

礫間生物膜の海水浄化効果と現地へのその応用に関する研究

小田 一紀* ・ 貫上 佳則** ・ 重松 孝昌**
大屋 博史***・ 綱 潔之****・ 倉田 克彦*****

1. 緒 言

筆者らは、3年前から閉鎖性内湾における汚濁海水の局所的浄化法として、下水処理法の一つである生物膜法に着目し、大阪港の実海水を用いた室内水槽実験によって礫間生物膜の浄化効果に関する基礎的研究を行ってきた。その結果、実海水に易分解性有機物を負荷して行った当初のバッチ実験では COD に対する反応速度定数は $k_r=0.2\sim0.7\text{ hr}^{-1}$ 程度の値を示し、礫間生物膜の海水浄化効果はかなり高いと判断された(小田ら, 1990)。

その後、新たに人工的負荷を加えない、低温期の、低濃度・難分解性有機物を含む実海水を対象とした連続負荷実験を行った。その結果、滞留時間が 7.0 day のとき、TOC の除去率は 2~3% とかなり小さいが、SS の除去率は 80% 前後、TP で 24~81%、TN で 15% 前後と比較的大きな値を示した。しかし、反応速度定数は、例えば TP に対しては $k_r=0.5\text{ day}^{-1}$ 程度と前述の易分解性有機物を負荷して得られた実験結果より 1 オーダー小さい値を示した。このことから、冬期の海水に対しては、礫間生物膜の浄化効果はほとんど期待できないと判断された(小田ら, 1991)。

本研究は、以上の実験に引き続いて、さらに春から冬に至る長期間の連続負荷実験を行うとともに、新たなバッチ実験および溶存酸素消費実験を行い、礫間生物膜の海水浄化効果に関する総合的知見を得ることを目的とする。

また、それらの知見に基づいて、潮流場における礫間生物膜構造物による周辺海域の海水浄化過程を数値解析し、この種の構造物の海水浄化効果を評価する。

2. 連続負荷実験

2.1 実験装置と実験方法

今回行った一連の実験は前回(小田ら, 1991)用いたものと同じ、直径 30 cm、高さ 100 cm のアクリル性縦

型円筒水槽 5 台を用いて、このうちの 1 台は別途行うバッチ実験に供した。内部に詰める接触材は、粒径約 1 cm、5 cm、および 15 cm の 3 種類の碎石を用いた。

海水は大阪港南港のフェリーターミナルから採取し、馴致を終えた各水槽の上端から送液ポンプにより滞留時間が 7.0 day になるように $q=144\text{ ml/hr}$ の一定流量(平均流速 0.12 m/hr)で流入させた。同時に水槽下端出口に取り付けたチューブの端部を水槽上端位置に固定し、これから流入水と同流量でオーバーフローする流出水を 7.0~10.0 day 間隔でサンプリングし、COD, D-COD; TOC, DOC; SS; TN, DN; TP, DP を測定した。流入水のサンプリングも流出水のそれと同時にを行い、同様な水質測定を行った。

なお、水槽外部には水槽下端から上端に至るもう一つのチューブを設け、その途中に設置したエアープンプによって水槽下端から海水を上端に戻すようにして海水を緩やかに循環させ、攪拌と同時に曝気を行った。

なお、水槽内での滞留時間は 7.0 day を基準にしたが、浄化効果に及ぼす滞留時間の影響を調べるため CASE-2 では碎石層高さを CASE-1 の場合の半分にすることによって 3.5 day に設定した。また、光合成による炭素の生産を防ぐために水槽にアルミ泊を貼り、内部は暗条件とした。

実施した実験ケースと実験条件をまとめて表-1 に示す。

2.2 実験結果

a) 水温の経日変化

測定期間中の水槽内の水温(測定は午後 2 時)の経日変化は図-1 に示すとおりである。この図から、水槽内の水温は 8~33°C の範囲で季節的に緩やかに変動したこ

表-1 実験ケースと実験条件

CASE No.	碎石粒径 (cm)	設定滞留時間 (day)	表面積・水量比 (cm ² /l)
CASE-1	約5	7.0	2800
CASE-2	約5	3.5	2800
CASE-3	約1	7.0	8000
CASE-4	約15	7.0	1000

* 正会員 工博 大阪市立大学教授 工学部土木工学科
** 正会員 工修 大阪市立大学助手 工学部土木工学科
*** 正会員 工修 鹿島建設(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) 総合技術研究所

