

令和 6 年 6 月 12 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04257

研究課題名（和文）超音波振動による油汚染地盤の浄化とその力学特性に関する研究

研究課題名（英文）Study on Remediation of Oil Contaminated Ground by Ultrasonic Vibration and Its Mechanical Properties

研究代表者

椋木 俊文（Mukunoki, Toshifumi）

熊本大学・大学院先端科学研究部（工）・教授

研究者番号：30423651

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、油汚染地盤を対象に、超音波を用いた浄化機構を解明することを目的として、油には流動パラフィンを用いて対象供試体内部の汚染流体の残存状態と超音波照射に伴う温度増加の空間分布を測定する実験を行った。本研究で得られた知見を次に列挙する。(1)振動子に近い地盤材料ほど、超音波振動の影響が強いため、間隙水の連続注入があれば、連続的に乳化を生じることができる。(2)超音波エネルギーにより、影響範囲で温度が高くなり、振動子周辺は70度近く温度上昇が期待できることから、不動油の粘性を低下させることができる。得られた成果は超音波照射だけではなく、間隙水の連続注入が不可欠であることも示唆している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、油汚染地盤を対象に超音波を照射し、間隙水と汚染油の乳化を発生させて浄化する新しい浄化手法の提案を目指した。超音波を照射させ、いわゆる乳化を促進する環境を整えることで、既存の手法では回収しにくい不動化した残留油を回収できる可能性を示唆することができた。置換法ができようできないような汚染現場において、汚染流体の流動性を高め、回収することは今後さらに重要な課題になる。本研究は基礎研究であり、本事業期間内に社会実装できる成果は得られてはいないが、地盤材料内部で超音波がもたらす諸現象（乳化、温度上昇、地盤の密実化）による浄化機構を示すことができたことは、学術的にも意義があると考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this study, experiments were conducted to measure the residual state of contaminated fluid and the spatial distribution of temperature increase due to ultrasonic irradiation in oil-contaminated soil using liquid paraffin as the oil. The aim was to elucidate the ultrasound-based remediation mechanism. The findings of this study are as follows: (1) The effect of ultrasonic vibration is stronger on the geomaterials closer to the transducer, allowing continuous injection of pore water to produce continuous emulsification. (2) The ultrasonic energy causes a higher temperature in the area of influence, with a temperature increase of nearly 70 °C expected around the transducer, thus reducing the viscosity of the immobile oil. The results also suggest that continuous injection of pore water is essential in addition to ultrasonic irradiation.

研究分野：環境地盤工学

キーワード：油汚染地盤 超音波 乳化 温度 粘性低下 X線CT画像解析

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

油の貯蔵施設から漏洩による地盤汚染問題が顕在化しつつある。地上から地中の油の滞留状態を特定し、浄化することは容易ではない。油は、常温で液体かつ水より高粘性で比重が水と異なり、さらに水に難水溶性であるため、油の地盤内流動は多相流動となる特徴がある。このような油による汚染地盤を効率的に浄化する手法を開発するためには、地盤中における油の水理特性を把握し、ミクロスケールの現象の理解が不可欠である。一般に、浄化手法としては水を循環させて汚染部をフラッシングする方法や空気を注入し、油をガス化させることにより浄化するエアースパーキング法がある。3次元的に広域に分布する場合、これらの方法は3次元的效果があるというよりは、限りなくピンポイント浄化に近いといえ、3次元的效果のある手法の開発が重要である。研究代表者は、これまで油流動の構成則の背後にあるメカニズムを解明することが重要であることを主張し、これまで模擬汚染砂供試体を対象に、温度を制御した流体注入実験を行い、マイクロ X 線 CT スキャナを用いた画像解析によって、砂の間隙構造、間隙径3次元空間分布、間隙の接続性の解析を実施してきた。この一連の研究で得られた一つの結論は、間隙中に油は残存してしまい、流体注入方法だけでは完全に除去することは困難であるということであった。これは流体間の相互作用に加え、土中の間隙構造特有のインボトル効果によって、圧力ポテンシャルが不均質に分布するからである。そこで、粒状材料中に残存する油を、超音波によって剥離・乳化させ、回収するまでの一連の工程について基礎的実験を重ねてきた。その研究経過の中で以下のような課題も見えてきた。

