

石膏粉を用いた自然的原因による水路トンネルずりに含有する重金属(ヒ素)の不溶化実験とその処理法に関する一事例

株式会社イーエス総合研究所 ○植松えり子・成田瑞季・小口智久・常松哲

1. はじめに

近年、道路・トンネル・河川・地下鉄工事現場等^{1)~5)}で自然的原因による有害物質(重金属類)を含有した岩石・土壌がほぼ全国的に発生している。これは我が国には、熱水変質の影響を受けた火成岩類や海成堆積岩類が広く分布しているためであり、これらの中には、土壤環境基準を超過した有害物質を含有している場合がある^{6)~8)}。

Fig.1 にわが国における重金属(ヒ素)を産出した記録のある鉱山の分布を示した^{9)~10)}。図よりヒ素鉱物産出鉱山は全国308箇所⁹⁾に及びほぼ全国的に散在し、これらを地質区分で見ると火成岩(花崗岩等)の分布域に点在している。また、Fig.2 に我が国での河川堆積物のヒ素の分布を示した¹¹⁾。図から道内に限ってみると道南、道央、道東地方の活火山周辺に広く分布していることがわかる。

一方、平成15年2月に土壤汚染対策法(以下、「土対法」という)が施行され、自然的原因による有害物質が含まれる土壌については法の対象外(法第三条)とされ、有害物質を含有した汚染土を他地域へ搬出した場合のみ適切な汚染防止対策措置が必要とされてきた^{12)・13)}。しかし、平成22年4月に土対法が改正され(以下、「改正法」という)、従来法では対象外であった自然的原因による有害物質が含まれている岩石・土壌についても土対法が適用され、人為的・自然的原因を問わず改正法に基づいて行われることになった¹⁴⁾。とりわけ、改正法第四条では、土地の形質変更の面積が3000㎡以上、土地の形質変更に係る深さが50cm以上の場合には届出が義務付けられ、調査命令が出される場合がある。「農業を営むために通常行われる行為」(耕起・整地など)は適用除外されるが、トンネル、用排水路の新設・改修、農地造成、農地整備工事など通常の土木工事と同視することができるものは改正法第四条に該当する。

さて、土壤汚染対策技術としては、遮水工・遮断工封じ込め、土壤洗浄¹⁵⁾、固化・不溶化、さらには現地発生土(粘性土)を利用した汚染土を被覆する対策¹⁶⁾や、不溶化剤を用いた重金属の溶出低減対策、吸着層を敷設し重金属等の捕捉を行って重金属等の地下浸透を防止する対策等々¹⁷⁾が提案されている。今後、自然的原因に由来する重金属対策が増大することを鑑み、比較的大規模な工事を要する遮水工・遮断工封じ込めに比べ安価な処理対策が望まれる。



Fig.1 ヒ素を産出したことのある鉱山

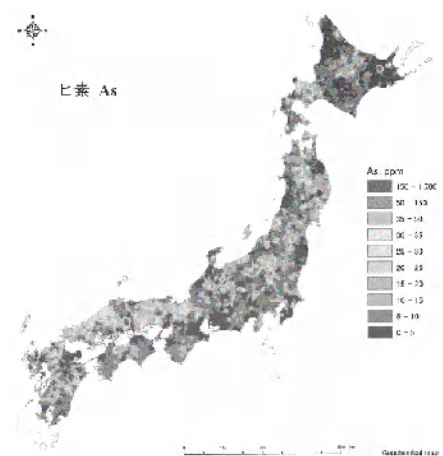


Fig.2 河川堆積物のヒ素の分布

従って、本研究報告では、著者らが研究開発した石膏粉を主原料とした不溶化剤^{18)~21)}を水路トンネル現場で遭遇した自然的原因によるヒ素含有岩石・土壌に添加混合し不溶化効果を確認するとともに、掘削搬出したトンネルずりを盛土状に堆積し、その盛土底面、盛土中央部及び盛土上部に層状に不溶化剤を散布処理した場合の不溶化効果を明らかにしたものである。

2. 不溶化実験

2.1 供試材料(掘削ずり)

