

セメント硬化体中における重金属の移動に関する実験的検討

広島大学大学院工学研究科 学生会員 ○佐藤俊光
広島大学大学院工学研究科 学生会員 宮本祐輔
広島大学大学院工学研究科 正会員 河合研至

1. はじめに

近年、地球温暖化をはじめとする環境問題に多くの関心が寄せられる中、コンクリート分野においても、環境負荷低減への取り組みの一環として、廃棄物や他産業種の副産物のコンクリートへの有効利用が望まれている。今後はさらなる環境負荷低減に向けて、多種多様な廃棄物等の有効利用が行われていくと予想されている。しかし、産業廃棄物等には、重金属類や環境ホルモンなど環境や人体に悪影響を及ぼす物質が多く含まれている危険性がある¹⁾。よって環境負荷低減を目的とした廃棄物等の有効利用にあたり、コンクリートからの重金属溶出による環境負荷が生じないことを適切に評価し、安全性を確認することが必要となる。

重金属溶出の評価ツールとして環境庁告示 13 号試験や環境庁告示 46 号試験等の利用が考えられるが、これらの溶出試験はそれぞれ廃棄物、土壌を対象とした試験であることから、コンクリートからの重金属溶出を適切に評価できるとは言い難い。したがって、コンクリートに適した溶出評価方法を確立すべきであるが、その第一段階として、コンクリートからの重金属溶出機構を把握しておく必要がある。

本研究では、有害な影響を及ぼしうる物質の中でも重金属に着目し、重金属を多量に含む産業廃棄物・副産物をコンクリート材料として利用した場合のコンクリートを想定して、コンクリートからの重金属溶出の長期予測手法及び評価手法の確立を目指す。まずは、基礎的な情報を得るため、セメントペーストを対象とした研究を行った。用いた重金属は銅、亜鉛、鉛の 3 種類で、試験体への重金属添加の有無、自然拡散、電気泳動の組み合わせによって、様々な条件を想定した実験を行った後、EPMA 分析を行い、重金属の移動性を検討した。

2. 実験概要

2.1 使用材料

使用する供試体は水セメント比 0.40 のセメントペーストで、セメントには普通ポルトランドセメントを用いた。また、重金属は銅、亜鉛、鉛の 3 種類に着目し、重金属を含有する溶液を作製する際には、それぞれ試薬の硝酸塩(硝酸銅三水和物($\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$)、硝酸亜鉛六水和物($\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)、硝酸鉛($\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$)を用いた。

2.2 実験方法

本研究では、拡散係数を導出することにより、拡散現象を解明する目的で拡散セル試験を行った。既往の研究²⁾において重金属の移動性が低いことが確認されているため、本研究においては、電気泳動による拡散セル試験により、強制的に拡散を起こさせ、拡散現象を生じやすくさせることを試みた。また、試験体に意図的に重金属を添加したセメントペーストを用いた試験を行うことにより、セメント硬化体中に重金属を多量に含んだときの拡散現象への影響について考察した。したがって試験条件としては、重金属を移動させる駆動力として、濃度勾配によるものと電気泳動によるもの、また試験体への重金属の添加の有無より、計 4 条件である。これらの条件で、3 種類の重金属



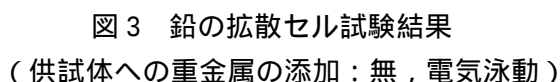
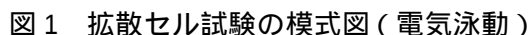
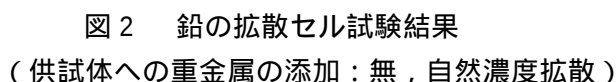
写真 1 拡散セル試験装置（濃度勾配）

本研究で使用した拡散セル試験装置を写真 1 に示す。左側が移動する重金属を検出する側（以下、検出側）、右側が重金属を多量に溶解させた溶液を満たす側（以下、重金属側）である。また、電気泳動による試験においては、図 1 に示すように供試体から 1.0cm の距離で両側にステンレス板電極を設置した。負荷する電圧については、電圧を高くし過ぎると電気分解により電極から気体が発生し、溶液の体積が減ってしまうため、気体が発生しない限界の電圧

