

平成 22 年 4 月 30 日現在

研究種目：基盤研究（A）
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19206096
 研究課題名（和文） 内湾性海成堆積物からの重金属溶出メカニズムと地層内封じ込め技術の開発
 研究課題名（英文） Mechanisms of extraction of heavy metals from marine sediments and development of sealing technology
 研究代表者
 土屋 範芳（TSUCHIYA NORIYOSHI）
 東北大学・大学院環境科学研究科・教授
 研究者番号：40207410

研究成果の概要（和文）：

東北地方には竜の口層をはじめとして、新第三系鮮新統の海成堆積物が分布している。これらの地層には、高い重金属類含有量（As, Cd, Pb）を示しものが多く、溶出量試験も環境基準を超えるものが数多く見いだされている。本研究は、これらの地層のヒ素および重金属類の溶出特性を明らかにした。その結果、堆積環境に起因する形態変化が、元素の溶出挙動に大きく影響を及ぼしていることが明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：

Pliocene marine sediments were widely distributed in Tohoku District. Those sediments contain much amount of heavy metals such as As, Cd and Pb, and some of them were higher than limit of environmental regulation. Extraction properties of As and other heavy metals were affected by form of them, which was corresponded to sedimentary environment.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	22,000,000	6,600,000	28,600,000
2008年度	7,200,000	2,160,000	9,360,000
2009年度	4,000,000	1,200,000	5,200,000
年度			
年度			
総計	33,200,000	9,960,000	43,160,000

研究分野：地球物質・エネルギー学

科研費の分科・細目：総合工学 地球・資源システム工学

キーワード：内湾性海成堆積物、地圏環境、地質汚染、重金属汚染、修復技術、地圏環境インフォマティクス、形態分析、化学形態

1. 研究開始当初の背景

土壤の重金属汚染は大きな社会問題となっているが、地圏表層の土壤が人間、社会の

安全に影響を及ぼすのは、実は土壤汚染そのものの汚染とともに、これらの有害物質が表層下の岩石地層に散逸し、地下水汚染の原因

となり、被害がより広範囲に広がること、および、飲用や農作物への蓄積などを通じた人間の健康リスクの増大によるところが大きい。

研究者代表者の土屋らは、「地圏環境インフォマティクスのシステム開発と全国展開」プロジェクト（科学振興調整費 産学官連携）で、東北地方の土壤汚染は、鮮新世（200-500 万年前）に堆積した、内湾性海成堆積物が、ヒ素を含む相当量の重金属類を含有していることを見いだした。

土壤汚染と地下水汚染のリンク過程で、最もハイリスクな状態は、岩石・地層が破壊され、新たな表面が曝露し、そこに地下水、雨水が接触して有害物質が溶出するプロセスである。すなわち、岩石から土壤への移行過程での流体との接触が、もっとも有害元素の溶出量を増大させる。この過程を如何にコントロールするかがリスク管理に欠かせない。また、自然そのものはこの岩石の土壤化のプロセスで、粘土鉱物や沸石鉱物などで有害元素を土壤内に吸着固定化して抱え込む自然浄化機能を有している。この機能を最大限活用することにより環境に同化した環境修復技術が可能であろう。

これらの背景から、本研究は、内湾性海成堆積物に焦点を絞り、この地層群、およびこの堆積物に有害元素をもたらした後背地火成岩からの有害元素の溶出挙動も明らかにして、仙台都市圏の土壤汚染のリスク回避についての検討を行った。

2. 研究の目的

東北地方には竜の口層をはじめとして、新第三系鮮新統の海成堆積物が分布している（土屋ら、2006, 2007）。これらの地層には、高い重金属類含有量を示しものも多く、溶出量試験も環境基準を超えるものが数多く見いだされている。土壤汚染対策法の施行以来、

自然由来の重金属類の扱いは大きな社会問題となっており、自然由来であっても地層を排出して移動させれば、何らかの対策が必要となる。たとえば仙台市では地下鉄東西線の路線はほとんどが竜の口層内を掘削することとなり、残土の処理には十分な配慮が必要となっている。本研究は、これらの土壤汚染対策の基礎として、新第三系鮮新統の海成堆積物のヒ素および重金属類の溶出特性を明らかにする。

3. 研究の方法

対象とした地層は、仙台層群竜の口層のほか、向山層、大年寺層、秋田県横手地域および青森県田子地域より船川層、女川層、山形県米沢地域より高峰層、福島県会津地域より和泉層を採取した。これらの試料について、蛍光X線分析により全岩含有量を、環境省告示 18,19 号試験、さらに交換態、リン酸交換態、酸化物態、および残渣の4つに区分する逐次抽出試験を行った。それぞれの検液は、ICP-MSにより分析した。この他にイオンクロマトグラフィーによる硫酸の分析および総有機炭素量（TOC）を分析した。主として対象とした元素は、As, Cd, Pb であり、このほかに Al, Fe, Cu, Zn, Se, Rb, Sr を分析した。

