

鉄鋼スラグの地盤材料としての有効利用に伴うフッ素の溶出挙動と その環境影響の評価

嘉門雅史・乾 徹・宮城大助*・勝見 武**

*京都大学大学院工学研究科修士課程

**京都大学大学院地球環境学堂

要 旨

産業廃棄物の地盤材料としての有効利用に関する研究は多数実施されており、主に力学的特性や安定性の改善、有害物質の溶出挙動の抑制を通して、利用用途の拡大が図られている。鉄鋼スラグについては、その有効利用率が高いものの、含有されるフッ素などの溶出が懸念されている。本研究では、複数の鉄鋼スラグを対象に各種溶出試験を行い、鉄鋼スラグからのフッ素、ホウ素の溶出特性を評価した。さらに、地盤材料として鉄鋼スラグを有効利用した際のフッ素の溶出挙動について、数値解析を用いて定量的に評価し、環境リスクの観点からその環境安全性と適正な利用形態について議論を行った。

キーワード：鉄鋼スラグ、溶出、フッ素、環境リスク

1. はじめに

近年、建設系廃棄物や産業廃棄物の不法投棄の問題、工場跡地の再開発時における汚染の発見など、土壌および地下水の汚染が顕在化している。さらには、環境への悪影響が新たに指摘される化学物質の数も増加しており、地盤汚染の抑制と適正な浄化対策が地盤工学における大きな課題となっている。様々な形態の土壌・地下水汚染が発覚するに伴って、環境基準項目の追加や基準値の強化、汚染サイトの適正管理を目的とした法律の制定といった施策が実施されてきた。地下水環境基準と土壌環境基準の規制項目にフッ素、ホウ素、硝酸性窒素が新たに追加されたことや、土壌汚染対策法の施行などはその代表的な動きである。しかしながら、これらの物質の溶出特性や地盤中での挙動については十分な知見が得られていない。特に、フッ素、ホウ素は天然起源のものや廃棄物材料からの溶出など汚染源が広範に渡っており、環境リスクを明らかにする観点からも

早急に評価を実施する必要がある。

一方、廃棄物の処分量削減のための方策として、地盤材料やコンクリート骨材などの建設資材として廃棄物を再利用する取り組みが積極的に行われており、廃棄物材料の力学的特性や化学的安定性の改善、有害物質の溶出抑制を目的とした処理技術の開発や用途の拡大が図られている。しかし、廃棄物材料は有害化学物質を含みうることから、地盤材料としての利用に際して我が国では、環境庁告示第46号に基づく溶出試験（以下、JLT46とする）の結果を土壌環境基準値と比較することにより、スクリーニングを行う。しかし、従来から指摘されているように、JLT46の試験結果は現場における実際の溶出挙動を必ずしも反映するものではない。したがって、化学物質の実際の挙動に基づいて地盤環境に対する環境負荷、安全性を検証しておくことが重要となる。

本研究では、産業廃棄物のうち地盤材料として積極的に有効利用されている鉄鋼スラグを対象として、各種室内試験を行い、フッ素及びホウ素の溶出特性

を実験的に検証した。さらに、実験結果に基づいて、鉄鋼スラグを路盤材として有効利用した際の、周辺地盤へ溶出した化学物質の分布を数値解析によって推定し、環境リスクの概念に基づいて環境安全性を評価する手法、および評価結果を示した。

2. 室内実験

2.1 使用材料

鉄鋼スラグは、鉄鋼製造工程において発生する副産物である高炉スラグ、製鋼スラグ、もしくはその混合物からなる。高炉スラグは、銑鉄を製造する高炉で溶融された鉄鉱石の鉄以外の成分、および副原料の石灰石やコークス中の灰分を分離回収、冷却したものである。製鋼スラグは、高炉で製造された溶銑やスクラップから鋼を生成する製鋼工程で生成するものであり、製鋼炉の形式によって転炉系スラグ、電気炉系スラグに区分される。鉄鋼スラグの主成分は、石灰（CaO）とシリカ（SiO₂）であり、天然石材と同様の成分、形態を有している（Photo 1）。鉄鋼スラグの有効利用に際しては、その品質が各種規格において規定されており、それらの規格、環境基準等を満たすものが製品として流通している。その用途もセメント原料、骨材、路盤材など多岐に渡っており、積極的に有効利用が図られている。



Photo 1 Steel slag

本研究では4種類の鉄鋼スラグを使用し、鉄鋼スラグの一般的な溶出特性の把握を試みた。その内訳は、製鋼工程で得られた脱燐・脱硫スラグ（Slag-1）、製鋼工程で得られた脱硅スラグ（Slag-2）、路盤材用製品スラグ（Slag-3）、セメント原料用製品スラグ（Slag-4）である。なお、実験においては、粒径2 mm以下に粒度調整したものを使用した。

Table 1にSlag-1～4の物理化学特性を示す。フッ素の含有量、およびJLT46による溶出濃度はともに、Slag-1、Slag-2、Slag-3、Slag-4の順に大きい値となっている。なお、Slag-1およびSlag-2は土壤環境基準0.8 mg/Lを超過する値を示した。一方、ホウ素はいずれの鉄鋼スラグについても、JLT46においては検出限界以上の溶出は確認されなかった。

2.2 溶出試験

Slag-1～4を対象として複数の溶出試験を実施し、その溶出特性を実験的に検討した。Table 2に実施した溶出試験の試験操作の概要を示す。溶出試験において得られた各検液中のフッ素濃度の分析にはイオンアナライザー（島津製作所製：PIA-1000）を、ホウ素濃度の分析にはJIS K 0102の47.3に準拠してICP（島津製作所製：ICPS-8000）を用いた。以下に、各溶出試験方法の目的、および詳細を示す。

(1) 環境庁告示第46号試験

環境庁告示46号試験は、1991年の「土壤の汚染に係る環境基準について」の制定に伴い定められ、当該基準の適合性を判定するための試験方法である。さらには、廃棄物由来の材料を地盤材料として再利用する場合、その環境適合性の判定方法としても用いられている。

(2) pH依存性試験

pH依存性試験は、無機化学物質の溶出濃度が高い

Table 1 Properties of steel slag used in laboratory experiments

	Slag-1	Slag-2	Slag-3	Slag-4
Particle density (g/cm ³)	3.18	3.51	3.03	2.77
Natural moisture content (%)	7.1	1.1	6.8	7.7
Particle size distribution				
Sand fraction (%)	96.5	97.8	88.5	85.9
Silt fraction (%)	3.5	2.2	11.5	14.1
pH (–)	12.6	12.5	12.4	10.3
Electric conductivity* (mS/cm)	6.13	3.96	2.97	0.88
Redox potential* (mV)	–60	–40	–22	98
Total content of fluorine (mg/kg)	9,500	4,300	1,500	530
Leached concentration of fluoride** (mg/L)	3.19	1.33	0.71	0.30
Leached concentration of boron** (mg/L)	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

