

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 26 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H02264

研究課題名(和文)環境保全と社会受容性を踏まえた、「地盤環境基準」の構築と実装のための戦略研究

研究課題名(英文) Study of establishment and implementation of new "geoenvironmental standards" considering environmental protection and social receptivity

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 32,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、(1)多様な土材料に対して異なる条件で試験を行い、国際標準化に向け各種溶出試験の確立を図り、(2)遮水と吸着を組み合わせた管理/保管/有効利用のシナリオを検討した。

(1)に関しては、初期飽和12～16時間、通水速度36 mL/hの修正カラム試験法で精度を確保しつつ試験時間を短縮しうること、掘削岩石からの砒素の溶出には浸透路長の増加が影響すること等が明らかとなった。

(2)については、粘土ライナーに1 kg/m²のゼオライトを添加すると高いセシウム吸着性能を発揮しうること、比表面積が大きい細粒のCa/Mg系不溶化材の方が長期に渡り高い吸着性を維持しうること等が明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：In this research, the following two main issues were studied: 1) various leaching tests with various geomaterials towards international standardization and 2) utilization of low-level contaminated geomaterials with the aid of barriers and sorption.

As for the first item, modified column test method with 12-16-h initial saturation and 36-mL/h infiltration rate can shorten a testing period with high accuracy. It was also found that arsenic leached from excavated rocks depends on percolation length.

Regarding the second item, we found that clay liners amended with zeolite of 1 kg/m² can sufficiently lower the Cs concentration of effluent. The sorption of As by soil-Ca/Mg composite containing the fine particles was higher than those containing coarse particles of Ca/Mg composite.

研究分野：地盤環境工学

キーワード：地盤環境 低濃度基準超過土 有効利用 遮水 吸着 溶出源評価 試験法

1. 研究開始当初の背景

土に含まれるヒ素 (As), フッ素 (F), 鉛 (Pb) などの環境影響物質の主要な曝露経路は、雨水や地下水を媒体とする溶出経路である。日本ではこの経路の判断基準として、環境庁告示第 46 号「土壌の汚染に係る環境基準 (1993 年)」及び土壌汚染対策法環境省告示 18 号「土壌溶出量調査に係る測定方法」で固液比 1:10, 溶出 6 時間の振とう試験が提示されている。これらの溶出基準に基づき汚染土壌と判断される対策費用は毎年 1000 億 - 2000 億円に達し、これらの費用を負担する企業・自治体等に極めて大きな負担となっている。また、リニア中央新幹線、北海道新幹線、東京外かく環状道路、東京オリンピック等の大規模建設工事に際し、大量の自然由来の汚染土壌の発生が想定されている。さらに福島第一原子力発電所の事故由来の放射性セシウム (以下、放射性 Cs) 汚染土壌の保管・管理には、高濃度範囲のみでも 1 兆円以上の費用が必要との試算もあり、低濃度土壌の有効利用の判断基準が示されない場合、その費用はさらに増加する。汚染土壌の対策コストだけでなく、廃棄物処分場の残余量への負荷、新規採土量の増加等の社会的な問題を発生させることも懸念されており、低濃度基準超過土壌の活用が強く求められている。

溶出特性化試験標準化の動きは欧米で先行しており、標準化を達成しているが、日本国内及びアジアの動きは十分ではなく、地域性を考慮した標準化は喫緊の課題である。また、標準化と比較して、汚染土壌の溶出特性に関するデータベースの構築は国際的に遅れており、溶出特性の類型化もなされていない。さらに、今後我が国の大規模建設工事に伴い大量発生が想定される自然由来汚染土壌からの溶出特性に関する知見は極めて少なく、地盤材料としての有効利用可能性に関する研究は研究代表者らにより緒に就いたばかりで、土壌・地盤材料の適切な循環利用を促すために必須である規制影響評価 / マテリアルフロー分析もこれまで例を見ない。

