

セメント固化を用いた軟弱地盤改良における地盤環境影響の実験的検討

嘉門雅史*・乾 徹*・東海林寛**

*京都大学大学院地球環境学堂

**京都大学大学院地球環境学舎修士課程

要 旨

セメント固化は、地盤改良や建設発生土、廃棄物の再資源化、汚染土壌対策などにおいて広く用いられているが、一度施工されると半永久的に環境中に存在することになるため、リスク管理や廃棄物循環利用時等の環境影響の観点から、セメント固化体中の重金属の長期的な溶出特性を把握する必要がある。本研究では、軟弱土のセメント改良体を乾湿繰返し試験に供し、劣化が促進した際の改良土からの六価クロムの拡散溶出挙動について実験的に評価を行った。さらにその結果に基づいて、セメント改良が地盤環境に及ぼす影響の定量的評価の考え方と手法について検討した結果を示す。

キーワード：セメント固化，溶出，六価クロム，乾湿繰返し

1. はじめに

地盤改良や建設発生土、廃棄物の再資源化、汚染土壌対策などにおいてセメント改良は広く用いられている。近年では、環境影響評価やライフサイクルコスト評価の導入により、建設工事に伴う環境負荷を定量的に明らかにすることが求められている。セメント改良が地盤環境に及ぼしうる影響としては、1) 高アルカリの溶出、2) セメント自体に含まれる六価クロム(以下、Cr(VI))、もしくは改良対象材に含まれる重金属の再溶出、が主に挙げられる。前者については、地盤が有するアルカリ中和能力が比較的高いことから、アルカリの地盤中での浸透距離は数十 cm 程度であると報告されており (Sakate, 1987)、その影響は有意なものではないと考えられる。後者については、セメント改良土中の重金属はマトリックスの緻密化による物理的封じ込め、難水溶性物質の生成、水和生成物による吸着・固定化といった作用により大幅に抑制されることが知られている。特に、セメント中には製造過程に起因して Cr(VI) が含有することが知られている (高橋 2000)。したがって、セメント、およびセメント系固化材を地

盤改良に用いる場合や改良土を再利用する際には、2000年に旧建設省、旧運輸省、農林水産省などから出された通達に従って、Cr(VI)の溶出抑制に関する必要な措置が執ることが義務付けられている。しかしながら、セメント改良土が長期的に環境中に存在する場合、乾湿繰返しや中性化によって、水和生成物の分解による改良土の劣化が進行することが予想されるが、その際の重金属の封じ込め効果にもたらされる影響については、明らかにはない。セメント改良土は一度施工されれば再利用過程も考慮すると半永久的に環境中に存在することが多いため、リスク管理や廃棄物循環利用時の環境影響の観点から、セメント固化体中の重金属の長期的な溶出特性を把握する必要がある。

本研究では、セメント改良土を乾湿繰返し試験に供し、劣化が促進した際の改良土中の Cr(VI) の拡散溶出挙動について浸せき試験により実験的に評価を行った。さらにその結果に基づいて、セメント改良土を施工することによる地盤環境への影響を拡散溶出モデル、および数値解析を導入して評価した結果を示し、環境影響評価の考え方と手法について検討した結果を示す。

2. セメント改良土からの Cr(VI) の溶出

地盤改良に用いられるセメント系固化材の主材であるセメントには Cr(VI) が含有されており、土壌の汚染に関わる環境基準、地下水の水質汚濁に係る環境基準で定められた環境基準値 (0.05 mg/L) を上回る溶出が確認されることがある。Cr(VI) が含有されている原因としては、セメントのクリンカー原料(石灰石、粘土、各種廃棄物材料他)、およびキルンの耐火レンガに含有されているクロム(三価)が焼成過程における高温加熱、酸化作用によって Cr(VI) に変化するためである(高橋, 2000)。各種セメントを対象とした全クロムの含有量、および Cr(VI) 溶出量の試験結果の一例を Table 1 に示す(Kamon, 2001)。全般的な傾向として、ポルトランドセメントはスラグセメントと比較して、全クロム含有量、Cr(VI) 溶出量ともに高い値を示しているが、いずれも環境基準値を超過する溶出量が確認されている。

Table 1 Total chromium content and Cr(VI) leaching concentration of various cements (Kamon, 2001)

Sample	Total chromium content (mg/kg)	Cr (VI) leaching concentration* (mg/L)
Ordinary Portland cement	C1	14.7
	C2	23.8
	C3	4.1
	C4	12.4
	C5	7.0
Slag cement	S1	0.2
	S2	0.3
	S3	4.3

*According to the test method in Japanese Environmental Agency Notification No.46

セメント系固化材により軟弱地盤の改良を行った際には、生成するセメント水和物により Cr(VI) は固定されるため、改良土からの Cr(VI) 溶出量はセメント単体と比較して大幅に小さくなる。ただし、土壌中には水和物の生成を阻害する粘土鉱物や有機分が存在する場合には、Cr(VI) の固定化効果は小さく、特に、火山灰質粘性土については Cr(VI) の溶出濃度が高いとされている(恒岡, 2004)。

こういった状況を受け、2000 年に旧建設省、旧運輸省、農林水産省などから「セメント及びセメント系固化材の地盤改良への使用及び改良土の再利用に関する当面の措置について(2001 年に一部変更)」が通達され、セメント、およびセメント系固化材を地盤改良に用いる際には、配合設計の段階で、現地土壌と使用予定の固化材を用いて環境庁告示 46 号(以下、JLT46 とする)に基づく Cr(VI) の溶出試験を実施することが求められるようになった。さらに、Cr(VI) の溶出量が高

い傾向にある火山灰質粘性土を対象とする場合には、施工後の現地採取試料を対象とした JLT46、およびタンクリーチング試験に基づく Cr(VI) の溶出試験を併せて実施することが定められている。

