

環境影響評価のためのカラム通水試験の基準化に向けて

Toward Standardization of a Percolation Test for Environmental Safety of Soil Materials

肴 倉 宏 史 (さかなくら ひろふみ)

国立環境研究所

保 高 徹 生 (やすたか てつお)

産産業技術総合研究所

井野場 誠 治 (いのば せいじ)

(一財)電力中央研究所

渡 邊 保 貴 (わたなべ やすたか)

(一財)電力中央研究所

中 村 謙 吾 (なかむら けんご)

東北大学

藤 川 拓 朗 (ふじかわ たくろう)

福岡大学

1. はじめに

ある現場の土の汚染の状態、あるいは、これから使おうとする土質材料(土や人工地盤材料)の環境安全性のうち、有害物質の溶出による地下水汚染の可能性について評価する際は、平成3年環境庁告示第46号(環告46号)¹⁾が使われている。環告46号では、2 mm以下の風乾試料と純水を1 kg対10 Lの割合(液固比10 L/kg)で混合して6時間反復振とうを行い、固液分離によって得られる検液中の有害物質の濃度を測定する。得られる結果は1物質につき1つのみであるため、実際に現場にあるときのような、溶出してくる濃度の時間的な増加や減少などの挙動に関する情報は得られない。

カラム通水試験は、カラムに充填した土質材料に溶媒を連続的に流し、得られる流出液中の有害物質の濃度を測定することにより、有害物質の挙動を評価できる。また、現場により近い条件であるので、より適切な環境安全性の評価と、土質材料の適切な活用のための情報取得が期待できる。しかし、カラム通水試験は多くの時間と労力を必要とするので、環告46号法のような多試料に対する判定試験には適さない。また、そもそも、カラム通水試験と環告46号の結果は、比較できるものではない。

以上を念頭に置きながら、本稿では、環境影響評価のためのカラム通水試験の基準化に向けた筆者らの取り組みを紹介する。

2. カラム通水試験の種類

地盤工学分野の室内試験において、カラムは、土の透水試験を初め様々な試験に使われている^{2)~4)}。本稿では、それらの中で、定流量を基本とし、土質材料とそれを通過する水との相互作用による、有害物質等の溶出(流出)特性などを把握・評価するために行われる試験に着目する。

カラム通水試験は、我が国ではこれまで基準化(標準化と同義)された方法が無いため、これまで、試験条件は、自由に、研究的に設定されてきた。試験条件には、

カラム内径、試料充填方法、試料充填高さ、溶媒の種類、溶媒の通水方法や通水方向、等々、実に様々な項目があり、都度、各自が設定した条件で実施されている。そのため、多くの時間と労力をかけて貴重なデータが得られても、試験条件が異なるために、データの相互比較は困難であり、現場利用の実績・経験を有する試料との比較を踏まえた環境安全性の予測や、モデルパラメータ取得の簡易化等に結びついていないのが現状である。

共通の試験条件でカラム通水試験を実施することにより、上記の課題は大きく前進できるものと期待される。既に、国際標準化機構 第190技術委員会 地盤環境 (ISO/TC 190 Soil quality) では、土及び土質材料 (soil and soil materials) を対象に、ISO/TS 21268-3: 2007 “Soil quality —Leaching procedures for subsequent chemical and ecotoxicological testing of soil and soil materials— Part 3: Up-flow percolation test (化学及び生態毒性試験のための溶出操作—第3部: 上向流通水試験)” というカラム通水試験が標準化されている⁵⁾。なお、TSとは技術仕様 (Technical Specification) のことで、精度評価を終えていないなどの理由から正式な標準 (いわゆる ISO) に準じたものであることを表す。そのため、見直し期間が正式な標準が5年ごとであるのに対して、3年ごとと短く設定されている。この他、表1に示すように、欧州標準化機構 (CEN)⁶⁾、オランダ標準化団体 (NEN)⁷⁾、ドイツ標準化団体 (DIN)⁸⁾、米国環境保護庁 (US EPA)⁹⁾、北欧試験標準化団体 (Nordtest)¹⁰⁾では、それぞれ表1に示す評価物を対象に、カラム通水試験を標準化している。これらのうち、日本の標準規格を示す日本工業標準調査会 (JISC) は JIS と ISO との整合を図るとの協定を持ち、また、地盤工学会は ISO/TC 190の国内審議団体であることから、カラム通水試験の基準化を目指す際には、ISO/TS 21268-3 (ISO法) との整合を第一に検討する必要がある。なお、ISOを国内標準として導入する際には、適切な理由に基づき試験条件を修正することは可能とされている。

