

浄化力に優れた砂浜堆積層の開発

水産大学校食品化学科
芝 恒男・前田俊道

実施年度：平成9年～11年

緒言

戦後、工業・商業地域の開発や防災などの観点から沿岸護岸工事が進み、自然砂浜海岸が急激に減少してきた。しかしながら、砂浜海岸は海洋の浄化に大きな役割を果たしており、海洋環境を保全するには必要不可欠なものであることが解ってきた。またその浄化力を経済的指数に置き換えて評価すると、護岸等によって砂浜海岸を破壊するよりも、場合によっては砂浜海岸を維持した方がはるかに経済的利点の大きい場合も存在することが明らかになってきており、砂浜海岸を維持あるいは再生するための施策が求められている。¹⁾

砂浜海岸では波による海水の供給とろ過が繰り返されている。このろ過過程で、海水中の有機物が浄化を受けると考えられるが、そのろ過浄過程についての実験的定性および定量研究はいまだなされていない。そこで本研究では、砂浜海岸を維持さらには積極的な再生の施策を進めるための基礎研究として、1) 砂浜海岸によるろ過浄化における生物および非生物過程の役割、2) 浄化能力の定量方法の開発、3) 砂浜堆積構造とろ過浄化能の関係についての解明を行い、浄化機能に優れた砂浜堆積層についての考察を行った。

調査方法

(1) 堆積物の採取

干潮時に渚線で砂浜に内径3.6cmのアクリルパイプを手で挿入して堆積物を採取した。

(2) 間隙水の分布

上層水を駒込ピペットで除去したのち、パイプを斜めにし、重力を利用して静かに堆積物を取り出した。カッターナイフで1cm厚に輪切りにしたのち、輪切りにした試料およそ10gを縦62mm、内径32mm、出口を400℃で加熱処理したGF/Fガラスフィルターで底の栓をしたプラスチック製のロートに移した。ロートを4～3のピンホールのあるパラフィルムでカバーした。この状態で測定される正味の泥の重量を湿重量とした。次にこれを、42 x g、30分で遠心した。この時得られた間隙水非毛管水とした。さらにロートを1500 x g、30分で遠心し、得られる間隙水を毛管水とした。Kohnke (1968)²⁾の計算式を用いて計算したそれぞれの間隙の最小孔径は、48 μ mおよび1.8 μ mであった。

(3) 堆積物の粒径分布

輪切りにした各切片砂浜堆積物のうち、約 5g を海水 100ml に 1 時間、室温で緩やかに振騰した。得られた砂浜堆積物の懸濁液をシリンダーに移し 1 分間静置した後、ピペット法で上層の微小粒子を含んだ砂浜堆積物懸濁液を採り、63 μ m 孔径のフルイでろ過した。このピペット法によるろ過を 2 度繰り返した。砂浜堆積物懸濁液の全量を、2000, 250, 630 μ m 孔径のフルイで順次ろ過し、この操作により得られた砂浜堆積物をそれぞれ $2000 \geq \mu$ m (分画 1, Gravel: れき), 2000~250 μ m (分画 2), 250~63 μ m (分画 3), 63 μ m \geq (分画 4, Silt&Cray: シルト-粘土) とした。またこの砂浜堆積物の分画には、海水を使用した。分画 4 は 10,000 rpm で 20 分遠沈し、上澄液を捨て沈殿を 100°C で一昼夜処理したのち乾燥重量を測定した。分画 2 および 3 はそれぞれを分散剤 (Na-hexametaphosphate 33g と Na_2CO_3 7g を蒸留水で 1000ml にメスアップし、同液を 20 倍希釈して使用) を含んだ 100ml 蒸留水 (Buller and McManus 1979)³⁾ に懸濁し、分液ロート中で 1 時間激しく振騰した。得られた砂浜堆積物懸濁液を、分画 2 については 250 μ m と 63 μ m 孔径のフルイで順次ろ過し、 $\geq 250 \mu$ m (分画 5: 粗砂・中流砂), 250~63 μ m (分画 6: 細砂), 63 μ m (分画 7: シルト・粘土) とし、また分画 3 の砂浜堆積物懸濁液は 63 μ m のフルイでろ過し各々 250~63 μ m (分画 8: 細砂), 63 μ m \geq (分画 9: シルト・粘土) とした。土壌粒子の粒径区分は Wentworth (1922)⁴⁾ に基づいた。ろ過された砂浜堆積物およびフルイ上の砂浜堆積物は 10,000 rpm, 30 分遠沈した後、100°C で一昼夜乾燥し真空デシケーター中で冷却した後、重量を測定した。

