

原著

最終処分場浸出水中の1,4-ジオキサンの挙動

志水信弘・平川周作・鳥羽峰樹・池浦太荘・桜木建治・大久保彰人

福岡県内の最終処分場浸出水を対象として、1,4-ジオキサン濃度を測定し、その挙動や変動要因を検討した。その結果、建設廃棄物主体の処分場 L1 の浸出水 W1 の 1,4-ジオキサン濃度は、梅雨後から上昇し、秋に最高濃度に達した後、冬に最低濃度となった。また、廃プラスチック主体とする処分場 L2 の浸出水 W2 の 1,4-ジオキサン濃度は、ほぼ一定していた。

1,4-ジオキサンとその他の水質項目値の相関関係を検討した結果、W1 の 1,4-ジオキサンの挙動は、可溶性成分、有機物及びその生物分解に係る項目と類似しており、降雨の浸透と浸出などの地下水水文学的な要素が原因と考えられた。また、建設廃棄物を主体とする L1 の浸出水 W1 から 1,4-ジオキサンが検出されたことから、建設廃棄物も排出源となる可能性が示唆された。

[キーワード：1,4-ジオキサン、最終処分場、浸出水、建設廃棄物、廃プラスチック]

1 はじめに

1,4-ジオキサンは、国際ガン研究機関ではヒトに対して発がん性を示す可能性がある物質に分類されている化学物質である。最終処分場の浸出水等からは、1,4-ジオキサンが検出されることが多く^{1),2)}、平成 25 年には最終処分場の維持管理基準（浸透水：0.05 mg/L 以下、放流水：0.5 mg/L 以下）に加えられた。そのため、浸出水等の 1,4-ジオキサン濃度を監視する必要性が生じている。一方、1,4-ジオキサン濃度の季節変動のように年間を通じた継続的な検討事例は少なく、どのような調査時期が適切か不明である。

そこで、県内の処分場跡地の浸出水を対象として 1,4-ジオキサン濃度を毎月測定し、その挙動や変動要因を検討した。

2 研究方法

2・1 試薬

試薬は、特に断りがない限り特級試薬（和光純薬工業(株)製）を使用した。メタノールは、残留農薬分析用試薬（和光純薬工業(株)製）を使用した。

2・2 対象施設及び試料

対象施設は、埋立終了後十年以上経過している埋立物の異なる県内の安定型処分場跡地 2 か所（L1 及び L2）とした。L1 及び L2 の埋立物及び浸出水の概要模式図を図 1 に示す。L1 は、主な埋立物が建設廃棄物であり、

浸出水（以降 W1 とする。）を対象とした。L2 は、主な埋立物が廃プラスチックであり、浸出水（以降 W2 とする。）を対象とした。

調査期間は、平成 24 年 5 月から平成 26 年 3 月まで毎月 1 回（計 23 回）、フラン瓶に採水し、実験室に持ち帰った。

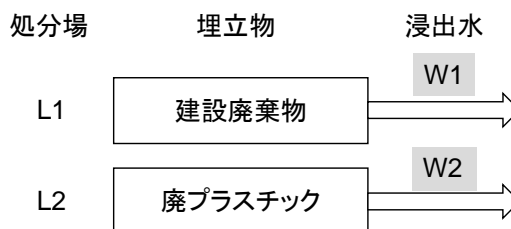


図 1 対象処分場の埋立物及び浸出水の概要

2・3 分析方法及び使用機器

試料水は、採水時に水温、溶存酸素量（以下 DO とする。）及び酸化還元電位（以下 Eh とする。）をマルチ水質計（東亜 DKK(株)製、MM-60R）により測定した。

実験室に持ち帰った試料水は、pH、電気伝導度（以下 EC とする。）、全有機体炭素（以下 TOC とする。）、1,4-ジオキサン濃度、イオン成分濃度（Na⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻、HCO₃⁻、CO₃²⁻）を測定した。

JIS K0102 に従い、pH を pH 計（東亜 DKK(株)製、HM-5S）により、EC を EC 計（東亜 DKK(株)製、CM-40S）により測定した。

