

令和 2 年 6 月 30 日現在

機関番号：33903

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06564

研究課題名(和文) 津波堆積物分別土砂の有効利用に向けた難透水性材料用カラム試験法の開発

研究課題名(英文) Development of Up-flow percolation test method for impermeable materials for effective use of separated tsunami sediment

研究代表者

中村 吉男 (NAKAMURA, Yoshio)

愛知工業大学・工学部・教授

研究者番号：90784538

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：難透水性材料を対象としたカラム通水試験法について検討し、1) 難透水性材料は、透水性材料に比べて土壌と溶媒の接触時間が長くなるので、累積L/Sが低い範囲で溶出が終了する。2) 定動水勾配条件による通水は、透水係数と動水勾配の双方の要因を分離して浸透挙動を確認できることから、難透水性材料の溶出挙動を明らかにするための有効な手法である。3) 一方で細粒分含有量の多い土砂では、土壌の電化特性とイオンの吸着状況による土壌構造の変化により通水時に透水性の低下が生じることがあり、安定した地盤環境パラメーターを求めるためには、通水速度のコントロールが容易な定流量条件でのカラム試験に優位性があることが確認された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

津波堆積物分別土砂の有効利用に向けた環境安全性の評価手法の確立が求められている。津波堆積物土砂は、細粒分を含み、難透水性を呈することが少なからず確認されている。土壌の環境安全性を科学的根拠に基づき評価する手法の一つとしてカラム試験が挙げられ、広く実施されているが、透水性の低い土砂に対するカラム試験の方法は確立していない。本研究で検討した難透水性材料を対象としたカラム試験の有効性・適用性の評価は、分別土砂地盤に含まれる重金属等の有害物質の“環境受容性”を判断するための試験方法を確立する上で、また、復興資材等の品質管理や環境安全性の評価手法の展開に一助を加えたと考えている。

研究成果の概要(英文)：This study examines an Up-flow percolation test method for impermeable soils.1) Compared to permeable soils, the time for contact between soil and solvent is longer for impermeable soils, so the elution is complete in the range where the cumulative L/S is low.2) Water flow under constant hydraulic gradient condition is an effective method for clarifying the elution behavior of impermeable soils because it is possible to confirm the seepage behavior by separating both factors of coefficient of permeability and hydraulic gradient.3) On the other hand, in the case of sediment containing a large amount of fine particles, the permeability may decrease during water flow due to changes in the soil structure due to the electrification characteristics of the soil and the adsorption of ions. In order to obtain stable ground environment parameters, it was clarified that an Up-flow percolation test under the constant flow rate condition where the water flow rate was easy to control was advantageous.

研究分野：環境地盤工学

キーワード：津波堆積物 難透水性材料 カラム通水試験 透水係数 溶出特性

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

東日本大震災により発生した災害廃棄物の処理は、再生利用を前提とした中間処理が行われ、復興資材として被災地における海岸堤防、海岸防災林復旧などの公共工事に利活用が進められた。世界有数の大災害経験国である我が国において、災害廃棄物由来の分別土砂の再利用を促進するためには、環境安全性の妥当性を科学的根拠に基づき評価して再生利用の意義を広く啓発することが必要であり、そのためには利用形態を考慮した分別土砂の環境安全性を評価する合理的な手法の開発が求められる。環境媒体中における有害物質の移動現象に着目した溶出特性試験であるカラム通水試験は、液固比、溶媒組成、pHなどの要因特性に加えて、対象土壌の性状と重金属類の物質種との組み合わせによる溶出パターンの類型化を図ることが出来る。その試験方法は、透水性が比較的高い材料を対象とし、昨年度(2019年)国際標準化(ISO化)¹⁾された。本研究は、細粒分を含み透水性が低い試料へのカラム試験の適用性について、定動水勾配条件のカラム試験の有効性を検討し、分別土砂地盤に含まれる重金属等の有害物質の“環境受容性”を判断するための試験方法について議論するものである。

