

海水浄化への生物膜法の応用に関する基礎的研究

小田 一紀*・岡木 良治**・大屋 博史***・倉田 克彦****

1. ま え が き

近年、内湾の水質はかなり改善されてきていると言われているが、富栄養化による赤潮の発生は、依然として後を絶たない。最近のウォーターフロント開発の進展は、このような内湾や沿岸域における水質環境の改善の必要性を一層高めている。運輸省では、沿岸域における様々な生態系と物理系の作用を積極的に海水浄化に利用する“シーブルー計画”(シーブルーテクノロジー研究委員会, 1989)を策定し、その対策の一つとして生物膜法の利用を挙げている。生物膜法は、自然の浄化作用を応用したもので、濾床材表面に形成される生物膜中の微生物の摂食作用によって汚水中の有機物や栄養塩類を除去する技術であり、現在下水処理の有効な手段としてかなり普及している。最近、この生物膜法の一つである礫間接触酸化法が注目され、河川水の浄化法としてその実用化試験が各地で実施されている。しかし、この方法が、一般に下水や河川水よりも汚濁濃度の低い海水に、どの程度有効であるか、またどのように利用すればよいか等についてはほとんど分かっていないのが実状である。このような観点から、本研究では、まず沿岸域において最も現実的な生物膜法として礫間接触酸化法を取り上げ、水槽実験によって汚濁海水に対するその基本的な浄化特性を明らかにする。さらに、その実用化のための 2, 3 の浄化水域モデルを考え、上記の水槽実験の結果に基づき、潮汐場におけるこれら浄化堤配置モデルによる浄化過程を数値シミュレーションによって検討し、沿岸域における生物膜法の応用の可能性について検討する。

2. 礫間接触酸化法による海水浄化実験

2.1 有機物酸化分解過程の理論モデル

微生物による有機物酸化分解速度は一般に、有機物濃度に比例するとされており、その分解過程はいわゆる一次反応式(例えば、合葉ら, 1975)で表される。ここではこれを若干修正し、後述の実験結果に基づき、難分解性

の有機物濃度を“基底濃度” L_b として取り込んだ次の式で表すことにする。

$$\frac{\partial L}{\partial t} = -k_r(L - L_b) \quad (1)$$

ここに、 L : 有機物濃度, k_r : 反応速度定数, L_b : 基底濃度。

初期有機物濃度を L_0 として、式(1)を積分すると、

$$L = (L_0 - L_b)e^{-k_r t} + L_b \quad (2)$$

となる。

式中の k_r は様々な因子の影響を受けるが、水温の影響が最も支配的であり、従来地下水を対象とした研究では、ある水温 $T^\circ\text{C}$ における反応速度定数 $k_r(T)$ は、 20°C における反応速度定数 $k_r(20)$ を基準にして一般に式(3)のように表される(柏谷, 1980)。

$$k_r(T) = k_r(20) \cdot \theta^{(T-20)} \quad (3)$$

ここに、 θ : 温度補正係数。

2.2 実験方法

図-1 に示すような実験水槽の中に粒径 5 cm 程度の碎石を詰め、有機物としてスキムミルクを溶かした実海水を約 3 カ月間水槽内に循環させ、生物膜を育成させた(衛生工学ではこれを馴致と呼ぶ)。ただし、植物性生物による光合成の影響を排除するため水槽内は暗条件とした。その後、スキムミルクで一定汚濁負荷を与え、海水を水温、曝気量一定の下で、微流速(今回の実験では断面平均流速は 0.48 cm/sec)で水槽内を循環させ、適当な時間間隔でサンプリングし、COD (KMnO₄ 法)、TOC および DO 値の経時変化を測定した(このような実験法をバッチ実験と呼ぶ)。なお、水温は 13~25°C の間(実験中は一定)で、また初期濃度は COD で 5~20 mg/l の間で変化させ、浄化効果に及ぼすこれら因子の影響を調べ

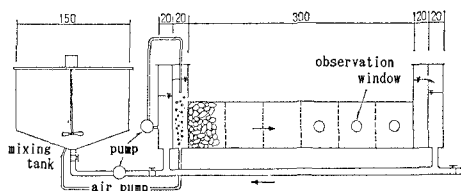


図-1 実験水槽 (単位: cm)

