

九州特殊土の吸着能力と有効拡散係数に関する研究

佐々木綾
林 重徳
杜 延軍

佐賀大学大学院工学系研究科博士前期課程

佐賀大学低平地研究センター

佐賀大学低平地研究センター

1. はじめに

近年、埋立処分場からの有害物質を含んだ浸出水による周辺環境の汚染が危惧されている。埋立処分場では、遮水シート（ジオメンブレン）の使用が義務付けられているが、その機能と効果には不安が残る。その理由として、遮水シート施工時の接合継ぎ目の不良、下地地盤の整地不良、廃棄物投入による荷重や液圧などによるシートの破壊の可能性と共に、これらの破損した箇所の特定制および修理の困難さ、並びにバクテリア等の微生物による劣化など様々な問題が指摘されており、遮水シートだけで汚染物質の浸出を十分かつ長期にわたって防ぐことはできない¹⁾。

近年、クレイライナーとしてベントナイトが用いられているが、ベントナイトはコストが高いという問題がある。そこで本研究では、自然粘性土（有明粘土、赤ぼく、灰土）が有する難透水性、高吸着性および土の自癒機能に着目し、遮水シートに替えて土質遮閉層を設け汚染物質を保持する土質遮閉一水封型埋立処分場システムの開発・設計を最終目的としている。

本報では、九州の特殊土である有明粘土、赤ぼく、灰土を用いて、吸着能力および有効拡散係数について検討し、土質遮閉層としてより適した土を選定した結果について述べる。

2. 試料土について

(1) 試料土の選定

今回の実験では、有明粘土、赤ぼく、灰土を試料土として選んだ。本研究では、九州北部での施工を考えており、九州北部付近で採取できる自然粘性土を用いて実験を行ってきた。有明粘土は、

表-1 試料土の物理化学的性質

特性	有明粘土	赤ぼく	灰土
土粒子密度 ρ_s (g/cm ³)	2.616	2.709	2.664
含水比 (%)	153	48.8	52.0
液性限界 w_L (%)	116	68	67
塑性指数 I_P	66	27	9
粒度組成 (%)			
粘土分	85	62	63
シルト分	14	15	15
砂分	1	23	22
粘土鉱物 (%)			
イライト	34	—	—
スメクタイト	40	—	—
カオリナイト	22	—	—
パーミキュライト	4	—	—
ハロイサイト	—	100	49
メタハロイサイト	—	—	51
pH at 1:3 (soil:Dw*)	8.0	5.5	5.9
陽イオン交換容量 CEC(meq/100mg)	36.0	11.7	11.8
交換性陽イオン(meq/100mg)			
Na ⁺	14.4	0.19	0.34
K ⁺	4.05	0.38	2.04
Ca ⁺	7.49	5.18	3.60
Mg ⁺	12.6	0.72	1.06
水溶性成分 (meq/L)			
Na ⁺	42.3	0.80	1.27
K ⁺	5.77	0.03	0.32
Ca ⁺	8.48	3.40	1.86
Mg ⁺	33.7	0.88	0.86
HCO ₃	20	ND<1	ND<1

*DW: 蒸留水
ND: 定量下限値未満

佐賀県江北町から、灰土、赤ぼくは福岡県大牟田テクノパークにおいて採取した。これまでの研究により、これらの試料土は高いCEC（陽イオン交換容量）と高い粘土分含有率を示しており、土質遮閉層としての有用性が期待される。

(2) 試料土の物理化学的性質

試料土の物理化学的性質を表-1に示す。粘土鉱物の種類および含有量は、X線回析強度比により、成分比率(%)を算出した。CECについて

は Shollenberger 法を用いて求めた。有明粘土は多くの粘土分を含み、高い比表面積を有するイライトを含有しているため、大きい陽イオン交換容量 (CEC) をもつ。赤ぼくと灰土は、CEC, pH とともにほぼ同じ値である。

