

環境研究総合推進費【2-1902】

環境中に放流された排水由来GHGs排出メカニズムの解明と 排出量算定方法の検討

体系的番号 : JPMEERF20192002

重点課題 主:【重点課題⑧】地球温暖化現象の解明・予測・対策評価
副: ー

行政要請研究テーマ(行政ニーズ)

: (2-2)河川等に放流された有機性汚濁負荷を起源とする
CH₄・N₂O発生メカニズムの解明及び排出削減方策の研究

研究代表者 : 山崎宏史(東洋大学)

研究実施期間 : 令和元年度～令和3年度

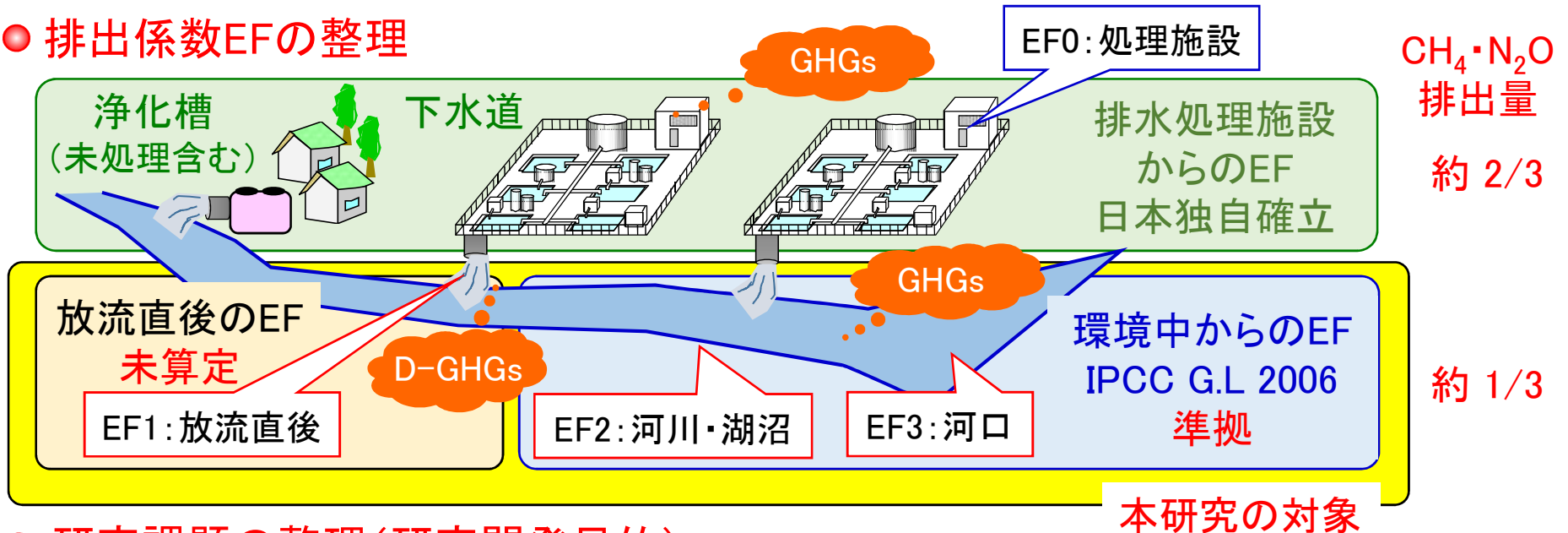
研究代表機関 サブ1 : 山崎宏史、村野昭人、青木宗之(東洋大学)
: 蛭江美孝、小野寺崇 (国立環境研究所)

研究分担機関 サブ2 : 増田周平 (秋田高専)

研究分担機関 サブ3 : 寺田昭彦 (東京農工大)

はじめに(研究背景等) 研究開発目的1 GHGs排出係数(EF)の開発

● 排出係数EFの整理



● 研究課題の整理(研究開発目的)

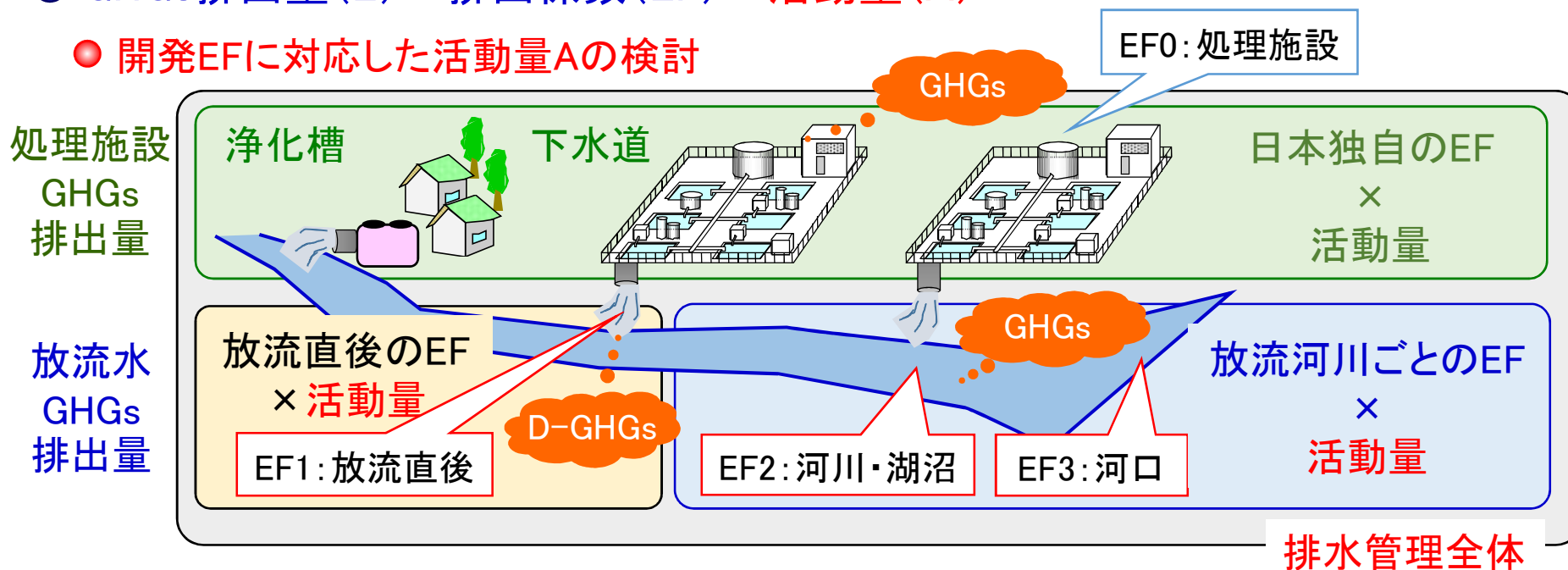
対象	放流直後(EF1)	放流河川(EF2+3)	
状況(課題)	処理後排水 D-N ₂ O残存	河川環境 (急峻, 清澄)	排水に含まれるNH ₄ -N 硝化反応由来N ₂ O
IPCC G.L. 2006 (現NIR適用)	考慮されていない	5 g-N ₂ O-N/kg-N	(硝化+)脱窒反応 考慮
IPCC G.L. 2019		5 g-N ₂ O-N/kg-N(清 澄) 19 g-N ₂ O-N/kg-N(富栄養)	硝化反応由来 考慮不十分
研究課題	EF1(放流直後) 含める考慮が必要 (サブ2, 1で対応)	日本の河川環境 考慮が必要 (サブ1で対応)	硝化反応 考慮が必要 (サブ1で対応)

はじめに(研究背景等) 研究開発目的2

GHGs排出量の算定とGHGs排出最小化モデルの検討

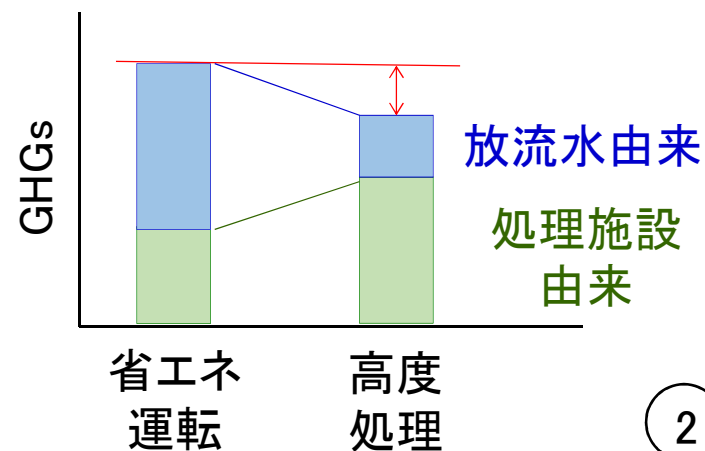
● GHGs排出量(E) = 排出係数(EF) × 活動量(A)