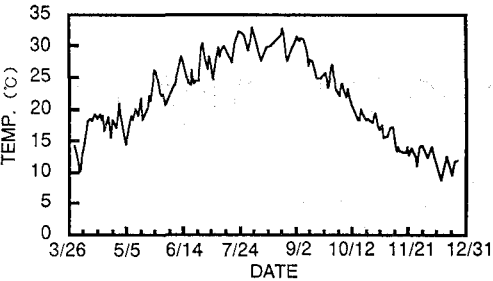


図-1 水槽内水温 (午後2時測定) の経日変化

とがわかる。これらの水温は大阪南港の現地海水の水温に比べ、春、秋はやや低め、夏はやや高めであった。

b) 水質の経日変化

図-2 (a)~(e) は CASE-1 のときの流入水 (input) と流出水 (output) について、それぞれの COD, TOC, SS, TN, TP の濃度の経日変化を表したものである。これらの図によると、SS, TN, TP については4月から10月にかけての温暖期には流出水の濃度が流入水のそれより低下しており、礫間生物膜による浄化効果が認め

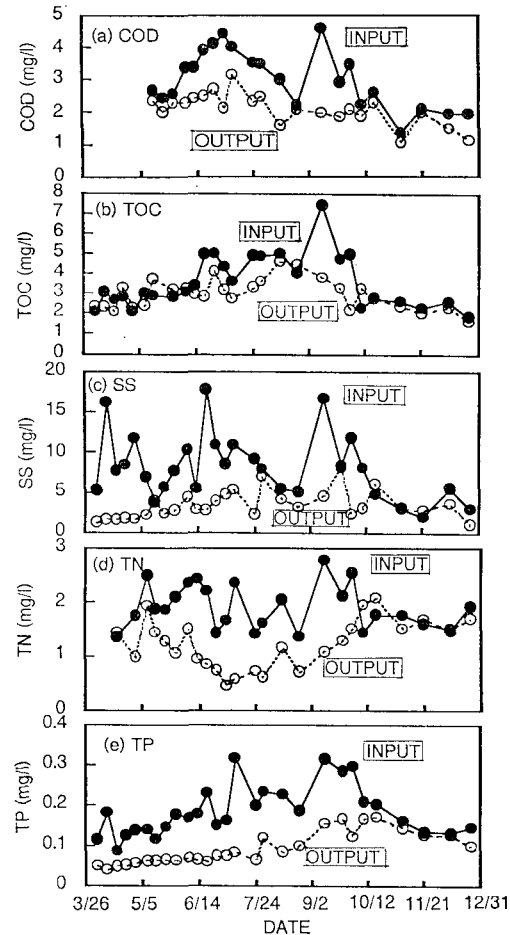


図-2 水質濃度の経日変化例 (CASE-1 の場合)

られる。しかし、10月以降の寒冷期にはいると流入水 (採取してきた実海水) の濃度そのものが低下することおよび微生物の摂食活動も衰えるので、浄化効果はほとんど認められない。

COD に対しては温暖期に多少の浄化効果が認められるが、TOC に対しては8月~10月の期間を除いてほとんど浄化効果は見られず、SS などに対するそれに比べて全般的にかなり劣るといえる。

他の CASE の場合もほぼ同様な傾向であったので、ここではそれらの図を示すことは省略する。

何れにしても、図-2 から明らかなように、測定された水質濃度は短い日数の間にもかなり大きく変化しているの、このような水質濃度の経日変化だけでは浄化効果の定量的な評価は困難である。そこで、次にこれらの時間積分、すなわち実海水中の物質累積量の経日変化を調べてみる。

