

(20) 塩水中における微粒子の成長と沈降特性に関する基礎的研究

九州大学 工学部 ○古賀 憲一

栗谷 陽一

楠田 哲也

1. はじめに

海域における水質汚濁の将来予測、工事、浚渫に伴う環境影響評価を行なうには、汚濁物質の拡散、底泥からの塩類の溶出、巻き上げ、沈降等の現象を解明し、さらには生態学、海洋学等の総合的観点から検討を進める必要があろう。現在まで、各分野において多岐にわたる研究が進められ、各種の基礎データ及びそれに基づく水質汚濁の予測、評価が試みられている。しかしながら、汚濁物質の鉛直輸送問題、特に沈降による輸送現象については現象が複雑なため知見も乏しく、海洋調査における沈降フラックスのデータ、¹⁾概略的な沈降速度が得られているだけで、²⁾基礎資料すら満足に得られていないのが現状であろう。本研究は、以上の観点に基づき、凝集性を有する微粒子の成長特性、沈降特性が濁質濃度、流体の剪断応力の如何なる影響を受けるかについて実験的検討を加え、海域における微粒子の沈降に関する基礎的資料を得ようとしたものである。

2. 実験装置及び方法

微粒子を成長させるための装置として図-1に示す攪拌槽(容量3ℓ)を用いた。実際海域では、底面に強い剪断速度が存在し、粒子の鉛直濃度分布が生じているために、海域での粒子の成長を論じる場合には沈降、巻き上げ現象までも考慮に入れなければならない。したがって、塩水中の粒子の成長について基礎的資料を得ようとするれば、空間的に濃度分布のない状態での成長を調べる必要があり、そのために攪拌槽を用いた。なお、攪拌槽内では、剪断速度の空間的分布の幅が広く、空間的に強い剪断速度が存在している。したがって、剪断速度の空間的分布が粒子の成長に及ぼす影響はまぬがれ得ないが、その影響は粒子の衝突現象からみて二次的なものである。実験に使用した微粒子は市販カオリン(ASP-600, 平均径 $0.64\mu\text{m}$, 以下、カオリンと称する)及び筑後川河口部から採取した底泥(採取後、水簸を行なった。平均径 $2\mu\text{m}$, 強熱減量10%, 以下、筑後川粘土と称する)の二種である。いずれの試料も塩水(並塩を蒸留水に溶かし塩水比重を1.025にしたもの)に1ヶ月以上浸したものである。塩水(塩水比重を海水とほぼ同一にしている)は並塩がイオン交換法で製造されているため、塩水中の Mg^{2+} 、 Ca^{2+} は各々 $0.03\text{g}/\ell$ 、 $0.02\text{g}/\ell$ と海水中のそれら(Mg^{2+} $1.3\text{g}/\ell$ 、 Ca^{2+} $0.41\text{g}/\ell$)に比べかなり減少している。したがって、塩水中の Na^{+} については $13\text{g}/\ell$ であり海水中の $11\text{g}/\ell$ に比べ若干多くなっている。粒子の粒度分布は図-

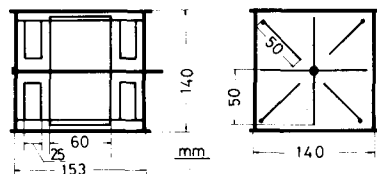


図-1 攪拌槽

2に示すガラス製サンプリング装置を用いて攪拌槽から採取後、しばらく放置して顕微鏡撮影することにより求めた。粒径分布を得るための読み取り最小粒径は $3\sim 5\mu\text{m}$ とした。粒子の成長に伴う微細粒子の減少を知るために、1). 顕微鏡写真で得られたフィルム上で微細粒子個数を求める(粒径 $0.1\sim 3\mu\text{m}$ 程度)、2). 静置後の上澄水濁度を求める(静置時間2時間、採水水深10cm)、の2通りの方法を採用した。沈降速度の測定法として、まず上述のサンプリング装置で採水し、下面のガラス板上に粒子を沈降させた後、顕微鏡の焦点をそのガラス面上に合わせる。つぎに、静かにサンプリング装置を反転(裏返し)し、上面から下面までの距離を沈降する時間を求め、沈降速度を算定し、その下面に達した粒子を撮影することによって

