

## 廃棄物埋立処分場における有害有機化学物質の挙動評価モデル

田 中 信 寿・松 藤 敏 彦

(北海道大学工学部衛生工学科)

李 東 勲

(ソウル市立大学校工科大学環境工学科)

## Estimation model for leakage potential of hazardous organic chemicals from solid waste landfills

Nobutoshi TANAKA, Toshihiko MATSUTO

(Dept. of Environ. and Sanitary Eng., Hokkaido Univ.)

Donghoon LEE

(Dept. of Environ. Eng., Seoul City Univ.)

N. TANAKA, T. MATSUTO, D. LEE *Estimation model for leakage potential of hazardous organic chemicals from solid waste landfills.* Bull. Inst. Public Health, 40(2), 164-175, 1991.

Leakage potential estimation of hazardous organic chemicals (HOC) from solid waste landfills is an important issue to manage environmental pollution and health risk of HOC. In this paper, a mathematical model was presented for deciding HOC attenuation in landfill layer and direction of HOC leakage potential, *i.e.*, whether will HOC be transported upward with landfill gas or downward with leachate. By an application of the model to 3 case scenarios, the following conclusions were derived.

(1) The direction of HOC transport depends only on Henry's constant,  $H$ . In principle, HOC will be transported upward with landfill gas, when  $H$  of it is more than the critical Henry's constant  $H_{crit}$ , which is defined as the ratio of superficial flow rate of leachate to that of landfill gas. On the other hand, HOC will be transported downward with leachate, when it is less than  $H_{crit}$ . However, when  $H$  of HOC is nearly equal to  $H_{crit}$ , it will be transported to both directions.

(2) The more amount of landfill gas generation is, the more number of HOC will leak upward with landfill gas.

(3) Attenuation of HOC in landfill layer depends on  $k \cdot Kp$ , which is the product of HOC degradation rate constant,  $k$  ( $d^{-1}$ ) and HOC solid distribution coefficient,  $Kp$  (mL/g). It is expected that in solid landfill layer HOC would easily attenuate in about 1/1000 of initial concentration if HOC is transported with landfill gas/leachate in solution.

**Key Words** sanitary landfill, Hazardous organic chemicals, attenuation, leakage potential, transport model

(Accepted for publication, June 24, 1991)

[キーワード] 廃棄物処分場, 有害化学物質, 減衰性, 漏出性, 評価モデル, 輸送モデル

[平成3年6月24日受理]

## 1. はじめに

いわゆる先進技術諸国の地下水及び公共水域が、有害な有機化学物質 (Hazardous Organic Chemicals, 以下では HOC) によって広く汚染されていることが、多数報告されている。HOC による環境汚染・健康リスクを評価・管理するためには、HOC の環境中における挙動及び運命に関する正確な評価を行い、その物質の有用性に照らし合わせて、適正な使用を定める必要がある。その場合、考慮すべき課題の一つに最終処分場における HOC の環境への漏出性評価がある。しかも、中杉<sup>1)</sup>も指摘しているように、一つの HOC が地下水・土壌を汚染するのみでなく、同時に大気も汚染するクロスメディア汚染が生じることに留意する必要がある。

Jury ら<sup>2)</sup>は、土壌中に入った HOC が、流出(浸出)、蒸発、分解のどの経路を経て土壌中から消失するのかを判断する数学モデルを開発し、これにより、HOC を分類し、かつ予備的に環境への有害性判定を行うことを提案している。このモデルでは、ガス相、水相、固相(吸着相)中の HOC 濃度の線形平衡分配則、一次分解反応速度、土壌表面での大気薄膜を通しての蒸発を仮定し、土壌層内における水の定常下降流(降雨浸透水)及び(表面蒸発による)上昇流を前提としている。そして、この解析に必要な物性は、HOC の土壌中有機炭素への分配係数、ヘンリー定数、及び一次分解定数(または半減期)の3つである。

本論文は、Jury ら<sup>2)</sup>の考えを埋立処分場に展開したものである。埋立処分場では、処分された腐敗性有機物の分解のために、嫌気性ガスが発生しガスの上向流が生じ、HOC の蒸散(大気への輸送)の駆動力は、Jury ら<sup>2)</sup>の考えている太陽熱や風による水分蒸発による促進よりは、このガス流であると考えられる。最近、筆者らが行った廃棄物層内におけるトリクロロエチレン(TCE)の挙動に関する基礎的研究<sup>3-8)</sup>やその他の埋立処分場研究の成果<sup>9-12)</sup>を使って、埋立処分場における HOC の浸出性(浸出水への漏出)、揮散性(大気への漏出)、分解性(埋立層内での消滅)を評価するモデルを考える。

さて、これまで浸透水による HOC 輸送に関する研究は多数あるので、ガスによる HOC 輸送の既往の研

究を簡単に述べる。Shen ら<sup>13)</sup>は、既に1981年に HOC の埋立地からの大気への拡散・制御法を概説的に論じているし、Hwang<sup>14)</sup>は埋立地からの HOC の大気放出フラックスの計算式を紹介し、Farmer ら<sup>15)</sup>は土壌(覆土)中での HOC の分子拡散による放出フラックス式を求め、Thiobodeaux ら<sup>16)</sup>は土壌中の移動抵抗と土壌表面に接する大気薄膜中の移動抵抗の直列和で総括 HOC 移動係数を算出して計算する放出フラックス式と、埋立地内部からのバルク流れが存在する場合にはバルク流れによる放出フラックスを加算する式とを提案している。筆者らの本論文での取扱いは、より基礎的なガス拡散型の輸送方程式を解いている(かつ、瞬間吸着を前提していない)点、及び上で紹介した研究はいずれも埋立地表層部を対象としているのに対して本研究は埋立地内部から表層または底部への輸送を、浸出水による輸送と同時に解いている点で特徴がある。

## 2. HOC の分配(吸着)・分解特性の表現

### 2.1 固-液間分配平衡関係(土壌・底質については例えば文献1))

HOC の液相と固相間の分配平衡は、等温吸着式により表現される。

$$C_s = K_p C_L \quad (1)$$

ここで  $C_s$  [ $\mu\text{g-HOC/g-solid}$ ],  $C_L$  [ $\mu\text{g-HOC/mL-liquid}$ ] は固相、液相中の平衡濃度で、分配係数  $K_p$  は、土壌中では有機炭素量  $f_{oc}$  に比例することが知られている。すなわち、次式で定義される  $K_{oc}$  は土壌・底質の種類によらず、HOC 固有の値である。

$$K_{oc} = K_p / f_{oc} \quad (2)$$

一方、廃棄物固相と液相間の等温吸着関係も線形であることは、TCE に対して筆者らにより確かめられている<sup>3)</sup>。即ち、TCE に対する土壌  $K_{oc}$  の実測値として  $150\text{mL/g}^{17)}$ ,  $195\text{mL/g}^{18)}$  などが報告されているが、焼却灰  $K_{om} (= K_p / f_{om} : f_{om}$  は有機物含有量) は  $140\text{mL/g}$  程度で、焼却灰中の有機物中有機炭素量 ( $f_{oc}/f_{om}$ ) の実測値<sup>10)</sup>  $0.30$  を考慮すると、焼却灰の  $K_{oc}$  は土壌のそれに比べると約  $2 \sim 3$  倍大きい。また、破碎不燃ごみの  $K_{om}$  は  $50$ 、紙は  $12 \sim 16$  ( $K_{oc} = 27 \sim 36$ )、ポリエチレ