● 開発EFに対応した活動量Aの検討

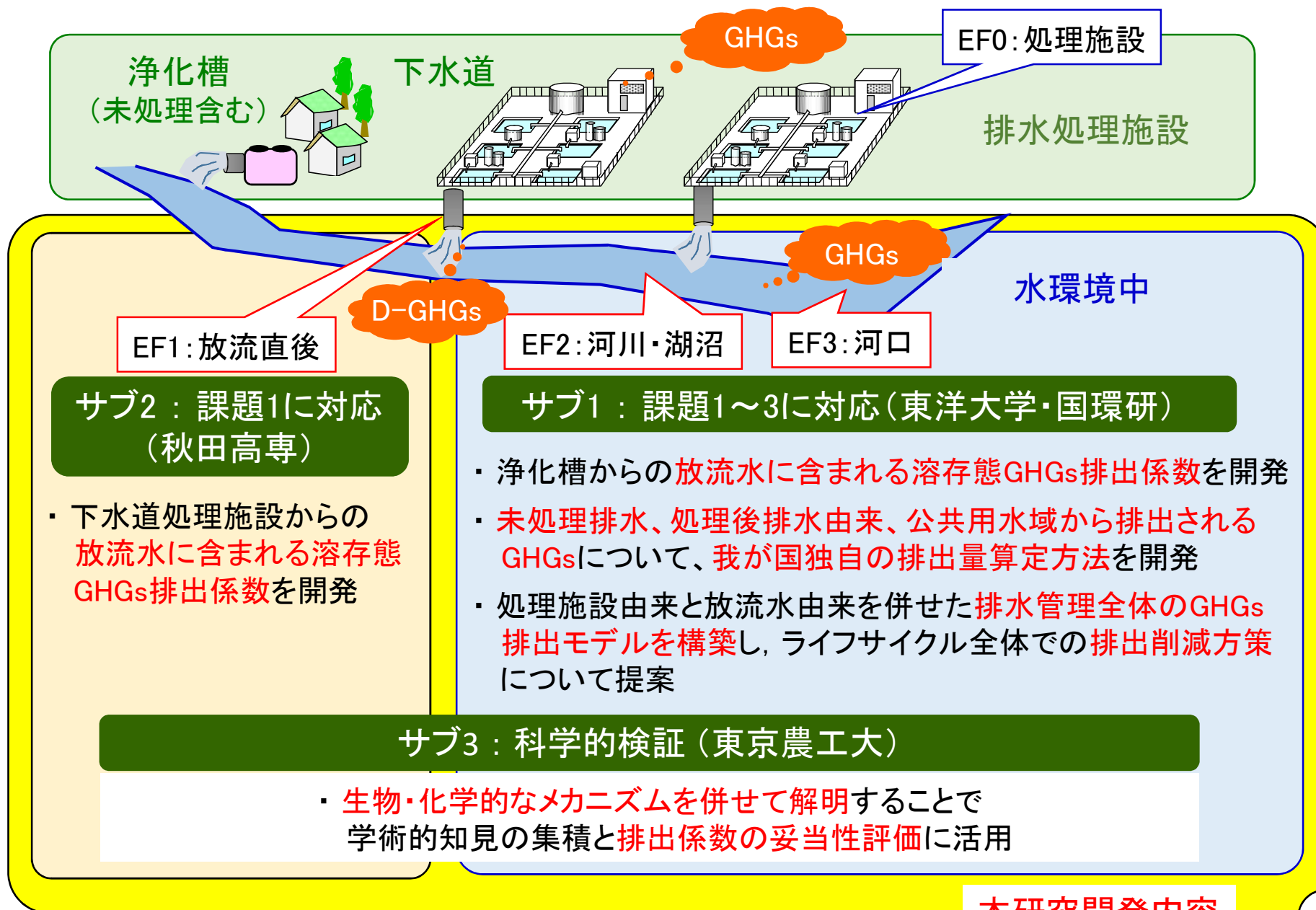


● 研究課題の整理2(研究開発目的2)

研究課題	
開発EFに対応する適切な活動量の検討	サブ1で 対応
処理施設や放流先の状況に応じて複数のEFを使い分ける方法論の検討	
処理施設由来 + 放流水由来のトレードオフを含めたGHGs排出量の最小化を検討	



研究目標(全体目標)・研究開発内容



成果の概要 サブテーマ2

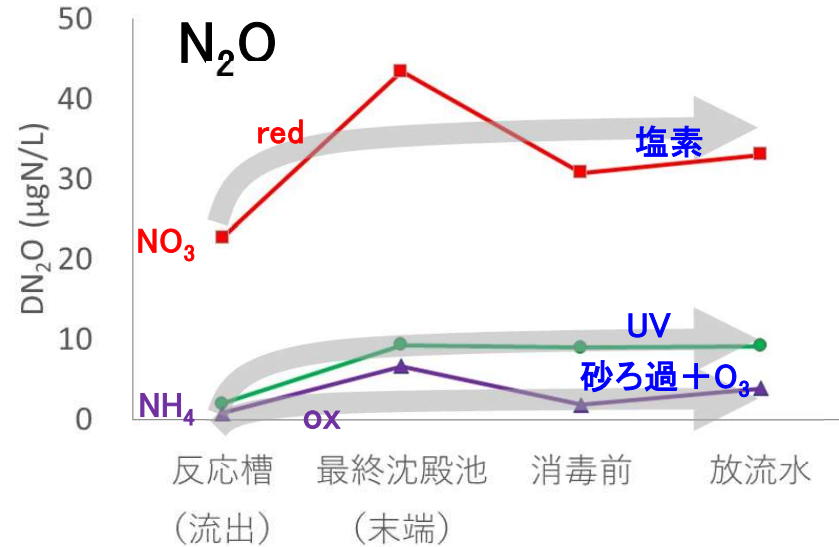
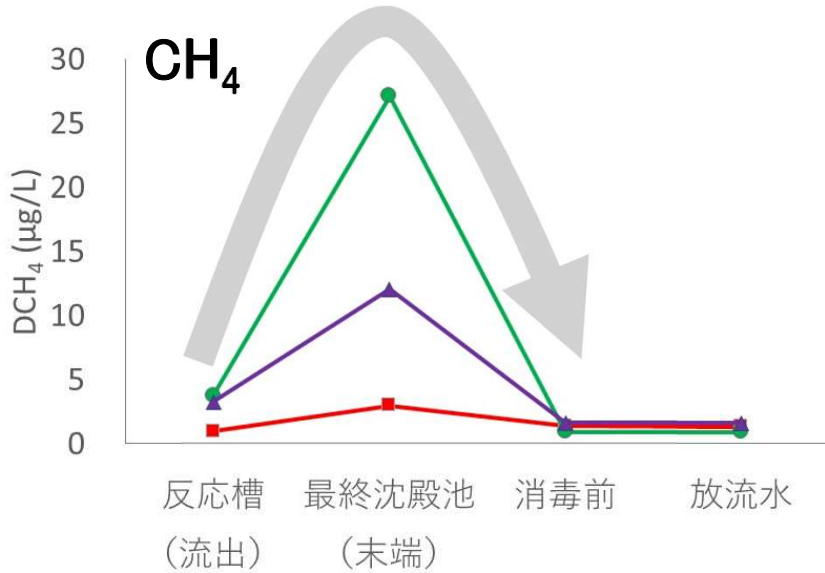
下水処理プロセスからの溶存態GHGsの流出機構解明

下水処理水に含まれる溶存態GHGsの量を推定する排出係数を開発する。そのために、複数の異なるプロセス構成の下水処理場において、反応タンクおよび最終沈殿池以降のプロセスにおける溶存態GHGsの実態を把握する。その上で、生物処理、塩素処理やオゾン処理などのプロセスにおけるGHGs生成に影響する主要な環境因子を明らかにし、それらをふまえGHGs生成量を最小化する条件について検討する。検討の結果は、下水処理水に含まれる溶存態GHGs発生量の推定、およびその削減可能性に対する定量的な評価を可能とすることで、サブ1における排出量算定方法、GHGs排出量最小化シナリオの提案および本テーマ全体に貢献する。

研究分担者 サブ2 : 増田周平（秋田高専）

反応槽以降のD-GHGs変動

● 複数の異なるプロセスの下水処理場 溶存態(D-)GHGsの変動



■ B処理場(疑似AO・硝化あり) ▲ E処理場(疑似AO・硝化なし) ● D処理場(AOAO: 高度N除去)

● 既往の知見も含めて放流水のD-GHG濃度を整理

CH₄ 中央値: 1.4 µg/L
 (大気平衡濃度 ≒ 0.03 µg/L)
 CH₄: 40 µgCO₂/L

<<
83倍

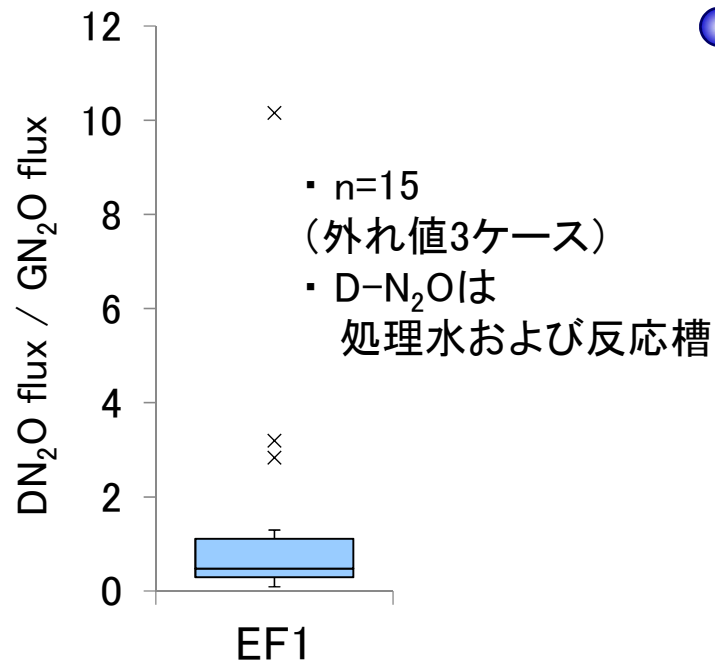
N₂O 中央値: 12.6 µg/L
 (大気平衡濃度 ≒ 0.26 µg/L)
 N₂O: 3,327 µgCO₂/L

