



Ellen van Voorthuizen, Royal Haskoning  
 Mark van Loosdrecht, TU Delft  
 Cora Uijterlinde, STOWA

# Resultaten internationaal onderzoek naar broeikasgassen uit riolen en zuiveringen

**In 2010 zijn in H<sub>2</sub>O de resultaten besproken van het Nederlandse onderzoek naar de emissie van broeikasgassen vanuit rwzi's<sup>1)</sup>. Tegelijkertijd met het Nederlandse onderzoek zijn ook in Australië, de Verenigde Staten en Frankrijk onderzoeken uitgevoerd naar de emissie van broeikasgassen vanuit riolering en zuiveringen. De resultaten van deze vier onderzoeken zijn gebundeld in een 'State of Science Report' van de Global Water Research Coalition (GWRC)<sup>2)</sup>. Door het bundelen van de resultaten is het inzicht in de vorming en emissie van methaan en lachgas vanuit riolering en zuivering vergroot. Dit heeft onder andere geleid tot een tabel waarmee het risico op lachgasemissie op een rwzi kan worden ingeschat aan de hand van een aantal proceskenmerken. Verder blijkt dat de vorming en emissie van methaan vanuit de riolering substantieel is.**

**B**ij de aanvang van de onderzoeken was weinig bekend over de emissie van broeikasgassen vanuit de afvalwaterketen, terwijl wereldwijd de aandacht voor dit onderwerp groeit. Voor de afvalwaterketen betreffen de broeikasgassen met name lachgas (N<sub>2</sub>O) en methaan (CH<sub>4</sub>). De Unie van Waterschappen heeft in 2010 een klimaatakkoord ondertekend met het ministerie van VROM. Een onderdeel daarvan is het streven naar een reductie van 30 procent broeikasgassen tussen 1990 en 2020. Om de kennisleemte op het gebied van broeikasgasemissies vanuit de afvalwaterketen op te vullen, is in diverse landen uitgebreid praktijkonderzoek opgestart. De voornaamste doelen die men wilde bereiken, waren: het evalueren van het gebruik van generieke factoren om de emissie van lachgas (en methaan) vanuit individuele zuiveringen te schatten, het vaststellen van de oorsprong van lachgasemissie, het begrijpen van de emissieroutes van lachgas en het inventariseren van het niveau waarop methaan wordt gevormd en geëmitteerd vanuit riolering en zuiveringen.

## Lachgasemissie zuiveringen

Het onderzoek naar de emissie van lachgas is uitgevoerd in Australië, de Verenigde Staten, Frankrijk en Nederland. Met uitzondering van Nederland is het onderzoek in de andere landen uitgevoerd op niet-afgedekte

zuiveringen. Om op deze zuiveringen de emissie te bepalen, is in de Verenigde Staten en Frankrijk gebruik gemaakt van een drijvende box waarin de gassamenstelling boven een klein deel van het wateroppervlak werd bepaald. In Australië is gebruik gemaakt van metingen in de vloeistoffase, waarna aan de hand van stofoverdrachtscoëfficiënten de emissie van lachgas is bepaald. In Nederland is de emissie van lachgas bepaald aan de hand van metingen aan de totale afgezogen lucht van zuiveringen die volledig zijn overdekt, met uitzondering van de nabezink-tanks. De metingen zijn uitgevoerd op in totaal 26 zuiveringen, waarvan zeven in Australië, twaalf in de Verenigde Staten, vier in Frankrijk en drie in Nederland.

## Methaanemissie zuiveringen

Onderzoek naar de emissie van methaan op zuiveringen is alleen uitgevoerd in Frankrijk en Nederland.

In Frankrijk is de emissie bepaald aan de hand van metingen uitgevoerd met een drijvende box die alleen op de biologische ruimtes van de rwzi is geplaatst. Op deze wijze is niet de totale emissie van de zuivering bepaald.

In Nederland is dit wel gedaan, door via een aantal steekmonsters de emissie vanuit alle procesonderdelen te bepalen, waardoor ook de plaats van de emissie inzichtelijk werd gemaakt.

