

## B-51 CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O のインベントリーの精緻化と開発中核技術の内外への普及

### (5) 下水道施設を活用した CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O 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(CH<sub>4</sub>)および亜酸化窒素(N<sub>2</sub>O)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、CH<sub>4</sub>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。

N<sub>2</sub>O 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。N<sub>2</sub>O 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-N<sub>2</sub>O/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 N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O の連続測定を 11 回行った。結果としては、測定期間中の N<sub>2</sub>O 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、N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O 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、N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O 総排出量を求めたところ、3.6 Gg-N<sub>2</sub>O/year であった。本調査における N<sub>2</sub>O 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(CO<sub>2</sub>)を除くと、汚泥焼却に伴う N<sub>2</sub>O、下水処理に伴う CH<sub>4</sub>、および電力や燃料、薬品等の使用に伴う CO<sub>2</sub>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  $\text{CO}_2$  と、水処理に由来する  $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  及び汚泥焼却に由来する  $\text{N}_2\text{O}$  である。本研究は、下水の処理過程で生成する  $\text{CH}_4$  及び  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{CH}_4$  排出の制御効果の把握・評価と、硝化状態ごとの  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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 $\text{CH}_4$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 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  $\text{CH}_4$  が生成されている。このため、下水中には高濃度の  $\text{CH}_4$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{CH}_4$  ( $\text{CO}_2$  の 20 倍) や  $\text{N}_2\text{O}$  ( $\text{CO}_2$  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、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  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。 $\text{CH}_4$ 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、 $\text{CH}_4$  抑制効果に関して検討を行った。 $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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 $\text{CH}_4$ に関する検討

微生物由来の  $\text{CH}_4$  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、 $\text{CH}_4$  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  $\text{CH}_4$  を生成していると考えられる。その後、生成された  $\text{CH}_4$  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 CH<sub>4</sub> 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、全槽工アレーションであるため、流入下水中の溶存 CH<sub>4</sub> 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、CH<sub>4</sub> 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工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 カ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なったためである。通常は表示の SRT に近い値に設定してある。

### 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 CH<sub>4</sub> サンプルと液体 CH<sub>4</sub> 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 CH<sub>4</sub> 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

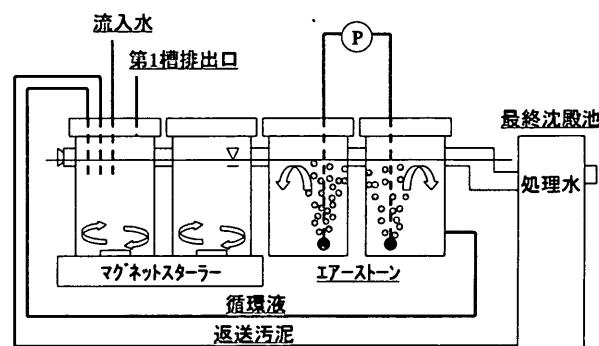


図-1 完全覆外型実験施設簡易図（循環法）

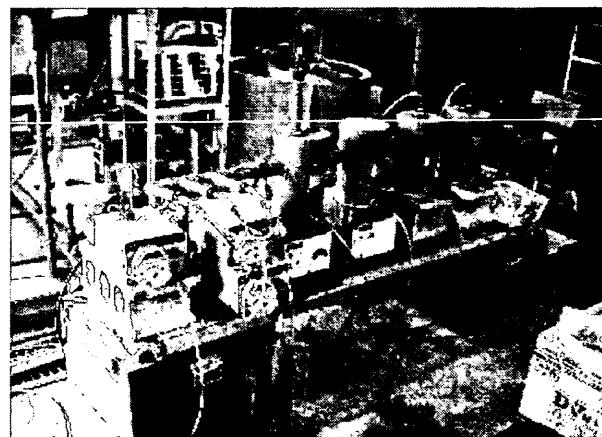


図-2 完全覆外型実験施設の写真

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)
嫌気・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

った。その他に、通常時の大気中の CH<sub>4</sub> 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 CH<sub>4</sub> 濃度のみを計算するために測定する）に、実験中に 1 回のプ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 CH<sub>4</sub> 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、一度フランピングに採水し、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、シリジン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% グルコン酸クロル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、CODcr・T-N・T-P・NH<sub>4</sub>-N・NO<sub>2</sub>-N・NO<sub>x</sub>-N (NO<sub>2</sub>-N+NO<sub>3</sub>-N)・PO<sub>4</sub>-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、各処理法ともにほぼ同じような値であった。処理水は、CODcr 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 NH<sub>4</sub>-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 NH<sub>4</sub>-N 濃度が高くなつたと考えられる。また、嫌気-好気法実験終了時に、嫌気槽の PO<sub>4</sub>-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、CH<sub>4</sub> 測定結果を表-3 に示す。流入水中の CH<sub>4</sub> 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 CH<sub>4</sub> 抑制効果があった。排出 CH<sub>4</sub> 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 CH<sub>4</sub> 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 NO<sub>3</sub>-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つたこと (NO<sub>3</sub>-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つたと予想できる。この結果から、無酸素槽の脱窒が CH<sub>4</sub> 抑制には効果的である。脱窒反応が CH<sub>4</sub> にどのような影響を与えてるか、詳細は不明だが、脱窒反応のエネルギー源として、CH<sub>4</sub> 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
CODcr	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 <sub>4</sub> -N	20.30	0.19	23.45	5.06	23.12	0.07
PO <sub>4</sub> -P	1.62	0.28	2.05	0.83	1.94	1.20
NO <sub>3-2</sub> -N	0.10	7.41	0.26	6.15	0.08	17.24
NO <sub>2</sub> -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 CH<sub>4</sub> 検討結果

	循環法	嫌気-好気法	標準法
流入水中 CH <sub>4</sub> 量 (mg/m <sup>3</sup> )	617.5	431.3	550.9
処理水中 CH <sub>4</sub> 量 (mg/m <sup>3</sup> )	5.0	0.5	0.0
排出 CH <sub>4</sub> 量 (mg/m <sup>3</sup> )	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  $\text{CH}_4$  に与える影響に関して検討を行う必要がある。

### 3. 2 $\text{N}_2\text{O}$ 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  $\text{N}_2$  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、 $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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。

このため、当検討では、硝化と  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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  $10\text{m}^3$  の水深  $2\text{m}$  の施設である。反応槽内をそれぞれ  $2\text{m}^3$  ごとの 5 槽に分割しており、後段に最終沈殿池（終沈）が設置している。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 ~8h、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った場合（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  $\text{N}_2\text{O}$  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

