

平成 30 年 6 月 26 日現在

機関番号：82101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26420539

研究課題名(和文)国内およびアジア地域の廃棄物埋立地における亜酸化窒素の発生・排出メカニズムの解明

研究課題名(英文)Mechanisms of emission and generation of nitrous oxide from landfill in japan and Asian region

研究代表者

石垣 智基 (Ishigaki, Tomonori)

国立研究開発法人国立環境研究所・資源循環・廃棄物研究センター・主任研究員

研究者番号：90343756

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：実埋立地におけるガス排出挙動をもとに、メタン発生量の多い埋立地においては、メタンと亜酸化窒素の排出量に一定の相関が見られることが確認された。亜酸化窒素排出量が多い埋立地には、有機物を含む廃棄物の埋設、高い地下水位、水面変動など共通した管理特性が確認された。埋立層に存在する水分量の変化が溶存態亜酸化窒素のガス態への移行に与える影響に関する知見を得た。有機系廃棄物由来の窒素成分は転換速度が速く、溶存窒素化合物が亜酸化窒素に変換し、その一部がガス化する機作が推測された。中長期的な排出挙動の推移をパラメータ化し、メタンおよび亜酸化窒素の両者を含めた温室効果ガス排出量算定モデルを開発した。

研究成果の概要(英文)：Investigation of gas emission from waste landfills revealed that emissions of methane and nitrous oxide are correlated at the landfills with high methane emission. Landfills with high nitrous oxide emission showed common properties of management of landfills such as disposal of organic waste, high water table, or fluctuation of water table. Change of moisture content in the waste layer affected gasification of solubilized nitrous oxide. Nitrogen derived from easily decomposable waste exhibited high conversion rate, and mechanism of emission of gaseous nitrous oxide by transformation of solubilized state following to decomposition. A model for estimating the emission of Greenhouse gases includes both methane and nitrous oxide has been developed.

研究分野：環境工学

キーワード：廃棄物埋立地 亜酸化窒素 温室効果ガス

1. 研究開始当初の背景

廃棄物埋立地からは、埋設された廃棄物の物理化学的・生物学的反応に応じて、長期間にわたって多成分のガス(埋立地ガス)が発生することが知られている。厨芥類や汚泥などに含まれる有機物を起因とするメタンはその主成分であり、水素やエチレンなどの可燃性成分や、硫化水素などの有害成分とあわせ、安全上の観点から長年の観測対象となってきた。近年では、メタンは温室効果ガスやエネルギー源としても注目されており、その排出抑制や有効利用のための工法や維持管理に多大な予算が投入される状況となっている。その他、悪臭や有害性を有するガス成分については、埋立地の有するリスクのひとつとして取り扱われ、その削減に向けた取り組みが広く行われてきている。

一方で、メタンと同じく温室効果ガスである亜酸化窒素については、化学的に不活性であること、生物的に有害性が低いこと、等の理由で、埋立地ガス成分としては注目されておらず、近年に至るまで積極的な観測対象とはなっていない。亜酸化窒素は、二酸化炭素の約 300 倍の温暖化効果を有するとされており、IPCC により主要な温室効果ガスとしてインベントリ上での排出量の報告を求められていることから、その排出源の把握と排出量削減方策が世界的に検討されている。しかし、現在でも廃棄物埋立地は亜酸化窒素の排出源としてカウントされておらず、報告対象にはなっていないことから、その観測事例は依然として決して多くないのが現状である。

その反面、IPCC の第四次評価報告書においては、埋立地の管理状態によっては亜酸化窒素の排出を無視できないことを危惧する記述が記されている。また、強力なオゾン層破壊物質としても大気中の挙動が注目されていることから、インベントリ上の報告義務の有無に関わらず、埋立地からの亜酸化窒素排出実態の把握が必要であることは間違いない。