処理後排水に残存する相対的な寄与 CH₄小 << D-N₂O大

放流水(下水道処理後排水)に残存するD-GHG_s排出係数の開発

● 処理後排水に残存するD-GHG_s排出係数開発における検討内容

- ・ 既存の処理施設(排水処理プロセス)由来排出係数(EF_0)との整合性
→【現状の EF_0 と連動】
- ・ 反応槽D-N₂O ①反応槽G-N₂Oと正の相関 ②処理水D-N₂Oと同レベル
→【処理後排水D-N₂Oと反応槽G-N₂Oに量的因果関係】
- ・ D-CH₄濃度は影響小かつ推定が困難 →【算定対象から除外】
- ・ 処理後排水D-N₂Oは放流先で全てガス化すると仮定



● 処理後排水に残存するD-GHG_s排出係数開発

処理後排水に残存するD-N₂O排出係数: EF_1
排水処理プロセス由来G-N₂O排出係数に対し
一律の比率として定義

中央値=0.48 (EF_1)

全N₂O量の約3割がD-N₂O

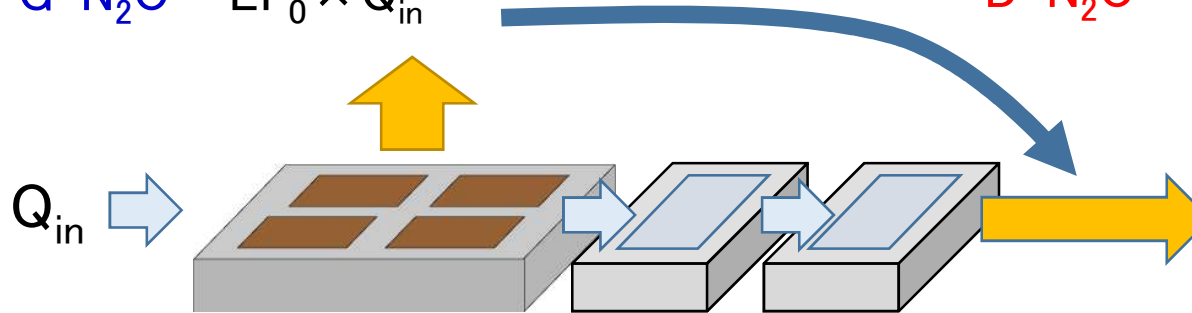
放流水(下水道処理後排水)に残存するD-GHG_s排出係数の開発

処理施設からのN₂O排出量

$$G-N_2O = EF_0 \times Q_{in}$$

処理後排水からのN₂O排出量

$$D-N_2O = EF_1 \times G-N_2O$$



- ✓ EF_0 の改訂に対して自動的に反映可能
- ✓ ガス態削減が溶存態削減に直結

サブテーマ2

- ・ 下水処理水に含まれる溶存態GHGsの量を推定する排出係数を開発
- ・ 反応槽～最終沈殿池におけるプロセスの溶存態GHGsの実態を把握
- ・ サブテーマ1における排出量算定方法、GHGs排出量最小化シナリオの提案および本テーマ全体に貢献

成果の概要 サブテーマ3

安定同位体を用いた N_2O 生成ポテンシャル評価と機構解明

都市河川に点在する生活排水処理施設の上流・下流を含めた複数箇所の底質中に生息する微生物群集の網羅的解析を行い、**底質における N_2O 生成と N_2O 消費を担う微生物群の同定と定量**を行う。また、河川底質や活性汚泥などに生息する微生物群が有する N_2O 生成・消費ポテンシャルの正確定量を目指し、**新規 ^{15}N トレーサー法を開発**する。脱窒細菌の純粋菌株数種を用いた嫌気条件における回分試験を実施し、 N_2O 生成および N_2O 消費速度の定量を行う。さらに、 **^{15}N トレーサー法を用い、河川底質の N_2O の生成量や生成経路、蓄積、消費速度を明らかにする。**

サブ1、2の河川底質サンプルなどに ^{15}N トレーサー法を適用し、 N_2O 生成と N_2O 消費に関する定量的知見をサポートする。さらには、**本テーマで提案する排出係数の学術的根拠となるデータを蓄積**する。

研究分担者 サブ3 : 寺田昭彦(東京農工大)

^{15}N トレーサー法による真の N_2O の生成・消費速度を算出可能な手法開発

- 正味の N_2O 排出を生成と消費に分け、真の N_2O 生成速度と N_2O 消費速度を精査

嫌気条件



*実際の試験で $^{15}\text{NO}_2^-$ の蓄積は検出されず。
 ^{15}NO は蓄積が無いことを想定

真の N_2O 生成速度

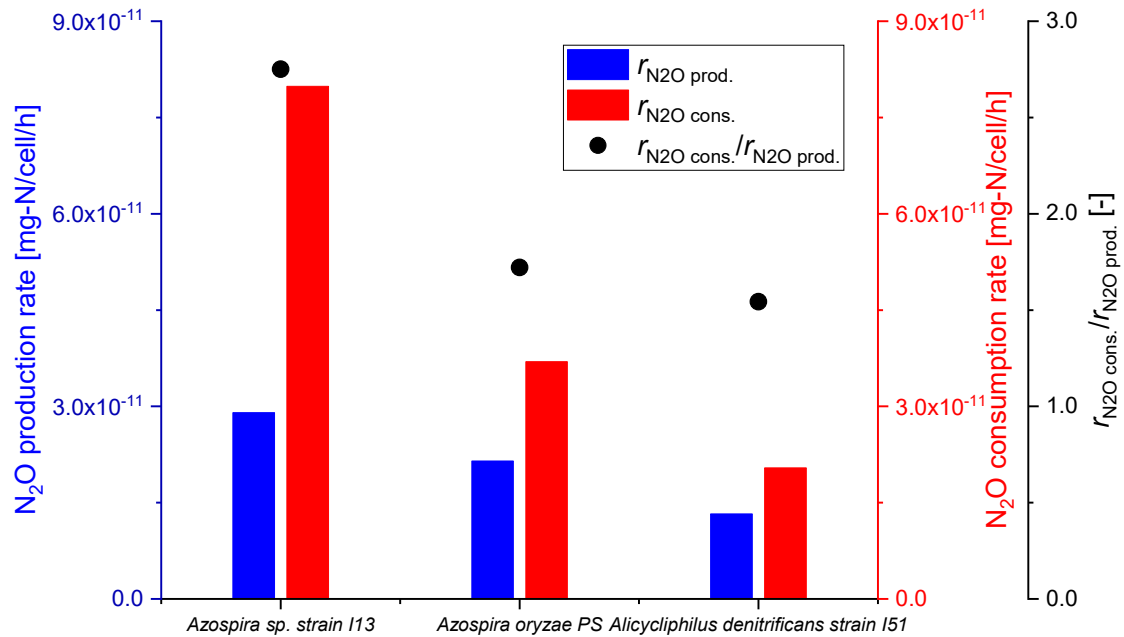
$$r_{\text{N}_2\text{O prod.}} = r_{46\text{N}_2\text{O}} + r_{30\text{N}_2}$$