2. 研究の目的

本研究では、硫酸カリウムアルミニウム(ミョウバン, $\text{AlK}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$)を有害物質と見立てて、通水速度を変化させた定流量カラム試験を実施し、通水速度の変化に伴う硫酸カリウムアルミニウムの溶出特性を評価し、マリオットサイフォンを用いた定動水勾配条件によるカラム試験を試作して、締固め密度の違いによる透水性の異なるカラム試験を実施し、難透水性土砂に対する定動水勾配条件でのカラム試験の有効性を検証した。定流量条件及び定動水勾配条件で硫酸カリウムアルミニウム水溶液、NaCl水溶液に対する破過試験を実施し、濃度変化の理論解を用いて、吸着および脱離過程における移流分散特性にかかわる地盤環境パラメータ(分散係数・縦分散長・遅延係数)を求め、求めた地盤環境パラメータから、試験結果の妥当性を検証した。(以上の～の実験は、溶出液の濃度変化は、簡便的に溶出液の電気伝導度を測定して把握している。) NaCl水溶液と硫酸カリウムアルミニウム水溶液に対する破過試験で得た溶出液の成分分析を実施し、カラム通水中の溶出物質の濃度変化について考察し、一連の実験を通じて細粒分を含む低透水性材料におけるカラム試験方法の適用性について議論した。

3. 研究の方法

(1) 第一実験

締固め土の透水性を支配する因子の一つである細粒分含有率と粘土含有率に着目し、粘土と砂を混合した難透水性の人工分別土砂を作成した。図-1は、人工分別土砂の粒度分布を示したものであり、一般に、0.074mmふるいを通過する細粒分を10~15%以上含有し、粘土分(0.005mm以下)を5%程度含有していれば、適切な締固めを行うことにより難透水性を呈すると云われている²⁾。JIS基準の締固めエネルギーとISO基準で規定されている締固め方法による締固めエネルギーで突き固めた人工分別土砂の締固め曲線を図-2に示す。図には締固め密度と透水係数の対応関係を併記しており、本研究で使用した人工分別土砂は、締固めの効果とともに難透水材料へと移行することがわかる。一方、カラム通水試験においては、人工分別土砂に、有害物質に見立てた硫酸カリウムアルミニウム(ミョウバン, $\text{AlK}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$)を添加し、溶出液の電気伝導度の変化を測定して硫酸カリウムアルミニウムの溶出特性を評価した。硫酸カリウムアルミニウムは、100gの水(25℃)への溶解度が6.74gであり、きわめて溶解度が高く、イオン交換反応により人工分別土砂に含有する重金属等の溶出を促進させる効果がある。

カラム通水試験の概要を図-3に示す。ISO規格に準じたアクリル円筒容器(直径5cm,長さH30cm)に試料を充填し、上向流でカラム内に純水を通水した。通水方法は、ISO規格に準じた定量ポンプによる定流量条件(以下、「定流量カラム試験」とマリオットサイフォンを用いた定動水勾配条件(以下、「定動水勾配カラム試験」)の2条件とした。定流量カラム試験は、主に緩い密度条件(D値85%)における通水速度の違いに着目した。定動水勾配カラム試験は、透水性が極めて低い試験試料に対して

