

令和 2 年 5 月 20 日現在

機関番号：37102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06566

研究課題名(和文) 自然由来のヒ素を含有し酸性化する掘削土砂の中性化による不溶化処理に関する研究

研究課題名(英文) Study on insolubilization treatment by neutralization of acid sediment containing natural arsenic

研究代表者

林 泰弘 (HAYASHI, Yasuhiro)

九州産業大学・建築都市工学部・教授

研究者番号：50274692

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：酸性化する土砂を地盤材料として有効利用するための中性化処理の研究を行った。中性化のためのアルカリ資材に炭酸カルシウムを用いた場合には、過剰添加による高アルカリ化のリスクが少なく、長期的にも変化が少ないなどの利点があるが、添加量が多くなる懸念があり、酸化マグネシウムを添加した場合には、少量で短期的に中性化が図れるが、pHが高くなりすぎる懸念があることを示した。長期的なpHを短期間で評価するためには、乾湿繰り返し養生をした試料を用い、酸性化可能性試験によってpHを測定するのが望ましく、特に、後者が有効であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

首都圏の建設工事は工事規模が大きいという、大深度地盤の掘削によって、酸化し酸性化する土砂が大量に発生する。この土砂を利用可能な状態に改良し、発生現場に近い場所で有効に活用することで、天然土砂の採掘を抑制するとともに、残土の処分が提言されるため処分容量の保全が可能であるうえ、土砂運搬に伴う環境負荷の低減に貢献することができる。

研究成果の概要(英文)：The neutralization treatment for the effective use of acidified soil as a geomaterial was studied. The following results were obtained. In case of calcium carbonate is added for neutralization, there are advantages such as low risk of becoming highly alkaline due to excessive addition and little change over the long term, but there is a concern that the amount added will increase. In case of magnesium oxide was added, neutralization could be achieved in the short term with a small amount, but there was a concern that the pH would become too high. In order to evaluate long-term pH in a short period, it is desirable to measure the pH by acidification test, using a sample that has been subjected to repeated dry and wet curing.

研究分野：地盤工学

キーワード：酸性土 中性化処理 有効利用 pH 酸性化可能性試験 乾湿繰り返し養生

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

建設発生土を建設資材として有効に利用ができれば、処分場の延命化、新規土砂の採掘量縮減など環境負荷の低減効果大きい。首都圏では大深度地下のシールド工事が多く行われており、大量の土砂が発生しているが、この土砂は掘削時の水や気泡、高分子材の添加を伴う破碎によって軟弱化するとともに、場外への運搬、保管過程で大気と接触し酸化する。また、ヒ素が黄鉄鉱と共存していることが多く、黄鉄鉱の酸化によって酸性化し、土壤汚染対策法の基準を超えてヒ素が溶出する危険性が高いことからそのまま利用することは困難である。

2. 研究の目的

掘削された土砂が大気に触れて酸化しても、酸性化するのを防げばヒ素の溶出リスクも少なく、安全な地盤材料として使用できると考えた。そこで、酸性化する土(以下、酸性土と称する)に中和資材(アルカリ資材)を添加し、土を長期にわたり中性域に調整する方法を検討し、ヒ素の溶出抑制効果を経時的な変化を含めて検討することとした。

しかしながら、本研究でもともと対象としていた酸化に伴って酸性化し、ヒ素が土壤環境基準を超えて溶出するような試料が十分に入手できなかった。酸性土の有効利用についても大きな課題となっていることから、酸性土の中性化に重きを置いた研究を行った。人工的に作製した酸性土を対象に、アルカリ資材の添加による中性化の状態を長期にわたって保証できる方法を検討することを目的とした。

3. 研究の方法

異なる物性を示す原土に酸性化剤を添加して pH=3 となる酸性土を作製した。この酸性土にアルカリ資材を添加して中性化処理土を作製した。中性化処理土の pH は養生によって変化するため長期的な pH に評価方法を検討した。その流れを図 1 に示す。

