

II-436

定常飽和流れに伴う非イオン性有機化合物の廃棄物層内輸送現象に関する研究

北海道大学工学部 学員○李 東勲 正員 田中信寿
正員 神山桂一 後藤 聖

1. はじめに 農薬や有機溶剤の様な有害有機化合物による地下水汚染がアメリカをはじめヨーロッパ、日本等で数多く報告されている⁽¹⁾⁽²⁾。これらの物質による地下水汚染は限られた地域だけでなく、広い地域で検出されている。また、欧米では廃棄物埋立処分場の浸出水や発生ガスや近隣の地下水からも多数の種類の有害な有機化合物が検出されているが⁽³⁾、日本での報告例は少ない。日本では村岡らは開発中のモニタリング方法で不燃ごみ埋立処分場の表層土壤中からテトラクロロエチレンが検出されたと報告している⁽⁴⁾。また、村岡らと金沢ら⁽⁵⁾はこれらの物質の地下水への予想侵入経路の1つに廃棄物の埋立による経路を挙げている。しかし、EPA(米国環境保護庁)が規定した129種類の優先汚染物質中、数の上から約90%を占める有機化合物の、都市廃棄物埋立処分場における挙動や運命に関する研究はあまり充分とは言えない。前報⁽⁶⁾⁽⁷⁾では、非イオン性有機化合物としてトリクロロエチレン(TCE)を選び、廃棄物への収着特性について基礎的な研究を行った。本報では、それから一步進んで、水が連続的に流れている間に水中に存在しているTCEがどの様に収着し破過されるかを調べ考察する。

2. 収着現象 非イオン性有機化合物の土壌等への収着に関しては色々な研究がある⁽⁸⁾。しかし、水中に存在している場合の土壌や廃棄物等への収着特性は水と固形物中有機物との分配現象(固形物の有機物への吸収現象とも考えられる)で説明するものが多い。これにより収着現象を気液間の物質移動と類似に取り扱い、移動の抵抗は図1に示す様に境膜にあると考え、次式の様に表した。この様な物質移動にもとづいた収着速度モデルは、演者らの知る限りにおいては、新しい提案である。固液界面(固体表面)では瞬間的に平衡状態になると仮定する。

$$F = k_s(C_s' - C_s) = k_l(C_l - C_l')$$

$$= K_s(C_s - K_p C_l) = K_l(C_s/K_p - C_l) \quad (1) \quad C_s' = K_p C_l' \quad (2)$$

但し、 $K_s^{-1} \equiv (1/k_s) + (K_p/k_l)$ 、 $K_l^{-1} \equiv (1/k_l) + (1/(K_p k_s))$ 、F:TCEフラックス[$\mu\text{g}/\text{cm}^2\text{h}$]、 k_s :固形物側境膜物質移動係数[$\text{g}/\text{cm}^2\text{h}$]、 C_l :液体中の濃度[$\mu\text{g}/\text{mL}$]、 k_l :液側境膜物質移動係数[cm/h]、 C_l' :固液界面の濃度[$\mu\text{g}/\text{mL}$]、 K_s :固形物側基準総括物質移動係数[$\text{g}/\text{cm}^2\text{h}$]、 C_s :固形物中の濃度[$\mu\text{g}/\text{g}$]、 K_l :液側基準総括物質移動係数[cm/h]、 C_s' :固液界面の濃度[$\mu\text{g}/\text{g}$]、 K_p :分配係数[mL/g]

3. 実験材料及び実験方法 廃棄物として実験に用いたものは破碎ごみである。また、600°Cで焼いた砂を比較として用いた。破碎ごみは粗大ごみや不燃ごみなどの分別ごみを破碎し、30mmのふるいを通したもの(S.R.R.)を採取し、それをさらにふるい分けし、4.0mm以下のものを実験に用いた。実験装置はガラスやテフロン製の様な非収着性材料を用いて図2の様に製作した。原水貯蔵槽⑦は21.77L容量のガラス瓶で破過実験の際は三方コック④の方向を⑦→④→③にしており、脱着に移る際には⑧→④→③に切り替えた。図上のカラム①と②の流量はそれぞれ60.4mL/hと77.5mL/hであり、砂の場合は60.0mL/hで実験を行った。

