

# 完全混合槽列モデルを用いたライシメータ浸透水の水質挙動解析\*

武 下 俊 宏\*\*  
 村 田 真 理\*\*  
 樋 口 壯 太 郎\*\*  
 三 井 清 志\*\*\*

## Kinetic Analysis on Eluviation Property of Solutes in Lysimeter Leachate Applying Tank-in-series Model

Toshihiro TAKESHITA\*\*, Mari MURATA\*\*, Sotaro HIGUCHI\*\* and Kiyoshi MITSUI\*\*\*

A kinetic analysis based on a tank-in-series model was adapted to the evaluation of lysimeter leachate. Experiments were carried out on two lysimeters; one was filled with the mixture of industrial inorganic waste materials, the other was filled with the mixture in which sludge was modified with cement. The analyzed results demonstrated that the residence time distribution (RTD) function based on the tank-in-series model with impulse input depicted the time course of concentrations of chlorine, COD and T-N in the leachate. Moreover, the comparative evaluation of parameters in the RTD function obtained for the two lysimeters described that the modification of sludge with cement in the mixture of wastes decreased the mean residence time and elution amount of solutes. As the RTD functions obtained for the solutes in two lysimeters were well traced over the experimental data, the functions were adopted to the prediction for the future elution of solutes in the leachate.

*Key Words* : Impulse response, Leachate, Regression analysis, Residence time distribution function, Tank-in-series model

### 1. はじめに

最終処分場における埋立廃棄物の安定化には、廃棄物層の内部環境、気液固相の接触条件等が複雑に関わっている。特に、廃棄物層に浸透する雨水による汚濁物質の洗い出しは廃棄物安定化への効果が大きく、発生する浸出水水質の経時的変化の把握は埋立廃棄物の安定化、浸出水の水質管理、浸出水処理プラントの処理能力設計等に重要である。また、近年は廃棄物を焼却処理して埋立処分される傾向にあるため、最終処分場では焼却残渣のような無機物主体の埋立廃棄物から水溶性の無機塩類が高濃度に溶出するため、浸出水処理施設や処理水放流域周辺等において高塩障害が生じている。これらの対策と

して、高濃度の無機塩類の溶出を抑制する埋立廃棄物の積み増し方法や廃棄物の固化改良方法等が種々検討されている。埋立廃棄物層内の水分移動、溶質成分移動に関してはこれまでも物質収支や物質拡散に関する理論に基づく多くの研究がなされている<sup>1)</sup>。その中で、簡易な浸出水水質の解析には指数関数近似法が用いられるが、本方法では評価が十分行えない水質項目も多く存在する。一方、前田ら<sup>2)</sup>は、圃場のプレファレンシャルフロー（水みちや不透水領域等の発達による不均一な水や溶質の移動）が重金属や硝酸態窒素の溶脱に与える影響を解析しており、非反応性トレーサーとして臭素を土壌表面に施用した実験により土壌のプレファレンシャルフローの存在を明らかにしている。さらに圃場容水量に対する可動

\* 平成 24 年 11 月 26 日受付

\*\* 福岡大学産学官連携研究機関 資源循環・環境制御システム研究所

\*\*\* ひびき灘開発株式会社

水の割合を考慮して土壌の連続槽列改変モデルを適用することで、土壌のプレファレンシャルフローを数値で表せることを示している。埋立廃棄物の粒度構成は複雑であり、雨水浸透による浸透水の発生においてもプレファレンシャルフローに類似する現象が指摘されており、完全混合槽列モデル解析の適用により、埋立廃棄物の浸透水がマトリックスフロー（均一な水や溶質の移動）に加えてプレファレンシャルフローの影響を受ける場合の溶出特性を数値で表現できる可能性がある。そこで、埋立廃棄物から生じる浸透水の水質解析に完全混合槽列モデルを適用し、雨水流入による廃棄物槽内の混合特性と可溶性成分の溶出特性を数値で表現可能かライシメータ実験結果を用いて解析した。

