

《 解 説 》

天然モルデナイトと竹炭の 水質浄化能の違いが及ぼすビオトープへの影響

岡本真琴*, 小林大誠**, 小堀 進***, 坂本栄治**

*九州国際大学地学, **近畿大学産業理工学部, ***NPO法人直方川づくりの会

我々はこれまで実験室規模の循環装置を用いて、天然鉱物や竹炭等をレキとした水質浄化実験を行ってきた結果、天然モルデナイトを含む岩石が最も硝化を促進させ、有機成分中に含まれる窒素成分のうちアンモニア塩であるものの水質浄化に優れているということを見い出したり。

本研究では、この浄化方法をより実用化段階へ近づけるために、ビオトープ内に設置した大型の水質浄化実験装置において、硝化が最も早い天然モルデナイトとイオン交換能のほとんどない竹炭における物性の比較を行い、各々の処理水がビオトープへどのような影響を及ぼすのか検討を行った。その結果、天然モルデナイトには、硝化を促進させる効果があり、有機物（有機成分中に含まれる窒素）が減少することによる大腸菌群の菌数減少の効果があることも確認された。将来的には、天然モルデナイトを使うことで、生物多様性のある豊かな水辺が復元できるとともに、人々が気軽に水辺で楽しむことができる近自然工法による親水公園やより豊かなビオトープを作り出すことが可能であると考える。

1. はじめに

近年、河川は生活排水や農業排水などに起因する富栄養化による水質汚染が問題となっている。原因として社会基盤の整備の遅れや農業の際の過剰施肥などが挙げられる。各自治体では公共下水道の設置などによる水質の浄化に向けた取り組みが行われている所であるが、本来川には自浄作用がある。それらの作用を促して、生物多様性のある豊かな水環境に戻せば、現在よりも水質改善がなされるであろう。

この富栄養化の原因としてあげられるのが、おもに窒素分である。これは有機態窒素と無機態窒素として表すことができ、窒素循環の流れとして有機態窒素-アンモニア態窒素-亜硝酸態窒素-硝酸態窒素などに変化する。窒素は、植物の三大栄養素の一つであるが、植物が栄養として取り込むには取り込

まれやすい形である硝酸態窒素である必要がある。そのためには窒素分の酸化を促進させなければ植物が利用することができず、窒素分の減少、水質の浄化は進まない。

現在の水質浄化技術として挙げると、さまざまなものがあるが、問題点は各々固有にある。今後の浄化技術は資源循環型、持続型、自立型であることが重要であるとされる²⁾。そのことを踏まえ、簡便でかつ、半永久的に使用できるものとして天然の岩石・鉱物をレキとして用いた「レキ間浄化法」がある。レキ間浄化法は大規模なコストが必要ではないため、より経済的に使用することが可能である。

本研究では、これまで天然岩石を用いて、実験室規模で水質浄化実験を行ってきた。その結果より、天然岩石の中でも天然モルデナイトが他の岩石と比べ硝化能力が高く、水質浄化に優れているということを見い出した^{1,3)}。

そこで本研究では、実験室規模からより実用化段階に近づけるため、福岡県直方市に設置された尺岳川ビオトープの水質浄化実験施設において、水質浄化材として天然モルデナイトと竹炭を使用し、各々

