

塩水中における微細土粒子の凝集・沈降過程に関する研究

——ベントナイトをモデルとして——

小田一紀*・宋元平**・芝村圭***・農本充****

1. はじめに

河川上流から濁水成分として流れてくる微細土粒子は河川中では一般に負に帯電しており、互いに反発しあい凝集せずに水中を浮遊している。しかし、河口域汽水域に達すると海水中の豊富な陽イオンに出会い、電荷を失うとともに、流れの攪拌作用により粒子同士の遭遇機会が増え、互いに吸着しフロックを形成する。粒径が大きくなったフロックは、ストークス則により沈降速度を増し、その多くが河口域に堆積する。このような微細土粒子フロックの堆積が中国や東南アジアの河口域における航路埋没問題の大きな原因となっている。また、これらの微細土粒子には人為的に海水中に放出された有害な陽イオンも吸着し、それらのフロックの沈殿は底生生物にも影響を及ぼす可能性がある。

このように河口域に達した微細土粒子の凝集・沈降・堆積の素過程は河口域の地形、水質、生態系の形成に大きな影響を及ぼしているにも拘わらず、これらの素過程の定量的な予測に役立つ研究例は国の内外ともに数少ない。我が国では、楠田ら (1978) や安立 (1982, 1983) の実験的研究がみられるが、何れもこれらの素過程を定量的に予測できるまでには至っていない。彼らの研究によると、フロックの形成過程は、主として攪拌強度、濁質濃度、塩分の 3 因子に依存する事が見出されている。

本研究は、彼らの研究成果を基盤として、海水として塩水を、微細土粒子のモデルとしてベントナイトを用いた系統的な室内実験を行い、塩水中における微細土粒子のフロック形成過程、終局粒径および有効密度と前記 3 条件との関係を定量的に調べ、それらを予測する経験式を提示する。

2. 実験概要

2.1 土粒子試料

土粒子の物理・化学的性質が異なると凝集特性も異な

るので、実験に用いる土粒子試料は研究対象とする河川から採取するのが望ましいと考えられる。本研究は、最終的には中国の長江河口域における微細土粒子の沈降・堆積過程の解明を目的としているので、土粒子試料は長江から採取すべきであるが、ある程度まとまった量の試料の確保が困難であったため、ここでは比較的均質な物理・化学的性質を有し、入手が容易な市販のベントナイトを用いることにした。また、一般に、河口域の堆積土は、粒径が 5~75 μm のシルトないしは 5 μm 以下の粘土で構成されている。これらは主にモンモリロナイトを主成分とするベントナイトを多く含んでいることが見出されており、このことも土粒子試料としてベントナイトを用いた理由の一つである。

因みに、長江中流域に位置する南京市の南京長江大橋下の水辺で採取された浮遊砂のサンプル、河口域における北槽上口の河床から採取された表層堆積土のサンプル、および実験に用いたベントナイトを X 線光電子分析装置により組成分析を行った結果、表-1 に示すように長江の中流・河口域で採取された土粒子サンプルとベントナイトの組成は炭素の含有率に差がみられるが、それ以外の元素の含有率には大きな差はみられないことが確認された。

なお、表中の数値は、X 線を照射した土粒子表面における元素数の含有率を表す。また、長江で採取された土粒子のサンプルは蒸留水を入れたビーカーの中で十分に攪拌し、沈殿後上澄み水を除去して残った微細土粒子を強制乾燥させて分析に用いた。

2.2 凝集実験

(1) 実験装置と方法

表-1 ベントナイトと長江土粒子の組成比較

分析試料	元素含有率 (%)								
	C	O	Al	Si	Fe	Mg	Ca	その他	
ベントナイト	28.6	42.6	8.9	13.1	1.9	0.3	1.4	3.2	
長江土粒子	中流域 (南京)	18.4	49.3	13.0	13.6	1.8	0.1	1.5	2.3
	河口域 (上海)	13.8	53.3	7.5	20.0	0.6	0.1	0.9	3.8

* 正会員 工博 大阪市立大学教授 環境都市工学科
 ** 理修 (有)プロボート
 *** 工修 住宅・都市整備公団
 **** 学生会員 大阪市立大学大学院 工学研究科

