

表5-13 模型槽へのダイオキシン類及び金属類の充填量

濃度の単位 充填量の単位	ダイオキシン類											
	$\mu\text{g-TEQ/kg}$ $\mu\text{g-TEQ}$	T-Hg mg/Kg g	T-Cr mg/Kg g	Cd mg/Kg g	Cu mg/Kg g	Pb mg/Kg g	Zn mg/Kg g	Fe mg/Kg g	Mn mg/Kg g	Na mg/Kg g	K mg/Kg g	Ca mg/Kg g
飛灰	64	7	350	860	2700	7700	50000	28000	1100	56000	50000	140000
焼却灰	0.019	0.043	530	14	4800	5200	4500	140000	3900	19000	8400	190000
破砕不燃ゴミ	0.0035	0.25	1.21	0	32.8	640	570	4980	810	52520	45800	16180
飛灰	35968	3.934	196.7	483.32	1517.4	4327.4	28100	15736	618.2	31472	28100	78680
焼却灰	37.316	0.084452	1040.92	27.496	9427.2	10212.8	8838	274960	7659.6	37316	16497.6	373160
破砕不燃ゴミ	2.3765	0.16975	0.82159	0	22.2712	434.56	387.03	3381.42	549.99	35661.08	31098.2	10986.22
合計	36000	4.2	1240	511	11000	15000	37300	294000	8830	104000	75700	463000

*濃度の単位は乾重当たり

**充填量: 飛灰 562 kg-dry
 焼却灰 1964 kg-dry
 破砕不燃ゴミ 679 kg-dry

***ダイオキシン類以外は類似試料のデータから引用

表5-14 第1槽の槽出口でのダイオキシン類及び金属類の漏出率

	ダイオキシン類		T-Hg	T-Cr	Cd	Cu	Pb	Zn	Fe	Mn	Na	K	Ca
	μg-TEQ	μg	g	g	g	g	g	g	g	g	g	g	g
充填量	36000	3990000	4.2	1240	511	11000	15000	37300	294000	8830	104000	75700	463000
埋立481日 後の漏出量	4.70E-03	0.756	3.17E-04	0.067	0.061	0.184	0.208	0.062	22.6	0.381	5920	5070	5680
漏出率	1.31E-07	1.89E-07	7.55E-05	5.40E-05	1.19E-04	1.67E-05	1.39E-05	1.66E-06	7.69E-05	4.31E-05	5.69E-02	6.70E-02	1.23E-02

表5-15 第2槽の槽出口でのダイオキシン類及び金属類の漏出率

	ダイオキシン類		T-Hg	T-Cr	Cd	Cu	Pb	Zn	Fe	Mn	Na	K	Ca
	μg-TEQ	μg	g	g	g	g	g	g	g	g	g	g	g
充填量	36000	3990000	4.2	1240	511	11000	15000	37300	294000	8830	104000	75700	463000
埋立481日 後の漏出量	8.06E-03	1.52	5.31E-04	0.344	0.072	0.202	0.323	0.17	27.9	0.249	11100	8600	7730
漏出率	2.24E-07	3.81E-07	1.26E-04	2.77E-04	1.41E-04	1.84E-05	2.15E-05	4.56E-06	9.49E-05	2.82E-05	1.07E-01	1.14E-01	1.67E-02