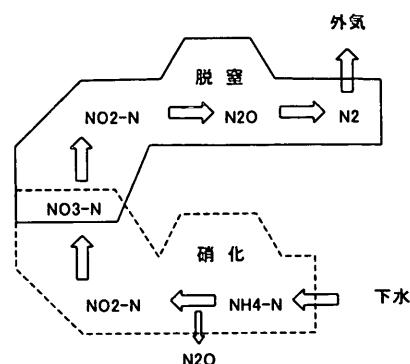


図-3 硝化・脱窒反応の簡易図

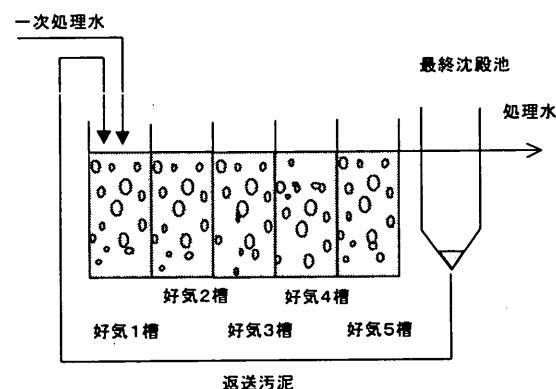


図-4 パイロットプラントの簡易図

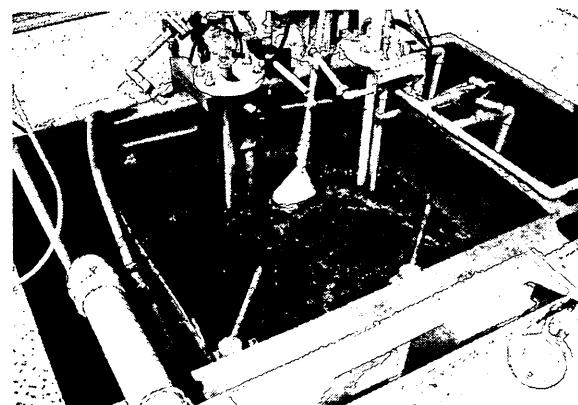


図-5 パイロットプラント反応槽の写真

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。

### 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N<sub>2</sub>Oサンプルと液体N<sub>2</sub>O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N<sub>2</sub>O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、プランクガスも現場で1検体を採取する。液体N<sub>2</sub>O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、一度フランピングに採水し、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-CODcr、流入下水・返送汚泥・各5反応槽のD-CODcr、NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N、NO<sub>x</sub>-N、PO<sub>4</sub>-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N<sub>2</sub>O生成量と水温、MLSSを図-6に示す。図中のN<sub>2</sub>O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（=「N<sub>2</sub>O総量」）を水処理過程で生成されるN<sub>2</sub>O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N<sub>2</sub>Oが排出された。排出量としては、期間平均で100mgN<sub>2</sub>O-N/m<sup>3</sup>程度であり、期間最大値は450mgN<sub>2</sub>O-N/m<sup>3</sup>であった。期間中は、管理状態や処理の状態により、反応槽内のN<sub>2</sub>O生成量はかなり変動する結果であった。

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

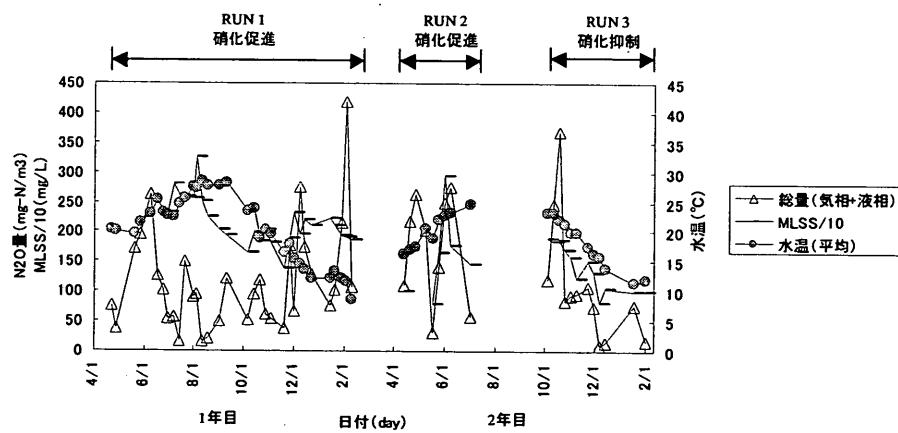


図-6 N<sub>2</sub>O生成量、水温、MLSSの変化

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。

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ついて、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  $NH_4^{\cdot}N$ 、 $NO_x^{\cdot}N$  濃度を示す。

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  $NH_4^{\cdot}N$  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  $NH_4^{\cdot}N$  が残存せず、 $NO_x^{\cdot}N$  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。

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の活性汚泥の硝化活性が低下し、処理水中に  $NH_4^{\cdot}N$  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

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

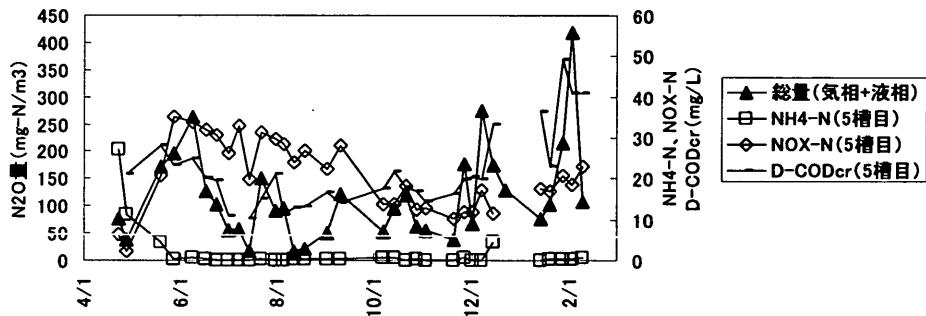


図-7 RUN1 における  $N_2O$  総量と処理状況

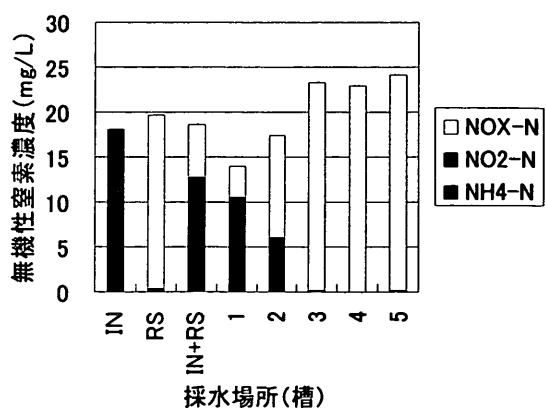


図-8 反応槽内の硝化の進行状況 (水温 26°C)

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50mg/l(通常20)まで上昇した。硝化およびN<sub>2</sub>Oの生成量をみると、処理の悪化した期間においてNO<sub>x</sub>-Nが低下し、N<sub>2</sub>O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N<sub>2</sub>O生成量は低い値で安定していた。図-9に翌年1月27日の硝化の進行状況を示す。

