

(51) 炭酸化した焼却飛灰および溶融飛灰のセメント固化物からの重金属溶出特性に関する研究

Heavy metals leaching behavior of carbonated cement solidified fly ash from incineration facilities and melting facilities

土手裕*, 関戸知雄*, 縄田大介**

Yutaka Dote*, Tomoo Sekito* and Daisuke Nawata**

ABSTRACT: MSW fly ash generated from MSW incineration facilities and melting facilities has to be stabilized or solidified by solidification / stabilization treatment before landfilling because of a high leachability of hazardous heavy metals. Although cement solidification is used as a typical method for fly ash treatment, addition of cement causes an increase in the amount of landfill waste due to cement volume. In this study, carbonation treatment as pre-treatment of cement solidification treatment was applied to fly ash obtained from 4 incineration facilities and 8 melting facilities (gasification・melting facilities and ash melting facilities). Leaching tests were performed by JLT 13 and Pb, Cd, and Cr concentrations were determined.

Concentration of Pb in leachate from carbonated fly ash were decreased. This result implies that the carbonation would be an effective treatment for reduction of the amount of cement added to fly ash for stabilization of heavy metals. However, Pb concentrations from some carbonated fly ash samples obtained from gasification・melting facilities were not below the Japanese regulatory criterion for hazardous industrial wastes landfilling even 30% of cement was added to the fly ash. From XRD analysis, for carbonated fly ash from which Pb concentration of leachate was lowered to the criterion successfully, it was found that slow carbonation would be effective for the preventing of Pb leaching. Concentration of Cd in leachate from some melting fly ash increased according to decrease of pH by carbonation, however, the concentration could be lowered by 10% of cement addition and alkalinity such as calcium hydroxide to maintain high pH.

KEYWORDS: MSW fly ash, molten fly ash, carbonation, lead, cadmium, leaching test

1 はじめに

一般廃棄物の焼却により発生する焼却飛灰、および溶融処理によって発生する溶融飛灰は、可溶性の重金属を含んでいるため、セメント固化、薬剤処理などの無害化処理の後に埋立処分することが義務付けられている。平成12年度において、セメント固化（薬剤処理との併用も含む）により焼却飛灰および溶融飛灰（以下、あわせて飛灰と呼ぶ）を処理している施設数は、それぞれの全施設の約40%、約30%と推定されている¹⁾。今後も、主な固化方法として用いられると思われる。

セメント固化処理は、飛灰にセメントと水を混ぜることで、含有される水溶性重金属類をセメント鉱物へ

*宮崎大学工学部 (Department of civil and environmental engineering, University of Miyazaki)

**復建調査設計株式会社(Fukken CO.,LTD)

固定する、あるいは強いアルカリ性による水酸化物生成により不溶化するという簡易な方法であり、ランニングコストが他の中間処理方法に比べて安い²⁾という利点がある。一般に焼却飛灰に対しセメント 13~40%、水 18~40%を添加し、固化することにより、重金属の溶出濃度を環境庁が定める基準値以下にすることができると言われている³⁾。一方、埋立処分量の減容化のためには、できるだけセメント添加量を少なくすることが望ましい。このため、飛灰に対して簡易な前処理を行い、重金属溶出濃度を削減させた後に少量のセメントで固化を行う方法が考えられる。筆者らは、こうしたセメント固化の補助的処理として、二酸化炭素による炭酸化处理に注目した。重金属を含む廃棄物に対して二酸化炭素を吸収させて炭酸化を行うことで、重金属の溶出抑制効果を明らかにした知見がいくつか報告されている。Lange ら^{4),5)}は、金属精錬廃棄物のセメント固化体を二酸化炭素雰囲気中で養生し、鉛等の重金属溶出抑制を報告している。小林ら⁶⁾は、焼却飛灰に対するセメント固化の前処理として、炭酸化と水混練とを複合させて処理を行うことで、鉛溶出濃度を低減させた。また、Shimaoka ら⁷⁾は、焼却飛灰に対し二酸化炭素雰囲気中で養生を行い、鉛の溶出濃度低下とそのメカニズムについて明らかにしている。

本研究では、焼却飛灰および炭酸化の知見の少ない溶融飛灰を試料として用い、セメント固化の前処理として炭酸化を行い、セメント固化体からの重金属溶出特性とセメント添加量の削減の可能性について明らかにすることを目的とした。また、複数の施設から試料を採取し、重金属溶出挙動の比較を行った。

2 実験試料および実験方法概要

2.1 実験試料概要

本研究では、焼却飛灰を 4 施設から、溶融飛灰を 8 施設から採取した。それぞれの採取施設の概要を表-1 に示す。焼却飛灰は、ストーカ炉、流動床炉の 2 種類、溶融飛灰はアーク方式、コークスベッド方式、プラズマ方式、表面溶融方式の 4 種類の形式から採取した。試料は全て郵送で入手した。強熱減量は、焼却飛灰が 0.1~0.2%、溶融飛灰が 0.1~1.6%であった。溶融飛灰のうち、MF, MG, MH は、酸性ガス中和剤を吹き込む前に採取した飛灰である。また、酸性ガス中和に用いられた薬剤は FC を除いて全て消石灰であった。FC では、酸性ガス中和剤として水酸化ナトリウムが用いられていた。

