

8.4 土壌・地下水汚染の管理・制御技術に関する研究

研究予算：運営費交付金（一般勘定）

研究期間：平 18～平 22

担当チーム：材料地盤研究グループ（土質）

研究担当者：小橋秀俊、榎谷有吾、吉田直人

【要旨】

本研究は土質材料の環境安全性を評価する技術を確立するとともに、土壌・地下水汚染の環境への影響を把握、制御することを目的として実施するものである。

本研究では、土質材料の環境安全性を評価する技術として、建設発生土中の有害物質が環境基準を超過する可能性を短時間で判定する簡易分析手法の現場適用性について検討した。また、土壌・地下水汚染の環境への影響把握・制御として、土壌の有害物質吸着特性について整理するとともに、科学的自然減衰を用いたダイオキシン汚染土の浄化処理技術について検討した。

キーワード：地盤汚染、簡易分析、科学的自然減衰

1. はじめに

平成 15 年 2 月に国民の安全と安心の確保を図るため、土壌汚染の状況の把握、土壌汚染による人の健康被害の防止に関する措置等を規定した「土壌汚染対策法」が施行された。その結果、土壌汚染問題への社会的な関心が高まり、より一層適切な汚染対策が求められることとなった。その一方で、汚染の対策には莫大な費用を要するため、汚染範囲の絞り込みや環境リスクの検討を行ない、より効率的な汚染対策を実施することが必要である。

また、平成 16 年度より建設発生土の公共工事土量調査と工事間利用調整が行なわれ、これまでより一層、建設発生土の再利用を図ることが求められている。しかしながら、建設発生土中に自然的原因による重金属類により、予期せぬ環境汚染を引き起こす事例が生じている。これは、土壌にはもともと微量ながら重金属類が含まれているためである。「土壌汚染対策法の施行について」（環水土第 20 号、平成 15 年 2 月 4 日）によると、自然的原因により土壌溶出量基準に適合しない特定有害物質として 8 種類が挙げられている。特定有害物質は基準を超過する原因が自然的原因であっても、搬入先での利用や現場内利用において、新たなリスクを引き起こさないようにする必要がある。

2. 研究の概要

2.1 土壌の有害物質吸着特性の把握

建設工事で発生する掘削ずり、建設発生土はその体積が大きいため環境基準を超過する場合、対策として掘削除去、不溶化処理を行うと対策費用が高くなり工

事に支障が生じる可能性がある。そのため、現在は道路盛土等に封じ込める対策がとられているが、封じ込め対策の場合、汚染の拡散対策を目的に設置する遮水シートが工事費増加の一因となっている。

一方で、自然的原因で環境基準を超過する項目のうち、最も基準を超過する事例が多いヒ素は、土壌への吸着効果が大きいので、敷土を行うことで汚染物質の拡散対策を行うことが出来ると期待される。しかしながら、土壌のヒ素の吸着効果の検討については、標準液を用いて検討したものがほとんどであり、自然的原因で環境基準を超過した試料から作成した溶液（以下、「自然由来溶液」という）を用いて検討した事例は少ない。そこで、本研究では自然由来溶液を用いてバッチ吸着試験を実施し、ヒ素の土壌吸着特性について検討した。

また、土壌の吸着特性を検討する際、通常現地の状態に近いカラム吸着試験によって有害物質の遅延性を推定する。しかし、カラム吸着試験は透水性の低い土壌では実施することが困難であるといった欠点がある。そこで、バッチ吸着試験から有害物質の遅延性を推定することの可能性について検討した。

2.2 簡易分析手法の現地適用性の検討

建設発生土の工事間の直接流用が困難な場合、建設発生土をストックヤードで一時的に集積・保管する。現在ストックヤードで土壌を受入れる際は特に検査等は実施していない。そのため工事現場において、環境基準値超過の可能性を調査していない限り、環境基準値を超過した土壌がストックヤードに混入する可能性がある。そこで、本研究では汚染の拡散を防ぐことを

