

平成 23 年 6 月 1 日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2008～2010
 課題番号：20760314
 研究課題名 (和文) 環境地盤工学的視点からみた地盤材料の促進曝露試験法とその解釈法の高度化に関する研究
 研究課題名 (英文) Improvement of laboratory testing methods and their interpretation for simulating geo-environmental processes
 研究代表者
 乾 徹 (INUI TORU)
 京都大学・地球環境学堂・准教授
 研究者番号：90324706

研究成果の概要 (和文)：建設廃棄物や他産業から排出された廃棄物を地盤材料として使用する場合に、微量に含まれる重金属等の有害物質の長期的挙動を把握するための室内試験方法の検討、および溶出試験での溶出量を現場での溶出挙動への解釈、モデル化手法の検討を行った。具体的には、①廃コンクリート再生砕石の路盤材利用時の微量有害物質の環境侵入挙動のモデル化、②焼却灰埋立海面処分場特有の環境条件下における重金属の移動性を評価するための室内溶出試験法の検討、③自然由来重金属を含有する掘削岩石の溶出挙動に及ぼす試験方法の影響、の3つのサブテーマについて実験的に検証を行った。

研究成果の概要 (英文)：Geotechnical and geoenvironmental engineering has been contributed to the sound reuse/recycle of waste and by-products in Japan, since large amount of them not only from construction works but also from various industries and human activities has been widely utilized as geo-materials. However, the potential for soil and groundwater pollution due to toxic substances should be carefully assessed under the environment of each given application. This research have developed laboratory testing methods and their interpretation to simulate leaching and mobility of these toxic substances in the following situations;1) Long-term leaching behavior of hexavalent chromium from recycle concrete aggregate utilized as road base materials by employing acceleration tests, 2) Heavy metal mobility in coastal MSW incinerator ash landfill by developing modified batch leaching tests, and 3) Leaching characteristics of excavated soil containing arsenic by natural origin.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

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：土壌圏現象, 環境質定量化・予測, 重金属, 再資源化材料, 溶出試験, 建設発生土, 焼却灰埋立地盤

1. 研究開始当初の背景

建設廃棄物や他産業から排出された副産物・廃棄物を地盤材料として使用する場合、これらの材料は微量の有害物質を含むことから、利用・処分に先立って環境影響が有意でないことを明らかにし、施主や周辺住民と合意形成を図ることが求められる。現状は、これらの材料も地盤の構成材料となるという理由で土壌を対象とした公定溶出試験が慣用的に採用され、対象物質の溶出濃度が土壌環境基準を超過しなければ有意な環境影響はないと判断される。しかし、公定溶出試験は一定条件下で実施される判定試験であり、現場における実際の溶出挙動や環境影響を評価・推測するものではない。一般的に、地盤を対象とした環境影響評価においては地下水中の化学物質濃度が指標として採用される。これは、副産物や廃棄物由来の材料に含まれる有害物質は無機物質であり、地下水摂取による影響が主となるためである。図-1に示すように、任意の曝露地点での地下水中の化学物質濃度は、再生資材層への降雨・水分浸透量、利用面積、化学物質の溶出濃度、帯水層の流量など様々な要因に支配される。さらに溶出濃度自体も材料の比表面積や透水性、環境中での乾燥・摩耗・凍結融解等への曝露に起因する材料の劣化程度、などが関与する。したがって、これらの要因を考慮しながら化学物質の溶出に伴う実際の環境影響を評価し、利用の可否、および適切な利用規模や形態を合理的に決定する性能評価の考え方を導入していく必要がある。

