

(S4-27) 塩素化エチレン類による土壌・地下水汚染の原位置生物処理に関する 適用可能性試験の検討

○羽瀧博臣¹・伊藤雅子¹・金井良太¹・西田憲司¹・
土壌汚染の除去等の措置の適用可能性試験に関する調査・検討部会¹
¹土壌環境センター

1. 背景および目的

土壌汚染の除去等の措置（オンサイト浄化、原位置浄化）においては、各処理方法により目標土壌溶出量を超えない汚染状態となること等、効果を確認した結果について、汚染除去等計画に記載しなければならないと土壌汚染対策法施行規則¹⁾に記載されている。汚染除去等計画の作成に際しては、汚染の除去等の処理方法の適用可能性を確認する方法、さらに区域内措置優良化ガイドブック²⁾（以下「ガイドブック」という）における原位置浄化の項には、「適用可能性試験」で効果を確認すること等が挙げられている。また、土壌汚染対策法に基づく調査及び措置に関するガイドライン（改定3.1版）³⁾（以下「ガイドライン」という）には汚染除去等計画を作成するに当たって、「汚染の除去等の処理方法の適用性を確認する方法」に、「室内試験」や「試験施工」等が挙げられている。しなしながら、これらには具体的な方法や手順等については示されていない。

このような背景から適用可能性試験は、現状、各社の裁量や工夫により実施していると考えられる。よって、ステークホルダーへの説明に際し適用可能性の根拠が示せない、適用可否の判断方法や判断基準をその都度検討する必要性が生じる等非効率で、対策着手に遅延が生じる懸念もある。そのため、適用可能性を判断する方法を具体化しておくことが重要であり、その標準化が望まれる。そこで、標準的な方法や手順等を提案することを目的として、土壌環境センター（以下「センター」という）に設置した土壌汚染の除去等の措置の適用可能性試験に関する調査・検討部会（以下、「適用性試験部会」という）にて調査・研究を行っている。

本報では、オンサイト浄化、原位置浄化のうち、原位置浄化を対象とした塩素化エチレン類による土壌・地下水汚染の原位置生物処理に関し、その適用可能性試験としての微生物分解確認手順および留意点を検討したので報告する。

なお、オンサイト浄化については、「重金属汚染土壌のオンサイト処理に関する適用可能性試験の検討」⁴⁾として投稿しているので、標準化を目指す議論のため本報と合わせて参考にされたい。

2. 適用可能性試験に関する資料整理

2.1 ガイドライン³⁾

【汚染の除去等の処理方法の適用性を確認する方法】

ガイドライン Appendix22 では、汚染の除去等の処理方法の適用性を確認する方法として、以下が示されている。

- ① 現地採取試料を用いた室内試験結果
- ② 現地で行ったパイロット試験（掘削した土壌を用いて現地に設置した処理施設で行う試験や、土壌を掘削せずに原位置で行う試験等）や試験施工の結果
- ③ 同一事業所において、過去に適用性を確認した結果あるいは汚染除去等工事の実施結果
- ④ 措置対象地と同様な地盤環境（同様な地質や地下水環境、土壌の汚染状態である場合をいう。）を有する土地において、過去に適用性を確認した結果あるいは汚染除去等工事の実施結果

【汚染の除去等の処理方法の適用性を確認する項目】

都道府県知事が汚染除去等計画の中で汚染の除去等の処理方法の適用性を確認する項目として、以下の項目が一般的であるとされており、これらを踏まえ、採用する処理方法の適用性を確認する必要がある。

Study on applicability test for in-situ bioremediation of soil and groundwater contamination by chlorinated ethylene
Hiroomi Habuchi¹, Masako Ito¹, Ryota Kanai¹, Kenji Nishida¹ and Study Group on Applicability test of measures such
as removal of soil contamination¹ (¹GEPC)

連絡先：〒102-0083 東京都千代田区麹町 4-5 KS ビル 3F （一社）土壌環境センター
TEL 03-5215-5955 FAX 03-5215-5954 E-mail info@gepc.or.jp