目的に、ストックヤードにおける簡易分析法の適用性について検討した。

2.3 科学的自然減衰を用いたダイオキシン汚染土の浄化処理技術の検討

土木研究所土質チームではダイオキシン類汚染土の封じ込め工法として袋詰脱水処理工法¹⁾を開発し、実際に汚染現場において適用してきた。封じ込めた汚染土はリスク管理地として管理し、同時に微生物の浄化能力を有効に活用することを目的に、有害物質の生物化学的变化による無害化機能についても研究してきた²⁾。

本研究では、これらの研究成果を活かし、封じ込めた汚染土の更なるリスク低減を目的に、微生物のダイオキシン類分解能力を利用した長期的なリスク低減技術について検討した。

3. 研究方法および成果

3.1 土壌の有害物質吸着特性の把握

3.1.1 土壌のヒ素吸着特性の検討

ヒ素の由来が異なる溶液を用いて、土壌のヒ素吸着能力について検討するため、以下に示す方法で実験を行った。

1) 環境庁告示 46 号に準じ、自然的原因によりヒ素を含む土壌試料からヒ素を溶出させ、実験溶液を作製した(一部試料は固液比を変更して行った)。また、由来の違いによるヒ素の土壌吸着効果を検討するために、標準液(KH_2AsO_4)で溶液(以下「人工溶液」という)を作製した。

2) 作製した溶液 500ml に吸着土を 50g 入れ、振とう機で 24 時間振とうした(振とう回数:200 回/分、振とう幅:4~5cm)。

3) 振とう終了後、遠心分離(3000rpm、20 分)を行い、 $0.45\ \mu\text{m}$ のメンブレンフィルターで溶液をろ過し、各種物質の濃度を測定し、吸着土への吸着率を求めた。

吸着土の特性を表-1 に、ヒ素を含む土壌試料の由来ならびに溶出試験条件を表-2 に示す。

表-1 吸着土の特性

試料名	山砂	関東ローム	硅砂	黒土
産地	銚田市	成田市	豊浦硅砂	園芸用
土の 粒度 分布	礫分(%)	0.4	0	1
	砂分(%)	83.9	11.5	99.9
	シルト分(%)	9.2	54.1	0.1
	粘土分(%)	6.5	34.4	-
含水比(%)	15	48	<0.1	58
強熱減量(%)	3.0	12	0.3	34
土粒子密度(g/cm^3)	2.687	2.770	2.640	2.303
有機物含有量(%)	0.01	0.51	0.01	10

表-2 土壌試料の由来ならびに溶出試験条件

試料番号	産地	産状	固液比	
自然 溶液	A	北海道	溶結凝灰岩	1:5
	B	山梨	鉱脈	1:10
	C	群馬	山土(表土)	1:10
	D	北海道	トンネル掘削ずり	1:10
	E	北海道	トンネル掘削ずり	1:10
	F	北海道	トンネル掘削ずり	1:10
	G	北海道	トンネル掘削ずり	1:10
	H	北海道	トンネル掘削ずり	1:10
	I	北海道	トンネル掘削ずり	1:5 1:10
	J	北海道	トンネル掘削ずり	1:10
	K	北海道	トンネル掘削ずり	1:10
	L	北海道	砂岩	1:10
人口 溶液	M	KH_2AsO_4	-	-
	N	KH_2AsO_4	-	-
	O	KH_2AsO_4	-	-

溶液濃度と土壌へのヒ素吸着量の関係を図-1 に示す。山砂、関東ローム、黒土で非常に高いヒ素吸着率が認められた。一方、硅砂ではヒ素の吸着率が低く、ほとんど吸着されない溶液も確認された。硅砂のヒ素吸着率が低い原因として、硅砂の粒子が大きく、有機物や粘土鉱物が非常に少ない土壤であることが考えられる。また、一般に砂質である硅砂は多孔質にはなっておらず、表面積が小さいため、吸着能が低いことが考えられる。さらに、他の土壤に比べアルミニウム(2800mg/L)や鉄(1800mg/L)が高く、陰イオンが低い傾向があった。このことから、他の金属イオンが高濃度に存在するため、電気的吸着ではヒ素以外の元素が先に吸着し、ヒ素は吸着せずに溶液中に存在したことも考えられる。

