

粘性土のコンシステンシー限界に及ぼす pH の影響

松下英次¹・山本哲朗²

¹大学院理工学研究科社会建設工学専攻

²社会建設工学科

間隙水の pH が粘性土のコンシステンシー限界に及ぼす影響を明らかにするために、12 種類の土試料を用い、硫酸、塩酸および水酸化ナトリウム水溶液によって、それらの pH を変化させた土試料について液・塑性限界試験を行った。その結果、pH とコンシステンシー限界の関係には、2 つのタイプがあることが分かった。一つは、黒礫スメクタイトのように、pH の増加とともにコンシステンシー限界も増加するタイプである。もう一つは、今市カオリナイトのように、コンシステンシー限界が初期の pH (以後、(pH)_i と称す) で最大になり、pH の増加または減少に従い、それらが減少するタイプである。両者の違いは粘土鉱物の違いと pH の変化によって生じる土粒子の凝集・分散現象によって説明することができる。

Key Word: Clay, Consistency limit, pH

1. まえがき

粘土の諸物理的・力学的性質は粘土鉱物の種類はもとより、間隙水の pH、イオンの種類および濃度によってかなり変化することが知られている。周知のように、酸性雨の問題が提起されて久しくなるが、近年、それは地盤環境工学の立場から間隙水の pH の変化に伴って土の諸物性値がどのように変化するかを明らかにする研究が増えつつある。

ここでは最初にそれらの研究の概要を紹介し、その後本研究の目的を述べる。

Olso¹⁾は陽イオンの種類、pH の異なるカオリナイト、イライトおよびモンモリロナイトに対して静的三軸圧縮試験を行い、粘土の工学的特性は粒子間の物理的もしくは化学的相互作用により異なることを明らかにした。

亀井ら^{2), 3), 4)}は土の酸性化が、土の諸物理的性質および静的強度・変形特性に大きな影響を及ぼすことを報告している。

佐野ら⁵⁾は現場で採取した未だ酸性化していない土を室内で所定の期間保存し、徐々に酸性化させた土に対してコンシステンシー限界試験を行った。この結果

酸性化を呈する土の pH の推移には、経過日数と温度が関与し、コンシステンシー限界と pH が密接な関係にあることを明らかにしている。

Torrancer ら⁶⁾は塩酸を用いて pH を調整したラダ粘土の降伏応力を測定し、pH の減少に伴って降伏応力が減少することを明らかにした。さらに、pH が減少するにつれて液性限界は増加するものと、pH が 5.0 ~ 6.0 で最大となるものの 2 つのタイプがあることを示した。

山本ら^{7), 8)}は土の繰返しせん断強度に及ぼす pH の影響を調べた。その結果、土の繰返しせん断強度は pH の変化によって生じる土の骨格構造と密接な関係にあると述べている。

著者らは土の力学的性質の推定や工学的分類に利用され、細粒土の物理的・工学的性質を表わす重要な指標であるコンシステンシー限界に着目し、酸性雨の主成分である硫酸、塩酸、さらに水酸化ナトリウムを用いて土の pH を人工的に変化させた際、土のコンシステンシー限界がどのように変わるかを明らかにすることを目的とした実験を行った。実験では粒度分布、鉱物組成等の異なる 12 種類の粘性土が用いられた。以下、実験に用いた土試料、実験方法および結果につ

Table 1 Physical Properties of samples

	G_s	D_{50} (mm)	D_{max} (mm)	w_L (%)	w_P (%)	I_P	F_{clay} (%)	FC (%)	Classi- sifi- cation	(pH) _i
Daido clay (Yamaguchi)	2.570	0.007	0.250	55.5	24.7	30.8	45.0	87.1	CH	6.8
Annaka bentonite (Gunma)	2.400	0.005	0.032	375.8	33.4	342.4	59.7	100	CH	10.6
Kobe clay (Hyougo)	2.614	0.005	0.850	56.0	22.9	33.1	50.0	98.0	CH	4.8
Syoubara clay (Hiroshima)	2.681	0.005	0.075	55.1	31.7	23.4	50.0	100.0	CH	4.3
Ubemisaki clayey soil (Yamaguchi)	2.598	0.009	0.250	46.6	26.1	20.5	17.0	96.1	CL	7.4
Ubemisaki diluvial clay (Yamaguchi)	2.580	0.027	2.000	69.0	43.5	25.5	18.5	93.8	CH	7.8
Kuroiso smectite (Tochigi)	2.792	0.005	0.032	1073	88.0	985.0	51.4	100	CH	9.7
Imaichi kaolinite (Tochigi)	2.513	0.008	0.048	49.3	33.2	14.1	40.1	100	ML	7.9
Syoubara dickite (Hiroshima)	2.609	0.005	0.032	43.3	33.6	9.7	41.8	100	ML	7.5
Syoubara pyrophyllite (Hiroshima)	2.772	0.005	0.032	48.4	33.6	14.9	46.8	100	ML	7.5
Nabeyama sericite (Shimane)	2.750	0.014	0.128	58.8	34.4	24.4	16.1	97.2	CH	9.4
Nabeyama cleavage sericite (Shimane)	2.773	0.009	0.032	104.8	51.5	53.3	20.3	100	CH	9.3

