

pH が異なる土懸濁液の沈降・堆積特性

笹西 孝行 (社会建設工学専攻)

鈴木 素之 (社会建設工学科)

山本 哲朗 (社会建設工学科)

Sedimentation characteristic of soil suspension under condition of different pHs

Takayuki SASANISHI (Graduate school of science and engineering)

Motoyuki SUZUKI (Department of civil engineering)

Tetsuro YAMAMOTO (Department of civil engineering)

In order to clarify the influence of pH on the sedimentation characteristic of a soil suspension, sedimentation analyses were performed on 5 soil samples of which pH values were artificially changed by adding sulfuric acid or sodium hydroxide solutions. There exists a liner relationship between the thickness of sediment and the effective depth of soil suspension. Therefore the sedimentation characteristic can be evaluated by the effective depth. Also, settling velocity seems to be dependent on the pH, clay fraction and a kind of main clay mineral. This phenomenon may be induced by the difference of electric charge on surface of soil particles due to the pH of solution.

Key Words: pH, cohesive soil, sedimentation, suspension

1. はじめに

様々な要因によって地盤環境の化学的性質は多種多様に変化している。その素因として火山活動や土の鉱物から流出する化学物質などによる変化が、その誘因として人為的要素には酸性雨による汚染や地盤安定処理やコンクリートの打設などの土木事業による化学物質の流入などが挙げられる¹⁾。

このような地盤環境の化学的性質の変化は地盤を構成する土の土粒子間力に影響を与える。土粒子間に作用する界面化学的作用が異なり、それに応じて異なる大きさの引力と斥力が作用する。土粒子間に作用する引力には比較的弱い力で普遍的に作用するファン・デル・ワールス力がある。一方、斥力にはイオンの種類や濃度によって影響範囲が異なる拡散電気二重層に起因した電気力がある。周辺の条件によって引力と斥力として作用する pH 依存電荷がある。その簡単なメカニズムを Fig.1 に示す。周辺部の条件とは間隙水の水素イオン濃度の変化であり、土粒子表面から水素イオンが解離あるいは結合することによる。それによって電荷が変化するため pH の違いによって引力と斥力が生じるというものである¹⁾⁻³⁾。

このように地盤土の化学的性質の変化は、土の骨格

構造の形成に影響を与え、河川の三角洲や埋め立て地盤など土の骨格が形成されて間もない若い正規圧密土地盤の工学的性質を強く支配するものと考えられる。間隙水の化学的性質の違いに土粒子の堆積状況の変化を明らかにすることは、工学的に重要である。

本文では間隙水の化学的性質を示す指標として一般に用いられる pH に着目し、硫酸および水酸化ナトリウムにより pH を人工的に変化させた 5 種類の粘性土を対象にして、土懸濁液の沈降・堆積挙動に及ぼす pH の影響について検討したものである。

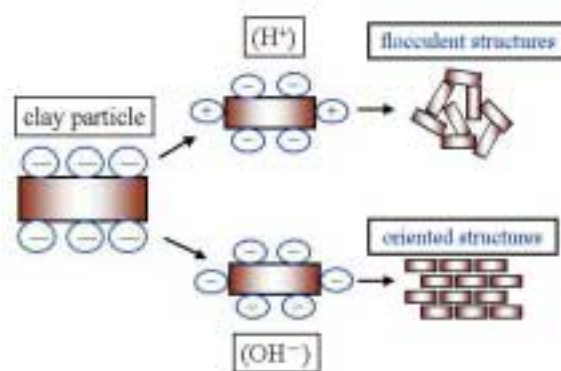


Fig.1 Model of electric charge on clay particle

2. 既往の研究

間隙水の pH の違いによりコンシステンシー特性や強度・変形特性が大きく異なることが報告されている⁴⁾。松下ら⁵⁾はコンシステンシー限界と pH の特異な関係を明らかにし、pH の違いが土粒子表面の電荷を変化させ、その結果として含水比変化に伴う流動特性や圧密過程で形成される土の骨格構造が変化することを示唆している。一方、土懸濁液は分散・凝集の理論で説明される⁶⁾。分散系は分散相と分散媒より成る。この場合、分散相は固体(土粒子)、分散媒は液体(水)である。分散は分散相の粒径の範囲によって、コロイド(数 nm ~ 0.1 μm)あるいはサスペンション(0.1 μm ~ 数 10 μm)と呼ばれる。サスペンション(懸濁液)の場合、ストークスの式で表わされる沈降速度の方がブラウン運動の効果よりも大きいと土粒子同士の凝集や沈降が起こる。大坪ら⁷⁾は海成粘土の海水準変動による塩分環境の変化に着目し、塩分濃度の変化が工学的性質に及ぼす影響を、粘土粒子のコロイド化学的性質により明らかにしている。しかし、土懸濁液が沈降した直後の低拘束圧・高含水比状態において形成された土の骨格構造がどのように pH によって変化するのか明らかにされていない。

3. 試料および実験方法

(1) 試料の物理的性質および化学的性質

試料はカオリン粘土、大道粘土、山陽粘性土、宇部岬粘土および本由良粘土の 5 種類である。Table 1 に試料の物理的性質および化学的性質を示す。ここで、カオリン粘土および大道粘土の粒度試験では土粒子の分散が良好でないため、レーザー回折粒度分布装置⁸⁾を用いて求めている。試料の物理的性質をまとめると、 $w_L = 35.0 \sim 110.6\%$ 、 $w_P = 21.8 \sim 42.8\%$ 、 $I_P = 13.2 \sim 67.8$ 、 $D_{50} = 0.003 \sim 0.036$ mm、 $F_{clay} = 25.0 \sim 96.8\%$ 、 $F_c = 56.3 \sim$

97.7 % である。カオリン粘土、大道粘土および宇部岬粘土は CH、山陽粘性土は ML、本由良粘土は CL に分類される。試料の化学的性質をみると初期の pH(以下、 $(pH)_i$ とする)は、カオリン粘土の場合 6.8、大道粘土の場合 6.5 および宇部岬粘土の場合 7.8 でほぼ中性であり、山陽粘性土の場合 4.8 で酸性であり、本由良粘土の場合 8.6 でアルカリ性である。

不定方位試料を用いた粉末 X 線回折試験結果によると、主要粘土鉱物はカオリン粘土、大道粘土および山陽粘性土の場合カオリナイト、宇部岬粘土の場合イライトおよび本由良粘土の場合スメクタイトであり、5 試料ともにその他の鉱物として石英を含んでいることを確認している。