2. 研究の目的

研究代表者らはこれまで、建設発生土の有効利用、汚染土壌のリスク評価、循環資源の試験方法、東日本大震災由来の災害廃棄物や放射性 Cs 含有土壌の管理手法・有効利用の指針提示、さらに放射性 Cs 汚染土壌の対策に伴う社会経済影響評価に関する研究を精力的に進めてきた。本研究ではこれらの研究成果と知見を更に発展・統合し、(1) 科学的根拠に基づく溶出特性評価スキームの構築、(2) 管理 / 保管 / 有効利用のシナリオ構築と環境安全性の評価、を行い、(3) 社会実装のための規制影響および社会受容性、を明らかにすることを目的とする。これらを実行することで、環境保全と社会受容性を踏まえた、新しい「地盤環境基準」のフレームワークを構築し、リスクに応じた汚染土壌の地盤材料

としての有効利用の促進、管理・保管方法の構築を推進し、持続可能な国土利用を図るとともに、日本 / アジアの地盤環境のあり方について主導的立場として普及を図ることを目指す。さらに、自然由来汚染土壌や放射性 Cs 汚染土壌等の大規模土壌汚染に対して、地盤工学会・自治体・関連省庁・事業者と連携し社会実装につなげていく。

3. 研究の方法

(1) 科学的根拠に基づく溶出特性評価スキームの構築では、カラム試験、シリアルバッチ試験、pH 依存性試験の国際標準化に向け、多種多様な種類の土材料を用い、異なる条件下で試験を行った。(2) 管理 / 保管 / 有効利用のシナリオ構築と環境安全性の評価は、日本の多様な土壌を対象に吸着試験、物理化学性試験を実施し、遮水と吸着の両面から各種対策工の性能評価のその評価手法を検討した。(3) 上記の(1)及び(2)で提案された施策に対して規制影響評価・社会受容性を分析し、実社会における有効性を検討した。具体的な検討方法を以下に示す。

3.1 各種試験による土壌・岩石試料の溶出挙動評価

本研究では、建設工事で発生した自然由来の重金属を含有する掘削岩石・土砂を使用した。具体的には、硬質砂岩、泥岩、石英閃緑岩、花崗閃緑岩等の岩石や、砂質、粘土質の海成堆積物を主な対象とした。例として、石英閃緑岩の外観と粒度分布を図 1 に示す。これらの試料を用い、主に各種溶出試験の試験条件と、試料の前処理条件の違いの影響を精査した。溶出試験には、上向流カラム通水試験、散水型カラム試験を行い、対象化学物質の排出濃度の経時変化を評価した。



図 1 硬質砂岩・泥岩・石英閃緑岩の外観

上向流カラム試験では、試験方法の標準化を目的とし、初めにカラム寸法や流速等の各種条件を変えて試験を行った。その後、直径 5 cm, 高さ 30 cm のアクリル製カラムを使用し、2 cm 高さごとに 125 g のランマーを高さ 20 cm から 3 回突固めを行い試料を充填した。岩石試料は最大粒径が 9.5 mm となるよう破砕したものを供した。その後、蒸留水をカラムの下端から 12 mL/h で定流量ポンプにより送液し、試料を飽和させた。飽和完了後に送液を止め 2 日間静置を行い、12 mL/h で通水を行った。その後、所定の液固比で浸出液を採取し、化学分析を行った。

散水型カラム試験では、上向流カラム通水試験と同じ乾燥密度となるようにカラムに

試料を充填し、図2に示すとおり上部よりニードルタイプの散水装置により降雨を再現し試験を開始した。表1に各カラム試験の試験条件を示す。また間隙水を採水するため、供試体中に厚さ3 cmのガラスビーズ層を供試体内に設け、供試体底部から浸出水を所定の液固比で採取した。なお、両カラム試験で得た浸出水は0.45 μmフィルタでろ過を行い、pH, Eh, EC, 砒素等の溶出濃度を測定した。pH, ECの測定にはpH/COND METER F-54を、Ehの測定にはLAQUA F-74Sを用いた。化学分析には、原子吸光分光光度計(島津製作所, AA-6800)とICP発光分光分析装置(Agilent, 700Series)を用いた。



