

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

研究区分 : 環境問題対応型研究（ミディアムファンディング枠）

研究実施期間 : 2022（令和4）年度～2024（令和6）年度

課題番号 : 3MF-2204

体系的番号 : JPMEERF20223M04

研究課題名 : 海面処分場安定化と残留キレート分解に関する研究

Project Title : Study on Stabilization of Sea Area Landfill Sites and Decomposition of Residual Chelate

研究代表者 : 樋口 壮太郎

研究代表機関 : 特定非営利活動法人環境技術支援ネットワーク

研究分担機関 : 福岡大学

キーワード : 海面処分場、エアリフトポンプ、電気分解、pH、残留キレート

2025（令和7）年5月



環境研究総合推進費
Environment Research and Technology Development Fund



独立行政法人
環境再生保全機構
ERCA Environmental Restoration and Conservation Agency

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書	1
研究課題情報	4
<基本情報>	4
<研究体制>	4
<研究経費>	5
<研究の全体概要図>	6
1. 研究成果	7
1. 1. 研究背景	7
1. 2. 研究目的	7
1. 3. 研究目標	8
1. 4. 研究内容・研究結果	9
1. 4. 1. 研究内容	10
1. 4. 2. 研究結果及び考察	12
1. 5. 研究成果及び自己評価	23
1. 5. 1. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献	23
1. 5. 2. 研究成果に基づく研究目標の達成状況及び自己評価	24
1. 6. 研究成果発表状況の概要	26
1. 6. 1. 研究成果発表の件数	26
1. 6. 2. 主要な研究成果発表	26
1. 6. 3. 主要な研究成果普及活動	26
1. 7. 國際共同研究等の状況	27
1. 8. 研究者略歴	27
2. 研究成果発表の一覧	28
(1) 産業財産権	28
(2) 論文	28
(3) 著書	29
(4) 口頭発表・ポスター発表	29
(5) 「国民との科学・技術対話」の実施	29
(6) マスメディア等への公表・報道等	29
(7) 研究成果による受賞	29
(8) その他の成果発表	30
権利表示・義務記載	30

Abstract

研究課題情報

<基本情報>

研究区分 :	環境問題対応型研究（ミディアムファンディング枠）
研究実施期間 :	2022（令和4）年度～2024（令和6）年度
研究領域 :	資源循環領域
重点課題 :	【重点課題12】社会構造の変化に対応した持続可能な廃棄物の適正処理の確保に関する研究・技術開発
行政ニーズ :	
課題番号 :	3MF-2204
体系的番号 :	JPMEERF20223M04
研究課題名 :	海面処分場安定化と残留キレート分解に関する研究
研究代表者 :	樋口 壮太郎
研究代表機関 :	特定非営利活動法人環境技術支援ネットワーク
研究分担機関 :	福岡大学
研究協力機関 :	該当なし

<研究体制>

サブテーマ1 海面処分場安定化

<サブテーマリーダー（STL）、研究分担者、及び研究協力者>

役割	機関名	部署名	役職名	氏名	一時参画期間
リーダー	環境技術支援ネットワーク		理事長	樋口壯太郎	
協力者	環境技術支援ネットワーク		研究員	劉 佳星	2022年度
協力者	福岡大学	大学院工学研究科博士後期課程	なし	愈 靈傑	2022年10月～2025年3月
協力者	福岡大学	大学院工学研究科修士課程	なし	潘 剑来	2022年10月～2023年3月

サブテーマ2 残留キレート分解

<サブテーマリーダー（STL）、研究分担者、及び研究協力者>

役割	機関名	部署名	役職名	氏名	一時参画期間
リーダー	福岡大学	工学部	准教授	為田一雄	
協力者	福岡大学	環境保全センター	助教	劉 佳星	2023年4月～ 2024年度

<研究経費>

<研究課題全体の研究経費（円）>

年度	直接経費	間接経費	経費合計	契約上限額
2022	14,929,971	3,440,029	18,370,000	18370000
2023	15,399,380	3,538,620	18,938,000	18938000
2024	13,874,276	4,128,000	17,888,000	17888000
全期間	44,089,351	11,106,649	55,196,000	55196000

<研究の全体概要図>

焼却施設と最終処分場統合管理システムに関する研究

代表研究機関: 特定非営利活動法人環境技術支援ネットワーク

研究背景

現在の最終処分場の課題は塩類問題と残留キレートによる浸出水処理阻害、安定化阻害

- ・塩類問題解決には海面処分場が適している
- ・海面処分場設置数は日本の1.5%であるが処分容量は40.1%と大きなウエイトを占めている。(国際的にも事例が少なく日本特有の処分場)
- ・しかし海面処分場は構造上、水質安定化が遅い
- ・残留キレートとキレート由来のCOD、窒素は浸出水処理阻害要因となっている
- ・キレートは魚類への生物毒性が強い
- ・残留キレート類の分解技術がないので洗い出しによる減少を待つかない。

廃棄物管理コストの上昇

海面処分場の安定化促進が必要

残留キレート類の分解技術が必要

これまでの研究で分かったこと

- ・同じ焼却残渣を用いた内陸と海面埋立模擬実験では内陸分場の方が圧倒的に安定化が早い。
- ・海面埋立の水中部(底部)の廃棄物の安定化は半永久的に不可能。
- ・安定化のためには浸透水の層内移動や空気流入等が必要である
- ・残留キレート分解の可能性は確認できたがキレート由来の窒素等の分解は困難

本研究内容

NPO環境技術支援
ネットワーク(代表研究機関)

海面処分場の安定化

- ・エアリフトポンプによる底部取水、空気供給に着目
- ・模擬埋立槽による長期実験により効果の確認を行う。

残留キレート類分解

- ・逆浸透膜による分離、電気透析膜法による分解実験
- ・残留キレート分解後、硝化実験
- ・残留キレート分離、分解後のバイオアッセイ調査による安全性確認。
- ・DTC系、PIP系について実施する。

福岡大学(分担研究機関)

目標

- ・海面処分場の水面下の安定化が進行すること
- ・海面処分場安定化のためのエアリフトポンプ等の配置、規模目安の設定
- ・残留キレートおよびキレート由来の難分解性物質の分離分解技術の確立

1. 研究成果

1. 1. 研究背景

国土が狭く最終処分場用地の確保が困難な我が国は焼却等中間処理による減容化、無害化を図ったのちに残渣を埋立処分することを廃棄物管理の基本としてきた。その結果、最終処分場においては焼却時の排ガス脱塩に起因する「塩類問題」、「高アルカリ問題」と飛灰安定化処理に伴う「残留キレートおよびキレート由来のCOD、T-N問題」が適正管理上の課題となっている。「塩類問題」については、海面処分場は高濃度無機塩類を含む我が国の埋立ごみに適合しており、塩類問題解決に適した処分場である。「高アルカリ問題」は内陸処分場では準好気性埋立に代表される埋立構造から、空気との接触機会が多いので中性化が早いが、海面処分場においては水中に埋立処分するため、空気との接触は殆どなく、嫌気的状態となるので高pH状態が長期間継続され、廃止阻害要因となっている。「残留キレートおよびキレート由来のCOD、T-N問題」については、内陸、海面双方の課題であるが、特に海面処分場は底部の浸透水を取水処理するのではなく、余水と呼ばれる表流水の処理を行い、外部に放流される。余水はポンドと称する水面に集められ、この余水の水質が安定化の目安となり、余水が排水基準以下になれば廃止することができる。このため水面下の浸透水は封じ込めの状態で、処理対象とはなっておらず、廃止後も水面下に汚濁負荷の高い廃棄物が封じ込まれることになっており、次世代に負の遺産として引き継がれることになる。

1. 2. 研究目的

海面処分場の真の早期安定化のためには①余水の安定化だけではなく、浸透水の安定化も必要であると考え、余水と浸透水の循環により、埋立層全体を安定化させる必要がある。現在の海面処分場には底部集水管や底部浸透水の取水設備がなく、海面処分場構造を変える必要がある。このため、水面下の浸透水をエアリフトポンプにより汲み上げ、余水と混合循環する構造を組み込んだ埋立構造を研究提案する。②残留キレートおよびキレート由来のCOD、T-N問題については余水水質に適した新しい水処理方式として電気分解法について研究開発を行う。このため、脱塩剤2種類（高反応石灰、重曹）、飛灰安定化剤3種類（PIP系キレート剤、DTC系キレート剤、無機リン系安定化剤）および埋立構造2種類（従来型、エアリフトポンプによる循環型）、計12ケースの模擬埋立実験をおこない、早期安定型海面処分場の研究開発と電気分解による余水処理施設の研究開発を行うことを目的とした。さらに海面処分に適した排ガス脱塩剤と飛灰安定化剤の提案を行うことを目的とした。

1. 3. 研究目標

<全体の研究目標>

研究課題名	海面処分場安定化と残留キレート分解に関する研究
全体目標	<ul style="list-style-type: none"> ・海面処分場安定化のためにエアリフトポンプ等により取水、循環、空気供給による中性化が進行し、水面下の安定化進行が進むこと。 ・安定化を進行させるための揚水ピットの配置、エアリフトポンプ規模設定の目安を付けること。 ・残留キレートおよびキレート由来のCOD、窒素の分離、分解技術の確立を行うこと。

<サブテーマ1の研究目標>

サブテーマ1名	海面処分場安定化
サブテーマ1実施機関	特定非営利活動法人環境技術支援ネットワーク
サブテーマ1目標	<ul style="list-style-type: none"> ・海面処分場安定化のためにエアリフトポンプ等により取水、循環、空気供給による中性化が進行し、水面下の安定化進行が進むこと。 ・安定化を進行させるための揚水ピットの配置、エアリフトポンプ規模設定の目安を付けること。

<サブテーマ2の研究目標>

サブテーマ2名	残留キレート分解
サブテーマ2実施機関	福岡大学
サブテーマ2目標	<ul style="list-style-type: none"> ・残留キレートおよびキレート由来のCOD、窒素の分離、分解技術の確立を行うこと。 ・上記技術により分解された浸出水等が水環境中の生物に影響を与えないことを確認する。

1. 4. 研究内容・研究結果

1. 4. 1. 研究内容

[全体]

本研究課題では海面処分場が抱える課題として水質安定化の遅延があり、その解決策としてエアリフトポンプにより、水面下の浸透水を揚水し余水と循環混合することによりpHの低下とCOD、窒素の早期安定化研究を行った。また余水処理における難分解性有機物である残留キレート、CODおよび窒素を電気分解により分解処理する技術の開発研究を行った。

[サブテーマ1]

これまでの研究で海面処分場の安定化遅延要因として水面下の浸透水が滞留したままの浸漬状態であるため、酸化されず、高pH、残留キレート、キレート由来のCODと窒素が高濃度かつ長期的に継続されることが判った。そこで幅1,000mm×長さ2,000mm×有効深さ1,000mmの鋼板製とSUS製模擬埋立層6基を設置し、海水を500mm充填し、焼却残渣を水面消失まで10回に分けて投入（1回/週）するとともに人工散水を行う。各模擬埋立層はそれぞれ従来型（余水取水）とエアリフトポンプが設置された底部取水循環型（循環型）の2槽にわかれています。6基、12槽で構成されています。そのうち3基、6槽には排ガス処理脱塩剤に高反応石灰を使用した焼却施設からの焼却残渣を飛灰と主灰を重量比3:7で充填した。3層の違いは飛灰の安定化剤にPIP系有機キレート、DTC系有機キレートおよび無機リン系安定化剤を使用したものとの違いである。残りの3基、6槽には排ガス処理脱塩剤に重曹を用いた焼却残渣を用い、同様に、飛灰安定化剤3種類と従来型、循環型の2つのタイプとした。写真1に模擬埋立槽の写真、図1、図2に模擬埋立槽概要図、表1に12ケースの実験条件を示した。また写真2に埋立中写真を図3に模擬埋立槽への焼却残渣投入概念図を示した。