(2) 実験方法

pH 調整薬品として $(pH)_i$ より酸性側に变化させるときは硫酸、アルカリ性側に变化させるときは水酸化ナトリウムを用いる。この pH 調整薬品を純水に加え、所定の濃度に調整した水溶液を作製する。試料の含水比が $(pH)_i$ における液性限界の約 1.5 ~ 2.0 倍となるように pH 調整薬品の水溶液を加え攪拌してスラリー状¹³⁾にし、1 日間放置する。その後、pH メーターを用いて所定の pH になっていることを確認する。このとき、pH が所定の値に達していない場合には含水比を調整しながら pH 調整薬品を加えた水溶液をさらに加えて pH を再調整する。逆に試料の pH が所定の pH を超えた場合は $(pH)_i$ の試料を加えて pH を再調整する。なお、 $(pH)_i$ の試料を作製する場合は pH 調整薬品を加えた水溶液の代わりに純水を用いる。このようにして pH 調整を行ったスラリー試料から炉乾燥質量が 50 g となる試料を取り出し、沈降分析を行う。ここで留意すべき点は、すべての試料において塑性指数 I_p が 20.0 以上であるので、作製したスラリー試料に過酸化水素水 6 % 溶液を 100 ml 加えた後、分散剤を 10 ml 加えることが地盤工学会基準¹⁰⁾に定められているが、今回の実験で

Table 1 Physical and chemical properties and mineral composition of soil samples

Soil sample	Kaolin	Daido	Sanyo	Ubemisaki	Honyura
ρ_s (g/cm ³)	2.618	2.602	2.671	2.598	2.568
D_{50} (mm)	0.007	0.011	0.036	0.008	0.018
D_{max} (mm)	0.2	0.2	2.0	0.9	0.9
w_L (%)	62.0	57.2	49.7	59.5	35.0
w_P (%)	40.2	23.5	27.9	30.5	21.8
I_P	21.8	33.7	21.9	29.0	13.2
F_{clay} (%)	96.8	25.0	33.8	45.3	32.2
F_c (%)	97.7	94.0	56.3	96.6	74.6
$(pH)_i$	6.8	6.5	4.8	7.8	8.6
Soil classification	CH	CH	ML	CH	CL
Dominated clay mineral	Kaolinite	Kaolinite	Kaolinite	Illite	Smectite

5 min 15 min 30 min 60 min 120 min 180 min 240 min 1440 min 5 min 15 min 30 min 60 min 120 min 180 min 240 min 1440 min

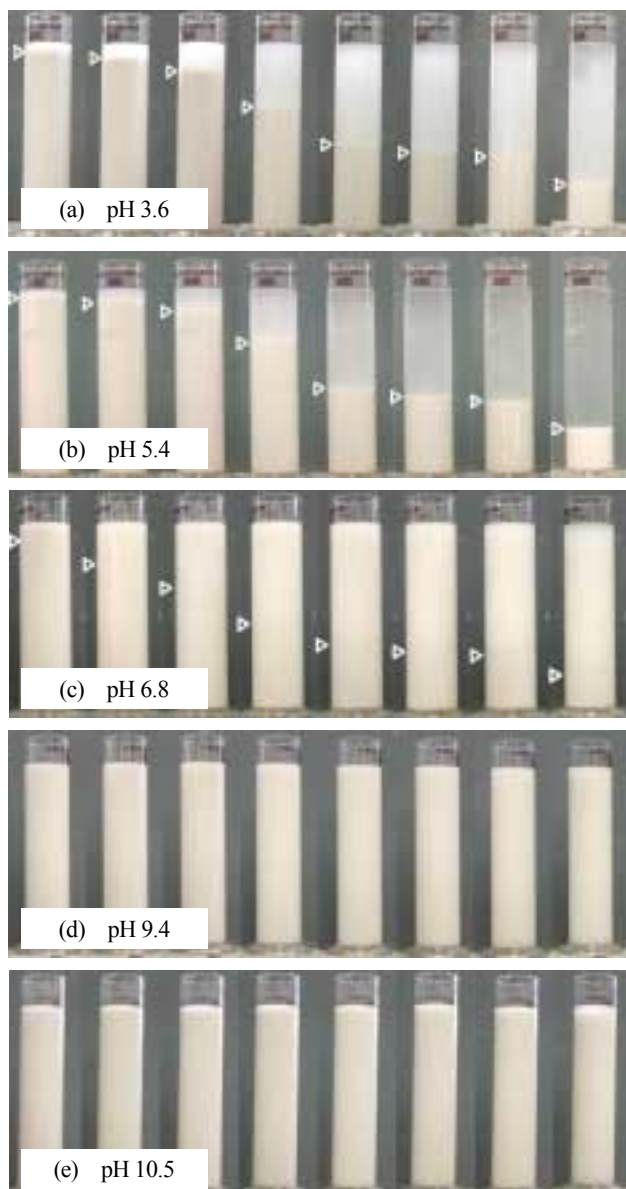


Photo.1 Kaolin

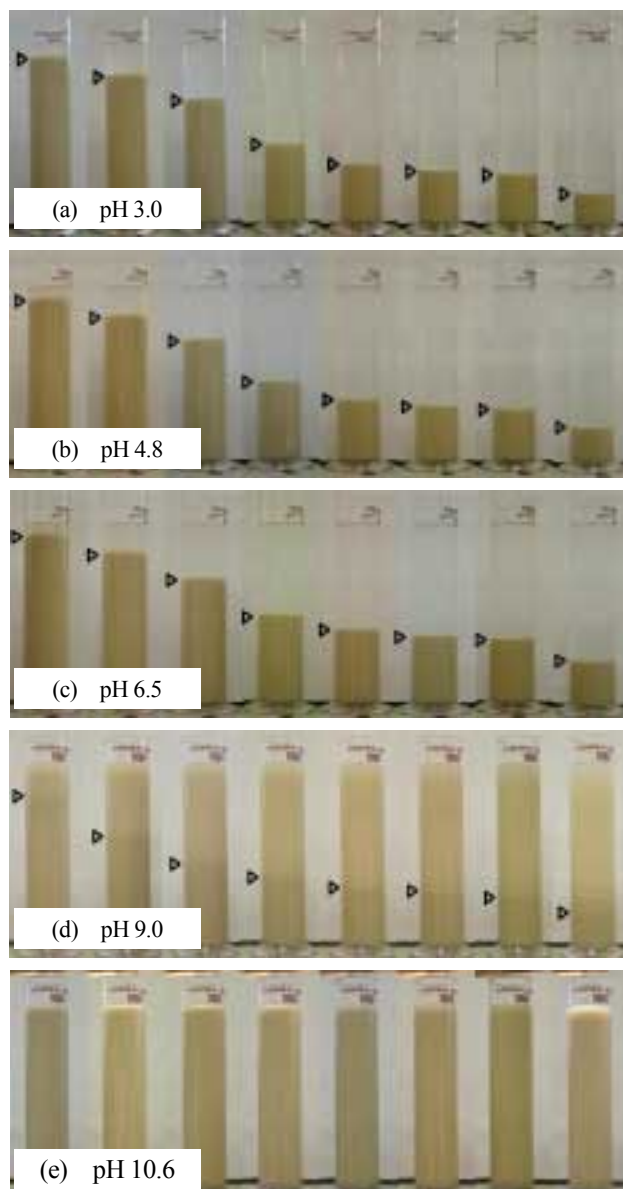


Photo.2 Daido

は pH による沈降の変化に着目したため、これらの操作を行っていない点である。また、均一な懸濁液にするために、攪拌時間を基準よりも長い 5 分間行う。その他の操作については地盤工学会で定められた手順で行う。

