

上向流カラム通水試験における各種試験条件の違いが溶出挙動に与える影響

福岡大学工学部 学生会員 堀 睦
 福岡大学工学部 正会員 佐藤研一 藤川拓朗 古賀千佳嗣
 (国研)産業技術総合研究所 正会員 保高徹生

1. はじめに 我が国において土壌の汚染状態や環境安全性を評価する際は、平成3年環境庁告示第46号法試験(環告46号法試験)が判定試験として使用されている。しかし、この試験は土壌の中に含まれる重金属類の溶出濃度の判定をするのみで、溶出挙動などの長期的な把握をすることは出来ない。そのため、今後は判定試験と、実際の環境条件に即した特性化試験¹⁾とを併用し、環境安全品質の検査を行っていく事が重要となる。その中でも、化学的根拠に基づいた特性化試験である上向流カラム通水試験(カラム試験)は環境安全性を詳細に評価できるため、これからの活用が期待されている²⁾。しかしカラム試験はまだ技術仕様の段階であり、標準化されていないのが現状である。このような背景の中、著者ら^{2),3)}はこれまでにカラム試験の標準化に向けた検討を行い、再現性の高い溶出操作について一連の結果を得ている。そこで、本報告では標準化に向けて更なる検討を行うため、物理特性の異なる自然由来の重金属を含んだ数種類の土壌を用いて、通水速度の影響、解砕粒径の影響、カラム径の影響について評価を行った結果を報告する。

2. 実験概要

2-1 実験に用いた試料 実験には沖積土、土丹(泥岩)、岩石の3種類の試料を使用した。土丹と岩石については試料の粒径が大きかったために破碎を行い、実験には4.75mmふるいを通過したものを用いた。この試料の粒径加積曲線は図-1に、物理特性を表-1に示している。また環告46号法試験の結果は表-2に示している通り、いずれの試料も土壌環境基準値以下であったが、自然由来の重金属を含有していることが分かる。

2-2 実験方法 本報告ではISO/CEN規格^{4),5)}を標準法とし、この規格に沿って実験を行った。カラムの回路図を図-2に示す。まず試料を5等分し1層分ずつカラム内に入れ、試料高さ30±5cmとなるようにカラムに充填する。

突き固めは直径5cm、質量125gのランマーを約20cmの高さから各層ごとに3回落下させて行った。カラム上部には0.45μmのメンブランフィルターを設置し、プレフィルターとした。試料充填後、溶媒のCaCl₂(塩化カルシウム)溶液をカラム下端から通水し、飽和状態にする。2日間静置した後に通水速度12mL/hで通水させ、規定の時間(分画)ごとに浸出液の採取を行った。採取した浸出液は0.45μmのメンブランフィルターを用いて吸引濾過を行い検液とした。Cl⁻(塩化物イオン)及びF⁻(フッ化物イオン)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、As(ヒ素)はICPプラズマ発光分析装置(ICP7000-Ver.2;島津製作所製)を用いて測定した。

2-3 実験条件 各試料の実験条件を表-3に示す。通水速度はISO/CEN規格の12mL/hとするが、飽和方法の違いによる影響の検討を行うため、沖積土に関しては飽和終了後2日間静置したものと連続通水の2通りの条件で行った。またこの場合、通水速度は通常の3倍である36mL/hの条件においても検討を行い、通水速度の影響についての評価を行った。試料粒径の違いによる影響については、粒径4.75mm以下と2mm以下の試料について比較をした。カラム径の違いについては図-3に示す3種類のカラムの中に粒径4.75mm以下の試料を充填し、飽和終了後2日間静置した後に12mL/hの通水速度で実験を行い、カラム径の違いによる側壁流(バイパスフロー)の影響について検討を行った。

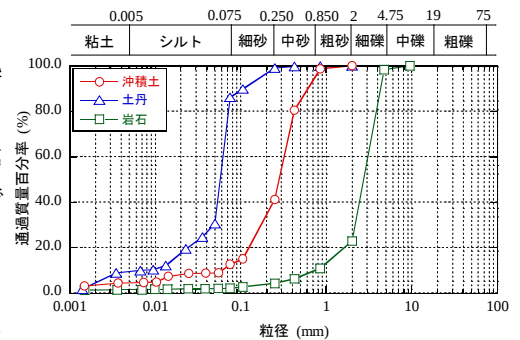


図-1 各試料の粒径加積曲線

表-1 物理特性

試料	沖積土	土丹	岩石
土粒子の密度 ρ_s (g/cm ³)	2.556	2.776	2.819
細粒分含有率 F_c (%)	14.28	84.6	2.2
均等係数 U_c (%)	5.54	5.57	3.88
曲率係数 U_c (%)	1.47	2.44	2.13

