

B-16 地球温暖化抑制のためのCH₄、N₂Oの対策技術開発と評価に関する研究
(7) 廃棄物処理分野におけるメタン・亜酸化窒素の発生抑制対策に関する研究

研究代表者 国立公衆衛生院廃棄物工学部 田中 勝

厚生省国立公衆衛生院

廃棄物工学部

最終処分工学室

廃棄物計画室

地域環境衛生学部

環境評価室

田中 勝

井上雄三

大迫政浩

山田正人

渡辺征夫

平成7～9年度合計予算額 21,734千円
(平成9年度当初予算額 7,249千円)

〔要旨〕 廃棄物処理分野におけるメタンおよび亜酸化窒素の排出実態および発生抑制対策を現場観測等から検討した。機械化バッチ式ごみ焼却炉において、連続観測により求めたメタン排出係数は、燃焼が良好である低負荷ならびに燃し切り運転時に低く、不完全燃焼が生じている高負荷ならびに埋火運転時に高くなっており、ごみの適正な燃焼がメタン発生抑制においても重要であることがわかった我が国で排出されるし尿および生活雑排水に含まれる窒素のうち26%がし尿処理施設に投入されており、そのうち亜酸化窒素発生が大きいとされる高負荷型脱窒素処理施設における発生ポテンシャルは、し尿および生活雑排水由来の亜酸化窒素全体の3%程度であると推定された。高負荷脱窒素処理施設における全国調査では、投入し尿および浄化槽汚泥のCOD/T-N比が低い施設で亜酸化窒素転換率が大きくなる傾向が認められた。また、連続観測では、し尿等が搬入される時間帯や反応槽への供給空気量の切替え時に亜酸化窒素濃度が増加する傾向がみられ、反応槽投入物の質の制御および操作のタイミングが亜酸化窒素の発生抑制に重要であることが示唆された。一般廃棄物最終処分場では、わが国、韓国およびインドネシアにおける現場観測により、埋め立てられたごみの埋蔵期間や覆土の透気性が時期的および場所的なメタン放出量の変動に関与しており、さらに覆土に比較的高いメタン酸化能があることが示唆された。また、覆土における大気および埋立地ガスの拡散・移動と、実験的に求めた覆土のメタン酸化を組み合わせる数理モデルを構築し、ごみ層におけるガス圧と覆土の透気性の制御が、覆土の酸化能を最大化するようなメタン発生抑制対策を考える際に重要であることを示した。

〔キーワード〕 地球温暖化、メタン、亜酸化窒素、廃棄物処理、放出機構、発生抑制対策

1. 序

廃棄物処理分野では、最終処分場、ごみ焼却施設およびし尿処理場から、燃焼または生物代謝に由来するメタンおよび亜酸化窒素が発生し、メタンでは最終処分場が、亜酸化窒素ではごみ焼却施設およびし尿処理場が発生源としての寄与が大きい¹⁾。したがって、まずこれら施設における対策を優先させるべきである。しかし、様々な物質で構成される廃棄物より放出される温室効果ガスの実態およびメカニズムには不明な点が多く、実施による放出実態を把握し、その現状に見合った制御可能な因子を検討する必要がある。加えて、世界的には最終処分場からのメタン放出の抑制が重要であり、気候帯や開発途上国等、地域の環境や社会状況に合わせた適正な技術の開発および評価が急務である。

本研究では、わが国のごみ焼却施設とし尿処理施設、およびわが国とアジア地域における一般廃棄物最終処分場で行った現地観測により、メタンと亜酸化窒素の放出に関与するいくつかの因子を抽出し、室内

実験、数値シミュレーション、および文献調査等と併せて、発生抑制対策を検討した。

2. ごみ焼却施設におけるメタンの放出抑制対策の検討

2. 1 はじめに

我が国では、一般廃棄物の中間処理における焼却率が平成6年度で75.5%に達しており、世界有数のごみ焼却大国である。ごみ焼却施設の中で、処理量では大規模な全連続式の施設が全体の70%余りを占めているが施設数ではより小規模な機械化バッチ式の施設が全体の50%弱と多数を占める。全連続式焼却施設では24時間の定常運転によりメタンの排出量は比較的小さく、場合によっては排ガス中のメタン濃度は大気濃度よりも低くなるが、1日8時間で立ち上げ、定常燃焼、立ち下げ、埋火という間欠運転を行う機械化バッチ式込み焼却施設ではメタンの排出量が比較的大きい^り。平成8年度には、機械化バッチ式ごみ焼却施設において、排ガス中のメタン濃度を現場で連続測定し、当施設におけるメタン放出抑制対策を検討した。

2. 2 機械化バッチ式ごみ焼却施設におけるメタンの放出抑制対策の検討

(1)方法：調査を行った焼却施設は、平成3年に竣工された多段扇型ストーカ式の機械化バッチ式燃焼施設で、焼却能力は23t/day×2基(1日8時間稼働)である。燃焼炉から発生した排ガスは、空気予熱器、白煙防止器を通過、有害ガス除去のため消石灰を噴霧した後、電気集塵器でばいじんを除去した後に、煙突より大気へ放出される。連続測定は、平成8年12月10日～12月13日、12月16日～20日および平成9年1月21日～25日に行った。試料の採取および分析には現場に設置した自動連続分析システムを用いた。煙突直前煙道のフランジにサンプリング管を取り付け、ステンレス管(1/8インチ)により約10m引き廻し、施設横に設置した小屋まで配管した。小屋で吸引した試料は、4mL/minで100mLのガスタイトシリンジに25分間自動的に分取して平均化した後、切り替えバルブにより計量管(2mL)経由で、ガスクロマト装置へ導入した。分離カラムにはPorapakN(1.5m、3/1.5mm)を用い、カラムオープン温度は60℃に設定した。検出器にはFIDを用いた。得られたクロマトグラムはデータ処理装置(島津C-R6A)に磁気データとして記録した。以上の操作はBASICプログラムにより30分サイクルで自動制御した。