3. 吸着能力に関する検討

(1) バッチ試験の概要および実験手順

土の吸着能力を評価する方法には、1) バッチ試験、2) コラム試験の2つの方法がある。吸着等温線はバッチ試験から得られ、懸濁液について行うものである。この方法の物理的モデルには、すべての粒子が溶液中で分散していて、その全表面が汚染物質と接触しているような粒子の完全分散が仮定されている。一方、コラム試験では、粒子同士が接触した、いわゆる土塊状態の試料について行われる。つまり、試料が土粒子骨格構造を持ち、この試験から得られる吸着特性は土構造系と汚染物の相互作用の結果から得られるものである²⁾。しかし、コラム試験には長い時間を要し、試験装置にも制限があるため、バッチ試験から吸着能力を評価した。バッチ試験の結果から吸着等温線が得られ、これから吸着定数 K_f , n を求め、有明粘土、赤ぼく、灰土の吸着能力を比較する。

バッチ試験は、ASTM D4646-87に準拠して行った³⁾。まず、試料土を乾燥質量10gとなるように三角フラスコに分取し、200, 400, 600, 800, 1000, mg/Lの単一塩溶液 (KCl 溶液) 又は、混合溶液 (NaCl, KCl, CaCl₂溶液) を三角フラスコに200mlずつ満たす。その後、三角フラスコを室温25°C、回転速度29rpmの条件で24時間連続攪拌する。攪拌終了後、三角フラスコを30分静置させ、上澄み液を遠心分離機を用いて3000rpmで30分間遠心分離する。得られた供試液の陽イオン濃度を原子吸光分析装置を用いて測定する。

(2) 吸着定数の算定式

土1gあたりの吸着量は次式によって計算される。

$$S = \frac{(c_0 - c_e)}{M_s} V_{sol} \quad (1)$$

ここで、 S : 土粒子の吸着量 (mg/g), c_0 : 溶液の初期濃度 (mg/L), c_e : 平衡濃度 (mg/L), V_{sol} : 模擬汚染物質溶液の体積 (L), M_s : 試料土の乾燥質量 (g)

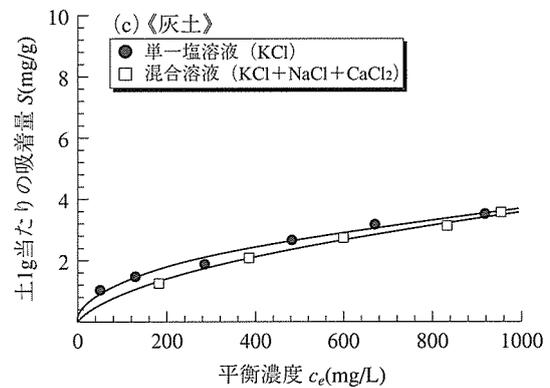
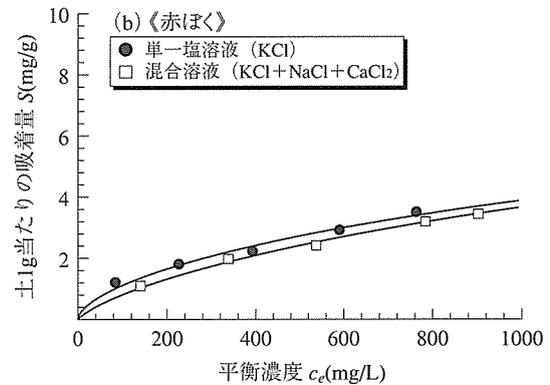
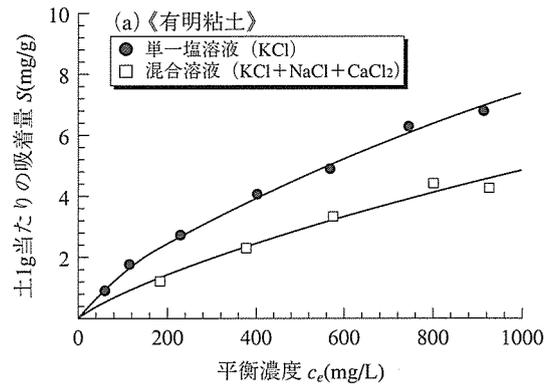


