

## 論文

# 砕石スラッジを利用した 重金属汚染土壌処理の基礎的検討

齊 藤 貢<sup>※)</sup>  
大 塚 尚 寛<sup>※※)</sup>

## 1. はじめに

土壌は、水や大気とともに環境の重要な構成要素であり、人間をはじめとする生物の生存基盤や物質循環の要として、また、水質の浄化や食料の生産などにおいて重要な役割を担っている。しかし、土壌は、水や大気のように流動性や拡散性を持たないため、有害物質を滞留する可能性がある。鉛 (Pb)、カドミウム (Cd)、クロム (Cr) など自然界で分解することのない重金属類によって土壌が一旦汚染されると、その影響が長期にわたり持続する蓄積性の汚染となるため、土壌中から効率よく汚染物質を除去・分離する処理方法の開発が期待されている。

環境省の行った土壌汚染調査によると、重金属汚染土壌の対策としては掘削除去がほとんどであり、掘削除去後の土壌処理は敷地外に持ち出して処分されている現状にある<sup>1)</sup>。原位置で行われている物理・化学的な汚染物質除去による土壌浄化方法は、浄化技術として確立されているが、多額の費用や設備を必要とする大がかりな方法である<sup>2)</sup>。一方で、固化・不溶化による土壌処理方法<sup>2, 3)</sup>は、汚染物質を直接除去するわけではないため根本的な土壌浄化とは言い難いが、土壌中に種々の固形化剤や不溶化剤を添加し、他の生活圏への汚染物質の移動を抑制することから、経済的な処理方法として広く実施されている。

固化・不溶化による重金属汚染土壌の処理には、重金属の吸着と分離の2つの工程が必要となる。そこで本研究では、重金属吸着物として『砕石スラッジ』に着目した。砕石スラッジは、砕石および砕砂を製造する際に発生する細粒分を水洗した洗浄水から脱水分離したものであり、その性状は汚染されていない原石山の構成物質

(二酸化ケイ素 ( $\text{SiO}_2$ ) や酸化アルミニウム ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) が主成分) そのものである。粒度が非常に細かいため表面積が大きく、含水比が高いことから、汚染土壌との混合攪拌により重金属成分の物理および化学的吸着が見込まれる。

一方で砕石スラッジは、採掘跡地の埋め戻しや植栽用覆土、さらに路盤材としてその一部が利用されている程度であり、有効な資源となり得る可能性を秘めているにもかかわらず産業廃棄物となっている現状にある<sup>4)</sup>。そのため、砕石スラッジの再資源化や有効利用、資源循環型社会への貢献という観点からも、砕石スラッジの利用は極めて有効であると考えられる。

本研究では、砕石スラッジを重金属吸着材に利用した原位置での汚染土壌処理の可能性について検討した。

## 2. 砕石スラッジの重金属吸着能

### 2. 1 砕石スラッジ

実験に使用した砕石スラッジは、粒径 $106\mu\text{m}$ 以下の安山岩スラッジおよび砂岩スラッジの2種類である。表1に砕石スラッジの物性値と蛍光X線分析による金属類の化学組成を示す。

構成する元素の種類は、両スラッジ間で違いはみられなかったが、第2、第3元素である鉄 (Fe) とカルシウム (Ca) の構成比に違いが確認された。砂岩スラッジのCaの割合はSiと同程度であり、安山岩スラッジと比較してその含有量が高いことが確認された。

### 2. 2 重金属吸着能の測定方法

測定対象重金属は、汚染発生件数の多いPb、Cd、Crとした。重金属吸着能の測定方法は、 $500\text{mg/l}$ に調製した重金属・硝酸 ( $\text{HNO}_3$ ) 標準溶液 (関東化学、金属濃度 $1000\text{mg/l}$ )  $100\text{ml}$ と砕石スラッジ $5.0\text{g}$ をポリプロピレ

※) 岩手大学工学部建設環境工学科 助教 博士 (工学)