4. pH が異なる土懸濁液の沈降・堆積特性

(1) pH が異なる場合の沈降状況

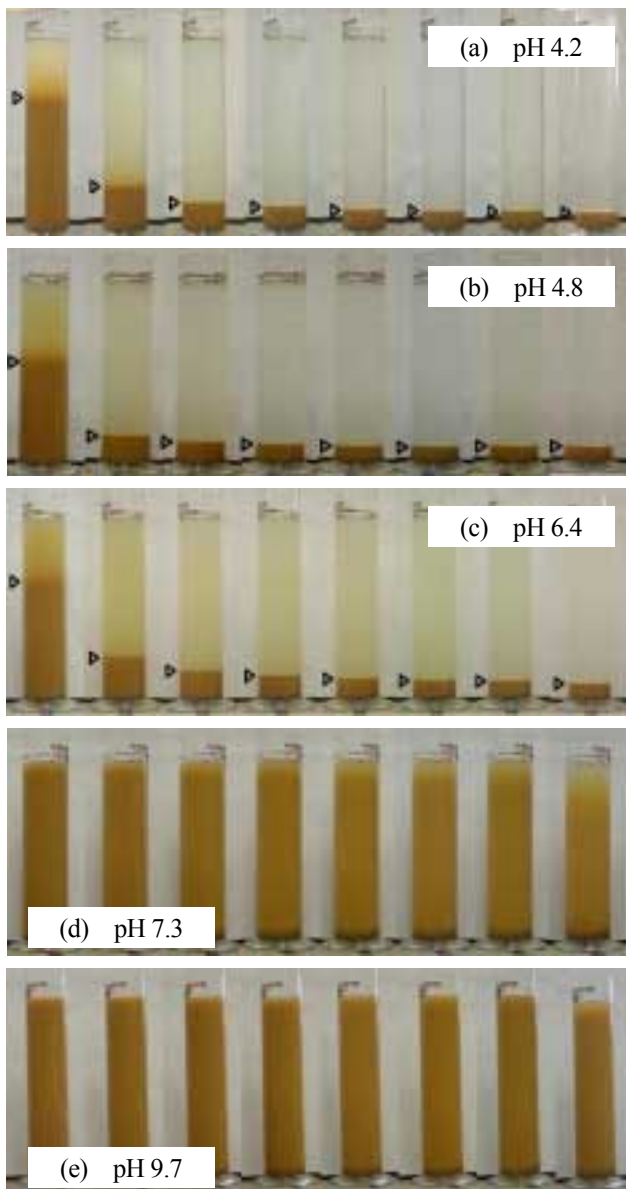
Photographs 1~5 にカオリン粘土、大道粘土、山陽粘性土、宇部岬粘土および本由良粘土の沈降状況の写真を示す。各写真は左から振とう後の経過時間が 5 min, 15 min, 30 min, 60 min, 120 min, 180 min, 240 min, 1440 min の沈降状況を示している。また、写真中に示す矢印は液体(水)と固体(土粒子)の界面が確認された

位置を指している。

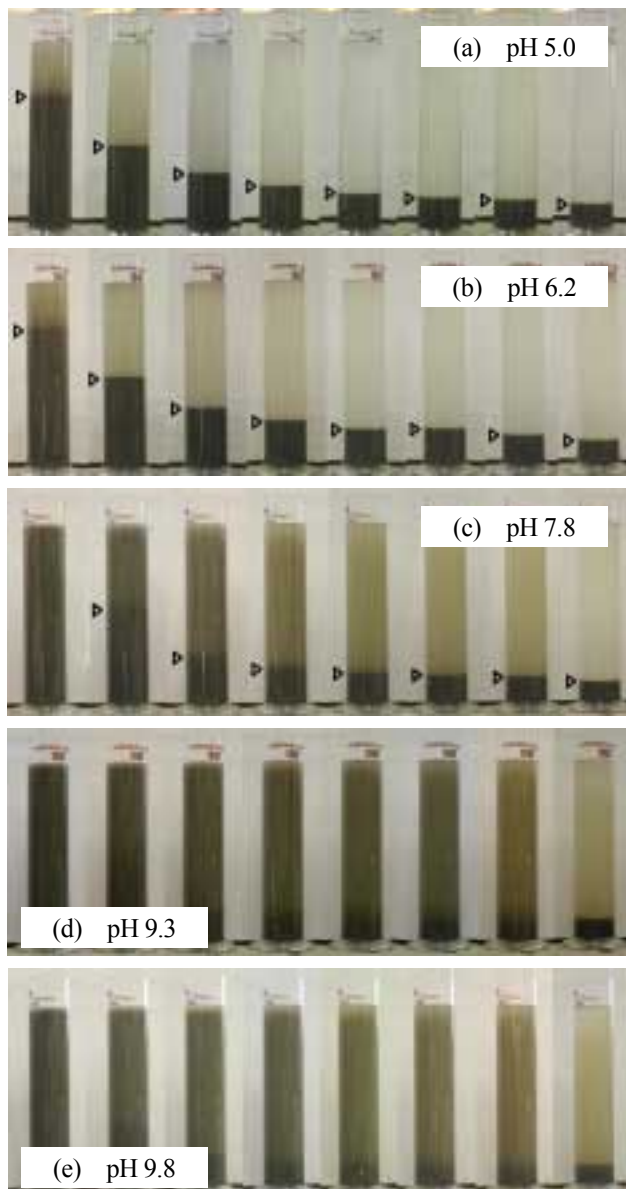
いずれの試料においても酸性側では界面が明瞭であるのに対し、アルカリ性側ではそれが不明瞭である。このことは、言い換えると、酸性側では沈降が速く、アルカリ性側では沈降が遅く生じているものと考えられる。

