浄水汚泥に含まれる有機物の分解とせん断特性の関係に関する基礎的研究

渡邊 保貴¹・小峯 秀雄²・村上 哲³・安原 一哉⁴・豊田 和弘⁵

¹正会員 一般財団法人電力中央研究所 地球工学研究所 バックエンド研究センター
(〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子1646)
E-mail: yasutaka@criepi.denken.or.jp

²正会員 茨城大学教授 工学部都市システム工学科 (〒316-8511 茨城県日立市中成沢町4-12-1)
E-mail: hkomine@mx.ibaraki.ac.jp

³正会員 茨城大学准教授 工学部都市システム工学科 (〒316-8511 茨城県日立市中成沢町4-12-1)
E-mail: murakami@mx.ibaraki.ac.jp

⁴フェロー会員 茨城大学名誉教授 地球変動適応科学研究機関(ICAS) 産官学連携研究員
(〒310-8512 茨城県水戸市文京2-1-1)
E-mail: yasuhara@mx.ibaraki.ac.jp

⁵非会員 茨城県日立市企業局 上下水道局 (〒316-0025 茨城県日立市森山町4-4-1)

水道事業から排出される浄水汚泥には多くの有機物が含まれている。浄水汚泥は一般的な土とは異なる生成過程を経て排出されるため、有機物の組成や分解特性に関して未知の部分が多く、地盤材料として有効利用する上で、工学的性質に及ぼす有機物の分解に関する経験的な解釈が通用するとは限らない。本研究では、浄水汚泥に含まれる有機物の組成および好気環境下における分解特性を明らかにすると共に、有機物分解後の浄水汚泥の三軸せん断特性を調査した。浄水汚泥にはフミン酸が多く含まれており、フミン酸の約44%は約6ヵ月間で好気分解されることを明らかにした。また、浄水汚泥の有機物が約1.38%分解されることにより、内部摩擦角は $39.7^{\circ} \sim 40.4^{\circ}$ の範囲から 37.9° 付近まで減少することを示した。

Key Words : waste, drinking water sludge, organic matter, humic acid, decomposition, shear strength

1. 背景と目的

水道事業の浄化処理過程では汚泥(以後、浄水汚泥と記述する)が排出される。写真-1に天日乾燥過程における浄水汚泥の外観を示す。現在、浄水汚泥は産業廃棄物に分類されており、有効利用により最終処分量の削減に努めることが肝要である。我が国における浄水汚泥の有効利用率は増加傾向にあり、平成20年度の実績は63%であった¹⁾。我が国では、園芸用土やグラウンド用土として浄水汚泥を利用することが多い²⁾。建設資材としての利用として、道路の路床材料、軽量盛土、最終処分場の即日覆土等の地盤材料としての利用に関する研究も進められている^{3,4,5,6)}。以上の有効利用が普及することに伴い、浄水汚泥を利用した後の視点、具体的には、材料の劣化について明らかにすることが浄水汚泥の安全かつ適正な利用を推進する上では重要になると考えられる。

一般的に土は岩石の風化作用など非常に長い時間を経

写真-1 天日乾燥過程における浄水汚泥の外観
a) 含水比 500~1500% b) 含水比約 30%

て生成されるものであり、土木事業の対象となる期間では安定した物質であると考えられてきた。その一方で、浄水汚泥は河川や湖沼の水中に存在していた微粒子や有機物を凝集剤を用いて凝集・沈殿させて生成させた物質であり、一般的な土とは生成過程が著しく異なる。そのため、浄水汚泥の中・長期的な安定性を利用する前に確認しておく必要性は高い。渡邊ら⁷⁾は、凝集剤ポリ塩化アルミニウムの架橋作用によりフロックあるいは団粒が

形成されていることに着目し、浄水汚泥に含まれる凝集剤成分Alの溶出を促進させることにより化学的変質を模擬し、化学的変質後の供試体を用いて定ひずみ速度載荷による圧密試験を行った。その結果、Al溶出の圧縮性への影響はきわめて小さいが、透水性は低下することを明らかにしている。

浄水汚泥の化学的な特徴として、有機物を多く含む点が挙げられる。既往の研究^{9),7)}から、浄水汚泥の強熱減量は茨城県日立市において9.0~28.9%の範囲で変動することが分かっている。全国的には、活性炭が含まれた浄水汚泥で強熱減量は50.5%と非常に高い値になる⁸⁾。浄水汚泥の有機物は、凝集・沈殿過程を経て粘土粒子と複合的に集積していると考えられるため、一般的な土とは有機物の組成や分解特性は異なるものと予想される。これまで、地盤工学の分野では、有機物は土のコンシステンシー、せん断、圧密特性等に影響を及ぼすと言われてきた⁹⁾。その一方で、腐植物質を主とする有機物の分解には非常に長い期間を要するため、有機物の分解と工学的性質の関係性を言及することの優先度は必ずしも高くはなかった。しかし、前述した通り、浄水汚泥のような廃棄物を地盤材料として利用する場合には、有機物の組成や分解特性が未知であるため、中・長期的な安全性を評価する上でも、有機物の分解特性を明らかにすることは重要である。そこで、本研究では、浄水汚泥に含まれる有機物の組成を調査すると共に、好気環境下における分解特性を明らかにすることを目的とする。そして、浄水汚泥のせん断特性に及ぼす有機物分解の影響を調査することにより、浄水汚泥の地盤工学的利用において有機物分解を検討することの重要性について考察する。

2. 浄水汚泥に含まれる有機物

本章では、浄水汚泥の基本的性質として物理的・化学的性質、鉱物組成、化学組成について記述する。浄水汚泥に含まれる有機物については、強熱減量試験を行うと共に、酸・アルカリ抽出によりフミン酸、フルボ酸、ヒューミンを含む土粒子の構成割合を明らかにした。

(1) 浄水汚泥の基本的性質

本研究において使用した試料は、茨城県日立市森山浄水場において採取した浄水汚泥である。原水は一級河川久慈川から取水しており、凝集剤にはポリ塩化アルミニウムが使用されている。使用した浄水汚泥に活性炭は含まれていない。

