

硫酸塩還元を用いた廃棄物埋立地からのメタン発生抑制及び重金属の固定法の研究

京都大学工学部

松井三郎

○金 正権

1.はじめに

地球温暖化を引き起こす物質のうち、メタンガスの寄与率は約18%であり、濃度は年間0.9%の割合で増加していると推定される。さらにメタンガスが地球温室効果に及ぼす影響は二酸化炭酸ガスの20倍であるが、それでも国内で排出される正確な量はまだ把握されていない。メタンガスの発生源は自然発生源と人為発生源に分けられる。人為発生源のうち廃棄物の埋立地から発生するメタンガスは、火災防止の点あるいは、資源の有効利用という点から問題視されてきたが、地球温暖化防止の点からも研究していくかなければならない。そこで本報では、人為的に埋立試験カラムに硫酸塩を添加して硫酸塩還元菌がメタン生成菌と競合してメタン生成菌の基質利用の活動度を阻害することを利用したメタンガス発生の抑制及び生成した硫化物による浸出水中の重金属の固定法について研究した結果を報告する。なお、この研究は継続中で一部は中間報告である。

2. 実験

2-1. 人工試料及び試験カラムの性状

人工ごみ試料としては、焼却灰とE・P灰を混合したもの（以下 焼却灰）と新聞紙及び下水汚泥を利用した。

実験条件としては表1に示したようにR1-R5は汚泥+新聞紙、R6-R10は汚泥+新聞紙+焼却灰を実験カラムの容量比が等しくなるように各々完全に混合していった。そして、各々の実験カラムに蒸留水、硫酸イオン調整水、重金属として塩化カドミウムを注入させた。

表2は試料の最初の重金属の含有量試験結果を示した。

2-2. 実験方法

実験に使用した埋立地試験カラムを図1に示した。

試験カラムは直径10cm、高さ60cm、容量4.3Lのポリアクリル容器でカラムの最上部と下部を5cm程度の砂でおおった。さらにカラムを上部は試料水による水封、下部は窒素ガスにより完全に密閉させ、嫌気性状態の

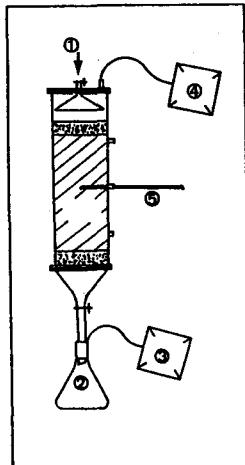


図1 実験カラム

表1 実験条件

槽	条件	SO_4^{2-} 濃度 (g/l as Sulfate)	Cd^{2+} 濃度 (mg/l)
R1	汚泥、新聞紙	0	0
R2	"	0	100
R3	"	2.2	"
R4	"	4.4	"
R5	"	44	"
R6	汚、新、焼却灰	0	0
R7	"	0	100
R8	"	1.7	"
R9	"	3.4	"
R10	"	34	"

表2 試料の含有量試験結果

項目	E・P灰	焼却灰	汚泥	新聞紙	木屑
Cd	0.33	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
Cr	0.26	0.22	0.058	N.D.	N.D.
Pb	5.8	2.0	0.036	0.028	N.D.
Cu	1.9	22	0.15	N.D.	N.D.
Fe	23	120	36	0.6	10
Mn	1.4	1.3	0.52	0.012	0.085
Zn	3.4	2.6	0.27	N.D.	N.D.
Al	57	86	14	N.D.	3.5
Ca	81	64	140	0.31	0.90
Mg	26	11	3.1	0.5	0.55
Na	62	10	0.65	0.95	0.25
K	71	7.6	1.9	0.081	0.6

(単位 : mg/g)

実験条件とした。そして、試料の散布は図1の①から設定水量負荷（年間の降雨量）の一週間分を週2回に等分し、散布した。注入した試料は図1の②より浸出水として全量取り出して分析を行った。

なお図1の②のフラスコには空気がはいらないように、図1の③の窒素ガスバッグを付着させた。発生するガスは図1の④のバッグに捕集し、ガス量の測定と分析を行った。そして、図1の⑤は実験カラムの内部温度を測定するために温度計を付着させた。

