

<報文>

廃棄物埋立地における水銀ガス調査*

長森 正尚**

キーワード ①廃棄物埋立地 ②水銀ガス ③安定化 ④温度

要 旨

日本における廃棄物埋立地への水銀の最終処分量は2014年ベースの推定で年間7.3トンと少なくないが、水銀大気排出インベントリで廃棄物埋立地は考慮されておらず、調査事例も少ないのが現状である。そこで、近年の水銀ガスの実態を把握すべく、廃棄物埋立地11施設のガス抜き管及び観測井内の水銀ガス濃度、並びに埋立地表面からの水銀ガスフラックスを調査した。その結果、ガス抜き管及び観測井内の水銀ガス濃度は、0.8～59.2 ng/m³と低く、さらに埋立地表面からの水銀ガスフラックスは、-0.6～27.9 ng/m²/時で気化しやすい水銀は気温が高いほど大気へと放出される傾向がみられた。これらから、埋め立てられた水銀は、安定化が進むほど廃棄物層内に留まりやすく、系外への放出は無視できる量であることが分かった。

1. はじめに

水銀に関する水俣条約が2017年8月16日に発効し、グローバルな水銀の管理が始まる一方で、国内でも大気排出抑制や水銀廃棄物管理が厳しくなった。他方、稼働中の廃棄物埋立地（以下、埋立地）への水銀の最終処分量は年間7.3トン（2014年ベース）と推定されており¹⁾、決して少ないとは言えない。筆者が近年埋め立てられている廃棄物中の総水銀含有量を調べたところ²⁾、焼却灰1～128 μg/kg、溶融スラグ18 μg/kgに対して、焼却飛灰が5700 μg/kg、不燃物が86～6080 μg/kgで高濃度であったが、推定量からみると濃度が低かった。なお、水銀ゼロ使用表示の乾電池28検体を2014年に調査したところ、2～110

μg/kg（18検体：定量下限値未満）と極低濃度であることが分かった³⁾。

他方、埋立地における水銀ガスの調査事例は少なく、水銀大気排出インベントリで埋立地は考慮されていない。埋立地からの水銀大気排出インベントリを推定している国は少なく、例えば米国（1995年ベース）⁴⁾は総排出量158トンに対しての0.08トンと極めて小さい。埋立地における水銀調査事例を表1に示す。東京都⁵⁾の調査（1990～2002年）では、ガス抜き管の平均濃度が50～19000ng/m³で大幅な変動に加えて漸減傾向がなく、最近では約100～10000 ng/m³（3埋立地）という事例⁶⁾しかない。埋立地の安全安心を確保するには、最近の水銀ガス濃度を調査す

表1 埋立地における水銀ガスの調査事例

調査地	埋立廃棄物	埋立量 (万t)	面積 (ha)	埋立期間	調査年	水銀ガス濃度			水銀ガスフラックス		
						作業面 (ng/m ³ N)	地表面 (ng/m ³ N)	井戸等* (ng/m ³ N)	作業面 (ng/m ² /時)	地表面 (ng/m ² /時)	井戸等* (mg/時)
日本 ¹⁾	一廃: 不燃、可燃、焼却灰 産廃: 上下水道汚泥等	9897	761	1929～	1990～2002	—	2～120	50～19000	—	—	<0.05**
日本 ⁹⁾	焼却灰主体 (CS処分場)	—	—	不明	埋立中	950～2300	—	—	—	—	—
日本 ⁹⁾	焼却灰主体	—	—	不明	埋立後1年	—	2.3～3.4	—	—	—	—
韓国 ¹⁰⁾	表記なし(オープンダンプ)	16000	272	1978～1992	2000	—	—	3.5～3000	—	—	2.7**
米国 ⁷⁾	都市固型廃棄物	360	59	1990～2000	2001	—	3500～6300	—	100～160**	22～40**	—
米国 ⁷⁾	都市固型廃棄物	570	101	1990～1999	1999	—	840～1160	—	52～99**	5.0～7.0**	—
米国 ⁷⁾	都市固型廃棄物	410	78	1990～1998	1998	—	6850～8600	—	230～440**	12～15**	—
米国 ⁷⁾	都市固型廃棄物	140	—	1990～2000	1997	—	20～1060	—	—	—	—
中国 ⁸⁾	都市固型廃棄物	47	52	2001～	2003～2006	—	—	2～1400	58000	-1～660	0.11**
中国 ⁸⁾	都市固型廃棄物	22	10	1983～2003	2004	—	—	—	—	54～560	—
中国 ⁸⁾	都市固型廃棄物	22	10	1994～2001	2004	—	—	—	—	20	—
中国 ⁸⁾	都市固型廃棄物	80	40	1989～2005	2004	—	—	5～74	9100	20～190	0.26**
中国 ⁸⁾	都市固型廃棄物	37	20	1989～2007	2004	—	—	—	290	—	—

