

固体系廃棄物の有効利用に伴う地盤環境影響要因の溶出の評価

嘉門雅史・勝見 武・乾 徹*・Milagro CASTRO-CUBA

*京都大学大学院工学研究科

要 旨

有害物質を含んだ固体系廃棄物を地盤工学的に有効利用する際には、地盤環境に対する適切な影響評価を行う必要がある。本研究では有効利用を目的とした処理を行った廃棄物に対して複数の溶出試験を実施し、地盤環境影響要因としての溶出特性、セメント固化による重金属の固定化効果、溶出操作の相違が溶出特性に与える影響について検討し、適切な溶出操作について議論を行った。

キーワード：固体系廃棄物、地盤環境影響、溶出試験、重金属、固化処理

1. はじめに

近年、各種焼却灰をはじめとする固体系廃棄物の処理・処分問題の解決が重要な課題となっている。これらの廃棄物は最終的には地盤中に受け入れざるを得ないが、処分場の残余年数が10年以下の低いレベルで推移していることから、廃棄物の適切な処分、もしくは地盤材料としての有効利用が実施、検討されている。しかし、廃棄物の地盤工学的処理と有効利用にあたっては、廃棄物が有する環境影響ポテンシャルを把握し、周辺地盤環境の汚染に対して配慮することが不可欠となっている。

従来から、廃棄物の有効利用・処分に先だって有害物質の溶出特性を把握するために溶出試験が行われている。しかし、例えば長谷川(1995)は溶出試験結果と比較して現場で測定される浸出水中の汚染物質濃度が大幅に異なることを報告している。この主な原因としては以下の3点が挙げられる(嘉門, 1997)。1) 溶出試験の試験条件と現実の材料の使用条件が大きく異なっている。2) 重金属の溶出量は浸出水のpHに大きな影響を受けるが、現場と溶出試験時のpHの値が異なっている。3) 周辺地盤の緩衝能や水文学的情報を考慮した汚染物質の移動機

構が評価されていない。

廃棄物からの環境影響要因の溶出は、Fig. 1に示すように降雨等によって侵入した間隙水が廃棄物と接触し、その有害物質を含んだ浸出水が地下水中に流入することによって生じる。有害物質の地盤中への移動は、移流(水が廃棄物層を流れることにより

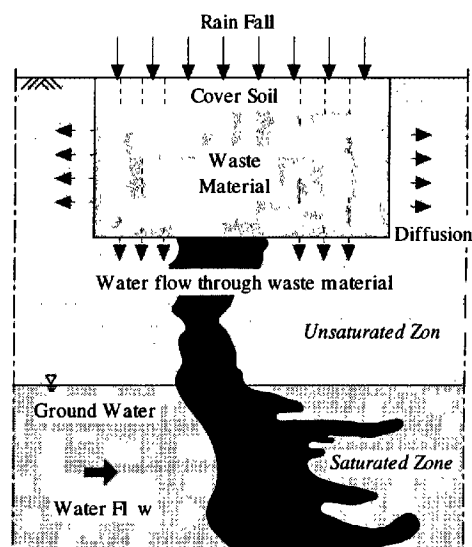


Fig. 1 Geo-environmental contamination due to the waste

有害物質が輸送される), 拡散 (水の流れがなくても濃度勾配によって有害物質が地盤中に移動する), 吸着 (土による有害物質の吸着により有害物質の移動に遅れが生じる) によって支配される。このうち, 拡散については本研究で対象とした比較的透水性の高い廃棄物材料においては無視できるほど小さいものであるが, 移流による有害物質の輸送, 土による有害物質の吸着能を考慮した環境影響評価を行う必要がある。

本研究では, 比較的有害性の高い廃棄物である下水汚泥焼却灰, 一般廃棄物焼却灰を有効利用した際の環境影響評価を行うことを目的して, これらの廃棄物に対して複数の溶出試験を実施し, 地盤環境影響要因としての溶出特性, セメント固化による重金属の固定化効果, 溶出操作の相違が溶出挙動に与える影響について実験的に検討し, 適切な溶出操作について議論を行った。

2. 各種溶出試験の概要

本研究では, **Table 1** に示す 4 種の溶出試験を実施した。溶出試験はバッチ式とモノリス式に大別される。前者は粉末状にした廃棄物と溶媒を攪拌・混合し, 有害物質の抽出を行うものであり, 操作が容易で再現性も高いが, 実際の現場での使用条件との関連づけが困難であるとされている。後者は, 締固め・固化などを行った成形体の試料に溶媒を接触させ, 有害物質の溶出を促す試験であり, 実際の溶出挙動に近いとされている。各試験方法の詳細を **2.1** ~ **2.4** に示す。

2.1 環境庁告示第 46 号試験

現在の日本において, 廃棄物の有害性に対して基準を設けるために環境庁が提示する公定試験方法であり, 廃棄物がその 10 倍量の水と接触したときの

有害物質溶出量を求めるための試験である。

2.2 pH 依存性試験

廃棄物からの重金属の溶出挙動は浸出水の pH に大きく依存することが知られている (Yong ら, 1994)。そのため, 廃棄物が pH の異なる様々な溶媒に接触した場合の有害物質溶出量を把握するため, pH 依存性試験を実施した。

pH 依存性試験は公定試験法ではないため様々な試験方法が模索されている (酒井ら, 1995)。適用する pH の範囲については, 実環境中で接触する溶媒は降雨など酸性のものが多くことから, 酸性側にのみ調整するもの, すべての pH 条件での溶出量を把握するとの考え方から, アルカリ側にも調整する方法がある。本研究では, 飛灰等を中心とした埋立地では, アルカリ性の浸出水に接触する機会が高いこと, またセメント固化を施すことによる高アルカリ分の溶出を考慮して, アルカリ側にも pH を調整した。この試験では, 有害金属の溶出濃度は溶解度に支配されることを前提としており, その影響が顕著に現れるように液固比を 5 と小さく設定している。

2.3 アベイラビリティ試験

アベイラビリティ試験はオランダの公定法の一つで, 廃棄物からの有害物質最大溶出可能量を求めるための試験である。試料粒径については, 125 μ m と他の試験法に比較して小さい値が設定されている。試料粒径を小さくすることは試料内からの金属類の溶出を促進する効果がある。一方, 液固比は L/S = 100 という非常に大きな設定になっている。これは, 廃棄物乾燥質量の 100 倍体積という大量の水が接触する時間, すなわち実条件では数十年から, 数百年経過後における溶出量を予測することになる。pH については, 埋立後の接触溶媒として酸性雨等を考慮した場合その最低値は pH = 4 であるとし, 長期

