

令和 2 年 5 月 27 日現在

機関番号：37111

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06623

研究課題名(和文) 水銀廃棄物の埋立処分における水銀収支と埋立処分手法の提案

研究課題名(英文) Mercury mass balance in simulated landfill lysimeters of mercury wastes: Selection of stabilization methods and landfill conditions for long-term stability of landfilled mercury waste

研究代表者

柳瀬 龍二 (Yanase, Ryuji)

福岡大学・公立大学の部局等・教授

研究者番号：20131849

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は2013年10月に採択された「水銀に関する水俣条約」を受け、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀の挙動を埋立実験槽を用いて調査研究した。5年間に調査の結果、水銀廃棄物は黒色硫化水銀の状態では埋立処分した場合は浸出水等への水銀流出があり「埋立不適」であった。一方、黒色硫化水銀のセメント固化物を埋立処分した場合は、浸出水や大気拡散などの系外への流出率は0.001%以下で影響は小さく、埋立地内にほとんどの水銀が残存するなど、「埋立可能」であった。これらの結果から、水銀流出抑制の最適な埋立条件は水銀廃棄物の固化物、準好気性埋立地、埋立地の上層・中層域(非滞水層)、アルカリ廃棄物以外等であった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀流出抑制に必要な最適な条件は、廃水銀を硫化物化した黒色硫化水銀の固化物が対象となる。また、最適な埋立条件は洗浄した固化物を準好気性埋立地の表層・中層域の非滞水層へ埋立処分することで、浸出水や大気拡散による水銀の流出が法規制を満足でき、長期亘って水銀流出の抑制が可能で、水銀廃棄物の処理処分時の環境対策として提言できた。

研究成果の概要(英文)：The Minamata Convention on Mercury (2017) emphasized mercury (Hg) preventative management. Hg release from landfills poses serious health and environmental risks. We investigated Hg behavior of sulfurized/solidified Hg wastes using lysimeters simulated landfill to ensure the safety of landfilled Hg wastes. The five years lysimeter experiment showed sulfurized Hg (HgS) waste become unstable in landfill situations; dissolved Hg was detected in leachate. Cement solidification to HgS waste enhanced the stability in landfill situations; Hg emission from lysimeter with the solidified HgS waste was extremely low (less than 0.001%). And then, comparison of the lysimeter experiment for different landfill types and patterns indicated that semi-aerobic type landfill inhibited Hg emission and aquifer and alkaline components in landfill layer were related to Hg dissolution and diffusion.

研究分野：工学

キーワード：水銀廃棄物 埋立処分 水銀流出特性 水銀廃棄物の埋立手法

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

国内で発生した不要水銀含有製品や水銀含有廃棄物は、水銀専用の中間処理施設に回収・金属水銀に精製された後、国内外へ流通し国内に蓄蔵することはなかった。しかし、2017年水銀に関する条約が発効し、2020年以降は水銀の輸出入が原則禁止となり、水銀含有廃棄物等から回収した水銀が国内に蓄蔵する事になる。このため、国内で回収され水銀対策は「水銀による環境の汚染防止に関する法律」、「大気汚染防止法の一部を改正する法律」、「廃棄物の処理及び清掃に関する法律」等の整備が進められた。水銀の最終処分に関する法整備の中で、回収した水銀は特別管理廃棄物に指定され、埋立処分前に水銀の硫化物化後に固型化する、環境省令で定めた基準を適用し、その判定結果により管理型処分場又は遮断型処分場に埋立処分されること等が規定されている。

しかしながら、水銀廃棄物等の埋立処分に関する安全性などの研究が少ない現状にある。このため、硫化水銀の固化物を埋立処分する場合の長期的に安全に管理できる、多重防護を十分に考慮した具体的な埋立手法の確立が早急に求められている。

