

論文 水中パルス放電により回収された再生細骨材の海洋環境回復のための覆砂代替材として適用可能性

飯笹 真也^{*1}・増田 龍哉^{*2}・浪平 隆男^{*3}・重石 光弘^{*4}

要旨: 本研究では、「水中コンクリート内パルス放電法」を用いて、コンクリートからパルス再生細骨材を回収し、海域環境回復のための覆砂の代替材としてパルス再生細骨材の適用性を検討するために、アサリを用いた魚類急性毒性試験を実施した。その結果、pH、および粒度がアサリの生存個体数に影響を与える事が明らかとなった。また、比重分離による軽量セメント分の除外、および中性化によってアサリの斃死数が低減されることが判明した。そして、六価クロムの溶出基準も満たしており、パルス再生細骨材が覆砂の代替材として適用できる可能性を示した。

キーワード: 再生細骨材, パルスパワー, バイオアッセイ試験, 干潟再生, 覆砂

1.はじめに

平成 20 年度における建設産業廃棄物は約 6 千 4 百万トンに達しており、その内コンクリート塊が占める割合は 3 千 2 百万トンを超えている¹⁾。さらに、今後は廃コンクリート塊の排出量は増加すると見込まれている。一方、再生骨材の需要は低下傾向にあるため、再生骨材の利用先を充実させていく必要がある。

このような背景から著者らは、新たな骨材再生技術として、パルスパワー技術を応用した骨材再生技術の開発、提案を行っており、実用化を進めている²⁾。既往の研究成果により、本技術を用いる事で、コンクリートから「コンクリート用再生骨材 H」³⁾の規定を満たす再生粗骨材（以後、パルス再生粗骨材と称す）が回収可能である事が明らかとなっている⁴⁾。そして、近年、JIS A 5308「レディミクストコンクリート」⁵⁾が改正され普通コンクリートおよび舗装コンクリートに再生骨材 H を使用できるようになった。すなわち、パルス再生粗骨材は、一般骨材と同様にコンクリート構造物に用いる事が可能である。また、本技術では、パルス再生粗骨材を回収した際に、再生細骨材（以後、パルス再生細骨材と称す）も回収される。しかし、パルス再生細骨材には硬化セメント分が多く含まれるため、「コンクリート用再生骨材 L」⁶⁾程度の低品質となり、構造用コンクリート骨材として用いる事はできない。

ここで、近年、有明海や八代海の海域環境の悪化に伴う赤潮の頻発化や貧酸素水塊の発生といった諸現象の問題に着目する。特に干潟の典型種で水産有用種であるアサリは、干潟において濾食による水質浄化機能や潮干狩り対象生物としての親水機能を担っているが、1980 年代後半から急激な漁獲量の減少が問題となっており、回

復の兆しは見えていない⁷⁾。このような背景から、干潟では覆砂等の対策事業が行われている^{8) 9)}。覆砂とは水質悪化の要因となるリン酸塩や窒素化合物の供給源が海底に堆積した有機物である場合、これらを砂で覆って溶出を封じ込めることであり、その効果は、①底質の改善②有機物溶出量の削減③水質の改善④生態個数の改善により評価され、評価基準には水産用水基準等が用いられている。また、覆砂の粒度は生態系に対し非常に重要であり、細留分が 5%~20%程度含まれている事が望ましい。よって、覆砂には適切な粒度の砂を用いる必要がある。しかし、環境保護の観点から海砂の採取が規定されているため、砂の供給が切迫しているのが現状である。このような背景から、覆砂工法を採用する際に産業廃棄物から生成した覆砂代替材の利用が検討されるようになった。例として、PS 灰造粒物、人工ゼオライト、およびダム堆積砂などが挙げられる。これらの代替材は、室内試験で一定の成果をあげており、覆砂工への適用が期待されている。しかし、これらの代替材は、産業副産物であるため、安定した供給が望めない。よって、安定した供給と質が望める新たな覆砂代替材が必要である。

