

油汚染土のバイオレメディエーションに関する研究（その4）

クウェートにおける大規模現地実証試験の結果と処理方式の提案

千野 裕之 辻 博和
石川 洋二 松原 隆志
(エンジニアリング本部
環境エンジニアリング部)

Study on Bioremediation of Oil Contaminated Soil (Part 4)

Result of Large Scale Field Experiment in Kuwait and Proposal for Application of Each Remediation Technology

Hiroyuki Chino Hirokazu Tsuji
Yoji Isikawa Takashi Matsubara

Abstract

Bioremediation field experiment was carried out for the treatment of another 5500 m³ oil contaminated soil in Kuwait. Further cost reduction by improving efficiency and verification of large-scale demonstration is required. Then, the new technology such as composting piles using pile-turner were introduced and investigated. Pile-turner method is effective same as landfarming method. It is cleared that brackish water could be utilized for irrigation same as fresh water. Vegetation experiments were carried out using the bioremediated soil, then the yield of the third crop was more than that of native desert soil. So the soil physical characteristics were tested, then the bioremediated soil were better improved on the permeability and water holding capacity than that of non-treated soil and native desert soil. The criteria for the treatment of the contaminated soil in Kuwait based on the end points of several experimental results were proposed and also the protocol for the actual field treatment depends on the contamination level and area were proposed.

概要

先の湾岸戦争における流出原油における汚染土を浄化するために、今までの研究に引き続いて、クウェートにおいて新たに5500m³規模のバイオレメディエーション（生物的環境修復）現地実証試験を行った。ここでは、パイルターナー（畝造成および攪拌機械）を導入し、コスト低減と大量施工の可能性を検討した。その結果、汚染土中の油分は順調に分解し、ランドファーミング（畑耕耘）方式と同程度の分解速度と到達度を示し、パイルターナー方式は有効な方式であると判定された。また、塩分を若干含むブラキッシュウォーターは真水と同様に散水に使用可能なことなどを明らかにした。バイオレメディエーション処理土について植栽試験を三作にわたり実施し、処理土において砂漠自然土に比べて植栽植物の刈り取り収量が大きくなった。そこで、処理土の物理性を評価検討したところ、処理土は砂漠自然土あるいは無処理土に比べて透水性も保水性も優れており、軽汚染処理土ではもとの砂漠自然土と比較しても、透水性、保水性の両面で優れた土に改良されることが明らかになった。上述の結果、さらには既報の成果をもとに、クウェートにおける油汚染土の処理目標値を設定するとともに、汚染の程度別さらには原位置での処理が可能か否かによって最適な処理方法を提案した。

1. まえがき

先の湾岸戦争における流出原油による油汚染土の修復に関連して、クウェート科学研究所と共同で、クウェート現地において、バイオレメディエーション実証実験を

1994年度から実施してきた。1) これまでに、ランドファーミング(畑耕耘)方式、ウインドローパイル(高畝切り返し)方式、スタティックパイル(高畝強制通気)方式による実証試験で約7000 m³の処理を行い、3方式のいずれでもTPH (Total Petroleum Hydrocarbon) の80%以上が分解

し、その到達濃度は1%未満となった。²⁾ 加えて、浄化処理土の植栽試験によって処理土が十分植物が生育できるまでに修復されたことを証明できた。^{3)~4)}

しかしながら、同国における汚染土の浄化を実工事として進めるためには、さらなる効率化すなわちコストダウンが望まれた。それを解決する手段として、施工機械としてパイルターナーを導入した。パイルターナーは、畝を自動的に高速で攪拌・造成することができるので、通気と均一化が極めて効率的である。また、バイオレメディエーション処理においては、水および栄養等の添加物を加える必要があり、パイルターナーはこれらと土の混合を効率的に行うことが可能である。本報告では、上述の既存の3方式と比較検討し、適用性を明らかにした。最後に、それらの結果を踏まえて、当該汚染土の工事における浄化の目標値を定め、各方式の適用性を提案した。

