

有機物混入土壤の再生利用に関する基礎的研究

Fundamental Study on Recycling Soil Containing Organic Matter

今井亮介* 羽渕博臣* 清水祐也*

要旨

中間貯蔵施設に貯蔵される除染で発生した土壤（以下、除去土壤）や、近年多発する豪雨等で発生する災害発生土砂は異物を取り除いて再生利用することが求められている。しかし、これら除去土壤や災害発生土砂には草木等が含まれていることが多く、さらに除去土壤には高吸水性樹脂を含む土壤改質材が加えられる場合がある。このような草木や高吸水性樹脂等の異物（総称して有機物）が混入した土壤は、時間の経過とともにその土質特性がどのように変化するのか、環境にどのような影響を及ぼすかについて不明な点が多い。

そこで、有機物混入土壤を盛土資材等として効率的に再生利用するために、有機物の長期的変化や有機物混入土壤の土質特性の変化を検証することを目的に複数の試験と分析を行った。その結果、有機物の暴露試験では、その長期的な変化を捉える指標として化学的酸素要求量（COD）やIR分析が活用できる可能性があること、有機物混入土壤の盛土試験では、土壤中の有機物量は時間の経過とともに減少し、盛土の沈下や、土壤の力学特性に影響を与える等の知見が得られたので報告する。

キーワード：有機物、高吸水性樹脂、盛土、土質特性

1. まえがき

2011年3月11日の東日本大震災に伴う福島第一原発事故から10年が経過し、放射性物質汚染からの回復を目指した除染事業が進められている。除染作業で発生した土壤は、分別等処理施設において異物除去が行われており、そこでは土壤改質材が使用されることが多い。この改質材には、高吸水性樹脂（ポリアクリル酸ナトリウム、以下、SAP：Super Absorbent Polymer）という有機物を含むものがある^{1),2)}。このSAPは水と接触すると体積が数百倍に及ぶ吸水膨潤性があるため、SAPを含んだ土壤を再生資材として利用した場合、土質特性に影響を及ぼすおそれがある。

また、令和2年7月豪雨等の豪雨災害が近年多発している。これら豪雨災害では、草木等を多く含んだ土砂が多量に発生する。このような土砂については振動ふるいや比重選別機等を用いて草木の除去が行われるが、細かいものは除去されず残留する。これら土砂に含まれる草木は時間経過とともに腐食が進むため、再生資材として利用した場合、土質特性に影響を及ぼすおそれがある。

SAPや草木といった有機物が混入した土壤（以下、有機物混入土壤）を再生資材として利用するには、その有機物に応じた土質特性や、利用した場合の影響を把握しておく必要がある。

そこで本研究では、有機物混入土壤を再生資材として

効率的に利用するために、有機物の特性及び有機物混入土壤の土質特性の長期的変化を検証することを目的として「稻わら等の有機物の暴露試験」と「稻わらやSAPを混合した有機物混入土壤の盛土試験」を行った。これらの試験内容と試験から得られた知見を報告する。なお、暴露試験は2018年11月より行っており、2019年度の奥村組技術研究年報No.45にて、中間報告をしている³⁾。本報では、中間報告以降の変化について報告する。

2. 稲わら等の有機物の暴露試験

2.1 試験概要

有機物は、小動物や微生物等の分解者によって溶脱や細片化、異化等の作用により分解される。また、紫外線によりその性状が変化する。本研究では、有機物の経時変化に伴い、有機物の特性がどのように変化するか検証することを目的として、4種類の有機物試料を屋外に置き、2つの条件（雨の影響の有無、以下、「雨あり」、「雨なし」）のもと暴露試験を行った（写真-1）。なお、「雨なし」の試験体は5mmの透明アクリル板で屋根を設けたため、紫外線の照射量は「雨あり」の10~20%前後と想定される。

