

最終処分場浸出水中重金属の 河川及び底質への影響評価

山田亜矢¹・小野芳朗²・河原長美²・並木健二³・谷口守²

¹学生会員 岡山大学大学院 自然科学研究科地球・環境システム科学専攻 (〒700-8530 岡山市津島中 3-1-1)

²正会員 工博 岡山大学教授 環境理工学部環境デザイン工学科 (〒700-8530 岡山市津島中 3-1-1)

³セイコーインスツルメンツ株式会社 (〒560-0083 大阪府豊中市新千里西町 1-1-4)

最終処分場の安全性評価に関して、科学的でかつ市民に説明しうるツールが求められる。そうしたツールの例として本研究では、重金属の組成に注目することにした。浸出水処理水中金属が放流先河川に及ぼす影響、すなわち放流先河川水質に最も影響を及ぼす発生源を予測するために、浸出水処理水の downstream 河川水質への寄与率を重回帰分析により定量した。また河川底質中の微粒子成分 ($\phi < 105 \mu\text{m}$) の金属の組成から過去の影響を検討した。その結果、浸出水の過去の影響は小さいが、一方で処理後放流水の周辺河川環境への影響はカドミウム、鉛に関して明確であることがわかった。

Key Words : leachate, multiple regression analysis, river sediment, heavy metals

1. はじめに

処分場建設が困難になった理由としては、埋立のための用地が少なくなってきたこと、処分場開発と自然環境保全が対立関係になってきたこと、処分場の環境汚染防止、廃棄物の危険性が強く認識されるようになったことなどがあげられる¹⁾。最終処分場の安全性評価に関して、科学的でかつ市民に説明しうるツールが求められる。そうしたツールの例として本研究では、処分場浸出水が周辺環境に及ぼす影響の検討のために、有害物質の中でも重金属に注目した。現場におけるモニタリングの関心事は、浸出水の流入している河川下流の水質の安全性確保と、その水質に対する処分場浸出水の寄与率である。寄与率を知ることで、対象処分場への技術的対応を求め、また、降水量を評価項目に入れることで、渇水時や洪水時の挙動を予測できる予防的措置をとることも可能である。分析法には ICP 発光分光分析法を適用し、約 1 年間にわたり対象処分地の浸出水、周辺河川水等の重金属の経日挙動を把握した。この経日挙動、及び降水量の重回帰分析により、放流先河川に最も影響を及ぼす寄与率を予測した。

2. 試料の採取

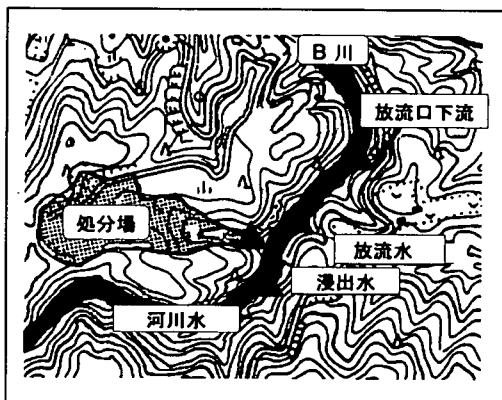
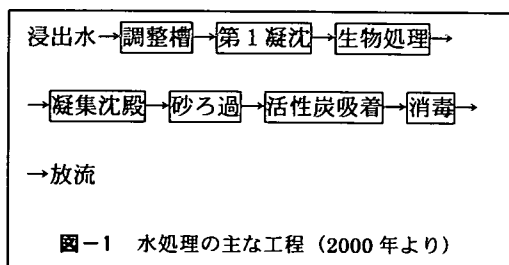
浸出水試料を採取した A 市最終処分場（一部管理型）は小起伏山地にある。この処分場は構造基準が適用されていなかった時代に竣工しているが、1999 年 6 月に遮水シートを張り、一部が管理型処分場となった。この処分場の東側に B 川が位置しており、施設からの処理水を放流している。処分場は B 川流域の中で上流部に位置しており、サンプリングポイント群の上流には施設、人家、農地はない。放流量は 75 t/日である。処分場の概要を表-1 に、2000 年から行なわれている水処理の主な工程を図-1 に示す。2000 年以前は仮設の処理施設にて処理されていた。

