

焼却灰埋立層浸出水 pHの決定要因

北海道大学工学部 (正)松藤敏彦 (正)田中信寿 宮脇健太郎 阿部知子 (現北海道庁)

1. はじめに

わが国においては、焼却処理の推進により埋立物中の焼却残渣の割合が高まっている。ごみ中の重金属は焼却灰に濃縮されるため、埋立後に環境中に流出するか否かは重要な問題である。埋立層内の重金属の挙動を明らかにするには、浸出水の移動、灰への吸着、沈殿生成などさまざまなメカニズムを考えなければならないが、それらを左右する最も重要な環境要因は pH である。

焼却灰埋立あるいはその模擬実験については多くの報告があり、1988~92年の間に国内で発表された報告を整理したところ、以下のようにまとめられた。焼却灰はアルカリ分を多く含むため、振とう溶出試験を行なうと浸出水の pH は 12 前後と高い(文献1,2)。しかし、a) 実際の埋立地浸出水の pH は中性域であり(文献3,4,5)、模擬実験の場合、b) pH が 11~12 のまま低下しないもの(文献6,7,8)と、c) pH が 11 前後から中性域まで急激に低下するもの(文献9,10)、の 3 つに分けられた。(最近の文献のみとしたのは、ごみ質の変化とともに灰の特性が変わる可能性があるためである)。本報では、この違いが何故生じるのかについて検討した。なお、実験で用いた焼却灰は、札幌市篠路清掃工場より採取したものである。

2. 埋立地からの浸出水の pH

カラム実験では pH 測定が浸出水採取後すぐ行なわれるのに対し、埋立地では集水ピットに貯留され、一定水位に達したのち取水・測定されるとの違いがある。従って、この間外気と接触することになる。そこで、2 mm ふるい下の焼却灰 10 g と蒸留水 100 mL を 200 mL ビーカーに入れ、攪拌後静置したもの(「灰あり液」と呼ぶ)、およびそのろ液(ろ紙:アドバンティック No.2)を室温で放置した。図 1 に示すように、時間の経過とともにろ液の pH は低下し、IC は増加した。ろ液のビーカーの底には、2 日目より炭酸カルシウムの白い沈殿が見られ(原子吸光度計で沈殿中のカルシウムを確認)、大気中炭酸ガスの溶け込みにより pH が低下したと考えられる。水酸化カルシウム水溶液を放置しても、ろ液とほぼ同様の結果が得られた。図 1 で「灰あり液」の方が pH が高いのは、焼却灰からのアルカリ分溶出があるためである。準好気性埋立構造の場合、底部集排水管を浸出水が流れる間にも大気に曝されることになるため、図 1 より短時間で pH が低下する可能性がある。なお、模擬実験でも pH が最初から低いものがあるが(文献11,12)、いずれも浸出水サンプリングが月 1 回であり、貯留の間の炭酸ガス溶け込みが考えられる。

3. カラム実験による浸出水 pH の変化

カラム実験において pH が低下した c) では、いずれも実験槽を屋外に置き自然降雨であるのに対し、pH が低下しない b) は室内実験で人工降雨を連続的に流しており、中には飽和通水しているものもある。また、埋立構造を模擬した実験で、嫌気性埋立のみ pH が下がらない⁹⁾との報告もあり、2 と同様、大気からの焼却灰層への炭酸ガス侵入が pH を低下させると想われる。すなわち、自然降雨の場合は降雨間隔が長く、層内は水分不飽和状態となり大気が侵入できる。

この仮定を確かめるため、内径 5 cm、高さ 40 cm のアクリル製カラムに焼却灰を充填し、降雨を与える実験を行なった。灰は一様に水になじませるため、風乾のものに水を加えて予め含水率 20% (重力脱水時に相当) とした。焼却灰の粒径は、4 mm ふるい下およびさらに 2 mm 以下をカットしたもの(透気係数大)の 2 種類とし、カラム底部には 6 mm 径のガラスピーブーズを 50 g (高さ 1.5 cm) 敷いた。実験条件を表 1 に示す。いずれも焼却灰 500 g (湿重) を充填し、充填高さは 4 mm ふるい下の灰で 22 cm、2~4 mm の灰で 26 cm であった。降雨は 1 週間おきあるいは毎日の 2 とおりで、20 mL の無炭酸水を一度に与えた(上部に一旦湛水する)。

