

学 位 論 文 要 旨

(Summary of the Doctoral Dissertation)

学位論文題目 (Dissertation Title)	建設工事に伴う自然由来重金属等の土壌・地下水汚染と水-岩石反応に関する研究 (The Heavy Metal Pollution and Water-Rock Interaction in Natural Ground at the Construction Sites)
氏 名 (Name)	熱田 真一

本学位論文は、建設工事に伴う自然由来重金属等を含有する土壌・地下水汚染を、水-岩石反応に関する視点で土壌・岩石から地下水への移行機構を地質学的・環境科学的・鉱物化学的に検討したうえで、その移行機構を適切にモデル化し、自然由来重金属等の発生源評価を行ったものである。近年の建設工事では土壌汚染対策法に基づき、自然的原因による重金属等も対象となり、重金属等の土壌環境基準値を超過する事例が重要な課題となっており、社会的要請の背景からも必要なものである。

本学位論文では 5 章から構成されている。

第 1 章では、国内外の自然由来重金属等に対する法律及びリスク評価方法についてとりまとめている。この中で、国内では土壌・地下水汚染物質として砒素、ふっ素、酸性水の事例が多いことから、これら 3 物質を本学位論文で対象とした目的と位置づけを示した。

第 2 章では、3 物質が問題となっている国内外の事例を挙げ、地質と 3 物質の含有量や溶出現象の関係をレビューし、これらの物質の土壌・岩石からの溶出特性を評価する既存の試験方法、リスク評価方法の課題をとりまとめた。

第 3 章では、各種分析、実験、数値解析により、土壌・岩石からの砒素、ふっ素、酸性水 3 物質の溶出機構を検討した。砒素は、酸性環境下において、堆積物中の砒素を含むフランボイダルパイライトの鉱物化学組成から、その溶解が原因であることを示した。その鉱物化学的特徴を基に熱力学解析によりモデル化し、溶出機構の定量化を行った。また、砒素の溶出機構と pH の関係から水酸化鉄、粘土鉱物又は有機物に吸着した砒素が脱着することで高濃度の砒素の溶出が生じる可能性を上げた。これらから、フランボイダルパイライトだけでは説明できない溶出量の問題について、鉱物量・鉱物化学組成の特徴からマスバランスを基に定量的に明らかにした。

ふっ素の溶出現象は、風化に伴う黒雲母の分解に伴って溶出する場合と、未風化の花崗岩類中に産する螢石からの溶解により高濃度のふっ素が溶出する場合があることを明らかにし、各鉱物の溶解度積が溶出率を支配することを示した。

酸性水については、全含有量試験と pH の関係、及び鉱物の含有量や溶解速度をモデル化した熱力学解析で、長期的な溶出試験結果を再現できることを示した。

第 4 章では、実際の建設工事現場を想定した、一度掘削により酸化環境下にさらされた土壌が、その後埋め土・盛土等の地下の還元環境下におかれ、かつ地下水が存在する流れ場条件下での水-岩石反応を模擬したステップバッチ試験と土槽実験を行った。地下水が存在するような流れ場では還元状態となり、発生源からの砒素、酸性水は、しだいに溶出量を減少させながら流動に伴う分散により、周辺地盤へは十分

希釈されることが明らかとなった。また、その溶出機構は、酸化環境下から還元環境下まで pH-Eh 図上で熱力学的に平衡に推移することを示し、既存の溶出量試験では評価できない現象を、発生源からの溶出機構として明らかにした。

第 5 章では、本学位論文での研究成果をふまえ、自然由来重金属等による土壌・地下水汚染と水-岩石反応に関する調査・評価に関して、考え方と評価方法を提案した。それは、発生源評価としてこれまでの溶出量試験による評価ではなく、発生源の土壌・岩石から地下水への移行機構を地質学的・環境科学的・鉱物化学的に検討すること、適切にモデル化した熱力学解析に基づく長期評価を導入することにより、適切な施工・対策等への活用が可能であることを示した。

