



Ellen van Voorthuizen, Royal Haskoning

Marlies Kampschreur, TU Delft, thans Waterschap Aa en Maas

Mark van Loosdrecht, TU Delft

Cora Uijterlinde, STOWA

Emissies van broeikasgassen van rwzi's

De aanleiding voor het onderzoek naar de emissie van broeikasgassen van rioolwaterzuiveringsinstallaties was rond 2007 het in te vullen duurzaamheidsbeleid van de waterschappen. Hieraan is de jaren daarna verder invulling gegeven met de ondertekening van het MJA-3 convenant in juli 2008 en recent (april 2010) het klimaatakkoord. Het MJA-3 convenant is gericht op de reductie van het energieverbruik. Het klimaatakkoord richt zich op een reductie van de emissie van broeikasgassen vanuit rwzi's. In het hier beschreven onderzoek¹⁾ is de emissie van methaan en lachgas op drie zuiveringen bepaald, waarbij de emissie van lachgas gedurende een week continu is gemeten en de emissie van methaan is bepaald aan de hand van steekmonsters.

Uit de metingen bleek dat de emissie van methaan voornamelijk is in te schatten met de huidige, door het ministerie van VROM opgestelde emissiefactoren. Verder bleek dat de emissie van methaan bij zuiveringen zonder slibgisting 15 tot 20 procent kan bijdragen aan de totale broeikasgasemissie, terwijl dit voor zuiveringen met slibgisting kan oplopen tot 40 procent. Met betrekking tot lachgas werd vastgesteld dat de emissie zeer variabel is. Deze variatie werd waargenomen tussen de verschillende zuiveringen en binnen dezelfde zuivering tussen uren, dagen en seizoenen. Door deze variaties bleek het niet mogelijk een emissiefactor op te stellen om de emissie vanuit individuele zuiveringen in te schatten. Om dit in de toekomst wel te kunnen doen, zal in een vervolgonderzoek door STOWA worden gezocht naar een mogelijke correlatie tussen de emissie van lachgas en enkele procesparameters. Dan ontstaat ook meer inzicht in de vorming en emissie van lachgas. In het nieuwe onderzoek wordt gezocht naar maatregelen om deze emissie te reduceren. Hiermee kan aan het klimaatakkoord invulling worden gegeven.

Broeikasgassen en de rwzi

Relevante broeikasgassen die op een rwzi vrijkomen, zijn koolstofdioxide, methaan en lachgas. De emissie van koolstofdioxide is voor de rwzi's gerelateerd aan het verbruik van elektriciteit, aardgas of andere primaire, fossiele energiedragers. Deze verbruiken zijn goed gedocumenteerd, waardoor een goed beeld bestaat van de koolstofdioxide-

emissies. Dit geldt niet voor de emissie van methaan en lachgas. Emissies van koolstofdioxide, afkomstig van de afbraak van organische stof, de zogenaamde korte kringloop, dragen niet bij aan het broeikas-effect en worden buiten beschouwing gelaten.

Met betrekking tot methaan zijn in het verleden onderzoeken uitgevoerd in de Verenigde Staten²⁾. Recenter zijn in de Verenigde Staten en Australië³⁾ onderzoeken uitgevoerd naar de emissie van methaan op zuiveringen en vanuit de riolering. Bij zuiveringen zonder slibgisting wordt het geëmitteerde methaan met name gevormd in de riolering, gezien de beperkte aanwezigheid van anaerobe omstandigheden op de zuivering. Bij zuiveringen met slibgisting kan methaanemissie plaatshebben via het rejectiewater, lekkages in de vergister, gasspui en onvolledige verbranding. Verder is methaanemissie mogelijk uit slibbuffers, slibindickers of tijdens slibverladingen⁴⁾.

Met betrekking tot lachgas zijn meerdere studies uitgevoerd op zowel laboratorium- als praktijkschaal. Opvallend hierbij is de grote mate van variatie die wordt gevonden in de emissie van lachgas. In de praktijk en op laboratoriumschaal werden emissiefactoren voor lachgas gevonden variërend van 0 tot 15 procent van de inkomende stikstofvracht⁵⁾. Belangrijke procesparameters die invloed lijken te hebben op deze variatie, zijn de nitriet- en zuurstofconcentratie én de CZV/N-verhouding van het influent. Ook het

type belichting en de reactorconfiguratie lijken de emissie te beïnvloeden.

