

II-338 廃棄物層内における不飽和浸透水および発生ガスによるトリクロロエチレンの同時輸送に関する研究

北海道大学工学部 正員 佐々木寛（現 三菱重工業(株)勤務）
正員 田中信寿 正員 松藤敏彦

1. はじめに

近年、トリクロロエチレン（以下ではTCEという）等の有害有機塩素化合物による地下水汚染が多数報告され、汚染状況やその有害性についてマスコミにもしばしば取り上げられ、人々の関心も高い。

TCE等の揮発性有機化合物は、より安全な物質に転換が進んでいるものの、有用な物質ゆえ多くの産業で使われており、適切な中間処理をせずに廃棄物最終処分場に搬入される可能性がある。そのため、最終処分場において、揮発性有機化合物を適切に管理するために、それらの廃棄物層内における挙動を解明することは重要である。

本研究室では、李や後藤らの研究によってTCEの吸着特性や分解特性が明らかにされ、廃棄物層内の飽和水やガスの単一輸送媒体による輸送モデルが提案され実験的に確かめられている。また、廃棄物層内での不飽和浸透水と発生ガスという逆方向に流れる2つの輸送媒体によるTCE輸送方程式は提案されているが、実験的検証はされていない。そこで、本研究ではそれを検証するためカラム実験を行なった。

2. 廃棄物層内におけるTCE輸送方程式

実験条件として廃棄物層内の下向きの不飽和浸透水と上向きの発生ガスを定常流としそれぞれの拡散係数を一定とする（水、ガス共に拡散流れ）と、実験廃棄物層内におけるTCE輸送方程式は次の式で表わされる（気、液間のTCEには瞬時に平衡が成り立つとする）。この式の成立を検証する。

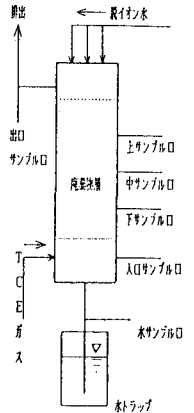
$$\frac{\partial C_0}{\partial \tau} = (\phi - \psi) \frac{\partial C_0}{\partial \xi} + \left[\frac{\phi}{Pe_0} + \frac{\psi}{Pe_g} \right] \frac{\partial^2 C_0}{\partial \xi^2} - \eta \left[f \frac{\partial C_0}{\partial \tau} + (1-f) \beta (C_0 - S) \right]$$

移流項 拡散項 廃棄物への吸着項

$$\frac{\partial S}{\partial \tau} = f \frac{\partial C_0}{\partial \tau} + (1-f) \beta (C_0 - S) - \kappa S$$

瞬間吸着 速度吸着 分解

（ξは上向き）



3. 実験材料と実験方法

実験に用いた廃棄物は、人工ごみ（破碎分別ごみ（木くずが大部分）、焼却灰、ポリエチレン製ごみ袋を重量比5:4.5:0.5で混合したもの）と焼却灰である（連続燃焼式焼却炉の粒径2～9.52mmの部分を用いた）。

まず、TCE吸着に関する基礎定数である K_p 、 $k_{s,as}$ 、 f 、 k を求めるために回分式実験を行った。

次に、TCE輸送方程式を実験的に検証するために廃棄物をカラムに充填し、カラム実験を行った。実験装置を図1に示す。実験条件 L 、 v_g 、 v_l 、 T_c を表2に示した。実験方法は、カラムの上部から脱イオン水を、下部から窒素で希釈したTCEガスを定常的に流す。TCEガスをステップ変化で入力し、ほぼ定常に達した後ステップ的に窒素ガスのみに切り替え、その間にそれぞれのサンプル口でのガス中TCE濃度変化と流出水中のTCE濃度変化を測定した。実験開始時の空気から窒素への切り替えを利用してガス流れの混合特性 Pe_0 を求めた。さらに、実験終了時にカラム上部からNaCl溶液をステップ入力しCl⁻濃度の経時変化を測定することで浸透水流れの混合特性 Pe_l を求めた。

4. 実験結果と考察

回分式実験から得られたTCE吸着・分解特性を表1に、カラム実験のトレーサ応答によって得られた廃棄物層の特性 θ_s 、 θ_l （重量測定や廃棄物の真密度測定の結果とよく一致している）、及び混合特性 Pe_0 、 Pe_l を表2に示す（なお、模擬計算時に、廃棄物層の上下空間においてガスは完全混合、水は瞬時に流れるとした）。しかし、カラム実験

