

8.6 自然的原因による重金属汚染の対策技術の開発（２）

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：防災地質チーム

研究担当者：伊東佳彦、日下部祐基、岡崎健治、
田本修一

【要旨】

建設工事において遭遇する自然的原因による重金属に対しては、平成 15 年 9 月に刊行された「建設工事で遭遇する地盤汚染対応マニュアル(暫定版)」¹⁾に準拠して評価・対策が実施されている。しかし、同マニュアルは平成 15 年 2 月に施行された土壌汚染対策法に準拠しており、同法は本来、自然的原因による岩石ズリ中の有害重金属は対象外としており、より合理的な評価・対策法が求められている。特に北海道では近年、建設工事において有害重金属や酸性水の流出が発生する事例が確認されており、施工上あるいは事業費上の課題となっている。

本研究ではこのようなことを背景に、合理的な重金属の評価・対策法の技術開発を目的として、汚染リスクの高い地質環境の調査法の提案、汚染リスクの簡易判定手法の開発、および自然的原因による重金属を含む岩石ズリの対策・処理方法の構築などの調査研究を、平成 18 年度から 22 年の 5 カ年にわたり行うものである。平成 18～19 年度は、汚染リスクの高い地質環境の調査法の提案の一環として、北海道における重金属の分布状況を重金属 GIS マップとして取りまとめた。また、汚染リスクの簡易判定手法開発の一環として、粒径分布に応じた重金属溶出量評価法の検討を実施した。さらに対策・処理方法の提案の一環として、覆土処理工法について検討した。

キーワード：掘削ずり、重金属、汚染リスク、溶出試験

1．はじめに

北海道には海成堆積岩類や熱水変質岩等の分布域を中心に、建設工事の際に有害重金属や酸性水の流出が発生する事例が報告されており、施工上あるいは事業費上の課題となっている。建設工事において遭遇する重金属に対しては、平成 15 年 9 月に刊行された「建設工事で遭遇する地盤汚染対応マニュアル(暫定版)」¹⁾に準拠して評価・対策が実施されている。しかし、同マニュアルは平成 15 年 5 月に施行された土壌汚染対策法に準拠しており、同法は本来自然的原因による岩石ズリ中の有害重金属は対象外としているため、より合理的な評価・対策法が求められている。

本研究は、自然由来重金属を含む岩石を合理的に評価し対策を行う技術を開発することを目的に、平成 18 年度～22 年度の 5 カ年にかけて重点的に調査研究を行うものである。重点プロジェクトの初～2 年次（平成 18～19 年度）の研究成果の概要について以下に報告する。

2．年次計画と研究方法

本研究の年次計画を表 - 1 に示す。18～19 年度は、汚染リスクの高い地質環境の調査法の提案、汚染リスクの簡易判定手法の開発、および対策・処理方法の提案の 3 つの項目について研究を実施した。各項目の研

表 - 1 年次計画

	18 年度	19 年度	20 年度	21 年度	22 年度
汚染リスクの高い地質環境の調査法の提案	○	○			
汚染リスクの簡易判定手法の開発	○	○	○	○	○
対策・処理方法の提案	○	○	○	○	○
とりまとめ					○

究方法は以下の通りである。

２．１ 汚染リスクの高い地質環境の調査法の提案

北海道内における汚染リスクの分布状況を詳細に把握し建設工事実施の際の基礎資料とするため、北海道における重金属 GIS マップを作成した。同マップは、つくば中央研究所が平成 16 年度に構築したデータベースを基礎に既存資料^{2) 3) 4) 5)}のデータを加え、GIS ソフトウェア上で(独)産業技術総合研究所発行の 1/20 万のシームレス地質図（許諾番号：第 63500 A 20060601-001 号）と重ね合わせて、とりまとめている。

２．２ 汚染リスクの簡易判定手法の開発

2.2.1 粒径分布に応じた重金属溶出量評価法の検討

(1) 試料

分析試料の最大粒径や粒径分布等が重金属の溶出量に与える影響を確認するため、同一試料を対象に粒度試験、および最大粒径を変えた溶出試験を実施した。また、鉱物組成や重金属含有量との関係を検討するため偏光顕微鏡観察および含有量試験を実施した。試験に供したのは、北海道内におけるトンネル及び切土現場で発生した新鮮な岩石 10 試料である。試料の概要を表 - 2 に示す。7 試料が火山岩・火砕岩類で、3 試料は堆積岩類である。粒径調整には 2mm、10mm、37.5mm ふるいを用い、各ふるい通過分を試験に供した。含有量試験は日本工業規格に準じて T-S、昭和 46 年環境庁告示第 59 号の底質調査方法に準じて As、Pb、Se、Cd、T-Hg、T-Cr 及び Fe の分析を行った。

(2) 分析方法

溶出環境による岩石からの重金属溶出特性を把握するため、表 - 3 に示す各条件の溶出試験を行った。46 号試験は、試料粒径以外について平成 3 年環境庁告示第 46 号の付表に準じた。長期溶出試験は、平成 13 年 4 月 23 日付け国官技第 18 号通達による「セメント及びセメント系固化材を使用した改良土の六価クロム溶出試験実施要領（案）」に準じた。異なる項目について以下に述べる。固液比 1:10 の割合で純水 10 リットルに試料を水中に没するように水浸させ、密封後、20 恒温槽にて静置した。採水の際には軽く攪拌して 200ml 採水し、0.45 μm メンブランフィルターで濾過し検液とした。採水は 1、7、28、56、100 及び 200 日経過時の 6 回実施した。検液の分析は日本工業規格に準じて溶出液の pH 及び電気伝導度(EC)を測定し、溶出液中の As、Pb、Se、Cd、T-Hg、Cr⁶⁺、SO₄²⁻、SiO₂ 及び Fe を分析した。

2.2.2 酸性化する試料の重金属溶出量評価法の検討

(1) 試料

溶出試験において溶出水の pH が酸性になる試料を選定する目的で、予備試験を行った。試料の選定条件としては、地盤工学会基準 JGS 0211-2000「土懸濁液の pH 試験方法」に示される溶媒に蒸留水を用いた pH 試験で酸性を示し、かつ同試験方法に参考で示されている 30%過酸化水素水による pH 試験で概ね pH が 3 以下を示すもの、また試料が均質で酸性の変質及び珪化変質を被ったものとした。予備試験の条件に該当し、試験に供した試料の概要を表 - 4 に、含有量試験結果を表 - 5 に示す。試験に供した試料は、北海道内に分布する火山岩及び火砕岩でいずれも露頭より採取した 4 試料である。試料の粒径調整は、2mm、37.5mm ふるいを用い、各ふるい通過分を試験に供した。

(2) 分析方法

表 - 6 に示す各条件の溶出試験を行った。表中の 46 号試験及び長期溶出試験方法は、2.2.1(2)で述べた方法と同様である。

希硫酸溶出試験は、試料粒径及び溶媒以外について、平成 3 年環境庁告示第 46 号の付表に準じた。強制酸化試験の試験方法は、試料粒径以外について（社）地盤工学会の「土質試験の方法と解説，第一回改訂版」に準じて溶出操作を行い、反応後の上澄み液を採水し、0.45 μm メンブランフィルターで濾過し検液とした。検液の分析は、日本工業規格に準じて溶出液の pH 及び電気伝導度(EC)を測定し、溶出液中の As、Pb、Se、Cd、T-Hg、Cr⁶⁺、SO₄²⁻、Na、K、Mg、Cl、Ca、Fe 及びアルカリ度を分析した。