5-3. まとめ

準好気性及び循環型準好気性の二つの大型模型槽を用いて最終処分場におけるダイオキシン類の挙動について基礎的研究を行い、以下のような成果を得た。

- ① 模型槽浸出水（原水）のダイオキシン類濃度は、準好気性埋立の第1槽において埋立て直後 10pg-TEQ/L 以上（～40pg-TEQ/L）であったが埋立 282 日経過以降は排水基準の 10pg-TEQ/L 以下となった。循環型準好気性の第2槽では、埋立直後から排水基準を下回る濃度あるいは基準と同程度の濃度で推移したが、降雨量が増加し循環水量を増やした時点で濃度が上昇する現象が見られた。しかし、総量 36×10^9 pg-TEQ のダイオキシン類が充填された実験であることを考えると、浸出水の濃度は予想に反して低かった。
- ② 埋立後 481 日経過した時点での模型槽からのダイオキシン類の漏出率は 10^{-7} のオーダーであり、金属元素に比べて格段に低い値であった。481 日間の貯留率はほぼ 100% であると言える。
- ③ 浸出水中のダイオキシン類の存在形態は SS 性（1 μ m 以上）が 90% 以上であった。ダイオキシン類除去には粒子除去が効果的であると言える。
- ④ 浸出水中のダイオキシン類の同族体分布は、調査期間中変化せず基本的に充填した廃棄物（飛灰）の分布を反映した。SS 性部分のもとより、非 SS 性部分も廃棄物の分布を反映することから、非 SS 性といえども 1 μ m 以下の微粒子に属するダイオキシン類である可能性が高い。
- ⑤ 模型槽本体からの鉄の溶出に起因すると思われる異常な SS に関連するデータを除いて評価すると、浸出水中のダイオキシン類と SS には濃度相関が認められた。得られた 1 次回掃式から判断するとダイオキシン類濃度 10pg-TEQ/L を達成するための SS はおよそ 100mg/L となった。金属類では銅、クロム、亜鉛及び鉄がダイオキシン類と一定の相関がある可能性が認められたが、これは SS との相関に関連すると思われる。
- ⑥ 浸出水中のダイオキシン類と BOD 及び TOC の間にも一定の濃度相関が認められる。これは、従来指摘されている有機物によるダイオキシン類の固相から液相への移動促進と関連づけて考えられることができる。
- ⑦ 浸出水の ORP とダイオキシン類濃度には逆相関が見られた。
- ⑧ 浸出水の pH とダイオキシン類濃度を見ると、高 pH でダイオキシン類濃度が高くなる傾向が見られるが、相関は必ずしも高くない。
- ⑨ 浸出水の塩素イオンとダイオキシン類の濃度を見ると、塩素イオンの濃度が高いとダイオキシン類の濃度が高くなる傾向が見られるが、相関は必ずしも高くない。
- ⑩ 飛灰（ダイオキシン類濃度 64000pg-TEQ/g）と混合ゴミ（飛灰＋焼却灰＋破碎不燃物）のダイオキシン類に係わる溶出試験を行ったところ、溶出濃度は飛灰で 2 pg-TEQ/L、混合ゴミで 0.3pg-TEQ/L となり、環境基準を考慮すると十分低い値であった。
- ⑪ 総体的に見て、ダイオキシン類や栄養塩では循環型準好気性の第2槽が準好気性の第1槽より低濃度化していると言える。ただし、降雨量増加等によって循環水量を上げ

ると第2槽においてこれらの濃度が増加する現象が認められた。浸出水と廃棄物の接触機会が増えることによる洗い出し効果による現象と考えられる。

- ⑫ 期間中実験地における雨水のダイオキシン類濃度を追跡調査した。雨水の濃度範囲は0.05～2.7pg-TEQ/Lであり、平均値は0.59pg-TEQ/Lであった。協本が報告した1995年の松山の範囲0.45～8.6pg-TEQ/L、平均値2.58pg-TEQ/Lよりかなり低下しており、この間の全国的な排出改善を反映していると思われる。雨水のダイオキシン類の同族体分布の中には焼却パターンのもも見られるが、2.7pg-TEQ/Lの高濃度を示した雨水の分布は焼却残渣のものとは異なっており、ダイオキシン類に係わる多様な大気汚染が考えられる。

第6章 埋立物からのダイオキシン類溶出挙動研究

6-1. 溶出挙動試験1 (溶出WG、広島チーム)

6-1-1 調査概要

1) 調査目的

ダイオキシン類は水への溶解度が低く、土壌への吸着性も高いことから、廃棄物処分場へ埋め立てられた廃棄物中のダイオキシン類が溶出することは少ないと考えられる。しかしながら、平成9年度に行った調査では、低濃度ながらダイオキシン類の溶出が見られ、13カ所の埋立処分場における浸出水原水中のダイオキシン類濃度は0.0006pg-TEQ/l (0.6pg/l) から16pg-TEQ/l (1400pg/l) と広範囲にわたっていた。このことは、溶出に影響を与える何らかの因子が存在していることを示している。

そこで、本ワーキンググループでは、浸出水へのダイオキシン類溶出に影響を与える因子を解明することを目的として、各種条件下で溶出実験を行い、ダイオキシン類の溶出特性を調査した。

2) 調査方法

(1) 概要

本調査で考慮する溶出特性にかかわる要因は以下のとおりとした。

- ① 灰の種類
- ② 溶出溶媒 蒸留水、海水
- ③ 共存マトリックス LAS、メタノール
- ④ 溶出時間 短時間—振とう抽出、長時間—長期浸漬

この4点に着目し、本調査ではまず各灰試料を蒸留水で溶出することから始め、次に各種条件下における溶出実験を行い、溶出液についてダイオキシン類分析を行った。

(2) 試料

溶出用の試料として、施設 No.14 (全連炉) の飛灰、焼却灰および挙動部会 B のカラム実験に用いられている飛灰、混合灰を用いた。

カラム実験混合灰の組成は、焼却灰：飛灰：破碎不燃物＝6：2：2である。

施設 No.14 の試料については、飛灰はそのまま溶出試験に用いたが、焼却灰は飛灰と混合し、混合灰として試験に用いた。混合割合は灰の搬入割合とし、焼却灰：飛灰＝8.135：1.865とした。

試料とした灰はいずれも全て均一に混合した後に溶出試験に用いた。

(3) 溶出条件

①灰の種類による溶出実験

カラム実験飛灰、同混合灰、施設 No.14 飛灰、同混合灰の4種について、蒸留水のみの1条件で振とう溶出を行い、ろ液についてダイオキシン類の分析を行った。ろ紙のろ過孔径は1 μm 及び0.45 μm の2種類とした。溶出条件は以下のとおりである。蒸留水は高速液体クロマトグラフ用（和光純薬）を用いた。

