

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

Study on the dissolution of inorganic ions and the stabilization  
of solid wastes in controlled landfill sites

2017年2月

田中 宏和

Hirokazu TANAKA



博士論文

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

Study on the dissolution of inorganic ions and the stabilization  
of solid wastes in controlled landfill sites

2017年 2月

早稲田大学大学院 創造理工学研究科

地球・環境資源理工学専攻 地圏環境学研究

田中 宏和

Hirokazu TANAKA







# 目次

<b>第一章 序論</b> .....	1
1.1 はじめに .....	2
1.2 最終処分場の安定化と研究の動向 .....	5
1.3 処分場安定化研究における既往の知見 .....	7
1.4 本論文の目的と構成 .....	10
1.4.1 社会的意義 .....	10
1.4.2 研究目的と課題 .....	10
1.4.3 本論文の構成と内容 .....	11
<b>第二章 研究対象処分場の概要</b> .....	17
2.1 はじめに .....	18
2.2 埋立地の構造と埋立方法 .....	18
2.3 埋立時期と埋立廃棄物の種類 .....	20
2.4 まとめ .....	22
<b>第三章 研究方法</b> .....	25
3.1 はじめに .....	26
3.2 ボーリングコアサンプルを用いた調査方法 .....	27
3.2.1 ボーリング掘削方法 .....	27
3.2.2 コアの状態観察と分析用試料の調製 .....	27
3.2.3 湿潤密度試験と透水試験方法 .....	28
3.2.4 固形分・水分と強熱残留物試験方法 .....	28
3.2.5 溶出試験用検液調製方法 .....	28
3.2.6 溶出試験分析項目 .....	29
3.2.7 溶出検液分析方法 .....	29
3.2.8 イオン交換容量試験方法 .....	29
3.3 浸出水を用いた調査方法 .....	31
3.3.1 試料採取方法 .....	31
3.3.2 分析項目と前処理および分析方法 .....	31
3.4 観測井モニタリング .....	32
3.4.1 井戸の構造 .....	32
3.4.2 水位と水温の測定方法 .....	34
3.4.3 深度別の電気伝導率と酸化還元電位の測定方法 .....	34
3.5 浸入水量の計算方法 .....	34
<b>第四章 埋立層内の状態</b> .....	39
4.1 はじめに .....	40

4.2	ボーリングコアの性状と含有物質	40
4.2.1	写真とコアスケッチ	40
4.2.2	湿潤密度	43
4.2.3	透水係数	46
4.2.4	固形分と強熱残留物	47
4.3	保有水の水位と水質	50
4.3.1	水位の経時変化	50
4.3.2	水温の経時変化	52
4.3.3	電気伝導率の深度変化	53
4.3.4	酸化還元電位の深度変化	54
4.4	集排水設備で集められた浸出水からみた埋立層内雰囲気	55
4.4.1	pHの経時変化	56
4.4.2	酸化還元電位の経時変化	56
4.4.3	溶存酸素の経時変化	57
4.4.4	水質指標と安定化	58
4.5	浸出水中の主要イオンとバランス	58
4.5.1	電気伝導率の経時変化	59
4.5.2	浸出水中のイオンバランス	63
4.6	まとめ	69
<b>第五章 浸入水水量変化等の短期的因子が塩類溶出に及ぼす影響</b>		<b>75</b>
5.1	はじめに	76
5.2	埋立初期における塩類溶出	76
5.3	埋立層の不均質性による塩類溶出への影響	82
5.4	易溶出性イオン種間の溶出性の違い	85
5.5	埋立層内雰囲気変化による溶出特性への影響	90
5.6	有機物分解生成物による塩類溶出への影響	96
5.7	まとめ	101
<b>第六章 有機物分解プロセス等の長期的因子が塩類溶出に及ぼす影響</b>		<b>105</b>
6.1	はじめに	106
6.2	一価イオンの溶出特性	106
6.2.1	易溶出性イオンの溶出特性	106
6.2.2	アンモニウムイオンの溶出特性	112
6.3	多価イオンの溶出特性	114
6.3.1	層内雰囲気変化の影響を受けるイオン	114

6.3.2	炭酸系イオンとマグネシウムイオン	118
6.4	微量元素の溶出特性	123
6.4.1	ホウ素	123
6.4.2	ヒ素とアンチモン	125
6.4.3	重金属類	127
6.5	まとめ	131
<b>第七章 埋立廃棄物中の塩類残存量による溶出性の検討</b>		<b>137</b>
7.1	はじめに	138
7.2	溶出試験検液の電気伝導率	138
7.3	溶出試験検液の各種イオン濃度	139
7.3.1	第5区画の埋立層内イオン	145
7.3.2	第4区画の埋立層内イオン	146
7.3.3	第2区画と第3区画の埋立層内イオン	146
7.3.4	第1区画の埋立層内イオン	147
7.3	まとめ	148
<b>第八章 結言</b>		<b>153</b>

研究業績

謝辞





# 第一章

## 序論

### 1.1 はじめに

人間が産業活動や日常生活を行うことで廃棄物が発生する。近年の経済成長と人口増加に伴い、世界における廃棄物発生量が増加している<sup>1)</sup>。世界の廃棄物総排出量は2000年には130億tであったが、2050年には約2倍になると試算されている<sup>1,2)</sup>。

わが国では、1950年代から1970年代まで高度経済成長を遂げ、大量生産・大量消費の時代を迎えた。さらに、トイレの水洗化などによるライフスタイルの変化により下水処理場等から発生する汚泥量が増加したことも影響し、1990年頃には廃棄物量の増加、質の多様化、処分場の確保の困難性から廃棄物問題が顕在化した。こうした廃棄物問題に対処するために、1970年に「廃棄物の処理及び清掃に関する法律（昭和45年12月法律第137号）（以下、「廃掃法」という。）」が施行された。当初は「廃棄物の適正な処理」がその主なテーマであったが、1991年に改正され、「廃棄物の排出抑制と廃棄物の分別、保管、収集、再生、処分等の適正処理」が新たに追加された。

近年では、2004年6月に米国で開催されたG8サミットにおいて、日本はReduce（発生抑制）、Reuse（再使用）、Recycle（再生利用）の3Rによる循環型社会構築を目指す「3Rイニシアティブ」を提唱し、新たな政策構想として合意された。国内でも3Rを軸とした「循環型社会づくり」の施策が進行中である。循環型社会とは「天然資源の消費を抑制することによって環境負荷の低減を図る」社会であり、社会経済への天然資源投入量を減らし、循環利用率を高めることが重要といわれている<sup>1)</sup>。ここでいう「天然資源」には化石燃料が含まれるため、「循環型社会づくり」は「低炭素社会づくり」と同じ方向を目指す施策であり、地球温暖化対策としても重視されている。

ローカル的な要素が多い廃棄物問題に対して、地球温暖化問題は全世界に関係するため、社会の関心は高い。人為的な温室効果ガスの排出量を削減するための京都議定書が1997年に議決されてから18年後の2015年に、新たな法的拘束力のある国際的な合意文書となるパリ協定が採択された<sup>1)</sup>。一方で、国や地方自治体は3Rに関する様々な施策や啓発活動を活発に行い、国民や企業の環境問題に対する意識の高まりもあって、平成3年度以降の廃棄物発生量は減少傾向にある<sup>1)</sup>。

わが国の廃棄物の最終処分量は平成12年度の約5600万tから平成25年度約1600万tと、13年間で約71%減少した<sup>1)</sup>。そして、最終処分場の残余年数も、一般廃棄物処分場については平成17年度で14.8年であったものが平成26年には20.1年となり、また、産業廃棄物処分場についても平成14年度に4.5年であったものが平成26年度には14.7年まで増加した<sup>1)</sup>。しかし、ここ数年間の最終処分量は横ばいで推移しており、埋立残余容量についても決して余裕がある状態とはいえない。

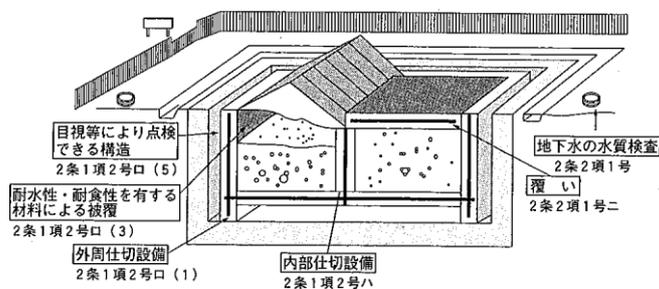
わが国においては、発生した廃棄物をそのまま最終処分場に埋め立てることはなく、再資源化や減容化、安定化、無害化等の中間処理を施し、最終的な残渣のみを処分している。そのため、一部の新興国のように不衛生な廃棄物がそのままの状態でも処分されることはない。しかし、今日のように適切な法体系や技術的基準が整備されていなかった過去においては、最終処分場は悪臭の発生やネズミの生息など、不衛生な状態であったことから迷惑施設として強く意識されていた。この意識は今日でも根強く残っており、新たな処分場の建設に対して近隣住民の理解が得にくいのが現状である。

一方、1994年に国連大学が「ゼロエミッション (Zero Emission)」という概念を創設した。これは、企業連携型の物質循環を組み合わせた産業連鎖を構築することで、自然界に放出される廃棄物をなくすことが可能であるとした考えである。今日、一部の企業では、これを宣伝文句として使用し、良いイメージだけが世間に広まっているともいえる。しかしながら、現実の社会経済構造と科学技術では、最終的な残渣を完全になくすことはできないため、最終処分場は今もなお、いわゆる静脈産業の「最後の砦」として社会システムの中で欠くことのできない重要なインフラとして位置づけられる。

わが国の最終処分場は廃掃法により、遮断型最終処分場、管理型最終処分場、安定型最終処分場の3つのタイプに区別され、それぞれ構造が異なり(図 1-1)、処分できる廃棄物の種類が異なる(表 1-1)。この中で、遮断型最終処分場は有害性の高い廃棄物を処分対象とし、有害物質が外部環境に漏洩しないように半永久的に保管する施設である。廃棄物を外部環境と隔離するため、構造が堅牢であり、処分費用が高額である。安定型最終処分場は有害性・環境汚染性がない廃棄物を処分する施設であり、構造が簡易であるため処分費用が安価であるが、処分可能な廃棄物の種類が限定される。

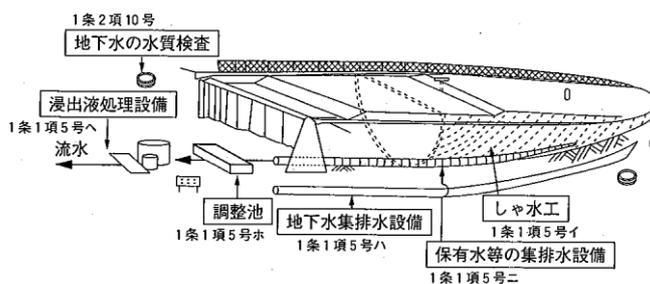
一方、管理型最終処分場は水溶性や腐敗性の物質を含む残渣を処分可能な施設であり、社会で大量発生する焼却灰や汚泥などの廃棄物に対応している。透水係数の低い岩盤を基盤とした造成や埋立区画基底への遮水シート敷設などの対策により、埋立廃棄物や発生する汚水が地下水と接触しない構造として、埋立地周辺の環境を汚染しない工夫がなされている。現存する多くの管理型最終処分場は広大な敷地を有し、しかも屋外にあることから、降水は埋立地内部に容易に浸透し、埋立廃棄物からの溶脱物を含有した汚水が多量に発生する。この汚水は埋立地底部に敷設された集水設備に集められ、水処理設備で浄化した後に公共用水域等に排水される。廃掃法では、前者の埋立層内部にある汚水を「保有水」、層から排水された汚水を「浸出水」と呼んで区別している。近年、中間処理技術の高度化により有用資源の回収率が向上する一方、最終残渣には有害性や環境汚染性を有する物質の占める割合が高まる傾向にあるため、今後、最も普及すると見込まれるのが管理型最終処分場である。本研究は、こ

の管理型最終処分場の安定化に焦点をあてたものである。



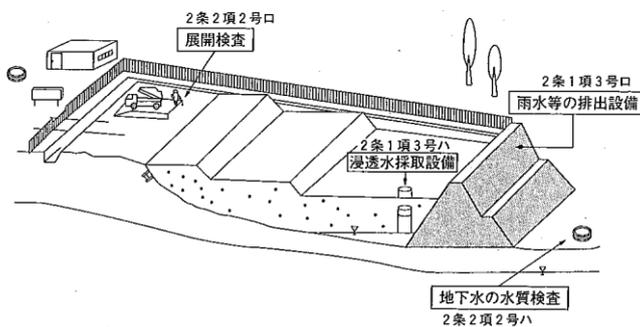
図中の条項は「一般廃棄物の最終処分場及び産業廃棄物の最終処分場に係る技術上の基準を定める省令」

図 1-1(a) 遮断型最終処分場の構造例<sup>2)</sup>



図中の条項は「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」

図 1-1(b) 管理型最終処分場の構造例<sup>2)</sup>



図中の条項は「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」

図 1-1(c) 安定型最終処分場の構造例<sup>2)</sup>

表 1-1 各埋立処分場で処理できるもの<sup>2)</sup>

安定型処分場	管理型処分場	しゃ断型処分場	禁止物
無機性の固形状のもの	安定型にもしゃ断型にも該当しないもの	有害な（特別管理）産業廃棄物	最終処分できないもの
廃プラスチック類 ゴムくず 金属くず ガラスくず コンクリートくず 陶磁器くず がれき類 等	廃油（タールピッチ類）、紙くず、繊維くず、動物性残さ、死体、動物のふん尿、燃え殻、ばいじん、汚泥、鉱さい及びその廃棄物を処分するために処理したもの	燃え殻 ばいじん 汚泥 鉱さい で、金属等を含むもの	廃油 廃酸 廃アルカリ 感染性廃棄物 廃 PCB 等 廃石綿 ※定められた中間処理した後に、汚泥、燃え殻等として処分

一般廃棄物の最終処分場は管理型と法律上明記されていないが、埋め立てる廃棄物の質から、構造上は管理型に該当する。

## 1.2 最終処分場の安定化と研究の動向

管理型最終処分場には環境を汚染する危険性のある廃棄物が埋立処分される。これらは適正な運転管理下では環境汚染を誘発しないが、運転管理や施設の維持管理が不適切であれば環境を汚染するリスクポテンシャルを有する。一方、この環境汚染リスクポテンシャルは、時間経過に伴い次第に低下する。なぜなら、生物・物理化学的反応により、埋立廃棄物の性状が安全サイドへと変化するためである。

処分場埋立地内には様々な種類の廃棄物残渣が不均質に存在しており、これらは有機物と無機物に大別できる。汚泥等の有機物は微生物の働きにより低分子に分解され、保有水に溶解したり、ガスとなって大気中に放出・拡散する。これを「有機物分解」という。また、無機物についても、水溶性の塩類は保有水に溶解し、浸出水として系外へ排除される。これを「塩類洗い出し」という。一方、塩類の中には酸化物や硫化物等の難溶塩を形成し、埋立廃棄物層から溶出しにくくなるものがある。これを「塩類不溶化」という<sup>3)</sup>。これらの三つのメカニズムにより埋立廃棄物層の性状は次第に変化して、環境汚染リスクポテンシャルが低下する。

最終処分は廃棄物を自然に同化させるプロセスともいわれている。わが国では処分場埋立地を微生物が有機物を分解するための反応容器として考え、その中で埋立廃棄物を土壌に還元させる概念が定着している<sup>4)</sup>。長い年月の経過に伴い、「有機物分解」と「塩類洗い出し」が進むと、埋立層内には廃棄物残渣に最初から含まれていた難溶性物質と、「塩類不溶化」により形成された物質の占める割合が次第に増加する。そして、埋立廃棄物が「それ以上変化しない状態になること」を安定化と呼んでいる。

最終的な安定化状態については、「廃棄物を掘り返して大気や雨に曝しても

環境に影響を与えない状態」とする考え方がある。しかし、このような状態になるまでには、おそらく地層の風化と同程度の長い時間が必要となることが容易に想像できる。最終処分場が人工的な構造物であることを考慮すると、この定義を処分場の運転管理に用いることは現実的でない。そのため、一般的には「もうそれ以上何の変化も起こさない状態で、広義には環境に影響を与えない状態」を最終的な安定化状態と定義する場合が多い<sup>4)</sup>。しかし、「何も変化を起こさない状態」や「環境に影響を与えない状態」を科学的に証明することは難しい。

わが国では、「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。）」において、最終処分場の廃止基準を定めている。この廃止基準とは、埋立地内部の環境汚染リスクポテンシャルが低下し、放置しても環境汚染が発生しない状態にまで安全が担保されたことを判断するための法的な技術基準である。浸出水水質やガスの発生状態、埋立地内部の温度等の計測可能な項目を定めている。即ち、廃止基準に適合した状態とは、「浸出水や埋立ガスを集めて浄化するなどの埋立地維持管理を行わなくても環境に与える影響を無視できる」状態であり、安定化の完全な終焉を意味していないことから、第一段階の安定化状態といわれる<sup>4)</sup>。処分場管理者は、この状態に到達するまで管理責任があり、安定化した処分場埋立地の跡地は利用しやすいため、早期の安定化が望まれる。

これまでの多くの現場経験から、廃止基準に適合する状態にまで安定化が進行するには、30～50年間以上の時間が必要といわれている。しかし、廃棄物処理に関する現在の法体系が構築され、処分場の構造基準ができてから約45年しか経過しておらず、廃止基準が制定されたのも約20年前である。そのため、安定化に関する研究の歴史は浅く、メカニズムの詳細は未だ解明されていない。

そして、廃止基準には「有機物分解」の進行状態を確認するための指標はあるが、「塩類洗い出し」や「塩類不溶化」の状態評価に関する基準が定められていない。基準省令の維持管理基準には、周縁地下水への影響判断のためのモニタリング指標として、一般的な保有水中に高濃度に含まれる塩化物イオンが採用されている。しかし、廃止基準の保有水水質基準には塩化物イオンが含まれていない。このことから、廃止基準は有害物質や有機物の漏洩による環境汚染を防ぐことを目的として設定していることが分かる。したがって、フッ化物等の有害性の高い塩類は基準値があるが、それ以外の塩類については環境に与える影響が小さいため、廃止基準に設定されていない。

過去の安定化に関する研究についても、「有機物分解」を主たる着眼点とする研究事例が相対的に多い<sup>5・10)</sup>。これは、処分場を運営管理する上で「有機物

分解」に関連する廃止基準の達成が最も遅い経験から、早期廃止に貢献するための技術的な研究成果が求められているためと考えられる。しかし、埋立層内では生物反応だけでなく物理化学的な反応も進行し、それぞれが互いに関係している<sup>11-13)</sup>。したがって、安定化促進を目指す研究を行うためにも、安定化の総合的かつ詳細なプロセスと、それに作用する影響因子の把握が重要と考えられる。そのためには、有機物だけでなく無機塩類の挙動についても着目すべきであるが、無機塩類の溶出や不溶化については、先述したとおり廃止基準に評価項目がないことが影響し、安定化の進行段階における情報が不足している。

さらに、数少ない塩類洗い出しに関する研究についても、小型実験槽を用いた研究<sup>6,14-17)</sup>が多く、実際の処分場を対象とした調査事例が少ない<sup>12)</sup>。小型実験槽を用いた研究は、槽内の廃棄物組成や環境条件を調整しやすく、実験終了後の廃棄物性状も分析できることから、結果を解析評価しやすい長所がある。また、供給水量を調整することで実験時間の短縮が可能であり、研究期間が短期間に限られる場合に有効である。ただし、反応時間の短縮が不可能である塩類不溶化などの事象については、小型実験槽の研究結果が実際の処分場埋立地の状態を反映しているとは言い難く、実験方法としては適切でない。

その一方で、実際の処分場を対象とした研究は長い年月を要し、調査事例が少ないためモニタリングデータは貴重である<sup>12)</sup>。しかし、埋立廃棄物の種類や組成が明確でない場合が多く、埋立地内部の状態も不均質である。さらに、降水量や蒸発量は天候次第で変化し、層内浸入水量のコントロールができないため、収集データの解析評価が難しくなる。しかしながら、実際の処分場埋立地で進行している安定化メカニズムを知るためには、現場の調査データからのアプローチが必須であることはいままでのない。

### 1.3 処分場安定化研究における既往の知見

国内外の過去の研究により、処分場埋立地の安定化プロセスは以下のようにまとめられる。

管理型最終処分場に埋立処分される腐敗性の残渣には有機物が含まれ、微生物により分解される。埋立層内の微生物反応により分解される有機物を生物分解性有機物といい、その中で、厨芥に含まれる炭水化物、脂肪、タンパク質等は分解されやすいため易分解性有機物と呼ばれる。一方、木材の主要成分であるリグニンやセルロース等は分解に長時間を要するため、難分解性有機物と呼ばれる。高分子量の固体有機物は様々な代謝により低分子に分解され、可溶化する。嫌氣的雰囲気下と好氣的雰囲気下では活性化する微生物の種類が異なり、有機物分解のプロセスも異なる。嫌氣的雰囲気下では加水分解、酸発酵、メタン発酵が進行し、好氣的雰囲気下では酸化分解が起こり、有機物は最終的に二酸化炭素、メタン、水に分解される。タンパク質等の窒素や硫黄を含む有機窒

素化合物の場合は、最終生成物としてアンモニアや硫化水素も発生する<sup>4,18)</sup>。

有機物分解は安定化における主要なメカニズムのひとつであるため、過去の研究では埋立地内で経時的に進行する微生物反応と、それに伴う層内状態変化により、安定化の進捗状況を複数の段階に区分して説明している<sup>11,19-21)</sup>。特に、埋立開始から最終的な安定化状態までを5段階の有機物分解プロセス変化に応じて区分すると分かりやすい<sup>19,20)</sup> (図 1-2)。5段階のプロセスとは、最初に好気性分解期があり、それに続く嫌気性分解期を3段階に区分し、最後に再度の好気性分解期があるとしたもので、それぞれの特徴は以下のとおりである。

第Ⅰ期は初期の好気性分解期であり、浸出水にはアミノ酸、二酸化炭素、水、硝酸塩および硫酸塩など、全ての好気性分解で生ずる一般的な分解産物が含まれる。一部では嫌氣的になり、脂肪が加水分解反応により脂肪酸とグリセリンとなり、揮発性脂肪酸が生成するが、その量は次の段階の方が多い。この段階は、生物酸化反応による発熱のため、廃棄物が圧密されていなければ高温となる。しかし、廃棄物層内で進行する好気性分解反応に使われる酸素消費量が層外から供給される酸素量に比べて大きくなるため、この段階の継続期間は短いといわれている。

第Ⅱ期は嫌気性酸発酵期であり、嫌気性分解プロセスの初期の段階である。通性嫌気性細菌と偏性嫌気性細菌の両方の作用により易分解性有機物が分解され、廃棄物層内の雰囲気は次第に還元化し、この段階の終期にはメタン菌が増殖できる状態となる。この期間の浸出水は生物化学的酸素要求量 (BOD) とアンモニア濃度が高く、後者は主にタンパク質の加水分解と発酵で生成される。多量に発生する揮発性脂肪酸と二酸化炭素により、浸出水の pH が低下する。また、高濃度の無機イオン ( $\text{Cl}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Na}^+$ 等) を含むが、層内雰囲気の還元化により  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度は次第に低下する。pH 低下は重金属の溶解を促進させる一方、硫化物を形成する金属は不溶化が進行する。

第Ⅲ期は、メタン菌により揮発性有機酸がメタンと二酸化炭素に変換されはじめるメタン生成発達期であり、嫌気性分解プロセスの中間に位置する。ガス中のメタン濃度が増加するが、水素、二酸化炭素および揮発性脂肪酸の濃度は減少する。浸出水中の脂肪酸濃度が低下することにより pH とアルカリ度が上昇し、カルシウムや鉄、マンガン等の金属の溶解度も低下する。金属類の溶解度の低下は、第Ⅱ期から続く生物反応により、硫酸塩が硫化物となることも要因である。

第Ⅳ期は嫌気性分解の最後の段階であり、メタン生成が定常的に継続する期間 (メタン生成定常期) である。この時点で揮発性有機酸はほとんどなく、有機物の可溶化は既に終末期を迎えているが、難分解性有機物の分解による有機物からメタンの発生が継続する。また、第Ⅲ期までに増殖した微生物の自己分

# 第一章

解も進行する。難分解性有機物の分解反応が律速となるため、浸出水の BOD 濃度は低く、pH はメタン菌が活動できる中性域で安定している。

第 V 期は土壌化期といわれる。この段階まで難分解性の有機物が残存している場合には、埋立地の上層部で 2 回目の好気性分解が発現することがある。しかし、埋立廃棄物内の生物分解性有機物のほとんどがなくなっており、分解に要する酸素消費量が減少する。そのため、大気中の酸素が埋立層内に拡散侵入して好気性ゾーンが拡大し、層内雰囲気は酸化状態となるためメタンと二酸化炭素の発生は微弱となり、最終的に停止する。その結果、埋立廃棄物層中のガス成分が空気と同じになり、このような状態になれば、廃棄物は土壌に還元され、安定化したといえる。

各段階の継続期間については、埋立物中の有機物の質や量によって異なるが、第 I 期が数時間、第 II 期が数か月から 1 年間程度、第 III 期は約 1 年間で終了するが、第 IV 期については数十年間継続し、第 V 期が完全に終了するまでには数百年かかると考えられている<sup>4)</sup>。

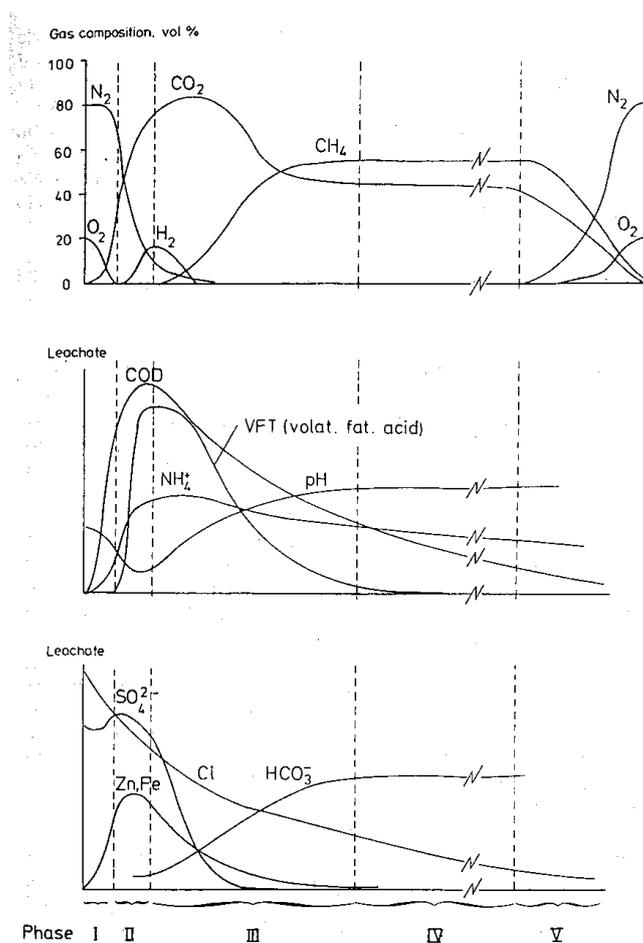


図 1-2 安定化に伴う埋立ガス組成と浸出水水質の変化<sup>20)</sup>

### 1.4 本論文の目的と構成

#### 1.4.1 社会的意義

管理型最終処分場には廃棄物焼却施設や下水終末処理場から発生する残渣を処分することから、社会で発生する大部分の廃棄物残渣が埋立処分される。そのため、今後、最も活用され、建設が進むタイプの処分場である。

管理型最終処分場の構造基準が策定されてから約 40 年が経過し、近年は埋め立てが終了して、廃止を待つ処分場が国内に多数存在する。法的な廃止基準が約 20 年前に制定されているが、調査方法は厳密には決められていない。廃止基準には、処分場埋立地が環境に悪影響を及ぼさない第一段階の安定化状態への到達を評価する目的があるが、調査方法に不備があると処分場埋立地の正しい状態を反映したデータが得られず、将来、環境汚染を引き起こす可能性がある。しかし、廃止基準の適否を判断する調査や審査は近年始まったばかりであり、処分場管理者や行政の担当部局においても経験やノウハウの蓄積が少なく、調査報告書のデータを信じて判断せざるを得ない。そのため、埋立地全体の環境汚染リスクポテンシャルの低下を、廃止基準との適否のみで判定することについては不安がある。

この問題の根本的な原因は、安定化に関する詳細なプロセスが未だ解明されていないことにある。即ち、廃止基準のみで正しく第一段階の安定化状態を評価できるのかについては検討の余地があり、過去の研究でも課題が指摘されている<sup>22-25)</sup>。未来永劫にわたり環境汚染を引き起こす危険性を否定し、かつ、処分場跡地を利用する上での安全性を保障する科学的根拠と、それに裏付けされた処分場の廃止判定が求められる。そのためには、廃止基準以外の視点から、処分場埋立地の内部状態を把握し、その上で将来における変化を予測するためのデータ収集と評価技術の開発が重要となる。しかしながら、最終処分場の維持管理には多額の費用が必要であり、安易に廃止判定を先送りには許されない。したがって、処分場安定化プロセスの詳細解明と、廃止基準項目を補完する知見の収集は喫緊の課題である。

このような状況を鑑みて、本論文では廃止基準には規定がないが、埋立廃棄物中に多量に含まれる塩類に着目し、廃棄物安定化と各種イオンの溶出挙動との関係性を評価検討した。本研究の成果は、廃棄物最終処分場の安全性確保に寄与するものであり、自然環境保全に貢献する。また、最終処分場の安全性が向上することで、国民の処分場建設への理解が深まることが期待され、静脈産業だけでなく動脈産業を含めた産業発展と、高度で衛生的な日常生活を維持することができる。

#### 1.4.2 研究目的と課題

本研究は、過去の研究事例が少ない塩類に焦点をあて、管理型最終処分場からの塩類溶出特性を把握し、廃棄物安定化における塩類溶出メカニズムを解明

することを目的とする。具体的には、埋立時期が異なる複数の処分場埋立地における浸出水の水質を 5 年間追跡調査し、得られたモニタリングデータを解析することで各種塩類の溶出性の特徴を調べ、影響因子を検討する。

浸出水水質は、1.3 で述べたような長期的に作用する影響因子の他に、気象変化等による短いスパンの変化がある。そこで、本論文ではそれぞれを区分し、以下の 2 点を研究課題とした。

- I 埋立層内への浸入水水量変化等の短期的因子が塩類溶出に及ぼす影響
- II 有機物分解プロセス等の長期的因子が塩類溶出に及ぼす影響

### 1.4.3 本論文の構成と内容

本論文は研究成果を以下の構成で報告する。

第一章 序論

第二章 研究対象処分場の概要

第三章 研究方法

第四章 埋立層内の状態

第五章 浸入水水量変化等の短期的因子が塩類溶出に及ぼす影響

第六章 有機物分解プロセス等の長期的因子が塩類溶出に及ぼす影響

第七章 埋立廃棄物中の塩類残存量による溶出性の検討

第八章 結言

本論文の内容を要約すると以下のとおりとなる。

第二章では、本論文で研究対象とした管理型産業廃棄物処分場の構造、立地条件、埋立廃棄物の種類、埋立方法および維持管理方法について説明する。

第三章では、本研究のために行ったボーリング調査や層内保有水調査、浸出水水質の分析方法、層内浸入水量の計算手法等についてまとめる。

第四章では、埋立層内の廃棄物固相の状態評価をボーリング調査結果から、層内保有水の状態評価を水位、水温、電気伝導率および酸化還元電位から行う。また、それぞれの埋立区画における安定化の進捗状況について、浸出水の pH、酸化還元電位、溶存酸素濃度を用いた判定を試みる。さらに、判定した安定化進捗状況と浸出水中の主要イオンバランスとの整合性を評価する。

第五章では、調査前の 30 日間に埋立地に浸入する水量と浸出水中の各種イオン濃度の相関分析を行い、短期的な浸入水水量変動が溶出挙動に与えるメカニズムを考察する。

第六章では、時間経過に伴う浸出水中のイオン濃度変化から、イオン種別に溶出特性への影響因子を考察する。また、有機物分解プロセスに由来する層内

状態変化による影響を評価する。さらに、金属類などの浸出水中に微量に含まれる元素の溶出特性についても説明を試みる。

第七章では、ボーリングコアサンプルの溶出試験から、埋立廃棄物中に存在する主要イオンの含有量と相対割合を評価し、第四章から第六章で考察した各種イオンの溶出メカニズムとの整合性を確認する。

第八章では、総括として研究成果を概要し、既往の知見に対する整合性と特異性、新たに判明した影響因子とメカニズムについて整理する。さらに、本研究の成果の有用性と活用事例、将来の展望について述べる。

参考文献

- 1) 環境省：平成 28 年版 環境・循環型社会・生物多様性白書（PDF 版）,pp.4,165-210.
- 2) 田中勝：新・廃棄物学入門,中央法規出版株式会社,pp.33-38,161-167(2005).
- 3) 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).
- 4) 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,pp.4-5,pp.123-127 (2000).
- 5) 清和成,内河裕美,Sang N.Nguyen,池道彦,藤田正憲,石垣智基,Blent Inanc,井上雄三,三井清志,前田信一,鈴木學,門上希和夫,肥塚隆男：浸出水循環式を適用した海面埋立廃棄物最終処分場の安定化促進モデル試験, 環境工学研究論文集,Vol.43,pp.319-325(2006).
- 6) 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,pp.796-798(2007).
- 7) 澤村啓美,石垣智基,遠藤和人,小野雄策,原雄,香村一夫,惣田訓,山田正人,池道彦：微生物の基質利用性・系統分類に基づく最終処分場の安定度評価, 環境技術, Vol.39,No.6,pp.355-364(2010).
- 8) 為田一雄,内田正信,武下俊宏,樋口壯太郎,西山亨,高士昇吾,寺本佳宏,川合啓之,宮村典仁,山川雅弘,吉岡理：霧状酸化剤を用いた埋立地の早期安定化に関する研究, 第 22 回 廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集,pp.441-442(2011).
- 9) 柳瀬龍二,平田修,松藤康司,小山田謙二,石田眞滋：浸出水の水温と水質を用いた埋立地の安定化の判定手法に関する研究, 廃棄物資源循環学会論文誌,Vol.22,No.5,pp.298-305(2011).
- 10) Hideki Yoshida : Analysis of in Situ Passive Aeration within a Closed Landfill by Temperature and Gas Component, The 2nd Symposium of Asian Regional Branch of International Waste Working Group Proceeding Book,pp.304-306(2015).
- 11) 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, Vol.21, pp.49-65(1994).
- 12) 寺島奏：都市廃棄物埋立地における汚濁物の挙動－現象と基礎, ならびに無機汚濁物の挙動－, 廃棄物学会誌,Vol.7,No.2,pp.148-167(1996).
- 13) 濱村研吾,志水信弘,土田大輔,永瀬誠,鳥羽峰樹,黒川陽一,高橋浩司,小淵祐

- 二,末永朋 則,成岡朋弘,江藤次郎,島岡隆行:焼却灰セメント原料化のための有機性コンポストを混合した都市ごみ焼却灰からの塩素溶出挙動の解明,廃棄物資源循環学会論文誌,Vol.20,No.1,pp.52-60(2009).
- 14)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,pp.405-406(2009).
- 15)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,pp.403-404(2014).
- 16)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,pp.499-500(2014).
- 17)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,pp.463-464(2015).
- 18)真次寛:準好気性埋立構造の廃棄物埋立地における生ごみ由来の浸出水量の予測手法に関する研究,福岡大学博士学位論文,pp.16(2014).
- 19)John F. Rees: The Fate of Carbon Compounds in the Landfill Disposal of Organic Matter, Journal of Chemical Technology and Biotechnology, Vol.30, pp.161-175(1980).
- 20)T.H. Christensen, R. Cossu, R.Stegmann: Landfilling of Waste: Leachate, Elsevier Applied Science, pp.65-88(1992).
- 21)東條安匡:廃棄物処分場における元素の消長と最終安定化に至る物質挙動解明の必要性,廃棄物資源循環学会誌,Vol.20,No.6,pp.278-282(2009).
- 22)原雄:産業廃棄物処理現場で扱われる分析・測定データについて,廃棄物学会誌,Vol.18,No.6,pp.353-360(2007).
- 23)吉田英樹:埋立地ガスと温度一埋め立てが終了した処分場での調査事例を通して一,廃棄物学会誌,Vol.20,No.6,pp.283-286(2009).
- 24)長森正尚,磯部友護:管理型最終処分場の廃止基準に関する考察(8),第25回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集,pp.449-450(2014).
- 25)柳瀬龍二,海老原正人,杉田昭義,松藤康司,香川智紀:安定型処分場における廃棄物層内の温度変化(廃止基準の評価)について,第26回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集,pp.469-470(2015).





## 第二章

### 研究対象処分場の概要

### 2.1 はじめに

管理型最終処分場の埋め立てが終了し、廃止基準に適合するまでには 30～50 年間が必要といわれ、それ以上の年月を要する場合もある。そのため、数年間の研究だけでは長期的な変化を把握不可能である。したがって、特定の処分場における初期から晩期までの安定化プロセスを研究するには、普通は数十年間のモニタリングが必要となる。しかし、このように長期間の調査を継続するには大変な努力が必要であり、調査技術も日進月歩で変化することから、特定の処分場埋立地の経時変化のみから安定化全体のプロセスを研究することは難しく、現実的ではない。

また、基準省令では環境保全上の観点から、周縁地下水や水処理後の放流水については定期的な測定義務を課しているが、保有水水質や埋立廃棄物の状態に関しては調査を義務付けていない。さらに、廃止基準適否を判断するための調査は高額な費用が必要となるため、埋め立てが終了してから数十年間経過した後に開始するのが一般的である。そのため、埋立途中や埋立終了直後での層内の状態調査や、保有水水質検査は必要なく、運転管理上の目的でデータ収集されるケースは稀である。

以上から、処分場埋立地における廃棄物安定化プロセスの研究手法としては、複数の埋立地の調査結果を用いる方法が現実的である。しかし、全国各地の最終処分場は立地条件、構造、気候、受け入れている廃棄物種類等の条件がそれぞれ異なり、これらは調査データに影響する。したがって、埋立時期以外の条件が類似している埋立区画を複数有する処分場が研究対象に適している。本研究では、そのような最適条件を有する処分場を研究サイトとして選択している。

### 2.2 埋立地の構造と埋立方法

本研究の対象サイトは、福井県北部に位置する管理型最終処分場である。通常、陸上埋立では谷地や土砂採取跡などの地形を利用して最終処分場を造成する場合が多い。しかし、当該処分場は異なり、平地を掘削して遮水シートを敷設した掘り込み式の埋立地である。2016 年 4 月現在での埋立区画は全 6 区画あり、それぞれは完全に独立し、埋立廃棄物が接触することはない。面積、容量および深さを表 2-1 に示した。研究対象処分場の埋立層厚は、第 1 区画のみが 3.5 m、第 2～6 区画が 6 m である。

全ての埋立区画の底部には集水管が敷設され、そこを通じて浸出水が集水枡に溜まる構造となっている。集水枡には水中ポンプが設置されており、水位センサーとタイマーによる制御で浸出水を水処理施設に導水している。浸出水は水処理施設で凝集沈殿処理した後、下水道へ排水している。集水枡から水処理施設までの導水管はそれぞれ個別であることから、水処理施設に入る手前で各埋立区画別の浸出水を容易に採取できる。しかし、導水管には水量計が設置されていないため、埋立地から排除された浸出水水量の実測データはない。

ここでは一般的な内陸の処分場と異なる埋立方法を採用している。あらかじめ雨水を埋立区画内に GL-2 m 程度の水位で貯留し、そこに埋立廃棄物を片押し工法<sup>1)</sup>で直接投入している。これは、埋立地周縁の地下水位が高いため、地下水による外部からの水圧で遮水シートが破損することを予防するための運用である。そのため、当日覆土も中間覆土も施工していない。地表部を覆うための最終覆土には埋立地掘削造成で発生した砂質土を使用している。また、埋立終了後においても保有水水位が高く管理され、埋立廃棄物の大部分が水中に浸漬している。このような状態は海面埋立処分場に類似している。しかし、当該処分場で埋立開始前に貯留される水は降水である。また、海面埋立処分場においては保有水を揚水井戸、内水ポンドもしくは管理水面に設置された水平暗渠から排除するが、対象処分場では浸出水を埋立層底部の集水管から排水するため、保有水の移動は原則的に上部から下部に向かう点も海面埋立処分場と異なる。

このように、本研究の対象処分場は一般的な陸上埋立処分場とも、海面埋立処分場とも異なる特徴を有する。陸上埋立処分場では不飽和帯と飽和帯が存在し、海面埋立処分場では浸入水（海水）に高濃度の塩分を含むため、廃棄物からの溶出塩類の評価は複雑となる。しかし、本研究対象処分場は実在する処分場の中でも埋立廃棄物層内の状態が比較的単純であり、含水飽和状態の埋立廃棄物からの塩類溶出特性を評価することが可能である。

表 2-1 各埋立区画の面積、容積および深さ

埋立区画	面積 (m <sup>2</sup> )	容積 (m <sup>3</sup> )	深さ (m)
第 1 区画	3,750	9,730	3.5
第 2 区画	3,750	13,275	6.0
第 3 区画	7,800	31,950	6.0
第 4 区画	7,800	31,950	6.0
第 5 区画	11,790	52,650	6.0
第 6 区画	11,790	52,650	6.0

### 2.3 埋立時期と埋立廃棄物の種類

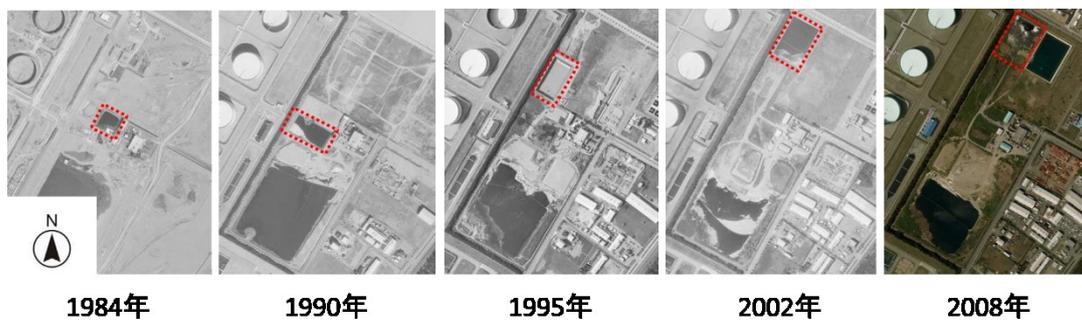
研究対象処分場は1982年に操業を開始し、2016年4月現在も操業を継続している。操業開始当初は第1区画のみであったが、既存の区画の埋め立てが終了する前に、隣接地に新たな埋立区画を整備してきた。本研究を開始した2005年には埋立途中の第5区画を含めて全5区画であったが、第6区画を2007年に増設し、2008年3月から使用している。各区画の埋立時期は表2-2のとおりである。処分場の航空写真を図2-1に、管理型最終処分場のレイアウトを図2-2に示した。図2-1中の赤破線で囲った部分が管理型処分場の埋立途中区画である。

各埋立区画の埋立廃棄物の種類別重量組成を図2-3に示した。主な廃棄物は汚泥類と焼却灰類であり、第2～5区画ではこの2種類の廃棄物だけで9割以上を占める。第1区画については、汚泥類の割合が他区画に比べて少ないが、それでも汚泥類と焼却灰類を合わせると全体の6割程度となり、全区画において主な廃棄物の種類が汚泥類と焼却灰類であることは共通している。図1に示した焼却灰類の大部分は、処分場に併設する焼却炉で発生したもので、性状は黒色粒状であり、焼却炉から排出された後は速やかに水槽中に浸漬して冷却処理している。操業開始から焼却炉の更新は行っていないため、焼却灰の性状は第1区画から第6区画まで大きな相違はない。

埋め立ては基本的に古い区画から行われ、当該区画が満杯になった後、新しい区画への埋め立てへと移っていった。図2-1の航空写真でもこのことが確認できる。表2-2では、第5区画と第6区画の切替え時のみ、約1年間並行して埋め立てしたように表記されているが、これは埋立地のレイアウト上、第6区画への搬入作業道が第5区画上となるため、第6区画の埋立開始直後は第5区画の一部が搬入廃棄物の仮置き場として利用され、第5区画の最終覆土敷設工事の完了が遅れたためである。図2-1の2008年の航空写真では、第6区画への作業道が整備され、第5区画の埋め立てが終了直前であることが分かる。同じ日の搬入廃棄物は同一の区画に埋め立てし、廃棄物の種類によって埋立区画を変更するような運用は行っていない。そのため、埋立区画の切り替え時に、埋立廃棄物の種類や組成が大きく異なることはない。ただし、2006年に安定型最終処分場への廃石膏ボードの埋め立てが全面的に禁止されたことから<sup>2)</sup>、第5区画と第6区画のみ廃石膏ボードが埋め立てされている。

表 2-2 各区画の埋立時期

埋立区画	埋立開始	埋立終了
第1区画	1982年12月	1988年3月
第2区画	1988年3月	1990年9月
第3区画	1990年9月	1995年5月
第4区画	1995年6月	2000年12月
第5区画	2001年1月	2009年5月
第6区画	2008年3月	—



※赤破線部が管理型最終処分場の埋立途中区画

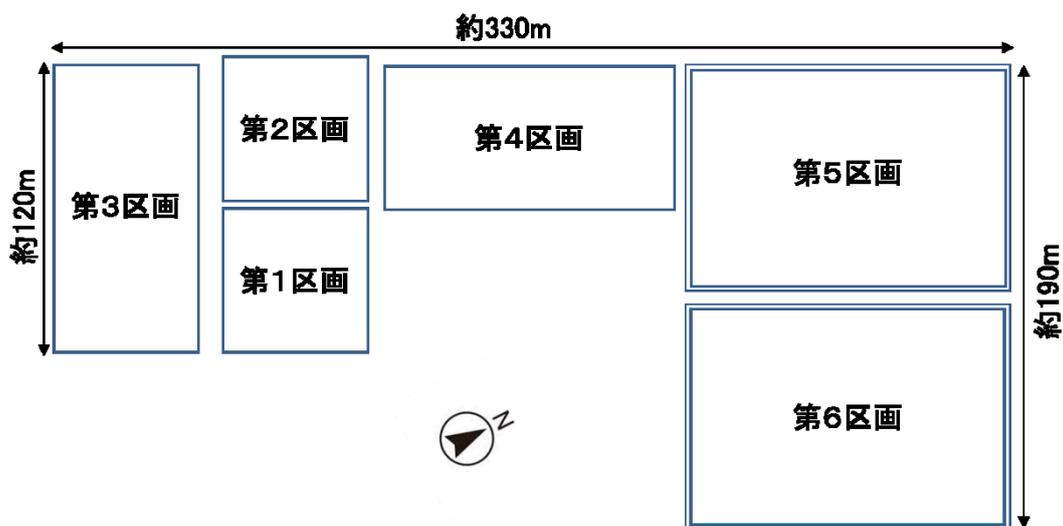
図 2-1 処分場の航空写真<sup>3)</sup>

図 2-2 管理型最終処分場の配置

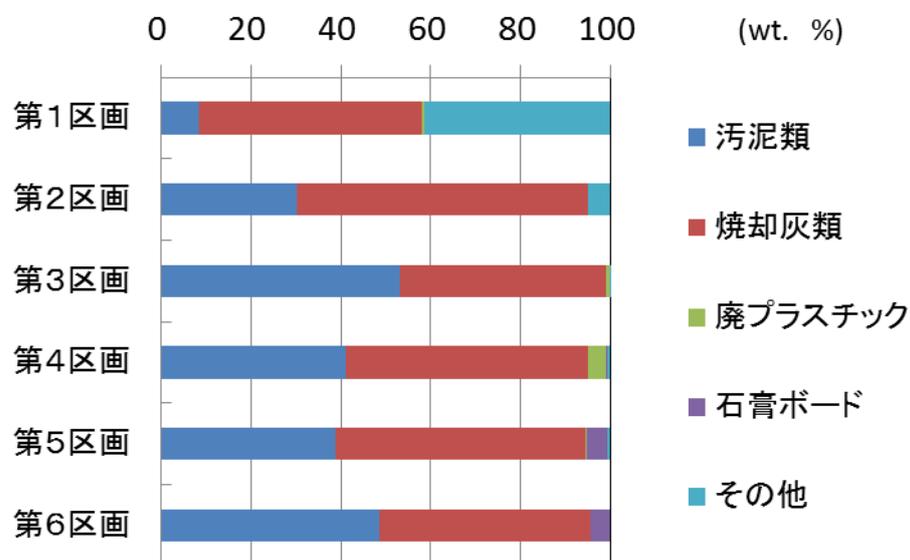


図 2-3 埋立廃棄物の種類別重量組成

#### 2.4 まとめ

本論文の研究対象として、同じ敷地内にあり、異なる時期に埋め立てされた区画が 6 サイト存在する処分場を選定した。それぞれの埋立区画は構造が類似し、埋立方法や運転・維持管理状態は同様である。埋立廃棄物の種類やその組成については、一部の搬入業者の入れ替わりや、技術革新等による微小な変化は存在するかもしれないが、同じ場所で同一の経営者が運営してきた処分場であることから急激な変化はない。したがって、各区画の層内状態の相異は時間経過による影響が大きく、これらを比較することで処分場埋立地の安定化に伴う長期的な変化を評価できる。即ち、安定化に関する研究対象として、特に恵まれた条件の処分場といえる。

### 参考文献

- 1) 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,pp547(1999).
- 2) 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).
- 3) 国土交通省 国土地理院：地図・空中写真閲覧サービス，<http://mapps.gsi.go.jp/maplibSearch.do#1>（閲覧日 2016 年 6 月 21 日）.