供試材料は北海道内の水路トンネルから発生した掘削ずりで、以下に述べる諸性質を有している。

(1)地質概要

掘削ずりは、新第三系中新統新十津川層群増毛層、泥岩部層灰色弱風化軟質砂質泥岩に分類される。この岩石は、水洗い後、自然乾燥によって網状クラックが発生し、剥離が多少見られ、比較的スレーキングしやすい。また、少量であるが、新第三系中新統新十津川層群増毛層、泥岩部層灰色弱風化硬質細粒砂岩が含まれていた。

(2)鉱物組成及び元素組成

粉末X線回折試験の不定方位データに基づくと、この軟質砂質泥岩は比較的多量の石英、少量の斜長石、クローライト(緑泥石)、イライトおよびイライト/スメクタイト混合層鉱物と、微量のクリノタイロライト-ヒューランダイト系鉱物(ゼオライト)などからなる。パイライト(黄鉄鉱)は、粉末X線回折試験の検出限界未満であるので、化学的風化によって、大部分が溶出したと考えられる。また、蛍光X線試験により、試料の元素組成を測定した(Table1)。主成分はケイ素、アルミニウム、鉄であり、微量ながら硫黄、カリウム、カルシウム、チタンが含まれる。

Table1 蛍光X線結果

元素	含有量
Al ₂ O ₃	20.5%
SiO ₂	67.8%
SO ₃	0.9%
K ₂ O	1.9%
CaO	2.0%
TiO ₂	0.7%
Fe ₂ O ₃	6.1%

(3)ヒ素溶出量及び含有量

試料のヒ素溶出量及び含有量を Table2 に示す。掘削予定地全区間においてヒ素溶出量が土対法の溶出基準値を若干超過しており、平均濃度は 0.023 mg/L である。一方、ヒ素含有量は低く全て基準値以下であった。

Table2 ヒ素溶出量及び含有量

	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	No.6	平均	基準値※
ヒ素溶出量[mg/L]	0.012	0.034	0.014	0.034	0.026	0.019	0.023	<0.01
ヒ素含有量[mg/kg]	1	3	1未満	2	3	2	2	<150

※ 土対法で定める溶出量基準及び含有量基準

2.2 不溶化剤

一般に現在使用されている不溶化剤として、カルシウム系、マグネシウム系、鉄系、鋳物系¹⁵⁾等様々な種類があるが、中でも著者らが研究を進めている不溶化剤^{18), 19)}(RE-I

型, (株HMI 製) はカルシウムを主成分としており、pH は中性であるため農用地周辺での使用に適していると考えられる。そこで本不溶化剤を使用し、以下に示す種々の実験を行った。不溶化剤の性状は Table3 に示す通りであり、不溶化のメカニズムは、不溶化剤から溶解したカルシウムイオンが土壌粒子の表面に反応層を生成し、その反応層で難溶性のヒ酸カルシウム[Ca₃(AsO₄)₂]が生成されるためと考えられている^{18)~21)}。

Table3 不溶化剤の性状

外観	粒径	pH	Ca 含有量
粉体(白色)	<3 mm	6.8	23.5%

2.3 溶出試験方法

溶出試験は環境庁告示第 46 号に基づいて行った。2 mm以下に粉碎後風乾した試料と蒸留水を固液比 1:10 で 6 時間振とうし、振とう後 3000rpm の条件で 20 分間遠心分離を行い、上澄み液を孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過し検液を作成した。

2.4 不溶化特性を把握する実験

本不溶化剤 (RE - I 型) と掘削ずりの不溶化効果を把握する目的で、以下の実験を試みた。

(1) 配合試験

掘削ずりに不溶化剤を添加して溶出試験を行い、ヒ素濃度が溶出量基準以下になる配合量を把握した。

【試験方法】

2 mm以下に粉碎後風乾した掘削ずりに不溶化剤を 0.2~2% (重量比) 添加し、固液比を変えて溶出試験を行った。

【試験結果】

不溶化剤配合量とヒ素溶出量の関係を Fig.3 に示す。不溶化剤添加量の増加とともにヒ素溶出量が低下し、溶出量基準以下となることが確認できた。

次に、不溶化剤未添加のヒ素溶出量と、ヒ素が基準値以下となる不溶化剤配合量の関係を Fig.4 に示す。図より、未添加のヒ素溶出量が高いほど、必要な配合量が多いことがわかる。掘削ずりのヒ素平均濃度 0.023 mg/L を基準値以下とするのに必要な配合量は 0.4% であった。

