

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	—

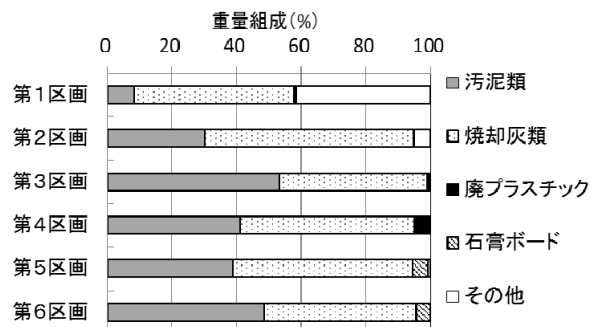


図 1 埋立廃棄物の重量組成

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

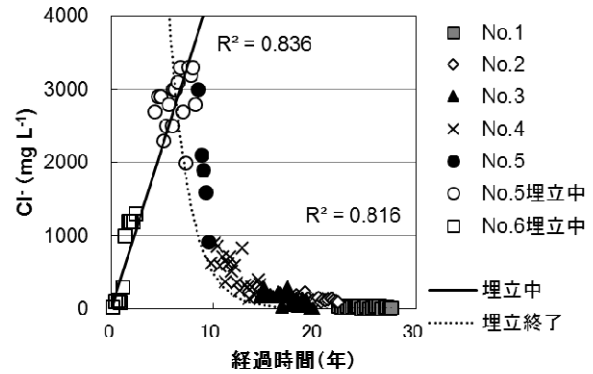


図2 経過時間とCl⁻濃度の関係

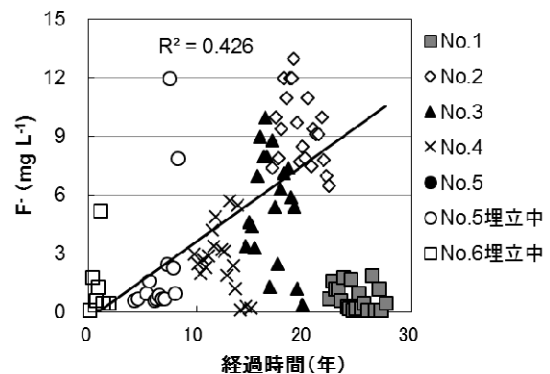


図3 経過時間とF⁻濃度の関係

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

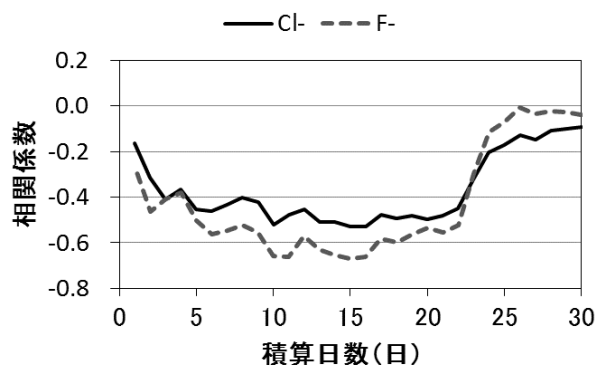


図 4 No. 1 の相関係数

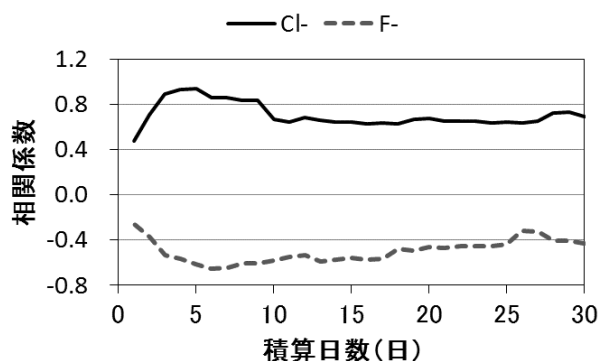


図 5 No. 6 の相関係数

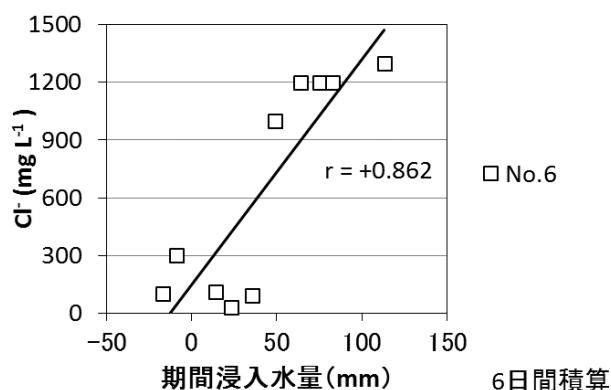


図 6 No. 6 の期間浸入水量と Cl⁻濃度の関係

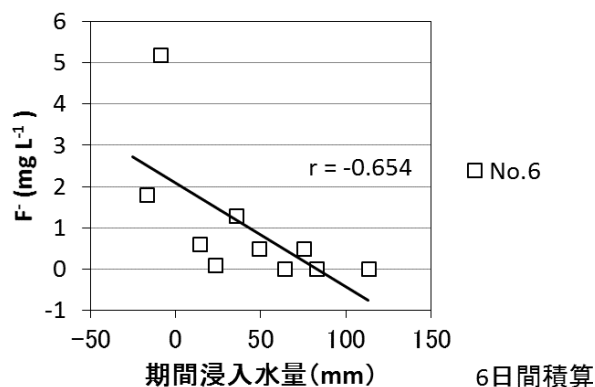


図 7 No. 6 の期間浸入水量と F⁻濃度の関係

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－,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)