## 第三章

### 研究方法

#### 3.1 はじめに

管理型最終処分場で処分する廃棄物には汚染物質を含むため、遮水構造に問題があったり、水処理施設の運転が不適切であったりすると、環境汚染を引き起こす可能性がある。そのため、基準省令では周縁地下水と放流水の定期的な水質検査を義務付けている。これらの検査は、基準と分析方法が法律で明確に定められており、処分場管理者はそれらに基づいて実施しなければならない。また、基準省令では廃止基準も定めており、これらの水質検査方法は明確に定められ、埋立ガス発生状況や層内温度状況の検査についても概略の方法が定められている。

しかし、廃止に至るまでの途中過程における保有水水質や埋立廃棄物の性状確認の調査については基準省令には記載がなく、検査を行う必要がない。そのため、処分場の安定化状態を調査するために法律で定めた方法はなく、一般的にオーソライズされた方法も存在しない。そこで、多くの研究者は独自に開発した調査方法を用いるか、他分野で用いられている調査手法から有効と考えられるものを選択して活用している。

本研究の主たるテーマである「塩類洗い出し」と「塩類不溶化」の研究においては、埋立廃棄物層内に存在する塩類と、そこから溶出する塩類の状態把握が重要である。しかし、一言で塩類といっても、処分場には様々な種類の残渣が埋め立てられているため、それらの種類は多く、全てを分析評価することは難しい。また、埋立区画では廃棄物残渣を直接投入しているため、層内の廃棄物には場所や深さによって塩類含有量の差異が生じると予想される。このような不均質性を広域的に調査する手法としては電気探査や電磁探査などの各種物理探査法があり、埋立層内部の電氣的・物理的性質を知る上で有効である。しかし、これらの手法のみでは含有物質量や透水性などの詳細な情報を得ることが難しく、詳細な物性や化学的な情報を用いる処分場研究には他の手法を活用する必要がある。

そこで、本研究ではボーリング掘削したコアサンプルの性状分析、観測井内保有水の水位・水質調査および集排水設備の浸出水水質調査から埋立層の内部状態の把握と、塩類溶出メカニズムと影響因子の解明を行った。ボーリング掘削や観測井で得られる調査結果は平面的にみれば埋立地全体の一点の情報にすぎないが、埋立層深層部の状態を直接的に観察・測定できる利点がある。一方、浸出水水質は埋立層から溶脱する物質の状態を全体的に反映しており、複数回の調査を行うことでより平均化される。

### 3.2 ボーリングコアサンプルを用いた調査方法

#### 3.2.1 ボーリング掘削方法

ボーリング掘削調査は第1区画から第5区画において、2009年11月に実施した。掘削地点を図3-1に示す。掘削位置は集排水管の埋設部を避けた。なお、当時の第6区画は埋め立てを開始したばかりであり、整地されたエリアが無かったため、調査対象としていない。

掘削径は116 mmとし、掘削深度は第1区画のみ3 m、第2～5区画は5 mとした。埋立廃棄物層は自然地層に比べて強度的に軟弱であるため、コアサンプルを乱さずに採取する工夫が必要である。そのため、二重管のサンプラーを用いた無水オールコア方式を採用した。また、廃棄物埋立層から採取したコアサンプルは、大気に曝されることで急激に性状が変化することが懸念される。そのため、ポリカーボネート製の内管に採取したコアサンプルは、採取後速やかに管の開口部をビニルシートで密閉し、できるだけ大気との接触を避けるように保管した。

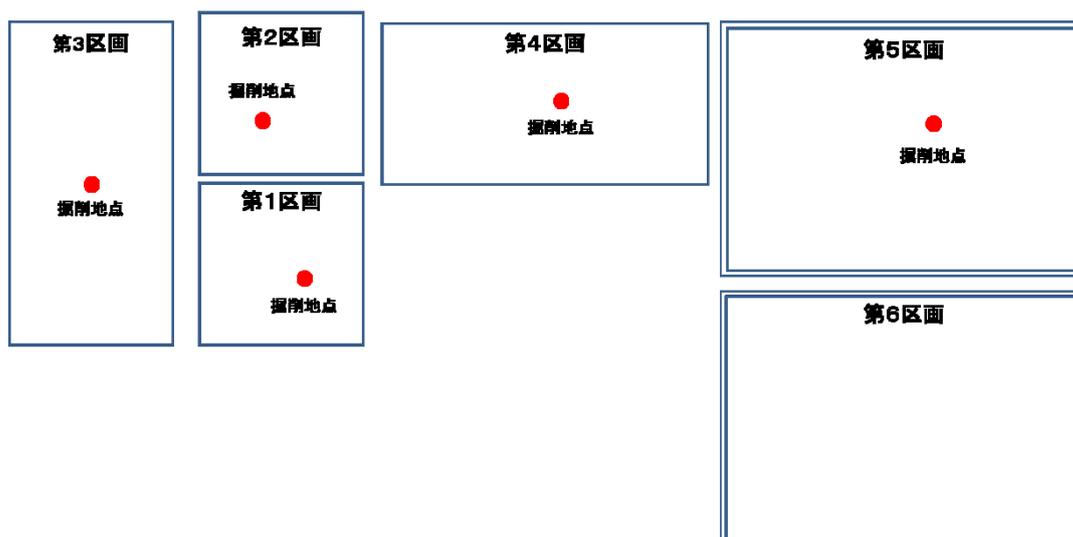


図 3-1 掘削地点平面図

#### 3.2.2 コアの状態観察と分析用試料の調製

掘削から30時間以内に、コアサンプルを深度0.25 m毎に切断して湿潤密度を測定後、内管を縦方向に切断して静かに開き（図3-2）、写真撮影とコアスケッチを行った。その後、コアサンプルを長さ0.25 m単位で、できるだけ全ての深度が同量となるように樹脂製のトレイに分取し、ステンレス製の平ヘラを用いて手動で混合均一化した。これらのサンプルをアルミ製のチャック付き袋に入れて試験室に持ち帰り、分析用試料とした。ただし、一部の深度のコアサンプルは全量を透水試験に供したため、分析用試料の調製はしていない。

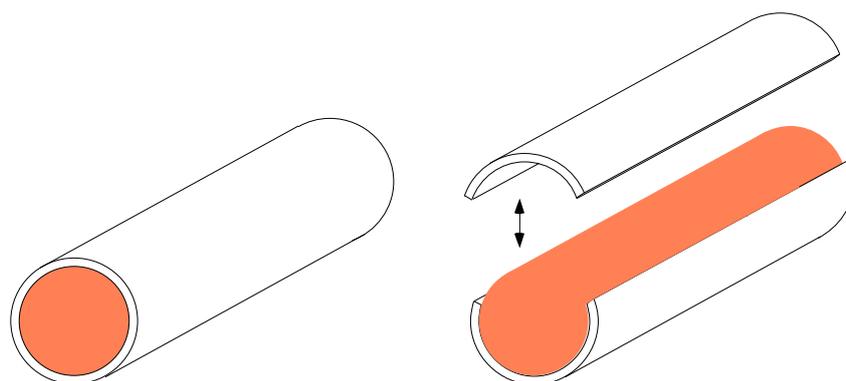


図 3-2 内管の縦割りの概要図

### 3.2.3 湿潤密度試験と透水試験方法

コアサンプルの湿潤密度を以下の方法で測定した。最初に内管とビニルシートで密封された 0.25 m 単位のコアサンプルの重量を秤量し、次に内管とビニルシートの重量を秤量して差し引き、コアサンプルの湿潤重量を得た。また、内管の長さとお内径からコアサンプルの容積を求めた。最後に、湿潤重量と容積から湿潤密度を算出した。

透水試験は「土の土質試験法（日本工業規格 JIS A 1218）」に準拠して実施した。最初は変水位法で測定し、 $1.00 \times 10^{-3} \text{ cm s}^{-1}$  よりも透水係数が高く、変水位法が不適と判断されたサンプルについては定水位法で再測定した値を採用した。試験対象試料は、第 1 区画では 0.25-0.50 m、1.25-1.50 m および 2.25-2.50 m とし、第 2 区画では 0.25-0.50 m、1.50-1.75 m、2.25-2.50 m、3.25-3.50 m および 4.25-4.50 m とした。第 3～5 区画では 0.25-0.50 m、1.25-1.50 m、2.25-2.50 m、3.25-3.50 m および 4.25-4.50 m とした。第 2 区画の 1.25-1.50 m の試料には最終覆土と廃棄物層の境界が確認されたため、試験対象としなかった。

### 3.2.4 固形分・水分と強熱残留物試験方法

固形分・水分の測定を下水試験方法の「一般汚泥試験 蒸発残留物及び含水率<sup>1)</sup>」に準拠して実施した。乾燥温度と時間は 105°C で 2 時間以上とした。

固形分・水分試験に併せて、強熱残留物を下水試験方法の「一般汚泥試験 強熱残留物<sup>1)</sup>」に準拠して実施した。加熱温度と時間は 600°C で 2 時間以上とした。

### 3.2.5 溶出試験用検液調製方法

溶出試験用の検液調製は、以下の 2 通りの方法で行った。

#### (a) 振とう操作による検液調製方法

3.2.2 で調製した湿潤状態の分析用試料 40 g を容量 500 mL の樹脂製容器に移し入れ、超純水 400 mL を加えた後、振とう機（㈱スギヤマゲン VERTICAL SHAKER）を用いて、 $300 \text{ min}^{-1}$  で 5 分間上下振とうさせた。その後、遠心分離

機（日立工機(株) himac DF8DL）を用いて、3000 rpm で 20 分間遠心分離後、上澄液を孔径 0.45  $\mu\text{m}$  メンブレンフィルターでろ過した。この溶液を以後、「振とう検液」と記す。この検液調製は分析用試料を調製した当日に実施した。

#### (b) 分散機による検液調製方法

3.2.2 で調製した湿潤状態の分析用試料 10 g を容量 1000 mL の樹脂製容器に移し入れ、超純水 500 mL を加えた後、ホモジナイザー（IKA ジャパン(株) ULTRA-TURRAX T25）を用いて、20500 rpm で 5 分間分散処理した。その後、遠心分離機（日立工機(株) himac DF8DL）を用いて、3000 rpm で 20 分間遠心分離後、上澄液を孔径 0.45  $\mu\text{m}$  のメンブレンフィルターでろ過した。この溶液を以後、「分散検液」と記す。この検液調製は、第 1 区画については深度 1.75-2.00 m と 2.50-2.75 m の試料を、第 2～5 区画については深度 1.75-2.00 m、2.50-2.75 m、3.50-3.75 m および 4.50-4.75 m の試料を対象として、分析用試料を調製した翌日に実施した。

#### 3.2.6 溶出試験分析項目

3.2.5(a)で調製した振とう検液について、塩化物イオン ( $\text{Cl}^-$ )、亜硝酸イオン ( $\text{NO}_2^-$ )、硝酸イオン ( $\text{NO}_3^-$ )、硫酸イオン ( $\text{SO}_4^{2-}$ )、ナトリウムイオン ( $\text{Na}^+$ )、カリウムイオン ( $\text{K}^+$ )、アンモニウムイオン ( $\text{NH}_4^+$ )、マグネシウムイオン ( $\text{Mg}^{2+}$ )、カルシウムイオン ( $\text{Ca}^{2+}$ ) および無機体炭素 (IC) の濃度を分析した。

3.2.5(b)で調製した分散検液では、 $\text{NH}_4^+$ 以外の振とう検液で分析した項目と、全窒素 (TN) の濃度を測定した。

#### 3.2.7 溶出検液分析方法

$\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ および  $\text{SO}_4^{2-}$ は水酸化カリウム系溶離液を用いたイオンクロマトグラフ（日本ダイオネクス(株) 現：サーモフィッシュャーサイエンティフィック(株) DX-500）を使用し、ガードカラムは IonPac AG17-C を、分離カラムは IonPac AS17-C を用いて分析した。IC の分析は非分散形赤外線ガス分析計（(株)島津製作所 TOC-VCSH）で行った。IC は全てが遊離炭酸 ( $\text{CO}_2$ )、炭酸水素イオン ( $\text{HCO}_3^-$ ) および炭酸イオン ( $\text{CO}_3^{2-}$ ) に由来するものとし、これらの総計を炭酸系イオン種の濃度とした。非分散形赤外線ガス分析計に全窒素測定用のユニット（(株)島津製作所 TNM-1）を付属した機器を用い、燃焼酸化-化学発光法で TN を測定した。 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ および  $\text{Ca}^{2+}$ は、リアクションガスとしてメタンまたは酸素を用いた ICP 質量分析装置（(株)パーキンエルマージャパン ELAN DRC-e）で分析した。 $\text{NH}_4^+$ の分析はイオン電極法（(株)堀場製作所 F-53 電極 5002A）を用いた。分析結果の定量下限値は、 $\text{SO}_4^{2-}$ が 0.5  $\text{mg L}^{-1}$ 、 $\text{NH}_4^+$ が 0.05  $\text{mg L}^{-1}$ 、それ以外の項目は 0.1  $\text{mg L}^{-1}$  とし、有効数字は 2 桁とした。

#### 3.2.8 イオン交換容量試験方法

イオン交換容量のうち、特に陽イオン交換容量 (CEC) は土壤の地力を評価する指標として広く用いられてきた。分析手法や使用する試薬濃度によって得られる結

果が異なることから、分析対象試料に適した条件を検討することが重要である<sup>2,3)</sup>。これまで様々な検討がなされており、わが国では Schollenberger 法<sup>4)</sup>を改良した方法<sup>3,5)</sup>が広く用いられているが、この方法は主に土壌や鉱物を分析対象とした方法である。自然土壌や鉱物は長い年月の風化作用を経ているため、化学的な組成が比較的単純で安定性が高く、土壌に関しては粒度も均質な場合が多い。しかし、本研究の分析対象である埋立廃棄物は、その多くが人工物であるため含有物質の化学組成は多種多様であり、化学的な安定性に乏しい物質が含まれ、さらに粒度も一定していない。

そのため、本研究では 2015 年に試料と薬液を強制的に振とうさせる手法<sup>6,7)</sup>を参考とし、薬液に酢酸アンモニウムの代わりに塩化ナトリウムを用いる方法で廃棄物の CEC の定量に成功している<sup>8,9)</sup>。本論文では、さらに改良を施した以下の方法を用いてイオン交換容量を測定した。本方法は前処理を共通化することにより、CEC と陰イオン交換容量 (AEC) の同時分析を可能とした。

#### (a) 試料調製

最初に、3.2.2 で調製した分析用試料 100 g と純水 200 mL を 500 mL ビーカーに入れ、超音波洗浄機を用いて試料を分散させた。次に、分析用試料と純水の混合物を 2 mm メッシュの非金属製ふるいに通過させて大きな夾雑物を排除した後、遠心分離 (3000 rpm 15 分間) し、沈殿物を平底磁皿に移して 60°C で乾燥してイオン交換容量試験用試料を調製した。なお、3.2.4 と同じ方法で、調製したイオン交換容量試験用試料の固形分・水分と強熱残留物を測定した。

#### (b) 検液調製

風乾試料を正確に 10 g 秤量し、500 mL 蓋付き三角フラスコに入れ、0.1 N 硝酸カリウム水溶液 (吸着液) 200 mL を加えた後、マグネチックスターラーで 24 時間攪拌した。次に、三角フラスコ内の懸濁液全量を遠沈管に移して 3000 rpm で 15 分間遠心分離し、上澄液を排除した。沈殿物に 80% メタノール水溶液 (洗浄液) 200 mL を加えて三角フラスコに移し、24 時間攪拌した。その後、遠心分離と上澄液の排除、洗浄液による攪拌操作を再度繰り返した。そして、懸濁液全量を遠心分離して得た沈殿物に、1 N 塩化ナトリウム水溶液 (置換液) 200 mL を加え、24 時間攪拌した。攪拌操作後の置換液を遠心分離して得た上澄液を 0.45  $\mu\text{m}$  メンブレンフィルターでろ過し、これをイオン交換容量試験用の検液とした。なお、検液は複数の樹脂製容器に分取し、CEC 分析用検液には 1% 容量の硝酸を添加し、分析時まで冷蔵保存した。AEC 分析用の検液は暗所で冷凍保存し、分析前は自然解凍した。

#### (c) イオン交換容量の測定

検液中の  $\text{K}^+$  濃度を ICP 質量分析計 (パーキンエルマージャパン株式会社 ELAN DRC-e) で測定し、乾燥試料 100 g あたりの電気化学当量に換算して CEC 値を得た。また、検液中の  $\text{NO}_3^-$  濃度を連続流れ分析装置 (ビーエルテック株式会社 QuAAtro39) を用い、

カドミウム還元・塩酸酸性ナフチルエチレンジアミン発色 CFA 法で測定し、乾燥試料 100 g あたりの電気化学当量に換算して AEC 値を得た。したがって、本研究で評価する CEC は  $K^+$  を陽イオン種としており、AEC は  $NO_3^-$  を陰イオン種としたものである。

### 3.3 浸出水を用いた調査方法

#### 3.3.1 試料採取方法

浸出水試料は、各埋立区画の集水枡から導水される浸出水を水処理施設で採取した。第 3 区画の排水は 2 系列あるため、全 6 区画で計 7 系列の浸出水試料となる。以下、No. の後に埋立区画の番号を付して浸出水名とし、第 3 区画のみ枝番を付けて No.3-1 および No.3-2 と表記する。

導水ポンプ運転直後の水には、導水管内に長時間滞留した水や集水枡底部から巻き上がった沈殿物が含まれる。このような影響を避けるため、導水ポンプ運転開始後に数分間の捨て水を行い、色層が安定してから浸出水試料を採取した。試料は約 3 か月の間隔で、2005 年 4 月から 2010 年 7 月までの計 22 回採取した。ただし、2008 年 3 月から埋め立てを開始した第 6 区画の調査回数は 10 回である。

#### 3.3.2 分析項目と前処理および分析方法

分析項目は pH、電気伝導率 (EC)、酸化還元電位 (ORP)、溶存酸素 (DO)、IC、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、ホウ素 (B)、マンガン (Mn)、鉄 (Fe)、ニッケル (Ni)、ヒ素 (As)、カドミウム (Cd)、アンチモン (Sb) および鉛 (Pb) とした。pH、EC、ORP、DO および NH<sub>4</sub><sup>+</sup> については採取した試料をそのまま分析した。IC、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup> および Ca<sup>2+</sup> は孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過処理した後の検液を分析した。B、Mn、Fe、Ni、As、Cd、Sb および Pb は硝酸により酸分解処理した検液を分析した。具体的には、ポリプロピレン製の酸分解用容器に試料を 50 mL 分取し、硝酸を 5 mL 添加して 95°C で 10mL 以下になるまで加熱濃縮した。放熱後、超純水で 50 mL までメスアップし、孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過処理して検液を調製した。

pH の分析はガラス電極法 (株堀場製作所 F-23) で行った。EC の分析は白金電極法 (東亜電波工業(株)、現: 東亜ディーケーケー CM-40G) で行った。ORP の分析は銀/塩化銀電極を使用した (電気化学計器(株)、現: 東亜ディーケーケー(株) PHL-20)。DO は「よう素滴定法」を採用し、現場にて試料を採取したフラン瓶にアルカリ性よう化カリウム-アジ化ナトリウム溶液と硫酸マンガン (II) 溶液を添加し、溶存酸素の固定操作を行った。IC、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> および NH<sub>4</sub><sup>+</sup> の分析方法は 3.2.7 と同様の方法を用いた。Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、B、Mn、Fe、Ni、Cd、Sb および Pb については、2009 年 4 月以降は 3.2.7 と同じ方法を用いたが、そ

れ以前においては ICP 発光分析装置（パーキンエルマー・ジャパン(株) Optima3000XL) 用いて分析した。ただし、As、Se および Sb については水素化物発生装置（日本ジャーレルアッシュ(株)、現：サーモフィッシャーサイエンティフィック(株) HYD-1) を ICP 発光分析装置に付加し、水素化物発生 ICP 発光分光分析法にて分析した。定量下限値は B が  $0.02 \text{ mg L}^{-1}$ 、Mn が  $0.05 \text{ mg L}^{-1}$ 、Fe が  $0.1 \text{ mg L}^{-1}$ 、Ni、Cd および Sb が  $0.001 \text{ mg L}^{-1}$ 、Pb が  $0.002 \text{ mg L}^{-1}$  とし、有効数字は 2 桁とした。

### 3.4 観測井モニタリング

#### 3.4.1 井戸の構造

第 6 区画を除く第 1～5 区画には、それぞれ新旧 2 本の保有水観測井が設置されている。各観測井の位置を図 3-3 に、構造を図 3-4 と表 3-1 に、写真を図 3-5 に示した。

旧観測井は 2008 年 10 月に設置した。無水・無排土工法で掘削した直径 267 mm の孔に外径 114 mm の耐熱性硬質塩化ビニル管を埋設した井戸で、ストレーナー部は井戸底から上部 1 m の部分のみとした。管周には GL -0.5 m まで単粒度砕石 5 号を充填し、それより上部は最終覆土と同じ砂質土を充填した。

新観測井は 3.2.1 で説明したボーリング掘削孔を利用して、2009 年 12 月に設置した。直径 116 mm 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、ストレーナー部は井戸底から GL -1 m の部分とし、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 号砕砂を充填した。GL -1 m 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 0.5 m 四方のセメンチング処理を施した。

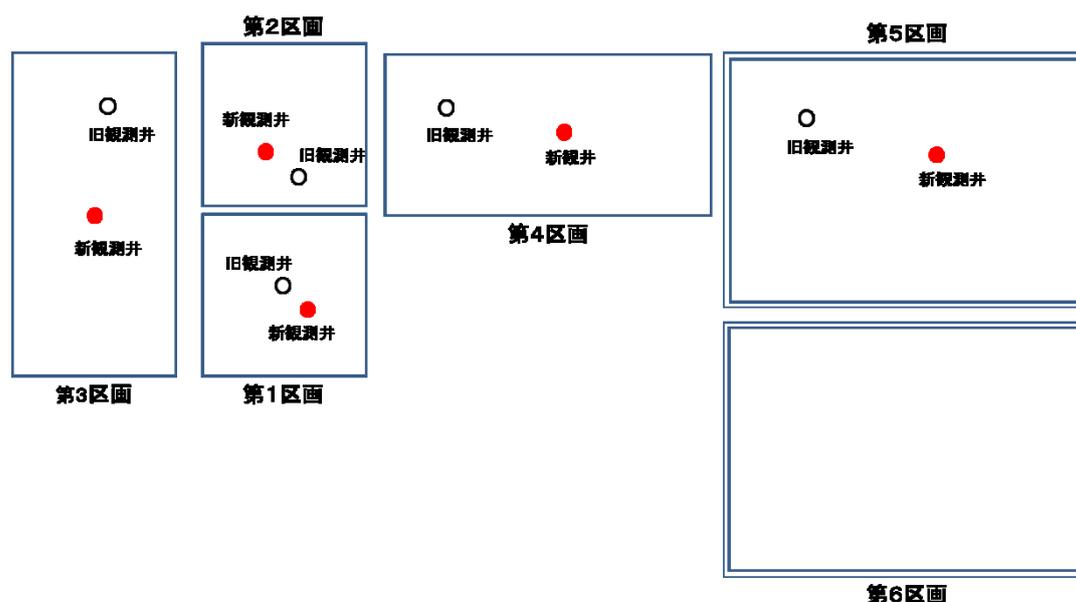


図 3-3 観測井の位置（平面図）

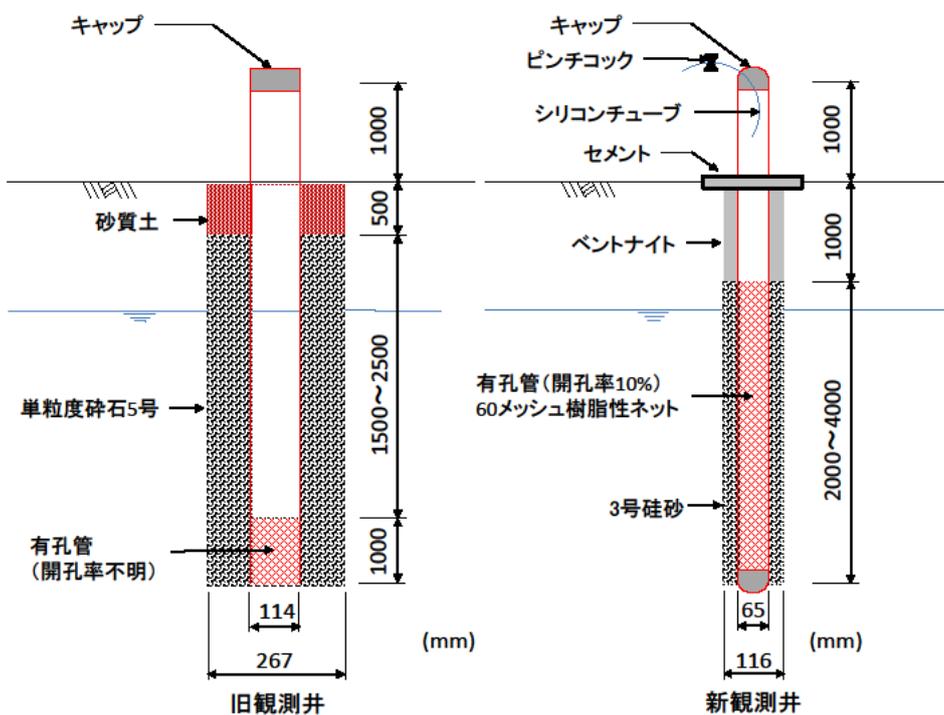


図 3-4 観測井の構造

表 3-1 観測井の深長とストレーナー部の深さ

	旧観測井					新観測井				
	第1区画	第2区画	第3区画	第4区画	第5区画	第1区画	第2区画	第3区画	第4区画	第5区画
立上長さ (m)	1					1				
地下深長 (m)	3	4				3	5			
ストレーナー部深さ (m)	2~3	3~4				1~2	1~5			



旧観測井



新観測井

図 3-5 観測井の写真

#### 3.4.2 水位と水温の測定方法

観測井内保有水水位はロープ式水位計（アルファ光学㈱ WL100TYPE3B）を用いて測定した。2009年4月から2010年12月までは旧観測井で、2010年2月から2016年3月までは新観測井で計測した。旧観測井の測定頻度は月に1~4回とし、新観測井では毎月1回とした。また、2014年6月以降は、新観測井の水位測定時に同機器を用いて井戸底から約0.3 m 上部の保有水水温を測定した。

#### 3.4.3 深度別の電気伝導率と酸化還元電位の測定方法

新観測井を対象とし、観測井内保有水のECとORPをポータブル多項目水質計(㈱堀場製作所 W-2000S W-22XD)を使用して測定した。3.4.2の方法で水位を測定後、観測井内に直接センサーを静かに挿入し、水面部から深度1 m 間隔で計測した。この調査は2013年8月28日、2014年8月26日、2014年10月30日および2016年8月17日の計4回実施した。

#### 3.5 浸入水量の計算方法

埋立地への浸入水量は、気象データを用いて算出した。浸出水試料を初めて採取した2005年4月21日を例に説明する(図3-6)。

はじめに、Blaney Criddle法を用いて<sup>10)</sup>、植被による係数(k)を0.7として月間可能蒸発量を算出した。計算に用いた気温データは研究対象処分場から約8 km 北側にある気象観測点のアメダスデータを使用した<sup>11)</sup>。しかし、その地点では日照量を計測していないため、日照時間については約15 km 東側に離れた地点のアメダスデータを用いた<sup>12)</sup>。年間日照時間は2005年から2010年までの平均値を使用した。

次に、可能蒸発量の60~70%が実蒸発量といわれているため<sup>13)</sup>、月間可能蒸発量の60%が蒸発に使用されたとして月間蒸発量を計算し、それを各月の日数で除した値を日間蒸発量とした。図3-6(b)が日間蒸発量を表している。つまり、調査を実施した4月と、その前月の3月では日間蒸発量は異なり、同じ月の場合には日間蒸発量は全ての日で同じと仮定している。日間降水量から日間蒸発量を差し引いたものを日間浸入水量とした。即ち、図3-6(c)に示したとおり、日間浸入水量は負の値をとる場合もある。最後に、調査日から過去n日間分の日間浸入水量の総和をn日間の期間浸入水量とした。図3-6(d)に例を示した。

なお、Blaney Criddle法による月間蒸発量の計算式は以下のとおりである。

$$E_t = E_T \times 0.6$$

$$E_T = 25.4 \times k \times c_j \times t_j$$

$E_t$  : 月間蒸発量 (mm)

$E_T$  : 月間可能蒸発量 (mm)

k : 植被による係数 0.6~0.8 (本研究では 0.7 を使用)

cj : 年間日照時間に対する月間日照時間の割合

tj : 月間平均気温 (F) ( $F = 1.8 \times \text{セルシウス温度 (}^\circ\text{C)} + 32$ )

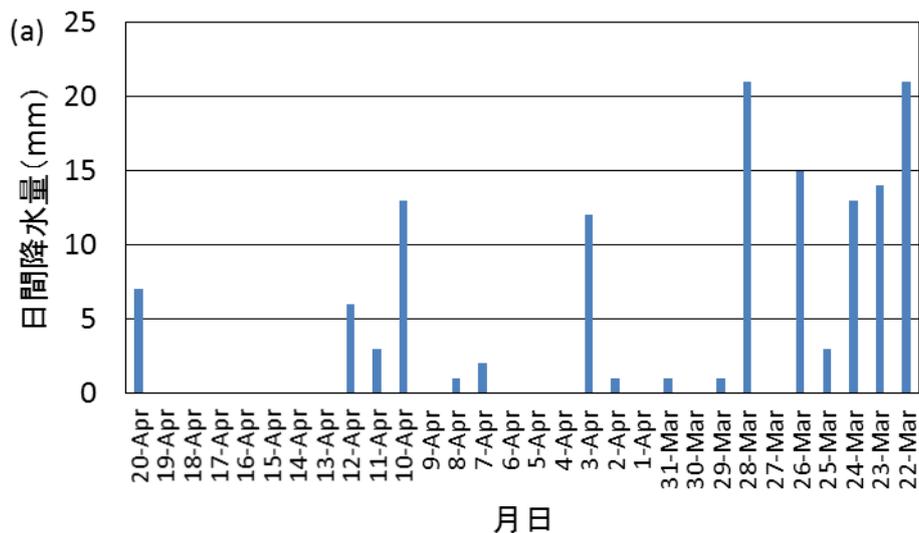


図 3-6(a) 2005 年 4 月 21 日以前 30 日前までの日間降水量

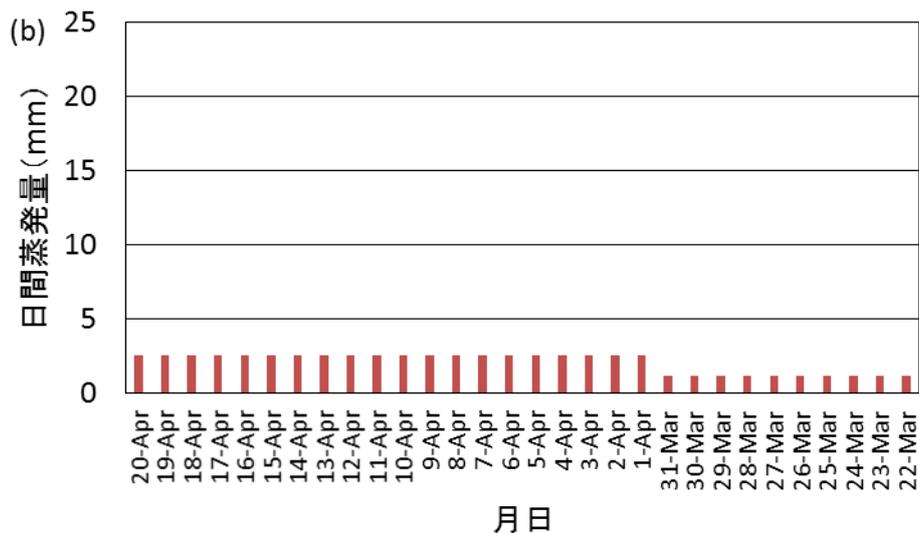


図 3-6(b) 2005 年 4 月 21 日以前 30 日前までの日間蒸発量 (計算値)

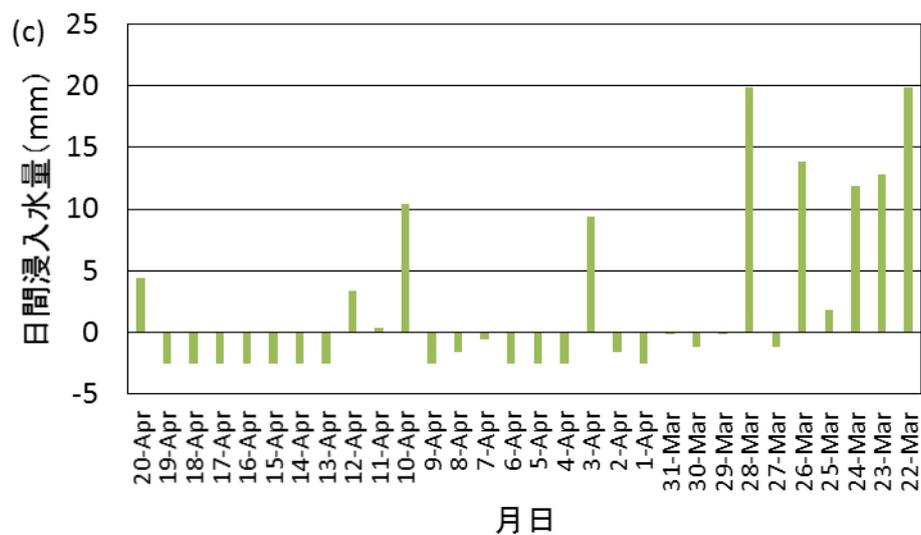


図 3-6(c) 2005 年 4 月 21 日以前 30 日前までの日間浸入水量 (計算値)

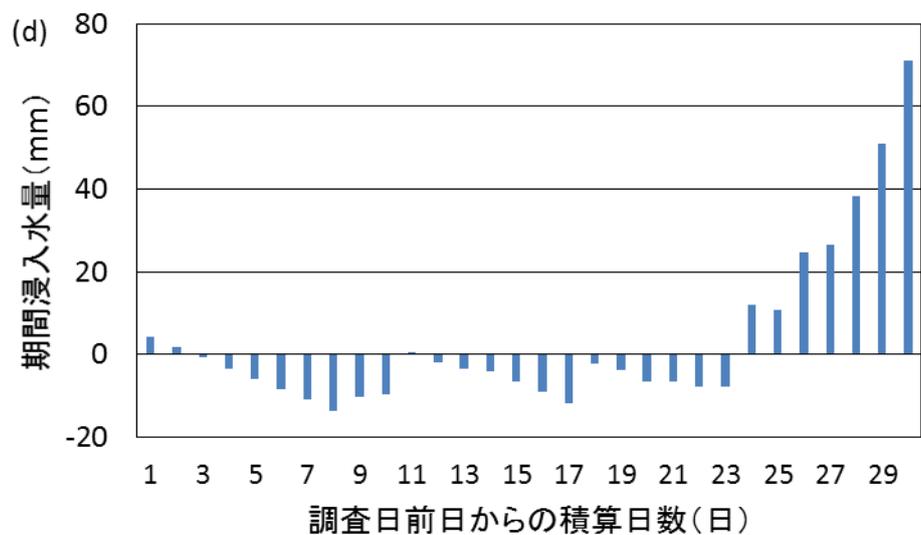


図 3-6(d) 2005 年 4 月 21 日以前 30 日前までの期間浸入水量 (計算値)

#### 参考文献

- 1) 社団法人日本下水道協会：下水試験方法 上巻 1997年版,pp.296-297(1997).
- 2) 原田靖生：土壌の陽イオン・陰イオン交換容量—測定法とその背景—,日本土壌肥料学会雑誌,Vol.55,No.3,pp.273-283(1984).
- 3) 藤貫正,藤井紀之,武司秀夫：粘土の陽イオン交換容量（CEC）の測定と交換性陽イオンの定量,地質ニュース 1967年8月号,地質研究所,No.156,pp.10-14(1967).
- 4) Shollenberger, C.J. and Simon, R.H. : Determination of Exchange Capacity and Exchangeable Bases in Soil-Ammonium Acetate Method, Soil Sci,Vol.59,pp.13-24(1945).
- 5) 土壌標準分析・測定法委員会：土壌標準分析・測定法[POD 版],株式会社博友社,pp.150-154(2003).
- 6) Wada, K. and Harada, Y. : Effects of Salt Concentration and Cation Species on the Measured Cation-Exchange Capacity of Solids and Clays in Proc. Intern. Clay Conf., Tokyo, 1969, No.1, pp.561-571(1969).
- 7) 和田光史：土壌粘土によるイオンの交換・吸着反応,土壌の吸着現象,日本土壌肥料学会編,株式会社 博友社, pp.5-57(1981).
- 8) 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,pp.425-426 (2016).
- 9) 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—層構成物の陽イオン交換能(CEC)に着目して—,平成 28 年度廃棄物資源循環学会春の研究発表会,P-023(2016).
- 10) 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,pp.16-26(1962).
- 11) 国土交通省気象庁：過去の気象データ検索,  
[http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php?prec\\_No.=57&block\\_No.=1071&year=&month=&day=&view=](http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php?prec_No.=57&block_No.=1071&year=&month=&day=&view=), (閲覧日 2015 年 10 月 18 日).
- 12) 国土交通省気象庁：過去の気象データ検索,  
[http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php?prec\\_No.=57&block\\_No.=47616&year=&month=&day=&view=](http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php?prec_No.=57&block_No.=47616&year=&month=&day=&view=), (閲覧日 2015 年 10 月 18 日).
- 13) (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,pp.338(2001).



## 第四章

### 埋立層内の状態

### 4.1 はじめに

小型実験槽を用いた研究では、試験開始時における埋立物の状態は任意に設定でき、そのため槽内の詳細情報については既知である。一方、既存の最終処分場を対象とする研究では、埋立地の構造や埋立物の総量に関しては資料等で把握可能であるが、それ以上の情報は欠如している。安定化における塩類溶出メカニズムを考察する上で、研究対象処分場の埋立層内の基礎的な情報は必須である。そこで、本章では研究対象処分場の埋立層内状態を把握する目的で実施した各種調査結果をまとめるとともに、各埋立区画の安定化の進捗ステージを浸出水水質から推定し、主要イオンバランスとの整合性を検討する。

### 4.2 ボーリングコアの性状と含有物質

ボーリング掘削調査で得られる結果は埋立地全体の局所的な情報である。しかし、ボーリングコア分析は埋立層内の鉛直方向の状態を直接的に観察・分析することができる唯一の方法であり、深層部の状態を知るための重要な情報源である。

#### 4.2.1 写真とコアスケッチ

第1区画から第5区画のボーリングコアの写真とスケッチを図4-1(a)～(e)に示した。第6区画ではボーリング調査を実施していない。写真では、最終覆土の茶色部分と、廃棄物層の黒色部分がはっきりと見分けられる。黒色の大部分は焼却灰に由来する。近年の焼却炉は性能が向上し、焼却灰中の炭素含有量が少なく、無機灰分特有の灰色を呈するケースが多いが、研究対象処分場の焼却炉は旧式であるため、炭素含有量が多く、黒色を呈する。写真では見難いが、スケッチでは黒色部分の複数の部分に汚泥が存在することが示されている。さらに、木片や礫、ビニール等の固形廃棄物も存在する。この状態は全ての埋立区画のボーリングコアにおいて同様であり、埋立層内に様々な種類の廃棄物が堆積していることが伺える。

# 第四章

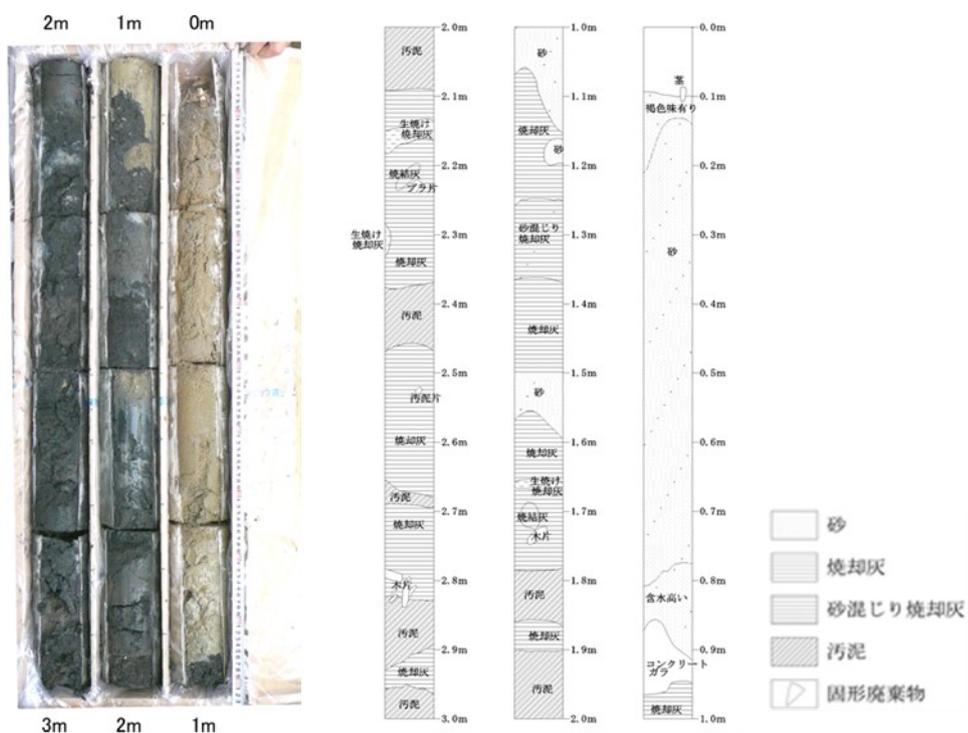


図 4-1(a) 第 1 区画のボーリングコアの写真とスケッチ

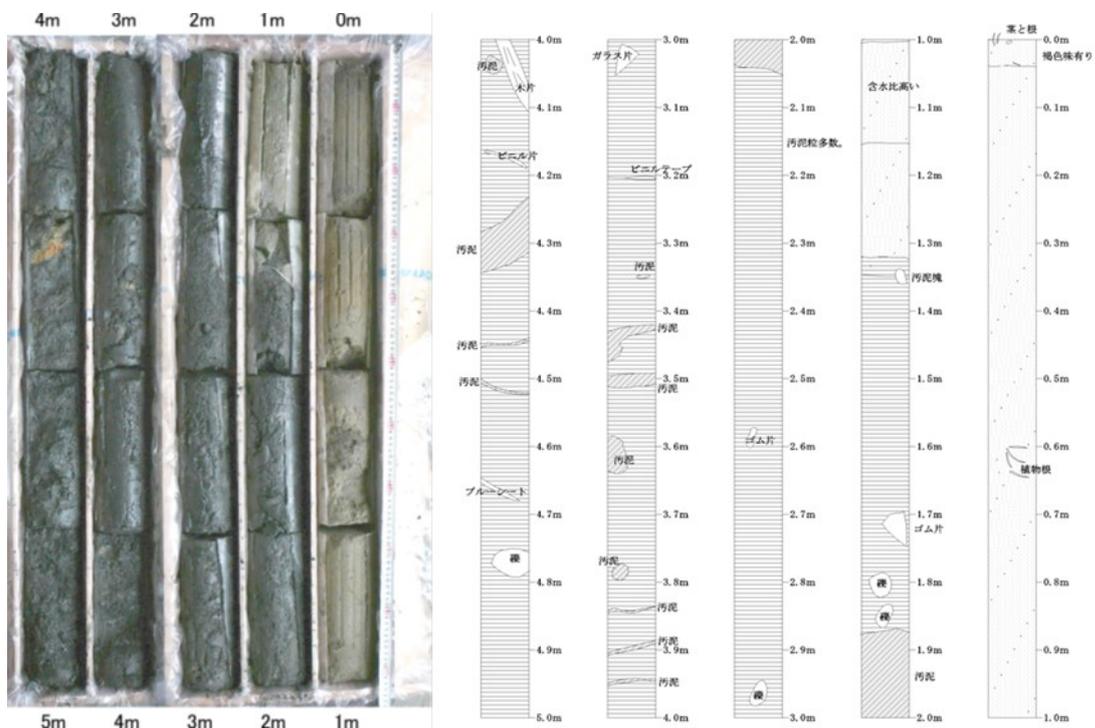


図 4-1(b) 第 2 区画のボーリングコアの写真とスケッチ

## 第四章

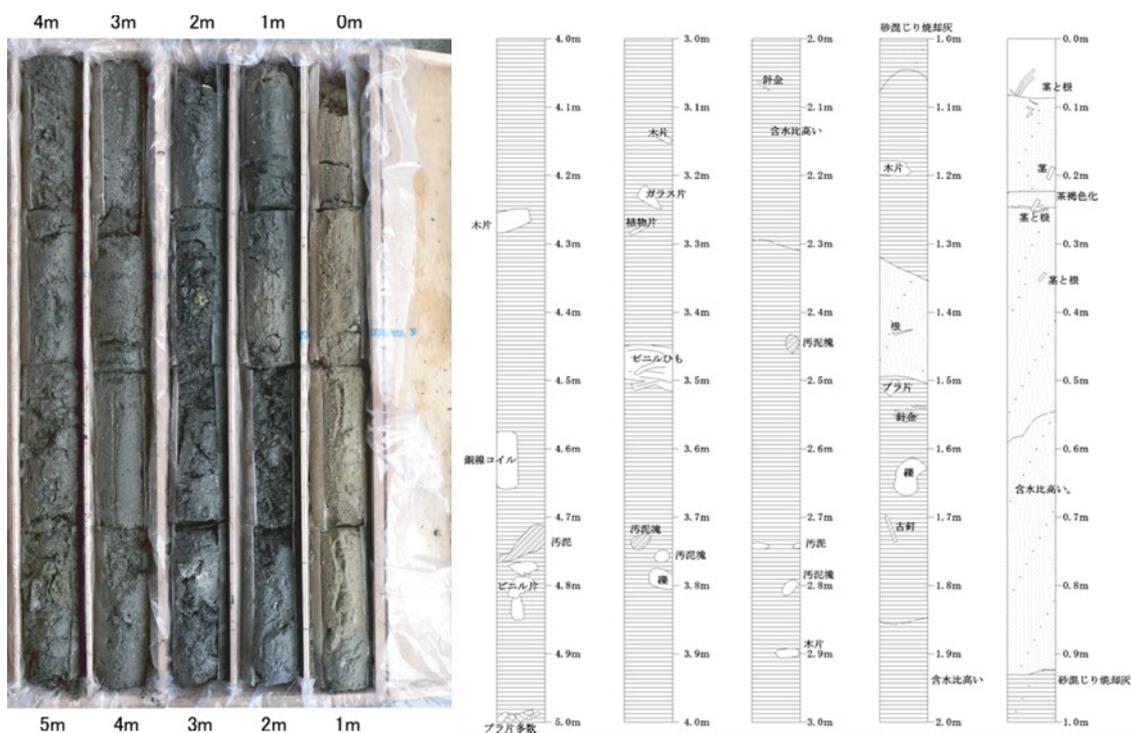


図 4-1(c) 第 3 区画のボーリングコアの写真とスケッチ

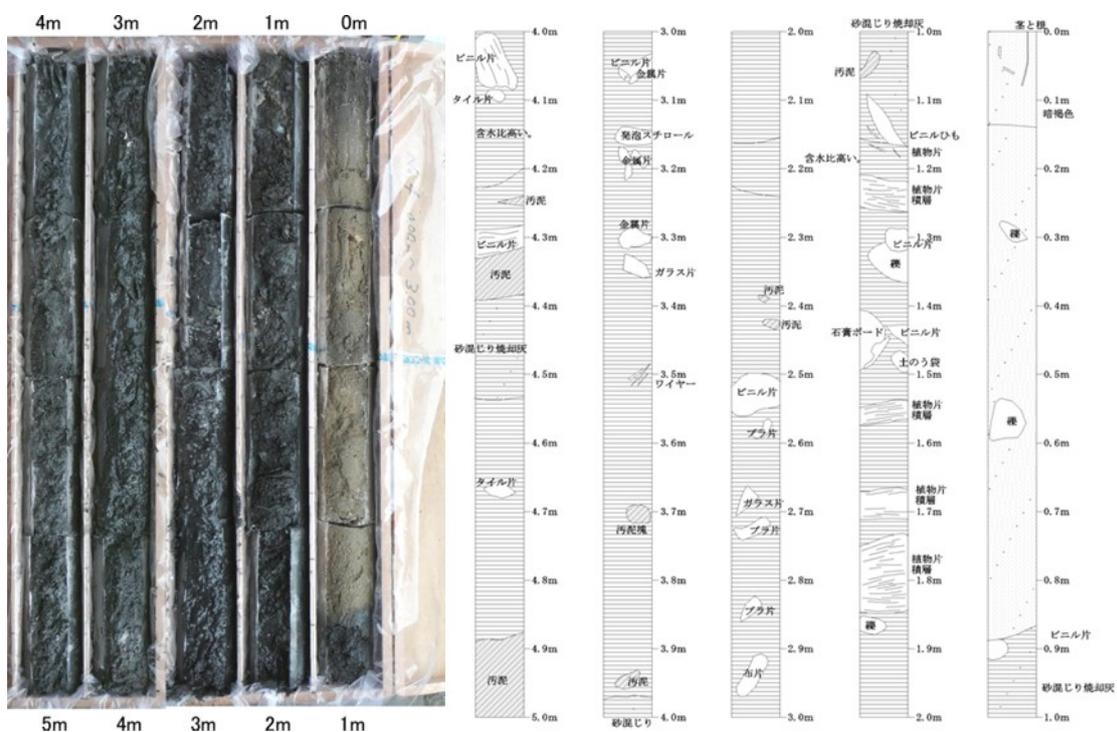


図 4-1(d) 第 4 区画のボーリングコアの写真とスケッチ

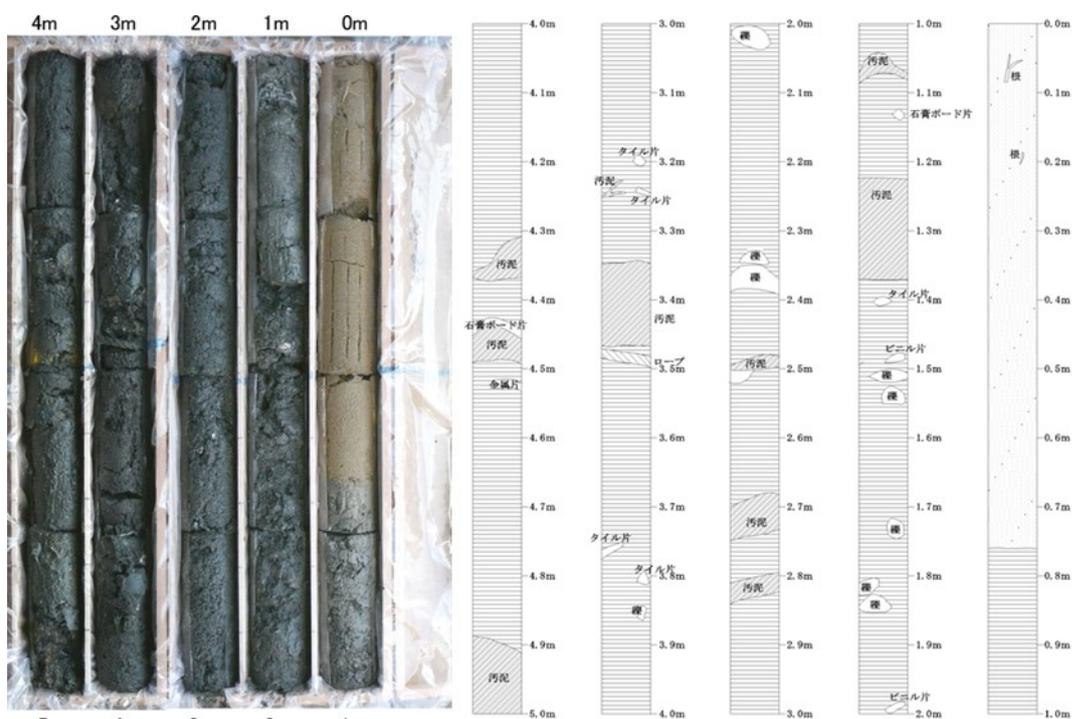


図 4-1(e) 第 5 区画のボーリングコアの写真とスケッチ

#### 4.2.2 湿潤密度

コアサンプルの湿潤密度を図 4-2(a)～(e)に示した。図には、最終覆土層と廃棄物層の境界深度を赤の破線で示した。

全ての埋立区画において、廃棄物層に比べて最終覆土層の湿潤密度が高い傾向がある。砂質土の単位重量は一般的に  $1.6 \sim 2.0 \text{ g cm}^{-3}$  であり<sup>1,2)</sup>、最終覆土の結果もほぼその範囲の値を示した。同じ最終覆土内で深度による差がみられるのは、内管に収納されたコアサンプルをそのまま重量測定しているため、水分の差が影響している可能性がある。4.2.4 で後述する固形分ではトレイ上で混合した分析用試料を測定しているため、湿潤密度のような差がみられず、このことから水分による影響と推察される。廃棄物層においては、第 4 区画の深度  $3.0 \sim 3.5 \text{ m}$  と第 5 区画の深度  $1.5 \sim 2.0 \text{ m}$  で最終覆土層に近い高値の湿潤密度を示しているが、図 4-2 のスケッチから、前者は金属片が、後者は礫がコアに存在することが分かり、そのためにその部分のコアサンプルの湿潤密度が見かけ上、大きくなったものと考えられる。一方、第 4 区画の深度  $1.50 \sim 2.25 \text{ m}$  は特異的に低値を示し、図 4-1(d)のコアスケッチの植物片が多く含まれる部分と一致する。このように、ボーリングコアをそのまま測定した湿潤密度調査では、特異的な廃棄物がコアサンプル中に含まれる場合には、周辺深度のコアに比べて湿潤密度が著しく異なる値を示すことがある。