そこで、本研究では、覆砂工にパルス再生細骨材を用いる事を提案した。廃コンクリート排出量は今後増加すると見込まれるため、再生細骨材の供給が切迫する可能性は少ないと考えられる。また、パルス再生細骨材が覆砂工に適用可能であれば、水産資源の減少と、廃コンクリート排出量の増加の問題を同時に解決することが可能になると思われる。そこで、パルス再生細骨材の覆砂代替材としての有用性を確認するために、干潟の典型種であり有用種でもあるアサリを用いて、OECD(経済協力開発機構)ガイドライン¹⁰⁾に準拠した魚類急性毒性試

*1 国立大学法人熊本大学 イノベーション推進機構中核的研究機関研究員 博(工) (正会員)

*2 国立大学法人熊本大学 大学院先端機構特任准教授 博(工) (非会員)

*3 国立大学法人熊本大学 バイオエレクトロニクス研究センター准教授 博(工) (非会員)

*4 国立大学法人熊本大学 大学院自然科学研究科准教授 博(工) (正会員)

験(OECD TG203)を実施した。

2. パルス再生細骨材

2.1 パルスパワー技術を応用した骨材再生技術

パルスパワー技術とは貯蔵された電気エネルギーを時空的に圧縮、重畳して、短時間に大電力を狭い空間内に集中させ、それを制御・伝送する技術である¹⁾。水中パルス放電によるコンクリート破碎の仕組みについて図-1に示す。この技術は、水中に設置したコンクリートに高電圧電極から繰り返し放電を行い、コンクリートを破碎する。放電エネルギー量(放電回数)の増加に伴い、再生粗骨材 H が回収可能である⁴⁾。ここで、図-1に示す低電圧電極は 5mm角開口のステンレス製半球状メッシュとなっており、パルス放電により 5mm 程度以下に破碎されたものは水槽の底に沈積する。すなわち、5mm 角開口のメッシュ上に留まった破砕片がパルス再生粗骨材となる。本試験で破碎に用いたコンクリートの配合を表-1に示す。粗骨材は熊本県山鹿産の斑レイ岩、密度 2.99g/cm³、また細骨材は熊本県南関産の山砂、密度 2.56 g/cm³ である。このコンクリートをパルス放電により破碎し、5mm 角開口のメッシュを通過し沈殿した破砕片をパルス再生細骨材として回収した。

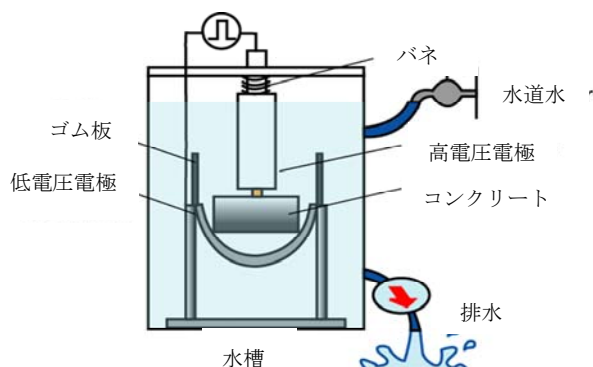


図-1 パルス放電によるコンクリート破碎の仕組み

2.2 パルス再生細骨材の比重分離

1 節でも述べたようにパルス再生細骨材にはセメント分が多く含まれている。パルス再生細骨材を覆砂に用いる事を考えた場合、含まれるセメント分は水素イオン濃度指数(以後 pH) 上昇の原因となるため、取り除く必要がある。そこで、図-2に示すミキサを用い、セメント分を取り除く事を試みた。このミキサは注水しながら、対流を引き起こすことで、セメント分等の比較的密度の

軽いものは、ミキサから水と共に流出する。また、骨材などの比較的密度の高いものはミキサの底に沈殿する仕組みとなっている。本研究では、底に沈殿したものを比重分離後のパルス再生細骨材として回収し、ミキサから流出したものを軽量分として回収した。図-3に比重分離前、および比重分離後のパルス再生細骨材を示す。比重分離により比重の軽いセメント分が取り除くことができている事が分かる。尚、比重分離により、パルス再生細骨材質量の約 56%が軽量分として取り除かれた。



図-2 ミキサ



図-3 比重分離前の砂(左)と比重分離後(右)