埋立地での亜酸化窒素の発生は、窒素化合物の生物学的転換に依存するところが大きいと推測されるが、そのメカニズムや発生条件については不明な点が多い。環境中や生活排水からの亜酸化窒素生成に関する既往研究を踏まえると、アンモニア態窒素の好気性硝化反応に伴う発生、もしくは亜硝酸態窒素の脱窒反応における発生が、一般的な反応経路として想定される。ただし、埋立地内の環境条件および廃棄物に含有されている窒素源を考慮すると、埋立地での亜酸化窒素発生および排出経路は単一ではなく、環境中への放出までには物質移動、雰囲気の変化、亜酸化窒素自身の相変化という複合的な要因が関わっているものと考えられる。こうした要因は、廃棄物管理システムと埋立地管理に起因する埋立物の流体透過特性、生物学的特性、立地上の特性(主に気象条件)に強く依存す

ると考えられることから、「場」の管理条件に応じた大気中への排出メカニズムを解明することが求められる。

2. 研究の目的

廃棄物埋立地の立地・管理状態と埋立物の特性に応じた亜酸化窒素の発生・排出メカニズムを解明する。表層やガス抜き管を經由して内部への酸素浸透が想定される埋立地管理におけるメタン排出削減の効果と、亜酸化窒素の排出に与える影響とを明らかにする。その上で、メタン・亜酸化窒素をともに含めた温室効果ガス排出量の削減のための維持管理上の方策について検討する。具体的には、埋立物の品質管理、排水管・排水層や中間覆土材調整による埋立地内の水位制御、表層およびガス抜き管の活用による酸素の浸透管理などについて、温室効果ガス排出挙動に与える影響を定量的に評価する。上記の成果をもとに、埋立地からの亜酸化窒素排出量を算定可能な物質収支モデルを提案する。モデルに用いられるパラメータは、廃棄物管理手法、埋立地工法および維持管理、埋立地の立地気候帯に応じて類型化したうえで、既存のメタン排出量算定モデルと一体化した運用が可能なツールとして提示する。

3. 研究の方法

(1) 廃棄物埋立地における亜酸化窒素排出挙動の調査

国内外の廃棄物埋立地における亜酸化窒素排出挙動を明らかにするため、地表面からの埋立地ガスフラックスを測定した。対象とした埋立地は A1-A2: 高水位の海面処分場、B: 層厚の高い産業廃棄物処分場、C: 水位の高い産業廃棄物処分場、D: マレーシアの生活ごみ埋立地、E: 高水位の海面処分場、F、亜熱帯地域の埋立地、G: タイの生活ごみ埋立地、H-I: スリランカの廃棄物投棄(オープンダンプ)地である。

ガスフラックスの測定に際しては、閉鎖型フラックスチャンバー法により一定時間毎に採取したガス試料中の、実験室に持ち帰り分析に供した。測定対象としたガス成分と分析方法は、亜酸化窒素(電子捕捉型検出器付きガスクロマトグラフ)、メタンおよび二酸化炭素(水素炎イオン化型検出器ガスクロマトグラフ)である。

(2) ガス状亜酸化窒素の排出メカニズムの解明に関する検討

埋立地からのガス状亜酸化窒素排出に関与する要素反応について検証を行った。50 ml バイアル瓶スケールでの溶存態亜酸化窒素のガス態への移行に関する状況を評価した。その上で、埋立地環境下における亜酸化窒素ガス排出挙動評価するためのカラム(内径 120 mm × 高さ 65 cm)を構築し、実験的シミュレーションを行った。埋立地環境としては、覆土を表層のみに設置しカラム内が一体的