この通達を受けて、各方面でセメント改良土からの Cr(VI) の溶出に関する詳細な調査と対応が実施されてきた。セメント協会においてはセメント中の水溶性 Cr(VI) の含有量削減が行われ、20 mg/kg 以下とする自主管理基準を設けている(細谷, 2002)。さらに、「セメント及びセメント系固化材と使用した改良体の六価クロム溶出試験方法(案)」をセメント協会標準試験方法として策定し、データの蓄積が図られている。国土交通省セメント系固化処理土検討委員会においても詳細な検討が行われ、具体的には以下のような成果が報告されている(セメント系固化処理土検討委員会, 2003)。

- [1] 配合設計段階での溶出試験において土壌環境基準を超える溶出がなかった配合で施工することにより、516 現場中 2 つの現場を除いては施工後の溶出試験においても土壌環境基準を超過する溶出は確認されなかった。超過したケースにおいてもその濃度は土壌環境基準の 3 倍以内であり、タンクリーチング試験においては、環境基準以上の溶出は確認されなかった。
- [2] 既設のセメント改良土を対象とした調査においては、一部、土壌環境基準を超える Cr(VI) の溶出が確認されたが、周辺土壌からの溶出濃度、地下水中の濃度ともに環境基準以下であった。
- [3] 普通ポルトランドセメント、および火山灰質土を使用した場合には溶出濃度が高い傾向にある。
- [4] 還元的雰囲気下においては Cr(VI) 溶出濃度が低減する。
- [5] Cr(VI) の地盤中における移動性は低く、主に土壌による吸着作用、および還元作用が大きな影響を及ぼしている。

しかしながら、セメント改良土からの長期的な Cr(VI) の溶出特性についてはデータが蓄積されておらず、試験方法の整備、溶出に及ぼす要因を同定し、長期的にも Cr(VI) の溶出による環境リスクを管理することが重要である。なお、セメント固化による重金属の封じ込め効果に影響を及ぼす主要な要因としては、以下のものが挙げられる。

- [1] 酸性雨や微生物活動に起因する有機酸の接触
- [2] 乾燥、炭酸化によるセメント改良土の中性化、および水和生成物の分解
- [3] 海水の接触する場合の水和生成物の溶出と塩化物による侵食

3. 室内実験

3.1 使用材料

採取地の異なる 2 種類の関東ローム (Volcanic cohesive soil , 以下, VCS-H, VCS-N と称す), および 藤森粘土 (以下, Clay-F と称す) の計 3 種類の軟弱土を固化対象土とし, 2 mm ふり通過分を実験に使用した。対象土の主な物理化学特性を Table 2 に示す。関東ロームは自然含水比(VCS-H:96.8% ,VCS-N:86.0%), Clay-F は液性限界付近の含水比 (49.0%) でそれぞれ使用した。セメントには普通ポルトランドセメント(以下, OPC)を用いた。なお, 使用した OPC の JLT46 による Cr(VI) 溶出量は 0.94 mg/L であった。

3.2 供試体の作製

OPC を 200 kg/m^3 の配合で対象土に粉体添加し, 所定時間ソイルミキサーで混合・攪拌した。その後, $\phi 50 \text{ mm} \times h 100 \text{ mm}$ のモールド内に突き固め, 恒温湿潤条件 (室温 20°C , 湿度 100%) で 28 日間養生したものを成型供試体とした。また, 供試体の形状による乾湿繰返しに対する影響の違いを検討するために, 成型供試体を破碎し, 3.36 ~ 9.5 mm に粒度調整したものを礫状供試体とした。

3.3 試験方法

(1) 乾湿繰返し試験

成型供試体, 礫状供試体を対象として乾湿繰返し試験を実施した。実験条件を Table 3 に示す。乾燥過程においては, $60 \pm 3^\circ\text{C}$ に保った乾燥炉内に 24 時間静置し

た。乾燥前後に供試体の質量を測定し, 含水比の変化を求めている。その後, 室内 ($20 \pm 3^\circ\text{C}$) で空气中に 1 時間放置して冷却し, 湿潤過程に供した。湿潤過程においては, 供試体が完全に浸かるだけの体積 (VCS-H, N 固化体: 液固比 4, Clay-F 固化体: 液固比 3) の純水中 ($20 \pm 3^\circ\text{C}$) に 23 時間静置した。実験では, 上記の乾燥, 冷却, 湿潤の一連の過程を最長で 15 サイクル繰り返した。なお, 湿潤過程終了後の浸せき液を対象として, 後述する方法で各種化学分析を実施した。所定回数の乾湿繰返しサイクル終了後の供試体については, 一軸圧縮試験 (JIS A 1216) を実施し, 乾湿繰返しに伴う強度変化を測定した。さらに, 供試体の外側から中心部にかけて, 同質量になるように 6 等分にトリミングした各部分の土の pH, および JLT46 による Cr(VI) 溶出濃度を計測し, 供試体内部の pH と可溶性 Cr(VI) 量の分布を評価した。

(2) 溶出試験

一般的なバッチ溶出試験である JLT46 および pH 依存性溶出試験を実施した。pH 依存性溶出試験の試験手順は JLT46 に準じたが, 溶媒の硝酸濃度を調整することによって pH を変化させ, 溶出試験終了時の平衡状態での pH と Cr(VI) 溶出量の関係性を評価した。さらに, 乾湿繰返し試験と比較するために, 通常の拡散溶出試験を実施し, 水浸状態におけるセメント改良土からの Cr(VI) 溶出量を計測した。溶媒体積をはじめとする拡散溶出試験の試験条件は乾湿繰返し試験の湿潤過程に準じた。24 時間毎に浸せき液を交換し, 交換後の浸せき液を対象として後述の化学分析を実施した。

(3) 化学分析

Table 2 Properties of the soils used in the experiment

Parameters		Volcanic cohesive soil-H	Volcanic cohesive soil-N	Fujinomori clay
Particle density	(Mg/m^3)	2.67	2.65	2.67
Water content	(%)	96.8	86.0	49.0
Liquid limit	(%)	122.1	114.8	51.2
Plastic limit	(%)	83.2	82.2	26.3
Grain size distribution				
Sand fraction (2 mm – 75 μm)	(%)	52	64	49
Silt fraction (75 μm – 5 μm)	(%)	23	21	23
Clay fraction (5 μm –)	(%)	25	15	28
pH		7.3	6.3	3.4
Cr(VI) leaching concentration*	(mg/L)	N.D.	N.D.	N.D.