2.2 実験方法概要

(1) 含有量測定方法

飛灰中金属含有量を測定するため、硝酸と過塩素酸の混酸 (2:1) による酸分解を行い、分解液を適宜希釈して原子吸光度計 (HITACHI, Z-5300) で測定を行った。同一試料から 3 試料を採取し、分析を行い、平均値をその試料の金属含有量とした。

(2) 炭酸化方法

セメント添加量と炭酸化時間を表-2 に示す。飛灰に蒸留水を添加 (焼却飛灰; 30%, 溶融飛灰; 10%) し、乳鉢で均等に混ぜ合わせた後、表面にラップを巻いた金属製の板に 5mm~7mm の厚さに広げてデシケーター (0.26m³) に入れ、二酸化炭素ガス (濃度 99.9%) を 0.1L/min で通気させた。飛灰と二酸化炭素が

表-1 試料採取施設概要

試料名	焼却炉・溶融炉タイプ	集塵機タイプ	酸性ガス中和剤
FA	全連続式ストーカ炉	電気集塵機	消石灰
FB	全連続式ストーカ炉	バグフィルター	消石灰
FC	全連続式ストーカ炉	電気集塵機	水酸化ナトリウム
FD	全連続式流動床炉	バグフィルター	消石灰
MA	コークスベッド式	バグフィルター	消石灰
MB	プラズマ方式	バグフィルター	消石灰
MC	プラズマ方式	バグフィルター	消石灰
MD	表面溶融方式	バグフィルター	消石灰
ME	プラズマ方式	バグフィルター	消石灰
MF	アーク方式	バグフィルター	*
MG	コークスベッド式	バグフィルター	*
MH	アーク方式	バグフィルター	*

*酸性ガス中和剤吹き込み前に採取

表-2 実験条件

	炭酸化時間 [時間]	セメント添加量 [%]
焼却飛灰	0, 1, 4, 24	0, 1, 5, 15
溶融飛灰	0, 1, 4, 24	0, 1, 10, 30

均等に接触するように、通気開始から 1, 4 時間目にデシケーターから取り出して薬さじを用いてかき混ぜた。また、乾燥を防ぐためにデシケーターの中には水を入れた容器を入れた。なお、炭酸化時間は 1, 4, 24 時間とした。なお、炭酸化時の含水率は、もっとも重金属溶出の効果が現れる割合を確認するための実験を行い、決定した。

(3) セメント固化体作成および養生方法

飛灰は、普通ポルトランドセメント（太平洋セメント株式会社製）を用いて固化を行った。セメント添加量は、焼却飛灰は 1, 5, 15%, 溶融飛灰は 1, 10, 30%とした。それぞれの添加量の最大値は、溶融飛灰は一般的添加量と思われる量のおよそ最大値を、焼却飛灰は、予備試験より、十分溶出濃度の抑制効果が見られた最小量を採用した。炭酸化後の飛灰を 105℃で半日乾燥させ、粒径が 0.5mm 以下になるように乳鉢ですり潰し、所定のセメントを添加した。よく攪拌した後に含水率が 30%となるように蒸留水を加え、混合した。混合後の試料はポリエチレン製の袋に詰め、軽く締め固めた後に下部に水を張ったデシケーター内で 28 日間養生した。養生後、粒径が 4.75mm 以下にふるい分けし、溶出試験を行った。なお、セメント添加量 0%の試料も、同様の方法で 28 日間養生し、溶出試験を行った。

(4) 溶出試験方法

セメント固化体からの重金属溶出ポテンシャルを明らかにするため、環境庁告示第 13 号に準じた溶出試験を行った。容積 500mL のポリ瓶に粉碎した試料 20g と 200mL の蒸留水を入れ、6 時間振とう後、0.45μm のメンブランフィルターで固液分離を行った。採水後、直ちに pH を測定した。ろ液は、IC（無機体炭素）を TOC メータで、鉛、カドミウム、カルシウム、全クロムの金属溶出量を原子吸光光度計で測定した。

3 実験結果

3.1 含有量測定結果

表-3 に飛灰中含有量測定結果を示す。焼却飛灰 FA, FB は FC, FD に比べてカルシウム含有量がやや多かった。FC のカルシウム含有量が少ない理由は、酸性ガス中和処理に消石灰を用いていないためであると思われるが、FD のカルシウム含有量が少なかった理由は不明である。

溶融飛灰は、酸性ガス中和剤（消石灰）吹き込み後に採取した試料（MA～ME）のカルシウム含有量が、中和剤吹き込み前に採取した試料（MF～MH）に比べて 1～2 オーダー大きかった。以下、MA～ME を高カルシウム飛灰、MF～MH を低カルシウム飛灰と呼ぶ。また、溶融飛灰の鉛とカドミウムの含有量は焼却飛灰に比べ約 10 倍多かった。

