

# 岩石由来の環境汚染に関する調査について

奥村 興平・桜井 國幸・門間 聖子

## Advanced Geochemical Survey of Environmental Contamination Caused by Waste Rock

Kohei Okumura, Kuniyuki Sakurai and Mariko Monma

### Abstract

In Japan, the Soil Contamination Countermeasures Law was enforced in February, 2003. The law aims to prevent soil contaminations that have been frequently detected everywhere for the last few decades, in order to reduce risk for people's health. It contains regulations, in which the designated level in the soil is formulated for heavy metals such as As and Pb. Regardless, it is not so rare that the concentration of such heavy metals exceeds the designated level in natural rocks. To this case, the law can not be applicable. However, when these hazardous rocks are carried out as waste rock far from the original place during dam or tunnel construction, it is certainly required to take appropriate actions by law. This problem is an interdisciplinary subject between geological engineering and environmental chemistry. OYO Corporation has been conducting many environmental surveys and investigations for preventing contamination of river waters and agricultural soils caused by such hazardous rocks.

In this paper, we compiled many disclosed case studies and our experiences in the process of trials and errors. The distribution of hydrothermally altered volcanic rocks in Japan, evaluation methods of naturally hazardous rocks, and contamination-control measures are reported.

**Key words:** hazardous rock, buffering ability, heavy metal, the Soil Contamination Countermeasures Law

### (要 旨)

近年の環境保全への社会的認識の向上に伴う法整備の一環として、平成15年2月に土壤汚染対策法が施行された。この法律の基準を超過して自然由来の重金属等を含む岩石（以下、有害岩石と記す）は法の適用対象外とされているが、土木工事などのように、この有害岩石の掘削ずりを当該土地の外に搬出する場合は適切な対応が求められる。しかしながら、施工現場における地質条件は多様であり、有害岩石に関する調査・分析法はいまだ確立されていないのが現状である。この問題は、地質工学と環境化学に関わる学際的な課題であり、従来からOYOでは、有害岩石の掘削に伴う河川の水質汚濁や、農用地土壌への汚染等の“二次汚染”を防止するための調査を数多く実施してきた。ここでは、試行錯誤を重ねてきた経験技術とこれまでの公表事例を参考に、変質帯の調査法や岩石ずりの有害性判定法、及び対策技術についての最新の成果を報告する。

キーワード：有害岩石，緩衝能，重金属等，土壤汚染対策法

## 1. まえがき

OYOにおいては、有害岩石による環境汚染に対し、現場試験及び室内試験を含めて、地球化学的・環境化学的に取組んできた。

本論文では、岩石・土壌における環境汚染の実態と対応の経緯について、法制度の変遷を含めた議論を行い、次に有害岩石の地質学的背景を記し、特に硫化鉱物を含む岩石による環境汚染調査の事例と留意点について述べる。

自然由来の環境汚染については、古くから知られている割にはリスク評価や管理面での関心の程度はいまだ低く、対策を考える上での新しい問題の一つとも言える。自然由来の環境汚染対策を検討する場合、廃棄物の最終処分場のような遮水工や薬剤を用いる不溶化処理のように、人工的に封じ込める方法が一般的である。

しかし、自然由来であるがゆえに、自然地盤自体が保有する「中和作用」や「緩衝能」といった地球化学的営力を、有効に活用して対策を考えていくことが、「環境リスクの最小化、費用対効果の最大化」を図る上で極めて重要と思われるが、このような視点に立った環境調査が今まで見過ごされてきた。

## 2. 岩石・土壌による汚染の実態と対応の経緯

### 2.1 法制度の変遷

我国における有害岩石による環境汚染の歴史は、鉱山における生産技術が近代化された明治時代に遡る。古い

ものでは、明治10年代に栃木県の足尾銅山から発生した鉱毒水により、渡良瀬川流域の農用地に大規模な作物被害が発生し社会問題となった。また、昭和40年代には、岐阜県神岡町の神岡鉱山において、亜鉛製錬時に生ずるカドミウムを含む鉱廃水を富山県の神通川に排出してきたことにより、流域の水田土壌にカドミウムが蓄積し、そこで取れたカドミウム米を長年食した地域農民にイタイタイ病が発生したとして大きな社会問題になった。

その後、昭和50年代に入ると、東京都における六価クロム鉱さいの埋立てによる環境汚染が社会問題となり、汚染の場が市街地にも見られるようになった。

このような状況を受け、有害な岩石や土壌による環境汚染に対する法制度は、当初の農用地を対象にしたものから市街地をも対象にしたものへと整備されてきた。このうち、鉱山関連法以外の法制度は、岩石ではなく土壌のみを対象として整備されてきている。このため、有害岩石による環境汚染については、土壌に関する法制度を準用しているのが実情である。

表-1にこれらの法制度（鉱山関連法を除く）の変遷を示すと共に、以下にその概要を述べる。

#### (1) 公害対策基本法

公害対策基本法（昭和42年法律第132号）は、大気汚染、水質汚濁、土壌の汚染、騒音、振動、地盤沈下及び悪臭のいわゆる典型7公害への対応などについて規定したものである。このうち土壌の汚染については、昭和45年の第64回臨時国会（いわゆる公害国会）ではじめて公害の定義に追加され、土壌の汚染を防止するために必要な規定が設けられた。しかし当時は、土壌汚染に係る知見が必ずしも十分でなかったことから、

表-1 土壌汚染に係る法制度等の変遷

Table 1 History of law enforcement concerning soil contamination

制定・通知年月	分類	名 称	備 考
昭和 42 年 8 月	法律	公害対策基本法	昭和 45 年改正時に土壌汚染の追加
昭和 45 年 12 月	法律	農用地土壌汚染防止法	玄米中のカドミウム、土壌中の銅及び砒素が対象
昭和 61 年 2 月	指針	市街地土壌汚染に係る暫定対策指針	公共用地として転換される国有地に適用
平成 3 年 8 月	基準	土壌の汚染に係る環境基準	溶出量基準
平成 4 年 7 月	指針	国有地に係る土壌汚染対策指針	土壌環境基準設定に伴う見直し
平成 5 年 11 月	法律	環境基本法	
平成 6 年 11 月	指針	重金属等に係る土壌汚染調査・対策指針及び有機塩素系化合物等に係る土壌・地下水汚染調査・対策暫定指針	土地全般に適用、含有量参考値が示される。
平成 11 年 1 月	指針	土壌・地下水汚染に係る調査・対策指針	
平成 14 年 8 月	法律	土壌汚染対策法	平成 15 年 2 月施行
平成 18 年 3 月	指針	油汚染対策ガイドライン	

環境基準の設定には至らなかった。

その後環境庁（当時）では、平成3年に「土壤の汚染に係る環境基準の設定について」を中央公害対策審議会に諮問し、その答申を踏まえてカドミウム等10項目についての土壤の汚染に係る環境基準を平成3年環境庁告示第46号で告示した。

この法律は平成5年11月19日、環境基本法の制定に伴い廃止されたが、土壤の汚染に係る環境基準については、その後も新たな知見に基づき項目の追加や基準値の強化といった改正がなされ、現在に至っている。

## (2) 農用地土壤汚染防止法

公害防止対策が十分に実施されていなかった時代、鉱山採掘施設から流出した重金属を含む廃水や金属製錬施設からの排気ガス及び排水により、農用地が汚染される事例が発生していた。代表的なものでは、前述の富山県神通川流域におけるカドミウムを含む水稻の摂食による健康被害、群馬県渡良瀬川流域の銅による、また宮崎県土呂久等における砒素による農作物の生育阻害などが知られている。

このようなことから、公害対策基本法に土壤汚染が追加され、これに伴い農用地における土壤汚染対策を推進する実施法として、農用地土壤汚染防止法（昭和45年法律第139号）が制定された。

本法では、カドミウム、銅及び砒素の3物質を特定有害物質として政令で指定している。都道府県知事は、調査地域が指定要件（カドミウム：玄米中1.0 mg/kg以上、銅：土壤中125 mg/kg以上、砒素：土壤中15 mg/kg以上）に該当した場合、その地域を農用地土壤汚染対策地域として指定し、対策計画を定め、対策事業を実施する。

## (3) 市街地土壤汚染に係る指針等

市街地における土壤汚染問題への取り組みは比較的新しく、昭和61年に環境庁（当時）が公共用地として転換される国有地に対し、「市街地土壤汚染に係る暫定対策指針」を示したのが最初である。

これらの動きと前後して、半導体製造業等のいわゆるハイテク産業やクリーニング業で用いられてきた揮発性有機化合物による地下水汚染が問題となったことから、平成元年の水質汚濁防止法一部改正により、有害物質を含む水の地下浸透が禁止されると共に、地下水の常時監視が行われることとなった。その結果、揮発性有機化合物による土壤・地下水汚染の実態が次第に明らかになってきた。このことから、環境庁は、平成6年にそれまでの「国有地に係る土壤汚染対策指針」を廃止して、土地全般に対して活用されるよう「重金属等に係る土壤汚染調査・対策指針」及び「有機塩素系化合物等に係る土壤・地下水汚染調査・対策暫定指針」を示した。

