

(49) 焼却灰有効利用のための炭酸化による重金属の不溶化に関する基礎的研究

Carbonation for immobilization of lead in bottom ash

本幡 照文\*, 李 政準\*, 張 瑞娜\*, 崎田 省吾\*\*, 島岡 隆行\*\*

Akifumi MOTOHATA\*, Jungjoon LEE\*, Ruina ZHANG\*,  
Shogo SAKITA\*\*, and Takayuki SHIMAOKA\*\*

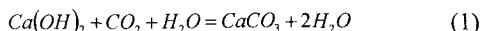
**ABSTRACT;** Utilization of municipal solid waste (MSW) incineration residue as construction material is discussed due to the lack of the capacity of MSW landfill site. And, it is required that heavy metal components such as Pb in bottom ash has not to leach out. In this study, the immobilization of Pb by carbonation process was examined as a pretreatment for the stabilization of heavy metal components in bottom ash. It was confirmed that Pb concentration of leachate from bottom ash greatly decreased by CO<sub>2</sub> gas passing through the bottom ash packed in column. Especially, water content range from 10 to 20 % in bottom ash was suitable for the absorption of CO<sub>2</sub> gas and Pb immobilization. Changes of alkalinity and EC that affect immobilization of Pb by CO<sub>2</sub> gas were observed. Increases of calcite(CaCO<sub>3</sub>), which is able to adsorb Pb were also confirmed with X-ray diffraction analyses. Mechanism of immobilization of Pb was examined by using the chemical equilibrium computation of various Pb species.

**KEYWORDS;** Carbonation, Utilization of incineration residue, Lead, X-ray diffraction, Chemical equilibrium computation

## 1 はじめに

経済社会活動が高度化し、大量生産・大量消費・大量廃棄型となるにつれ、廃棄物量は増大するとともに、廃棄物の質が多様化している。最終処分場の残余容量は逼迫し、我が国における平成13年度の一般廃棄物の最終処分場の残余年数は全国平均で12.5年となっている<sup>1)</sup>。一般廃棄物の焼却灰は、埋立廃棄物の約半分を占めている。したがって、最終処分量を削減するために焼却灰を有効利用することは不可欠であり、近年、この動きが高まっている。我が国においては溶融スラグの土木資材化、エコセメント、焼結ブロック等による再資源化が提案され、効果を挙げつつある。焼却灰を土木資材として有効利用する場合、Pbなどの焼却灰に含有する重金属を不溶化させる必要がある。このための前処理として、筆者らは炭酸化(Carbonation)に着目して研究を行っている。

炭酸化とは、雰囲気中の炭酸ガスが液相に溶解して発生した炭酸イオンと、液相中のカチオンが反応することによって生じる現象のことである。例えば、コンクリートにおいては以下の反応式に示す中和反応が進行し、鉄筋コンクリート建築物の劣化が生じる<sup>2)</sup>。



清掃工場から排出される飛灰及び焼却灰においても、炭酸化に伴ったある種の反応が生じることがこれまでの研究によって確認されている。飛灰に関しては、島岡ら<sup>3)~5)</sup>は飛灰における重金属の不溶

\* 九州大学大学院工学府都市環境システム工学専攻 Department of Urban and Environmental Engineering, Graduate School, Kyushu University

\*\* 九州大学大学院工学研究院環境都市部門 Department of Civil Engineering, Graduate School of Engineering, Kyushu University

化の原因の1つとして炭酸ガスとの反応を挙げ、不溶化の程度は飛灰の含水率や炭酸ガスの分圧に比例していることを確認している。野馬ら<sup>6)</sup>は埋立処分場での問題の1つであるカルシウムスケールの対策として高アルカリ飛灰中のカルシウムを炭酸化し、難溶性の炭酸カルシウムを生成させて処理する方法について述べている。土手ら<sup>7),8)</sup>は飛灰のセメント固化の前処理として炭酸化を行い、溶出基準を満たすために必要とされているセメント添加量を減らすことができるこことを示している。焼却灰においては、Meima ら<sup>9)</sup>は焼却灰の溶出液に炭酸ガスを通気する実験を行い、アルカリ性である焼却灰のpHが中性化し、新しく生成した鉱物にCuなどの微量元素が吸着によって固定化されることを明らかにしている。さらに、金ら<sup>10),11)</sup>は焼却灰に炭酸ガスを通気してpHを低下させることにより、埋立地内のpH低下に要する時間を減少させ、その間にPb溶出量を減少させることができること可能であり、炭酸化に適する焼却灰の含水率が存在することを示している。

