

生物膜の海水浄化効果に関する水槽実験

—冬期海水を対象として—

小田 一 紀・大屋 博 史** 齋 藤 美 香***・倉 田 克 彦****

1. ま え が き

近年、閉鎖性内湾における水質悪化が沿岸生態系に大きなインパクトを与えており、劣化した生態系の回復を求める社会的要請が高まっている。このような社会的背景の下で筆者らは、2年前から閉鎖性水域の汚濁海水を浄化する手段の一つとして、既に有効な下水処理法として普及している生物膜法に着目し、大量、低濃度の汚濁海水の浄化への本手法の適用性について基礎的研究を行ってきた。これまでのところ、パッチ実験によってスキムミルクのような易分解性の有機物に対しては比較的低濃度であっても、礫間生物膜は高い浄化効果を有すること、および易分解性有機物に対するその浄化特性が明らかになった(小田ら, 1990)。

しかし実海中の有機物は、かなり難分解性のものであるといわれており、また実際の汚濁負荷条件は連続負荷であるので、今回は実験条件を実態にできるだけ近付け、冬期の特に低濃度、難分解性の実海水をそのまま用いて、連続負荷実験によって礫間生物膜の浄化効果を調べた。また、実海水のゲル濾過を行って汚濁海水に含まれる有機成分を分子量によって分画し、含有成分の微生物分解性の評価を行った。

2. 海水浄化実験

2.1 実験方法

実験は 図-1 に示すような直径 30 cm、高さ 100 cm のアクリル製縦型円筒形水槽を用いて行った。接触材として粒径約 5 cm の碎石、粒径約 1 cm の碎石、およびポリプロピレン製の人工藻の3種類を用いた。浄化効果は水量とそれに接触する接触材の表面積に大きく依存すると考えられるので、表面積・水量比を式(1)のように定義し、その違いによる浄化効果の差を調べた。

$$\text{表面積} \cdot \text{水量比} = \frac{\text{水槽単位体積当りの接触材の表面積}}{\text{水槽単位体積当りに含まれる水量}} \dots\dots\dots (1)$$

実施した実験ケースとその条件をまとめて示すと、表-1 のとおりである。

表-1 実験条件

CASE	負荷水	接 触 材	表面積・水量比 (cm ² /l)	滞留時間 (day)
CASE-1	海水	粒径約 5 cm	2600	7.0
CASE-2	〃	〃	〃	3.5
CASE-3	〃	粒径約 1 cm	8000	7.0
CASE-4	〃	人工藻	1900	〃
CASE-5	河川水	粒径約 5 cm	2600	〃

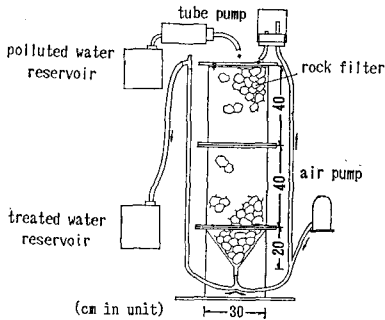


図-1 実験水槽

海水は大阪港南港のフェリーターミナルから採取し、これを実験水槽および流入水タンクに満たし、送液ポンプにより滞留時間が約 7.0 day になるように約 144 ml/hr の一定流量で連続的に水槽上端から流入させ、下端に取り付けてあるチューブからオーバーフローさせて流出水タンクに貯めた。残りの海水は変質しないように冷蔵庫に保管した。なお、水槽内での滞留時間は約 7.0 day を基本としたが、浄化効果におよぼす滞留時間の影響を調べるため粒径約 5 cm の碎石については、水槽の高さを滞留時間約 7.0 day の場合の半分にする事によって、滞留時間を約 3.5 day に設定した(CASE-2)。また、曝気を行い、かつ海水を循環させ、水槽内で物質の濃度差を生じさせない、いわゆる完全混合状態にするためエアープンプを用いた。さらに、光合成での炭酸同化作用に

