

産業廃棄物である石炭燃焼灰を用いた法面の酸性土壌問題への対策：金属溶出、土壌侵食、植物生育への影響

Application of Coal Ash to Improvement of Acid Soils on Slope in Consideration of Metal Dissolution, Soil Erosion, and Plant Growth

国立研究開発法人 産業技術総合研究所 地質調査総合センター
地圏資源環境研究部門 地下水研究グループ 松本 親樹

（研究計画ないし研究手法の概略）

1. 研究目的と背景

本研究の目的は、内陸地の開発に伴い構築される切土法面に現れる酸性土壌に対して、産業廃棄物である一方で酸緩衝作用が期待される石炭燃焼灰を適用することで、この酸性土壌の問題を解決する新たな対策法を確立することである。内陸地の開発において生ずる切土法面の酸性土壌の問題は、日本において多数報告されており、これは法面緑化の阻害や斜面の崩壊を引き起こす。本問題に対しては、法面表面をコンクリートや植栽により覆うことで対策が講じられているが、それらの材料を消費することや酸性環境で生育する植物種が限定される等の問題がある。本研究は、建築材料や土壌改良材等、これまで日本国内で有効利用されてきた産業廃棄物である「石炭燃焼灰」を、内陸地の開発に伴い生ずる「酸性土壌」という環境問題へ適用することで、産業廃棄物の有効利用と環境問題の解決を両立させるという点において意義がある。また、石炭灰の有する強アルカリの性質は土壌の酸性化を抑制することが期待されるが、同時に周辺への影響や重金属の溶出等が懸念される。本研究ではそのような予想される課題に対して、1. 重金属の溶出、2. 土壌侵食、3. 植物生育への影響 というように分野を横断する視点から石炭燃焼灰（石炭灰）の適用可否を検討した。

2. 方法

2.1. 重金属溶出の評価

「石炭灰からの重金属の溶出」という点に関しては、数種類の石炭灰（FA: Fly Ash（フライアッシュ）およびBA: Bottom Ash（ボトムアッシュ）を含む）を用いた単一バッチ試験（環告46号）および二段階バッチ試験を行うことで、短期的および長期的な溶出挙動の評価を行った⁽¹⁾。酸性土壌の建設発生土としての利用に関して、黄鉄鉱が酸性化した後、化学的に安定化した状態で利用することを想定した。そのため、硫酸を使用して模擬酸性土壌を作製⁽²⁾するとともに、模擬土壌および石炭灰が酸性、中性、アルカリ性の溶媒に触れた際の重金属の溶出挙動を把握するため、溶媒のpHをpH=4.0、7.0、10.0に調整し、前述の溶出試験を実施した。さらに、石炭灰を酸性土に覆土した状態でカラム通水試験を実施することにより、酸性土に石炭灰を適用したときの重金属溶出に関する検討を行った（発表論文(1, 3)参照）。

2.2. 土壌侵食の評価

石炭灰を酸性土壌に適用した場合における土壌侵食の挙動を把握するため、人工降雨試験装置を用いた土壌侵食試験を実施した（発表論文(2)参照）。2.1.と同様の方法で模擬酸性土壌を作製し⁽²⁾、

通常の土壌（土壌侵食が報告された場所の土性を模擬して作製）に種々の石炭灰を混合して適用した場合と酸性土壌に適用した場合において、土壌侵食試験を実施した。通常の土壌および酸性土壌に、0%、20%、40%、60%、80%、100%の混合割合で石炭灰を混合した。それらの土壌試料を種々の分析と土壌侵食試験に使用した。

人工降雨装置を用いた土壌侵食試験の概要を図-1に示す⁽³⁾。縦24.0cm、横15.5cm、高さ2.0cmのプラスチック製の容器に作製した土壌試料を充填し（充填率を調整して試験条件を統一した）、80 mm/hの降雨強度で人工降雨を発生させた（東京の最大時間雨量はおよそ80-90 mm/h⁽⁴⁾）。降雨により侵食された土壌を含む表流水を採取した後、それらを乾燥させ、残留した土壌の重量を測定し、土壌流出量とした。本試験で得られた値は下記の式を用いて年間土壌流出量として記録した。