2. 研究目的

本研究の目的は、化学反応装置の混合特性を解析する手法の一つである完全混合槽列モデルのインパルス応答を廃棄物を充填したライシメータの溶出特性解析に応用し、廃棄物層の混合特性把握、可溶性成分の溶出特性把握、浸透水水質の変化を表す近似式の導出、浸透水水質の将来予測等に利用可能か検討することである。さらに、ここで得られた近似式のパラメータを用いて溶出成分の廃棄物層内における混合拡散特性を比較することで、埋立廃棄物の改良効果を評価可能か検討することである。

3. 研究方法

3.1. 完全混合槽列モデルの理論

完全混合槽列モデルの概念図を図1に示す。完全混合槽列モデルは、流通反応器における二つの理想流れ（完全混合流れと押出流れ）の中間に位置する非理想流れを、図1に示す様な同じ容量Vの完全混合槽が複数個直列に配置された中を流体が一方方向に流れると仮定し、その槽数Nを用いて反応器内の混合状態を評価するものである<sup>3,4)</sup>。この反応装置に一定流速vの流体を流しておき、ある時刻t=0にトレーサーを最初の槽に注入する。このときの最初の槽のt=0におけるトレーサー濃度をCとする。トレーサー注入と同時にN番目の槽の出口のトレーサー濃度C<sub>L</sub>(t)のモニタリングを開始する。このとき、最初の槽へのトレーサーの注入（インパルス入力）

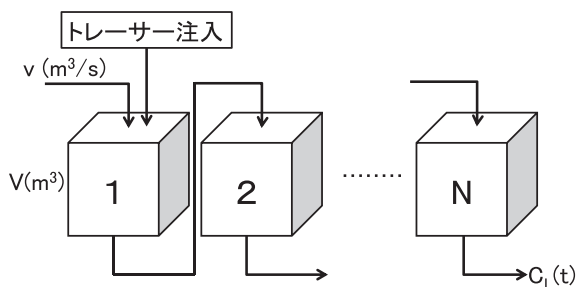


図1 完全混合槽列モデルの概念図

に対し、N番目の槽の出口のトレーサー濃度の経時変化C<sub>L</sub>(t)（インパルス応答曲線）が得られる。図1に示す槽列の滞留時間分布関数は、時間tとそのときの濃度C<sub>L</sub>(t)を規格化した無次元時間θと無次元濃度E(θ)を用いて(1)式で表される。

$$E(\theta) = \frac{N(N\theta)^{N-1}}{(N-1)!} e^{-N\theta} \quad (N \geq 1) \tag{1}$$

(1)式において特にN=1の場合は(2)式で表記される。

$$E(\theta) = e^{-\theta} \quad (N = 1) \tag{2}$$

ここで、E(θ)とC<sub>L</sub>(t)、θとtの関係はそれぞれ(3)式、(4)式で表される。

$$E(\theta) = t_m E(t) = t_m \frac{C_L(t)}{C} \tag{3}$$

$$\theta = t/t_m \tag{4}$$

ただし、(3)式中のE(t)、Cはそれぞれ(5)式、(6)式で表される。

$$E(t) = \frac{C_L(t)}{C} \tag{5}$$

$$C = \int_0^\infty C_L(t) dt \tag{6}$$

t<sub>m</sub>は平均滞留時間であり、槽数N、槽の容量V、流速vを用いてt<sub>m</sub> = NV/vで算出される。CはN番目の槽の出口のトレーサー濃度C<sub>L</sub>(t)の時間積分値で、これは最初の槽のt=0におけるトレーサー濃度に等しい。ここで、Nは槽数なので実際には1以上の自然数をとるが、解析においてはΓ関数を導入して(1)式の分母の階乗項(N-1)!をΓ(N)に変更した(7)式を用い、Nを1以上の実数に拡張して取り扱うこととした。

$$E(\theta) = \frac{N(N\theta)^{N-1}}{\Gamma(N)} e^{-N\theta} \quad (N \geq 1) \tag{7}$$