真の N_2O 消費速度

$$r_{\text{N}_2\text{O cons.}} = -r_{44\text{N}_2\text{O}} + r_{30\text{N}_2}$$

15Nを添加することで分離可能

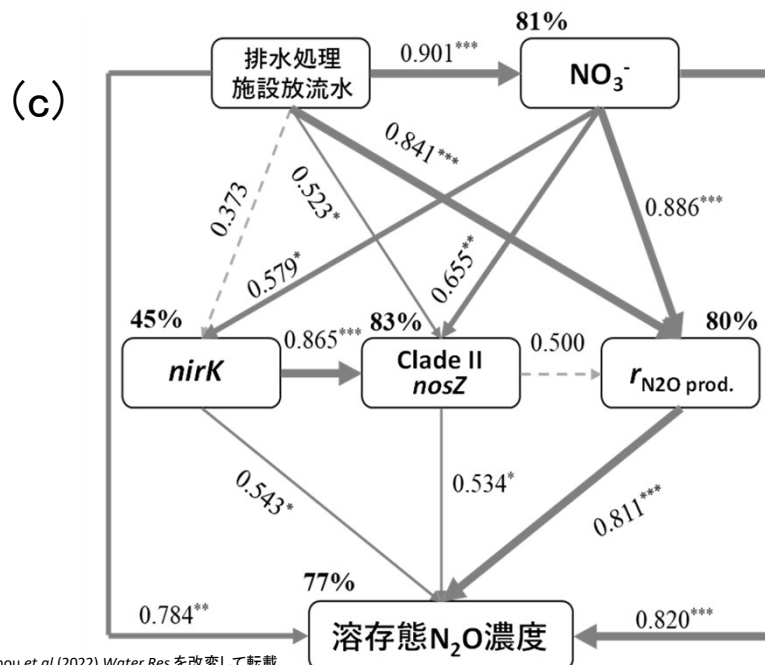
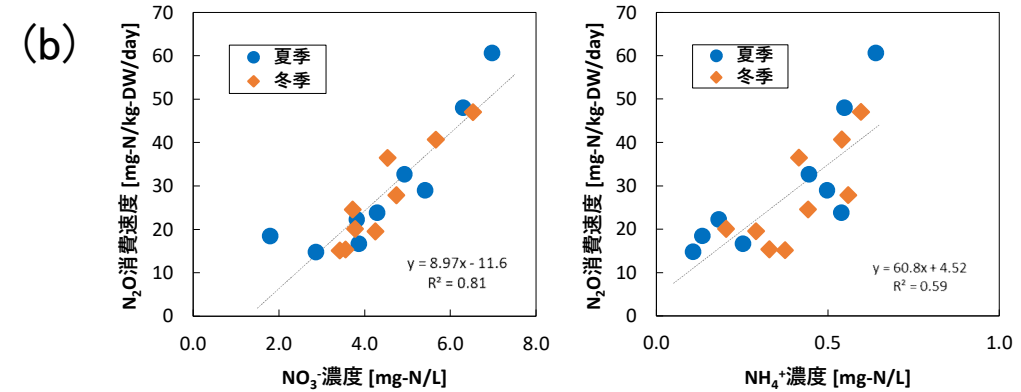
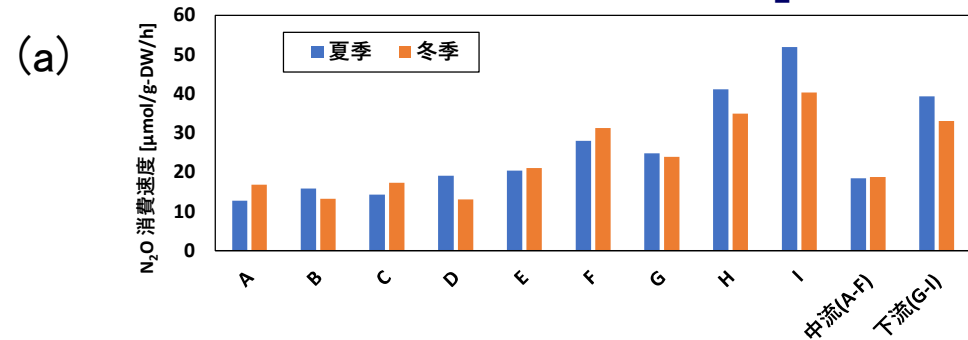
四重極型GC-MS
 $^{44}\text{N}_2\text{O}$, $^{45}\text{N}_2\text{O}$, $^{46}\text{N}_2\text{O}$,
 $^{29}\text{N}_2$, $^{30}\text{N}_2$ を測定



- ・ 新規 ^{15}N トレーサー法により真の N_2O 生成・消費速度を算出可能
- ・ 脱窒細菌によって生成・消費速度が異なることを実証
- ・ N_2O 生成、 N_2O 消費の度合いは脱窒細菌の表現型によることを示唆

大規模河川の底質のN₂O消費活性評価とN₂O生成機構

● 生活排水処理施設の放流水が底質の微生物活性に及ぼす影響とN₂O生成機構の解明



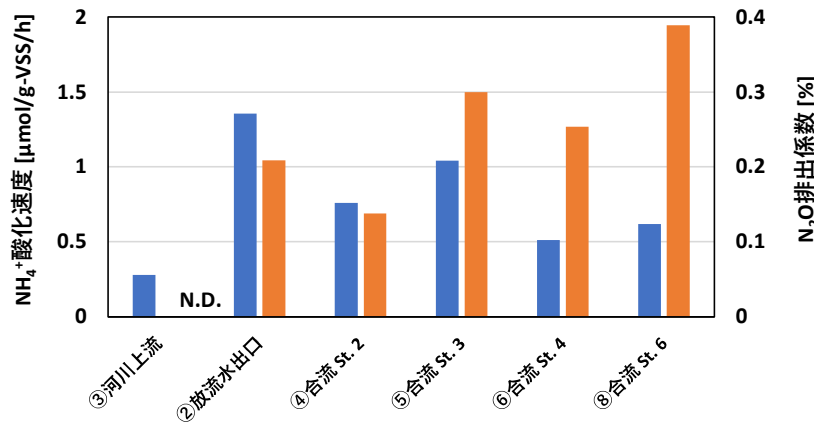
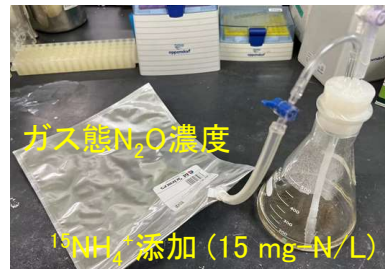
(a) 河川下流に向かうにつれて、N₂O消費活性(およびN₂O生成活性)が増大
 (b) N₂O消費活性は河川水のNO₃⁻濃度に強い正の相関。NH₄⁺濃度にも弱い正の相関
 (c) 排水処理施設からのNO₃⁻の脱窒によるN₂O生成活性の増大と溶存N₂O生成

小規模河川底質のN₂O消費活性評価とN₂O生成機構

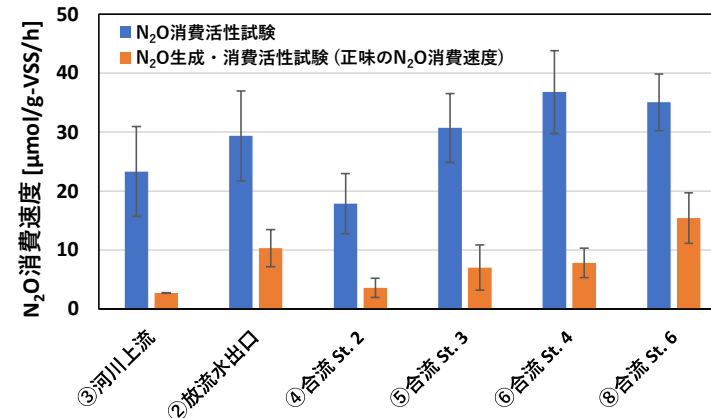
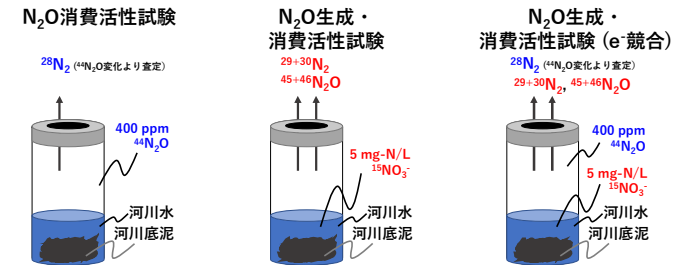
- 排水処理施設の放流水が小規模河川底質のN₂O生成・消費活性へ及ぼす影響 解明 (サブテーマ1と連携)