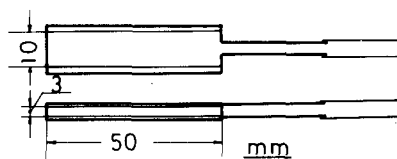


図-2 サンプリング装置

粒径を得た。沈降速度を求める粒子はフロック化しているものを採用し、明らかに原粒子と認められるものについては除外した。実験方法として、前述の塩水を攪拌槽に注入し、濁質を所定の濃度になるように攪拌槽に注入し、所定の攪拌強度で攪拌する。適当な時間間隔で粒度分布、沈降速度を求めるための採水を行なう。これらの操作を濁質濃度、攪拌強度、粘土の種類を変えて、繰り返して行なう。濁質濃度が高い場合、粒度分布、沈降速度を得るための採水を高濃度のまま行なうと種々の困難が生じるので塩水を満したサンプリング瓶にガラス管を用いて注入希釈した後、前述のサンプリング方法で測定を行なった。

3. 結果及び考察

3-1) 攪拌強度の影響

図-3, 4にカオリン, 筑後川粘土の濁質濃度を 0.1 g/l とし, 攪拌強度 (G) を変えた時の体積メディアン径 (d_{50}) の時間変化を示す。いずれの場合においても, 攪拌時間の経過に伴ない平均径は増加し最大値に達した後, 若干減少気味かはば一定の大きさになっている。これらの図では, 攪拌時間を3時間程度までの例しか示していないが, 攪拌時間を30時間まで長くしても, この一定となる平均径の値は変わらないことを確認している。平均径が最大値に達する時間 (t_p) は, 本例で示す範囲では攪拌強度の小さい程, 反比例的に長くなり, 従って G と t_p との積はほぼ一定値となり, カオリンの場合 $G \cdot t_p \sim 2.4 \times 10^5$, 筑後川粘土で $G \cdot t_p \sim 3.6 \times 10^5$ 程度となっている。平均径の最大値, 平均径の成長速度 (成長初期) と攪拌強度との関係を各々図-5, 6に示す。これらの図から,

$$d_{50,m} \sim G^{-1}, \quad d(d_{50})/dt \sim G$$

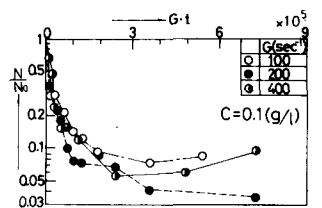


図-8 微細粒子の時間変化(カオリン)

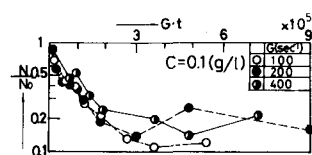


図-9 微細粒子の時間変化(筑後川)

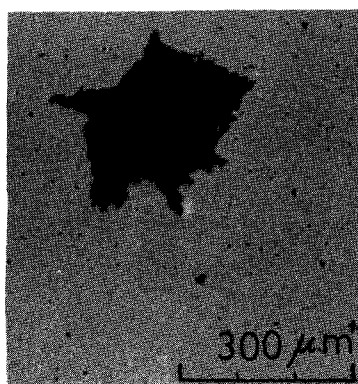


写真-1 成長粒子と微細粒子 (t_p 付近)
カオリン

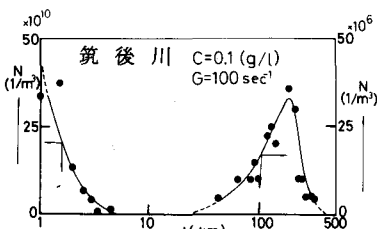


図-7 t_p 付近での個数分布

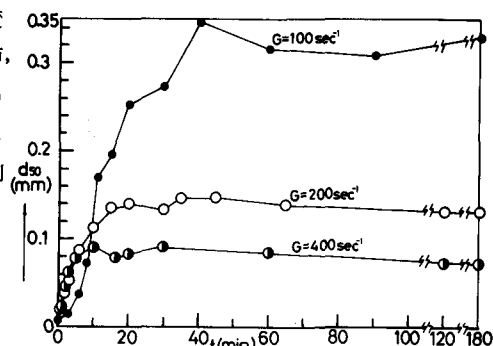


図-3 平均径の時間変化(カオリン)

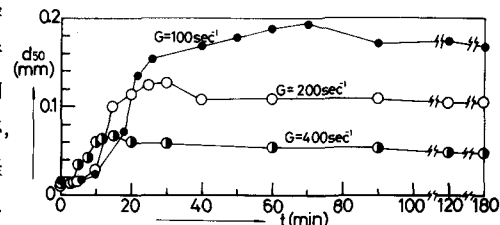


図-4 平均径の時間変化(筑後川粘土)

