

## 〈研究発表〉

### 嫌気性消化後の汚泥処理におけるメタン放散に関する研究

奥村 拓也<sup>1)</sup>, 大下 和徹<sup>1)</sup>, 高岡 昌輝<sup>1)</sup>, 水野 忠雄<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> 京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻

(〒615-8540 京都市西京区京都大学桂 C クラスター, E-mail: oshita@epsehost.env.kyoto-u.ac.jp)

#### 概要

下水処理場では、温室効果ガスであるメタンが大気中に放散されている。本研究では、嫌気性消化の有無で各1カ所の下水処理施設にて、これまで調査例がほとんどない脱水プロセスを中心としたメタン放散の調査を行った。その結果、大気へのメタン放散量は、消化ありで  $736 \pm 189 \text{ mg-CH}_4/\text{m}^3$ -下水、消化なしで  $115 \pm 96.1 \text{ mg-CH}_4/\text{m}^3$ -下水と見積もられた。消化ガス利用による  $\text{CO}_2$  排出間接削減量に対するメタン放散による  $\text{CO}_2$  換算排出量の割合は最大で50%となり無視できないことがわかった。

キーワード: 嫌気性消化, メタン発酵, 下水汚泥処理, メタン放散

#### 1. 研究の背景と目的

下水汚泥の嫌気性消化は、メタンを主成分とする消化ガスを発生させ、これをエネルギー利用できる。近年、嫌気性消化は、下水道分野におけるエネルギー対策、地球温暖化対策のため、見直されてきている。しかし、メタンは温室効果が  $\text{CO}_2$  の21倍とされており、嫌気性消化後に消化汚泥から発生したメタンが大気中に移行すれば、温暖化に寄与することとなる。現に、汚泥貯留槽等において、臭気漏洩防止の観点から汚泥が密閉状態とされた上、夏場の高温条件が重なった場合、消化汚泥からメタンを含む腐敗ガスが発生し、トラブルとなる事例も報告されており<sup>1)</sup>、消化汚泥からメタンが大気中に放散されている可能性が高い。

現在、わが国の温室効果ガス排出インベントリーの算出に使用されている下水汚泥処理からのメタンの排出係数は、竹石ら<sup>2)</sup>、佐藤ら<sup>3)</sup>の約20年前の調査結果が基になっており、 $348 \text{ mg-CH}_4/\text{m}^3$ -下水<sup>4),5)</sup>が設定されている。その内訳は濃縮由来が  $242 \text{ mg-CH}_4/\text{m}^3$ -下水、脱水由来が  $106 \text{ mg-CH}_4/\text{m}^3$ -下水となっているが、特に脱水由来は、I. 前段に嫌気性消化が存在する、II. 平衡状態にある消化汚泥に溶存したメタンが脱水時に全て放散される。この2点の仮定に基づくところが大きい。

すなわち、脱水までに、汚泥が嫌気分解され新たに発生する可能性のあるメタンの影響は無視されている。また嫌気性消化を有しない下水処理場にもこの値が適用されており、実情が反映されているとは言い難い。脱水プロセス由来の  $\text{CH}_4$  排出係数については、武らも全国11都市を対象としたアンケート・文献調査を行っており、その値は  $0 \sim 674 \text{ g-CH}_4/\text{t-DS}$  であったとしているが<sup>6)</sup>、約10年前に報告された値であることや、汚泥

固形分ベースの値となっているため、前述した排出係数とも比較し難く、この場合も嫌気性消化の有無については区別された報告とはなっていない。

そこで、本研究では、我が国において、嫌気性消化後から脱水まで汚泥からのメタン放散を、嫌気性消化がない場合と比較する形で調査し、その排出係数を最新のデータとしてそれぞれ明らかにすることを第一の目的とした。具体的には、嫌気性消化を有する下水処理場1カ所と、有さない下水処理場1カ所にて、主に脱水機廻りを中心に、大気中に汚泥からメタンが放散される可能性がある箇所での放散量を調査するとともに、消化汚泥や脱水ろ液中の溶存メタンも測定した。

