

河口・沿岸海域におけるシルトの凝集と沈降に関する研究

三村 信男*・加藤 始**・斉藤 敦志***・田切 康博****

1. 緒 論

河川によって流送される物質の相当部分は、シルトや有機性懸濁粒子で占められている。河口から沿岸海域に運ばれたこれら微粒子は、海水中の金属イオンの吸着という化学的作用、微生物の介在、流れ・波による攪拌という物理的作用の複合的影響によって凝集し、沈降、堆積する。こうした現象は、航路や港湾の埋没の直接の原因となっている一方、この領域における水質汚濁、底質汚染にも深い関連を有している。したがって、これらの問題を考える上で、凝集、沈降、堆積、巻き上げ（再浮遊）、流送といったシルトの河口・沿岸海域における挙動を明らかにすることは重要である。

本研究では、凝集と沈降との2つのプロセスを対象とする。凝集現象に関しては、懸濁物の種類や海水濃度といった要因の変化に対する凝集の実態を明らかにし、また、凝集フロックの沈降速度にも検討を加える。

2. 凝集と沈降に関する実験

2.1 凝集実験

a) 凝集について^{1),2)}

凝集とは水中に懸濁している微細な粒子が集塊化し、粒径の大きなフロックを形成する現象である。そのメカニズムとしては、①水中の溶存イオンによる微粒子の表面電荷の中和、②高分子物質の吸着による架橋作用、③粘着性のある有機物フロックへの吸着、捕捉が挙げられる。

一般に、水中の粘土、シルト粒子の表面は負に帯電しており、その反発力によって分散状態を保っている。この表面電荷が海水中の金属イオン（ Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 等）によって中和されれば、ファンデルワールス引力が卓越し、粒子相互の衝突によって結合がおこる。これが①のメカニズムによる電気化学的な凝集であるが、この現象に影響を与える要因としては、懸濁物の種類と表面

の状態、粒径、溶存イオン、粒子の運動状態等がある。

ただし、①に関係する諸力が影響する粒径は数十 μm までであり、また、ファンデルワールス力による結合力は小さいことから、フロックの大粒径化には②、③のメカニズムの寄与も大きいと考えられる。

b) 実験の概要

本研究では、主として①のメカニズムによる凝集現象に着目した。そのため、成分を調整した塩水（人工海水）中に種々の試料を懸濁させ、ジャーテスター（攪拌装置）で攪拌しながら、凝集の進展度を調べた。その指標としたのは、フロックの粒径である。フロックの粒径は顕微鏡写真を撮影して計測した。測定数は各ケース毎に100から1000個である。

検討した項目は、攪拌の継続時間、懸濁物質の種類、海水濃度の違いによる凝集特性の変化についてである。そのため、攪拌時間については20分から240分までを6段階にかえ、海水濃度としては0、10、30、100%の5段階にかえて実験を行なった。

c) 人工海水と懸濁物

懸濁液中の溶存イオンの種類と量は凝集を左右する重

表-1 海水³⁾と人工海水の主たる成分

陽イオン	海水 (g/kg)	人工海水 (g/kg)	陰イオン等	海水 (g/kg)	人工海水 (g/kg)
Na^+	10.556	10.556	Cl^-	18.980	19.238
Mg^{2+}	1.272	1.272	SO_4^{2-}	2.649	2.649
K^+	0.380	0.380	HCO_3^-	0.140	—
Ca^{2+}	0.400	0.400	Br^-	0.065	—
Sr^{2+}	0.008	—	H_3BO_3	0.026	—

表-2 凝集実験に用いた懸濁物

試料	算術 平均 粒径 (μm)	体積 中央 粒径 (μm)	有機 物量 (%)	備 考
粘土				
カオリナイト	6	10	—	1:1 型非和水型粘土
モンモリロナイト	5	21	—	2:1 型和水型粘土
底泥				
港内	7	15	7.0	採泥：日立港内
河口	6	14	5.0	採泥：河口より 250 m 上流
感潮域中間	14	24	7.8	採泥：河口より 1300 m 上流
上流	16	28	7.7	採泥：河口より 3300 m 上流