管理型最終処分場の安定化における塩類溶出特性

田中宏和・中村大充

Characteristics of Salts Dissolution in the Stabilization of Controlled Landfills

Hirokazu TANAKA, Masamitsu NAKAMURA

埋立時期が異なる管理型最終処分場埋立地の浸出水とボーリングコアサンプルの溶出試験結果を比較し、時間経過による各種イオンの洗い出し特性を評価・検討した。研究対象の処分場埋立地は保有水水位が高く、埋立廃棄物の大部分が含水飽和している。保有水水質と溶出試験結果から、埋立層内では深度が増すほど塩類の存在量が多いことが分かり、このことから塩類洗い出し作用は浅層部から優先的に進行することが確認された。また、埋立廃棄物中には SO_4^{2-} と Ca^{2+} が多く含まれるが、これらは層内から溶出しにくく、難溶性の塩として層内に存在することが示唆された。一方、 Cl^- と Na^+ は溶出性が高く、埋め立てからの経過時間が短い区画の浸出水に高濃度で含まれていた。しかし、溶出試験結果から長期間経過した埋立区画内にも Na^+ が多量に残存していることが判明したことから、 Cl^- と比較すると Na^+ は溶出しにくいことが分かった。また、長期間経過した埋立区画においては、有機窒素化合物の分解により生成されるイオン種の占める割合が大きいことが確認された。安定化を評価する水質指標として EC を用いる場合が多いが、保有水と浸出水、経過時間の短い区画と長い区画では、それぞれ EC に寄与するイオン種が異なることが判明した。

1. はじめに

管理型最終処分場に埋め立てられる最終残渣には様々な塩類が含まれる。水溶性が高い塩類は浸透水に溶解し、浸出水として埋立地の外に排除される。この作用は「塩類洗い出し」と呼ばれ、埋立廃棄物の安定化プロセスにおける重要なメカニズムの一つである¹⁾。一方、塩類の中には水に難溶性の化合物を形成し、埋立廃棄物層内に留まりやすくなるものもある。この現象は「塩類不溶化」と呼ばれ²⁾、処分場埋立地を鉱物等の「保管容器」として考える概念³⁾の基礎となっている。

「塩類洗い出し」や「塩類不溶化」の研究については、カラムや小型実験槽を用いた事例が複数あるが³⁻⁷⁾、実際の処分場を対象とした報告は少ない⁸⁾。さらに、有機物分解に伴う酸素消費により埋立層内部は嫌気状態・還元性雰囲気になりやすい。そのため、埋立廃棄物を調査する場合には、掘削後から分析にとりかかるまでの保管時間中に、試料が酸素に触れることで化合物形態が変化する懸念があり、信頼性のあるデータを得ることが難しい。これらのことから、安定化についての様々な研究がこれまで行われていない。

既存処分場の構造基準等を定めた「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）」（以下「基準省令」という。）が施行されてから約 40 年が経過し、同省令に廃止基準が追加されてから約 20 年が経過した今日、全国各地には廃止を待つ処分場が多数存在する。これらの処分場は廃止基準への適否によって廃止の可否が審査される。この廃止基準や処分場埋立地を調査する方法等は、過去に得られた知見により策定されたものである。すなわち、埋立廃棄物の安定化メカニズムの完全解明ができていない段階での知見を用いた審査であることから、審査を行う行政や審査を受ける処分場管理者、そ

して近隣住民が処分場の未来永劫にわたる安全性に不安を抱くのは当然かもしれない。しかし、処分場の維持管理には多額の費用が必要となるため、科学的根拠に基づかない不安感だけで廃止を遅らせることは社会的な不利益となり、許されない。以上の状況を考慮すると、処分場に対する不安の軽減・解消には、埋立廃棄物の安定化に関する情報・知見を速やかに収集することが重要であり、安定化メカニズムの解明は廃棄物研究者に求められる喫緊の課題である。

本研究では、安定化メカニズムの中で「塩類洗い出し」と「塩類不溶化」に焦点を絞り、管理型最終処分場の埋立廃棄物層からの塩類溶出プロセスについて検討する。具体的には、埋立地から排除される浸出水とボーリング掘削により採取したコアサンプルの溶出試験検液に含まれる主要イオン濃度を分析し、それぞれを比較した。本研究では、各種塩類について埋立廃棄物からの溶出特性の違いを評価し、得られた成果は「塩類洗い出し」と「塩類不溶化」メカニズムを解明するための貴重な知見となる。

2. 処分場の情報と調査方法

2. 1 研究対象施設の概況と評価区画

研究対象とした管理型最終処分場は掘り込み式で、埋立区画が 6 区画あり、それぞれの埋立時期が異なる。降水を貯留した区画に埋立物を片押し工法⁹⁾で直接投入している。中間覆土は施工していない。埋立終了後も保有水を高水位で管理しているため、水位が最も低い場合でも GL-3m 程度までしか下がらないことを確認している¹⁰⁾。本報では、同じ埋立廃棄物層厚を有し、埋め立てから経過時間が長い第 2 区画と、短い第 5 区画を比較・評価した。それぞれの埋立時期を表 1 に、埋立廃棄物の種類別重量組成を図 1 に示す。両区画とも面積と容積が異なるが、底部にある集水設備により保有水を浸出水として排除する構造は同様である。また、同一処分場敷地内にあるため、曝されている気候や気象条件も同じである。この処分場では、全ての搬