また、(7)式において、槽数Nを変化させてθとE(θ)の関係を計算した結果を図2に示す。完全混合流れ(N=1)の場合の滞留時間分布関数は(2)式で表されるが、非理想流れ(1 < N < ∞)の場合は(7)式で表され、ピークを有するポアソン分布状の曲線となる。この曲線のピーク座標は以下のように表される。

$$(\theta, E(\theta)) = \left( \frac{N-1}{N}, \frac{N(N-1)^{N-1}}{\Gamma(N)} e^{-(N-1)} \right)$$

二つの理想流れにおいて、完全混合流れはN=1、押出流れはN→∞で表される。しかし、非理想流れである中間の流れは1 < N < ∞にあり、Nの値が1に近いほど完全混合流れよりに偏倚しており、逆にNの値が大きくなるほど押出流れよりに偏倚していると評価される。

完全混合槽列モデルのインパルス応答解析によりN

の値が得られた場合、さらに分散 $\rho^2$ の値を(8)式により求めることができる。

$$\rho^2 = \frac{1}{N} \quad (8)$$

これは、もう一つの解析モデルである混合拡散モデルの分散数 $D/(\mu L)$ と(9)式の関係にある。

$$\rho^2 = t_m^2 \left[ 2 \frac{D}{\mu L} - 2 \left( \frac{D}{\mu L} \right)^2 (1 - e^{-\frac{\mu L}{D}}) \right] \quad (9)$$

ここで、反応装置の管内流速 $\mu$ と管長さ $L$ がわかれば軸方向分散係数 $D$ を(9)式から求めることができる。さらに、分散数の逆数はペクレ数( $Pe = \mu L / D$ )であり、この値が高ければ対流項が混合において支配的、低ければ拡散項が混合において支配的と評価される。なお、混合拡散モデルでは反応装置の管長さ方向の距離 $z$ における微小区間の物質収支から(10)式を導き、この偏微分方程式の解にインパルス入力と境界条件を与えて(11)式の滞留時間分布関数 $E(\theta)$ を得る。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial z} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (10)$$

$$E(\theta) = \frac{1}{\sqrt{4\pi(D/uL)}} \exp \left[ -\frac{(1-\theta)^2}{4(D/uL)} \right] \quad (11)$$

混合拡散モデルでは、反応装置内の流体の混合状態を、パラメータ $(D/\mu L)$ を用いて表し、押出流れ( $D/\mu L \rightarrow 0$ )と完全混合流れ( $D/\mu L \rightarrow \infty$ )の理想流れの中間に位置する非理想流れの混合状態を評価する。なお、混合拡散モデルの滞留時間分布関数 $E(\theta)$ は、正規分布状の曲線を示す。

### 3.2. データ解析

本研究では、廃棄物を充填したライシメータを化学反応装置、廃棄物に含まれる可溶性溶出成分をトレーサー、廃棄物のライシメータへの充填をインパルス入力とみなし、化学反応装置の混合拡散特性を表す完全混合槽列モデルによりライシメータ浸透水水質の解析を行う。さらに解析の条件として、雨水にはトレーサーと同種の物質が含まれていない、廃棄物の保有水容量を超えたときに浸透水が発生する、廃棄物層の保有水量や可動水量はその割合が変化しない、と仮定した。

ライシメータ実験により得られた浸透水中の着目成分のデータを、横軸に時間 $t$ 、縦軸に濃度 $C_L(t)$ をとって経時変化を示すグラフを作成し、得られたグラフを元にさらに無次元時間 $\theta$ と無次元濃度 $E(\theta)$ に変換したグラフを作成する。無次元時間と無次元濃度に変換したグラフと図2に示した $E(\theta)$ 曲線とを重ね合わせ、実験データと $E(\theta)$ 曲線が最も合致する $N$ の値を図2から求める。 $N$ 値を決定した後は、 $E(\theta)$ 曲線から実際の実験デー

