

中間覆土に鉄鋼スラグを適用した場合の鉛漏出特性の評価

土手 裕^{a)}・黒田 憲佑^{b)}・関戸 知雄^{c)}

Evaluation of Lead Leakage Characteristics using Steel Slag for Intermediate Cover

Yutaka DOTE, Kensuke KURODA, Tomoo SEKITO

Abstract

The purpose of this study was to evaluate a leakage restraint effect of steel slag used for intermediate cover in a final disposal site. Advection diffusion parameters such as diffusion coefficient(D), volumetric water content(θ) and distribution coefficient (K_d) were determined by column experiments and batch adsorption experiments. Lead concentration leaked from slag layer was predicted based on the two lead elution scenarios in which a distribution of lead concentration eluted from fly ash was rectangle (Scenario 1) and triangle (Scenario 2). In Scenario 1, an inflow lead concentration was constant until available lead washed out, and then the inflow lead concentration became zero. In Scenario 2, an inflow lead concentration increased at a constant rate until reached the maximum concentration, and then the inflow lead concentration decreased at a constant rate. The observed lead concentration from a bottom of the column agreed with the calculated lead concentration using a K_d of 63.8 L/kg obtained from column experiments more than that using a K_d of 11.5 L/kg obtained from batch experiments. One of the reasons that the K_d obtained from column experiments was larger than the K_d obtained from batch experiments might be that the slag used in column experiments contacted continuously with lead solution for about 50 days. In the two lead elution scenarios, in the considered range of infiltration flow rate into landfill layer, inflow lead concentration in Scenario 1 and the maximum inflow lead concentration in Scenario 2, the slag used in this study could not be suppress leachate lead concentration below the Japanese effluent standard. In the two scenarios, it was found that setting K_d to 95,700L/kg could be suppressed leachate lead concentration below the Japanese effluent standard.

Keywords: Intermediate cover, Steel slag, Lead, Addictive diffusion, Adsorption

1. はじめに

焼却飛灰は主要な埋立物であり、鉛や亜鉛などの重金属が含まれている¹⁾。その中でも鉛はバッテリーや鉛管、顔料に用いられており、貧血や消化器疾患、末梢神経障害などを引き起こす人体に有害な重金属である²⁾。

焼却飛灰は特別管理一般廃棄物として扱われており、重金属の溶出抑制のための薬剤等による中間処理を施し埋立基準を満たすことにより最終処分場へ埋立られる³⁾。中間処理は、即効性が高く使用方法が簡単であることや、混練処理による処理物の容量の増加が少ないという点から液体キレート剤が多く適用されている⁴⁾。しかしながら、キレート処理された飛灰から鉛の再溶出の可能性が指摘されている⁵⁾。最終処分場は決められた廃止基準を満たすことで廃止することができる⁶⁾。しかし、廃止と同時に浸

出水の処理も終了してしまうため、廃止後に埋立地から鉛の再溶出が確認された場合、鉛が環境中に放出されることが懸念される。再溶出した鉛の漏出防止法として鉛を埋立層内の中間覆土で固定化する方法が考えられる。

一方、鉄鋼スラグは鉄鋼を生産する際に発生する副産物で、平成 27 年度には約 3700 万トン発生している⁷⁾。また、鉄鋼スラグはリサイクル材として注目されており道路路盤材、コンクリート用混和材などに利用されている⁸⁾。加えて鉛などの重金属を吸着することが明らかにされている⁹⁾。このことから、鉄鋼スラグを中間覆土として使用し鉛などの重金属を固定化できる可能性がある。

鉄鋼スラグによる鉛吸着には、pH8 から pH13 の間ではヘンリー型の吸着等温式が適応できることがわかっている¹⁰⁾。pH2 から pH5.5 の間では鉄鋼スラグによる鉛の吸着率は 70%以上であることが報告されている¹¹⁾。しかし、鉄鋼スラグを覆土材として用いた研究は透水性を確保するための材料として用いられており¹²⁾、¹³⁾、吸着材としての検討はされていない。山口¹⁴⁾の研究ではカラム実験で求めた拡散係数とバッチ式の吸着実験により求めた分配係数を用いて、飛灰からの鉛溶出シナリオに基づき廃止後の

a) 社会環境システム工学科教授

b) 社会環境システム工学科学部生 (現 村本建設(株))

c) 社会環境システム工学科准教授

最終処分場からの鉛漏出濃度予測を行っているが、実際に鉛溶液を用いたカラム実験は実施されていない。このように、中間覆土に鉄鋼スラグを用いた場合の鉛漏出特性は明らかとなっていない。

よって本研究では、最終処分場層内の中間覆土に鉄鋼スラグを用いた場合を想定し、スラグ層における鉛の漏出抑制効果を評価することを目的とした。そのため、埋立層からの鉛漏出モデルには遅延係数 R_f を用いた 1 次元移流拡散方程式を用い、実際に鉛溶液を用いたカラム実験によりモデルの検証を行った。得られたパラメータを用いて飛灰からの鉛溶出シナリオに基づいた鉛漏出濃度予測を行い、排水基準を満たす期間の検証を行った。

2. 解析方法

2.1 移流拡散方程式

本実験では、式(1)と(2)に示すように遅延係数 R_f を用いた 1 次元移流拡散方程式を用いた。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\frac{V}{R_f} \frac{\partial C}{\partial x} + \frac{D}{R_f} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (1)$$

$$R_f = 1 + \frac{\rho_d \times K_d}{\theta} \quad (2)$$

ここで、 C : 浸出水の鉛濃度 (mg/L)、 V : ダルシー流速 (m/s)、 θ : 体積含水率 (-)、 D : 拡散係数 (m²/s)、 ρ_d : カラムに充填したスラグの見かけ密度 (kg/L)、 K_d : 分配係数 (L/kg)、 t : 経過時間 (s)、 x : スラグ充填層表面からの鉛直距離 (m) である。式(1)は初期条件を $t=0$ のとき $C=0$ 、境界条件を $x=0$ のとき $C=C_0$ (充填層入口濃度)、 $x=L$ (m) (充填層出口) 濃度=0 として、クランク・ニコルソン法にて解いた。以下の式(3)～式(5)に得られた差分方程式を示す。(i: 空間、j: 時間、n: 空間の分割数)

(i) $i=1$ の時 (充填層表面)

$$(2\alpha + 1)C_{1,j+1} + (-\alpha + \beta)C_{2,j+1} = (\alpha + \beta)C_{0,j} \\ + (1 - 2\alpha)C_{1,j} + (\alpha - \beta)C_{2,j} - (-\alpha - \beta)C_{0,j+1} \quad (3)$$