溶出容器：ガラス製（2リットル）

溶出溶媒：蒸留水

固液比：1：10（試料1kgに対して蒸留水10リットル）

pH：未調整（pH値は測定）

溶出方法：振とう、6時間

溶出温度：室温（23 $^{\circ}\text{C}$ ～25 $^{\circ}\text{C}$ ）

②溶媒の種類による溶出実験

海面埋立を想定し、海水による溶出特性を調査した。海水は人工海水を用いた。

試料はカラム実験飛灰、施設 No.14 飛灰の2種とし、塩濃度を1、2、3%の3条件とし、各条件について溶出を行った。ろ紙孔径は塩濃度3%のみ1 μm 、0.45 μm とし、他の条件については1 μm のみのろ過を行った。溶出条件は蒸留水による溶出と同一とした。

用いた人工海水はジャマリンラボラトリー製、塩濃度3%のイオン分析結果は以下のとおりである。

陽イオン

Na 10650mg/l

K 586mg/l

Mg 972mg/l

Ca 421mg/l

陰イオン

Cl 14900mg/l

SO₄ 2590mg/l

③共存マトリックスの種類による溶出実験

ダイオキシン類の溶出に関与していると考えられるマトリックス成分として、LAS、メタノールを選び、濃度条件を変えた溶出実験を行った。

試料はカラム実験飛灰、施設 No.14 飛灰の2種とし、LAS濃度を1000mg/l、100mg/lの2条件、メタノール濃度を20%、10%、100mg/lの3条件とし、各条件について溶出を行った。ろ紙孔径はLAS濃度1000mg/l、メタノール濃度20%のみ1 μm 、0.45 μm とし、他の条件については1 μm のみのろ過を行った。溶出条件は蒸留水による溶出と同一とした。

メタノールは残留農薬試験用（1000倍濃縮、和光純薬）を、またLASは炭素数ごとの高濃度混合標準の入手が不可能であったため、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム（LAS試験用、和光純薬）を標準として用いた。

④溶出時間による溶出実験

海面埋立における長期に渡る溶出特性を把握するために、海水を用いた長期浸漬実験を行った。比較対照として、蒸留水による実験も平行して行った。

試料はカラム実験飛灰1種とし、塩濃度は3%の1条件とした。固液比は1:10とし静置状態で1ヶ月間溶出を行った。ろ過はろ紙孔径0.45 μ mでのろ過のみとした。なお継続して3ヶ月、6ヶ月、12ヶ月の溶出を行っている。溶出条件は以下のとおりである。

溶出容器：ポリプロピレン製100リットル容器

溶出溶媒：蒸留水、海水（塩濃度3%）

固液比：1:10（試料4.0~4.5kgに対して溶媒40~45リットル）

pH：未調整（pH値は測定）

溶出方法：静置1、3、6、12ヶ月

溶出温度：室温（23 $^{\circ}$ C~25 $^{\circ}$ C）

⑤ダイオキシン類溶出関連物質の分析

ダイオキシン類分析と同時にダイオキシン類溶出関連物質として、溶出液のpH、EC、TOC、Fe、n-ヘキサン抽出物質、陰イオン界面活性剤、フミン・フルボ酸、アルコール類、低級脂肪酸の分析を行った。アルコール類及び低級脂肪酸の分析項目は以下のとおりである。分析は1 μ mろ過のろ液についてのみ行ったが、長期浸漬実験については0.45 μ mのろ液について分析を行った。

- ・アルコール類 メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、2-メチル-1-ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、2-エチルヘキサノール、ヘプタノール、オクタノール、ノナノール、デカノール
- ・低級脂肪酸 シュウ酸、クエン酸、DL-イソクエン酸、D-酒石酸、L-アスコルビン酸、リンゴ酸、ギ酸、マレイン酸、マロン酸、シキミ酸、コハク酸、L-乳酸、蟻酸、酢酸、フマル酸、アジピン酸、レブリン酸、プロピオン酸、イ酪酸、酪酸、吉草酸

6-1-2 調査結果

1) ダイオキシン類及び関連物質分析結果

各試料のダイオキシン類分析結果及び関連物質の分析結果を表6-1~11に示す。

表6-1 蒸留水溶出分析結果

試料名	カラム実験 飛灰 1 μ mろ過	カラム実験 飛灰 0.45 μ mろ過	カラム実験混合灰 1 μ mろ過	カラム実験混合灰 0.45 μ mろ過
pH	10.6	—	9.9	—
EC(mS/cm)	18.9	—	5.3	—
TOC(mg/l)	5	—	19	—
Fe(mg/l)	0.2	—	<0.1	—
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	<0.5	—	1.4	—
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	<0.02	—	<0.02	—
フミン酸	<0.01	—	<0.01	—
フルボ酸	<0.01	—	<0.01	—
ダイキシン (Total pg/l)	110	19	15	9.0
ダイキシン (pg-TEQ/l)	0.35	0.049	0.028	0.015

