

上向流カラム通水試験の飽和方法が溶出特性に及ぼす影響の検討

福岡大学工学部 学生会員 篠原佳祐 松尾典映
 福岡大学工学部 正会員 佐藤研一 藤川拓朗 古賀千佳嗣
 (独) 国立環境研究所 正会員 肴倉宏史

1.はじめに 我が国において、平成3年環境庁告示第46号法試験(以下、環告46号法)は、土壤環境基準の判定試験として重要な役割を果たしている。しかし、環告46号法では溶出特性の1側面しか見ることができないため、溶出濃度の時間的な増加・減少等の溶出挙動に関する情報を得られない。このような中、上向流カラム通水試験は、環告46号法とは異なり初期段階からの溶出濃度に関する情報を得ることが可能であるだけでなく、長期間の溶出挙動も把握出来るため、実環境に近い試験とされている。しかし、カラム試験は、標準的な試験方法がまだ確立されていないことから、各研究機関との試験結果の比較が難しいとされており、試験結果の再現性が低いことが課題とされている¹⁾。

そこで本研究では、上向流カラム通水試験に及ぼす影響因子を把握し、試験結果の再現性の高い試験方法の標準化を目的としている。本報告では、特に供試体の飽和方法の違いによる影響に着目して検討を行った結果について報告する。

2. 実験概要

2-1 実験試料 実験試料として自然由来の重金属等が含まれる砂質土を用いた。表-1に物理特性、図-1に粒径加積曲線を示す。この試料を四分法により分取した後、4.75mm 振りを通過したものを使用した。

2-2 実験方法 カラム試験の試料充填方法は、ISO TS 21268-3²⁾及びCEN TS 14405³⁾に準拠し、表-2に示す試験法を標準方法として用いた。図-2は本研究で使用したカラム試験機で使用したカラム試験機の回路図であり、試料5層に分け、最終高さを30±5cmになるように充填する。突固めは直径5cm、重さ125gのランマーを高さ約20cmから各層3回落下させ、供試体作製後、カラムの下端から飽和速度約20mL/minで飽和させ、2日間以上静置させている。飽和過程終了後、通水速度は12±1.6mL/hとなるように調整を行い、通水を開始し、所定の分画にて採取を行った。なお、採水タンク内は空気に接触して浸出液のpHに影響を与えることのないように、窒素で封入している。採取した浸出液は、吸引濾過を行い、EC(電気伝導度)、pH、Cl(塩素)、As(ヒ素)、F(フッ素)、Pb(鉛)の測定を行った。塩化物イオン(Cl)及びフッ化物イオン(F)はイオンクロマトグラフィー(ICS-1000:ダイオネクス社製)を用い、ヒ素(As)はICPプラズマ発光分析装置(ICP7000-Ver.2:島津製作所製)を用いて各々定量した。

2-3 実験条件 本研究では飽和過程における飽和方法の違いが溶出特性に及ぼす影響を把握すべく、表-3に示す4つのCaseについて検討を行った。Case1は表-2に示した標準法を示している。Case2は静置時間の影響が試験結果に及ぼす影響を把握すべく、静置時間を置かずカラム内に溶媒を通水後、直ちに試験を開始した。Case3は、Case2と同様に通水後直ちに試験開始したが、飽和度を高めることを目的に溶媒に脱気水(真空圧60kPaで48時間吸引したもの)を使用した。Case4は、短時間で飽和度を高めることを目的にカラム内に試料を充填後1.25L/minのCO₂を10分間通した後、脱気水を用いて直ちに試験を開始した。これらの飽和方法の違いが飽和度、pH、重金属等の溶出挙動に与える影響を把握し、再現性の高い試験方法の検討を行った。

3. 実験結果及び考察 図-3に浸出液のpH、図-4にECの測定結果を示す。ECは試験条件による影響は見られなかったが、pH

表-1 物理特性及び溶出特性

土粒子密度(g/m ³)	2.679	
自然含水比(%)	18.5	
細粒分含有率Fc(%)	14.5	
pH	8.06	
Ec(mS/cm)	0.30	
環告46号法 試験結果	F:フッ素(mg/L)	0.83
	Cl:塩素(mg/L)	18.0
	As:ヒ素(mg/L)	0.003

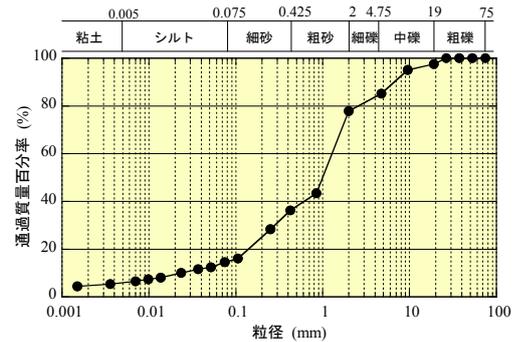


図-1 粒径加積曲線

表-2 カラム試験(標準試験法)