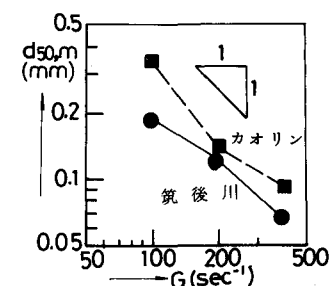


図-5 平均径の最大値と G の関係

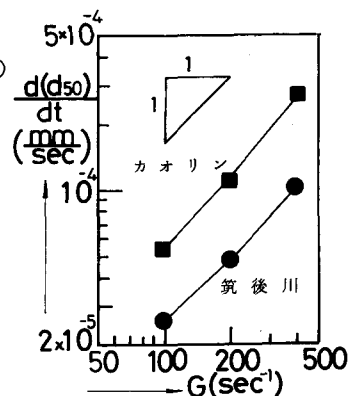


図-6 成長速度と G の関係

となることがわかる。写真-1に示す例は、平均値が最大値に達した付近(tp)における顕微鏡写真である。この写真から、平均径が最大値に達しても、まだ微細な粒子の存在が認められる。tp 付近における微細粒子と成長粒子の各々の個数頻度分布の一例を図-7に示す この図において、個数でみれば微細粒子の方が成長粒子に比べ約 10^4 倍程度存在していることがわかる。成長粒子と微細粒子との粒径比が100倍程度あるので、微細粒子の体積濃度は成長粒子のその数%程度となろう。いずれにしても、塩水中の粒子が攪拌の下で成長する場合、本実験ではtp 付近における個数分布のピークが2つ認められた。薬品処理によるフロックについて、この現象は余り見受けられない。図-8, 9に、各粘土における微細粒子の個数濃度の時間変化を示す。横軸は攪拌時間を攪拌強度で無次元化したものである。微細粒子濃度の時間変化は、いずれの粘土についても $G \cdot t$ 値で規定されるようであり、ある $G \cdot t$ までに微細粒子の個数濃度が指数関数的に減少している。減少しきった時の $G \cdot t$ 値はカオリンで $(2 \sim 3) \times 10^5$ 、筑後川粘土で $(3 \sim 5) \times 10^5$ であり、前述の平均径が最大値に達するまでの $G \cdot tp$ 値とはほぼ一致している。微細粒子の個数濃度が急激に減少した後、ほぼ一定値となるがカオリンで数%, 筑後川粘土で約10%の微細粒子が成長しきれずに残存していることがわかる。このように、塩水中で微粒子が成長する際

未凝集のままの粒子が存在することは定性的に知られていることであるが、実際海域での物質輸送問題(特に、拡散問題)を考える場合、このような微粒子の存在については注意を払う必要があろう。図-10~13に沈降速度と粒径との関係を示す。濁質を注入してから粒子をサンプリングするまでの攪拌時間を1~2時間とした時の結果を図-10, 12に、約1日間攪拌を継続した時の結果を図-11, 13に示す。これらの図から、沈降速度と粒径との関係は、攪拌強度、攪拌継続時間に余り依存しないことがわかる。薬品処理でフロック形成を行なった場合、攪拌強度とその継続時間を増すことによって、フロックの内部構造が密な構造へと再編成され、いわゆるフロック密度の増加現象(これを著者らは「もまれ」と称している)が認められる。³⁾図-10~13からわかるように、塩水中で成長する粒子について、この「もまれ」の現象はさほど生じてないようである。

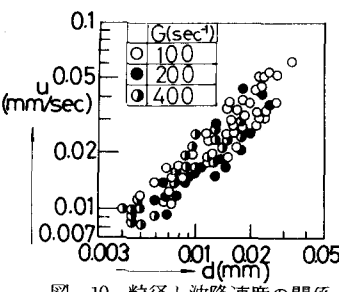


図-10 粒径と沈降速度の関係 (カオリン, 2時間)

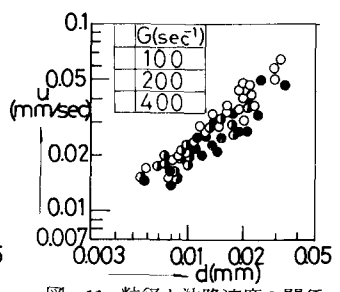


図-11 粒径と沈降速度の関係 (カオリン, 28時間)