試験期間：2018年11月～2020年11月（2年間）

試験場所：茨城県つくば市

* 土木本部土木部環境技術室



写真-1 暴露試験

2.2 使用材料

有機物として、ひのき、稻わら、広葉樹及び SAP を対象として試験を行った。使用材料の諸元を表-1に、使用した有機物試料を写真-2に示す。

表-1 使用材料の諸元

ひのきチップ	
製品目	ひのきのふかふかマット
稻わら	
製品目	敷きわら
広葉樹チップ	
製品目	広葉樹おがくず
SAP	
製品目	サンフレッシュ ST-500D
製作会社	SDP グローバル株式会社
成分	アクリル酸重合体部分ナトリウム塩架橋物 97%
形状	粉末状
色	白色
臭い	ほとんど無臭
pH	6.1 (製品の 0.5% 生理食塩水分散液)

2.3 試験結果

a. 有機物の変化

各試料の状況を写真-2に、湿潤質量及び含水率を表-2に示す。

これらから分かるように、ひのき、稻わらおよび広葉樹については、「雨なし」試料は茶色に変化し、湿潤質量は 12~21%減少した。「雨あり」試料は灰色に変化し、かつ、試料片も小さくなつたことが確認できた。また、湿潤質量は 29~61%減少した。土壤と混合した稻わらが 30 日で質量が 50%以上低減した実験報告⁴⁾もあることから、有機物が分解され、雨風の影響により流出し、さらに雨や紫外線の影響でその挙動がより進行したと推察される。一方、含水率をみると、ひのきと稻わらは全ての試料で 10~15%程度減少しているのに対し、広葉樹は「雨なし」試料で 1.8%増、「雨あり」試料で 3.5%減となり、保水状態に違いが生じた。

SAP については、「雨なし」試料の湿潤質量は 6% (50g→53g) 増加した。その要因は、吸湿によるものと考えられ、SAP 表面は紫外線等の影響から茶色に変色しているものの、内部は白色の状態が観察されたことや含水率の増加 (9.6%→10.9%) から、SAP の保水能力が維持されていると考えられる。一方、「雨あり」試料で

は、SAP 下に敷いたガーゼのみが残り SAP の存在がほとんど確認出来ない状態となった。これは、風雨や乾燥によって SAP が流出したことが原因と考えられる。



写真-2 有機物試料

表-2 有機物の変化

No	降雨条件	摘要	初期状態 (2018/11/18)			最終状態 (2020/11/11)		
			目視形態	質量 ^{※1} (g)	含水率 (%)	目視形態	質量 ^{※1} (g)	含水率 (%)
1	雨なし	ひのき	木肌色	14	19.6	濃茶色	11	3.0
2		稻わら	濃茶色	18	12.0	茶色	15	3.2
3		広葉樹	茶色	65	12.2	茶色	57	14.0
4		SAP	白色	50	9.6	茶色	53	10.9
5	雨あり	ひのき	木肌色	14	19.6	※2	10	3.6
6		稻わら	濃茶色	18	12.0	灰色	7	3.1
7		広葉樹	茶色	65	12.2	灰色	45	8.7
8		SAP	白色	50	9.6	※3		

※1：湿潤質量

※2：表面付近は灰黒色で下層は木肌呈す

※3：ガーゼのみで SAP の存在が確認できなかつたため測定不可

b. 劣化指標としての可能性

本検討では、有機物の分解等の長期的変化を「劣化」と呼ぶこととした。この劣化の状態を汎用的な分析方法で定量的に評価する指標（以下、劣化指標）の提案を目指し、2018年度³⁾から検討を行ってきた。劣化指標の候補として選定した項目とその可能性評価を表-3に示す。

検討の結果、化学的酸素要求量（COD）は、全ての有機物試料で、初期状態に比べて暴露した試料の測定値が増加する結果が得られたことから、劣化指標として活用できる可能性があると評価した（図-1）。