その後、有害物質に対する新たな知見を踏まえ、平

成11年に「土壤・地下水汚染に係る調査・対策指針」及び同運用基準が環境省から通知された。ここで示された、重金属等の5地点混合法による試料採取方法や、揮発性有機化合物に対する表層土壤ガス調査法等は、現在の土壤汚染対策法においても踏襲されている。

なお、土壤環境基準の規制は、汚染がもつばら自然的原因によることが明らかであると認められる場所、あるいは原材料の堆積場、廃棄物の埋立地の施設等に係る土壤については適用されない。また、各種指針においても、「土壤・地下水汚染に係る調査・対策指針」が初めて自然的原因の取扱いを示し、専門家の助言を得て総合的に判断することが望ましいとしている。

## (4) 土壤汚染対策法

市街地における土壤汚染対策は自主的取組の推進を基本として進められてきたが、近年の土壤汚染の判明件数の増加は著しく、対策確立への社会的要請が強まったことから、平成15年2月、土壤汚染対策法（平成14年法律第53号）が施行された。

本法は、土壤汚染の防止については既存の法律によって対処することを前提に、既に発生した土壤汚染について、その状況の把握、汚染の除去等の措置を講ずるところにある。なお、自然的原因により土壤に特定有害物質が含まれていることは、本法の「土壤汚染」には該当しないが、施行通知等で、人の健康被害等を生ずることのないよう適切な措置を求めている。

## 2.2 鉱山関連

鉱山においては、鉱化作用により地質時代に生成した高濃度（品位）の重金属等を含む岩石（鉱石）を採掘することから、過去には鉱廃水や掘削ずりの不適切な取扱いにより、様々な環境汚染を発生させた経緯がある。

このため、稼行中の鉱山の鉱害防止対策を盛り込んだ鉱山保安法（昭和24年法律第70号、最終改正平成16年6月）が制定された。

本法は、汚染者負担の原則に則り、鉱業権者等が鉱害防止義務者として、発生源対策及び坑廃水処理などの適切な鉱害防止を行うこと等を定めている。終掘や倒産等により鉱害防止義務者がいない休廃止鉱山については、地方公共団体が国の支援を受けて鉱害防止を図ることとしている。また、旧鉱業権者に対しては、鉱業権の消滅後5年間は鉱害防止等に必要な設備の設置を命じることができる。

## 2.3 建設工事関連

建設工事における土壤汚染については、施工対象箇所

の土壤汚染状況が予見されている場合には「建設発生土

利用技術マニュアル第3版」<sup>1)</sup>に、また施工中に汚染土壌に遭遇した場合には「建設工事で遭遇する地盤汚染対応マニュアル〔暫定版〕」<sup>2)</sup>に、その対応方法が示されている。

しかし、施工に伴い発生した岩石（以下、掘削ずり）に起因する“二次汚染”については、対応方法が確立されていないのが現状である。掘削ずりは、溶出成分の種類や特性の違いなど土壌とは異なる汚染リスクを有するが、基準や指針等はいずれも土壌を対象としたものしか存在しない。このため、掘削ずりに対しては土壌汚染に対する基準や調査の考え方を準用し、岩石特有の汚染リスクについては、個別のケースごとに試験方法等を工夫しながらその評価に努めてきた。掘削ずりの処理問題について公表された事例としては、東北新幹線岩手-青森間の八甲田トンネル<sup>3)</sup>や国道289号の甲子トンネル<sup>4)</sup>が挙げられるが、これらはいずれも学識経験者を交えた検討委員会において、岩石による環境汚染リスクの評価とそれを踏まえた対策の方法を立案し、施工に反映させている。

なお、建設工事における掘削ずりによる環境汚染リスクへの対応として、独立行政法人土木研究所と当社を含む民間企業5社からなる「岩石由来の環境汚染対策研究グループ」により、リスク低減方策についての検討が現在行われており<sup>5)</sup>、2007年中には研究報告書として「建設工事における自然由来の重金属汚染対応マニュアル（暫定版）」（仮題）が公表される予定である。

### 3. 有害岩石の成因・産状

岩石由来の環境汚染問題に適切に対処するには、その

成因である有害物質が何処にどのような状態で存在するのか、その起源は何かを知ることが重要である。

土壌汚染対策法は、砒素、鉛、ふっ素、ほう素、水銀、カドミウム、セレン、六価クロムの8物質を土壌中に含まれることに起因して人の健康に障害を生ずる恐れがあるものとして特定有害物質に指定している。

これら8物質は、一面では有用な鉱物資源であり、地殻中に高濃度で濃集する場合には採鉱の対象となるために、国内でもかつては数多くの金属鉱山が稼行されてきた。現在はほぼ全てが終掘し、閉鎖されているとはいえ、これらの鉱山周辺には稼行の対象とはならない低品位鉱や鉱染帯が存在することも珍しくないで、場合によっては環境汚染の原因になりうる。このため、かつての鉱山が何処に在ったのかを知ることが有害物質が何処に潜在する可能性があるのかを知るのに有効である。

一方、都市周辺の地盤中には、有害物質が金属鉱床に較べて遥かに低い含有量しか示さないが、土壌環境基準を超える溶出量を示す地質が少なからずある<sup>6), 7)</sup>。このような地質は、土地造成やビル等の基礎掘削で建設残土として外部に搬出されるので環境汚染の原因となることがある。このような特性を有する地質については、既往の地質図などにより、その分布を把握することがある程度可能である。

以下に、環境汚染の原因となりうる有害岩石の分布について述べる。

#### 3.1 鉱染帯の分布

鉱染帯は火成活動に関連して形成されたものが多いといわれる。火成活動は地質時代ごとに特徴を有するために、それに伴って生成された鉱床やそれに随伴する鉱染帯に

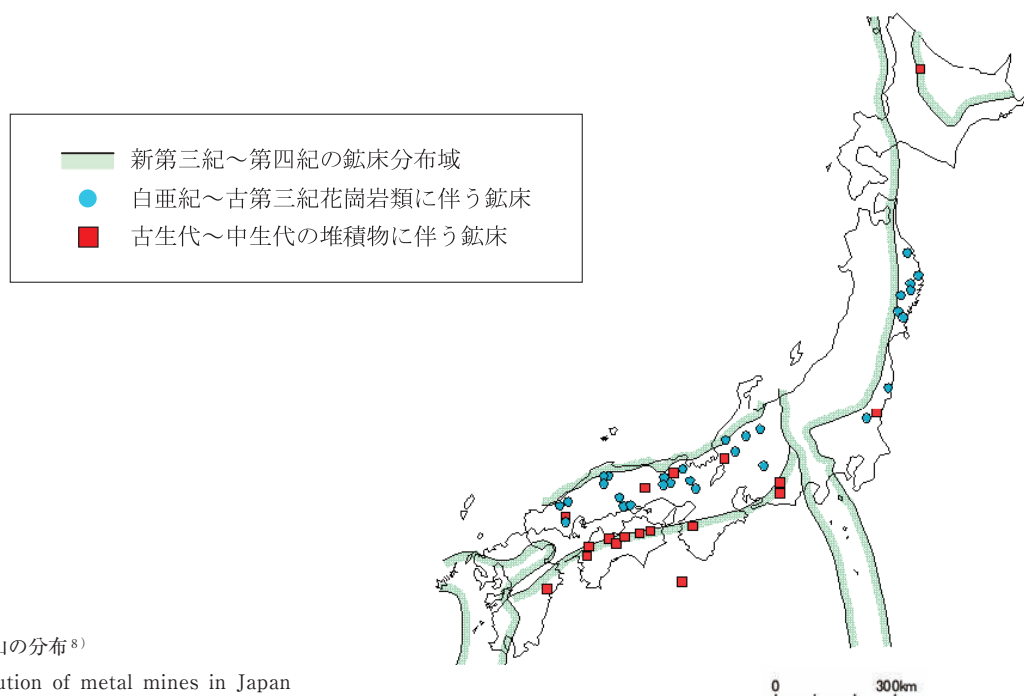


図-1 金属鉱山の分布<sup>8)</sup>

Fig. 1 Distribution of metal mines in Japan (based on Ishihara, 1978).