ここで、図-10にRUN1の全期間のN<sub>2</sub>O総量とNO<sub>2</sub>-N濃度の関係を示す。図より、N<sub>2</sub>O総量が多い場合、NO<sub>2</sub>-N濃度も高い値を示す傾向にある。これは、N<sub>2</sub>OおよびNO<sub>2</sub>-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低下時の処理状況が悪化した場合に、NO<sub>2</sub>-Nが上昇し、N<sub>2</sub>O総量も増加することが多い。

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、N<sub>2</sub>O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NO<sub>2</sub>-N濃度が上がり、このようなケースでN<sub>2</sub>O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N<sub>2</sub>O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NH<sub>4</sub>-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。N<sub>2</sub>O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27mgN<sub>2</sub>O-N/m<sup>3</sup>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<sub>x</sub>-Nが若干上昇しており、それに合わせてN<sub>2</sub>O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

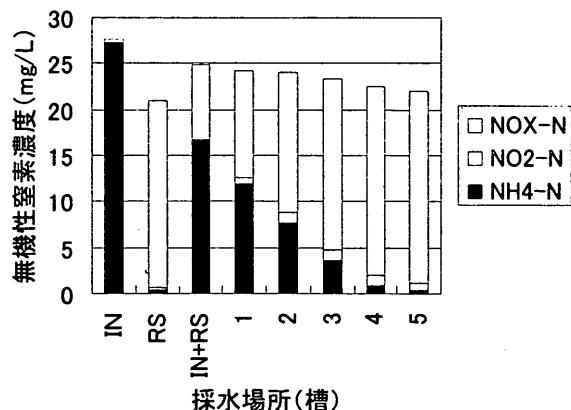


図-9 反応槽内の硝化の進行状況(水温12°C)

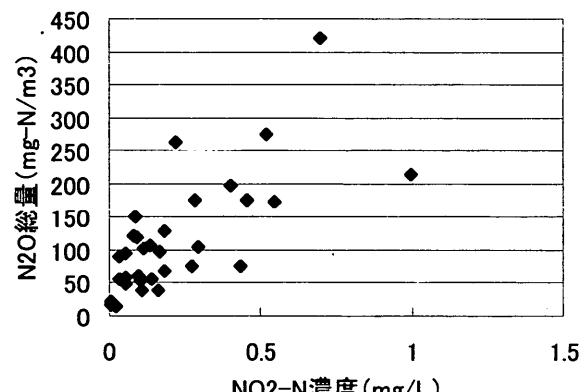


図-10 硝化促進時のN<sub>2</sub>OとNO<sub>2</sub>-Nの関係

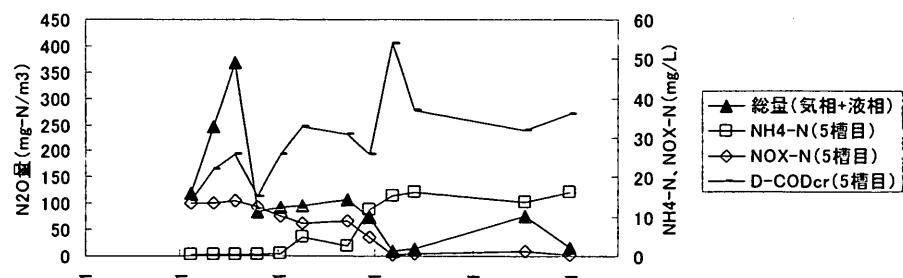


図-11 RUN3におけるN<sub>2</sub>O総量と処理状況

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  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  生成量が増加することがあることがわかる。

### 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 がまだ十分低下せず 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-CODcr 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  $\text{N}_2\text{O}$  生成量が一時的に増加している。なお、実験期間を通じ  $\text{N}_2\text{O}$  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と考えられる。

以上のことから、 $\text{N}_2\text{O}$  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、 $\text{N}_2\text{O}$  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 0.04 mg/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 °C の頃に  $\text{NO}_2\text{-N}$  濃度と  $\text{N}_2\text{O}$  生成量の増加が観察された。

### 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、 $\text{N}_2\text{O}$  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

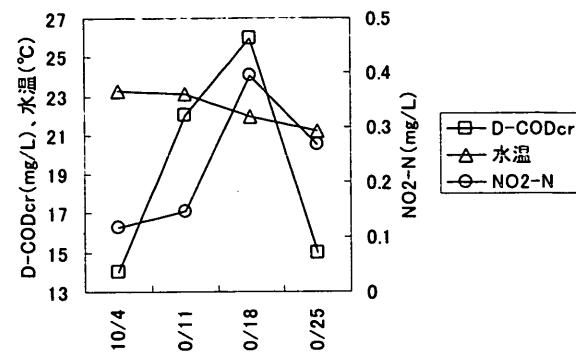


図-12 水温変動期の処理状況の例

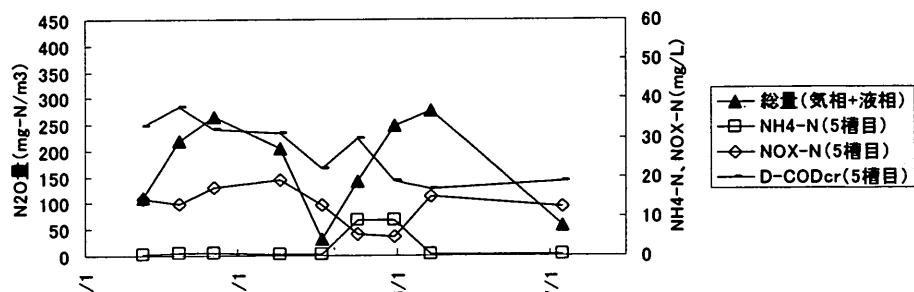


図-13 RUN2 における  $\text{N}_2\text{O}$  総量と処理状況

に関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  $NO_2\cdot N$  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づつ増加していき、最終的に硝化細菌数が安定すると、 $N_2O$  や  $NO_2\cdot N$  の濃度は減少する。実際、この期間の平均  $NO_2\cdot N$  濃度は  $0.21\text{ mg/l}$  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  $36.8\text{ mgN}_2O\cdot N/m^3$  (高水温と低水温の平均値) とする。総  $N_2O$  排出量は  $0.75\text{ Gg-N}_2O/year$  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  $NO_3\cdot N$  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たか、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  $100\text{ mgN}_2O\cdot N/m^3$  程度であり、期間最大値は  $450\text{ mgN}_2O\cdot N/m^3$  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  $55.3\text{ mgN}_2O\cdot N/m^3$  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。

### 4. 汚泥処理プロセスから排出される温室効果ガスについて

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<sup>1)</sup>。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量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<sup>2)</sup>。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 の名称で示すこととする。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 Measurment	A A	B			C			D		E E	F F	
		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	
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 H N S Ash	37.34 5.40 5.96 5.17 29.62	37.90 4.51 5.17 5.48 26.40	43.16 6.22 5.48 4.12 20.21	29.81 5.03 1.04 1.04 27.77	46.61 5.50 5.48 5.48 14.89	40.02 4.72 4.70 4.70 17.70	37.78 5.86 4.41 0.69 16.91	40.93 6.00 5.51 0.69 26.88	35.44 5.75 4.59 0.50 19.28	51.44 6.51 5.14 0.50 13.36	46.43 6.86 5.14 0.50 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

