

◇報 告◇

スレーキング等で溶出特性が変化する掘削ずりへの
不溶化工の適用検討Research on the Applicability of Insolubilization Treatment
to Waste Rocks with Changing Elution Characteristics due
to Slaking菅沼 棕 友*, 森 喜 彦*, 片 田 直 人*,
黒 川 大 亮**, 松 山 祐 介***, 山 崎 浩****SUGANUMA, Ryosuke*; MORI, Yoshihiko*; KATADA, Naoto*;
KUROKAWA, Daisuke**; MATSUYAMA, Yusuke***; YAMAZAKI, Hiroshi****

要 旨

トンネル工事に伴い発生する掘削ずりのなかには、自然由来の重金属等を含有し、土壌溶出量基準を満足しないものが存在する。その対策の一つとして、重金属の溶出を低減させるための材料を混合添加する不溶化工法がある。一方で、施工後に破碎やスレーキングが起こる場合は、重金属等の溶出が増加する懸念のあることが指摘されている。本研究では、土壌溶出量基準を満足しない堆積岩と火成岩の掘削ずりを用い、破碎やスレーキングを起こした場合のデナイト添加による不溶化の有効性および持続性を、室内配合試験で一般的な評価法である短期溶出試験および土研式雨水曝露試験により検証した。その結果、スレーキングや破碎により細片化するずりに対しても、デナイトを 15kg/m³ 以上添加することで長期的に重金属等の溶出を抑制できることが確認された。

キーワード：不溶化材，不溶化工法，デナイト[®]，MgO，デナイト[®]SE，掘削ずり

* 研究開発本部 セメント・コンクリート研究所 固化・不溶化技術グループ

Solidification & Immobilization Technology Group, Cement & Concrete Research Laboratory, Research & Development Division

** 研究開発本部 セメント・コンクリート研究所 技術グループ リーダー

Manager, Solidification & Immobilization Technology Group, Cement & Concrete Research Laboratory, Research & Development Division

*** 資源事業部 土壌ソリューショングループ サブリーダー

Deputy Manager, Geo-Solution Group, Mineral Resources Business Department

**** 資源事業部 土壌ソリューショングループ リーダー

Manager, Mineral Resources Business Department

ABSTRACT

Waste rocks generated during tunnel construction contain naturally occurring heavy metals, sometimes in amounts incompatible with the soil elution standards. Insolubilization is a common measure to reduce future elution by adding materials that chemically immobilize the heavy metals. However, it has been reported that crushing or slaking occurring after the construction can change the elution characteristics of the heavy metals.

In this study, sedimentary rock and igneous rock samples which were obtained from excavation and found incompatible with the soil elution standards were examined by the short-term elution test, which was a laboratory test commonly used for evaluation, and the rainwater exposure test by the method of the Public Works Research Institute of Japan.

The effectiveness and duration of the insolubilization using DENITE were investigated, and the changes in elution characteristics of heavy metals associated with crushing and slaking were measured. It was found that the addition of DENITE at 15 kg/m³ or more could reduce leaching concentrations of heavy metals for a long term, even with waste rocks liable to fragmentation by slaking or crushing.

Keywords : *Insolubilizing material, Insolubilization method, DENITE[®], MgO, DENITE[®] SE, Waste rocks*

1. はじめに

トンネル工事に伴い発生する掘削ずり（岩石・土砂）には、自然由来の重金属等を含有し土壌溶出量基準に不適合となるケースがある。そのような掘削ずりについては、「建設工事における自然由来重金属等含有岩石・土壌への対応マニュアル」に技術的対応が包括的にまとめられており、遮水工のような滲出水の発生抑制や地下浸透を抑制する物理的方法の他、重金属等の溶解や酸化反応を抑制する不溶化工等の化学的方法が提示されている。不溶化工の特徴として、①比較的低コストであり、②施工実績も

多く、③地盤変位の影響を受けた場合も変形追従性が期待できる、④強度が不足する場合に強度発現が期待できる等が挙げられる。また、マグネシウム系やカルシウム系の不溶化材を使用した場合は、酸性化する岩石・土壌に対する中和資材としての効果も期待できる。一方で施工後に破砕やスレーキング（**Fig. 1**）などによってずりの細片化が起こる場合は、重金属等の溶出が増加する可能性がある。したがって、施工後に細片化するような岩石などに対しては、重金属等の溶出抑制効果の高い不溶化材および中和資材の選定が必要である。太平洋セメント株式会社はマグネシア系不溶化材のデナイト[®]（以下[®]