実験は、2枚の平板翼 (2.4 cm×2.5 cm) を持つ攪拌機 (ジャーテスター) とビーカー (φ8.5 mm) を用いて行った。前述のペントナイトを所定量とり、24時間以上蒸留水に浸漬させてよく水になじませ、この懸濁液をつくった塩水 450 ml に加えて 500 ml (水深は約 8.8 cm) とし、これを所定の攪拌強度で攪拌した。攪拌強度 $G(s^{-1})$ は、攪拌に要するトルクを測定して、後述の式 (1) および (2) によって算定した。なお、攪拌翼はその下端がビーカーの底から約 1 cm 上方に位置するように設定し、濁質濃度 $C_t(mg/l)$ 、塩分 $C(psu)$ は懸濁液投入後、所定の濃度になるように予めペントナイトと NaCl の質量を調整した。以上の 3 つの実験パラメーターの値を表-2 に示すように設定し、合計 96 ケースの実験を行った。

表-2 実験パラメーターの設定値

攪拌強度 $G(s^{-1})$	26.5, 57.0, 94.5, 137.8
濁質濃度 $C_t(mg/l)$	25, 50, 100, 200, 300, 500
塩分 $C(psu)$	5, 15, 25, 35

(2) フロック粒径の測定法と定義

攪拌開始から所定の時間が経過する毎に、サンプリング器 (内径 1.5 mm, 長さ 70 mm のガラス管) で採水し、これをプレパラート上に滴下し、デジタルカメラを用いてフロック画像を暗視野照明の顕微鏡下で撮影した。図-1 にフロック画像の一例を示す。このようなフロックのデジタルカメラ画像から画像解析ソフトによりその面積を求め、それと等しい面積を持つ円の直径 (円相当径) を算出し、さらに円相当径に球相当径への変換係数 0.965 を乗ずることにより、球相当径を求めた。各採水毎に 100~200 個のフロックの球相当径を求め、これより体積基準の粒径加積曲線を描き、その中位径 d_{50} をもってその経過時間におけるフロック群の代表粒径 $d(\mu m)$ とした。なお、今回用いたペントナイトについて上と同じデジタル画像解析によってその中位径を求めた結果、 $d_{50}=9.4 \mu m$ となり、これを以後の凝集実験における微細土粒子の初期粒径 d_0 として採用した。

(3) 攪拌強度

Camp ら (1943) は、粒子の凝集速度は絶対速度勾配 $G=(\gamma_{zx}^2+\gamma_{yz}^2+\gamma_{xz}^2)^{1/2}$ および粒子濃度に比例することを理論的に導いた。同時に、式 (1) に示すように、 G は単位時間、単位体積あたりに流体粘性によって失うエネルギー ϵ_0 を流体の粘性係数で除した値の平方根に等しいこと、 ϵ_0 は Stokes (1845) によって導かれた消散関数 (dissipation function) にほかならないことを示した。我が国の衛生工学分野では、この G を攪拌強度と一般に呼

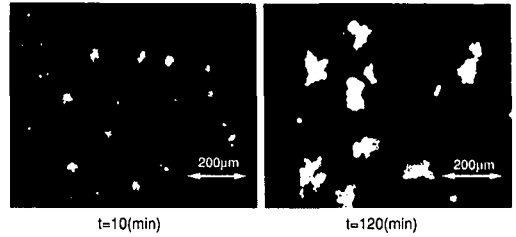


図-1 フロック画像の一例 (G=26.5 s⁻¹, C_t=25 mg/l, C=35 psu)

んでいる。

$$G = \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu}} \dots\dots\dots (1)$$

ここに、 ϵ_0 : 流体の単位体積、単位時間あたりのエネルギー消費量 (N・cm/cm³・s)、 μ : 流体の粘性係数 (N・s/cm²)

ϵ_0 は、今回のようにビーカーの中では比較的小さな平板翼を回転させて攪拌するジャーテスト方式では、流体の攪拌するトルクを液体の体積で割って平均化して取り扱い、式 (2) で与えられる。

$$\epsilon_0 = \frac{2\pi f T_r}{V} \dots\dots\dots (2)$$

ここに、 T_r : 攪拌に要するトルク (N・cm)、 f : 攪拌翼の回転速度 (s⁻¹)、 V : 流体の体積 (cm³)。

実験では、ビーカーを微小トルクメーター (東日製 5-OT 25 型) の上に載せて攪拌時のトルク T_r を、また光学式タコメーターを用いて攪拌翼の回転速度 f を測定し、式 (2) および式 (1) によって攪拌強度 G を算定した。

