨城県霞ヶ浦浄化センターから霞ヶ浦への放流水、茨城県下館市下館水処理センターから小貝川への放流水、東京都八王子処理場から多摩川への途中にあるなじみ水路、横浜市

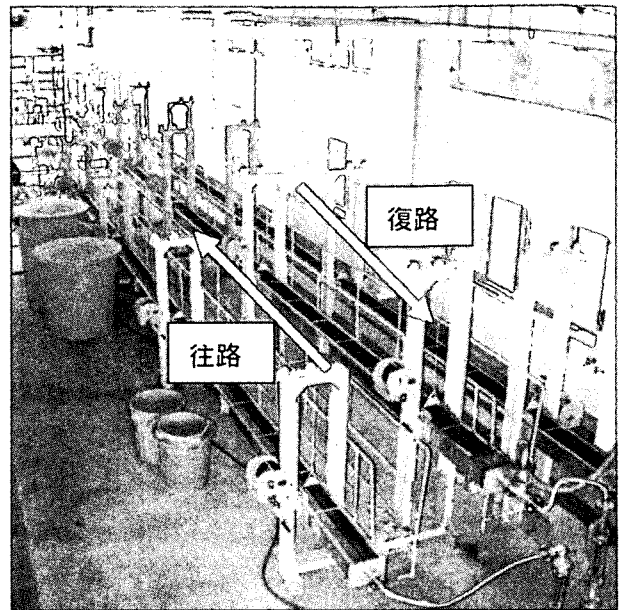


図-2 模型水路

表-1 模型水路の諸元

水路床	玉砂利
塩素添加率 [mg/L]	2.0
塩素接触時間 [min]	15
流入水量 [L/min]	15
流量 [L/min]	100
勾配 [%]	2.33
平均砂利高 [mm]	20.0
平均水深 [mm]	45.3
平均流速 [m/sec]	0.184
	[m/hr]
	11.0
レイノルズ数	4.389
水路容量 [m ³]	0.54
循環水槽容量 [m ³]	0.48
全容量 [m ³]	1.02
水路流下時間 [min]	5
全滞留時間 [min]	68
循環時間 [min/回]	10

※玉砂利の性状: 85%が粒径8~12mm、空隙率36.7%

※塩素注入率は0.5mg/L

※「平均水深」は玉砂利の空隙率を考慮した値

表-2 現地調査箇所

最寄りの下水処理場	処理方式	対象箇所
茨城県霞ヶ浦浄化センター	凝集剤併用型循環式硝化脱窒法	霞ヶ浦
下館市下館水処理センター	嫌気-好気活性汚泥法	小貝川
東京都八王子処理場	標準活性汚泥法	多摩川へのなじみ水路
横浜市神奈川下水処理場	嫌気-無酸素-好気法+砂ろ過+オゾン	入江川せせらぎ
横浜市都筑下水処理場	嫌気-硝化内生脱窒法+砂ろ過+オゾン	江川せせらぎ

神奈川下水処理場から入江川せせらぎへの再生水、及び横浜市都筑下水処理場から江川せせらぎへの再生水を調査対象とした。

調査対象では、下水処理水が合流する前、合流直後、その下流方向など、それぞれの調査対象につき5～6箇所で採水し、それらの指標細菌を即日分析した。分析項目は水路実験と同様に大腸菌群、糞便性大腸菌群、一般細菌、大腸菌、及び糞便性連鎖球菌としたが、場所によっては平板培養法ではなく、最確数法によって測定した。最確数法は、大腸菌群は河川水質試験方法に準じてBGLB培地直接MPN法、糞便性大腸菌群は上水試験方法に準じてFC培地法で、糞便性連鎖球菌は下水試験方法に準じてアザイドデキストロースブイヨン培地法で測定した。また、一般水質項目として、水温、pH、DO、伝導度、残留塩素、SS、COD_{Cr}とした。

2.3 調査結果

2.3.1 模型水路実験の調査結果

模型水路実験の結果を表-3に示す。「流入」は図-1における「採水1」から採水したものを示し、消毒及び塩素中和後の流入水である。「循環」は図-1における「採水2」から採水したものを示し、一度水路を流れたものである。

pHは流入水でやや低い値を示しているが、循環水では中性に近付いている。残留塩素は全残留塩素がほぼ0.10前後、遊離残留塩素が0.10以下であった。流入水と循環水の大小関係が明確ではなかったが、調査