表-3 劣化指標としての可能性評価

項目	2018年度測定		暴露試験後 2020年度測定		評価
	初期状態	劣化促進 ^{※1}	雨なし	雨あり	
ひのき	TOC (g/kg)	12	16 △	42	6 ×
	BOD (g/kg)	18	22 △	39	14 ×
	COD (g/kg)	114	536 ○	1100	813 ○
	強熱減量(%)	100	100 ×	96	90 ×
稻わら	TOC (g/kg)	23	29 △	28	10 ×
	BOD (g/kg)	80	26 △	63	18 △
	COD (g/kg)	552	876 ○	844	981 ○
	強熱減量(%)	88	86 ×	85	73 ×
広葉樹	TOC (g/kg)	4	16 △	10	5 ×
	BOD (g/kg)	3	29 △	18	8 △
	COD (g/kg)	176	555 ○	395	721 ○
	強熱減量(%)	99	83 ×	97	96 ×
SAP	TOC (g/kg)	17	102 △	70	※2
	BOD (g/kg)	0	0 △	4	
	COD (g/kg)	53	177 ○	690	
	強熱減量(%)	58	59 ×	58	

※1: 2018年度実施の高温高圧試験の測定値³⁾。記号(○、△、×)は、劣化指標としてなり得るかの可能性を2018年度に評価したものである。

※2: SAPの存在がほとんど確認できず測定不可。

生物化学的酸素要求量(BOD)は、種類により異なる結果が得られたことから、対象とする有機物を選択することで活用できる可能性があると評価した(図-2)。

一方、全有機体炭素(TOC)の測定値は一定の傾向が得られなかつたため、また、強熱減量の測定値は変化が小さいため、指標としての適用性は低いと評価した。

次に、汎用的な分析方法である赤外分光分析(IR分析)を用いてIRスペクトルから劣化状態を観察した(図-3)。赤外分光法は、物質に赤外光を照射し、透過または反射光を測定することで試料の構造解析や定量を行う分析手法である。本分析はKBr法(固体の測定)にて行っており、供試体の厚さによりスペクトル全体の透過度が異なるため、透過度のスペクトル形状について相対的な比較検討を行った。

図-3に示すIRスペクトルからは、有機物の分子構造中のO-H(水酸基)やC=O(カルボニル基)、C-Oの特徴的なスペクトルの出現を確認した。

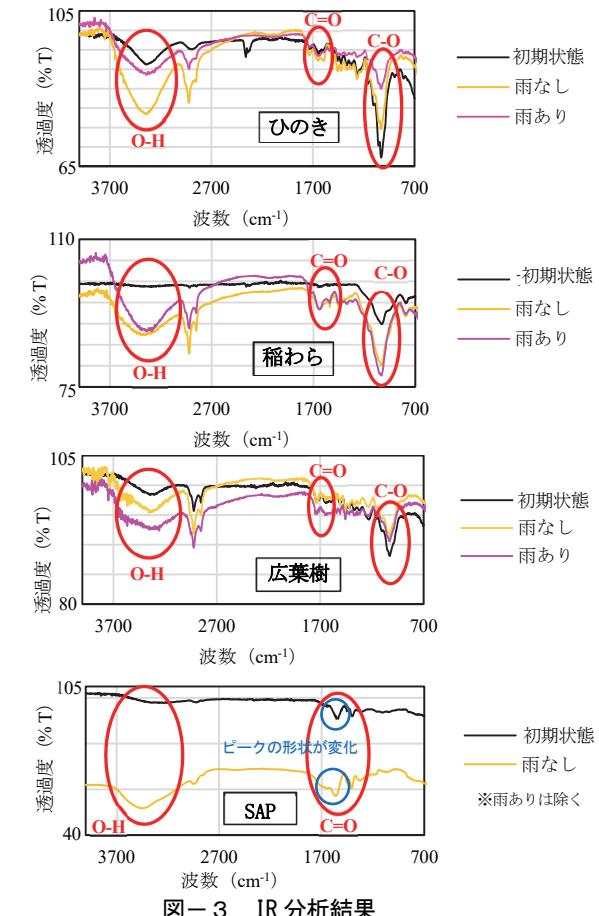
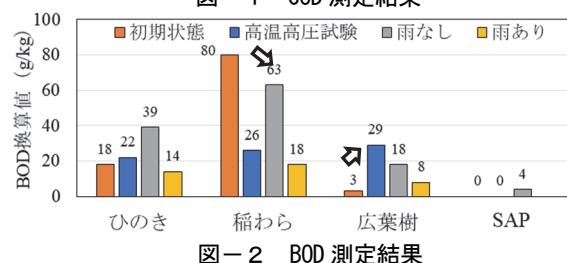
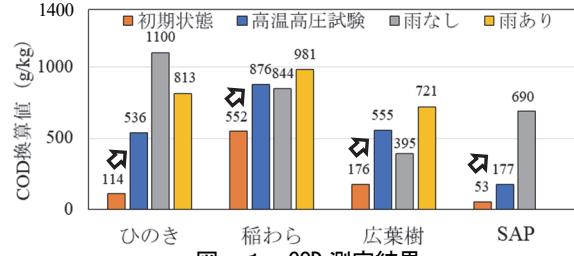
ひのきと広葉樹のIRスペクトルでは、O-HとC-Oの相対的なピークの高さに着目すると、初期状態に比べて暴露後のスペクトルはC-Oが減少し、O-Hが増加していることが読み取れる。このことは植物中のセルロースやリグニンに含まれるC-O-C(エーテル)が分解され、O-Hが生成される現象をとらえている可能性が高い。