写真1 埋立槽設置状況

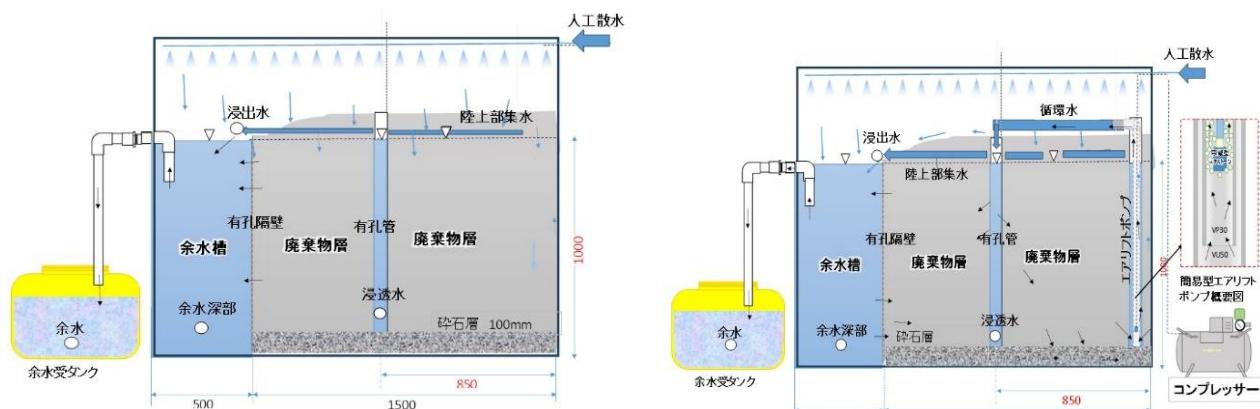


図1 従来型模擬埋立槽

図2 循環型模擬埋立槽

表1 模擬埋立槽と実験諸元

模擬埋立槽番号	RUN1	RUN2	RUN3	RUN4	RUN5	RUN6	RUN7	RUN8	RUN9	RUN10	RUN11	RUN12
形式	循環型	従来型	循環型	従来型	循環型	従来型	循環型	従来型	循環型	従来型	循環型	従来型
実験供試体焼却残渣	K市ストーカ式焼却施設 排ガス処理方法：乾式 脱塩剤：高反応石灰 ($\text{Ca}(\text{OH})_2$)						W市ストーカ式焼却施設 排ガス処理方法：乾式 脱塩剤：重曹 (NaHCO_3)					
形式寸法	各槽1,500 L (幅500 mm×長さ2,000 mm×高さ1,500 mm) 総計：18,000 L											
底部碎石層	各槽高さ100 mm, 75 L 総計：900 L											
廃棄物有効充填容積	各槽750 L (幅500 mm×長さ1,500 mm×高さ1,000 mm) 総計：9,000 L											
余水槽有効容積	各槽250 L (幅500 mm×長さ500 mm×高さ1,000 mm) 総計：3,000 L											
初期海水充填高さ	各槽高さ1,000 mm, 1,000 L 総計：12,000 L											
焼却残渣 (乾燥灰)	飛灰	各槽142 kg 総計852 kg				各槽126 kg 総計756 kg						
	主灰	各槽567 kg 総計3,402 kg				各槽504 kg 総計3,024 kg						
計		各槽709 kg 総計4,254 kg				各槽630 kg 総計3,780 kg						
混合灰の比重	0.99											0.84
飛灰安定化剤添加率 と添加量	PIP系：2.5 % (S-803)	DTG系：2.5 % (S-814)	りん系：18 % (R-101)		PIP系：2.5 % (S-803)	DTG系：2.5 % (S-814)	りん系：2 % (R-101)					
	3.65 kg	3.65 kg	26.3 kg		3.25 kg	3.25 kg	2.6 kg					
最終埋立槽浸漬高さ と浸漬水量	各槽900 mm, 226 L, 総計1,356 L											各槽900 mm, 287 L, 総計1,722 L
エアリフト空気注入量	2 L/分	—	2 L/分	—	2 L/分	—	2 L/分	—	2 L/分	—	2 L/分	—
人工散水	32.6 L/週/1槽											



水面埋立中



水面消失後、循環水は浸透水採取孔に返送、
上部に廃棄物1層を積み増し埋立

写真2 埋立中写真

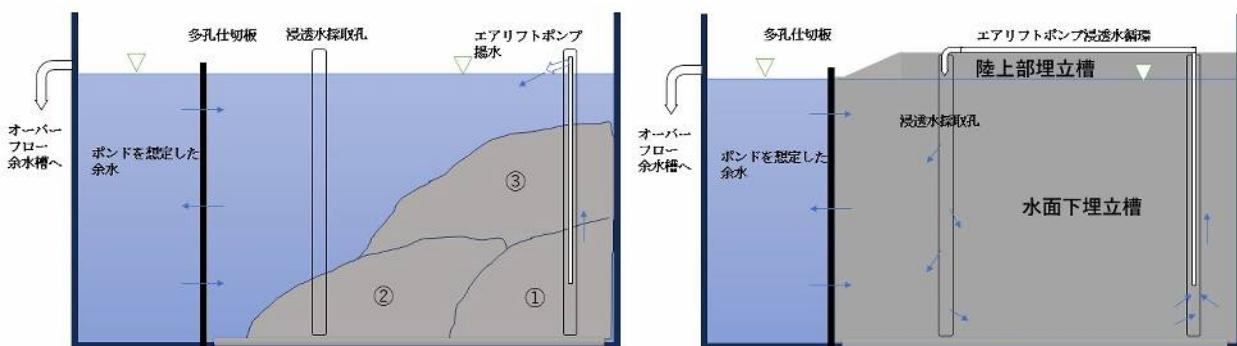


図3 埋立手順概要図

[サブテーマ2]

これまでの研究でオゾン等で残留キレート分解は可能であることを確認したがキレート由来のCOD、窒素の分解ができないため、模擬埋立槽余水等を用いて、電気分解法による処理実験を行った。図4に電気分解概略図と実験に用いた装置仕様を表2に示した。本装置はバイポーラ膜、イオン交換膜および電極で構成されている設備で、基本はバイポーラ膜電気透析装置である。電気分解装置として使用するためバイポーラ膜とイオン交換膜を取り外して実験に供した。写真3に装置の写真を示した。

表2 電気分解実験装置仕

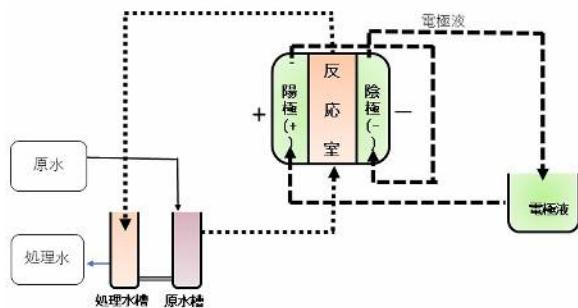


図4 電気分解装置概要

型 式	アシライザーEX3B
機 能	バイポーラ膜電気透析
表 示	電流、電圧、塩液・酸・アルカリ液電気伝導度、時間、積算電流
有効面積(電気分解)	55 cm ²
通電面積(電気分解)	55 cm ²
有効膜面積(電気透析)	550 cm ² (55cm ² ×10)
膜対数(電気透析)	10
通電条件	定電圧(3パターン選択可)・定電流
最大電流	4.4A
最大電圧	15V
使用可能上限温度	40.0 °C
処理能力	500ml～1000ml/回



写真3 電気分解装置写真

1. 4. 2. 研究結果及び考察

[全体]

海面処分場の安定化のために、水面下の浸透水をエアリフトポンプで揚水し、余水と混合循環（循環型）することにより、浸透水中の汚濁物が洗い出され、余水水質が一時的に上昇するものの、エアリフトポンプにより空気供給することにより、従来型よりも、余水と浸透水を早期に安定化することができた。pH低下については空気中のCO₂量が0.04%と低いため、空気量が不足していたため顕著な低減効果は得られなかった。脱塩剤の違いによる余水等への影響については、高反応石灰よりも重曹を使用した焼却残渣のほうが早期に水質低減化した。飛灰安定化剤の違いによる影響については、キレート剤の場合は、残留キレートの他、キレート由来のCOD, T-N濃度が上昇し、水質低減化も遅かった。特に、従来型では水面下の浸透水中の濃度が高く、低減化も緩慢であった。2種類のキレート剤（PIP系、DTC系）の顕著な違いはなかった。無機リン系安定化剤についてはCOD, T-Nが含まれていないため、余水水質は早期に低減化したが、無機リン系安定化剤は酸性であるため、高反応石灰飛灰の高アルカリ、高カルシウム含有の影響により、キレートの添加率2.5%に対して、添加率18%と高く、経済的に実用化は困難であると判断された。重曹飛灰についてはキレート添加率2.5%、無機リン系安定化剤2.0%であった。電気分解による残留キレート、キレート由来のCOD、T-Nについては、まず純水に食塩を添加して、模擬海水をつくり、キレート剤を添加して、電解により発生したCO₂を回収、測定し、投入したキレートのC量との収支をとり、分解されていることを確認した。次に模擬埋立槽の余水を用いて残留キレート、キレート由来のCOD, T-N分解実験を行い全項目についてNDまで分解することができた。ただし初年度の2022年に設置した高反応石灰を充填した模擬埋立槽3基は鋼板で製作したため、腐食により残留キレートが鉄と反応し、余水からの検出量は殆どなかったが、浸透水からは検出された。このため循環型余水を対象に電気分解実験を行い、CODとT-Nを含めNDまで分解することができた。2023年に設置した重曹灰を充填した模擬埋立槽3基はSUS製としたため余水並びの浸透水共に残留キレートが検出された。実験は循環型余水を対象に実験を行い、全項目、NDまで分解することができた。これらのことから海面処分場の余水、浸透水の早期安定化に最も効果が高かったのは、脱塩剤は重曹、飛灰安定化剤は無機リン系安定化剤であり、エアリフトポンプによる浸透水循環により、さらに効果を高めることができた。また余水等の処理は海水と飛灰中の塩化物濃度が高いことから、電気分解処理の適用性が高く、難分解有機物である残留キレート、COD, T-Nの分解が可能であった。前処理としてカルシウム除去を行うことで電気分解のみで、生物処理、凝集沈殿処理、ろ過、活性炭等の処理工程を省くことができ、新しい処理システムが可能であることが示唆された。

[サブテーマ1]

焼却施設で用いられている排ガス脱塩剤と飛灰安定化剤は水質に与える影響が大きく、排ガス脱塩剤の場合は高反応石灰、重曹とも高pHではあるがCOD、T-Nの安定化は重曹の方が早かった。飛灰安定化剤は有機キレート剤を使用した場合PIP系、DTC系とも無機リン系と比べ、COD, T-N濃度は高濃度であった。エアリフトポンプによる浸透水と余水の循環混合については余水水質が上昇するが、全体の安定化速度は循環型の方が早かった。（成果1, 3, 5, 7）

