

## ごみ焼却炉からの亜酸化窒素及びメタンの排出要因の検討

上野 広行 辰市 祐久 岩崎 好陽

### 要 旨

都内ごみ焼却炉10施設における $N_2O$ 及びメタンの排出状況を調査した。その結果ごみ焼却炉から排出される $N_2O$ 濃度は1~20 ppm程度であった。 $N_2O$ 濃度は炉内温度に大きく依存しており、炉内温度が700℃以下では25 ppm程度ではほぼ一定であるが、900℃以上では5 ppm以下になっていた。また、 $N_2O$ 濃度は焼却炉の規模には依存しないが、脱硝対策は $N_2O$ 濃度を増加させる傾向にあった。都内の一般ごみの焼却により排出される $N_2O$ の総量は年間260トン程度と推定された。

ごみ焼却炉から排出されるメタン濃度については、焼却能力が150t/d以上の比較的大きい炉では1 ppm前後であったが、焼却能力の小さい炉では500 ppmを超える場合も見られた。

### 1 はじめに

大気中含まれる $N_2O$ とメタンは、炭酸ガス、フロンにつぐ地球温暖化物質として注目されている。大気中の $N_2O$ 及びメタンの濃度は近年増加傾向にあることが指摘されている<sup>1)</sup>。しかしその発生源は人為的なものから自然発生源まで多岐にわたっているため、大気中の濃度の増加の原因は現在ほとんど解明されていない。今後 $N_2O$ 及びメタンの削減計画を検討する上で、各発生源からの排出実態を正しく把握することは必要不可欠であるといえる。

人為的発生源から排出される $N_2O$ については、ボイラー<sup>2)</sup>や火力発電所<sup>3)</sup>、自動車排ガス<sup>4)</sup>などで一部測定が行われており<sup>5)</sup>、石炭の流動層燃焼においてはMoritomiら<sup>6)</sup>がその生成機構を検討している<sup>7)</sup>。

しかし、測定対象となる発生源の種類及び形式が多様多岐にわたるため、発生源からの $N_2O$ の排出状況は必ずしも十分に明らかにされていないのが現状である。特に、汚泥焼却炉、ごみ焼却炉などの廃棄物焼却炉関係については、 $N_2O$ の測定はほとんどなされていない<sup>8)</sup>。

更に近年 $N_2O$ の試料採取方法の問題点の指摘<sup>9)</sup>があり、データの取り直しが行われている状況にある<sup>10)</sup>。

筆者らは、これまで数種類の固定発生源の排出状況を調査し、ボイラーでは数 ppm (v/v)、ごみ焼却炉では数

ppmから20 ppm前後、汚泥焼却炉では数10から100 ppm前後の $N_2O$ が排出されていることを報告した<sup>11)</sup>。ここでは、ごみ焼却炉に注目し、 $N_2O$ の排出要因を検討するとともに都内のごみ焼却炉からの総排出量を推定することを目的として調査を行った。また、あわせてメタンも測定したので、その結果を報告する。

### 2 実 験

#### (1) 調査対象施設

調査は都内10ヶ所のごみ焼却炉で行った。焼却能力65 t/dから300 t/dまでの、一般の都市ごみを焼却しているストーカ方式の連続機械炉を8施設調査した。その他、一般の都市ごみを焼却している流動層炉、不燃ごみ、粗大ごみを焼却しているバッチ炉を各1施設調査した。

#### (2) 測定方法

試料の採取は、炉の後の排ガス用ダクトに付設したフランジより行った。採取口に試料採取管を挿入し、凝縮水トラップ及び電子クーラーを通して排ガスを吸引した。 $N_2O$ 及びメタンの分析用には、更にソーダライム及び塩化カルシウムを通し、ポリふっ化ビニル製ないしはポリエステル製のサンプリングバッグ(容積15ℓ)に採取した。

$N_2O$ の分析には電子捕獲型検出器(ECD)付きのガス

表1 分析条件

	N <sub>2</sub> O	メタン
ガスクロ 検出器	YANACO-G1800 ECO <sup>63</sup> Ni 10mCi	島津 GC-6A FID
充填剤	Porapak-Q 80~100mesh	活性アルミナ
カラム	Glass 4mm (I.D.) × 2m	ステンレス 4mm (I.D.) × 1.5m
温度	Column 50°C Det. 340°C	Column 40°C Det. 150°C
キャリアガス	N <sub>2</sub> 25ml/min.	N <sub>2</sub> 70ml/min.