一方、前報³⁾ で述べたように、バイオレメディエーション処理土を用いたアルファルファおよびバミュダグラスによる植栽試験を二作にわたり実施し、処理土が修復されたことを証明した。ここでは三作目の植栽試験を行い、異なる処理土による生育の違いを検討するとともに、処理土の保水性・透水性などの物理性と生育との関係について考察を行った。

なお、本研究は通産省の石油産業等産業基盤整備事業のもと(財)石油産業活性化センターから委託を受け実施したものである。

2. 現地実証試験の内容と方法

(1) 汚染土の性状

現地実験区はクウェート市南部ブルガン油田地帯内オイルレイク102付近に設けた^{1)~4)}。Table1に各々の供試土の性状を示す。土中の油分濃度TPHが4.4%のものを重汚染土、3.3%のものを中汚染土とし、さらに2%のものを軽汚染土とした。供試土のうち、重汚染土および中汚染土は既報¹⁾ で用いた汚染土に比べて塩分濃度が極めて高く、塩化物イオン濃度が23,000 mg/kg以上、電気伝導度

として45 mS/cm以上であった。

(2) 試験区の設定と維持管理

汚染土には所定の栄養、羊糞堆肥およびウッドチップを加えた。高さ約1.3m×幅約3m×長さ100mの180m³の畝29本を造成し、うち一部の畝について後述するモニタリングを実施した。実験区のレイアウトはFig. 1に示す。維持管理は98年10月から2000年2月まで実施した。今回新たに、水のコスト低減を意図して、ブラキシシューウォーターで散水する区も設けた。ブラキシシューウォーターはpHがほぼ中性であるが、若干の塩分を含み、塩化物イオン含有量が約1,000 mg/kg、電気伝導度が約5,000 μSである。

パイルターナーは、畝をまたぐ形で進行し、毎分200回転で高速回転する刃によって土を畝の側から中心に集め、これを後ろにはじき飛ばす形で再度畝を造成するという機構となっており、時速約200 mで運転された。水はミキシングと同時に畝の天端から供給された。土壌の含水率は8~10%を維持するように散水量の管理を行った。パイルターナーの能力、散水装置の段取り替えを考慮し、1日5畝ずつを処理することとした。夏季の暑さのため、パイルターナーの動作不良が一部生じたが、それ以外は順調に作動した。

(3) モニタリング

モニタリング項目は既報^{2)~3)} のとおりであり、油分としてはTPHおよびTEM (Total Extractable Matter) の定量、

Table 1 供試土の性状
Characteristics of the Sample

分析項目	単位	軽汚染土	中汚染土	重汚染土
pH		8.0	7.9	8.1
EC	μS/cm	5550	44500	47030
含水率	%	0.5	1.62	1.84
強熱減量	%	4.5	9.1	10.4
TEM (Total Extractable Matter)	%	2.33	4.32	5.55
TPH (Total Petroleum Hydrocarbon)	%	1.95	3.29	4.43
塩化物イオン	mg/kg	2230	23330	24580
硫酸イオン	mg/kg	2190	2840	2590
全菌数	Log cfu/g	6	6	6