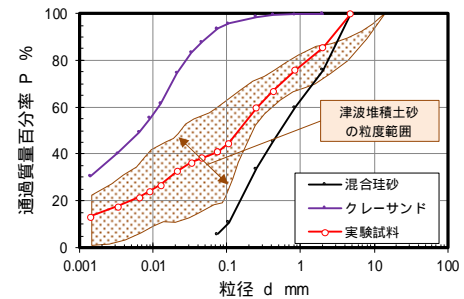


図-1 粒度分布

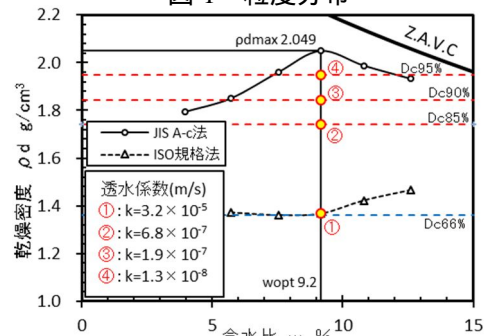


図-2 締固め曲線

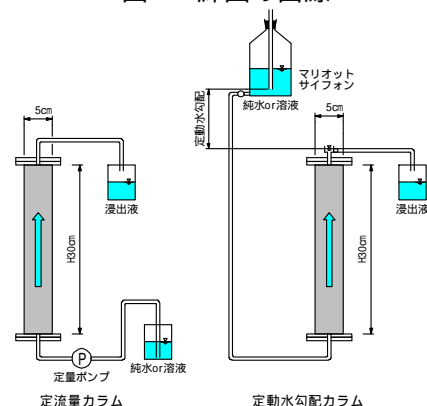


図-3 カラム通水試験装置の概要

も、動水勾配を上げる（圧力を加える）ことで通水が可能な方法であり、密度条件の違い（D 値 75%とD 値 90%）による透水性の違いに着目した。なお、D 値 75%の密度条件は、ISO規格に準じた締め固め方法で得られた密度である。

(2) 第二実験

硫酸カリウムアルミニウム水溶液、NaCl 水溶液に対して通水速度および通水方法の設定を変えた破過試験（吸着・脱離）を実施し、実験で得られた破過曲線に(1),(2)式に示す。濃度変化の理論解にフィッティングして、吸着および脱離過程における移流分散特性にかかわる地盤環境パラメータ（分散係数、縦分散長、遅延係数）を求めた。なお、溶質が NaCl のケースは、溶質が非吸着性（非反応性）とみなし、遅延係数 R を 1 とした。また、硫酸カリウムアルミニウム水溶液、NaCl 水溶液の両定流量条件行ったカラム試験については、溶出液の成分を ICP-MS 及びイオンクロマトグラフィーで分析し、カラム通水中の溶出物質の濃度変化を把握した。

【吸着過程】

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left[\frac{RL - vt}{2\sqrt{DRt}} \right] + \frac{1}{2} \exp \left(\frac{vL}{D} \right) \operatorname{erfc} \left[\frac{RL + vt}{2\sqrt{DRt}} \right] \quad (1)$$

【脱離過程】

$$\frac{C}{C_0} = 1 - \left\{ \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left[\frac{RL - vt}{2\sqrt{DRt}} \right] + \frac{1}{2} \exp \left(\frac{vL}{D} \right) \operatorname{erfc} \left[\frac{RL + vt}{2\sqrt{DRt}} \right] \right\} \quad (2)$$

ここに、 C : 流出濃度, C_0 : 流入濃度, R : 遅延係数, L : カラムの長さ, t : 注入開始後の経過時間, v : 間隙内平均流速, D : 分散係数

4. 研究成果^{3) 4)}

(1) 供試体密度を D 値 85%（透水係数 $k=1.6 \times 10^{-6}$ m/s）とし、定流量カラム試験によって通水速度を 3 パターンに変化させ、通水速度の変化に伴う硫酸カリウムアルミニウムの溶出特性の変化を評価した。累積液固比(L/S)と電気伝導率(EC)の関係を図-4 に示す。概ね累積 L/S < 3.0 では、各 CASE の累積 L/S と電気伝導率の関係は、同様の傾向を示すが、累積 L/S > 3.0 では、通水速度が速くなるに従って、累積 L/S に対する電気伝導率の低下量が減少する傾向にあった。土壌と溶媒の接触時間が短くなることで影響しているものと考えられる。このことから、透水係数の低い難透水材料は、透水性材料に比べて接触時間が長くなるので、累積 L/S が低い範囲で溶出が終了することを意味している。