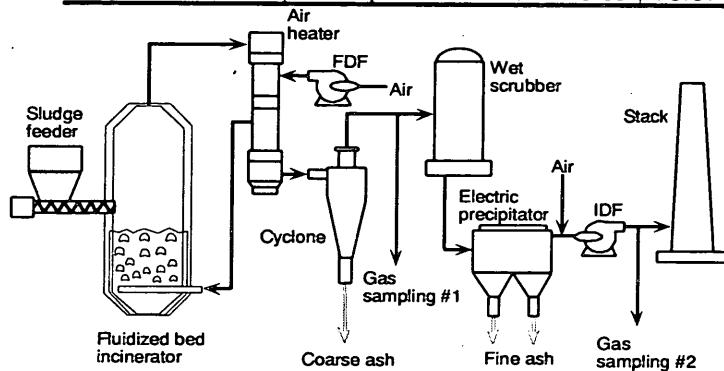


図-14 典型的な汚泥焼却炉簡易図

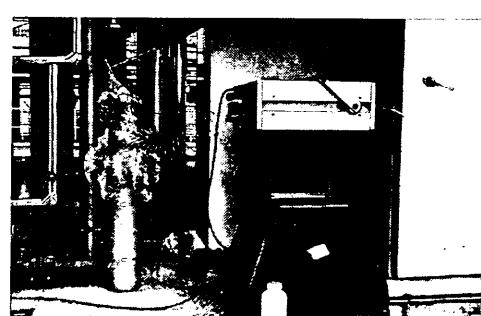


図-15 GC による分析の様子

を通過させた後、分析計に導入した。排ガス中の N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O 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、N<sub>2</sub>O 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 CO<sub>2</sub> 濃度

$C_{CO2,stack}$  : 煙突入り口での CO<sub>2</sub> 濃度

$C_{O2,furnace}$  : 焼却炉出口での O<sub>2</sub> 濃度

$C_{O2,stack}$  : 煙突入り口での O<sub>2</sub> 濃度

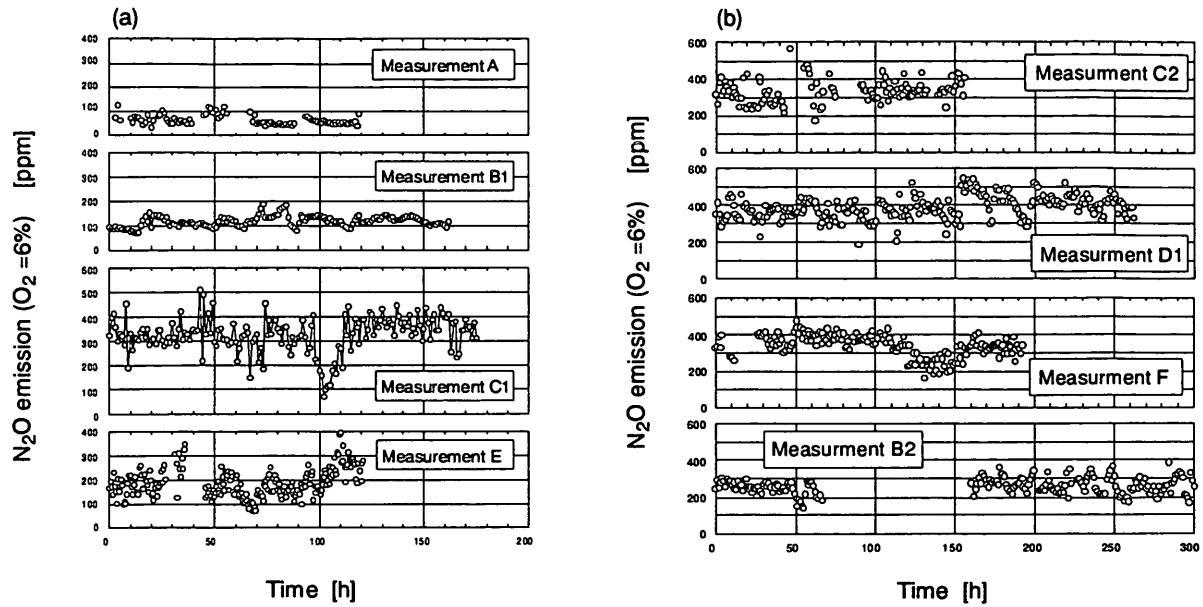
$C_{N2O,furnace}$  : 計算された焼却炉出口での N<sub>2</sub>O 濃度

$C_{N2O,stack}$  : 測定された煙突出口での N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O 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、N<sub>2</sub>O 濃度 (O<sub>2</sub> 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、N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O 濃度の変化

C1 および E 測定での変動が大きかった。また、N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O が排出されていた。

測定全期間の N<sub>2</sub>O 濃度の平均値、これから求めた N<sub>2</sub>O 排出係数と汚泥中の N 分の N<sub>2</sub>O 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·N<sub>2</sub>O/t·WS、平均値 792 g·N<sub>2</sub>O/t·WS、乾燥汚泥基準で 1,672～6,643 g·N<sub>2</sub>O/t·DS、平均値 3,755 g·N<sub>2</sub>O/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<sub>2</sub>O/t·WS、4,024 g·N<sub>2</sub>O/t·DS となった。また、表・7 に示されるように、N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O 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<sub>2</sub>O 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<sup>2)</sup>にある流動層型下水汚泥焼却炉からの N<sub>2</sub>O 排出係数の最新の推奨値は、800 g·N<sub>2</sub>O/t·DS (ドイツ)、100-1,500 g·N<sub>2</sub>O/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·N<sub>2</sub>O/t·WS が採用

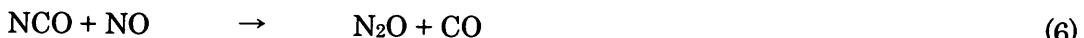
表・7 測定結果の一覧

Incinerator	A	B			C			D		E	F	Capacity Mean weighted mean		
Measurement	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			
Mean N <sub>2</sub> O emission, O <sub>2</sub> =6%	64	119	270	153	325	311	275	392	319	181	338			
Conversion of N in sludge to N <sub>2</sub> 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 <sub>2</sub> O/t·WS	Mea Min. Max.	307 150 971	359 207 554	792 401 1,558	470 272 748	1,007 239 1,592	1,087 632 1,440	636 191 1,637	1,213 600 1,955	1,033 380 1,456	726 257 2,260	1,080 522 1,405	792 350 1,416	866 363 1,555
Emission factor, g-N <sub>2</sub> O/t·DS	Mea Min. Max.	1,520 750 4,900	1,830 1,040 2,780	3,770 1,910 7,410	2,188 1,265 3,482	4,700 1,190 7,520	4,400 2,560 5,830	2,848 855 7,333	6,400 3,160 10,300	4,863 1,790 6,853	2,880 1,020 8,970	5,910 2,850 7,690	3,755 1,672 6,643	4,024 1,697 7,134