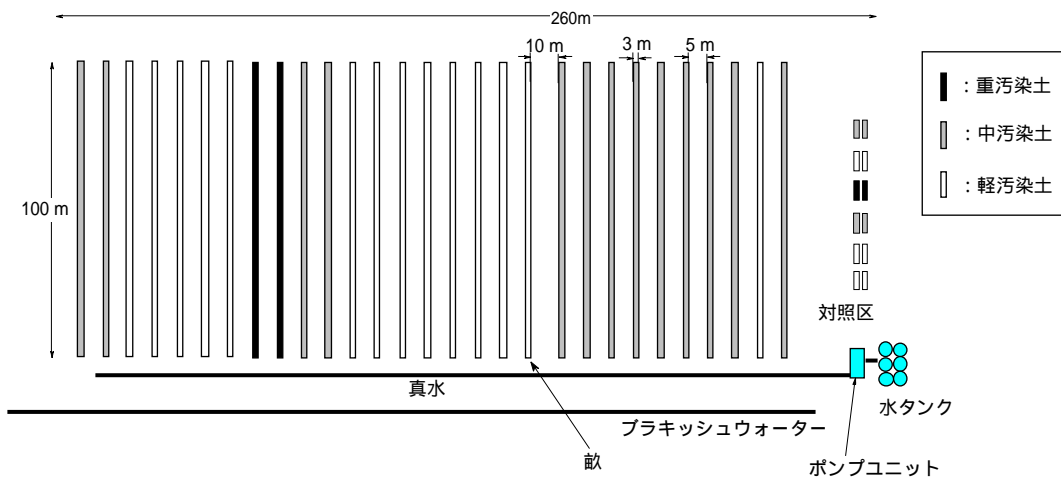


Fig. 1 パイルターナー現地実証試験区のレイアウト
Site Layout of the Pile-Turner Field Experiment

カラムクロマトグラフによるTEM を構成する各成分ごとの分画定量, 液体クロマトグラフによる芳香族成分の同定等を行った。また, 塩分, 栄養分について分析を行うとともに, 水懸濁液中の油膜生成の有無, 常温における油臭の発生の有無を判定した。微生物活性に関しては, 炭化水素資化性菌数, デヒドロゲナーゼ活性などのモニタリングを行った。浄化処理土の毒性評価の一環として, 変異原性試験を労働省告示法に従って実施した。同試験は処理土から抽出された油分を用いて, 定められたサルモネラ菌5 株に対する突然変異誘起性を評価するものである。試験は, 代謝活性化法(肝臓抽出液等を加え, 代謝活性化された後に突然変異を示す化合物を判定する方法)による場合と代謝活性化法によらない場合の両者について実施したが, 本報告では後者の結果についてのみ報告する。

3. 試験結果と考察

(1) 処理方式の比較

パイルターナーで処理した区および対照区のTPHの変化をFig. 2に示す。なお, 図中には既報で報告したランドファーミング方式およびスタティックパイル方式の結果も併記した。パイルターナー方式では, 既報の他方式と異なり試験を冬に開始したことから, 初期の分解速度は劣った。しかし, 6 ~9 ヶ月後にはランドファーミング(畑耕耘)方式と同程度に分解到達度を示し, 15ヵ月ではTPHの80%以上が分解した。このことから, パイルターナー方式は有効な方式であるといえた。

石油成分は, その各有機溶媒への溶解性, 極性の程度により, 脂肪族, 芳香族, レジン, アスファルテンの各成分に分画される。Fig. 3はTEMとして抽出された各成分をカラムクロマトグラフで分画し, 定量した例を示している。その結果, TEMの値はTPHと同様に経時的に低下した。分画された成分に着目すると, 15ヶ月後に脂肪族の90%, 芳香族の50%が分解し, 図示しないがランドファーミング方式の場合と同様の傾向を示した。

Fig. 4に各方式における単位土量あたりの散水量の積算

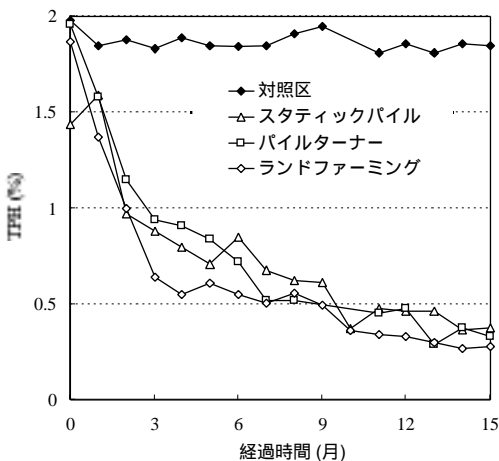


Fig. 2 TPHの変化 (軽汚染土)
Degradation of TPH (Lightly Contaminated Soil)