* 正会員 工博 茨城大学助教授 工学部建設工学科

** 正会員 工博 茨城大学教授 工学部建設工学科

*** 北海道開発庁

**** 関電工(株)

要な要因である。そのため、表-1 に示すように標準的な海水の組成に近い人工海水を作り、実験に用いた。

一方、懸濁物としては、市販の粘土(カオリナイト、モンモリロナイト)と現地底泥との2グループを用いた。

粘土は、通常、様々なイオンを粒子表面に吸着しており、表面の荷電状態が均一ではない。そこで、蒸留水による洗浄と放置をくり返し、なるべく表面状態の均一な粘土試料を作ることを試みた。図-1 は、洗浄後の脱離液の状態を示すものであるが、洗浄回数が多くなるにつれて、pH が7に近づき、電気伝導度が低下するなど、吸着イオンが放出されていくことがわかる。この他に、人工海水による洗浄と放置をくり返し、粘土表面に吸着されている陽イオンを、人工海水中の溶存イオンで置換した試料も作製し、同様に実験に供した。

現地底泥は、日立港に流入する茂宮川において採取した。茂宮川は、延長 14.2 km、流域面積 37.33 km²、高水流量 310 m³/s の小河川である。流域には、水田と市街地が入りまじり、河口付近には干潟がみられる。また、感潮域は約 2 km である。この川において、日立港内から感潮域の上流までの4か所から採泥した。採取した試料は、74 μ m のふるいでこし、通過した部分を蒸留水中に分散させて、懸濁液を作製した。粘土と同様の洗浄による前処理も検討したが、それに伴って現地底泥が含む多様な成分が流失すると考え、今回は行なわなかった。

なお、凝集実験における懸濁物の初期濃度は SS として 100 mg/l に統一した。

2.2 沈降実験

凝集して成長したフロックは、沈降し易くなる点に特徴がある。そこで、上に述べた凝集実験の結果形成されたフロックの沈降特性を調べた。沈降特性の検討には図-2 に示すような沈降筒を用いた。凝集実験が完了した懸濁液を静かに沈降筒に移し、沈降開始後所定の時間間隔で5か所の採水口から懸濁液をサンプリングした。

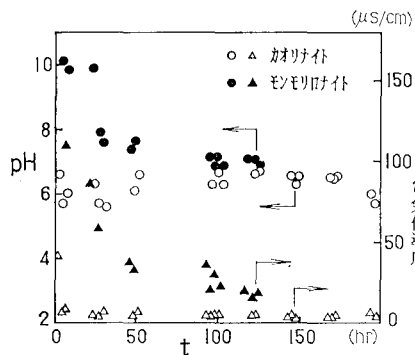


図-1 粘土の前処理の効果

この実験において測定した項目は沈降開始時点での粒度分布と上記サンプル中の懸濁物濃度である。本研究では、新たに開発した方法によって、この2種類のデータを用いて粘土フロックの沈降速度を算定し、その結果を従来の種々の研究結果と比較、検討した。

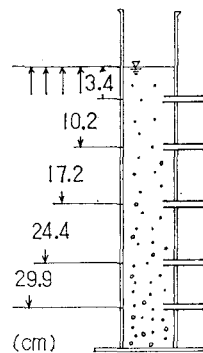


図-2 沈降筒

3. 海水によるシルトの凝集

3.1 粘土懸濁液の凝集

今回の実験で用いた全ての懸濁液が凝集し、海水に凝集力があることが確認された。ただし、粘土懸濁液の場合、凝集の進行はさほど急速ではない。

図-3, 4 にカオリナイトの凝集の進行状態を示す。図-3 は体積累積百分率で示した粒度分布の時間変化であるが、攪拌の継続とともに粒径の小さな粒子が減少し粒径の大きなフロックが形成されていることがわかる。

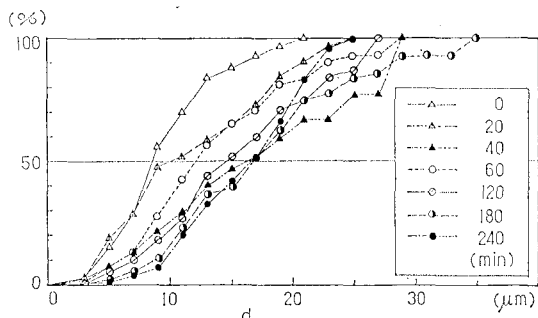


図-3 粒径分布の時間変化(カオリナイト-人工海水 100%)