表-3 試料中金属含有量

試料	金属含有量 (mg/kg)			
	Ca	Cd	Cr	Pb
FA	139,547	14	40	201
FB	176,270	25	109	701
FC	75,723	18	94	480
FD	80,690	8	99	1,451
MA	177,899	107	97	4,750
MB	154,488	60	3	4,575
MC	197,144	95	10	3,025
MD	171,896	121	13	3,938
ME	235,153	117	98	10,967
MF	26,568	123	24	15,000
MG	15,526	199	71	36,694
MH	1,913	840	34	21,619

3.2 炭酸化時間およびセメント添加量と溶出液 pH の関係

(1) 焼却飛灰からの溶出液 pH

図-1 に、焼却飛灰の炭酸化時間と溶出液 pH の関係を示す。セメントを添加していない焼却飛灰は、炭酸化を行っても pH が約 11 と高かった。

FA, FB は炭酸化時間が増加しても pH はほとんど低下しなかった。これは、飛灰中のアルカリ分のうち、炭酸化によって中和される割合が小さく、二酸化炭素と反応せずに残留したアルカリ分が溶解して、高 pH を示したと思われる。また、FA, FB へのセメント添加量を変化させても、溶出液 pH は高アルカリのまま変化しなかった。これは、FA, FB 中のアルカリ分が、セメント添加により加わるアルカリ分よりも相対的に多かったためだと思われる。

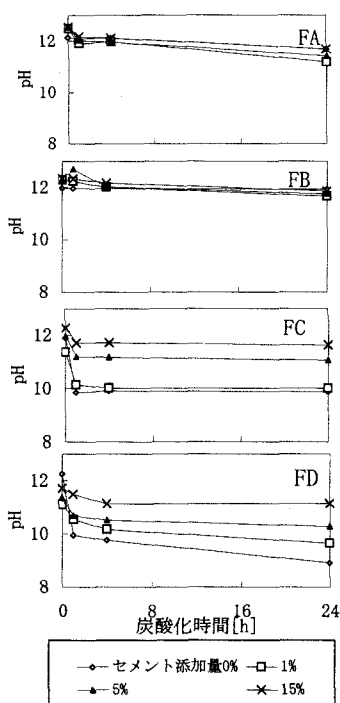


図-1 炭酸化時間と pH の関係 (焼却飛灰)

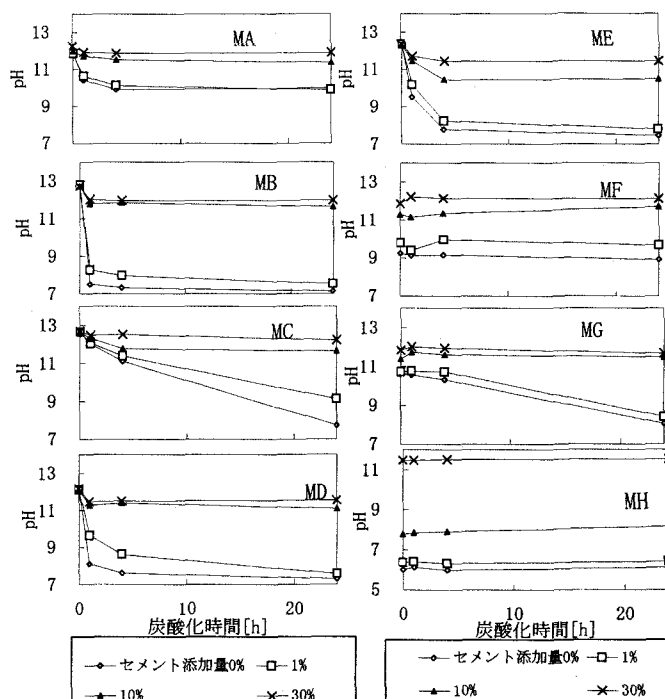


図-2 炭酸化時間と pH の関係 (溶融飛灰)

一方、カルシウム含有量の比較的少ない FC, FD は、炭酸化を 1 時間行くと、pH がおよそ 0.5~2 低下した。FC, FD は FA, FB と比べて、含有されるアルカリ分が少ないために、炭酸化によって二酸化炭素で中和される割合が大きいため、pH が低下したと推定される。また、セメント添加量が多くなるほど炭酸化による pH の低下が小さかった。これは、セメント由来のアルカリ分が相対的に増えたためだと考えられる。

(2) 溶融飛灰からの溶出液 pH

図-2 に溶融飛灰の炭酸化時間と溶出液 pH の関係を示す。炭酸化前の高カルシウム飛灰 (MA~ME) の pH は、セメント添加量によらず 12~13 と高かった。これらの飛灰は、セメント添加量が多い (10%, 30%) と、炭酸化時間が増加しても pH の変化が小さかった。また、セメント添加量が少ない (0%, 1%) と、炭酸化を行うことで溶出液 pH が減少した。

高カルシウム飛灰は、FA, FB と異なり、カルシウム含有量が高いに関わらず、炭酸化を行うと pH が下がった。この原因を明らかにすることは、今後の課題となるが、溶融飛灰中のアルカリ分が、焼却飛灰よりも二酸化炭素で中和されやすい化合物で含まれていたことが考えられる。また、焼却飛灰のほうが炭酸化時の含水率が大きく (30%)、二酸化炭素が灰粒子の隙間に浸透しにくかったために、未反応のアルカリ分が多く残ったことが考えられる。