SAPのIRスペクトルでは、初期状態に比べて「雨なし」試料は、C=Oのピークが減少し、また1500~1700cm⁻¹にかけてピークの形状の変化(図-3中の青丸部)が観察された。この変化はSAPの劣化による変化をとらえている可能性が高い。また、O-Hのピークの増加は吸湿によると推察している。「雨あり」試料は風雨等により流出した可能性が高いため検証は行わなかった。

これらの分析結果から、IR分析により植物やSAPの分解等の変化を評価できる可能性が示唆された。詳細の

検討は今後の課題と考える。

なお、CODの測定値では、2018年度に劣化の促進試験としての適用性を検討した高温高圧(200°C、1.0Mpa、160分)で処理した供試体も増加結果が得られた。このことから、高温高圧処理により有機物の劣化が短時間で再現できる可能性があると評価した(図-1)。



3. 有機物混入土壤の盛土試験

3.1 試験概要

土壤中の有機物の長期的な変化や土質特性、力学特性

への影響を検証することを目的に、SAPを含む改質材と稻わらを混合した土壤にて盛土を構築し、盛土試験を行った（写真-3）。盛土試験では、沈下量測定や原位置コーン貫入試験等の土質試験により検証を行った。

試験期間：2019年9月～2021年3月（約18ヶ月）

試験場所：茨城県つくば市

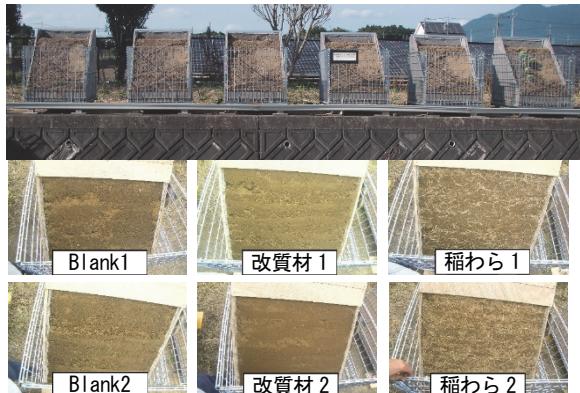


写真-3 盛土構築状況（下段は構築直後の盛土表面）

3.2 使用材料・盛土の諸元

盛土の構築手順を以下に示す。また、使用材料の諸元を表-4に、各盛土の粒度分布を図-4に、構築した盛土の諸元を表-5に示す。

【盛土の構築手順】

- 型枠：メッシュパレット、コンパネ、保護シートを用いて土壤充填容積417.8Lの型枠を6個用意
- 土壤：10cmスケルトンパケットを用いて異物を除去
- 混練：二軸ミキサーで約60kgごとに5分間混練し、均質化及び添加物（改質材、稻わら）と混合
- 土壤充填：3層に分け、締固め後、層厚が1、2層は30cm、3層目は20cmとなるように混練後土壤を投入
- 各層の締固め：型枠バイブレータで約2秒間接地面表面を満遍なく1往復
- 締め固め度：各層の仕上がり面を対象にプロクター貫入で貫入量を測定評価