4. 実験結果及び考察

4. 1 破過実験及び脱着実験 定常飽和流れの破碎ごみ層内におけるTCE及び Cl^- の無次元濃度破過曲線及び脱着曲線を図3に示す。図によると破過実験の際に原水のTCE濃度が流出水量の増加と共に低くなっている。これは原水貯蔵槽の原水の量が減るほど原水貯蔵槽のガス空間の体積が増え、TCEがガス化するからである。原水濃度の変化は次の様な関係で計算でき、その計算結果は、図3に示した様に実験値とほぼ一致している。この結

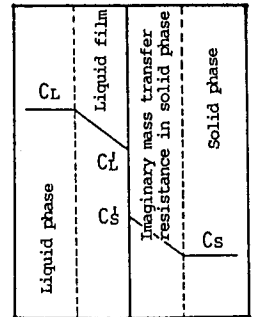


Fig.1 Schematic representation of the movement of a nonionic organic chemical between water and organic content of solid

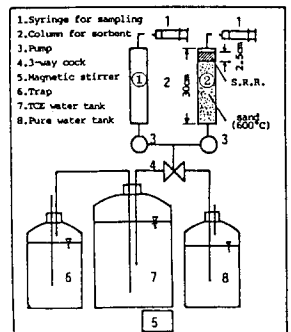


Fig.2 Experimental apparatus

果から本実験装置中の流入部分でのリークや収着などによる損失が殆どないことが分かった。

$$C/C_0 = 1/(1 + K_H V_0/V_L) \quad (3)$$

但し、 C :原水中TCE濃度[$\mu\text{g/L}$]、 C_0 :ガス空間がない初期の原水中TCE濃度[$\mu\text{g/L}$]、 K_H :ヘンリー定数($=0.328^{(9)}$)[-]、 V_0 :原水貯蔵槽内のガス空間の体積[L]、 V_L :原水貯蔵槽内の水量[L]
図によると間隙内の流速が9.8cm/hのカラム①と12.6cm/hのカラム②の流出水量に対する破過曲線がほぼ重なっている。これらの流速条件では破過曲線は、流速に影響を受けないと思われる。

4. 2 実験データの補正 図3の破過曲線を原水の濃度変化式を用いて一定濃度の原水がカラムに流入したとした時の破過曲線に補正し図4に示した。廃棄物に収着されたTCE量と脱着されたTCE量の関係を調べるために図4から収着量と脱着量を求めた。収着量と脱着量はそれぞれの曲線に斜線で示す部分の面積である。カラム①においての面積比は1:0.92、カラム②においての面積比は1:0.88で測定時間内には約90%が脱着された。しかし、低い濃度であるが脱着はまだまた続いており脱着は収着より遅いが、収着されたものは殆ど脱着されると思われる。また、図上から求めた収着量を用いて次の式の様に分配係数を求めた結果はカラム①と②がそれぞれ10.3mL/gと10.7mL/gで回分式等温収着平衡実験で求めた10.3mL/gとよく一致している。

$$K_D = (\text{斜線部の面積}) \times q/M \quad (4)$$

但し、 K_D :分配係数[mL/g]、 M :充填材の乾燥重量[g]、 q :流量[L/h]
回分式実験と連続式実験で同じ分配係数が得られたことは今回得られた破過曲線が有効であることを示している。ここでは示さないが砂の場合は分配係数が0.08mL/gと計算され、殆ど収着しないが、同じ砂でありながら回分式等温収着実験の0.2mL/gより小さい。これは定常飽和流れ実験に用いた砂を600°Cで約2時間焼いて、有機物質と思われる約0.2%の熱灼減量物質を無くしたからであると思われる。