表一 標準化されているカラム通水試験の例^{5)~10)}

団体	規格番号	評価対象
ISO	ISO/TS 21268-3	土及び土質材料
CEN	CEN/TS 14405	廃棄物
NEN	NEN 7371	土石材料
DIN	DIN 19528	廃棄物及び土質材料
US EPA	Method 1314	廃棄物
Nordtest	NT envir 002	廃棄物及び無機粒状物

そこで以下では、ISO/TS 21268-3⁵⁾の概要を以下に紹介し、次節では、ISO法の試験条件が適切かどうか、筆者らの知見を踏まえながら、現時点の筆者らの見解を述べる。

3. 上向流カラム通水試験 ISO/TS 21268-3 の概要

カラム本体は、内径50 mmまたは100 mmのガラスまたはプラスチック製のものを用いる。上下端にはろ紙（プレフィルター）を設置する。プレフィルターの孔径は1.5~20 μm とし、試料とプレフィルターの間には珪砂など不活性な材料を挟む。試料は、基本的に、風乾は行っていない自然含水状態のものを用いる。試料の粒度は、質量割合で95%以上が4 mmふるいを通過したものとし、これに合わせるために破碎は行っても良いが、過度には行わないこととしている。試料は、高さは300 \pm 50 mmとなるように予備充填により必要量を見積もってから、これを15画分に分け、1画分につき質量125 gのランマー（カラム内径5 cmの場合）を高さ20 cmから3回落下させて、突固めを行う。

通水する溶媒は、濃度0.001 mol/LのCaCl₂溶液を用いる。試料を充填後、カラム下端から徐々に水位を上げ、上端に達したら2日以上静置、若しくはポンプにより水を循環させる。その後、線速度（ダルシー流速）150 \pm 20 mm/dでカラム下端から上端へ通水する。カラム上端からの流出液を容器に採取し、表一2に示す間隔で容器を交換することにより、合計7画分の流出液（フラクション）を得る。流出液は基本的に遠心分離を行った後、孔径0.45 μm のメンブランフィルターでろ過を行い、各分析項目について測定する。

試験期間は、累積液固比10 L/kgに到達するためには約1ヶ月程度を要し、採取容器は最大で20 L程度のものを用意する必要がある。

カラム通水試験結果の例を、図一1に示す。

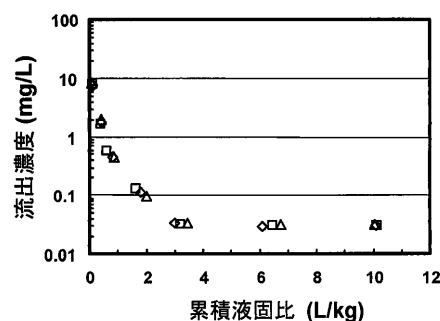
4. ISO法の試験条件は適切か

実際の現場における汚染土の範囲や土質材料の利用条件は様々であるので、現場を再現することを最大の目的とし、すべてに適した試験条件を一意に決定し標準化することは不可能である。また、基本的に、実験室内で、所定の期間内に試験を完了する必要がある。このような室内試験としての制約を念頭に、ISO法が標準法として適切かどうか、考察する必要がある。

そこで筆者らは、ISO法による試験条件について、実

表一2 ISO法における液固比に基づく採取画分

画分 No.	液固比 (L/kg)	累積液固比 (L/kg)
1	0.1 \pm 0.02	0.1 \pm 0.02
2	0.1 \pm 0.02	0.2 \pm 0.04
3	0.3 \pm 0.05	0.5 \pm 0.08
4	0.5 \pm 0.01	1.0 \pm 0.15
5	1.0 \pm 0.2	2.0 \pm 0.3
6	3.0 \pm 0.2	5.0 \pm 0.4
7	5.0 \pm 0.2	10.0 \pm 0.1