表-4 使用材料の諸元

土壤		建設発生土 礫まじり砂質細粒土、または砂礫質細粒土 自然含水比43.3%
添加物	改質材	珪酸塩鉱物系中性土壤改質材 アクリル酸ナトリウム（SAP）系高分子結合剤を0～10%含む
	稻わら	約5cmに切断して使用

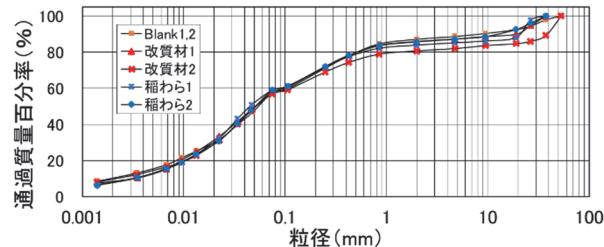


図-4 各盛土の粒度分布

表-5 構築した盛土の諸元

盛土名	Blank1	Blank2	改質材1	改質材2	稻わら1	稻わら2
添加物	なし	なし	改質材 [*] 3wt%	改質材 [*] 6wt%	稻わら 1wt%	稻わら 2wt%
高さ(m)	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
充填土壤質量(kg)	474.2	497.1	479.4	479.9	449.9	366.2
盛土体積(L)	417.8L	417.8L	417.8L	417.8L	417.8L	417.8L
湿潤密度(t/m ³)	1.13	1.19	1.15	1.15	1.08	0.88
含水比(%)	43.3	43.3	38.1	35.5	38.9	36.6
土質区分	礫まじり 砂質細粒土	礫まじり 砂質細粒土	砂礫質 細粒土	砂礫質 細粒土	砂礫質 細粒土	礫まじり 砂質細粒土

*改質材質量の数%の SAP を含む

vii. 沈下量測定：各型枠の盛土表面3箇所に沈下量測定用平板を設置し、法面保護板を外して沈下測定

3.3 試験結果

a. 盛土沈下量

盛土の沈下量測定結果を図-5に示す。

盛土の507日経過後の沈下量は、稻わら2（2wt%添加）の6.4mmが最も大きく、次いで、改質材2（6wt%添加、改質材質量の数%の SAP を含む）の4.3mmとなった。その他の盛土は、稻わら1（1wt%添加）2.0mm、Blank1（添加なし）1.8mm、Blank2（添加なし）1.0mm、改質材1（3wt%添加、改質材質量の数%の SAP を含む）0.7mmと小さな値を示し、土壤中の有機物の混入量が多いほど沈下量が大きくなる結果が得られた。このことから、土壤中の有機物の分解等による体積変化（縮減）が盛土の沈下に影響を与える可能性が高いと推察される。

なお、改質材2は盛土構築後230日あたりまで隆起し、その後、沈下が進行する測定結果が得られた。盛土の隆起は SAP の吸水膨潤の影響と推測される。一方、SAPは乾湿の繰り返しにより保水機能が低下することが報告されている⁵⁾。また、膨潤した SAP は塩化カルシウム等の多価陽イオンに反応すると、膨張が抑制され取り込んだ水分を放出する性質から、土壤中の陽イオンの吸着によりその機能が低下した可能性がある。これらの要因によって、土壤中の SAP の保水機能が徐々に低下し、膨潤した SAP の体積が縮減したため、一旦隆起した盛土がその後沈下したと推測される。

