

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 4 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011 ～ 2012

課題番号：23656296

研究課題名（和文） 自然由来で環境問題を引き起こしうる掘削土を、直接活用する対応のメカニズムと設計

研究課題名（英文） Effective utilization of the excavated soils with natural contamination - Mechanism and design

研究代表者

勝見 武 (KATSUMI TAKESHI)

京都大学・地球環境学堂・教授

研究者番号：60233764

研究成果の概要（和文）：本研究では、自然起源で重金属を含有したり酸性を呈する土砂や岩石を直接活用する対策法について、実験的検討を行った。検討の結果、1) ジオシンセティッククレイライナー（GCL）は、ベントナイトの初期膨潤が期待できる条件下では高い遮水性能を発揮しうる、2) GCL は、重金属含有浸出水に対して高い重金属緩衝能を示す、3) 溶液中の砒素は、先行して吸着された他の共存物質に二次的に吸着され錯体を形成する、4) ベントナイトの初期膨潤が阻害される条件下では、GCL やベントナイト混合土の遮水性能が低下する、等が明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：This research aims to establish proper countermeasures for the utilization of soils and rocks potentially containing metals and/or acidity. From the experimental results, following issues were verified: 1) Geosynthetic clay liner (GCL) shows low hydraulic conductivity when the bentonite can be sufficiently swelled, 2) GCL can perform relatively high metal attenuation capacity against the solutions containing metals and comparatively high acidity, 3) Arsenic in a solution is immobilized on the other precipitated metals coexisting in the solution through a surface complexation reaction, and 4) A hydraulic conductivity of bentonite-based materials, such as GCL and soil-bentonite mixture, increased under the conditions that the swelling of bentonite is inhibited.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：土木工学・地盤工学

キーワード：地盤環境工学，ジオシンセティッククレイライナー（GCL），透水試験，酸性廃水，重金属，ベントナイト混合土，吸着試験，遮水層

## 1. 研究開始当初の背景

我が国では、鉱床や海成堆積物など自然起源で重金属を含有している場合や、パイライト鉱物などを含有するため、空気に触れると酸化して硫酸を生成しうる土砂や岩石が広く存在する。このような土砂や岩石が堆積する地盤において工事を行う際には、土砂に含まれている重金属が環境基準を超えて溶出したり、掘削によって土砂が曝気されて酸性水が発生するなどの環境問題が生じる可能

性があり、十分な対応が必要である。

このような自然由来重金属基準超過土の問題については、2003年に施行され、2010年に改正された土壤汚染対策法にも関連して、最近の重要な地盤環境問題となっている。一方でこのような自然由来の汚染土壌は、当該地から掘削除去し、例えば処分場等に場外搬出されるケースが未だ多く、運搬時の二次汚染リスクや過剰な対策費用等について議論されることが多い。

## 2. 研究の目的

上記のような背景を受け、本研究では、自然的原因で重金属を含有していたり酸性を呈する掘削土砂や岩石を、そのまま直接活用する対策法を提案することを目的とした。具体的には、粘土系遮水材を底部遮水工に用いた場合の環境負荷低減効果を定量化すべく、①粘土系遮水材により重金属の溶出や酸性水の溶出は抑制できるのか、②粘土系遮水材を底部遮水工に用いることで、重金属や酸性水の透過は抑制できるのか、③粘土系遮水材を用いて効率的に環境保全対策を行うには、どのような構造、設計方針が妥当か、といった点を科学的に明らかにすべく、実験的検討を行った。

## 3. 研究の方法

本研究で対象とする重金属含有土砂の適用イメージを図-1に示す。図に示すように粘土系遮水材を底部遮水工として用い、重金属を含んだり酸性を呈する土砂や岩石を、基盤として直接利用する対策法について検討を行ったものである。具体的には、底部遮水工に用いる粘土系遮水材としてジオシンセティッククレイライナー（以下、GCL）やベントナイト混合土を想定し、その遮水性能や重金属緩衝能を評価した。ジオシンセティッククレイライナーとは、2枚のジオテキスタイル（織布もしくは不織布）の間に天然鉱物であるベントナイトを挟み込んだ、厚さ5～10mmの工場製品であり、処分場の底部遮水等への適用事例がある。本研究では、GCLにBentofix® NSP 4900を用い、以下に示す各種検討を行った。