されている<sup>6)</sup>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ろう。

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 地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<sup>3)</sup>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、 $N_2O$  の消失反応(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。

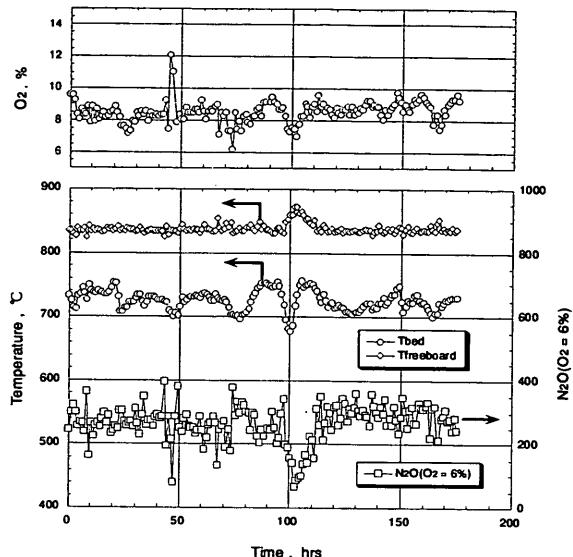


図-17 温度、 $N_2O$ 、酸素濃度の経時変化

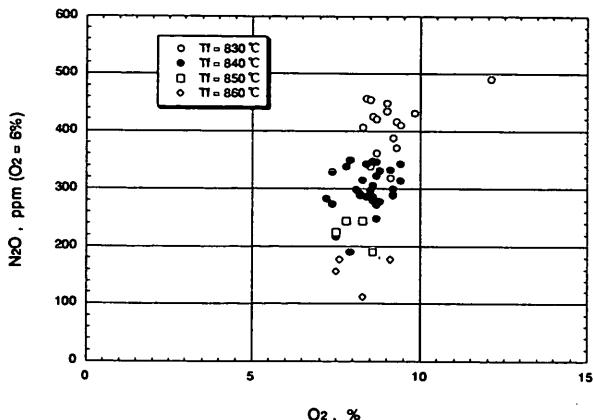


図-18 排ガス中の  $O_2$  濃度と  $N_2O$  の関係

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、 $N_2O$  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  $N_2O$  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°C 以内）データを抽出し排ガス中酸素濃度の  $N_2O$  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、 $N_2O$  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  $N_2O$  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  $N_2O$  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  $N_2O$  濃度は増加することが分かる。フリーボード温度の  $N_2O$  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<sup>5)</sup>。

上記解析は一つの焼却炉について、フリーボード温度と  $N_2O$  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  $N_2O$  への転換率の関係が報告されている<sup>5)</sup>。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  $N_2O$  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  $N_2O$  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  $N_2O$  への転換率の関係を示す。今回測定した 6 頃所の焼却炉におけるフリーボード温度と汚泥中 N 分の  $N_2O$  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  $N_2O$  への転換率の関係で他と異なる傾向を示した 2 台

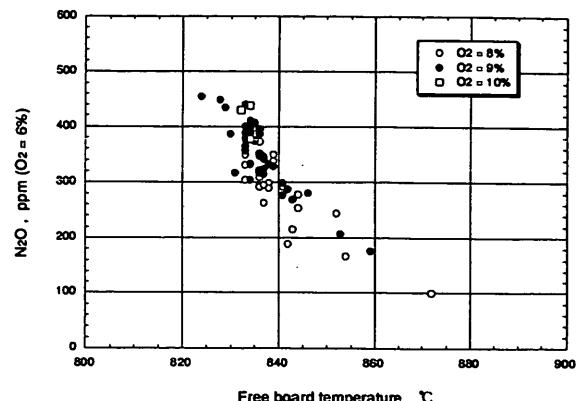


図-19 フリーボード温度と  $N_2O$  の関係

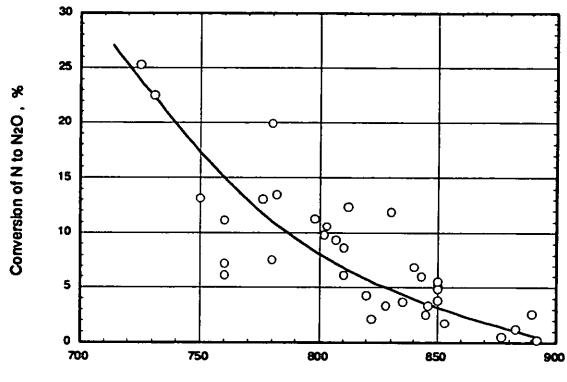
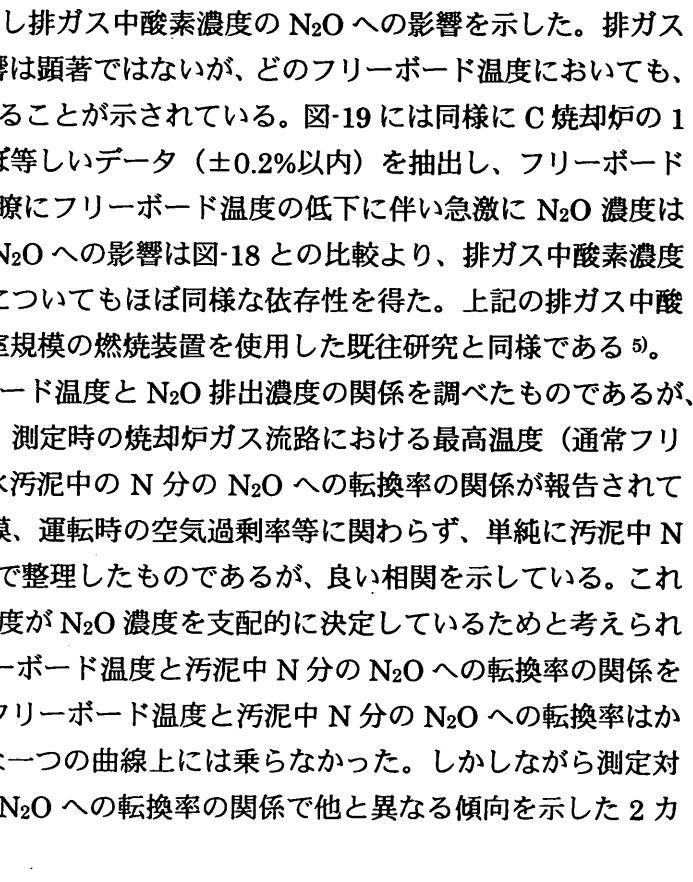