値を示す。同図から明らかなように, パイルターナー方式はスタティックパイル方式やウインドローパイル方式の場合と同程度の散水量であり, 汚染土を薄く広げて設置せねばならないランドファーミング方式の場合の1/2以下である。このように比較的節水できると方式であるといえた。

(2) 変異原性試験結果

本試験では, 処理土から抽出した油分の突然変異誘起性を調べた。試験は労働省告示法に従い, 5 菌株を用いて, それぞれ3 ヶ月処理ごとに試験を行った。結果の例をTable 2に示す。中汚染土, 重汚染土の未処理土の一部でサルモネラTA98株およびTA1537株で陽性と判定された。しかし, 処理によって, 3 ヶ月経過以降はすべて変異原性は陰性と判定され, バイオレメディエーション処理で汚染土が無害化されることが明らかとなった。

(3) 微生物のモニタリング結果

全菌数, 炭化水素資化性菌数等いくつかの項目について, モニタリングを実施してきた。必ずしも油分の分解とこれらの活性が対応していたとは言えなかったが, Fig. 5に例示するように, デヒドロゲナーゼ活性は油分の分解挙動とよい対応を示し, Fig. 2において軽汚染土のTPHが急激に低下した時期にトリフェニルフォルマザ

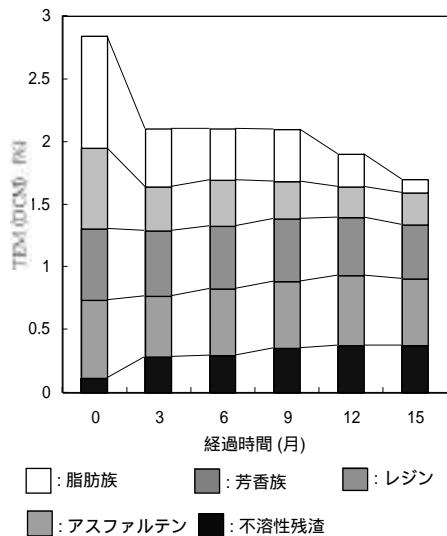


Fig. 3 画分分析結果の例 (軽汚染土)
Result of the Fraction Analysis (Lightly Contaminated Soil)

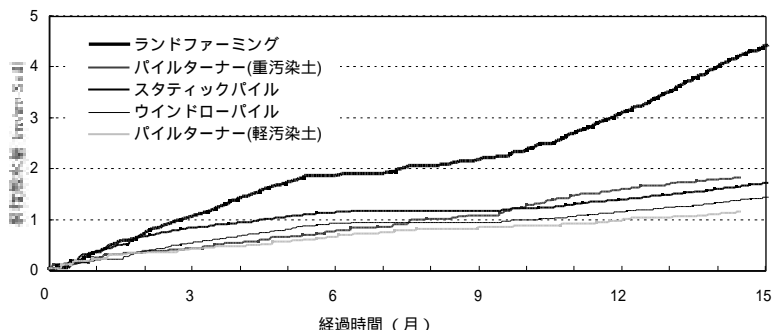


Fig. 4 累積散水量の比較
Accumulative Water Supply

Table 2 変異原性試験結果の例
Result of Mutagenesis Test

中汚染土バイルターナー方式					
供試菌株名	未処理	3カ月後	6カ月後	9カ月後	16カ月後
TA100株	-	-	-	-	-
TA1535株	-	-	-	-	-
WP2 uvrA株	-	-	-	-	-
TA98株	+	-	-	-	-
TA1537株	+	-	-	-	-

中汚染土ランドファーミング方式					
供試菌株名	未処理	3カ月後	6カ月後	9カ月後	15カ月後
TA100株	-	-	-	-	-
TA1535株	-	-	-	-	-
WP2 uvrA株	-	-	-	-	-
TA98株	+	-	-	-	-
TA1537株	+	-	-	-	-