*井戸等とは、ガス抜き管やガス抽出井戸のことを示す。 **文献中のデータから換算した値。

*Study on gaseous mercury in solid waste landfills

**Masanao Nagamori (埼玉県環境科学国際センター) Center for Environmental Science in Saitama

る必要があり、さらに排出量推定には実埋立地でのガス放出量の測定も重要である。日本の水銀フラックス測定事例はなく、米国⁷⁾や中国⁸⁾の事例で、埋立地表面における調査結果として5.0~40 ng/m²/時、及び1~660 ng/m²/時という報告がある。これらは未処理の都市ごみ主体の埋立地調査であり、日本の場合と異なる可能性がある。作業面からのフラックスは、52~440 ng/m²/時(米国)、290~58000 ng/m²/時(中国)となっており、埋立作業中にガス状水銀がより多く放出される傾向にある。

本研究では、近年の我が国における埋立地での水銀ガスの実態を把握すべく、埋立地ガス中の水銀濃度及び埋立地表面からの水銀フラックスに関して、埋立廃棄物の種類、埋立終了後の年数などの異なる条件で調査した。

2. 方法

2.1 埋立地層内の水銀ガス濃度測定

調査対象11埋立地の概要を表2に示す。維持管理基準が強化された1998年以前に埋立開始された埋立地が9施設であるが、安定型処分場であるSM埋立地以外は準好気性埋立構造を有していた。また、焼却灰等の有機物含有量の少ない埋立廃棄物が主体である埋立地が多かった。水銀ガス濃度の調査にあたっては、ガス抜き管及び観測井を対象としたが、都合により調査できなかったガス抜き管が4施設あった。

各管内のガスは0.5L/分で金アマルガム水銀捕集管(NIC製、M-160(以下、捕集管))に導入され、捕集された水銀ガスを大気中水銀測定装置(NIC製、マーキュリーWA-5A)で計測した。また、埋立地ガス中の水蒸気及び二酸化炭素ガスの影響を除去するため、捕集管の前段階に再加熱ソーダライム管²⁾を装着した。なお、捕集開始から簡易ガス測定器(Geotechnical Instruments製、GA5000)で埋立地ガスの組成をモニターし、変動し始めた時点で外気が侵入したと判断して捕集を終了することとした。

さらに、管内の水銀ガス濃度分布について、小川式パッシブサンプラー(20mm×30mm)¹⁾を用いて調査した。金薄膜をコーティングした直径15mmの石英ろ紙(東京ダ

イレック製、2500QAT-UP)を水銀捕集用フィルターとしてサンプラー内部に装填し、分子拡散プレートを被せた。金薄膜は、スパッタリング装置(HITACHI製、JFC-1600)を用い、ろ紙上に同じ厚さになるようにコーティングした。さらに、金薄膜後のろ紙を850℃の電気炉で30分間加熱し水銀を完全に除去した。本調査は2埋立地のガス抜き管とし、RM埋立地で深度26mを5m間隔、RY埋立地で深度14mを4m間隔で実施した。また、フィルターへの水滴の付着を防ぐ目的でサンプラーをプラスチックカップで覆い、調査時間は3時間暴露とした。ろ紙に吸着させた水銀量は、加熱気化水銀測定装置(日本インストルメンツ製、マーキュリーSP-3D)で測定した。

2.2 埋立地表面からの水銀ガスフラックス測定

調査地点の埋立廃棄物量を表3に示す。焼却灰と不燃物では水銀含有量に違いがあることが分かったため²⁾、廃棄物の埋立割合の異なるRM埋立地内に設置した3つのセル(C4~C6)を対象とし、各地表面からの水銀ガスフラックスを調査した。セルの設置作業は2016年6月、調査は2017年6~11月に実施した。なお、各セルに設置されている観測井(深さ1.5~2.5m)内の水銀ガス濃度も併せて測定したが、約7 ng/m³で地点差がなく、いずれも酸素濃度がほぼ0%であった。