Table 1 Applied leaching test in laboratory experiment

Test	Environment agency notification No.46	pH-dependent test	Availability test (NEN7341)	Column method
Testing type	Batch	Batch	Batch	Monolith
Leaching vessel	1L polyethylene bottle	1L polyethylene bottle	1L glass beaker	$\phi 5.1 \times 10$ cm column
Sample particle size	< 2mm	< 2mm	< 125 μ m	< 2mm
Sample mass	50g	30g	16g	—
Solvent	Distilled water adjusted to pH 5.8-6.3 by HCl	Distilled water adjusted to various pH value by HCl or NaOH	Distilled water and HNO ₃ (at the 1st extraction pH 7, at the 2nd extraction pH 4)	Distilled (adjusting to pH 4 by HNO ₃)
Liquid to solid ratio	10:1	5:1	100:1 (50 $\times$ 2)	Cumulative
Leaching method	Horizontal shaking (200times/min, amplitude: 4-5cm)		Stirring	—
Leaching time	6 hours	6 hours	3 hours $\times$ 2	Periodically
Filtration	After 20 min-centrifugal separation at 3,000rpm, suction filtration with 0.45 μ m MF		Suction filtration with 0.45 μ m MF	Suction filtration with 0.45 μ m MF

的にアルカリ成分が流出した後の溶出ポテンシャルを把握する視点から、pH を 4 に固定する方法を採用している。ただしアルカリ性側において高濃度で溶出する酸素酸の陰イオンを形成する元素 (As, Se 等) を過小評価することのないよう、pH を 7 に固定して 3 時間抽出した後、pH を 4 に固定して 3 時間抽出し、両者を混合して検液とする 2 段階のバッチ試験となっている。

2.4 カラム溶出試験

カラム式溶出試験は、成形体の試料に対して透水試験とはほぼ同様の方法で水を通過させるため、現場での廃棄物と水の接触条件を再現することが可能である。実験は以下の方法で行った。

直径 5.1cm、高さ 10cm の塩化ビニール製円筒形モールド内に未処理または処理を行った廃棄物を、セメント協会法に準じた 4 層突固めにより充填した。恒温状態で所定期間養生後、溶出試験を開始した。試験装置は Fig. 2 に示すように、モールド両端に塩化ビニール管エンドキャップをはめ、そこに蒸留水 (HNO_3 で pH を 4 に維持) を貯めたタンクからビニールチューブを接続して、所定の水頭差を与えて上方流で水を供給する手法を用いた。

3. 実験方法

3.1 固体系廃棄物

室内試験には一般廃棄物焼却灰 2 種、下水污泥焼却灰 1 種の計 3 種の固体系廃棄物を使用した。各廃棄物の諸特性を Table 2 に示す。

下水污泥焼却灰 (以下 SS 灰) については、1998

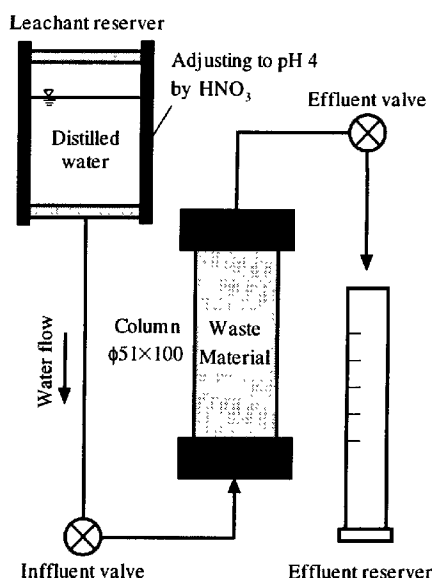


Fig. 2 Apparatus for column leaching test

Table 2 Properties of the waste used in this study

	MSW-1	MSW-2	SS
Particle density (g/cm^3)	2.236	2.210	3.005
Optimum water content (%)	—	—	58.3
Maximum dry density (g/cm^3)	—	—	0.93
Gravel fraction (%)	0.4	1.2	0.0
Sand fraction (%)	81.3	90.0	43.3
Silt fraction (%)	18.0	8.6	54.4
Clay fraction (%)	0.2	0.2	2.2
Main components	NaCl, KCl CaSO ₄ SiO ₂		SiO ₂ CaO Al ₂ O ₃
Heavy metal component	Cd, Pb, Cu, Zn, As etc.	Pb, Cr, Cd etc	Cr, Pb, Zn etc.
Total content of heavy metal (mg/kg-ash)	Pb: 7600 Cd: 280	Pb: 9800 Cd: 270	Cr: 92
pH	7.22	6.14	9.64
Ignition loss (%)	5.96	11.3	9.33
Sampling site	Kyoto city, Tobu Clean Center		Otsu, Shiga
Sampling date	May, 98	July, 98	June, 98

年 6 月に滋賀県琵琶湖環境部で回収、焼却処理されてできたもので、この焼却灰は下水処理過程において凝集剤として消石灰が添加された石灰系下水汚泥焼却灰である。

一般廃棄物焼却灰 (以下 MSW 灰) は、京都市伏見区の京都市東部クリーンセンターにおいて採取された 2 種の電気集塵飛灰 (EP 灰) を使用した。

3.2 固化材

本研究では廃棄物を実際に有効利用した状態での環境影響評価を行うため、一般廃棄物焼却灰に固化処理を施し、環境影響評価を行っている。ここでは、MSW 灰の強度発現や重金属の固定化に効果が高いとされる、嘉門ら (1994) が示した焼却飛灰を産業副産物である流動床石炭灰とセメントによって安定処理を行う手法を適用した。実験で使用した流動床灰の物性を Table 3 に示す。セメントについては大日本セメント社製のポルトランドセメントを用いた。

3.3 廃棄物の処理

MSW 灰は自然含水比が 1%以下と非常に低いことから、 $w=30\%$ の一定含水比で加水締固めを行ったもの、流動床石炭灰とセメントの複合利用による

Table 3 Properties of coal ash

Particle density (g/cm^3)	2.467
Gravel fraction (%)	0.0
Sand fraction (%)	12.1
Silt fraction (%)	82.7
Clay fraction (%)	5.2
Ignition loss (%)	20.6
Main composition	SiO ₂ Al ₂ O ₃ CaO
Sampling site	Kobe steel LTD

Table 4 Physical properties of the stabilized waste used in this study

Ash	MSW-1		MSW-2		SS			
Treatment	No treatment (w=30%)	Stabilized (w=26%)	No treatment (w=30%)	Stabilized (w=26%)	Compacted (w=57%)		Compacted (w=65%)	
Aging (days)	—	28	—	28	7	28	7	28
Unconfined compressive strength (MPa)	—	0.54	—	0.47	2.12	2.27	0.89	0.95
Wet density (g/cm ³)	1.52	1.34	1.46	1.18	1.41	1.41	1.49	1.49
Dry density (g/cm ³)	1.17	1.06	1.12	0.96	0.96	0.96	0.96	0.96
Water content (%)	30.0	26.4	30.0	23.0	46.7	45.9	55.3	54.9
Hydraulic conductivity (cm/s)	10 ⁻⁵ ~10 ⁻⁴	10 ⁻⁵ ~10 ⁻⁴	10 ⁻⁵ ~10 ⁻⁴	10 ⁻⁵ ~10 ⁻⁴	—	10 ⁻⁴	—	—

