

平成 21 年 6 月 8 日現在

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2006～2008

課題番号：18686039

研究課題名（和文） 汚染物質のコロイド形態による土壌内移動と運命予測の解明

研究課題名（英文） Fate and Transport of Colloid-Facilitated Contaminants in Soil

研究代表者

川本 健（KAWAMOTO KEN）

埼玉大学・大学院理工学研究科・准教授

研究者番号：50292644

研究成果の概要：現在、土壌・地下水汚染問題が国内外で顕在化している。本研究では、汚染物質を吸着して地盤内を長距離まで移動することが報告されている土壌コロイド（粒径が $1\mu\text{m}$ 以下）に注目し、土壌内での移動挙動解析や汚染物質（農薬や鉛）の吸着特性を、室内実験を中心に検討した。その結果、多孔質媒体内での土壌コロイドの移動特性は各付着係数を考慮した移流分散式で上手く表現できること等の成果が得られ、これらの成果は汚染物質のコロイド担体輸送が関与する諸問題（汚染領域の特定や汚染土壌の効率的な浄化工法の構築）に寄与するものと言える。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006 年度	12,100,000	3,630,000	15,730,000
2007 年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2008 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	14,700,000	4,410,000	19,110,000

研究分野：地盤環境工学，土壌物理学

科研費の分科・細目：土木工学・地盤工学

キーワード：土壌汚染，地下水汚染，土壌コロイド，吸着，移流分散

1. 研究開始当初の背景

人為的要因（工場からの揮発性有機化合物の漏洩，農地からの農薬の流出など），自然起因（地層中に存在する高濃度のヒ素など），自然災害（例えば，最近の米国ハリケーン被害によるオイルタンクからのガソリン流出）など，様々な要因によって引き起こされる土壌・地下水汚染が世界各地で問題となっている。国内においても同様な問題が顕在化し，昨今の土壌汚染対策法の施行とも相成り，汚

染領域の特定手法や効率的な浄化対策を目指して，学術と実務の両面から積極的な研究が推し進められている。

土壌の汚染物質移動現象の中でも，近年，汚染物質輸送のキャリアー（担い手）としての土壌コロイドの存在が注目されている。微小な粒子径からなるコロイドは，汚染物質を吸着して地盤内を長距離まで移動することが報告されるなど，汚染物質の輸送促進の大きな要因となる。しかし，コロイドによる汚

染物質の吸着・輸送機構に関しては、欧米で研究が幾つか見られるものの、学術的に十分に理解されていない点が多く、さらなるデータの蓄積が必要とされている。さらに、通常の汚染物質の移動解析についても、現時点では土壌そのものと土壌コロイドへの吸着を区別せずに取り扱われることが多く、両者への物質分配といった汚染物質の吸着実態が十分に考慮されていないのが現状である。

2. 研究の目的

本研究の最終目標は、土壌における汚染物質の運命予測モデルを構築し、土壌・地下水汚染防止のためのリスクアセスメントや汚染土壌の効率的な浄化工法を提案することにある。土壌は固相、液相、気相からなる複雑な系であり、汚染物質の土壌内移動を解明するためには、各相間の物質分配と各相での物質移動を規定するパラメータ（物質移動パラメータ）を正しく予測する必要がある。本研究課題では、特に、固相（土壌と土壌コロイド）と液相間の物質分配、液相における汚染物質の移動に焦点を当て、汚染物質の吸着・脱離機構とコロイドの形態による汚染物質の移動機構の解明、水・コロイド・汚染物質同時移動モデルの構築を目的とする。本研究課題では、具体的に以下の項目について検討を行う。

- 1) 汚染物質のコロイドへの吸着・脱離機構の解明
- 2) 液相における物質移動パラメータ予測モデルの提案
- 3) 水・コロイド・汚染物質同時移動モデルの構築

3. 研究の方法

本研究は、主に室内カラム実験及びバッチ試験を用いて、土壌コロイドの移動・流出特性、汚染物質の吸着・脱離機構の解明を目指した。具体的な研究方法は以下の通りである。

(1) 土壌コロイド移動・流出特性の解明

土壌カラムからのコロイド流出特性

土壌試料として、黒ボク土（東京）と赤黄色土（沖縄）の2種類を用いて、土壌カラムからのコロイド流出挙動を調べた。カラム（直径4.9cm、高さ10cm）に土壌を充填し、表層から人工雨水を供給し、カラム底部からの流出溶液のコロイド濃度等を測定した（図1）。この時、供給水の条件として、人工雨水のみを与える条件と、土壌から抽出した1 μ m以下のコロイド画分を含む溶液（以下、水分散コロイド）を与える条件の2通りを設定した。