現場毎平均 N_2O フラックス

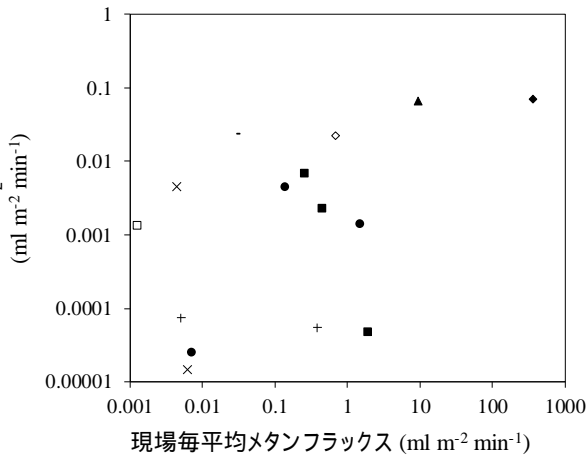


図 1 埋立地表面より排出されるメタンおよび亜酸化窒素フラックスの関係 :A1, :A2, x:B, +: C, :D, :E, -:F, :H, :I

環境となりやすいセル式と、間に2層の覆土層を設置し、上部および下部からの物質移動を制限したサンドイッチ式について検討した。両方式について、それぞれ層内水位を高く維持する条件と、滞水をさせない条件を設定した。

4. 研究成果

(1) 廃棄物埋立地における亜酸化窒素排出挙動

廃棄物埋立地における亜酸化窒素排出挙動を明らかにするための実地調査を日本を含むアジア地域において実施した。実埋立地におけるガス排出挙動をもとに、メタン発生量の多い埋立地においては、メタンと亜酸化窒素の排出量に一定の相関が見られることが確認された(図1)。また、高い亜酸化窒素排出が確認された埋立地の管理状態としては、有機物を含む廃棄物の埋設や、高い地下水位および水面変動など共通した特徴が確認された。亜酸化窒素ガスの排出量が低い範囲においても、高い埋立地ガス総排出量を示す場合もあり、亜酸化窒素の生成・流動を阻害する要因についての検討が必要であることが示唆された。

(2) ガス状亜酸化窒素の排出メカニズム

埋立地からの亜酸化窒素排出の主要因として考えられる、埋立層内に存在する水分に含まれる溶存態の亜酸化窒素を対象として、溶存態からのガス移行挙動についての検討を行った。水分含有量の変化が亜酸化窒素のガス態への移行に与える影響から、表層浸透および内部貯水によるガス態の亜酸化窒素排出挙動に関する知見を得た。特に、一時的に可溶化した窒素成分は亜酸化窒素態に変化した場合には速やかにガス相に移行することが示され、埋立地内の水分は亜酸化窒素の貯蔵に影響するのではなく、固相からの

窒素成分溶解を通じて亜酸化窒素転換を促進していることが示唆された。

廃棄物埋立地の管理状態ごとに類推される亜酸化窒素の排出経路を実験的に検証した。有機系の廃棄物由来の窒素成分は、転換速度が速く、溶存した窒素成分が亜酸化窒素に変換し、その一部がガス化する機作が推測された。セル式の管理条件下においては、滞水によって実験系内が速やかに嫌気化し、亜酸化窒素は速やかにガス化されることが示された(図2A)。一方で、セル式において滞水をさせない場合には、実験系内は好气的条件になりやすく、ガス態および溶存態亜酸化窒素ともに低く、亜酸化窒素への転換自体が起こりにくいことが示された(図2B)。サンドイッチ式条件下では、内部の滞水条件の影響は受けにくい、中間覆土の影響により物質移動が遅くなるため、溶存態亜酸化窒素の生成ピークから、少し遅れてガス状亜酸化窒素の排出へと移行することが推測された(図2C)。