2.3 パルス再生細骨材の品質

パルス再生細骨材の品質評価試験として、密度試験、吸水率試験、およびふるいわけ試験を実施した。尚、品質試験は比重分離前、比重分離後のパルス再生細骨材、および比重分離により取り除かれた軽量分それぞれに対し行った。密度、吸水率試験結果を表-2に示す。尚、表-2に示す 2.5mm 以下から 0.15mm 以上の再生細骨材は比重分離した後に、ふるいわけを行い粒度毎に分別したものである。表-2よりパルス再生細骨材は密度が低く、吸水率が高い。これは、セメント分が多く含まれている事が要因である。そして、粒度が小さいほど密度が低く、吸水率が高くなっている。次に、図-4にふるいわけ試験結果を示す。ふるいわけ試験結果より、パルス再生細骨材は一般的な細骨材に比べ粒径 1.2mm 以上の比較的大きい細骨材が多く含まれており、粒径 0.6mm 以下の小さい細骨材は 10%程度しか含まれておらず、また比重分離後、および軽量分には粒径 0.6mm 以下の試料はほとんど含まれていない。これは比重分離の工程で水と共に流出した際に回収できずに失われたと思われる。また、比重分離によって粒径 1.2mm 以上の破砕片が減少した。すなわち、取り除かれた粒径 1.2mm 以上の破砕片には、セメント分が多く含まれていたと思われる。そして、

表-1 破碎用コンクリート示方配合

スランプの 範囲 (cm)	空気量 (%)	水セメント比 W/C (%)	細骨材率 s/a (%)	単位量(kg/m ³)				
				水	セメント	細骨材	粗骨材	混和剤
				W	C	S	G	
5.5~10.5	1.5	47	41	176	374	724	1217	1.27

比重分離前、および比重分離後のパルス再生細骨材を用いて、魚類急性毒性試験を実施した。

表 - 2 密度、吸水率試験結果

	表乾密度 (g/cm ³)	絶乾密度 (g/cm ³)	吸水率(%)
比重分離前	2.32	2.06	12.56
比重分離後	2.40	2.19	9.89
軽量分	2.30	2.05	12.04
2.5mm 以下 1.2mm 以上	2.46	2.25	9.00
1.2mm 以下 0.6mm 以上	2.41	2.19	9.93
0.6mm 以下 0.15mm 以上	2.37	2.13	10.93
熊本港の海砂	2.62	2.56	2.33

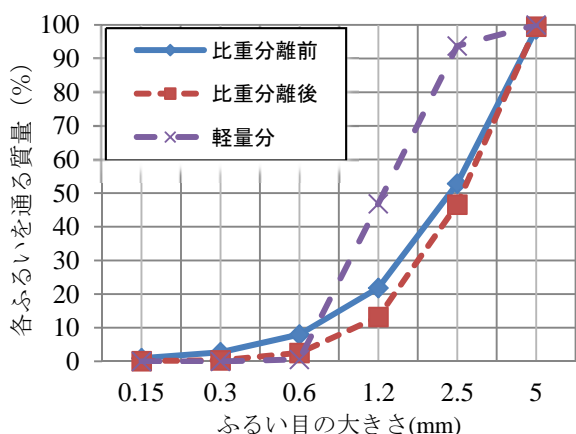


図 - 4 パルス再生細骨材の粒度分布

3. バイオアッセイ試験

パルス再生細骨材の海洋生物に対する安全性確認のため、OECD(経済協力開発機構)ガイドライン¹⁰⁾に準拠した魚類急性毒性試験(OECD TG203)を実施した。

3.1 魚類急性毒性試験(1)

本試験では、魚類急性毒性試験で一般的に用いられるメダカではなく、熊本港周辺干潟に生息する生物の代表種としてアサリ(図-5)を選択した。尚、使用したアサリは熊本港人工干潟なぎさ線で採取したものである。

バイオアッセイ試験の試験区一覧を表-3、試験の様子を図-6に示す。バイオアッセイ試験では、比重分離を行っていないパルス再生細骨材(URS*² Untreated Recycled Sand), 比重分離したパルス再生細骨材(RS*³ Recycled Sand), RSのパルス再生細骨材をふるいにより各粒度で選定をしたもの(RS2.5, RS1.2, RS0.6), 熊本港北なぎさ線の海砂(SS*⁴ Sea Sand)の下で試験を行った。