安定処理を施したものの2種類の処理状態で実験を行った。安定処理土の配合は乾燥質量比で MSW 灰:流動床灰:セメント=8:2:1 で混合し、含水比が 26% になるまで加水締固めを行ったものを試料とした。

SS 灰は CaO の含有量が多いため、吸水発熱反応やポズラン反応などにより高い自硬性を示すことから、加水締固めのみ行ったものを試料とした。

3.4 環境影響要因の測定

廃棄物に起因する地盤環境要因は、重金属、有機系有害物質、高アルカリ、塩分、カルシウム分など多岐にわたる。本研究では、Pb (鉛)、Cd (カドミウム)、Cr (クロム)、Zn (亜鉛)、Ca (カルシウム)、NaCl (塩分)、pH (高アルカリ分) を対象として溶出特性の検討を行った。なお、Pb, Cd, Cr, Zn, Ca については ICP 発光光度計 (株式会社島津製作所製, ICPS-4960 および ICPS-8000) を用いて測定を行った。

4. 廃棄物の有効利用に伴う環境影響要因の溶出に関する実験的検討とその評価

4.1 廃棄物および固化処理廃棄物の基本特性

本研究に使用した廃棄物および固化処理廃棄物の諸特性を Table 4 に示す。

下水汚泥焼却灰は、初期含水比をそれぞれ 57%, 65% に設定し、加水締固めを行い供試体を作製した。この初期含水比は、予め行った締固め試験から得られた最適含水比 58.3% 前後の含水比に設定している。w=57%, w=65% 双方の配合の試料とも、下水汚泥焼却灰中に大量に含まれている CaO に起因する吸水発熱反応によって、材令 7 日でそれぞれ 2 MPa, 0.9 MPa, 材令 28 日でそれぞれ 2 MPa, 1 MPa の一軸圧縮強さを示した。このことから、適当な含水比で加水締固めを行った下水汚泥焼却灰は、路盤材等としても利用可能な程度の高い強度を有する材料である判断できる。

一般廃棄物焼却灰の固化処理試料は、MSW-1, MSW-2 双方とも材令 28 日で、共に 0.5 MPa 前後の

一軸圧縮強さを示した。この強度は埋立地盤等の跡地利用など一般廃棄物の有効利用を想定した場合、有効利用には十分な強度であると判断できる。ただし、MSW-1 については含水比が養生前、養生後ともにほとんど変化しておらず、水和反応が十分に生じていない可能性もあるが、強度的には MSW-2 とほぼ同じ値を示している。これは、焼却灰中の塩分により固化処理効果が低下し水和反応自体は不十分であるが、その一方で MSW に含有されているカルシウム分、塩分が加水締固めを行うことによって固結し、比較的強度が高まったことが考えられる。しかし、MSW-2 に関しては焼却灰中に塩分が含まれているにも関わらず養生によって含水比が低下し、水和反応が生じていると判断できる。従って一般廃棄物に対する固化処理効果は、焼却灰中の塩分量だけではなく、焼却温度などによる焼却灰の組成過程の相違によって影響を受けることが予想される。

4.2 重金属溶出の pH 依存性

3 種類のバッチ式溶出試験 (環境庁告示第 46 号試験, pH 依存性試験, アベイラビリティ試験) から得られた各重金属の溶出量 (mg/kg-ash) と検液の pH の関係を MSW-2 について Fig. 3~6 に示す。

Pb は、およそ pH<6.0 と pH>12.0 の領域において非常に高い溶出量を示す両性金属である。また 6.0<pH<12.0 の領域では、pH の変化によって溶出量がオーダーレベルで変化し、pH10.0 前後で最小

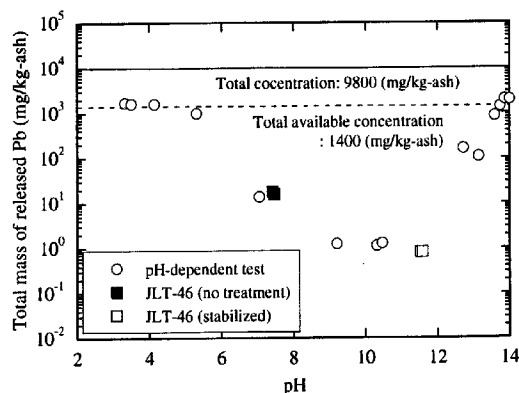


Fig. 3 Total mass of released Pb as a function of pH

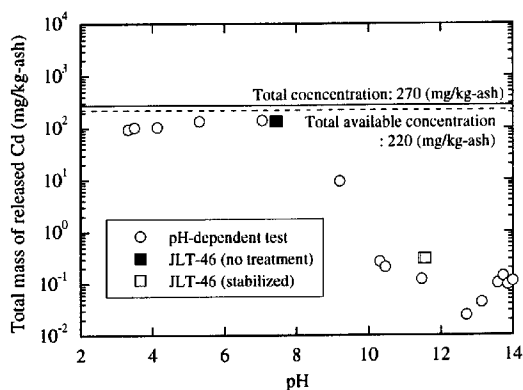


Fig. 4 Total mass of released Cd as a function of pH

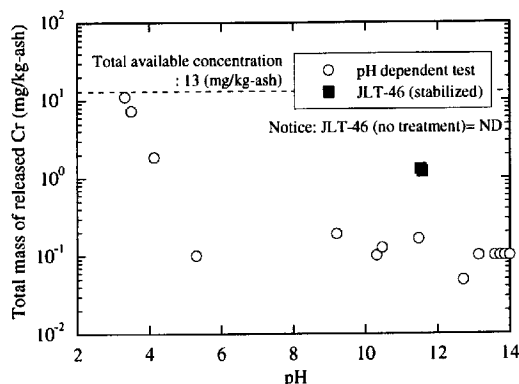


Fig. 5 Total mass of released Cr as a function of pH

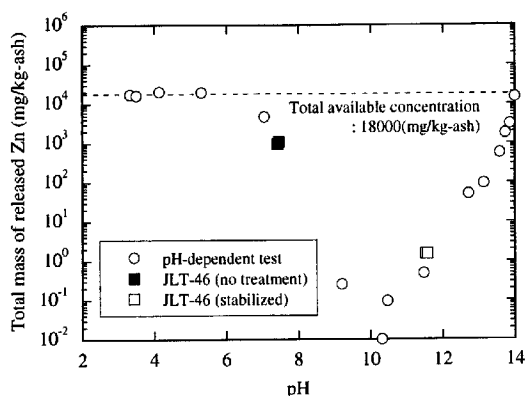


Fig. 6 Total mass of released Zn as a function of pH

の溶出量を示す。焼却灰中の総 Pb 含有量とアベイラビリティ試験によって得られた最大溶出量を比較すると、総含有量の約 12.5～15% しか溶出しない。これは焼却灰中の Pb の大半が珪酸塩や不溶性の鉱物中に取り込まれているためと考えられる。

