

大型ライシメータによる石炭灰層を含む多層地盤中の水分・溶質の移動

Movement of Soil Water and Solute through Coal Ash Layer Packed in Large-Scale Lysimeter

五十嵐敏文*・下垣 久**

By Toshifumi IGARASHI and Hisashi SHIMOGAKI

Large-scale experiment by using lysimeter was conducted to clarify the infiltration of soil water through three-layered formation structure, composed of top loam, fly ash and bottom loam, the calcium leaching from the fly ash, and the leached calcium migration through the bottom loam layer. The results showed that the infiltration through each layer was expressed in van-Genuchten's models, and that the permeability of fly ash was sensitively dependent on water content. Henry type model was applicable to the calcium leaching. The calcium migration through bottom loam layer was described by the combined model which consisted of a reversible Henry model and an irreversible first-order reaction model.

Keywords : infiltration, leaching, migration, calcium, lysimeter

1. はじめに

我が国の石炭火力発電所から発生する石炭灰は、年間約400万トンに達し、その50%以上は陸上あるいは海面に埋立処分されている¹⁾。しかし、このような大量発生廃棄物の一つである石炭灰を合理的に埋立処分する方法やその有効な跡地利用方策に関しては十分検討されていないのが現状である。近年ようやく、ごみ、粗大ごみ、焼却残渣等の一般廃棄物に対する最終処分場の設計指針が示されたり²⁾、一般廃棄物の埋立跡地の土質工学的検討がなされている程度であり³⁾、米国におけるhigh volume, low concentrationなる固体廃棄物の埋立処分に伴う環境影響に関する調査・研究^{4) 5) 6)}と比較すると立ち後れている。

本研究では、石炭灰埋立処分地の設計合理化ならびに有効な跡地利用を推進するために、実際の石炭灰埋立地を模擬した大型カラム（ライシメータ）試験を実施し、降雨の石炭灰層を通しての降下浸透現象や石炭灰中の主要元素の一つであるカルシウム(Ca)の溶出・移行現象を観察・解明し、そのモデル化を図る。

2. ライシメータ試験方法

試験に用いたライシメータは、図-1に示すように内径1.5m、高さ2.5mの鋼製の円筒容器であり、地下水

* 正会員 電力中央研究所 我孫子研究所 原燃サイクル部
(〒270-11 千葉県我孫子市我孫子1646)

**正会員 電力中央研究所 我孫子研究所 水理部

面は地下水位コントローラによって任意に設定できるようになっている。この容器に表-1に示す物理性状を有するフライアッシュ（豪州炭弱アルカリ性灰）および関東ロームを図-1に示す地層構造で充填した。なお、本試験では、カラム最下層に砂礫を敷き、下部ローム層のほぼ中央であるカラム下端から85cmの位置に地下水位を設定した。また、カラム内には水分量を測定するためのテンシオメータおよび挿入型中性子水分計測定孔を設けるとともに、図中に示す深度に間隙水採取用のポーラスカップを埋設した。

覆土ローム層に供給する降雨として、我が国の年間降水量を考慮して25mm/週(1304mm/y)の割合で間欠的に水道水を供給した。しかし、人工降雨装置の性能上連続給水は困難であったため、週に一度、降雨継続時間を3時間とし、その時間内で25mmの降雨を供給した（降雨強度8.3mm/h）。

一方、給水量と同時にカラムからの流出量も測定し、その値は平均18.7mm/週(975mm/y)となった。この流出量は正味の浸透水量に対応するため、降雨量と流出量との差、すなわち6.3mm/週(329mm/y)という値が平均蒸発量に相当することになる。

本試験の測定項目は、上述の出入水量の他に、テンシオメータや中性子水分計によるフライアッシュ層とローム層中の水分量およびポーラスカップを通しての採水・ICP分析による間隙水中のCa濃度である。

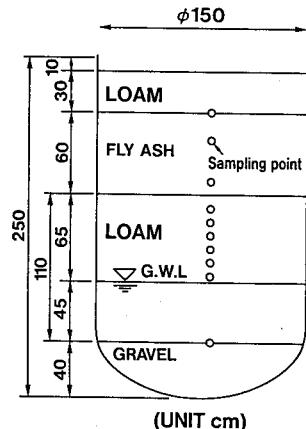


表-1 充填試料の物理特性

Sample	Specific gravity	Porosity	Permeability coefficient
ρ (-)	ϵ (-)	k_s (cm/s)	
Fly ash	2.23	0.55	3×10^{-4}
Loam	2.73	0.75	3×10^{-3}