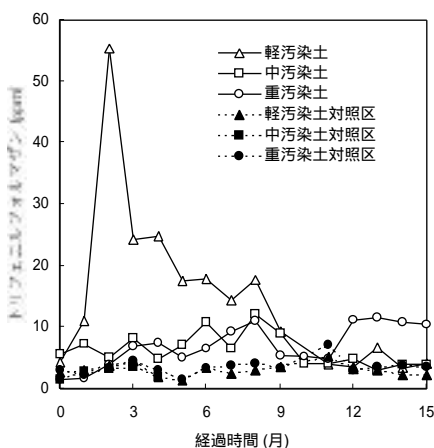


Fig. 5 デヒドロゲナーゼ活性の測定例
Measurement of Dehydrogenase Activity of the Soil

ンの発生量すなわちデヒドロゲナーゼ活性が大きくなった。したがって、今後の維持管理に有用なモニタリング法であると考えられた。

(4) 土中の塩分および散水の塩分の影響

本実験に用いた中汚染土および重汚染土は極めて塩分濃度が高かった。この塩分は、湾岸戦争後の火災の消火活動に用いられた海水に起因する。Fig. 6に示すようにTPHの分解は停滞し、15ヶ月経過後もTPHとして約2%が残留しており、図中に併記した既報の結果すなわち、同等の油分濃度で塩分濃度の低い汚染土で行ったランドファーミング方式における到達濃度には及ばなかった。この原因を別途室内試験で水洗浄して除塩した土を用いて検証した。Fig. 7は三角フラスコ内に汚染土を加え、適正な温度および水分条件で培養し、二酸化炭素発生量を経時的に調べ比較して示したものである。好気性微生物の分解が盛んなほど二酸化炭素発生量が増加するので、この方法は微生物活性の指標となる。同図からわかるように、脱塩を適正に行うことで、二酸化炭素発生量は明らかに増加している。図示しないが、上記分解試験後のTPHは6ヶ月後で約1%であることから、分解速度を向上できるといえた。

一方、維持管理期間の含水率を維持するために、真水を用いた場合と若干塩分を含むブラキッシュウォーターを用いた場合のTPHの変化を比較してFig. 6に示す。同図

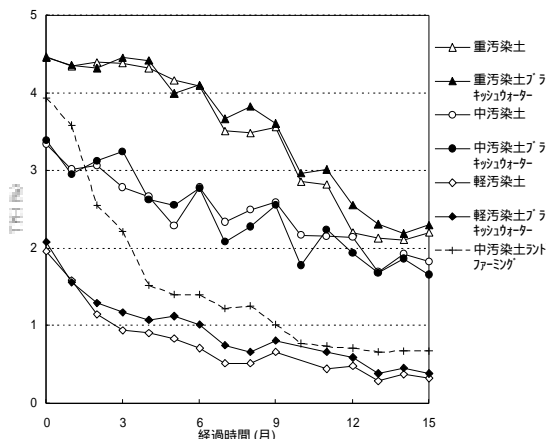


Fig. 6 ブラキッシュウォーターの影響
Effect of the Brackish Water

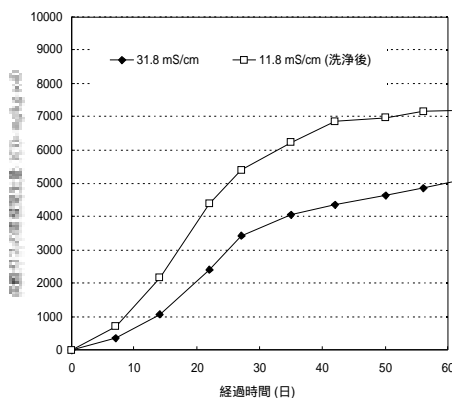


Fig. 7 脱塩の効果
Effect of Salt Washing

から明らかなように、軽汚染土、中汚染土、重汚染土すべての場合において、真水を用いた場合とブラキッシュウォーターを用いた場合ではTPHにほとんど差異は認められず、安価なブラキッシュウォーターを維持管理に用いることが可能なことが明らかとなった。