- ① 汚染の除去等の処理対象となる特定有害物質（土壤汚染状況調査等において基準不適合となった特定有害物質及び汚染の除去等の処理の過程で基準不適合となるおそれがある特定有害物質）及び土壤の汚染状態（土壤溶出量及び土壤含有量）
- ② 汚染の除去等の原理及び処理フロー
- ③ 汚染の除去等の処理対象となる地質及び地下水に係る情報（土質の種類、地下水の有無及び pH 等の地下水環境に係る情報等）
- ④ 汚染の除去等の処理の適用性を確認できる試験結果（土壤溶出量及び土壤含有量）及び処理に要する期間
- ⑤ 実績の有無

2.2 ガイドブック²⁾

ガイドブックでは、各措置技術の解説とともに各措置技術を実施するに当たって留意すべき事項がチェックリストとして例示されている。このチェックリストについては、各現場により条件が異なることから、実際の使用に当たっては、措置実施者が適切なものを作成する必要があるとされている。しかしながら、ガイドブックでは、要求品質やチェック項目がチェックリストの中で事前の適用可能性試験の実施の必要性が記載されているだけで、その具体的な試験方法の記載はない。

3. 適用可能性試験の検討対象

適用可能性試験の検討対象の選定に際しては、センター技術委員会実態集計分科会がセンター会員企業を対象に継続的に行っているアンケート調査をもとにした⁵⁾。例えば令和3年度の調査結果では、原位置浄化を実施した際に選択された対策のうち、生物処理が最も多かった。また、対策対象の汚染物質については、有機塩素系化合物で約25%と重金属等に次いで多かった。その傾向は令和3年度以前も同様である。そこで、原位置浄化のうち、テトラクロロエチレン（以下「PCE」という）やトリクロロエチレン（以下「TCE」という）などの塩素化エチレン類を対象とし、「有機物を含む薬剤（以下、薬剤）を用いて嫌気性微生物を活性化することで脱塩素化する生物処理」（以下「嫌気性生物処理」という）を検討対象とした。

そして、適用可能性試験の試験フロー（案）の作成に際しては、適用性試験部会会員企業の経験や事例、文献調査等をもとに検討した。

4. 適用可能性試験の目的

嫌気性生物処理の適用可能性試験において、「適用性が確認できる」とは、ガイドラインの基本的な考え方に示されている「土壤汚染の除去の措置として目標土壤溶出量を超える汚染状態にある土壤を目標土壤溶出量を超えない汚染状態にする」ことである。したがってサイトにおいて採取された汚染土壤を採取し、同サイトに生息する嫌気性微生物による土壤溶出量低下を確認できれば、適用可能性試験の目的を果たせると考えられる。

しかし、サイトで試験に利用可能な土壤は容易に得られないことが多く、ボーリング試料が残っていたとしても、多くの場合、本来の状況とは異なった状態となり評価できないと考えられる。したがって、試験の標準化にあたり、土壤を利用した適用可能性試験は容易でないと判断した。

一方、サイトでは観測井が設置されている場合が多い。地下水は比較的容易に採取でき、土壤のように局所的なデータにもならないので、地下水で評価するのは妥当と考えられる。地下水は土壤に接しているため、地下水中の汚染濃度が低下すれば、土壤から地下水への汚染溶出、溶脱が促進される。それに伴い地下水濃度は上昇するが、嫌気性微生物の働きにより再度低下する。この繰り返しにより、結果的に土壤溶出量が低下していくと考えられる。ただし、濃度低下後においても、土壤の細孔部に存在する塩素化エチレン類の再溶出でリバウンドの懸念はあるが、こうした課題は、サイトでのパイロット試験による確認が必要である。

したがって、適用可能性試験の目的は、サイトの地下水を用いた室内試験により、地下水中の塩素化エチレン類が、嫌気性微生物により分解脱塩素化することの確認とする。

5. 適用可能性試験フロー（案）

適用可能性試験の試験フロー（案）の作成に際しては、センター適用性試験部会会員企業の経験や事例、文献調査等をもとに検討した。試験フロー（案）を図-1に示し、以降、各項目の内容について述べる。なお、この試験フローは適用性試験部会が現段階で調査・検討したものに基き作成しており、一例の提示に留まっている点に留意されたい。

5.1 採取試料の初期性状確認

採取した地下水試料を用いた室内試験から得られる以下の情報により、微生物分解の可能性を評価する。なお、以下に示す項目は、室内試験で実施することを想定しており、水温や pH については、サイトでも確認することが望ましい。

