

汽水湖の貧酸素改善を目指した実験的研究

杉原幸樹・新目竜一

1. はじめに

ダム、湖沼、海域など停滞性水域における底層貧酸素化は生物斃死、富栄養化、悪臭などの要因となっており、漁業や水質の面で多くの問題が起こり、その対策として直接酸素を供給する手法も行われ、鉛直循環、散気式曝気、マイクロバブル注入、高濃度酸素水供給などが実施されている。

これらは鉛直混合を誘発する手法がほとんどであり、塩淡水密度躍層を有する汽水湖では鉛直混合を発生させると、水域全体の塩水化や栄養塩の拡散などが懸念され、実装上の課題である。また汽水湖での酸素供給時の効果は報告例が非常に少ない。また実際に塩淡水密度躍層を有する網走湖では漁業活動が盛んであり、貧酸素水塊中の硫化水素やアンモニアなど有害物質の暴露によって度々、魚介類の大量斃死や悪臭などの被害が生じていた。

本研究は汽水湖の網走湖で、底層貧酸素の改善を目指し、水中型気液溶解装置(WEP：特許第3849986号、松江土建(株)・土木研究所)を用いて、酸素供給時に起こる化学的变化について現地でも水槽実験を行った結果をまとめる。

2. 現地調査

対象水域の網走湖(図-1参照)は北海道北東部に位置し、面積32.3km²、最大水深16.1m、平均水深6.1m、貯水量約2億3千万m³の海跡湖である。下流部でオホーツク海に接続し、海水が遡上して湖内では塩水と淡水の二層構造を形成している。網走湖では内水面漁業が重要な産業となっており、ワカサギ、シラウオ、シジミなどは国内でも有数の漁獲量である。図-2にSt.1とSt.2(図-1参照)の水温、塩分、溶存酸素(DO)の鉛直水質分布を9月5日に観測した結果を示す。図より水深8mに明瞭な境界を有し、上層に淡水、下層に塩水となる水塊が平面的に均一に分布していた。水温は水深8～10mで連続的な勾配を持つが、DOや塩分は水

深8mで躍層を形成し、塩水層では貧酸素状態となっていた。なお、2016年8月17日～23日に台風7、9、11号が連続して通過し、既往最高水位を更新する洪水が発生した。既往最大の洪水が流入しても塩水層は維持され、貧酸素状態であることが確認された。貧酸素塩水中には130mg/Lもの高濃度の硫化水素が含まれ、青潮等の原因である。貧酸素改善を行うときに上昇流を伴う手法では淡水層の塩水化や毒性物質の拡散が問題となる。そのため網走湖では、貧酸素改善は塩水層のみの改善が要求される。矢島・増木¹⁾はWEPによる高濃度酸素水塊は水平方向に進行することを示しており、現地において酸素供給時の変化を調べた。

3. 現地実験

3.1 実験方法

2016年9月5日～9月12日に呼人(ヨビト)港(図-1参照)近傍でWEPを用いた酸素供給実験を実施した。作業船で呼人港沖合水深9mより、水中ポン

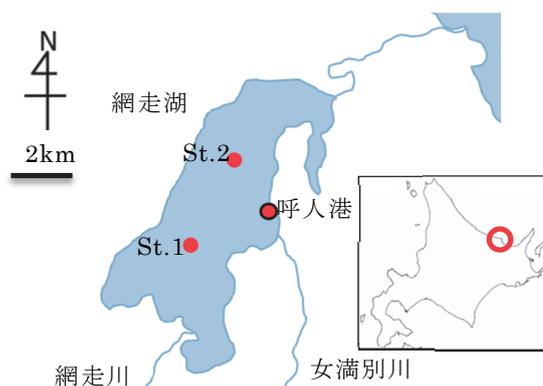


図-1 調査位置図

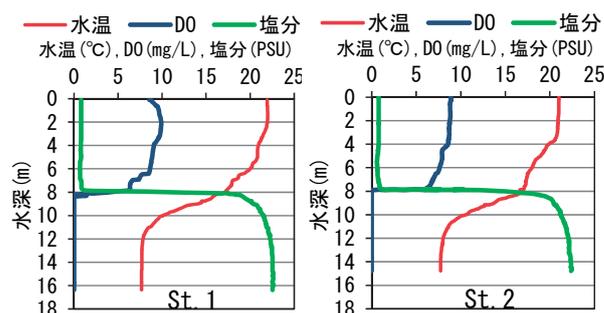


図-2 水質鉛直分布(2016.9.5)