入廃棄物を古い区画から順番に埋め立てている。したがって、埋立廃棄物の種類や組成が大きく変化することではなく、埋立地内部の状態は経過時間の差による安定化プロセスの相違の影響を強く受けるため、研究対象に適している。

2. 2 浸出水試料の採取方法

埋立区画の底部にある集水設備に溜まった浸出水を採取して試料とした。本報では 2005 年 4 月～2010 年 7 月の計 22 回の調査結果を評価した。

2. 3 ボーリング掘削と溶出試験用試料調製方法

ボーリング掘削は 2009 年 11 月に無水オールコア方式で実施した。掘削深度は 5m である。掘削はサンプラーの内側に樹脂製の管を取り付け、コアが崩れずに、そのままの形状で管内に収まる方法を用いてサンプルを採取した。0.5m 単位で掘削し、直ちに管の開口部をビニールシートで密閉し、できるだけコアサンプルが空気と接触するのを避けた。掘削から 30 時間以内にコアサンプルを 0.25m 単位に切断分離し、湿潤・有姿のまま樹脂性トレイ内で混合・均一化して溶出試験用試料を得た。

2. 4 溶出試験用検液の調製方法

溶出試験用の検液調製を異なる 2 つの方法で行った。検液調製方法のフローを図 2 に示す。検液調製 A（以下、本方法で調製した検液を「振とう検液」という。）は、分析用試料を持ち帰った当日に行った。透水試験にコアサンプルを供した深度を除き、全ての深度の試料について検液を調製した。検液調製 A の翌日に、検液調製 B（以下、本方法で調製した検液を「粉碎検液」という。）を行った。それまでの間、試料はアルミパック内に密封し、冷蔵して保管した。粉碎検液は深度 1.75-2.00m、2.50-2.75m、3.50-3.75m、4.50-4.75m の試料のみ調製した。

2. 5 分析項目と分析方法

電気伝導率（EC）は白金電極法（東亜電波工業(株) CM-40G）で分析した。ナトリウムイオン（Na⁺）、カリウムイオン（K⁺）、マグネシウムイオン（Mg²⁺）およびカルシウムイオン（Ca²⁺）の分析は 2009 年 1 月までは ICP-AES 法（(株) パーキンエルマー ジャパン Optima3000XL）を、それ以降は ICP-MS 法（(株) パーキンエルマー ジャパン ELAN DRC-e）を用いた。アンモニウムイオン（NH₄⁺）はイオン電極法（(株) 堀場製作所 F-53 電極 5002A）を用いて測定したため、電離せずに水中に溶解している遊離アンモニウムについても NH₄⁺として評価した。塩化物イオン（Cl⁻）、硫酸イオン（SO₄²⁻）、亜硝酸イオン（NO₂⁻）および硝酸イオン（NO₃⁻）はイオンクロマトグラフ法（日本ダイオネクス社(株) DX-500）を用いて分析した。遊離炭酸（CO₂）、炭酸水素イオン（HCO₃⁻）および炭酸イオン（CO₃²⁻）の総量を炭酸系イオン類（CS）とし、非分散形赤外線ガス分析計（島津製作所(株) 全有機体炭素計 TOC-VCSH）で測定した無機体炭素が全て CS に由来するものとみなして測定した。全窒素（TN）は全有機体炭素計に付加した機器（島津製作所(株) TNM-1）を用い、燃烧酸化・化学発光法で測定した。乾燥重量当たりの含有量を求めるため、分析用試料を 105℃で 2 時間以上加熱し、デシケータ中で恒温となった後に乾燥重量を秤量し、固形分を算出した。

2. 6 保有水水位と深度別 EC の測定方法

ボーリングの掘削孔を利用し、保有水観測井を設置した。観測井の構造を図 3 に示す。直径 116mm の掘削孔に外径 76 mm の耐熱性硬質塩化ビニル管を埋設した。ストレーナー部分は井戸底から GL -1m までの 4m 分とし、開孔率は 10%とした。さらに、ストレーナー部には 60 メッシュのサラン樹脂ネットを二重巻きし、その周りには 3 号珪砂を充填した。GL -1m から地面まではベントナイトを充填し、地表部の井戸周辺は 0.5m 四方のセメンチング処理を施した。観測井内の保有水水位をロープ式水位計（アルファ光学(株) WL100TYPE3B）で、EC をポータブル多項目水質計（(株) 堀場製作所 W-2000S W-22XD）で測定した。

3. 結果と考察

3. 1 深度による EC の変化

EC は基準省令に定める維持管理基準において、周縁地下水への影響を判断するために測定を義務付けている水質項目であり、調査研究等でも安定化における塩類洗い出

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 2 区画	3,750	13,275	6.0	1988年3月	1990年9月
第 5 区画	11,790	52,650	6.0	2001年1月	2009年5月