図-1 K⁺のバッチ試験結果

実験結果より、Freundlich 型吸着等温線が得られ、これから吸着定数 K_f , n を算定する。Freundlich モデルは次式によって表される。

$$S = K_f \cdot c_e^n \quad (2)$$

ここで、 K_f , n : 吸着定数

(3) 実験結果および考察

図-1の吸着等温線より、単一塩溶液と混合溶液の吸着量を比較すると、3試料とも単一塩溶液の方が大きい。これは、混合溶液の中でK⁺, Na⁺, Ca²⁺イオンが土に吸着される際に、陽イオンが互いに競争しながら吸着されるために、それぞれの吸着量が減ったと考えられる。次に、図-2より、3試料のK⁺の吸着量を単一塩溶液、混合溶液に

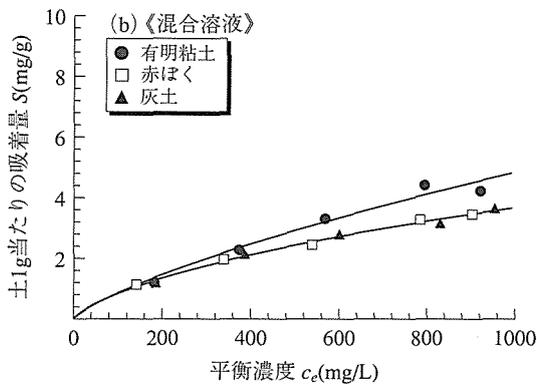
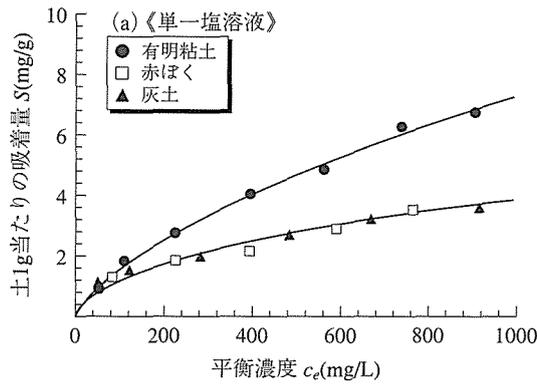


図-2 3試料におけるK⁺吸着量の比較

表-2 K⁺のFreundlich 吸着パラメーター

試料土	模擬汚染物質溶液	K ⁺ の吸着パラメーター	
		K_f	n
有明粘土	単一塩溶液	0.077	0.659
	混合溶液	0.029	0.735
赤ぼく	単一塩溶液	0.125	0.496
	混合溶液	0.059	0.597
灰土	単一塩溶液	0.129	0.49
	混合溶液	0.058	0.598

において比較すると、どちらも有明粘土の吸着量が一番大きくなっている。これは、有明粘土のCECが最も高いためであると考えられる。また、赤ぼくと灰土の吸着量はほぼ同じ結果となった。これは、両試料のCECが、ほとんど同じだからである。表-2に、K⁺の吸着パラメータを示す。

4. 有効拡散係数に関する検討⁴⁾

(1) 拡散実験の概要および実験手順

土質遮閉層に用いる土質材料(粘性土)は、汚染物質が外に漏れないように、透水性が小さいものを用いる必要がある。よって、粘性土においては移流の影響はほとんどなく、汚染物質の輸送は拡散に支配され、埋立処分場を設計する場合、汚染物質の土質遮閉層における拡散輸送を把握することは必要となる。

拡散実験の目的は実験結果を逆解析して土質遮

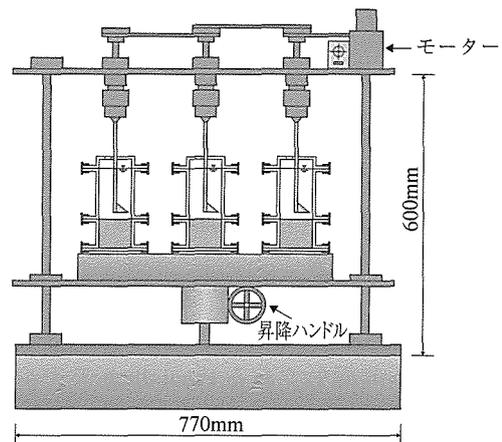


図-3 拡散実験装置の概略図(全体)