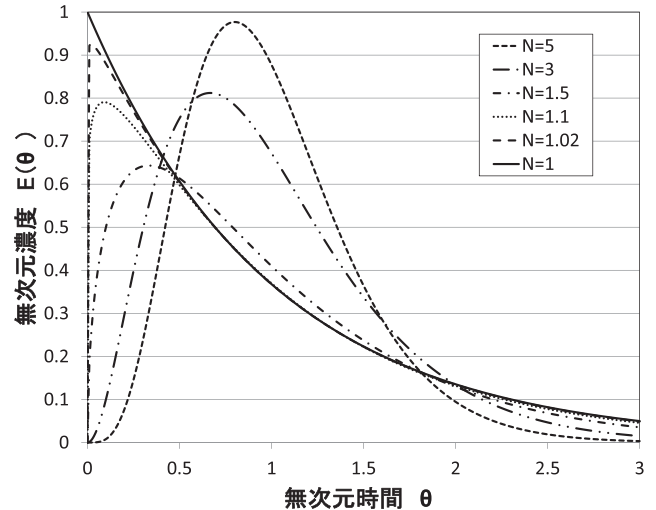


図2 無次元化後の滞留時間分布曲線

タを示す $C_L(t)$ 曲線へ変換し、データの近似曲線を得る。

今回は実験データと図2の $E(\theta)$ 曲線との照合は省略し、代わりに表計算ソフト(エクセル2010)の回帰解析機能(ソルバー機能)を用い、ダミーのパラメータを設定して実験データと完全混合槽列モデルのインパルス応答関数(7)式から、最小二乗法により3つのパラメータ( $C, N, t_m$ )を決定した。

### 3.3. ライシメータ実験

#### 3.3.1. ライシメータの構造

図3に今回解析に使用したライシメータの構造と集水設備についての概略図を示す。廃棄物は四角錐台を逆さにして重ね合わせた上段下段の二層構造になっており、上段は上面 $7m \times 7m$ 、下面 $5m \times 5m$ 、層厚 $2m$ の容積に廃棄物が充填されている。下段は上面 $12m \times 12m$ 、下面 $10m \times 10m$ 、層厚 $2m$ (下面周囲)、 $2.5m$ (下面中心)の容積に廃棄物が充填されている。集水設備は下段下面中心部に浸出水導水管が埋設されている。同型のライシメータ2基を造成し、次に述べる組成の改良前廃棄物と

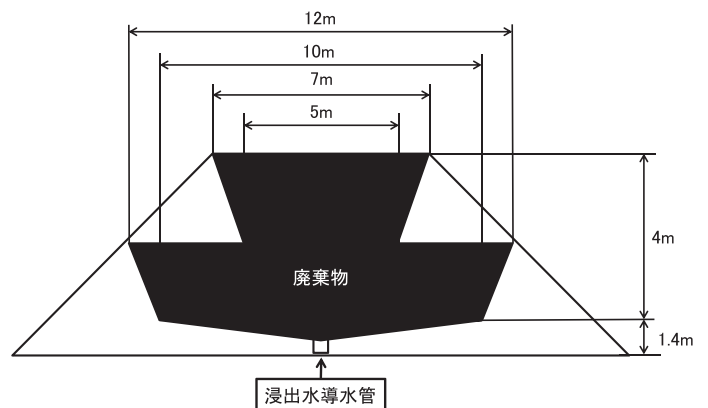


図3 ライシメータの構造と採水位置

表 1 充填廃棄物の組成

廃棄物	埋立重量比(%)	
	No.1	No.2
改良汚泥	35	-
汚泥	-	35
鉱さい	37	
ガラス陶磁器	11	
燃え殻	5	
煤塵	6	
政令第13号	6	
合計	100	