*: Value for the solution according to JGS 0211-2000 (Test method for pH of soils)

**.: Determined by JLT46, N.D.: Not detected

Table 2 Leaching test method

Test	JLT46	pH-dependent test	Serial batch test	Availability test	Column leaching test
Testing type	Batch	Batch	Batch	Batch	Flow through
Leaching vessel		1 l polyethylene bottle		1 l glass beaker	Column ($\phi=6$ cm)
Sample particle size	< 2 mm	< 2mm	< 2mm	< 125 μ m	< 2mm
Sample mass / volume	50 g	30 g	40 g	8 g	—
Solvent	Distilled water adjusted to pH 5.8–6.3 by HCl solution	Distilled water with different pH values by HNO ₃ or NaOH solution	Distilled water (adjusting to pH 4 by HNO ₃ solution)	Distilled water and HNO ₃ (at the 1st extraction; pH 7, at the 2nd extraction; pH 4)	Distilled (adjusting to pH 4 by HNO ₃)
Liquid to solid ratio	10:1	5:1	100:1 (20:1 $\times$ 5 times)	100:1 (50:1 $\times$ 2 times)	Cumulative
Leaching method	Horizontal shaking (200 times/min, amplitude: 4–5 cm)			Stirrer	—
Leaching time	6 hours	6 hours	24 hours $\times$ 5	3 hours $\times$ 2	Periodically
Filtration	20 min-centrifugal separation at 3,000 rpm and suction filtration with 0.45 μ m MF			Suction filtration with 0.45 μ m MF (Membrane Filter)	

pH 依存性を示すことを背景として、廃棄物が pH の異なる様々な溶媒に接触した場合の溶出濃度を測定し、pH が溶出量に及ぼす影響を把握するための試験である。pH 依存性試験は公定試験法ではなく、様々な試験方法が示されている。この試験は有害な無機元素の溶出濃度は閉鎖的なバッチ試験においては溶解度に支配されることを前提としており、その影響が顕著に現れるように、溶媒体積を $L/S=5$ と小さい値を採用した。試験方法は以下の通りである。

試料 30 g と溶媒(酸性側は純水と 1.0 N HNO₃ 溶液、アルカリ性側は純水と 10 % NaOH 溶液でそれぞれ所定の pH になるように調整) 150 mL を 500 mL ポリプロピレンボトルに入れて混合し、振とう機で 6 時間平行振とうする。以降は、環境庁告示 46 号試験の手順に従って検液を作成し、その pH、および化学物質濃度を測定した。

(3) アベイラビリティ試験 (NEN 7341)

アベイラビリティ試験はオランダの公定試験法の 1 つで、廃棄物からの無機化学物質の最大溶出可能量 (Availability) を把握することを意図した試験である。具体的には、廃棄物が何らかの要因で細かく粉砕された状態になる、無限量の酸性の溶媒にさらされる、といった廃棄物にとって非常に過酷な条件下において溶出する可能性のある化学物質量として定義されている。液固比 L/S は、溶解度による制限で溶出が抑制されないように、 $L/S=100$ という大きい値が設定されている。したがって、廃棄物の最終処分後の水の接触量と考えた場合、数十年から数百年単位の溶出を予測すると考えられる。試験方法は以下の通りである。

125 μ m 以下の粒径に破碎した試料 8 g と蒸留水 400 mL を 1 L ビーカーに入れ、1N HNO₃ 溶液を用いて pH を 7 ± 0.5 に保ちながらマグネチックスターラーで溶液を 3 時間攪拌する。その後、15 分静置し、メンブレンフィルターでろ過する。次に、フィルター、スターラーに付着したものを含めて残渣をビー

カーに入れ、再度蒸留水 400 mL を加える。1N HNO₃ 溶液を用いて pH を 4 ± 0.05 に保ちながらマグネチックスターラーで溶液を 3 時間攪拌する。同様に、攪拌終了後 15 分間静置し、ろ過する。この 2 段階の抽出操作によって得られたそれぞれのろ液を混合して検液とする。

(4) シリアルバッチ試験

シリアルバッチ試験は、廃棄物材料からの中、長期的な溶出挙動を把握することを目的としたバッチ溶出試験である。本試験の長所として、操作が簡便で再現性が高い、長期的な溶出を短時間で把握できるという点が挙げられる。しかし一方で、pH の変化を反映できない、時間的な溶出特性が把握できないという短所もある。試験方法は以下の通りである。

試料 40 g に、純水に HNO₃ を加えて pH 4 とした溶媒 800 mL を 1 L ポリプロピレンボトルに入れて混合し、 $L/S=20$ とする。なお、溶媒を pH 4 とするのは安全側の評価として酸性雨を考慮するためである。作成した混合溶液を JLT46 と同じ要領で、平行振とうさせ、作成した検液を第 1 段階の検液とする。ただし、振とう時間は 24 時間とする。1 回目の振とうを終えた後の全ての残渣を試料として、pH 4 とした溶媒を 800 mL 再度加え、再び $L/S=20$ の条件で振とうし、試験を行う。以下、同様の作業を合計 5 回繰り返すことにより、1 つの試料より 5 つの検液を作成し、最終的に $L/S=100$ とする。それぞれの段階における化学物質溶出濃度を測定し、大量の溶媒が接触した場合の溶出量の変化を推定する。

(5) カラム溶出試験

カラム溶出試験は、成型体の試料に対して透水試験と同じ要領で通水させ、実際の現場での雨水等の浸透による比較的透水性の高い廃棄物材料の溶出挙動を評価する試験である。主に、短～中期的な溶出挙動を把握する際に適用される。本試験は長所として、溶出挙動の時間的な特性を把握できる、実際の

溶出挙動に近い形態で試験であるという点が挙げられる。また、短所として、再現性がバッチ溶出試験と比較して低い、試験に長時間有するという点が挙げられる。試験方法は以下の通りである。

直径 62 mm のアクリル製円筒カラムに、各実験ケースでカラム内の試料密度がほぼ一定となるように考慮して、地盤工学会基準「突固めによる土の締固め試験方法」(JGS-T 711) に準じた 3 層突き固めにより試料を充填した。カラム溶出試験装置の概略図を Fig. 1 に示す。蒸留水に HNO_3 を加えて pH 4 に調整した溶媒を貯めたタンクを、定水位となるように所定の高さに設置し、ビニール製のチューブでタンクとカラムを繋いで、カラムの下部から上部への上方流で水を供給した。廃棄物層を通過した溶液を適宜採取し、 $0.45\ \mu\text{m}$ 孔径のメンブレンフィルターでろ過したものを検液とした。