クロマトグラフを用いた。メタンの分析には、水素炎イオン化検出器 (FID) 付きのガスクロマトグラフを用いた。分析条件は表1の通りである。試料のガスクロマトグラフへの導入は、サンプリングバッグから、シリンジにより1mlを採取し、直接注入した。

NO<sub>x</sub> (NO + NO<sub>2</sub>), O<sub>2</sub>, COについては、電子クーラーの後に連続測定器を接続し測定した。NO<sub>x</sub>は化学発光法, O<sub>2</sub>は磁気式, COは赤外線吸収法を用いた。また、一部の施設では、赤外線吸収法によるN<sub>2</sub>Oの連続測定も行った。

3 結果及び考察

調査結果の概要を表2に示した。表中のN<sub>2</sub>Oの値は、ガスクロマトグラフで測定した値である。N<sub>2</sub>Oとメタンについては、平均値と最大値, 最小値を示した。NO<sub>x</sub>, O<sub>2</sub>, COの値は、試料採取中の最大値と最小値である。

(1) N<sub>2</sub>Oの排出要因

以下にN<sub>2</sub>Oの排出状況を各要因ごとに検討した。

ア 燃料中の窒素含有量

燃焼によるN<sub>2</sub>Oの生成量は燃料中の窒素含有量に依存する可能性がある。東京都清掃研究所によると都内区部の一般ごみ中の窒素含有量は平均0.47%であり、各工場ごとに大きな差はない。今回調査したごみ焼却炉においても、分別ごみを処理しているJ焼却炉を除き同程度と考えられる。

燃料中の窒素含有量と、筆者らが測定したガスボイラー、汚泥焼却炉の平均的な測定値との関係を図1に表した。ガス燃料中の窒素分としては、N<sub>2</sub>以外はほとんど含まれていない。また、下水汚泥中の窒素分は5~6%程