2.3 沈降実験

沈降実験は、前述の凝集実験と同様の方法で凝集実験を行い、フロックがほぼ終局粒径に成長した時間帯で採水し、これを同じ濃度の塩水を満たしてある内径 42 mm のメスシリンダーに静かに注入して行った。沈降速度は、沈降中のフロックを図-2 に示すようにメスシリンダーの横に固定された普通顕微鏡を用いてデジタルカメラで撮影することによって測定した。フロック画像には、撮影時刻が写し込まれるので 20~30 秒間隔で撮影された 2 枚の画像から特定のフロックを識別して、その間の平均沈降速度算定することができる。また、同時にフロックの粒径 (球相当径) も前述の凝集実験と同じ方法で測定した。照明には、メスシリンダー内の水温をできる限り一様に保ち、塩水中に対流が起こらないようにするため放射熱の小さい蛍光灯を撮影時だけ用いた。なお、沈降実験は、攪拌強度を $G=26.5(s^{-1})$ と一定に保ち、濁質濃度と塩分を表-3 に示すような値に設定した 5 ケースのみについて行った。各ケースでの測定対象とし

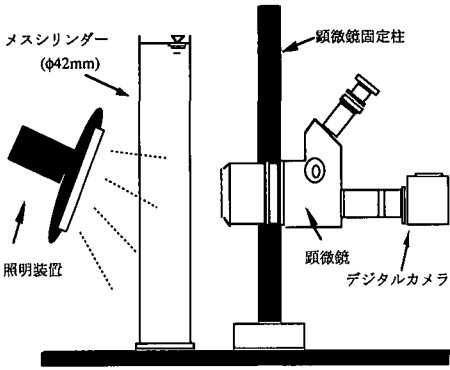


図-2 沈降実験装置

表-3 沈降実験における実験条件

実験ケース	濁質濃度 C_t (mg/l)	塩分 C (psu)
1	25	15
2		25
3		35
4	100	35
5	500	35

たフロック数は各ケースとも 30~40 個であった。

3. 実験結果

3.1 フロクの成長過程

図-3 に凝集実験によって得られたフロック粒径 d の変化の一例を示す。この図は $G=57.0\text{ s}^{-1}$, $C_t=50\text{ mg/l}$ を一定に保ち、塩分を 5~35 psu に変化させたときのフロクの成長過程をあらわしている。一方、図-4 は、 $C_t=100\text{ mg/l}$, $C=35\text{ psu}$ を一定に保ち、攪拌強度を $G=26.5\sim 137.8\text{ s}^{-1}$ に変化させたとき、また、図-5 は、 $G=$

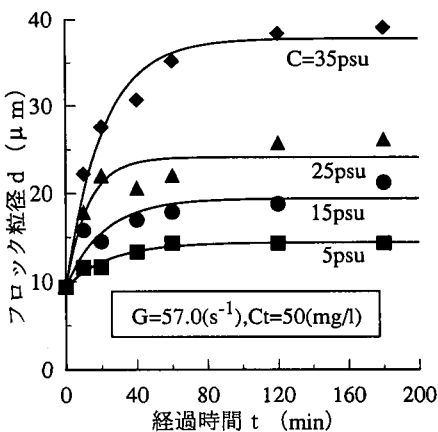


図-3 フロク粒径の経時変化 (塩分による相違)

26.5 s^{-1} , $C=15\text{ psu}$ を一定に保ち、 $C_t=25\sim 500\text{ mg/l}$ に変化させた時のフロクの成長過程を示している。これらの図によると、(i)時間の経過とともにフロクは急速に成長するが、実験開始後 20~80 min 経過すると、ほぼその粒径は一定となり終局粒径に達する、また、(ii)終局粒径に達する間での時間は、攪拌強度および濁質濃度が大きいほど、逆に、塩分が小さいほど短くなる、その結果、(iii)終局粒径は、攪拌強度および濁質濃度が大きいほど小さく、逆に塩分が大きいほど大きくなる、など楠田らや安立が得た既往の知見と一致した結果が得られた。