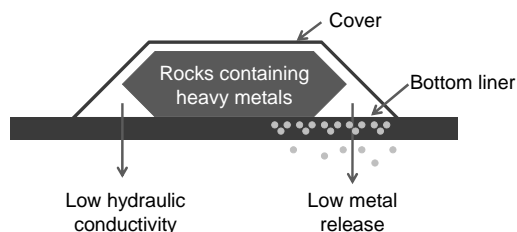


図-1 粘土系遮水材を底部遮水に用いた封じ込め措置の概念図

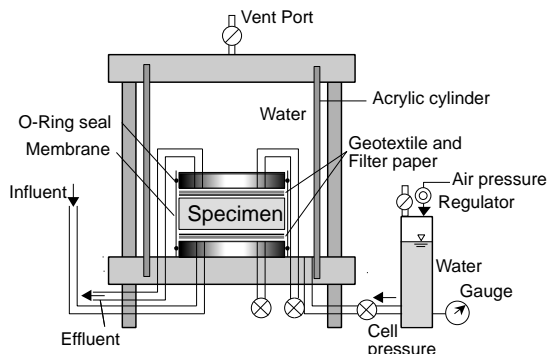


図-2 透水試験装置の概略図

(1) 透過する溶液の重金属濃度や pH が、粘土系遮水材の遮水性能にどのように影響するのか

GCL中のベントナイトは、蒸留水等に初めに曝露された場合、高い膨潤性を発揮するものの、カチオンを含む溶液に接した場合ベントナイトの膨潤が阻害され、結果的にGCLの遮水性能が低下することが懸念される。自然由来で発生する酸性廃水は、空気曝露された結果生じる硫酸に起因して低pHを示す場合や、比較的高い重金属濃度を有している場合があり、これら低pHや重金属が、ベントナイトの膨潤に対して阻害要因となることが考えられる。

そこで本研究では、重金属を含有する酸性廃水がGCLの遮水性能に及ぼす影響、及び酸性を呈する土砂を母材に用いた場合のベントナイト混合土の遮水性能を定量化すべく、種々の条件下でベントナイトの膨潤試験及び透水試験を行った。膨潤試験とは、所定の溶液に粉体状のベントナイト（GCLから取り出したもの）を少量ずつ計2.0g投下し、静置後のベントナイトの膨潤量を評価する試験である。透水試験には、GCLや締固め粘土ライナーのような低透水性材料の遮水性能を評価する際に広く用いられている、図-1に示す柔壁型透水試験装置を用いた。

(2) GCLを底部遮水工に用いることで、重金属や酸性水の透過は抑制できるのか

(1)ではGCLやベントナイト混合土の遮水性能を検証するが、ベントナイトは粘土鉱物であり、比表面積が大きく粒子表面が負電荷を帯びていることや、陽イオン交換反応等により、重金属の吸着作用が期待できる。そのため遮水性能に加えて重金属等に対する吸着性能が発揮されれば、遮水層として非常に有効である。さらに実環境で発生する自然由来の基準超過土や酸性廃水の中には、単一種ではなく複数種の重金属を含有する場合があり、このような条件下での吸着特性を評価しておくことは、実施工に向けた極めて重要な事項となりうる。

そこで、ICP発光分析装置を用いて、(1)で記した透水試験時の浸出水及び流入水の化学組成を分析し、前後の濃度変化を評価することで、GCLの重金属緩衝能を評価した。また重金属の種類や濃度の異なる溶液に対して吸着試験を行い、吸着重金属の選択性を評価した。対象とする重金属含有溶液には、実際に採取された酸性廃水のほか、ヒ素や鉛等を単一あるいは複数種混合した模擬浸出水を使用した。本研究では、対象とする溶液50mLに対して0.1gの乾燥ベントナイト（GCLから取り出したもの）を添加し、振とう前後の重金属濃度からベントナイトの吸着率を求めた。