プで試験水を90L採取し、船上で酸素供給実験を行った。写真-1に実験装置の全景を示す。吐出量30L/minの小型WEPを作成し、90Lの試験水を開放水槽内で循環させ、酸素ガス(99.5%)を1気圧条件で溶解させた。水槽内のDO、濁度、酸化還元電位(ORP)の変化を水質計でモニタリングした。加えて、一定時間毎にシリンジで試験水を分取し、菅原ら²⁾の手法より酢酸亜鉛固定法により硫化水素を定量した。その他分析項目は全有機炭素(TOC)、全リン(TP)、オルトリン酸態リン(PO₄)、全窒素(TN)、アンモニウム態窒素(NH₄)、亜硝酸態窒素(NO₂)、硝酸態窒素(NO₃)である。

3.2 実験結果

WEPによる現地貧酸素水への酸素供給結果を図-3に示す。酸素供給から10分ほどでDOは40mg/Lまで上昇し、50分ほどで一旦濃度が低下した後、以降は40mg/Lでほぼ一定値となった。実験時の試験水水温は17℃であり、大気条件下のDO飽和濃度は9.3mg/Lであり、酸素分圧がほぼ100%で給気した場合には最大で46.5mg/Lほどになることを考慮すると、WEPは50分ほどで現地貧酸素水を飽和可能であることが確認された。

次に濁度をみると50分まで単調上昇し、その後一定値となった。目視による変化(写真-2参照)として、初期の試験水は黒色半透明であったが、酸素供給直後から変色しはじめ、120分後には完全に白濁して、微粒子状物質が確認された。対応するようにORPも5~50分までは-290mVでほぼ一定値を示していたが、50分以降は上昇傾向を示し、140分後には-10mVとなった。この間はDOが過剰に存在してもORPは負値を示していた。

表-1に網走湖で採取した原水(淡水と塩水)、酸素供給120分後の試験水の水質分析結果をまとめる。表中NDは未検出を意味する。まず、現状の網走湖の淡水と塩水の水質を比較すると、TOCは同一であるが、リンや窒素の濃度は大きく異なり、特にPO₄とNH₄は顕著であった。このことから有機物は塩淡によらず、均一に分布しているが、栄養塩は塩水層に高濃度に蓄積されていた。このときのDOは淡水層では9mg/L程、塩水層ではゼロであった(図-2参照)。次に酸素を供給した場合、PO₄とNH₄が若干濃度低下を示

したが、他の項目に変化は見られなかった。特にNO₂、NO₃は酸素を供給しても検出されなかった。次に現地で採取した底泥を直径8cmの亚克力管に入れ図-3の実験後の試験水を注水して底泥と接触させ、3日間5℃暗条件で静置した後の試験水の分析結果をみるとTOCが低下、TP、

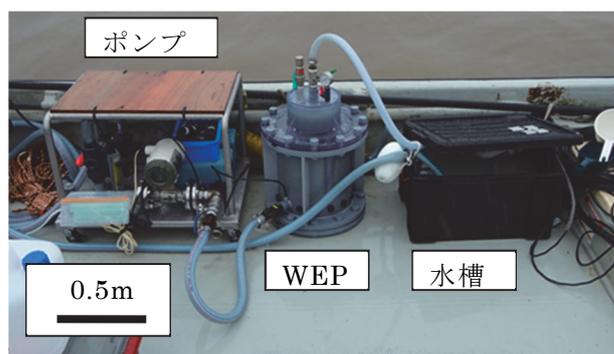


写真-1 実験装置全景

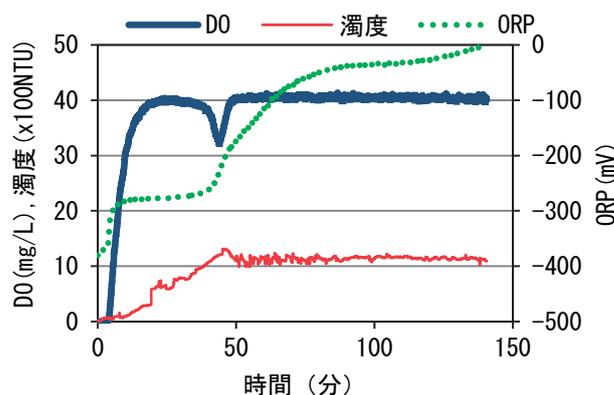


図-3 水槽中の循環酸素供給結果



写真-2 実験時の試験水の様子
(左：実験開始時，右：酸素供給120分後)

表-1 水質分析結果

(mg/L)	原水 (淡水)	原水 (塩水)	酸素供給後 (塩水)	底泥接触 3日 (塩水)
TOC	9.7	10	10	8.8
TP	0.12	4.3	4.3	1.3
PO ₄	0.086	4	3.8	1.1
TN	1.3	22	22	25
NH ₄	0.1	21	20	23
NO ₂	0.06	ND	ND	ND
NO ₃	0.91	ND	ND	ND