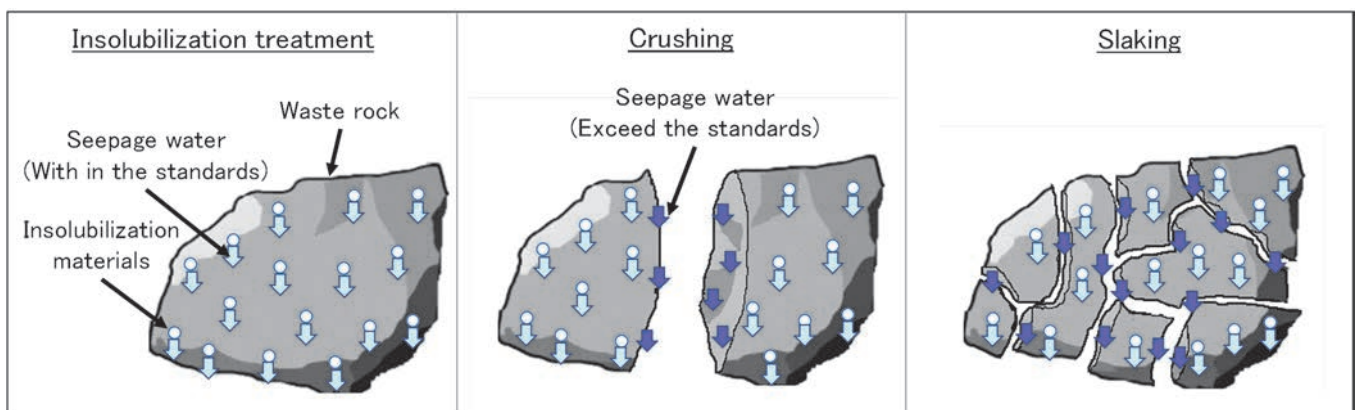


Fig.1 Image of Insolubilization treatment, Crushing and Slaking
(不溶化工による処理と破砕およびスレーキングのイメージ)

は省略)を開発し、掘削ずりへの不溶化工の適用に関して、短期溶出試験によりその不溶化効果の有効性を報告¹⁾²⁾しており、道路建設工事やトンネル建設工事などでの実績をあげてきた。一方、同マニュアルの2023年版では、現場での実現象に近い溶出試験である実現象再現溶出試験（土研式雨水曝露試験など）で、長期的な溶出特性等の総合的な評価による合理的な対策を採用することが推奨されている。³⁾

そこで本稿では、短期溶出試験（環告18号試験）により土壌溶出量基準を満足しなかった堆積岩および火成岩の掘削ずりを対象とし、不溶化工の設計のための室内配合試験として一般的に採用される短期溶出試験とともに土研式雨水曝露試験を実施し、掘削ずりのスレーキングや破碎にともなう重金属等の溶出特性の変化に対するデナイトでの不溶化工の有効性および持続性を検証したので報告する。

2. 試験方法

2.1 使用材料

不溶化材はデナイトを使用した。対象の掘削ずりの物性および短期溶出試験での溶出特性を **Table 1** に示す。また、島らのBCR 逐次抽出法⁴⁾を用いて抽出した各画分の含有量を **Table 2** に示す。堆積岩①、②はスレーキング率が30%以上とスレーキングしやすい岩石⁵⁾であるのに対し、火成岩のスレーキング率は低かった。溶出特性では、堆積岩①はヒ素(As)およびフッ素(F)、堆積岩②はホウ素(B)、火成岩はAsの土壌溶出量基準を超過した。逐次抽出での溶出リスクの高い水溶性画分では、堆積岩②のBが9.4%(12.6mg/kg)と比較的高い割合を示した。

粉末X線回折装置(D8 advance, Bruker 社製)で分析した回折パターンより確認された鉱物組成を **Table 3** に示す。堆積岩①および②は、石英、白雲母や緑泥石の他に微量の黄鉄鉱等の鉄鉱物が、火成岩は石英や長石類が多い他に少量の雲母類が認められた。

