

(43) 炭酸ガス吸収による焼却灰埋立層浸出液 pH の低下に関する研究

Neutralization of leachate pH by carbon dioxide absorption in incineration ash landfill

宮脇健太郎、松藤敏彦、田中信寿、松尾孝之、増田剛
Kentaro MIYAWAKI, Toshihiko MATSUTO, Nobutoshi TANAKA
Takayuki MATSUO, Takeshi MASUDA

Abstract: Because of high burning rate of combustible waste, incineration ash constitutes a large percentage of landfilled waste in Japan. High alkali content in the ash leads to high pH in leachate, which have been seen in many reports of shaking test or lysimeter tests of the ash. However, a couple of lysimeter studies show rapid decrease of pH in leachate, and neutral pH are commonly observed in actual landfill operations. By close analysis of past studies, the authors assumed that carbon dioxide immigration/absorption into ash layer could neutralize pH.

The authors tested the assumption by batch type experiments in this study. Carbon dioxide absorption rate into ash was determined, and good correlation was observed between the absorption amounts and pH decrease in leachate. Though the most experiments were done in carbon dioxide concentration of 30%, the neutralization of pH was also realized in the atmosphere whose concentration is only 0.03%. Finally, model simulation explicitly shows that the neutralization process follows the second order reaction of carbon dioxide and alkali, and the reaction rate constant was estimated.

Keyword: Incineration ash, pH neutralization, leachate, carbon dioxide

1. 既報の整理と研究目的

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灰の割合が高まっている。焼却灰中には重金属が濃縮され、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、沈殿生成反応、浸出液への移動、灰への吸着など、さまざまなメカニズムを考えなければならないが、それらを左右する重要な環境要因のひとつが pH である。

焼却灰埋立地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ることができた。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液の pH は12前後と高い¹⁾。しかし、a)実際の埋立地浸出液の pH は中性域である^{2,3,4)}。一方、ライシメータによる模擬実験における浸出液の場合、b) pH が11～12のまま低下しないもの^{5,6,7,8)}と、c) pH が11前後から中性域まで急激に低下するもの^{7,8)}、の3つに分けられた。(最近の文献のみとしたのは、近年ごみ質の変化とともに、焼却灰中の強熱減量が小さくなっているためである。文献6,7)には強熱減量の記載があり、それぞれ2.9%、7.2%であった)。本論文では、このような違いがなぜ生じるのかについて考察し、焼却灰埋立地浸出液の pH を低下させる要因を明らかにする。

2. 模擬カラムを用いた予備的考察

ライシメータ実験のうち、文献7,8)はb) c)双方の結果を同時に得ており、pH 低下の原因を考えるのに都合がよい。金谷⁷⁾は、焼却灰(粒径9.5mm以下)を1mの高さに充填したアクリルカラムを用い、屋外において自然降雨を与えると pH が約1か月後に10.5から7付近まで急激に低下したが、室内で人工降雨を連続的に流すと高 pH が

北海道大学工学部衛生工学科

Dept. of Environmental and Sanitary Engr., Hokkaido University

続いたと報告している。また、中野ら⁸⁾は埋立構造を模擬した充填量6トンあるいは20トンという大型の屋外実験で、準好気性埋立のpHは3か月あるいは13か月後に12から7まで急激に低下したが、嫌気性埋立では2年を経過しても下がらないと報告している。

自然降雨は人工降雨と違って間欠的であり、層内の含水率が低くなり、気相部の割合が増加して通気性が良好となる時期がある。(これに対し、pHが低下しない文献^{5,6}はいずれも連続的に降雨を与えている。)また、準好気性埋立とは埋立層下部に埋設される集排水管出口が大気に解放されており、層内に大気が侵入できる構造であるが、嫌気性埋立は管出口が水封され、層底部が滞水している。これらのことにより、大気成分が焼却灰層中に侵入できることが浸出液pH低下に影響しており、大気中の炭酸ガスによる中和が原因ではないかと考えられる。pH低下の要因としては、酸性雨や溶出成分の洗い出しも考えられるが、前者は中野らの報告によって、後者は金谷の報告によって、ともに決定的な影響を持たないことが示される。