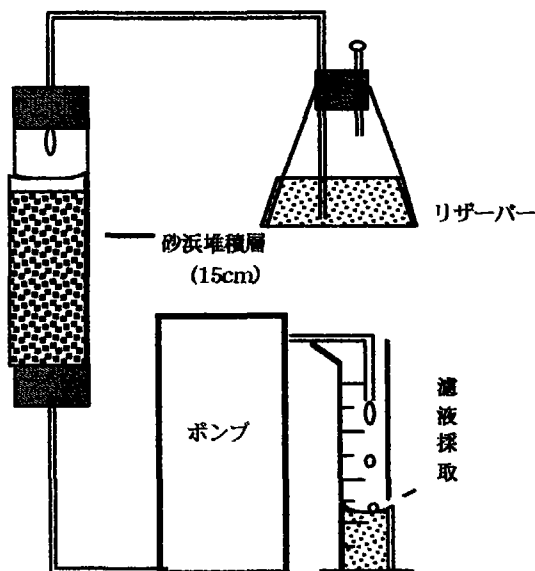


図 1 濾過実験装置

(4) 海水のろ過実験

内径 3.6cm のアクリルパイプに 15 cm 高の砂浜堆積物を充填し、これに 1000ppm 濃度で酢酸またはショ糖を含む人工海水を、1 ml/min で流した。ろ液について酢酸さらにはショ糖の濃度を測定した。

(5) 酢酸および炭水化物の測定

ろ液中の炭水化物濃度は Johnson and Sieburth 法 (1977)⁵⁾ によって測定した。またろ液中の酢酸濃度およびノニルフェノール化合物については、HPLC を用いて測定した。すなわち酢酸については、0.4% リン酸液を強陽イオンカラム KC811 (Shodex Co.) に 1 ml/min の速度で流し、溶出液について 210nm の吸光度を測定して、酢酸濃度を定量測定した。

調査結果

(1) 砂浜堆積層の浄化能力

波によって供給された海水が砂浜堆積層でろ過される過程で、海水中有機物が、砂粒子による吸着される過程について調べた。図2は、始めに1000 ppm濃度の酢酸を含んだ人工海水を、1 ml/minの流速で、下関市内の水産大学校正門前で採集した150 cm³、高さ15 cmの柱状堆積層中をろ過した場合の間隙水の酢酸濃度を示している。図に示されるように、間隙水中の酢酸濃度は、非毛管水で高く、毛管水で低い。またいずれも表層で高く、下層に行くにしたがって減少している。特に表層の非毛管水では、原液と同じ濃度が観察されている。酢酸が上層から供給されることを考えると、下層に行くにしたがって酢酸濃度が減少することは、砂浜堆積層を海水が通過する間に、海水中の酢酸が除去されていることを示し、その除去、すなわち浄化能力は、毛管間隙の方が優れていることがわかる。毛管間隙の浄化力が優れているのは、間隙体積当たりの粒子比表面積が多きいことがあげられる。