受理日：2007年1月9日

〒805-8512 北九州市八幡東区平野 1-6-1

九州国際大学 経済学部

e-mail: okamoto@econ.kiu.ac.jp

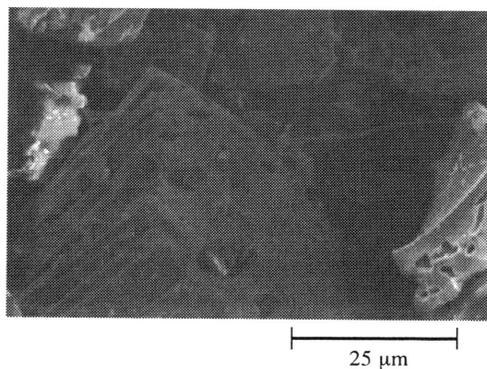
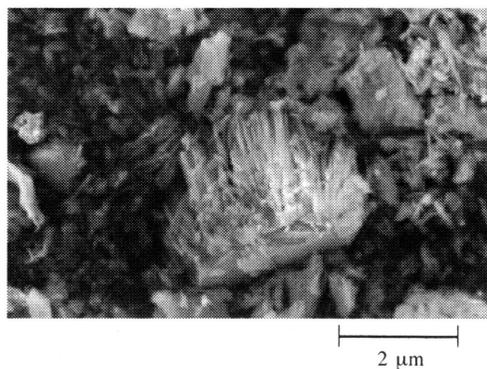


図1 SEM Images of samples (upper: zeolite, lower: bamboo coal).

によって浄化された水の比較検討を行った。また通過した後の水が、水生生物にどのように影響を及ぼすのかを検討した。

今回の実験に併せて、シロガヤツリ草を植栽した。これは、縣ら⁴⁾のこれまでの研究の結果、シロガヤツリが植物生産が高く、水質浄化に最も優れていることが明らかとなっている。今回は水質浄化植物を用いて、浄化を行うファイトレメディエーション(植物を用いた環境修復技術)を用いて、ビオトープ内にある水路上に、最適な植物であるシロガヤツリを植栽した上で、天然ゼオライトと竹炭がシロガヤツリの生育に及ぼす違いを各々検討した。

2. 実験方法

2.1 水質浄化材の物性

今回用いた水質浄化材は、Caに富む天然モルデナイトと竹炭を使用した。天然モルデナイトは、福島県福島市桑折町飯坂鉱山産出で、純度約75%のモルデナイト(以下、ゼオライトと記す)と福岡県産出

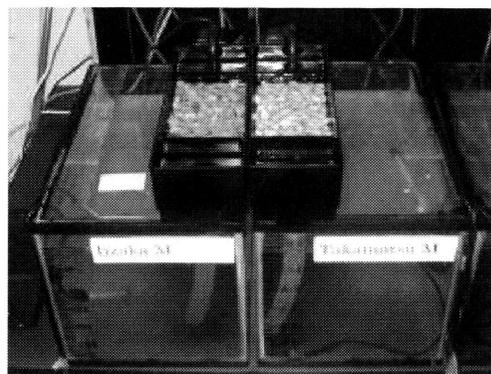


図2 Apparatus of Experiment.

の竹炭である。浄化材のSEM写真を図1にそれぞれ示す。

上段のゼオライトには、モルデナイト特有の無数の針状の結晶が確認でき、竹炭においては多数の細孔が確認することができる。今回の実験に先立ち、実験室規模で浄化実験を行った。実験装置を図2に示す。実験は、好気性雰囲気下において循環型水槽に河川水30 L、水温25℃、流速3 L/min、24時間毎に分析、20日間実験を行った。このとき使用したレキはゼオライト、そして対照としてのガラスビーズである。粒径は、9.5 mm~12 mmにそろえ、ガラスビーズはビードレックス社のものを使用した。図3に実験室で行った結果を示す。

このゼオライトは、ブランク(対照実験)であるガラスビーズより NH_4^+ の減少が早く、 NO_3^- の増加が早いという、硝化能力が大きく、優れた浄化能力をもっていることが確認された。

竹炭はこれまでの研究³⁾により細孔を持っていることと、陽イオン交換能がほとんどなく、物理吸着のみであることが明らかになっている。本実験では、ゼオライトとの水質比較のために使用した。

2.2 尺岳川ビオトープの概要

ビオトープとはbioとtopeが組み合わさった言葉であり、生物の生息空間と訳すことができる。

今回の実験を行った尺岳川ビオトープは流水系であり、一般的な止水系のビオトープとは違い、水質浄化施設が併設されているため、生息する多様な生物種がその水質に適応した生態系を作り上げる、特殊なビオトープであるということが言える。