改良後廃棄物をそれぞれ充填した。

### 3.3.2. 充填廃棄物の組成

盛土に充填した廃棄物の組成を表1に示す。産業廃棄物の無機汚泥（以後、汚泥と略記する）をそのまま用いて他の廃棄物と混合した改良前廃棄物と、セメント系固化材（一般軟弱土用）を汚泥に200kg/m<sup>3</sup>の割合で添加し、重機で混合した改良汚泥を他の廃棄物と混合した改良後廃棄物の2種類を準備し使用した。

## 4. 実験結果と考察

実験結果の解析は、浸出水処理において問題となる3成分（塩素、COD、T-N）を選定し、改良前廃棄物と改良後廃棄物の双方の浸透水について行った。

### 4.1. 塩素濃度の溶出特性解析

図4にライシメータ浸透水に含まれる塩素濃度の経時変化を示す。左図に改良前廃棄物、右図に改良後廃棄物の実験結果を示す。また、表2に実験データを基に完全

混合槽列モデルのインパルス応答関数を用いて求めた3つのパラメータの解析結果を示す。解析の結果、改良後廃棄物では改良前廃棄物より平均滞留時間  $t_m$  が107日（約16%）減少し、改良後廃棄物で浸透水がより速やかに排水されていることが確認された。次に、積分濃度  $C$  を比較すると、改良後廃棄物では改良前廃棄物より  $38 \times 10^6 \text{ mg/L}$ （約71%）減少し、改良後廃棄物では塩素の溶出が大幅に抑制されていることが確認された。最後に槽数  $N$  を比較すると、改良後廃棄物では改良前廃棄物より値が増加する結果を得た。槽数  $N$  の増加は、理論的にはより小さな容積内で完全混合が行われると解釈でき、物質の混合拡散がより制限された範囲内で生じていることを意味している。よって、改良後廃棄物では廃棄物層内での塩素の混合拡散が抑制されていることが確認された。