*According to the test method in Japanese Environmental Agency Notification No.46

Table 3 Test method for wetting and drying test conducted in this study

Procedure	Drying process	Wetting process
	Place the beakers containing the testing specimens in a closed oven where the temperature is maintained at $60 \pm 3^\circ\text{C}$ for 24 hours. Remove the specimens from the oven and allow 1hour for the specimen to cool to room temperature.	Add the distilled water to the beaker to fully cover the specimens (L/S = 4 for the volcanic cohesive soil specimens and L/S = 3 for the alluvial clay specimens), and store the water covered specimens at $20 \pm 3^\circ\text{C}$ for 23 hours.
Measurement	Moisture content, Relative mass loss, Cr(VI) leaching concentration and pH of the solution after every wetting cycle.	
Number of cycles	15 (for the volcanic cohesive soil-H and alluvial clay specimens) 12 (for the volcanic cohesive soil-N specimens)	

乾湿繰返し試験の浸せき液, および各種溶出試験で得られた検液を対象として, pH, 電気伝導度, Cr(VI) 濃度の測定を行った。Cr(VI) 濃度の定量はジフェニルカルバジドを用いた吸光光度法 (JIS K 0102, 65.2.1) に従った。pH の測定には pH メーター-F-14 (堀場製作所), 電気伝導度の測定には導電率計 ES-14 (堀場製作所), Cr(VI) 濃度の測定には吸光光度計 UVmini1240 (島津製作所) をそれぞれ使用した。

4. 実験結果とその考察

4.1 セメント改良土の基本化学特性

3 種類のセメント改良土を対象とした JLT46, および pH 依存性溶出試験から得られた, セメント改良土の酸緩衝特性 (酸添加量と溶出試験終了時の pH の関係) を Fig. 1 に示す。酸添加量が 0.05 mol/kg まではすべてのセメント改良土について pH の低下傾向はほぼ同一であるが, 酸添加量が 0.05 mol/kg 以上が増加すると対象土の酸緩衝能力に従って pH 低下傾向が異なった。具体的には, 0.15 mol/kg の酸添加量に対する pH は Clay-F, VCS-N, VCS-H の順に高くなっており, VCS-H の酸緩衝能力が最も高く, VCS-N, Clay-F の順

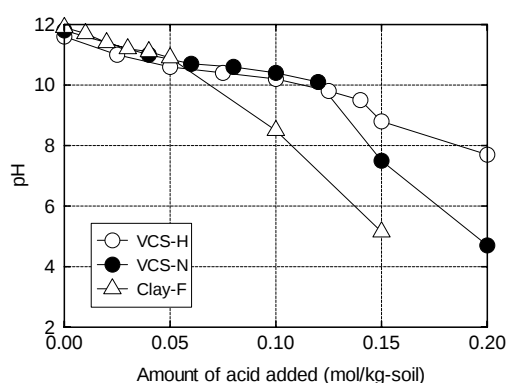


Fig. 1 Acid titration curves of the cement-treated specimens in the pH-dependent leaching test.

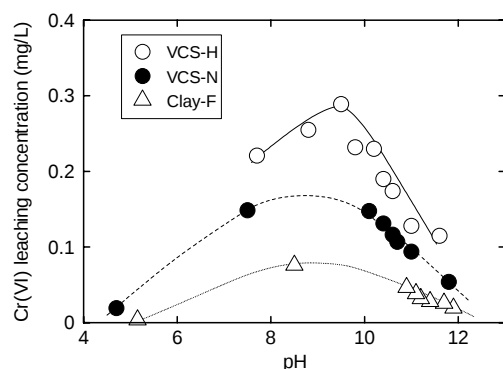


Fig. 2 Cr(VI) leaching concentrations affected by pH in JLT46 and pH-dependent leaching test.

に続くと考えられる。重金属の溶出量は一般的に pH が低下すると溶出量が大きくなることから, 重金属の溶出抑制の観点からは, 酸緩衝能力が高い材料が有利であると判断できる。

JLT, および pH 依存性溶出試験から得られた溶出試験終了時の pH と Cr(VI) 溶出濃度の関係を Fig. 2 に示す。クロムは一般的に酸性～中性条件下では三価クロム (Cr(III)) として存在する。一方, Cr(VI) は中性～アルカリ条件下で存在し, pH が高くなるほどその溶解性が高くなる傾向にある。しかしながら, Fig. 2 をみるとセメント改良土自体の pH である 12 程度から酸添加によって pH が低下するに伴って Cr(VI) の溶出濃度が急激に増加し, pH = 8～10 の範囲で最大値を示す。これは, セメント改良土中の水和物に固定化されていた Cr(VI) が酸添加による水和生成物の溶解によって溶出したと考えられる。しかし, さらなる酸添加によって pH が低下すると, Cr(VI) 溶出濃度は低下する傾向が示した。これは, pH の低下に伴って Cr(III) に還元され, 溶出量が小さくなったと考えられる。このことから, 環境中においてセメント改良土に酸に曝露される場合には Cr(VI) の溶出が促進されることが予測されるが, Fig. 1 に示されるようにセメント改良土の酸緩衝能力は高いため, 急激な pH の低下は発生しないと推測される。ただし, 既往の研究 (嘉門ら, 2003) においては, 乾湿繰返し作用を受けたセメント改良土の酸緩衝能力は大幅に低下することが示されており, セメントによる表層地盤改良など, 乾湿繰返しに曝露されやすい条件下においては留意が必要であると考えられる。

固化対象土による Cr(VI) 溶出濃度の相違をみると, ずれの pH に対しても VCS-H が最も高い溶出濃度を示し, VCS-N, Clay-F の順に Cr(VI) 溶出濃度は小さくなった。火山灰質粘性土は水和物の生成を阻害する粘土鉱物を多く含有することから, セメント改良土からの Cr(VI) 溶出濃度が高いことはよく知られており, Fig. 2 の結果もその傾向に一致するものである。

