

管理型最終処分場における埋立廃棄物層からの塩化物イオンとフッ化物イオンの溶出性の相違

田中宏和・中村大充

Differences Between Chloride and Fluoride Ions in Dissolution Properties from a Controlled Landfill

Hirokazu TANAKA, Masamitsu NAKAMURA

管理型最終処分場の浸出水に含まれる F 濃度は微量であり、洗い出しに関する過去の研究事例は少ない。しかし、F を含めたフッ素化合物は有害であることから、研究する意義は大きい。本報では長期的な浸出水のモニタリングデータから、F の溶出性を Cl と比較した。F 濃度の経時変化は Cl と異なり、埋立開始から約 20 年間、緩やかな増加傾向を示した。また、埋立初期の区画における期間浸入水量増加に対する濃度変化についても、Cl の濃度は増加したが、F は減少した。これらの原因として、埋立廃棄物層中に存在する化合物の溶解性の差異が影響していると考えられた。

1. はじめに

最終処分場には多種多様な物質が埋め立てられる。埋立物に含まれる塩類の一部が酸化物や硫化物等の難溶塩を形成して系外に溶出しにくくなる「塩類不溶化」と、水溶性の高い塩類が浸出水に溶解して埋立層外に排除される「塩類洗い出し」は、共に最終処分場が時間をかけて安定化するうえでの重要なメカニズムである。

過去の研究により、埋立廃棄物層内の塩化物イオン(Cl)は溶出しやすいことが知られている¹⁻³⁾。「一般廃棄物の最終処分場及び産業廃棄物の最終処分場に係る技術上の基準を定める省令(昭和52年3月14日総理府・厚生省令第1号)」に定める維持管理基準においても、周縁地下水への影響を判断するために地下水中のCl濃度の測定を義務付けている。つまり、Clは保有水に含まれる代表的なイオンとして取り扱われている。しかし、廃止基準の保有水水質基準にはCl濃度の規定がない。これは、保有水水質基準の主目的が有害物質や有機物の漏洩による環境汚染を防ぐことであり、環境への悪影響が比較的少ないClは評価対象から除外されているためである。

しかしながら、保有水水質基準の中には水銀やカドミウム等の重金属、ヒ素やセレン等の半金属に関する項目があるように、低濃度であっても有害性が高い物質については注意を要する。そのため、安定化進行過程における有害物質の溶出挙動を把握することが重要である。これらの有害

物質の一部については、過去に実験槽や理論的な計算を用いた詳細な検討がされているが⁴⁻⁶⁾、実際の処分場を対象とした研究事例は少ない。本報では、浸出水中のフッ化物イオン(F)に着目し、その溶出性をClと比較して評価する。

2. 処分場概況と調査方法

2.1 研究対象処分場埋立地の概要

本研究では北陸地方の海岸に近い平坦地にある掘り込み式の管理型最終処分場を調査対象とした。ここには、廃棄物が接触しない構造の独立した埋立地が6区画ある。それぞれの区画の大きさと廃棄物を埋め立てた時期を表1に、埋立廃棄物の重量組成を図1に示した。廃棄物の埋立方法は、降水をGL+2m程度まで貯留した区画内に、廃棄物を片押し工法⁷⁾で直接投入している。中間覆土は施工しておらず、最終覆土には砂質土を用いている。各埋立区画の底部には浸透水を排除するための集水設備があり、定期的に排水している。

第1区画の埋立層厚が他区画よりも薄いことを除き、全ての区画はほぼ同様な構造である。また、曝されている気象条件も同じである。第1区画から順次埋め立てているため、区画により埋立開始からの経過時間が異なる。埋立区画の切り替え時に埋立廃棄物の種類や組成が急激に変化することがないことから、それぞれの区画の埋立地内部状態は経過時間による安定化の進行の影響を強く受けてい

表1 埋立区画の大きさと埋立時期

埋立区画	面積 (m ²)	容積 (m ³)	深さ (m)	埋立開始	埋立終了
第1区画	3,750	9,730	3.5	1982年12月	1988年3月
第2区画	3,750	13,275	6.0	1988年3月	1990年9月
第3区画	7,800	31,950	6.0	1990年9月	1995年5月
第4区画	7,800	31,950	6.0	1995年6月	2000年12月
第5区画	11,790	52,650	6.0	2001年1月	2009年5月
第6区画	11,790	52,650	6.0	2008年3月	—