主要粘土鉱物がカオリナイトの Photos.1~3 のカオリン粘土、大道粘土および山陽粘性土の場合、酸性側での沈降状況はカオリン粘土が最も遅く、アルカリ性側での懸濁液の濃度もカオリン粘土が最も高いようである。ここで着目すべき点は 3 試料の粘土含有量 F_{clay} の違いである。Table 1 に示すようにカオリン粘土の場合、 $F_{\text{clay}} = 96.8\%$ 、大道粘土の場合、 $F_{\text{clay}} = 25.0\%$ 、山陽粘性土の場合、 $F_{\text{clay}} = 33.8\%$ であり、カオリン粘土の粘土含有量が最も大きい。これより、主要粘土鉱物が

5 min 15 min 30 min 60 min 120 min 180 min 240 min 1440 min 5 min 15 min 30 min 60 min 120 min 180 min 240 min 1440 min



Photos.3 Sanyo



Photos.4 Ubemisaki

同じである場合、粘土含有量が大きい試料ほど沈降が遅いことがわかる。

粘土含有量がほぼ同じ Photo.3(c)の山陽粘性土($F_{clay} = 33.8\%$)と Photo.5(b)の本由良粘土($F_{clay} = 32.2\%$)を比較すると、pH はほぼ同じであるのに本由良粘土よりも山陽粘性土の方が沈降が速い。本由良粘土はスメクタイト、山陽粘性土はカオリナイトが主要粘土鉱物である。このことは主要粘土鉱物の性質の違いによるものであると考えられる。