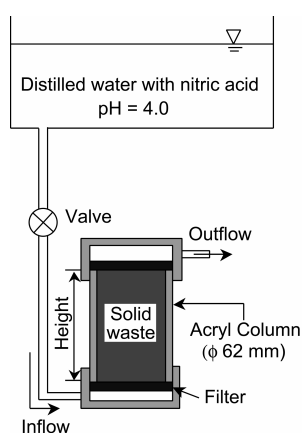


Fig. 1 Apparatus for column leaching test

3. 実験結果と考察

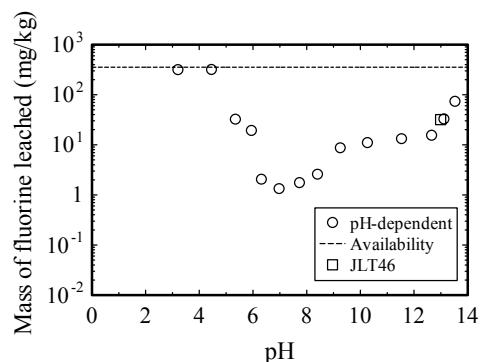
3.1 バッチ溶出試験結果

Slag-1~4 を対象に実施した JLT46, アベイラビリティ試験, pH 依存性試験の 3 種類のバッチ溶出試験における検液の pH とのフッ素溶出量 (mg/kg) の関係を Fig. 2 に示す。なお、フッ素溶出量は単位質量スラグからの溶出量として表記している。なお、ホウ素については、JLT46 において土壤環境基準値以上の溶出が確認されなかったことから、以降での議論は省略する。

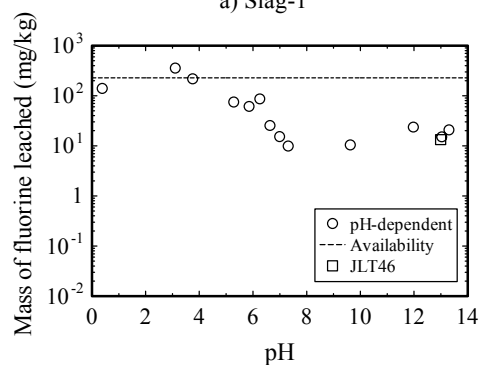
鉄鋼スラグの種類によらず、フッ素の溶出量は pH=7~8 の中性域で最小値を示し、酸性およびアルカリ性が強くなるにつれてオーダーレベルで増加する強い pH 依存性が観察される。一般的に酸性条件下において無機元素は高い溶解度を示すが、鉄鋼スラグはアルカリ条件下においても高い溶出量を示した。その機構については、 $\text{CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$ 系ゲルの生成が

急激に進行し、フッ素イオンの捕集に寄与しない $\text{CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$ ゲル量が増加するためフッ素溶出濃度が上昇するという報告もあるが (水渡・井上 2002), 詳細については検証が必要である。

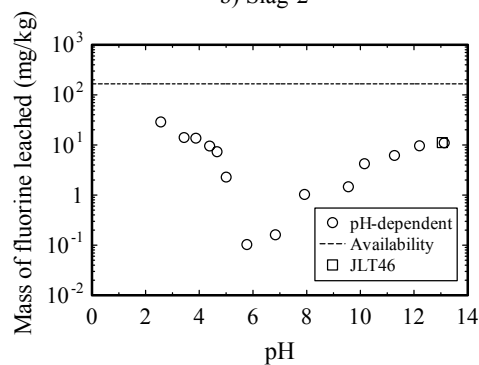
JLT46 による溶出量は pH 依存性試験による溶出



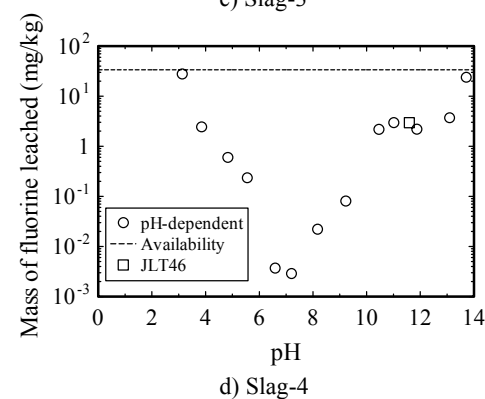
a) Slag-1



b) Slag-2



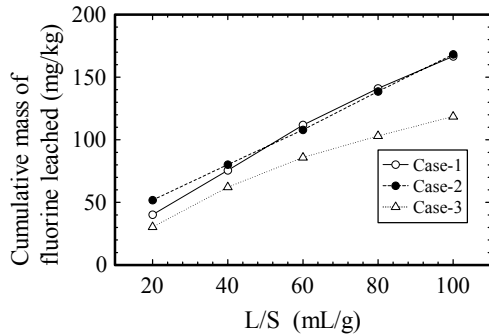
c) Slag-3



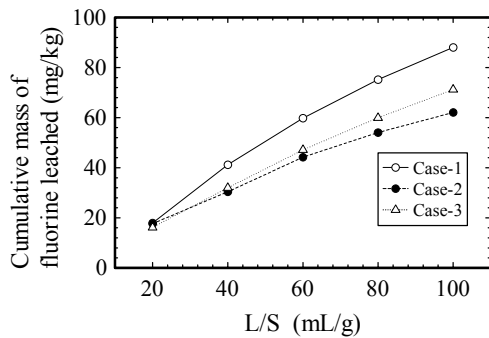
d) Slag-4

Fig. 2 Leaching amount of fluoride with pH values

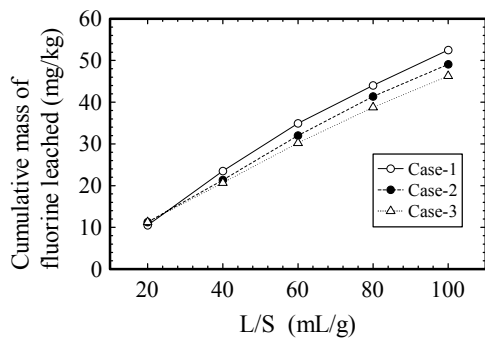
量とほぼ同様となっており、JLT46 においても溶出量は pH に支配されているといえる。一方、アベイラビリティ試験における溶出量は、含有量と比較して大幅に低い値となっており、鉄鋼スラグ中のフッ素は非水溶性画分の占める割合が多いと推定される。