※※) 正会員 理事 岩手大学工学部建設環境工学科 教授 工博

表1 砕石スラッジの物性値と化学組成

	安山岩スラッジ		砂岩スラッジ	
土粒子密度 (g/cm <sup>3</sup> )	2.83		2.64	
含水比 (%)	24.3		21.1	
粒度分布 (%)				
礫分	0.00		0.00	
砂分	7.00		15.0	
シルト分	57.0		41.0	
粘土分	36.0		44.0	
液性限界 (%)	31.4		29.0	
塑性限界 (%)	21.5		17.3	
塑性指数	9.90		11.7	
pH	8.00		8.10	
成分組成 (%)				
	Si	39.7	Si	31.5
	Fe	26.1	Ca	30.9
	Ca	14.5	Fe	18.3
	Al	10.6	Al	8.91
	K	1.86	K	4.03
	Mg	1.72	Mg	1.80
	Ti	1.68	Ti	1.35
	Na	1.67	Na	0.92

ン製の容器に入れ、振盪機により120回/minの速度で30分間振盪する。振盪後、直ちに容器内のスラッジを自然ろ過 (ADVANTEC, Na 5 B,  $\phi$ 150mm) し、110°Cの恒温乾燥器内で24時間乾燥させる。乾燥後、スラッジ1.0gを秤量し、硝酸一過酸化水素による湿式酸分解を行う。得られた溶液を20mlに定容し、絶対検量線法により原子吸光光度計 (SHIMADZU, AA-6300) で砕石スラッジへの重金属吸着量を測定する。この条件で測定したスラッジ1.0g当りの重金属吸着量を“重金属吸着能”と定義した。

## 2. 3 重金属吸着能の測定結果と性能評価

重金属の吸着には、吸着材の陽イオン交換容量 (CEC) と吸着材の比表面積が大きな要素と考えられる。CECは、土壌が持つ負電荷の総量 (交換可能な陽イオンの量) であり、単位質量 (通常100g) あたりのミリグラム当量数 (meq) で表され<sup>5)</sup>、CECが高いほど陽イオンの重金属吸着量は増加すると推測される。また比表面積は、重金属

の吸着可能な面積を表しており、比表面積が大きいほど重金属吸着量は増加すると推測される。

砕石スラッジの重金属吸着能を評価するために、重金属や揮発性有機化合物の吸着材として広く用いられている天然硬質ゼオライト ((株) チエ, 粒径75 $\mu$ m以下) および活性炭 (関東化学, 粒径75 $\mu$ m以下) の重金属吸着能を砕石スラッジの場合と同様の方法で測定し、砕石スラッジの重金属吸着材としての性能評価を行った。表2に各砕石スラッジと既存の重金属吸着材の重金属吸着能および CEC の測定結果を示す。

砕石スラッジの重金属吸着能を比較すると、化合物中で陽イオンの形態を取りやすい Pb や Cd では砂岩スラッジへの吸着量が高い値が、陰イオンの形態を取りやすい Cr では安山岩スラッジの吸着量が高い値を示し、岩種によって吸着傾向が異なる結果であった。また吸着量で比較すると、いずれの砕石スラッジにおいても Pb の吸着量が他の重金属に比べて1オーダー高い結果であった。

表2 重金属吸着能と陽イオン交換容量

	安山岩スラッジ	砂岩スラッジ	ゼオライト	活性炭
Pb (mg/g)	1.24	3.17	9.83	3.05
Cd (mg/g)	0.15	0.29	0.22	$7.42 \times 10^{-3}$
Cr (mg/g)	0.20	N.D.	$6.67 \times 10^{-4}$	5.32
CEC (meq/100g)	11.3	7.40	160	9.00

砕石スラッジに比べて、既存の重金属吸着材であるゼオライトではPb吸着量が高く、活性炭ではCr吸着量が高い結果であった。ゼオライトのPb吸着量が高い理由としては、他に比べてCECの値が非常に大きいことが上げられる。砂岩スラッジのPb吸着能は3.17mg/gであり、活性炭と同程度であった。既存の重金属吸着材であるゼオライトよりは劣るものの、砕石スラッジが産業廃棄物として多量に廃棄されている現状を考えると、固化・不溶化によるPb汚染土壌処理への砂岩スラッジの利用が期待できる結果が得られた。

## 2. 4 砂岩スラッジのPb吸着形態

Pb<sup>2+</sup>やCd<sup>2+</sup>等の陽イオンは、層状ケイ酸塩粘土鉱物（モンモリロナイト、ハロイサイト等）の交換性陽イオンのサイトを置換するイオン交換反応により吸着することが知られている<sup>6, 7)</sup>。また、酸化・水酸化物（ゲタタイト、ギブサイト等）や非晶質アルミノケイ酸塩鉱物（アロフェン等）の表面へのPb吸着量は、pHの上昇とともに増加することが報告されている<sup>8, 9)</sup>。砂岩スラッジを用いたPb汚染土壌浄化の可能性を検討するため、交換性陽イオンによるイオン交換反応やPb生成物の沈殿吸着の観点から、砂岩スラッジのPb吸着の形態を検討した。