Cd は pH<7.0～8.0 の酸性領域のみで高い溶出量を示す陽性金属である。pH>8.0 の領域では急激に溶出量が低下し、高アルカリ領域での溶出量は非常に小さい。総含有量と最大溶出量の比較を行うと、Pb とは異なり含有量の 80% 以上が溶出しうる。また、固化処理を施すことにより、アベイラビリティ試験下でも溶出量が抑えられた（次節 Table 5 参照）。

このことから、安定処理による Cd の固定化効果は単に pH の低下によるものだけではなく、セメント生成物等による封じ込め効果も寄与していると判断できる。

Cr は顕著な pH 依存性は確認できなかったが、pH<4.0～5.0 の酸性領域で溶出量が高くなった。

Zn は Pb とほぼ同じ挙動を示す両性金属である。ただし、溶出量が非常に高くなる領域が Pb とは若干異なり、pH<7.0, pH>13.0 の領域である。

以上のような各重金属溶出の pH 依存性は、過去に蓄積されているデータ（The International Ash Working Group, 1997）と比較しても同様の傾向を示しており、焼却灰の種類を問わず重金属溶出に関する pH 依存性はほぼ同じ傾向を示すと判断できる。

4.3 バッチ式溶出試験による廃棄物の溶出特性

各焼却灰に対する JLT-46、アベイラビリティ試験の結果を Table 5 に示す。

(1) 下水汚泥焼却灰

SS 灰については、無処理のもの（以下、材令 0 日）、および初期含水比 57%、65% でそれぞれ加水締固め後、28 日養生したもの、計 3 種類に対して溶出試験を実施した。環境庁告示 46 号法（以下、JLT-46）を行った結果、溶出液の pH は材令を問わず高い pH を示したが、材令 0 日の試料が pH=12.0 強の値を示したのに対し、28 日養生を行ったものは pH=11.0 前後の値にとどまった。このことから、材令の伸びによって処理土からのアルカリ溶出が抑制されると思われる。重金属の溶出に関しては、Pb については、材令 0 日のものが 0.15ppm の溶出量を示したのに対し、材令 28 日のものは Pb が検出されなかった。Zn についても同じ傾向が確認でき、材令 0 日のものが材令 28 日のものと比較して、2～3 倍の溶出量を示した。これは、Pb、Zn とともにアルカリ領域で溶出量が高くなる両性金属であるため、アルカリ度の高い材令 0 日の試料から多量に溶出したと考えられる。Cd については処理方法を問わず、0.01～0.02ppm の溶出量を示し、土壌環境基準レベルもしくは若干上回る溶出量を示した。Cr（全クロム）については、材令 28 日の試料が、材令 0 日の試料と比較して 10～15 倍の高い溶出量を示した。この理由としては、水との長期間の接触によって大量の Ca 分等の溶脱が進行することにより、焼却灰の粒子表面などの劣化が進行し、Cr の溶出を促したと考えられる。以上の溶出試験結果から、SS 灰の有効利用に際しては、有害重金属である Pb、Cr および高アルカリ分の溶出が問題になると判断できる。

Table 5 Results of batch-type leaching test

Sample			Japanese Leaching Test No.46						Availability test (NVN7341)				
Ash	Treatment		pH	E.C. (mS/cm)	Pb (mg/L)	Zn (mg/L)	Cr (mg/L)	Cd (mg/L)	Pb (mg/L)	Zn (mg/L)	Cr (mg/L)	Cd (mg/L)	Acid neutralizing capacity (mol/kg)
MSW-1	No treatment		10.78	32.0	0.23	0.02	0.02	0.02	950	28000	13	230	4.04
			10.73	32.1	0.22	0.01	0.02	0.01					
	Stabilized (w=26%)		12.33	25.6	0.48	0.12	0.15	0.02	1100	8400	13	130	5.64
			12.23	25.0	0.30	0.09	0.15	0.03					
MSW-2	No treatment		7.42	35.0	1.77	94.19	ND	13.50	1400	18000	12	220	3.58
			7.46	35.2	1.57	107.19	ND	13.49					
	Stabilized (w=26%)		11.53	30.2	0.08	0.15	0.13	0.03	2200	15000	13	140	5.82
			11.58	29.9	0.08	0.15	0.12	0.03					
SS	No treatment		12.31	3.00	0.15	0.25	0.01	0.02	26	230	12	26	10.0
			12.17	2.63	0.15	0.17	0.02	0.02					
	Compacted 28 day aging	w=57%	10.99	1.80	ND	0.08	0.10	0.02	—	—	—	—	—
		w=65%	11.37	1.67	ND	0.09	0.30	0.01	—	—	—	—	—
Pulverized coal fly ash			12.62	—	ND	<0.01	0.44	0.04	—	—	—	—	—
Cement			12.72	—	ND	ND	1.59	0.05	—	—	—	—	—

Notice) E.C.: Electric Conductivity, ND: Not detected

(2) MSW-1

一般廃棄物焼却灰については、無処理の試料、および固化処理を施した試料（材令 28 日）に対して溶出試験を行った。

JLT-46 試験において、無処理の試料が pH=10.7 程度の値であったのに対し、安定処理試料は pH=12.3 前後と高いアルカリ溶出を示した。重金属溶出量に着目すると、Pb, Zn については安定処理を施した試料が、より大きな溶出量を示した。これは、4.1 で示したように、水和反応が十分に生じておらず、反応生成物による重金属固定化効果が低いこと、およびセメント添加に伴う pH 上昇により、両性金属である Pb, Zn の溶出量が増加したと考えられる。Cd については、溶出量はほとんど変化しなかった。これは、無処理、安定処理の試料双方とも pH の値がアルカリ性を示していることから、陽性金属である Cd の溶出が抑えられたと考えられる。Cr については、安定処理により大幅に溶出量が増加した。この pH 領域においては、Cr 溶出量はほとんど pH 依存性を示さないことから、安定処理に使用した固化材（流動床石炭灰、セメント）に含有される Cr が溶出したと予想される。

(3) MSW-2

MSW-2 は、無処理の試料が pH=7.4 程度、安定処理試料が pH=11.5 程度の pH 値を示した。MSW-1 と比較すると、無処理の廃棄物が特に低い pH 値を示している。MSW-2 は MSW-1 と同じ廃棄物焼却場から採取されているが、採取時期が異なるため、大きく物性、化学組成が異なっていると判断できる。重金属溶出量に着目すると、Pb, Zn, Cd の 3 元素