Table 1 Physical properties and Elution properties
(物性と溶出特性)

Sample name	Wet density (g/cm ³)※1	Water content (%)	Slaking rate (%)※2	Amount of elution (mg/L)※3			pH
				As	F	B	
Sedimentary rocks①	1.343	2.9	35.7	0.026	0.9	—	11.1
Sedimentary rocks②	1.315	4.1	42.9	—	—	1.3	8.5
Igneous rocks	1.308	<0.5%	0.2	0.023	—	—	9.8
Soil elution standards				0.01	0.8	1.0	—

※1 JIS A 1104 (Particle size:<2mm)、※2 NEXCO test method 110、※3 Notification No.18 of the Ministry of the Environment

Table 2 Content by Sequential extraction
(逐次抽出による含有量)

Sequential extraction fraction (mg/kg)	Sedimentary rocks①		Sedimentary rocks②	Igneous rocks
	As	F	B	As
Water solubility fraction	0.14	6.3	12.6	0.24
Acid solubility fraction	<0.05	1.1	5.0	0.46
Reducing fraction	0.29	0.6	1.0	0.27
Oxidizing fraction	0.16	1.2	2.7	0.56
Residue	5.8	540	110	5.4
Total content	6.36	550.4	134.0	6.94

Table 3 Mineral composition
(鉱物組成)

Sample name	Quartz	Albite	Muscovite	Biotite	K-feldspar	Anorthite	Chlorite	Pyrite	Magnetite
Sedimentary rocks①	◎	△	○				○	—	—
Sedimentary rocks②	◎	△	△				○	—	—
Igneous rocks	◎	△	+	+	○	△			

※◎ : Extremely large ○ : large △ : Medium + : Small — : Trace

2.2 試験方法

(1) 試料調製

試験のフローを **Fig. 2** に示す。有姿の掘削ずりをジョークラッシャーにより破碎し、目開き 37.5mm と 9.5mm 篩いを用いて選別し、粒径を 9.5～37.5mm に調製したうえで縮分を行い、各種溶出試験に供した。

(2) 短期溶出試験

短期溶出試験では、9.5～37.5mm に調製した掘削ずりをジョークラッシャーとロールクラッシャーにより 2mm 以下に破碎し重量比で 10% 量を加水し、デナイトを 15, 50 および 100kg/m³ 添加してソイルミ

キサで混合した。混合後の掘削ずりを密封保管して、20℃環境下で 7 日間養生した後、環告 18 号法に準拠して各種重金属等の溶出量を測定した。

(3) 実現象再現溶出試験

9.5～37.5 mm の掘削ずりに対して 20L/m³ 量を加水し、デナイトを 15, 50 および 100kg/m³ 添加してオムニミキサで混合した。混合後の掘削ずりを密封して 20℃環境下で 1 日間養生した後、2mm のガラスビーズを底面から 20mm 程度に敷き詰めた φ252×300mm のワグネルポットに JIS A 1104 を参考に充填した。掘削ずりを充填したワグネルポットを千葉県佐倉市の屋外に曝露し、ワグネルポットの下部に設