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

よる炭素の生産を防ぐため、水槽内は暗条件とした。いずれの水槽も馴致期間として1カ月以上経過した後、流入水と流出水を適宜サンプリングし、TOC (全有機性炭素)、DOC (溶存態有機性炭素)、SS (浮遊物質)、TP (全燐)、TN (全窒素) の値を測定した。また海水と河川水による浄化効果の相違をみるために大和川の河口から約10 km 上流点で河川水を採取し、粒径約5 cm の碎石の接触材を用いて、滞留時間約7.0 day の条件で同様な測定を行った。

2.2 採取水の水質

表-2 は1990年10月22日～1991年1月14日までの、期間中に採取した海水および河川水の塩分濃度、pH、COD、DO の値を示している。海水の採取場所は大阪港の奥部であり、複数の市内河川からの河川水の流入により塩分濃度が通常の海水に比べて若干低めであることがわかる。また、COD については平成2年度の大阪府環境白書(1990)によると南港での年間の平均値は3.5 mg/l であるが、今回の採取期間は冬期であるためこれに比べてかなり低い値となっている。河川水は当大学水理実験場の横を流れている大和川から採取した。下水や小規模の汚濁河川が流入しているため、大阪港に比べてかなり高いCOD値を示している。

表-2 採取した海水(大阪港)と河川水(大和川)の水質比較

採取場所	塩分濃度 (%)	pH	COD (mg/l)	DO (mg/l)
大阪港	20.3	7.54	1.70	5.3
	25.1	7.69	2.04	7.2
大和川	—	8.5	4.11	9.1
	—	—	9.62	—

採取期間 1990.10.22～1991.1.14

表-3 実験ケースにおける流出水の平均水質と平均除去率

水 質 項 目			TOC	DOC	TN	TP	SS	
海 水	流入水濃度		平均値(mg/l)	2.66	2.49	2.48	0.151	4.94
	流	CASE-1	平均値(mg/l)	2.65	2.39	2.02	0.034	1.16
			除去率(%)	0.64	4.13	18.5	77.6	76.6
	出	CASE-2	平均値(mg/l)	—	—	2.72	0.047	1.01
			除去率(%)	—	—	-9.58	68.9	79.4
	水	CASE-3	平均値(mg/l)	2.59	2.45	2.11	0.028	0.92
			除去率(%)	2.74	1.77	15.1	81.3	81.3
	濃	CASE-4	平均値(mg/l)	2.97	2.89	2.53	0.115	0.77
			除去率(%)	-11.5	-16.1	-1.77	23.7	84.4
	度							
河 川 水	流入水濃度		平均値(mg/l)	5.69	4.18	3.78	0.359	42.8
	流出水濃度		平均値(mg/l)	3.42	3.33	2.52	0.136	1.88
	(CASE-5)		除去率(%)	39.9	20.3	33.3	62.0	95.6

2.3 実験結果

測定は、1990年11月14日から1991年1月24日までの秋から冬にかけての期間に行った。表-3 は浄化実験の結果をまとめたもので、各実験ケースの流入水と流出水のTOC、DOC、TN、TP、SS 濃度の測定期間内における平均値、および平均値を用いて式(2)で計算したそれぞれの除去率を示している。

$$\text{除去率(\%)} = \frac{\text{流入水の平均濃度} - \text{流出水の平均濃度}}{\text{流入水の平均濃度}} \quad (2)$$