・地下水の測定値

薬剤等の添加前の塩素化エチレン類の濃度を把握するための項目

浄化対象物質

薬剤添加前の浄化対象物質の初期濃度を確認する。

分解生成物

クロロエチレン等の分解生成物が検出されているか確認する。検出されていれば、地盤環境中に微生物が生息でき分解反応が進んでいる可能性が高いと言える。

分解微生物の生息環境を把握するための項目⁶⁾

全有機体炭素 (TOC)、pH 等

TOC は、添加する薬剤の残存量の指標となるため把握することが望ましい。ただし、TOC は、水中に存在する有機物を構成する炭素の総量であるため、例えば、地下水試料に汚れや汚濁物質等がある場合は、薬剤以外の有機物も含まれることに留意する。

・分解微生物の存在

PCE や TCE をエチレンにまで分解する嫌気性微生物 (*Dehalococcoides*) 属細菌等の存在が知られており、分解可能な微生物の存在を予め確認することで分解が可能であるかを評価する。微生物の確認手法として、PCR 法により標的とする DNA に特異的プライマーペアを利用し、その DNA の存在を検出することで、目的の微生物の存在や存在量を確認する方法^{7,8)}がある。一方で、分解微生物の存在が確認できない場合でも分解が進む場合があることにも留意し、次段階の薬剤添加および微生物分解を評価することが望ましい。

・阻害要因

微生物の活性や分解に影響を与える地盤環境中の阻害要因について、予め把握することが望ましい。例えば、嫌気条件下での微生物分解は、水温や pH、硫酸イオン等が基本的な評価項目になり、水温は 10℃ 以上、pH は 5~9 程度が望ましい⁹⁾。

5.2 試料の調整

薬剤を添加し、微生物分解を評価するためには、採取した地下水試料を測定装置へ供せる状態にする必要がある。そのためには、事前に測定用の容器を準備し、地下水試料を分取するなど試料の調整を行う。

・前処理

地下水試料中の土粒子等に付着する微生物の生息環境等に配慮し、例えば、試験に使用する地下水試料を分取する際は、攪拌して沈殿物も含める等、適切に処理する。

浄化対象物質が低濃度の場合には、必要に応じて浄化対象物質を追添加する。

・器具および装置

試験に用いる器具および装置は、コンタミネーションが生じないように洗浄や滅菌等を行い、測定に支障がないよう留意する。

・試験容器および試料分取量

コントロール試験用の容器を含め、試験に必要な容器を用意する。例えば 50~150mL ガラスバイアル瓶を利用が考えられる。また、好気的環境にならないようにヘッドスペースを窒素ガス等で置換するなど環境条件に留意する。

試料分取量については、浄化対象物質の濃度測定に必要な量や使用する薬剤メーカーからの提供情報、過去の実績等を勘案して分取する。

・コントロール試験／ブランク試験の準備

薬剤による分解促進を確認するため、コントロール試験（地下水試料に薬剤を添加しない試験）を設ける。また、浄化対象物質が自然的要因による分解などによって濃度が減少する自然減衰やその他混入物による分解等が懸念される場合は、その有無をコントロール試験により確認すること等が考えられる。その他、ブランク試験（浄化対象物質を含まない水に薬剤を添加した試験）によって薬剤による副生成物や pH 等水質に与える影響を確認することが望ましい。

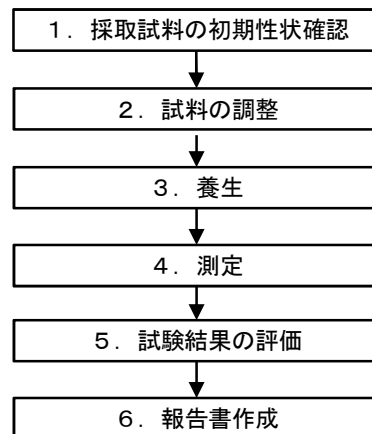


図-1 試験フロー (案)

- ・薬剤の添加

薬剤の添加に際しては、使用する薬剤に応じた量を添加する。

5.3 養生

微生物の生息環境や活性化促進等のための養生条件を設定する。

- ・養生条件

薬剤を添加した地下水試料は遮光し、さらに好気的環境にならないようにする。また、ヘッドスペースを窒素ガス等でパージする、テフロン加工のブチルゴム栓とアルミシール等で密栓すること等が望ましい。温度条件は、原則、サイトと同じ地下水温で実施し、一定の温度条件（温度範囲：15～25℃）を保持するため、恒温槽内に静置することも望まれる。