3. 水分流動・溶質移行解析手法

覆土ローム層、フライアッシュ層、下部ローム層の3層から構成される地盤中の一次元飽和・不飽和水分流動解析は、有限要素法に基づくFEGMコード⁷⁾を用いた。支配方程式を式(1)に示す。

$$\frac{d\theta}{dh} \cdot \frac{\partial h}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} (k \frac{\partial}{\partial z} (h + z)) \quad (1)$$

ここに、 θ ：体積含水率、 h ：圧力水頭、 t ：時間、 z ：位置水頭、 k ：透水係数

フライアッシュ層からのCa溶出、それに引続く下部ローム層中のCa移行を評価するための一次元溶質移行解析は、有限要素法に基づくFERMコード⁷⁾を用いた。支配方程式を式(2)に示す。

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} (\theta C) + \rho_b \frac{\partial S}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z} (V C) \\ &= \frac{\partial}{\partial z} (\theta D \frac{\partial C}{\partial z}) - K_w \cdot \theta \cdot C - K_s \cdot \rho_b \cdot S \quad (2) \end{aligned}$$

ここに、 C ：液相中の溶質（ここではCa）濃度、 ρ_b ：固相のみかけ密度、 S ：固相中の溶質濃度、

V ：ダルシー流速、 D ：分散係数、 K_w ：液相からの消滅速度定数、 K_s ：固相からの消滅速度定数

4. 試験結果と解析モデルの適用性

4.1 フライアッシュ層を通しての水分流動

不飽和浸透特性を評価するためには、まずサクション圧（圧力水頭 h ）と水分量（体積含水率 θ ）との関係を示す水分特性曲線（soil moisture characteristic curve）および不飽和透水係数（ k ）と水分量（ θ ）との関係を求めることが必要である。これらを測定する方法には幾つかあるが⁸⁾、ここでは、直接ライ

シメータを土柱法のカラムにみなし $h - \theta$ 関係を、また散水に伴う水分量とサクション圧の経時変化から $k - \theta$ 関係を測定した。これらの測定結果を図-2に示す。また、図中には式(3), (4)で表現されるvan Genuchten式⁸⁾を適用した結果も示した。

$$Se = \frac{1}{(1 + \alpha |h|^n)^m} \quad (3)$$

$$\frac{k}{k_s} = Se^{1/2} \cdot (1 - (1 - Se^{1/m})^m)^2 \quad (4)$$

ただし、
 $Se = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r}$

$$m = 1 - 1/n$$

ここに、
 Se : 有効飽和度、
 θ_r : 最小容水量、
 θ_s : 最大容水量、
 k_s : 鮎和透水係数、
 α , m , n : 定数

一般に、van Genuchten式は砂質土に対しては有効であり、粘性土に対してはあまり有効ではないと言われているが¹⁰⁾、本試験ではロームとフライアッシュの両方に対してvan Genuchten式が適用できることがわかる。また、フライアッシュの場合、水分量のわずかな差でサクション圧や透水係数が急激に変化することもわかる。水分流動解析では、この関係式を使用することにした。

図-3は、式(1), (3), (4)を用いて以下の境界条件で解析した場合の水分量の鉛直分布を示す。

(定常流動解析) $z=0$ で $h=+45$ cm,

$z=200$ cm で $q_{in}=18.7$ mm/週

(非定常流動解析) $z=0$ で $h=+45$ cm,
 $z=200$ cm, $0 < t \leq 3$ hrs で $q_{in}=6.23$ mm/h

3 hrs $< t \leq 7$ days で $q_{in}=0$ mm/h

7 days $< t \leq 7$ days 3 hrs で $q_{in}=6.23$ mm/h

ここに、 q_{in} : 降雨フラックス、

z : z 座標で下部ローム層底部をゼロとする

なお、非定常流動解析の初期条件は定常流動解析結果を用いた。降雨条件としては、定常流動解析では平均浸透速度 (18.7 mm/週 = 0.11 mm/h) に相当する降雨量を連続的に与えたが、非定常流動解析では降雨期間中にに対してだけ正味の浸透水量に対応する降雨強度 (18.7 mm/3h = 6.23 mm/h) を与え、降雨終了後は浸透水量をゼロとし、これを繰り返した。このような非定常流動解析における降雨条件はライシメータ試験条件を模擬したものである。