表-2 環告46号試験結果

試料	pH	B (mg/L)	As (mg/L)	F (mg/L)
沖積土	4.75	0.02	0.003	N.D.
土丹	8.00	0.06	0.038	0.18
岩石	11.82	0.04	N.D.	0.18
土壌環境基準値	1.00	0.01	0.80	

表-3 実験条件

試料状態	沖積土	土丹	岩石
溶媒	0.001mol/LのCaCl ₂ 溶液		
通水速度	12mL/h	12mL/h	12mL/h
	36mL/h		
飽和方法	2日間静置	2日間静置	2日間静置
	連続通水		

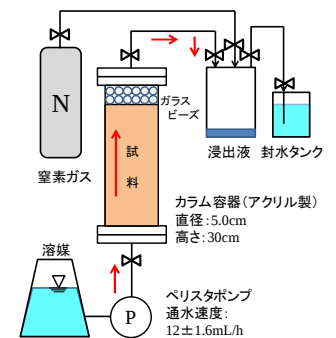


図-2 カラム回路図

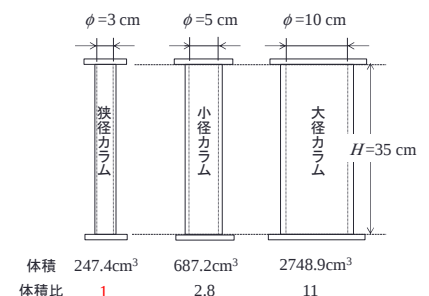


図-3 カラム径の違い

3. 実験結果及び考察

3-1 飽和方法及び通水速度の違いによる影響 沖積土を用いた試験の pH の結果を図-4 に示す。2 日間静置した Case1 及び Case2 はいずれも初期段階で減少し、その後増加の動きを示した。また Case3 については他の条件よりやや高い値となった。EC の結果は図-5 のようにいずれの Case もほぼ同一となり、大きな差は見られなかった。F(フッ素)の溶出濃度は図-6 に示すように、通水速度の速い Case2 及び Case3 の初期段階での溶出濃度が Case1 に比べ高い値となった。これは F(フッ素)が水に溶けやすいために初期段階において通水速度の影響を受けたためだと考えられる。As(ヒ素)の溶出濃度は図-7 に示すようにいずれの Case においても同様の時間変化曲線(ブレイクスルーカーブ、以下 BTC)⁶⁾を示した。これは As(ヒ素)が土壌に吸着しやすいために通水速度や飽和条件に影響されなかったためだと考察できる。さらに飽和方法及び通水速度を変えたカラム試験については、再現性の評価を行うために、沖積土を用いて異なる 4 つの機関で一斉試験を行った。その結果は図-8 に示す通り、通常の 3 倍スピードである 36mL/h で通水させたものが、12mL/h よりも溶出濃度及びピーク濃度のいずれにおいても高くなっていることがわかる。また BTC を見ると液固比の低い、比較的溶出初期の段階でバラつきが見られることから、カラムに充填した試料の間隙比や透水係数等の関連性を踏まえ、通水速度の決定が必要である。

3-2 試料粒径の違いによる影響 粒径 4.75mm 以下と 2mm 以下の 2 種類の土丹を試料として用い、粒径の違いが溶出挙動に与える影響について評価を行った。また、使用したカラムは直径 5cm の小径カラムである。図-9 に示すように、F(フッ素)の溶出挙動は粒径 4.75mm 以下と 2mm 以下ではほとんど差がなく、BTC を見ても同じような形となった。これはカラム径と使用する試料の最大粒径との比がいずれも 10 倍以上であったためだと考えられる³⁾。この結果から小径カラムにおいては、試料粒径 4.75mm 以下であれば粒径の違いによる影響は受けにくいことがわかった。

3-3 カラム径の違いが試験結果に及ぼす影響 大径カラム(直径 10cm)、狭径カラム(直径 3cm)を用いて、カラム径の違いによる影響について検討を行い、その結果を図-10 に示す。使用した試料は粒径 4.75mm 以下の土丹である。F(フッ素)の溶出濃度は BTC の挙動は、どちらも同じような傾向を示しているが、濃度ピークを迎えるタイミングや最大流出濃度に差が生じている。これは狭径カラムのカラム径 3cm に対し、試料粒径が 4.75mm 以下であったため、カラム径と粒径の比が小さく、試料の間隙が不均質になり水みちが生じた可能性があると考えられる⁷⁾。