本研究ではこのようなフロクの成長過程を式 (3) の形で表し、最小二乗法に基づいて実験値に最も適合する係数 α , β の値を算出した。

$$d = d_0\{\beta(1 - e^{-\alpha t}) + 1\} \dots\dots\dots (3)$$

ここに、 d_0 : フロクの初期粒径 (微細土粒子の粒径)

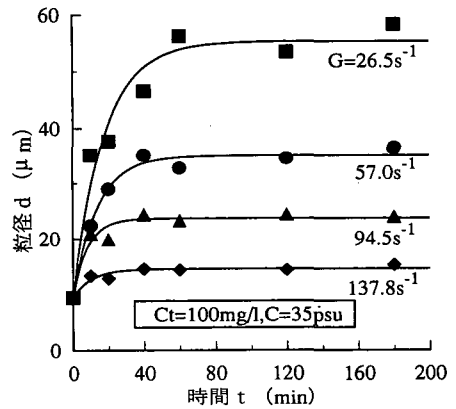


図-4 フロク粒径の経時変化 (攪拌強度による相違)

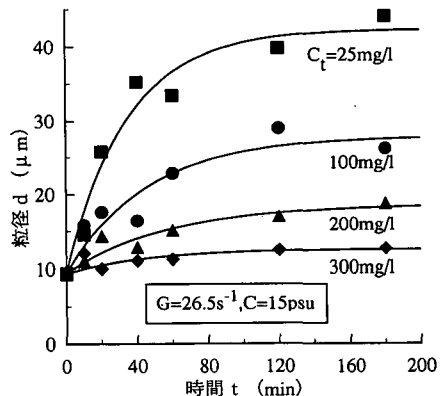


図-5 フロク粒径の経時変化 (濁質濃度による相違)

(μm), β : フロックの粒径係数, α : フロックの成長速度係数 (min^{-1}), t : 攪拌時間 (min).

3.2 フロック終局粒径の予測式

式 (3) において t を無限大にすることによりフロックの終局粒径 $d_{\infty} = d_0(\beta + 1)$ を求め、これと攪拌強度 G , 濁質濃度 C_t および塩分 C との定量的な関係をもとめる。まず、丹波ら (1965, 1970) は、硫酸アルミニウムを用いた土粒子の凝集実験によって、フロックの終局粒径 d_{∞} は攪拌翼の回転速度にほぼ反比例することを見だしている。本実験結果においてもこのことが確認されたので、これらの関係を式 (4) の形で表す。

$$d_{\infty} = a f^{-1} \dots\dots\dots (4)$$

ここに、 a : C_t と C に依存する係数。

f は、式 (1) と式 (2) から直接 G に関係づけられ、本実験では式 (5) のように表される。

$$f = 6.75 G^{2/3} (\text{s}^{-1}) \dots\dots\dots (5)$$

一方、流体単位体積あたりに存在する全土粒子の表面積は濁質濃度 C_t の $2/3$ 乗に比例するので、土粒子一個あたりへの塩分の平均寄与量は $C/C_t^{2/3}$ に比例すると考えられ、この値が大きいほど凝集によるフロックの終局粒径 d_{∞} は大きくなると予想される。以上のことから、式 (4) 中の係数 a の値を各実験毎に最小二乗法で求め、それと $C/C_t^{2/3}$ との関係を表すと図-6 のようである。この図から a と $C/C_t^{2/3}$ との間の関係が式 (6) のように表される。

$$a = 2186 \times (C/C_t^{2/3})^{0.48} \dots\dots\dots (6)$$

最終的に、フロックの終局粒径 d_{∞} は式 (4)、式 (5) および式 (6) から、攪拌強度 G , 濁質濃度 C_t および塩分 C が与えられると式 (7) で予測することができる。