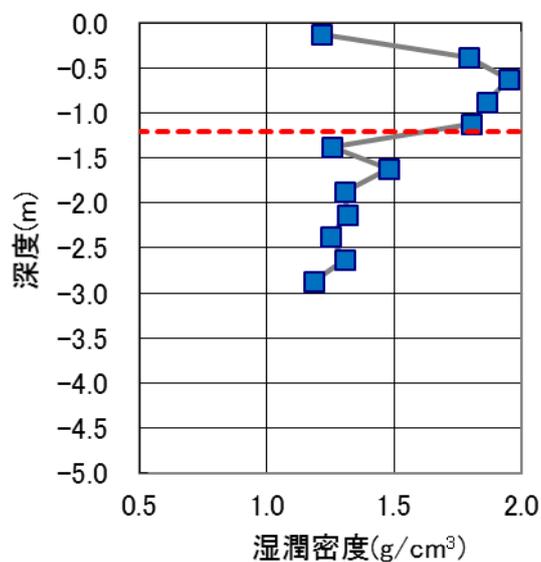


図 4-2(a) 第 1 区画のコアサンプルの湿潤密度深度分布

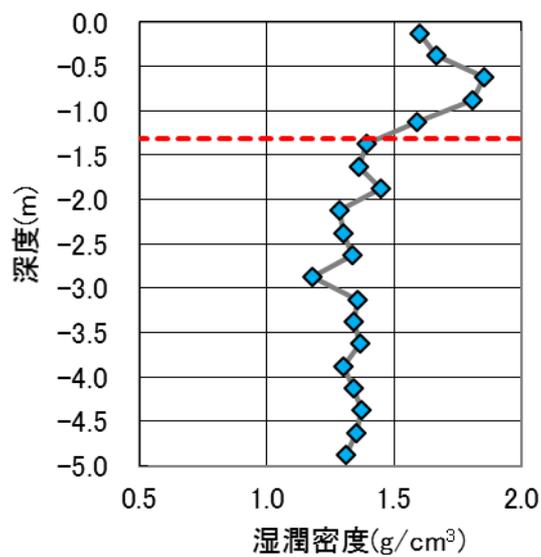


図 4-2(b) 第 2 区画のコアサンプルの湿潤密度深度分布

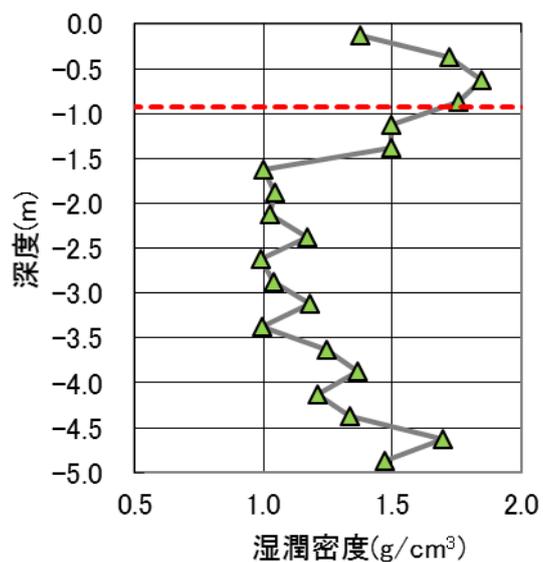


図 4-2(c) 第 3 区画のコアサンプルの湿潤密度深度分布

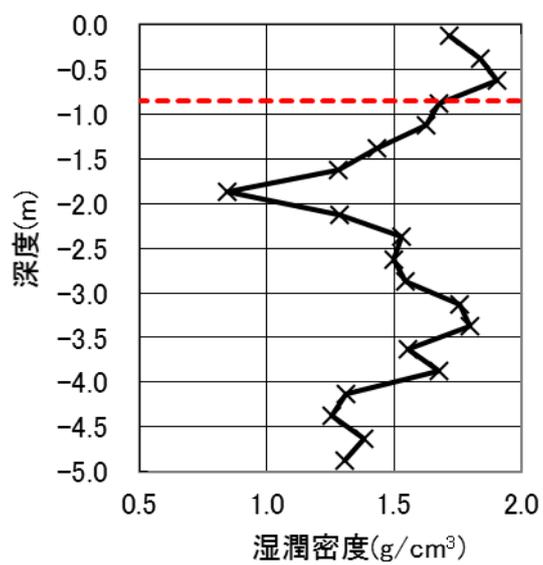


図 4-2(d) 第 4 区画のコアサンプルの湿潤密度深度分布

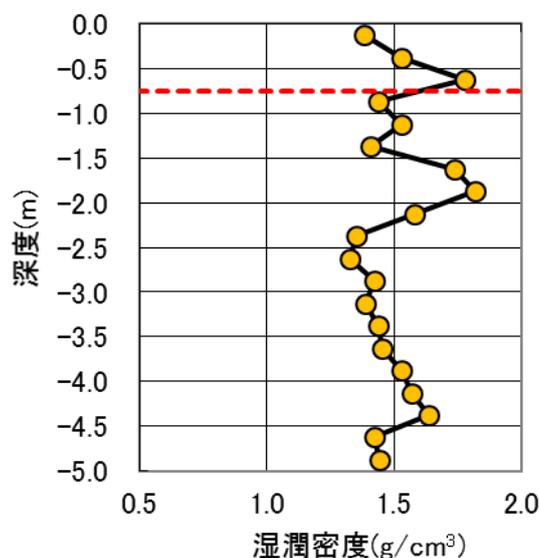


図 4-2(e) 第 5 区画のコアサンプルの湿潤密度深度分布

#### 4.2.3 透水係数

ボーリングコアサンプルの透水係数を図 4-3 に示した。全ての埋立区画の 0.25-0.50 m は最終覆土層であるため、ほぼ同程度の透水係数を示した。一般的な砂質土の透水係数は  $10^{-2} \sim 10^{-3} \text{ cm s}^{-1}$  であり<sup>2-4)</sup>、本研究の結果でも同様な値となった。

廃棄物層については、試料による透水係数の差が大きく、埋立区画や深度による一定の傾向はなかった。第 1 区画の 1.25-1.50 m、第 2 区画の 3.25-3.50 m と 4.25-2.50 m、および第 4 区画の 2.25-2.50 m は  $1 \times 10^{-4} \text{ cm s}^{-1}$  以下の低値を示した。図 4-1(a)(b)(d)のコアスケッチによると、これらの部分には汚泥が存在している。つまり、汚泥の低い透水係数が律速となり、そのコア試料の透水係数を低下させている可能性がある。

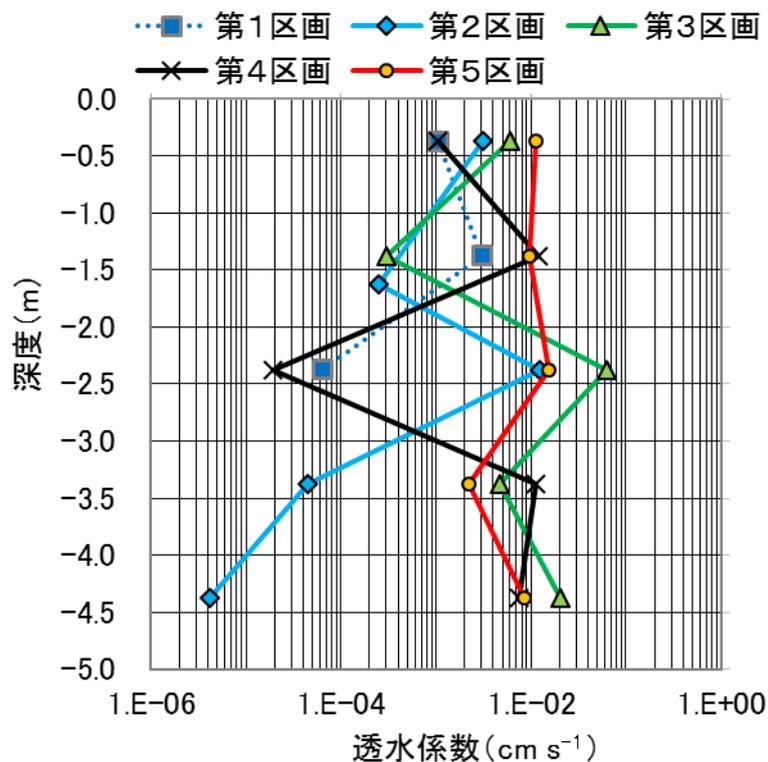


図 4-3 ボーリングコアの透水係数

#### 4.2.4 固形分と強熱残留物

固形分と強熱残留物の測定結果を図 4-4(a)~(e)に併せて示した。

全ての埋立区画において、最終覆土部の固形分含有率は 80%以上の類似した値を示した。4.2.2 の湿潤密度は深度による差異がみられたが、分析用試料の固形分含有率では大きな差異はなかった。砂質土中の水分は分析用試料調製時の混合操作により容易に脱水し、分析用試料に含まれる水分量の試料差が小さくなるためと考えられる。

一方、全埋立区画の廃棄物層の固形分含有率は最終覆土層のそれらに比べて低い。第 1 区画と第 2 区画については、深度による変化は僅かであるが、第 3~5 区画では深度により大きな差異があった。埋立区画別に比較すると、全体的には第 1 区画が最も低く、続いて第 2 区画が低かった。第 3~5 区画では区画間に差は確認できなかった。

強熱残留物の含有率は、全ての埋立区画の最終覆土層においては 98%以上の高値を示した。最終覆土として、腐植などの有機質を含まない土壌が用いられていることから、妥当な結果といえる。一方、廃棄物層の強熱残留物の含有率は、全埋立区画において、最終覆土層よりも低い値を示した。廃棄物中には高温で燃焼または揮

散する物質が含まれるため、この結果も妥当といえる。しかし、分析用試料による相違があり、特に第3区画と第5区画は他の区画に比べてばらつきが大きい。

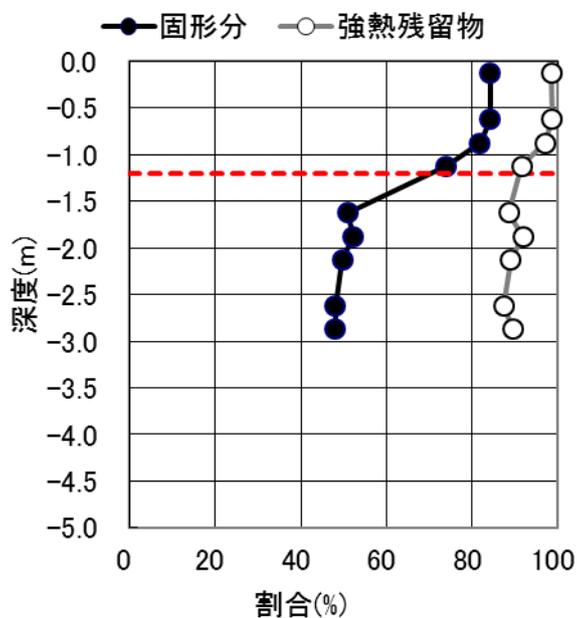


図 4-4(a) 第 1 区画のコアサンプルの固形分と強熱残留物

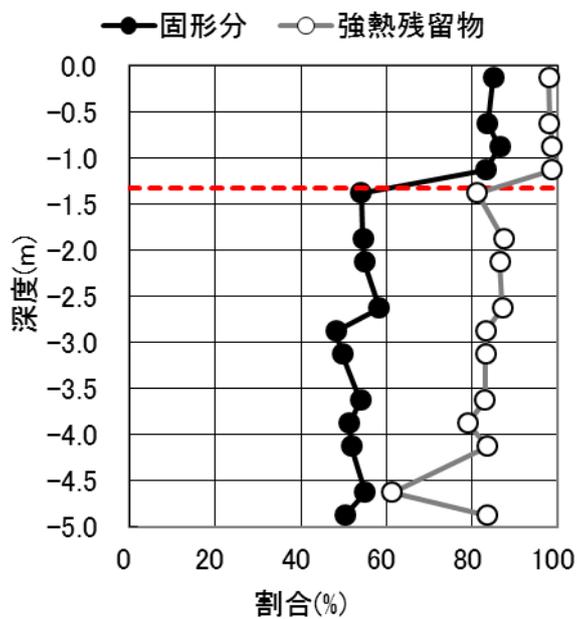


図 4-4(b) 第 2 区画のコアサンプルの固形分と強熱残留物

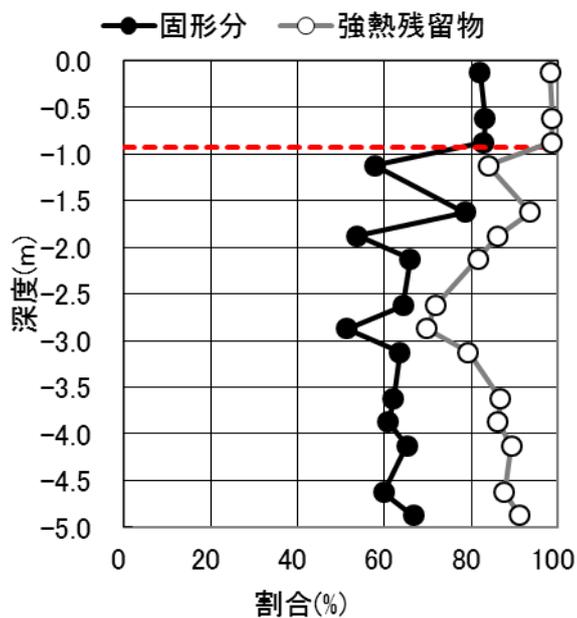


図 4-4(c) 第 3 区画のコアサンプルの固形分と強熱残留物

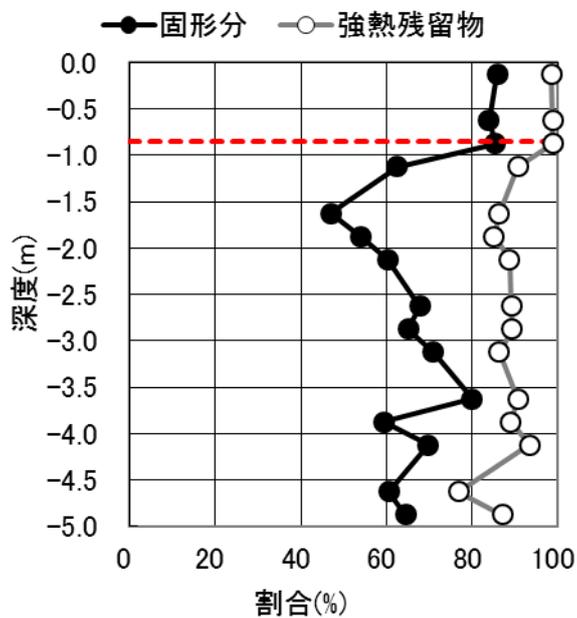


図 4-4(d) 第 4 区画のコアサンプルの固形分と強熱残留物

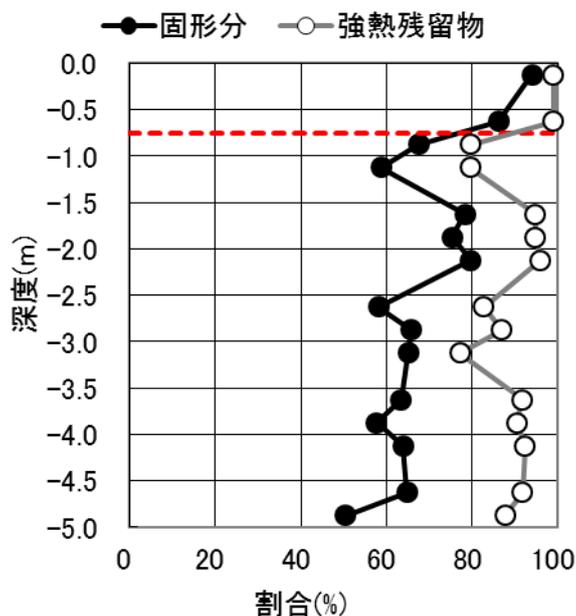


図 4-4(e) 第 5 区画のコアサンプルの固形分と強熱残留物

以上の結果から、層内の埋立廃棄物の種類が不均質であるため、物理的性質が深度により異なることが示された。ボーリング調査結果は広い埋立区画の一部の結果である。しかし、掘削位置を任意に決定しているため、他の部分についても類似した結果を示すと考えられる。また、埋立方法が片押し工法であることから、同じ深度に同じ種類の廃棄物が埋め立てされることはなく、埋立層の水平方向、垂直方向の連続性は乏しいと推定される。

### 4.3 保有水の水位と水質

新観測井は底部から GL-1 m までが有孔管であるため、保有水が観測井内を水平方向に移動・拡散することができる。つまり、観測井内保有水の深度による水質の相違は、周辺保有水水質の差を表している。旧観測井については有孔管が底部にあることから、観測井内保有水は主に深層部の保有水であり、さらに井戸内の水が入れ替わりにくい。そのため、井戸内に長期間滞留した水の水質は周辺保有水の状態とは異なるが、井戸周りには透水性の高い砕石があるため、井戸内水位は保有水面を表している。

#### 4.3.1 水位の経時変化

第 1 区画から第 5 区画の観測井保有水水位の時系列変化を図 4-5 に示した。旧観測井のデータ収集期間は新観測井に比べて短い、重複している期間をみる限り、同区画にある新旧観測井ではともに類似の変動がみられ、水位についても大差はな

## 第四章

い。第1区画、第3区画および第4区画については、水位が低下している期間があるが、そのほとんどは晩夏から秋であり、北陸地方で最も降水量が少ない季節である。2013年の春から秋にかけて、第4区画と第5区画の保有水水位が低下しているのは、埋立地において太陽光発電設備設置工事があり、それに併せて一時的に浸出水の排水量を増加させたことによる。2015年の第3区画の水位低下が長期化しているのは、隣接する安定型最終処分場を調査する関係で、排水量を増量する運用を行ったためである。このように、短期的には水位が低下することがあるが、その程度は最深でGL-3 m程度であり、埋立終了区画の層内保有水は年間を通じて高水位で管理されている。即ち、研究対象処分場の全埋立区画における廃棄物層の大部分は水中に浸漬し、水分飽和した状態となっている。

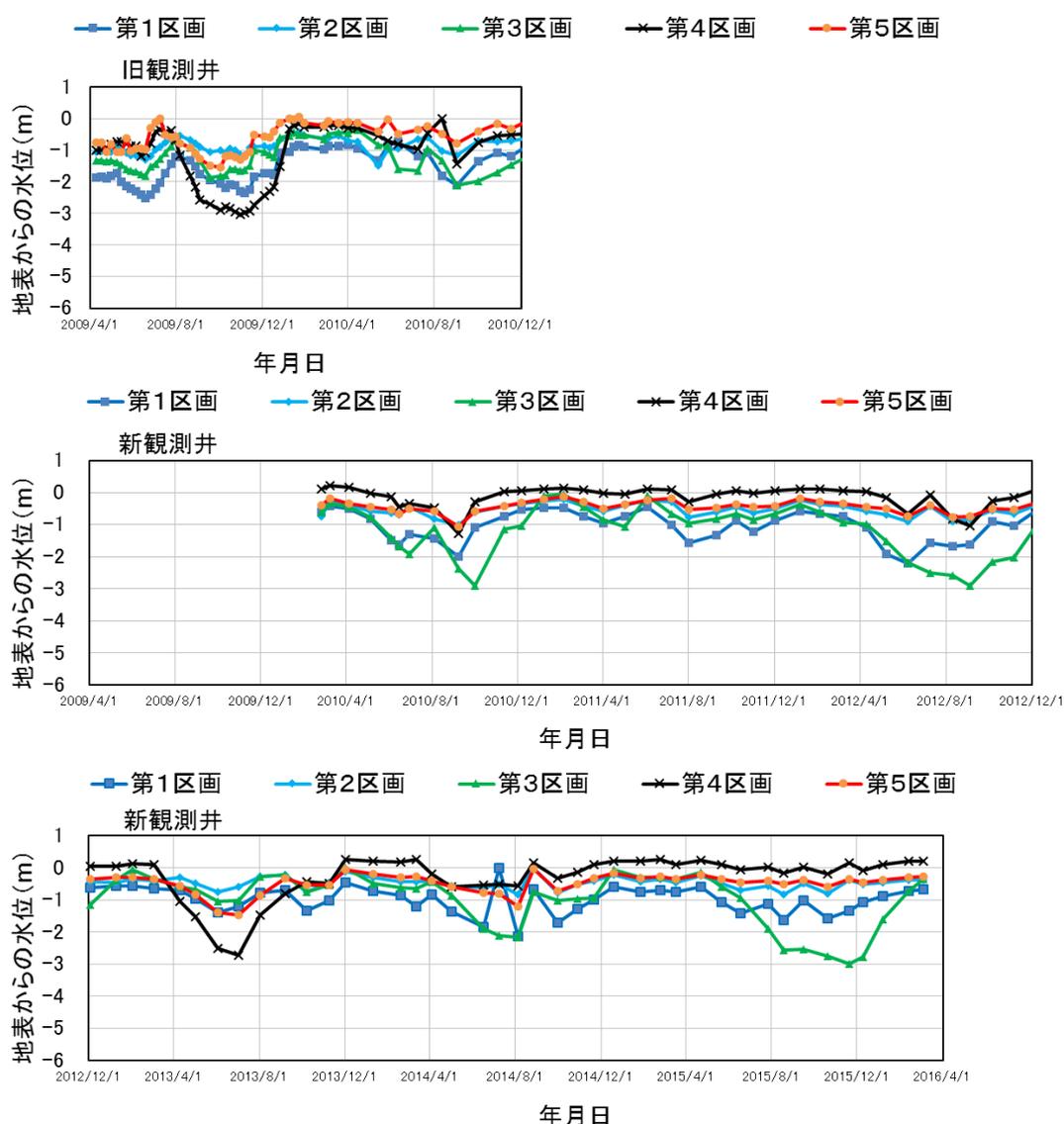


図 4-5 第1区画から第5区画の観測井保有水水位の経時変化

### 4.3.2 水温の経時変化

第1区画から第5区画の新観測井内保有水の水温を図4-6に示した。全ての埋立区画で夏から秋にかけて水温が上昇、冬から春にかけて低下する傾向がみられた。観測井の開口部は蓋があり、井戸内保有水と外気の間には気層が存在する。そのため、外気と保有水間で直接的に熱交換することはない。即ち、観測井内の保有水水温は埋立層の温度を反映している。

埋立層の有効熱伝導率は埋立層の体積含水率に対して直線的に増加する<sup>5,6)</sup>。つまり、埋立層内が水分飽和している研究対象処分場では、層内の有機物分解で発生する代謝熱が外部に放熱しやすく、埋立層温度は外気や周縁地層からの熱伝導による影響を受けやすい。また、対象処分場周縁の地下水位が高いことから、地層温度はその影響を受ける。そして、GL-10 mよりも浅い地下水温は季節変動する<sup>7)</sup>。当然、気温も季節変動することから、図4-6にみられた年周期の層内温度変化は外気温と地下水温の変化が原因である。年間の水温変動幅は第1区画が最も大きかった。これは埋立層厚が他区画に比べて半分程度であるため、外部からの熱伝導の影響を受けやすいためである。

観測井内保有水の2015年4月から2016年3月までの年間平均水温を図4-7に示した。なお、熱伝導の影響を受けやすい第1区画は表記していない。埋め立てからの経過時間が最も短い第5区画が最高(13.5℃)であり、埋立時期が古くなるほど低下傾向がみられ、第2区画が最低値(12.3℃)となった。

この埋立区画による平均温度の相違は、有機物分解プロセスの進捗に伴う代謝熱の変化を反映していることが示唆される。つまり、第5区画においては好気性分解による発熱量が多いが、第4区画から第2区画にかけては嫌気性分解プロセスが主体となるため発熱量が少なく、温度が低下する。これらの埋立区画間の有機物分解ステージの相違については、4.4.4にて詳述する。

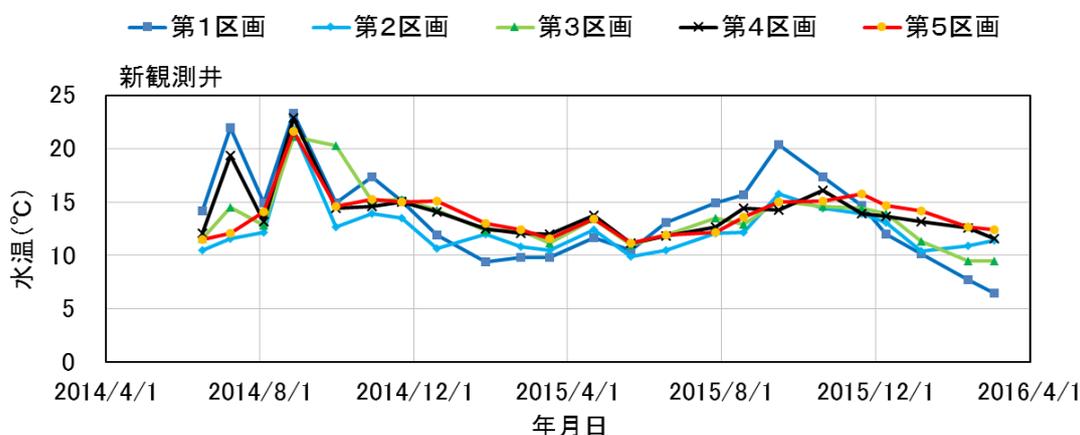


図4-6 新観測井内保有水の水温の経時変化

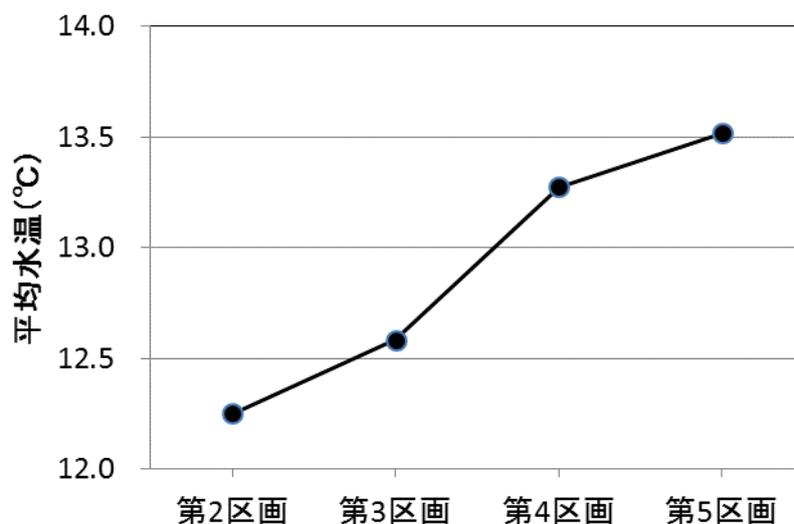


図 4-7 新観測井内保有水の平均水温

#### 4.3.3 電気伝導率の深度変化

新観測井内保有水の電気伝導率（EC）の深度変化を、2014年10月30日の結果を例として図4-8に示した。横軸は水面からの深度としている。全ての埋立区画において水面部のECは同程度の値を示したが、第2～5区画では深くなるにつれて上昇した。特に埋立終了からの経過時間が短い第5区画で最も顕著であり、深部のECは高値を示した。埋め立てから長時間経過した区画では深度によるEC上昇幅は小さくなった。

このECの深度による変化と埋立区画による相違は以下のとおり説明できる。塩分を多く溶解した水の比重は大きいいため、埋立層中の保有水は鉛直方向に塩分の濃度勾配を形成している。地表に降った降水の一部は浸入水となり埋立層内に浸透し、重力により下部に移動する。しかし、図4-5で示したとおり研究対象処分場の保有水水位が高いことから、不飽和層の固相間隙を浸透した浸入水は地表に近い浅層部で保有水面に到達する。浸入水は保有水に比べて塩分濃度が低く、比重が小さいため、保有水中では下方方向に移動しにくく、保有水の浅層部に留まる。しかし、保有水は底部の集水管から浸出水として排水されることから、全体的に上から下に移動する。保有水は廃棄物層内を移動する際に埋立物中の塩分を溶解するため、深部になるほど塩分濃度が高くなり、比重も大きくなる。

ここで、例として浸出水排水による保有水中Cl<sup>-</sup>イオンの流束を図3-6(d)の30日間の期間浸入水量70.96mmと、後述する第6区画の浸出水中のCl<sup>-</sup>濃度37meqL<sup>-1</sup>（表4-1）から概算すると $1.0 \times 10^{-5} \text{ mol s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ 程度となる。一方、濃度差が誘発する物質移動の流束を移動距離5mと仮定して、フィックの法則から拡散係数 $2.03 \times$

$10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ を用いて概算すると、 $1.5 \times 10^{-8} \text{ mol s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ となる。このことから、浸出水排水による塩分の移動は水中の濃度差が誘発する移動よりも速いことが分かる。この関係は塩類洗い出しが進行している第1区画のCl濃度  $0.42 \text{ meq L}^{-1}$  (表 4-1)を用いても変わらず、鉛直方向の濃度勾配は長期にわたり保持される。

このように、長い時間をかけて埋立廃棄物層の塩分は浅層部から優先的に洗い出されるが、深層部の洗い出しも次第に進行するため、保有水の鉛直方向の塩分濃度勾配は次第に緩やかとなり、最終的に浅層部と深層部の差はほとんどなくなる。図 4-8の深度によるECの深度変化と埋立区画間の相違はこのような現象を表している。

埋立区画内の廃棄物層全体が均質であれば、層内の塩類洗い出しは上述したメカニズムで進行し、単純で分かりやすい。また、層内には膨大な量の保有水が存在するため、短期間に大量の降雨があっても保有水の濃度勾配は維持され、深層部の保有水は容易に希釈されず、浸出水水質が急激に変化することはないはずである。しかし、4.2で示されたとおり、埋立廃棄物層内は不均質であり、透水性も場所や深度により異なる。この埋立廃棄物層の不均質性は、保有水の移動や水質分布を複雑化させ、浸出水水質の短期的な変化を誘発する可能性がある。詳細については第五章で述べる。

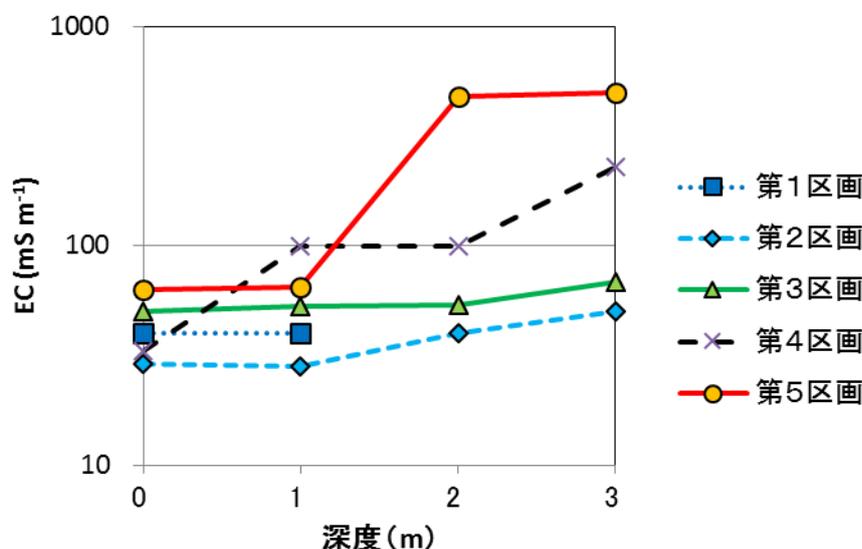


図 4-8 新観測井内保有水の水深に伴う EC の変化

#### 4.3.4 酸化還元電位の深度変化

新観測井内保有水の酸化還元電位 (ORP) 深度変化を図 4-9 に示した。横軸は水面からの深度である。埋立終了からの経過時間が最も長い第1区画が 100 mV 前後

の高値であるのに対し、最も短い第5区画が-400 mV から-200 mV であり、低値を示した。また、第2区画から第5区画については、深くなるにつれて ORP が低下し、その傾向は第5区画が最も顕著であった。

ORP は埋立層内の酸化還元雰囲気を示す指標である。埋立層内に生物分解性有機物が存在すると好気性分解が進行し、層内に存在する酸素を消費して嫌気・還元状態となり、ORP が低下する。一方、地表からの大気侵入や、浸入水の溶存酸素により埋立層内に酸素が供給されると好気・酸化状態となり、ORP は上昇する。

図 4-9 の ORP 値は有機物分解に伴う層内雰囲気の変化を反映している。つまり、第5区画では有機物分解により層内酸素濃度が低下し、特に深層部は酸素が届きにくいため還元性が強くなり ORP が低い。しかし、浅層部は深層部に比べて酸素が供給されやすいため ORP が比較的高くなる。また、第1区画の埋立廃棄物層内には生物分解性有機物が少なく、生物分解により消費される酸素量も少ない。その結果、外部から供給される酸素により層内の好気化が進むため、ORP は高値を示す。

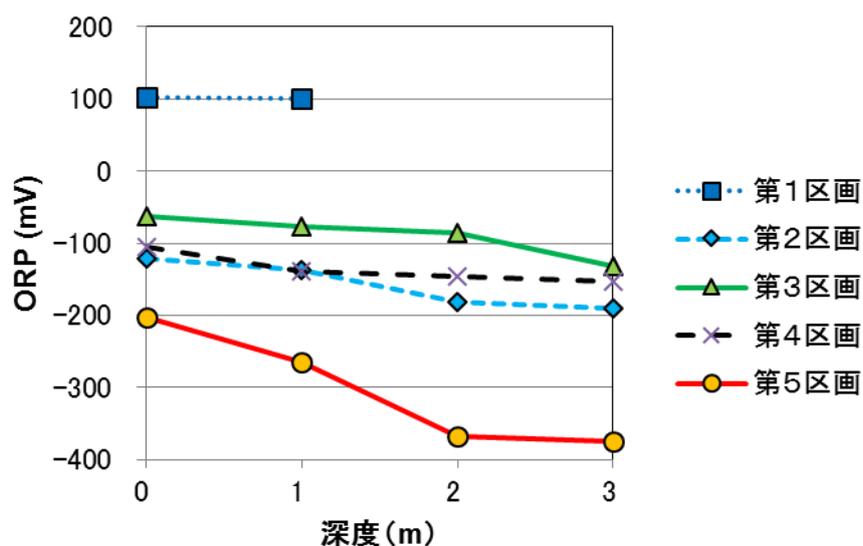


図 4-9 新観測井内保有水の水深に伴う ORP の変化

#### 4.4 集排水設備で集められた浸出水からみた埋立層内雰囲気の変化

観測井内保有水の水質からは井戸周辺の保有水の水質を知ることができる。一方、埋立層底部の集水設備で集められる浸出水の水質からは、埋立区画全体の平均的な状態を把握できる。また、集水管が水没していることから、そこに貯留される浸出水は大気との接触による水質変化の影響を受けにくく、ORP や DO は埋立層内保有水の水質を反映している。本節で評価する pH と ORP は安定化における有機物分解

プロセスを反映する重要なパラメータであり<sup>8,9)</sup>、DOも埋立層内の好気・嫌気状態を評価するための基本的な水質指標である。

#### 4.4.1 pHの経時変化

埋立開始からの経過時間を横軸にとり、pHの経時変化を図4-10(埋立途中 n=27, 埋立終了後 n=115)に示した。埋立途中と埋立終了後のデータを区分して線形近似し、それぞれの近似線と決定係数を併記した。No.5については埋立途中と埋立終了後でプロットマーカを変えて表記した。

全ての浸出水のpHは6.2~9.9の範囲内にあり、その大部分は中性から弱アルカリ性を示した。埋立開始から約10年後までの第6区画と第5区画までのデータは時間経過に伴い低下した。しかし、その後の第4区画のpHは第5区画と連続性がみられず、他の区画の浸出水に比べて高値を示した。埋立開始10年後から30年後までの第4区画から第1区画においては、時間経過とともに低下傾向を示した。

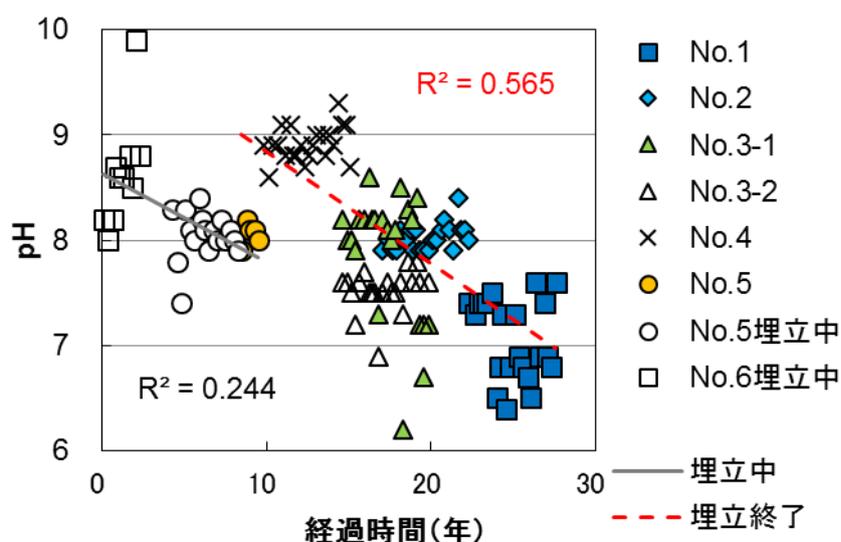


図 4-10 埋立開始からの経過時間と浸出水の pH の関係

#### 4.4.2 酸化還元電位の経時変化

埋立開始からの経過時間と浸出水のORPの関係を図4-11 (n=142)に示し、3次の多項式近似曲線を併記した。浸出水を比較すると、No.5とNo.4の一部が最も低く、No.1が最も高い。No.6とNo.5では値のばらつきが大きい。全体的には低下傾向を示し、近似曲線では約7年後(第5区画)で最低となった。その後のORPは上昇傾向を示し、埋め立てから約22年後以降(第1区画)は0mV程度の高値を示した。

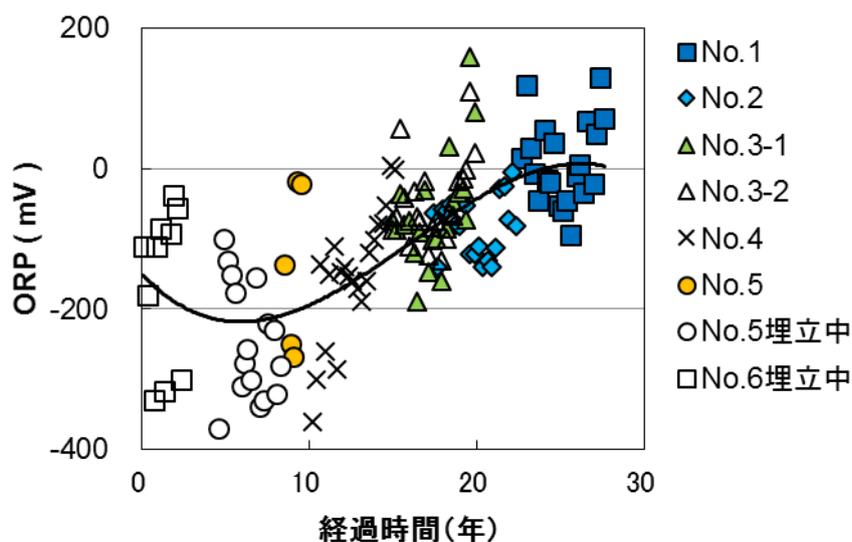


図 4-11 埋立開始からの経過時間と浸出水の ORP の関係

#### 4.4.3 溶存酸素の経時変化

図 4-12 に埋立開始からの経過時間と浸出水の溶存酸素（DO）濃度の関係を、2次の多項式近似曲線および決定係数と併せて示した（ $n=142$ ）。埋立開始直後（第 6 区画）では DO 濃度のばらつきが大きいですが、埋立開始から約 5 年後（第 5 区画）には DO がほとんど検出されなくなりました。そして、約 13 年後（第 4 区画）で再び検出され、その後は検出される頻度が増加し、濃度も次第に増加しました。

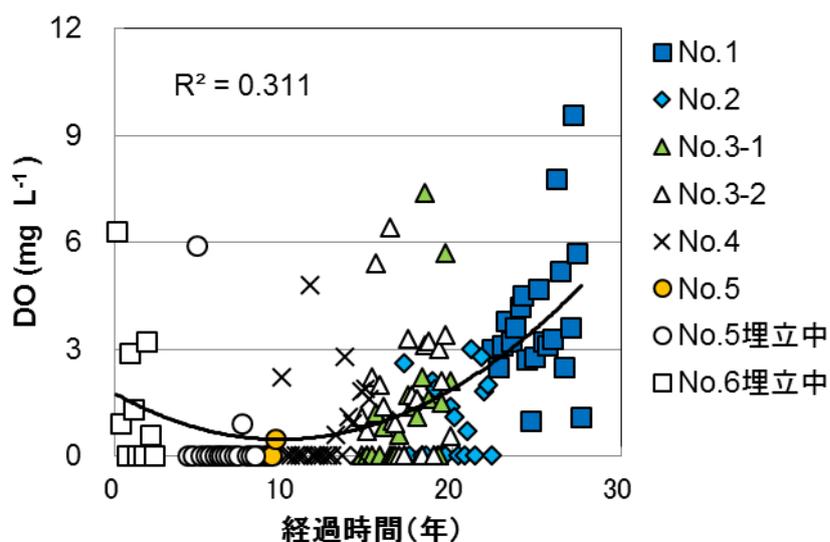


図 4-12 埋立開始からの経過時間と浸出水の DO 濃度の関係

### 4.4.4 水質指標と安定化

上述した水質指標の経時変化を 1.3 で述べた安定化の各進行段階の特徴と比較する。

埋立開始から約 5 年間の期間（第 6 区画と第 5 区画の埋立途中）は ORP が低下傾向にあるが、DO は検出されているため、第 I 期の好気性分解期の特徴と一致する。また、埋立開始 5 年後から 10 年後までの期間（第 5 区画の埋立終了前）は他の期間に比べて ORP が低く、DO が検出されない。さらに、埋立開始から連続した pH 低下傾向が継続しているため、この期間は第 II 期の嫌気性酸発酵期の特徴に一致する。その後の第 4 区画は、No.4 の pH が No.5 に比べて高いことから第 III 期（メタン生成発達期）に相当する可能性がある。しかし、高 pH 値は約 5 年間継続しており、1.3 で述べた約 1 年間という一般的な期間に比べて長い。

No.3 と No.2 では経過時間に伴い DO 濃度が増加し、ORP が上昇しているため、第 3 区画と第 2 区画は第 IV 期（メタン生成定常期）に相当すると考えられる。ただし、埋立開始 5 年後から検出されていなかった DO が再び検出されたのが約 13 年後（第 4 区画）であることから、この頃から第 III 期から第 IV 期への移行が始まっている可能性がある。また、埋立開始から 23 年後以降（第 1 区画）では ORP の上昇傾向が止まり、高値で安定していることと、DO も高濃度で検出されていることから第 V 期の特徴と一致し、第 1 区画は土壌化期に相当すると判定できる。しかし、それ以前の第 IV 期が終了し、第 V 期へ移行した時期は不明瞭である。第 IV 期を長く見積もり、埋立開始 10 年後（第 4 区画）から 23 年後（第 2 区画）までの全ての期間が相当すると仮定しても、継続期間は約 13 年間であり、1.3 で述べた一般的な期間（数十年間）に比べると短い。

図 4-7 に示した保有水水温の区画間の差異は、このような有機物分解ステージの違いに由来する可能性が高い。つまり、経過時間が長くなるにつれて、有機物分解プロセスは好気性分解から嫌気性分解へと、分解される有機物は生物易分解性から難分解性へと移行する。しかし、埋立層は不均質であるため、有機物分解プロセスの移行は層内全体が同様に進むことはなく、易分解性有機物の好気性分解反応ゾーンが時間経過とともに減少していると考えられる。その結果、層内全体での発熱量が次第に減少し、層内温度が低下したと推察される。

### 4.5 浸出水中の主要イオンとバランス

4.4 において、それぞれの埋立区画が有機物分解プロセスの様々な段階に相当することを推定した。一方、1.3 で説明したとおり、有機物分解プロセスによる埋立層内雰囲気の変化が無機塩類の溶出挙動に影響することが知られている。そこで、研究対象処分場の浸出水の EC とイオンバランスから、各埋立区画の安定化進捗状況を検討する。

4.5.1 電気伝導率の経時変化

ECは水中の電解質量を反映する総合的指標である。つまり、ECが高ければ、浸出水に多量の水溶性電解質が溶解していることを示す。

調査日によるECの変動を図4-13(a)~(g)に示した。No.5の2009年7月2日から2010年7月15日にかけては、連続的にECが低下しており、この期間は第5区画の埋立が終了した直後の期間に相当する。また、No.6の2008年4月23日から2009年11月5日までは連続的にECが上昇しており、この期間は第6区画の埋め立てが始まった直後に相当する。これらの現象は、水溶性電解質を含む埋立残渣の区画内への供給が埋立終了により停止したことや、逆に、埋立開始により継続的な供給が始まったことが原因として考えられるが、詳細については第六章の6.2.1で述べる。

一方、No.1~4の浸出水では、時間経過に伴う連続的なECの上昇や低下傾向はみられず、調査日による差異が目立つ。また、上述した期間以外のNo.5についても不連続なECの変化がみられた。このように短時間で生じるECの変動は有機物分解や埋立層内雰囲気によるものとは考えにくく、それ以外に短期的に浸出水水質を変化させる因子が存在することを示している。

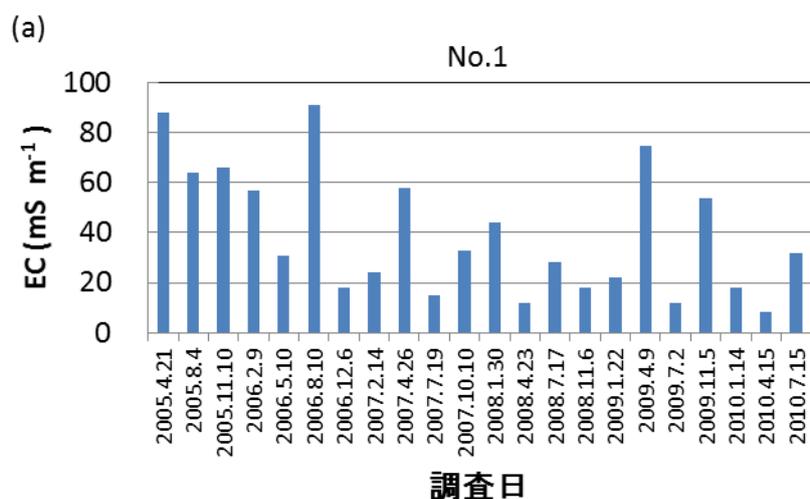


図 4-13(a) 調査日による No.1 浸出水の EC の変動

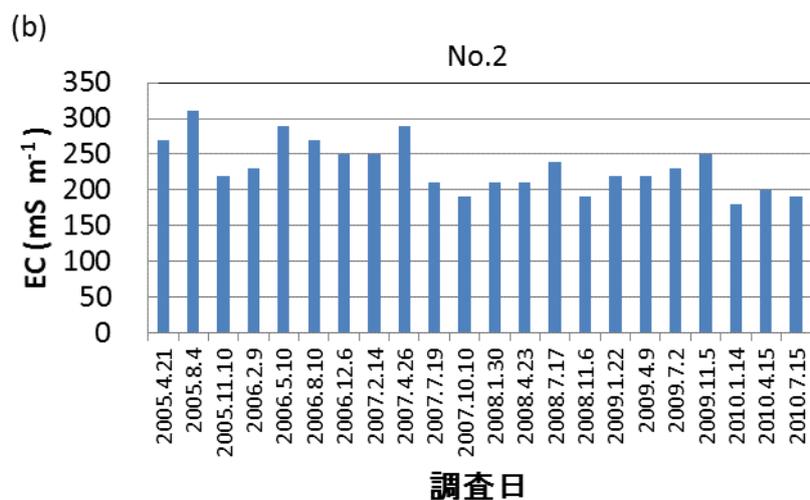


図 4-13(b) 調査日による No.2 浸出水の EC の変動

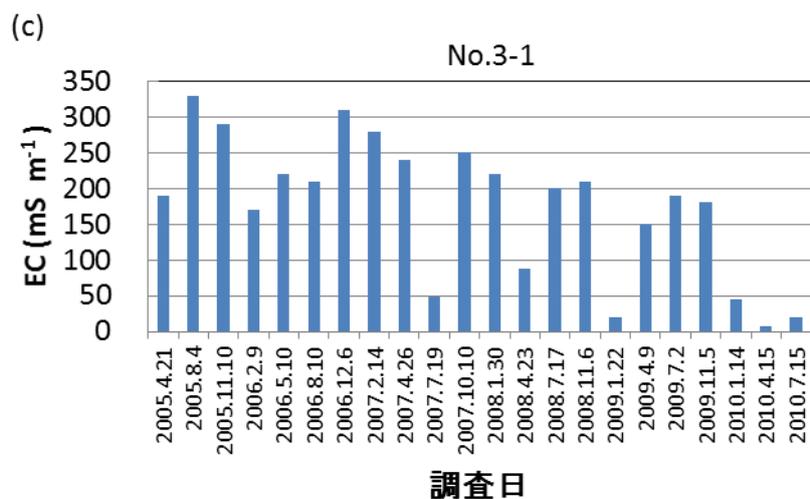


図 4-13(c) 調査日による No.3-1 浸出水の EC の変動

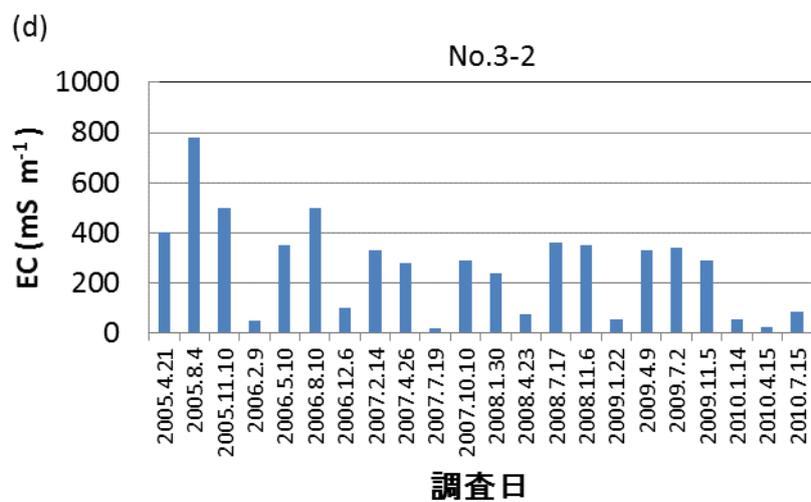


図 4-13(d) 調査日による No.3-2 浸出水の EC の変動

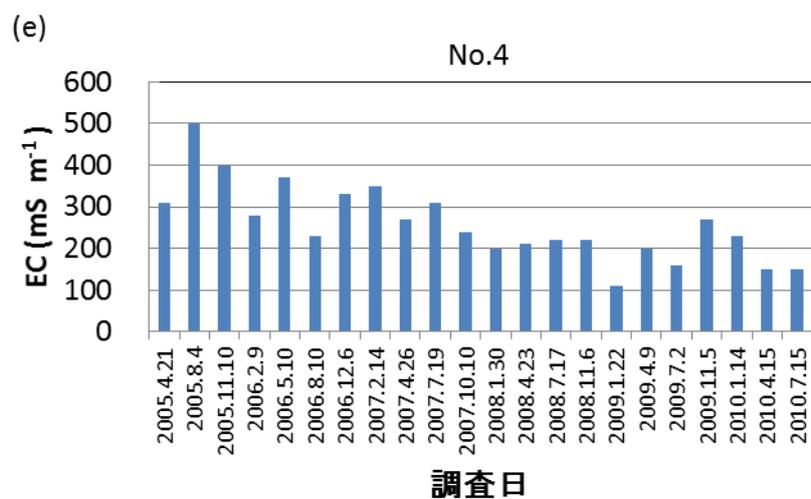


図 4-13(e) 調査日による No.4 浸出水の EC の変動

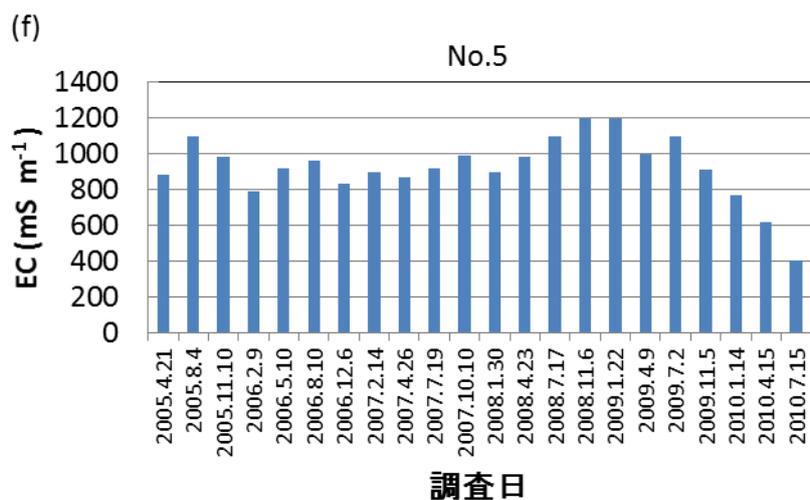


図 4-13(f) 調査日による No.5 浸出水の EC の変動

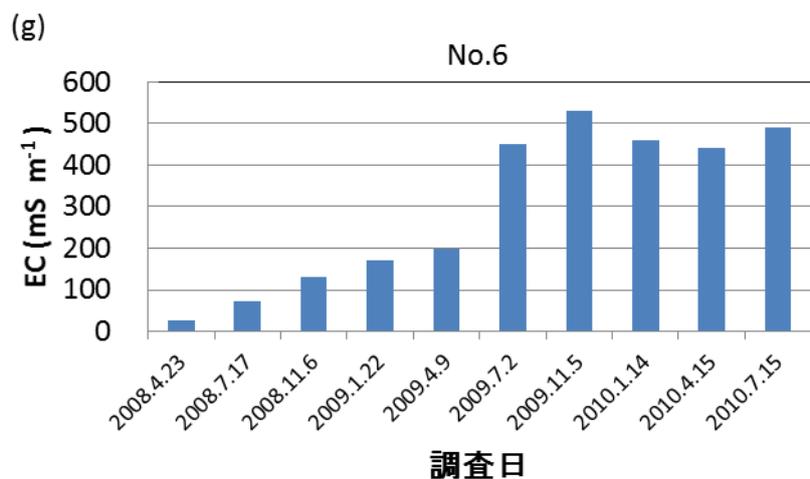


図 4-13(g) 調査日による No.6 浸出水の EC の変動

埋立開始からの経過時間と浸出水の EC の関係を図 4-14 に示した(埋立途中 n=27、埋立終了後 n=115)。グラフには近似線と決定係数を併記した。

埋立途中では EC は直線的に上昇し、埋立終了後は指数関数的に低下したため、前者は線形で、後者は指数で近似した。この結果から、時間経過に伴い埋立途中の浸出水中の電解質は増加し、埋立終了後は次第に減少することが確認された。