(2)結果：図1に平成8年12月17日～18日に排ガス中のメタン濃度ならびにごみ投入量等を示す。なお、12月17日には炉内のごみを全て焼

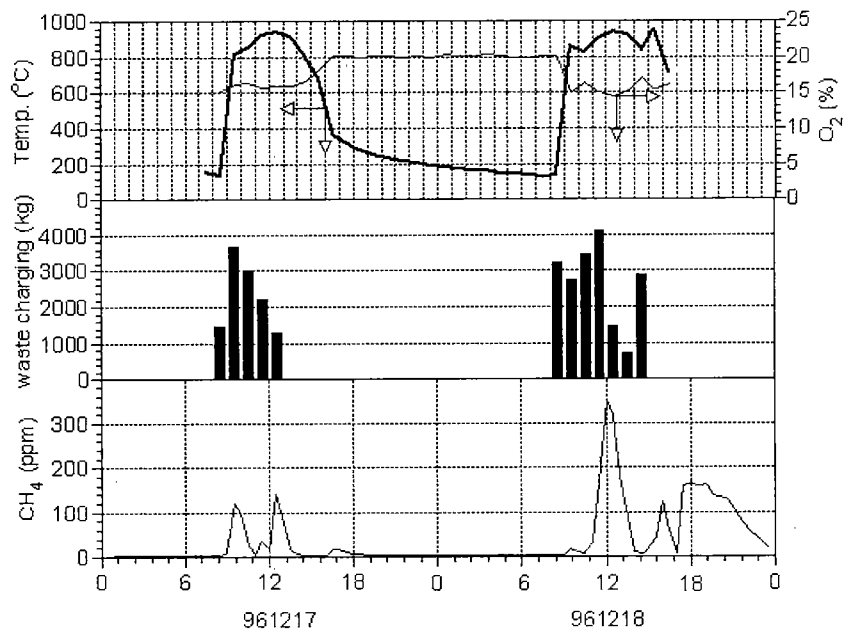


図1 バッチ式ごみ焼却炉における排ガス中のメタンの濃度の変動

(1)方法：既存データ集^{7,8)}

より高負荷脱窒素処理方式の施設についてデータベースを作成し、表3に示す15の施設を選定した。それぞれの施設にガス採取用具一式(エアポンプ、2L アルミニウムバッグ等)を送付し、ガスの採取と投入し尿・浄化槽汚泥量および槽内・放流水の性状等の基礎データの提供を依頼した。なお、ガスは排風臭気用ダクトの採取孔で吸引風量1L/min程度で10分間バッグに採取した。返送されたガス試料は採取日から1週間以内に、GC-ECDでN₂O、GC-FIDでCH₄、GC-TCDでN₂、O₂およびCO₂を分離定量した。

(2)結果：表4にN₂O放出量、N₂O排出係数および投入窒素成分のN₂O転換率を示した。調査した施設の全てでN₂Oの放出が認められ、大きいところでは数百ppmvオーダーの濃度が観測され、N₂O転換率が数十%オーダーにあった。排水処理における硝化脱窒過程においてN₂Oは；①硝化反応におけるNO₂⁻の還元および②脱窒反応における中間生成物として発生する。これらに影響する因子として、これまで前者では有機物濃度、DO濃度、SRTが、また後者ではC/N比、pH、SRTが挙げられている⁹⁾¹⁰⁾。図2には投入基質のCOD/T-N比とN₂O転換率の関係をプロットした。図は、COD/T-N比(重量比)が2よりも小さい領域ではこの比の低下とともにN₂O転換率が高くなる傾向を示しており、N₂Oの発生が主に電子供与体の不足¹⁰⁾すなわち脱窒反応に由来することを示唆している。

表4 調査結果

施設名	N ₂ O濃度 (ppmv)	N ₂ O排出係数 (g-N ₂ O/kL)	N ₂ O転換率 (%)
A	1.1x10 ²	4.8x10 ²	7.9
B	13	2.1x10 ²	4.2
C	7.9x10 ²	1.2x10 ²	45
D	96	86	1.9
E	29	75	-
F	7.1x10 ²	4.3x10 ³	89
G	1.8	4.8	0.12
H	4.1x10 ²	7.0x10 ²	9.9
I	7.1	30	0.63
J	5.6x10 ²	42	0.52
K	54	5.3x10 ²	14
L	0.76	7	0.16
M	7.3	21	-
N	1.7	14	0.24
O	69	1.3x10 ²	2.1

表3 調査対象施設の概要

施設名	竣工年	処理能力 (kL/year)	処理量 (10 ³ kL/year)			主反応槽	メタノール添加
			し尿	浄化槽汚泥	比率 (%)		
A	1982	80	27	1.4	4.8	単一	なし
B	1991	80	20	3.6	15	単一	なし
C	1987	320	62	27	30	複数 ¹⁾	なし
D	1990	115	20	20	51	単一	なし
E	1986	100	11	29	72 ^{a)}	単一	なし
F	1983	40	12	2.3	16	複数	あり
G	1991	70	18	4.8	21	複数 ^{c)}	あり
H	1985	110	32	3.8	10	複数 ^{b)}	なし
I	1992	45	1.3	0.031	19	単一 ^{d)}	あり
J	1989	60	22	3	12	単一	-
K	1992	70	20	2.1	9.4	複数	あり
L	1988	110	20	8.9	31	複数	あり
M	1991	85	7.5	14	64	単一	あり
N	1992	34	2	0.047	19	単一 ^{e)}	あり
O	1970	80	29	2.4	7.6	単一	あり

a: し尿と浄化槽汚泥は別系統で処理されている

b: 二段階, c: 二段階, 希釈水使用, d: 仕上げ槽あり, e: プロセス水による希釈

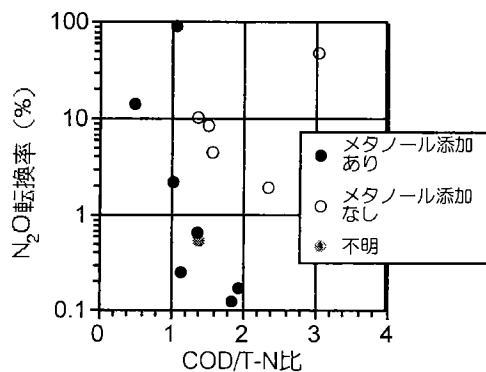


図2 COD/T-N比とN₂O転換率の関係

却してから消火する「燃し切り」を行ったのに対して、12月18日では炉内にごみを残留させて種火を残す「埋火」の操作を行っている。排ガス流量から算出したごみ投入量に対するメタン排出係数はそれぞれ374g/t、697g/tであり、両日で2倍弱の差が見られた。また、燃し切りを行った17日には炉停止後の排ガス中メタン濃度が3ppm前後と安定していたのに対し、埋火を行った18日には夜間に最大167ppmのピークが観測された。定常運転時における炉出口温度および排ガス中の酸素濃度は燃焼が不安定であったことを示している。これは、17日のごみ投入量が比較的少なく、18日ではごみ投入量が多かったことに起因すると考えられる。