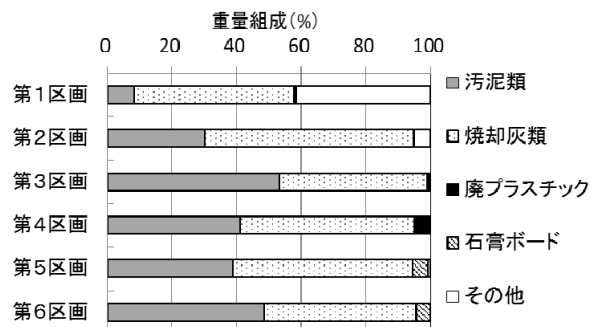


図1 埋立廃棄物の重量組成

と考えられる。

観測井の保有水水位モニタリング結果から、研究対象処分場は埋立終了後も全区画の保有水水位が高く管理され、埋立廃棄物層の大部分が含水飽和していることが分かっている⁸⁾。

2. 2 浸出水の採取

浸出水試料は、各埋立区画の集水設備から導水される浸出水を水処理施設で採取した。試料は導水管内での長時間滞留や集水枡底部に沈殿した汚泥等の巻き上がりによる水質変化を避けるため、数分間の捨て水を行い、色相が安定してから採取した。これにより、集水設備に溜まってから経過時間の短い浸出水試料を得た。試料採取間隔は約3か月とし、本報では2005年4月から2010年7月までの22回の調査結果を評価対象とする。ただし、第6区画は2008年3月に埋め立てを開始したため、その後に実施した10回の調査で得られたデータしかない。以下、浸出水試料名にはNo.の後に埋立区画の番号を付して表記する。

2. 3 浸出水の分析項目とその方法

本報で評価する水質項目はCl⁻とF⁻である。これらはイオンクロマトグラフ法（日本ダイオネクス㈱ DX-500）で分析し、定量下限値を0.1mg L⁻¹とした。

2. 4 期間浸入水量とイオン濃度との相関係数の計算方法

調査前日から数日間に埋立層内に浸入した水量（期間浸入水量）を、気象データを用いて計算した⁸⁾。月間可能蒸発量をBlaney Criddle法⁹⁾を用いて、植被による係数(k)を0.7として算出した。用いた気象データは処分場近隣の気象観測点のアメダスデータを使用し、年間日照時間は2005年から2010年までの平均値とした。次に、月間可能蒸発量の60%が蒸発に有効に使用されたとして月間蒸発量を算出し¹⁰⁾、それを単純に各月の日数で除した値を日間蒸発量とした。日間降水量から日間蒸発量を差し引いた値を日間浸入水量とし、調査日から過去n日間分の日間浸入水量の総和をn日間積算の期間浸入水量と定義した。蒸発によって日間浸入水量が負の値を示す場合があり、積算日数が長くても期間浸入水量は必ずしも多くなならない。

浸出水を採取したそれぞれの調査日について、1~30日間の各積算日数における期間浸入水量と浸出水のイオン濃度との相関係数を計算した。相関の有意性は、一般的によく用いられる危険率を5%とした片側検定で評価した。

3. 結果

3. 1 経過時間と浸出水の濃度の関係

Cl⁻とF⁻について、埋立開始からの経過時間と浸出水中の濃度との関係をそれぞれ図2 (n=120) と図3 (n=102) に示した。なお、F⁻の定量下限値未満のデータは図から除外した。Cl⁻については、全てのデータが定量下限以上の濃度で検出された。さらに、図2のCl⁻については埋立途中と埋立終了後の結果を区分し、それぞれを線形近似と指数近似した。図3のF⁻では、No.1を除いたNo.2~6の結果を線形近似した。近似線には決定係数を併記した。

両図から分るとおり、Cl⁻とF⁻では経過時間に対する浸出水中の濃度変化挙動が大きく異なった。Cl⁻はNo.5とNo.6で示されるとおり、埋立途中は時間経過に伴い直線的な濃度増加挙動を示した（図2）。一方、埋立終了後は