### 2. 4. 1 交換性Caによるイオン交換反応

砂岩スラッジには高い構成比率でCaが含有している。粉末X線回折装置（理学電機、RINT-2200）による砂岩スラッジの定性分析の結果、炭酸カルシウム（CaCO<sub>3</sub>）由来のCaが高強度で確認された。CaCO<sub>3</sub>は低pH下でイオン解離しやすい状態となる。砂岩スラッジと混合したPb・HNO<sub>3</sub>標準溶液は酸性溶液であったため、CaCO<sub>3</sub>から解離したCa<sup>2+</sup>とPb<sup>2+</sup>がイオン交換した可能性が示唆される。

スラッジ中のCa含有量がPb吸着能に大きく影響すると考えられるため、あらかじめ50% HNO<sub>3</sub>（関東化学、特級）で振盪機により120回/minの速度で30分間振盪し、Ca含有量を減らした砂岩スラッジを用いてPb吸着能の測定を行った。その結果、酸洗浄した砂岩スラッジのPb吸着能は0.72mg/gであり、未洗浄（3.17mg/g）のものと比較して約1/5程度であった。酸洗浄した砂岩スラッジによるPb吸着能実験で、スラッジをろ過した後のろ液中Pb濃度に大きな変化が見られず、スラッジへのPb吸着がほとんどなかったことが検証された。一方、未洗浄の砂岩スラッジによるPb吸着能実験で、ろ過後のろ液中Ca濃度が増大したことから、砂岩スラッジのPb吸着は、スラッジ中のCaによるイオン交換が関与しているものと推察された。

### 2. 4. 2 Pb生成物の沈殿反応

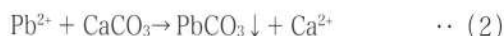
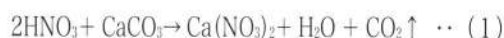
水中に存在する重金属イオンは、pHの上昇とともに重金属水酸化物となり沈殿する。重金属水酸化物の水に対する溶解度は非常に小さいものが多く、酸性条件下でイオンとして溶解していた重金属は、アルカリで中和すると水酸化物塩となり沈殿するようになる。金属水酸化物が沈殿するために必要な条件は、金属イオン濃度とOH<sup>-</sup>イオン濃度の積がその水酸化物の溶解度積より大きくなることであり、排水処理の分野でアルカリ条件下での凝集沈殿法はよく知られている<sup>10)</sup>。

砂岩スラッジによるPb吸着能の測定前後では、溶液のpHが1.3から振盪後に6.0に上昇することが確認された。つまり、砂岩スラッジへのPb吸着は、pHの上昇に伴いPb(OH)<sub>2</sub>として沈殿している可能性が示唆される。

蛍光X線および粉末X線回折による分析の結果、砂岩スラッジ中のCaは全体の約30%であり、その大部分が

CaCO<sub>3</sub>であることが確認されたため、Pb 吸着能測定実験で使用した Pb 標準溶液に CaCO<sub>3</sub>(関東化学、粒径12-15 μm) を添加し反応生成物の確認を行った。添加した CaCO<sub>3</sub>は、砂岩スラッジ5.0g中の Ca 構成比率である約30%に相当する量とした。30分間振盪後、白色沈殿をろ過し乾燥させ、粉末X線回折により白色沈殿物の分析を行った。

粉末X線回折の結果、Pb(OH)<sub>2</sub>に起因するピークは確認されず、未反応の CaCO<sub>3</sub>と PbCO<sub>3</sub>の生成が確認された。生成物から推察される化学反応式を(1)式、(2)式に示す。



HNO<sub>3</sub>とCaCO<sub>3</sub>の中和反応によってCO<sub>2</sub>が発生し、pHが6.0まで上昇したものと考えられる。またPbCO<sub>3</sub>の生成は、CaCO<sub>3</sub>の解離によって生じたCa<sup>2+</sup>とPb<sup>2+</sup>のイオン交換反応によるものと推察される。

