

火山灰土由来の無機凝集剤を用いた
貯水池濁水処理に関する研究

筑波大学大学院
生命環境科学研究科
国際地縁技術開発科学専攻
博士（農学）学位論文

海野 仁

目 次

第1章 序論	1
1.1 研究の背景	1
1.2 既往研究の動向	1
1.3 本研究の目的	2
1.4 本研究の構成	3
第2章 微細粒子土砂の粒度分布	5
2.1 検討手法	6
2.1.1 粒度分布の測定法	6
2.1.2 SSの経時変化と粒度分布への換算	7
2.1.3 前処理の影響	8
2.1.4 採水地点別の具体的手順	9
2.2 実験結果	13
2.2.1 川治ダム・下久保ダム	13
2.2.2 山口川	19
2.3 まとめ	22
第3章 火山灰土由来の無機凝集剤の特性	25
3.1 火山灰土由来の無機凝集剤の製造工程	26
3.1.1 コロイド粒子の凝集・分散現象	26
3.1.2 火山灰土由来の無機凝集剤の製造工程と化学成分	28
3.2 火山灰土由来の無機凝集剤の凝集・分散	28
3.2.1 火山灰土由来の無機凝集剤のpH条件と濁度の経時変化	28
3.2.2 関東ローム懸濁液のpH条件と濁度の経時変化	31
3.2.3 火山灰土由来の無機凝集剤を用いた関東ローム懸濁液の凝集	34
3.3 火山灰土由来の無機凝集剤の荷電特性	36
3.3.1 火山灰土由来の無機凝集剤の荷電特性	36
3.3.2 関東ローム懸濁液の荷電特性	41
3.3.3 凝集フロックを含む懸濁液の荷電特性	43

3.3.4	火山灰土由来の無機凝集剤の形状観察	45
3.4	まとめ	51
第4章	微細粒子土砂の沈降現象	54
4.1	モデルフロクの沈降現象	54
4.1.1	フロクの粒径と沈降速度	54
4.1.2	実験方法	55
4.1.3	実験結果	56
4.2	現地採取した土粒子の沈降現象	62
4.2.1	実験方法	62
4.2.2	実験結果	62
4.3	まとめ	69
第5章	火山灰土を用いた貯水池濁水の凝集と沈降	72
5.1	効率的な凝集処理	72
5.1.1	実験概要	73
5.1.2	実験準備	73
5.1.3	凝集実験の手順	73
5.1.4	実験結果	75
5.2	濁水の特性と凝集効果	78
5.2.1	凝集実験装置の構成	78
5.2.2	大夕張ダム流入水	79
5.2.3	鹿野川ダム貯水池濁水	82
5.2.4	濁水の特性と凝集効果	84
5.3	貯水池濁水の凝集と沈降	88
5.3.1	濁水の採水	88
5.3.2	実験方法	89
5.3.3	実験結果	91
5.4	凝集効果の下方持続性	95
5.4.1	実験方法	95
5.4.2	実験結果	96
5.4.3	考察	98

5.5	まとめ	98
第6章	貯水池濁水処理における適用	101
6.1	現地実験	101
6.1.1	実験方法	101
6.1.2	実験結果	103
6.1.3	実用化に向けた課題	107
6.2	現地適用性の評価	107
6.3	まとめ	109
第7章	結論	111
	謝辞	114

第1章 序論

1.1 研究の背景

我が国では環境影響評価法が制定・施行され、大規模な新設ダムでは事業が環境に及ぼす影響を予測・評価し、必要に応じ保全措置を講じる仕組みが確立された。しかしながら、既設ダムの中には、大規模出水後の貯水池の懸濁化により、下流河川に濁水を長期間放流する事例も見られる¹⁾。貯水池の懸濁化については、選択取水設備および流動制御フェンスの設置により一定の成果を上げているが^{2),3)}、これらの施設の規模や運用方法を検討する場合は、湖内に流入する土粒子の動態、具体的には土粒子の移流、拡散ならびに沈降を精度良く予測しておく必要がある。土粒子の動態を支配する要因には土粒子の濃度、粒度分布、貯水池の水温などが挙げられるが、土粒子の粒度分布と沈降速度を実験的に求める必要性については、ダム事業に関する環境影響評価手法を定めた省令の解説書にも示されている⁴⁾。土粒子の沈降速度に関する情報は、濁質の動態予測に不可欠な情報であり、粒度分布を与条件として、沈降速度を適切に評価することが望まれる。

貯水池に濁水が長期間滞留する原因に、秋季における大規模な濁水の流入が挙げられる。日ごとに気温が低下する秋季に濁水が流入した場合、貯水池には温度躍層が形成されず、全層に渡って濁水が混合される状況となる。このような場合、流動制御フェンスを設置し選択取水設備を運用してもなお濁水の放流は避けられず、抜本的な対策としては、清水バイパスの運用に限られているのが現状である⁵⁾。貯水池が全層に渡って懸濁化した場合の対応として凝集剤を用いた土粒子の強制沈降も考えられるが、一般に用いられる人工の合成材料では、貯水池底泥として長期滞留後の貯水池の水質に与える影響が不明である。また、沈降した凝集フロックを別途処理する必要も生じることから、運用実績はほとんど見あたらない。そこで、貯水池の環境に及ぼす影響の少ない対策手法として、天然由来の火山灰土を用いた濁水の凝集沈降が考えられる。これは、アロフェン・イモゴライトなどの粘土鉱物を凝集剤として貯水池に散布し、濁水を構成する土粒子の沈降を促進させようとするものである。濁水の長期化が課題でありながらも新規に清水バイパスを導入することが困難な貯水池については、懸濁物質を凝集沈降させる技術が求められている。

1.2 既往研究の動向

貯水池の濁水予測に必要となる土粒子の沈降速度の設定手法について、既往研究をレビューする。仲村渠らは浄水場の沈砂池に流入する濁水を対象に、レーザー回折式測定装置を用いた粒度分布を沈降速度分布に換算する手法を提案した⁶⁾。貯水池の濁水シミュレーションにおいても分析手法が簡便なことから、従来、仲村渠らの研究と同様に、濁水をレーザー回折法により分析し、得られた粒径分布からストークス式やルベイ式等を用いて沈降速度分布を算定する手法が用いられてきた。

しかしながら、レーザー回折法による粒度分布を基に設定した沈降速度については、沈降実験により計測した沈降速度と異なる場合がある⁷⁾。鈴木らの貯水池底泥を試料とした研究では、長期濁水化の原因となる難沈降粒子について、ストークス式を用いて沈降や長期濁水化を予測することは非常に困難であると指摘しており⁸⁾、適切な粒度分布の調査手法、条件設定手法の確立が求められている。

一方、貯水池懸濁化対策として利用が期待されるアロフェン・イモゴライトなどの粘土鉱物について、凝集・分散機構を把握した既往研究をレビューする。軽部らは、懸濁液中におけるアロフェンとイモゴライトの分散凝集挙動と荷電特性を測定し、脱鉄アロフェンで pH4.5~pH6、非脱鉄アロフェンで pH5.5~pH7 の範囲で凝集が進行したと報じた⁹⁾。Adachi らは、pH の異なるアロフェン懸濁液の凝集実験を行い、等電点（ゼータ電位が 0 となる点）付近において速やかにフロック径が増加する状況を報告した¹⁰⁾。Tsuchida らはイモゴライトを対象に異なる pH、イオン強度の条件で凝集実験を行い、アルカリ領域で沈澱物の堆積が増大すること、イモゴライトの荷電特性がチューブ状の粒子形状を反映していることを報告した¹¹⁾。小林らはイモゴライトを取り上げ、pH の異なる懸濁液中の凝集・分散挙動を把握した結果、イモゴライトの等電点が pH9 付近であり、アロフェンに比べ、イモゴライトの等電点を与える pH が高いことを報告した^{12),13)}。これらの既往研究は、火山灰土を凝集剤として利用する際の条件設定に不可欠な知見を与えている。

火山灰土の凝集剤としての利用について、既往研究をレビューする。堀岡は、アロフェンに硫酸を添加することにより凝集性能を高める方法を提案した¹⁴⁾。尾崎らは、火山灰土に pH 調整剤を添加した凝集剤の製法を提案した¹⁵⁾。しかしながら、堀岡の研究は現地への適用にまでは言及しておらず、一方、尾崎らの報告には凝集機構を具体的に説明する実験結果が見あたらない。また、堀岡、尾崎らの報告は、いずれも凝集性能を高めることを目的に化学薬品を添加しており、貯水池に投入した場合、長期滞留後の水質に与える影響について別途検討が必要となる。貯水池に凝集剤を投入し、堆砂の一部として長期間存置する利用を考えると、薬品を添加することなく火山灰土の凝集性能を引き出す方法を開発することが求められる。柏井らはアロフェンを主成分とする火山灰土を材料とし、超音波分散、急速攪拌および緩速攪拌の各処理を行うことにより、濁水を凝集処理できると報告した¹⁶⁾。しかしながら、柏井らの研究は小規模な室内実験に基づく報告である。火山灰土の凝集剤としての利用と凝集処理手法の実用化にあたっては、火山灰土の凝集・分散機構と荷電特性について精査するとともに、現地にて凝集実験を行い、凝集効果を把握することが求められている。

以上の既往研究の動向については、本論文の関係各章の冒頭で詳述する。

1.3 本研究の目的

本研究は、貯水池に流入し濁水放流の長期化の原因となる濁水、あるいは堆積土砂の湖内移動に

伴い生じる濁水を対象に、貯水池への環境負荷を抑制しつつ有効な対策技術を開発することを目的とする。具体的には、貯水池の濁水長期化の原因となる土粒子について、粒度分布ならびに沈降速度の把握手法を提案すること、さらに、貯水池の懸濁化対策として、環境負荷の少ない火山灰土由来の無機凝集剤を取り上げ、貯水池濁水対策としての利用方法について提案することを目的とする。