(ii) $2 \leq i \leq n-1$ の時

$$(-\alpha - \beta)C_{i-1,j+1} + (2\alpha + 1)C_{i,j+1} + (-\alpha + \beta)C_{i+1,j+1} \\ = (\alpha + \beta)C_{i-1,j} + (1 - 2\alpha)C_{i,j} + (\alpha - \beta)C_{i+1,j} \quad (4)$$

(iii) $i=n$ の時 (充填層底面)

$$(-\alpha - \beta)C_{n-1,j+1} + (\alpha + \beta + 1)C_{n,j+1} \\ = (\alpha + \beta)C_{n-1,j} + (-\alpha - \beta + 1)C_{n,j} \quad (5)$$

ただし、 $\alpha = \frac{\Delta t D}{2R_f(\Delta x)^2}$ 、 $\beta = \frac{\Delta t V}{4\theta R_f \Delta x}$ で Δt は時間の刻み幅、 Δx は距離の刻み幅である。

2.2 パラメータの決定法

ρ_d はカラム内に所定の高さまで充填したスラグの充填体積と充填重量から求めた。また、 V はカラムの断面積とカラムへの通水流量から求めた。 θ はカラム通水実験から求めた。 D は NaCl 溶液を用いたカラム実験で得られた浸出水濃度の実測値と計算値の残差自乗和が最小となるように Simplex 法により求めた。

2.3 溶出シナリオ

2.3.1 条件設定

最終処分場の埋立層面積 S を 1m² とし、廃棄物埋立厚さ L_w を 2m、中間覆土層厚さを 0.5m、埋立物密度を 1200 (kg-dry/m³)¹⁵⁾ と設定した。埋立地への浸透水量 Q を浸透係数 $F(-)$ と降雨強度 $I=1700$ (mm/年)¹⁶⁾ を用いて次式で求めた。 F は代表値 0.2¹⁷⁾ と 0.1, 0.04 の 3 パターンとした。

$$Q(\text{m}^3/\text{日}) = F \times \{I/(1000 \times 365)\} \times S \quad (6)$$

焼却残渣の埋立割合は 75%¹⁸⁾ という報告があるので埋立物中の焼却残渣重量を 0.75 (kg-焼却残渣 / kg-埋立物) とした。また、飛灰発生量は主灰の 1/10 であり、飛灰には消石灰が 2 倍量含まれる¹⁹⁾ ことから焼却灰 1 に対する飛灰の発生量は 0.3 である。よって、焼却残渣中の飛灰重量は $0.3/(1+0.3) = 0.23$ (kg-飛灰 / kg-焼却残渣) となる。これらより、埋立物中の飛灰重量は $0.75 \times 0.23 = 0.17$ (kg-飛灰/kg-埋立物) となる。よって、飛灰の埋立重量は次式で得られる。

$$S \times L_w \times 1200 \times 0.17 = 410 \text{ (kg-飛灰)} \quad (7)$$

処理飛灰中の鉛含有量 q_{Pb} は 400mg/kg²⁰⁾ という報告がある。よって、埋立層内の鉛重量は $400 \times 410 = 164,000$ mg となる。焼却飛灰について 13 号溶出試験で溶出率 16%²¹⁾ の報告があり、これを用いると溶出可能鉛 W は 26,240mg である。

2.3.2 鉛溶出シナリオ

溶出シナリオ 1 として、時刻 0 で鉛が一定の溶解度 C_d (mg/L) で飛灰から溶け出し、溶出可能鉛の全量が溶け出した瞬間に溶出濃度が 0 になると仮定した。溶出可能鉛の全量が溶け出す時間を T_c (day) とし、 C_d は 0.5, 1.0, 5.0, 10 の 4 ケース、 F は 0.2, 0.1, 0.04 の 3 ケース計 12 ケース検証した。 T_c を次式から求めた。

$$W = C_d \times (Q \times 10^3) \times T_c \quad (8)$$

シナリオ 2 として、 $t=0$ から一定速度で鉛溶出濃度が増加し、最大溶出濃度 C_{max} (mg/L) に達したら一定速度で溶出濃度が減少し、溶出可能鉛の全量が溶出した瞬間に溶出濃度 0 になると仮定した。 $C=C_{max}$ となる時間を T_{max} (day) とし、 C_{max} は 0.5, 1.0, 5.0, 10 の 4 ケース、 F は 0.2, 0.1, 0.04 の 3 ケース計 12 ケースを検証した。 T_{max} を次式から求めた。