ンフィルム (ごみ袋) は87 ( $K_{oc} \approx 100$ ), ポリ塩化ビニル (パイプ) は299 ( $K_{oc} \approx 780$ ) である。廃棄物中の有機物量は土壤に比べてかなり多いことから、廃棄物の  $K_p$  は、土壤のそれに比べて大きいと考えられる (しかし、まだ TCE 以外の系統的なデータはない)。

## 2.2 気-液間分配平衡関係

気-液間の分配平衡にはいわゆる次のヘンリー-則が成立する (例えば、文献2))。

$$C_G = H C_L \quad (3)$$

ここで  $C_G$  [ $\mu\text{g}/\text{mL-gas}$ ] は気相中の平衡濃度で、HOC のヘンリー一定数  $H$  [-] は、多くの研究者がその溶解度に対する飽和蒸気圧の比で推算できることを指摘している (例えば、文献2))。

筆者らは TCE の  $H$  を、15, 20, 30°C で測定し、0.257, 0.325, 0.445 を得ている<sup>3)</sup>。HOC の  $H$  の範囲は、Hwang<sup>14)</sup> が示しているのは  $5.3 \times 10^{-5}$  (Phenol) から 2.4 (Trichlorofluoromethane) で、Jury ら<sup>2)</sup> は、 $7.6 \times 10^{-9}$  (Monuron) から 140 (n-Octane) とし、HOC の  $H$  はかなり大きな幅を持っている。

さて、廃棄物層では塩分濃度が高くなるので分配係数が塩分濃度の影響を受けることが予想される。そこで筆者らは水中の NaCl 濃度を 0~5 mol/L まで増加させて焼却灰-水-空気間の TCE の  $K_p$  と  $H$  を測定した<sup>5)</sup>。その結果、 $K_p$  は 1~4.3,  $H$  は 1~5.5 まで増加した。つまり、水中の塩分の存在によって HOC は水中より固相や気相に分配され易くなることを意味する。

## 2.3 吸着速度

Jury ら<sup>2)</sup> は、瞬時吸着を前提としているが、廃棄物への TCE 吸着速度の研究<sup>4)</sup> によると、液相と固相間の吸着速度は固相表面の液境膜や固相内の移動抵抗により無限に大きいとは言えず、次の瞬時吸着と物質移動型吸着の並列モデルで表現できる。

吸着速度 [ $\mu\text{g-TCE}/(\text{g-solid} \cdot \text{d})$ ]:

$$q_L = f K_p \frac{\partial C_L}{\partial t} + (1-f) K_S a_S (K_p C_L - C_S) \quad (4)$$

瞬間吸着平衡率  $f$  と総括物質移動係数  $K_S a_S$  が相互に影響するために、正確に決めることは難しいが、破碎不燃ごみで  $f \approx 0.2$ ,  $K_S a_S \approx 0.04 \text{ h}^{-1}$ , 焼却灰で  $f \approx 0.4$ ,  $K_S a_S \approx 0.05 \text{ h}^{-1}$  の程度であった (いずれも粒径 4 mm 以下)。粒径が大きくなると  $K_S a_S$  は固相内の移動

抵抗に支配され、しかもそれが粒径の 3 乗に逆比例することが理論的に予想される<sup>4)</sup> から、実際の廃棄物層では吸着速度はかなり遅く、瞬間に吸着するとは見なせないと思われる。

気液間の分配速度に関しては、ガス相と液相の相対速度が小さいときにはガス-液相間に瞬時平衡が成立するとしてよい<sup>4)</sup>。

## 2.4 分解特性

Jury ら<sup>2)</sup> は、いくつかの HOC について土壤中での半減期 (数値の範囲として 15d から  $\infty$  (分解せず) まで) を与えているが、現場と実験室で非常に違っているし、温度や含水率及び微生物量に大きな影響を受け、重要な特性値であるのに定め難いと述べている。

最近までに研究された有機塩素系溶剤の生物学的分解実験結果をまとめると、全てに整合した結果は得られていないがおおよそ次のようなことが言える。多くの場合、好気性よりは嫌気性雰囲気である程度分解されるとの結果が得られている。土壤培地の場合には適切な微生物の存在<sup>19)</sup> と土壤の有機物が比較的豊かな場合<sup>20,21)</sup> に嫌氣的に分解され、液体培地の場合にも一次基質として有機塩素系溶剤以外に有機物が含まれている場合<sup>22-24)</sup> には分解された。即ち、有機物が豊富に含まれている泥状沈澱物のような土壤、及び TCE に過去に汚染された地域の土壤を用いた嫌氣的雰囲気の回分式培養では有機塩素系溶剤が分解されたが、有機物が少ない砂質土の場合は 27 週間の長い培養期間でも分解されなかった<sup>25)</sup>。液体培地の場合は、嫌気性生物膜を利用した 1,2-ジクロロエタンの分解<sup>22,24)</sup> を除いて、基質として酢酸などの他の有機物がある程度含まれている場合に、有機塩素系溶剤が回分式及び連続流式生物膜法によって分解された。これらの結果から、有機塩素系溶剤は一次基質としては利用されず、他の有機物と一緒に相互代謝によって分解されることが分かる<sup>20-23,25,26)</sup>。さらに、多くの場合に、これらの有機塩素系溶剤の分解中間産物もまた有害な物質である<sup>20,21)</sup>。例えば、Vogel ら<sup>23)</sup> はテトラクロロエチレンは嫌気性雰囲気中で還元的脱塩素化反応により、順次 TCE, シス/トランス-1,2-ジクロロエチレン, クロロエチレンになると述べている (ただし、クロロエチレンから二酸化炭素への転換は考え難いとしている)。これらの研究の内、分解の進行を報告している Bouwer ら<sup>22,25)</sup> の研究

から嫌気条件下での TCE 分解の半減期は約10週であると思われる。

好気性分解については、特定の菌(メタン利用菌<sup>27,28)</sup>でないかと考えられている)が存在する場合、効率よく分解されるが、分解メカニズムや分解産物の物質収支など明確されねばならないことが多い。

井戸調査による地下水層での TCE や1,1,1-トリクロロエタンの減少速度は $0.003\text{d}^{-1}$ (半減期230d)との報告<sup>29)</sup>がある。

また、筆者らの最近の研究<sup>5,7)</sup>で、TCE は嫌気雰囲気廃棄物層内で化学的に還元(脱塩素)され、その反応速度(20°C)は、固相内 TCE 濃度  $C_s$  のみの関数で表現でき、反応速度定数  $k$  は、焼却灰で $0.024 \pm 0.005\text{h}^{-1}$ (半減期29h)、破碎不燃ごみで $0.0037 \pm 0.0008\text{h}^{-1}$ (半減期190h=7.8d)であった。

$$\text{分解速度}[\mu\text{g-TCE}/(\text{g-solid}\cdot\text{d})]: r_c = kC_s \quad (5)$$