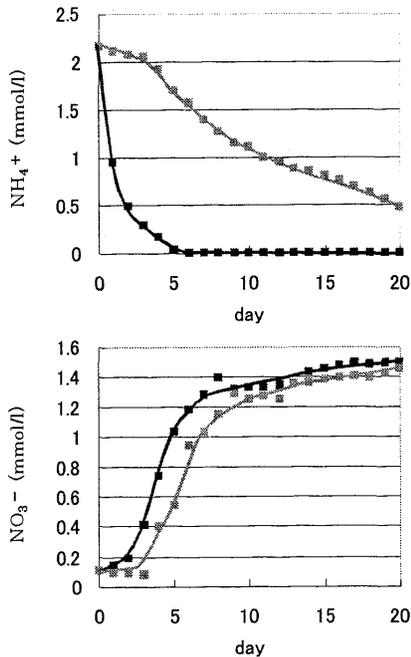


図3 Changes of N- NH_3 (upper) and N- NO_3 (lower). ■; Glass bead. ■; Iizaka mordenite).

尺岳川ビオトープの所在地は、福岡県直方市、遠賀川支流の尺岳川沿いにあり、2001年8月に尺岳川エコパークの一部として完成した。概略図を図4に示す。施設付近には住宅地があり、生活排水が尺岳川へと流れている。当施設は、水質浄化実験施設として使用される他に、付近の小学校での、ビオトープを用いた環境教育の場としても利用されている⁵⁾。本実験で使用する水は生活排水が含まれている尺岳川の水を使用しており、ビオトープ内へは、尺岳川からポンプにより毎秒約5Lで汲み上げ、2分割されたゼオライト槽と竹炭槽を通過させている。通過させた水は、それぞれの水路を通り池で合流させ、その後再び尺岳川に合流させている。

2.3 水質浄化実験装置と水路

水質浄化実験装置を図5に示す。装置は縦26 m、横6 m、深さ0.8 mで2分割して、右側にゼオライト(約17 t)、左側に竹炭(約3 t)をそれぞれ敷き詰めている。ゼオライト槽、竹炭槽ともに槽の上部を通過しないようになっており、また各々を通過する水は、同量となるように随時調整をしている。

2.4 シロガヤツリ

ゼオライト槽と竹炭槽の槽通過後の処理水は水路を流れるが、その水路上には、福岡県保健環境研究所が水質浄化に適した植物として推奨しているシロガヤツリを植栽した。シロガヤツリは、カヤツリグサ科カヤツリグサ属の多年草本植物で、マダガスカル島原産で帰化している⁶⁾。これは、水中からの窒素成分除去に優れていることが縣らりに明らかにされており、環境浄化植物といえる。今回は各々の処理水がシロガヤツリの成長と窒素成分除去を観察するために株数、排水口の水量、日当たり、処理水口からの距離を同一条件にし、植栽した。

2.5 基礎実験

まず、基礎実験として、尺岳川ビオトープ内水質浄化装置において、汲み上げた水が各槽を通過するために必要な時間を原水にNaCl混合による電気伝導度測定により行った。この結果、水の装置内滞留時間はゼオライト槽側では約7時間、竹炭槽側では約9時間であった。

2.6 分析項目

毎回、入水後(図4のS1)、ゼオライト槽通過後(図4のS2)、竹炭槽通過後(図4のS3)、尺岳川合流前(図4のS4)の4地点を固定して採水した。

pH、電気伝導度(EC)、溶存酸素(DO)、酸化還元電位(ORP)はHORIBA製マルチ水質モニタリングシステム(U-23)にて現場にて測定、そしてサンプルを実験室に持ち帰り、N- NH_4^+ (窒素成分の NH_4^+ で、以下N-と表す)などの陽イオンはキャピラリー電気泳動、N- NO_2^- 、N- NO_3^- などの陰イオンは島津製作所製イオンクロマトグラフィー、化学的酸素要求量(COD)は KMnO_4 の消費量、全窒素(T-N)はペルオキシ二硫酸カリウムによる比色測定、大腸菌群はLB-BGLB法より統計学的に求めた。そして、ゼオライト槽と竹炭槽からの水における生物の違いを見るため、生物調査を排水口付近の水路で行った。さらにシロガヤツリの成長比較も行った。