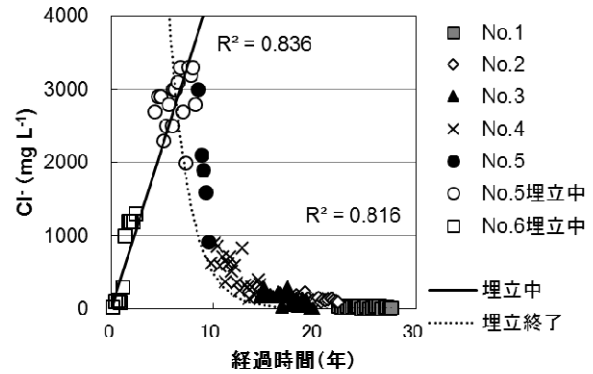


図2 経過時間とCl⁻濃度の関係

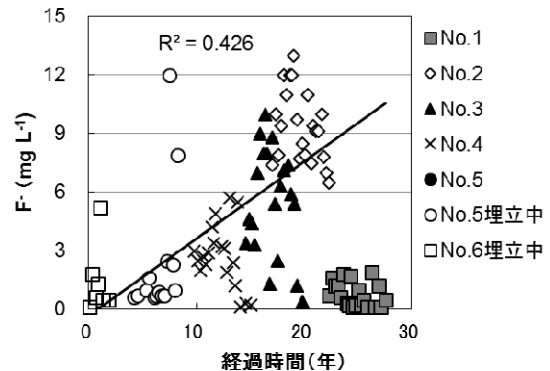


図3 経過時間とF⁻濃度の関係

指数関数的に濃度減少した。

F⁻はNo.2からNo.6の結果 (n=82) に示されるとおり、埋立開始から約20年間、時間経過に伴う緩やかな濃度増加傾向が確認された（図3）。特にNo.2の結果は全てが6mg L⁻¹以上であり、一部のデータは「ふっ素およびその化合物」の排水基準（15mg L⁻¹）に近い値を示した。一方、No.1のF⁻濃度はNo.2に比べて著しく低く、他の浸出水と連続性がみられなかった。

3. 2 期間浸入水量と浸出水のイオン濃度の相関

No.1とNo.6について、積算日数を横軸にとり、期間浸入水量と浸出水中のイオン濃度の相関係数を、それぞれ図4と図5に示した。相関係数の絶対値が大きいほど高い相関性を有することを表す。No.1については、Cl⁻とF⁻の相関係数は、共に積算日数が2~22日の間で有意であり、Cl⁻よりもF⁻の相関性が高かった。

No.6の相関係数は、Cl⁻が正であったのに対し、F⁻は負となり、大きな相違があった。Cl⁻の相関は2~30日間で有意であったが、F⁻について有意な相関を示す積算日数は3~11日と13~17日のみであった。

4. 考察

4. 1 塩化物イオンの溶出性

Cl⁻は埋立廃棄物層内の有機物分解や化学反応による環境変化の影響を受けにくく、溶出しやすいといわれる¹⁻³⁾。図2にみられた埋立途中での濃度増加は、継続的に区画内に埋め立てられる廃棄物からCl⁻溶出が速やかに進み、浸出水として系外排除されるCl⁻量よりも埋立廃棄物層内のCl⁻量の増加が大きかったためと考えられる。また、埋立終了後にみられた濃度減少は、浸入水や保有水に溶解する

Cl⁻の供給源が既存の埋立廃棄物に限られることにより、層内の Cl⁻量が次第に減少し、その影響によって溶出量が連続的に減少したためと考えられる。

期間浸入水量と Cl⁻濃度の相関係数については、No.1 では全て負の値を示した (図 4)。このことは、浸入水量が増えると浸出水の Cl⁻濃度が減少することを表す。このメカニズムとしては、埋立廃棄物層内が不均質であるため、層内に透水性の高いゾーンが存在し、その部分を移動する保有水が Cl⁻を十分に溶解せずに浸出水として排除されることが一要因と考えられる⁸⁾。