表-3 模型水路実験の結果

		水温 [°C]	pH	全塩素 [mg/L]	遊離塩素 [mg/L]	一般細菌 [CFU/mL]	大腸菌群 [CFU/mL]	大腸菌 [CFU/mL]	糞便性 [CFU/mL]	連鎖球菌 [CFU/mL]
9月12日	流入	25.5				7,700	3,350	500		295
	循環		7.10	0.06	0.03	5,950	2,730	230		195
9月19日	流入	24.2	6.74	0.04	0.02	10,800	605	120	160	40
	循環		6.79	0.03	0.00	2,650	615	10	80	5
9月25日	流入	23.2	6.44	0.15	0.06	16,850	905	450	645	105
	循環		6.52	0.08	0.07	2,300	265	150	270	55
10月9日	流入	22.5	6.43	0.09	0.10	14,150	1,500	550	875	380
	循環		6.62	0.13	0.08	2,850	570	500	260	175
10月16日	流入	23.0	6.44	0.07	0.04	19,150	2,980	650	1,445	580
	循環		6.55	0.12	0.10	3,150	310	550	120	250
10月23日	流入	22.2	6.88	0.09	0.08	16,850	1,265	175	735	235
	循環		6.99	0.10	0.07	16,600	2,745	85	1,735	135
10月30日	流入	21.2	6.57	0.13	0.06	13,700	435	265	395	295
	循環		6.73	0.10	0.07	17,600	2,740	180	505	135
11月6日	流入	19.5	6.43	0.07	0.02	14,950	95	400	365	260
	循環		6.72	0.11	0.10	25,000	620	250	870	200
11月13日	流入	18.8	6.37	0.14	0.12	31,800	1,235	155	275	385
	循環		6.70	0.10	0.06	10,300	1,520	100	290	215
11月20日	流入	17.6				13,400	1,320	210	525	635
	循環					13,700	1,470	215	160	450
11月27日	流入		6.71	0.13	0.03	12,600	505	75	140	175
	循環		7.02	0.12	0.07	13,900	800	150	195	105
12月5日	流入	18.7	6.76	0.02	0.03	14,800	880	125	1,240	100
	循環		7.02	0.06	0.03	12,450	1,250	130	1,290	150
12月11日	流入	14.6	6.52	0.08	0.07	7,650	940	85	650	235
	循環		6.75	0.10	0.05	5,020	1,140	170	1,365	140
12月18日	流入	15.4	6.26	0.10	0.07	9,000	1,265	190	755	1,110
	循環		6.70	0.08	0.01	6,660	1,130	130	360	250
12月26日	流入		6.43	0.06	0.02	10,750	195	20	320	160
	循環		6.67	0.06	0.01	8,450	360	60	375	120
1月8日	流入	15.5	6.20	0.08	0.06	36,100	3,500	310	1,690	535
	循環		6.54	0.10	0.04	24,350	2,815	315	680	285
1月22日	流入	13.9	6.62	0.09	0.08	6,450	790	195	420	205
	循環		7.07	0.08	0.05	4,850	290	150	100	180

※「連鎖球菌」は糞便性連鎖球菌

期間中はほぼ一定で推移していたものと予想される。

衛生学的指標では、10月9日から23日にかけて大腸菌群、大腸菌、糞便性大腸菌群、糞便性連鎖球菌が増加している。これは季節変動に伴い、原水を供給する標準活性汚泥法パイロットプラントの活性汚泥の性状が変わっており、処理水質が一時的に悪化したためと予想される。他にも採水日によって流入水、循環水ともかなりの変動が見られたが、特徴ある変動は確認できなかった。

図-3には、衛生学的指標の模型水路内での増加量として、循環水中の衛生学的指標を流入水中の衛生学的指標で除した値を示す。この図からは、運転開始から約1ヶ月間(9月12日から10月16日)は循環水中の衛生学的指標の方が流入水中の衛生学的指標の衛生学的指標よりも少なく、水路内で衛生学的指標が減少していることがわかる。しかし、10月23日以降、糞便性連鎖球菌を除く衛生学的指標は軒並み上昇した。特に大腸菌群において著しく上昇していた。

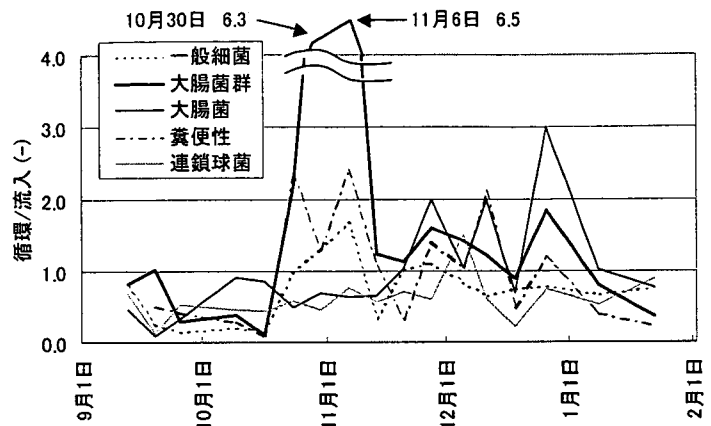


図-3 指標細菌の増加(循環水/流入水)

運転開始からの1ヶ月間は水路床である玉砂利への付着や被捕食などが卓越してい

たが、1ヶ月経過後は大腸菌群、大腸菌、糞便性大腸菌群において、流入水よりも循環水の方が多かった。この原因として、玉砂利からの剥離などによって衛生学的指標の指標細菌の付着・被捕食などによる減少がなくなり、指標細菌の最増殖が顕在化してきたものと考えられる。

表-3において、灰色塗りつぶしの箇所は流入水よりも循環水の方が衛生学的指標が高かったものを示す。これによると、全17回の測定のうち循環水の方が衛生学的指標が高かったのは、大腸菌群で10回、糞便性大腸菌群で8回、大腸菌で5回となっており、特に大腸菌群は最増殖の影響をかなり受けているものと予想された。

本調査では、指標細菌の最増殖の観点から衛生学的指標としての適切さを調査したが、その観点では、一般細菌、大腸菌、糞便性連鎖球菌が衛生学的指標として適切と考えられた。しかし、一般細菌は雨水の表面流出の影響を受けるなど、大腸菌群などに比べて病原細菌との直接的な関連性が十分でないため³⁾、大腸菌もしくは糞便性連鎖球菌が適切であると考えられた。しかし、本調査では最増殖の観点にしか注目していない上に、最増殖の要因(水温、水質、他)も不明なため、今後さらなる調査が必要と考えられる。