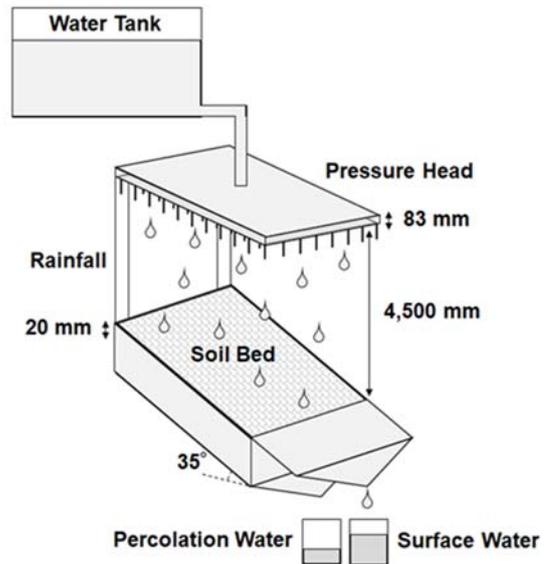


図-1 人工降雨装置を用いた土壌侵食試験の概要。

$$H = ((R \times E)) / (A \times G \times I),$$

H: 年間土壌流出量 (cm/year)、R: 年間降水量 (mm/year)、E: 土壌流出量 (g/hour)、A: 土壌断面積 (cm²)、G: 土壌の乾燥密度 (g/cm³)、I: 1時間当たり降水量 (mm/hour)

加えて、人工降雨装置の再現性を確認するために、ベントレーによって提唱された小麦粉法⁽⁵⁾を利用した雨滴径の測定を行うとともに、それらを日本の雨滴粒形分布⁽⁶⁾および雨滴径と落下速度の関係⁽⁷⁾と比較した。

2.3. 植物生育への影響評価

ここでは、黄鉄鉱を土壌に混合することで模擬酸性土壌を作製し、種々の混合割合で石炭灰を混合した酸性土壌を用いて、植物生育試験を実施した。生育試験は、温度、湿度が管理された実験室において実施した(発表論文(4)参照)。生育試験には、酸性に比較的強い耐性を示すことで知られる *Acacia mangium* を使用した。試験中には、定期的な水の供給と施肥を実施するとともに、植物の茎径、高さ、乾燥重量を測定した⁽⁸⁾。各生育条件において3検体を用いた生育試験を行い、それぞれの結果の平均値を算出した。また、生育試験終了後には、使用した植物を酸溶解分析⁽⁹⁾に供することで、植物体中の重金属の蓄積状況を調査した。

(実験調査によって得られた新しい知見)

3. 結果と考察

3.1. 重金属溶出傾向

表-1に各pH条件下における二段階バッチ試験の結果を示す。液固比(L/S)=10で実施した単一バッチ試験の結果より、pH=7における結果と比較して、pH=4および10の条件下でAlの溶出量が増大した。また、二段階バッチ試験の結果(表1)より、Alは一段階目よりも二段階目において溶出量が多くなる傾向を示しており、これはAlが石炭灰より長期的に溶出することを示す。このように、石炭灰に多量に含まれるAlの溶出やそれらの長期的な溶出が周辺環境へ与える影響、さらには土壌侵食や植物生育へ与える影響を考慮する必要があるといえる。

表1 二段階バッチ試験における主要な溶出元素 (FA: フライアッシュ、BA: ボトムアッシュ) .

