

|              |   |
|--------------|---|
| Title        | Scaling effects on heavy metals leaching from excavated rocks and the remediation efficiency of reactive layers composed of MgO-amended soil  |
| Author(s)    | Du, Xun   |
| Citation     | 大阪大学, 2024, 博士論文  |
| Version Type |   |
| URL          | <a href="https://hdl.handle.net/11094/96089">https://hdl.handle.net/11094/96089</a>   |
| rights       |   |
| Note         | やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。 |

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

## Abstract of Thesis

|  |   |
|--|---|
| Name (DU XUN)  |   |
| Title  | Scaling effects on heavy metals leaching from excavated rocks and the remediation efficiency of reactive layers composed of MgO-amended soil (スケール効果を考慮した掘削岩石からの自然由来重金属等の溶出挙動および酸化マグネシウム改良土反応層による対策効果の評価) |
| <p><b>Abstract of Thesis</b></p> <p>Environmental pollution stemming from excavated rock naturally containing heavy metals presents two noteworthy challenges. The first challenge pertains to the precise assessment of heavy metal leaching behavior from these rocks. Conduction of column leaching experiments to evaluate heavy metal leaching from these rocks encounters a lack of well-established protocols primarily due to the ambiguity surrounding scaling effects resulting from alterations in particle sizes and the corresponding column dimensions. The second challenge relates to the efficient recycling of the abundant resources of these rocks. One of the most promising methods for recycling contaminated rocks is the reactive layer system. However, determining the optimal composition of reactive materials remains an ongoing concern. To tackle these two pivotal issues, this study conducted quantitative research on the scaling effect on the leaching behavior of arsenic (As), copper (Cu), and lead (Pb), and evaluated the performance of MgO (magnesium oxide)-amended soil as a reactive layer material for As.</p> <p>In Chapter 1, the thesis's objectives and content were clearly outlined.</p> <p>In Chapter 2, the origins of naturally contaminated rocks and the release mechanisms and migration behaviors of As within these naturally contaminated rocks were reviewed. The countermeasures employed to mitigate the pollution of contaminated rocks and their technical flaws were summarized.</p> <p>In Chapter 3, the particle size effects on the leaching of As, Cu, and Pb were evaluated by conducting column percolation experiments with two distinct particle size ranges of 2-9.5 mm and 2-26.5 mm. The pH value exhibited a proportional relationship with the specific surface area (SSA) of the rocks, in terms of H<sup>+</sup> concentrations. The concentration and leachability of As were virtually proportional to the SSA of the rocks. In the case of Pb, both the concentration and leachability ratios between the two columns were slightly higher than the SSA ratio. Additionally, the Pb concentration displayed a strong correlation with pH regardless of the particle size. However, for Cu, the concentration and leachability ratios between the two columns were lower than the SSA ratio.</p> <p>In Chapter 4, rock layer thickness effects on the leaching of As, Cu, and Pb were investigated by conducting column experiments with two distinct rock layer thicknesses of 280 mm and 560 mm. The pH value was proportional to the rock layer thickness. The concentration of As remained relatively unaffected by the rock layer thickness, while the leachability of As was noticeably diminished in the column with a 560 mm rock layer. The Pb concentration and leachability ratios between the two columns were slightly higher than 2. The rock layer thickness did not affect either the concentration or leachability of Cu on the scale of the liquid-to-solid ratio.</p> <p>In Chapter 5, the performances of the decomposed granite soil amended by two different MgO materials were evaluated by conducting a series of batch sorption experiments and column sorption experiments. Batch sorption experiments revealed that the mixture of soil and MgO material could benefit the sorption capacity of individual soil and MgO materials and the improvement in soil sorption capacity by hard-burn MgO (HB MgO) was higher than that by light-burn MgO (LB MgO). However, the long-term sorption performance did not show significant differences between these two types of MgO-amended soils in column sorption experiments. An additional 5% of LB MgO or HB MgO could effectively reduce the As concentration. The similar performance of two MgO-amended soils could be attributed to their comparable pH buffering capacity for the acidic influent.</p> <p>In Chapter 6, by assuming a simplified site condition for a reactive layer system, the leachate quality was estimated. Subsequently, the minimum thicknesses of the reactive layer were calculated using the results of both batch and column sorption experiments. The discrepancy between the thicknesses derived from batch experiments and that from column experiments underscored the limitations in batch sorption experiments and highlighted the significance of conducting column experiments, particularly when evaluating the sorption performance of MgO-amended soil against acidic leachate.</p> <p>In Chapter 7, the main conclusions and recommendations for future work were summarized.</p> |   |

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

| 氏 名 ( DU XUN ) |     |     |       |
|----------------|-----|-----|-------|
|                | (職) |     | 氏 名   |
| 論文審査担当者        | 主 査 | 教授  | 乾 徹   |
|                | 副 査 | 教授  | 鎌田 敏郎 |
|                | 副 査 | 准教授 | 廣畑 幹人 |