以上より、砂岩スラッジのPb吸着形態は、砂岩スラッジ中のCaCO<sub>3</sub>の解離によって生じたCa<sup>2+</sup>とPb<sup>2+</sup>のイオン交換による吸着、さらにはPbCO<sub>3</sub>の生成による沈殿生成物の吸着によるものと推察された。

### 3. Pb 汚染土壌と砕石スラッジの混合による Pb の不溶化

土壌汚染対策法(2002年5月公布、2003年1月施行)によって、Pbをはじめとする重金属類は第2種特定有害物質に指定されている。汚染区域に指定された土壌は、含有量基準(150mg/kg)と溶出量基準(0.01mg/l)および第2溶出量基準(0.3mg/l)に適合か不適合かによって、適当な措置対策を施す必要がある<sup>11)</sup>。そこで、砂岩スラッジの混合によるPb汚染土壌からのPb不溶化の有効性について検討した。

#### 3. 1 砂岩スラッジによる Pb 汚染土壌の Pb 不溶化の有効性

3. 1. 1 高濃度 Pb 汚染土壌からの Pb 溶出量の測定  
土壌を構成する粒子サイズはばらつきがあり、各粒子サイズにより比表面積が異なるためPb吸着能に差異が生じると考えられる。そこで、Pb吸着の程度が評価しやすい高濃度Pb汚染土壌を用いて、砂岩スラッジとの

混合土壌中における粒径ごとのPb含有量の測定を行った。そして、砂岩スラッジの混合によるPb不溶化の可能性、またPb吸着材となる砂岩スラッジの混合比率を検討するためPb溶出量の測定を行った。

硝酸鉛(関東化学)4.8g(Pb:3000mgに相当)を蒸留水100mlに溶解したPb溶液を、黒土1000gに添加し、黒土に万遍なくPb溶液が含有するように電動ミキサで混合(132rpm、30分間)する。110℃に設定した恒温乾燥器内で24時間養生し、完全に水分を蒸発させて高濃度Pb汚染土壌を作製した。その後、100mesh(106 μm以下)のふるいを通過した砂岩スラッジを高濃度Pb汚染土壌に加えて混合土壌とした。

図1に高濃度Pb汚染土壌(3000mg/kg)と重量比5%の混合土壌における粒径ごとのPb含有量とPb溶出量を示す。土粒子の分粒は、8.6、18、36、60mesh(各2.0mm、850、425、250 μm以下通過)のふるいをういて行った。

粒径の小さい土粒子ほどPb含有量が高い結果であった。特に、粒径2.0mmを超える土粒子中のPb含有量は環境基準値を下まわっており、Pb溶出量も溶出量基準を下まわる結果であった。そこで、Pb含有量の多い粒径2.0mm以下の土粒子について、砂岩スラッジの混合比を変化させてPb溶出量の測定を行った。

小分けした高濃度Pb汚染土壌に対して重量比が50%、10%、5%となるように砂岩スラッジを加え、電動ミキサにより攪拌混合(132rpm、5分間)したものをPb不溶化実験の混合土壌とした。

混合土壌を20℃に設定した恒温乾燥器内で任意の時間(0、7、14日間)養生させた後、水抽出法によりPbの溶出量の測定を行った。抽出は、混合土壌10gをポリプロピレン共重合体製の容器に入れた後、純水(pH5.8~6.3)100mlを加え、常温・常圧で振盪機により6時間連続振盪した。30分間静置した後、遠心分離機により3000rpmで20分間遠心分離を行った。上澄み液をメンブランフィルター(Milipore、孔径0.45 μm)を用いて完全にろ過し、そのろ液をPb流出量測定の試料とした。表3に汚染土壌と砂岩スラッジの混合土壌からの養生期間におけるPb溶出量と第2溶出量基準の適否を示す。なお溶出量の測定は、各Pb汚染濃度につき3サンプルを測定し算術平均値で示した。