また、図-2 は測定期間中の水温の経日変化を表している。

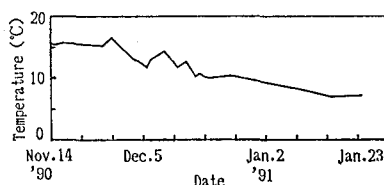


図-2 水温の経日変化

a) TOC および DOC の除去

図-3 および 図-4 は、それぞれの各実験ケースにおける TOC および DOC の経日変化を示している。これらの図および表-3 によると、河川水中の炭素成分は、TOC で約 40%、DOC で約 20% とかなり除去されているにもかかわらず、海水中の炭素成分はどのケースにおいてもほとんど除去されていないことがわかる。つまり、冬期における海水中の有機性炭素は、河川水中の有機性炭素とは異なり、微生物活動によっては分解し難い成分であることがわかる。なお、図-3 および 図-4 において流入水の TOC および DOC の経日変化は現場での採取水そのものの水質の変動を表している。また、

CASE-2 においては11月から12月にかけて流出水の TOC および DOC とともに急激な増加を示しているが、これはこの期間 CASE-2 の実験装置の暗条件づくりに不備があり、太陽光が当たったため光合成活動が行われ、水槽中で DOC が生産されたためであると考えられる。

b) SS (浮遊物質) の除去

SS の経日変化を 図-5 に示す。また 図-6 は、1990年11月14日から1991年1月24日までの CASE-1～CASE-4 の SS 濃度累積値 ($[\text{mg/l}] \cdot \text{day}$) の変化を示している。これらの図からどのケースにおいても SS の除去効果は高く、測定期間中の流入水と流出水の平均濃度から求めた除去率は 表-3 に示すようにいずれも 80% 程度であり、特に碎石の粒径が小さい CASE-3

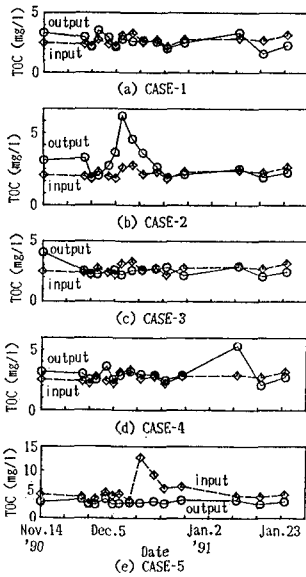


図-3 TOCの経日変化

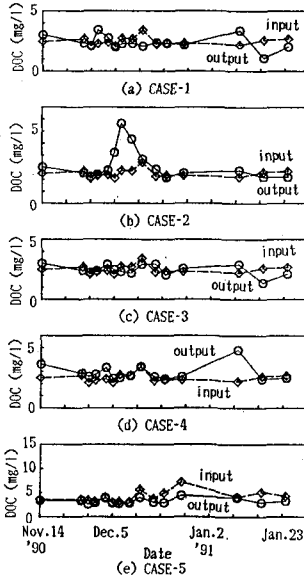


図-4 DOCの経日変化

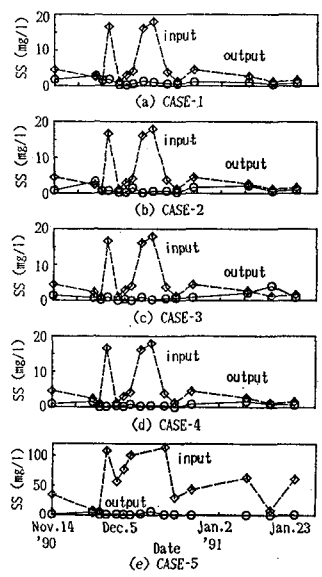


図-5 SSの経日変化

と人工藻の CASE-4 は大きい。また、CASE-1 と CASE-2 の違い、つまり滞留時間による違いがほとんどないことから、SS は微生物による摂取というよりも、接触材の表面での付着という物理的要因によって除去されているのではないかと考えられる。

