

〔短 報〕

## 植物プランクトンを活用した水質浄化技術の検討 (第2報)

石川県保健環境センター 環境科学部 原田 由美子・古澤 佑一・吉田 秀一  
安田 能生弘・清水 隆二

### 〔和文要旨〕

石川県の河北潟では化学的酸素要求量 (COD) の環境基準を未だに達成していない。河北潟における COD の負荷割合については、4～10月の平均で内部生産が約6割を占めていることがこれまでの県の調査で明らかになっている。内部生産の低減には潟に流入する栄養塩類の低減が課題である。そこで、本研究では、新たな水質浄化技術として考案した、河北潟に在来する植物プランクトンを用いて水中の栄養塩類を低減する装置による浄化実験を行い、クロロフィルa 100 $\mu\text{g/L}$ あたり0.04～0.09mg/Lの硝酸性窒素を除去できることを確認した。

キーワード：河北潟，湖沼，植物プランクトン，水質浄化，化学的酸素要求量，水理学的滞留時間

### 1 はじめに

石川県の河北潟，木場潟及び柴山潟の3湖沼においては、昭和49年及び52年に環境基準を当てはめてから未だに化学的酸素要求量 (COD) の環境基準を達成していない<sup>1)</sup>。

県の調査では、河北潟の年平均のCOD汚濁負荷の内訳は内部生産と流入負荷がほぼ同じであるが、4～10月の暖候期には内部生産が約6割になると報告している<sup>2)</sup>。

これまでに実施した「浮葉植物による水質浄化と植栽・利用に関する研究」(平成20年度～22年度)では、ヒシ植栽により硝酸性窒素 (NO<sub>3</sub>-N) 及びリン酸態リン (PO<sub>4</sub>-P) の濃度を検出下限値 (NO<sub>3</sub>-N濃度0.01mg/L, PO<sub>4</sub>-P濃度0.003mg/L) 未満に低減できたが、ヒシを植えていない対照水路では、やや遅れて、NO<sub>3</sub>-N濃度、PO<sub>4</sub>-P濃度の減少と、それに伴い植物プランクトンの指標であるクロロフィルa (Chl a) 濃度の増加を確認した<sup>3)</sup>。

また、「河北潟における難分解性有機物に関する実態調査」(平成24年度～26年度)では、河北潟湖水中の有機物のうち、春夏は易分解性の懸濁態成分の有機物が多く、この成分と植物プランクトンの指標であるChl aとの相関が高いことを明らかにし、潟内の内部生産を低減させることが水質浄化に重要であるとした<sup>4)</sup>。

内部生産は潟内部での植物プランクトンの増殖に起因し、その増殖は流入河川水中の窒素・リン(りん)等の栄養塩類に依存するので、内部生産の低減には流入河川水中の窒素・リンの低減が課題である。

そこで、新たな水質浄化技術として、河北潟に在来する植物プランクトンを用いて、水中の栄養塩類を低減する浄化装置を考案し、その特性を検討した<sup>5)</sup>。

前報<sup>5)</sup>では、栄養塩類を低減するために必要な培養槽の容量について検討し、容量60L, 30L, 10Lの培養槽を用いて、いずれもNO<sub>3</sub>-N約0.3mg/Lを検出下限値(濃度0.01mg/L)未満の濃度まで低減できることを確認した。なお、容量10Lの培養槽では、植物プランクトンがCOD濃度で75mg/LあればNO<sub>3</sub>-Nを低減できた。本報

---

Examinations of the Water Quality Improvement Technology with Utilizing an Intake of Nutrient Salts by Phytoplanktons (2nd Report). by HARADA Yumiko, FURUSAWA Yuichi, YOSHIDA Syuichi, YASUDA Nobuhiro and SHIMIZU Ryuji (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Kahokugata Lagoon, Lakes, Phytoplankton, Water Quality Improvement, Chemical Oxygen Demand, Hydraulic Retention Time

