

停滞性沿岸域での悪臭ガス発生に関する調査

堀田 哲夫* ・天野 光歩** ・山下 芳浩***
陳 飛 勇**** ・東海 林 光*****

沿岸域の運河水域奥部や自流入の少ない都市河川の汽水域等では、春から秋の主に干潮時に悪臭ガスが発生し、周囲に悪臭問題を発生させている。加えて近年は健全な干潟を保全するため、干潟域でのヘドロ堆積による悪臭発生機構の解明も重要な課題となっている。本研究では、現地調査、室内実験によって悪臭ガス発生現象を支配する重要な因子を抽出し、現象のモデル化を行った。シミュレーション結果では、底泥中に蓄積された嫌気性ガスが潮位の低下に伴って放出される様子が適切に表現され、簡単なモデルでも現象の予測が可能であることを示した。これを活用すれば底質調査等だけで悪臭発生予測が可能となる。

1. はじめに

沿岸域の運河水域奥部や自流入の少ない都市河川の汽水域等では、昭和 40 年代後半頃から、春から秋にかけて主に干潮時に水面から悪臭ガスが発生し、周囲に悪臭問題を発生させてきた。その後、ヘドロの浚渫や下水道整備等によりその程度は軽減されてはきているものの、未だ悪臭の発生が見られている (堀口他, 1991)。

加えて近年は健全な干潟を保全するため、干潟域でのヘドロ堆積による悪臭発生機構の解明も重要な課題となっている。本研究は、現地観測、室内実験結果等を基に悪臭ガス発生機構を解明、モデル化したものである。

2. 嫌気性分解ガスの発生機構

有機物による水質・底質汚濁が進行している停滞性の比較的浅い汽水域においては、夏季に嫌気性分解ガスが発生し、周囲環境へ悪臭による影響を及ぼしているところがある。この嫌気性分解ガスの主な成分は、メタン、炭酸ガス及び硫化水素ガスであるが、前者 2 つは無臭であり、悪臭の主な原因となっているのは硫化水素で、量的には最大でも 2% 程度と少ないものの、卵の腐敗臭を呈し有毒である。

一般に有機物による底泥汚濁が進行している水域における硫化水素 (H_2S) の発生過程としては次の 2 つがある。

- ・たん白質中に含まれる硫黄が、嫌気性分解によって硫化水素に還元されて発生するもの
- ・同じく嫌気性状態で、硫酸イオンが硫酸還元菌によって還元されて発生するもの

これらの過程は、嫌気状態では底泥中のみならず水中でも起こり、水中での発生の有無は、水中の有機物と溶存酸素濃度によって支配される。前者は、有機物濃度が

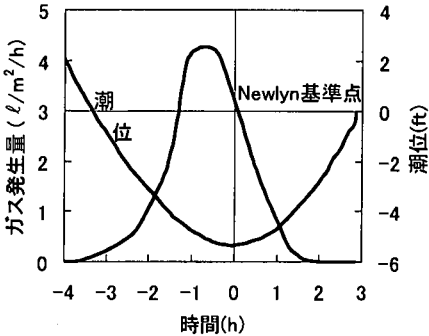


図-1 Tilbury 汽水部におけるガス発生量 (テムズ川, 1952.7.3)

かなり高い下水管中やダム湖深層等でも見られる場合があるが、ここではより一般的で豊富な硫酸イオンが存在する停滞性沿岸域の底泥での発生を取り扱う (類似例として、安定型処分場での発生ケースもある。) この代表的な例としては、イギリスのテムズ川での観測例がある (杉木, 1968 : 図-1 参照)。

硫化水素ガスの発生機構は、一般に次のように説明される。底泥は、ごく表層の部分を除けば、一般に微生物呼吸による有機物の分解により嫌気性状態となっており、この還元層では硝酸呼吸や発酵、硫酸還元、メタン生成を行う嫌気性微生物群によって有機物が分解される。