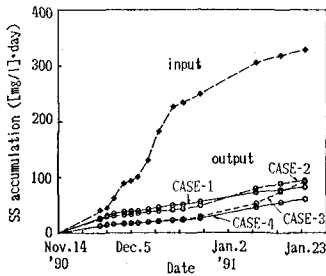


図-6 SSの累積値

c) TN の除去

TN の経日変化を 図-7 に示す。海水では CASE-1 で約 19%, CASE-3 で約 15% とある程度の除去率が得られているが、CASE-2 では除去率が負の値を示している。これは前述の炭素の場合にみられたように11月から12月にかけて流出水の TN 値が急激に増加したためである。この TN 値の急増も暗条件作りの不備によって発生した植物性プランクトンによる窒素同化作用が原因ではないかと考えられる。河川水では TN の除去率は 33% 程度と海水の場合より大きな値を示しているが、比較的大きな流入濃度および 1 週間という長い滞留時間にもかかわらず、この程度の除去率しか得られていない

ことは、冬期における礫間生物膜の TN に対する浄化効果のある程度の限界を示しているように思われる。

d) TP の除去

TP の経日変化を 図-8 に示す。TP については、CASE-1 では約 78%, CASE-2 では約 69%, CASE-3 では約 81%, CASE-4 では約 24% の除去率が得られた。明らかに滞留時間、接触材の違いにより除去率が異なっており、接触材の表面積・水量化が大きいほど、また滞留時間が長いほど除去率が大きいことがわかる。

一般に微生物による有機物や、栄養塩類の分解速度は、その濃度に比例するという一次反応式で表される。しかし、筆者ら (1990) は、海水中に含まれるような低濃度の汚濁物質に対しては、その分解速度は、微生物では分解が困難である難分解性物質の濃度を考慮した式 (3) に示すような一次反応式を用いることが適当であることを示した。

$$\frac{dL}{dt} = -k_r(L - L_b) \quad (3)$$

ここで、 t は反応時間、 L は有機物あるいは栄養塩類濃度、 L_b は難分解性の有機物濃度、あるいは栄養塩類濃度、 k_r は反応速度定数である。

式 (3) を $t=0$ で $L=L_0$ の初期条件で積分すると式 (4) を得る。

$$L = (L_0 - L_b) \exp(-k_r \cdot t) + L_b \quad (4)$$

表-3 に記した CASE-1 と CASE-2 の実験結果を用いて式 (4) から、粒径約 5 cm の碎石を接触材とする礫間生物膜の TP に対する反応速度定数を求めると以下のごとくである。 $t=0$ day における流入水の初期 TP 濃度は $L_0=0.151$ mg/l、CASE-2 より $t=3.5$ day で

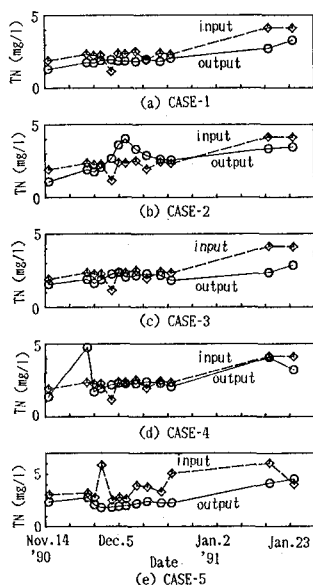


図-7 TN の経日変化

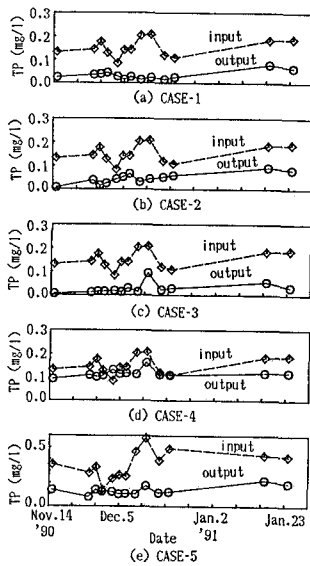


図-8 TP の経日変化

の流出水の TP 濃度は $L=0.047 \text{ mg/l}$, CASE-1 より $t=7.0 \text{ day}$ での TP 濃度は $L=0.034 \text{ mg/l}$ である。また別途行ったバッチ実験より難分解性 TP 濃度として $L_b=0.028 \text{ mg/l}$ が得られたので、これらの値を式 (4) に代入すると $k_r=0.52 \text{ day}^{-1}$ が求められ、TP の経時変化は 図-9 のように表される。