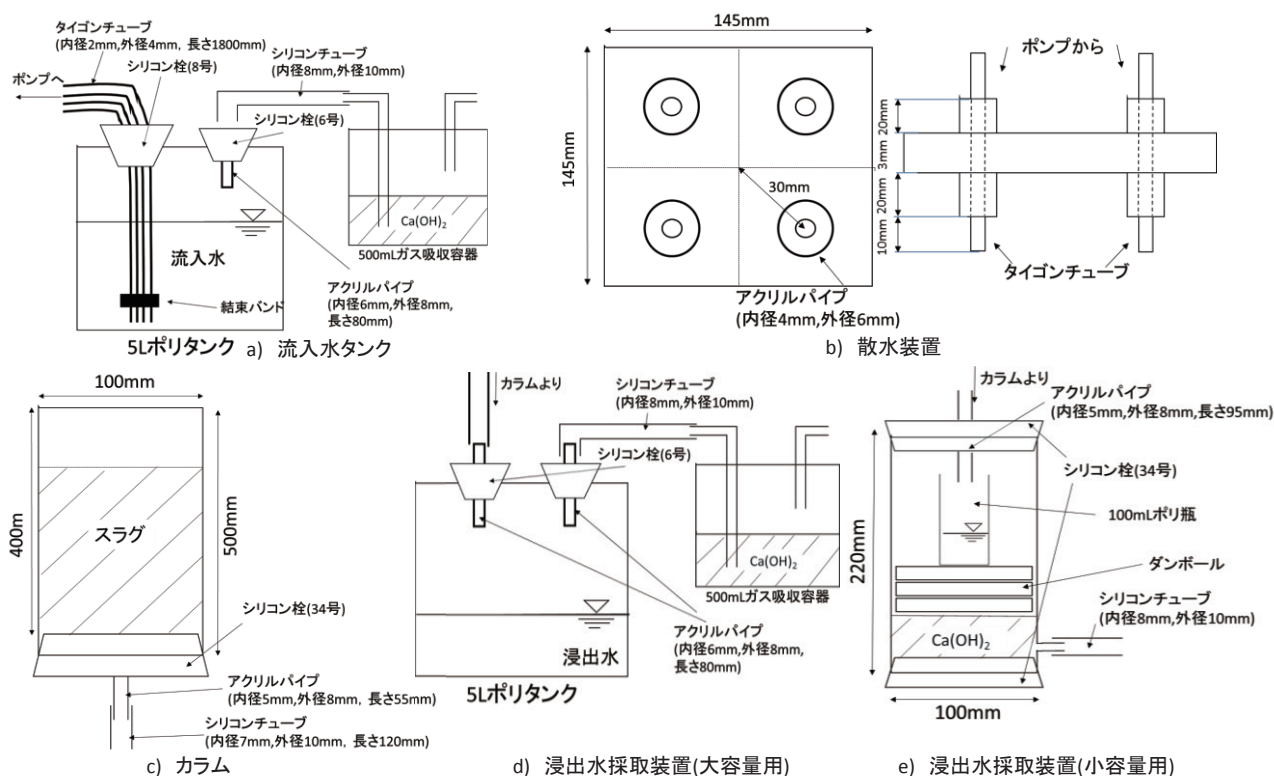


図 1. カラム実験装置.

$$W = (1 / 2) \times \{C_{max} \times (Q \times 10^3)\} \times (2 \times T_{max}) \quad (9)$$

3. 実験方法

3.1 用いたスラグ

本実験で用いたスラグは、高炉徐冷スラグ¹⁴⁾を篩分けし、4.74-19mmに篩分けたものを洗浄後、105℃で乾燥させ、ペイル缶に保存した。

3.2 吸着実験

吸着実験で終了 pH が 12 になるような NaOH の添加量を決定することを目的に行った。スラグは洗浄スラグを用いた。500mL のポリ瓶に洗浄スラグを 10g とメスシリンダーで蒸留水を 500mL 加えた後、所定量の 1M 濃度 NaOH をデジタルピペットで加え、200rpm で 6 時間振とうした。振とう終了後、pH を測定した。加えた NaOH の量は 4~10(mL/500mL 蒸留水)とした。

原水の Pb 濃度は 0, 1, 5, 10, 20mg/L とした。原水は 1L のポリ瓶に蒸留水 1000mL を入れ、pH 調整のために 1M の NaOH を 16mL 加え良く攪拌した後、PbCl₂ で作成した 2000mg-Pb/L 溶液を所定量加えて良く混合して作成した。500mL のポリ瓶に洗浄スラグを 10g を入れ、作成した原水を 500mL 加えた後、200rpm で 6 時間振とうさせた。振とう後、分析用サンプルとして 50mL を 0.45μm のメンブランフィルターでろ過し、濃硝酸を 0.25mL 加えて保存した。また、pH メータ (HORIBA F-74BW) で分析用サンプルを採取

後の残った溶液の pH を測定した。分析方法はフレイム原子吸光光度法とフレイムレス原子吸光光度法 (Hitachi, Z-2000) を用いた。

3.3 カラム通水実験

3.3.1 カラム実験装置

カラム実験装置を図 1 に示す。流入水タンクには 5L のポリ瓶を用い、直径 26mm と 22mm の穴をあけた蓋をした。8 号のシリコン栓に直径 10mm の穴をあけ、タイゴンチューブ 4 本をシリコン栓下部から 300mm 出るように通し、4 本のタイゴンチューブの端を結束バンドで束ね、タイゴンチューブとシリコン栓の隙間をワセリンで塞いだ。また 6 号のシリコン栓に 8mm の穴をあけてアクリルパイプをシリコン栓下部から 15mm 出るように通し、シリコンチューブでガス吸収容器とつないだ。通水タンクの蓋の穴に、上記シリコン栓をつないだ。ガス吸収容器には Ca(OH)₂ を入れた。(図 1 a))

散水装置はアクリル板に中心から 30mm の場所に直径 4.5mm の穴を合計 4 つ空け、穴の上面および下面にアクリルパイプを接着させた。ポンプを経由したタイゴンチューブをそれぞれに通し、アクリルパイプ下端からタイゴンチューブが 10mm 出るように通した。この散水装置をカラム上端に置き、カラムと散水装置を少量のアロンアルファで固定して空隙をワセリンで塞いだ。(図 1 b))

カラムはアクリル製の内径 100mm、外径 120mm、長さ

表 1. 水道水 1L に加える 1M の NaOH の量.

設定 pH	9	11	12
NaOH (mL)	0.25	1.9	8.2

500mm のカラムを用いた。カラム下部には、浸出水採取装置につながるシリコンチューブを取りつけ、アクリルパイプを通したシリコン栓を取り付けた。(図 1 c))

浸出水採取装置には大容量採水用と小容量採水用の 2 つを用意した。大容量採水用には直径 22mm の穴を 2 つ空けた蓋をした 5L のポリ瓶を用い、6 号のシリコン栓に 8mm の穴をあけてアクリルパイプをシリコン栓下部から 15mm 出るように通したものを 2 つ用意した。一方のアクリルパイプにはシリコンチューブを用いてガス吸収容器へ導き、もう一方はカラム下部のシリコンチューブをつないだ。これらのシリコン栓を蓋に取り付け、隙間にワセリンを塗った。(図 1 d))

小容量採水用には 100mL のポリ瓶を用い、Ca(OH)₂ を充填したカラム内に置いた。カラムの上部と下部は 34 号のシリコン栓を取り付け、上部のシリコン栓にはアクリルパイプを通してカラム下部のシリコンチューブを取り付けた。下部のシリコン栓の上に Ca(OH)₂ を入れ、その上にダンボールを 3 枚置き、その上に 100mL のポリ瓶を置いた(図 1 e))。ポンプは定量送液ポンプ(TOKYO RIKIKAI, MP-1000)を二台用いた。

3.3.2 流入 pH と浸出水 pH の関係を調べる実験

ポンプ流量調整は水道水を用い、カラムに取り付ける前の散水装置を用いて以下の通り行った。散水装置下部から出ているタイゴンチューブ 4 本の下にそれぞれ 100mL のポリ瓶を置いて通水を開始して 2 時間後に通水を停止し、ポリ瓶内の水の重量を測定した。その後、4 本のタイゴンチューブの下に 1L の計量カップを置き、同様にして通水を 2 時間行い、計量カップ内の水の重量を測定した。