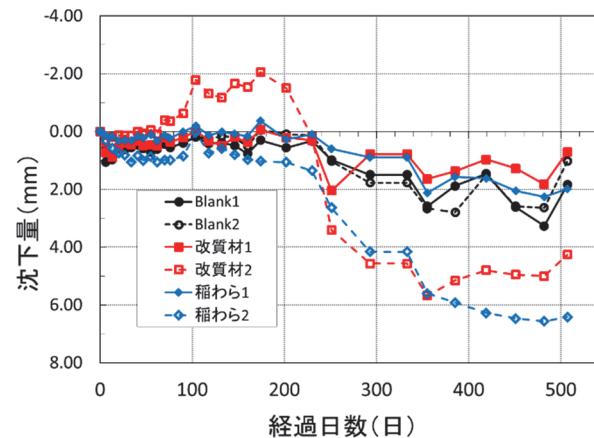


図-5 盛土の沈下量測定結果

b. 土質特性

盛土の構築時と18ヶ月経過後の解体時に実施した土質試験の結果概要を表-6に、試験結果を図-6に示す（一部の試験で中間期9ヶ月経過後の測定結果を含む）。

表-6 土質試験の結果概要

試料名・試験名	試験名	試験法	構築時の測定値に対する解体時の数値の比率
攪乱試料	強熱減量	JGS 0221	79~90%に低下
	最大乾燥密度	JGS 0711	101~109%に増加
	最適含水比	JGS 0711	90~100%に低下
	コーン指数	JGS 0716	113~312%に増加
	自然含水比	JGS 0711	71~98%に低下
	原位置試験	コーン貫入抵抗 ^{※1}	JGS 1431 55~91%に低下
不攪乱試料	一軸圧縮強度	JGS 0511	14~21%に低下

※1：試料表面から5~70cmまでの平均値

強熱減量は、すべてのケースで構築時に比べて解体時の測定値が減少する結果が得られた。のことより、時間の経過とともに土壤中の有機物が分解されて減少した可能性が高いと考える。しかしながら、有機物を添加しないケース（Blank1, 2）の強熱減量が13%と高い値（有機物を多く含む）だったため、今回の試験で添加した有機物（最大で稻わら2%）の変化の検証には至らなかった。

最大乾燥密度は、すべてのケースで若干の増加を、最適含水比は若干の減少を示した。土壤中の有機物の減少により、相対的に土粒子量が増加したため、このような結果が得られたと推察できる。

コーン指数は、すべてのケースで測定値が増加する結果が得られた。のことより、土壤中の有機物が減少するとコーン指数が改善される可能性があることが示唆される。しかしながら、その増加量は有機物を添加しないケース（Blank1, 2）の方が大きくなる結果であったことから、もともと土壤中に含まれていた有機物が試験で加えた有機物に比べて、より分解が進行したとも考察できるが、詳細については検証するには至らなかった。

自然含水比はすべてのケースで、構築時より解体時の測定値が減少する結果が得られた。また、SAPや稻わらを添加したケースの方が減少量が小さくなる傾向があった。このことから、土中のSAPのみならず稻わらが水分を保持しているとも考察できる。しかし、解体時にBlank1、改質材1及び改質材2の土壤を採取し、ふるいを用いてSAPの膨潤性を確認したところ、膨潤は確認できなかったことから、盛土の解体時にはSAPの保水機能は低下している可能性が高いことも考えられる。

一方、原位置でのコーン貫入抵抗試験では、構築後に一旦測定値が上昇し、解体時に大きく減少した。また、一軸圧縮強度試験（不攪乱試料）では、解体後に強度が低下する結果となった。これらの測定値は、時間の経過とともに土壤中の有機物が減少して土壤（土壤の資材としての品質）が向上していると推測される他の測定結果と相反するものであった。盛土の自然含水比が構築時は

最適含水比に近かったが解体時には減少していた可能性や、不攪乱試料のサンプル採取時に供試体が損傷したことが、その原因の一つとも考えられるが、詳細の検証には至らなかった。

