

覆土による重金属汚染対策に関する現場実験（その2）

(独) 土木研究所寒地土木研究所 ○正会員 田本 修一
(独) 土木研究所寒地土木研究所 正会員 伊東 佳彦
(独) 土木研究所寒地土木研究所 岡崎 健治
北海道大学大学院工学研究科 正会員 五十嵐 敏文

1. はじめに

重金属、揮発性有機化合物等による土壤汚染が顕在化してきたことを背景として、平成15年2月に人為的活動による土壤汚染を対象に「土壤汚染対策法」が施行された。また、これを受けて平成15年7月に自然的原因の重金属による土壤汚染も対象とした「建設工事で遭遇する地盤汚染対応マニュアル（暫定版）」¹⁾が発刊された。しかし、後者は基本的に前者に準拠しており、より実態に即した評価、対策手法の確立が急務となっている。

北海道における海成の堆積岩や熱水変質の影響を受けた火山岩等一般的に見られる地質においても、環境基準を超過して有害重金属が溶出したり、酸性水が流出したりする事例が確認されている。これらは、適切な処理を施して汚染の拡散を防止する必要がある、道路建設事業における処理方法としてシート等による遮水対策などが主体となっているが、工事費増嵩の一因となっている。

砒素（As）などの重金属類は土壤への吸着効果が大きいため、現地発生土を用いて汚染土を覆土や敷土によってある一定の厚さだけ包み込むことによって、降雨による水の浸透（酸素の侵入）が抑制され、溶出水中の重金属は固相である敷土へ吸着され、溶出濃度の低減が期待される。前報²⁾では、覆土のみによる対策では砒素の流出拡散を抑止できないため、吸着層などの重金属移行抑止層を設ける必要があることを報告した。本報告では、覆土材料を重金属移行抑止層として敷土に用いた場合、その有効性を評価するために実施した吸着試験、逐次溶出試験及び敷土底部より漏洩するAsの溶出・拡散評価を行った結果について報告するものである。

2. 試験方法

2-1 試料

吸着試験に用いた試料は、現場周辺で採取された床掘土及び購入土である。逐次溶出試験に用いた試料は、砒素を含む掘削ずり（粘板岩）である。各試料の物理特性を表-1に示す。また、各試料の鉱物学的、化学的な性状を明らかにするために、X線粉末回折（床掘土、購入土及びずり）及び蛍光X線分析（ずり）を行った。その結果を表-2、3に示す。吸着試料として用いた床掘土及び購入土には、X線粉末回折結果よりAsの吸着効果が期待できる粘土鉱物としてイライトが検出された。

表-1 各試料の物理特性

試料名	床掘土	購入土	掘削ずり (粘板岩)
自然含水比 Wn(%)	25.9	26.1	15.4
風乾試料含水比 Wdry(%)	15.0	8.8	-
土粒子の密度 ρ_s (g/cm ³)	2.649	2.615	2.751
平均粒径 D ₅₀ (mm)	0.0939	0.488	6.64
均等係数 U _c	164.4	150.4	917.4
細粒分含有率 F _c (%)	47.4	21.6	14.3
地盤材料の分類	SCs	SCsG	GS-Cs

表-2 各試料の各試料のX線粉末回折結果

試料	確認された鉱物
床掘土	石英、斜長石、クリストバライト、緑泥石、方解石、イライト
購入土	石英、斜長石、クリストバライト、緑泥石、方解石、イライト
掘削ずり (粘板岩)	石英、正長石、曹長石、緑泥石、白雲母、方解石、カオリナイト

表-3 掘削ずりの蛍光X線分析結果

試料	掘削ずり (粘板岩)
砒素 (mg/kg)	10.5
硫黄 (wt.%)	0.27
Fe ₂ O ₃ (wt.%)	5.43
Al ₂ O ₃ (wt.%)	12.1
CaO (wt.%)	1.59

In situ experiments on the function of covering soil against arsenic-bearing muck disposal (Part 2)

Shuichi TAMOTO, Yoshihiko ITO, Kenji OKAZAKI (Civil Engineering Research Institute for Cold Region, PWRI),

Toshifumi IGARASHI (Hokkaido University)

2-2 吸着試験

吸着試験は、バッチ法に基づき実施した。20～25℃の温度条件で、粉碎した粘板岩 50g に脱イオン水 500mL を加え、往復振とう機を用いて約 200rpm で 6 時間、24 時間及び 14 日間の振とうを行った。振とう後、各溶出液の遠心分離を行い、吸着試験用の溶媒とした。各溶媒に床掘土、購入土を固液比 1:10 となるよう投入し、4 時間振とう後、0.45 μm メンブレンフィルターによって固液分離を行い、ろ液中の As を分析した。As 分析は、水素化物発生プラズマ発光分析法 (ICP-AES) を用いた。吸着前後の As 濃度変化から各試料への吸着量を求めた。

