

ほう素汚染地盤への原位置洗浄処理の適用

三浦俊彦 井出一貴 久保博
藤井研介 西田憲司
(本社土木本部) (本社土木本部)

In-Situ Flushing Remediation of Boron Contaminated Soil

Toshihiko Miura Kazuki Ide Hiroshi Kubo
Kensuke Fujii Kenji Nishida

Abstract

Soil flushing is an effective technology that removes the contaminant and remediates the ground by a low cost. However, the application example is few because the contaminants such as heavy metals cannot be easily dissolved to water in general. Tretability tests were executed to examine the applicability for boron that dissolved comparatively easily in contaminants. Boron concentration of ground water sampled from the site was exceeded the environmental standards value, but water soluble boron and boron content of soils were below the standard values though boron contains these soil. These results indicate that the most of dissolubility boron of soils was able to remove by washing and remaining boron was existed at stable form with few environmental diffusion risks. Column tests and field tests demonstrated that the gravel mixing sand that existed in the aquifer was high permeability and could be remediated by passing the water about three times the soil pore volume.

概要

原位置洗浄は、安いコストで汚染物質を除去し、汚染地盤を浄化できる有効な技術である。しかし、重金属等の多くは水に溶解しにくいいため、原位置洗浄の適用例は少ない。そこで本試験は、汚染物質の中でも比較的溶解しやすいほう素を対象に、原位置洗浄の適用性を調べることを目的として、室内試験を実施した。試験で用いた試料は実際のほう素汚染地盤から採取したもので、地下水は環境基準値を超えていたが、土は溶出量と含有量ともに指定基準値以下であった。土にも少量のほう素が含まれていたが、水洗浄により溶解性の高いほう素の大部分を除去することができ、洗浄後に残留したほう素は水に溶けにくい安定な形態で存在していた。また、カラム試験により、帯水層に存在する礫混じり砂は透水性が高く、間隙体積の約3倍の水を通水することによって浄化できることがわかった。現場実証試験でも、通水洗浄で浄化できること、そして再溶出がないことを確認できた。

1. はじめに

重金属汚染地盤の原位置における対策法の一つとして、原位置洗浄がある。この手法は、地盤に揚水と注水の設備を設置して、浄化対象の地盤に積極的に水を流すことにより、地盤中の重金属等を回収して浄化する方法である。本手法は、溶解性の重金属等は除去できるが、土粒子に吸着しているもの、難溶性化合物として存在する重金属等には適用が難しい。また、土質の面からも、透水性の良い均一な砂質地盤以外は適用が難しいことから、実際に施工された事例は少ない。しかし本手法は、適用できる地盤であれば、掘削の必要がなく、地表面を乱さずに汚染物質を地中から除去できることから、比較的低コストで環境負荷の少ない有効な手法である。

重金属等の中でも、砒素やセレン、六価クロム、ふっ素、ほう素等の水に溶解して陰イオンとなるものは、鉛やカドミウム、水銀等の陽イオンとなるものに比べて、地盤中で水に溶けやすい形態で存在しやすい性質がある。特にほう素は、他の重金属等と比べて土粒子に吸着しにくく、地下水によって拡散しやすい¹⁾ため、原位置洗浄

で浄化できる可能性は高い。しかし、地盤中に存在するほう素のすべてが水に溶解するわけではなく、ほう酸カルシウム等の化合物や土粒子への吸着態も存在し、洗浄が難しい場合もある。そのため、実工事へ適用する際は、事前のトリータビリティ試験が重要である。

そこで、実際のほう素汚染地盤を対象に、原位置洗浄の適用性を評価することを目的として、地下水および土壌の性状、洗浄に係わる土中ほう素の化学的性状、室内透水試験による地盤の透水性等を調べた。また、原位置洗浄の手法として、重力排水と湛水を繰り返す方法と、注水井と揚水井を用いて連続的に水を流す方法を想定して、それぞれの効果を室内試験により調査し、施工方法の検討を行った。また、これらの結果をもとに、原位置洗浄の試験施工を実施し、洗浄効果の検証を行った。本報では、これらの結果を報告する。