学位論文審査の結果及び最終試験の結果報告書

山口大学大学院創成科学研究科

氏 名	熱田 真一
審 査 委 員	主 査： 太田 岳洋
	副 査： 宮田 雄一郎
	副 査： 大和田 正明
	副 査： 坂口 有人
	副 査： 永瀧 真理子
	副 査： 丸茂 克美
論 文 題 目	建設工事に伴う自然由来重金属等の土壌・地下水汚染と水-岩石反応に関する研究 (The Heavy Metal Pollution and Water-Rock Interaction in Natural Ground at the Construction Sites)
<p>【論文審査の結果及び最終試験の結果】</p> <p>本審査論文は、建設工事で懸念される自然由来重金属等による土壌・地下水汚染問題に対して、水-岩石反応の観点から地質学的、鉱物化学的検討により、自然由来重金属等の土壌・岩石から地下水への移行機構を明らかにしたうえで、その移行機構をモデル化している。さらに、そのモデルに基づいた自然由来重金属等の発生源評価の考え方と手法を提案した包括的内容の論文である。</p> <p>本論文は 5 章から構成されている。第 1 章では、国内外の自然由来重金属等に対する法規類のリスク評価方法について現状を示し、国内では土壌・地下水汚染物質として砒素、ふっ素、酸性水の事例が多いことを示したうえで、これらを対象とした本研究の目的と位置づけを述べている。</p> <p>第 2 章では、砒素とふっ素の含有量や溶出現象と地質との関係をレビューし、これらの物質の土壌・岩石からの溶出特性を評価する既存の試験方法、リスク評価方法の課題を示した。また、酸性水の発生現象を評価する試験方法の課題も示した。</p> <p>第 3 章では、各種分析、実験、数値解析により、土壌・岩石からの砒素、ふっ素の溶出機構と酸性水の発生現象を明らかにしている。砒素については、酸性下での砒素の溶出は堆積物中の砒素を含むフランボイダルパイライトの溶解が原因であること、弱アルカリ下では酸化鉄、粘土鉱物あるいは有機物に吸着した砒素が脱着することが原因であることを示した。これまで定性的に論じられていた弱アルカリ下での砒素の溶出の原因がフランボイダルパイライトに起因しないことを、鉱物化学組成と溶出量とのマスバランスから定量的に明らかにしたことには独創性が認められる。</p> <p>ふっ素の溶出現象については、風化に伴う黒雲母の分解に伴ってふっ素が溶出する場合と、</p>	

未風化の花崗岩中から蛍石の溶解によりふっ素が溶出する場合があることを明らかにし、各鉱物の溶解度積が溶出率を支配することを示した。鉱物の分解に伴うふっ素の溶出に関する定量的な検討はこれまで行われておらず、独創性の高い成果と評価できる。

酸性水については、鉱物の含有量や溶解速度を適切にモデル化することにより熱力学解析で長期的な溶出試験結果を再現できることを示した。この成果は酸性水の溶出に関する長期的な評価を可能にしており、有効性、実用性が高い。

第 4 章では、実際の建設工事現場を想定した地下水流動場での砒素と酸性水の発生源からの溶出機構の把握と評価手法の確立を試みた。地下水流動場では還元状態での溶出現象となり、流動に伴う拡散により発生源からの溶出量が減少することを明らかにした。周辺地盤へは十分希釈された砒素、酸性水が拡散することを示した。これらのことは、既存の溶出特性の評価方法では、実際の流動場における溶出現象を評価できないことを示しており、独創性、有効性に富む成果と言える。

第 5 章では、研究成果をまとめて、自然由来重金属等による土壌・地下水汚染に対する調査・評価に関する考え方と評価手順を提案している。これは、これまでの溶出試験のみの評価ではなく、発生源の含有鉱物を考慮した評価方法と熱力学解析に基づく長期評価を取り入れた評価手順であり、独創性、実用性のある提案である。

公聴会における主な質問内容は、1)実際の現場と実験での粒径、表面積の相違の問題、2)溶出実験の際の粘土鉱物への元素吸着の問題、3)熱力学解析結果の急激な濃度変化について、4)吸着物質を利用した対策の考え方、5)提案手法の有効性、などであった。いずれの質問に対しても発表者からの的確な回答がなされた。

以上より、本研究は独創性、信頼性、有効性、実用性ともに優れ、博士（理学）の論文に十分値するものと判断した。

論文内容及び審査会、公聴会での質問に対する応答などから、最終試験は合格とした。

なお、主要な関連論文の発表状況は下記のとおりである。

- 1) 熱田真一・孫躍・太田岳洋, 自然地盤における砒素溶出機構の検討. 応用地質, Vol.59, No.6, pp.1-16, 2019 年
- 2) Atsuta, S., Shiga, T., Itonaga, S., Determination of dioxin sources by patterns of poly chlorinated biphenyl congeners and using chemical mass balance method. ISM-2017 Commission 6 INTERNATIONAL CONFERENCE ON GEO-SPATIAL TECHNOLOGIES AND EARTH RESOURCES GTER 2017, Publishing House for Science and Technology, Vietnam, Special Issue, pp.745-748, 2017 年