本研究では、焼却灰の環境安全なリサイクルの促進を目的として、炭酸化を用いたPbの不溶化を試み、不溶化のメカニズムに関して考察した。実験1では焼却灰の炭酸ガス吸収量とPb不溶化の関係を、含水率及び炭酸ガス通気流量をパラメータとして検討を行った。実験2では炭酸化のメカニズムを考察するため、焼却灰による炭酸ガス吸収が終了した段階に至るまでに、炭酸ガス吸収量や溶出液の成分が経時的にどのような変化を示すかに着目して検討した。CalciteによるPbの吸着の可能性を考慮し、炭酸化によるCa化合物の形態変化を確認するため、X線回折分析を行った。さらに、Pb不溶化の一因として溶解度の低下を考え、Pbの化合形態の変化を推定するために化学平衡計算を行った。

## 2 実験方法

本研究では、都市ごみ清掃工場から排出された焼却灰のうち、路盤材等の土木資材として使用する際に締固めやすいとされている13mmふるいを通過したもの用いた。表-1に実験1で使用した焼却灰の各成分の含有量、及び溶出試験(JLT46)の結果を、表-2に実験2で使用した焼却灰の各成分の含水率、含有量および溶出試験(JLT46)の結果を示す。Pbの溶出濃度は土壤環境基準(<0.01mg/L)を満足していなかった。

実験装置図を図-1に示す。ボンベからの炭酸ガスと窒素ガスをそれぞれレギュレータで圧力調整し、流量計で流量を管理した。Y型チューブコネクタを用いてガスを混合し、集氣びんの中で十分に混合させ、ガス分配管でガスを分岐した。分岐した各カラムへの流量はそれぞれの流量計で調整し、どのカラムにも同じ流量のガスが行き渡るようにした。なお、水蒸気飽和相を通して試料の含水率の変化を防ぎ、その後各カラムへ通気した。

実験1では内径26mm、長さ300mmのガラス製カラムを直列につないだものを、実験2では内径52mm、長さ350mmの塩化ビニル製カラムを使用した。実験1では各々のカラム内に、110°Cで絶乾させた後、所定の含水率に調整した焼却灰150g-dry ashずつを充填した。実験2では含水率を調整しない焼却灰280g-dry ashを各カラムに充填した。所定の炭酸ガス濃度となるよう調整した混合ガスを通気し、試料の炭酸化を行った。設定した含水率と炭酸ガス通気流量を表-3、表-4に示す。通気開始後、経時にガスをサンプリングして、ガスクロマトグラフ(GC-8A、島津製作所製)を用いて炭酸ガス濃度を測定した。実験1においては、所定の時間経過後、カラム

表-1 焼却灰の化学的性状(実験1)

成分	含有量 mg/kg	溶出濃度 mg/L	成分	含有量 mg/kg	溶出濃度 mg/L
Ca	218,000	712	Na	11,700	181
K	92,500	92.9	Pb	455	0.22
Al	59,500	0.95	Cd	11	<0.01

表-2 焼却灰の化学的性状(実験2)

成分	含有量 mg/kg	溶出濃度 mg/L	成分	含有量 mg/kg	溶出濃度 mg/L
Ca	184,000	633	Ti	195	0.02
Al	50,500	22.1	Sb	66	0.03
Fe	34,700	0.06	T-Cr	46	<0.01
Mg	12,600	0.02	Ni	45	<0.01
Na	9,640	138	Si	42	1.162
K	4,500	77.7	Li	28	0.07
Zn	1,630	0.262	Mo	11	0.03
Cu	1,620	0.496	V	9	0.13
Ba	561	1.677	Co	4	<0.01
Mn	494	<0.01	Cd	3	<0.01
Pb	459	0.488			
pH		12.4	含水率 %		29.3
Pアルカリ度 mg-CaCO <sub>3</sub> /L		1,449	EC mS/cm		7.41

ムを外して充填試料を取り出し、含水率の測定、及びRUN2のみ溶出試験（JLT46）を行った。実験2においては、通気開始後、所定の時間にそれぞれ1本ずつカラムを外して充填試料を取り出し、含水率の測定及び溶出試験（JLT46）を行った。成分の溶出濃度の測定にはICP発光分析装置（ICPS-7000 Ver.2、島津製作所製）を用いた。また、実験2に関しては2時間後と通気終了時の試料について、十分に溶解平衡状態に到達させ、また溶解している成分のみをろ過することを目的に、液固比5で48時間浸とう溶出させ、 $0.1\mu\text{m}$ のメンブレンフィルターでろ過をする溶出試験を行い、焼却灰粒子と溶液間の化学平衡計算のための基礎データとした。