c) 流入水および流出水中の物質累積量の経日変化

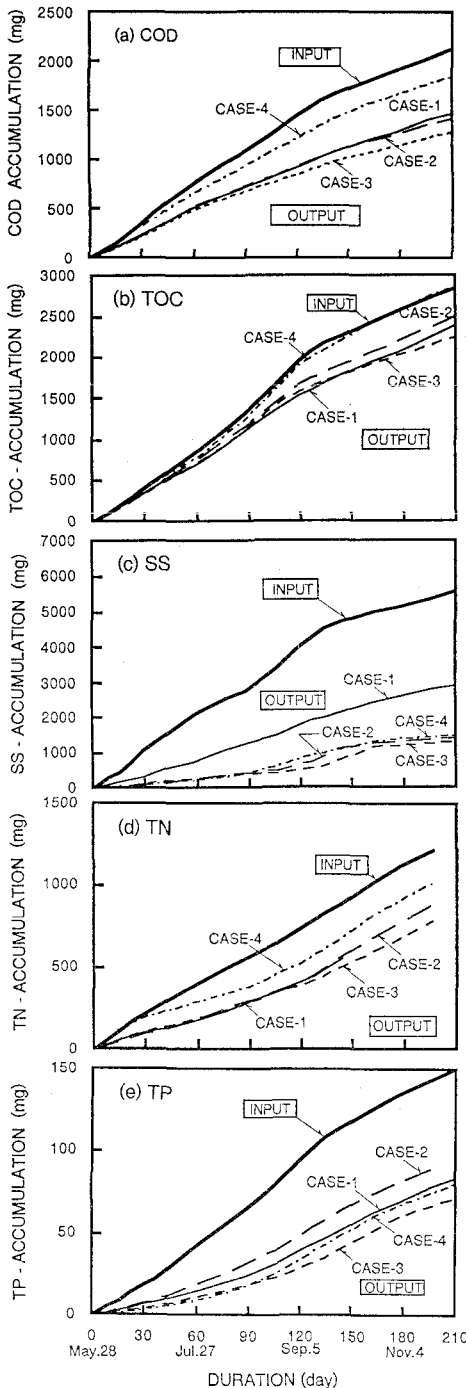
図-3 (a)~(e) はそれぞれ各実験 CASE の流入水および流出水中の COD, TOC, SS, TN および TP の累積量の経日変化を表したものである。これらの累積量は $L(\text{mg/l}) \times q(\text{l/day}) \times \Delta t(\text{day})$ (L : 濃度, q : 流量, Δt : 測定時間間隔) で計算した値を順次加え合わせて求めた。これらの図の縦座標の値は1991年5月28日を時間原点としたときのある経過日数時までの物質の総量を表しているの、流出水 (output) に対する物質累積量を流入水 (input) に対するそれで割った値はその時点までの平均的な物質残存率 ($1 - \text{物質残存率} = \text{物質除去率}$) と解釈できる。このようにして求めた除去率は半分以上の長期的な時間スケールでとらえた平均的な浄化効果を表すので、短時間のバッチ実験から求められる浄化効果の値よりは実用性が高いといえる。

以上のようにして求めた経過日数 210 日に対する各水質指標の除去率をまとめて示すと表-2 のごとくである。

表-2 から滞留時間が 7.0 day (CASE-2 は 3.5 day)

表-2 各水質指標の 210 日後の累積量と累積除去率

水質指標	COD (mg)	TOC (mg)	SS (mg)	TN (mg)	TP (mg)
流入水	2132.2	2884.3	5583.1	1355.6	150.3
流出水	CASE-1 (30.6)	1478.7 (16.6)	2405.4 (47.5)	559.0 (44.9)	84.3 (43.9)
	CASE-2 (32.7)	1433.2 (12.7)	2517.1 (74.7)	889.1 (34.4)	95.4 (40.2)
	CASE-3 (39.1)	1299.1 (21.6)	1311.0 (76.5)	790.9 (41.7)	72.8 (51.6)
	CASE-4 (13.1)	1852.2 (0.402)	2260.5 (73.2)	1022.6 (24.6)	81.0 (46.1)



図—3 流入および流出水中の物質累積量の経日変化

という前提条件の下ではほぼ次のことがいえる。(i) TOC については、何れの実験 CASE でも累積除去率は 20% 程度以下であり、礫間生物膜による有機性炭素の除去はあまり期待できない。(ii) COD については、CASE-4 を除いて 31~39% の比較的大きな累積除去率を示しているが、有機物以外の物質も検出されている可能性があ

ると考えられる。(iii) 一方、SS については CASE-1 を除いても何れも 70% 以上の高い累積除去率を示し、礫間生物膜による浮遊性物質の除去効果はかなり大きい。(iv) また、TN については 25~42%、TP は 40~52% と比較的大きな累積除去率を有する。(v) 滞留時間が 7.0 day の CASE-1 と 3.5 day の CASE-2 とでは各水質指標の累積除去率に大きな差は認められない。このことから滞留時間が少なくとも 3.5 day 以上になれば浄化作用は終了する。(vi) 接触材の表面積・水量比が 8000 cm²/l である CASE-3 の累積除去率は何れの水質指標に関しても他の CASE より大きい。逆に 1000 cm²/l の CASE-4 は一般に最も低い累積除去率を示しており、表面積・水量比の大きいほど浄化効果は高い。