2. 3 まとめ

以上より、この形式の焼却施設では、①適切なごみ投入による燃焼の安定化、および、②燃し切り運転または24時間連続運転の実施等の運転改善がメタンの発生抑制対策として重要である。

3. し尿処理施設における亜酸化窒素の発生抑制対策の検討

3. 1 し尿処理施設からの亜酸化窒素発生ポテンシャルの推定

IPCC²⁾の推定では、下水、し尿等の人間生活に由来する人為的な亜酸化窒素の発生源は項目として取り上げられていない。しかし、Watanabaら³⁾はし尿および生活雑排水から排出される窒素のうち、一部(0.1~10%)が亜酸化窒素に変換されるとすると、その地球全体の放出量は0.01~1.3Tg・Ng/yrに達し、他の放出量と比較して無視できないことを指摘している。したがって、まず、我が国のし尿処理施設における亜酸化窒素発生ポテンシャルの推定を行った。

我が国において、公共下水道等のサービスを受けている人口⁴⁾を表1に示す。今回対象とするし尿処理施設には生し尿の他に、単独処理浄化槽ならびに合併処理浄化槽の汚泥が投入される。そこで、し尿および生活雑排水より汚泥中に移行する窒素量を表2に示すように推定した。すなわち、し尿処理施設で処理される窒素は併せて全人口の25.6%に相当する。これまで、数千ppmvオーダーのN₂Oの発生が観測されている¹⁾高負荷型脱窒素処理方式の施設においては、処理窒素量全体の10%、すなわち

3.2×10^7 g-N/dayが投入される。この施設における全窒素に対する亜酸化窒素への転換率は0.12~14%の範囲にある⁵⁾とすると、放出量は0.014~1.6Gg/yearと推定される。Watanabe³⁾らの推定によると、我が国におけるし尿および生活雑排水全体からの亜酸化窒素発生ポテンシャルは0.46~45.6Gg/yearであるから、その3%程度が高負荷型し尿処理施設に由来することになる。

3. 2 高負荷脱窒素処理方式し尿処理施設における亜酸化窒素転換率の把握

表1 我が国におけるし尿および生活雑排水処理の状況 (1993年度)⁴⁾

	人口(千人)	比率(%)
公共下水道	54890	43.9
コミュニティープラント	401	0.3
合併処理浄化槽	7856	6.3
単独処理浄化槽	26818	21.5
し尿処理施設	29686	23.8
下水道マンホール等投入	1573	1.3
農村還元等	0.3	0.0
海洋投入	2586	2.1
自家処理	1126	0.9
合計	124936	100.0

表2 浄化槽汚泥に移行する窒素量の推定^{3) 5)}

	汚泥発生量 L/人/日	汚泥中の全窒素成分 mg-N/L	人間による窒素排出原単位 g-N/人/日	汚泥中に移行する窒素割合 %
単独処理浄化槽	0.5	400	7	5.7
合併処理浄化槽	1.5	700	10	10.0

3. 3 連続観測による亜酸化窒素の発生挙動の把握

(1)方法：観測を行ったし尿処理施設は、平成8年に竣工された膜分離高負荷生物脱窒素処理方式の施設であり、処理能力は38kL/dayである。本施設における主反応槽は密閉式の単一槽であり、断続的（30分毎）に循環ポンプを動かし、曝気空気を自然吸引して、硝化過程と脱窒過程を制御している。また、生物処理後の固液分離を限外ろ過（UF）膜でおこない、槽内に微生物を高濃度で保持することで高負荷運転をおこなっている。なお、本施設ではメタノール添加は行っていない。亜酸化窒素の連続測定は、平成10年4月23～24日にかけて行った。硝化脱窒反応槽上部の消泡装置を通過後の中濃度臭気排気ダクトのサンプリング孔より、氷冷トラップを経由して、テフロン管で分析装置まで配管した。ダクトからの排気ガスの吸引採取（約1L/min）および N_2O 濃度の測定は、ガスフィルタ相関式赤外吸収分析計（Model 46C-HL, Thermo Environment Instruments）で行った。濃度はアナログでチャート紙に連続的に記録し、チャート紙から測定開始から1分間隔でデータを読み取って解析に用いた。

(2)結果：図3に4月23日における N_2O 濃度の経時変動を、槽内水のORPおよび供給空気量とともに示した。今回測定された N_2O 濃度は、平均して3ppmであり、この施設では、これまで報告されているような高濃度の N_2O ¹¹⁾は発生していなかったが、0～36.5ppmの範囲で周期的な発生濃度の変動が認められた。この変動には、①30分毎に現れる10～40ppm程度のピークと、②午前10時頃から午後13時頃にかけてのベースラインの上昇という2つのパターンがあった。前者は、供給空気量が周期的に減少する直後から上昇し、槽内のORPの低下とともに下降するピークであり、これまで報告されているように¹¹⁾、曝気量の切り替わりにより、硝化または脱窒反応（おそらくは脱窒反応）の進行が不完全になることが原因と推測される。また、後者は施設に新たなし尿および浄化槽汚泥が搬入される時間帯にほぼ一致しており、反応槽内の基質の質の変動が原因と推測される。

3. 4 まとめ

今回の結果は、高負荷脱窒素処理方式し尿処理場において、基質の N_2O 転換率が大きい場合には数十%オーダーに達すること、また、し尿等の性状が脱窒反応における N_2O 発生に影響していること、また、単一槽で硝化脱窒をおこなう施設では、硝化・脱窒工程の切り替えや搬入物の投入等の操作により、 N_2O 発生が大きく変動することを示している。これらの N_2O 発生に対する変動因子は、いいかえれば、 N_2O