### 3 焼却灰の炭酸ガス吸収量と含水率及び通気流量の関係 (実験1)

RUN1～3における各含水率での焼却灰の最終的な炭酸ガス累積吸収量 ( $\text{mmol}\text{-CO}_2/\text{g-dry ash}$ ) を図-2に示す。今回使用した焼却灰では、含水率がおよそ10%～20%の範囲において多くの炭酸ガスが吸収されることが考えられた。この結果は、10%から16.7%が炭酸化に適しているという金ら<sup>11)</sup>の報告とほぼ一致している。これらのことより考えられるのが、焼却灰の付着水が気体と接触している表面積と通気ガスとの接触、また焼却灰粒子から溶出する各成分と付着水量の関係における最適含水率の存在である。今回の実験での炭酸ガス吸収量は0.09  $\text{mmol}\text{-CO}_2/\text{g-dry ash}$  から0.81  $\text{mmol}\text{-CO}_2/\text{g-dry ash}$  の範囲であった。この値は土手ら<sup>9)</sup>による飛灰の炭酸ガスの吸収量である2.0  $\text{mmol}\text{-CO}_2/\text{g-dry ash}$  よりも小さい値である。また、RUN1、RUN2とRUN3を比較すると、通気流量が他よりかなり大きいRUN3において、炭酸ガス累積吸収量が他より低くなっていることが示された。この原因としては、飛灰を対象とした実験結果<sup>4)</sup>と同様に、流量が大きすぎる際には焼却灰粒子の表面が急激に炭酸化てしまい、焼却灰深部まで炭酸化が進行しないことが考えられる。この結果に関しては、さらに検討が必要である。図-3にRUN2のみ測定を行った溶出試験（JLT46）における鉛の溶出濃度と炭酸ガス吸収量の関係を示す。焼却灰が炭酸ガスをより多く吸収しているときに、鉛の溶出濃度も低下していることが確認された。以上より、重金属の不溶化を目的とした炭酸化処理には、含水率は10%から20%が適しているのではないかと考えられた。

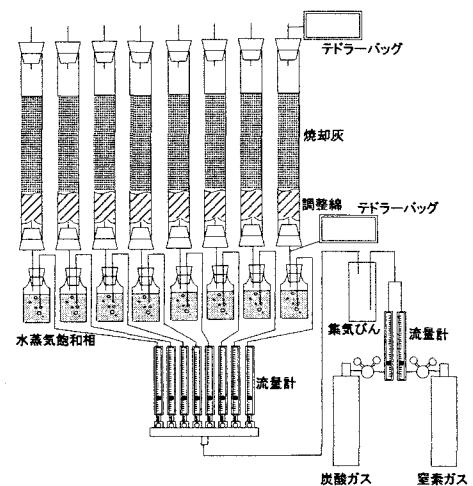


図-1 炭酸ガス吸収実験装置

表-3 設定含水率と炭酸ガス通気流量（実験1）

RUN No.	含水率(%)	炭酸ガス通気流量 ( $\text{mmol}\text{-CO}_2/\text{g-dry ash}/\text{hr}$ )
1	7.5	0.23
	18.8	
	26.7	
	28.5	
2	2.1	0.42
	9.2	
	15.0	
	22.0	
3	26.4	0.74
	0.0	
	5.8	
	11.8	
4	16.1	0.36
	17.8	

表-4 設定混合ガス通気流量と炭酸ガス通気流量（実験2）

RUN No.	混合ガス通気流量 (mL/min)	炭酸ガス通気流量 ( $\text{mmol}\text{-CO}_2/\text{g-dry ash}/\text{hr}$ )
5	340	0.45
6	340	0.15

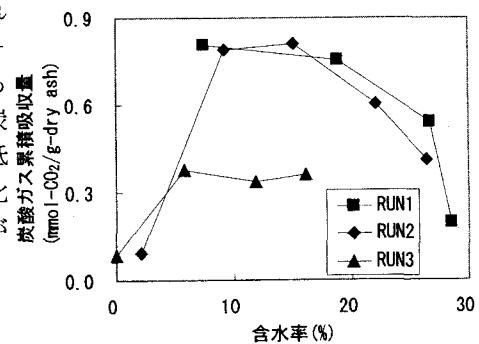


図-2 含水率と炭酸ガス累積吸収量の関係

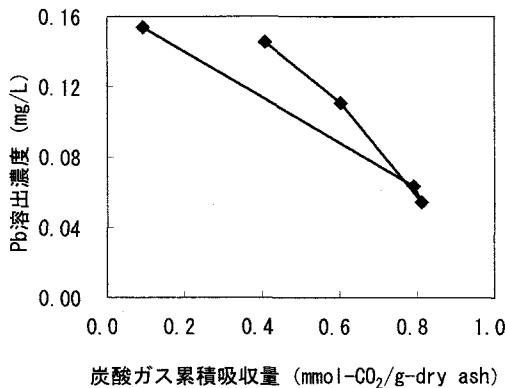


図-3 炭酸ガス累積吸収量とPb溶出濃度の関係  
(RUN2)