スラグ充填方法は次の通りである。空のカラムの重量を測定し、カラム内に 20cm ごとにスラグを充填して木槌で 2、3 回叩いて詰め、40cm 充填後、カラムの重量、充填高さを記録した。その後、カラム下部のシリコンチューブを折り曲げてピンチコックで止め、カラム内に水道水をスラグ上端から約 2cm まで加え、木槌でカラムを叩き気泡を抜いた。その後、カラム下部のシリコンチューブを開放して水を抜いた。シリコンチューブに溜まっている水も排出した。

流入水は中性(未調整水道水)、pH9, pH11, pH12 とし、1M の NaOH を表 1 に示すように加えた。流入水は実験あるいは流入水交換の当日に作成した。

浸出水採水方法は以下の通り行った。大容量採水時は空の蓋を除いた 5L のポリタンクの重量を測定し、蓋をしてからアクリルパイプにカラムからのシリコンチューブを

表 2. 充填密度、Run 終了後の処理.

実験 ID	Run1-1	Run1-2	Run1-3	Run1-4	Run1-5	Run2
流入水種類	水道水	pH9	pH11	pH12	pH11	pH11
充填密度(kg/L)	1.28	1.28	1.28	1.28	1.28	1.28
Run 終了後の処理	洗浄	洗浄	洗浄	洗浄	詰め替え	洗浄

つなぎ採水した。採水後はカラム下部のチューブを折り曲げてピンチコックで止め、すぐに小容量用に置き換えた。浸出水を含む 5L のポリ瓶の重量を測定した。

小容量採水時は空の 100mL ポリ瓶の重量を測定して浸出水採取装置(小容量用)に置き、カラム上部にシリコン栓を付け、スラグ充填カラム下部からのシリコンチューブとつないだ。約 1 時間経過後、カラム下部のチューブを折り曲げてピンチコックで止め、すぐに大容量用に置き換えた。浸出水を含む 100mL ポリ瓶の重量を測定した。

実験の順序と条件を表 2 に示す。Run-1 で流入水を交換する時は散水装置を取り外し、カラム下部のシリコンチューブをピンチコックで留め、水道水をカラム内のスラグの上端から約 2cm まで入れてピンチコックを外し水を抜いた。この一連の作業を 3 回繰り返した。その後、再び散水装置をカラムに装着しワセリンで空隙を塞いだ。Run1-5 が終わったらカラム内のスラグを詰め替えて Run2 を行った。pH は浸出水採取後直ちに測定した。

3.3.3 カラム通水実験方法

3.3.2 と同様スラグを充填し、充填密度を測定した。ポンプ流量を 80mL/h に設定して水道水の通水を開始し、浸出水流量が一定となったら流入水を NaCl 溶液(3.3g-NaCl/L)に変更した。変更直後に流入水タンクから NaCl 溶液 50mL を採取し電気伝導度(EC)を電気伝導度メータ(HORIBA F-74BW)で測定した。これを通水前通水溶液 EC とした。

NaCl 溶液に変更する直前の浸出水を 50mL 採取し、0 分サンプルとした。50mL のポリ瓶を出口にセットして通水を開始した。最初の 2 時間は 20 分おきに浸出水受けの 50mL のポリ瓶を交換した。2 時間目以降は 100mL のポリ瓶を用い、1 時間ごとに交換した。8 時間目の試料採取後、浸出水受けを 5L のポリ瓶を用いて 9 時間放置し、その後、100mL のポリ瓶で 1 時間試料採取をした後、5L のポリ瓶で 9 時間放置し、その後、100mL のポリ瓶で 1 時間試料採取をした。最後に流入水タンクから 50mL を採取した。これを終了時通水溶液 EC とした。どの場合も、採取した浸出水の重量を測定後に EC を測定した。その後、カラム内を水道水を用いて 3.3.2 と同様に 3 回洗浄した後、pH12 に調整した NaOH 溶液を通水した。浸出水 pH が 12 になるまで継続した後、Pb 溶液(10mg/L)を通水した。Pb 溶液は、蒸留水に NaOH を用いて pH12 に調整した溶液 1L に対して 2000mg-Pb/L 溶液を 5mL 加え、NaOH を用いて pH12 に再度調整して作成した。

Pb 溶液を交換する直前に浸出水受けから 50mL を採取し

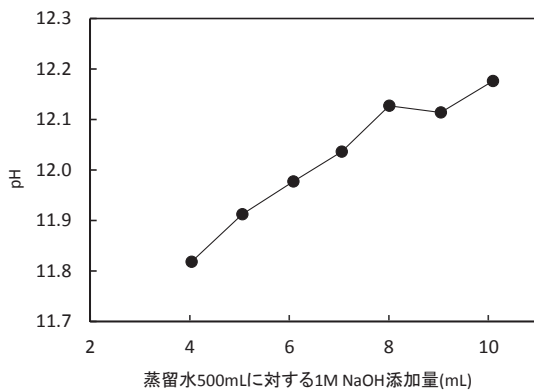


図2. NaOH 添加量と終了 pH の関係.

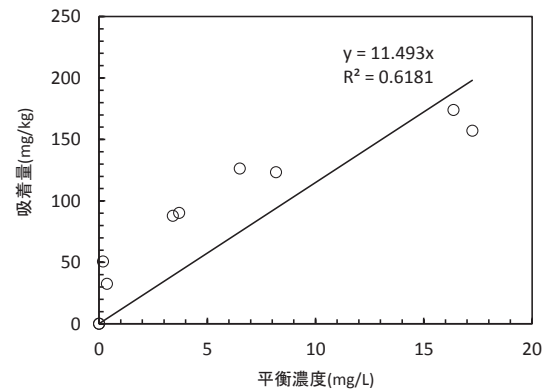


図3. 鉛吸着実験結果.

表3. チューブの個別流量合計と全体流量測定結果.