4. 研究成果

溶出試験では、Cd が環境基準である 0.01 mg/L を越えて溶出する試料が多く、最も高い試料は約 0.65 mg/L を示した。これは極めて高い値である。環境基準をこえる Cd を溶出する地層のうち、竜の口層、大年寺層が突出して高い値を示し、ついで女川層、船川層となるが、和泉層と高峰層からのわずかな溶出しか認められなかった。As は、竜の口層、船川層、和泉層、高峰層からの溶出が環境基準を超えるものがあるが、Cd に比べると溶出量は大きく基準値を超えるものは少なかった。また、同じ地

層であっても、Cd と As の溶出の仕方が異なっていた。Pb は一部試料で環境基準を越えるが、As や Cd 溶出量は少なかった。地層別では、竜の口層、和泉層、高峰層、女川層から基準値以上の Pb が検出された。

pH とヒ素および重金属類の溶出挙動には特徴が見られ、竜の口層は、溶出試験後の検液の pH は酸性側にシフトする試料が多いが、和泉層や高峰層では検液の pH 変化は大きくは認められなかった。竜の口層は海成堆積物で、試料の多くにはフランボイダルパイライトが含まれている。一方、和泉層や高峰層は湖成層であり、重金属類の存在形態が竜の口層とは異なっていたと考えられる。一方、同じ竜の口層でも検液の pH がアルカリ性になり、このような試料からも As の溶出が認められる。この場合は、モンモリロナイトやアロフェンなどに吸着していた As が pH の上昇とともに液中に溶出してきたと推定される。

竜の口層の重金属類の溶出挙動には試料(地域)により差異が認められる。たとえば、竜の口層の TOC と As の溶出量にはよい相関があり、還元環境下での堆積によってヒ素および重金属の濃集が進んだと考えられる。つまり、竜の口海進の進行にともなって海水準が変化して、その結果、重金属類の濃集や存在形態が変化している。海成堆積物、特に内湾性堆積物では、堆積環境によりヒ素や重金属類の存在形態が異なり、これらの元素の溶出挙動に大きく影響を及ぼしていると考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

1. Y. Ogawa, S. Yamasaki and N. Tsuchiya : The influence of grain sizes and chemical weathering level on extractability of elements from sedimentary rocks., AIP

Conference Proceedings, 987, 129-132, (2008) (査読有り)

2. S. Kano, N. Tsuchiya, C. Inoue, T. Komai, T. Shiratori and H. Jingu : System development of geosphere environmental informatics and its application., AIP Conference Proceedings, 987, 159-162, (2008) (査読有り)
3. 狩野真吾, 土屋範芳, 井上千弘, 原淳子, 駒井武, 白鳥寿一, 神宮宏 : 「地圏環境インフォマティクスのデータベース構築とその応用例」, Journal of MMIJ, 124 (2), 148-153, (2008) (査読有り)
4. 小川泰正, 原淳子, 土屋範芳, 丸茂克美, 駒井武 : 「多段階ろ過からみた風化粘板岩からの元素溶出挙動」, 資源地質, 57 (1), 15-24, (2007) (査読有り)
5. 土屋範芳, 狩野真吾, 小川泰正, 山田亮一 : 「地圏における重金属類の分布と岩石からの移行プロセスにおける化学形態に関する基礎的検討」, 地学雑誌, 116 (6), 864-876, (2007) (査読有り)

[学会発表] (計 4 件)

1. 土屋範芳, 荒川淳一, 東北地方海成鮮新統(竜の口層他)に含まれる重金属含有量と溶出挙動, 日本地質学会講演要旨, 116, 154(2009,9.7) (岡山理科大)
2. 山崎慎一・武田 晃・塚田祥文・土屋範芳 : エネルギー分散型蛍光 X 線装置による土壌中の臭素、ヨウ素およびその他の微量元素の分析, 日土肥誌要旨集, 55, 30 (2009.9.6) (名古屋大学)

3.山田亮一, 土屋範芳, 吉田武義, 神宮 宏,
GENIUSシステムに対応した鉱山データ
ベースの作成とその活用事例, 資源地質
学会要旨集, 58,39(2009,6.23) (東京大学)

4.土屋範芳, 井上千弘, 小川泰正, 駒井武,
白鳥寿一, 狩野真吾, 地圏環境インフォマ
ティクス(GENIUS)の開発, 資源地質学会
要旨集, 58,53(2009,6.23) (東京大学)

[その他]

ホームページ等

<http://geoserv.kankyotohoku.ac.jp/genius/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

土屋 範芳 (TSUCHIYA NORIYOSHI)

東北大学・大学院環境科学研究科・教授

研究者番号 : 40207410

(2)研究分担者

平野 伸夫 (HIRANO NOBUO)

東北大学・大学院環境科学研究科・助教

研究者番号 : 80344688

岡本 敦 (OKAMOTO ATSUSHI)

東北大学・大学院環境科学研究科・助教

研究者番号 : 40422092

小川 泰正 (OGAWA YASUMASA)

東北大学・大学院環境科学研究科・助教

研究者番号 : 50422093

(3)連携研究者