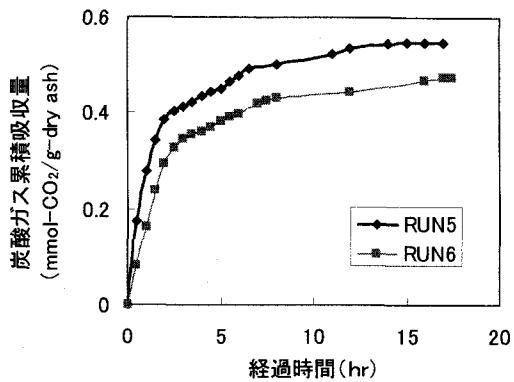


図-4 炭酸ガス累積吸収量の経時変化

#### 4 炭酸化による焼却灰成分の溶出挙動の経時的変化 (実験2)

焼却灰の各成分の溶出挙動、溶出液のpH、Pアルカリ度、ECの経時的な変化に着目して、炭酸化によるPb不溶化の化学的メカニズムの解明を試みた。炭酸ガス通気流量の多いRUN5では、通気開始後すぐカラム流出部における炭酸ガス濃度が上昇し、通気開始後2.5時間でカラム流入部とカラム流出部の炭酸ガス濃度がほぼ等しくなった。流量の小さいRUN6では、通気開始後1時間は流出部の炭酸ガス濃度が上がりず、その後上昇を始めて通気開始後3.5時間でほぼ等しくなった。図-4に各RUNの炭酸ガス累積吸収量の経時変化を示す。焼却灰の最終的な炭酸ガス累積吸収量を計算すると、RUN5では0.55mmol-CO<sub>2</sub>/g-dry ash、RUN6では0.48mmol-CO<sub>2</sub>/g-dry ashとなり、使用した焼却灰の性状は異なるものの、実験1で得られた炭酸ガス累積吸収量の範囲内に収まった。

JLT46におけるPbの溶出濃度の経時変化を図-5に示す。Pbの溶出濃度は、RUN5、RUN6ともに通気開始後2時間で大きく変化した。通気前の0.49mg/Lと比較し、通気開始後2時間でRUN5では0.03mg/L、RUN6では0.01mg/Lと大きく減少した。炭酸ガスの通気を続けることによってPbの不溶化が生じ、今回の流量においては2時間の通気で通気前の1割以下にまで減少することが示された。RUN5とRUN6を比較すると、通気開始後1時間まではPb溶出濃度低下に大きな差が生じておらず、炭酸ガス通気流量が多い方がより速く不溶化が起きることを示している。Pb溶出濃度と炭酸ガス吸収量の関係を見たのが図-6である。RUN5とRUN6のPb溶出濃度は炭酸ガス吸収量が0.2mmol-CO<sub>2</sub>/g-dry ash以下までは同じ傾向を示しているが、その後は流量の小さいRUN6の方が等しい炭酸ガス吸収量でPbの不溶化が著しかった。Pb溶

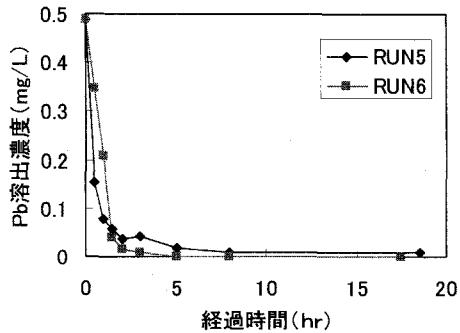


図-5 Pb溶出濃度の経時変化

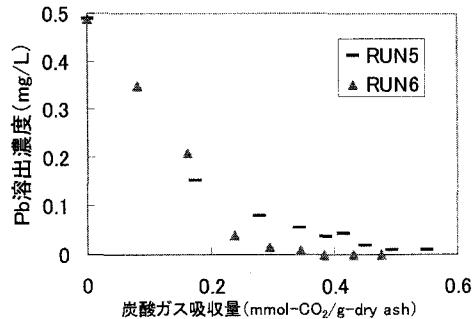


図-6 Pb溶出濃度と炭酸ガス吸収量の関係

出濃度が低い範囲では、Pbの不溶化への炭酸ガス通気流量の影響が見受けられる。この理由としては、前章でも述べたとおり、高濃度では焼却灰粒子の表面が急激に炭酸化してしまい、焼却灰深部まで炭酸化が到達しないことが考えられる。