その結果、還元層では脱窒素作用により硝酸イオンが消失し、硫酸還元により硫化水素が生成され、あるいはメタン発酵によりメタンが生成されと考えられる。これらの反応は酸化還元電位に関係し、一般に硫酸還元が終わるまではメタンの生成は起こらない。そのため底泥中では表層より酸素呼吸、硝酸呼吸、硫酸還元、メタン生成の卓越する層が形成されと考えられている (Jorgensen, 1983 : 図-2 参照)。

停滞性沿岸域の底泥中のように、硫酸イオンが豊富に存在する条件下では硫酸イオンを電子受容体として有機物の嫌気性分解が起こり、その結果として硫化水素が生

* 正会員 (株)建設技術研究所 河川部首席技師長
** 正会員 工修 (株)建設技術研究所
*** (株)建設技術研究所
**** 正会員 工博 (株)建設技術研究所
***** 正会員 工修 (株)建設技術研究所

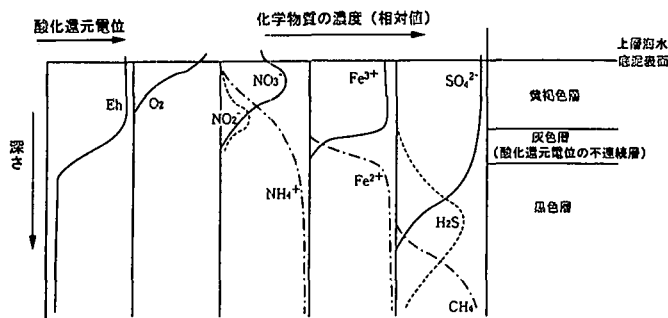
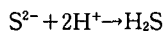
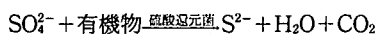
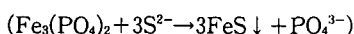
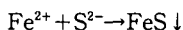
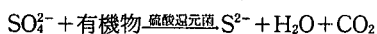
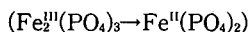
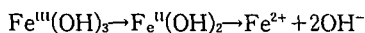


図-2 底泥における酸化還元電位 (Eh) 及び微生物群集の代謝に関係する化学物質の濃度の垂直分布

成される。その反応は次式で表される。



海水の pH が 8 以上であると、 H_2S は HS^- 又は S^{2-} のイオン状態にあるが、pH が 8 以下になるとガス体の H_2S も発生し水中に放出される。しかしながら一般には底泥中には不溶性の 3 価の鉄化合物 ($\text{Fe}(\text{OH})_3$, $\text{Fe}_2(\text{PO}_4)_2$ 等) がある程度存在しており、還元状態になると 2 価の鉄となり水中に溶け出してくる (その結果 PO_4^{3-} が水中に溶け出すことになる。)。この Fe^{2+} は硫化水素と直ちに反応し硫化第一鉄の沈殿物が生成され黒色化する。これらの過程は次のように表される。



しかしながら多量に H_2S が生成されると間隙水のみならず、水中でも H_2S , HS^- , S^{2-} の硫化物イオンが検出されるようになり、強い悪臭を放つようになる。一般に間隙水中の pH はそれ程高くないことから、底泥中で生成された硫化水素のうち一部分は小さな気泡として底泥中に貯えられ、残りは水中に溶解する (図-3 参照)。そして前者は、図-1 に示した例のように、水位が下がり底泥の気泡保持能が低下するとともに瞬時に放出され、水中へ溶解しながら大気中に放出される。また後者は、