一方、No.6 の相関係数は正の値を示し (図 5)、期間浸入水の増加に伴い、浸出水の Cl⁻の濃度が増加する傾向がみられた (図 6)。この挙動は、Cl⁻の高い溶出性に由来する。埋立初期の第 6 区画内の大部分は貯留水が占め、埋立層が占める割合は少ない。また、その廃棄物層は埋め立てから経過時間が短いため、多量の塩分を含有する。降雨時に埋立層に浸透した浸入水は、多量の塩分を溶解しながら深部へ移動し、保有水に到達する。その結果、貯留水と保有水の水位レベルに差ができることで、深層部の保有水が埋立層法面から貯留水の底部に潜り込むように流入する。この底層部に流入した比重の大きい貯留水は、浸入水量が少ないときに排除される貯留水に比べて濃度が高い。このようなメカニズムにより、期間浸入水量が増えると排除される No.6 の Cl⁻濃度が増加したと考えた。同様な現象は、Cl⁻以外にもナトリウム、カリウム、カルシウムおよび硫酸イオンで確認されている⁸⁾。

4. 2 フッ化物イオンの溶出性

Cl⁻と異なり、F⁻については埋立途中における急激な浸出水濃度の上昇がみられなかった (図 3)。フッ素は最大の電気陰性度を有する元素であり、反応性が極めて高い。そのため、多くのフッ化物のイオン結合性は強固であり、難溶性である。つまり、フッ化物を大量に含む新しい埋立廃棄物層においても、F⁻が解離して溶出する速度は遅い。したがって、埋立途中区画において Cl⁻が示したような急激な濃度増加はみられなかったと考えられる。また、図 7 において、期間浸入水量の増加に伴い浸出水の F⁻濃度が減少した原因は、埋立廃棄物固相からの溶出性が極めて低いため、浸入水量増加による希釈効果が優先し、Cl⁻等の他のイオンとは異なる挙動を示したものと考えられる。図 4 において、Cl⁻よりも F⁻の相関が良かった原因についても、高透水性ゾーンでの保有水への F⁻の溶解速度が Cl⁻よりも遅いことが要因と考えられ、整合性がある。

図 3 の No.2~5 で示される時間経過に伴う緩やかな濃度増加傾向の原因については、本研究では明確にできなかった。しかし、著者らは埋立廃棄物層内に存在する有機フッ素化合物の生物分解性が非常に低く、極めて難分解性である特性が関係している可能性を考えている。また、No.1 の F⁻濃度が他の浸出水と連続性がなく、低濃度を示した理由についても不明であり、今後の検討課題である。

5. まとめ

保有水水位が高い管理型最終処分場埋立地の浸出水に含まれる Cl⁻と F⁻の濃度から、それぞれの溶出性を比較評価した。Cl⁻は時間経過に伴い、埋立途中では直線的に濃度増加し、埋立終了後は指数関数的に濃度減少した。一方、F⁻は埋立途中の埋立廃棄物量増加の影響を受けず、埋立開

