

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 10 月 9 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289149

研究課題名(和文) 岩盤掘削ずり対策のための吸着層工法の評価・設計法の構築

研究課題名(英文) Evaluation and designing of adsorption layer method for countermeasures against excavated rocks

研究代表者

五十嵐 敏文 (Igarashi, Toshifumi)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：90301944

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,600,000円

研究成果の概要(和文)：ヒ素を溶出する岩盤掘削ずりに対して、ずり層、覆土層、吸着層の3層からなる室内カラム試験において、水分量変化、酸素濃度変化の測定およびヒ素の溶出・移行挙動を測定した。その結果、水分流動、酸素濃度、ヒ素の溶出挙動との関係を明らかにし、Hydrous1-Dを適用し、一連の現象を評価できるモデルに改良した。その中で、ヒ素溶出は水分量や酸素濃度と関連し、その移行には可逆的な吸着と不可逆的な吸着が存在することを明らかにした。原位置カラム試験でも同様な結果が得られた。実験で得られたパラメータを用いて、種々の条件でのヒ素の溶出・移行現象を評価できるモデルに改良し、吸着層等の設計に反映できるモデルを構築した。

研究成果の概要(英文)：Column experiments consisting of covering soil, crushed rock containing arsenic, and bottom adsorption layers were conducted in the laboratory to understand the leaching and migration of arsenic in relation to changes in water content and oxygen concentration. The results showed that the arsenic leaching was affected by water content and oxygen concentration. In addition, arsenic retardation was found to consist of both conventional reversible and irreversible adsorptions. The irreversible one results from the precipitation of iron hydroxides in the columns. The similar results were obtained in the in situ column experiments. The Hydrous1-D model was revised by considering the relationships. The leaching and migration of arsenic was evaluated by the revised model using the obtained parameters. This model will be effective in designing the adsorption layer method.

研究分野：地球化学

キーワード：地盤工学 環境地盤 吸着層工法 設計法 移流分散

1. 研究開始当初の背景

国内では、平成 15 年に「土壤汚染対策法」(以下土対法と称する)が施行され、平成 22 年 4 月に改正土対法が施行された。この改正法によって自然由来の重金属類汚染土壤も法律の対象になったが、岩盤掘削ずり(岩ずり)を中心とする建設残土に対しては、溶出試験法が未確立なこともあり、法律の対象にはならなかった。しかし、熱水変質や鉱化変質が広く分布する地域や海成泥岩地域においては重金属類が濃集しているため、トンネル掘削等によって大量の建設残土、すなわち岩ずりが発生すると、この岩ずりから重金属類が溶出することになる。このような岩ずりを合理的に処分したり、有効利用することは重要であるが、その際、人への健康リスクを低減することが不可欠である。そこで、平成 23~25 年度に「岩盤掘削ずりに対する溶出試験および不溶化・吸着試験の標準化」(科研費・基盤 B)において、種々の方法や条件での溶出試験や合理的な対策法について実験的に検討を行ってきた。その結果、岩ずりに対して慣例的に実施されてきている粒径を 2 mm 以下に粉碎し、その粉碎試料を土対法に準拠した溶出量試験に提供するという方法が、岩ずりのリスクを評価する上で有効であること、多様な対策の中でも岩ずり層下部に吸着層を敷設するという吸着層工法が合理的であることを明らかにしてきた。この工法は、国交省のマニュアルでも対策の一つとして記載されているが、バッチ式の溶出量試験結果と吸着試験結果とを組み合わせ評価しているだけであり、降雨浸透、ずりからの重金属類の溶出、吸着層での吸着という一連の現象を連成させて評価できておらず、その工法の性能評価法や最適設計法に関しては構築されていないのが実情である。

国外では、バングラデシュ、西ベンガル等の地域で自然由来の地下水や土壌のヒ素などの重金属類の汚染による人体への影響が発現しており、そのような汚染が世界のほかの多くの地域、とくに東南アジアのベトナム、カンボジア等でも認められるようになってきている。したがって、自然由来のため重金属類の濃度は極端には高くはないが、大量に発生する岩ずりなどの建設残土に対するリスクを合理的に低減する対策、とりわけどの地域でも適用可能な合理的で経済的な対策を早急に構築する必要がある。