図-3(a) 中には、非定常解析の初期条件となる定常解析結果と降雨終了3時間後から次回降雨の直前の7日目までの結果を示し、図-3(b) 中にはその後の7日間すなわち7日から14日目までの結果を示す。さらに、その次の7日間の解析も実施したが、図-3(b) と同様の結果を示した。これらの図から、定常流動解析結果を初期条件とする場合と今回採用した非定常な降雨を一度経験した7日目の非定常流動解析結果を初期条件とする場合とでは覆土層内の水分分布にわずかな相違が認められるものの不連続の降雨によって水分量の分布が周期的に変化し、その周期が降雨パターンに対応する7日間となることがわかる。また、降雨

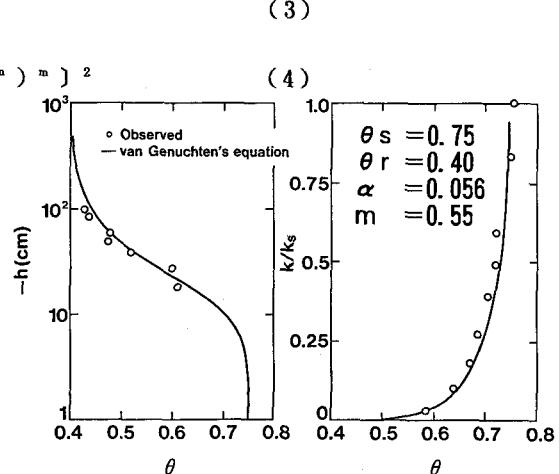


図-2(a) ロームの $h - \theta$, $k/k_s - \theta$ の関係

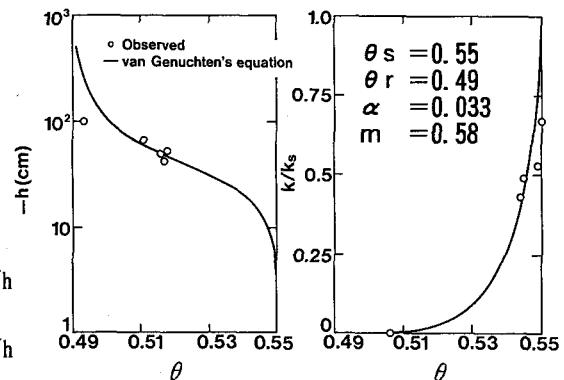


図-2(b) フライアッシュの $h - \theta$, $k/k_s - \theta$ の関係

に伴う水分量変化も覆土ローム層内だけに現れ、フライアッシュ層および下部ローム層では水分量変化がほとんど認められなかった。

図-4には、覆土ローム層、フライアッシュ層、下部ローム層中の各水分量測定深度における水分量の経時変化を示す。図中の実線等は非定常流動解析結果であり、各プロットは中性子水分計を用いた実測値である。この図からも不連続な降雨に伴う水分量変化は、覆土ローム層中央の $z = 185\text{cm}$ の位置でだけ認められ、フライアッシュ層中央の $z = 140\text{cm}$ や下部ローム層中の $z = 60\text{cm}$ の位置では、降雨の有無にかかわらず水分量が経時に変化しないことがわかる。また、実測値と解析結果とも概ね一致し、本解析手法がフライアッシュ層を含む多層地盤の流れ系を評価できることが明らかになった。

4.2 フライアッシュからのCa溶出とローム層中の移行

前節における定常流動解析結果と非定常流動解析結果との比較から、連続降雨と不連続降雨に対する水分量の相違は、覆土ローム層内にだけ現れ、フライアッシュ層や下部ローム層内には現れないことが判明した。そこで、フライアッシュ層からのCa溶出と下部ローム層中のCa移行に関する非定常溶質移行解析を行う場合、水分流動は定常として取り扱うこととした。