図-2 にサンプリングポイントを示す。河川水質試料は浸出水、処理施設からの放流水、放流口からすぐ上流の河川水、及び放流口から約 50m 下流の河川水である。採水期間は 1999 年 11 月から 2000 年 10 月である。採水間隔は 1999 年 11 月から 2000 年 3 月は週 2 回、4 月から 10 月は週 1 回である。

河川底質試料は 2000 年 8 月に、放流口すぐ上流、放流口直下、放流口から 3, 7, 23, 34, 47m の地点から採取した。採取深さは表面から約 5cm の層とした。

表-1 A市の最終処分場(一部管理型)の概要

埋立物	直接不燃ゴミ、資源化ゴミ 分別収集後、焼却残渣、粗 大ゴミ破碎残渣、環境清掃 ゴミ
埋立年数	約30年間
埋立面積	約52,000m ² (管理型面積 10,000m ² 容積56,000m ³)
これまでの埋立量	約300,000t



3. 実験方法^{2), 3)}

(1)河川水質試料

東洋ろ紙GS-25でろ過後、硝酸(和光純薬、有害金属測定用)によりpHを2にして冷蔵保存した。ICP発光分光分析装置(セイコーインスツルメンツSPS1700H)を用い、ホウ素、ナトリウム、カリウム、カルシウム、クロム、マンガン、鉄、カドミウム、鉛、ヒ素、アンチモンを分析した。ホウ素、クロム、マンガン、鉄、カドミウム、鉛は試料に硝酸(和光純薬、有害金属測定用)を加えて前処理をした後、ICP発光分光分析法(イットリウムを内標準物質とした内標準法)にて、ナトリウム、カリウム、カルシウムは希釈した後、ICP発光分析法(検量線法)にて、ヒ素、アンチモンは試料に硫酸(和光

純薬、超微量分析用)(1+1)、硝酸(和光純薬、有害金属測定用)、塩酸(和光純薬、ヒ素分析用)、ヨウ化カリウム(和光純薬、特級)溶液(1M)を加えて前処理をした後、水素化物発生-ICP発光分光分析法(検量線法)にて分析した。データは相対標準偏差が10%未満のものを採用した。

(2)河川底質試料⁴⁾

河川底質は化学的、生物的变化を受け、水の流動による影響を受けることがあっても、変化の速度は比較的小さく、また水域の変化を積極的に受けているため、河川底質を調査することにより、水質調査だけでは得られない過去の影響を知ることができる⁵⁾。そして河川底質の粒径の小さなところは表面積が大きくなるため金属の付着量が大きくなる^{6), 7)}ことから、粒径が105μm未満の微粒子成分の金属の組成を調べた。

採取した河川底質は実験室で大きな石、木屑、生物などを取り除いた後、湿潤のまま2mm以下に振り分けを行った。振り分けを行った試料は50mlの遠心管に入れ、3000rpmで10分間遠心分離して水分を取り除いた後、風通しのよい冷暗所にて風乾させた後、105μmのふるいで分画したものを実験に供試した。試料は過酸化水素水(和光純薬、原子吸光測定用)、硝酸(和光純薬、有害金属測定用)、塩酸(和光純薬、ヒ素分析用)によるマイクロ波式酸分解法にて抽出した後、含有量をICP発光分光分析装置(セイコーインスツルメンツSPS1700H)を用い、ホウ素、ナトリウム、銅、ニッケル、亜鉛、ストロンチウム、クロム、カドミウム、鉛、スズ、マグネシウム、カリウム、カルシウム、マンガン、鉄を分析した。ホウ素、ナトリウム、銅、ニッケル、亜鉛、ストロンチウム、クロム、カドミウム、鉛、スズはイットリウムを内標準物質とした内標準法にて、マグネシウム、カリウム、カルシウム、マンガン、鉄は希釈した後、検量線法にて分析した。データは相対標準偏差が10%未満のものを採用した。