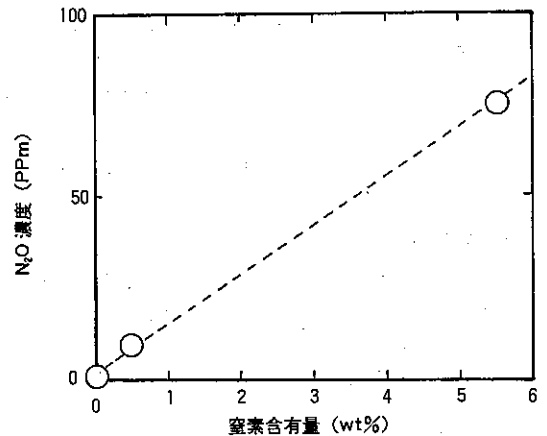


図1 燃料中の窒素含有量と  
排ガス中N<sub>2</sub>O濃度との関係

表2 ごみ焼却炉調査結果

炉形式	焼却能力 t/d	試料 数	N <sub>2</sub> O ppm		CH <sub>4</sub> ppm		NO <sub>x</sub> ppm	O <sub>2</sub> %	CO ppm	炉内温度 ℃
			ave.	min.~max.	ave.	min.~max.	min.~max.	min.~max.	min.~max.	
A ストーカ炉	65	9	*1.4	0.9~1.9	89	3.2~580	25~42	14.3~15.5	10~1600<	900~940
B ストーカ炉	70	2	8	7~8			67~70	11.0~11.9		830~920
C ストーカ炉	105	9	1.2	0.5~1.8	23	1.1~61	69~112	12.7~16.6	0~1600<	880~950
D ストーカ炉	150	5	14	6~22			103~140	11.0~15.2		840~900
E ストーカ炉	150	15	13.0	7.3~18.8	1.7	1.2~2.5	59~139	12.5~14.8	0	850~880
F ストーカ炉	150	10	7.0	4.1~10.5	0.2	0.1~0.3	90~126	10.1~12.5	24~330	790~870
G ストーカ炉	300	15	19.2	5.2~28.7	1.3	0.8~3.9	15~83	10.4~12.7	14~74	480~800
H ストーカ炉	300	12	5.3	4.2~6.7	1.2	0.8~3.2	36~57	8.8~11.6	11~58	850~880
I 流動層炉	200	17	8	3~15			84~171	3.5~15.3		780~940
J バッチ炉	3.5t/7h	5	4.2	0.4~13.0	3.8	1.0~8.3				

\*Aごみ焼却炉のN<sub>2</sub>Oの値は赤外線吸収法による

度という調査結果がある。この図から、窒素含有量が高いほど  $N_2O$  濃度も高くなるのは明らかである。すなわち、 $N_2O$  生成量は燃料中の窒素含有量にも依存しているものと考えられる。

参考までに、ごみの場合平均的な  $N_2O$  排出濃度を 10 ppm とすると、ごみ中の窒素の約 1% 程度が  $N_2O$  に変換していることになる。

イ 炉形式

一般ごみを処理する焼却炉には、階段状にごみを移動させ焼却するストーカ炉と、熱風で巻き上げた細かい砂の中でごみを焼却する流動層炉、及び比較的小規模の炉で間欠的に燃焼するバッチ炉がある。都内においては、ほとんどがストーカ方式のものであり、極わずかに流動層炉も使用されている。今回流動層方式の焼却炉は I 焼却炉の 1 炉のみで調査した。そのため炉の形式による  $N_2O$  排出量の差については十分な検討をすることができないが、表 2 において平均的な  $N_2O$  濃度を比較してみると、ストーカ炉では数 ppm から 20 ppm 程度、流動層炉では 8 ppm と大差はなかった。また、流動層炉の特徴は、排ガス中の  $O_2$  濃度、全炭化水素濃度、CO 濃度などの時間変動が比較的大きいことである。実際、連続測定でも、 $O_2$  濃度、 $NOx$  濃度、CO 濃度、 $N_2O$  濃度とも流動層炉での変動は大きく、 $N_2O$  生成量が燃焼条件に影響を受けることが示唆されていた。

ウ  $O_2$  濃度、 $NOx$  濃度との関係

ごみ焼却炉の多くは、燃焼状態の管理を排ガス中の  $O_2$  濃度を指標として行っている。すなわち、空気を多く送りこめば、より燃焼が促進されるが、反面  $NOx$  濃度が増加するため、適切な  $O_2$  濃度で燃焼するように制御している。

燃焼状態の変化が  $N_2O$  排出量に与える影響を調べるため、 $O_2$  濃度、 $NOx$  濃度との関係を連続測定により検討した。F 焼却炉における連続測定チャートの一部を図 2 に示した。これによると、多くの場合  $NOx$  と  $N_2O$  は逆相関の傾向を示していた。しかしながら、 $O_2$  濃度が低くなった場合には  $NOx$  と  $N_2O$  は  $O_2$  とともに減少していた。図 3 には  $O_2$  濃度と  $NOx$  濃度との関係、図 4 には  $O_2$  濃度と  $N_2O$  濃度との関係を示した。図のプロットは 3 分間隔のデータである。空気による希釈効果を除くため、 $N_2O$ 、 $NOx$  とも希釈率を一定にする  $O_2$  12% 換算してある。 $O_2$  と  $NOx$  はばらつきは大きいものの正の相関関係