Emissiefactoren

Door de ondertekening van het Kyoto-protocol heeft Nederland zich verplicht elk jaar zijn emissie van broeikasgassen te rapporteren. Voor de bijdrage van de zuiveringen wordt voor methaan een emissiefactor van 0,0085 kg CH₄/kg CZV_{influent}⁶⁾ gehanteerd. Voor de emissie van lachgas wordt voornamelijk de door het IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) in 1997 gedefinieerde emissiefactor van één procent (van inkomende stikstofvracht) gehanteerd. Op basis van deze emissiefactoren wordt de bijdrage van de Nederlandse rwzi's aan de totale methaanemissies in Nederland geschat op één procent en voor lachgas op vier procent. Het totale elektriciteitsverbruik van de Nederlandse rwzi's bedroeg in 2008 721 miljoen kWh, waarvan ongeveer 24 procent is opgewekt in WKK-installaties (cijfers van het CBS). Dit is 0,6 procent van het totale elektriciteitsverbruik in Nederland.

Naast de verplichting van Nederland ten aanzien van het Kyoto-protocol hebben de waterschappen de verplichting de uitstoot van broeikasgassen in het milieujarverslag te rapporteren voor IPCC-plichtige rwzi's of rwzi's met een ontwerpcapaciteit groter dan 136.360 i.e. (136 g TZV). Voor deze rapportage wordt voor lachgas een emissiefactor van 0,07 procent van de inkomende stikstofvracht gehanteerd⁷⁾. Voor de hoeveelheid geëmitteerd methaan wordt

rwzi	emissiefactor (kg CH ₄ /kg CZV)	VROM-factor	afwijking t.o.v VROM	emissiefactor (g CH ₄ /i.e. (150 g TZV)
Papendrecht	0,0087	0,007	1,2x hoger	0,58
Kortenoord	0,0053	0,007	1,3x lager	0,42
Kralingseveer (oktober)	0,012	0,0085	1,4x hoger	1,2
Kralingseveer (februari)	0,008	0,0085	1,1x lager	0,63

Tabel 1. Overzicht van de emissiefactoren voor methaan, zoals waargenomen op de diverse rwzi's.

in de rapportage uitgegaan van het feit dat emissie van methaan op een rwzi voornamelijk afkomstig is uit na-indikers bij rwzi's met slibgisting. Hiervoor wordt een emissiefactor van 18 g CH₄ i.e. 136^{-1} j^{-1} gehanteerd.

Doelstelling onderzoek

De doelstelling van het onderzoek was inzicht te krijgen in de emissie van broeikasgassen van Nederlandse rwzi's. Om deze doelstelling te bereiken is in het onderzoek gezocht naar antwoorden op de volgende onderzoeksvragen:

- Wat is de methaan- en lachgasemissie van een voor Nederland representatieve rwzi?
- Waar hebben vorming en uitstoot van deze broeikasgassen plaats?
- Zijn de huidige emissiefactoren voor methaan en lachgas bruikbaar om een inschatting te maken van de totale broeikasgasemissie van een Nederlandse rwzi?
- Zijn aanvullende metingen noodzakelijk om te komen tot betrouwbare emissiefactoren voor de Nederlandse rwzi's?

In het onderzoek is de nadruk gelegd op de emissie van lachgas, omdat dit een veel sterker broeikasgas is dan methaan en in het actiefslibproces zelf wordt geproduceerd. Uit literatuuronderzoek bleek dat de emissie van lachgas kan variëren in tijd en plaats⁵⁾. Om die reden is ervoor gekozen de totale emissie over een langere periode te meten in de volledig afgezogen lucht van een zuivering. Om dit te kunnen bewerkstelligen, zijn zuiveringen geselecteerd die geheel zijn afgedekt en verschillen in CZV/N-verhouding (wel of geen voorbezinktank) en wijze van fosfaatverwijdering. Op basis van deze criteria zijn de rwzi's Papendrecht, Kralingseveer en Kortenoord geselecteerd. De rwzi's Papendrecht en Kortenoord hebben beide geen voorbezinktank en verschillen in wijze van fosfaatverwijdering (Papendrecht volledig biologisch, Kortenoord chemisch en biologisch). De rwzi Kralingseveer beschikt over een voorbezinkingstap en slibgisting en verwijdert fosfaat biologisch. De metingen in Kralingseveer zijn uitgevoerd in oktober 2008 en februari 2009. Op deze wijze kon een mogelijk effect van de watertemperatuur op

de emissie van lachgas worden onderzocht. De metingen in Papendrecht en Kortenoord hadden respectievelijk plaats in september 2008 en juni 2009.