#### 4. 研究成果

##### (1) ベントナイトの初期膨潤が GCL の遮水性能に及ぼす影響

透水試験は、GCL を対象に、表-1 に示す各条件で実施した。図-3~5 に各ケースの試験結果を示す。これらの結果から、初期曝露溶液、透水溶液ともに蒸留水を用いた Case 1 (図-3) で最も小さい透水係数を示すことがわかる。また初めに GCL を蒸留水に曝露させ、その後酸性廃水を透水させた場合 (Case 2, 図-4), 初期から酸性廃水を透水させた場合 (Case 3, 図-5) と比べ、小さい透水係数を示していることがわかる。排出水の pH 及び EC が平衡に達した Pore volumes of flow (PVF, 間隙体積に対する排出水の比率) = 150 前後で比較すると、透水係数は Case 2 で  $1.1 \times 10^{-10}$  m/s, Case 3 で  $5.0 \times 10^{-10}$  m/s である。これらの結果から、GCL 中のベントナイトを十分に水和膨潤させることによって、GCL の遮水性能を高めることが期待できる。Case 3 (図-5) において、時間の経過とともに透水係数が低下していることが確認できるが、これは溶液中の金属類に起因して目詰まりを起こしたためであると考えられる (写真-1 参照)。

表-1 透水試験の実験条件

	初期曝露溶液	透水溶液
Case 1	蒸留水	蒸留水
Case 2	蒸留水	酸性廃水
Case 3	酸性廃水	酸性廃水

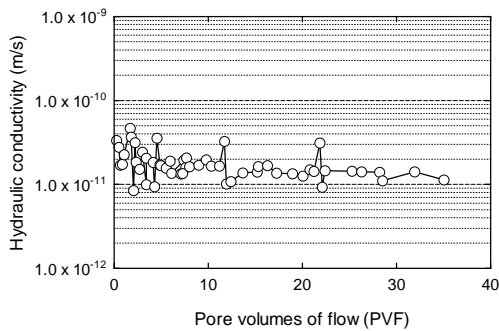


図-3 初期曝露溶液、透水溶液ともに蒸留水を用いた透水試験結果 (Case 1)

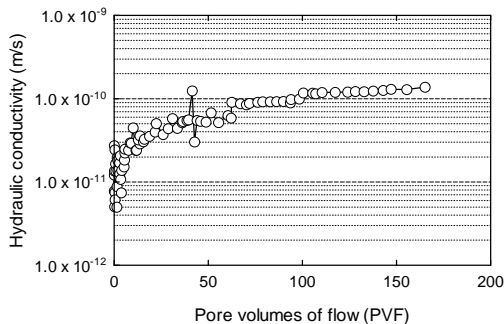


図-4 初期曝露溶液に蒸留水、透水溶液に酸性廃水を用いた透水試験結果 (Case 2)

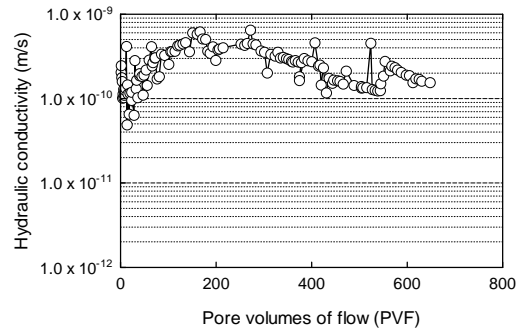


図-4 初期曝露溶液、透水溶液ともに酸性廃水を用いた透水試験結果 (Case 3)



写真-1 透水試験終了後の GCL の様子 (左: Case 1, 右: Case 3)

##### (2) 透過する溶液や母材となる土砂の pH が遮水性能に及ぼす影響

図-5 に、pH の異なる溶液に対して実施した、ベントナイトの膨潤試験結果を示す。この結果から、pH の低下に伴いベントナイトの膨潤量は低下し、pH = 1 の場合には 15 mL/2g-bentonite 程度までベントナイトの膨潤量が低下することがわかる。

図-6 は、異なるベントナイト添加量で作製されたベントナイト混合土の、透水係数を示したものである。深草粘土は pH が 3 程度の酸性土であり、図-6 に示したとおり深草粘土を混合したケースでは、透水係数が上昇することがわかる。ベントナイトを添加していないケース ( $C_{BP} = 0 \text{ kg/m}^3$ ) の透水係数は、珪砂と深草粘土の混合土の方が小さいにも関わらず、 $C_{BP} = 100 \text{ kg/m}^3$  のケースでは混合土の透水係数が大きいことから、ベントナイ