記号表

変数： t : 時間[h]、 z : 流れ方向の距離[cm]、 C_0 : 気相中濃度[$\mu\text{g/L}$]、 C_0^* : 基準濃度、 S : 固相中濃度[$\mu\text{g/g}$]
無次元変数： $\tau = t/(L/v_g)$ 、 $\xi = z/L$ 、 $C_0^* = C_0/C_0^*$ 、 $S^* = S/(K_p C_0^* H)$
無次元定数：吸着能 $\eta = K_p \rho_s \theta_s / (\theta_l + H \theta_g)$ 、吸着速度 $\beta = k_{s,as} (L/v_g)$
分解速度 $\kappa = k(L/v_g)$ 、ベクレ数(液相) $Pe_l = Lv_l/D_l$ 、ベクレ数(気相) $Pe_0 = Lv_g/D_0$ 、 $\phi = (\theta_l / (\theta_l + H \theta_g)) (v_l/v_g)$ 、 $\psi = H \theta_g / (\theta_l + H \theta_g)$
実験条件やサンプル特性： L : 充填層の長さ[cm]、 v_g 、 v_l : 気相、液相の間隙流速[cm/h]、 T_c : TCE注入時間[h]、 θ_s 、 θ_l 、 θ_g : 固相、液相、気相の容積分率[-]、 ρ_s : 固相真密度[g/cm³]、 K_p : (TCE)分配係数[mL/g]、 H : (TCE)ヘンリー定数[-]、 f : 固相への(TCE)瞬間吸着率[-]、 $k_{s,as}$: 気相から固相内部への(TCE)吸着速度を示す総括物質移動容量係数[h⁻¹]、 $k_{s,as}$: 固相内物質(TCE)移動容量係数[h⁻¹]、 $k_{s,an}$: 水中の溶質移動2相モデルにおける流動水から不動水への物質移動係数[h⁻¹]、 k : 固相内におけるTCE分解速度定数[h⁻¹]、 D_0 、 D_l : 気相、液相の拡散(分散)係数[cm²/h]

表1 回分式実験により得られた基礎定数

機体	繰返し回数	f [-]	$k_s a_s$ [h ⁻¹]	K_0 [mL/g]	k [h ⁻¹]
人工ごみ	1回目	0.00	1.25	7.93	0.0143
	2回目	0.00	1.25	8.92	0.0026
	3回目	-	-	9.42	0.0096
	平均	0.00	1.25	8.73	0.0071
焼却灰	1回目	0.00	0.080	16.3	0.0345
	2回目	0.00	0.240	14.8	0.0414
	3回目	-	-	14.8	0.0338
	平均	0.00	0.136	15.3	0.0364

3回目の K_0 , kの決定には平均のf, $k_s a_s$ を使った。

で廃棄物を充填する際、水をよく

なじませなかった場合(Run1~Run

3)では、廃棄物層内の不飽和浸透水の流れの死空間容積が大きく2.で述べた拡散モデルを適用することができなかった。そのため、流動水(拡散流れ)と不動水(流れ方向に溶質移動はなく、流れと直角方向の流動水と物質移動型の溶質交換をする)を考える2相モデルで解析した結果が表2の θ_{LN} (不動水の容積分率), k_{na} (不動水・流動水間の物質移動係数)である。

表2からRun1~Run3では θ_{LN} は小さく、 Pe_L は非常に小さい(滞留時間の分布が大きく、分布型は完全混合に近い)ことが分かり、ここで検証しようとする拡散モデルでは表現できない。また、このような場合、TCEの早い漏出が観測された。

一方、充填時に廃棄物に水をよくなじませてから行った場合(Run4~Run6)については不飽和浸透水及びガス流れの両方に拡散モデルが適用できたので、2節の輸送式を用いてTCE輸送の模擬を試みた。その結果例を図2に示した。ただし、収着速度に関する特性f, $k_s a_s$ の2つのみは探索した(表3)。他の定数は表1及び表2のものを用いた。ただし、 Pe_0 のみは、トレーサガスが窒素で模擬対象ガスがTCEであるので、窒素ガスで得られた Pe_0 の2倍の値を用いた(拡散は分子拡散型で窒素の分子拡散係数はTCEの約2倍であるから)。図2にはTCE濃度の経時変化の実験値をプロット点で、模擬結果を実線と破線で示す。以上のことから、廃棄物と水が十分に馴染んで流れるときには、層内の水及びガスの流れは拡散モデルでよく表現でき、従って2節の基礎式でTCE輸送がよく表現できることが分かった。しかし、f, $k_s a_s$ は、回分式実験などの簡便な実験で求めることができず、結局カラム実験で定めねばならない。また、この2つの値を回分式実験のf, $k_s a_s$ や李らの実験結果(表3のgとw)と比較考察すると、廃棄物層内を不飽和浸透流が流れる時は、廃棄物表面は厚い水膜で覆われているとは考えられないということになる。