また地球温暖化対策としての嫌気性消化の機能を考えた場合、メタン放散による  $\text{CO}_2$  換算排出量は、消化ガスのエネルギー利用による  $\text{CO}_2$  排出間接削減量に負の影響を与え、この観点からの評価が必要である。欧州においては、Matthijs R.J. Daelman らにより、消化ガス発電による  $\text{CO}_2$  排出間接削減量をメタン放散による  $\text{CO}_2$  換算排出量が上回る例が報告されている<sup>7)</sup>。

そこで、本研究においても、消化ガスのエネルギー利用による  $\text{CO}_2$  排出量削減効果に対するメタン放散の影響を明らかにすることを第二の目的とした。具体的にはいくつかのケースを設定し、消化ガスの焼却補助燃料利用による  $\text{CO}_2$  排出間接削減量に対するメタン放散の影響を見積もった。

#### 2. 調査方法

##### 2.1 対象施設

本研究における調査の概要を Fig.1 に示す。対象施設は、ほぼ同規模の2施設であり、嫌気性消化プロセスを有する下水処理施設 H と、嫌気性消化のない下水

処理施設 N を選定した。施設 H では、初沈汚泥を重力濃縮、余剰汚泥を遠心濃縮し、濃縮汚泥全量を中温嫌気性消化したあとベルトプレス脱水機により脱水し、脱水ケーキを焼却処理している。また消化ガスは、焼却炉の補助燃料として利用されている。施設 N では、初沈汚泥を重力濃縮、余剰濃縮汚泥をともに遠心濃縮し、混合した後にスクリーブプレス脱水機によって脱水し、脱水ケーキを焼却している。

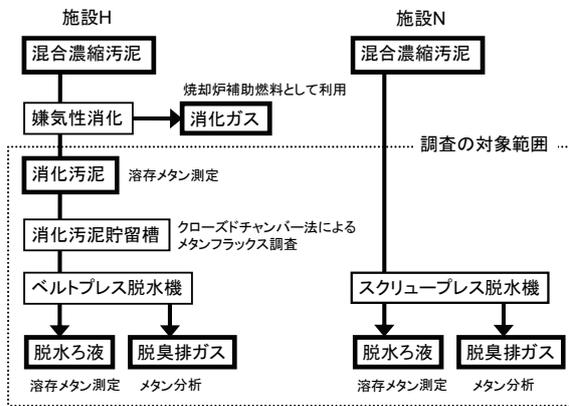


Fig.1 Outline of this study.

## 2.2 試料のサンプリングと調査概要

Fig.1 より、調査個所は、嫌気性消化後に汚泥からメタンが大気中に放散される可能性のあるポイントを考えて。まず施設 H では嫌気性消化後の消化汚泥貯留槽が開放型であり、その表面からのメタン放散を調査するために、現地でクローズドチャンバー法によるメタンフラックス調査を行なった。また、脱水機棟における脱臭排ガスをサンプリングし、大気中に排出されているメタン量を把握した。加えて消化汚泥と脱水ろ液をサンプリングし、溶存メタンを調査した。比較対象とした施設 N は嫌気性消化を有さないため、脱水機棟における脱臭排ガス中のメタン量を把握するとともに、脱水ろ液中の溶存メタンを調査した。なお両施設ともに脱水ケーキは焼却炉、あるいは溶融炉へ送られるが、ケーキピットなどの脱臭排ガスについては焼却炉の補助燃焼空気として用いられているため、大気中へのメタン放散には寄与しないと考えて測定は行わなかった。

## 2.3 消化汚泥貯留槽におけるメタンフラックス測定方法

施設 H の消化汚泥貯留槽にて、クローズドチャンバー法によるメタンフラックス測定調査を行なった。

本調査で使用したクローズドチャンバー<sup>8)</sup>の概観を Fig.2 に示す。チャンバーはポリ塩化ビニル製で底の抜けた円筒形と、それを取り囲む発泡ポリエチレン製の浮き部分から構成される。チャンバー上部には 2 つの穴が空いており、1 つはガス吸引用、もう 1 つはガス吸引時の圧力調整用である。本調査では、1 日の調査で汚泥貯留槽の 4-6 箇所にチャンバーを浮かべ、メタ

ン検知器(新コスモス電機製:高感度ガス検知器コスモテクターXP-3160)によりガスを吸引しつつ、メタン濃度の変化を測定・記録し、これを元にメタン濃度の上昇速度( $dC/dt$ )を得た。また測定時の温度も同時に記録した。圧力調整用の穴は、チャンバー内部側にガスバッグを取り付け、大気側を開放することで、ガス吸引に伴うチャンバー内の圧力変化を防止した。実施日はいずれも晴天であり、実験は日中に、延べ 3 日行った。