(a) 硝化試験

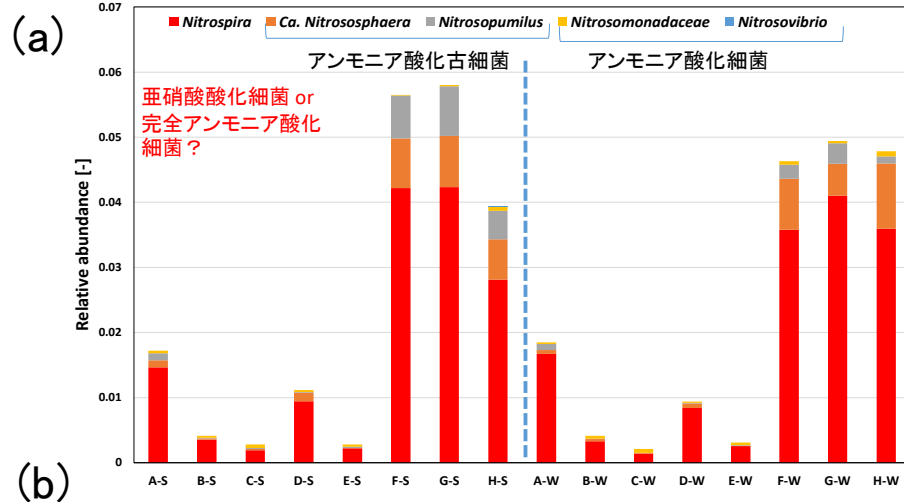


(b) 脱窒試験

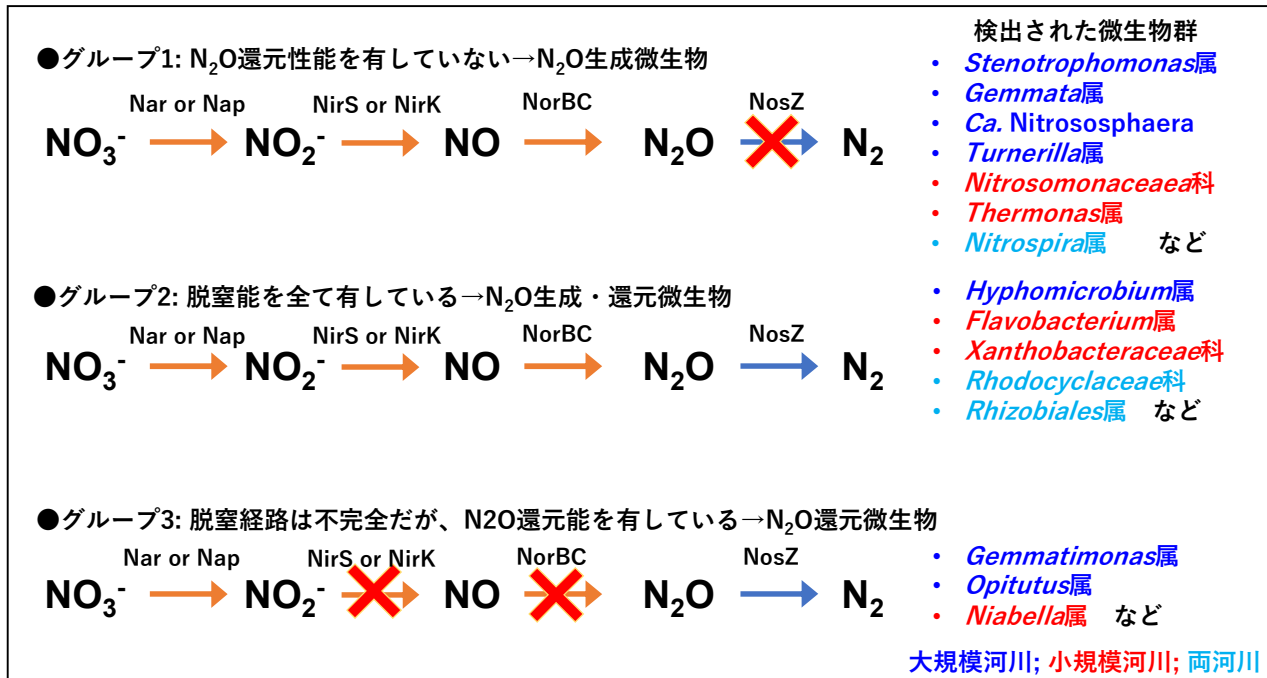


(a) 放流水出口付近が硝化のホットスポット、下流に行くほどN₂O排出係数が高い
 (b) 河川底質はN₂Oの基質律速のため、N₂O消費速度が制限されている
 → サブテーマ1の結果と一致

河川底質に生息するN₂O生成および消費に関わる微生物群の同定



Zhou et al.(2022) Water Res. を改変して転載



(a) 河川下流に向かうにつれて、アンモニア酸化細菌の存在割合が増大

(b) N₂O生成・消費に関わる鍵となる微生物同定大規模・小規模河川に共通して現れる主要な分類群 (*Nitrospira*, *Rhodocyclaceae*, *Rhizobiales*) を同定

成果の概要 サブテーマ1

環境中に放流される有機性排水を起源とする

GHGs排出量算定方法の開発と排出削減方策の研究

下水処理場放流水が流入する河川等の調査を通じ、GHGs排出に影響を及ぼす主要なパラメータの抽出を行う。また、この抽出した主要なパラメータを用いた室内モデル試験を実施することで、有機性排水由来のGHGs排出ポテンシャルの評価を行う。併せて、下水処理場、浄化槽における放流水の調査を行い、水質バランス(有機物・窒素の形態、構成割合等)や環境条件を考慮したGHGs排出ポテンシャル評価を行う。

上記と並行して、関係機関とも連携しつつ、複数の排出係数を用いた方法論を検討するとともに、排水管理全体(汚水処理施設+放流河川からのGHGs)に係るGHGs排出源を整理し、新たな方法論を作成する。また、作成した方法論に基づき、有機性排水由来GHGsに関する我が国独自の排出係数および排出量算定方法を提案する。さらに、排水管理全体のGHGs排出モデルから総合的なGHGs排出量最小化のシナリオを提案する。

研究代表機関 サブ1 : 山崎宏史、村野昭人、青木宗之 (東洋大学)
: 蛭江美孝、小野寺崇 (国立環境研究所)

下水道/河川+浄化槽/水路 調査対象

● 調査対象

河川環境基準点 ... 20地点

- ・ 河川環境基準類型 AA~C

2020年、2021年
夏季・冬季

下水道終末処理場+放流河川 ... 3処理場

- ・ 下水処理場A(オキシデーションデイツ法) / 河川α(環境基準B)
- ・ 下水処理場B(標準活性汚泥法) / 河川β(環境基準A)
- ・ 下水処理場C(標準活性汚泥法) / 河川γ(環境基準C)

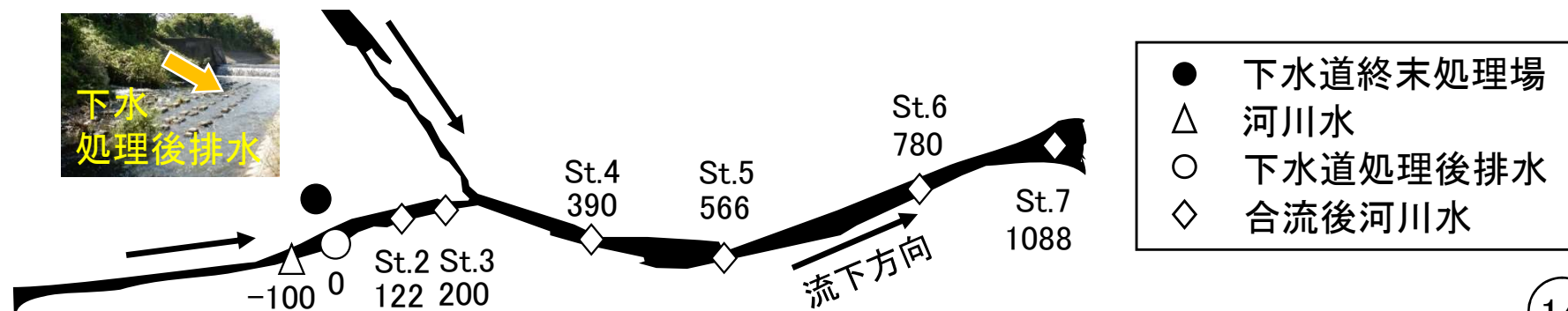
2019/7~2021/9
毎月1~2回程度
2021/5~2022/3
毎月1~2回程度

浄化槽+放流水路

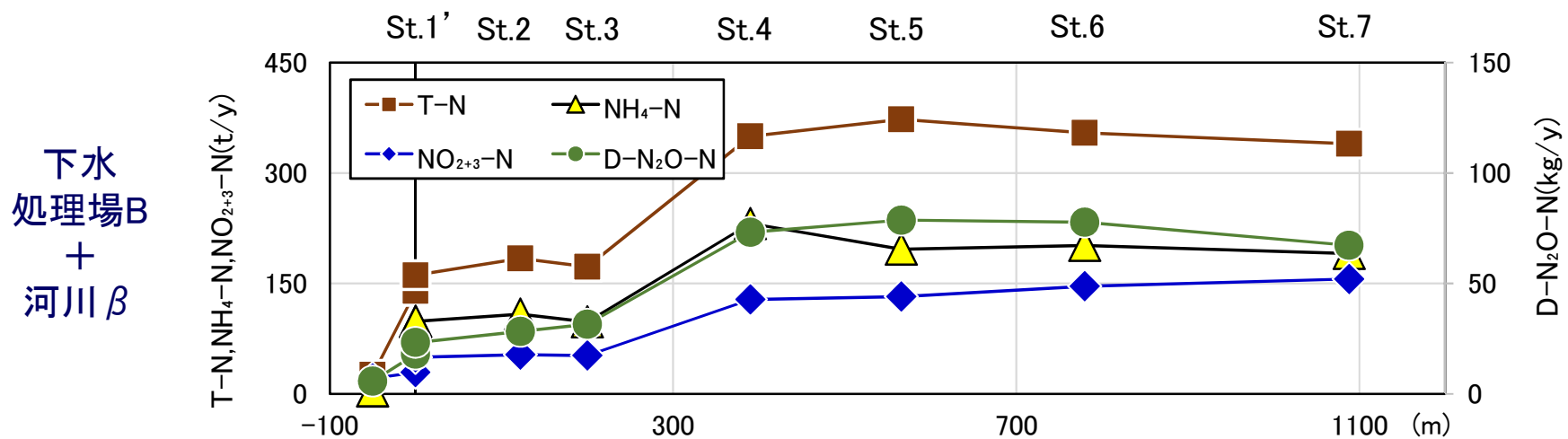
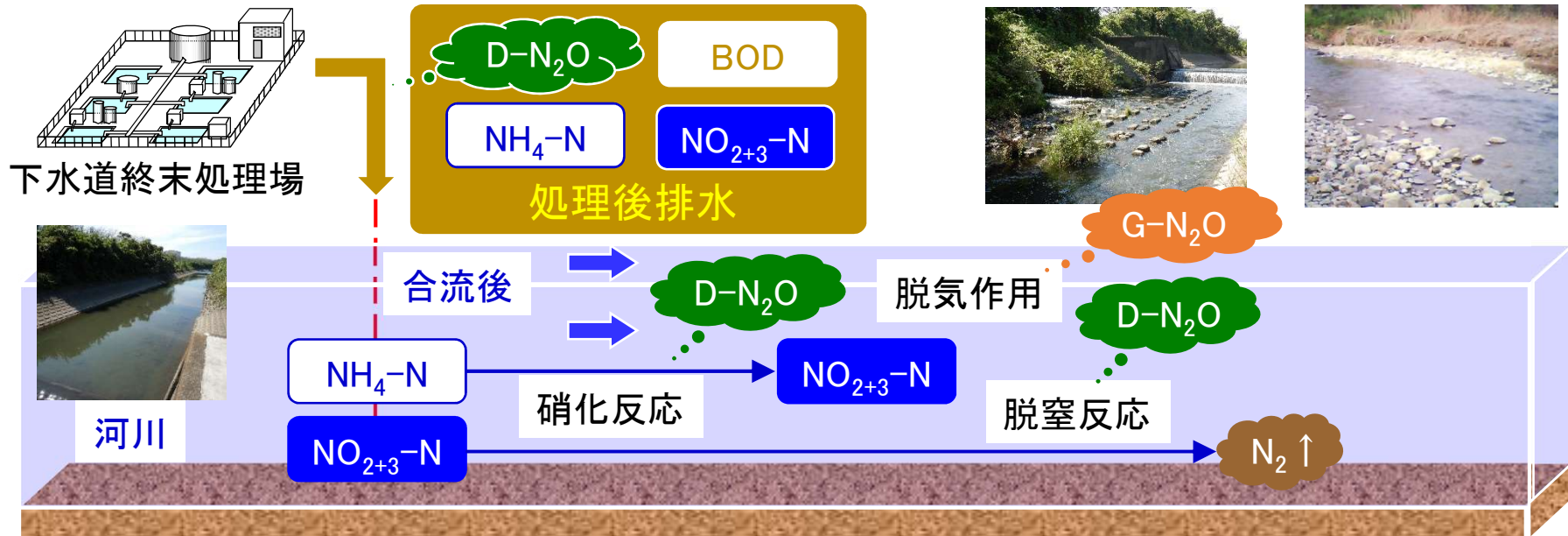
- ・ 単独処理浄化槽、合併処理浄化槽 処理後排水 20軒
- ・ 単独処理浄化槽、合併処理浄化槽処理 放流水路 2カ所