表—２ 粒径分布に応じた重金属溶出量評価に用いた試料の概要

記号	岩種	備考
LT1	火山礫凝灰岩	灰白色の基質に径 1cm 以下の変質した角礫が散在。岩片の多くは灰白色だが一部褐色、黒色を呈する。
LT2	火山礫凝灰岩	暗灰色に強変質しており、灰白色の微細鉱物（明礬石等）と微細な黄鉄鉱を多量に生ずる。
LT3	火山礫凝灰岩	帯緑灰色、灰白色、褐色などに変質した大小の火山岩片を含む。基質は褐色。
A T	酸性凝灰岩	帯緑灰色の片状細粒緻密岩
H A	角閃石安山岩	変質した斑状の安山岩。斜長石や輝石の粗粒斑晶を多数含むが、暗灰色～黄褐色に変質している。
W T	熔結凝灰岩	径 8cm 以下の変質した火山岩角礫を多数含む。基質は暗灰色を呈し、微細な黄鉄鉱を多数含む。
D R	粗粒玄武岩	帯緑灰色に変質。発泡痕が散在するが、緑泥石が充填
M S	泥岩	黒色緻密で弱い層理が認められる。
S L	粘板岩	黒色泥質で片理が発達。微小褶曲顕著。
W S	中粒砂岩	暗灰色ワッケ質で、変形作用を受けている。灰白色の鉱物脈がネットワーク状に発達。

表 - 3 粒度分布に関する溶出試験の概要

試験方法	溶出条件	試料の最大粒径	試料
46号試験	固液比 1:10 6時間振とう	2,9.5,37.5 mm	LT1,LT2,LT3,AT,HA, WT,DR,MS,SL,WS
長期溶出試験	固液比 1:10 室内で最大 200日静置	2,37.5mm	LT2,HA,WT,DR,MS, SL,WS

表 - 4 酸性化する試料の概要

記号	変質、岩種等	備考	pH (H ₂ O)	pH (H ₂ O ₂)
AN1	酸性変質(白色 粘土化)、安山岩 溶岩	露岩部の岩 相は均質、 硫化鉱物含 む。比較的 硬質。	2.9	2
AN2	中性変質(青灰 色粘土化)、安山 岩溶岩	露岩部の岩 相は均質、 硫化鉱物含 む。軟質でス メクタイトを 含むものと考え られる。	4.1	2.6
TB1	酸性変質(白色 粘土化)、安山岩 質凝灰角礫岩	露岩部の岩 相は均質、 硫化鉱物含 む。比較的 硬質。	2.8	2
TB2	酸性変質(白色粘 土化) 安山岩質凝灰角 礫岩	露岩部の岩 相は比較的 均質、硫化 鉱物含む。	4.2	2

表 - 5 酸性化する試料の重金属の含有量等

項目	単位	基準値	AN1	AN2	TB1	TB2
カドミウム	mg/kg	150	0.14	0.38	0.07	0.25
鉛	mg/kg	150	28.9	11.0	6.8	11.0
ヒ素	mg/kg	150	13.1	60.1	8.4	7.3
鉄	%		3.45	13.0	3.25	3.09
総水銀	mg/kg	15	0.02	3.18	0.10	0.14
総クロム	mg/kg	250	35.2	16.1	53.9	38.3
セレン	mg/kg	150	0.8	<0.1	3.1	0.3
総硫黄	%	0.4 ²	2.06	0.352	2.52	0.826
カルシウム	%		0.08	0.26	0.05	0.12
含水率	%		2.8	4.5	8.1	9.3
強熱減量	%		1.7	9.0	2.6	2.4
カルシウムはCaOとして						
2.酸性水の有無						

表 - 6 酸性化する試料に関する溶出試験の概要

試験名称	溶出条件	試料の最大粒径	適用試料
46号試験	固液比 1:10, 6時間振とう	2, 37.5mm	LT2, AN1, AN2, TB1, TB2
希硫酸溶出試験	固液比 1:10, 6時間振とう, 溶媒: pH2 H ₂ SO ₄ 溶液	2, 37.5mm	LT2, AN1, AN2, TB1, TB2
強制酸化試験	固液比 1:10, 溶媒: 30% H ₂ O ₂ 溶液	2, 37.5mm	LT2, AN1, AN2, TB1, TB2
長期溶出試験	固液比 1:10, 室内で最大200日間静置	2, 37.5mm	LT2, AN1, AN2, TB1, TB2

2.2.3 長期汚染リスクを考慮した重金属溶出量評価 フローの検討

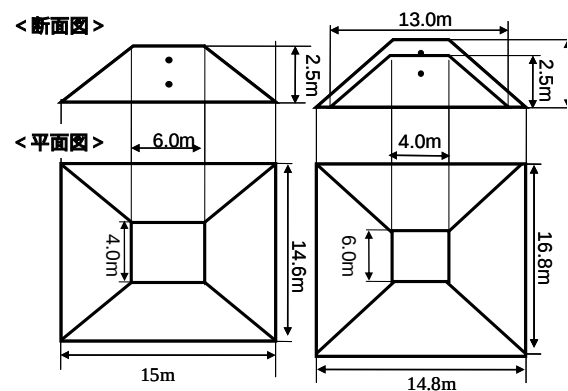
2.2.1 及び 2.2.2 の結果を基に長期汚染リスクを考慮した重金属溶出量評価フローの検討を行った。

2.3 対策・処理方法の提案

2.3.1 覆土処理工法の検討

(1) 現場実験

現地発生土等の覆土によるヒ素の溶出抑制効果を検討するため、北海道開発局旭川開発建設部管内一般国道450号旭川紋別自動車道上川町中越地区において、覆土による重金属汚染対策工法に関する現場実験を行った。実験期間は平成17年12月～19年7月である。実験の盛土形状を図-1に、計測機器設置位置を図-2にそれぞれ示す。また、実験ケース一覧を表-7に、Asを含有する発生土(粘板岩)の蛍光X線分析結果及び溶出試験結果を表-8に示す。盛土は13～16.8m四方で、高さ2.5～3.0mのものを複数の異なる材料で覆土することによって合計4基築造した。覆土の厚さは0.5mである。盛土内の測定項目は土中水分量(体積含水率)、地温、酸素濃度であり、各計測機器



a) ケース1 b) ケース2・3・4

図 - 1 盛土の形状

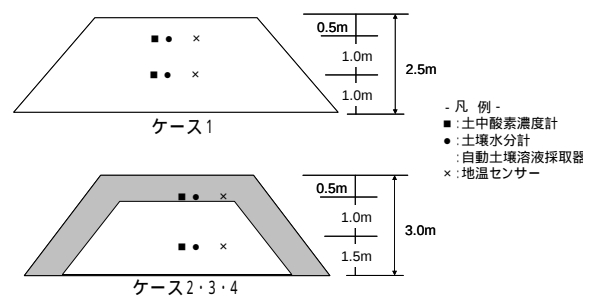


図 - 2 計測機器の設置位置

8.6 自然的原因による重金属汚染の 対策技術の開発（２）

は全ケースに対して盛土天端から 0.5m、1.5m の深度で埋設した。実験期間中の盛土内間隙水を分析するため、計測機器と同深度に土壤溶液採取器を全ケースに設置した。また、盛土底部からの浸出水を採水するため、集水容器を設置した。採水したヒ素の分析方法は、水素化物発生プラズマ発光分析法（ICP-AES 法）である。なお、盛土底部からのヒ素流出拡散防止のため、底部には二重の遮水シートを敷設した。