上述の COD、TN、TP が比較的大きな累積除去率を示したのは、これらのうちの浮遊性成分 (P-COD、POC、PN、PP) が SS 中に多く含まれ、SS の礫間生物膜表面への吸着 (吸着後、膜表層部の原生動物によって摂食され、同化または分解される) や礫間空隙での沈澱などとともに物理的に除去されるためであると考えられる。

d) 長期反応速度定数

生物膜による物質の除去分解過程は、一般に次の一次反応式の形で表される。

$$\frac{dL}{dt} = -k_r(L - L_d) \quad \dots\dots\dots (1)$$

初期濃度 $L = L_0$ で式 (1) を積分すると、物質濃度 L と経過時間 t との関係が式 (2) のように表される。

$$L = (L_0 - L_d) \exp(-k_r t) + L_d \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここに、 L_d : 難分解性物質の濃度、 k_r : 反応速度定数。

任意経過時間 $t = T$ における物質の除去率 α_T と終局的除去率 $\alpha_v = 1 - (L_d/L_0)$ が与えられると、式 (2) から反応速度定数は式 (3) で求められる。

$$k_r = \frac{1}{T} \ln \left(\frac{\alpha_v}{\alpha_v - \alpha_T} \right) \quad \dots\dots\dots (3)$$

一般に、反応速度定数は様々の物理・生物・化学的条件によって長期的に変動するので、実用的な観点からはより長期的な時間スケールでとらえたもので評価することが望ましい。そこで、ここでは α_T として $T = 7.0$ day の滞留時間で行った前述の長期間の連続負荷実験から得られた累積除去率 (表—2 参照) を適用することにする。また、 α_v としては長期間の実験結果がないので、別途実施したバッチ実験の結果の平均値を用いることにする。このバッチ実験はほぼ毎月 2 回、連続負荷実験に用いた海水と同じものを用いて、CASE-1 の場合のみについて実施した。以上の値を用いて求めた長期反応速度定数の値を α_T 、 α_v とともに表—3 にまとめて示す。

表—3 中の () 内の値は、表面積・水量比が大きい CASE-3 の場合 ($T = 7.0$ day) について求めた長期反応

表-3 長期反応速度定数 ($T = 7.0$ day)

水質指標	α_T	α_U	k_r (day ⁻¹)
COD	0.31 (0.39)	0.47	0.18 (0.25)
TOC	0.17 (0.22)	0.55	0.053 (0.73)
SS	0.75 (0.78)	0.81	0.37 (0.47)
TN	0.33 (0.42)	0.43	0.21 (0.54)
TP	0.44 (0.52)	0.53	0.34 (0.57)

速度定数を表す。この場合、 α_T として表-2の値を、 α_U としてCASE-1の場合と同じ値を用いた。

表-3によれば、一般に長期反応速度定数の値はCASE-3の方がCASE-1より大きく、両者を求めてCODについては、 $k_r = 0.3 \text{ day}^{-1}$ 前後、SSは $k_r = 0.4 \sim 0.5 \text{ day}^{-1}$ 程度、TNは $k_r = 0.2 \sim 0.5 \text{ day}^{-1}$ 程度、TPは $k_r = 0.3 \sim 0.6 \text{ day}^{-1}$ 程度の値を示す。TOCについては、両者とも $k_r = 0.05 \sim 0.07 \text{ day}^{-1}$ 程度のかかなり小さな値となることがわかる。

自然河川の自浄作用による反応速度定数の値は溶解性有機物に対してはBODで $k_r = 0.1 \sim 1.0 \text{ day}^{-1}$ 、浮遊性有機物の沈澱による浄化も含めるとその2倍程度になるといわれている(宗宮ら, 1991)。今回、筆者らが得た表-4中の値はこの値とはほぼ同程度であるといえる。

3. 溶存酸素消費実験

礫間生物膜による海水浄化効果の効率化をはかるためには礫間生物膜による海水中の溶存酸素の消費過程を解明しておくことも重要である。このため、図-4に示すような小規模な実験装置を用いて溶存酸素の消費過程を調べた。

実験は、CASE-3の水槽から生物膜の育成した粒径約1cmの砕石を取り出し、塩化ビニール製の孔開きパイプを立てた広口ガラス瓶の中に詰め、これに海水を満たした後、溶存酸素計付きゴム栓で密封し、スターラーに