2. 研究の目的

本研究は、水銀廃棄物の埋立処分に伴う環境保全上の適切な処分手法の確立は急務であり、水銀廃棄物を埋立処分した際の水銀の挙動を2つの研究テーマから構成する。研究内容は(1)実処分場を模擬した埋立実験槽を用いて、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀(総水銀、メチル水銀)の浸出水への流出や大気拡散など、水銀の埋立地系外への流出特性を5年間に亘って検討し、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀の流出特性を把握する。また、埋立5年後に埋立実験槽を解体し、埋立廃棄物中の水銀残存量や溶出特性等から、埋立処分した5年後の水銀廃棄物中の水銀挙動を把握し、埋立廃棄物の違いや水銀廃棄物の埋立処分方法の違いによる、水銀廃棄物の最適な埋立手法を提案する。(2)埋立処分される水銀廃棄物に与える共存物質等の埋立環境を想定し、作成した水銀廃棄物(黒色硫化水銀、その固化物)の基本特性を把握するため、水銀廃棄物の物理的影響(未洗浄・洗浄)を考慮し、水銀の溶出や気化に与える影響等を検討する。これら水銀廃棄物の調査研究から、管理型処分場への水銀廃棄物の埋立処分を想定し、埋立廃棄物の違いや水銀廃棄物の埋立処分方法の違いによる、水銀廃棄物の最適な埋立手法を提案する。同時に、埋立処分の前提となる水銀廃棄物の地上保管時における最適な管理条件を提案する。

3. 研究の方法

(1) 埋立実験槽を用いた水銀廃棄物中の水銀の埋立特性の把握

3種類の水銀廃棄物が異なる形態(黒色硫化水銀やそのセメント固化物)で埋立処分された場合、埋立構造の違い(準好気性埋立、嫌気性埋立)及び埋立廃棄物(燃え殻単独、燃え殻と有機系汚泥の混合廃棄物)の違いなどの諸条件を踏まえ、浸出水への水銀の流出特性や水銀の気化特性を把握し、排水基準や環境基準等の法規制と比較検討する(表1、図1参照)。実験は定期的に散水(5mm/日)を2回/週に行い、調査は浸出水中の全水銀、メチル水銀、気化水銀(槽表面)及び、本研究に必要な項目(廃棄物等の初

表1 水銀廃棄物の埋立条件

実験槽	埋立構造	充填廃棄物(kg)		黒色硫化水銀		
		燃え殻	下水汚泥堆肥化物	充填方法	充填量(g)	
No.1	準好気性	27.2	6.8	黒色硫化水銀(混合型)	415	
No.2				黒色硫化水銀(層状型)	415	
No.3				セメント固化物(層状型)	492	
No.4				ブランク	-	
No.5	嫌気性	27.2	6.8	黒色硫化水銀(混合型)	415	
No.6				黒色硫化水銀(層状型)	415	
No.7				セメント固化物(層状型)	492	
No.8				ブランク	-	
No.9	準好気性	34	-	黒色硫化水銀(混合型)	415	
No.10				ブランク	-	
No.11				嫌気性	黒色硫化水銀(混合型)	415
No.12				ブランク	-	