試験手順を以下に示す。(1)各試料をそれぞれ水槽の底に平坦になるように約5cmの厚さで敷設し、海水を入れ



図 - 5 アサリ

表 - 3 魚類急性毒性試験区一覧

試験区名	パルス再生細骨材の詳細
URS	比重分離前
RS	比重分離後
RS2.5	2.5mm 以下 1.2mm 以上
RS1.2	1.2mm 以下 0.6mm 以上
RS0.6	0.6mm 以下 0.15mm 以上
SS	熊本港北なぎさ線の海砂



図 - 6 バイオアッセイ試験

る。(2)採取後2日間じゅん化させた試験生物を各水槽に投入し試験を実施する。(3)試験期間中は試験生物の状態を試験開始3, 24, 48, 72 および96時間後に観察し、同時に水温、溶存酸素濃度、pHを測定する。試験期間中の条件を表-4に示す。水温、溶存酸素濃度は、試験開始から終了まで、試験区の違いによる差異はみられなかった。

表 - 4 試験条件

試験生物	アサリ(殻長: 第1回 1.5-3.0cm)
試験器具	10Lのガラス製水槽(試験区毎に2個の計12個)
試験期間	96時間
水質	海水(熊本港で採取)
試験生物数	水槽毎に20個体
水温	24℃
エアレーション	緩やかに実施
照明	室内灯による16時間明/8時間暗
給餌	なし

図 - 7、図 - 8 に pH と試験生物の生存個体数の推移を示す。これらのグラフより、pH の上昇に伴って生存個体数は減少した。特に URS と RS2.5 の試験区は生存個体数が少なくなった。pH 上昇の要因としてはセメント分が考えられる。まず、URS は比重分離を行っていない為 セメント分が多く混入し、pH が上昇したと考えられる。次に、RS2.5 は比重分離後であるが、1.2mm~2.5mm 間にセメント分が多く混入している事が比重分離の際に推測されたため、まだセメント分が混入していたと考えられる。一方、RS0.6 以下の試験区においても密度、吸水率試験結果からセメント分が混入していると思われたが、pH8~9 程度を保持しており、生存個体数はほとんど減少しなかった。これは、覆土的な効果によってアルカリ分が溶出しにくかったためと思われる。また、粒度が小さく、アサリの活動を阻害しない事が、生態にほとんど影響を与えなかったと思われる。以上より、パルス再生細骨材は、比重分離後の適切な粒度のものを用いる事で、覆砂の代替材に用いる事ができる可能性が示唆された。

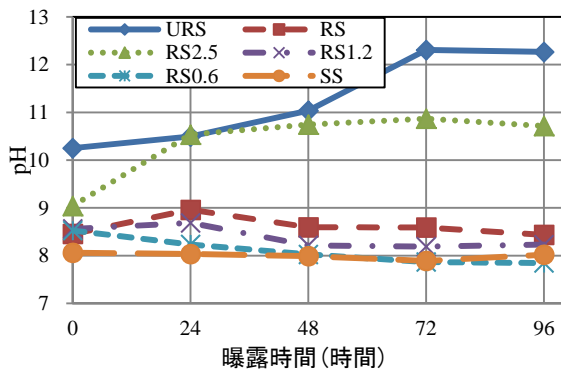


図 - 7 pH の推移

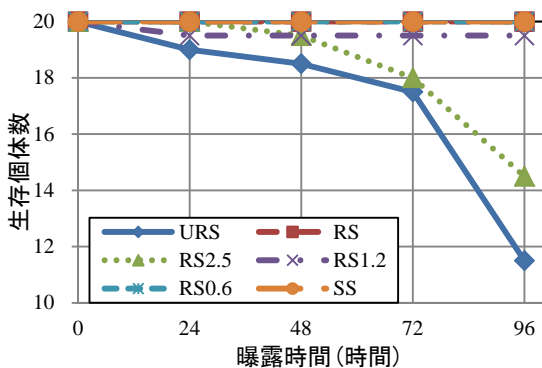


図 - 8 生存個体数の推移

3.2 EPMA による白色結晶の解析

上記の魚類急性毒性試験において、高 pH となった URS と RS2.5 では試験開始 24 時間後に砂の表面に白い物質が大量に発生し、試験開始 72 時間後には URS の水面に白い膜状の物質が生成された。この白い物質を回収