2. 原位置洗浄の概要

原位置洗浄の概要をFig. 1 に示す。原位置洗浄は、洗浄液を注入井戸、涵養井もしくは散水等によって地下に

浸透させ、汚染地盤内を通過させた後、揚水処理を行う。洗浄に用いる液体は、水が最も多く使用される。それは、土粒子への化学的な影響が少なく、かつ水処理に与える影響も小さいため、使用しやすいためである。しかし、重金属等の種類や形態によっては、除去効率を高めるために、弱酸や弱アルカリ溶液、無機塩等の薬剤が使用される場合もある。この場合、もともと溶解しにくい形態の重金属等も溶解するため、洗浄液を水で十分にすすいで回収することが必要となる。地中の重金属等は、洗浄水によって除去され、洗浄水とともに地上部へ回収される。揚水された洗浄水は、地上の水処理装置によって重金属等を除去した後、再び洗浄水として再利用する。洗浄後の地盤は、重金属等の含有量が完全に除去されたわけではないが、土壤汚染対策法の指定基準および地下水の環境基準値を達成することで、浄化地盤と評価される。

3. 地下水と試料土の性状

現地から採取した地下水と試料土の性状をTable 1に示す。試料土の粒度分布をFig. 2に示す。A土とB土ともに帯水層に位置する土で、A土は礫混じり砂で、B土砂質細粒土であった。

地下水のpHは中性で、ほう素濃度は1.2mg/Lと地下水の環境基準値(1mg/L)を超えていた。試料土AとBのpHは中性で、環告46号のほう素溶出量は、A土で0.09mg/L、B土で0.14mg/Lと土壤溶出量基準(1mg/L)以下であった。環告19号のほう素含有量は、A土で1.5mg/kg、B土で17mg/kgと含有量基準値(4000mg/kg)以下であった。A土とB土ともに、土壤汚染対策法の指定基準値以下の非汚染土であり、地下水のみが環境基準値を超えていることから、洗浄による浄化の可能性が高いと判断された。

4. 洗浄に係わる試料土の化学的性状調査

4.1 繰返し溶出試験

4.1.1 目的 水による原位置洗浄の適用性を調べることを目的として、同一試料土を水で繰返し溶出して、潜在的に除去が可能なほう素の量を調べた。

4.1.2 試験方法 土100gに水200mL(液固比2)を加えて6時間振とうし、固液分離した。分離液は、ほう素濃度を測定し、固形分は再び水を200mL添加して、振とうと固液分離の操作を繰返した。分離液のほう素濃度が定量下限値(0.01mg/L)以下になるまで繰返した。

4.1.3 結果 Fig. 3とFig. 4に、溶出回数とほう素濃度、累積ほう素除去量の関係を示す。ほう素濃度は、A土とB土ともに溶出回数が増加するにつれて減少し、A土は4回、B土は6回で定量下限値以下となった。したがって、A土とB土ともに、水洗浄でほう素溶出量を低減できることがわかった。累積ほう素除去量は、A土で0.63mg/kg、B土で3.6mg/kgであり、それぞれ環告19号含有量に対して約42%、21%であった。水で除去できるほう素量は、含

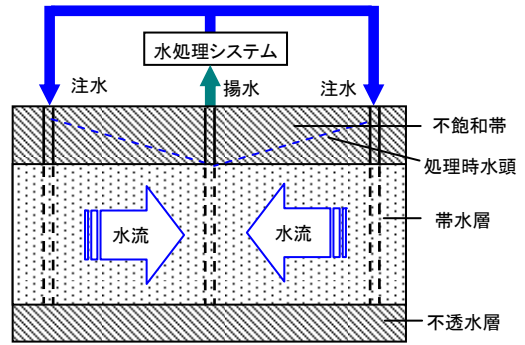


Fig. 1 原位置洗浄の概要

Scheme of Soil Flashing Remediation

Table 1 地下水と試料土の性状

Physico-chemical Properties of Soil and Ground Water Samples

種類	項目	単位	値		
地下水	pH		6.7		
	電気伝導度	mS/m	28.0		
	ほう素濃度	mg/L	1.2		
試料土	試料名		A土	B土	
	含水比	%	14.1	32.8	
	土粒子密度	g/cm ³	2.65	2.78	
	粒度組成	>2mm	%	9.6	0.5
		0.075~2mm	%	86.6	44.8
		<0.075mm	%	3.8	54.7
	pH		6.6	6.3	
	環告46号ほう素溶出量	mg/L	0.09	0.14	
環告19号ほう素含有量	mg/kg	1.5	17.0		
底質調査法ほう素含有量	mg/kg	1.8	19.0		