## 論文審査の結果の要旨

長大トンネル等の大規模掘削工事において、掘削した岩石・土壌からその堆積過程や鉱物組成に起因するヒ素 (As) や鉛 (Pb)、ふっ素等 (以下、自然由来重金属等) が環境基準を超過する濃度で溶出する事例が数多く報告されており、対策に多大な費用、労力を要している。掘削物量は膨大であるため、合理的な対策工法の確立と信頼性の向上が求められるが、対策工設計のためのパラメータを取得する試験方法や設計手法が確立されていないのが現状である。例えば、掘削岩石からの重金属等の溶出濃度を室内試験で評価する場合、一般的にカラム浸透試験が適用されるが、岩石試料の粒子寸法やカラム寸法が溶出濃度に及ぼす影響 (以下、スケール効果) については評価事例が限られている。また、代表的な対策工法である吸着層工法は、盛土層の下部に重金属等に対して吸着、沈殿形成などの作用が期待できる鉱物系資材を現地発生土に混合した材料を反応層として敷設し、浸透水から重金属等を除去することにより周辺環境の汚染を防止する。しかし、混合する資材の組成や粒径、長期的に生じる水和反応が対策効果・持続性に及ぼす影響については未解明な部分が多い。本研究では、As、Pb、銅 (Cu) 等を含有する熱水変質岩を対象に、溶出挙動に及ぼすスケール効果を明らかにしている。また、吸着層材料として適用される MgO (酸化マグネシウム) 系資材を添加した土壌を対象に、酸性水と As の地下浸透抑制効果を詳細に検討するとともに、一連の実験で得られた知見を反映した実務的な設計手法を検討している。

第 1 章では、研究の背景と目的、論文の構成を示している。

第 2 章では、文献調査に基づき、岩石中の酸性水や自然由来重金属等の起源、溶出機構と地盤中の移行挙動について概説している。さらには、代表的な対策技術と技術的な課題を総括している。

第 3 章では、比表面積と最大粒径が異なる水準の岩石試料を対象に長期カラム浸透試験を行い、As、Cu、Pb の溶出性に及ぼす粒度効果を評価した結果を報告している。As の溶出濃度・速度は試料の比表面積にはほぼ比例する一方、Pb 溶出濃度については比表面積との相関はほとんど確認されず、比表面積比との相関が高い水素イオン濃度が Pb 溶出濃度に対して支配的であること等を明らかにしている。

第 4 章では、As、Cu、Pb の溶出に及ぼす試料層厚、すなわち浸透距離の影響を 280 mm 層厚と 560 mm 層厚の 2 水準の試料に対する長期のカラム浸透試験結果に基づいて評価している。浸出水中の水素イオン濃度増加量は層厚に比例する一方、As 濃度は比較的早期に一定濃度に到達し、層厚による影響は非常に小さいとしている。一方、Pb の溶出濃度は浸透距離に比例して上昇する水素イオン濃度に連動して上昇することを示している。さらには、試験終了後の供試体中の深度方向の形態毎の As、Pb 分布の分析結果に基づいて、岩石層中の移行性、および層厚が溶出濃度に及ぼす機構を推定している。

第 5 章では、粒度、化学組成や水和速度が異なる 2 種類の MgO 系資材をそれぞれまさ土に添加した吸着層材料

を対象に、硫酸酸性水中に溶存する As 吸着特性を一連のバッチ吸着試験、上向流カラム通水試験により評価している。バッチ吸着試験では粉体状で水和反応速度が大きい重焼 MgO 系資材の方が、粒状の軽焼 MgO 系資材と比較して吸着性能の改善効果が大きくなる一方、実利用条件を模擬したカラム通水試験においては、MgO 系資材の酸緩衝能力が As 吸着性能の支配的要因となり、破過が生じる累積通水量に有意な差異はみられない。また、破過後の長期的な As 濃度も反応性が低い軽焼 MgO 系資材の方が抑制効果が高くなる可能性を示唆している。吸着した As の脱着試験も同時に実施し、吸着総量の 90%程度は安定して吸着層に保持されることを確認している。

第 6 章では、第 3 章から第 5 章で得られた実験的知見に基づいて、吸着層工法を適用した掘削岩石による盛土における必要な吸着層厚を簡便に評価する方法を示すとともに、従来のバッチ吸着試験結果を用いた評価結果と比較することにより、本研究で実施した試験に基づく設計パラメータ取得の意義を明らかにしている。

第 7 章では、主な結論と今後の課題、提言をまとめている。

以上のように、本論文は自然由来重金属や酸性水に起因する環境影響が懸念される掘削岩石を対象に、溶出挙動に及ぼす層厚や粒度といったスケール効果、および代表的な対策工法である吸着層工法を対象に、使用する鉱物系資材の水和反応性や粒度といった物性が酸性水中に溶存する As の吸着特性やその持続性を一連の室内試験結果に基づいて明らかにするとともに、これらの試験結果を活用して既存の設計手法と比較して合理性の高い設計手法を提案している。様々な特性の掘削岩石に対するデータの蓄積が今後にも必要なものの、大規模掘削工事において課題となる酸性水および自然由来重金属等を対象とした対策の信頼性向上・低コスト化に貢献するところが大きい。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。