図3は、酢酸/人工海水のろ過の後に、人工海水を堆積層に流し続けた時の間隙水中の酢酸濃度である。図に示されるように、間隙水中の酢酸濃度は急激に減少するが、その減

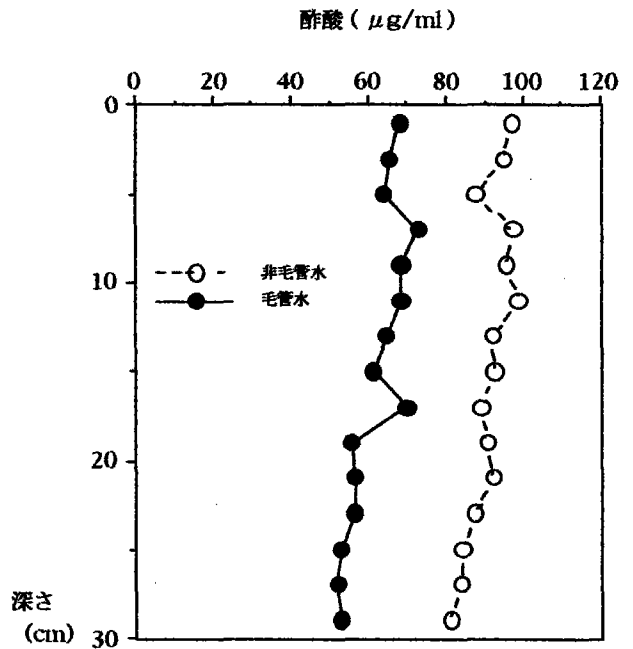


図2. 間隙水中の酢酸濃度

少具合は非毛管水で激しい。このことは間隙にトラップされた有機物が急激に堆積層から流れ出してしまうことを意味している。

図4は、図2・3の実験を、ろ液について調べた結果である。図中「堆積層にトラップされた酢酸量」は、堆積層に供給された酢酸総量からろ液中に回収された酢酸量を差し引いたものである。図に示されるように「堆積層から溶出した酢酸量」は、「堆積層にトラップされた酢酸量」よりも小さく、この両者の差は堆積層にかなりの量の酢酸が残っていることを示す。