図-20 焼却炉における  $N_2O$  転換率に関して



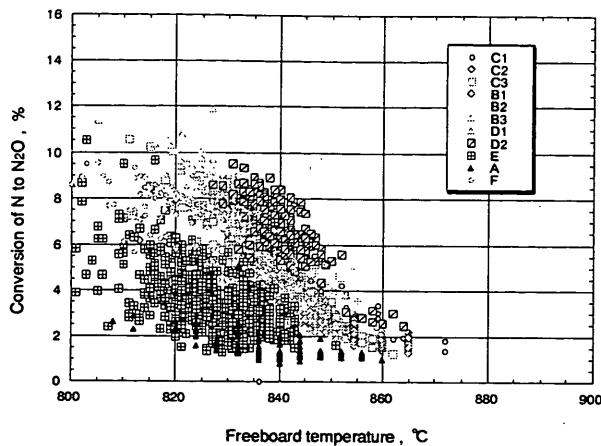


図-21 全測定の  $\text{N}_2\text{O}$  転換率と FB 温度の関係

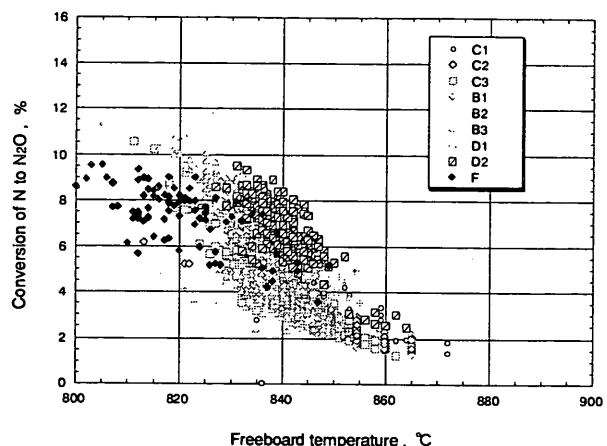


図-22 4 施設での  $\text{N}_2\text{O}$  転換率と FB 温度の関係

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  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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、 $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{O}_2$  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、燃焼用空気の流量も一定に保

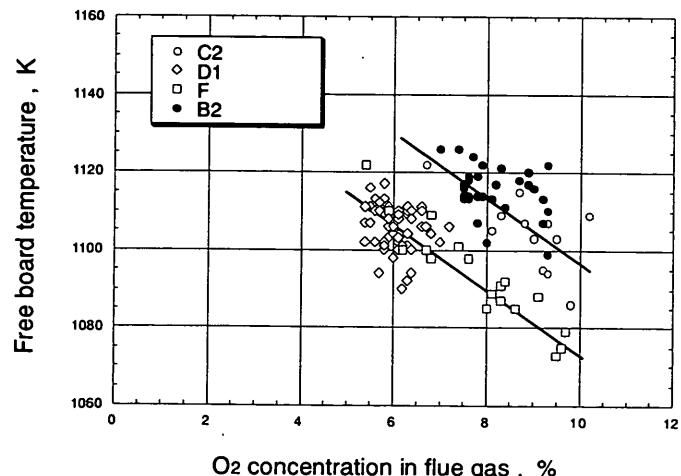


図-23 FB 温度と排ガス中の  $\text{O}_2$  濃度の関係

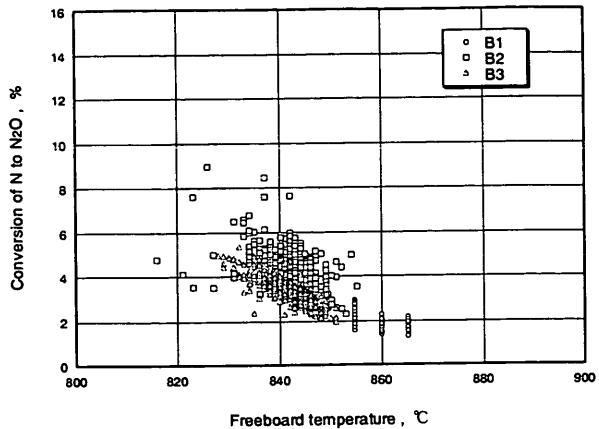


図-24 B 焼却炉の  $\text{N}_2\text{O}$  転換率と FB 温度

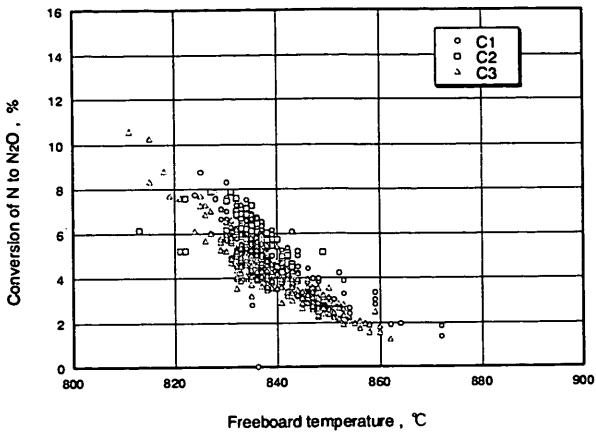


図-25 C 焼却炉の  $\text{N}_2\text{O}$  転換率と FB 温度

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  $\text{O}_2$  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、 $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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、 $\text{N}_2\text{O}$  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、 $\text{N}_2\text{O}$  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 より明らかなように、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  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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、 $\text{N}_2\text{O}$  排出濃度が測定時期により大きく異なったと判断できる。しかしながら、 $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  排出濃度となり、 $\text{N}_2\text{O}$  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と思われる。

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  $\text{N}_2\text{O}$  の出発物質の一つであり  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2$  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· $N_2O$ /t·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 力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· $N_2O$ /t·WS、平均値 792 g· $N_2O$ /t·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ろう。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 力所、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%			
						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	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	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	81.70	79.50	20.50	5.90	33.53	5.55	1.09
Q	75	A重油	74.40	68.00	32.00	3.50	34.00	5.30	0.80

測定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°C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。

$\text{N}_2\text{O}$ 排出濃度の推定で重要な、汚泥中N分の $\text{N}_2\text{O}$ 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。

$$\eta = A_0 + A_1 T_f \quad (12)$$

$$\eta = A_0 + A_1 T_f + A_2 T_f^2 \quad (13)$$

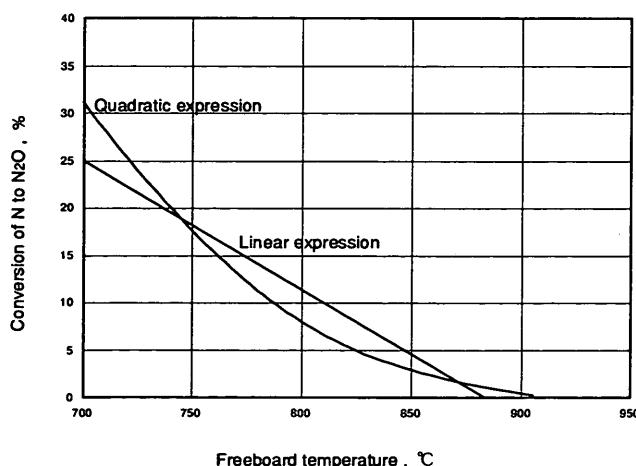


表-8 近似式の係数

	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  
 $\text{N}_2\text{O}$ 転換率とFB温度の関係