試料名	施設 No.14 飛灰 1 μ mろ過	施設 No.14 飛灰 0.45 μ mろ過	施設 No.14 混合灰 1 μ mろ過	施設 No.14 混合灰 0.45 μ mろ過
pH	13.2	—	12.7	—
EC(mS/cm)	27.9	—	16.5	—
TOC(mg/l)	3	—	167	—
Fe(mg/l)	0.2	—	<0.1	—
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	0.6	—	2.0	—
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	<0.02	—	0.07	—
フミン酸	<0.01	—	<0.01	—
フルボ酸	<0.01	—	0.42	—
ダイキシン (Total pg/l)	18	27	20	12
ダイキシン (pg-TEQ/l)	0.049	0.044	0.029	0.018

表 6 - 2 海水溶出分析結果

塩濃度 3 % 溶出

試料名	カラム実験 飛灰 1 μm ろ過	カラム実験 飛灰 0.45 μm ろ過	施設 No.14 飛灰 1 μm ろ過	施設 No.14 飛灰 0.45 μm ろ過
pH	10.0	—	13.1	—
EC(mS/cm)	50.2	—	57.3	—
TOC(mg/l)	2	—	13	—
Fe(mg/l)	<0.1	—	<0.1	—
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	1.2	—	<0.5	—
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	<0.02	—	<0.02	—
フミン酸	<0.01	—	<0.01	—
フルボ酸	<0.01	—	0.034	—
ダイオキシン (Total pg/l)	64	8.4	16	11
ダイオキシン (pg-TEQ/l)	0.12	0.017	0.041	0.018

塩濃度 2 % 溶出

試料名	カラム実験 飛灰 1 μm ろ過	—	施設 No.14 飛灰 1 μm ろ過	—
pH	10.3	—	13.2	—
EC(mS/cm)	42.5	—	52.2	—
TOC(mg/l)	3	—	4	—
Fe(mg/l)	<0.1	—	<0.1	—
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	1.2	—	0.6	—
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	<0.02	—	<0.02	—
フミン酸	<0.01	—	<0.01	—
フルボ酸	0.022	—	<0.01	—
ダイオキシン (Total pg/l)	210	—	54	—
ダイオキシン (pg-TEQ/l)	0.85	—	0.28	—

塩濃度 1 % 溶出

試料名	カラム実験 飛灰 1 μm ろ過	—	施設 No.14 飛灰 1 μm ろ過	—
pH	10.9	—	13.2	—
EC(mS/cm)	30.5	—	43.5	—
TOC(mg/l)	6	—	8	—
Fe(mg/l)	<0.1	—	<0.1	—
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	1.0	—	<0.5	—
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	<0.02	—	<0.02	—
フミン酸	<0.01	—	<0.01	—
フルボ酸	<0.01	—	<0.01	—
ダイオキシン (Total pg/l)	300	—	59	—
ダイオキシン (pg-TEQ/l)	1.3	—	0.31	—

表 6 - 3 LAS 溶出分析結果

LAS 1000mg/l 溶出

試料名	カラム実験 飛灰 1 μ mろ過	カラム実験 飛灰 0.45 μ mろ過	施設 No.14 飛灰 1 μ mろ過	施設 No.14 飛灰 0.45 μ mろ過
pH	10.5	—	12.6	—
EC(mS/cm)	21.3	—	34.0	—
TOC(mg/l)	13	—	23	—
Fe(mg/l)	<0.1	—	<0.1	—
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	1.0	—	1.2	—
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	—	—	—	—
フミン酸	<0.01	—	<0.01	—
フルボ酸	0.01	—	<0.01	—
ダイオキシン (Total pg/l)	390	77	57	7.2
ダイオキシン (pg-TEQ/l)	2.0	0.28	0.12	0.016

LAS 100mg/l 溶出

試料名	カラム実験 飛灰 1 μ mろ過	—	施設 No.14 飛灰 1 μ mろ過	—
pH	10.5	—	12.6	—
EC(mS/cm)	21.5	—	34.1	—
TOC(mg/l)	6	—	11	—
Fe(mg/l)	<0.1	—	<0.1	—
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	1.0	—	1.0	—
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	—	—	—	—
フミン酸	<0.01	—	<0.01	—
フルボ酸	<0.01	—	<0.01	—
ダイオキシン (Total pg/l)	150	—	13	—
ダイオキシン (pg-TEQ/l)	0.63	—	0.024	—

表6-4 メタノール溶出分析結果

メタノール 20%溶出

試料名	カラム実験 飛灰 1 μ mろ過	カラム実験 飛灰 0.45 μ mろ過	施設 No.14 飛灰 1 μ mろ過	施設 No.14 飛灰 0.45 μ mろ過
pH	11.2	—	12.5	—
EC(mS/cm)	12.0	—	20.1	—
TOC(mg/l)	52900	—	58300	—
Fe(mg/l)	<0.1	—	<0.1	—
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	1.0	—	0.8	—
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	<0.02	—	<0.02	—
フミン酸	<0.01	—	<0.01	—
フルボ酸	<0.01	—	0.076	—
ダイキシン (Total pg/l)	470	18	41	20
ダイキシン (pg-TEQ/l)	2.6	0.058	0.095	0.042