PO₄ は顕著に低下、TN、NH₄ は上昇する結果となった。この場合も NO₂、NO₃ は検出されなかった。なお、3 日後の試験水の DO は 1mg/L 以下となっており、白濁物質はほぼ消失していた。これらより底泥表面の酸化によって PO₄ が吸着された³⁾と推察される。

次に酸素供給時の硫化水素の経時変化を図-4 に示す。初期試験水は 130mg/L の硫化水素を含有しており、酸素供給開始から直線的に減少し、50 分でゼロとなった。図-3 中の 0~50 分間の変化も供給した酸素は硫化水素の酸化に使われ、硫化水素消失後に DO が一定となった。

ここで、酸素供給によって生じる濁度成分を同定するため、酸素供給後の試験水を 0.45μm のメンブランフィルターで濾過し、濾別された固体について蛍光 X 線分析(XRF)および X 線回折分析(XRD)を行った。XRF は含有元素の定性分析を行う手法、XRD は X 線回折によって結晶構造を判別する手法である。XRF の結果から、白色固体は硫黄 84%、ケイ素 8%、リン 3%、鉄 1%、その他 4%で構成されていることが確認された。XRD の結果から、白色固体はほぼ立方晶単純格子の硫黄で、立方晶面心格子の塩化ナトリウム、斜方晶系の硫黄が含まれることが確認された。よって酸素供給時に生成する白色固体は、ほぼ立方晶単純格子の硫黄であり、不純物として塩や土砂を含有していることを確認した。

生成した固体硫黄の挙動を写真-3 に示す。酸素供給条件を変えた 3 本の試料を 10 日間静置した前後の比較である。写真中の左瓶は試験原水、中瓶は原水に 3 分酸素供給して初期 DO を 40mg/L にした酸素一時供給のもの、右瓶は原水に 3 時間以上酸素供給して酸素飽和にしたもので、各試料は気泡が入らないよう充填して冷暗所で静置した。原水は 10 日後も変化は観察されなかった。一時供給は供給直後に固体硫黄が生成し、白濁していたが、10 日後には固体硫黄が消失して外観は原水とほぼ変わらず、やや黒色が退色していた。酸素飽和したものは充填直後に固体硫黄が分散して白濁していたが、10 日後には固体が沈降し、上澄みは無色透明となっていた。このことから、生成した固体硫黄は貧酸素状態で硫化水素として再溶解すること、酸素飽和を維持することで硫黄の沈降除去が可能であることが推察され

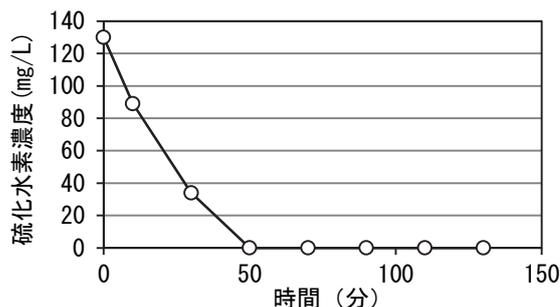


図-4 酸素供給時の硫化水素濃度変化



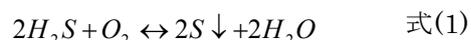
写真-3 固体硫黄の経時挙動
(左：実験開始時、右：静置10日後)

*左瓶：原水、中瓶：一時供給、右瓶：酸素飽和

る。

3.3 酸素供給時の変化

以上の実験から、貧酸素塩水層に酸素供給を行うと、数分から数日の極めて初期に硫化水素が酸化され、固体硫黄となり析出し、硝化が起こらないことが明らかとなった。このとき硫化水素は 1 時間弱で完全に酸化されるが、有機物や栄養塩に明瞭な変化が見られなかった。また、析出した硫黄は貧酸素化にともない再び溶解する挙動が見られ、貧酸素塩水中に酸素供給したときの反応は中間体を無視し、最終的に式(1)にまとめられる。



式(1)から硫化水素の無害化には反応を右辺に偏らせることが有利であり、酸素の供給および沈殿硫黄の除去が有効と考えられる。

3.4 酸素消費速度

次に、無酸素塩水のみの場合および底泥と接触した場合について、酸素消費速度を算出した。図-5 に無酸素塩水に 3 分酸素供給した水のみ DO 変化と無酸素塩水に 3 時間以上酸素供給を行い酸素濃度が一定となった試験水を直径 8cm のアクリル管を用いて底泥と接触させた場合の DO 変化を示す。

水のみの場合、初期 DO を 40mg/L としても約 1 時間で DO がゼロとなった。この酸素消費は硫化水素の酸化によるものと思われ、式(1)からも酸素濃度に依存した可逆反応であるため、酸