ここで、 $\eta$  :

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<sup>7)</sup>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 焚却炉では 800°C を下回っているが、G 焚却炉では 870°C と比較的高温になっている。N 焚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にある。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

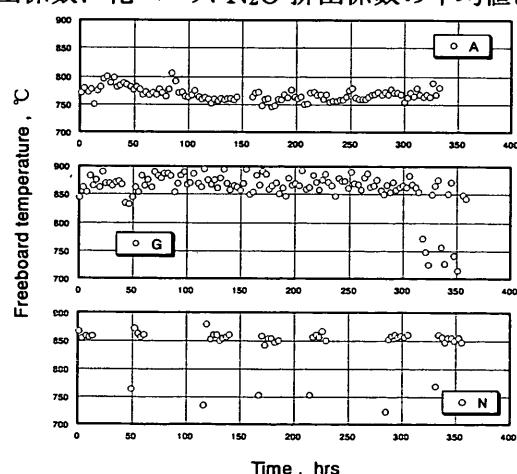


図-27 FB 温度変動の一例

$\text{g-N}_2\text{O/t-DS}$ 、二次式使用でそれぞれ 214ppm、733  $\text{g-N}_2\text{O/t-WS}$ 、3419  $\text{g-N}_2\text{O/t-DS}$  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 955 t-WS/day に対する  $\text{N}_2\text{O}$  排出係数を調べるために、二次近似式を使用した場合の湿ベース  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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 °C	平均FB温度 °C	層との温度差 °C	推定 $\text{N}_2\text{O}$ 濃度 ppm			N $\text{O}$ 排出係数 g-N $\text{O}$ /t-WS			N $\text{O}$ 排出係数 g-N $\text{O}$ /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 °C	平均FB温度 °C	層との温度差 °C	推定 $\text{N}_2\text{O}$ 濃度 ppm			N $\text{O}$ 排出係数 g-N $\text{O}$ /t-WS			N $\text{O}$ 排出係数 g-N $\text{O}$ /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-N<sub>2</sub>O /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 N<sub>2</sub>O 排出係数の大きな焼却炉が全体の N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O 排出係数の大きな焼却炉での N<sub>2</sub>O 対策は、全国の下水汚泥焼却炉全体の N<sub>2</sub>O 排出係数を引き下げることに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、N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O への転換率を二次式で近似した場合の、湿ベースの N<sub>2</sub>O 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-N<sub>2</sub>O/t-WS、標準偏差 407 g-N<sub>2</sub>O/t-WS で正規分布を仮定すると、平均値  $\sigma$  に 16 基のデータがはいる。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と思われるが、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、

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

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-N<sub>2</sub>O/t-WS

$E_{95}$  : 95%信頼区間 ( $=1.98\sigma$ ) g-N<sub>2</sub>O/t-WS

$\sigma$  : 標準偏差 g-N<sub>2</sub>O/t-WS

となる。

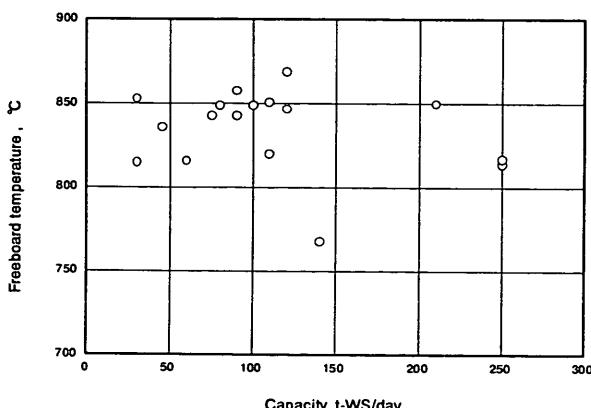


図-29 焼却容量と FB 最高温度の関係

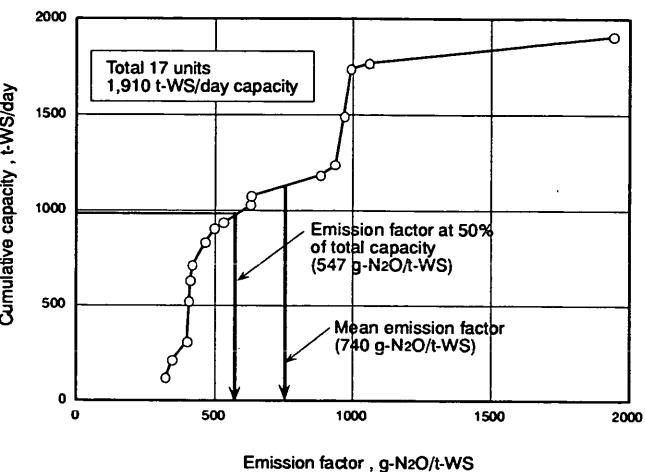


図-28 N<sub>2</sub>O 排出特性と焼却容量積算値 (2 次)

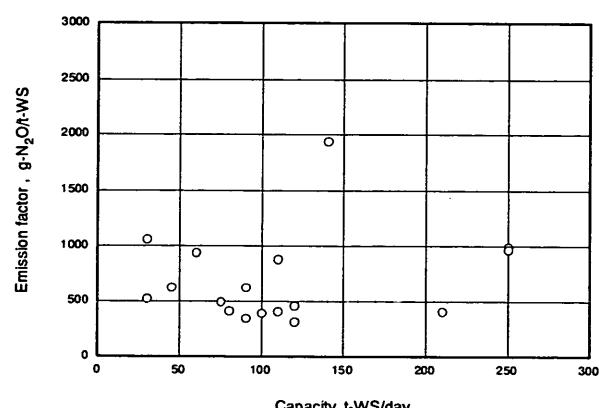


図-30 焼却容量と湿ベース N<sub>2</sub>O 排出係数

今回の運転データ解析から得られた  $\text{N}_2\text{O}$  排出係数の加重平均値、733 g· $\text{N}_2\text{O}/\text{t}\cdot\text{WS}$  は表-7 に示される実地調査で得られた値である 866 g· $\text{N}_2\text{O}/\text{t}\cdot\text{WS}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  のインベントリーの推定にあたって、排出係数を 839 g· $\text{N}_2\text{O}/\text{t}\cdot\text{WS}$  としている<sup>8)</sup>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  $\text{N}_2\text{O}$  インベントリー推計の手順に従って計算を試みた、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· $\text{N}_2\text{O}/\text{t}\cdot\text{WS}$  を乗じると、 $\text{N}_2\text{O}$  のインベントリーは 2.81Gg· $\text{N}_2\text{O}/\text{year}$  となる。また、総焼却容量ベースでは、調査した 17 基で 1.5t· $\text{N}_2\text{O}/\text{day}$  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、3.6Gg· $\text{N}_2\text{O}/\text{year}$  の  $\text{N}_2\text{O}$  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入手し  $\text{N}_2\text{O}$  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、 $\text{N}_2\text{O}$  排出濃度を推定し、その炉の  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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、環境省が  $\text{N}_2\text{O}$  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  $\text{CH}_4$  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  $\text{CH}_4$  抑制効果が確認できた。これは、返送汚泥中に  $\text{NO}_3^-$  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  $\text{CH}_4$  抑制には効果的である。脱窒反応が  $\text{CH}_4$  にどのような影響を与えていたか、詳細は不明だが、脱窒反応のエネルギー源として、 $\text{CH}_4$  が消費されたとも考えられる。