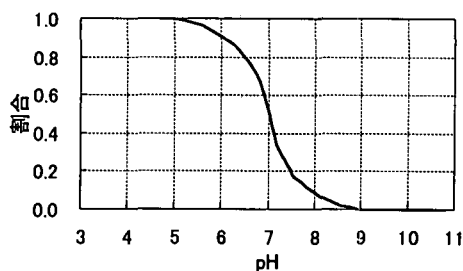


図-3 pH に対する遊離硫化水素の割合

一部分が水中の溶存酸素により酸化され、一部分が表面より大気中へ気散されるが、酸化速度が大きいためその量は相対的に小さい。

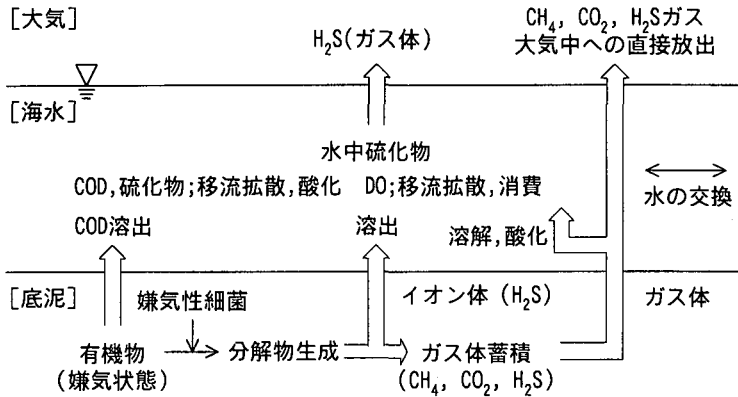
3. 硫化水素発生機構のモデル化

本研究で対象とした運河水域では、硫酸イオンが水中に豊富に存在し、たん白質に起因するものに比べ、硫酸イオンが還元されて発生する硫化水素の方がはるかに多い。そして、底泥中に比べ水中の有機物質濃度はそれ程高くないため、水中での発生は底泥に比べかなり小さいものと考えられた。そこで、このモデルでは硫化水素の発生は底泥中のみで起こるものとし、その生成・密着機構、水中での挙動及び大気中への放出機構のモデル化を行うこととした。もちろん前述の通り、水中での硫化水素は溶存酸素の影響を大きく受けるので、水中での溶存酸素そしてそれと深く関連する COD の挙動もモデル化することとした。

この他、鉄等の金属イオンの存在、底泥中の有機物濃度の変化、水中の pH 変化も影響要因として考えられるが、当該水域では金属イオン濃度が低いこと、底泥中の有機物は大量に存在すること、そして水中の pH については 7.5 程度で比較的安定していることから要因から除外し、前述の現象を大きく支配している因子のみを対象として抽出し、図-4 のような形でモデル化を行った。

3.1 嫌気性分解ガス発生モデル

悪臭の要因となる硫化水素は、嫌気性分解ガス中最大でも 2% 程度であり、かつその挙動も複雑である。そこで、ほとんど全てがガス体で生成され保存性物質とみなせるメタンガス (65%)、炭酸ガス (35%) で嫌気性分解ガスが構成されているものと考え、底泥中でのガスの生成・蓄積、水位低下に伴う底泥面からのガスの放出、海水中を減衰しながら大気中へ放出される過程をモデル化することとした。これは、海水中を通過する時に発生ガスの一部が海水中へ溶出するからである。この場合、減衰率は海水中の溶存酸素濃度に関わらず一定であるとして、以下のようにモデル化を行った。



図—4 嫌気性分解ガス発生及び水質変化機構模式図

表—1 モデル構造整理表

区分	項目	嫌気性 ガス	硫化水素		DO	COD
			ガス体	イオン体		
底泥	生成及び 蓄積・放出	生成及び 蓄積・放出	生成及び 蓄積・放出	生成及び 溶出	—	溶出
海水	溶解減衰	溶解減衰	酸化	消費	消費	消費
大気	放出	放出	気散	—	—	—

$$\frac{dW_{ai}}{dt} = P_{ai} - \beta_i W_{ai} \quad (\text{底泥モデル}) \quad (1)$$

W_{ai} : 底泥中ガス蓄積量 (g/m^2), i : 分割水域 No.