* 正会員 工博 大阪市立大学教授 工学部土木工学科
 ** 工修 日本電信電話(株)
 *** 学生員 大阪市立大学大学院 工学研究科
 **** 正会員 工博 東洋建設(株) 技術本部技術研究所

た。なお、すべての場合において水槽内の溶存酸素は、全域でほぼ飽和状態であった。

2.3 実験結果

図-2 中の○および◇印は、水温 15°C、初期濃度約 20 mg/l の場合の COD と TOC の経時変化の実験結果を示している。図中の実線は、実験値から最小自乗法で k_r を求め、式 (2) を描いたものである。この図から式 (2) が実験値によく適合していることがわかる。

また、図-3 は同時に測定した溶存酸素濃度の経時変化を表わしたものである。この図から有機物の負荷を与えた当初は酸化分解に消費される酸素量が多いため溶存酸素濃度は低下するが、ある程度分解が進むと消費酸素量が減少するので溶存酸素濃度が回復していく様子が見出せる。

図-2 に示したような COD の経時変化の実験結果から求めた k_r と初期濃度 L_0 との関係、図-4 に示す。データにはばらつきが見られるが、この図から初期濃度が 5~20 mg/l 程度の範囲内では、 k_r は初期濃度によってあまり変化しないことがわかる。この傾向は TOC についても同様であった。

河川水を対象とした礫間接触酸化法に関する研究が若干行われているが、その一つである建設省の荒川調節池における連続負荷実験によれば、礫間での滞留時間が 2~3 時間以上あれば BOD は 70% 前後除去できるという結果が得られている(横塚ら, 1987)。これを k_r に換算すると 0.3~0.4 1/hr 程度となる。筆者らの実験はバッチ実験であり、上記の建設省の連続負荷実験とは方法が異なるが、図-4 に示した今回の海水を対象とした実験結果は、これと同程度の値を示しているといえる。

一方、COD に対する k_r と水温 T との関係は図-5 のように求められる。この図から k_r は水温の上昇と

ともに増大することがわかる。TOC に対しても同様の結果が得られたが、これらの実験結果から式 (3) で表される水温補正式は、

$$\begin{aligned} \text{COD: } k_r(T) &= 0.57 \times 1.05^{(T-20)} \quad (1/\text{hr}) \\ \text{TOC: } k_r(T) &= 0.34 \times 1.05^{(T-20)} \quad (1/\text{hr}) \end{aligned} \quad \dots (4)$$

のように求められる。

3. 水域浄化過程の数値シミュレーション

3.1 浄化堤配置モデル

浄化堤配置モデルは、大別して 2 種類のものを設定する。一つは図-6 (a) および (b) に示すように海岸線から沖側にコの字形の礫層堤を配置して、矩形水域をつくるもので、このうち堤体の幅が 12.5 m のものを TYPE-I A, 25.0 m のものを TYPE-I B とする。また同図(c) および (d) に示すように逆に海岸を掘り込んで矩形水域としたものを TYPE-II とするが、このうち海岸線に平行に礫層堤を設けたものを TYPE-II A, 海岸に直角に礫層堤を設けたものを TYPE-II B とする。TYPE-II の堤体幅は A, B とともに 25 m とする。また、両 TYPE とともに礫層堤で囲まれた水域(以後内水域と呼ぶ)の大きさは、海岸線に平行に 200 m, 直角に 100 m とする。

3.2 仮定と計算領域

a) 仮定

図-6 のように設定した浄化堤配置モデルに対する浄化過程の計算においては礫層堤のみに浄化効果をもたせ、かつその浄化効果を表す反応速度定数 k_r の値は、堤体全体にわたって一様で、一定であると仮定する。また有機物としては COD を対象とする。

b) 計算領域

計算領域は、浄化堤を中心として、直線の海岸線に平行に 6.4 km, 直角に沖合いに 3.2 km の大きさを設定する。平均水深は海岸線で 3 m, 3.2 km 沖合いで 35 m, したがって海底勾配は一様で 1/100 とする。また TYPE-II の浄化堤配置モデルの内水域の水深は一様で平均水深 3 m とする。