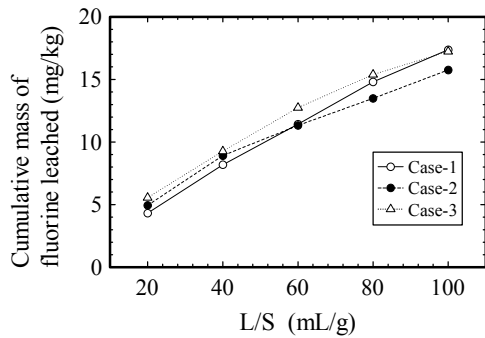
a) Slag-1



b) Slag-2



c) Slag-3



d) Slag-4

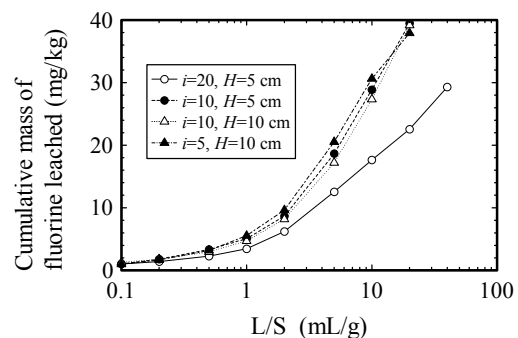
Fig. 3 Leaching amount of fluoride in serial batch tests

Slag-1~4 を対象に実施したシリアルバッチ試験結果（各 Slag について 3 回の試験を実施）を Fig. 3 に示す。なお、Fig. 3 においては L/S の累積値とフッ素の累積溶出量の関係を示している。

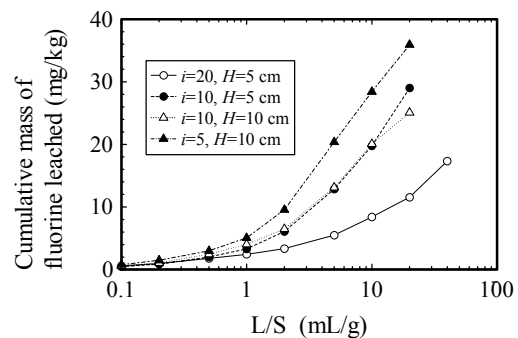
フッ素溶出量は、その含有量によって大小があるものの、 L/S と溶出量の関係は鉄鋼スラグの種類によらず同じ傾向を示した。累積溶出量の増加率は L/S の増加に伴い減少する傾向を示すが、 $L/S = 100$ に達した時点でも継続的なフッ素の溶出が確認された。このことから、実環境中における水の接触に対しても鉄鋼スラグからのフッ素の溶出は長期間に渡り継続すると推測される。これは、水の接触直後の溶出量が一般的に多い重金属とは異なる溶出モードであるといえる。

3.2 カラム溶出試験結果

スラグ層を浸透する溶媒の流速（動水勾配 i ）とスラグ層高さ H を変化させて実施したカラム溶出試験の結果（Slag-2, および Slag-3）を Fig. 4 に示す。ここでは L/S で表記した累積浸透流量と単位質量スラグからのフッ素溶出量の累積値の関係を示している。動水勾配が小さい、すなわち浸透流速が小さい試験ケースほどフッ素溶出量は高い値を示している。また、スラグ層高さが異なる場合でも、同じ動水勾配条件下であれば累積流量と溶出量の関係にはほぼ



a) Slag-2



b) Slag-3

Fig. 4 Fluoride leaching behavior in column leaching test

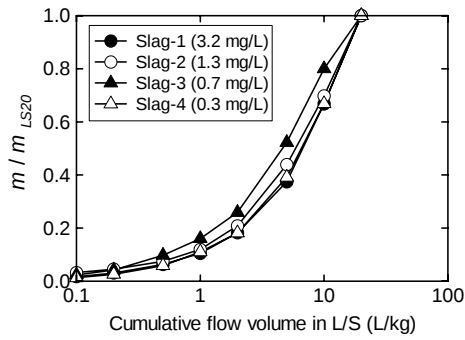


Fig. 5 Fluoride leaching behavior from different iron and steel slag materials

一定の関係が確認される。これらの傾向は一般廃棄物焼却飛灰溶融スラグからの重金属の溶出においても確認されている（嘉門ら 2004）。このことから、スラグ材料からの無機イオンの溶出は流速依存性を有するが、試験スケールに対する依存性は小さいといえる。

Fig. 5 に、Slag-1～4 について累積流量が $L/S = 20$ に達した時点での溶出量で正規化した単位質量スラグからのフッ素溶出量と流量の関係を示す。スラグの種類を問わず、累積流量とフッ素溶出量にはほぼ一意的な関係が確認できる。具体的には、試験開始初期の溶出量が比較的高く、 L/S が大きくなるにしたがって、累積溶出量の増加率は低下している。鉄鋼スラグの種類によらず同じ傾向が確認されていることから、この溶出量の浸透流量に対する依存性は一般的な特性であると考えられる。

これらの試験結果から、鉄鋼スラグからの化学物質溶出量はスラグ層内の浸透流量が明らかになれば、おおよそ溶出試験結果から推測できるといえる。しかし、溶出量は浸透流速に依存することから、試験条件の決定においては留意が必要である。

4. 解析手法と条件

室内試験結果に基づいて、鉄鋼スラグを路盤材料として利用した事例を想定し、利用開始から 10 年間に渡るフッ素の地盤内の輸送挙動と汚染分布を浸透流解析および移流分散解析を用いて推定した。さらに、鉄鋼スラグを路盤材料として利用した際の環境安全性を評価した。以下にその手法を示す。

4.1 解析の基礎理論

水溶性汚染物質の移動特性を数値解析によって評価する場合、一般的に飽和不飽和浸透方程式と移流分散方程式が支配方程式として用いられる。このうち、移流分散方程式は水溶性物質の流れ方向および

直角方向への分散を表す分散項、流れによる輸送を表す移流項、地盤への吸着・脱着による移動の遅れを表す遅延項の 3 項から構成される。本研究の解析においては、西垣ら（1995）による移流分散に基づく地下水での溶質移動に関する既存の有限要素コード「DTransu-2D-EL」を使用した。本解析手法は、密度依存を考慮した飽和・不飽和 2 次元移流分散問題に適用可能な数値解析手法である。

本数値解析手法における数値計算のフローは以下の通りである。

- [1] 濃度を既知として飽和・不飽和浸透流解析を行い、要素における体積含水率、ダルシー流速を計算し、節点の実流速を求める。
- [2] 流れ場を既知として Eulerian-Lagrangian 法による移流分散解析を行い、濃度分布を求める。
- [3] 得られた濃度分布を既知条件として浸透流解析に戻って反復計算を行い、各時間ステップにおける収束解を得る。