- (1) 乳化が促進するのは超音波振動によって、土粒子が移動し間隙流体を移動させることで起きるが、長時間の超音波振動は土の間隙状態を相対密度90%以上に変化していくため、緩い構造の地盤における超音波作用は地表面の沈下を誘引する可能性がある。
- (2) 超音波振動によって間隙構造が密になり、透水係数が低下することが示唆されるため、乳化後の油回収量の評価は、振動後の間隙構造の縮小化を考慮しなければならない。
- (3) 現在の実験方法は室内実験用の方法であり、現場で超音波を作用させる方向は、重力方向か水平方向であることを想定した実験方法の確立が必要である。

2. 研究の目的

本研究ではマイクロ X 線 CT スキャナ (Nikon-320XH) を用いて (写真1)、間隙構造の可視化により超音波振動前後の油の地盤内滞留状況および粒子再配列および間隙構造の変化を画像解析し、超音波振動に伴う油の浄化機構の解明し、本手法の可能性を提示することである。

3. 研究の方法

3. 1 X 線 CT を使った間隙内残留油の画像解析

超音波照射を実施すると、一定時間が経過後は乳化が進まない状態になる。それは間隙水中においてパラフィンの限界溶解状態に到達していることを意味する。そこで本研究では超音波を照射して一定時間経過後に供試体下部から溶媒を注入する通水実験も行い、超音波照射のみの実験と得られる X 線 CT 画像の比較を行った (写真2と写真3)。



写真1 Nikon CT



写真2 超音波照射と通水実験の様子様子

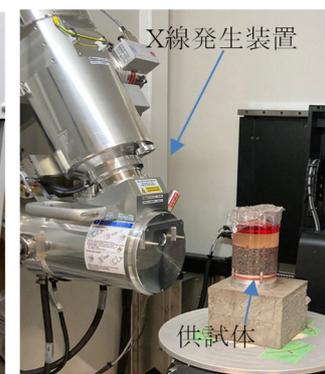


写真3 CT 撮影様子

3. 2 乳化に伴う温度変化の空間分布分析

超音波照射方向への温度分布を調べる実験を行った。これは、超音波発生電力を大きくすると、振幅が大きくなることから、振動エネルギーが最終的に熱に代わることから、供試体が熱を帯びることを確認した。温度増加は、間隙流体の粘性低下に寄与できることから、これを超音波照射による汚染地盤浄化の付加価値と捉え、メスシリンダーを用いて細長い円柱地盤を準備し、超音波照射方向の温度分布を調べた。以下にその手順を述べる。

(1) 超音波照射時間が 50 分の場合

Step 1 : 高さ 430mm, 内径 62.8mm の 1L メスシリンダーに珪砂 3 号と水を入れ作成した。珪砂の量は 970cm で水を珪砂表面から 1cm まで注入した。また, それぞれの出力での温度上昇を調べるため 7 個の供試体を作成した。

Step2 : 超音波照射

Step1 で作成した供試体に超音波照射時間 10 分水面から 超音波照射を行った。その際, 超音波照射 を行っているメスシリンダー表面から 1m の地点からサーモトレーサーでメスシリンダーの表面温度を測定した。

Step3 : 表面温度測定

Step2 で示した温度測定方法で初期状態から 1 分おきに 50 分まで, 19 回熱画像を取得した。その後, 得られた熱画像から表面温度の変化を読み取った。また, 温度計を珪砂表面から 5cm まで差し込み直接温度を測定した。その後, 得られた熱画像から表面温度の変化を読み取った。

4. 研究成果

4. 1 超音波照射と間隙水の連続注入

X 線 CT 撮影を行う際に CT 画像上で油と水の密度が小さいためそれぞれの区別が困難である。そこでコントラストを出すために, 注入流体を水の代わりに水に対して X 線吸収量の大きいヨウ化カリウム(KI)水溶液を用いた。ここでは KI 水溶液と珪砂, 流動パラフィンそれぞれの材料間でコントラストが明確になった 5%(密度 $\rho_w=1.035\text{g/cm}^3$)の KI 水溶液の濃度を採用した。表 1 は X 線 CT 撮影条件を示す。