では、前報と同条件で河川水の浄化実験を行い、CODとChl aの関係について確認した。次いで、原水に栄養塩としてNO<sub>3</sub>-N及びPO<sub>4</sub>-Pの添加を行い、装置の浄化能力について検討したので報告する。

## 2 水質浄化実験の装置と方法

### 2.1 実験装置の概要

実験装置の概要を、図1に示す。

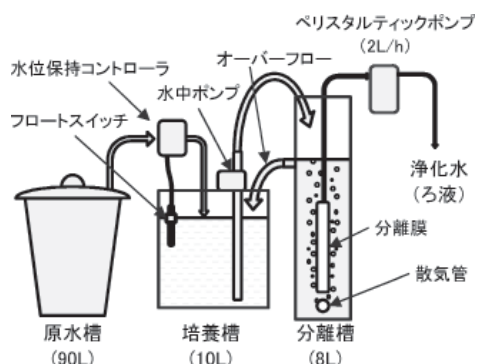


図1 実験装置の概要

容量90Lのポリバケツに試料(原水)を満たして原水槽とした。窒素・燐を吸収させる植物プランクトンの培養槽には市販のガラス水槽(容量10L)を用いた。植物プランクトンの効率的、連続的な分離のため、前報<sup>5)</sup>同様に、分離槽はアクリル製(容量8L)とし、分離膜には株クボタ社製の浸透型有機平膜(A4サイズ両面張り、公称孔径0.4 $\mu$ m、平均孔径0.2 $\mu$ m)を用いた。

培養槽の水(培養水)は水中ポンプで分離槽へ汲み上げ、オーバーフローを培養槽に戻して循環させた。分離膜からは、ペリスタルティックポンプで2L/hの速度で吸引し、そのろ液は系外に排出した。培養槽及び分離槽の水の総量は16Lとし、排水水として減少した水量分は、フロートスイッチ付水位保持コントローラにより原水を培養槽に補充した。また、膜の目詰まり防止のため、ペリスタルティックポンプは9分吸引、1分休止の間欠運転をすると共に分離槽下部の散気管から曝気し、分離膜表面の洗浄を行った。

光合成によって窒素・燐を吸収させるため、日照時間

を考慮して装置の稼働時間は午前9時から午後5時までとした。

実験装置の水理的滞留時間(HRT)は稼働中の平均で8時間、休止も含めた全平均で1日となる。

### 2.2 実験方法

#### 2.2.1 河川水の浄化実験

窒素・燐を吸収させる植物プランクトンとして河北潟の在来プランクトンを増殖させるために、培養槽に潟流出口付近の大根布放水路で採取した水(河北潟の湖水)を10L入れた。培養槽に補充する原水は、過去の調査で河北潟流入河川中溶存性の窒素・燐の濃度が比較的高かった森下川で採取した水(森下川の河川水、NO<sub>3</sub>-N濃度約0.3mg/L、PO<sub>4</sub>-P濃度約0.02mg/L)を用いた。森下川の河川水は概ね10日おきに採水し、4~6日おきに原水槽に補充した。採取当日に用いなかった森下川の河川水は4 $^{\circ}$ Cで保管し、原水槽への補充は温度変化の影響がないように午後5時の実験装置運転停止後に行った。

#### 2.2.2 栄養塩を添加した河川水の浄化実験

培養水には、2.2.1の実験で植物プランクトンを増殖させたものを使用し、原水槽にはNO<sub>3</sub>-N約3.0mg/L、PO<sub>4</sub>-P約0.1mg/L相当の硝酸及びリン酸を添加した森下川の河川水を満たして実験を行い、原水槽へ補充する同河川水にも同様に添加した。また、補充する河川水の採水や保管も2.2.1と同様とした。

### 2.3 測定項目

原水、培養水、ろ液をそれぞれ1Lずつ採取し、硝酸性窒素(NO<sub>3</sub>-N)及びリン酸態リン(PO<sub>4</sub>-P)並びに植物プランクトン量の目安として化学的酸素要求量(COD)及びクロロフィルa(Chl a)を測定した。各項目の測定方法は、表1に示すとおりである。