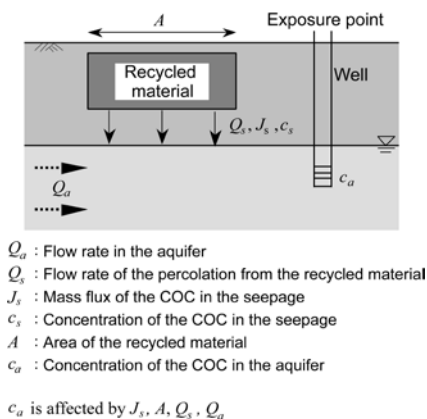


図-1 廃棄物由来の建設資材の地盤工学的利用に伴う環境影響の概念図

2. 研究の目的

上記の研究背景を受けて、本研究は副産物や廃棄物由来の材料を地盤材料を対象として、材料の長期的な物理化学特性の変化やそれに伴う有害物質の溶出挙動を評価するための試験方法の開発を行うとともに、その結果の工学的解釈方法を提案することを目的とする。一般に、これらの材料の長期的な環境影響を評価するための試験方法として

は促進曝露（劣化）試験が用いられるが、本研究では実際の環境条件に曝露された材料と促進曝露された材料の物理化学的特性を比較、分析することによって、室内試験方法やその解釈が妥当であり、環境影響の判定方法として適用しうるかの科学的根拠を見いだすことに主眼をおく。

3. 研究の方法

副産物・廃棄物由来の資材を地盤材料と使用する以下の3つの典型的なケースについて個別に検討を行った。各ケースの検討方法の概要を示す。

(1) 廃コンクリート再生砕石の路盤材利用における地盤環境影響の評価

廃コンクリート再生砕石（以下、RCA）に代表される粒状材を路盤材料として利用するケースを想定し、再生資材から溶出する化学物質の周辺地盤における汚染分布を有限要素法による浸透流解析および移流分散解析を用いて推定した。パラメトリックスタディを実施し、路盤幅、地下水流量、降雨浸透量が帯水層中の化学物質濃度に与える影響を検討した。解析に用いた鉛直二次元断面（単位奥行き）を図-2に示す。

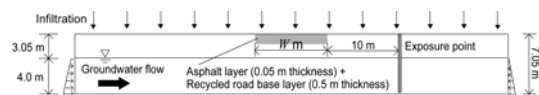


図-2 検討に用いた鉛直二次元断面

さらには、異なる現場から採取した4種類のRCAを対象として、六価クロム（Cr(VI)）溶出量を実験的に評価した。特に、再生砕石と接触する水の量、接触形態が溶出量に及ぼす影響を、タンクリーチング試験と公定溶出試験との結果を比較することにより調査した。さらに、乾湿繰り返し、凍結融解、すり減り等の実環境で起こりうる条件に曝露された場合の溶出量への影響を評価した結果に基づいて、現場における溶出量・溶出濃度の評価の考え方について提案を行った。

(2) 焼却灰埋立海面処分場における重金属の動態評価

わが国の一般廃棄物の処理においては、焼却処理を行って減容化し、近年は海面処分場へ埋め立てる割合が大都市近郊を中心に増加している。海面処分場は海底粘土層と遮水性護岸によって周辺環境への汚濁物質の流出を防ぐ機能を有するが、埋立終了後は跡地を土地資源として利用するのが一般的である。このことから、焼却灰中に高濃度で含まれる重金属や水質汚濁物質の埋立地盤内における長期的な挙動を評価し、環境安全性を示すことは急務の課題である。海面処分場の廃棄物埋立地盤の化学的特徴としては、焼却灰中のアルカリ分に起因してpHが高い、内

水位が高く、水の流れも緩慢なため内部が嫌気性になりやすい、有機物や塩分が豊富であることなどが挙げられる。本研究では、焼却灰層中と海成粘土層中において重金属の存在形態、溶出特性にこれらの化学的環境が及ぼす影響を改良型バッチ試験によって検討し、処分場内部における重金属の長期的な移動可能性について評価を行った。さらには、過去に実施された海面処分場の廃棄物埋立地盤を構成する焼却灰層と海成粘土層を模擬した大型カラム透水試験結果と比較し、提案試験方法の妥当性を検証した。提案するバッチ試験は、図-3に示すように簡便なシステムであるが、ヘッドスペースに充填する気体や導入する気体を変化させ、様々な pH、酸化還元電位条件を再現すると同時に、重金属の分析方法に逐次抽出試験を導入している。逐次抽出試験においては、1) 交換性態：炭酸塩もしくは土に吸着している形態、2) 還元性態：鉄・マンガンの水和酸化物に吸着している形態、3) 酸化性態：有機物または硫化物に吸着している形態、4) 残留態：安定した構造で溶出の恐れがない形態、の4画分の存在量を調査し、重金属の移動ポテンシャルを定量的に評価した。