Table 2 Mineral composition of each soil identified by X-ray diffraction test

	Clay minerals	Others
Daido clay	Kaolinite	Alkali feldspar, Gypsum, Quartz
Bentonite	Montmorillonite	Clinoptilolite, Mordenite, Quartz
Kobe clay	Muscovite, Smectite, Kaolinite	Pyrophyllite, Quartz
Syoubara clay	Halloysite, Biotite, Talc	Quartz
Ubemisaki clayey soil	Illite, Biotite, Kaolinite	Gypsum, Quartz
Ubemisaki diluvial clay	Phlogopite, Kaolinite	Gypsum, Quartz
Kuroiso smectite	Montmorillonite	Quartz
Imaichi kaolinite	Kaolinite	Pyrophyllite, Quartz
Syoubara dickite	Dickite	Quartz
Syoubara pyrophyllite	Pyrophyllite	Quartz
Nabeoka sericite	Sericite	Calcite, Quartz
Nabeoka cleavage sericite	Sericite	Calcite, Quartz

いて順次述べる。

2. 土試料および pH 調整薬品

土試料として 12 種類の粘土、すなわち大道粘土、

安中ベントナイト、神戸粘土、庄原粘土、宇部岬粘性土、宇部岬洪積粘土、黒磯スメクタイト、今市カオリナイト、庄原ディッカイト、庄原パイロフィライト、鍋山セリサイトおよび鍋山劈開セリサイトを用いた。このうち前者 6 つの土試料はそれぞれの現場から採取

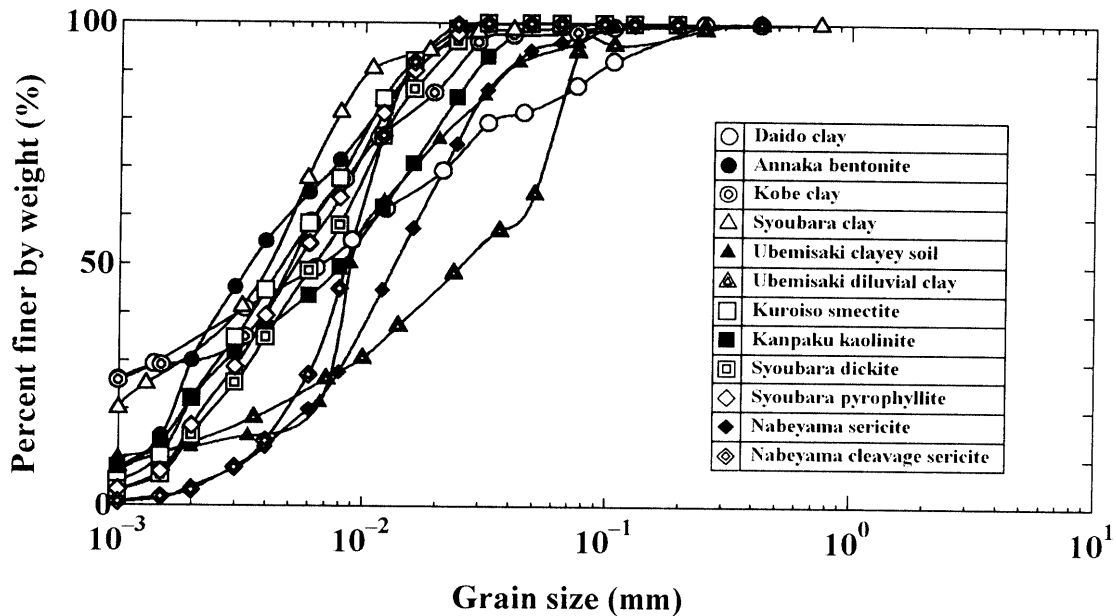


Fig.1 Grading curves of samples

したものである。また、後者の6つの土試料はそれぞれを採取している鉱山から購入したものである。これらの物理定数および主要含有鉱物をそれぞれ Tables 1, 2 に示す。また粒径加積曲線を Fig.1 に示す。これらの土試料は、液性限界・塑性限界試験を行うため、 $425\mu\text{m}$ ふり通過分として得られたものである。このうち大道粘土、神戸粘土、庄原粘土、宇部岬粘性土および宇部岬洪積粘土の粒度試験については、通常の土質試験法⁹⁾に従って行ったが、安中ベントナイト、黒磯スメクタイト、今市関白カオリナイト、庄原ディッカイト、庄原パイロフィライト、鍋山セリサイトおよび鍋山劈開セリサイトについては、通常の土質試験法に従うと土粒子の分散性が悪いため、レーザー回折粒度分布測定装置 (PRO-7000S 型) を用いて行った。