図-2 建設工事で遭遇した岩石由来の環境汚染問題箇所

Fig. 2 The map showing the locations where serious environmental contaminations were caused by waste rock under the civil engineering construction, Circle: Tunnel and road, triangle: dam

もそれぞれ特徴がある。

図-1に国内の金属鉱山の分布を示す。

古生代末～中生代中頃にかけて生成した広域変成帯に特徴的に伴われる鉱床としてキースラガー（層状含銅硫化鉄床）が挙げられ、代表的なものに別子、佐々連（愛媛県）、久根（静岡県）、日立（茨城県）などがある。

白亜紀～古第三紀の花崗岩類に伴う鉱床は、山陰・山陽～飛騨地方に広く分布し、生野、明延（兵庫県）や神岡（岐阜県）などが代表的な鉱床である。

図-1に示す新第三紀～第四紀の鉱床分布域には非常に多くの鉱床が存在するが、中でも新第三紀の海底火山活動で形成されたグリーンタフ地域には黒鉱鉱床をはじめ銅鉛亜鉛鉱脈鉱床、金銀鉱床、硫黄鉱床などが存在し、これらは広範囲に鉱染帯や変質帯を伴っている。図-2で明らかなように、岩石由来の環境汚染対策が実施されたトンネルや道路、ダム工事サイトはその多くが新第三紀～第四紀鉱床分布域に位置する。そこでは、鉱床母岩中に生成された有害物質の溶出に対する環境汚染防止対策が地域の地質特性に応じて実施されている。

### 3.2 都市周辺の汚染地質

上述の有害物質は、実は海水中にも微量あるいは超微量ながら含まれている。そのために、新第三紀鮮新統～第四紀更新統の海成層には、環境基準を下回るがかなりの濃度で有害物質が含まれている。例えば、房総半島に分布する上総層群や下総層群には1～12 mg/kgの砒素や



図-3 日本における鮮新統・更新統の分布<sup>11)</sup>

Fig. 3 Distribution of the Pliocene and Pleistocene series in Japan (shaded area)

鉛が含有されている<sup>9)</sup>。

土壌汚染対策法における砒素及び鉛の含有量基準は150 mg/kg以下であるから、通常、海成層中の砒素及び鉛が含有量基準を超過することはない。しかしながら溶出量については、両者ともに基準値が0.01 mg/L以下であることから、これを超過する海成層に遭遇することは往々にしてある。

新第三紀鮮新統～第四紀更新統の海成層は、上総層群や下総層群のほか、十勝累層群（北海道）、竜の口層（仙台市周辺）、西山層（新潟県）、掛川層群（静岡）、大阪層群など都市部周辺の平野部に広く分布する。したがって、このような地質環境のところでは都市土木工事をを行い、そこで発生する残土を不用意に他の地区での盛土や埋土に用いると、周辺の河川水・地下水に汚染を引き起こしかねないので注意を要する。

一方、最近になって、非海成泥岩・亜炭や氾濫原堆積物中の粘性土層から砒素、鉛を含んだ酸性水が発生する事例が2・3の地区から報告されている<sup>10)</sup>。

鮮新統及び更新統の分布状況は図-3のとおりである。

## 4. 有害岩石の調査事例

### 4.1 調査地及び調査の概要

ここで紹介する調査地は、グリーンタフ地域内に位置するダム計画サイトである。地質は、グリーンタフ変質

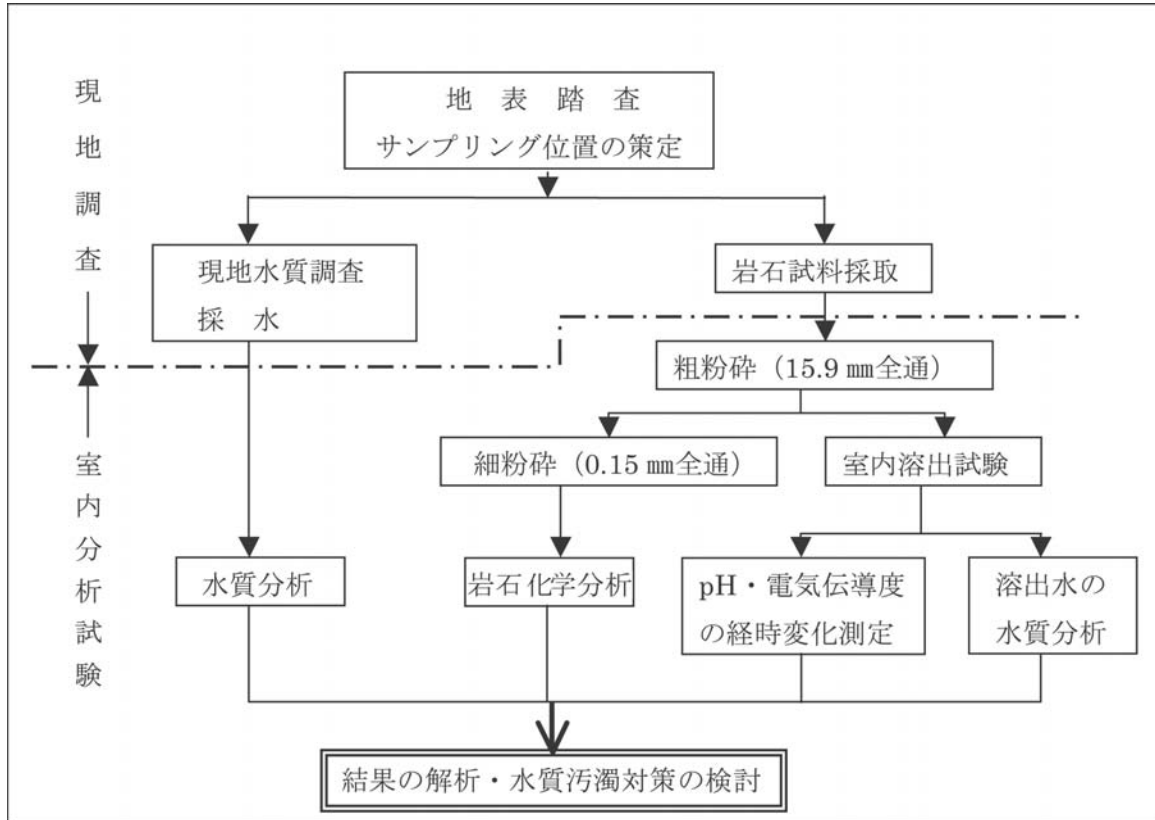


図-4 調査流れ図

Fig. 4 Flow chart of the OYO environmental survey

を受けて緑色化した安山岩及び凝灰角礫岩からなる。地質が複雑な上、変質帯の存在や軟弱な岩屑堆積物が分布するなど、地質工学的に問題のあるところであり、特にダム建設時の掘削及びズリ捨てに伴って、河川水の水質汚濁による環境汚染をどのように評価することが大きな問題であった。

調査としては、現地水質、岩石成分、溶出に関する測定及び分析試験を行ったが、その結果、重金属などを溶存する硫酸酸性水が発生する可能性が確実視された。と同時に、周辺に中和力を持つ岩石が存在することを明らかにし得たので、この新知見に基づき、自然の営力を利用した水質汚濁対策を提案したのである。

当該サイト付近には黄鉄鉱など硫化鉱物を含有した変

質帯が存在し、かつてその中央部にあった粘土鉱床を露天掘りした経緯がある。この掘削跡の溜まり水は、pH 3の強酸性を示す硫酸酸性水であった。これは、粘土鉱床中に含有されていた硫化鉱物が空気中の酸素及び水と反応して硫酸を生成したためである。一般にこの反応と同時に、生じた硫酸が岩石中に固定されていた有害物質（特に重金属類）を溶し出す役目を果たすことになる。

ダム計画では、変質帯を約25万<sup>3</sup>m掘削する予定であり、硫化鉱物含有ズリの発生は避け得ず、その処理の方法によっては、より空気に曝され易い状況となるため、重金属等を含有する硫酸酸性水の大量発生が十分に考えられる。このような有害な水が河川など公共用水域に流入すると、生態系や人の健康に影響を及ぼす水質汚濁を招く。

表-2 水質調査測定・分析項目

Table 2 Measurement items for water quality survey

区分	測定・分析項目	選定理由
現地測定	水温, pH, 電気伝導度	水の概括的な性質を知る。
室内分析 水質7項目	Na <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> , Ca <sup>2+</sup> , Mg <sup>2+</sup> Cl <sup>-</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	一般的な陸水の主要成分で、ヘキサダイアグラムに図化し、水質比較や水系判別に用いる。
室内分析 公害関連項目	Fe, Zn, Cu, Pb, As	硫化鉱物に付随し、水中に酸化溶出する実態を知る。

