

再生材・廃棄物における単一バッチ溶出試験(13号及び46号)と 2段バッチ溶出試験の比較

Comparison of Leaching Methods for Recycled and Waste Materials

六車満由美 藤田久雄
Mayumi MUGURUMA Hisao FUJITA

要 旨

資源再利用が進むなか再生材の環境への安全性や埋立処分場に持ち込まれる廃棄物種の特性を把握する必要がある⁷⁾。単一バッチ試験は廃棄物の溶出特性の一側面しか示し得ない。再生材等を試料に単一バッチ試験と2段バッチ溶出試験を比較しスラグ等については溶出挙動をカラム試験と比較した。結果、溶出量は単一バッチ試験より2段バッチ試験の方が多かった。スラグの2段バッチ試験の溶出量はカラム試験と概ね傾向が一致していた。2段バッチ試験は短期溶出と長期溶出を含めた再生材等の品質試験に応用が考えられる。

キーワード：初期溶出，液固比，2段バッチ溶出試験，廃棄物溶出特性

I はじめに

廃棄物を埋立処分するにあたり，また廃棄物からのリサイクル物を利用するにあたり，その廃棄物や再生材の環境影響を把握するための方法が溶出試験である。現在，日本において環境庁告示第13号による溶出試験（以下，環告13号法）は廃棄物の埋立処分するための安定性評価試験として，環境庁告示第46号による溶出試験（以下，環告46号法）は土壤環境基準を測定するための試験方法として，また廃棄物由来の再生資源を建設資材など2次製品に利用する場合に環境安全性評価の方法としても利用されている¹⁾²⁾。どちらも蒸留水を溶媒として液固比液体 L/試料重 Kg；以下 L/S と表す）10で混合し，6時間振とうする。そして廃棄物が10倍量の水と接触した時に溶出する濃度を指標に有害性の基準が設けられている。しかし廃棄物等と降雨や地下水が接触する初期に初期流出と呼ばれる高濃度の溶出が起こることが多く L/S 比の低い領域の初期段階での溶出挙動を問題とする試験方法への関心が高まっている³⁾。欧州連合（EU）では，廃棄物の溶出試験の統一化・標準化の流れの中で，2002年11月に4方法の溶出試験法が採択された⁴⁾。その内の2段バッチ溶出試験法（prEN12457-3，以下2段バッチ法）は蒸留水を溶媒として，L/S = 2のバッチ試験後，

L/S = 8のバッチ試験を連続して行い L/S 比の低い領域の溶出量を把握できる試験法である。今回2段バッチ法を再生材・廃棄物に適用し，従来の単一バッチ溶出試験（環告13号法又は環告46号法）との溶出量を比較した。また海砂，スラグ A，及びスラグ B についてはカラム溶出試験における溶出挙動とも比較した。

II 実験方法

1 試料及び測定項目

表1に示す廃棄物等について pH，電気伝導率，Na，K，Ca，Al，Cd，Pb，Cu，Mo，B，Fe，Mn，Mg，As，Se を測定した。

表1 実験に用いた試料と種類

試料名	廃棄物等の種類
グレイサイディングボード	ガラス陶器くず
再生砕石	ガレキ類
石膏	
コンクリートがら	洗浄海砂
海砂	
スラグ A	一般廃棄物溶融
スラグ B	産業廃棄物溶融