上記の結果においてPbの不溶化に対する炭酸化の効果が確認されたが、炭酸ガスが焼却灰表面の付着水に溶解したことによる、炭酸および重炭酸イオンの解離による水素イオンの発生がpHやPアルカリ度の低下につながり、Pbの溶解度に影響を与えると考えられる。また、炭酸ガスの影響を直接的に把握するためにはpHよりもPアルカリ度が適している。したがって、炭酸化の進行状況を把握するためにはPアルカリ度の測定が必要である。Pアルカリ度とPb溶出濃度の関係を炭酸ガス通気流量で比較したのが図-7である。RUN5とRUN6を比較すると、全体的な傾向としては類似していることが確認される。

溶液中に存在している電解質の量の変化を確認するためにECの測定を行ったところ、ECは通気開始後3時間でRUN5、RUN6とともに大きく変化することが確認された。最終的にはRUN5では2.42mS/cm、RUN6では2.60mS/cmとなった。この結果から、溶液中の成分が沈殿を生成し、電解質の減少が生じたと考えられる。図-8においてPb溶出濃度とECの関係を調べたところ、高EC領域ではRUN5とRUN6で同じ傾向が見られたが、およそEC<3.5mS/cmの範囲においては炭酸ガス通気流量の少ないRUN6のほうがRUN5と比較して同じECでPb溶出濃度が低くなっていることが示された。

## 5 炭酸化による焼却灰中のCa化合物の形態変化

焼却灰は大量のCaを含有しており、セメントや飛灰と同様に炭酸化における現象として $\text{Ca}(\text{OH})_2$ の $\text{CaCO}_3$ への変化が考えられるが、 $\text{CaCO}_3$ の結晶の一種であるCalciteが生成していることが確認された場合、CalciteにはPbを吸着する能力があることが報告されている<sup>12)</sup>ため、吸着相が増えることによってPbの不溶化に直接的に影響を与えている可能性が考えられる。

図-9にCa溶出濃度の経時変化を示す。Ca溶出濃度はRUN5、RUN6とともに通気開始後3時間という期間で大きな変化を示し、その後はほぼ一定となった。また通気開始後1時間までは炭酸ガス通気流量の高いRUN5がRUN6より同じ通気時間におけるCa溶出濃度の低下が

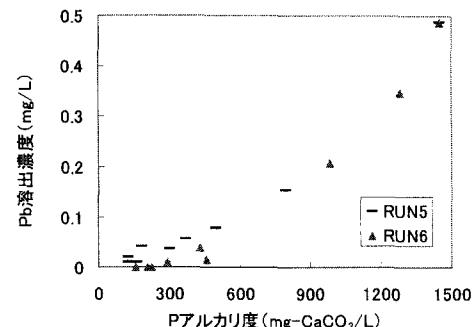


図-7 Pb溶出濃度とPアルカリ度の関係

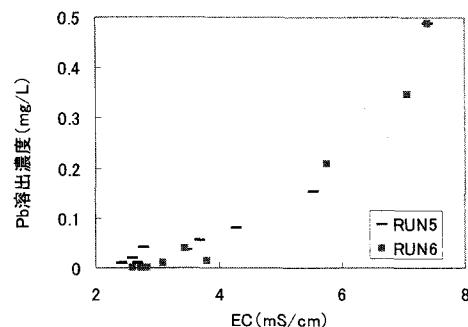


図-8 Pb溶出濃度とECの関係

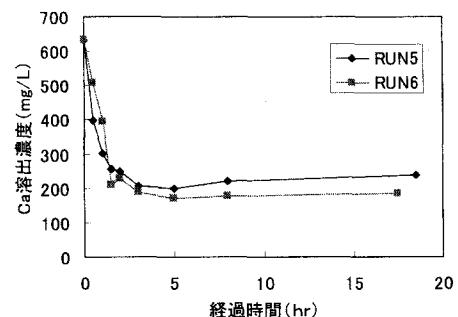


図-9 Ca溶出濃度の経時変化

表-5 X線回折測定に供した試料

RUN No.	通気時間(hr)	炭酸ガス吸収量 (mmol-CO <sub>2</sub> /g-dry ash)
5	0.5	0.17
	1	0.28
	18.5	0.55
6	0.5	0.08
	1	0.16
	17.5	0.48

大きかった。

以上より、実際に  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  が溶解度の低い Calcite へと変化していることが示唆された。炭酸化による焼却灰中に含まれる Ca 化合物の変化を確認するため、X 線回折装置 (MultiFlex, リガク製) を用いて化合物の同定を試みた。表-5 に X 線回折分析を行った試料における炭酸ガス累積吸収量を示す。また、図-10 に RUN5 および RUN6 の試料の X 線回折の結果を示す。炭酸ガスの通気によって Calcite が大幅に増加していることが分かる。通気開始後 0.5 時間、1 時間に關しては RUN5 においてより多くの Calcite が確認された。Portlandite( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ) は減少傾向を示しており、RUN5, RUN6 とともに実験終了時にはピーク線が消失している。難溶解性塩である Friedel's Salt ( $3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{CaCl}_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ ) のピークは通気開始後一旦増加し、その後減少している。