土試料の pH 調整薬品には硫酸、塩酸および水酸化ナトリウムを用いた。

3. 実験方法

土試料の液性限界試験および塑性限界試験は、土質試験法⁹⁾に準じて行った。まず、蒸留水を用いてこれらの試験を行い、その後、pH を増減させるため蒸留水にそれぞれ水酸化ナトリウム、硫酸あるいは塩酸を加えた所定の水溶液を用いてこれらの試験を行った。pH の測定には pH メーター ((株)堀場製作所製) を用いた。

4. 結果および考察

Figs. 2(a) ~ (d) にそれぞれ大道粘土、安中ベントナイト、黒磯スメクタイト、今市カオリナイトの液性限界 w_L 、塑性限界 w_p および塑性指数 I_p と pH の関係を示す。

まず、これらの図から分かるように (pH)_i より酸性側では、すべての試料において pH の減少に伴い液性限界が明瞭に減少している。この原因は、硫酸または塩酸を加えることにより、粘土粒子の pH の影響を受けない負の永久荷電によって形成される拡散電気二重層が減少することにより粒子間の反発力減少する^{10), 11)}。これによって、粒子間距離が小さくなり、粒子間距離に反比例する London-van der Waals 引力および正に帯電する pH 依存荷電と負の永久荷電との引力によって粘土粒子はあたかも大きな土粒子のように凝集する^{10), 11)}。また一般的に、酸濃度を増加させることによって比表面積は増加するといわれている¹⁰⁾。比表面積の増加は粒径が大きくなることを意味している。液性限界は、一般的に土粒子が大きくなるとその値は小さくなることから、(pH)_i より酸性側では、上述した2つの原因によって土粒子の粒径が大きくなり液性限界が減少したものと考えられる。

次に、(pH)_i よりアルカリ性側では、大道粘土、庄原粘土、今市カオリナイト、庄原ディッカイト、庄原パイロフィライトのように pH が増加するに従い、液性限界が減少するもの (タイプA) と、安中ベントナイト、神戸粘土、宇部岬粘性土、宇部岬洪積粘土、黒