Voor bepaling van de methaanemissie zijn steekmonsters genomen van de afgezogen lucht op de plaatsen waar methaanemissie is te verwachten (ontvangstkelder, anaerobe of anoxische tank, beluchtingstank en slibverwerking). Lachgas is gedurende de meetperiode online gemeten in de afgezogen lucht. Tijdens de monsternamen is ook het luchtdebiet gemeten om zo de emissievracht van methaan en lachgas te kunnen bepalen. Naast de methaan- en lachgasmetingen zijn in de meetperiode de procesgegevens opgevraagd van de zuivering en is de samenstelling van het influent en effluent bepaald. Om de totale uitstoot van broeikasgassen van een zuivering te bepalen, is het verbruik aan aardgas en elektriciteit en de emissie van methaan en lachgas omgerekend naar CO₂-equivalenten*.

Methaanemissie

De emissiefactoren zoals deze zijn berekend aan de hand van de metingen op de rwzi's Papendrecht, Kortenoord en Kralingseveer, zijn samengevat in tabel 1.

Gezien het feit dat emissiefactoren redelijk dicht rond de emissiefactor van VROM liggen, lijkt deze emissiefactor voornamelijk toepasbaar om de uitstoot van methaan aan de hand van het CZV_{influent} in te schatten. In dit onderzoek werd de emissiefactor bepaald aan de hand van een beperkt aantal metingen in een korte periode.

Op de rwzi's Papendrecht en Kortenoord waren met name het ontvangwerk en de beluchtingstank de belangrijkste bronnen van methaanemissie. Op beide rwzi's lag de bijdrage van het ontvangwerk rond de 45 tot 50 procent, de bijdrage vanuit de beluchting bedroeg voor beide zuiveringen ongeveer 30 procent. Het methaan dat werd geëmitteerd in het ontvangwerk, is zeer waarschijnlijk gevormd in de riolering, gezien

de korte verblijftijd van het afvalwater in het ontvangwerk. Vanwege de anoxische en aerobe omstandigheden is methaanvorming in de beluchtingstank bijna uit te sluiten. De geëmitteerde hoeveelheid methaan moet eerder zijn gevormd. Dit kan in beperkte mate zijn gebeurd in de anaerobe tank en de selector. Waarschijnlijker is dat dit methaan eveneens uit de riolering komt en in de beluchtingstank wordt 'gestript'. Daarnaast kan het rejectiewater ook methaan bevatten (alleen van toepassing voor Kortenoord).

Op de rwzi Kralingseveer leverden de onderdelen van de sliblijn (slibindikers, -buffers en -silo) met bijna 50 procent de grootste bijdrage aan de emissie van methaan. Deze grote bijdrage is te verklaren door de aanwezigheid van slibgisting op deze rwzi. Verder werd een bijdrage van ongeveer 25 procent gemeten vanuit het ontvangwerk en de voorbezinktanks. Het geëmitteerde methaan kan gevormd zijn in de riolering, maar kan ook afkomstig zijn uit het rejectiewater.

Lachgasemissie

De emissiefactoren voor lachgas, zoals deze zijn berekend aan de hand van de metingen op de rwzi's Papendrecht, Kortenoord en Kralingseveer, zijn samengevat in tabel 2.

Uit tabel 2 blijkt dat een grote variatie bestaat in emissiefactoren tussen verschillende zuiveringen en tussen dezelfde zuivering in verschillende seizoenen. Tijdens de metingen op de zuiveringen werd ook gedurende de dag een grote variatie geconstateerd in emissiefactoren. Een illustratie hiervan is opgenomen in afbeelding 1. Deze grafiek geeft de variatie weer in lachgasemissie samen met het influentdebiet, zoals waargenomen gedurende de meetperiode in oktober op Kralingseveer. Te zien is dat de emissie van lachgas varieert met de aanvoer van influent. Dit suggereert dat de emissie van lachgas toeneemt bij toenemende belasting. Dit kon echter door de metingen niet worden bevestigd. In het voorgenomen vervolgonderzoek zal aan dit punt aandacht worden geschonken, met als doel de emissie

Tabel 2. Overzicht van de emissiefactoren voor lachgas, zoals waargenomen op de diverse rwzi's gedurende de meetperiodes.

rwzi	emissiefactor (% van influentvracht)	afwijking t.o.v VROM (1%)	afwijking t.o.v. MJV (0,07%)
Papendrecht	0,040	25 x lager	1,8 x lager
Kortenoord	0,048	21 x lager	1,5 x lager
Kralingseveer (oktober)	0,42	2,4 x lager	6 x hoger
Kralingseveer (februari)	6,1	6,1 x hoger	87 x hoger

van lachgas vanuit individuele rwzi's beter in te schatten.

