

日本及びマレーシアの大学と連携した水質改善への取組

Efforts to improve water quality in collaboration with universities in Japan and Malaysia

米田 健一

Kenichi YONEDA

ムニラ ハッセイン*

Munirah HUSSEIN

要旨

本研究は、東京農工大学及びマレーシア・日本国際工科院と共同で、マレーシアの家庭ごみ処分場からの浸出水中重金属の汚染状況に焦点を当て、処分場浸出水中の重金属を調査した。6箇所の処分場から浸出水を採取し重金属を分析、汚染度を品質評価尺度(QRS)により評価した。その結果閉鎖及び投棄型処分場で重金属濃度が高く、1箇所の処分場浸出水中には排出許容濃度の約8倍のヒ素濃度が検出された。次に処分場浸出水中ヒ素濃度の高い処分場におけるヒ素吸着除去法を検討した。As(III)は水中では余り存在せず、また除去されにくくAs(V)よりも大きい毒性がある。As(III)試薬のバッチ式吸着試験を、処分場内で採取出来るウルチ土壌を用いて実施し、試料土壌のAs(III)吸着容量にてAs(III)吸着に適切な土壌を選定した。その結果As(III)吸着容量は、4種類の試料土壌で0.31(U土壌) > 0.19(L土壌) > 0.18(S土壌) > 0.14(K土壌)の順で高く、またU土壌は鉄とマンガンの含有量が高い土壌であった。浸出水中ヒ素を現地ウルチ土壌により吸着除去する本法は、水質改善に供せる可能性が有る。

キーワード：埋立地浸出水、重金属、汚染、ヒ素(3価)、土壌

Key words: Landfill leachate, Heavy metal, Pollution, As(III), Soil

1 緒言

マレーシアでは固形廃棄物の未処理の投棄による多数の汚染物質があり、そのうちいくつかの汚染物質として重金属がある¹⁾。重金属は、微量濃度でも環境への毒性が高いとして分類される汚染物質である。重金属の有毒な性質は、自然の生物学的バランスを乱し、そして自己浄化プロセスを妨げていると報告されている²⁾。環境中への重金属の過剰放出は、地質、風化や浸透、火山活動、山火事などの自然由来による発生、及びごみや固形廃棄物の処分場、埋め立てごみからの金属の浸出、鉱業・鉱石や金属の工業処理、金属の使用を含む製造等により引き起されている。

マレーシアのごみ処分場の現状は、図1の通りほぼ半数が投棄型処分場、また閉鎖処分場も半数近く有り、衛生型処分場は、10%にも満たない状況である。

ごみ処分場の浸出水は、ごみ処分場から流れ出たり、浸み出したりする液体で、マレーシア処分場では次のような状況が観察されている。

- 有機物、重金属、化学物質等の色々な汚染物質を含んでいる水が排出されている。
- 分解中の有機物質が含まれる廃液、および廃液と雨水等の混合水が、排出されている。
- 投棄型ごみ処分場からの浸出水は直接小川に流れ込み、また地下水の帯水層にも入っている。

- 電子部品等の重金属を含む家電製品、具体的には水銀、ヒ素、カドミウム、鉛、ポリ塩化ビニル(PVC)等及び溶剤等の有害成分を含んでいる水が排出されている。

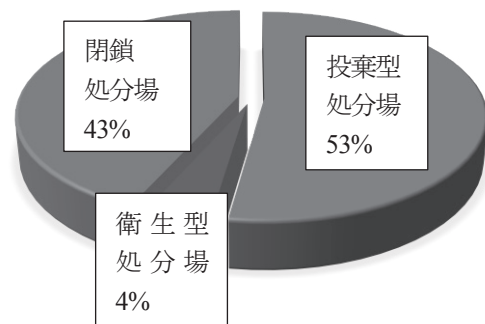


図1 マレーシアのごみ処分場の種類

研究の背景には、東南アジアごみ処分場での課題の一つとして、著者らがタイのごみ処分場浸出水に付いて研究を重ねて、重金属の中で特にヒ素が、規制値を超えて検出されている事を報告している^{3) 4)} ことがある。特に底部に遮水シート(以降ライナー)がない場合やライナーが破損している場合に、浸出水の生成やその処分場からの移動によって、重金属が環境に放出される可能性がある。そこで浸出水中の重金属を除去する方法として、安価な土壌で吸着除去する方法を考えた。またマレーシアの処分場浸出水や地下水中の重金属汚染について、い