3.3 汚濁負荷条件

汚濁負荷条件は次の 2 ケースを設定する。

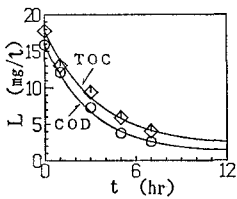


図-2 COD および TOC の経時変化

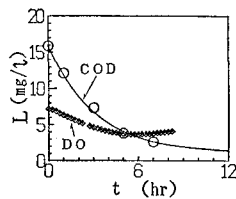


図-3 DO の経時変化

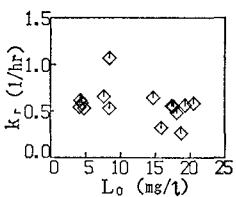


図-4 k_r と L_0 との関係 (COD)

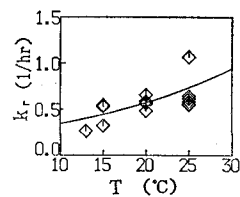


図-5 k_r と T との関係 (COD)

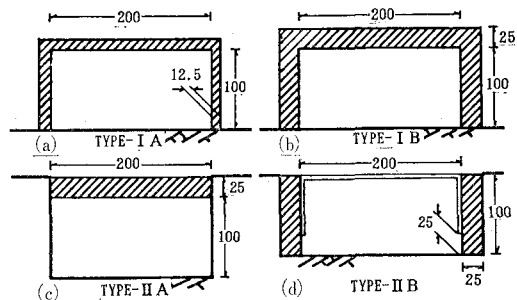


図-6 浄化堤配置モデル (単位: m)

① CASE-1: 内水域には特別な負荷を与えず, 計算領域全体のバックグラウンドの汚濁濃度として 5 mg COD/l を与える.

② CASE-2: 内水域に 10 g COD/sec の連続汚濁負荷を与え, かつ, 計算領域全体のバックグラウンドの汚濁濃度として 2 mg COD/l を負荷する.

3.4 計算方法

a) 計算理論

潮流計算には, $N-S$ 方程式を水深方向に積分した 2 次元一層モデルを用いる. その運動方程式は式 (5) および式 (6), また連続方程式は式 (7) で表される.

運動方程式:

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \frac{1}{\lambda} \left\{ u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} \right\} + g \lambda \frac{\partial \zeta}{\partial x} \\ = A_t \left\{ \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right\} - \frac{C_f u \sqrt{u^2 + v^2}}{\lambda \sqrt{H + \zeta}} \\ - \frac{K}{d \lambda} u \sqrt{u^2 + v^2} \dots\dots\dots (5)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + \frac{1}{\lambda} \left\{ u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} \right\} + g \lambda \frac{\partial \zeta}{\partial y} \\ = A_t \left\{ \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \right\} - \frac{C_f v \sqrt{u^2 + v^2}}{\lambda \sqrt{H + \zeta}} \\ - \frac{K}{d \lambda} v \sqrt{u^2 + v^2} \dots\dots\dots (6)$$

連続方程式:

$$\frac{\partial \zeta}{\partial t} + \frac{1}{\lambda} \cdot \frac{\partial (H + \zeta) u}{\partial x} + \frac{1}{\lambda} \cdot \frac{\partial (H + \zeta) v}{\partial y} = 0 \dots\dots (7)$$

ここに, u, v : 水深方向に平均化された流速, ζ : 水位変動量, H : 平均水深, λ : 礫層堤の空隙率で, 礫層堤内部でのみ考慮し, その他の水域は 1.0 とする, K : 礫層堤体による摩擦損失係数, A_t : 渦動粘性係数, $C_f = n^2 g / H^{1/3}$: 海底摩擦係数, n : マニングの粗度係数, g : 重力加速度.

また, 潮流による有機物の拡散計算は式 (8) で表される 2 次元の Fick の拡散方程式を用いる.

$$(H + \zeta) \lambda \frac{\partial L}{\partial t} + u(H + \zeta) \frac{\partial L}{\partial x} + v(H + \zeta) \frac{\partial L}{\partial y} \\ = \frac{\partial}{\partial x} D(H + \zeta) \lambda \frac{\partial L}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial y} D(H + \zeta) \lambda \frac{\partial L}{\partial y} \\ - k_r L(H + \zeta) \lambda + (H + \zeta) \lambda Q \dots\dots\dots (8)$$

ここに, L : 有機物濃度, k_r : 反応速度定数, D : 乱流拡散係数, Q : 有機物負荷強度, すなわち単位時間当りの有機物負荷量.