表3 ガスフラックス調査地点の埋立廃棄物量等

No.	灰の割合	一般廃棄物(t)		産業廃棄物(t)		合計(t)	水銀ガス濃度(ng/m ³)
		焼却灰	不燃物	燃えがら	廃プラ		
C4	少	16.2	51.7	9.4	40.9	118.2	7.1
C5	中	40.7	40.9	0.0	42.2	123.8	6.6
C6	多	53.3	35.8	9.4	33.5	132.0	6.9

埋立地表面から大気へ放出する水銀ガス量は、図1に示すフラックスチャンバー法を用いて測定した¹²⁾。使用したチャンバーは無色透明の亚克力製(縦400×幅250×高さ100mm;内容量10L)であり、3.0L/分の定流量で大気を流しながら、チャンバーの大気流入口と流出口における水銀ガスを流量0.5L/分で捕集管に導入し、大気中水銀測定装置で計測した。なお、水銀ガスの捕集時間は56分であり、得られた水銀ガス量と吸引流量から算出した水銀ガス濃度を1時間の平均濃度(流入口C_i, 流出口C_o; ng/m³)とし、水銀フラックスF(ng/m²/時)を次式から算出した。

$$F = (C_o - C_i) / A \times Q - F_{BL}$$

ここで、Aは対象とする表面積、Qは大気流量(m³/時)である。F_{BL}は本方法によるブランク値であり、チャンバーと土壌表面との間にテフロン製の板を敷いた状態で測定した。ブランク値の平均値及び標準偏差は0.26 ± 0.13ng/m²/時(n=9)であった。水銀フラックスの測定と

表2 調査対象埋立地の概要

埋立地	埋立年	深度	GV*	MW**	埋立廃棄物
RS	1979~1987	9m	1	3	不燃ごみ, 焼却灰, 可燃ごみ
WS	1982~2000	45m	2	2	廃プラ, 建廃, 汚泥等
FU	1988~	8m***	0	1	焼却灰, 灰固化物
RT	1989~1992	25m	1	1	焼却灰, 不燃物, 廃プラ
KT	1989~2007	10m	0	2	焼却灰, 不燃物, 熔融スラグ
SM	1995~2002	30m	0	3	建廃, 廃プラ, ガラ陶くず
HK	1996~	7m***	0	2	灰固化物, 熔融スラグ
RY	1996~1997	18.5m	1	1	焼却灰, 不燃物, 廃プラ
RZ	1997~2000	27m	1	1	焼却灰, 不燃物, 廃プラ
RX	2000~2007	23m	1	1	焼却灰, 不燃物, 廃プラ
RM	2007~2017	26m	1	1	不燃物, 廃プラ, 焼却灰

* ガス抜き管 ** 観測井 *** 調査時の深度

同時に、埋立地表面からの高さ10cmにおける気温（以下、地表気温）、相対湿度、日射量、地中熱流量、大気圧、風量等も併せて観測した。

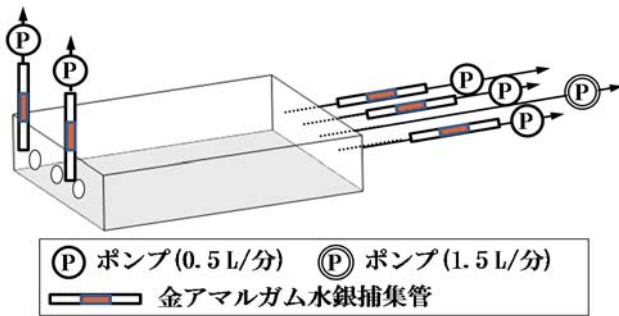


図1 フラックスチャンパー法の概略等

表4 水銀ガス濃度の調査結果

(単位: ng/m³)

埋立地	ガス抜き管		観測井	
	2017年度	2018年度	2017年度	2018年度
RS	4.2	-	46	-
			59	-
			10	-
WS	9.7	-	1.5	0.2
			6.2	5.8
FU	-	-	1.7	-
RT	3.0	1.5	1.1	6.2
			0.9	-
KT	-	-	2.9	-
			1.8	-
SM	-	-	1.1	-
			1.0	0.2
HK	-	-	1.9	-
			4.3	-
RY	3.9	-	7.1	-
RZ	3.0	1.8	42	12
RX	21	34	2.8	0.8
RM	39	-	18	-