し、乾燥させたところ図 - 9 に示す白色結晶が得られた。



図 - 9 白色結晶

この白色結晶の EPMA 解析¹⁷⁾を行った結果、炭酸カルシウムであった。これはセメントの水和反応生成物である水酸化カルシウムが海水中の溶存二酸化炭素、および炭酸イオンと反応し析出されたものと考えられる。よって、pH の上昇の原因は水酸化カルシウムからのアルカリ分の溶出であると思われる。そこで、水酸化カルシウムを二酸化炭素と反応させることで pH は低下すると考え、パルス再生細骨材の中性化を行った。

3.3 パルス再生細骨材の中性化

パルス再生細骨材の中性化は、中性化試験機を用いた。中性化条件は、温度 32.5℃、湿度 60%、二酸化炭素濃度 10% で実施した。尚、中性化を行ったパルス再生細骨材は表 - 2 に示した試料の URS, RS, RS2.5, RS1.2, RS0.6 である。pH の測定は、中性化試験機から取り出した再生細骨材を蒸留水内で 30 分間静止させた後に行った。暴露 1 週間程度で pH が 8~9 程度まで低下したため、中性化を終了し、中性化後の各試料を用いて 2 回目の魚類急性毒性試験を実施した。

3.4 魚類急性毒性試験(2)

2 回目の魚類急性毒性試験に用いた各試料について表 - 5 に示す。尚、試験手順、および試験条件は表 - 4 に示した 1 回目の魚類急性毒性試験と同様である。水温、溶存酸素濃度は、試験開始から終了まで、試験区の違いによる差異はみられなかった。

表 - 5 魚類急性毒性試験区一覧

試験区名	パルス再生細骨材の詳細
CURS	比重分離前 (中性化後)
CRS	比重分離後 (中性化後)
CRS2.5	2.5mm 以下 1.2mm 以上 (中性化後)
CRS1.2	1.2mm 以下 0.6mm 以上 (中性化後)
CRS0.6	0.6mm 以下 0.15mm 以上 (中性化後)
SS	熊本港北なぎさ線の海砂

図 - 10 に各試験区の pH の推移を示す。1 回目の魚類急性毒性試験の pH の推移 (図 - 7) に比べ pH の上昇は抑えられた。しかし、比重分離前の CURS が今回の試験においても pH が上昇したことから、パルス再生細骨材を覆砂代替材に用いる場合、比重分離は不可欠であった。

CRSについては1回目の魚類急性毒性試験では試験終了時のpHが8.5だったのに対し、今回の試験ではpHが10まで上昇した。また、今回の試験でもCURS, CRS, CRS2.5, いずれも高pHとなった試験区から試験開始24時間後には再生細骨材の表面に炭酸カルシウムの析出が認められた。中性化後のパルス再生細骨材を用いたにもかかわらずpHが上昇した要因としては、中性化の際に、二酸化炭素によってpHは低下したが、炭酸カルシウムから低くなったpHを元に戻そうとする緩衝作用が働き、炭酸カルシウムが炭酸イオンとカルシウムイオンに分かれたためと考えられる。また、中性化したのはパルス再生細骨材の表面だけであり、内部から水酸化カルシウムが溶出し、pHが上昇したことも考えられる。しかし、1回目の試験では72時間後にCURSの水面に炭酸カルシウムの膜が生成されていたが、2回目の試験ではどの試験区からも水面に膜の生成は認められなかった。すなわち、中性化によって膜の生成は抑えられたと考えられる。