P_{ai} : 底泥中ガス生成速度 ($g/m^2/day$)

(浮泥層厚, 底泥強熱減量, 泥温の関数形)

β_i : 底泥面から海水中へのガス放出率 (1/day)

($0.72/(H_i + 0.7)^4$, ただし H は水深(m))

また底泥面で海水中に放出されたガス (βW_a) は水面に到達するまでに指数関数的に減衰するとし、次式でモデル化を行った。

$$R_{ai} = \beta_i W_{ai} \cdot e^{-\gamma_a H_i} \quad (\text{大気中放出モデル}) \quad (2)$$

R_{ai} : 大気中放出速度 ($g/m^2/day$)

γ_a : 海水中減衰係数 (1/m)

3.2 硫化水素ガス発生モデル

他の2つの成分と異なり底泥中で生成された硫化水素は、イオン体及びガス体の2つの形態をとることから、生成した硫化水素を2つの成分に分け、ガス体の底泥中での蓄積及び水位低下に伴う底泥面からのガス放出、海水中での減衰と大気中への放出過程をモデル化することとした。この場合、海水中での減衰は、溶出のみならず海水中の溶存酸素による酸化によって大きく影響を受けることから、次のような形でモデル化を行った。

$$\frac{dW_i}{dt} = (1 - \alpha_i) P_i - \beta_i W_i \quad (\text{底泥モデル}) \quad (3)$$

W_i : 底泥中ガス H_2S ガス蓄積量 (mg/m^2)

P_i : 底泥中総硫化物生成速度 ($mg/m^2/day$)

α_i : 底泥面から海水中へのイオン体硫化物溶出率
($1 - \alpha_i$ はガス体生成率で強熱減量の関数)

β_i : 底泥面から海水中へのガス体放出率 (1/day)
(ガス体放出率 β_i は嫌気性分解ガスと同一)

$$R_i = \beta_i W_i e^{-\gamma H_i} \quad (\text{大気中放出モデル}) \quad (4)$$

R_i : 大気中放出速度 ($g/m^2/day$)

γ : 海水中減衰係数 (1/m) (DO 濃度の関数)

3.3 水質モデル

流動を連続の式で与え、水質指標として COD, 硫化物 (S^{2-} 表示) 及び DO の3指標を採用し、分割された水域内では完全混合であると仮定して、次式を基本にモデル化を行った。ただし、硫化水素の減少係数は DO 濃度によって大きく変化するとされており、DO 濃度を考慮した2分子反応とした。

$$\frac{d}{dt}(C_i V_i) = C_{i-1} Q_{i-1} + E_i A_i - K_c C_i V_i \quad (+ \text{溶解} - \text{気散}) \quad (5)$$

C_i : 海水中の水質濃度 (mg/l), V_i : 水域容量 (m^3)

Q_i : 水域間移動水量 (m^3/s)

E_i : 底泥からの溶出速度 ($g/m^2/day$)

A_i : 有効水域面積 (m^2), K_c : 減少係数 (1/day)

4. 現地への適用結果

各種定数同定のための室内実験等を実施した上で、運河水域で流況、水質、底質及びガス発生量調査を実施し、それら現象へのモデルの適用性を検討した。

4.1 嫌気性分解ガスの発生現象

前章で述べた嫌気性分解ガス及び、硫化水素ガス発生モデルに関連する未解明分野の現象について室内実験を行い、各種定数の同定、定式化を行った。

検討する現象は、嫌気性分解ガス生成速度、嫌気性分解ガス水中減衰率、総 H_2S 生成速度、 H_2S ガス体生成率、 H_2S ガス水中減衰率であり、それぞれ関連するパラメータは、表-2の通りである。

表-2 室内実験、現地観測実施状況（水質関連除外）

項 目	パラメータ
嫌気性分解ガス生成速度 (P_a)	浮泥厚, 強熱減量, 泥温
嫌気性分解ガス水中減衰率 (r_a)	水深
総 H_2S 生成速度 (P)	浮泥厚, 強熱減量, 泥温
H_2S ガス体生成率 ($1-\alpha$)	強熱減量
H_2S ガス水中減衰率 (r)	溶存酸素, 水深