この結果より、焼却灰に炭酸ガスを通気することによって式(1)に示したセメントの炭酸化と良く

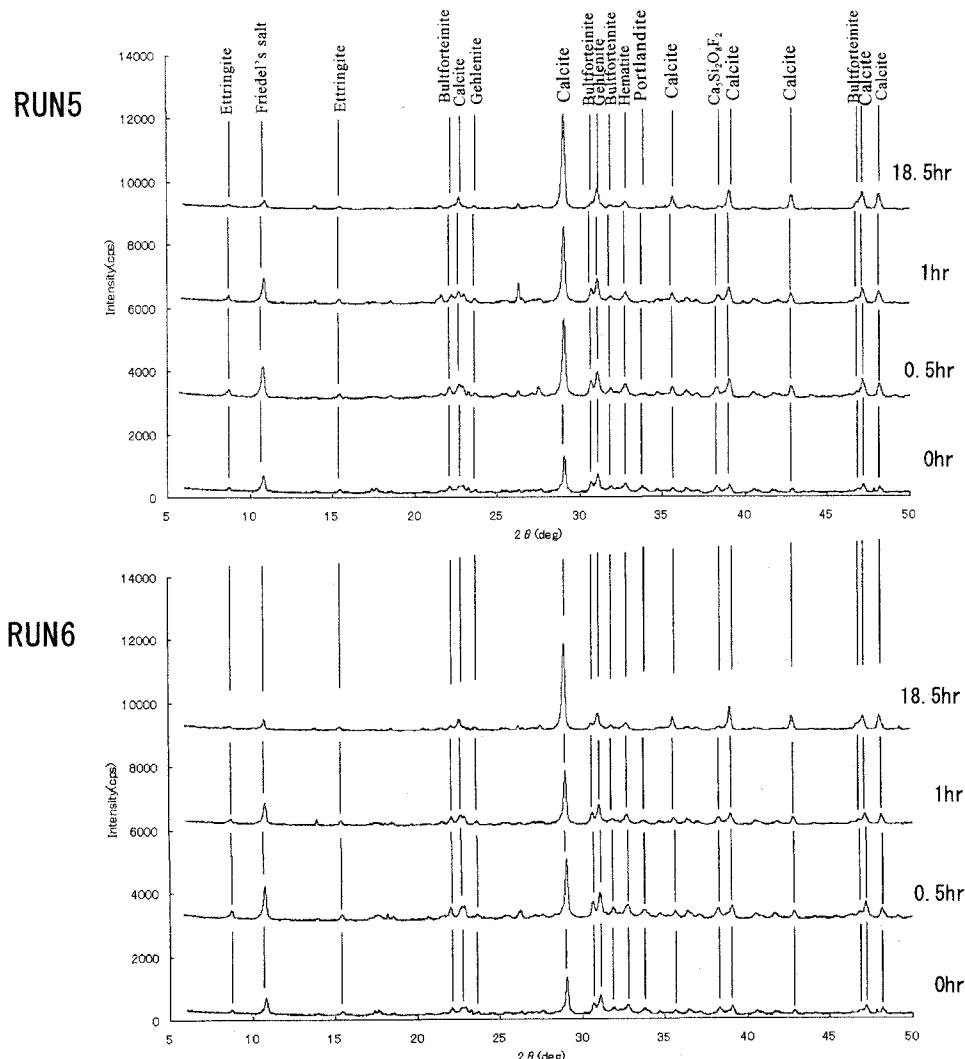


図-10 X線回折図

似た反応、もしくは炭酸ガスによる Friedel's Salt( $3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{CaCl}_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ )の分解が生じて、その結果重金属吸着能を持つ Calcite が通気時間に伴って増加していることが推察された。今後の課題としては、多種の成分が含まれている焼却灰の付着水中という環境下で、Calcite がどれほど吸着力を持っているかについて明らかにすること、この Calcite による Pb の吸着が Pb 不溶化にどの程度寄与しているのかの検討が考えられる。

## 6 化学平衡計算による Pb の化合形態の推定

炭酸化による Pb の不溶化の理由として化合形態の変化を考え、実験によって得られたデータを用いて化学平衡計算を行うことによって、Pb の化合形態の変化の推定を行った。