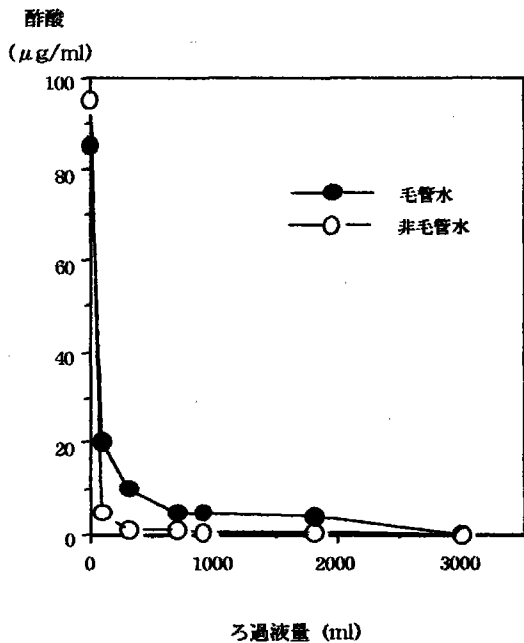


図3. 酢酸/人工海水によるろ過の後に、人工海水でろ過した場合の間隙水中の酢酸濃度

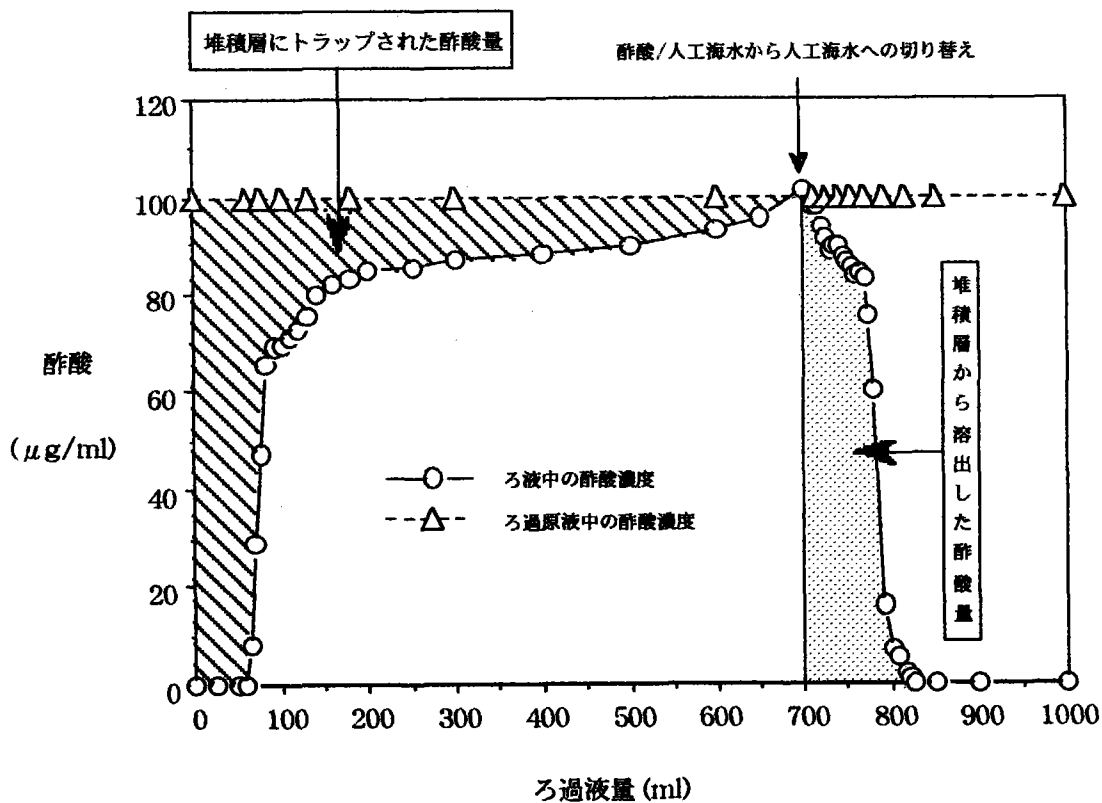


図4. 酢酸/人工海水のろ過実験；ろ液中の酢酸濃度

「堆積層にトラップされた酢酸量」から「堆積層から溶出した酢酸量」を差し引くと7.56 mgの値が得られる。この値は堆積層に留まっている酢酸量と考えられるが、それを確かめる目的で、図4のろ過終了後の堆積層からの酢酸の抽出を試みた。すなわち堆積物をピーカーに回収して均一に混合した後等分割し、それぞれについて異なる方法で酢酸の抽出を試みた。その結果(表1)アルコール抽出をした時に最も大きい値が得られたが、この値は計算によって求められた値にごく近い結果となった。以上の結果から、堆積層によって浄化される酢酸量を、ろ過実験法で求められることが分かった。

表1. 吸着量の求め方

定量方法	求められた吸着酢酸量 (mg/150cm ²)
「堆積層にトラップされた酢酸量」 - 「堆積層から溶出した酢酸量」	7.56
アルコール抽出	7.54
0.1 N HCl 抽出	4.12
0.1 N NaOH 抽出	2.4
蒸留水冷抽出	0
蒸留水煮沸抽出	0
人工海水冷抽出	0
人工海水煮沸抽出	0

(2) 砂浜堆積層の浄化過程の特徴

砂浜堆積層について、これまでに観察された浄化能力に果たす微生物の働きについて調べた。図5は、あらかじめ加熱殺菌しておいた砂浜堆積層の浄化能力を、無処理の砂浜堆積層の浄化能力と比べたものである。図に見られるように、ろ液中の酢酸濃度に差は見られない。したがって、殺菌、非殺菌の堆積層では、その浄化能力に差の無いことが分かった。また図6は砂浜堆積層にショ糖液(10 $\mu\text{g/ml}$)をろ過した実験結果である。図に見られるように、ろ液中にショ糖は観察されるものの、その分解産物として予想される単糖類は観察されない。したがって、海水が砂浜堆積層中をろ過されるような短時間の過程では、堆積層による浄化は、砂粒子による吸着が主で、微生物の働きはほとんど無視できることがわかった。