2020年、2021年
夏季・冬季
2020年、2021年
四季

● 下水処理場Bと放流河川β(一級河川)



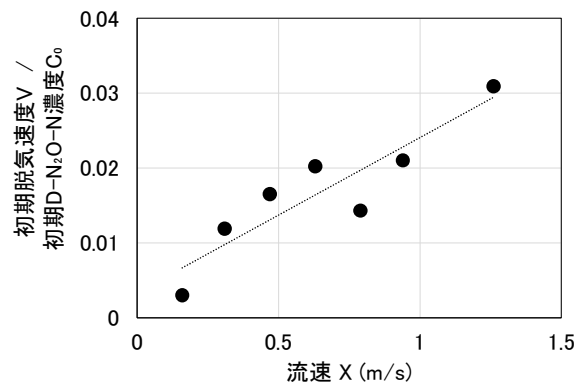
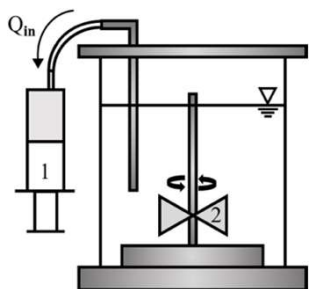
EF2(河川) 河川流下方向における窒素挙動モデル



処理後排水 → 河川 脱気作用 + 硝化反応 + 脱窒反応 複合的影響が存在

EF2(河川) 脱気D-N₂O量の算定

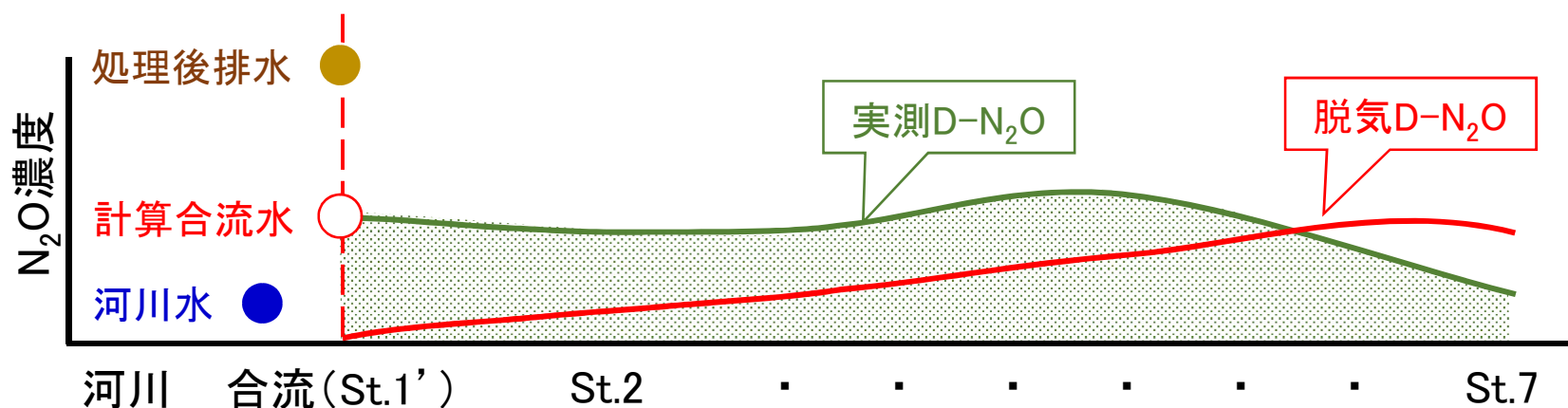
- 室内モデル試験 初期D-N₂O-N濃度・流速を変化 N₂O脱気速度を算出



$$\frac{V}{C_0} = 0.0207X + 0.0034 \quad \dots \text{式(1)}$$

V : 初期脱気速度 ($\mu\text{g/L}\cdot\text{min}$)
 C₀: 初期D-N₂O-N濃度 ($\mu\text{g/L}$)
 X : 流速 (m/s)

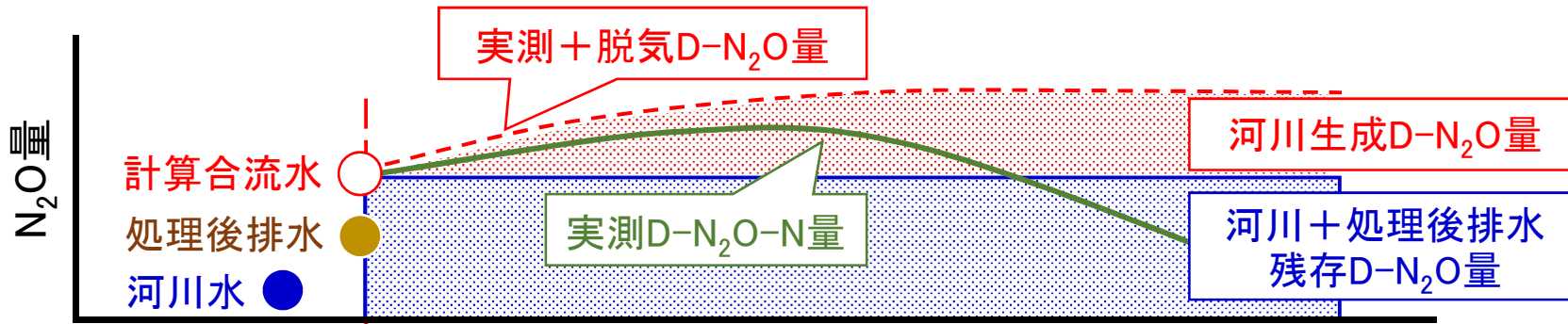
- 河川D-N₂O-N濃度実測 → D-N₂O-N濃度・流速からD-N₂O-N脱気量を算定



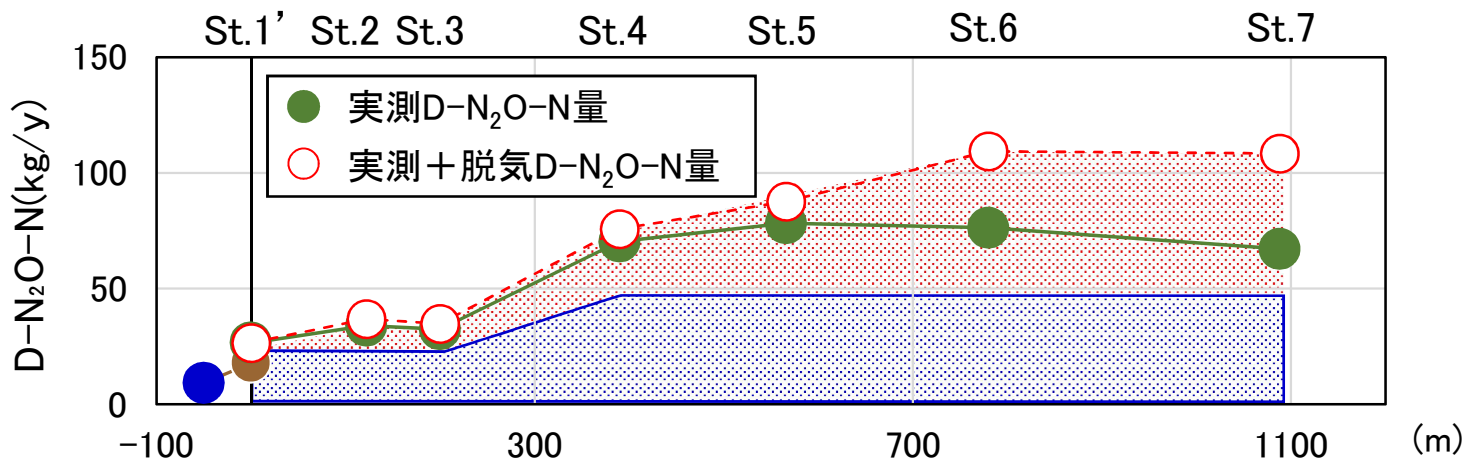
硝化・脱窒反応によるD-N₂O生成 脱気作用によるD-N₂O減少
 → 脱気作用によるD-N₂O減少を考慮