焼却灰粒子と溶液間の化学平衡計算のための基礎データを得るために行った平衡計算用溶出試験の結果を表-6 に示す。JLT46 による溶出試験結果と値が異なっていることが確認された。また、Pb は不溶化しているものの、Mo と Sb の濃度は上昇していることが示された。この事に関しては今後の課題として考慮する必要がある。

今回の計算では Visual MINTEQ ver.2.21 を使用した。各種成分以外に pH、Eh、P アルカリ度を考慮し、また炭酸ガスの分圧は 0.00035atm、温度は 25°C と設定した。

化学平衡計算を行うことにより、表-7 に示す Pb 化合物が各時間経過後の焼却灰中に含まれることが推定された。まず RUN5においては通気開始前と比較して、2 時間通気後の焼却灰には炭酸塩である Cerrusite を含めて 10 種類、さらに 18.5 時間通気後の焼却灰においては 16 種類の Pb 化合物の存在可能性が示された。RUN6 に関しては、2 時間通気後は 5 種類、17.5 時間通気後は 7 種類の化合物が推定された。この結果から、まず焼却灰中で複合酸化物形<sup>(3)</sup>として存在していた鉛が水に溶解することにより  $\text{Pb}(\text{OH})_2$  となり、これが炭酸ガスの通気によって例えば Cerrusite のような炭酸化物を含む、溶解度の低い他の化合物に変化し、Pb の全体的な溶解度の低下を導くものと考えられる。またその変化は炭酸ガスの通気流量によって異なっているものと推測される。これから課題として、化合形態の変化から Pb の全体的な溶解度の低下を理論的に示すことが挙げられる。

表-6 各成分の溶出濃度

成分	通気前	RUN5		RUN6	
		2h (mg/L)	18.5h (mg/L)	2h (mg/L)	17.5h (mg/L)
Al	570	177	130	253	141
Ba	2.58	0.741	0.298	0.884	0.192
Ca	294	378	461	349	376
Cd	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
Co	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
Cr	0.002	0.003	0.002	0.003	0.003
Cu	0.395	0.333	0.486	0.344	0.328
Fe	0.033	0.023	0.016	0.011	0.008
K	179	159	132	148	127
Li	0.191	0.017	0.01	0.055	0.006
Mg	0.024	0.023	0.076	0.015	0.034
Mn	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
Mo	0.008	0.075	0.087	0.117	0.101
Na	282	261	248	327	320
Ni	0.001	0.002	0.001	0.014	0.013
Pb	0.29	0.054	0.054	0.032	0.023
Sb	N.D.	0.173	0.12	0.21	0.113
Si	0.652	0.493	0.539	0.418	0.318
Ti	0.01	0.011	0.011	0.01	0.01
V	0.037	0.036	0.036	0.09	0.148
Zn	0.047	0.001	N.D.	0.002	0.003
Cl	704	1030	1210	1160	1310
SO <sub>4</sub>	N.D.	N.D.	30.9	N.D.	43.4
NO <sub>3</sub>	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
NO <sub>2</sub>	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

表-7 推定された Pb 化合物

化合形態	0h	RUN5		RUN6	
		2h	18.5h	2h	17.5h
$\text{Pb}(\text{OH})_2$	○	○	○	○	○
Cerrusite ( $\text{PbCO}_3$ )		○	○	○	○
Hydrocerrusite ( $\text{Pb}_3(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2$ )		○	○	○	○
$\text{Pb}_{10}(\text{OH})_6\text{O}(\text{CO}_3)_6$		○	○		
$\text{Pb}_2(\text{OH})_3\text{Cl}$		○	○	○	○
$\text{Pb}_2\text{O}(\text{OH})_2$		○	○		
$\text{Pb}_2\text{O}_3$		○	○		
$\text{Pb}_2\text{OCO}_3$		○	○		
$\text{Pb}_2\text{V}_2\text{O}_7$		○	○		○
$\text{Pb}_3(\text{VO}_4)_2$		○	○	○	○
$\text{Pb}_3\text{O}_2\text{CO}_3$				○	
$\text{Pb}_3\text{O}_2\text{SO}_4$				○	
$\text{Pb}_4(\text{OH})_6\text{SO}_4$				○	
$\text{Pb}_4\text{O}_3\text{SO}_4$				○	
$\text{PbCrO}_4$				○	
$\text{PbMoO}_4$				○	○

## 7まとめ

本研究では焼却灰有効利用のための前処理として、炭酸化を検討した。まず、カラムに含水率を変えた焼却灰を充填して炭酸ガスを通気する実験によって、焼却灰の炭酸ガス吸収量と含水率の関係を考察した。次に、同じく焼却灰充填カラムを用いて、各種成分や指標の経時的変化を測定することにより、焼却灰の炭酸ガス吸収、Pbの不溶化に関係している因子について考察を行った。また、X線回折分析を行うことによってPbの吸着能を持つCalciteの量の変化について確認した。さらに、化学平衡計算を用いて炭酸化によるPb化合物の形態変化について推定を行った。得られた結論を以下に示す。