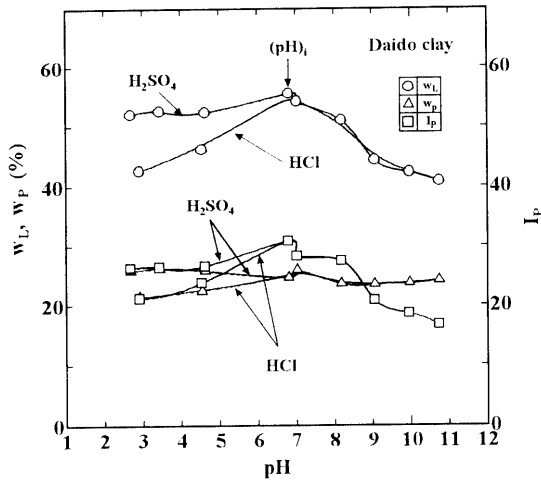


Fig.2(a) Relationship between consistency limit and pH for Daidou clay

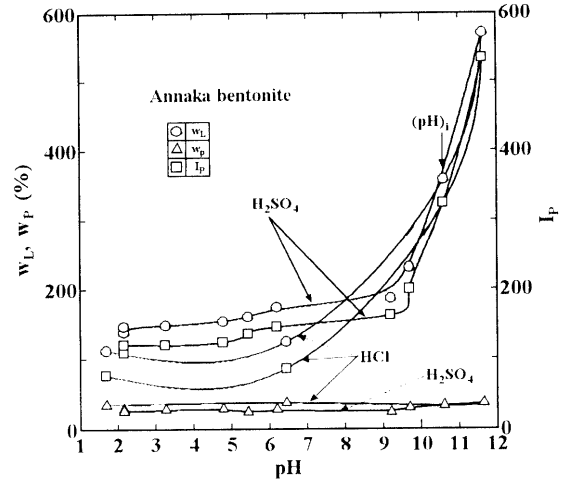


Fig.2(b) Relationship between consistency limit and pH for Annaka bentonite

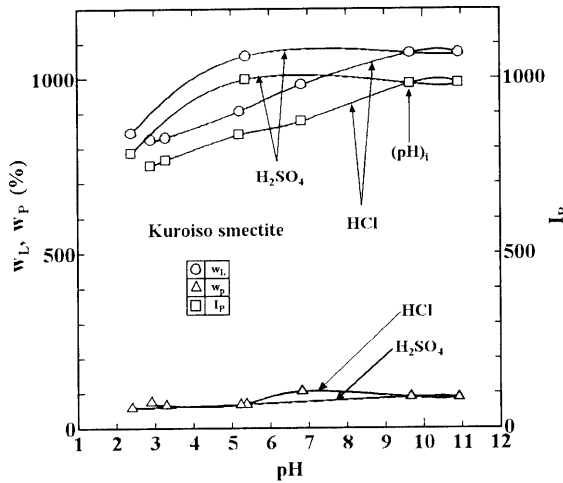


Fig.2(c) Relationship between consistency limit and pH for Kuroiso smectite

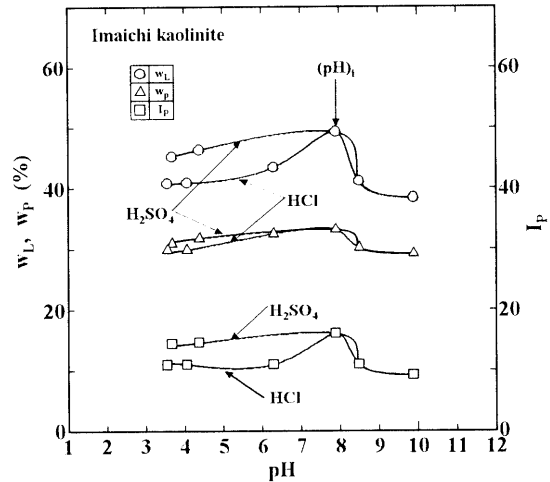


Fig.2(d) Relationship between consistency limit and pH for Imaichi kaolinite

磯スメクタイト、鍋山セリサイト、鍋山劈開セリサイトのように pH が増加するに従い液性限界も増加するもの(タイプB)の2種類の傾向を示した。この原因として、酸性側とは逆に粘土粒子の分散および比表面積の減少による影響と粘土粒子の分散による土粒子間反発力の影響が考えられる。前者が卓越した場合、酸性側と逆の原因で液性限界は増加すると考えられる。しかし、後者が卓越した場合、土粒子間の結合力が失われて流動性が増し、液性限界を減少させると考えられる。タイプAでは、後者が卓越したと考えられる。これらに対して、タイプBでは、前者が卓越したと考えられる。また、Table 2 に示した主要含有鉱物を見てもタイプAには、pH 依存荷電より永久荷電の方が大きい、その大きさを無視できないカオリナイトのような 1:1 型鉱物やパイロフィライトのような

一部の 2:1 型鉱物が含まれている^{10), 11)}。これに対してタイプBは、pH 依存荷電より永久荷電の方がはるかに大きくなるスメクタイトや雲母系鉱物のような大部分の 2:1 型の鉱物が含まれている^{10), 11)}。このように pH 依存荷電の影響の大小によってアルカリ性側で pH の変化による液性限界の変化に 2 つの傾向が現れたものと考えられる。

Figs. 3(a), (b) はそれぞれ上述した 2 つのタイプの pH~w_l 関係を w_l/(w_l)_i に整理し直した図である。ここで(w_l)_i は (pH)_i での液性限界である。Fig. 3(a)における今市カオリナイトおよび庄原粘土の結果、さらに Fig. 3(b)における安中ベントナイトの結果を除けば各土試料の w_l/(w_l)_i~pH 関係は 2 つのタイプとも似たものとなっている。