EF2(河川) 河川流下方向の窒素量変化 河川β

- 各地点の窒素成分濃度に水量を乗じて年間の窒素分量を算出



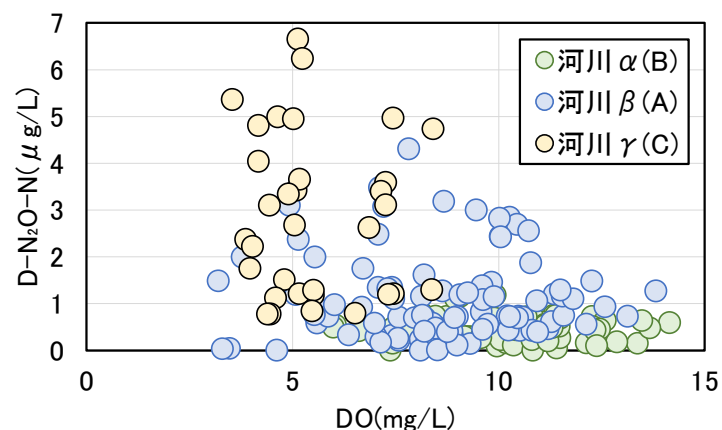
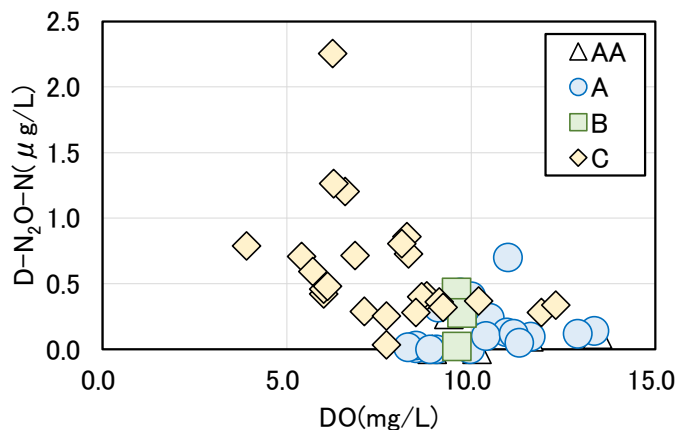
河川流下方向 実測D-N₂O-N量+脱気D-N₂O-N量



サブテーマ2同様 処理後排水や河川水には溶存態(D-)N₂O残存
 → 処理後排水に含まれる窒素成分を起源に河川で生成されるD-N₂O量
 処理後排水+河川水に残存するD-N₂O量を差し引く必要がある

EF2(河川) 河川環境がGHGs生成に及ぼす影響

- 環境基準類型指定別DOとD-N₂O
- 河川α～γにおけるDOとD-N₂O



環境基準類型 C : DO濃度約 8mg/L 以下 D-N₂O生成量増加

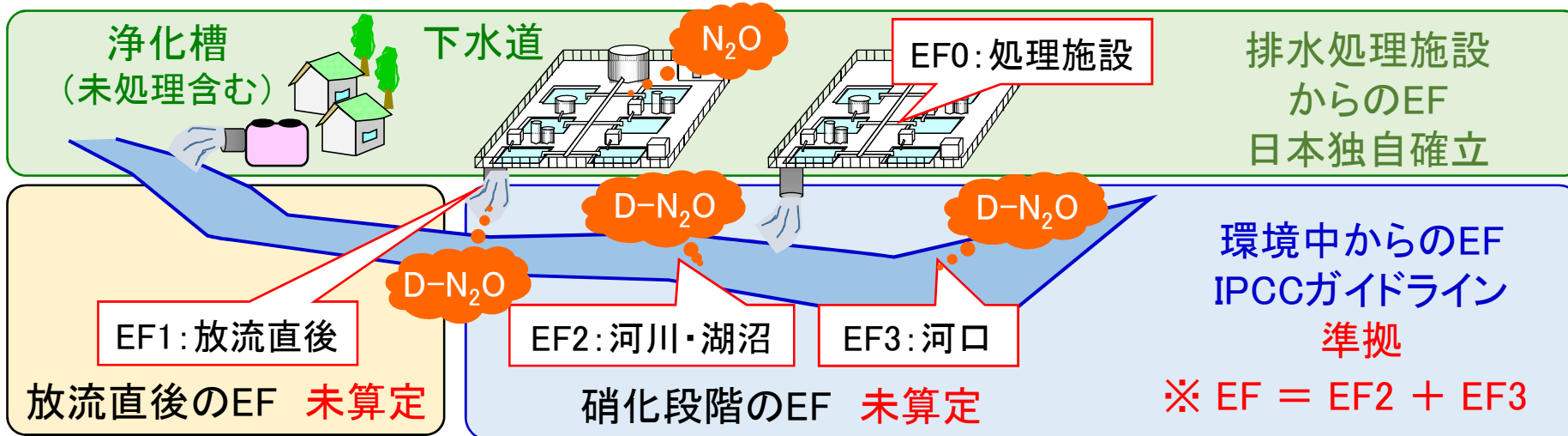
- 河川環境を考慮した硝化由来D-N₂O排出係数の開発

河川名	環境基準	D-N ₂ O排出係数 (kg-D-N ₂ O-N / kg-NH ₄ -N)	D-N ₂ O排出係数 (kg-D-N ₂ O-N / kg-NH ₄ -N)	河川の硝化反応で生成した D-N ₂ O-N量 (kg-N ₂ O-N/年)	処理後排水に含まれる NH ₄ -N量 (kg-NH ₄ -N/年)	・式(2)
河川β	A	0.0019	$\text{D-N}_2\text{O排出係数} = \frac{\text{河川の硝化反応で生成した D-N}_2\text{O-N量 (kg-N}_2\text{O-N/年)}}{\text{処理後排水に含まれる NH}_4\text{-N量 (kg-NH}_4\text{-N/年)}} \cdot \text{式(2)}$			
河川α	B	0.0020		環境基準類型 B以上	0.0020(kg-D-N ₂ O-N/kg-NH ₄ -N)	
河川γ	C	0.0040		環境基準類型 C以下	0.0040(kg-D-N ₂ O-N/kg-NH ₄ -N)	