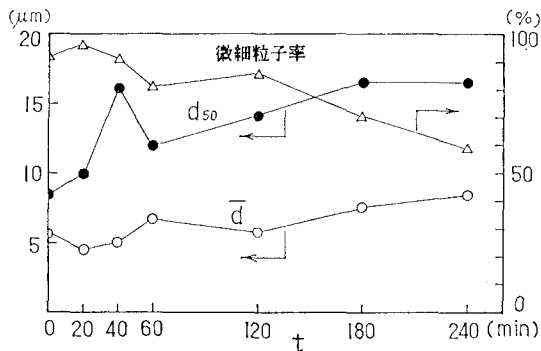


図-4 粒径、微細粒子率の時間変化(カオリナイト-人工海水 100%)

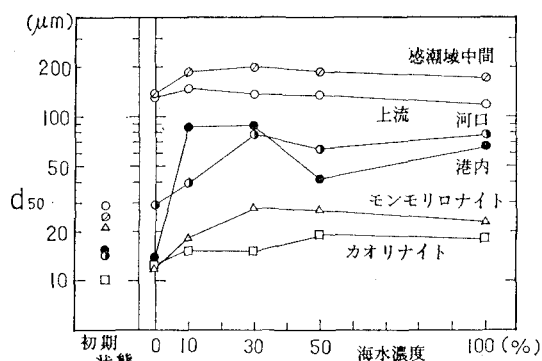


図-5 懸濁物、海水濃度による凝集の違い

図-4 は、算術平均径 ($\bar{d}$)、体積中央粒径 (d_{50}) と (粒径 $1 \mu\text{m}$ 以下の粒子数)/(全粒子数) で定義した微細粒子率の変化を示したものであるが、 d_{50} でみると約 2 倍に増大している。粘土を用いた全てのケースで 120 分程度では安定した粒度分布に到達した。これは粘土粒子の表面に溶液中の金属イオンが吸着、あるいはイオン交換されるのに要するとされている時間⁴⁾ にほぼ一致している。このことから、粘土懸濁液の海水中での凝集は、金属イオンによる粘土表面電荷の中和によって生じると考えられる。

3.2 懸濁物、海水濃度の影響

図-5 に、今回の実験で用いた全試料の各海水濃度での凝集の進展度を体積中央粒径 (d_{50}) を指標にして示す。

海水濃度の影響をみると、全ての試料が塩分濃度 10% で既に凝集している。このことから、現地では、感潮域の上流部分でシルトの凝集が始まるといえる。

粘土と底泥とでは、底泥の方が著しく大きなフロックを形成する。これらの懸濁液中には $50 \mu\text{m}$ をこえるフロックが多数観察された。表-2 に示すように、これらの底泥は有機物を多量に含んでいることから、その凝集には、海水中の金属イオンによる粒子の表面電荷の中和だけでなく、有機物による接着作用等が寄与しているものと推測される。

粘土ともっとも際だった違いを示したのは、感潮域中間と上流の底泥である。これら 2 つは、海水濃度 0% において

も、機械的な攪拌を受けるだけで凝集した。これらの試料が、底泥を採取して調整されたことを考えると、河川水中の懸濁物質が本来強い凝集性をもつのかあるいは河床に堆積した後凝集性を得たのか不明である。

また、現地底泥のもう一つの特徴は、港内、河口といった常に海水に曝されている場所の底泥フロックの粒径が、より上流の底泥フロックに比べて小さいということである。粘土についても、人工海水で洗浄、放置して作製した試料のフロックは、蒸留水で前処理した同種の粘土フロックと比べて小さくなる傾向を示した。このことは、海水と混合した初期におけるシルト表面の付着活性(反応性)⁵⁾ が高く、長期間海水に曝されるにつれて活性が低下するというメカニズムの存在を示唆している。