砂岩スラッジを混合しないPb汚染土壌からのPb溶

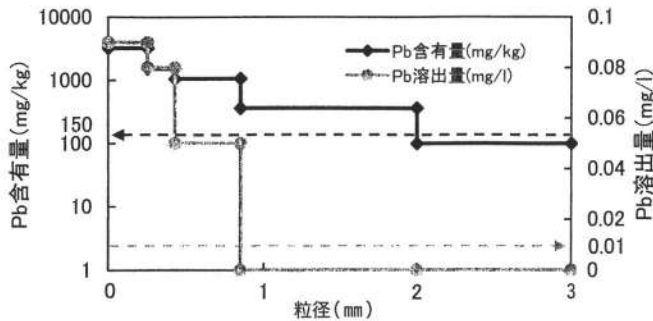


図1 高濃度 Pb 汚染土壌における粒径ごとの Pb 含有量と Pb 溶出量

表3 混合土壌からの養生期間における Pb 溶出量と第2溶出量基準の適否

重量比 (Pb汚染土壌：砂岩スラッジ)	養生日数(x)後のPb溶出量 (mg/l)			第2溶出量基準の適否*
	x=0	x=7	x=14	
100:50	0.017	0.010	0.0067	○
100:10	0.050	0.033	N.D. <sup>†</sup>	○
100:5	0.043	0.043	0.0033	○
100:0	0.50	—	—	×

\* 第2溶出量基準：≤0.3 mg/l

<sup>†</sup> N.D.：検出限界以下

出量が0.50mg/lであったのに対し、砂岩スラッジを混合した土壌からの Pb 溶出量は、砂岩スラッジの混合比率にかかわらず約1/10程度に低下する結果が得られた。また、14日間の養生後でも Pb 溶出量は低い値のままで維持されており、Pb 不溶化材としての可能性が示唆される結果が得られた。

### 3. 1. 2 低濃度 Pb 汚染土壌からの Pb 溶出量の測定

土壌汚染対策法では、含有量基準値を超過した高濃度汚染土壌は不溶化工法により措置することができない。そのため現実的には、重金属汚染事例の大半を占める低濃度汚染土や土壌汚染対策法の適用外である自然的要因による汚染土（含有量の上限：140mg/kg 以下）が、砂岩スラッジの混合による不溶化を行う対象となる。そこで、含有量基準値以下の低濃度 Pb 汚染土壌を用いて Pb 溶出量の測定を行った。

低濃度 Pb 汚染土壌の作製は、シャーレに敷き詰めた黒土（粒径2.0mm 以下）10g に土壌含有量基準以下（Pb：150mg/kg 以下）の汚染土壌となるように Pb 標準溶液の

相当量（例えば、汚染濃度150mg/kg の場合は1.5ml となる）を加えて作製した。Pb 標準溶液は、正確に量り取った相当量を約4ml に希釈した後、ピペットを用いて黒土を Pb 溶液で万遍なく湿潤させるように添加した。110℃に設定した恒温乾燥器内で24時間養生し、完全に水分を蒸発させて Pb 汚染土壌とした。Pb 汚染土壌に、100mesh（106μm 以下）のふるいを通過した砂岩スラッジ0.5g（重量比5%）を加え、手で1分間混合した。砂岩スラッジの混合比は、処理汚染土が不溶化可能であった際に原位置への埋め戻しを想定して、締固め後に土量体積が増加しない程度の添加量である5%とした。

Pb 溶出量の測定は、高濃度汚染土壌と同様の方法で行った。表4に混合土壌からの Pb 溶出量と溶出量基準の適否を示す。

含有量基準値以下の Pb 汚染土壌については、いずれも第2溶出量基準値をクリアする結果であった。また、Pb 含有量が40mg/kg 以下の汚染土壌では、全ての測定サンプルにおいて溶出量基準値を下まわる結果が得られた。

表4 混合土壌(砂岩スラッジ5%混合)からのPb溶出量と溶出量基準の適否

混合土壌中Pb含有量 (mg/kg)	測定サンプル数	Pb溶出量 (mg/l)			溶出量基準*	
		(最小)	(最大)	(平均)	$\leq 0.01 \text{ mg/l}^\dagger$	$\leq 0.3 \text{ mg/l}^\ddagger$
150	5	0.014	0.018	0.015	×	○
90	4	0.013	0.015	0.014	×	○
50	5	0.0090	0.011	0.010	△	○
40	5	0.0083	0.0094	0.0090	○	○
30	5	0.0067	0.0075	0.0072	○	○

