

京都大学工学部 学生員 ○宮崎 匠  
 京都大学大学院 フェロー 嘉門 雅史  
 京都大学大学院 正会員 勝見 武  
 京都大学大学院 正会員 乾 徹

1. はじめに

我が国では一般廃棄物を焼却処理して海面埋立するケースが多くなっているが、焼却残渣である焼却灰には人体や生態系に有害な重金属が濃縮して含まれるため、海面処分場の浸出水中の重金属に対する安全性の確保が求められる。そのためには遮水工である底部粘土層の透水係数などの物理的条件だけでなく、焼却灰の pH 条件をはじめ、海面処分場内は嫌気性になりやすいこと等の生化学的条件をも考慮して評価する必要がある。これを受けて著者らは、バッチ試験や柔壁型透水試験によって pH、酸化還元電位 (Eh) 等の化学的条件が微生物活性ならびに重金属の動態に与える影響について考察してきた<sup>1)</sup>。本研究ではより現場条件に近いと考えられる大型カラム透水試験を行い、遮水工である粘土層と焼却灰層における化学的条件の変化と重金属の挙動への影響について検討した。

2. 実験方法

2.1 使用材料 実験には海成粘土と一般廃棄物焼却灰を使用した。海成粘土、焼却灰の特性を表-1, 2 にそれぞれ示す。焼却灰は焼却炉から排出された炉底灰とキレート処理飛灰の混合灰の 4.75 mm ふるい通過分を使用した。

2.2 大型カラム透水試験 図-1 に示す大型カラムに海成粘土層 (h = 150 mm、0.2 MPa で予備圧密)、焼却灰層 (h = 850 mm、焼却灰を海水に浸漬し海水ごと脱気した後水中落下法で充填、湿潤密度 1.35 t/m<sup>3</sup>) の順に充填し、その上部に溶媒 (水位 20~40 cm、人工海水に栄養塩として NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> を 1000 mg/L、電子受容体として Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> を 1000 mg/L、ZnCl<sub>2</sub> を 2000 mg/L 添加したもの) を加えた。表-3 に溶媒の化学特性を示す。溶媒の上部空間の圧力を窒素ガスで 0.04 MPa に維持し、下方流で透水を行った。

2.3 化学分析 排水および大型カラム側面の排水ポートから採取した所定深度 (粘土層 2 ヶ所、廃棄物層 7 ヶ所) の間隙水を化学分析に供した。分析項目は、pH、酸化還元電位 (Eh)、Zn 濃度、全有機炭素量 (TOC)、S<sup>2-</sup>濃度、アデノシン 3 リン酸 (ATP) 濃度である。

3. 試験結果と考察

図-2 にカラム内の pH の深度方向分布とその経時変化を示す。焼却灰の強いアルカリ性のために実験開始直後の pH は 12.0 以上と高い pH を示す一方、粘土層の有する緩衝能力の影響で粘土層の pH は 9~11 程度を示した。時間の経過とともに焼却灰の洗い出しが進行するとカラム上部から pH の低下がみられ、316 日経過後の 100 mm 深さでの pH は 7 以下、450 mm 深さでは pH = 9.5 程度となっており、大きな時間変化は確認されていない。図-3 に Eh の深度分布とその経時変化を示す。焼却灰

表-1 海成粘土の特性

採取地点	大阪港 阪南 5 区 (水深 10~13m)
土粒子密度	2.61 g/cm <sup>3</sup>
塑性限界	22.7%
液性限界	41.1%
pH*	8.9

\*環境省告示 46 号試験の検液

表-2 廃棄物焼却灰の特性

最適含水比	24.4 %	
pH5.8~6.3 の 溶液と混合	pH*	12.38
	Eh*	-124mV
pH7.8~8.3 の 溶液と混合	pH*	12.24
	Eh*	-118mV
Zn 濃度*	0.37mg/L	