(L/S): 液固比	Sample	pH	Na (mg/L)	Al (mg/L)	Si (mg/L)	K (mg/L)	Cr (mg/L)	Fe (mg/L)	As (mg/L)
2段階バッチ(L/S=2) (1段階目)	FA1	4	2.02	0.24	5.08	8.61	0.34	1.53	0.009
2段階バッチ(L/S=8) (2段階目)	FA1	4	13.39	9.98	158.89	58.45	3.14	7.97	0.011
2段階バッチ(L/S=2) (1段階目)	FA1	7	3.95	0.22	4.42	16.20	0.39	4.60	0.037
2段階バッチ(L/S=8) (2段階目)	FA1	7	3.15	0.24	4.93	9.88	0.11	0.84	0.029
2段階バッチ(L/S=2) (1段階目)	FA1	10	2.53	0.16	6.07	9.85	0.30	2.04	0.008
2段階バッチ(L/S=8) (2段階目)	FA1	10	1.97	0.79	15.52	16.42	0.14	0.53	0.009
2段階バッチ(L/S=2) (1段階目)	FA2	4	3.45	0.42	7.57	15.89	0.82	1.27	0.012
2段階バッチ(L/S=8) (2段階目)	FA2	4	1.39	0.41	7.57	13.93	0.20	0.49	0.015
2段階バッチ(L/S=2) (1段階目)	FA2	7	3.31	0.20	5.66	13.10	0.65	3.98	0.021
2段階バッチ(L/S=8) (2段階目)	FA2	7	8.58	2.70	12.19	2.55	0.32	2.30	0.250
2段階バッチ(L/S=2) (1段階目)	FA2	10	3.99	0.26	6.99	18.11	0.75	1.36	0.013
2段階バッチ(L/S=8) (2段階目)	FA2	10	1.44	0.32	6.99	11.70	0.17	0.34	0.013
2段階バッチ(L/S=2) (1段階目)	BA	4	0.56	0.02	4.62	2.92	0.00	0.17	0.002
2段階バッチ(L/S=8) (2段階目)	BA	4	0.41	0.02	2.18	3.34	0.00	0.01	0.002
2段階バッチ(L/S=2) (1段階目)	BA	7	0.86	0.03	6.21	6.33	0.00	0.37	0.009
2段階バッチ(L/S=8) (2段階目)	BA	7	0.88	0.02	2.99	3.47	0.00	0.06	0.012
2段階バッチ(L/S=2) (1段階目)	BA	10	0.78	0.02	4.09	2.35	0.00	0.15	0.002
2段階バッチ(L/S=8) (2段階目)	BA	10	0.91	0.02	1.83	3.11	0.00	-	0.001

カラム通水試験の結果において、石炭灰単体からのFeおよびAlの継続的な溶出が確認された。一方で、酸性土壌に石炭灰を適用したとき、石炭灰の中和能力が酸性土壌の酸生成能力を上回る場合には、アルカリ性のpHを示す溶出液と上述の試験におけるpH=10の条件下で得られた重金属の溶出傾向が確認された(発表論文(3)参照)。一方で、逆の場合には、酸性を示すpHの溶出液と上述の試験におけるpH=4の条件下で得られた傾向が確認された。さらに、石炭灰より溶出するCaやMg等のイオンが、石炭灰と酸性土壌の接触部において沈殿物を生成し、透水性が低下した。また、カラム通水試験と酸性土壌の風化試験の結果より、酸性土壌が風化して細粒化するような試料では、石炭灰より溶出する高pHの溶液に曝された酸性土壌の風化が促進され、細粒化するとともに、その部分で細粒分による土粒子間の閉塞が生じ、カラムへの通水が困難となった。以上の結果より、周辺環境への影響という点に関しては、石炭灰に多量に含まれるFeやAlの溶出やそれらの長期的な溶出を考慮すべきである。さらに、酸性土壌に石炭灰を適用する際には、適用後の土壌の透水性に影響を与え得るCaやMg等の溶出イオンにも着目する必要がある。

3.2. 石炭灰の特性が土壤侵食に与える影響

図2は中性土壤に異なる混合割合で石炭灰を適用した場合の年間土壤流出量を示す。同図より、石炭灰の混合割合の増大とともに土壤流出量も増大していることがわかる。これは、本試験で使用した石炭灰の大部分がシルトおよび粘土で構成されており、石炭灰の混合量を増加するとともに混合土壤のシルトおよび粘土分が増加することに起因すると考えられる。土壤中のシルトや粘土分が増加すると、土壤の透水性が低下するため、斜面に降った降雨は土壤中に浸透し難く、そのほとんどが表流水となって斜面表面を流れていく。雨滴が土壤に接触したときには、その衝撃により土粒子が地面から剥離されるとともに、斜面表面に卓越した表流水により土粒子が流されていく。このことは、図2において石炭灰の混合割合の増加とともに表流水量が增加していることからわかる。つまり、シルトおよび粘土分を多く含む石炭灰を多量に土壤に混合すると、土壤侵食が促進されるといえる。一方で、一般的に砂分を多く含むボトムアッシュのような石炭灰は、土壤の透水性を改善するとともに土壤侵食を抑制することが期待される。このように、土壤侵食という観点からは石炭灰の土性に着目した適用を検討することが重要であろう。