Figs. 2(a)~(d)に見られるように、多くの土試料

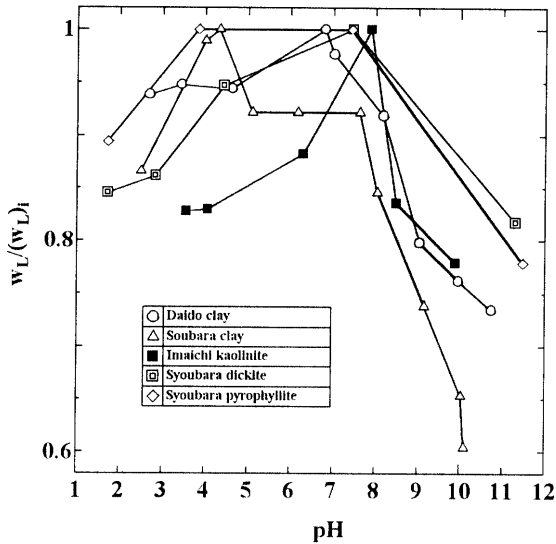


Fig.3(a) Relationship between $w_L/(w_L)_i$ and pH for type A of samples

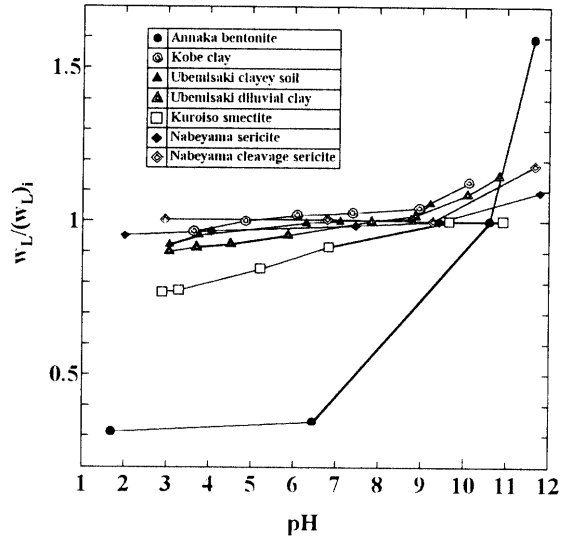


Fig.3(b) Relationship between $w_L/(w_L)_i$ to pH for type B of samples

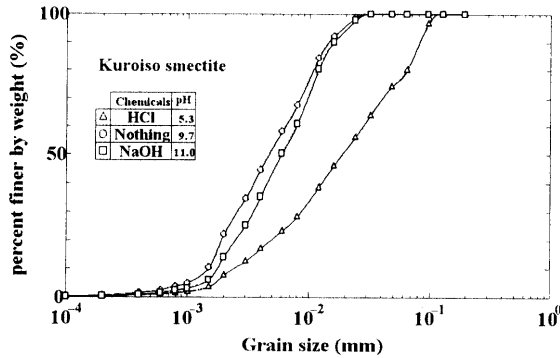


Fig.4(a) Grading curves of Kuroiso smectite for different pH

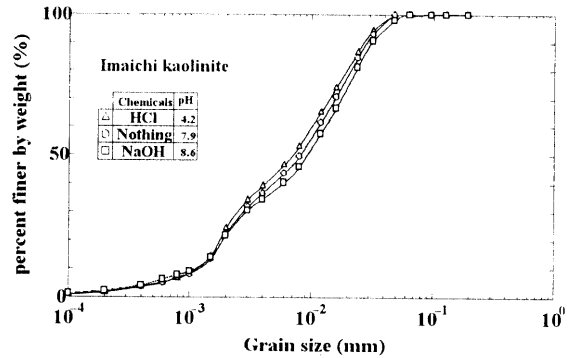


Fig.4(b) Grading curves of Imaichi kaolinite for different pH

において、硫酸で pH を低下させたときの液性限界は、塩酸で pH を低下させたときの液性限界よりも大きくなった。

pH の変化による塑性限界および塑性指数の変化もその度合いは違うものの液性限界とほぼ同様の傾向を示した。

次に、純粋な粘土である黒磯スメクタイト、今市関白カオリナイト、庄原ディッカイト、庄原パイロフィライト、鍋山セリサイトおよび鍋山劈開セリサイトに塩酸および水酸化ナトリウムを加えた土試料について粒度試験、密度試験およびX線回折試験を行った。Figs. 4(a), (b)にそれぞれ黒磯スメクタイトおよび今市カオリナイトの粒径加積曲線を示す。Fig. 4(a)から、黒磯スメクタイトの粒度分布は、現状と水酸化ナトリウムを加えた土試料とはほとんど変化は見られないが、塩酸を加えた試料で粒径の大きなものが増加している。この原因として、前述した液性限界の結果と同

様、土粒子が凝集し、これを分散剤によって分散させようとしたが、凝集力が大きかったために、完全に分散しきれなかったためと考えられる。この他の土試料は Fig. 4(b)の今市カオリナイトの場合のように、塩酸あるいは水酸化ナトリウムの添加によって粒度は変化していない。

また、塩酸あるいは水酸化ナトリウムによって密度に顕著な差は見られなかった。さらに主要含有鉱物にも変化は見られなかった。

これらのことから、黒磯スメクタイト、今市カオリナイト、庄原ディッカイト、庄原パイロフィライト、鍋山セリサイトおよび鍋山劈開セリサイトでは、塩酸および水酸化ナトリウムの添加によって化学反応などを発生していないと考えられる。

粒度試験では分散剤を用いているため、液性限界の時に見られるような土粒子の凝集および分散は見られない。そこで、簡易的な方法で分散および凝集を調

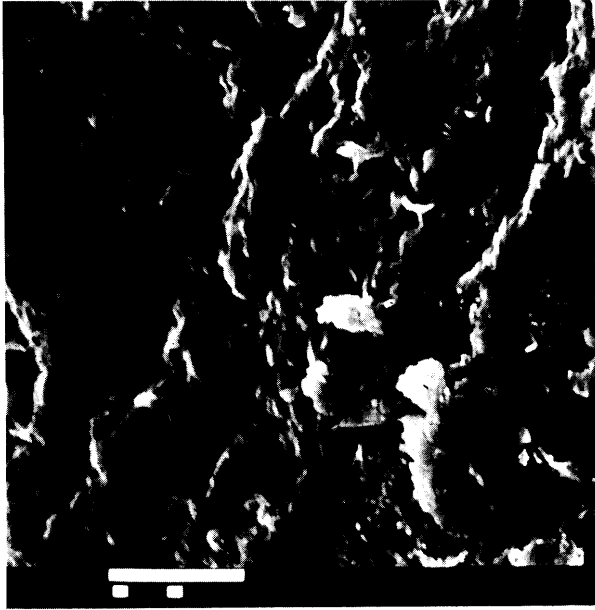
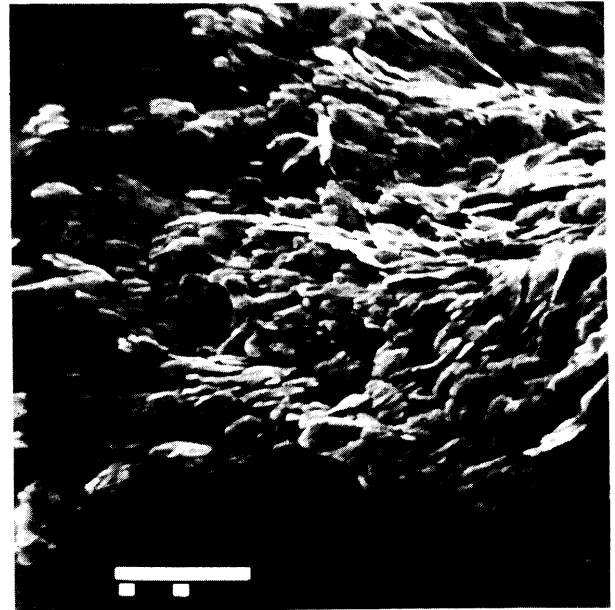
Photo.1(a) Kuroiso smectite (H₂SO₄)