フライアッシュ層中の $z = 150\text{cm}$ と $z = 120\text{cm}$ における間隙水中の実測Ca濃度の経時変化を図-5に示す。ただし、図中の縦軸はフライアッシュ層中の初期における間隙水Ca濃度の平均値に相当する 580mg/l （ここではこの濃度を C_0 とする）で基準化した。この C_0 なる値がCa溶出濃度に相当する。この図から、 $z = 150\text{cm}$ では試験開始から100日目までは間隙水中のCa濃度はほぼ 580mg/l と一定であるが、その後急激に低下し、150日目以降は降雨

として供給している水道水中のCa濃度である 20mg/l 前後に漸近する傾向を示した。また、 $z = 120\text{cm}$ 、すなわち $z = 150\text{cm}$ よりも30cm下部では、試験開始から240日目までは C_0 に相当する濃度を示すが、 $z = 150\text{cm}$ での濃度変化と同様に、その後急激に低下し、300日目以降は水道水中のCa濃度に漸近した。このことは、フライアッシュ層からのCaの溶出パターンとして、 C_0 に相当する溶出Ca濃度は深度方向に対して一定であり、その溶出継続時間がフライアッシュ層自体の深度とともに増加することを示す。

フライアッシュ層の間隙水中のCa濃度の測定結果を踏まえ、以下の初期条件に基づき式(2)の非定常解析を行った。今回の解析では、Caのソースは初期条件で与えた。

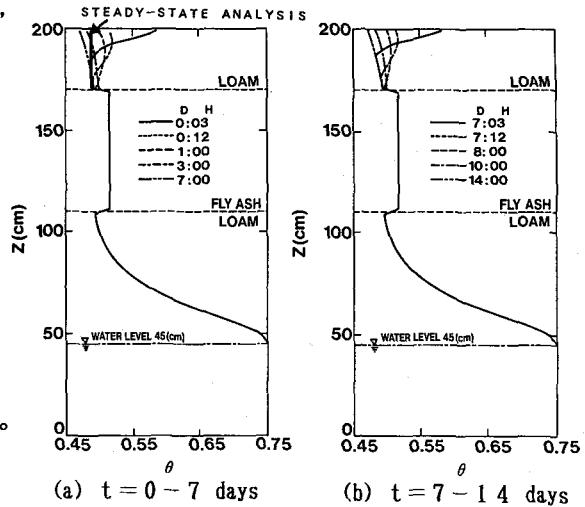


図-3 非定常流動解析による水分量鉛直分布

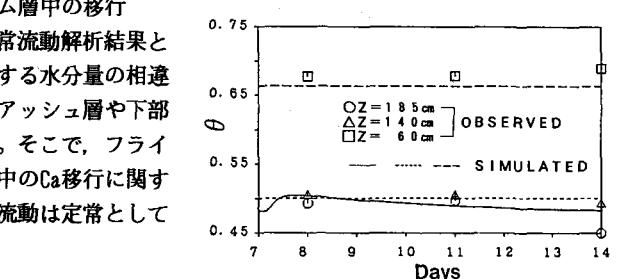


図-4 水分量変化の実測値と解析結果との比較

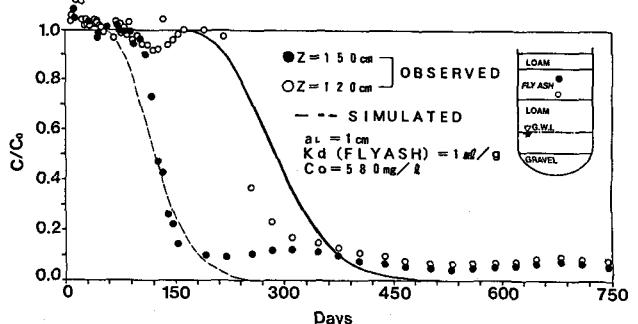


図-5 フライアッシュ層中のCa濃度経時変化

$$t = 0, \quad 0 \leq z \leq 110 \text{ cm} \text{ (下部ローム層)} \quad \text{で} \quad C = 0$$

$$110 \text{ cm} < z \leq 170 \text{ cm} \text{ (フライアッシュ層)} \quad \text{で} \quad C = C_0$$

$$170 \text{ cm} < z \leq 200 \text{ cm} \text{ (覆土ローム層)} \quad \text{で} \quad C = 0$$

ただし、降雨中のCa濃度は約15~20mg/l程度であり、 C_0 と比較すると十分低かったために、降雨中のCa濃度はゼロとした。また、式(2)中の θ と V は定常流動解析結果を用い、 ρ_b は試験条件に基づき設定した。