(1) 実験供試灰、飛灰安定化剤の分析

表3に焼却残渣の組成分析、表4に飛灰不溶化剤の組成分析、表5に飛灰安定化処理後の飛灰の溶出試験結果を示した。

表3 焼却残渣（飛灰と主灰）の組成分析

名称	分析項目	単位	高反応石灰		重曹		分析方法
			飛灰	主灰	飛灰	主灰	
飛灰 及び 主灰 含 有 量 分 析 項 目	有機物量 (COD _{Mn})	mg/kg	6,200	2,500	5,000	2,600	底質調査方法 4.7 過マンガン酸カリウムによる酸素消費量
	有機物量 (COD _{Cl})	mg/kg	74,000	19,000	51,000	10,000	JIS K 0102 20. 三クロム酸カリウムによる酸素消費量準用
	全窒素 (T-N)	mg/kg	130	140	340	630	底質調査方法 4.8.1.2 インドフェノール青吸光度法
	全リン (T-P)	mg/kg	1,800	3,800	3,400	6,300	底質調査方法 5.6.4 ICP発光分光分析法準用
	ナトリウム (Na)	mg/kg	37,000	13,000	180,000	24,000	底質調査方法 5.6.1 フレーム原子吸光法準用
	カリウム (K)	mg/kg	55,000	12,000	79,000	250,000	JIS K 0102 49.2 フレーム光度法
	マグネシウム (Mg)	mg/kg	7,800	12,000	9,900	15,000	底質調査方法 5.6.2 フレーム原子吸光法準用
	カルシウム (Ca)	mg/kg	250,000	150,000	12,000	170,000	底質調査方法 5.6.3 フレーム原子吸光法準用
	鉛 (Pb)	mg/kg	1,100	560	1,400	330	底質調査方法 5.2.1 フレーム原子吸光法
	鉄 (Fe)	mg/kg	2,400	29,000	3,600	32,000	底質調査方法 5.5.1 フレーム原子吸光法
水素イオン濃度(pH)	水素イオン濃度(pH)	—	11.6(24°C)	12.6(19°C)	12.6(24°C)	12.0(24°C)	底質調査方法 4.4 ガラス電極法
	硫黄(S)	mg/kg	16,000	4,400	33,000	2,300	JIS A 5011-1 A.7 硫酸バリウム質量法
	含水率	%	0.9	12.9	1.2	30.7	底質調査方法 4.1 105°C2時間乾燥による減量法

表4 飛灰不溶化剤の組成分析

名称	分析項目	単位	試験結果			備考
			S803	S814	R101	
キ レ ー ト 剤 の 組 成 分 析	有機物量 (COD _{Cr})	mg/kg	390,000	470,000	62	JIS K 0102 20 二クロム酸カリウムによる酸素消費量
	有機物量 (COD _{Mn})	mg/kg	270,000	240,000	<50	JIS K 0102 17 100°Cにおける過マグン酸カリウムによる酸素消費量
	全有機炭素 (TOC)	mg/kg	90,000	180,000	280	JIS K 0102 22.1 燃焼酸化-赤外線式TOC分析法
	全窒素 (T-N)	mg/kg	35,000	38,000	230	JIS K 0102 45.2 紫外線吸光光度法
	全リン (T-P)	mg/kg			350,000	JIS K 0102 46.3.1及び36.3.4 メチル二硝酸カリウム分解-流れ分析法
	カルシウム (Ca)	mg/kg	1	2.1	<1	JIS K 0102 50.2 フレーム原子吸光法
	カリウム (K)	mg/kg	140,000	140,000	66	JIS K 0102 49.2 フレーム光度法
	硫黄 (S)	mg/kg	92,000	81,000	900	JIS A 5011-1 A.7 硫酸バリウム質量法
	水素イオン濃度 (pH)	—	>14	>14	<1	JIS K 0102 12.1 ガラス電極法
	塩化物イオン (Cl ⁻)	mg/kg	460	360	測定不能	JIS K 0102 35.1 硝酸銀滴定法
	比重	—	1.233	1.184	1.578	ビクメーターによる方法

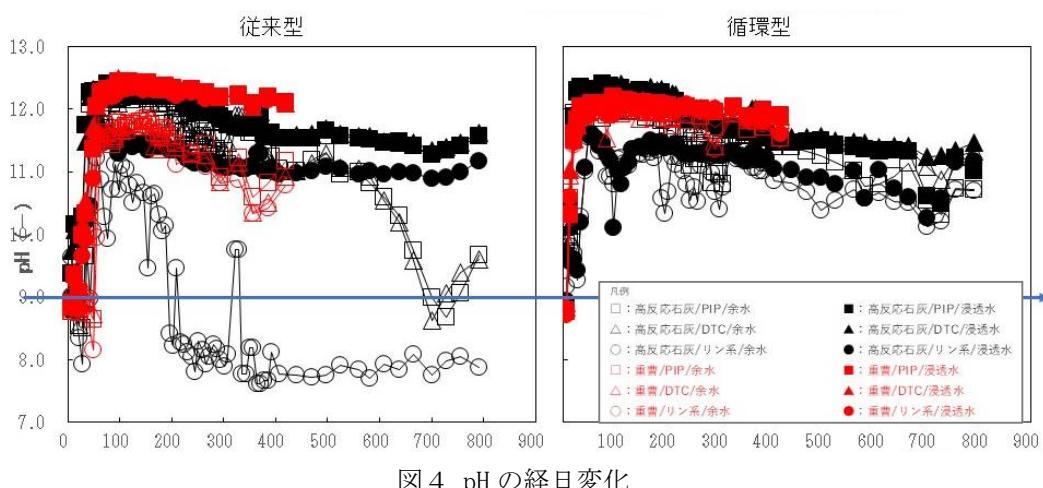
表5 飛灰不溶化剤処理後溶出試験

溶出分析項目 (飛灰不溶化処理後)	単位	高反応石灰			重曹		
		PIP2.5%	DTC2.5%	リン18%	PIP2.5%	DTC2.5%	リン2%
化学的酸素消費量 - COD _{Mn}	mg/L	150	110	33	140	95	3.7
化学的酸素消費量 - COD _{Cr}	mg/L	540	610	260	600	660	260
窒素含有量 - T-N	mg/L	28	34	5.4	26	33	4.7
カリウム - K	mg/L	4,300	4,200	3,800	5,400	4,900	4,900
カルシウム - Ca	mg/L	8,600	8,300	7,400	1,400	1,100	650
塩化物イオン	mg/L	24,000	24,000	22,000	28,000	34,000	28,000
硫黄	mg/L	570	550	440	2,300	2,100	2,300
電気伝導率	mS/m	5,100	5,100	4,400	6,200	6,100	5,600
有機体炭素 (TOC)	mg/L	87	170	23	68	170	4.1

(2) 模擬埋立槽水質経日変化

1) pH

pHの経日変化を図5に示す。脱塩剤の違いによる大きな差異は顕著に見られず高pHを示していた。高反応石灰及び重曹共に高pHを示した要因としては、高反応石灰を使用した場合、飛灰中に残存する多量の未反応Ca(OH)₂が影響しているものと考えられる。これに対して、重曹を用いた場合、表3の組成分析結果により飛灰及び焼却灰中にNa系及びK系の酸化物や炭酸塩が大量に残存し、水中に浸漬状態であるため水と反応した後に水酸化物イオンが生成され、高pHを呈していたものと考えられる。従来型についてRUN8 (PIP系、重曹) では98日目にピークに達し余水pH11.8、浸透水pH12.5に、一方、RUN2 (PIP系、高反応石灰) では余水pH12.3 (49日目)、浸透水pH12.4 (77日目)とピークに達した。重曹は高反応石灰と比べピーク到達が遅い傾向を示した。また、重曹の余水のpHは高反応石灰より低く、浸透水のpHは若干高い傾向が確認された。リン系のRUN12 (重曹) とRUN6 (高反応石灰) については、重曹飛灰への添加率が2 %であるのに対し、高反応石灰飛灰への添加率は18 %と非常に高く、かつリンは酸性薬剤であるため余水および浸透水のpHは低かった。一方、循環型については、RUN7 (PIP、重曹) では56日目にピークに達し余水、浸透水共にpH12.1に、RUN1 (PIP、高反応石灰) では余水 (35日目)、浸透水 (77日目) それぞれpH12.4とピークに達した。循環型については重曹と高反応石灰ともに長期間、高pHを維持し、低下は遅かった。これはエアリフトにより余水、浸透水が混合循環されpHが均一化されたことと、注入した空気中のCO₂濃度 (0.04 %) が低かったためと考えられる。



2) COD

CODの経日変化を図5に示した。脱塩剤に重曹を用いた場合、高反応石灰と比較し、従来型、循環型とともに余水及び浸透水のピーク濃度が低い値を示した。従来型についてRUN8 (PIP, 重曹) のピーク濃度は、余水で56日目に115 mg/L、浸透水で63日目に213 mg/Lに達した。511日経過後にはそれぞれ余水で13 mg/L (約102 mg/L減少) 、浸透水で103 mg/L (約110 mg/L減少) まで低下した。一方、RUN2 (PIP, 従来型) では余水のピーク濃度は98日目に217 mg/L、浸透水のピーク濃度は同じく98日目に259 mg/Lに達した。511日経過後にはそれぞれ余水で23 mg/L (約194 mg/L減少) 、浸透水で154 mg/L (約105 mg/L減少) まで低下した。循環型については、RUN7 (PIP, 重曹) 余水及び浸透水のピーク濃度は84日目にそれぞれ154 mg/L、162 mg/Lに達し、511日目にはそれぞれ余水41 mg/L (約113 mg/L減少) 、浸透水88 mg/L (約74 mg/L減少) まで低下した。一方、RUN1 (PIP、高反応石灰) 余水及び浸透水のピーク濃度は105日目にそれぞれ215 mg/L、250 mg/Lに達し、511日目にはそれぞれ余水91 mg/L (約124 mg/L減少) 、浸透水99 mg/L (約151 mg/L減少) まで低下した。