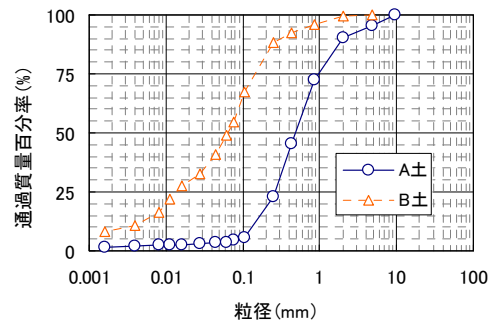


Fig. 2 試料土の粒度分布

Grain Size Accumulations of Soil Samples

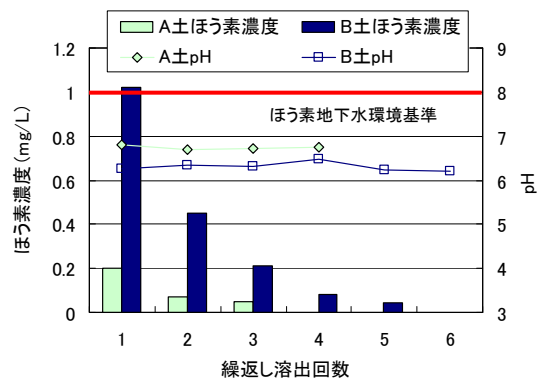


Fig. 3 溶出回数とほう素濃度の関係

Relation of Frequency of Extraction and Boron Concentration

有量の半分以下であるが、水で洗浄することによりほう素溶出量が十分に低減することから、原位置洗浄の適用可能性が高いと考えられた。

4.2 簡易逐次抽出法によるほう素の形態分析

4.2.1 目的 水洗浄では、溶出しやすいほう素は除去できるが、全量を除去することはできない。そのため、地盤内で時間を経ることによって、残留したほう素が再び地下水へ溶出する可能性が考えられる。本試験は、再溶出のリスクを調べる一手法として、簡易な逐次抽出法によるほう素の形態分析を行った。逐次抽出法とは、土中に存在する重金属等の形態を、化学試薬に対する溶解度の違いを利用して、分別抽出し評価する方法である²⁾。

4.2.2 試験方法 今回採用した逐次抽出法のフローをTable 2に示す。逐次抽出法には多くの方法が提案されているが、ほう素を対象とした方法は少ないため、簡易な手法として本手法を用いた。

4.2.3 結果 Fig. 5に、土中ほう素の形態分析の結果を示す。A土のほう素は、比較的溶出しやすい水溶出態や交換態、無機化合物態が約60%存在し、溶出しにくい残渣が40%であった。繰返し溶出で除去できるほう素量は全体の約42%であるため、水洗浄しても溶出しやすい形態が少量残るが、もともと含有量が少ないため、地下水濃度へ与える影響は少ないと考えられる。一方、B土のほう素は、溶出しやすい形態が約20%で、繰返し溶出で除去できるほう素量と同程度であった。残りの約80%は溶出しにくい形態で存在しており、水洗浄後の再溶出のリスクは少ないと考えられた。これらの結果から、水洗浄では完全にほう素を除去することはできないが、残留したほう素のほとんどは難溶性であり、再溶出のリスクは少ないと考えられた。

5. 透水性と施工法の検討

5.1 試料土の透水係数の測定

5.1.1 目的 A土とB土を対象に、現地の地盤を想定したカラムを作製し、透水係数を測定して、原位置洗浄処理の可能性を透水性の面から評価することを目的とした。

5.1.2 試験方法 試験手順は次のとおり。①A土とB土を直径5cmのアクリルの円筒容器に、高さが5cmとなるように充填した。充填時の湿潤密度は、地盤から別途採取したボーリングコアサンプルの湿潤密度を参考にした。

Table 3にカラム作製時の条件を示す。②湛水面と排水面の差を30cmとした定水頭法により、透水係数を測定した。A土は排水量が100mLとなる時間を測定し、B土は排水量が20mLとなる時間を測定した。

