

(0079) 重金属等不溶化処理の適用性確認試験手順（案）の作成および

不溶化処理土壌の安定性に関する既往研究事例の調査

○秦浩司¹・大山将¹・鈴木義彦¹・片岡昌裕¹・技術標準化部会¹
¹ 土壌環境センター

1. はじめに

平成 20 年 3 月に制定した土壌環境センター第 2 号技術標準 (GEPC・TS-02-S1)「硫酸添加溶出試験法・消石灰添加溶出試験法」(以下、GEPC・TS-02-S1 試験)は、重金属等不溶化処理技術の更なる向上を図り、普及を促進するため、重金属等の溶出に大きな影響を及ぼすと考えられる pH についてその影響度合いを評価する試験法として制定され、「土壌汚染対策法に基づく調査及び措置に関するガイドライン (改訂第 2 版)」においても紹介されている。

技術標準制定後、フォローアップとして実施したアンケート調査の中で寄せられた意見として、「(GEPC・TS-02-S1 試験を含めた)不溶化処理の適用性確認試験手順の提示」および「不溶化処理土壌の安定性のデータ蓄積や、pH 以外の要因に関する影響の試験法についての検討」の要望があったことから、前者については既存の図書などを参考にして試験手順(案)を作成、後者については不溶化処理土壌の(長期)安定性に関する既往の研究事例について文献調査を実施したので紹介する。

2. 適用性確認試験手順(案)の作成

重金属等の基準不適合土壌の不溶化措置の際に実施する「適用性確認試験」の手順については、既存の図書(例えば、セメント協会「セメント系固化材による地盤改良マニュアル」¹⁾など)にも紹介されているが、筆者らは、配合試験の前に実施しておくことが望ましいと考えられる土質性状の試験や、不溶化処理土壌の安定性確認のため、GEPC・TS-02-S1 試験の工程を組み込んだ「不溶化処理に係る一般的な適用性確認試験手順」の案を検討した。図-1 に手順フロー(案)を示す。

各手順の説明についてはフロー図中に解説したが、手順 4 の「不溶化処理の配合試験」、および手順 5 の「結果まとめ」における現場添加量の決定方法については、以下に詳細を記す。

2.1 不溶化処理の配合試験

手順 4 の「不溶化処理の配合試験」では、手順 3 までの事前分析の結果を踏まえ、不溶化処理に関する配合試験を行い、不溶化の効果を確認する。

(1) 不溶化材(剤)の選定

対象物質に応じた薬剤や市販の不溶化材(剤)は、土壌環境センター編「土壌汚染と対応の実務」²⁾などを参考に選定する。使用材料選定が目的の場合は、配合試験では数種類の材料を使用し、結果を比較する。

(2) 配合試験条件の設定

事前分析による対象重金属の溶出量値を考慮して、不溶化材(剤)の添加量(率)について、材料メーカーの推奨添加量等を参考に、必要に応じて 1 材料につき 3~4 水準の添加量(率)を設定する。

(3) 配合試験

① 不溶化材(剤)の混合

試料土壌に対して不溶化材(剤)を設定添加量で添加し、ソイルミキサー等で十分に練り合わせ、ポリエチレン袋内に密封し一定条件下(温度や湿度の安定している場所)で養生する。

また、不溶化処理土壌の強度が問題になる場合(所要の強度を発現することが求められる施工条件)は、試験項目に応じた供試体を作製する。

A proposal of the treatability test protocol for immobilization of heavy-metals contaminated soil,
and a review of studies about the stability of immobilized soil

Hiroshi Hata¹, Sho Oyama¹, Yoshihiko Suzuki¹, Masahiro Kataoka¹ and Study group for technical standards¹ (¹GEPC)