メタノール 10%溶出

試料名	カラム実験 飛灰 1 μ mろ過	—	施設 No.14 飛灰 1 μ mろ過	—
pH	10.7	—	12.6	—
EC(mS/cm)	16.5	—	25.3	—
TOC(mg/l)	27800	—	28700	—
Fe(mg/l)	<0.1	—	<0.1	—
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	1.4	—	1.4	—
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	<0.02	—	<0.02	—
フミン酸	<0.01	—	<0.01	—
フルボ酸	<0.01	—	<0.01	—
ダイキシン (Total pg/l)	160	—	23	—
ダイキシン (pg-TEQ/l)	0.50	—	0.048	—

メタノール 100mg/l 溶出

試料名	カラム実験 飛灰 1 μ mろ過	—	施設 No.14 飛灰 1 μ mろ過	—
pH	10.6	—	12.6	—
EC(mS/cm)	21.3	—	33.8	—
TOC(mg/l)	43	—	34	—
Fe(mg/l)	<0.1	—	<0.1	—
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	1.8	—	1.2	—
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	<0.02	—	<0.02	—
フミン酸	<0.01	—	<0.01	—
フルボ酸	<0.01	—	<0.01	—
ダイキシン (Total pg/l)	170	—	12	—
ダイキシン (pg-TEQ/l)	0.47	—	0.024	—

表 6 - 5 長期浸漬分析結果

試料名	カラム実験 飛灰 海水1ヶ月浸漬	カラム実験 飛灰 蒸留水1ヶ月浸漬
pH	8.7	10.2
EC(mS/cm)	57.8	19.5
TOC(mg/l)	4	4
Fe(mg/l)	<0.1	<0.1
n-ヘキサン抽出物質(mg/l)	2.0	1.4
陰イオン界面活性剤 (mg/l)	<0.02	<0.02
フミン酸	<0.01	<0.01
フルボ酸	<0.01	<0.01
ダイキシン (Total pg/l)	610	120
ダイキシン (pg-TEQ/l)	3.5	0.54

表 6 - 6 原灰分析結果

原灰

試料名	カラム実験 飛灰	カラム実験混合灰	施設 No.14 飛灰	施設 No.14 主灰
ダイキシン (Total ng/g)	6600	2300	120	8.9
ダイキシン (ng-TEQ/g)	57	20	2.3	0.089

表6-7 アルコール類分析結果

試料名	カラム実験 飛灰 蒸留水	カラム実験混合灰 蒸留水	施設 No.14 飛灰 蒸留水	施設 No.14 混合灰 蒸留水
メタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
エタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
プロパノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ブタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
2-メチル-1-ブタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ペンタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ヘキサノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
2-エチルヘキサノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ヘプタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
オクタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ノナノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
デカノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10

試料名	カラム実験 飛灰 塩濃度 3 %	施設 No.14 飛灰 塩濃度 3 %	カラム実験 飛灰 塩濃度 2 %	施設 No.14 飛灰 塩濃度 2 %
メタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
エタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
プロパノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ブタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
2-メチル-1-ブタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ペンタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ヘキサノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
2-エチルヘキサノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ヘプタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
オクタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ノナノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
デカノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10

試料名	カラム実験 飛灰 塩濃度 1 %	施設 No.14 飛灰 塩濃度 1 %	カラム実験 飛灰 LAS1000mg/l	施設 No.14 飛灰 LAS1000mg/l
メタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
エタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
プロパノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ブタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
2-メチル-1-ブタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ペンタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ヘキサノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
2-エチルヘキサノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ヘプタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
オクタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ノナノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
デカノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10

表6-8 アルコール類分析結果

試料名	カラム実験 飛灰 LAS100mg/l	施設 No.14 飛灰 LAS100mg/l	カラム実験 飛灰 メタノール 20%	施設 No.14 混合灰 メタノール 20%
メタノール(mg/l)	<10	<10	---	---
エタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
プロパノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ブタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
2-メチル-1-ブタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ペンタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ヘキサノール	<10	<10	<10	<10
2-エチルヘキサノール	<10	<10	<10	<10
ヘプタノール	<10	<10	<10	<10
オクタノール	<10	<10	<10	<10
ノナノール	<10	<10	<10	<10
デカノール	<10	<10	<10	<10

試料名	カラム実験 飛灰 メタノール 10%	施設 No.14 飛灰 メタノール 10%	カラム実験 飛灰 メタノール 100mg/l	施設 No.14 飛灰 メタノール 100mg/l
メタノール(mg/l)	---	---	---	---
エタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
プロパノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ブタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
2-メチル-1-ブタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ペンタノール(mg/l)	<10	<10	<10	<10
ヘキサノール	<10	<10	<10	<10
2-エチルヘキサノール	<10	<10	<10	<10
ヘプタノール	<10	<10	<10	<10
オクタノール	<10	<10	<10	<10
ノナノール	<10	<10	<10	<10
デカノール	<10	<10	<10	<10