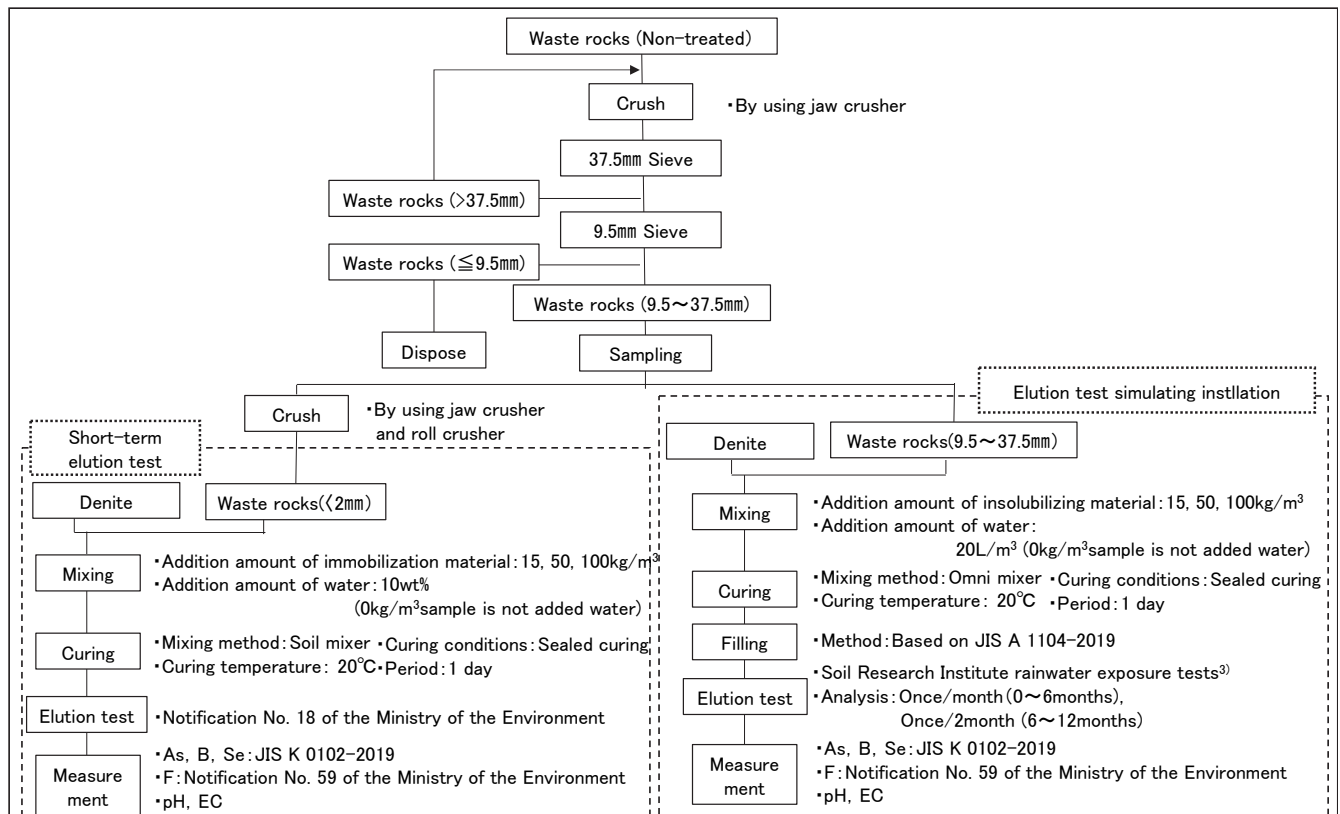


Fig.2 Test flow
(試験フロー)

置したポリタンクで集水した滲出液を、曝露後6カ月間は1カ月ごとに、曝露後6カ月以降は2カ月ごと回収した。滲出液を $0.45\mu\text{m}$ のメンブレンフィルターでろ過し、ろ液中の各種重金属等の濃度、pH、電気伝導率（EC）を測定した。また、曝露による粒度の経時変化を評価する目的で、未処理の掘削ずりについては、土研式雨水曝露試験に供するものとは別に、同様に充填したワグネルポットを屋外に設置し、曝露1年間までの比表面積の経時変化と、曝露試験前後の粒度分布を測定した。なお、掘削ずりの比表面積はX線CT装置(SMX-225CT FPD HR Plus, 島津製作所社製)による撮影画像のGV(グレーバリュウ)を最適化し、土粒子界面のボクセル数から算出した。

(4) 破碎の影響を模擬した曝露試験

盛土構造物として有効利用される際の、破碎による重金属等の溶出量増加を再現する目的で、スレーキング率が僅かであった火成岩について、曝露8カ月経過後にワグネルポットから掘削ずりの全量を回収、9.5mm以下に再破碎しワグネルポットに充填して再曝露した。再曝露を開始した掘削ずりについても、2カ月ごとに滲出液中の重金属等の濃度、pH、ECを測定するとともに、曝露試験後の粒度分布を土の粒度試験方法（JIS A 1204）に従い測定した。

3. 試験結果と考察

3.1 短期溶出試験

短期溶出試験結果をFig. 3に示す。いずれの掘削ずりも、デナイトを $15\text{kg}/\text{m}^3$ 以上添加することで、全ての重金属等の土壌溶出量基準を満足した。