連絡先: 〒102-0083 東京都千代田区麹町 4-5 KS ビル 3F (一社) 土壌環境センター

TEL 03-5215-5955 FAX 03-5215-5954 E-mail info@gepc.or.jp

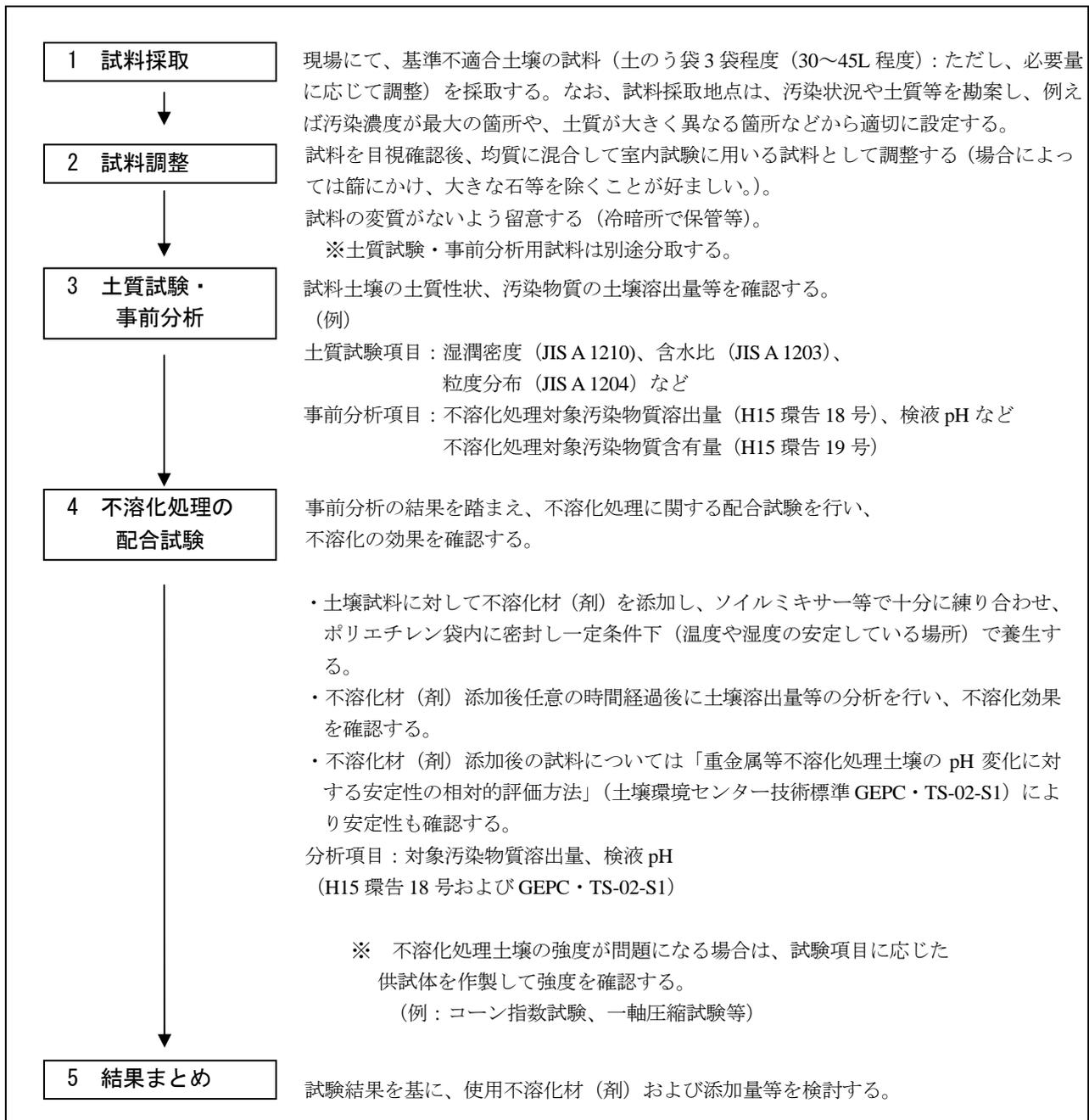


図-1 不溶化処理に係る一般的な適用性確認試験の手順フロー（案）

②不溶化効果の確認

不溶化材（剤）添加後、任意の時間経過後に土壌溶出量（H15 環告 18 号）の分析を行い、不溶化効果を確認する。検液の pH や酸化還元電位、電気伝導度等を併せて測定しておくことが望ましい。