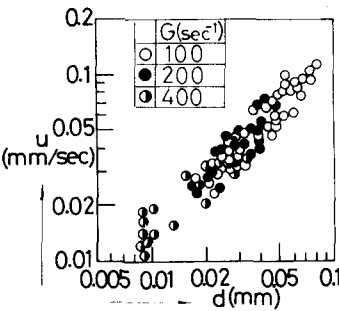


図-12 粒径と沈降速度の関係 (筑後川粘土, 1時間)

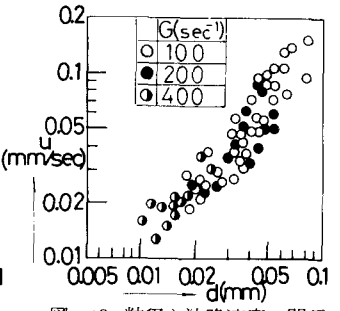


図-13 粒径と沈降速度の関係 (筑後川粘土, 27時間)

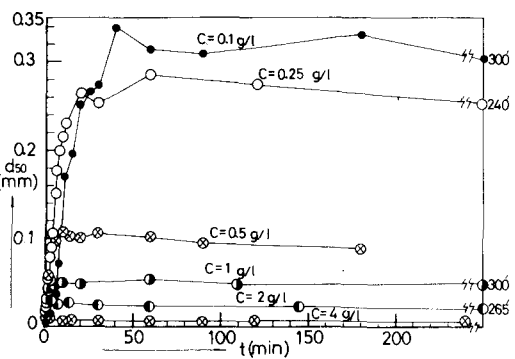


図-14 平均径の時間変化 (カオリン)

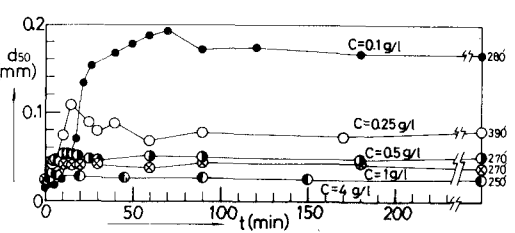


図-15 平均径の時間変化 (筑後川粘土)

3-2) 濁質濃度の影響

図-14, 15 に攪拌強度を 100 sec^{-1} にし、カオリン、筑後川粘土の濁質濃度 (C) を $0.1 \text{ g/l} \sim 4 \text{ g/l}$ まで変化させた時の平均径の時間変化を示す。図-3, 4 と同様に、濁質濃度を変えても平均径はある時間 t_p で最大値を示し、その後はほぼ一定値となる。濁質濃度を高くすると t_p はほぼ反比例的に短くなることがわかる。図-14, 15 から得られる平均径の成長速度 (成長初期) $d(d_{50})/dt$ および平均径の最大値 $d_{50,m}$ と濁質濃度との

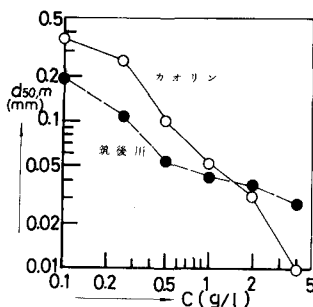
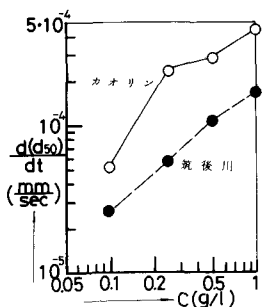


