## 埋立焼却残渣の炭酸化に伴う鉛の不溶化機構の解明

## 九州大学大学院 学生会員 原口 崇 正会員 島岡 隆行 正会員 江藤 次郎 河越 健至

1.はじめに 我が国では、持続可能な循環型社会の育成に向けて、廃棄物の発生抑制、再利用、リサイクル等の 取組みが行われている。現在、廃棄物処分場に取り巻く問題として、残余容量・残余年数の逼迫化と新規処分場建 設の難しさが挙げられるが、これに対応する策として、処分場内に埋立てられている焼却残渣を路盤材等の建設資 材へ転用する試みが図られている。その転用の際の課題の一つとして、焼却残渣中に含有されている鉛等の重金属 の不溶化を図る必要性があるが、このためには、含有されている鉛が自然環境下で示す長期的な挙動を検討する必 要性がある。この研究では、埋立られた焼却残渣に対する風化プロセスとして炭酸化が顕著に見られることに着目 し、炭酸化に伴う鉛不溶化機構の解明を目的とした。

2.実験方法 本研究で用いる試料はアメリカ合衆国ニューハンプシャー州の埋立地で採取した。表 - 1 に採取区 画と採取深度を示す。表 - 1 で区画名として用いられている年は、その年から数年間の期間に区画が埋立てられた ことを示す。

残渣中にはCaが多く含まれ、炭酸化に伴い炭酸塩が多く生成されることが考えられるため、全体的な炭酸化の傾向を把握する手法として、X線回折分析(XRD)によるCa鉱物の同定を行い、そのピーク強度の比較を行った。またXRDとは別に、直接的に炭酸化の傾向を定量する手段として、各試料中の炭酸含有量の測定も行った。次に、溶出試験として環境省告示第46号試験(JLT46)を行い、鉛の溶出率と炭酸含有量との相関を検討した。

炭酸化に伴う鉛炭酸塩の生成を検討するため、SPring-8でのX線吸光微細構造(XAFS)分光法による含有鉛の化合 形態の推定も行った。

3.実験結果および考察 表 - 2 に、同定されたCa鉱物のピーク強度を示す。また図 - 1 に、炭酸含有量を深さ方 向に示す。表 - 2 における各試料のCaCO<sub>3</sub>のピーク強度を比較すると、2001年、

2003年の新しい埋立区画において、他の埋立区画よりも大きい傾向を示した。 図 - 1においても2001年、2003年での炭酸含有量は他の埋立区画よりも多い傾向を示した。これらの結果から、2001年、2003年埋立区画において炭酸化がより進行し、CaCO<sub>3</sub>が多く生成されていたことが示唆された。次に、JLT46で得られた溶出液の鉛溶出濃度をICP発光分析装置で測定し、溶出率に

換算した。その溶出率を炭酸含有量と比較し相関性を検討した。図 - 2に溶出率と炭酸含有量の相関および溶出率の換算式を示す。 2001年、2003年埋立区画などの炭酸含有量が多い区画では、鉛溶出 率が低い傾向となった。1989年、1994年埋立区画等の炭酸含有量が 少ない区画では、一部で鉛溶出率が低い傾向を示す試料があった が、高い傾向を示すものも多く認められ、炭酸化が進行するほど鉛 溶出が抑制されることが示された。

炭酸化に伴う不溶化の一因として、鉛炭酸塩の生成が考えられる ため、SPring-8 での XAFS 測定による含有鉛の化合形態の推定を 行った。XAFS の解析には、Rigaku 製 XAFS 解析ソフトウェア REX2000 を用いた。



埋立区画	キャッピング	採取深度(m)
1989年	あり	0, 1, 2, 2.5
1994年	あり	0, 1, 2, 3
2001年	なし	0, 1, 2, 3, 4
2003年	なし	0, 0.5, 1, 2, 3, 4



図 - 1 炭酸含有量の変化

4

+++

																				-
	キャッピング	あり								なし										
鉱物名	埋立前 焼却残渣	1989年埋立			1994年埋立					2001年埋立				2003年埋立						
	深さ	0	1	2	2.5	0	0.5	1	2	3	0	1	2	3	4	0	0.5	1	2	Ē
Ettringite																				Γ
Ca <sub>6</sub> Al <sub>2</sub> (SO <sub>4</sub> ) <sub>3</sub> (OH) <sub>12</sub> · 26H <sub>2</sub> O	-	++	++	-	++	++	++	+	++	++	-	+	-	-	-	-	++	++	++	
Calcite	++				++	++	++	++	++	++	+++	+++	+++	+++	+++			+++	+++	Ī
CaCO <sub>3</sub>		++	++	+												++++	++++			
Gypsum																				Í
CaSO₄ · 2H₂O	-	-	- I		-	-	-	-	-	-	+	++	-	- I	+	-	-	-	+	l