以上の結果より, セメント改良体に多量の酸性溶媒が接触すると, 改良土中の水和生成物が溶解し, Cr(VI) の溶出量が増大することが明らかになった。特に pH = 9 程度まで低下すると溶出量が大幅に増加することから, 酸の作用, 乾湿繰返し作用によって中性化, 水和生成物の分解が生じた場合には, Cr(VI) の溶出量は増加すると判断できる。

4.2 乾湿繰返し条件下における Cr(VI) の溶出特性

3 種類のセメント改良土の乾湿繰返し回数と一軸圧縮強さの関係を Fig. 3 に示す。セメント改良土を乾燥

させた場合、乾燥による収縮効果、および高温養生による安定処理効果の促進により一軸圧縮強さが増加するが(嘉門ら, 1991), 長期間に渡って乾湿繰返しに曝露されると、水和生成物の分解が進行し、強度低下が生じると推測される。Fig. 3 をみると、Clay-F 改良土については、乾湿繰返しが6サイクルまでは強度が増加し、その後著しい強度低下が見られ、乾湿繰返しが12サイクルに達した時点では、試験開始時の一軸圧縮強さを下回った。一方、関東ローム改良土については、セメント改良効果自体が非常に小さいことから強度低下はみられず、VCS-H 改良土については一軸圧縮強さが漸増、VCS-N 改良土についてはほぼ一定でそれぞれ推移している。

Fig. 4 に乾湿繰返し試験前、および3, 6, 9, 12, 15 サイクル終了時点の成型供試体内部の pH 分布を示す。乾湿繰返しサイクルの増加に伴って pH は徐々に低下する傾向が確認され、12 サイクル終了時点で供試体表面の pH は pH = 9 程度まで低下した。供試体の中心部分においては、3 サイクル目までの pH 低下が比較的大きいものの、その後の低下量は小さく、試験終了時の供試体中心部の pH はいずれの改良土においても pH = 11 程度であった。改良対象土による相違をみると、Fig. 1 で示した酸緩衝能が最も小さい Clay-F 改良土の pH 低下が、特に供試体内部において最も小さくなるという相反する結果となった。これは、関東ローム改良土と比較して改良効果が大いことから、マトリックスの緻密化という物理的な効果によって乾湿繰返しによる pH 低下が抑制されたと考えられる。一方、関東ローム改良土については、強度発現が小さく、酸緩衝能力も小さい VCS-N の pH 低下量が大きく、供試体の内部まで pH = 9 程度の領域が広がっていることが観察できる。

乾湿繰返し試験の湿潤過程における成型供試体からの Cr(VI) 溶出量の累積値と経過時間の関係を Fig. 5 に示す。比較として、常時水浸させた成型供試体、および乾湿繰返し条件下での礫状供試体からの Cr(VI) 溶出量を併せて示している。さらに、乾湿繰返し試験前、および3, 6, 9, 12, 15 サイクル終了時点の成型供試体内部の溶出可能な Cr(VI) 量の分布を Fig. 6、礫状供試体中の溶出可能な Cr(VI) 量と乾湿繰返しサイクル数の関係を Fig. 7 にそれぞれ示す。ここで、溶出可能な Cr(VI) 量は所定の乾湿繰返しサイクルが終了した供試体を対象に実施した JLT46 による溶出濃度から算出している。

成型供試体については、乾湿繰返し条件下における Cr(VI) の溶出量は水浸条件下における溶出量と比較して、いずれの改良土においても3~6倍の高い値を示した。このことから、乾湿繰返し作用によるセメン

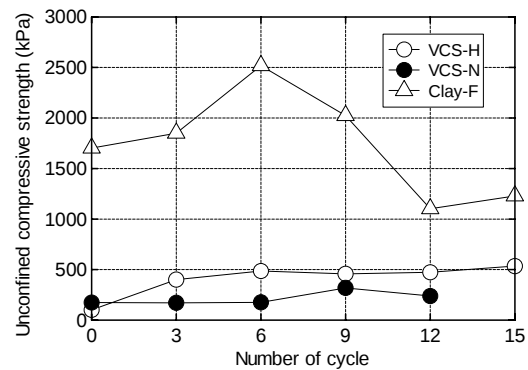


Fig. 3 Unconfined compressive strength with the number of drying-wetting cycle

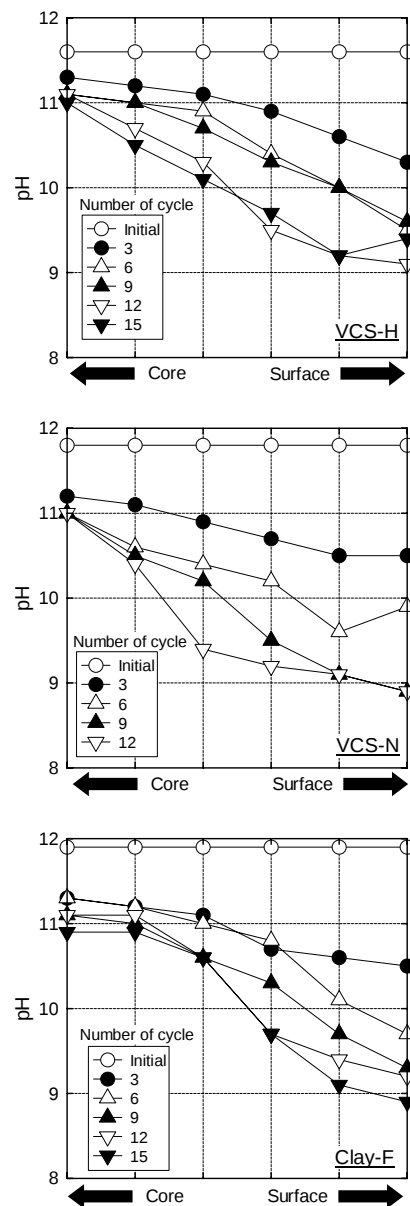


Fig. 4 pH distributions across the inside of specimens with the number of wetting-drying cycle