クローズドチャンバー法を用いたメタンガス発生速度の算出式を式(1)に示した。

$$R = \frac{V}{22.4 \times (273.2 + Ta) / 273.2} \times \frac{1}{A} \times \frac{dC}{dt} \quad \text{式(1)}$$

ここで、 $R$ :水面からのガス発生速度( $\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ )、 $V$ :チャンバーシステムの容積(L)、 $Ta$ :チャンバー内気温( $^{\circ}\text{C}$ )、 $A$ :チャンバーの開口面積( $\text{m}^2$ )、 $dC/dt$ :メタン濃度の上昇速度(ppmv/s)である。汚泥貯留槽からのメタン発生量は、得られたメタン発生速度の平均値に消化汚泥貯留槽の水面面積を乗じることで算出した。

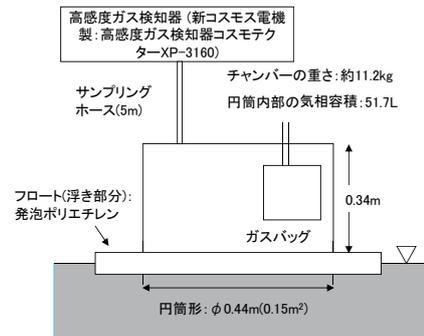


Fig.2 Closed chamber for methane flux measurement.

## 2.4 消化汚泥、脱水ろ液中の溶存メタンの測定方法

消化汚泥中溶存メタンは脱水時に大気中に放散するから液に移行すると考えられる。そこで、消化汚泥、脱水ろ液を対象に、それらの溶存メタンを測定した。

### (1) 測定対象

施設 H の消化汚泥、消化汚泥の遠心分離液、脱水ろ液中の溶存メタンをそれぞれ測定した。消化汚泥の遠心分離液(以下、汚泥分離液)は、消化汚泥を 3,000rpm で 20 分間遠心分離を行った上澄み水を使用した。また、比較対象として施設 N の脱水ろ液中の溶存メタンも同様に測定した。サンプリング回数は消化汚泥については 1 回、脱水ろ液は施設 H、N とともに 6 回行い、測定は 1 回のサンプリングで消化汚泥、その遠心分離液は 3 回、脱水ろ液は 5 回行った。

### (2) 測定手順

溶存メタンを測定する実験手順は、文献<sup>9)</sup>を参考にした。具体的には、約 123mL バイアル瓶に試料を 2 倍以上オーバーフローさせ、瓶内を空気に触れてい

ない試料で満たし、空気が入らないよう注意しながらブチルゴム栓、アルミシールをしてハンドクリッパーにより固定し密閉した。続いて試料 30mL を上部からシリンジで引き抜き窒素ガス 30mL と交換した。殺菌消毒液として 20%グルコン酸クロルヘキシジン液を 10mL 加え、生物学的メタン酸化およびメタン生成を抑制させた。シェイカー(ヤマト科学株式会社製: Shaker SA300)により 200rpm で 2hr 以上振とうし、試料の溶存メタンを気液平衡にした後に気相部のメタン濃度を Micro-GC (バリアンテクノロジーズ社製: CP4900) で測定した。溶存メタンは気相と液相が平衡状態として、メタンの水への溶解度を考慮して求めた。

### 2.5 脱臭排ガス中のメタン分析方法

脱水機棟の脱臭排ガス中のメタンを調査した。具体的には、施設 H, N の脱臭処理装置から排出される排ガスのサンプリングを施設 H で 4 回、施設 N で 3 回実施し、1 回のサンプリングで 1L ガスバッグにそれぞれ 4 回ずつ採取し、持ち帰って Micro-GC (バリアンテクノロジーズ社製: CP4900) でメタン濃度を測定した。メタン発生量は、排ガス流量にメタン濃度を乗じ算出した。排ガス流量は各施設の計画排ガス流量を用いた。