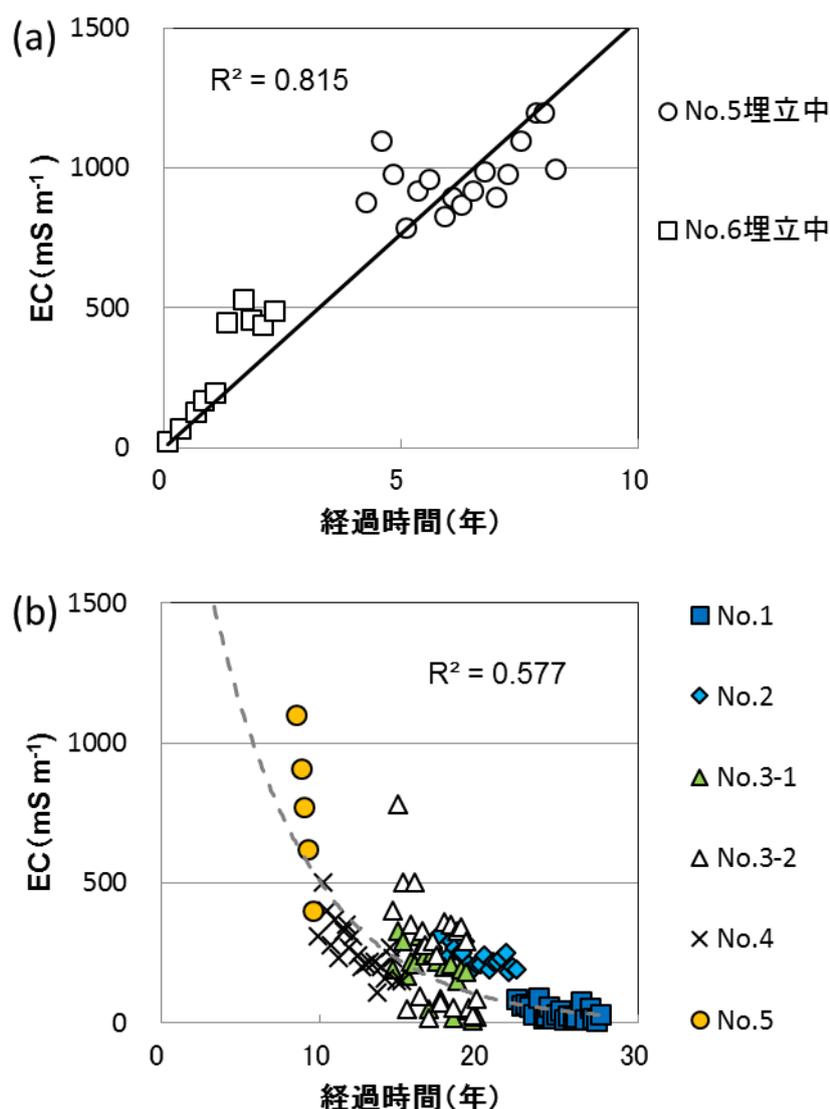


図 4-14 埋立開始からの経過時間と浸出水の EC の関係  
(a : 埋立途中 b : 埋立終了後)

#### 4.5.2 浸出水中のイオンバランス

浸出水の水質分析を最後の実施した 2010 年 7 月 15 日の結果を例として、各埋立区画の浸出水のイオンバランスを表 4-1 に示した。なお、図 4-10 に示した pH 範囲においては、IC は HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>の形態が大部分を占めることから<sup>10)</sup>、表中では IC を一価イオンとして計算している。定量下限未満のデータは便宜上、0.000 meq L<sup>-1</sup>として表記した。NO<sub>2</sub><sup>-</sup>と H<sup>+</sup>はほとんど検出されなかったため表に記載していない。他のイオン種に比べて NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度は、全ての浸出水において低い特徴があった。

浸出水中の主なイオンとしては Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、IC、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>および Mg<sup>2+</sup>が過

去の研究で報告されている<sup>11,12)</sup>。表 4-1 に示したとおり、 $\text{NH}_4^+$ もこれらのイオンと同程度の濃度で検出されたことから、本研究ではこれらの 8 種のイオンを主要イオンとして評価する。

首都圏の雨水を対象とした過去の研究<sup>13)</sup>で、雨水に含まれるイオン成分濃度に関する報告がある。それによれば、雨水中の各種イオン濃度は  $\text{SO}_4^{2-}$  が  $0.02\sim 0.08 \text{ meq L}^{-1}$ 、 $\text{NO}_3^-$  が  $0.01\sim 0.05 \text{ meq L}^{-1}$ 、 $\text{Cl}^-$  が  $0.02\sim 0.10 \text{ meq L}^{-1}$ 、 $\text{NH}_4^+$  が  $0.01\sim 0.03 \text{ meq L}^{-1}$ 、 $\text{Na}^+$  が  $0.01\sim 0.07 \text{ meq L}^{-1}$ 、 $\text{K}^+$  が  $0.003\sim 0.010 \text{ meq L}^{-1}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  が  $0.02\sim 0.30 \text{ meq L}^{-1}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  が  $0.001\sim 0.050 \text{ meq L}^{-1}$  であった。福井県で実施された調査<sup>14)</sup>によれば、雨水中の  $\text{NO}_3^-$  の濃度が  $0.024 \text{ meq L}^{-1}$ 、 $\text{Na}^+$  の濃度は約  $0.14 \text{ meq L}^{-1}$  であり、前者は首都圏の報告と差がないが、後者はやや高値であった。さらに、福井県沿岸部の降水成分の調査<sup>15)</sup>では  $\text{Cl}^-$  の濃度が約  $0.1 \text{ meq L}^{-1}$  という報告があり、これについても首都圏に比べて高い。

雨水中の IC については、ヘンリー則を用いて算出する。 $25^\circ\text{C}$ におけるヘンリー一定数は  $3.4\times 10^{-2} \text{ mol L}^{-1} \text{ atm}^{-1}$  であり、溶解平衡エンタルピー変化は  $-4.85 \text{ kcal mol}^{-1}$  である<sup>16)</sup>。雨雲が発生する上空の温度を  $-5^\circ\text{C}$  と仮定すると、ヘンリー一定数は  $8.5\times 10^{-2} \text{ mol L}^{-1} \text{ atm}^{-1}$  と計算され、大気中の二酸化炭素の分圧が  $4.0\times 10^{-4} \text{ atm}$ <sup>17)</sup> であることから、雨水中の二酸化炭素濃度は  $3.40\times 10^{-5} \text{ mol L}^{-1}$  となる。降水途中での温度上昇の影響などにより、地表に到達する雨水中の二酸化炭素濃度は、実際にはこれ以下と考えられるが、表 4-1 と同様に IC が全て一価の陰イオンであると仮定すると、 $0.0340 \text{ meq L}^{-1}$  になる。

これらの雨水中のイオン濃度を表 4-1 に示した浸出水中のイオン濃度と比較する。 $\text{NO}_3^-$  濃度については雨水と浸出水の間で類似しているため、浸出水濃度を用いて埋立廃棄物からの溶出挙動を評価することは難しい。一方、 $\text{SO}_4^{2-}$  を除いた他のイオンについては、雨水に比べて浸出水の濃度が高値であることから、浸出水中のイオンは主に埋立廃棄物由来と考えることができる。 $\text{SO}_4^{2-}$  に関しては、埋立開始から経過時間が短い第 5 区画と第 6 区画の浸出水は雨水に比べて著しく高濃度であるが、No.1、No.3-1、No.3-2 および No.4 については雨水よりも低濃度である。このことから、第 1 区画、第 3 区画、第 4 区画においては、浸入水が埋立層内を移動する過程で  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度を低下させる作用が働いていることが示唆される。

表 4-1 各浸出水のイオンバランス（単位：meq L<sup>-1</sup>）

	No.1	No.2	No.3-1	No.3-2	No.4	No.5	No.6
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.10	5.6	0.10	0.031	0.094	14	23
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.000	0.008	0.010	0.000	0.057	0.000	0.000
Cl <sup>-</sup>	0.42	2.5	0.28	1.7	5.4	26	37
IC <sup>※</sup>	2.8	13	1.6	6.2	9.2	4.9	1.4
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.19	4.4	0.65	3.9	3.3	5.8	3.6
Na <sup>+</sup>	0.52	11	0.91	3.7	13	30	35
K <sup>+</sup>	0.22	0.72	0.15	0.54	0.77	2.3	3.1
Ca <sup>2+</sup>	1.7	5.5	0.40	0.90	0.90	6.0	19
Mg <sup>2+</sup>	0.48	1.0	0.26	0.59	0.59	2.8	1.2
陰イオン計	3.3	21	2.0	7.9	15	45	61
陽イオン計	3.1	22	2.4	9.6	18	46	62

※ICは一価の陰イオンとして計算した

全ての調査日のデータについて、各イオン種が主要イオン中に占める電気化学当量単位の存在比を算出し、浸出水別に平均して図 4-15(a)~(g)のレーダーチャートに示した。それぞれのレーダーチャートの形状は各イオン種の存在比を表しており、No.6 は調査日により形状が異なったが、それ以外の浸出水については調査日による形状の差はほとんどみられず、類似していた。

No.6 について 10 回実施した水質分析結果全てをレーダーチャートに示した。前半 5 回分を図 4-16(a)に、後半 5 回分を(b)に示した。前半 5 回の調査ではレーダーチャートの形状が大きく変化している。このことは、調査日により各イオンの存在比が大きく変化していることを示す。一方、後半 5 回の調査では同様な形状を示し、図 4-15(f)の No.5 の形状に類似していた。

図 4-13(g)や図 4-14(a)で示されるとおり、埋立開始前の区画内に貯留された水には水溶性電解質がほとんど含まれていないため、埋立開始直後における No.6 の EC 値は低い。しかし、時間経過とともに埋立廃棄物量が増えると、廃棄層から保有水と貯留水に溶出する塩分量が増え、浸出水の EC 値が上昇する。そして、浸出水中の電解質は埋立廃棄物層から溶出するものが大部分を占める状態となる。その結果、埋立廃棄物の質は大きく変動しないため、各イオンの存在比は安定する。

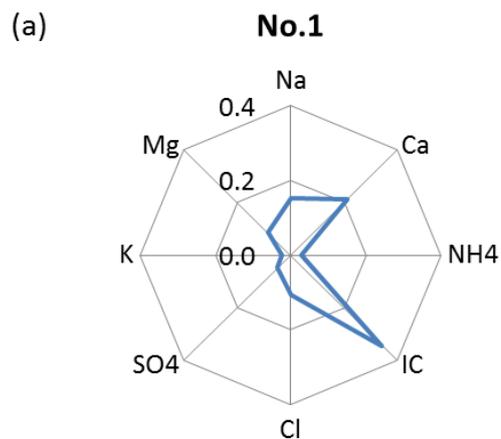


図 4-15(a) No.1 浸出水中の主要イオンの平均存在比

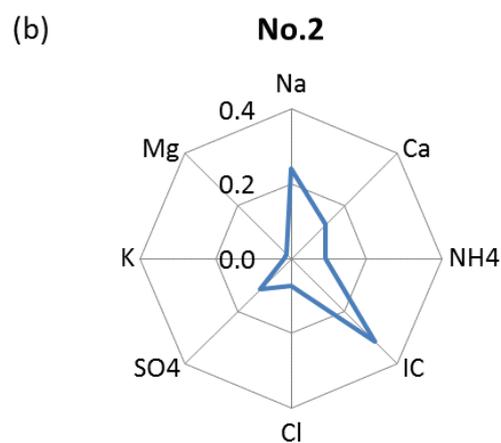


図 4-15(b) No.2 浸出水中の主要イオンの平均存在比

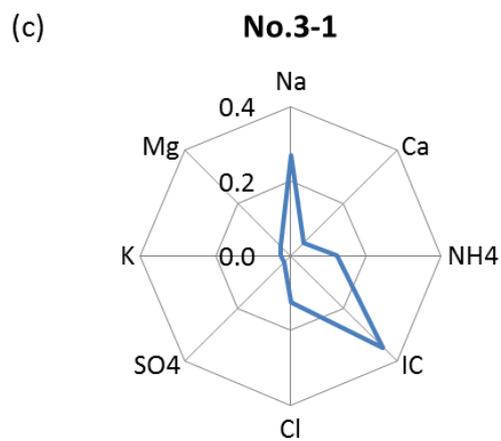


図 4-15(c) No.3-1 浸出水中の主要イオンの平均存在比

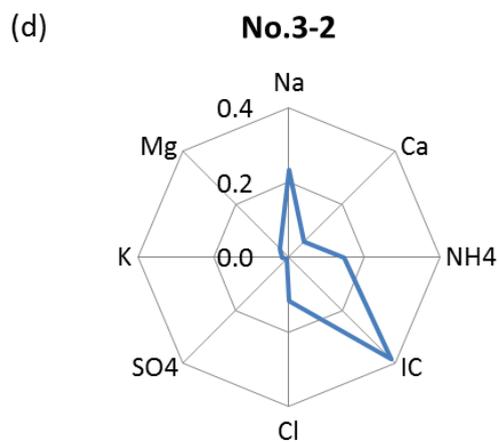


図 4-15(d) No.3-2 浸出水中の主要イオンの平均存在比

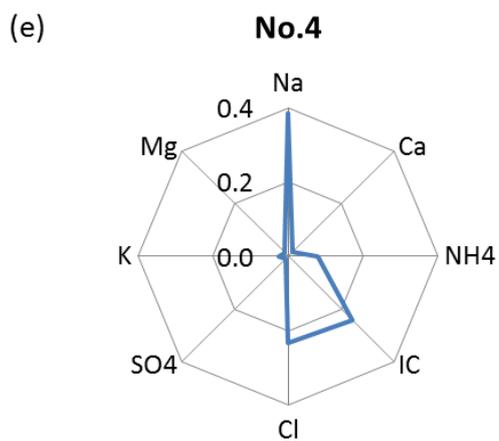


図 4-15(e) No.4 浸出水中の主要イオンの平均存在比

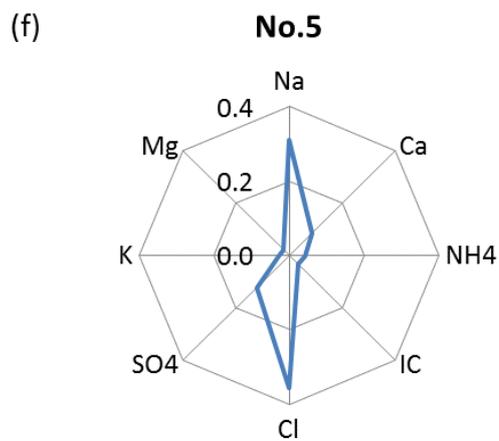


図 4-15(f) No.5 浸出水中の主要イオンの平均存在比

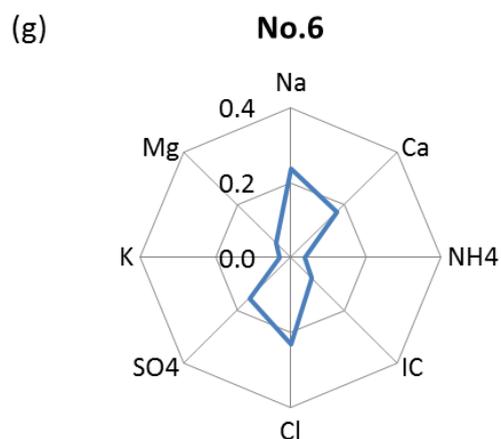


図 4-15(g) No.6 浸出水中の主要イオンの平均存在比

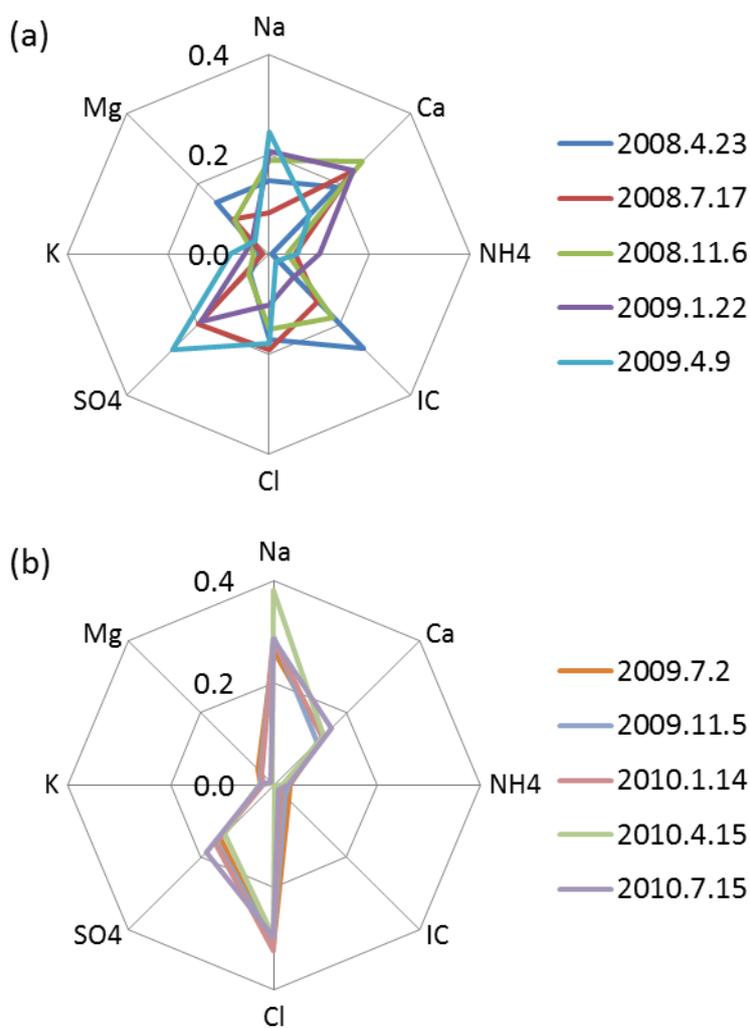


図 4-16 No.6 浸出水中の主要イオンの存在比  
 (a : 2008 年 4 月～2009 年 4 月, b : 2009 年 7 月～2010 年 7 月)

図 4-15(a)~(g)を比較すると、図(c)の No.3-1 と図(d)の No.3-2 形状は類似している。しかし、各埋立区画間の浸出水では形状が大きく異なった。

各区画に埋め立てされている廃棄物の重量組成に関しては、第二章の 2.3 で示したとおり、第 2~5 区画は汚泥類と焼却灰類だけでの埋立廃棄物全体の 9 割以上を占める（図 2-3）。第 1 区画は汚泥類の割合が他区画に比べて小さいが、汚泥類と焼却灰類を合わせると約 6 割となり、全区画で主な埋立廃棄物の種類が汚泥類と焼却灰類であることは共通している。また、古い区画から順番に埋め立てを行うため、埋立廃棄物の種類が埋立区画の変更時に大きく変化することはない。そのため、図 4-15 の埋立区画間にみられる各イオンの存在比の相違は、埋立当初の廃棄物中に含有する塩類の相違に由来することは考えにくく、時間経過に伴う安定化プロセスを反映していると考えられる。

図 4-15 のレーダーチャートの形状を埋立時期が新しい順に検討する。No.6 と No.5 については、 $\text{Cl}^-$  と  $\text{Na}^+$  の存在比がそれぞれアニオンとカチオンの中で最も大きく、続いて  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の存在比が大きい。この結果は第 6 区画と第 5 区画が好気性分解期の第 I 期と嫌気性酸発酵期の第 II 期に相当することと矛盾しない。

次の No.4 においては  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の存在比が減少し、代わりに  $\text{IC}$  と  $\text{NH}_4^+$  の存在比が増加している。このことは層内雰囲気還元化により金属類の硫化物形成が進行し、有機物分解で発生するアンモニアの溶出がみられる第 III 期の特徴と一致する。さらに、4.4 で述べた pH、ORP および DO の結果と併せて考えると、第 4 区画は第 III 期のメタン生成発達期に相当すると判定される。

それ以降の No.3、No.2 および No.1 については、最も存在比が大きいイオン種は  $\text{IC}$  であった。また、No.4 と No.3 では存在比が小さかった  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  が No.2 では増加し、No.1 においては  $\text{Ca}^{2+}$  の存在比がカチオン中で最大となった。第 IV 期の浸出水は  $\text{IC}$  濃度が高値を維持する特徴があるため、第 3 区画と第 2 区画が第 IV 期のメタン生成定常期に相当することと整合的である。ただし、No.2 でみられる  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の存在比の増加は、硫化物の酸化反応が起こっていることを示唆しており、第 2 区画の一部は既に第 V 期に移行しつつあることが推察される。第 1 区画は安定化プロセスの最終段階である第 V 期（土壌化期）に到達しているが、他の主要イオンに比べて  $\text{IC}$  の存在比が大きい。このことから、埋立層内の有機物分解反応は継続しており、第 V 期の末期には至っていないことが示唆される。

### 4.6 まとめ

本章では研究対象処分場の埋立層内の状態評価を行い、以下の結論が得られた。

- (1) 埋立廃棄物層内は様々な種類の廃棄物が不均質に存在するため、密度や透水性などの物理的性質が場所や深度により異なる。

- (2) 研究対象処分場では、埋立途中での貯留水水位と埋立終了後の保有水水位が GL-3m よりも高く管理されており、埋立廃棄物の大部分は水分飽和した状態で維持されていた。
- (3) 埋立層内の温度は層外からの熱伝導の影響を受け、季節的に変動した。保有水の年間平均温度は 12.3~13.5℃であり、埋立区画間の平均温度の相違は、有機物分解プロセスの進捗と整合的であった。
- (4) 観測井内保有水の EC は浅層部が低く深層部が高い鉛直方向の濃度勾配を形成しており、その勾配は埋め立てからの経過時間が短くなるほど緩やかとなった。このことは、埋立層内の塩分洗い出しが基本的には浅層から優先的に進行することを示すが、観測井周辺に限った結果であり、埋立層全体の状態を反映しているわけではない。
- (5) 観測井内保有水の ORP は埋め立てから経過時間が最も長い区画の値が高く、最も短い区画の値が低い傾向があった。また、浅層部が高く深層部が低い傾向があった。これらの傾向は埋立廃棄物層内で進行する有機物分解による酸素消費と、層内に地表から酸素が供給されることを反映している。
- (6) 浸出水の EC は調査日による値の変動が大きく、浸出水水質に短期的な影響を及ぼす因子の存在が示唆された。
- (7) 埋立途中では経時的に EC が上昇し、埋立終了後では低下した。このことは、埋立途中では浸出水中の電解質濃度は増加し、埋立終了後では電解質濃度が低下することを示していた。
- (8) 浸出水中の主要イオンは Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、IC、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>および Mg<sup>2+</sup>である。一部の埋立区画では SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の濃度が一般的な雨水よりも低いことから、浸入水が埋立層内を移動する過程で SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度を低下させる作用が働いていることが示唆された。
- (9) 浸出水水質から、安定化による有機物分解プロセスにおいて、各埋立区画の相当する進捗段階が判定された。埋立開始から 5 年後までの第 6 区画と第 5 区画が第 I 期（好気性分解期）、5 年後から 10 年後までの第 5 区画が第 II 期（嫌気性酸発酵期）、第 4 区画が第 III 期（メタン生成発達期）、第 3 区画と第 2 区画が第 IV 期（メタン生成定常期）、第 1 区画が第 V 期（土壌化期）に相当する。ただし、第 2 区画の一部では第 V 期への移行が始まっていると推定された。

### 参考文献

- 1) 山崎久雄：土の単位重量推定に関する資料,ユニオンシステム株式会社技術情報(2004),  
<http://www.unions.co.jp/dqs/dynamic/files/03.pdf#search='%E7%A0%82+%E5%AF%86%E5%BA%A6'> (閲覧日平成 28 年 11 月 14 日) .
- 2) 地盤工学会「土質試験・基本と手引き-」改訂編集 WG：土質試験・基本と手引き- (第二回改訂版),公益社団法人 地盤工学会,pp.17,91,99(2010).
- 3) 独立行政法人土木研究所地質・地盤研究グループ土質・振動チーム：河川堤防の浸透に対する照査・設計のポイント,pp.21(2014),  
<https://www.pwri.go.jp/team/smd/pdf/syousasekkei%20point1407.pdf>  
(閲覧日平成 28 年 11 月 14 日) .
- 4) 澤孝平：地盤工学[第 2 版],森北出版株式会社,pp49(2009).
- 5) 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,pp.4-5,pp.223-226(2000).
- 6) 吉田英樹, 田中信壽, 穂積準：廃棄物充填層の有効熱伝導率に関する研究, 廃棄物学会論文誌,Vol,3,No.2,pp.17-25(1992).
- 7) 岡谷一義,岩城文太,富永泰子,種岡裕：新潟市海岸部の地下水温度鉛直分布の特徴,新潟県保健環境科学研究所年報,Vol.20,pp.101-104(2005).
- 8) T.H. Christensen, R. Cossu, R.Stegmann： Landfilling of Waste： Leachete, Elsevier Applied Science, pp.65-88(1992).
- 9) Pohland, F. G.： Leachate recirculation for accelerated landfill stabilization, Sardinia '89 Symposium, Porto Conte, Italy, 9-13 October(1989).
- 10) 石井雅男,吉川久幸,松枝秀和：電量滴定法による海水中の全炭酸濃度の高精度分析および大気中の二酸化炭素と海水中の全炭酸の放射性炭素同位体比の測定,気象研究所技術報告,No.41,pp.5-7(2000).
- 11) 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,Vol.14, No.3,pp.123-132(2003).
- 12) 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, Vol.21, pp.49-65(1994).
- 13) 岡本満美,牛久保明邦：酸性雨中の海塩起源イオンに関する研究,日本海水学会誌,Vol.53,No.5,pp.364-372(1999).
- 14) 坪川博之,井上由里香：福井県における酸性雨調査,福井大学地域環境教育センター研究紀要「日本海地域の自然と環境」,No.17,pp.25-33(2010).
- 15) 山田寿寛,正通寛治,高田敏夫,稲津悦朗：雨水成分に関する調査研究 (第 5 報), 福井県公害センター年報,Vol.15,pp.61-74(1985).

- 16) John H. Seinfeld, Spyros N, Pandis : Atmospheric chemistry and physics, From air pollution to climate change, Third edition, Wiley.
- 17) World meteorological organization : WMO Greenhouse gas bulletin, No.12,(2016).





## 第五章

浸入水水量変化等の短期的因子が  
塩類溶出に及ぼす影響

### 5.1 はじめに

一般的な屋外の管理型最終処分場においては、降雨が埋立層内に浸入し、浸透水となる。埋立廃棄物層の塩類は浸透水に溶解し、浸出水として系外に排除される。そのため、浸入水水量の変動が浸出水水質に影響を及ぼすことが容易に想像できる。

これまでに、大雨の後に浸出水中の有機物濃度や EC が上昇した事例<sup>1)</sup>と低下した事例<sup>2)</sup>の研究報告がある。また、大雨後に観測井内保有水の EC が低下し、pH が上昇した事例<sup>3)</sup>も報告されている。しかし、これらの研究事例は降水量と浸出水の時系列変化を定性的に評価しており、浸入水水量を用いた検討はなされていない。

本章では、浸入水水量と浸出水中のイオン濃度の相関分析を行い、浸入水水量の変化が埋立廃棄物層の塩類溶出特性に及ぼす影響を考察する。

### 5.2 埋立初期における塩類溶出

期間浸入水量と浸出水の Cl<sup>-</sup>濃度との相関係数を計算し、図 5-1 に示した。横軸は相関係数を計算する上で日間浸入水量を積算した日数としている。つまり、浸入水を積算した日が調査日前日だけの場合の相関係数を 1 日にプロットし、調査日前日から 30 日前までの期間浸入水量の相関係数を 30 日にプロットしている。危険率 5% の片側検定では、No.1~5 (n=22) については相関係数の絶対値が 0.360 以上、No.6 (n=10) では 0.549 以上であれば有意な相関を有することから、これらの閾値をグラフ上に破線で示した。

図 5-1 の相関係数は、No.1~5 については全ての積算日数で負となり、No.6 のみが正の値を示した。全ての浸出水について、最も相関が強かった積算日数について、期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>濃度との関係を図 5-2(a)~(g)にそれぞれ示した。各グラフには線形近似線と相関係数を併記した。

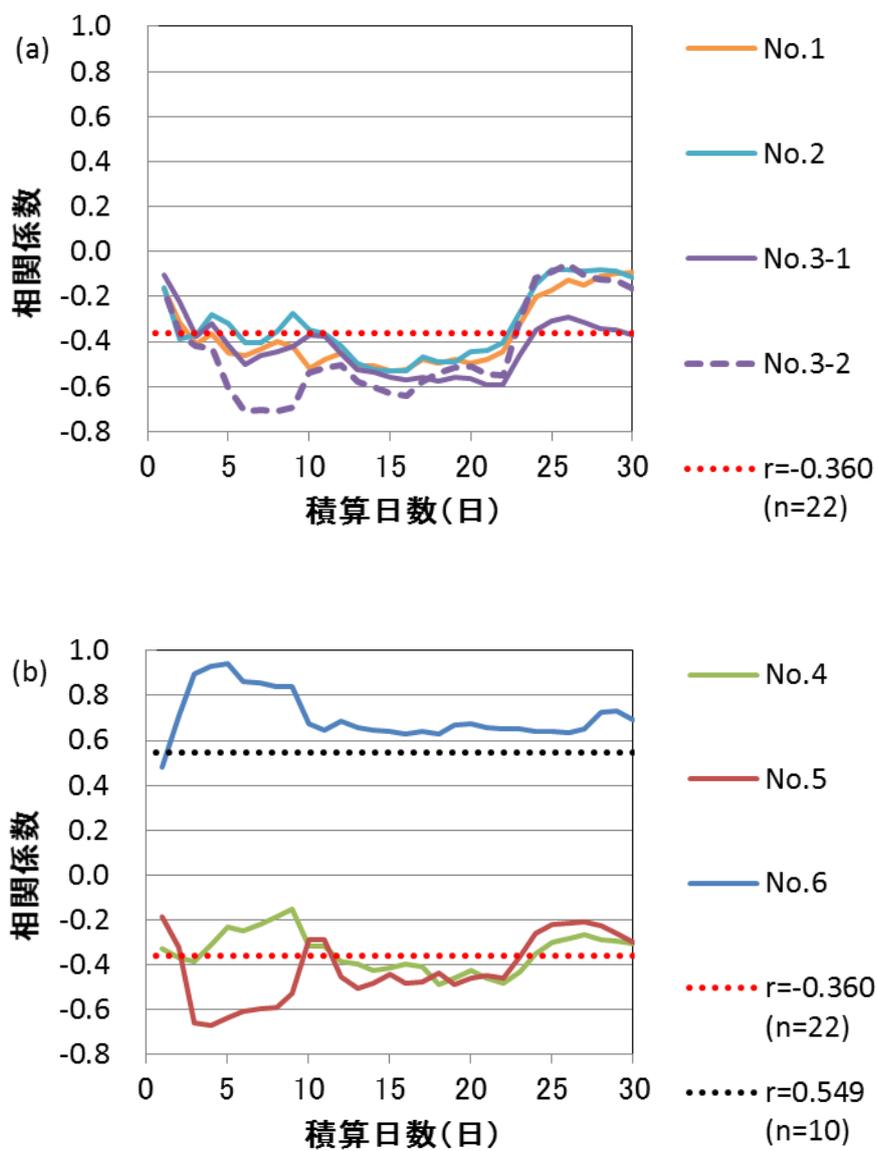


図 5-1 期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>濃度との相関係数  
(a : No.1~3-2 b : No.4~6)

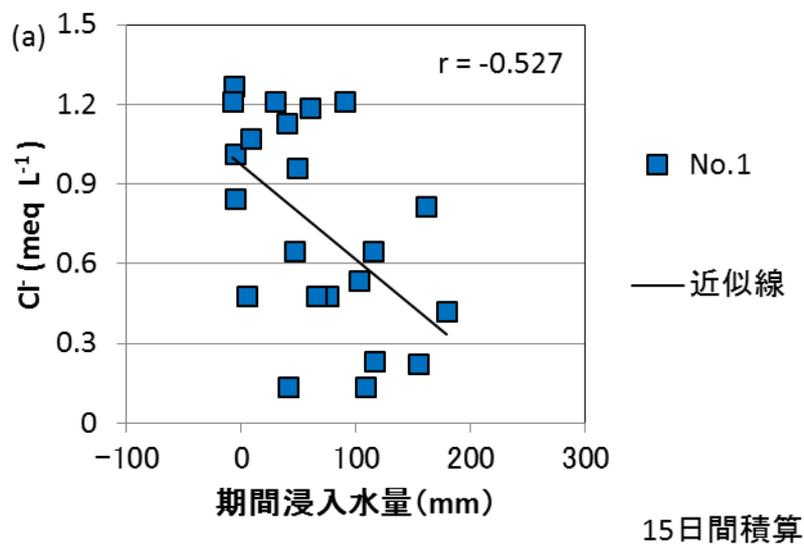


図 5-2(a) No.1 浸出水における期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>濃度の関係

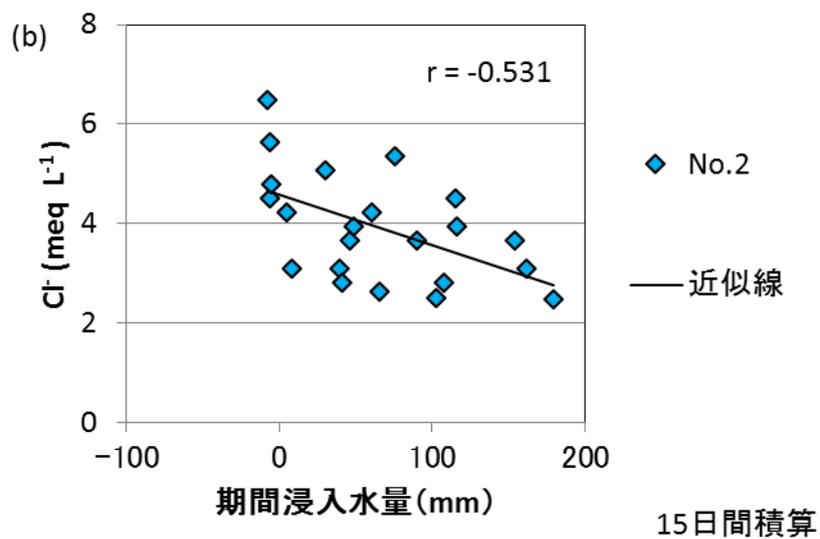


図 5-2(b) No.2 浸出水における期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>濃度の関係

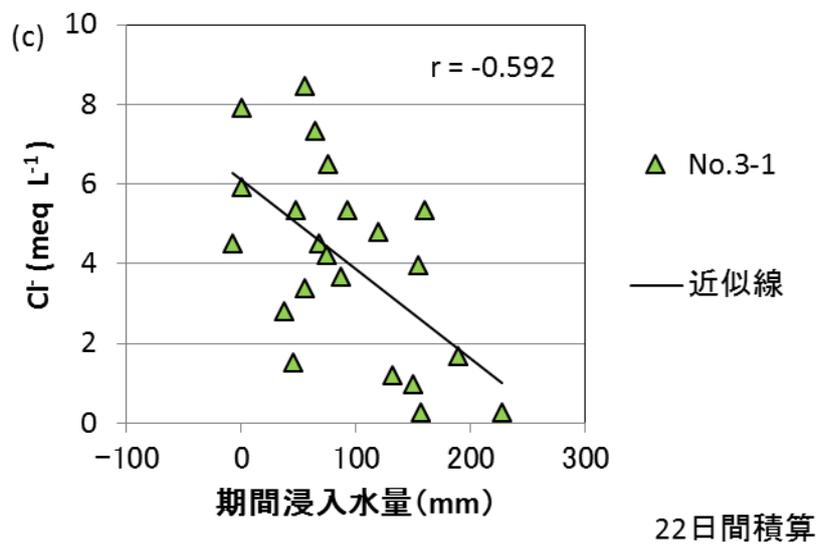


図 5-2(c) No.3-1 浸出水における期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>濃度の関係

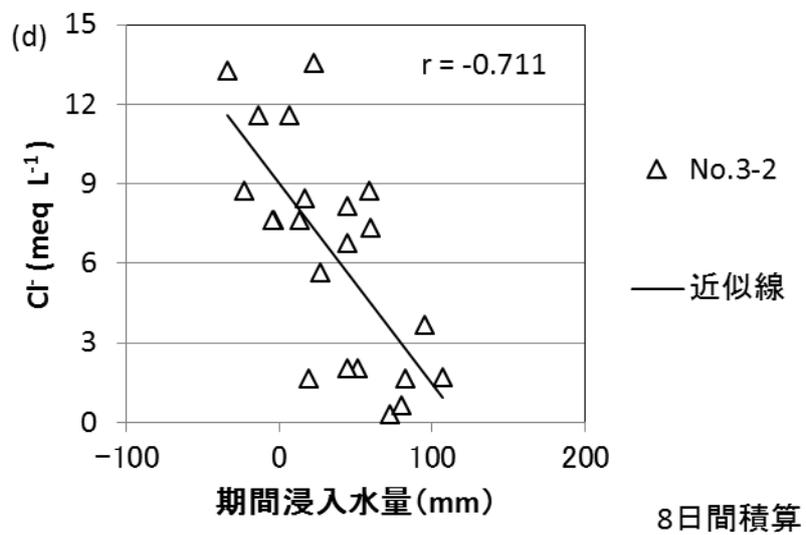


図 5-2(d) No.3-2 浸出水における期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>濃度の関係

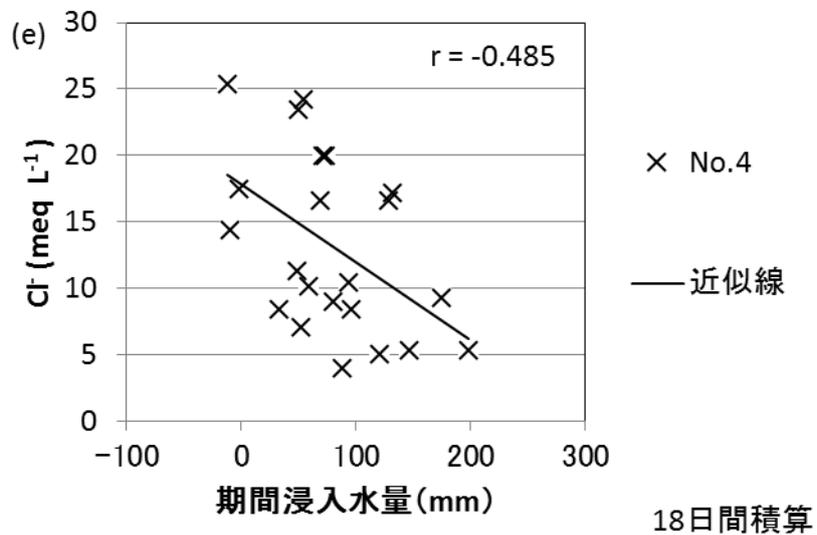


図 5-2(e) No.4 浸出水における期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>濃度の関係

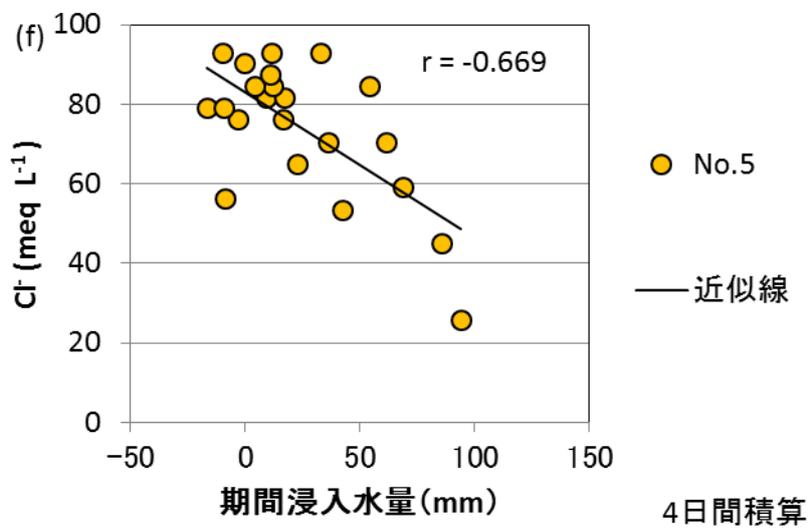


図 5-2(f) No.5 浸出水における期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>濃度の関係

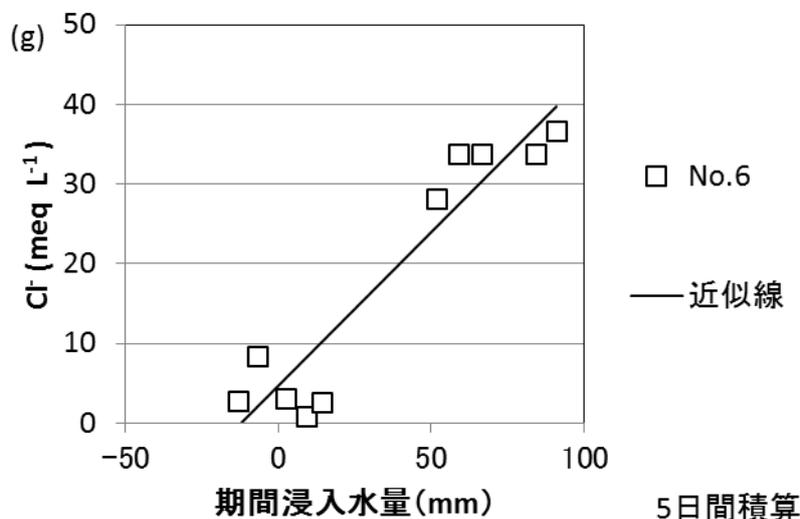


図 5-2(g) No.6 浸出水における期間浸入水量と Cl⁻濃度の関係

図 5-2(a)~(f)の No.1~5 では期間浸入水量の増加に伴い Cl⁻濃度が減少し、逆に(g)の No.6 では濃度が増加する傾向がみられた。つまり、図 5-1 で Cl⁻の相関係数が No.1~5 で負となったことは、第 1~5 区画では期間浸入水量が増加すると浸出水中の Cl⁻の濃度が減少することを示す。また、No.6 の Cl⁻の相関係数が正を示したことは、第 6 区画では期間浸入水量が増えると Cl⁻濃度が増加することを示す。即ち、前者と後者で浸入水水量の増加が浸出水の Cl⁻濃度の増減に正反対に作用していることとなる。これは、調査当時の第 6 区画が廃棄物埋め立てを開始したばかりであり、他区画に比べて埋立廃棄物層中に含まれる Cl⁻量が多く、溶出が進行しやすいことが原因と考えられる。

本研究で浸出水水質モニタリングを実施した期間は、第 1~4 区画は埋め立てが完全に終了しており、第 5 区画については埋立期間の後半と埋立終了後にあたる。一方、第 6 区画は埋立開始から約 2 年半に相当し、区画内の大半は貯留水であり、埋立部分の面積は狭い時期である。また、保有水と同じく貯留水においても、深層部には塩分を高濃度に含んだ比重の大きい水が溜まりやすい。そのため、貯留水水面に降った雨水は比重が小さいため、浅層部に留まる。一方、埋立層内に浸入した雨水は、下方に浸透していく過程で多量の塩分を溶解しながら比重が大きくなり、保有水面に達する。そして、埋立層と接する貯留水水位とのバランスを保つため、浸入水よりもさらに塩分濃度が高く比重の大きい保有水が、浸入水水量分だけ底部集水管や積層した埋立層の法面から貯留水の底部に潜り込むように流入する(図 5-3)。

第 6 区画においてはこのようなメカニズムにより、浸入水が増えると貯留水底部の塩分濃度が上昇し、集水管から排除される浸出水の Cl 濃度が増加したと考えられる。なお、No.6 については、3 日間から 9 日間の積算日数において特に相関係数が高かった (図 5-1(b))。このことは、埋立初期の区画では、浸出水水質は浸入水水量変化による影響が早く、上記メカニズムによる保有水の移動が 9 日以内で終了することを示す。

No.6 の浸入水水量とイオン濃度の関係は、Cl 以外のイオン種についても  $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  および  $\text{Ca}^{2+}$  で有意な正の相関がみられた (図 5-5(g)、図 5-7(g))。また、 $\text{Mg}^{2+}$  と  $\text{NH}_4^+$  については有意性が確認できる積算日数は少ないが、全ての積算日数で正の値を示した (図 5-7(g)、図 5-8(g))。IC については全積算日数で有意性がなく、負の相関を示す積算日数もあった (図 5-8(g))。  $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{NH}_4^+$  および IC について相関が低下した理由については有機物分解プロセスによる生成物や層内雰囲気の変化が保有水中のこれらのイオン濃度に影響したことが考えられるが、詳細については後述する。

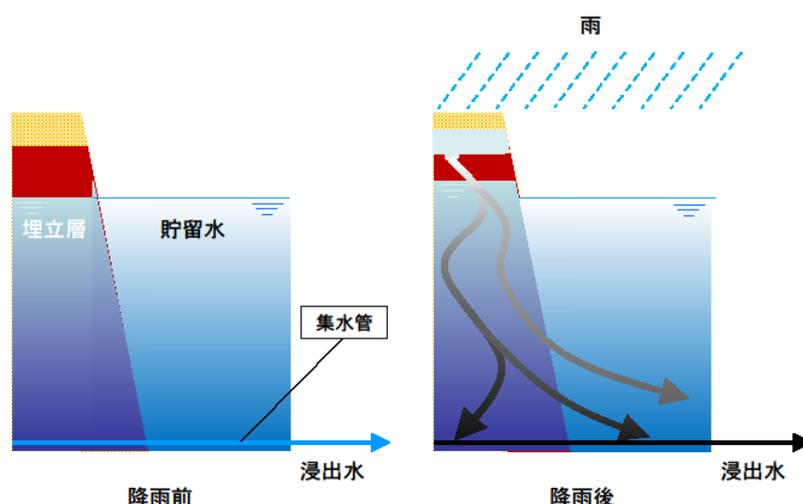


図 5-3 第 6 区画 (埋立初期) における浸出水濃度増加メカニズム

### 5.3 埋立層の不均質性による塩類溶出への影響

図 5-1 に示した期間浸入水量と Cl 濃度の相関は、No.1~5 についても 12 日間積算から 22 日間積算までは有意性が認められた。したがって、埋立終了または埋立途中後半の区画においても、浸出水の Cl 濃度は期間浸入水量の影響を受けている。ただし、相関係数は埋立区画間で異なり、また、同じ浸出水においても積算日数による差がみられた。

浸入水と浸出水水質の関係については、大雨イベント後に浸出水の化学的酸素要求量（COD）や Cl<sup>-</sup>等の濃度が上昇した事例報告<sup>1)</sup>がある。その原因は、埋立層内に大量の浸入水が浸透することで、平常時には浸入水が浸透しにくいゾーンに残る水溶性物質が大雨時に洗い出されるためとされている。しかし、本研究では期間浸入水量の増加に伴い Cl<sup>-</sup>濃度が減少しているため、この研究報告と正反対の現象であり、この説明は成り立たない。また、大雨後に観測井内保有水の EC が低下した事例報告<sup>3)</sup>では、雨水による希釈効果が原因であると考察している。

本研究対象処分場では保有水水位が高く、埋立廃棄物層のほとんどが水没状態にある。保有水水面より上位にある不飽和ゾーンにおいては、浸入水水量の増加により浸透部分が広がり、浸入水に溶解する塩分量が変化する可能性はある。しかし、その下部には飽和ゾーンが存在し、浸入水は早期に保有水面に到達する。埋立区画内に貯留されている保有水水量は期間浸入水量に比べて膨大であり、かつ、鉛直方向の塩分濃度勾配を形成していることから、最終覆土が含水飽和するような激しい降雨があったとしても、保有水深層部の水質に影響を与えることは考えにくい。そのため、研究対象処分場で確認された期間浸入水量変化による浸出水の Cl<sup>-</sup>濃度変化は、前述した過去の研究報告と異なるメカニズムでなければ説明できない。

研究対象処分場の第 2 区画では、比抵抗探査による埋立層内部可視化調査で、「水みち」が不規則に存在することが分かっている<sup>4)</sup>。この「水みち」とは埋立層中で相対的に高い透水性を有するゾーンを意味しており、いわゆる「層の裂け目」等の流路を意味しているわけではない。他の区画も第 2 区画と類似の埋立物および埋立工法であることから、同様な「水みち」が存在すると考えられる。

この「水みち」は、4.2 で述べた埋立廃棄物層内の不均質性により、層内の各部分で透水性が異なるために生じ、この透水性の偏在が浸出水の塩分濃度に影響する可能性が高い。つまり、層内は保有水が移動しやすいゾーンと移動しにくいゾーンに区分される。透水性が高いゾーンは保有水が移動しやすく、入れ替わりやすいため、他のゾーンよりも塩類洗い出しが早く進み、その結果、Cl<sup>-</sup>存在量の減少が早い。また、このゾーンを移動する保有水は埋立廃棄物層内での滞留時間が相対的に短いため、塩類の溶解量が進まない状態で浸出水となって排水される。さらに、浸入水水量が増えると、保有水の浅層部には塩分濃度の低い浸入水が多く混入し、この水が透水性の高いゾーンに供給されやすくなるため、浸出水の塩分濃度はさらに低下する（図 5-4）。このように、保有水水位が高い本研究対象処分場においては、透水性が高いゾーンを移動する保有水が期間浸入水量増加に伴う Cl<sup>-</sup>濃度低下挙動を引き起こしている可能性が高い。

高透水ゾーンの分布状況は埋立区画により様々である。即ち、図 5-1 に示した期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>濃度との相関係数には、高透水ゾーンを移動する保有水水量や、層内への浸入から浸出水として系外排除されるまでの移動に要する時間が影響する。

短期間の積算日数で強い相関を示した浸出水（No.3-2、No.5）の集水エリアにおいては、表層の保有水が底部に達するまでの時間が短く、透水性の高いゾーンの寄与が大きいことが示唆される。逆に、No.4 では全ての積算日数で強い相関を示さなかったため、第4区画の埋立廃棄物層内には透水性の高いゾーンが少ないことが推察される。

No.3-1 と No.3-2 を比較すると、No.3-1 は 13～22 日間でやや強い相関を示したが、No.3-2 ではそれよりも短い 3～9 日間において No.3-1 よりも強い相関を示した。これらの相関係数の相違から、No.3-2 の集水エリアの方が No.3-1 よりも高透水ゾーンの影響が大きく、短時間で多量の保有水が移動できることを示している。No.3-1 と No.3-2 の集水エリアは共に同一区画にあり、埋立深度や集水設備等に構造的、または性能的な違いはない。即ち、これらの浸出水間の相関係数の相違は、集水エリアの埋立廃棄物層の内部状態の違いを反映していることが示唆される。

なお、24 日以上積算日数になると、No.1～5 に関する期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>濃度の相関係数が低下した。このことは、透水ゾーンの偏在と浸入水量変化による浸出水水質への影響は、調査日から 23 日前までの天候に依存することを示している。よって、研究対象処分場においては、透水性の高いゾーンを移動する浸入水は、ほとんどが 23 日以内に浸出水として排除されていることとなる。

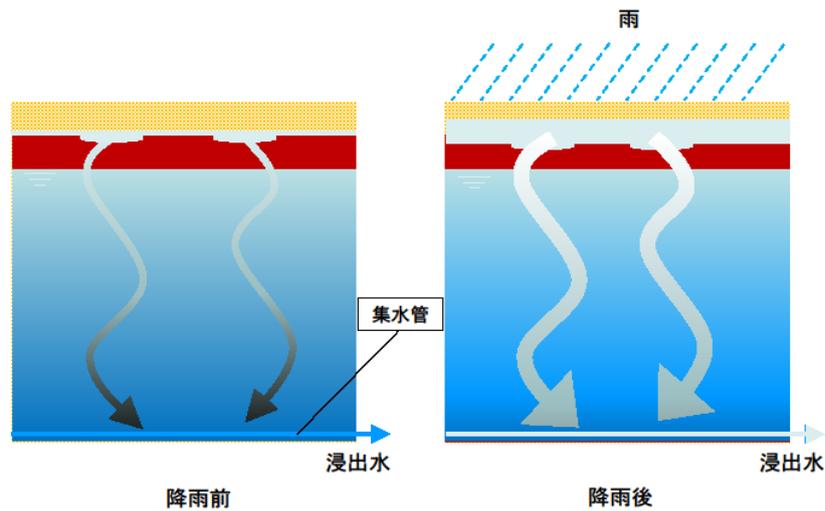


図 5-4 埋立終了区画における高透水ゾーンに由来する浸出水濃度減少メカニズム

#### 5.4 易溶出性イオン種間の溶出性の違い

期間浸入水量と浸出水の  $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 濃度との相関係数を埋立区画別に図 5-5(a)～(g) に示した。比較のため、 $\text{Cl}^-$ の相関係数も併記した。 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$ および  $\text{K}^+$ は有機物を構成する主要元素ではなく、大部分が廃棄物中に塩として存在する。また、これら 3 種のイオンは有機物分解や化学反応による埋立層内の環境変化の影響を受けにくい<sup>5,7)</sup>ため、埋立廃棄物層から溶出しやすいといわれている。