\*環境省告示 13 号試験の検液

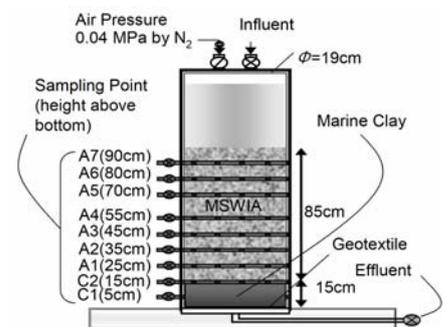


図-1 大型カラム透水試験

表-3 溶媒の化学特性

pH	Eh (mV)	TOC (mg/L)	Zn <sup>2+</sup> 濃度 (mg/L)
5.12	66	6.1	920

層を脱気して実験を開始したこともあり、実験開始直後から約 100 日経過後までは底部を除いたカラム全体で強い還元性を示した。粘土層内 (950 mm 深さ) では、Eh がやや高い値を示しており、粘土層が Eh に影響を与えると考えられるが詳細のメカニズムについては検討が必要である。排水 (1000 mm 深さ) の Eh が大幅に高いのは、密閉状態を保つようにしたものの何らかの原因で空気と接触したためであると考えられる。Eh の時間変化に着目すると、試験開始直後に Eh が焼却灰層内部で -600 mV 以下と急激に低下したが、その後は Eh の上昇がみられた。316 日経過時点での焼却灰層内部の Eh は -200~-300 mV 程度を維持しており、大きな時間変化は確認されていない。試験開始直後の Eh の低下は焼却灰からの化学物質が高い濃度で溶出することに依存すると考えられるが、そのメカニズムについては検討が必要である。図-3 にカラムにおける各深度の pH、Eh、Zn 濃度の値を、CO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O-S-Zn システムにおける Zn の存在形態 (図 4) にプロットしたものを示す。カラム内には他の物質も含まれるため、この図が本研究における Zn の存在形態を正確に表しているとはいえないが、カラム内の現象を考察する際の参考にはできる。深度 50 mm の採取ポート以外からは、全く Zn は検出されなかったことから、Zn は Zn(OH)<sub>2</sub>、Zn(CO<sub>3</sub>)、ZnS のいずれかの沈殿を形成し安定化しており、埋立層内における移動性は非常に低いと考えられる。ただし、S<sup>2-</sup>はカラム全域において終始 0.15 mg/L 程度と非常に低い値しか検出されなかったため、カラム内の硫酸還元菌の活動はあまり活発ではなかった可能性があり、ZnS の存在が重金属安定化に及ぼした影響に関しては断言できない。また、pH、および Eh の低下と S<sup>2-</sup>の減少が同時に起こると、焼却灰層上部で確認されたように Zn<sup>2+</sup>の形をとって溶出が促進される可能性がこの図から示唆される。現時点では pH、および Eh に大きな変化がみられず、かつカラム各地点からはほとんど Zn の溶出はないことから、焼却灰層内の重金属は安定しており、移動性は非常に小さいと判断できる。

#### 4. おわりに

本研究ではバッチ試験や柔壁型透水試験よりも現場条件に近いと考えられる大型カラムによる透水試験を行い、化学的条件の変化が重金属の動態に与える影響について考察した。今後同様の試験を実施するにあたっては溶媒の脱気を行い、また添加溶媒の pH が海水に近い弱アルカリ性になるように添加剤を調整することで、より海面埋立処分場の化学的条件に近いものになると考える。また、金属硫化物量を測定して硫酸還元菌による重金属の安定化作用を確認することも考えられる。今後は本研究で使用した大型カラムを解体し抽出試験を実施することで、カラム内の重金属の分布や存在形態を調べ、本研究の測定結果と併せてさらなるメカニズムの解明を図る次第である。

#### 【参考文献】

- 1) Kamon, M. Zhang, H., Katsumi, T., and Inui, T. (2006) : Biochemical effects on the long-term mobility of heavy metals in marine clay at coastal landfill sites, *Journal of ASTM International*, Vol.3, No.7, Paper ID JA113326.
- 2) Hem, J.D. (1972) : Chemistry and occurrence of cadmium and zinc in surface water and groundwater, *Water Resources Research*, Vol.8, pp.661-678.

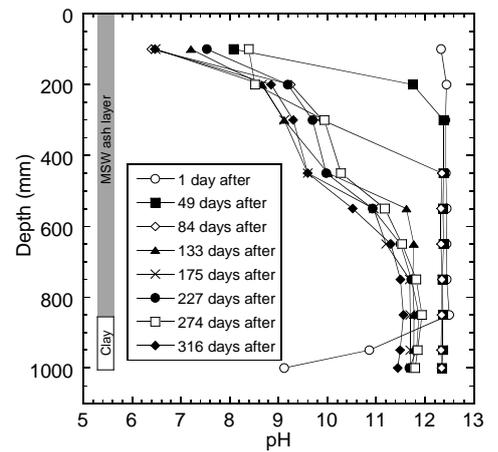


図-2 pH 分布の経時変化

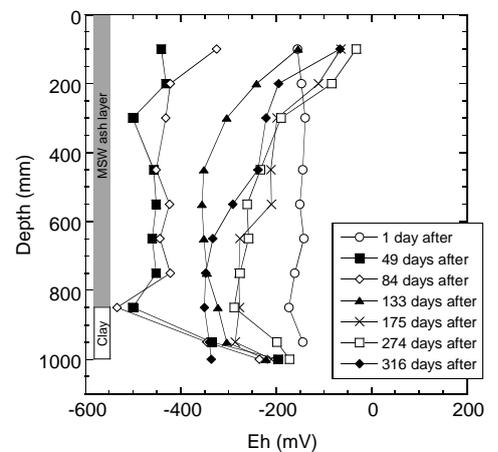


図-3 Eh 分布の経時変化

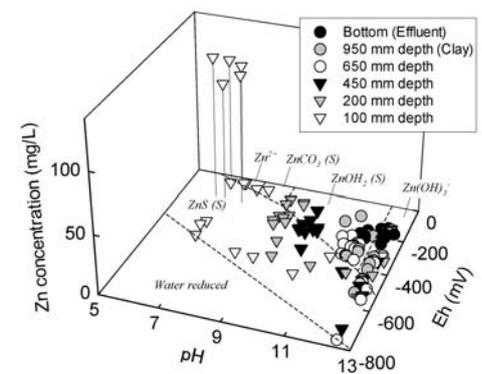


図-4 pH、Eh と Zn<sup>2+</sup>の溶出量