表 1 X 線 CT 撮影条件

| | |
|--------------------------|-----------|
| 電圧(kV) | 230 |
| 電流(μA) | 200 |
| Frames | 200 |
| ゲイン(dB) | 18.0 |
| ピクセルサイズ(μm) | 51.47 |
| 画像サイズ | 2000×2000 |
| フィルター枚数 | 0 |
| 幾何倍率 | 3.886 |

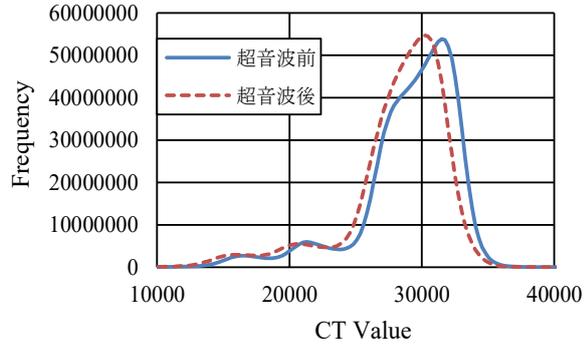


図 1 超音波前後の CT 値ヒストグラム

表 2 超音波照射のみの実験

| | 実験前 | 実験後 |
|-------------------------|-------|--------|
| 油体積(mm^3) | 11546 | 13645 |
| 油割合 | 0.048 | 0.056 |
| Blob数(個) | 25547 | 30835 |
| Blob体積(mm^3) | 0.45 | 0.44 |
| 油除去率(%) | | -18.18 |

表 3 供試体高さ領域ごとの体積変化

| 供試体高さ(%) | 実験前油体積(mm^3) | 実験後油体積(mm^3) | 体積変化 | 除去率(%) |
|----------|-------------------------|-------------------------|--------|--------|
| 0-20 | 2324.5 | 2854.0 | -529.5 | -18.6 |
| 20-40 | 2485.2 | 2960.7 | -475.5 | -16.1 |
| 40-60 | 2549.7 | 2941.9 | -392.2 | -13.3 |
| 60-80 | 2521.3 | 2954.6 | -433.3 | -14.7 |
| 80-100 | 1711.9 | 1989.6 | -277.7 | -14.0 |

(1)CT撮影結果

(a)超音波照射実験

図 1 は超音波照射前後の CT 画像の CT 値ヒストグラムである。表 2 は 3 次元画像に対してラベリング処理を行った後, 超音波照射前後の油の体積, Blob 数を示したものである。図 2 は, 供試体内部の残存している流動パラフィンである。超音波照射前後で流動パラフィンが劇的に減少したという印象はないが, 超音波照射前に存在した大きいパラフィンの塊が小さくなっている。表 2 からは油の体積は超音波照射前が 11546mm^3 であるのに対し, 超音波照射後は 13645mm^3 となり 2099mm^3 も体積が増加し, 油除去率は -18% となっていることがわかる。Blob 数(塊)は超音波照射前後で 27622 個から 33172 個に増加した。表 3 は供試体を上部から 5 等分し, それぞれの領域ごとの油の体積変化を示したものである。表 3 より全体的に油が増加しており, 特に超音波ホーンに近い供試体上部から 20%までの領域ほど体積が増加している。このように超音波照射による乳化によって油の体積が減ると考えていたが, 必ずしもそうはなっていないことがわかった。この結果の解釈は以下のように k ンが得ることができる。超音波照射が残存するパラフィンに与える物理