経過時間の設定は、不溶化材（剤）の特性を考慮して決定する。例えばセメント系の材料を用いる場合は、強度発現の期間を考慮して材齢 7 日、材齢 28 日を設定することが一般的である（セメント協会¹⁾）。

③不溶化処理土壌の安定性の確認

不溶化材（剤）添加後の試料について GEPC・TS-02-S1 試験により、pH 変化に対する安定性も確認する。検液の pH や酸化還元電位、電気伝導度等を併せて測定しておくことが望ましい。

④強度測定

不溶化処理土壌の強度が問題になる場合の試験方法としては、コーン指数試験（JIS A 1228）、一軸圧縮試験（JIS A 1216）等がある。方法詳細については、地盤工学会「地盤材料試験の方法と解説」³⁾等を参照されたい。

2.2 現場添加量の決定（安全率の設定・最少添加量の考え方）

手順5の「結果まとめ」では、手順4の試験結果を基に、使用不溶化材（剤）および添加量等を検討する。

実際の不溶化処理工事では、室内配合試験と現場施工とで不溶化効果の違いを整理した既往の知見は少なく、適用性確認試験の結果を基に、土質や使用施工機械等を考慮した安全率を加味した現場添加量を決定する方法は確立されていないのが現状である。したがって、セメント協会¹⁾や土壤環境センター²⁾などで、不溶化材（剤）の現場添加量設定についての考え方が示されているのでこれらを参考にしている。以下に「安全率の設定」と「最少添加量の考え方」について記す。なお、現場において実際の施工機械を用いた試験施工を実施し、その結果をふまえて最終的に現場添加量を決定する方法もある。

（1）安全率の設定

セメント協会¹⁾では、セメント系固化材による汚染土壌の固化・不溶化対策を実施する際の室内配合試験結果から、安全率を加味した現場添加量の設定方法について、以下の3例を示している。

- ①目標とする基準を満足する添加量に割増率を乗じ、現場添加量とする（割増率は工法、土壌性状および施工機械の混合精度を考慮して設定する。）。
- ②目標とする基準を安全率で除して得られる溶出量を設定し、その値を満足する添加量を現場添加量とする。
- ③現地より採取した土壌に事前調査時の溶出量に安全率を乗じた溶出量になるよう模擬汚染土壌を作製し、室内配合試験に供する。

（2）最少添加量の考え方

添加量の設定にあたっては、現場における均一な混合が確保できる最少添加量についても考慮する必要がある。セメント系固化材の場合は 50 kg/m^3 程度（セメント協会¹⁾）、石灰の場合は 30 kg/m^3 （日本石灰協会⁴⁾）とされている。不溶化材（剤）として用いられる粉体系の薬剤は、セメントや石灰とは粒径やかさ比重等が異なる場合もあるため、上記の数値をそのまま採用することはできないが、一般には粒径が小さいほど、また、かさ比重が小さいほど均一な混合が確保できる材料の最少添加量は小さくなると考えられる。一方、溶液系の不溶化材（剤）については最少添加量に関する知見は殆どないため、液体系の不溶化材（剤）についても土壌への均一混合が担保できる添加量を試験施工等にて確認・決定することが望ましい。

3. 重金属等不溶化処理土壌の安定性に関する既往研究事例の調査

2.で示した適用性確認試験手順（案）では、不溶化材（剤）添加後の試料を用いたGEPC・TS-02-S1試験の実施によるpH変化に対する安定性の確認の工程を組込むことを提案している。しかし、不溶化処理土壌の埋戻し箇所によっては、pH変化以外の現象に着目した試験を追加することも考えられることから、重金属等不溶化処理土壌の安定性に関する既往研究事例を調査した。