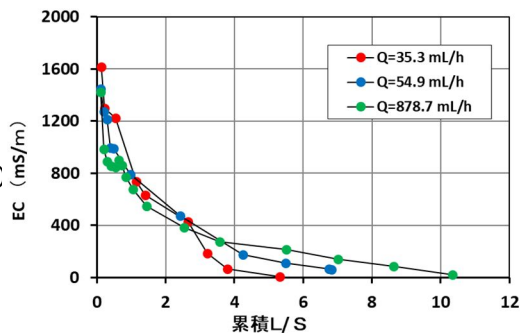


図-4 通水速度と硫酸カリウムアルミニウムの溶出特性

(2) 定動水勾配カラム試験により、密度の異なる 2 条件（D 値 75%とD 値 90%）において、動水勾配を変化させて、硫酸カリウムアルミニウムの溶出特性の変化を評価した。また、比較のため、各密度条件に対して、定流量カラム試験も併せて実施した。別途実施した透水試験の結果より各締め固め条件における飽和透水係数は、D 値 75%（CASE1～CASE4）では $k=2.41 \times 10^{-5}$ m/s、D 値 90%（CASE5～CASE8）では $k=5.71 \times 10^{-6}$ m/s であった。実験結果を締め固め条件毎に整理し、図-5、図-6 に示す。同図に示すとおり、D 値 90%（CASE5～CASE8）は D 値 75%（CASE1～CASE4）に比べて、L/S の進行に伴って EC が急激に低下する。D 値 90%は D 値 75%に比べて透水係数が低いことから、同じ L/S であっても純水と土試料との接触時間が長くなり、溶出が早く終了するものと考えられ、前節で述べた従来の定流量カラム試験によって得られる溶出特性と同様な結果となっている。定流量条件（動水勾配と透水係数の積が一定）に

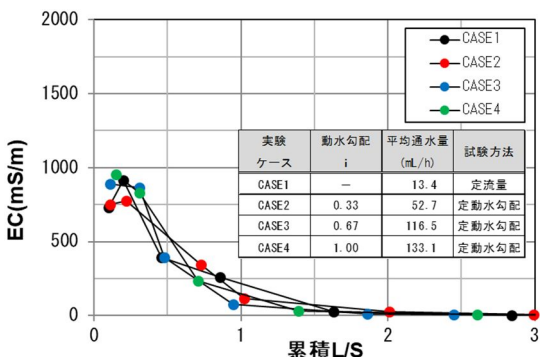


図-5 硫酸カリウムアルミニウムの溶出特性 (D 値 75%)

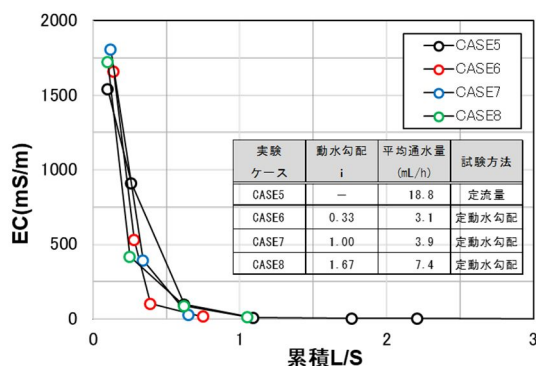


図-6 硫酸カリウムアルミニウムの溶出特性 (D 値 90%)

対し、定動水勾配条件は、透水係数と動水勾配の双方の要因が確認できる手法であり、透水性を吟味し難透水性材料の溶出挙動を明らかにするうえで有効な手法であるものと考えられる。

(3) NaCl 水溶液 (濃度 0.25%), 硫酸カリウムアルミニウム水溶液 (濃度 1.0%) に対して通水速度および通水方法の設定を変えた破過試験 (吸着・脱離) を実施した。カラム通水試験の結果を図-7 に示す。同図は、電気伝導率 (EC) の測定値を注入時の値 (C_0) で除した比濃度 (C/C_0) を縦軸とし、ポアボリュームを横軸にして整理した。また、同図には、濃度変化の理論解に基づき、分散係数 (D)、遅延係数 (R) を同定し、破線で示した。各パラメータの同定結果を表-1 に示す。定流量条件では、NaCl と硫酸カリウムアルミニウムの吸着過程と脱離過程の全てで、分散係数はほぼ同じ値が得られた。また、定流量条件における硫酸カリウムアルミニウムの遅延係数は、吸着過程では、 $R=1.081$ 、脱離過程では $R=3.772$ となり、吸着過程と脱離過程で差異が生じた。一方、定動水勾配条件では、NaCl の分散係数は吸着過程と脱離過程でほぼ同じ値となったが、硫酸カリウムアルミニウムの分散係数は NaCl の分散係数に比べて、吸着過程で $1/20$ 、脱離過程で $1/30$ 程度の低い値を示した。本来、分散係数は物質の種類によらない物理的パラメータである。図-8 に示すように定動水勾配条件では、試験時間の経過に伴って単位時間当たりの通水量が徐々に減少する傾向を示しており、NaCl の試験と硫酸カリウムアルミニウムの試験では、カラム内の流況が異なっていたものと考えられる。透水性が低下した原因として、 SO_4^{2-} は粘土粒子を凝集させる効果があること、粘土には表面荷電が存在し、静電的な力によってイオン交換や吸着現象が生じることが挙げられる。すなわち、細粒分の再配列に伴う透水性の低下に加え、土壌の電化特性とイオンの吸着状況等による土壌構造の変化によるものと考えられるが、この点については、本研究の範囲では議論を十分行ったと難しいので、今後の検討課題として順次取り組んでいきたいと考えている。