次に、3つのパラメータを完全混合槽列モデルのインパルス応答関数に代入し、得られた近似曲線を図4の実

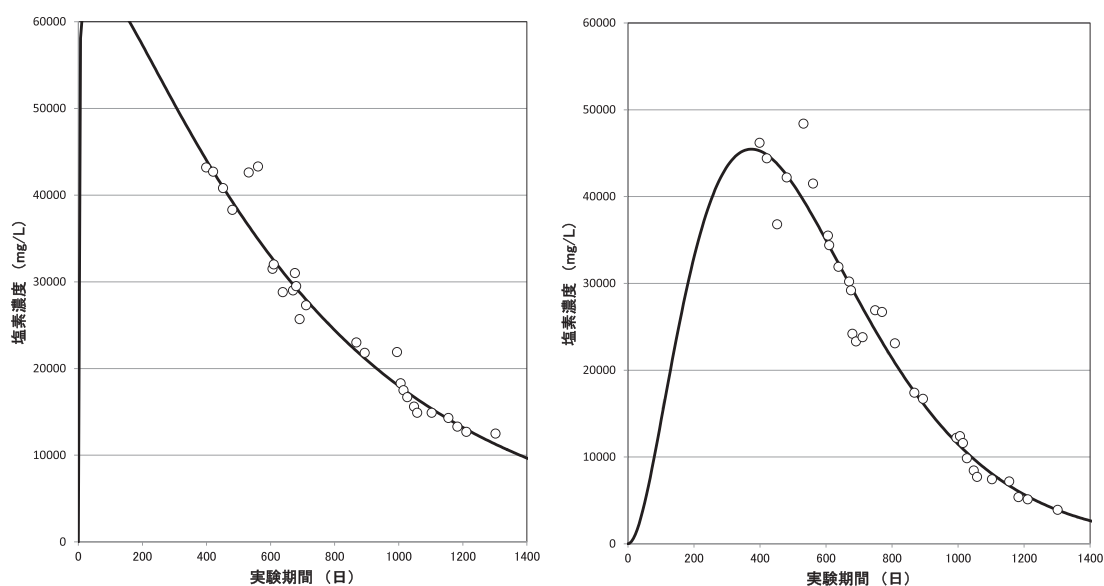


図4 塩素濃度の測定結果と完全混合槽列モデル解析による近似曲線  
左；改良前廃棄物，右；改良後廃棄物

表2 塩素の解析結果

パラメータ	改良前廃棄物	改良後廃棄物
平均滞留時間 (tm)	669	562
積分濃度 (C)	$53.9 \times 10^6$	$15.8 \times 10^6$
槽数 (N)	1.09	3.00

験データに重ねて実線で示した。図4に示す様に、得られた近似曲線は実験結果をよく再現していたため、浸出水中塩素の水質将来予測に利用できると判断した。また、得られた近似曲線から、塩素のピーク濃度は改良前廃棄物で高くなるが、1400日目の濃度を両図で比較すると、改良後廃棄物では早期に浸透水の塩素濃度が低下することが確認された。

4.2. COD濃度の溶出特性解析

図5にライシメータ浸出水中に含まれるCOD濃度の経時変化を示す。左図に改良前廃棄物、右図に改良後廃棄物の実験結果を示す。また、表3に実験データを基に完全混合槽列モデルのインパルス応答関数を用いて求めた3つのパラメータの解析結果を示す。平均滞留時間  $t_m$  をみると、改良後廃棄物では改良前廃棄物より544日(約56%)と大幅に減少し、改良後廃棄物では浸透水がより速やかに排水されていることが確認された。次に、積分

濃度 C を比較すると、改良後廃棄物では改良前廃棄物より  $0.29 \times 10^6 \text{ mg/L}$  (約21%)減少し、廃棄物の改良のためにセメントを添加したにもかかわらず、改良後廃棄物ではCOD成分の溶出が抑制されていることが確認された。最後に槽数 N を比較すると、改良後廃棄物では改良前廃棄物より値が増加する結果を得た。これより、改良後廃棄物では廃棄物層内のCOD成分の混合拡散が僅かに抑制されていることが確認された。

次に、得られた3つのパラメータを完全混合槽列モデルのインパルス応答関数に代入し、得られた近似曲線を図5の実験結果に重ねて実線で示した。図5に示す様に、得られた近似曲線は実験結果をよく再現していたため、浸出水中のCOD成分の水質将来予測に利用できると判断した。また、得られた近似曲線から、CODのピーク濃度は改良後廃棄物で高くなる傾向を示したが、1400日目の濃度を両図で比較すると、改良後廃棄物では早期