*マレーシア・日本国際工科院(MJIT)環境グリーン工学科(EGT)

くつかの研究が行われてきたが、特にごみ処分場浸出水中の重金属汚染のサンプリング箇所に関連した研究は少ない。

本研究最初の目的は、マレーシアの衛生的および非衛生的（閉鎖型及び投棄型）ごみ処分場から流出する浸出水中の重金属のレベル、処分場の設計仕様、稼働状況、および汚染状態等を調査研究することし、特に処分場浸出水中の人体に大きな影響を及ぼすと考えられる重金属汚染物質を調査した⁵⁾。

また環境中のヒ素は、自然発生源としては土壌に含まれるヒ素、また人為的発生源としては、農薬、防腐剤及び電子電気廃棄物(e-Waste:イーウエスト)等の両方に由来する可能性がある。無機ヒ素は、主にAs(III)とAs(V)の2つの酸化状態で存在し、どちらも人間及び生態系全般に有害である。ごみ処分場から排出された、浸出水中のヒ素は、水路への表面流出、または土壌浸透によって地下水系を汚染する可能性があり、重要な課題となっている。本研究のもう一つの目的は、現地ごみ処分場内で採取可能で鉄分を含む複数のウルチ土壌から、処分場浸出水処理システムに適する吸着剤を選定する事である。本研究では試料土壌は4箇所の処分場から収集して、バッチ式試験を実施して評価した⁶⁾。

2 研究方法

2.1 取り組み

本研究は、図2研究の取り組みに示すように、川崎市環境総合研究所が中心になり東京農工大学とマレーシア・日本国際工科院(MJIIT)と連携して実施した。

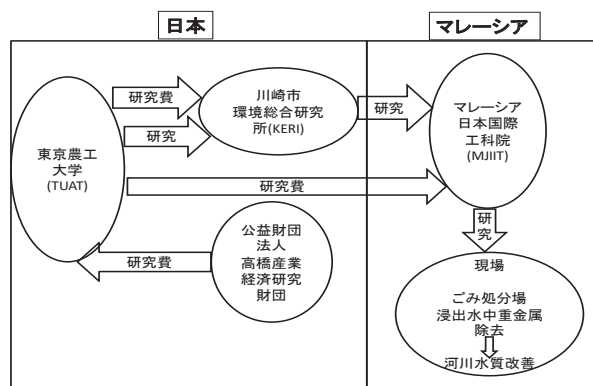


図2 研究の取り組み

2.2 サンプリング地点

マレーシアの種類の違う6箇所のごみ処分場から浸出水をサンプリングした。表1は、サンプリングした6箇所の処分場の種類と状況を示す。SL1とSL2は衛生型処分場、CL1とCL2は閉鎖型処分場、DS1とDS2は現在使用中の投棄型処分場である。

表1 ごみ処分場の種類と状況

	①	②	③	④	⑤	⑥
	衛生型 ごみ処分場 (SL1)	衛生型 ごみ処分場 (SL2)	閉鎖 ごみ処分場 (CL1)	閉鎖 ごみ処分場 (CL2)	投棄型 ごみ処分場 (DS1)	投棄型 ごみ処分場 (DS2)
能力 (トン/日)	1200	800	480	60	60	135
運転状況	運転中	運転中	閉鎖中	閉鎖中	運転中	運転中
稼働年月(年)	3	3	22	36	36	19
地形	平坦	平坦	谷	谷	谷	谷
底部ライナー	有り	有り	無し	無し	無し	無し
覆土	有り	有り	有り	有り	無し	無し
浸出水集積	有り	有り	有り	有り	無し	無し
浸出水処理	有り	有り	有り	無し	無し	無し

2.3 処分場浸出水サンプリング地点

浸出水を採取した6箇所の処分場の場所を図3の地図に示す。更に表2に示す合計15箇所の浸出水を採取した地点は次の通り。

① 衛生型処分場(SL1)での浸出水サンプルは、浸出水原水集積池と処理浸出水放出地点でサンプリングした。

② 衛生型処分場(SL2)での浸出水サンプルは、浸出水原水集積池と処理浸出水放出地点でサンプリングした。

③ 閉鎖処分場(CL1)での浸出水サンプルは、浸出水原水集積池と処理浸出水放出地点でサンプリングした。

④ 閉鎖処分場(CL2)での浸出水サンプルは、浸出水処理装置が無いので、浸出水は貯まり井戸と閉

鎖処分場からの浸出水と雨水の混合した箇所です。サンプルを採取しました。

- ⑤ 投棄型処分場浸出水(DS1)での2個浸出水サンプルは、処分場内に流れているドレイン流路、浸出水の小川、水溜りからサンプルを採取しました。

- ⑥ 投棄型処分場(DS2)での4個の浸出水サンプルは、処分場内に流れている図4のドレイン流路及び図5の浸出水の流れ込んでいる小川等からサンプルを採取しました。