## 3. 調査結果と考察

### 3.1 消化汚泥貯留槽におけるメタンフラックス

本測定結果から求めたメタン濃度上昇速度  $dC/dt$  (ppmv/s)と式(1)を用いて求めたメタン発生速度、実験時の気温を Table.1 に示した。メタン濃度上昇速度は、平均±標準偏差で  $2.28 \pm 1.24$  ppmv/s 程度であり。メタン発生速度は平均±標準偏差は  $33.3 \pm 18.1$   $\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$  であった。同貯留槽の汚泥面面積は  $25\pi\text{m}^2$  で、貯留槽への消化汚泥投入量が  $7\text{m}^3/\text{hr}$  であることから、これより消化汚泥  $1\text{m}^3$  あたりのメタン発生率は  $1.34 \pm 0.73\text{mol}/\text{m}^3$ -消化汚泥と計算された。さらに、施設 H の年間下水処理量は  $38,005,000\text{m}^3/\text{year}^{10)}$ 、年間消化汚泥発生量は  $185,220\text{t}/\text{year}^{10)}$ より、汚泥貯留槽からのメタン放散は、排出係数として  $105 \pm 57\text{mg-CH}_4/\text{m}^3$ -下水と算出された。

この実験結果が妥当であるかを検討するため、式(2)により同様の状況における水への飽和溶存メタン量  $M_{CH_4}(\text{mol}/\text{m}^3\text{-水})$ を計算した。施設 H の消化槽の高さ(消化汚泥を引き抜く点までの高低水位差)は約 12m で、引き抜き消化汚泥にかかる水圧は約 2.2 気圧(=a)である。1 気圧でのメタンの水への溶解度は  $35^\circ\text{C}$  において  $0.02545$  (=b)で、消化ガスのメタン割合  $C_{CH_4}$  を 60% とすると、飽和溶存メタンは約  $1.5\text{mol}/\text{m}^3\text{-水}$  となる。

$$M_{CH_4} = a \times b \times C_{CH_4} \times 1,000 \quad \text{式(2)}$$

この結果は、チャンバー調査により求めた汚泥貯留

槽からのメタン発生率:  $1.34 \pm 0.73\text{mol}/\text{m}^3$ -消化汚泥と概ね整合しており、メタン飽和となった消化汚泥中の溶存メタンの多くが、消化汚泥貯留槽にて気相へ移行していることが推測された。

Table 1 Results of methane flux measurement.

測定	温度	メタン濃度上昇速度	メタン発生速度	測定回数
	°C	ppmv/s	$\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$	
測定1	12.2	$1.90 \pm 1.78$	$27.6 \pm 25.9$	N=4
測定2	10.5	$2.27 \pm 0.80$	$33.2 \pm 11.7$	N=6
測定3	10.8	$2.54 \pm 1.38$	$37.1 \pm 20.2$	N=6
全平均	11.2	$2.28 \pm 1.24$	$33.3 \pm 18.1$	N=16

±の値は標準偏差

### 3.2 消化汚泥、脱水ろ液中の溶存メタン

消化汚泥および汚泥分離液中の溶存メタンの測定結果を、汚泥の TS 濃度とともに Table.2 に示した。溶存メタンは、汚泥分離液と消化汚泥でほぼ同じ値であり、メタンが汚泥中水分に溶解していることが確認された。しかし、前節で求めた消化汚泥中メタン濃度  $1.34 \pm 0.73\text{mol}/\text{m}^3$ -消化汚泥と比較すると低く、汚泥サンプリング時に常圧大気に曝され、溶存メタンの多くが揮散した可能性が考えられた。

次に、脱水ろ液中の溶存メタンを測定した結果を、各 TS 濃度とともに Table.2 に示した。溶存メタンは施設 N の方が施設 H より多かった。この理由は、あまりはっきりしなかったが、水質や脱水方式の差が影響している可能性もある。少なくとも、施設 N の汚泥処理においても、重力濃縮や汚泥貯留槽で嫌気状態となってメタンが生成され、それが大きく大気へ放散されることなく溶存している可能性が考えられた。

各施設における脱水ろ液中の溶存メタンに、各施設の年間脱水ろ液量<sup>10)</sup>を乗じ、各施設の年間下水処理量(施設 H は前述、施設 N は  $38,745,489(\text{m}^3/\text{year})^{10)}$ で除することで溶存メタンが大気中に排出された場合のメタン排出係数を求めたところ、施設 H では、 $7.70 \pm 6.27\text{mg-CH}_4/\text{m}^3$ -下水、施設 N では、 $19.0 \pm 4.8\text{mg-CH}_4/\text{m}^3$ -下水となり、汚泥貯留槽からのメタン放散よりも大幅に低いことが明らかになった。

Table 2 Conc. of the dissolved methane in sludge and filtrate.