以上より、pH が大きく、粘土含有量大きい試料および主要粘土鉱物がカオリナイトである試料ほど沈降は遅い。

(2) 各試料の沈降高さとは有効高さの関係

上記(1)での考察は液体と固体の界面を肉眼によって

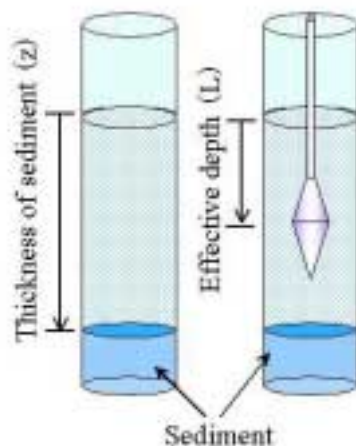
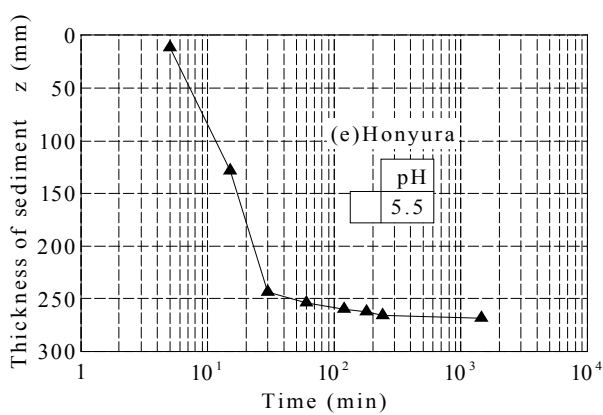
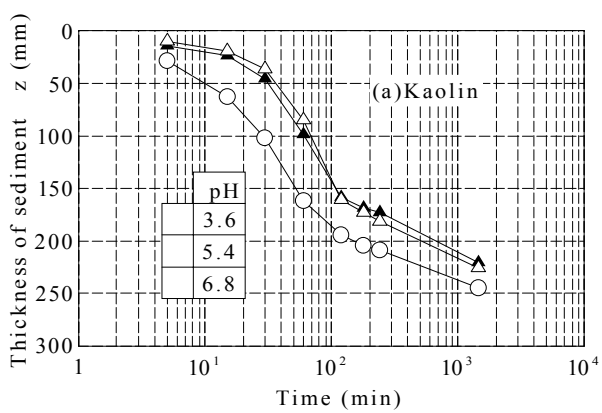
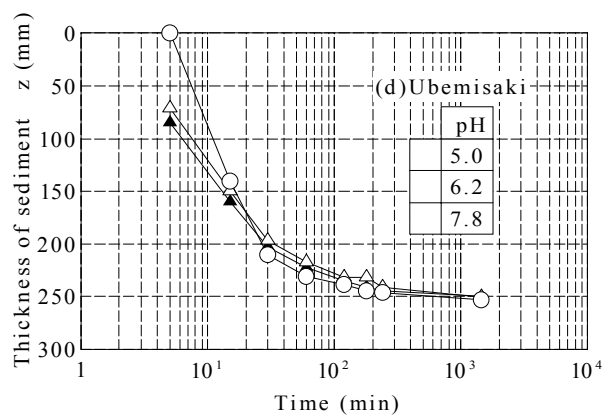
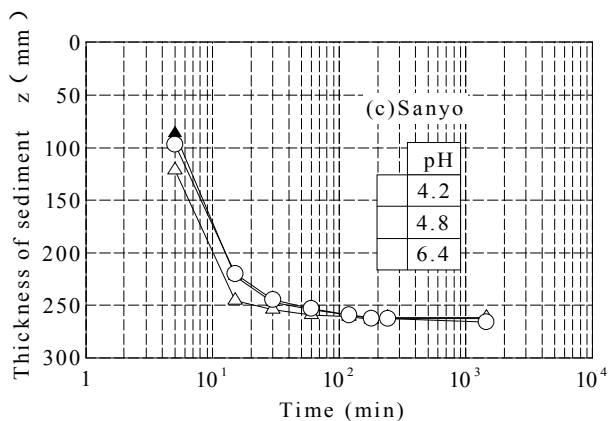
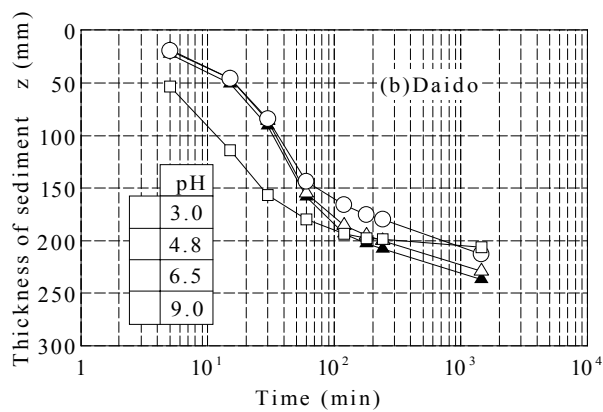
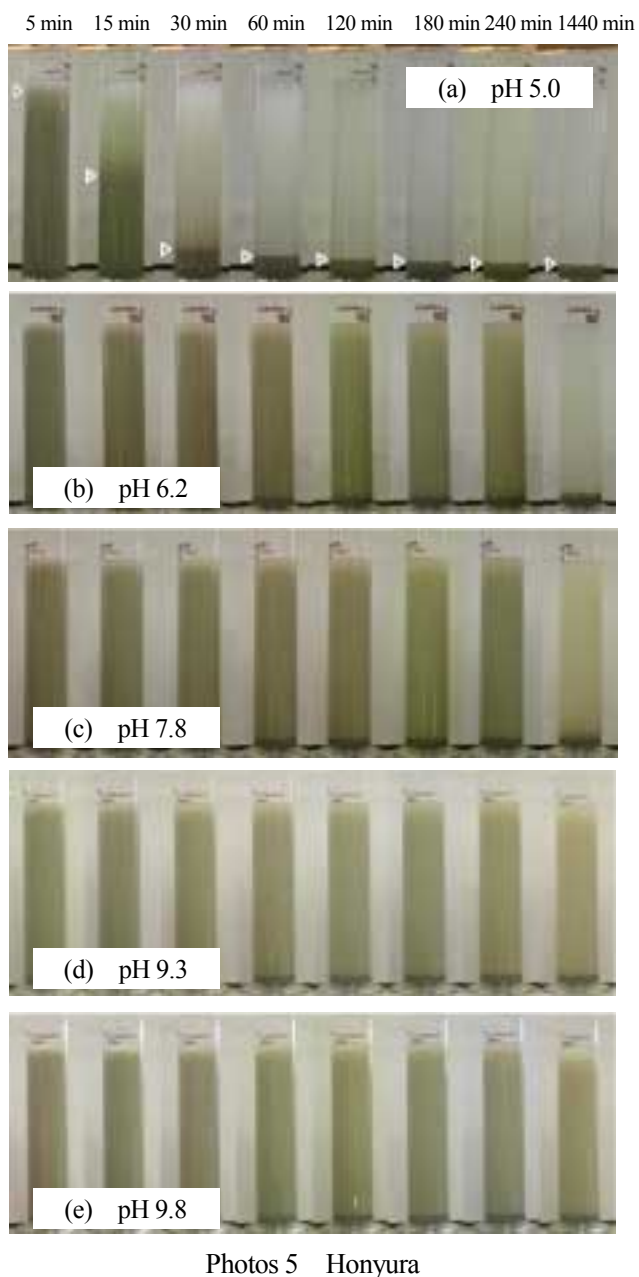
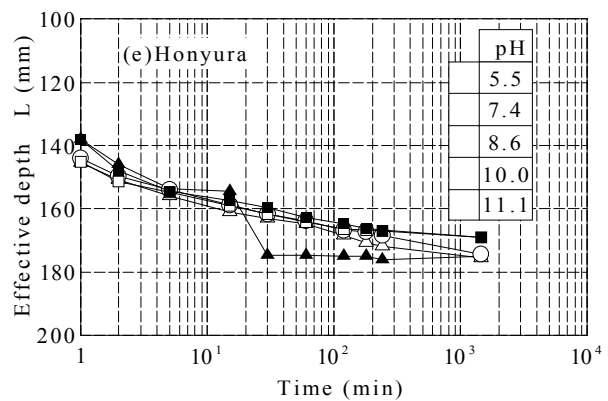
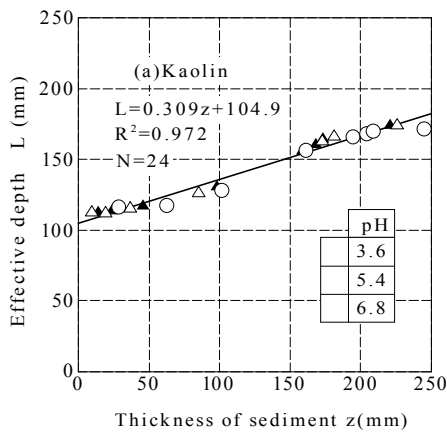
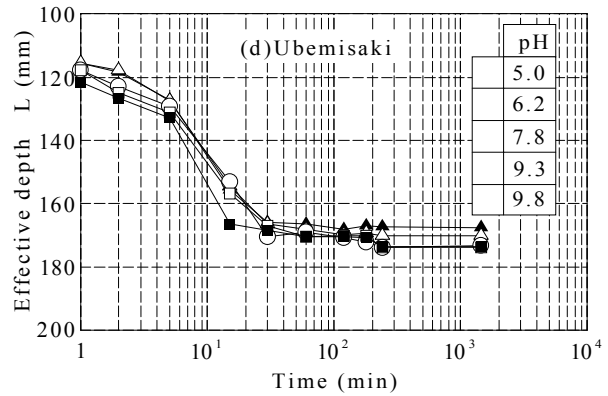
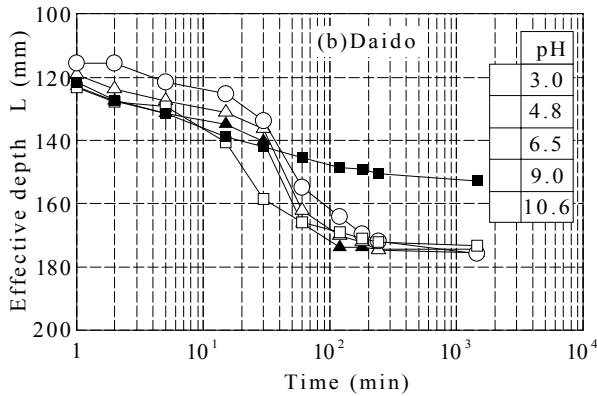
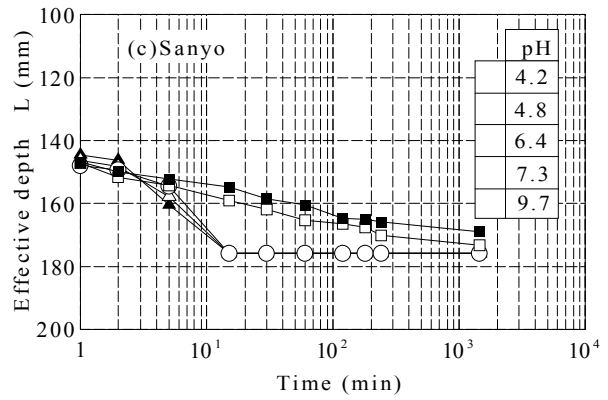
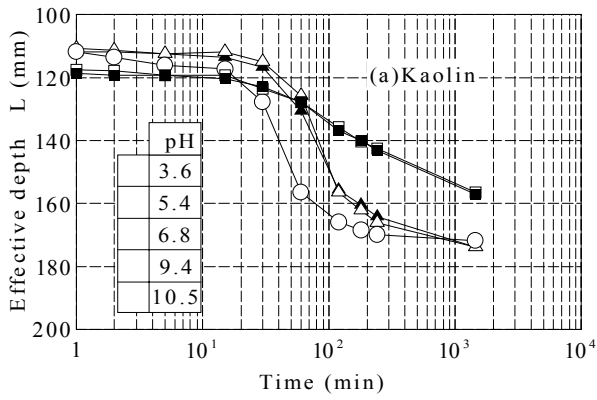