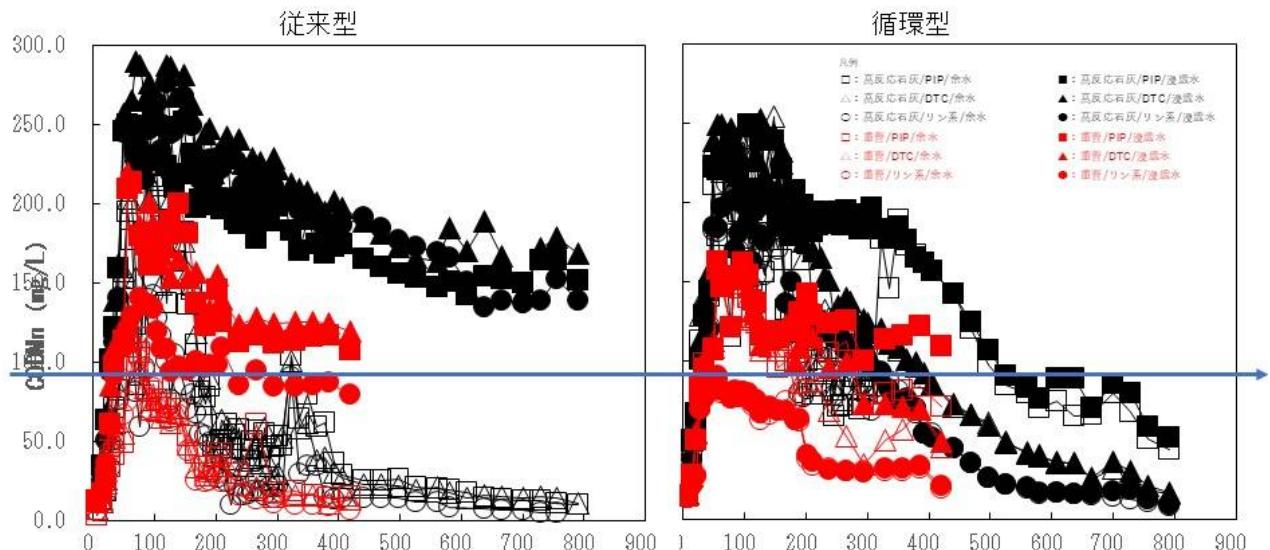


図5 CODの経日変化

3) T-N

T-Nの経日変化を図6に示した。脱塩剤に重曹を用いた場合、高反応石灰と比べ、従来型、循環型とともに余水及び浸透水のピーク濃度が低い値を示した。

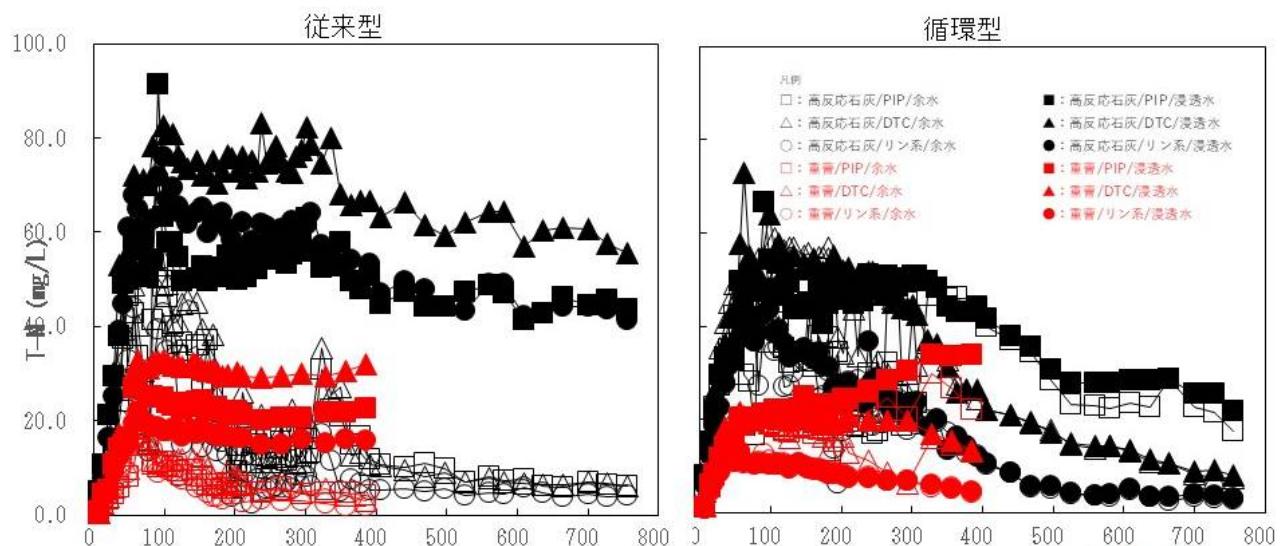


図6 T-Nの経日変化

4) 残留キレート

図7に残留キレートの経日変化を示した。従来型、高反応石灰槽では模擬埋立槽を鋼板製としたため、腐食に伴い発生する鉄イオンと反応し、余水中の残留キレートはほぼ検出されなかったが。浸透水中には高反応石灰槽で330mg/Lの残留キレートが検出され、770日経過後も20mg/L程度、検出された。重曹槽については余水で初期に約45mg/Lを検出したが、100日目以降は10mg/Lに低下し、420日目以降検出されなくなった。浸透水中には初期に450mg/Lを検出したが400日経過後には20mg/L程度に低下した。循環型では高反応石灰槽では殆ど検出されなかった。重曹槽余水は初期に18mg/L検出されたが、100日目以降、検出されなかった。浸透水も初期に18mg/L検出された、110日目に47mg/Lを検出したのち、ほとんど検出されなかった。

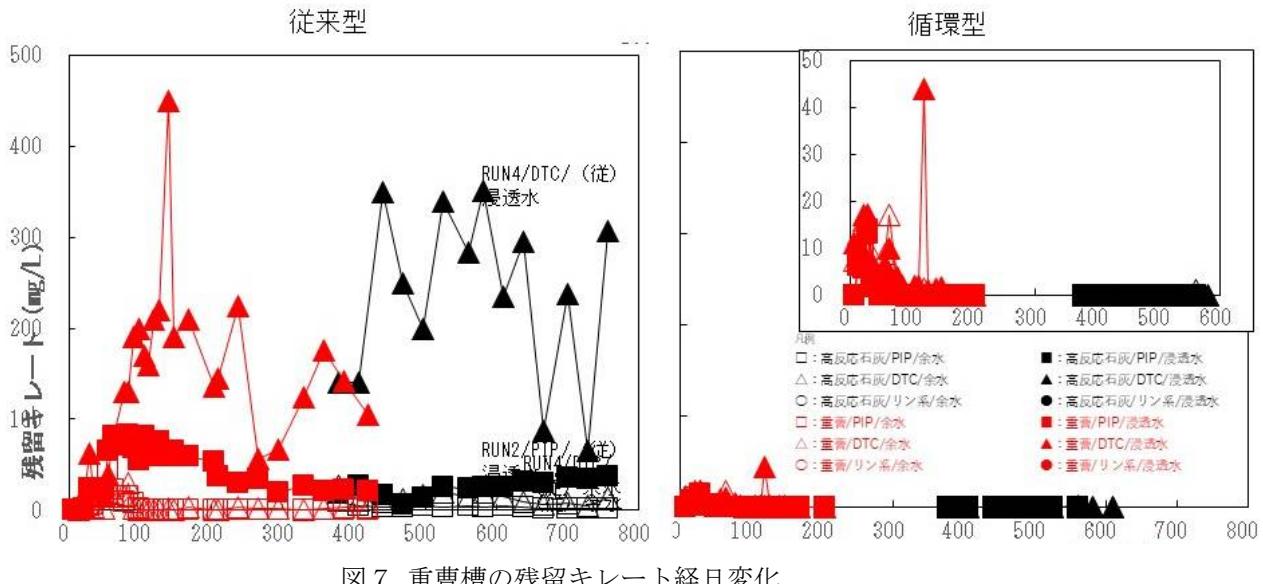


図7 重曹槽の残留キレート経日変化

(3) 排ガス脱塩剤と飛灰不溶化剤が水質に与える影響

1) 排ガス脱塩剤の違いによる水質への影響

高反応石灰、重曹共にpHは高く、低減化も遅かった。BOD, T-Nについては重曹のほうが低減化が早く、早期に安定化すると推察される。この要因としては排ガス脱塩剤に石灰を用いた場合、 CaCl_2 と未反応石灰が飛灰として捕集され、埋立処分された場合、水に溶解した Ca^{2+} は CaCO_3 として埋立層内に沈積する。 CaCO_3 は不透水性であり、浸透水等の洗い出しを阻害する。一方、重曹は NaCl が飛灰として捕集される。 NaCl は溶解性で、通水阻害を引き起こさないためと推察される。

2) 飛灰不溶化剤の違いによる水質への影響

有機キレート剤はCOD, T-N等を高濃度に含有し、水質に大きな影響を与える。表3と表4の焼却残渣および飛灰不溶化剤組成分析結果から模擬埋立槽のCODとT-Nの飛灰、主灰および飛灰安定化剤の負荷量比率を示した。(図8) これよりキレートに由来するCODは高反応石灰槽で22%~25%、重曹槽では29%~31%、T-Nは高反応石灰槽で64%~65%、重曹槽では24%~25%と高い比率を有していた。無機リン系についてはCOD, T-Nに与える影響は殆どなく、キレートについては特にT-Nの影響が大きい。キレート中のT-Nのほぼ100%が有機体窒素であり、キレートを構成する難分解性物質であり、かつキレートそのものが硝化阻害物質であるため、金属類の不溶化に使用されなかった残留キレートの生物処理は困難である。図9に硝化阻害物質であるチオ尿素とPIP系キレートの構造を示した。

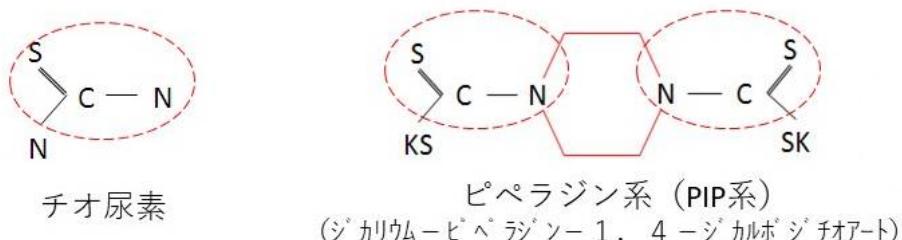


図9 チオ尿素とキレート (PIP) の構造 (内田, 2015)

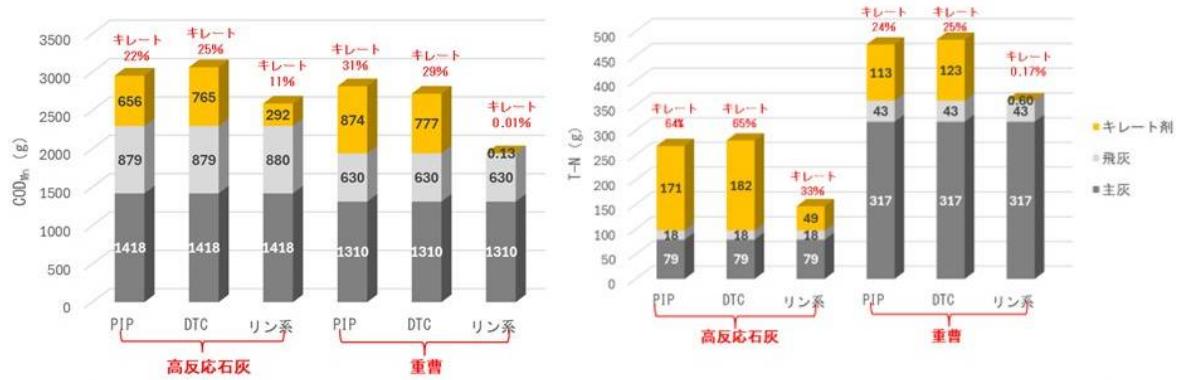


図8 飛灰不溶化剤の焼却残渣中の汚濁負荷量

(4)エアリフト循環の評価

1) 溶出量

表6に実験開始から385日目の各槽の水質の累加溶出量を示した。溶出率は溶出試験を溶出可能量と設定した。これより、循環型の方が浸透水の揚水循環により、溶出量が多く海面処分場全体の安定化効果が認められた。