以上より、短期溶出試験におけるデナイトの必要添加量は $15\text{kg}/\text{m}^3$ となった。

3.2 実現象再現溶出試験

(1) 粒度変化

土研式雨水曝露試験での掘削ずりの比表面積および粒度分布の変化をFig. 4に示す。堆積岩では比表面積が12カ月経過後に約2～3倍に増加し、屋外曝露によりスレーキングが進行していることが確認された。

一方、火成岩の比表面積は一定で推移し、スレーキング試験の結果と同様となった。盛土構造物として利用する場合の破碎を模擬し再破碎した火成岩については、堆積岩と同程度（約2～3倍）の比表面積まで増加した。

粒度分布についてみると、堆積岩は曝露試験後に9.5mm以下の礫分や2mm以下の砂分の割合が増加しており、火成岩についても再破碎したものは同様の粒度分布となった。

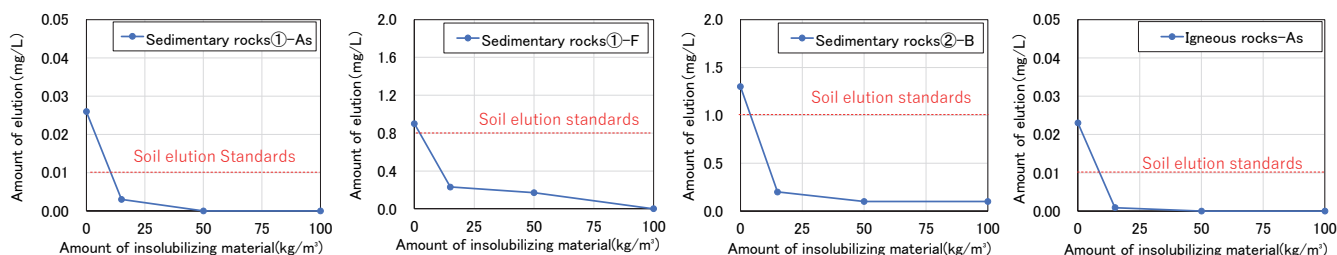


Fig.3 Result of Short-term elution test
(短期溶出試験結果)

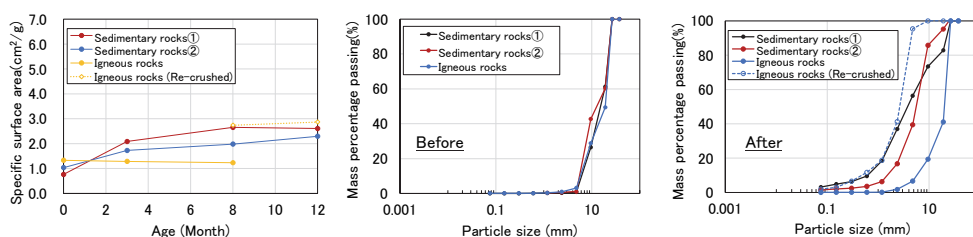


Fig.4 Changes in Specific surface area and Particle size distribution
(比表面積と粒度分布の変化)

(2) 土研式雨水曝露試験結果

土研式雨水曝露試験結果を **Fig. 5~Fig. 7** に示す。未処理の掘削ずりでは、pH が 8~9 の範囲内で推移し、EC は累積液固比((渗出液量/ずり重量)の累積値)に伴って低下する傾向を示した。溶出特性としていずれの試料および元素においても累積液固比が 2~3 程度まで土壤溶出量基準を超過した。次に、デナイトで不溶化処理した掘削ずりの pH は、デナイトの添加量に伴って増加し、曝露 3 カ月以降で低下する傾向を示した。また、EC は曝露 3 カ月で一時的に増加したが、その後は 100~200mS/m の範囲で推移した。この一時的な増加は、夏季の高温多湿の環境において、掘削ずりやデナイト由来の鉱物の溶解度が増加したことや、 $Mg(OH)_2$ 等の水和物の炭酸化が進行し、溶解度が比較的高い炭酸マグネシウムに転移したためと推察される。溶出特性としてデナイトの添加により溶出濃度が低下する傾向を示し