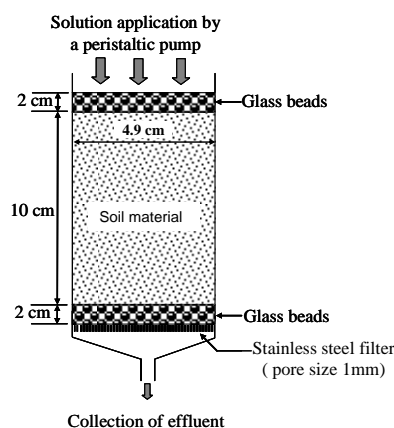


図1 カラム実験装置

砂層カラムにおけるコロイド移動特性

多孔質媒体内でのコロイド移動機構をより詳しく検討するため、砂層（粒径0.2mmと0.48mmの2種類）に水分散コロイド溶液を供給し、砂層カラムからの流出量、砂層カラム内のコロイド付着量分布、流速やpHの影響などを調べた。

数値解析によるコロイド流出・移動解析

数値解析を行い、コロイド流出・移動解析を行なった。解析にはHydrus-1Dを用いて、各吸着サイトにおける一次反応速度付着係数を考慮した移流分散方程式で解析を試みた。

(2) 土壌コロイドによる汚染物質の吸着・脱離機構の解明

土壌コロイドの荷電特性

土壌コロイドによる汚染物質の吸着はその表面荷電特性やコロイドの凝集分散に大きく左右される。そこで、異なるpH条件下で、ゼータ電位計を用いて水分散コロイドの表面荷電を実測するとともに、コロイド安定性試験を行い、コロイドの凝集沈降特性や粒径分布の時間変化を調べた。

農薬および鉛の土壌コロイド吸着特性

土壌および水分散コロイド溶液への汚染物質の吸着・脱離特性を、室内バッチ試験を用いて評価した。この時、比較対象としてカオリナイトも用いた。汚染物質としては、除草剤として広く用いられている酸性農薬の2,4-ジクロロフェノキシ酢酸（以下、2,4-D）と鉛を用いた。

4. 研究成果

研究方法の各検討項目に対して得られた結果を検討し、以下の研究成果が得られた。

(1) 土壌コロイド移動・流出機構の解明

土壌自体から流出するコロイド（以下、自

然コロイド)と、土壤に供給した水分散コロイドでは、その移動特性が異なることが示された。水分散コロイドは一次反応吸着・脱離係数による単収着サイトモデルでその流出挙動が上手く表現できるのに対し、自然コロイドでは分配係数による平衡収着サイトと一次反応吸着・脱離係数による収着サイトの双方を考慮しないと、その流出挙動が適切に表現できないことが明らかになった(図2)。このような土壤コロイドの移動・流出挙動はこれまで報告されておらず、本研究で得られた新たな知見であると思われる(成果は国際学術雑誌に投稿中)。

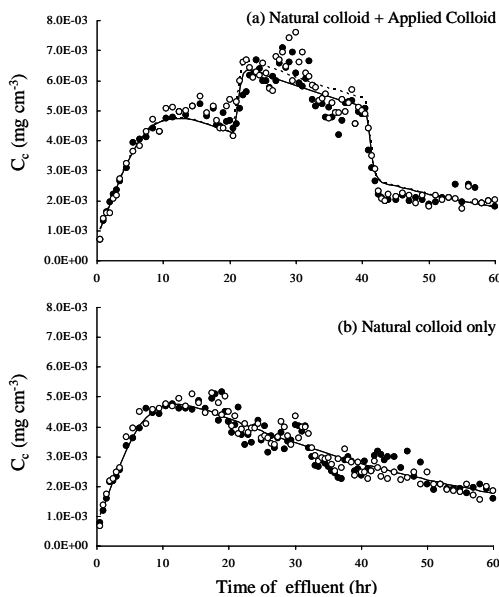


図2 土壤カラムからのコロイド流出解析例。(a) 自然コロイド+水分散コロイドの流出, (b)自然コロイドのみの流出

砂層カラムにおけるコロイド移動特性を検討した結果、砂層内での水分散コロイドの移動特性を表現するためには、前述の土壤内での挙動と異なり、不可逆的なコロイド収着サイト(物理的捕捉係数)が必要なことが明らかになった。数値解析により評価される物理的捕捉係数は、コロイドの供給濃度や流速により変化し、その値の大小がコロイドの流出形状(破過曲線)に影響を及ぼした。このような、コロイドの供給濃度がコロイド流出に影響を及ぼすことは既に一部の研究で示されていたが、物理的捕捉係数との関係を定量的に評価した点や、破過曲線の形状との関係を明らかにした点は新たな成果である(現在、国際学術雑誌に投稿準備中)。