4. 浄化処理土の緑化適性と物理性に関する検討

(1) 試験内容と方法

バイオレメディエーション処理土を用いた二作にわたる植栽試験に引き続いて、三作目を実施した。ここでは、供試土としてランドファーミング方式などで15ヶ月間処理された4種の処理土と無処理土および砂漠自然土を用い、植物としてパミューダグラス、アルファルファを用いた。試験区は5m x 5mとし、試験方法の詳細は前報³⁾に示したとおりである。

(2) 試験結果と考察

Fig. 8およびFig. 9に三作目の刈り取り収量調査の結果を示す。すべてのバイオレメディエーション処理土は砂漠自然土を上回る生育を示し、処理土が緑化用地盤として優れていることがあらためて確認できた。一方、各処理区の間で、三作実施した後も生育に差異が認められ、軽汚染処理土が中汚染処理土を上回る傾向が認められた。その理由として、土壌の物理性の違いに起因して

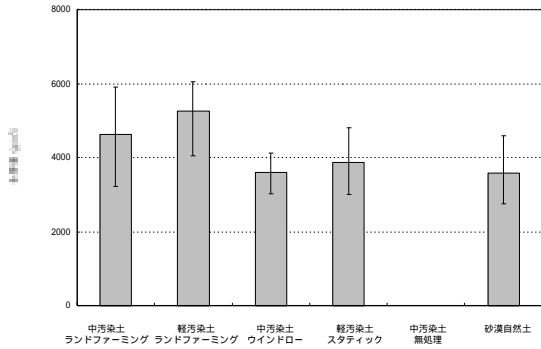


Fig. 8 アルファファの刈り取り収量（三作目）
Amount of Harvest (Third Cultivation of Alfalfa)

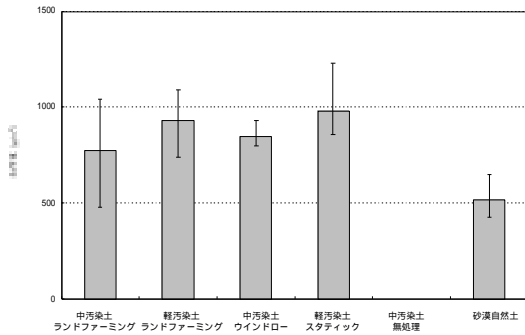


Fig. 9 バミューダグラスの刈り取り収量（三作目）
Amount of Harvest (Third Cultivation of Bermuda Grass)

いることが予想された。そこで、処理法の異なるバミューダグラス植栽区の各処理土の不攪乱試料を用いて、土壌物理性について三相分布の測定、変水位法による透水試験およびpF水分試験を行った。

三相分布の結果をFig. 10に、保水性試験（pF水分特性曲線）の結果をFig. 11に、透水性試験（変水位法）の結果をFig. 12に示す。三相分布を見ると、無処理土の固相率が高いのに比較して処理土の固相率が低くなっていることが分かった。透水係数は処理土が大きく、無処理土および砂漠自然土が小さかった。pF水分特性曲線に関しては、pF1.5とpF3における体積含水率の差、つまり植物が利用できる水分量が軽汚染処理土が一番多く、次いで砂漠自然土、中汚染処理土で、無処理土は非常に少ないことが分かった。これらを総合すると、処理土の物理性は、無処理土と比較して透水性と保水性の両方で優れていることが分かった。また、砂漠自然土と比較しても、軽汚染処理土はその両方で優れていることが明らかとなり、バイオレメディエーション処理によって土壌の物理性が改良されているといえた。

5. 汚染土の処理目標と処理方式の提案

(1) 汚染土の処理目標

油分の分析、植栽試験など多岐にわたるモニタリングの結果、Table 3に示すように終点が示された。これを踏まえ、浄化の目標として「TPHとして1%未満とする」ことを提案した。上記目標値まで浄化を行えば、油膜、油臭は認められなくことはもちろん、変異原性はなく、