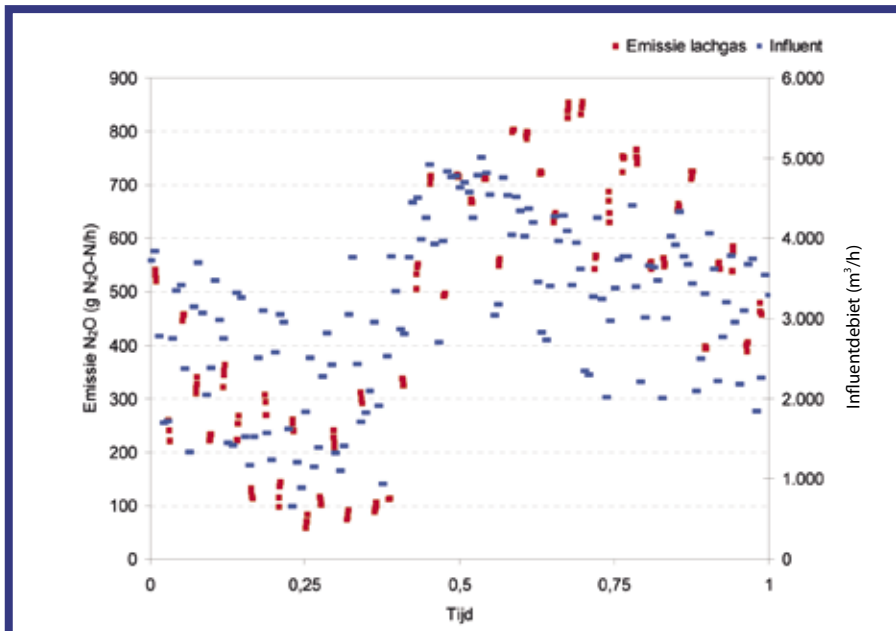
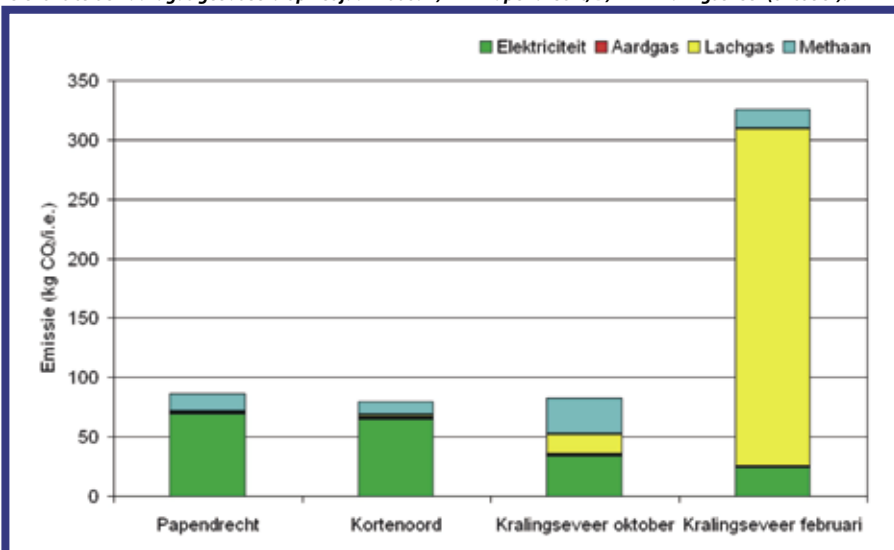
Door de grote variatie tussen zuiveringen en in de tijd is het niet mogelijk om vooraf een redelijke inschatting te doen voor de emissie van N₂O vanuit een specifieke zuivering. Hiervoor zal in het vervolgonderzoek gezocht worden naar een correlatie tussen de emissie van lachgas en procesparameters. Enkele van de procesparameters die zullen worden onderzocht, zijn de stikstofbelasting en nitrietconcentratie.