本解析コードで用いられている質量保存則とダルシーの方程式に基づく密度依存を考慮した飽和・不飽和浸透流に関する基礎方程式は以下の通りである（Pickens et al. 1979）。

$$\rho_f \theta \gamma \frac{\partial c}{\partial t} + \rho \{ \beta S_s + C_s(\theta) \} \frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left\{ \rho K_{ij}^s K_r(\theta) \frac{\partial \phi}{\partial x_j} + \rho K_{is}^s(\theta) \rho_r \right\} \quad (1)$$

ここで、 ϕ ：圧力水頭、 θ ：体積含水率、 S_s ：比貯留係数、 $C_s(\theta)$ ：比水分容量、 K_{ij}^s ：飽和透水テンソル、 $K_r(\theta)$ ：比透水係数、 c ：溶質濃度（ $0 \leq c \leq 1$ 、飽和濃度を 1 として正規化）、 t ：時間、 ρ_f ：溶媒の密度、 ρ ：流体の密度、 ρ_r ：溶媒の密度に対する流体の密度比、 $\beta = 1$ ：飽和領域、 $\beta = 0$ ：不飽和領域、 γ ：溶質の密度比である。

また、(1) 式での流体の密度 ρ は次式で濃度と関連付けられる。

$$\rho = \rho_f (1 + \gamma c) \quad (2)$$

一方、本解析コードの移流分散に関する基礎方程式は次の通りである。

$$R \theta \rho \frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\theta \rho D_{ij} \frac{\partial c}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} (\theta \rho v_i c) - \theta \rho \lambda R c - Q_c \quad (3)$$

ここで、 R ：遅延係数、 D_{ij} ：分散テンソル、 v_i ：実流速（cm/s） Q_c ：湧出・吸込項、 λ ：減衰定数を表している。また、分散テンソル D_{ij} は次式で表される。

$$D_{ij} = \alpha_T \|V\| \delta_{ij} + (\alpha_T + \alpha_L) \frac{V_i V_j}{\|V\|} + \alpha_m \tau \delta_{ij} \quad (4)$$

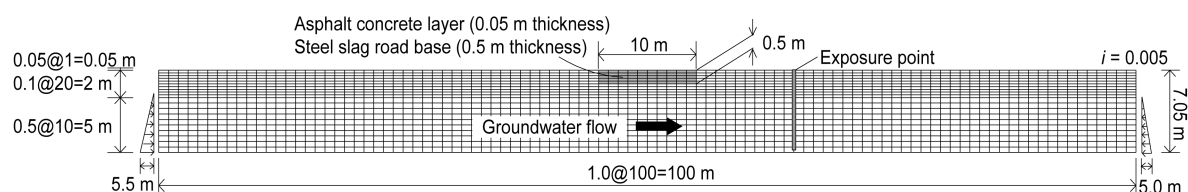


Fig. 6 Example of the cross section for analytical study

Table 3 Material properties used in numerical analyses

Parameters	Unit	Sand	Asphalt	Steel slag
Hydraulic conductivity k	cm/s	2.084×10^{-2}	1.000×10^{-7}	3.500×10^{-4}
Effective porosity n_e	-	0.300	0.180	0.267
Longitudinal dispersivity α_L	cm	10	10	10
Transversal dispersivity α_T	cm	1	1	1
Effective diffusivity D_m	cm ² /s	1.0×10^{-5}	1.0×10^{-5}	1.0×10^{-5}
Tortuosity τ	-	0.66	0.66	0.66
Retardation factor R_d	-	1	1	1

ここで、 α_T ：横分散長、 α_L ：縦分散長、 V_i ：実流速ベクトル、 $\|V\|$ ：実流速のノルム、 α_m ：分子拡散係数、 τ ：屈曲率、 δ_{ij} ：クロネッカのデルタである。

4.2 解析断面

路盤材用製品スラグである Slag-3 を路盤材として再利用した実地盤を想定し、利用開始から 10 年間に渡るフッ素の溶出・輸送挙動を推定し、その結果に基づいて環境影響評価を行った。解析断面の一例を Fig. 6 に示す。10 m 幅、0.05 m 厚のアスファルト層下部に 0.5 m 厚の鉄鋼スラグによる路盤層を設けた。周辺には乾燥砂質地盤、もしくは比較的保水性の高い湿潤砂質地盤が存在するとした。解析に使用した各層の材料パラメータを Table 3 に示す。解析領域は水平距離 100 m、鉛直深さは 7.05 m、単位奥行き鉛直二次元領域とした。また、解析断面上面に一様に雨水が浸透するとした。以上に示した解析断面および解析条件に基づいて、降雨浸透量、地下水面の位置を以下の通りパラメトリック変化させた場合の汚染分布を計算した。

- [1] 降雨浸透量：降雨浸透量を 160 mm/year（日本の平均的な年間降水量 1,600 mm/year の 10 分の 1）とするケースを基本とした。それ以外に、800 mm/year（年間降水量の 2 分の 1）、80 mm/year（年間降水量の 20 分の 1）、32 mm/year（年間降水量の 50 分の 1）に変化させた。一般的にアスファルト層における降雨浸透量は降水量の 5 %程度とされている。
- [2] 地下水面：解析断面左端で深さ 4.55 m の地点から解析断面右端で深さ 5.05 m の地点（スラグ層下部では、スラグ層下部から地下水面まで 4.725 m ~ 4.775 m）を地下水面とするケースを基本と

した。それ以外に、同じく 3.55 m ~ 4.05 m（スラグ層下部では 3.725 m ~ 3.775 m）、2.55 m ~ 3.05 m（スラグ層下部では 2.725 m ~ 2.775 m）、1.55 m ~ 2.05 m（スラグ層下部では 1.725 m ~ 1.775 m）に変化させた。

5. 解析結果と考察

5.1 実験結果の解析への適用

移流分散解析に用いる鉄鋼スラグ層からのフッ素の溶出濃度は、カラム溶出試験結果に基づいて決定した。以下にその手法の概要を示す。

浸透流解析で求められる解析断面の各接点における実流速の分布に基づいて、時間当たりのスラグ層を通過して周辺地盤に流出する流量が推定される。一方、カラム溶出試験において、フッ素溶出量は流量に対する依存性を示したことから、路盤層からの溶出量も流量に依存すると考えられ、その関係は同程度の浸透流速下で実施したカラム試験結果と一致すると考えられる。