浄水汚泥の物理的・化学的性質を表-1に示す。浄水汚泥A, B, Eは天日乾燥、浄水汚泥C, D, F, Gは加圧脱水された試料である。土粒子の密度と強熱減量はそれぞれ日本工業規格JIS A 1202: 1999, JIS A 1226: 2000に準拠し

表-1 浄水汚泥の物理的・化学的性質

試料名	土粒子の密度 (g/cm ³)	液性限界 (%)	塑性限界 (%)	強熱減量 (%)
A	2.58	224	145	17.6
B	2.61	178	104	18.8
C	2.52	269	151	26.6
D	2.45	113	91	27.3
E	2.54			17.1
F	2.65			22.1
G	2.45			19.1

*斜線部は未測定項目を意味する。

図-1 茨城県日立市における浄水汚泥の強熱減量

表-2 浄水汚泥の化学組成

試料名	浄水汚泥			発生土 NS*
	C	E	F	
SiO ₂ (%)	46	44	46	61
Al ₂ O ₃ (%)	24	24	24	16
Fe ₂ O ₃ (%)	5.8	4.9	5.8	8.2
CaO (%)	1.9	1.2	1.9	0.6
MgO (%)	1.0	1.1	1.0	0.8
Na ₂ O (%)	1.0	1.3	1.0	0.9
K ₂ O (%)	1.3	1.6	1.3	1.1
P ₂ O ₅ (%)	0.59	0.44	0.59	0.04

*NSは茨城県日立市内の埋設管工事の発生土である。

て測定した。液性限界・塑性限界試験は、JIS A 1205: 2009に準拠して実施した。すなわち、室温20℃で水分を蒸発させながら含水比を低下させる過程で液性限界と塑性限界を測定した。浄水汚泥の強熱減量は、図-1に示すように排出される時期により9.0~28.9%の範囲で変動することが分かっており、表-1に示す強熱減量はその範囲内である。浄水汚泥の強熱減量が高い理由は、主に取水(河川水)に含まれていた有機物が凝集されたためと推察される。

浄水汚泥の化学組成を表-2に示す。分析には蛍光X線分析装置(3270E/理学電機)を用いた。強熱減量の割合を全体から差し引き、酸化物形態に換算した乾燥質量の百

分率で結果を表示した。また、浄水汚泥の比較対象として茨城県日立市森山浄水場内の埋設管工事にて排出された発生土NS ($L_f=7.5\%$)の化学組成を併記した。割合浄水汚泥は発生土NSと比べると、 SiO_2 の割合が小さく、 Al_2O_3 の割合が大きい。一般的な土と比べて浄水汚泥には有機物が多く含まれるために石英等の鉱物の割合が相対的に減少し、また、凝集剤ポリ塩化アルミニウムの成分が残留していることが推察される。

(2) 有機物の組成

一般的に土壤中の有機物は、酸とアルカリに対する溶解性の違いからフルボ酸(fulvic acid)、フミン酸(humic acid)、ヒューミン(humin)に分類される。図-2に示すように、フルボ酸は酸とアルカリの両方に溶解し、フミン酸はアルカリにのみ溶解する。浄水汚泥に含まれる有機物の組成を明らかにするため、酸・アルカリ抽出を行った。

酸・アルカリ抽出の手順は以下の通りである^{10), 11), 12)}。

写真-2に示す容量1Lの三角フラスコに乾燥質量で50gの試料を投入し、液固比10 L/kgになるように0.5mol/LのNaOHを500g添加した。混合溶液は、試料全体が流動するように24時間スターラー攪拌した。攪拌中は試料の流出を防ぐため、ラップ、輪ゴム、ビニルテープで三角フラスコ上部を塞いだ。浄水汚泥は攪拌スターラー攪拌後、混合溶液を3000 rpmで30分間遠心分離し、沈殿物と上澄み液を得た。遠心分離により沈殿した物質はヒューミンを含む土粒子である。上澄み液は6 mol/LのHClでpH2.0まで調整した。pH調整後の液体を再び遠心分離し、このとき、アルカリに可溶かつ酸に不溶のフミン酸が沈殿物として分離される。上澄み液には酸にも可溶なフルボ酸が含まれている。上澄み液のフルボ酸の濃度を調べるため、上澄み液を5mLずつ10本の試験管に移し、それらを110℃で質量一定になるまで炉乾燥した後の乾燥質量を計測した。上澄み液の量とフルボ酸の濃度からフルボ酸の質量を算出した。塩の除去は行っていないため、ここで算出されるフルボ酸には塩の質量も含まれている。なお、後述する試験結果より、フルボ酸の割合はフミン酸と比べておおよそ1/100であるため、分解量を議論する上でフルボ酸が塩等の溶解物質を含んだ質量で表わされていても論旨には影響しない。

酸・アルカリへの可溶性に基づいた浄水汚泥に含まれる有機物の割合を表-3に示す。浄水汚泥に最も多く含まれていたのはヒューミンを含む土粒子であり、その割合は90.70～98.78%であった。一方、発生土NSのヒューミンを含む土粒子の割合は99.72%であった。次に割合が多かったのはフミン酸であり、浄水汚泥には1.20～9.27%の範囲で含まれていた。その値は発生土NSと比べると約5～37倍にあたり、フミン酸が多く含まれていることが浄水汚泥の特徴であると言える。これは、浄化処理過程に

図-2 酸・アルカリへの可溶性に基づいた有機物の分類

写真-2 酸・アルカリ抽出に用いた試験装置

表-3 酸・アルカリへの可溶性に基づいた浄水汚泥に含まれる有機物の割合

試料名	フルボ酸 (%)	フミン酸 (%)	ヒューミンを含む土粒子 (%)
A	0.039	3.14	96.82
B	0.032	2.39	97.58
C	0.034	9.27	90.70
D	0.040	4.31	95.65
E	0.016	1.20	98.78
F	0.049	3.90	96.05
G	0.036	5.14	94.82
NS	0.028	0.25	99.72