3. 結果

3.1 埋立地層内の水銀ガス濃度

埋立地ガス中の水銀濃度の調査結果を表4に示す。埋立廃棄物の種類、埋立年齢など背景が異なる埋立地での調査であったが、ガス抜き管で1.5~39.0 ng/m³、観測井で0.8~59.2 ng/m³と濃度範囲が比較的狭かった。これらの濃度は、前述の文献値の低いレベルに位置した。2年続けて測定した管内の水銀ガス濃度は低下した地点が多かった。次に、これら水銀ガス濃度と管内温度の関係を図2に示す。RS埋立地を除いた調査結果からは、管内温度が高いと水銀ガス濃度が高くなる傾向を示していた。RS埋立地は埋立年が最も古く、埋立廃棄物に含まれていた水銀が多かった可能性が考えられる。これを除けば、東京都の調査⁵⁾で埋立地ガスの温度と水銀ガス濃度が正の関係を示していたことと類似していた。他方、層内温度と同じく埋立廃棄物の安定化指標の一つであるメタンガス濃度比「CH₄/(CH₄+CO₂)」と水銀ガス濃度の関係を図3に示す。一般的に、メタンガス濃度比が0.6~0.5を下回るとは、層内に大気が侵入して部分的に好気性分解が生じて、埋立廃棄物の安定化が進んでいることを示している¹³⁾。ここでは、比に大きく影響する埋立地ガス濃度が1%未満の試料を除いて図示したが、メタンガス濃度比が大きいほど水銀ガス濃度が高い傾向にあった。すなわち、埋立地ガス中のメタンガスの割合が大きいメタン発酵期は、水銀ガスが比較的高濃度の傾向があると言える。なお、同じ埋立地でも調査管によってメタンガス濃度比が異なっていたことから、管内ガスデータは埋立地全体ではなく、採取した管周辺の状況を表していると考えられた。他方、メタンガス濃度比が1.0付近のガスについては、管周辺の間隙水が高アルカリのため二酸化炭素ガスが吸収された可能性が高い。埋立廃棄物中にアルカリ性を示す焼却灰等が多く含まれている場合が考えられ、メタンガス濃度比が安定化を表現できないことがある。