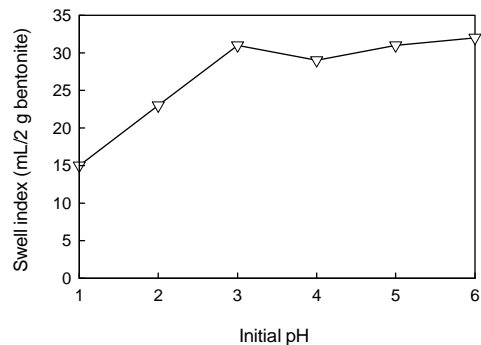


図-5 溶液の初期 pH とベントナイトの膨潤量の関係

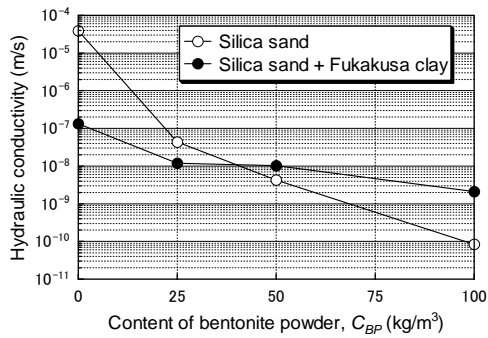


図-6 粉体ベントナイト添加量がベントナイト混合土の透水係数に及ぼす影響

トの膨潤が阻害されたことが確認できる。これらの結果から、ベントナイトを主材料とする遮水材の遮水性能は、初期溶液及び母材の pH に影響を受けるといえる。

### (3) GCL による重金属濃度減衰効果

図-7 は 4. (1) で述べた透水試験の Case 3 において、GCL を通過した後の排出水の化学組成を評価し、初期溶液中の重金属濃度との比率を図化したものである。この結果から、Fe, Cu, Zn, Al, Pb の各種重金属に対し、それぞれ PVF = 210, 160, 70, 260, 200 の時点で排出水の濃度が流入水の濃度と同等になることがわかる。その後各重金属は脱着に転じるが、流入水量が間隙体積の 70 倍程度までであれば重金属濃度が減衰されており、GCL の重金属緩衝能が確認できる。一方ヒ素については、試験期間を通して排出水の濃度は流入水の濃度と比べ低い値を示しており、高い吸着能を維持しうることがわかる。

図-8 は、バッチ吸着試験の結果であり、2 ~ 80% の希釈濃度に調整した実際の酸性廃水 50 mL に対して、1.0 g の乾燥ベントナイト (GCL から取り出したもの) を添加し、振とう前後の重金属濃度からベントナイトの吸着率を求めたものである。この結果から、低濃度の酸性廃水に対しては、ヒ素を除くいずれの重金属に対しても、GCL は高い吸着能を発揮しうることが明らかとなった。また高濃度 (80% = 0.8) の酸性廃水に対しては、Al = As > Cu > Fe > Pb > Zn の順に高い吸着性を示すことがわかった。ヒ素は他の重金属とは異なる傾向を示しており、酸性廃水の濃度が高くなるほど高い吸着性を示している。これは、ヒ素の吸着メカニズムは主に、先行して吸着された他の共存物質に二次的に吸着され、錯体を形成するためであると考えられる。

図-9 は、ヒ素に加えてもう 1 種の重金属を混合した溶液に対して、同様の吸着試験を行ったものである。この結果から、鉄が溶液中に共存する場合、相対的にヒ素の吸着率が上昇していることがわかる。このことから、ヒ

素の吸着特性には特に共存する鉄イオンの果たす役割が大きく、その存在によってその後のヒ素の吸着性が変化するものと考えられる。

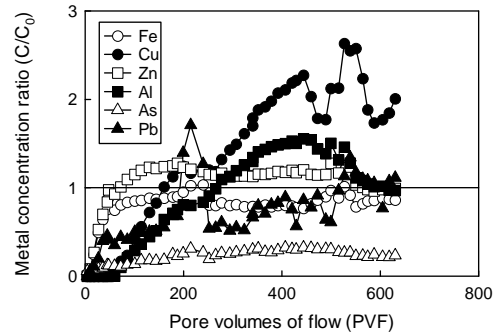


図-7 透水試験の排出水の重金属濃度の変化 (Case B)