試験に使用する溶液の作成においては、そもそも重金属はアルカリ環境において溶解度が低いため、重金属側の試験溶液に重金属を多量に溶解させたとしても供試体からアルカリ成分が溶出し溶液の pH が上昇すると重金属の沈殿が生じてしまう。よって、セメントペーストを粉碎し、液固比 10(ml/g)として純水中で 24 時間攪拌させたもののろ液を用いることによって、試験溶液を予め細孔溶液に近い状態にした。また、重金属側の試験溶液には、純水中に粉碎したセメントペーストとともに重金属を加えて攪拌したろ液を用いた。これら操作によって得られた溶液の初期濃度は Cu は 0.91ppm、Zn は 0.25ppm、Pb は 30ppm であった。そして、厚さ 1.5mm に切断したセメントペースト板を検出側の溶液と重金属側の溶液との間に挟んだ。

3. 実験結果と考察

供試体には重金属を添加しておらず、濃度勾配による鉛の拡散セル試験結果を図 2 に、供試体には重金属を添加しておらず、電気泳動による鉛の拡散セル試験結果を図 3 にそれぞれ示す。どちらの試験条件においても、重金属側の濃度減少量と検出側の濃度増加量が等しくならず、定常状態に至らなかったため、拡散係数の算出を行うことができなかった。これは、重金属がセメント硬化体により吸着やイオン交換などにより固定されたためであると考えられる。検出側にも若干の濃度が検出されているのは、セメントに微量ながら



含まれていた重金属が溶出したためであると思われる。また、電気泳動の試験では、濃度勾配による試験に比べ重金属側の濃度減少量ははるかに大きな値となり、直線的に減少している。これは、鉛イオンがプラスの電極に引き付けられたためと考えられる。これは後述する EPMA 分析結果よりも明らかとなる。よって鉛は細孔溶液中においてマイナスの電荷のイオンとして存在していることが分かる。

3.2 EPMA 分析の結果と考察

供試体には重金属を添加しておらず、濃度勾配による鉛の拡散セル試験の EPMA 分析結果を図 4 に、供試体には重金属を添加しておらず、電気泳動による鉛の拡散セル試験の EPMA 分析結果を図 5 にそれぞれ示す。図において上端が拡散セルの重金属側の溶液に接していた面、下端が拡散セルの検出側の溶液に接していた面である。

図 4 及び 5 より、鉛は試験期間中に表面から内部へ移動していることがわかる。したがって、重金属はセメント硬化体中を濃度拡散によって移動すると考えられる。また、電気泳動の試験では、濃度勾配の試験に比べ移動距離が短いことから、鉛イオンは + 電極に引き付けられたことがうかがえる。

次に供試体には重金属を添加しておらず、濃度勾配による鉛の拡散セル試験体内における重金属側の端部から内部にかけての濃度分布を図 6 に、供試体には重金属を添加しておらず、電気泳動による鉛の拡散セル試験体内における重金属側の端部から内部にかけての濃度分布を図 7 にそれぞれ示す。また、Fick の拡散方程式を用いて EPMA 分析結果から見かけの拡散係数を算出した。算出した拡散係数は図中にあわせてそれぞれ示す。これより、鉛における拡散係数のオーダーは $10^{-12} \sim 10^{-13}$ であるから、鉛は極めて移動性が低いものと考えられる。また、鉛と同様にして、銅及び亜鉛における見かけの拡散係数を算出した結果、それらの拡散係数のオーダーはともに 10^{-14} であった。

4. 結論

本研究では、重金属を多量に含む産業廃棄物・副産物をコンクリート材料として利用した場合のコンクリートを想定して、コンクリートからの重金属溶出の長期予測手法及び評価手法の確立を目指し、まず基礎的な重金属の溶出機構を把握するため、セメント硬化体を用いた各種実験により、重金属の移動性について拡散試験及び EPMA 分析により検討を行った。

