

令和 6 年 6 月 15 日現在

機関番号：32685

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20K12227

研究課題名（和文）焼却灰埋立層の二酸化炭素高溶存溶液による中和機構の検討

研究課題名（英文）Investigation of neutralization mechanism of incinerated ash landfill layer by highly dissolved solution of carbon dioxide

研究代表者

宮脇 健太郎（Miyawaki, Kentaro）

明星大学・理工学部・教授

研究者番号：00289521

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、浸出水pHの高い廃棄物最終処分場を想定し、焼却灰層に二酸化炭素高溶存溶液を注入することで、焼却灰層の緩やかな中和を検討した。約1400mg-CO₂/L程度の溶液を生成し、ガラスビーズ模擬埋立層を通過させ一定程度のCO₂供給が可能であることを確認した。また、焼却灰層に溶液を通水し、模擬浸出水pHが低下することを確認した。通水後の焼却灰粒子表面のSEM-EDX計測より炭酸カルシウムの生成を推定した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

学術的意義としては、CO₂は水への溶存性が高い気体であり、CO₂を溶存させたウルトラファインバブル（UFB）の計測事例はほとんど存在しなかった。本研究でUFB計数を実施したところ、今回の実験条件では存在量は少ないことが明らかとなった。社会的意義としては、二酸化炭素高溶存溶液を用いることで焼却灰層の穏やかな中和を進め、安定的に浸出水pHを低下させることが可能であることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：Assuming a final waste landfill with high leachate pH, this study investigated the gradual neutralization of an incinerator ash layer by injecting a high CO₂ dissolved solution into the incinerator ash layer. A solution of about 1400 mg-CO₂/L was generated, and it was confirmed that a certain level of CO₂ supply was possible by passing the solution through a glass bead simulated landfill layer. The solution was also passed through the incinerator ash layer, and it was confirmed that the pH of the simulated leachate decreased. The formation of calcium carbonate was estimated from SEM-EDX measurements of the incinerated ash particle surfaces after the experiment.

研究分野：廃棄物工学

キーワード：焼却灰中和 ウルトラファインバブル 浸出水pH

1. 研究開始当初の背景

現在、一般廃棄物最終処分場への搬入物は約 80%が焼却残渣となっている。焼却残渣（焼却灰、焼却飛灰）はアルカリ性物質を多く含み、長期間にわたり埋立廃棄物層の pH は高い状態で推移する。処分場のボーリング調査を実施した経験があり、埋立層は長期間経過後も pH10.5 程度であることを確認している。間隙を浸透し流出する浸出水はアルカリ性となるが、現在の日本の標準的な廃棄物埋立構造である準好気性埋立構造では、浸出水集排水管近傍で流入した大気中 CO₂ により浸出水は中和されると考えられている。しかし、古い処分場や海面処分場では、高 pH 浸出水の流出が長期間にわたる事例が報告されている。また、将来的な跡地利用などで埋立状況が変化した場合に、高 pH 浸出水が発生する懸念がある。

焼却灰の CO₂ ガスによる中和の検討は古くから存在し、近年、多くの研究者により焼却残渣の重金属固定高濃度 CO₂ ガスによる埋立前の焼却灰の中和についても検討が進んでいる。代表研究者も、大気通気により大気中 CO₂ のみでも浸出水 pH を低減することを確認し報告してきた（科研費基盤研究 (C) 2014-2016）。しかし、実際の既埋立区域での埋立層への気体注入は困難であり、代表研究者らは溶液として CO₂ を供給する可能性を検討していた。

気体を高濃度で水中に溶解する技術として、近年、ウルトラファインバブル (UFB) という技術が注目されており、CO₂ 溶存 UFB 水については土壤汚染修復分野でも油汚染土壌洗浄に適応できる技術が検討されている。また UFB は微細空隙にも溶存した気体を供給可能と言われ、移動特性について検討が行われてい。しかし、不飽和間隙への供給、微細空隙での中和反応については、機構など詳細検討事例は少なかった。なお、研究当初、正確に UFB の計数(数および径)が可能な分析法は存在しなかった。

2. 研究の目的

焼却灰層の二酸化炭素による中和において、過去の気体通気の研究から粒子表面の炭酸化が確認されているが、内部のアルカリ性物質（主に Ca(OH)₂）まで十分に反応しないことが課題となっている（図 1 参照）。本研究では、二酸化炭素高溶存溶液を焼却灰層に供給し間隙部分の中和を進め、浸出水 pH を低下させること、非反応性のガラスビーズを模擬埋立層として用い間隙を流下する際の溶液の変化（溶存 CO₂ の減少の度合い）を確認すること、また最終段階では、ウルトラファインバブル(UFB)を用いて炭酸化を行った際の多孔質状に生成した CaCO₃ 層を確認し、粒子内の微細空隙で CO₂ により中和される機構について表面分析などを利用し解明することを目的とした。