4. 実験結果

(1)河川水質試料

図-3、図-4に一例として5月16日の各金属濃度の組成を、浸出水、放流水、放流口下流、及び河川水について示す。縦軸が金属濃度で図-3では対数とした。ヒ素、アンチモンは常に検出下限以下であった。なお毎回の採水でこうした組成はほぼ同様

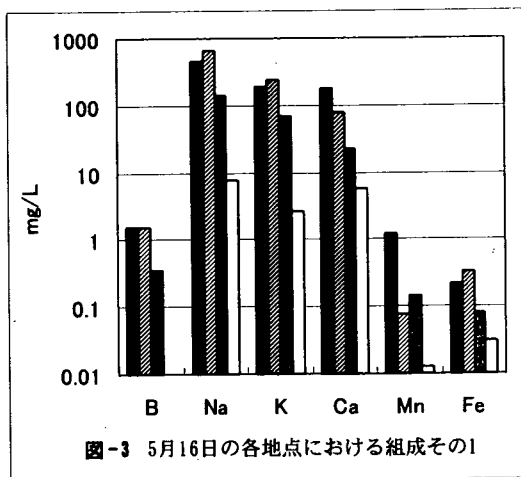


図-3 5月16日の各地点における組成その1

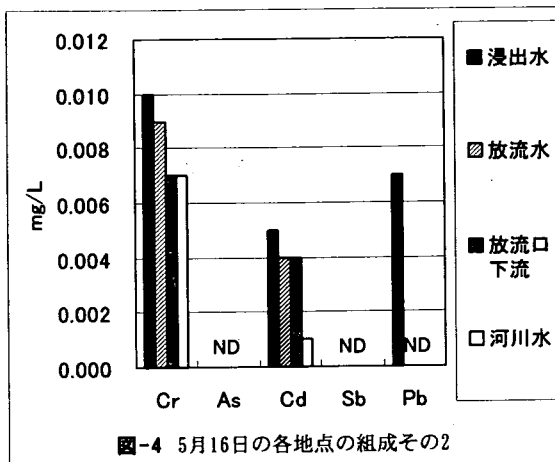


図-4 5月16日の各地点の組成その2

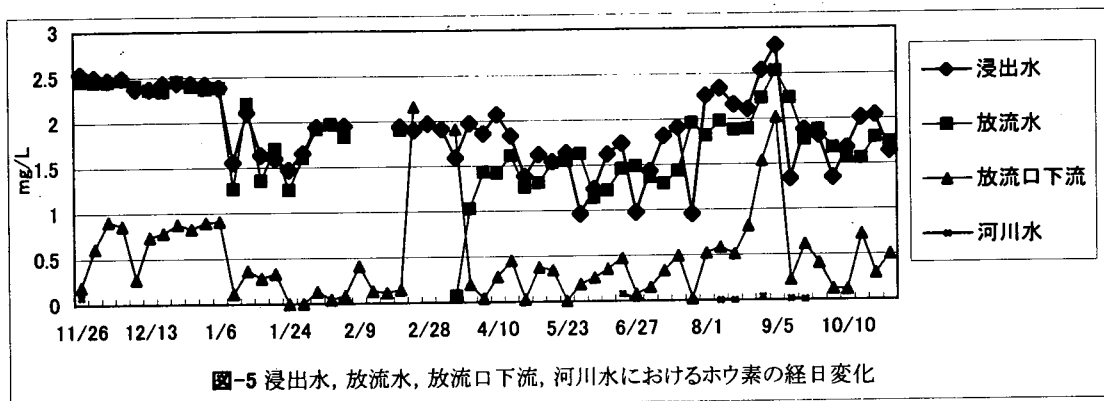


図-5 浸出水, 放流水, 放流口下流, 河川水におけるホウ素の経日変化

なパターンを得ている。しかし、放流口下流、河川水において有害金属のカドミウムと鉛の環境基準の超過が認められることもあった。各地点の組成の比較により、浸出水、放流水と放流口下流の組成パターンが似ていたことから、放流口下流は放流水の影響を受けていると推察される。