なお, 式 (8) 中の右辺第 3 項は, 礫層堤による浄化項を表す. 実験では式 (1) に基底濃度 L_b を考慮しているが, ここではその影響を無視している. また右辺第 4 項は汚濁負荷を表し, 前述の CASE-2 の負荷条件の場合のみ考慮する.

b) 数値計算法

数値計算には領域設定が容易である有限要素法を用いる. 計算領域の要素分割は, 礫層堤体内では節点間隔を 12.5 m に, 内水域および堤体近傍の外水域では 25 m, さらにその外側の外水域では 100 m および 800 m とする. 有限要素法の具体的な説明は省略するが基本的には川原(1985)の方法に依る.

c) 諸定数と境界条件

計算に用いる諸定数は次のとおりである. 礫層堤の空隙率 $\lambda = 0.45$, 礫粒径 $d = 15$ cm. 礫層堤の摩擦損失係数 K は次の Stephanson (1979) の実験式を用いて設定する.

$$K = \begin{cases} 800\lambda/Re & : Re < 10^2 \\ 800\lambda/Re + K_t & : 10^2 < Re < 10^4 \\ K_t & : 10^4 < Re \end{cases} \dots\dots\dots (9)$$

ここに, $Re = d\sqrt{u^2 + v^2}/\nu$, K_t : 礫の粗さによって決まる定数で今回の計算では 1 とする. また, 海底摩擦係数を求めるときのマニングの粗度係数は 0.025 とする.

渦動粘性係数 A_t は分割要素の大きさや流れの状態によって変えるべきであるが, ここでは全領域で一定値を用い, $A_t = 1.0 \text{ m}^2/\text{sec}$ とする. また乱流拡散係数 D は, 内水域で $D = 1.0 \text{ m}^2/\text{sec}$, 堤体内で $0.5 \text{ m}^2/\text{sec}$, 外水域で $10.0 \text{ m}^2/\text{sec}$ とする. 堤体の有機物除去速度定数は, 今回の実験結果を参考にして $k_r = 0.1, 0.3$ および 0.5 1/hr の 3 種類に変える.

境界条件は潮流計算では陸境界およびその他の不透水壁では $\partial V / \partial n = 0$ (V : 流速) とするが, それ以外の外水域での左右の仮想境界では $\zeta_x(t) = a_0 \sin(T/2\pi \cdot t + \varepsilon_x)$; $\varepsilon_x = x/\sqrt{gh}$ (x : 内水域中央に原点を有し, 陸岸線にとった座標) の強制潮位を与え, 振幅は $a_0 = 0.5 \text{ m}$ とする. また拡散計算では, 仮想境界とその他の不透水壁で濃度フラックスがゼロ, また外水域での左右の仮想境界では, 潮流が計算領域に流入する場合は領域外から濃度として一定濃度 (バックグラウンド濃度) を強制的に与えた. 流出するときは浄化水域と仮想境界が非常に離れていることを考慮して, 便宜上濃度フラックスがゼロになるよう設定した.

d) 浄化効果の評価法

図-6 に示した 4 種類の浄化堤配置モデルの浄化効果の評価するために定常状態における次の量を求める.

i) 平均濃度分布

各分割要素における 1 周期当りの時間平均濃度の空間的分布.

ii) 内水域平均濃度

内水域における空間的, 時間的な平均濃度で, i) の平均濃度分布を内水域に対して, 空間的に平均化して求めたものに相当する.

iii) 単位除去量

堤体によって潮汐1周期当りに除去される有機物総量を堤体の単位体積(平均水面下体積)当り, 単位時間当りに平均化した量. 堤体中の任意の分割要素におけるタイムステップ Δt 当りの除去量は, 反応速度定数 $\times$ 要素内の有機物濃度 $\times$ 要素内ネット水量 $\times \Delta t$ で計算できる. これを堤体内の全分割要素に対して求め, 1周期にわたって累積すると堤体によって1周期当りに除去される有機物総量が得られる.

iv) 除去率

潮汐1周期当りに内水域に負荷される汚濁負荷総量に対する堤体によって除去される有機物総量の比で, 汚濁負荷条件が CASE-2 の場合のみ求める.