2 試験方法

- (1) 環告13号法：産業廃棄物に含まれる金属等の検定方法（昭和48年環境庁告示第13号）の埋立処分に係る試験方法に準じて行った。各1000mlポリエチレン製の容器に試料50gと蒸留水500mlを入れ水平振とう機で200rpm，振とう幅4cm，6時間振とう後，1.0μm ガラス繊維ろ紙（GA100）で濾過したものを検水とした。
- (2) 環告46号法：土壌汚染に係る環境基準について（平成3年環境庁告示第46号）に準じて行った。各1000mlポリエチレン製の容器に試料50gと蒸留水500mlを入れ水平振とう機で200rpm，振とう幅4cm，6時間振とう後，0.45μmのメンブランろ紙で濾過したものを検水とした。
- (3) カラム溶出試験：貴田らが行った方法³⁾に準拠し，内径5cmの円筒状のアクリルカラムに試料1kgを詰め下流降で蒸留水を1日あたり500mlを連続して流した。初期は50mlずつ採水し，液固比（流出量L/試料重kg）が大きくなるに従い採水量を増やし0.45μmのメンブランろ紙で濾過したものを検水とした。L/S比約15までに31日を要した。
- (4) 2段バッチ法：EUで採択された2段バッチ溶出試験法（prEN12457-3）に準じて実施した。蒸留水を溶媒として500mlポリエチレン製の容器に試料50gと蒸留水100mlを入れ水平振とう機で200rpm，振とう幅4cm，6時間振とう後，0.45μmのメンブランろ紙で濾過したものをL/S=2検水とした。濾過後の残渣と濾過に使用したメンブランろ紙を1000mlポリエチレン製の容器に入れ蒸留水400mlを入れ同一条件で18時間振とう後，0.45μmのメンブランろ紙で濾過したものをL/S=2~10検水とした。
- (5) 有効含有量試験：土壌含有量試験（平成15年3月6日環境省告示第19号・L/S=100/3 1モル塩酸）による試験方法によりおこなった⁶⁾。全含有量と区別するため有効含有量と表記した。

Ⅲ 結果及び考察

1 2段バッチ法と環告13号法の比較

2段バッチ法，環告13号法及び有効含有量試験を

グレイサイティングボード，再生砕石，石膏，コンクリートがらに適用し，廃棄物の単位重量当たりに溶出した元素の溶出量（mg/kg）を表2に示した。廃棄物が10倍量の蒸留水と接触したときの環告13号法の溶出量（L/S=10）と2段バッチ法の累積溶出量（L/S=2溶出量とL/S=8の溶出量の合計値）との比較では，2段バッチ法の溶出量は環告13号法の溶出量とほぼ同等か多く，より安全側の評価を与えている。

有害元素のCd，Pb，As，Seは定量下限値以下かほとんど溶出しなかった。溶出量が2つの溶出試験方法で異なったのは，Al，Mgであった。

また，2段バッチ法はL/S=2の非常に低い領域での溶出操作により，短期的な溶出挙動を把握できる。同時に2回のバッチ試験のL/S=2溶出量とL/S=2~10溶出量の比は溶出量の漸弱傾向を示す溶出特性の指標となる³⁾。

再生砕石，石膏，コンクリートがらについては，元素の溶出パターンはNa，Kは（L/S=2~10）/（L/S=2）比が小さく早く溶出量が減少するが，Ca，Alは比が大きく溶出量の減少が緩かであることがわかった。

グレイサイティングボードについては，Caの（L/S=2~10）/（L/S=2）比が小さく再生砕石，石膏及びコンクリートがらとは異なった初期溶出傾向を示していた。

なお，2段バッチ法の適用時の問題点として，吸水性の高い試料や粘性のある試料（石膏，グレイサイティングボード）では液固比が小さい（L/S=2）場合に検水が得にくくL/S=8試験液に持ち越しやすくなり不向きであった。粒状の試料に対してはL/S=2でも十分な検水が得られた。

単一バッチ試験は廃棄物の溶出特性の一側面しか示し得ないが2段バッチ法は初期溶出と溶出量の減少傾向の有無についても確認できると思われる。

2 2段バッチ法と環告46号法とカラム試験との比較

バッチ試験系を実施する際に一般環境を模擬したカラム試験と比較しその妥当性を比較した。2段バッチ法，46号法及び有効含有量を海砂，スラグA及びスラグBに適用し廃棄物の単位重量当たりに

表2 廃棄物等の環告13号法と2段バッチ法の溶出試験結果 (mg/kg)