自然由来溶液と人工溶液の吸着率の違いは、山砂、関東ローム、黒土では確認できず、硅砂においては自然由来溶液が人工溶液よりも吸着率が低い傾向がみられた。

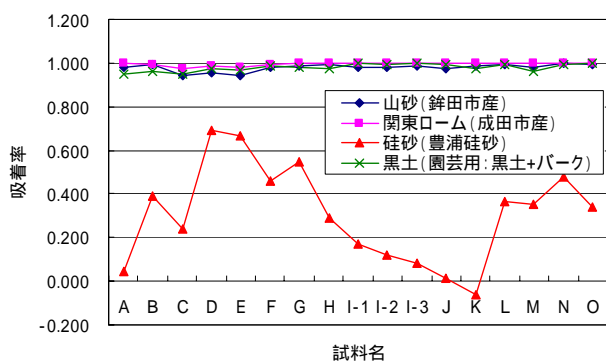


図-1 ヒ素の土壌吸着率

図-2 に実験前後の水溶性のヒ素の存在状態を Eh-pH 図上に示す。平行な破線の間が水の安定領域である。ヒ素は一般の環境下では、3 価と 5 価が主要な価数であるが、本実験ではすべてのケースで 5 価の状態であった。また、溶液が中性付近のものがほとんどだったこともあり、実験の前後で pH の変動は小さかったが、弱酸性と弱アルカリ性の溶液はそれぞれ中性域へ移行した。Eh は実験後に上昇する傾向がみられた。また、溶液由来の違いによる特性は確認されなかった。

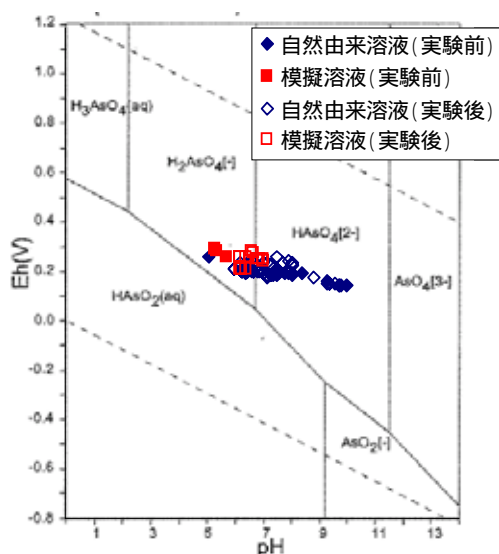


図-2 Eh-pH 図 (竹野(2005)³⁾ に加筆)

3.1.2 バッチ吸着試験による有害物質の遅延性の推定

実験は、人工溶液を用いて、バッチ吸着試験、カラム吸着試験を実施した。吸着土は、表-3 に示す山砂、川砂を用いた。

バッチ吸着試験とカラム吸着試験から求めた遅延係数について比較した。結果を表-4 に示す。バッチ吸

着試験による遅延係数は、初期濃度と平衡液相濃度を推定し、Freundlich 型吸着等温式に代入することにより求めた。バッチ吸着試験から求めた遅延係数はカラム吸着試験による遅延係数とほぼ同程度の値となった。

表-3 吸着土の特性

試料名		山砂	川砂
土粒子の密度 s (g/cm^3)		2.686	2.701
土の含水比 w (%)		16.5	6.9
土の粒度分布	礫分 (%)	1.6	3.5
	砂分 (%)	75.8	83.0
	シルト分 (%)	17.6	10.3
	粘土分 (%)	5.0	3.2
最大粒径		8.1	8.5
土の pH		2.8	1.4
強熱減量 (%)		<0.1	<0.1
有機物含有量 (%)		8.5	4.8