た。特に、堆積岩①の As と F 溶出濃度は大幅に低下し 15kg/m³ 以上の添加で、堆積岩②の B 溶出濃度は 50kg/m³ 以上の添加により、土壤溶出量基準以下の濃度で推移した。デナイトは As と F に対して、難溶性化合物の生成や水和生成物への固溶により、高い不溶化効果を発現することが報告されている⁶⁾。本試験で使用した堆積岩①および堆積岩②はスレーキングにより細片化しているが、スレーキングの有無に関わらず長期的に安定した不溶化効果が得られる可能性が示唆され、(3)において考察する。

(3) スレーキングによる溶出特性の変化が不溶化効果に及ぼす影響

土研式雨水曝露試験での掘削ずりからの重金属等の累積溶出量を **Fig. 8~Fig. 10** に示す。また、逐次抽出試験 (**Table 2**) での水溶性画分と曝露 1 年間の累積溶出量の比を、溶出割合として算出した。溶出

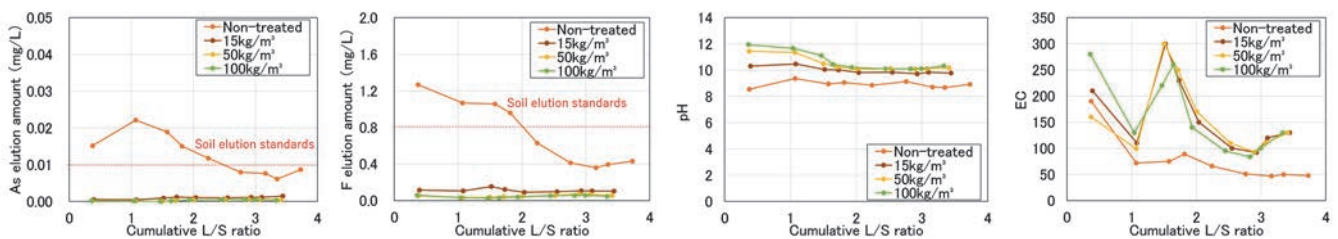


Fig.5 Result of elution test during outdoor exposure (Sedimentary rocks①)
(土研式雨水曝露試験結果 (堆積岩①))

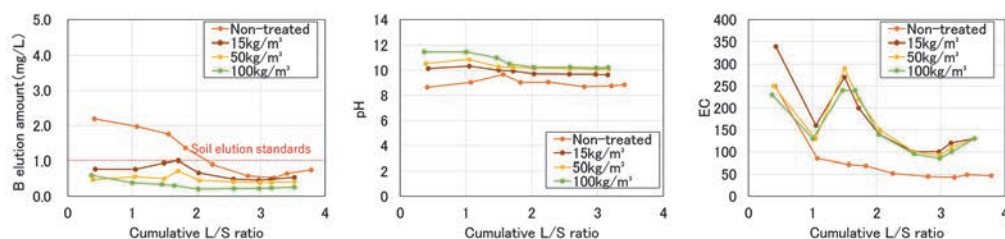


Fig.6 Result of elution test during outdoor exposure (Sedimentary rocks②)
(土研式雨水曝露試験結果 (堆積岩②))

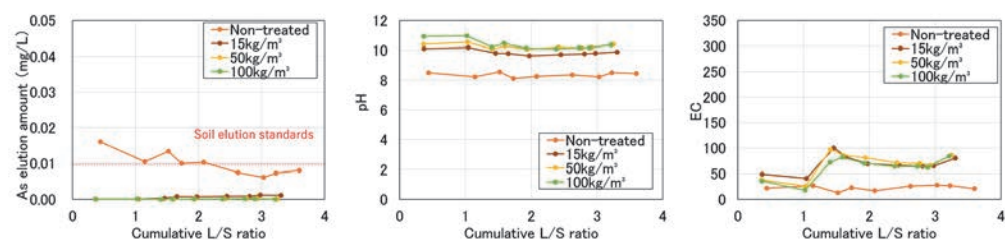


Fig.7 Result of elution test during outdoor exposure (Igneous rocks)
(土研式雨水曝露試験結果 (火成岩))

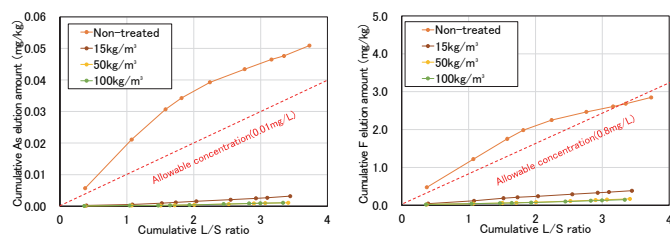


Fig.8 Cumulative elution amount
(Sedimentary rocks①)
(累積溶出量 (堆積岩①))