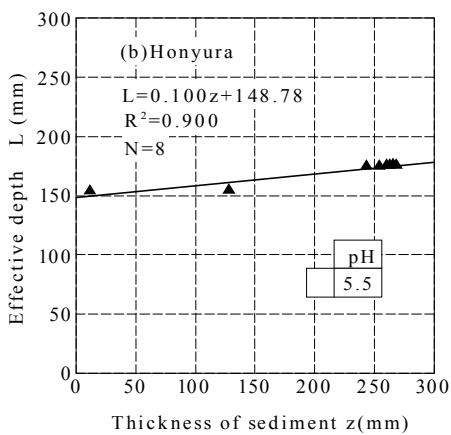
Fig.2 Model of sedimentation characteristic



Figs.3 Thickness of sediment



Figs.4 Effective depth



Figs.5 Relationship between thickness of sediment and effective depth

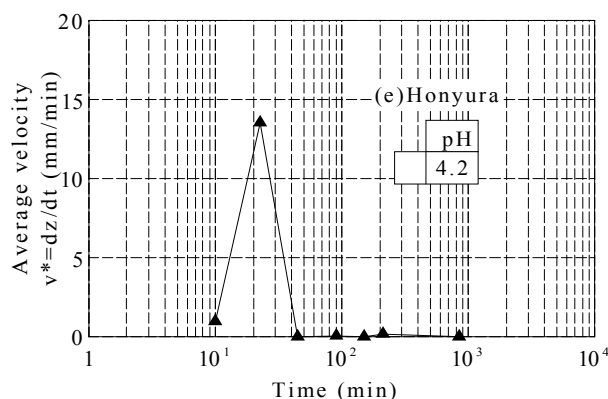
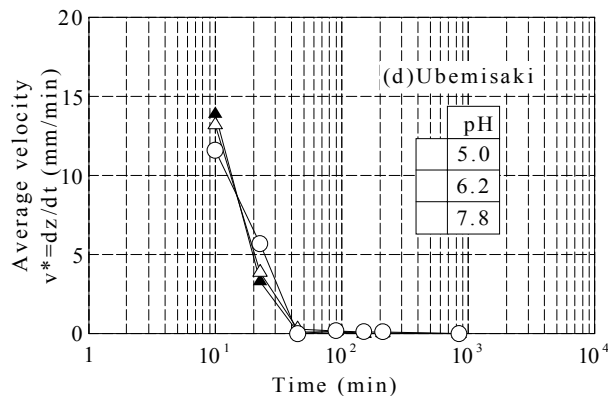
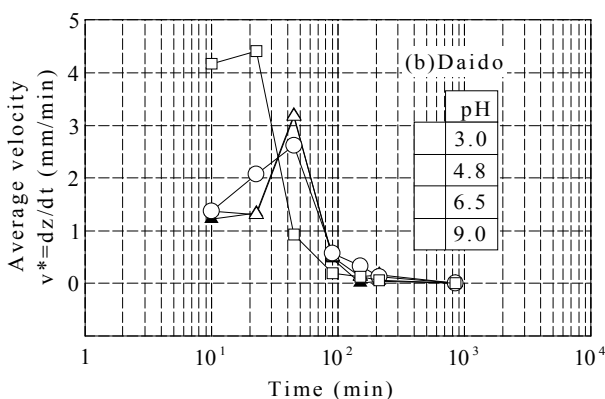
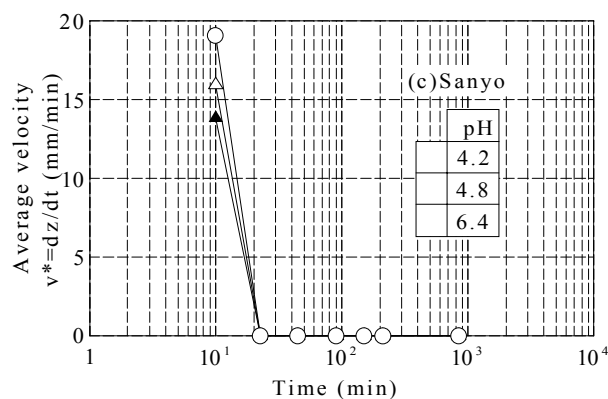
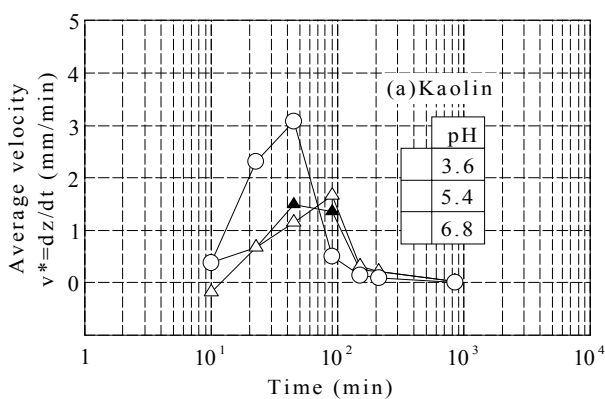
判定したものであり、定性的で客観性に乏しい。そこで、本節では通常の沈降分析における有効深さを用いて定量的な評価の可能性を検討する。

Figure 2 に土懸濁液の沈降モデルを示す。有効高さ L は Fig.2 に示すように水面から浮標の中央までの長さである。沈降分析では、この高さからストークスの法則と密度浮標理論を用いて粒径および通過百分率を求めるが、沈降高さ z は、水面から堆積物が確認された部分、つまり Photos.1 ~ 5 に矢印で示す位置までの高さである。

Figures 3(a) ~ (e) にカオリン粘土、大道粘土、山陽粘性土、宇部岬粘土および本由良粘土の pH が異なる場合における沈降高さを示す。ここで Photos.1 ~ 5 に