2-3 逐次溶出試験

溶出試験は、バッチ法に基づき実施した。20～25℃の温度条件で、粉碎した粘板岩 15g に脱イオン水 150mL を加え、往復振とう機を用いて約 120rpm で 1 日間の振とうを行った。振とう後、溶液の pH を測定し、0.45 μm メンブレンフィルターによって固液分離した。ろ液に対して化学分析を行うとともに、岩石試料に再び脱イオン水 150 mL を加え溶出試験を 10 回繰り返して行った。ろ液中の分析対象とした項目は As である。As 分析は、水素化物発生プラズマ発光分析法 (ICP-AES) を用いた。

3. 試験結果及び考察

3-1 吸着試験

吸着量 q は、参考文献¹⁾ に示される(1)式により求めた。また、分配係数 K_d は As の固液相濃度がヘンリー式で表現されるものと仮定し、(2)式により求めた。

$$\text{吸着量 (mg/kg} \cdot \text{dry)} = \frac{(\text{初期濃度 mg/l} - \text{平衡濃度 mg/l}) \times \text{溶液量 l} \times 1000 \text{ g/kg}}{\text{試料土量 g} \times \text{試料土乾燥質量比}} \dots (1)$$

$$\text{吸着量 (mg/kg} \cdot \text{dry)} = \text{分配係数 L/g} \times \text{平衡濃度 mg/L} \dots (2)$$

ここで、試料土乾燥質量比：表-1 の風乾試料含水比 W_{dry} より求めたものである。

吸着試験結果を表-4 に示す。この表より、試験用溶媒の初期濃度は、溶出期間によって異なっており、24 時間溶出操作を行った As 濃度が最大で 0.025mg/L 示した。これは、水酸化鉄を含む岩石中の粘土鉱物が pH の変化によって吸着と解離の両面の性格を有するため、長期間の溶出操作により吸着剤として作用した可能性が考えられる。

本試験で得られた分配係数 K_d の最大値は床掘土で 271L/g、購入土で 261L/g となった。このことから、覆土材料に使用した床掘土及び購入土は、As の吸着能を有していることが確認された。

表-4 吸着試験結果

試料名	4時間振とう後	As溶出濃度 (mg/L)		試料土乾燥質量比	(C0-Ce)/C0	吸着量 q (mg/kg·dry)	Kd 分配係数
	pH	初期濃度 C0	平衡濃度 Ce		吸着率 (%)		
床掘土6H	8.7	0.009	0.001	0.885	88.9	0.0904	90
床掘土24H	8.6	0.025	0.001		96.0	0.271	271
床掘土14DAY	8.3	0.005	0.001		80.0	0.0452	45
購入土6H	8.7	0.009	<0.001	0.919	-	-	-
購入土24H	8.5	0.025	0.001		96.0	0.261	261
購入土14DAY	8.2	0.005	<0.001		-	-	-

3-2 逐次溶出試験

溶出水中の As 濃度変化を図-1 に示す。この図より As 濃度は初回の溶出時に最大値を示し、溶出回数とともに徐々に減少する。このことから、実現場においては岩石に接触する水が増加することにより As の溶出量が減少していくものと考えられる。