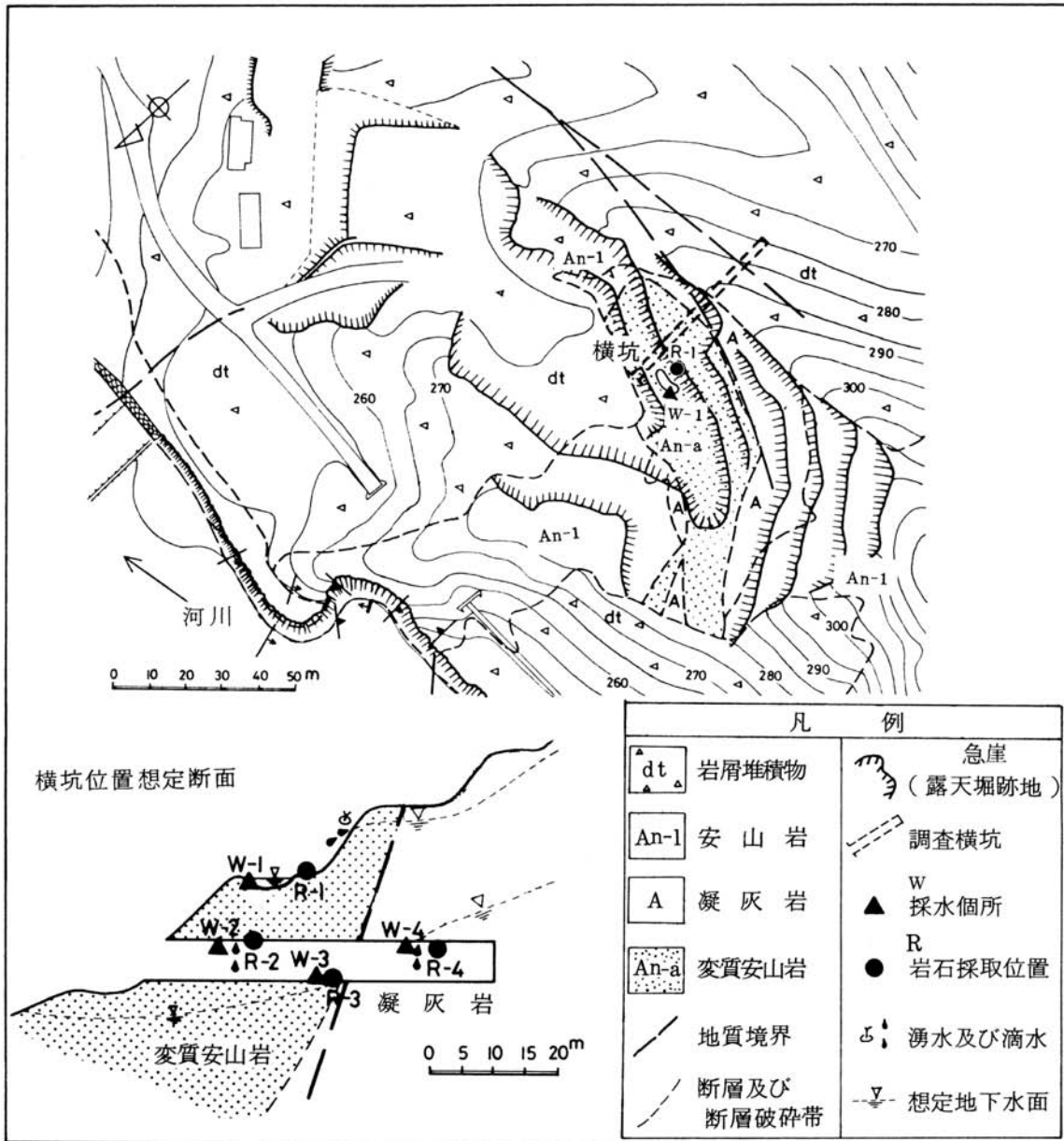


図-5 サンプル箇所位置図

Fig. 5 Localities of water and rocks samples (W-1, 2, 3 and 4: water samples, R-1, 2, 3 and 4: rock samples)

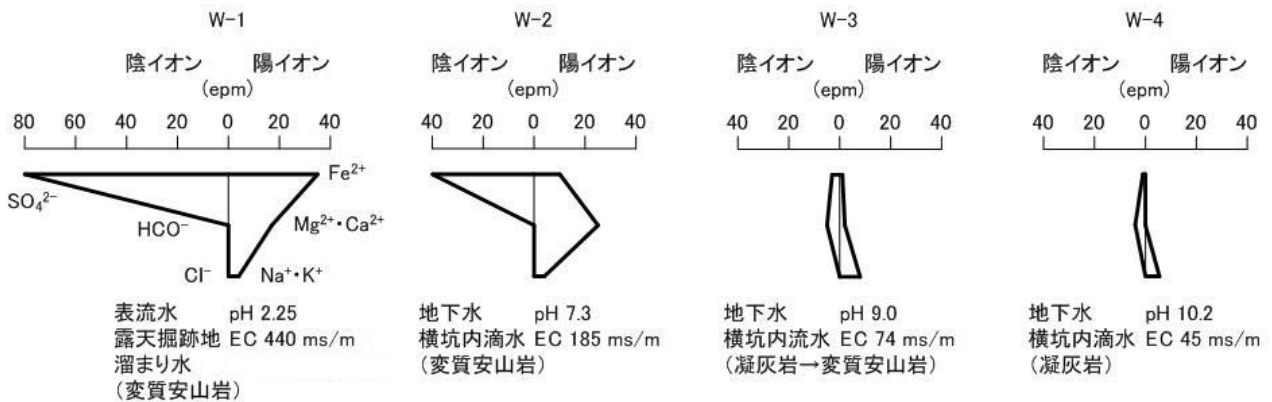


図-6 現地水質ヘキサダイアグラムと pH・電気伝導度

Fig. 6 Hexa- or Stiff diagrams, pH and electric conductivity of waters in-situ

ここでは、主に施工時のズリ捨て状況を考慮した試験、すなわち岩石ずりや掘削粘土中の有害重金属等が雰囲気(酸化還元環境)の変化によりどのような挙動を示すかを検討するため、図-4に示すような岩石粉砕物の溶出試験を中心とする基礎的な調査を行った。

#### 4.2 現地水質調査

サイト予定地に分布する粘土鉱床露天掘り跡(変質安山岩地表部)の地表水(溜まり水)及び調査横坑内(変質安山岩及び凝灰岩)湧出水の水質の把握を目的とし採水箇所(図-5参照)を選定した。表-2に測定・分析の15項目を示す。水質分析結果をヘキサダイアグラム(図-6)に示した。得られた知見は以下の3点にまとめられる。

- ① 粘土鉱床露天掘り跡の地表水(W-1)は、pH 2.25、電気伝導度(EC) 440 mS/mを示し、Fe分など重金属等を多量に溶存する硫酸酸性水である。
- ② 横坑内で岩肌に褐色沈着物が見られる箇所からの滴水(W-2)は、pH 7.3、EC 185 mS/mを示し、Fe分がほとんど除去された水質である。これは、変質安山岩中を浸透する過程で中和されたこと、地表水に多かった鉄分が酸化し褐色沈殿物(水酸化鉄)を生じたこと、さらに $\text{SO}_4^{2-}$ イオンの少ない地表水で希釈されたことによると推察される。
- ③ 横坑内深所の凝灰岩からの滴水(W-4)及びその水の変質安山岩面を流下する水(W-3)は、pHがそれぞれ10及び9とアルカリ性を示し、ECは45及び74 mS/mと前の2種の水より格段に低い。これは明らかに溶存イオンの濃度が相対的に少ないことを示している。分析値を見ると、 $\text{Na}^+$ と $\text{HCO}_3^-$ イオンが卓越、Fe分などの重金属等が皆無に近く、地表水(W-1)及び横坑内(W-2)とは好対照の水と云える。

#### 4.3 岩石成分分析

4.1節の採水箇所との関連性も考慮して、露天掘り法面及び横坑内から4種類の岩石を採取した。全分析した項目は、岩石の主要成分である $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{K}_2\text{O}$ 、強熱減量、及び硫化鉱物の主成分であるFe、Zn、Cu、Pb、As、Sで、以上あわせて13項目とした。岩石の採取位置、地質名、岩相及び変質状況などを表-3に示した。

本表のS(硫黄)含有量と図-7に示したその他成分との関係から、第1に地表部の変質安山岩(R-1)はS含有量、Fe分及び塩基性成分( $\text{Na}_2\text{O}$ など)が最も少なく、逆に $\text{SiO}_2$ は最高含有率を示す。これは地表面のR-1は酸化を強く受け、 $\text{SiO}_2$ 以外の成分が酸性水により溶出減少した結果を示すと思われる。第2に横坑内奥の凝灰岩(R-4)は塩基性成分が最も多く含まれるのが特徴的である。

#### 4.4 溶出試験

この試験は、長年月の間に風雨や温度変化などに曝される自然環境の中で、岩石(固)、水(液)及び空気(気)の三者が関与して生ずる風化現象を検証するために、室内に設定した物理化学条件下で試験して、調査地の各岩石から水へ溶出する種々のイオンの挙動を把握することを目的とした。供試した岩石は、分析に用いた4試料(表-3)で、すべて15.9 mm以下の粒度とした。試験は、空気酸化反応促進を考慮したシャワー循環法と、より長時間の水質変化を追跡する半水浸静置法との2種類を実施した。図-8にR-1とR-2との岩石の混合比が異なる場合のEC及びpH変化を、また図-9にR-1とR-4との場合の同様な変化を示す。

これらの試験結果では予測値(計算値)と実測値がよく一致していることから、各岩石試料からの溶出水は、その採取位置近くの現地水質と酷似していることが確認

表-3 岩石採取位置、岩相及び変質状況

Table 3 Sampling locations, lithofacies and the degree of rock alteration

No.	位置	地質名	岩相および変質状況	硫黄含有量
R-1	露天掘り 法面	変質 安山岩	風化し、粘土化～土壌化している。白色パッチ状の長石斑晶明瞭。強変質である。	0.1%
R-2	横坑 11m	〃	岩塊表面が赤褐色を呈する。灰色で塊状。微粒状黄鉄鉱含有。強変質である。	0.7%
R-3	横坑 29m	〃	白色、塊状。微粒状黄鉄鉱あり。中変質で比較的原石に近いものもある。	1.5%
R-4	横坑 45m	凝灰岩	更に深部の凝灰岩に比べ変質帯に近いため軽微な変質を受けている。微粒状の黄鉄鉱が僅かに散在する。	1.1%