なお、TN に対する反応速度定数は暗条件づくりの不備によって今回は求められなかった。また、SS についても、今回の実験データだけではその浄化効果の定式化は困難であり、今後の課題と考えられる。

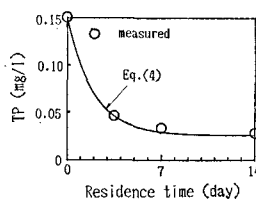


図-9 滞留時間と TP 濃度の関係

3. 海水中の溶存態有機性炭素の分析

海水に含まれる溶存態有機性炭素の特性を調べるため、丹保ら (1978) の提案したゲルクロマトグラフィーの手法を用いてゲルクロマトグラムを作成した。すなわち、大阪港から採取した海水を孔径 $0.45 \mu\text{m}$ のメンブレンフィルターで濾過した後、これを約 5 倍に濃縮し、セファデックスゲル G-15 を入れた直径 5 cm、長さ 80 cm のガラスシリンダーのなかを通す。このガラスシリンダーの下端から流出するフラクションを連続的に 10 ml ずつ分取して、TOC および波長 220 nm と 260 nm での紫外外部吸光度 (以下 E_{220} , E_{260} と表す) を測定する。そ

のようにして得られたゲルクロマトグラムを 図-10 に示す。これをフラクション値によって 5 つの画群に分画し、表-4 に示すように各画群での TOC/ E_{260} の平均値を求めて、海水に含まれる溶存態有機性炭素の微生物分解の難易性を調べた。また同様の方法で大和川から採取した河川水についても 図-11 に示すゲルクロマトグラムを作成し、表-5 に示すように各画群での TOC/ E_{260} の平均値を求めた。

図-11 に見られるように河川水では画群 II および画群 IV に E_{260} の大きなピークが発生しているのに対し、図-10 からわかるように海水の場合は画群 III および画群 V に E_{260} の大きなピークが発生しており、両者に含まれる溶存態有機性炭素の種類が異なっていることがわかる。また、丹保らによる

と、画群 I では TOC/ E_{260} 比がある程度大きくても生物分解性は悪いとされ、画群 II ~ 画群 V ではこの値が 40~50 程度が微生物分解の限界とされており、それ以下の値ではほとんど分解できないといわれている。この知見に基づけば、表-4 および表-5 に示した海水中の溶存態有機性炭素も、河川水中のそれも生物膜による分解性は限界付近にあるといえる。ただ、表-3 に示したように河川水に対する DOC の除去率は 20% 程度に得られており、生物膜によるある程度の分解性を示していることは前述のことと多少矛盾しているように思われる。