図 5-5 において、これら 3 種のイオンの相関係数を比較すると、全ての浸出水において積算日数に対する相関係数の増減は類似した挙動がみられた。このことは、浸入水水量の変動に対して、浸出水中のイオン濃度が同様に変化していることを示しており、3 種のイオンの溶出特性が類似していることを反映している。

しかしながら、相関係数はイオン種間で差があり、相関の良否についても浸出水により順位が異なった。No.6 (図 5-5 (g)) では、期間浸入水量に対する  $\text{Cl}^-$ と  $\text{Na}^+$ のそれぞれの相関係数は近値であり、 $\text{K}^+$ の相関が比較的低い。第 5 区画 (図 5-5 (f)) では、3 種のイオンの相関係数の差が大きく、 $\text{Na}^+$ については全積算日数で有意性は認められず、 $\text{K}^+$ についても  $\text{Cl}^-$ に比べて有意性がある積算日数は少ない。No.4 (図 5-5 (e)) では、相関の有意性が認められる積算日数において、イオン種間の相関は類似している。No.3-1 (図 5-5 (c)) と No.3-2 (図 5-5 (d)) では、No.6 と同様に  $\text{Cl}^-$ と  $\text{Na}^+$ のそれぞれの相関係数は類似しており、これらに比べて  $\text{K}^+$ の相関が低い。No.2 (図 5-5 (b)) では、No.5 と同じく 3 種のイオンのそれぞれの相関係数の差異が大きく、最も相関が低いのは  $\text{Na}^+$ であり、全積算日数において有意性がない。逆に、No.1 (図 5-5 (a)) では、 $\text{Na}^+$ の相関が最も高く、 $\text{Cl}^-$ の相関が最も低い。

浸入水や保有水が埋立層内を移動する際には廃棄物等の固相間隙を通り、保有水の流速は固相近傍よりも間隙中央部が速い<sup>8)</sup>。そのため、飽和水中の固相近傍と間隙中央の間には濃度勾配ができる。また、水分飽和している埋立廃棄物層では、小さな間隙では水の移動が起こりにくく (本論文では「停滞水」と呼ぶ)、大きな間隙では水は移動しやすい (本論文では「可動水」と呼ぶ)。そのため、ここでも濃度勾配が形成される。5.3 において先述した埋立廃棄物層内での透水性の偏在が浸出水水質に影響するメカニズムは、このようなミクロな視点における物質移動を強く想定したものではない。しかしながら、透水性の高いゾーンには相対的に大きな間隙が集中して存在すると考えられ、その部分の保有水の濃度低下は固相間隙内の濃度勾配に起因するともいえる。つまり、透水性の高いゾーンでは大きな間隙中央を通る水量が多くなるため、保有水の塩分濃度が低下する。そこでは、埋立物固相近傍や停滞水ゾーンからの分子拡散により、水溶性物質が間隙中央に供給されるが、4.3.3 で説明したとおり保有水移動の方が速い。

廃棄物固相中の各イオンが同様な溶出性を有し、かつ、固相近傍水や停滞水での濃度勾配による移動速度が同様であれば、同一区画の浸出水における期間浸入水量

と各イオン濃度との相関係数は同じになるはずである。しかし、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>およびK<sup>+</sup>の相関係数が前述のように異なることは、固相から水相への溶解性が異なるか、もしくは保有水中での移動速度が異なることを示している。

Cl<sup>-</sup>とNa<sup>+</sup>またはK<sup>+</sup>の間で大きく異なる点として、荷電による電氣的な性質がある。土壌においては、腐植や粘土鉱物が有する陽イオン交換容量（CEC）が異なると、カチオンの固相への吸・脱着作用に影響するといわれている<sup>9)</sup>。また、CECに及ぼす陽イオン種の影響は土壌に含まれる主要陽イオン交換物質に左右され<sup>10)</sup>、粘土への陽イオンの侵入能はカチオンにより異なる<sup>11)</sup>。

図5-6に第2区画から第5区画までのボーリングコアサンプルを用いて測定したCECと陰イオン交換容量（AEC）の平均値を示した。この結果から、AECに比べてCECが著しく高値であることが判明した。これまで、Na<sup>+</sup>をイオン種とした試験でも埋立廃棄物試料中にCECが存在することを確認しており<sup>12,13)</sup>、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>およびK<sup>+</sup>の相関係数の相違は廃棄物の陽イオン交換能が影響している可能性が高い。

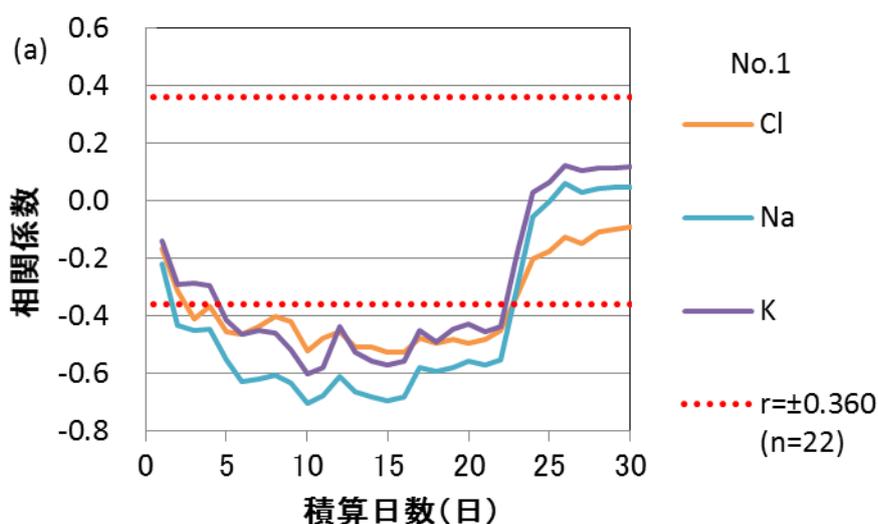


図 5-5(a) No.1 浸出水における期間浸入水量と Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>および K<sup>+</sup>の各濃度との相関係数

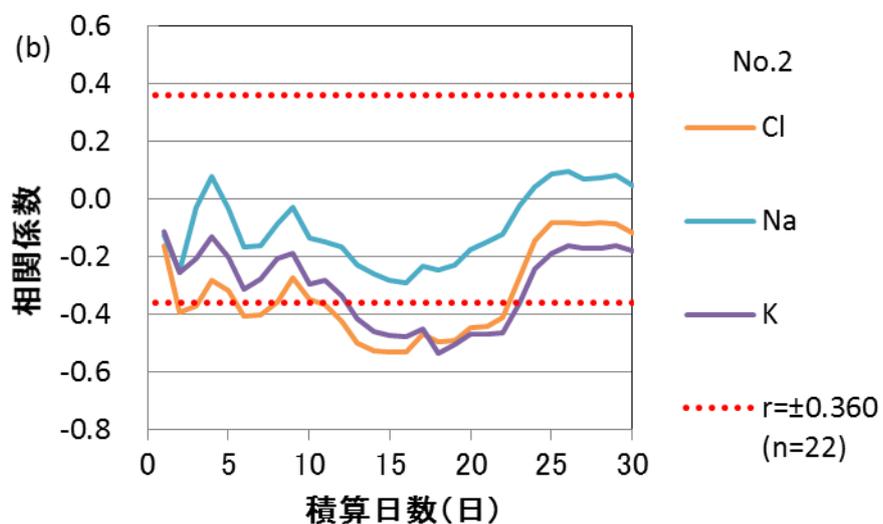


図 5-5(b) No.2 浸出水における期間浸入水量と Cl、Na<sup>+</sup>および K<sup>+</sup>の各濃度との相関係数

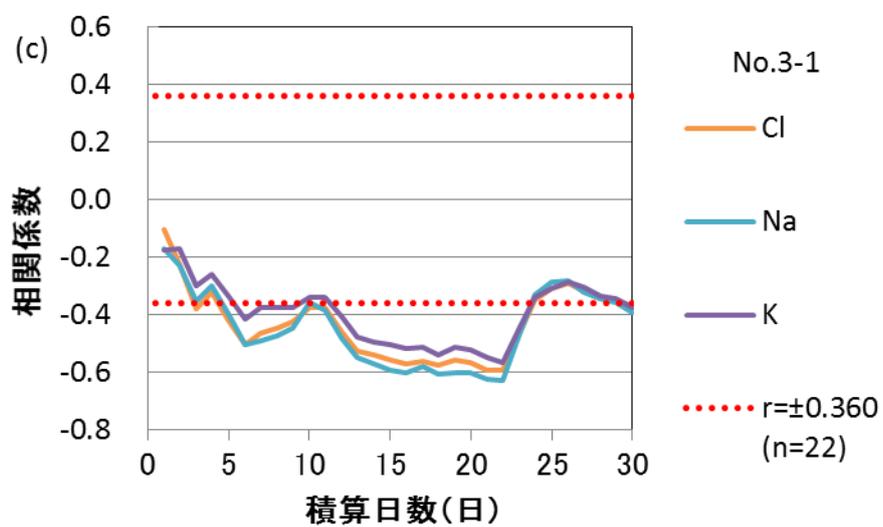


図 5-5(c) No.3-1 浸出水における期間浸入水量と Cl、Na<sup>+</sup>および K<sup>+</sup>の各濃度との相関係数

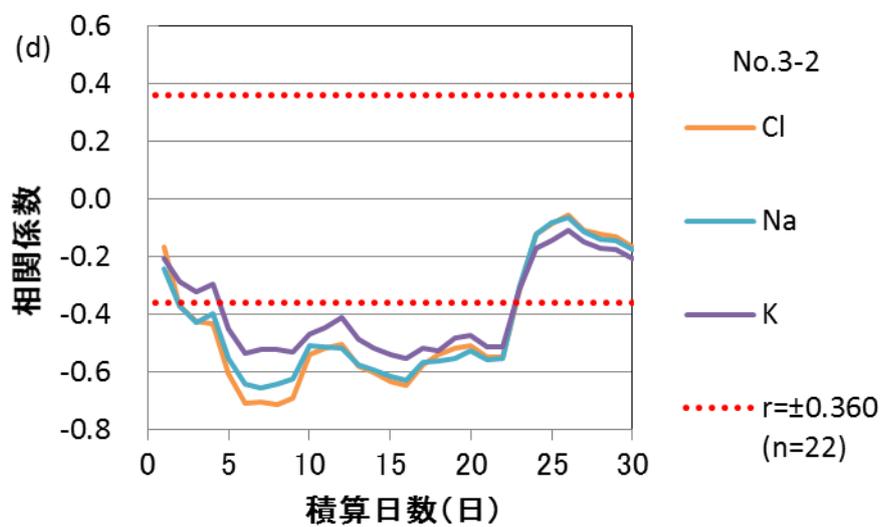


図 5-5(d) No.3-2 浸出水における期間浸入水量と Cl、Na<sup>+</sup>および K<sup>+</sup>の各濃度との相関係数

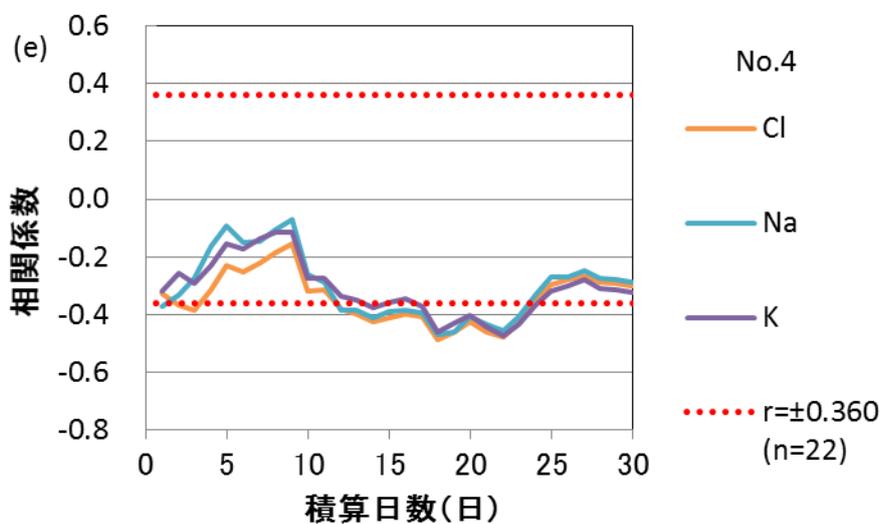


図 5-5(e) No.4 浸出水における期間浸入水量と Cl、Na<sup>+</sup>および K<sup>+</sup>の各濃度との相関係数

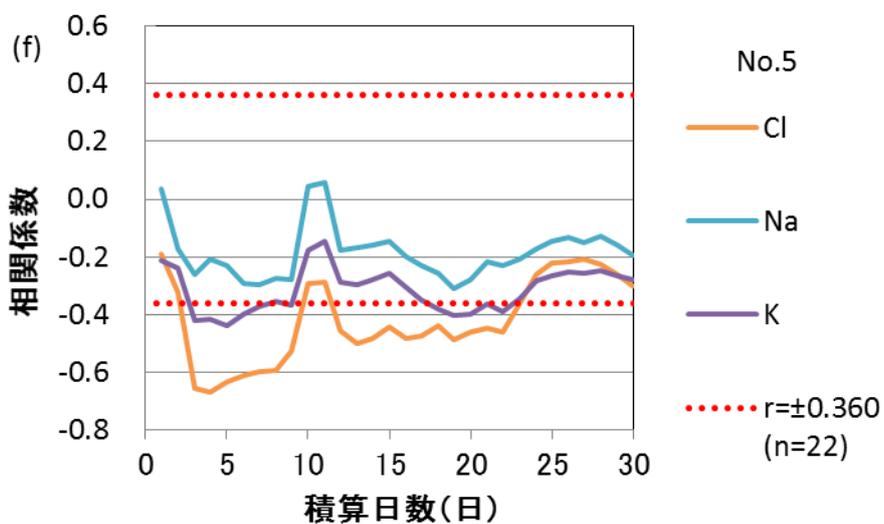


図 5-5(f) No.5 浸出水における期間浸入水量と Cl、Na<sup>+</sup>および K<sup>+</sup>の各濃度との相関係数

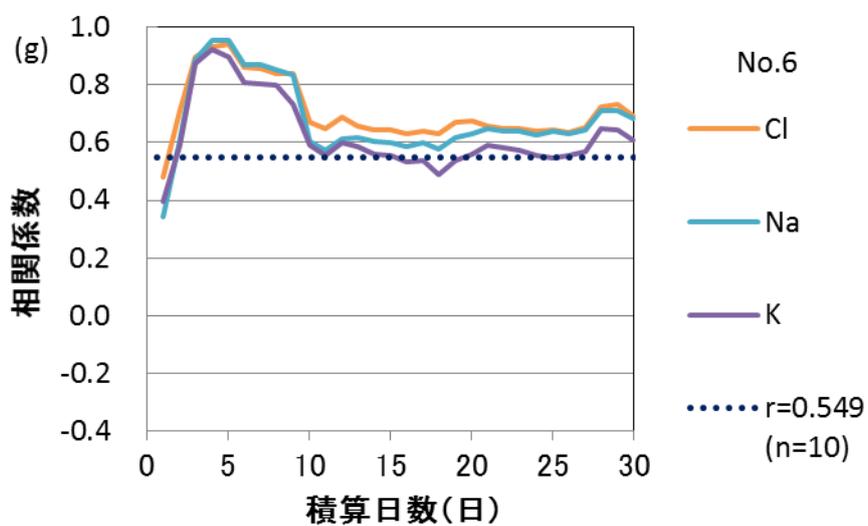


図 5-5(g) No.6 浸出水における期間浸入水量と Cl、Na<sup>+</sup>および K<sup>+</sup>の各濃度との相関係数

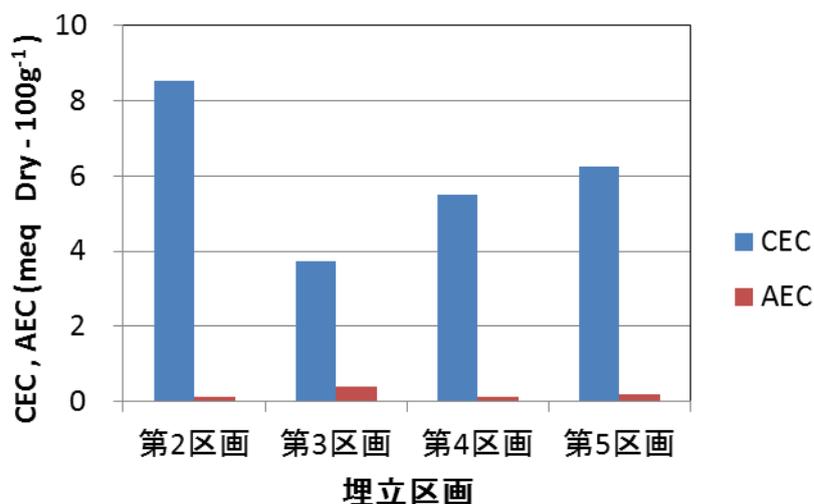


図 5-6 ポーリングコアサンプルの CEC と AEC

### 5.5 埋立層内雰囲気変化による溶出特性への影響

期間浸入水量と浸出水中の  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  および  $\text{Mg}^{2+}$  の相関係数を浸出水別に図 5-7(a)～(g) に示した。

1.3 に前述したとおり、過去の研究によると、 $\text{SO}_4^{2-}$  は有機物分解プロセスにより層内雰囲気の嫌気化が進行すると、微生物反応により硫化物形成に資するといわれている<sup>14)</sup>。これは、偏性嫌気性細菌である硫酸塩還元細菌が有機物分解の中間代謝物である有機酸を栄養源とし、 $\text{SO}_4^{2-}$  中の酸素を使って呼吸するため、 $\text{SO}_4^{2-}$  を還元して硫化水素 ( $\text{H}_2\text{S}$ ) を生成することによる<sup>15,16)</sup>。なお、 $\text{H}_2\text{S}$  が発生するための因子としては、十分な水分が存在することと、pH がほぼ中性領域であることが必要である<sup>17)</sup>。研究対象処分場は常に高い保有水水位を有し (図 4-5)、層内はほぼ中性であることから (図 4-10)、これらの条件を満たしている。さらに、 $\text{H}_2\text{S}$  は水中では弱酸となるため、弱アルカリ性の第 4 区画の保有水中では電離して、硫化水素イオンや硫化物イオンになりやすい<sup>17,18)</sup>。そして、さらに有機物分解プロセスが進み、層内雰囲気の嫌気状態が弱まると、硫黄酸化細菌が活性化して硫化物中の硫黄を  $\text{SO}_4^{2-}$  に酸化する反応が進行する<sup>19,20)</sup>。

$\text{Ca}^{2+}$  と  $\text{Mg}^{2+}$  については、廃棄物層が厚くなると炭酸塩や硫化物等の難溶塩を形成し、廃棄物層に沈着や再吸着しやすくなるため、一価イオンに比べて溶出しにくいとする研究報告がある<sup>6)</sup>。

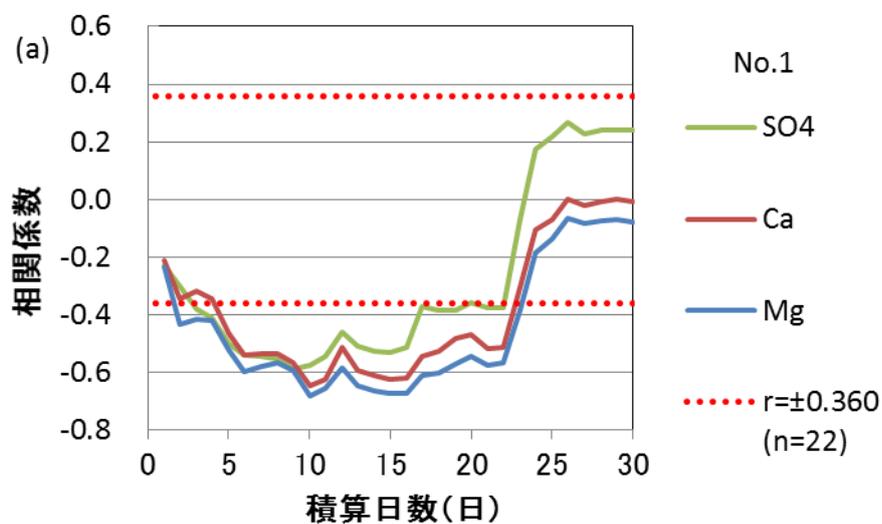


図 5-7(a) No.1 浸出水における期間浸入水量と  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  および  $\text{Mg}^{2+}$  の各濃度との相関係数

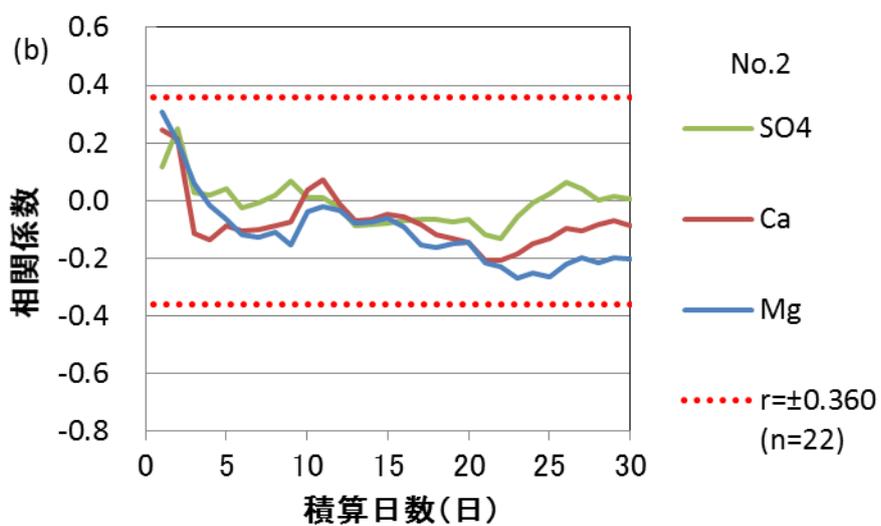


図 5-7(b) No.2 浸出水における期間浸入水量と  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  および  $\text{Mg}^{2+}$  の各濃度との相関係数

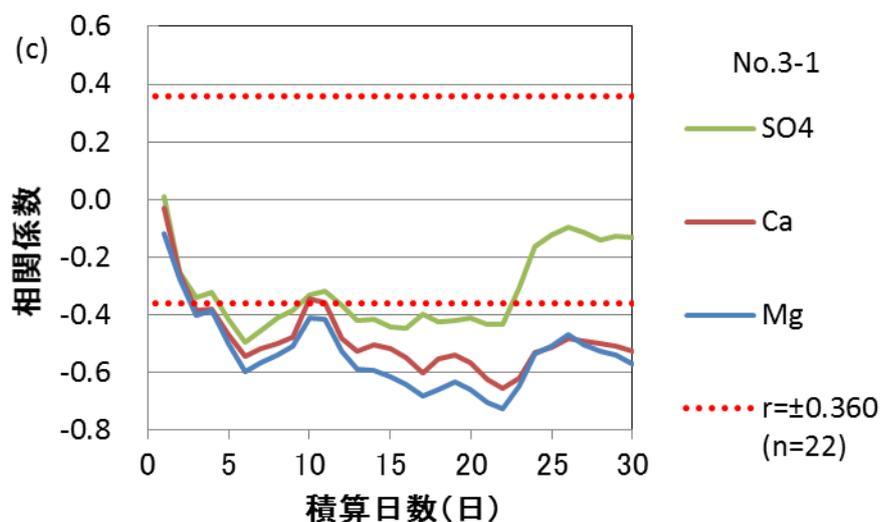


図 5-7(c) No.3-1 浸出水における期間浸入水量と  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ および  $\text{Mg}^{2+}$ の各濃度との相関係数

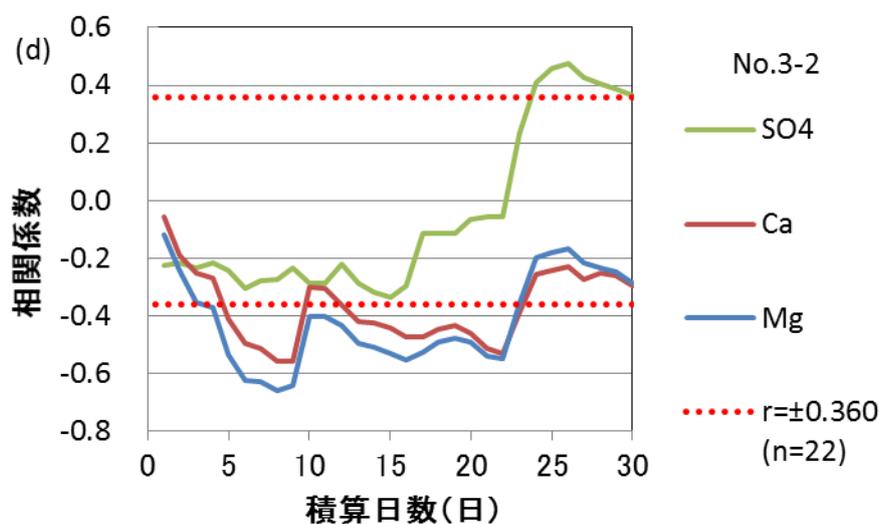


図 5-7(d) No.3-2 浸出水における期間浸入水量と  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ および  $\text{Mg}^{2+}$ の各濃度との相関係数

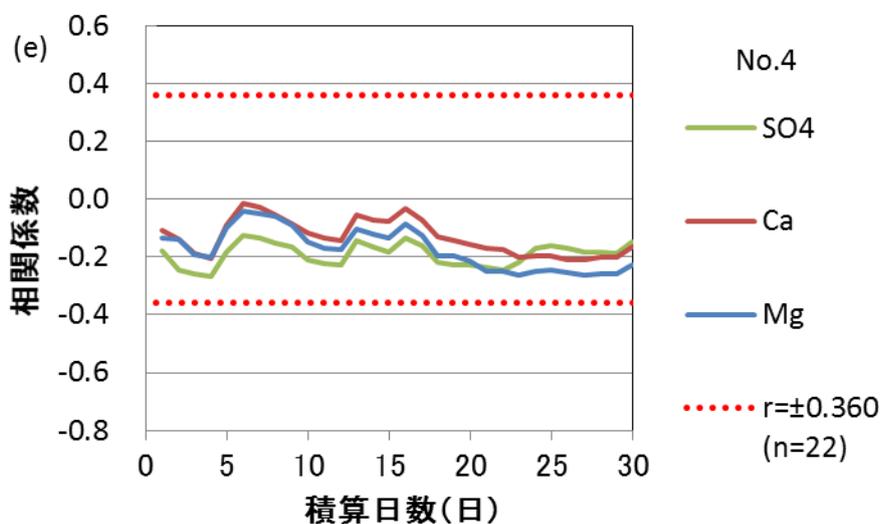


図 5-7(e) No.4 浸出水における期間浸入水量と  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  および  $\text{Mg}^{2+}$  の各濃度との相関係数

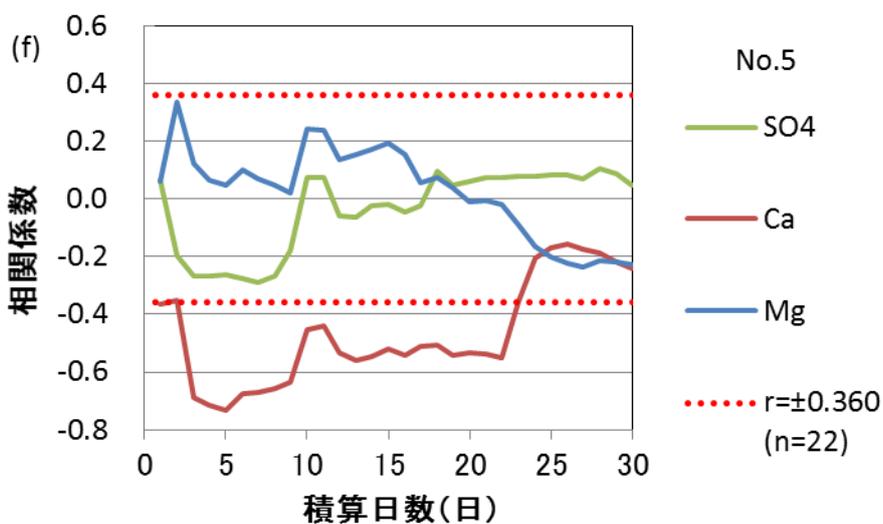


図 5-7(f) No.5 浸出水における期間浸入水量と  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  および  $\text{Mg}^{2+}$  の各濃度との相関係数

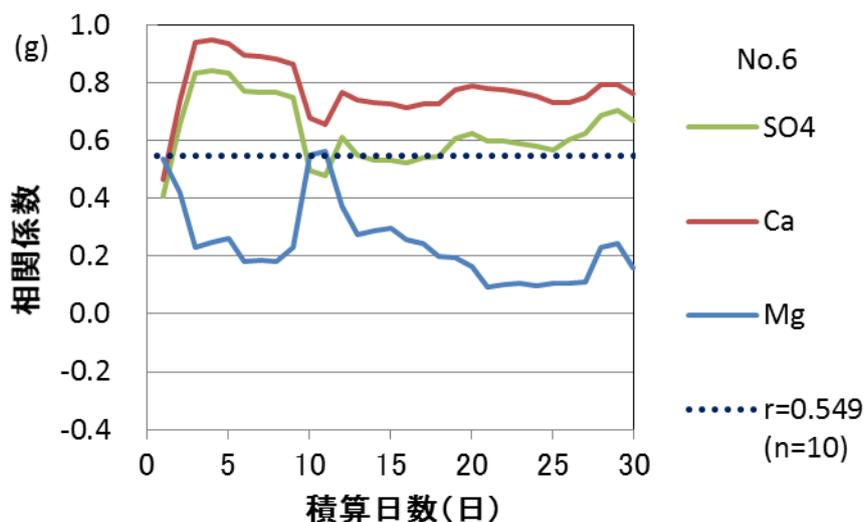


図 5-7(g) No.6 浸出水における期間浸入水量と  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  および  $\text{Mg}^{2+}$  の各濃度との相関係数

図 5-7(g) に示した No.6 では  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  は積算日数に伴う相関係数の増減が類似しており、 $\text{Mg}^{2+}$  に比べると相関に有意性が認められる積算日数が多い。また、 $\text{SO}_4^{2-}$  よりも  $\text{Ca}^{2+}$  の方が高い相関を示した。4.4 と 4.5 に述べたとおり、第 6 区画は第 I 期の好気性分解期に相当する。埋立層内の雰囲気は嫌気性に移行途中であるが、好気性が大部分を占める。そのため、 $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  は層内雰囲気の影響を受けにくく、高い相関係数を示したことは妥当といえる。しかし、 $\text{SO}_4^{2-}$  の相関が  $\text{Ca}^{2+}$  に比べて低かったのは、層内の一部で  $\text{SO}_4^{2-}$  の還元が進行し、 $\text{Ca}^{2+}$  よりも溶出性が低下していることが考えられる。一方、 $\text{Mg}^{2+}$  は有機物分解で生ずる  $\text{CO}_2$  と反応して難溶性の炭酸塩 ( $\text{MgCO}_3$ ) を形成する性質がある<sup>21)</sup>。そのため、炭酸塩形成反応が浸出水中の  $\text{Mg}^{2+}$  濃度を変化させるように作用したため、浸入水量との相関が低下したと考えられる。 $\text{Ca}^{2+}$  も炭酸塩を形成する性質があるが、 $\text{Mg}^{2+}$  に比べて保有水中の濃度が高いため、炭酸塩形成よりも洗い出しの方が優勢であると推察される。

図 5-7 (f) に示した No.5 では、3 種のイオンとも積算日数に伴う相関係数の増減は積算日数が 16 日間までは類似していたが、全ての積算日数において  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Mg}^{2+}$  のついては有意性が認められなかった。第 5 区画の埋立終了前までは第 II 期の嫌気性酸発酵期に相当する。 $\text{SO}_4^{2-}$  の相関係数の低下は、微生物反応による還元反応が保有水の濃度に影響するためと考えられる。

図 5-7(e) に示した No.4 では、3 種のイオンとも積算日数に伴う相関係数の増減は積算日数が 18 日間までは類似していたが、有意性はなかった。第 4 区画は第 III 期の

メタン生成発達期に相当するため、 $\text{SO}_4^{2-}$ は $\text{H}_2\text{S}$ に還元され<sup>15,16)</sup>、 $\text{Ca}^{2+}$ は難溶性の硫化物を形成しやすい期間である<sup>14)</sup>。さらに、5.3において第4区画の埋立廃棄物層内には透水性の高いゾーンが少ないことがCIの相関分析から判明している。そのため、層内雰囲気は保有水に与える影響が大きく、浸入水水量とイオン濃度の相関を低下させる原因と考えられる。

図5-7(c)と(d)に示したNo.3-1とNo.3-2については、3種のイオンとも積算日数に伴う相関係数の増減が類似していた。No.3-1とNo.3-2ともに $\text{Ca}^{2+}$ と $\text{Mg}^{2+}$ の相関係数は全ての積算日数において近値であったが、 $\text{SO}_4^{2-}$ の相関は $\text{Ca}^{2+}$ と $\text{Mg}^{2+}$ に比べて全体的に低い。特にNo.3-2については、 $\text{Ca}^{2+}$ と $\text{Mg}^{2+}$ では相関の有意性がなくなる24日間以降の積算日数において、 $\text{SO}_4^{2-}$ は有意な正の相関を示している。第3区画は第IV期のメタン生成定常期に相当するため、第III期に形成された硫化物が層内雰囲気の好気化とともに次第に酸化される<sup>19,20)</sup>。保有水水位が高い本研究対象処分場の場合、埋立廃棄物層内への溶存酸素の供給は主に浸入水に含まれる溶存酸素による。短期間の浸入水水量の増加では埋立層内への酸素供給量は少ない。しかし、長期的に浸入水水量が多くなり、酸化反応に十分な酸素が供給されると、層内の $\text{SO}_4^{2-}$ 量が増えて溶出しやすくなる。その結果、24日間以上の積算日数においては、 $\text{SO}_4^{2-}$ は有意な正の相関を示した可能性がある。5.3で比較したとおり、No.3-1の集水エリアはNo.3-2よりも透水性が高透水ゾーンの影響が小さいため、No.3-1の $\text{SO}_4^{2-}$ の相関係数は有意性がある値までには達していない。

図5-7(b)に示したNo.2では、3種のイオンとも相関係数は全ての積算日数で有意性がなかった。第2区画は第IV期に相当するが、4.5.2で述べたとおり、層内の一部は第V期にむけて好気化が進んでいる。即ち、浸入水水量が増加すると高透水ゾーンに溶存酸素が供給され、硫化物の酸化反応が進むことで、 $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ の濃度を増加させる作用が働く。さらに、高透水ゾーンでは希釈により濃度減少する作用も働くことから、これらの作用が相反することで相関の有意性を妨げていると考えられる。一方、 $\text{Mg}^{2+}$ については硫化物を形成しないため、層内雰囲気の影響は関係しない。しかし、第2区画は他の埋立区画に比べてCECが大きいことを確認しており<sup>12,13)</sup>、5.4で述べた陽イオン交換作用がカチオンである $\text{Mg}^{2+}$ の溶出を妨げている可能性がある。

図5-7(a)に示したNo.1では、3種のイオンとも積算日数に伴う相関係数の増減が類似していたが、全体的に浸入水水量と $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ のそれぞれの相関よりも $\text{SO}_4^{2-}$ の相関が低かった。第1区画は第V期の土壌化期に達しており、第III期に形成した硫化物が酸化されて生ずる硫酸塩の中で、溶解度の低い塩の溶出が継続していることが $\text{SO}_4^{2-}$ の相関を低下させている要因の一つと推察される。

5.6 有機物分解生成物による塩類溶出への影響

期間浸入水量と浸出水中の IC と NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の相関係数を埋立区画別に図 5-8(a)~(g)に示した。これらのイオン種は埋立廃棄物中に塩類として含有されているだけでなく、IC は有機物分解で生成され<sup>8,22)</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>はタンパク質等の有機窒素化合物の生物分解により生成される点が他のイオンと異なる<sup>14,23)</sup>。

これら2種のイオンは、水に溶解すると下式のような電離平衡の状態が存在し<sup>18,24)</sup>、それぞれの存在割合は pH により変化する。式①の IC については、図 4-10 に示した中性から弱アルカリ性の pH 範囲では HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>の形態が大部分を占めるが、CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>も存在する<sup>24)</sup>。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>については、式②の平衡定数(25℃)は 1.81×10<sup>-5</sup>(pKb=4.75)であるため、大部分は電離していないアンモニア(NH<sub>3</sub>)の形態で遊離している<sup>18)</sup>。NH<sub>3</sub>の 1 atm における水への溶解度は 34.6 wt.%であり<sup>18)</sup>、電離しない状態であっても水にきわめて溶けやすい性質を有する。

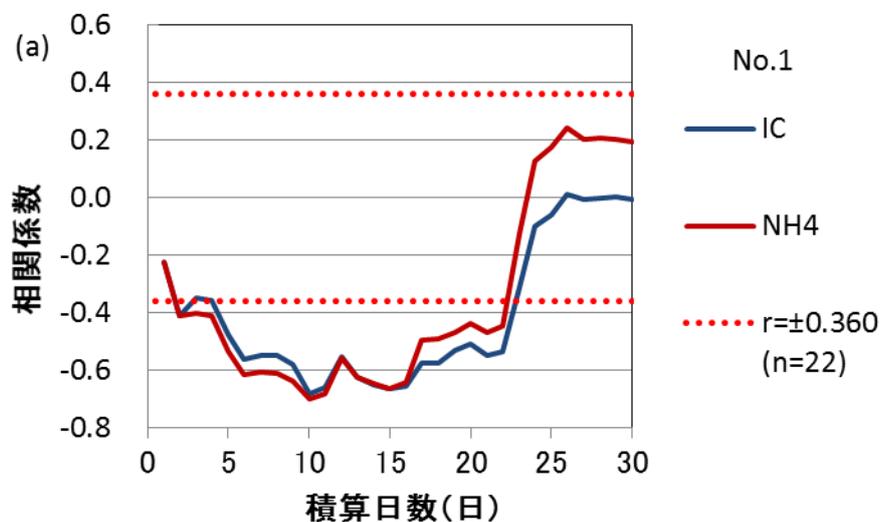
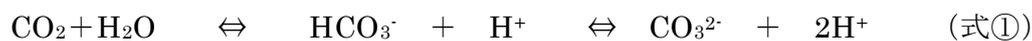


図 5-8(a) No.1 浸出水における期間浸入水量と IC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の各濃度との相関係数

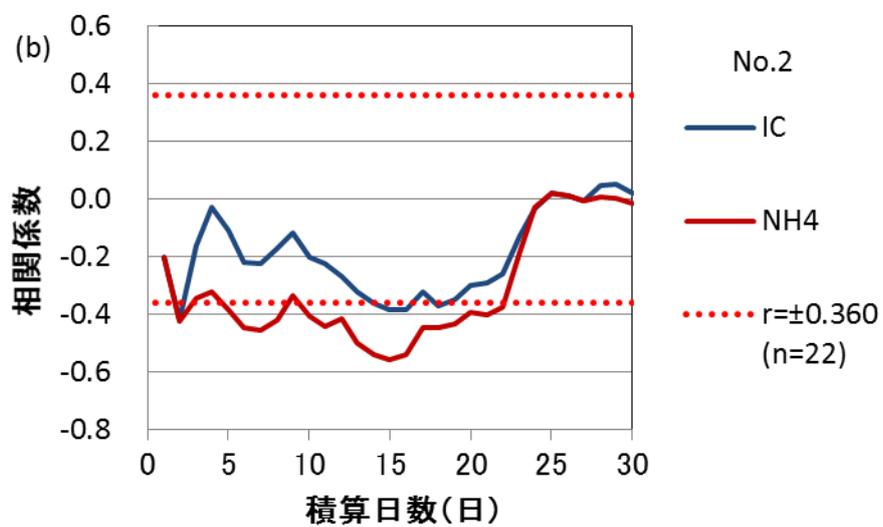


図 5-8(b) No.2 浸出水における期間浸入水量と IC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の各濃度との相関係数

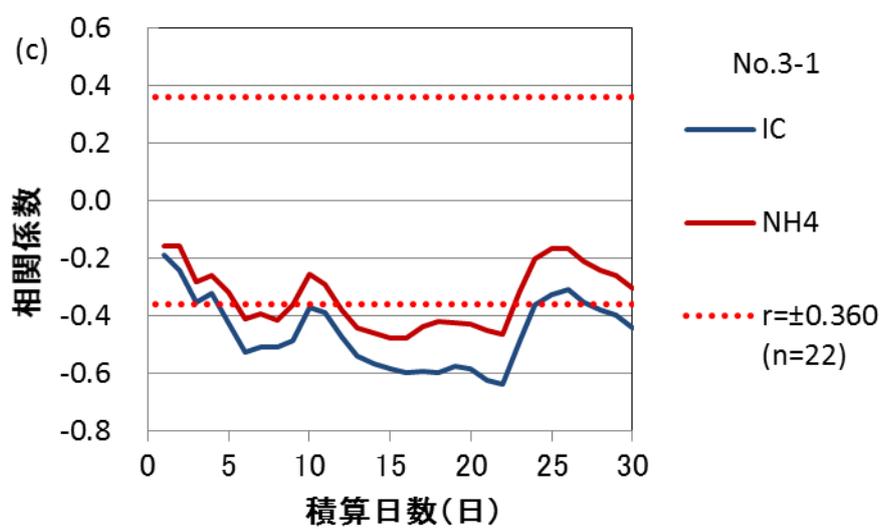


図 5-8(c) No.3-1 浸出水における期間浸入水量と IC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の各濃度との相関係数

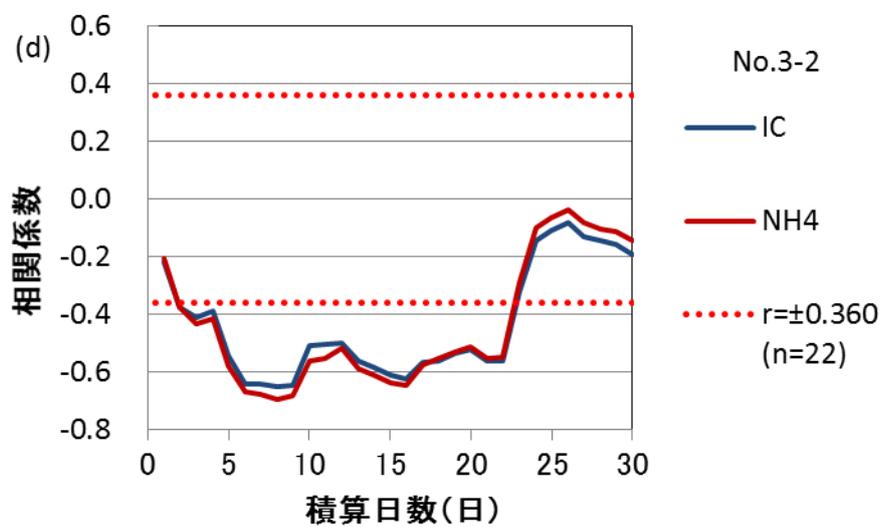


図 5-8(d) No.3-2 浸出水における期間浸入水量と IC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の各濃度との相関係数

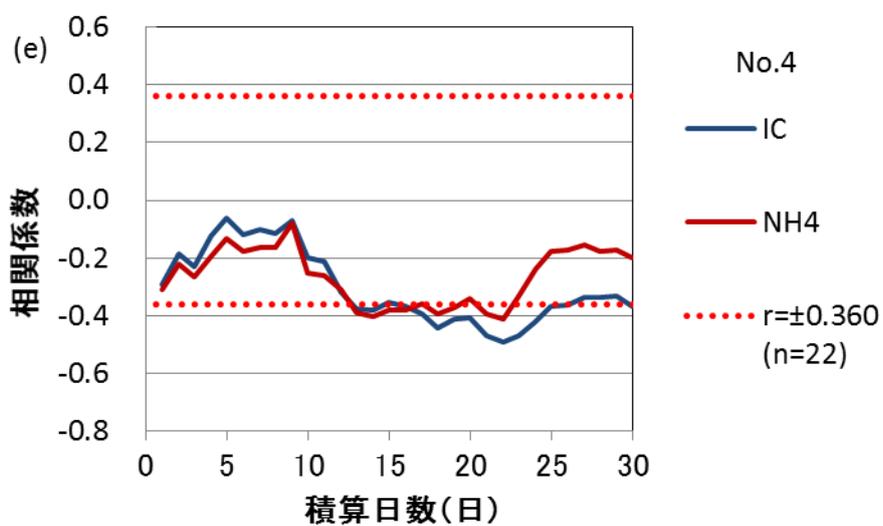


図 5-8(e) No.4 浸出水における期間浸入水量と IC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の各濃度との相関係数

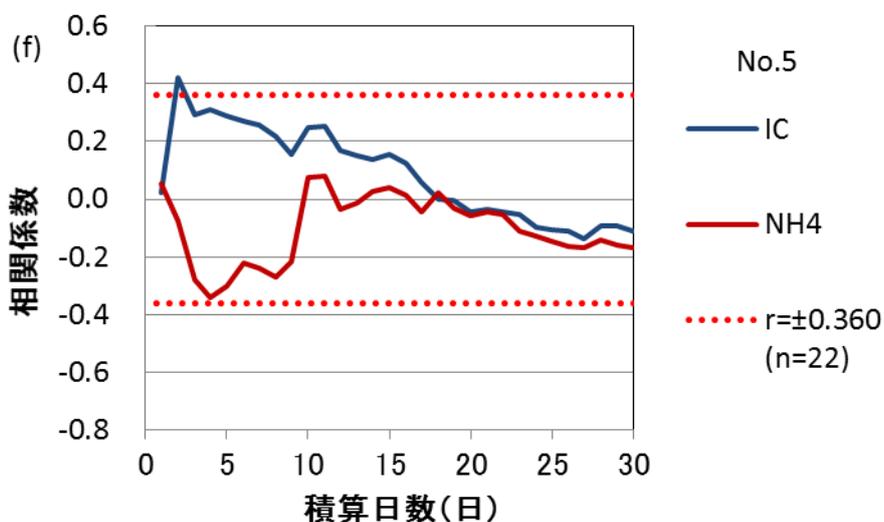


図 5-8(f) No.5 浸出水における期間浸入水量と IC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の各濃度との相関係数

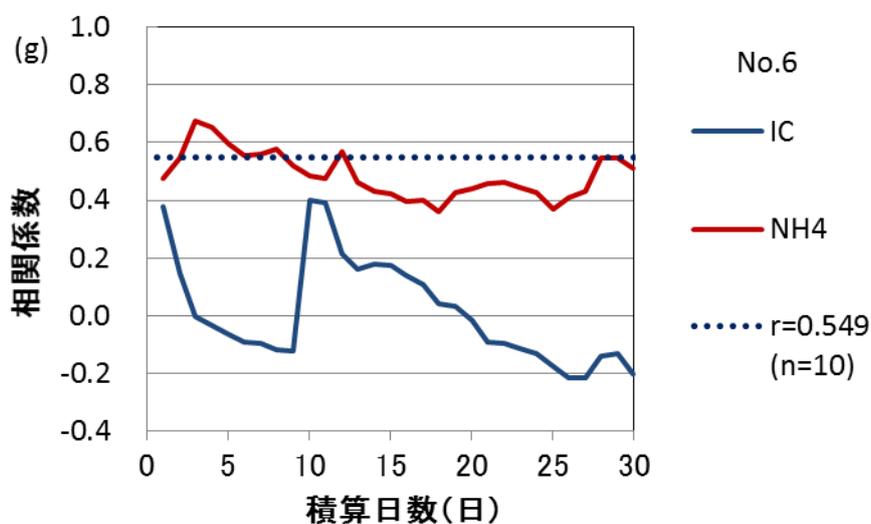


図 5-8(g) No.6 浸出水における期間浸入水量と IC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の各濃度との相関係数

図 5-8 (g)に示した No.6 では、IC に有意な相関がみられず、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>についても有意性が確認できる積算日数は少なかった。第 I 期の好気性分解期に相当する第 6 区画では、有機物分解で CO<sub>2</sub> が大量に発生して保有水中の濃度を変動させるため、浸入

水水量と浸出水中の IC 濃度との相関が低下する。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>については、有機窒素化合物の分解で生ずる量よりも、埋立廃棄物中に塩として含まれる量が多く、かつ、きわめて水に溶解しやすい性質から、IC に比べて高い相関を示したと考えられる。

図 5-8(f)に示した No.5 では、積算日数が 9 日間までは CS と NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の相関係数は正負で正反対の挙動を示したが、10 日間以上の積算日数では増減挙動およびそれらの値は類似した。第 II 期の嫌気性酸発酵期に相当する第 5 区画では、埋立廃棄物層内に有機物分解由来の CO<sub>2</sub>が多量に存在するため、正の相関を示したと推察できる。しかし、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の相関係数は負になることが多く、IC とは異なる傾向を示した。これは、第 5 区画においては NH<sub>4</sub><sup>+</sup>を生成する生物反応が活性化しておらず、浸出水中の大部分の NH<sub>4</sub><sup>+</sup>は廃棄物中の水溶性塩の溶解に由来するものであるためである。一般的には、第 II 期に相当するこの期間では有機窒素化合物分解による NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の生成量が多くなるが、研究対象処分場では第 4 区画で生成される NH<sub>4</sub><sup>+</sup>量は少ない。この詳細については第六章で述べる。IC と NH<sub>4</sub><sup>+</sup>共に有意性が認められる相関係数は少なく、浸入水水量との相関は低い。

No.1~4 については、積算日数に対する相関係数の増減（図 5-8(a)~(e)）は、IC と NH<sub>4</sub><sup>+</sup>で類似していた。このことから、第 1 区画から第 4 区画において、浸出水中に含まれるこれらのイオンの大部分が有機窒素化合物の分解生成物由来である可能性が高い。つまり、図 5-8 において高い相関を示すということは、高透水ゾーン部において、有機窒素化合物分解による濃度変動よりも、浸入水水量増加による濃度減少作用の方が相対的に強いことを示している。

No.1 と No.3-2 において、相関が他の浸出水よりも高い結果となった。No.1 については、第 1 区画が第 V 期（土壌化期）に到達しているため、有機物分解の活性が低下していることを考えると、浸入水水量の影響を強く受けることは理解しやすい。No.3-2 については、第 3 区画が第 IV 期であることを考慮すると、一般的には生物分解で生成される IC と NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の浸出水への溶脱が継続している時期であり、相関に悪影響を及ぼすはずである。しかし、5.3 で述べたとおり No.3-2 の集水エリアは高透水ゾーンの寄与が大きく、生物分解による IC と NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の生成よりも、浸入水水量の影響が優勢であると考えられる。そのため、No.3-2 に比べて透水ゾーンの偏在が少ない No.3-1 の相関係数は No.3-2 に比べて低い。

図 5-8(b)の No.2 において、IC の相関が NH<sub>4</sub><sup>+</sup>に比べて低い理由としては、第 2 区画の埋立廃棄物層内の一部の好気化が進行しているため、その部分の好気性分解で発生した CO<sub>2</sub>が保有水に溶解して濃度を変動させていることが一つの要因と考えられる。特に、高透水ゾーンは浸入水の溶存酸素が供給されやすく、有機物分解の進行が早いため、嫌気性分解から好気性分解への移行も早期に進むと推察される。

### 5.7 まとめ

本章では埋立層内への期間浸入水水量と浸出水の各種イオン濃度との相関分析を行い、以下の結論が得られた。

- (1) 埋立初期の区画では期間浸入水量が増加すると浸出水中の塩分濃度が増加する傾向がある。これは、埋立区画の大部分を貯留水が占め、埋立廃棄物層が易溶性塩分を豊富に含有することと関係する。浸入水水量が増加すると塩分濃度が高い保有水が底部の集水設備や貯留水深層部に流入するため、浸出水の塩分濃度が増加する。
- (2) 埋立終了区画や埋め立てが半分以上進んだ区画においては、期間浸入水水量が増加すると浸出水中の塩分濃度が低下する傾向がある。これは、埋立廃棄物層が不均質なことから層内透水ゾーンの偏在を生じ、高透水ゾーンは水の入れ替わりが激しいため塩類洗い出しが進んでいることによる。さらに、浸入水水量が増加すると透水ゾーンを移動する時間も短くなり、塩類の溶解が進まないまま排水される浸出水が増えることと、保有水浅層部の塩分濃度が低い水が高透水ゾーンに供給されやすくなるためと推測される。
- (3) 埋立廃棄層から溶出しやすいといわれる  $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$ および  $\text{K}^+$ は、浸入水水量との相関係数がそれぞれ異なり、埋立廃棄物が有する陽イオン交換能が影響していることが示唆された。
- (4)  $\text{SO}_4^{2-}$ と  $\text{Ca}^{2+}$ については、層内雰囲気の変化による微生物反応が保有水濃度に影響を及ぼし、浸入水水量と浸出水濃度との相関関係を低下させた。
- (5)  $\text{Mg}^{2+}$ は有機物分解で生ずる  $\text{CO}_2$ と難溶性の炭酸塩を形成する反応が、浸入水水量と浸出水濃度との相関関係を低下させた。
- (6)  $\text{IC}$ と  $\text{NH}_4^+$ は有機窒素化合物の生物分解で生成されることにより、浸入水水量と浸出水濃度との相関を低下させる。しかし、有機窒素化合物の残存量が少ない第1区画と、高透水ゾーンの寄与が大きいNo.3-2浸出水の集水エリアにおいては、生物分解による影響に比べて浸入水水量変化による影響が強く、高い相関があった。

### 参考文献

- 1) 福井博,高橋通正,斉藤邦彦,坂本広美:最終処分場の廃止時期の判定における浸出液採取方法の検討,第17回廃棄物学会研究発表会講演論文集,pp.874-876(2006).
- 2) 栗原正憲,大石修:最終処分場浸出水の成分濃度の時系列変化と降水量との関係,第18回廃棄物学会研究発表会講演論文集,pp.707-709(2007).
- 3) 長森正尚,川寄幹生,小野雄策,河村清史,山田正人,井上雄三,石垣智基,小野芳朗:管理型最終処分場の廃止基準に関する考察(4),第16回廃棄物学会研究発表会講演論文集,pp.1001-1003(2005).
- 4) 香村一夫,黒川雅裕,横瀬隆司,伊藤貴宏,竹内睦雄,田中宏和:比抵抗法による廃棄物層内水みち探査法の開発とその有効性,物理探査,Vol.69,No.3,173-183(2016).
- 5) 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,Vol.14, No.3,pp.123-132(2003).
- 6) 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,Vol.21, pp.49-65(1994).
- 7) 柴田公子,福田哲郎,弘中博史,神田文雄,山本征治,前田達男:一般廃棄物最終処分場における浸出水の水質の推移について,山口県衛生公害研究センター業績報告,Vol.18,pp.56-59(1997).
- 8) 山田正人,(最終処分場研究会)関東処分組:廃棄物最終処分場のための現場調査法 現場屋がつくった現場調査法,サムハウパブリッシング,pp.8-16,16-23(2016).
- 9) 鶴田正樹,香村一夫,馬場直紀,山中麻衣,志賀美英:九州南部に分布するシラスの有する重金属および有機汚濁物質吸着特性の検討—シラス採取層準とそれに伴う特性の相異について—,用水と廃水,Vol.51,No.8,pp.649-657(2009).
- 10) 原田靖生:土壌の陽イオン・陰イオン交換容量—測定法とその背景—,日本土壤肥科学雑誌,Vol.55,No.3,pp.273-283(1984).
- 11) 藤貫正,藤井紀之,武司秀夫:粘土の陽イオン交換容量(CEC)の測定と交換性陽イオンの定量,地質ニュース,地質研究所,No.156,pp.10-14(1967).
- 12) 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,pp.425-426(2016).
- 13) 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—層構成物の陽イオン交換能(CEC)に着目して—,平成28年度廃棄物資源循環学会春の研究発表会,P-023(2016).
- 14) T.H. Christensen, R. Cossu, R. Stegmann: Landfilling of Waste: Leachate, Elsevier Applied Science, pp.65-88(1992).