また、試料採取時刻については、実験装置の運転時間を考慮して、午後1時半頃とした。

## 3 結果と考察

### 3.1 河川水の浄化実験

NO<sub>3</sub>-N又はPO<sub>4</sub>-Pの原水中濃度及び原水中濃度とろ

表1 各項目の測定方法

測定項目	測定方法
硝酸性窒素(NO <sub>3</sub> -N)	JIS K0102 43.2.6 流れ分析法 (JIS K0170-2 7.3.5 カドミウムカラム還元・塩酸性ナフチルエチレンジアミン発色CFA法)
リン酸態リン(PO <sub>4</sub> -P)	JIS K0102 46.1.4 流れ分析法 (JIS K0170-4 6.3.4 モリブデン青発色CFA法)
化学的酸素要求量(COD)	JIS K0102 19 100 $^{\circ}$ Cにおける過マンガン酸カリウム酸素消費量(COD <sub>Mn</sub> )
クロロフィルa(Chl a)	セルロース混合エステルメンブレン(MF-ミリポア、孔径0.45 $\mu$ m)でろ過後、ろ紙を90%アセトン10mL中でスターラー攪拌30分、超音波処理5分、4 $^{\circ}$ C抽出2時間、遠心分離(10,000rpm (Rmax=15,400 $\times$ g)、10分)し、上澄みを上水試験方法(2011)IV-2.25に準じて測定

注) JIS: 日本工業規格

液中濃度の差（除去濃度）並びに培養水中のCOD及びChl aの推移を図2、図3に示す。NO<sub>3</sub>-N、PO<sub>4</sub>-Pについて、装置を稼働した後それぞれ12日目及び6日目に全量除去されていることが確認された。また、NO<sub>3</sub>-N、PO<sub>4</sub>-Pの除去濃度の増加に伴い、COD及びChl aが増加していた。

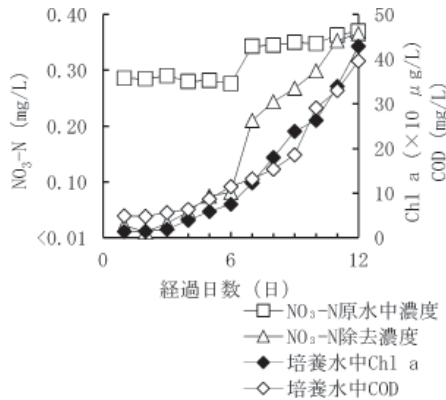


図2 NO<sub>3</sub>-N、COD及びChl aの濃度推移（原水中NO<sub>3</sub>-N 0.3mg/L）

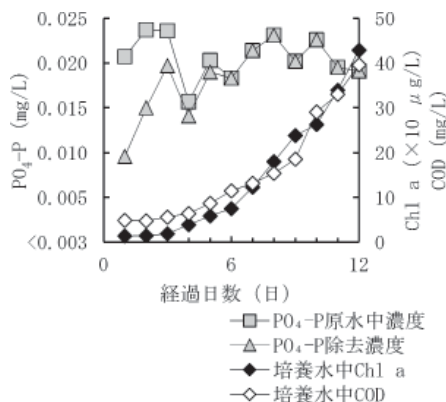


図3 PO<sub>4</sub>-P、COD及びChl aの濃度推移（原水中PO<sub>4</sub>-P 0.02mg/L）

CODとChl aの関係を図4に示す。両者には正の相関（寄与率R<sup>2</sup> = 0.97）が認められたことから、前報では植物プランクトンの量の目安としてCODを使用していたが、本報では植物プランクトンの濃度を推定する指標として一般的に多く使われているChl aを用いることとした。