2.3.2 現地調査の調査結果

現地調査の結果を表-4に示す。表-4.a、4.bは下水処理水再生水によるせせらぎ水路である「入江川せせらぎ」「江川せせらぎ」の衛生学的指標を示す。両河川ともに、住宅地の中を流れるせせらぎである。これらのせせらぎでは塩素消毒を行っていないということなので、残留塩素については測定していない。いずれも清澄な水であるが、せせらぎへの給水直後から大腸菌以外の衛生学的指標が上昇している。これらは指標細菌の最増殖であるよりも、犬の散歩や土・ほこりなど、住宅地を流れるが故の汚染があったものと推測されたが、大腸菌だけはそれらの影響をほとんど受けないことがわかった。

表-4.cには、多摩川へのなじみ水路中の衛生学的指標を示す。なじみ水路は下水処理水が100%であり、最初の50m程度はコンクリート三面張りであるが、その後は草の生い茂った自然のなじみ水路となっており(図-4)、その後150m程で多摩川へ注がれる。なじみ水路もせせらぎ水路と同様に、大腸菌以外は放流口

表-4 現地調査における衛生学的指標

表-4. a 入江川せせらぎ

2003/2/3	水温 [°C]	pH	DO [mg/L]	伝導度 [mS/cm]	SS [mg/L]	COD [mg/L]	一般細菌 平板	大腸菌群 平板	糞便性 平板	大腸菌 平板	連鎖球菌 平板
再生水供給地点	15.2	6.57	16.75	0.80	<0.1	4.9	220	4	0	0	0
給水地から400m	14.7	6.78	14.68	0.80	0.2	4.6	2,935	80	6	1	0
給水地から800m	13.8	7.12	12.80	0.80	1.6	4.6	3,740	121	3	0	0
給水地から1,200m	12.3	7.39	12.30	0.80	3.4	4.5	3,175	294	140	2	1
終点付近	10.8	7.35	12.32	0.77	3.0	4.5	2,005	161	79	6	3

表-4. b 江川せせらぎ

2003/2/10	水温 [°C]	pH	DO [mg/L]	伝導度 [mS/cm]	SS [mg/L]	COD [mg/L]	一般細菌 平板	大腸菌群 平板	糞便性 平板	大腸菌 平板	連鎖球菌 平板
再生水供給地点	17.1	7.07	9.87	0.48	<0.1	7.5	1,485	15	9	1	1
供給から100m	17.1	7.07	8.34	0.47	<0.1	7.5	3,780	59	20	3	14
供給から250m	17.0	7.06	8.28	0.47	<0.1	8.1	5,270	59	36	1	24
供給から500m	16.8	7.01	6.04	0.47	24.7	11.6	6,365	375	58	2	59
供給から700m	16.7	7.03	6.06	0.47	15.7	11.4	4,575	735	39	2	44

表-4. c 多摩川へのなじみ水路

2002/10/22	水温 [°C]	pH	DO [mg/L]	伝導度 [mS/cm]	残塩 全	遊離	SS [mg/L]	COD [mg/L]	一般細菌 平板	大腸菌群 最確数	大腸菌 平板	糞便性 最確数	連鎖球菌 最確数
放流口	23.4	6.39	7.57	0.61	0.04	0.01	<0.1	7.2	730	350	15	110	17
放流口下流50m	23.7	6.41	7.37	0.61	0.06	0.01	1.0	7.5	975	>1,600	5	>1,600	33
放流口下流100m	23.6	6.46	7.48	0.60	0.07	0.04	0.5	7.1	1,780	>1,600	15	540	17
放流口下流150m	23.5	6.52	7.39	0.61	0.06	0.04	1.0	6.9	895	1,600	10	920	79
放流口下流200m	23.5	6.53	7.50	0.50	0.08	0.02	1.0	6.8	1,400	>1,600	15	540	33

表-4. d 霞ヶ浦

2002/10/8	水温 [°C]	pH	DO [mg/L]	伝導度 [mS/cm]	残塩 全	遊離	SS [mg/L]	COD [mg/L]	一般細菌 平板	大腸菌群 最確数	大腸菌 平板	連鎖球菌 最確数
放流口上流50m	23.6	6.71	5.50	0.49	0.07	0.03	6.5	5.5	3,680	>1,600	10	23
下水処理水放流口	25.2	7.40	7.40	0.61	0.10	0.02	0.5	4.8	100	33	0	3
放流口下流 5m	24.5	6.39	6.70	0.60	0.11	0.05	2.0	5.3	85	79	0	3
放流口下流 10m	25.0	6.42	6.20	0.58	0.09	0.04	10.5	5.5	65	130	0	3
放流口下流 50m	23.8	6.50	5.95	0.50	0.08	0.06	14.5	5.9	1,710	>1,600	5	13

表-4. e 小貝川

2003/3/10	水温 [°C]	pH	DO [mg/L]	伝導度 [mS/cm]	残塩 全	遊離	SS [mg/L]	COD [mg/L]	一般細菌 平板	大腸菌群 平板	糞便性 平板	大腸菌 平板	連鎖球菌 平板
放流口上流50m	8.3	7.22	13.02	0.21	0.03	0.02	8.6	4.3	2,700	290	14	2	1
放流口	15.1	6.43	8.10	0.45	0.08	0.04	7.2	11.6	44,900	6,340	2,825	135	500
合流点付近	9.0	7.11	12.64	0.21	0.09	0.04	10.6	4.3	2,840	377	38	2	12
放流口下流0.3km	8.7	7.17	12.96	0.21	0.06	0.04	8.8	4.3	3,180	377	29	3	3
放流口下流1km	8.8	7.19	12.67	0.21	0.07	0.05	8.8	4.3	3,635	321	36	2	2