ここで  $k[\text{d}^{-1}]$  は式(5)で定義される分解反応速度定数である。以上のことから、嫌気的雰囲気達成し易い廃棄物層内では、比較的大きな HOC 分解特性、つまり大きい  $k$  をもつものと予想できる。

### 3. 廃棄物層内における HOC の輸送方程式

土壌層などの多孔体内中の溶質輸送は拡散モデルで表現される。それに気-液-固相間の物質移動(分配)速度式や分解反応速度式を組み込むことによって輸送式が導出される。

断続的降雨による廃棄物層内の降雨浸透流を定常流で表現してよいかどうかには大きな問題が残されている。しかし、HOC の廃棄物埋立地における環境影響を簡単に評価する方法を、Jury ら<sup>2)</sup>のように開発するとすれば、そのように仮定するのがよいであろう。また、拡散が、流体内の分子拡散によるのか、それとも流体混合(層内の流体塊の流達時間差)によるのかも大きな問題である。筆者の一人は既に、廃棄物埋立層内における気相有効拡散係数  $D_c$  は、次式で計算できる分子拡散に起因するものであることを明らかにしている<sup>10)</sup>。

$$D_c = D_{G,A} \theta_G / \xi \quad (6)$$

Jury ら<sup>2)</sup>は、中間的な分子量の HOC に対しては空気

中の分子拡散係数  $D_{G,A}$  は、(温度の影響がわずかで)  $D_{G,A} = 0.43\text{m}^2/\text{d}$  で一定としてよいとしている(筆者らの測定した窒素ガス中の TCE の  $D_{G,A}$  は $0.86\text{m}^2/\text{d}$  であり<sup>3)</sup>、Hirschfelder 式によるその推算値<sup>30)</sup>は $0.703\text{m}^2/\text{d}$  である)、また、屈曲係数  $\xi$  は球充填層の1.4からフィルム状物質の多い場合は10~20に、さらに含水率が増加したときにもそれ以上に増加することが分かっている<sup>10)</sup>。

一方、液相内の拡散は、水分不飽和流れの廃棄物層内での筆者らの NaCl トレーサ応答実験<sup>12)</sup>(紙、繊維、ビニールチューブで構成した人工ごみ層(2.5cm 以下に裁断)、焼却灰層(粒径1.5cm 以下);高さ90cm)において  $Pe(=VL/D)$  数は1程度で、それから計算すると、液相(混合)拡散係数  $D_L = 0.2\text{m}^2/\text{d}$  程度となり、これは NaCl の水中分子拡散係数 $0.00011\text{m}^2/\text{d}$  よりはるかに大きく、明らかに流体混合による拡散であった。

以上のことから、浸透水量は定常流を仮定するので、また、ガス流量は場所的に変化するが、拡散が分子拡散によるので、いずれの拡散係数も一定として定式化することができる。さらに、式を展開するには、水とガスがどのような位置関係で流れるかをモデル化する必要がある。しかし、廃棄物(固相)の周りを水が覆い、更にその周りをガスが流れるとするのが常識的であろう。間隙浸透水速度  $V_L$ (空塔速度を体積含水率  $\theta_L$  で除したものは下向き(重力方向)を正、間隙ガス速度  $V_G$  は上向きを正にとる。したがって次式で上側符号は上向き輸送( $z$  を上向きに)、下側符号は下向き輸送に対応する。(図1)

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} = \pm V_L \frac{\partial C_L}{\partial z} + D_L \frac{\partial^2 C_L}{\partial z^2} - \frac{q_L}{\theta_L} \theta_{S\rho_S} \quad (7)$$

$$\frac{\partial C_G}{\partial t} = \mp \frac{\partial v_G C_G}{\partial z} + D_G \frac{\partial^2 C_G}{\partial z^2} - \frac{q_G}{\theta_G} \quad (8)$$

$$\frac{\partial C_S}{\partial t} = q_L + r_c \quad (9)$$

このモデルに基づいて、2.3節で述べたように気-液間は瞬時分配平衡(式(3))が成立し(式(7)、(8)を統合して気-液相で一つの相とみなす)、固-液間の収着速度  $q_L$  は式(4)が適用でき、分解速度  $r_c$  は式(5)が適用できるとし、さらに無次元化すると次式が導出される。

$$\frac{\partial \tilde{C}_L}{\partial \tau} = \pm \phi \frac{\partial \tilde{C}_L}{\partial \xi} \mp \psi \frac{\partial \tilde{V}_G \tilde{C}_L}{\partial \xi} +$$

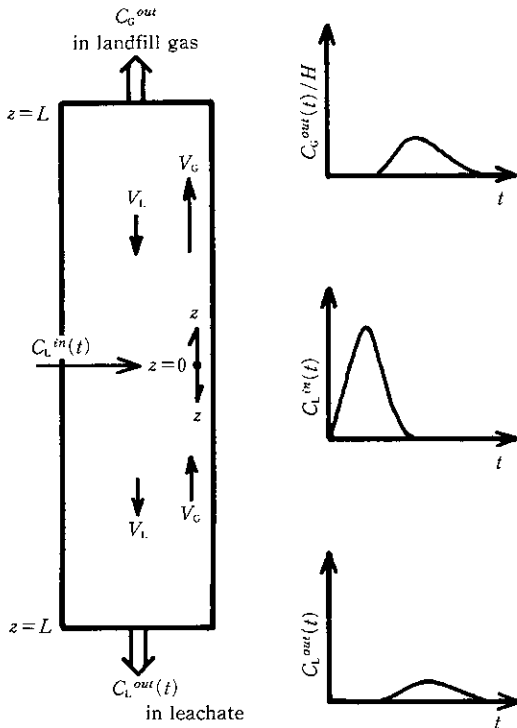


Fig.1 Schematic diagram of HOC transport in sanitary landfills

$$+ \left\{ \frac{\phi}{(Pe)_L} + \frac{\psi}{(Pe)_G} \right\} \frac{\partial^2 \tilde{C}_L}{\partial \xi^2} - \eta \left[ f \frac{\partial \tilde{C}_L}{\partial \tau} + (1-f) \beta (\tilde{C}_L - \tilde{C}_S) \right] \quad (10)$$

$$\frac{\partial \tilde{C}_S}{\partial \tau} = f \frac{\partial \tilde{C}_L}{\partial \tau} + (1-f) \beta (\tilde{C}_L - \tilde{C}_S) - \alpha \tilde{C}_S \quad (11)$$

ここで次のような無次元量を導入している。

無次元時間： $\tau = t / (L / V_L)$   
 無次元距離： $\xi = z / L$   
 無次元濃度： $\tilde{C}_L = C_L / C_L^*$ ,  $\tilde{C}_S = C_S / (K_p C_L^*)$   
 ( $C_L^*$ は基準濃度) (12)  
 無次元ガス流速： $\tilde{V}_G = V_G / \bar{V}_G$   
 ( $\bar{V}_G$ は基準ガス流速)