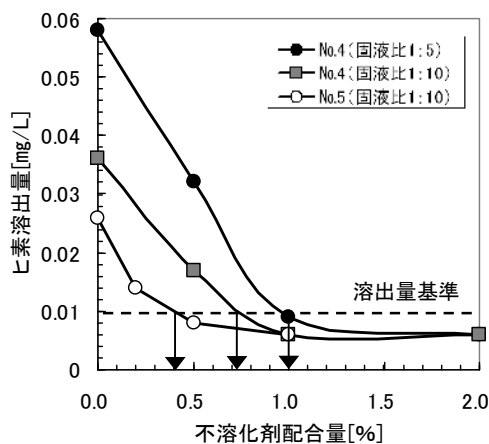


Fig.3 不溶化剤配合量とヒ素溶出量の関係

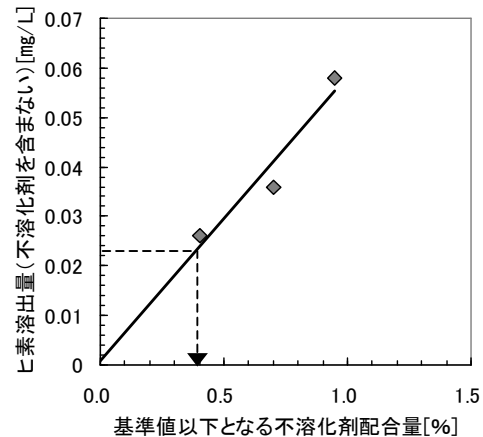


Fig.4 ヒ素溶出量と基準値以下となる不溶化剤配合量の関係

(2) 不溶化剤溶液を用いた不溶化試験

本不溶化剤は溶解性が極めて高く、溶液としても不溶化効果があることを明らかにする目的で、本不溶化剤を用いて以下の実験を行った。

【試験方法】

不溶化剤 10 g を蒸留水 1L で 2 時間溶出後、孔径 0.45 μm メンブレンフィルターでろ過し不溶化剤溶液（以下、溶液という）を作成した。溶液のカルシウム濃度は 640 mg/L、pH は 6.8 であった。次に、掘削ずりと段階的に希釈した溶液を固液比 1 : 10 で溶出し、ヒ素濃度を測定した。

【試験結果】

添加した溶液のカルシウム濃度とヒ素溶出量の関係を Fig.5 に示す。溶液の添加により、掘削ずりのヒ素濃度が低下し溶出量基準以下となった。以上より、不溶化剤溶液でもヒ素を不溶化できることがわかった。

(3) 不溶化層による不溶化反応の確認

不溶化層の不溶化効果を確認するため、以下の実験を行った。

【試験方法】

試験には堆積場に堆積（盛土）した掘削ずりと盛土基礎底面の 2 試料を用いた。掘削ずりに不溶化剤を混合した盛土部と、基礎底面に不溶化剤を混合した不溶化層を作成し、掘削ずりから作成したヒ素溶液（ヒ素 0.033 mg/L）と固液比 1 : 10 で溶出試験を行い、ヒ素濃度を測定した。

