

上向流カラム通水試験における試料解砕粒径が溶出挙動に及ぼす影響

福岡大学大学院 学生会員 池田 哲朗

福岡大学工学部 正会員 佐藤 研一 藤川 拓朗 古賀 千佳嗣

1. はじめに 土壌汚染対策法の改正に伴い、自然由来重金属含有土壌を建設事業で取り扱う事例が増加しており、汚染の判定や対策費用の負担などの問題が顕在化している。その打開策の一つとして、特性化試験である上向流カラム通水試験（以下、カラム試験）による環境影響評価手法に注目が寄せられている。現在ではカラム試験の国際標準化（ISO 化）に向けた取り組みが行われており、その動向を踏まえて今後は JIS 化させる方針である。しかしながら、現状の ISO 標準カラム通水試験は、試料の最大粒径によって使用するカラム径は定めているものの、塊状試料の解砕粒径までは規定されていないのが現状である。そこで、本研究では土丹（軟岩）を用いて試料の最大粒径を 37.5mm（粗礫）、19mm（中礫）、4.75mm（細礫）、2mm（粗砂）に分け、最大粒径の違いが溶出挙動に及ぼす影響について検討した。併せてバッチ溶出試験を行い、カラム試験とバッチ試験の両者の比較・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 実験試料には土丹（軟岩）を使用した。表-1 に物理特性と溶出特性を示す。環告 46 号法試験結果から分かるように、フッ素(F)、ホウ素(B)が検出されており、自然由来による重金属等を含有していることが分かる。

2-2 カラム試験方法 カラム容器への試料充填は、ISO TS 21268-3¹⁾及び CEN TS 14405²⁾に準拠し、表-2 に示す試験法を本実験の標準方法として用いた。

図-1 は本研究で使用したカラム試験機の回路図である。ISO/CEN 規格におけるカラム試験に供する試料の最大粒径が規定されているが、本研究では、最大粒径の違いによる溶出挙動の変化を確認するため、表-3 の実験条件及び図-2 の粒径加積曲線に示すように最大粒径を 37.5mm(粗礫)、19mm(中礫)、4.75mm(細礫)、2mm(粗砂)に分類し検討を行った。このカラムに試料を 5 層に分け、最終高さが 30 ± 5 cm になるように充填する。突固めは直径 3.5 cm、重さ 125 g のランマーを高さ約 20 cm 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 20 mL/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 10~15 mL/h となるようにポンプの調整を行い、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、あらかじめ窒素で封入している。採取した浸出液は、吸引濾過を行い、フッ素(F)はイオンクロマトグラフィー(ICS-1000:ダイオネクス社製)、ホウ素は ICP プラズマ発光分析装置(ICP7000-Ver.2:1 島津製作所製)を用いた。

3. 実験結果及び考察

3-1 解砕粒径の違いがカラム試験結果に及ぼす影響 図-3 に解砕粒径の違いが pH に与える影響について示す。すべての条件において 7~8 の値で推移しており解砕粒径の違いが pH に及ぼす影響は小さいことが考えられる。図-4 に EC の試験結果を示す。最大粒径 37.5, 19, 4.75mm

表-1 試料の物理特性及び溶出特性

土粒子密度 ρ_s (g/cm ³)		2.776
自然含水比 w(%)		5.7
環告46号法 試験結果 (2mm以下)	pH	7.12
	EC(mS/cm)	0.82
	F: フッ素(mg/L)	0.16
	B: ホウ素(mg/L)	0.09

表-2 カラム試験方法^{1), 2)}

最大粒径	4.75mm
試料の状態	湿式(自然含水状態)
充填の方法	高さ6cmを5層 125gランマーで各層3回
試料高さ	30±5cm、充填量統一
ろ紙の孔径	1.5~8μm
溶媒	1mMのCaCl ₂ 溶媒
分画	9分画 (24時間、48時間、 72時間、96時間、7日、14日、 21日、28日、35日)