5.1.3 結果 Table 3に、透水係数の測定結果を示す。A土の透水係数は $5.2 \times 10^{-3} \text{cm/sec}$ 、B土の透水係数は $2.1 \times 10^{-5} \text{cm/sec}$ であった。一般に、工期等の面から、原位置洗浄を効率よく適用するためには、地盤の透水係数が 10^{-4}cm/sec 以上であることが必要とされている²⁾。本試

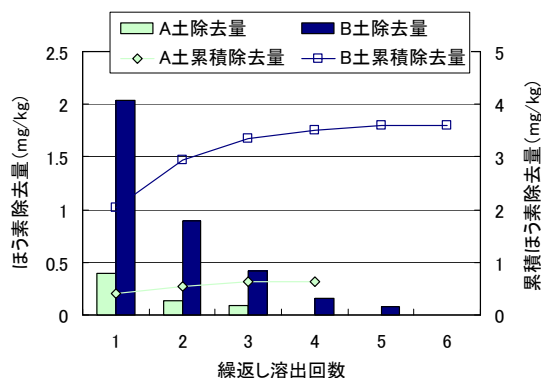


Fig. 4 溶出回数と累積ほう素除去量の関係
Relation of Frequency of Extraction and Boron Removal Quantity

Table 2 逐次抽出の試験フロー
Test Flow of Sequential Chemical Fractionation

画分	形態	試験方法
水溶出態	水で溶出するもの	湿潤土 10 g に液固比 10 の水を加えて 6 時間振とう後、固液分離
交換態	土粒子に電氣的に吸着しているもの	上記残渣に液固比 10 の 5% 硫酸ナトリウム溶液を加えて 6 時間振とう後、固液分離
無機結合態	土粒子に化学結合、または炭酸塩等の無機化合物で存在するもの	上記残渣に液固比 10 の 0.001 M 塩酸を加えて 6 時間振とう後、固液分離
残渣	溶解しにくい残渣成分	上記残渣を底質調査法にてほう素含有量を分析

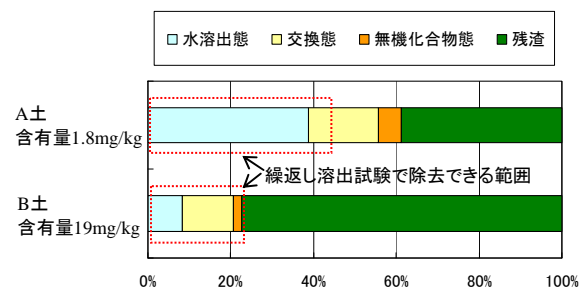


Fig. 5 逐次抽出による土壌中ほう素の形態分布
Distribution of Boron by Sequential Chemical Fractionation

Table 3 透水試験のカラム条件と測定結果
Column Conditions and Results of Permeability Test

項目	単位	A土	B土
カラム土柱の高さ	cm	5.0	5.0
カラム土柱の体積	cm ³	98.1	98.1
充填時の含水率	%	12.4	24.7
充填時の湿潤密度	g/cm ³	1.96	1.80
充填時の間隙率	%	35.0	49.8
充填時の飽和度	%	63.5	88.5
透水係数	cm/sec	5.2×10^{-3}	2.1×10^{-5}

験は攪乱土を用いているため、必ずしも現地盤の透水性を評価しているとは言えないが、A土は比較的透水性がよく原位置洗浄の適用性は高いが、B土への原位置洗浄の適用性は低いことが考えられた。

5.2 重力排水と湛水による洗浄試験

5.2.1 目的 原位置洗浄の手法として、ウェルポイントまたはディープウェルによる地下水の重力排水と、水による湛水を繰り返す手法を想定して、その浄化効果と効率を調べることを目的とした。

5.2.2 試験方法 試料土は、先の試験から洗浄による浄化の可能性が高いA土を使用した。Table 4にカラム充填時の条件を示す。また、Fig. 6に試験装置を示す。試験手順は次のとおり。①直径4.2cmのカラムに、高さが10cmとなるようにA土を充填した。充填時の湿潤密度は、1.73 g/cm³と1.57g/cm³の2ケースとした。②地下水（ほう素1.2mg/L）をカラム下部から入れて、土の上部まで湛水した。③排水のコックを開いて、24時間の重力排水を行った。湛水と排水の量と排水中のほう素濃度を測定した。④排水後、水道水を入れて土の上部まで湛水した。⑤重力排水を行って、排水中のほう素濃度を測定した。⑥水の湛水と重力排水の操作を3回繰り返した。