1,4-ジオキサン濃度は、志水らの方法³⁾に従い、ヘッドスペース GC/MS（梶島津製作所製、GCMS-TQ8030）を使用し測定した。TOC は、JIS K0102 に従い全有機体

炭素計（梶島津製作所製、TOC-V_{CSH}）により測定した。

イオン成分のうち Na⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻は、イオンクロマトグラフ（日本ダイオネクス㈱製、ICS-1100）を使用し、測定した。HCO₃⁻、CO₃²⁻は、環境省自然環境局鉱泉分析法指針に従い、分離滴定法により測定した。

3 結果及び考察

3・1 1,4-ジオキサン濃度の経月変化

最終処分場浸出水における 1,4-ジオキサンの挙動を明らかにするため、平成 24 年 5 月から平成 26 年 3 月まで継続的に測定を行った。

建設廃棄物を主体とする L1 の浸出水 W1 の測定結果を図 2 に示す。平成 24 年度の W1 の 1,4-ジオキサン濃度は、5 月 (0.027 mg/L) から 6 月 (0.010 mg/L) にかけて一旦低下した後、上昇を始め、9 月に最高濃度 (0.043 mg/L) に達した。その後低下し、2 月に最低濃度 (0.003 mg/L) となった。また、W1 の平成 25 年度の調査についてもほぼ同様な経月変化をしており、5 月から 6 月にかけて低

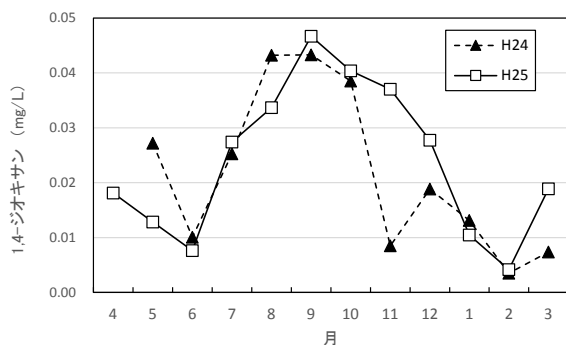


図 2 W1 の 1,4-ジオキサン濃度の経月変化

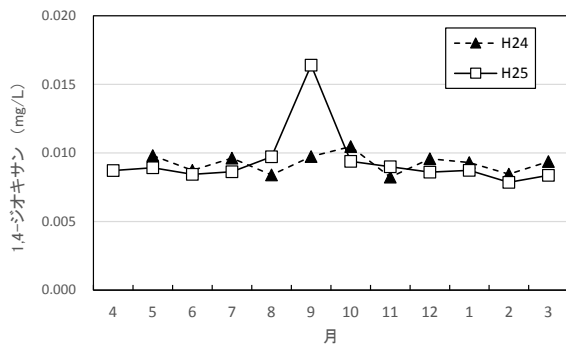


図 3 W2 の 1,4-ジオキサン濃度の経月変化

下し、その後、上昇を始め、9 月に最高濃度に達した。その後、低下を始め、2 月に最低濃度となった。このように W1 では 1,4-ジオキサン濃度が季節的な変動をし、その変動幅は両年度とも最高濃度が最低濃度の約 10 倍と大きく変化していた。

一方、廃プラスチックを主体とする L2 の浸出水 W2 の測定結果を図 3 に示す。W2 では、平成 25 年 9 月に 0.016 mg/L と一過的に濃度が上昇したが、それ以外は年間を通じて約 0.009 mg/L で推移しており、季節的な濃度変化が少なく、W1 の挙動とは大きく異なっていた。また、W2 の一過的な濃度上昇の原因は特定できなかった。

以上のように浸出水中の 1,4-ジオキサンの挙動は、処分場ごとに大きく異なり、その監視にはそれぞれの処分場の 1,4-ジオキサンの挙動を考慮し、調査時期等を注意する必要があると考えられた。

