

セメント硬化体中における鉛の拡散・吸着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 ○菊地博満
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 正会員 河合研至

1. はじめに

近年、環境問題に多くの関心が寄せられており、以前までの大量消費・大量廃棄の廃棄型社会から、リサイクルを促進し、資源を大切にしようとする循環型社会への転換が進んでいる。コンクリート分野においても都市ごみや産業副産物の有効利用など、環境負荷低減を目指した取り組みが行われている。これらは性能照査型設計法により、コンクリート材料として性質を満足すれば再利用が可能となり、今日では多くの廃棄物が資源として再利用されている。よって今後は、さらに多種多様な廃棄物等の有効利用が行われていくと考えられる。しかし産業廃棄物等には、重金属類や環境ホルモンなど人体や環境に悪影響を及ぼす物質が多く含まれている。それらを有効利用した場合、安全性の保証が必要であり、また安全性を適切に評価する評価法が必要となってくる。

従来、重金属はセメント硬化体に固定されやすいことが知られており、コンクリートに含有されたとしてもコンクリートからの溶出は起こりにくいと考えられるが、コンクリートが超長期に渡って使用される場合、重金属が溶出する可能性がある。コンクリートからの重金属溶出は、内部拡散、表面溶解、表面洗浄、

吸着、イオン交換などにより起こり得ると考えられるが、それぞれの因子が実際にどの程度溶出に寄与するかについては明らかになっていない。そこで、本研究では重金属の溶出を支配する決定的な要因を把握するため、セメントペースト、およびそれを構成するセメント水和生成物を用いて拡散、吸着について実験的に検討し、考察を行うことにより、セメント硬化体中における重金属の溶出挙動を解明することを研究目的とした。

2. 実験概要

2.1 拡散試験

セメント硬化体中での鉛の移動性を把握する目的で拡散セル試験を行った。図1に示すセルを用いて、濃度勾配のみを駆動力として鉛をセメント硬化体中で拡散させ、拡散係数を得る試験である。

2.1 - 1 使用材料

試験体として用いたセメントペーストの水セメント比は0.5、0.6、0.65の3種類とし、セメントには普通ポルトランドセメントを用いた。本実験では重金属の鉛に着目し、鉛を含有する溶液を作製する際には、試薬の硝酸塩(硝酸鉛($\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$))を用いた。本実験では、鉛を添加しないセメントペーストと、意図的に重金属を添加したセメントペーストを作製した。尚、添加量はセメント質量の1%である。

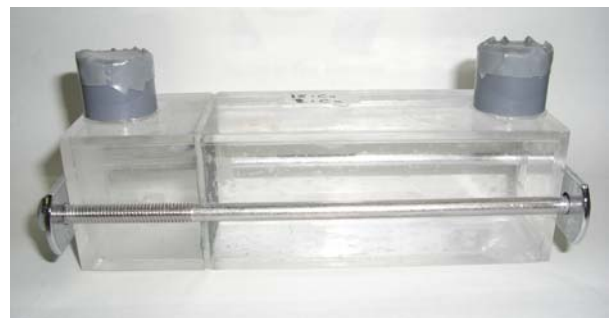


図1 拡散セル装置

2.1 - 2 実験方法

本実験装置では、厚さ 1.5mm のセメントペースト板を、鉛を溶解させてない溶液（検出側、図1では左側）と、鉛を溶解させた溶液（重金属側、右側）との間に挟む形状となっている。以下、ここでは実験開始時の溶液をイニシャル溶液と呼ぶこととする。3種類の W/C において試験体への重金属添加の有無の2種類、計6種類の試験条件で試験を行った。開始後、重金属側、検出側それぞれの溶液を定期的に採取し、原子吸

光光度計を用いて両側の濃度を測定し、両側の濃度変化が一定になるまで溶液の測定を行う。

2.2 吸着試験

重金属がセメント硬化体中の細孔溶液（液相）中に存在する場合の、セメント硬化体に対する重金属の吸着特性を調べる目的で吸着実験を行った。

2.2 - 1 使用材料

W/C = 0.4 のセメントペーストを試験体として使用し、セメントには普通ポルトランドセメントを用いた。また、本研究ではセメント硬化体中に存在するセメント水和生成物に着目し、ケイ酸カルシウム水和物： $C_{1.4}SH_{1.7}$ （以下 C-S-H）、エトリンガイト（ $3CaO \cdot Al_2O_3 \cdot 3CaSO_4 \cdot 32H_2O$ ）、モノサルフェート（ $3CaO \cdot Al_2O_3 \cdot CaSO_4 \cdot 12H_2O$ ）、水酸化カルシウム（ $Ca(OH)_2$ ）の 4 種類を試料として用いた。また、重金属は拡散試験と同様に鉛を取り扱い、試薬の硝酸鉛（ $Pb(NO_3)_2$ ）を用いた。

