

埋立焼却残渣における二酸化炭素吸収の推定に関する研究

九州大学大学院工学府

学生会員 ○福井 晋平

九州大学大学院工学研究院

正会員 高橋 史武 島岡 隆行

University of New Hampshire

Kevin H. Gardner

1. はじめに

廃棄物に関する地球温暖化研究では、生ごみ埋立地からの温室効果ガス(二酸化炭素、メタン)の排出現象に着目され、その排出量を推定する研究が主であった。一方で、廃棄物焼却残渣の再資源化を目指した研究分野では、焼却残渣が二酸化炭素を吸収して鉱物的変化が生じることが研究から明らかになっている^{1),2)}ことや、日本や米国の一部の州では焼却処理した残渣の埋立が主体である(2005年度実績で日本における最終処分された廃棄物に占める焼却残渣は62%である³⁾)ことから、埋め立てられた焼却残渣は炭酸化され、大気中の二酸化炭素を吸収すると考えられるが埋立地内への二酸化炭素吸収は進行がゆるやかであるため埋立地による二酸化炭素吸収は着目されずにいた。

本研究では埋立焼却残渣における二酸化炭素吸収に着目した。そして、二酸化炭素吸収量を定量・評価することを目的とし、埋立焼却残渣の炭酸化要因の検討および、焼却残渣の飽和炭酸化量の検討を行った。

2. 実験概要

2-1 実験試料：表1に採取した実験試料一覧を記す。本研究で用いた試料は、米国の焼却残渣主体の埋立地において、1995年(No.1) 1997年(No.2)に埋立て処分された比較的埋立て年度の近い2箇所において焼却残渣の試料採取を行った。試料採取は、それぞれの埋立て箇所において埋立地表面を0mとし、0mから1m刻みで深さ方向に4mまでの5点で行った。また、試料採取当日に焼却工場から埋立地に運ばれてきた焼却残渣(FBA)の採取もおこなった。

2-2 埋立焼却残渣の炭酸化要因の検討：No.1-0m~4m, No.2-0m~4mの10試料について、現在の炭酸含有量の測定を実施した。炭酸化が進む要因を検討するために、それぞれの試料の含有量の測定、比表面積の測定を実施した。比表面積を測定する際には、1.6mm篩いを通してものを用いた。

2-3 焼却残渣の飽和炭酸化量の検討：焼却残渣の飽和炭酸化量を把握するために、各試料に関して炭酸化試験を実施した。炭酸化試験はグローブボックス内に窒素85%、二酸化炭素15%の混合ガスを流入し、内部の二酸化炭素濃度が15%付近になったことを確認した後に、75μm以下に粉碎した各試料を含水率10%に調整してからグローブボックス内部に入れて行った。飽和炭酸含有量に達するまでに要する時間を把握するために、FBAを炭酸化試験開始後、1, 3, 6, 12, 24, 72, 148時間後に、炭酸含有量の測定を行った。他の試料は、FBAの炭酸含有量の経時変化の結果を元に飽和炭酸含有量を測定した。炭酸化試験を実施していた期間中のグローブボックス内の温度、湿度はそれぞれ約20℃、65%であった。

3. 結果および考察

3-1 埋立焼却残渣の炭酸化要因の検討：表2に蛍光X分析(XRF)により求めた各試料の元素含有量を記している。各試料をみると、FBA, No.1, No.2いずれの試料もSi, Ca, Fe, Alが主成分として存在していることがわかる。埋立焼却残渣であるNo.1, No.2の試料のNa, KおよびClの含有量は、FBAの試料と比較して小さな値となっていることから、埋立て期間中に溶出現象が進んでいたことが示唆された。各試料の炭酸含有量の測定結果が、図1である。No.1の試料を見ると採取地点が深い試料ほど、炭酸含有量が小さいことが確認できる。この要因は埋立地表面の方が大気中の二酸化炭素と触れやすい環境にあるため、炭酸化が進行したと考えられる。No.2-0~3mについてはNo.1