科学技術文献情報のデータベース等の利用により、「不溶化」「土壌」「安定性」などのキーワード組み合わせにて検索し、国内の文献を中心に関連があると判断したものについて情報を整理した。その結果、不溶化処理土壌の（長期）安定性確認の試験方法は、大きく①長期保管試験、②溶出促進試験、③カラム試験に分けられた（表-1）。以下に各試験方法の概要について述べる。

3.1 長期保管試験

長期保管試験は、不溶化処理土壌を屋外もしくは室内で保管し、不溶化処理後の時間経過に伴う重金属等溶出量の変化を確認する方法である。

既往研究事例としては、不溶化処理土壌の屋外での暴露試験（橋本・小池沢⁵⁾および鈴木・橋本⁶⁾のほか、不溶化処理土壌をポリエチレン袋内、もしくは水中養生して保管する方法（奥村ほか⁷⁾；木虎ほか⁸⁾；日高・保賀⁹⁾；大山・保賀¹⁰⁾；大山¹¹⁾；川崎ほか¹²⁾，大山¹³⁾）や、タンクリーチング試験（国土交通省大臣官房技術審議官通達 平成13年4月20日¹⁴⁾）を長期に実施した試験について報告があった（大山ほか¹⁵⁾ ¹⁶⁾）。

その他、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）」¹⁷⁾では、自然由来の重金属等を含有する岩石・土壌の溶出挙動の試験方法として、ワグネルポットやコンテナを用いた雨水暴露試験やライシメータを用いる室内試験、タンクリーチング試験の長期間に渡る実施などの試験法を紹介しており、不溶化処理土壌の安定性確認試験としても適用できるものと考えられる。

表-1 不溶化処理土壌の安定性確認に関する試験方法

試験方法		概要	参考文献
長期保管試験	屋外暴露試験	不溶化処理土壌を（雨水が溜まらないようにした）ポリエチレン缶に入れ、地中もしくは地上に放置し、定期的に採取・分析する。	5), 6)
		土壌をワグネルポットやコンテナに入れて屋外に設置し、ポット内を通過した雨水を回収・分析する。	17)* ¹
	室内保管試験	不溶化処理土壌をポリ袋に密封・恒温（20℃）保管、もしくは密封・水中養生し、一定期間毎に対象重金属の溶出量等を測定する。	7) - 13)
	タンクリーチング試験	タンクリーチング試験を長期に実施し、一定期間毎に溶液中の重金属等濃度を測定する。	15) - 17) * ¹
溶出促進試験	酸・アルカリ添加溶出試験	GEPC・TS-02-S1 試験（硫酸添加溶出試験・アルカリ添加溶出試験）など	7) - 12), 18) - 24)
	乾燥試験・乾湿繰り返し試験	不溶化処理土壌を乾燥、もしくは乾湿繰り返し処理し、対象重金属等の溶出量の変化を確認	25)
	中性化試験	主にセメント系材料による不溶化処理土壌に対し、二酸化炭素を吹き込んで強制的に中性化させ、対象重金属等の溶出量の変化を調べる。	25) - 26)
	シリアルバッチ試験・繰り返し溶出試験	蒸留水や硝酸溶液で溶出試験を繰り返す。	17) * ¹ , 26)
	pH スタット試験	溶出液の pH を固定した溶出試験	27), 28)
	促進酸化試験	過酸化水素による溶出試験	17) * ¹ , 29) - 30) * ¹
	還元雰囲気での溶出試験	脱気水または還元剤添加による溶出試験	18) * ¹ , 31) - 32) * ¹
カラム試験	模擬雨水通水試験	pH5 程度に調整した液をカラムに通水し、カラム通過水の重金属濃度を測定する。	6), 18) - 19)
	酸通水試験・オランダカラム試験	pH4 の硝酸溶液をカラムに通水し、カラム通過水の重金属濃度を測定する。	26) - 27)
	ライシメータ* ² 試験	土壌を充填したライシメータに人工的に水を浸透させ、通過水の重金属濃度を測定する。	17) * ¹

