

氏 名	張 虎 元
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	工 博 第 2140 号
学位授与の日付	平 成 14 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 土 木 工 学 専 攻
学位論文題目	Redox Effects on Heavy Metal Mobility and Hydraulic Conductivity of Clay Liners at Landfill Sites (廃棄物処分場における重金属の移動性と粘土ライナーの透水係数に及ぼす 酸化還元反応の影響)
論文調査委員	(主 査) 教 授 嘉 門 雅 史 教 授 大 西 有 三 教 授 森 澤 眞 輔

論 文 内 容 の 要 旨

固体廃棄物の処理処分は世界の国々が直面する重要な社会問題であり、発生抑制を始め、リユース、リサイクル、焼却による減容化、最終処分を含めた廃棄物管理に対する総合的なアプローチが必要とされている。今日まで、多くの廃棄物最終処分場が建設され、埋立処分が固体廃棄物の処分として経済的に有効な方法であることが実証されてきた。廃棄物最終埋立処分場に求められる機能は、廃棄物を埋立地内に貯留保持し、廃棄物からの有害な浸出水を処分場外に流出・飛散させないことであり、そのために遮水ライナーシステムの役割はきわめて重要となっている。処分場からの浸出水は多量の重金属類を含有しており、底部ライナーの遮水性能を劣化させるリスクはきわめて高い。本論文では、廃棄物最終処分場という還元条件下において、浸出水中の重金属などの汚染物質がどのような挙動を呈するかを把握して、底部ライナーの遮水機能や工学的性質に及ぼす影響を、詳細な実験に基づいて明らかにしたものであり、以下の7章からなっている。

第1章は序論であり、本論文の研究の背景を述べるとともに、研究の目的と位置づけを示し、本論文の内容と構成をとりまとめて、各章のつながりをフローにより示している。

第2章では固体系廃棄物の処理における地盤工学的問題を総括し、特に廃棄物最終処分場構造の地盤工学的課題を取り上げ、微生物作用とその結果としての浸出水特性とについて、地球化学的相互作用に基づいて考察した。好気性、嫌気性微生物による化学的、微生物学的反応が廃棄物中の有機物質の分解を引き起こし、処分場からの汚染浸出水が発生し、それと同時に、雨水、地表水、もしくは地下水の処分場内への侵入が浸出水の発生を促進させる。嫌気性条件下において、初期に発生した浸出水のpHは一般に低く、4.5~7.5の値を示す。一方、終期の嫌気性条件下で発生した浸出水のpHは、7.5~9.0の高い値を示す。一般廃棄物処分場からの浸出水は多量の有機物質を含んでおり、これら有機物質が微生物の栄養塩として消費され、結果として微生物の爆発的増加と生化学的反応をもたらすことを示した。

第3章では、土-水システムにおける酸化還元過程を考究し、廃棄物処分場における微生物作用との相関を明らかにした。特に酸化還元反応を要約して、微生物活性との関係を示した。微生物は一連の酸化還元反応の触媒として作用し、この酸化還元反応は電子供与体としての有機物質の酸化反応と、電子授与体としての無機化合物の還元反応に起因するものであり、地盤内における電子授与体の働きに起因する三価鉄と硫酸塩の還元は、微生物によって誘引される酸化還元反応に依存した重金属の自然減衰に大きく影響することを示した。さらに連鎖還元反応によって浸出水を処分地近傍では強い還元状態に、外側では酸化状態に、その中間は適度な還元状態へと変化させ、反応生成物の制御と、重金属の自然減衰に寄与していることを明らかにした。

第4章では、酸化還元条件下における廃棄物処分場での重金属の移動特性に関する実験的研究を実施し、鉄と亜鉛の移動特性に焦点をおいて検討した。微生物活動による酸化還元反応は、pHの変化によって重金属の挙動に影響を及ぼし、通常の土壌pH条件下で鉄は不溶性である。還元条件下において鉄は可溶性であるが、硫酸塩還元条件下では硫化鉄を形成し非可動性となる。処分場からの浸出水における鉄の酸化還元循環は、重金属吸着能の制御と浸出水の拡散抑制という二つの重