1.4 本研究の構成

本研究の構成を具体的に示す。第1章では、研究の背景と既往研究の動向を踏まえ、本研究の目的を提示した。第2章では、洪水時に現地から採取した濁水を試料に沈降実験を行い、測定した沈降速度からストークス式を用いて粒度分布を算定する。これを粒度分布の最確値と捉え、簡便的な手法であるレーザー回折・散乱光法ならびに透過式遠心沈降法を用いて測定した粒度分布との比較検討を行う。第3章では、火山灰土由来の無機凝集剤の特性を把握することを目的に、凝集剤の凝集・分散と荷電特性について明らかにするほか、関東ローム懸濁液を模擬濁水とした凝集実験の結果について報告する。第4章では、土粒子の沈降速度を直接計測する手法を提案し、粒径と沈降速度との関係を明らかにするとともに、ストークス式を用いて求めた沈降速度と実際の沈降速度との差異について検討する。第5章では、火山灰土由来の無機凝集剤を用いた効果的・効率的な凝集処理手法を提案する。さらに、実際の貯水池での利用を想定し、凝集剤の凝集効果の下方持続性について検討し、結果を報告する。第6章では、堆積土砂の湖内移動の行われている現地において凝集実験を行った結果を報告するとともに、貯水池濁水処理の実用化に向けた課題を整理し、現地への適用についての評価手法を提案する。第7章では、各章の検討より得られた知見をまとめ、結論として提示する。

なお、本論文の現地観測データならびに実験データは、筆者が担当者となり独立行政法人土木研究所が実施した以下の研究を通じて得たものである。貯水池の濁水長期化対策という社会の要請を理解の上、予算の確保ならびに配分にご協力下さった方々にお礼申し上げる。

- ・ 重点プロジェクト研究：貯水池及び貯水池下流河川の流れと土砂移動モデルに関する研究（5年間の研究期間のうち、平成20年度、21年度）
- ・ 一般研究：天然凝集材による貯水池の濁水長期化対策に関する研究（平成19～21年度）
- ・ 基盤研究：天然凝集材による環境負荷低減型濁水処理システムに関する研究（平成22～24年度）
- ・ 基盤研究：貯水池に流入する濁質の動態と処理に関する研究（平成25年度より継続中）

第1章の参考文献

- 1) 坂本博文：真名川ダムの濁水長期化対策について，ダム技術No.263, pp.82-86, 2008.8
- 2) 左近重信，杉村重憲，中田朋樹：早明浦ダム選択取水設備運用方法の構築について，ダム技術No.178, pp.57-73, 2001.7
- 3) 高橋剛：川治ダムにおける濁水長期化軽減対策について，平成17年度国土交通省国土技術研究会自由課題，2005.10
- 4) 河川事業環境影響評価研究会編：ダム事業における環境影響評価の考え方，pp.3.106-107, (財)ダム水源地環境整備センター，2000.
- 5) 鈴木弘二，小林俊英：浦山ダム清水バイパスの初年度の運用と効果，ダム技術No.269, pp.40-49, 2009.2.
- 6) 仲村渠将，吉永安俊，酒井一人：沈砂池の浮遊土砂捕捉率の試算，農業農村工学会全国大会講演要旨集，pp.680-681, 2009.
- 7) 柏井条介：ダム貯水池の水温・水質予測の一般化に向けて，河川，713号，pp.38-44, 2005.
- 8) 鈴木祥広，出口近士，関戸知雄，塩盛弘一郎，杉尾哲：宮崎県小丸川水系のダム堆積土砂に含まれる難沈降粒子の物理・化学的性状，土木学会論文集G, Vol.65 No.1, 16-25, 2009.
- 9) 軽部重太郎，杉本英夫，藤平雅巳，中石克也：アロフェンとイモゴライトの分散凝集と荷電特性，農業土木学会論文集，No.196, pp.103-110, 1998.8
- 10) Y. Adachi, S. Koga, M. Kobayashi and M. Inada: Study of colloidal stability of allophane dispersion by dynamic light scattering, *Colloids and Surfaces A*, No.265, pp.149-154, 2005.
- 11) H. Tsuchida, S. Oki, K. Nakaishi, and Y. Adachi: Effects of pH and ionic strength on electrokinetic properties of imogolite, *Colloids and Surfaces A*, No.265, pp.131-134, 2005.
- 12) 小林幹佳，似内美貴，大内岳，高橋政之輔，颯田尚哉，足立泰久：モデルコロイドの凝集沈降実験に基づく天然粘土鉱物イモゴライトの濁水凝集機構，土木学会論文集B1（水工学）Vol.68, No.4, I_787-I_792, 2012.
- 13) M. Kobayashi, M. Nitanaï, N. Satta and Y. Adachi: Coagulation and charging of latex particles in the presence of imogolite, *Colloids and Surfaces A*, No.435, pp.139-146, 2013.
- 14) 堀岡正和：新しい凝集剤に関する研究（I）－アロフェンを原料とする凝集剤の製法－，水道協会雑誌第398号，pp.9-16, 1967.11
- 15) 尾崎哲二，口舩愛，森本辰雄，和田信一郎：火山灰土を原料とする新しい凝集剤の開発，土木学会誌 vol.93 No.6, pp.52-55, 2008.6
- 16) 柏井条介，結城和宏：天然凝集材（アロフェン）の濁質凝集効果，ダム技術No.239, pp.20-28, 2006.8

第2章 微細粒子土砂の粒度分布^{1), 2), 3)}

ダム貯水池の水質問題のひとつに、濁水長期化問題があり、この対策として選択取水設備や流動制御フェンス等が用いられている。これらの施設の規模や運用方法を検討する場合は、従来、土砂による水の濁りに関する数値シミュレーション（以下、「濁水シミュレーション」と略す。）が用いられてきた。シミュレーションの手法は、近年の計算機の性能向上と共に進歩しており、鉛直1次元モデル、鉛直2次元モデルなどの種々のモデルが開発されている。濁水予測を精度良く行うためには、土粒子の沈降速度をはじめ、条件設定のための観測方法ならびに分析・整理方法の改善を図ることが望まれている。

一方、行政の手続きとして、一定規模以上の新規ダム事業の実施にあたっては、環境影響評価を実施することが法律で定められている。また、調査手法を定めた省令には、「濁度またはSS及びその調査時における流量」が調査すべき情報として定められている。さらに、省令の解説書には、濁度・SSのほかにも出水時に採水された濁質の粒度分布を調査すること、また、必要に応じ、粒子の沈降速度を実験的に求めることが示されている⁴⁾。

本研究の目的の一つに、濁水シミュレーションの重要な条件設定の一つである土粒子の沈降速度分布の設定に必要な、土粒子の粒度分布の設定手法を提案することが挙げられる。土粒子の沈降速度の設定手法について、既往研究をレビューする。

仲村渠らは浄水場の沈砂池に流入する濁水を対象に、レーザー回折式測定装置を用いた粒度分布を沈降速度分布に換算する手法を提案した⁵⁾。貯水池の濁水シミュレーションにおいても分析手法が簡便なことから、従来、仲村渠らの研究と同様に、濁水をレーザー回折法により分析し、得られた粒径分布からストークス式やルベイ式等を用いて沈降速度分布を算定する手法が用いられてきた。しかしながら、横山は、レーザー回折法の分析装置の特性として、得られた粒度分布は真値よりも大きめにシフトしている可能性があるとし唆している⁶⁾。また、柏井らは、レーザー回折法による粒度分布を基に設定した沈降速度が沈降実験により計測した沈降速度と異なる場合があると報告している⁷⁾。さらに、鈴木らの貯水池底泥を試料とした研究では、長期濁水化の原因となる難沈降粒子について、ストークス式を用いて沈降や長期濁水化を予測することは非常に困難であると指摘している⁸⁾。以上の既往研究では、レーザー回折法により粒度を分析し、ストークス式やルベイ式等を用いて沈降速度分布を算定する手法の問題点は指摘されているが、代替案は提示されていない。また、難沈降粒子の沈降現象の把握の困難さに言及しているものの、解決策が示されずに現在にいたっている。貯水池に滞留する土粒子の沈降速度の適切な調査手法の確立が急務である。

本研究では、従来行われていたレーザー回折法による粒径分布にストークス式やルベイ式等を適用して沈降速度分布を設定する手法に問題意識を持ち、沈降速度を適切に評価する手法を提案する。

このうち、本章では、洪水時に現地から採取した濁水を試料に沈降実験を行い、測定した沈降速度からストークス式を用いて粒度分布を算定する。これを粒度分布の最確値と捉え、簡便な手法であるレーザー回折・散乱光法（以下、「レーザー回折法」と略す。）ならびに透過式遠心沈降法（以下「遠心沈降法」という。）を用いて測定した粒度分布との比較検討を行う。さらに、多大な労力を要することから実施例の少ない沈降筒法について、これを代替し得る分析手法を提案する。検討に必要な試料は、2007年に川治ダム貯水池（栃木県）・下久保ダム貯水池（群馬県）において、また、2010年に利根川水系山口川（茨城県）において採水した。以下、順を追って記述を進める。

2.1 検討手法

2.1.1 粒度分布の測定法

濁水シミュレーションで用いる濁質の沈降速度分布の設定手法には、濁質の粒度分布を測定し、その結果からストークス式等により沈降速度分布を換算する方法が用いられる。粒度分布を求める手法は、分析手法が簡便なことからレーザー法や遠心沈降法といった測定装置を用いた方法が一般的に用いられている。一方、沈降速度の測定には、沈降筒に注入した濁水の濃度の経時変化を測定する沈降試験が用いられるが、施設の規模・測定方法は様々である。ここでは、沈降筒を用いた手法を「沈降筒法」と記述する。

本研究では、①沈降筒法、②遠心沈降法、③レーザー回折法の3種類の方法により粒度分布を測定し、結果を比較検討した。沈降筒法は、濁水を沈降筒に投入したのち沈降筒下部のSSを経時観測し、SSの減少量に相当する土粒子の沈降速度を求め、求めた沈降速度にストークス式を適用して粒径を求め、粒度分布に換算する手法である。遠心沈降法は、遠心力により強制的に粒子を沈降させ、遠心力付加時間毎の光の通過量を計測するとともに、濃度の時間変化から沈降速度を設定し、ストークス式を用いて粒径を換算する手法である⁹⁾。レーザー回折法は、土粒子にレーザー光を照射し、土粒子からの回折光の光強度を計測した後、光強度にMie散乱理論を適用し、粒子径区分毎の粒子量を求める手法である¹⁰⁾。各測定方法の詳細、測定項目を表-2.1.1に示す。なお、土粒子の密度は、JIS A 1202により測定した。