また、次の無次元パラメーターを定義している。

$$\eta = \frac{\rho_s \theta_s}{\theta_L + H \theta_G} K_p$$

$$\beta = (K_s a_s) (L / V_L), \quad \alpha = k (L / V_L)$$

$$\phi = \frac{\theta_L}{\theta_L + H \theta_G}, \quad \psi = \frac{H \theta_G}{\theta_L + H \theta_G} (\bar{V}_G / V_L) \quad (13)$$

$$(Pe)_L = L V_L / D_L, \quad (Pe)_G = L \bar{V}_G / D_G$$

基礎式を解析的に解くことは困難である。そこで、

埋立層のある深さに HOC の発生源があり、その濃度変化  $C^{in}(t)$  に対して、それが降雨浸透水や発生ガスによって輸送され、埋立層下端または上端に到達したときの濃度の変化 ( $C^{out}(t)$ ) を、伝達関数の形で求め、それから濃度減衰比  $\Lambda$  を計算する。その  $\Lambda$  が HOC の特性とどのような関係にあるのかをみることで、HOC の埋立処分場における漏出性を評価する。なお、 $\Lambda$  は、次のような定義になり、 $\Lambda = 1$  で濃度減衰なし (分解せず)、 $\Lambda = 0$  で漏出無し (全量分解) を意味する。

$$\Lambda = \int C^{out}(t) dt / \int C^{in}(t) dt \quad (14)$$

#### 4. 埋立地条件

本論文の目的は、埋立地における HOC の漏出性をスクリーニングすることであるから、埋立地シナリオを設定する。これまでの埋立地研究<sup>9-11)</sup>から水相体積率  $\theta_L$ 、ガス相体積率  $\theta_G$ 、廃棄物固相真密度  $\rho_s$  を、埋立ごみ種毎に表 1 のように設定する。降雨水量 1600mm/y、浸出係数 0.5、 $\theta_L = 0.5$ 、HOC 移動距離  $L = 10m$  とおくと、 $V_L = 4.4mm/d$  となり、水移動 (平均滞留) 時間  $L / V_L$  は 2280d となるので、概略値を表 1 のように設定した。ガス発生量は経時的にも場所的にも変化するが、これまでの研究から流速比  $\bar{V}_G / V_L$  を概略値として表 1 のように定め、三つの埋立層で一桁ずつ違うとした。(このシナリオは、3 種類のごみ層に対応して作られたというより、ガス発生量の異なる 3 つのシナリオが作られたと考える方がよい)

$Pe$  数は、水相については、前述した筆者らの実験データ<sup>12)</sup>を輸送長さ  $L$  のみの補正で、 $(Pe)_L = 10$  とおいた。気相については、前述の式(6)で  $D_{G,A} = 0.43m^2/d$ 、 $\theta_G = 0.5$ 、 $\xi = 20$  とおくと、混合ごみ層では  $(Pe)_G = 818$  となるので、概略値を表 1 のように設定した。なお、 $L / V_L$ 、 $V_G / V_L$ 、 $(Pe)_L$ 、 $(Pe)_G$  の設定値は大きく変化する可能性があるので、解析結果に対する感度的考察を行うことで補強する。

さらに、廃棄物層内のガス速度分布についてシナリオが必要である。一つはガス発生特性が場所的に一定であると仮定し、しかも HOC の発生源が廃棄物層の中央に存在するというシナリオで、流速分布は次のように表現できる。

Table 1 Landfill conditions(scenario)

	$\theta_L$ [vol%]	$\theta_G$ [vol%]	$\rho_s$ [g/cm <sup>3</sup> ]	$L/V_L$ [d]	$\frac{V_G}{V_L}$	$(Pe)_L$	$(Pe)_G$	$L/\bar{V}_G$ [d]	$\frac{\theta_s \rho_s}{\theta_L}$	$\frac{\theta_s \rho_s}{\theta_G}$
混合ごみ層	0.62	0.2	1.7	2000	200	10	1000	10	0.49	1.53
不燃ごみ層	0.41	0.3	1.9	2000	20	10	100	100	1.34	1.84
焼却灰層	0.35	0.2	2.8	2000	2	10	10	1000	3.6	6.3

$$\bar{V}_G(\xi) = \pm \xi + 1 \quad (\bar{V}_G : \text{層内平均ガス流速}) \quad (15)$$

他の一つはガス速度分布は一定とするものである。

$$\bar{V}_G(\xi) = 1 \quad (\bar{V}_G : \text{層内ガス流速}) \quad (16)$$

### 5. 輸送特性

伝達関数法により減衰比を求めるためには、さらに、(1)浸透水及び埋立ガスが共に押し流れである場合(5.1節)、(2)拡散流れでの輸送を解くためには埋立ガス流れが場所的に一定の場合(5.2節)を前提する必要がある。以上の前提で、HOCの廃棄物層内における輸送特性を考察する。

5.1 浸透水、埋立ガスの流れが押し流れと仮定できるとき  $(Pe)_G, (Pe)_L = \infty$

(1) 押し流れの伝達関数解

埋立ガスの流速分布  $\bar{V}_G(\xi)$  を次式で表現する。

$$\bar{V}_G(\xi) = a\xi + b \quad (17)$$

この時、伝達関数の形で解析的に解くことができる。

$$G(s) = \frac{C_L^{out}}{C_L^{in}} = \exp\left\{\frac{m(s)}{\pm \psi a} \ln\left(\frac{\pm \phi \mp \psi(a+b)}{\pm \phi \mp \psi b}\right)\right\} \quad (18)$$

ここで(ただし、上側符号：上向輸送、下側符号：下向輸送)

$$m(s) = \pm \psi a + s + \eta s + \eta(1-f)\beta \frac{(1-f)s + \kappa}{s + \kappa + (1-f)\beta} \quad (19)$$

伝達関数に  $s=0$  を代入することによって、ゲイン、すなわち廃棄物層中央のHOC濃度  $C_L^{in}$  に対する浸出水または埋立ガス中のHOC濃度  $(C_L^{out}$  または  $C_G^{out}/H)$  の減衰比  $\Lambda$  が計算できる。

$$\Lambda = \exp\left[-\left\{1 + \frac{\eta\kappa}{\pm \psi a(1+\delta)}\right\} \ln\left(\frac{\pm \phi \mp \psi(a+b)}{\pm \phi \mp \psi b}\right)\right] \quad (a \neq 0) \quad (20)$$

$$\Lambda = \exp\left\{\frac{\eta\kappa}{(1+\delta)(\pm \phi \mp \psi b)}\right\} \quad (a=0) \quad (20')$$

$$\text{ここで } \delta = \kappa / \{(1-f)\beta\} = k / \{(1-f)K_s a_s\} \quad (21)$$