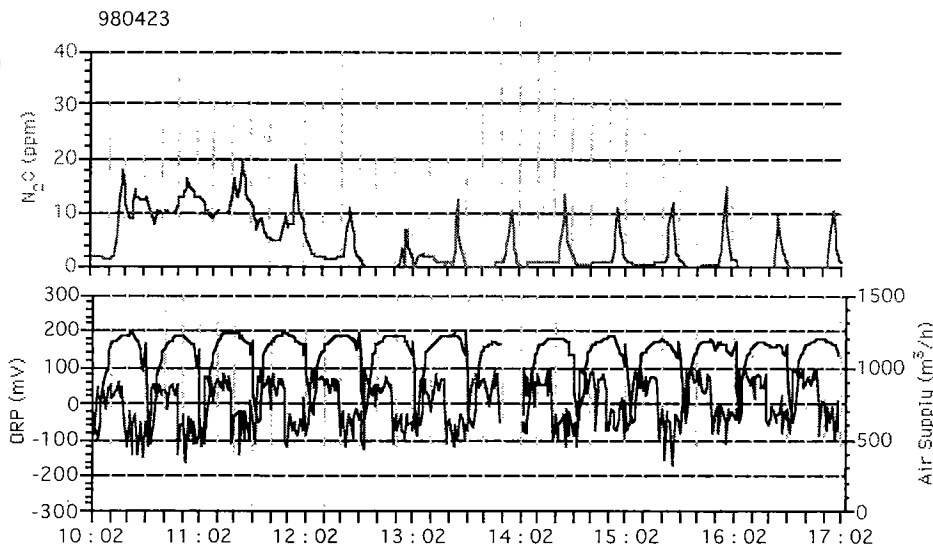


図3 反応槽排気中の N_2O 濃度、反応槽内ORP、反応槽への空気供給量の変動

発生抑制の操作因子になると考えられ、その最適化について検討を進める必要がある。さらに、自然界における硝化・脱窒における亜酸化窒素の発生状況、および富栄養化等の他の環境影響との比較において便益を考慮し、硝化脱窒操作の是非を検討して行くことも必要である。

4. 最終処分場からのメタンの発生抑制対策

4. 1 はじめに

廃棄物最終処分場から放出される CH_4 ガスは、他の発生源を合わせた全球発生量の 3~10% に相当すると概算されている²⁾。また、わが国における一般廃棄物最終処分場から年間 130~520Gg の放出が推定され、廃棄物処理関連施設全体の 50% から 90% 以上を占める¹⁾。さらに、各国で進行している急速な経済成長と都市化による都市ごみの増加にともない世界的な CH_4 放出量の増加も予想される。本研究では、最終処分場の覆土に存在するメタントロフ（メタン酸化細菌群）に着目して、わが国および海外における CH_4 の放出特性および覆土による CH_4 の酸化能を調査し、また、室内実験と数値解析をおこなって、開発途上国でも適用可能な簡易な覆土の施用による CH_4 発生抑制の可能性を検討した。

4. 2 わが国の最終処分場における CH_4 放出特性の検討

(1)方法：調査した最終処分場（埋立面積約 2 万 m^2 ）は、主に生ごみを埋立処分する一般廃棄物最終処分場で、1993 年からごみが搬入されていた。調査は 1995 年 9 月 14 日（夏期調査）および 12 月 19 日（冬期調査）に行った。面的な分布特性を把握できるように測点を設け、地表面から放出されるガスフラックスを閉鎖式チャンバー法¹⁾で測定した。また、ガス抜き管において強制排気式チャンバー法¹⁾でガス放出速度を測定した。採取したガス試料についてはガスクロマトグラフ（検出器 FID 及び TCD）を用いて組成（ O_2 、 N_2 、 CO_2 および CH_4 ）及び濃度を測定した。さらに、覆土土壌物性（含水率、間隙率、強熱減量等）やメタン酸化細菌（メタントロフ）数¹⁾もあわせて測定した。

(2)結果：図 4 に地表面の CH_4 フラックスの分布を示した。地表面 CH_4 フラックスは埋立地内で場所的に大きく変動しており、また、冬期調査において平均した地表面 CH_4 フラックスは 0.012 L/min/m^2 、夏期調査では 0.060 L/min/m^2 であった。これら地表面フラックスは場所的にごみ層上部により古いごみが存在する領域で大きくなる傾向にあった。また、覆土表面が乾燥シラックが多数認められた夏期調査では CH_4 全放出量の 90% 以上が地表面から放出されていたが、表面が比較的湿潤し締まった状態にあった冬期調査では約 90% がガス抜き管から放出されていた。図 5 に CH_4 と炭素性ガス（ CH_4 および CO_2 ）の比率（メタン比率）を地表面フラックスとガス抜き管で比較した。ガス抜き管ガスの組成はごみ層からの発生ガスに近いから、図 5 に示された地表面フラックスのメタン比率の低下は覆土層を通過した影響であると考えられる。図 6 は覆土層 30 cm

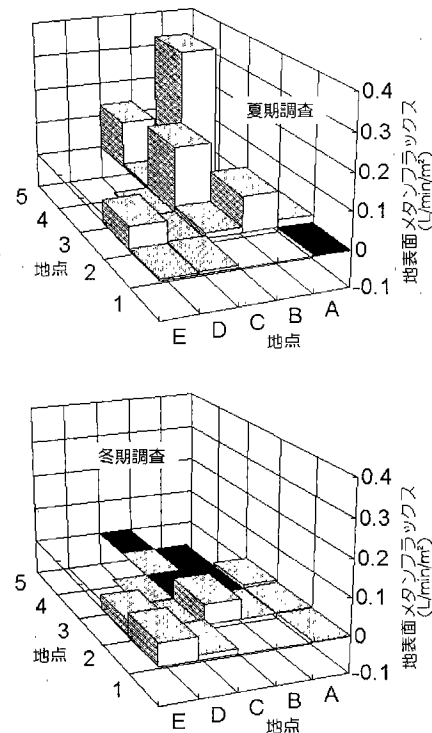


図 4 地表面メタンフラックスの分布

深さにおけるメタノトローフの平面分布である。図は CH_4 を代謝し二酸化炭素を生成するメタノトローフが埋立地覆土層全域に分布することを示している。ここで、覆土のメタン酸化能を調べるため、上記最終処分場覆土から採取した土壌約 10 g を褐色バイアル瓶 (125 mL) に封入し、組成を調整した気体 (O_2 : 20%, CH_4 : 349 ppm~80%, N_2 バランス) を充填した後インキュベーター ($30 \pm 1^\circ\text{C}$) 内に置き、経時的に気体を採取してその組成変化を測定した。図 7 は初期 CH_4 濃度に対するメタン減少速度を示したものである。土壌のメタン酸化特性を表すため、このプロットをミカエリスメンテン型の式 ($V = V_{\max} \cdot [S] / (K_m + [S])$) に適合させ、式中の最大メタン減少速度 V_{\max} は 1.2×10^{-8} mol/min/dry-g, 半飽和定数 K_m は 1.25×10^4 ppm と求められた。この最大メタン減少速度と覆土土壌の平均比重 2.8 g/cm^3 , 現場における覆土層厚さ約 1 m, 活性の温度補正値として文献¹²⁾より $Q_{10}=1.9$ および最適温度 31°C を用いると、覆土単位面積あたりのメタン減少速度は最大で夏期調査で 0.079 L/min/m^2 , 冬期調査で 0.061 L/min/m^2 と概算された。これらの値は先に示した地表面 CH_4 フラックスと同程度にあり、覆土のメタン酸化能が地表面からのメタン放出に匹敵するレベルにあった。