期値、浸出水の pH, COD, Cl<sup>-</sup>, ガス質等) について定期的の実施した。また、埋立 5 年後に埋立

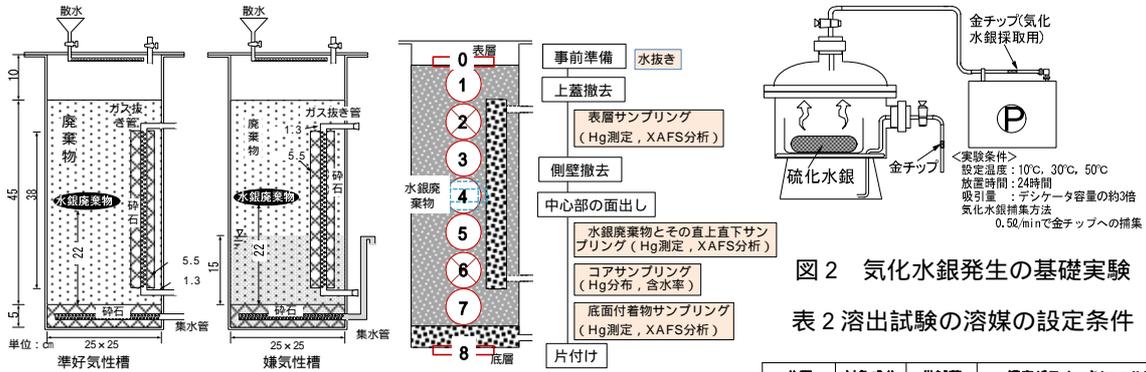


図 2 気化水銀発生の基礎実験

表 2 溶出試験の溶媒の設定条件

分類	対象成分	供試薬	濃度パラメータ(mg/L)		
陽イオン	Na <sup>+</sup>	NaNO <sub>3</sub>	100	1,000	10,000
	Ca <sup>2+</sup>	Ca(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	100	1,000	10,000
	K <sup>+</sup>	KNO <sub>3</sub>	100	1,000	10,000
陰イオン	Cl <sup>-</sup>	NaCl	50	500	10,000
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NaNO <sub>3</sub>	50	300	3,000
	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	50	500	2,000
酸化剤	FeCl <sub>3</sub>	FeCl <sub>3</sub>	10	500	10,000
PH	pH	HNO <sub>3</sub> NaOH	3, 5, 7, 9, 11		

埋立実験槽(左: 準好気性, 右: 嫌気性) 解体要領

図 1 水銀廃棄物の埋立槽図と解体要領

実験槽を解体し、上・中・下層毎の解体廃棄物の水銀含有

量(総水銀、メチル水銀) 溶出試験、気化水銀及び XAFS 分析等を行った。

(2) 水銀廃棄物(黒色硫化水銀やそのセメント固化物)の流出特性や気化特性を把握するため、共存イオンの影響や温度の影響等の基礎実験を調査し、水銀の流出特性を検証する(図 2、表 2 参照)。

#### 4. 研究成果

水銀廃棄物の 5 年間に亘る埋立実験を通して得られた実験結果から、水銀廃棄物の 3 種類の埋立処分手法による水銀の環境負荷抑制に最適な埋立条件の比較を表 3 に示した。

表 3 水銀廃棄物の環境負荷抑制のための埋立条件

埋立廃棄物	埋立構造	水銀廃棄物の埋立方法	5年間の経時変化			解体後(5年後)の廃棄物			総合
			T-Hg (浸出水)	M-Hg (浸出水)	V-Hg (気化水銀)	T-Hg (含有)	T-Hg (溶出)	M-Hg (含有)	
混合廃棄物	準好気性槽	混合槽	×	△	×	-	×	△	×
		層状槽	△	△	○	-	△	△	△
		固化物槽	○	○	○	-	○	○	○
	嫌気性槽	混合槽	×	△	×	-	×	△	×
		層状槽	×	△	○	△	△	△	×
		固化物槽	△	△	○	△	○	△	△
燃え殻単独	準好気性槽	混合槽	×	△	×	-	×	△	×
	嫌気性槽	混合槽	△	△	×	-	×	△	×

T-Hg・V-Hg : ○規制基準値以下, △埋立期間中に規制基準値を超え, ×: 規制基準値を超える  
M-Hg : ○メチル水銀の生成可能性が小, △: 生成の可能性・不明

ア) 黒色硫化水銀を廃棄物と混合埋立する手法(混合槽)

黒色硫化水銀単体を廃棄物(混合廃棄物や燃え殻単独)と混合埋立処分した場合は、埋立構造に関係なく水銀が浸出水や大気拡散などを經由して埋立地系外へ流出し、排水基準や環境基準などの法規制値を超える可能性がある。また、黒色硫化水銀はアルカリ性環境下では二硫化水銀に再溶解する懸念が確認されたことから、高アルカリ領域の環境下やアルカリ廃棄物への単独埋立処分は不適である。メチル水銀も極微量生成している可能性もあることから、これらを総合的判断すると「埋立処分不可」と判定できる。