において比較的分子量の大きい(1000～1500以上)フミン酸類に対して、凝集効果が高いことに由来すると考えられる¹³⁾。浄水汚泥に含まれるフルボ酸の割合は0.016～0.040%であり、フミン酸と比べると含有量は非常に少ない。また、浄水汚泥に含まれるフルボ酸の割合は発生土NSとほとんど同じであったことから、浄水汚泥のフルボ酸含有量は、一般的な土と同程度であると考えられる。

3. 好気環境下における有機物の分解特性

2章では、浄水汚泥に含まれる有機物の組成は一般的な土とは異なることを明らかにした。そのため、浄水汚泥に含まれる有機物に関して、分解特性を把握しておくことが浄水汚泥の安全な利用に結びつくと考えられる。本章では、浄水汚泥に含まれる有機物の好気環境下にお

ける分解特性を明らかにする。

(1) 試料の養生と土壌呼吸速度の測定方法

本研究では、好気環境下における有機物の分解特性を把握するため、浄水汚泥を含水比一定のもとに養生し、定期的に土壌呼吸速度と強熱減量を測定した。土中では、植物根の呼吸や微生物による有機物の分解により CO_2 が排出され、土中の CO_2 濃度は大気中より高くなる。しかしながら、土中の CO_2 濃度は土の排気性や排水性、あるいは深さによって大きく異なり¹⁴⁾、微生物の活動圏となる微小な間隙における CO_2 濃度を把握することは困難である。以上の理由より、本研究では基礎的検討として、好気環境下における有機物の分解特性を調査した。

使用した試料は表-3に試料名FとGで示される浄水汚泥である。また、河川流域が異なる場合に有機物の分解特性が変化することを想定し、千葉県佐倉市の佐倉浄水場において採取した浄水汚泥(以後、浄水汚泥Sと記述する)も用いた。佐倉浄水場では、原水を鹿島川と印旛沼から取水し、工業用水を供給している。凝集剤として塩化アルミニウムが使用されている。試料Sの強熱減量は25.4%であった。試料の団粒寸法は、2mm以下にほぐしたものと2～19mmに分級したものの二種類を用いた。ただし、試料Gに関しては、2mm以下の試料の量を十分に確保できなかったため、2～19mmに分級した試料のみを使用した。各試料は加圧脱水された直後のものを採取し、同一条件で養生した。

養生期間内に各試料の含水比が変化し、微生物の活性が変化すること¹⁵⁾を最小限に抑えるため、ステンレス製の容器に入れた後、空気を極力抜いた状態でラップをした。そして、各容器を30～35℃に制御された炉の中で養生した。Plante et al.¹⁶⁾は5, 15, 25, 35℃と温度を変化させた場合、35℃のケースで最も二酸化炭素の排出量が多いことを示しており、本研究では微生物による有機物の分解がより顕著となる条件を選定したと言える。試料F, G, Sについて含水比の変動幅はそれぞれ150～166%, 108～123%, 132～158%であった。養生している間、含水比の変化を小さくすることを優先していたため、容器内の空気量は少なかったが、およそ月一度の間隔で空気の入替えを行い、養生中も微生物による有機物の分解は進行していたと考えられる。

恒温状態で養生した試料の一部を定期的に取り出し、土壌呼吸速度と強熱減量を測定した。土壌呼吸速度とは、単位質量、単位時間あたりの CO_2 発生量[mg/kg/d]として定義され、一般的には土壌の肥沃性に関わる土壌バイオマスの測定に活用されており¹⁷⁾、葉の暗呼吸や根の活性を把握するための指標としても類似した測定が実践されている^{18), 19)}。本研究では、微生物の活性を間接的に調査することを目的に土壌呼吸速度を測定した。本研究で用

図-3 土壌呼吸速度測定装置

写真-3 土壌呼吸速度測定装置の設置状況

図-4 二酸化炭素排出量と経過時間の関係(30～35℃)

いた土壌呼吸速度測定装置を図-3と写真-3に示す。デシケーターの底部に CO_2 センサ(C2D-W02TR/株式会社ユー・ドム)を、陶磁器棚板の上に試料を設置した。 CO_2 センサの測定範囲は CO_2 濃度で0～5000 $\mu\text{L/L}$ (分解能1 $\mu\text{L/L}$)、温度で-20～80℃ (分解能0.1℃)、相対湿度で0～100%RH (分解能0.1%)である。測定間隔は60秒/回とした。 CO_2 発生量の測定は養生時と同じ密閉容器、同じ温度下で実施した。すなわち、乾燥質量で20～30gの試料をデシケーター内に静置した後、デシケーターの上蓋と底部をOリングと高真空シール用オイルコンパウンド(HIVAC-G)で密着させ、さらにパラフィルムとビニルテ

ープで外側からもシールし、密閉性を高めた。なお、試料を設置しない状態でデシケーター内部のCO₂濃度が一定値で推移すること、温度と湿度の影響を受けないことを事前に確認している。CO₂濃度の測定時間は24時間とした。なお、試料採取から2日以内に一度目の測定を実施している。

CO₂排出量 M_{CO_2} (g)の計算は以下の通りである。24時間で測定されたデシケーター内のCO₂濃度増加分 C (μL/L)、デシケーターの容積 V (L)、温度 T (°C)と気圧 P (Pa)は一定の条件の下、式(1)でボイル・シャルルの法則よりデシケーター内のCO₂の体積を標準状態(0°C, 101325Pa)における体積 V_{CO_2} に換算し、式(2)により24時間でデシケーター内において増加したCO₂の質量 M_{CO_2} を求めた。

$$V_{CO_2} = \frac{V \times C \times 10^{-6} \times 273}{T + 273} \quad (1)$$

$$M_{CO_2} = \frac{V_{CO_2}}{22.4} \times 44 \quad (2)$$

ここに、既知の実験条件として、 V は9.41L、 T は20°C、CO₂の分子量は44、理想気体1molの体積は22.4Lとした。

浄水汚泥からのCO₂排出量を24時間測定した後、JIS A 1226:2000に準拠して試料の強熱減量を測定した。CO₂排出量の測定に用いた試料の残りは、他のCO₂測定で使い回さずに処分した。