Table.2 Correlation of effective depth and thickness of sediment

Soil sample	Equation		R ²	N	pH<
	α	β			
Kaolin	0.309	104.85	0.972	24	6.8
Daido	0.270	117.84	0.959	32	9.0
Sanyo	0.112	147.15	0.918	24	6.4
Ubemisaki	0.205	121.28	0.910	24	7.8
Honyura	0.100	148.78	0.900	8	5.5



Figs.6 Average velocity

いて界面が明瞭に判定できた場合について整理している。Figs.4(a) ~ (e)にカオリン粘土, 大道粘土, 山陽粘性土, 宇部岬粘土および本由良粘土の pH が異なる場合の有効高さを示す。Fig.4(a)のカオリン粘土はアルカリ性側で他のそれと異なる挙動が確認できる。これと同様の傾向を示したものは Fig.4(b)の大道粘土である。この2試料においては細粒分含有率 F_c が非常に高いことが注目される。Figs.4(c) ~ (e)のその他3試料は有効高さに明瞭な違いがなかった。この理由として Fig.4(c)の宇部岬粘土は有機物を多く含むため、有効高さに pH の影響が現れにくかったことが考えられる。また、Fig.4(d)および(e)の山陽粘性土および本由良粘土は細粒分含有率がそれぞれ 56.3% および 74.6% であり、他の3試料より低いために顕著な pH の影響は現れなかったものと考えられる。次に、Figs.5(a)および(b)にカオリン粘土および本由良粘土の沈降高さとお有効高さの関係を代表例として示す。Fig.5(a)のカオリン粘土の場

合、他の5試料と比較して、沈降高さとお有効高さの間には直線関係が認められ、最も相関性が高い。逆に Fig.5(b)の本由良粘土の場合、最も相関性が悪い。その他の試料の結果を一覧にしたものが Table 2 である。表

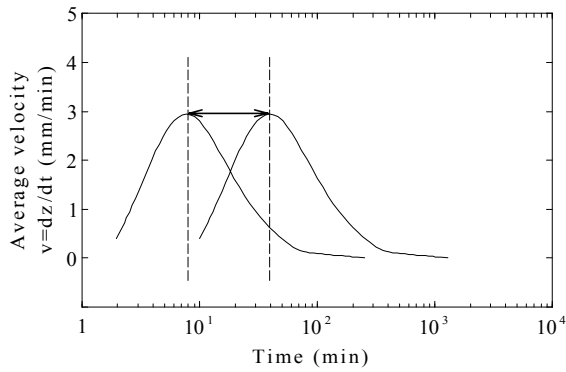


Fig.7 Average velocity model

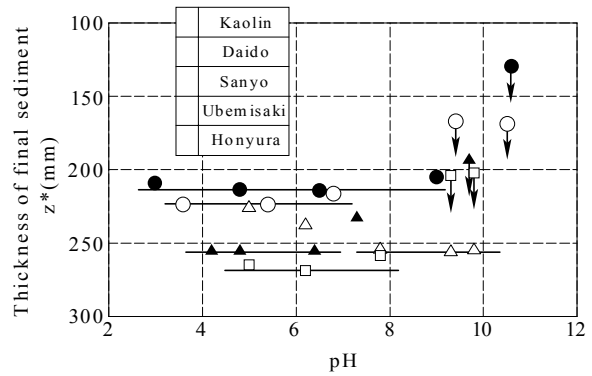


Fig.8 Relationship between z^* and pH

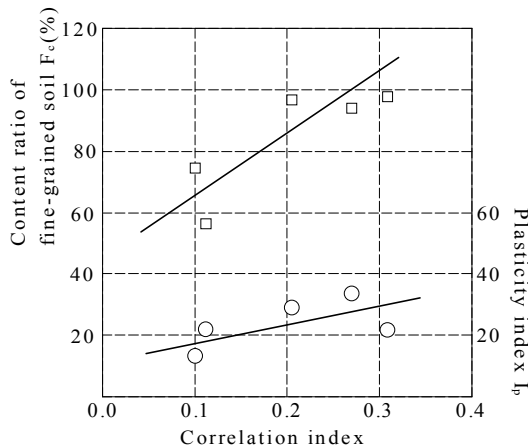


Fig.9 Relationship between F_c or I_p and

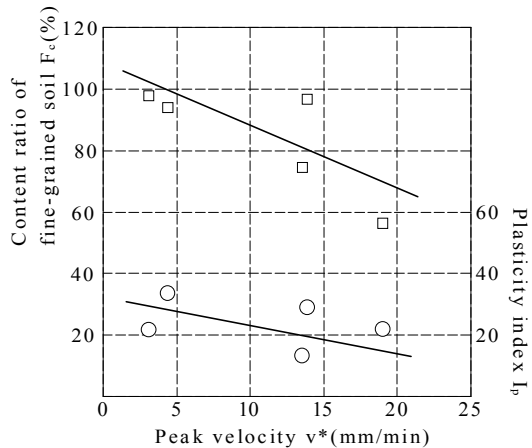


Fig.10 Relationship between F_c or I_p and v^*

中の は近似直線の傾き， はその切片， R^2 は決定係数， N はデータ数および $pH <$ は沈降状況写真に矢印を示した pH の上限値である．いずれの場合も $R^2 = 0.971 \sim 0.900$ の範囲であり，相関性は比較的良好であると考えられる．このことから，定性的な沈降高さの代わりに，定量的な有効高さによる沈降・堆積特性の評価方法が適用可能である．

以上より，有効高さは，試料によって変化傾向が異なるが，細粒分含有率が高い試料ほど pH による明瞭な差が表れやすい．沈殿高さと有効高さには比較的良好な相関性が得られ，有効高さは沈降・堆積特性の把握するための妥当なパラメータとなる．

(3) pH が異なる場合の土懸濁液の沈降・堆積特性

Figures 6(a) ~ (e)にカオリン粘土，大道粘土，宇部岬粘土，山陽粘性土および本由良粘土の pH が異なる場合の平均速度を示す．この平均速度は，4.(2)で示した沈殿高さと有効高さの近似直線において有効高さから沈殿高さを算出し，その沈殿高さの変化量と経過時間から求めたものである．Fig.6(a)のカオリン粘土の平均速度 v は $pH 6.8 (= (pH)_i)$ のときに最大値を示す．Fig.6(b)の大道粘土の v は $pH 9.0$ のとき最大値を示し，