グレイサイティグボード															
	Na	K	Ca	AL	Cu	Mg	Fe	Mn	B	Mo	Cd	Pb	As	Se	
有効含有量 (mg/kg)					23		8500	310	49		0.9	27	5.0	0.40	
環告13号 L/S=10 (mg/kg)	799	177	2700		0.08	0.80	0.5	0.5	2.0	-	0.01	0.01	0.02	0.09	
2 段 バ ッ チ	L/S=2 (mg/kg)	443	88	1668	0.86	0.04	0.64	0.5	0.5	0.7	0.18	0.01	0.01	0.02	0.22
	L/S=2~10 (mg/kg)	573	137	1392	3.47	0.06	0.68	0.5	0.5	1.8	0.14	0.01	0.01	0.02	0.08
	累積量 (mg/kg)	1016.2	225	3060	4.33	0.1	1.32	0.5	0.5	2.4	0.32	0.01	0.01	0.02	0.3
	(L/S=2~10)/(L/S=2)	1.3	1.6	0.8	4.0	1.3	1.1	-	-	2.7	0.8	-	-	-	0.4
再生砕石															
	Na	K	Ca	AL	Cu	Mg	Fe	Mn	B	Mo	Cd	Pb	As	Se	
有効含有量 (mg/kg)			110000	7500	16	4100	5100	230	9		0.5	78	4.0	0.2	
環告13号 L/S=10 (mg/kg)	417	208	7700	0.12	0.39	0.7	0.6	0.5	0.2	0.41	0.01	0.01	0.02	0.02	
2 段 バ ッ チ	L/S=2 (mg/kg)	348	290	1410	0.32	0.18	0.42	0.2	0.5	0.2	0.29	0.01	0.01	0.02	0.02
	L/S=2~10 (mg/kg)	163	226	5808	2.32	0.15	2	1.8	0.5	0.2	0.31	0.01	0.04	0.02	0.02
	累積量 (mg/kg)	511	516	7218	2.64	0.33	2.42	2.0	0.5	0.2	0.61	0.01	0.05	0.02	0.02
	(L/S=2~10)/(L/S=2)	0.5	0.8	4.1	7.3	0.9	4.8	7.7	-	-	1.1	-	6.5	-	-
石膏															
	Na	K	Ca	AL	Cu	Mg	Fe	Mn	B	Mo	Cd	Pb	As	Se	
有効含有量 (mg/kg)			150000	110	1.2	560	290	40	3	0.3	0.3	4.7	0.5	0.2	
環告13号 L/S=10 (mg/kg)	206	133	6400	1.9	0.02	0.8	0.5	1.3	1	0.07	0.03	0.01	0.03	0.02	
2 段 バ ッ チ	L/S=2 (mg/kg)	101	121	1290	0.58	0.02	54	0.5	1.1	0.07	0.03	0.01	0.01	0.02	
	L/S=2~10 (mg/kg)	66	73	5312	2.24	0.02	35.2	0.5	2.2	0.6	0.05	0.02	0.01	0.02	
	累積量 (mg/kg)	167	194	6602	2.82	0.02	89.2	0.5	3.2	1.5	0.12	0.05	0.01	0.02	
	(L/S=2~10)/(L/S=2)	0.6	0.6	4.1	3.9	-	0.7	-	2.0	0.8	0.7	0.7	-	2.7	-
コンクリートがら															
	Na	K	Ca	AL	Cu	Mg	Fe	Mn	B	Mo	Cd	Pb	As	Se	
有効含有量 (mg/kg)			209200	6660	31	20500	4900	320	8	2.9	0.6	15	2.5	0.2	
環告13号 L/S=10 (mg/kg)	224	320	6800	2.9	0.02	1.40	1.2	0.5	0.2	0.13	0.01	0.02	0.02	0.02	
2 段 バ ッ チ	L/S=2 (mg/kg)	171	389	1320	0.7	0.05	0.05	0.5	0.5	0.2	0.03	0.01	0.01	0.02	
	L/S=2~10 (mg/kg)	80	175	5736	5.36	0.02	0.52	0.5	0.5	0.2	0.10	0.01	0.02	0.02	
	累積量 (mg/kg)	251	564	7056	6.06	0.05	0.57	0.5	0.5	0.2	0.13	0.01	0.02	0.02	
	(L/S=2~10)/(L/S=2)	0.5	0.5	4.3	7.7	-	10.8	-	-	-	4.0	-	-	-	-