表6 エアリフト循環の効果（溶出量）

高反応石灰槽	COD _{mn}	COD _{mn} (kg)	T-N	T-N (kg)	Ca	Ca (kg)	Cl	Cl (kg)
RUN1/PIP/循環型	51.2%	0.20	65.2%	0.05	53.3%	8.60	58.21%	34.94
RUN2/PIP/従来型	35.4%	0.14	50.2%	0.04	38.1%	6.15	41.89%	25.15
RUN3/DTC/循環型	69.9%	0.24	77.9%	0.07	63.4%	10.22	65.67%	39.42
RUN 4 /DTC/従来型	42.5%	0.15	53.1%	0.04	40.3%	6.50	41.91%	25.16
RUN5/リン/循環型	78.0%	0.19	97.0%	0.04	64.7%	10.44	67.43%	40.48
RUN6/リン/従来型	39.6%	0.10	69.8%	0.03	38.2%	6.17	38.71%	23.23

2)

重曹槽	COD _{mn}	COD _{mn} (kg)	T-N	T-N (kg)	Ca	Ca (kg)	Cl	Cl (kg)
RUN7/PIP/循環型	37.66%	0.15	47.86%	0.03	14.21%	0.3	69.91%	40
RUN8/PIP/従来型	16.76%	0.07	16.43%	0.01	17.26%	0.4	36.71%	21
RUN9/DTC/循環型	37.02%	0.13	31.02%	0.02	12.45%	0.3	66.29%	38
RUN10/DTC/従来型	17.40%	0.06	15.96%	0.01	16.62%	0.4	35.85%	20
RUN11/リン/循環型	34.31%	0.08	33.59%	0.01	14.79%	0.3	73.91%	42
RUN12/リン/従来型	22.98%	0.06	21.19%	0.01	17.17%	0.4	37.42%	21

2) pH低下効果

実験開始後、420日目のエアリフトによる空気吹き込み量（空気中のCO₂を0.04%）、余水槽表層からのCO₂吸收量から模擬埋立槽余水と浸透水のpHが9.0に達するまでに必要なCO₂量を計算した。その結果を表7に示した。これよりエアリフト循環に伴う空気供給量により、余水および浸透水の中性化期間短縮に効果があること。

表7 模擬埋立槽の中性化までに必要なCO₂量

高反応石灰実験槽		pH	排水基準値までH+必要量 (mol/L)	残存水量 (L)	H+必要量(mol)	H ₂ CO ₃ 必要量(mol)	H ₂ CO ₃ 必要量(mol)	CO ₂ 必要量(L)
RUN1/PI P/循環型	余水深部	11.29	0.001939845	250	0.484961	0.242481	0.63	13.86
	浸透水	11.54	0.003457369	226	0.781365	0.390683		
RUN2/PI P/従来型	余水深部	11.67	0.004667351	250	1.166838	0.583419	0.96	21.02
	浸透水	11.58	0.003791894	199	0.754587	0.377293		
RUN3/DT C/循環型	余水深部	11.59	0.003880451	250	0.970113	0.485056	0.95	20.90
	浸透水	11.62	0.004158694	226	0.939865	0.469932		
RUN4/DT C/従来型	余水深部	11.73	0.005360318	250	1.340079	0.67004	1.07	23.31
	浸透水	11.6	0.003971072	199	0.790243	0.395122		
RUN5/リ ン/循環型	余水深部	11.03	0.001061519	250	0.26538	0.13269	0.29	6.29
	浸透水	11.14	0.001370384	226	0.309707	0.154853		
RUN6/リ ン/従来型	余水深部	10.54	0.000336737	250	0.084184	0.042092	0.15	3.18
	浸透水	11.02	0.001037129	199	0.206389	0.103194		

重曹実験槽		pH	排水基準値までH+必要量 (mol/L)	残存水量 (L)	H+必要量(mol)	H ₂ CO ₃ 必要量(mol)	CO ₂ 量
RUN7/PIP/ 循環型	余水深部	11.85	0.007069458	250	1.767364	0.883682	2.02
	浸透水	11.9	0.007933282	287	2.276852	1.138426	
RUN8/PIP/ 従来型型	余水深部	12.08	0.012012644	250	3.003161	1.501581	3.13
	浸透水	12.12	0.013172567	247	3.253624	1.626812	
RUN9/DTC/ 循環型	余水深部	11.89	0.007752471	250	1.938118	0.969059	2.08
	浸透水	11.89	0.007752471	287	2.224959	1.11248	
RUN10/DTC/ 従来型型	余水深部	12.09	0.012292688	250	3.073172	1.536586	3.09
	浸透水	12.1	0.012579254	247	3.107076	1.553538	
RUN11/リン 循環型	余水深部	11.59	0.003880451	250	0.970113	0.485056	1.05
	浸透水	11.6	0.003971072	287	1.139698	0.569849	
RUN12/リン 従来型型	余水深部	12.01	0.01022293	250	2.555732	1.277866	2.76
	浸透水	12.08	0.012012644	247	2.967123	1.483562	

(5) 結論

模擬埋立槽実験を通じて、排ガス脱塩剤に高反応石灰と重曹を用いた場合の焼却残渣及び飛灰不溶化剤の溶出特性に関する長期水質の比較を行った。これにより、脱塩剤の種類が溶出特性及び水質への影響に与える要因が明らかになった。

既存の海面処分場では水面下の廃棄物層内の浸透水の移動がほとんどなく、これが処分場の廃止を遅延させる要因の一つとなっている。エアリフトポンプの導入により、廃棄物層内の浸透水を揚水循環させると、余水の水質が上昇し、浸透水は余水との混合循環により汚濁成分が低減することが確認された。これにより、余水処理時に一時的に水処理施設への負荷が増加するものの、廃棄物層内の汚濁物質を早期に溶出させることで、維持管理費や継続的な水処理費の削減が可能であると考えられる。更に、エアリフトポンプによる空気供給により、空気中のCO₂と反応し、pHの低減効果も期待される。今回の実験では高反応石灰と重曹のいずれの場合も、エアリフトポンプによるpH低減効果に顕著な効果は見られなかった。これは、空気中のCO₂濃度が0.04 %と低いためと考えられる。そのため、空気の注入量を増加させるか、CO₂濃度を高めることで、より効果的なpH低減が可能であることが確認された。

また、脱塩剤に重曹を用いた場合、埋立層内に不透水性層の形成が少なく、特に循環型では洗い出しが早く進み、早期に濃度低減化できることが確認できた。更に、水処理プロセスにおいては、初期段階でCaを除去した後、それ以後のCa除去プロセスを省略できるため、Ca汚泥の処理等に関する問題も緩和できると考えられる。

すなわち、海面処分場の早期安定化を考慮した場合、エアリフトポンプ工法を導入し、焼却施設の排ガス処理に使用される脱塩剤として重曹、飛灰不溶化剤として無機リン系薬剤の組み合わせが最も適していた。

[サブテーマ2]

サブテーマ2では電気分解により、残留キレート、COD、T-Nの分解が可能であること、およびそのメカニズムを明らかにした。これにより従来の生物処理による硝化脱窒、凝集沈殿、砂ろ過、活性炭の工程を省略することができ、余水中の Ca^{2+} 除去を行った後に、直接電気分解にかけられることが判った。飛灰安定化剤にDTC系キレートを用いた模擬埋立槽の余水を用いて電気分解を行った、電気分解の前処理として、 Ca^{2+} については炭酸ナトリウム(Na_2CO_3)を用いて凝集沈殿処理を行った。またキレート剤の内、DTC系キレートについては生物毒性があるため、処理前の余水と電気分解処理水についてミジンコを用いた生物毒性調査を行った。その結果、電気分解処理水の遊泳阻害率が上昇したが、その原因是塩水に電気を通すことにより生成する次亜塩素による、消毒効果であると推察された。(成果2、4、6、8、9)

(1) 模擬水による電気分解効果確認と分解メカニズムの推定

模擬水は市販塩を純水に溶解させ、1%の Cl^- 濃度、1,000 mLの塩水を作成し、PIP系キレート剤を添加し、キレート濃度を200 mg/Lに調整し(PIP系キレート剤添加量は160 mg)、とし実験供試試料とした。

実験は以下の18ケースで実施した。

・電流値を1.1A, 2, 2A, 4.4Aに固定し、電圧を変動(9.0V, 12.0V, 15V)に変動させたケース。

・電圧を9.0V、12.0V, 15V3ケース、電流値を1.1 A、2.2 A、4.4 Aの3ケースに変動させたケース。

その結果、COD、TOCおよび窒素については電圧や電流値の違いに影響を受けた。電流を一定にすると、電圧が高いほど高い分解率を示した。また、電圧を一定にすると、電流が高いほど高い分解率を示した。表8に電圧を9Vに固定し、電流を変動させた3ケースの実験結果を示した。

(2) 電気分解による難分解性有機物分解収支確認

電気分解により残留キレート等の分解を確認したが、これらはガス化したと考えられる。このため電極槽から発生するガスを回収、分析し、添加したキレート剤と比較することにより収支確認を行った。収支確認は電圧9V、電流値4.4Aのケースについて行った。

電極槽の上部にゴム栓をして装置を密封し、電極槽から発生したガスをエアバッグにより回収した。回収したガスは、洗浄瓶に誘導し、洗浄後、回収した。(図9) その結果、エアバッグで回収したガス量は28 mLであった。 NO_x の量を把握するため、強い酸化力を持つ H_2O_2 を使用し、ガス洗浄瓶に添加した試料は H_2O_2 濃度で0.5%、液量は40 mL/本であった。ガス洗浄は2段設置し、洗浄液については2段まとめて回収し、洗浄液をイオンクロマト法で分析した。その結果、 NO_3 濃度は 6×10^{-3} mg/L、 NO_2 濃度は 2.1×10^{-4} mg/Lであった。ガス洗浄瓶に通した結果、ガス(B)で9 mLを回収した。従って、今回のガスの成分は H_2 、 N_2 、 CO_2 と推察される。ガス洗浄瓶を通したガスをガスクロマトグラフィーで分析を行った。その結果、 N_2 は5 mL、 H_2 は4 mLであった。

1) Nの収支計算

実験結果より全体の収支計算を行った。比較のため全ての単位はmolに換算した。Nの収支計算結果を表9に示す。投入と回収のマスバランスは以下のとおりである。マスバランス $= 4.4 \times 10^{-4} \text{ mol} \div 4.5 \times 10^{-4} \text{ mol} \approx 97.8 \%$

表8 電気分解実験結果(電圧値9V固定、電流変動)

水質項目	単位	原水	処理水			備考
			電流 1.1A	電流 2.2A	電流 4.4A	
COD	mg/L	42.4	10.0 (76.4%)	2.8 (93.4%)	0.0 (100.0%)	電圧: 9.0V 3回実験を行い、平均値を記した。カッコ内の数値は分解率。
T-N	mg/L	7.8	3.2 (59.0%)	1.1 (85.9%)	0.0 (100.0%)	
TOC	mg/L	8.3	2.5 (69.9%)	0.8 (90.4%)	0.0 (100.0%)	
残留キレート	mg/L	200.0	ND	ND	ND	
稼働時間	min	—	200	140	90	
循環流速	ml/min	—	5.0	7.1	11.1	