以上のことから、これまでの成果を踏まえ、自然由来の重金属類を含有あるいは溶出する岩ずりなどの建設残土に対しては、二重シートやベントナイトなどの粘土で残土を覆い、周辺への拡散防止を図る遮水工よりも、各国で入手しやすい天然材料を用いた吸着層工法が有望であり、その性能評価法や設計法を構築することはきわめて重要な課題である。

2. 研究の目的

吸着層工法の性能評価法や設計法の構築のためには、覆土 - 岩ずり - 吸着層から構成される降雨浸透現象、岩ずりからの重金属類の溶出現象、溶出した重金属類の吸着層での吸着現象という一連の現象を連成して評価する必要がある。そのため、多層からなるカラム試験を実験室や原位置で実施することによって、これらの現象を評価する。さらに、この一連の現象を評価し、実土捨場において適用可能な解析モデルを構築する。また、従来のバッチ式の溶出試験や吸着試験を行うことによって、これらの結果とカラム試験結果とを比較することによって、モデルに入力するためのパラメータを容易に取得するための簡易な試験法や評価法を提案する。

3. 研究の方法

- (1) 室内簡易カラム試験結果を踏まえ、覆度層、岩盤ずり層、吸着層からなる室内カラム試験を実施し、温度、水分量、酸素濃度といった主要な環境パラメータを連続モニタリングしながら、ずりからのヒ素の溶出挙動、それに続く吸着層におけるヒ素の吸着・保持挙動を明らかにする。
- (2) 上記のカラム試験結果および充填材料の物理化学試験結果を踏まえ、評価に必要な入力データを取得し、カラム内の水分移動、ヒ素の溶出・移行現象を評価し、吸着層の性能を評価するとともに、設計法について考察する。
- (3) 原位置カラム試験を実施し、室内カラム試験との比較・検討を行う。

4. 研究成果

ヒ素を溶出する岩盤掘削ずりに対して、ずり層、覆土層、吸着層の 3 層からなる室内カラム試験において、水分量変化、酸素濃度変化の測定と同時に、ヒ素の溶出・移行挙動を測定した。その結果、図-1 から 3 に示すように、定期的な降雨によって間隙中の酸素濃度が徐々に低下するとともに、それによるヒ素溶出の低減はあまり顕著には認められないことがわかった。