は未測定。

溶出した元素の溶出量 (mg/kg) を表3に示す。また検出された主な元素についてカラム試験と勧告46号法及び2段バッチ試験の累積溶出量 (mg/kg) を比較したグラフを図1示す。

元素別にみるとNa, K, B, Moは3試料とも(L/S=2~10)/(L/S=2)比が0.5~1.2と小さく

早い段階で大幅に減少する(溶出が終わる)傾向を示しカラム試験の溶出傾向と概ね一致した。

Caは(L/S=2~10)/(L/S=2)比が4.0前後とNa, Kに比べ大きく、溶出量の減少が緩やかな傾向を示しカラム試験の溶出傾向と一致していた。

AlはスラグA, スラグBにおいて(L/S=2~

10) / (L/S = 2) 比が4.0前後で緩やかな溶出傾向を示したが海砂は比0.2と小さく極早い段階で溶出が終了する傾向を示した。これはカラム試験の溶出傾向と一致しており試料の溶出特性を示すものであった。

有害元素のCd, Pb, As, Seは2段バッチ法, 環告46号法, カラム試験でも検出されないか, 検出されても極わずかで溶出傾向が一致していた。

溶出量が溶出試験法で異なったのはAl, Mgであった。Alの溶出量は2段バッチ試験による溶出量がカラム試験より約5倍, MgはスラグA, Bで約3倍多かった。

これは2回の振とう操作により物理的劣化が加速され溶出量が増加したものの, 一回目の溶出試験の後,

新たな溶媒と接触させるため拡散溶出が継続し溶出量が増加したものと考え⁸⁾。スラグの溶出量は2段バッチ試験, 単一バッチ試験, カラム試験の順に多かった。

また有効含有量と溶出量を比べると必ずしも比例せず, 試料の構造等により溶出特性に違いが生じていると思われる。

方法の違う溶出試験の結果を数値のみで直接比較するのは問題もあるが, 実際の浸透現象を再現する溶出試験のライシメーターでは半年から1年以上, カラム試験でも30日程度の期間を要するため現場での規制を行う目的で行われる溶出試験には操作性が簡便であり再現性よく短時間で結果が得られる事が求められる。スラグ等のロット間差を管理する上

表3 再生材等の環告46号法と2段バッチ法の溶出試験結果 (mg/kg)

海砂																	
	pH	EC ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	Na	K	Ca	AL	Cu	Mg	Fe	Mn	B	Mo	Cd	Pb	As	Se	
有効含有量 (mg/kg)	-	-	-	-	12000	290	1	400	610	143	6	1.2	0.1	1.1	0.37	0.2	
環告46号 L/S=10(mg/kg)	9.5	50	18.0	23.0	47	3.0	0.02	13.0	0.5	0.1	0.2	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02	
2 段 バ ッ チ	L/S=2 (mg/kg)	9.3	120	22.0	6.8	12	17.8	0.03	12.6	26	2.8	0.2	0.01	0.01	0.03	0.02	0.02
	L/S=2~10(mg/kg)	9.6	70	11.2	22.4	58	3.2	0.02	11.2	0.5	0.1	0.2	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02
	累積量 (mg/kg)			33.2	29.2	69	21	0.03	23.8	26	2.8	0.3	0.01	0.01	0.03	0.03	0.02
	(L/S=2~10)(L/S=2)	-	0.6	0.5	3.3	4.9	0.2	-	0.9	0.01	-	-	-	-	-	-	-
一般廃棄物溶融スラグ(スラグA)																	
	pH	EC ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	Na	K	Ca	AL	Cu	Mg	Fe	Mn	B	Mo	Cd	Pb	As	Se	
有効含有量 (mg/kg)	-	-	-	-	210000	89000	5	8700	28000	2720	278	14	0.1	25	0.1	0.2	
環告46号 L/S=10(mg/kg)	9.7	54	15.0	3.0	79	10.0	0.19	1.3	0.5	0.1	0.2	0.01	0.01	0.07	0.02	0.02	
2 段 バ ッ チ	L/S=2 (mg/kg)	10.3	170	13.4	3.6	48	5.4	0.02	0.8	0.5	0.1	0.2	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02
	L/S=2~10(mg/kg)	10.4	98	6.32	3.12	120	18.4	0.02	2.5	0.5	0.1	0.2	0.01	0.01	0.03	0.02	0.02
	累積量 (mg/kg)			19.72	6.72	168	23.8	0.02	3.3	0.5	0.1	0.2	0.01	0.01	0.03	0.02	0.02
	(L/S=2~10)(L/S=2)	-	0.6	0.5	0.9	2.5	3.4	-	3.0	-	-	-	-	-	-	-	-
産業廃棄物溶融スラグ(スラグB)																	
	pH	EC ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	Na	K	Ca	AL	Cu	Mg	Fe	Mn	B	Mo	Cd	Pb	As	Se	
有効含有量 (mg/kg)	-	-	-	-	48000	16000	1400	1900	16000	180	120	19	0.1	120	1.5	0.2	
環告46号 L/S=10(mg/kg)	8.8	63	12.0	3.0	100	39	0.06	1.6	0.5	0.1	0.17	0.09	0.01	0.01	0.02	0.02	
2 段 バ ッ チ	L/S=2 (mg/kg)	8.7	120	10.8	3.4	32	12	0.03	1.0	0.5	0.1	0.2	0.08	0.01	0.01	0.02	0.02
	L/S=2~10(mg/kg)	8.8	70	4.4	2.88	104	48	0.06	1.7	0.5	0.1	0.2	0.10	0.01	0.01	0.02	0.02
	累積量 (mg/kg)			15.2	6.28	136	60	0.08	2.6	0.5	0.1	0.2	0.18	0.01	0.01	0.02	0.02
	(L/S=2~10)(L/S=2)	-	0.6	0.4	0.8	3.3	4.0	2.0	1.8	-	-	-	1.2	-	-	-	-