低カルシウム飛灰 (MF~MH) は、高カルシウム飛灰に比べて、炭酸化前の pH が 11 以下と低く、ほとんど炭酸化を行っても変化しなかった。低カルシウム飛灰は中和剤吹き込み前に採取した飛灰であり、これは、これらの飛灰に含まれるアルカリ分が少なく、二酸化炭素と反応するアルカリ分も少ないため、溶出液 pH に変化が生じなかったと思われる。

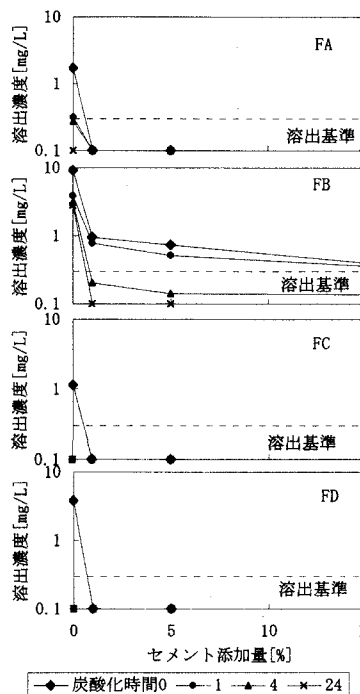


図-3 セメント添加量と鉛溶出濃度の関係 (焼却飛灰)

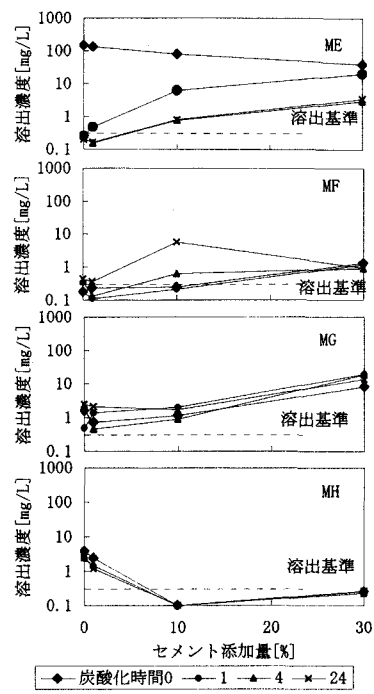
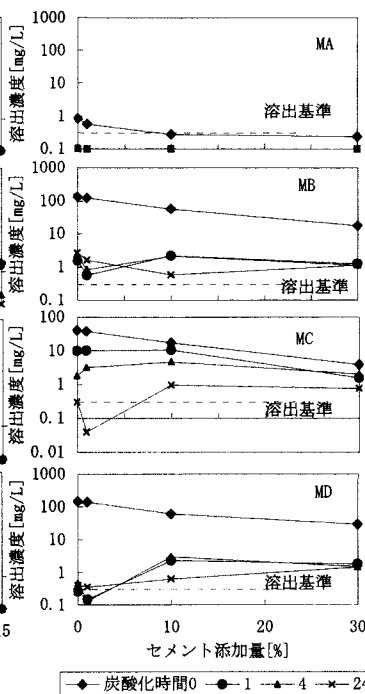


図-4 セメント添加量と鉛溶出濃度の関係 (溶融飛灰)

3.3 重金属溶出濃度

(1) 鉛溶出濃度

図-3 に焼却飛灰のセメント添加量と溶出液中鉛溶出濃度を示す。セメント添加量および炭酸化時間が増加すると、溶出濃度は低下した。特に、FC、FDはセメント添加量0%でも炭酸化を1時間以上行うことで検出限界 (0.1mg/L) 以下になり、炭酸化による重金属溶出抑制効果が大きかった。FA もセメント 1%添加することで溶出基準を満たした。一方、FB は炭酸化1時間ではセメントを15%添加しても溶出基準を満たさなかったが、4時間炭酸化を行うことでセメント添加量1%でも溶出基準を満たした。

図-4 に溶融飛灰のセメント添加量と溶出液中鉛濃度の関係を示す。高カルシウム飛灰は炭酸化を行うことで鉛溶出濃度を減少させることができた。また、低カルシウム飛灰は炭酸化を行っても鉛溶出濃度は低下せず、効果が現れなかった。特に、MAおよびMHを除くその他の飛灰は、炭酸化を行い、セメントを30%添加しても溶出基準を満たすまで鉛