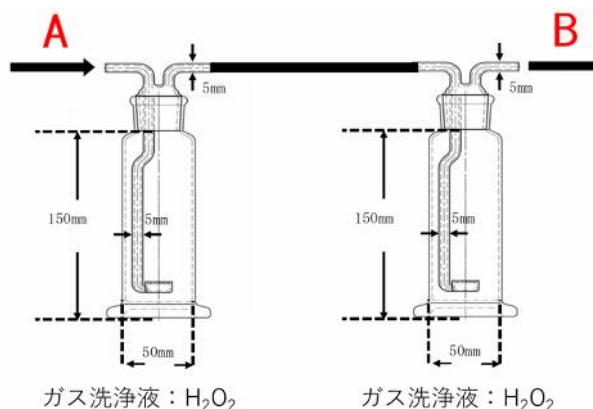


図9 ガス洗浄瓶概要

この結果より、窒素に関しては、投入したN分は殆どガス化して、N₂ガスとして回収された。

2) Cの収支

Cの収支計算を表10に示した。Cの収支を計算するため、上記の実験と同じ手順でエアバッグで回収したガス(A)をAからガス洗浄瓶に誘導し、Bで洗浄したガス(B)を回収した。ガス洗浄瓶に添加した試料はH₂O₂濃度0.5%とCa(OH)₂濃

度0.1% (100 mL水に0.1 g Ca(OH)₂を溶解)。まず、H₂O₂ガス洗浄瓶を2段設置し (前述N測定と同じ)、洗浄したガス(B)をCa(OH)₂洗浄液に誘導し、Ca(OH)₂洗浄液を回収した。回収した

Ca(OH)₂溶液をろ過し、沈殿物の重量を測定した。その結果、沈殿物重量は53 mgであった。Ca(OH)₂洗浄液で回収したガス(B)の成分予測はCO₂と推察される。表9の実験結果を用いて、単位をmolに換算して炭素の収支を計算した。Cのマスバランスは以下のようである。

Cマスバランス = $5.3 \times 10^{-4} \text{ mol} \div 5.5 \times 10^{-4} \text{ mol} = 96.3\%$

(3) 難分解性有機物、窒素の電気分解メカニズム

1) 有機キレート

PIP系キレート剤の構造を図10に示した。実験に用いたPIP系キレートを原子吸光光度法とイオンクロマトグラフィー法により分析し、化学式はK₂C₄H₄N₂S₄と推定した。図10に示すように、SKの変更により、キレート剤の種類も異なる。ピペラジン系薬剤をベースにしたので、今回はカリウムイオン (K⁺) と硫黄イオン (S²⁻) は電気分解メカニズムの検討から除外した。また、キレートと重金属の反応を図11に示した。

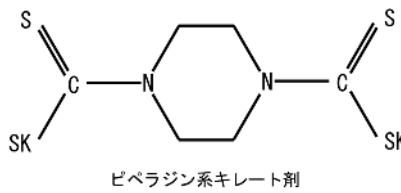


図 10 PIP系キレート構造(内田, 2015)

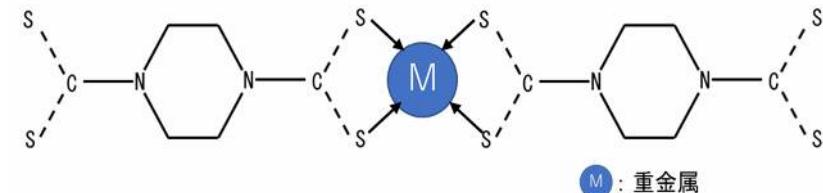
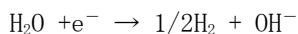
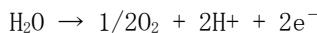


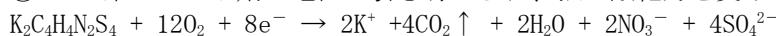
図 11 PIP系キレート剤と重金属反応図

2) 分解メカニズム

① 電気分解により、酸素 (O₂) と水素イオン (H⁺) と同時に溶液中にCl⁻が含まれるので、塩素は電極で分解し、次亜塩素酸と塩酸を生成する。



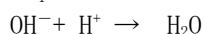
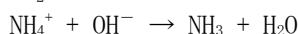
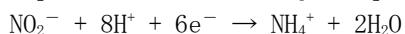
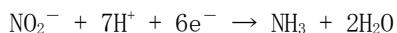
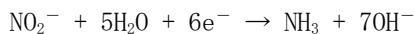
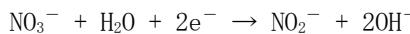
② PIP系キレート剤が電極に引き寄せられ、強い酸化力を受けて酸化分解する。



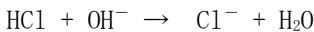
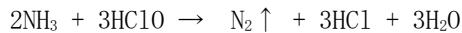
K⁺とSO₄²⁻は溶液中に残存。CO₂はガスとして排出され、CODが分解された。

③ PIP系キレート剤の分解により生成した硝酸イオン (NO₃⁻) は亜硝酸イオン (NO₂⁻) を経てアンモニア

(NH₃) に還元される。反応による生成した水酸化物イオン (OH⁻) は (1) で電気分解により生成した水素イオン (H⁺) と結合して水を生成する。それらの反応式は次のとおりである。(広, 2004)



④ ③で生成したアンモニア (NH₃) は①で生成した次亜塩素酸 (HC1O) との液相反応によりクロラミン (NH₂Cl) を生成しつつ酸化が進行し、最終的には以下に示すように分解されて窒素ガスになる(広, 2004)。



以上が電気分解のメカニズムである。収支計算の結果により、PIP系キレート剤は電気分解を受けて、N分とC分はN₂とCO₂に酸化され、ガスとして回収された。すなわち、CODと窒素が分解された。

(3) 模擬実験槽余水を用いた電気分解

サブテーマ1で実施した模擬埋立実験槽のRUN2(高反応石灰/PIP/従来型)とRUN8(重曹/PIP/従来型)の余水を採取して電気分解実験を行った。

1) 実験設備

実験設備は前掲(表2、図4、写真3)設備を用いた。

2) 実験供試原水

実験供試水サンプルは従来型槽のRUN2, RUN8の余水で、実験開始後511日目の余水を用いた。表11に原水水質を示した。

3) 前処理

電気分解に用いる電極はCa²⁺濃度が高いとスケールを生成し通電能力が低下するため、Ca²⁺濃度をライムソーダ法(Na₂CO₃による凝集沈殿)により200mg/L以下に調整した。これにより電解前のCOD、およびT-Nは若干低下したが残留キレート濃度は低下しなかった

4) 実験結果

電極板はチタン-白金電極板、通電面積55.0 cm²を使用した。稼働条件は、電圧9V～15V、電流0A～4.4A、液体流速は100ml/minとした。表12にその結果を示した。電解後、2試料ともCOD、T-Nおよび残留キレートは完全分解された。処理時間は概ね45分であった。原水濃度差による影響は見られなかった。

表-11 実験供試余水水質

項目	単位	高反応石灰余水	重曹余水
Ca ²⁺	mg/L	7,420	620
Cl ⁻	mg/L	33,220	40,200
COD	mg/L	377.2	98.34
T-N	mg/L	132.2	44.60
残留キレート	mg/L	367.8	42.7

表 12 余水の電気分解実験結果

項目	単位	高反応石灰余水			重曹余水		
		原水	電解前原水	処理水	原水	電解前原水	処理水
Ca ²⁺	mg/L	7,420	140	<30	620	30	<30
Cl ⁻	mg/L	33,220	33,220	21,344	40,200	40,200	39,800
COD	mg/L	377.2	345.6	—	98.34	95.22	—
T-N	mg/L	132.2	126.5	—	44.60	41.55	—
残留キレート	mg/L	367.8	367.8	—	42.7	42.7	—

(4) 電気分解処理水の生物毒性試験

飛灰安定化剤として使用されている。キレートは硝化阻害等の生物毒性を有している。特にDTC系キレートについては毒性が強く、ミジンコ、藻類、甲殻類に対しても強い毒性を有している。(土井, 2020) 電気分解により残留キレートも分解されるので、処理水について生物毒性を行った。

1) 試験方法

電気分解した後の処理水の生態系への影響を確認するため生物毒性試験を実施した。実験は、ミジンコ急性遊泳阻害試験を採用し、ミジンコを被験物質に48時間曝露し、遊泳阻害率を測定し、対照区の遊泳阻害率と比較することにより、ミジンコに対する被験物質の毒性を明らかにする。試験方法はOECDテストガイドライン202及び、「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律(化審法)」の「ミジンコ急性遊泳阻害試験」に準じて実施した。

2) 試験サンプル

試験サンプルは模擬埋立実験槽、RUN4/高反応石灰/DTC系の浸透水(441日目、DTC系残留キレート濃度:350mg/L)を電気分解により、NDまで分解した処理水を用いた。電気分解装置の稼働条件は電圧15V、電流(電流上限4.4A)、処理時間120分、塩素イオン濃度は2%

3) 供試生物

供試生物はオオミジンコ(*Daphnia magna*)、入手先は国立開発法人国立環境研究所、飼育水は試験サンプルの原水と処理水とした。飼育条件は以下のとおり。

- ・飼育水: 試験に用いる試験水で飼育
- ・飼育密度: 50頭/L飼育水
- ・照明: 16時間明 - 8時間暗条件
- ・温度: 18~22°C
- ・餌: クロレラ
- ・容器: 1Lのガラスピーカーを用い、試験容器と同様にゴミの混入を防止するため、ラップで蓋をした

4) 試験条件

① 処理水

被験物質40mLをピペットで採取し、試験用水を加え200mLに定容とし、20%の溶液を調整した。この溶液を試験用水で順次希釈し、20, 10, 5.0, 2.5, 1.3%の試験液を調整した。対照区は試験用水のみとした。

- ・試験用水: 脱塩水道水(水道水を活性炭ろ過により脱塩素処理した水)
- ・曝露期間: 48時間
- ・曝露方式: 止水式
- ・濃度区: 対照区, 1.25, 2.5, 5, 10, 20% (公比2)
- ・試験容量: 200mL / 試験区 (50mL / 容器)
- ・連数: 4容器 / 試験区
- ・供試生物数: 20匹 / 試験区 (5匹 / 容器)
- ・試験温度: 21±1°C
- ・溶存酸素濃度: 鮫和酸素濃度の60%以上 (エアレーション無)
- ・pH: 調整なし
- ・照明: 16時間明 / 8時間暗
- ・餌: 無給餌

② 原水

被験物質1mLをマイクロピペットで採取し、試験用水を加え200mLに定容とし、0.5%の溶液を調整した。この溶液を試験用水で順次希釈し、0.5, 0.25, 0.13, 0.063, 0.031, 0.016, 0.0078%の試験液を調整した。対照区は試験用水のみとした。

- ・試験用水: 脱塩水道水(久留米市水道水を活性炭ろ過により脱塩素処理した水)
- ・曝露期間: 48時間
- ・曝露方式: 止水式
- ・濃度区: 対照区、0.0078, 0.0016, 0.031, 0.063, 0.13, 0.25, 0.5% (公比2)
- ・試験容量: 200mL / 試験区 (50mL / 容器)
- ・連数: 4容器 / 試験区
- ・供試生物数: 20匹 / 試験区 (5匹 / 容器)
- ・試験温度: 21±1°C
- ・溶存酸素濃度: 鮫和酸素濃度の60%以上 (エアレーション無)
- ・pH: 調整なし
- ・照明: 16時間明 / 8時間暗
- ・餌: 無給餌