については非常に大きな値を示した。しかし、安定処理を施すことにより、3 元素とも溶出量が大幅に抑制された。この理由としては、pH の上昇によって重金属が水酸化物の沈殿を生成して溶出量が抑制されたこと、セメント水和生成物中に封じ込められたことの 2 点が考えられるが、どちらの影響が卓越しているかは同定出来ない。また、Cr については MSW-1 と同様に固化材の影響により溶出量が大幅に増加した。

4.4 カラム試験による廃棄物の溶出特性

廃棄物は透水性が高い材料であるため、汚染物質の溶出の形態としては、地盤に侵入した水が廃棄物層中を通過することによるものが支配的である。そこで、カラム試験によって廃棄物中を通過する浸透水による汚染物質溶出特性を実験的に検討した。本研究ではカラム試験を、バッチ式試験と比較して廃棄物有効利用時の環境影響要因の溶出を実条件に近い形態で評価できる試験方法として位置づけている。

(1) 下水汚泥焼却灰

Fig. 7 に総流下量（累積液固比に換算）と浸出水の pH の関係を示す。通水開始直後に 12.0~12.5 程度の値を示し、その後流下量の増加と共に pH は漸減するが pH=11.0 を下回ることとはなく、高いアルカリ性を示した。これは、SS 中の CaO の水和反応による OH⁻に起因するものである。

総流下量と累積 Cr 溶出量の関係を Fig. 8 に示す。Cr は若干の初期流出があった後、その後の溶出は微量になる。しかし、総流下量 $L/S = 60$ 以降から、Breakthrough 的に溶出濃度が増加し、 $L/S = 130$

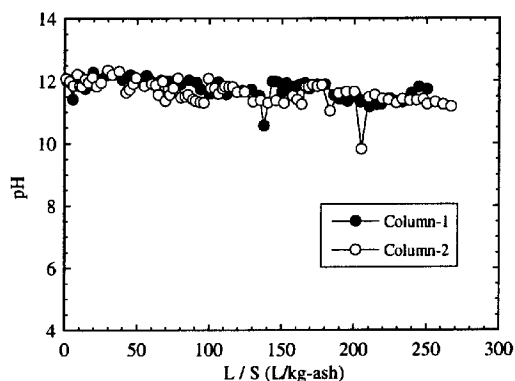


Fig. 7 pH of leachate with column test (SS)

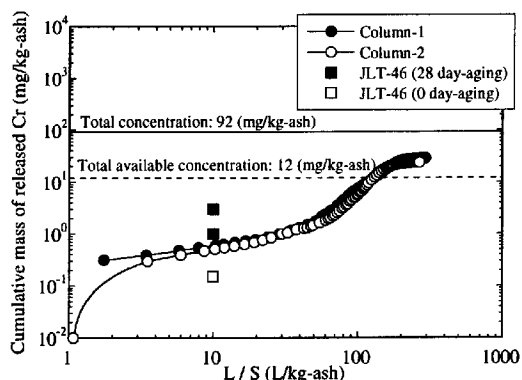


Fig. 8 Cumulative mass of released Cr with column test (SS-ash)

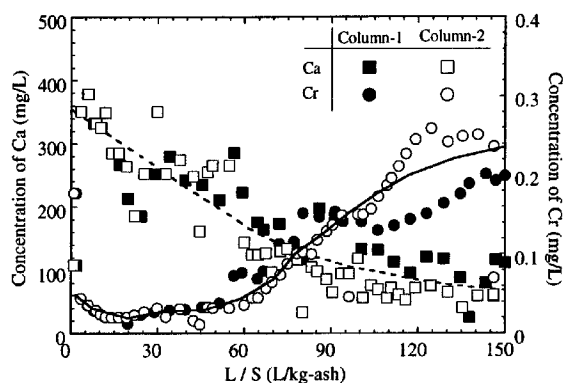


Fig. 9 Leached concentration of Ca and Cr (SS-ash)

～170 をピークに、その後収束する傾向を示す。Cr は pH 依存性をほとんど示さないことから、Cr の溶出が増加した理由として、以下の2点が考えられる。第一の理由としては 4.3 (1) で示した材料の劣化が挙げられる。Fig. 9 に Cr 溶出濃度と Ca 溶出濃度の関係を示す。Ca の溶出による材料の劣化が進行するにつれ、Cr の溶出が増加する傾向が確認できる。また、最終的な Cr 累積溶出量は Cr 含有総量の約 30～35% に相当する 24～28 (mg/kg-ash) が溶出しており、アベイラビリティ試験による最大溶出量 13 (mg/kg-ash) の 2 倍程度が溶出している。このことから、材料と水との接触時間が長いカラム試験の方が大きな溶出量を示すと判断でき、Cr の溶出に関

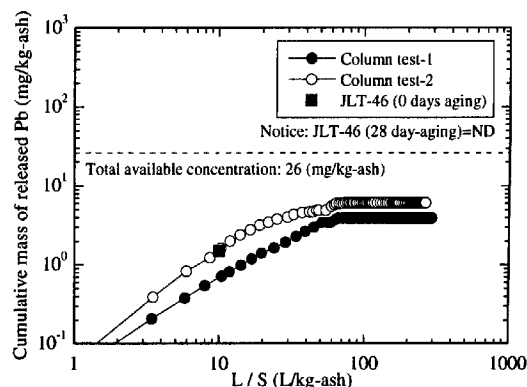


Fig. 10 Cumulative mass of released Pb with column test (SS-ash)

しては材料の劣化による影響が大きいと考えられる。また同時に、アベイラビリティ試験では水の接触時間に起因するような溶出挙動を再現できないとも判断できる。

総流量と累積 Pb 溶出量の関係を Fig. 10 に示す。全般に流下初期に高い溶出量を示し、最大 0.08mg/L の溶出濃度を示した。総流量 $L/S = 65$ 程度でほぼ溶出が終了し、最終的な流出量は 4.0 mg, 6.1 mg となった。しかし、この結果は、JLT-46 試験から得られた材料 28 日の試料からは Pb が溶出しないという結果と一致しない。理由としては、Pb 溶出の pH 依存性に深い関連があると思われる。JLT-46 試験での pH は 10.99, 11.37 と比較的低い値を示しているが、一方カラム試験の溶出水は pH=12 前後のアルカリ側の値を示したため、両性金属である Pb の溶出が促進されたと考えられる。

(2) MSW-1

Fig. 11 に総流量と浸出水の pH の関係を示す。安定処理試料は無処理の試料と比較すると、セメントの水和反応による OH⁻ による影響で通水開始直後から 12.0～12.5 程度の高いアルカリ分の溶出が確認できる。その後 pH は低下し、pH = 11 程度の値に収束する。