次に砂粒子への有機物吸着能を単一有機物で表現しうるかについて調べた。表2はそれぞれ1000ppm濃度の酢酸と酪酸、グリシンとチロシンの堆積層砂粒子への吸着度を調べたものである。酢酸と酪酸では、酢酸が親水性が強く、グリシンとチロシンでは、グリシンの親水性が高い。表に見られるように単独に有機物をろ過した場合では、150 cm^3 の堆積層当たり、有機酸では酢酸が7.2mg、酪酸が5.9mgとなり、親水性の高い有機酸がより多く堆積層に吸着除去される結果となった。一方アミノ酸ではグリシンが2.9 mg、チロシンが4.4 mgとなり、こちらでは非親水性のチロシンがより多く吸着される結果となった。

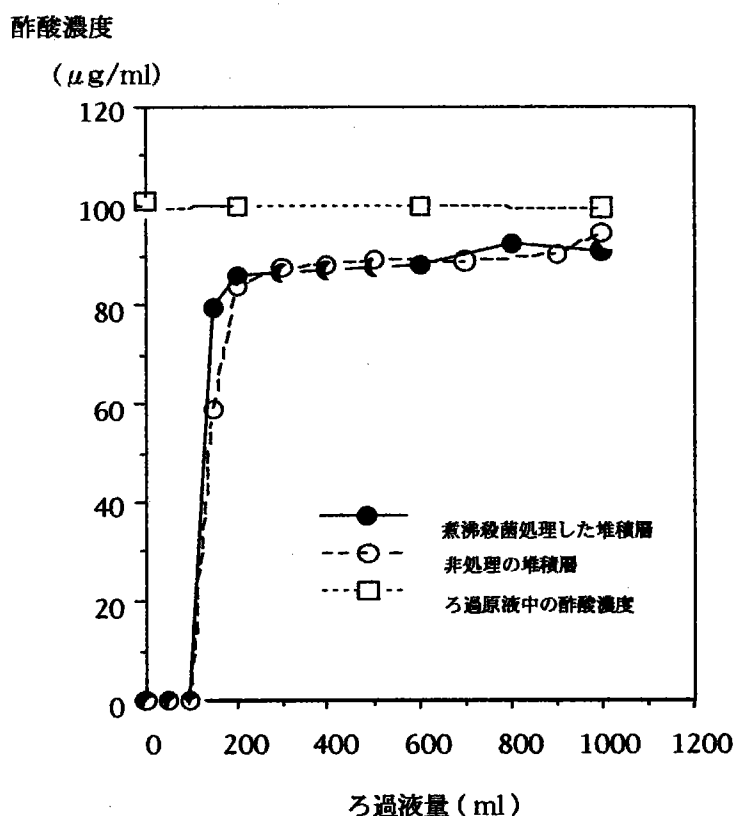


図5. 滅菌した砂浜堆積層のろ過浄化能力

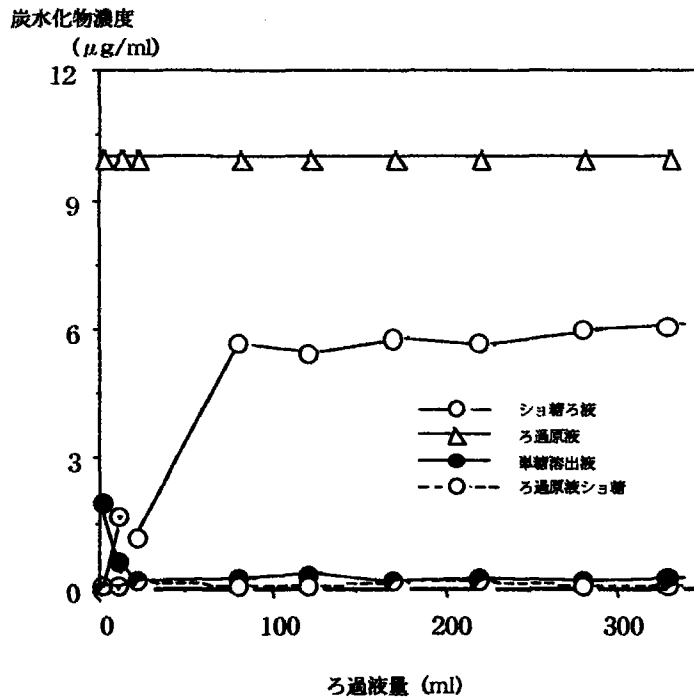


図6. ショ糖をろ過した時のろ液中のショ糖・単糖濃度

表2. 単独あるいは混合液をろ過した時の吸着量の変化

ろ液中の有機物	吸着量 (mg / 150 cm ³ 堆積層)	
	酢酸量	酪酸量
酢酸単独	7.2	-
酪酸単独	-	5.9
酢酸/酪酸混合	7.3	3.0
	グリシン	チロシン
グリシン単独	2.9	-
チロシン単独	-	4.4
グリシン/チロシン混合	0.6	4.7

以上の結果を総合すると、堆積層による吸着過程には、親水性、非親水性の両方の過程が混在していることがわかった。また有機酸、アミノ酸をそれぞれ混合和して（つまり合計2000ppmで）ろ過すると、吸着総和量は増えるものの、酢酸およびチロシンの吸着除去量は減少しないのに、酪酸およびグリシンは単独の時よりも吸着量が減少する結果となった。

以上の結果からすると砂浜堆積層の吸着浄化能力を求めるには、仮想の自然有機物混合物を調整して実験を行うか、または個々の有機物に対して実験を行うかの、2方法が考えられる。しかし全ての有機物を同時に同感度で測定する方法が無い現状では、特定の有機物を用いて実験を行い、その結果

をもって浄化能を推定する以外に方法が無いと思われた。

(3) 砂浜堆積層の浄化能力に対する堆積構造の影響