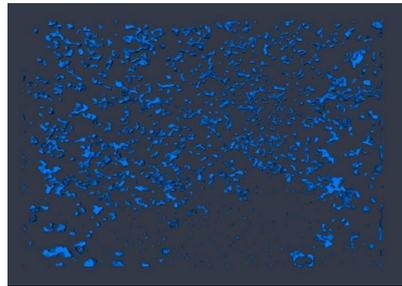


図 2(a) 供試体 A 実験前の断面画像

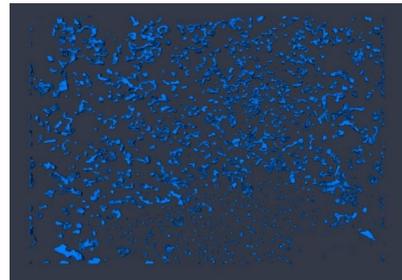


図 2(b) 供試体 A 実験後の断面画像

挙動は、

- (1) 振動による残存油が移動する、
- (2) 間隙水と乳化する、
- (3) 超音波エネルギーによる温度上昇に伴う油の粘性低下とそれに伴う流動化する

である。これは超音波の振動作用によって、CT撮影範囲外の供試体下部から油が浮上してきたと考える。1点目のCT値変化については閾値設定の際にMCW法を用いるのではなく、図1に示す得られたCT値のヒストグラムから油部分の最小点を閾値と設定した。以上のように閾値を設定し油部分のみの体積変化を測定すると超音波照射前体積11941mm³であり、超音波照射後は11882mm³となり体積は59mm³減少し、除去率は0.49%となり油の除去はできたが変化が小さく、超音波照射のみでは、油の浄化は効果的でないことが示唆されたといえる。

(b) 通水+超音波実験

実験前後の油体積変化とBlob数変化を表4に示す。実験前の油の体積は10394mm³でBlob数は7749個であり、通水と超音波照射実験後は体積が6459mm³、Blob数が28492となり油の体積は減少しているがBlob数が約4倍以上に増加している。このことから、超音波照射によって大きな油の塊が細かく分散されて流動性が高まり除去されたと考える。除去率(体積変化)は37%となり超音波のみ、通水のみの実験よりも除去率が高いため効果的であることが分かった。

図3の鉛直断面図から全体的に油が減少したように見えるが、供試体の上部では体積が増加して見える。そこで供試体を上から10等分してそれぞれの領域ごとの油の体積測定を行ったものを表5に示す。この表を用いて高さと除去量の関係をグラフにしたものを図4示す。図4、表10より超音波が発生するホーンから離れた供試体下部になるにつれて除去量が増加している。そのため供試体の底部まで超音波の効果があることが分かる。また、実験後の供試体の上から10%までの領域では除去率が負の値をとっており、除去前より体積が約2.5倍に増加している。このような結果として、供試体下部に存在していた油が超音波振動によって浮上して供試体の上部にトラップされたと考える。また、超音波ホーンに近い供試体上部になるほど乳化反応が起きやすいため、超音波のみの実験の時と同様に乳化して油のCT値が変化したのではないかと考える。

4.2 超音波照射中の温度測定実験

ここでは、超音波照射により対象地盤の温度が定常状態になるがおよそ50分程度であることが分かったため、その実験結果に着目して、以下議論する。

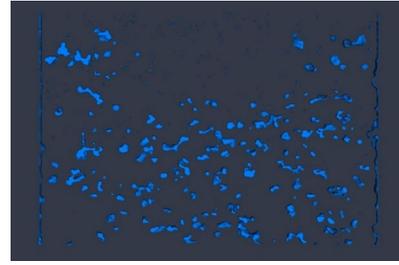


図3(a) 供試体C 実験前断面画像

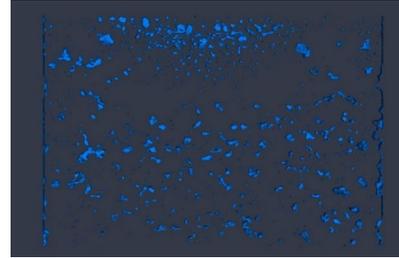


図3(b) 供試体C 実験後断面画像

表4 超音波照射+通水実験

| | 実験前 | 実験後 |
|--------------------------|-------|-------|
| 油体積(mm ³) | 10394 | 6459 |
| 油割合 | 0.043 | 0.026 |
| Blob数(個) | 7749 | 28492 |
| Blob体積(mm ³) | 1.34 | 0.23 |
| 油除去率(%) | 37.86 | |