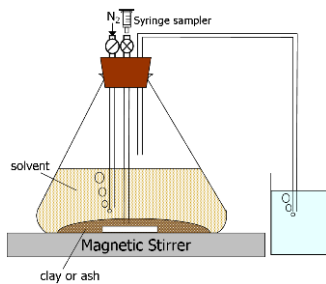


図-3 バッチ試験装置

(3) 自然由来重金属を含有する岩石の溶出挙動と試験法の影響

我が国は金属鉱床、海成泥質堆積物などを起因とする自然由来の重金属を含有する地質が広く分布しているため、建設工事の際に発生する掘削物から環境基準を超える濃度の重金属が溶出することが頻繁にある。岩石・土壌中に自然的な原因で存在している重金属は人為的な原因によるものと比較して含有量も比較的少なく、溶出機構も異なる場合が多い。例えば、黄鉄鉱はヒ素を含む場合

があるが、掘削して空気と水に曝露されると硫酸を生成して酸性水を発生するとともに、黄鉄鉱中のヒ素が溶出する。したがって、人為的原因による汚染と比較して溶出特性や環境安全性の評価が難しく、様々な観点からの評価によって環境影響が推定されているのが現状である。しかし、自然由来の重金属の溶出挙動に及ぼす試験方法の影響は未解明な部分が多く、試験方法の選定とその評価も専門家の判断によるところが大きい。本研究では、自然由来の重金属等を含有する複数の岩石・土壌を対象として全含有量試験、短期的に重金属溶出があるか判定する短期溶出試験(2mm以下に粉碎した試料のバッチ試験)、試料が長期的に空気や水分に曝露された時の酸性化の程度を把握する酸性化可能性試験(過酸化水素水を用いる pH 試験)、現場に近い環境下での溶出挙動を把握する雨水曝露試験などを行い、相互の試験結果の関連の調査、その結果に基づく簡便な室内試験による実溶出挙動の推定可能性の検証を行った。

4. 研究成果

(1) 廃コンクリート再生砕石の路盤材利用における地盤環境影響の評価

図-2に示した解析領域を対象に、数値解析によって降雨浸透量、地下水流速(流量)、路盤層幅がそれぞれ路盤から地下水流れ方向に10 m離れた地点での5年経過時点での正規化化学物質濃度 C/C_0 (%) (C_0 は溶出源濃度)に及ぼす影響を調査した。その結果、 C/C_0 と、地下水流量(流速) Q (m/day)、降雨浸透量 I (m/day)、路盤の設置幅 W (m) には、 $C/C_0 = A \cdot I \cdot Q^{-1} \cdot W^{0.34}$ の関係が確認された (A は定数項)。従って、帯水層中の化学物質濃度は、溶出濃度に加えて、降雨浸透量、地下水の流量、廃棄物層の利用規模によっても大きな影響を受けるといえ、環境影響評価においては、これらの要因の調査、考慮が必要である。一方、 C/C_0 の値に着目すると、1%前後の値を示す。本解析は、周辺地盤は一様な砂質土で構成されると仮定しているが、このことは通常環境下において帯水層中の濃度が再生資材からの溶出濃度の1/100程度に

