





#### 4. 結果および考察

##### 4.1 IrH の添加による Pb の溶出抑制と反応形態

図2に HAp 無添加区における IrH 添加による Pb 溶出量を示す。また、図3に HAp 無添加区における IrH 添加率ごとの Pb 形態別の含有率を示す。Pb の溶出は IrH の添加率が高いほど抑制される傾向にあった。IrH の 5%添加時においては、IrH 無添加の Pb 溶出の約 1/30 まで溶出を抑制した。

反応後の Pb の形態は、IrH の添加率の増加に伴い Fe-Mn 酸化物吸着態の割合が増加した。反対に交換態や炭酸塩態は減少する傾向にあり、IrH の添加によって炭酸塩態など溶解度の比較的高い形態の Pb が Fe-Mn 酸化物吸着態に変化し、溶出の抑制につながったと推察された。また、土壌 pH には顕著な差がみられなかったが、IrH の添加によって緩やかに低下する傾向がみられた。

##### 4.2 HAp の施用時における IrH の添加による Pb の溶出抑制と反応形態への影響

図4に HAp5%添加区における IrH 添加による Pb 溶出量を示す。また、図5に HAp5%添加区における IrH 添加率ごとの Pb 形態別の含有率を示す。HAp の添加による Pb の溶出抑制効果は IrH に比べ極めて高く、HAp5%添加区における IrH0%の Pb 溶出は HAp 無添加区の IrH0%における溶出量の 1/100 以下まで抑制されていた。図3における IrH を 5%単用した場合の Pb 溶出量は資材無添加の約 1/30 であったため、HAp の方が優れた Pb 溶出の抑制効果を示すことが確認された。

さらに、HAp5%添加区において IrH を添加することで Pb の溶出をより低濃度に抑える事ができた。HAp5%添加区において IrH の 1%の添加で Pb 溶出は HAp を単用時の半量以下に抑える事ができた。IrH の 3%以上の添加では Pb 溶出量に差はほとんどなく、溶出量基準値の 0.01mg/L まで抑制できる可能性が示唆された。

Pb の形態は HAp の添加によって顕著に交換態や炭酸塩態の割合が減少し、残渣態の割合が増加した。これは、HAp の添加による低溶解性の Pb 化合物形成によるものと推察される。また、HAp5%添加区の Pb 形態は IrH を 3% 添加時で Fe-Mn 酸化物吸着態の割合が約 20%に及んだ。しかし、IrH を 5%添加時でも 20%程度にとどまった。HAp 無添加区の IrH を 5%添加時では 25%程度の Fe-Mn 酸化物吸着態が確認されているため、資材併用時の不溶化反応は IrH と Pb よりも HAp と Pb が優先的に反応することが示唆された。また、併用時の土壌 pH は IrH の添加率に伴い低くなる傾向があったが、HAp を添加することで IrH 単用時より低下が緩和された。

##### 4.3 IrH の添加による Sb の溶出抑制と反応形態

図6に HAp 無添加区における IrH 添加による Sb 溶出量を示す。また、図7に HAp 無添加区における IrH 添加率ごとの Sb 形態別の含有率を示す。Sb の溶出も Pb と同様

に IrH の添加率が高いほど抑制される傾向があった。IrH を 1%添加時においては、IrH 無添加時のおよそ半量、IrH を 5%添加時においては約 1/20 まで Sb 溶出が抑制された。

反応後の Sb の形態は、残渣態が 60%から 70%を占める割合となった。さらに、Pb の形態ほど顕著ではないが IrH の添加によって無添加時より Sb 形態の Fe-Mn 酸化物吸着態の割合が増加した。

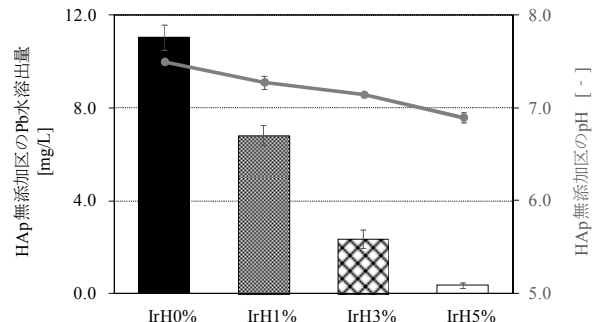


図2 HAp 無添加区における IrH 添加率ごとの Pb 溶出量

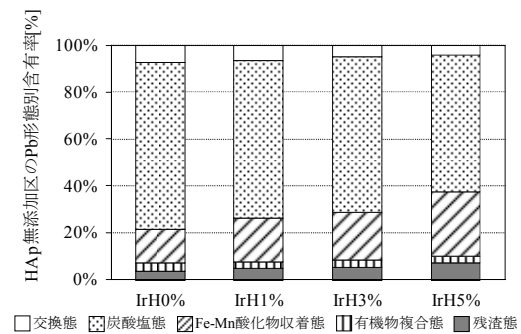


図3 HAp 無添加区における IrH 添加率ごとの Pb 形態別含有率 [%]