図2 散水型カラム試験の様子

振とう式のバッチ溶出試験では、国内の2箇所で採取した砂系と粘土系の海成堆積物を用い、試料状態は湿潤試料と風乾試料の2条件で違いを評価した。表1に試料土の基本物性、表2に含水比測定結果を示す。採取した土壌は実環境の状態を保つために、塊状で真空保存したものを5以下の暗所で保管した。湿潤試料については、還元状態を保つために2 mmにふるい分けは行わず、塊状の中心部分を取ったものを試料として用いた。さらに、風乾した試料においては約1週間室温22℃、湿度23%の実験室に静置し風乾させた後、2 mmふるいを通した分を試料とした。

表1 バッチ溶出試験に用いた試料の特性

	HS	HC	YS	YC
土粒子密度 (g/cm ³)	2.669	2.667	2.708	2.672
砂分 (%)	90.8	34.4	84.0	6.3
シルト分 (%)	4.9	42.3	9.6	56.1
粘土分 (%)	4.3	23.3	6.4	37.6
強熱減量 (%)	2.0	3.7	3.7	6.8

3.2 遮水と吸着による管理/保管/有効利用シナリオの検討

一般廃棄物焼却飛灰および飛灰処理物中の放射性セシウムは、含有量の約65~90%が間隙水に溶出することが報告されているが、浸出水中の放射性物質を既存の水処理施設では除去できないため、セシウム吸着能力が

高いゼオライトを添加したジオシンセティッククレイライナー(以下GCL)を用いて周辺地盤と隔離することが検討されている。処分場浸出水中に高い濃度で含まれるカチオンによるベントナイトの膨潤量低下や、ゼオライトから溶脱するカリウムによるセシウム吸着能低下が懸念されることから、図3に示す複層型と混合型の2種類のゼオライト添加型GCLの中間層を模擬した供試体を作製し、柔壁型透水試験装置を援用した通水試験により、Ca²⁺溶液に対する遮水性能とセシウム吸着性を評価した。

柔壁型透水試験を使用し、透水溶液にはCaCl₂とCsClを用いてCa²⁺イオン濃度とCs⁺イオン濃度がそれぞれ0.1 mol/L, 1 mg/Lとなるよう調製した溶液を用いた。拘束圧は30 kPaとし、排出液の量と濃度を測定することでゼオライト添加型GCLの遮水性とセシウム吸着性を同時に評価した。

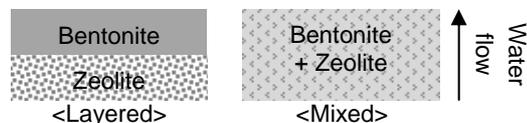


図3 ゼオライト添加型GCLの模式図

表2 試験ケース毎の供試体

Case	Bentonite (kg/m ²)	Zeolite (kg/m ²)	Type	e after test
B3Z0	3.0	-	-	3.04
B5Z0	5.0	-	-	2.45
B5Z1_Mix	5.0	1.0	Mixed	2.42
B5Z1_Sep	5.0	1.0	Layered	2.22
B3Z3_Mix	3.0	3.0	Mixed	2.30
B3Z3_Sep	3.0	3.0	Layered	2.42

盛土材として低濃度基準超過土を有効活用する際、底部に遮水シートを敷設すると力学的に弱部となる可能性がある。そのため、現地発生土を活用しつつ重金属等の拡散を抑制するため、吸着材を混合した吸着層工法も有効と考え、対策工としての利用可能性を評価した。一般的なまさ土(土粒子密度:2.65 g/cm³)に、天然鉱物焼成物を主成分とするCa/Mg系の不溶化材を混合し、カラム吸着試験を行った。Ca/Mg系不溶化材は図4に示すように細粒(粒径:2 mm以下)と粗粒(粒径:2~7 mm)の2種類を使用した。このCa/Mg系不溶化材を、乾燥質量比で3%, 5%となるようまさ土と混合し、バッチ吸着試験とカラム吸着試験を行った。

バッチ吸着試験では、初めに最適含水比に調整した試料を締め固め度95%で締め固め、所定期間養生した後に十分に破碎し、試験に供した。用いたNaAsO₂は0.1~10 mg/Lの濃度範囲で、液固比が10となるよう試料に添加し実施した。カラム吸着試験では、図5に示すカラムに同じく締め固め度95%で試料を締め固めた後、13 mL/hの定流量で溶液を供試体下部から送液した。初めに2日間蒸留水を送液し、供試体を飽和させた後、0.1 mg/L NaAsO₂水溶液を送液した。