	標準法
最大粒径	4.75mmアンダー(狭径カラム)
試料の状態	湿式
充填方法	高さ6cmを5層 125gランマーで各層3回
試料高さ	30cm±5cm、充填量統一
プレフィルター	1.5~8μm
溶媒	蒸留水
飽和期間	2日間静置
流量	10~15mL/h
分画	時間区切り(24時間、48時間、 72時間、96時間、7日、14日、 21日、28日、35日)

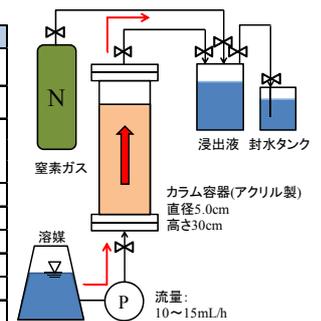


図-2 カラム回路図

表-3 飽和方法の違いに着目した試験条件

	Case1	Case2	Case3	Case4
試料状態	湿式	湿式	湿式	湿式
溶媒	蒸留水	蒸留水	脱気水	脱気水
飽和方法	2日間静置	即日	即日	即日+CO ₂ 置換
質量(g)	775.64	776.67	781.03	777.88
乾燥質量(g)	599.55	558.17	584.05	621.13
供試体高さ(cm)	29.18	29.47	28.5	28.82
含水比(%)	18.5	18.5	18.5	18.5
乾燥密度ρ _d (g/cm ³)	1.05	0.96	1.04	1.11
飽和度Sr(%)	92.3	88.3	89.6	94.2

※飽和度は試験終了後の値を示す。

について、Case4のみ定液固比の領域において他の条件より低いpHを示した。これは、CO₂を通して試験を行ったため、中性化が起きているものだと考えられる。図-5にフッ素(F)の測定結果、図-6にフッ素(F)の累積溶出量を示す。なお、図-5には、バッチ試験結果も併せて示す。Fに関してどの試験条件も測定開始直後から溶出量が上昇し、ピーク値を過ぎると減少する傾向が見られた。また、Case4のみ他の条件より下回る結果となった。累積溶出量についても同様にCase4のみ他の条件と比べて低いことが分かる。これは、CO₂置換によってFが炭酸塩化又は他の重金属が炭酸塩化し、吸着した可能性が考えられる。そのため、飽和方法におけるCO₂置換はカラム試験において、重金属の溶出挙動に影響を及ぼす要因の一つだと考えられる。図-7に塩素(Cl)の測定結果を示す。Clに関して電気抵抗の主な要因は無機塩類であるためECに比例するように減少傾向を示し、試験条件の違いによる影響は見られなかった。図-8にヒ素(As)の測定結果を示す。図中には、バッチ試験結果も併せて示している。低液固比領域において定量下限値以下を示した分画があったが、Asに関してはいずれも液固比5でピークが見られ、その後低下する傾向を示したものの、飽和方法の違いによって溶出量も異なる傾向を示した。そこで図-9に飽和度で整理した結果、飽和度が高くなる程Asは減少する傾向が見られた。これに対し、FはAsと異なり、飽和度が高くなるほど溶出濃度が高い傾向を示した。また、飽和度の高いCase4のみ他の条件より変化が大きいことが分かる。これは、CO₂置換がpHに影響を与えたためだと考えられる。以上の結果から飽和方法の違いが再現性にどの程度影響を与えるかについて把握すべく図-10に上向流カラム試験の最大濃度と累積溶出量(累積液固比10)の関係を示す。これは、各重金属等の最大濃度と累積液固比10の累積溶出量についてまとめたものであり、試験結果の平均値に対する比を示している⁴⁾。この試験結果よりCase1~4は平均値の最大濃度比、積算溶出量ともに±20%の範囲内にあるが、Case4のAs、Fは他の条件と差があるため、Case1~3は飽和方法の違いは試験結果の再現性に影響を及ぼす可能性は低いが、Case4のCO₂置換は、試料によっては再現性に影響を及ぼす可能性があるため注意が必要である。

4. まとめ 1)飽和方法について脱気水とCO₂置換を併用する手法は、カラム充填試料中の飽和度を高める手法として有効である。しかし、測定対象とする土壌や重金属によって炭酸化が生じ、結果として溶出挙動過大・過小評価する可能性もあるため、注意が必要である。2) Fの溶出特性については、飽和方法の違いによる溶媒の種類(蒸留水と脱気水)や静置時間に関係なく一定の再現性を得られることが示された。