【試験結果】

試験結果を Fig.6 に示す。その結果、どちらのヒ素濃度も基準値以下であった。以上より、不溶化層は掘削ずりから溶出したヒ素を不溶化できることがわかった。

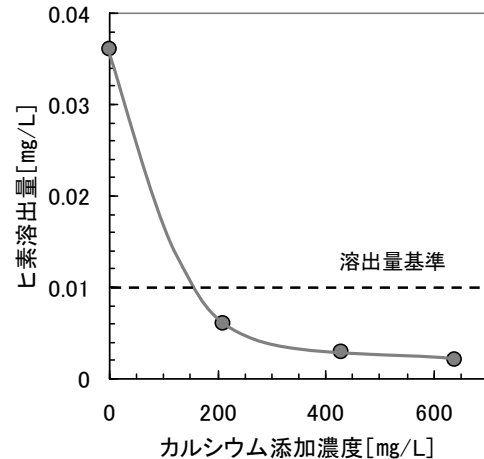


Fig.5 カルシウム添加濃度とヒ素溶出量の関係

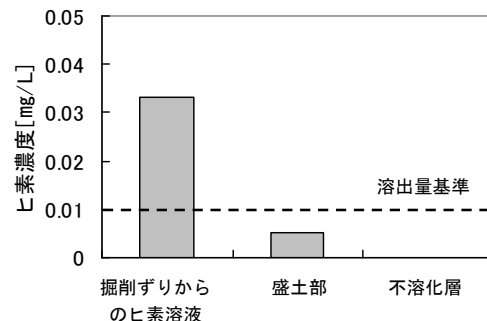


Fig.6 不溶化層のヒ素不溶化結果

3. 処理方法

3.1 処理方法の基本的な考え方

従来法では、自然的原因による有害物質が含まれた土壌は法の適用対象とならない。しかし、溶出量基準を超過する場合や、地域以外の土地へ搬出する場合には、人や周辺環境への汚染拡散防止のための措置が必要である。

前項 2 の結果より、水に溶解したカルシウム溶液にも不溶化効果があり、また盛土基礎底面に混合した不溶化層もヒ素を不溶化できることが確認できた。そこでこの 2 つの性能を合わせた処理法を行うことにした。処理法の概要を Fig.7 に示す。掘削ずりの上面に敷設

した不溶化剤が降雨等で溶解・浸透することで全体を不溶化するとともに、さらに底面に敷設した不溶化層でヒ素を不溶化することができるものである。また、有害物質汚染拡散状況を監視する目的で、盛土敷地境界にモニタリングのための観測孔を設置した。

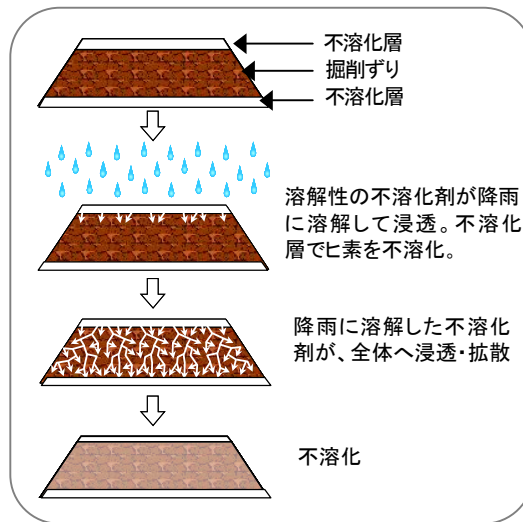


Fig.7 処理法の概要

3.2 施工方法

掘削ずりを盛土状に堆積し、その盛土底面、盛土中央部及び盛土上部に層状に不溶化剤を散布処理した。不溶化剤を敷設した層（不溶化層）は、飛散防止のため、スタビライザーを用い、盛土底部は基礎底面と、中央部・上部は掘削ずりと攪拌を行った。また、施工後は、雨水の浸透を防止するため盛土の側面及び上面に覆土をした。施工年度及び掘削ずり量、不溶化剤量等を Table4 に、盛土平面図・盛土詳細図を Fig.8 に示す。