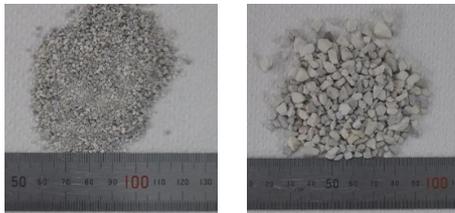


図4 実験に用いた細粒・粗粒のCa/Mg材

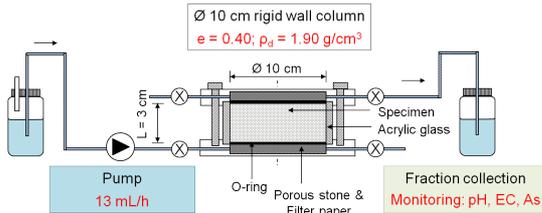


図5 カラム試験の概要図

4. 研究成果

4.1 土壌・岩石試料の溶出挙動

カラム試験による溶出挙動評価には時間を要するため、測定精度を確保しつつ試験時間を短縮することが望ましい。図6は初期飽和時間48時間、通水速度12 mL/hのISO法と、本研究で適用した初期飽和時間12~16時間、通水速度36 mL/hの修正法で得られた各濃度を比較したものであるが、複数種の土壌試料に対して、累積液固比に関わらず両者はよく一致しており、試験期間を従来の1/3程度に短縮しうる可能性が示唆された。

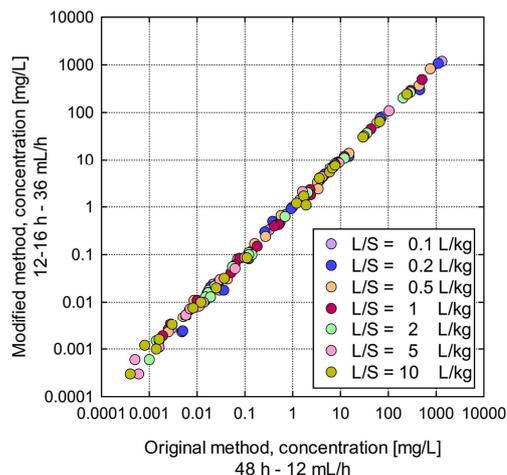


図6 ISO法と本研究での修正法における各濃度の比較

次に掘削ずりを用いた散水型カラム試験の一例として、図7に石英閃緑岩のpH、ECの変化を示す。pHはいずれの採水位置でも7.5~8.5の間を推移しているが、供試体深部に向かうにつれ若干増加している傾向が伺える。ECは試験初期に最も高い値を示し、その後減少する傾向を示しており、上部(32 cm)の値がやや低いものの、中部(64 cm)と下部(90 cm)ではあまり変化していない。このことから、浸透路長が増加する過程で、浸透水中の総イオン濃度の増加率は減少する傾向にあることがわかる。図8はヒ素の溶

出濃度の変化であるが、実験開始後10日を過ぎた頃から浸透路長に比例して大きくなっていることがわかる。このことから、砒素の溶出には浸透路長の増加による試料と浸透水との接触回数の増加が影響を与えていることが考えられる。最大で、下部(90 cm)で0.10 mg/Lの砒素の溶出が確認された。