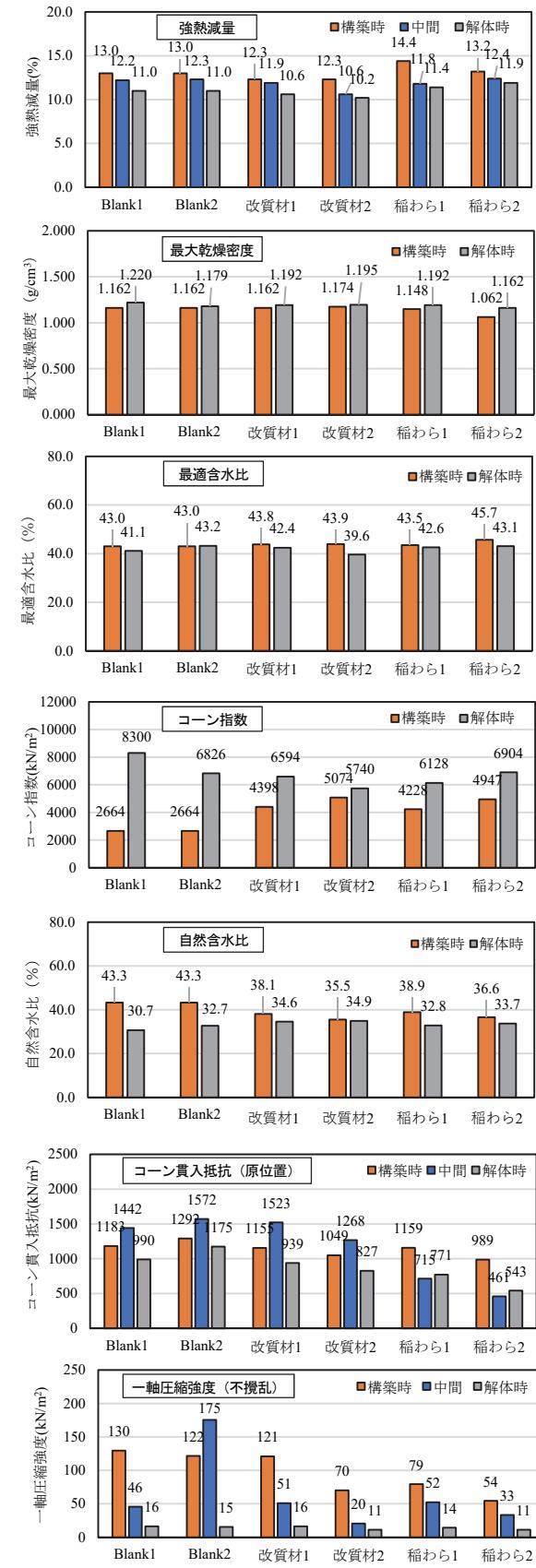


図-6 土質試験の結果

c. SAP の測定方法の検討

SAP は、水を取り込み体積が数百倍に膨張する吸水能力があるため、浚渫工事、大雨による土砂災害の軟弱な土砂の運び出し等での使用が想定されるが、SAP を含む改質材が過剰に添加された場合は、土質特性に影響を及ぼす懸念がある。しかし、土壤中の SAP の質量や体積の測定方法は現状では確立していない。そこで、SAP を溶解して溶液中の濃度測定を試みた。

まず、測定する前段階として、検液を作成するために 5 種類の有機溶媒での SAP の溶解試験を行った。溶媒にはジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、テトラヒドロフラン、アセトニトリル、アセトンを用いて、各溶媒 10ml に SAP0.10g を加え、3 分間超音波照射したところ、SAP はいずれの有機溶媒にも溶けなかつた。

次に pH を変化させた水での SAP の溶解試験を行った。水溶液は無色透明で SAP が溶けているようにみえるが、攪拌しても濃淡の差が生じる結果となった。**写真-4** に溶解試験の SAP の状態を示す。このような状態の検液ではあるが、紫外可視分光法 (UV-Vis) による測定を行った。測定方法を表-7 に、UV-Vis のスペクトルを図-7 に示す。図-7 に示すように、pH 4, 7, 10, 13 の検液で 210~230nm 付近に緩やかなピークが確認された。

また、pH12 の水酸化ナトリウム水溶液とアンモニア水溶液を溶媒とし、近赤外線分光法 (NIRS) による測定を行った。測定方法を表-7 に、NIRS のスペクトルを図-8 に示す。図-8 に示すように、いずれの水溶液でも 1400~1480nm 付近にピークが確認された。

これらの測定結果より、中性域を含めた水を溶媒とし、検液を UV-Vis や NIRS で測定することにより SAP の検出（存在の有無）が可能であるとの知見を得ることができた。しかしながら、定量化手法の確立には至っていない。SAP の定量評価方法は、今後の課題と考える。