図-16 成長速度と C の関係 図-17 平均径の最大値と C の関係

関係を各々図-16, 17 に示す。これらの図から、平均径の成長速度は濁質濃度の増加に伴ない比例的に大きくなっている。平均径の最大値は、濁質濃度の増加に伴ない小さくなっており、このことは塩水中でベントナイトを凝集させる時、⁴⁾薬品処理でフロックを形成する時にも認められる現象である。平均径の最大値が濁質濃度によって変化する理由については、後で検討を加える。図-18~21 に、微細粒子の個数濃度 (N) 及び上澄水濁度 (CR) の時間変化を示す。横軸は濁質濃度と攪拌時間との積で表現したものである。微細粒子の攪拌時間に対する減少パターンは前述の図-8, 9 と同様である。これらの図から、初濃度の高い方が低いものに比べ、同一 Ct 値でも微細粒子の残存率は大きくなることが認められる。粒子が衝突合一して成長する際に、付着効率の時間変化及び破壊がないものとするれば、微細粒子の濃度変化は Ct または CGt 値で決定され、本例で示される結果は現われない。したがって、微細粒子の濃度変化のみから判断すれば、濁質濃度の高い程、破壊が生じ易いかあるいは付着効率が減少しているものと考えられる。図-22, 23 に、濁質濃度を变化させた場合の粒径と沈降速度との関係を示す。粒子をサンプリングするまでの攪拌時間は双方とも $22 \sim 28$ 時間である。これらの図において、工学的観点からみれば、濁質濃度が変っても粒径と沈降速度との関係を両対数紙上ではほぼ 1 本の直線で近似することも可能であろう。したがって、工学的には、 $u \sim d$ と表し得て、粒径 $0.01, 0.1 \text{ mm}$ での沈降速度は各々 $0.01 \text{ mm/sec}, 0.1 \text{ mm/sec}$ 程度となる。粒径を d 、沈降速度を u として、 $u = u_0(d/d_0)^n$ (ただし、 $d_0 = 1 \text{ cm}$) とした時の u_0 , n と濁質濃度との関係を図-24 に示す。工学的には、粒径と沈降速度との関係は濁質濃度に余り依存していないことが認められたが、図-24 からわかるように、個々の濁質濃度に関するデータを詳細にみれば粒径と

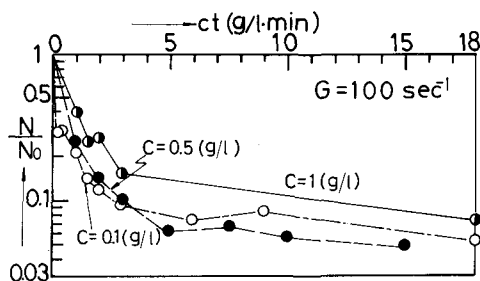


図-18 微細粒子の時間変化 (カオリン)

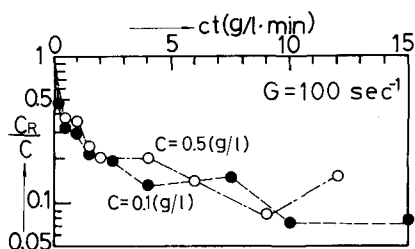


図-19 上澄水濁度の時間変化 (カオリン)

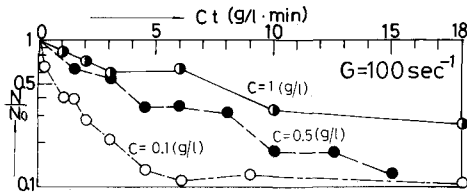


図-20 微細粒子の時間変化 (筑後川粘土)

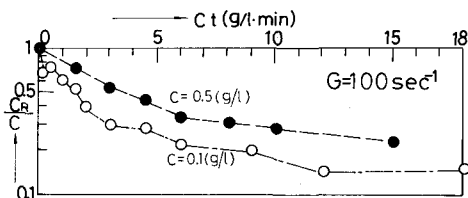


図-21 上澄水濁度の時間変化 (筑後川粘土)

沈降速度との関係は濁質濃度によって変わっている。すなわち、 $u = u_0(d/d_0)^n$ とした時の u_0 , n が濁質濃度の低い程大きくなっている。図-24 の結果及びストークス式から粒子の水中での見掛け密度 (ρ_e) を求め、その結果を図-25 に示す。この図において同一粒径での粒子の見掛け密度は、低濁度の方が高濁度のものに比べ大きくなっており、密な状態で構造が形成されていることがわかる。塩水中で成長する粒子については、攪拌の継続に伴う水中での見掛け密度の増加が余り認められなかったので(図-10~13 参照), 上述した濁質濃度の違いによる見掛け密度の差は主に成長段階から生じているものと考えられる。また、図-18~21 に示したように、微細粒子の残存率は同一 Ct 値でも低濁度の方が小さくなっていて、このことは大粒子の内部に密度の大きい微細な粒子がより多く含まれていることを示唆している。なお、工学的にみて、 $u \sim d$ と表わし得ることから、その時の粒子の水中での見掛け密度 (ρ_e) は、ストークス式が成り立つとして、 $\rho_e \sim d^{-1}$ と表わし得る。図-25 中に、ベントナイトを塩水中で凝集させた時及び Mc Cave によって得られたデータを示しているが、本例のものとオーダー的には差がないようである。