溶出水の pH 変化を図-2 に示す。この図より、溶出回数によって pH の変化は大きな挙動を示さず、pH7.7～8.4 の弱アルカリ性を示した。

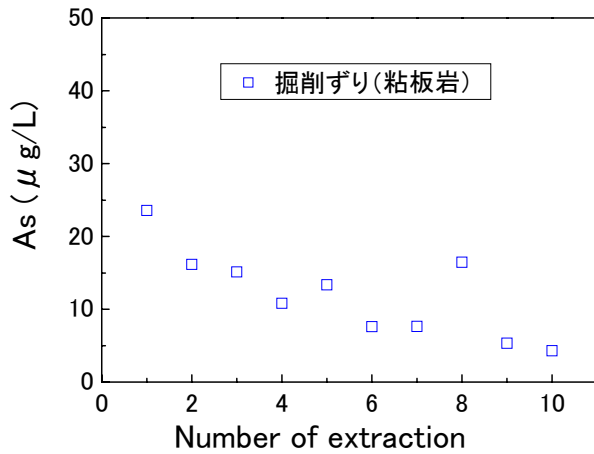


図-1 溶出回数と As 溶出量の関係

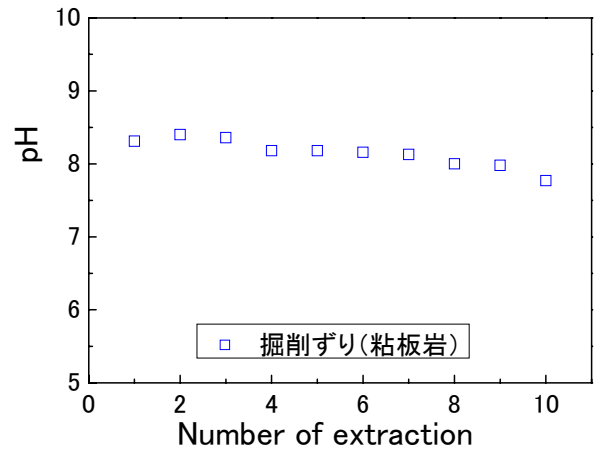


図-2 溶出回数と pH の関係

4. As の溶出・拡散評価

これまでの実験結果を踏まえ、ずりからの As 溶出と覆土材料を敷土として用いた場合の As 吸着を考慮し、敷土外部への As 漏洩量を評価した。漏洩量の評価に際しては、1 次元移流拡散方程式のステップ入力に対する解析解における下記の近似式³⁾ に逐次溶出試験結果を踏まえたずりからの As 溶出濃度を与えて解析した。

$$C(x,t) = \frac{C_0}{2} \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x - \left(\frac{v}{R_f} \right) t}{2 \sqrt{\left(\frac{D}{R_f} \right) t}} \right\} \dots (3)$$

$$R_f = 1 + \frac{\rho_d}{\theta} K_d \dots (4)$$

ここで、C は敷土下部からの漏洩濃度、C₀ はずりからの As 溶出濃度、x は距離、v は浸透速度、R_f は遅延係数、D は分散係数、t は時間、ρ_d は乾燥密度、θ は体積含水率である。

表-5 に示す入力値（ずり厚 2.5m、敷土厚 0.5m）を用い、逐次溶出試験結果から実際の降雨浸透量を考慮し図-3 に示すようなずりからの As 浸透量を設定した。ここで、敷土厚は覆土厚をそのまま置き換えた場合を想定した。また、分配係数 K_d は吸着試験の最大濃度における吸着量から算定した値を採用した。

表-5 パラメータ入力値

パラメータ	入力値	
	床掘土	購入土
ずり層	層厚=2.5m θ=0.3	
敷土層	層厚=0.5m ρ _d =1.16g/cm ³ θ=0.2 K _d =271L/g D=0.1m ² /y	層厚=0.5m ρ _d =1.20g/cm ³ θ=0.2 K _d =261L/g D=0.1m ² /y
	有効降雨量 v=365mm/y	

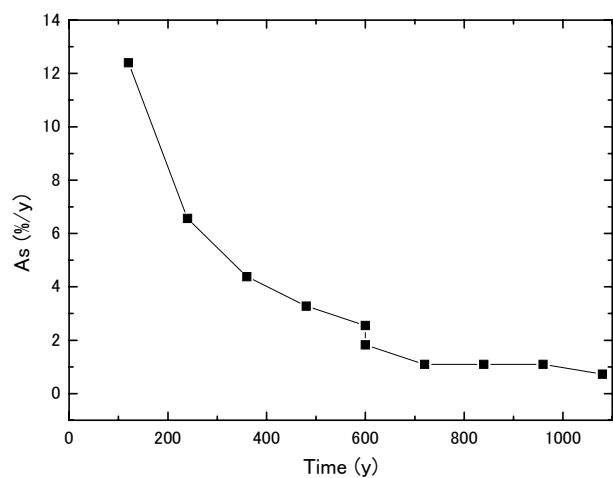
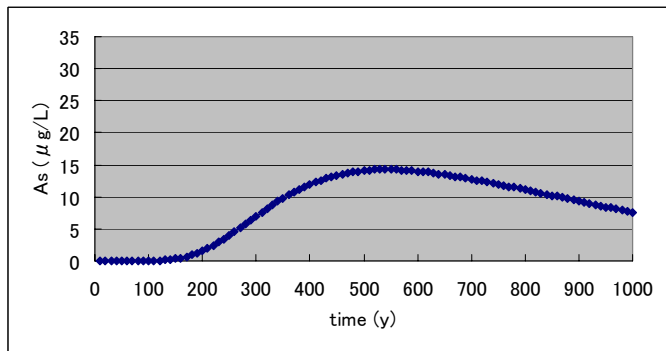
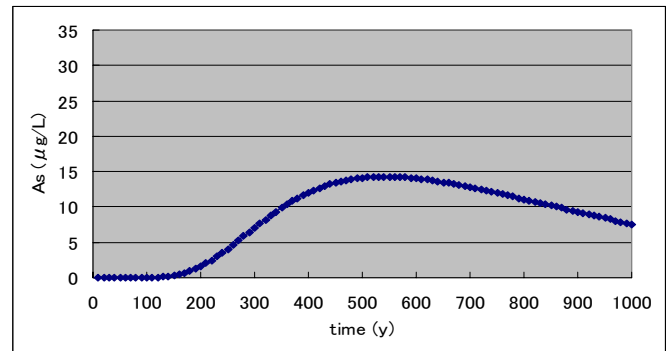