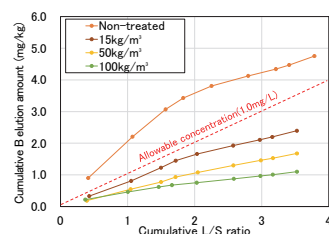


Fig.9 Cumulative elution amount
(Sedimentary rocks②)
(累積溶出量 (堆積岩②))

割合の一覧を **Table 4** に示す。累積溶出量は、ワグネルポットに充填時の掘削ずりの単位質量から算出した。なお、図中の許容濃度は、当該濃度で継続溶出した際の液固比と累積溶出量の直線プロットであり、所定期間での平均溶出濃度が土壌溶出量基準を満足するかの指標となる。未処理のずりのうち、堆積岩①の F の累積溶出量の増加量が漸減したのに対し、その他の重金属等の累積溶出量では漸減する傾向は認められなかった。溶出割合では、堆積岩①の As が 36.4%，F が 37.0%，堆積岩②の B は 37.7% となったが、火成岩の As の溶出割合は 15.1% と堆積岩①より低くなった。この溶出割合の差は、堆積

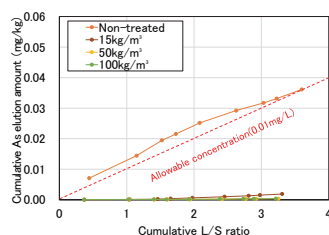


Fig.10 Cumulative elution amount
(Igneous rocks)
(累積溶出量 (火成岩))

Table 4 Elution content
(溶出量)

Sample name	Element/ Water solubility fraction	Denite addition (kg/m ³)	Cumulative elution rate (mg/kg)	Elution content (%)
Sedimentary rocks①	As/ 0.14 (mg/kg)	0	0.051	36.4
		15	0.003	2.3
		50	0.001	0.8
		100	0.001	0.8
	F/ 6.3 (mg/kg)	0	2.85	37.0
		15	0.38	5.0
		50	0.17	2.2
		100	0.15	1.9
Sedimentary rocks②	B/ 12.6 (mg/kg)	0	4.75	37.7
		15	2.39	19.0
		50	1.68	13.3
		100	1.10	8.7
Igneous rocks	As/ 0.24 (mg/kg)	0	0.036	15.1
		15	0.002	0.8
		50	<0.001	0.1
		100	<0.001	0.1

岩①と火成岩のスレーキングによる比表面積の差が一因と考えられる。

一方、デナイトを添加して不溶化処理した掘削ずりの溶出割合は、15kg/m³添加でAsが2.3%および0.8%, Fが5.0%と大幅に低下し、Bについても19.0%に低下し、所定期間における平均溶出濃度が土壌溶出量基準を満足することが確認された。曝露中にデナイトは、Mg(OH)₂等の水和生成物になると考えられるが、これら水和生成物は掘削ずりから溶出した重金属等を物理的に吸着、固定化することが示されている⁷⁾。Fig.11に示すスレーキング等の新たな破断面から溶出する重金属等に対しても、デナイト添加による重金属吸着作用が有効に機能したと考えられる。

以上より、スレーキングや破碎により細片化して溶出特性が変化するずりに対しても、デナイトを使用した不溶化処理は、長期的に安定的な不溶化効果を有することが確認された。

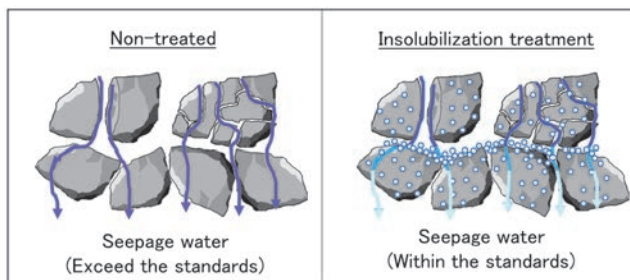


Fig.11 Image of Insolubilization effect against crushing and slaking
(破碎及びスレーキングに対する不溶化効果のイメージ)