## Methaanemissie riolering

In de Verenigde Staten en Australië is onderzoek uitgevoerd naar de vorming en emissie van methaan vanuit de riolering. In Australië is dit gedaan bij twee persleidingen, waarbij aan de hand van vloeistofmonsters de concentratie methaan op diverse punten in de persleiding werd bepaald. In de Verenigde Staten is de methaanemissie vanuit de riolering geëvalueerd door in een gebied in de staat Georgia de gasfase van 64 gemalen te analyseren. Deze gemalen werden voornamelijk gevoed door gravitaire leidingen.

## Resultaten onderzoek lachgasemissies zuiveringen

Een samenvatting van de emissie van lachgas zoals deze is bepaald in de diverse onderzoeken, staat in tabel 1. Tabel 1 toont dat in alle landen een grote variatie werd gevonden in de emissie van lachgas. Deze variatie werd waargenomen tussen verschillende zuiveringen, maar ook tussen seizoenen op dezelfde zuiveringen en op dezelfde zuiveringen gedurende de dag<sup>2)</sup>. Deze resultaten tonen aan dat voor de inschatting van de emissie vanuit een individuele zuivering geen gebruik kan worden gemaakt van een generieke emissiefactor, maar dat altijd metingen over een langere periode nodig zijn. Voor het uitvoeren van deze metingen is een beter inzicht nodig in de variatie om tot een

goed meetprotocol te komen. Met het nu lopende STOWA-onderzoek naar de emissie van lachgas en methaan wordt getracht dit inzicht te verkrijgen.

De oorsprong van de emissie van lachgas kan alleen worden bepaald als kan worden gemeten in de afzonderlijke compartimenten van een zuivering. Dit was niet mogelijk met de resultaten van het Nederlandse onderzoek, maar wel met de resultaten van het Amerikaanse en Franse onderzoek. Afbeelding 1 geeft de emissie van lachgas weer vanuit een volledig gemengde tank voor en na het uitschakelen van de beluchting.

In afbeelding 1 zijn twee pieken in de emissie van lachgas waar te nemen. De eerste piek kan het gevolg zijn van vorming van lachgas tijdens de denitrificatie, de tweede grotere piek werd waargenomen tijdens de beluchte fase in de reactor. Dit is een sterke indicatie dat lachgas werd gevormd tijdens de nitrificatie. Deze resultaten worden ondersteund door de resultaten uit de Verenigde Staten waar de hoogste lachgasconcentraties in de vloeistoffase werden gevonden in een tweede aeroob compartiment dat werd voorafgegaan door een eerste aeroob compartiment<sup>2</sup>. De resultaten wijzen in het algemeen sterk naar nitrificatie als voornaamste bron van lachgasemissies. Dit inzicht wijkt af van eerdere inzichten dat voornamelijk denitrificatie verantwoordelijk is voor de vorming van lachgas.