表 - 7 実験ケース一覧表

ケース	1	2	3	4
路体材料	掘削ずり(粘板岩)	掘削ずり(粘板岩)	掘削ずり(粘板岩)	掘削ずり(粘板岩)
覆土材料	-	床堀土	購入土	購入土 + 3%ウッドチップ
路体乾燥密度	1.99g/cm ³	1.99g/cm ³	1.99g/cm ³	1.99g/cm ³
覆土乾燥密度	-	1.19g/cm ³	1.52g/cm ³	1.44g/cm ³
路体透水係数 k	3.22×10^{-2} cm/s	3.22×10^{-2} cm/s	3.22×10^{-2} cm/s	3.22×10^{-2} cm/s
覆土透水係数 k	-	2.11×10^{-4} cm/s	9.06×10^{-4} cm/s	7.63×10^{-4} cm/s

表 - 8 蛍光 X 線分析結果及び溶出試験結果

試料	掘削ずり (粘板岩)
ヒ素	(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
ヒ素溶出量	(mg/L) 0.011
pH	- 8.3
振とう速度: 120rpm	

(2) 室内試験

覆土を施した盛土底部からのヒ素溶出拡散評価のため、現場実験で用いた試料を使いバッチ式吸着試験及び逐次溶出試験を行った。試験に用いた試料の物理特性一覧表を表 - 9 に示す。

バッチ式吸着試験は、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。各溶媒に床堀土、購入土を固液比 1:10 となるよう投入し、4 時間振とう後、0.45μm メンブレンフィルターによって固液分離を行い、ろ液中のヒ素を分析した。ヒ素分析は水素化物発生 ICP-AES 法を用いた。吸着前後のヒ素濃度変化から各試料への吸着量を求めた。

逐次溶出試験は、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、0.45μm 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 150mL を加え溶出試験を 10 回繰り返し行った。ろ液中の分析対象とした項目はヒ素である。ヒ素分析は、水素化物発生 ICP-AES 法を用いた。

表 - 9 各試料の物理特性

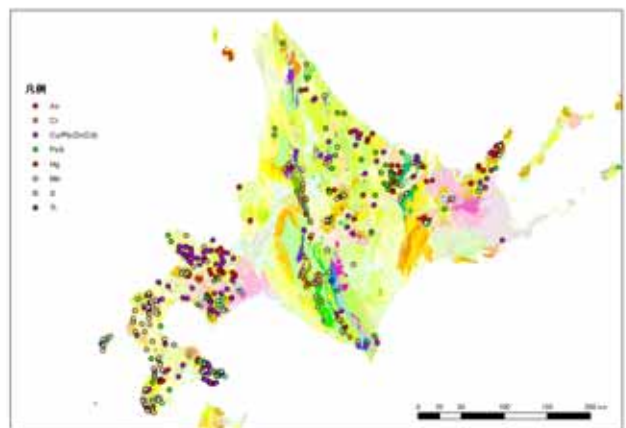
試料名	床堀土	購入土	掘削ずり (粘板岩)
自然含水比 Wn(%)	25.9	26.1	15.4
風乾試料含水比 Wdry(%)	15.0	8.8	-
土粒子の密度 ρ_s (g/cm ³)	2.649	2.615	2.751
平均粒径 D ₅₀ (mm)	0.0939	0.488	6.64
均等係数 U _c	164.4	150.4	917.4
細粒分含有率 F _c (%)	47.4	21.6	14.3
地盤材料の分類	SCs	SCsG	GS-Cs

3. 研究結果

3.1 北海道における重金属 GIS マップの作成

北海道における重金属 GIS マップを図 - 3 に示す。つくば中央研究所が作成したデータベースの 149 箇所に 518 箇所を追加し、合計 667 箇所となっている。

鉱床と母岩の地質との対応を見るため母岩の地質と鉱床タイプと対比した。地質区分名と記号を表 - 10 に示す。区分方法は、(独)産業技術総合研究所提案の全国統一凡例⁶⁾を用いた。鉱床区分毎に該当した地質区分の割合の例を図 - 4 に示す。



許諾番号: 第 63500 A 20060601 - 001 号

図 - 3 北海道のシームレス地質図と鉱山・鉱床位置

表 - 10 地質区分と記号

記号	大区名
Qs	第四紀堆積岩類
Ns	新第三紀堆積岩類
Ps	古第三紀堆積岩類
Ms	中生代以前の堆積岩類
Qv	第四紀火山岩類
Nv	新第三紀火山岩類
Pv	古第三紀火山岩類
Mv	中生代以前の火山岩類
as	付加体堆積岩類
am	付加体苦鉄質
pl	深成岩類
me	変成岩類

北海道で特に問題となっているヒ素は、新第三紀及び第四紀の火山岩類で76%を占めていた。

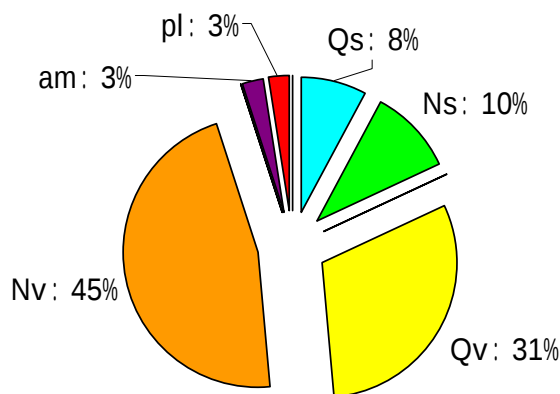


図 - 4 鉱床区分(ヒ素)

3.2 汚染リスクの簡易判定法の開発

3.2.1 粒径分布に応じた重金属溶出量評価法の検討

(1) 最大粒径と溶出量

46号試験において、粒径別のデータが得られた有害物質のうちヒ素(以下、As という)について、最大粒径と溶出量の関係を図 - 5 に示す。概ね粒径が大きくなるほど溶出量が減少している傾向が読み取れる。

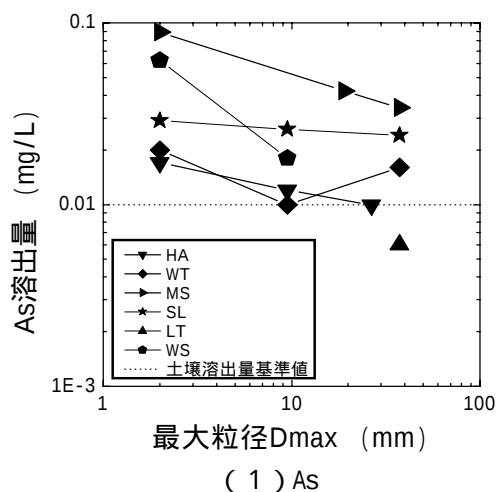


図 - 5 最大粒径と溶出量の関係(As)