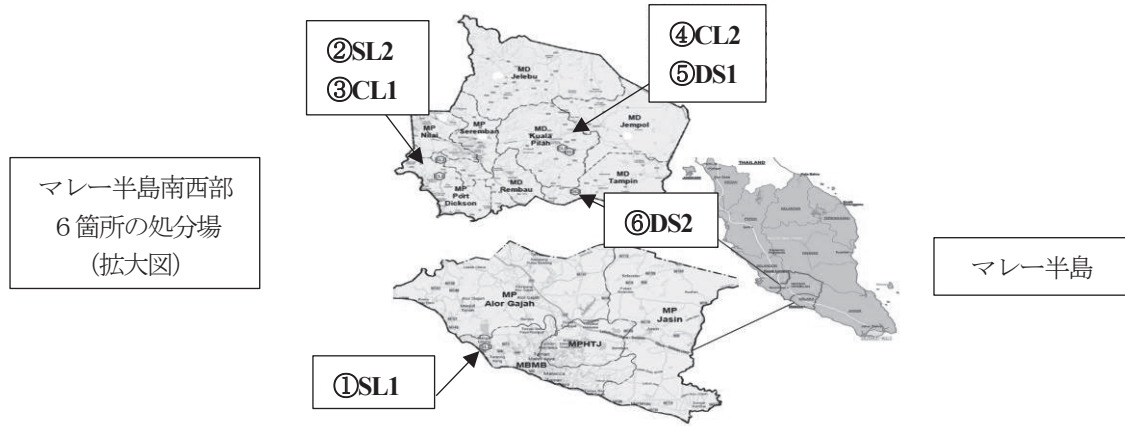


図3 浸出水サンプル採取処分場



図4 ドレイン流路からの浸出水サンプル採取



図5 浸出水が流れ込む小川から浸出水サンプル採取

2.4 分析方法

- 測定項目**
 表2に示す通りヒ素、カドミウム、銅、クロム、ニッケル、鉛、マンガン、鉄、鉛、セレンの10種類の重金属である。
- 分析装置**
 誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-OES)を用いた。
- 分析手順**
 浸出液15サンプルを米国公衆衛生協会の水と廃水の検査のための標準方法(APHA 2017⁷⁾)に従って図6の分析手順にて重金属を分析した。

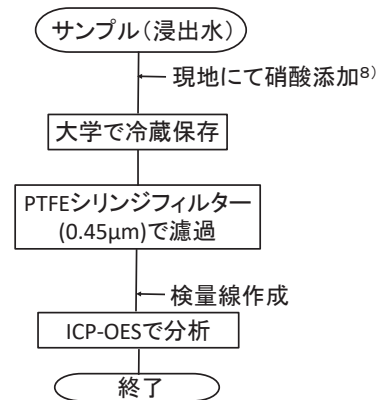


図6 分析手順

2.5 品質評価尺度(QRS)計算方法

浸出水中の重金属の汚染に関して、15 箇所の浸出水の品質評価尺度 (QRS⁹⁾) である q_i 値を次に示す (1) 式にて計算した。

$$q_i = \frac{C_i}{S_i} \times 100 \quad (1)$$

ここでは、

q_i : 品質評価尺度 (%)

C_i : 浸出水中の重金属濃度 (mg/L)

S_i : 重金属の排出許容濃度¹⁰⁾ (mg/L)