- 15) 石本真：アーバンクボタ，(株)クボタ, No.23, pp.20-25(1984).
- 16) 林正男，宗清生，宇都宮彬：水質特性と硫化水素の発生ポテンシャル, 日本環境衛生センター所報論文集, No.36, pp.74-79(2009).
- 17) 小野雄策, 田中信壽：建設廃棄物埋立における硫化水素ガス発生の可能性と管理法に関する考察，廃棄物学会論文誌, Vol.14, No.5, pp.248-257(2003).
- 18) 株式会社 東京化学同人：化学辞典（第 1 版），株式会社 東京化学同人, pp.94-95, 1515(1994).
- 19) 林正男，宗清生，宇都宮彬：水質特性と硫化水素の発生ポテンシャル, 日本環境衛生センター所報論文集, No.36, pp.74-79(2009).
- 20) 古坂澄石：アーバンクボタ，(株)クボタ, No.25, pp.32-41(1986).
- 21) 寺島奏：都市廃棄物埋立地における汚濁物の挙動—現象と基礎，ならびに無機汚濁物の挙動—, 廃棄物学会誌, Vol.7, No.2, pp.148-167(1996).
- 22) 北川政美：好気性生物処理技術の特徴と発展の流れ，エバラ時報, No.228, pp.13-22(2010).
- 23) 日本光合成学会：窒素循環，  
<http://photosyn.jp/pwiki/index.php?%E7%AA%92%E7%B4%A0%E5%BE%AA%E7%92%B0> (閲覧日 2015 年 10 月 18 日).
- 24) 石井雅男, 吉川久幸, 松枝秀和：電量滴定法による海水中の全炭酸濃度の高精度分析および大気中の二酸化炭素と海水中の全炭酸の放射性炭素同位体比の測定, 気象研究所技術報告, No.41, pp.5-7(2000).



## 第六章

有機物分解プロセス等の長期的因子が  
塩類溶出に及ぼす影響

### 6.1 はじめに

第一章の 1.3 で記したように過去の研究において、有機物分解プロセスの変化や生成物が一部の無機イオンの溶出に影響を与えることが報告されている。また、第四章の 4.4 と 4.5 において、研究対象処分場の浸出水が既往の知見と類似した特徴を示した。これにより、埋立開始からの経過時間が異なるそれぞれの埋立区画を、有機物分解プロセスの 5 つのステージに区分することができた。さらに、第五章では期間浸入水量と浸出水中の主要イオン濃度の相関分析を行い、相関の低い一部のイオン種については、有機物分解に伴う埋立層内雰囲気の変化や生成物による因子が相関を阻害している可能性が示唆された。

そこで本章においては、浸出水中のイオン濃度の経時変化から、長期的な塩類溶出の特徴を明らかにしたうえで、有機物分解プロセスとの関連性について考察する。

なお、第五章で示されたとおり、No.3-2 浸出水の集水エリアには他区画に比べて透水性が高いゾーンの影響が大きいため、No.3-2 は短期的な因子である期間浸入水量の影響を受けやすい。そのため、本章では浸入水水量変化の影響を受けにくい No.3-1 を第 3 区画の代表として取り扱うこととする。

### 6.2 一価イオンの溶出特性

浸出水中の主要イオンの中で、電離して一価のイオンとなるのは  $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$  および  $\text{NH}_4^+$  である。この中で、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$  および  $\text{K}^+$  は有機物を構成する主要元素ではなく、大部分は廃棄物中の塩として埋め立てされたものである。また、層内雰囲気の影響を受けにくく<sup>1)</sup>、埋立廃棄物から溶出しやすいといわれている<sup>2,3)</sup>。一方、 $\text{NH}_4^+$  は埋立廃棄物中に塩として存在するだけでなく、有機窒素化合物の生物分解で生成し<sup>4,5)</sup>、第五章で述べたとおり電離平衡の状態で存在する。一方、電離していない形態の  $\text{NH}_3$  も水に溶けやすい<sup>6)</sup>。なお、有機窒素化合物の分解により生成された  $\text{NH}_4^+$  が保有水中に溶解する現象は、廃棄物中の塩類が溶解する現象とは異なり、本来の「溶出」の意味とは異なる。しかし、本論文では煩雑性を避けるため、論旨に支障がないかぎり、これらの現象を合わせて広義の「溶出」と表記する。

#### 6.2.1 易溶出性イオンの溶出特性

埋立開始からの経過時間と浸出水中の  $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$  および  $\text{K}^+$  の各種イオン濃度との関係をそれぞれ図 6-1～3 に示した。図は埋立途中(a)と埋立終了後(b)に分けて表記している (a : n=27, b : n=93)。埋立途中の図(a)には第 6 区画と埋立途中における第 5 区画の浸出水のデータをプロットし、埋立終了後の図(b)には埋立終了後の第 5 区画と第 1～4 区画の浸出水のデータをプロットした。図(a)は第 I 期と第 II 期に相当するため、有機物の好気性分解により埋立層内の酸素濃度が低下し、層内雰囲気の嫌気・還元化が進行する期間である。さらに、この期間は新たな廃棄物が区画内に埋め立てされるため、系外から継続的に水溶性塩類が供給される。一方、図(b)は第

Ⅲ～Ⅴ期に相当し、系外からの塩類供給はない。そして、埋立廃棄物層内は嫌気・還元状態から、次第に好気・酸化状態へと回復する期間である。

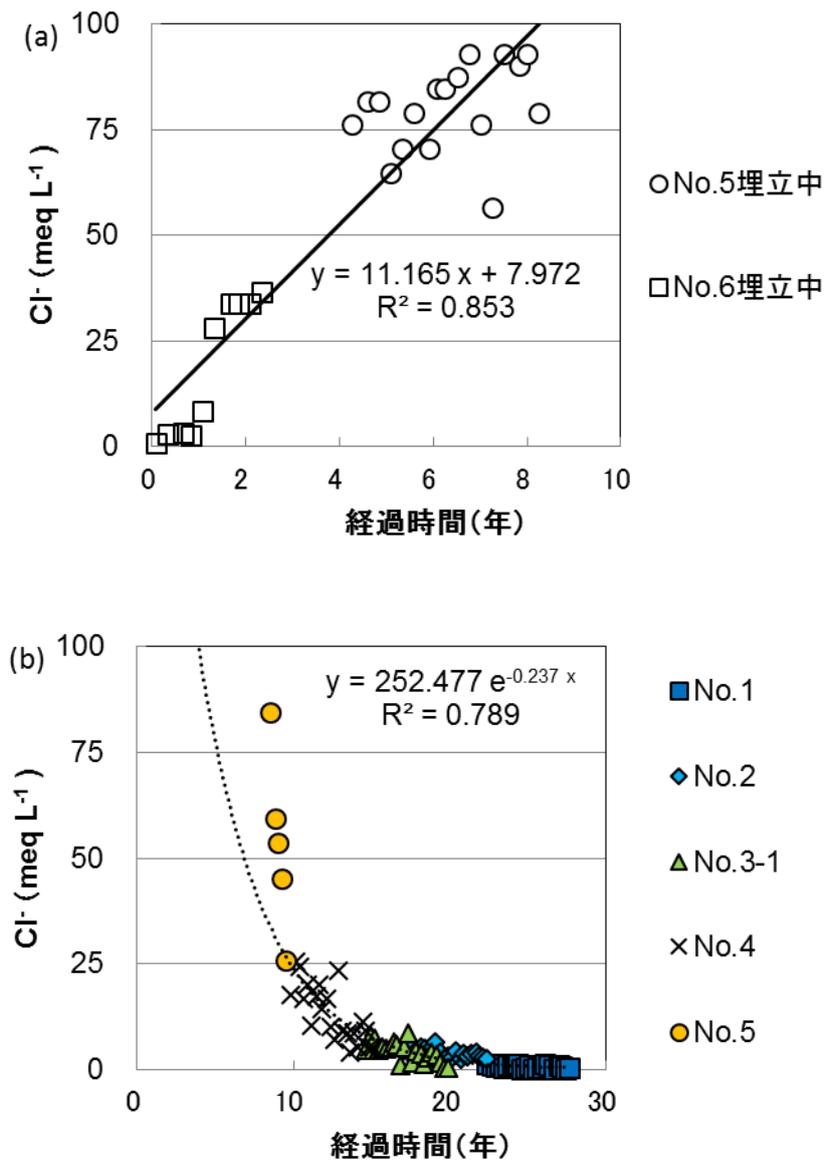


図 6-1 埋立開始からの経過時間と浸出水中の Cl<sup>-</sup>濃度との関係

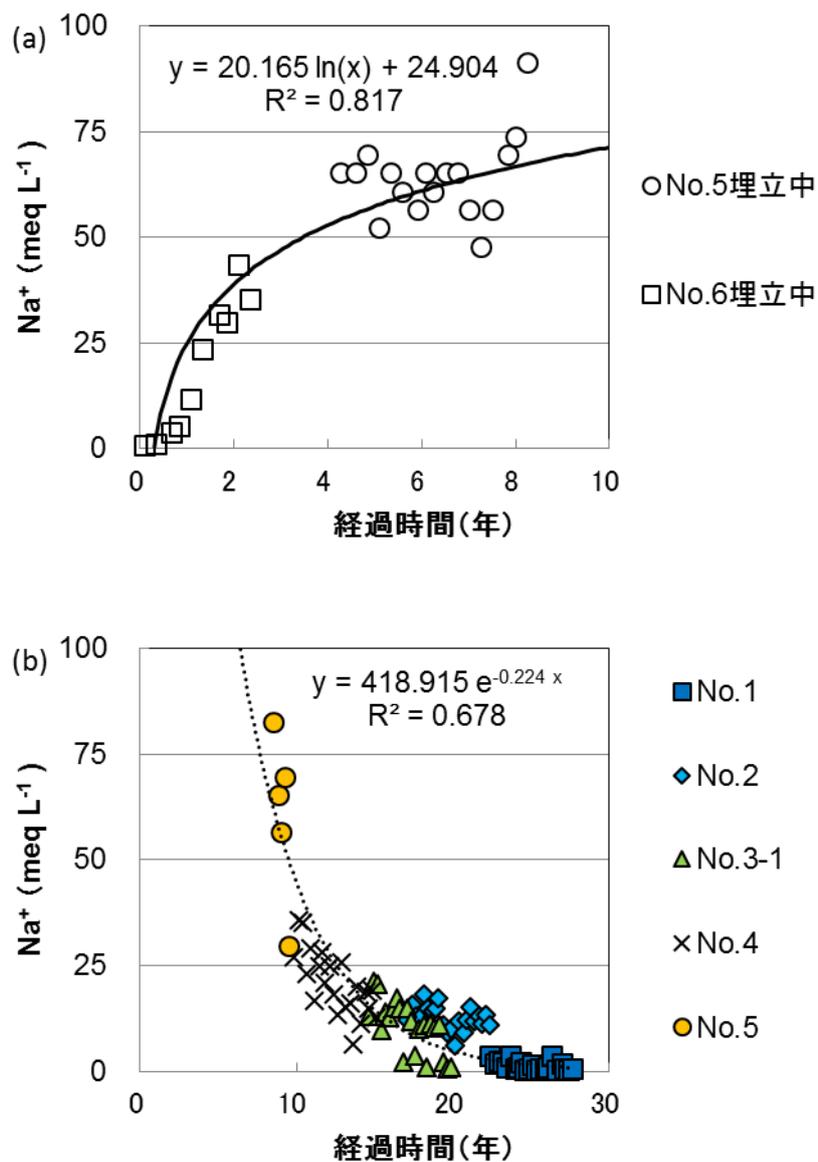


図 6-2 埋立開始からの経過時間と浸出水中の  $\text{Na}^+$ 濃度との関係

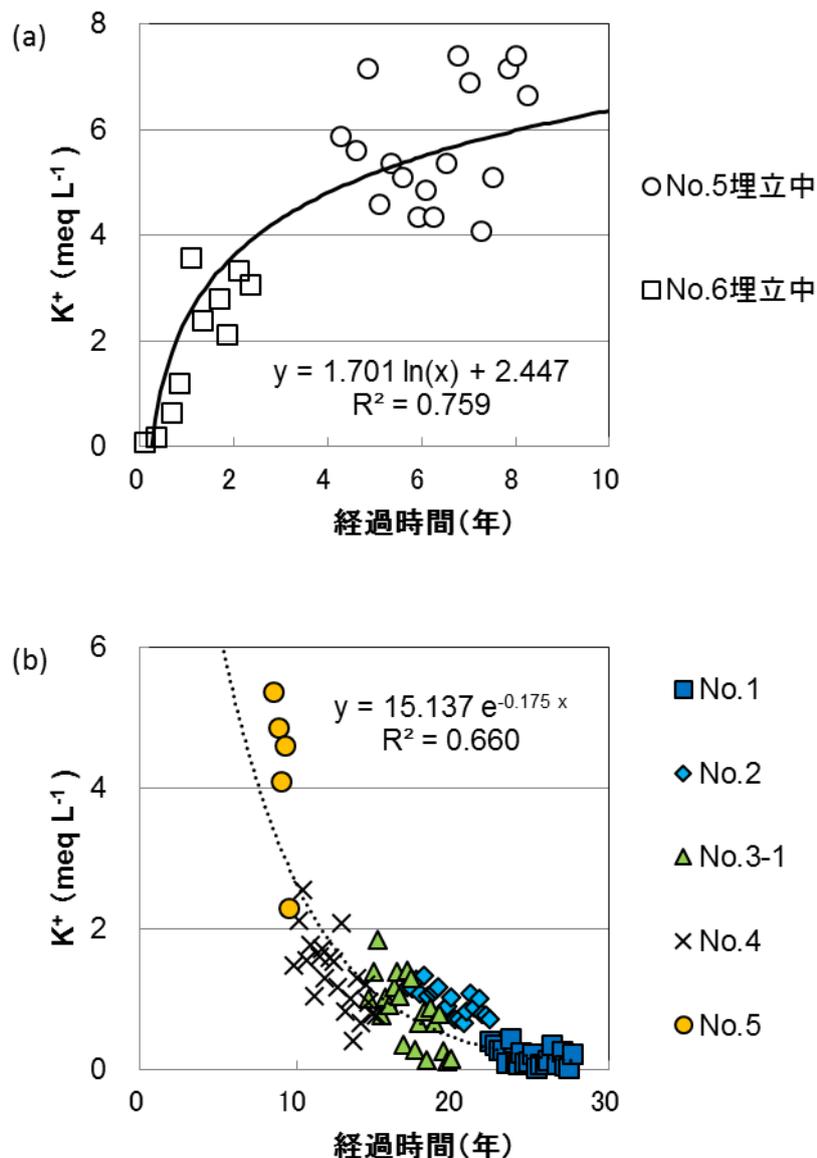


図 6-3 埋立開始からの経過時間と浸出水中の  $K^+$ 濃度との関係

浸出水中の  $Cl^-$ 、 $Na^+$ および  $K^+$ は、埋立途中においては時間経過に伴い濃度増加した（図 6-1(a)、図 6-2(a)、図 6-3(a)）、埋立終了後においては指数関数的に濃度減少した（図 6-1(b)、図 6-2(b)、図 6-3(b)）。埋立区画が異なっても連続的な濃度変化がみられたことは、それぞれの区画に埋め立てされた廃棄物中の単位体積あたりの塩分量に差が少なく、埋立層内の雰囲気の違いが溶出性に影響しないことを示す。即ち、

層内が嫌氣的となっても溶出が阻害されることはなく、これらのイオンが溶出しやすいとした過去の研究報告<sup>1-3)</sup>と整合する。

埋立途中における浸出水の塩分濃度増加は、継続的に埋め立てられる廃棄物中の水溶性塩が保有水や貯留水に速やかに溶出し、その溶出量が浸出水として系外排除される量よりも多いためである。ただし、保有水や貯留水は全体が一様な濃度ではなく、鉛直方向に塩分の濃度勾配を形成しており、塩分を高濃度に含み比重の大きい保有水が浸出水として排水されることは、第5章の5.2で説明した<sup>7)</sup>。

図6-1(a)、図6-2(a)および図6-3(a)における、経時的な濃度増加挙動をイオン種別に比較すると、Cl<sup>-</sup>は直線的に増加しているが、Na<sup>+</sup>とK<sup>+</sup>の濃度増加は時間経過とともに緩やかになり、増加速度に鈍化がみられた。また、図6-1(b)、図6-2(b)および図6-3(b)における濃度減少では、全てが指数関数的に減少しているが、近似式から算出した半減期は表6-1のとおりであり、Cl<sup>-</sup>が最も短く、それに比べてNa<sup>+</sup>とK<sup>+</sup>は長い。つまり、これらのイオンは他のイオンに比べて溶出しやすいが、その溶出性には僅かな差があり、Na<sup>+</sup>とK<sup>+</sup>よりもCl<sup>-</sup>が溶出しやすい。

表 6-1 浸出水中の Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>および K<sup>+</sup>の各濃度の半減期

イオン	半減期 (年)
Cl <sup>-</sup>	2.92
Na <sup>+</sup>	3.12
K <sup>+</sup>	3.96

例として No.3-1 と No.4 について、Na<sup>+</sup>濃度に対する Cl<sup>-</sup>濃度と、K<sup>+</sup>濃度に対する Cl<sup>-</sup>濃度の関係をそれぞれ図6-4と図6-5に示した。図には線形近似線を併せて表記した。同じ区画の浸出水であっても、イオン濃度に大きな差異があるのは、第五章の5.3で述べた期間浸入水量による影響と考えられる。そして、近似直線の傾きはそれぞれのイオン種の溶出量の比を表す。図6-4、図6-5とも、No.4に比べてNo.3-1の傾きが小さい。このことはNa<sup>+</sup>やK<sup>+</sup>に対するCl<sup>-</sup>の溶出量が第4区画よりも第3区画の方が少ないことを示している。

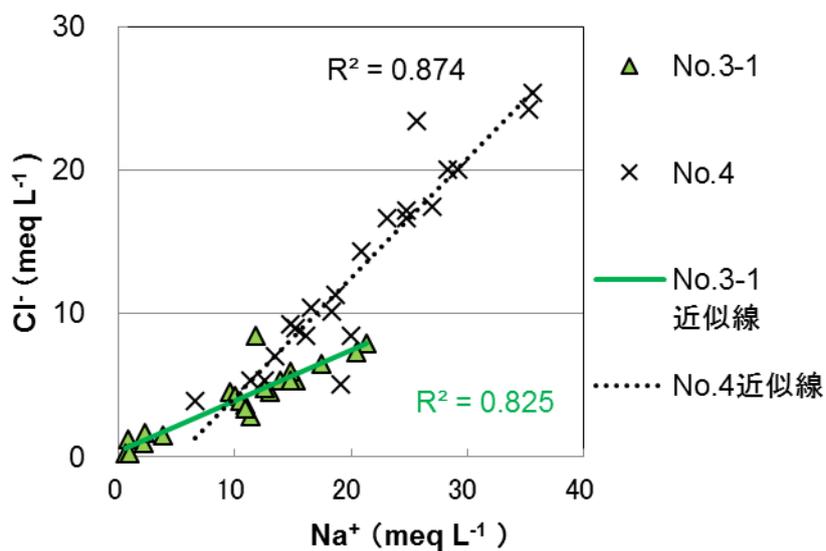


図 6-4 No.3-1 と No.4 浸出水における  $\text{Na}^+$ 濃度と  $\text{Cl}^-$ 濃度の関係

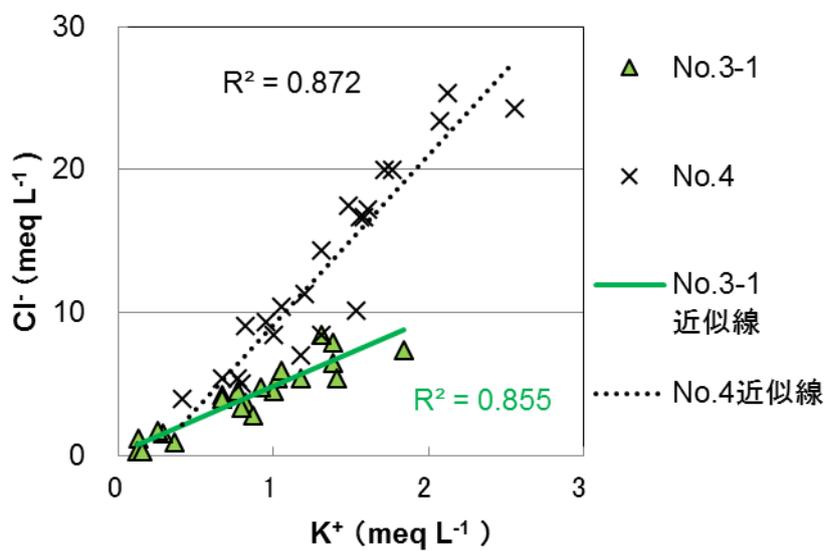


図 6-5 No.3-1 と No.4 浸出水における  $\text{K}^+$ 濃度と  $\text{Cl}^-$ 濃度の関係

No.1~5 の全ての浸出水についても同様に、 $\text{Na}^+$ 濃度に対する  $\text{Cl}^-$ 濃度と、 $\text{K}^+$ 濃度に対する  $\text{Cl}^-$ 濃度の関係を埋立区画別に線形近似し、得られた近似式の傾きを表 6-2 に示した。 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ ともに、埋立開始からの経過時間が長い区画ほど傾きが小さい。このことから、 $\text{Cl}^-$ が早期に溶出するのに対し、 $\text{Na}^+$ と  $\text{K}^+$ の溶出は遅いことが示される。

第五章の 5.4 において、易溶出性イオンの溶出性に違いがみられる原因として、埋立廃棄物による陽イオン交換能が影響している可能性を述べた。本節においても、カチオンである  $\text{Na}^+$ と  $\text{K}^+$ がアニオンである  $\text{Cl}^-$ よりも溶出性が低いことが判明したことから、カチオン交換作用は廃棄物固相からの溶脱や、層内での移動を妨げる作用があると考えられる。

表 6-2 浸出水中の  $\text{Na}^+$ および  $\text{K}^+$ に対する  $\text{Cl}^-$ 濃度の関係を線形近似したときの傾き

	$\text{Na}^+$	$\text{K}^+$
No.1	0.235	1.92
No.2	0.298	3.81
No.3-1	0.349	4.64
No.4	0.830	11.9
No.5	0.952	16.0

### 6.2.2 アンモニウムイオンの溶出特性

埋立開始からの経過時間と浸出水中の  $\text{NH}_4^+$ 濃度との関係を図 6-6 に示した。

図 6-6(a)に示した埋立途中においては、 $\text{NH}_4^+$ 濃度は  $\text{Cl}^-$ と同じく経過時間に対して直線的に増加した。 $\text{NH}_4^+$ はカチオンであるが、先述したとおり水中ではほとんどが電離していない  $\text{NH}_3$ の状態で遊離している<sup>6)</sup>。そのため、 $\text{Na}^+$ や  $\text{K}^+$ と異なる濃度増加挙動を示したと推察される。

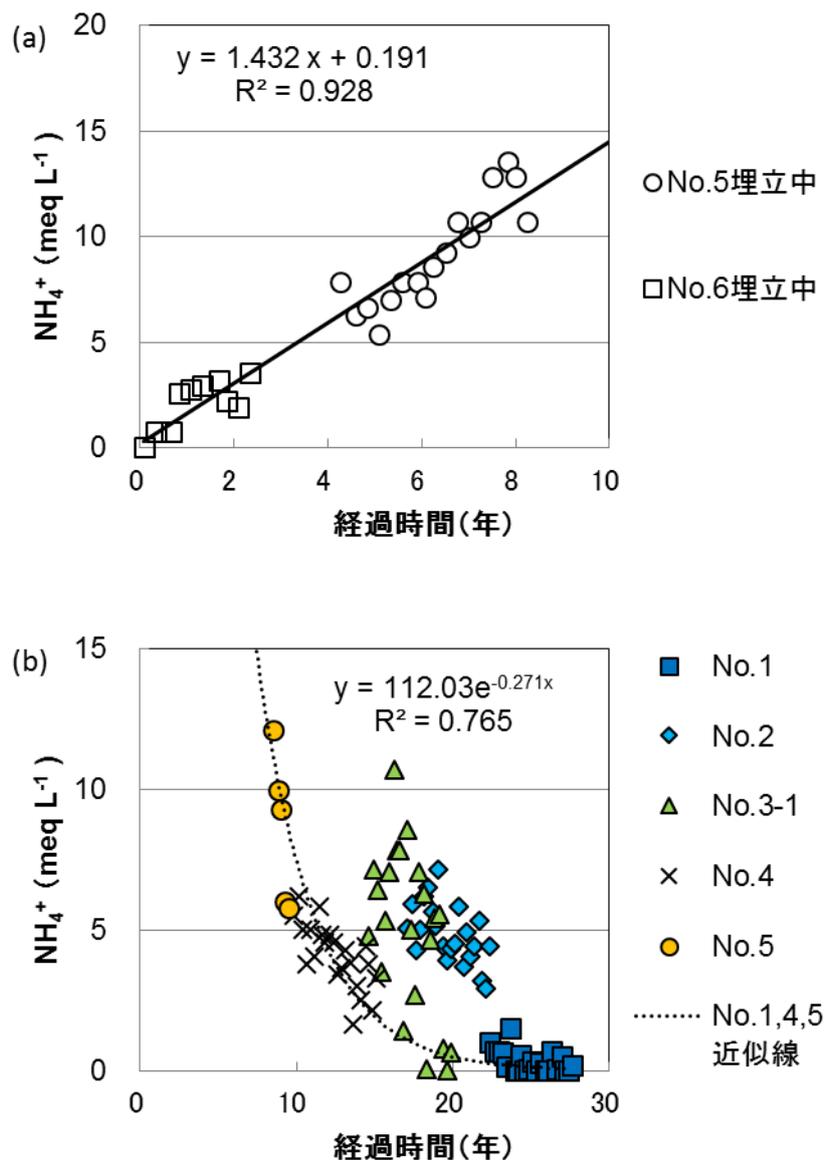


図 6-6 埋立開始からの経過時間と浸出水中の  $\text{NH}_4^+$ 濃度との関係

埋立途中の第 5 区画と第 6 区画は、第 I 期と第 II 期に相当し、過去の研究によれば、この期間は有機窒素化合物の分解が活性化される時期といわれる。そのため、生物分解により生成する  $\text{NH}_3$  が浸出水濃度に影響する可能性が考えられる。しかし、図 6-6(b)に示されるように、埋立終了直後における No. 5 の  $\text{NH}_4^+$ 濃度が急減している。このことから、研究対象処分場での埋立途中の浸出水中に含まれる  $\text{NH}_4^+$ は廃棄物に塩として含有していた  $\text{NH}_3$  が優勢であると推察される。そのように考えると、 $\text{NH}_3$  の水溶性が非常に高いため<sup>6)</sup>、埋立途中の濃度増加が  $\text{Cl}^-$ と同様に直線的であったことは妥当である。

図 6-6(b)に示した埋立終了後の濃度変化については、 $\text{NH}_4^+$ は経過時間に対する連続的な濃度変化がみられず、他の一価イオンとは異なる。No.2 と No.3 の濃度が No.1 と No.4 に比べて高い値を示した。そこで、No.2 と No.3 を除外して No.1、No.4 および埋立終了後の No.5 のデータのみを抽出すると、図 6-6(b)に併記したような指数近似線が得られ、指数関数的な濃度減衰 ( $n=49$ ) がみられる。このことは、第 5 区画と第 4 区画、第 1 区画においては、有機窒素化合物の分解により生ずる  $\text{NH}_4^+$ 量よりも、洗い出しで系外排除される量の方が優勢であることを示している。一方、近似曲線よりも高濃度となった第 2 区画と第 3 区画では、浸出水として系外排除される以上の  $\text{NH}_4^+$ が有機窒素化合物の分解により生成されていることが示される。

第 2 区画と第 3 区画は有機物分解プロセスの第IV期に相当するが、過去の研究では第II期と第III期の浸出水中の  $\text{NH}_3$  濃度が最も高くなるといわれているため<sup>4)</sup>、この現象は特異的である。第四章にて考察したとおり、既往の研究結果に比べて研究対象処分場の第III期の継続期間が長く、逆に第IV期が短いことから、特にこの期間の生物反応に特徴があることが伺える。嫌気性分解プロセスの代謝経路は複雑であり、本研究で得られたデータのみで明確な原因を特定することは難しい。しかし、嫌気性メタン発酵の活性化する温度が中温発酵で  $30\sim 40^\circ\text{C}$ といわれており<sup>8,9)</sup>、それに比べて研究対象処分場の層内平均温度が図 4-7 に示したとおり低温 ( $12.3\sim 13.5^\circ\text{C}$ ) であることが影響している可能性がある。

第 1 区画については第V期の土壌化期であることから、埋立廃棄物層内に残存する有機窒素化合物量は既に少ない。また、好気状態の層内では硝化反応が進行して  $\text{NH}_4^+$ が  $\text{NO}_3^-$ に酸化されるため、浸出水の  $\text{NH}_4^+$ 濃度が低値となることは妥当といえる。

### 6.3 多価イオンの溶出特性

浸出水中の主要イオンの中で、電離して多価イオンとなることができるのは  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{IC}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ および  $\text{Ca}^{2+}$ である。第五章の 5.5 に述べたとおり、 $\text{SO}_4^{2-}$ は埋立層内の嫌気化が進むと微生物反応により  $\text{H}_2\text{S}$  に還元され<sup>10-15)</sup>、好気状態に回復すると再び  $\text{SO}_4^{2-}$ に酸化される<sup>15,16)</sup>。また、 $\text{Ca}^{2+}$ は  $\text{H}_2\text{S}$  と反応して難溶性の硫化物を形成するが、層内が好気状態に戻ると硫酸塩となる。 $\text{Ca}^{2+}$ の硫酸塩は硫化物に比べて溶解度が高いため、廃棄物層から溶出しやすくなる。 $\text{Mg}^{2+}$ は硫化物を形成しないが、 $\text{CO}_2$  と反応して炭酸塩を形成する。 $\text{Ca}^{2+}$ も炭酸塩を形成するが、これらの炭酸塩は  $\text{CO}_2$  濃度が過剰になると炭酸水素塩となり、再溶解する性質がある<sup>6,17)</sup>。 $\text{IC}$  は  $\text{NH}_4^+$ と同じく、有機物の生物分解で生成される<sup>18)</sup>点が他の多価イオンと異なる。このような、各種イオンの特性を踏まえて、以下に長期的な溶出特性を検討する。

#### 6.3.1 層内雰囲気変化の影響を受けるイオン

先述したとおり、 $\text{SO}_4^{2-}$ と  $\text{Ca}^{2+}$ は埋立廃棄物層内の酸化還元雰囲気の影響を受けや

すい。これらのイオンについて、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 6-7 と図 6-8 にそれぞれ示した (a : n=27, b : n=93)。

両イオンとも、埋立途中では時間経過とともに濃度が増加したが、埋立終了が近づくにつれて  $\text{Na}^+$  や  $\text{K}^+$  と同様に濃度増加の鈍化がみられた。 $\text{Ca}^{2+}$  濃度増加の鈍化は、第五章の 5.4 と本章の 6.2.1 で述べたカチオン交換による溶出阻害が一つの原因として考えられる。しかし、 $\text{SO}_4^{2-}$  はアニオンであるためカチオン交換作用には影響されない。濃度上昇の鈍化がみられる埋立途中の後半は、有機物分解プロセスの第Ⅱ期に相当する。即ち、埋立廃棄物層内の嫌気化により、 $\text{SO}_4^{2-}$  の還元と  $\text{Ca}^{2+}$  の硫化物形成反応が進行したことが、これらの濃度増加が鈍化した主たる原因と考えられる。埋立途中における  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の濃度の関係を図 6-9 に示した。直線的な相関がみられ、 $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の濃度変化が対応している。

一方、埋立終了後においては、経過時間に対する連続的な濃度変化はみられなかった。図 6-7(b) と図 6-8(b) における No.5 の濃度変化で示されるとおり、これらのイオン濃度は埋立終了後に急激に減少した。そして、浸出水別に比較すると No.4 が最も低濃度を示し、No.1~4 の中では No.2 が比較的高濃度を示した。

第 4 区画は第Ⅲ期のメタン生成発達期に相当し、 $\text{SO}_4^{2-}$  から転化した  $\text{H}_2\text{S}$  が重金属と硫化物を形成することと、pH が上昇することによる相乗効果で多くの金属が不溶化する期間である<sup>4)</sup>。そのため、No.4 浸出水の  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の濃度が他の埋立終了区画に比べて低濃度を示したことは妥当である。

第 2 区画は第Ⅳ期 (メタン生成定常期) に相当するが、4.5.2 と 5.5 で述べたとおり埋立廃棄物層の一部は第Ⅴ期 (土壌化期) への移行が始まっている可能性が高い。過去に、埋立開始から 8~12 年経過した管理型最終処分場における浸出水中の  $\text{SO}_4^{2-}$  濃度が経時的に増加し、その現象が嫌気状態から好気状態に埋立層内雰囲気に変化するためとした報告がある<sup>3)</sup>。本研究においても、No.2 の  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  が高濃度であることは、第 2 区画の埋立廃棄物層内の一部の嫌気状態が緩み、好気状態に回復しつつあることと関係する。即ち、その部分の硫化物が硫酸塩に酸化されて、保有水に溶解しやすくなったためと推測される。第Ⅳ期から第Ⅴ期に移行する時期に浸出水の  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  濃度が上昇することは理論的にも妥当であることから、これらのイオン濃度は嫌気性分解の終末期を知るための指標としての活用が期待できる。

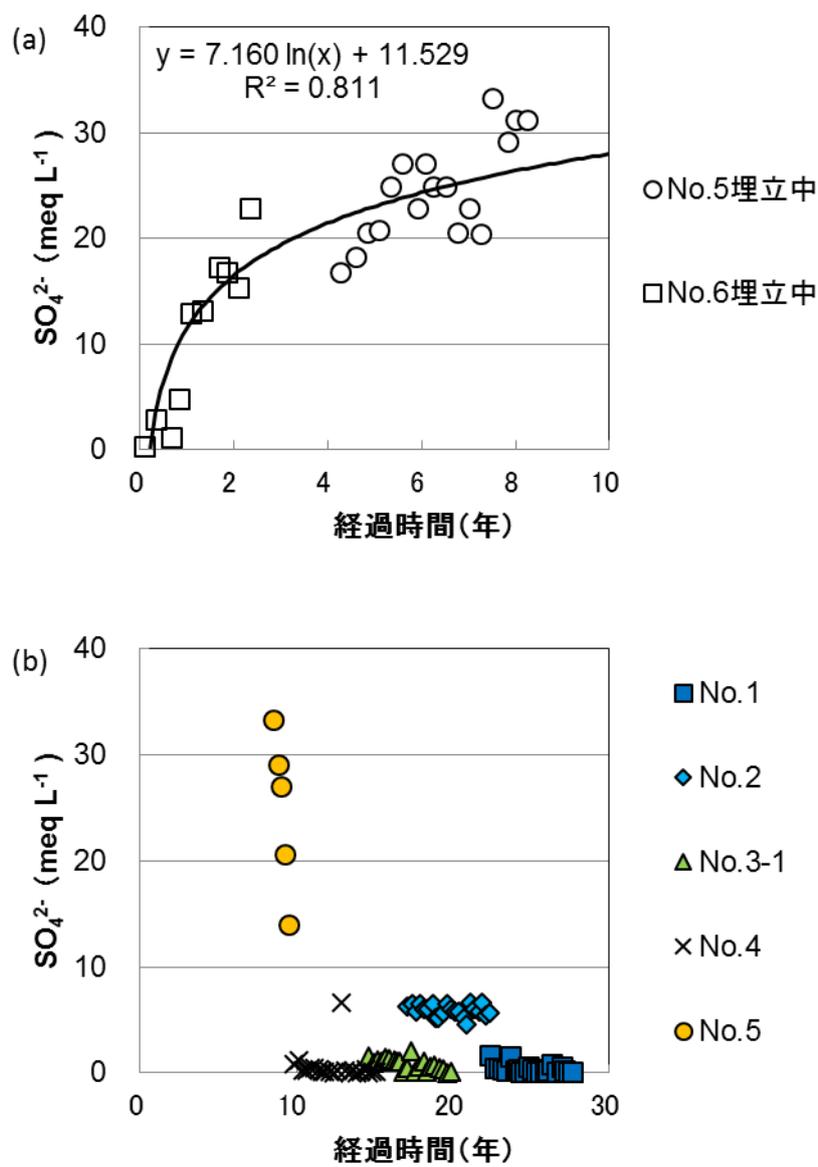
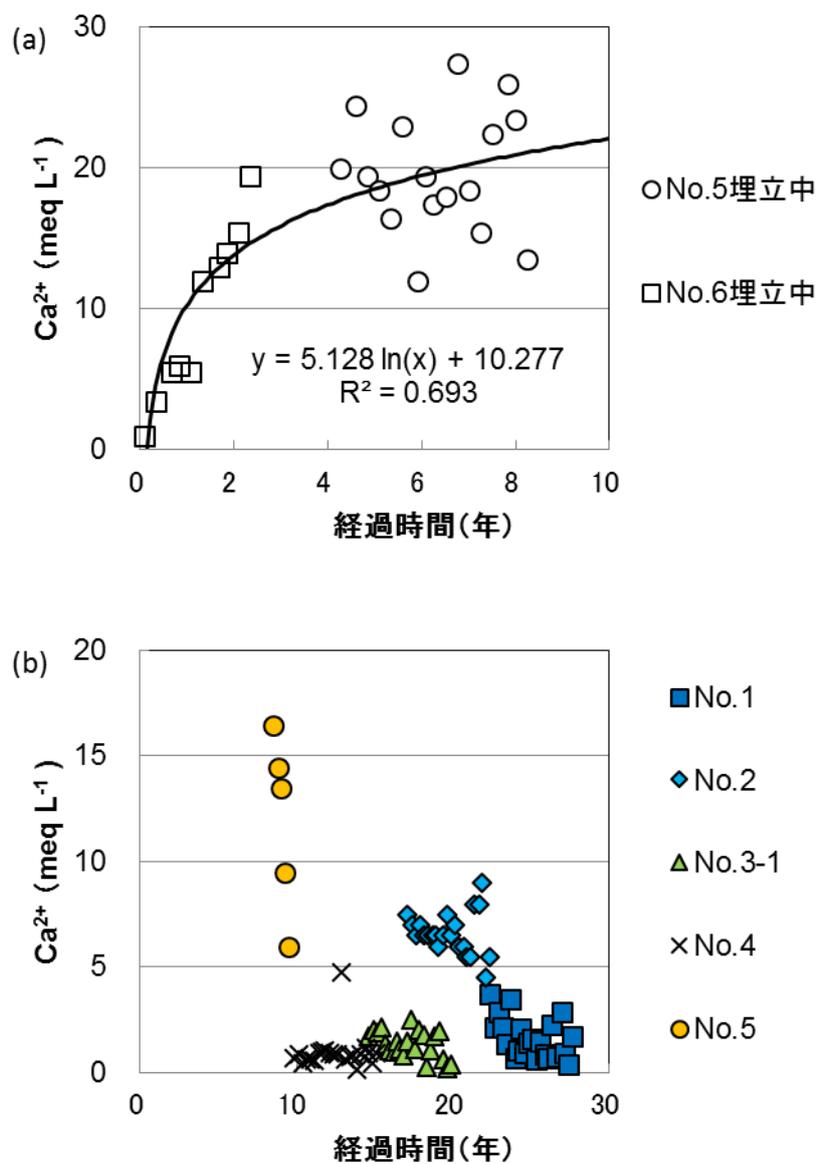


図 6-7 埋立開始からの経過時間と浸出水中の  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度との関係

図 6-8 埋立開始からの経過時間と浸出水中の  $\text{Ca}^{2+}$ 濃度との関係

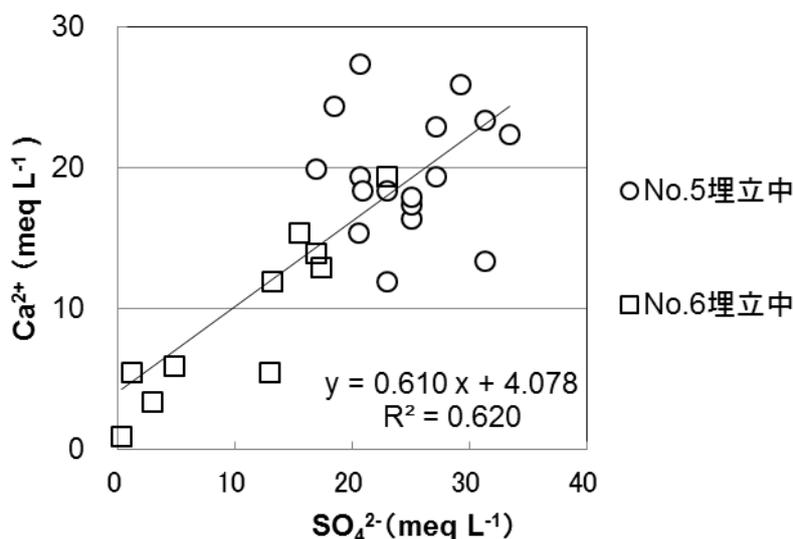


図 6-9 埋立途中における浸出水中の  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  濃度の関係

### 6.3.2 炭酸系イオンとマグネシウムイオン

IC は有機物が生物分解されて生ずるイオン種であるが、 $\text{Mg}^{2+}$  は有機物の主要構成元素でないため、有機物分解では生成されない。これらのイオンについて、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 6-10 と図 6-11 にそれぞれ示した (a : n=27, b : n=93)。

埋立途中では、両イオンとも時間経過とともに指数関数的な濃度増加を示し、埋立終了が近くなるにつれて濃度の増加が激しくなった。この現象を説明するため、第五章 5.6 で説明した水中における IC の電離平衡式を再度以下に示す。



図 4-10 に示したとおり、埋立途中である第 6 区画と第 5 区画の pH は弱アルカリ性である。そのため、保有水中の IC の大半は  $\text{HCO}_3^-$  の形態をとるが、 $\text{CO}_3^{2-}$  も低い割合であるが存在する<sup>19)</sup>。 $\text{CO}_3^{2-}$  は  $\text{Mg}^{2+}$  や  $\text{Ca}^{2+}$  と反応して、それぞれ炭酸塩 ( $\text{MgCO}_3$ 、 $\text{CaCO}_3$ ) を形成するが<sup>6,17)</sup>、これらの水への溶解度は低い。そのため、炭酸塩の形成により保有水中の  $\text{CO}_3^{2-}$  濃度が減少すると、平衡移動の原理により上式は右方向に進み、さらに炭酸塩の形成が進むと考えられる。

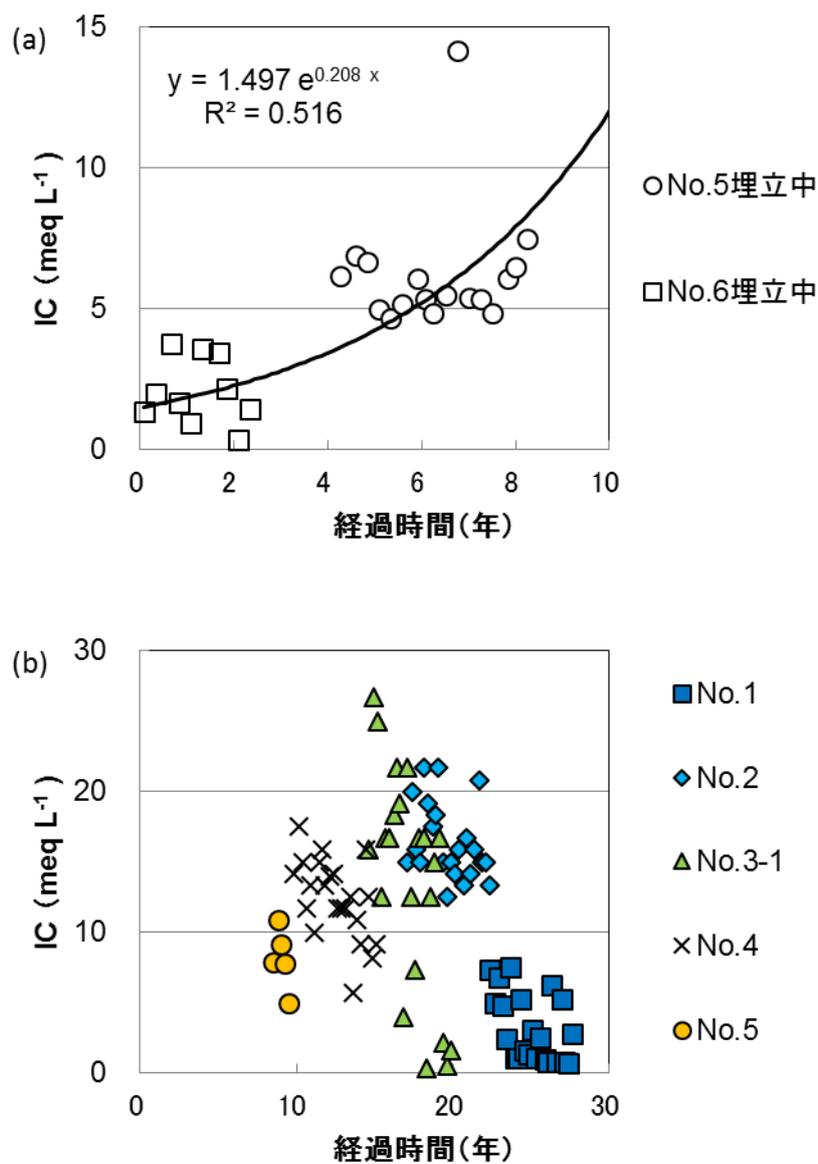
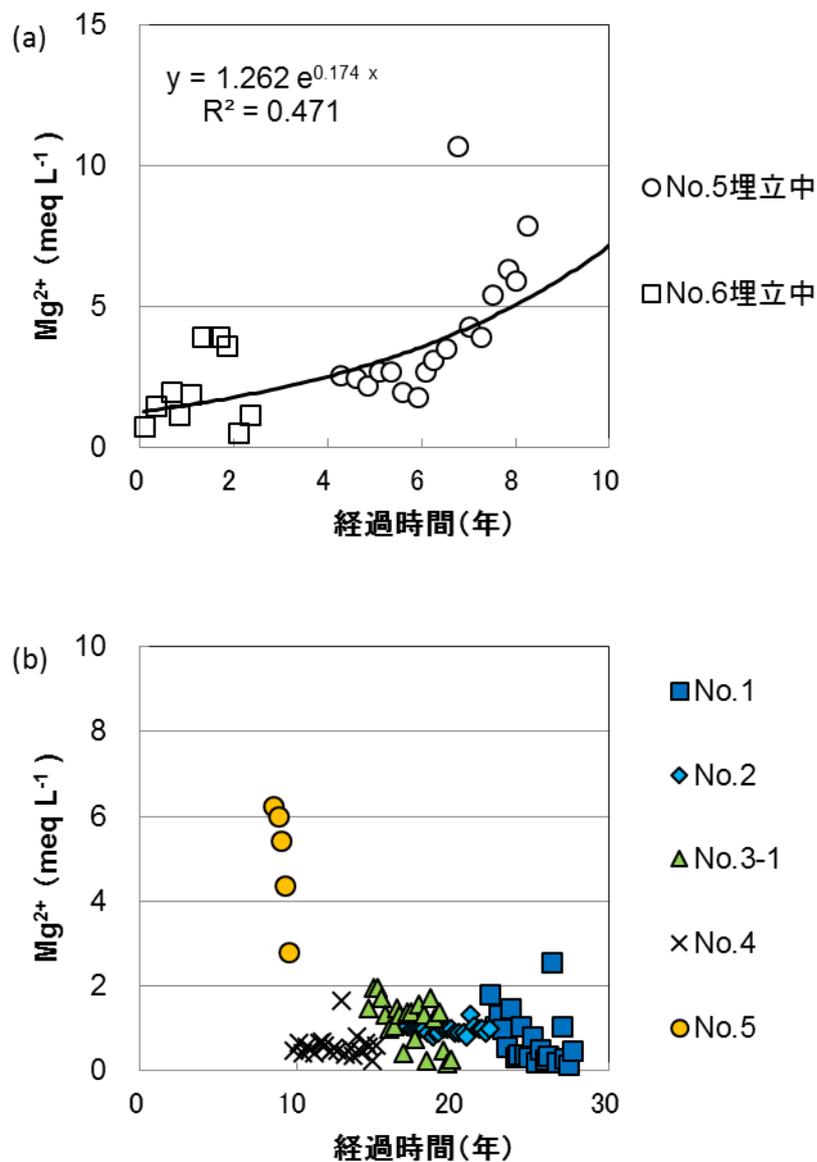