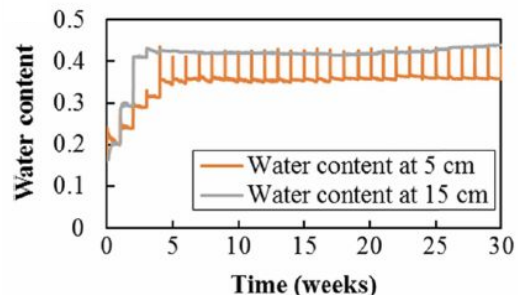


図 - 1 吸着層・覆土層に河川浚渫土を用いた 3 層からなるカラムにおけるずり層中の水分量変化¹⁾

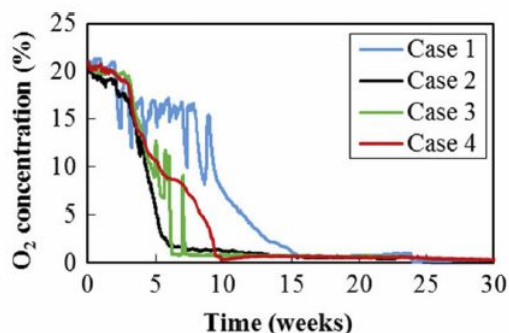


図 - 2 4 ケースのカラムにおけるずり層中の酸素濃度変化 (Case 4 に対応する水分量変化は図-1 参照) ¹⁾

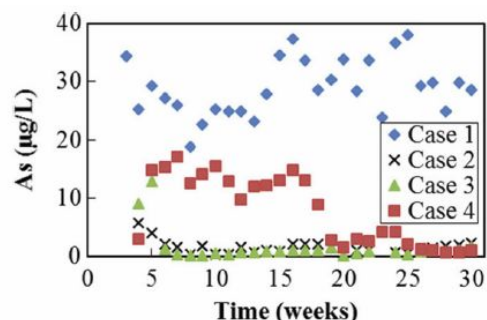


図 - 3 4 ケースのカラムにおけるヒ素溶出濃度変化 (Case 4 に対応する水分量変化は図-1 参照) ¹⁾

ヒ素溶出に関しては水分量や酸素濃度と関連若干するが、分配係数で表現される可逆的な吸着と鉄などとの共沈による不可逆的な吸着とが存在することが破過曲線より明らかになった。

水分流動、酸素濃度、ヒ素の溶出挙動との関係を踏まえた上で、Hydrous1-D を適用し、一連の現象を評価できるモデルに改良した。その中で、ヒ素吸着には、可逆的な吸着と不可逆的な吸着とが作用するモデルを構築し、そのパラメータ値を取得した。

上記の室内試験の結果を踏まえ、原位置におけるカラム試験を実施した。原位置カラム試験では、カラム径、降雨の水質とその条件などは室内カラム試験とは異なっているが、ほぼ同様の結果が得られた。このことは、気温、降雨条件にかかわらず、岩盤掘削ずりからのヒ素の溶出特性、吸着層における吸着特性は変化しないこと ²⁾、ほぼ同様の分配係数が得られることを示唆する。

すなわち、原位置での試験の実施も重要であるが、施工までの時間、現地の空きスペースなどの関係で、原位置試験が困難な場合は、室内試験で代用することも可能である。

ヒ素溶出を抑制するもう一つの方法として黄鉄鉱の酸化溶解を抑制する方法がある。ずり埋め立て環境条件を模擬するために、

酸化第二鉄 (赤鉄鉱、ヘマタイト) の共存が黄鉄鉱酸化におよぼす影響を実験的に検討した。その結果、pH にかかわらず、ヘマタイト共存下では黄鉄鉱の酸化が抑制された。SEM-EDS 観察、赤外吸収スペクトル、サイクリックボルタンメトリーの結果から、ヘマタイト共存下では黄鉄鉱表面のカソド反応が抑制されることが明らかになった ³⁾。このことから、黄鉄鉱の酸化にともない溶出するヒ素を同時に溶出する鉄の酸化生成物を利用することによって、ヒ素の溶出を抑制できる可能性が示唆された。

<参考文献>

- 1) P. Tangvirorn, R. Hayashi, T. Igarashi, Effects of additional layer(s) on the mobility of arsenic from hydrothermally altered rock in laboratory column experiments, *Water, Air, & Soil Pollution*, Vol. 228, 191 1-10, 2017. doi 10.1007/s11270-017-3295-7
- 2) S. Tamoto, C.B. Tabelin, T. Igarashi, M. Ito, N. Hiroyoshi, Short and long term release mechanisms of arsenic, selenium and boron from a tunnel-excavated sedimentary rock under in situ conditions, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 175-176, pp. 60-71, 2015. doi 10.1016/j.jconhyd. 2015.01.003
- 3) C.B. Tabelin, S. Veerawattanatum, M. Ito, N. Hiroyoshi, T. Igarashi, Pyrite oxidation in the presence of hematite and alumina: II. Effects on the cathodic and anodic half-cell reactions, *Science and the Total Environment*, Vol. 581-582, pp. 126-135, 2017. doi 10.1016/j.scitotenv.2016.12.050

5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 8 件)

1. P. Tangvirorn, R. Hayashi, T. Igarashi, Effects of additional layer(s) on the mobility of arsenic from hydrothermally altered rock in laboratory column experiments, *Water, Air, & Soil Pollution*, 査読有, Vol. 228, 191 1-10, 2017. doi 10.1007/s11270-017-3295-7
2. C.B. Tabelin, S. Veerawattanatum, M. Ito, N. Hiroyoshi, T. Igarashi, Pyrite oxidation in the presence of hematite and alumina: I. Batch leaching experiments and kinetic modeling calculation, *Science and the Total Environment*, 査読有, Vol. 580, pp. 687-698, 2017.