	チューブ1	チューブ2	チューブ3	チューブ4	合計	平均	標準偏差	変動係数(%)
個別流量(mL/h)	18	18	22	21	78	19.75	1.79	9.04
全体流量(mL/h)	84.5				84.5	81.25※	3.25※	4※

※個別流量合計と全体流量によるもの

て 0.45 μ m のメンブレインフィルターでろ過し、濃硝酸を 0.25mL 加えて保存した。これを 0 分サンプルとした。通水開始後は 1~2 日に 1 回おおむね決まった時間に 100mL のポリ瓶を用いてサンプリングをした。サンプリング後は 0.45 μ m のメンブレインフィルターで 50mL ろ過したろ液に濃硝酸を 0.25mL 加えて分析用サンプルとした。残った浸出水で pH を測定した。また、流入水は Pb 溶液を交換するごとに分析用サンプルを採取した。鉛濃度の分析にはフレイム原子吸光光度法とフレイムレス原子吸光光度法 (Hitachi, Z-2000) を用いた。

鉛通水終了後、流入水を水道水に変更し、流量が一定になったことを確認したら、ポンプを止めて直ちに浸出水を空のポリ瓶に受け、3 時間放置後、ポリ瓶内の浸出水量を測定した (W_1)。その後、カラム内のスラグ全量を金属製のバットに移し、105 $^{\circ}$ C で 48 時間乾燥させて保有水分量を測定した (W_2)。 θ (-) を W_1 , W_2 , V (充填体積) を用いて次式で求めた。

$$\theta = \frac{W_1 + W_2}{V} \quad (10)$$

4. 結果と考察

4.4.1 吸着実験結果

NaOH 添加量と終了 pH の関係を図 2 に示す。NaOH 添加量が 7 (mL/500mL 蒸留水) 以上で終了 pH は 12 を越えた。7 (mL/500mL 蒸留水) の添加で pH は 12.0 となり目標とした 12 とほぼ同程度であったが、スラグの不均一性を考慮して、より安全側である 8 (mL/500mL 蒸留水) (終了 pH12.1) が適切と考えられた。

得られた結果を図 3 に示す。平衡濃度の増加とともに吸

着量が直線的に増加していると見なせたので、式(11)に示すヘンリー型の吸着等温式を用いることとした。

$$q = K_d \times C_e \quad (11)$$

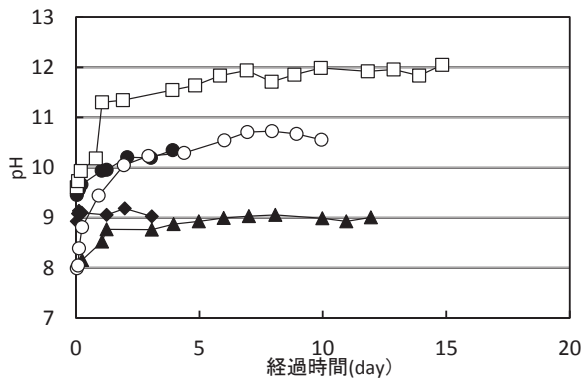
ここで、 q は吸着量 (mg/kg)、 K_d は分配係数 (L/kg)、 C_e は平衡濃度 (mg/L) である。本実験で得られた K_d は 11.5 L/kg であり、昨年の卒論で得られた値 (11.7 L/kg)¹⁴⁾ ほぼ同じであった。

4.4.2 流入 pH と浸出水 pH の関係

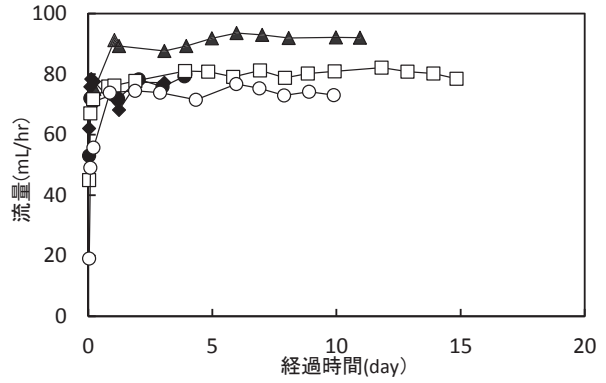
流量測定結果を表 3 に示す。チューブ 1, 2 はポンプ 1 に、チューブ 3, 4 はポンプ 2 にセットした。流量を 80mL/h になるように設定して行った。4 つのチューブ間での流量のばらつきは、変動係数が 9% と小さかった。個別流量測定後に行った全体流量測定との変動係数は 4% となり、時間をおいても安定した流量が得られることを確認した。

浸出水 pH の経時変化を図 4 a) に示す。水道水を流した場合 (Run-1)、最初の 1 時間での浸出水の pH は 8.2 で時間経過とともに上昇していき、6 日目で pH9.1 に到達した。その後、pH9.0 \pm 0.1 で一定となった。pH9 の溶液を流した場合 (Run1-2)、通水 2 時間で pH は 9.1 となり、以降 pH9.1 \pm 0.1 でほぼ一定となった。pH11 の溶液を流した場合 (Run1-3)、5 日目で pH10.3 まで上昇したが、pH11 には届かなかった。

そこで、pH12 の溶液通水後 (Run1-4) に、再度 pH11 の溶液を通水した (Run1-5)。しかし、通水開始直後から 3 時間



a) 浸出水 pH の経時変化



b) 流量の経時変化

図 4. カラム通水実験結果(▲:Run1-1, ◆:Run1-2, ●:Run1-3, □:Run1-4, ○:Run2).

表 4. 各 Run での 24 時間以降の流量変動.

RunID	Run1-1	Run1-2	Run1-3	Run1-4	Run2
平均 (mL/h)	90.1	74.2	77.0	80.2	73.9
変動係数 (%)	4.0	5.8	3.9	1.6	2.1

の間、浸出水の pH は 11.4 のままだった。このことから、スラグを一度高い pH の水と接触させると、本実験で行ったような洗浄を行っても、スラグの塩基性物質を完全に洗い流すことは困難であることが分かった。そこで、スラグを充填し直して、pH11 の溶液を通水した (Run2)。通水開始 7 日目以降 pH は 10.6 ± 0.1 で一定となった。pH12 の溶液を通水した場合 (Run1-4)、6 日目以降、pH は 11.9 ± 0.2 で一定となった。

以上より、水道水通水の結果からスラグは塩基性であり、pH9 以上の溶液を通水すると浸出水 pH も通水溶液と概ね一致することが分かった。また、浸出水 pH は通水開始 1 週間を過ぎるとおおむね一定になることが分かった。

浸出水流量の測定結果を図 4 b) に示す。どの条件もおおよそ 24 時間経過後から流量が一定となった。表 4 に通水開始 24 時間以降の流量の平均、変動係数を示す。変動係数が 2~6% 程度であり、1 回の Run 中の流量変動は小さかった。また、平均流量は 74~90 (mL/h) であり設定流量である 80mL/h の ± 10 mL/h の範囲であった。