2-3. 分析項目及び方法

浸出水の分析はpH、電気伝導度、ORP、 K_+ -N、 NH_4^+ -N、 C_1^- 、 Ca^{+2} は下水道試験法により、COD（クロム法）はStandard Methods、TOC、TC及びICはTOC-500自動分析器、糖分はアンソロン硫酸法、有機酸及び硫酸塩は細管式等速電気泳動分析装置、重金属は高周波プラズマの分析装置（ICP）を利用して、全項目を10日に1回分析した。また、実験カラムの重量を1ヶ月に1回、カラム内の温度は毎日測定した。浸出水の分析時のろ過は、重金属はNO.5Cのろ紙で、有機酸、硫酸塩、糖及び総有機炭素（TOC）は0.45μmメンブレンフィルターで行った。

3. 実験結果と考察

実験に使用した汚泥は嫌気性消化されてない一般下水汚泥であったため微生物による人工試料の分解がかなり遅くなり、実験開始後約170日目から少量のガスが発生している。従って、現在までの実験結果の範囲内で有機物の変化、発生したガスの傾向について検討した。

【pH】図2の浸出水pH変化は、充填した試料中の汚泥の影響を受けて汚泥の有機物の嫌気性分解により生成した有機酸の変化によってR1-R5の方がR6

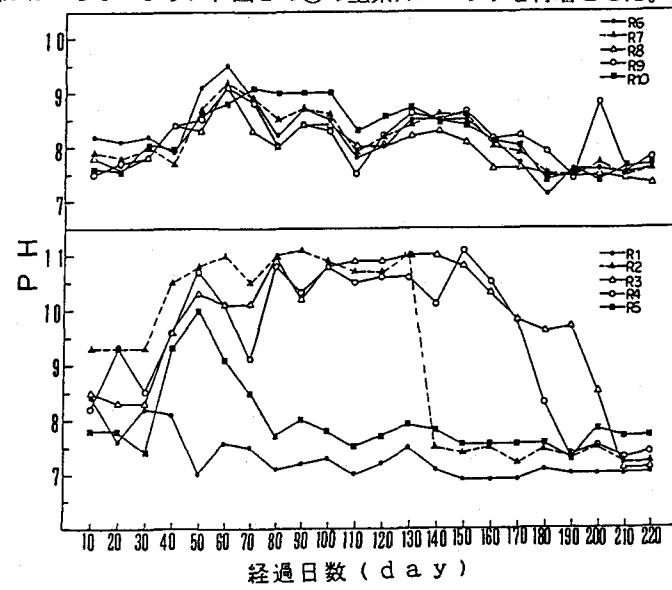


図2 浸出水のpH変化

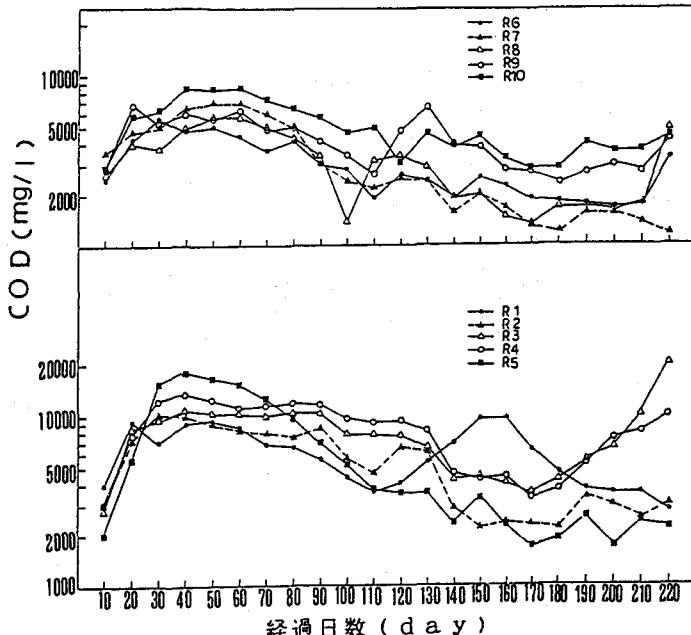


図3 浸出水のCOD濃度変化

-R10よりその変動が激しくなった。R2-R5は、実験約50日目にpH10-11程度を示したがR5はR1とともに約80日目以降は中性であった。しかし、R2,3,4も約150-160日目を前後にしてほぼ中性になった。一方、R6-R10の場合も約約60日目でpH9-10程度を示したがいずれも180日目からは中性になった。