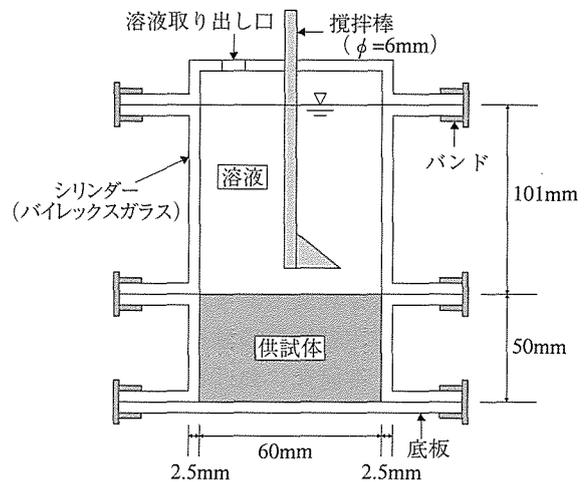


図-4 拡散実験のセル概略図

閉層としての土の有効拡散係数 D_e を予測することである。図-3, 4に、拡散実験装置を示す。試料土360gを拡散実験のセルに少しずつ、シリンダー内の側壁によく密着するように入れ、圧力 $\sigma=3\text{ kPa}$ で一次圧密供試体を作製する。この時、有明粘土においては、自然含水比($w_n \approx 1.3 w_L$)で、赤ぼくと、灰土においては、液性限界の1.3倍になるように蒸留水を加えて作製した。

この後、上部のシリンダーに約1000mg/LのKCl溶液を、供試体の表面が乱れないように静かに少しずつ入れる。溶液内の濃度勾配をなくすために攪拌棒を6rpmで回転させる。溶液の採取は、有明粘土については2日おきに14日間、赤ぼく、灰土については1日おきに7日間、溶液の高さの変化を無視できるように0.5mLという微量な量を採取する。採取した溶液は蒸留水により20mL(40倍希釈)の供試液とする。得られた供試液の陽イオン濃度は、原子吸光分析装置を用いて測定する。

(2) 実験結果の解析

拡散および汚染物質の土粒子への吸着を考慮し

た場合の一次元基礎式は、次式で与えられる。

$$(\theta + \rho_d K_P) \frac{\partial C}{\partial t} = \theta D_e \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (3)$$

ここで、 θ ：体積含水率、 ρ_d ：乾燥密度、 K_P ：分配係数、 C ：溶液中の物質濃度、 t ：時間、 D_e ：有効拡散係数、 x ：物質からの距離

ここで、分配係数 K_P はバッチ試験の結果より予測される。非線形である Freundlich モデルにおいて、分配係数は次式により得られる。

$$K_P = \frac{\int_0^{C_{oi}} \frac{\partial S_i}{\partial C_i} dc}{\int_0^{C_{oi}} dc} \quad (4)$$

ここで、 C_{oi} ： i の条件下で考慮している濃度の最高値（初期濃度）

式(4)を積分して式(5)のように表すことができる。

$$K_P = K_f \cdot C_{oi}^{n-1} \quad (5)$$

これは、控え目な評価であり、一定の遅延係数を用いて反応性の汚染物質の輸送解析を行うことが出来る。また、本研究における境界条件は、上部は有限質量（Finite Mass）であり、下部は不透水基底であるので、次式で表される。

$$C(t) = C_0 - \frac{1}{H_f} \int_0^t f_r(\tau) d\tau \quad (\text{上部}) \quad (6)$$

$$\frac{\partial C(L,t)}{\partial x} = 0 \quad (\text{下部}) \quad (7)$$

ここで、 C_0 ：汚染物質の初期濃度、 L ：供試体の高さ、 H_f ：溶液の平均高さ、 f_r ：質量フラックス

有効拡散係数は、プログラム Pollute V6.3を用いて算定する⁹⁾。バッチ試験から求めた吸着定数、供試体の厚さ、体積含水率、試験期間、および溶液の初期濃度のデータを入力し、有効拡散係数の値のみを変化させ、実測値に理論曲線が最も一致する時の値を、実験における有効拡散係数とする。表-3に Pollute V6.3に用いる入力パラメータを示す。

