



TITLE:

Exposure conditions affecting leaching of geogenic contaminants from excavated soils and rocks( Abstract\_要旨 )

AUTHOR(S):

Tang, Jiajie

---

CITATION:

Tang, Jiajie. Exposure conditions affecting leaching of geogenic contaminants from excavated soils and rocks. 京都大学, 2023, 博士(地球環境学)

ISSUE DATE:

2023-09-25

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k24955>

RIGHT:

許諾条件により本文は2024-09-24に公開

( 続紙 1 )

京都大学	博士 ( 地球環境学 )	氏名	TANG Jiajie
論文題目	Exposure conditions affecting leaching of geogenic contaminants from excavated soils and rocks (掘削土壌・岩石に含まれる自然由来重金属等の溶出挙動に及ぼす曝露条件の影響)		
(論文内容の要旨)			
<p>本論文は、掘削した岩石や土砂から溶出する地質起源の自然由来重金属等の溶出特性を、実験的に評価したものである。日本には、地質的な要因でヒ素などの重金属等を含む地層が広く分布しており、建設工事に伴い掘削した岩石や土砂から、環境基準を超過する濃度で自然由来重金属等が溶出することがある。同様に、海底堆積物中にも自然由来の重金属等が含まれており、津波で巻き上げられ陸域で沈降することで発生する津波堆積物からも環境基準を超過する濃度で重金属等が検出され、復旧・復興事業における課題となる場合がある。そのような掘削岩石・土砂や津波堆積物から溶出する重金属等の濃度は多くのケースで基準の数倍程度以下と高くないことや、地盤中での移動性が高くないことを考慮すると、土砂処分場に廃棄するのではなく、地盤材料として適切に管理しつつ活用を図ることが求められるが、実環境で岩石等が曝される種々の要因が溶出挙動に及ぼす影響は、十分に解明されていないのが実状である。そこで本論文では、室内実験と数値計算とを組み合わせ、掘削岩石や津波堆積物に含まれる自然由来重金属等の溶出挙動に及ぼす乾湿繰返しや温度の影響を評価するとともに、経時的な溶出濃度の変化を予測しうる計算手法を検討している。論文は6章からなり、以下に各章の内容を説明する。</p> <p>第1章は序論であり、日本での自然由来重金属等による地盤汚染の現状や発生要因、その対応策に関する情報を概説している。また、本論文で主対象とするヒ素による地盤汚染の状況と盛土材として利用した際に懸念される種々の要因を俯瞰的にまとめ、研究の重要性を明確にするとともに、第3章以降の研究内容と各種実験の目的を整理している。</p> <p>第2章は、既往研究のレビューであり、本論文で対象とするヒ素を中心に、自然由来重金属等の岩石・土砂からの溶出に関する研究事例を網羅的にまとめるとともに、鉱物学的な観点から溶出メカニズムを説明している。特に、自然由来のヒ素汚染の要因や種類、日本国内での分布や、pH、酸化還元条件、有機物含有量、固液接触時間等の影響に関する評価事例について詳述している。また、本論文での主な検討項目である乾湿繰返しの影響に関する評価事例を整理し、既往研究では実環境での挙動を十分に評価できていないことを指摘することで、本論文の優位性を示すとともに、第3章以降の結果の解釈に必要な事項を整理している。</p>			

第3章では、東日本大震災で発生した津波堆積物を対象に、乾湿繰返し条件がヒ素の溶出に及ぼす影響を、2条件の乾燥温度に対して評価している。質量比で18%の蒸留水を噴霧し8時間静置する湿潤過程と、25°Cないし40°Cでの16時間の乾燥過程とを1サイクルとする乾湿繰返し操作を、最大で30回行った後、回分式のバッチ溶出試験を異なる液固比に対して行っている。実験の結果から、乾湿繰返しにより粒子の破碎と酸化が促進されるためヒ素の分配係数は小さくなり、液相の溶出濃度が高くなること、その影響は温度が高いほど顕著であること、堆積物中に存在するヒ素のうち溶出に関与するのは全体の10%未満であること等を確認している。また、併せて実施したSEM-EDSの結果から、フランボイダルパイライトの酸化によりヒ素の溶出量が増加するものの、経時的に水酸化第二鉄の被膜がパイライト表面に形成されることでヒ素の溶出が抑制される可能性があることを指摘している。