表-4 バッチ吸着試験とカラム吸着試験の結果

試験種類	バッチ吸着試験			
	山砂			
土壌				
固液比	1:5	1:10	1:20	1:50
遅延係数	13.04	7.04	6.34	6.37
試験種類	バッチ吸着試験			
	川砂			
土壌				
固液比	1:5	1:10	1:20	1:50
遅延係数	9.77	5.97	5.93	4.29
試験種類	カラム吸着試験			
	山砂		川砂	
土壌				
固液比	1:5.3	1:5.3	1:5.5	1:5.5
遅延係数	8.57	10.6	5.38	6.16

3.2 簡易分析手法の現地適用性の検討

3.2.1 簡易分析適用の流れ

ストックヤードでは同一地域からの土壌の搬入がほとんどであるため、土壌の構成成分は一定の範囲にあると考えられる。そこで、ストックヤードに搬入される建設発生土を蛍光 X 線分析や各種簡易分析を用いて管理する方法を提案した。管理フローを図-3 に示す。

初めにストックヤードに搬入される土壌について溶出試験および蛍光 X 線分析を実施し、通常当該ストックヤードで取り扱われる土壌成分の範囲を把握し、成分ごとに「環境基準値超過の可能性が少ない土壌」の管理幅を設定したデータベースを作成した。

ストックヤードの土壌と、環境基準値の超過している土壌を作成したデータベースに照合し、データベース(全 13 成分)の管理幅を超える成分が一定成分数以上ある土を「環境基準値超過の可能性のある土壌」とし、その場合は、簡易溶出試験を実施することとした。

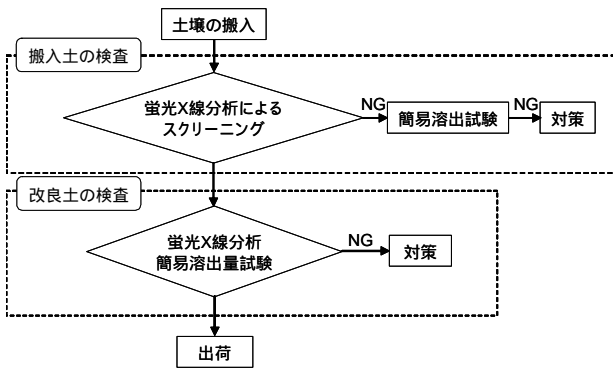


図-3 ストックヤードにおける建設発生土管理フロー

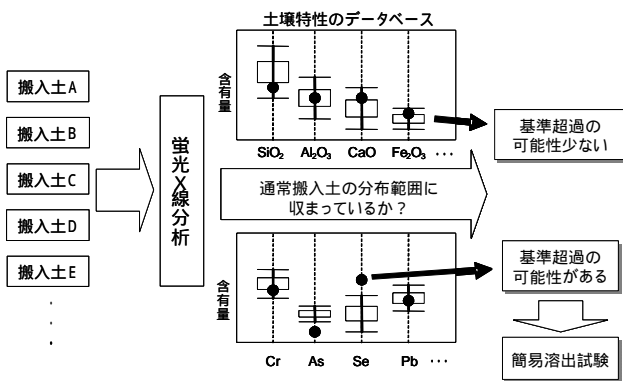


図-4 データベースを用いた簡易分析手法

3.2.2 適用事例

愛知県のストックヤードにおいて実際に簡易分析を適用した。適用に際し、事前に地域特性を考慮した土壌特性を把握するため、各建設現場よりストックヤードに搬入された発生土について、蛍光X線分析および公定法や簡易溶出試験による分析を実施し、その結果をもとに当該ストックヤードで成分ごとの管理幅を設定したデータベースを作成した。