3・2 1,4-ジオキサン濃度と水質項目との関連性および変動要因の推定

坂本らは、浸出水中の 1,4-ジオキサン濃度が降雨直後に低下し、その後元の濃度に回復する事例を報告している⁴⁾。しかし、今回の結果では W1 では梅雨後数か月して大幅に 1,4-ジオキサン濃度が上昇する場合や W2 のように変動がほぼない場合もあり、報告とは挙動が異なっていた。そこで、これらの挙動の違いや変動の要因を推定するため、W1 の 1,4-ジオキサンとその他の水質項目の測定値とのピアソンの積率相関係数を計算した。相関係数は、W1 の各月の 1,4-ジオキサン濃度と各水質項目値との間で求め、その結果を表 1 に示す。

W1 の 1,4-ジオキサン濃度については、TOC、Na⁺、Mg²⁺、Cl⁻、HCO₃⁻及び EC と正の強い相関関係 (r>0.7) を示し、DO と負の強い相関関係 (r<-0.7) を示した。次に詳しく検討するため、1,4-ジオキサン濃度と相関関係のある各項目の測定値の経月変化をグラフとして図 4-9 に示した。

W1 の正の強い相関関係のあった項目の例として、TOC と 1,4-ジオキサンの経月変化について平成 24 年度の結果を図 4 に、平成 25 年度の結果を図 5 に示した。1,4-ジオキサンの変化は、TOC やその他の項目 (Na⁺、Mg²⁺、Cl⁻、HCO₃⁻及び EC) のものと類似していた。可溶性成分である TOC、Na⁺及び Cl⁻は、降雨の埋立層への浸透に伴

表 1 W1 の 1,4-ジオキサン濃度と各水質項目の測定値との相関係数 (r)

Sample	TOC	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻	CO ₃ ²⁻	Temp.	pH	DO	EC	Eh
W1	0.90	0.92	0.41	0.71	0.43	0.97	-0.20	0.77	-0.41	0.61	-0.58	-0.70	0.80	-0.19

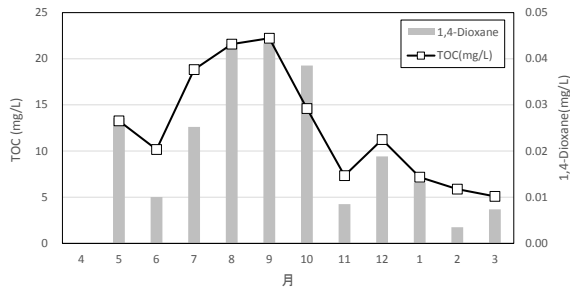


図4 W1のTOCと1,4-ジオキサンの経月変化
(平成24年度)

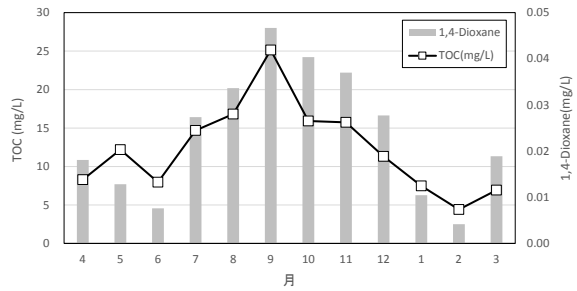


図5 W1のTOCと1,4-ジオキサンの経月変化
(平成25年度)

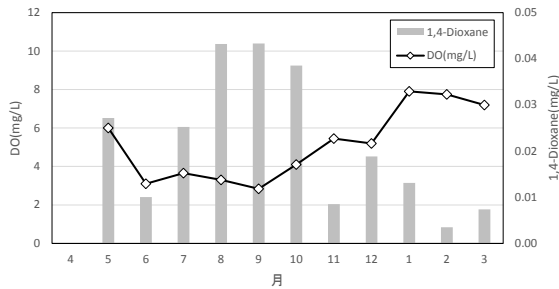


図6 W1のDOと1,4-ジオキサンの経月変化
(平成24年度)

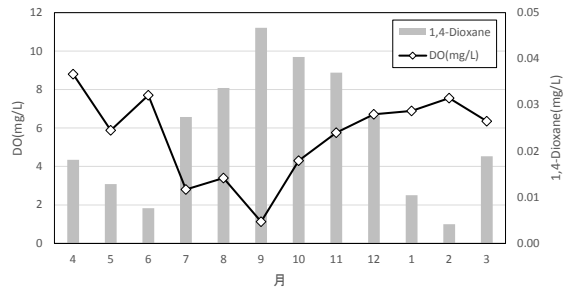


図7 W1のDOと1,4-ジオキサンの経月変化
(平成25年度)