$$d_{\infty} = 315.7 \frac{(C/C_t^{2/3})^{0.48}}{G^{2/3}} \dots\dots\dots (7)$$

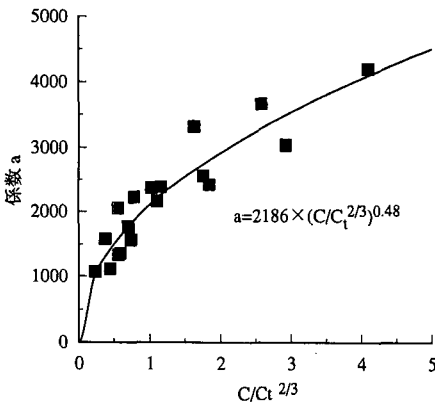


図-6 係数 a と $C/C_t^{2/3}$ との関係

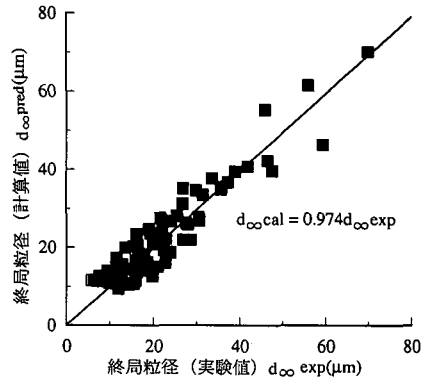


図-7 終局粒径の予測値と実験値の比較

式 (7) の信頼性を確認するために、図-7 のように横軸に実験値 $d_{\infty \text{exp}}$ を、縦軸に式 (7) から算定した終局粒径の予測値 $d_{\infty \text{pred}}$ を取り比較すると多少のばらつきはみられるものの、両者はよく一致しており、式 (7) は信頼できることがわかった。

3.3 フロックの有効密度

土粒子フロックはその形成過程で間隙水を含みながら成長していくため、粒径の増大とともに平均的な密度が減少するとともに、含水率の高い構造に変化していく。ストークス則 ($Re < 1$) に従えば、微細粒子の沈降速度は式 (8) によって求められる。フロックの沈降過程にこの式を適用し、前述の沈降実験から求めたフロック粒径 d と沈降速度 w よりフロックの平均速度を逆算することができる。

$$w = \left\{ \frac{4g}{3} \cdot \frac{Re(\rho_s - \rho)}{45 \left(\frac{\rho_s - \rho}{\rho} \right)} \right\} = \frac{4g}{135} \frac{(\rho_s - \rho)}{\mu} d^2 \dots\dots (8)$$

ここに、 w : 粒子の沈降速度 (cm/s), d : 粒径 (cm), g : 重力加速度, ρ_s : 粒子の密度 (g/cm^3), C_D : 抵抗係数, ρ : 流体の密度 (g/cm^3), μ : 水の粘性係数。

ここでは、 ρ_s そのものではなく、後の利用に便利ように式 (8) を変形して、フロックの有効密度 $\rho_e = \rho_s - \rho$ を次式で求めた。

$$\rho_e = \rho_s - \rho = \frac{135 \mu \cdot w}{4g d^2} \dots\dots\dots (9)$$

図-8 は、両対数グラフの横軸にフロックの粒径 d (μm) を、縦軸に式 (9) で求めたフロックの有効密度 ρ_e (g/cm^3) をとり、両者の関係を表したものである。この図から、フロックの密度は一定ではなく、粒径の増大に伴って小さくなるのがわかる。最小二乗法により、これらの間の関係を求めると式 (10) のように表される。これらの実験結果は、表-2 に示した濁質濃度 $C_t = 25 \sim 500 \text{ mg/l}$ と塩分 $C = 15 \sim 35 \text{ psu}$ という幅広い条件のもとで得られたものであるが、フロックの有効密度 ρ_e は、塩分、濁質濃度にはほとんど関係なく、フロックの

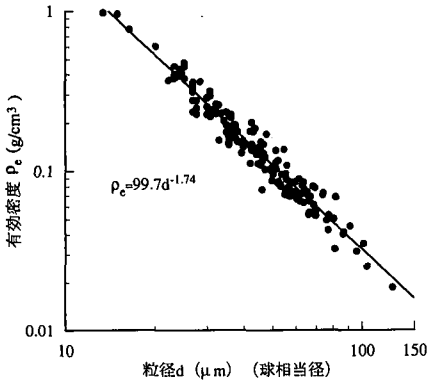


図-8 フロックの有効密度と粒径の関係

終局粒径(球相当径)が与えられると、式(10)で算定できるといえる。

$$\rho_e = 99.7d^{-1.74} \quad (\text{g/cm}^3) \dots\dots\dots (10)$$

フロックの粒径が20~100 μmの本実験条件の範囲内においては、フロックの有効密度は粒径の-1.74乗に比例することがわかる。また、式(10)を式(8)に代入することにより、沈降速度とフロック粒径の関係が式(11)のように求められる。この式から、フロックの沈降速度は、粒径の0.26乗に比例することがわかる。