表-4 溶解度曲線の計算に用いた溶解度積および平衡定数

		平衡定数	
反応		logKs	文献
PbCO_3	$\rightleftharpoons \text{Pb}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$	-13.1	9)
Pb(OH)_2	$\rightleftharpoons \text{Pb}^{2+} + 2\text{OH}^-$	-15.0	9)
CdCO_3	$\rightleftharpoons \text{Cd}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$	-12.1	11)
Cd(OH)_2	$\rightleftharpoons \text{Cd}^{2+} + 2\text{OH}^-$	-14.4	11)
Cd(OH)Cl	$\rightleftharpoons \text{Cd}^{2+} + \text{OH}^- + \text{Cl}^-$	-11.5	11)
		log β	文献
H_2CO_3	$\rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{HCO}_3^-$	-6.3	8)
HCO_3^-	$\rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{CO}_3^{2-}$	-10.4	8)
PbOH^+	$\rightleftharpoons \text{Pb}^{2+} + \text{OH}^-$	-6.3	10)
Pb(OH)_2^0	$\rightleftharpoons \text{Pb}^{2+} + 2\text{OH}^-$	-11.1	10)
Pb(OH)_3^-	$\rightleftharpoons \text{Pb}^{2+} + 3\text{OH}^-$	-13.9	10)
PbCO_3^0	$\rightleftharpoons \text{Pb}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$	-7.1	10)
CdOH^+	$\rightleftharpoons \text{Cd}^{2+} + \text{OH}^-$	-3.6	11)
Cd(OH)_2^0	$\rightleftharpoons \text{Cd}^{2+} + 2\text{OH}^-$	-7.1	11)
Cd(OH)_3^-	$\rightleftharpoons \text{Cd}^{2+} + 3\text{OH}^-$	-8.0	11)
CdCO_3^0	$\rightleftharpoons \text{Cd}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$	-6.4	11)
CdCl^+	$\rightleftharpoons \text{Cd}^{2+} + \text{Cl}^-$	-2.2	11)
CdCl_2^0	$\rightleftharpoons \text{Cd}^{2+} + 2\text{Cl}^-$	-3.3	11)
CdCl_3^-	$\rightleftharpoons \text{Cd}^{2+} + 3\text{Cl}^-$	-2.9	11)

溶出を抑制することができなかった。低カルシウム飛灰は、セメント添加量の増加に伴い、鉛溶出濃度も増加した。

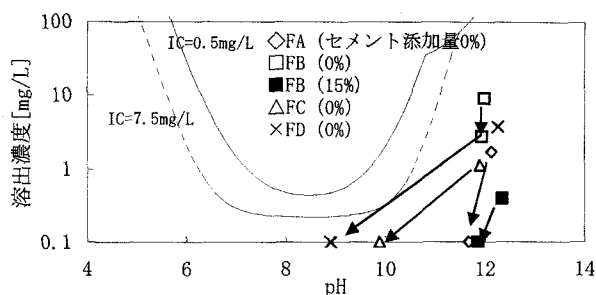
図-5 に、炭酸化時間 0 時間と 24 時間およびセメント添加量 0% と 15% の条件による焼却飛灰からの鉛溶出濃度と pH の関係の変化を、鉛溶解度曲線と共に示す。溶解度曲線の計算に用いた IC (無機炭素) 濃度は、溶出液中 IC 濃度測定値の最大値 (7.5mg/L) および最小値 (0.5mg/L) とした。計算に用いた化合物種と溶解度積を表-4 に示す。矢印は炭酸化 0 時間から 24 時間の変化を示している。なお、定量限界以下のデータは 0.1mg/L にプロットした。この図より、炭酸化を行うことで、鉛の溶解度以下に溶出濃度が抑制されていることが分かる。炭酸化によって生成した炭酸カルシウム塩などに、鉛が物理的に閉じ込められるなど、溶解しにくい状態になったと予想される。同様に図-6 に高カルシウム飛灰である MA, MC, MD, 低カルシウム飛灰である MF, MH について、炭酸化時間 0 時間と 24 時間、およびセメント添加量 0% と 15% の条件による鉛溶出濃度と pH の関係の変化を示す。溶解度曲線の計算に用いた IC 濃度は、MC, MD, MH の溶出液 IC 濃度測定値の最大値 (50mg/L), および最小値 (0.5mg/L) として計算した。MA を除く高

カルシウム飛灰は、セメント 0% の場合、炭酸化により pH が大きく低下し、それに伴って溶解度曲線に沿って鉛濃度も大きく低下した。セメントを添加すると、溶出濃度は溶解度曲線と離れるように低下し、セメントによる物理的閉じ込めの効果が見られた。一方、低カルシウム飛灰は、セメント 0% の場合、炭酸化を行っても pH が低い領域で溶出濃度が変化しない。セメントを添加すると、pH が高くなり、溶解度曲線はずれて濃度が低くなっているが、炭酸化による変化はごくわずかであった。データを示していない試料についても同様の傾向が見られ、カルシウムの含有量の違い、すなわちアルカリ含有量の違いによって、炭酸化やセメント添加による溶出挙動が異なった。

(2) カドミウム溶出濃度

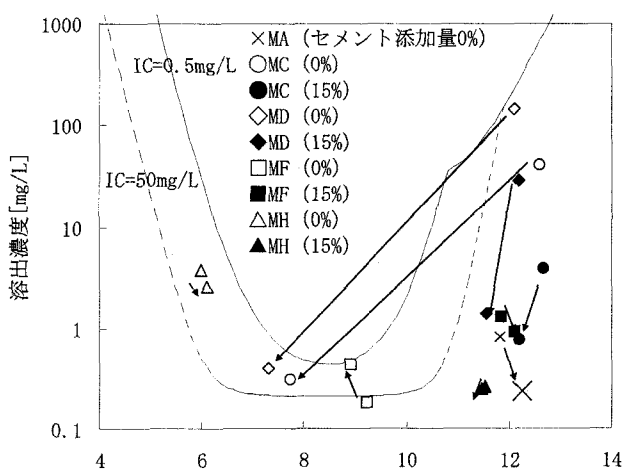
焼却飛灰からのカドミウム溶出は、全ての試料で検出限界 (0.01mg/L) 以下であり、セメントの添加や炭酸化による溶出濃度の変化は不明であった。