堆積構造と浄化能力との関係を調べる目的で、浄化能に対するろ過速度の影響を調べた。図7は酢酸/人工海水を10ml/minおよび1 ml/minでろ過したときのろ液中の酢酸濃度の変化を示したものである。図に見られるように、10ml/minでろ過した時は200ml超のろ過液量で原液濃度と同じになるのに、1 ml/minのろ過速度では700mlで原液濃度と同じになる。一方人工海水へ切り替えた後に堆積層から排出される酢酸量については、いずれの速度でも同じ酢酸量値が得られた。以上の結果から10ml/minでろ過した時の酢酸浄化量を計算すると、150cm³の堆積層当たり3.9mgになり1 ml/minで観察された浄化能のおよそ半分である。図には示していないが、5 ml/minでろ過した場合には、10ml/minよりも優れた浄化能を示したものの、1 ml/minのろ過よりも劣っていた。以上の結果から砂浜堆積物による浄化には1 ml/min以下の流速でろ過が行われるような堆積構造が浄化力に優れていることがわかった。

次に堆積構造の異なる砂浜堆積層について、そのろ過浄化能力を調べた。図8には代表的なものとして下関周辺の宇賀、彦島周辺の粒子組成を示した。また表3には吉見、宇賀、彦島、小串、計4地点の堆積構造と酢酸浄化能力を示した。表に見られるように、浄化能力は、細砂の割合が大きい彦島で最大の11.5mg酢酸量が得られた一方、粗砂・中粒砂の割合が大きい宇賀、小串ではともに3.7mg程度の浄化能力しか観察されなかった。従って、浄化能力の大きい堆積構造は細砂の割合の高い堆積構造と考えられる。また堆積構造との関係では、間隙水の組成と浄化能力の間には明りょうな相関が見られず、間隙水の組成を基に浄化能力を推定することは不可能と思われた。

以上の結果を総合すると、粒子組成を細かくすれば浄化能力が高まるように思われるが、細砂を越えてシルト・粘土が堆積層に混じると急激にろ過速度が低下し、その結果浄化能力を測定することは不可能であった。ろ過速度が低下すると、波が堆積層表面を流れて海水が堆積層に浸透しなくなる。その結果堆積構造による浄化を受けにくくなることが示唆される。