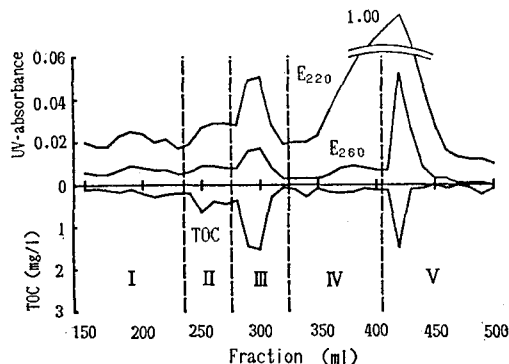


図-10 海水中の溶存態有機性炭素のゲルクロマトグラム

表-4 海水中の溶存態有機性炭素のゲルクロマトグラムにおける各画群の TOC/ E_{260} 比の平均

画 群	I	II	III	IV	V
TOC/ E_{260}	25	50	69	25	21

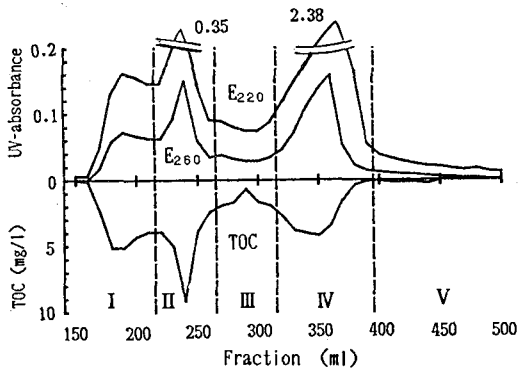


図-11 河川水中の溶存態有機性炭素のゲルマトグラム

表-5 河川水中の溶存態有機性炭素のゲルマトグラムにおける各画群の TOC/E₂₆₀ 比の平均

画 群	I	II	III	IV	V
TOC/E ₂₆₀	75	61	51	34	12

この理由については今後の課題である。

4. まとめと今後の課題

今回実施した冬期の海水を対象とした礫間生物膜の浄化効果に関する実験結果は、以下のようにまとめられる。

(1) 冬期海水を対象とした場合、TOC および DOC は、実験で用いたいずれの接触材の生物膜によってもほとんど除去されない。これはゲルマトグラフィーによる分析からもわかるように冬期の海水中の溶存態有機性炭素が難分解性のもので構成されているからである。

(2) 一方、SS の除去率は、実験で用いたいずれの接触材の場合でも 77~84% 程度と大きく、礫間生物膜が浮遊物質の高い濾過効果を有すること、および粒径の小さい接触材を用いるほど除去効果が高いことが見出された。

(3) また TP の除去率も 24~81% と高く、その値は接触材の表面積・水量比が大きいほど、また滞留時間が長いほど大きい。また、その濃度の経時変化は式(4)に示されるような難分解性濃度の影響を取り入れた一次反応式で表される。

さらに、TN に対しては除去率は約 15% 程度と TP に比べて低い、ある程度の除去効果が期待でき、礫間生物膜が富栄養化の原因である窒素、特にリンの除去に効果があることが確認された。

(4) 人工藻生物膜の浄化効果は、TN、TP に関しては砕石よりやや劣るものの、SS に関しては表面積・水量比が小さいにもかかわらず、砕石と同程度かそれ以上に高い。

以上のことから礫間生物膜は、冬期においては有機物の除去はほとんど期待できないが、富栄養化の原因であるリンや窒素の除去には効果があり、沿岸域の富栄養化の抑制に役立つと考えられる。また、浮遊物質の除去効果も高いため、処理された海水が見た目にきれいな海水となり、景観を重視する最近のウォーターフロント開発の理念にかなうものと思われる。しかし、今回の実験結果に基づけば、実海水中に含まれる窒素やリンに対して高い浄化効果を得ようとするには礫間での滞留時間に少なくとも数日を要するため、どのような構造と規模の浄化堤にすればこのような長い滞留時間が得られるかを考えることが今後の重要な課題である。また、礫間での海水の流速が浄化効果に及ぼす影響についても検討する必要がある。

さらに、今回の CASE-2 での実験装置における暗条件づくりの不備から生じた同化作用による炭素と窒素の増加は、植物の光合成活動により浄化堤が逆に二次汚濁物質の生産源となる可能性を示唆している。礫層生物膜の光合成活動による炭素や窒素の生産がどの程度であるかということも調査する必要がある。

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(平成3年3月定年退職)と貫上佳則助手、および大阪市立環境科学研究所の福永勲氏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

- 小田一紀・他(1990): 海水浄化への生物膜法の応用に関する基礎的研究, 海岸工学論文集, 第37巻, pp. 838-842.
- 丹保憲仁・他(1976): マトリックスによる都市水代謝の水質評価-都市用排水系の再評価のための研究(II), 水道協会雑誌, 第502号, pp. 2-24.
- 大阪府環境白書・平成2年版(1990): 大阪府環境保健部環境局環境政策課, 400 p.