### Vorming lachgas

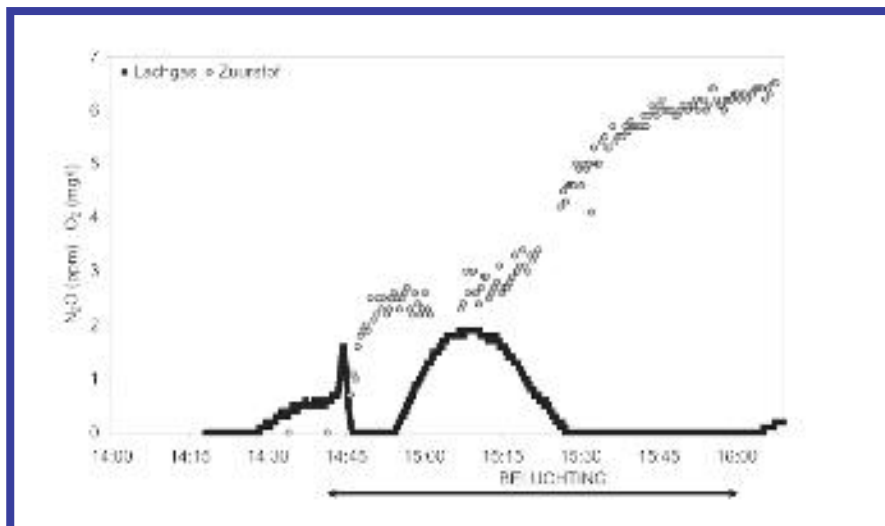
Aan de hand van een statistische analyse van de resultaten uit de Verenigde Staten is duidelijk geworden dat de ammonium-, nitriet en zuurstofconcentratie positief gecorreleerd zijn met de vorming van lachgas tijdens de nitrificatie<sup>2,3</sup>. De rol van ammonium werd bevestigd in een ander onderzoek waarin op laboratoriumschaal werd waargenomen dat bij hogere ammoniumconcentraties hogere nitrificatiesnelheden werden behaald en dat dit tevens leidde tot een hogere emissie van lachgas<sup>4</sup>. De rol van nitriet werd bevestigd door resultaten uit Australië. In het Australische onderzoek werd gevonden dat wanneer de concentratie nitriet hoger was dan 0,3 tot 0,5 mg/l de emissie van lachgas sterk toenam<sup>2,5</sup>. In hetzelfde onderzoek werd ook gevonden dat de twee zuiveringen met de laagste lachgasemissies het hoogste recirculatie-debiet (ten opzichte van het influent-debiet) hadden<sup>2,5</sup>. Hiermee lijkt ook de mate van recirculatie van invloed te zijn op de vorming van lachgas.

Naast het feit dat nitriet en zuurstof een belangrijke rol spelen bij de vorming van lachgas tijdens de nitrificatie werd op basis van de uitgevoerde statistische analyse ook duidelijk dat deze procesparameters een rol spelen bij de vorming van lachgas tijdens de denitrificatie.

Het internationale onderzoek heeft voldoende inzicht opgeleverd om aan te geven welke procesparameters een belangrijke rol spelen bij de vorming van lachgas. Dit inzicht vormt een goed startpunt om maatregelen te definiëren die de

land	emissie minimaal - maximaal (kg N <sub>2</sub> O-N/kg NKJ influent)
Australië	0,002 - 0,112
Frankrijk	< 0,0001 - 0,0017
Verenigde Staten	0,0003 - 0,018
Nederland	0,0004 - 0,061

Tabel 1. Overzicht van de lachgasemissie uit de praktijkonderzoeken in Australië, Frankrijk, de Verenigde Staten en Nederland, waarbij de minimale en maximaal gevonden emissies zijn weergegeven.



Afb. 1: Lachgasemissie vanuit een volledig gemengde tank voor en na uitschakelen beluchting (overgenomen uit GWRC-rapport<sup>2</sup>).

hoogte van het risico	hoog	medium	laag
<b>procesparameter</b>			
effluentconcentratie totaal N (mg N/l)	> 10	5-10	< 5
mate van variatie in concentratie N in zuivering	hoog	medium	laag
mate van variatie in (dagelijkse) belasting	hoog	medium	laag
maximale concentratie NO <sub>2</sub> (mg N/l) in gehele zuivering	> 0,5*	0,2 - 0,5	< 0,2 *

\* Risico neemt niet verder toe bij hogere concentraties.

Tabel 2. Risicomatrix lachgasemissie vanuit zuivering.

vorming en emissie van lachgas reduceren. In de praktijk zal dan vervolgens nog wel onderzoek nodig zijn om het effect van die maatregelen te toetsen.

### Risico op lachgasemissie

Met het verkregen inzicht uit de diverse internationale onderzoeken is het mogelijk om een schatting te maken van het risico op de vorming en emissie van lachgas aan de hand van een aantal proceskenmerken. De risicomatrix die hiervoor kan worden gebruikt, is weergegeven in tabel 2. In het algemeen kan aan de hand van tabel 2 worden gesteld dat wanneer hoge concentraties aan ammonium en nitriet in een zuivering kunnen worden voorkómen, het risico op de emissie van lachgas vermindert. Belangrijk is ook dat een goede stikstof-effluentkwaliteit samengaat met een laag risico op lachgasemissie. Wel dient

opgemerkt te worden dat het hier gaat om een schatting van het risico, maar dat nog geen waarde kan worden gegeven over de hoogte van de emissie. Hiervoor zal altijd eerst moeten worden gemeten.