Voor het verschil in emissie tussen de zuiveringen Papendrecht en Kortenoord aan de ene kant en Kralingseveer aan de andere kant zijn verschillende verklaringen mogelijk:

- het verschil in BZV/N-verhouding. In Kralingseveer bedroeg deze in oktober circa 2,2, terwijl in Papendrecht een BZV/N-verhouding van 2,9 werd waargenomen en in Kortenoord 2,5;
- het verschil in stikstofbelasting. In Papendrecht en Kortenoord bedroeg de belasting respectievelijk 0,012 en 0,010 kg N/kg ds · d, terwijl in Kralingseveer een belasting van 0,020 kg N/kg ds · d werd waargenomen;
- het verschil in procesconfiguratie. In Papendrecht en Kortenoord heeft de stikstofverwijdering plaats in een carousel, terwijl in Kralingseveer de nitrificatie en denitrificatie in een propstroomreactor en carousel plaatsvindt.

Op Kralingseveer werd een opmerkelijk groot verschil gevonden tussen de emissie van lachgas in oktober en februari. Het grote verschil wordt toegeschreven aan een hoge stikstofbelasting door een verhoogde aanvoer in combinatie met een zeer lage temperatuur (7 tot 9 °C). Dit leidde tot een ophoping van ammonium en nitriet (10 tot 20 mg/l) als gevolg van een onvolledige nitrificatie. De ophoping van nitriet kan leiden tot vorming van lachgas, zoals werd waargenomen door Burgess⁹⁾ en Butler⁹⁾. In deze onderzoeken werd de vorming van lachgas gebruikt als alarmsignaal voor een falende nitrificatie door een piekbelasting

Afb. 2: Broeikasgasbijdrage in kg CO₂-equivalenten per dag en bijdrage aan totaal in procenten. Verbruik elektriciteit en aardgas gebaseerd op het jaar 2008. A) rwzi Papendrecht, B) rwzi Kralingseveer (oktober).



Afb. 1: Emissie lachgas gedurende een dag in oktober op de rwzi Kralingseveer.

van ammonium of een tekort aan zuurstof, waarbij naast lachgas ook nitriet werd gevormd. Door een verhoogde beluchttingsintensiteit (als reactie op de hoge ammoniumconcentraties) werd het gevormde lachgas in hoge mate gestript. Door het samenvallen van een hoge aanvoer en een lage temperatuur kan het effect van alleen de temperatuur niet worden vastgesteld.

Doordat op de bemeten zuiveringen de emissie is bepaald in de totale afgezogen lucht van een tank waarin zowel nitrificatie als denitrificatie plaatsvindt, kan niet worden bepaald welk proces verantwoordelijk is geweest voor de vorming van lachgas. Wel geven de resultaten een indicatie dat de stikstofbelasting en de nitrietconcentratie belangrijke procesparameters zijn voor de mate van N₂O-vorming en -emissie.

Totale broeikasgasemissie

In afbeelding 2 is de totale broeikasgasemissie van de rwzi's Papendrecht, Kortenoord en Kralingseveer weergegeven.

De totale broeikasgasemissie van rwzi Kortenoord is vergelijkbaar met rwzi Papendrecht (zie afbeelding 2). Het elektriciteitsverbruik op deze twee zuiveringen levert met 80 procent de grootste bijdrage aan de totale broeikasgasemissie. Die bedroeg in Papendrecht bijna 86 kg CO₂-eq/i.e. en op Kortenoord iets meer dan 79 kg CO₂-eq/i.e. Op rwzi Kralingseveer vormen elektriciteitsverbruik (42 procent) en methaanemissie (36 procent) in oktober de grootste bijdragen aan de totale broeikasgasemissie die ongeveer 83 kg CO₂-eq/i.e. bedroeg. Door de zeer hoge emissie van lachgas in februari bedroeg de totale broeikasgasemissie ruim 325 kg CO₂-eq/i.e., bijna vier maal meer dan in oktober. Lachgas leverde met bijna 90 procent de grootste bijdrage aan deze emissie. Deze hoge broeikasgasemissie en de bijdrage van lachgas daaraan laten zien hoe groot het effect is van één week op de totale uitstoot van een zuivering voor een heel jaar. In hoeverre omstandigheden zoals in februari voorkomen en resulteren in een hoge lachgasemissie is niet bepaald. Daarvoor is het nodig gedurende een langere periode (jaar) te meten.