次に、作成したデータベースに新たにストックヤードへ搬入された発生土 116 検体と、全国調査により得られたヒ素または鉛が環境基準値を超えている土壌 69 検体を照合した。その結果得られたデータベースの管理幅から逸脱している成分(以下、「はずれ成分」という)の個数と管理外サンプル数の割合を、図-5 に示す。

はずれ成分が 4 成分以上の土壌を「環境基準値の超過の可能性がある土」と設定した場合、ストックヤードの土壌の管理外サンプルの個数は約 4%の割合で「環境基準値超過の可能性がある土」という判定結果が得られ、全国調査により得られたヒ素または鉛が環境基準値を超えている土壌の管理外サンプルの割合は、約 93%が「環境基準値超過の可能性がある土」という

判定結果が得られ、効率的に「環境基準値の超過の可能性がある土壌」を判別することが出来る。このため、はずれ成分数が 4 個以上の土壌を管理値と設定した。

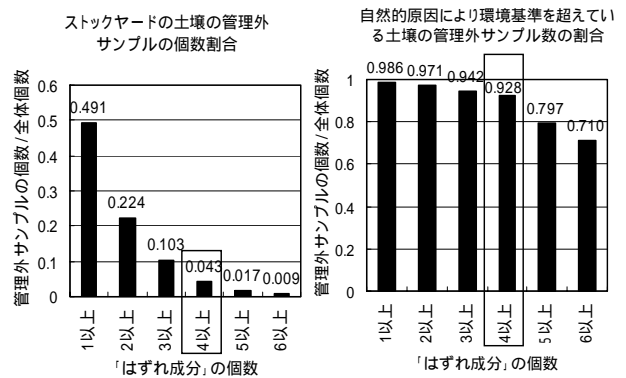


図-5 はずれ成分個数の管理値の設定

本管理方法を適用した結果を図-6 に示す。実際にストックヤードに搬入された発生土 71 検体に対して簡易分析を実施したところ、7 検体が「環境基準値超過の可能性がある土」とされた。これらの 7 検体については、当該地域で自然的原因により環境基準を超過する可能性があると考えられる鉛とヒ素について ICP-MS、検出管等による溶出試験を実施し、環境基準値以下であることを確認した。

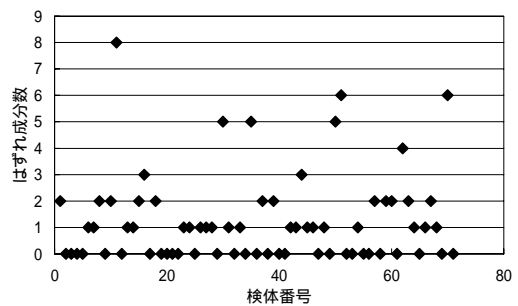


図-6 搬入土のスクリーニング結果

3.3 科学的自然減衰を用いたダイオキシン汚染土の浄化処理技術の検討

3.3.1 実験の流れ

表-5 に示すダイオキシン汚染土を、ポンプ充填に適した流動条件となるフロー値 (200 程度) が得られる含水比となるまで加水した。その汚染土に微生物源としてグラニユール (w=1816.2%, pH=7.24) 蓮田にて採取した土壌 (以下、蓮田土壌とする) (w=192.9%, pH=6.75) ならびに微生物活性剤を、栄養塩として酢酸を表-6 に示す条件で混合し、袋に充填した。充填後は微生物の活動を促進させることを目的に、土壌温度

が20程度となるよう養生した。

ダイオキシン類の分解が期待される微生物としては *Dehalococcoides* 属に着目した。*Dehalococcoides* 属は既往の研究により嫌気性環境下において、ダイオキシン類(PCDDs)の脱塩素能を持つことが確認されている²⁾。土壌の化学的性質を示すパラメータとしてpH、微生物がダイオキシン類分解の関与を詳細に検討することを目的として、PCR-DGGE法(土壌からDNAを抽出し、微生物群集の構造を比較する手法)によるバンドパターンの比較および多様性指数より、微生物のダイオキシン類分解ポテンシャルについて調査した。なお、微生物解析は袋体からサンプリングした試料および充填試料を試験管内で養生した試料で行った。