表 - 2 XRD 測定結果

++++: 1000cps以上、+++: 1000~500cps、++: 500~200cps、+: 200cps以下、-: 非検出





化合形態		Pb-glass	PbO	PbCO3	PbS	PbCuSbS3	PbCuSO4(OH)2	PbSO4	PbCl2
焼却原灰		67.2	25.8	-	-	7.0	-	-	-
1989年 埋立区画 2003年	0m	100.0	-	-	-	-	-	-	-
	2.5m	96.1	2.6	-	-	1.3	-	-	-
	0m	34.2	17.5	-	31.3	-	-	0.4	16.6
埋立区画	3m	79.6	-	-	20.4	-	-	-	-
化合形態		Pb-glass	PbO	PbCO3	PbS	PbCuSbS3	PbCuSO4(OH)2	PbSO4	PbCl2
焼却原灰		83.5	16.5	-	-	-	-	-	-
	0.5h	77.1	22.9	-	-	-	-	-	-
DUNI	1h	84.3	15.7	-	-	-	-	-	-
RUNT	8h	91.5	-	-	8.5	-	-	-	-
	17.5h	85.3	-	2.7	-	-	12.0	-	-
	0.5h	94.7	5.3	-	-	-	-	-	-
DUNO	1h	87.4	12.6	-	-	-	-	-	-
RUNZ	8h	97.7	-	2.3	-	-	-	-	-
	18.5h	58.3	-	10.9	-	-	14.3	-	16.5

測定で用いた標準試料と測定試料の一覧を表 - 3 に示す。標準試料として用いたPb-Glassとは、鉛を多く含有して いるガラスである。本研究では、放射線遮蔽用に市販されているものを標準試料として使用した。また、本研究で は比較対照として、カラムを用いた炭酸化促進実験で長時間通気した試料中に含有されている鉛の化合形態の推定 も並行して行った。実験に用いたカラムの内径は52mm、長さは350mmであり、充填する焼却灰の重さは乾燥重量 換算で280gとした。また通気ガス中の二酸化炭素濃度はそれぞれ0.12mmol/g (RUN1)、0.45mmol/g (RUN2)とした。

図 - 3にXAFSの測定結果を、表 - 4に鉛の化合形態の推定結果を示す。鉛の化合形態の主要なものとしてはPb-GlassとPbOが大部分を占めた。PbCO<sub>3</sub>は埋立採取試料からは検出されなかったが、炭酸化促進実験で採取された試 料のうち、長時間通気した3検体の試料(RUN1の17.5時間通気試料、およびRUN2の8時間通気試料と18.5時間通 気試料)から検出された。2003年埋立区画で採取された埋立試料ではPbCO<sub>3</sub>の生成は見られないにも関わらず、図 - 2によりかなりの不溶化が確認されていることから、炭酸化が著しい環境では炭酸化に伴う不溶化の一因として 鉛炭酸塩生成による鉛溶出抑制が期待されるものの、通常の埋立環境では他の要因が働いているものと示唆された。

炭酸化促進実験で得られた試料を用いて薄片試料を作成した。顕微鏡観察を行った結果、粒子表面近くにおいて、 炭酸化の影響によると思われる新たな鉱物の生成が示唆され、埋立試料においても同様に新たな鉱物が生成されて いるものと考えられた。この鉱物はCaCO3であることが可能性として示唆されたが、CaCO3が鉛を吸着する事が知 見として報告されていることから、埋立試料において新たに生成されたCaCO3が鉛溶出の抑制に大きく寄与してい る可能性が考えられた。

4.まとめ この研究では、炭酸化が埋立られた焼却残渣に対する風化プロセスとして起きている事に着目し、炭酸化に伴う鉛不溶化機構の解明を目的とした。埋立採取試料の炭酸含有量と鉛溶出率との比較を行ったところ、炭酸含有量を多く含む試料ほど鉛溶出率が低い傾向が示された。鉛溶出率が低下する要因としてはPbCO<sub>3</sub>の生成が考えられたが、SPring-8による埋立試料のXAFS解析の結果、PbCO<sub>3</sub>の生成が溶出抑制に寄与している可能性は低いことが示唆された。CaCO<sub>3</sub>に代表される新たな鉱物が粒子表面近くに生成する事によって鉛の溶出を抑制している可能性が考えられた。

【参考文献】1)本幡照文,島岡隆行,崎田省吾:焼却灰の炭酸化に伴う鉛不溶化現象の解明,廃棄物学会研究発表会 講演論文集 Vol.15, pp.1057-1059, 2004

2) ASHAKI A. ROUFF, RICHARD J. REEDER, and NICHOLAS S. FISHER : Pb Sorption with Calcite, A Radiotracer Study, Aquatic Geochemistry, Vol.8, pp.203-228, 2003