図 6-10 埋立開始からの経過時間と浸出水中の IC 濃度との関係

図 6-11 埋立開始からの経過時間と浸出水中の  $Mg^{2+}$ 濃度との関係

しかし、 $MgCO_3$ と $CaCO_3$ は水中の $CO_2$ 濃度が過剰に高くなると炭酸水素塩となり、水に再溶解する性質がある<sup>6,17)</sup>。第Ⅰ期と第Ⅱ期に相当する第6区画と第5区画では有機物分解由来の $CO_2$ が大量に生成されるため、生物分解反応が活性化して埋立廃棄物層内の $CO_2$ が過剰になると、これら炭酸塩の再溶解が始まる。また、第Ⅱ期の嫌気性酸発酵期は有機物分解の代謝物として揮発性脂肪酸が大量生成される期間である<sup>4,20,21)</sup>。そして、カルボン酸は $MgCO_3$ や $CaCO_3$ と反応し、 $CO_2$ を生成

しながら溶解させる性質を有する。

これらのことから、埋立途中において IC と  $Mg^{2+}$  の濃度増加が次第に急になった原因としては、初期に形成された  $MgCO_3$  が、有機物分解で生成される  $CO_2$  と揮発性脂肪酸の層内濃度の増加に伴い、溶解してイオン化したことが考えられる。即ち、IC と  $Mg^{2+}$  は他のイオン種と同じく、新たに埋め立てられる廃棄物からの溶出作用により、浸出水中のイオン濃度が増加する。この作用に加えて、上述した炭酸塩の溶解作用により、保有水中のイオン濃度がさらに増加したと推測される。

埋立途中における IC と  $Mg^{2+}$  の濃度の関係を図 6-12 に示した。直線的な相関がみられ、IC の濃度増加と  $Mg^{2+}$  の濃度増加が対応している。傾きが 1 にならないのは  $Mg^{2+}$  以外の炭酸塩の IC や、有機物分解で生成される IC が保有水に溶解したためと推察される。なお、 $Mg^{2+}$  はカチオンであるため、第五章の 5.4 と本章の 6.2.1 で述べたカチオン交換による溶出阻害も受けているが、それよりも炭酸塩の再溶解による濃度増加作用が相対的に強く影響していると考えられる。

$Mg^{2+}$  と同様に  $Ca^{2+}$  についても、埋立途中における IC 濃度との関係を図 6-13 に示した。 $CaCO_3$  も過剰の  $CO_2$  や揮発性脂肪酸の影響により  $MgCO_3$  と同様に溶解する性質がある。しかし、図 6-13 の相関は図 6-12 よりも悪い。このことは、浸出水の  $Ca^{2+}$  には  $CaCO_3$  の溶解作用以外の影響因子が作用していることを示唆している。即ち、 $Ca^{2+}$  は 6.3.1 で述べた硫化物形成作用が優先するため、硫化物を形成しない  $Mg^{2+}$  とは異なる濃度増加挙動を示したものと思われる。

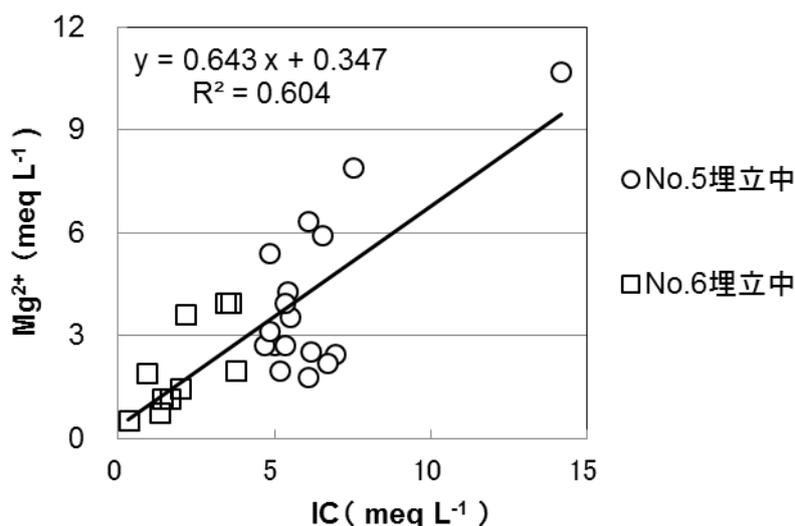


図 6-12 埋立途中における浸出水中の IC と  $Mg^{2+}$  濃度の関係

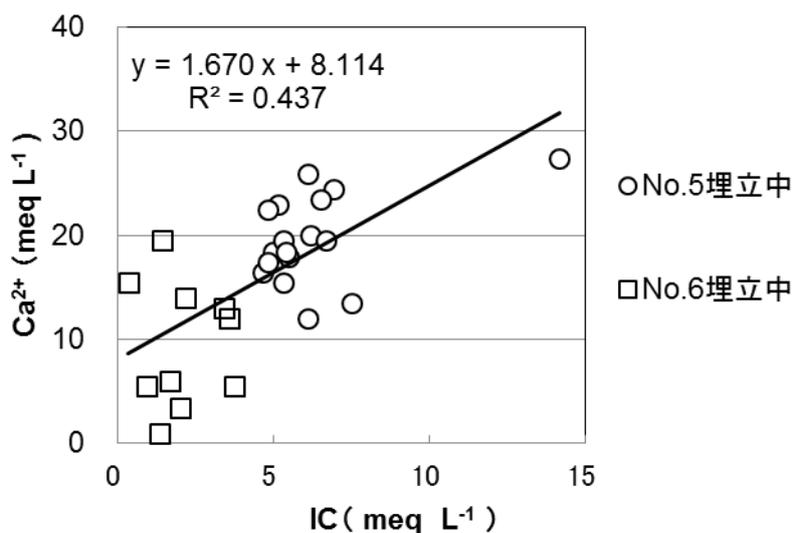


図 6-13 埋立途中における浸出水中の IC と  $\text{Ca}^{2+}$ 濃度の関係

図 6-10(b)と図 6-11(b)に示したとおり、埋立終了後の IC と  $\text{Mg}^{2+}$ 濃度については経過時間に対する連続的な濃度変化はみられなかった。

浸出水別に比較すると、No.1～4の IC 濃度は  $\text{NH}_4^+$ と類似する大小関係を示した。しかし、埋立終了後の No.5 の IC 濃度が No.4 よりも低濃度を示し、No.1 の濃度のばらつきが大きい点が  $\text{NH}_4^+$ と異なる。そのため、No.2 と No.3-1 のデータを除外しても図 6-6(b)でみられた  $\text{NH}_4^+$ のように指数関数的な濃度変化はみられない。No.3-1 の IC 濃度のばらつきが大きい、全体的には No.3-1 と No.2 の IC 濃度は No.4 に比べると高い。このことは、第Ⅲ期（メタン生成発達期）に相当する第 4 区画に比べて第Ⅳ期（メタン生成定常期）に相当する第 3 区画と第 2 区画の IC 濃度が高いことを示しており、この現象は過去の研究報告<sup>4)</sup>と整合する。No.1 の IC 濃度が低値となった原因は埋立廃棄物層内の生物分解性有機物量が減少したことによる。しかし、濃度値のばらつきが大きく、比較的高濃度で検出される場合もあることから、第 1 区画は完全な有機物分解の終焉には到達しておらず、第四章の 4.5.2 の考察と同じ結論となる。

$\text{Mg}^{2+}$ については図 6-11(b)に示したとおり、埋立終了後の濃度が  $\text{SO}_4^{2-}$ や  $\text{Ca}^{2+}$ と同様に急激に減少した。しかし、No.2 で高濃度を示さず、No.1～3 の濃度が類似していた点は  $\text{SO}_4^{2-}$ や  $\text{Ca}^{2+}$ と異なる。 $\text{Mg}^{2+}$ は埋立層内が嫌気化しても硫化物を形成することはなく、IC のように有機物分解で生成されることもない。前述したように、反応に適した条件であれば炭酸塩を形成するが、それも有機物分解に伴う  $\text{CO}_2$  と揮発性脂肪酸の層内濃度の増加により溶解する。このような性質から、 $\text{Mg}^{2+}$ は早期に洗い出しが進み、第 2 区画においても特に高濃度を示さなかったといえる。

## 6.4 微量元素の溶出特性

第一章の 1.2 で述べたとおり、安定化とは埋立廃棄物が「それ以上変化しない状態になること」であり、廃止基準に求められる安定化状態とは、第一段階の安定化状態といわれる「浸出水や埋立ガスを集めて浄化するなどの埋立地維持管理を行わなくても環境に与える影響を無視できる」状態である<sup>13)</sup>。

前節までは、安定化における塩類の溶出特性を解明するために、浸出水に高濃度に含まれるイオン種について検討してきた。しかしながら、浸出水中には評価対象としなかった塩類も多数あり、その中には微量であっても人体や生物への有害性が高い物質が存在する。万が一、処分場廃止後にこのような有害物質が溶出して、外部に漏洩することがあれば、環境が汚染され、健康被害が発生する可能性も危惧される。このような微量元素の揮散や溶出は、処分場埋立地の安定化という大きな反応過程の中ではごく一部の現象かもしれないが、将来における処分場埋立地の安全性を確保するためには無視できない事項である。

これまでに水銀やカドミウムに関して、実験槽や理論的な計算を用いた詳細な研究がなされている<sup>22-25)</sup>。しかし、実際の処分場データを用いた溶出に関する研究事例は少ない。なぜなら、実際の処分場においては、重金属をはじめとする有害元素の溶出量が少ないためである。つまり、分析値が定量下限値未満となる場合が多く、溶出量の増減傾向の評価が難しいことが一原因と考えられる。実際、本研究においてもカドミウムと鉛が検出された回数は 142 検体中で前者が 4 検体、後者が 3 検体のみであり、いずれも低濃度であった。

そこで本節では、主要イオンのように濃度は高くないが、定量下限値を超えて複数回検出された元素の中で、特徴的な溶出挙動が確認されたものをピックアップし、その溶出メカニズムを考察する。この検討は有害物質を直接的に評価するものではないが、同属元素のような種類が類似している元素の溶出挙動の推定に利用できる。

### 6.4.1 ホウ素

主要イオンと類似した溶出挙動を示した元素として B がある。埋立開始からの経過時間と浸出水中の B 濃度との関係をそれぞれ図 6-14 に示した(a:n=27, b:n=93)。

埋立途中は指数関数的に濃度増加し、IC と  $Mg^{2+}$  の濃度変化に類似している。一方、埋立終了後においては、指数関数的な濃度減少を示し、この点は Cl<sup>-</sup> 等の易溶出性イオンの濃度変化に類似している。

B は金属と非金属の中間の性質を示し、酸素との親和性が高いことから、環境中で速やかに酸化または加水分解されて様々な形態の酸化物を形成する<sup>26)</sup>。水中においては、中性付近では  $B(OH)_3$  が主な形態であるが、ルイス酸として働き、水から水酸化物イオンを受容して  $[B(OH)_4]^-$  も僅かに存在する<sup>26,27)</sup>。未解離の状態でも水に溶け、水への溶解度は  $5.7 \text{ g cm}^{-3}$  (25°C) である<sup>6)</sup>。pH が低いと廃棄物固相から溶出しやすく<sup>28)</sup>、高濃度ではポリほう酸陰イオンである  $[B_4O_5(OH)_4]^{2-}$  や  $[B_5O_6(OH)]_4^-$

などの形態をとる場合もある<sup>27,29)</sup>。

このような特徴を考えると、図 6-14 でみられた浸出水の B 濃度の連続的な変化が理解しやすい。即ち、埋立途中でみられた経過時間に伴う指数関数的な濃度増加は pH の低下に伴い (図 4-10)、溶出量が増加したためである。また、埋立終了後の指数関数的な濃度減少は、未解離の  $B(OH)_3$  が水に溶解しやすいことが影響していると推察できる。また、B が埋立廃棄物層内の嫌気化による影響を受けにくい原因としては、B が半金属であることと、 $B(OH)_3$  がルイス酸であるため  $HS^-$  や  $S^{2-}$  と反応しにくいことが考えられる。

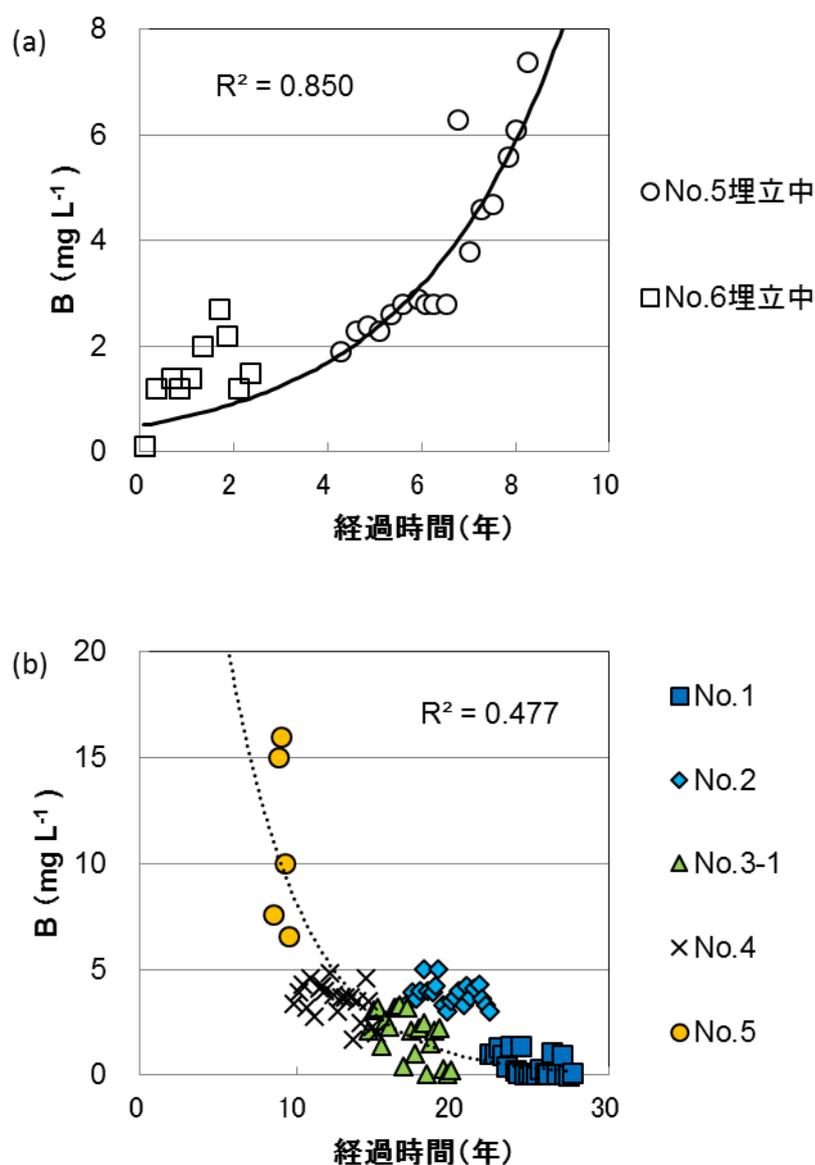


図 6-14 埋立開始からの経過時間と浸出水中の B 濃度との関係

## 6.4.2 ヒ素とアンチモン

As と Sb 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 6-15 (a : n=25, b : n=68) と図 6-16 (a : n=27, b : n=68) に示した。

As、Sb とも、埋立途中では濃度増加傾向を示した。また、埋立終了後では No.4 から No.2 にかけては濃度減少し、No.1 では転じて濃度増加する傾向がみられた。As と Sb は B と同じ半金属であるが、さらに同族元素 (第 15 属) であるため、この 2 種類の元素は類似した溶出特性を示したと考えられる。

埋立途中での濃度増加は主要イオンと同じく、新たに埋め立てされる廃棄物からの溶出が主な原因と考えられるが、主要イオンに比べて相関性が低い。近似には最も相関が高い指数関数を採用したが、曲率は低く、線形近似としても相関係数はあまり変わらない。埋立終了後にみられた濃度減少は、洗い出しが一原因として考えられる。しかし、土壌化期に相当する第 1 区画においては濃度増加しており、それだけでは説明できず、複雑である。

As は好氣的条件下では 5 価の  $\text{H}_3\text{AsO}_4$  の形態が大部分を占め、 $\text{H}_2\text{AsO}_4^-$  や  $\text{HAsO}_4^{2-}$  に電離しやすい<sup>30,31)</sup>。一方、嫌氣的条件下では 3 価の  $\text{H}_3\text{AsO}_3$  になりやすく、解離しにくい<sup>30,31)</sup>。好氣状態から嫌氣状態になると、微生物呼吸により  $\text{H}_3\text{AsO}_4$  が  $\text{H}_3\text{AsO}_3$  に還元される<sup>32)</sup>。また、土壌中では  $\text{H}_3\text{AsO}_4$  は吸着性が強く、鉄やアルミニウムの酸化物粒子に吸着して固定されているが、 $\text{H}_3\text{AsO}_3$  は吸着性が低く、水への溶出性が高い<sup>33)</sup>。

Sb については、水域に存在する主要な成分は  $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$ 、または  $\text{Sb}(\text{OH})_5$  である。嫌氣的条件下においては 3 価の  $\text{Sb}(\text{OH})_3$  や  $\text{Sb}(\text{OH})_4^-$  の種が主要成分となるが、 $\text{Sb}_2\text{S}_4^{4-}$  の様なチオ体も存在するといわれている<sup>34,35)</sup>。土壌に吸着しやすい元素であるが、高 pH または低 pH であると、土壌からの洗脱が早いといわれている<sup>34)</sup>。

このような As と Sb の特徴から図 6-15(b)と図 6-16(b)の挙動を考察する。第 4 区画は第Ⅲ期 (メタン生成発達期) であり、層内雰囲気は嫌氣性である。そのため、As と Sb はそれぞれ 3 価の  $\text{H}_3\text{AsO}_3$  と  $\text{Sb}(\text{OH})_3$  が主な存在形態と考えられる。 $\text{H}_3\text{AsO}_3$  は水への溶出性が高く、 $\text{Sb}(\text{OH})_3$  もルイス酸であるため  $\text{HS}^-$  や  $\text{S}^{2-}$  と反応しにくいと推察される。そのため、層内が嫌氣状態である第 4 区画から第 2 区画までの期間は、埋立廃棄物固相からこれらの成分の溶脱が進行し、層内残存量の減少に伴い、浸出水の濃度は次第に減少する。また、Sb については pH が中性に近づくことにより (図 4-10)、溶出しにくくなる影響<sup>34)</sup>も働くと考えられる。さらに、As と Sb は難溶性硫化物を形成する性質がある。そのため、埋立廃棄物層から溶脱せずに、硫化物を形成していた一部の As と Sb が、層内状態の好酸化により酸化されて、第 1 区画においては濃度が増加した可能性がある。

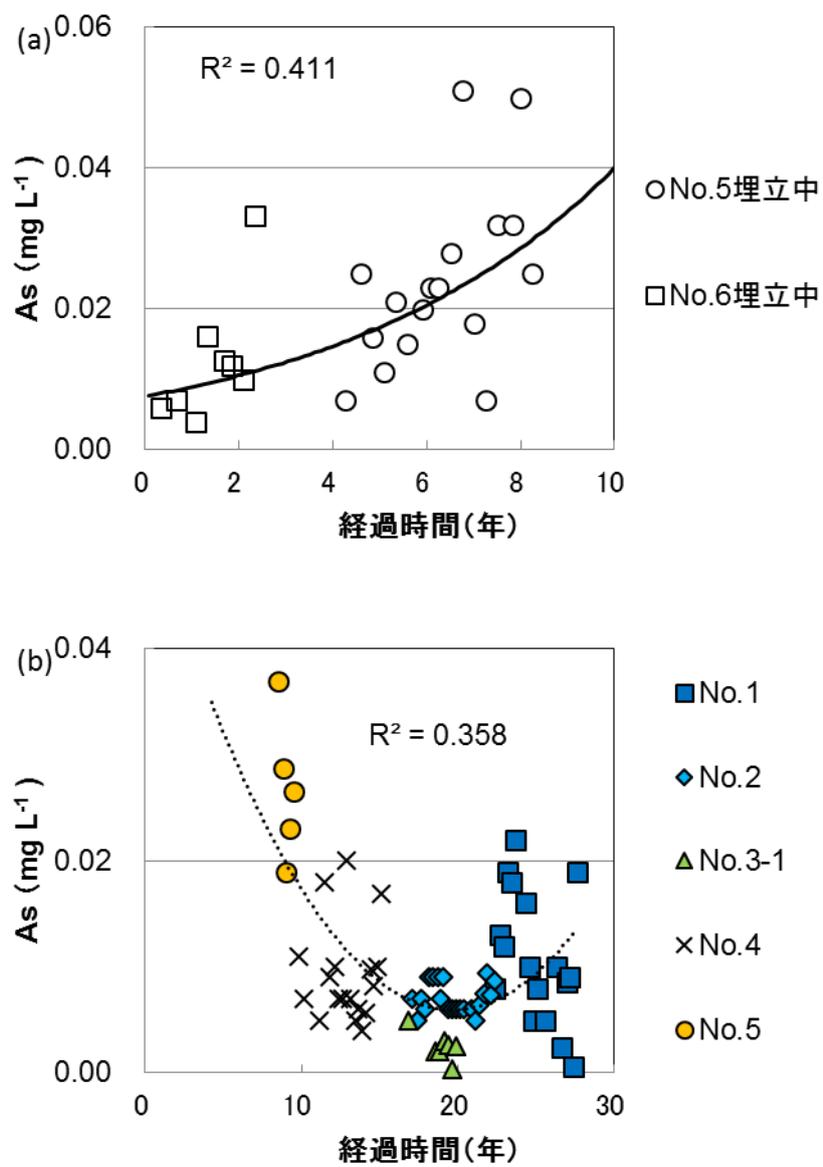


図 6-15 埋立開始からの経過時間と浸出水中の As 濃度との関係

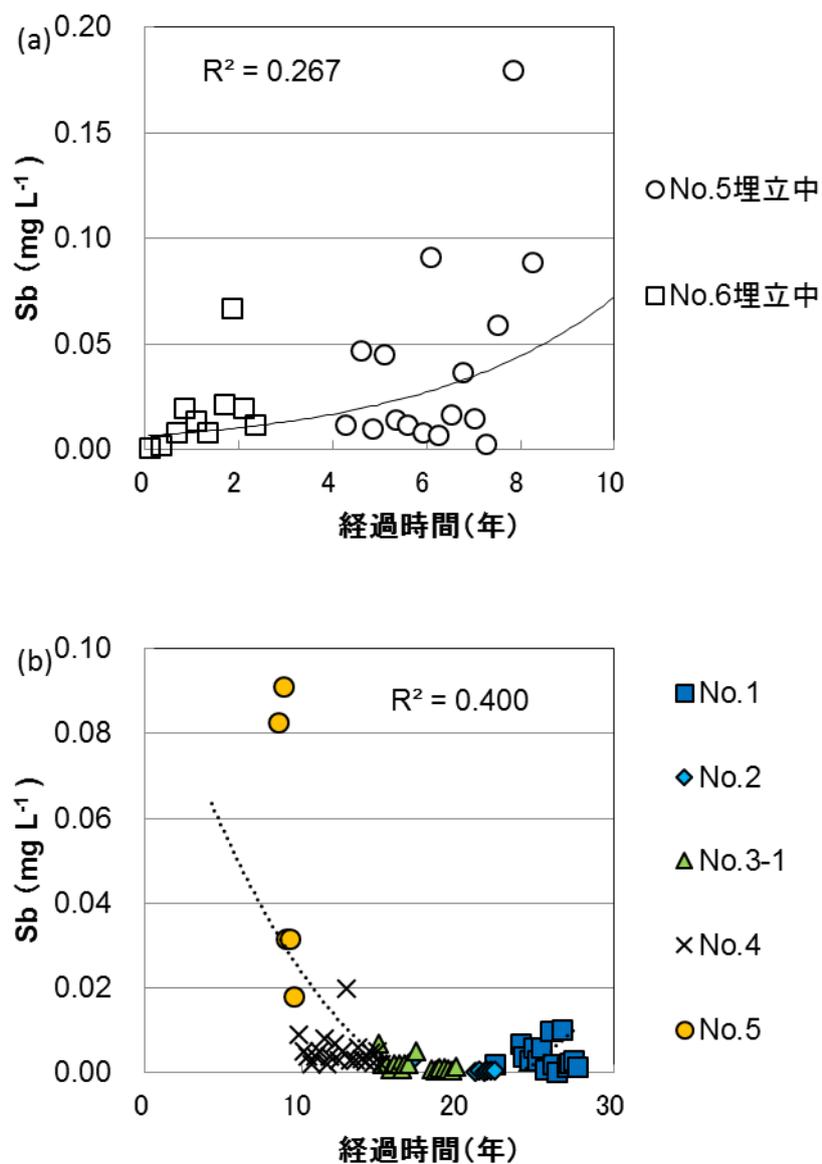


図 6-16 埋立開始からの経過時間と浸出水中の Sb 濃度との関係

#### 6.4.3 重金属類

Mn、Fe および Ni 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 6-17～19 にそれぞれ示した (Mn a : n=24, b : n=71 ; Fe a : n=8, b : n=48 ; Ni a : n=26, b : n=90)。図 6-17(a)は No.5 のデータのみを二次式で、図 6-18(b)は指数関数で、図 6-19(a)については No.6 の結果は一次式で、No.5 の結果は二次式で、図 6-19(b)は指数関数でそれぞれ近似し、近似線と決定係数を併記し

た。

これらの元素については、埋立途中の No.6 から No.5 にかけての連続的な濃度増加はみられず、図 6-19(a)に示したとおり、Ni の No.6 のみで直線的な濃度増加を示した。また、図 6-17(a)と図 6-19(a)の近似線で示したとおり、No.5 については Mn と Ni が、経過時間が 4 年後から 7 年後までは濃度減少し、7 年後から 9 年後にかけては濃度増加する類似した濃度変化を示した。鉄は埋立途中におけるデータ数が少なく、時間経過との相関は評価できなかった。

埋立終了後については、Mn は経過時間に対しての相関がなく、Fe については経過時間に伴う濃度増加傾向があった。一方、Ni については指数関数的に濃度減少した。

Mn、Fe および Ni は全てが第一系列の遷移金属である。Ni のみが No.6 で直線的な濃度上昇挙動を示したことは、埋立廃棄物中に水溶性の Ni が多く含まれていた可能性がある。また、これら 3 種の元素は共に H<sub>2</sub>S と難溶性硫化物を形成する性質があることから、埋立開始 4 年後から 7 年後までの No.5 にみられた Mn と Ni の濃度減少は、第 II 期（嫌気性酸発酵期）の特徴である硫化物の形成反応で説明できる。一方、7 年後から 9 年後にかけての濃度増加については、硫化物形成による不溶化よりも pH 低下（図 4-10）による溶出促進作用が卓越した可能性がある。

主要イオンについては、埋立終了後に濃度増加したものはないため、図 6-18(b)に示された Fe 濃度の増加は特異的である。これは埋立層内雰囲気嫌気・還元状態が緩むにつれて、それまで難溶性硫化物であったものが硫酸塩に酸化されることにより、次第に溶出量が増加したためと推察される。Mn についても相関は低い（図 6-17(b)）、第 4 区画では検出回数が少なく、第 1 区画では多数回にわたり比較的高濃度で検出されていることは Fe の結果と整合性がある。

一方、Ni については浸出水中に高濃度で存在する Cl<sup>-</sup>や NH<sub>4</sub><sup>+</sup>を配位子とした錯体を形成しやすい特徴がある。例えば、[Ni(NH<sub>3</sub>)<sub>6</sub>]Cl<sub>2</sub>や[NiCl<sub>4</sub>]<sup>2-</sup>のような錯体や錯イオンを形成する。この特性が影響したために、Ni は指数関数的な濃度低下を示した可能性がある。即ち、層内の嫌気化が進んでおらず、高濃度の Cl<sup>-</sup>や NH<sub>4</sub><sup>+</sup>が存在する第 I 期や第 II 期において錯体を形成し、それらが第 III 期以降に洗い出しされれば、図 6-19(b)に示された指数関数的な濃度減少を説明できる。

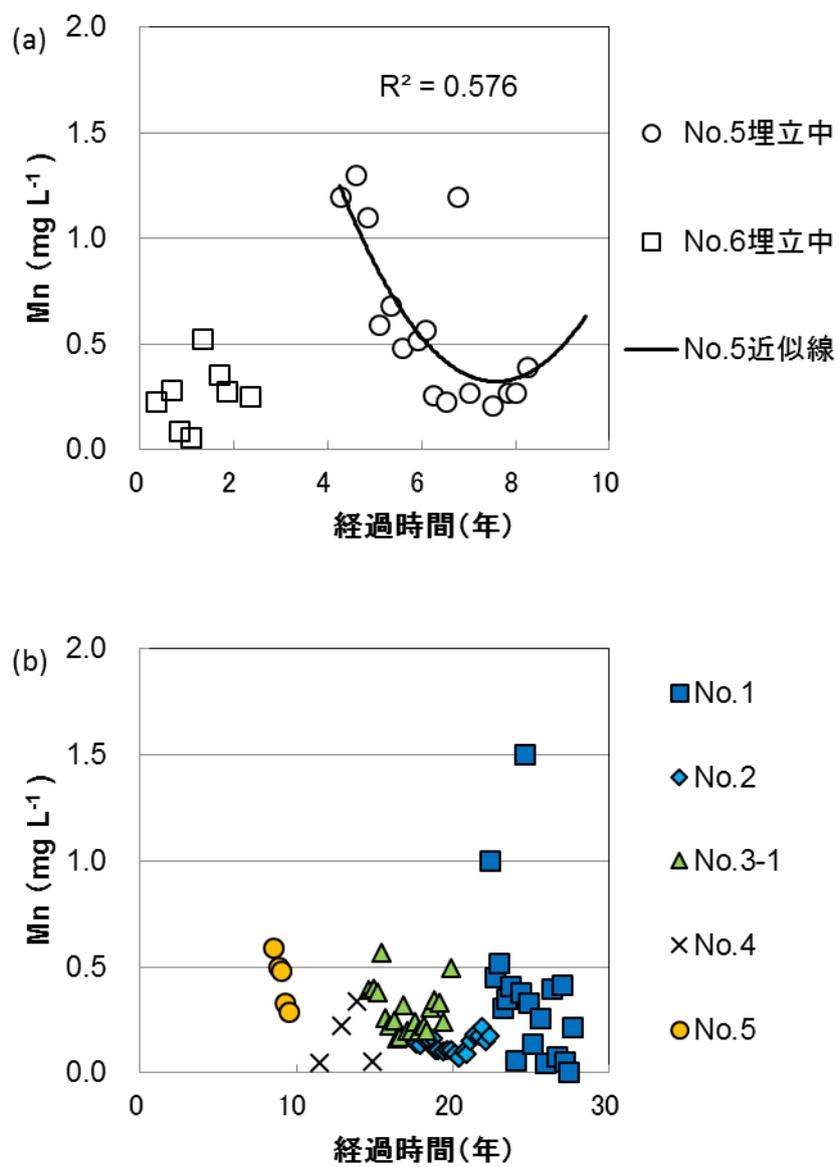


図 6-17 埋立開始からの経過時間と浸出水中の Mn 濃度との関係

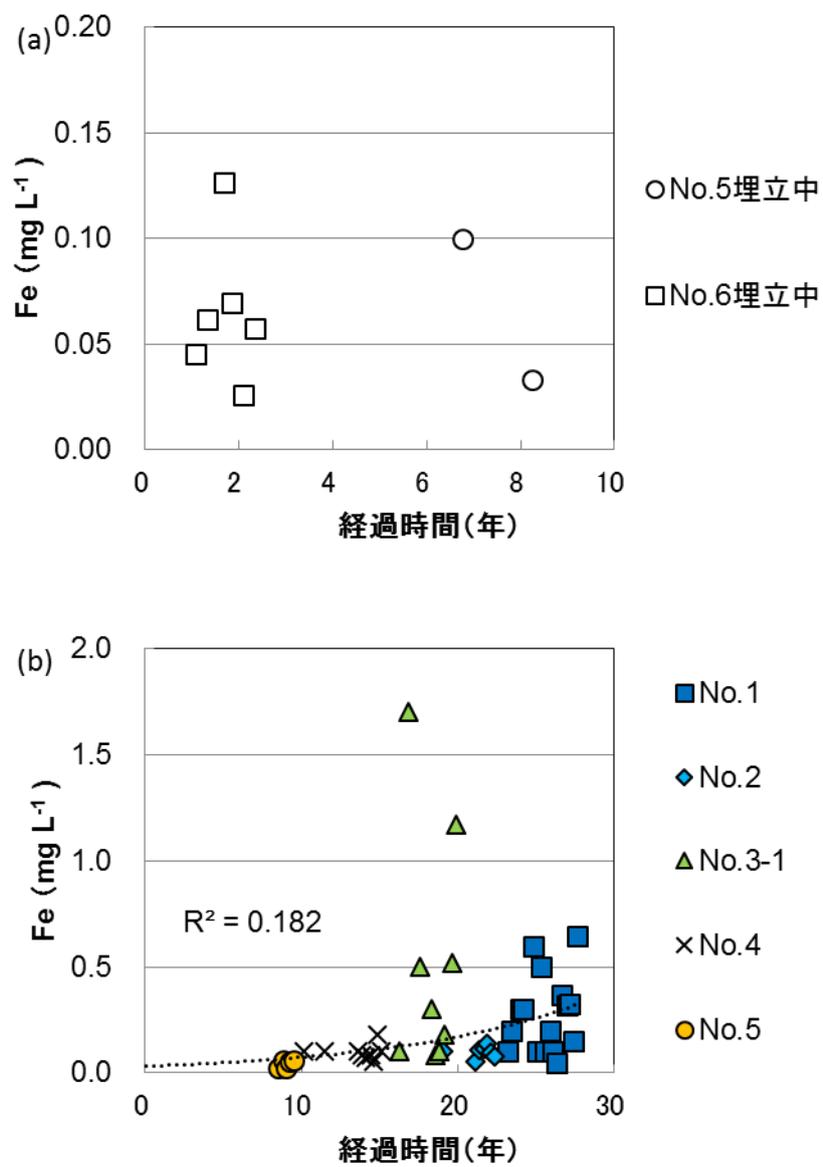


図 6-18 埋立開始からの経過時間と浸出水中の Fe 濃度との関係

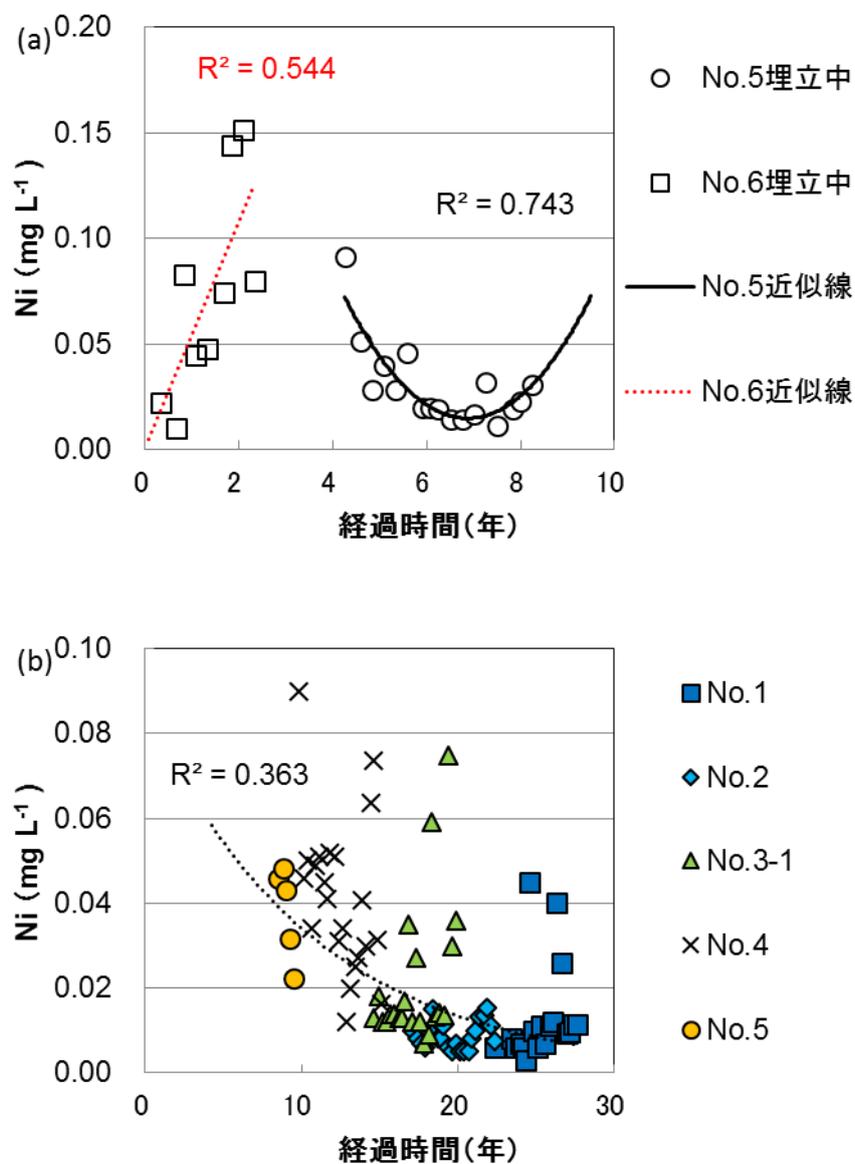


図 6-19 埋立開始からの経過時間と浸出水中の Ni 濃度との関係

### 6.5 まとめ

本章では浸出水中のイオン濃度の経時変化を解析した。その結果を以下にまとめる。

- (1) 埋立途中区画の浸出水の主要イオン濃度は経時的に増加したが、その増加挙動はイオン種により異なった。その原因は、イオン種が有する物理化学的お

- よび生物化学的特性の違いであった。
- (2) 埋立終了後における浸出水の易溶性イオン濃度は時間経過に伴い連続的に減衰した。
  - (3)  $\text{Na}^+$ と  $\text{K}^+$ は  $\text{Cl}^-$ よりも溶出しにくく、これには廃棄物固相でのカチオン交換の影響が示唆された。この結果は第五章の結果と整合する。
  - (4)  $\text{NH}_4^+$ 濃度は、第Ⅲ期に相当する第 4 区画よりも第Ⅳ期に相当する第 2 区画と第 3 区画の方が高かった。この原因として、研究対象処分場の低い層内温度が考えられ、微生物反応に影響していることが推測された。
  - (5)  $\text{SO}_4^{2-}$ と  $\text{Ca}^{2+}$ については、第Ⅱ期に相当する第 5 区画では濃度の増加が鈍化し、第Ⅲ期に相当する第 4 区画では他区画に比べて濃度が低かった。これは埋立層内の嫌気化に伴う硫化物形成反応の影響と考えられた。また、第Ⅳ期に相当する第 2 区画において、比較的高濃度で検出されたことから、当区画では埋立層の一部で既に好気化が進み、第Ⅴ期に移行しつつあることが推察された。このことは、第四章の結論と整合していた。
  - (6)  $\text{IC}$ と  $\text{Mg}^{2+}$ については、第Ⅱ期に相当する第 5 区画において経時的に濃度増加の割合が大きくなった。この現象は有機物分解で生ずる  $\text{CO}_2$ が層内で過剰となることと、嫌気性分解で生成する揮発性脂肪酸が増加することの効果により、初期に形成された難溶性炭酸塩が再溶解するためと考えられた。このことは、第五章の結論と整合的である。
  - (7) 浸出水に含まれる複数の微量元素の濃度には、経時的な変化がみられた。しかし、それらの挙動は元素により異なった。
  - (8) 半金属については、水中の B の主たる形態は  $\text{B(OH)}_3$ である。一方、嫌気状態下では、As は  $\text{H}_3\text{AsO}_3$ 、Sb は  $\text{Sb(OH)}_3$ の形態をとりやすい。 $\text{B(OH)}_3$ と  $\text{Sb(OH)}_3$ はルイス酸であり、 $\text{H}_3\text{AsO}_3$ は解離しにくい。よって、層内雰囲気は嫌気状態となってもこれらの成分からは硫化物が形成されにくい。このことが埋立終了後の浸出水において、連続的な濃度減少を示した主な原因と考えられた。
  - (9) 重金属については、第Ⅱ期に相当する区画において、Mn と Ni で硫化物形成による濃度減少と pH 低下による濃度増加がみられた。埋立終了後においては、Mn と Fe は経時的に濃度増加し、硫化物の酸化が原因と推察された。Ni は浸出水中に高濃度に含まれる  $\text{Cl}^-$ や  $\text{NH}_4^+$ と錯体を形成しやすい性質があり、その影響により、埋立終了後に指数関数的に濃度減少したと推察された。

参考文献

- 1) 柴田公子, 福田哲郎, 弘中博史, 神田文雄, 山本征治, 前田達男: 一般廃棄物最終処分場における浸出水の水質の推移について, 山口県衛生公害研究センター業績報告, Vol.18, pp.56-59(1997).
- 2) 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, Vol.14, No.3, pp.123 - 132(2003).
- 3) 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, Vol.21, pp.49-65(1994).
- 4) T.H. Christensen, R. Cossu, R. Stegmann: Landfilling of Waste: Leachate, Elsevier Applied Science, pp.65-88(1992).
- 5) 日本光合成学会: 窒素循環,  
<http://photosyn.jp/pwiki/index.php?%E7%AA%92%E7%B4%A0%E5%BE%AA%E7%92%B0> (閲覧日 2015 年 10 月 18 日).
- 6) 株式会社 東京化学同人: 化学辞典(第1版), 株式会社 東京化学同人, pp.94-95, 818, 820, 1228 (1994).
- 7) 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—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, Vol.28, No.1, pp.13-25(2017).
- 8) 李玉友: メタン発酵技術の概要とその応用展望, 一般社団法人 日本環境衛生施設工業会広報誌 JEFMA, No.53, pp.4-18(2005).
- 9) 社団法人 日本有機資源協会: バイオガス化マニュアル, pp.9(2006).
- 10) 石本真: アーバンクボタ, 株式会社クボタ, No.23, pp.20-25(1984).
- 11) 松井三郎, 立脇征弘: 硫酸塩還元菌, 環境技術, Vol.18, No.4, pp.229-244(1989).
- 12) 竹内純一: 硫酸塩還元細菌の生理生態, 用水と排水, Vol.31, No.4, pp.294-305 (1989).
- 13) 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, pp.4-5, pp.4-5, 142-144(2000).
- 14) 小野雄策, 田中信壽: 建設廃棄物埋立における硫化水素ガス発生の可能性と管理法に関する考察, 廃棄物学会論文誌, Vol.14, No.5, pp.248-257(2003).
- 15) 林正男, 宗清生, 宇都宮彬: 水質特性と硫化水素の発生ポテンシャル, 日本環境衛生センター所報論文集, No.36, pp.74-79(2009).
- 16) 古坂澄石: アーバンクボタ, 株式会社クボタ, No.25, pp.32-41(1986).
- 17) 寺島奏: 都市廃棄物埋立地における汚濁物の挙動—現象と基礎, ならびに無機汚濁物の挙動—, 廃棄物学会誌, Vol.7, No.2, pp.148-167(1996).

- 18) 北川政美：好気性生物処理技術の特徴と発展の流れ,エバラ時報, No.228, pp.13-22(2010).
- 19) 石井雅男,吉川久幸,松枝秀和：電量滴定法による海水中の全炭酸濃度の高精度分析および大気中の二酸化炭素と海水中の全炭酸の放射性炭素同位体比の測定,気象研究所技術報告,No.41,pp.5-7(2000).
- 20) 片岡直明：嫌気性生物処理技術の特徴と発展の流れ,エバラ時報, No.229, pp.27-38(2010).
- 21) 中村浩平,鎌形洋一：メタン生成にかかわる共生微生物系の研究と最新動向,環境バイオテクノロジー学会誌,Vol.5,No.2,pp.81-89(2006).
- 22) 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,Vol.20,No.1,pp.12-23(2009).
- 23) 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<sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>の影響に関する研究,衛生工学研究論文集,Vol.24,pp.177-186(1988).
- 24) 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,Vol.25,pp.21-27(1989).
- 25) 都市廃棄物埋立処分場浸出水中の溶存カドミウム濃度の長期的経時変化に関する理論的研究,Vol.26,pp.49-60(1990).
- 26) 環境省 環境リスク評価室：化学物質の環境リスクの評価 第 6 巻,ほう素及びその化合物, <https://www.env.go.jp/chemi/report/h19-03/pdf/chpt1/1-2-3-08.pdf>, (閲覧日 2016 年 12 月 3 日) .
- 27) 経済産業省,新エネルギー・産業技術総合開発機構：有害性評価書 ホウ素及びその化合物,化学物質排出把握管理促進法政令号番号 1-304,Ver.0.4,No.1.7,pp.11, <http://www.meti.go.jp/committee/materials/downloadfiles/g80312b03j.pdf#search=%27%E3%83%9B%E3%82%A6%E7%B4%A0+%E7%92%B0%E5%A2%83%E4%B8%AD%27>, (閲覧日 2016 年 12 月 3 日) .
- 28) 独立行政法人 国立環境研究所：廃棄物埋立処分における有害物質の挙動解明に関する研究（特別研究）,国立環境研究所特別研究報告 SR-40-2001, pp.9-46 (2001).
- 29) IPCS : International Programme on Chemical Safety (1998) Boron, Environmental Health Criteria, 204,WHO, Geneva.
- 30) 長谷川浩：自然界におけるヒ素のスペシエーションと植物との相互作用, 海洋化学研究,Vol.26,No.1,pp.14-21(2013).
- 31) 藤川陽子：砒素の特性とその環境水からの除去,APEC 環境技術交流バーチャルセンター, [http://www.apec-vc.or.jp/j/modules/tinyd00/?id=61&kh\\_open\\_cid\\_00=7](http://www.apec-vc.or.jp/j/modules/tinyd00/?id=61&kh_open_cid_00=7), (閲覧日 2016 年 12 月 3 日) .

- 32) 伊田健司,鈴木章,平野洋一,川瀬義矩:ヒ素の水環境中における存在形態とその挙動, 埼玉県環境科学国際センター報, Vol.5, pp.141-144(2004).
- 33) 山村茂樹:微生物を利用して汚染土壌からヒ素を除去する, 国立環境研究所,国環研ニュース 26 卷,Vol.26,No.5(2007),  
<http://www.nies.go.jp/kanko/news/26/26-5/26-5-03.html>, (2016 年 12 月 3 日 閲覧).
- 34) 環境省 環境リスク評価室:化学物質の環境リスクの評価 第 6 卷,アンチモン及びその化合物, <http://www.env.go.jp/chemi/report/h19-03/pdf/chpt1/1-2-3-02.pdf>, (2016 年 12 月 3 日 閲覧) .
- 35) 経済産業省,新エネルギー・産業技術総合開発機構:有害性評価書 アンチモン及びその化合物,化学物質排出把握管理促進法政令号番号 1-25,Ver.0.4,No.132,pp.10-11,  
<http://www.meti.go.jp/committee/materials/downloadfiles/g80312b04j.pdf#search=%27%E3%82%A2%E3%83%B3%E3%83%81%E3%83%A2%E3%83%B3+%E5%9C%9F%E5%A3%8C%27>, (閲覧日 2016 年 12 月 3 日) .