要な意義を有している。鉄の酸化還元サイクル、特に還元領域での三価鉄の還元溶解と、酸化もしくは無酸素状態への推移領域における二価鉄の再沈殿は、浸出水中の鉄の移動性に重要な役割を果たす。一方、酸素の還元、脱窒と三価鉄の還元状態では、亜鉛の溶解度はpHにのみ左右され、pHが7より小さいとき亜鉛は可溶性で、pHが7.2よりも大きくなると亜鉛は水酸化物と炭酸塩化合物として沈殿する。硫化塩還元状態では、硫化反応の還元生成物が塩化亜鉛の沈殿を生じさせる。そのため亜鉛と反応し、結果的に有効な亜鉛の減衰が行われることを明らかにした。

第5章では廃棄物処分場での重金属の自然減衰に着目し、沈殿と吸着現象を明らかにした。強度の還元状態において、亜鉛や鉛、カドミウムなどの重金属と反応できる硫酸塩の微生物呼吸による還元生成物は、関連する金属の不動化に結び付き、安定した硫化物の沈殿を形成する。不動化された重金属は、将来的に還元状態が酸化状態に移行したとしても、可動化することは困難である。微生物の酸化還元反応は、処分場浸出水のpHを酸性から中性もしくはアルカリ性へと変化させる。したがって、水酸化物や炭酸塩化合物の沈殿によって、亜鉛、鉛、カドミウム、水銀などの重金属の自然減衰の促進効果があることを明らかにした。

第6章では大阪湾海成粘土の透水性に及ぼす酸化還元作用を実験的に検討し、廃棄物処分場の粘土ライナーとしての適用性を検討した。用いた大阪湾海成粘土は酸化還元電位が -377mV であり、強度に還元された土である。異なる酸化還元電位を有する溶液を土供試体に浸透させたが、工学的特性には顕著な変化は生じず、透水係数においても酸化還元電位の変化に対して大阪湾海成粘土は鋭敏ではない。しかしながら、透水試験において、天然由来の微生物を増殖させるために栄養塩を添加して実験すると、2オーダーから1オーダー程度の透水係数の減少が確認された。嫌気性条件下における土粒子表面でのバイオフィームと嫌気性無機沈殿物の形成が、透水係数の減少に寄与したものと考えられ、浸出水によって促進された微生物活動は、微生物数の増大と、微生物活動によって誘引された酸化還元反応の促進となり、処分場粘土ライナーとして大阪湾海底粘土の透水係数に有効に作用することを示した。

第8章は結論であり、本論文で得られた成果について要約し、今後の課題を整理して示している。

論文審査の結果の要旨

廃棄物処分場における重金属の移動特性は、処分場からの浸出水の漏出問題の環境影響を評価する上で重要な課題であるにもかかわらず、未だ十分な知見が得られていない。本論文は、廃棄物処分場における酸化還元条件が廃棄物中に含有される重金属の移動特性に及ぼす影響を、基礎理論に基づいた詳細な実験によって検討すると共に、遮水機能を左右する粘土ライナーの透水性への作用を解明する一連の研究をまとめたものであって、得られた主な成果は次のとおりである。

1) 好気性、嫌気性微生物による化学的、微生物学的反応が廃棄物の有機物質分解を引き起こし、処分場から汚染浸出水が発生することを地球化学相互作用と称し、これによって浸出水特性が左右されることを示した。特に、嫌気性条件下において、浸出水のpHは7.5~9.0と高い値を示し、含有する多くの有機物質が微生物の栄養塩として消費され、その結果として微生物の爆発的増加と生化学的反応がもたらされることを明らかにした。

2) 三価鉄の還元条件下において鉄は可溶性であるが、硫酸塩還元条件下では硫化鉄を形成し、非可動性になる。したがって、処分場からの汚染浸出水中での鉄の酸化還元循環が、重金属吸着能の制御と汚染浸出水の拡散抑制を支配していることを明らかにした。

3) 天然バリアーとしての海底粘土の透水試験において、柔壁型透水試験の有効性を述べるとともに、天然由来の微生物を増殖させるために栄養塩を添加して実験すると、2オーダーから1オーダー程度の透水係数の減少が確認された。

4) 処分場浸出水によって促進された微生物活動は、微生物数の増大と、酸化還元反応を誘引し、海底粘土を遮水工として用いた処分場粘土ライナーの透水性能に対し、有効に作用していることを明らかにした。

以上要するに、本論文は、酸化還元特性に基づく廃棄物処分場内での重金属に関するいくつかの反応を見出して、それらの反応が重金属の移動特性と遮水機能を担う粘土ライナーの透水性に及ぼす影響についての重要な知見を得たものであり、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成14年2月25日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。