5) 試験結果

電気分解後処理水・原水ともに曝露試験期間中遊泳阻害が確認された。処理水の曝露後48時間の半数影響濃度は11.83%、原水の曝露後48時間の半数影響濃度は0.071%であった。電気分解後処理水の遊泳阻害された各試験濃度区に対する24時間及び48時間における遊泳阻害率を図12に示した。原水の遊泳阻害率を図13に示した。電気分解後処理水と原水の半数影響濃度(EC50)、24時間後と48時間後を表15に示した。

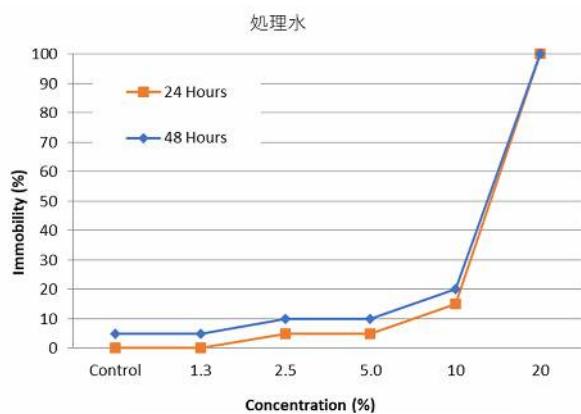


図12 处理水の遊泳阻害数

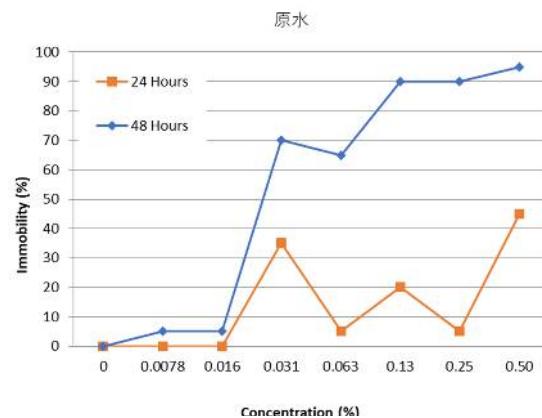


図13 原水の遊泳阻害数

表15 半数影響濃度 (EC50)

	24時間後	(95%信頼区間)	48時間後	(95%信頼区間)
処理水	12.50%	(10.269~15.961)	11.83%	(9.940~14.537)
原水	0.60%	(0.374~2.442)	0.071 %	(0.039~0.115)

6) 考察

電気分解処理水の生物毒性についてはオオミジンコを用いた、実験を行ったが、処理水の半数影響濃度は原水を上回る結果となった。その原因是塩水に電気通電すると次亜塩素が生成し、滅菌機能を有するため、原水よりも高い結果となった。次亜塩素は一般的に排水処理水の滅菌材として使用されているので、還元剤（チオ硫酸ナトリウム）を添加するか、後処理工程で曝気を行うことで対処が可能である。

(5) 結論

今回の実験研究で、海面模擬埋立槽からの余水に含まれるCOD、T-Nや残留キレートは電気分解により処理できることが確認できた。電気分解処理水の生物毒性についてはオオミジンコを用いた、実験を行ったが、処理水の半数影響濃度は原水を上回る結果となった。その原因是塩水に電気通電すると次亜塩素が生成し、滅菌機能を有するため、原水よりも高い結果となった。次亜塩素は一般的に排水処理水の滅菌材として使用されているので、還元剤（チオ硫酸ナトリウム）を添加するか、後処理工程で曝気を行うことで対処が可能である。海面処分場においては高塩類、高アルカリ環境であり、生物処理における生物相、特に硝化菌の順養維持は高度な維持管理技術を要する。また生物相維持のため24時間プロワー等の稼働を継続しなければならない。さらに現状の処理プロセスは多くのユニットにより構成され、攪拌機、ポンプ等の電気消費量も大きい。このため電気分解処理が可能になれば処理プロセスは簡素化され間欠運転も可能となる。その結果、大幅な維持管理電力費や薬剤費を節減することが可能となると考えられる。

1. 5. 研究成果及び自己評価

1. 5. 1. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献

<得られた研究成果の学術的意義>

サブテーマ1のエアリフトポンプによる底部浸透水の揚水循環は機械式ポンプではなく空気を用いるため、浸透水中に酸素と少量ではあるが二酸化炭素を供給し、有機物分解とpH低下に寄与することができ、学術的意義はある。焼却排ガス処理に用いられる脱塩剤や飛灰安定化剤は余水や浸透水の安定化に影響を与え、最終処分場のコスト増の要因の一つとなっている。このため最終処分のみならず、焼却等中間処理方式を含めたトータルシステムの構築が必要である。これは海面処分場のみならず内陸処分場にも当てはまるごとであり、今後の廃棄物管理上の学術的意義はある。

サブテーマ2の電気分解については有機物、特に難分解性有機物の分解が可能であることが明らかになり、新たな水処理法としての新規性が高く、学術的意義も大きい。

<環境政策等へ既に貢献した研究成果>

「特に記載する事項はない」

<環境政策等へ貢献することが見込まれる研究成果>

サブテーマ1のエアリフトポンプによる底部浸透水の揚水循環は機械式ポンプではなく空気を用いるため、浸透水中に酸素と少量ではあるが二酸化炭素を供給し、有機物分解とpH低下に寄与することができる。さらに従来、底部浸透水については処理対象とされておらず、余水のみが処理対象となり、余水水質低下により。処分場が廃止された場合、底部の浸透水は汚濁負荷の高いまま封じ込められることになる。最近の異常気象等や災害により、護岸が破壊された場合、浸透水が外部に流出することになる。恒久的な環境保全のためにも浸透水を含む安定化は必要であり、負の遺産化は防ぐべきである。また本研究により、焼却排ガス処理に用いられる脱塩剤や飛灰安定化剤は余水や浸透水の安定化に影響を与え、最終処分場のコスト増の要因の一つとなっている。このため最終処分のみならず、焼却等中間処理方式を含めたトータルシステムの構築が必要である。これは海面処分場のみならず内陸処分場にも適用できることであり、今後の廃棄物管理の参考になると考えられる。

サブテーマ2の電気分解については有機物、特に難分解性有機物の分解が可能であることが明らかになり、新たな水処理技術として期待される。特に最近、問題になっている有機フッ素化合物(PFAS)分解も可能であり、応用が可能である。一般的に電気的な処理は電力脱炭素化社会にと考えられているが、従来の生物処理や凝集沈殿は24時間稼働しなければならないのに対して、電気的処理は間欠運転が可能であり、従来の施設を省略することが可能である。このためシステムの簡素化、汚泥発生量の抑制等から建設費、維持管理費を含め、トータルコストは従来より抑えられる可能性があり、活用の可能性が高い。

1. 5. 2. 研究成果に基づく研究目標の達成状況及び自己評価

<全体達成状況の自己評価> · · · · ·

4. 目標にはやや及ばないが一定の成果をあげた

「海面処分場安定化と残留キレート分解に関する研究」（特定非営利活動法人環境技術支援ネットワーク、樋口 壮太郎）

全体目標	全体達成状況
<ul style="list-style-type: none"> ・海面処分場安定化のためにエアリフトポンプ等により取水、循環、空気供給による中性化が進行し、水面下の安定化進行が進むこと。 ・安定化を進行させるための揚水ピットの配置、エアリフトポンプ規模設定の目安を付けること。 ・残留キレートおよびキレート由来のCOD、窒素の分離、分解技術の確立を行うこと。 	<ul style="list-style-type: none"> ・エアリフトポンプによる浸透水の揚水循環による中性化の進行については認められたが効果は小さかった。その要因は空気中のCO₂が0.04%と低いため、空気量が不足していたためと考えらえる。しかし、中性化に必要なCO₂量の定量化はできたので、実装段階での設備規模の計画は可能となつた。水面下の安定化については揚水循環により余水の水質が上昇するものの、投入廃棄物中のCOD等の溶出率が向上し、早期安定化が可能である。 ・揚水ピットの配置は1 ha (100m×100m) に1か所を目安とする。揚水ピットは1 haに1か所、設置し、水面が残っている間は揚水ピットから直接、水面に排水、水面消失後は埋立間隙率が30%（実験時測定では28%）であるため、揚水量は埋立高さ10mの場合、100,000 m³×0.3=30,000 m³となり、揚水量は21 m³/分のプロワーで送風揚水を行う。構造は直径1mの鋼管を想定している。 ・残留キレート、キレート由来のCOD, T-Nの分解技術は電気分解法によりほぼ確立できた。前処理としてCaを200mg/l以下にすることにより、従来施設の生物処理、凝集沈殿、ろ過、活性炭工程を省くことができる。電気分解に伴い、生成する次亜塩素酸については窒素分解に寄与するが残余分については後処理として中和剤（チオ硫酸ナトリウム）処理や曝気処理が必要となる。

<サブテーマ1 達成状況の自己評価> · · · · ·

4. 目標にはやや及ばないが一定の成果をあげた

「海面処分場安定化」（環境技術支援ネットワーク、樋口壯太郎）

サブテーマ1目標	サブテーマ1達成状況
<ul style="list-style-type: none"> ・海面処分場安定化のためにエアリフトポンプ等により取水、循環、空気供給による中性化が進行し、水面下の安定化進行が進むこと。 ・安定化を進行させるための揚水ピットの配置、エアリフトポンプ規模設定の目安を付けること。 	<ul style="list-style-type: none"> ・エアリフトポンプによる浸透水の揚水循環による中性化の進行については認められたが効果は小さかった。その要因は空気中のCO₂が0.04%と低いため、空気量が不足していたためと考えらえる。しかし、中性化に必要なCO₂量の定量化はできたので、実装段階での設備規模の計画は可能となつた。水面下の安定化については揚水循環により余水の水質が上昇するものの、投入廃棄物中のCOD等の溶出率が向上し、早期安定化が可能である。 ・揚水ピットの配置は1 ha (100m×100m) に1か所を目安とする。揚水ピットは1 haに1か所、設置し、水面が残っている間は揚水ピットから直接、水面に排水、水面消失後は埋立間隙率が30%（実

	験時測定では28%) であるため、揚水量は埋立高さ10mの場合、 $100,000\text{m}^3 \times 0.3 = 30,000\text{m}^3$ となり、揚水量は $21\text{m}^3/\text{分}$ のプロワーで送風揚水を行う。構造は直径1mの鋼管を想定している。
--	--

<サブテーマ2達成状況の自己評価> · · · · · 3. 目標どおりの成果をあげた

「残留キレート分解」（福岡大学、為田一雄）

サブテーマ2目標	サブテーマ2達成状況
<ul style="list-style-type: none"> ・残留キレートおよびキレート由来のCOD、窒素の分離、分解技術の確立を行うこと。 ・上記技術により分解された浸出水等が水環境中の生物に影響を与えないことを確認する。 	<ul style="list-style-type: none"> ・残留キレート、キレート由来のCOD, T-Nの分解技術は電気分解法によりほぼ確立できた。前処理としてCaを200mg/1以下にすることにより、従来施設の生物処理、凝集沈殿、ろ過、活性炭工程を省くことができる。 ・生物への影響については原水と電気分解水についてオオミジンコを用いた生物毒性調査を行い、原水よりも半数致死率が高かった。その原因は、電気分解プロセスで発生する次亜塩素が滅菌効果を有しているためその影響を受けたことが判った。このため電気分解処理の後処理として中和剤（チオ硫酸ナトリウム）処理や曝気処理を設置することにより、対処が可能である。