また、黒ボク土(東京)と赤黄色土(沖縄)から抽出された水分散コロイドには、その荷電特性に大きな違いが見られ、黒ボク土水分

散コロイドはpHの変化によって荷電量が変化する変位荷電が支配的なコロイドであるのに対し、赤黄色土水分散コロイドはpHの影響を受けない永久荷電が支配的なコロイドであることが明らかになった。これらの違いは前述のコロイド移動・流出特性にも影響を与えることが予想され、今後も継続して検討を行っていく予定である。

(2) 土壤コロイドによる汚染物質担体輸送

汚染物質として農薬の2,4-Dと鉛を用いて、土壤および土壤コロイドへの吸着・脱離特性を調べた。その結果、2,4-Dと鉛のいずれの吸着等温線も良い直線関係を示し、その比例定数である吸着係数 K_d はpHに大きく影響を受けることが示された。そして、土壤と土壤コロイドの K_d の違いから、2,4-Dでは中性において土壤とコロイド両者の K_d はほぼ等しくなるものの、塩基性ではコロイドの K_d が土壤の K_d を大きく上回ることを、鉛では塩基性において土壤の K_d がコロイドの K_d を上回る傾向が見られた。また、2,4-Dに関しては脱離試験も行っており、その結果2,4-Dの吸着機構は、土壤の有機物質(および有機無機複合体)との配位結合が支配的であることが明らかになった。

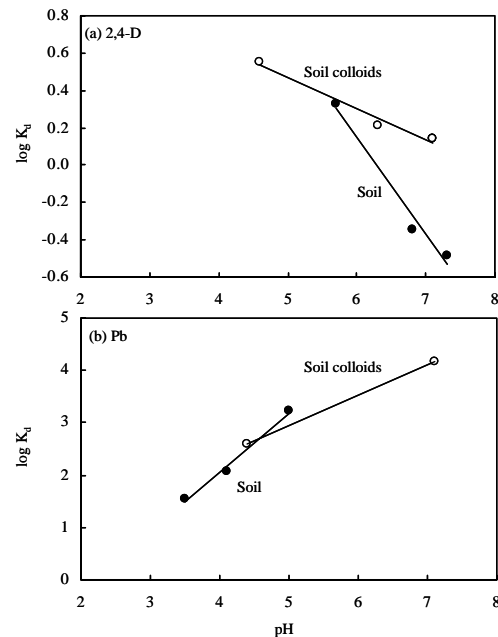


図3 吸着係数 K_d とpHの関係。

(a)2,4-D, (b)鉛

以上の結果を踏まえ、コロイドによる汚染物質担体輸送を考えると次の可能性が考えられる。2,4-Dのような酸性農薬は、土壤溶液が塩基性を示す場合、土壤溶液に溶解した形態での土壤内移動とともに、コロイド吸着

形態での土壌内移動が増すものと考えられる。鉛では、土壌溶液が塩基性を示す場合、土壌およびコロイドへの吸着量が大きいために、土壌溶液に溶解した形態での土壌内移動は小さくなり、土壌内移動はコロイド吸着形態での移動が支配的になるものと考えられる。今後はこれらの吸着・脱離特性を本研究期間内に検討した水・コロイド移動解析に組み込むことにより、本研究目標の水・コロイド・汚染物質同時移動モデルの構築・検証、汚染領域の特定や汚染土壌の効率的な浄化工法の提案を行う予定である。

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8件)

Hamamoto, S., M.A.P. Samintha, A. Resurreccion, K. Kawamoto, S. Hasegawa, T. Komatsu, and P. Moldrup, Solute diffusivity in variably-compacted, variably-saturated volcanic ash soils, *Vadose Zone J.*, 2009, 査読有(掲載確定).

Zaman, M.M., T. Komatsu, K. Kawamoto, and P. Moldrup, Adsorption of herbicide (2,4-D) onto volcanic ash soil and soil colloidal particles at varying pH, *J. of Nuclear Science and Application*, 2009, 査読有(掲載確定).
Ei Mon, E., T. Hirata, K. Kawamoto, S. Hiradate, T. Komatsu, and P. Moldrup, Adsorption of 2,4-dichlorophenoxyacetic acid onto volcanic ash soils: Effects of pH and soil organic matter, *EnvironmentAsia*, 2(1), 1-9, 2009, 査読有.