*1 自然由来の重金属等を含有する岩石・土壌の溶出挙動の試験方法として紹介

*2 金属やコンクリート製の大きな容器に土壌などを充填して屋内もしくは屋外に設置し、様々な環境条件を与えて計測を行う実験装置

3.2 溶出促進試験

溶出促進試験は酸やアルカリを用いるなどにより不溶化処理土壌に強制的な負荷を与えて溶出量を測定する方法である。

GEPC・TS-02-S1 試験は、硫酸や消石灰を添加して溶出試験を実施する溶出促進試験に位置づけられる。前出の奥村ほか⁷⁾、木虎ほか⁸⁾、日高・保賀⁹⁾、大山・保賀¹⁰⁾、大山¹¹⁾、川崎ほか¹²⁾がこの試験を採用しており、その他、鈴木・橋本^{18), 19)}、中館ほか²⁰⁾、三浦ほか²¹⁾、福武ほか²²⁾、平井ほか²³⁾、大山・松久²⁴⁾などでも本試験法が不溶化処理土壌の安定性評価の試験として実施されている。これに準じた溶出促進試験法として、前出の橋本・小池沢⁵⁾、鈴木・橋本⁶⁾が、不溶化処理土壌に硫酸水溶液およびポルトランドセメント懸濁液を加えて溶出試験を実施している。

一方、田口ほか²⁵⁾は pH 変化のほか、乾燥や乾湿繰り返し処理および中性化の影響を調べている。田坂ほか²⁶⁾は、オランダ規格協会（NEN; Nederlands Normalisatie-instituut）のシリアルバッチ試験（NEN 7343）を模して pH4 の硝酸溶液により液体（L）/固体（S）=10 で 24 時間溶出の操作を 10 回繰り返す安定性評価試験を提案・実施しており、篠原ほか²⁷⁾は、pH を 1～13 に調製した溶液で 24 時間振とうする溶出試験、成ほか²⁸⁾は、飛灰の不溶化処理試料に液 L/S=10 で pH を 3～13 の 6 水準に保ちながら液中の重金属濃度を測定する「pH スタット試験」を実施している。

また、前出の土木研究所¹⁷⁾や田本ほか²⁹⁻³²⁾は、自然由来の重金属等を含有する岩石・土壌の溶出挙動の試験方法として、過酸化水素水や希硫酸を用いた促進酸化試験、繰り返し溶出試験、脱気水または還元剤添加による還元雰囲気での溶出試験などの試験法を紹介しており、不溶化処理土壌の安定性確認試験としても適用できるものと考えられる。

3.3 カラム試験

カラム試験は、不溶化処理土壌をカラムに充填して通水する試験で、通水量と降雨量の比較や酸の負荷量から相当する年数の安定性を評価する報文があった。

前出の鈴木・橋本^{6), 18), 19)}は、不溶化処理土壌を内径 5cm の塩ビ製カラムに充填し、蒸留水に硫酸を加えて雨水を pH5.0 に調製した溶液を 3L/h で通水し、通水開始 1,795 日後までの測定結果をカラムへの通水量と試料採取した土地の年平均降水量の比較から、この通水期間は 58 年に相当するとしている。