この予想を確かめるため、内径5cm、高さ40cmの亚克力製カラムを用いた実験を行った。焼却灰は札幌市篠路清掃工場の灰ピットより採取したボトムアッシュで、風乾後に水を加えて予め含水率20%とした。試料は4mmメッシュふるい通過分を用い、湿重量で500gを充填した(高さ22~26cm)。実験は、1)カラム上下大気解放(好気性埋立を模擬)／カラムを密閉し窒素ガス充填(嫌気性埋立を模擬)、2)降雨間隔：7日ごと／1日ごと、3)焼却灰粒径：4mm以下／2~4mm、の組み合わせで行った。降雨は、20mLの無炭酸水を一度に与えた(上部に一旦湛水する)。結果を図1に示す。

7日ごとに降雨を与えた場合、上下端解放では浸出液のpHは速やかに低下するが、密閉状態のものはほとんど下らない。カラム底部には6mm径のガラスビーズを50g(高さ1.5cm)敷いたが、カラム上下を解放してもビーズを敷かないとpHは低下せず、底に水分飽和部分ができて大気の侵入を妨げたと解釈できる。また、上下端を解放しても、降雨を毎日とした場合には、7日ごとの降雨に比べてpH低下は緩慢になった。これらの結果は、上記の仮定と矛盾がないが、定性的な説明の域を出ていない。

そこで、短いカラムを用いたバッチ実験を行い、炭酸ガス吸収量と浸出液pHの関係を定量的に把握することを試みた。カラムが短いと内部はほぼ均一と考えられ、炭酸ガスの吸収量測定も容易に行える。

3. 炭酸ガス吸収および降雨実験

3.1 実験方法

前節の筆者らの実験も含めて、これまでの焼却灰を用いた模擬実験では、取扱い・保存の容易さのため一旦乾燥したものを使うことが多かった。しかし、乾燥により特性が変化する可能性があり、実際の埋立地に投入される状況とも異なる。そこで、前節と同じ清掃工場から焼却灰を採取し(採取時期は同じでない)、空き缶などの大きなものを取り除いたのち、水分の蒸発を防ぐためビニール袋に密閉して保存して試料とした。この試料の含水率は25~16%(保存中に低下した)、熱灼減量は2.8%、粒径分布は0.25以下：8.1%、0.25~0.5：8.3%、0.5~1.0：10.8%、1.0~2.0：15.3%、2.0~5.6：26.4%、5.6mm以上：31.1%である。

試料は内径5cm、長さ5cmの亚克力カラムに20g(湿重量)を充填した。焼却灰は金網(1mmメッシュ)で支え、軽く詰める程度とした(層厚約1cm)。内容量1100mLの広口びんにCO₂：30%、N₂：70%のガスを通気し、びん内の空気を置換したのち、試料を充填したカラムを入れて密栓し、実験を開始した。また、炭酸ガスが吸収されるに従い容器内部が陰圧となり、外部から空気が侵入するのを避けるため、窒素ガスを充填したガスパック(容量1L)を接続した。これにより、びん内部の炭酸ガス濃度(びんのふたのガスサンプリング口よりガスを採取し、ガスクロマトグラフで測定)を経時的に測定することで炭酸ガス吸収量を求めることができる。降雨は、炭酸ガス吸収後、カラムをびんから取り出し、メスピペットで蒸留水を20mL、表面に均等に与えた。焼却灰の粒径が大きいため、浸出液は速やかに流出した。

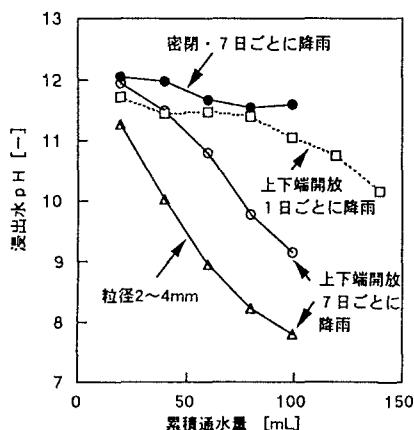


図1 カラム実験における
浸出水pHの経時変化
(焼却灰：4mmメッシュふるい通過分)