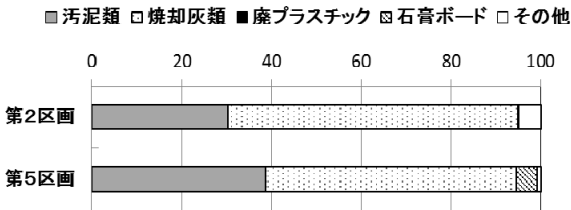


図 1 埋立廃棄物の重量組成

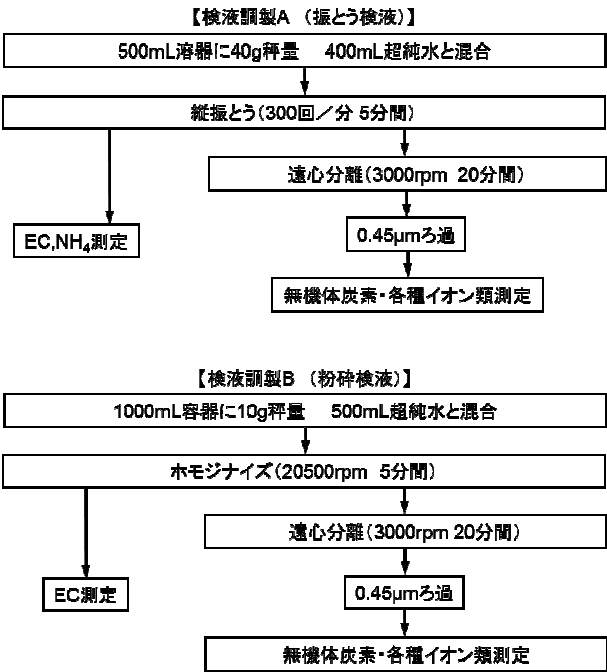


図 2 溶出試験用の検液調製法

し状態の評価に利用されることが多い指標である。

観測井内保有水の深度に対する EC の変化を図 4 に示した。横軸は保有水の水面からの深度である。深度が深いほど EC が高くなる傾向がみられた。第 2 区画と第 5 区画を比較すると、水面付近では近値であるが、深部においては第 5 区画が第 2 区画よりも著しく高値となった。また、振とう検液の EC 値を乾燥重量当りに換算し、図 5 に示した。浅層部に比べて深層の EC が高くなる傾向がみられ、その濃度変化は第 2 区画よりも第 5 区画の方が大きかった。

図 4 と図 5 の EC 値の変化は以下のとおり説明できる。調査対象処分場の保有水水位は高いため¹⁰⁾、地表から浸入した水は埋立層内の浅い部分で保有水に到達する。保有水は鉛直方向に濃度勾配を形成しており(図 4)、塩分溶解量が少なく比重が小さい浸入水は浅層部に留まる。しかし、保有水は底部の集水設備から浸出水として排除されるため、埋立層内の保有水は重力により下方向へゆっくりと浸透・移動する。保有水は埋立廃棄物層の間隙を通過して移動する際、塩類を溶解するため、深層部の保有水の EC は浅層部に比べて高くなる。その結果、保有水の EC は深度が深い方が高くなり、図 4 のような挙動を示す。このように、浅層部では塩分濃度が低い浸透水が層内の塩類を溶解させるため、深層部に比べて洗い出しが先行して進む。その結果、深層部の廃棄物の塩類存在量は浅層部よりも多くなり、図 5 に示した深度に対する振とう検液の EC 上昇傾向と合致する。第 2 区画は第 5 区画に比べて埋め立てからの経過時間が長く、深層部においても塩類洗い出しが進行しているため、図 4 と図 5 で示したとおり、保有水、振とう検液とも第 2 区画の EC は第 5 区画よりも低い。

以上の結果から、研究対象処分場のように保有水水位が高く、埋立廃棄物の大部分が含水飽和している埋立地においては、浅層から優先的に塩類洗い出しが進むことが確認された。

3. 2 埋立終了から経過期間が短い区画の塩類溶出

浸出水中に含まれる主要なイオンとして Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 CS^- 、 Na^+ 、 K^+ 、 NH_4^+ 、 Mg^{2+} および Ca^{2+} がある^{10,13-15)}。これらのイオン種に、本研究の溶出試験において比較的高濃度で検出された NO_3^- を加えた 9 種のイオンについて考察する。

浸出水中のそれぞれのイオン濃度を電気化学等量単位で測定し、全体濃度に占める各種イオン濃度の相対割合について、全ての調査日を平均して図 6 に示した。また、振とう検液と粉砕検液については、イオン濃度から乾燥重量あたりの含有量を算出し、得られた含有量の相対割合の平均をそれぞれ図 7 と図 8 に示した。なお、粉砕検液については NH_4^+ を測定していないため、その代替として TN と NO_3^- の差を Re-N として記載した。 NO_2^- については、ほとんどの試料で検出されなかったため、評価対象としなかった。したがって、 Re-N は大部分が NH_4^+ に由来すると考えられるが、正確には有機体窒素等の他の形態の窒素を含んだ指標である。

埋立終了からの経過時間が短い第 5 区画に着目すると、浸出水では Cl^- と Na^+ の割合が大きく、続いて SO_4^{2-} と Ca^{2+} が大きい(図 6)。一方、溶出試験でも同様に、これらの含有量が多いが、 Cl^- と Na^+ に比べて SO_4^{2-} と Ca^{2+} の割合が大きい点が異なる(図 7、図 8)。なお、 SO_4^{2-} と Ca^{2+} の割合が大きい傾向は、振とう検液よりも粉砕検液が顕著であった。