4. 3 海外の最終処分場における調査

(1) 韓国: 調査の対象とした最終処分場 (埋立面積約 6 万 8 千 m^2) はソウル市に近郊に位置し、1991 年から 1994 年にかけて都市ごみや下水汚泥等が搬入されており、表面には覆土が施されていた。調査は 1996 年 2 月 22 日に行い、地表面フラックス、ガス抜き管放出速度および土壌物性、メタノトローフ数を測定した。図 8 に処分場中央縦断線における地表面 CH_4 フラックスの観測結果を示す。地表面 CH_4 フラックスは $0 \sim 1.3 \times 10^{-3} \text{ L/min/m}^2$ で、わが国の処分場の観測地よりも数オーダー低い値にあった。また、ガス抜き管放出速度は $0.6 \sim 6.6 \text{ L/min}$ でわが国の観測地よりもやや低いオーダーにあった。観測時が冬期であり、現場の覆土土壌が地表面数 cm 以下が凍結しており透気性が非常に小さく、またごみ層の厚さが平均して約 2m と薄く外気温の影響を受けやすいことが、地表面フラックスおよびガス抜き管放出速度を低下させていたためと考えられる。なお、覆土土壌表面 (0~10cm 深さ) にはわが国の観測地と同程度 ($10^7 \sim 10^8$ /dry-g オーダー) のメタノトローフの存在が確認された。

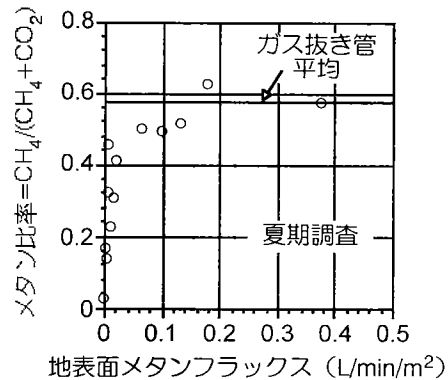


図5 メタン比率の比較

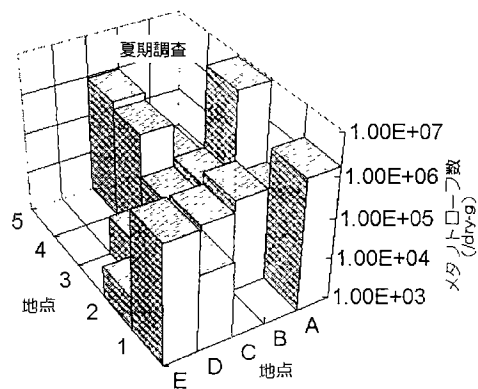


図6 メタノトローフの分布

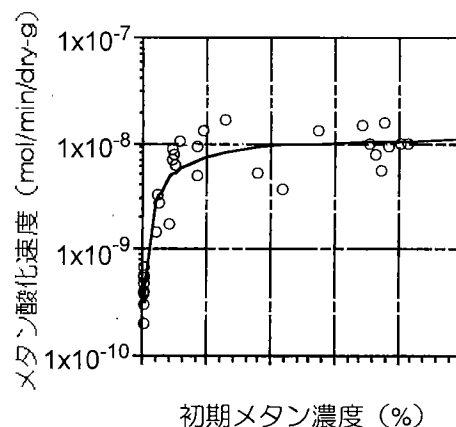


図7 初期メタン濃度とメタン酸化速度の関係

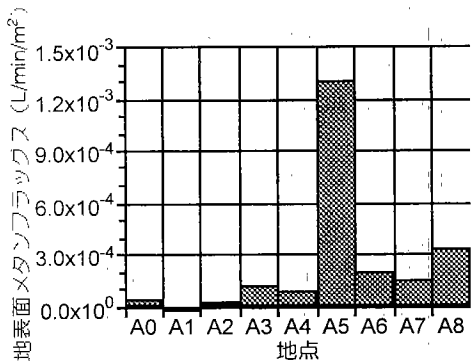


図8 韓国最終処分場における
地表面メタンフラックスの分布

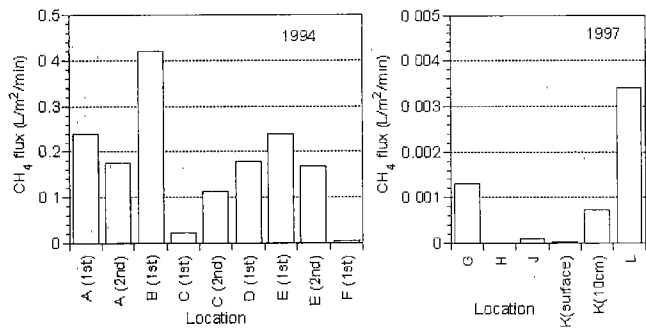


図9 インドネシア最終処分場における
地表面メタンフラックス

(2)インドネシア：1997年2月11日にジャカルタ郊外ベカシ市の Bantengbang 最終処分場において、覆土における地表面メタンフラックスをチャンパー法で測定した。当最終処分場では1994年および1995年の同時期に調査を行っている¹⁾。図9に測定結果を1994年に行った調査と共に示すが、今回の調査では以前の調査よりメタン地表面フラックスが全体的に2オーダー程小さかった。また地表面と10cm掘り下げた地面（K地点）において、後者で若干フラックスが大きくなる傾向があった。覆土表面には草本が繁茂し、覆土は粘土質で水を含んで、掘り返すのが困難なほど堅く締まっており、クラックもほとんど観察されなかった。したがって、今回の観測された低いフラックスは、主に覆土の透気性が著しく低かったことが原因であると考えられる。