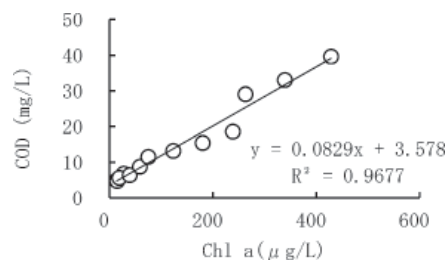


図4 培養水中のCODとChl aの関係

実験開始後12日間のNO<sub>3</sub>-Nの除去濃度及び培養水中のChl aの関係と稼働後6日間のPO<sub>4</sub>-Pの除去濃度及び

培養水中のChl aの関係を図5、図6に示す。NO<sub>3</sub>-Nの除去濃度とChl aには正の相関（R<sup>2</sup> = 0.93）が認められ、Chl a 100μg/Lあたり0.09mg/LのNO<sub>3</sub>-Nが除去されていた。PO<sub>4</sub>-Pの除去濃度とChl aには相関が認められなかった。これは、装置稼働後6日でPO<sub>4</sub>-Pがほぼ100%の減少率を示していることから、原水中のPO<sub>4</sub>-Pの量が、培養槽内に存在する植物プランクトンのPO<sub>4</sub>-P除去能力を測定するために十分な量に達していなかったためと考えられるが、6日目のデータから、Chl a 100μg/Lあたり約0.02mg/LのPO<sub>4</sub>-Pが除去できると考えられた（図3）。

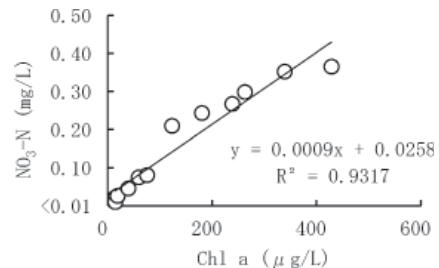


図5 NO<sub>3</sub>-N除去濃度と培養水中Chl aの関係（原水中NO<sub>3</sub>-N 0.3mg/L）

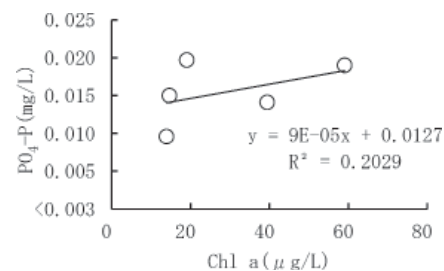


図6 PO<sub>4</sub>-P除去濃度と培養水中Chl aの関係（原水中PO<sub>4</sub>-P 0.02mg/L）

### 3・2 栄養塩を添加した河川水の浄化実験

NO<sub>3</sub>-N又はPO<sub>4</sub>-Pについて原水中濃度及び除去濃度並びに培養水中のChl aの関係を図7、図8に示す。NO<sub>3</sub>-Nについて、装置を稼働後7日目に約3割が除去され、PO<sub>4</sub>-Pについては1日目に全量除去されていることが確認された。また、培養水中のNO<sub>3</sub>-N除去濃度の増加に伴い、Chl aが増加していた。

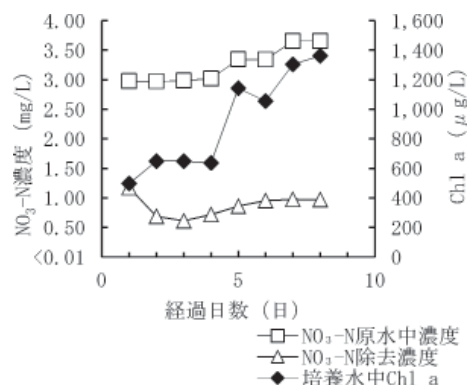


図7 NO<sub>3</sub>-N除去濃度と培養水中Chl aの関係（原水中NO<sub>3</sub>-N 3mg/L）

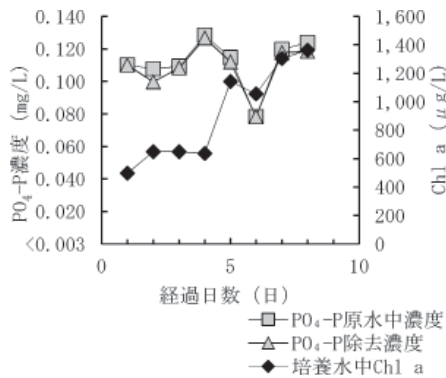


図8 PO<sub>4</sub>-P除去濃度と培養水中Chl aの関係(原水中PO<sub>4</sub>-P 0.1mg/L)