は未測定。

でも埋立廃棄物の溶出特性を把握する上でも短期間に結果を得るためには、今回検討した2段バッチ法が短期的な溶出特性を把握でき従来の溶出試験法を補完できる方法と思われる。

IV まとめ

- 1 2段バッチ法をコンクリートがら等に適用した場合、溶出量は環告13号法及び勸告46号法と同等か多く溶出し、より安全側の評価を与える指標となる。
- 2 EU 2段バッチ試験(L/S=2 6時間後, L/S=8 18時間)はカラム試験とも溶出傾向は概ね一致していた。
- 3 2段バッチ法の問題点は、吸水性の高い試料や粘性のある試料では液固比が小さいL/S=2の場合に検水が得にくく不向きであった。粒状の試料に対してはL/S=2でも充分な検水が得られた。
- 4 2段バッチ法は溶出量、溶出量の比を評価する事で公定試験法の環告第13号法、環告46号法、有効含有量試験法を補完する形で廃棄物、再生材が持つ初期溶出特性のデータが得られる。

る測定法を定める件(平成15年3月6日環境省告示第19号)

- 7) 貴田晶子:再生材の安全性評価,最終処分場の安全性の評価法,セミナー講演概要集,47-60,平成16年3月3日
- 8) 貴田晶子,大迫政浩,酒井伸一:カラム試験による溶融スラグの建設資材利用時の土壌・地下水系への影響評価,環境科学会誌,16,6,497-516,(2003)

文 献

- 1) 平成10年3月26日の生衛発第508号:「一般廃棄物の溶融固化物の再生利用に関する指針」
- 2) 日本工業標準調査会(2002)一般廃棄物,下水廃棄物等の溶融溶融固化物を用いたコンクリート用細骨材(TRA0016:2002),一般廃棄物,下水廃棄物等の溶融溶融固化物を用いた道路用細骨材(TRA0017:2002)
- 3) 酒井伸一,水谷聡,高月紘:溶出試験の基本的考え方,廃棄物学会誌,7,5,383-393,(1996)
- 4) 多野崎隆雄,田中勝,ピエール・モスコビッツ他:欧州における廃棄物及び土壌の評価方法の標準化,環境科学学会誌,16(6):465-473(2003)
- 5) 貴田晶子,大迫政浩,酒井伸一:カラム試験による溶融スラグの土木利用時の土壌・地下水系への影響評価,第14回廃棄物学会研究発表会講演論文集,551-553,(2003)
- 6) 土壌汚染対策法に基づく告示:土壌含有量調査に係