図-7 に溶融飛灰のセメント添加量と溶出液中カドミウム濃度の関係を示す。全ての試料で、セメント添加量が増加するとカドミウム溶出濃度が低下した。MH 以外は、セメントを 10% 添加することで、溶出基準以下に溶出が抑制された。しかし、セメント添加量が低い (0%, 1%) と炭酸化によってカドミウム溶出濃度が高くなる試料も見られた (MB, MC, MD, ME, MG)。図-8 に、炭酸化時間 0 時間と 24 時間およびセメント添加量 0% の溶融飛灰 (MA, MC, MD, MF, MH) からのカドミウム溶出濃度と pH の関係を、カ



矢印は炭酸化 0 時間から 24 時間への変化を示す。

図-5 焼却飛灰炭酸化による鉛溶出濃度変化



矢印は炭酸化 0 時間から 24 時間への変化を示す。

図-6 セメント添加量と鉛溶出濃度の関係 (溶融飛灰)

ドミウム溶解度曲線と共に示す。MH については、セメント添加量 10% の場合も示した。溶解度曲線の計算に考慮した化合物は表-4 に示す。なお、塩素濃度は、MA, MC, MD, MF, MG の溶出液中塩素濃度を測定し、約 10,000mg/L であることを確認し、これを溶解度曲線の計算に用いた。矢印は炭酸化時間 0 時間から 24 時間への変化を示している。溶出濃度は溶解度曲線よりも低いが、炭酸化を行うと pH の低下に伴い、溶解度曲線に沿って濃度が上昇したことが分かる。また、溶

解度が低くなる pH10 から 11 では、溶出濃度も低くなっている。セメント添加量 10% でも溶出が抑制されなかった MH は、セメント添加前に含まれていたアルカリ分が低いために、炭酸化前の溶出液 pH が 6 と低く、溶解度が高いためにカドミウムが溶出したと思われる。さらに、セメントを加えることにより溶出液 pH は 8 に上がったが、やはり溶解度が高いために溶出が抑制されなかったと思われる。

以上より、溶融飛灰については、炭酸化を行うことにより pH が低下すると、溶解度曲線に沿ってカドミウム溶出濃度が増加した。ただし、酸性ガス中和剤として用いられる消石灰を飛灰の pH が高くなるように添加し、セメント添加量を 10% とすることで、溶出液 pH をアルカリに保つことにより、カドミウム溶出濃度を溶出基準以下に抑えることが分かった。

(3) 全クロム溶出濃度

焼却飛灰および溶融飛灰からは、セメント添加量や炭酸化時間によらず、ほぼ一定の濃度で溶出し、炭酸

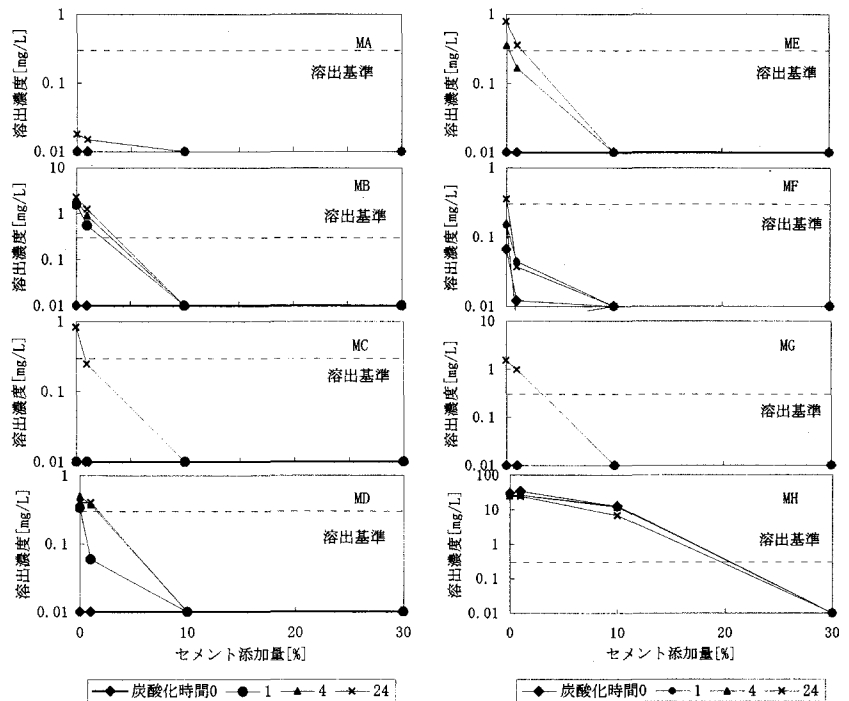
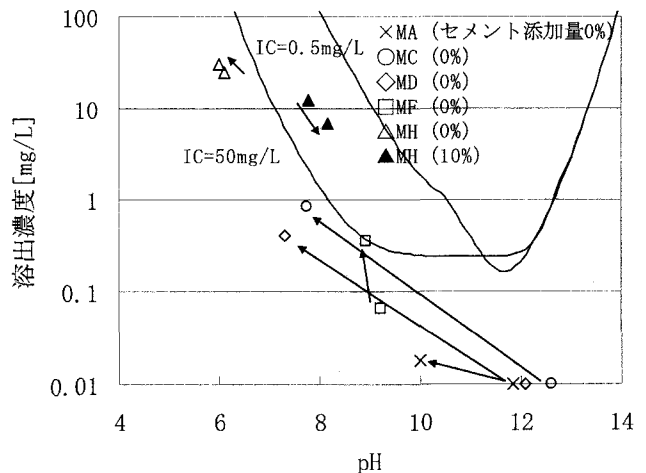