\* ○: 全サンプル適, △: サンプル平均適, ×: サンプル平均不適

† 溶出量基準:  $\leq 0.01 \text{ mg/l}$ ‡ 第2溶出量基準:  $\leq 0.3 \text{ mg/l}$ 

表5 pH変化におけるPb溶出量と溶出量基準の適否

調整pH	測定サンプル数	Pb溶出量 (mg/l)			溶出量基準*	
		(最小)	(最大)	(平均)	$\leq 0.01 \text{ mg/l}^\dagger$	$\leq 0.3 \text{ mg/l}^\ddagger$
1.0	3	1.2	1.3	1.3	×	×
1.25	3	0.68	0.99	0.79	×	×
1.5	3	0.23	0.29	0.25	×	○
2.0	3	0.033	0.043	0.038	×	○
3.0	3	0.022	0.024	0.023	×	○
5.0	3	0.018	0.019	0.019	×	○
7.0	3	0.018	0.024	0.020	×	○

\* ○: 全サンプル適, △: サンプル平均適, ×: サンプル平均不適

† 溶出量基準:  $\leq 0.01 \text{ mg/l}$ ‡ 第2溶出量基準:  $\leq 0.3 \text{ mg/l}$ 

### 3. 2 Pb不溶化へのpHの影響

土壌 pH は、酸性雨をはじめとする様々な要因により変化することが知られている。環境省が2000年から2002年に全国23地点で実施した酸性雨調査においては、pH 4未満の降雨が全体の約5%を占め、欧米並みの酸性雨が観測されたと報告している<sup>12)</sup>。また、酸性雨以外の土壌 pH 変化をもたらす要因として、微細な金属鉱物を含む岩石や地層が、掘削や浚渫工事により地表の酸素と接触し酸性化が進行するなどの報告がある<sup>13-15)</sup>。つまり、砂岩スラッジの混合により、いったん Pb を不溶化した後にその土壌を埋め戻しても、酸性雰囲気下において Pb が再溶出し、二次汚染を引き起こす可能性が考えられる。そこで、混合土壌の酸性雰囲気下における Pb 溶出量の変化を検討した。

実験は、土壌中の Pb 含有量が土壌含有量基準である 150mg/kg、砂岩スラッジの混合比が汚染土壌に対し重量比5%の混合土壌を用いて行った。水抽出法の代わりに純水と硝酸により pH 調製を行った各溶液 (pH1.0、1.25、1.5、2.0、3.0、5.0、7.0) を用いて抽出し、Pb 溶出量の測定を行った。表5に pH 変化における Pb 溶出量と溶出量基準の適否を示す。

pH2.0を下まわる酸性条件で Pb 溶出量が急激に増加する傾向が見られた。pH2.0以上では Pb 溶出量が0.018~0.043mg/l とほぼ一定の値をとり、溶出量基準は超過するもののいずれも第2溶出量基準を満たす結果であった。酸性雨等の影響により土壌の pH が2.0を下まわる可能性が極めて低いことから、汚染現場において砂岩スラッジの混合による Pb 不溶化を行った場合の Pb の再溶



出（二次汚染）の恐れはないと考えられる。

### 3. 3 汚染土壌の減量化と処理工程の検討

実現場での汚染土壌処理では、汚染物質を多量に含んだ濃縮汚染土と基準値以下の土壌とに分離することで場外処分となる土壌を減量でき、低コストでの土壌処理が可能になると考えられる。原位置で処理が可能となるような砂岩スラッジを用いた Pb 汚染土壌の不溶化工程について検討した。

Pb 含有量基準を超える高濃度汚染土壌は不溶化後も原位置に埋め戻すことはできないため、汚染事例の大半を占める低濃度 Pb 汚染土壌が不溶化処理の対象となる。図2に実現場を想定した低濃度 Pb 汚染土壌と砂岩スラッジの混合による Pb 不溶化の処理フローを示す。

汚染土壌を掘削後、汚染処理土量を減量するためにふ

るい選別機を用いて粒径 2 mm を基準に分離する。Pb 含有量の少ない粒径 2 mm を超える粗粒分のうち、溶出量基準に適合するものについては対策が不要であるため、原位置への埋め戻しを行う。Pb 含有量の多い粒径 2 mm 以下の細粒分や、溶出量基準に不適合でかつ第2溶出量基準には適合する粒径 2 mm を超える粗粒分は、砂岩スラッジを混合して Pb 不溶化処理を行う。Pb 溶出量の基準をクリアした不溶化処理後の土壌は、2年間の地下水モニタリングを経て、その後地下水汚染がないと判断されれば汚染土壌の浄化措置が完了となる。