Table4 施工年度及び掘削ずり量、不溶化剤量等

施工年度	掘削ずり量	掘削ずりの乾燥密度	不溶化剤量
H21~H22	12,000m ³	1.9t/m ³	120t

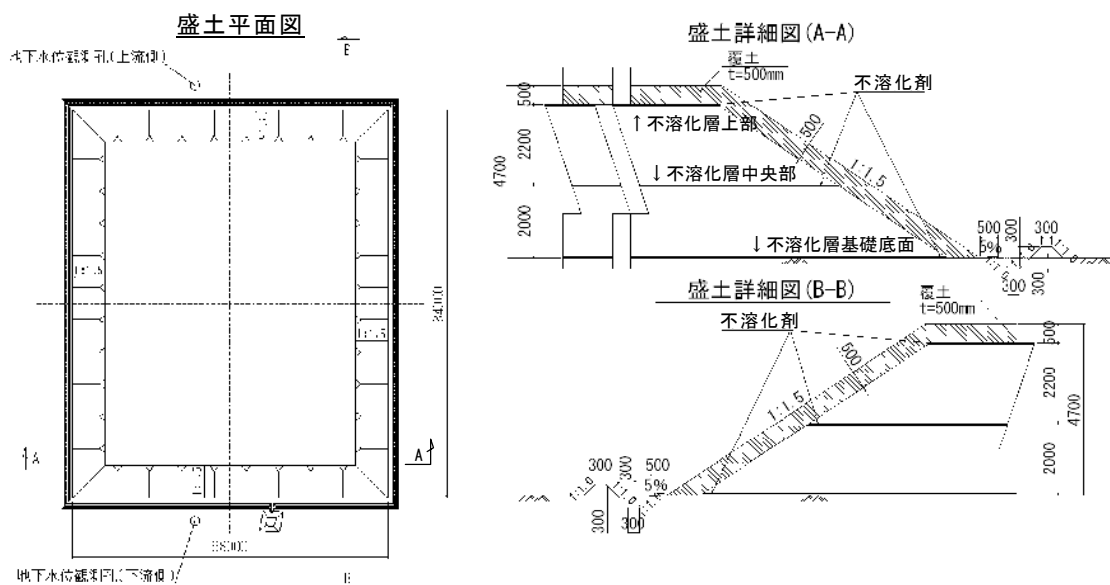


Fig.8 盛土平面図・盛土詳細図

3.3 モニタリング

(1)モニタリング方法

施工段階で盛土基礎底面及び盛土部から試料を採取して溶出試験を行い、ヒ素が不溶化されているか確認した。また、盛土の上流側・下流側に観測孔を設け (Fig.8)、施工前、施工中、施工後の地下水のヒ素濃度、pH を定期的に観測した。

(2)モニタリング結果

不溶化層の溶出試験結果を Table5 に示す。不溶化層では溶出基準値以下に不溶化できていることが確認できた。次に地下水のヒ素及び pH の結果を Fig.9 に示す。施工中、施工後ともにヒ素は検出されなかった。また、pH も中性付近で推移しており、不溶化処理がなされていることが確認できた。

Table5 不溶化層の溶出試験結果

	不溶化層 (基礎底面)	不溶化層 (中央部)	不溶化層 (上部)
ヒ素 溶出量 [mg/L]	0.003	0.006	0.008
pH[-]	8.0	7.9	7.8

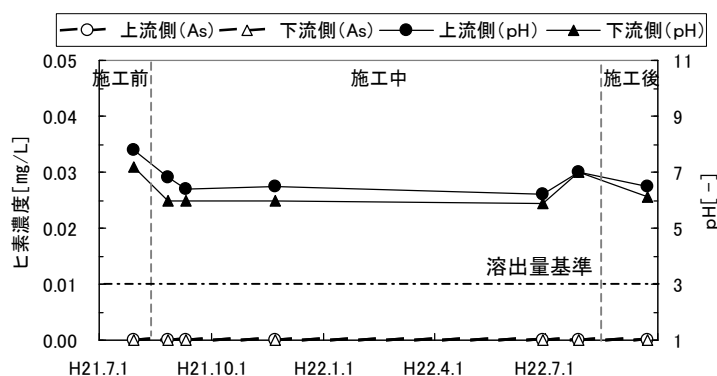


Fig.9 地下水のヒ素及びpH

4. あとがき

以上、水路トンネル工事で遭遇した自然的原因に由来するヒ素含有掘削ずりの不溶化実験を行った結果、不溶化効果が十分得られることが判明した。また、搬出した掘削ずりを堆積場に堆積 (盛土状) し、盛土部の中央部、上部に不溶化剤を層状に敷設するとともに、盛土基礎底面に不溶化層を設けた。さらに、盛土敷地境界に観測孔 (上・下流 2 箇所) を設置し、水質の監視をした結果から、本処理法の有効性・妥当性が確認された。