- doi 10.1016/j.scitoenv.2016.12.015
3. C.B. Tabelin, S. Veerawattananum, M. Ito, N. Hiroyoshi, T. Igarashi, Pyrite oxidation in the presence of hematite and alumina: II. Effects on the cathodic and anodic half-cell reactions, *Science and the Total Environment*, 査読有, Vol. 581-582, pp. 126-135, 2017.
doi 10.1016/j.scitoenv.2016.12.050
 4. 富山真吾, 五十嵐敏文, 井伊博行, 高野日出男 地球化学的手法と数値解析を用いた下川鉾山坑内水の起源推定, *Journal of MMIJ*, 査読有, Vol. 132, No. 5, pp. 80-88, 2016.
 5. K.K. Mar, D. Karnawati, D.P.E. Putra, Sarto, T. Igarashi, C.B. Tabelin, Arsenic adsorption performance of lignite in laboratory column experiments under saturated flow conditions, *ASEAN Engineering Journal*, Part C, 査読有, Vol. 4, No. 2, pp. 41-52, 2015.
 6. S. Tamoto, C.B. Tabelin, T. Igarashi, M. Ito, N. Hiroyoshi, Short and long term release mechanisms of arsenic, selenium and boron from a tunnel-excavated sedimentary rock under in situ conditions, *Journal of Contaminant Hydrology*, 査読有, Vol. 175-176, pp. 60-71, 2015.
doi 10.1016/j.jconhyd. 2015.01.003
 7. 成瀬辰郎, 川島健, 五十嵐敏文, 半焼成ドロマイトを用いた掘削ずりからのヒ素溶出低減, 土木学会論文集G (環境), 査読有, Vol. 70, No. 4, pp. 78-85, 2014.
 8. C.B. Tabelin, T. Igarashi, A review of the incorporation and mobilization of arsenic in hydrothermally altered rocks excavated during tunnel construction, *ASEAN Engineering Journal*, Part C, 査読有, Vol. 3, No. 1, pp. 77-94, 2014.

[学会発表](計 31件)

1. 五十嵐敏文, 地盤工学と地質学における最新のかかわり 4. 自然的要因による環境汚染の評価と対策, 地盤工学会誌, Vol. 64-11/12(706/707), pp.52-57, 2016.
2. T. Igarashi, C.B. Tabelin, Reasonable disposal of hydrothermally altered rock by considering the properties of heavy metal leaching, Proceedings of the ESASGD 2016, 2016年11月14日, ハノイ鉾山地質大学, ハノイ(ベトナム)
3. P. Tangviroon, R. Hayashi, T. Igarashi, Effects of covering and adsorption layers on mobility of arsenic from hydrothermally altered rock in laboratory column experiments, International Doctoral Symposium on Sustainable Management of Resources