された。まず溶出イオン総量に比例する EC の測定値からは、地表部 (R-1) から横坑深部 (R-4) に向けて溶出量の減少及び溶出速度の遅くなる傾向が見られ、また意図したとおりシャワー法の方が溶出速度が大きいことも判った。pH 値は各岩石の中で経時的に漸減あ

るいは漸増傾向を示すものの、溶出後短時間で R-1 は強酸性、R-2 は弱酸性、R-3 は弱アルカリ性、R-4 はアルカリ性と、各岩石固有の pH 値を示している。これらの結果から次のことが言える。すなわち、表土 (風化岩) は空気酸化により生成した硫酸酸性水を溶出する。

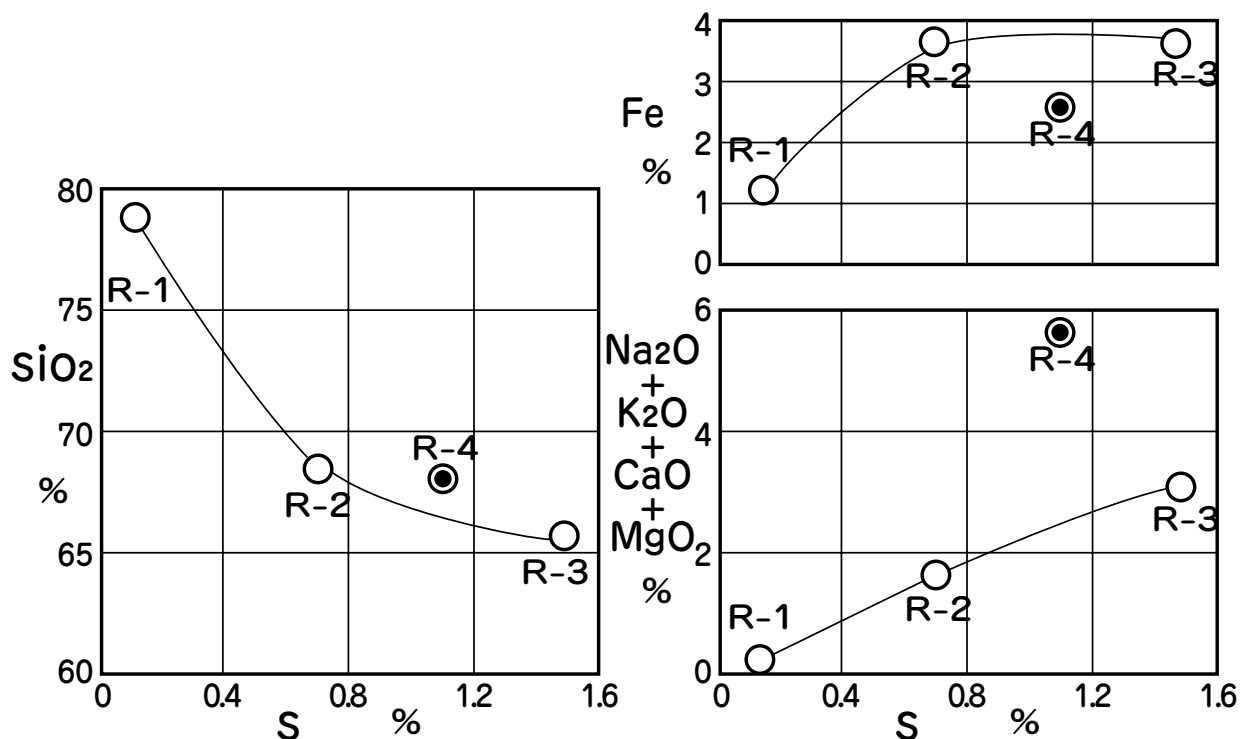


図-7 岩石成分間の関係 (図中の番号は試料 No. を示す)

Fig. 7 Relationships among sample rock components (numeric indicates each sample number)

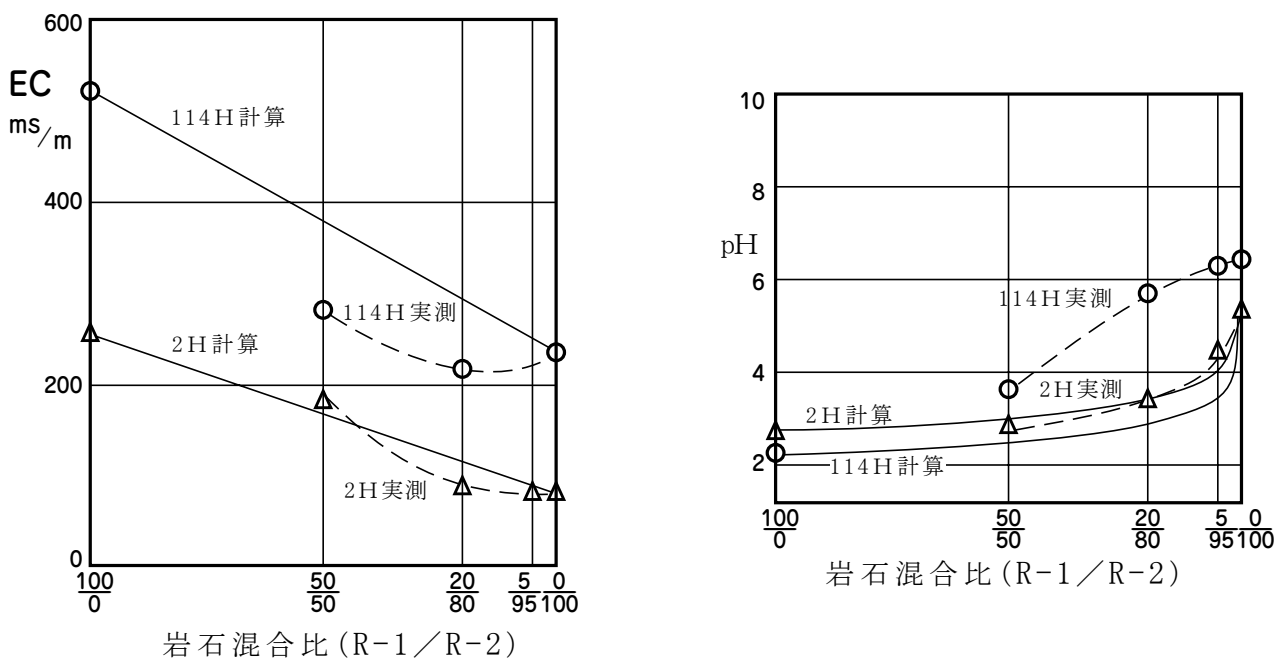


図-8 変質安山岩の地表部 (R-1) と深部 (R-2) の混合溶出試験

Fig. 8 Leaching tests shown by the relations between EC values of ambient water and the mixing ratios of altered andesite samples. R-1: Sample taken at the surface of the earth, R-2: Sample taken at the depth

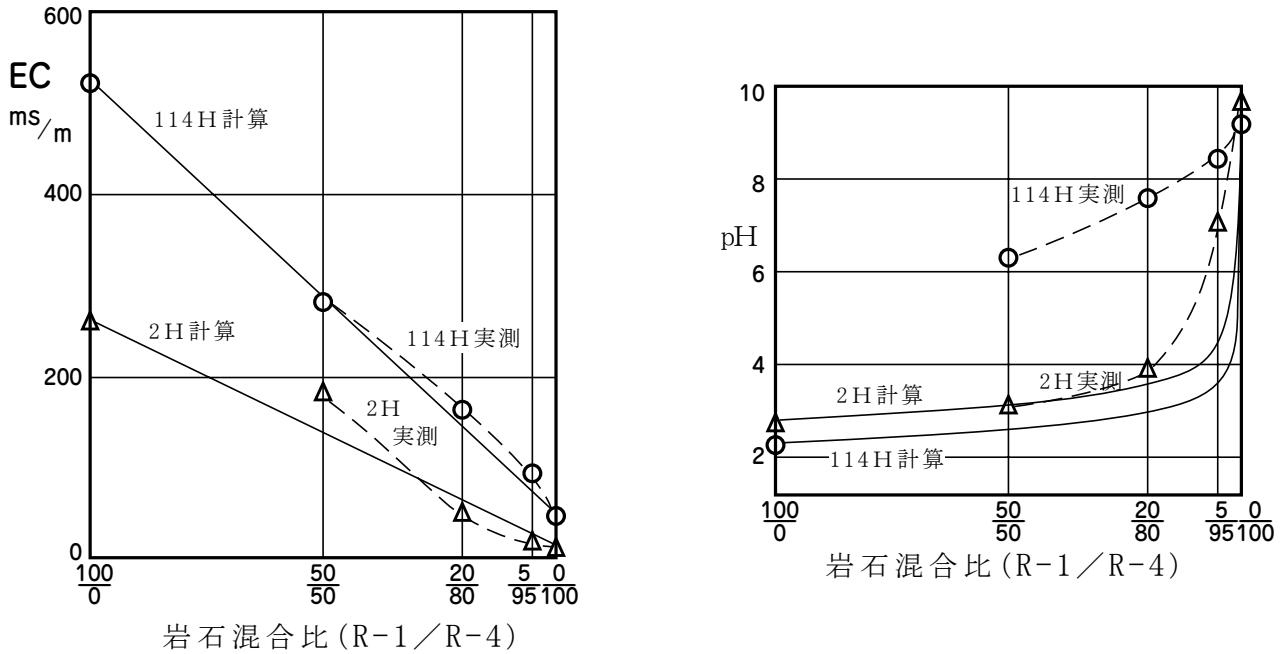


図-9 変質安山岩の地表部 (R-1) と深部凝灰岩 (R-4) の混合溶出試験  
 Fig. 9 Leaching tests shown by the relations between EC values of ambient water and the mixing ratios of rock samples. R-1: Altered andesite taken at the surface of the earth, R-4: Altered tuff taken at the depth