実験開始後7日間のNO<sub>3</sub>-Nの除去濃度及び培養水中のChl aの関係を図9に示す。NO<sub>3</sub>-Nの除去濃度とChl aには正の相関 (R<sup>2</sup> = 0.87) が認められ、Chl a 100μg/Lあたり0.04mg/LのNO<sub>3</sub>-Nが除去されていたが栄養塩を添加しなかった場合に比べ、除去の効率が悪くなった。

原因については、中村ら<sup>6)</sup>により、硝酸塩及びリン酸塩濃度と植物プランクトンの細胞数あたりの摂取速度はMichaelis-Menten式に従うことが報告されており、単純な比例関係ではないためと考えられた。また、図9の回帰直線が原点通過しない理由については、培養槽の水に植物プランクトンを増殖させた水を使用したこと、他に必要な栄養成分が不足している、または、培養槽の容量に対して植物プランクトン量が過剰となったために培養槽内部に光が届かず光合成の効率が悪くなったこと等が考えられたが、詳細は不明である。

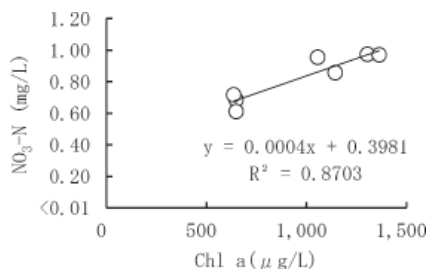


図9 NO<sub>3</sub>-N除去濃度と培養水中Chl aの関係(原水中NO<sub>3</sub>-N 3mg/L)

PO<sub>4</sub>-Pの除去濃度については、実験開始直後から

PO<sub>4</sub>-Pがほぼ100%の減少率を示していることから、Chl aとの相関を確認できなかった。1日目のデータから、Chl a 100μg/Lあたり約0.02mg/Lもしくはそれ以上のPO<sub>4</sub>-Pが除去できると考えられた(図8)。

#### 4 まとめ

- (1) CODとChl a濃度には正の相関が認められたことから、植物プランクトンの量の目安としてChl aを用いることとした。
- (2) 植物プランクトンを活用した水質浄化装置(10L培養槽)を用いてChl a 100μg/Lあたり0.04~0.09mg/LのNO<sub>3</sub>-Nを除去できることを確認した。また、Chl a 100μg/Lあたり約0.02mg/Lもしくはそれ以上のPO<sub>4</sub>-Pを除去できると考えられた。

#### 文 献

- 1) 石川県：平成28年度公共用水域及び地下水の水質測定の結果報告書(2017)
- 2) 石川県環境安全部：河北潟水質保全対策検討調査報告書(2006)
- 3) 柿澤隆一, 小西秀則, 玉井徹, 亀井とし, 本田和子：浮葉植物による水質浄化と植栽・利用に関する研究(中間報告)―模擬水路を用いた水質浄化の検討一, 石川県保健環境センター研究報告書, 47, 1-6 (2010)
- 4) 安田能生弘, 古澤佑一, 川畑陵介, 牧野雅英, 谷村睦美, 亀井とし：河北潟における難分解性有機物に関する実態調査(最終報), 石川県保健環境センター研究報告書, 52, 1-6 (2015)
- 5) 古澤佑一, 川畑陵介, 安田能生弘, 清水隆二：植物プランクトンを活用した水質浄化技術の検討(第1報), 石川県保健環境センター研究報告書, 53, 14-17 (2016)
- 6) 中村泰男, 渡辺信：Chattonella antiquaの硝酸塩及びリン酸塩摂取について, J. Oceanogr. Soc. Jpn, 39, 167-170 (1983)