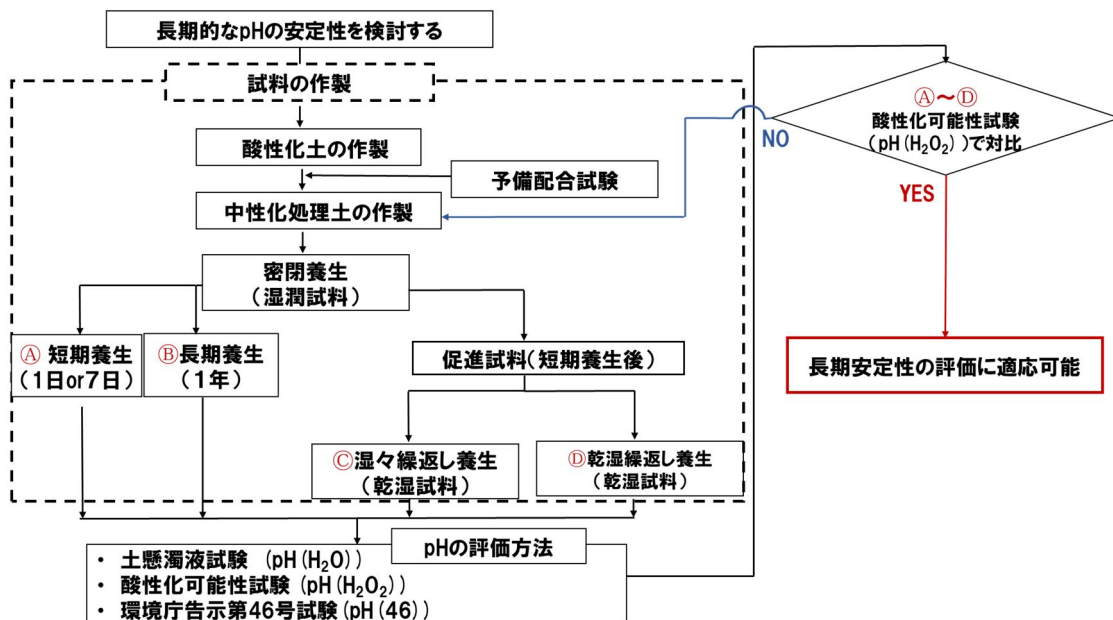


図 1 中性化処理土の長期的な pH 評価の流れ¹⁾

原土には研究対象地域に広く分布する上総層群泥岩(土丹)を主体に、物理特性や化学特性が異なる他の地域で発生した建設発生土、工業用の粘土を用いた。酸性化剤には硫酸(試薬)、黄鉄鉱(鉱物を粉砕したもの)、有機系材料である植物活性剤(AG 剤)、フミン酸(試薬)を用いた。対象土と酸性化剤の組み合わせによって pH=3 となる幅広い物性を持つ酸性土を作製した。

中性化のためのアルカリ資材には、炭酸カルシウム(試薬)、酸化マグネシウム(試薬)、苦土石灰(改良材)を用いた。酸性土にアルカリ資材を添加し、養生後の pH を測定した。なお、予備試験の過程で、苦土石灰による中性化効果が小さい(大量の添加が必要)であると判明した²⁾ため、以降の実験は実施していない。

養生方法は、恒温(20±3)密閉養生を基本として、水の入れ替えを行う水中養生(湿々繰返し養生)、乾燥と湿潤の繰返し養生(乾湿繰返し養生)を行った。

試料の pH は、JIS-0211:2009「土懸濁液の pH 試験」で定められた方法による pH(以下、pH(H₂O)と称す)と平成 3 年環境庁告示第 46 号で定められた溶出量分析方法で作製された試料の pH(以下、pH(46 号)と称す)、JGS 0271-2016「過酸化水素水による土及び岩石の酸性化可能性

試験」で得られた試料液の pH (以下、 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O}_2)$ と称す) を用いた。 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ を基準にすると、 $\text{pH}(\text{46号})$ は 6 時間の振とうによって土の団粒構造を破壊すること、 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O}_2)$ は強制的に酸化することで硫化物や有機物の短時間での分解が可能のため、より長期的な評価が可能であると考えた。

4. 研究成果

各原土を $\text{pH}=3$ にするための酸性化剤の添加率は表 1 のように求められた。フミン酸は単独で加えても pH はほとんど変化しないため、硫酸と併用して使用した。

表 1 $\text{pH}=3$ の酸性土を作製するための酸性化剤添加量

	土丹A	土丹B	土丹D	木節粘土	関門浚渫土	関東ローム
黄鉄鉱 (%)	7.0	7.0	-	-	-	-
硫酸添加量(mol/kg)	0.37	0.33	0.16	0.03	0.60	1.00
AG材添加率(%)	-	-	30	43	-	-
硫酸添加量(mol/kg)	-	-	0.16	0.03	-	-
フミン酸添加率(%)	-	-	2.7	3.8	-	-