5.2.3 結果 Fig. 7に、湛水に必要な地下水量と、それを重力排水した場合の排水量を示す。湛水に要した水量は、両ケースとも20~25mLの範囲にあった。充填時の飽和度から計算すると、湛水に要する量は30~35mLとなるが、実際の湛水量はそれよりも少なかった。これは、一部の空隙に空気が残留したためと考えられる。排水量は、湛水量よりも少なく、湿潤密度が1.57g/cm³のケースは短時間で20mLとなったが、湿潤密度が1.73g/cm³のケースでは、排水に時間がかかり、24時間後で16mL程度であった。このことは、重力排水では十分な排水ができず、間隙水量が残存することを示している。

Fig. 8に、排水中のほう素濃度の変化を示す。湿潤密度1.73g/cm³のケースの排水中ほう素濃度は、水の排水1回目で0.46mg/Lと環境基準値の半分まで減少し、3回目で0.1mg/Lまで低減した。湿潤密度1.57g/cm³のケースの排水中ほう素濃度は、地下水を湛水させたときの初期濃度が高く、排水3回目で環境基準値以下が達成できた。これらの結果から、ばらつきはあるが、湛水と排水を3回繰り返すことにより、A土の洗浄・浄化は可能であると考えられた。しかし、実際の地盤はより湿潤密度が高いため排水に時間がかかること、ウェルポイントやディープウェルでは均一な重力排水が難しく、より多くの間隙水量が残存することから、現場では室内試験よりも多くの洗浄回数を必要とすることが推定された。したがって、本試料土の洗浄方法としては適当ではないと判断した。

5.3 通水洗浄試験

5.3.1 目的 注水井と揚水井を利用して、連続的に水平方向に水を流す通水洗浄方式は、重力排水と湛水を繰り返す方式よりも均一に水が流れるため、効率的に地盤を浄化できると考えられる。そこで、通水洗浄を模したカラム試験を実施して、洗浄効果の調査を行った。

5.3.2 試験方法 試料土は、先の試験から洗浄による浄化の可能性が高いA土を使用した。Table 5にカラム充填

Table 4 重力排水と湛水試験のカラム条件
Column Conditions of Gravity Drainage and Water Saturating Test

項目	単位	A土-1	A土-2
カラム土柱の高さ	cm	10.0	10.0
カラム土柱の体積	cm ³	138.5	138.5
充填時の含水率	%	23.6	16.3
充填時の湿潤密度	g/cm ³	1.73	1.57
充填時の間隙率	%	50.0	42.8
充填時の飽和度	%	81.7	60.0