- and Environment in the 21th Century, 2016年11月9-11日, 北海道大学, 札幌
4. C.B. Tabelin, R.D. Corpus, S. Veerawattananum, M. Ito, N. Hiroyoshi, T. Igarashi, Formation of schwertmannite-like and scorodite-like coatings on pyrite and its implications in acid mine drainage control, IMCP 2016, Iron Control-Practice and Research, pp. 133-144, 2016, 2016年9月11-15日, ケベックコンベンションセンター, ケベック(カナダ)
 5. 五十嵐敏文, トンネル工事において発生する重金属含有掘削ずりの対策事例, 第51回地盤工学研究発表会 DS-8, 2016年9月13-15日, 岡山大学, 岡山
 6. 能登健太, 田本修一, 山崎秀策, 山本隆広, 五十嵐敏文, 掘削泥岩から溶出する酸性水およびヒ素に対する吸着層の有効性, PY-29, 資源・素材(盛岡), 2016年9月13-15日, 岩手大学, 盛岡
 7. 林律人, P. Tangviroon, 五十嵐敏文, 酸素濃度と透水性からみた掘削ずりからのヒ素溶出挙動に及ぼす覆土層, 吸着層の効果, PY-31, 資源・素材(盛岡), 2016年9月13-15日, 岩手大学, 盛岡
 8. 富山真吾, 高橋一彦, 山縣三郎, 五十嵐敏文, 休廃止鉾山を対象とした表面被覆工事に伴う坑内水量低減効果の予測評価, 3306, 資源・素材(盛岡), 2016年9月13-15日, 岩手大学, 盛岡
 9. S. Veerawattananum, D. Wiwattanadate, C.B. Tabelin, M. Ito, N. Hiroyoshi, T. Igarashi, Electrochemical insights on pyrite dissolution in the presence of alumina, ASEAN++2016, pp. 906-916, 2016年7月28-29日, チュラロンコーン大学, バンコク(タイ)
 10. I. Park, K. Magaribuchi, S. Veerawattananum, C.B. Tabelin, M. Ito, N. Hiroyoshi, T. Igarashi, Suppression of arsenopyrite oxidation by carrier microencapsulation using Ti-catechol complex, ASEAN++2016, pp. 918-928, 2016年7月28-29日, チュラロンコーン大学, バンコク(タイ)
 11. 林律人, P. Tangviroon, 五十嵐敏文, 掘削ずりからのヒ素溶出に及ぼす覆土層, 吸着層の影響, 資源・素材学会北海道支部春季講演会, A-9, pp. 17-18, 2016年6月18日, 室蘭工大, 室蘭
 12. 野呂田晋, 橋本綾佳, 佐藤明, 五十嵐敏文, 西南北海道に分布する天然地質材料の砒素, 鉛, カドミウム吸着性能と吸着機構に関する予察的検討, 日本応用地質学会北海道支部, 北海道応用地質研究会講演予稿集, Vol. 36, pp. 13-16, 2016年6月17日, 寒地土木研究所, 札幌
 13. S. Jeong, H. Woo, J. Park, T. Igarashi, Effects of humic acid on arsenic removal