での指標細菌数が最も少なくなっている。しかし、放流口下流50mを過ぎた後には指標細菌によって増加したり減少したりで、特に傾向は把握できなかった。一方、大腸菌は他の衛生学的指標とは異なり、大きな変動は見られなかった。ただし、この時の大腸菌は測定時に10倍以上の希釈で行ったために、精度はあまり良くない。

表-4.dには、霞ヶ浦の衛生学的指標を示す。基本的には下水処理水よりも霞ヶ浦の水の方が指標細菌数が多かった。しかし、下水処理水の放流口から5mや10m程度では大きな変化が見ら



図-4 なじみ水路

れず、今後さらに詳細な調査が必要であると考えられた。

表-4.eには、小貝川の衛生学的指標を示す。小貝川では、下水処理水の方が小貝川の水よりも指標細菌の数が多かった。また、下水処理水合流後の河川水の方が、合流前の河川水よりも指標細菌数がやや多めとなっていた。下館処理場の晴天時日平均下水量は 6,095m³/日程度であり⁴⁾、調査日の調査時刻の放流量を 6,095m³/日÷24 時間÷3,600 秒=0.07m³/秒とする。調査時刻の小貝川の流量は約 20m³/秒であったため、小貝川に捨てる下水処理水の割合は 0.4%程度であったと考えられる。これを元に下水処理水合流後の指標細菌数を予想すると、概ね合致し、0.3km 下流から 1.0km 下流地点にかけても特に増減は見られない。ただし、この時の水温が極めて低かったので、影響を及ぼす全ての因子が小さくなり、増減がほとんど確認できなかった可能性もある。

本調査では、放流後の下水処理水について、様々な場面での衛生学的指標の消長を調査した。その結果、再生水を利用したせせらぎやなじみ水路では各指標細菌が増加したが、大腸菌だけは増加せず一定であった点がわかった。また、霞ヶ浦や小貝川では、下水処理水と湖水、河川水において違いは見られたが、特筆すべき現象は確認できなかった。そのため、今後は湖水、河川水において詳細な調査が必要になるものと考えられる。

3. まとめ

- 1) 模型水路実験による指標細菌の最増殖の様子からは、大腸菌、糞便性連鎖球菌が衛生学的指標として適切と考えられた。しかし、まだ影響因子等の調査が不十分であるため、今後の調査が必要である。
- 2) 現地調査における、せせらぎ水路、なじみ水路では、大腸菌を除く指標細菌が、放流直後から増加した。しかし、大腸菌だけは増加せず、ほぼ一定であった。
- 3) 現地調査における、河川、湖水では、下水処理水とそれぞれの環境水の差ははっきりと出た。しかし、混合過程や流下過程における指標細菌の消長はほとんど観察することができなかったため、今後は衛生学的指標に影響を及ぼしそうな因子に的を絞った調査が必要と考えられる。

なお、本調査研究は、試験研究費により実施されたものである。

参考文献

- 1) 例えば、平田強「塩素消毒と細菌」水道協会雑誌、Vol. 62、No. 5、pp. 6~9、1993
- 2) 水質基準に関する省令（平成 15 年 5 月 30 日厚生労働省令第 101 号）
- 3) 例えば、金子光美「水質衛生学」p. 475、技報堂、1996
- 4) （社）日本下水道協会「平成 13 年度版 下水道統計 行政編」2003

5. 水環境再生技術の開発に関する研究

下水処理研究室 室長 中島英一郎
主任研究官 田嶋 淳

1. はじめに

近年、水環境における内分泌攪乱物質や有機塩素化合物等をはじめとする微量環境汚染物質の問題が大きくなってきている。これらの物質は主に都市活動により排出されるものであり、微量ではあっても自然環境や生態系、人体への影響が懸念されるものである。例えば内分泌攪乱物質については、生殖機能異常や生殖行動異常、雄の雌性化、孵化能力の低下、免疫系や神経系への影響など水系生態系への悪影響が懸念されており、有機塩素化合物についても、発ガン性が指摘されているトリハロメタン等、生物への高い毒性が問題視されている。

内分泌攪乱物質については、国土交通省より出された下水道における内分泌攪乱化学物質に関する調査結果¹⁾によると、流入下水中の内分泌攪乱物質が下水処理の過程で大きく低減し、放流水中では調査対象物質のほとんどが 90%以上減少しているとされているが、内分泌攪乱物質が生態系に与える影響については、調査研究が進められている段階であり、依然明らかにし得る知見が十分ではなく、今後更なる削減が求められる可能性もある。

オゾン処理については、これら微量環境汚染物質の除去に対する有効性が多数指摘されているが、日本の下水処理場における導入実績は少ない状況にあり、平成 13 年度現在で、全国 1,718 の処理場のうち、約 2%に当たる 40 箇所の処理場で導入されているに過ぎない²⁾。また、オゾン処理の導入目的も消毒や脱色が中心となっており、微量環境汚染物質除去を考慮したオゾン処理の運転管理がなされていないのが現状である。

そこで平成 14 年度の研究では、下水処理水中の微量環境汚染物質の除去を効率的に行うためのオゾン処理運転方法の確立を目的として、パイロットプラント実験により、有機物、内分泌攪乱物質、有機ハロゲン化合物及び細菌類を除去対象物質として、オゾン処理条件による除去効果の違いについての基礎的な検討を行った。なお、内分泌攪乱物質としては、17β エストラジオール（以下 E2 と記す）、ノニルフェノール（以下 NP と記す）、ビスフェノール A（以下 BPA と記す）、ベンゾフェノン（以下 BP と記す）、フタル酸ジ-2-エチルヘキシルの 5 物質を対象とした。また、オゾン処理では、運転管理費用が高いという問題があることから、オゾン処理条件によるパイロットプラントの消費電力量の違いについても簡単な検討を行った。