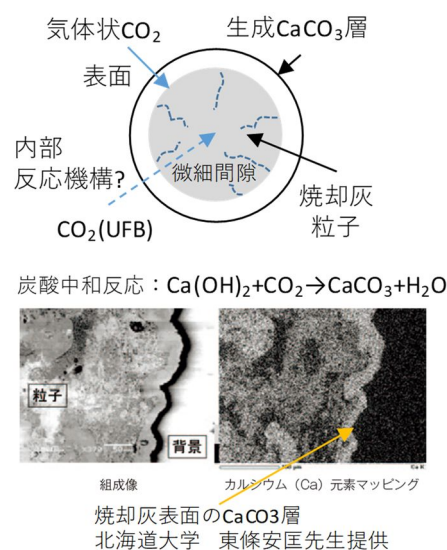


図 1 焼却灰表面・内部反応イメージ

3. 研究の方法

基本的に、申請書に記載の研究を実施した。

1) 焼却灰層 (反応状態) を用いた CO₂ 吸収の実験的検討

焼却灰埋立層への二酸化炭素溶存溶液（炭酸水）の供給事例はないことから、飽和状態で二酸化炭素を溶存させた溶液（CO₂ 水）ウルトラファインバブル (UFB) を用いて二酸化炭素溶存量を高めた溶液（CO₂-UFB 水）を焼却灰層に供給することで、焼却灰表面が炭酸化されるかということを検討した。各種条件で焼却灰を充填したカラム (直径 mm 充填厚 150mm) に溶液 (CO₂ 水、CO₂-UFB 水、純水など) を通水し、流出液 (模擬浸出水) の pH、無機炭素 IC、Ca 濃度、その他金属類の計測を実施した。試験後の焼却灰について上中下層で溶出試験を行った。

2) ガラスビーズ層 (非反応状態) を用いた CO₂ 溶存状態変化の実験的検討

直径 50mm、ガラスビーズ層厚 150mm または 1000mm のカラムに、流量を段階的に変更して CO₂-UFB 水を供給し、流出液の IC を計測した。また、一部試験では、研究最終年頃実用化された、ウルトラファインバブルの計数装置を用いて、バブル数、平均粒径等を計測した (外部分析依頼)。

3) 焼却灰表面での反応機構解明の検討

二酸化炭素高溶存溶液を接触中和させた焼却灰について、焼却灰表面の表面分析 (SEM 観察、SEM-EDX 分析) を行った。

4. 研究成果

研究期間で得られた成果のうち一部を報告する。

1) 焼却灰層 (反応状態) を用いた CO₂ 吸収の実験的検討

多数試験を実施し、学会発表も行ったが、焼却灰の不均一性から再現性については問題が残っ

た。最終段階の試験結果として、図2に浸出水 pH (CO₂ 水、純水) を示す。二酸化炭素高溶存溶液を通水すると、浸出水 pH が低下することが確認された。併せて図3に IC 濃度を示す。CO₂ 水では pH 低下と共に IC が上昇しており、中和が終了し未反応 IC が増加することが確認された。図4に CO₂-UFB 水を用いた条件での浸出水 pH、IC、Ca を示した。充填条件が図2,3 とは異なるため L/S の状況は異なるが、pH 低下とともに IC 上昇、Ca 濃度変化は、CO₂ 水同等の傾向が認められる。また、試験後の焼却灰の溶出試験(環告13号)により、上層より中和が進行していることが確認できた。

2) ガラスビーズ層(非反応状態)を用いた CO₂ 溶存状態変化の実験的検討

図5に、ガラスビーズ層厚および流入水量を変化させた流出液 IC の変化を示す(縦軸: 流出 IC/流入 IC)。流入量が少ない条件では、IC の減衰が大きいことが分かった。また、層厚を変化させても流入水量が多い条件では、40%程度は保持され、十分間隙中に CO₂ を供給できることが推測された。

UFB 計測については、事前に想定した溶存性の高い気体の場合バブルがあまり存在できない懸念があった。実測でも、CO₂ 水、CO₂-UFB 水ともに 10⁶ 個/mL 程度で差が認められなかった。このことは、UFB として存在する量は微量である可能性を示した。現在、継続して UFB 存在量を増加させる条件について検討御行っている。

3) 焼却灰表面での反応機構解明の検討

カラム試験終了後の焼却灰について、脱気乾燥後、SEM 観察を行った。また、併せて SEM-EDX での観察を行った。一部の例を示す。図6に未処理焼却灰表面を、反応後焼却灰表面を、図7に EDX スペクトルおよび表1に含有元素原子数濃度を示す。多孔質状の CaCO₃ の生成が認められた。

CO₂ を溶液で供給し、一定深さの焼却灰層を中和することが可能なことが確認でき、実用に向けた第一歩のデータが取得できたと考えられる。なお、途中にも記載したが、CO₂ の UFB 存在量については、通常の大気と異なり少ないことが推測されたことから、現在も条件等検討を継続している。

その他、分担研究者による焼却灰由来の浸出液に対する二酸化炭素吸収速度の検討を実施し、pH と二酸化炭素吸収速度との間には相関性があることなど有用な知見が得られた。