ポンプ流量測定結果より 4 つのチューブ間での流量のばらつきは小さかった。24 時間経過すると浸出水流量はおおよそ一定になった。1 回の Run 中の流量変動は小さかった。スラグは塩基性であり、pH9 以上の溶液を通水すると浸出水 pH も流入 pH と概ね一致することが分かった。また、浸出水 pH は通水開始 1 週間を過ぎるとおおむね一定になることが分かった。

4.4.3 カラム通水実験結果

カラム通水実験における ρ_d は 1.29(kg/L)、 θ は

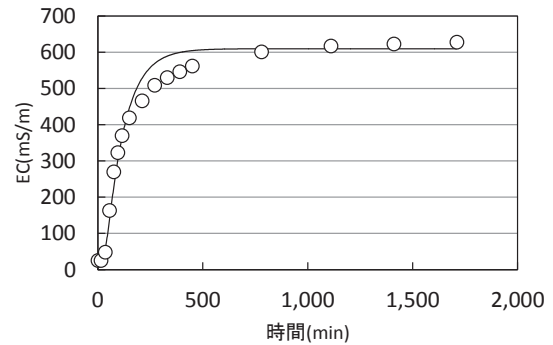


図 5. NaCl 通水実験による浸出水実測値と計算 (○: 実測値, 実線: 計算値) .

0.099(-)であった。NaCl 通水実験における浸出水濃度 (EC) の経時変化と探索で得られた D を用いた計算結果を図 5 に示す。実測値と計算値はよく一致していた。このことから計算に用いた θ と D は適切であったと言えた。よって、得られた $D = 7.19 \times 10^{-6} (\text{m}^2/\text{s})$ を用いることとした。

鉛通水実験で得られた浸出水鉛濃度の実測値を図 6 に示す。通水開始約 8 日間は浸出水の鉛濃度は 0mg/L であった。通水開始約 9 日目から徐々に浸出水の鉛濃度が増加し始めた。通水開始約 50 日目まで浸出水の鉛濃度が 3.2mg/L 程度まで増加した。時間の制約上浸出水の鉛濃度が流入水の鉛濃度である 10mg/L になるまで実験を行うことができなかった。なお、実験期間中の浸出水 pH は平均 12.21 (標準偏差 0.08) で pH はおおよそ 12.2 で安定し変動も小さかったと言えた。流量の平均は 78.0mL/h (標準偏差 3.08mL/h) であった。流量もおおよそ 80mL/h で安定し変動も小さかったと言えた。

バッチ実験によって得られた K_d (11.5L/kg) を用いた浸出水鉛濃度の計算値を点線として図 6 中に示すが、実測値と一致しなかった。そこで、浸出水中鉛濃度の実測値と計算値の残差自乗和が最小となるように、 D と同様の探索法により K_d を求めた。その結果を図中に実線で示すが、実

測値と計算値は良い一致を示した。得られた K_d は 63.8L/kg であった。バッチ実験で得られた K_d よりもカラム実験で得られた K_d の方が大きくなった理由としてカラム実験で用いたスラグは実験期間中(約 50 日)絶え間なく鉛溶液と接触していたためより鉛を吸着したことが原因の 1 つだと考えられた。

4.4.4 鉛溶出シナリオによる鉛溶出予測

シナリオ 1 における浸出水の鉛濃度の例として $F=0.2$ で $C_d=10\text{mg/L}$ 、 0.5mg/L の時の結果を流入水鉛濃度と共に図 7 に示す。浸出水鉛濃度は時間とともに上昇し C_d に達した。時間が T_c に達すると浸出水鉛濃度は急激に減少した。 C_d が 10mg/L と 0.5mg/L の場合を比較すると浸出水鉛濃度は同じような挙動を示した。

表 5 に F と C_d の各条件において浸出水中の鉛濃度が鉛排水基準 (0.1mg/L) を超えるまでの時間を示す。 F 、 C_d がどの条件でも浸出水鉛濃度は C_d まで達し、排水基準 (0.1mg/L) 以下に保つことはできなかった。排水基準を超える時間に F は影響せず、 C_d が小さいほど時間が長くなった。以上より、使用したスラグでは F と C_d を変化させても排水基準以下に抑制することはできなかった。

シナリオ 2 における浸出水の鉛濃度の例として $F=0.2$ で $C_{\text{max}}=10\text{mg/L}$ 、 0.5mg/L の時の結果を流入水鉛濃度と共に図 8 に示す。浸出水鉛濃度は流入水濃度に遅れて上昇し、 C_{max} に達した後、流入水鉛濃度に少し遅れて浸出水鉛濃度が減少し始めた。流入水鉛濃度が減少するにつれて浸

出水鉛濃度も同様に減少した。 C_{max} が 10mg/L と 0.5mg/L の時を比較すると、 C_{max} が小さくなるにつれて流入水鉛濃度と浸出水鉛濃度の差が小さくなった。

表 5 に F と C_{max} の各条件において浸出水中の鉛濃度が鉛排水基準 (0.1mg/L) を超えるまでの時間を示すが、 F 、 C_{max} がどの条件でも浸出水鉛濃度は C_{max} まで達し、排水基準 (0.1mg/L) 以下に保つことができなかった。 F が大きいほど、また C_{max} が小さいほど、排水基準を超えるまでの時間は長くなった。カッコで示すように流入水鉛濃度と浸出水鉛濃度が 0.1mg/L に至った日の差を見ると、最長で 171 日であった。最短で 101 日であったため最短と最長とあまり

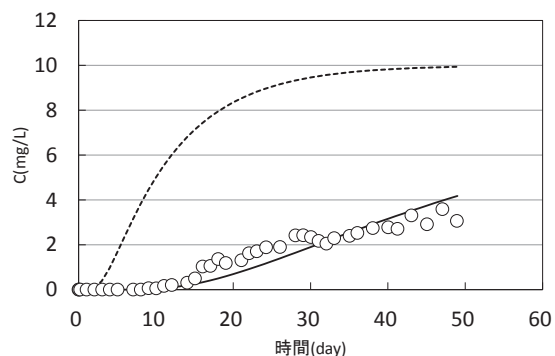
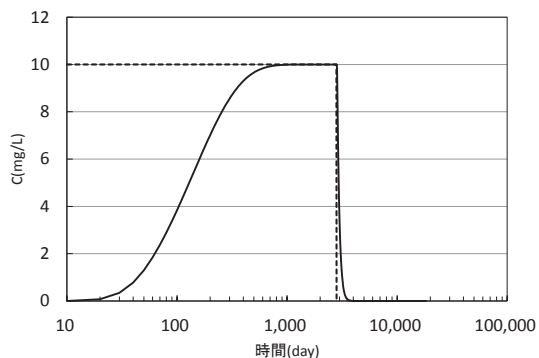
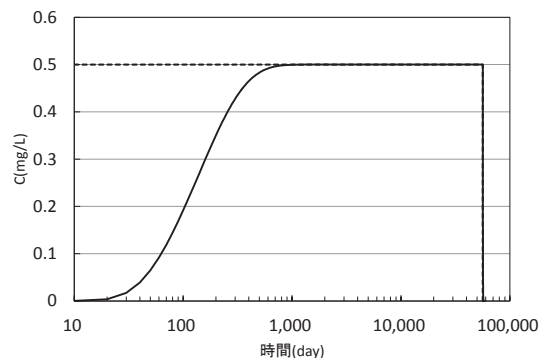