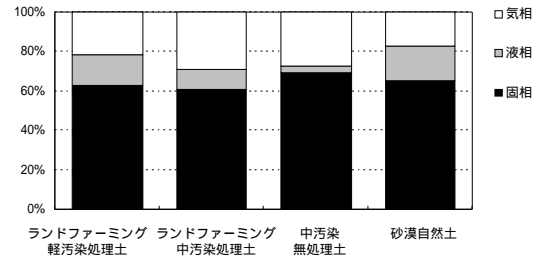


Fig. 10 各種処理土の三相分布
Three Phases of the Treated Soil

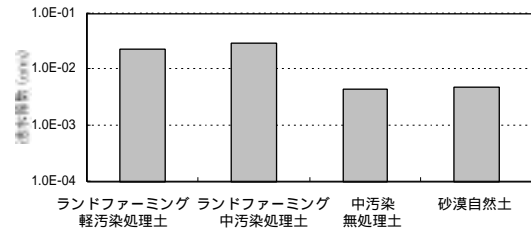


Fig. 11 各種処理土の透水係数
Water Permiability of the Treated Soil

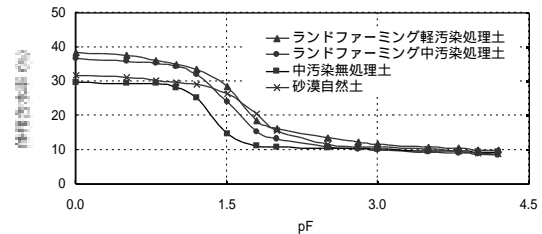


Fig. 12 各種処理土のpF-水分曲線
pF-Moisture Curve of the Treated Soil

Table 3 各モニタリングによる終点
End Point of the Each Monitoring Results

	油分解の到達点	植栽の可否	変異原性
中汚染土	TPHで0.8~0.9% PAHで0.5 mg/kg-soil	1%未満で生育	3か月以上の処理でなくなる
軽汚染土	TPHで0.8~0.9% PAHで0.5 mg/kg-soil	0.4%で順調に生育	3か月以上の処理でなくなる

かつ植栽も可能な土となっている。ただし、TPHが1%未満の極めて軽度な汚染土の場合、2~3か月のバイオレメディエーション処理を行うことで油膜、油臭がないレベルまで浄化可能である。





なお、一部地下水位の高く、地下水への汚染の懸念がある地域においては、地下水のモニタリングを含め、別途検討する必要がある。

(2) 推奨される浄化処理手法

Table 4に各方式の比較表を示す。同表から、ランドファームing方式は分解速度は大であるが、水消費量が大きく、専有面積が大きいという点で問題があり、スタティックパイル方式は軽汚染土にしか適用できない。これに対してパイルターナー方式は分解速度は大きい、水消費量は小さくまた専有面積も小さく低コストである。これらのことから、パイルターナー方式は最も適していると判定した。ただしパイルターナーを本工事で用いる場合は、夏季の暑さ対策などの改良が必要である。