(2) 長期溶出特性

As の溶出量及び pH の経時変化を図 - 6 に示す。ここで As の溶出量について不検出の場合は、便宜上 0mg/L とした。有害物質の長期溶出特性は As では以下の溶出傾向が認められた。

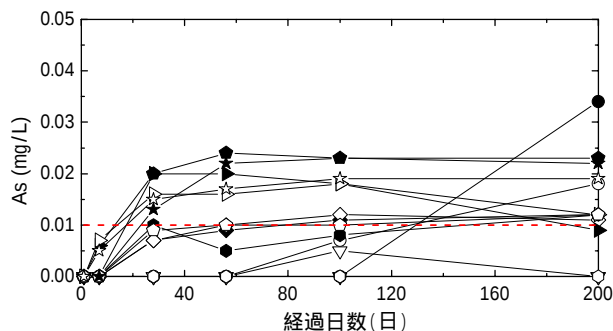
漸増し、ほぼ一定値となる(WT、SL)

当初、増加しその後漸減する(MS、WS)

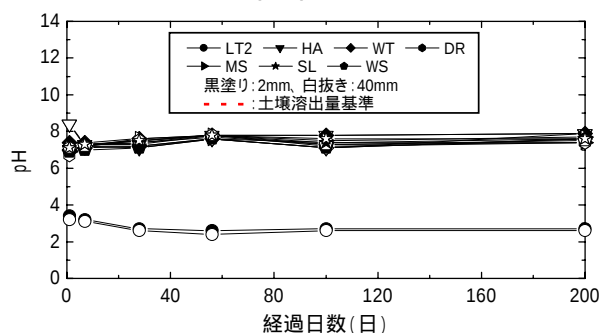
当初、ほとんど溶出しないが、一定期間後溶出量が増加する(LT2、DR)

一度溶出したが、概ね溶出しない(HA)

堆積岩類(SL,MS,WS)では経過日数60~80日で概ね平衡に達し、最大溶出量となっており、長期溶出試験を行う場合の参考となると思われる。また、試験期間中ほとんどの試料で pH6.7~7.9 の中性~弱アルカリ性を示し、LT2のみ pH2.4~3.4 と酸性を示した。



(1) As



(2) pH

図 - 6 As 溶出量及び pH の経時変化⁷⁾

(3) 粒径分布に応じた重金属溶出量評価法

46号試験と長期溶出試験の As 溶出量を図 - 7 に示す。ここで、長期溶出試験における As 溶出量は、200 日間で検出された溶出量の最大値をプロットしている。また、46号試験において、最大粒径 2mm のものを公定法、最大粒径 37.5mm のものを四捨五入して 40mm 溶出試験法と呼称する。

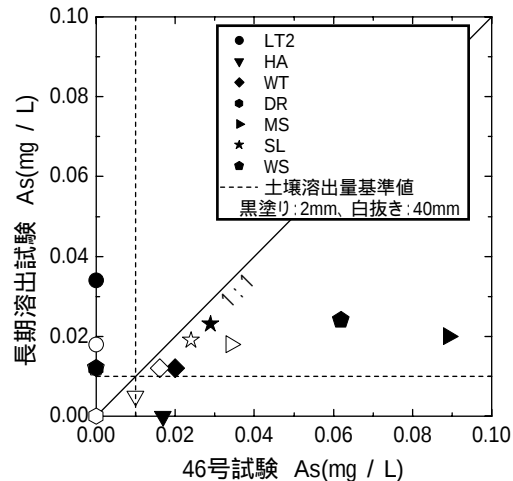


図 - 7 46号試験の As 溶出量と長期溶出試験の As 溶出量の関係

これらの試験のうち、実際の施工現場をより近似しているのは長期溶出試験であり、公定法および 40mm 溶出試験法はそれを短時間あるいは試験室内で評価するための簡易法と位置づけられる。すなわち公定法あるいは 40mm 溶出試験法は、長期溶出試験値より試料を高濃度（安全側）で評価（図 - 7 中では 1 : 1 の線の右下側）することが望ましい。また、1 : 1 の線から右下に離れるほど安全側過ぎる（＝不経済すぎる）評価を行うことになるため、極力 1 : 1 の線の右下近傍で評価されるのが望ましい。

このような観点で両試験を比較すると、公定法（図中黒塗り）は LT2 および DR を除き、40mm 溶出試験法（図中白抜き）では LT2 を除き、長期溶出試験値に比べ溶出量は大きく出ており（1 : 1 線の右下側）、長期溶出結果を安全側に評価している。また、40mm 溶出試験法のほうが公定法の方より 1 : 1 の線から相対的に近く、経済的である。以上のことから 40mm 溶出試験法はかなり実用性が高いと考えられる。ただし、前述のとおり 40mm 溶出試験法でも、LT2 を安全側に評価できていない。同試料は図—6 に見るとおり、pH が 2.4～3.4 とかなり酸性側に变化しており、同試料のように pH が酸性側に移行する試料については別途評価法を検討する必要がある。

以上の結果を受け、岩石ズリ中の重金属をより合理的に評価する方法として、40mm 溶出試験法（素案）を提案した。試験法の概要を表 - 11 に示す。表中には比較のため、公定法の概要も併記した。この試験方法は溶出容器、試料粒径及び試料重量以外は公定法に準じており、かつ室内で比較的容易に試験が実施できる。なお、実際の岩石ズリの大きさからは最大粒径をさらに大きくすることも考えられるが、経済的かつ実用的な室内試験という観点からは実施が困難となる。

表 - 11 40mm 溶出試験法素案の概要

試験法	環境省告示第 46 号試験(公定法)	40mm 溶出試験(素案)
試験の種類	パッチ	
溶出容器	1L ポリエチレン容器	5L ポリエチレン容器
試料粒径	< 2mm	< 37.5mm
試料重量	50g	500g
溶媒	塩酸により pH5.8-6.3 に調整された純水	
固液比	10:1	
溶出操作	水平振動(200 回/分、振幅 4-5cm)	
溶出時間	6 時間	
濾過法	3,000 回転/分による 20 分間の遠心分離後、0.45 μm メンブランフィルターによる濾過	

3.2.2 酸性化する試料の重金属溶出量評価法の検討 (1) 溶出試験結果

各溶出試験の結果を図 - 8 に示す。なお、同図中には、LT2 の結果も示す。

pH は、いずれの試料においても酸性を示す。長期溶出試験では AN2 以外、日数が経過するほど pH も低下し、概ね 46 号試験 > 長期溶出試験最低値 > 希硫酸溶出試験の傾向があり、長期溶出試験の pH は希硫酸の pH に近似する可能性がある。

EC は、いずれの試料においても増加傾向を示す。長期溶出試験における 180 日以降の値は、強制酸化試験及び希硫酸溶出試験の値には達していない。

前述のとおり LT2 において、公定法及び 40mm 溶出試験法で検出されなかった As は、長期溶出試験では基準値を超過して検出された。また、強制酸化試験及び希硫酸溶出試験においても、基準値を超過して As が検出された。Pb では、公定法及び 40mm 溶出試験法で基準値以下であった AN1 において、長期溶出試験では 180 日で基準値を超過し、希硫酸溶出試験でも基準値を超過して検出された。その他の重金属類では、公定法及び 40mm 溶出試験法において不検出または基準値以下のもので、長期溶出試験で基準値を超過するものはなかった。