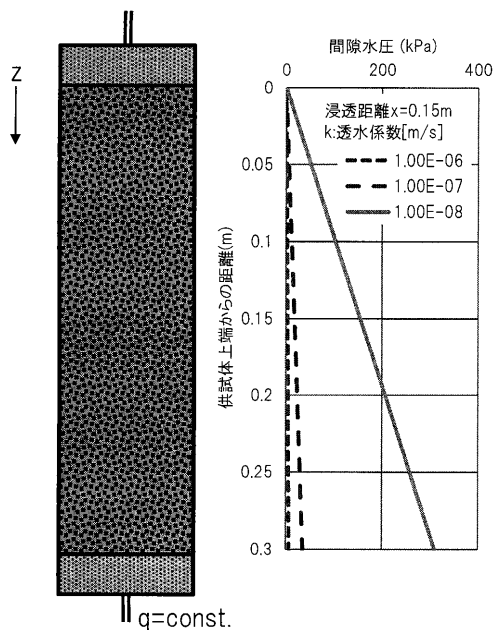
図一1 カラム通水試験結果の例：一般廃棄物焼却主灰からのクロムの流出挙動（同一条件で3回実施。記号◇, □, △は異なるカラムの結果を表している）¹¹⁾

験的に検討を重ねてきた^{12)~16)}。以下では、これまでの結果も踏まえつつ、ISO法の試験条件を論じる。

4.1 カラム内径と試料充填高さ

まず、カラム内径については、試料の最大粒径の5~10倍以上とすることにより、側壁流の影響を十分に緩和できると言われている³⁾。このことから、95%通過粒径を4 mmとし、カラム内径を50 mmまたは100 mmとすることは妥当であろう。また、5~10倍の条件を基本として、通水の際の線速度を同一とすることにより、異なる内径のカラムを用いることは許容可能と思われる。

試料充填高さについては、カラム通水試験は基本的に一次元の応答を調べるための試験であるので、最も重要である。充填高さが高いほど、カラム内部を浸透して平衡濃度に達するまで、有害物質の濃度は高くなると予想される。したがって、充填高さあまりにも低い試験だけでは、環境影響を過小評価する可能性がある。また、現場と同じ高さにできれば、得られる結果の説得力も高くなる。しかし、高さ数mの盛土を室内のカラムで模擬することは実際上困難である。また、定流量で通水する際の水圧を現実的な範囲に抑えるためにも、試料充填高さと透水性は重要な検討項目である。図一2に、ISO法において生じる定常時の間隙水圧を試算した。ここでは、一定流量、飽和上向流の条件のもと、任意の透水係数が与えられた場合の浸透水圧をダルシー則に基づいて計算し、浸透水圧の分だけ間隙水圧が増えると考えた。定流量であるため透水係数が小さいほど供試体下端に生じる間隙水圧は高くなる。透水係数 10^{-6} ~ 10^{-7} m/sであれば、動水勾配1~10程度に相当する間隙水圧分布のため、ISOの線速度（浸透距離0.15 m/d）は概ね妥当



図一 2 定流量時の間隙水圧分布の計算例

であると思われる。一方、 10^{-8} m/s では間隙水圧が非常に高くなり、その場合は、有効応力の変化に注意を要するものと考えられる。試料充填高さが大きく、透水性が低い場合には、間隙水圧が定常化するまでに長時間を要することも予想される。

試料充填高さは結果に直接影響する項目の一つであるので、標準法として試料特性の比較を可能とするためにも、300 mm で統一することは重要であろう。ただし、許容誤差範囲は ± 50 mm (300 mm に対して $\pm 16.7\%$)としているが、予備充填試験を適切に行えば狭めることは十分に可能と思われる。

4.2 試料の充填から水飽和まで

試料を自然含水状態で用いるべきか、風乾して用いるべきかについては、結論を得ることは難しい。風乾の操作は土の性質に影響を与えるので好ましくないという考えがある一方、風乾によって試料保存性が高まり、また、試料の均質化が容易になるとの意見もある。含水比が異なることにより、所定の突固めエネルギーでカラムに充填される試料の乾燥密度にも影響する。これまでの検討では、充填時の含水状態による結果への影響はあまり大きくはない^{(12), (16)}。これは、ISO 法は水飽和後 2 日間以上静置してから通水を開始することが一つの理由ではないかと推察している。

試料の充填方法については、ISO 法に記述されている 125 g ランマーによる突固めでは、JIS の突固め試験などと比較して非常に小さい。これは、定流量で通水することを第一義とすると考えれば、合理的かもしれない。なお、突固めエネルギーを ISO 法の 1/3 で充填したところ、試験中に試料が陥没した経験もあることから、突固めエネルギーが小さいといえども、最低限は、ISO 法にしたがっておくことが望ましいと考えている。