2.2 - 2 実験方法

図 2 に示すように、室温 20 の条件下で、はじめに粉砕機で粉砕したセメントペースト 4 g を 100ml の純水に加え、溶出するイオンが平衡状態に達するように 10 時間撹拌した。撹拌後、所定の濃度の重金属溶液を 5ml と、各セメント水和生成物を 1g 加え、一定温度下でさらに 6 時間撹拌を行った。撹拌終了後、吸引ろ過を行い、そのろ液について濃度測定を行った。

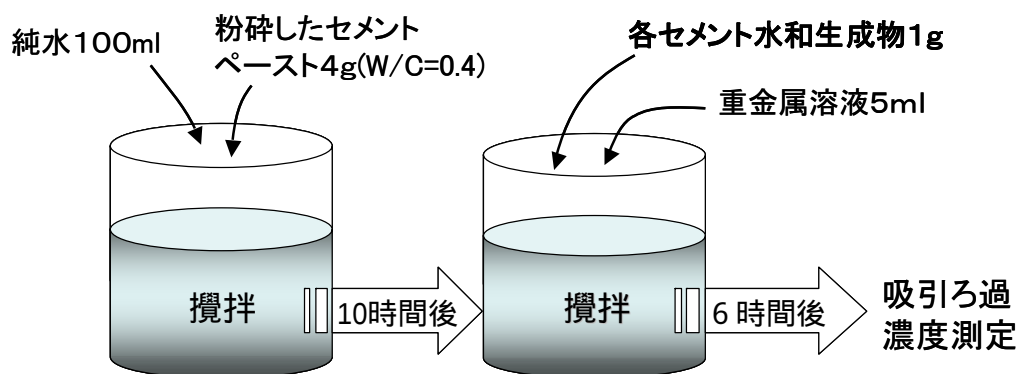


図 2 吸着試験の手順

3. 実験結果と考察

3.1 拡散試験

いずれの試験条件においても両側の濃度変化量が定常状態に至らず、拡散係数の算出はできなかった。また試験体に重金属を添加した影響も見られなかった。濃度拡散によって重金属側から試験体内へ移動した重金属は、セメント硬化体中で吸着されたことが示唆される。

図 3 に試験体に Pb 無添加における W/C=0.5、0.65 の試験結果を示す。初期段階において、重金属側の濃度減少量に差があることがわかる。これは、W/C が低いほど未水和セメントの増加により、Pb の吸着量が増加することが要因であると考えられる。よって初期段階ではセメント硬化体への吸着量の差が、重金属側の濃度減少量の差として表れたものと考えられる。

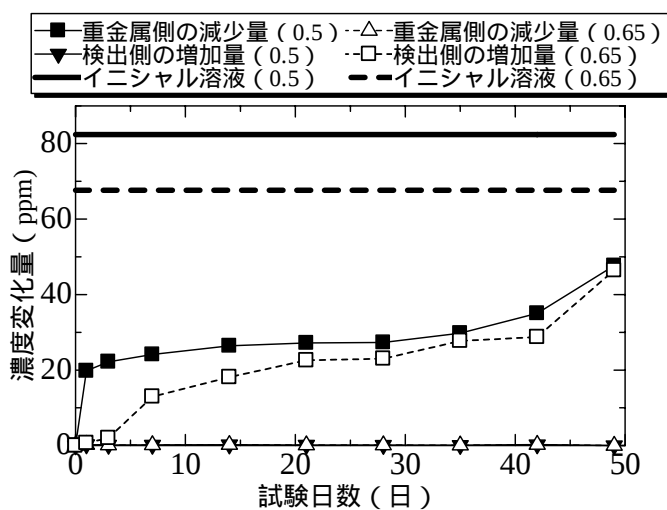


図3 試験体 OPC、W/C=0.5、0.65 の濃度変化量

3.2 吸着試験

図4、5に本研究の実験結果から算出された各セメント水和物1gにおける吸着量のうち、C-S-Hと、モノサルフェートの吸着量を示す。図4、5よりC-S-Hを1g置換した場合、吸着等温線がラングミュア型を示し、モノサルフェートを1g置換した場合には、ヘンリー型を示した。またエトリンガイト、水酸化カルシウムの場合においても、それぞれヘンリー型を示した。