硫酸のみすべての対象土に適用したが、対象土によって必要な添加量が大きく異なっており、この違いが中性化処理土へ影響を及ぼすと考えられた。

酸性土にアルカリ資材を添加し、湿潤養生した試料を用いて $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ 、 $\text{pH}(\text{46号})$ 、 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O}_2)$ を測定した。まず、密閉養生した試料の養生期間の影響を確認した。密閉養生 7 日の試料と 1 年の試料の $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ の関係を図 2 に示す。凡例の DB は土丹 B、(3) は硫酸を用いて $\text{pH}=3$ とした酸性土、(f) は黄鉄鉱を用いて $\text{pH}=3$ とした酸性土、【 】はアルカリ資材の種類と添加率(%)で C は炭酸カルシウム、M は酸化マグネシウムを示している。中性化処理土の種類によっては両者の値は異なり、長期養生による pH の低下が確認された。

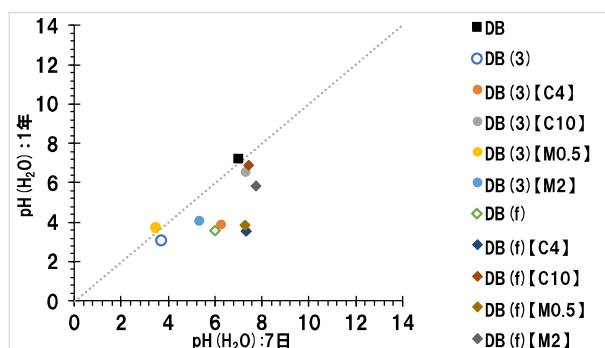


図 2 密閉養生 7 日の試料と 1 年の試料の $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ の関係³⁾

長期養生後の試料の pH を短期間で推定するために、密閉養生 1 年の試料の $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ と密閉養生 7 日の試料の $\text{pH}(\text{H}_2\text{O}_2)$ 関係を検討した。土丹 D の結果を図 3 に示す。凡例は、アルカリ資材の種類と添加率(%), () は酸性化の方法を示しており、 $\text{pHa}3$ は硫酸を用いて $\text{pH}=3$ とした酸性土、 FeS_2 は黄鉄鉱を用いて $\text{pH}=3$ とした酸性土を示している。一部、 $\text{pH}(\text{H}_2\text{O}) > \text{pH}(\text{H}_2\text{O}_2)$ がみられるが、未処理土や酸化マグネシウムの添加率が小さい試料であることから、中性化処理土の長期的な pH の評価としては $\text{pH}(\text{H}_2\text{O}_2)$ が適用できると考えた。

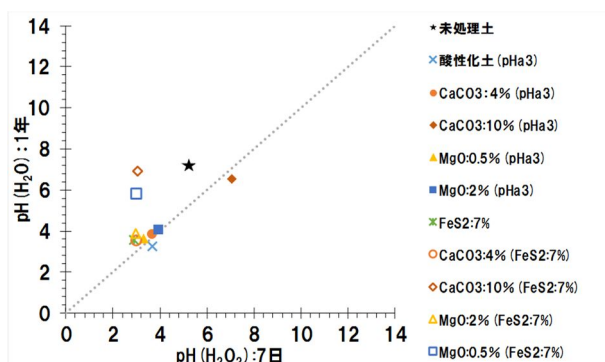


図 3 密閉養生養生 7 日の試料と 1 年の試料の $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ の関係²⁾

試料の養生方法に着目し、7日間密閉養生した試料と7日養生後に乾湿繰返しを受けた試料のpHをpH(H₂O₂)で評価した(図4)。凡例のMJは関門浚渫土, DDは土丹D,(3)は硫酸を用いてpH=3とした酸性土,【 】はアルカリ資材の種類と添加率(%)でCは炭酸カルシウム,Mは酸化マグネシウムを示している。両者の値はほぼ一致しているため、乾湿繰返し養生を行わなくても、pH(H₂O₂)で評価できると判断した。