- by iron-based materials, Geo-Environmental Engineering 2016, pp. 107-114, 2016年6月2-3日, カーン大学, ナント(フランス)
14. P. Tangvirorn, R. Hayashi, T. Igarashi, Effects of covering and adsorption layer on mobility of arsenic from hydrothermally altered rock in laboratory column experiments, Geo-Environmental Engineering 2016, pp. 115-122, 2016年6月2-3日, カーン大学, ナント(フランス)
15. C.B. Tabelin, S. Veerawattananum, M. Ito, N. Hiroyoshi, T. Igarashi, The interplay between pyrite and hematite and its implication in acid mine drainage control, Geo-Environmental Engineering 2016, pp. 141-150, 2016年6月2-3日, カーン大学, ナント(フランス)
16. S. Veerawattananum, D. Wiwattanadate, C.B. Tabelin, M. Ito, N. Hiroyoshi, T. Igarashi, Fundamental electrochemical studies of carrier micro-encapsulation on pyrite: The stability of metal-organic complexes, Geo-Environmental Engineering 2016, pp. 161-170, 2016年6月2-3日, カーン大学, ナント(フランス)
17. 龍原毅, 直原俊介, 巽隆有, 五十嵐敏文, 掘削ずりからのヒ素溶出対策のための吸着層設置位置の影響, 地盤工学ジャーナル, Vol. 10, No. 4, pp. 635-640, 2015.
18. 石神大輔, 五十嵐敏文, 田村拓四郎, 田作淳, 重金属吸着マットを用いた自然由来重金属含有ずり等の処理方法, 環境浄化技術, Vol. 14, No. 5, pp. 43-47, 2015.
19. C.B. Tabelin, M. Ito, N. Hiroyoshi, T. Igarashi, The effects of colloidal $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ on pyrite oxidative dissolution and its implications in the formation of acid mine drainage, IC-GeoE & SIMPOMIN 2015, 2015年9月29-30日, Cititel Hotel, ジョージタウン(マレーシア)
20. J. Ota, S. Tamoto, T. Yamamoto, T. Igarashi, Effects of adsorption and covering-soil layers on arsenic leaching from excavated rocks, 10th Asian Regional Conference of IAEG, Tp3-P25 1104059, 2015年9月26-29日, 京大防災研究所, 宇治(京都)
21. 富山真吾, 山口耕平, 五十嵐敏文, 坑内空間充填に係る安全性評価の検討, 3608, 資源・素材(松山), 2015年9月8-10日, 愛媛大学, 松山
22. 太田迅, 五十嵐敏文, 田本修一, 山本隆広, 泥岩掘削ずりから発生するヒ素含有浸出水に及ぼす吸着層、覆土層の効果, 資源・素材学会北海道支部春季講演会, C-11, pp. 71-72, 2015年6月13日, 函館市国際水産・海洋総合研究センター, 函館
23. C.B. Tabelin, A. Hashimoto, T. Igarashi, M. Ito, N. Hiroyoshi, Sequestration of boron, arsenic and selenium leached from tunnel-excavated rocks through adsorption, 14th Global Joint Seminar on Geo-Environmental Engineering, 2015年5月21-22日, コンコルディア大学, モントリオール(カナダ)
24. 五十嵐敏文, 田本修一, C.B. Tabelin, 道内におけるトンネル掘削ずりの対策事例, 資源・素材(熊本), 2014年9月15-17日, 熊本大学, 熊本
25. C.B. Tabelin, N. Hiroyoshi, M. Ito, T. Igarashi, Enhanced encapsulation of pyrite using colloidal micro-seeds: Visualization and attachment experiments, The 7th AUN/SEED-Net Geological Engineering Conference, 2014年9月29-30日, ヤンゴン大学, ヤンゴン(ミャンマー)
26. K.K. Mar, D. Karnawati, D.P.E. Putra, Sarto, T. Igarashi, C.B. Tabelin, Evaluating arsenic adsorption performance of lignite under saturated flow condition for permeable reactive barrier (PRB) design, The 7th AUN/SEED-Net Geological Engineering Conference, 2014年9月29-30日, ヤンゴン大学, ヤンゴン(ミャンマー)
27. S. Tamoto, Y. Ito, T. Igarashi, Effect of mixing mudstone with serpentinite on reducing arsenic concentration leached from mudstone, 8th Asian Rock Mechanics Symposium, EA-1, 2014年10月14-16日, ホテルロイトン, 札幌
28. C.B. Tabelin, T. Igarashi, M. Ito, N. Hiroyoshi, Tunnel-excavated rock: An invisible threat to the environment, 8th Asian Rock Mechanics Symposium, EA-2, 2014年10月14-16日, ホテルロイトン, 札幌
29. C.B. Tabelin, R. Sasaki, T. Igarashi, S. Tamoto, M. Ito, N. Hiroyoshi, The leaching and speciation behaviors of arsenic and selenium in tunnel-excavated rocks under flow-through conditions, Proceedings of the 3rd International Conference on Advances in Mining and Tunneling, pp. 573-581, 2014年10月21-22日, プンタオ(ベトナム)
30. C.B. Tabelin, M. Ito, N. Hiroyoshi, T. Igarashi, Leachability of arsenic from tunnel-excavated rock under free- and controlled-flow conditions, Proceedings of the 13th Global Joint Seminar on Geo-Environmental Engineering, pp. 31-37, 2014年5月30-31日, 定山溪, 札幌
31. S. Tamoto, Y. Ito, T. Igarashi, C.B.

Tabelin, Characterization of arsenic adsorption onto natural materials as an adsorption layer, Proceedings of the 13th Global Joint Seminar on Geo-Environmental Engineering, pp. 54-60, 2014年5月30-31日, 定山溪, 札幌

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://trans-er.eng.hokudai.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

五十嵐 敏文 (IGARASHI, Toshifumi)
北海道大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号: 90301944

(2) 研究分担者

川崎 了 (KAWASAKI, Satoru)
北海道大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号: 00304022

タペリンカーリット

(Tabelin, B. Carlito)

北海道大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号: 60626125

(3) 連携研究者

田本 修一 (TAMOTO, Shuichi)
国立研究開発法人
土木研究所寒地土木研究所・研究員
研究者番号: 60414231