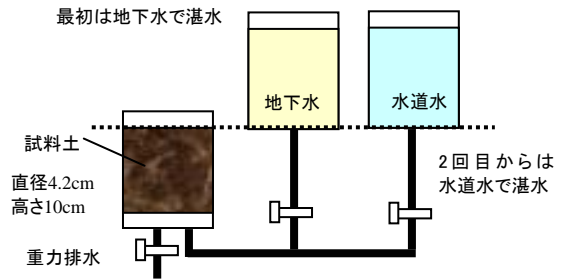


Fig. 6 重力排水と湛水試験の装置
Apparatus of Gravity Drainage and Water Saturating Test

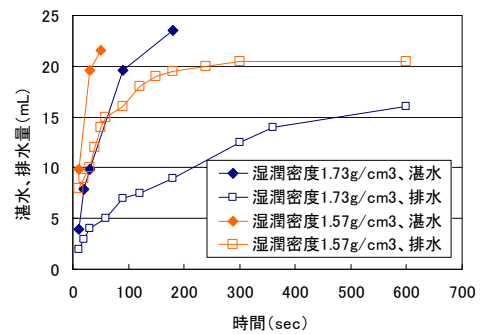


Fig. 7 1回目の湛水量と排水量
The First Quantity of Saturation and Drainage

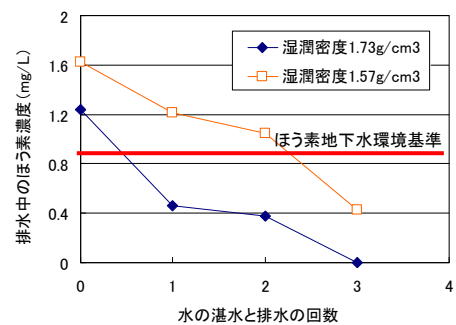


Fig. 8 排水のほう素濃度の変化
Changes of Boron Concentration in Drainage

時の条件を示す。また、Fig. 9に試験装置を示す。試験手順は次のとおり。①直径5cmのカラムに、高さが5cmとなるようにA土を充填した。充填時の湿潤密度は、1.96g/cm³とした。②地下水（ほう素1.2mg/L）をカラム下部から入れて、土の上部まで湛水した。③カラムの下部から水を通水速度0.001cm/sec（1.2mL/min）で流した。④カラムの上部から排出された浸出液を10mLずつ採取し、ほう

Table 5 通水洗浄試験のカラム条件
Column Conditions of Water Permeability Washing Test

項目	単位	A土
カラム土柱の高さ	cm	5.0
カラム土柱の体積	cm ³	98.13
充填時の含水率	%	15.0
充填時の湿潤密度	g/cm ³	1.96
充填時の間隙率	%	37.1
充填時の飽和度	%	79.7

素濃度を測定した。⑤通水終了後、カラムを解体して土のほう素溶出量を測定した。

5.3.3 結果 Fig. 10に、間隙交換回数（通水量/飽和間隙水量）とほう素濃度の関係を示す。浸出液中のほう素濃度は、間隙交換回数の増加とともに減少し、通水開始直後に地下水環境基準以下となった。また、環境基準値の半分以下となるのに必要な間隙交換回数は、約3回であった。安全率を考慮して、環境基準値の半分以下を浄化目標とすれば、飽和間隙水量に対して、約3倍以上の水を通水することで、洗浄・浄化が可能であると考えられた。

Fig. 11に、間隙交換回数と累積ほう素除去量の関係を示す。ほう素除去量は、間隙交換回数とともに増加し、最終時には約0.7mg/kgにまで達した。これは、環告19号のほう素含有量1.5mg/kgに対して約47%に相当し、繰返し洗浄により除去できるほう素量0.63mg/kgと、地下水（1.2mg/L）に含まれるほう素量0.06mg/kgの合計とほぼ一致していた。したがって、通水洗浄により、水に溶出する可能性のあるほう素の大部分を除去できたと思われる。なお、カラム解体後の試料土のほう素溶出量は、定量下限値以下であった。

6. 通水洗浄の実証試験

6.1 目的

上述の結果から、礫混じり砂（A土）は、ほう素の洗浄除去が可能であること、重力排水と湛水を繰り返す方法よりも、水平方向に連続的に水を流す通水洗浄方式の方が施工法として妥当であると考えられた。そこで、A土を採取した箇所と同じ礫混じり砂地盤において、通水洗浄の浄化効果の検証を目的として、実証実験を行った。

6.2 試験概要

実証試験サイトの概要をFig. 12に示す。12m角の範囲を鋼矢板で締め切ったほう素汚染地盤を、実証試験の対象とした。揚水と注水は柱列状の井戸で実施した。揚水ラインと注水ラインの間隔は10mとし、深度は難透水層が存在する6mまで打設した。各井戸は、帯水層であるGL-2~-6mの範囲を有孔、帯水層上部の盛土範囲は無孔として、帯水層の4mと盛土の一部を通水する構造とした（通水対象の地盤体積は400m³となる）。通水洗浄時の水頭差は、揚水井と注入井間の10mで0.3mとして、動水勾配0.03と設定した。揚水量は32m³/日とし、日中の9時間ポンプを作動して行った。注水量は、設定の動水勾配を維持するために必要な水量を投入した。観測井は、通