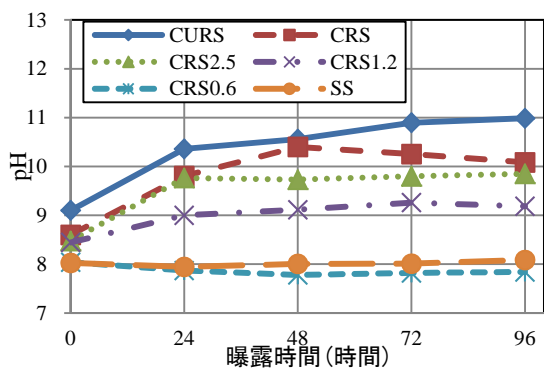


図 - 10 pHの推移

次に、図 - 11 に試験生物の生存個体数の推移を示す。

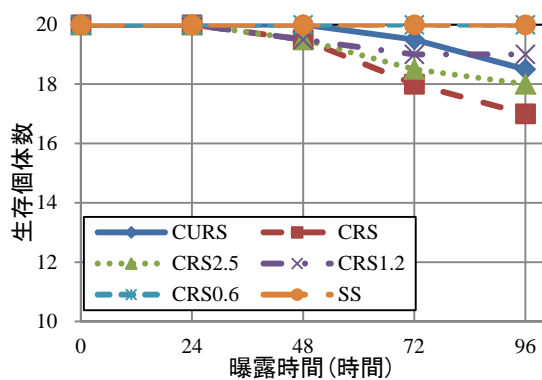


図 - 11 生存個体数の推移

1 回目の魚類急性毒性試験における生存個体数の推移(図 - 8)に比べ斃死数が低下した。これは、パルス再生細骨材を中性化させたことでpHの上昇が抑えられたためと考えられる。しかし、試験終盤で個体数が減少したCURS, CRS, およびCRS2.5の試験区においては、パルス再生細骨材の表面に炭酸カルシウムが析出し、白い

膜が形成されていた。それらが、アサリが潜るのを阻害し個体数が減少したと思われる。よって、比較的粒度の大きい2.5mm程度の再生細骨材を用いた魚類急性毒性試験では中性化後のパルス再生細骨材を用いてもアサリへの影響があった。

以上より、パルス再生細骨材の覆砂工への適用には、pHを低下させることは重要であった。また、比重分離を行わなかったパルス再生細骨材(CURS)は中性化後(CURS)においてもpHが上昇したため、比重分離は不可欠であった。比重分離によってpHは低下したが、粒径2.5mm以上のパルス再生細骨材を用いた試験区では、中性化前、および中性化後にpHの上昇、個体数の減少が確認された。よって、より効率よく軽量分を取り除くために比重分離方法の再検討は必要である。そして、pH上昇対策として中性化は有効であった。しかし、中性化後も関わらずpHが上昇した試験区があった。これは炭酸カルシウムが炭酸イオンとカルシウムイオンに分かれた事や、パルス再生細骨材の内部まで中性化していなかったためと考えられる。そのため、本実験では1週間程度の暴露試験を行ったが、中性化処理が不十分であった可能性もある。よって、長期間中性化したパルス再生細骨材を用いた検討も行う必要がある。また、高pHとなった試験区からは必ず炭酸カルシウムが析出し、パルス再生細骨材表面に膜が生成され、アサリの活動を阻害し個体数減少の原因となっていると考えられた。そのため、今回のアサリを用いた魚類急性毒性試験に限っては、試験区において炭酸カルシウムの析出の有無がパルス再生細骨材の生態への影響を測る指標として用いることができると考えられる。そして、今回の試験は魚類急性毒性試験(OECD TG203)の試験方法に従って実施したため、試験期間を96時間とした。しかし、パルス再生細骨材の覆砂代替材への適用を考えた場合、長期的なpHの変化、および生存個体数の変化も調べる必要がある。

4. 六価クロム溶出試験

パルス再生細骨材を覆砂材として用いることを想定すると、海中への有害物質の溶出を確認する必要がある。そこで、六価クロムに着目し、パルス再生細骨材からの六価クロムの溶出、および中性化が六価クロム溶出に与える影響を調べるために、土壌中重金属等の溶出量分析方法で試験を行った。尚、六価クロム溶出試験では、粒度調整後のパルス再生細骨材は用いらず、比重分離、および中性化後のものを用いた。溶出量分析方法(土壌環境基準、平成3年8月23日付け環境庁告示第46号に掲げる方法)は①ジフェニルカルバジド吸光光度法②フレーム原子吸光光度法、の2つの定量方法を用いた。六価クロム溶出試験結果を表 - 6 に示す。尚、六価クロムの評

価基準には、海洋汚染防止法（環告 14 号）を用いた。

表 - 6 六価クロム溶出試験結果

パルス再生細骨材の詳細	平均(mg/L)	環境基準 (mg/L)
比重分離前(URS)	① 0.03	0.5
	② 不検出	
比重分離後(RS)	① 0.03	
	② 不検出	
軽量分	① 0.05	
比重分離前中性化 (CURS)	① 0.10	
比重分離後中性化 (CRS)	① 0.09	