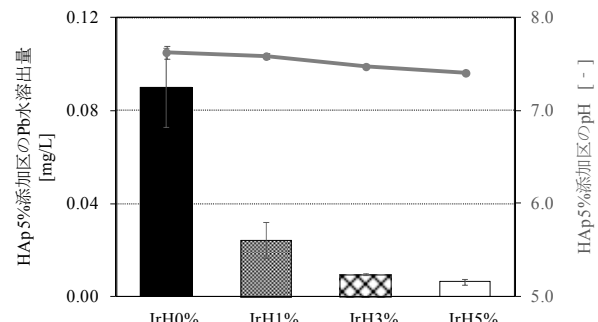


図4 HAp 5% 添加区における IrH 添加率ごとの Pb 溶出量

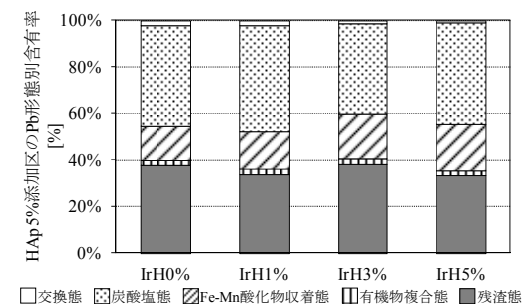


図5 HAp 5% 添加区における IrH 添加率ごとの Pb 形態別含有率 [%]

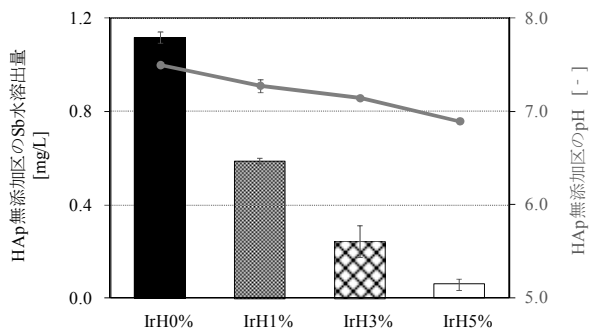


図 6 HAp 無添加区における IrH 添加率ごとの Sb 溶出量

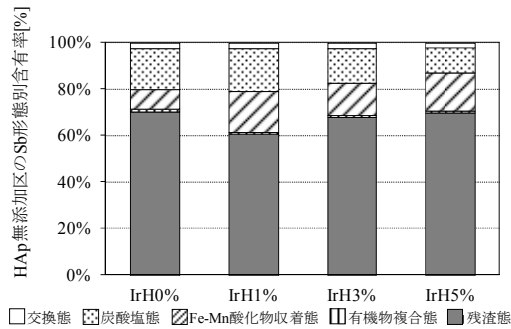


図 7 HAp 無添加区の Sb 形態別含有率 [%]

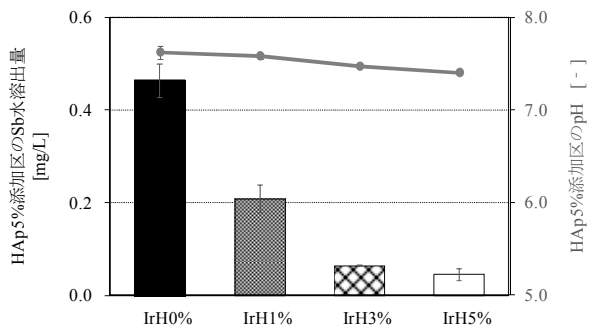


図 8 HAp5%添加区における IrH 添加率ごとの Sb 溶出量

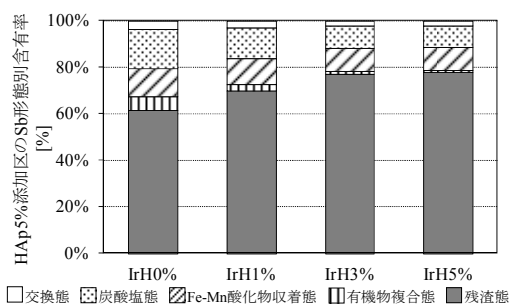


図 9 HAp5%添加区の Sb 形態別含有率 [%]