【引用文献】

- 1) 田本修一・伊東佳彦・岡崎健治・五十嵐敏文：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技術報告書，第 47 号，pp.247～250，(2007)
- 2) 佐々木幹夫・木村裕俊・赤澤正彦・長谷川利春：八甲田トンネルで発生する鉍化変質岩の環境対策，土と基礎，Vol.53，No.5，pp.8～10，(2005)
- 3) 原淳子：北海道特定流域内の重金属類の分布と移動～伊達地区長流川流域において～，

- 20年度第2回土壌汚染研究会, (独)産業技術連携推進会議エネルギー一部会地圏環境分科会土壌汚染研究会, pp.58~59, (2009)
- 4) 野呂田晋・遠藤祐司・八幡正弘・岡村聡: 硫黄鉱床周辺の熱水変質岩における有害物質溶出特性—西南北海道七飯地域, 旧精進川鉱山における例—, 北海道立地質研究所報告, 第76号, pp.55~61, (2005)
 - 5) 谷畑一行・菊谷正己・高橋靖: 自然由来の重金属を含む建設発生土の処理と対策 - 仙台市地下鉄東西線 -, トンネルと地下, Vol.41, No.1, (2010)
 - 6) 加藤孝幸・田本修一・伊東佳彦・飯田友章: 熱水変質岩の岩相・変質分帯と重金属等の含有量, 日本応用地質学会道支部 H17 年度研究発表会講演予稿集, 第25号, pp.49~52, (2005)
 - 7) 野呂田晋・遠藤祐司・八幡正弘・伊東佳彦・日下部祐基・田本修一: 建設発生土に含まれる自然由来有害物質に関する地質学的検討, 同上平成19年度研究発表会講演予稿集, 第27号, pp.5~8, (2007)
 - 8) 垣原康之・高橋良・遠藤祐司・八幡正弘・野呂田晋・駒井武・原淳子・川辺能成: 堆積岩からの重金属等の溶出挙動, 同上平成21年度研究発表会講演予稿集, 第29号, pp.5~6, (2009)
 - 9) 阿南修司: 岩石に由来する土壌・地下水汚染に関する研究, 土木技術資料, Vol.47, No.1, pp.9~10, (2005)
 - 10) 佐々木靖人・阿南修司・伊藤政美: 土木分野における自然由来の重金属問題への対応, 地質と調査, 2006年度第2号, pp.8~13, (2006)
 - 11) (独)産業技術総合研究所地質調査総合センター: 日本地球化学図, pp.36, (2004)
 - 12) 小澤英明: 土壌汚染対策法, 白揚社, pp.167~179, (2003)
 - 13) (独)土木研究所編: 建設工事で遭遇する地盤汚染マニュアル[暫定版], 鹿島出版社, pp.14, pp.71~72, (2004)
 - 14) 深津巧二: 土壌汚染の法務, 民事法研究会, pp.308~329, (2010)
 - 15) 地盤工学会: 続・土壌・地下水汚染の調査・予測・対策, pp.79~90, (2008)
 - 16) (社)北海道環境保全技術協会技術委員会: 自然由来ヒ素含有掘削ずり処理のための道内産火山灰土・粘性土の吸着層への利用可能性, 北海道環境保全技術協会技術レポート, No.1, pp.2~13, (2009)
 - 17) (独)土木研究所: 建設工事における自然由来重金属等含有岩石・土壌への対応マニュアル(暫定版)(案), 土木研究所試料第4156号, pp.64~72, (2010)
 - 18) 植松えり子・小口智久・常松哲: 廃石膏ボードとホタテ貝殻を利用したヒ素不溶化処理の研究, 第40回地盤工学研究発表会, pp.2613~2614, (2005)
 - 19) 植松えり子・小口智久・常松哲: 廃石膏ボードを利用したヒ素不溶化処理の研究(その2) - 不溶化における土粒子の影響 -, 第41回地盤工学研究発表会, pp.2369~2370, (2006)
 - 20) 植松えり子・小口智久・常松哲: 石膏粉とホタテ貝殻を利用したヒ素含有土壌の不溶化技術, 農業土木北海道, 第30号, pp.42~46, (2008)
 - 21) 植松えり子・齋藤謙一・小口智久・常松哲: 自然的原因による砒素不溶化剤の開発, (社)北海道土地改良設計協会報文集, 第21号, pp.27~34, (2009)