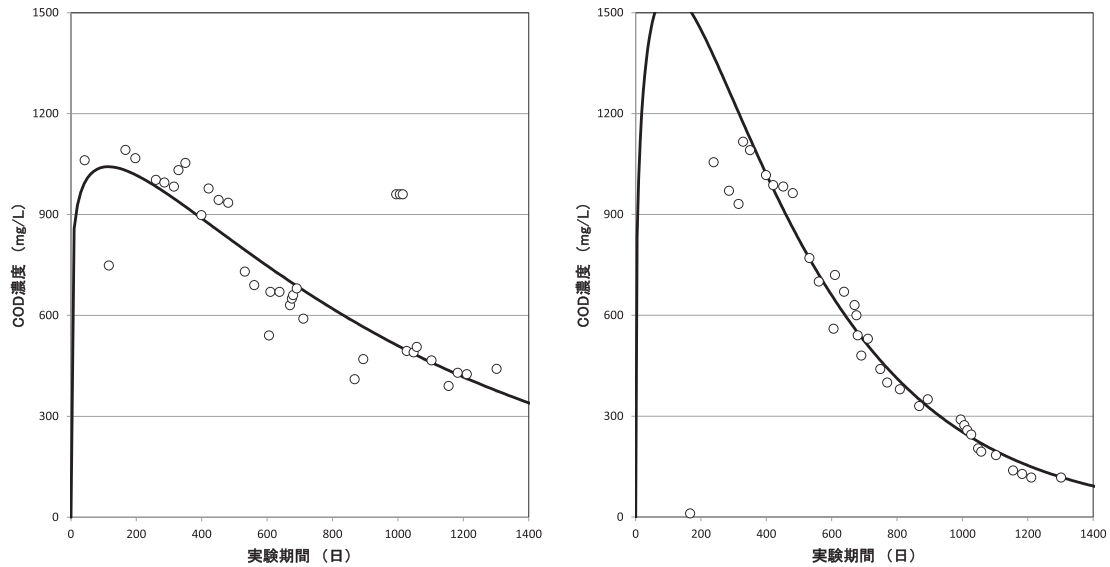


図5 COD濃度の測定結果と完全混合槽列モデル解析による近似曲線  
左図；改良前廃棄物、右図；改良後廃棄物

表3 CODの解析結果

パラメータ	改良前廃棄物	改良後廃棄物
平均滞留時間 (tm)	1010	466
積分濃度 (C)	$1.37 \times 10^6$	$1.08 \times 10^6$
槽数 (N)	1.13	1.29

に COD 濃度が低下することが確認された。

### 4.3. T-N 濃度の溶出特性解析

図6にライシメータ浸出水に含まれる T-N 濃度の経時変化を示す。左図に改良前廃棄物、右図に改良後廃棄物の実験結果を示す。また、表4には本データを基に完全混合槽列モデルのインパルス応答関数を用いて求めた3つのパラメータの解析結果を示す。まず、平均滞留時間を比較すると、改良後廃棄物では改良前廃棄物より250日(約22%)減少しており、改良後廃棄物では浸透水がより速やかに排水されていることが確認された。次に、積分濃度Cを比較すると改良後廃棄物では改良前廃棄物より  $133 \times 10^3 \text{ mg/L}$  (約47%)減少しており、改良後廃棄物では T-N 成分の溶出が抑制されていることが確認された。最後に槽数Nを比較すると、改良後廃棄物では改良前廃棄物より値が増加する結果を得た。よって、改良後廃棄物では廃棄物層内の T-N 成分の混合拡散が抑制されていることが確認された。

次に、得られた3つのパラメータを完全混合槽列モデルのインパルス応答関数に代入し、得られた近似曲線を図6の実験データに重ねて実線で示した。T-Nの実験データはばらつきの大いデータであったが、得られた近似曲線は実験開始時からの実験結果をよく再現していたことから、浸出水中の T-N 成分の水質将来予測に利用

できると判断した。また、図6の近似曲線が示す1400日時点での T-N 濃度を比較すると、改良後廃棄物では明らかに改良前廃棄物より T-N 濃度が低くなっており、改良後廃棄物では T-N 濃度が早期に低下することが示された。一般的に、焼却残渣等を充填したライシメータ浸透水の T-N の溶出特性は、図6に示す様な緩やかなピークが出現するデータが得られる傾向にある。これまで、T-N のデータ解析にはピーク以降の期間の実験データを用いた指数関数近似を試みてきた。しかし、T-N の溶出特性を十分再現できる近似式と近似曲線は指数関数近似では得られなかった。しかし今回、完全混合槽列モデルによる近似式の導出を試みたところ、図6に示す様に、実験データ全体を再現する近似曲線を得ることが可能となった。

### 5. 結論

完全混合槽列モデルのインパルス応答関数を用い、廃棄物浸透水の水質挙動解析を行った。本モデルを用いてライシメータ実験で得られたデータを解析し、廃棄物の改良効果を3つのパラメータ(積分濃度; C, 槽数; N, 平均滞留時間;  $t_m$ )を用いて評価したところ、塩素, COD, T-N の各溶出成分について改良効果を確認することができた。また、3成分について得られたパラメータ