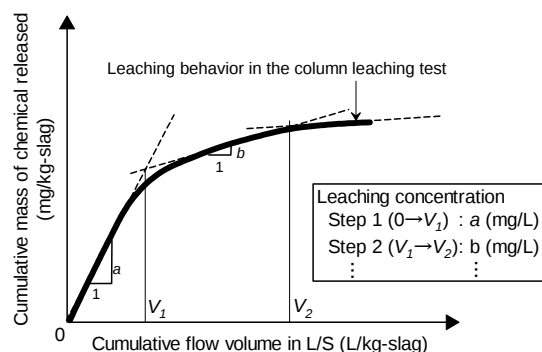


Fig. 7 Concept for determining the leaching concentration in the analytical study

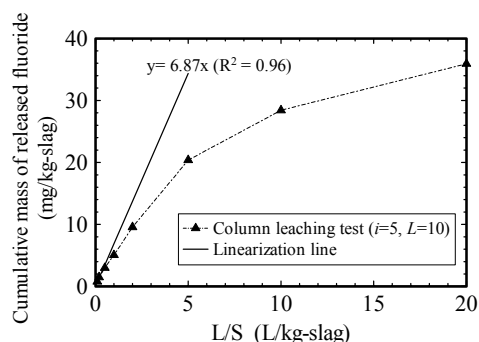


Fig. 8 Leaching concentration determined by the result of column leaching test

カラム試験結果に基づいて、溶出濃度を決定するための考え方を Fig. 7 に示す。溶出濃度は浸透水量と溶出量の関係の傾きにより定義されるが、流量の増加に伴ってその傾き、すなわち溶出濃度は変化する。よって、解析に導入する際にも流量の増加に従って溶出濃度を段階的に変化させることにより、溶出濃度の流量依存性を再現した。

具体的に本解析の降雨浸透量 160 mm/year のケースでは、10 年間経過時点での路盤層の累積流量は L/S で高々 0.32 である。従って、Fig. 8 に示すように Slag-3 を対象としたカラム溶出試験の結果に基づいて、 $L/S = 0.32$ までの範囲では溶出初期濃度 6.87 mg/L の一定値で溶出すると考え、その値を与えた。本解析ケースでは、雨水浸透が制限されていることから、 L/S が小さい段階での溶出濃度を一定値とし

て与えているが、水の浸透量が多いケースや長期間に渡る解析を行う場合には、Fig. 7 に示すように、 L/S の増加に伴う溶出濃度の変化を考慮する必要があると考えられる。

5.2 解析結果

Fig. 9 に、降雨浸透量が 160 mm/year の時における 10 年経過後のフッ素の濃度分布を示す。濃度は、間隙水中のフッ素濃度を表している。

Fig. 9 においては、スラグ層下層の砂質土地盤中を地下水面まで高い濃度で拡がり、地下水面までの部分に高い汚染濃度が卓越する。これは、不飽和領域においては飽和度が小さいことから、結果的に間隙水中のフッ素濃度が高くなっているためである。地下水面以下は低い濃度で汚染が地下水流れの下流方向へと拡がっている。スラグ層直下の帯水層においては鉛直方向に汚染は拡がらないが、離れるにしたがって分散の寄与により鉛直方向に汚染が拡がり、低い濃度ではあるが汚染範囲は大きくなる。しかし、地下水中の濃度は最大の地点でも環境基準以下の値を示している。なお、降雨浸透量、地下水面、砂質土層の保水性を変化させた場合も、汚染分布はほぼ同じ傾向を示した。

スラグ層から 10 m 下流地点における、帯水層の上部 2 m におけるフッ素平均濃度の経時変化について、降雨浸透量を変化させた場合を Fig. 10、地下水面深さを変化させた場合を Fig. 11、砂質地盤の保水

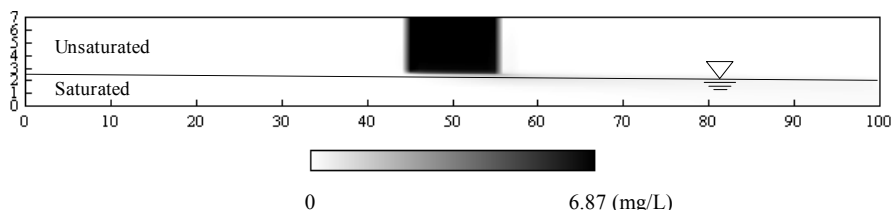


Fig. 9 Distribution of fluoride concentration (10 years after)

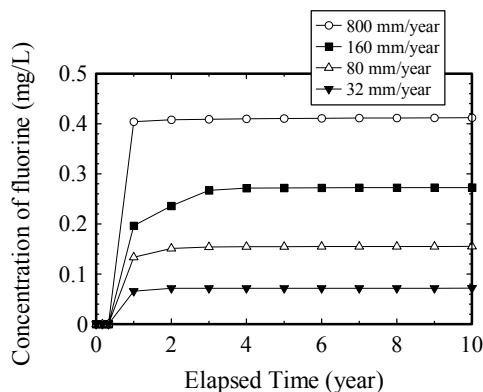


Fig. 10 Fluoride concentration affected by infiltration rate

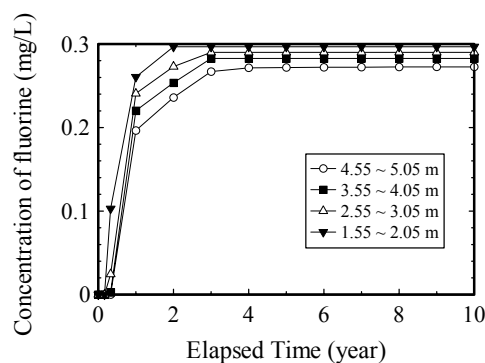


Fig. 11 Fluoride concentration changes affected by the depths of water table

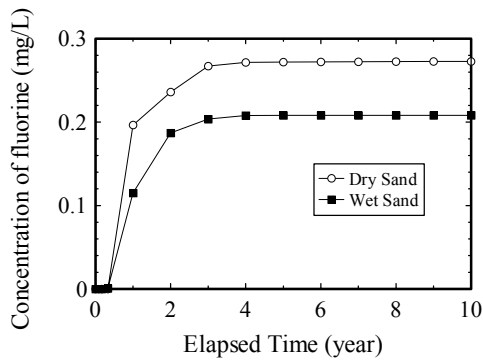


Fig. 12 Fluoride concentration changes affected by water retention properties of surrounding layer