1) 焼却灰の炭酸ガス吸収量は、焼却灰の含水率がおよそ10%から20%において大きな値を示すことが考えられた。

2) 今回の流量では、溶出液中のPb濃度は通気開始後およそ2時間で1割以下に減少した。また、Pb溶出濃度は炭酸化の初期段階では、炭酸ガス通気流量に関係なく同様の低下傾向を示すが、Pb濃度がある程度低下してからは、炭酸ガス通気流量が高い場合は十分不溶化されないことが示された。

3) X線回折分析の結果から、炭酸ガスの通気によってPbの吸着能を持つCalciteが増加していることが示された。

4) 化学平衡計算の結果から、炭酸ガスの通気によりPb(OH)<sub>2</sub>が炭酸化物を含む他の化合形態に変化していることが推定された。

今後の課題としては、焼却灰の含水率が炭酸ガス吸収に影響を及ぼす原因の確定、不溶化したPbにおけるCalciteへのPbの吸着量の割合の算定、化学平衡計算による結果を参考にしたX線微細吸収分光法などを用いたPb化合物の形態変化の確認が考えられる。

## 【参考文献】

- 1) 平成16年版循環型社会白書：環境省
- 2) 船戸己知雄, 田代利明: コンクリートの耐久性と化学の基礎, セメント新聞社(1992)
- 3) T. Shimaoka, K. Miyawaki, M. Soeda, M. Hanashima, T. Yoshida, T. Uchida, Kevin H. Gardner, and T. Taylor Eighmy: Mechanisms for the aging-induced reduction of lead solubility in scrubber residues from municipal solid waste combustion, Waste Management & Research Vol.20, pp.90-98(2002)
- 4) T. Shimaoka, K. Miyawaki, M. Hanashima, T. Yoshida, I. Ito, and T. Uchida: INSOLUBILITY OF HAZARDOUS HEAVY METALS IN WET FLY ASHES OF MUNICIPAL SOLID WASTE, PROCEEDINGS FROM WASTECON/ISWA WORLD CONGRESS 1998 SWANA'S 36TH ANNUAL INTERNATIONAL SOLID WASTE EXPOSITION, pp.419-431(1998)
- 5) 島岡隆行, 宮脇健太郎, 花嶋正孝, 内田敏仁, 伊藤一郎: 焼却飛灰の水混練に伴う鉛の不溶化現象について(その2), 第8回廃棄物学会研究発表会講演論文集, pp.692-694(1997)
- 6) 野馬幸生, 貴田晶子: 高アルカリ飛灰の炭酸化と処理飛灰の溶出特性, 廃棄物学会論文誌, Vol.8, No.4, pp.129-137(1997)
- 7) 土手裕, 丸山俊朗: セメント固化の前処理としての飛灰炭酸化効果の検討, 第12回廃棄物学会研究発表会講演論文集, pp.869-871(2001)
- 8) 繩田大輔, 土手裕: セメント固化の前処理としての炭酸化によるセメント削減と長期的溶出抑制効果の検討, 第13回廃棄物学会研究発表会講演論文集, pp.844-846(2002)
- 9) Jeannet A. Meima, Renata D. van der Weijden, T. Taylor Eighmy, and Rob N.J. Comans: Carbonation processes in municipal solid waste incinerator bottom ash and their effect on the leaching of copper and molybdenum, Applied Geochemistry, Vol.17, pp.1503-1513(2002)
- 10) 清野昭則, 金相烈, 田中信壽, 松藤敏彦: 炭酸ガス中和前処理による焼却灰からの重金属溶出抑制に関する研究, 第10回廃棄物学会研究発表会講演論文集, pp.497-499(1999)

- 11) Sang-Yul Kim, Toshihiko Matsuto, and Nobutoshi Tanaka: Evaluation of pre-treatment methods for landfill disposal of residues from municipal solid waste incineration, *Waste Management & Research*, Vol.21, pp.416-423(2003)
- 12) ASHAKI A. ROUFF, RICHARD J. REEDER, and NICHOLAS S. FISHER: Pb(II) Sorption with Calcite: A Radiotracer Study, *Aquatic Geochemistry*, Vol.8, pp.203-228(2003)
- 13) 山本浩, 名越正泰, 岩崎敏彦, 中原啓介, 藤沢能成, 高岡昌輝, 武田信生: 焼却灰含有鉛の化合物形態解析, 第12回廃棄物学会研究発表会講演論文集, pp.872-874(2001)