4. まとめ 1) 溶出濃度は飽和方法の違いによる影響を受ける可能性は低い、通水速度については、溶出の初期段階でバラつきを生む可能性がある。2) 試料粒径の違いについては、直径 5cm の小径カラムを使用した場合、4.75mm 以下及び 2mm 以下、どちらの試料粒径においても粒径の違いによる影響は小さいことが確認された。3) 狭径カラムの使用は試料量を削減できる点で有効だが、カラム径に対して試料粒径が大きすぎると側壁流の影響を受け、溶出濃度を低く見積もる可能性があるため注意が必要である。

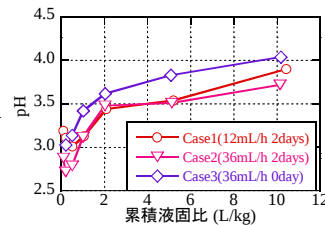


図-4 pH 測定結果

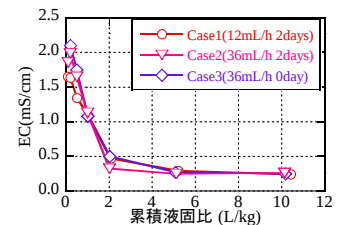


図-5 EC 測定結果

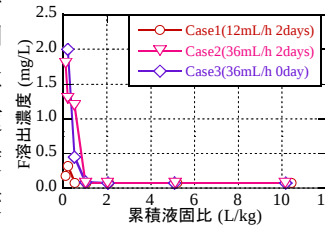


図-6 F(フッ素)測定結果

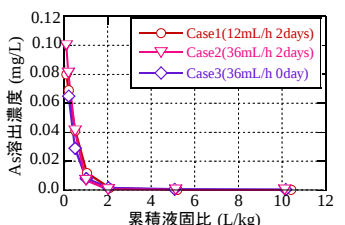


図-7 As(ヒ素)測定結果

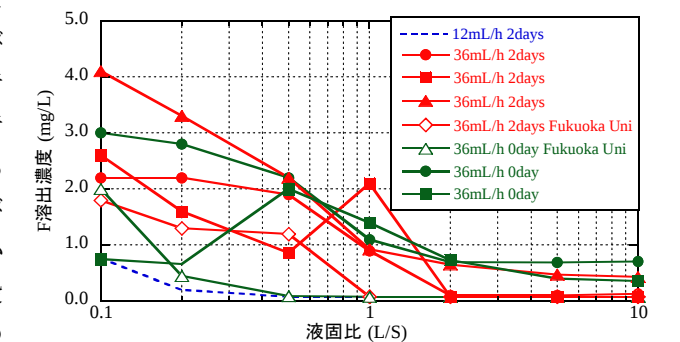


図-8 一斉試験 F(フッ素)測定結果

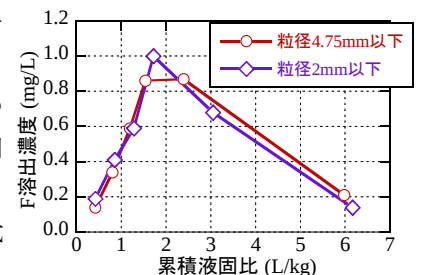


図-9 土丹 F(フッ素)測定結果

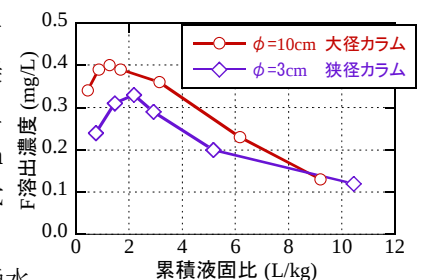


図-10 土丹 F(フッ素)測定結果

参考文献：1)倉倉ら：(0043)ISO/TC 190 (地盤環境)で規格化されている溶出試験について 2)倉倉ら：環境影響評価のためのカラム通水試験の基準化にむけて、地盤工学会誌, Vol.63, No.1, Ser.No.684, pp.18-21, 2015 3)藤川ら：上向流カラム通水試験のカラム径が溶出挙動に及ぼす影響, 土木学会第 70 回年次学術講演会講演会概要集, pp.135-136, 2015 4)ISO/TS 21268-3 Soil quality-Leaching procedures for subsequent chemical and eco toxicological testing of soil and soil materials, Part3:Up-flow percolation test 5)CEN/TS 14405 Characterization of waste-Leaching behavior tests-Up-flow percolation test(under specified conditions), 2004. 6)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, No4, pp.697-706, 2014. 7)藤川ら：上向流カラム通水試験の飽和方法及びカラム径の違いが溶出挙動に及ぼす影響, 第 11 回環境地盤工学シンポジウム発表論文集, pp.439-444,2015.