測定対象	溶存メタン (mL/L)	溶存メタン ( $\text{mol}/\text{m}^3$ )	TS (mg/L)	測定回数
消化汚泥	$7.0 \pm 0.7$	$0.31 \pm 0.031$	$18,000 \pm 58$	N=3
汚泥分離液	$8.9 \pm 1.3$	$0.40 \pm 0.058$	-	N=3
脱水ろ液(H)	$2.7 \pm 2.2$	$0.12 \pm 0.098$	$360 \pm 89$	N=30
脱水ろ液(N)	$10.6 \pm 2.7$	$0.47 \pm 0.121$	$1,660 \pm 230$	N=30

※消化汚泥、汚泥分離液中溶存メタンの単位は mL/L-消化汚泥  
※表中±は標準偏差

### 3.3 脱臭排ガス中のメタン

施設 H, N の脱水機棟からの臭気排ガス(以下、排ガス H)中に含まれるメタンを調査し、メタン濃度測定結果を Table.3 に示した。排ガス H 中のメタン濃度は、平均±標準偏差として  $0.15 \pm 0.03\%$  であった。排ガス H の計画ガス流量は  $45(\text{m}^3/\text{min})$  であることから、年間メ

タン発生量は 35,478(m<sup>3</sup>/年)となり、メタンの排出係数は、前述した施設 H の年間下水処理量を用い、623±126mg-CH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>-下水と算出された。

次に、排ガス N 中メタン濃度は平均±標準偏差が 0.023±0.022%であった。排ガス N の計画流量も 45(m<sup>3</sup>/min)で、年間メタン発生量は 33,113(m<sup>3</sup>/年)と算出され、メタン排出係数は、前述した施設 N の年間下水処理量から、95.5±91.3mg-CH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>-下水となった。

Table 3 Results of methane concentration in exhaust gas from deodorizing process

施設	測定	メタン濃度 (ppmv)	測定回数
H	測定1	0.15±0.05	各N=4
	測定2	0.14±0.03	
	測定3	0.17±0.02	
	測定4	0.16±0.02	
	全平均	0.15±0.03	N=16
N	測定1	0.019±0.015	各N=4
	測定2	0.027±0.010	
	測定3	0.023±0.038	
	全平均	0.023±0.022	N=12

※表中±は標準偏差

#### 4. まとめ(排出係数、CO<sub>2</sub> 排出量への影響)

メタン放散の排出係数をまとめたものを Table.4 に示した。排出係数の合計は施設 H が、736±189 mg-CH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>-下水、施設 N が 115±96.1 mg-CH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>-下水であり、嫌気性消化を有する施設 H が 6 倍以上高くなった。施設 H、施設 N のメタン排出係数は平均値として現排出係数:106 mg-CH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>-下水のそれぞれ 7.0 倍、1.1 倍であった。内訳は脱水機棟脱臭排ガス由来が最も大きく、脱水ろ液溶存メタン由来はあまり大きくなかった。現排出係数は消化汚泥中の溶存メタンが全量大気中に放出されると仮定して設定されているが、この値は、施設 H の消化汚泥貯留槽由来、施設 N の由来総和と概ね同程度であり、この部分の排出は汚泥中に飽和溶存したメタンが大気中に放出された結果によるものと推測された。一方、施設 H の脱水機棟脱臭排ガス由来の分については、貯留槽から脱水が終了するまでにメタン発酵が生じた結果であると推測された。

Table 4 Emission factor of methane from sludge treatment.