溶出試験の結果から、埋立層内には Cl^- や Na^+ よりも

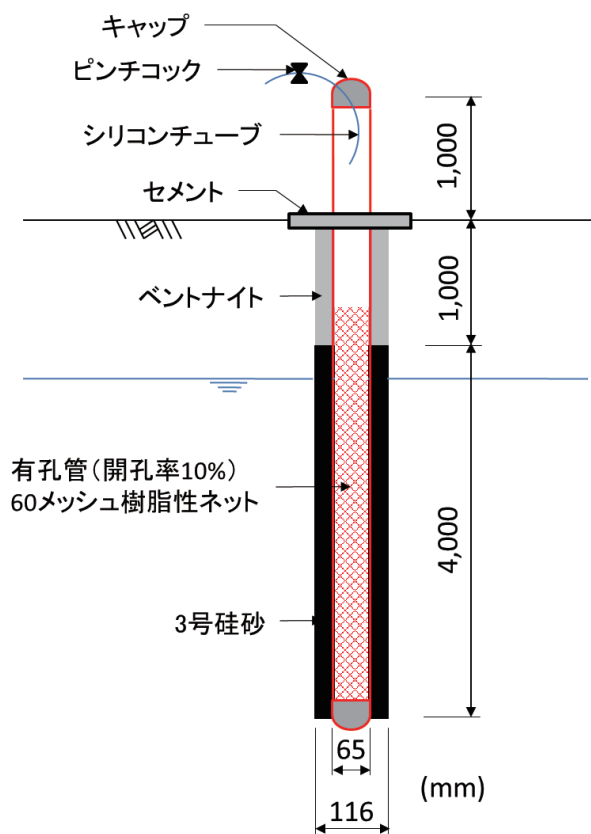


図3 観測井の構造

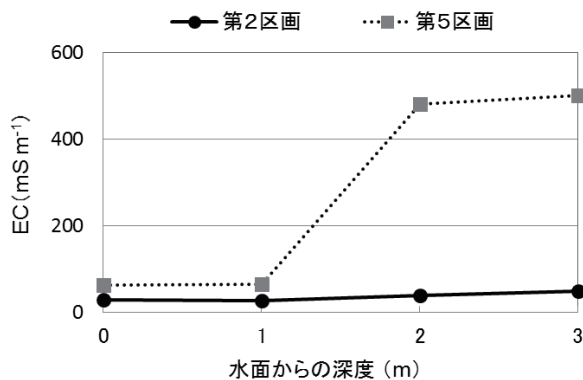


図4 観測井内保有水の深度による EC の変化^{10, 11)}

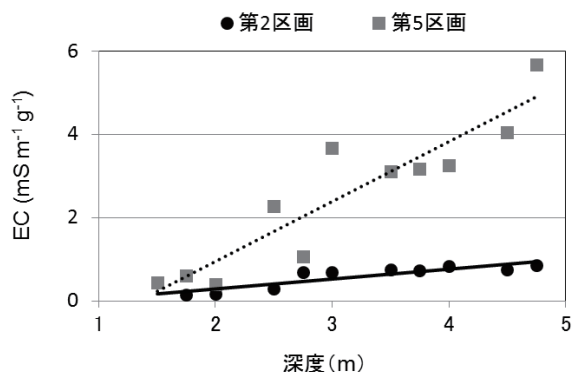


図5 振とう検液の深度による EC の変化¹¹⁾

SO_4^{2-} と Ca^{2+} が多く存在することが示唆される。しかし、 Cl^- と Na^+ は埋立層から溶出しやすい特性があるため^{13,14)}、浸出水には SO_4^{2-} や Ca^{2+} よりも Cl^- と Na^+ が高濃度に含まれたと考えられる。換言すれば、 SO_4^{2-} と Ca^{2+} は埋立廃棄物層内に多量に含まれるが、 Cl^- や Na^+ に比べて溶出しにくく、洗い出しされにくい性質があるといえる。

全ての試料の結果を比較すると、全てのイオン種の濃度について、振とう検液に比べて粉砕検液の方が高値を示した。これらの結果は、液固比の違いとともに、攪拌力の違いが大きく影響していると考えられる。振とう検液は廃棄物固相間隙にあった停滞水や、固相表面の水溶性物質を溶解したものであるのに対し、粉砕検液は表層をさらに強制的に研磨するだけでなく、団粒・固結した塊体を破壊し、通常は保有水と物質交換しにくい部分に含まれる塩類までも溶解させる。簡単に言えば、前者は比較的溶出しやすい部分にある塩類であるが、後者は非常に溶出しにくく、洗い出しされにくい塩類を含んでいる。振とう検液と粉砕検液から求めた含有量の差について、イオン別の相対割合を算出し、図9に示した。その結果、他のイオンに比べて SO_4^{2-} と Ca^{2+} の占める割合が著しく大きいことが判明した。

SO_4^{2-} と Ca^{2+} は難溶性の $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ を形成する特性があり、これは石膏ボードの主成分である。2006年の環境省通知¹⁶⁾により、廃石膏ボードを埋立処分できる処分場が、それまでの安定型処分場から管理型処分場に変更された。そのため、図1に示したとおり、第5区画よりも新しい区画には廃石膏ボードが埋め立てられるようになった。

溶出試験の結果から、第5区画の埋立層には $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ が多量に存在する可能性が高いが、それが廃石膏ボード由来のものなのか、他の廃棄物から溶出した SO_4^{2-} と Ca^{2+} が結合して埋立層内に形成されたものであるのかは分からない。しかし、溶出試験で確認された高含有量の SO_4^{2-} と Ca^{2+} が強力な攪拌力によって、埋立廃棄物中の $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ から検液中に溶解した可能性は高い。つまり、埋立廃棄物層内に高含有量で存在する SO_4^{2-} と Ca^{2+} が浸出水中に溶出しにくい原因の一つとして、難溶性の $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ の影響が示唆される。

3.3 埋立終了から経過時間が長い区画の塩類溶出

埋立終了から経過時間が長い第2区画について考察する。

浸出水中の主要イオン濃度に占める Na^+ 濃度の相対割合は第5区画と同様に大きい(図6)。しかし、 Cl^- は Na^+ に比べて小さく、第5区画に比べて CS 、 NH_4^+ および Ca^{2+} の割合が大きいことが分かる。特に、最も高濃度であるイオン種は CS であった。