(2) 押し流れ場におけるHOCの漏出性・減衰性  
物理的に考えて、減衰比  $\Lambda$  は1を超えることはないから、式(20)、(20')から次の条件が成立する。

$$\pm \phi > \pm \psi b \quad (22)$$

つまり、 $\phi/\psi > b$  の時、HOCは埋立ガスにより上向きに輸送され、 $\phi/\psi < b$  の時は、浸出水により下向きに輸送される。 $\phi/\psi = (\theta_L V_L) / (H\theta_G \bar{V}_G)$  には、HOCの特性では  $H$  のみが含まれているので、HOCがどちら向きに運ばれるかは、 $H$  のみによって決まる。

さて  $b$  は、埋立ガス流速が場所的に一定の場合(式(16))も、ガス発生速度が埋立層内の全層で場所的に一定である場合(式(17))も、 $b=1$  である。

よってHOCが浸出水側に漏出するか、埋立ガス側に漏出するかの限界値  $H_{crit}$  は次式で求まる。

$$H_{crit} = (\theta_L/\theta_G) / (\bar{V}_G/V_L) \quad (23)$$

このことから、混合ごみ層シナリオでは、 $H_{crit} = 0.02$ 、不燃ごみ層シナリオでは、 $H_{crit} = 0.07$ 、焼却灰層シナリオでは、 $H_{crit} = 0.9$  となる。HOCは廃棄物層内で減衰しない限り、 $H > H_{crit}$  のとき埋立ガスによって上向きに輸送され、浸出水側には漏出しないことが分かる(しかし、実際には拡散効果が存在するので5.2節を参照されたい)。

ガス速度シナリオを式(15)とし、式(20)の  $\Lambda$  を  $\delta=0$  (つまり、 $k \ll (1-f)\beta$ ) として、 $k \cdot K_p$  をパラメータとし、 $H$  に対して描いたものが図2である。上向き輸送で減衰比が高々0.5にしかならないのは、ガス量が埋立地表面で発生源の2倍となり、希釈されるからである。次に、 $k \cdot K_p$  vs  $H$  平面で  $\Lambda$  等高線を描いたのが図3である。 $\Lambda \approx 0$  は図2から読み取った概略値なので破線で示し

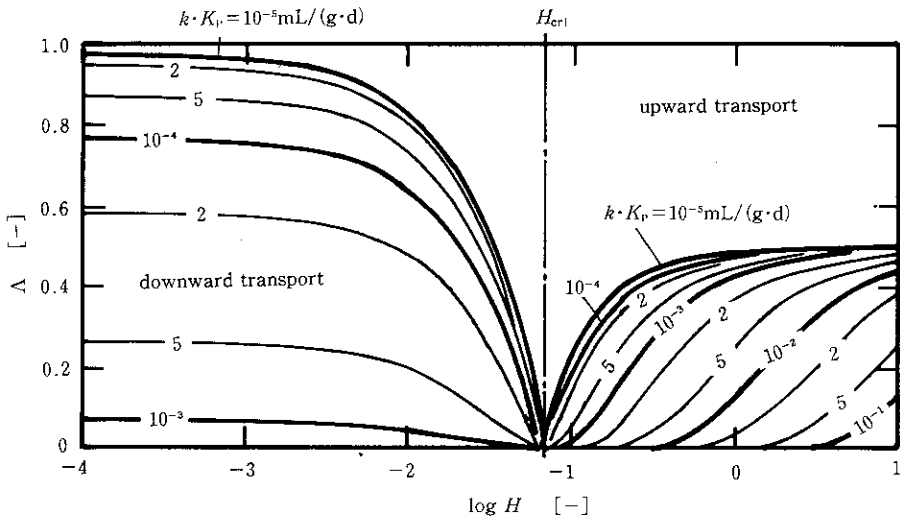


Fig.2 Relationship between attenuation ratio  $\Delta$  and Henry's constant  $H$  when each gas and water has a piston flow pattern, that is,  $P_{eL}$  and  $P_{eC} = \infty$  (calculation condition:  $\delta = 0$ , for gas velocity scenario of Eq.(15) and incombustible refuse layer scenario)

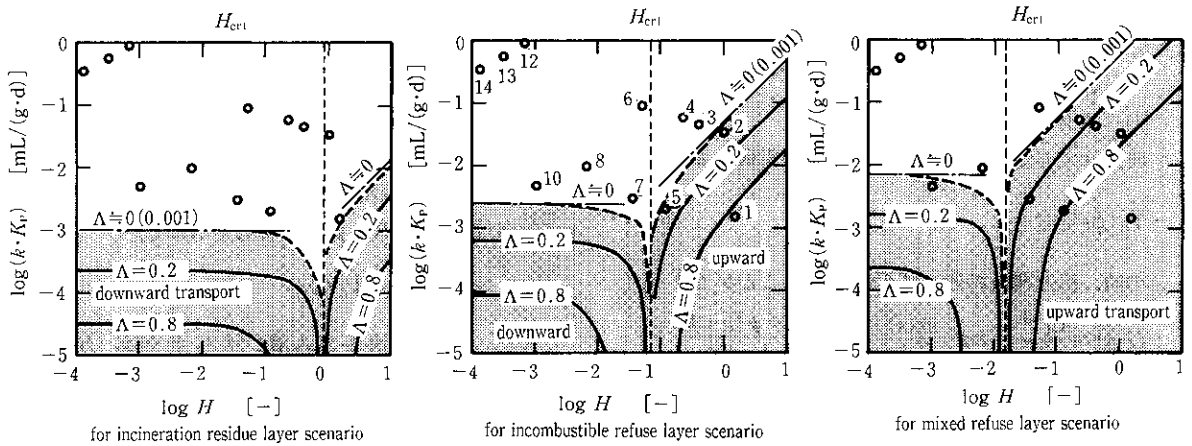


Fig.3 Estimation chart of HOC attenuation and direction of HOC leakage potential when each gas and water has a piston flow pattern, that is,  $P_{eL}$  and  $P_{eC} = \infty$  (calculation condition:  $\delta = 0$ , for gas velocity scenario of Eq.(15))

である。また、それは  $\Delta = 0.001$  を想定している。図中でスクリーンの入っている部分が HOC 漏出可能域である。

さらに、式(20)を  $\Delta \approx 0$  の領域で成立する式に展開すると、  
 $H \rightarrow 大で$   
 $-k \cdot K_p / H = (1 + \ln \Delta / \ln 2) (\bar{V}_G / L) (\theta_L / \rho_s \theta_s) (1 + \delta)$

$$H \rightarrow 0 \text{ で } -k \cdot K_p = (V_L / L) (\theta_L / \rho_s \theta_s) (1 + \delta) \ln \Delta \tag{24}$$

$$\tag{25}$$

これらの式で  $\Delta = 0.001$  ( $\delta = 0$ ) とおいて計算した線が図3中の一点鎖線であり、HOC 漏出性に対する滞留時間  $L / \bar{V}_G$ ,  $L / V_L$ , 分解速度と収着速度の比  $\delta$  や設定した減衰比  $\Delta$  の影響を評価できる。