- ・養生期間

想定する浄化期間や過去の実績等から適用可能性試験にかかる想定期間を設定する。想定期間後の測定結果によっては、養生期間を延長する可能性がある。

5.4 測定

微生物分解の進行を確認するため、逐次あるいは養生期間経過後、以下に示す項目について測定を行う。

- ・塩素化エチレン類の測定

生物処理の効果および塩素化エチレン類の濃度を把握するため、浄化対象物質、分解生成物を平成15年環境省告示第17号（地下水に含まれる調査対象物質の量の測定方法）に従い測定する。公定法による分析以外にも、気相部分のヘッドスペース分析によるエチレン、エタンの測定（簡易分析）等もある。

- ・その他の測定項目

分解微生物の生息環境を把握するための項目⁶⁾

pH、水温、硫酸イオン 等

微生物の活性や分解に影響を与える阻害要因について、把握することが望ましい。

全有機体炭素（TOC）

添加した薬剤の残存量の指標となるため把握することが望ましい。

分解微生物の存在

分解微生物の存在（5.1 採取試料の初期性状確認で測定した場合は増加）を確認することが望ましい。これにより、塩素化エチレン類の濃度減少が分解微生物によるものかを評価する。

5.5 試験結果の評価

養生期間経過後の測定結果から微生物分解が進んでいる可能性を評価する。浄化対象物質や分解生成物が無害なエチレンやエタンまで脱塩素化されることを確認することが望ましい。ただし、分解までに時間を要する場合や早期な判断指標として、浄化対象物質や分解生成物の濃度の減少傾向の確認、クロロエチレン生成の確認、気相部分のヘッドスペース分析によるエチレン、エタンの確認等により、微生物分解の可能性を評価する。

5.6 報告書作成

適用可能性の評価結果の報告を行う。

- ・報告書記載事項

試料採取日、薬剤条件、養生温度、測定結果とそれに基づく分解の可能性

6. まとめ

本稿では、適用可能性試験の必要性について整理し、土壤汚染の除去等の措置のうち、塩素化エチレン類による土壤・地下水汚染の嫌気性生物処理に関する適用可能性試験例を試験フロー（案）としてまとめた。今後、汚染の除去等の処理方法の適用性を確認する方法検討に際して一助になればと考える。ただし、当該試験フロー（案）は試験方法の一例の提示に留まっている点は留意されたい。今回提示した試験フロー（案）について、意見を聞き、議論し、標準的な考え、試験フローに仕上げていきたい。

参考文献

- 1) 環境省（2007）：土壤汚染対策法施行規則，別表第7の5の項中欄1のト、別表第7の5の項中欄2のホ。
- 2) 環境省（2020）：区域内措置優良化ガイドブック（改訂版）—土壤汚染対策法に基づくオンサイト措置及び原位置措置を適切に実施するために—，pp.93～96.
- 3) 環境省（2022）：土壤汚染対策法に基づく調査及び措置に関するガイドライン（改訂第3.1版），5.4措置の実施，Appendix -22.
- 4) 森岡錦也・佐藤 毅・山崎将義・田村和広・西田憲司・土壤汚染の除去等の措置の適用可能性試験に関する調査・検討部会（2023）：重金属汚染土壤のオンサイト処理に関する適用可能性試験の検討，第28回地下水土壤汚染とその防止対策に関する研究集会講演集，投稿中.
- 5) 土壤環境センター（2022）：ホームページ技術実態集計分科会，トピックス.
- 6) 高畑陽（2013）：バイオオーグメンテーションの実用化への可能性と課題，環境バイオテクノロジー学会誌，Vol.13, No.1, 19～23.
- 7) 中村寛治・上野俊洋・石田浩昭（2003）：塩素化エチレン分解に関与する微生物の解析および検出，土壤環境センター技術ニュース No.7, pp.1～5.
- 8) 四本瑞世・緒方浩基・千野裕之（2009）：DNA 解析手法を用いた VOCs 分解微生物の検出および特性評価，大林組技術研究所報，No.73.
- 9) 日野良太・古屋光啓・佐藤徹朗・高畑陽・地下水汚染のサイト評価手法の活用検討部会（土壤環境センター）（2021）：VOCs 汚染地下水の自然減衰の確認と濃度変化の予測に関する基礎的検討，第26回地下水・土壤汚染とその防止対策に関する研究集会講演集，S3-08.