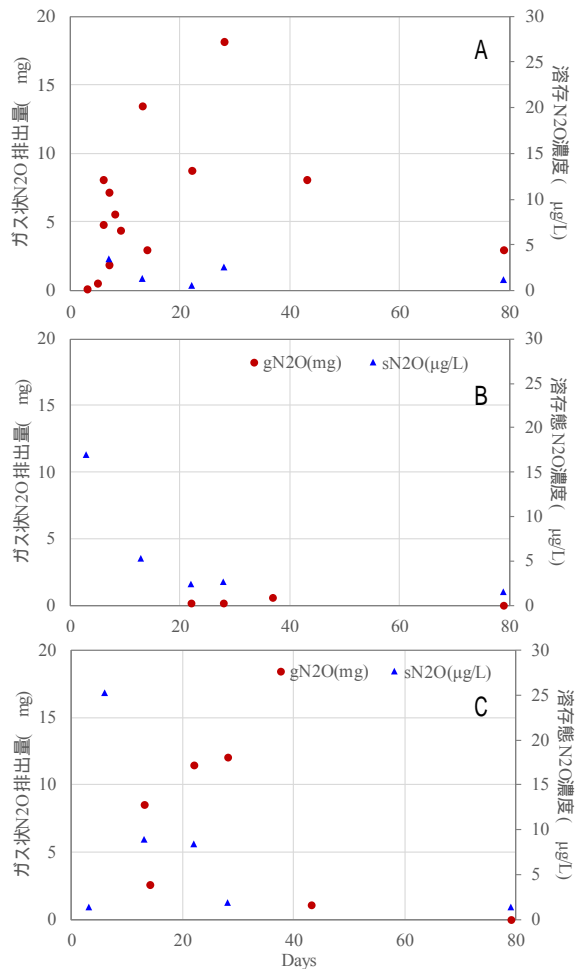


図 2 埋立地模擬実験における亜酸化窒素発生挙動, A: セル式滞水条件, B: セル式無体水条件, C: サンドイッチ式滞水条件

(3) 亜酸化窒素排出量算定モデルの開発

得られた結果を用いて、埋め立てられる廃棄物、埋立地管理手法、立地気候帯を加味した亜酸化窒素排出量算定モデルの開発に着手した。国内外の廃棄物埋立地からの亜酸化窒素の排出実態に係る現地調査結果を踏まえ、中長期的な排出挙動の推移をパラメータ化し、メタンおよび亜酸化窒素の両者を含めた温室効果ガス排出量算定モデルの開発をすすめた。温室効果ガス排出インベントリに活用することを意識し、メタンを含めた埋立地由来の温室効果ポテンシャルの評価が可能になるよう、既存のメタン排出量算定モデル(IPCCモデル)と一体化した運用が可能なツールとしての開発を指向した。IPCCモデルからの改良点としては、(1)好気性分解、嫌気性分解によって消費される炭素、窒素の分解量を同一モデルで表現、(2)好気性分解補正係数を廃止、(3)嫌気性分解時に発生する亜酸化窒素について一次反応モデル式で表現、(4)水分不足による生物分解の低下を表現、である。埋立地管理情報や気候帯に応じた排出係数を、いずれも既存の算定式であるメタン排出量算定モデルと同レベルの詳細度まで類型化を行った。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 4 件)

Tomonori Ishigaki, Mikako Nakagawa, Masanao Nagamori, Masato Yamada, Anaerobic generation and emission of nitrous oxide in waste landfills, *Environmental Earth Sciences*, 査読有, 75, 1-6, 2016

Masanao Nagamori, M.I.M. Mowjood, Youichi Watanabe, Yugo, Isobe, Tomonori Ishigaki, Ken Kawamoto, Characterization of temporal variations in landfill gas components inside an open solid waste dumpsite in Sri Lanka, *Journal of Air and Waste Management Association*, 査読有, 66, 1257-1267, 2016

Yuka Ogata, Tomonori Ishigaki, Mikako Nakagawa, Masato Yamada, Effect of increasing salinity on biogas production in waste landfills with leachate recirculation: A lab scale model study, *査読有, Biotechnology Reports*, 10, 111-116, 2016

長森正尚, 石垣智基, 山田正人, 埋立地ガス調査による廃棄物最終処分場の安全確認について, *査読無, 廃棄物資源循環学会誌*, 27, 39-48, 2016

[学会発表](計 19 件)

Ogata Y., Ishigaki T., Tanaka H., Endo K., Yamada M., Distinctive gas emissions in industrial landfill under anaerobic condition, *International Symposium on Industrial and Hazardous Waste*, 2018

Sutthasil N., Ishigaki T., Ogata Y., Yamada M., Tanaka H., Yabuki Y., Nagamori M., Oishi O., Monitoring of an Industrial Waste Japanese Old Landfill in Japan, *The 22th Korea-Japan International Symposium of Korea Society of Waste Management*, 2018