$q_i=100$ は浸出水中の重金属濃度が、排出許容濃度である事を示す。

2.6 重金属除去に適した土壌選定方法

マレーシア南西部のウルチ土壌 (赤い粘土土壌で、東南アジア、東南中国、アメリカ南部に広く分布しており、酸化鉄の蓄積により赤色、黄色である) は、鉄分が多く、褐色で判別しやすく、吸着性に優れていると考えられる。調査に使用された試料土壌は、浸出水を採取した 6 箇所の処分場のうち、ウルチ土壌があり、かつ浸出水がウルチ土壌に流れ込んでいない 4 箇所の処分場から 16 種類の土壌をサンプリングした。その内 10 種類の土壌を選定して陽イオン交換容量 (CEC)、BET 表面積、鉄、アルミニウム、マンガン分析を行った。試料土壌は過酸化水素を用いて有機物を除去するために前処理した。前処理後、土壌を風乾、粉碎した後 2mm 篩を通過させて、バッチ式試験の試料土壌とした。

土壌の As (III) 吸着能力を調べるバッチ式試験は、三角フラスコに試薬 As (III) を特定の濃度で溶解後、試料土壌を混合比 1 : 20 (土壌 : 溶液比) で投入した。往復振盪機上で三角フラスコから溶液を、0 分、10 分、20 分、40 分、60 分、90 分、120 分後に、更に平衡に近づけるため 1440 分後、サンプリングした。As (III) 濃度は、ICP-OES を用いて分析した。試料土壌による As (III) 吸着容量 q (mg/g) は、

初期 As (III) 濃度 C_0 (mg/L)、飽和 As (III) 濃度 C_{eq} (mg/L) (1440 分後の溶液中の As (III) 濃度とした)、As (III) 溶液量 V_{sol} (L) 及び投入土壌量 M_s (g) により、次に示す (2) 式にて計算した。

$$q = \frac{(C_0 - C_{eq})V_{sol}}{M_s} \quad (2)$$

3 結果と考察

3.1 浸出水分析結果、QRS 計算結果と考察

衛生型処分場、閉鎖処分場、および投棄型処分場に於ける合計 15 種類の浸出水中重金属 QRS 値を表 2 に示した。2 つの衛生型処分場浸出水 SL1、SL2 の浸出水原水中のヒ素 QRS は、143~195 であったが、処理装置により適切に処理され、出口では 16~26 と、排水許容濃度 (0.05mg/L)、及び QRS100 を下回っていた。

CL1 は、閉鎖された処分場浸出水で、浸出水の集積と処理装置が設置され閉鎖されていた。原浸出水は、ヒ素、鉄、マンガンは、許容を超えていた。空気曝気処理を行った後の放流水中のヒ素は、QRS 19 で、排水許容濃度以下であるが、鉄とマンガンは、空気曝気処理では効果は不足で排水許容濃度以上であった。

CL2 は、処理装置の設置されない投棄型処分場が、単に閉鎖された為、CL1 とは状況が異なる。閉鎖処分場から出た浸出水は、井戸にポンプで送られ放置されている。井戸及びポンプから流れ出した浸出水中のヒ素は排水許容濃度を超えて、QRS: 268、306、またマンガン、鉄、セレンに付いても、何も処理されないで地表に流れ出た CL2 は、潜在的リスクとなっていた。

2 箇所の投棄型処分場浸出水 DS1、DS2 中のヒ素 (QRS:232~787)、クロム (QRS:109~165)、マンガン (QRS:147~1577)、鉄 (QRS:174~2669)、セレン (QRS:122~1255) は、排出許容濃度を超えていた。適切な底部ライナーと浸出水集積システムが無く、管理されていない投棄型処分場では、小川に放流されていく浸出水中の多くの重金属は、排出規制濃度を超えていた。

表 2 衛生型処分場、閉鎖処分場、投棄型処分場浸出水重金属 QRS (品質評価尺度)

サンプリング点	原水/放流水	単位	ヒ素	カドミウム	銅	クロム	ニッケル	亜鉛	マンガン	鉄	鉛	セレン
衛生型処分場												
SL1	原水	%	143	20	5	73	100	5	41	18	4	68
	放流水	%	16	33	2	6	10	2	10	7	8	78
SL2	原水	%	195	27	3	45	28	5	20	48	6	761
	放流水	%	26	44	2	2	2	5	35	69	11	257
閉鎖処分場												
CL1	原水	%	252	42	6	48	33	22	488	294	14	34
	放流水	%	19	24	19	33	35	73	1802	210	8	57
CL2	原水 (井戸)	%	268	78	28	82	63	19	190	325	35	365
	原水	%	306	82	30	82	66	20	230	332	43	347
投棄型処分場												
DS1	原水	%	548	57	20	165	76	44	299	366	55	122
	原水	%	548	46	105	87	58	33	156	291	0	1255
	原水	%	787	122	28	109	61	20	59	174	39	533
DS2	原水	%	588	41	28	138	108	21	158	401	54	478
	原水	%	403	61	138	122	152	164	1577	2669	691	0
	原水	%	232	77	54	49	46	9	164	203	38	1099
	原水	%	378	78	25	51	50	8	147	284	34	404
排出許容濃度		mg/L	0.05	0.01	0.20	0.20	0.20	2.0	0.20	5.0	0.10	0.02