性を変化させた場合を Fig. 12 にそれぞれ示す。地下水中のフッ素濃度の経時変化は、解析条件によらずほぼ同じ傾向を示すことが分かる。1 年未満の段階では汚染が到達しておらず、濃度はほとんどゼロとなり変化は見られない。約 1 年後には地下水中に汚染が広がるため、濃度が上昇し、以降増加率を下げながら濃度は高くなる。そして、約 3 年経過以降はほぼ一定となる。Fig. 10 より降雨浸透量が多いほど地下水中フッ素濃度が高くなり、降雨浸透量が影響を及ぼすことが分かる。一方 Fig. 11 より、地下水面の位置が浅いほど当然ながらフッ素の到達が早い、3 年経過以降はその濃度に大きな相違はみられない。Fig. 12 より、乾燥砂質土の方が地下水中フッ素濃度は高くなり、周辺地盤の条件が影響を及ぼすことが分かる。これらの結果より、降雨浸透量と周辺地盤の物性（保水性）が地盤中のフッ素濃度分布に大きな影響を及ぼすことが分かる。

6. リスク評価を利用した環境影響の推定

6.1 環境リスクの算定方法

解析によって得られた 10 年経過後の濃度でフッ素を含有する地下水を日常的に飲用摂取したと仮定した場合の健康リスクを評価の指標として、環境影響の推定、議論を行った。フッ素の健康影響は、慢性影響として斑状歯、骨の硬化、白血球減少などが挙げられる。フッ素の飲用摂取による健康リスク $Risk$ は、摂取量を許容摂取量で除した以下の式 (5), (6) で計算できる。

$$Risk = \frac{C}{RfD} \times \left(\frac{IR \times ED}{BW \times AT} \right) \quad (5)$$

$$RfD = \frac{NOAEL}{UF} \quad (6)$$

ここで、 $Risk$: 有害物質による健康リスク (-), C : 地下水中の有害物質濃度 (mg/L), RfD : 有害物質の発

病の閾値 (mg/kg/day), IR : 地下水の摂取率 (L/day), ED : 曝露期間 (day), BW : 体重 (kg), AT : 影響期間 (day), $NOAEL$: 無毒性量 (mg/kg/day), UF : 不確実性係数である。ここでは、米国環境保護庁が示しているフッ素による健康被害発生の閾値となる摂取量 ($NOAEL = 0.06$ mg/kg-body-weight/day) に不確実性係数 $UF = 100$ を適用し (U.S.EPA 2003), 地下水を日常的に飲用した場合の健康リスクを算定した。なお、式 (5) 中の IR , BW は個人差を有するパラメータであるが、これらのパラメータの分布を考慮して算出したリスクの中央値を求めた。 $Risk$ の定義より、算出値が 1 を超えなければ、フッ素による健康被害を及ぼす可能性が低く安全であると判断できる。

6.2 環境リスクの算定結果と考察

路盤材として利用開始から 10 年後における、降雨浸透量によるスラグ層からの下流方向距離と算出リスク値の関係を Fig. 13 に示す。なお、各地点におけるリスクの算出においては、当該地点での地下水濃度の平均値を用いている。Fig. 13 より、降雨浸透量が多い場合でもリスクは 10^{-1} 未満となり、鉄鋼スラグを路盤材として利用することによる周辺環境への負荷は無視できる水準であるといえる。

一方、降雨浸透量が小さくなるにしたがってリスクも低下する傾向がみられた。したがって、フッ素

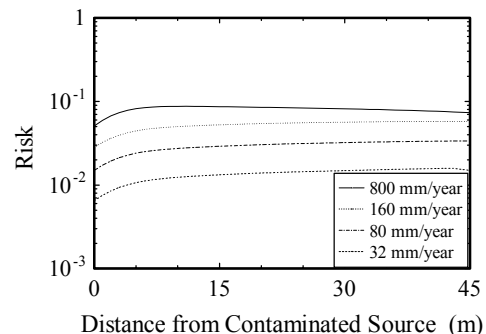


Fig. 13 Risk values calculated with different infiltration rates

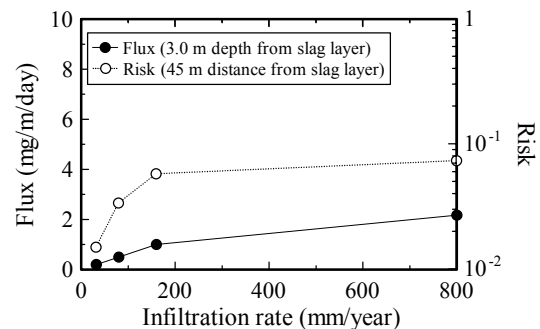


Fig. 14 Calculated risk values vs. fluoride infiltration flux into the aquifer

の帯水層への流入速度が環境影響に影響を及ぼしていると推測されることから、以下の式 (7) を用いて、フッ素の帯水層への流入フラックスを算出し、環境リスクとの関係を検討した。

$$J_z = S_e \times V_z \times C_p \quad (7)$$

ここで、 J_z ：帯水層へのフッ素流入フラックス (mg/m/day)、 S_e ：帯水層直上の地盤の飽和度 (-)、 V_z ：同 鉛直方向の浸透流速 (m/day)、 C_p ：同 間隙中のフッ素濃度 (mg/m³)である。

降雨浸透量とフッ素の帯水層への流入フラックス、および 45 m 下流地点での算出リスク値との関係を Fig. 14 に示す。降雨浸透量と流入フラックスはほぼ線形的な関係を示している。一方、リスクの値も流入フラックスおよび降雨浸透量に大きく依存し、降雨浸透を制御することが環境影響の軽減には有効であることが分かる。実地盤ではアスファルト舗装をした場合の降雨浸透量は一般に、降雨強度の 10 分の

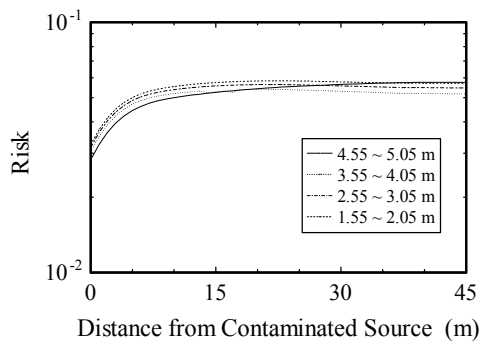


Fig. 15 Risk values calculated with different depths of water table

Table 4 Depth of water table vs. infiltration flux

Depth of water table (m)	Flux (mg/m/day)
4.55~5.05	1.01
3.55~4.05	1.01
2.55~3.05	1.00
1.55~2.05	1.01

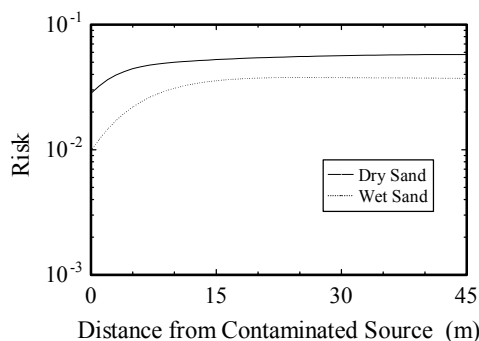


Fig. 16 Calculated risk values influenced by water retention property of surrounding layer