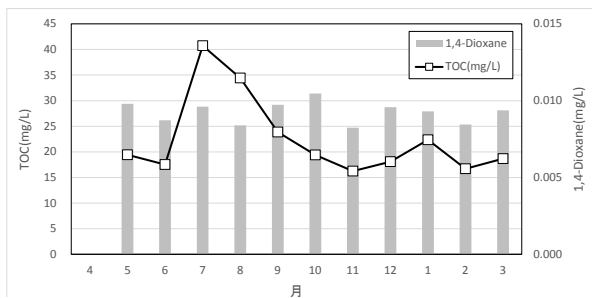


図8 W2のTOCと1,4-ジオキサンの経月変化
(平成24年度)

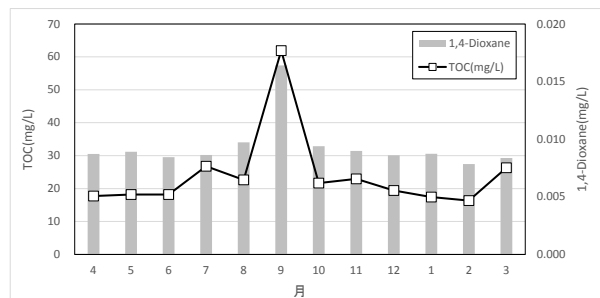


図9 W2のTOCと1,4-ジオキサンの経月変化
(平成25年度)

い廃棄物から溶出し、秋期に濃度が上昇したと考えられた。一方、冬期には降雨量の低下とともにこれらの溶出量も低下し、濃度が低下したものと考えられた。また HCO_3^- 濃度は、降雨の浸透に伴う有機物の溶出とその生物分解により CO_2 が発生することにより、秋期に増加したものと考えられた。逆に冬期は、降雨量の減少に伴い溶出有機物量が低下した結果、生物分解量が減少し、 HCO_3^- 濃度が低下したものと考えられた。

次に W1 の負の強い相関関係のあった DO と 1,4-ジオキサンの経月変化について平成 24 年度の結果を図 6 に、平成 25 年度の結果を図 7 に示した。DO は、1,4-ジオキサン濃度の秋期の増加と逆に低下していた。秋期の DO の低下は、 HCO_3^- の挙動と同様に溶出有機物の生物分解に伴い、DO が消費されたため低下したと考えられた。

さらに降雨時期 (6、7 月) と最高濃度 (1,4-ジオキサン等) もしくは最低濃度 (DO) を示す時期に注目すると、

いずれの項目も約 3 か月程度の遅れが生じていた。これは、降雨とその浸透、廃棄物からの溶出と地下水移動による移動と浸出等の地下水文学的な要因により生じていると考えられた。

以上のことから 1,4-ジオキサンの挙動は、可溶性成分 (塩、有機物) 及び有機物の生物分解に関する項目と高い相関関係を示していた。これは、1,4-ジオキサンが非常に高い水溶解度を有し、上述の可溶性成分と挙動を同じくしているためと考えられた。また、可溶性成分の挙動は、埋立層中の地下水文学的要因により生じると考えられたことから、L1 の浸出水 W1 の 1,4-ジオキサンの挙動についても同様に、埋立層中の地下水文学的な要因により起こるものと考えられた。

次に W2 について、1,4-ジオキサンや他の項目の挙動を検討した。その例として 1,4-ジオキサンと TOC の経月変化について平成 24 年度の結果を図 8 に、平成 25