①ジフェニルカルバジド吸光光度法

②フレイム原子吸光光度法

いずれの試料からも六価クロムの溶出が認められたが、比重分離前、比重分離後、および軽量分から溶出された六価クロムは環境基準以下であった。しかし、中性化後の比重分離前、および比重分離後は共に六角クロムの溶出量は増加した。これは、コンクリート中で六価クロムをコンクリート中に固定しているセメント水和物のモノサルフェートの結晶構造が、中性化により破壊された事が要因と考えられる。よって、パルス再生細骨材への中性化によって六価クロム溶出は増加したが、環境基準は十分に満たしており、六角クロムの環境基準から見た場合、パルス再生細骨材の覆砂工への適用できる可能性が示唆された。しかし、六価クロム等の有害物質はアサリなど食用の生物に長期的に蓄積され、食する際に問題となる事も懸念される。よって、長期的な六価クロムの溶出も調べていく必要がある。

5. まとめ

本研究では、廃コンクリート排出量、および海域環境の回復、これら2つの問題を同時に解決するための方法として、パルス再生細骨材の覆砂工の代替材としての適用性を検討するためにOECDガイドラインに準拠した急性魚類毒性試験を実施した。その結果、以下の事が明らかとなった。

- (1) 比重分離によって軽量セメント分を除去し、比較的粒度の小さいパルス再生細骨材を用いる事でアサリの生存個体数への影響は少なかった。
- (2) pH 上昇対策として、パルス再生細骨材の中性化を行った結果、アサリの斃死数は低下した。しかし、pH が上昇した試験区があった。
- (3) パルス再生細骨材からの六価クロム溶出試験を行

った結果、比重分離前、比重分離後、および中性化前、中性化後それぞれの試料において環境基準は十分に満たしていた。

本実験の結果より、パルス再生細骨材の覆砂代替材への適用の可能性が示唆された。しかし、本試験で行った急性魚類毒性試験は96時間であったため、長期的なpHの変化や生存個体数の変化を調べる必要がある。また、六価クロムの溶出においても食用生物に長期的に貯蓄される可能性もあるため、今後は長期的な試験も行い、人工干潟造成等への適用に向けたデータの蓄積を図る必要がある。そして、パルス再生細骨材の覆砂工代替材への適用を詳細に検討していく。

参考文献

- 1) 国土交通省総合政策局：建設廃棄物品目別排出量平成 20 年度「建設副産物実態調査結果詳細データ（建設廃棄物）」、2010.3
- 2) 重石光弘, 浪平隆男ほか：パルスパワーによるコンクリートからの粗骨材の分離・回収, コンクリート工学年次論文集, vol.28, No.1, pp1475-1480, 2006.
- 3) 日本工業標準調査会：JIS A 5021「コンクリート用再生骨材 H」, 2005
- 4) 高木基志, 重石光弘ほか：「廃コンクリートより粗骨材を分離回収するためのパルスパワー出力の最適化に関する研究」, コンクリート工学年次論文集, Vol.30, No.2, 2008
- 5) 日本工業標準調査会：JIS A 5308「レディミクストコンクリート」, 2009
- 6) 日本工業標準調査会：JIS A 5023「再生骨材 L を用いたコンクリート」, 2006
- 7) 環境省, 有明海, 八代海総合調査委員会：「委員会報告」, 2006
- 8) 福岡県：「有明海再生に関する福岡県計画」, 1996
- 9) 熊本県：「有明海, 八代海再生に向けた熊本県計画」, オーム社, 1996
- 10) OCED GUIDELINE FOR TESTING OF CHEMICALS：「Fish, Acute Toxicity Test」, 1984
- 11) 秋山秀典：高電圧パルスパワー工学, オーム社, pp.36-38, 2003.12

謝辞

本研究は文部科学省グローバル COE プログラム「衝撃エネルギー工学グローバル先端拠点」の支援の下、JSPS 科研費 21510099, 24310058 の助成を受けて実施したものです。ここに感謝の意を表します。