3. 実験結果及び考察

3.1 pH

入水後(S1)と各槽通過後(S2, S3)のpHは、実験開始から数日経過してもpH7前後であり、著

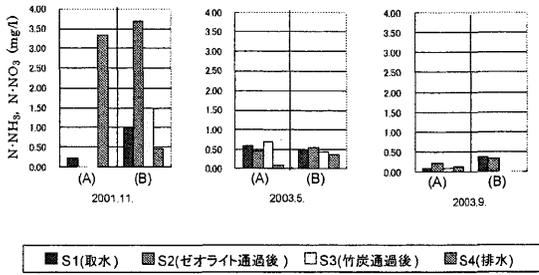


図6 Changes of N-NH₃ (A) and N-NO₃ (B).

しい変化が認められなかった。すなわち、水がレキを通過しても pH が変化しないことがわかった。

3.2 N-NH₃, N-NO₃

無機性窒素の形態である N-NH₃, N-NO₃ の値を図6に示す。実験開始4ヶ月後の2001年11月では N-NH₃ が入水後に比べ、検出限界値以下となり、各槽通過後減少した。それと同時に、N-NO₃ は増加している。増加量はゼオライト槽で著しく硝化が進んでいたことがわかる。これはゼオライトの持つイオン交換能が働いているためであると考えられる。竹炭には、このような作用はほとんどないため³⁾、ゼオライトより小さくなり、レキでの差が現れる結果になったと考えられる。

しかし、2年後の2003年5月になると、N-NH₃, N-NO₃ ともに濃度がほぼ同じ値を示している。2003年9月になると N-NO₃ はS3において検出されなくなった。これは、2003年7月に2回の大雨による川の増水によりピオトープが冠水したためであると考ええる。なお、2001年11月において排水部のS4で N-NH₃ が大幅に増加しているが、これはピオトープ内にある樹木の葉が水路内に落ちたもしくは水路付近の通路に敷設した木材のチップや枯葉などが水路に落ちたため、N-NH₃ が高くなったと考えられる。

3.3 全窒素 (T-N)

図7に全窒素量を示す。2002年11月ではS1とそれほど変化がない。このときの窒素分の形態は図6より日付が異なるため、一概に比較することはできないが、無機成分で硝酸態窒素であると考えられる。T-Nの変化がないため、各実験槽によって硝化が促進されたものを含む水がそのまま流れたと考えられる。2003年5月ではS2が落ちていた。8月になると、

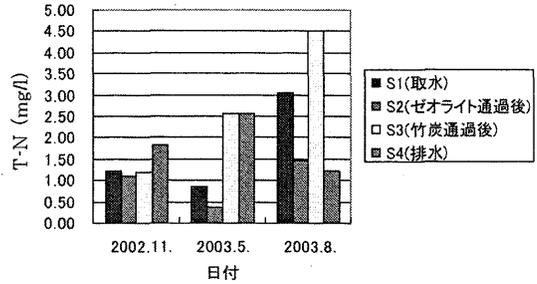


図7 Changes of T-N.

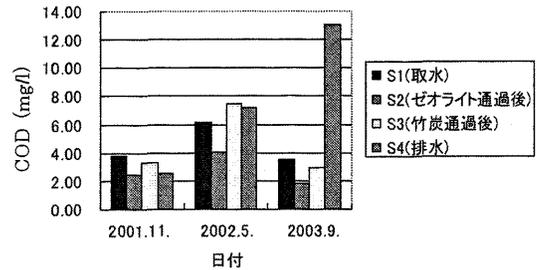


図8 Changes of COD.