試料名	カラム実験 飛灰 海水 3% 1ヶ月	カラム実験 飛灰 蒸留水 1ヶ月
メタノール(mg/l)	<10	<10
エタノール(mg/l)	<10	<10
プロパノール(mg/l)	<10	<10
ブタノール(mg/l)	<10	<10
2-メチル-1-ブタノール(mg/l)	<10	<10
ペンタノール(mg/l)	<10	<10
ヘキサノール	<10	<10
2-エチルヘキサノール	<10	<10
ヘプタノール	<10	<10
オクタノール	<10	<10
ノナノール	<10	<10
デカノール	<10	<10

表6-9 低級脂肪酸分析結果

試料名	カラム実験 飛灰 蒸留水	カラム実験混合灰 蒸留水	施設 No.14 飛灰 蒸留水	施設 No.14 混合灰 蒸留水
シュウ酸(mg/l)	<0.4	21	<0.4	8.0
クエン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
DL-イソクエン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
D-酒石酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
L-アスコルビン酸・リンゴ酸・ キ酸 (mg/l)	<2	<2	<2	6.8
マレイン酸・マロン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
シキミ酸・コハク酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
L-乳酸(mg/l)	<2	<2	<2	37
蟻酸 (mg/l)	<2	<2	<2	18
酢酸(mg/l)	<2	<2	<2	58
フマル酸(mg/l)	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02
アジピン酸・レブリン酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
プロピオン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
イ酪酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
酪酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
吉草酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2

試料名	カラム実験 飛灰 塩濃度 3 %	施設 No.14 飛灰 塩濃度 3 %	カラム実験 飛灰 塩濃度 2 %	施設 No.14 飛灰 塩濃度 2 %
シュウ酸(mg/l)	0.83	<0.4	0.74	<0.4
クエン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
DL-イソクエン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
D-酒石酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
L-アスコルビン酸・リンゴ酸・ キ酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
マレイン酸・マロン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
シキミ酸・コハク酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
L-乳酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
蟻酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
酢酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
フマル酸(mg/l)	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02
アジピン酸・レブリン酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
プロピオン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
イ酪酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
酪酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
吉草酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2

表6-10 低級脂肪酸分析結果

試料名	カラム実験 飛灰 塩濃度 1 %	施設 No.14 飛灰 塩濃度 1 %	カラム実験 飛灰 LAS1000mg/l	施設 No.14 飛灰 LAS1000mg/l
シュウ酸(mg/l)	0.96	<0.4	0.96	<0.4
クエン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
DL-イソクエン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
D-酒石酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
L-アスコルビン酸・リンゴ酸・ キナ酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
マレイン酸・マロン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
シキミ酸・コハク酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
L-乳酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
蟻酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
酢酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
フマル酸(mg/l)	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02
アジピン酸・レブリン酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
プロピオン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
イ酪酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
酪酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
吉草酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2

試料名	カラム実験 飛灰 LAS100mg/l	施設 No.14 飛灰 LAS100mg/l	カラム実験 飛灰 メタノール 20%	施設 No.14 飛灰 メタノール 20%
シュウ酸(mg/l)	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4
クエン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
DL-イソクエン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
D-酒石酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
L-アスコルビン酸・リンゴ酸・ キナ酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
マレイン酸・マロン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
シキミ酸・コハク酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
L-乳酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
蟻酸 (mg/l)	<2	<2	3.1	<2
酢酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
フマル酸(mg/l)	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02
アジピン酸・レブリン酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
プロピオン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
イ酪酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
酪酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
吉草酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2

表6-11 低級脂肪酸分析結果

試料名	カラム実験 飛灰 メタノール 10%	施設 No.14 飛灰 メタノール 10%	カラム実験 飛灰 メタノール 100mg/l	施設 No.14 飛灰 メタノール 100mg/l
シュウ酸(mg/l)	<0.4	<0.4	0.64	<0.4
クエン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
DL-イソクエン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
D-酒石酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
L-アスコルビン酸・リンゴ酸・ キナ酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
マレイン酸・マロン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
シキミ酸・コハク酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
L-乳酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
蟻酸 (mg/l)	4.5	<2	2.1	<2
酢酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
フマル酸(mg/l)	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02
アジピン酸・レブリン酸 (mg/l)	<2	<2	<2	<2
プロピオン酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
イ酪酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
酪酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2
吉草酸(mg/l)	<2	<2	<2	<2