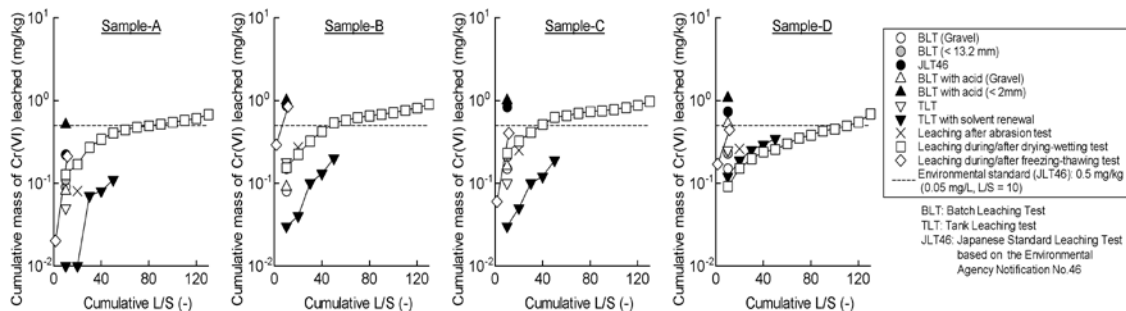


図-4 各試験における溶出量の比較結果(累積液固比と累積 Cr(VI) 溶出量の関係)

なることを示している。土壤環境基準と地下水環境基準の値は大半の項目で同じ値であることを考慮すると、再生資材が用いられる現場での環境条件と人への健康影響の曝露経路が推定できれば、適用現場によっては再生資材の安全性の判断基準を土壤環境基準から緩和する可能性も考えられる。

図-4に4種類のRCAを対象に実施した溶出試験における溶出量、および乾湿繰返し、凍結融解、すり減りという3種類の劣化促進後のCr(VI)の溶出量の比較を示す。結果は累積液固比で表した試験時に接触させた溶媒量とCr(VI)の累積溶出量の平均値の関係で示しており、傾きの大きさが溶出濃度を示す。劣化促進試験のうちCr(VI)の累積溶出量が最も大きかったのはいずれの試料においても乾湿繰返し曝露であった。また、モルタル付着量が多い試料B、Dについては、凍結融解曝露と乾湿繰返し曝露時の溶出量は同等であった。劣化促進後の溶出量と標準的な溶出試験(バッチ溶出試験、タンクリーチング試験、酸添加バッチ溶出試験)の溶出量を比較すると、促進劣化後のCr(VI)溶出量・濃度は、有姿の碎石を対象としたバッチ溶出試験と比較するといずれも高い値だったが、2mm以下に破碎した碎石を対象としたJLT46試験、もしくはそれに近い条件(初期pHを5.5とした酸添加バッチ溶出試験)とは同等以下に留まった。

以上の結果より、再生資材からの溶出濃度は環境影響評価において最も重要な因子のひとつであるが、図-4に示した試験結果からCr(VI)の溶出濃度は、①接触する水分量、②試料の粒径(比表面積)、③接触時間に影響される。①、②についての試験での評価は比較的容易であるが、③については個々のサイトにおいて変化することから適宜判断が必要であり、さらに材料の劣化に及ぼす影響も考慮した場合、溶出濃度の厳密な推定は非常に困難である。しかしながら、人の健康に対する環境リスクが任意の期間の平均的な曝露量で算定されること、促進劣化後の溶出量、および溶出濃度はいずれの試料においても2mm以下に破碎した碎石を対象としたJLT46試験、もしくはそれに準ずる試験と同等以下であることの2点を考慮すると、JLT46試験による平均的な溶出濃度でモデル化することによって、実環境での碎石の劣化が生じた場合の最大の溶出量、環境影響を概ね評価できるといえる。

(2) 焼却灰埋立海面処分場における重金属の動態評価

3.(2)に示した改良型バッチ試験結果の一例として、海面埋立処分場の焼却灰層を想定した焼却灰-海水系におけるpHとEhによるZnの存在形態の分布を図-5に示す。ここでは、3.(2)に示した4つの画分に加え、