図-7 セメント添加量とカドミウム溶出濃度の関係 (溶融飛灰)



矢印は炭酸化 0 時間から 24 時間への変化を示す。

図-8 溶融飛灰炭酸化によるカドミウム溶出濃度変化

化による溶出抑制効果はみられなかった。MF の炭酸化 1 時間、セメント添加量 30% でわずかに溶出基準（六価クロムとして 1.5mg/L）を超えたが、その他の条件では溶出基準以下であった。

3.4 XRD 分析による炭酸化による結晶構造変化

X 溶融飛灰を炭酸化すると、鉛の溶出濃度は低下したが、多くの試料でセメントを 30% 添加しても溶出基準以下にならなかった。しかし、MA は、他の溶融飛灰と異なり、鉛の溶出濃度が炭酸化により抑制された。また、炭酸化およびセメント添加を行わない場合の溶出濃度も低かった。そこで XRD 回折分析（理学社、RINT2000）により、化合物構造の違いから、溶出挙動の違いについて考察を行った。

図 9(a)~(d) に、MA および ME の炭酸化前および炭酸化後（それぞれ養生前）の結果を示す。ME は、炭酸化前に、酸性ガス中和剤として吹き込まれた消石灰（水酸化カルシウム）のピークがみられる（図 9(c)）。これは、炭酸化をすることによって消失し、新たに炭酸カルシウムのピークが検出された（図 9(d)）。これは、水酸化カルシウムと二酸化炭素が反応し、炭酸カルシウムが生成したことを示している。一方 MA では、ME と同程度のカルシウム含有量であり、消石灰が吹き込まれた試料であるにもかかわらず、炭酸化前には水酸化カルシウムのピークが

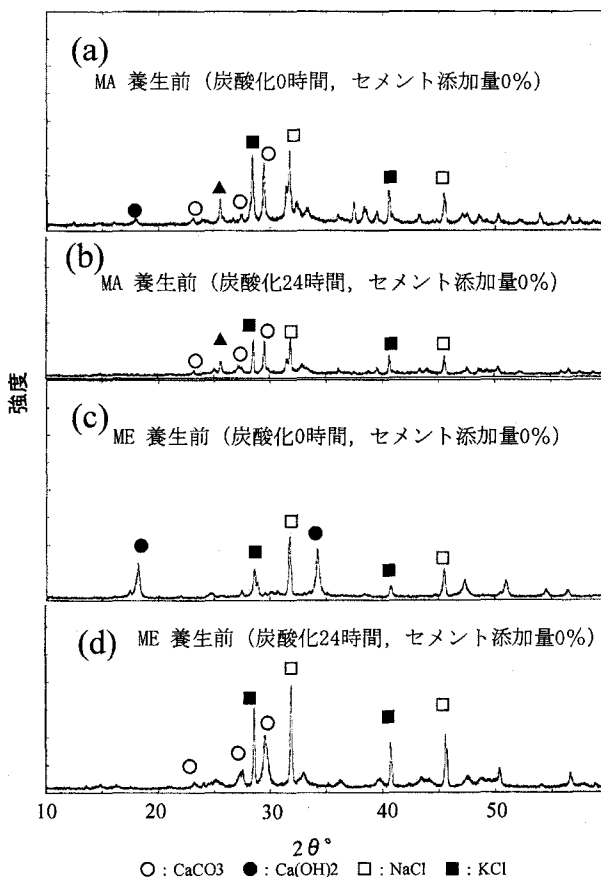


図 9 養生前溶融飛灰 (MA, ME) の炭酸化前後の変化

小さく、炭酸カルシウムのピークが検出された（図 9(a)）。これは、MA を実験試料として採取する前に、水分を含んだ状態で、しばらく空气中に保管されていた等により、空气中二酸化炭素と接触したことにより炭酸化が起きてしまっていたことが示唆される。この場合、非常にゆっくりと炭酸化が起きるため、急激な炭酸化による炭酸カルシウムの層が灰表面に形成せず、粒子内部まで炭酸化されたと思われる。従って、MA は、炭酸化による鉛の溶出抑制が実験前に既に生じていたため、炭酸化およびセメント固化することで容易に鉛の溶出が抑えられたと考えられる。一方、ME は、高濃度の二酸化炭素により炭酸化を行ったため、粒子表面に炭酸カルシウムの層が生成し、二酸化炭素が飛灰内部まで到達せず、十分に炭酸化が起これなかったと思われる。