2. 実験方法

2-1. 実験装置

神戸市玉津下水処理場内に実験装置を設置し、最終沈殿池越流水及び砂ろ過水を原水槽（容量約 1m³）に貯留し、内分泌攪乱物質標準試薬を原水槽へ添加後、原水槽よりオゾン反応塔へ、原水槽内の試験水がなくなるまで試験水を連続通水し、2-2 に示す実験条件によりオゾン処理を行った。実験装置の概要を図-1 に、実験装置の設備仕様を表-1 に示す。なお、最終沈殿池越流水は標準活性汚泥法による処理水であり、砂ろ過水は、標準活性汚泥法と循環式硝化脱窒法による処理水を混合し、砂ろ過して得られたものである。

表-1 実験装置仕様

項目	仕様
オゾン発生装置	PSA オゾナイザー 発生量：20gO ₃ /h 又は 30gO ₃ /h
反応塔サイズ	φ200mm×2,900mmH
反応塔有効容量	約 90L
反応塔材質	SUS304
オゾン注入方式	散気方式

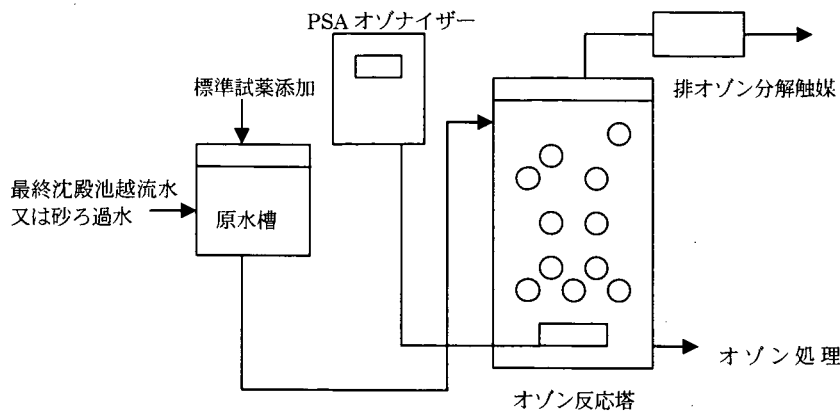


図-1 実験装置概要

2-2. 実験条件

2-2-1. 試験水

試験水には、玉津下水処理場の砂ろ過水に、概ね NP=1 μ g/L、E2=0.05 μ g/L、BPA=0.5 μ g/L、BP=1 μ g/L、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル=5 μ g/L の濃度となるように標準試薬を添加調整したものを用いた。なお、添加する内分泌攪乱物質は、国土交通省より出された下水道における内分泌攪乱化学物質に関する調査結果¹⁾において、下水道で留意すべき物質として選定された6物質のうち処理水で検出された5物質を対象とし、設定濃度は、平成10~12年度国土交通省調査における下水処理水中の内分泌攪乱物質の最大濃度を目安としたものである。

また、試験水として最終沈殿池越流水も併せて用い、オゾン処理による細菌類の除去効果の把握を行った。最終沈殿池越流水については、基本的には標準試薬の添加は行わないが、最終沈殿池越流水と砂ろ過水における内分泌攪乱物質の除去効果の違いを確認するために、いくつかの実験ケースで標準試薬の添加を行った。

なお、実験に用いた最終沈殿池越流水及び砂ろ過水の水質は、表-2の通りである。NH₄及びNO₂-N濃度については処理場からの放流水において共に0.1mg/L以下となっており、硝化反応が十分に進行していた。

表-2 実験に用いた原水の水質

水質項目	砂ろ過水	終沈越流水
pH	6.7~7.3	6.6~6.8
SS (mg/L)	1以下	2~3
BOD (mg/L)	2以下~2.9	2.3~3.9
COD _{Mn} (mg/L)	7.1~9.6	8.8~10.8
TOC (mg/L)	5.3~7.5	5.5~6.7

2-2-2. 接触時間

「二次処理水を対象としたオゾン処理システム技術マニュアル」³⁾では、オゾン処理に必要な接触時間は一般に10~20分程度を標準とする、とされており、本実験では5~20分の範囲で3段階に設定した。

2-2-3. オゾン注入率

「二次処理水を対象としたオゾン処理システム技術マニュアル」³⁾では、オゾン注入率は、一般的には5~10mg/L程度とする、とされており、本実験では5~20mg/Lの範囲で段階的に設定した。なお、その際のオゾンガス濃度は14.7~93.6g/Nm³、オゾンガス流量は1.2~5.1L/minの範囲で設定した。また、オゾンガス濃度とオゾン吸収効率の関係を検討するため、オゾン注入率10mg/Lにおいてオゾンガス濃度を16.9~65.4g/Nm³の範囲で3段階に設定した。

2-3. 試料の採取及び分析項目

オゾン処理前及びオゾン処理後の試験水を、処理開始より約30分毎に3回採取し、混合したものを分析試料とした。砂ろ過水を試験水とした場合の水質分析項目は、pH、SS、BOD、COD_{Mn}、E₂₆₀、TOC、TOX、NP、E2、BPA、BP、フタル酸ジ-2-エチルヘキシルとし、最終沈殿池越流水を試験水とした場合の水質分析項目は、pH、

SS、BOD、COD_{Mn}、TOC、大腸菌群、糞便性大腸菌群とした（内分泌攪乱物質標準試薬を添加するケースでは内分泌攪乱物質も測定）。なお、NP、BPA、BP 及びフタル酸ジ-2-エチルヘキシルはGC/MS法により、E2はELISA法により分析を行った。