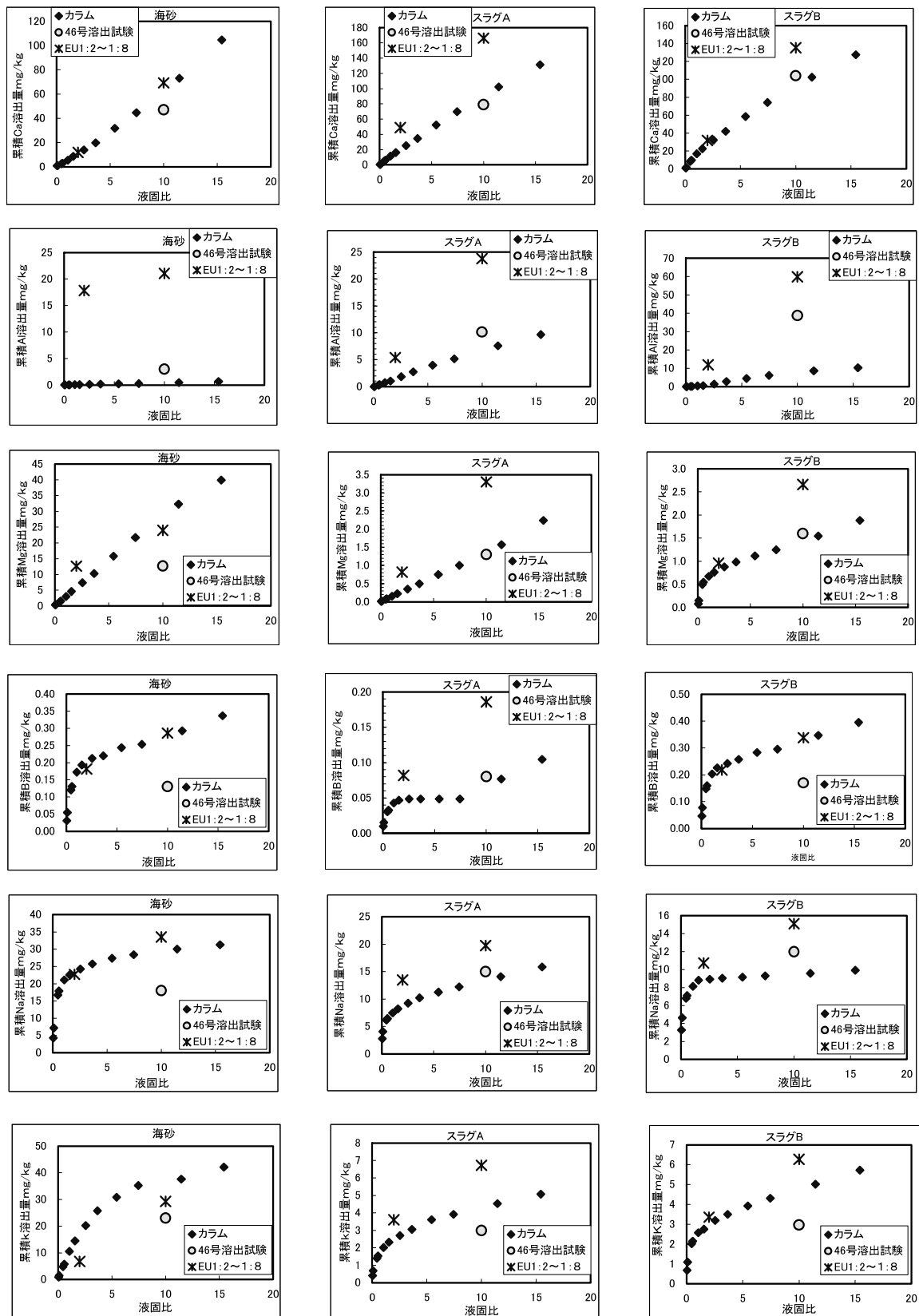


図 1 カラム試験と単一バッチ試験、2段バッチ試験の溶出量(mg/kg)の比較