以上より、溶融飛灰に対しては、低濃度の二酸化炭素濃度でゆっくりと炭酸化を行うことが、鉛の溶出抑制に効果的であることが示唆された。

4 まとめ

本研究では、いくつかの施設から採取した焼却飛灰および溶融飛灰に対して、セメント固化の前処理とし

て炭酸化を行い、セメント添加量削減の可能性、および採取施設の違いによる重金属溶出挙動の違いを明らかにした。以下に本研究で得られた結論をまとめる。

- 1) 焼却飛灰に対して、セメント添加前に炭酸化を行うことによって、重金属溶出濃度を大きく削減できた。セメントを 1% 添加して養生することにより、鉛、カドミウム、クロムの溶出基準を満足した。通常は 13~40% 添加し、固化を行うため、炭酸化を行うことにより、セメント使用量を削減できる可能性がある。
- 2) 溶融飛灰の内、高カルシウム飛灰に対して炭酸化を行うと、セメント添加量によらず鉛溶出濃度を減少させることができた。一方、低カルシウム飛灰は、炭酸化の有無およびセメント添加量の違いによって、鉛溶出濃度は変化しなかった。しかし、セメントを 30% 添加して固化を行っても MA 以外は溶出濃度を溶出基準以下にすることができなかった。
- 3) 炭酸化を行っただけで鉛濃度が溶出基準以下になった MA は、実験的に炭酸化を行う前に、既に空気中の二酸化炭素によりゆっくりと炭酸化が行われていたことがわかった。このため、効果的に重金属溶出抑制を行うためには、比較的二酸化炭素濃度の低いガスを用いて炭酸化を行うことが望ましいと思われる。一般的なごみ組成¹²⁾ (炭素 26%, 水素 3.7%, 窒素 0.3%, 酸素 23%, 水分 41%) を空気比 1.5 で燃焼した時の、理論的湿り燃焼ガス中二酸化炭素濃度は約 10% であり、こうしたガスを利用することができれば、低コストで炭酸化が行えるだろう。今後は、低濃度二酸化炭素ガスを用いた炭酸化実験を行い、重金属溶出抑制に効果的な炭酸化条件を明らかにする必要がある。
- 4) 溶融飛灰のカドミウム溶出濃度は、炭酸化を行うことにより pH が低下すると、溶解度曲線に沿って溶出濃度が増加した。ただし、酸性ガス中和剤として用いられる消石灰を飛灰の pH が高くなるように添加し、セメント添加量を 10% とすることで、溶出液 pH をアルカリに保つことにより、カドミウム溶出濃度を溶出基準以下に抑えることが可能であると思われる。

参考文献

- 1) 土手裕：飛灰のセメント固化について、財団だより、No.59, pp.18-21, 2004
- 2) 勝浦英雄, 井上卓：溶融飛灰の中間処理技術について、PPM, 1995/4, pp.24-33, 1995
- 3) 平岡正勝, 酒井伸一：ごみ焼却灰の性状と処理技術の展望, 廃棄物学会誌, Vol.5, No.1, pp.3-17, 1994
- 4) L.C.Lange, C.D.Hills and A.B.Poole : The effect of accelerated carbonation on type properties of cement-solidified waste forms, Waste Management, Vol.16, No.8, pp.757-763, 1996
- 5) L.C.Lange, C.D.Hills, and A.B.poole : Preliminary investigation into the effects of carbonation on cement-solidified hazardous wastes, Environmental Science & Technology, Vol.30, No.1, pp.25-30, 1996
- 6) 小林俊幸, 添田政司, 島岡隆行, 花嶋正孝, CO₂ と水で複合処理した飛灰の固化に関する一考察, Cement Science and Concrete technology, No.54, pp.23-27, 2000
- 7) T.Shimaoka, K.Miyawaki, M.Soeda, T.Yoshida, T.Uchida, K.H.Gardner, and T.T.Eighmy : Mechanisms for the aging-induced reduction of lead solubility in scrubber residues from municipal solid waste combustion, Waste Management and Research, Vol.20, pp.90-98, 2002
- 8) R.A.デイ, Jr., A.L.アンダーウッド著, 鳥居泰男, 康智三共訳：定量分析化学改訂版, 培風館, 1997
- 9) Robert M. Smith & Arthur E. Martel : Critical Stability Constants, Vol.4, 1976
- 10) Schock, M.R. & Gardels, M.C. : Plumbosolvency reduction by high pH and low carbonate solubility relationship, Journal of the American Water Works Association, Vol.75, No.2, pp.87-91, 1983
- 11) 土手裕, 田中信寿, 神山桂一：埋立層内汚水中の溶存カドミウム濃度に及ぼす OH⁻, Cl⁻, CO₃²⁻の影響に関する研究, 衛生工学研究論文集, Vol.24, pp.177-189, 1988
- 12) 志垣政信編著：絵とき廃棄物の焼却技術, オーム社, 1995