表—2.1.1 粒度分布測定法と計測項目

測定方法	沈降筒法	遠心沈降法	レーザー回折法
測定計測器	沈降筒 φ200mm×L2200mm (約63L)	SKC-2000	SALD-3000S
測定条件	室温一定(20°C)	測定範囲: 0.3 μm~50 μm	測定範囲 0.05 μm~3000 μm
測定項目	沈降筒水位、SS、水温	粒度分布	粒度分布
測定手順	初期水深を2.0mとし、底面から0.5mの位置に採水用コックを設置し、測定回数毎に1Lの採水を行う。	採水した試料100mLを測定装置に投入し、測定を行う。	試料濃度に応じた量(50~100mL程度)を測定装置に投入し測定を行う。
測定回数	11~13回 (充水直後、(5分後、15分後、) 1時間後、3時間後、6時間後、12時間後、24時間後、3日後、7日後、14日後、21日後、42日後) 山口川では、5分後、15分後についても実施。	1回	1回
粒度分布算出方法	粒子の沈降速度を沈降筒水位と採水経過時間より算出する。沈降速度からストークス式により粒径を換算し、濁水の濃度変化から通過率を算出する。	遠心力により強制的に粒子を沈降させ、沈降時間と遠心力付加時間毎に光の通過量を計測し、濃度変化を測定する。濃度の変化より通過率を算出し、その後、沈降速度を用いてストークス式より粒径を換算する。	土粒子にレーザー光を照射し、土粒子からの回折光の光強度を計測する。計測した光強度にMie散乱理論を適用し、粒子径区分毎の粒子量を求める。
汎用性	測定方法の詳細が統一されていない。	測定計器自体が少ない。	一般的によく用いられる。

2.1.2 SSの経時変化と粒度分布への換算

沈降筒法によって測定したSSの粒度分布への換算手法について述べる。水中の粒子は、経過時間 t [s]の間に水面から採水地点までの距離 l [m]を沈降していると考え、この時間 t に対応する平均沈降速度 $w(t)$ [m/s]は式(2.1.1)で表される。

$$w(t) = \frac{l}{t} \quad (2.1.1)$$

この時間 t の間に沈降したSS[mg/L]の重量比 $F(t)$ [無次元]は、実験開始時点($t=0$)から t までのSSの変化量であるで、式(2.1.2)で表される。

$$F(t) = \frac{SS_{t=0} - SS(t)}{SS_{t=0}} \quad (2.1.2)$$

このSSの重量比 $F(t)$ は、時間順として沈降が速いほうからの累積分布として求めているので、通常の沈降が遅い方からの累積分布に直すのであれば、式(2.1.3)で表される。

$$F(t) = \frac{SS(t)}{SS_{t=0}} \quad (2.1.3)$$

粒子形状が球形であること，単一粒子の沈降とみなせること，および粒子レイノルズ数 ($Re = d \cdot w_s / \nu$) が 1 よりも小さいという条件が成り立つ場合，粒子の沈降速度と粒径は，ストークスの沈降速度式により相互に換算することができる。

$$w_s = \frac{d^2 g (\rho_s - \rho_w)}{18\mu} \quad (2.1.4)$$

ここに， w_s ：粒子の沈降速度[m/s]， d ：粒径[m]， g ：重力加速度[m/s²]， ρ_s ：粒子密度[kg/m³]， ρ_w ：水(媒質)の密度[kg/m³]， μ ：水の粘性係数[N s / m²]， ν ：水の動粘性係数[m²/s]である¹¹⁾。粒径 d は，ストークス則をベースに SS の減少率から換算していることから，ストークス径とも呼ばれている。沈降筒法では，濁水を沈降筒内の水位が 2.0m となるまで注水し，表—2.1.1 に示される測定時間毎に沈降筒水位，水温，SS の計測を行った。

濁水シミュレーションで用いる濁質の沈降速度の設定手法は，前述の通り，濁質の粒度分布にストークス式を適用して沈降速度分布を換算する方法が用いられる。具体的には，遠心沈降法，レーザー一回折法等を用いて計測した粒度分布について，粒径区分を数段階設定し，各粒径区分の SS 占有率と代表粒径を設定する。次に，各代表粒径に対応する沈降速度を(2.4)式を用いて算定し，沈降速度別の占有率を求め，沈降速度分布を求める。沈降筒法では沈降速度の分布を計測することから，遠心沈降法，レーザー一回折法に比べ，最も適した沈降速度分布を与えると考えられる。以下，議論を容易にする観点から，沈降速度分布に代えて粒度分布の比較について検討を進める。

2.1.3 前処理の影響

濁水中に含まれる濁質粒子の土コロイドは，粒子に作用する外場の影響を受けて運動する。この運動により粒子が衝突を起こし，粒子間に強い引力が作用していれば凝集し，フロックを形成するといわれている¹²⁾。フロックが形成されたまま測定を行うと，粒度分布が粗粒化傾向に見積もられ，沈降速度が過大に評価されることから，ここでは前処理として濁質の分散について検討する。

濁質の分散方法は，分散剤等の薬液を注入する方法や超音波振動を与える方法が考えられる。分散剤は，多種に亘り存在し，濁水を構成する土粒子の組成により最適な分散剤の種類，注入量を決定することは非常に困難である。そこで，様々な土粒子の分散手法として適用が可能と考えられる超音波振動による分散を採用した。超音波分散は，②遠心沈降法，③レーザー一回折法を用いた分析の一部のケースに導入し，超音波分散には，東京硝子器械(株)製の超音波洗浄器 FU-10C を使用した。処理手順は，ビーカーに入れた濁水 1L に対し，出力 60W，発振周波数 28kHz の超音波振動を所定の時間加える方法とした。表—2.1.2 に濁水土粒子の分散方法を示す。

表-2.1.2 濁水土粒子の分散

測定方法	分散方法	
	分散なし	分散あり
透過式 遠心沈降法	分散剤:無添加 分散方法:手攪拌	分散剤:無添加 分散方法:超音波振動10分間(60W)
レーザー 回折・散乱法	分散剤:無添加 分散方法:手攪拌	分散剤:無添加 分散方法:超音波振動10分間(60W)

2.1.4 採水地点別の具体的手順

(1) 川治ダム・下久保ダムにおける検討

出水時に川治ダム（栃木県日光市）および下久保ダム（群馬県藤岡市）において貯水池に流入する濁水を採水した（図-2.1.1）（表-2.1.3）。川治ダムから採水した試料は、SS=1,160 mg / L と高濃度である。一方、下久保ダムから採水した試料は、SS=42 mg / L と比較的低濃度である。粒度分布の分析方法は、前述の3手法とし、一部については超音波分散を行い、結果を比較検討した。また、電子顕微鏡を用いた粒子の形状観察を併せて実施し、分析手法により差異の生じる原因について考察した。土粒子の超音波分散の方法を表-2.1.3に、実験ケースの一覧を、表-2.1.4に示す。

(2) 山口川における検討

検討に先立ち、利根川水系山口川（茨城県桜川市）において洪水時に河川水を採水した（図-2.1.2）。採水は、洪水のピーク時から減水時にかけて4回おこなった。本来であれば増水時にも採水を実施すべきであるが、事前準備が整わず採水する機会を逸した。各試料の採水時刻および濁度・SSの測定結果を、表-2.1.5に、採水地点近傍の雨量観測所のデータを図-2.1.3に、採水地点の流量データを図-2.1.4に示す。これらの試料を用い、①沈降筒法、②遠心沈降法及び③レーザー回折法による粒度分布の比較検討をおこなった。

実験方法は、基本的に「(1) 川治ダム・下久保ダムにおける検討」と同様としたが、20 μmを超える大きな粒径の範囲の粒度分布が求められるよう、沈降筒法に充水後5 min、15 minの採水・分析を追加した。なお、遠心沈降法、レーザー回折法の一部のケースについては、超音波分散を行った。分散方法についても、「(1) 川治ダム・下久保ダムにおける検討」と同様、出力60W、分散時間10 minとした。

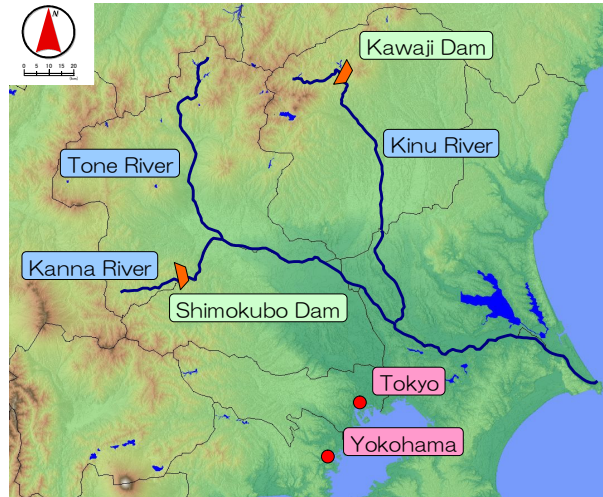


図-2.1.1 川治ダム・下久保ダムの位置

表-2.1.3 実験に使用した濁水（川治ダム・下久保ダム）

	濁水1	濁水2
ダム名	川治ダム	下久保ダム
採水地点	貯水池末端	貯水池末端
種別	貯水池流入水	貯水池流入水
採水日	2007/9/7	2007/10/1
SS[mg/L]	1,160	42