試料を充填後、カラム内に水を飽和させて 2 日間以上静置、若しくはポンプにより水を循環させる。このス

テップは、カラム内部を化学平衡状態に近づけるためと ISO 法には記述されている。現場での実際の現象を模倣しているのではなく、多少の違和感を覚えるが、先述したように試料の初期含水状態の違いなどが緩和され、後述の試験精度の向上にも寄与していると推察され、標準法として重要なものと考えている。

4.3 通水から流出液の採取・分析・評価まで

カラム通水試験を中断せざるを得なくなる状況としては、カラム内部あるいはフィルター部で目詰まりが発生するなどして通水が不可能となる事態が挙げられる。特に、イオン濃度が低い溶液では、コロイドによって通水が困難となる場合がある。また、カラム内や端部にガスが溜まることによっても同様に通水ができなくなる場合がある。筆者らの検討では、0.001 mol/L の CaCl_2 溶液は、コロイドを抑制し、目詰まりを予防する効果があることを確認した^{(13), (14)}。ただし、コロイドを構成する成分には有害物質を含む場合もあり、これらの移動を無視し得ない場合は CaCl_2 溶液の利用は検討する余地がある。一方、ガスの滞留については、明確な支障となったことは確認されていないものの、溶媒をあらかじめ脱気してから使用するなどして未然に防止しておくことが可能である。

通水速度については、線速度 (ダルシー流速) で 150 ± 20 mm/d としている。例えば、透水係数 10^{-5} m/s、動水勾配 0.05 のとき、ダルシー流速は 43 mm/d と計算される。このような比較はパラメータ次第であるので一概にはいえないが、試験を行う際、現場の地下水流速や材料の透水性を念頭に置いておくことは大切である。試験時間を短縮したい場合に通水速度を上げることは一法であるが、この場合、着目する物質の溶出挙動が接触水量のみに依存するという前提条件があることに注意しなければならない。つまり、このような前提条件が成立しているかどうかについて、十分な検討が必要である。また、通水速度を上げることは、試験操作の面からも、カラム内圧が上昇し目詰まりを早める可能性がある点に留意する必要がある。なお、目詰まりという観点からも、試験期間中、通水速度の変動には常に注意を払い、頻繁に、流量を確認することが重要である。

採取画分については、表一 2 に示した累積液固比基準では、採水容器の交換時間はカラムに充填した試料質量によって決まり、乾燥密度の小さいものと大きいものとは 2 倍近く異なる場合がある。しかし、先述したように、現場での状況を考えれば、乾燥密度に依らない、体積基準 (定流量の試験では、経過時間基準と同義) での評価が適切である。バッチ試験と異なり、カラム通水試験は一定体積で行う試験であるので、このことが可能である。そこで筆者らは、月曜開始とすれば平日に採水が可能となるよう、表一 3 に示す工程を提案している。翻って、表一 2 の累積液固比基準では、作業者の勤務時間を問わずに交換しなければならないという問題がある。なお、通水時間の延長については、通水 30 日後も濃度上昇が継続する場合もあるため、推奨することを含めて

表-3 筆者らが提案する採取画分

画分 No.	通水時間 (日)	累積通水時間 (日)
1	1	1
2	2	3
3	4	7
4	7	14
5	7	21
6	7	28
7	7	35

判断方法の検討が必要と思われる。

結果の整理方法については、溶出濃度 (mg/L) のまま、あるいは、試料重量あたりの (累積) 溶出量 (mg/kg) など表される。なお、カラム通水試験はバッチ試験に比べ「現場により近い条件」での試験ではあるが、多くの場合、実際の現場とは大きく異なる条件での試験である。したがって、得られる結果は、現地での地下水濃度の変化を示すものではなく、「共通の試験条件」で得られる溶出特性である。結果の評価方法については、関係者の合意形成を含めて、今後、十分な検討と議論を重ねる必要がある。通水量や時間に関する軸 (横軸) の表示方法は、充填体積あたりの累積通水量 (L/L)、累積液固比 (L/kg) などがある。解析的には、間隙体積によって通水量を正規化することも有効である。いずれに関しても、充填量、充填高さ、乾燥密度は重要なパラメータであり、結果に併記することが肝要である。