以上のように、現地におけるシルトの凝集には、単純な電気化学的凝集を考えるだけでは説明できない部分が多く残されている。

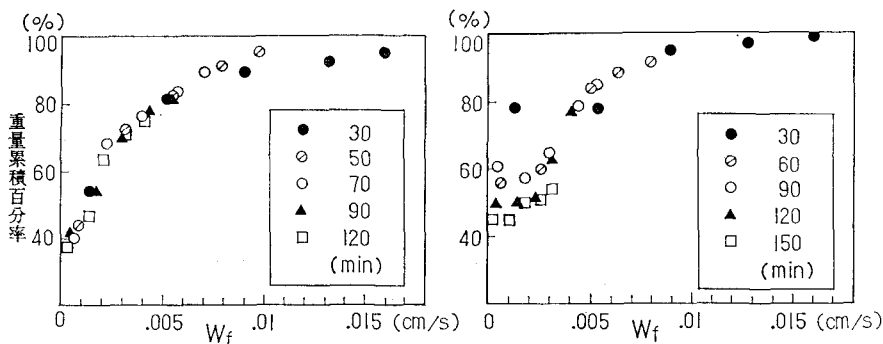
4. フロックの沈降速度

4.1 沈降実験の結果

沈降実験によれば、沈降速度に対するフロックの累積重量の分布が計測される⁶⁾。カオリナイトに対する計測結果の例を図-6 に示す。海水濃度 10% の場合、累積重量分布は全ての測定時に対してほぼ同一となるのに対して海水濃度 50% では各測定時の与える分布が大きく異なる。これは、沈降中に凝集が生じて粒径分布が変化したために生じる。カオリナイトでは海水濃度 30% から、モンモリナイトでは微弱ではあるが海水濃度 10% から沈降中の凝集が生じていた。

4.2 沈降速度の算定

沈降実験の結果を定量的に取り扱い、フロックの沈降速度を求めることを考える。浄水処理の過程で発生するフロックを対象にした従来の研究では、近接撮影によって直接沈降速度を測定する方法がとられているが、本研究の粘土フロックのように $20 \mu\text{m}$ 以下のものは撮影で



(a) カオリナイト-人工海水 10%

(b) カオリナイト-人工海水 50%

図-6 沈降実験の結果

きない。そこで、沈降中に凝集が発生せず、粒径分布が全沈降過程を通じて変化しないという、海水濃度の低い粘土フロック懸濁液を対象にして次のような沈降速度の算定方法を考えた。

沈降実験によって得

られるデータは、図-7に示すような粒径一個数分布と沈降速度—累積重量分布とであるが、粒径分布と累積重量分布との対応関係が不明なため、各粒径のフロックの沈降速度を直接的に求めることができない。そこで、丹保等⁷⁾によって浄水フロックに対して得られた密度算定式が、海水による粘土フロックにも適用できるとして、これら諸量の関係をつける。

粒径 d のフロックに着目すると、体積 v 、相対密度 $\Delta\rho_f$ は次のように表わせる。

$$v = A_v d^3 \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$\Delta\rho_f = \rho_f - \rho_w = \frac{a}{(d/d_0)^K} = a \cdot d'^{-K} \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 A_v は体積形状係数、 ρ_f 、 ρ_w は各々フロックと水の密度、 d' は基準粒径 d_0 (ここでは 1 cm) で無次元化した粒径、 a 、 K は定数である。

このフロックの沈降速度 w_f がストークスの式で与えられるとする。

$$w_f = \left(\frac{4}{3} \frac{g}{C_D} \frac{\Delta\rho_f}{\rho_w} d \right)^{1/2} \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで、フロックの不規則な形状、透水性の効果を含めて $C_D = B/R_e$ とおき、式 (2) を式 (3) に代入すると次のようになる。

$$w_f = C(ad'^{-K})d^2 = Cad'^{2-K} \cdot d_0^2 \quad \dots\dots\dots (4)$$

このとき、 $C = 4g/3\mu B$ で、 μ は水の粘性係数である。

一方、この粒径をもつフロックが N 個あるとすると、その全質量 M は次のように表わせる。

$$M = N\rho_f v \\ = NA_v a d'^{3-K} \cdot d_0^3 + N\rho_w A_v d^3 \quad \dots\dots\dots (5)$$

沈降速度を表わす式 (4) と質量分布を表わす式 (5) との間には、沈降実験で得られた沈降速度—累積重量分布に対応する関係が存在するはずであるので、 N には実測値を与え最小自乗法によって実験データにもっともよく一致するように未知定数 C 、 a 、 k を決定する。この他に、体積形状係数 A_v が未知で残されているが、今回の解析では不規則なフロック形状の効果が不明なので、フロックを球と仮定し、 $A_v = 0.524$ とした。求められた値を式 (4) に代入すれば、フロックの粒径と沈降速度との関係が確定する。