図 6. 浸出水鉛濃度の実測値と計算値の比較 (○ : 実測値, 点線 : バッチ実験で得られた K_d を用いた場合の計算値, 実線 : 鉛通水実験で得られた K_d を用いた場合の計算値)。



a) $C_d=10\text{mg/L}$



b) $C_d=0.5\text{mg/L}$

図 7. シナリオ 1 ($F=0.2$) での結果例 (点線 : 流入濃度, 実線 : 浸出水濃度)。

表 5. シナリオ 1, 2 で鉛の排水基準 (0.1mg/L) を超えるまでの時間 (日)。

F (-)	シナリオ 1				シナリオ 2			
	C_d (mg/L)				C_{max} (mg/L)			
	10	5	1	0.5	10	5	1	0.5
0.2	22	26	45	64	130(101)	256(143)	2889(171)	11439(171)
0.1	22	26	45	64	179(122)	386(160)	5805(171)	22707(171)
0.04	22	26	45	64	290(149)	734(170)	14256(171)	56510(171)

(※カッコ内は流入濃度と浸出水濃度が 0.1mg/L に至った日の差)

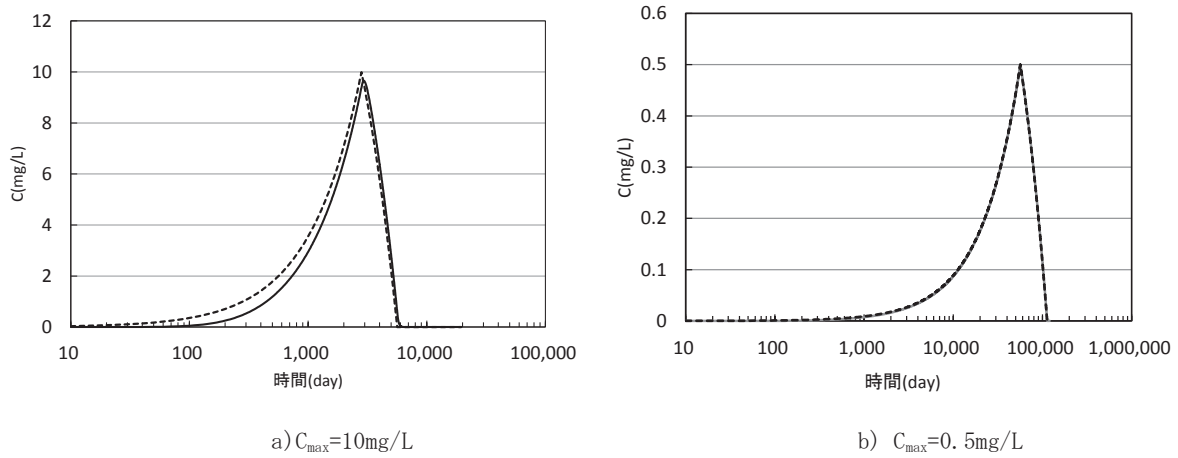


図8. シナリオ2 (F=0.2)での結果例(点線：流入濃度，実線：浸出水濃度).

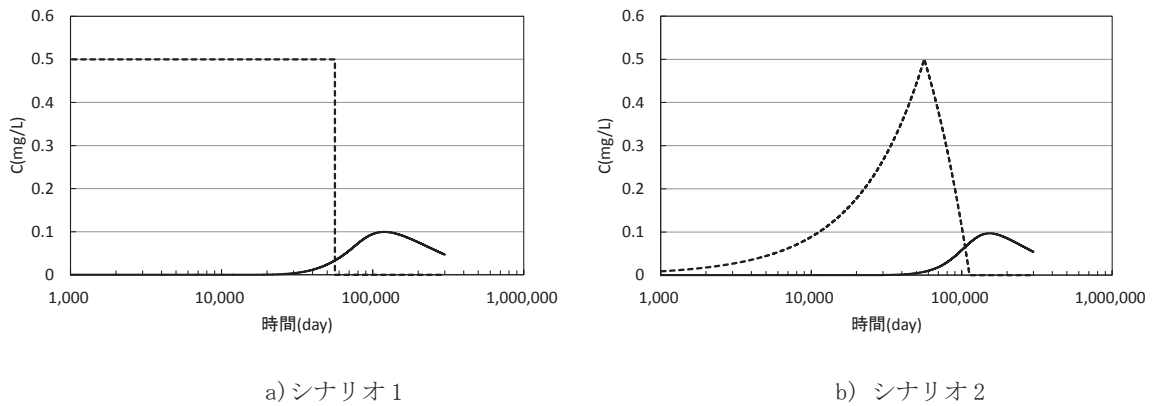


図9. 2つのシナリオで排水基準以下に抑制できる分配係数(95,700L/kg)を用いた場合の結果(F=0.2, $C_d, C_{max}=0.5\text{mg/L}$, 点線：流入濃度，実線：浸出水濃度).