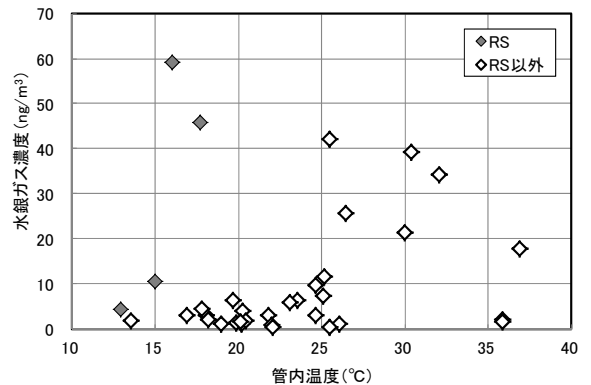


図2 水銀ガス濃度と管内温度の関係

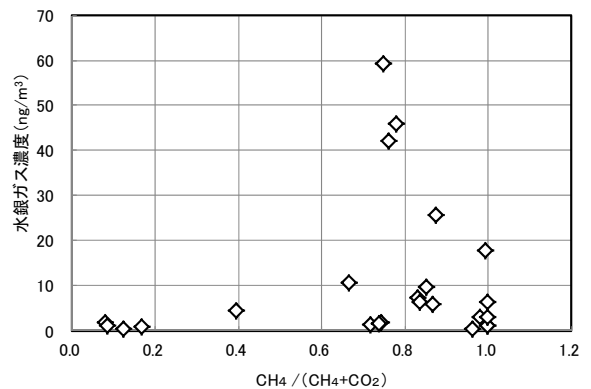


図3 水銀ガス濃度とメタンガス濃度比の関係

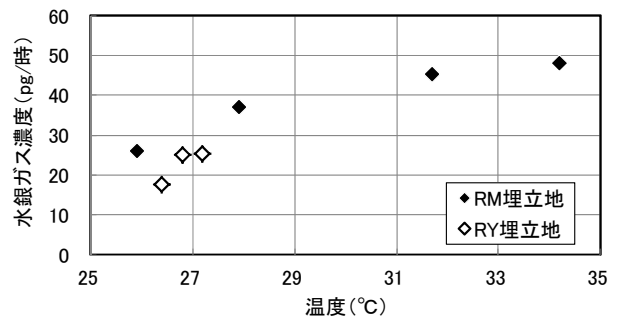


図4 水銀ガス濃度と管内温度の関係（深度調査）

次に、ガス抜き管の深度ごとに調査した水銀ガス濃度と温度の関係を図4に示す。RM埋立地は25.9～34.2℃の温度勾配があり、RY埋立地は26.4～27.2℃と温度がほぼ一定であった。今回の調査では濃度の単位をpg/時で示すため、相対的な濃度の違いになるが、RM埋立地で26.1～48.0 pg/時、RY埋立地で17.6～25.2 pg/時の範囲であった。両埋立地において、同じ管内であっても、温度が高いほど水銀ガス濃度が高い傾向があり、水銀ガス濃度に偏りがあることが分かった。温度により飽和水銀ガス濃度は大きく変化するが、管周辺の廃棄物層と管内における水銀ガスの移流・拡散の様子は今回の調査からは不明である。なお、調査日時が異なるが、ガス抜き管内の水銀ガス濃度がRM埋立地とRY埋立地で10倍の違いがあったが、本手法ではそこまで大きな違いはみられなかった。

3.2 埋立地表面からの水銀ガスフラックス

RM埋立地のセルC5の夏季における水銀フラックスと気象の観測結果を図5に示す。水銀フラックスは10.6～19.0 ng/m²/時 (n=5) と幅があり、日射量及び地表気温と変動が類似していた。なお、夏季ではセルC4が21.7～24.2 ng/m²/時 (n=3)、セルC6が14.5～27.9 ng/m²/時 (n=5)、冬季でセルC4が-0.6～0.6 ng/m²/時 (n=5)、セルC5で1.4～2.6 ng/m²/時 (n=5) であった。この他に、気圧変動や地中熱流量等とフラックスの関係は見いだせなかった。これは、水銀ガスの採取に約1時間を要することから、短時間で変化する項目との詳細な解析ができなかったことが挙げられる。なお、一般環境土壌における水銀フラッ

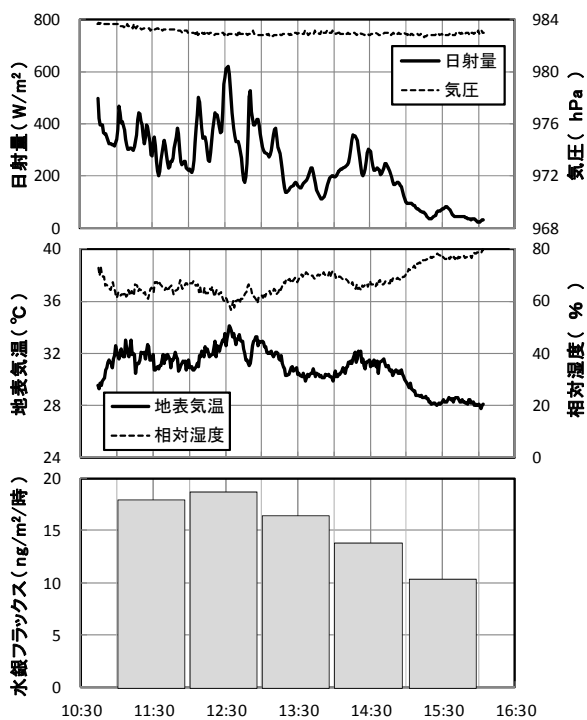


図5 水銀フラックスと気象変動 (セルC5)

クス¹⁴⁾が測定されているが、人工造成地で1.1未満～174 ng/m²/時 (n=531)、森林土壌で1.1未満～32 ng/m²/時 (n=245) と報告されており、本研究の結果は森林土壌と同程度であった。

次に、全観測データを用いて、水銀フラックスと相関が高かった項目のうち地表温度との関係を図6に示す。気化しやすい水銀は高温なほど大気へと放出される傾向がみられ、埋立廃棄物の組成の違いによる影響はみられなかった。なお、調査地点ごとの地表温度や日射量と水銀フラックスの間の相関については、C5地点においては高かったが、C4及びC6では明確ではなかった。これは、C4及びC6の調査日の地表温度や日射量の変動が少なく、それらの影響が明確にならなかったと考えられる。