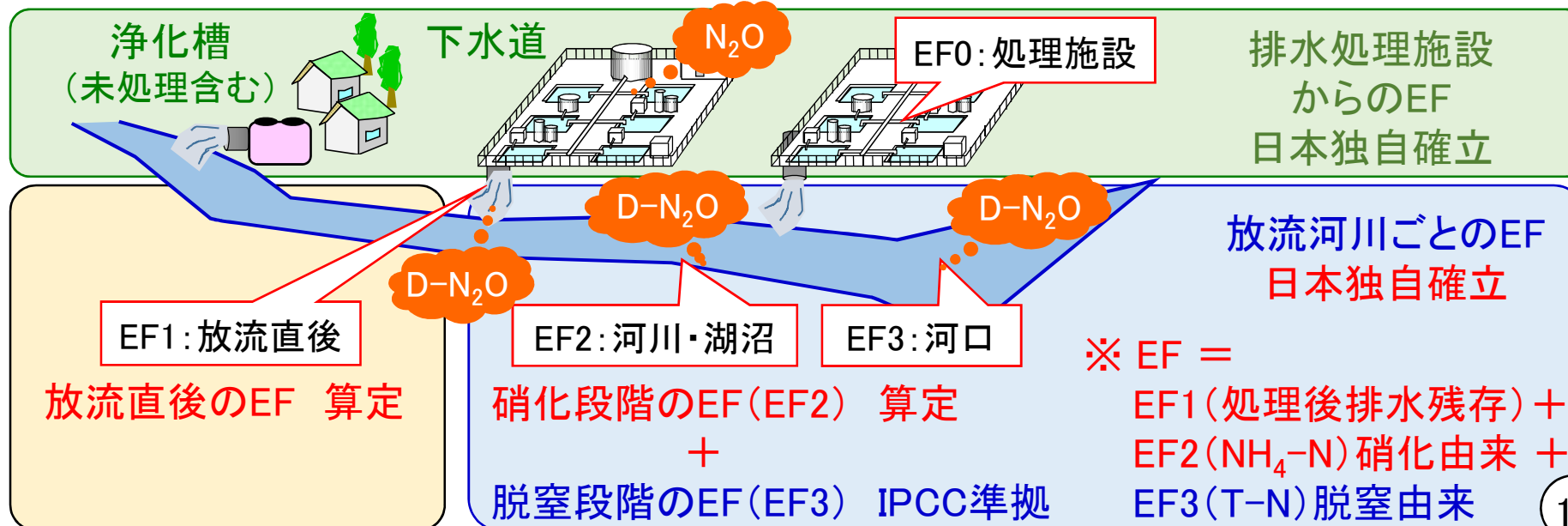
河川環境を考慮した処理後排水NH₄-Nを起源としたD-N₂O排出係数を開発

下水道処理後排水を起源としたN₂O排出係数(EF1~3)の開発状況

● 本研究前の課題



● 本研究による排出係数の開発



下水道処理後排水を起源としたN₂O算定方法の開発

	排水処理方式	処理施設 N ₂ O排出		処理後排水 残存N ₂ O		河川環境	処理後排水 由来N ₂ O		
		EF0	活動量	EF1	活動量		EF2+3	活動量	
IPCC G.L. Default (2006)				考慮されていない		IPCC G.L. Default (2006)	硝化由来 考慮されていない 5 g-N ₂ O-N/kg-N (脱窒由来)	排水処理量 × 放流T-N濃度	
IPCC G.L. Default (2019)				考慮されていない		IPCC G.L. Default (2019)	清澄な河川 富栄養化河川	5 g-N ₂ O-N/kg-N 19 g-N ₂ O-N/kg-N	排水処理量 × 放流T-N濃度
	標準 活性汚泥法	0.090 g-N ₂ O -N/m ³	排水処理量 (m ³)	EF0 × 0.48	排水処理量 (m ³)	河川環境基準 (AA~B)	2 g-N ₂ O-N/kg-NH ₄ -N (硝化由来)	排水処理量 × 放流NH ₄ -N濃度	
	嫌気好気 活性汚泥法	0.019 g-N ₂ O -N/m ³					5 g-N ₂ O-N/kg-N (脱窒由来) IPCC(2006)準拠	排水処理量 × 放流T-N濃度	
	嫌気無酸素 好気法・ 循環式 硝化脱窒法	0.007 g-N ₂ O -N/m ³					4 g-N ₂ O-N/kg-NH ₄ -N (硝化由来)	排水処理量 × 放流NH ₄ -N濃度	
	循環式 硝化脱窒型 膜分離 活性汚泥法	0.0003 g-N ₂ O -N/m ³					5 g-N ₂ O-N/kg-N (脱窒由来) IPCC(2006)準拠	排水処理量 × 放流T-N濃度	
									河川環境基準 (C~E)

下水道処理後排水を起源とした河川からのN₂O排出量算定式＝

IPCC G.L. Default(2006) + 処理後排水残存N₂O + 処理後排水硝化由来N₂O

排水管理全体のGHGs排出モデルの構築・最小化のシナリオの提案

● 処理施設由来と処理後排水由来を併せた排水管理全体のGHGs排出モデルの構築

下水道の高度処理化

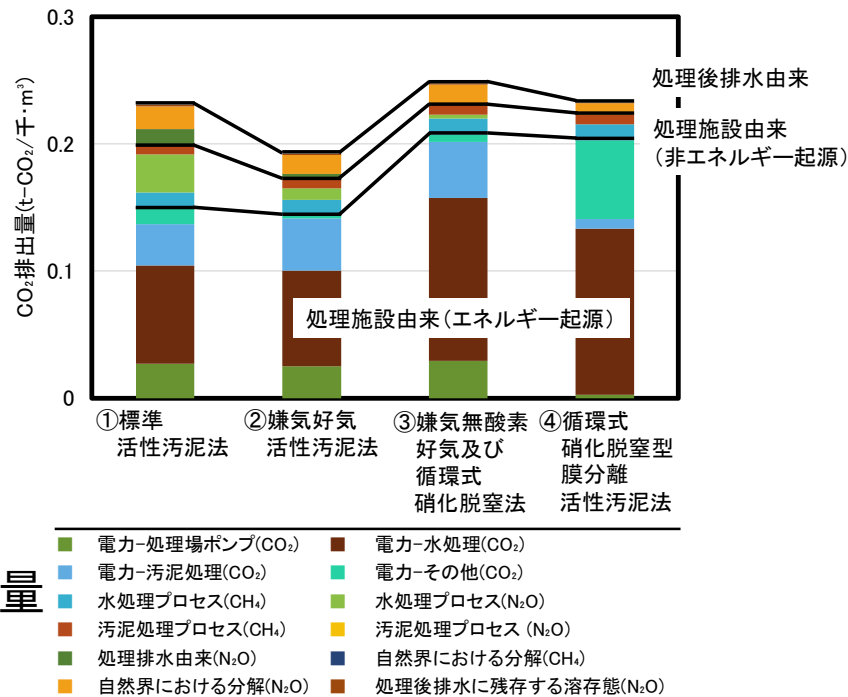
- ・ エネルギー由来CO₂増大
- ・ 排水処理プロセス由来GHGs減少
- ・ 処理後排水由来GHGs減少



● 処理施設由来と処理後排水由来を併せた排水管理全体のGHGs排出最小化シナリオ

排水処理施設由来 + 処理後排水由来GHG排出量

$$= \text{排出係数} \times \text{活動量}$$



	排出係数	活動量	削減効果
高度処理化	<ul style="list-style-type: none"> ・ 排水処理プロセス由来GHGs減少 → 処理後排水残存N₂O減少 ・ (河川の清澄化により) → 環境基準B以下 → 排出係数カテゴリーを移動 	処理後排水に含まれる NH ₄ -N量・ T-N量削減	処理施設由来 + 処理後排水由来 GHGs排出量 50%以上削減

処理施設由来と処理後排水由来を併せた排水管理全体のGHGs排出モデルを構築
高度処理化により直接・間接発生の相乗効果によるGHGs排出量削減を提案

環境政策等への貢献

- 下水道処理後排水を起源とした自然界の分解に伴うGHGsとして我が国の実態を反映した我が国独自の精緻な温室効果ガス排出量算定方法を提案し、インベントリへの反映を目指す。

本研究成果である処理後排水由来GHGsの温室効果ガス排出量算定方法に関して日本国温室効果ガスインベントリへの早期反映を目指し、研究実施期間中より環境省温室効果ガス排出量方法検討会廃棄物分科会に参加し、研究進捗として資料提供と共に内容を報告し、事前理解を頂いてきた。

- 処理施設由来と処理後排水由来を併せた排水管理全体のGHGs排出モデルの構築と削減方策の提案

下水道分野、浄化槽分野に分け、に分け、エネルギー起源を含む処理施設で排出されるGHGs(直接発生)と処理後排水由来のGHGs(間接発生)を合わせた排水管理全体のモデルを構築し、トレードオフを考慮した排水管理全体におけるGHGs排出削減に関する提案を行い、本研究で開発した処理後排水由来のGHGs排出量算定方法が日本温室効果ガスインベントリに反映された場合においても、下水道、浄化槽の各分野におけるGHGs排出量削減のための方策を併せて示した。

本研究成果 処理後排水由来GHGsの温室効果ガス排出量算定方法の提案
日本国温室効果ガスインベントリへの早期反映を目指す

研究実施期間中 温室効果ガス排出量方法検討会廃棄物分科会に参加・報告

研究成果の発表状況

査読付き論文	7件(投稿中含む)
その他誌上発表(査読なし)	2件
口頭発表(学会等)	25件
「国民との科学・技術対話」の実施	6件
マスコミ等への公表・報道等	3件
本研究に関連する受賞	2件

<査読付き論文>

- 1) 柿島隼徒、蛭江美孝、山崎宏史ら: 浄化槽放流水および放流先水路における温室効果ガス CH_4 ・ N_2O の排出特性, 日本水処理生物学会誌【投稿中】
- 2) Hiroshi Yamazaki, Akito Murano, Yoshitaka Ebie et al.,: Development of emission factors for N_2O derived from nitrification in sewage-treated water in rivers, Water Science and Technology【投稿中】
- 3) 大友 渉平, 増田 周平ら: 土木学会論文集G(環境)77(7):71-82, 攪拌方法の最適化による無終端水路反応槽における N_2O 排出抑制戦略—実処理場での連続測定と実証試験—
- 4) S. Masuda, H. Yamazaki, et al.,: Journal of Environmental Management, 112621 (2021) Impact of Nitrogen Compound Variability of Sewage Treated Water on N_2O Production in Riverbeds. (IF:6.789)
- 5) Shohei Otomo, Akihiko Terada, Shuhei Masuda et al.,: Journal of Water and Environment Technology, 19(3):139-152(2021) Long-term assessment of N_2O emission factor in full-scale oxidation ditch reactor considering spatiotemporal distribution. (CiteScore:1.6)
- 6) K. Oba, A. Terada et al.,: Exploring the functions of efficient canonical denitrifying bacteria as N_2O sinks: Implications from ^{15}N tracer and transcriptome analyses, Environmental Science and Technology【投稿中】
- 7) Y. ZHOU, A. TERADA et al.,: Water Res. 216, 118276(2022) Low nitrous oxide concentration and spatial microbial community transition across an urban river affected by treated sewage. (IF:11.236)

新型コロナウイルス影響 可能な範囲で研究継続 積極的な対外発表実施

査読付き論文 IFの高い論文も含まれている