素消費速度は 1200 秒までの傾きを採用し、 $21.2 \times 10^{-3} \text{mg/L/s}$ となる。複数回試験を行い、試験水のみ酸素消費速度は $1.8 \pm 0.05 \text{g/L/day}$ であった。次に底泥接触させた場合の酸素消費速度は 4800 秒までの傾きから $8 \times 10^{-4} \text{mg/L/s}$ となる。ここで接触面積は 48cm^2 、水量は 1L で試験を行い、底泥の酸素消費速度は $13.8 \pm 0.52 \text{g/m}^2/\text{day}$ であった。牧ら⁴⁾は東京湾での酸素消費速度は $0.2 \sim 2.4 \text{g/m}^2/\text{day}$ と報告しており、網走湖底泥は桁違いに大きな値である。

この酸素消費速度より、供給した酸素量と同量の酸素消費量になる面積を概算した。1 辺が任意長さの正方形、厚さ 1m の直方体中の日当たりの酸素消費量を算出し、図-6 に示す。WEP の加給酸素量は吐出量：60L/min、DO：40mg/L として、 3.4kg/day であり、釣り合う正方形長は水のみで 2m、底泥で 15m である。この結果は現状の底層環境に酸素供給しても水塊のみで 1 日あたり 2m 四方、底泥のみでも 15m 四方の面積で消費されてしまうことを示唆している。WEP を実装した場合にも、DO 改善の発現範囲が非常に小さいことが推察される。しかし継続して酸素供給を行うことで、水や底泥が酸化されて酸素消費

速度が減少することが期待される。その場合は DO 改善範囲が拡大すると想定される。

4. まとめ

本研究によって、恒常的に無酸素塩水が滞留し、水質汚濁の要因となっていることが明らかとなった。網走湖は塩淡水境界を有する水理的特徴から貧酸素改善には手法を選定する必要がある。鉛直混合を伴わない酸素供給手法としてWEPを用いることで、水深選択的な貧酸素改善が可能であり、硫化水素の無害化の可能性があると示唆された。一方、WEPの現地実装を考慮すると、固体硫黄の底泥沈降や有機炭素の酸化分解などが想定され、これらがどのように変化し、生物相に影響するかを明らかにすることが今後の課題となる。

参考文献

- 1) 矢島啓、増木新吾：ダム湖におけるWEPシステムから吐出される高濃度酸素水の流動メカニズム、水工学論文集、Vol.53、pp.1339～1344、2009
- 2) 菅原庄吾、鮎川和泰、千賀有希子、奥村稔、清家泰：砂泥堆積物中溶存硫化物の分析法の開発及びその現場への適用、科学研究費補助金研究成果報告書（研究番号：19201016）、pp.40～48、2010
- 3) 古米弘明、大垣真一郎：湖沼底泥のリン脱吸着反応の放射性同位体元素による解析、土木学会論文集、第351号/II-2、pp.203～212、1984
- 4) 牧秀明、中村泰男、東博紀：貧酸素水塊の形成機構と生物への影響評価に関する研究、国立環境研究所特別研究報告、SR-93-2010、2010

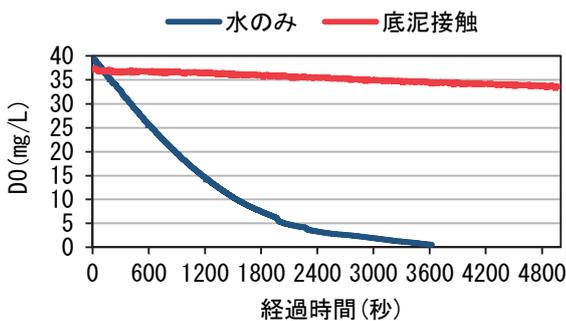


図-5 酸素消費試験結果

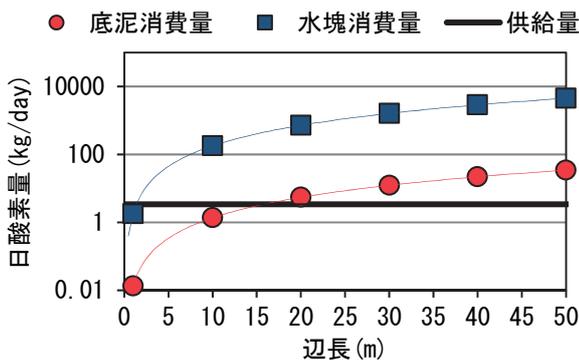


図-6 消費、供給酸素量の試算

杉原幸樹



土木研究所寒地土木研究所
寒地水圏研究グループ水環境
保全チーム 研究員、
博士(工学)
Dr.Koki SUGIHARA

新目竜一



土木研究所寒地土木研究所
寒地水圏研究グループ水環境
保全チーム 上席研究員
Ryuichi SHIMME