

一般廃棄物埋立処分場浸出水中の内分泌かく乱物質の 流出及び処理特性に関する基礎的研究

学位論文内容の要旨

近年、野生生物の生殖異変の報告から内分泌かく乱物質(以下、EDCs)が問題になっている。EDCsには、ダイオキシン類など副次的に生産されるものの他、農薬類・界面活性剤・プラスチック関連物質などが挙げられている。これらは、我々の身の回りに存在し、しかも大量に使用されている物質である。

使用済みのプラスチックは焼却処理される他に、不燃ごみとして、もしくは事業者によって直接、埋立処分場へ持ち込まれ、プラスチックに使用されている EDCs が、浸出水を媒体として周辺の水環境を汚染する可能性がある。このため、埋立処分場から発生する浸出水中に含まれる EDCs の濃度や、水処理施設における除去効果についての研究が必要となっている。

現在、浸出水中に検出される EDCs の種類と、その濃度範囲が把握されつつある。しかし、浸出水中の EDCs 濃度の変動特性、ごみ層内部での挙動、水処理施設での各処理プロセスによる除去効果の評価についての研究は少ない。特に、ごみ層内部での挙動についての研究は今も行われておらず、このため長期的な流出に関する議論ができない。そこで本研究では、次の3点を主な研究課題とした。

- ・一般廃棄物埋立処分場における EDCs の流出濃度および変動特性
- ・埋立廃棄物層における EDCs の流出特性
- ・浸出水処理施設における EDCs の処理特性

第1章では、本研究の背景として廃棄物埋立処分場をとりまく EDCs の問題について説明し、研究の目的、構成と流れについて述べた。

第2章では、浸出水中ダイオキシン類の実態と研究の動向を文献調査によって述べた。浸出水中に含まれる濃度は高くないが長期間にわたって低濃度で推移すること、SS に含まれて流出しやすいこと、また埋立層から流出する総量はきわめて少ないことが分かった。生物処理や凝集沈殿処理などの従来の水処理方法でも、河川水レベルまで除去することは可能であることが分かった。

第3章では、一般廃棄物埋立処分場における EDCs の流出濃度および変動特性について調査した。

最初に、測定対象とする EDCs を選定した。政府のミレニアムプロジェクト(1999年)に挙げられた、対応すべき重要性が特に高い化学物質と、浸出水中の EDCs 濃度を調査した既往の研究を参考に、アルキルフェノール類(APs)、ビスフェノール A(BPA)、フタル酸エステル類(PAEs)および有機スズ化合物類(OTs)の4物質群を対象とした(以下、測定対象 EDCs を単に EDCs と記す)。

調査対象とする埋立処分場として、二つの一般廃棄物処分場(A、B 処分場)を選定した。A 処分場では、混合ごみを埋め立てており、焼却灰を含まないのが特徴である。B 処分場では、可燃ごみの焼

却灰と事業系の直接搬入ごみを埋め立てている。

浸出水中の EDCs 濃度を測定した結果、埋め立てられたプラスチックから溶出すると思われる BPA と DEHP が、河川水に比べて高濃度であった。BPA は、河川水中濃度に比べて 100 倍以上の濃度で検出されるため、水処理による除去が必要である。DEHP は、河川水中濃度に比べて 10 倍程度であり、リスク低減のために水処理が必要であると思われる。また、界面活性剤に使用される APs は河川水レベルであり、また船底塗料に使用される OTs は検出されないため、これらの物質は浸出水中では問題とならない。

埋立ブロックの経過年数に対して、浸出水に含まれる BPA 濃度は減少していくが、DEHP はほぼ一定の濃度で推移することが分かり、長期的な流出傾向が示唆された。

第 4 章は、埋立廃棄物層における EDCs の流出特性を、室内実験によって調べた。EDCs のごみ層内の移動を支配する要因としては、ごみ層への収着と、ごみ層内部での分解が考えられる。そこで、EDCs のごみ試料への分配係数と、ごみ試料中での EDCs 分解速度定数を測定した。

分配係数は、BPA<APs<PAEs の順に大きくなった。これは、オクタノール水分配係数の大小と相関が見られる。また、ごみ試料毎に比較すると、覆土試料<ごみ試料 A, B<焼却灰試料の順に大きくなった。熱灼減量との相関を超えて、PAEs は焼却灰試料に収着しやすい傾向があることが分かった。

分解速度定数は、APs が比較的高く、次に BPA が大きかった。PAEs では、DBP と DEHP が特に小さかった。ごみ試料毎に比較すると、覆土試料において、APs と BPA が高かった。

さらに、この結果を用いて、ごみ層からの EDCs の流出濃度の経時変化を、モデル計算によって予測した。流出濃度の変化を表す計算式は、ごみ毎に定まる初期流出濃度を表す定数と、雨水による洗い出しおよび分解による濃度減少を表す関数との積で表現できた。初期流出濃度は、分配係数を求める収着実験の結果から求められることがわかった。次に、濃度減少を表す関数のパラメータを評価した結果、洗い出しによる濃度減少の効果が小さく、分解による濃度減少の効果が支配的であることがわかった。最後に、流出濃度の経時変化を計算した結果、BPA は初期濃度が高いために、また DBP と DEHP は分解が極端に遅くてごみ層内にとどまるため、河川水中の濃度レベルまで減少するのに数十年以上必要であることが分かった。

第 5 章は、浸出水処理プロセスにおける EDCs の処理特性について検討を行った。特に高濃度で検出される BPA と DEHP について述べる。

最初に、5ヶ所の浸出水処理施設において、処理プロセス毎に採水して EDCs 濃度変化を調査した。BPA は、単純な曝気処理によって濃度が河川水レベルまで低下することがわかった。DEHP は、曝気・凝集沈殿・回転円板・砂ろ過および活性炭吸着処理では除去できず、河川中の 10 倍程度の濃度で放流されることが分かった。このため、DEHP の除去のためには促進酸化処理などの、さらに追加的な処理が必要であることが分かった。