(2) 浄水汚泥の土壌呼吸速度および強熱減量の推移

浄水汚泥の土壌呼吸速度と経過時間の関係を図-4に示す。図中の曲線は、試験結果を指数関数で近似した曲線であり、指数関数を選択した理論的根拠は次節に後述する。土壌呼吸速度は初期に最も高く、時間の経過と共に減少する傾向が認められた。浄水汚泥Fに関しては、団粒寸法2~19mmの方が土壌呼吸速度は大きかった。その一つの要因としては、24時間の測定の間に、団粒寸法2~19mmと2mm以下の試料の含水比が166%からそれぞれ139%と132%まで低下しており、団粒寸法が小さいほど比表面積も大きいため乾燥が著しかったことから、より乾燥した団粒寸法2mm以下の環境では微生物の活性は低下していたことが考えられる。団粒寸法2~19mmに限ると土壌呼吸速度の値は浄水汚泥FおよびSがGと比べて比較的大きかった。こうした結果には含水比だけでなく強熱減量等の大小も影響しており、強熱減量は易分解性の有機物量と関係性があると予想されるが、明確な理由は現時点で不明である。図-5に強熱減量と経過時間の関係を示す。時間の経過と共に強熱減量は減少する傾向が認められた。浄水汚泥Sの団粒寸法2~19mmのケースを除いて強熱減量の減少率は1~3%であった。浄水汚泥Fに関して約6ヵ月が経過した時点でフルボ酸とフミン酸の割合を調べたところ、図-6に示すようにフミン酸は約44%減少し、フルボ酸は約51%増加していた。フミン酸

図-5 強熱減量と経過時間の関係(30~35°C)

図-6 約6ヵ月経過時点における有機物の組成

表-4 試験結果のフィッティングパラメーター

	試料	α	β
CASE1	浄水汚泥 F (団粒寸法 2~19mm)	2607.1	1.25×10^2
CASE2	浄水汚泥 F (団粒寸法 2mm 以下)	1725.1	1.55×10^2
CASE3	浄水汚泥 G (団粒寸法 2~19mm)	1563.9	2.15×10^2
CASE4	浄水汚泥 S (団粒寸法 2~19mm)	2589.8	1.57×10^2
CASE5	浄水汚泥 S (団粒寸法 2mm 以下)	3408.0	1.75×10^2

の減少は、微生物による有機物分解により有機物が消失したことを示していると考えられる。フルボ酸の増加については、フルボ酸の割合は小さいため測定精度上の問題もあるが、一部のフミン酸を構成する分子が低分子化し、より分子量の小さいフルボ酸として質量増分に現れた可能性が考えられる。なお、土粒子との区別が難しいためヒューミンの定量は行っていない。

(3) 炭素収支の観点における好気性分解の判定

本研究では、土壤呼吸速度の測定時や試料の養生期間中に O_2 濃度を管理していないため、有機物の分解が好気環境のもとに行われていたことを確認する必要がある。好気環境下における有機物の分解では、 CO_2 濃度の増加と O_2 濃度の減少が釣り合い、嫌気環境下においては CO_2 と CH_4 が同時に生成される²⁰⁾。そのため、好気環境であれば発生した CO_2 の炭素はほぼすべて有機物由来であり、土壤呼吸速度と強熱減量の炭素収支を通して好気性分解の判定が可能であると考えられる。一方、嫌気環境下では、 CH_4 の生成にも有機物由来の炭素が消費されるため、土壤呼吸速度から計算される炭素量は強熱減量から計算される炭素量とは釣り合わない。

Jenny^{21), 22)}は一つの土壌系の中で有機物の添加と分解が同時に起こる時、土壤有機物の変化量 dX/dt は新たな有機物の添加量 A から土壤有機物の分解量 rX を差し引いたものであるとし、次のように表した。

$$\frac{dX}{dt} = A - rX \quad (3)$$

ここに、 r はある一定期間の分解率(一定値)である。式(3)を積分すると、有機物の分解量は式(4)として与えられる。

$$rX = A - (A - rX_0)e^{-rt} \quad (4)$$

X_0 は試験開始時における土壤有機物量である。ここで、浄水汚泥に含まれる有機物の分解を考える場合は、 X_0 は浄水汚泥に含まれる初期の有機物量である。浄水汚泥の利用期間中に新たな有機物の添加はないと考えて A を無視すると、浄水汚泥に含まれる有機物の分解量は式(5)のように表わされる。

$$rX = rX_0e^{-rt} \quad (5)$$

分解率 r は定数であるため、式(5)の両辺から r を消去すると式(6)のようになり、有機物量 X は時間 t の指数関数で表わされる。

$$X = X_0e^{-rt} \quad (6)$$

以上より、図-4 に示した土壤呼吸速度と経過時間の関係に対して、好気性分解の場合は CO_2 排出量と有機物分解量に相関があることと、ある時期の有機物量は一定の分解率の時間の関数で与えられることを仮定し、式(6)と同様の指数関数で近似した。すなわち、近似曲線の形を式(7)で与える。

$$q_{CO_2} = \alpha e^{-\beta t} \quad (7)$$

ここに、 q_{CO_2} は土壤呼吸速度[$mg/kg/d$]である。フィッティングパラメーターの α は排出直後の浄水汚泥から生じる CO_2 排出量、 β は CO_2 排出量の減少率に相当する。各係

図-7 有機物分解量と累積 CO_2 排出量

図-8 浄水汚泥Fに関して強熱減量の増分から得られた有機物の生成量を推計するフィッティングカーブ

図-9 有機物分解に起因する炭素消費量と経過時間の関係
※試験番号 CASE1~5 は表-4 と一致している。式(7)より求めた結果を「計算」、強熱減量の差分から求めた結果を「実験値」と表記している。