なお、平成9年度は、将来、メタン放出量を観測するために、中国の上海市、成都市および北京市の最終処分場において、現地との協議と基礎調査を行った。

4. 4 可搬型メタン分析計の開発

廃棄物最終処分場では、地表面からのメタンフラックスが場所的に不均一なため、チャンパー法を用いて測定する場合、なるべく多数の測点をとる必要があり、現場で迅速にメタンを分析可能な機器が有用である。キャリアーガス等の圧縮ガスを使用せず、可搬性の高い四重極質量分析計(Q-MS)を用いたメタン分析計を、日本原子力研究所の阿部哲也氏、廣木成治氏、ならびに(株)荏原総合研究所との共同で試作し、これを室内実験および現場調査で評価した。

試作したメタン分析計は、ダイヤフラムポンプにて循環される大気圧試料ガスを微量流量バルブを介して真空系へ取り込み、質量分析法によりメタンを定量するものである。分析部は1~100amuの四重極分析型(Q-MS)と排気速度50L/secの小型ターボ分子ポンプ(TMP)および試料ガス循環ダイヤフラムポンプからなり、制御部はQ-MSとTMPのコントローラーおよびレコーダーから成る。装置全体の概要を図10に示す。Q-MSからの15amu (CH₃⁺, ¹⁵N⁺) および14amu (CH₂⁺, ¹⁴N⁺) の信号を利用し、なお、メタンと窒素の信号強度を比較することにより定量を行った。それぞれの信号強度をM14およびM15(A)とすると、メタン濃度をx(%)との関係は式(1)で表される；

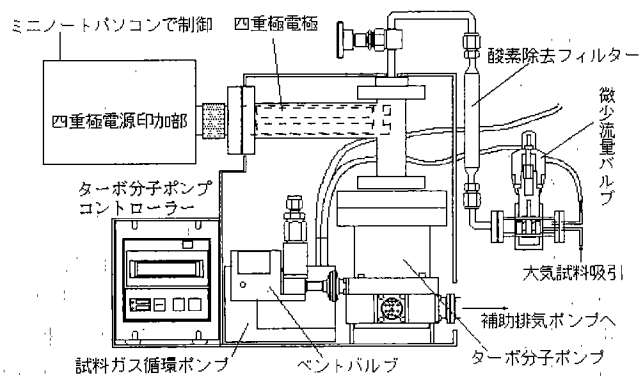


図10 可搬型メタン分析計(四重極質量分析計)

$$\frac{M15}{M14} = \frac{CH_3^+ + {}^{15}N^+}{CH_2^+ + {}^{14}N^+} = \frac{x \cdot 0.84 \cdot 1.25 + (100 - x) \cdot 0.7809 \cdot 0.000365 \cdot 0.084}{x \cdot 0.135 \cdot 1.25 + (100 - x) \cdot 0.7809 \cdot 0.099635 \cdot 0.084} \quad (1)$$

図11に標準ガス試料による測定値と式(1)による理論値の比較を示した。この方法は、真空系内のガス圧力に関係なく定量を行える特徴を持つ。なお、現状でメタンガスに対する定量限界は100ppmである。さらに、チャンパーにメタン分析計を接続し内部のメタン濃度を十数秒毎に計測し、テドラーバックに採取した試料のGC-FID法による測定値との比較したものを図12に示す。メタンガス濃度は両者とも良く一致していた ($r=0.953$)。

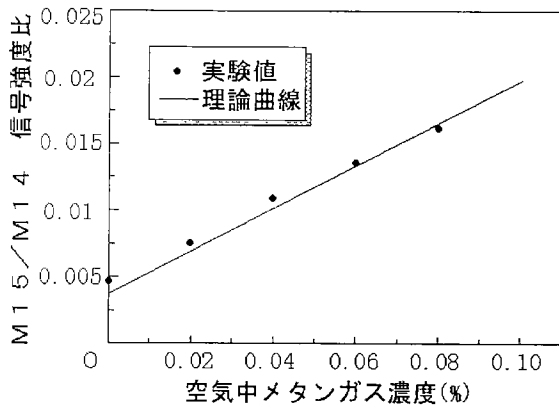


図11 Q-MSにおける測定値と理論値の比較

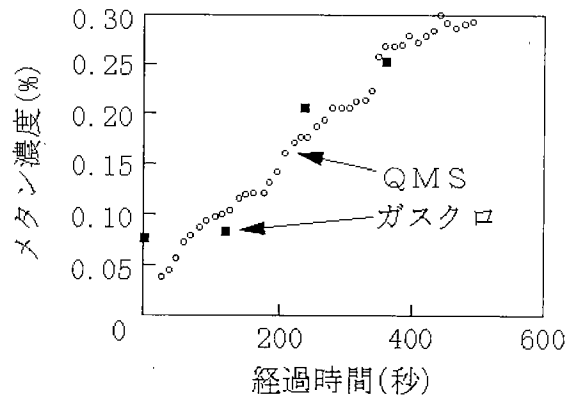


図12 Q-MSによるチャンパー内メタン濃度変動の測定例

4. 5 覆土中のメタン酸化及び移動の数値解析

(1)方法：埋立地ガスおよび大気の覆土内における移動過程としては、全圧勾配による流動と濃度勾配による分子拡散が考えられる。まず、田中と神山¹³⁾にしたがい、ガスが2成分(A、B)の場合、ガス成分Aにおけるステファン-マックスウェルの式による拡散流れは次式で表した。

$$-\frac{1}{RT} \cdot \frac{dP_A}{dz} = \frac{N_A^D \cdot X_B - N_B^D \cdot X_A}{D_{AB}} \cdot \frac{\xi}{\epsilon} \quad (2)$$

$$X_A + X_B = 1 \quad (3)$$

ここで、 P_A はガス成分Aにおける全圧(Pa)、 N_A^D と N_B^D はそれぞれ成分AとBにおける拡散フラックス(mol/m²/sec)、 X_A と X_B はそれぞれ成分AとBにおけるモル分率、 D_{AB} は2成分拡散係数(m²/sec)、 ξ は屈曲係数(-)、 ϵ は土壌の気相率である。なお、多孔質中の等圧拡散の場合には、次の関係が成り立つ。

$$N_A^D \cdot \sqrt{M_A} + N_B^D \cdot \sqrt{M_B} = 0 \quad (4)$$

また、全圧流れにはダルシー則を用いた。

$$F = \frac{k}{\eta} \cdot \frac{dP}{dz} \cdot \frac{P_0}{RT} \quad (5)$$

ここで、 F はフラックス(mol/m²/sec)、 k は比透気係数(m²)、 η は粘性係数(Pa·s)、 z は多孔質媒体の

長さ (m)、 P は全圧 (Pa)、 P_0 は静圧 (Pa)、 R は気体定数 ($=8.314 \text{ m}^3 \cdot \text{Pa} / \text{mol} \cdot \text{K}$)、 T は絶対温度である (K)。次に、覆土中に存在するメタントロフによるメタンの酸化反応を、基質濃度 (CH_4 および O_2) に依存するミカエリス-メンテン型の式であらわした。

$$V = V_{\max} \cdot \frac{K_M}{K_M + X_M} \cdot \frac{K_O}{K_O + X_O} \quad (6)$$