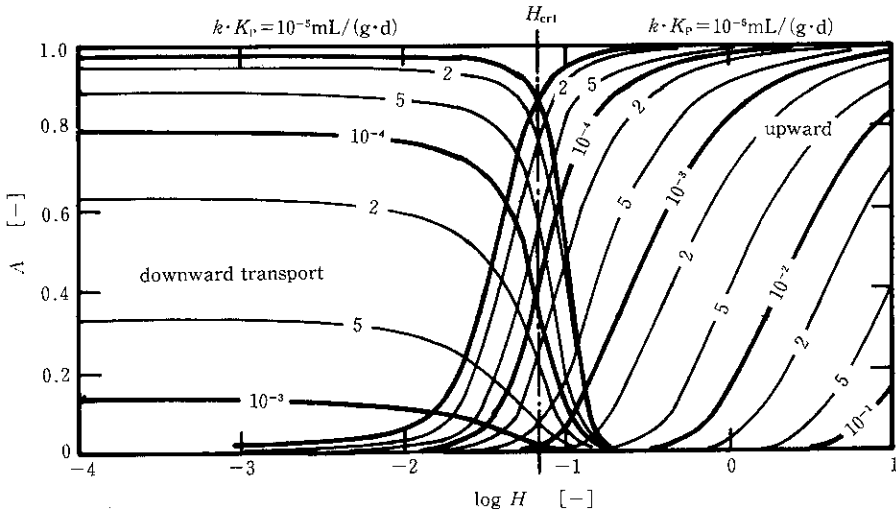


Fig.4 Relationship between attenuation ratio  $\Lambda$  and Henry's constant  $H$  on gas velocity scenario of Eq.(16), that is, constant gas velocity distribution (calculation condition:  $\delta=0$ , for incombustible refuse layer scenario)

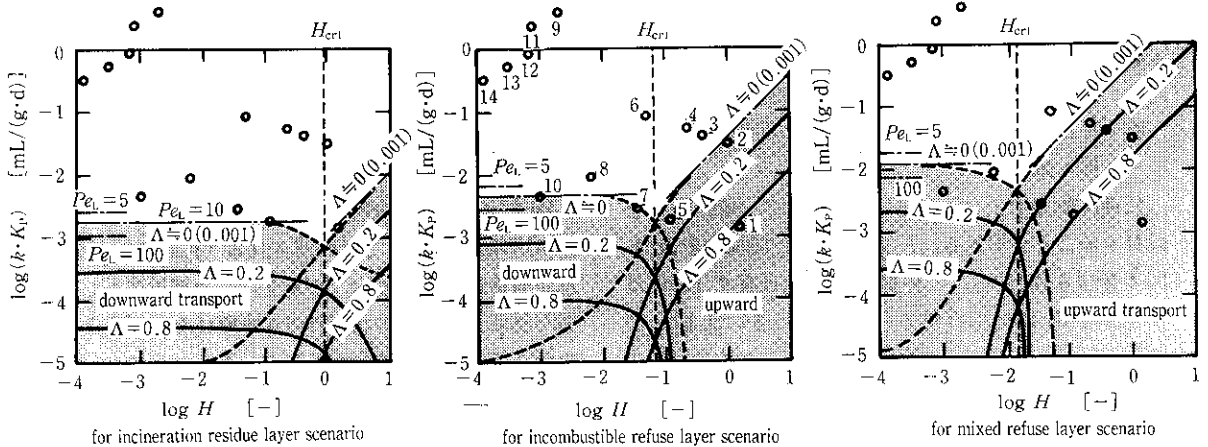


Fig.5 Estimation chart of HOC attenuation and direction of HOC leakage potential on gas velocity scenario of Eq.(16), that is, constant gas velocity distribution (calculation condition:  $\delta=0$ )

5.2 拡散流れ場で埋立ガス流速が場所的に一定である場合 ( $a=0$ ) の HOC 輸送特性

(1) 拡散流れ場の伝達関数解

輸送基礎式を、 $\xi=1$  で  $(\partial C_i / \partial \xi) = 0$  であるとして解くと、伝達関数は次のように解ける。

$$G(s) = \frac{\sqrt{C_i^{out}}}{\sqrt{C_i^{in}}}$$

$$= \frac{(p(s)-q(s)) \exp \{p(s)+q(s)\}}{p(s) \exp \{p(s)\} - q(s) \exp \{q(s)\}} \quad (26)$$

ここで、(上側符号: 上向き輸送, 下側符号, 下向き輸送)

$$p(s) = \frac{\pm(\psi-\phi) + \sqrt{(\psi-\phi)^2 + 4n(s) \{(\phi/Pe_c) + (\psi/Pe_c)\}}}{2 \{(\phi/Pe_c) + (\psi/Pe_c)\}} \quad (27)$$



Table 2 Leakage potential estimation for various HOCs

No.	HOC	$H$ [-]	$K_{OC}$ [mL/g]	$K_p$ [mL/g]	$k$ [d <sup>-1</sup> ]	$k \cdot K_p$ [mL/(g·d)]	in incombustible refuse	
							leakage direction	attenuation ability
1.	Methyl bromide	1.5	22	2.2	(0.000693)	0.0015	gas	low
2.	1,1,1-Trichloroethane	0.95	113	11	0.003	0.033	gas	large
3.	TCE	0.4	150	15	0.003	0.045	gas	large
4.	Benzene	0.22	83	8.3	(0.000693)	0.058	gas	large
5.	Chloroform	0.12	29	2.9	(0.000693)	0.0020	gas & leachate	large
6.	Napthalene	0.05	1300	130	(0.000693)	0.090	gas & leachate	very large
7.	Ethylene dibromide	0.035	44	4.4	(0.000693)	0.0030	leachate & gas	large
8.	Bromobenzene	0.0062	150	15	(0.000693)	0.010	leachate	large
9.	DDT	0.002	240000	24000	0.00018	4.3	leachate	very large
10.	Nitrobenzene	0.001	71	7.1	(0.000693)	0.0049	leachate	large
11.	Triallate	$7.9 \times 10^{-4}$	3600	360	0.00693	2.5	leachate	very large
12.	Dieldrin	$6.7 \times 10^{-4}$	12000	1200	0.00080	0.95	leachate	very large
13.	Phorate	$3.1 \times 10^{-4}$	660	66	0.00845	0.55	leachate	very large
14.	Lindane	$1.3 \times 10^{-4}$	1300	130	0.0026	0.34	leachate	very large

$$q(s) = \frac{\pm(\psi - \phi) - \sqrt{[(\psi - \phi)^2 + 4n(s) \{(\phi/P_{eL}) + (\psi/P_{eC})\}]}{2 \{(\phi/P_{eL}) + (\psi/P_{eC})\}} \quad (28)$$

さらに、

$$n(s) = s + \eta f s + \eta(1-f)\beta \frac{(1-f)s + x}{s + x + (1-f)\beta} \quad (29)$$

(2) 拡散の影響の大きい場における HOC の漏出性・減衰性

伝達関数(26)に  $s = 0$  を代入することで、減衰比  $\Lambda$  を計算することができる。さらに、図 2 と同様の取扱で、図 4 を得る ( $\delta = 0$ )。この図から  $H_{cri}$  近傍の HOC は浸出水と埋立ガスの両方に漏出するが、大部分の HOC の漏出方向は、5.1 節と同様に  $H_{cri}$  との大小で決まることが分かる。