#### 4.4 HAp の施用時における IrH の添加による Sb の溶出抑制と反応形態への影響

図 8 に HAp5%添加区における IrH 添加による Sb 溶出量を示す。また、図 9 に HAp5%添加区における IrH 添加率ごとの Sb 形態別の含有率を示す。HAp の添加では、同量の IrH 添加に及ばないが資材無添加時の半量程度まで Sb 溶出が抑制された。HAp と Sb の不溶化反応には、HAp が持つ官能基への収着や解離したカルシウムイオンとの反応による沈殿などが考えられる。

また、HAp5%添加区においても IrH の添加は効果的であり、IrH の添加率が高いほど多くの Sb の溶出が抑制された。HAp から解離したリン酸イオンなどが、併用することで IrH への Sb 収着と競合する懸念があったが、競合による溶出の促進は確認されなかった。

Sb の形態は、IrH の添加が多いほど炭酸塩態、交換態の割合が減る傾向にあった。しかし、IrH 単用時と異なり Fe-Mn 酸化物収着態の増加は見られず、残渣態の割合が増加した。Tessier らの逐次抽出法では Sb 形態の大部分を占める残渣態の分画ができないため、より適切な逐次抽出を行う必要性が露見した。

## 5. まとめ

本研究では、Pb と Sb の複合汚染に有効な対策として HAp と IrH を併用した不溶化処理を検討した。本報告は、IrH の添加率を変え HAp と共に土壌へ併用し、溶出試験および逐次抽出試験を通して、資材添加率による溶出抑制効果や不溶化形態への影響を検討した。実験により得られた知見を以下にまとめる。

- (1) Pb と Sb が共存する土壌間隙水中で資材を併用した場合、Pb は HAp との不溶化反応が優先的と推察された。また、Sb は IrH との不溶化反応が優先的だが、HAp との間にも不溶化に関わる反応がみられた。
- (2) HAp と IrH の併用は単用時よりも低濃度に Pb と Sb の溶出を同時に抑えることができると確認され、両者を併用することで、Pb、Sb 複合汚染土の不溶化処理を資材単用よりも効果的に行えることが明らかとなった。

## 参考文献

- 1) Furuta S, Katsuki H, Komarneni S : Removal of Lead Ion Using Porous Hydroxyapatite Monoliths Synthesized from Gypsum Waste, *Journal of Ceramic Society of Japan*, Vol.108, No.3, pp.315-317, 2000
- 2) 環境省 水・大気環境局 土壌環境課：射撃場に係る鉛汚染調査・対策ガイドライン，巻末資料，pp.A1-A6 2007
- 3) 吉田孝敏，加藤雅彦，佐藤健：射撃場鉛汚染土壌に対するリン酸二カルシウムと酢酸の併用による鉛不溶化の促進，*土木学会論文集 G (環境)*，Vol. 67, No.2, pp.93-100, 2011
- 4) 中丸康夫：セレンおよびアンチモンの土壌中における収着挙動と植物への可給性についての研究，*日本土壌肥科学雑誌*，Vol.81, No.5, pp.463-464, 2010
- 5) 高橋嘉夫，板井哲明，光延聖，谷水雅治：X 線吸収微細構造を用いたヒ素及びアンチモンの水-土壌系での分配挙動に関する研究，*Photon Fact News*, Vol.25, No.4, pp.23-28, 2008
- 6) 和田信一朗：土砂中の自然由来重金属対策，ベース設計資料，No.146, 土木編，pp.35-37, 2010
- 7) Mitsunobu S, Sakai Y, Takahashi Y : Characterization of Fe(III) (hydr)oxides in arsenic contaminated soil under various redox conditions by XAFS and Mössbauer spectroscopies, *Applied Geochemistry*, issue 11, Vol.3, pp. 3236-3243, 2008
- 8) Tessier A, Campbell P G C, Bisson M : Sequential Extraction Procedure for the Speciation of Particulate Trace Metals, *Analytical Chemistry*, Vol.51, No.7, pp.844-851, 1979