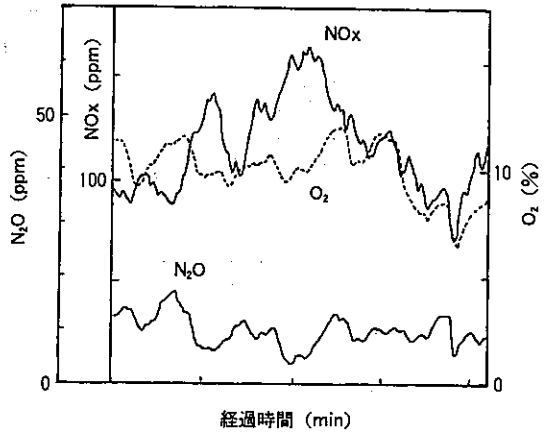


図 2  $N_2O$ 、 $NOx$ 、 $O_2$  の連続測定例

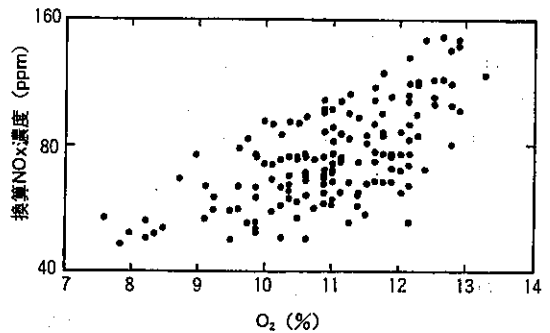


図 3 F 焼却炉における  $O_2$  濃度と換算  $NOx$  濃度との関係

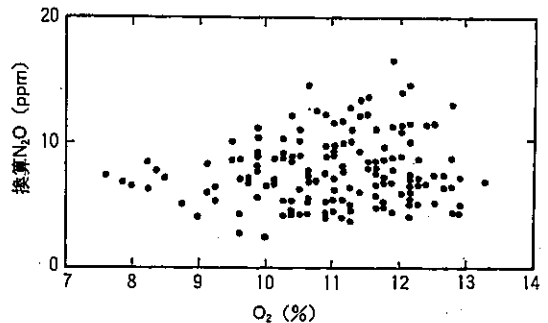


図 4 F 焼却炉における  $O_2$  濃度と換算  $N_2O$  濃度との関係

が認められた。これは、 $O_2$  濃度が増えることにより、ごみ中の窒素が酸化される割合が高くなるためと考えられる。一方  $N_2O$  をみると  $O_2$  濃度が 10% 以下では濃度が低く、 $NOx$  同様生成が抑えられていることが示唆される。

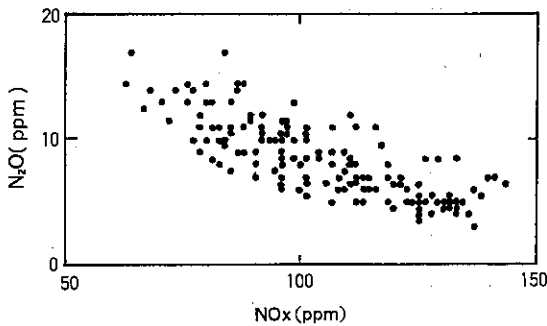


図5 F焼却炉におけるNOx酸素濃度とN<sub>2</sub>O濃度との関係

しかし、O<sub>2</sub>濃度が10%以上ではNOxと異なり明確な関係が得られなかった。このことは、O<sub>2</sub>濃度がN<sub>2</sub>Oに与える影響はそれほど大きくないことを示している。

図5にはN<sub>2</sub>OとNOxとの関係を示した。連続チャートにも見られるようにN<sub>2</sub>OはNOxと逆相関の傾向にあった。NOxはO<sub>2</sub>濃度の増加により増加するが、N<sub>2</sub>OはO<sub>2</sub>濃度10%以上ではそれほど影響を受けない。したがって、N<sub>2</sub>OとNOxの逆相関を説明するにはO<sub>2</sub>濃度以外の要因を考えなければならない。