既往の研究¹⁾で、セメント硬化体への鉛の吸着はフロインドリッヒ型の吸着等温線に分類をしていたが、これは水和物ごとで吸着形態が異なっており、それらが足し合わされた結果として、フロインドリッヒ型に近い吸着形態を示したものと考えられる。

吸着量がマイナスを示すことについては、本研究の吸着試験において、その理由を明らかとすることが出来なかったが、セメント硬化体内における各セメント水和物と本研究で用いた合成セメント水和物とでは吸着特性が異なること、セメント硬化体内におけるセメント水和物あるいは合成セメント水和物の中で、選択的に鉛が吸着する水和物が存在することなどが原因として考えられる。

またセメント硬化体中における鉛の吸着には、セメント硬化体中の60~70%をC-S-Hゲルが占めていることから、吸着等温線がラングミュア型を示したC-S-Hの寄与が大きいことが推察される。また他の水和物は吸着に寄与する可能性は低いと考えられる。

4. 結論

拡散試験における現時点での結果より、細孔溶液中に存在するPbのほとんどがセメント硬化体に固定されるため、濃度勾配によるPbのセメント硬化体中からの溶出の可能性は低いといえる。

吸着試験より、本研究で用いた4種類のセメント水和生成物と鉛との吸着特性に関し、C-S-Hはラングミュア型の吸着等温曲線、モノサルフェート、エトリンガイト、水酸化カルシウムはヘンリー型の吸着等温線を示した。セメント硬化体中のセメント水和生成物は吸着形態がそれぞれ異なり、それらが足し合わされた結果によりセメント硬化体への鉛の吸着はフロインドリッヒ型に近い吸着形態を示していると考えられる。そしてC-S-Hの存在がセメント硬化体中における鉛の吸着に大きな影響を与えていると示唆される。

【参考文献】

- 1) 河合研至ほか:セメント硬化体中における重金属の拡散・吸着、セメント・コンクリート論文集、No.61, pp123-128(2007)

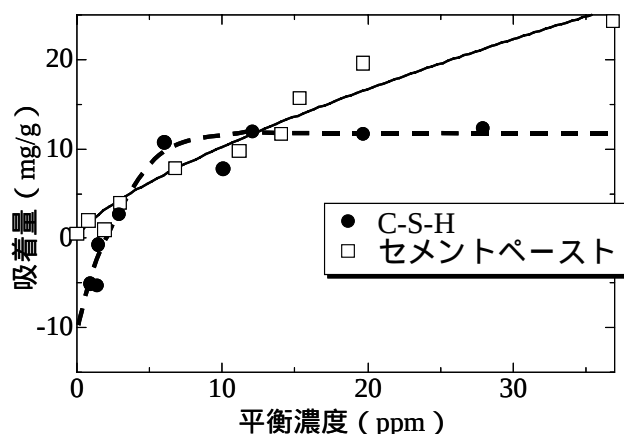


図4 C-S-Hを1g置換した場合

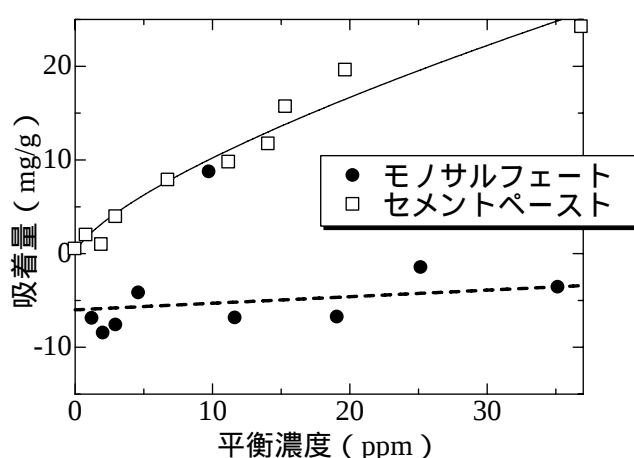


図5 モノサルフェートを1g置換した場合