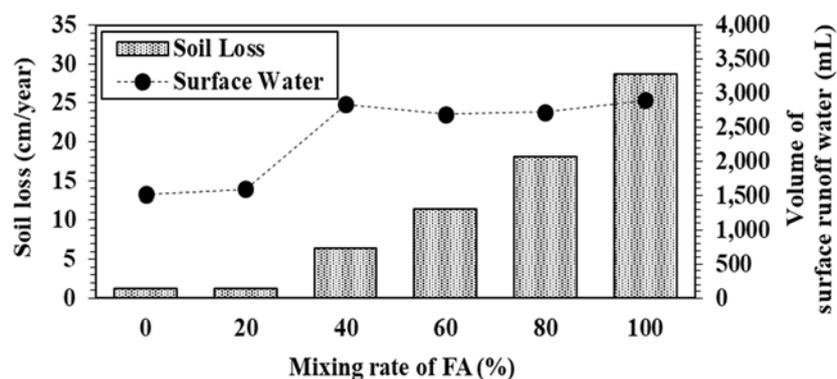


図2 石炭灰を異なる混合割合で土壤に適用した場合の年間土壤流出量。

酸性土壤に石炭灰を適用した試料を用いて、同様の土壤侵食試験を行った結果、石炭灰の混合とともに土壤流出量が低下した。これは、石炭灰の中和作用により酸性土壤の土壤pHが中性付近まで増加したことに起因すると考えられる。土壤pHが酸性の条件下では、土壤中にAlが含まれる場合にはAlが溶出し易くなり、溶出したAlによる土粒子の凝集が起こる。これにより、土壤の液性限界は低下し、降雨による土壤侵食が発生し易くなる場合がある⁽³⁾。今回の試験では、酸性土壤に石炭灰を適用することで土壤pHが中性付近を示したことから、Alによる土粒子の凝集が起こらなかったため、土壤侵食が低減したと考えられる。また、石炭灰を適用することで対象土壤の液性限界が増加したことも、土壤侵食が低減した原因であると推測される。液性限界が増加すると、土壤は少量の水分では液性を示し難く、土粒子の雨滴による剥離や表流水による運搬が容易に起り難くなると考えられる。石炭灰混合後に酸性土壤の液性限界が増加した理由は、前述したように凝集作用を示すAlの溶出が抑制されたことや水酸化鉄の沈殿による土粒子間の粘着作用の増加⁽¹⁰⁾が可能性として考えられる。3.1. で得られた石炭灰からの重金属の溶出傾向とあわせて考えると、石炭灰からのAlやFeの溶出は、このようなメカニズムを通じて、土壤侵食に影響を与え得るため、石炭灰を酸性土壤に適用する際に留意すべき点であるといえる。また、石炭灰を適用した後の土壤pHの状態は、それらの金属の溶出傾向を決定するため、注意が必要である。酸性土壤に石炭灰を適用した土壤は多くの場合、盛り土や法面に適用され、最終的にはその他の土壤や植物で被覆されるため、直接降雨に

曝されることは少ないと考えられる。しかし、被覆層の剥離や覆土までの間に降雨に曝される場合には、土壌侵食が発生し得るため、このような要因を考慮に入れた石炭灰の利用を検討することが重要である。

3.3. 石炭灰の植物生育への影響

種々の混合割合で石炭灰(FA)を混合した酸性土壌(黄鉄鉱10%混合)を用いた植物生育試験の結果より、石炭灰の混合量の増加とともに、植物の成長率が低下した(図3参照)。石炭灰の分析や植物溶解分析の結果、これは石炭灰より溶出したAlや土壌pHがアルカリ側に変化したことが原因であると示唆された。Alによる植物の栄養吸収阻害や枯死に関しては、既往の研究でも報告されている⁽¹¹⁾。しかしながら、黄鉄鉱を40%混合して作製した酸性土壌に石炭灰(FA)を適用した場合には、大半の植物が枯死した。このことは、酸性土壌の酸生成能力(黄鉄鉱含有率)によっては、石炭灰の混合の有無にかかわらず、強酸性土壌の影響で植物が枯死することを示している。さらに、表1の結果より、石炭灰の種類によって金属溶出量やその溶出挙動が異なるが、前述したAlや石炭灰混合後の土壌pH等の植物生育に影響を与える要因を考慮することで、酸性土壌に適用できる石炭灰を判断することも可能であろう。また、石炭灰を適用した酸性土壌の上部に被覆された植物が枯死することは、酸性土壌が降雨に曝され、3.2.で示した土壌侵食が促進されることを意味する。そのため、重金属の溶出および土壌侵食とあわせて、石炭灰の植物生育への影響を検討することが重要である。