試料名	カラム実験 飛灰 海水 3% 1ヶ月	カラム実験 飛灰 蒸留水 1ヶ月
シュウ酸(mg/l)	0.41	0.81
クエン酸(mg/l)	<2	<2
DL-イソクエン酸(mg/l)	<2	<2
D-酒石酸(mg/l)	<2	<2
L-アスコルビン酸・リンゴ酸・ キナ酸 (mg/l)	<2	<2
マレイン酸・マロン酸(mg/l)	<2	<2
シキミ酸・コハク酸(mg/l)	<2	<2
L-乳酸(mg/l)	<2	<2
蟻酸 (mg/l)	<2	<2
酢酸(mg/l)	<2	<2
フマル酸(mg/l)	<0.02	<0.02
アジピン酸・レブリン酸 (mg/l)	<2	<2
プロピオン酸(mg/l)	<2	<2
イ酪酸(mg/l)	<2	<2
酪酸(mg/l)	<2	<2
吉草酸(mg/l)	<2	<2

2) 考察

(1) 蒸留水溶出

蒸留水溶出（1 μm ろ過）では、カラム実験飛灰で 110pg/l(0.35pg-TEQ/l)（以下表示数値は、実測濃度（毒性等量）とする）、同混合灰で 15pg/l(0.028pg-TEQ/l)の濃度が検出され、混合灰の方が溶出濃度は低かった。ろ紙孔径の差では、0.45 μm ろ紙の方で濃度が低くなる傾向が認められ、実測値で（以下、濃度差を表す数値は実測値で表す）飛灰では約5分の1、混合灰では約2分の1の濃度であった。

施設 No.14 飛灰では、18pg/l(0.049pg-TEQ/l)の濃度が検出され、同混合灰では 20pg/l(0.029pg-TEQ/l)の濃度が検出された。飛灰ではろ紙孔径の差はほとんどなかったが、混合灰では約2分の1の濃度であった。

(2) 海水溶出

塩濃度3%溶出の1 μm ろ過では、カラム実験飛灰で 64pg/l(0.12pg-TEQ/l)、施設 No.14 飛灰で 16pg/l(0.041pg-TEQ/l)の濃度が検出され、蒸留水溶出による検出濃度とほとんど同じ濃度であった。ろ紙孔径の差は、カラム実験飛灰は蒸留水溶出と同じ傾向が認められたが、施設 No.14 飛灰では0.45 μm ろ過の方が約1.5分の1低い濃度であった。

塩濃度2%溶出（1 μm ろ過のみ）では、カラム実験飛灰、施設施設 No.14 飛灰とも蒸留水溶出より多い溶出が認められ、カラム実験飛灰で 210pg/l(0.85pg-TEQ/l)、施設 No.14 飛灰で 54pg/l(0.28pg-TEQ/l)の濃度が検出され、蒸留水溶出のそれぞれ約2倍、3倍の溶出量であった。

塩濃度1%溶出では、塩濃度2%溶出よりも溶出量が多く、蒸留水溶出のそれぞれ約3倍の溶出量であった。以上のように、海水による溶出では塩濃度1%及び2%溶出では、蒸留水溶出に比べて溶出濃度が増加しているが、塩濃度3%溶出では逆に減少している。海水溶出では、塩濃度が溶出に影響を与えているのは明らかであり、塩濃度1%付近に溶出の極大点があるものと考えられる。塩濃度が高い場合には塩析効果により溶出液中の微粒子に吸着し、本来ろ紙には捕集されない通過分がろ紙に捕集されている可能性が考えられる。塩濃度1%付近において、塩濃度の条件を細かく設定した溶出実験が必要と考えられる。

(3) LAS 溶出

LAS1000mg/l 溶出（1 μm ろ過）では、カラム実験飛灰で 390pg/l(2.0pg-TEQ/l)、施設 No.14 飛灰で 57pg/l(0.12pg-TEQ/l)の濃度が検出され、カラム実験飛灰では蒸留水溶出の約3.5倍、施設 No.14 飛灰では蒸留水溶出の約3倍の溶出量であった。

LAS100mg/l 溶出では蒸留水溶出とほぼ同レベルの溶出量であり、カラム実験飛灰で 150pg/l(0.63pg-TEQ/l)、施設 No. 14 飛灰で 13pg/l(0.024pg-TEQ/l)の濃度が検出された。

LAS 溶出においては、LAS 濃度の高い方が溶出量も多い結果であり、界面活性剤の臨界ミセル濃度が関与しているものと思われる。LAS 溶出では、LAS によってダイオキシン類が水に溶解しているのではなく、LAS 濃度が臨界ミセル濃度を超えると、ダイオキシン類が吸着したコロイドが形成され、このコロイドがろ紙を通過することにより、見かけ上の溶出が増加していると考えられる。

LAS1000mg/l 溶出の 0.45 μm ろ過ではカラム実験飛灰で 77pg/l(0.28pg-TEQ/l)、施設 No.14 飛灰で 7.2pg/l(0.016pg-TEQ/l)の濃度が検出され、1 μm ろ過のそれぞれ約 5 分の 1、約 8 分の 1 の濃度であった。0.45 μm ろ過で溶出量が減少しているが、形成されたコロイドが 0.45 μm ろ過で捕集されたためと考えられる。