具体的には、それぞれ以下のように定式化した。図-5～9には、実験結果の一例を示す。

a) 嫌気性分解ガス生成速度 (P_a)

$$P_a = 0.0022 \cdot L \cdot x^{2.578} \cdot (1.068)^{T-20} \dots\dots\dots (6)$$

b) 嫌気性分解ガス水中減衰率 (r_a)

$$R_a = 0.06 \dots\dots\dots (7)$$

c) 総 H_2S 生成速度 (P)

$$P = 0.0042 \cdot L \cdot x^{2.578} \cdot (1.068)^{T-20} \dots\dots\dots (8)$$

d) H_2S ガス体生成率 (y)

$$y = 6.094 \times 10^{-12} \cdot x^{7.678} \dots\dots\dots (9)$$

e) H_2S ガス水中減衰率 (r)

$$r = 0.075 \cdot \text{DO} + 0.56 \dots\dots\dots (10)$$

ただし、 L は浮泥層厚 (m), x は強熱減量 (%), T は泥温 ($^{\circ}\text{C}$) である。

以上を用いてモデルを構築し、11月に実施された底泥

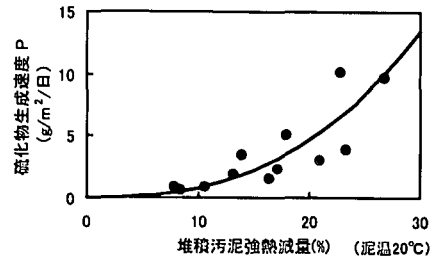


図-7 強熱減量と硫化物生成速度の関係

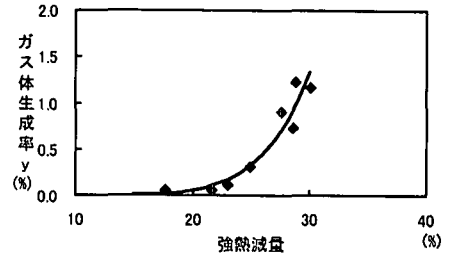


図-8 強熱減量と硫化物生成速度の関係

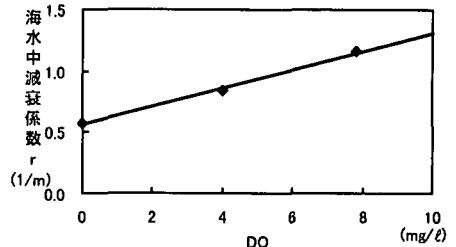


図-9 水中減衰率と DO 濃度の関係

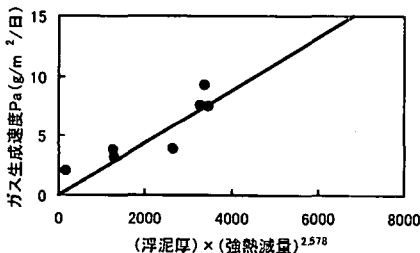


図-5 ガス生成量と強熱減量・浮泥層厚の関係

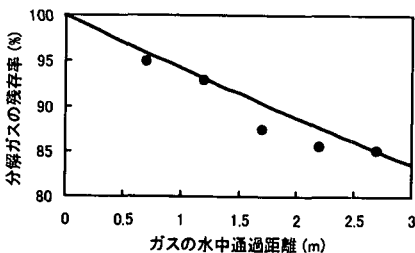


図-6 嫌気性ガス残存率と水中通過距離の関係

面での嫌気性分解ガス発生量調査（日単位）結果と比較検証した（図-10 参照）。ただし、水位低下に伴う底泥からのガス放出率 (β) の推定は、実験では困難であることから試算により設定した。この期間は小潮から大潮への移行期間であり、最小水深が小さくなる傾向にあるが、それにつれて嫌気性分解ガスの底泥面での日発生量が増大しており、その傾向をモデルでも良く表現している。

図-11 は、時刻単位の硫化水素ガス発生状況計算結果であるが、潮位が低下しない期間はガスが底泥中に蓄積され、大潮に近づき水深が小さくなるにつれて水位低下時に多量のガス発生が起こることが表現されている。

4.2 水質変化現象

図-12 は別地点の検証結果ではあるが、硫化物の影響で干潮時に DO が低下し、満潮時にはやや改善される傾向が概ね表現されている。ただし、このケースでは硫化物の濃度が低く、水中から大気中への気散量はわずかであった。