表-2.1.4 実験ケース（川治ダム・下久保ダム）

ケース	濁水	分析方法	分散処理
1	川治ダム流入水	沈降筒法	なし
2	川治ダム流入水	遠心沈降法	なし
3	川治ダム流入水	遠心沈降法	10min
4	川治ダム流入水	レーザー回折法	なし
5	川治ダム流入水	レーザー回折法	10min
6	下久保ダム流入水	沈降筒法	なし
7	下久保ダム流入水	遠心沈降法	なし
8	下久保ダム流入水	遠心沈降法	10min
9	下久保ダム流入水	レーザー回折法	なし
10	下久保ダム流入水	レーザー回折法	10min

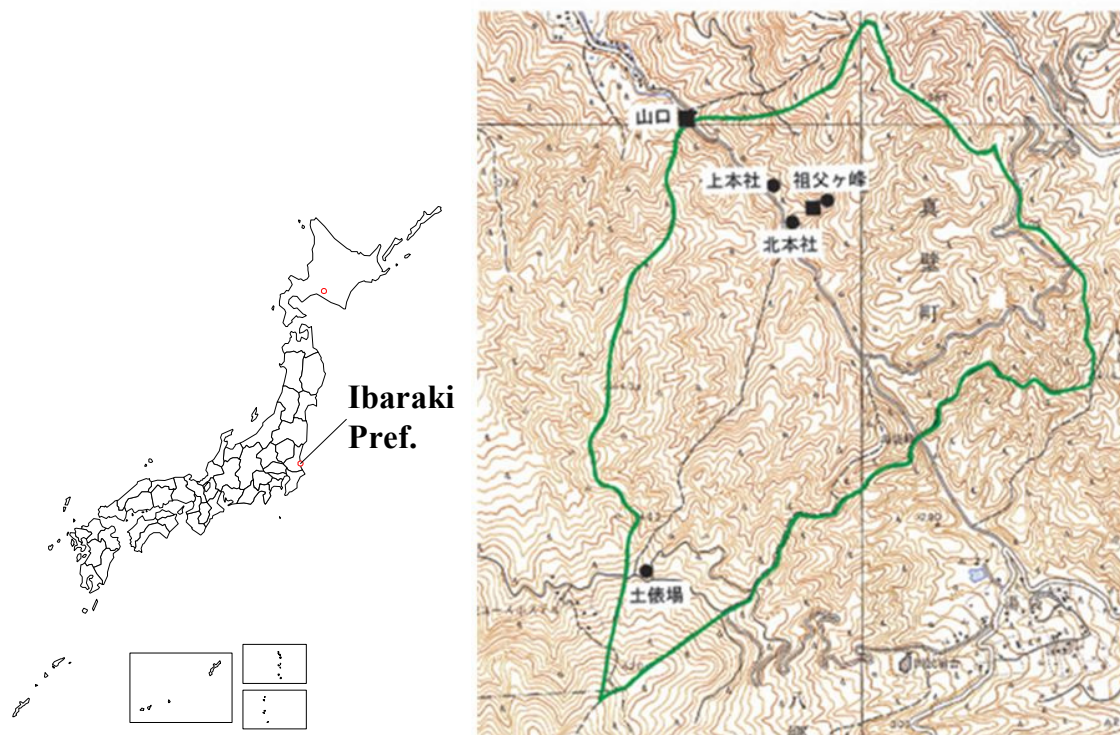


図-2.1.2 山口川の位置

表-2.1.5 実験に使用した濁水（山口川）

試料No.	採水日	採水時刻	分析時 濁度 [NTU]	分析時 SS [mg/L]
1	2010.9.16	10:55	787	944
2	2010.9.16	11:25	432	466
3	2010.9.16	12:35	143	189
4	2010.9.16	13:50	59	93

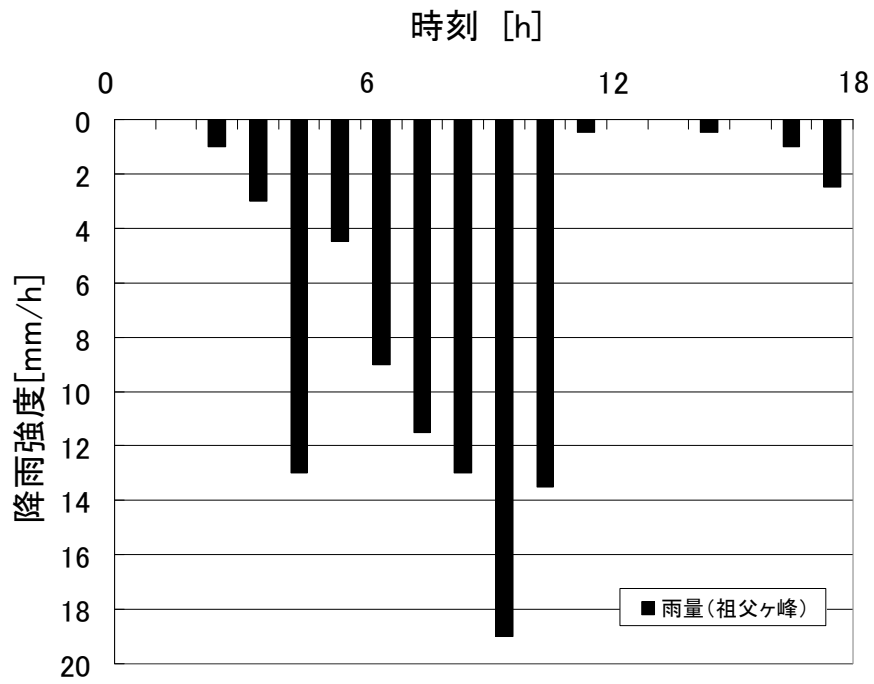


図-2.1.3 採水日の降雨強度（祖父ヶ峰観測所）

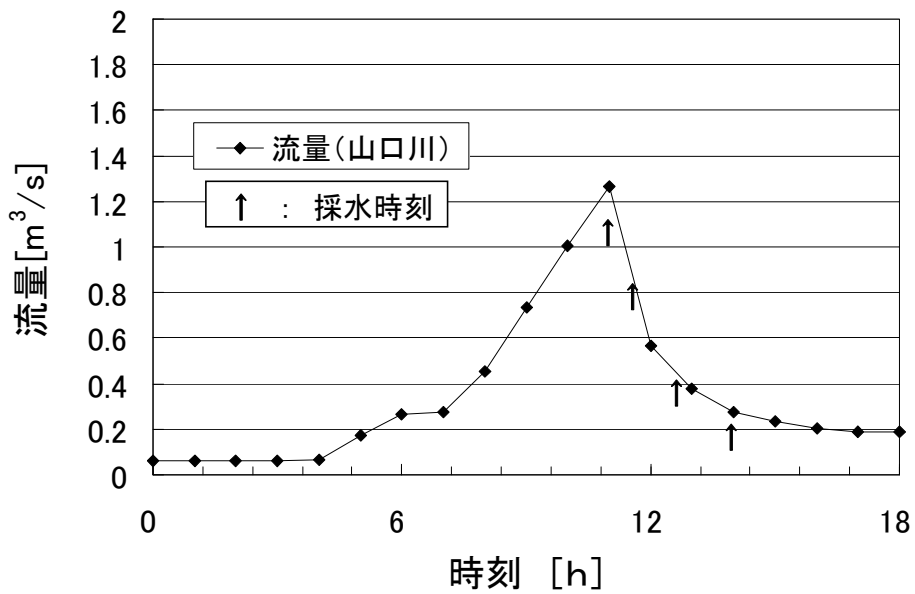


図-2.1.4 採水日の流量（山口川流量観測所）

2.2 実験結果

2.2.1 川治ダム・下久保ダム

川治ダム流入水の実験結果を図-2.2.1～図-2.2.2に、下久保ダム流入水の実験結果を図-2.2.3～図-2.2.4に示す。川治ダム流入水について、沈降筒法と他の2手法（分散なし）の結果を比較する（図-2.2.1）。沈降筒法と遠心沈降法（分散なし）は、 $2\mu\text{m}$ 以下の小粒径の範囲で良く一致する結果となった。しかしながら、レーザー回折法（分散なし）は、 $5\mu\text{m}$ 以下の範囲で沈降筒法よりも粗粒化する結果となった。

下久保ダム流入水について、沈降筒法と他の2手法を比較する（図-2.2.3～図-2.2.4）。沈降筒法と遠心沈降法（分散なし）との結果がほぼ一致する範囲は $5\mu\text{m}$ 以下となり、川治ダム流入水よりも広い範囲で、両手法の結果がほぼ一致する状況となった。しかしながら、遠心沈降法（分散あり）の結果は、沈降筒法から大きく乖離する結果となった。

ここで、超音波分散の有無が粒度分布に及ぼす影響について考察する。図-2.2.1と図-2.2.2、図-2.2.3と図-2.2.4を対比すると、川治ダム流入水では分散の有無による粒度分布の差異は微小であるものの、下久保ダムでは、分散の影響が大きく現れている。特に、下久保ダムの遠心沈降法は、超音波分散により細粒分がさらに細粒化し、結果として沈降筒法よりも細粒化する結果となった。

今回実験した2試料については、沈降筒法の代わりに遠心沈降法（分散なし）を用いても、細粒分の粒度分布が、ほぼ適切に求められる結果となった。しかしながら、一般に利用されているレーザー回折法は、沈降筒法に比べ、特に粒径の小さい範囲で粗粒化を示す結果となった。なお、上記2試料の沈降筒の結果のうち、粒径の大きい部分での分布が示されていないが、これは、沈降筒充水直後と1時間後までの間にSSを測定するための採水をしなかったことによるものである。後述する山口川では充水5分後、15分後の採水を追加し、粒径の大きい範囲についても粒径加積曲線を表記できるよう実験方法を改良した。

次に、粒子形状の観察について述べる。川治ダム流入水・下久保ダム流入水を静置し沈澱物を採取後、自然乾燥させ乳鉢で軽く解きほぐして粉末試料とし、電子顕微鏡を用いて写真撮影した。粒子径状は1試料につき3種類の粒度（ $d > 10\mu\text{m}$ 、 $5\mu\text{m} < d < 10\mu\text{m}$ 、 $d < 2\mu\text{m}$ ）を対象に撮影した。撮影には日本電子（株）製走査型電子顕微鏡JSM-T100を用いた。川治ダム流入水の土粒子の形状を、写真-2.2.1～写真-2.2.3に、下久保ダム流入水の土粒子の形状を、写真-2.2.4～写真-2.2.6に示す。