Photo.1(b) Kuroiso smectite (HCl)

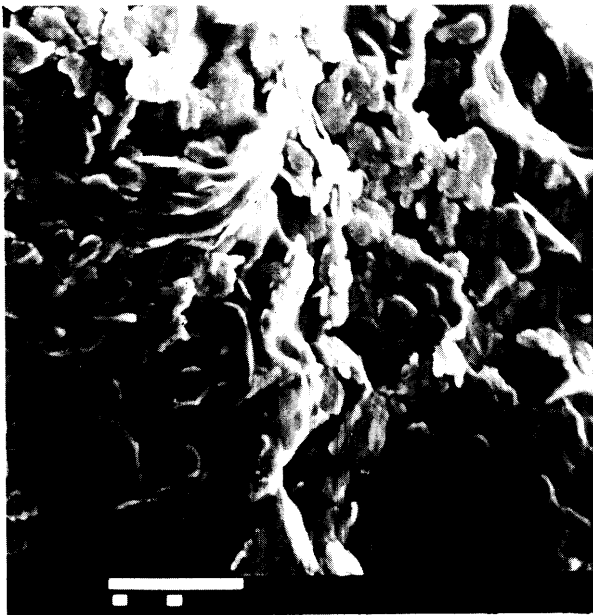


Photo.1(c) Kuroiso smectite (Nothing)

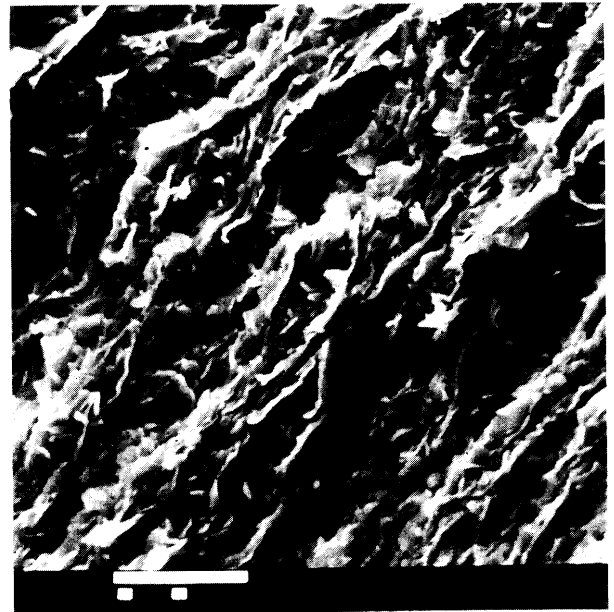


Photo.1(d) Kuroiso smectite (NaOH)

べることにした。すなわち、500ml のビーカーに蒸留水を満たして少量の試料を加えて沈降状況を見るものである。この試験には、黒礫スメクタイトおよび今市カオリナイトを用いた。その結果、両者とも塩酸試料で最も沈降が早く、次いで初期の試料となり、水酸化ナトリウム試料で最も沈降が遅かった。これらのことから、塩酸試料では凝集を起こし、水酸化ナトリウム試料では分散を起こしていると考えられる。

黒礫スメクタイトおよび今市カオリナイトを硫酸、塩酸、水酸化ナトリウム水溶液および蒸留水によって

液性限界付近の含水比で繰り返した試料の SEM 写真を撮影した。Photos. 1(a)~(d)、Photos. 2(a)~(d)にそれぞれ黒礫スメクタイトおよび今市カオリナイトの結果を示す。ここで、拡大率は、黒礫スメクタイトで 2500 倍、今市カオリナイトで 4500 倍である。まず、黒礫スメクタイトの蒸留水による試料と硫酸および塩酸による試料を比較すると、硫酸および塩酸による試料で間隙が小さくなっていることが分かる。これは、酸性側に移行することによる土粒子の凝集の影響と考えられる。一方、水酸化ナトリウムによる試料では配