また、実験条件の違いによる消費電力量の違いを把握するため、各実験条件における消費電力量を測定するとともに、オゾン吸収効率を把握するため、排気中オゾン濃度を測定した。

3. 結果と考察

3-1. オゾン注入率による除去率の変化

オゾン注入率がTOC及びCODの除去に与える影響を図-2に示す。オゾン注入率5~20mg/Lの範囲内では、TOCは殆ど除去できないが、CODについては、オゾン注入率が増加するにつれ除去率が若干向上することが分かった。このことは、オゾン処理により有機物が酸化されるためCODが低減するものの、有機物が完全に無機化されるに至っていないことを示している。

次に、オゾン注入率が内分泌攪乱物質（E2、BPA、NP、BP、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル）の除去に与える影響を図-3~6に示す。E2、BPA、NPについては、オゾン注入率5~20mg/Lの範囲内では、オゾン注入率に関わらず、殆どのケースで検出限界以下にまで除去されたが、BPについては、オゾン注入率10mg/L以上で検出限界以下にまで除去されることが分かった。なお、フタル酸ジ-2-エチルヘキシルについては、オゾン処理前の試料について全ての条件で検出限界以下となったが、その理由は不明である。

次に、オゾン注入率がTOXの除去に与える影響を図-7に示す。オゾン注入率が増加するにつれTOXの除去率は向上し、オゾン注入率を5mg/Lから20mg/Lに増加させることにより、TOX除去率は20%から60%にまで向上することが分かった。

また、オゾン注入率が腸菌群及び糞便性大腸菌群の除去に与える影響を図-8に示す。ばらつきが見られるものの、オゾン注入により概ね1.5log~2.5log程度除去され、オゾン注入率5~20mg/Lの範囲内では、オゾン注入率による除去率の違いは見られなかった。

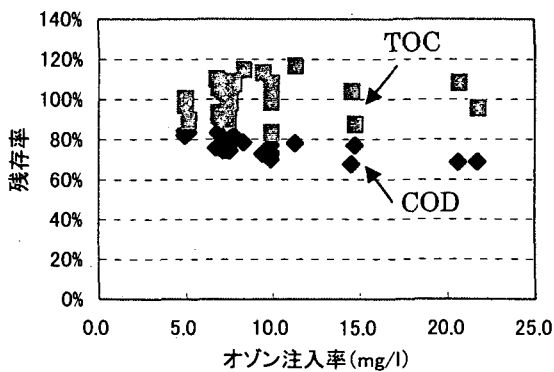


図-2 オゾン注入率とTOC、COD残存率の関係

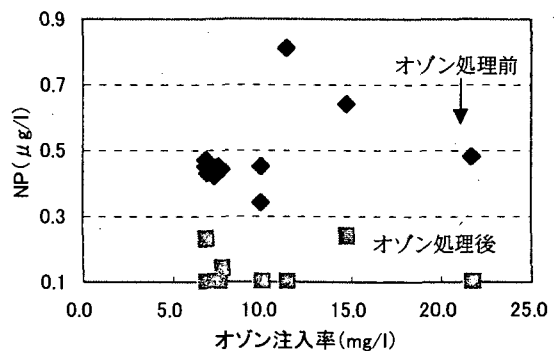


図-3 オゾン注入率とNP除去効果の関係 (NP検出下限値=0.1µg/l)

※図中NP=0.1µg/lの点は全て検出下限値以下を示す

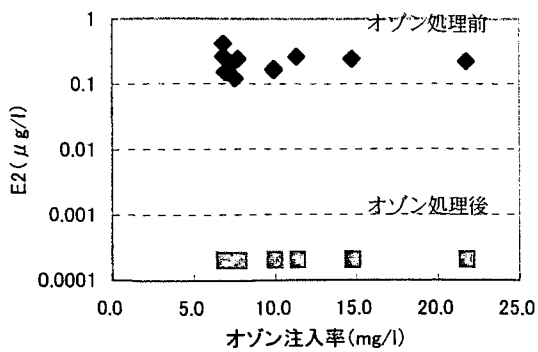


図-4 オゾン注入率とE2除去効果の関係
(E2 検出下限値=0.0002 μg/l)

※図中オゾン処理後の点は全て検出下限値以下

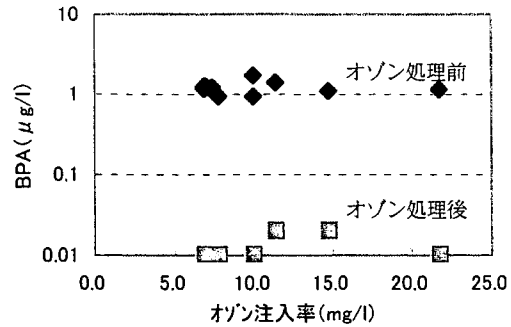


図-5 オゾン注入率とBPA除去効果の関係
(BPA 検出下限値=0.01 μg/l)

※図中 BPA=0.01 μg/l の点は全て検出下限値以下を示す

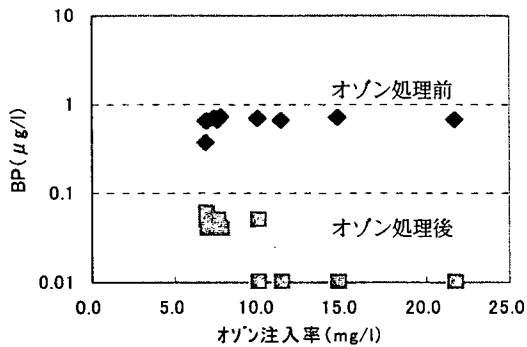


図-6 オゾン注入率とBP除去効果の関係
(BP 検出下限値=0.01 μg/l)