S1に比べ、S4が小さくなっている。夏期であるため、窒素分を豊富に含んだ水に藻類が繁殖したためであると考えられる。そのため、冬期である2002年11月時点では値が変わらなかったと考えられる。S2が減少したのはゼオライト槽内において嫌気性状態となっていたことから脱窒素が促進されたのではないかと考えられる。

3.4 COD

CODの変化を図8に示す。実験開始当初からあまり変化はなく、ほぼ一定であるが、S2とS3の2地点を比較すると、いずれもS2の方がS3より小さくなっていることがわかる。CODは有機物の相対量を示す指標であるが、有機物の量ではないため、量的にはいえないが、ゼオライトがより有機物の量を減少させる効果があると考えられる。

3.5 大腸菌群

大腸菌群の算出は、統計学的に求めたため、桁が同じである場合、ほぼ同じと今回は考えた。大腸菌群の変化を図9に示す。

2001年12月ではS1に比べ、S2が減少している。S3においては、あまり変わらないことがわかる。

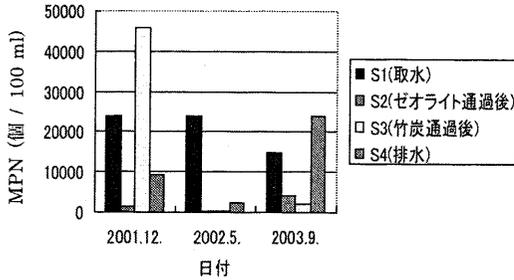


図9 Changes of colon bacilli (MPN: Microbacteria Party Number) at each sampling point.

しかし2002年5月以降は、S2とS3の相違はなくなっている。大腸菌群は、2001年12月では100 ml 当たりS1が24,000個、S2が1,500個、S3が46,000個とゼオライトが竹炭より減少しているが、長期間経過すると、 $S4 > S1 > S2 \geq S3$ とS2とS3に著しい相違がなくなっている。しかし、S1と比較すると、いずれも減少していたことから、ゼオライト、竹炭共に大腸菌群減少の効果があると考えられる。

3.6 ORP, 水路

水路の状況を図10に示す。2003年5月では、水路の川床の色についてゼオライト槽側では茶色で、そのときのORPは+10 mVと酸化性を示し、もう一方の竹炭槽側は黒色で-14 mVと還元性を示した。ここで言う河床部の酸化性及び還元性は、二枚貝等の底生生物が生存する可能性を考えるとときには重要な項目であり、より豊かな生物多様性を生み出すには、酸化性雰囲気であるゼオライト槽側の水路の方が、より好ましいと考えられる。

3.7 生物調査

図11(2004年9月14日撮影)に、ゼオライト(写真の右側)と竹炭(写真の左側)の各槽の排水口の様子を示す。ゼオライト槽側の排水口の石垣には多数のカワニナ(巻貝)が付着しており、竹炭側にはカワニナは極端に少なかった。このことは、硝化を促進するゼオライト側の方が植物の一種である藻類の繁茂を促し、それを餌とするカワニナの繁殖を促進させる食物連鎖の一例を示していることを強く示唆している。

このように、竹炭処理とゼオライト処理では生物相、すなわち、食物連鎖を基本とする生物多様性

表1 Results of a biological survey.

	ゼオライト側	竹炭側
アメリカザリガニ	15	12
スジエビ	6	25
ミナミヌマエビ	6	1
ヒメアメンボ	1~2	
ヤゴ		
シジミ		
タニシ		
カワニナ		

表2 Comparison of *Cyperus alternifolius* L.