総流量と累積 Pb 溶出量の関係を Fig. 12 に示す。

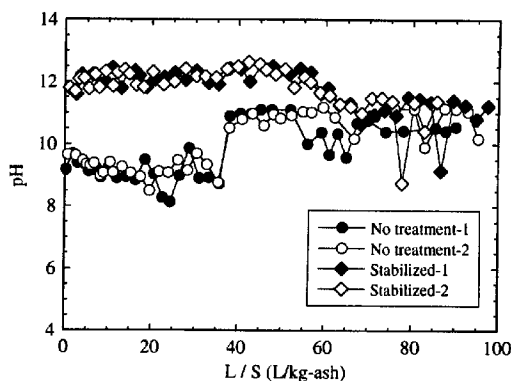


Fig. 11 pH of leachate with column test (MSW-1)

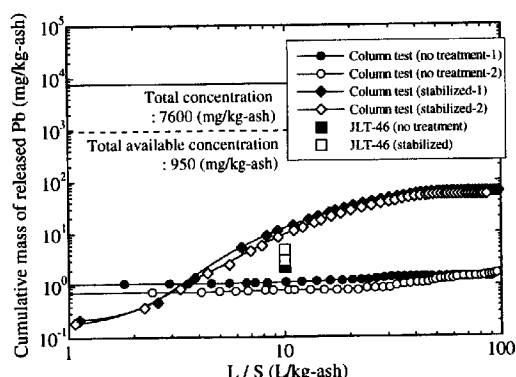


Fig. 12 Cumulative mass of released Pb with column test (MSW-1)

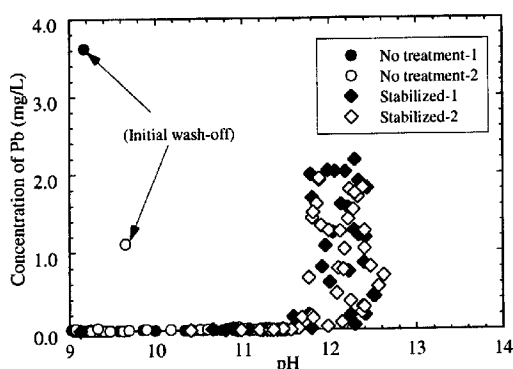


Fig. 13 Leached concentration of Pb versus pH

無処理の試料については流下初期に高濃度の溶出が生じた後、微量 (0.00~0.02ppm) の Pb が溶出するにとどまった。一方、安定処理を行った試料については、初期流出は抑えられたが、その後の溶出量が大幅に増加し、 $L/S = 100$ の流下量では無処理の廃棄物と比較して 40 倍以上の累積溶出量を示した。この理由としては、Pb 溶出の pH 依存性によるところが大きいと思われる。先程述べたように、安定処理効果がほとんど発揮されていないにもかかわらず、セメント添加によって溶出液の pH が 12 以上になったため、両性金属である Pb の溶出が促進されたと考えられる (Fig. 13 参照)。

総流下量と累積 Cd 溶出量の関係を Fig. 14 に示す。無処理の廃棄物からは Pb と同様に流下初期に非常に高い溶出量を示し、JLT-46 によって得られた溶出量の 30 倍程度の Cd が溶出した。このようにカラム試験における溶出量がバッチ試験による溶出量と大きく異なったのは、Cd 溶出の pH 依存性によるものである。JLT-46 で得られた溶出液は pH = 10.8 程度であったのに対し、カラム試験における累積液固比 10 までは採取された溶出液は pH = 9 程度を示す (Fig. 11 参照)。Fig. 4 に示した MSW-1 からの Cd 溶出に関する pH 依存性を確認すると pH = 9 における溶出量に対し、pH = 10.8 ではワンオーダー

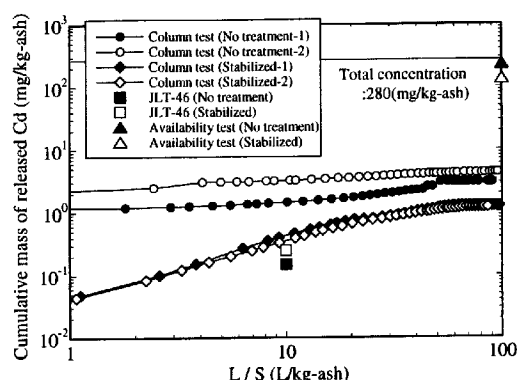


Fig. 14 Cumulative mass of released Cd with column test (MSW-1)

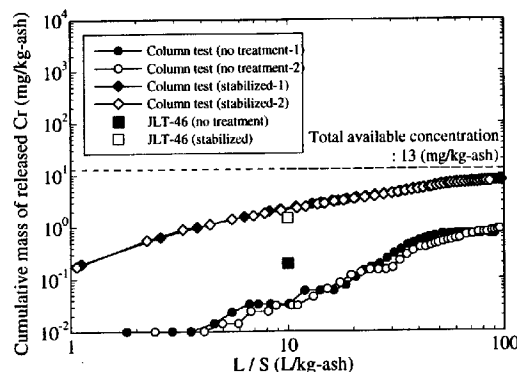


Fig. 15 Cumulative mass of released Cr with column test (MSW-1)

程度小さい値を示す。このことから、JLT-46 では pH による影響によって Cd の溶出が制限され、溶出量が危険側に評価されたといえる。

一方、固化処理を施した場合の Cd 溶出量は初期流出を含め、大幅に抑制されていることがわかる。これは、セメント添加による pH 上昇により Cd が水酸化物の沈殿を生じたことによって、溶出が抑制されたと考えられる。

総流下量と累積 Cr 溶出量の関係を Fig. 15 に示す。固化処理廃棄物からは、バッチ試験と同様に固化処理に用いた流動床石炭灰、セメントに起因する Cr の溶出が確認される。一方、無処理の廃棄物については、微量の溶出が検出されるにとどまった。

(3) MSW-2

ここでは、MSW-1 と異なる溶出特性が得られた点を中心に実験結果の検討、考察を行う。

Fig. 16 に総流下量と浸出水の pH の関係を示す。安定処理試料は通水開始直後に pH = 10.0~11.5 程度の値を示し、その後約 $L/S = 20$ で pH = 12 程度の最大値を示した後は、徐々に pH は低下した。一方、無処理の試料については、通水開始直後 pH = 8~9 前後の値を示す。その後、 $L/S = 25$ 前後で、急激に pH が 10.5 付近まで上昇する。これは MSW-