実験は、表 1 に示すパターンで行った。カッコ内は実験条件で、例えば A_1 (0.5h→20mL) とは、炭酸ガス中に 30 分放置し、その後 20mL の降雨を与えたことを示す。上付き「*」とは実験前に降雨を 1 回与えているとの意味であり（「**」は降雨が 2 回）、例えば A_1^* とは A_1 の試料に対し再び炭酸ガス吸収→降雨を繰り返したことを表す。実際の埋立地では炭酸ガス吸収が連続的に行われるのに対し、降雨による洗い出しは相対的に短時間に起こるが、表 1 のパターンは、炭酸ガス吸収も短時間に行わせたことに相当する。

3.2 焼却灰の炭酸ガス吸収量と 浸出液 pH 低下 (実験 A)

図 2 に、実験 A における炭酸ガスの累積吸収量を示す。以下では吸収量を焼却灰乾燥重量あたりで表示する。また、ガス濃度からモル濃度への換算は、 0°C 基準とした。

A_3 を見ると、24 時間で $0.63\text{mmol-CO}_2/\text{g-ash(dry)}$ が吸収されている。

(このとき、容器中の炭酸ガス濃度は 29.2 から 9.1% に低下した。) 花嶋ら⁹⁾は、焼却灰中カルシウムの 60% が CaO の形態で存在すると報告しているが、本研究で用いた焼却灰中のカルシウム量を測定したところ 1.5mmol/g(dry) であり、 CaO を焼却灰の主なアルカリ供給源と考えると、上記の炭酸ガス吸収量との対応がほぼつく。(ただし、カルシウム組成は焼却灰ごとに異なると考えられるので、オーダーの比較である。) すなわち、アルカリの中和のために炭酸ガスが吸収されたと予想される。

そこで、炭酸ガス吸収量と溶出液 pH の関係を見ることにする。図 3 は、炭酸ガス中の放置時間を変えた A_1, A_2, A_3 に降雨を与えたときの浸出液 pH を、炭酸ガス吸収量に対してプロットしている。R とは、試料焼却灰に炭酸ガス吸収を行わせる

表 1 実験番号および実験条件

実験 A : 炭酸ガス吸収量の大きさと浸出液 pH の関係を知る

R → $A_1(0.5\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$ → $A_1^*(24\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$

R → $A_2(3\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$ → $A_2^*(24\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$

R → $A_3(24\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$ → $A_3^*(24\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$

・ R : 清掃工場から採取した焼却灰

・ (0.5h→20mL) は (0.5 時間炭酸ガス吸収後、20mL の降雨) の意

実験 B : 焼却灰自体が中和されるかどうか (カッコ内は放置時間)

$B_1(0.5\text{h})$ 、 $B_2(3\text{h})$ 、 $B_3(1\text{d})$ 、 $B_4(7\text{d})$

・ 炭酸ガス中に試料を放置

・ 炭酸ガス吸収後試料を 5g 取り出し、固液比 $1:10$ で振とうし、pH 測定。
残りの試料に、 15mL の降雨を与え、浸出液の pH 測定。

実験 C : 大気中の炭酸ガスで焼却灰の中和が可能か (カッコ内は放置時間)

$C_1(1\text{d})$ 、 $C_2(2\text{d})$ 、 $C_3(3\text{d})$

・ 室内に試料を放置

・ pH 測定は、実験 B と同じ。

実験 D : 含水率と炭酸ガス吸収量の関係を知る (カッコ内は含水率(%))

$D_1(0)$ 、 $D_2(7)$ 、 $D_3(10)$: 乾燥機中で乾燥後、カラムに充填

$D_4(20)$: R と同じ

$D_5(25)$: R に蒸留水 1mL を加えた

実験 E : 洗い出しの影響

R → $E_1(24\text{h} \rightarrow 5\text{mL})$ → $E_1^*(24\text{h} \rightarrow 5\text{mL})$ → $E_1^{**}(24\text{h} \rightarrow 17\text{mL})$

R → $E_2(24\text{h} \rightarrow 10\text{mL})$ → $E_2^*(24\text{h} \rightarrow 10\text{mL})$ → $E_2^{**}(24\text{h} \rightarrow 17\text{mL})$

R → $E_3(24\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$ → $E_3^*(24\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$ → $E_3^{**}(24\text{h} \rightarrow 17\text{mL})$

R → $E_4(20\text{mL} \rightarrow 24\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$ → $E_4^*(24\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$