図3 異なる混合割合で石炭灰を酸性土壌(黄鉄鉱10%混合)に適用した際の植物生育の様子: 右に向けて石炭灰の混合量増加。

4. まとめ

以上の結果より、予想される課題(金属溶出、土壌侵食、植物生育阻害)に石炭灰が与える影響、そのメカニズム、および着目すべきパラメータを一部整理することができた。特に、石炭灰から溶出するAl、Fe、Ca、Mg等の溶出量とその溶出挙動、石炭灰の土性(砂分、シルト分、粘土分の割合)、酸性土壌に対する石炭灰の中和能力は、酸性土壌に石炭灰を適用する際に着目すべきパラメータであると考えられる。また、酸性土壌への石炭灰の適用後において、それらの観点より、対象土壌の物理・化学特性を再評価するとともに、重金属溶出、土壌侵食、および植物生育の評価を行うことが重要であるといえる。

5. 参考文献

(1) 六車満由美ほか: 再生材・廃棄物における単一バッチ溶出試験(13号及び46号)と2段バッチ溶出試験の比較. 香川県環境保健研究センター所報, 第3号, pp. 175-180, 2004.

- (2) 亀井健史ほか：粘性土の強度・変形特性に及ぼす酸性化の影響. *土木学会論文集*, 517, pp.189-196, 1995.
- (3) S. Matsumoto et al.: Effects of pH-Induced Changes in Soil Physical Characteristics on the Development of Soil Water Erosion. *Geosciences*, 8(4), pp.134, 2018.
- (4) 横山仁：東京都におけるゲリラ豪雨の実態とその適応策について. *地球環境*, 21(2), pp. 167-172, 2016.
- (5) J. Mazon and M. Vinas: A Low-cost Experiment for Determining Raindrop Size Distribution. *Weather*, 68(2), pp.49-52, 2013.
- (6) 大内浩：雨滴粒径の分布について(I). *気象集誌 第2*, 35(3), pp. 196-200, 1957
- (7) 藤原輝男, 金山和生：雨滴の終末速度による地面浸食に関する研究(3). 山口大学工学部研究報告, 28(1), pp. 9-18, 1977.
- (8) S. Matsumoto et al.: Securing Topsoil for Rehabilitation Using Fly Ash in Open-cast Coal Mines: Effects of Fly Ash on Plant Growth. *Proc. of 22th Conference on Environment and Mineral Processing*, pp. 177-183, 2018.
- (9) Q.F. Quadir et al.: Itonic Response of *Lotus japonicus* to Different Root-zone Temperatures. *Soil Science and Plant Nutrition*, 57(2), pp. 221-232, 2011.
- (10) 山根一郎：土壌の組成とはたらき. *Urban Kubota No. 13*, 特集「土壌」, pp. 42-47, 1976.
- (11) S. Matsumoto et al., Effects of Acid Soils on Plant Growth and Successful Revegetation in the Case of Mine Site. *Soil pH for Nutrient Availability and Crop Performance*, S. Oshunsanya, *Intech Open*, 2017. DOI: 10.5772/intechopen.70928.

(発表論文)

- 1) S. Matsumoto, K. Murakami, A. Hamanaka, T. Sasaoka, H. Shimada: Formation of a Low-permeability Cover Layer Using Fly Ash for Prevention of Acid Water Issues in Mines. *Proc. of 54th CCOP Annual Session, Thematic Session "Geoscience for Future Earth: Beyond History Toward Mystery"*, Busan, Korea, 30 October 2018.
- 2) S. Matsumoto, K. Murakami, H. Shimada, T. Sasaoka, A. Hamanaka: Application of Fly Ash to Mine Soils for Prevention of Soil Water Erosion. *Extended Abstract of GEOSEA2018*, pp. 234, Hanoi, Vietnam, 13-21 October 2018.
- 3) 松本親樹、村上海人、濱中晃弘、笹岡孝司、島田英樹：露天掘り石炭鉱山における酸性鉱山廃水対策へのフライアッシュの適用とその抑制機構. *資源・素材学会 平成30年度秋季大会*, 福岡, 2018. 9.
- 4) A. Hamanaka, H. Yamasaki, T. Sasaoka, H. Shimada, S. Matsumoto: Application of Fly Ash to Acidic Soil to Improve Plant Growth in Disturbed Land of Open-cut mining. *Proc. of 18th Int. Sympo. on Environmental issues and Waste management in Energy and Mineral production (SWEMP)*, Santiago, Chili, 20-22 November 2018.

他、学術論文2本を執筆中