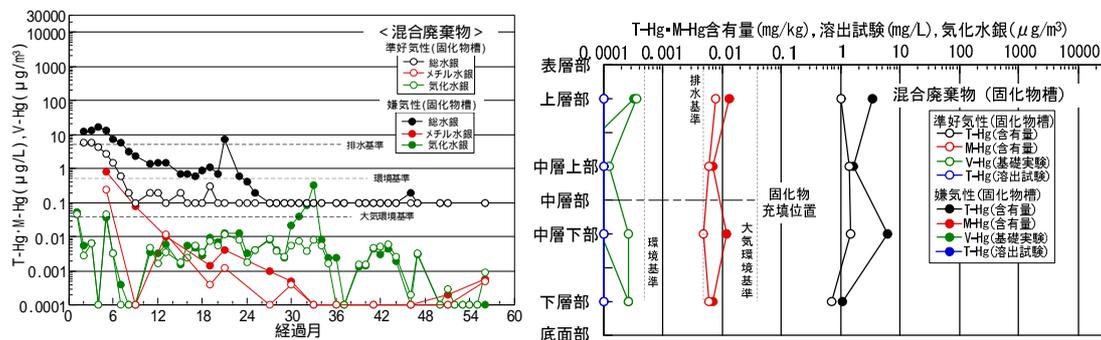
イ) 黒色硫化水銀を槽中央部に一塊で埋立処分する方法(層状槽)

黒色硫化水銀を埋立実験槽中央部に一塊で埋立処分した場合、準好気性・嫌気性に関係なく、充填した黒色硫化水銀の直上又は直下の廃棄物中の水銀含有量が高くなる傾向にあり、黒色硫化水銀中の水銀が廃棄物へ移動している。特に、実験槽下層部が帯水(15 cm)した嫌気性槽で

は、槽上部からの散水による浸出水（保有水）の一過性による通過と、廃棄物や充填した一塊の黑色硫化水銀周辺の高含水率化により、充填した黑色硫化水銀の塊が攪乱され、その直下の廃棄物中の水銀含有量が高くなる傾向を示し、長期に亘って水銀の浸出水への流出現象も起きている事から、嫌気性埋立の場合は「埋立処分不可」の判定である。一方で、準好気性埋立の場合は、一塊で充填した黑色硫化水銀の直下で廃棄物中の水銀含有量が高くなっているものの、浸出水への水銀流出は埋立初期に SS 由来で流出しているが、その後は環境基準以下又は不検出で推移していることから、埋立初期の水銀対策等を実施することで、「条件付きの埋立処分可能」と判定できる。

#### ウ) 水銀廃棄物の固化物を槽中央部に埋立処分する方法（固化物槽）

黑色硫化水銀をセメント固型化した固化物を槽中央部に埋立処分した場合、嫌気性埋立において「層状槽」と同様に、固化物周辺の含水率が高くなっているが、固化物自体は解体時の状況も充填時と大きな変化はなく、埋立初期に SS 由来の水銀が短期間流出している程度である事から、埋立初期の対策を実施することで「条件付きの埋立処分可能」と判定できる。一方、固化物を準好気性埋立地に埋立処分した場合、埋立初期から浸出水や気化水銀などの規制値を概ね満足し、固化物中の水銀の廃棄物への移動もほとんどなく、更には、メチル水銀もほとんど生成していない状況にあることから、水銀廃棄物の固化物を準好気性埋立構造を有する埋立地への埋立処分は「埋立処分可能」と判定できる（図3参照）。



浸出水中の水銀と気化水銀の経時変化 層状別解体廃棄物中の水銀含有量・溶出試験・気化水銀

図3 黑色硫化水銀のセメント固化物を槽中央部に充填した固化物槽（準好気性・嫌気性）

#### エ) 水銀廃棄物の固化物の埋立処分前の対策

本実験における水銀廃棄物を埋立処分する最適条件は、黑色硫化水銀をセメント固型化した固化物を埋立処分手法が適正していることが確認できたが、作成したセメント固化物は埋立処分する前に一時地上保管する事が想定される。そこで、本研究の基礎実験から得られた結果、「作成した固化物を一端洗浄することで、固化物に付着している水銀を洗浄・除去でき、固化物からの水銀溶出量や気化水銀発生量を大幅に抑制できる」ことから、水銀廃棄物の埋立処分の最適条件に、固化物の埋立事前洗浄プロセスを導入することで、更に、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀リスクを大幅に抑制できる効果が見込める事が想定できる。