数の値を表-4にまとめた。 α は団粒寸法の差異に起因する含水比の分布により値が変動すると考えられる。 β は $1.25 \times 10^2 \sim 2.15 \times 10^2$ の範囲であった。 β の物理的意味は有機物の分解率である。ただし、 β には有機物の分解に関わる複数の要因が丸め込まれており、例えば微生物の種類や数、易生物分解性有機物の種類や量などが考えられ

る。本試験の測定系統においては、有機物分解特性に及ぼす上記した項目の影響は互いに打ち消し合っていたため、 β は限られた範囲内で得られたと考えられる。本研究では一つの試料に対する分解率を一定値とみなすが、分解率の時間的な変化やそれと関係性のある要因については今後の課題とする。

式(7)より、一日あたりの CO_2 排出量を求めることができるので、 β が時間の経過に対して一定であるとの仮定の下、式(7)を時間範囲 $t_1 < t < t_2$ で積分すると累積 CO_2 排出量 $Q_{\text{CO}_2} [\text{mg/kg}]$ を求める式(8)が得られる。そして、 CO_2 から炭素 C の分子量に換算することにより、式(9)から有機物分解に起因する炭素消費量 $Q_c [\text{mg/kg}]$ が求まる。

$$Q_{\text{CO}_2} = \int_{t_1}^{t_2} q_{\text{CO}_2} dt = \frac{\alpha}{\beta} (e^{-\beta t_1} - e^{-\beta t_2}) \quad (8)$$

$$Q_c = \frac{\alpha}{\beta} (e^{-\beta t_1} - e^{-\beta t_2}) \times \frac{12}{44} \quad (9)$$

有機物分解量すなわち有機物分解における炭素消費量を算出するため、強熱減量の差分を試料質量に乘じることにより求めた。強熱減量試験では、炭酸塩類が CO_2 となり揮発することにより無機物を含めた有機物含有量が算出される問題もあるが、浄水汚泥を養生する期間内に炭酸塩類の生成や消失は有機物の増減に対してきわめて微小であると考え、強熱減量の差分を用いることにより、有機物分解で消費された炭素量を計算した。しかし、浄水汚泥の養生中には植物根の生育等により、有機物が新たに生成された可能性もある。実際、図-7に示すように式(8)から計算される累積 CO_2 量がほぼ最大値に至る手前で、浄水汚泥Fに関しては、有機物分解量が減少し、有機物が増加していることがわかる。これは、土壌呼吸速度が低下し、有機物の分解が概ね完了した段階で有機物の生成が支配的になったことを意味していると考えられる。なお、浄水汚泥Gに関しては測定期間が短いため有機物の増加は確認されなかった。浄水汚泥Sに関しては、排出源が他の試料と異なるため理由は不明だが、測定期間内に有機物が増加することはなかった。有機物が増加した場合には、有機物増分を除外した実質の有機物分解量を推計するため、有機物の増加に対して式(10)を仮定してあてはめ、図-8に示すように有機物生成量を求めた。式(10)の適用範囲は試験期間内とする。また、ここでは有機物の生成は分解と同時に起こる現象と考え、式(6)に倣って式(10)を仮定したが、植物細胞の増殖に関する記述がLockhartの一階の偏微分方程式を基礎に検討されていることから²³⁾、単純ではあるが妥当な仮定であると考えられる。

$$X' = X_0 e^{st} \quad (10)$$

ここに、 X' は有機物の生成量、 X_0 は試験開始時における

図-10 三軸圧縮試験装置の概略図

図-11 三軸圧縮試験で用いた浄水汚泥Aの粒径加積曲線

図-12 供試体の有機物分解過程における CO_2 濃度の推移

土壌有機物量、 s は有機物の生成率である。式(10)についてもある期間内の有機物生成量を求め、強熱減量から正味の有機物分解量を算出した。この補正は浄水汚泥Fについてのみ行い、その他の試料に関しては有機物増加の実験事実が得られなかったことから補正は行っていない。

有機物分解に起因する炭素消費量と経過時間の関係を図-9に示す。浄水汚泥S(団粒寸法2mm以下)を除いて計算結果と有機物分解に起因する炭素消費量 Q_c の時間変化が定性的に一致しており、ほぼ炭素収支がとれていることがわかる。これより、浄水汚泥S(団粒寸法2mm以下)を除いて好気性分解が進行していたと判定される。計算値の方が炭素消費量は若干小さい傾向にあるが、実験式(7)のフィッティングの段階で誤差が含まれていること、好気性分解から嫌気性分解に移移することにより CO_2 排出量は減少したことが推察されること等が原因として考

えられる。浄水汚泥S(団粒寸法2mm以下)の結果に関しては、 CO_2 排出量は大きく強熱減量の低下は小さいことから、その試料条件では有機物生成が顕著であった可能性が考えられるが、式(10)を適用する上での根拠が不足しているため、有機物生成量の補正による検討は行わないこととした。有機物の分解と生成を区別するための実測値を入手することが今後の課題である。

4. せん断特性に及ぼす有機物分解の影響

3章では、好気環境下において浄水汚泥に含まれる有機物は分解されることを確認した。本章では、浄水汚泥のせん断特性に及ぼす有機物分解の影響を三軸圧縮試験により調査した結果を記述する。有機物分解の促進には過酸化水素水を使用した。