(4) NaCl 水溶液 (濃度: 0.25%, pH: 5.1) を用いた定流量条件の破過試験 (吸着・脱離) を実施し、溶出液の成分分析を実施した。図-9 は、ポアボリュームに対する EC と pH の変化を示したものである。pH は、NaCl の通水開始から徐々に低下し、NaCl 通水中は緩やかに上昇する傾向を示す。純水切替後は、EC の低下と併せて pH は上昇する。図-10, 図-11 は通水液の成分である Na^+ と Cl^- の濃度変化を EC と比較して整理した (C/C_{max} で正規化)。これらの図によれば、EC の変化は Cl^- の変化と一致し、 Na^+ の挙動は、EC の変化よりも遅れが生じることがわかる。第二実験の濃度変化の理論解による解析では、EC の挙動を遅延係数 $R=1$ とみなして解析を進めたが、EC の変化は非吸着性 (非反応性) の Cl^- の挙動と一致することが確認され、 $R=1$ の妥当性を評価しうるものである。次に硫酸カリウムアルミニウム水溶液 (濃度: 1.0%, pH: 3.5) を用いた定流量条件の破過試験 (吸着・脱離) の溶出液の成分分析結果を示す。図-12 は、ポアボリュームに対する EC と pH の変化を示したものである。pH は、硫酸カリウムアルミニウム水溶液の通水開始から EC の上昇に伴って急激に低下する。純水切替後は、EC の低下と関係なく pH は概ね一定の値を示す。図-13 ~ 図-15 は通水液の成分である K^+ , Al^{3+} , SO_4^{2-} の濃度変化を EC と比較して整理した (C/C_{max} で正規化)。これらの図によれば、EC の変化は SO_4^{2-} の変化と一致する。陰イオン (Cl^- , SO_4^{2-}) と EC の破過曲線が一致することは興味深く、負電荷を帯びている粘土粒子に吸着していた水素イオン (H^+) と供給された陽イオンとの間でイオン交換が生じ、供給された陰イオンとバランスする形で、粘土粒子に吸着していた H^+ が離脱したものと解釈される。このことは、pH の推移からも理解される。一方、 K^+ , Al^{3+} は EC の変化よりも遅れが生じることがわかる。第二実験の濃度変化の理論解による解析で得た硫酸カリウムアルミニウムの分散係数や遅延係数は、

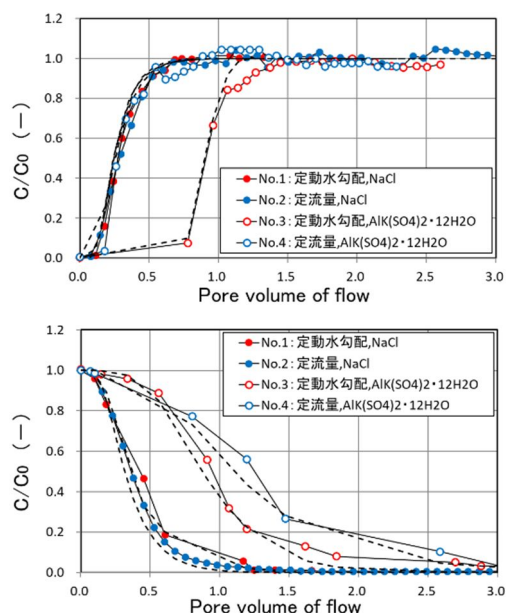


図-7 C/C_0 の理論曲線と実験値の比較

表-1 各パラメータの同定結果

通水方法	溶質	吸着過程		脱離過程	
		分散係数 D (cm ² /s)	遅延係数 R	分散係数 D (cm ² /s)	遅延係数 R
1 定動水勾配 i=2.5	NaCl	3.0×10^{-3}	[1.000]	3.0×10^{-3}	[1.000]
2 定流量	NaCl	7.5×10^{-3}	[1.000]	7.5×10^{-3}	[1.000]
3 定動水勾配 i=2.5	AlK(SO ₄) ₂ · 12H ₂ O	1.5×10^{-4}	2.049	8.5×10^{-4}	1.419
4 定流量	AlK(SO ₄) ₂ · 12H ₂ O	7.5×10^{-3}	1.081	7.5×10^{-3}	3.772