Chamindu, D.T.K.K., and K. Kawamoto, Transport and retention of colloid-sized materials in saturated porous media, *Proceedings of International Collaborative Graduate Symposium between Saitama University, Japan and University of Moratuwa, Sri Lanka*, 105-110, 2008, 査読無.

Hirata, T., E. Ei Mon, K. Kawamoto, and T. Komatsu, Measurements of distribution coefficients for pesticide onto soil and colloidal materials, *Proceedings of the International Exchange Symposium on Sustainable Infrastructure Development in Asia*, 102-107, 2008, 査読無.

Kawamoto, K., P. Moldrup, T. Komatsu, L.W. de Jonge, and M. Oda, Water repellency of aggregate size fractions of a volcanic ash soil, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 71, 1658-1666, 2007, 査読有.

Sharma, A., K. Kawamoto, T. Komatsu, and P. Moldrup, Adsorption mechanisms of an ionic pesticide onto kaolinite, *Proceedings of the International Conference on Emerging Issues on Research and Development*, Kathmandu, Nepal, Technical Session IV: Environment, No. 6, 2007, 査読無.

川本 健, 斎藤広隆, Per Moldrup, 小松登志子, 黒ぼく土カラムからの土壌コロイド流出解析, 埼玉大学紀要工学部, 40, 28-35, 2007, 査読無.

[学会発表](計28件)

Ei Mon, E., A. Sharma, K. Kawamoto, and T. Komatsu, Adsorption-desorption behavior of 2,4-dichlorophenoxyacetic acid in a volcanic ash soil, *Japanese Geoscience Union Meeting 2009*, 2009.05.19, 幕張メッセ(千葉).

Hirata, T., K. Kawamoto, D.T.K.K. Chamindu, and T. Komatsu, Mobilization and leaching of colloidal particles in repacked Okinawa red-yellow soil, *Japanese Geoscience Union Meeting 2009*, 2009.05.19, 幕張メッセ(千葉).

Chamindu, D.T.K.K., K. Kawamoto, H. Saito, P. Moldrup, and T. Komatsu, Numerical modeling of mobilization and leaching of natural and water dispersible colloids in aggregated volcanic ash soil columns, *Japanese Geoscience Union Meeting 2009*, 2009.05.19, 幕張メッセ(千葉).

Ei Mon, E., K. Kawamoto, T. Komatsu, and P. Moldrup, Irreversibility of 2,4-dichlorophenoxyacetic acid sorption onto a volcanic ash soil: Effect of pH, *American Geophysical Union Fall Meeting 2008*, 2008.12.15, San Francisco, U.S.A.

Chamindu, D.T.K.K., K. Kawamoto, H. Saito, P. Moldrup, S. Bradford, and T. Komatsu, Transport and straining of colloid-sized materials in saturated porous media: Experimental and numerical analysis, 2008 ASA-CSSA-SSSA International Annual Meetings, 2008.10.07, Houston, U.S.A.
Karunarathna, A.K., K. Kawamoto, P.

Moldrup, L. W. de Jonge, and T. Komatsu, Development of a predictive expression for soil water repellency based on soil organic carbon content, 2008 ASA-CSSA-SSSA International Annual Meetings, 2008.10.07, Houston, U.S.A.

Hirata, T., E. Ei Mon, K. Kawamoto, and T. Komatsu, Sorption and desorption behavior of 2,4-dichlorophenoxyacetic acid in kaolinite, volcanic ash soil and water dispersible colloid, International Symposium on Environmental Management:

Hazardous-Environmental Management Toward Sustainability (iSEM 2008), 2008.09.22, Nakorn Nayok, Thailand.

Nyamdavaa, G., D.T.K.K. Chamindu, K. Kawamoto, T. Komatsu, and P. Moldrup, Characteristics and transport of volcanic ash soil colloids in saturated sand, 10th International Summer Symposium, Japan Society of Civil Engineers, 2008.09.18, 土木学会館 (東京).

Hirata, T., E. Ei Mon, K. Kawamoto, and T. Komatsu, Measurements of distribution coefficients for pesticide onto soil and colloidal materials, International Exchange Symposium on Sustainable Infrastructure Development in Asia, 2008.09.15, Peradeniya, Sri Lanka.