一方、振とう検液についても浸出水と同様に Na^+ と CS の相対割合が大きい、 Ca^{2+} の相対割合が比較的小さく、 SO_4^{2-} については著しく小さい点が浸出水濃度と異なる(図7)。粉砕検液については、振とう検液に比べて Ca^{2+} 、 SO_4^{2-} および Re-N の相対割合が大きい(図8)。

一般的に処分場安定化における有機物分解プロセスは塩類洗い出しに比べて遅いといわれる。また、有機窒素化合物の生物分解では、二酸化炭素やアンモニアが生成される¹⁷⁾。そのため、第5区画よりも第2区画の浸出水中の CS と NH_4^+ の相対割合が大きい原因の一つとして、有機窒素化合物の分解で生成するイオンによる影響が考えられる。すなわち、当初の埋立廃棄物中に含まれていた可溶性の塩類は、塩類洗い出し作用で系外に排除され、層内残存量は時間経過に伴い次第に減少するが、 CS と NH_4^+ は

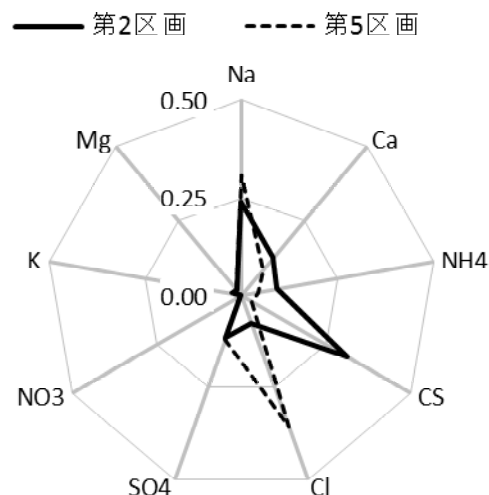


図6 浸出水のイオン相対割合¹¹⁾

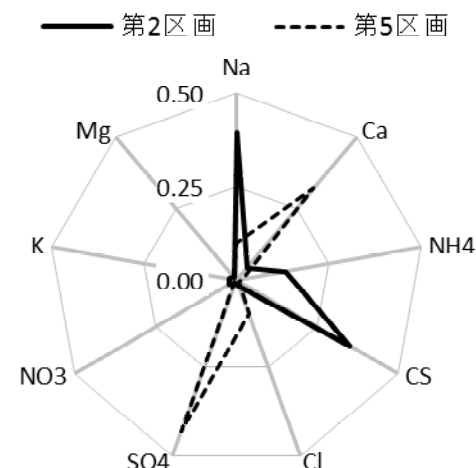


図7 振とう検液のイオン相対割合¹¹⁾

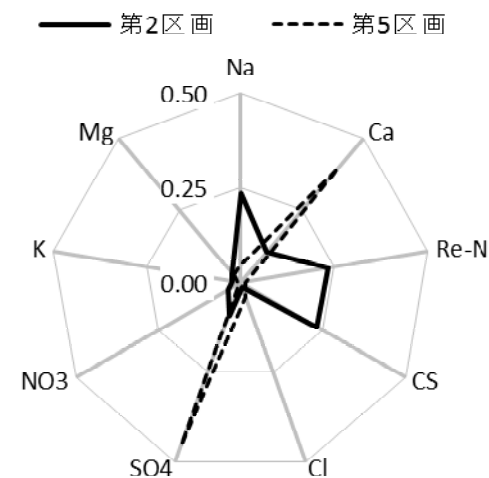


図8 粉砕検液のイオン相対割合¹¹⁾

有機窒素化合物分解の生成物が層内に供給される。そのため、埋め立てからの経過時間が長い第2区画の浸出水では、CS 濃度と NH_4^+ 濃度の相対割合が大きくなったと考えられる。これらのイオン種は振とう検液でも相対割合が大きい。同様な原因に起因すると推察されるが、コアサンプル中における存在形態については解明できなかった。

振とう検液よりも粉碎検液中の Ca^{2+} と SO_4^{2-} の相対割合が大きい理由は、3.2において第5区画の例で説明したとおり、これらのイオンが埋立廃棄物層内で難溶性の $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ を形成し、強力な攪拌力によって粉碎検液中に多く溶出したためと考えられる。第2区画の埋立時期は、廃石膏ボードの埋立処分が安定型最終処分場で可能であり¹⁶⁾、埋立物中には廃石膏ボードはほとんど含まれていない(図1)。したがって、第2区画の埋立廃棄物層内に $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ が存在するとすれば、埋立層内で形成した可能性が高い。このことは、上述した第5区画の層内に存在する $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ が、廃石膏ボードに由来するものだけではないことを示唆している。

第2区画の浸出水や溶出試験の結果において、第5区画に比べて第2区画の Cl^- の相対割合が低下しているのに対し、 Na^+ の割合が依然として大きいことは興味深い。両者とも埋立廃棄物層から溶出しやすいといわれるが^{13,14)}、本研究では Na^+ が Cl^- よりも溶出しにくい性質を有することが示された。特に、溶出試験において Na^+ の相対割合が Ca^{2+} よりも大きい事実は、 Na^+ の溶出が $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 等の難溶塩の溶解よりも遅いことを示唆している。この現象の一要因として、筆者らは埋立廃棄物が陽イオンを吸着・保持する性質を有する可能性を考えており、評価指標としてイオン交換容量を用いた研究を進めている¹⁸⁻²⁰⁾。