篠原ほか²⁷⁾は、不溶化処理土壌を充填したカラムに酸性雨を想定して pH4 に調製した硫酸溶液を通水し、約 270 B.V. (Bed Volume; 充填されている固相の空隙を満たすのに必要な溶媒の量) までの硫酸の負荷量から 117 年に相当するとしている。田坂ほか²⁶⁾は、前出の「リアルバッチ試験」以外に、模擬汚染スラッジを処理した造粒物を対象に、オランダのカラム試験 (NEN 7343) を実施している。これは、処理土壌を充填したカラムに pH4 の硝酸溶液を一定流速で L/S=10 になるまで流し続ける方法である。また、これに準じた方法として、L/S 比を 200 まで上げた場合、流速を 10 倍にした場合、処理土壌を乾湿繰り返しや締め固めなどの前処理を施した場合、硫酸、フミン酸、シュウ酸を流す場合などについても試験を実施している。

4. おわりに

重金属等不溶化処理の適用性確認試験手順 (案) については、既存の図書等を参考に、不溶化処理土壌の安定性確認の試験方法である GEPC・TS-02-S1 試験の工程を組み込んだ形で作成した (図-1)。

一方、不溶化処理土壌の安定性確認の試験方法としては、既往研究事例の調査より、GEPC・TS-02-01 試験のような pH 変化に対する安定性の評価のほかにも、長期保管、乾湿繰り返し、中性化試験、促進酸化試験など、着目する現象や目的に応じて実施されていることが分かった。本稿では各々の試験結果の紹介は省略したが、これらのデータ蓄積により、重金属ごとの特性や使用不溶化材 (剤) の特性についての知見が増えることが期待される。

また、現場で実施した不溶化処理土壌を実処理サイトで一定期間ごとに採取・分析する直接的な安定性確認のデータは現状では少ない (占部³³⁾、鈴木・橋本^{6), 18), 19)} ことから、今後データの蓄積が望まれる。

参考文献

- 1)セメント協会 (2012) :セメント系固化材による地盤改良マニュアル 第4版, 技報堂出版(株)
- 2)土壌環境センター編 (2001) :土壌汚染と対応の現実, (株)オーム社, pp 132-133
- 3)地盤工学会 (2009) :地盤材料試験の方法と解説, 丸善(株)
- 4)日本石灰協会 (2011) :石灰による地盤改良マニュアル, (株)報光社
- 5)橋本正憲, 小池沢耕二 (2002) :重金属不溶化処理土壌の長期安定性について, 第8回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 181-182
- 6)鈴木義彦, 橋本正憲 (2010) :重金属不溶化処理土壌の長期安定性試験結果, 土壌環境センター技術ニュース No.17, 9-16
- 7)奥村正孝, 日高厚, 川西順次, 大山将 (2006) :マグネシウム系固化材を用いた重金属汚染土壌の固化・不溶化処理, 鴻池組技術研究報告 2006, 1-6
- 8)木虎智子, 荒木一司, 玉田裕二, 石崎仁 (2006) :複合汚染土を用いた不溶化材の長期安定性評価, 第12回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 104-107
- 9)日高厚, 保賀康史 (2007) マグネシウム系固化材によるトンネル掘削ブリの固化・不溶化処理に関する検討, 第18回廃棄物学会研究発表会講演論文集, 892-894
- 10)大山将, 保賀康史 (2009) :自然的原因で重金属等を溶出する土砂に対する酸化マグネシウム系材料を用いた固化・不溶化処理の適用に関する検討, 第15回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 557-562
- 11)大山将 (2009) :酸化マグネシウム系材料による重金属等汚染土壌の不溶化処理事例と長期安定性, 第8回環境地盤工学シンポジウム発表論文集, 179-184