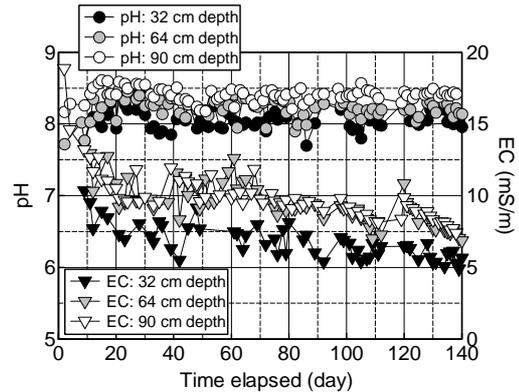


図7 散水型カラム試験におけるpHとECの変化

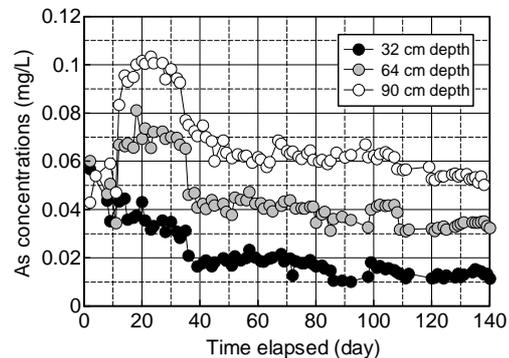


図8 散水型カラム試験におけるAs濃度の変化

海成堆積物の砂質土を用いた散水型カラム試験(深度70 cm)と上向流カラム試験の結果のうち、pHとNa濃度の変化を図9と図10に示す。これらの図から分かるように、pH、Na濃度ともに両者はよく一致した。液固比(L/S)2程度までpHは約8で安定していたが、その後7~8の間で変動した。Na濃度はL/S=0.5までで1オーダー程度低下し、その後いずれの試験でも同様に徐々に低下した。ECの挙動も同様であった。これらの結果からISO規格の上向流カラム試験で散水型カラム試験における主要な溶解性成分の挙動を把握できると言えるが、L/S=5以上でNa濃度の差異が大きくなることが示唆された。

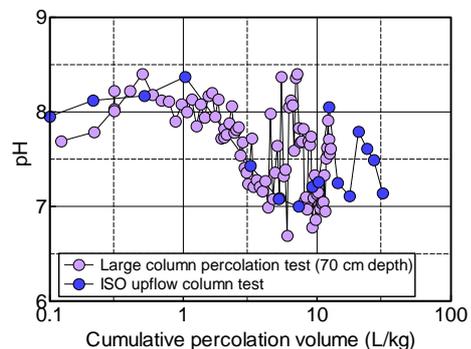


図9 両試験での海成堆積物のpHの比較

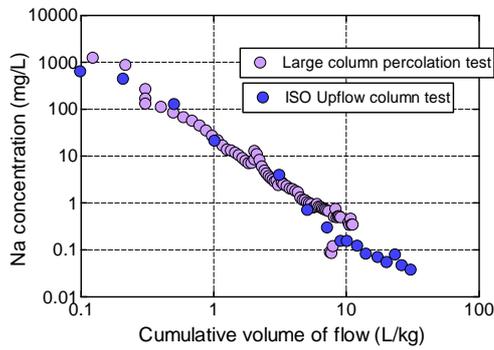


図 10 両試験での海成堆積物の Na 濃度の比較

4.2 遮水と吸着による管理 / 保管 / 有効利用シナリオ

ゼオライト添加型 GCL の適用性評価の例として、ベントナイト添加量 3 kg/m^2 の GCL に対する透水試験中の、Ca, Na, K 濃度の変化を図 11 に示す。各供試体の間隙体積で正規化した累積流量 (Pore volumes of flow, PVF) との関係で示している。Ca 濃度は通水初期に流入濃度よりも低く、Na 濃度はベントナイト由来の高濃度を示しているが、ベントナイトのイオン交換によると考えられる。また、ゼオライトを添加した供試体からゼオライト由来の K^+ の溶脱が確認できる。