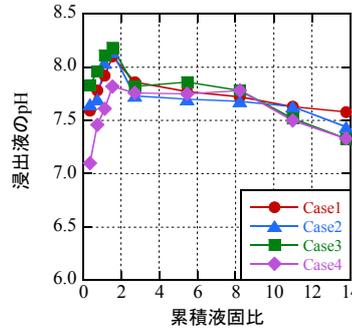


図-3 浸出液のpH

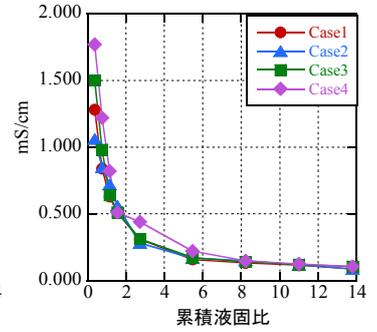


図-4 ECの測定結果

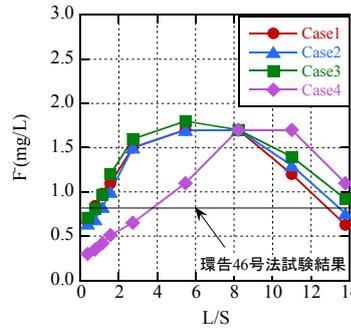


図-5 フッ素(F)の測定結果

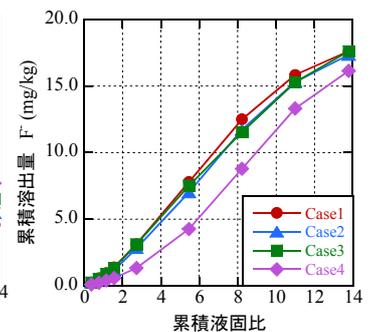


図-6 フッ素(F)の累積溶出量

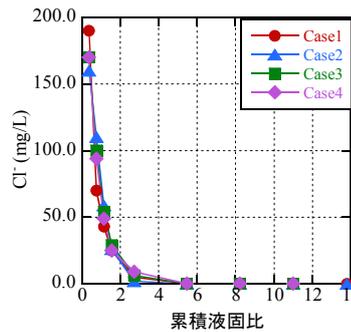


図-7 塩素(Cl)の測定結果

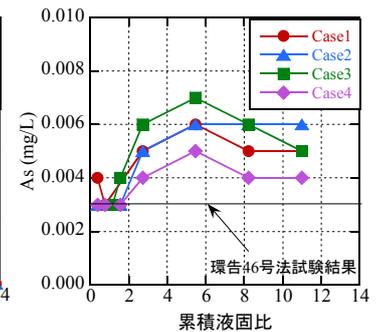


図-8 ヒ素(As)の測定結果

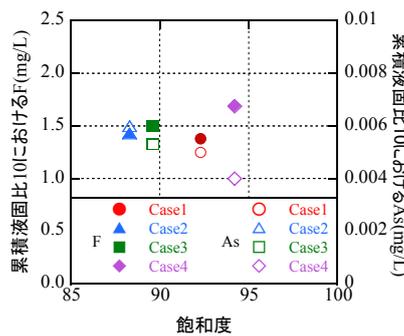


図-9 飽和度での溶出濃度の比較

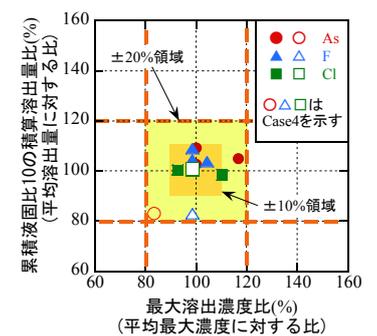


図-10 上向流カラム試験の最大濃度と累積溶出量(累積液固比10)の関係

参考文献 1) 井野場ら: 上向流カラム通水試験の室内精度評価とカラム内の移流拡散状況の観察, 第20回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, 2009. 2) ISO/TS 21268-3 Soil quality—Leaching procedures for subsequent chemical and ecotoxicological testing of soil and soil materials, Part3:Up-flow percolation test 3) CEN/TS 14405 Characterization of waste – Leaching behaviour tests – Up-flow percolation test (under specified conditions), 2004. 4) 中村ら: 上向流カラム通水試験の標準化に向けた重金属等の溶出挙動評価, 地盤工学ジャーナル, Vol9, No.4, pp697-706, 2014.