R → $E_5(50\text{mL} \rightarrow 24\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$ → $E_5^*(24\text{h} \rightarrow 20\text{mL})$

・ E_1^{**} 、 E_2^{**} 、 E_3^{**} : 実験 B と同じ振とう実験を行った。

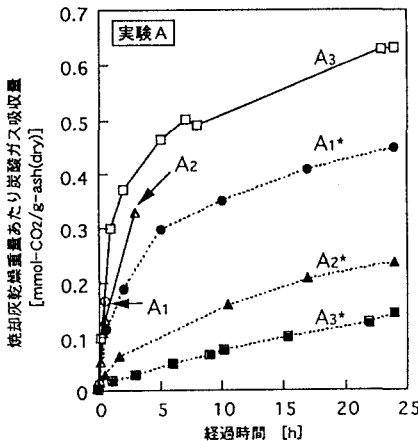


図 2 焼却灰の炭酸ガス吸収量経時変化
(記号は実験番号: 表 1 参照,
 A_3^* は A_3 に降雨を与えた後の試料)

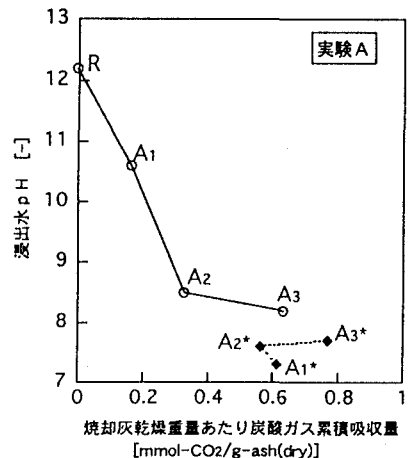


図 3 炭酸ガス吸収による
浸出液 pH の低下

ことなく降雨を与えたものであるが、炭酸ガス吸収量が多い順 ($R < A_1 < A_2 < A_3$) に pH が低下しており、アルカリ中和の進行度合いが違いためと考えられる。その後、再び炭酸ガス吸収を行わせると、1度目の吸収量が多いほど吸収量は小さい (図2)。このときの浸出液 pH を、2度の通算炭酸ガス累積吸収量に対して示すと図3中の A_1^*, A_2^*, A_3^* となるが、累積吸収量、pH ともに大差がなく、いずれも1度目の浸出液 pH より低い。このことは、炭酸ガス吸収が飽和に近づいていることを示している。なお、図2で A_2 は A_3 に重なるはずであるが、サンプルのばらつきのためか、今回の実験においては図に示す程度のばらつきがあった。

3.3 炭酸ガスによる焼却灰自体の中和 (実験B)

焼却灰層中では、固相中溶解成分の溶出、降雨浸透水による溶出成分の洗い出し、といった現象の結果、浸出液の pH が決定する。したがって、浸出液の pH 低下が、必ずしも固相の中和を意味するとは言いきれない。そこで、炭酸ガス吸収による固相部の変化を見るため、降雨を与えると同時に、焼却灰の振とう試験を行い、その pH を測定した。これを実験Bとし、実験条件は表1に示している。

炭酸ガス吸収方法はAと同様だが、所定の時間炭酸ガス中に放置したのち試料を5gを取って固液比1:10で振とうし、溶液の pH を測定した。残りの灰には15mLの降雨を与え、浸出液の pH を測定した。結果を、横軸に炭酸ガス吸収量、縦軸に pH をとって図4中の実線で示す。振とうによる pH は、浸出液 pH より高いものの、やはり低下しており、固相部も炭酸ガスによって中和されていることがわかる。

3.4 大気中炭酸ガスによる中和 (実験C)

実験A、Bは、初期炭酸ガス濃度30%の雰囲気で行っているが、大気中の濃度はそのわずか1000分の1にすぎない。そこで、大気中に焼却灰カラムを放置し、pH が低下するかどうかを見た。ただし、室内に放置したので1日で含水率が5%前後まで低下してしまい、1日経過するごとに蒸留水を滴下して調湿した。その結果を、実験Bと比較するため図4に破線で示す。C₁, C₂, C₃とも、上が振とう液、下が浸出液の pH である。比較のため、振とうによる pH が実験Bと一致するよう、C₁, C₂, C₃の横軸の位置を決めた。図に示すように、確かに pH は低下しており、大気中の炭酸ガス濃度レベルで中和が起こることがわかった。なお、乾燥による pH 低下ではないことを示すため、乾燥焼却灰 (後述のD₁と同じ) の結果を、縦軸上に×印で示した。