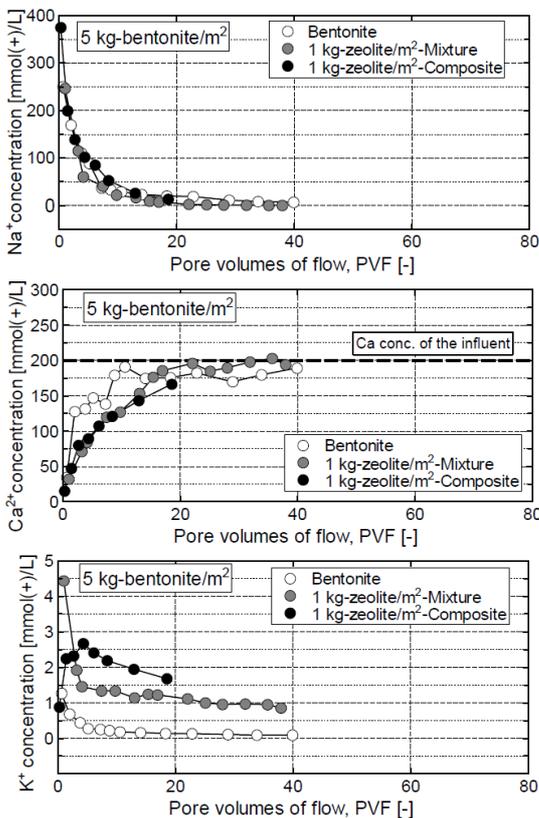


図 11 透水試験中の Ca, Na, K 濃度の変化

図 12 に PVF と透水係数の関係を示す。汎用的な GCL (ベントナイト: 5 kg/m^2) の蒸留水に対する透水係数が約 $8.0 \times 10^{-11} \text{ m/s}$ 程度であるのに対し、透水溶液中のカチオンの影響で全てのケースで透水係数が上昇したことが分かる。混合型では、ゼオライトを混合することで単体型と比較してベントナイト

の単位体積あたりの充填密度が低下したため、透水係数が大きくなったと考えられる。また複層型について、ゼオライト層が Ca^{2+} と Na^+ , K^+ のイオン交換を行い、ベントナイト層に到達する前に、通水液中の Ca^{2+} 濃度が低下したと考えられ、単体型と比較してベントナイトの水和膨潤に差が生じたためと考えられる。図 13 は排出液中の Cs 濃度の経時変化を示したものであるが、ゼオライトの有無によって Cs 濃度が大きく異なることが分かる。ゼオライトを含む供試体においては、混合方法に関わらず期間を通して約 0.01 mg/L であり、 1 kg/m^2 のゼオライト添加で高いセシウム吸着性能を発揮しうることが明らかとなった。

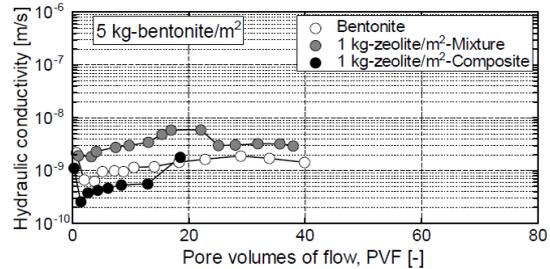


図 12 透水試験中の透水係数の変化

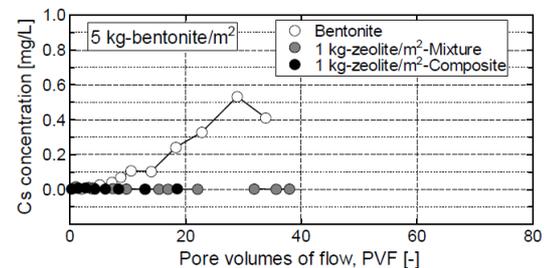


図 13 透水試験中の Cs 濃度の変化

次に、Ca/Mg 系不溶化材をまさ土に 3%あるいは 5%添加し、吸着層としての性能を評価した。結果の例として、カラム吸着試験で得られた、通水溶液に対する排出水の As の相対濃度を図 14 に示す。横軸の累積液固比は対数表示してあり、凡例中の S と L はそれぞれ用いた Ca/Mg 系不溶化材が細粒と粗粒であることを表している。この結果から、細粒を用いた場合の方が比表面積が大きいいため、長期に渡って As 濃度は低く、高い吸着性を維持しうることが分かる。一方、粗粒の Ca/Mg 系不溶化材を用いた場合には、累積液固比が 3 程度までは概ね一定の排出濃度を示すものの、累積液固比 10 程度で大きく上昇した。

図 15 は排出液に含まれる Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ の各濃度の変化を示したものであるが、経時的に洗い出され、各濃度は低下傾向を示した。この傾向は EC の変化にも同様に見られ、混合土中に存在するこれらの各物質が溶存態であることを示している。Ca/Mg 系不溶化材の化学組成では Mg 化合物より Ca 化合物の方が存在率が高いため、Ca 濃度も相対的に高くなったと考えられる。pH-Eh ダイアグラム

からは、ヒ素は HAsO_4^{2-} として存在する As(V) が主要であり、Ca/Mg 系不溶化材による As 濃度低減の主なメカニズムは、難溶性のヒ酸カルシウム ($\text{CaHAsO}_4(\text{H}_2\text{O})$) の形成であると結論付けられる。