## 第七章

### 埋立廃棄物中の塩類残存量による 溶出性の検討

### 7.1 はじめに

第五章と第六章においては浸出水の水質から、各種イオンの溶出特性について検討した。その結果、長期的な有機物分解プロセスによる埋立層内雰囲気の変化の影響を受けやすいイオンや元素がある一方、影響を受けにくいものもあることが判明した。また、各種イオンや元素が有する電気的な性質や化学的な性質が溶出挙動に影響することも示唆した。

本章では、溶出試験から埋立廃棄物中に存在するイオン量を埋立区画別に検討し、これまで述べてきた各種塩類の溶出メカニズムの評価を試みる。

### 7.2 溶出試験検液の電気伝導率

溶出試験用に調整した振とう検液と分散検液の EC を単位乾燥重量あたりに換算し、図 7-1 に示した。全てのサンプルにおいて、振とう検液に比べて分散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作用している。前者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、後者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ている。簡単に言えば、前者は溶出しやすい塩類による EC であり、後者は比較的溶出しにくい塩類を加えた EC である。

各試料を比較すると、他の埋立区画に対して第 5 区画の EC が高い。これは第 5 区画が埋立終了から最も経過時間が短いため、塩類洗い出しが進んでいないためである。しかし、第 1 区画が第 2～4 区画に比べて高い EC 値を示していることから、当該区画の廃棄物固相には水溶性塩類が多く存在することを示している。

また、第 2 区画、第 3 区画および第 5 区画において、EC は浅層部よりも深層部の EC が高い傾向がある。これは、浅層から優先的に塩類洗い出しが進行しているためと考えられる。第四章と第五章で述べたとおり、埋立廃棄物層内は不均質であるため、塩類洗い出しされやすい部分とされにくい部分が混在しているが、基本的に浸入水や保有水は重力により浅層部から深層部に移動する。そのため、浅層部の方が比較的容易に塩類洗い出しが行われる。その一方で、第 1 区画と第 4 区画では浅層部の EC が高い。これは、深層部に比べて浅層部に地上から酸素が供給されやすいことに由来すると考えられるが、詳細については次節で説明する。

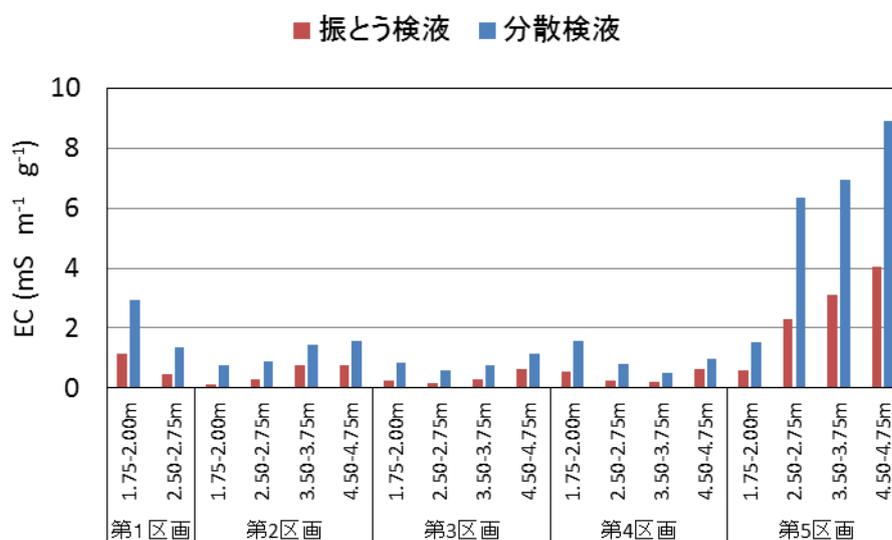


図 7-1 溶出試験検液の単位乾燥重量あたりの EC 値

### 7.3 溶出試験検液の各種イオン濃度

溶出試験用に調整した検液中の  $\text{Cl}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{IC}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  および  $\text{Mg}^{2+}$  の濃度について、電気化学当量単位の相対割合を算出し、埋立区画別に図 7-2 から図 7-6 にそれぞれ示した。比較のため、振とう検液と分散検液を並べて表記した。浸出水の調査においては、 $\text{NO}_3^-$  濃度が他のイオンに比べて著しく低濃度であったため検討対象から除外したが、溶出試験検液においては他のイオン種と同等程度の濃度で検出されたため検討対象とした。また、分散検液については  $\text{NH}_4^+$  を分析しなかったため、その代替として  $\text{TN}$  と  $\text{NO}_3^-$  の差を  $\text{NH}_4^+$  と同じ位置に表記し、凡例には  $\text{Re-N}$  と記載した。なお、全ての試料で  $\text{NO}_2^-$  は検出されなかった。

アニオンとカチオンのそれぞれの総量のバランスがとれていない原因として、 $\text{IC}$  と  $\text{NH}_4^+$  は実際には全てが電離していない形態であるが、便宜上、一価のイオンとして算出していることがある。また、攪拌力により強制的に溶解した難溶塩は電離しない状態で検液中に存在する場合もある。

得られた結果について、有機物分解プロセスの進行に合わせて、埋立終了からの経過期間が短い埋立区画から順に検討する。

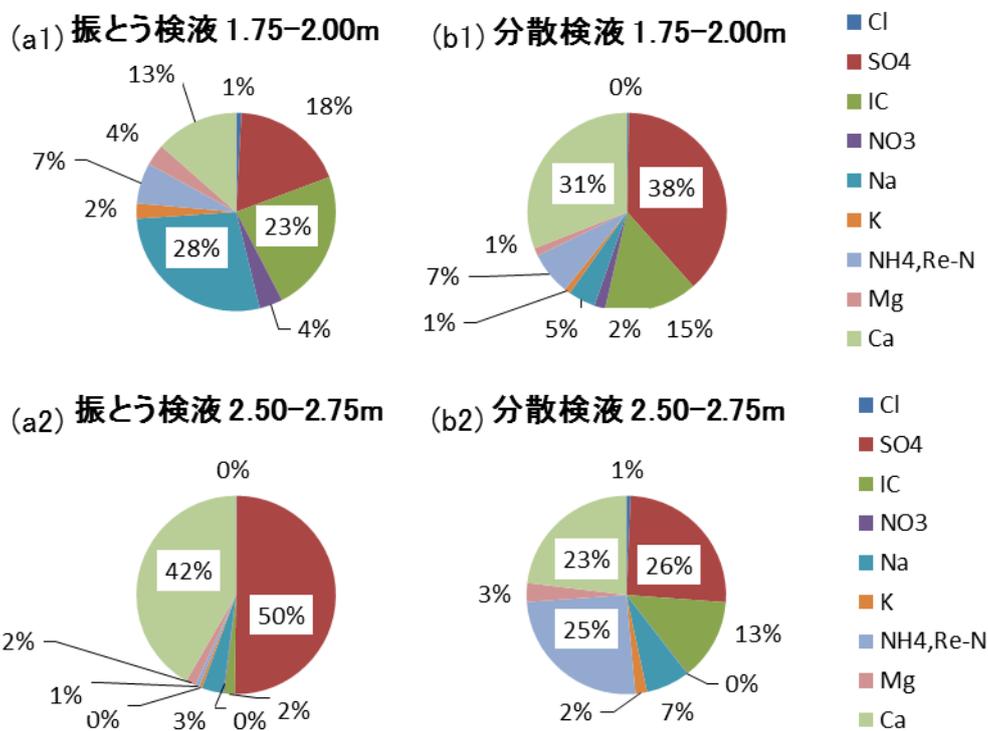


図 7-2 第 1 区画の溶出試験溶液中の各種イオンの相対濃度割合

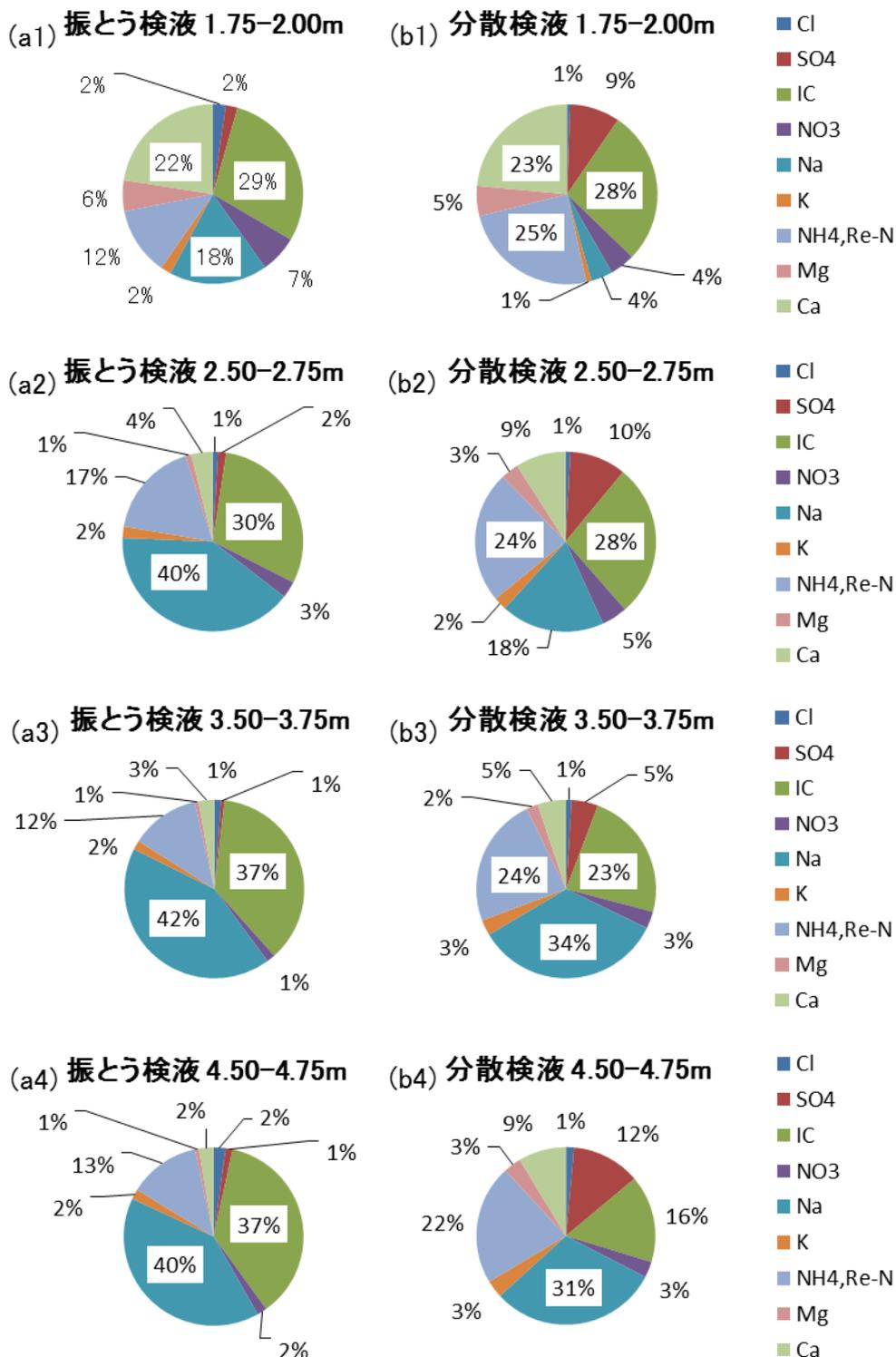


図 7-3 第 2 区画の溶出試験溶液中の各種イオンの相対濃度割合

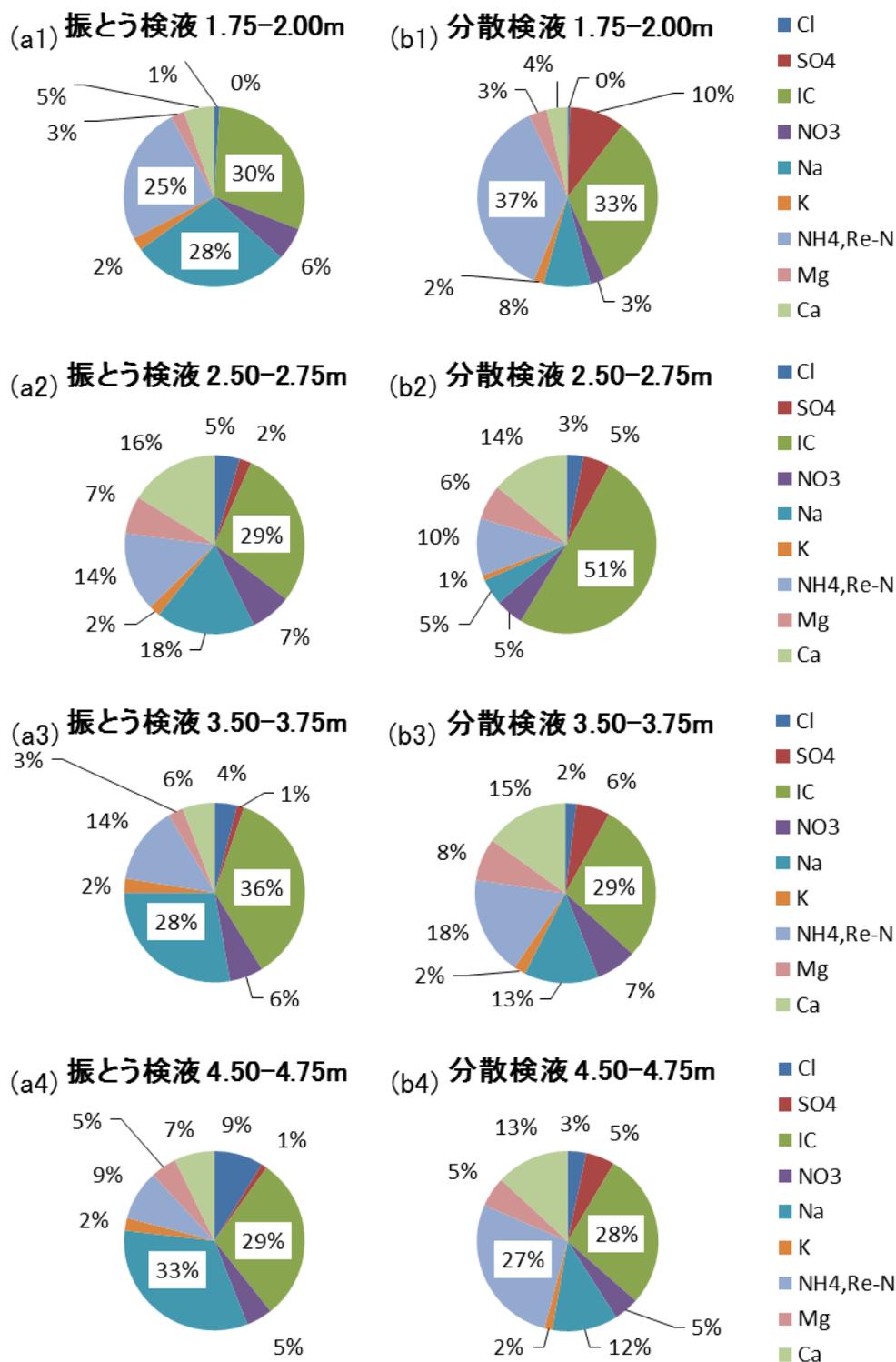


図 7-4 第 3 区画の溶出試験溶液中の各種イオンの相対濃度割合

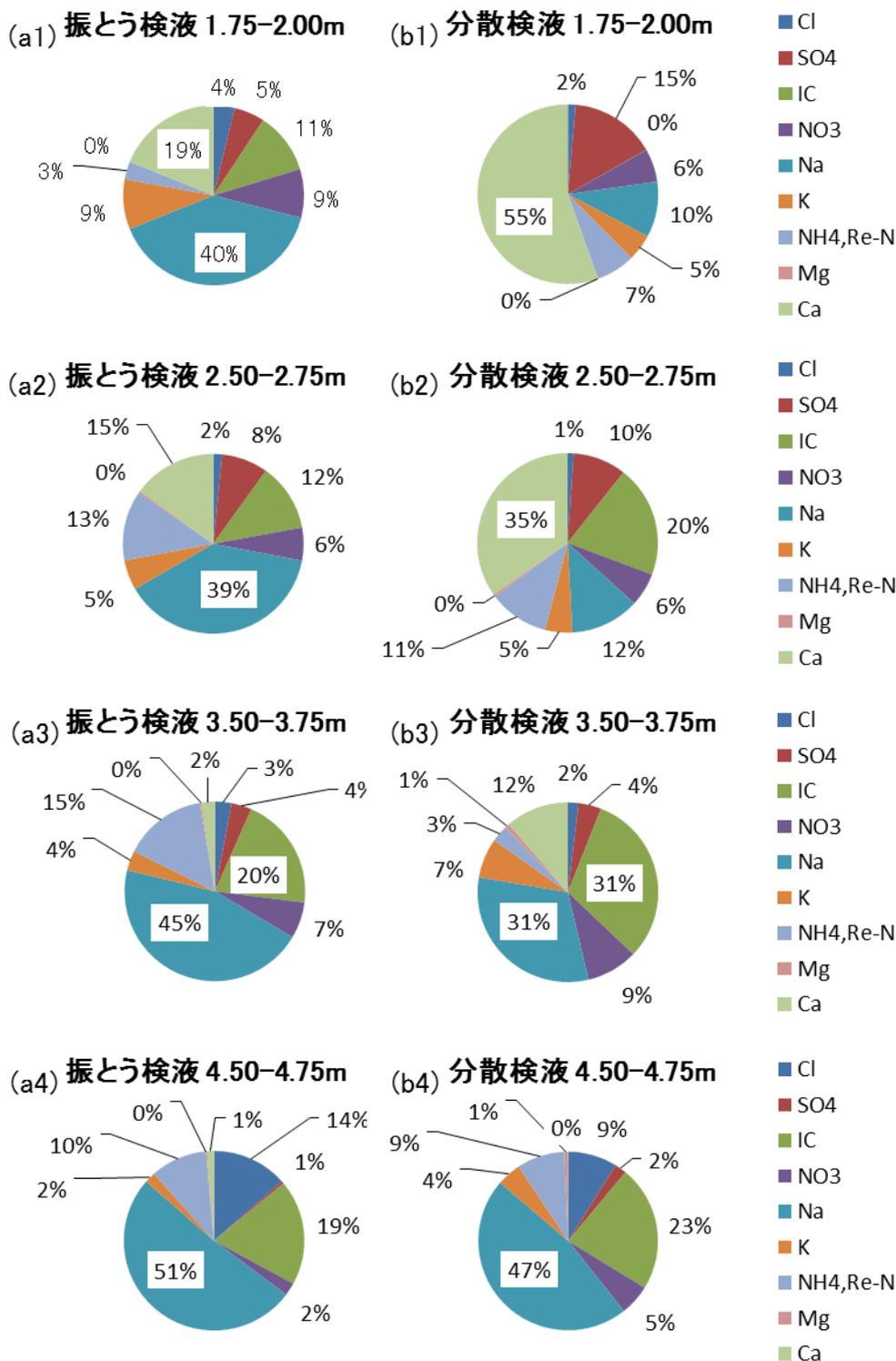


図 7-5 第 4 区画の溶出試験溶液中の各種イオンの相対濃度割合

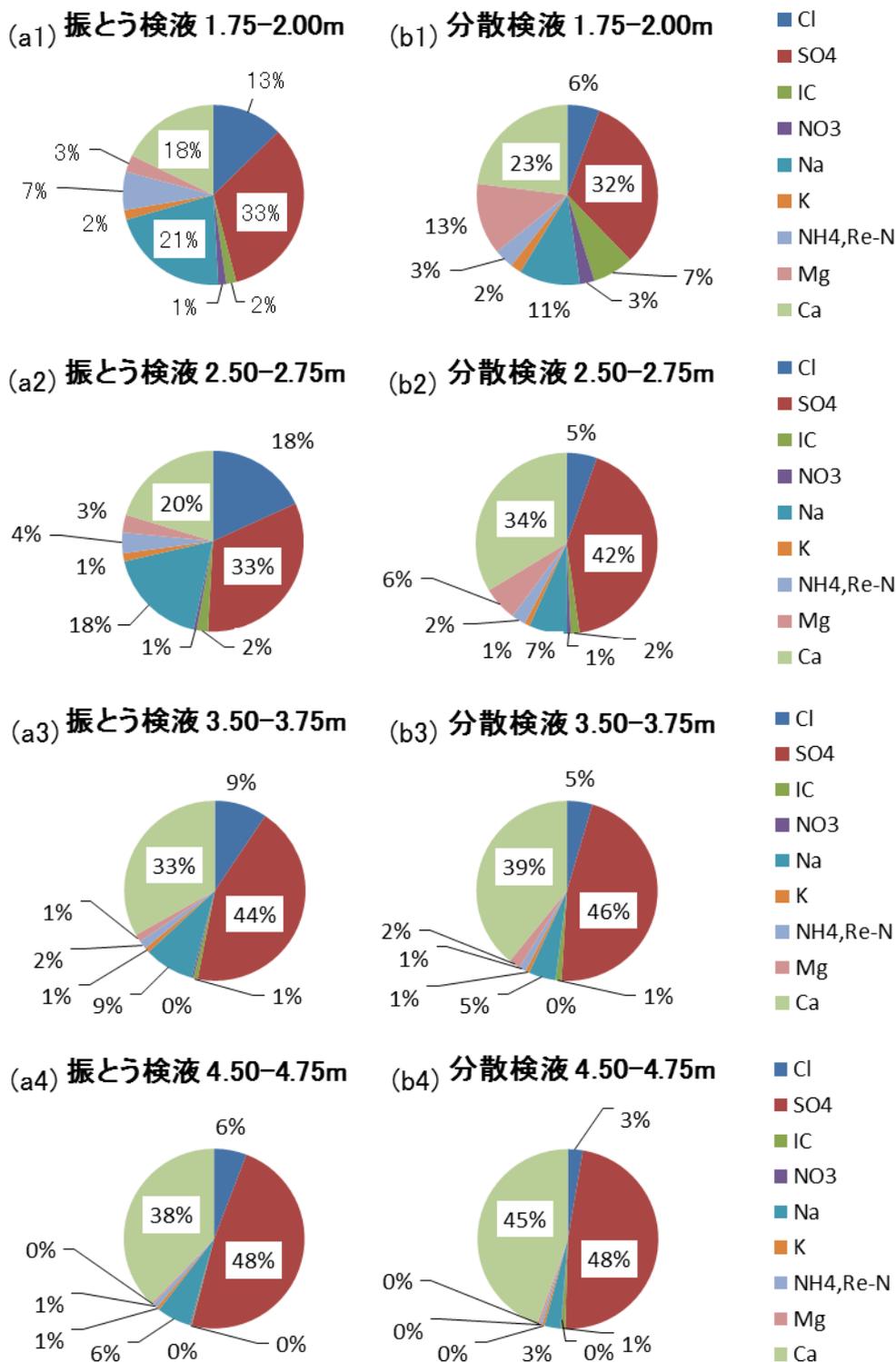


図 7-6 第 5 区画の溶出試験溶液中の各種イオンの相対濃度割合

## 7.3.1 第5区画の埋立層内イオン

第5区画の結果を示した図7-6では振とう検液と分散検液ともに、深層部である4.75-5.00 mと浅層部である1.75-2.00 mとの各種イオンの相対割合が大きく異なった。深層部では $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ が大部分を占めているが、浅層部では $\text{Cl}^-$ や $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ のような溶出しやすいイオンの相対割合が比較的大きい。

図7-7に振とう検液から求めた第5区画における単位重量あたりの $\text{Cl}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Na}^+$ および $\text{Ca}^{2+}$ 含有量の深度分布を示した。このグラフから、深くなるにつれて $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ の含有量が増加しており、図7-1に示された深層部における高いEC値は $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ に由来することが判明した。つまり、易溶出性イオンである $\text{Cl}^-$ や $\text{Na}^+$ に比べて $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ は埋立廃棄物層に残りやすく、移動しにくいことが示唆される。この原因として、土壌中の粘土粒子と陽イオンの関係では、二価イオンの方が一価イオンよりも強い静電力が働くことが知られている<sup>1)</sup>。即ち、埋立廃棄物層においても同様に、 $\text{Ca}^{2+}$ が強い静電力で廃棄物固相に吸着されることが考えられる。さらに、 $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ を含む微細粒子が埋立廃棄物層内の間隙を保有水とともに移動し、深層部に蓄積することも考えられる。2006年の環境省通知<sup>2)</sup>により、廃石膏ボードの処分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2-3に示したとおり、第5区画よりも新しい区画に埋め立てされている。廃石膏ボードの主成分は $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ である。埋立廃棄物の中に微細粒子として留まっていた $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ が溶出試験の強力な攪拌力により検液中に溶解した可能性が高い。このことは振とう検液(a4)よりも分散検液(b4)の方が $\text{Ca}^{2+}$ の相対割合が増加していることと調和的である。

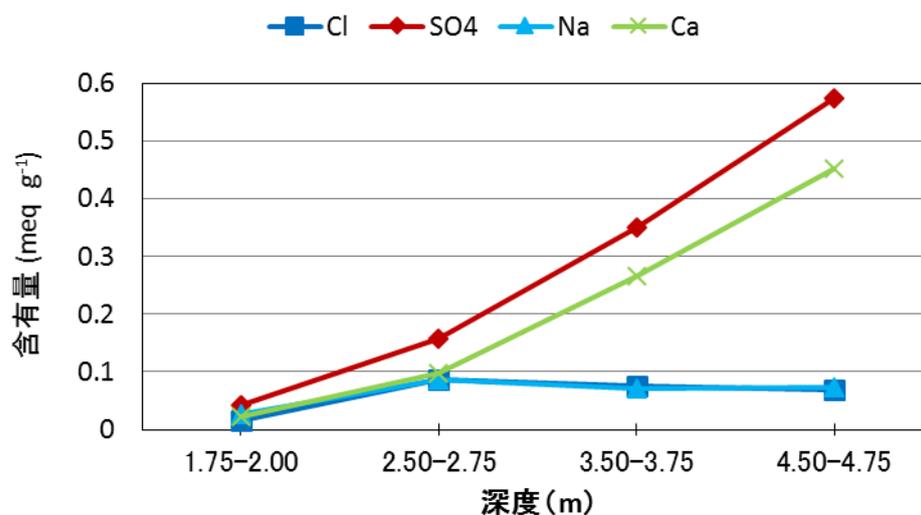


図7-7 振とう検液から求めた第5区画コア試料中のイオン含有量

### 7.3.2 第4区画の埋立層内イオン

第4区画の結果を示した図7-5においても、第5区画と同じように深層部である4.50-4.75 mと浅層部である1.75-2.00 mとは、各種イオンの相対割合が大きく異なっていた。振とう検液を比較すると、 $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ は深くなるにつれて相対割合が減少し、深層部の4.50-4.75 mでは確認できない。また、 $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ が検出された1.75-2.00 m、2.50-2.75 mおよび3.50-3.75 mにおいては、振とう検液に比べて分散検液の相対割合が大きく、特に $\text{Ca}^{2+}$ については深度が浅い方がその差は大きい。

第Ⅲ期（メタン生成発達期）に相当するこの区画では、 $\text{SO}_4^{2-}$ が還元され、 $\text{Ca}^{2+}$ が硫化物を形成していることを第五章と第六章で述べた。しかし、層内雰囲気嫌気・還元状態から好気・酸化状態への移行は酸素が供給されやすい浅層から進行する。そのため、浅層部では既に硫化物の一部の酸化反応が始まっており、その結果、 $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ が検出される。つまり、図7-1の第4区画における浅層部のECが高値を示したのは、硫化物の酸化反応による影響である。一方、強い嫌気・還元状態が残る深層部では、これらはCaSの形態で残存するため、振とう検液、分散検液ともに $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ が検出されない。

なお、振とう検液と分散検液間で $\text{SO}_4^{2-}$ の相対割合の差は小さいのに対して $\text{Ca}^{2+}$ は差が大きい理由はつぎのように考えられる。酸化途中のCaSと $\text{CaSO}_4$ の混合粒子が攪拌過程で細分化され、溶出試験検液に含まれる。分析前の酸分解処理により、水には溶解しにくいCaSの微細粒子も溶解する。振とう操作に比べて分散操作は攪拌力が強く、CaSを細分化させやすいため、その分だけ振とう検液よりも分散検液の $\text{Ca}^{2+}$ の相対割合が大きくなる。

$\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{Ca}^{2+}$ 以外に着目する点としては、Cl<sup>-</sup>とNa<sup>+</sup>の相対割合の差異がある。振とう検液で比較すると、全ての深度においてCl<sup>-</sup>に比べてNa<sup>+</sup>の相対割合が大きい。この結果は、Na<sup>+</sup>がCl<sup>-</sup>よりも廃棄物層に残留しやすいことを示している。

### 7.3.3 第2区画と第3区画の埋立層内イオン

第2区画と第3区画の全ての深度において、振とう検液中のICの相対割合が第4区画に比べて大きく、 $\text{NH}_4^+$ については第4区画とほぼ同程度の相対割合を示した。ICについては第六章の6.3.2で述べたとおり、これらの区画の浸出水に含まれるIC濃度が増加していることと整合する。

図7-8に振とう検液から求めた第2区画から第4区画における $\text{NH}_4^+$ 含有量の深度分布を示した。第六章の6.2.2で、第2区画と第3区画の浸出水中の $\text{NH}_4^+$ 濃度は第4区画よりも高く、有機窒素化合物の分解による生成量が洗い出し量よりも勝っていることを述べた。図7-8においても、4.50-4.75 mで第4区画の含有量が第3区画よりも大きくなっている点を除き、それ以外の $\text{NH}_4^+$ 含有量は第4区画よりも第2区画と第3区画が大きい。このことは、第六章の浸出水についての考察とほぼ整合する。即ち、図7-3と図7-4に示した $\text{NH}_4^+$ の相対割合が図7-5の相対割合と同程度であるのは、ICの

濃度増加が大きく、それ以外のイオン種が相対的に低くなった影響である。

さらに第3区画の溶出検液では、第4区画では全ての深度でほとんど検出されなかった  $Mg^{2+}$  が検出されている。第六章の 6.3.2 において、初期に炭酸塩を形成した  $Mg^{2+}$  は有機物分解由来の  $CO_2$  やカルボン酸の濃度増加により再溶解して溶出することを述べた。図 7-4 に示された  $Mg^{2+}$  は、第Ⅲ期（メタン生成発達期）に層内の  $CO_2$  とカルボン酸濃度が低下することで、溶出せずに層内に残留していた  $MgCO_3$  が第Ⅳ期（メタン生成定常期）に  $CO_2$  濃度が再度増加することにより溶解しやすい状態となり、溶出試験の強い攪拌力により検液に溶解したと考えられる。

$SO_4^{2-}$  と  $Ca^{2+}$  については、振とう検液では第2区画の 1.75-2.00 m と 2.50-2.75 m で検出された。また、振とう検液と分散検液を比較すると、分散検液中の  $SO_4^{2-}$  と  $Ca^{2+}$  の相対割合が大きくなった。これらのことから、埋め立てから経過時間が長く、地表から酸素が供給されやすい、第2区画の浅層部で硫化物の酸化反応が進んでいることが示唆される。第四章から第六章で第2区画の一部の好気化が進行し、第Ⅴ期（土壌化期）に到達しつつあることを述べたが、この溶出試験結果と一致する。

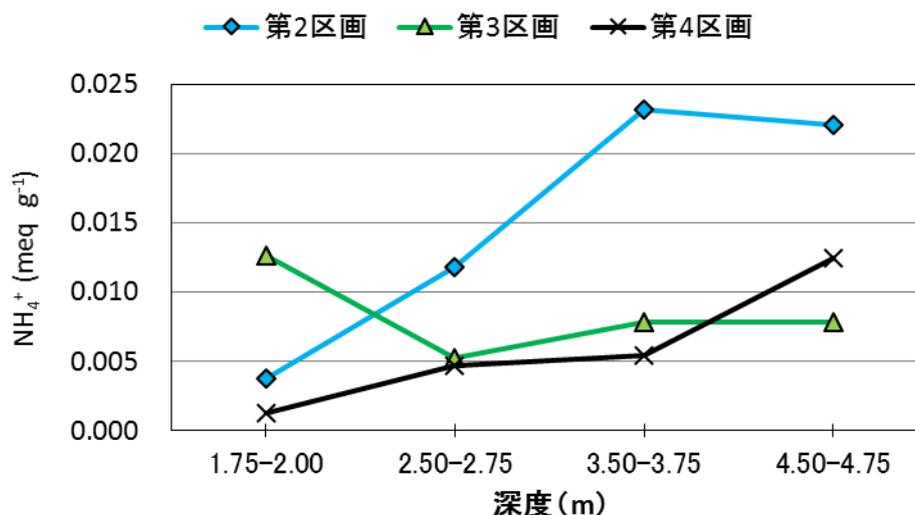


図 7-8 振とう検液から求めた第2区画から第4区画のコア試料中の  $NH_4^+$  含有量

### 7.3.4 第1区画の埋立層内イオン

第1区画の振とう検液については 1.75-2.00 m では  $Na^+$  の相対割合が最も大きいのに対して、2.50-2.75 m では  $SO_4^{2-}$  と  $Ca^{2+}$  の相対割合が大部分を占めている。 $Na^+$  が埋立廃棄物層内に残留しやすいことは 7.3.2 でも述べた。しかし、第1区画のように埋め立てからの経過時間が長い区画においても、 $Cl^-$  が廃棄物層にほとんど残留していないのに

対して、 $\text{Na}^+$ は高い相対割合で存在している。このことは、第五章と第六章で述べた陽イオン交換能によるカチオン溶出阻害作用と整合している。

2.50-2.75 m の振とう検液で示された  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の高い相対割合は硫化物の酸化が原因であると考えられ、1.75-2.00 m の振とう検液中でも比較的大きい割合で存在している。また、分散検液においても高い相対割合であり、廃棄物固相に多く存在していることが示される。このことは、第五章の図 5-7(a) で期間浸入水量とこれらのイオン濃度との相関係数が比較的高かったことと整合的である。

なお、図 7-1 で 2.50-2.75 m よりも 1.75-2.00 m の EC が高かった原因は浅層部の IC 濃度が高いためであり、図 7-2 においても 2.50-2.75m よりも 1.75-2.00m の IC の相対割合が大きい。これは第 V 期の好氣的有機物分解が、酸素供給されやすい浅層部の方が活発であるためと考えられる。

### 7.3 まとめ

本章では第 1 区画から第 5 区画までのボーリングコアサンプルを用いた溶出試験結果を解析し、以下の結論が得られた。

- (1) 第 II 期（嫌気性酸発酵期）に相当する第 5 区画においては、深層部において  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の含有量が大きく、 $\text{Cl}^-$  や  $\text{Na}^+$  に比べて埋立層内での移動性が低いことが示された。
- (2) 第 III 期（メタン生成発達期）に相当する第 4 区画においては、深度が深くなるにつれて  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の相対割合が減少し、この時期に層内雰囲気嫌気・還元化に伴い進行する硫化物の形成作用と現象が一致した。
- (3) 第 IV 期（メタン生成定常期）に相当する第 2 区画と第 3 区画においては、IC の相対割合が大きく、浸出水の濃度増加挙動と整合的であった。また、第 4 区画では微量であった  $\text{Mg}^{2+}$  の相対割合が第 3 区画では比較的大きくなり、埋立廃棄物固相に残存していた  $\text{MgCO}_3$  が層内における  $\text{CO}_2$  量の増加に伴い溶解しやすい状態となっていることが示唆された。さらに、第 3 区画に比べて第 2 区画の浅層部では  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の相対割合が大きく、第 2 区画の一部の好気化が進み、第 V 期へ移行しつつあるとした第四章から第六章の結果と整合した。
- (4) 第 V 期（土壌化期）に相当する第 1 区画においては、 $\text{Cl}^-$  に比べて  $\text{Na}^+$  の含有量が大きく、第五章と第六章で述べた、陽イオン交換能によるカチオン溶出阻害作用と整合する結果であった。また、 $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  が高い相対割合を示していたことから、硫化物の酸化反応で生成したこれらのイオンが埋立廃棄物層内に存在し、第四章で期間浸入水量との相関が高かったことと整合的であった。さらに、IC の相対割合が浅層部で大きく、第 1 区画内では好気性有機物

分解が続いていることが示され、第四章と第六章の結果と一致した。

- (5) 各埋立区画の埋立廃棄物層内のイオン含有量と相対割合は深度によって異なり、浅層部は各区画が相当するとした有機物分解プロセスの次の段階の特徴を示すことがあった。これは、酸素が地表から供給されるために、層内状態の変化が浅層から進行することに由来すると考えられた。

参考文献

- 1) 中野正詩: 土壌中における溶解物質の移動予測のシナリオ, 土壌の物理性, No.67, pp.51-57(1993).
- 2) 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), 環産廃発第 060601001 号, 平成 18 年 6 月 1 日,(2006).





## 第八章

## 結言

最終処分場は人間が日常生活を営む上で、また、産業活動を行う上で欠くことのできない重要なインフラである。なかでも、管理型最終処分場は社会で発生する大部分の廃棄物残渣の埋立処分が可能であり、将来、最も普及するとされるタイプの処分場である。

管理型最終処分場に埋立処分された廃棄物は、長い時間をかけての生物化学的反応や物理化学的反応により安定化が進む。この安定化は、埋立廃棄物の環境汚染リスクポテンシャルを低下させるために早期の進行が望まれる。しかし、廃棄物安定化に関連する反応は数多く、メカニズムが複雑であり、詳細については不明な部分が多い。特に既存処分場を対象とした塩類溶出に関する研究事例が少なく、これまでに蓄積されている情報が乏しい。そのため、本研究では施設の構造や曝された気象条件が同様であり、埋立時期が異なる埋立地 6 区画の浸出水水質を約 5 年間モニタリングし、安定化における塩類の不溶化と溶出に視点を絞った検討を行った。

第一章では、本研究を実施する背景として、廃棄物最終処分場が社会的に重要なインフラであることと、廃棄物安定化に関する研究の動向と既往の知見、本論文の目的と構成について述べた。

第二章では、本論文で研究対象とした処分場の概要と特徴について述べた。

第三章では、本研究に用いた調査手法や分析方法、層内浸入水量の算出方法について説明した。

第四章では、埋立層内の基礎的な状態把握を目的とし、最初にボーリング掘削による埋立廃棄物の性状調査と観測井を用いた保有水調査についてまとめた。その結果、廃棄物層内は不均質であり、透水係数をはじめとする物性が場所や深度により異なること、埋立廃棄物層の保有水面は非常に高いこと、埋立物の熱伝導率が高いため外部温度の影響を受けやすいことを確認した。さらに、浸出水の pH、ORP および DO の経時変化と主要イオン濃度の相対比から、安定化による一連の有機物分解プロセスにおいて、それぞれの埋立区画が合致するステージを判定した。

第五章では、埋立層内への浸入水水量と浸出水中の主要イオン濃度の相関分析を行い、浸入水水量の短期的な変化が浸出水水質に影響を及ぼすことを確認した。浸入水水量変化が浸出水のイオン濃度変化に及ぼす効果は、埋立初期の区画とそれ以外の区画では正反対であることから、それぞれ異なるメカニズムが作用していることが判明した。即ち、埋立初期区画においては埋立廃棄物層に存在する豊富な水溶性塩分が浸入水と保有水に速やかに溶解するため、鉛直方向に濃度差の大きい塩分勾配が形成される。これにより、底部にある高い塩分濃度の水が浸出水として排水されやすくなる。一方、埋立終了区画においては、埋立廃棄物層内の不均質性により透水性の異なるゾーンが偏在し、高透水ゾーンを移動する保有水が浸出水水質に影響を与える。そして、各埋立区画間

の高透水ゾーンの相違は浸出水水質に与える影響の差異となる。また、それぞれのイオン種が有する電気的な性質と層内雰囲気への感受性、有機物分解による生成物も浸出水のイオン濃度に影響する因子であることが示された。

第六章では、浸出水水質の経時変化から主要イオンと半金属、重金属の長期的な溶出特性を評価し、その溶出メカニズムと影響因子について検討した。その結果、易溶出性といわれる  $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$  および  $\text{K}^+$  の間にも溶出性に差異があり、アニオンに比べてカチオンの溶出が遅い結果となった。これは、埋立廃棄物によるカチオン交換作用が原因と考えられ、第五章の結果と一致した。 $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  は有機物分解プロセスに伴う層内雰囲気の嫌気・還元化の影響を受け、浸出水の濃度変化は既往の知見とほぼ一致した。しかし、土壌化期に到達前の埋立区画において比較的高濃度に検出され、このことは有機性分解プロセスが次の段階に移行する兆候と考えられた。 $\text{IC}$  と  $\text{Mg}^{2+}$  は難溶性炭酸塩の形成と、有機物分解由来生成物の層内濃度増加による再溶解反応が埋立層からの溶出に大きく影響していた。半金属である  $\text{B}$ 、 $\text{As}$  および  $\text{Sb}$  はルイス酸または解離しにくい遊離体の形態で存在し、層内雰囲気の影響を受けにくく、連続的な溶出挙動を示した。一方、重金属である  $\text{Mn}$ 、 $\text{Fe}$  および  $\text{Ni}$  は硫化物形成による溶出阻害と  $\text{pH}$  低下による溶出促進の両方の作用が均衡していた。また、 $\text{Ni}$  は錯体を形成しやすい性質を有し、これが溶出に影響することが示唆された。

第七章では、ボーリングコアサンプル中に含まれる主要イオンの相対割合から、第四章から第六章で述べた溶出特性に影響する因子やメカニズムについて確認した。 $\text{Cl}^-$  に比べて  $\text{Na}^+$  が埋立層内に長期間残存することや、埋立区画や深度による  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  の相対割合の変化から、前章まで述べてきた影響因子やメカニズムが妥当であることを確認した。

第一章で述べたとおり、実際の処分場における廃棄物安定化は、関連する影響因子が多く、進行する各種反応は複雑である。そのため、因子を制限できる小型実験槽やカラムを用いた試験研究により個別のメカニズムを解明していく方法が主流である。このような基礎的で明確な研究成果は重要である。しかし、このような基礎データを積み上げるだけでは実際の安定化メカニズム解明は永遠に不可能であり、実験データと既存処分場の調査データを比較・検討することが大切である。ただし、現場を対象とする研究は、処分場管理者の理解と協力が必要であり、調査は長期に及ぶため、研究の実施できる環境に恵まれにくい。本研究では多くの条件に恵まれたことにより、このように大規模で長期的な研究を行うことができた。そのため、本研究のデータと成果は大変貴重であり、重要である。

本研究は、浸出水の各種イオン濃度から安定化における塩類溶出メカニズムの解明を目指したものであり、浸出水中のイオン濃度や相対割合が埋立地内部の有機物分解プロセスの進捗や層内雰囲気の変化を反映していることを確認

した。換言すると、浸出水中イオンのモニタリングデータを層内安定化の判定指標として活用できる可能性がある。例えば  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Ca}^{2+}$  は土壌化期に移行する前に濃度が増加したことから、廃止基準適合の前兆を知るための有効な指標となる。つまり、現在の廃止基準には塩類に関する基準設定はないため、それを補完する指標としての利用が期待できる。ただし、これを実用化するためには、多数の処分場において様々なデータ集積を行い、より一般化した知見の確立が必要である。

そして、埋立廃棄物が土壌や鉱物のようにイオン交換能を有し、これがカチオンの溶出阻害因子として作用していることは、本研究により初めて判明したものである。しかし、埋立物が陽イオン交換容量を有する原因や仕組みは未知であり、これを解明するための研究が求められる。

本研究の目的である処分場埋立地からの塩類溶出メカニズムの詳細説明が完全に達成できれば、次段階では塩類溶出を促進または抑制する技術開発に発展することが期待される。この技術は、安定化の促進に貢献することは当然であるが、それ以外にも工業生産活動に寄与できる可能性を有する。なぜなら、過去の処分場には高度な中間処理を経ていない電気電子機器廃棄物が多量に埋め立てられ、その中には多くの希少元素が含まれている。また、現在においても、経済的に回収価値がない希少元素は、そのまま埋立処分されている。そこで、特定の元素の溶出をコントロールし、埋立地内部に貯蔵・保管したものを選択的に抽出する技術が開発されれば、処分場はこれまでの「反応容器」としての概念だけでなく、「保管容器」としての新たな役割が付加される。このことは、社会情勢の混乱や原料価格の高騰などにより、希少元素の入手が困難となった場合において、産業活動への安定供給に寄与する役割を担い、処分場が静脈産業の最後の砦から、動脈産業の起点に変貌を遂げることを意味している。





# 研究業績

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
<b>査読あり論文</b> (学術雑誌)	<p>○<b>田中宏和</b>, 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の塩類濃度に及ぼす影響一, 廃棄物資源循環学会論文誌, Vol. 28, pp. 13-25(2017. 1), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>○香村一夫, 黒川雅裕, 横瀬隆司, 伊藤貴宏, 竹内睦雄, <b>田中宏和</b>:比抵抗法による廃棄物層内水みち探査法の開発とその有効性, 物理探査, Vol. 69, No. 3, pp. 173-183(2016. 7), 公益社団法人物理探査学会</p>
(国際会議)	<p>Ryuji Yokose, Takahiro Ito, Masahiro Kurokawa, Mutsuo Takeuchi, <b>Hirokazu Tanaka</b>, Kazuo Kamura : Clarifying metal-enriched zones in landfills by induce polarization measurement, Proceedings of The 12<sup>th</sup> SEGJ International Symposium, Tokyo Japan(2015. 11), Society of Exploration Geophysics of Japan</p> <p>○<b>Hirokazu Tanaka</b>, Tomonori Ishigaki, Kazuto Endo, Masato Yamada, Kazuo Kamura: Dissolution of Inorganic Ions by Leachate Quality of an Industrial Waste Landfill, Proceedings of 2nd Symposium of IWWG Asian Regional Branch, pp. 470-479, Shanghai China(2015. 4), International Waste Working Group</p> <p>Kazuo Kamura, Takahiro Ito, Ryuji Yokose, Masahiro Kurokawa, Mutsuo Takeuchi, <b>Hirokazu Tanaka</b>: Exploration of metal-enriched zones in landfills, Proceedings of 2nd Symposium of IWWG Asian Regional Branch, pp. 123-128, Shanghai China(2015. 4), International Waste Working Group</p>
<b>査読なし論文</b> (学術雑誌)	<p>○<b>田中宏和</b>, 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誌, Vol. 27, No. 1, pp27-38(2016), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p>
(国際会議)	<p>Kazuo Kamura, Masahiro Kurokawa, Ryuji Yokose, Takahiro Ito, Mutsuo Takeuchi, <b>Hirokazu Tanaka</b> : Visualization of permeating water paths in landfills using electrical resistivity survey, Proceedings of The 9<sup>th</sup> Intercontinental Landfill Research Symposium, pp. 91-92, Noboribetsu Japan(2016. 6), International Waste Working Group</p>
<b>国内学会発表</b>	<p>○<b>田中宏和</b>, 中村大充, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 香村一夫: 管理型最終処分場における塩化物イオンとフッ化物イオンの溶出特性比較, 第 38 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, pp272-274, 釧路市 (2017. 1) , 公益社団法人 全国都市清掃会議</p> <p>瀧中英仁, 香村一夫, 肴倉宏史, 成岡朋弘, <b>田中宏和</b>:都市鉱山としての最終処分場評価(3)一賦存するメタルの種類・濃度・存在形態とその資源経済的価値一, 第 38 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, pp236-238, 釧路市 (2017. 1) , 公益社団法人 全国都市清掃会議</p> <p>黒川雅裕, 杉山実友希, 香村一夫, 竹内睦雄, <b>田中宏和</b>:都市鉱山としての最終処分場評価(4)一埋立層内メタル濃集ゾーン把握に対する非破壊探査手法の開発一, 第 38 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, pp239-241, 釧路市 (2017. 1) , 公益社団法人 全国都市清掃会議</p>

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
国内学会発表	<p>尾形有香, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, <b>田中宏和</b>, 佐藤昌宏: 跡地利用が最終処分場の地表面からのガス排出挙動に及ぼす影響, 第 38 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, pp284-286, 釧路市 (2017. 1), 公益社団法人 全国都市清掃会議</p> <p>○<b>田中宏和</b>, 中村大充, 大家清紀, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 香村一夫: 管理型最終処分場ポ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集, pp407-408, 和歌山市 (2016. 9), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>○石井敦, <b>田中宏和</b>, 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集, pp425-426, 和歌山市 (2016. 9), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>中村大充, <b>田中宏和</b>, 荻野賢治, 大家清紀: 管理型最終処分場の浸出水の光酸化分解処理の効果の検討, 第 27 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集, pp429-430, 和歌山市 (2016. 9), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>○石井敦, <b>田中宏和</b>, 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, 東京都 (2016. 5), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>黒川雅裕, 横瀬隆司, 高橋光馬, <b>田中宏和</b>, 竹内睦雄, 香村一夫: 電気探査比抵抗法による廃棄物埋立層内の水みち探索, 物理探査学会第 134 回学術講演会論文集, pp. 195-198, 東京都 (2016. 5), 公益社団法人 物理探査学会</p> <p><b>田中宏和</b>, 山崎慶子, 大家清紀, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 香村一夫: 最終処分場における観測井内滞留ガスと埋立経過期間および保有水水位との関連性, 第 37 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, pp249-251, 周南市 (2016. 1), 公益社団法人 全国都市清掃会議</p> <p>黒川雅裕, 横瀬隆司, <b>田中宏和</b>, 竹内睦雄, 香村一夫: 様々な電気探査法による廃棄物埋立層内部状態の可視化, 物理探査学会第 133 回学術講演会論文集, pp1-4, 金沢市 (2015. 9), 公益社団法人 物理探査学会</p> <p><b>田中宏和</b>, 山崎慶子, 荻野賢治, 大家清紀, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 香村一夫: 管理型最終処分場における観測井内滞留ガス濃度調査, 第 26 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集, pp471-472, 福岡市 (2015. 9), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>瀧中英仁, 高田康平, <b>田中宏和</b>, 香村一夫: 最終処分場埋立層内におけるメタル類の濃度と賦存形態に関する検討, 第 26 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集, pp473-474, 福岡市 (2015. 9), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>瀧中英仁, 高田康平, 香村一夫, <b>田中宏和</b>: 最終処分場埋立層内におけるメタル類の濃度とその化学的賦存形態に関する検討, 平成 27 年度廃棄物資源循環学会 春の研究発表会, P-036, 川崎市 (2015. 5), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p>

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
国内学会発表	<p>佐藤昌宏, 山田正人, 石垣智基, 遠藤和人, <b>田中宏和</b>: 太陽光パネルベタ基礎周縁における埋立ガスフラックスに関する調査事例, 平成 27 年度廃棄物資源循環学会 春の研究発表会, P-034, 川崎市(2015. 5), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>佐藤昌宏, 山田正人, 石垣智基, 遠藤和人, <b>田中宏和</b>: 埋立地における地中ガスのメタン比および地表面ガスフラックスの経年変化, 平成 26 年度廃棄物資源循環学会関東支部講演会・研究発表会・意見交換会, P-035, 東京都(2015. 3), 一般社団法人廃棄物資源循環学会</p> <p>○<b>田中宏和</b>, 松井亮, 大家清紀, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 香村一夫: 砂質最終覆土の水分量変化挙動, 第 36 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, pp291-293, 沼津市(2015. 1), 公益社団法人 全国都市清掃会議</p> <p>佐藤昌宏, 山田正人, 石垣智基, 遠藤和人, <b>田中宏和</b>: 最終処分場の表面における埋立地ガスフラックスおよび層内ガス濃度の経年変化, 第 22 回北海道大学衛生工学シンポジウム, No. 11, 札幌市(2014. 11), 北海道大学工学部衛生環境工学コース</p> <p>○<b>田中宏和</b>, 松井亮, 大家清紀, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 香村一夫: 砂質土を使用した最終覆土の浸透水移動性評価, 第 25 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集, pp453-454, 広島市(2014. 9), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p><b>田中宏和</b>, 中村大充, 山崎慶子, 大家清紀, 石垣智基, 遠藤和人, 山田正人, 香村一夫: 管理型最終処分場跡地の自然エネルギー発電施設としての活用可能性, 第 25 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集, pp407-408, 広島市(2014. 9), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>横瀬降司, 若林恭子, 小山研也, 伊藤貴宏, <b>田中宏和</b>, 香村一夫: 電気探査 IP 法を用いた廃棄物埋立層内メタル濃集ゾーンの把握, 第 25 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演集, pp451-452, 広島市(2014. 9), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>横瀬降司, 伊藤貴宏, 小山研也, 若林恭子, <b>田中宏和</b>, 香村一夫: 埋立経過年数の異なる廃棄物層で得られた比抵抗プロファイルとその解釈、平成 26 年度廃棄物資源循環学会 春の研究発表会, P-012, 川崎市(2014. 5), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p> <p>佐藤昌宏, 山田正人, 石垣智基, 遠藤和人, <b>田中宏和</b>: 埋立地における地中ガスのメタン比および地表面ガスフラックスの経年変化, 平成 26 年度廃棄物資源循環学会 春の研究発表会, P-035, 川崎市(2014. 5), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p>
著書	<p>朝倉宏, 石垣智基, 磯部友護, 遠藤和人, 小野雄策, 香村一夫, 川寄幹生, <b>田中宏和</b>, 谷川俊治, 堤克裕, 長森正尚, 長谷隆仁, 八戸昭一, 原雄, 前田正男, 福井博, 山田正人: 廃棄物最終処分場のための現場調査法 現場屋がつくった現場調査法, 山田正人・最終処分場研究会関東処分組編, 小野雄策・サムハウパブリッシング発行 (2016. 7)</p>
依頼講演	<p><b>田中宏和</b>: 最終処分場の調査事例, 平成 27 年度廃棄物資源循環学会主催第 1 回セミナーテキスト, pp. 111-119, 川崎市(2015. 5), 一般社団法人 廃棄物資源循環学会</p>





# 謝辭

## 謝辞

本論文は、平成 18 年から平成 28 年にかけて、福井県衛生環境研究センターで実施した研究を、早稲田大学大学院創造理工学研究科 地球環境資源理工学専攻の社会人ドクターコースに在籍し、香村一夫教授のご指導をいただきながらまとめたものです。

私は福井県庁に奉職してから 10 年後に、かねてから希望していた研究職に就くことができ、研究者として最高の称号である博士号を取得したいと考えていました。そして、学会などで県内外の様々な研究に携わる多くの方々に出会い、博士号の取得を勧められました。しかし、なかなか機会に恵まれず、研究に没頭する日々を過ごしていたときに、「もし、本当にやる気があるのであれば」という条件付きで、香村一夫先生から本大学院の受験を勧められ、平成 26 年春に入学することができました。仕事との両立には大きな不安がありましたが、周りの皆様にお支えいただき、本論文をまとめることができました。皆様への感謝の気持ちは言葉では言い尽くせないほど深いものですが、ここに、お世話になりました皆様への謝辞を述べさせていただきます。

はじめに、指導教授である香村一夫先生には、本学の教員になられる以前の千葉県環境研究センターにご在籍されていた頃から、約 13 年間にわたり、ご助言とご指導をいただきました。初めてお会いした当時は、福井県敦賀市の不適正民間最終処分場問題が大きな行政課題の一つとなっていたため、福井県の研究機関に在籍する廃棄物担当者として、国立環境研究所や地方環境研究所の有識者にご助言をお願いしていた時期でした。そのようなときに、香村先生に見せていただいた比抵抗探査による埋立地内部の可視化画像は先進的であり、衝撃的で、身震いするほど感動したのを覚えています。その後、共同研究を続けてきましたが、私が本大学院に在籍してからは、さらに懇切丁寧なご指導をいただきましたことに、心から感謝申し上げます。先生がよくおっしゃられている、「学位の取得は通過点に過ぎず、それ以降の研究が大切である」という言葉を肝に銘じ、今後とも精進していく所存です。

また、国立環境研究所や地方環境研究所、大学、民間企業の研究者や技術者で構成する最終処分場研究会「関東処分組」の皆様には、廃棄物に関する研究経験がなかった私に、基礎知識から最新の調査技法まで、多岐にわたり教えていただきました。また、本研究対象処分場の共同調査にもご協力くださいました。皆様からご提供いただいた埋立ガスフラックスや各種物理探査などの調査結果は、本研究の考察において非常に参考となり、重要なバックデータとなり

ました。関東処分組のご支援がなければ、本論文は生まれなかったといっても過言ではありません。その中で、国立研究開発法人国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター 国際廃棄物管理技術研究室長の山田正人先生は、本論文の審査も願うするなど、特にお世話になりました。ここで関東処分組の皆様へ、心よりお礼申し上げます。

さらに、本論文の審査においては、本大学院創造理工学研究科 地球環境資源理工学専攻特任教授の斎藤章先生と同専攻教授の大河内博先生に、大変お世話になりました。先生方におかれましては、本論文を一語一句まで詳細にご審査いただき、考察に関する貴重なご助言だけでなく、誤字脱字や文章表現などの細部に至るまで、懇切丁寧にご指導いただきました。深くお礼申し上げます。

そして、本研究を行うにあたり、お世話になりました福井県衛生環境研究センターの皆様へお礼申し上げます。歴代の所長である、石畝史様、田中仁和様および青木浩一様は、私が本大学院に入学することを快諾し、学業を継続しやすい職場環境を整えてくださいました。また、水質環境研究グループの皆様は、現場調査や分析の協力だけでなく、学業が多忙のときは私の担当業務を積極的に補助するなど、多方面から助けてくれました。さらに、管理室の皆様は、本研究に関する共同調査準備や物品購入など、様々な事務を快く引き受け、迅速かつ適正に執行してくれました。社会人ドクターコースで学位を取得するためには、職場の皆様の温かいご支援が絶対必要条件です。センター職員の皆様がいつも親切に、応援してくれたことに深謝します。

加えて、私が技術者として生きていくための心構えをご教授いただきました上司の方々、研究を行う上で多くのご助言、ご鞭撻をいただきました多方面の先生方、調査にご協力くださいました処分場の皆様へ感謝申し上げます。

その他、多くの方々に支えていただき、本論文を書き上げることができました。本当に、ありがとうございました。

末文になりますが、私を生み育ててくれた両親、いつも明るく疲れを癒してくれる子供たち、私の薄給から学業に必要な多額の費用を捻出し、日常の健康管理を気遣ってくれる良妻に、心から感謝します。

平成 29 年 2 月

田中 宏和