(4) 機械的破断の影響を模擬した曝露試験

未処理のずりの溶出濃度が土壌溶出量基準以下となった曝露8カ月経過後のタイミングで再破碎・再充填した火成岩の土研式雨水曝露試験結果をFig.12に示す。再破碎により未処理のずりのAs溶

出濃度は土壌溶出量基準を超過したが、デナイトを15および50kg/m³添加した水準では土壌溶出量基準以下で推移した。

以上より、スレーキングの有無に関わらず長期的な不溶化効果が確認されたことと同様に、盛土等の供用中に破碎するような事例においてもデナイトを使用した不溶化工は有効であることが示された。

4. まとめ

堆積岩、火成岩の掘削ずりに対してデナイトによる不溶化処理を施し、1年間の土研式雨水曝露試験にて不溶化効果とその持続性を評価し、以下の結果を得た。

- (1) 堆積岩は、曝露期間中にスレーキングが進行し、細片化した。逐次抽出での水溶性画分のうち、As, F, Bの約40%が溶出した。
- (2) 火成岩は、曝露期間中にスレーキングの進行は認められなかった。逐次抽出試験での水溶性画分のうち、Asの約15%が溶出した。
- (3) 短期溶出試験で選定した必要添加量で処理した場合、曝露期間中にAsとFの溶出濃度は土壌溶出量基準を満足した。また、B溶出濃度は一時的に土壌溶出量基準を超過したものの、曝露期間中の持続性について検証を重ねて行く。
- (4) 曝露8カ月後に再破碎し、As溶出量が一時的に増加する場合においても、デナイトによる不溶化効果が認められた。以上より、スレーキングや破碎により細片化するずりに対しても、デナイトを添加することで長期的に溶出濃度を低減できることが確認された。今後も新たな試料で試験するとともに、曝露試験を継続することで、不溶化効果の持続性について検証を重ねて行く。

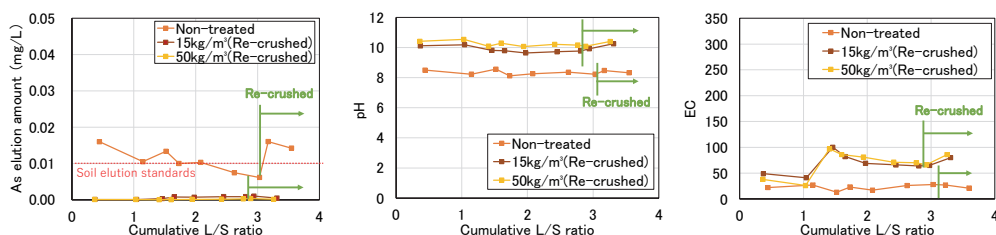


Fig.12 Result of elution test during outdoor exposure (Re-crushed Igneous rocks)
(土研式雨水曝露試験結果 (再破碎された火成岩))

参 考 文 献

- 1) 森 香奈子, 松山祐介, 守屋政彦ほか. 掘削ずりの不溶化に関する基礎的検討. 地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集. 2015, 21, eS6-05.
- 2) 天本優作, 松山祐介, 守屋政彦ほか. 掘削ずりの粒径が不溶化効果に及ぼす影響. 地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集. 2016, 22, eS2-10.
- 3) 品川俊介, 田本修一, 佐々木靖人ほか. 岩石からの重金属等の長期溶出評価方法. 日本応用地質学会研究発表会講演論文集. 2009, p. 99-100.
- 4) 島 貴富, 藤田健二, 貫上佳則ほか. BCR 逐次抽出法によるセメントおよびセメント固化体中の重金属溶出挙動の評価. 地盤改良シンポジウム論文集. 2002, 5, p. 271-274. .
- 5) 月本国春, 山内 智. ぜい弱岩による盛土の品質管理手法の検討. 土木学会北海道支部論文報告集. 2008, 64, eC-2.
- 6) 高野 淳, 長瀬孝宏, 岸森智佳ほか. MgO による重金属の不溶化機構の解明に関する基礎的検討. 地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集. 2017, 23, eS1-10.
- 7) 七尾 舞, 森 喜彦, 普久原朝之ほか. MgO 系材料の吸着層工法への適用に関する検討ーその 4ー. 地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会講演集, 2023, 28, eS2-05.