(4) メタノール溶出

メタノール 20%溶出 (1 μm ろ過) では、カラム実験飛灰で 470pg/l(2.6pg-TEQ/l)、施設 No.14 飛灰で 41pg/l(0.095pg-TEQ/l)の濃度が検出され、カラム実験飛灰では蒸留水溶出の約 4 倍、施設 No.14 飛灰では蒸留水溶出の約 2 倍の溶出量であった。

メタノール 10%溶出では、溶出量は蒸留水溶出より若干多く、カラム実験飛灰、施設 No.14 飛灰でそれぞれ約 1.5 倍、1.3 倍の溶出量であった。メタノール 100mg/l 溶出では蒸留水溶出とほぼ同じレベルであり大差はなかった。

メタノール溶出ではメタノール濃度の高い方が溶出量も多い結果であった。

メタノール 20%溶出の 0.45 μm ろ過ではカラム実験飛灰で 18pg/l(0.058pg-TEQ/l)、施設 No.14 飛灰で 20pg/l(0.042pg-TEQ/l)の濃度が検出され、1 μm ろ過のそれぞれ約 26 分の 1、約 2 分の 1 の濃度であった。メタノール溶出においても LAS 溶出と同様に、ダイオキシン類が水に完全に溶解しているのではなく、エマルジョンとしてコロイド状で分散しているため、エマルジョンが 0.45 μm ろ過で捕集されたためと考えられる。

(5) 海水長期浸漬

海水 (塩濃度 3%) 1ヶ月浸漬 (0.45 μm ろ過) では、カラム実験飛灰で 610pg/l(3.5pg-TEQ/l)の濃度が検出され、蒸留水溶出 (0.45 μm ろ過) の約 30 倍の溶出量であった。塩濃度 3%の振とう抽出の結果 (0.45 μm ろ過) とも比べると約 70 倍の溶出量であり、時間的な要因による溶出量の増加が顕著である。

一方、比較対照とした蒸留水 1ヶ月浸漬では、120pg/l(0.54pg-TEQ/l)の濃度が検出されており、海水浸漬の結果に比べて約 5 分の 1 の値ではあるが、蒸留水振とう抽出 (0.45 μm ろ過) の結果と比べると、約 6 倍の溶出量であった。

(6) 各試験における原灰からの溶出率

各試験における原灰からの溶出率を表6-12に示す。また、蒸留水による溶出率(1 μ mろ過)を1とした時の、各溶出試験における溶出の比率を表6-13に示す。

溶出率は溶出液のダイオキシン類濃度の増加にともなって増加している。溶出率の範囲は、カラム実験飛灰の実測濃度1 μ mろ液で $14 \times 10^{-6}\%$ (海水3%) $\sim 100 \times 10^{-6}\%$ (メタノール20%)、塩濃度3%1ヶ月(0.45 μ mろ液)で $130 \times 10^{-6}\%$ 。また、施設No.14飛灰では、実測濃度1 μ mろ液で $100 \times 10^{-6}\%$ (メタノール100mg/l) $\sim 490 \times 10^{-6}\%$ (海水1%)であり、塩濃度1%、2%、LAS1000mg/l、メタノール20%、10%、海水1ヶ月浸漬の各条件による溶出において、蒸留水による溶出率を上回った。

カラム実験飛灰と施設No.14飛灰を比べると、原灰の濃度は施設No.14飛灰の方が低いにもかかわらず、原灰からの溶出率は施設No.14飛灰の方が1桁高い結果であった。毒性等量での溶出率は、実測濃度での溶出率よりも1桁低い値であるが、これは後述するように7塩素化物、8塩素化物の溶出率が高いことに起因していると考えられる。

蒸留水による溶出率を1とした時の、各条件による溶出比率を実測濃度でみると、塩濃度1%ではカラム実験飛灰で2.7、施設No.14飛灰で3.3、LAS1000mg/lではカラム実験飛灰で3.5、施設No.14飛灰で3.2、メタノール20%ではカラム実験飛灰で4.3、施設No.14飛灰で2.3であった。溶出液のダイオキシン類濃度、原灰からの溶出率はカラム実験飛灰、施設No.14飛灰で差があるが、蒸留水溶出に対する各条件における溶出比率は、どちらの灰もほぼ同じであり、灰の性状が異なっても、マトリックス成分の濃度による溶出効果は同じであると考えられる。

一般的に、飛灰と焼却灰が混合された状態では、ダイオキシン類の溶出率が高くなることが指摘されている。飛灰と混合灰の蒸留水での溶出率を比較すると、カラム実験混合灰では、溶出率は1 μ mろ液では低下しており、また0.45 μ mろ液では飛灰の溶出率とほとんど変わらない結果であったが、施設No.14混合灰では、1 μ mろ液の実測濃度で飛灰の約4倍の溶出率であり、焼却灰を混合したことの影響が認められる。

以上のように、ダイオキシン類の溶出率は海水1%、2%、LAS1000mg/l、メタノール20%、10%、海水1ヶ月浸漬で増加しており、これらマトリックス成分の存在、また浸漬時間が溶出を増加させる一因となっている。