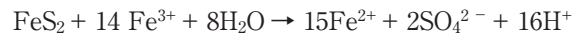
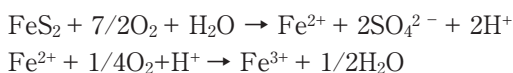
未酸化の深部変質安山岩はその変質度合 (硫黄含有量や粒度) により溶出傾向が異なる。塩基性成分に富む凝灰岩は溶出量が多くないが、比較的高い pH (すなわち弱アルカリ性) を示す。

これらの結果を検討する中で、酸性地表水は同一地層の未酸化部分を浸透する途中で中和されたと考えられた。したがって、滴水 (W-2) に見られるように、深部変質安山岩や凝灰岩に、表土に係わる硫酸酸性水を中和する作用が期待出来るのではないかと考え、表土と深部岩石とを種々の割合で混合して溶出試験を試みたのである。その溶出水の pH, EC の測定値と、各岩石単独の溶出水の指示値を用いた計算値との比較から、深部変質安山岩には溶存イオンの減少 (EC の低下) を伴う中和能力があること、一方凝灰岩は EC の低下は示さないが、深部変質安山岩に優る中和力のあることが判った。

#### 4.5 硫化鉱物を含む有害岩石に係る水質汚濁機構と周辺岩石の中和能力

##### (1) 水質汚濁機構

変質安山岩地表部の水が強酸性を示すのは、現地水質調査及び溶出試験の結果から硫酸 (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) によることが明らかである。硫酸は変質安山岩中の硫化鉱物 (主に黄鉄鉱 (FeS<sub>2</sub>) と思われる。) が水の存在の下で、空気 (酸素) により酸化され生成したものであり、その反応式は次 3 つの式に示す通りである<sup>12)</sup>。



また *Thiobacillus thiooxidans* と称する硫黄酸化バクテリアの作用によっても、

S (硫黄) が発熱を伴った以下に示す反応を起こして、硫酸イオンが発生する。



硫化鉱物の酸化反応については実験的に次のようなことが知られている<sup>13), 14)</sup>。

- ① 水の存在により酸化が促進される。
- ② 酸化速度は鉱物粒の表面積に比例する。
- ③ 温度 10℃ 上昇毎に酸化速度は約 2 倍となる。
- ④ 雰囲気中の酸素濃度に比例する。
- ⑤ 磁硫鉄鉱 > ゲル状硫化鉄鉱 > 白鉄鉱 > 黄鉄鉱の順に酸化が速い。
- ⑥ 粘土鉱物の存在が酸化触媒的作用をする場合がある。

##### (2) 周辺岩石の中和能力

深部の変質安山岩及び凝灰岩は、地表部変質安山岩 (表土) よりも硫化鉱物の含有量がむしろ多いが断気状態にあるため、これらに接している水は、中性から弱アルカリ性を示した。その理由は塩基性成分 (Na) が NaHCO<sub>3</sub> として溶出するためと思われる。そしてこの塩基性成分は地表部の変質安山岩に係わる硫酸酸性水を中和する作用を有している。

#### 4.6 土捨てに伴う水質汚濁対策の提案

将来的には湖底となる湛水域内（断気状態と推定）に捨土することを想定し、それまでの期間の当該処理について検討を行い、以下の4案を考えた。

- ① 表土の酸化を防止する。→アスファルトや粘土などで覆土し断気環境にする。
- ② 表土に中和剤を混合する。→石灰石、消石灰などを用いる。
- ③ 表土に深部岩石を混合する。→塩基性に富む変質安山岩、凝灰岩を混ぜ捨土。
- ④ 酸性浸出水を中和処理する。→濁水処理と合わせ、苛性ソーダなどで中和する。

この中で、①と③を併せた処理法が設備やコストなどの面から最も実情に即していると考えられたので、有害岩石の土捨てに伴う水質汚濁防止工法として提案した。

#### 4.7 今後の検討課題

サイト予定地の硫化鉱物を含む地表部変質安山岩は、硫酸酸性水を溶出する。その部分を掘削し捨てる場合は何等かの処理が必要となる。

一方、深部の岩石からは弱アルカリ性の水が供給され、その岩石には酸性水を中和する作用のあることが判った。

これらの結果を踏まえ、空気酸化の防止及び塩基性成分に富む岩石による中和作用を意図とした定量的で具体的な処理対策法案の作成が今後の課題となった。と同時に、新たに提起された、一時的に生じる酸性水によるコンクリート侵蝕の問題に対する効果をも実証的に明らかにする事が必要となった。そのためには、長時間行えるより大型化した現場試験装置が有効と判断され、これによって「環境リスクの最小化と費用対効果の最大化」を図る方が得られると考えている。

### 5. 岩石由来の環境汚染調査における留意点

#### 5.1 硫化鉱物を含む岩石による環境汚染

3.1, 3.2節において述べたとおり、自然由来の環境汚染としては、地質時代の硫化水素イオンを含む熱水活動により生成した鉱化変質岩に起因するもの、海成層中に生成した硫化鉱物に起因するものがある。前者ではダム、トンネル工事などで発生する鉱化変質帯の岩石ずりや掘削土による重金属類を含む酸性水の発生、後者では都市土木及び臨海部の浚渫土埋立地での砒素、鉛による土壤汚染が挙げられる。

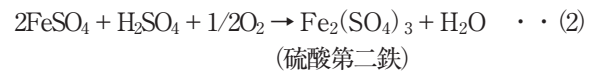
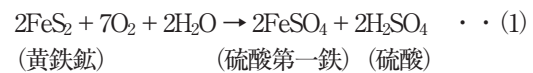
ことに日本は世界有数の火山国・温泉国であるため、火山活動に伴い生成した硫化鉱物を含む鉱化変質帯が各地に広く存在し、その中にある硫化鉱物には、濃度によっては人体に有害な重金属類である砒素、鉛、カドミウム

などが含まれている。

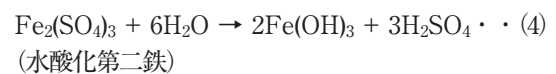
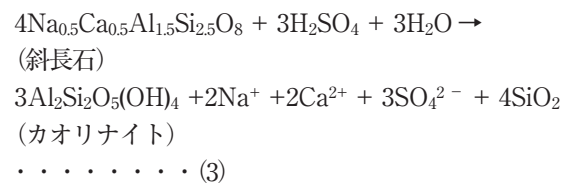
自然の産物である重金属を含む硫化鉱物は資源として有効に利用されるが、硫化鉱物を含む土石は不用意な取り扱いをすると重金属類による環境汚染問題を引き起こす。建設工事などに伴い発生した掘削土中に硫化鉱物が含まれる場合は、その硫黄分が空気や水と接触することにより酸化されて金属を含む硫酸となって溶け出し、土壤や地下水、河川を汚染することに十分留意する必要がある。

#### 5.2 岩石が有する重金属類溶出抑制機能

硫化鉱物を含む岩石（変質岩）は水と空気中の酸素の存在下で、重金属類を含む硫酸酸性水を生成することをこれまで述べてきた。例えば、黄鉄鉱（FeS<sub>2</sub>）の場合には（1）、（2）式に示す酸化反応が起こる<sup>12)</sup>。



一方で、カルシウム-ナトリウム質斜長石が含まれる未風化の岩石では、例えば（3）、（4）式のような反応が起こり、硫酸酸性水によるpHの低下は一時的に抑制されて、中和生成物として褐色の水酸化第二鉄（Fe(OH)<sub>3</sub>）が沈殿する。



このような、岩石が有する重金属類溶出抑制機能を「緩衝能」と称するが、要対策岩の周囲に緩衝能が期待できる岩石が存在する場合には、その自然の持つ能力による中和反応を活用して、硫酸酸性水への対策が可能になる。