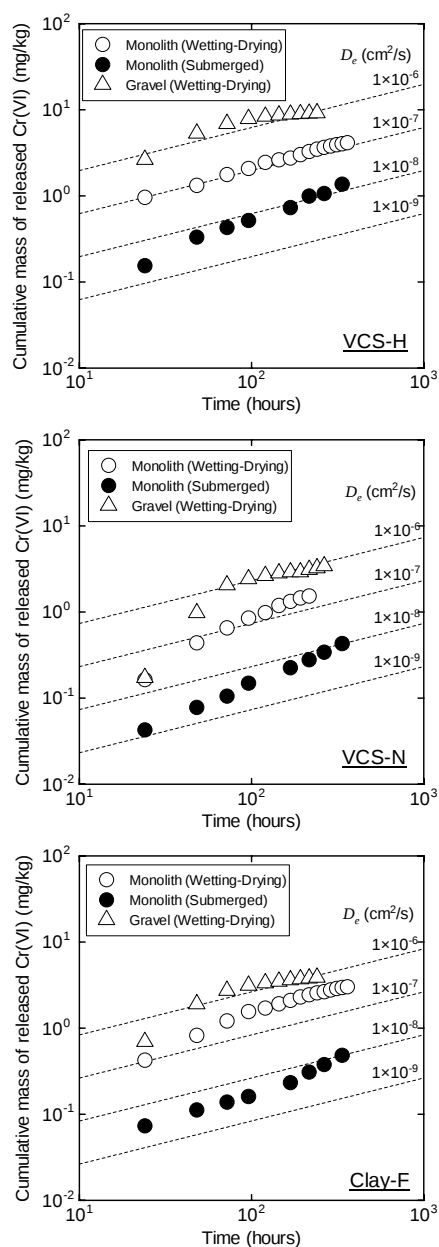


Fig. 5 Cumulative mass of released Cr(VI) compared with the theoretical solutions for the diffusive leaching

ト改良土の物理化学特性の変化が改良土の Cr(VI) の溶出を促進することは明らかである。Fig. 6 に示した成型供試体内部の溶解性 Cr(VI) 量の分布をみると、VCS-H 改良土と Clay-F 改良土については共通する傾向が確認され、乾湿繰返しサイクル数の増加に伴って供試体内部の溶解性 Cr(VI) 量が試験開始前と比較して増加する。一方、供試体表面においては溶解性 Cr(VI) 量は微増、もしくはわずかに減少しているが、これは表面付近の溶解性 Cr(VI) が湿潤過程において溶媒中に溶出したためと考えられ、総体的に溶解性 Cr(VI) 量は乾湿繰返し作用の影響により増加する。その後サイクル数が増加するに伴って、溶媒中に溶解性の Cr(VI) が溶出し、供試体内部の溶解性 Cr(VI) 量が減少する挙

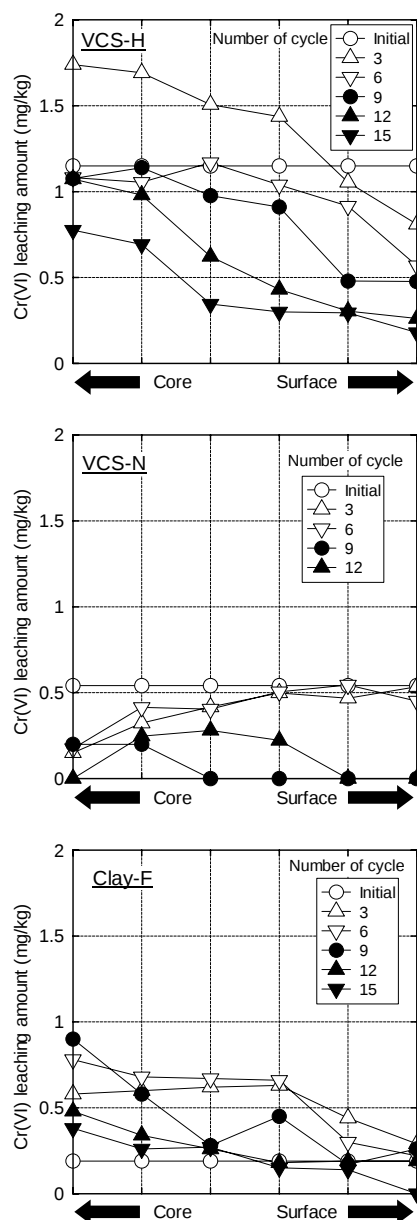


Fig. 6 Distributions of the leachable Cr(VI) amount determined by JLT46 for the specimens exposed to the wetting-drying cycle.

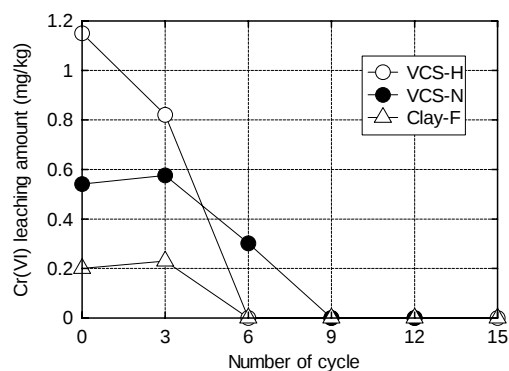


Fig. 7 Leachable amount of Cr(VI) for the gravel specimens with the number of wetting-drying cycle