※図中の BP=0.01 μg/l の点は全て検出下限値以下を示す

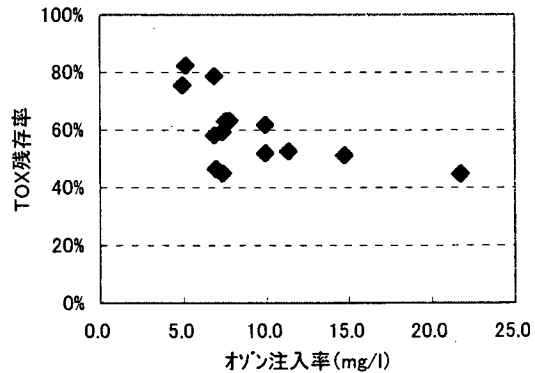


図-7 オゾン注入率とTOX残存率の関係

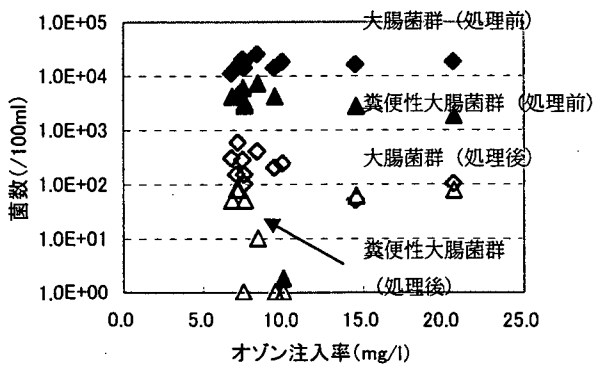


図-8 オゾン注入率と大腸菌群・糞便性大腸菌群
除去効果の関係

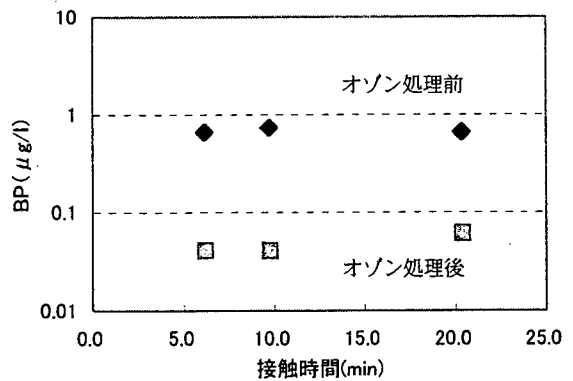


図-9 オゾン接触時間とBP除去効果の関係

3-2. 接触時間による除去率の変化

内分泌攪乱物質のうち、検出限界以下にまで低減できないケースが多く見られたBPについて、接触時間がベンゾフェノンの除去に与える影響を図-9に示す。接触時間が7~20minの範囲内では、BPの除去率に違いは見られなかった。

その他、TOX、大腸菌群数及び糞便性大腸菌群数についても同様に、接触時間が7~20minの範囲内では、接触時間による除去率の違いは見られなかった。

オゾンの酸化力は非常に強く、除去対象物質との反応は短時間で終了することから、接触時間による除去率の違いが見られなかったものと考えられる。接触時間が大きくなる程オゾン反応槽の規模が大きくなることから、上記の結果を踏まえ、接触時間はできるだけ小さくすることが望ましいと言える。

3-3. オゾン処理による有機物組成の変化

オゾン処理前後の E_{260} と COD の関係を図-10 に示す。オゾン処理により、COD に比べ E_{260} の方が大きく低減した。不飽和結合を有する有機物質は紫外部（波長 250~260nm）に吸収を示すことから、図-10 は、有機物のうち、特に不飽和結合を有する有機物がオゾンにより酸化されやすいことを示しているものと考えられる。

3-4. 競合物質が内分泌攪乱物質除去に与える影響

3-3における考察より、オゾンは E_{260} で代表される有機物質との反応性に富んでいることが分かった。そこで、処理水中に含まれる競合物質として E_{260} に着目し、オゾン注入率 7mg/L の条件におけるオゾン処理前後の E_{260} とベンゾフェノンの除去効果の関係を示したものが図-11 である。原水の E_{260} が 0.065~0.109 の範囲内では、オゾン処理後の BP 濃度は同程度であり、 E_{260} がベンゾフェノンの除去効果に与える影響は特に見られなかった。また、競合物質として COD に着目した場合にも COD がベンゾフェノンの除去効果に与える影響は特に見られなかった。しかしながら、今回の実験では E_{260} 及び COD の分布幅が小さかったことから、 E_{260} 及び COD が内分泌攪乱物質除去に与える影響を把握するためには、より広範囲の E_{260} 及び COD を対象に検討を進める必要がある。

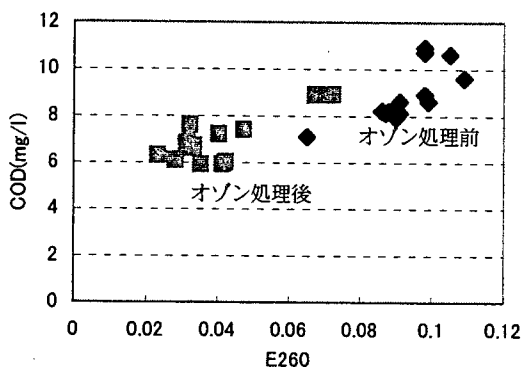


図-10 オゾン処理による COD 及び E_{260} の変化

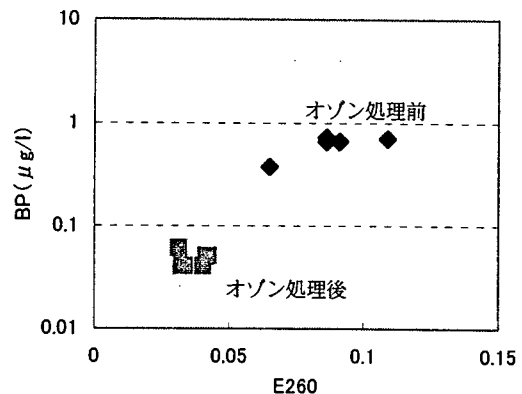


図-11 原水 E_{260} が BP 除去効果に与える影響 (オゾン注入率=7mg/l)