1 以下になるとされており、本計算結果の降雨浸透量が 160 mm/year 以下のケースに相当すると考えられる。これらのケースにおける算出リスクは十分に低いことから、鉄鋼スラグを路盤材として利用した際の周辺環境に対する安全性が確認できる。

次に、10 年経過後における、地下水面深さが変化した場合のスラグ層からの下流方向距離と算出リスク値の関係を Fig. 15 に示す。地下水面の変化による算出値の相違はほとんど見られず、リスクは地下水面深さに依存しないことが分かる。これは、Table 4 に示すように、地下水面の位置によらず、フッ素の流入フラックスがほとんど変化しないためであると考えられる。

10 年経過後における、周辺地盤の保水性の違い（乾燥地盤、湿潤地盤）による、スラグ層からの下流方向距離と算出リスク値の関係を Fig. 16 に示す。リスクは乾燥地盤の方が湿潤地盤よりも大きく、周辺地盤の条件によってリスクが異なることが分かる。これは、スラグ下層における地下水中へのフッ素の流入フラックスの値が乾燥地盤では 1.00 mg/m/day、湿潤地盤では 0.76 mg/m/day と乾燥地盤の方が大きいためであると考えられる。降雨浸透量が同条件にもかかわらず、乾燥砂質土において流入フラックスが大きいのは、飽和度の相違により浸透流速、間隙水中濃度が乾燥砂質土の方が大きくなるためである。

以上より、不飽和地盤において鉄鋼スラグを路盤材として用いた時のリスクは降雨浸透量、周辺の地盤の保水性条件による影響が大きく、これはフッ素の流入フラックスの大小に依存すると考えられる。ただし、降雨浸透量、地下水面、地盤条件を変化させた全ての場合において、リスクは 1 より十分に低い値となったことから、実地盤において土壤環境基準を満たす品質を有する鉄鋼スラグ、すなわちフッ素溶出濃度が 0.71 mg/L 程度に調整された製品スラグを路盤材として使用した場合、周辺環境に対する環境影響は十分に小さく、安全であるといえる。

7. おわりに

本研究では、鉄鋼スラグを地盤材料として有効利用した際の環境安全性を照査することを目的として、各種溶出試験を行い、特に顕著な溶出が確認されたフッ素の溶出特性を検討した。さらに、実験結果に基づいて路盤材料として利用した場合の地盤中の汚染分布を、数値解析を用いて推定するとともに、地下水を摂取した場合の環境リスクを指標として、地盤環境への影響を評価した。以下に本研究による成果をまとめる。

- [1] pH 依存性試験の結果から、本研究で用いた 4 種類の鉄鋼スラグからのフッ素溶出量は鉄鋼スラグの種類によらず pH に依存し、強酸性および強アルカリ性で溶出量が大きくなる傾向を示した。
- [2] シリアルバッチ試験の結果から、鉄鋼スラグからのフッ素の溶出は、数十倍～100 倍体積の溶媒が接触した場合にも継続して生じることが明らかになった。したがって、実際にも鉄鋼スラグからのフッ素の溶出は長期間続くと推定される。また、カラム溶出試験の結果から、鉄鋼スラグからのフッ素溶出は浸透流量、および浸透流速に対する依存性を示し、鉄鋼スラグの種類によらず同じ傾向を示した。
- [3] 浸透流解析により推定した鉄鋼スラグ層を通過した総流量、およびカラム溶出試験結果を用いて、数値解析に導入する廃棄物層からの化学物質溶出濃度の推定方法を提案した。
- [4] 鉄鋼スラグを路盤材として利用したときの解析結果から、周辺環境における路盤材から溶出するフッ素由来のリスクは、帯水層へのフッ素の流入フラックスを左右する降雨浸透量、および周辺地盤の保水性による影響が大きいことが分かった。
- [5] 土壤環境基準を満たすように品質調整された路盤材用製品スラグを路盤材として利用した場合、周辺地盤での地下水飲用によるリスクは十分に低い値を示した。したがって、周辺環境への負荷は無視できるレベルであるといえ、路盤材としての利用場合の環境安全性は高いと判定できる。

謝 辞

実験の実施にあたりご協力いただいた京都大学防災研究所 地盤災害研究部門 井合 進教授、同技術室 清水博樹技官、鉄鋼スラグ試料をご提供いただいた株式会社神戸製鋼所 井川 昇氏に深謝いたします。ありがとうございました。

参考文献

- Pickens, J.F., Gillham, R.W. and Cameron, D.R. (1979): Finite element analysis of the transport of water and solutes in tile-drained soil, J. Hydrogy, Vol.40, pp.243-264.
- U.S.EPA (2003): Integrated Risk Information System (IRIS), <http://www.epa.gov/iris/index.html>.
- 嘉門雅史・乾 徹・勝見 武・宮城大助 (2004): スラグ材料の地盤工学的利用に際しての環境影響とその評価について、土木学会第 59 回年次学術講演会、(投稿中)。
- 西垣 誠・菱谷智幸・橋本 学・河野伊一郎 (1995): 飽和・不飽和領域における物質移動を伴う密度依存地下水流の数値解析的手法に関する研究、土木学会論文集, Vol.511/III-30, pp.135-144.
- 水渡英昭・井上 亮 (2002): 溶銑予備処理スラグからのフッ素溶出挙動、鉄と鋼, Vol.88, No.6, pp.56-62.

Leaching Behavior of Fluoride from Steel Slag in Geotechnical Applications

Masashi KAMON, Toru INUI, Daisuke MIYAGI*, and Takeshi KATSUMI**

* Graduate School of Engineering, Kyoto University

** Graduate School of Global Environmental Studies, Kyoto University

Synopsis

Leaching behaviors of inorganic chemicals in waste slag utilization as road base material were assessed based on results of laboratory leaching tests. Column leaching tests, as well as several batch leaching tests, were conducted to examine the fluoride and boron leaching from steel slag, influenced by the permeation velocity and the thickness of slag layer. Experimental results showed that fluoride leaching amount was significantly controlled by the permeation velocity as well as the cumulative flow volume per unit weight of slag. Leaching behaviors from road base constructed with slag material were modeled using the advection-dispersion chemical transport analysis, considering the effect of flow volume on the leaching concentration. Analytical results confirmed that the environmental risk, caused by the fluoride leaching, resulted in the accepted level against the rain infiltration into the road base.

Keywords: steel slag, leaching, fluoride, environmental risk