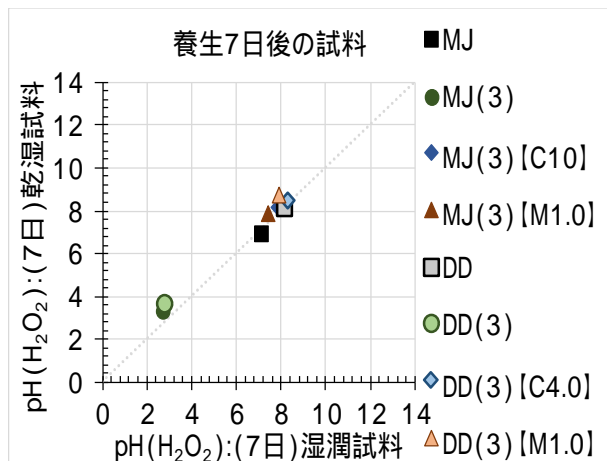


図4 湿潤試料と湿々試料のpH(H₂O₂)の関係²⁾

中性化に必要なアルカリ資材添加率(以降、必要アルカリ資材添加率と称す)に及ぼす原土の種類、酸性材の種類や添加量の影響を検討した。図5は酸性化剤に硫酸を用いた場合であり、必要アルカリ資材添加率は6.5 pH(H₂O₂) 7.5となる範囲を示している。凡例のSは硫酸を用いて酸性土を作製したことを示している。硫酸添加量が多い酸性土ほど必要アルカリ資材添加率は大きく、酸化マグネシウムよりも炭酸カルシウムの添加率が大きい。

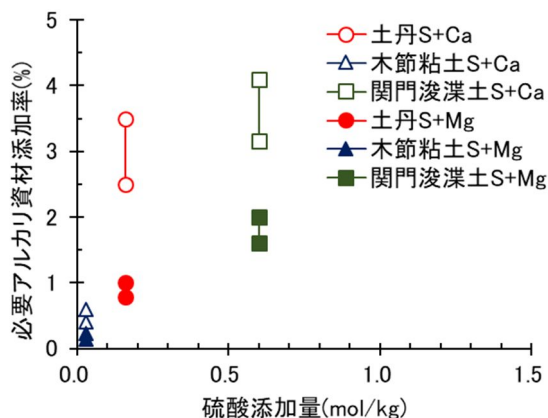


図5 硫酸添加量と必要アルカリ資材添加率の関係

酸性化剤に有機系材料である植物活性剤(AG剤)を用いた場合(図6)には、AG剤の添加量と必要アルカリ資材添加率の関係は見られなかった。

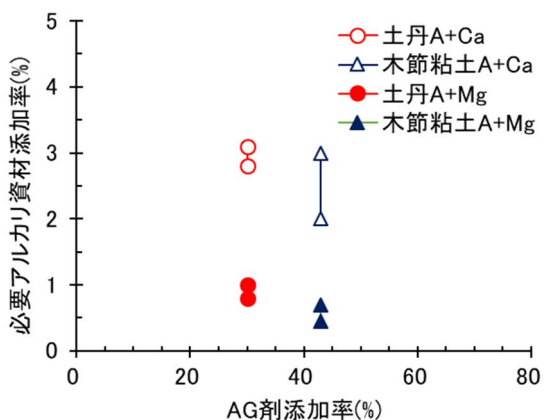


図6 AG剤添加量と必要アルカリ資材添加率の関係

酸性土の物性と必要アルカリ添加率との関係を検討した。土の pH 緩衝能に関連する物理化学特性は有機物含有量や結晶水、結合水の水分量に左右されることが多いため、強熱減量が一つの指標となりうる考えた。

図 7 に酸性土の強熱減量と必要アルカリ添加率の関係を示す。木節粘土については明確に強熱減量の増加による必要アルカリ添加率の増加傾向が確認できた。一方で、土丹は強熱減量と必要アルカリ添加率の関係があいまいである。また、木節粘土、関門浚渫土と木節粘土には大きな違いがみられるため強熱減量では評価できない。

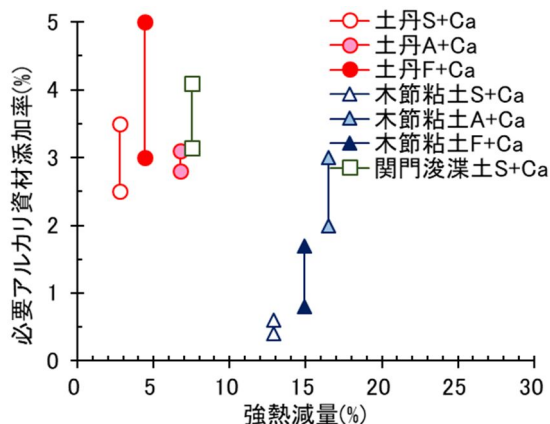


図 7 強熱減量と必要アルカリ資材の添加率の関係

有機物含有量の影響だけに着目し、酸性土のフミン酸含有量と必要アルカリ添加率の関係を図 7 に示す。土丹と関門浚渫土はフミン酸の量と必要アルカリ資材添加率に関連がみられるが、木節粘土はフミン酸含有量の多いフミン酸・硫酸酸性土の必要アルカリ添加率が AG 剤酸性土よりも少ないことから、フミン酸含有量だけでは評価ができない。また、原土の種類の違いも考慮できていない。