NOxはO<sub>2</sub>濃度と共に、炉内温度の影響も受ける。すなわち、炉温の上昇と共にサーマルNOxが増加する。このことから、高温になりNOxが増加すると逆にN<sub>2</sub>Oが減少していくものと考えられる。

エ 炉内温度

上で述べた仮説を確かめるため、図6に炉内温度とガスクロマトグラフで測定したN<sub>2</sub>O濃度との関係を示した。N<sub>2</sub>Oは炉内温度が700℃以下では25 ppm程度ではほぼ一定であるが、700℃以上では、温度が上がるほどN<sub>2</sub>O濃度は低くなり、900℃以上では5 ppm以下になっていた。このようにN<sub>2</sub>O濃度は炉内温度に依存し、700℃以下で最大であり、900℃以上の高温になると小さくなることが明らかになった。

炉内温度が高いとN<sub>2</sub>O濃度が低くなるのは、高温ではN<sub>2</sub>Oの分解反応が優勢になるためと考えられる。このことは、筆者らが行った予備的な実験結果も支持している。すなわち、N<sub>2</sub>O標準ガスを窒素気流中で加熱していくとN<sub>2</sub>O濃度が減少することを確認している。

したがって、ごみ焼却炉においては、ごみ中の窒素がN<sub>2</sub>Oに転換し25 ppmにも達しうるが、炉内温度が高いと

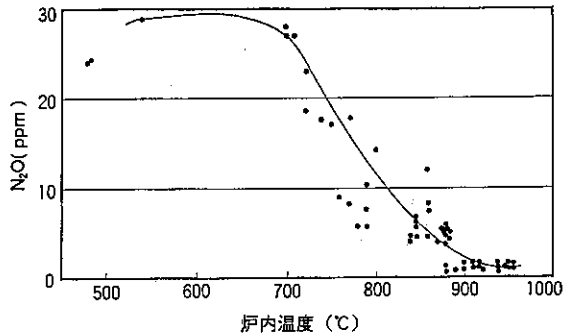


図6 炉内温度とN<sub>2</sub>O濃度との関係

分解あるいは酸化反応で数 ppm 以下の濃度になるものと考えられる。

表2のN<sub>2</sub>Oの変動を見ると、バッチ炉を除き、G焼却炉とI焼却炉が大きかった。これらの炉に共通しているのは、炉内温度の変動が大きいことであり、N<sub>2</sub>Oが温度に影響を受けることを反映している。

以上のようにN<sub>2</sub>O濃度は炉内温度に大きく依存していることが明らかとなったが、ここで用いた炉内温度の測定場所は各炉で異なるため、厳密に比較することは難しい。図6のばらつきはこのことに起因するものと考えられる。

オ 脱硝装置

ごみ焼却炉においては近年各種のNOx対策がとられている。この脱硝対策がN<sub>2</sub>O濃度にどのような影響を与えるかについて検討した。脱硝対策による影響については、既に自動車の三元触媒やボイラーの還元二段燃焼において排ガス中のN<sub>2</sub>O濃度を増加させているという報告がある<sup>3), 6), 10)</sup>。

今回の調査におけるG焼却炉では尿素水溶液を炉内噴霧することによる脱硝が行われていた。排ガス中のN<sub>2</sub>O濃度は他の焼却炉より比較的高く、20 ppm程度の値を示した。更に、一日に一回行うノズルの洗浄時には尿素が多量に噴霧されるが、この時には30 ppm前後の値が示された。これはNOxが減少するのに対照的であった。この原因としては、尿素が噴霧されるために炉内温度が低くなること、尿素中の窒素がN<sub>2</sub>Oに変化することが考えられる。

H焼却炉では、アンモニア注入による触媒脱硝装置を使用していた。ここでは、脱硝装置の前後で同時にバッグに採取し、分析した。その結果を表3に示す。これに

表3 触媒脱硝反応器前後  
でのN<sub>2</sub>O測定結果 (n=8)