- 12)川崎浩司, 馬場秀明, 大山将 (2009): 酸化マグネシウム系材料によるシアン汚染土壌の固化・不溶化処理事例と長期安定性,第 44 回地盤工学研究発表会発表講演集, 1885-1886
- 13)大山将 (2010): アンチモン不溶化処理技術に関する基礎的検討, 第 16 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 136-140
- 14) 「セメント及びセメント系固化材の地盤改良への使用及び改良土の再利用に関する当面の措置について」の運用について (平成 12 年 3 月 24 日付け建設省技調発第 49 号建設省営建発第 10 号)
- 15)大山将, 小山孝, 日高厚 (2003A): フッ素・ホウ素汚染土壌の固化・不溶化処理に関する検討, 第 38 回地盤工学研究発表会発表講演集, 2315-2316
- 16)大山将, 小山孝, 日高厚 (2003B): マグネシウム系固化材による重金属等汚染土壌の固化・不溶化処理に関する検討, 第 14 回廃棄物学会研究発表会講演論文集, 1228-1230
- 17)土木研究所 (2010): 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), 資料集 9
- 18)鈴木義彦, 橋本正憲 (2007): 重金属不溶化処理土壌の長期安定性試験結果, 第 13 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 435-439
- 19)鈴木義彦, 橋本正憲 (2008): 重金属不溶化処理土壌の長期安定性試験結果, 土壌環境センター技術ニュース No.14, 1-7
- 20)中館健, 石原吉雄, 秦浩司, 野原勝明 (2008): 重金属複合汚染土壌の不溶化処理,第 14 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 541-544
- 21)三浦俊彦, 安田敏夫, 日笠山徹巳, 黒木泰貴, 久保博 (2009) カドミウムとセレンの複合汚染土の不溶化事例, 第 15 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 282-285
- 22)福武健一, 井出一貴,日笠山徹巳 (2010): 自然的原因によるひ素汚染土壌の不溶化事例, 第 16 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 131-135
- 23)平井恭正, 今村敏, 土光政伸 (2011): 重金属模擬汚染土壌の作製及び酸化鉄系材料を用いた不溶化に関する検討,第 17 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 523-526
- 24)大山将, 松久裕之 (2011): 酸化マグネシウム系材料を用いた高濃度フッ素汚染土壌に対する固化・不溶化処理に関する基礎的検討, 第 17 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 314-319
- 25)田口信子, 川地武, 久保博 (1996): 汚染土の不溶化処理に関する研究 (その 1) -シアン、六価クロム、セレン汚染土の不溶化と効果の安定性, 大林組技術研究所報, 115-120
- 26)田坂行雄, 寺下敬次郎, 武甕孝雄, 五十嵐秀明, 両角昌公 (2003): 汚染土壌に含まれる有害物質の不溶化処理技術の研究 その 2, 日本建築学会大会学術講演梗概集 (2003 年 9 月), 487-488
- 27)篠原隆明, 岡本俊, 橋本正憲 (2004): 重金属汚染土壌のチタン系薬剤による不溶化処理と長期安定性, 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講演集, 56-58
- 28)成昊鎮, 野田玲治, 伊藤一郎, 堀尾正韌 (2004): リバーニング処理による飛灰ペレット中の重金属溶出特性とその制御, 化学工学論文集, 30 (1), 65-72
- 29)田本修一, 伊東佳彦, 日下部祐基 (2006): 岩石の有害物質溶出に関する考察 (その 3)、日本応用地質学会平成 18 年度研究発表会講演論文集, 205-208
- 30)田本修一, 岡崎健治, 阿南修司, 伊東佳彦 (2009): 酸性化した溶出水による岩石ずりの重金属類溶出量評価に関する考察、第 8 回環境地盤工学シンポジウム発表論文集, 203-208
- 31)田本修一, 岡崎健治, 阿南修司, 伊東佳彦, 五十嵐敏文 (2010): 岩石の有害物質溶出に関する考察 (その 7)、日本応用地質学会平成 22 年度研究発表会講演論文集, 323-324
- 32)田本修一, 伊東佳彦, 倉橋稔幸, 阿南修司, 五十嵐敏 (2011): 文岩石の有害物質溶出に関する考察 (その 8) -水質組成と溶出源評価に関する検討一、日本応用地質学会平成 23 年度研究発表会講演論文集, 159-160
- 33)占部正尚 (2005): ソフィアの土壌汚染対策技術 増加する相談事例と、不溶化の長期安定性について, 産業と環境, 2005 年 9 月号, 87-89