1. 6. 研究成果発表状況の概要

1. 6. 1. 研究成果発表の件数

成果発表の種別	件数
産業財産権	1件
査読付き論文	2件
査読無し論文	2件
著書	該当なし
「国民との科学・技術対話」の実施	令和25年3月13日に実施
口頭発表・ポスター発表	6件
マスコミ等への公表・報道等	該当なし
成果による受賞	該当なし
その他の成果発表	該当なし

1. 6. 2. 主要な研究成果発表

成果番号	主要な研究成果発表 (「研究成果発表の一覧」の査読付き論文又は著書から10件まで抜粋)
1	俞靈傑、 <u>為</u> 、田一雄、劉佳星、重松幹二、樋口壯太郎「浸透水循環による海面最終処分場の水質安定化に関する研究」、「廃棄物資源循環学会論文誌」一般社団法人廃棄物資源循環学会 Vol. 35、PP143-154、(2024) 査読あり
2	劉佳星、重松幹二、 <u>為</u> 、田一雄、樋口壯太郎「浸出水中の難分解性有機物の電気分解処理に関する研究」、「廃棄物資源循環学会論文誌」一般社団法人廃棄物資源循環学会 Vol. 33、PP. 235-241、(2022) 査読あり
3	Lingjie Yu, <u>Kazuo Tameda</u> , Jiaxing Liu, Shigematsu Mikiji, Sotaro Higuchi, "Study on Early Stabilization of Sea Surface Landfill by Airlift Pump Method." Proceedings of The 12th Asia-Pacific Landfill Symposium (2024)
4	Jiaxing Liu, Lingjie Yu, <u>Kazuo Tameda</u> , Sotaro Higuchi "Study on Recycling of By-product Salt by Bipolar Membrane Electrodialysis Device." Proceedings of The 12th Asia-Pacific Landfill Symposium (2024)
5	俞靈傑、 <u>為</u> 、田一雄、重松幹二、劉佳星、樋口壯太郎「排ガス脱塩剤や飛灰安定化剤が海面処分場に与える影響（2）」第46回全国都市清掃研究事例発表会、PP 262-264、(2025)
6	劉佳星、俞靈傑、 <u>為</u> 、田一雄、樋口壯太郎「浸出水の電気分解処理に関する研究」第46回全国都市清掃研究事例発表会、PP 271-273、(2025)
7	俞靈傑、 <u>為</u> 、田一雄、重松幹二、劉佳星、樋口壯太郎「排ガス脱塩剤や飛灰安定化剤が海面処分場に与える影響」第35回廃棄物資源循環学会研究発表会、PP 403-404、(2024)
8	劉佳星、俞靈傑、 <u>為</u> 、田一雄、樋口壯太郎「電気分解による海面処分場の余水処理」第35回廃棄物資源循環学会研究発表会、PP 435-436(2024)
9	樋口壯太郎、劉佳星「難分解性有機物の電気分解処理」環境産業新聞社、都市と廃棄物、Vol. 53. No. 4, pp48-54, (2023)
10	樋口壯太郎「最終処分から提言する廃棄物管理システム」環境産業新聞社、都市と廃棄物、Vol. 53. No. 9, pp56-41, (2023),

注：この欄の成果番号は「研究成果発表の一覧」と共通です。

1. 6. 3. 主要な研究成果普及活動

国民との科学・技術対話」として成果発表会を実施した。内容は本研究課題である「海面処分場の早期安定化」と「電気分解による残留キレート分解」についてサブリーダー、研究協力者が発表、質疑応答を実施した。

開催日:2025年3月13日（木）

場所：福岡大学多目的ホール

参加者：現地18名、Web参加31名

広報は特定非営利活動法人が主催しているWeb研究会（SOS研究会、登録者94名）会員、関係団体（廃棄物3R研究財団、大阪湾広域臨海環境整備センター大阪等にパンフレットを配布、送信）

1. 7. 国際共同研究等の状況

＜国際共同研究の概要＞

国際共同研究を実施していない。

1. 8. 研究者略歴

<研究者（研究代表者及びサブテーマリーダー）略歴>

研究者氏名	略歴（学歴、学位、経歴、現職、研究テーマ等）
樋口壯太郎	研究代表者及びサブテーマ1リーダー 九州大学大学院工学研究科博士後期課程修了 博士（工学） 福岡大学教授を経て、 現在、特定非営利活動法人環境技術支援ネットワーク理事長、福岡大学資源循環・環境制御システム研究所客員教授、福岡大学名誉教授 専門は廃棄物管理、研究テーマは「浸出水の無機塩類対策」、「海面処分場安定化」、「難分解性有機物の電気化学分解」等
為田一雄	サブテーマ2リーダー 福岡大学大学院工学研究科博士後期課程修了 博士（工学） (株)オストランド研究員、(有) ジェーハック代表、福岡大学資源循環・環境制御システム研究所研究員を経て 現在、福岡大学工学部准教授、福岡大学資源循環・環境制御システム研究所研究開発室長 専門は廃棄物管理、研究テーマは「灰洗浄による資源化」、「最終処分場浸出水水質予測」、「副生塩リサイクル」等

2. 研究成果発表の一覧

(1) 産業財産権

成果番号	出願年月日	発明者	出願者	名称	出願以降の番号
1	2022年10月24日	樋口壯太郎、劉佳星、為、田一雄	樋口壯太郎	被処理水の処理方法、キレート剤由来の分解装置および浄化処理システム	特願2022-17009 特許第7689741号 登録日2025年5月30日

(2) 論文

<論文>

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ	査読の有無
1	2022	劉佳星、重松幹二、為、田一雄、樋口壯太郎「浸出水中の難分解性有機物の電気分解処理に関する研究」、「廃棄物資源循環学会論文誌」一般社団法人廃棄物資源循環学会 Vol. 33、PP. 235-241、(2022)	2	有
2	2024	俞靈傑、為、田一雄、劉佳星、重松幹二、樋口壯太郎「浸透水循環による海面最終処分場の水質安定化に関する研究」、「廃棄物資源循環学会論文誌」一般社団法人廃棄物資源循環学会 Vol. 35、PP. 143-154、(2024)	1	有
3	2024	Lingjie Yu, Kazuo Tameda, Jiaxing Liu, Shigematsu Mikiji, Sotaro Higuchi, "Study on Early Stabilization of Sea Surface Landfill by Airlift Pump Method." Proceedings of The 12th Asia-Pacific Landfill Symposium (2024)	1	無
4	2024	Jiaxing Liu, Lingjie Yu, Kazuo Tameda, Sotaro Higuchi "Study on Recycling of By-product Salt by Bipolar Membrane Electrodialysis Device." Proceedings of The 12th Asia-Pacific Landfill Symposium (2024)	2	無

(3) 著書

<著書>

「特に記載することはない」

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ

(4) 口頭発表・ポスター発表

<口頭発表・ポスター発表>

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ	査読の有無
5	2025	俞靈傑、為、田一雄、重松幹二、劉佳星、樋口壯太郎「排ガス脱塩剤や飛灰安定化剤が海面処分場に与	1	無

		える影響（2）」第46回全国都市清掃研究事例発表会、PP 262-264、(2025)		
6	2025	劉佳星、俞靈傑、為、田一雄、樋口壯太郎「浸出水の電気分解処理に関する研究」第46回全国都市清掃研究事例発表会、PP 271-273、(2025)	2	無
7	2024	俞靈傑、為、田一雄、重松幹二、劉佳星、樋口壯太郎「排ガス脱塩剤や飛灰安定化剤が海面処分場に与える影響」第35回廃棄物資源循環学会研究発表会、PP 403-404、(2024)	1	無
8	2024	劉佳星、俞靈傑、為、田一雄、樋口壯太郎「電気分解による海面処分場の余水処理」第35回廃棄物資源循環学会研究発表会、PP 435-436(2024)	2	無
9	2023	樋口壯太郎、劉佳星「難分解性有機物の電気分解処理」環境産業新聞社、都市と廃棄物、Vol. 53. No. 4, pp48-54, (2023)	2	無
10	2023	樋口壯太郎「最終処分から提言する廃棄物管理システム」環境産業新聞社、都市と廃棄物、Vol. 53. No. 9, pp56-41, (2023)	1	無

(3) 「国民との科学・技術対話」の実施

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
11	2024	国民との科学・技術対話」として成果発表会を実施した。内容は本研究課題である「海面処分場の早期安定化」と「電気分解による残留キレート分解」についてサブリーダー、研究協力者が発表、質疑応答を実施した。 開催日:2025年3月13日（木） 場所：福岡大学多目的ホール 参加者：現地18名、Web参加31名 広報は特定非営利活動法人が主催しているWeb研究会（SOS研究会、登録者94名）会員、関係団体（廃棄物3R研究財団、大阪湾広域臨海環境整備センター大阪等にパンフレットを配布、送信）	1, 2

(6) マスメディア等への公表・報道等

「特に記載することはない」

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ

(7) 研究成果による受賞

「特に記載することはない」

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ
			1

(8) その他の成果発表

「特に記載することはない」

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ

権利表示・義務記載

「特に記載することはない」

この研究成果報告書の文責は、研究課題に参画した研究者にあります。
この研究成果報告書の著作権は、引用部分及びERCAのロゴマークを除いて、原則的に著作者に属します。
独立行政法人環境再生保全機構（ERCA）は、この文書の複製及び公衆送信について許諾されています。

Abstract

[Project Information]

Project Title : Study on Stabilization of Sea Area Landfill Sites and Decomposition of Residual Chelate

Project Number : JPMEERF20223M04

Project Period (FY) : 2022-2024

Principal Investigator : Higuchi Sotaro

(PI ORCID) :

Principal Institution : NPO Environmental Technical Support Network

504,No.2 Suzukann 4-29-13 Koutoubashi Sumida-ku Tokyo,JAPAN

Tel: +81366592435

E-mail: higuchis@rj8.so-net.ne.jp

Cooperated by : Fukuoka University, Graduate School of Engineering

Keywords : Sea Surface Disposal Site, Air lift Pump, Electrolysis, pH, Residual Chelate

[Abstract]

The current sea-based disposal site lacks bottom drainage pipes and facilities for collecting leachate from the base, necessitating a redesign of the structure. Therefore, a new landfill structure is proposed, incorporating a system in which leachate from below the water surface is pumped up using an airlift pump and circulated together with excess water. (2) Regarding the issues of residual chelating agents and chelate-derived COD and T-N, research and development were conducted on electrolysis as a new water treatment method suitable for the quality of the excess water. To this end, simulated landfill experiments were conducted in 12 different cases using two types of desulfurizing agents (highly reactive lime and sodium bicarbonate), three types of fly ash stabilizers (PIP-type chelating agent, DTC-type chelating agent, and inorganic phosphorus-based stabilizer), and two types of landfill structures (conventional type and airlift circulation type). Research and development were carried out for an early-stabilizing sea-based disposal site and a wastewater treatment facility using electrolysis. Furthermore, proposals were made for flue gas desulfurizing agents and fly ash stabilizers suitable for sea-based disposal."