$\text{N}_2\text{O}$  に関しては、期間平均で 100mg $\text{N}_2\text{O}\cdot\text{N}/\text{m}^3$  程度の排出があり、期間最大値は 450mg $\text{N}_2\text{O}\cdot\text{N}/\text{m}^3$  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  $\text{N}_2\text{O}$  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、 $\text{N}_2\text{O}$  生成量を低く保つことが可能であり、その量は高くても 55.3mg $\text{N}_2\text{O}\cdot\text{N}/\text{m}^3$  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

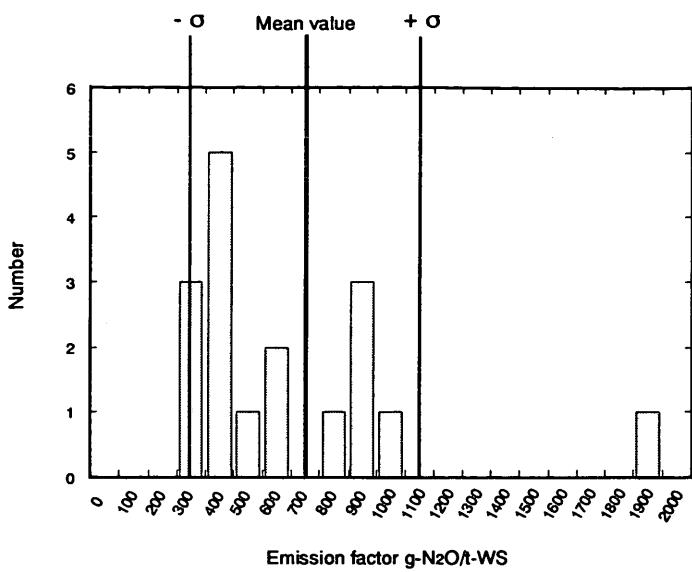


図-31 排出係数の出現頻度分布

Mean value

- ○

+ ○

Emission factor g-N<sub>2</sub>O/t·WS

Number

0

1

2

3

4

5

6

7

8

9

10

11

12

13

14

15

16

17

18

19

20

21

22

23

24

25

26

27

28

29

30

31

32

33

34

35

36

37

38

39

40

41

42

43

44

45

46

47

48

49

50

51

52

53

54

55

56

57

58

59

60

61

62

63

64

65

66

67

68

69

70

71

72

73

74

75

76

77

78

79

80

81

82

83

84

85

86

87

88

89

90

91

92

93

94

95

96

97

98

99

100

101

102

103

104

105

106

107

108

109

110

111

112

113

114

115

116

117

118

119

120

121

122

123

124

125

126

127

128

129

130

131

132

133

134

135

136

137

138

139

140

141

142

143

144

145

146

147

148

149

150

151

152

153

154

155

156

157

158

159

160

161

162

163

164

165

166

167

168

169

170

171

172

173

174

175

176

177

178

179

180

181

182

183

184

185

186

187

188

189

190

191

192

193

194

195

196

197

198

199

200

201

202

203

204

205

206

207

208

209

210

211

212

213

214

215

216

217

218

219

220

221

222

223

224

225

226

227

228

229

230

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<sub>2</sub>O 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<sub>2</sub>O 排出係数は必ずしも炉の N<sub>2</sub>O 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<sub>2</sub>O 排出係数は湿汚泥基準で、350～1,416 g·N<sub>2</sub>O/t·WS、平均値 792 g·N<sub>2</sub>O/t·WS、乾燥汚泥基準で 1,672～6,643 g·N<sub>2</sub>O/t·DS、平均値 3,755 g·N<sub>2</sub>O/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<sub>2</sub>O/t·WS、4,024 g·N<sub>2</sub>O/t·DS となり、IPCC の推奨値にくらべかなり大きな値となった。焼却炉においては、N<sub>2</sub>O 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<sub>2</sub>O 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<sub>2</sub>O 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<sub>2</sub>O/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<sub>2</sub>O 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<sub>2</sub>O のインベントリーは 2.81Gg·N<sub>2</sub>O/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<sub>2</sub>O/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<sub>2</sub>O/year の N<sub>2</sub>O 排出量があることも推定できる。

## 6. 引用文献

- 1) 玉置、他：環境技術、24、pp. 50、1995.
- 2) <http://www.ipcc-nigip.iges.or.jp/public/gp/gpgau.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

## 7. 国際共同研究等の状況

なし

## 8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表（学術誌・書籍）

<学術誌（査読あり）>

なし

<学術誌（査読なし）>

- ① 平出亮輔、鈴木穂、川嶋幸徳：土木技術資料、vol.44No.2、pp. 56-61、2002  
「下水処理過程からの温室効果ガス N<sub>2</sub>O 排出特性」

<書籍>

なし

<報告書類等>

- ① 高橋正宏、鈴木穂、他：国総研資料第 10 号、pp. 93-96、2001  
「平成 12 年度下水道関係調査研究年次報告書集」
- ② 中島英一郎、川嶋幸徳、平出亮輔：国総研資料第 64 号、pp. 119-122、2002  
「平成 13 年度下水道関係調査研究年次報告書集」
- (2) 口頭発表
- ① 鈴木善三、川嶋幸徳、平出亮輔：第 12 回環境工学総合シンポジウム、(社)日本機械学会、2002  
「下水汚泥流動焼却炉の亜酸化窒素排出量の連続測定（II）」
- ② 平出亮輔、川嶋幸徳、他：第 39 回下水道研究発表会、(社)日本下水道協会、2002  
「下水処理過程から排出される温室効果ガスの排出特性に関する研究」
- ③ 平出亮輔、中島智史、中島英一郎：第 37 回日本水環境学会、(社)日本水環境学会、2003  
「水処理過程から排出される温室効果ガス (CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O) に関する研究」
- (3) 特許出願
- なし
- (4) 受賞等
- なし
- (5) 一般への公表・報道等
- なし

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

当研究で得られた成果は、温室効果ガス排出総量計算時の基礎資料として利用され、各地方自治体においても下水処理施設を建設・運転管理時の資料としても活用する。また、「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。