

氏 名	PUBUDU PRIYA UDAYAGEE KUMARASINGHE
博士の専攻分野の名称	博士（学術）
学位記号番号	博理工甲第 1112 号
学位授与年月日	平成 30 年 9 月 21 日
学位授与の条件	学位規則第 4 条第 1 項該当
学位論文題目	IDENTIFICATION OF GROUNDWATER CONTAMINATION AND DEVELOPMENT OF SITE-SPECIFIC PERMEABLE REACTIVE BARRIER SYSTEM FOR ENVIRONMENTAL POLLUTION CONTROL OF OPEN SOLID WASTE DUMPSITES IN SRI LANKA (スリランカ廃棄物処分場の地下水汚染の把握と汚染防止のための反応性浸透壁システムの開発)
論文審査委員	委員長 教 授 川本 健 委 員 教 授 田中 規夫 委 員 准 教 授 浅本 晋吾 委 員 教 授 長田 昌彦 委 員 産業技術総合研究所 上級主任研究員 坂本 靖英

論文の内容の要旨

This study was aimed to identify the current contamination level at open solid waste dumpsites in Sri Lanka and development of site specific permeable reactive barrier (PRB), which is one of the highest applicable treatment method used to treat groundwater in-situ. First an open solid waste dumpsite located at Sri Lanka was monitored to identify the temporal variability of perched water and groundwater quality. This dumpsite has two sections with respect to the age of the waste dumping. The one section of the dumpsite (Old section), has been used for the 7 years and quit the operation, then moved to the other section (New section) for dumping waste for 6 months. The perched water from the new section of the dumpsite identified as a highly contaminated solution; the BOD, COD, TN, TP, EC was exceeded their maximum permissible levels. Heavy metals, such as Pb, Cd, Cu, Zn, Cr etc was observed both in perched water and groundwater at the dumpsite. The *LPI* index, which used to describe the pollution potential, greatly fluctuated with the time for the water quality analyzed for the perched water, whereas less fluctuations were observed for groundwater. The level of pollution was greatly reduced with the aging of the dumpsite. Further, was a slight negative correlation was observed between rainfall and perched water quality and strong positive correlation was developed between major equivalent cations/anions and EC of the perched water.

As the next step, a two-dimensional groundwater model has been used to simulate the heavy metal transport in an aquifer at solid waste dumpsite and to estimate the effectiveness of PRB on trap heavy metals. The potential contaminants were selected as Cd and Pb based on the research part 1. The numerical simulations well captured the wash-out process of heavy metals from the pollutant source and the time period needed to have of full wash-out was

highly dependent on the hydraulic gradient, pollution load, distribution coefficient and the way of waste dumping (direct dumping/buried waste dumping). The virtual PRB installed at the downstream, was able to well trapped the target metals and reduce the heavy metal concentrations less than the effluent water quality standards.

As the third part of the research, series of laboratory experiments were conducted to evaluate the applicability of some low cost and locally available materials collected from Sri Lanka to use as PRB filling materials. The potential contaminants were selected as Cd and Pb based on the research part 1. Mixtures of alluvial loamy soil, coconut shell biochar, and laterite clay brick mixed in different proportions were tested for their effectiveness as PRB filling materials. Results showed that the Langmuir model performed well for fitting Cd and Pb adsorption isotherms and maximum adsorption capacities for Pb became higher than those for Cd. Further, the three mixed materials resulted in a low dependency of pH and ionic strength in the adsorption of both metals. In the multiple trace element solution, the existence of other metals had a significant effect on Cd adsorption but less on Pb adsorption. All tested adsorbents showed low leaching of adsorbed metals (Cd and Pb) by resulting high hysteresis indices in desorption studies. The hydraulic conductivities (Ks) of the tested adsorbents under different compaction levels were measured to examine a suitable packing condition for the PRB system. The inclusion of brick was effective to improve the hydraulic property and measured Ks values for 75% brick materials gave results of $>10^{-4}$ cm/s at high compaction levels ($D_r = 90\%$ and 100%). The tested adsorbents (three mixed materials) are strongly recommended as PRB filling materials to treat groundwater contaminated with landfill leachate based on their reactivity and hydraulic properties.