$H$  と  $k \cdot K_p$  面上で、 $\Lambda$  等高線を示したのが、図 5 である ( $\delta = 0$ )。スクリーンをかけた部分が HOC 漏出可能域で、 $H_{cri}$  近傍を除いて 5.1 節の結果 (図 3) とほとんど同じである。

さらに、 $\Lambda = 0$  の領域で成立する式を求めると、

$$H \rightarrow \text{大で} \\ -k \cdot K_p / H \approx (\bar{V}_c / L) (\theta_c / \rho_s \theta_s) (1 + \delta) \ln \Lambda \quad (30)$$

$$H \rightarrow 0 \text{ で} \\ -k \cdot K_p = \text{func}(L / V_L, \theta_L / \rho_s \theta_s, \Lambda, P_{eL}, \delta) \quad (31)$$

$$\approx (V_L / L) (\theta_L / \rho_s \theta_s) (1 + \delta) \ln \Lambda \quad (32)$$

式(30)、(31)で  $\Lambda = 0.001$  ( $\delta = 0$ ) とおいて計算した線が図 5 中の一点鎖線である。 $H \rightarrow 0$  では式(31)で探索的に計算した。 $P_{eL}$  の影響はわずかで図 5 中に示した通りである。他のパラメータ、滞留時間  $L / \bar{V}_c$ 、 $L / V_L$ 、速度比  $\delta$  や設定した減衰比  $\Lambda$  の HOC 漏出性に対する影響は式(30)、(32)から評価できる。

### 5.3 吸着速度が律速する場合 ( $k > (1-f)K_{S a_S}$ )

HOC の分解は固相で進むとしている (式(5)) ので HOC は吸着することで分解される。上記では、分解速度が吸着速度より遅い、つまり分解速度律速として議論を展開した。この状況の方が実際に有り得ると考えたからである。伝達関数解から分かるように、伝達関数は、 $k$  と  $(1-f)K_{S a_S}$  に関して対称である。したがって、本節の条件の場合には、 $k$  (または  $\kappa$ ) と  $(1-f)K_{S a_S}$  (または  $(1-f)\beta$ ) を入れ換えればよい。

## 6. 適用例

図 3 や 5 を使えば、既知あるいは未知の HOC の  $H$ 、 $k$ 、 $K_p$  から埋立地における漏出・分解特性を評価できる。ただし、これは発生源の濃度と漏出点の濃度の各々の最高濃度比を示すものではない。つまり、発生源が無限の大きさを持つときの濃度比であり、有限の発生源である時には最高濃度比はここで計算する  $\Lambda$  より小さい。

応用例を示すために、HOCの特性を表2に抜き書きした<sup>2,31)</sup>。K<sub>oc</sub>からK<sub>p</sub>を計算するときには、K<sub>p</sub>=0.1×K<sub>oc</sub>で求めた。kは、(廃棄物層ではもっと大きな分解速度が期待されるが) Jury<sup>2)</sup>らが土壌での値として示した値(∞としているものは半減期を1000dとし括弧でくくった)と、TCEと1,1,1-trichloroethaneは、文献29)(地下水水中での値)から求めた。図3, 5にプロットしたが、不燃ごみ層シナリオで判定した結果を表2に示した。ほとんどが漏出せずまたは僅かに漏出するのみである。廃棄物からのHOCの溶出濃度が基準値の1000倍程度で、かつHOCが水中またはガス中に溶存する状態で輸送される時には、HOCの環境への漏出性はほとんどないと判断できる(原液状態での投入こそ問題である)。

## 7. おわりに

有機化学物質(HOC)が廃棄物から溶出して降雨浸透水や発生ガスによって輸送される場合の基礎式を示し、これにより、HOCの埋立地からの漏出方向や減衰性について検討できるようにした。また、混合ごみ、不燃ごみ、焼却灰の3つの埋立地のシナリオ(ガス発生量の異なる3つの埋立地シナリオ)に対して、漏出性を判定する線図を示した。それにより得られた主な結論は次の通りである。

- 1) HOCの漏出方向は、HOCの特性としてはヘンリー一定数 $H$ のみにより決まる。その限界値 $H_{cri}$ (式(23))はガス発生量が大きくなると大きくなり、混合ごみ埋立地のようにガス発生が多い埋立地では多くのHOCが埋立ガス側に漏出する可能性がある。
- 2) 埋立地特性値 $H_{cri}$ 近傍の $H$ をもつHOCは浸出水と埋立ガスの双方に漏出可能性がある。
- 3) HOCの埋立層内での減衰性は、 $H$ と、( $k < (1-f)K_{sa_0}$ の条件下で)分解速度定数 $k$ と分配係数 $K_p$ の積により決まるが、浸出水側への輸送時には $k \cdot K_p$ のみで決まる(埋立地条件の影響は、減衰の大きい場合には式(25)、(26)で評価できる)。埋立ガス側への輸送時には、減衰して漏出して来ないと判定される限界値 $(k \cdot K_p)_{cri}$ は $H$ に比例して大きくなり、 $H$ の大きなHOC程、漏出し易い(その関係は式(24)、(30)で示される)。つま

り、大きな $H$ を持つHOC程埋立ガス側に漏出し易い。

- 4) HOCの土壌中の分解速度定数 $k$ を使って、漏出可能性を評価すると多くのHOCは漏出してこないと判定される。このことから、廃棄物から溶出したHOCが、環境基準値の1000倍程度であり、かつ降雨浸透水や発生ガスによって輸送される形態をとる限り、埋立地からのHOC漏出はわずかであると考えられる。従って埋立処分場へのHOC搬入規制にあたっては原液状態や原液を染み込ませた様な廃棄物の搬入を禁止することが肝要で、溶出試験で評価される程度のHOC溶出濃度のものは比較的容易に埋立地内で分解される可能性がある。
- 5) 廃棄物への分配係数 $K_p$ や廃棄物層内での分解速度定数 $k$ を研究することでHOCに対するより合理的、また効率的な埋立地管理を行える。

本論文の一部は、廃棄物学会第1回研究発表会で報告した(文献7)。本研究は土木学会衛生工学委員会広域処分小委員会(左合正雄委員長)の実験研究の一部として実施したものである。

## 引用文献

- 1) 中杉修身：有害廃棄物問題の展望，廃棄物学会誌，Vol. 2, No.1, 21-28, 1991.
- 2) Jury, W. A., Spencer, W. F., and Farmer, W. J.: Behavior assessment model for trace organics in soil: I. Model description, *J. Environ. Qual.*, Vol. 12, No.4, 558-564, 1983, II. Chemical classification and parameter sensitivity, *J. Environ. Qual.*, Vol.13, No.4, 567-572, 1984, III. Application of screening model, *J. Environ. Qual.*, Vol.13, No.4, 573-579, 1984, IV. Review of experimental evidence, *J. Environ. Qual.*, Vol.13, No.4, 580-586, 1984.
- 3) 李東勲, 田中信寿, 神山桂一：埋立処分場廃棄物へのトリクロロエチレンの取着特性について，衛生工学研究論文集，第25巻，15-20, 1989.
- 4) 李東勲, 田中信寿, 神山桂一：廃棄物埋立層内におけるトリクロロエチレンの輸送現象に関する研究—湿潤廃棄物中のガスによる輸送並びに飽和水による輸送一，衛生工学研究論文集，第26巻，61-70, 1990.
- 5) 李東勲, 田中信寿, 神山桂一：トリクロロエチレンの水一固形廃棄物間の分配係数測定法について，水質汚濁研究，第13巻，第4号，255-259, 1990.