この事例として、4章にあげた調査事例がその一例となる。

#### 5.3 廃鉱山採鉱跡地における酸性坑廃水

図-10に、金属資源として採鉱を行った鉱山跡地を想定した酸性坑廃水が発生する機構の概念図を示す。

通常、採鉱直後の地下水位（太い点線）は坑道掘削の影響により坑道沿いに坑道の奥まで低下している。これ

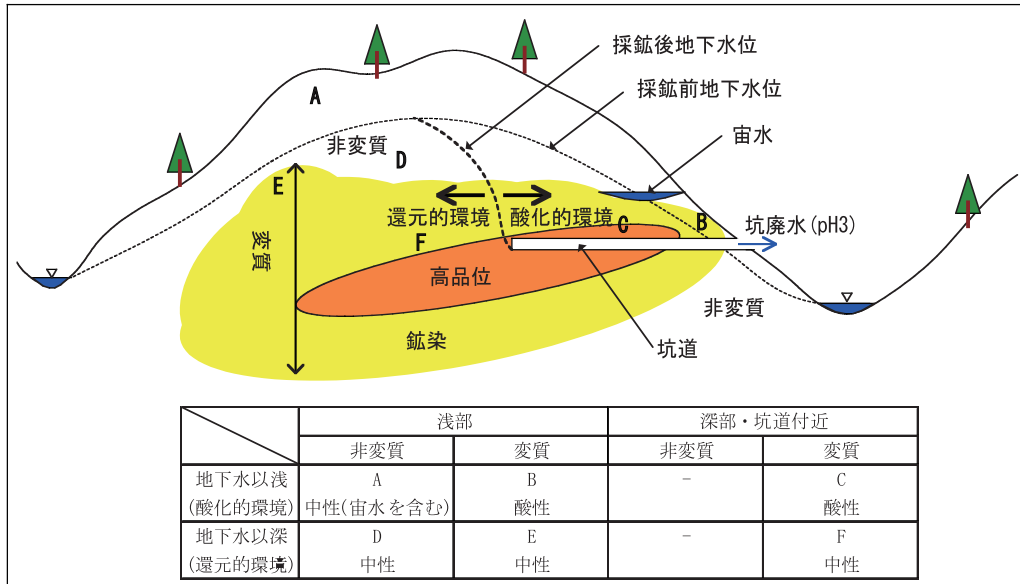


図-10 鉱山跡地で酸性坑廃水が発生する機構概念図

Fig. 10 Schematic diagram showing the mechanism of acid drainage at an abandoned mined area

に伴い、坑道掘削前には地下水位以深で還元的環境にあった鉱化変質帯の部分、地下水位以浅となって空気に曝され酸化的環境となる。こうしたことから、硫化鉱物の酸化反応が進行して、重金属類を含む低 pH の硫酸酸性水が発生することになる。

しかし、周囲の状況を見ると、非変質帯の部分は、宙水を含む地下水位以浅の酸化的環境 (A ゾーン) の部分、地下水位以深の還元的環境 (D ゾーン) の部分とも「中性」を示し、変質帯も地下水位以深の還元的環境 (E, F ゾーン) の部分では「中性」を示すことになる。

つまり、地下水位以浅の酸化的環境にある変質帯の部分 (B, C ゾーン) も、前の 4.2 節で述べた自然の岩石の持つ「緩衝能」が発揮されるように対策を行うことにより、元の還元的環境に戻してやる事ができれば、ある程度、酸性坑廃水の発生を防ぐことができるのである。

#### 5.4 Eh - pH からみた溶出形態の変化

図-11 に pH 及び Eh (酸化還元電位) と砒素の形態を整理した Eh - pH ダイアグラムを示した。ここでは、砒素、硫黄、鉄の各化学種が  $10^{-6}$  モルという濃度 (活動度) で存在するという、自然環境下では比較的普通に起こりうるような条件が設定されている。

この図から、例えば pH2 の強酸性状態にある水の場合、Eh が +0.3 ~ +0.5mV の酸化環境では砒素は亜砒酸となり溶出しやすい状態となるが、それ以外の環境では溶出しにくい砒酸鉄 (スコロド石) や硫化砒素 (雄黄) などの形態をとることがわかる。同様に、中性の pH7 付近では Eh - 0.1mV 以上の酸化環境で溶出しやすく、pH12 の強アルカリ性状態では、Eh - 0.4mV 以上のやや還元的な環境から酸化環境まで幅広い範囲で溶出しやすいことを示している。

このように、砒素を含めた重金属類の溶出についての検討を行う場合には、pH はもちろんのこと、Eh も重要なファクターであることに留意する必要がある。

#### 5.5 調査・措置の検討への適用

先に述べたような重金属類の溶出機構 (5.2 節) 及び pH-Eh の変化による形態の変化 (5.4 節) を踏まえた上で、実際の建設工事に伴う掘削土等の有害性の判定に関する

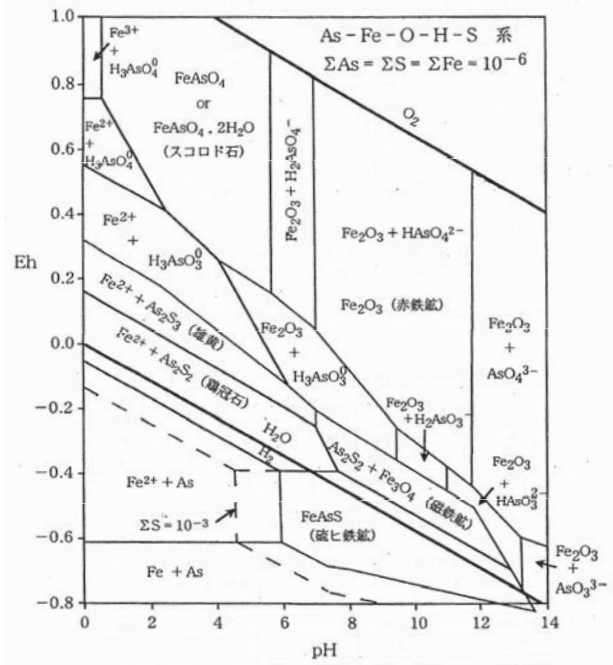


図-11 As - Fe - O - H - S 系の熱力学計算で求めた Eh - pH ダイアグラム<sup>15)</sup>

Fig. 11 Eh-pH diagram of the As-Fe-O-H-S system after Vink (1996)

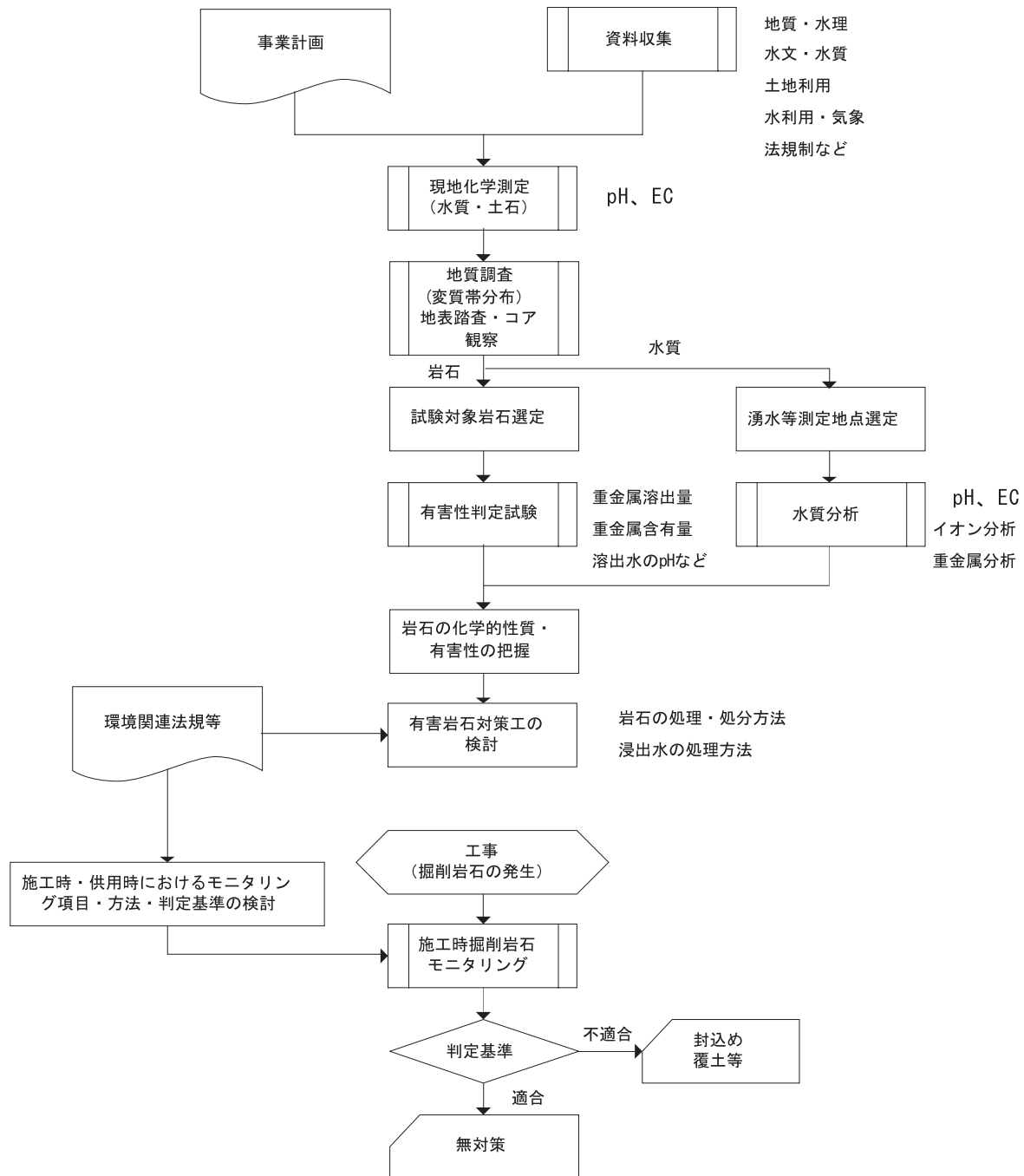


図-12 掘削岩石の有害性に関する調査・措置の検討フロー

Fig. 12 Flow chart of environmental surveys and countermeasures for mitigating chemical hazards caused by waste rock