In the final step of the research the long term applicability of selected PRB materials were tested by conducting series of column study. The column filled materials (Soil 12.5% + Biochar 12.5% + Brick 75%) were selected based on the research part 3 and the potential contaminants were selected as Cd based on the research part 1. The effectiveness was evaluated at two initial Cd concentrations as 30 and 300 ppm. At the same time Br^- was flowed together with Cd as a non- reactive contaminant. The removal efficiency (R%) was highly depended on the initial Cd concentration; at $C_0 = 300$ ppm the R% reached 90% at the beginning and gradually reduced with the time while at $C_0 = 30$ ppm the R%, reached almost 100% throughout the tested duration. Cd and Br^- behaved differently; no adsorption of Br^- was observed onto the PRB filling materials. The hydraulic conductivity (Ks) of tested materials were obtained at different EC to observe the hydraulic properties of the tested materials. Results showed that a linear correlation between Ks and EC. The hydraulic conductivity of the filling material was drastically reduced at low EC.

論文の審査結果の要旨

当学位論文審査委員会は、平成 30 年 7 月 31 日に論文発表会を開催し、論文内容の発表に続いて質疑と論文内容の審査を行なった。以下に審査結果を要約する。

開発途上国における一般廃棄物の大半は、汚染防止措置を講ずることなく不衛生なオープンダンピング（開放投棄）として処分されている。廃棄物処分場内部から発生する汚水（浸出水）は周辺河川や地下水に直接流入し、廃棄物処分場およびその周辺域での環境劣化を引き起こしている。本研究で対象とするスリランカも、都市域の人口増加、商業活動の活発化、生活の多様化等により一般廃棄物の排出量が増加し、未熟な廃棄物管理システムや廃棄物処分場未整備も相まって、処分場およびその周辺域の環境劣化が深刻な問題となっている。しかし、汚染源となる処分場内部の詳細な長期的水質変化はこれまでに実施されたことがなく、処分場内部水質に雨水や投棄経過後の年数が与える影響、季節変動、潜在的な環境リスクは不明なままである。さらに、既存処分場の環境改善・汚染修復に関しても、技術的な問題も含めて、現地で適用可能な低コスト・低メンテナンス・低環境負荷の技術開発の提案が行われていないのが現状である。このような背景のもとに、本学位論文では、既存廃棄物処分場の内部保有水質の長期モニタリングを実施して潜在的な環境リスクを評価するとともに、既存処分場の原位置地下水浄化法の一つである反応性浸透壁（Permeable Reactive Barrier:PRB）に注目し、特に、浸出水が流入する地下水に含まれる重金属類の浄化を目的とした PRB 材料選定のために不可欠となる、地域有機資材（ココヤシ殻炭）、地域土壌やレンガ材、及びその混合材の重金属吸着特性や透水性を室内実験によって調べた。

第 1 章では、研究の背景や目的、関連する既往の研究について記述している。既往の研究については、特に本研究で主要な内容となる、浸出水水質特性の報告事例、PRB が適用された地下水浄化に関する研究事例を整理し、レビューを行っている。

第 2 章では、スリランカの代表的な廃棄物処分場として中央州ウダパラータ村の処分場（オープンダンピング）を選定し、処分場内部保有水及び地下水質の長期モニタリングを約 2 年間（2013-2015 年）にわたり実施した結果を示した。対象処分場は、廃棄物投棄後 0.5 年（New）と 7 年（Old）の二つの区画からなる。対象水質項目は有機成分（BOD、COD 等）、無機成分（Na、Cl 等）、重金属成分であり、地下水位変動、温度、降雨量も同時に計測した。結果として、New と Old の区画の双方の内部保有水で Pb、Cd、Cu といった重金属が同程度の濃度で検出されたこと、両区画の内部保有水水質は有機成分や無機成分の濃度に大きな違いがあること、両区画とも水質変化に雨水の影響が小さいこと、主要無機成分濃度から換算した等価イオン強度は EC と非常に良い相関があること、等が明らかとなった。さらに、既往研究で提案されている Leachate Pollution Index（LPI）に基づいて内部保有水の潜在的環境リスクを評価した結果、New 区画では LPI 値が大きく環境リスクが高いこと、Old 区画の LPI 値は有機成分や無機成分の洗い出しで十分に低いこと、が示された（ただし、重金属成分は Old 区画にも依然として残留している可能性は高い）。