表5 超音波照射+通水実験
供試体高さ領域ごとの体積変化

| 供試体高さ(%) | 実験前油体積(mm ³) | 実験後油体積(mm ³) | 体積変化 | 除去率(%) |
|----------|--------------------------|--------------------------|-------|--------|
| 0-10 | 370.9 | 925.7 | 554.8 | 149.6 |
| 10-20 | 648.0 | 531.2 | 116.8 | 18.0 |
| 20-30 | 888.1 | 537.3 | 350.8 | 39.5 |
| 30-40 | 1019.7 | 531.0 | 488.7 | 47.9 |
| 40-50 | 1178.4 | 612.9 | 565.6 | 48.0 |
| 50-60 | 1348.0 | 752.1 | 595.8 | 44.2 |
| 60-70 | 1162.8 | 648.7 | 514.1 | 44.2 |
| 70-80 | 1255.2 | 707.8 | 547.4 | 43.6 |
| 80-90 | 1195.3 | 687.4 | 507.8 | 42.5 |
| 90-100 | 1325.5 | 521.6 | 803.9 | 60.6 |

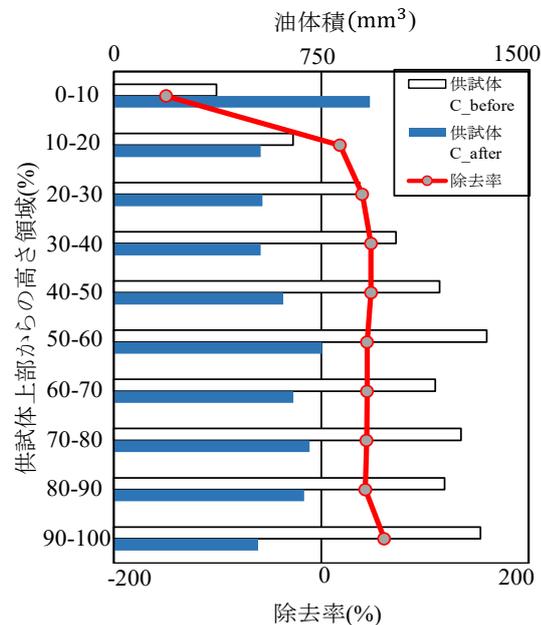


図4 供試体高さとおの体積変化の関係

表6 時間毎の供試体最高表面温度

| 時間(min) | 最高温度(°C) | 時間(min) | 最高温度(°C) |
|---------|----------|---------|----------|
| 0 | 20.7 | 15 | 56.0 |
| 1 | 22.9 | 20 | 60.0 |
| 2 | 27.6 | 25 | 62.3 |
| 3 | 31.5 | 30 | 63.9 |
| 4 | 35.1 | 35 | 64.6 |
| 5 | 38.1 | 40 | 65.2 |
| 6 | 40.9 | 45 | 64.2 |
| 7 | 43.1 | 50 | 65.2 |
| 8 | 45.3 | | |
| 9 | 47.0 | | |
| 10 | 49.0 | | |



写真4 超音波照射実験と温度測定実験の様子

(1) 供試体内部の温度分布

表6と図5はそれぞれのサーモグラフィーで測定した各時間におけるメスシリンダーの表面最高温度とそのグラフを示している。超音波照射後まもなく、温度は増加し始めていることがわかる。また、超音波照射50分時点で棒状温度計で供試体内部を直接測定した温度は73°Cであり、サーモグラフィーの測定はあくまでメスシリンダー表面の温度であり、図5より、表面と供試体内部の温度差は定常状態において7.8°Cであることを確認した。今回の温度測定実験の結果は1Lメスシリンダーを実験供試体容器に用いた場合の結果であり、より一般的な超音波による温度上昇を評価するためには熱収支による評価をする必要がある。

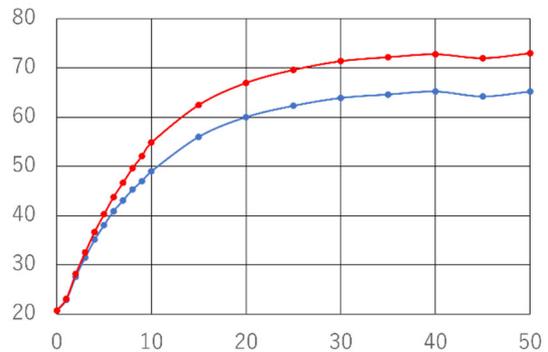


図5 供試体内部（赤）と表面（青）の温度

図6は珪砂表面からの深さ方向の距離とメスシリンダーの表面温度のグラフである。この図から供試体下部は温度上昇していないこと、また超音波発生装置の出力を上げると温度上昇する範囲が大きくなることが確認できる。また、超音波発生出力値が大きくなるほど、深さ方向への温度分布は大きくなっていることがわかる。280.4Wでは、超音波照射口と同程度の温度をおよそ5cmまで維持することができることがわかった。