本処理方法は、低濃度 Pb 汚染土壌が対象であるため、他の重金属や VOC などとの複合汚染土壌では充分な不溶化処理がなされない可能性がある。もし、砂岩スラッジ混合後の溶出量基準や地下水モニタリング後に基準を

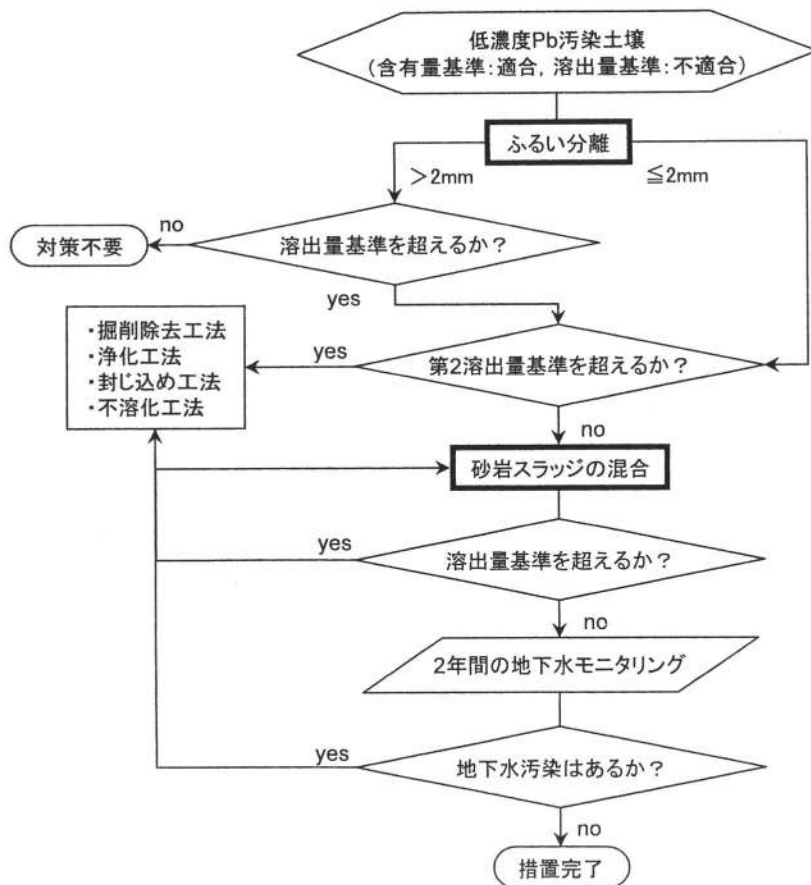


図2 低濃度 Pb 汚染土壌と砂岩スラッジの混合による Pb 不溶化の処理フロー

クリアしない場合は、処理土量が埋め戻し可能土量を超過するけれども、再度砂岩スラッジを混練して不溶化処理を行うか、最終的には他の対策工法により処理することが必要となる。

本処理工程は、『ふるい分離』と『土壌とスラッジの混練』の作業を、自走式ふるい選別機や自走式土質改良機とすることで対象地への移動を容易にし、原位置での処理を可能とするものである。本研究で提案した砂岩スラッジを用いた Pb 不溶化の処理工程は、図2のフローで示したように、必ず措置完了となるような絶対的な手法とは言い切れず、無理な場合は従来工法との併用を前提とした工程である。しかし、処理施設等への汚染土壌の運搬が不要となるため、運搬過程における汚染土壌の飛散の心配がない、また、現在不溶化に使用されている固化材や不溶化材、天然ゼオライトなどと比較して砂岩スラッジは、碎石生産工程で発生する副産物であるため、低コストでの入手が見込めるなど有用な点が多い。砂岩スラッジの混合による Pb の不溶化は、コスト面もさることながら、碎石スラッジの再資源化や資源循環型社会への貢献という観点からも有用な Pb 汚染土壌処理工法として期待される。

#### 4. まとめ

碎石スラッジが重金属汚染土壌処理に利用可能であるかを検討するため、碎石スラッジの重金属吸着能の測定、Pb 汚染土壌と砂岩スラッジの混合による Pb の不溶化に関する検討を行った結果、以下のように結論づけられる。