川治ダム流入濁水の2000倍写真では、 $10 \sim 20\mu\text{m}$ の鱗片状の結晶が概ね球形に集合した粒子と、 $2\mu\text{m}$ 前後の角ばった破片状の粒子が見られる。5000倍写真では、 $2 \sim 5\mu\text{m}$ の角ばった板状粒子を主体とし、 $2\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ の長い板状粒子も認められる。7000倍写真では、 $1 \sim 3\mu\text{m}$ の不規則板状

粒子を主体とし、 $4\mu\text{m} \times 7\mu\text{m}$ の長い板状粒子も認められる。下久保ダム流入濁水の 2000 倍写真では、 $5 \sim 10\mu\text{m}$ の鱗片状の厚みのある粒子を主体とし、 $7\mu\text{m}$ 前後の破片状の粒子が見られる。5000 倍写真では、 $5 \sim 10\mu\text{m}$ 前後の鱗片状の集合体を主体とし、 $3\mu\text{m} \sim 5\mu\text{m}$ の角ばった破片状粒子も見られる。7000 倍写真では、 $3 \sim 5\mu\text{m}$ の不規則な板状粒子が見られる。形状観察の結果、両貯水池に流入する濁水の土粒子は、主に鱗片状の厚みのある粒子または板状粒子で構成され、ストークス則の前提条件である球形粒子とは大きく異なることが判明した。

レーザー回折法は、多様な土粒子の形状を球形状の粒子の直径に換算して粒度分布を求める手法である。このため、特に鱗片状粒子の場合、球形粒子に置き換えて沈降速度を求めると、過大な値を示すと考えられる。一方、沈降筒法は、土粒子の沈降速度を直接的に求めていることから、土粒子の形状にかかわらず、沈降速度を適切に評価できると考えられる。

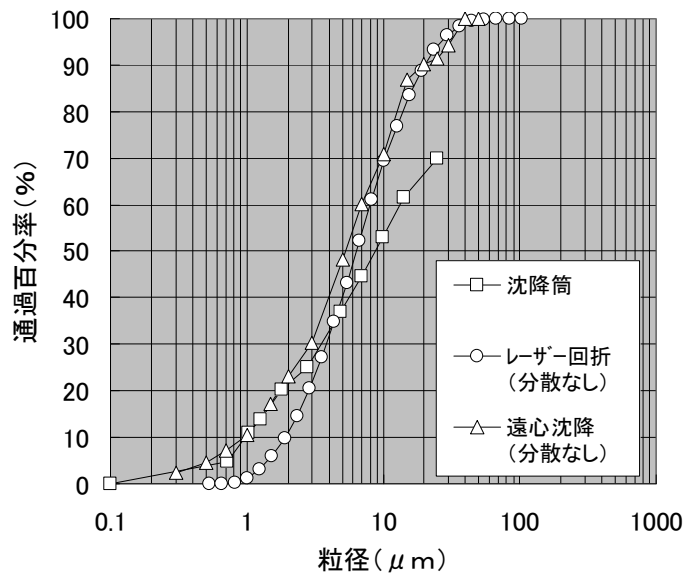


図-2.2.1 川治ダム流入水 (分散なし)

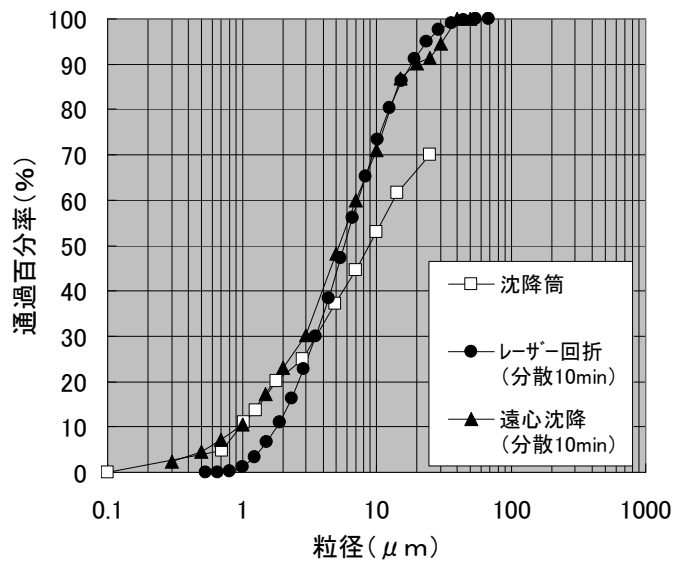


図-2.2.2 川治ダム流入水 (分散 10min)

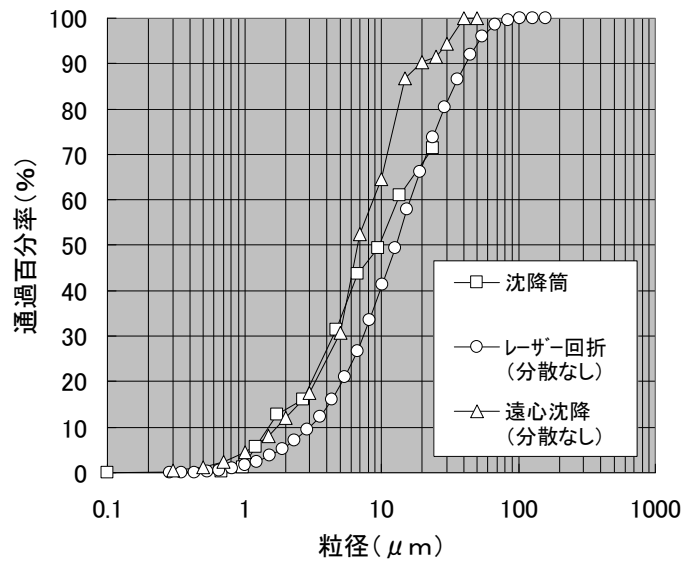


図-2.2.3 下久保ダム流入水 (分散なし)

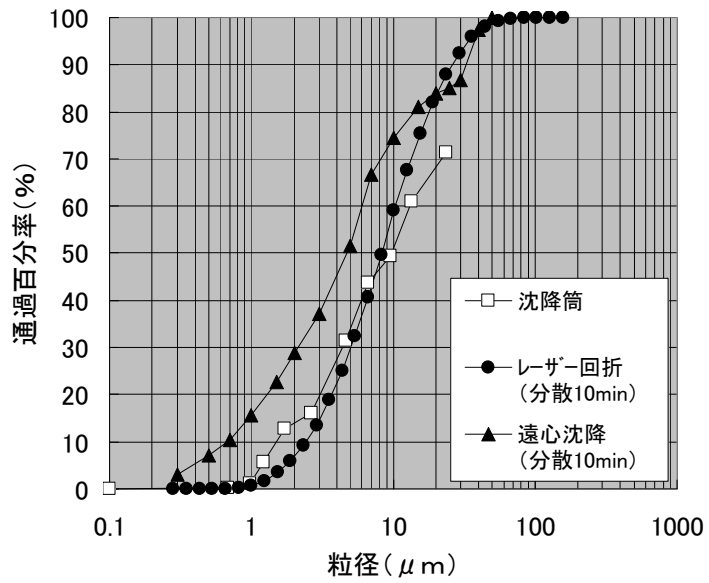


図-2.2.4 下久保ダム流入水 (分散 10min)

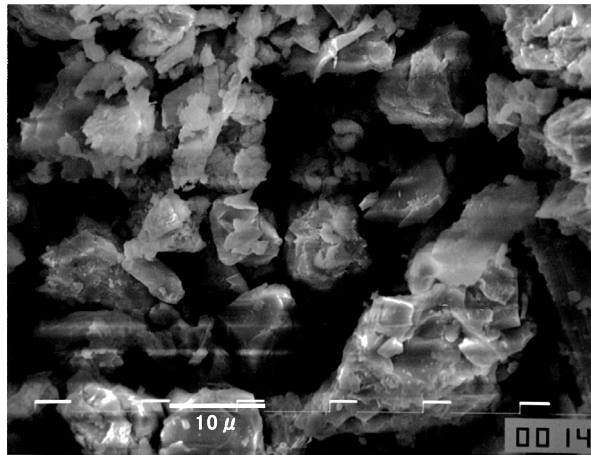


写真-2.2.1 川治ダム流入濁水 (×2000)

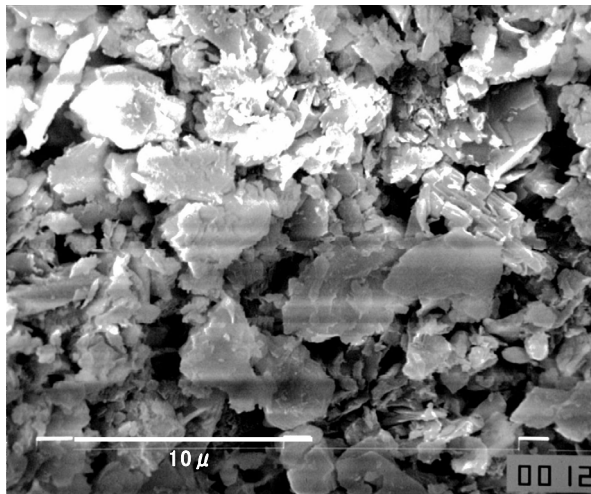


写真-2.2.2 川治ダム流入濁水 (×5000)

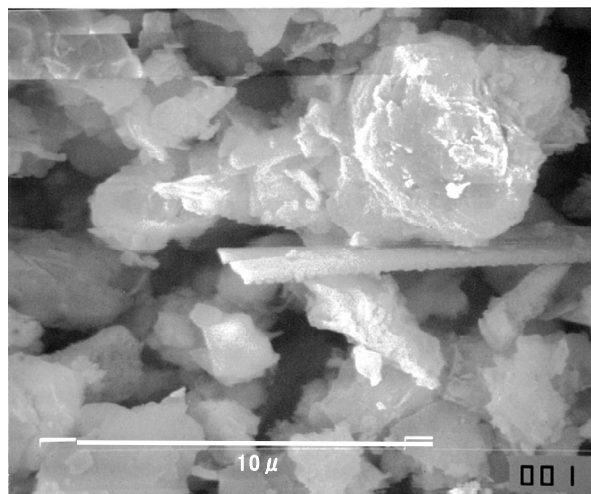


写真-2.2.3 川治ダム流入濁水 (×7000)