	竹炭側	ゼオライト側
重さ(kg)	10.02	11.23
枝数(本)	127	166

(ビオトープ)に大きく影響を及ぼす。

次に、2003年5月の生物調査における結果を表1に示す。どちらにおいてもエビ類の品種が確認された。特に個体数が多かったのは、ゼオライト槽側ではカワニナ、ヌマエビで、竹炭槽側ではスジエビ、アメリカザリガニであった。このうち、水質がきれいなところに住む生物としてよく用いられているミナミヌマエビを取り上げると、ゼオライト側の方が竹炭側より多く、水質が改善されていることがわかった。なお、この時期は、まだ生物の多様性があるとははいえなかった。

3.8 シロガヤツリ

2004年1月28日に水路から取り出したシロガヤツリの写真を図12に示す。2株とも同じ条件の場所のものを比較した。右のゼオライト側の方が左の竹炭側よりも茎が長く、葉が大きく出ており、成長していることがわかる。今回は、シロガヤツリの成長を数値化するため、水路に植栽しているシロガヤツリから9株を選び出し、シロガヤツリをプランターから取り出し、重量を求め、9株の平均値を算出した。そして枝数も根元から切断し求めた。結果を表



図4 Outline map of Shakutake Biotope.



図5 Water Purification tank (left: bamboo coal, right: zeolite).



図10 Condition of a watercourse on May, 2003. (left: Bamboo coal, right: zeolite).



図11 Condition of a watercourse (It was taken on 14th Sept., 2004). (left: Bamboo coal, right: zeolite).

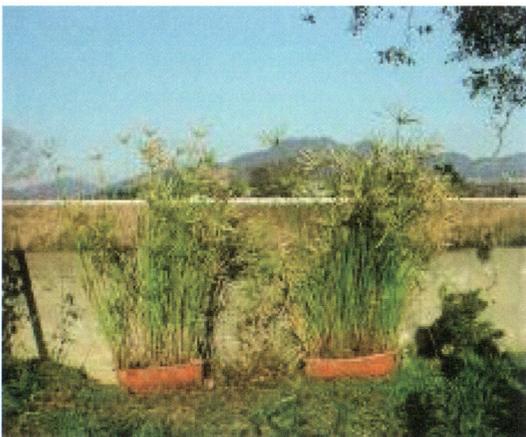


図12 Changes of *Cyperus alternifolius* L. (left: bamboo coal, right: zeolite).



図15 Condition of a watercourse on Sept., 2004.

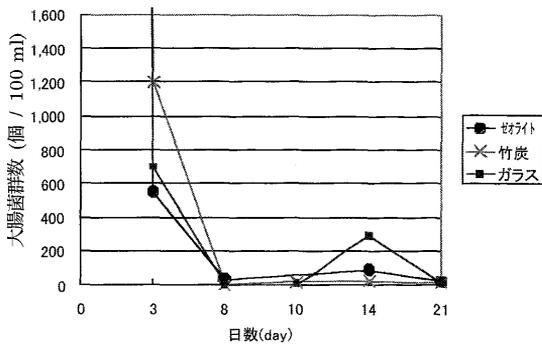


図13 Changes of colon bacilli.

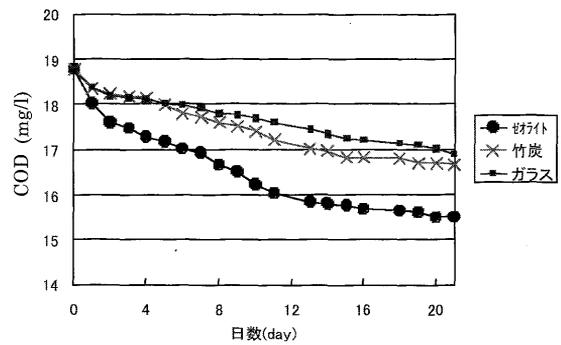


図14 Changes of COD.