表-5 汚染土の性状

試料名		S	N
土粒子の密度 s (g/cm ³)		2.932	2.618
自然含水比Wn (%)		63.2	36.4
粒度	礫分 (%)	24	21
	砂分 (%)	41	36
	シルト分 (%)	17	25
	粘土分 (%)	18	18
	最大粒径	9.5	19
土のpH		7.8	7.6
有機物含有量 (%)		3.4	1.4
有機体炭素 (mg/l)		7.3	14
酸化還元電位 (mV)		177	170
ダイオキシン類 (pg-TEQ/g) (加水後)		790	35,000

表-6 袋への充填材料

袋内への 充填試料 (l)	実験ケース			
	1	2	3	
汚染土試料	S		N	
	40	40	30	
微生物	グラニューール	1.82	0.91	1.36
	蓮田土壌	1.82	1.82	1.36
	微生物活性化剤	-	1.82	-
	栄養塩(酢酸)	1.82	0.91	1.36
合計	45.46	45.46	34.08	
初期含水比(%)	120.4	120.6	96.1	

3.3.2 実験結果

土壌 pH の測定結果を図-7 に示す。実験ケース 1 および 2 では培養日数の増加に伴い pH が上昇する傾向が認められた。特に実験ケース 2 では培養開始から 1 ヶ月程度で pH=8.0 を超える傾向が認められた。逆に、実験ケース 3 では安定して pH=5.0 付近を維持した。汚染土の由来により pH の変動傾向が異なることから、土壌そのものに含まれる成分の影響によるものと考えられる。

ダイオキシン類の分解が期待される微生物として着目した *Dehalococcoides* 属を定量 PCR 法によりカウン

トした結果を図-8 に示す。実験ケース 3 では培養開始初期から 84 日にかけて安定的に *Dehalococcoides* 属が検出された。しかしながら、*Dehalococcoides* 属としては最大でも 1.0E+03cells/mg 程度であり、ダイオキシン類の分解に関する寄与はそれほど高くないと考えられる。実験ケース 1 については培養開始から 1 ヶ月程度にかけて *Dehalococcoides* 属の増殖が認められるものの、その後 84 日にかけて定量下限値以下までの減少が認められた。また、実験ケース 2 については培養開始後 14 日および 84 日に 1.0e+02cells/mg で検出されるものの、それ以外は定量下限値以下であった。以上より、実験ケース 3 については *Dehalococcoides* 属の生育を維持できる環境であることが認められたものの、実験ケース 1 および 2 については生育を促進する補助工法の適用についても検討が必要であると考えられる。

また、図-9 に示すように、実験ケース 3 に関しては培養日数の増加に伴い、微生物の多様性指数の増加が認められた。実験ケース 1 については初期に示した高い多様性が 56 日にかけて低下し、その後 84 日にかけて増加が認められた。実験ケース 2 については培養日数の増加に伴い多様性が低下する傾向が認められた。ダイオキシン類濃度との相関は明らかでないが、実験ケース 1 および実験ケース 3 について多様性の増加に伴う分解ポテンシャルの向上が期待できる結果となった。