図-5 に浸出水、放流水、放流口下流、及び河川水におけるホウ素の経日変化を示す。ホウ素は浸出水、放流口下流においては4回の採水日に環境基準1mg/Lの超過が見られるが、河川水は採水期間を通じて検出下限以下であることが多かった。降水量の経日変化との比較から、ホウ素の放流口下流における濃度の増加は温水期の河川水の減少によるものと推察される。このことは測定した他の全ての金属においてもいえることである。ところでホウ素は地殻に10ppm程度含有されており、実際には水蒸気蒸留によって自然界には濃縮されてホウ酸として地上に出てきて広く分布していることが知られている。またホウ素の有効な除去技術は開発されておらず、浸出水に含まれる原因も明らかにはなっていない。

別実験の焼却灰の含有量試験からホウ素が飛灰においては9700mg/kg、底灰においては6780mg/kg含有されることがわかっているため、焼却灰の浸出水への溶出が懸念される。

これらの結果から放流口下流の河川水質は放流水の影響を受けていると推察される。

(2) 河川底質試料

河川底質の含有量試験結果を図-6に示す。縦軸が含有量で対数となっており、放流口のすぐ上流、放流口直下、及び放流口から47m下流の地点について示した。ホウ素、カリウムは47m下流における含有量が上流における含有量より多くなっているが、それ以外の金属、すなわちストロンチウム、銅、ニッケル、カドミウム、ナトリウム、クロム、亜鉛、カルシウム、マンガン、マグネシウム、鉄、鉛、スズは放流口直下において含有量が多くなっているものの、47m下流の放流口下流に達すると、放流口上流に近い値にまで含有量は少なくなっている。従って、処理施設ができる以前の浸出水の影響は小さ