固相へのCaの吸着モデルとしては、式(5)に示すヘンリー式を用いた。

$$S = K_d \cdot C \quad (5)$$

ここに、 K_d : 分配係数 (distribution coefficient)

ヘンリー式は最も簡便な式であるが、ミニカラム試験では移動度の高いCaやホウ素(B)のような元素に対しては有効であることが示されている¹¹⁾。また、分散係数Dは式(6)のように表現されるので、試験結果と解析結果とのフィッティングによって分散長 (dispersivity) a_L を求めた。

$$D = a_L \cdot V / \theta \quad (6)$$

本ライシメータ試験では、フライアッシュ層および下部ローム層中のCa濃度分布から $a_L = 1 \text{ cm}$ とした。

フライアッシュ層はCaのソースとなるため式(2)における $K_w = K_s = 0$ とし、さらに式(5)において $K_d = 0$ に設定し解析した。しかし、Ca濃度の低減が実測結果よりも早く進行したため、 $K_d = 1 \text{ ml/g}$ に設定し直し、再解析した。その結果を図-5の実線と破線で示した。この図から、Caのソースであるフライアッシュ層に対しては、ヘンリー式で示される遅延効果を組みることによって間隙水中のCa濃度変化をシミュレートできることがわかる。ヘンリー式は固液相間の吸着・脱離反応を表現するための一つのモデルであるため、このことは、フライアッシュ層自体もCaに対してもソースであることと同時に、吸着・脱離反応のような遅延効果も有することを示唆する。

フライアッシュ層の有する K_d 値から式(7)によって遅延係数 (retardation factor) R_r を算出すると約2になる。

$$R_r = 1 + \rho_b \cdot K_d / \theta \quad (7)$$

この数値は、フライアッシュ層の間隙水が2回置き換わるまでCaの溶出が継続することを意味する。そのため、フライアッシュ層の K_d 値は溶出継続時間を推定する上で重要なパラメータとなると考えられる。

図-6は、下部ローム層中の $z = 100 \text{ cm}$ における間隙水中の実測Ca濃度をプロットしたものである。図中の縦軸は、図-5同様Ca溶出濃度 C_0 で基準化している。この図から、フライアッシュ層から溶出したCaが濃度低下を伴いながら下部ローム層を降下浸透することがわかる。また、Caの降下浸透速度は間隙水の浸透速度(有效降雨量)と比較すると遅く、ピークCa濃度もフライアッシュ層中と比較すると半減することから、ロームによってCaが吸着されていることが推察される。

図-6には式(5)を用いた場合の解析結果も示す。しかし、ロームの吸着モデルとして K_d だけを用いた場合は、Ca浸透速度の遅延効果を表現することはできるが、Ca濃度の十分な低減は表現できない。このため、式(2)中の K_w あるいは K_s を考慮する必要があることがわかる。ヘンリー式を使用した場合、 K_w を用い

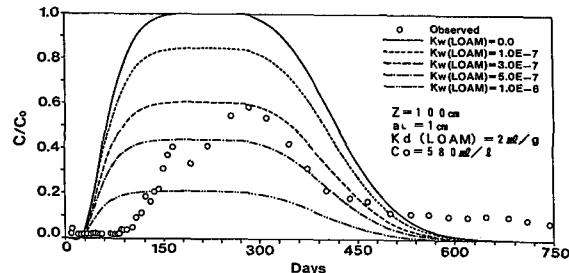


図-6 下部ローム層中のCa濃度経時変化と K_w の影響

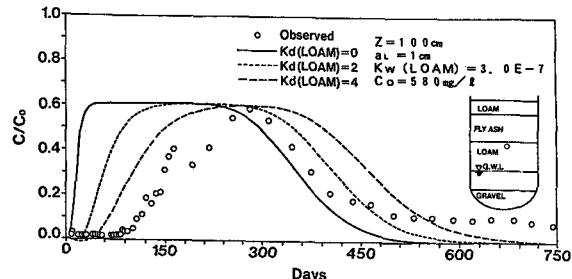


図-7 下部ローム層中のCa濃度経時変化と K_d の影響

ても、 K_s を用いてもパラメータ値を変更することによって同一の解析結果を得ることができるため、ここでは、後述するようにCa濃度の低下は液相に関与する反応と考えられるので、 K_s をゼロとし、 K_w によってCa濃度の低減効果を検討した。図-6では、 K_a を固定し、 K_w を $0 \sim 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ で変化させたが、 $3 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ 程度が妥当であると判断される。