2に示す。

得られた数値から比較すると、重さはゼオライト側約11 kgに対し、竹炭側約10 kg、枝数はゼオライト側約160本、竹炭側約130本でいずれの場合もゼオライトの方が成長していることが判明した。これより、ゼオライトにより硝化が促された窒素分がシロガヤツリに取り込まれたことが確認された。

T-N, T-NO₃などの分析値の差(すなわち、微分値)が小さくても、植物の育成(すなわち、積分値)には、肉眼的に大きく影響する。植物の育成に伴う栄養塩の吸収による水質浄化(ファイトレメディエーション)の目的においても、ゼオライト効果は確実である。

3.9 確認実験

ゼオライト槽におけるCOD、大腸菌群の減少の原因は槽の濾過効果によるものかを確認するために、実験室規模において循環型装置で確認実験を行った。このときの実験条件は2.1 水質浄化材の物性の際に使用した条件と同一とした。ただし確認実験では、大腸菌群も測定を行った。この時の結果のうち、大腸菌群のグラフとCODのグラフを図13、および図14に示す。

大腸菌群は、基準にしているガラスビーズと比べ、ゼオライトが最も減少が早い。CODを見ると、同様に減少していることから、ゼオライトのもつイオン交換により、有機物の正電荷をとらえ、硝化を促進することが判明した。その結果CODが減少し、大腸菌群の成長に必要な栄養分が減少したため、菌数も連動したと考えられる。

大腸菌群数が一時的に増加しているのは、菌数の

増殖時間と有機物の量に関連があると考えるが、今回は3種類の浄化材の条件を同一としたため、その部分は考慮に入れていない。

今回の結果より、有機物の挙動と大腸菌群数の挙動が同様であったことより、有機物と大腸菌群には関連があると考えられる。なお、実験装置は循環型であることから、濾過効果はあると考えられるが、その効果は小さく、むしろ有機物の分解・減少に伴うものであると考えられる。

3.10 現状

これまでの結果より、長期間経過すると浄化材は、ゼオライトと竹炭で差がなくなってきている。これは浄化材本来の機能を果たさなくなってきていると推測される。大雨による冠水や汲み上げ時に取り込んだ泥などが、ゼオライト及び竹炭の表面に付着、堆積したため、ゼオライトの硝化促進機能が発揮されなかったためだと推測される。ゼオライトの機能を生かすためには、浄化槽内のゼオライト表面に堆積する泥などを除去すれば、継続した水質浄化機能が維持できるものと考えられる。

4. 総括

今回の実験結果を以下にまとめる。

- ① 天然ゼオライトは無機態窒素であるアンモニウム態窒素を硝酸態窒素に変える硝化作用が大きく、水質浄化に役立っていた。
- ② 全窒素より、槽内部において嫌気性になり還元反応が起き、N₂として脱窒素が起きているのではないかと考えられる。
- ③ CODやORP、水路の水の色より、竹炭槽内部

において有機物堆積による嫌気性状態になっていた。水底の色が黒色になり、ORPも還元状態を示したことから裏付けられる。ゼオライト槽では有機物減少の酸化性状態であった。このために、ゼオライト槽においては大腸菌群が生育しにくい環境を容易に作り出すと考えられる。

- ④ シロガヤツリについては、窒素分の顕著な減少を水質データより観察することができなかったが、同条件による成長比較を行ったところ、ゼオライト槽側の成長が顕著であった。すなわち、硝酸性窒素がより多いゼオライト槽側で、シロガヤツリが成長したことがはっきりとわかる。このように、ファイトレメディエーションを利用した水質浄化には、特に天然ゼオライトが有効であることを確認した。
- ⑤ 河川水をゼオライト槽側に通すことにより原水の水質を改善させて、より豊かなビオトープ(水生生物の多様性)を創生できることを明らかにした。

図15に2004年9月現在のビオトープの状況を示す。流水開始後、冠水などの紆余屈折を経て来たが、豊かな水辺空間の様相を呈している。流通系や循環系のビオトープにおいて、ゼオライト槽を通すことにより、より豊かな生態系を作り出すと共に、大腸菌群の抑制効果により人々が安心して水と親しめる良好な水環境を創出することが可能である。

5. おわりに

本研究のフィールドである尺岳川ビオトープは、2003年の出水で流域近辺が多量の被害を受け、その対策として地上げ、堤防の構築などで、やむを得ず取り壊さざるを得なくなった。