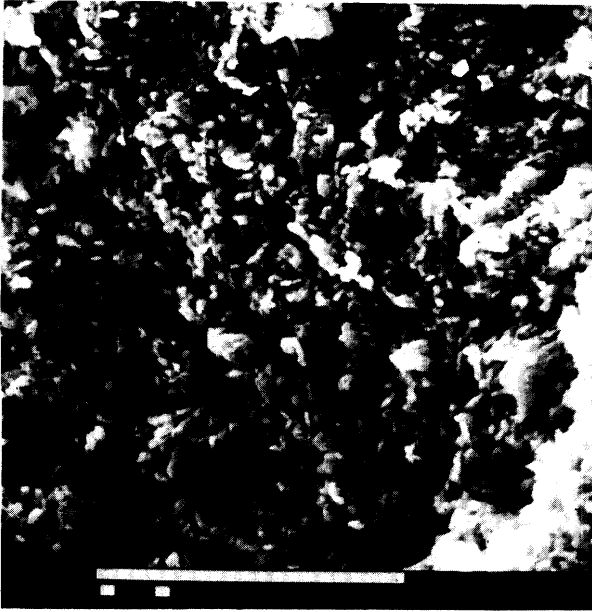
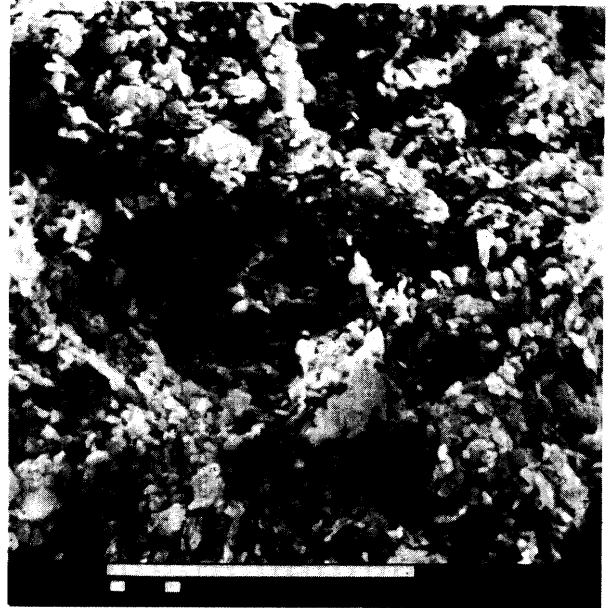
Photo.2(a) Imaichi kaolinite (H_2SO_4)

Photo.2(b) Imaichi kaolinite (HCl)

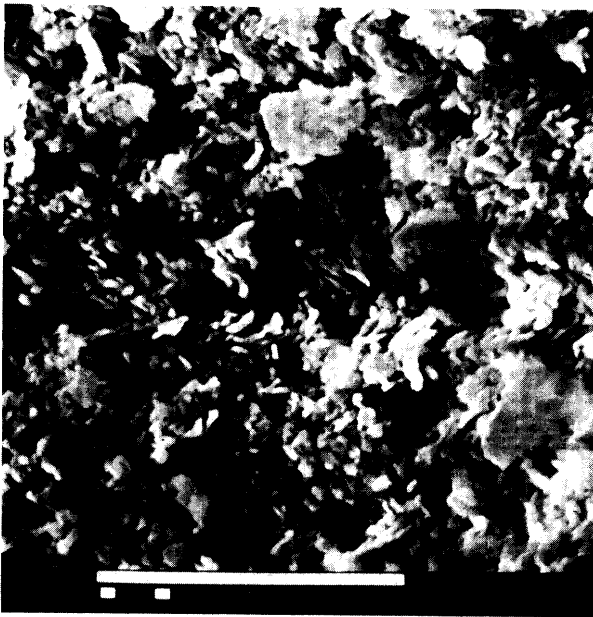


Photo.2(c) Imaichi kaolinite (Nothing)

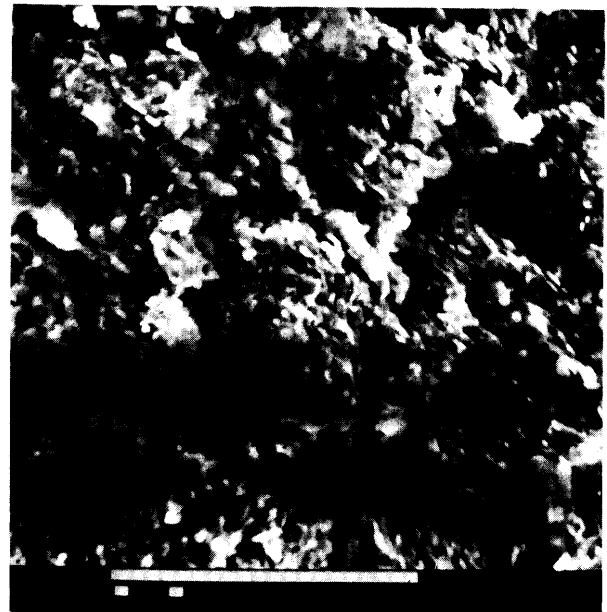


Photo.2(d) Imaichi kaolinite (NaOH)