図-7は K_w を固定し、ロームの K_a を $0 \sim 4 \text{ mol/g}$ の範囲で変化させた場合の結果である。この図からロームの K_a は $2 \sim 4 \text{ mol/g}$ 程度であることがわかる。

上述のライシメータ試験結果に基づくと、ロームによるCa吸着には、ヘンリー式すなわち K_a で表現される可逆吸着成分と K_w で表現される不可逆吸着成分の両方が作用することが判明した。ロームのCa吸着がヘンリー式に従うことは、ミニカラム試験結果から既に確認されていたが¹¹⁾、不可逆吸着成分が存在することも今回確認された。この可逆吸着の機構としては、主要な共存陽イオンであるナトリウム(Na)がCaに先行して移行することが確認されたことから、陽イオン交換反応であると考えられる。一方、不可逆吸着の機構としては、Caの主要同伴陰イオンである硫酸イオン(SO_4^{2-})がCaと同様な挙動を示し、隙水pHが弱アルカリ性であったことから、① CaCO_3 や CaSO_4 等の沈殿物生成に関与する溶解・沈殿反応、②リン酸イオンの特異吸着の場合と同様に、 SO_4^{2-} のロームへの特異吸着に伴う陽イオン吸着量の増加¹²⁾等が考えられ、今後の一層の検討が必要である。

5. まとめ

石炭灰層を通しての水分流動および石炭灰層から溶出する主要元素の一つであるCaの移行挙動を解明するために、大型ライシメータ試験を実施し、以下の結果が得られた。

- (1) 石炭灰層に用いたフライアッシュ、覆土層と下部層に用いたロームを通しての水分流動は、van-Genuchten式で表現される $h - \theta$ 、 $k - \theta$ 関係によって、3層構造の浸透特性をシミュレートできた。
- (2) フライアッシュは、その水分量のわずかな差でサクション圧や不飽和透水係数が急激に変化した。
- (3) フライアッシュからのCa溶出はヘンリー式で表現でき、比例定数 K_a に対応した溶出継続時間を示す。
- (4) ロームのCa吸着には、 K_a で表現される可逆吸着成分と K_w で表現される不可逆吸着成分が存在する。

参考文献

- 1) 資源エネルギー庁石炭部監修；コール・ノート1990年版、資源産業新聞社、1990.
- 2) 厚生省水道環境部監修；廃棄物最終処分場指針解説、(社)全国都市清掃會議、1989.
- 3) 土質工学会廃棄物埋立地盤の早期有効利用技術に関する研究委員会；フォーラム“廃棄物埋立地盤”，1990.
- 4) EPA；Report to Congress : Wastes from the Combustion of Coal by Electric Utility Power Plants, EPA530-SW-88-002, 1988.
- 5) Murarka, I.P., and McIntosh, D.A.; Solid-Waste Environmental Studies(SWES): Description, Status, and Available Results, EPRI-BA-5322-SR, 1987.
- 6) 五十嵐敏文；米国電力研究所(EPRI)における固体廃棄物埋立処分環境影響評価、環境技術, Vol. 18, No. 4, pp. 251~254, 1989.
- 7) 河西基, 五十嵐敏文, 馬原保典, 満木泰郎；有限要素法による放射性核種地中移行解析手法の開発、電中研研究報告 385026, 1986.
- 8) 河西基, 五十嵐敏文；不飽和土中の水分移動特性とその測定方法、電中研研究報告 U87002, 1987.
- 9) van Genuchten, M.Th.; A Closed-form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils, Soil Sci. Soc. Am. J., Vol. 44, pp. 892~898, 1980.
- 10) Nielsen, D.R., van Genuchten, M.Th., and Biggar, J.W.; Water Flow and Solute Transport Processes in the Unsaturated Zone, Water Resour. Res., Vol. 22, No. 9, pp. 89S~108S, 1986.
- 11) 五十嵐敏文, 下垣久；石炭灰中微量元素の土壤への吸着特性、電中研研究報告 U91003, 1991.
- 12) 日本土壤肥料学会編；土壤の吸着現象－基礎と応用－, pp. 43~48, 博友社, 1981.