の試料と同様に採取地点が深い試料ほどに炭酸含有量が増加するという傾向が得られているが、No.2-4mにおいて炭酸含有量が増加し最も大きな値となっている。No.2-4mでの採取点は他の採取点に比べ明らかに掘削しやすかったため、空気の侵入が容易であったと推測でき、これはNo.2-4mで炭酸含有量が大きくなっていることと矛盾しない。No.1に比べてNo.2の試料の方が各深さ方向において炭酸含有量の値が大きいという結果が得られている。これは、埋立地内の通気性、保水性などの環境の

表1 実験試料

試料名	採取深さ(m)	備考
FBA		試料採取日排出
No.1-0m	0	1995年 埋立処分
No.1-1m	1	
No.1-2m	2	
No.1-3m	3	
No.1-4m	4	
No.2-0m	0	1997年 埋立処分
No.2-1m	1	
No.2-2m	2	
No.2-3m	3	
No.2-4m	4	

表2 各試料の含有量

元素	FBA	No.1-0~4m		No.2-0~4m	
	含有量 (g/kg-ash)	平均含有量 (g/kg-ash)	標準偏差 (-)	平均含有量 (g/kg-ash)	標準偏差 (-)
Si	192.67	121.39	27.85	92.64	14.96
Ca	117.59	150.67	35.54	178.68	38.96
Fe	83.20	165.66	62.86	154.79	36.89
Al	67.78	71.46	12.05	71.01	15.17
Na	25.94	9.25	3.25	7.72	1.98
K	11.10	5.12	1.86	5.12	1.15
Cl	13.34	2.36	1.05	2.53	2.20

違いも考えられるが、試料の成分によるものも考えられる。表2より Ca だけが No.2 の方が No.1 の試料より平均含有量が顕著に高いことから Ca 含有量が炭酸化量に影響を与えるのではないかと示唆された。

各試料の比表面積の分析結果を炭酸含有量との関係について検討したものが図2である。これから、比表面積が大きいほど炭酸含有量が大きく炭酸化反応が進むと比表面積が大きくなるという斉藤⁴⁾の研究成果と一致している。

3-2 焼却残渣の飽和炭酸化量の検討：

FBA の炭酸化試験を実施した際の炭酸含有量の経時変化を追ったものが図3である。炭酸含有量は試験開始1時間で大きく増加し、その後は緩やかな増加を示し、72時間から148時間の期間ではほとんど増加を示さなくなったため、148時間の時点で FBA は飽和炭酸含有量に達したことが示唆された。このときの、炭酸含有量は、1.45 mol/kg-ash であった。FBA は埋立焼却残渣ではないため、炭酸化試験実施前において他の試料と比較して炭酸化が進行していない。よって、FBA が飽和炭酸含有量に達した時点で他の試料に関しても飽和炭酸含有量に達するのに十分な時間であると判断した。図4は炭酸化試験148時間後における各試料の飽和炭酸含有量を示したものである。飽和炭酸含有量は1.25～2.60 mol/kg-ash と、試料間でばらつきがあることが確認された。飽和炭酸含有量においても No.1 より No.2 のほうが大きな値となる傾向が得られた。炭酸化試験は、すべての試料において環境はで統一されているため、飽和炭酸含有量は焼却残渣中の含有量や化合形態の影響が大きいと考えられる。3-1 で Ca 含有量が炭酸含有量と関連があると示唆されたので焼却残渣の主成分である Ca 含有量と飽和炭酸含有量の関係を図5に示した。Ca 含有量と飽和炭酸含有量の間には正の相関が見られた。その他の表2に示している主要含有成分と飽和炭酸含有量の間では相関は得られなかった。これより、Ca 含有量が飽和炭酸含有量に影響を及ぼすことが示唆された。

SP-ring8 の共用ビームライン BL02B2 による X 線回折分析 (XRD) により、炭酸化前後の各試料を調べた。炭酸化前後で、各試料に大きな鉱物形態変化は見られなかった。Ca 成分は炭酸化されると炭酸カルシウム系鉱物となり、その中でも、焼却残渣中の主な鉱物は calcite であるが、calcite のピークに、炭酸化前後に大きな変化はみられなかった。このことから、炭酸化により生成された炭酸カルシウム系鉱物は、非晶質の鉱物であることが示唆された。