(1) 三軸圧縮試験における供試体の作製方法および試験方法

浄水汚泥のせん断特性に及ぼす有機物分解の影響を明らかにするため、過酸化水素水を用いて有機物の分解を促進した供試体に対して、圧密排水三軸圧縮試験を実施した。本研究で使用した三軸圧縮試験装置を図-10に示す。供試体の寸法は高さ100mm、直径50mmの円柱形である。表-1に示した最適含水比に調整した浄水汚泥Aを粒径2mm以下に調整し、動的締固めにより供試体を作製した。ここで示す粒径とは、2mmふるいを通過した浄水汚泥の団粒の直径である。浄水汚泥は不定形で排出されるため、粒径は試料の保管方法や分級操作などに応じて変化する。本研究では、試料の破碎方法と分級操作を可能な限り統一するため、突固めによる土の締固め試験方法(JIS A 1210: 2009)のE法に準拠して作製した供試体を手でほぐし、2mmふるい通過分を用いて三軸圧縮試験用の供試体を作製した。試料の粒径加積曲線を図-11に示す。動的締固めでは、三軸圧縮試験機のペDESTAL上にもールドを設置し、ゴムスリーブを負圧で張った後、試料を20層に分けて投入し、重量339.25g、直径25.0mmの突き棒を各層30回、高さ30mmから落下させた。目標の乾燥密度は 0.82g/cm^3 、締固め度は75%である。一般的に参考にされる締固め規定である締固め度90%²⁴⁾は下回っているが、文献²⁵⁾において報告されている試験施工時の現場密度試験の結果とほぼ同程度の値であり、道路の路床材料としては十分な要求性能が期待される状態である。

供試体作製後、 CO_2 を供試体下部から約30分間通気し、間隙を CO_2 に置き換えてから、6%、9%、15%濃度の過酸化水素水を通水した。有機物の分解量を変化させるため、各濃度の過酸化水素水を適宜組み合わせ通水した。過酸化水素水を通水すると酸化反応により CO_2 が生じ、透水性は低下するため、動水勾配を約5.0として通水を行

(a) 過酸化水素水と蒸留水を通水した場合

(b) 蒸留水を通水した場合

図-13 有機物分解過程における陽イオン溶出濃度

った。 CO_2 は水と共に供試体上部から排出され、トラップを介してデシケーターまで導いた。デシケーター内の CO_2 濃度を測定し、図-12に示すように CO_2 濃度が定常化したことを確認し、酸化反応の終息とみなした。以上の操作を省くと、圧密過程やせん断過程において供試体が CO_2 により不飽和になる。過酸化水素水を通水した後、脱気した蒸留水を通水し、可能な限り過酸化水素水を洗い出した。B値が0.95以上であることを確認し、飽和とみなした。飽和後、供試体を有効拘束圧50kPaまたは100kPaで等方圧密し、ひずみ速度 $0.1\%/min$ 、排水条件のもと、軸ひずみ20%まで軸圧縮した。なお、最大乾燥密度に締固めた浄水汚泥の透水係数はおよそ 10^{-5}cm/s であることを文献⁶⁾で報告しており、上記ひずみ速度であっても供試体内に過剰間隙水圧は残留しない。

(2) 有機物分解後の浄水汚泥のせん断特性

過酸化水素水および蒸留水を通水したときの陽イオン溶出濃度の推移を図-13に示す。陽イオンの溶出は、間隙水の性質を変え、イオン交換などを経て粘土の保水性やせん断特性は変化することが知られているため^{26), 27)}、有機物分解とせん断特性の変化を考察する際に、陽イオン溶出特性も併せて把握しておくことは重要である。過酸化水素水を通水した場合には、濃度が切り替わる液固

比付近において陽イオン溶出濃度は変動したが、溶出濃度は蒸留水を通水した場合とほとんど同程度であった。したがって、過酸化水素水通水の有無を比較した場合の結果の差異は、有機物分解に起因すると限定して考えることができる。

有機物分解後の浄水汚泥の圧密排水三軸圧縮試験における軸差応力および体積ひずみと軸ひずみの関係を図-14に示す。CASE1は蒸留水を通水しており、試験の再現性を確認した結果、最大軸差応力の差は約7kPaであった。CASE2～CASE5では過酸化水素水と蒸留水を通水した。図中に表記した乾燥密度は、等方圧密後の供試体の乾燥密度である。乾燥密度が変動した理由として、通水と圧密による体積変化は強熱減量の減少量によらず、 $0.53 \sim 5.97 \text{ cm}^3$ の範囲で体積変化したことが挙げられる。強熱減量は、三軸圧縮試験終了後に測定した供試体上部・中部・下部の強熱減量の平均値である。特にCASE4およびCASE5のように強熱減量の低下量が大きいほど、軸ひずみ約5%以上の領域において体積ひずみは大きく、すなわち、体積膨張は抑制され、最大軸差応力は減少した。

上記の試験結果を簡略的に検証するため、過酸化水素水および水酸化ナトリウム溶液に浸漬することにより事前に有機物を分解した試料で作製した再構成供試体を用いて、圧密排水三軸圧縮試験を実施した。試料は、6%過酸化水素水または0.5 mol/Lの水酸化ナトリウム溶液に液固比2 L/kgで24時間浸漬することを1～5回繰返し、有機物の分解を促した。浸漬後の試料を含水比44～50%まで室温20℃で風乾し、締固めエネルギー約102 kJ/m³で供試体を作製した。B値が0.95以上であることを確認し、有効拘束圧50kPaで等方圧密後、ひずみ速度0.1%/minで軸圧縮した。図-15に試験結果を示す。比較のため乾燥密度0.801～0.804 g/cm³の範囲に着目すると、強熱減量が小さいほど体積膨張は抑制され、最大軸差応力は減少しており、図-14と同様の傾向が確認された。

有機物はセメンテーション効果により土粒子間を結合することが知られている²⁸⁾。図-16に示すように、浄水汚泥は(1)凝集剤による架橋結合と(2)有機物のセメンテーションにより団粒構造が形成されていると考えられる。今回の実験事実に基づけば、有機物が分解されることにより土粒子間の結合力が弱まり、団粒は破碎しやすくなり、体積膨張は抑制されたと推察される。ただし、浄水汚泥の団粒形成に対する有機物のセメンテーション効果について、現時点で定量的な情報はないため、機構解明にはさらなる調査が要る。