ビオトープとしての生物相の遷移を観察するにはこれからと云う時に誠に残念なことである。しかし、これまでの結果から、流水系のビオトープを構築す

るにはゼオライトの有効性が判明したので、本結果を踏まえて、自然観察を目的としたゼオライト処理した人工河川「春の小川」が直方市溝堀の導流堤に2004年10月に作られた。生態系の遷移の観察と自然観察(環境教育)の場としての利用の緒についてである。いずれにしても、ますます重要になってくると思われる水環境の保全に対して、天然ゼオライトの持つ諸特性が、今後より一層積極的に活用されることを切に期待したい。

短期間であったが、天然ゼオライトを使用した尺岳川ビオトープを建設して頂いた直方市および九州地方整備局遠賀川河川事務所に感謝の意を表す。

文 献

- 岡本真琴, 佐藤雄星, 坂本栄治, 天然ゼオライト岩における水質浄化能の比較, ゼオライト, 20, 55-65 (2003).
- 吉田 隆, 植物による環境負荷低減技術, 株式会社エヌ・ティー・エス, 141-144 (2000).
- 佐藤雄星, 岡本真琴, 小堀 進, 坂本栄治, 天然モルデナイトと竹炭の水質浄化能における相違, 第18回ゼオライト研究発表会講演予稿集 (2002).
- 縣 和一, 武内康博, 青木則明, 山路博之, 河鍋征人, 宮崎 彰, シュロガヤツリの植物学的特徴と栽培法, 西日本グリーン研究所研究報告 2, 27-36 (2000).
- 小堀 進, 佐藤雄星, 坂本栄治, 尺岳川エコパーク (第2報), 環境教育の場としてのビオトープ構想, 日本環境教育学会第13回大会(仙台)発表要旨集, 131 (2002).
- 清水建夫, 日本の帰化植物, 平凡社, 296-297 (2003).
注) シロガヤツリは外来種であるために、種が拡散しない様に注意する必要がある。
- 縣 和一, 武内康博, 中村 透, 脇山浩吉, 汽水域におけるシュロガヤツリの水上栽培と水質浄化, 西日本グリーン研究所研究報告 2, 1-7 (2000).
- 有賀亮造, 窒素・燐削減技術マニュアル, 公害研究対策センター, 110-133 (1984).
- 愛知真木子, 環境中の硝酸イオンがツユクサ (*Commelina communis* L.) の硝酸イオン蓄積量に及ぼす影響, 生物機能開発研究所紀要 3, 23-27 (2003).

Comparison of the Ability on Water Quality Purification between Natural Mordenite and Bamboo Coal in the Biotope, Japan

Makoto Okamoto*, Taisei Kobayashi**, Susumu Kobori***, and Eiji Sakamoto**

* Division of earth science, Kyushu International University,

** School of humanity-oriented science and engineering, Kinki University,

*** NPO corporation, a secretary of the society on Nougata Kawadukuri

We have investigated with removal capability with many physical properties of natural mordenite as fundamental knowledge of the method of removing the nitrogen ingredient contained in river water. In this study, we have surveyed removal capability with many physical properties in the aerobic atmosphere circulation equipment of a laboratory scale and full scale of the artificial biotope using these natural mordenite rocks and bamboo coal. We measured pH, COD, NH_4^+ , NO_2^- , NO_3^- and T-N, etc. of actual river water under the same experiment conditions. We have also compared purification ability of the water quality in natural mordenite and bamboo coal, which is without ion exchange ability, and glass, which does not have adsorption ability at all. Moreover, the water quality purification capability of natural mordenite was also evaluated including many of those properties.

We showed clearly that natural mordenite was more advantageous to the removal of ammonium ion by oxidization of NH_4^+ and the removal of nitrogen than bamboo coal without ion exchange ability, and glass which does not have adsorption ability and exchange ability at all, when natural mordenite had high positive ion exchange ability as the result of various experiments. We also elucidated that the ability of water quality purification of natural mordenite as a resources is more excellent to bamboo coal even within the artificial biotope.

Keywords: water quality purification, natural mordenite, bamboo coal, bio-tope