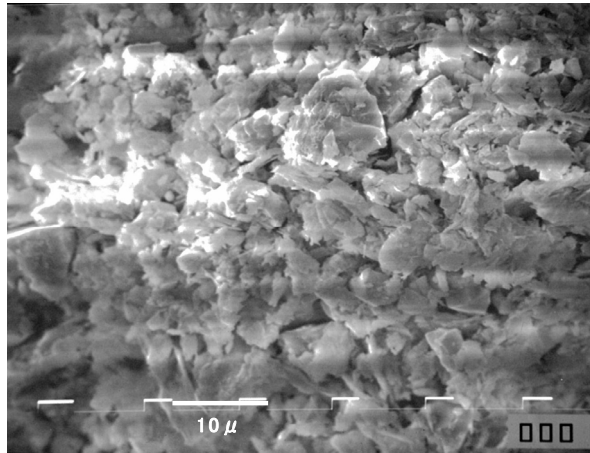


写真-2.2.4 下久保ダム流入濁水 (×2000)

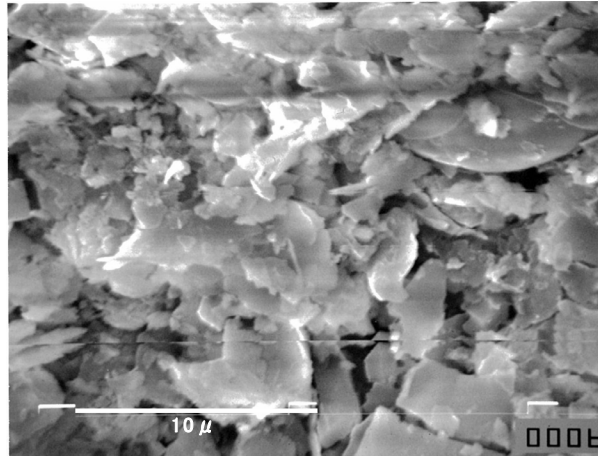


写真-2.2.5 下久保ダム流入濁水 (×5000)

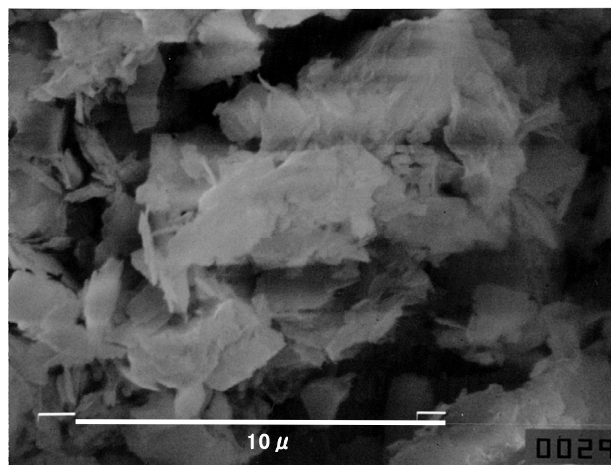


写真-2.2.6 下久保ダム流入濁水 (×7000)

2.2.2 山口川

採取した4検体の試料について、沈降筒法を用いて求めた粒度分布を図-2.2.5に示す。試料は洪水のピーク時から減水時にかけて採取したものであり、時間の経過に伴いSSも減少する傾向が見られた。さらに、SSの低下に伴い粒度分布も徐々に細粒化する傾向が見られた。今後は、増水時においても試料を採取し、SS・粒度分布の経時変化を把握することが課題と考えられる。

採取した4検体の試料について、沈降筒法、遠心沈降法（分散なし／分散10min）およびレーザー一回折法（分散なし／分散10min）の5手法により求めた粒度分布を図-2.2.6～図-2.2.9に示す。ここで、遠心沈降法（分散なし／分散10min）による測定範囲の上限は50 μm であることから、これを上回る粒径範囲については、45 μm のふるいを通さない試料と通した試料とのSSの差分を求めて、粒度分布を補間した。5手法による分析結果は、類似した分布を示すものの、粒径30 μm 以下の粒径範囲に着目すると、沈降筒法およびレーザー一回折法（分散10min）が中間的な分布を示し、遠心沈降法（分散なし）、レーザー一回折法（分散なし）の順に粗粒化する結果を示した。一方、遠心沈降法（分散10min）は、沈降筒法よりもさらに細粒化する結果となった。

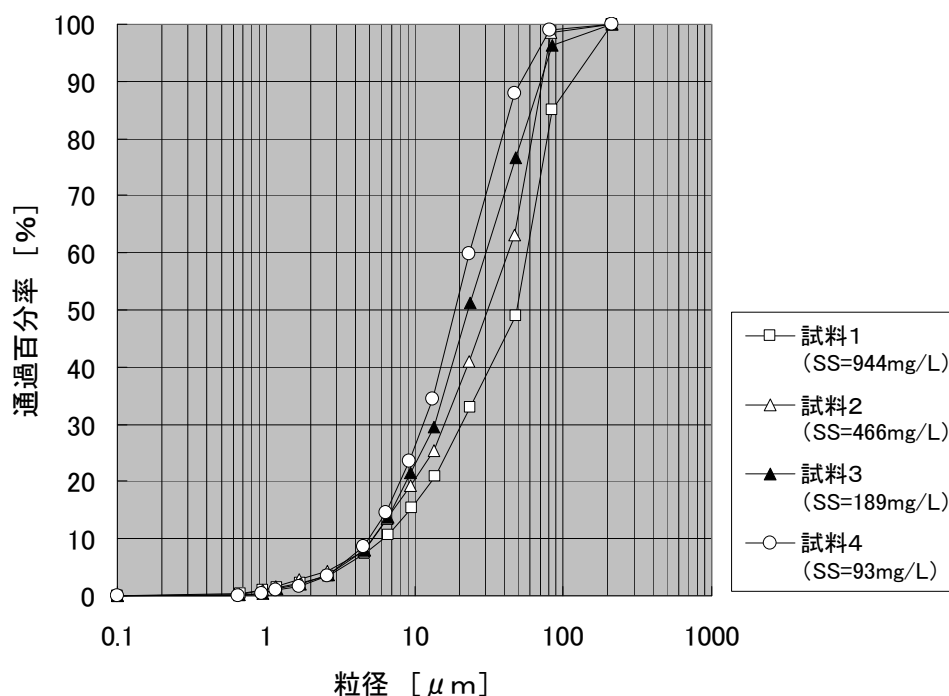


図-2.2.5 沈降筒法による粒度分布

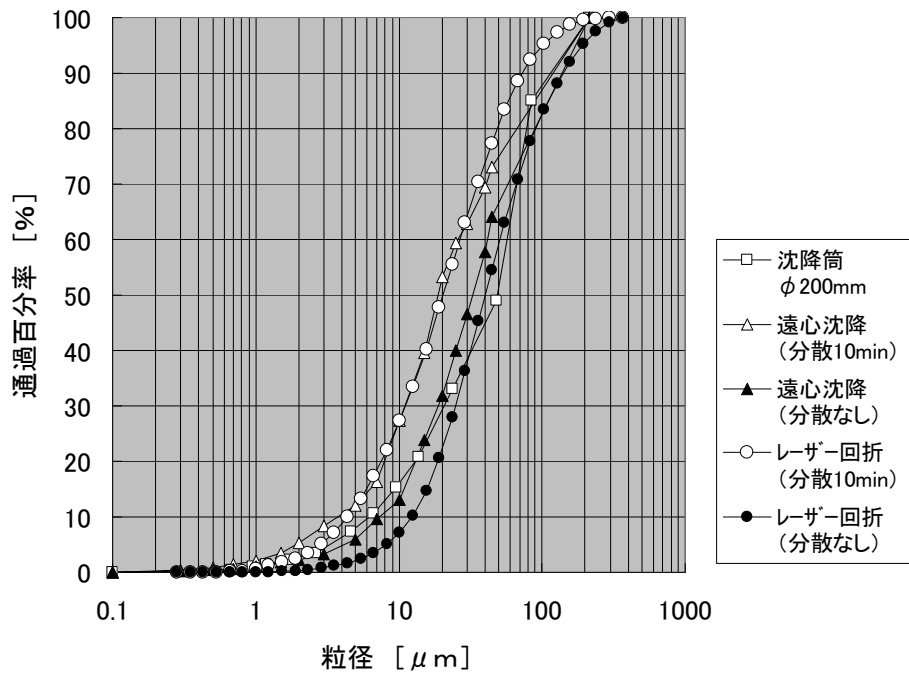


図-2.2.6 分析手法と粒度分布 (試料1)