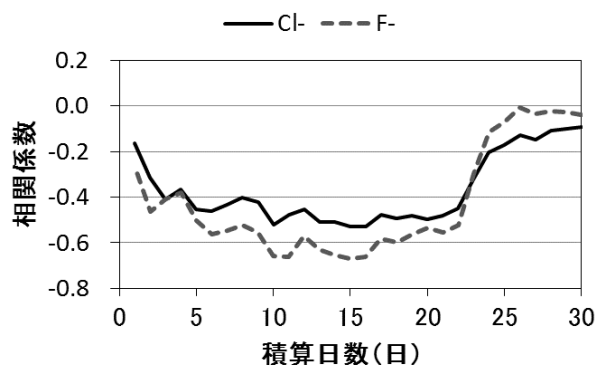


図 4 No. 1 の相関係数

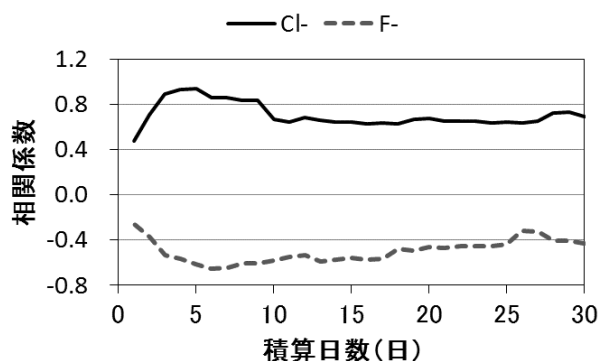


図 5 No. 6 の相関係数

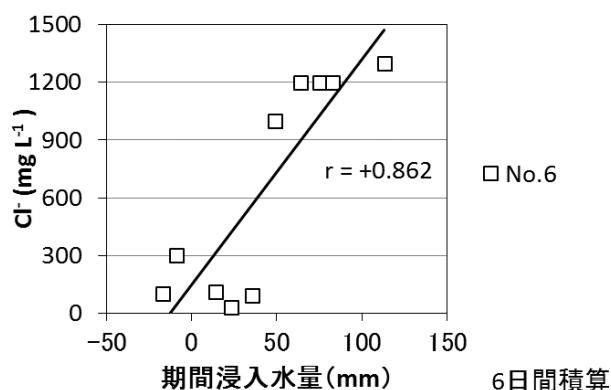


図 6 No. 6 の期間浸入水量と Cl⁻濃度の関係

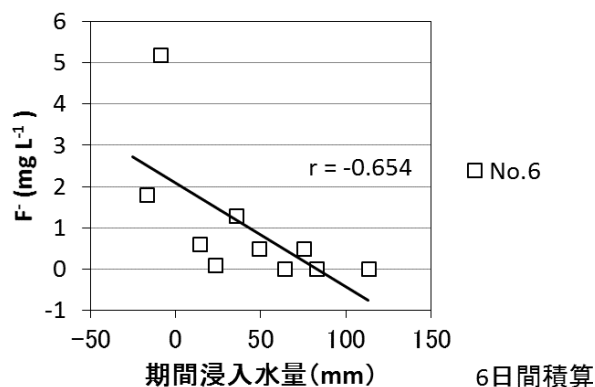


図 7 No. 6 の期間浸入水量と F⁻濃度の関係

始から約 20 年間、緩やかな濃度増加傾向を示した。また、埋立初期の区画において、Cl⁻は期間浸入水量が増加すると浸出水の濃度が増加したが、F⁻については濃度減少した。これらの挙動の相違は、Cl⁻が溶出性に優れているのに対し、多くのフッ化物が難溶性であるため F⁻は埋立物固相から溶出しにくいことが原因と考えられた。

謝辞

本研究は、特別電源所在県科学技術振興事業「跡地利用された最終処分場における安定化に関する研究」の一部である。調査に御協力いただきました関係者の方々に深謝します。

参考文献

- 1) 香村一夫,海老原昇,原雄：一般廃棄物最終処分場における浸出水中のイオン濃度と廃棄物層の比抵抗について, 廃棄物学会論文誌, 14(3), 123-132(2003)
- 2) 長森正尚,小野雄策：浸出水の水質経年変化－管理型産業廃棄物最終処分場－,埼玉県公害センター研究報告, 21, 49-65(1994)
- 3) Tanaka H., Ishigaki T., Endo K., Yamada M., Kamura K. : Dissolution of Inorganic Ions by Leachate Quality of an Industrial Waste Landfill, The 2nd Symposium of Asian Regional Branch of International Waste Working Group Proceeding Book, 470-479(2015)
- 4) 柳瀬龍二,平田修,松藤康司,花嶋正孝：使用済み乾電池の埋立処分に伴う埋立 20 年間の水銀の挙動,廃棄物資源循環学会論文誌, 20(1), 12-23(2009).
- 5) 土手裕,田中信寿,神山桂一：廃棄物内汚水中の溶存カドミウム濃度に及ぼす OH⁻, Cl⁻, CO₃²⁻の影響に関する研究, 衛生工学研究論文集, 24, 177-186(1988).
- 6) 土手裕,田中信寿,神山桂一：模擬埋立実験による廃棄物埋立層内におけるカドミウムの化学的挙動に関する研究,衛生工学研究論文集, 25, 21-27(1989).
- 7) 最終処分場技術システム研究会：廃棄物最終処分場技術システムハンドブック, 環境産業新聞社, 547(1999)
- 8) 田中宏和,香村一夫：管理型最終処分場の安定化における塩類溶出特性一層内浸入水量が浸出水濃度に及ぼす影響一,廃棄物資源循環学会論文誌, 28, 13-25(2017)
- 9) Blaney H.F. and Criddle W.D. : Determining Consumptive Use and Irrigation Water Requirements, Technical Bulletin No.1275, Agricultural Research Service, United States Department of Agriculture in cooperation with The Office of Utah State Engineer, 16-26(1962)
- 10) (社) 全国都市清掃会議：廃棄物最終処分場整備の計画・設計要領, (社) 全国都市清掃会議, 338(2001)