第4章では、トンネル掘削工事の実際の切羽から採取した泥岩と火山岩を用いて、岩種の違いや乾湿繰返しが溶出特性に及ぼす影響を調査している。破碎した岩石に、第3章と同じ乾湿繰返しを最大で50回与えた後、バッチ溶出試験を異なる液固比と接触時間で行い、溶出パラメータ（溶出に直接関与する化学物質質量 $M_L$ 、分配係数 $K_d$ ）を求めている。さらに、破碎岩石と浸透水を連続的に接触させるカラム通水試験を行うとともに、逐次抽出試験で得られたヒ素の存在形態に関する結果との関係から、溶出メカニズムを考察している。その結果、同じ切羽から採取した岩石でも種類によってヒ素溶出量は大きく異なることや、破碎泥岩では接触時間とヒ素溶出量に明瞭な相関が見られないこと、中性域でヒ素の溶出量が増加する傾向にあること、火山岩はヒ素含有量が多くその多くが易溶性の非特異的収着体あるいは特異的収着体として存在していること等を示している。

第5章では、ヒ素溶出濃度の経時変化を予測するための計算手法を検討している。初めに、第3章と同じ津波堆積物を用いてバッチ溶出試験を行い、溶出パラメータを異なる接触時間に対して求めている。得られた溶出パラメータを用いて、一次元移流分散方程式から経時的な溶出濃度プロファイルを解析的に求め、直径5 cm×高さ10 cmのカラムを用いて実施したカラム通水試験の結果と比較することで、計算方法の妥当性を検証している。その結果、6時間と24時間の異なる接触時間で求めた溶出パラメータを用いて解析することで、カラム通水試験で得られる溶出濃度プロファイルの予測精度が改善すると述べている。さらに、本章では高さ90 cmの大規模カラム試験も実施し、溶出挙動は降雨条件ではなく降雨量によって支配的に決定されること、最大溶出濃度は小型カラムと大きな差異が無いこと等を確認している。

第6章は結論であり、論文を総括するとともに今後の課題を示している。

( 続紙 2 )

(論文審査の結果の要旨)

我が国では、地質起源の自然由来重金属等が環境基準を超えて溶出する岩石や土砂が建設工事に伴って大量に発生しており、社会的な課題となっている。土砂処分場の残余容量確保のためにも、適切な管理のもと地盤材料として再資源化するのが望ましいが、溶出挙動には未解明な点が多い。本論文は、掘削岩石と津波堆積物を対象に、自然由来重金属等の溶出挙動に及ぼす乾湿繰返しの影響と、長期溶出挙動の予測手法を、室内試験と数値解析により検討したものである。得られた主な成果は以下の通りである。

第一に、乾湿繰返しが掘削岩石や津波堆積物からのヒ素の溶出に及ぼす影響を明らかにした。乾湿繰返しによる粒子破碎とフランボイダルパイライトの酸化がヒ素の溶出量を増加させることは過去にも指摘されていたが、パイライト表面での経時的な水酸化第二鉄被膜の形成によるヒ素の溶出抑制の可能性を明らかにしたことは、溶出メカニズムを理解する上で重要な示唆を与えており、学術的な意義が大きい。

第二に、従来のバッチ溶出試験を改良し、溶出に関与する物質量の定量化を実現した。従来の研究では掘削岩石や土砂中に存在するヒ素のうち、どの程度のヒ素が実際に溶出に関与するのか明らかにされていない。本論文では、蒸留水と固体試料の比率を変化させたバッチ溶出試験から、溶出に関与する物質量を間接的に求める手法を提案している。本論文で提案する方法で溶出に関与する物質量を簡便に求めることで、自然由来重金属等含有岩石・土砂の再資源化に必要となる不溶化や吸着層等の対策技術の合理化が期待できることから、実務面での価値が高い。

第三に、経時的な溶出濃度プロファイルを予測する手法を提案した。現場での自然由来重金属等の長期溶出挙動を把握するためには、数ヶ月間にわたりカラム通水試験を行うのが一般的である。本論文では、予測精度の改善は必要であるものの、液固比バッチ試験で得られる溶出パラメータを用いて、一次元移流分散方程式から経時的な溶出濃度プロファイルを表現する手法を提案している。時間と労力を要する通水試験に比べ簡便に評価しうる可能性を提示しており、長期挙動予測手法の進展に貢献した。

以上の成果により、本論文は自然由来重金属等の岩石・土砂からの溶出特性の解明に資する重要な知見を示しており、地球環境学の発展に大きく寄与した。よって本論文は博士（地球環境学）の学位論文として価値あるものと認める。また、令和5年8月17日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公開可能日：                      年                      月                      日以降