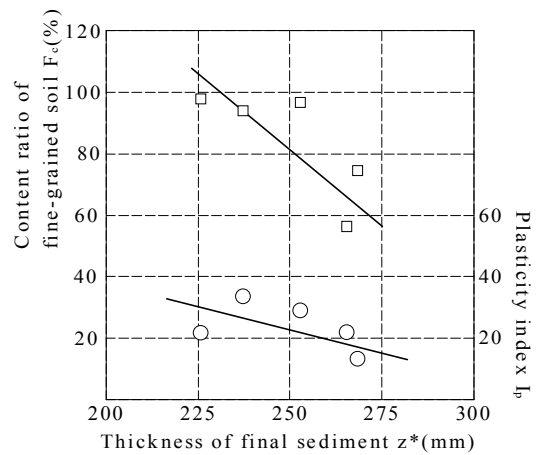


Fig.11 Relationship between F_c or I_p and z^*

Figs.6(c) ~ (e)の山陽粘性土，宇部岬粘土および本由良粘土は，各々異なる pH で最大値を示しており， pH による平均速度の影響は確認されなかった．また，5 試料のピーク速度 v^* を比較すると，カオリン粘土および大道粘土は他の 3 試料と異なり，特に小さな値を示している．このことは，4.(1)で述べた粘土含有量が大いこと，主要粘土鉱物がカオリンであることから，沈降速度が小さくなることを定量的に示している．また，

全ての試料において沈降速度は収束傾向にあり、沈降状況はこれ以降大きく変化しないと考えられる。

Figure 7 に平均沈降速度の変化パターンをモデル化したものを示す。このモデルより平均速度の変化傾向はピークの発現が試料によって異なるものの、全ての試料で同一傾向であると考えられる。

Figure 8 にカオリン粘土、大道粘土、宇部岬粘土、山陽粘性土および本由良粘土における pH と最終沈殿高さ z^* の関係を示す。ここで用いた最終沈殿高さも相関式より求めたものであり、本文では最終沈降高さを 1440 min の時の沈降高さとした。なお、最終沈降高さについては、界面が明瞭でない pH についても整理をしている。図から明らかなように、宇部岬粘土を除く全ての試料において酸性側で最終沈殿高さを示している。このことから、酸性側にある最終沈殿高さは pH によらずほぼ一定である。宇部岬粘土については、4.(2)でも述べたが、有機物を多く含む試料であるため影響が現れにくかったものと考えられる。

以上より、平均速度は、pH の違いによって大きく変化しなかった。ピーク速度は、粘土含有量が大きく、主要粘土鉱物がカオリンであるものが、特に小さな値を示し、沈降速度が遅いことを定量的に裏付けた。平均速度の変化傾向は全ての試料において同じであった。また、全ての試料において平均速度は収束しており、これ以上沈降状況に変化は現れないと考えられる。最終沈降高さは、宇部岬粘土を除く全ての試料において酸性側であった。このことは、沈降が速く進むことを示しており、pH の影響を受けるものと考えられる。

(4) 物理・化学的性質と沈降・堆積特性

Figure 9 に近似直線の傾き F_c および I_p 関係を示す。両指標ともに、ほぼ右上がりの直線関係にある。このことは、 F_c および I_p が大きくなると、 z^* も大きくなることを示し、つまり、高塑性の試料ほど、有効高さに対する沈殿高さが高くなることを示している。

Figure 10 にピーク速度 v^* と F_c および I_p の関係を示す。両指標ともに、ほぼ右下がりの直線関係にあり、 F_c および I_p が小さくなると v^* も小さくなる。Fig.11 に最終沈殿高さ z^* と F_c および I_p の関係を示す。両指標ともに、ほぼ右下がりの直線関係にあり、 F_c および I_p が小さくなると、 z^* も小さくなる。このことから高塑性の試料ほど沈降速度が小さく、また沈殿しにくく間隙が大きい状態で堆積していることを示している。

以上を総括すると、沈降・堆積特性に F_c および I_p は密接に関係しており、その関係は細粒分含有率が高く、塑性指数が大きい試料、つまり粘土質の試料ほど沈降速度が遅く、間隙が大きい状態で堆積する。

5. まとめ

本論文では 5 種類の粘性土を対象にして pH を変化させた沈降分析を行った。その結果による考察の結果から以下のような知見が導かれた。

- 1) pH が大きい試料、粘土含有量が大きい試料および主要粘土鉱物がカオリン粘土である試料ほど沈降は遅い。
- 2) 有効深さは、試料によって変化傾向が異なるが、細粒分含有率が高い試料ほど pH による明瞭な差が表れやすい。
- 3) 沈殿深さと有効深さには比較的良好な相関関係にあり、定量的な検討が可能である。
- 4) 平均速度は、pH の違いによって大きく変化しない。
- 5) ピーク速度は、粘土含有量が大きく、主要粘土鉱物がカオリンであるものが、沈降速度が遅い。
- 6) 平均速度の変化傾向は全ての試料において同一である。
- 7) 全ての試料において平均速度は収束しており、これ以上沈降状況に変化は現れないと考えられる。
- 8) 最終沈降高さは、宇部岬粘土を除く全ての試料において酸性側であり、pH の違いに影響を受ける。
- 9) 沈降特性に F_c および I_p は密接に関係しており、その関係は細粒分含有率が高く、塑性指数が大きい試料ほど沈降速度が遅く、間隙が大きい状態で沈殿する。

謝辞

本論文をまとめるにあたり、常盤地下工業(株)の松下英次氏には実験に対して、有益なご助言をいただいた。ここに記して厚く感謝の意を表す次第である。

参考文献

- 1) 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.
- 2) 環境地盤工学入門編集委員会編: 環境地盤工学入門, 土質工学会, 1987.
- 3) 日本粘土学会編: 粘土ハンドブック第二版, 日本粘土学会, 技報堂出版, 1987.
- 4) 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.
- 5) 松下英次, 山本哲朗, 鈴木素之: 土のコンシステンシーに及ぼす pH の影響, 土木学会論文集, No.617/46, pp.283-297, 1999.
- 6) 森山登: 分散・凝集の化学, 産業図書, p.2-46, 1995.
- 7) 大坪政美: 土のコロイド現象の基礎と応用(その 1), 農業土木学会誌, 第 67 巻, 第 1 号

- 8)古河幸雄, 藤田龍之, 国広忠之, 深澤誠: レーザー回折/散乱式粒度分析装置の地盤土への適用, 第 36 回地盤工学研究発表会発表講演集, pp.333-334, 2001.
- 9)松下英次, 山本哲朗, 鈴木素之: 粘土の物理試験における pH 調整方法とその問題点, 土と基礎, Vol.49, .2, pp.25 ~ 28, 2001.
- 10) (社)地盤工学会: 土質試験の方法と解説 第 1 回改訂版 , pp.69-88 , 2000.

(平成 14 年 12 月 27 日受理)