Conclusies

Het doel van dit onderzoek was inzicht te geven in de emissie van broeikasgassen van Nederlandse rwzi's. Om dit doel te bereiken is in vier meetperiodes bij drie zuiveringen de emissie van lachgas en methaan vastgesteld.

Op basis van de resultaten van dit onderzoek kunnen de volgende conclusies worden getrokken:

- De emissiefactor voor methaan van 0,085 kg CZV, zoals gehanteerd door het ministerie van VROM, lijkt voorsnóg bruikbaar voor de inschatting van de methaanemissies van Nederlandse rwzi's met slihgisting. Bij zuiveringen zonder slihgisting kan een factor van 0,007 kg CH₄/kg CZV worden toegepast;
- Op zuiveringen zonder slihgisting levert het ontvangstwerk de grootste bijdrage aan de emissie van methaan. Daarmee

vormt de riolering de grootste bron van methaanemissie. Op zuiveringen met gisting dragen ook de slibgisting en alle daaraan gerelateerde onderdelen significant bij aan de methaanemissie;

- Gezien de variatie in de emissie van lachgas tussen rwzi's (en in de tijd) kan hiervoor vooralsnog geen algemene emissiefactor worden opgesteld. Momenteel kan de lachgasemissie van een specifieke zuivering alleen worden vastgesteld door langetermijnmonitoring;
- De resultaten van dit onderzoek indiceren dat de stikstofbelasting, de concentratie nitriet, de mate van beluchting en de CZV/N-verhouding invloed hebben op de vorming en emissie van lachgas.

Vooruitblik vervolgonderzoek

Het hier beschreven onderzoek heeft waardevolle informatie opgeleverd over de mate van methaan en lachgasemissies van Nederlandse rwzi's. Om nader invulling te geven aan de reductie van broeikasgasemissie, zoals is afgesproken in het onlangs getekende klimaatakkoord, is nader onderzoek nodig. Dit STOWA-onderzoek zal binnenkort beginnen, waarbij getracht

wordt een model op te stellen om de emissie van methaan te voorspellen. Voor lachgas zal op dit punt op zoek worden gegaan naar een mogelijke correlatie tussen de emissie van lachgas en enkele procesparameters. Procesparameters die hierbij onderzocht worden, zijn de stikstofbelasting en nitrietconcentratie. Het onderzoek naar een mogelijke correlatie zal worden uitgevoerd op één rwzi waar minimaal een half jaar zal worden gemeten om ook de invloed van temperatuur en verhoogde aanvoer op de vorming en emissie van lachgas te bepalen. Op laboratoriumschaal zal het effect van de CZV/N-verhouding en de mate van beluchting op de vorming en emissie van lachgas worden onderzocht.

NOTEN

- 1) STOWA (2010). Emissies van broeikasgassen van rwzi's. Rapport 2010-08.
- 2) Czepiel P., P. Crill en R. Harriss (1993). Methane emissions from municipal wastewater treatment processes. Environ. Sci. Technol. 27, pag. 2472-2477.
- 3) Guisasola A., D. de Haas, J. Keller en Z. Yuan (2008). Methane formation in sewer systems. Water Research 42, pag. 1421-1430.

- 4) STOWA (2004). Stankoverlast en bestrijding bij de verlading van ontwaterd slib. Rapport 2004-09.
- 5) Kampschreur M., H. Temmink, R. Kleerebezem, M. van Jetten en M. Loosdrecht (2009). Nitrous oxide emission during wastewater treatment. Water Research nr 17, pag. 4093-4103.
- 6) VROM (2008). Protocol 8136 Afvalwater t.b.v. NIR 2008, uitgave maart 2008, 6B CH₄ en N₂O uit afvalwater.
- 7) STOWA (2007). E-PRTR voor rwzi's. Rapport 2007-W-10.
- 8) Burgess J., B. Colliver, R. Stuetz en T. Stephenson (2002). Dinitrogen oxide production by a mixed culture of nitrifying bacteria during ammonia shock loading and aeration failure. Journal of Industrial Microbiology & Biotechnology 29, pag. 309-313.
- 9) Butler M., Y. Wang, E. Cartmell en T. Stephenson (2009). Nitrous oxide emissions for early warning of biological nitrification failure in activated sludge. Water Research 43, pag. 1265-1272.

* Omrekeningsfactor elektriciteit: 0,67 kg CO₂/kWh
aardgas: 1,8 kg CO₂/m³
lachgas: 298 kg CO₂/kg N₂O
methaan: 25 kg CO₂/kg CH₄