Yamada M., Ishigaki T., Aftercare method by semi-aerobic concept, *16th International Waste Management and Landfill Symposium*, 2017

尾形有香, 石垣智基, 遠藤和人, 田中宏和, 山田正人, 北陸地方の保有水位の高い管理型最終処分場における埋立地ガス排出の挙動 - 6 年間の継続的な調査結果より, *廃棄物資源循環学会 春の研究発表会*, 2017

Komsilp Wangyao, Nopparit Sutthasil, Panida Payomthip, Sutthiprapa S., Chart Chiemchaisri, Tomonori Ishigaki, Satoru Ochiai, Methane emission from MBT technology at Phitsanulok landfill, *3rd 3R International Scientific Conference on Material Cycles and Waste Management*, 2016

田中宏和, 山崎慶子, 大家清紀, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 香村一夫, 最終処分場における観測井内滞留ガスと埋立経過期間および保有水水位との関連性, *第 37 回全国都市清掃研究・事例発表会*, 2016

Tomonori Ishigaki, Appropriate and Efficient Waste Management Required for Development of City, *Seminar on Logistics Infrastructure Development for Efficient Waste Management*, 2015

Tomonori Ishigaki, Appropriate Management of Waste Landfills coupled with Leachate Treatment in South East Asia, *The 14th Expert Meeting on Solid Waste Management in Asia and Pacific Islands*, 2015

Hirokazu Tanaka, Tomonori Ishigaki, Kazuto Endo, Masato Yamada, Kazuo Kamura, Dissolution of Inorganic Ions by Leachate Quality of an Industrial Waste Landfill, *The 2nd IWWG-ARB Symposium*, 2015

Nopparit Sutthasil, Chart

Chiemchaisri1, Wilai Chiemchaisri, Komsilp Wangyao, Kazuto Endo, Tomonori Ishigaki, Masato Yamada, Methane emission from semi-aerobic landfill test cell operated in Tropical climate: Case study of Thailand, 2nd 3R International Scientific Conference on Material Cycles and Waste Management, 2015

佐藤昌宏, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 田中宏和, 太陽光パネルベた基礎周縁における埋立ガスフラックスに関する調査事例, 廃棄物資源循環学会春の研究発表会, 2015

田中宏和, 山崎慶子, 荻野賢治, 大家清紀, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 香村一夫, 管理型最終処分場における観測井内滞留ガス濃度調査, 第 26 回廃棄物資源循環学会研究発表会, 2015

田中宏和, 松井亮, 大家清紀, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 香村一夫, 砂質土を使用した最終覆土の浸透水移動性評価, 第 25 回廃棄物資源循環学会研究発表会, 2014

尾形有香, 中川美加子, 石垣智基, 山田正人, 浸出水循環による塩類蓄積が微生物群集構造に及ぼす影響, 第 25 回廃棄物資源循環学会研究発表会, 2014

石垣智基, 鈴木和将, 磯部友護, 川寄幹生, 山田正人, 東條安匡, 中間処理残さ主体埋立物の安定化遅延機構に関する生物学的な検討, 第 25 回廃棄物資源循環学会研究発表会, 2014

佐藤昌宏, 山田正人, 石垣智基, 遠藤和人, 田中宏和, 埋立地における地中ガスのメタン比および地表面ガスフラックスの経年変化, 廃棄物資源循環学会 2014 春の研究発表会, 2014

Yuka Ogata, Tomonori Ishigaki, Hee-Jong Kim, Mikako Nakagawa, Masato Yamada, Feasibility of leachate recirculation on waste landfills in Southeast Asia, The 2014 Spring Conference of the Korea Society of Waste Management, 2014

Tomonori Ishigaki, Masahiro Sato, Yuka Ogata, Masato Yamada, Behavior of gas emission from temporary storage sites for disaster waste management, The 2014 Spring Conference of the Korea Society of Waste Management, 2014

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石垣 智基 (ISHIGAKI Tomonori)
国立環境研究所・資源循環・廃棄物研究センター・主任研究員
研究者番号: 90343756