3.5 炭酸ガス吸収量に対する含水率の影響 (実験D)

炭酸ガスの吸収は、固相、液相のどちらで起こるのだろうか。これを知るため、炭酸ガス吸収量に対する含水率の影響を調べた。低含水率とするには、焼却灰を100℃の乾燥機中に45分～70分入れて乾燥させた後、カラムに充填し、高含水率はカラムに充填後、蒸留水1mLを加えて調整した。炭酸ガスの吸収量を図5に示す。何も手を加えないD₄に較べて、含水率の低いD₃、D₂および含水率の高いD₅は、吸収量が低下している。Blk (ブランク) とは焼却灰を入れずに同様の実験を行ったもので、吸収源がないにも係わらず、見かけ上吸収量が正となっている (焼却灰量がゼロなので、炭酸ガス減少量をD₄の焼却灰乾燥重量で割った値をプロットした)。これは、窒素を充填したガスパックとの間のガス交換に

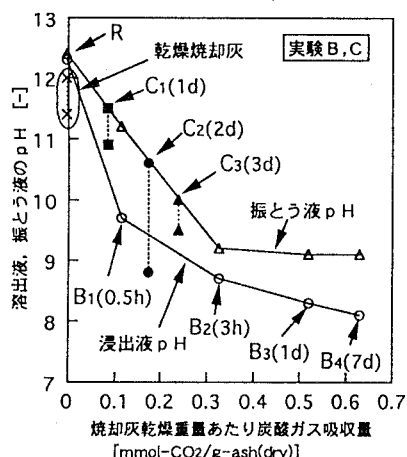


図4 浸出液 pH と振とう溶出液 pH の相関 (ひとつの炭酸ガス吸収量に対して両者を測定)

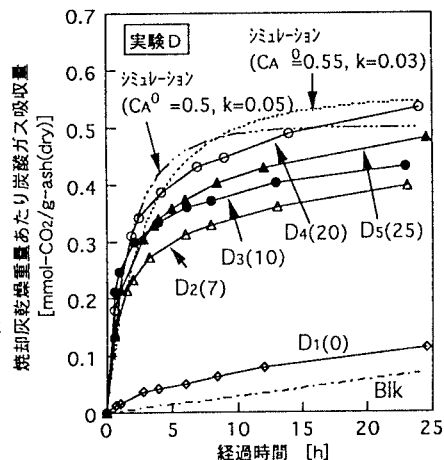


図5 炭酸ガス吸収量に対する含水率の影響 (カッコ内は含水率[%])

よと思われる。図2、図4、図5の結果はこの分を差し引いて考えなければならないが、定性的な傾向を大きく変えるものではないので、補正は行わない。D₁は、乾燥器中に24時間において含水率をゼロとしたものだが、他の試料と同様な吸収量変化が見られることから、やはり炭酸ガスを吸収していることがわかる。以上の結果より、含水率により多少の変化はあるが、含水率がゼロに近くならない限り、焼却灰は大きな炭酸ガス吸収速度を保っており、主として固相に吸収されている（固相が中和されている）と考えられる。このことは、3.3節の結果とも矛盾しない。

なお、清掃工場における焼却灰の採取後、実験AからDまでは1か月が経過し、この間徐々に保存試料の乾燥が進んでいたが、図2のA₃よりも図5のD₄の吸収量が小さいのは、含水率の低下が影響しているかもしれない。（短時間に水を加えたD₅(25)は、保存中の試料の状態を模擬できていない可能性がある。）