ここで、 V は土壌の CH_4 酸化速度 ($\text{mol} / \text{m}^3 / \text{sec}$)、 V_{\max} は最大 CH_4 酸化速度 ($\text{mol} / \text{m}^3 / \text{sec}$)、 K_M と K_O はそれぞれ CH_4 と O_2 に対する半飽和定数 (-)、 X_M と X_O はそれぞれ CH_4 と O_2 のモル分率 (-) である。なお、メタン酸化速度式では、実験的に求めたメタン酸化最大速度 3.2×10^{-4} ($\text{mol} / \text{m}^3 / \text{sec}$) とメタンに対する半飽和定数 1.25% (図 7)、また、酸素に対する半飽和定数を、メタントロフが微好気性であることを考慮して 0.5% と仮定して用いた。以上をまとめて、次式で土壌ガス (N_2 、 O_2 、 CO_2 および CH_4) の全フラックスを求めた。

$$N_A^T = N_A^D + X_A \cdot F \quad (7)$$

$$\frac{\varepsilon \cdot P_0}{RT} \cdot \frac{dX_A}{dt} = -\frac{N_A^T}{dz} + R_A \quad (8)$$

ここで、 N_A^T は全フラックス ($\text{mol} / \text{m}^2 / \text{sec}$)、 R_A は反応項 ($\text{mol} / \text{m}^2 / \text{sec}$) である。覆土層として高さ 1m の土壌カラムを仮定し、10 のコンパートメントに分割した。各コンパートメントにおける土壌ガスのフラックスを前進差分法を用いて数値的に解いた。大気との境界において、 N_2 、 O_2 、 CO_2 および CH_4 濃度をそれぞれ、0.787、0.21、0.0003 および 0、静圧とした。

底部のごみ層との境界では、各成分濃度をそれぞれ 0、0、0.4 および 0.6 とした。カラム内の初期濃度は大気と同じにした。2成分拡散係数は Chapman-Enskog 則より求めた¹³⁾。 T は 293 K で一定とした。覆土の ε と乾燥密度はそれぞれ 1.55 ¹³⁾ および $1.6 \times 10^6 \text{ g} / \text{m}^3$ とした。 ε 、 P および V_{\max} を覆土の設計因子として、 N_A^T と X_A を 1 秒間隔で定常になるまで計算した。

(2) 結果：図 13 は、覆土によるメタン酸化が無い場合の ε 、 $P-P_0$ に対する CH_4 フラックスの変動である。図は、覆土表面の CH_4 フラックスが、土壌の間隙 (気相率) が大きい場合には全圧の影響を強く受け、間隙が小さい場合には拡散が支配的になることを示し

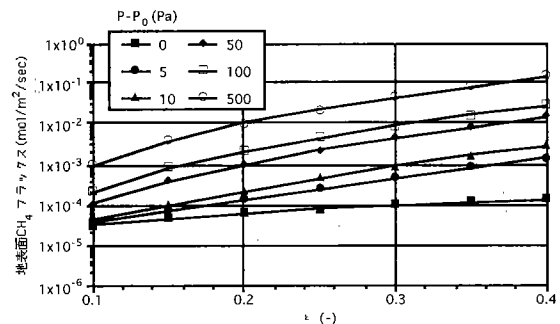


図 13 メタン酸化が無い場合の地表面 CH_4 フラックスの計算結果

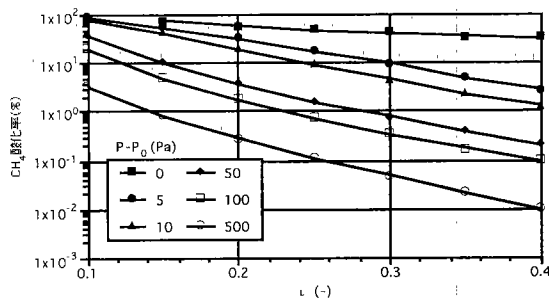


図 14 メタン酸化率と気相率、全圧との関係

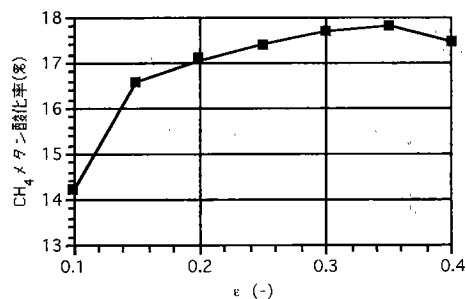


図 15 短絡経路による大気放出を考慮した場合のメタン酸化率 ($P-P_0=0$)

ている。図14は、覆土によるメタン酸化がある場合の ϵ 、 P に対するメタン酸化率である。今回用いた計算条件では、 $P-P_0$ が100Pa以上、 ϵ が0.3以上になると、覆土で酸化されるメタンの割合が10以下になり、覆土によるメタン酸化において、これらの物理学的パラメータが重要であることを示している。図15は、覆土を通過しない埋立地ガスが全て、ガス抜き管等の短絡経路から大気へ直接放出されると仮定して、 $P-P_0$ が0の場合のメタン酸化率を計算し、 ϵ に対してプロットしたものである。今回用いた計算条件では、気相率が0.3と0.4の間にメタン酸化率の最大値が存在し、約18%程度のメタンを酸化することがわかる。これらは、覆土の施用でメタン酸化を最大化する際に、覆土の気相率が重要な設計因子であること、同時にガス抜き管等の短絡経路におけるメタンの制御が必要であることを示している。

4. 6 まとめ

最終処分場の現場観測により、地表面におけるメタンフラックスの場所的、時期的な変動にはおそらく土壌の透気性が大きく関与しており、地表面におけるガスフラックスは、覆土の有する比較的高いメタン酸化能により酸化されていることがわかった。また、数値計算により、覆土の気相率がメタン酸化を最大化する設計因子として重要であることを示した。今後は、より具体的な覆土およびガス抜き施設の設計方法を検討するために、より詳細かつ広範な現場条件および生物反応メカニズムを、数値モデルによるシミュレーションに反映してゆく必要がある。