3-5. 発生オゾンガス濃度とオゾン吸収効率の関係

オゾン注入率一定（約 10mg/L）条件における、発生オゾンガス濃度とオゾン吸収効率の関係を示したものが図-12 であり、発生オゾンガス濃度が高いほどオゾン吸収効率が向上することが分かった。これは、オゾンガス濃度を高濃度にするによって、液相での濃度勾配が大きくなり、水へのオゾンの溶解が効率的に行われることによるものと考えられる。

3-6. オゾン注入率と単位処理量当たり消費電力量の関係

オゾン処理において問題となるのは運転管理費用であり、そのうち、オゾン製造に係る電力費が最も大きいと考えられる。以上のことから、オゾン注入率と実験施設における単位処理量当たりのオゾナイザー消費電力量の関係を示したものが図-13 である。図-13 は、オゾン注入率 5~20mg/L の範囲では、オゾン注入率と単位処理量当

たりの消費電力量が比例関係にあることを示しており、運転管理費用低減の為には、除去対象物質に応じた適切なオゾン注入率により、オゾン処理を行うことが重要であることが分かった。臭素酸イオンをはじめとするオゾン処理による消毒副生成物の生成をできるだけ抑制する観点からも、適切なオゾン注入率の設定は重要であると考えられる。

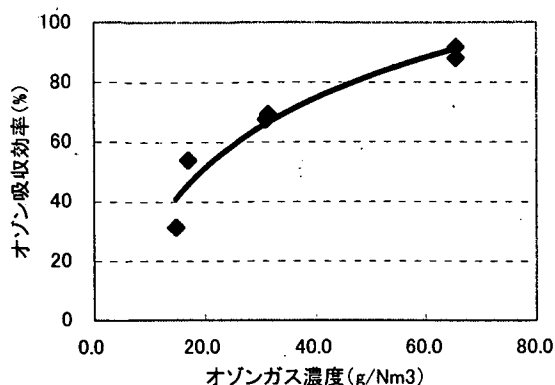


図-12 発生オゾンガス濃度とオゾン吸収効率の関係

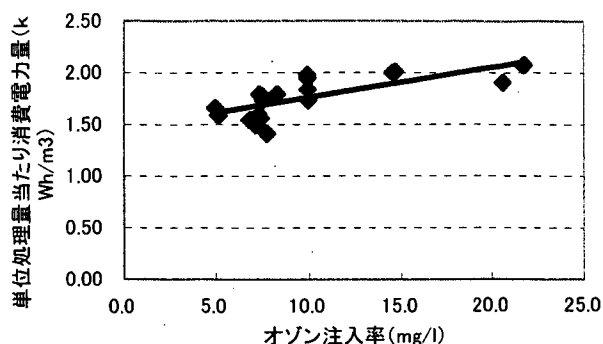


図-13 オゾン注入率と処理量当たり消費電力量の関係

4. まとめ

以上の実験結果を以下に整理する。

- (1) 内分泌攪乱物質のうち、E2、NP、BPAについては、オゾン注入率 5~20mg/L の範囲では、全ての条件で検出限界以下まで除去された。一方、BP については、オゾン注入率 10mg/L 以上で検出限界以下にまで除去された。
- (2) TOX の除去率は、オゾン注入率の増加とともに増加し、オゾン注入率 20mg/L では約 60% 除去された。
- (3) 大腸菌群及び糞便性大腸菌群の除去率は 1.5log~2.5log 程度であり、オゾン注入率による違いは見られなかった。
- (4) 接触時間 7~20min の範囲では、接触時間による除去率の違いは見られなかった。
- (5) オゾン処理により E260 は 50~70% 程度低減したが、COD 除去率は 20~30% であり、TOC は殆ど除去されないことから、オゾン処理により特に不飽和結合を有する有機物が酸化されやすいが、無機化には至らないことが分かった。
- (6) オゾン注入率一定の条件では、発生オゾンガス濃度が高くなるほどオゾン吸収効率は向上する。
- (7) オゾン注入率と単位処理量当たりオゾナイザー消費電力量は比例関係にあり、運転管理費用低減のためには必要最小限のオゾン注入率とすることが重要である。

今後は、オゾン注入率を更に低減させた場合や接触時間を更に短くした場合の除去効果の確認を行うとともに、原水の性状が内分泌攪乱物質をはじめとした微量環境汚染物質の除去効果に与える影響について検討を進めていく予定である。

なお、本調査研究は、技術研究開発調査費により実施されたものである。

参考文献

- 1) 国土交通省都市・地域整備局下水道部：平成 12 年度下水道における内分泌攪乱化学物質に関する調査報告書、2001.3.
- 2) (社) 日本下水道協会：下水道統計行政編（平成 13 年度）
- 3) (財) 下水道新技術推進機構：二次処理水を対象としたオゾン処理システム技術マニュアル、1997.6.