Chamindu, K. Kawamoto, H. Saito, T. Komatsu, and P. Moldrup, Transport and retention of colloid-sized materials in saturated porous media: Experimental and numerical analysis, Third HYDRUS Workshop, 2008.06.28, 東京大学農学部 (東京).

Chamindu, D.K., K. Kawamoto, H. Saito, S.A. Bradford, P. Moldrup, and T. Komatsu, Transport and straining of colloid-sized materials in saturated porous media, Interfaces Against Pollution 2008, 2008.06.04, 京都大学 (京都).

Karunarithna, A.K., K. Kawamoto, P. Moldrup, T. Komatsu, and L.W. de Jonge, Characterizing soil water repellency properties by soil organic carbon content, soil texture and sieved-size fractions, Interfaces Against Pollution 2008, 2008.06.04, 京都大学 (京都).

Samintha, M.A.P., S. Hamamoto, A.C. Resurreccion, K. Kawamoto, P. Moldrup, T. Komatsu, and S. Hasegawa, Comparison of solute diffusivity between volcanic ash soils and normal mineral soils, Japanese Geoscience Union Meeting 2008, 2008.05.27, 幕張メッセ (千葉).

Chamindu, D.K., K. Kawamoto, H. Saito, P. Moldrup, and T. Komatsu, Experimental and numerical analysis of colloid transport and straining in saturated sand, Japanese Geoscience Union Meeting 2008, 2008.05.27, 幕張メッセ (千葉).

Karunarithna, A.K., K. Kawamoto, P. Moldrup, and T. Komatsu, Estimation of unsaturated hydraulic properties in water repellent soil by time domain reflectometry coil probe measurements, Soil Moisture Workshop 2008, 2008.03.27, 田町 (東京).

Chamindu, D.K., K. Kawamoto, H. Saito, P. Moldrup, and T. Komatsu, Transport and straining of colloid-sized materials in saturated sand, American Geophysical Union Fall Meeting 2007, 2007.12.14, San Francisco, U.S.A.

Samintha, M.A.P., A.C. Resurreccion, K. Kawamoto, T. Komatsu, and P. Moldrup, Solute diffusivity of repacked volcanic ash soil: Effect of changes in pore size distribution due to soil compaction, 2007.12.14, San Francisco, U.S.A.

Chamindu, D.T.K.K., K. Kawamoto, H. Saito, and T. Komatsu, Soil colloids: Characteristics and transport in saturated sand, 第49回土壌物理学学会シンポジウム, 2007.10.13, 九州大学西新プラザ (福岡).

平田 大貴, 川本 健, D.T.K.K. Chamindu, 小松 登志子, 土壌および抽出コロイドへのイオン性農薬の吸着特性, 第49回土壌物理学学会シンポジウム, 2007.10.13, 九州大学西新プラザ (福岡).

Chamindu, D.T.K.K., K. Kawamoto, H. Saito, T. Komatsu, and P. Moldrup, Transport and retention of colloid-sized materials in saturated porous media, 9th International Summer Symposium, Japan Society of Civil Engineers, 2007.09.18, 横浜国立大学 (神奈川).

+ 他 8 件

{ 図書 } (計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

(1)研究成果報告書

川本 健, 土壌汚染物質のマルチフェイズ
輸送機構の解明, 埼玉大学総合研究機構
研究プロジェクト研究成果報告書, 第 6
号, 107-108, 2008.

川本 健, 汚染物質のキャリアーとしての
コロイド粒子の土壌内移動の解明, 埼玉
大学総合研究機構研究プロジェクト研究
成果報告書, 第 5 号, 474-475, 2007.

(2)シンポジウム開催等

本研究成果の積極的な情報発信を目的と
し, 2008 年と 2009 年の日本地球惑星科学連
合において, 「Subsurface Mass Transport,
Material Cycle, and Environmental
Assessment (地質媒体における物質移動, 物
質循環と環境評価)」と題したインターナシ
ョナルセッションを企画した。

6. 研究組織

(1)研究代表者

川本 健 (KAWAMOTO KEN)
埼玉大学・大学院理工学研究科・准教授
研究者番号: 50292644

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし

(4)研究協力者

斎藤 広隆 (SAITO HIROTAKA)

東京農工大学・共生科学技術研究科
・准教授
研究者番号: 70447514

Per Moldrup

Aalborg University・Department of
Chemistry, Biotechnology, and
Environmental Engineering・Professor

小松 登志子 (KOMATSU TOSHIKO)
埼玉大学・理工学研究科・教授
研究者番号: 80034396