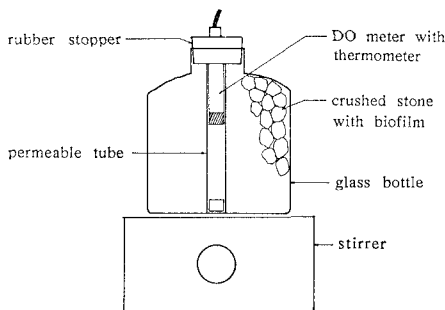


図-4 溶存酸素消費過程の実験装置

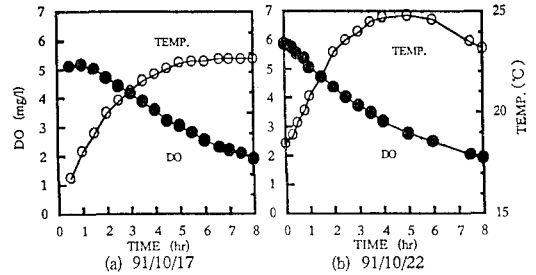


図-5 溶存酸素濃度と水温の経時変化

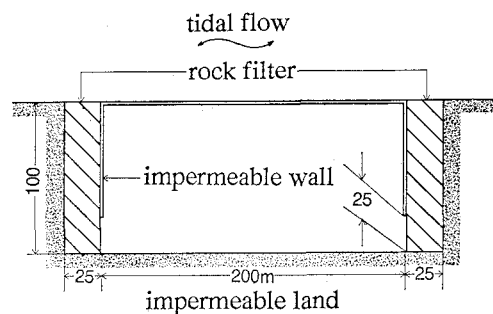
よって海水を混合しながら水温とDO値の変化を15～30min間隔で測定した。

測定したDO値の経時変化は図-5にその一例を示すように経過時間に対して指数関係的に減少しており、有機物などと同様にその減少過程は式(1)と同形の一次反応式で表しうることがわかる。実験結果からその減少速度定数 k を求めると $k = 0.049 \sim 0.18 \text{ hr}^{-1}$ の値を得た。この実験は9月26日～11月21日の間に行われた。図-1および図-2からわかるように、この期間は海水の水温およびその中の物質濃度とともに減少期に入っており、生物膜による酸素消費速度の低い時期に当たると考えられるので、上で得た溶存酸素減少速度定数は、温暖期のそれに比べてやや小さ目の値であると考えられる。

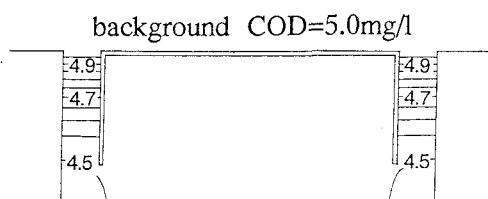
4. 礫間生物膜構造物による水域浄化過程の数値シミュレーション

4.1 計算条件と計算方法

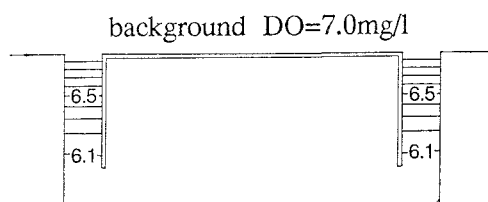
構造物の平面的な配置形状として筆者らが既に試みた配置形状(小田ら, 1990)の中から礫層における海水の滞留時間が長くとれる図-6(a)に示すものを選んだ。計算では、物質(ここではCODとする)のbackground濃度を 5 mg/l として海水が周期12hr、振幅0.5mの潮汐現象を繰り返す間に構造物周辺水域の物質濃度分布がどのように変化するかを求めた。計算に用いた礫間生物膜のCODに対する反応速度定数 k_r の値は表-4に示した今回の長期間の実験結果に基づいて少し大き目の $k_r = 0.5 \text{ day}^{-1}$ を、また溶存酸素減少速度定数 k の値は、前述の実験結果を参考にして $k = 0.15 \text{ hr}^{-1}$ を採用した。さらに、海面よりの再曝気を考慮して、礫層構造物を除く全水域で再曝気係数 K の値を、Chaddertonら(1982)による提案や、堀江(1987)が用いた値を参考にして、 $K = 0.05 \text{ day}^{-1}$ とした。礫層構造物領域では再曝気は考慮しなかった。その他の計算条件、計算方法および潮流と物質拡散の方程式は前回(小田ら, 1990)に用いたものと全く同じであるので、ここでの記述は省略する。今回初めて行った溶存酸素の拡散計算には物質拡散のそれと基本的に同じ拡散方程式を用いた。