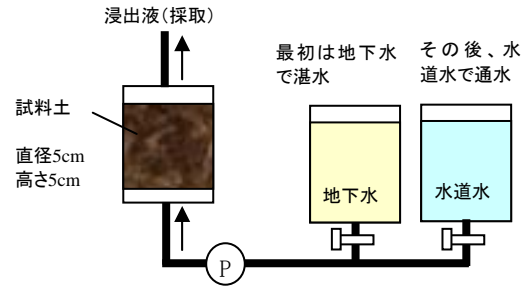


Fig. 9 通水洗浄試験の装置

Apparatus of Water Permeability Washing Test

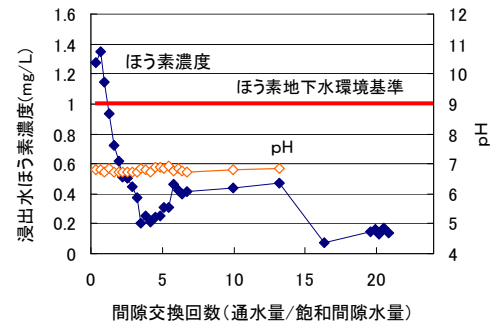


Fig. 10 間隙交換回数とほう素濃度の関係

Relation of Pore Exchange Frequency and Boron Concentration

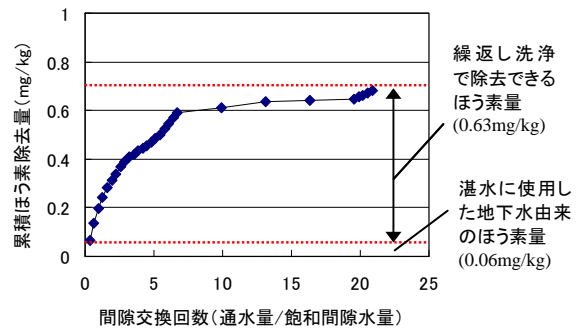


Fig. 11 間隙交換回数と累積ほう素除去量の関係

Relation of Pore Exchange Frequency and Boron Removal Quantity

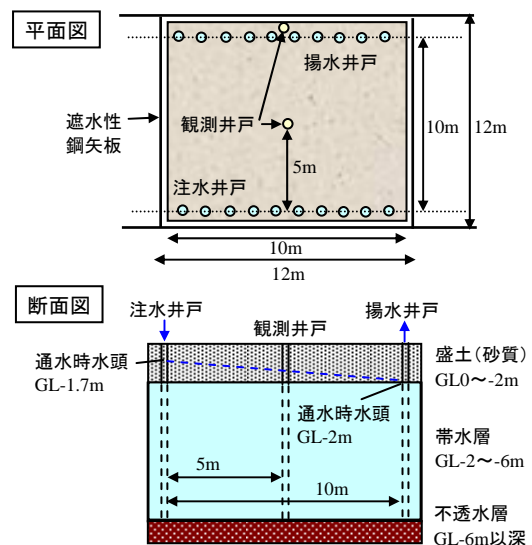


Fig. 12 実証試験サイトの概要
Outline of Field Test Site

水洗浄域の中央と揚水ラインの外側に設置して定期的な水を採取し、ほう素濃度を測定した。14日間通水した後、通水を止めて再び14日間そのまま放置して、地下水のほう素濃度の経時変化を調べた。

6.3 試験結果

Fig. 13に積算揚水量と注入量の推移を示す。間隙率を0.35、間隙容量を140m³とした場合に、揚水量から求めた間隙交換回数も示す。期間中の総揚水量は444m³で、間隙交換回数は3.2回であった。室内試験から求めた必要通水量は3回であったため、実証試験でも目標とする通水量は確保できた。一方、総注入量は414m³で、揚水量の93%に相当した。これは、試験期間中の降雨浸透水や計測誤差等が影響したと思われる。なお、試験期間中の揚水量と通水時間から算出した透水係数は8.1×10⁻²cm/secであり、室内試験よりも透水性の良い地盤であった。

Fig. 14に、観測井におけるほう素濃度の変化を示す。洗浄域中央に位置する観測井のほう素濃度は、通水開始とともに減少し、間隙交換回数1回で環境基準値の半分以下となった。したがって、通水洗浄による浄化が認められた。一方、揚水井の外側に位置する観測井のほう素濃度は、少し低減する傾向があったが、通水洗浄対象域と比べて高い値を示した。揚水の水質を測定しなかったため、室内試験の浸出水の結果とは比較できない。しかし、観測井の位置が中央にあることから、全体が浄化されるまでには間隙交換回数1回の約2倍必要と推定され、室内試験の必要水量の3回とほぼ一致していると考えられる。