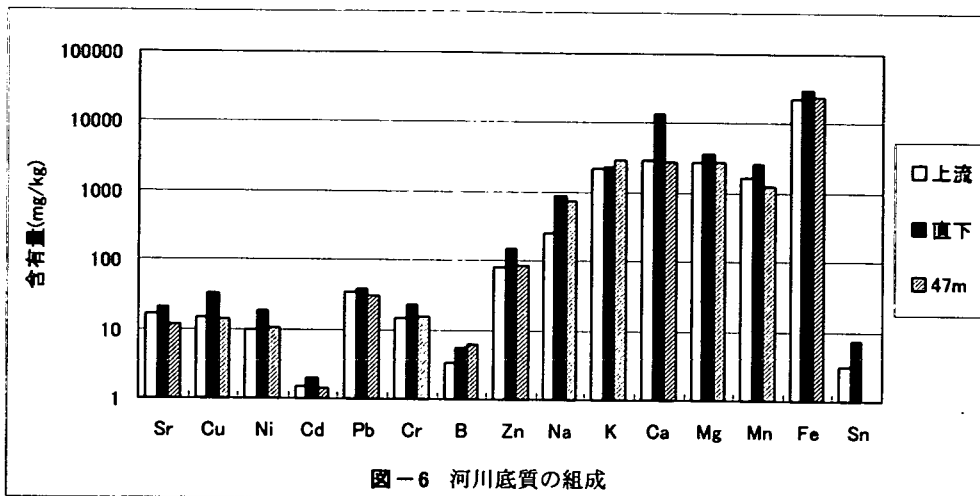


図-6 河川底質の組成

いと推察される。

5. 重回帰分析による考察^{8), 9), 10)}

放流口下流における各金属濃度を目的変数 Y として、その説明変数として河川水を X1、放流水を X2、降水量を X3 として重回帰分析を行った。なお、各地点の金属濃度は対数正規分布しており、対数値を標準化した。この際、ND 値には検出下限値の 2 分の 1 の値を便宜的に使用した。検出下限値の 10 分の 1、2 分の 1、検出下限値で検討しても、結果的に差はなかった。そこで、ダイオキシン類の TEQ への換算時に、ND 値の 2 分の 1 の値を採用することを援用し、ND 値の 2 分の 1 の値を採用した。ダイオキシン類の測定値が ND の場合、環境大気・環境水では各異性体について検出下限値の 2 分の 1 の値を用いる。これは、環境中にはゼロはないことから、2 分の 1 の値を TEF に掛けて TEQ を出して安全側で評価するという考えである。降水量は採水日前日、前日から 2、3、4、5、6、7 日前までの累加降水量とした。そして誤差を小さくするために、この累加降水量をダミー変数を用いてスコア化した。ダミー変数とは定性的な事柄(要因, 対象いずれでもよい)の起こる、起こらないに対する表現の方法である。岡山県下の气象台、測候所より「降水量が多い」ことの定義について「明確な定義はないが、一般的に日降水量が 10mm を超えた場合に降水量が多い、と言う」との回答を得た。そこで n 日前までの累加降水量が 0mm の場合「雨がらない」、10n (mm) 以下の場合「雨が少ない」、10n (mm) を超えた場合「雨がが多い」と定義した。定義を表-2 に示す。

表-2 スコア化した降水量

ダミー変数	雨	定義
0	ない	降水量 = 0 (mm)
1	少ない	0 (mm) < 降水量 ≤ 10n (mm)
2	多い	10n (mm) < 降水量

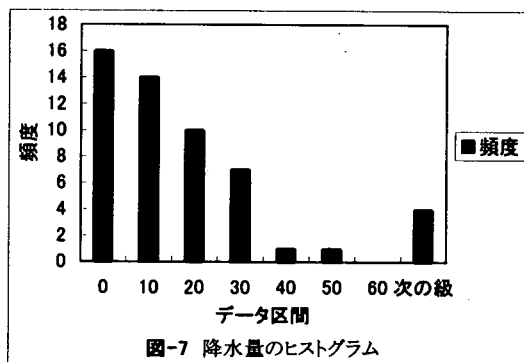


図-7 降水量のヒストグラム

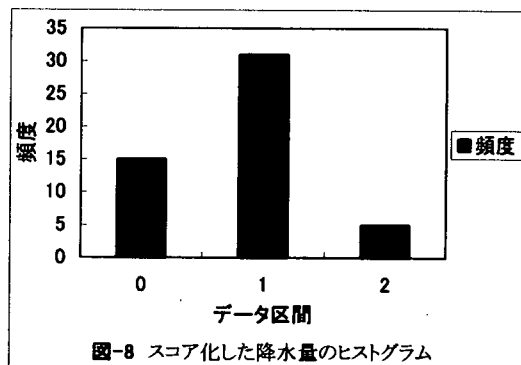


図-8 スコア化した降水量のヒストグラム

表-3 降水量 X3 との相関係数

元素	相関係数	
	X1 河川水	X2 放流水
ホウ素	0.0464	-0.126
ナトリウム	0.0281	0.0666
カリウム	-0.0545	-0.187
カルシウム	0.0646	0.0109
クロム	0.236	0.201
マンガン	-0.177	-0.223
鉄	0.191	0.179
カドミウム	0.112	-0.00578
鉛	0.235	0.239

一例として、採水1日前から4日前までの累加降水量のヒストグラム、定義に従いダミー変数にてスコア化した降水量のヒストグラムをそれぞれ図-7、図-8に示す。採水日前日から4日前までの累加降水量のため、40mm以下が少ない、即ちダミー変数1、40mmを超えたら雨が多い、即ちダミー変数で表される。

また、このようにして設定した説明変数間、特に一例として、定義に従いダミー変数にてスコア化した採水1日前から4日前までの累加降水量 X3 と河川水 X1、及び放流水 X2 との間の相関係数を表-3に示す。相関係数を検討する場合、自由度 20 以上が望ましいとされている¹¹⁾。相関係数の絶対値が0.25未満と低くなっており、有意水準5%でも有意ではないことから、降水量と河川水、及び放流水の関連性は低いことが推察される。