まず、降雨間隔を 1 週間とした結果を図 2 に示す。大気の侵入しやすさは No. 2 > No. 1 > No. 5 であるが、その順に pH が低くなっている。ただし、No. 1、No. 2 カラムの結果をそれぞれ図 3、図 4 に示すが、両者の溶出濃度、溶出パターンが異なつておらず、焼却灰の特性(特にアルカリ分の存在量・存在形態)が粒径に依存する可能性がある。今回用いた 4 mm 以下の重量割

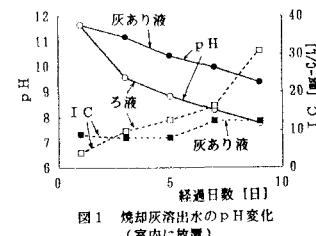
図 1 焼却灰溶出水の pH 变化
(室内に放置)

表 1 実験条件

降雨間隔 好気／嫌気	1 週間				1 日 好気
	好気	好気	嫌気	嫌気	
粒径 4 mm 以下 N o. 1	N o. 1	N o. 3	N o. 5	N o. 6	
2~4 mm N o. 2	N o. 2	N o. 4	N o. 7		

好気: カラム上下端開放
嫌気: カラム上下端密閉、窒素ガス充填
N o. 3 & 4: 固形有機物(餅)を入れる

合は、清掃工場で採取した灰の29%にすぎず、実際の埋立地内の現象を模擬できているかどうか、検討をする。また、他の条件は同じでもカラム底部にビーズを敷かないとpHは低下せず、底に水膜ができて大気の侵入を妨げたと解釈できる。

図5は、降雨を毎日としたカラムNo.6についての結果である。横軸のスケールが図2~4とは違うが、pHの低下はNo.5と同程度に遅く、両者ともアルカリ分の洗い出しによるものと思われる。これは、十数年分の連続降雨を与えてようやくpHが中性になったとの報告¹³⁾と類似した結果で、洗い出しの効果は小さいと言える。(No.7のpH低下も、No.6と同じように緩慢である。) No.3、No.4は灰に土を混ぜ、固形の有機物として餅を入れた。それぞれ灰の粒径で対応するNo.1、No.2よりもpH低下が早く、カラム下部で酸素濃度の低下(約13%)、炭酸ガスの発生(2%)が見られ、微生物活動により促進されたものと思われる。

4. 浸出水pHのシミュレーション

以上の結果をもとに、焼却灰層浸出水pHを、単純なモデルによってシミュレートする。まず、焼却灰層の容積をV[L]、気相、液相の体積割合をそれぞれ ε_G 、 ε_L とし、液相内は完全混合とする。アルカリ成分としてはカルシウムのみ、沈殿は CaCO_3 、 Ca(OH)_2 の2つを考えると、解くべき式は表2のようになる。 $\textcircled{5}$ $\textcircled{6}$ 式はそれぞれの沈殿が生成するときのみ用い、 $\textcircled{9}$ に $[\text{Cl}^-]$ を含めたのは焼却灰中のカルシウムが CaCl_2 として存在すると考えたためである。濃度単位は[mol/L]で、すべて液相体積基準である。

式中 C_1 、 C_2 はそれぞれ系内の炭素、カルシウムの存在量[mol/L] ($\varepsilon_L V$ を乗じると総モル数となる)である。層内液相体積のR倍の降雨($0 < R < 1$)が与えられたとすると、内部の液は $R \varepsilon_L V$ だけ流出する。これに伴って、層内からは溶解しているものが流出するので炭酸、カルシウム、塩素イオンは $\textcircled{11}$ ~ $\textcircled{13}$ のように減少する。一方、非降雨時には大気からの炭酸ガス侵入が期待でき、実際には侵入は徐々に起こるが、非降雨時ごとに炭酸ガス分圧 P_{CO_2} (計算では0.30)に相当する量が一度に層内に入るとした。また、実験結果にもとづいて、 $C_2 = 0.1$ (4000ppmに相当)、 $C_1 = 0.075$ 、 $R = 0.15$ 、 $\varepsilon_G = 0.21$ 、 $\varepsilon_L = 0.28$ として計算した結果を図6に示すが、文献9,10で見られたようなpHの急激な低下が再現できた。

5. 今後の課題

カラム実験、シミュレーションによってpH低下が炭酸ガス侵入によるものであるとの仮定が確認できた。しかし、まだ得られた結果は定性的な範囲であり、降雨強度、降雨間隔、焼却灰粒径分布、透気係数等のパラメータの影響を明らかにしなければならない。また、pHが埋立地深さにより変化するとの報告もあり、シミュレーションモデルでも考慮する必要がある。