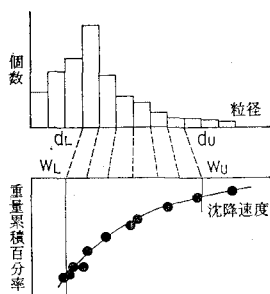


図-7 解析の模式図

沈降実験においては、図-6 からわかる通り全ての粒径範囲にわたって正確な累積重量分布が得られるわけではない。そこで、実際の解析にあたっては使用しうる沈降速度の上下限值 w_{fU} 、 w_{fL} を各ケース毎に定め、得られた結果が適用できる粒径範囲 ($d_U \sim d_L$) を限定した。解析したのは、カオリナイト、モンモリロナイト各々の海水濃度 0、10% の場合である。海水濃度がこれ以上になると沈降中に凝集が生じ、この解析方法が適用できない。上記 4 ケースで沈降速度が算定できたのは、 $4 \sim 32 \mu\text{m}$ の粒径範囲に対してであった。

4.3 フロックの沈降速度の比較

得られた粘土フロックの沈降速度を図-8に示す。図-8には、他の研究によって得られた浄水フロック、活性汚泥、塩水による粘土フロック、現地フロックの測定データ^{8),9),10),11)}を集約してある。

これをみると、粘土、シルトのフロックでは $5 \mu\text{m} \leq d \leq 0.2 \text{ cm}$ という広い範囲で $w_f \sim d^1$ という関係が成立することがわかる。その中で、同一粒径でありながら沈降速度の大きさが異なるのは、式 (4) でいえば C 、 a の違い、すなわち、抵抗係数と密度の違いによるものである。これは、粘土の種類と溶存金属イオンの種類によって、形成されるフロックの構造が異なり、密なものや粗なものがあるからであるといえる。図-9中の現地底泥フロックは、各々 $w_f \sim d^{1.4}$ 、 $w_f \sim d^{0.78}$ と傾きが異なっているが、これは、攪拌条件の差や浮遊・堆積の履歴、フロック中の有機分の量によって生じると考えられる。

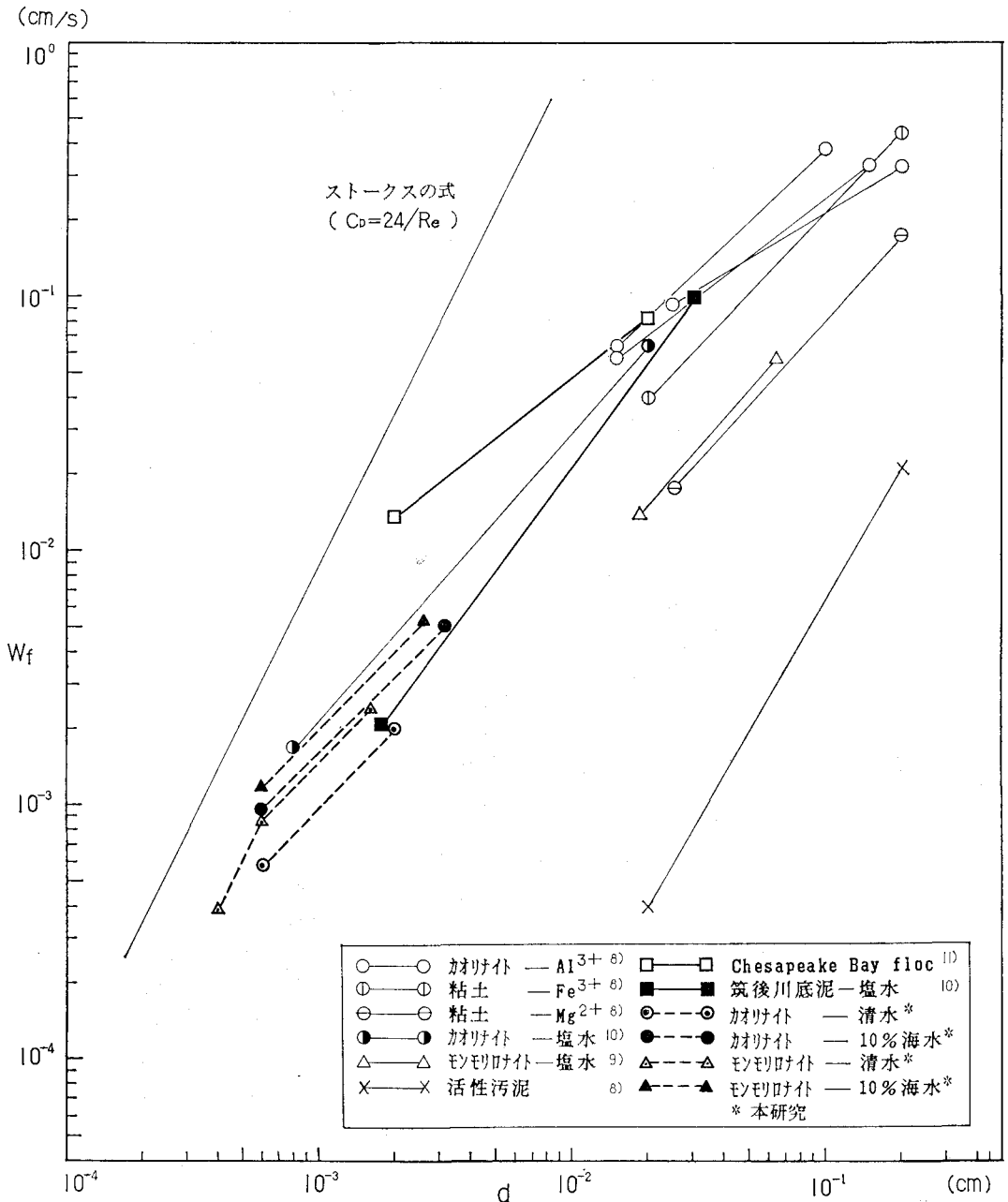
参照のため活性汚泥の沈降速度も示してあるが、フロック自体が微生物の集合体で密度が水に近いため、沈降速度は粘土、シルトフロックに比べてきわめて小さい。