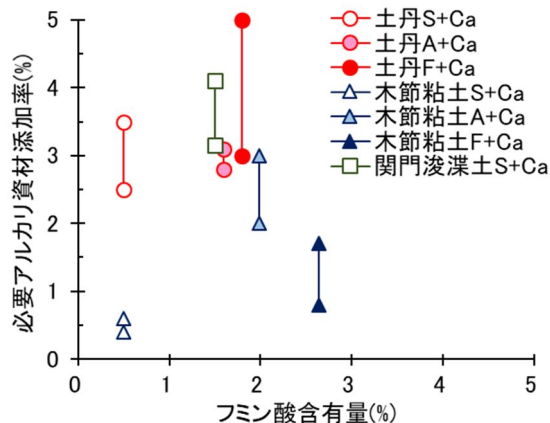


図 8 フミン酸添加率と必要アルカリ資材の添加率の関係

酸性土の pH が同じレベルであっても中性化に必要なアルカリ資材添加量は酸性化要因によって異なった。その要因を検討したが 酸性土の物性を単一の指標で評価することはできなかった。データ数を増やし、統計的処理により複合的な要因を検討する必要がある。

参考文献

- 1) 赤司かがり：繰返し水浸養生が中性化処理土の pH に及ぼす影響，第 13 回環境地盤工学シンポジウム発表資料，2019.9
- 2) 赤司かがり・林泰弘・佐藤市郎・田村明・松尾雄治：中性化処理した上総層群泥岩の長期的な pH の評価，第 13 回地盤改良シンポジウム論文集，pp.295-298，2018.10.
- 3) 赤司かがり・林泰弘・佐藤市郎・田村明・松尾雄治：繰返し水浸養生が中性化処理土の pH に及ぼす影響，第 13 回環境地盤工学シンポジウム，pp.399-404，2019.9.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 赤司かがり・林泰弘・佐藤市郎・田村明・松尾雄治	4. 巻 -
2. 論文標題 中性化処理した上総層群泥岩の長期的なpH の評価	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 第13回地盤改良シンポジウム論文集	6. 最初と最後の頁 295, 298
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 赤司かがり・林泰弘・佐藤市郎・田村明・松尾雄治	4. 巻 第1号
2. 論文標題 中性化処理土の繰り返し水浸養生による長期安定性の評価	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 九州産業大学建築都市工学部研究報告	6. 最初と最後の頁 39, 44
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 林泰弘・赤司かがり・佐藤市郎・田村明・中道和則・長野祐希・松尾雄治	4. 巻 -
2. 論文標題 酸性化する上総層群泥岩の中性化処理	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 第12回環境地盤工学シンポジウム発表論文集	6. 最初と最後の頁 303, 308
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 赤司かがり
2. 発表標題 乾湿繰返し作用が中性化処理した上総層群泥岩の化学特性へ及ぼす影響
3. 学会等名 第53回地盤工学研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 赤司かがり
2. 発表標題 乾湿繰返し養生による中性化処理土のpHの変化
3. 学会等名 土木学会第73回年次学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 赤司かがり
2. 発表標題 繰返し水浸養生による中性化処理土の長期的なpHの評価
3. 学会等名 平成30年度土木学会西部支部研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木隆成
2. 発表標題 複数のアルカリ資材を用いた酸性土の中性化処理
3. 学会等名 平成30年度土木学会西部支部研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 赤司かがり・林泰弘・佐藤市朗・田村明・中道和則・松尾雄治
2. 発表標題 中性化処理した上総層群泥岩の化学特性
3. 学会等名 土木学会第72回年次学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 赤司かがり・林泰弘・佐藤市郎・田村明・木原聡・松尾雄治
2. 発表標題 中性化处理した上総層群泥岩の化学特性に及ぼす乾湿繰り返し作用の影響
3. 学会等名 平成29年度土木学会西部支部研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 木原聡・林泰弘・佐藤市郎・田村明・赤司かがり・松尾雄治
2. 発表標題 母材の異なる酸性土の中性化处理に及ぼすアルカリ資材の効果
3. 学会等名 平成29年度土木学会西部支部研究発表会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔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
研究協力者	赤司 かがり (AKASHI Kagari)	西日本技術開発株式会社	
研究協力者	佐藤 市郎 (SATO Ichiro)	ラサテック株式会社	
研究協力者	田村 明 (TAMURA Akira)	MTアクアポリマー株式会社	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 協力者	松尾 雄治 (MATSUO Yuji)	九州産業大学 (37102)	