つぎに、平均径の最大値が濁質濃度によって変わる原因について検討を加えるために、希釈方式によって濁質濃度を変えて平均径の時間変化を求めた。なお、使用した筑後川粘土、塩水は前で述べた一連のものとは異なっている。実験方法として、まず別途用意した筑後川粘土を塩水中に 1 g/l になるように注入し、充分混合攪拌した後、1 昼夜以上静置する。沈澱した粘土と上澄液を分離し、上澄液をメンブランフィルターで濾過し希釈用塩水とする。つぎに、この上澄液を二つの攪拌槽に満たし、所定の強度で攪拌を始める。1 槽目の攪拌槽に 1 g/l になるように所定量の粘土(粘土は前述の沈澱させたものを使用)を注入する。所定の時間 (t_m) だけ攪拌を継続した後、その槽から粒子を破壊しないように静かに所定量だけ採水し、2 槽目の攪拌槽に注入し希釈を行なう。希釈終了時点を実験開始時刻として、以後平均径の時間変化を求める。図-26 に、希釈方式で得られた平均径の時間変化を示す。希釈後の濃度はすべて 0.1 g/l とした。図中に示す $C = 1 \text{ g/l}$ の結果は、希釈する以前の原粒子を形成させた時の平均径の時間変化を示している。この図から、希釈するまでの攪拌時間の長短にかかわらず、ただ単に濁質濃度を変えただけで平均径が大きくなっている。特に、 $C = 1 \text{ g/l}$ の下での平均径が最大値に達した後 ($t_m = 40$ 分) でも、濁質濃度を低下させるだけで、希釈後の平均粒径が大きくなっている。図-17 でも示したように、平均径の最大値が濁質濃度によって変わる理由として電気化学的要因が卓越しているならば、図-26 で示される結果は生じないであろう。つぎに、塩水中に所定濃度になるように粘土を注入し、充分混合攪拌した後の上澄液中に含まれる Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} の濃度の分析結果(原子吸光にて測定)を表-1 に示す。この表において、筑後川粘土につい

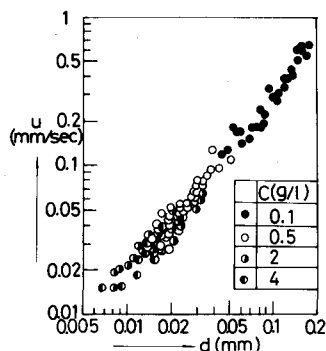


図-22 粒径と沈降速度の関係(カオリン)

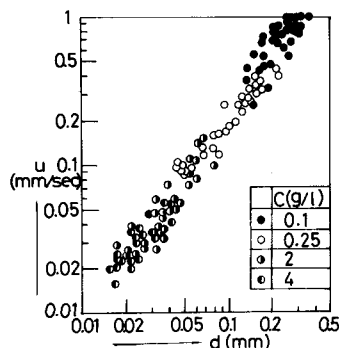


図-23 粒径と沈降速度の関係(筑後川粘土)

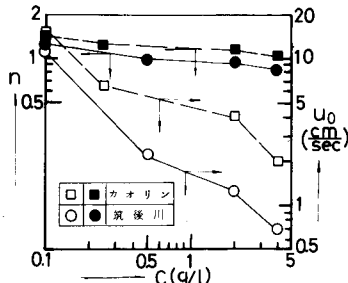


図-24 u_0 , n と濁質濃度の関係

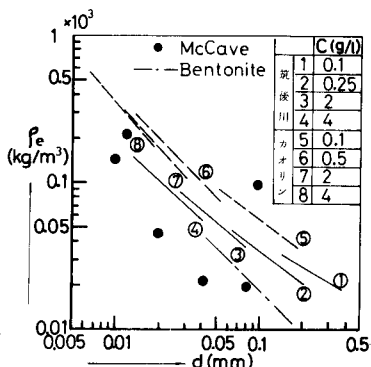


図-25 粒径と見掛け密度の関係

てのみ、濁質濃度の増加に伴ない若干 Mg^{2+} の増加が認められるが、これは底泥由来の Mg^{2+} と考えられ、この程度の増加が平均径の最大値を左右する程の量とは思われない。この表からも、平均径の最大値が濁質濃度によって変わる原因として、電気化学的要因が支配しているとは考え難い。以上のことから濁質濃度によって平均径の最大値が変わる原因は、物理的要因に支配されると考えられ、その現象は次のように説明づけられよう。濁質濃度が低い場合、構造が密な状態で成長しているため(図-24, 25参照), 粒子の剪断強度が増し破壊を受けにくく、結局平均径も大きくなったものと考えられる。前述したように、塩水中で成長した粒子には、攪拌の強度や継続時間の増加による「もまれ」の現象は余り認められなかったが、こ