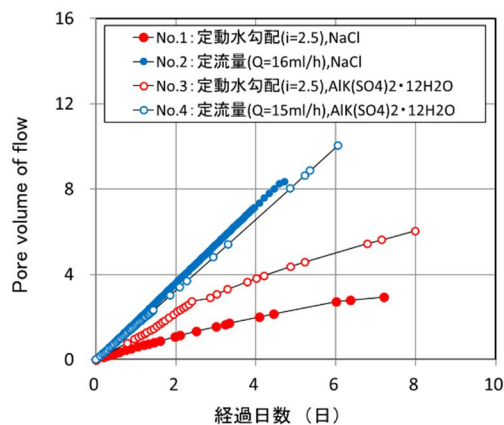


図-8 P.V.F と経過日数の関係

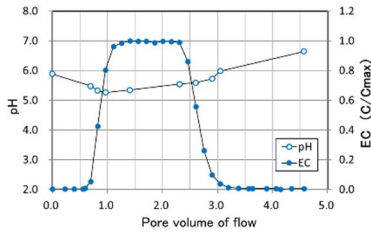


図-9 EC と pH の変化

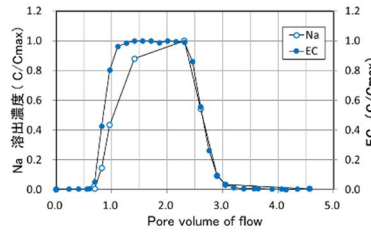


図-10 EC と Na⁺濃度の変化

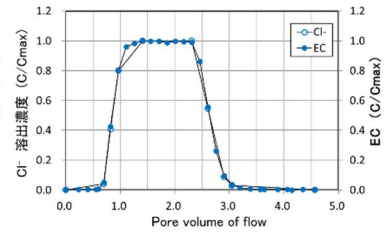


図-11 EC と Cl⁻濃度の変化

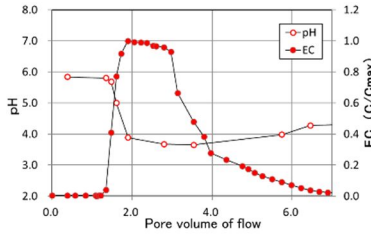


図-12 EC と pH の変化

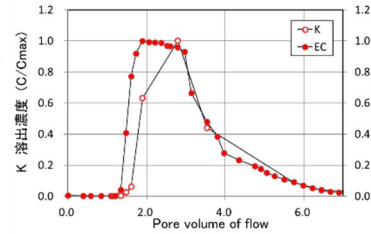


図-13 EC と K⁺濃度の変化

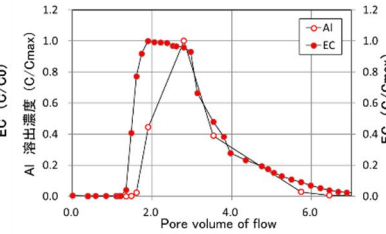


図-14 EC と Al³⁺濃度の変化

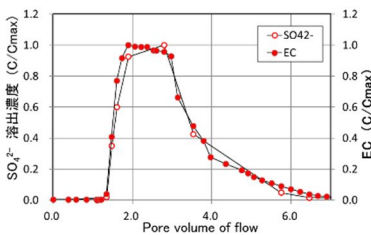


図-15 EC と SO₄²⁻濃度の変化

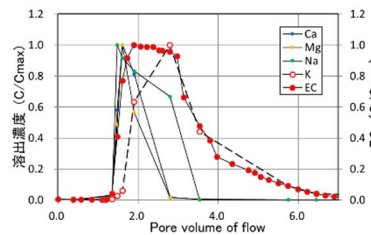


図-16 主要陽イオンの濃度変化

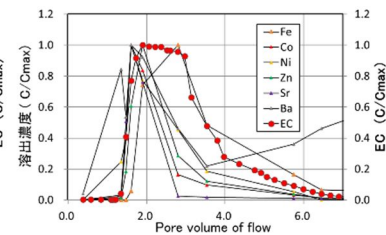


図-17 重金属等の濃度変化

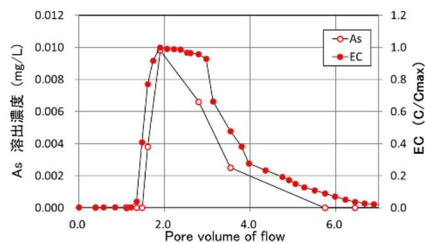


図-18 EC と As 濃度の変化

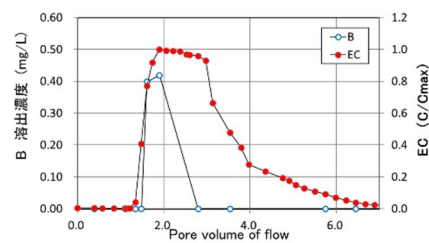


図-19 EC と B 濃度の変化

K⁺, Al³⁺, SO₄²⁻の平均的な値を示していたものと考えられ、K⁺, Al³⁺の遅延係数は、さらに大きな値を見込む必要がある。主要陽イオン(Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺, Na⁺)の溶出量の挙動を図-16に示す。硫酸カリウムアルミニウム水溶液の通水過程において、Na⁺濃度の低下が他の陽イオンよりも遅れる傾向が認められる。K⁺は通水液から供給され、K⁺の濃度の上昇に伴って、K⁺よりもイオン吸着力が弱いNa⁺がイオン交換によって水中に溶出したものと考えられる。