有効拘束圧50kPaおよび100kPaにおける圧密排水三軸圧縮試験における結果より作成したモールの応力円を図-17に示す。これより、有機物分解後の浄水汚泥の内部摩擦角 ϕ_{int} は37.9°、粘着力 c は0kN/m²であることが明らかとなった。また、有機物分解が生じない条件においても同

図-14 有機物分解後の浄水汚泥の圧密排水三軸圧縮試験における軸差応力および体積ひずみと軸ひずみの関係(有効拘束圧 50kPa)

図-15 事前に有機物を分解した浄水汚泥の圧密排水三軸圧縮試験における軸差応力および体積ひずみと軸ひずみの関係(有効拘束圧 50kPa)

等の乾燥密度であれば粘着力が0kN/m²であることが確認された。有機物のセメンテーションが減少することにより浄水汚泥は細粒化し、凝集以前の粘土としての特性が一部戻ることが予想されたが、本研究で実施した有機物分解では浄水汚泥の団粒は形状を残しており、砂としての力学特性が顕著であったために粘着力は0kN/m²であったと考えられる。また、凝集剤としてポリ塩化アルミニウムが使用されていたことから、アルミニウム塩の多価の正電荷により土粒子表面の電荷が中和され¹³⁾、電気化学的な作用が低下したことにより、粘土としての特性が

失われていたことも推察される。

粘着力 0kN/m^2 との実験事実に基づき、有効拘束圧 50kPa および 100kPa の試験結果から内部摩擦角を算出し、有機物の分解率との関係として図-18に整理した。CASE2およびCASE3については、分解操作後も強熱減量が高く、CASE1(分解なし)に対する強熱減量の減少割合を算出できなかったため、図-18から結果を除外した。圧密後の供試体の乾燥密度も併記した。CASE1-1およびCASE1-2から有機物分解なしの状態における内部摩擦角は $39.7^\circ\sim 40.4^\circ$ の範囲である。有機物が約 1.38% 減少することにより、浄水汚泥の内部摩擦角は $39.7^\circ\sim 40.4^\circ$ の範囲から 37.9° 付近まで減少することがわかる。3章の知見より、好気環境下において 1.38% の有機物分解は十分に起こり得ると言える。本研究の各実験で使用した試料に関しては、有機物分解による内部摩擦角の低下は材料特性を著しく変えるほどではなかったが、浄水汚泥を地盤材料として利用する上で、表層付近や緩詰め施工箇所などでは局部的に有機物の分解が進む可能性もあり、その場合は内部摩擦角が減少することが予想されるため、有機物分解による内部摩擦角の低下を考慮して設計定数を決定するなどの安全上の配慮も有効であると考えられる。なお、本研究では、過酸化水素水を用いて浄水汚泥に含まれる有機物の分解を促進しており、実際の環境とは分解プロセスが異なる。表-5は 6% 過酸化水素水に 24 時間浸漬した後の有機物等の分解率 R_d である。有機物等の分解率 R_d は式(11)により定義する。

$$R_d = \frac{m_1 - m_2}{m_1} \times 100 \quad (11)$$

ここに、 m_1 は含水比を用いて計算した試料の乾燥質量(g)、 m_2 は 6% 過酸化水素水に 24 時間浸漬した後の試料を 110°C で 24 時間炉乾燥した後の乾燥質量(g)である。フミン酸の分解率は $42.5\sim 46.6\%$ であった。この値は、図-6に示した $30\sim 35^\circ\text{C}$ 養生の約6ヵ月間で生じるフミン酸の分解率 44% と非常に近い値である。これより、過酸化水素水を用いた有機物の分解は自然界における分解とは厳密には同意ではないが、浄水汚泥の特徴でもあるフミン酸の分解率に関しては、好気的な分解と概ね同等の結果が得られたものと考えられる。

5. 結論

本研究では、浄水汚泥の有機物組成を明らかにすると共に、好気環境下における有機物の分解特性を調査した。その結果、浄水汚泥にはフミン酸が多く含まれており、フミン酸の約 44% は約6ヵ月間で好気分解されることを明らかにした。また、有機物分解後の浄水汚泥の三軸せん断特性を調査することにより、有機物の分解に起因し

図-17 有機物分解後の浄水汚泥の圧密排水三軸圧縮試験により得られたモールの応力円

図-18 粘着力 0kPa を仮定して求めた内部摩擦角および圧密後乾燥密度と強熱減量の減少割合の関係

表-5 6% 過酸化水素水に 24 時間浸漬した後の有機物等の分解率

試料	有機物等の分解率 $R_d(\%)$		
	フルボ酸	フミン酸	ヒューミンを含む土粒子
B	77.1	44.9	3.1
C	86.5	43.2	8.1
D	88.0	46.6	10.3
E	73.4	42.5	6.6

図-16 浄水汚泥の団粒構造における凝集剤および有機物の結合形態の概念

て浄水汚泥のせん断強度は低下することを明らかにした。本研究で実施した実験では、約1.38%の有機物が分解されることにより、内部摩擦角は39.7~40.4°の範囲から37.9°付近まで減少し、また、粘着力は有機物の分解によらず0kN/m²であった。本研究では、過酸化水素水を用いて有機物の分解を促進したが、フミン酸の分解に限定すれば、好気分解の場合と概ね同等の分解率であった。したがって、浄水汚泥の利用条件次第では有機物の分解は十分に起こり得ることであり、また、有機物の分解はせん断特性に影響を及ぼすことから、有機物の分解に関する検討を進めることが浄水汚泥の安全かつ適正な利用に結びつくと考えられる。