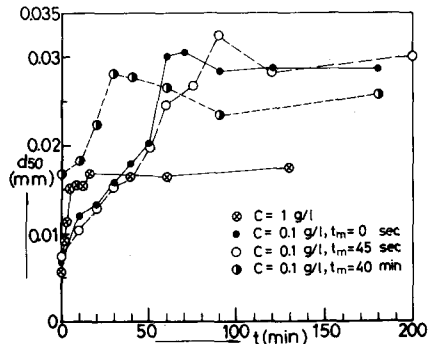


図-26 平均径の時間変化

表-1 Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} の分析結果

	C (g/l)	Na^+ (g/l)	Mg^{2+} (g/l)	Ca^{2+} (g/l)
カ	10	13.4	0.032	0.022
オ	5	13.0	0.032	0.021
リ	2	13.2	0.032	0.021
ン	0.2	13.4	0.031	0.020
筑	10	13.6	0.036	0.023
後	5	13.6	0.035	0.019
	2	13.6	0.033	0.022
川	0.2	13.8	0.032	0.020
塩 水		13.6	0.031	0.020

造をつくらず、破壊も受け易く、離合集散に近い状態にあるものと考えられる。薬品処理のフロックについては「もまれ」の効果でフロック密度が増加する傾向があり、著者らはこのことをモデル化してシミュレーションを行なった。「もまれ」の効果を考慮したときの粒径 d と沈降速度 u との関係は $u \sim d^{1.2}$ となり、「もまれ」の効果がない粗な状態では $u \sim d^{0.98}$ となる結果を得ている。⁷⁾本研究で得られた低濁度の下で成長したいわゆる密な状態での沈降速度と粒径との関係は $u \sim d^{1.3 \sim 1.4}$ と表われ、高濁度の粗な状態では、 $u \sim d^{0.9 \sim 1}$ となっており、前述のシミュレーション結果と近い値を示すようであるが、詳細については今後の検討課題としたい。

本研究で示したように、高濁度の下で成長する粒子の平均径の最大値が小さくなり、内部構造も粗になること、微細粒子の残存率が大きくなること等は、海域での物質輸送を考える際に注意すべき事項であるが、実際海域での微粒子の挙動、物質輸送現象を論じるには、剪断場での微粒子の凝集沈降現象や拡散現象まで考慮せねばならないであろう。今回得られた資料を基礎として、以後の検討を進めていきたい。

終りにあたり、実験に協力して頂いた当研究室の卒論生、島岡隆行、児玉洋文の両君、分析等に協力、助言を得た院生、森山克美、萬久光の両君に謝意を表します。本研究の一部は、文部省科学研究費(奨励研究-A)の補助を受けて行なったものである。

参考文献

- 1) 海洋科学, セジメントラップ 海洋出版株式会社, 1979, 122
- 2) 小笹, 「英国国立水理研究所におけるエスチュアリーでのシルテーションに関する研究について」, 港湾技研資料, 1980. Sept. NO. 354
- 3) 古賀, 栗谷, 楠田, 「フロックの基礎的性質に及ぼす攪拌条件の影響」, 水道協会雑誌, 54.4, 535号
- 4) 楠田, 古賀, 栗谷, 「塩水中における微粒子の凝集」, 用水と廃水, 1978, Vol. 20, No. 3
- 5) 古賀, 栗谷, 楠田, 「フロックの基礎的性質に及ぼす濁質濃度の影響」, 水道協会雑誌, 54.3, 534号
- 6) McCave, I.N., "Vertical Flux of Particles in the Ocean," Deep-Sea Research, England, Vol. 22, 1975, pp. 491-502
- 7) 古賀, 萬, 栗谷, 楠田「フロックの内部構造及びそのシミュレーションモデルについて」, 九大工学集報, 54.1, 52巻1号