施設	消化汚泥貯留槽	脱水ろ液中溶存メタン	脱水機棟脱臭排ガス	合計	現在の排出係数 <sup>(4),(5)</sup>
H	105±57	7.70±6.27	623±126	736±189	106±53
N	-	19.0±4.8	95.5±91.3	115±96.1	

※±の値は標準偏差 (単位: mgCH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>-下水)

この調査結果を含め、施設 H における嫌気性消化の焼却炉補助燃料利用に伴う CO<sub>2</sub> 排出間接削減量とメタン放散による CO<sub>2</sub> 換算排出量を、処理汚泥 t-DS あたりの値として比較した。具体的には、**ケース 1**: メタン放散を考慮しない、**ケース 2**: 現在の排出係数<sup>4)</sup>:

106 mg-CH<sub>4</sub>/m<sup>3</sup>-下水 を考慮、**ケース 3**: 今回の調査結果を考慮、**ケース 4**: 今回の調査結果は冬期に実施したため、夏期には温度上昇に伴って放散量が増加する等、年間の季節変動を考慮し、メタン放散を 2.3 倍に補正したケースとした。なお焼却炉補助燃料としての消化ガスは LNG 代替とし、その CO<sub>2</sub> 間接削減量は施設 H の消化ガス利用実績値、消化ガスおよび LNG の発熱量、LNG 使用による CO<sub>2</sub> 排出係数により求めた。

これらのケースにおいて計算結果を Table.5 に示した。メタン放散の消化ガス利用に対する温室効果ガス間接削減量への寄与は、Table.5 より、ケース 3、4 でそれぞれ 22%、50%となった。すなわち、嫌気性消化後の汚泥からのメタン放散は消化ガスエネルギー利用による CO<sub>2</sub> 排出間接削減量に負の影響を大きく与えることが示唆された。特に寄与の大きかった脱臭後の排ガスに含まれるメタンに対しては、濃度が希薄であるため、メタン酸化菌による生物学的処理プロセスを新たに導入するなどの対策を考える必要性が考えられた。

Table 5 Comparison of CO<sub>2</sub> emission from the utilization of digestion gas and methane diffusion (t-CO<sub>2</sub>/t-DS)

	ケース1	ケース2	ケース3	ケース4
①-消化ガス利用による CO <sub>2</sub> 排出間接削減量	0.42	0.42	0.42	0.42
②-メタン放散による CO <sub>2</sub> 換算排出量	0	0.013	0.090	0.21
②/①(%)	0	3.2	22	50

#### 参考文献

- 1) 下水道新技術推進機構: 汚泥由来の可燃性ガスと汚泥製品の安全対策に関する技術資料, p.8 (2006)
- 2) 竹石和夫, 鈴木穰, 松原誠: 下水処理施設からの放出量の解明に関する研究, 地球環境研究総合推進費研究成果報告集(中間報告)(1)・オゾン層の破壊・地球の温暖化, pp.253-256 (1993)
- 3) 佐藤和明, 水落元之, 鈴木穰: 下水処理施設からの放出量の解明に関する研究, 平成 4 年度地球環境研究総合推進費研究成果報告集(II)・地球の温暖化, pp.45-48 (1992)
- 4) 独立行政法人国立環境研究所地球環境研究センター: 日本国温室効果ガスインベントリ報告書, pp.8-26~8-27 (2011)
- 5) 環境省温室効果ガス算定方法検討会: 温室効果ガス排出量算定に関する検討結果, 第 4 部廃棄物分科会報告書, pp.82-90 (2006)
- 6) 武亨, 津倉洋, 一松雄太: 下水処理場における地球温暖化防止対策に関する調査研究, 第 40 回下水道研究発表会講演集, pp.45-47 (2003)
- 7) Matthijs R.J. Daelman, Ellen M. van Voorthuizen, Udo G.J.M. van Dongen, Eveline I.P. Volcke, Mark C.M. van Loosdrecht: Methane emission during municipal wastewater treatment, *Water Res.*, Vol.46, pp.3657-3670 (2012)
- 8) 増田周平, 鈴木俊輔, 李玉友, 西村修: 下水処理場の水処理プロセスにおけるメタン発生量の定量化手法に関する検討, 下水道協会誌, Vol.48, No.588, pp.119-126 (2011)
- 9) 大河原正博, 幡本将史, 西山桂太, 松浦哲久, 阿部憲一, 珠坪一晃, 井町寛之, 原田秀樹, 山口隆司, 大橋晶良: 嫌気性処理水に含まれる溶存メタンの密閉型 DHS 装置によるガス化回収, 水環境学会誌, Vol.33, pp.25-31 (2010)
- 10) 日本下水道協会: 下水道統計 (平成 20 年度版)