(3) 実験結果および考察

図-5, 6, 7より、3試料の有効拡散係数を比較すると、有明粘土が最も小さくなっている。これは、有明粘土の間隙のサイズが、他の試料よりも小さいため、間隙における拡散が起こりにくかったと考えられる。

表-3 入力パラメータ

パラメータ	有明粘土	赤ぼく	灰土
吸着定数 K_f	0.77	0.125	0.129
吸着定数 n	0.659	0.496	0.490
供試体の高さ L (cm)	5	5	5
乾燥密度 ρ_s (g/cm ³)	0.71	0.93	0.81
体積含水率 θ	0.698	0.651	0.69
溶液の初期濃度 C_0 (mg/L)	960	986	960
試験期間 t (day)	14	7	7

表-4 逆解析によって求めた有効拡散係数 D_e

試料土	有効拡散係数 $D_e \times 10^{-10}$ (m ² /s)
有明粘土	14.0
赤ぼく	15.5
灰土	16.0

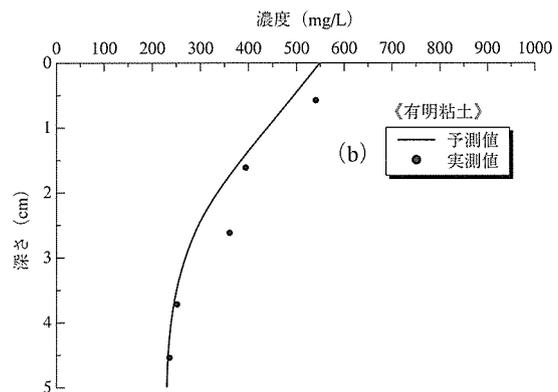
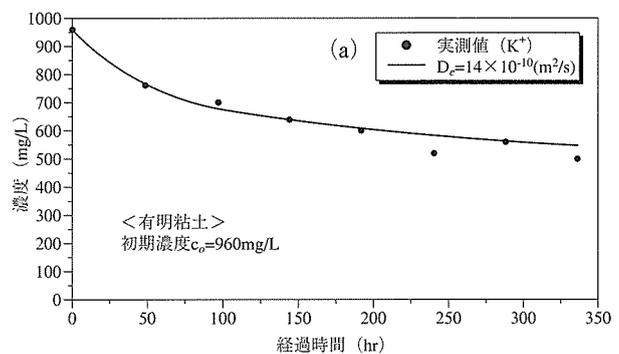


図-5 有明粘土の拡散実験結果
(a)K⁺濃度と経過時間の関係
(b)供試体深さとK⁺濃度分布の関係

また、K⁺の濃度は、供試体の下部にいくにしたがい減少していく傾向にあることが分かる。表-4に、逆解析によって求めた有効拡散係数をとりまとめる。

5. まとめ

今回の実験をまとめると以下の通りである。

- (1)バッチ試験の結果より、単一塩溶液、混合溶液における3試料のK⁺の吸着量を比較すると、有明粘土の吸着量が最も大きい。

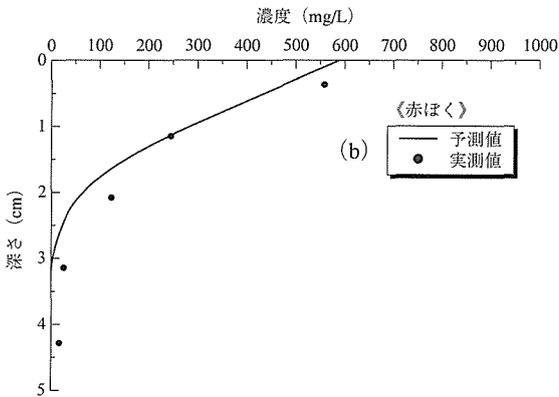
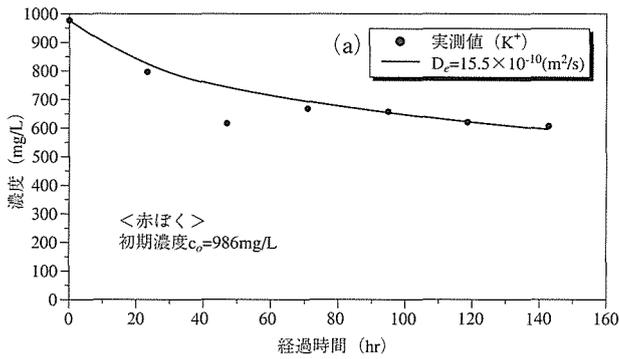