参考文献

- 1) 横口壯太郎他, 第11回全都清, 162-164(1990) 2) 宮脇健太郎他, 第12回全都清, 180-182(1991) 3) 清水典徳他, 第10回全都清, 213-215(1989) 4) 勝村陽子他, 第11回全都清, 152-154(1990) 5) 惣田夫, 第11回全都清, 155-157(1990) 6) 古田秀雄他, 第2回廃棄物学会, 297-300(1991) 7) 柳瀬龍二他, 第9回全都清, 198-188(1988) 8) 金谷健他, 第3回廃棄物学会, 487-490(1992) 9) 中野憲一他, 第3回廃棄物学会, 467-470(1992) 10) 8) と同じ 11) 村木宏他, 都市清掃, 42(170), 262-(1989) 12) 長野修治他, 第10回全都清, 186-189(1989) 13) 村木宏他, 都市清掃, 43(176), 265-269(1991) 14) 大迫政浩他, 第13回全都清, 195-197(1992)

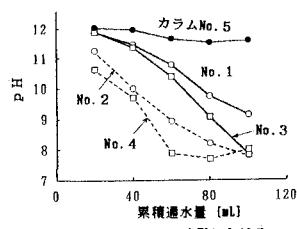


図2 カラム実験における浸出水pHの経時変化

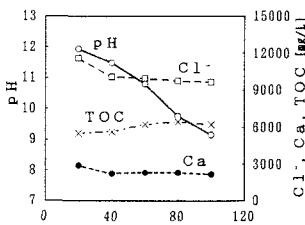


図3 カラムNo.1 浸出水の経時変化

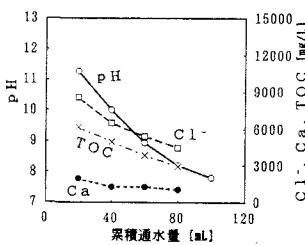


図4 カラムNo.2 浸出水の経時変化

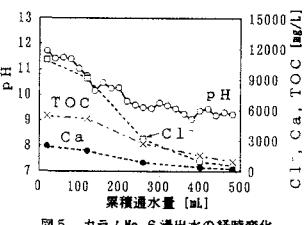


図5 カラムNo.6 浸出水の経時変化

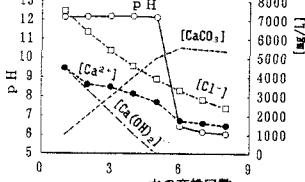


図6 シミュレーション結果

表2 焼却灰層浸出水pHのモデル式

単位液量あたりの気相中炭酸ガス = $P_{\text{CO}_2}/22.4 \times \varepsilon_G V / \varepsilon_L V$	①
炭酸平衡 $[\text{H}_2\text{CO}_3] = 3.9 \times 10^{-2} P_{\text{CO}_2}$	②
$(P_{\text{CO}_2} : \text{炭酸ガス分圧} [-])$	
$[\text{H}^+] [\text{CO}_3^{2-}] = 4.47 \times 10^{-7}$	③
$[\text{H}_2\text{CO}_3] = 5.01 \times 10^{-11}$	④
溶解度積 $[\text{Ca}^{2+}] [\text{CO}_3^{2-}] = 4.47 \times 10^{-9}$	⑤
$[\text{Ca}^{2+}] [\text{OH}^-]^2 = 9.19 \times 10^{-6}$	⑥
炭酸収支 $P_{\text{CO}_2}/(22.4 \times \varepsilon_L / \varepsilon_G + [\text{H}_2\text{CO}_3] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{2-}] + [\text{CaCO}_3] = C_1$	⑦
$[\text{Ca}^{2+}] + [\text{CaCO}_3] + [\text{Ca(OH)}_2] = C_2$	⑧
$([\text{CaCO}_3] + [\text{Ca(OH)}_2] \text{は液相あたりの沈殿量} [\text{mol/L}])$	
電荷収支式 $2[\text{Ca}^{2+}] + [\text{H}^+] = 2[\text{CO}_3^{2-}] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{OH}^-] + [\text{Cl}^-]$	⑨
水の自己プロトリシス定数 $[\text{H}^+] [\text{OH}^-] = 10^{-14}$	⑩
降雨による流出	
$C_1 \leftarrow C_1 - R ([\text{H}_2\text{CO}_3] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{2-}])$	⑪
$C_2 \leftarrow C_2 - R [\text{Ca}^{2+}]$	⑫
$[\text{Cl}^-] \leftarrow [\text{Cl}^-] - R [\text{Cl}^-]$	⑬