#### オ) 総括

本埋立実験と基礎実験より得られた研究成果から、水銀廃棄物の固化物の地上保管から埋立処分における水銀廃棄物の適正処理における水銀による環境負荷手減のための最適な条件を提案する。埋立処分された水銀廃棄物中の水銀は、浸出水への水銀流出や水銀の大気拡散によって埋立地系外へ流出し、流出した水銀量は浸出水への流出が大部分を占め、充填水銀量に対する水銀流出率は最大で 0.1% 以下であり、水銀廃棄物中の水銀はほとんど埋立実験槽内に残

存し、流出しにくいことが確認できた。更に、本実験で使用した黒色硫化水銀は埋立5年後の水銀の化学形態も黒色硫化水銀であり、非常に安定していることを確認した。一方で、埋立処分前の固化物の洗浄対策は、同時に浸出水への水銀流出を抑制対策としても重要と考えられることから、固化物の事前洗浄による水銀の流出抑制効果が得られている。

以上、3種類の水銀廃棄物と廃棄物の約5年間に亘る埋立実験と気化水銀及び基礎実験結果から、水銀廃棄物の埋立処分に伴う水銀の環境負荷低減を確保した埋立手法の最適条件は図4のとおりである

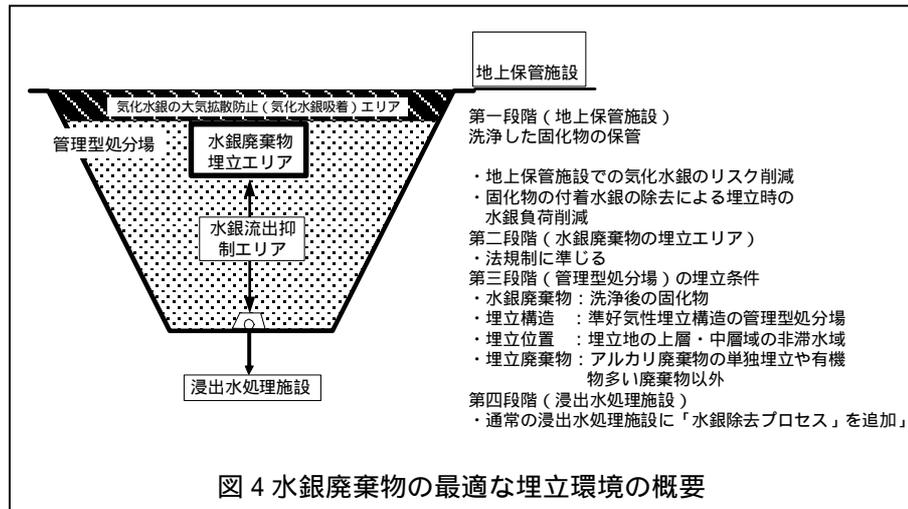


図4 水銀廃棄物の最適な埋立環境の概要

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 佐野 彰, 加藤 貴史, 柳瀬 龍二, 川瀬 敬三, 高岡 昌輝
2. 発表標題 中間処理された水銀廃棄物の埋立処分環境に対する安定性評価,
3. 学会等名 第41回全国都市清掃研究・事例発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 川瀬 敬三, 柳瀬 龍二, 松藤 康司, 佐野 彰, 高岡 昌輝, 高橋 史武
2. 発表標題 水銀廃棄物固化体の埋立処分に伴う水銀気化特性の検討(その3)
3. 学会等名 第41回全国都市清掃研究・事例発表会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	佐野 彰  (Sano Akira)  (90432070)	福岡大学・工学部・助教    (37111)	