3.6 洗い出しの影響（実験E）

実際の埋立地では、自然降雨による洗い出しが間欠的に起こる。そこで、降雨量を変化させて炭酸ガス吸収を繰り返す実験Eを行い、洗い出しの影響を調べた。結果を図6に示す。E₁, E₂, E₃の炭酸ガス吸収量が同じになるのは当然だが、降雨量を5, 10, 20mLと変えたにも係わらず、浸出液のpHは同じであった。また、2度目（E_k* : k=1~3）、3度目（E_k** : k=1~3）の炭酸ガス吸収量、pHにも差がない。3度目の浸出液pHが高いのは、実験B、Cと同様に振とう試験も行い、充填状態を乱したことが影響していると考えられるが、振とうによるpHは8.4あるいは8.5で、これも差がなかった。以上の結果より、洗い出し水量はpH変化に影響しないと言える。なお、E₃、E₃*と同じ降雨条件であるA₃、A₃*の浸出液中カルシウム濃度（それぞれ9.43、5.36mmol/L）から流出量合計を計算すると0.30mmolとなるが、これは充填した焼却灰が含有するカルシウム量24mmol（1.5mmol/g-dry×16g）の1.3%にすぎなかった。

一方、E₄, E₅は、炭酸ガス吸収前に20mL、50mLの降雨を与えたものであるが、事前の洗い出しが多いほど炭酸ガス吸収量が小さく、pHは高かった。これについては、まだ解釈できていないが、E₁, E₂, E₃の浸出液は、E₄, E₅のそれに比べて濁りが少ないとの特徴があった。

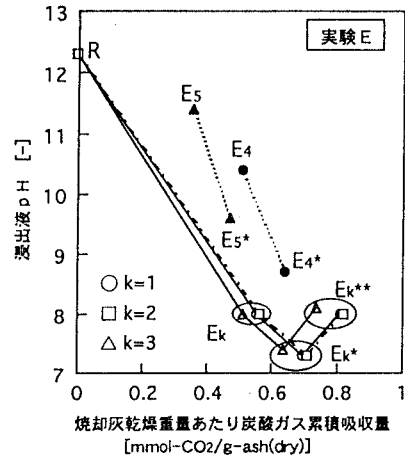


図6 浸出液 pH に対する
洗い出し水量の影響

4. 炭酸ガス吸収のモデル化

4.1 容器内炭酸ガス吸収のモデル式

前節では、炭酸ガスによる中和が浸出液 pH を低下させることを実験的に明らかにした。ここでは、「容器内の炭酸ガスが焼却灰表面まで拡散移動し、固相中のアルカリと等モルで反応する」というモデルを考えることにする。

容器内の炭酸ガス濃度を C_G [mmol/L]、灰固相中のアルカリ濃度（乾重量あたり）を C_A [mmol/g] と書くと、等モル反応であるから次の式が成立する。

$$S \frac{dC_A}{dt} = V \frac{dC_G}{dt} \qquad S : \text{焼却灰の質量 [g]} \quad V : \text{容器内ガス容積 [L]} \qquad (1)$$

アルカリと炭酸ガスの反応速度は

$$\frac{dC_A}{dt} = -k C_A C_G^* \qquad k : \text{反応速度定数 [L/(mmol} \cdot \text{h)]} \qquad (2)$$

で表すことができる。ここで、 C_G^* とは灰表面における炭酸ガス濃度であり、灰表面への炭酸ガス吸収速度は次式で表される。

$$\frac{dC_G}{dt} = -K \frac{A}{V} (C_G - C_G^*) \qquad K : \text{ガス側物質移動係数 [m/h]} \quad A : \text{灰表面積 [m}^2\text{]} \qquad (3)$$

これらを

$$\text{初期条件: } t=0 \text{ で } C_A = C_A^0, C_G = C_G^0 \quad (4)$$

の下で解くと、次式が得られる。

$$\left(1 - \frac{\beta}{\alpha}\right) \ln \frac{C_G}{C_G^0} + \frac{\beta}{\alpha} \ln \frac{C_G - \alpha}{C_G^0 - \alpha} = -K_a t \quad (5)$$

ここで

$$\alpha = C_G^0 - \frac{S}{V} C_A^0 \quad [\text{mmol/L}] \quad \beta = \frac{K_a}{k} \quad [\text{mmol/L}] \quad K_a = K \frac{A}{V} \quad [1/\text{h}] \quad (6)$$