3.5 計算結果

a) 汚濁負荷条件が CASE-1 の場合

図-7(a)~(d)は汚濁負荷条件が CASE-1 の場合の各浄化堤配置モデルにおける内水域を中心とした範囲の平均濃度分布を示している. ただし, 堤体の反応速度定数は $k_r=0.5$ 1/hr の場合のものである. これら図によると TYPE-I では堤体幅の大きいBの方が内水域の濃度がやや低くなっているが, いずれにしても TYPE-I では堤体内での滞留時間が短いためバックグラウンド濃度の 5 mg/l に比べて内水域の濃度低下は小さく, 水質改善はあまり期待できない.

TYPE-II A でも TYPE-I B とほとんど同程度の浄化効果しか期待できないが, TYPE-II B では内水域の濃度は 5 mg/l から 2 mg/l 以下に低下し, かなり良好な浄化効果が期待できる. ただし, 単位除去量は 0.56 gCOD/hr/m^3 と TYPE-I B や TYPE-II A の 0.94 gCOD/hr/m^3 に比べて低い. これは, TYPE-II B では, 定常状態になったときの内水域の平均濃度が低いために, 結果的に堤体で除去される有機物量が減るためであると考えられる. 図-8 に示すように内水域の平均濃度は TYPE-II B では, 急速に減少していくが計算の初期段階では, 濃度が高いため単位除去量はかなり大きいものと予想される.

TYPE-II B でも $k_r=0.1$ 1/hr のときは, 内水域の平均濃度は 3.9 mg/l となりそれほど大きな浄化効果は期待

できない.

b) 汚濁負荷条件が CASE-2 の場合

CASE-2 の場合の各浄化堤配置モデルにおける内水域の平均濃度分布の計算結果は 図-9(a)~(d) に示すとおりである. 図-7 の場合と同様に $k_r=0.5$ 1/hr の場合を示している.

図-9 によると TYPE-I では A, B とともに内水域濃度は負荷点でも 4 mg/l 程度, 平均濃度で $2.7\sim 2.9 \text{ mg/l}$ とかなり低く, 見かけ上浄化効果が高いように見えるが, これは堤体での透過量が大いいために, 内水域に負荷した有機物が移流拡散によって容易に外水域に出て希釈されてしまうからである. TYPE-II A でも同様の理由により内水域濃度はかなりの低下を示している. これに対して TYPE-II B では汚濁物質が内水域に滞留しやすいため内水域濃度は負荷点で 18 mg/l 程度, 平均でも 16.8 mg/l とかなり高く, 浄化効果は一見悪いように見える. しかし, 除去率を調べると 図-10 に示すように, TYPE-II B が最も高く汚濁負荷量の 50% 前後の量が堤体で除去されることがわかる. TYPE-I でも堤体幅の大きなBの場合は比較的除去率は高いようであるが, これは堤体の全長が長いためである. 図-11 は投資効果的な視点からとらえた, 堤体の単位長さ当りの, 単位時間当りの除去量, すなわち単位除去量を各浄化堤配置モデルについて比較したものであるが, この図からも TYPE-II B は他のモデルの場合に比べて数倍浄化効果が高いことがわかる.

以上の結果を総合すれば, TYPE-II B の浄化堤配置モデルはいずれの汚濁負荷条件 (CASE-1 および CASE-

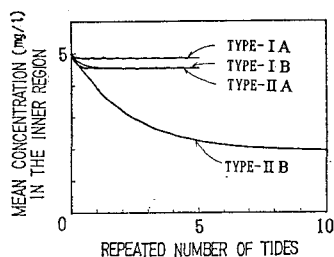


図-8 内水域平均濃度の経時変化 (CASE-1)