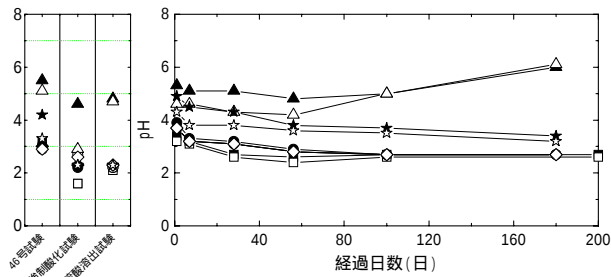
(2) 粒径分布の評価

図 - 8 より重金属類が検出された試料について、2mm 粒径及び 40mm 粒径を比較すると、TB2 のように Pb や Cd で各試験値が 2mm 粒径よりも 40mm 粒径が高濃度になる例もある。このことから、溶出水が酸性を示す岩石のうち、本試験に用いた酸性の熱水変質や珪化変質を被った火山岩や火砕岩では、岩石中に含まれる変質鉱物等の影響が大きく、粒径による溶出濃度の差は無い可能性が考えられる。

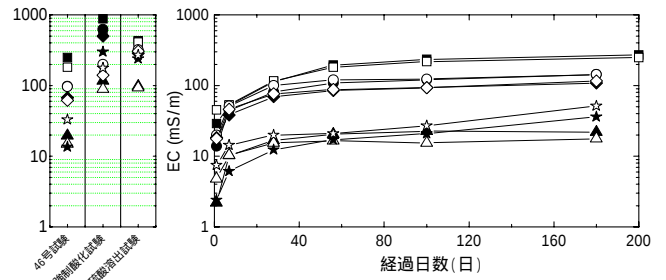
(3) 溶媒の評価

長期溶出試験において基準値を超過した Pb が検出された AN1 のヘキサダイアグラムを図 - 9 に示す。この図より、56 日、100 日後の長期溶出試験の溶出水の陽イオン・陰イオン濃度は、46 号試験および希硫酸溶出試験と調和的であり、強制酸化試験とは異なる。したがって強制酸化試験による溶出は、長期溶出試験の傾向と異なる可能性が高いものと考えられる。以上のことから、酸性化する試料の重金属溶出量評価には、希硫酸溶出試験による方法が望ましいものとする。