太字は、QRS100 以上で排出許容濃度を超えている値

3.2 バッチ式試験結果と考察

土壌による As(III) の吸着除去に必要な時間及び適切な土壌を検討するために、バッチ式吸着試験を実施した。図7は、As(III) 初期濃度 5mg/L で、As(III) の吸着に要する接触時間の影響を示す。0～120 分間では As(III) 吸着速度は大きかった。試験の初期段階における大きい吸着速度は、実験の初期における大量の吸着部位表面積の存在及び土壌表面の As(III) 濃度と溶液中の As(III) 濃度の違いによる高い推進力によるものであり、またその後、土壌表面上での As(III) の吸着による As(III) 濃度増加と溶液中 As(III) 濃度の減少による推進力の低下及び新しい吸

着表面の減少により吸着速度は徐々に遅くなり、1440 分(24 時間) 後には平衡にかなり近付いた。

また As(III) 初期濃度 50mg/L のバッチ式試験では、4 種類の試料土壌による As(III) 吸着容量(mg/g) q 値を(2) 式に As(III) 溶液量 V_{sol} (L) は 0.25、投入土壌量 M_s (g) は 12.5 及び C_{eq} に 1440 分後の As(III) 濃度を代入して計算した。その結果、4 種類の試料土壌の q 値は、それぞれ 0.31 (U 土壌) > 0.19 (L 土壌) > 0.18 (S 土壌) > 0.14 (K 土壌) となり、U 土壌が最も高い吸着容量、q 値であった。

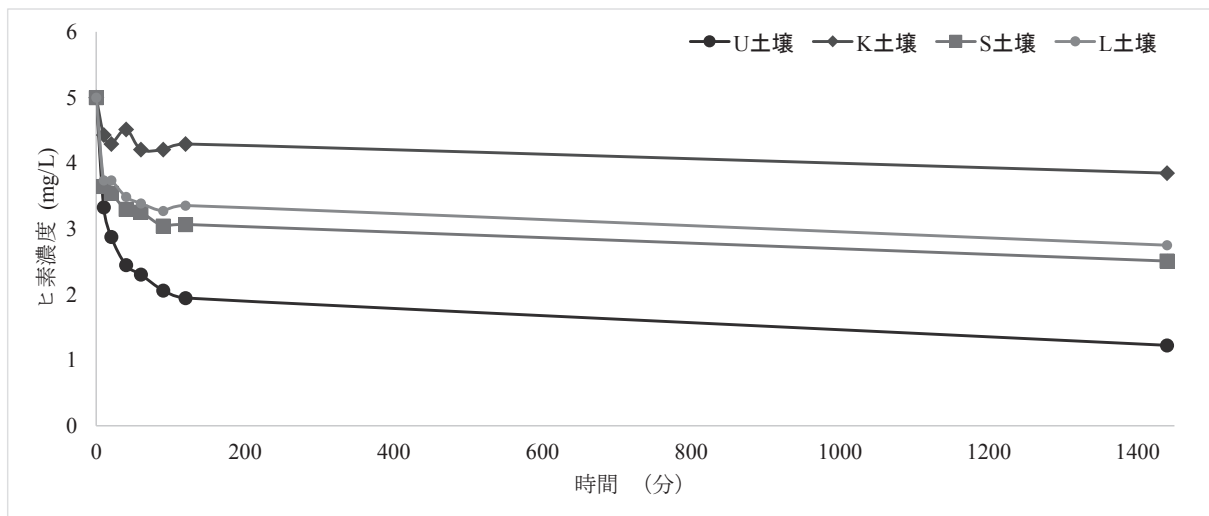


図7 バッチ試験結果
土壌によるヒ素吸着に関する接触時間の影響

4 結言

本研究でマレーシアの家庭ごみ処分場におけるいくつかの重要なデータを入手出来た。種々のタイプのごみ処分場(衛生型処分場、閉鎖型処分場、投棄型処分場)における浸出水中の重金属が、排出許容濃度を超えて存在しており、また近くの小川及び地下水に流入している可能性がある。そこで浸出水中重金属を吸着除去することにより重金属汚染の影響を減少することが出来ると考えた。