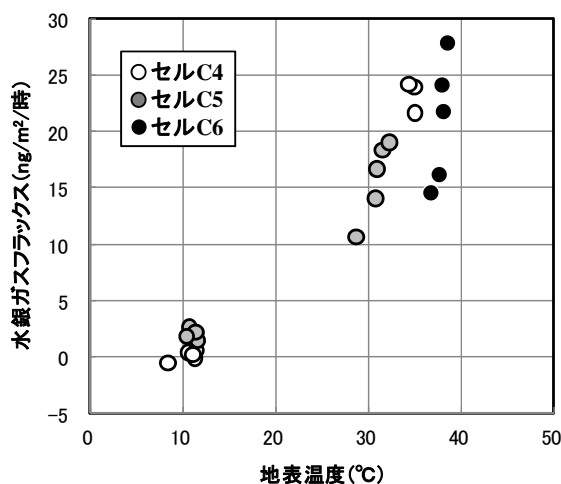


図6 水銀フラックスと地表温度の関係

4. まとめ

廃棄物埋立地11施設の水銀ガス濃度、並びに埋立地表面からの水銀ガスフラックスを調査した。水銀ガス濃度は0.8～59.2 ng/m³で文献値と比較して低い範囲であった。特に、埋立廃棄物の安定化指標である層内温度とメタンガス濃度比は水銀ガス濃度と関係がみられたが、埋立時期の古い場合に水銀ガス濃度が高い可能性が示唆された。また、ガス抜き管の深度ごとの水銀ガス濃度は温度勾配に従って偏りがあることが分かった。さらに、埋立地表面からの水銀ガスフラックスは、冬季で-0.6～2.6 ng/m²/時、夏季で10.6～27.9 ng/m²/時であり、気化しやすい水銀は気温が高いほど大気へと放出される傾向がみられた。なお、今回の調査では、最終覆土された埋立地において、埋立廃棄物の組成の違いによる水銀ガスフラックスへの影響はみられなかった。

5. 引用文献

- 1) 環境省：我が国の水銀に関するマテリアルフロー、

- http://www.env.go.jp/chemi/tmms/materialflow/materialflow_2014.pdf (2019. 8. 16アクセス)
- 2) 長森正尚, 長谷隆仁, 大塚宜寿: 廃棄物埋立地における水銀モニタリング. 第32回全国環境研究所交流シンポジウム予稿集, 29-30, 2017
 - 3) 清水辰人, 長森正尚: 最終処分場における乾電池の取り扱い見直しのための水銀含有量調査. 第36回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, 90-91, 2015
 - 4) USEPA: Mercury Study Report to Congress, Volume II. An Inventory of Anthropogenic Mercury Emissions in the United States, <https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-09/documents/volume2.pdf> (2019. 8. 16アクセス)
 - 5) 高橋昌史, 中浦久雄, 溝入茂, 庄司匡範: 中防外側処分場における水銀の挙動. 東京都環境科学研究所年報, 165-171, 2004
 - 6) 高岡昌輝: 水銀のライフサイクル管理について. 日本環境化学会講演会予稿集, **59**, 57-77, 2017
 - 7) Lindberg S. E., Southworth G. R., Bogle M. A., Blasing T. J., Owens J., Roy K., Zhang H., Kuiken T., Price J., Reinhart D., Sfeir H.: Airborne Emissions of Mercury from Municipal Solid Waste. I: New Measurements from Six Operating Landfills in Florida. *J Air & Waste Manag Assoc*, **55**, 859-869, 2005
 - 8) Z. G. Li, X. Feng, P. Li, L. Liang, S. L. Tang, S. F. Wang, X. W. Fu, G. L. Qiu, L. H. Shang: Emissions of air-borne mercury from five municipal solid waste landfills in Guiyang and Wuhan, China. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 3353-3364, 2010
 - 9) 西川雅高, 白石寛明, 柳瀬龍二, 谷田幸次: 改良型気中水銀測定用パッシブサンプラーによる埋立処分地上のガス状水銀濃度調査. 環境化学, 9, 681-684, 1999
 - 10) Kim K. H., Kim M. Y.: Mercury emissions as landfill gas from a large-scale abandoned landfill site in Seoul. *Atmos. Env.*, **36**, 4919-4928, 2002
 - 11) 國木里加, 川上智規, 加賀谷重浩, 井上隆信, Elvince Rosana, 永淵修: 大気中の水銀濃度の測定～パッシブサンプラーの開発～. 環境工学研究論文集, **46**, 355-359, 2009
 - 12) 長森正尚, 長谷隆仁, 磯部友護: 廃棄物埋立地における水銀ガスフラックス調査. 第44回 環境保全・公害防止研究発表会, 46-47, 2017
 - 13) 山田正人, 遠藤和人, Komsilp Wang-Yao, 朝倉宏, 石垣智基: 埋立地現場におけるIPCC一次分解モデルにおける好気性分解補正係数(MCF)の評価. 第20回廃棄物資源循環学会研究発表会, 447-448, 2009
 - 14) 丸本幸治, 坂田昌弘: 土壌からの水銀発生量とその変動要因. 地球化学, **39**, 183-196, 2005