炭酸ガス吸収量とアルカリ消費量の収支式 ((1)式を積分して得られる)

$$S(C_A^0 - C_A) = V(C_G^0 - C_G) \quad (7)$$

よりわかるように、 α とは C_A^0 がすべて消費されたときの炭酸ガス濃度である。また、 β はガス側物質移動速度と反応速度の比に相当する。実験は1日程度の時間を要していることから、反応律速であると考えられる。そこで $\beta \rightarrow \infty$ とすると(5)式より、次の解が得られる。

$$C_G = \frac{\alpha}{1 - \left(1 - \frac{\alpha}{C_G^0}\right) \exp(-k\alpha t)} \quad (8)$$

また、焼却灰の炭酸ガス吸収量 [mmol/g] は次式で与えられる。

$$[\text{CO}_2] = \frac{V}{S} (C_G^0 - C_G) \quad (9)$$

いま、 C_A^0 として24時間の炭酸ガス吸収量（平衡吸収量の代わりとして用いる）を与え、実験 D_4 のデータ

$$S = 16.0 \text{ g}, V = 1.1 \text{ L}, C_G^0 = 13.0 \text{ mmol/L}, C_A^0 = 0.55 \text{ mmol/L}$$

を用いて式(8)(9)による炭酸ガス吸収量を計算すると、図5の点線のようになり、 $k = 0.03 \text{ L}/(\text{mmol} \cdot \text{h})$ ($k\alpha = 0.16 \text{ h}^{-1}$) 程度でよく一致している。(Blkとして示した漏れの分を考慮し、 $C_A^0 = 0.50$ 、 $k = 0.05$ ($k\alpha = 0.30 \text{ h}^{-1}$) としたときの結果も図に示す。) ただし、実験結果からは吸収量が飽和に達せず、徐々に C_A^0 が増加するように見え、焼却灰中心部のアルカリ成分がゆっくりと反応系に加わっているのではないと思われる。モデルは灰中のアルカリ濃度を均一と考え（分布を考慮していない）、ただ一つのパラメータ k で表現しているため、その点の模擬は十分でない。

以上のことから、灰中のアルカリの中和は、炭酸ガスとアルカリの反応律速で生じていると考えてよく、その反応速度定数はおおよそ $0.03 \text{ L}/(\text{mmol} \cdot \text{h})$ であることがわかった。

4.2 大気中放置のシミュレーション

実験Cのように大気中に焼却灰が放置されているときは、前節の容器内炭酸ガス濃度が大気濃度 $C_{G(\text{air})}$ と同じであると考えてよいから、式(2)より

$$\frac{dC_A}{dt} = -k C_{G(\text{air})} C_A = -k' C_A \quad k' = k C_{G(\text{air})} \quad (10)$$

となる。この解は $C_A = C_A^0 \exp(-k' t)$ なので、炭酸ガス吸収量は

$$[\text{CO}_2] = C_A^0 - C_A = C_A^0 \{1 - \exp(-k' t)\} \quad (11)$$

で計算される。図1の実験で用いた試料は、実験A～Eで用いた試料と採取時期が異なっているが、参考のため計算を行ってみる。上で求めた $k = 0.03 \text{ L}/(\text{mmol} \cdot \text{h})$ を使うと、5週間後には炭酸ガス吸収量が0.16となり、図3よりこれに対応するpHを読みとると10.5となる。上下端を解放し、7日ごとに降雨を与えたとき（累積通水量100mLに相当）と較べると、傾向は再現できている。 $k = 0.05$ とすれば、pHは9と計算される。

一方、同様の方法で実験Cについて計算すると、 $k = 0.6$ 程度でないと実験結果と一致せず（ k が一桁大きい）、吸収が予想されるよりかなり早い。このことは、式(2)の反応速度が中和反応と固相内物質移動との総括反応速度であることを示唆している。今後さらに、 C_G の異なった条件、あるいは灰層中に水分が存在する場合について、速度定数 k を定める必要がある。

5. おわりに

筆者らは、焼却灰中の重金属が硫酸塩還元菌により安定な硫化物として固定される可能性を検討している¹⁰⁾。硫酸還元菌の生育には、pH中性域になることが必要であるが、「はじめに」で述べたように実際の埋立地や模擬実験によって、焼却灰埋立地浸出液pH低下の有無が異なっている。「果たして焼却灰埋立地のpHは、硫酸還元菌の生育範囲まで速やかに低下しうるのは」、「低下するとすればその原因は何か」を知ることが、本研究の動機であった。