図-3 経年変化と砒素浸透率の関係

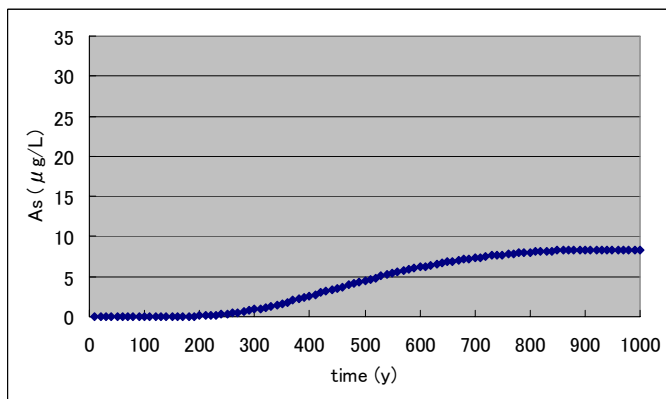


(1) 床掘土

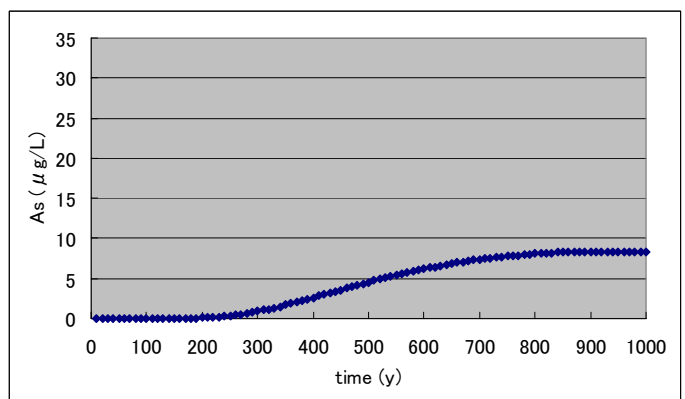


(2) 購入土

図-4 解析結果 (敷土厚 : 0.5m)



(1) 床掘土



(2) 購入土

図-5 解析結果 (敷土厚 : 1.0m)

これらを入力条件とした敷土底部からの As 漏洩解析結果を図-4 に示す。この図より、敷土厚 0.5m では床掘土及び購入土ともに、As の濃度低減効果は期待できるが、土壤溶出量基準値を超過した。そのため、敷土厚を 1.0m、分散係数を $0.3\text{m}^2/\text{y}$ に設定し、その他のパラメータは変更せずに再度解析を行った結果を図-5 に示す。この図より、十分な濃度低減が期待できる結果となった。いずれの場合も、細粒分を含む現地発生土を用いることにより As 漏洩濃度の低減が可能であり、As を含有する掘削ずりの処理対策の合理化を図ることができる。ただし、Kd を求めるための吸着試験は、大気条件下で行った試験であり、覆土を施した盛土内の酸素濃度は夏期には 5%以下の還元的环境下になる²⁾。今後、同環境下における As の溶出挙動及び吸着能を明らかにする必要があるものとする。

5. おわりに

覆土材料を重金属移行抑止層として敷土に用いた場合、その有効性を評価するために実施した吸着試験、逐次溶出試験及び敷土底部より漏洩する As の溶出・拡散評価を行った結果、以下のことが明らかとなった。

- ・覆土材料に使用した床掘土及び購入土は、As の吸着能を有し、ヘンリー式で仮定することにより表現が可能であった。
- ・細粒分を含む現地発生土を用いることにより As 漏洩濃度の低減が可能であったことから、現地発生土の吸着効果を利用した処理対策が有効であることが明らかとなった。

今後の課題として、還元環境下における As の溶出挙動及び吸着能を検討する予定である。なお、本実験は北海道大学、(独) 土木研究所寒地土木研究所の共同研究「自然由来の重金属による汚染岩石の地盤汚染対策工に関する研究」で行われたものである。

ここで、本実験にご協力頂いた関係各位に謝意を表す。

<参考文献>

- 1) (独) 土木研究所：建設工事で遭遇する地盤汚染対応マニュアル (暫定版)、土木研究所資料第 3903 号 2003.7.
- 2) 田本修一、伊東佳彦、日下部祐基、五十嵐敏文、渡邊歩、青木卓也：覆土による重金属汚染対策に関する現場実験、地盤工学会北海道支部第 47 回技術報告会、pp.247-250、2007.2.
- 3) Bear, Y.: Hydraulics of Groundwater, McGraw Hill, 1979.