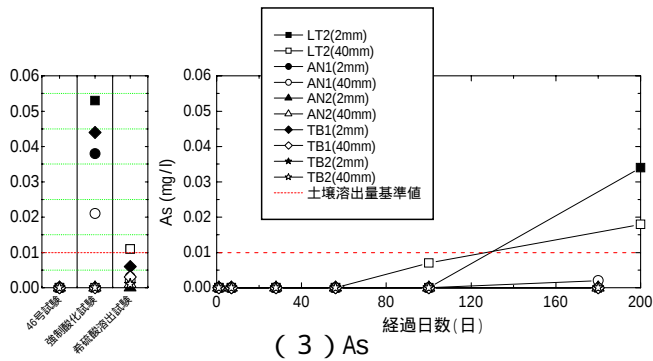
8.6 自然的原因による重金属汚染の 対策技術の開発（2）



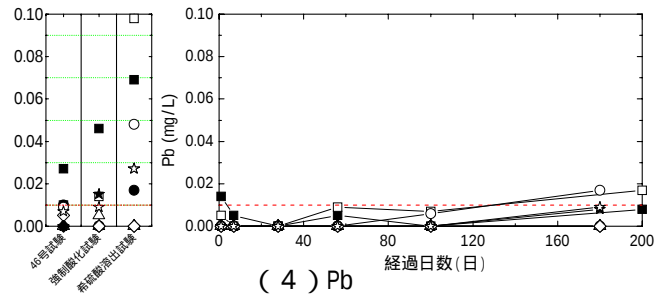
(1) pH



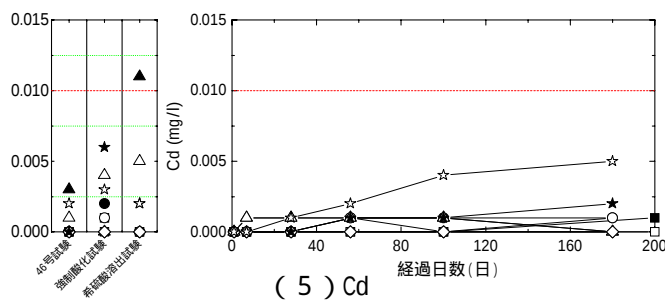
(2) EC



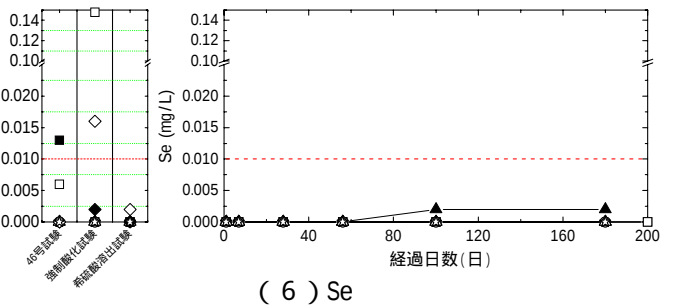
(3) As



(4) Pb



(5) Cd



(6) Se

図 - 8 各溶出条件における溶出試験結果

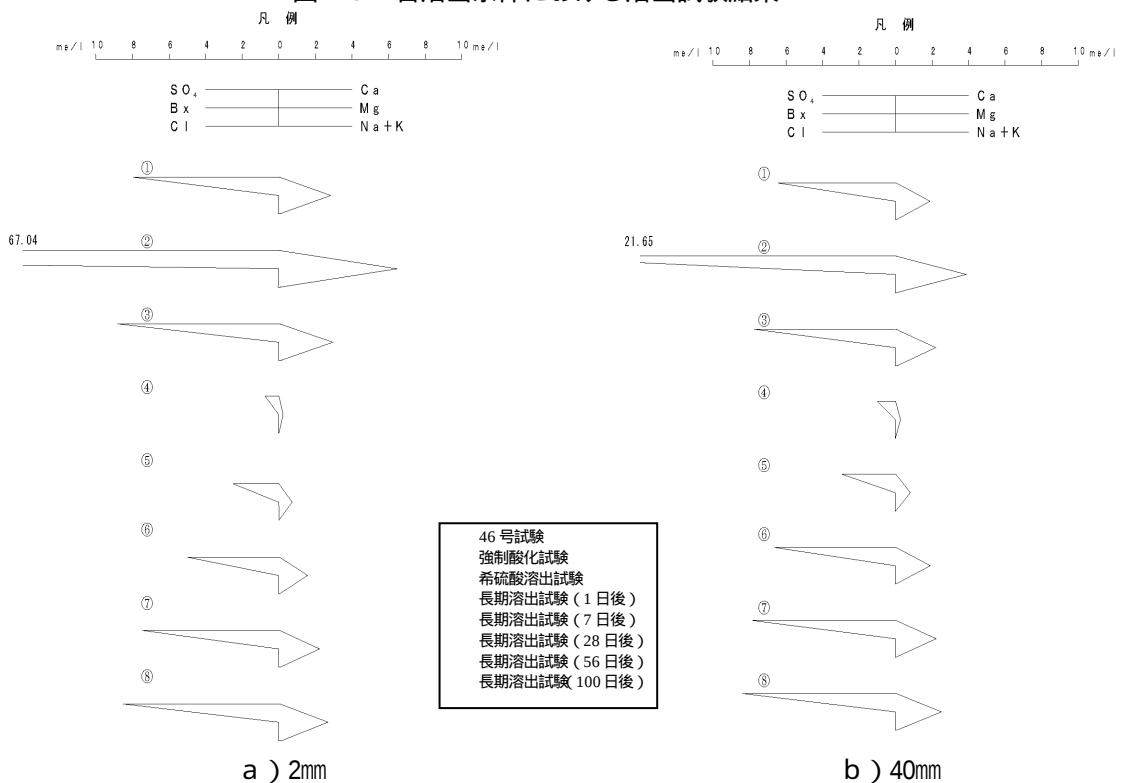


図 - 9 AN1 のヘキサキアグラム

3.2.3 長期汚染リスクを考慮した重金属溶出量評価 フロー（素案）の検討

(1) 評価フローの概要

溶出水が酸性化する試料の重金属溶出量評価法の検討結果を踏まえ長期汚染リスクを考慮した重金属汚染評価フロー（素案）を構築した。フローを図 - 10 に示す。試料の選定基準としては、pH 試験及び総硫黄含有量試験を実施し、長期汚染リスク試料の判定を行う。総硫黄含有量試験については、近年、携帯型の蛍光 X 線分析装置など現場で迅速に定量できる手法が開発されていることから、試料の判定は短時間でできる環境にある。フロー図において、長期汚染リスク試料に該当する場合、溶出水の酸性化に伴い、複合して重金属類が溶出する場合や短期リスクも考慮しなければならないため、希硫酸溶出試験の他に 46 号試験を併せて実施することとした。

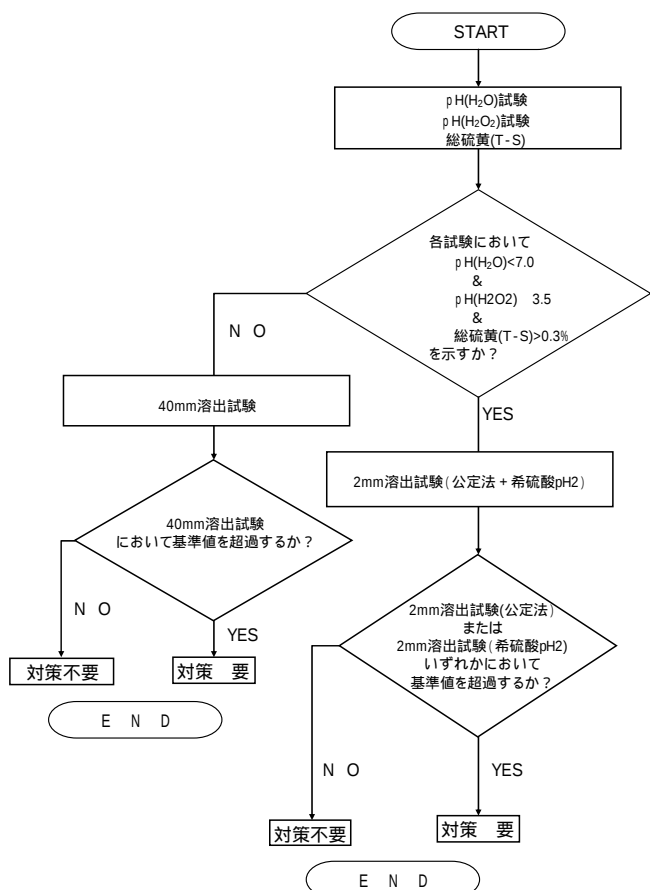


図 - 10 長期リスクを考慮した重金属溶出量評価
フロー（素案）

(2) 評価フローの課題

長期溶出試験値が実際の現場での岩石ズリからの溶出とどの程度対応しているかについて検討を要する。今後、実現現場での岩石ズリの pH や溶出特性を検討していく必要がある。

3.3 覆土処理工法の検討

3.3.1 現場実験

実験結果の例として、各計測機器の観測結果を図—11 に、水質分析結果を図—12 にそれぞれ示す。実験結果の詳細は田本ほか⁸⁾を参照されたい。図 - 11 より、盛土内の地温は冬期間でも氷点下とはならず、酸素濃度は無対策のケースと比較して、覆土を施したケースで夏期に減少し冬期に増加する傾向を示した。これは、雨水や融雪水によって盛土内の環境が還元状況と酸化状況の季節変動を繰り返すものと考えられる。

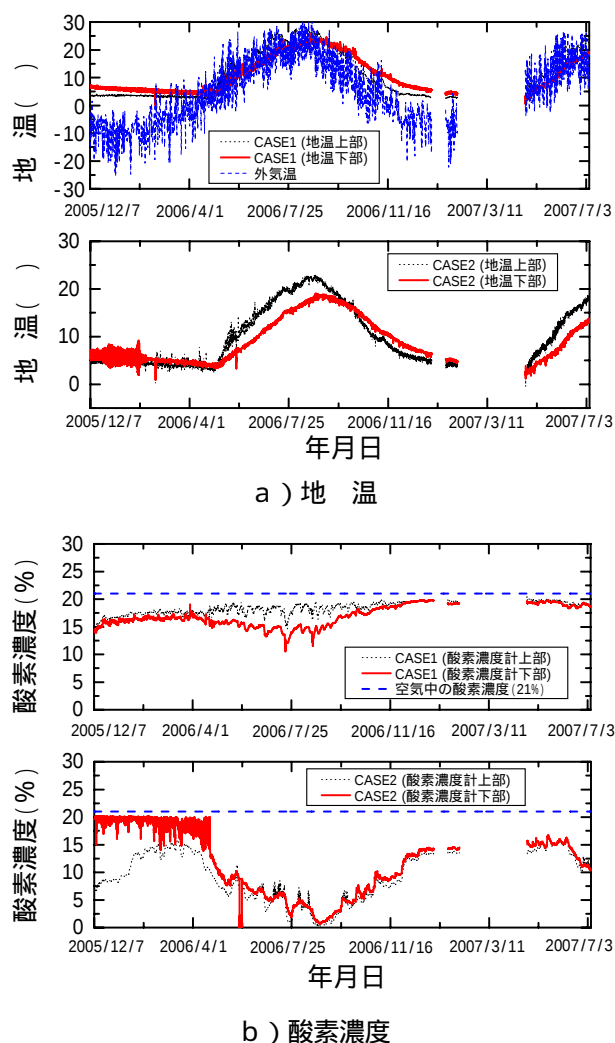


図 - 11 観測機器の計測結果例（ケース１・２）

図 - 12 より、盛土内部の As 溶出量は無対策及び覆土を施したケースで土壤溶出量基準値を超過し、pH は 10～11 のアルカリ性を示した。この結果、覆土のみによる対策では As の流出拡散を抑止できないため、敷土に吸着層などの重金属移行抑止層を設ける必要があると考えられる。

