

# 焼却残渣主体の埋立地における重金属の流出挙動及びその要因に関する研究

福岡大学 (学) ○柿木直人 (学) 松田貴 (正) 鈴木慎也 (正) 立藤綾子

## 1. はじめに

1991年の廃棄物処理法の改正により焼却飛灰はキレート処理やコンクリート固化等の無害化処理後、埋立処分することが義務付けられた。しかし、飛灰をキレート処理した後、一定期間湿潤状態で放置すると、Pbが再溶出することが報告されており、キレート機能の安定性が疑問視されている。そこで、松田ら<sup>2)</sup>は、キレート処理飛灰のO<sub>2</sub>、CO<sub>2</sub>及び大気曝露実験を行い、Pbの再溶出の要因について検討した。その結果、PbがO<sub>2</sub>曝露によって再溶出するが、CO<sub>2</sub>及び大気曝露では、CO<sub>2</sub>の存在によってPbCO<sub>3</sub>を形成し不溶化することやPbCO<sub>3</sub>はO<sub>2</sub>に曝されても再溶出しないこと等を明らかにした。本研究では、Pbの再溶出の要因がO<sub>2</sub>曝露による重金属化合物の形態変化ではないかと考え、キレート処理飛灰及びそのO<sub>2</sub>曝露(1週間)処理飛灰について重金属の化学形態を調査し、確認を行った。

## 2. 実験試料及び実験方法

実験試料は、T清掃工場で発生したキレート処理飛灰である。このT処理飛灰100gを500mLガス発生瓶に計り取り、100%O<sub>2</sub>を100mL/minで10分間吹き込み、ガス発生瓶中の気相部をO<sub>2</sub>で置換した。その後密閉し、室温で1週間放置した(図-1)。1週間放置前後の飛灰を逐次抽出法により水溶性画分、イオン交換態、炭酸塩態、酸化物態、有機物・硫化物態及び残留物態の6つの画分に分離し、抽出液のPb濃度を計測した(図-2)。また、両飛灰を環境庁告示13号溶出試験に供し、抽出液のpH、ORP、重金属濃度、未反応キレート剤濃度及び陽・陰イオン濃度を計測した。すべての実験を3連で行った。

## 3. 実験結果

まず、溶出試験の結果についてみると、O<sub>2</sub>曝露後においてZnとPbの溶出に変化が見られた(表-1)。Zn濃度はすべてのT処理飛灰において曝露前に比べて1.5mg/L低下した。一方、Pb濃度は曝露前において0.1mg/L以下であったT処理飛灰すべてが曝露後に上昇し、T飛灰②及び③では埋立基準を超える0.74及び0.39mg/Lに上昇した(表-1)。PbとZnは両性金属であるが、O<sub>2</sub>曝露後の変化は逆の傾向であったこと及び松田ら<sup>2)</sup>はPbの再溶出時においてORPが低下すると報告していることから、両金属間で酸化還元反応(電子のやりとり)が起き、それによってPb化合物が水溶性化合物に変化したのではないかと推察された。

そこで、化学形態について見ると、有機物・硫化物態及び残留物態画分については各試料間に差はほとんど見られず、いずれもO<sub>2</sub>曝露後減少した。特に、T飛灰②及び③の残留物態画分の減少量が多かった(図-3)。一方、酸化物態画分量は、O<sub>2</sub>曝露後にPb濃度が埋立基準を超えたT飛灰②、③と超えなかったT飛灰①で傾向が異なり、T飛灰②、③において減少し、T飛灰①では増加した(図-3)。また、炭酸塩態画分もO<sub>2</sub>曝露後に、T飛灰②、③にお