次に、単に浸出水を静置したときの濃度の経時変化を観測した。BPA の減少は、生物分解よりも、酸化的雰囲気によっておこる化学的酸化によることが示唆された。このため、BPA 処理のために、曝気処理が有効である。

最後に、凝集沈殿・活性炭吸着・促進酸化処理による除去効果を、室内実験によって評価した。BPA は、曝気処理によって処理できるので、DEHP について述べる。凝集沈殿処理では、ろ過程度の高い固液分離操作をすれば、半減できることが分かった。活性炭吸着処理では、DEHP は処理されにくい事がわかった。また、促進酸化処理によって、DEHP が容易に分解できることが分かった。

第 6 章では、まとめの章とし、本論文の結論を述べた。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 田 中 信 壽
副 査 教 授 恒 川 昌 美
副 査 教 授 古 市 徹
副 査 教 授 眞 柄 泰 基
副 査 助 教 授 松 藤 敏 彦

学 位 論 文 題 名

一般廃棄物埋立処分場浸出水中の内分泌かく乱物質の 流出及び処理特性に関する基礎的研究

近年、野生生物の生殖異変の報告から内分泌かく乱物質（以下、EDCs）が問題になっている。EDCsには、ダイオキシン類など副次的に生産されるものの他、農薬類・界面活性剤・プラスチック関連物質などが挙げられている。使用済みのプラスチックは、不燃ごみとして埋立処分場へ持ち込まれ、プラスチック中の EDCs が、浸出水を媒体として周辺の水環境を汚染する可能性がある。このため、浸出水中の EDCs 濃度や、水処理施設における除去効果についての研究が必要となっている。

本研究では、1)EDCs の流出濃度および変動特性、2)埋立廃棄物層における EDCs の流出特性、3) 浸出水処理施設における EDCs の処理特性、を主な研究課題としている。

第 1 章では、本研究の背景として廃棄物埋立処分場をとりまく EDCs の問題について説明し、研究の目的、構成と流れについて述べている。

第 2 章では、浸出水中ダイオキシン類濃度の実態を文献によって調査し、浸出水中濃度は高くないが長期にわたって流出が継続すること、生物処理や凝集沈殿処理などの通常の水処理方法で、河川水レベルまで除去できていることなどを明らかにしている。

第 3 章では、測定対象 EDCs として、アルキルフェノール類 (APs)、ビスフェノール A (BPA)、フタル酸エステル類 (PAEs) および有機スズ化合物類 (OTs) の 4 物質群を選定している（以下、測定対象 EDCs を単に EDCs と記す）。

調査対象埋立処分場は、A 処分場（混合ごみを埋め立てており、焼却灰を含まない）と、B 処分場（可燃ごみの焼却灰と事業系の直接搬入ごみ）であり、長期の測定により、埋立プラスチックから溶出する BPA と DEHP (APEs の一つでフタル酸ジエチルキル) が、河川水に比べて高濃度であること、また、APs は河川水レベルで、OTs は検出されないため、両物質は問題とならないことを明らかにしている。埋立ブロックの埋立後経過年数に対しては、浸出水中 BPA はわずかながら減少するが、DEHP

はほぼ一定の濃度で推移することも明らかにしている。

第4章では、埋立廃棄物層における EDCs の流出特性を室内実験によって調べている。EDCs の分配係数は全体に高い値であり、BPA<APs<PAEs の順に大きく、オクタノール/水分配係数と相関が見られること、また、覆土試料<ごみ試料 A, B<焼却灰試料の順に大きいことを明らかにしている。分解速度定数は全体に極めて小さな値であり、APs が比較的高く、次に BPA が大きかったこと、PAEs では、DBP (APEs の一つでフタル酸ジブチル) と DEHP が特に小さかったこと、ごみ試料毎に比較すると、覆土試料において APs と BPA が高かったことなどを明らかにしている。さらに、この結果を用いて、埋立地からの EDCs の流出濃度の経時的変化をモデル計算によって予測し、初期流出濃度は分配係数測定実験によって推定できること、濃度減少に対しては、洗い出しの効果は小さく、分解によるものが支配的であることなどを明らかにしている。

第5章では、浸出水処理プロセスにおける EDCs の処理特性について検討している。まず、5か所の浸出水処理施設を調査し、BPA は単純な曝気処理によって河川水レベルまで低下していること、DEHP は、曝気・凝集沈殿・回転円板・砂ろ過および活性炭吸着処理では除去できず、河川中の10倍程度の濃度で放流されていることを明らかにしている。次に、単に浸出水を静置したときの濃度の経時変化を測定し、BPA の減少は酸化雰囲気下では、生物分解よりも化学的酸化によって起こることを明らかにしている。さらに、凝集沈殿・活性炭吸着・促進酸化処理による DEHP 除去効果を室内実験によって評価し、凝集沈殿処理では固液分離効率が高ければ濃度を半減できること、活性炭吸着処理では処理できないが、促進酸化処理によって容易に分解できることなどを明らかにしている。

第6章では、本論文の結論を述べている。

これを要するに、著者は、一般廃棄物埋立処分場における EDCs の流出濃度および変動特性、EDCs の吸着・分解特性および流出特性、並びに浸出水処理施設における EDCs 処理特性に関する基礎的研究を行い、その成果は、一般廃棄物最終処分場浸出水中内分泌かく乱物質の適正な処理及び管理に貢献するものであり、廃棄物工学及び環境工学に寄与するところが大きい。

よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める