年度の結果を図9に示した。

TOCやその他の項目(Na⁺、K⁺、HCO₃⁻及びEC)の挙動は、平成25年9月の突発的上昇を除くと、梅雨直後の7月に2倍程度に濃度が上昇し、9月には低下し、その後もほぼ同じ値で推移していた。一方1,4-ジオキサンは、平成25年9月の突発的上昇を除くとほぼ同じ値で推移し、TOC等の挙動と異なっていた。このようにW2の1,4-ジオキサンの濃度が一定となる原因は明確ではないが、降水が浸透する過程において有機物である廃プラスチックからの1,4-ジオキサンの溶出と吸着に平衡が存在しているのではないかと推測している。

最後に、浸出水中の1,4-ジオキサンの起源は未だに不明であり、廃プラスチックや飛灰などが排出源として指摘されている²⁾。一方、今回の調査では建設廃棄物を主体とするL1の浸出水W1から1,4-ジオキサンが検出されており、建設廃棄物が原因となることが示唆された。また、濃度レベルもW2よりW1が高いことから過去の建設廃棄物中にも比較的高濃度に1,4-ジオキサンを含むものがある可能性があり、今後、詳しい検討を行う必要がある。

4 まとめ

1) 建設廃棄物を主体とするL1の浸出水W1の1,4-ジオキサン濃度は、梅雨後に上昇を始め、秋に最高濃度に達した。その後低下し、冬に最低濃度となった。また、変動幅は、両年度とも最高濃度が最低濃度の約10倍であった。廃プラスチックを主体とするL2の浸出水W2の1,4-ジオキサン濃度は、年間を通じて0.009 mg/L前後であった。

- 2) 浸出水中の1,4-ジオキサンの挙動は、処分場ごとに異なり、その監視にはそれぞれの処分場の1,4-ジオキサンの挙動を考慮し、適切な試料が採取できるような調査に注意が必要であると考えられた。
- 3) W1の1,4-ジオキサン濃度は、TOC、Na⁺、Mg²⁺、Cl⁻、HCO₃⁻及びECと正の強い相関関係($r > 0.7$)を示し、DOと負の強い相関関係($r < -0.7$)を示した。
- 4) W1の1,4-ジオキサンの挙動は、可溶性成分、有機物及びその生物分解に関係する項目と類似しており、降雨の浸透と廃棄物からの溶出と埋立層中の地下水水文学的な要素が原因と考えられた。また、毎年、濃度が上昇することから、1,4-ジオキサンが現在も何らかの廃棄物に含有されていると推定された。
- 5) 建設廃棄物を主体とするL1の浸出水W1から1,4-ジオキサンが検出されており、廃プラスチック以外に建設廃棄物が排出源となることが示唆された。

文献

- 1) (独)国立環境研究所：国立環境研究所特別報告 SR-28-'99, 1999.
- 2) (独)国立環境研究所：国立環境研究所特別報告 SR-40-2001, 2001.
- 3) 志水ら：廃棄物資源循環学会誌 23, No. 5, 240-249, 2012.
- 4) 坂本ら：環境科学会誌 18, No. 6, 635-646, 2005.

(英文要旨)

Behavior of 1,4-Dioxane in Landfill Leachate

**Nobuhiro SHIMIZU, Shusaku HIRAKAWA, Mineki TOBA,
Taso IKEURA, Kenji SAKURAGI and Akito OHKUBO**

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

We measured the concentration of 1,4-dioxane in leachate from landfill in Fukuoka Prefecture and studied the behavior and variation of 1,4-dioxane. The concentrations of 1,4-dioxane in leachate W1 from landfill, which was mainly filled by construction waste, increased after the rainy season and reached a maximum in the fall. After that, it decreased to a minimum in winter. The concentrations of 1,4-dioxane in leachate W2 from landfill, which was mainly filled by waste plastic, was approximately constant.

As a result of a correlation analysis between 1,4-dioxane and other water quality items, the behavior of 1,4-dioxane was similar to that of soluble matters, organic matters and items related to the biodegradation of organic matters. Therefore, it was considered that the behavior of 1,4-dioxane was caused by groundwater hydrological factors, such as leaching and infiltration of rainfall. 1,4-Dioxane was detected in leachate from landfill filled by construction waste, therefore, construction waste was suggested as the probable emission source of 1,4-dioxane.

[Key words; 1,4-dioxane, landfill, leachate, construction waste, waste plastic]