1. 碎石スラッジの重金属吸着能は、岩種および重金属の種類によって異なることが明らかとなった。特に、砂岩スラッジの Pb 吸着能が高い結果が得られた。

2. 砂岩スラッジの Pb 吸着形態は、砂岩スラッジ中の  $\text{CaCO}_3$  の解離によって生じた  $\text{Ca}^{2+}$  と  $\text{Pb}^{2+}$  のイオン交換による吸着、さらには  $\text{PbCO}_3$  の生成による沈殿生成物の吸着によるものと推察された。

3. 重量比 5% の砂岩スラッジを混合した土壌からの Pb 溶出量は、スラッジを含まない土壌に比べて約 1/5 程度に低下する結果が得られた。また、14 日間の養生後でも Pb 溶出量は低い値のままで維持されており、Pb 不溶化材としての有効性が示唆される結果が得られた。

#### 謝 辞

本研究の一部は、新キャタピラー三菱 (株) (現: キャタピラー・ジャパン (株)) との共同研究「重金属汚染土壌浄化への碎石スラッジの有効利用に関する研究」により実施した成果である。ここに記して謝意を表する。また、本研究において、実験および解析に協力された卒業生 柳沼彰広氏 (現: 日本上下水道設計 (株))、堀江亨氏 (現: 日陽エンジニアリング (株))、佐藤善輝氏 (現: 秋田県にかほ市役所)、文屋ゆかり氏 (現: 東北大学大学院環境科学研究科) に謝意を表する。

#### 参考文献

- 1) 環境省ホームページ; 土壌汚染対策法の施行状況及び土壌汚染調査・対策事例等に関する調査結果について: <http://www.env.go.jp/water/dojo/chosa.html>
- 2) シーリングソイル協会ホームページ; <http://www.sealingsoil.gr.jp/compare.htm>
- 3) 武島俊達、岡見智章、高田史朗、森本一生、和田信彦: シーリングソイル工法と洗浄工法の併用による重金属汚染土の高度浄化技術、第13回環境地質学シンポジウム論文集、pp. 139-142, (2003)
- 4) 脱水ケーキ調査研究委員会編: 脱水ケーキ利用技術マニュアル、(社) 日本碎石協会、pp. 1-5, (2002)
- 5) 土壌環境分析法編集委員会編: 土壌環境分析法、博友社、pp. 208-210, (1997)
- 6) J. A. Davis, C. C. Fuller and A. D. Cook: A model for trace metal sorption processes at the calcite surface: Adsorption of  $\text{Cd}^{2+}$  and subsequent solid solution formation, *Geochim. Cosmochim. Acta*, Vol. 51, pp. 1477-1490, (1987)
- 7) 湊 秀雄、渋谷靖弘: 都市廃碎最終処分場外壁材質としての粘土等の活用実施例と汚染土壌の安定処理新技術、粘土科学、Vol. 38(3), pp. 167-180, (1999)
- 8) E. A. Forbes, A. M. Posner and J. P. Quirk: The Specific Adsorption of Cd, Co, Cu, Pb, and Zn



- on Goethite, *J. Soil Sci.*, Vol.27(3), pp.154 – 166, (1976)
- 9) R. M. Mckenzie : The Adsorption of Lead and Other Heavy Metals on Oxides of Manganese and Iron, *Aust. J. Soil Res.*, Vol.18, pp.61 – 73, (1980)
- 10) 独立行政法人 石油天然ガス・金属鉱物資源機構鉱害防止支援業務グループ:坑廃水処理の原理, pp. 13 – 32, (2006)
- 11) 和田信彦: 重金属汚染土の対策工法の現状と問題点、第13回環境地質学シンポジウム論文集, pp. 133 – 138, (2003)
- 12) 環境省ホームページ; 報道発表資料-酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書について:  
<http://www.env.go.jp/press/press.php?serial=5052>
- 13) 下垣 久、大山隆弘、中川加明一郎: 堆積性泥岩からの強酸性水の生成に関する実験的検討、水環境学会誌、Vol. 20 (6), pp. 419 – 423, (1997)
- 14) 五十嵐敏文、大山隆弘: 黄鉄鉱の酸化に伴う貯水池水質の酸性化とアルミニウムの溶出、応用地質、Vol. 38 (5), pp. 244 – 251, (1997)
- 15) 服部修一、太田岳洋、木谷日出男: 酸性水発生に関わる掘削残土の応用地質学的検討- 鉱山に近接して施工される八甲田トンネルにおける岩石特性評価法-、応用地質、Vol. 43 (6), pp. 359 – 371, (2003)
-