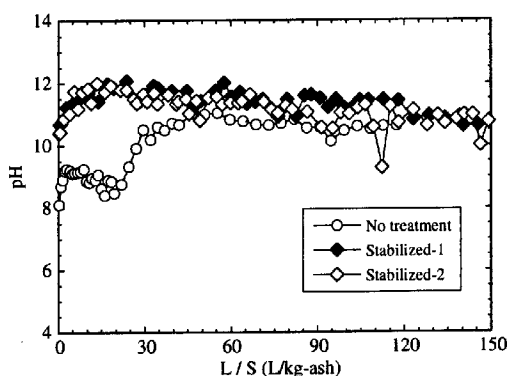


Fig. 16 pH of leachate with column test (MSW-2)

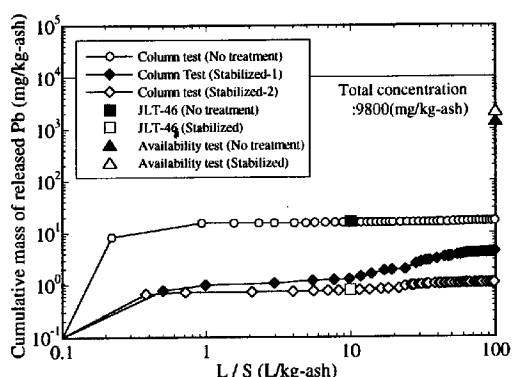


Fig. 17 Cumulative mass of released Pb with column test (MSW-2)

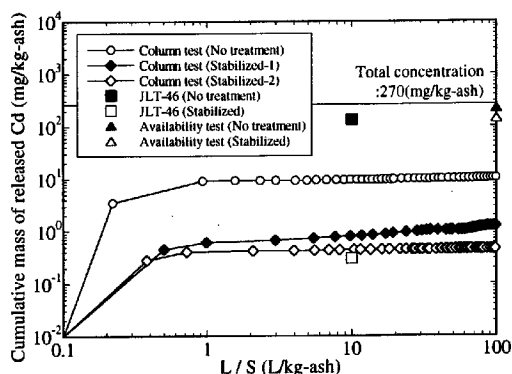


Fig. 18 Cumulative mass of released Cd with column test (MSW-2)

1 と同様の傾向である。双方の試料とも全般に MSW-1 と比較すると低い pH を示した。

総流下量と累積 Pb 溶出量の関係を Fig. 17 に示す。無処理の試料については流下初期に高濃度の溶出が生じた後、微量 (0.00~0.02ppm) の Pb が溶出するという MSW-1 と同じ傾向が確認できる。一方、固化処理を行った試料については、初期流出は抑えられる傾向は MSW-1 と同じであるが、その後の溶出量についても大幅に抑制され、 $L/S = 100$ の流下量では無処理の廃棄物と比較して 10%~20% の累積溶出量に減少した。これは、MSW-2 の溶出液の pH が流下初期で $pH = 11$ 程度と MSW-1 に比べて低いため、Pb の pH 依存性によって溶出が抑制された

と考えられる。

総流下量と累積 Cd 溶出量の関係を Fig. 18 に示す。MSW-1 と同様に固化処理を行うことによって、Cd 溶出量が大幅に抑制されている。しかし、MSW-1 の場合とは異なり、無処理の廃棄物に対する JLT-46 での溶出量がカラム試験の溶出量を大幅に上回っている。しかしこれについても Cd 溶出の pH 依存性によって説明することができる。つまり、JLT-46 による溶出液は $pH = 7.4$ 程度であったのに対し、カラム試験における累積液固比 10 までに採取された溶出液は $pH = 8 \sim 9$ 程度を示す (Fig. 16)。Fig. 4 に示された Cd 溶出に関する pH 依存性を確認すると $pH = 7.4$ と $pH = 8 \sim 9$ では溶出量が 1 オーダー以上異なるため、JLT-46 試験での溶出量が大幅に増加したと考えられる。

5. 溶出試験方法の評価

本研究では廃棄物の地盤工学的利用時の環境影響評価を行うことを目的として、複数の溶出試験を実施し、特にカラム式溶出試験の適用性について詳細に検討を行った。ここでは、実験結果に基づいて各試験方法の問題点、位置付け、適切な溶出操作について議論を行う。

5.1 カラム式溶出試験の適用性

カラム式試験の利点としては以下の 2 点が考えられる。第一に、ある一定の液固比に対する溶出量しか得られないバッチ式試験に対し、有害物質の溶出についての時間的変化に関する情報が得られる点である。第二に、バッチ式試験と比較して現場における溶出挙動に比較的近い試験であるため、浸出水の pH という有害物質の溶出に大きな影響を与えるパラメータが現場における値に近くなるという点である。前者については、下水汚泥焼却灰における Cr 溶出において、水との接触時間が長いカラム式試験ではアベイラビリティ試験による最大溶出量を超える量の溶出が確認できたこと、また、一般廃棄物焼却灰からの有害物質の溶出は初期流出が非常に大きいことなどの有害物質溶出に関する時間的挙動がカラム試験によって明らかになった。後者についても、4.4 で示した MSW からの Cd 溶出量が、pH の影響によってバッチ式試験による溶出量と大きく異なった点からも、カラム試験の有用性が示された。

しかし一方で、特に一般廃棄物焼却灰のサンプルにおいては、重金属溶出量に関する実験結果にばらつきが見られ、再現性の面で問題が生じた。これは、廃棄物の組成のばらつきとも考えられるが、カラム

長さが 10cm と非常に短かったなど、試験方法の問題も寄与したと思われる。さらに、試験に非常に長期間を要することも大きな問題点として挙げられる。

5.2 現行の溶出試験の位置付けと問題点

JLT-46 は簡便で再現性も高い溶出試験であり、一般廃棄物の安定処理に伴う Pb 溶出への影響、下水汚泥焼却灰からの水との接触による Cr の溶出挙動などについてはカラム試験によって得られた結果と一致した傾向を示した。しかし、Cd の溶出については、検液の pH がカラム試験による大きく異なり、溶出量を的確に把握できなかった。そのため、例えば現場条件下で何らかの理由で pH が変化する場合、JLT-46 では溶出挙動を十分に推測できないという問題点が挙げられる。

一方、アベイラビリティ試験を用いることにより、カラム試験で得られた有害物質の溶出量を大幅に上回る溶出量を得ることができる。これは、アベイラビリティ試験の意義を考えると妥当であるが、その一方で、先述した通り下水汚泥焼却灰からの Cr 溶出のように水との接触時間に起因するような溶出特性は十分に再現できなかった。また、アベイラビリティ試験は試料を非常に細かく粉碎した状態 (<125 μ m) で試験を行っているにも関わらず pH 依存性試験における pH < 4.0 以下の酸性領域での溶出量とほぼ同じ値である。これらのことから、アベイラビリティ試験における重金属の溶出は pH による影響が卓越したものであり、水との接触、試料の粉碎の程度などはほとんど寄与しないと判断できる。