4. まとめ

埋立地における炭酸化は、表層付近で進行しており、Ca 含有量が高いものほど炭酸含有量が多いことが示唆された。炭酸化反応が進むと比表面積が大きくなることが示唆された。焼却残渣の飽和炭酸含有量は、1.25～2.60 mol/kg-ash と幅を持つ結果となり、飽和炭酸含有量と Ca 含有量の間には正の相関がみられたため、Ca 含有量が飽和炭酸含有量に影響を及ぼすことが示唆された。炭酸化により生成される炭酸カルシウム系鉱物は非晶質であることが示唆された。今後は、より詳細な炭酸化反応機構を明らかにし、反応速度のモデル化の検討を行う予定である。

最後に、本研究は平成20年度日本学術振興会若手研究者インターナショナル・トレーニング・プログラム(「地球資源・環境系国際的若手研究者育成のためのアジアにおける研究拠点形成」)の支援を受けたものである。ここに深く謝意を表す。

[参考文献] 1) 李政準, 崎田省吾, 島岡隆行: 焼却灰の炭酸化処理に関する基礎的研究, 土木学会第58回年次学術講演会, pp.257-258, 2003 2) 江藤次郎, 原口崇, 島岡隆行: 埋立都市ごみ焼却残渣の炭酸化現象に伴う重金属溶出抑制, 第17回廃棄物学会研究発表会公演論文集, pp.825-827, 2006 3) 平成20年度版環境統計集 3 章物質循環一般廃棄物ごみ処理フローシート 4) 斉藤啓輔: 都市ごみ焼却灰の炭酸化における鉛の不溶化現象の解明に関する研究, 九州大学修士論文, 2008

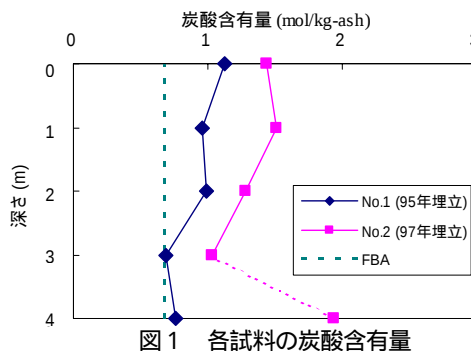


図1 各試料の炭酸含有量

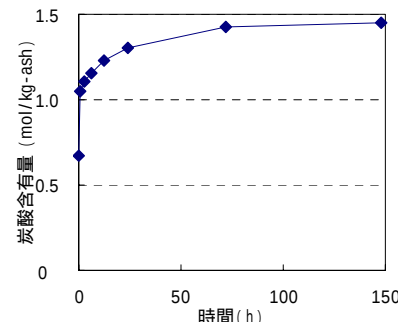


図3 炭酸含有量の経時変化

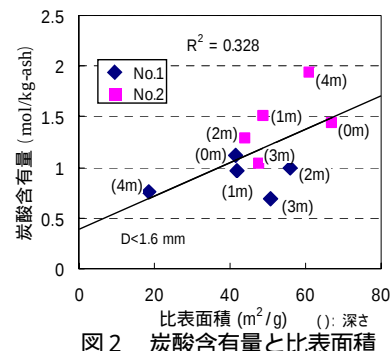


図2 炭酸含有量と比表面積

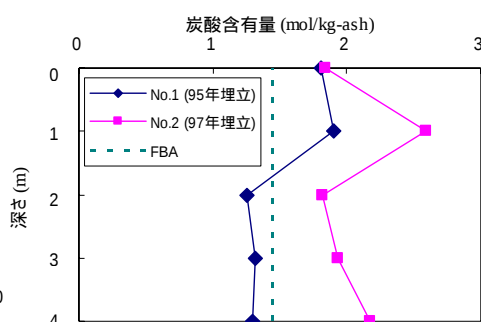


図4 各試料の飽和炭酸含有量

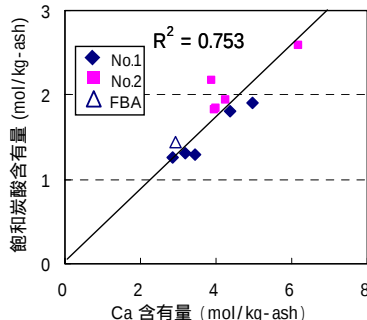


図5 飽和炭酸含有量とCa含有量