以下に、本研究より得られた結論について列挙する。

(1) 660 日間の拡散セル試験より、セメント硬化体も持つ

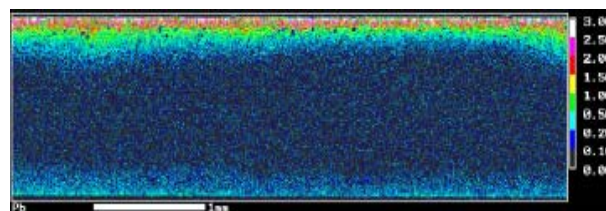


図 4 鉛の EPMA 分析結果

(供試体への重金属の添加：無，自然濃度拡散)

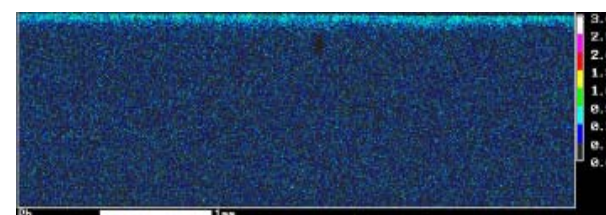


図 5 鉛の EPMA 分析結果

(供試体への重金属の添加：無，電気泳動)

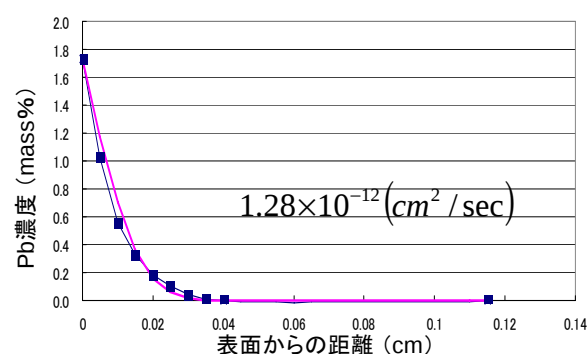


図 6 鉛の濃度分布

(供試体への重金属の添加：無，自然濃度拡散)

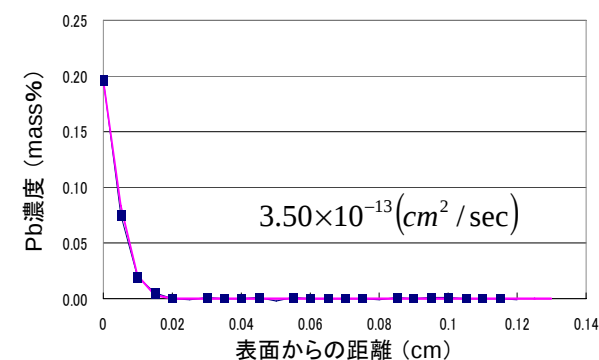


図 7 鉛の濃度分布

(供試体への重金属の添加：無，電気泳動)

固定能力が高いため、セメント硬化体中における重金属拡散による移動は極めて小さく、電圧負荷や重金属添加の条件による相違はみられなかった。

(2) EPMA 分析により、重金属はセメント硬化体中を濃度拡散によって移動することが確認できたが、本研究で用いた銅、亜鉛、鉛における見掛けの拡散係数をそれぞれ算出した結果、鉛>亜鉛>銅の順番であり、鉛は他の重金属に比べてセメント硬化体中で拡散しやすいといえるが、鉛における拡散係数のオーダーは $10^{-12} \sim 10^{-13}$ であり、移動性は極めて低いものと考えられる。

【参考文献】

- 1) コンクリートからの微量成分溶出に関する現状と課題、土木学会(2003)
- 2) 河合研至ほか: コンクリートに添加した重金属の長期溶出挙動、セメント・コンクリート論文集、No.58、pp.636-641(2004)