### Resultaten methaanemissie zuiveringen

In Frankrijk werden methaanemissies gerapporteerd die lager lagen dan de gemeten emissie op Nederlandse rwz's. De verklaring hiervoor is dat in Frankrijk de emissie alleen is bepaald van de biologische ruimtes van de zuivering en niet van de overige procesonderdelen. Dit is in Nederland wel gedaan, en aan de hand van die metingen werd duidelijk dat op zuiveringen zonder slijbgingsting de riolering de voornaamste bron was van de waargenomen methaanemissie<sup>2(6)</sup>. Op de zuivering met slijbgingsting leverde de onderdelen van de slijbgingsting

(indikers, buffers en silo) de grootste bijdrage (ongeveer 50 procent) aan de emissie van methaan<sup>2),6)</sup>.

### Resultaten methaanemissie riolering

In Australië is de vorming van methaan in de riolering onderzocht door op een aantal tijdstippen en op verschillende afstanden van het pompstation de concentratie methaan in de vloeistof te bepalen. De resultaten hiervan staan in afbeelding 2.

Uit afbeelding 2 kan worden afgeleid dat grote verschillen bestaan in methaanconcentraties op dezelfde locaties op verschillende tijdstippen en op verschillende locaties bij hetzelfde tijdstip. Beide duiden op een effect van de verblijftijd van het afvalwater in de leiding op de vorming van methaan. De gevonden hoge waarden kunnen wellicht voor een deel worden toegeschreven aan de hoge temperatuur en een aantal zuivelindustrieën die op de persleiding zijn aangesloten.

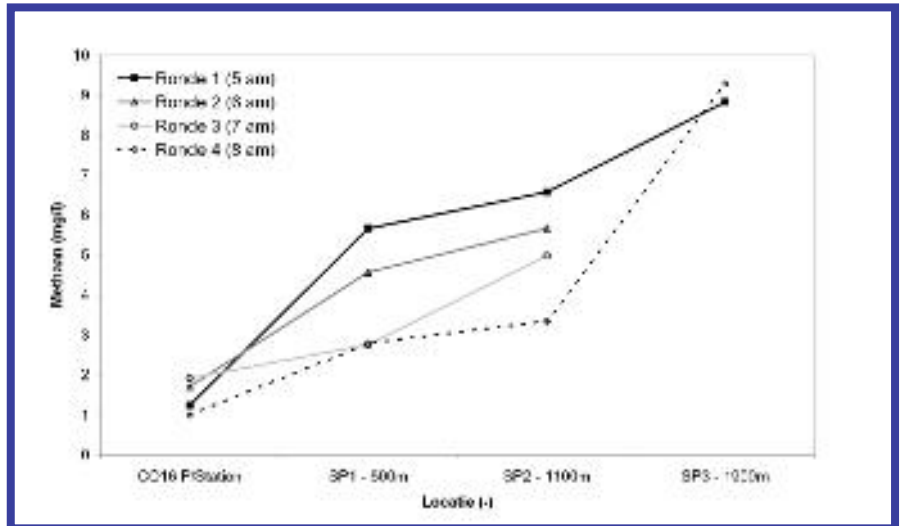
In de Verenigde Staten is de emissie van methaan vanuit rioolgemalen gemeten in de winter en de zomer. Bij 80 procent van de gemalen werd in de zomer (bij een buitentemperatuur van circa 27°C) een hogere emissie gemeten dan in de winter (bij een buitentemperatuur van circa 13°C). Deze waarneming duidt er op dat de temperatuur een belangrijke procesparameter is voor de mate van methaanvorming in de riolering. Uit bovengenoemd onderzoek blijkt dat vorming van methaan plaatsvindt in de riolering. Ook in Nederland werd een hoge emissie van methaan gemeten bij het ontvangswerk van enkele zuiveringen<sup>1),6)</sup>. De vorming van methaan in de riolering kan dus substantieel zijn. Belangrijk in het verdere onderzoek naar de mate van methaanemissie vanuit de riolering is de ontwikkeling van een goed meetprotocol om het gasdebiet vanuit de riolering te bepalen<sup>2)</sup>.