	N <sub>2</sub> O (ppm)	
	ave.	min. ~ max.
脱硝前	4.0	3.0 ~ 4.6
脱硝後	5.1	4.2 ~ 6.1

よると、N<sub>2</sub>Oは平均的には約4 ppmから約5 ppmへと25%程度増加していることがわかった。

以上のように、脱硝対策によってN<sub>2</sub>O濃度が増加する傾向が見られたが、その原因としてはアンモニアなどの窒素分を加えることが考えられる。すなわち、アンモニアの酸化及びNOの還元がN<sub>2</sub>Oの生成量を増加させる可能性がある。このことを確かめるには、今後更に実験的検討を行う必要がある。

(2) 都内ごみ焼却炉からのN<sub>2</sub>Oの総排出量の推定  
表2に示すように、N<sub>2</sub>Oの排出濃度は炉の規模や形式によっては大きな差はなかった。そこで以下のように、N<sub>2</sub>O排出量を推定する。

ごみ焼却炉からの燃焼ガスのN<sub>2</sub>O濃度を10 ppm (O<sub>2</sub>12%換算)とし、ごみ1kg焼却時の理論排ガス量を2.6Nm<sup>3</sup>、空気過剰率を2とすると、ごみ1tあたりおおよそ70g程度のN<sub>2</sub>Oが排出されることになる。都内の年間ごみ焼却量は、378万t (昭和63年度<sup>16)</sup>)であるから、年間の総排出量は260tと推定される。同様に日本全国では厚生省の統計<sup>17)</sup>を用いると、年間2400t程度と推定される。この推定値には中小の事業系の焼却炉が含まれていないことを考えると、実際の排出量はこれより大きなものになるであろう。

### (3) メタンの排出状況

排ガス中のメタンは表2からわかるように、焼却能力150t/d以上の炉では平均的には1 ppm前後であり、田中<sup>18)</sup>らの測定値(400t/dの炉で0.3-2.5 ppm)とほぼ一致した。これに対し、比較的規模の小さい炉では変動幅が非常に大きかった。例えば、A焼却炉では最高580 ppmもの濃度に達していた。これは、規模の小さい炉では、不完全燃焼が起こりやすいためと考えられる。実際、メタン濃度が高いA焼却炉とB焼却炉では、CO濃度は1600 ppm以上になることもあり、不完全燃焼が起きていることを示していた。

メタンは一般環境大気中に1.9 ppm程度の濃度で存在しており、規模の大きな炉ではこれに対しても低い濃度であり、大気中メタン濃度の増加に対する寄与は小さいといえることができる。

## 4 まとめ

都内ごみ焼却炉10施設におけるN<sub>2</sub>O及びメタンの排出状況を調査した。その結果次のことが明らかとなった。

- (1) ごみ焼却炉から排出されるN<sub>2</sub>O濃度は1~20 ppm程度であった。
- (2) N<sub>2</sub>O濃度は炉内温度に大きく依存していることが明らかとなった。すなわち、炉内温度が700℃以下では25 ppm程度ではほぼ一定であるが、900℃以上では5 ppm以下になっていた。
- (3) N<sub>2</sub>O濃度は焼却炉の規模には依存しないが、脱硝対策はN<sub>2</sub>O濃度を増加させる傾向にあった。
- (4) 都内の一般ごみの焼却により排出されるN<sub>2</sub>Oの総量は年間260トン程度と推定された。
- (5) ごみ焼却炉から排出されるメタン濃度については、焼却能力が150t/d以上の比較的大きい炉では非常に低く1 ppm前後であった。これに対し、焼却能力の小さい炉では500 ppmを越える場合も見られた。