8.6 自然的原因による重金属汚染の 対策技術の開発（２）

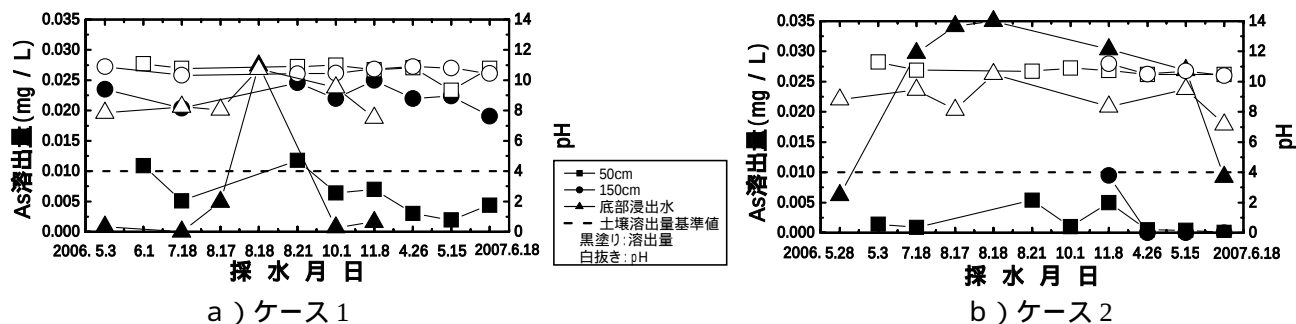


図 - 12 水質分析結果例（ケース 1・2）

表 - 12 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		-	-	-

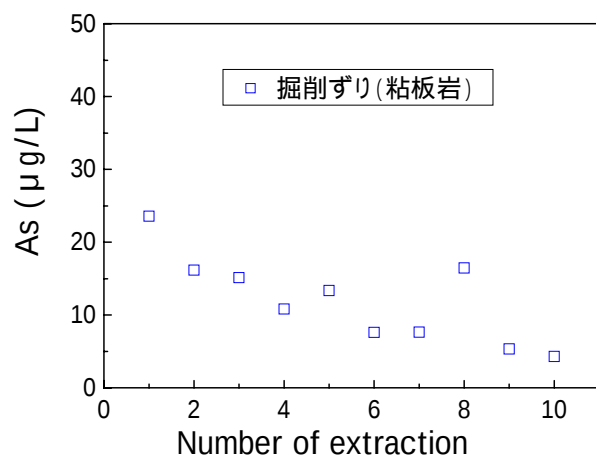


図 - 13 溶出回数と As 溶出量の関係

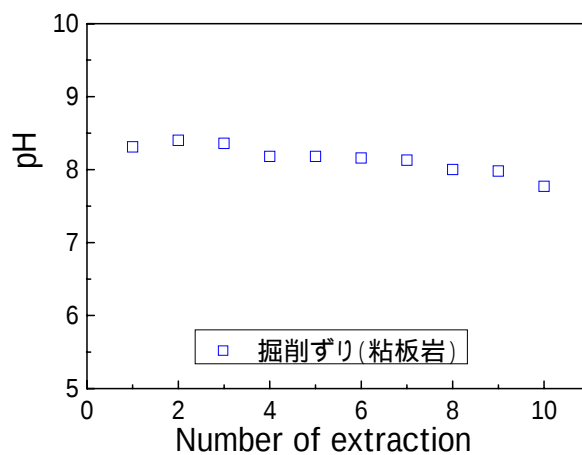


図 - 14 溶出回数と pH の関係

3.3.2 バッチ式吸着試験

吸着量 q は、土木研究所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。

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

・・・(1)

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

・・・(2)

ここで、試料土乾燥質量比：表 - 9 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 - 12 に示す。試験用溶媒の初期濃度は溶出期間によって異なり、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。

3.3.3 逐次溶出試験

溶出水中の As 濃度変化を図 - 13 に示す。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 - 14 に示す。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。

3.3.4 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⁹⁾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。

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

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

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、Rf 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 - 13 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 - 15 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 Kd 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。

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 - 16 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、土壌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 - 17 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⁸⁾。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考えられる。

表 - 13 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 $\theta = 0.3$	
敷土層	層厚 = 0.5m $\rho_d = 1.16\text{g}/\text{cm}^3$ $\theta = 0.2$ $K_d = 271\text{L}/\text{g}$ $D = 0.1\text{m}^2/\text{y}$	層厚 = 0.5m $\rho_d = 1.20\text{g}/\text{cm}^3$ $\theta = 0.2$ $K_d = 261\text{L}/\text{g}$ $D = 0.1\text{m}^2/\text{y}$
有効降雨量	$v = 365\text{mm}/\text{y}$	

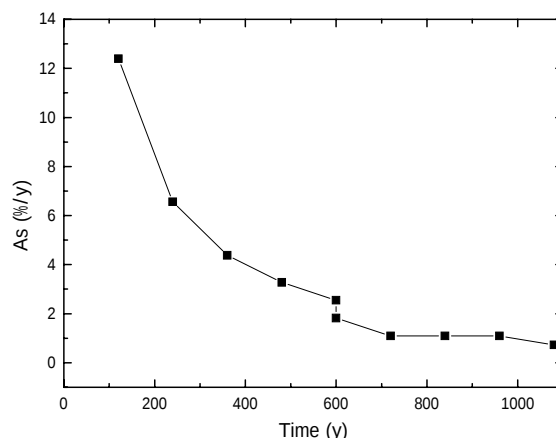
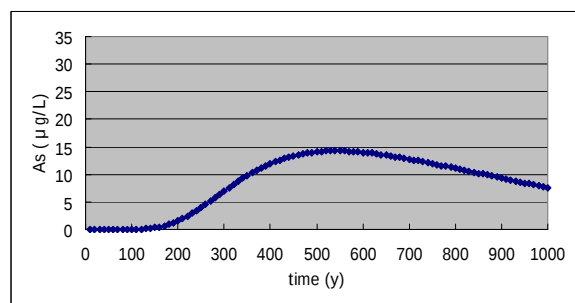
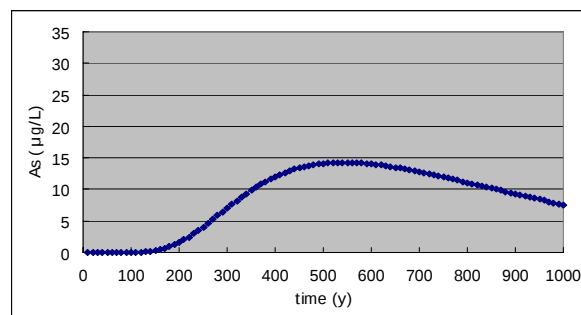