5.3 適切な溶出操作の考え方

以上の検討結果より、適切な溶出操作に関して以下のように考えることができる。

カラム式試験は初期溶出の把握、廃棄物からの浸出水の pH の推定に有用な試験であると考えられる。特に、有害物質の溶出量に大きな影響を及ぼす浸出水の pH を把握することは重要である。浸出水の pH が予測できると、その pH における最大の溶出量を pH 依存性試験結果から推定することにより、およそその環境影響を予測することができる。また、焼却灰からの Pb、Cd 等の溶出は流下初期におけるものが大半であることから、初期溶出挙動を適切に評価することが非常に重要である。

バッチ式試験に関しては、pH の管理を適切に行えば廃棄物からの溶出挙動を概ね評価すること可能であり、有用な試験であると判断できる。時間的な評価が行うことが難しいという問題に関しても、初

期流出を把握するために液固比を非常に小さい値で溶出試験を実施する、また長期的挙動を確認するために複数回のバッチ試験を繰り返すといった操作を行うことにより、時間的な溶出傾向をある程度把握できると思われる。しかし、現場で示しうる浸出水の pH 値をカラム式試験等を用いて適切に推測し、特に pH 依存性が顕著である重金属の溶出に関しては、危険側の評価にならないよう留意しなければならない。

6. 結論

本研究では、比較的危害性の高い廃棄物を地盤工学的に有効利用した際の地盤環境への影響評価を行うことを目的として、締固め、セメント固化といった有効利用のための処理を行った廃棄物を対象に、有害物質の溶出特性、固化処理による廃棄物からの有害物質溶出の抑制効果について実験的に検討した。得られた結論を以下に要約する。

- 1) 下水汚泥焼却灰の有効利用に際しては Pb、Cr、高アルカリの流出に留意する必要があることが明らかになった。特に Cr に関しては流下水量の増加とともに、アベイラビリティ試験による最大溶出量を超える量の溶出が確認された。
- 2) 一般廃棄物焼却灰については、安定処理による重金属封じ込め効果を中心に検討を行った。2 種の焼却灰を用いて、同じ配合による固化処理廃棄物を作製して試験を行ったが、化学組成による影響によりその安定処理効果にばらつきが見られた。
- 3) 安定処理効果が十分に発揮された試料については、Pb、Cd の溶出を大幅に抑制することができた。しかし、セメント固化に伴う浸出水の pH 上昇により、Pb の溶出量が大幅に増加するケースも確認された。
- 4) 固化処理に起因する有害物質の溶出、すなわち流動床灰からの Cr 溶出、セメント処理によるアルカリ溶出が認められた。
- 5) 一般廃棄物焼却灰からの溶出水の pH は 8~12 程度のアルカリ性を示す。この pH 領域で pH 依存性が顕著である Cd の溶出量については試験方法によって大きく異なる結果となった。
- 6) 廃棄物の地盤工学的利用時の環境影響評価試験として、カラム試験の適用性について詳細に検討を行った。また、従来の方法であるバッチ試験による評価結果と比較し、各試験方法の問題点、溶出試験の考え方について議論を行った。

謝 辞

本研究の遂行にあたり文部省科学研究費基盤研究(A)の援助をいただいた。記して謝意を表する次第である。また、研究の遂行にご協力をいただいた京都大学防災研究所 三村 衛助教授、同 清水博樹技官、ならびに試料を提供していただいた京都市環境局環境企画部、滋賀県琵琶湖環境部下水道課の諸氏に深謝します。

参考文献

- 嘉門雅史 (1997) : 発生土および廃棄物の地盤工学の処理と有効利用・9. 講座を終えるにあたって, 土と基礎, Vol.45, No.11, pp.43-48.
- 嘉門雅史・勝見 武・佐野陽一 (1994) : 一般廃棄物焼却灰の固化処理, 第 1 回環境地盤工学シンポジウム発表論文集, pp.231-238.
- 環境庁水質保全局 海洋汚染・廃棄物対策室監修 (1996) : 産業廃棄物分析マニュアル, 丸善出版.
- 酒井伸一・水谷 聡・高月 紘 (1996) : 溶出試験の基本的考え方, 廃棄物学会論文誌, Vol.7, No.5, pp.383-393.
- 酒井伸一・水谷 聡・高月 紘・岸田拓郎 (1995) : 廃棄物の溶出試験に関する研究—アベイラビリティ試験と pH 依存性試験—, 廃棄物学会論文誌, Vol.6, No.6, pp.225-234.
- 社団法人 地盤工学会 産業廃棄物の処理と有効利用に関する研究委員会 (1996) : 地盤工学分野における廃棄物の処理と有効利用に関する調査報告書, pp.5-11.
- 長谷川信夫 (1995) : 都市ごみ焼却飛灰中の鉛と埋立処分地での浸出特性に関する研究, 廃棄物学会論文誌, Vol.6, No.4, pp.149-156.
- The International Ash Working Group (1997) : Municipal Solid Waste Incinerator Residues, - Chapter 13, Elsevier, pp.507-578.
- Kamon, M. (1998) : Re-use of by-products, Proc. of Third International Congress on Environmental Geotechnics, Balkema, Vol.4, pp.1279-1292.
- McBride, M. B. (1994) : Environmental Chemistry of Soil, Oxford University Press.
- Poran, C.J. and F. Ahtchi-Ali (1989) : Properties of solid waste incinerator ash, Journal of Geotechnical Engineering, ASCE, Vol.115, No.8, pp.1118-1133.
- Sawyer, C.N. and P.L. McCarty (1982) : 環境工学のための化学 基礎編 (松井三郎・野口基一 翻訳), 森北出版.
- Shackelford, C. D. (1996) : Modeling and analysis in environmental geotechnics · An overview of practical application, Proc. of Second International Congress on Environmental Geotechnics, Balkema, Vol.3, pp.1375-1404.
- Yong, R.N., A.M.O. Mohamed and B.P. Warkentin (1992) : Principle of Contaminant Transport in Soils, Elsevier, pp.148-180.

Evaluation of Geo-environmental Impact due to the Leachate from Solid Wastes

Masashi KAMON, Takeshi KATSUMI, Toru INUI* and Milagro CASTRO-CUBA

*Graduate School of Engineering, Kyoto University

Synopsis

The leaching characteristics from the stabilized wastes are discussed from the viewpoint of landfilling and geotechnical utilization. Municipal solid waste incinerated fly ash (MSW-ash) and sewage sludge incinerated ash (SS-ash) are used for the experiment. Three different batch leaching test methods and a column leaching test are conducted. The experimental results show that the batch leaching tests could not evaluate the change in leaching characteristics due to the change in pH or the duration to contact with water. Cement stabilization would have a great effect on the immobilization of Cd and little effect on Pb.

Keywords: solid wastes; geo-environmental impact; leaching test; heavy metal; stabilization