水溶性分も併せてプロットしている。焼却灰層におけるZnの存在形態としてはpH \leq 10では交換性態、pH \geq 10では還元性態と酸化性態の割合が高い。つまり、pHが10以上ではZnはより難溶の形態に変化することが分かる。交換性態としてはZnCO₃やZn(OH)₂、還元性態としては鉄やマンガンの酸化物に吸着もしくは共沈したZnが抽出されると考えられる。還元性態の重金属は、処分場内部でしばしば観察される強還元性条件下では不安定になるが、pH \geq 10の範囲であれば難溶性の沈殿を形成すると考えられ、移動性自体は高くならないと判断できる。また、酸化性態の重金属は掘削等で好気的環境におかれると不安定になるため、pHによっては移動性が上昇するといえる。なお、Ehの違いによる存在形態の変化の傾向は明らかではなかった。以上より、焼却灰埋立地盤中の亜鉛の移動性にはpHが支配的要因となっており、pHが低下すると移動性が上昇すると考えられる。しかしながら、埋立地盤底部までアルカリの溶脱が進行してpHが低下することは考えにくく、Znの移動性は低いと結論付けることができる。

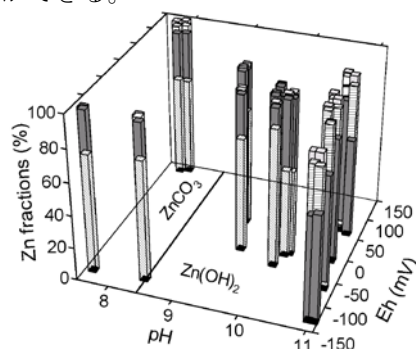


図-5 Eh、pHとZnの存在形態割合

次に、研究代表者らが過去に実施した大型カラム試験結果と本試験結果を比較することで提案試験法の妥当性を検証する。大型カラム試験は、内径190mm、高さ1,500mmのカラムに海面処分場の廃棄物埋立地盤を構成する焼却灰層と海成粘土層を模擬した大型カラム透水試験を500日以上に渡って実施し、処分場埋立地盤内の生化学的環境の変化が重金属の移動特性に与える影響の再現を図ったものである。本研究で実施した改良型バッチ試験はpHは7.5~11.0の範囲で推移しているが、水溶性のZnはほとんど確認されなかった。これは、カラム試験ではpH \leq 8.0の範囲で間隙水中に溶存態のZnが存在した結果とは一致しないが、易溶解性の交換性態の増加は再現している。これらのことから、カラム試験で確認されたpHの低下によって間隙水中のZn濃度が上昇する傾向はバッチ試験でも再現されているといえる。さらにバッチ試験においては、カラム試験で観察

された焼却灰層の pH (8~10) の範囲においては、交換性態と還元性態が支配的な存在形態であることが確認されているが、これもカラム試験終了後の Zn の存在形態と一致するものである。

以上のカラム試験結果とバッチ試験結果の関連性を考えると、本研究で実施したバッチ試験において、現場条件により近いモデル試験として位置づけられるカラム試験で得られた重金属の挙動がおよそ再現できていると考えられ、バッチ試験結果に基づいて焼却灰埋立地盤内部の重金属の挙動を議論することは妥当であるといえる。

(3) 自然由来重金属を含有する岩石の溶出挙動と試験法の影響

3. (3) に示した雨水曝露試験と各種溶出試験の結果として、自然由来のヒ素を含有する頁岩 (含有量 28 mg/kg)、および 3 種類の泥岩 1~3 (含有量はそれぞれ 23, 15, 23 mg/kg) における単位質量岩石からの As 溶出量 (mg/kg-sample) と溶出試験において岩石に接触させた水の量 (液固比に換算) の関係を図-6 に示す。