動が確認できる。乾湿繰返し試験終了時には供試体中心部の溶解性 Cr(VI) 量が高いものの表面付近においては非常に低い値になっている。改良土の種類による比較を行うと、VCS-H 改良土の中心部においては溶解性 Cr(VI) 量が 3 サイクル終了時に最大になって、その後徐々に減少するが、Clay-F 改良土の中心部においては、9 サイクル終了時に最大になってその後減少した。このことから、乾湿繰返し作用に対する溶解性 Cr(VI) 量の増加速度はセメント改良効果が高い Clay-F 改良土の方が小さいといえ、Cr(VI) 溶出の観点においては乾湿繰返しに対する耐久性が高いと判断できる。一方、VCS-N 改良土においては他の 2 種類の改良土と異なる挙動を示し、試験開始前の溶解性 Cr(VI) 量が最も高く、乾湿繰返しサイクル数の増加に伴い、減少する傾向がみられた。VCS-N 改良土は、Fig. 2 に示したように、JLT46 および pH 依存性試験においては Clay-F 改良土よりも高い溶出量を示しているにも関わらず、乾湿繰返し試験においては、成型供試体からの Cr(VI) 溶出量が小さくなっている。このことから、VCS-N 改良土における Cr(VI) 固定化、および溶出機構は他の 2 種類の改良土と異なるものであると推測されるが、詳細については検討が必要である。

一方、礫状供試体については成型供試体と比較して単位質量あたりの Cr(VI) 溶出量が大きくなっており、特に試験初期の溶出量が高く、その後収束する傾向がみられた。最終的な溶出量は成型供試体と比較して 1.5 ~ 2.5 倍の高い値を示した。乾湿繰返しサイクル数と供試体中の溶解性 Cr(VI) 量の関係を示した Fig. 7 をみると、乾湿繰返しサイクルが 6 ~ 9 回に達した時点で溶解性 Cr(VI) 量はほとんどゼロとなっており、セメント改良土中の可溶性の Cr(VI) がすべて溶出したと推測できる。このことから、セメント改良土を破碎し、礫状で利用することは、Cr(VI) 溶出の観点からは不利であるといえる。

4.3 拡散溶出モデルを用いた溶出量の評価

浸せき試験におけるセメント固化体から溶出挙動は拡散現象が支配的要因であることから、Fick の第 2 則に基づく拡散溶出モデルによって溶出量が評価されることが多い (例えば、Kosson et al., 2002)。固液界面での対象物質濃度を 0 と仮定した場合における一次元場での Fick の拡散則に対する解は以下の式 (1) で与え

ることができる。

$$m^t = 2C_0 \cdot \frac{S}{V} \left(\frac{D_a \cdot t}{\pi} \right)^{1/2} \quad (1)$$

ここで、 m^t ：単位質量試料からの時間 t における累積溶出量 (MM^{-1})、 C_0 ：単位質量試料中の溶出可能な対象物質濃度 (MM^{-1})、 S ：試料の表面積 (L^2)、 V ：試料の体積 (L^3)、 D_a ：対象物質の見かけの拡散係数 (L^2T^{-1})、 t ：経過時間 (T)、である。多孔質体の化学物質の純粋な拡散現象を評価する場合、拡散係数は対象物質の分子拡散係数と屈曲率により評価される。しかし、本実験におけるセメント固化体からの溶出は対象物質の溶脱と拡散移動の双方が関係する現象であることから、式 (1) においては、溶脱と拡散移動を見かけ上の拡散現象として評価し、見かけの拡散係数 D_a を定義している。

式 (1) に基づいて算出した $1.0 \times 10^{-9} \sim 1.0 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ の範囲で D_a をパラメトリックに変化させた場合の理論解を、セメント改良土からの Cr(VI) 累積溶出量と経過時間の関係を示した Fig. 5 に併記した。なお、一般的に C_0 としては $t = 0$ における試料中の溶出可能量が用いられるが、ここでは前述したように溶脱と拡散移動を見かけの拡散係数と評価していることから、最大溶出可能量として乾湿繰返し作用を受けた礫状供試体からの試験終了時の累積溶出量を用いた。これは、Fig. 7 に示したように、乾湿繰返し作用を受けた礫状供試体中の溶解性 Cr(VI) 量がほぼゼロになっていることを判断の根拠としている。

Fig. 5 より、Cr(VI) 累積溶出量の実験値は理論値とほぼ同じ傾きを示していることから、式 (1) による溶出量の近似は概ね妥当であると判断できる。このことを定量的に評価するため、実験で得られた経過時間と累積溶出量の関係を式 (1) に最小二乗法を用いてフィッティングさせることにより算出した D_a とその決定係数を Table 4 に示す。なお、Table 4 には算出に用いた各供試体の C_0 の値も併記している。決定係数はおおむね高い値を示しており、Cr(VI) の溶脱と拡散移動を見かけ状の拡散現象として評価した拡散溶出モデルは本実験結果に適用可能であると考えられる。また、乾湿繰返し条件下の D_a は水浸条件下と比較して 1 ~ 2 オーダー高い値を示す結果となった。

Table 4 Apparent diffusive coefficients for the specimens based on the experimental results

Specimen	Volcanic cohesive soil-H ($C_0 = 9.2 \text{ mg/kg}$)		Volcanic cohesive soil-N ($C_0 = 3.4 \text{ mg/kg}$)		Fujinomori clay ($C_0 = 3.9 \text{ mg/kg}$)	
	$D_a \text{ (cm}^2/\text{s)}$	R^2	$D_a \text{ (cm}^2/\text{s)}$	R^2	$D_a \text{ (cm}^2/\text{s)}$	R^2
Wetting-Drying	1.3×10^{-7}	0.99	1.7×10^{-7}	0.87	3.7×10^{-7}	0.97
Submerged	1.1×10^{-8}	0.91	6.9×10^{-9}	0.86	6.7×10^{-9}	0.88

5. 数値解析による環境影響評価手法の検討

セメント系固化材を用いた軟弱地盤改良に伴う Cr(VI) の溶出が地盤環境に及ぼす影響を推定するため、室内試験結果に基づいてセメント改良土からの Cr(VI) 溶出をモデル化し、その地盤内の輸送挙動を浸透流解析および移流分散解析（西垣ら，1994）を用いて推定した。解析に用いた二次元平面（単位深さ）を Fig. 8 に示す。解析の概要、適用した仮定、条件等は以下の通りである。