5 結語

廃棄物処理分野におけるメタンおよび亜酸化窒素の排出実態および発生抑制対策を現場観測等から検討した。

機械化バッチ式ごみ焼却炉では、ごみの適正な燃焼がメタン発生抑制においても重要であることがわかった。我が国の高負荷型脱窒素処理施設における亜酸化窒素発生ポテンシャルは、し尿および生活雑排水由来の亜酸化窒素全体の3%程度であると推定され、反応槽投入物の質の制御および操作のタイミングが亜酸化窒素の発生抑制に重要であることが示唆された。また、一般廃棄物最終処分場では、覆土の透気性が時期的および場所的なメタン放出量の変動に大きく関与しており、さらに覆土に比較的高いメタン酸化能があり、ごみ層におけるガス圧と覆土の透気性の制御が、覆土の酸化能を最大化するようなメタン発生抑制対策を考える際に重要であることを示した。

以上の成果より、廃棄物処理分野、特に一般廃棄物処理過程における、メタン・亜酸化窒素の発生抑制対策について、その制御方法の方向性が示された。今後は、これら方策を、現場に適用するべく具体化してゆくこと、また、産業廃棄物処理分野における検討を進めてゆくことが必要である。

引用文献

- 1) 田中勝・井上雄三・松澤裕・大迫政浩・渡辺征夫(1995)：メタン・亜酸化窒素の放出源及びその放出量の解明に関する研究(1) 廃棄物処理場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平成6年度終了研究成果報告集，48-59
- 2) IPCC (1994)：Other Trace Gases and Atmospheric Chemistry, Radiative Forcing of Climate Change, 2-52
- 3) I. Watanabe, Y. Matsuzawa, M. Osako, M. Yamada and M. Tanaka (1997)：Emission of Nitrous Oxide from Processes of Night Soil Treatment,, Proceedings of 7th International Workshop on Nitrous Oxide Emissions, Cologne, Germany,, April 1997
- 4) 厚生省生活衛生局水道環境部環境整備課監修(1996)：日本の廃棄物'96，(社)全国都市清掃会議，東京
- 5) 河村清史(1995)：浄化槽技術者の生活排水処理工学，(財)日本環境教育整備センター，東京
- 6) 田中勝・井上雄三・中野正博・大迫政浩・山田正人・渡辺征夫(1996)：地球温暖化抑制のためのCH₄，N₂Oの対策技術開発と評価に関する研究(7) 廃棄物処理分野におけるメタン・亜酸化窒素の発生抑制対策に関する研究，地球環境研究総合推進費平成7年度研究成果報告集(分冊II)，645-649

- 7) 厚生省生活衛生局水道環境部環境整備課編(1995) : 「廃棄物処理施設データブック平成5」, 環境産業新聞社, 東京
- 8) 厚生省生活衛生局水道環境部環境整備課監修(1995) : 「廃棄物処理事業・施設年報 平成5年度版」, 環境産業新聞社, 東京
- 9) 花木啓祐・鄭 紅・松尾友矩(1993) : 脱窒における一酸化二窒素の生成と操作因子の関係, 下水道協会誌論文集, 30, 104-116
- 10) H. Zeng, K. Hanaki and T. Matsuo(1994) : Production of nitrous oxide gas during nitrification of wastewater. Preprint Book. 1, IAWQ Biennial International Conference, Budapest, 117-125
- 11) 糸川裕紀・花木啓祐・松尾友矩(1995) : 間欠曝気をおこなないし尿処理施設における硝化・脱窒過程からの亜酸化窒素の発生と制御, 環境工学研究論文集, 32
- 12) S. C. Whalen, W. S. Reeburgh and K. A. Sandbeck(1990) : Rapid Methane Oxidation in a Landfill Cover Soil, Appl. Environ. Microbiol., 56, 3405-3411
- 13) 田中信寿・神山桂一(1991) : 廃棄物埋立処分場におけるガス及びガス成分の移動について—廃棄物層・土壌層を流れるガスの移動方程式とその応用—, 廃棄物学会誌, 2, 46-58

国際交流研究等の状況

最終処分場からのメタンの放出機構について、ソウル市立大学環境工学科李東勲副教授との共同研究を進めおり、また、平成9年度には、中国にて、上海市、成都市、北京市を訪問し、華東理工大学の張大年教授、華西医科大学の黎源情教授、および北京市清掃当局と将来的な研究協力のための協議をおこなった。

研究成果発表の状況

(1) 口頭発表

- ① 山田正人・井上雄三・大迫政浩・渡辺征夫・田中 勝・石渡尚美・玉井詩子(1996) : 最終処分場におけるメタン放出特性について (1) メタン放出フラックスの分布, 第17回全国都市清掃研究発表会講演論文集, 253-255
- ② Masato Yamada, Yuzo Inoue, Masahiro Osako, Masaru Tanaka and Naomi Ishiwata(1996) : Emission Properties of Methane from MSW Landfill Site, Proceedings of 7th ISWA International Congress, II-323-324
- ③ 金子一彦・堀田修・加藤隆男・井上雄三・山田正人・田中勝・阿部哲也・廣木成治(1996) : 可搬型メタン分析計による廃棄物最終処分場からのメタン放出量の推定, 第7回廃棄物学会研究発表会講演論文集, 723-724
- ④ 山田正人・井上雄三・大迫政浩・田中勝・李東勲・石渡尚美・玉井詩子(1996) : 最終処分場からのメタンガス放出に対する覆土土壌の影響について, 第7回廃棄物学会研究発表会講演論文集, 725-727
- ⑤ M. Yamada, Y. Inoue, D. Lee, M. Ohsako and M. Tanaka(1997) : Methane Emission from MSW Landfill Sites in Japan and Korea, Proceedings of 第1回韓・日廃棄物学会共同学術発表会, 171-178
- ⑥ M. Yamada, Y. Inoue, N. Ishiwata and M. Tanaka(1997) : Some Control Factors in Methane Emission from Landfill Site, Proceedings of the 8th International Conference on Anaerobic Digestion, 609-614
- ⑦ M. Yamada, N. Ishiwata, Y. Inoue, M. Ohsako and M. Tanaka(1998) : Numerical Analysis of Methane Oxidation and Migration in Landfill Cover Soil, Proceedings of 第2回韓・日廃棄物学会共同学術発表会, 81-84

(2) 論文発表

該当無し

(3) 出願特許・受賞等

該当無し