$$w = \frac{4g \times 10^{-4}}{135\mu} (99.7)d^{0.26} \dots\dots\dots (11)$$

4. 結 論

本研究によって得られた知見をまとめると以下のごとくである。

(1) フロックの粒径は、塩水に出会うと急速に成長し、塩水に出会ってから20~80 min経過すると、ほぼその粒径は一定となり終局粒径に達する。また、終局粒径に達する間での時間は、攪拌強度および濁質濃度が大きいほど、逆に、塩分が小さいほど短くなる。

(2) フロックの終局粒径 d_{∞} は、今回行った実験条件の範囲内 ($26.5 \text{ s}^{-1} \leq G \leq 137.8 \text{ s}^{-1}$, $25 \text{ mg/l} \leq C_t \leq 500 \text{ mg/l}$, および $5 \text{ psu} \leq C \leq 35 \text{ psu}$) においては、攪拌強度 G および濁質濃度 C_t が大きいほど小さくなり、逆に塩分が大きくなるほど大きくなるという結果が得られ、楠田らや安立の既往の研究結果と同じ傾向を示した。

(3) フロックの終局粒径 d_{∞} (球相当径) は、塩分 C ,

濁質濃度 C_t , 攪拌強度 G が与えられると、式(7)によって予測することができる。

(4) 十分成長したフロックの有効密度 ρ_e は、塩分、濁質濃度にほとんど関係なく、フロックの終局粒径(球相当径)が与えられると、式(10)で算定でき、また沈降速度は式(11)によって、算定できる。

本研究では、実河川における微細土粒子の代わりにベントナイトを試料として用いている。今回の実験結果の実河口域への適用性については、今後対象河川の微細土粒子を用いて検証しておく必要がある。

また、今回の凝集実験では、各ケースとも攪拌強度、濁質濃度、塩分を一定に保った状態でフロック形成過程を調べたが、実際の河口域では、時空間的にこれらの値は変動する。これらのパラメーターの値が変化すればフロックの形成過程にどのような変化が生じるかは今後の研究課題である。

さらに、沈降実験では、塩分と濁質濃度は幅広く変化させたが、攪拌強度は変化させなかった。これは、フロックの粒径は攪拌強度に依存するが、フロックの構造形成は攪拌強度が変化してもあまり変わらないであろうと考えたからである。このことは、今回の実験でフロックの有効密度が塩分の濁質濃度にほとんど関係なく、粒径のみに依存するという結果が得られたことから問題がないように思われるが、今後さらに検討しておく必要がある。

参 考 文 献

安立重昭 (1982): 海水中におけるベントナイトのフロック形成について, 港湾技研資料, No. 421.
 安立重昭 (1983): 海水中におけるベントナイトのフロック形成について (その2), 港湾技研資料, No. 464.
 楠田哲也・古賀憲一・粟谷陽一 (1978): 塩水中における粘土粒子の凝集, 用水と廃水, Vol. 1. 20, No. 3, pp. 31-36.
 丹保憲二・穂積 準・渡辺義公 (1965): フロック形成過程の基礎的研究(1), 水道協会雑誌, 372号, pp. 10-19.
 丹保憲二・山田浩一・穂積 準 (1967): アルミニウム・フロックの密度に関する研究, 水道協会雑誌, 427号, pp. 4-5.
 丹保憲二・山田浩一・穂積 準 (1970): フロック強度に関する研究, 水道協会雑誌, 427号, pp. 4-15.
 Camp T.R. (1943): Velocity Gradients and Internal Work in Fluid Motion, J. Boston Society of Civil Engineers, Vol.30, No. 4, pp. 219-237.
 Camp T. R. (1953): Flocculation and Flocculation Basins, Proc. ASCE, Vol. 79, No. 283, pp. 10-19.
 Stokes G. G. (1845): On the Theories of Internal Friction of Fluids in Motion, Etc., Cambridge Philosophical Transactions.