(a) 構造物の配置平面図



(b) 物質 COD 濃度分布



(c) DO 濃度分布

図-6 磯間生物膜構造物による水域浄化過程の数値シミュレーション結果

4.2 計算結果

構造物周辺水域における定常状態での COD 濃度分布および DO の濃度分布を図-6 (b), (c) に示す。同図 (b) によれば, background の COD 濃度 5.0 mg/l は, 同図 (a) に示した配置形状と大きさの構造物ではせいぜい 10% 程度しか減少しないことがわかる。同図 (c) から, 礫層内での溶存酸素濃度の低下は 13% 程度と極く僅かであるのは浄化がほとんど行われていないからであると判断される。

以上のように, かなり大きな礫層構造物を用いて浄化効果の検討を行ってみたが, 僅かな浄化効果しか得られなかった。しかし, 反応速度定数は礫層内における海水の流速等によっても変化するものと思われる。今回の計算では, 流速が極めて小さい場合平均実流速 (0.12 m/hr) の実験結果を用いているので, この結果から礫間生物膜法の実用性について結論を出すのは現時点では早計であると思われる。今後, 流速が速い場合の実験を行いさらに検討する必要がある。

5. 結 論

本研究によって得られた主な知見は以下のように要約される。

1) 今回用いた接触材の表面積・水量比の値, $1000 \sim 8000 \text{ cm}^2/\text{l}$ の範囲では, この値が大きいほど浄化効果は高い。

2) 滞留時間が 7.0 day (平均実流速 0.12 m/hr) のとき, 礫間生物膜による TOC に対する累積除去率は粒径 1 cm 程度の小さな礫材でも 20% 程度以下, また長期反応速度定数は大きくても $k_r = 0.07 \text{ day}^{-1}$ 程度と極めて小さい。

3) このとき, COD の累積除去率は $31 \sim 39\%$, 長期反応速度定数は大きくて $k_r = 0.25 \text{ day}^{-1}$ 程度と TOC に比べてやや大きい。

4) 一方, SS に対する累積除去率は最大 77% 程度, これにともなって TN, TP もそれぞれ 42%, 52% 程度とかなり大きい。しかし, 長期反応速度定数はそれぞれ $k_r = 0.47, 0.54$ および 0.57 day^{-1} 程度の値にとどまる。

5) 礫間生物膜の溶存酸素消費速度定数の値は, 水温低下期の 10 月～11 月において $k = 0.05 \sim 0.18 \text{ hr}^{-1}$ 程度である。

6) 以上の室内実験結果に基づいて行われた礫間生物膜構造物による水域浄化過程の数値シミュレーションから, $k_r = 0.5 \text{ day}^{-1}$, 滞留時間が数時間という条件下では生物膜のみによる浄化効果はほとんど期待できないと判断される。しかし, k_r は礫層内における海水の流速等によっても変化するもので, 今後流速の影響を考慮した浄化効果の評価をする必要がある。

また, 生物膜以外の他の付着生物群は, 生物膜以外の他の付着生物群による浄化効果をも積極的に利用する方策を講ずるとともに, それぞれ浄化効果の定式化を行う必要がある。

最後に, 本研究は文部省科学研究費一般研究 (B) (代表者: 小田一紀, No. 03452215) の補助を受けた。ここに記して謝意を表する。

参 考 文 献

- 堀江 毅 (1987): 海域の物質循環過程のモデル化と浄化対策効果の予測手法について, 港研報告, 26 巻, 4 号, pp. 57-123.
- 小田一紀・岡本良治・大屋博史・倉田克彦 (1990): 海水浄化への生物膜法へ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.
- 小田一紀・大屋博史・齋藤美香・倉田克彦 (1991): 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——海岸工学論文集, 第 38 巻, pp. 871-875.
- 宗宮 功編著 (1991): 自然の浄化機構, 技報堂出版, pp. 90-91.
- Chadderton, R. A., A. C. Miller and A. J. McDonnell (1982): Uncertain Analysis of Dissolved Oxygen Model, Proc. ASCE, Vol. 108, EE5, pp. 1003-1013.