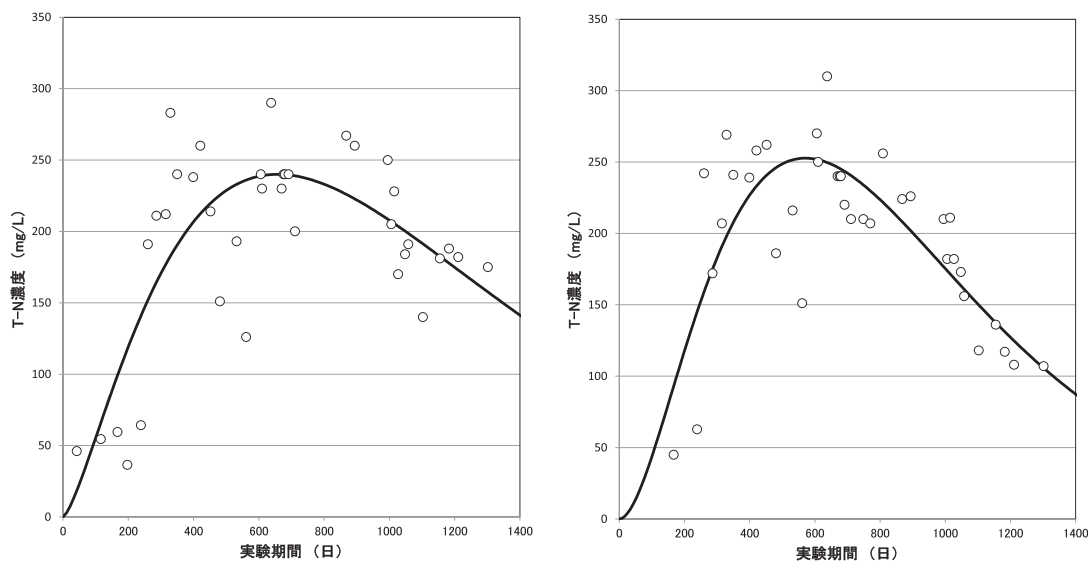


図6 T-N 濃度の測定結果と完全混合槽列モデル解析による近似曲線  
左図; 改良前廃棄物, 右図; 改良後廃棄物

表4 T-N の解析結果

パラメータ	改良前廃棄物	改良後廃棄物
平均滞留時間( $t_m$ )	1120	870
積分濃度(C)	$281 \times 10^3$	$148 \times 10^3$
槽数(N)	2.42	2.91

を用いて近似式を導出したところ、実験データをよく再現できる近似曲線が得られたため、導出した近似式を水質の将来予測に利用できると判断した。

今回行ったモデル解析は、ライシメータ内部の液停滞部（死空間）やバイパス流れ部（ショートカット流）等について特別な考慮をすることなく行った浸透水の水質解析である。今後はこれらの要素を考慮した浸透水の解析の他、埋立廃棄物の積み増し時の浸透水水質解析、埋立廃棄物の固化改良等の評価、廃棄物安定化評価、廃棄物層への外乱による内部攪乱の影響評価等に本解析方法を応用する予定である。

#### 引用文献

- 1) 環境安全な廃棄物埋立処分場の建設と管理 田中信壽 技報堂出版 (2000) 187-222.
- 2) Maeda M., Bergstrom L.F, Leaching patterns of heavy metals and nitrogen evaluated with a modified tanks-in-series model, *Journal of Contaminant Hydrology*, 43 (2), 165-185 (2000).
- 3) 改訂版 反応工学 橋本健治著 培風館 (1993) 179-205.
- 4) 化学工学便覧 化学工学会編 改訂六版 流通反応装置の流体混合 (1999) 210-217.