- 6) 田中信寿, 李東勲, 松藤敏彦, 神山桂一: 廃棄物層内での分解反応を伴うトリクロロエチレン輸送に関する研究, 廃棄物学会論文集, 第1巻, 第1号, 1-9, 1990.
- 7) 李東勲, 田中勝, 田中信寿, 松藤敏彦, 神山桂一: 埋立処分場における揮発性有害有機塩素化合物(トリクロロエチレン)の輸送予測に関する理論的考察, 廃棄物学会第1回研究発表会講演論文集, 381-384, 1990.
- 8) 後藤聖, 田中信寿, 神山桂一: 廃棄物層内におけるトリクロロエチレンの分解反応に関する研究, 土木学会第46回年次学術講演会講演要旨集(第2部)1158-1159, 1991.
- 9) 田中信寿, 高畑恒志, 神山桂一: 廃棄物埋立処分場における大気中酸素の廃棄物層への侵入深さとフラックスについて, 衛生工学研究論文集, Vol. 22, 37-47, 1986.
- 10) 田中信寿, 神山桂一: 都市廃棄物嫌気性埋立層中の可溶性汚濁物生成過程に関する研究, 土木学会論文集, 第381号/II-7, 212-225, 1987, 嫌気性混合ごみ埋立層中の可溶性汚濁物生成過程に関する研究, 衛生工学研究論文集, Vol. 24, 189-196, 1988, 都市廃棄物嫌気性埋立層中のガス発生特性に関する研究, 衛生工学研究論文集, 第25巻, 39-46, 1989, 廃棄物埋立処分場におけるガス及びガス成分の移動について—廃棄物層・土壌層を流れるガスの移動方程式とその応用—, 廃棄物学会誌, 第2巻, 第1号, 46-58, 1991.
- 11) 吉田英樹, 田中信寿, 神山桂一, 穂積準: 廃棄物埋立層内の温度分布に関する理論的研究, 第25巻, 29-38, 1989.
- 12) 田中信寿, 神山桂一, 他: 廃棄物充填層内の定常不飽和流による非反応性物質の移動特性について, 土木学会第41回年次学術講演会講演要旨集(第2部), 873-874, 1986, 同42回講演要旨集, 968-969, 1987.
- 13) Shen, T. T.: Control techniques for gas emission from hazardous waste landfills, *J. of the Air Pollution Control Association*, Vol.31, No.2, 132-135, 1981.
- 14) Hwang, S. T.: Toxic emissions from land disposal facilities, *Environmental Progress*, Vol.1, No.1, 46-52, 1982.
- 15) Farmer, W. J. et al.: Land disposal of hexachlorobenzene wastes, EPA-600/2-80-119, EPA, Cincinnati, Ohio, August, 1980.
- 16) Thibodeaux, L. J.: Estimating the air emissions of chemicals from hazardous waste landfills, *J. of Hazardous Materials*, 1980., cited in 14)
- 17) Josephson, J.: Subsurface organic contaminants, *Environ. Sci. Technol.*, Vol.17, 518a-521a, 1983, cited in 31).
- 18) 村岡浩爾: 最近の地下水汚染について, 土木学会論文集, 第405号/II-11, 25-41, 1989.
- 19) Kleopfer, R. D., Easley, D. M., Haas, B. B., Jr., Deihl, T. G., Jackson, D.E., and Wurrey, C. J.: Anaerobic degradation of trichloroethylene in soil, *E. S. & T.*, Vol.19, No.3, 277-280, 1985.
- 20) Parsons, F. and Lage, G. B.: Chlorinated organics in simulated groundwater environments, *JAWWA*, Vol.77, No.5, 52-59, 1985.
- 21) Parsons, F., Wood, P. R., and DeMarco, J.: Transformations of tetrachloroethylene in microcosms and groundwater, *JAWWA*, Vol.76, No.2, 56-59, 1984.
- 22) Bouwer, E. J. and McCarty, P. L.: Transformations of 1- and 2-carbon halogenated aliphatic organic compounds under methanogenic conditions, *Appl. Environ. Microb.*, Vol.45, 1286-1294, 1983.
- 23) Vogel, T. M. and McCarty, P. L.: Biotransformation of tetrachloroethylene to trichloroethylene, dichloroethylene, vinyl chloride, and carbon dioxide under methanogenic conditions, *Appl. Environ. Microb.*, Vol.49, 1080-1083, 1985.
- 24) 国安裕子訳: 有害化学物質を含有する地下水の生物膜処理, 海外文献抄録, Application of biological transformations in groundwater quality research, Tulsa, Oklahoma, March 27 (1984), 用水と廃水, Vol.28, No.10, 83-85, 1986.
- 25) Wilson, J. T., McNabb, J. F., Wilson, B. H. and Noonan, M. J.: Biotransformation of selected organic pollutants in groundwater, *Developments in Industrial Microbiology*, Vol.24, 225-233, 1983.
- 26) Wilson, J. T., Enfield, C. G., Dunlap, W. J., Cosby, R. L., Foster, D. A. and Baskin, L. B.: Transport and fate of selected organic pollutants in sandy soil, *J. Environ. Qual.*, Vol.10, No.4, 501-506, 1981.
- 27) Fogel, M. M., Taddeo, A. R., and Fogel, S.: Biodegradation of chlorinated ethenes by a methane-utilizing mixed culture, *Appl. Environ. Microb.* - Vol. 51, No.4, 720-724, 1986.
- 28) Imai, T., Takigawa, H., Nakagawa, S., Shen G. J., and Kodama, T.: Microbial oxidation of hydrocarbons and related compounds by whole-cell suspensions of the methane-oxidizing bacterium H-2, *Appl. Environ. Microb.* Vol.52, No.6, 1403-1406, 1986.
- 29) Roberts, P. V., Reinhard, M. and Valocchi, A. J.: Movement of organic contaminants in groundwater; implications for water supply, *JAWWA*, Vol.74, No. 8, 408-413, 1982.
- 30) Peterson, M. S., Lion, L. W., and Shoemaker, C. A.:

- Influence of vapor phase sorption on the fate of trichloroethylene in an unsaturated aquifer system, *E.S. & T.*, Vol.22, 571-578, 1988.
- 31) Falta, R. W., Javandel, I., Pruess, K., and Witherspoon, P. A. : Density-driven flow of gas in the unsaturated zone due to the evaporation of volatile organic compounds, *Water Resources Research*, Vol. 25, No.10, 2159-2169, 1989.