4.4 試験の精度

カラム通水試験を標準化するに際しての最大の課題は試験の再現性であると言われてきた。そこで筆者らは、ある汚染土を用いて、ISO法に基づき、3機関で一斉試験を行った¹⁶⁾。その際、風乾から縮分までの試料調製と、pHとECを除く各検液の分析は、それぞれ1機関に集約して行い、カラムへの試料の充填から通水による検液の採取までの部分を各機関で行った。その結果、例えばヒ素やフッ素などの陰イオン、カリウムやマグネシウムなどの陽イオンのいずれも、流出挙動は3機関で良く類似し、最大濃度、累積溶出量のいずれも、誤差は±20%の範囲内であることを確認した。様々な試料、さらに多くの機関での確認は必要と思われるが、今回の結果から、ISO法は標準法として検討に値すると考えている。

5. おわりに

カラム通水試験は、環告46号などの単一バッチ試験を代替するものではない。すなわちカラム通水試験は、カラムごとにポンプ等の装置が必要であり、また、試験時間も長いので、多数の試料を迅速に評価することはできない。カラム通水試験は、ある土質材料の環境安全性について科学的根拠を与えるための一つの試験方法である。カラム通水試験で環境安全性を評価した上で、多数

の試料の迅速な評価が必要な段階では、単一バッチ試験を適用するという階層的な評価を導入することが重要と考えている。そのためのツールとして、まず、カラム通水試験を標準化する必要がある。また、土質材料の利用は地下水面よりも上である場合が多いことから、散水 (不飽和) カラム試験の開発も重要な課題と考えている。

謝辞 カラム通水試験の試験条件検討にご尽力いただいた竹尾美幸氏 (当時 福岡大学学生) に感謝します。

参 考 文 献

- 1) 平成3年8月26日付環境庁告示第46号「土壌の汚染に係る環境基準について」
- 2) 地盤工学会：地盤試験の方法と解説, 2009.
- 3) 地盤工学会関西支部：地盤環境汚染一試験法と活用一, 2003.
- 4) 勲原子力環境整備センター：土壌と土壌核種間の放射性核種の分配係数, RWMC-90-P-13, 1990.
- 5) ISO/TS 21268-3 Soil quality Leaching procedures for subsequent chemical and ecotoxicological testing of soil and soil materials Part 3: Up-flow percolation test, 2007.
- 6) CEN/TS 14405 Characterization of waste —Leaching behaviour tests— Up-flow percolation test (under specified conditions), 2004.
- 7) NEN 7371 Leaching characteristics —Determination of the availability of inorganic components for leaching— Solid earthy and stony materials, 2004.
- 8) DIN 19528: 2009-01 Leaching of solid materials—Percolation method for the joint examination of the leaching behaviour of inorganic and organic substances, 2009.
- 9) US EPA: SW846 Method 1314 Liquid-Solid Partitioning as a Function of Liquid-Solid Ratio for Constituents in Solid Materials Using an Up-Flow Percolation Column Procedure, 2013.
- 10) Nordtest: Solid waste, granular inorganic material: Column test, 1995.
- 11) 香倉宏史・井野場誠治・大迫政浩：上向流カラム通水試験による溶出挙動評価法の標準化に関する研究—都市ごみ焼却灰を用いた室内精度の評価と流出挙動解析—第8回環境地盤工学シンポジウム発表論文集, pp. 281~286, 2009.
- 12) 中村謙吾・保高徹生・香倉宏史・藤川拓朗・竹尾美幸：上向流カラム試験条件が重金属類の溶出特性に与える影響, 第49回地盤工学研究発表会 CD-ROM, 2014.
- 13) 竹尾美幸・佐藤研一・藤川拓朗・古賀千佳嗣・香倉宏史・井野場誠治・渡邊保貴：上向流カラム通水試験による溶出挙動評価法の標準化に向けた検討, 第49回地盤工学研究発表会 CD-ROM, 2014.
- 14) 井野場誠治・渡邊保貴・香倉宏史・藤川拓朗・竹尾美幸：塩化カルシウム溶液を溶媒に用いた上向流カラム通水試験, 第49回地盤工学研究発表会 CD-ROM, 2014.
- 15) 保高徹生・中村謙吾・香倉宏史・三浦俊彦・井出一貴・星 純也・高橋真子：重金属汚染土壌の溶出特性評価—カラム試験と各種溶出試験による累積溶出量の比較—, 第49回地盤工学研究発表会 CD-ROM, 2014.
- 16) 中村謙吾・保高徹生・藤川拓朗・竹尾美幸・佐藤研一・渡邊保貴・井野場誠治・田本修一・香倉宏史：上向流カラム通水試験の標準化に向けた各種条件による重金属の溶出挙動の変化, 地盤工学ジャーナル (受理)

(原稿受理 2014.7.22)