重回帰分析により得られた回帰式全体の統計的精度は決定係数 R² で、また各回帰係数の統計的信頼性は t 値によって判断するのが一般的である。本研究では以下の考察で、回帰式の統計的精度が確保（すなわち、回帰式の構築が想定した変数に基づいて可能であったと判断できるもの）されている重金属に主に着目する。その精度の判断基準として R²=0.5 を採用した。また、そのような一定精度が得られた回帰式において、放流口下流におけるその金属濃度 (Y) に特に影響を及ぼしている変数を、その統計的信頼性に着目して t 値（絶対値）から判断した。具体的には、自由度 50 の場合、t 検定における有意水準 10% の t 値は 1.299（もしくは -1.299）であることから、t 値の絶対値が 1.299 を越える変数項目について監視を行えば、特に効果的であると考えた。

図-9、図-10 に重回帰分析による t 値、決定係数を示す。t 値が、X1 はクロム、マンガン、カドミ

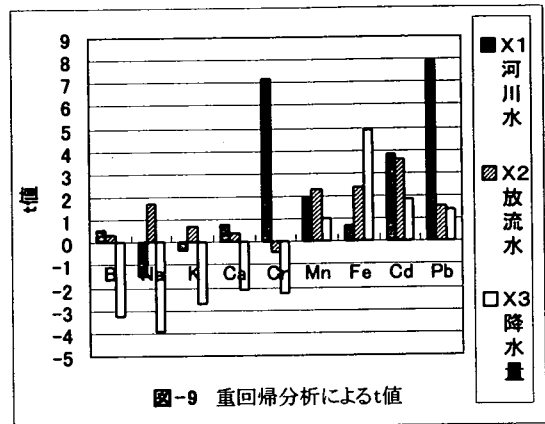


図-9 重回帰分析によるt値

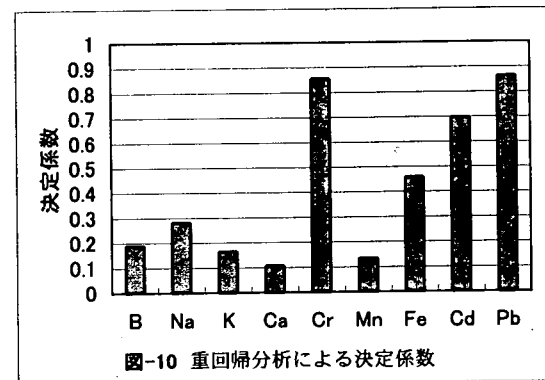


図-10 重回帰分析による決定係数

ウム、鉛に、X2 はナトリウム、マンガン、鉄、カドミウム、鉛に、X3 は、鉄、カドミウム、鉛に正の方向に大きい。また X1 はナトリウムに、X3 はホウ素、ナトリウム、カリウム、カルシウム、クロムに負の方向に大きい。決定係数に着目すると、クロム、カドミウム、鉛が高くなっている。

図-9、図-10 より、この分析結果から以下のことが評価できる。放流口下流金属のうち、最も放流水の影響を受けるのは決定係数、t 値の大きさを勘案すると、カドミウム、鉛である。またナトリウム、マンガンにもその影響が認められる。また河川の影響もクロム、マンガン、カドミウム、鉛において認められる。

しかし、カドミウム、鉛は河川水においては検出下限以下であることがほとんどであり、検出下限以下となったデータには重回帰分析の際に ND の 2 分の 1 の値を使っている。放流口下流においても、カドミウム、鉛が検出下限以下であることが多かったために、河川水と放流口下流のカドミウムと鉛の経日挙動が似たパターンとなった。そこで、t 値が大きくなり、決定係数も高くなったと考えられる。すなわち、カドミウム、鉛は河川水による希釈を受け

たと推察される。マンガン、クロムに関しては、河川水でも検出されたことから、河川水に正の影響を受けたと推察される。一方、ホウ素、ナトリウム、カリウム、カルシウム、クロムに降雨による希釈の効果の可能性があるかと推察される。

ホウ素、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マンガン、鉄については決定係数が0.5未満と小さいことから、放流口下流における挙動が河川水、放流水、降水量以外の因子にも支配されていることが推察される。そこで放流口下流と組成パターンが似ている浸出水、放流水のモニタリングが必要とされる。一方、決定係数が0.5を超えているクロム、カドミウム、鉛といった有害金属の放流口下流における挙動は河川水、放流水、降水量によって説明されている。このことと、放流水における重金属の組成パターンが放流口下流の組成パターンに似ていることを考慮すると、カドミウム、鉛に関しては、放流水の影響を考慮すべきであると推察される。