本研究によって得られた主な結果をまとめると、以下のようになる。

- 1) 焼却灰浸出液のpHは、炭酸ガスの吸収によって低下する。pHの低下は、炭酸ガスが焼却灰中アルカリを中和することによる。したがって、吸収量にはアルカリ分に相当する飽和値がある。
- 2) 大気中の炭酸ガス濃度レベルでも、pHを低下させることができる。
- 3) 炭酸ガスは、主として固相部に吸収される（固相部が中和される）。含水率による炭酸ガス吸収量変化は大きくはなく、浸出液pHに対する降雨量（洗い出し水量）の影響も小さい。
- 4) 炭酸ガス吸収は、反応律速とした固相内反応モデルでほぼ模擬できた。

浸出液のpHを低下させる要因は、例えば埋立層内の酸生成など、炭酸ガス吸収以外にも考えられる。しかし、炭酸ガスの吸収には、どの埋立地でも起こりうるとの普遍性がある。焼却灰は大粒径の割合が高いので、透気係数も大きい。透気係数の小さな覆土を施すことは処理を必要とする浸出水量削減に効果があるが、炭酸ガス吸収には不利である。本研究の結果からすると、焼却灰をなるべく浅く、広く拡げ、覆土はしないことがpHの低下を促進する。また、埋立地底部の集排水管によって埋立地内を好氣的にしようとする「準好気性埋立」は、炭酸ガスの供給を促す構造でもある。さらに積極的にpHの中性化をはかるならば、埋立地搬入前に炭酸ガス濃度の高い焼却排ガスでアルカリ分を中和する方法もありうる。

筆者らは、硫酸還元反応促進のためにpHが中性になることが望ましいと考えているが、埋立地内の現象はきわめて複雑であって、pHがどの範囲にあることがよいかについては解明すべことが多く残っている。しかし、仮にpHを高く保つことがよいとされた場合にも、本研究により得られた知見は有益な示唆を与えると考えている。

参考文献

- 1) 例えば、樋口壮太郎、山口隆二、花嶋正孝、島岡隆行：焼却残渣埋立に伴う Ca^{2+} , Cl^- の溶出特性について（その2）、第11回全国都市清掃研究発表会、pp.162-164(1990)
- 2) 清水典徳、丹野幹雄、小林進：一般廃棄物埋立地の浸出水及び処理水の性状について、第10回全国都市清掃研究発表会、pp.213-215(1989)
- 3) 勝村陽子、森田俊二：最終処分場埋立地の浸出水の実態について、第11回全国都市清掃研究発表会、pp.152-154(1990)
- 4) 惣田晃夫、福井博、吉野秀吉、坂本広美、淡路宣男：一般廃棄物埋立地からの浸出水の性状と経年変化について、第11回全国都市清掃研究発表会、pp.155-157(1990)
- 5) 古田秀雄、原田浩幸、中島重旗：都市ごみ焼却残渣における Ca^{2+} の溶出特性に関する研究、第2回廃棄物学会研究発表会、pp.297-300(1991)
- 6) 柳瀬龍二、花嶋正孝、松藤康司、長野修治、永井恵子、島岡隆行：廃棄物埋立槽における水銀の挙動（第1報）、第9回全国都市清掃研究発表会、pp.187-189(1988)
- 7) 金谷健、寺島泰：焼却灰埋立地浸出水の水量水質変化に関する研究、第3回廃棄物学会研究発表会、pp.487-490(1992)
- 8) 中野憲一、島岡隆行、松藤康司、花嶋正孝、樋口壮太郎、堀井安雄：無機塩類を高濃度に含む埋立地の浸出水流出特性について(3)、第3回廃棄物学会研究発表会、pp.467-470(1992)
- 9) 花嶋正孝、島岡隆行、樋口壮太郎、山口隆三、堀井安雄、長岡英明：廃棄物の積み増しによる無機塩類濃度制御に関する研究、第2回廃棄物学会研究発表会、pp.281-284(1991)
- 10) 宮脇健太郎、田中信寿、松藤敏彦：焼却灰溶出液中における硫酸還元反応への影響因子に関する研究、廃棄物学会論文誌、第6巻第3号、pp.95-104(1995)