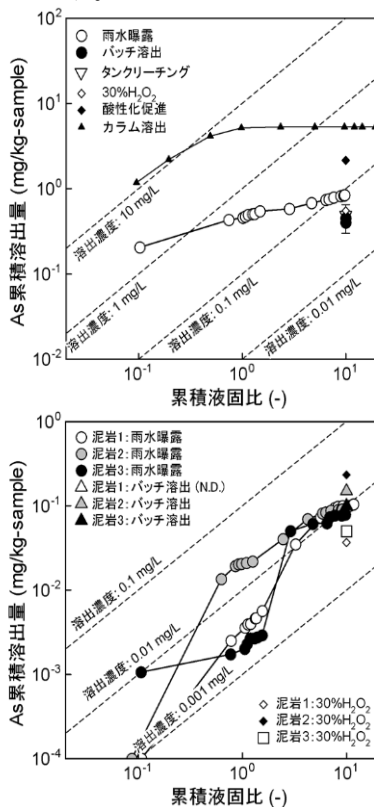


図-6 各種溶出試験における累積液固比とヒ素溶出量の関係 (上: 頁岩、下: 泥岩 1~3)

頁岩については、実際の溶出挙動に近いと位置づけられる屋外雨水曝露試験における溶出量は、同じ量の水が接触したときの短期溶出試験と酸性化可能性試験の結果よりやや高く、室内カラム試験と酸性化促進試験の結果よりも低くなった。本研究で使用した頁

岩は風化が全く進行していなかったことから、溶出水の電気伝導度が高く比較的高濃度で化学物質が溶脱していた。このことから、閉鎖系のバッチ試験においては化学平衡によってヒ素の溶出量は制限されたと考えられ、適切な評価には連続的に水を流下させるカラム試験が望ましいと考えられる。ただし、破碎粒度が小さい室内カラム試験によって溶出量を過大に評価してしまう傾向があり、試料の破碎方法や粒度調整に関しては検討が必要である。泥岩 1 に関しては、雨水曝露試験における溶出量が室内溶出試験の溶出量を大きく上回った。泥岩 1 は頁岩と同様に風化度が低く化学活性が高かったため、バッチ溶出試験では化学平衡によりヒ素の溶出が制限されたと考えられる。泥岩 2 と泥岩 3 に関しては、液固比 10 の時点における雨水曝露試験と短期溶出試験での溶出量がほぼ一致しており、室内試験によって実現場での溶出リスクを概ね評価できるといえる。しかしながら、現時点では溶出量の観点のみでの評価に留まっているのが現状であり、今後は溶出メカニズムの観点から室内溶出試験と屋外曝露試験結果を比較検討し、原位置での溶出挙動を推測しうる適切な試験体系の提案を行いたいと考えている。

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 龍原 毅・乾 徹・勝見 武 (2011): 土の化学・物理, 6. 土の化学物理と自然由来の重金属問題, 地盤工学会誌, Vol.59, No.2, pp.52-59, 査読無。
- ② 出島 茜・片山真理子・乾 徹・勝見 武・嘉門雅史 (2010): 自然由来の重金属を含有する岩石・土壌の溶出挙動と試験法の影響, 第 9 回地盤改良シンポジウム論文集, 日本材料学会, pp.87-90, 査読有。
- ③ Inui, T., Katsumi, T., Katayama, M. and Kamon, M. (2010): Effects of friability and grain size on the leaching of heavy metals in excavated rock materials, *Environmental Geotechnics for Sustainable Development*, M. Datta et al. (eds.), Tata McGraw Hill, New Delhi, pp.730-733, 査読有。
- ④ Plata, H., Inui, T., Katsumi, T., Oya, Y. and Kamon, M. (2010): Speciation and mobility assessment of zinc in coastal landfill sites with MSW incinerator ash, *Journal of Environmental Engineering*, ASCE, Vol.136, Issue 8, pp. 762-768, 査読有。
- ⑤ Inui, T., Katsumi, T., and Kamon, M. (2009): Environmental suitability of recycled concrete aggregates used in geotechnical

applications, *Proceedings of the Seventeenth International Conference on Soil Mechanics and Geotechnical Engineering*, M. Hamza et al. (eds.), IOS press, pp.340-343, 査読有.