6. おわりに

本研究の成果を以下にまとめる。

- 1) 各地点の重金属の組成、経日挙動から、放流口下流の河川水質は放流水の影響を受けており、また、降水量の経日変化と放流水の経日挙動の比較から、放流口下流の水質は河川水量の影響を受けると推察される。
- 2) 放流口下流において、ホウ素の環境基準値は超過していた。ホウ素は生殖毒性が報告されており、環境基準値に設定されている。浸出水からホウ素が検出される原因はまだ解明されておらず、またホウ素に有効な除去技術がないことから、今後も監視の必要がある。
- 3) 放流口下流、河川水において有害金属のカドミウムと鉛の環境基準の超過が認められた。
- 4) 底質の含有量試験結果から、底質は放流口から47m下流に至ると、放流水の影響が小さくなることから、処理施設ができる以前の浸出水の影響は小さいと推察される。
- 5) 経日挙動の重回帰分析により放流口下流の金属のうちカドミウム、鉛は放流水の影響を顕著に受けており、マンガン、鉄もその影響を受けている可能性が示唆された。

これらのことから処理施設ができる以前の浸出水影響が低いことがわかった。一方、処理後放流水の周辺河川環境への影響は、カドミウム、鉛に関して明確であり、また洪水期の処分場からの流出、及び濁水期の河川水量の減少による金属濃度の増加が予測されるため、1年を通じて浸出水、放流水を監視する必要があると考えられる。

謝辞：本研究に際し、重回帰分析に関し、御助言をいただいた統計数理研究所の馬場康維教授に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 田中信寿：環境安全な廃棄物埋立処分技術，廃棄物学会誌，Vol. 10, No2, pp. 118-127, 1999.
- 2) 日本分析化学会北海道支部編：環境の化学分析，三共出版，pp. 121-139, pp. 224-230, 1998.
- 3) 原口紘子：ICP発光分析の基礎と応用，講談社サイエンスティフィク，1986.
- 4) 環境庁水質保全局水質管理課編：改訂版底質調査法とその解説，日本環境測定分析協会，丸善，pp. 3-90, pp. 99-126, 1988.
- 5) 日本水産資源保護協会編：新編水質汚濁調査指針，恒星社厚生閣，pp. 237-272, 1980.
- 6) 三島昌夫編：環境中の微量金属の測定－試料の前処理法，東京化学同人，pp. 79-119, 1985.
- 7) 木場敏泰（他）編：環境分析の手法と評価，東京大学出版会，pp. 22-31, 1982.
- 8) 鈴木栄一：環境統計学＜情報処理の考え方＞，地人書館，pp. 1-13, pp. 145-151, 1979.
- 9) 鈴木栄一：環境統計学＜情報処理の実際例＞，地人書館，pp. 1-26, 1979.
- 10) 田中豊，脇本和昌：多変量統計解析法，現代数学社，pp. 1-51, 1983.
- 11) 奥野忠一，久米均，芳賀敏郎，吉澤正：多変量解析法《改訂版》，日科技連出版社，pp. 46, 1981.

(2001. 6. 13 受付)

IMPACT ASSESSMENT OF HEAVY METALS IN LEACHATE ON RIVER WATER AND SEDIMENT

Aya YAMADA, Yoshiro ONO, Osami KAWARA, Kenji NAMIKI
and Mamoru TANIGUCHI

It is necessary to build up a tool to assess scientifically the safety of the leachate from the landfill site of waste disposal. In this research, the concentrations of heavy metals analyzed by ICP were used to assess the water quality of the leachate. Multiple regression analysis was applied to the obtained data to estimate those sources of the heavy metals that effected to the water quality of river water. And we examined a past influence by investigating the content of the metals on the small particle element ($\phi < 105 \mu\text{m}$) in the river sediment. The influence of leachate in the past seemed to be low. However, the trace of the effect on the water environment was assumed to be clear as to cadmium and lead.