### Conclusies

Door het combineren van de resultaten uit de verschillende landen met ieder een eigen onderzoeks aanpak is meer kennis verkregen dan uit de afzonderlijke onderzoeken.

Op het gebied van lachgasemissies vanuit rwzi's is geconcludeerd dat:

- de emissie van lachgas zeer variabel is; om deze reden is het gebruik van een generieke emissiefactor om de emissie van een individuele zuivering in te schatten niet adequaat;
- meting van de lachgasemissie noodzakelijk is om inzicht te krijgen in de emissie vanuit een individuele zuivering;
- de nitrificatie met name verantwoordelijk is voor de vorming van lachgas;
- ophoping van nitriet in voornamelijk aerobe zones leidt tot vorming van lachgas;
- hoge concentraties ammonium kunnen leiden tot hoge lachgasemissies als nitrificatie optreedt;
- het risico op lachgasemissie kan worden geschat aan de hand van de effluent stikstofconcentratie, de mate van variatie in concentraties stikstofcomponenten in de zuivering, de mate van variatie



Afb. 2: Concentratie methaan op verschillende tijdstippen en locaties in een persleiding (CO16 PS) in Australië<sup>2)</sup>.

in belasting gedurende de dag en de maximale concentratie nitriet die kan optreden op een zuivering;

- een goede stikstofeffluentkwaliteit samengaat met een laag risico op lachgasemissie.

Op het gebied van methaanemissies vanuit riolering en rwzi's is de conclusie dat vorming en emissie vanuit de riolering substantieel kan zijn en dat de methaanemissie op zuiveringen zowel uit de riolering als van de behandeling van slib komt.

### Toekomstig onderzoek

Om de sector in de toekomst voldoende handvatten te geven om de emissie van lachgas te monitoren en te beheersen is nog onderzoek nodig naar de variatie in de emissie van lachgas om een goed meetprotocol op te stellen én naar het effect van maatregelen om de emissie van lachgas te reduceren.

Voor het onderzoek naar de emissie van methaan geldt dat nog onderzoek nodig is naar het ontwikkelen van een meetprotocol om de gasdebieten vanuit de riolering te bepalen (om zo inzicht te krijgen in de vrachten methaan die vanuit de riolering kunnen vrijkomen), het verzamelen van meer meetgegevens over methaanvorming

en emissie in verschillende systemen en op diverse locaties wereldwijd én het ontwikkelen van maatregelen om de vorming van methaan vanuit de riolering en slibbehandeling te reduceren.

### LITERATUUR

- 1) Van Voorthuizen E., M. Kampschreur, M. van Loosdrecht en C. Uijterlinde (2010). Emissie van broeikasgassen van rwzi's. H<sub>2</sub>O nr. 14/15, pag. 30-33.
- 2) GWRC (2011). N<sub>2</sub>O and CH<sub>4</sub> emission from wastewater collection and treatment systems. State of the Science Report.
- 3) Ahn J.-H., S. Kim, H. Park, B. Rahm, K. Pagilla en K. Chandran (2010). N<sub>2</sub>O emission from activated sludge processes 2008-2009: Results of a national monitoring survey in the United States. Environmental Science Technology 44, pag. 4505-4511.
- 4) Yu R., M. Kampschreur, M. van Loosdrecht en K. Chandran (2010). Mechanisms and specific directionality of autotrophic nitrous oxide and nitric oxide generation during transient anoxia. Environmental Science Technology 44, pag. 1313-1319.
- 5) Foley J., D. de Haas, Z. Yuan en P. Lant (2010). Nitrous oxide generation in full-scale biological nutrient removal wastewater treatment plants. Water Research nr. 3, pag. 831-844.
- 6) STOWA (2010). Emissies van broeikasgassen van rwzi's. Rapport 2010-08.

Locaties broeikasgasemissie op rwzi (locatie op foto is rwzi Apeldoorn).