- ⑥ Inui, T., Oya, Y., Plata, H., Katsumi, T., and Kamon, M. (2009): Speciation and mobility assessment of heavy metals in the coastal MSW incinerator ash landfill, *Journal of ASTM International*, Vol.6, No.8, Paper ID JAI102166, 査読有.
- ⑦ 乾 徹・出島 茜・勝見 武・嘉門雅史 (2008): 自然由来の重金属を含む建設発生土の溶出特性と試験条件の影響, 地下水地盤環境に関するシンポジウム 2008—地盤環境の保全—発表論文集, pp.67-70, 査読有.
- ⑧ 乾 徹・肴倉宏史・鎌迫典久・田坂行雄 (2008): 廃棄物再生資材の新たな環境影響試験法とその適用事例, 地盤工学会誌, Vol.56, No.8, pp.16-19, 査読無.

[学会発表] (計9件)

- ① 出島 茜・乾 徹・勝見 武・片山真理子, 自然由来重金属を含有する岩石・土壌の環境影響試験法に関する考察, 第45回地盤工学研究発表会, 2010/8/20, 愛媛大学(松山市).
- ② Plata, H., Inui, T., Oya, Y., Katsumi, T., and Kamon, M., Use of the modified BCR three-step sequential extraction procedure for the study of heavy metals mobility in MSWIA coastal landfill sites, 17th Seminar of JSPS-MOE Core University Program on Urban Management, 2009/10/26, 京都大学(京都市).
- ③ 乾 徹・品川俊介・森 啓年・田本修一, 建設工事における自然由来重金属等含有岩石・土壌への対応, 平成21年度資源・素材関係学協会合同秋季大会, 2009/9/10, 北海道大学(札幌市).
- ④ 齋藤春佳・田中有紀・乾 徹・勝見 武・嘉門雅史, 路盤材に廃コンクリート再生砕石を用いる際の環境影響評価, 平成21年度土木関西支部年次学術講演会, 2009/5/23, 神戸市立工業高等専門学校(神戸市).
- ⑤ Inui, T., Katsumi, T., and Kamon, M., Environmental risk control of waste and by-products utilized in geotechnical applications, 2nd Vietnam-Japan Symposium on Climate change and the Sustainability, 2008/11/28, ハノイ(ベトナム).
- ⑥ 出島 茜・乾 徹・勝見 武・嘉門雅史, 自然由来の重金属を含む建設発生土の溶出特性と試験条件の影響, 土木学会第63回年次学術講演会, 2008/9/11, 東北大学(仙台市).

- ⑦ 大矢好洋・乾 徹・勝見 武・嘉門雅史 (2008), 海面埋立処分場内部における重金属の存在形態と移動性の評価(その1)—バッチ試験による評価, 第43回地盤工学研究発表会, 2008/7/11, 広島国際会議場(広島市).
- ⑧ Dejima, A., Inui, T., Katsumi, T., and Kamon, M., Leaching characteristics of excavated soil containing arsenic by natural origin, *Geo-Environmental Engineering 2008*, 2008/6/13, 京都大学(京都市).
- ⑨ 出島 茜・勝見 武・乾 徹・嘉門雅史, 自然由来汚染土の重金属溶出特性と環境影響試験方法の基礎的検討, 平成20年度土木学会関西支部年次学術講演会, 2008/5/24, 近畿大学(東大阪市).

[その他]

ホームページ等

科学技術振興機構 WEB ラーニングプラザ「大地をめぐる環境問題」(分担製作, 成果の一部を反映)

<http://weblearningplaza.jst.go.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

乾 徹 (INUI TORU)

京都大学・地球環境学堂・准教授

研究者番号: 90324706

(2) 連携研究者

勝見 武 (KATSUMI TAKESHI)

京都大学・地球環境学堂・教授

研究者番号: 60233764

嘉門雅史 (KAMON MASASHI)

香川高等専門学校・校長

研究者番号: 40026331