謝辞：本論文で報告した実験データは、第一著者が茨城大学在学中に取得したものである。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 厚生労働省健康局水道課：浄水汚泥(浄水発生土)の循環利用について、第58回中央環境審議会循環型社会計画部会、資料4、2010。
- 2) 厚生労働省健康局水道課：水道事業における環境対策の手引書(改訂版)、第III編水道事業における環境対策の具体例、pp. 68-95, 2009。
- 3) 古河幸雄、曾津大三、藤田龍之：浄水汚泥の地盤材料への利用に関する研究、土木学会論文集C, Vol.62, No.1, pp.67-78, 2006。
- 4) Roque, A. J. and Carvalho, M.: Possibility of Using the drinking water sludge as geotechnical material, *Proc. of 5th International Congress of Environmental Geotechnics*, pp.1535-1542, 2006。
- 5) 渡邊保貴、小峯秀雄、安原一哉、村上哲、豊田和弘：浄水汚泥のアルミニウム溶出に関する環境影響評価手法の提案、土木学会論文集G, Vol.65, No.3, pp.188-201, 2009。
- 6) 渡邊保貴、小峯秀雄、安原一哉、村上哲、豊田和弘：凝集剤成分の溶出を伴う乾湿繰返しを受けた浄水汚泥の圧縮性および透水性の評価、土木学会論文集C, Vol. 66, No. 3, pp. 550-563, 2010。
- 7) 渡邊保貴、小峯秀雄、安原一哉、村上哲、豊田和弘：環境経済効果に着目した浄水汚泥と砂質土の混合利用、土木学会論文集C, Vol. 66, No. 4, pp. 788-799, 2010。
- 8) 中村公亮、佐藤研一、山田正太郎、藤川拓朗、長浜武知、木之下盛博：浄水汚泥を用いた粒状改良土の材料特性、第40回地盤工学研究発表会講演集(CD-ROM), 2005。
- 9) 嘉門雅史、浅川美利：新体系土木工学16土の力学(I)、技報堂出版、1988。
- 10) M. M. コノノワ[著]、菅野一郎ら[訳]：土壌有機物—

- その本質・性質および研究法、農山漁村文化協会、pp. 50-61, 1976。
- 11) Sparks, D. L.: *Environmental Soil Chemistry*, second edition, Academic Press, 2003。
 - 12) Ohkubo, N., Yagi, O. and Okada, M.: Effects of humic and fulvic acids on the growth of microcystis aeruginosa, *Environmental Technology*, Vol. 19, pp. 611-617, 1998。
 - 13) 丹保憲仁、小笠原紘一：浄水の技術、pp.37-59, 技報堂出版、2002。
 - 14) ウィリアム・ジュリー、ロバート・ホートン[著]、井上光弘、長裕幸、西村拓、諸泉利嗣、渡辺晋生[訳]：土壌物理学 土中の水・熱・ガス・化学物質移動の基礎と応用、三美印刷、2006。
 - 15) 土壌微生物研究会：土と微生物、岩波書店、1966。
 - 16) Plante, A. F., Conant, R. F., Carlson, J., Greenwood, R., Shulman, J. M., Haddix, M. L. and Paul E. A.: Decomposition temperature sensitivity of isolated soil organic matter fractions, *Soil Biology and Biochemistry*, Vol. 42, pp. 1991-1996, 2010。
 - 17) 坂本一憲、吉田富男：土壌呼吸速度による土壌バイオマスの測定、日本土壌肥科学雑誌、第59巻、第4号、pp.403-409, 1988。
 - 18) 野口航：個葉から葉緑体スケールのガス交換 c.呼吸速度(CO₂発生速度)測定、低温科学、Vol.67, pp.83-87, 2009。
 - 19) 別宮有紀子、坂田剛：根の呼吸の日中変動とその要因：根と葉の結びつきを考慮した生態学研究の新たな可能性、日本生態学会誌、No.59, pp.55-63, 2009。
 - 20) 田中信壽：環境安全な廃棄物埋立処分場の建設と管理、技報堂出版、2004。
 - 21) Jenny, H.: *Factors of Soil Formation*, McGraw-Hill, New York, 1941。
 - 22) 井ノ子昭夫：土壌中における有機物の分解と集積—その数式化へのアプローチ—、日本土壌肥科学雑誌、第52巻、第6号、pp. 548-558, 1981。
 - 23) Pietruszka, M.: General proof of the validity of a new tensor equation of plant growth, *Journal of Theoretical Biology*, Vol. 256, pp. 584-585, 2009。
 - 24) 地盤工学会：地盤調査の方法と解説(第1刷)、p. 561, 丸善、2004。
 - 25) 磯秀幸、渡邊保貴、小峯秀雄、村上哲、豊田和弘：室内CBRに基づく浄水汚泥の路床材としての品質管理方法の提案、第46回地盤工学研究発表会講演集(CD-ROM), 2011。
 - 26) 日本粘土学会：粘土ハンドブック、第二版、技報堂出版、1994。
 - 27) Warkentin, B. P. and Yong, R. N.: Shear strength of montmorillonite and kaolinite related to interparticle forces, *Clays and Clay Minerals*, Vol. 9, pp. 210-218, 1962。
 - 28) Mitchell, J. K. and Soga, K.: *Fundamentals of Soil Behavior*, third edition, John Wiley & Sons, 2005。

(2011.7.21 受付)

FUNDAMENTAL STUDY ON RELATION BETWEEN ORGANIC MATTER DECOMPOSITION AND SHEAR STRENGTH OF DRINKING WATER SLUDGE

Yasutaka WATANABE, Hideo KOMINE, Satoshi MURAKAMI,
Kazuya YASUHARA and Kazuhiro TOYODA

Drinking water sludge discharged during water purification contains a lot of organic matter. The generation process of drinking water sludge is quite different from that of general soils, so the influence of organic matter decomposition on the engineering properties is not interpreted enough. Therefore, it is important to investigate the decomposition characteristics of organic matter of drinking water sludge, and to discuss the relation between the organic matter decomposition and shear strength. First, this study isolated fulvic acid and humic acid, and observed the organic matter decomposition and soil respirations. The humic acid content of drinking water sludge was relatively high, and 44% of humic acid was decomposed during 6 month in aerobic condition. Second, triaxial compression tests were executed using the sludge that organic matter has been decomposed by hydroperoxide solutions. Approximately 1.38% of organic matter decomposition showed decrease in the internal friction angle from 39.7° — 40.4° to around 37.9° .