5.おわりに 本研究で得られた主な結果をまとめると、(1)気・液相の混合特性が拡散モデルで表すことができる時、2.で提案されたTCE輸送方程式によって不飽和浸透水と発生ガスによる同時輸送をシミュレーションできる。(2)TCE輸送方程式に関する基礎定数のうち、収着速度に関するf, $k_s a_s$ は、回分式実験で得られたもの(f=0.0, $k_s a_s$ =0.136)とは異なる値(f=0.231, $k_s a_s$ =0.017)となった。これは、固相の表面は水にすべて覆われているのではなく、湿った固相が気相と直接接触している部分があると考えられる。よって、固相への収着速度を表現するf, $k_s a_s$ は本研究のようなカラム実験で求める必要がある。(3)浸透水が非常に偏って流れる場合(廃棄物と水をよく馴染ませなかった時)、拡散モデルで表すことができなかった。また、その場合TCEが漏出しやすくなる傾向があった。

[筆者らのTCEに関する既往の発表]・李東勲, 田中, 神山桂一: 衛生工学研究論文集, 第25巻, 15-20(1989), 第26巻, 61-70(1990)、水質汚濁研究, 第13巻, 第4号, 255-259, (1990)・田中, 李, 松藤, 神山: 廃棄物学会論文集, 第1巻, 第1号, 1-9(1990)・李, 田中, 田中, 松藤, 神山: 廃棄物学会第1回研究発表会講演論文集, 381-384(1990)・田中, 松藤, 李, 神山: 廃棄物学会第2回研究発表会講演論文集, 357-360(1991)・後藤聖, 田中, 神山: 土木学会第46回年次講演第2部, 1158-1159(1991)・田中, 松藤, 李: 公衆衛生研究, 第40巻, 第2号, 164-175(1991)

・D. LEE, N. TANAKA, T. MATSUTO and K. KOYAMA: Proceedings Sardinia 91, Third International Landfill Symposium, 189-203(1991)

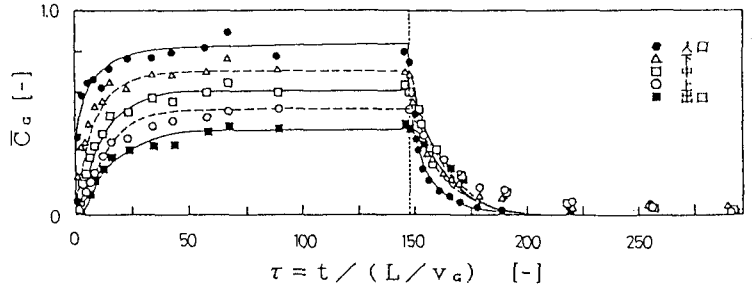


図2 カラム実験におけるTCEの破過及び洗出し結果と模擬結果(Run4)

表2 カラム実験の実験条件とトレーサ応答により得られた混合特性定数

カラム実験	L	v_0	v_L	T_c	θ_0	θ_L	θ_{LN}	Pe_0	Pe_L	k_{na}
Run No.	[cm]	[cm/h]	[cm/h]	[h]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[h ⁻¹]
1.人工ごみ	27.8	22.26	2.24	48.0	0.769	0.188	0.132	2.47	0.00096	0.00080
2.人工ごみ	27.5	22.70	10.13	73.1	0.741	0.193	0.138	2.91	0.00082	0.00269
3.焼却灰	30.1	31.78	4.23	98.1	0.540	0.078	0.020	1.73	0.00079	0.00164
4.焼却灰	30.0	36.82	11.68	120.3	0.475	0.199	0.209	2.73	2.08	0.00004
5.焼却灰	29.5	35.14	5.13	73.0	0.481	0.178	0.177	2.24	4.57	0.00000
6.焼却灰	29.0	39.78	25.03	49.0	0.442	0.216	0.199	2.05	8.16	0.00001

表3 カラム実験の模擬計算から得られた定数

Run No.	f [-]	$k_s a_s$ [h ⁻¹]
4	0.220	0.0125
5	0.250	0.0166
6	0.223	0.0227
平均	0.231	0.0173
g	0.215	0.0205
w	0.004	0.148

g: 湿潤廃棄物層内ガス流れによる輸送

w: 廃棄物層内の飽和水流れによる輸送