## 参考文献

- 1) R.Prinn et al.: Atmospheric Emissions and Trends of Nitrous Oxide Deduced From 10 Years of ALE-GAGE Data, J. Geophys. Res., 95, p.369-385 (1990).
- 2) R.F.Weiss and H.Craig: Production of Atmospheric Nitrous Oxide by Combustion, Geophys. Res. Lett., 3, p.751-753 (1976).
- 3) 藤井敏昭: ガスクロマトグラフィーによる排ガス中亜酸化窒素の分析, 大気汚染学会誌, 15, p 53-55 (1980).
- 4) W.M.Hao et al.: Sources of Atmospheric Nitrous Oxide from Combustion, J. Geophys. Res., 92, p.3098-3104 (1987).
- 5) 横山隆壽, 松田祐光: 火力発電所排ガス中のN<sub>2</sub>Oに関する実態調査, 電力中央研究所研究報告, T 89045 (1990).

- 6) 平木隆年ら：都市大気中  $N_2O$  濃度におよぼす自動車排ガスの影響，兵庫県公害研究所研究報告，12，p.1-7 (1980).
- 7) L.Moritomi et al.:  $N_2O$  Emission and Reduction from Circulating Fluidized Bed Combustors, The 3rd Int. Conf. on Circulating Fluidized Beds (Nagoya) (1990).
- 8) L.J.Muzio et al.: Errors in Grab Sample Measurements of  $N_2O$  from Combustion Sources, J.Air Poll.Control Assoc.,39, p.287-293 (1989).
- 9) 秋山薫ら：排ガス中の  $N_2O$  の採取方法と保存中における  $N_2O$  の生成について，東京都環境科学研究所年報 1991-2, p.3-8.
- 10) W.P.Linak et al.: Nitrous Oxide Emissions From Fossil Fuel Combustion, J.Geophys.Res.,95, p.7533-7541 (1990).
- 11) 岩崎好陽ら：固定発生源から排出される  $N_2O$  に関する検討，東京都環境科学研究所年報1990, p.25-28.
- 12) 岩崎好陽ら：固定発生源からの  $N_2O$  排出状況とその生成に関する考察，大気汚染学会誌，27，p.85-91 (1992).
- 13) 杉山雄ら：平成2年度東京都清掃研究所研究報告，p.6-47.
- 14) 日下部孝雄，石坂正勝：脱水ケーキの発熱量に関する一考察，第24回下水道研究発表会講演集，p.658-660 (1987).
- 15) 谷川昇ら：流動床ごみ焼却炉からの排ガス汚染物質の排出実態，大気汚染学会誌，22，p.52-56 (1987).
- 16) 東京都清掃局：昭和63年度清掃局年報.
- 17) 厚生省大臣官房統計情報部：厚生統計要覧平成2年版，p.107 (1991).
- 18) 田中勝ら：廃棄物処理場からの放出量の解明に関する研究，平成2年度地球環境研究総合推進費研究成果報告集，p.204-209.
- 19) 東京都環境保全局大気保全部：大気汚染常時測定局測定結果報告経年報平成2年度版.

---

## Studies on Emission of $N_2O$ and $CH_4$ from Municipal Refuse Incinerators

Hiroyuki Ueno, Sukehisa Tatsuichi and Yoshiharu Iwasaki

### (Abstract)

Emission of  $N_2O$  and  $CH_4$  exhausted from 10 refuse incinerators in Tokyo have been analyzed. The refuse incinerators yielded  $N_2O$  emission level of 1-20ppm.  $N_2O$  concentrations of exhaust gas were dependent on furnace temperature. At the temperature below  $700^\circ C$ ,  $N_2O$  concentrations were almost constant at 25ppm. While at the temperature above  $900^\circ C$ ,  $N_2O$  concentrations were less than 5ppm. These emission levels tend to increase when modifications to lower  $NO_x$  emissions were employed. Furnace scale did not affect the emission levels. We estimate that the municipal refuse incinerators in Tokyo release 260ton- $N_2O$  per year.  $CH_4$  concentrations from incinerators rated at more than 150ton per day were approximately 1ppm. In the case of relatively small incinerators,  $CH_4$  concentrations sometime rised to more than 500ppm.