このことから破砕ごみカラムの残りの部分をこの砂で充填しても収着量にはほとんど影響がないことが分かる。

4. 3 シミュレーション 補正した破砕ごみ破過曲線を次式の様に一次元拡散移動偏微分方程式に、前に述べた収着現象理論を加えた式を用いシミュレーションした。実験結果トレーサの破過曲線がTCEの破過曲線と比べると押し出し流れと考えられるので $Pe \rightarrow \infty$ と仮定、液側の収支式の第二項を無視した。それから伝達関数を求めJohnson法⁽¹⁰⁾を用いシミュレーションした。その結果を図4に補正した実験結果と一緒に示す。図によると β が

$$\partial \bar{C}_L / \partial \tau = -\partial \bar{C}_L / \partial \xi + 1/Pe \partial^2 \bar{C}_L / \partial \xi^2 - (1-\epsilon)/\epsilon \rho_s \beta K_p (\bar{C}_L - \bar{C}_s) \quad (5) \quad \partial \bar{C}_s / \partial \tau = \beta (\bar{C}_L - \bar{C}_s) \quad (6)$$

但し、 $\tau \equiv t/(Z/v)$ 、 $\xi \equiv z/Z$ 、 $Pe \equiv vZ/D$ 、 $\bar{C}_L \equiv C_L/C_0$ 、 $\bar{C}_s \equiv C_s/(K_p C_0)$ 、 $\beta \equiv K_p a_s L/v$ 、 t :時間[h]、 L :埋立層の長さ[cm]、 v :間隙内の流速[cm/h]、 D :拡散係数[cm²/h]、 C_L :液相濃度[$\mu\text{g/L}$]、 C_s :固形物中の濃度[$\mu\text{g/g}$]、 C_0 :流入水中濃度[$\mu\text{g/L}$]、 $K_p a_s$:総括物質移動容量係数[h⁻¹]、 ϵ :空隙率[-]、 ρ_s :廃棄物の密度[g/cm³]。

しかし、実験後半にテーリング部分があり、その部分の説明が不十分であるが、この部分に関しては種々の研究がある。一方、収着速度定数 $K_p a_s$ が約1.0hr⁻¹程度と計算されることからテーリング部分を詳細に説明する現象モデルが必要かどうか、今後検討したい。本研究は文部省科学研究補助金を受けている。

参考文献 1)環境庁水質保全局、官公庁公害専門資料、21、2、65/69(1986) 2)G.K.Forkard; Wat. Poll. Cont., 85, 63/70(1986) 3)例えば、Gretchen V. Sabel and Thomas P. Clark; Was. Managt. & Res., 2, 119/130(1984) 4)村岡浩爾、平田健正; 第33回水理講演会論文集(1989) 5)金沢晋二郎、Zdenek Filip; 第2回土壌・地下水汚染シンポジウム、国立公害研究所、35/51(1986) 6)李 東勲、田中信寿、神山桂一、43回土木学会年譜要集、第2部、946/947(1988) 7)李 東勲、田中信寿、神山桂一; 衛生工学研究論文集、25、15/20(1989) 8)例えば、Cary T. Chiou and Thomas D. Shoup; E.S. & T., 19, 1196/1200(1985) 9)李 東勲、田中信寿、神山桂一; 水質汚濁研究、投稿中 10)伊沢計介、自動制御入門、オーム社、244(1958)

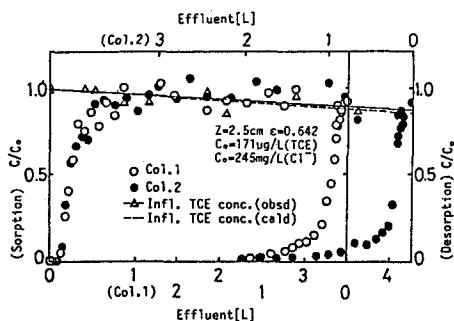


Fig.3 Observed TCE effluent curves for steady saturated flow through column ① and ②

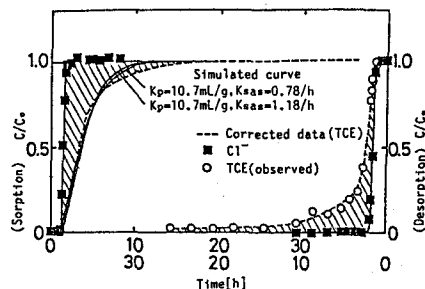


Fig.4 Corrected and simulated TCE effluent curves and Cl⁻ effluent curves for steady saturated flow through column ②