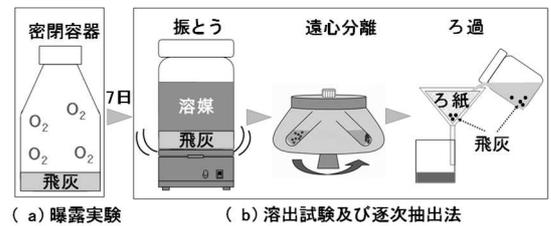


図-1 実験方法

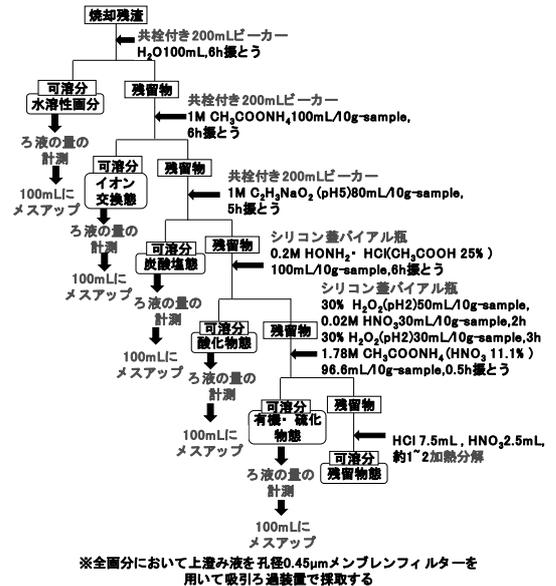


図-2 重金属の化学形態測定方法

表-1 溶出試験結果

項目	T飛灰①		T飛灰②		T飛灰③	
	前	後	前	後	前	後
pH (-)	12.37	12.63	12.44	12.74	12.42	12.77
ORP (mV)	-135	-116	-144	-108	-141	-111
Zn (mg/L)	1.98	0.70	2.76	0.68	2.15	0.74
Pb (mg/L)	0.02	0.06	0.04	0.74	0.02	0.39
Ca <sup>2+</sup> (mg/L)	2370	2310	2396	2343	2383	2292
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/L)	1145	1057	1189	1052	1160	1040

いてわずかに増加、T 飛灰①では減少したものの、その曝露後の量は T 飛灰②及び③に比べて多かった(図-3)。これらのこと及び水溶性画分が O<sub>2</sub> 曝露後に増加していること(図-4)から、O<sub>2</sub> 曝露により、酸化物態が水溶性画分に変化したために Pb の再溶出が起きた可能性が考えられる。高岡ら<sup>3)</sup>は、飛灰粒子表面には PbCO<sub>3</sub> や PbCl<sub>2</sub> が存在し、粒子内部は PbO<sub>2</sub> であると報告していることや一般に炭酸塩は被膜を形成し、気液の浸透を防止することから、炭酸塩被膜が少ない T 飛灰②及び③では、O<sub>2</sub> が飛灰内部へ浸透し、酸化還元反応が促進された結果、飛灰内部に存在する不溶性 PbO<sub>2</sub> が PbO や PbCl<sub>2</sub> 等の可溶性 Pb に変化し易かったのではないかと予想される。炭酸塩被膜が厚いと予想される T 飛灰①においても、曝露後に炭酸塩態画分が減少していることから、O<sub>2</sub> による酸化還元反応は粒子表面で起きているものの、内部に進行しなかったのではないかと考えられる。以上のことから、Pb の再溶出は酸化物態が水溶性態へ変化したこと、その変化の大きさは、飛灰粒子の炭酸塩被膜の量が影響しているものと推察された (図-5)。