投棄型処分場及び対策を加えないで閉鎖された処分場は、衛生型処分場及び対策を加えた後閉鎖した処分場と比較すると、浸出水中重金属濃度が高く、特にヒ素、クロム、マンガン、鉄、セレンが、排出許容濃度を超えていた。特に健康被害を起こす可能性があるヒ素¹¹⁾に関して、一箇所の投棄型処分場浸出水中のヒ素濃度は、排出許容濃度の8倍、鉄は27倍、マンガンは16倍、鉛は7倍、セレンは13倍であった。

次に、浸出水中のヒ素を処分場にて吸着除去出来る可能性があり、またマレーシアに多く分布するウルチ土壌を用いたバッチ式吸着試験を実施した。その結果4箇所の

処分場内で採取した試料土壌(U土壌、L土壌、S土壌およびK土壌)中で、U土壌が最も吸着容量が高い値を示した。

天然かつ現地で入手可能な物質である処分場内のU土壌は、処分場における浸出水中の重金属、特に健康と環境に対して非常に有毒なAs(III)を吸着し、浸出水からの除去に高い性能を示した。現地のウルチ土壌を用いて、浸出水中の重金属を吸着し減少する事で、現在処分場から小川に流れ込んでいる重金属の低減を図り水質改善を図れる可能性があると考えている。

ヒ素を現地の土壌を用いて浸出水から吸着して、除去する本手法は、マレーシアをはじめ投棄型処分場が多く存在し、かつウルチ土壌が広く分布する東南アジアに幅広く適応できる可能性があると考えている。

謝辞

本研究は、公益財団法人 高橋産業経済研究財団の助成援助による研究である。

文献

- 1) Jayanthi, B., Emenike, C. U., Agamuthu, P., Simarani, K., Mohamad, S., and Fauziah, S. H. : Selected microbial diversity of contaminated landfill soil of Peninsular Malaysia and the behavior towards heavy metal exposure, *Catena*, 147, 25-31(2016)
- 2) Talalaj, I. A. : Release of heavy metals from waste into leachate in active solid waste landfill, *Environment Protection Engineering*, 41, 83-94(2015)
- 3) Yoneda, K., : Arsenic behavior in landfill leachate and well in Thailand, International Conference on Sustainability Initiatives (ICSI) 2015 in conjunction with 8th ASEAN Environmental Engineering Conference (AEEC), Kuala Lumpur, Malaysia(2015)
- 4) Yoneda, K., Yamada, K. ; Arsenic behavior in landfill leachate and well water in Thailand, Malaysia-Japan Joint International Conference (MJJIC 2016) in conjunction with 1st International Conference on Advanced Technology & Applied Sciences (ICaTAS 2016), Kuala Lumpur, Malaysia(2016)
- 5) Hussein, M., Yoneda, K. : Environmental significance of heavy metal in leachate from different types of landfill in Malaysia, 5th 3R International Scientific Conference on Material Cycles and Waste Management (3RINCs 2019), Bangkok, Thailand(2019)
- 6) Hussein, M., and Yoneda, K. : Arsenite sorption capabilities of landfill soils from Malaysia, 5th 3R International Scientific Conference on Material Cycles and Waste Management (3RINCs 2019), Bangkok, Thailand(2019)
- 7) APHA (2017) Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater. 23rd Edition, American Public Health Association/American Water Works Association/Water Environment Federation, Washington DC, 276-282(2017)
- 8) Anderson, J. U. : An Improved Pretreatment for Mineralogical Analysis of Samples Containing Organic Matter, *Clays and Clay Minerals*, 10, 380-388(1961)
- 9) Ramakrishnaiah, C. R., Sadashivaiah, C., & Ranganna, G. : Assessment of water quality index for the groundwater in Tumkur taluk, Karnataka state, India. *E-Journal of Chemistry*, 6, 523-530(2009)
- 10) EQA, Environmental Quality (Control of pollution from solid waste transfer station and landfill) Regulation. Department of Environment Malaysia (2005)
- 11) 姫野誠一郎：ヒトにおけるヒ素の多様な整体影響、*地球環境*、22、81-90(2017)