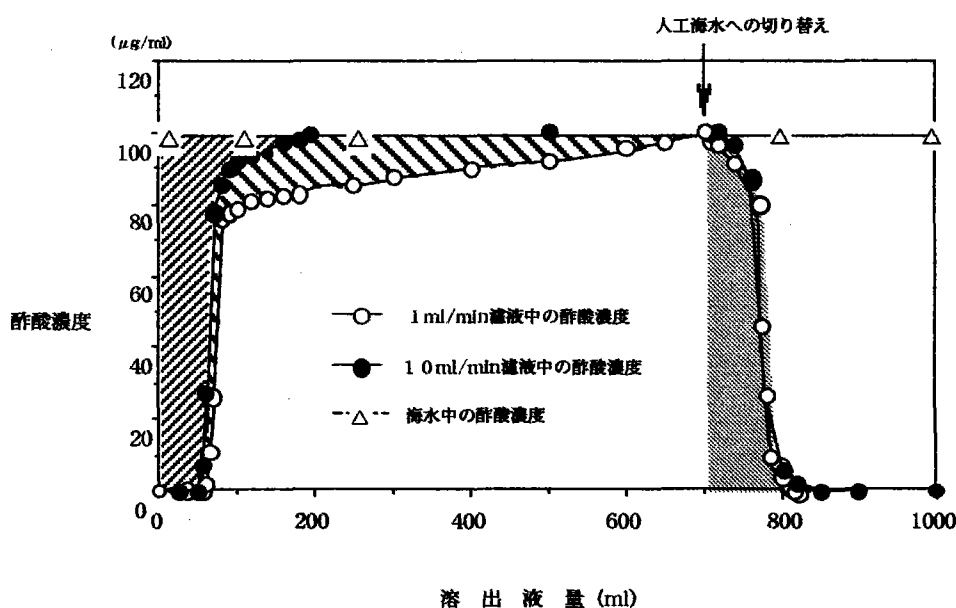


図7. 流速変化による濾過実験.

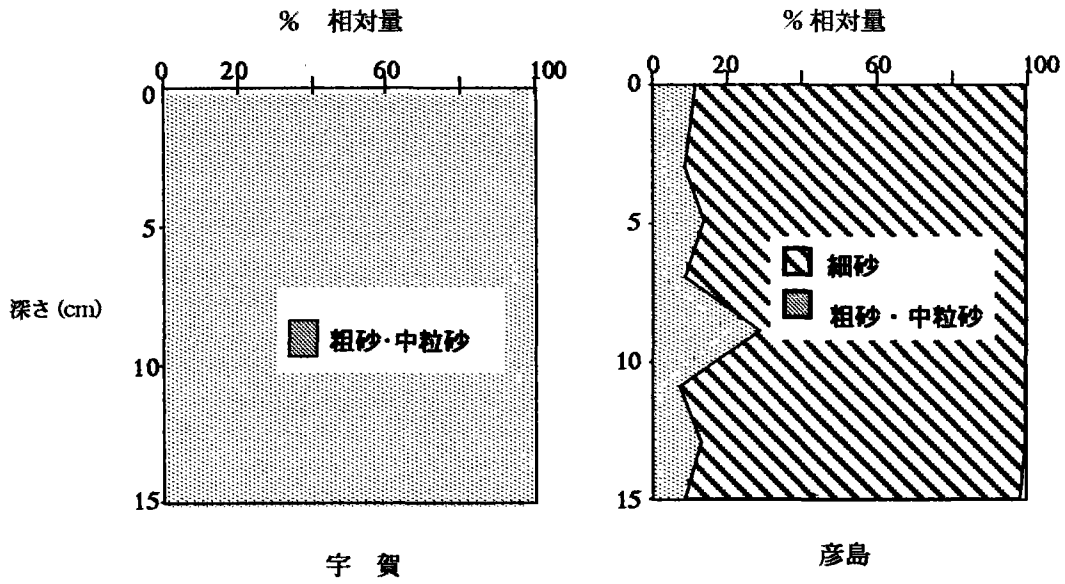


図8. 宇賀, 彦島の砂浜粒子構造

表3. 異なった堆積層の浄化能力

	吉見	宇賀	彦島	小串
間隙水	%相対量			
毛管水	5.68	6.01	3.98	6.51
非毛管水	11.66	8.86	13.03	11.3
粒子組成	%相対量			
シルト・粘土	0	0.1	0.1	0.1
細砂	64.2	0.4	87.4	14.4
粗砂中粒砂	32.9	99.5	12.5	68.9
礫	2.9	0	0	16.6
浄化能力	mg 酢酸/150 cm ² 堆積層			
酢酸ろ過浄化能	7.6	3.8	11.5	3.7