【COD】図3に示したようにCODの変化はまず、R1-R5をみると約40日目に最大の濃度になった後徐々に減少した。その後、R3, R4は170日目以降、再び急激に増加した。また、R1の場合は約140日目に最大濃度を示した後、R2, R5とともに減少している。一方、R6-R10の場合には、いずれも最大のピーク以降減少する傾向であったが、実験190日目付近からR6,8,9,10が増加している。

【 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 】図4に $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ を示した。浸出水の $\text{K}_\text{j}-\text{N}$ 濃度の変化が激しくなったが $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 濃度の変化幅はあまり大きくなかった。約170日目までの $\text{K}_\text{j}-\text{N}$ と $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ をみるとR1-R5の場合、 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ が $\text{K}_\text{j}-\text{N}$ の約20-50%、R6-R10の場合には30-50%であったが、180日目から220日目までは、R1-R5とR6-R10それぞれ50-65%、60-70%に大きくなかった。

【ガス成分及び発生量】発生したガス成分を図5に示した。ガスは170日目付近から発生し始めたが、その量は微量であり、しかもその成分はほぼ試料充填時の空気と同様の組成であった。しかし、約200日目からは、R1,3,6及びR8で週に200-300ml程度発生した。R1は200日目で2%のメタンガスが発生し、その後次第に増加し、228日目では9%となったが、 CO_2 はほぼ1%以下であった。R6の場合も242日目17%程度のメタンガスが発生したが、 CO_2 はほぼ0.5%以下であった。一方、R3, R8については、約221日目の CO_2 濃度が、それぞれ16%、4-5%と徐々に増加している。しかし、R3, R8ともにメタンガスの発生は実験249日目まで観察されなかった。

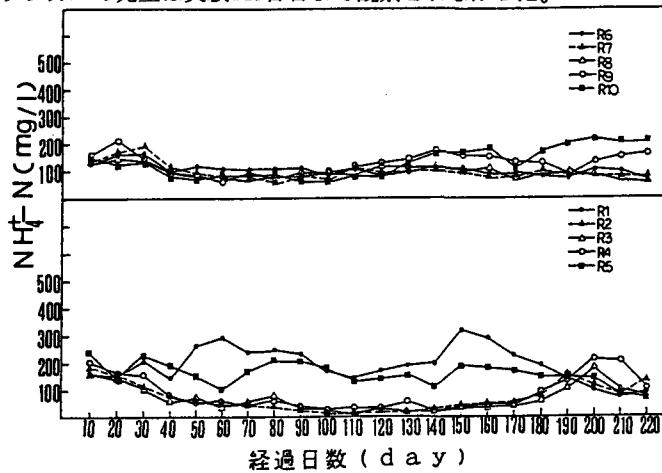


図4 浸出水の $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 濃度変化

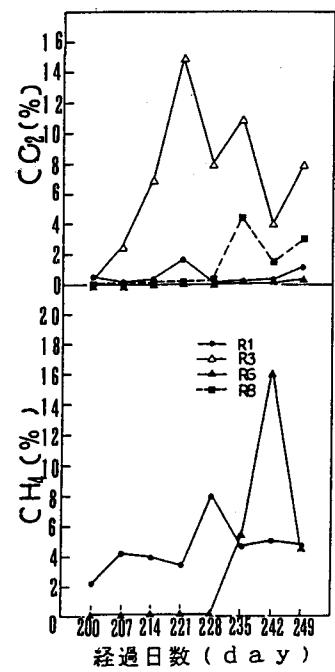


図5 ガス中の CH_4 及び CO_2 濃度

4. 結論

実験開始約250日目までの浸出水及びガス成分分析の結果、下記のことが観察された。

- 1) 実験初期の浸出水のpHは強アルカリから弱アルカリを示したが、約170日目付近を境に中性を示した。
- 2) CODはR3とR4が汚泥+新聞紙による2回目の最大濃度を示し、いままでの傾向としてはR3とR4の方が硫酸塩還元反応によって早く安定化状態になると予想される。
- 3) ガスの成分と発生量についてはpHが中性になった時点からガスが発生し始めた。しかし、硫酸塩還元反応が起きたR3、R8ではメタンガスは観察されなかった。

謝辞) 本研究での重金属分析にご協力頂いた国立公衆衛生院の田中 勝、大迫政浩先生に感謝します。