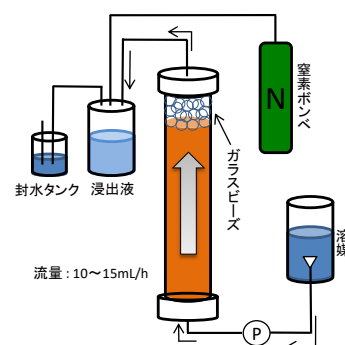


図-1 カラム試験の回路図

表-3 実験条件

実験試料	条件	粒径(mm)	使用したカラム	通水速度 (mL/h)	飽和時間
土丹	Case1	37.5~19	小径カラム (Φ=5cm)	10~15	2日間
	Case2	19~4.75			
	Case3	4.75~2			
	Case4	2~0.85			

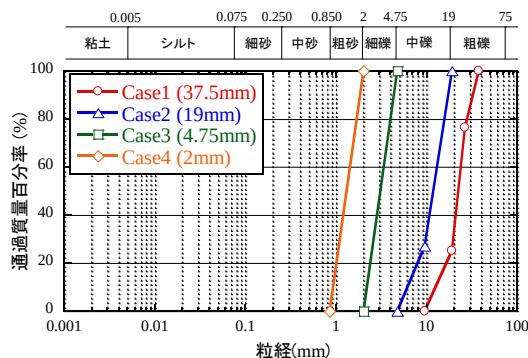


図-2 各条件における粒径加積曲線

(Case1, 2, 3) においては通水初期にピークを示し、液固比の増加に伴い減少しているが、最も粒径が細かい2mm (Case4) に関しては他の条件と比べ高い値で推移しており、液固比7付近において他の条件と同様の値で推移していることが確認された。この要因として、既往の研究³⁾において岩石からの溶出メカニズムとして表面洗浄、表面溶解及び拡散律速溶出により、2日間静置中に表面溶解と表面洗浄による溶出が短期的に発生したため初期にピークを示す挙動を呈することが明らかにされている。本研究においても溶媒が連続的に通水されることで、拡散律速溶出により長期に渡り低濃度で推移するが、最大粒径2mm (Case4) の条件に関しては、比表面積の増加によって他の条件よりも高い値で推移したことが考えられる。

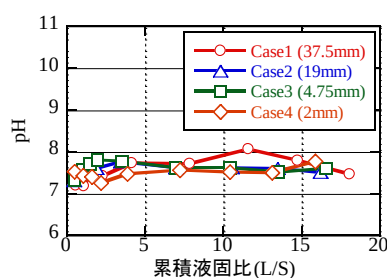


図-3 pHの測定結果

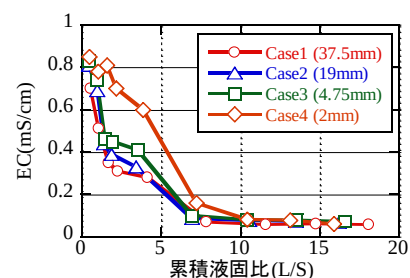
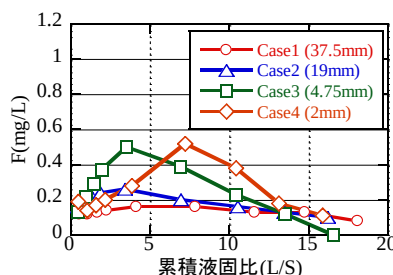
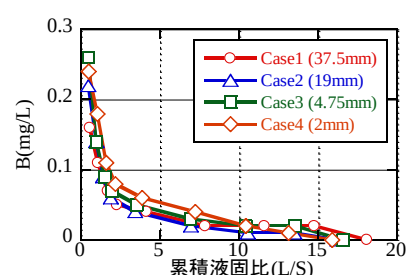


図-4 ECの測定結果



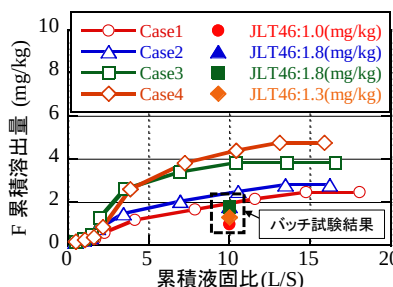
(a) フッ素 (F)