5. 結 語

本研究では、粘土と現地底泥を用いて、海水による凝集と形成されたフロックの沈降速度について検討した。

対象とした全試料が、少くとも海水濃度 10% で凝集したことから、現地河川では感潮域上流部において凝集が始まると考えられる。しかし、単一の粘土懸濁液の場合と異なり、現地における凝集のメカニズムには未知の問題が多い。一方、粘土、シルトのフロックの沈降速度は、粒径の広い範囲で、 $w_f \sim d^1$ という関係があることがわかった。港湾の埋没、水質汚濁等に対処するためには、こうした素過程の検討を進めながら、河口・沿岸海域におけるシルトの挙動の全体像を把握する方向に研究を進める必要がある。

最後に、本研究の端緒となる実験に取り組んだ秋元有喜君、図面の清書に協力して下さった矢崎裕美さん、沼田博男君に感謝する。また、本研究には、實吉奨学会から研究助成を受けたことを記して感謝する次第である。



図—8 各種フロクの沈降速度 (図中の直線は各論文中的数据を用いて著者が整理したものである。)

参考文献

- 1) 用廃水管理叢書 凝集沈殿, pp. 14~38, 工学図書, 1966.
- 2) 日本粉体工業技術協会編: 凝集工学, pp. 31~52, 日刊工業新聞社, 1982.
- 3) 小山忠四郎・半田暢彦・杉村行男: 湖水・海水の分析, p. 230, 講談社サイエンティフィク, 1972.
- 4) 日本粘土学会編: 粘土ハンドブック, p. 97, 技報堂出版, 1967.
- 5) 栗谷陽一・楠田哲也: フロクの沈降速度, 密度および構造に関する研究, 第11回衛生工学研究討論会講演論文集, pp. 13~18, 1975.
- 6) Weber Jr, W. J. (南部祥一, 丹保憲仁訳): 水質制御の物理化学プロセス, pp. 101~108, 朝倉書店, 1981.
- 7) 丹保憲仁・渡辺義公: アルミニウム・フロクの密度に関する研究, 水道協会雑誌, 第397号, pp. 2~10, 1967.
- 8) Tambo, N. and Y. Watanabe: Physical characteristics of flocs—I. The floc density function and aluminum floc, Water Research, Vol. 13, pp. 409~419, 1979.
- 9) 楠田哲也・古賀憲一・栗谷陽一: 塩水中における粘土粒子の凝集, 用水と廃水, Vol. 20, No. 3, pp. 31~36, 1978.
- 10) 古賀憲一・栗谷陽一・楠田哲也: 塩水中における微粒子の成長と沈降特性に関する基礎的研究, 第18回衛生工学研究討論会講演論文集, pp. 160~165, 1982.
- 11) Gibbs, R. J.: Estuarine flocs: Their size, settling velocity and density, JGR, Vol. 90, No. C2, pp. 3249~3251, 1985.