調査・措置の検討を行うことになる。

調査は、事業計画をもとにした資料収集調査から始まるが、その資料は、地質、水理・水文、水質、土地利用、水利用、気象、法規制関係などが対象となる。現地調査では現地化学測定、地質調査（変質帯分布、地質踏査、コア観察）、室内試験として有害性判定試験、水質分析などを行い、岩石の化学的性質と有害性を把握して、対策工の検討を行う。

これら調査の流れについてまとめたものを図-12に示

す。

平成15年2月に施行された土壌汚染対策法では、指定基準の超過状況、超過した基準の種類によって、汚染土壌に対する措置の選択方法が異なる。図-13に措置の選択方法について整理したものを示す。

### 5.6 有害岩石による水質汚濁対策の考え方

硫化鉱物を含む掘削岩石ずりからの重金属類の溶出対

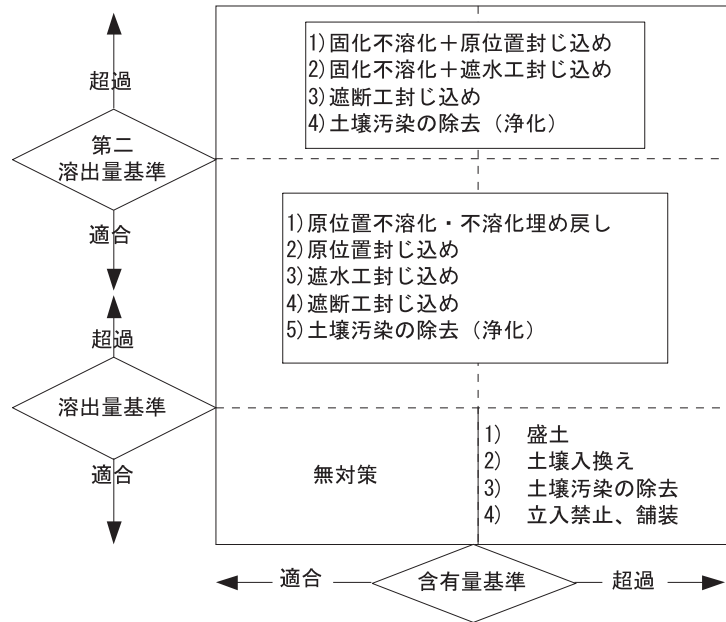


図- 13 汚染土壌に対する措置の選択方法の考え方  
 Fig. 13 Guideline for implementing countermeasures against soil contamination

策を検討する場合には、その溶出機構から岩石の変質度と風化度の把握が重要である。岩石の変質度・風化度と発生水質の関係を図- 14 に示す。

このように、掘削岩石からの重金属類の溶出を検討する場合には、以下に示した項目を把握する必要がある。

- ① 岩石の変質度指標 (全硫黄含有量 (TS))
- ② 酸化度 ( $SO_4^{2-}/T-S$ )
- ③ 緩衝能指標 (T-S/Ca)

また、図- 14 から分かるとおり、実際の硫化鉱物を含

有する変質岩石の風化に伴い重金属の溶出が生じるのは、②強変質強風化の段階である。4 章の調査事例ならびに 5 章で述べたとおり、変質岩石を元の還元的環境に戻すこと、あるいは変質岩石及び周辺の岩石が持つ緩衝能を期待できるケースも考えられる。

自然の緩衝能については、地球化学的・環境化学的な調査結果の段階において初めて明らかになることであるが、人工的な封じ込め対策を考える上でも、こうした自然の力を利用した対策を考慮しておくことが強く望まれる。

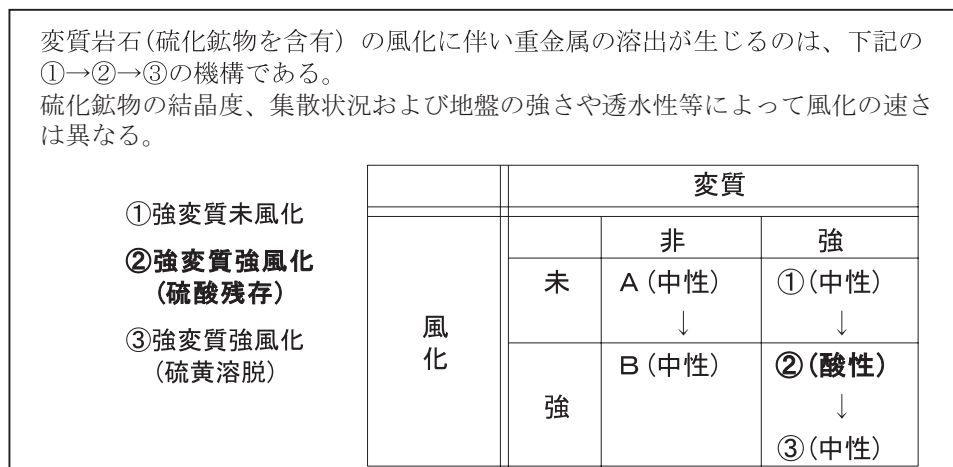


図- 14 岩石の変質度・風化度と発生水質の関係  
 Fig. 14 Relationship between the alteration degree and weathering level of rocks and the water quality generated

## 6. あとがき

本論文では先ず有害岩石による環境汚染の実態と法制度の変遷、有害岩石の成因と産状を述べ、次いで筆者らが関った事例を基に、岩石由来の環境汚染の機構及び岩石が有する緩衝能について論じてきた。OYOにおいては土壤汚染対策法施行以前から、有害岩石による環境汚染の防止のためのコンサルタントを地質・化学・土木の各分野が強く連携して行なってきた実績があり、このことにより多様な地質の中における有害岩石の実態と環境汚染対策の有効な手段に関して4章のような検討を可能にするとともに、他に類をみない情報を蓄積してきた。経験・情報は重要な資源であり、これを活用することにより、これまでの主にダム・トンネル・道路事業に加え今後は都市土木においても、地盤の特質と事業特性を考慮した環境リスクが最小且つ費用対効果が最適のコンサルタントが可能になるものと考えている。

球科学, 第 57 卷, pp.137-154.

- 11) 市原 実, 亀井節夫 (1970): 大阪層群 - 平野と丘陵の地質科学, 第 40 卷, 第 6 号, pp.282-291.
- 12) Dold, B. (2005): Basic Concepts of Environmental Geochemistry of Sulfide Mine-Waste, p.36, XXIV Curso Latinoamericano de Metalogenia, UNESCO-SEG.
- 13) 関陽太郎: 風化と変質, 地質と調査, 1982 年, 第 3 号, pp.31-40.
- 14) 五十嵐敏文, 大山隆弘, 斉藤典之 (2001): 黄鉄鉱を含む堆積岩の溶出水酸性化ポテンシャルに関する実験的検討, 応用地質, 第 42 卷第 4 号, pp.214-221.
- 15) Vink B.W. (1996): Stability relations of antimony and arsenic compounds in the light of revised and extended Eh-pH diagrams. Chem. Geol. Vol.130, pp.21-30.

## 参 考 文 献

- 1) 独立行政法人 土木研究所 (2004): 建設発生土利用技術マニュアル (第 3 版), p.204, 丸善.
- 2) 独立行政法人 土木研究所 (2004): 建設工事で遭遇する地盤汚染対応マニュアル (暫定版), p.149, 鹿島出版会.
- 3) 服部修一, 太田岳洋, 木谷日出男 (2003): 酸性水発生に関する掘削残土の応用地質学的検討, 応用地質, 第 43 卷第 6 号, pp.359-371.
- 4) 岩渕誠, 篠田耕二, 原淳二, 新居直人 (2006): 重金属と突発湧水への対応 - 国道 289 号甲子トンネル -, トンネルと地下, 第 37 卷, 第 11 号, pp.831-839.
- 5) 阿南修司, 柴田光晴, 品川俊介, 佐々木靖人, 岩石由来の環境汚染対策研究グループ (2007) 岩石による環境汚染リスクマップ, 応用地質, 第 47 卷, 第 6 号, pp.354-359.
- 6) 産業技術総合研究所地質調査総合センター (2003): 数値地質図 E-1 土壤・地質汚染評価基本図 ~ 5 万分の 1 姉崎 ~
- 7) 産業技術総合研究所地質調査総合センター (2006): 数値地質図 E-2 土壤・地質汚染評価基本図 ~ 5 万分の 1 仙台 ~
- 8) Ishihara, S. (1978): Metallogenesis in Japanese island arc system, J. Geol. Soc. London, Vol. 135, pp.389-406.
- 9) 鈴木喜計, かずさ砒素研究会 (1998): 自然地質からの砒素の溶出, 砒素をめぐる環境問題, pp.47-62, 東海大学出版会.
- 10) 吉村尚久, 赤井純治 (2003): 土壌および堆積物中のヒ素の挙動と地下水汚染 - 総説 -, 地