- [1] 0.4 m 四方のセメント改良土が帯水層中に存在するとし、地下水は Fig. 8 において左から右方向に動水勾配 0.01 で流れているとした。
- [2] セメント改良土からの Cr(VI) の溶出量は、Table 4 に示した実験結果から求めた D_a を用いて、セメント改良土表面からの Cr(VI) の溶出フラックスの時間平均値 $q_{t,ave}$ ($\text{ML}^{-2}\text{T}^{-1}$) をタイムステップ毎に算出し、解析に導入した。式 (1) に示した Fick の拡散則に基づくあるタイムステップ（時間 $t_{i-1} \sim t_i$ ）の溶出フラックスの時間平均値 $q_{t,ave}^i$ は、以下の式 (2) で与えられる。

$$q_{t,ave}^i = 2\rho \cdot C_0 \cdot D_a^{1/2} \cdot \pi^{-1/2} (t_i^{1/2} - t_{i-1}^{1/2}) \cdot (t_i - t_{i-1})^{-1} \quad (2)$$

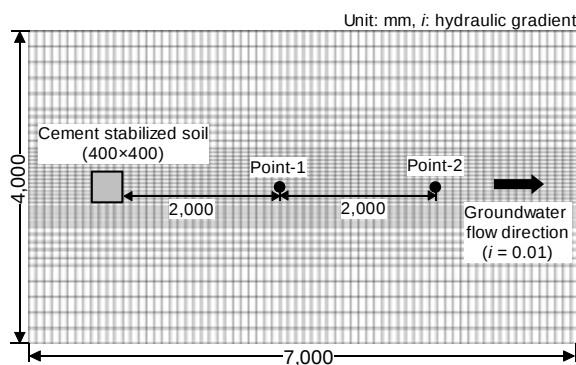


Fig. 8 2D plane section for the numerical analysis

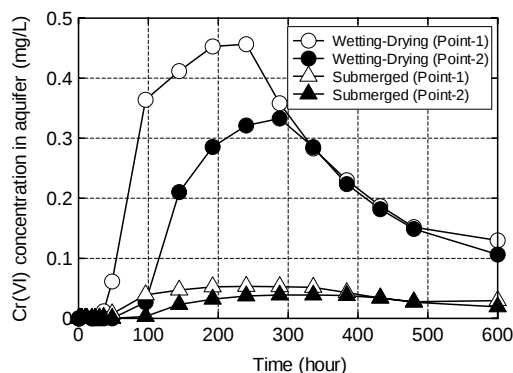


Fig. 9 Analytical result on the Cr(VI) concentration in aquifer (stabilized Clay-F)

ここで、 ρ ：材料の単位体積乾燥質量 (ML^{-3}) である。

- [3] 帯水層の透水係数を $4.6 \times 10^{-2} \text{ cm/s}$ ，遅延係数を 1.3，改良土の透水係数を $4.6 \times 10^{-4} \text{ cm/s}$ とした。縦分散長，横分散長をそれぞれ 10，1 cm，分子拡散係数を $1.0 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ と仮定した。

実際に $q_{t,ave}$ を算出する際には、地盤中のセメント改良土の表層からどの程度の領域が Cr(VI) の溶出に寄与するかを考慮し、 C_0 を決定する必要がある。しかしながら、これを判定するためのデータが現時点で得られないことから、本解析ではセメント改良土の表面から 10 mm に相当する部分が溶出に寄与すると仮定した。ただし、この値は評価の時間スケールや材料の物性によっても変化することから、今後の評価が必要である。

解析結果の一例として、Clay-F 改良土（成型供試体）の実験結果を導入した際の 2 つの観測点（Fig. 8 参照）における Cr(VI) の濃度変化を Fig. 9 に示す。式 (2) より、溶出フラックスは時間経過に伴って小さくなることから、観測点における濃度は最大値に達した後、徐々に低下する。水浸条件下では Cr(VI) 濃度は最大値の場合でも地下水環境基準値 (0.05 mg/L) を下回っており、環境安全性は確保されている。一方、実環境において乾湿繰返し試験のような条件に曝されることから、Fig. 9 に示した乾湿繰返し条件下における Cr(VI) 濃度の算出値は安全側の評価ではあるが、乾湿繰返しによって Cr(VI) 濃度が 1 オーダー程度上昇する結果となった。さらに、Fig. 5 に示した実験結果から推定できるように、改良土が礫状で施工されていれば溶出初期のフラックスが大きくなるため、Cr(VI) 濃度はさらに高くなると考えられる。

Cr(VI) 濃度は溶出フラックスに加えて、地下水流れ、セメント改良土の利用形態や規模に依存するが、同一の解析条件下で Cr(VI) 濃度の最大値は $q_{t,ave}$ の最大値に比例する結果となり、例えば Cr(VI) 濃度が地下水環境基準を満たすための許容フラックスが決定できる。よって、セメント改良土の利用形態や規模毎によって許容フラックスを決定し、室内試験で求められる有効拡散係数の判定や環境影響評価に導入することは有効な手法であると考えられる。

6. おわりに

本研究では、軟弱土（泥土，関東ローム 2 種類）のセメント改良土を対象に乾湿繰返し試験を実施し、劣化が促進した改良土からの六価クロム（Cr(VI)）の拡散溶出挙動について実験的に評価を行った。さらに得られた拡散係数に基づいて、セメント改良土を施工し