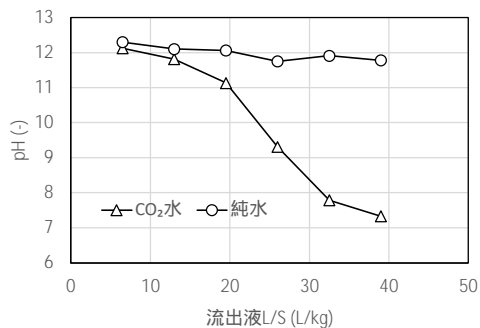


図2 流出液 pH

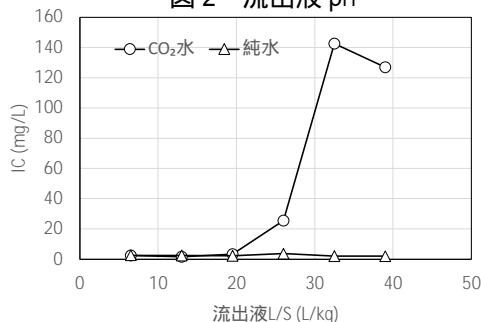


図3 流出液 IC

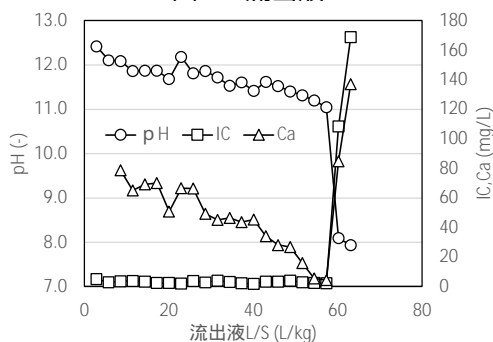


図4 流出液 pH, IC, Ca (CO₂-UFB 水)

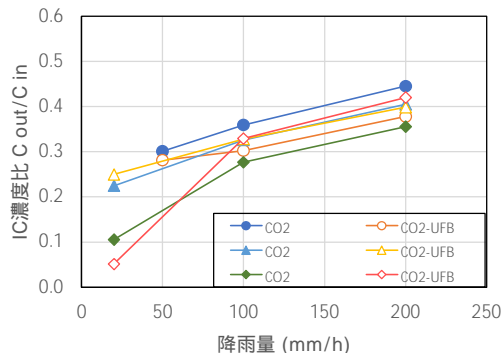


図5 IC 濃度比 (ガラスビーズ層)

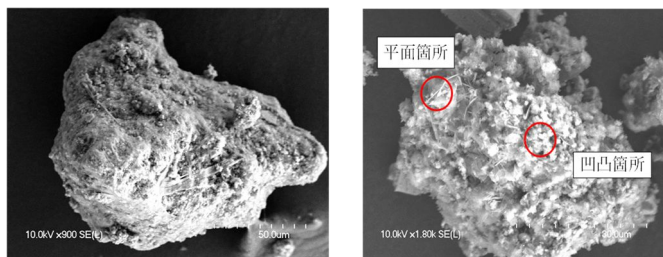


図6 SEM 画像 (未処理、反応後)

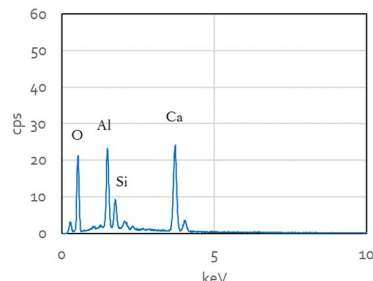


図7 EDX スペクトル (凹凸部)

表1 EDX 原子数濃度

元素	6 C	8 O	11 Na	12 Mg	
原子数濃度(%)	9.81	56.89	0.52	0.49	
元素	13 Al	14 Si	17 Cl	20 Ca	合計
原子数濃度(%)	9.78	4.17	0.26	18.08	100

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Kentaro Miyawaki
2. 発表標題 Significant change in leachate quality due to the transition to ash landfilling in Japan
3. 学会等名 Asian Pacific Landfill Symposium Thai 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松本 紋奈, 宮脇健太郎
2. 発表標題 CO2-UFB水の表面積ごとの気相への移行
3. 学会等名 令和4年度廃棄物資源循環学会関東支部研究発表会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 藤本真, 宮脇健太郎
2. 発表標題 最終処分場の高pH浸出水対策技術の検討
3. 学会等名 令和4年度廃棄物資源循環学会関東支部研究発表会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 岸智央, 宮脇健太郎
2. 発表標題 焼却灰埋立層のCO2-UFB水を用いた中和
3. 学会等名 令和4年度廃棄物資源循環学会関東支部研究発表会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 宮脇健太郎、大内洋諒、菱山敦子
2. 発表標題 二酸化炭素高溶存溶液を用いた焼却灰埋立層中和の検討
3. 学会等名 廃棄物資源循環学会研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 藤本真、宮脇健太郎
2. 発表標題 海面処分場の集排水施設（内水ポンド）を想定した大気中CO2模擬実験
3. 学会等名 廃棄物資源循環学会関東支部研究発表会（概要なし）
4. 発表年 2021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	遠藤 和人 (Endo Kazuto) (10353533)	国立研究開発法人国立環境研究所・福島支部・室長 (82101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------