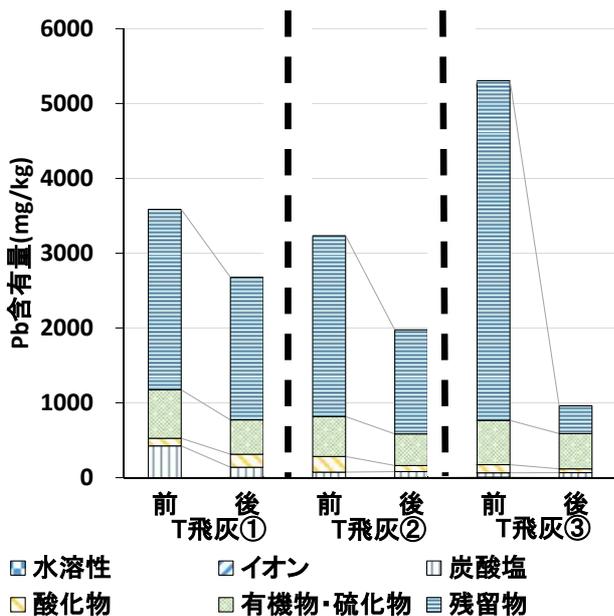


図-3 曝露前後の Pb の化学形態の変化

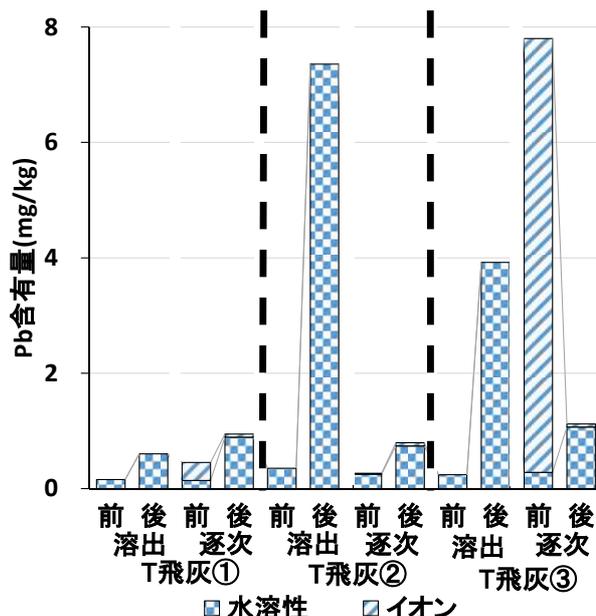


図-4 曝露前後の水溶性・イオン画分の変化

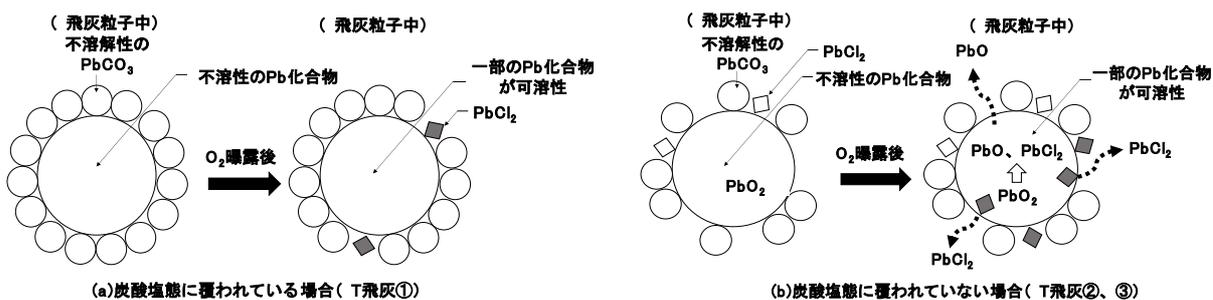


図-5 予想される Pb 再溶出のメカニズム

4. まとめ

本研究を通して、O<sub>2</sub> 曝露による Pb 化合物の変化とその要因について以下のことが予想された。

- ①Pb の再溶出は酸化物態が水溶性態に変化したためである。
- ②水溶性態への変化は、O<sub>2</sub> が飛灰内部へ浸透し、酸化還元反応が促進され、飛灰内部に存在する不溶性 PbO<sub>2</sub> が PbO や PbCl<sub>2</sub> 等の可溶性 Pb に変化したためである。
- ③②の反応は炭酸塩被膜が多い場合、抑制される傾向にある。

【参考文献】

1) 着倉宏史ら：キレート処理した一般廃棄物焼却飛灰からの鉛の再溶出挙動に関する研究，廃棄物学会論文誌，Vol.16, No.3, pp.214-222, 2005  
 2) 松田貴ら：キレート処理飛灰中の重金属の安定性に関する研究（その3）-H<sub>2</sub>発生による重金属キレート化合物の還元脱離の可能性-，第29回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集，pp.431-432, 2018  
 3) 高岡昌輝ら：逐次抽出法による飛灰中亜鉛・鉛・銅およびカドミウムの化学形態推定，土木学会論文集，No.685/VII-20, pp.79-90, 2001