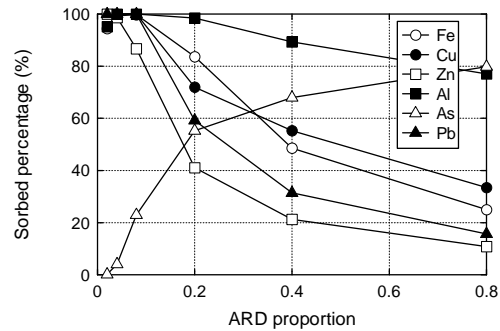


図-8 各 ARD 濃度における重金属の吸着率

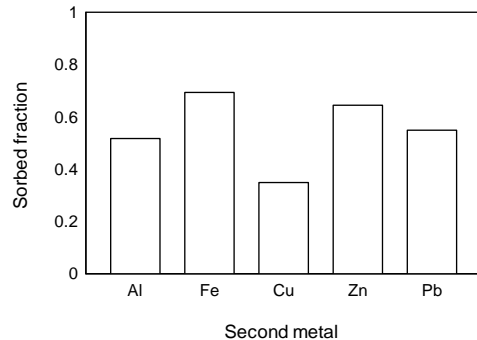


図-9 共存重金属ごとのヒ素吸着率

### (4) 粘土系遮水材を用いて効率的に封じ込め措置を行うには、どのような構造、設計方針が妥当か

重金属を含有したり酸性を呈する土砂や岩石の封じ込め措置としては、遮水性能及び吸着特性の観点から遮水層の構造を検討する必要がある。

遮水性能の観点からは、ベントナイトを主成分とする GCL やベントナイト混合土を適用する場合、ベントナイトの初期膨潤がその

後の遮水性能に大きく影響を及ぼすことから、ベントナイトが十分に膨潤しうる環境下で遮水層を設置することが重要であるといえる。

また吸着特性の観点からは、ヒ素の吸着には、錯体形成のために他の共存物質が必要であることに留意する必要がある。浸出水にヒ素のみが含有される場合においては、鉄等を含む層を敷設するなどの追加措置を検討すべきである。ただし浸出水に複数種の重金属が含有される場合には、ヒ素以外の物質がヒ素吸着の補助的役割を担うと考えられるため、GCL単体で利用を図ることも可能であると考えられる。いずれにせよ、ヒ素を除く重金属濃度は経時的に上昇し、ある時点で破過に至ることから、表面排水や底部排水を適切に行い、底部遮水層への流入量を低下させることが不可欠であるといえる。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 20 件)