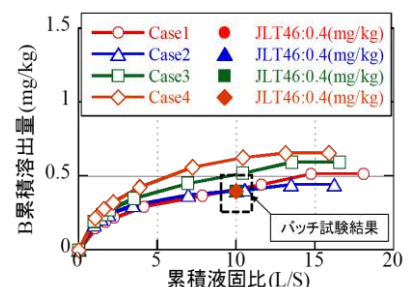
(b) ホウ素 (B)

図-5 解砕粒径の違いが溶出挙動に及ぼす影響

図-5 に解砕粒径の違いが溶出挙動に及ぼす影響について示す。(a)フッ素は、粒径が細かい4.75, 2mm (Case3, 4) が通水初期に顕著に増加し、明確なピークを示す挙動を呈している。一方で、最大粒径37.5, 19mm (Case1, 2) に関しては、通水初期から後期にかけて低濃度で推移することが確認された。(b)ホウ素の溶出挙動については、フッ素と同様に粒径



(a) フッ素 (F)-累積溶出量



(b) ホウ素 (B)-累積溶出量

図-6 解砕粒径の違いが累積溶出量に及ぼす影響

が細かい試料ほど溶出濃度が高くなる傾向にある。BTC (ブレイクスルーカーブ: 破過曲線) に関しては条件の違いに相違なく同様の形状が確認された。このことから、フッ素に関しては粒径が大きくなるほど長期間にわたり低濃度で推移するが、粒径が細かい試料ほど明確なピークを示す挙動を呈する。一方でホウ素に関しては、すべての条件において通水初期にピークを示したため初期の液固比管理に注意が必要であることがいえる。

3-2 カラム試験とバッチ試験の比較 図-6 に解砕粒径の違いが累積溶出量に及ぼす影響について示す。図中にはバッチ試験結果を併せて示している。(a)フッ素及び(b)ホウ素は、バッチ試験よりもカラム試験の方が高い値で推移することが確認された。この要因として、カラム試験は連続的に溶媒を通水させるためバッチ試験よりも拡散律速溶出による溶出が増加したことが考えられる。各条件における粒径に着目するとカラム試験では粒径が細かい試料ほど溶出量が増加しており、試験中盤から差が現れる結果が得られた。一方、バッチ試験からは粒径による溶出量の差異は確認されなかった。これは、バッチ試験では6時間振とう時に粒子破碎を起こし、試料粒径を考慮できていないことが示唆された。したがって、バッチ試験では粒径の影響を捉えることができないが、カラム試験では粒径の影響を捉えることが可能であることが分かる。さらに今回用いた試料において溶出量は粒径に依存することが確認されたため、今後は更なるデータの蓄積を行い、土丹のような土塊の適切な環境影響評価を行う必要がある。

4. まとめ カラム試験において対象とする元素に関係なく粒径が細くなるほど溶出量が増加傾向を示す結果が得られ、試験中盤から溶出量の差が生じることが判明した。また、既往の研究³⁾と同様に土丹のような土塊においてもバッチ溶出試験では6時間振とうの影響を受け、粒径の違いに影響を把握できない可能性が示された。今後は更なるデータの蓄積を行い、大径カラム ($\phi=10\text{cm}$) の使用も踏まえた土塊等の適切な環境影響評価と解砕粒径の検討を行う必要がある。

【参考文献】 1) ISO/TS 21268-3 Soil quality-Leaching procedures for subsequent chemical and ecotoxicological testing of soil and soil materials, Part3:Up-flow percolation test. 2) CEN/TS 14405 Characterization of waste-Leaching behavior tests-Up-flow percolation test(under specified conditions.) 3) 谷尻佑佑, 乾徹, 高井敦史, 勝見武: 掘削ずりの破碎性がヒ素の溶出挙動に及ぼす影響, 第51回地盤工学研究発表会, pp.97-98, 2016