4. まとめ

有機物混入土壤を盛土資材等として再生利用する場合を想定し、土質特性の長期的な変化について有機物の暴露試験と有機物混入土壤の盛土試験を実施した。その結果、以下のような知見を得ることができた。これらの知見により、有機物を含む土壤の利用に際しては、有機物の分解等を考慮することの重要性が示唆された。

- i. 有機物は時間の経過とともに変色や湿潤質量の減少等が生じ、その変化は雨等の影響を受けた方が大きい
- ii. 有機物の経時変化や劣化等の状態を示す指標として、COD 測定や IR 分析が活用できる可能性がある
- iii. 盛土土壤中の有機物量は時間の経過とともに減少し、盛土の沈下や土壤の力学特性に影響を与える

iv. 中性域を含めた水を溶媒とし、検液を UV-Vis や NIRS で測定することにより、SAP の検出が可能である。ただし、定量化手法の確立には至っていない

v. 土壤中の SAP は乾湿の繰り返し等の要因により、徐々に保水性が失われる可能性が高い
しかしながら、2018 年から行ってきた本研究では土壤中の有機物の変化の定量的評価には至っておらず、評価方法のさらなる検討が今後の課題と考える。

表-7 SAP の測定方法

測定法	UV-Vis 測定	NIRS 測定
SAP 濃度	500mg/L	10mg/L
pH 調整剤	HCl、NaOH	NaOH、NH ₄ OH
溶媒 pH	1, 4, 7, 10, 13	12
振とう	24 h, 150 rpm, 303 K	
測定機	紫外可視分光光度計 JASCO, V-630	近赤外吸収分析装置 Perkin Elmer Lambda 900Z

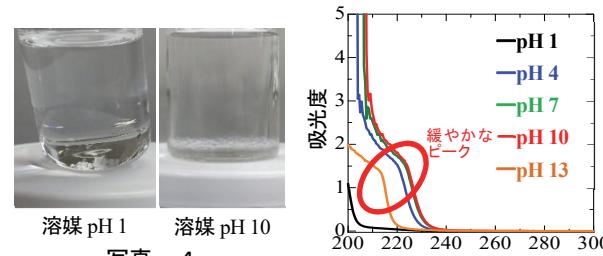


写真-4 溶解試験における SAP の状態

図-7 UV-Vis スペクトル

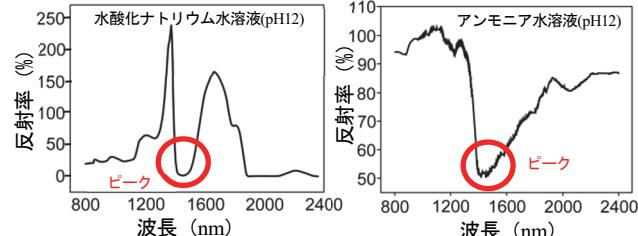


図-7 UV-Vis スペクトル

図-8 NIRS スペクトル

【謝辞】

本研究では、佐賀大学の大渡教授と川喜田准教授に御指導を、同大学理工学部理工学科化学部門で SAP の溶解試験や分析を実施して頂いた。ここに記して感謝の意を表す。

【参考文献】

- 1) 環境省除染情報サイト、<http://josen.env.go.jp/>、2019.3
- 2) 中間貯蔵除去土壤等の減容・再生利用技術開発戦略検討会（第10回）資料2「中間貯蔵除去土壤等の減容・再生利用技術開発戦略進捗状況について」、2019.3
- 3) 今井亮介、小西正郎、清水祐也、白石祐彰、「土中有機物の劣化促進試験及び分析方法の検討」、奥村組技術研究年報 No.45、pp.115-122、2019
- 4) 村井 隆他、「稻わらの土壤型別分解能及び分解促進剤の効果」、農業・食品産業技術総合研究機構東北農業試験研究協議会、東北農業研究第 17 号、pp.100-102、1975.10
- 5) 高橋正通他、「高吸水性高分子樹脂を添加した土壤の物理・化学・生物特性」、森林立地 62 卷 1 号、pp.51-59、2020