- ① Inui, T., Yasutaka, T., Endo, K., and Katsumi, T. (2012): Geo-environmental issues induced by the 2011 off the Pacific Coast of Tohoku Earthquake and tsunami, *Soils and Foundations*, Vol.52, Issue 5 (Special Issue on Geotechnical Aspects of the 2011 off the Pacific Coast of Tohoku Earthquake), pp.856-871, 査読有.DOI : なし
- ② Katsumi, T., Kotake, N., and Viswanadham, B.V.S. (2012): Geosynthetics for environmental protection – Compatibility and integrity, *Geosynthetics Asia 2012 - 5th Asian Regional Conference on Geosynthetics*, D.T. Bergado (ed.), pp.47-68, 査読有 . DOI : なし
- ③ Naka, A., Katsumi, T., Ohta, T., Flores, G., Inui, T., and Takai, A. (2012): Geosynthetic clay liner permeated with acid rock drainage: The role of iron in arsenic immobilization, *Geosynthetics Engineering Journal*, Vol.27, pp.39-46, 査読有 . DOI : なし
- ④ Naka, A., Katsumi, T., Inui, T., Flores, G., Ohta, T., Urakoshi, T., and Ishihara, T. (2012): Evaluation of mineral barriers against acid rock drainage, *Geotechnical Engineering Journal*, Journal of the Southeast Asian Geotechnical Engineering Society, September Issue, pp. 35-42, 査読有 . DOI : なし
- ⑤ Ishimori, H. and Katsumi, T. (2012): Temperature effects on the swelling capacity and barrier performance of geosynthetic clay liners permeated with sodium chloride solutions, *Geotextiles and Geomembranes*, Elsevier, Vol.33, pp.25-33, 査読有 . DOI : なし
- ⑥ Naka, A., Katsumi, T., Inui, T., Takai, A., Flores, G., and Ohta, T. (2012): Mineral barriers against natural contamination from excavated rocks, *Advances in Transportation Geotechnics II*, S. Miura, T., Ishikawa, N. Yoshida, Y. Hisari, and N. Abe (eds.), CRC Press (on USB), 査読有 . DOI : なし
- ⑦ 高井敦史・乾 徹・勝見 武・嘉門雅史・荒木 進 (2012): ソイルベントナイト連続遮水壁の遮水性能に及ぼす影響因子, *土木学会論文集 C*, Vol.68, No.1, pp.1-14, 査読有 . DOI : なし
- ⑧ Naka, A., Katsumi, T., Inui, T., Takai, A., and Ohta, T. (2011): Long-term performance of geosynthetic clay liners used in acid rock drainage mitigation, *Geosynthetics Engineering Journal*, Vol.26, pp.137-144, 査読有 . DOI : なし
- ⑨ Naka, A., Katsumi, T., Inui, T., Flores, G., and Ohta, T. (2011): Na-bentonite as rock containment barrier against heavy metals and acid leachates, *GEOMATE 2011 - First International Conference on Geotechnique, Construction Materials & Environment (on CD)*, 査読有 . DOI : なし
- ⑩ 勝見 武・高井敦史・大嶺 聖・風間基樹・乾 徹 (2011): 宮城県沿岸部における津波堆積物の物理化学的特性, 地下水地盤環境に関するシンポジウム 2011—水環境の保全と育水—発表論文集, pp.83-90, 査読有 . DOI : なし

[学会発表] (計 10 件)

- ① Naka, A., Katsumi, T., Ohta, T., and Flores, G. : Environmental impacts of the reuse of the excavated rocks: study cases in Japan and Peru, 第 49 回環境工学研究フォーラム特別企画関連事例発表セッション, 2012/11/29, 京都大学百周年時計台記念館 (京都市) .
- ② 高井敦史・遠藤和人・保高徹生・勝見 武・東日本大震災対応調査研究委員会 地盤環境研究委員会: 福島県沿岸部における津波堆積物の分布特性とキャラクターゼーション, 第 47 回地盤工学研究発表会, 2012/7/15, 八戸工業大学 (八戸市) .
- ③ 乾 徹・片山真理子・勝見 武・高井敦史 : 長期屋外曝露試験による自然由来重金属を含有する岩石の溶出挙動, 第 18 回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会, 2012/6/15, 埼玉会館 (さいたま市) .
- ④ Naka, A., Li, Z., Inui, T., Takai, A., Katsumi, K., and Ohta, T. : Barrier performance of bentonite against acid rock drainage, 第 46 回地盤工学研究発表会, 2011/7/7, 神戸国

際会議場（神戸市）。

- ④ 片山真理子・弘田実俊・乾 徹・高井敦史・勝見 武: 自然由来重金属を含有する岩石の溶出挙動の評価, 第46回地盤工学研究発表会, 2011/7/5, 神戸国際会議場（神戸市）。
- ⑤ 片山真理子・弘田実俊・乾 徹・勝見 武・高井敦史 (2011): 自然由来重金属を含有する岩石の溶出挙動に及ぼす試験法の影響, 第17回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会, 2011/6/16, サンプリアン川崎（川崎市）。
- ⑥ Naka, A., Katsumi, T., Inui, T., Li, Z., Takai, A., and Ohta, T. : Bentonite Barrier against heavy metal and acid rock drainage, 第17回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会, 2011/6/16, サンプリアン川崎（川崎市）。

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

勝見 武 (KATSUMI TAKESHI)  
京都大学・地球環境学堂・教授  
研究者番号：60233764

### (2) 研究分担者

乾 徹 (INUI TORU)  
京都大学・地球環境学堂・准教授  
研究者番号：90324706

高井 敦史 (TAKAI ATSUSHI)  
京都大学・地球環境学堂・助教  
研究者番号：30598347