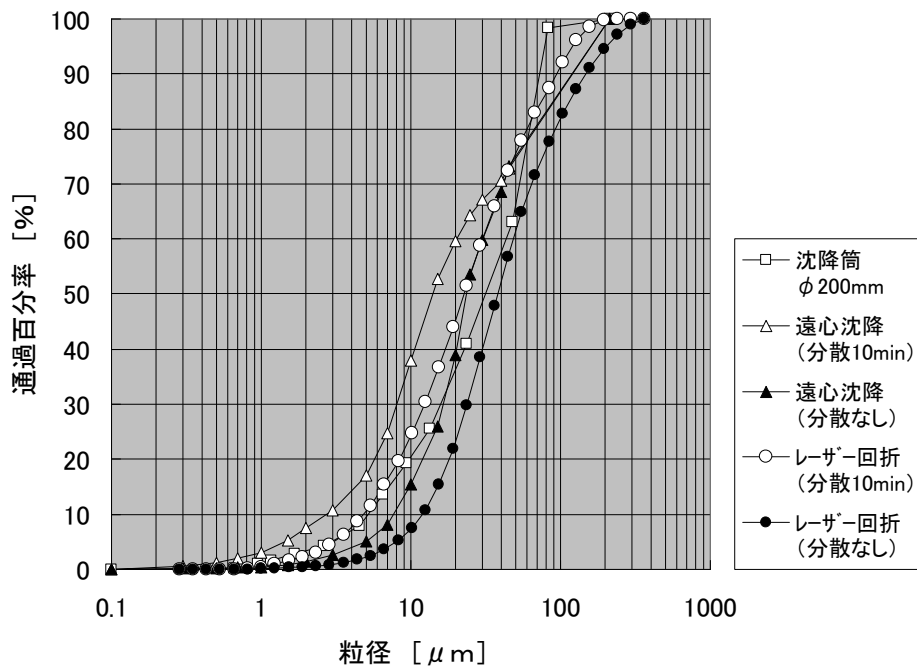


図-2.2.7 分析手法と粒度分布 (試料2)

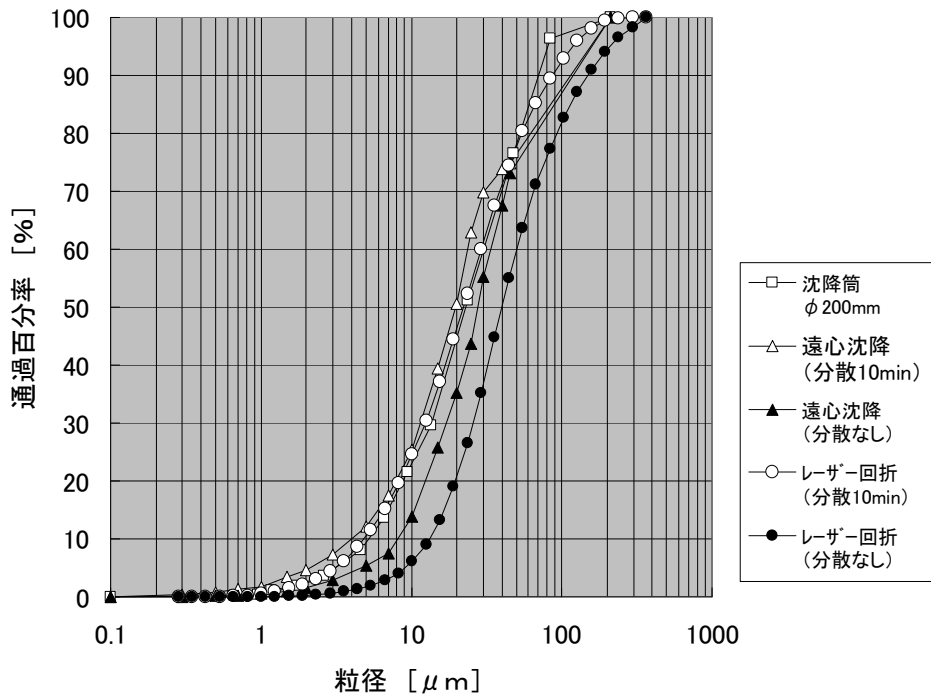


図-2.2.8 分析手法と粒度分布 (試料3)

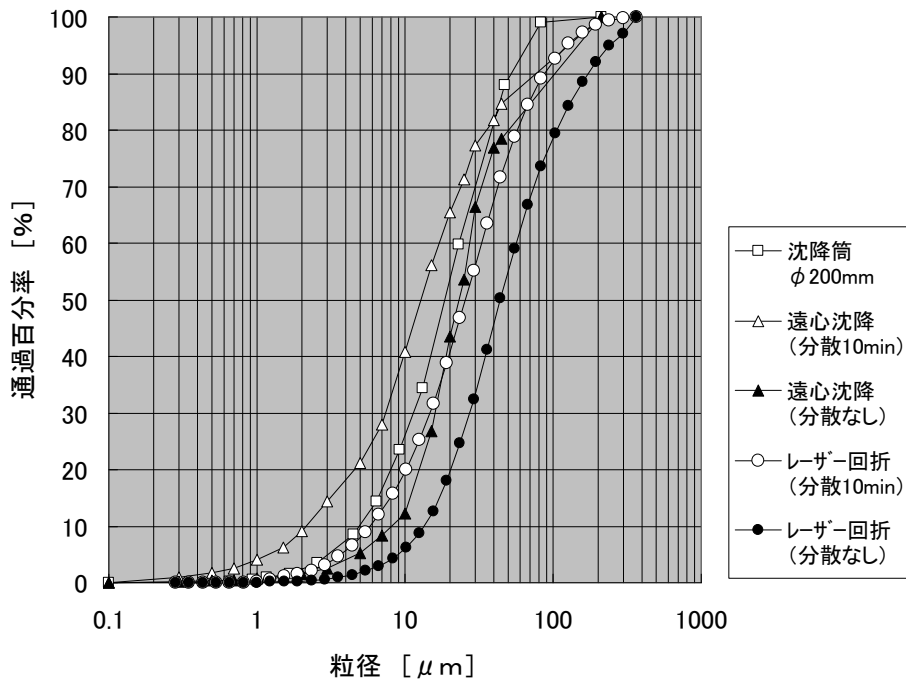


図-2.2.9 分析手法と粒度分布 (試料4)

ここで、微細粒子である粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の粒径範囲に着目し、分析結果を比較する（表—2.2.1）。粒径 $10\mu\text{m}$ は、1日あたり約 6.5m 沈降する粒子の粒径である（ 20°C ， $\gamma_s=2.4$ として計算）。試料 1 を例にとると、粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の占める割合は、沈降筒法では 16%であるのに対し、遠心沈降法（分散なし）では 13%、レーザー回折法（分散なし）では 7%となり、最も普及した手法であるレーザー回折法では微細粒子の占める割合を過小評価する結果となった。表—2.2.1 には試料 2～試料 4 の結果についても併記したが、細粒分の割合が増大するに従い、3 手法による分析結果の差が広がる結果となった。原因としては、土粒子の形状が球形ではなく不均一であること、沈降速度が土粒子の濃度によっても変化すること、土粒子が単一粒子のみで構成されているのではなく、フロックを形成していることなどが考えられる。

沈降筒法は、濁質の沈降現象を把握するには最も適した方法と考えられる。濁水現象の長期化が想定される貯水池については、多くの労力は要するものの、沈降筒法により沈降速度分布を求めることが望まれる。しかしながら、十分な量の試料が確保できない場合には、遠心沈降法（分散なし）あるいはレーザー回折法（分散 10min）によって粒度分布を求め、沈降速度分布を設定することも代替法として考えられる。

表—2.2.1 粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の粒子の占める割合

試料No.	分析手法		
	沈降筒法	遠心沈降法 (分散なし)	レーザー回折法 (分散なし)
1	16%	13%	7%
2	20%	15%	7%
3	23%	14%	6%
4	26%	12%	6%

2.3 まとめ

本研究では、従来行われていたレーザー回折法による粒径分布にストークス式やルベイス等を適用して沈降速度分布を設定する手法に問題意識を持ち、沈降速度を適切に評価する手法を提案することを目標とした。このうち、第 2 章の結論について、以下のとおりまとめる。

- ・利根川水系山口川（茨城県桜川市）において洪水時に河川水を採水し SS ならびに粒度分布を測定した。採水は、洪水のピーク時時から減水時にかけて 4 回おこなった。分析の結果、洪水のピーク時以降、時間の経過に伴い SS も減少する傾向が見られた。さらに、SS の低下に伴い

粒度分布も徐々に細粒化する傾向が見られた。今後は、増水時においても試料を採取し、SS・粒度分布の経時変化を把握することが課題と考えられる。

- ・沈降筒法，遠心沈降法，レーザー回折法を用いて粒度分布を比較したところ，従来から良く使用されているレーザー回折法による粒度分布が最も粗粒化傾向，つまり，沈降速度が大きく算定される傾向があった。その原因として土粒子の形状が球形ではなく不均一であること，沈降速度が土粒子の濃度によっても変化すること，土粒子が単一粒子のみではなく，フロックを形成していることなどが考えられた。
- ・沈降筒法は，濁質の沈降速度を直接測定していることから，沈降現象を把握するには最も適した方法と考えられる。しかしながら，十分な量の試料が確保できない場合には，遠心沈降法（分散なし）あるいはレーザー回折法（分散 10 min）が代替法となり得る。

なお，以上は粒径をパラメータとし沈降速度を論じたものである。従来から一般的に用いられているレーザー回折法を用いた粒度分布にストークス式を当てはめた場合，沈降速度を大きく算定する傾向がある。第4章では沈降現象を直接観察する手法について取り上げる。

第2章の参考文献

- 1) 海野仁, 箱石憲昭: 出水時における土粒子の粒度分布に関する比較研究, 河川技術論文集, 第17巻, pp17-pp22, 2011.7
- 2) 海野仁, 箱石憲昭: 出水時に河川を流下する微細粒子土砂の粒度分布に関する比較検討, 土木学会第66回 年次学術講演会概要集第II部門, pp.133-144, 2011.9.
- 3) Hitishi Umino, Noriaki Hakoishi; A Comparative Study on Grain Size Analysis for Sediments Flowing into Reservoirs, International Symposium on Dams for a Changing World, 2_0184, International Commission on Large Dams, 2012.
- 4) 河川事業環境影響評価研究会編: ダム事業における環境影響評価の考え方, pp.3.106-107, (財)ダム水源環境整備センター, 2000.
- 5) 仲村渠将, 吉永安俊, 酒井一人: 沈砂池の浮遊土砂捕捉率の試算, 農業農村工学会全国大会講演要旨集, pp.680-681, 2009.
- 6) 横山勝英: 濁度計の粒径依存特性と現地使用方法に関する考察, 土木学会論文集 No.698/II -58, pp93-pp98, 2002.2
- 7) 柏井条介: ダム貯水池の水温・水質予測の一般化に向けて, 河川, 713号, pp.38-44, 2005.
- 8) 鈴木祥広, 出口近士, 関戸知雄, 塩盛弘一郎, 杉尾哲: 宮崎県小丸川水系のダム堆積土砂に含まれる難沈降粒子の物理・化学的性状, 土木学会論文集G, Vol.65 No.1, 16-25, 2009.
- 9) 例えば, 日本ルフト(株)web ページ
<http://www.nihon-rufuto.com/science/pdf/D-2.pdf#search='遠心沈降'>
- 10) 例えば, (株)島津製作所 web ページ
<http://www.shimadzu.co.jp/powder/lecture/middle/m01.html>
- 11) 例えば, 椿東一郎, 荒木正夫: 水理学演習(上), pp.106-107, 森北出版, 1961.
- 12) 例えば, 小林幹佳, 足立泰久: コロイド凝集の動力学, pp157-199, 土のコロイド現象, 学会出版センター, 2003.