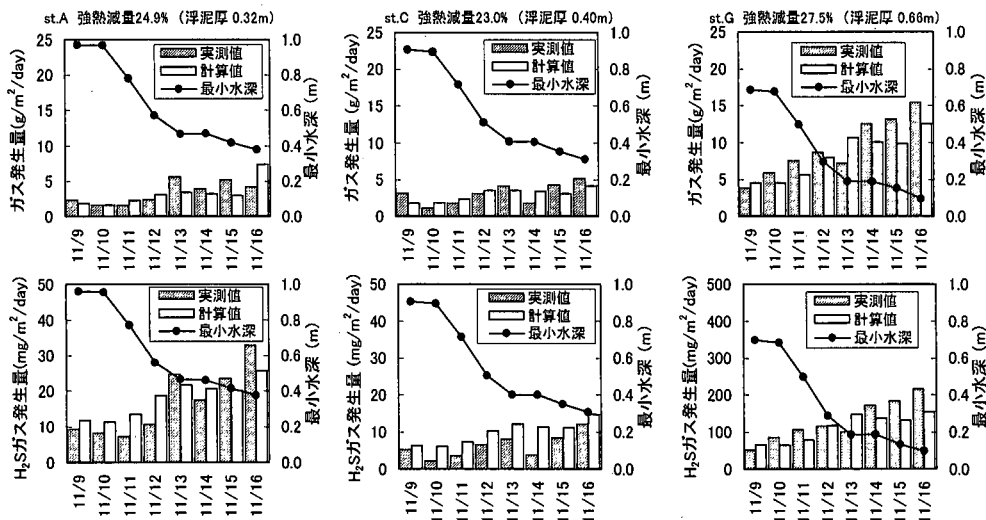


図-10 底泥面ガス日発生量検証図

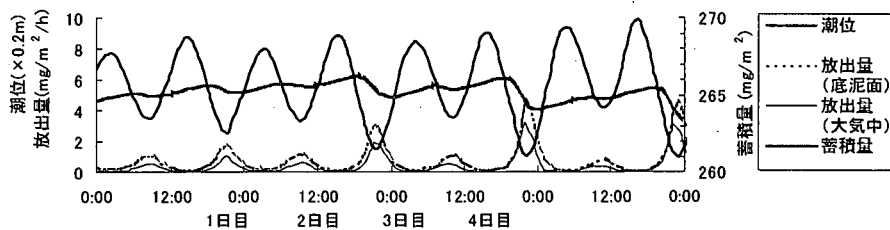


図-11 A地点 潮位・ H_2S ガス蓄積量・放出量関係図

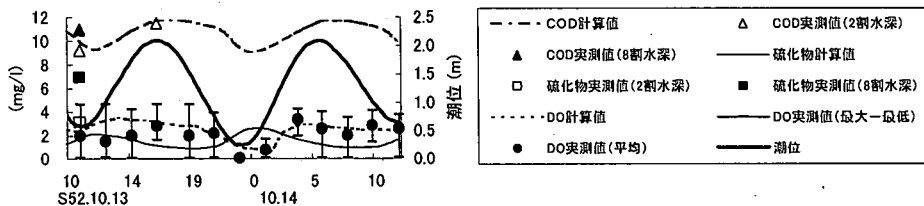


図-12 水質検証図

5. 結 論

一見複雑な現象でも、室内実験、現地調査をうまく活用して現象を大きく支配する重要な因子を抽出できれば、簡単なモデルでも現象の予測が可能であることが明らかとなった。また、各種実験による嫌気生分解ガス発生等の定式化は、今後の同種現象の調査に寄与するものと考えられる。このモデルでの検討結果は最終的に臭気排出強度に換算され、浚渫事業の優先順位及び浚渫深の

設定に活用された。

参 考 文 献

- 堀口孝男・堀江 毅・菊地政信・小島伸一 (1991): 運河における悪臭発生に関する調査・研究, 海洋工学論文集, 第38巻, pp. 901-905.
- 杉木昭典 (1968): 感潮河川の汚濁機構, 特に隅田川について, 土木研究所報告, 第133号, pp. 1-120.
- Jorgensen, B. B.(1983): The Major Biogeochemical Cycles and Their Interactions, Scope Report, Vol. 21, pp. 477-509.