た際の Cr(VI) の溶出が地盤環境に及ぼす影響の評価手法を示し、実際の環境影響を解析的に検討した事例を示した。得られた成果を以下に示す。

- [1] セメント改良土を対象とした環境庁告示第 46 号試験 (JLT46), および pH 依存性溶出試験の結果より, 酸性溶媒の接触により pH が低下すると水和生成物の溶解が起因と推測される Cr(VI) 溶出量の増加が確認され, pH = 8 ~ 10 程度で最大値を示した。このことから, 酸の接触, pH の変化がセメント改良土中の Cr(VI) の溶出を促進すると考えられる。
- [2] 乾湿繰返し条件下に曝露されたセメント改良土は中性化が進行し, 30 日間 (15 サイクル) の曝露後には直径 50 mm の円柱成型供試体の表面で pH = 9, 中心部で pH = 11 程度となり, 試験開始前と比較して大幅に低下した。
- [3] 乾湿繰返し曝露により, 成型供試体からの Cr(VI) の溶出量, および供試体内部の溶解性 Cr(VI) 量はいずれも増加した。しかし, VCS-N 改良土については, 溶解性 Cr(VI) の増加がみられず, Cr(VI) の溶出量も JLT46 試験では比較的高い値を示したにも関わらず, 乾湿繰返し条件下での溶出量は最も低いものであった。このことから, VCS-N 改良土からの Cr(VI) 溶出機構や存在形態が異なる可能性が指摘できるが, 詳細については今後の検討が必要である。
- [4] セメント改良土中の Cr(VI) の溶脱と拡散移動を見かけの拡散現象として拡散溶出モデルを用いて Cr(VI) 溶出量を定量化した結果, 本モデルの適用は可能であることが示された。実験結果をフィッティングして見かけの拡散係数を同定したところ, 乾湿繰返し条件下では水浸条件下と比較して 1 ~ 2 オーダー高い値を示す。
- [5] 礫状供試体からの溶出量は成型供試体と比較して試験開始直後に特に高い値を示すが, 時間の経過に伴って改良土中の溶解性 Cr(VI) 量が減少すると, 収束する傾向がみられた。乾湿繰返しサイクル 15 回終了時の Cr(VI) 溶出量は, 成型供試体の 1.5 ~ 2.5 倍高い値をしたことから, セメント改良土を破砕し, 礫状で利用することは Cr(VI) 溶出の観点からは不利である。
- [6] 実験で得られた拡散係数からセメント改良土からの Cr(VI) 溶出フラックスを定量的に評価し, セメント系固化材を用いた地盤改良に伴う地盤環境影響の評価に導入した。地下水中の Cr(VI) 濃度は溶出フラックスに比例することから, セメント改良土の利用形態や規模毎によって許容フラックスを決定し, 室内試験で求められる有効拡散係数の判

定や環境影響評価に導入することは有効な手法であると考えられる。

- [7] 実環境中でセメント改良土の表層からどの程度の領域が Cr(VI) の溶出に寄与するか, また促進試験として実施した乾湿繰返し試験による処理土の中性化, 炭酸化の進行が実環境条件においてどの程度の期間や負荷に相当するのかを長期暴露試験結果等と比較して推定することが, 今後の影響評価の実施にあたって必須であるといえる。

謝 辞

本研究は環境省平成 16 年度地球環境保全等試験研究「再生建材の循環利用過程における長期的な環境影響評価のための促進試験系の開発及び標準化に関する研究 (研究代表者: 酒井伸一博士 (国立環境研究所))」の一環として実施した。さらに, 室内実験の実施にあたり, 井合 進教授をはじめとする京都大学防災研究所 地盤災害研究部門地盤防災解析分野の各位, ならびに京都大学防災研究所技術室 清水博樹技官に多大なご配慮, ご協力をいただいた。記して謝意を表する。

参考文献

- 嘉門雅史・乾 徹・佐々木和憲・勝見 武 (2003): 重金属汚染土固化体の乾湿繰返し条件下における溶出特性の評価, 第 5 回環境地盤工学シンポジウム発表論文集, 地盤工学会, pp.175-178.
- 嘉門雅史・勝見 武・今西秀公 (1991): セメント系安定処理土の乾湿繰返し耐久性, セメント・コンクリート論文集, No.45, pp.745-749.
- セメント系固化処理土検討委員会 (2003): セメント系固化処理土に関する検討 最終報告書 (案)。
- 高橋 茂 (2000): セメントに含まれる微量成分の環境への影響, セメント・コンクリート, No.640, pp.20-29.
- 恒岡伸幸 (2004): セメント改良土からの六価クロムの溶出とその周辺地盤での挙動に関する研究, 京都大学博士学位論文。
- 西垣 誠・菱谷智幸・橋本 学・河野伊一郎 (1995): 飽和・不飽和領域における物質移動を伴う密度依存地下水流の数値解析手法に関する研究, 土木学会論文集, Vol.511/III-30, pp.135-144.
- 細谷俊夫 (2002): セメント系固化材と六価クロム, 材料, Vol.51, No.8, pp.933-942.
- Kamon, M. (2001): Remediation techniques by use of ground improvement, Soft Ground Technology, J.L. Hanson and R.J. Termaat, eds., ASCE, pp.374-387.

Kosson, D.S., van der Sloot, H.A., Sanchez, F. and Garrabrants, A.C. (2002): An integrated framework for evaluating leaching in waste management and utilization of secondary materials, *Environmental Engineering Science*, Vol.19, No.3, pp.159-204.

Sakate, M. (1987): Movement and neutralization of alkaline leachate at coal ash disposal sites, *Environmental Science and Technology*, Vol.21, No.8, pp.771-777.

Experimental study on the long-term environmental impact caused by the cement stabilization/solidification of soft ground

Masashi KAMON*, Toru INUI*, and Yutaka SHOJI**

*Graduate School of Global Environmental Studies, Kyoto University

** Graduate Student, Graduate School of Global Environmental Studies, Kyoto University

Synopsis

Diffusive leaching behavior of hexavalent chromium (Cr(VI)) from the cement stabilized soil were assessed based on the results of laboratory leaching tests. In particular, the effect of intermittent wetting and drying on the physical and chemical properties of the cement stabilized soil and its Cr(VI) leaching behavior were investigated by conducting the wetting and drying test for the monolith and gravel-type specimens. Experimental results showed that Cr(VI) leaching was significantly promoted by the intermittent wetting and drying. Apparent diffusion coefficients determined using the typical diffusive leaching model were 10^1 to 10^2 times larger under the wetting and drying condition than those under the submerged condition. Cr(VI) leaching from the cement stabilized soil were modeled using the advection-dispersion chemical transport analysis, applying the apparent diffusion coefficients determined in the laboratory tests. Analytical results confirmed that the environmental impact, caused by the cement stabilization/solidification of soft ground, resulted in the accepted level when the stabilized soil is not exposed to the intermittent wetting and drying.

Keywords: cement stabilization, leaching, hexavalent chromium, intermittent wetting and drying