Fig. 15に、通水洗浄後のほう素濃度の変化を示す。通水洗浄後のほう素濃度は、約14日の間洗浄直後とほぼ同じ低い値で推移した。したがって、限られた期間ではあるが、通水洗浄後、ほう素の地下水への再溶出がないことが確認できた。

7. まとめ

- 1) 本試験対象のほう素汚染地盤は、土(礫混じり砂と砂質細粒土の2種類)は溶出量と含有量ともに指定基準以下であり、地下水のみが環境基準を超えていた。
- 2) 土中ほう素の化学性状調査の結果から、水洗浄により溶出しやすい形態のほう素の大部分を除去することが可能であり、わずかに残留するほう素は、水に溶解しない安定な形態で存在していると考えられた。
- 3) 礫混じり砂と砂質細粒土の透水性を測定した結果、礫混じり砂は透水性が高く、原位置洗浄の適用可能性が高かったが、砂質細粒土は透水性が低く、洗浄の適用可能性は低いと考えられた。
- 4) 礫混じり砂を用いてカラム洗浄試験を行った結果、重力排水と湛水を繰り返す洗浄よりも、連続的に水平方向に水を通水させる通水洗浄の方が、効率が良いと判断された。通水洗浄方式では、間隙交換回数(通水量/間隙容量)3回の通水で浄化できると考えられた。
- 5) 実際の礫混じり砂地盤を対象に、通水洗浄の実証試験

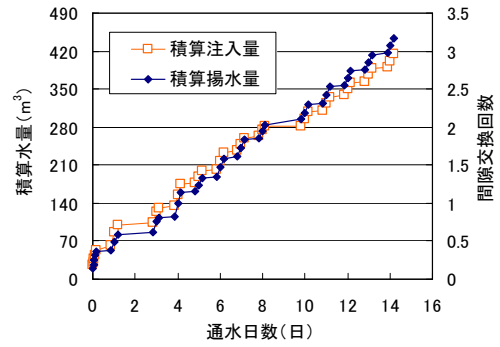


Fig. 13 積算揚水量と注入量
Amount of Total Pumping and Recharging Water

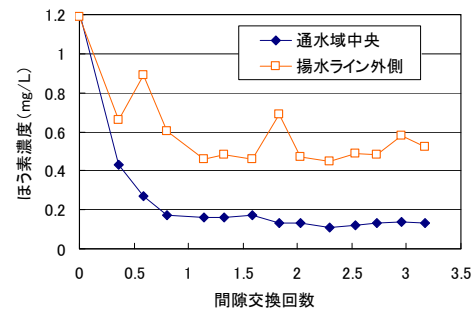


Fig. 14 観測井におけるほう素濃度の変化
Changes of Boron Concentration at Observation Well

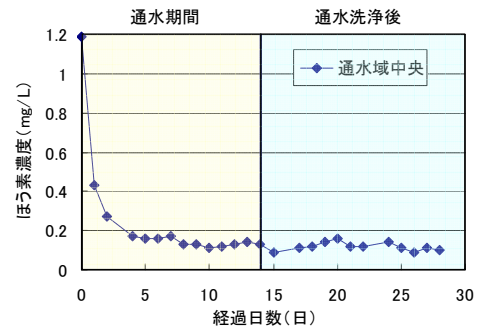


Fig. 15 通水洗浄後のほう素濃度の変化
Changes of Boron Concentration after Soil Flushing

を行った結果、ほう素汚染地盤を浄化できることが実証された。また、通水洗浄後、ほう素の地下水への再溶出がないことを確認した。

- 6) 今後は、本試験結果を用いて、原位置洗浄の現場への適用を検討するとともに、ほう素以外の重金属等についても試験を重ねて、原位置洗浄の適用範囲を整理したいと考える。

参考文献

- 1) 坂田昌弘：土壌への砒素とほう素の吸着特性，電力中央研究所エネルギー研究所研究報告，No.285049，(1986)
- 2) 平田健正，前川統一郎，他：土壌・地下水汚染の原位置浄化技術，シーエムシー出版，pp.58～63，(2004)