差はなかった。以上より、シナリオ2においても使用したスラグではFと C_{max} を変化させても排水基準以下に抑制することはできなかった。

K_d を95,700L/kgとすると、図9に示すように2つのシナリオで排水基準以下に抑制できた(F=0.2, $C_d, C_{max}=0.5$)。よって、鉄鋼スラグをリン酸で酸処理をして重金属を吸着するゼオライトを生成させるような活性化処理²²⁾をして K_d を95,700L/kgまで向上させることができれば浸出水中の鉛濃度を排水基準以下にできることが期待された。また、鉄鋼スラグの最大の K_d は50,000(L/kg)²³⁾と報告されており、これを用いて検証した場合はシナリオ1で約130年、シナリオ2では約200年の間浸出水鉛濃度を排水基準以下に抑制できた(F=0.2, $C_d, C_{max}=0.5$)。

5. おわりに

最終処分場層内の中間覆土に鉄鋼スラグを用いた場合を想定し、スラグ層における鉛の漏出抑制効果を評価することを目的として、パラメータを求めるためにバッチ

実験とカラム実験を行った。また2つの鉛溶出シナリオを用いて最終処分場からの鉛漏出濃度予測を行った。得られた主な知見を以下に示す。

- (1)バッチ実験で得られた K_d (11.5L/kg)より、鉛通水実験から得られた K_d (63.8L/kg)を用いた方が浸出水中の鉛濃度の実測値と計算値は良い一致を示した。
- (2)バッチ実験で得られた K_d よりもカラム実験で得られた K_d の方が大きくなった理由はカラム実験で用いたスラグは実験期間中(約50日)絶え間なく鉛溶液と接触していたため、より鉛を吸着したことが原因の1つだと考えられた。
- (3)シナリオ1、2ともに使用したスラグではFと C_d, C_{max} を変化させても排水基準以下に抑制することはできなかった。
- (4) K_d を95,700L/kgとすると、2つのシナリオにおいてF=0.2, $C_d, C_{max}=0.5\text{mg/L}$ の場合、浸出水鉛濃度を排水基準以下に抑制できた。
- (5)報告されている鉄鋼スラグの最大の K_d を用いて2つのシナリオのF=0.2, $C_d, C_{max}=0.5\text{mg/L}$ を検証した場

合、約 130～200 年の間浸出水鉛濃度を排水基準以下に抑制することができた。

参考文献

- 1) 平岡正勝, 酒井伸一: ごみ焼却飛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.
- 2) 日本科学者会議: 環境辞典, pp779-780, 旬報社, 2008
- 3) 特別管理一般廃棄物及び特別管理産業廃棄物の処分又は再生の方法として環境大臣が定める方法, <https://www.env.go.jp/hourei/add/k019.pdf> (2017 年 7 月 30 日閲覧)
- 4) 辻本浩子, 王寧, 肴倉宏史, 大迫政浩: 最終処分場から採取したキレート処理溶融飛灰中重金属の長期安定性の評価, 廃棄物資源循環学会論文誌, Vol.21, No2, pp.86-93, 2010.
- 5) 肴倉宏史, 田中信壽, 松藤敏彦: キレート処理した一般廃棄物焼却飛灰からの鉛の再溶出挙動に関する研究, 廃棄物学会論文誌, Vol.16, No.3, pp214-222, 2005.
- 6) 環境省: 一般廃棄物の最終処分場及び産業廃棄物の最終処分場に係る技術上の基準を定める省令, <http://law.egov.go.jp/htmldata/S52/S52F03102004001.html> (2017 年 8 月 2 日閲覧)
- 7) 鉄鋼スラグ協会: スラグ統計, 鉄鋼スラグ需要概要, 平成 27 年度鉄鋼スラグ需給の概要, <http://www.slg.jp/pdf/fs-161-01.pdf> (2017 年 8 月 2 日閲覧)
- 8) 鉄鋼スラグ協会: 鉄鋼スラグについて, 鉄鋼スラグの特性と用途, <http://www.slg.jp/slag/usage.html> (2017 年 6 月 23 日閲覧)
- 9) Dimitrova, S.V. and Mehanjiev, D.R.: Lead removal from aqueous solutions by granulated blast-furnace slag, *Water Research*, Vol.32, No.11, pp.3289-3292, 1998.
- 10) 上杉大樹: pH が高炉スラグの鉛除去能に与える影響, 宮崎大学工学部土木環境工学科卒業論文, 2014.
- 11) Eveliina, R., Jolanta K., Warchol, L., Johansson, W., Mika, S.: Slag as a low-cost sorbent for metal removal in the presence of chelating agents, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, Vol.27, pp115-125, 2015.
- 12) Suzuki, K., Anegawa, A., Endo, K., Yamada, M., Ono, Y.: Performance evaluation of intermediate cover soil barrier for removal of heavy metals in landfill Leachate, *Chemosphere*, Vol.73, pp.1428-1435, 2008.
- 13) 小野雄策, 川寄幹生, 渡辺洋一, 山田正人, 遠藤和人, 小野芳朗: 最終処分場内部保有水質制御のための浸透性反応層(HPRB)技術の開発, 廃棄物学会論文誌, Vol.9, No.3, pp.197-211, 2008.
- 14) 山口悟史: 中間覆土材に鉄鋼スラグを用いた場合の鉛の漏出特性の検討, 宮崎大学工学部社会環境システム工学科卒業論文, 2016.
- 15) 川浦栄太郎, 中川正, 岩田秀樹, 本間義信: 一般廃棄物最終処分場における水平締固め特性について, 第 24 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, pp.487-488, 2013.
- 16) 国土交通省, 平成 27 年度版 日本の水資源の現状, 第一章 水循環と水資源の賦存状況, http://www.mlit.go.jp/mizukokudo/mizusei/mizuko_kudo_mizsei_fr2_000013.html (閲覧日 2018 年 1 月 15 日)
- 17) 石橋俊将, 小宮哲平, 中山裕文, 島岡隆行: ジオシンセティックスを用いた廃棄物埋立地キャッピングの雨水浸透制御効果の検討, 第 17 回廃棄物学会研究発表会講演論文集, pp.1014-1016, 2006.
- 18) 環境省: 平成 26 年度, 日本の廃棄物処理, P.9, 平成 28 年.
- 19) 矢島達也, 樋口壮太郎: 埋立廃棄物の資源化と CO₂ 排出量に関する研究, 第 26 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演原稿, pp23-24, 2015.
- 20) 土手裕, 関戸知雄: 廃棄物からの長期的重金属溶出に関する研究, 衛生工学シンポジウム論文集, Vol.13, pp.107-110, 2005.
- 21) 竹本昌弘: セメント固化体からの易溶性物質溶出モデルパラメータへの固化体作成条件の影響, 宮崎大学工学部社会環境システム工学科卒業論文, 2016.
- 22) 桑原泰隆: 高炉スラグを再利用した機能性材料の合成とその応用, まてりあ, Vol.55, No.7, pp.336-340, 2016.
- 23) Srivastava, S.K., Gupta, V.K., Mohan, D.: Removal of lead and chromium by activated slag - A blast-furnace waste, *Journal of Environmental Engineering*, Vol. 123, pp.461-468, 1997.