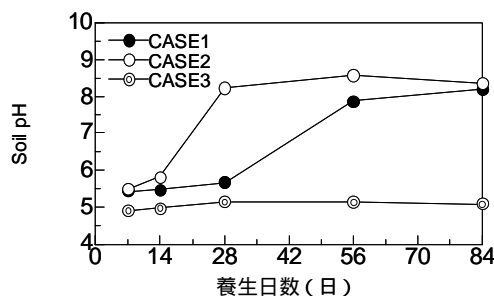


図-7 養生日数と土壌pHの推移

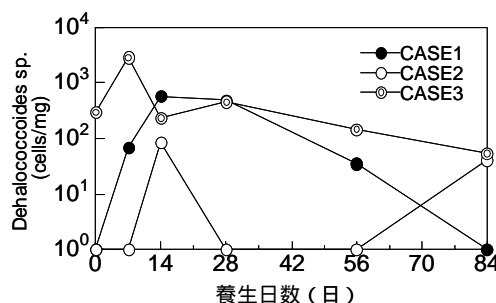


図-8 養生日数と*Dehalococcoides*属の推移

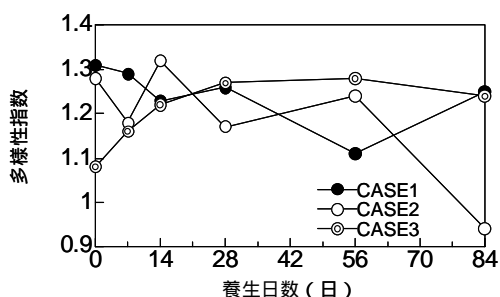


図-9 養生日数と微生物の多様性指数の推移

4. まとめ

- 1) 土壌の有害物質吸着特性の把握については、以下の成果が得られた。
 - ・山砂、関東ローム、黒土はヒ素の吸着率が高いが硅砂は低い。
 - ・硅砂は人工溶液のほうが吸着率が高い傾向がみられた。吸着層を考慮した汚染対策を考える際には、吸着土壌と汚染由来についての評価が必要になると考えられる。
 - ・バッチ吸着試験から求めた遅延係数と、カラム吸着試験から求めた遅延係数の値は、ほぼ同程度となり、バッチ吸着試験により有害物質の遅延性を推定できる可能性が示唆された。
- 2) 簡易分析手法の現地適用性の検討について以下の成果が得られた。
 - ・ストックヤードに搬入される土壌を、簡易分析手法を用いて環境基準超過土壌の拡散を防ぐ方法を提案した。実際にストックヤードで適用し、71 検体中7 検体の「環境基準値の超過の可能性のある土」を抽出できた。
 - ・今後、「環境基準値の超過の可能性のある土」を抽出し、環境基準値以下であることを確認した場合、データベースの管理幅を修正し、簡易分析手法の精度を高めることができると考えられる。
- 3) 科学的自然減衰を用いたダイオキシン汚染土の浄化処理技術の検討について以下の成果が得られた。
 - ・グラニユールや蓮田の土壌を微生物源として混入することで、ダイオキシン類の浄化に有効とされている *Dehalococcoides* 属の存在が確認された。
 - ・今後はさらに微生物が活性化する条件を検討していく必要がある。

参考文献

- 1) 独立行政法人土木研究所：袋詰脱水処理工法による高含水比ダイオキシン類汚染底質・土壌封じ込めマニュアル（案）、土木研究所資料第 3902 号、2003
- 2) 島俊郎、栗栖太、矢木修身、森啓年、桑野玲子、小橋秀俊：ダイオキシン類汚染土壌を対象とした微生物群集解析、第 10 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会、pp740-743、2004
- 3) 竹野直人：Eh-pH 図アトラス熱力学データベースの相互比較、地質調査総合センター研究資料集 No.419

RESEARCH ON MANAGEMENT METHOD OF GROUND POLLUTION

Abstract: There occasionally exist soil and groundwater contamination in construction sites. The aim of this study is to establish the management method of ground pollution by evaluating the exudation of heavy metals from contaminated soil.

In this research, the site applicability of the technique for judging the possibility that the poisonous substance exists in the construction generation soil in a short time was examined as a technology which evaluated environmental safety of the nature of soil material.

Moreover, the poisonous substance adsorption characteristic of the soil was examined, and the purification processing technology of the dioxin contamination soil which used a natural attenuation was examined.

Key words: ground pollution, leaching test, natural attenuation