振とう検液と粉碎検液から求めた含有量の差について、イオン種別の相対割合を図10に示した。なお、 NH_4^+ は Re-N との差を示している。 SO_4^{2-} と Ca^{2+} がほとんどを占めた第5区画の結果(図9)とは明らかに異なることが分かる。本節で説明した SO_4^{2-} 、CS、 Na^+ 、 NH_4^+ および Ca^{2+} の相対割合が大きい。このことは、これらのイオンや、解離してこれらのイオンを発生させる化合物が、固相間隙の停滞水や固相表面だけでなく、通常は保有水と物質交換しにくい部分にも存在することを意味している。

3.4 保有水と振とう検液の EC に寄与するイオン種の相違

先に図4と図5において、深度に伴い保有水と振とう検液の EC が上昇する理由を、表層部から優先的に塩類洗い出しが進行するためと説明した。ただし、図6と図7に示したとおり、浸出水と振とう検液では、主要イオン濃度の相対割合が異なる。浸出水は埋立廃棄物層の底部に溜まった保有水である。つまり、保有水と振とう検液、第2区画と第5区画では、EC に寄与する主要イオンが異なる。

保有水については、第5区画は埋立終了からの経過時間が短いため、埋立廃棄物層内には多量に Cl^- と Na^+ が存在しており、これらが EC に寄与する主なイオンである。一方、第2区画の浸出水に含まれる主要イオンは、 Na^+ 、CS、 NH_4^+ および Ca^{2+} であり、 Cl^- の多くは既に洗い出されている。

振とう検液中のイオンについては、第5区画では Ca^{2+} と SO_4^{2-} が主であり、深度に対する EC の上昇は深層部の埋立廃棄物にこれらのイオンの存在量が多いことを示している。廃石膏ボード由来の粒子状 $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ が埋立層内の固相間隙を移動することは考えにくいので、浅層部

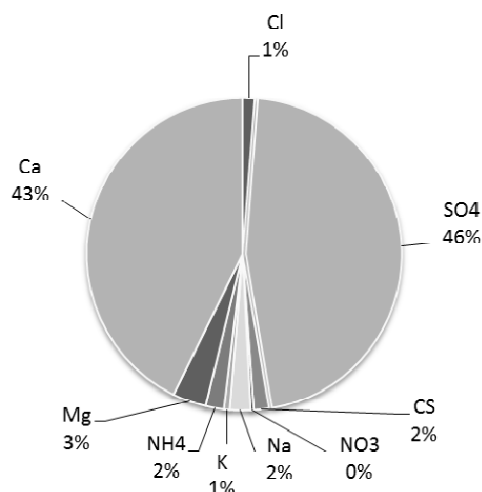


図9 第5区画における振とう検液と粉碎検液から求めたイオン含有量差の相対割合

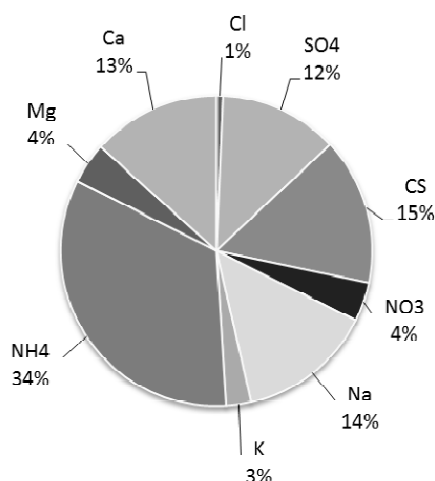


図10 第2区画における振とう検液と粉碎検液から求めたイオン含有量差の相対割合

の廃石膏ボードから優先的に溶解して溶出が進むか、もしくは深層部で $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ の形成が進行して高含有量になることが示唆される。どちらにしても、浅層部から先行して洗い出しが進む事実は変わらない。

第2区画については、 Na^+ 、CS および NH_4^+ が主成分であり、埋立層に残存する Na^+ と、有機窒素化合物の分解で生じる CS と NH_4^+ が主な EC の決定因子である。 Na^+ 濃度の相対割合を深度別にみると、1.75-2.00m では 18% であるが、2.50-2.75m で 40%、3.50-3.75m で 42%、4.50-4.75m で 40% であり、2.5m 以深では大差がなかった²¹⁾。深部ほど EC が上昇し、相対濃度に大差がない事実は深部ほど Na^+ の存在量が多く、浅層の洗い出し現象を裏付けている。

CS は 29~37% の範囲で深部ほど相対割合が高くなる傾向があった。 NH_4^+ は 12~17% で深度による増加傾向はなく²¹⁾、大差はなかった。しかし、濃度で評価すると、 NH_4^+ は 1.75-2.00m では 0.004meq g^{-1} であったのに対して、4.50-4.75m では約 5 倍の 0.022meq g^{-1} となり、深層ほど多量に含有する傾向がみられた²¹⁾。生物分解由来のイオンは層内での存在形態が不明であるため、浅層部よりも深層

部で生成される量が多いのか、それとも浅層部で生成したものが保有水の移動とともに深部で高濃度になるのかは明らかでない。しかし、筆者らは生物分解で生ずる物質の大きさは分子レベルになり、保有水とともに移動しやすいため、後者のメカニズムの可能性が高いと推測している。