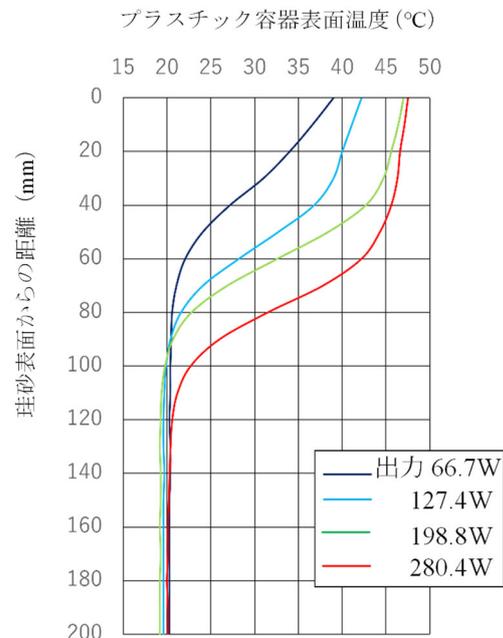


図6 供試体表面の深さ方向温度分布

5 まとめ

本研究で得られた知見を以下に列挙する。

- (1) 振動子に近い地盤材料ほど、超音波振動の影響が強いため、間隙水の連続注入があれば、連続的に乳化を生じることができる。
- (2) 超音波エネルギーにより、影響範囲で温度が高くなり、振動子周辺は70°C近く温度上昇が期待できることから、不動油の粘性を低下させることができる。

以上より、次のことを提案する。

- (1) 間隙内の残留油の流動性を高める目的として、超音波照射と間隙水の連続注入を行う。
- (2) 移動してきた間隙水に超音波照射と間隙水を連続注入し乳化を促進する。

これらを実装するフレームを構築することにより、新しい汚染地盤の浄化方法を提案できるが、超音波エネルギーの増幅は、同時に地盤の流動化や土粒子破碎を促進させてしまう懸念も残っていることから、対象地盤に合わせた最適な超音波発生電力を提案する必要がある。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 Toshifumi Mukunoki, Shintaro Shikita and Jiaxi Yang |
| 2. 発表標題 Evaluation of emulsion of residual oil and pore water in soil using ultrasonic wave via X-ray CT |
| 3. 学会等名 The 20th International Conference on Soil Mechanics and Geotechnical Engineering (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 出口 功武, 椋木 俊文 |
| 2. 発表標題 超音波作用による間隙内残留油の浄化の定量評価に関する研究 |
| 3. 学会等名 令和3年度土木学会西部支部年次講演会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|----------------------------------|
| 1. 発表者名 椋木俊文 |
| 2. 発表標題 超音波作用による粒状体内残留油の浄化の試み |
| 3. 学会等名 令和5年度土木学会西部支部年次講演会 |
| 4. 発表年 2024年 |

〔図書〕 計2件

| | |
|--|-----------------|
| 1. 著者名 利光 信之介 | 4. 発行年 2023年 |
| 2. 出版社 令和4年度熊本大学工学部土木建築学科 | 5. 総ページ数 13 |
| 3. 書名 超音波照射に伴う地盤材料内部の温度変化及び物性変化の評価に関する基礎的研究 | |

| | |
|---|-----------------|
| 1. 著者名 出口 功武 | 4. 発行年 2022年 |
| 2. 出版社 熊本大学工学部土木建築学科 | 5. 総ページ数 15 |
| 3. 書名 超音波作用による粒状体間隙構造中の 残留油除去量の定量評価に関する基礎的研究 | |

〔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 |
|---------------------------|-----------------------|----|
|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|