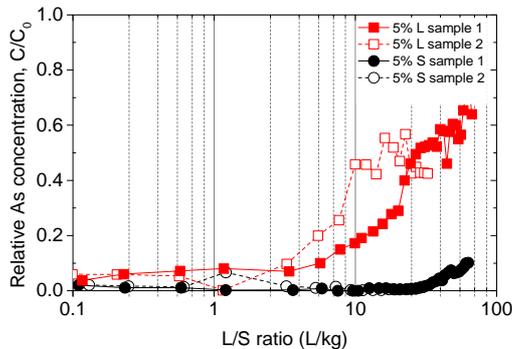


図 14 カラム試験中の As 濃度の変化

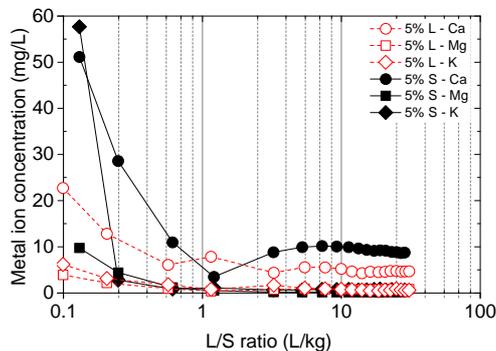


図 15 透水試験中のカチオン濃度の変化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 50 件)

- 1) Imoto, Y., Yasutaka, T., Someya, M. and Higashino, K. (2018): Influence of solid-liquid separation method parameters employed in soil leaching tests on apparent metal concentration, *Science of The Total Environment*, 624, 96-105.
- 2) Yasutaka T., Naka Kishimoto A., Sakanakura H., Kurosawa A., Inui T., and 21 co-authors (2017): Reproducibility of up-flow column percolation tests for contaminated soils. *PLoS ONE*, 12(6), e0178979
- 3) 乾 徹・Li Yuelei・勝見 武・高井敦史・佐藤一貴 (2016): ゼオライト添加したジオシンセティッククレーライナーの遮水性とセシウム吸着性能の評価, *ジオシンセティックス論文集*, 31, 85-90.
- 4) Takai, A., Inui, T., and Katsumi, T. (2016): Evaluating the hydraulic barrier performance of soil-bentonite cutoff walls using the piezocone penetration test, *Soils and Foundations*, 56(2), 277-290.
- 5) Katsumi, T. (2015): Soil excavation and reclamation in civil engineering: Environmental aspects, *Soil Science and Plant Nutrition*, Taylor & Francis, 61(S1), 21-29.

〔学会発表〕(計 25 件)

- 1) 保高徹生 (2018): 自然由来重金属等含有土の活用に向けた試験・評価法について, (公社)土木学会 平成 29 年度地盤工学セミナー
- 2) 肴倉宏史 (2017): 室内土質試験の JGS 改訂作業と新基準化の進捗状況 - WG2 (化学特性) の報告 - 第 52 回地盤工学研究発表会
- 3) Katsumi, T. (2017): Soil-bentonite cutoff walls for geoenvironmental containment, Indian Geotechnical Conference -2017 GeoNEst- Geotechnics for Natural and Engineered Sustainable Technologies
- 4) Katsumi, T. (2016): Contribution of environmental geotechnics for disaster recovery, Proceedings of the Second Japan-India Workshop in Geotechnical Engineering
- 5) 保高徹生 (2015): ISO/TC190 におけるカラム試験の国際標準化への日本取り組み, 第 21 回 地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会

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

肴倉宏史 (SAKANAKURA, Hirofumi)
 国立環境研究所・資源循環・廃棄物研究センター・主任研究員
 研究者番号: 70331973

遠藤和人 (ENDO, Kazuto)
 国立環境研究所・資源循環・廃棄物研究センター・主任研究員
 研究者番号: 10353533

保高徹生 (YASUTAKA, Tetsuo)
 産業技術総合研究所・地圏資源循環研究部門・研究グループ付
 研究者番号: 60610417

佐藤研一 (SATO, Kenichi)
 福岡大学・工学部・教授
 研究者番号: 20235336

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