考察

今回の研究で、砂浜堆積層の吸着除去による浄化能の測定法を考案し、かつその測定された浄化能

が細砂の割合の大きい堆積層で高いことを明らかにした。考案された測定法は、堆積層の潜在浄化能を測定するものであり、これまでに数多く行われてきた測定法が「自然界で実際に起こっている浄化能」を測定してきた⁶⁾のとは明らかに趣が異なる。また吸着除去能力に絞って浄化能を測定したのも大きな特徴である。環境汚染は刻々変化するものであり、かつかなり濃厚な汚濁液が砂浜に拡散する場合もあり得るので、今回考案した様な浄化潜在能力を定量する手法の方が、堆積層の造成など工学的手法を用いて環境浄化図る場合には、より有効と思われる。

今回の研究で細砂の割合の大きい砂浜堆積層で浄化能力が高い、極めて常識的な結果となった。今後、粒径を細分化してより詳細なデータを求めることも可能だが、本研究で示されたような数倍程度以内の変化であるならば、実際に砂浜の造成作業を行うときの手間を考えるとそれを行うことの意義は疑わしい。むしろ今後は多孔質の砂などについてその浄化能力を調べた方が有効だと思われる。

間隙組成と堆積層の吸着浄化能力との間には明瞭な関係が見られなかったが、間隙は酸素の供給路として、有機物分解に果たす役割が大きいことが知られている。今後吸着された有機物が微生物分解を受ける過程で、間隙組成と堆積層による浄化能との関係が明らかになると考えられ、そのような研究の遂行が望まれる。

本研究で堆積層 150cm³ 当たり 3~11mg の酢酸吸着除去能力が観察されたが、これは、深さ 15cm の砂浜 1 平米当たり 3~11 g の酢酸が除去されることになる。仮に海水 1 リットル当たりの有機物量を 0.5mg とすると、1 平米当たり 20 トン程度の海水が堆積層を通過するだけで、堆積層の吸着除去能力を超えてしまうことになる。当然のことながら、微生物による分解に期待すべきであって、分解による有機物のターンオーバーレイトを高めるのに有効な堆積構造についての解析が今後望まれる。

摘 要

1. 浄化に果たす微生物の役割についての研究が未着手のまま残された。
2. 浄化能力と間隙との相関についての研究が不十分であった。

謝 辞

最後にこれまでの研究にご支援頂いた水産庁資源生産推進部整備課沿整班の諸氏に感謝します。

引用文献

- 1) Mitsch, W. J. (1992) Landscape design and the role of created, restored, and natural riparian wetlands in controlling nonpoint source pollution. *Ecol. Eng.* 1: 27-47.
- 2) Khonke, H.: *Soil Physics*, McGraw Hill, New York, 1968, pp. 224.
- 3) Buller, A. T., and McManus, J. (1979) Sediment sampling and analysis, In Dyer, K. D. (ed.), *Estuarine Hydrography and Sedimentation*. Cambridge Univ. Press. pp. 87-130.
- 4) Wentworth C. K. (1922) A scale of grade and class terms for clastic sediments. *J. Geol.*,

30: 377-392.

- 5) Johnson, K. M. and Sieburth, J. M. (1977) Dissolved carbohydrates in seawater. I, a precise spectrophotometric analysis for monosaccharides. *Marine Chemistry*, 5: 1-13.
- 6) Yelverton, G. F. and Hackney, C. T. (1986) Flux of dissolved organic carbon and pore water through the substrate of a *Spartina alterniflora* marsh in North Carolina. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 22: 255-267