図-6 赤ぼくの拡散実験結果
(a)K⁺濃度と経過時間の関係
(b)供試体深さとK⁺濃度分布の関係

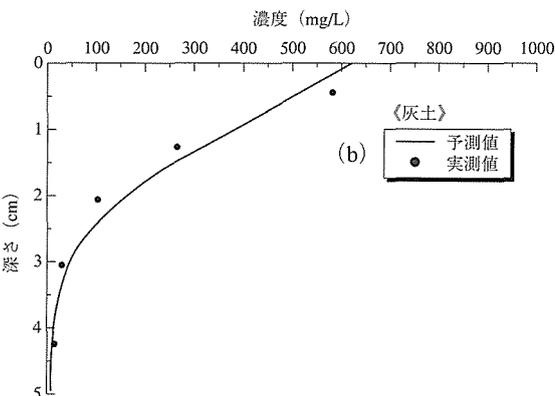
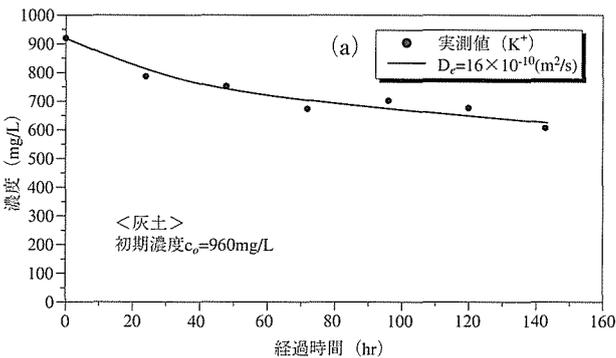


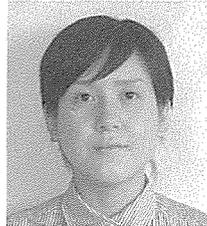
図-7 灰土の拡散実験結果
(a)K⁺濃度と経過時間の関係
(b)供試体深さとK⁺濃度分布の関係

- (2)バッチ試験の結果より、単一塩溶液と混合溶液における吸着量を比較すると、3試料とも単一塩溶液の方が大きい。
(3)拡散実験の結果より、3試料の単一塩溶液におけるK⁺の有効拡散係数を比較すると、有明粘土が最も小さい。

参考文献

- 1) 林重徳：環境問題と土木（地盤工学）技術の在り方，土木本部30周年記念誌，西日本技術開発株式会社，pp120-129，1998.
- 2) Yong, R.N., Mohamed, AMO., and Warkentin, B.P. 著，福江正治，加藤義久，小松田清吉訳，：地盤と地下水汚染の原理，東海出版会，1995.
- 3) Du, Y.J., Hayashi, S., Hino, T., and Tanaka, K. : Approach to the contaminant absorption properties of the Kyushu regional soils Proceedings of Geo 2000 Conference, paper No.Eg0550, Melbourne, Australia, 2000.
- 4) 金原広和：土質遮閉層に用いる九州の特殊土の吸着・拡散特性に関する基礎的研究，佐賀大学修士論文，2001.
- 5) Shackelford, C. D.: Diffusion of inorganic chemical wastes in compacted clay. Ph.D. dissertation. University of Texas, Austin, Tex., 1998.

著者略歴



佐々木 綾
(ささき あや)

2001年 佐賀大学理工学部都市工学科 卒業
2001年 佐賀大学大学院工学系研究科都市工学専攻

著者略歴



林 重徳
(はやし しげのり)

1976年 九州大学工学部助手
1986年 九州大学工学部助教授
1994年 佐賀大学低平地防災研究センター教授
2001年 佐賀大学低平地研究センター教授
工学博士



■ 著者略歴

杜 延军

(ドゥ ヤンジュン)

- 1997年 8 月 東南大学工学部講師
- 2001年 9 月 佐賀大学大学院工学系研究科博士後期課程
修了
- 2001年10月 佐賀大学低平地研究センター講師
Ph. D.