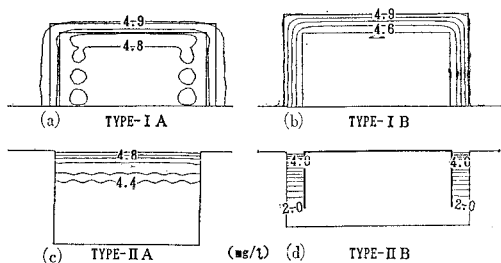


図-7 平均濃度分布 (CASE-1; $k_r=0.5$ 1/hr)

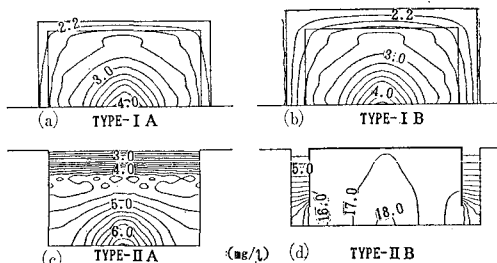


図-9 平均濃度分布 (CASE-2; $k_r=0.5$ 1/hr)

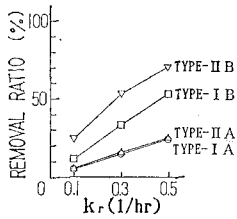


図-10 各浄化水域モデルの除去率 (CASE-2)

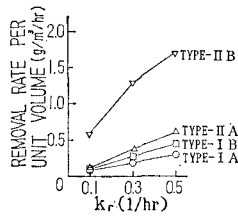


図-11 各浄化水域モデルの単位除去量 (CASE-2)

2) の場合でも良好な浄化効果が期待できる。

4. 結 論

本研究によって得られた結果は次のように要約される。

(1) 汚濁海水に対する礫間接触酸化の浄化効果は基底濃度の影響をとり入れた一次反応式で表され、その COD (あるいは TOC) 濃度は滞留時間とともに式 (2) で表されるように指数関数的に減少する。

(2) 一次反応式中の反応速度定数 k_r は水温の影響を強く受け、今回の実験では水温との間に COD および TOC に関して式 (4) で表される関係が存在する。また、 k_r におよぼす初期負荷濃度の影響は非常に小さい。

(3) 生物膜法の一つである礫間接触酸化法を海水浄化に应用する場合には、TYPE-II B のように礫層内での滞留時間が長くなるような堤体配置形状や堤体構造を選択することが望ましい。

本研究によって水槽実験では海水に対しても生物膜法が浄化効果を有することが見いだされたが、この方法が実際の沿岸域でも有効であるか否かを判断するには、今

後さらに解明しなければならない多くの課題が残されている。特に今回の水槽実験で用いた有機物 (スキムミルク) は実際の沿岸海水中のそれとは種類が異なり、微生物にとってはいわば高級料理が与えられることになる。今後は実際の沿岸海水中に含まれる有機物を用いた実験を行って浄化効果を調べる必要がある。

また実用化のための堤体の配置形状と構造には滞留時間が長くなるようなものが適していることを指摘したが、滞留時間が長くなると貧酸素状態になるおそれがあるので、浄化効果におよぼす溶存酸素濃度の影響を調べることも重要な課題である。同時に実用化の観点からは礫層堤内の溶存酸素濃度を増加させる方策を検討する必要がある。

なお本研究を実施するに当たっては様々な方々からご教示を戴いたが、特に当大学工学部土木工学科の本多淳裕教授と貫上佳則助手には貴重なご助言を戴いた。ここに記して謝意を表する。

参 考 文 献

- 合葉修一・永井史朗 (1975): 生物化学工学反応速度論, 科学技術社, 324 p.
- 柏谷 衛 (1980): 新体系土木工学 89 下水道, 技報堂出版, p. 144.
- 川原睦人 (1985): 有限要素法流体解析, 日科技連, 293 p.
- シーブルー・テクノロジー研究委員会 (1989): 快適な海域環境の創造に向けて—シーブルー計画, シーブルー・テクノロジー研究委員会, 239 p.
- 横塚尚志, 他 (1987): 荒川調節池総合開発事業における水利用高度化, 第2回水資源シンポジウム, pp. 81~86.
- Stephenson, D. (1979): Rockfill in hydraulic engineering, Elsevier Scientific Publishing, 215 p.