図-17は、図-16で示した主要陽イオン以外に検出された物質の溶出量の挙動を示したものである。概ね主要陽イオンと同様にECの増加とともに濃度が上昇し、硫酸カリウムアルミニウム水溶液の通水中に濃度低下が起こる傾向にあるが、Fe²⁺は硫酸カリウムアルミニウム水溶液の通水中にも濃度が上昇し、通水液の成分であるK⁺, Al³⁺と類似した挙動を示している。また、Ba²⁺は、純水に切り替えた後に再び濃度が上昇する傾向を示した。別途、反応輸送計算ソフト(PHREEQC)により各実験ケースをイオン交換反応によって模擬したところFe²⁺が他の陽イオンよりも遅れて溶出する現象が確認され、この現象はイオン交換反応によるものと推察される。

図-18, 図-19は、BとAsの溶出量の挙動を示したものである。両物質は、実験試料(クレーサンド+珪砂)の成分中に含有していることが確認されているが(底質調査法による全含有量、B: 30mg/kg, As: 1.2mg/kg) NaClの通水実験では検出されていない。硫酸カリウムアルミニウム水溶液通水中のpHの低下やイオン交換反応によりBとAsの溶出が促進されたものと考えられる。

< 引用文献 >

- 1) Soil quality - Leaching procedures for subsequent chemical and ecotoxicological testing of soil and soil-like materials - Part 3: Up-flow percolation test, ISO 21268-3:2019
- 2) 土質工学会：フィルダムの調査・設計から施工まで、1985、p.121
- 3) 中村吉男、小島淳一、肴倉宏史：通水方法の違いによる上向流カラム通水試験の吸着・溶出特性の影響について、第55回地盤工学研究発表会(2020)
- 4) 中村吉男、小島淳一、肴倉宏史：密度条件および通水方法の違いが上向流カラム試験の溶出特性に及ぼす影響について、土木学会第75回年次学術講演会(2020)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 中村吉男、小島淳一、肴倉宏史
2. 発表標題 通水方法の違いによる上向流カラム通水試験の吸着・溶出特性の影響について
3. 学会等名 第55回地盤工学研究発表会（2020）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中村吉男、小島淳一、肴倉宏史
2. 発表標題 密度条件および通水方法の違いが上向流カラム試験の溶出特性に及ぼす影響について
3. 学会等名 土木学会第75回年次学術講演会（2020）
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	肴倉 宏史 (SAKANAKURA Hirofumi) (70331973)	国立研究開発法人国立環境研究所・資源循環・廃棄物研究センター・室長 (82101)	