第 3 章では、PRB 材の選定に先立ち、PRB による地下水重金属除去効果に、廃棄物投棄環境（地表面投棄もしくは水中埋設投棄）や投棄量（汚染負荷量）、現地動水勾配（地下水位）の違いが及ぼす影響を、数値解析シミュレーションを用いて調べた。解析シミュレーションは「地圏環境リスク評価システム（Geo-Environmental Risk Assessment System:GERAS）」を用いて行い、Pb と Cd を対象汚染物質とし、これらの地下水中及び PRB の移動を、吸着平衡を考慮した移流分散方程式を解くことにより評価した。PRB の重金属吸着能は既存の研究報告を参考に設定した。その結果、PRB 設置は地下水中の重金属濃度を十分に低減する効果が確認でき、特に Cd の濃度低減に効果があること、廃棄物投棄環境が重金属の移流分散挙動に

影響を及ぼすこと、等が示された。

第4章では、PRB材の選定に関する研究を行っている。具体的には、既往研究でその高い重金属吸着能が報告されているスリランカ Bangadeniya 産沖積土（粒径 <2mm）とスリランカ産ココヤシ殻炭試料（粒径 <75 μ m）を用いるとともに、今回新たにこれらの材料に透水性を確保するためのスリランカ産焼成レンガを混合した材料を用いて、「重金属吸着・脱離能」、「締固めた状態での透水性」を、室内実験を用いて評価した。ここで、焼成レンガは粒径 2-4.75mm に破碎・調合して試験に用いた（以下、破碎レンガ）。対象とした重金属は主に Pb と Cd で、吸着に関しては競合重金属イオン（Cu、Zn、Ni）の影響についても調べた。

「重金属吸着・脱離能」に関する主な結果は下記となる。

- 1) Cd：吸着等温線から求まる最大吸着能は破碎レンガ混合率に影響を受けないものの、破碎レンガ混合率の増加に伴い、Cd 除去率は 90% から 70% 程度へと低下した。
- 2) Pb：吸着等温線から求まる最大吸着能は破碎レンガ混合率増加に伴い低下するものの、破碎レンガ混合率の増加は Pb 除去率には影響を与えない（90% 以上）。
- 3) Cd、Pb ともに水中の pH やイオン強度の変化は、これらの混合材の吸着特性に影響を及ぼさない。しかし、Cd・Pb ともに競合イオンの影響を受け、特に Cd 吸着は Pb や Cu と競合する場合に阻害されることが明らかになった。
- 4) 脱離試験の結果から、2 種混合材（沖積土・ココヤシ殻炭）及び 3 種混合材（沖積土・ココヤシ殻炭・破碎レンガ）ともに強い不可逆吸着を示す（実質的に脱離しない）ことが示された。

「締固めた状態での透水性」に関しては、破碎レンガの混合は混合材の透水性の向上に大きく寄与した。特に、破碎レンガ混合率 75% の 3 種混合材は、締固め度 80% の条件でも 10^3 cm/s 以上の高い透水係数を維持した。これらの結果を踏まえて、PRB 材として求められる高い吸着性と透水性を確保するためには、沖積土・ココヤシ殻炭への破碎レンガの混合は非常に効果的であり、現場で適用する際は破碎レンガ混合率 75% が適していることが示された。

第5章では、第4章で用いた混合材（沖積土 12.5%・ココヤシ殻炭 12.5%・破碎レンガ 75%）を用いてカラム通水試験を用いて、PRB 材の長期性能評価の予備的検討を行った。具体的には、汚染水として Cd 溶液を用いて、流入 Cd 濃度や通水流速が Cd の流出特性に及ぼす影響を調べ、飽和透水係数の経時変化を調べている。

第6章では、第1章から第5章までに得られた知見をもとに結論を述べるとともに、有機資材と土壌材料を吸着媒体とした PRB 材の開発に向け、長期性能評価の重要性や原位置適用における課題などの課題を挙げるなど、今後の研究展開の方向性を示した。

以上のように、本研究は、スリランカにおける廃棄物処分場の内部保有水水質の長期モニタリングを実施するとともに、原位置地下水浄化法として期待される PRB に注目し、PRB 材選定のために必要な地域有機資材（ココヤシ殻炭）や土壌、及びこれらと破碎レンガとの混合材の重金属吸着特性・透水性を室内実験によって調べた。その成果は、今後、PRB 材料の選定に直接的に貢献するものであり、既存処分場の環境改善・汚染修復技術の構築に効果的に活用されるものである。このことから、当学位論文審査委員会は、本論文が博士（学術）の学位に相応しい内容であると判断した。

なお、本論文の内容は、第2章及び第3章がそれぞれ国際学術雑誌 International Journal of GEOMATE (2017;2018) に掲載済みであり、第4章は国際学術雑誌 Journal of Environmental に投稿中である。