向構造を形成している。これは、アルカリ側に移行することによって拡散電気二重層が発達し、土粒子が分散した結果であると考えられる^{9),10)}。今市カオリナイトについては、黒礫スメクタイトほど土粒子構造には顕著な差は現れていないが、同様の傾向を示しているように思われる。

5. まとめ

本研究で得られた結果をまとめると次のようにな

る。今回用いた 12 種類の粘性土について、pH がコンシステンシー限界に大きな影響を与え、その影響の仕方には 2 つのタイプがあることが明らかになった。その 1 つは、タイプ A の今市カオリナイトのようにコンシステンシー限界が初期の pH ($(pH)_i$) で最大となり、pH が増加または減少するに従い減少する。もう一つは、タイプ B の黒礫スメクタイトのように、pH の増加とともにコンシステンシー限界も増加する。この原因として、 $(pH)_i$ より酸性側では、粘土粒子の凝集および比表面積の増加による影響と考えられる。 $(pH)_i$

よりアルカリ性側では、粘土粒子の分散および比表面積の減少による影響と粘土粒子の分散による土粒子間反発力の影響が考えられる。前者が卓越した場合、酸性側と逆の原因で液性限界は増加すると考えられる。しかし、後者が卓越した場合、土粒子間の結合力が失われて流動性が増加し、液性限界を減少させると考えられる。これら2つの傾向は、粘土の主要含有鉱物の違いによって起こると考えられる。

多くの土試料において、硫酸で pH を低下させたときの液性限界は、塩酸で pH を低下させたときの液性限界よりも大きくなった。

土試料の物理試験およびX線回折試験を行ったが、pH の変化に伴う土粒子の大きさや鉱物組成に顕著な差異は見られなかった。ただ、pH=5.3 の黒磯スメクタイトでは、pH=9.7 および pH=11.0 に比べて土粒子が大きくなった。

今後、さらに多くの試料に対し同様の試験を行い、pH とコンシステンシー限界の関係を明らかにする予定である。

最後に、実験を手伝ってくれた岩井 勝君に感謝を表します。

参考文献

- 1) Olso, R. E. : Shearing Strengths of Kaolinite, Illite, and Montmorillonite. Journal of the Geotechnical Engineering Division, ASCE, Vol.100, No. GT11, pp.1215~1229, 1974.
- 2) 亀井健史, 佐野博昭: ベントナイトの工学的特性に及ぼす水素イオン濃度指数の影響, 地すべり, 第30巻, 第2号, pp.30~40, 1993.
- 3) 亀井健史, 佐野博昭: 水素イオン濃度指数の違いがベ

- ントナイトのせん断特性に及ぼす影響, 地すべり, 第31巻, 第3号, pp.37~42, 1994.
- 4) 亀井健史, 佐野博昭: 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, No.517, III-31, pp.189~196, 1995.
- 5) 佐野博昭, 山田幹雄, 大田 実, 能澤真周: 酸性移行を呈するコンシステンシー限界について, 土木学会第52回年次学術講演会概要集, pp.10~11, 1997.
- 6) Torrance, J.K. and Pirnat, M.: Effect of pH on the Rheology of Marine Clay from the Site of the South Nation River, Canada, Landslide of 1971, Clays and Clay Minerals, Vol.32, No.5, pp.384~390, 1984.
- 7) 山本哲朗, 畑岡直樹, 真鍋 浩: 水素イオン濃度指数の宇部岬粘性土の繰返しせん断強度に及ぼす影響, 第31回地盤工学研究発表会講演概要集, pp.1323~1324, 1996.
- 8) 山本哲朗, 畑岡直樹, 松下英次: 庄原粘土の繰返しせん断強度に及ぼす水素イオン濃度指数の影響, 第32回地盤工学研究発表会講演概要集, pp.827~828, 1997.
- 9) 土質工学会: 土質試験の方法と解説, 1990.
- 10) 岩田進午, 喜田大三監修: 土の環境圏, (株)フジ・テクノシステム, 1997.
- 11) 土質工学会: 粘土ハンドブック第二版技報堂出版, 1987.
- 12) 土質工学会: 土質工学用語辞典, 1985.

(1997.10.15 受理)

EFFECT OF pH ON CONSISTENCY LIMIT OF CLAYEY SOILS

Eiji MATSUSHITA and Tetsuro YAMAMOTO

Consistency limit tests were performed on twelve clayey soil samples in order to clarify the effects of pore water pH on consistency limits of clayey soils. H_2SO_4 , HCl and NaOH solutions were used to adjust the pH value. It was found from the tests that there are two relationships between pH and the liquid limit w_L . One is that w_L increased with increasing pH such as in the case of Kuroiso smectite. The other is that w_L increased to maximum level at an initial pH and decreased with increasing or decreasing pH such as in the case of Imaichi kaolinite. These results could be due to flocculation or dispersion of soil particles induced by the differences in pH value and clay minerals.