4. まとめ

本研究では、管理型産業廃棄物最終処分場について、埋立時期が異なるが、同一処分場敷地内に存在する類似した構造の埋立区画を比較対象とし、浸出水中のイオン濃度と溶出試験検液で得られたイオン含有量から塩類洗い出し作用のメカニズムを考察した。

保有水は新旧区画とも、深度が深くなるのに伴い EC が上昇したが、EC に寄与するイオン種は異なった。比較的新しい埋立区画では埋立廃棄物層から溶出しやすい Cl⁻と Na⁺濃度の寄与が大きかったが、古い区画では Na⁺と生物分解で生成される CS と NH₄⁺の寄与が大きかった。

溶出試験からは、埋立廃棄物層内には CaSO₄・2H₂O が多量に存在し、難溶性であるため Ca²⁺と SO₄²⁻として溶出しにくく、洗い出しが遅れる可能性が示唆された。また、古い区画では埋立廃棄物層内の Cl 含有量に比べて Na⁺含有量は比較的多く残存していた。Cl と Na⁺は過去の研究で共に埋立廃棄物層から溶出しやすいといわれてきたイオンであるが、本研究により Cl に比べて Na⁺は埋立層内に残りやすく、溶出性に差があることが示された。

また、塩類洗い出しプロセスに比べて有機窒素化合物の分解プロセスが遅いため、古い埋立区画においては、生物分解により生ずるイオン種の存在割合が、他のイオン種に比べて相対的に大きくなると考えられた。

本研究対象処分場のように埋立廃棄物が含水飽和し、底部から浸出水を排除している埋立地においては、塩類洗い出し効果は浅層から深部へ進行することが確認された。

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) 朝倉宏：廃棄物埋立地の透水性と安定化，国立環境研究所循環型社会・廃棄物研究センターオンラインマガジン循環・廃棄物のけんきゅう 2008 年 6 月 30 日号，<http://www-cycle.nies.go.jp/magazine/kenkyu/20080623.htm> (閲覧日 2015 年 10 月 18 日)
- 2) 田中信壽：安全環境な廃棄物埋立処分場の建設と管理，技報堂出版株式会社，4・5(2000)
- 3) 元永優一，樋口壯太郎，花嶋正孝，武下俊宏，中家祥介，太田和善，小屋町法之：強制的な好気性工法による生活環境修復早期安定化システムの研究開発（その 2），第 18 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集，796・798(2007)
- 4) 小宮哲平，島岡隆行，古賀大三郎，八木美雄，西田卓史，高田光康：埋立廃棄物中の汚濁成分の溶出に及ぼす保有水位変動の影響，第 20 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集，405・406(2009)
- 5) 三井清志，伊藤洋，河内大輔，前村昌幸：産業廃棄物埋立地盤からの塩化物イオンの溶出に関する基礎研究，第 25 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集，403・404(2014)
- 6) 成岡朋弘，門木秀幸，上田智幸：エージングによる一般廃棄物焼却灰の無害化（その 2）ライシメータ試験による検証，第 25 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集，499・500(2014)
- 7) 古賀大三郎，鶴飼亮行，宮脇健太郎：埋立および散水方法を考慮した埋立地安定化の基礎的検討，第 26 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集，463・464(2015)
- 8) 寺島奏：都市廃棄物埋立地における汚濁物の挙動一現象と基礎，ならびに無機汚濁物の挙動一，廃棄物学会誌，7(2)，148・167(1996)
- 9) 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)
- 10) 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)
- 11) 田中宏和，中村大充，大家清紀，石垣智基，遠藤和人，山田正人，香村一夫：管理型最終処分場ボーリングコア中の塩類に関する考察，第 27 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集，407・408(2016)
- 12) 田中宏和，山田正人，香村一夫：最終処分場モニタリング技術の現状と課題，廃棄物資源循環学会論文誌，27(1)，27・38(2016)
- 13) 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)
- 14) 長森正尚，小野雄策：浸出水の水質経年変化一管理型産業廃棄物最終処分場一，埼玉県公害センター研究報告，21，49・65(1994)
- 15) 田中宏和，田中博義，橘浩廣，中屋亮二，山田正人，遠藤和人，大家清紀，小林克至：北陸地方の気候が管理型産業廃棄物最終処分場の安定化に及ぼす影響，第 17 回廃棄物学会研究発表会講演論文集，1048・1050(2006)
- 16) 環境省大臣官房廃棄物・リサイクル対策部長：廃石膏ボードから付着している紙を除去したものの取扱いについて（通知），環廃産発第 06060100 号 平成 18 年 6 月 1 日，(2006)
- 17) G. Andreottolla and P. Cannas : Lanffilling of Waste, 2・4 Chemical and Biological Characteristics of Lanfill Leachate, Eds. T.H. Christensen, R. Cossu, R. Stegmann, Elsevier Applied Science, 65・88(1992)
- 18) 石井敦，田中宏和，香村一夫：埋立廃棄物の CEC に着目した最終処分場から塩類流出を遅らせる要因，第 27 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集，425・426(2016)
- 19) 石井敦，田中宏和，香村一夫：廃棄物埋立層保有水から塩類流出を遅らせる原因一層構成物の陽イオン交換能(CEC)に着目して一，平成 28 年度廃棄物資源循環学会 春の研究発表会，P・023(2016)
- 20) 石井敦，田中宏和，香村一夫：最終処分場安定化における塩類溶出遅延因子に関する考察・CEC に着目して一，第 27 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集，425・426(2016)
- 21) 田中宏和：管理型最終処分場における塩類溶出メカニズムと廃棄物安定化に関する研究，早稲田大学博士学位論文，137・149(2017)