図 - 15 経年変化と砒素浸透率の関係

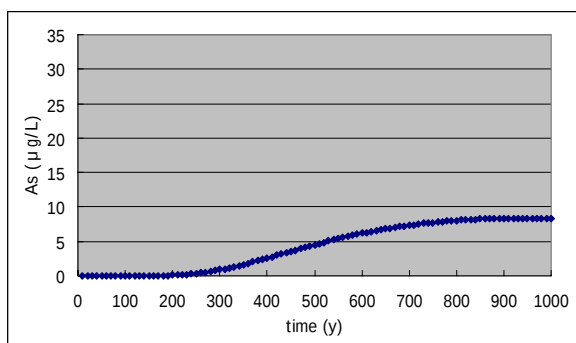


(1) 床掘土

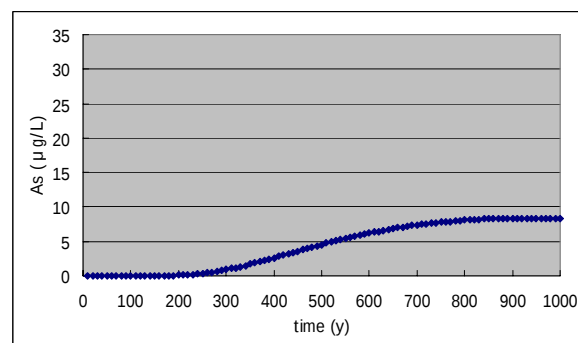


(2) 購入土

図 - 16 解析結果（敷土厚：0.5m）



（１）床掘土



（２）購入土

図 - 17 解析結果（敷土厚：1.0m）

4．まとめ

本研究では、北海道における重金属 GIS マップの作成及び粒径に応じた重金属溶出量評価法の検討を行った結果、以下のことが明らかとなった。

4.1 汚染リスクの高い地質環境の調査法の提案

表記検討の一環として、北海道における重金属 GIS マップを作成し、北海道内における重金属を含有する地質について検討した。その結果、北海道内における重金属を含有する地質（全鉱床）では、新第三紀火山岩類で 37%、付加体の堆積岩類で 22%と多いことが判明した。特に北海道で課題となっている As では新第三紀及び第四紀の火山岩類で 76%、Pb では、Pb 含む Cu/Pb/ Zn 鉱床では新第三紀火山岩類で 49%、付加体堆積岩類で 24%の割合で含有されていることが判明した。

4.2 汚染リスクの簡易判定手法の開発

4.2.1 粒径分布に応じた重金属溶出量評価法の検討

公定法、および同法と粒径を変えた溶出試験法を、北海道各地の重金属を含有する岩石ズリで実施した。また、異なる粒径での長期溶出について検討するため 2mm および 40mm を最大粒径とする長期溶出試験を実施した。この結果、以下のことが判明した。

(1) As、Pb、Se とともに岩種により多少のばらつきはあるが、粒径が大きくなるほど溶出量が減少する傾向が確認された。

(2) 長期溶出については、堆積岩類（SL,MS,WS）において、経過日数 60～80 日までに概ね最大溶出量となっていることが判明した。

(3) 公定法、最大粒径 40mm の溶出量分析および長期溶出量の比較から、溶液が酸性化する火山礫凝灰岩など一部の例外を除き、40mm での溶出試験が長期溶出を安全側かつ比較的経済的に評価している

ことを確認した。

(4) 以上をもとに、最大粒径を 40mm とする 40mm 溶出試験法（素案）を提案した。

4.2.2 酸性化する試料の重金属溶出量評価法の検討

(1) 溶出水が酸性化する試料を用いた溶出試験では、Pb について、46 号試験では基準値以下であった AN1 において、長期溶出試験では 180 日で基準値を超過し、希硫酸溶出試験でも基準値を超過して検出された。

(2) 長期溶出試験の溶出水の陽イオン・陰イオン濃度は、46 号試験および希硫酸溶出試験と調和的であり、強制酸化試験とは異なる。

4.2.3 長期汚染リスクを考慮した重金属溶出量評価フロー（素案）の検討

酸性化試料を用いた溶出試験結果を踏まえて長期汚染リスクを考慮した重金属汚染評価フロー（素案）を提案した。同法では、長期溶出試験値が実際の現場での岩石ズリからの溶出とどの程度対応しているかについて検討を要する必要があるが、今後、合理的な溶出量分析法を構築していくうえで重要な示唆を与えていると考えられる。

4.3 覆土処理工法の検討

覆土処理工法の検討では、現場実験においては、盛土内の地温は冬期間でもプラス温度を示し、酸素濃度は無対策のケースと比較して、覆土を施したケースで夏期に減少し冬期に増加する傾向を示した。また、盛土内の砒素溶出量は、無対策のケースはもとより覆土を施したケースにおいても土壌溶出量基準値を超過した。また、As の溶出・拡散評価を行うために実施した室内試験では、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。室内試験結果より実施した As の溶出・拡散評価では、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。

4.4 今後の課題

GIS マップの作成では、実現場での利用を念頭においたシステムを構築していく必要がある。溶出試験法の検討では、提案した溶出量評価フロー（素案）についてデータを蓄積するとともに、実現場との対応について検討していくことが必要である。覆土処理工法の検討では、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必要がある。

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) 阿南修司、岩石由来の環境汚染対策研究グループ：「岩石に由来する重金属汚染リスクの分布調査」、平成 16 年度研

- 究発表会講演論文集 pp.329-332、日本応用地質学会、2004.
- 3) 北海道開発庁：北海道地下資源調査資料、No.1～125、1951～1971.
 - 4) 工業技術院地質調査所：北海道金属非金属鉱床総覧、1967.
 - 5) 経済産業省資源エネルギー庁：広域地質構造調査報告書、昭和 56 年度～平成 15 年度、1982～2003.
 - 6) (独) 産業技術総合研究所ホームページ：
<http://www.aist.go.jp/RIODB/db084/>
 - 7) 田本修一、伊東佳彦、日下部祐基：建設発生土に含まれる砒素の溶出特性について（その 2）第 41 回地盤工学研究発表会講演要旨集、pp.2347-2348、地盤工学会、2006 年 7 月
 - 8) 田本修一他：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.
 - 9) Bear, Y.: Hydraulics of Groundwater, McGraw Hill, 1979.

DEVELOPMENT OF COUNTERMEASURES FOR HEAVY METAL POLLUTION BY NATURAL CAUSES (2)

Abstract : When we encounter rock including natural heavy metals in construction, its estimation and countermeasure is performed based on “ Provisional manual for dealing with ground contamination by heavy metal encountered in construction ”, published in September 2003. As the manual was edited in accordance with the Soil Contamination Countermeasures Law enforced in February 2003, which is enforced originally for soil contamination not for rock contamination by natural heavy metals, more suitable standard for estimation and countermeasure for natural heavy metals in rock is required. Recently, in Hokkaido, occurrences of natural heavy metals or acid water from rock are considerably reported in construction sites, and occurrences of them become the problem from the viewpoint of public cost and environmental pollution.

The study aims to develop a suitable standard for estimation and countermeasure for natural heavy metals in rock. Then, proposal of researching methods of area or zone with high concentration of heavy metals, development of simple estimation methods of contamination risk, and suitable countermeasure for natural heavy metals are carried out. From 2006 to 2007, a GIS map of heavy metals distribution in Hokkaido was geologically constructed as a part of proposal of effective methods of researching area or zone of high concentration of heavy metals. And comparison of leaching concentration of heavy metal among rock specimen with various maximum grain sizes was carried out as a part of development of simple estimation methods of contamination risk. Countermeasure by covering natural heavy metals with natural materials such as soil or fine rock muck was carried out as a part of suitable countermeasure for natural heavy metals.

Key words : rock muck, heavy metal contamination, contamination risk, leaching test