クウェートにおける油汚染土の浄化処理フローとし

Table 4 各方式の比較表
Comparison of Each Treating Methods

名称	ランドファームング(畑耕 耘)方式	ウインドローパイル(高畝切 り返し)方式	スタティックパイル(高畝強 制通気)方式	パイルターナー方式
模式図	中汚染土、軽汚染土 	中汚染土 	中汚染土、軽汚染土 	重汚染土、中汚染土、軽汚染土 
供給方式	水 回転式イリゲーションシステム	リーキーパイプおよび天端部 からの供給	リーキーパイプおよび天端部 からの供給	パイルターナー天端部からの 供給
	空気 トラクター&チラーによる耕耘	フロントローダーを用いた週 に一度の切り返し	コンプレッサーを用いた底面 からの強制通気	パイルターナーのミキシング による通気
15ヶ月後 の到達度 合い	軽汚染土でTPHの83%が分解, 中汚染土で0.7%, 軽汚染土で 0.3%に。 脂肪族90%, 芳香族60~70%分 解	TPHの75%が分解, 0.87%に。 脂肪族の85%, 芳香族48%分 解	軽汚染土でTPHの74%が分解, 0.38%に。脂肪族82%, 芳香族 43%分解。 中汚染土でTPHの30%が分解, 1.9%に。脂肪族60%, 芳香族 30%分解	軽汚染土でTPHの85%が分 解, 0.33%に。 脂肪族88%, 芳香族60%分 解。
平均水供 給量	夏場 17~20 L/m ² 日(5~6mm/日)	4~7 L/m ² 日	4~8 L/m ² 日	4~8 L/m ² 日
	秋冬春場 5 L/m ² 日(1.5 mm/日)	1 L/m ² 日	1 L/m ² 日	1 L/m ² 日
	総量実績 6 m ³ /m ² -土	1.4 m ³ /m ² -土	1.6 m ³ /m ² -土	1.2~1.8 m ³ /m ² -土
維持管理 必要設備	トラクター&チラー, イリゲー ションシステム	フロントローダー, リーキー パイプ	コンプレッサー, リーキーパ イプ	パイルターナー

て、一般のオイルレイクのように土を掘削、運搬する場所においては、基本的には、パイルターナーを用いた処理をすることとした。一部、油分濃度が1%程度の汚染レベルが低いものについては、大型スタティックパイル方式の提案を行った。一方、汚染の深度が浅く、in-situの処理が可能な場所では、ランドファームング方式がコスト的に有利でありこの方式も採用できる。

実工程のサイクルについては、冬季に準備工を行い、夏季をまたいで9ヶ月の処理を行い、1年周期で処理を行うことが望ましい。

7. まとめ

油汚染土のバイオレメディエーションに関して、クウェート国でさらなる効率化をめざした現地実証試験を行ない、以下のことが明らかとなった。その成果をもとに、クウェートにおける浄化の処理目標・処理フローを提案した。

(1)効率化と大規模施工の可能性を明らかにするためにパイルターナー方式を導入し、大型でしかも多数(180m³×29本)の畝を対象に維持管理を15ヶ月間にわたり実施した。その結果、TPHの80%以上が分解し、本方式は有効な方式であると判定された。なお、汚染土の塩分濃度が極めて高い場合、予め汚染土を洗浄し脱塩することで、十分バイオレメディエーション処理に対応できると判定された。

(2)浄化処理を行った土を用いて変異原性試験を行った結果、未処理土の一部において、サルモネラTA98株およびTA1537株を用いた場合、陽性と判定された。しかし、3ヶ月経過以降はすべて変異原性は陰性と判定され、バイオレメディエーション処理によって汚染土が無

害化されることが明らかとなった。

(3)バイオレメディエーション処理土を用いた三作目の植栽試験の結果から、砂漠自然土を上回る植物の生育が認められ、処理土が緑化用地盤として優れていることがあらためて確認できた。その理由として、処理によって土の透水性および保水性が、無処理土あるいは砂漠自然土に比較して改良されたことによると考えられた。

(4)クウェートにおける浄化の処理目標として、TPHを1%未満とすることを提案した。そして汚染土の程度あるいは原位置処理の有無別に各種の処理方式の適用法を提案した。

謝辞

本研究を進めるにあたって、東京大学農学部農学生命科学研究科の松本教授、小柳津教授、東京大学生物生産工学研究センターの大森教授に多大なる指導を受けた。また、分析作業において、(株)ジャパンエナジー分析センターの牧島主任研究員、(財)日本食品分析センターの佐藤課長にお世話になりました。この場を借りて、厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 千野, 喜田, 辻: 大林組技術研究所報, No.52 (1996年)
- 2) 千野, 辻, 石川, 四本: 大林組技術研究所報, No.54 (1997)
- 3) 千野, 辻, 石川, 四本, 松原: 大林組技術研究所報, No.57 (1998)
- 4) Chino, Tsuji, Matsubara, Al-Awadhi, Balba, Al-Daher: The Fifth International In Situ and On-Site Bioremediation Symposium, BATTELLE PRESS (1999)