第3章 火山灰土由来の無機凝集剤の特性

我が国では環境影響評価法が制定・施行され、大規模な新設ダムでは事業が環境に及ぼす影響を予測・評価し、必要に応じ保全措置を講じる仕組みが確立された。しかしながら、既設ダムの中には、大規模出水後の貯水池の懸濁化により、下流河川に濁水を長期間放流する事例も見られ¹⁾、問題解決が急務である。貯水池の濁水長期化については、選択取水設備および濁水拡散防止フェンスの設置により一定の成果を上げているものの^{2), 3)}、貯水池が全層懸濁した場合の対策としては、清水バイパスの運用に限られているのが現状である⁴⁾。一方、貯水池の濁水長期化の対応として凝集剤を用いた土粒子の強制沈降が考えられるが、一般に用いられる人工の合成材料では、貯水池底泥として長期滞留後の貯水池の水質に与える影響が不明である。沈降した凝集フロックを別途処理する必要も生じることから、運用実績はほとんど見あたらない。

本研究では、凝集剤として環境負荷の少ない火山灰土由来の無機凝集剤を取り上げ、凝集特性を明らかにするとともに貯水池における利用方法について提案することを目的とする。天然由来の土コロイドのうち、アロフェンおよびイモゴライトは比表面積が大きく凝集剤としての活用が考えられる。

火山灰土の主要な粘土鉱物であるアロフェンならびにイモゴライトについて、凝集・分散機構を把握した既往研究をレビューする。軽部らは、懸濁液中におけるアロフェンとイモゴライトの分散凝集挙動と荷電特性を測定し、脱鉄アロフェンで pH4.5~pH6、非脱鉄アロフェンで pH5.5~pH7 の範囲で凝集が進行したと報じた⁵⁾。Adachi らは、pH の異なるアロフェン懸濁液の凝集実験を行い、等電点(ゼータ電位が 0 となる点)付近において速やかにフロック径が増加する状況を報告した⁶⁾。Tsuchida らはイモゴライトを対象に異なる pH、イオン強度の条件で凝集実験を行い、アルカリ領域で沈澱物の堆積が増大すること、イモゴライトの荷電特性がチューブ状の粒子形状を反映していることを報告した⁷⁾。小林らはイモゴライトを取り上げ、pH の異なる懸濁液中の凝集・分散挙動を把握した結果、イモゴライトの等電点が pH9 付近であり、アロフェンに比べ、イモゴライトの等電点を与える pH が高いことを報告した^{8), 9)}。

これらの既往研究は、火山灰土を凝集剤として利用する際の条件設定に不可欠な知見を与えている。しかしながら、既往の研究では粘土鉱物の特性を的確に把握する都合上、試料の精製に多大な労力を要しており、貯水池に散布する凝集剤の製造法としては採用することが難しい。第3章では、既往研究では紹介されていない安価でかつ大量に調達可能な火山灰土由来の無機凝集剤を取り上げ、その製造工程を紹介する。さらに、火山灰土由来の無機凝集剤の特性を把握することを目標に、凝集剤の凝集・分散と荷電特性について整理するほか、関東ローム懸濁液を模擬濁水とした凝集実験の結果について報告する。

3.1 火山灰土由来の無機凝集剤の製造工程

本研究では、アロフェンを主成分とする火山灰土由来の無機凝集剤を使用した（写真-3.1.1）。アロフェンは非結晶性のケイ酸アルミニウム鉱物で、火山灰土壌下層の主要なコロイド粒子である¹⁰⁾。火山国である日本では、北海道・東北・九州を中心に全国に存在し、相当量の確保が期待できる¹¹⁾。水中に懸濁させたアロフェンは、周辺の pH 環境により凝集や分散現象を生じることが知られている^{5), 6)}。また、水との親和性や吸着能力に優れることから、乾燥剤や吸着剤として利用されている。アロフェンは、元来土壌中に含まれる物質であり、凝集剤として貯水池に投入しても、水利用に及ぼす影響、生物生息環境に及ぼす影響は少ないと考えられる。また、凝集剤の添加による堆砂の増加量は微量であり、貯水池の濁水対策としての利用が期待されている。本節では、コロイド粒子の凝集・分散現象について概説するとともに、火山灰土由来の無機凝集剤の製造工程と化学成分について記述する。



写真-3.1.1 本研究で取り扱う火山灰土由来の無機凝集剤

3.1.1 コロイド粒子の凝集・分散現象

ここで、コロイド粒子の凝集・分散現象について整理する^{12), 13)}。 μm のオーダーの大きさを持つコロイド粒子の表面は通常帯電しているため、接近したコロイド粒子間には静電的な力が作用する。同種粒子間の場合、この静電的な力は斥力である。一方、粒子間には分子間の van der Waals 引力が作用する。ここで、コロイド粒子を球形とし、電解質溶液に懸濁させた粒子間の静電的な相互作用ポテンシャルを求めると、

$$V_R(H) = \frac{64\pi a \gamma^2 n k T}{\kappa^2} \exp(-\kappa H) \quad (3.1.1)$$

$$\gamma = \tanh\left(\frac{ve\phi(0)}{4kT}\right) \quad (3.1.2)$$

ここに、 $V_R(H)$:表面間の距離 H [m]離れた半径 a [m]の球形粒子間の静電相互作用のポテンシャルエネルギー[J], $\phi(0)$:球形粒子表面における電位[V], v :電解質のイオン価(例えば, NaCl 水溶液であれば, 1 価.), e :単位電荷 ($=1.6 \times 10^{-19}$ [C]), k :ボルツマン定数 ($=1.38 \times 10^{-23}$ [J/K]), T :電解質溶液の絶対温度[K], n :電解質の数濃度[個/m³], $1/\kappa$:デバイ長 (=電気二重層の厚さ) [m]である. 一方, 粒子間の van der Waals 相互作用のポテンシャルを求めると,

$$V_A(H) = -\frac{Aa}{12H} \quad (3.1.3)$$

ここに、 $V_A(H)$:表面間の距離 H [m]離れた半径 a [m]の球形粒子間の van der Waals 相互作用のポテンシャルエネルギー[J], A :Hamaker 定数[J]. Hamaker 定数 A は, エネルギーの次元を持ち, van der Waals 相互作用の大きさの特徴づける物性値である. 式(3.1.1)に示した静電相互作用は電解質濃度に敏感に依存し, 濃度上昇とともに相互作用は弱くなる. 一方, 式(3.1.3)に示した van der Waals 相互作用は, 電解質濃度に依存しない. 2つのコロイド粒子間の相互作用ポテンシャル $V(H)$ [J]を式(3.1.1)と式(3.1.3)の和で表すと,

$$V(H) = \frac{64\pi a \gamma^2 n k T}{\kappa^2} \exp(-\kappa H) - \frac{Aa}{12H} \quad (3.1.4)$$

となる. この相互作用ポテンシャル $V(H)$ を粒子表面間の距離 H の関数として曲線を描いてみると, 一般にポテンシャルの山ができる. この山が十分高ければ粒子は分散したままであるが, 低ければ凝集することになる.

浄水処理において利用される無機系の凝集剤は, 主に2つの作用によって凝集沈殿を引き起こす⁸⁾. 1つは荷電中和(charge neutralization)であり, 帯電している微粒子表面へ異符号に帯電した凝集剤が吸着し, 静電斥力を除去することで凝集を促進する. もう1つは, 凝集剤自体が形成するフロックが網目のような役目を果たし, 懸濁粒子を絡み取ることによる凝集沈殿の促進である. これを, スウィープ凝集(sweep flocculation)という. Gregory らは, ケイ酸アルミニウム凝集剤を用いたカオリン懸濁液の凝集実験を行い, 試料の電気泳動移動度と濁度を測定した¹⁴⁾. 一定濃度の懸濁液に対し凝集剤投入量を段階的に増加させた場合, 等電点近傍で凝集が進行するほか, これを大きく上回る投入量においても凝集が進行したことを報告している. 前者を荷電中和による凝集, 後者をスウィープ凝集としている. 本研究では沈澱物の処理が不要な火山灰土由来の無機凝集剤を用いて, 上記凝集作用を発現させることを目指す.

3.1.2 火山灰土由来の無機凝集剤の製造工程と化学成分

本研究では、アロフェンを主成分とする火山灰土由来の無機凝集剤を使用した。製造元への聞き取りによると、当該凝集剤の製造工程は、おおよそ次の通りである。

- 1) 栃木県真岡市の採取地から火山灰質土壌を採取し、工場に運搬。
- 2) 運搬した土壌に水を加え、木片などの不純物を除去。
- 3) 比重差を利用して主にアロフェンを含む土粒子を選別して抽出。
- 4) 抽出した土粒子を脱水。

なお、製造工程では有機物を除去するための薬剤、pH を調整するための薬剤等は添加していないとしている。アロフェンを主成分とする火山灰土由来の無機凝集剤の化学成分を、表-3.1.1に示す。成分の多くは、二酸化ケイ素と酸化アルミニウム(III)が占めている。製造元では当該凝集剤を乾燥させたものを「アロフェン単味商品の乾燥剤」として販売しているが、当該凝集剤・乾燥剤を単に「アロフェン」と記述した場合、粘土鉱物のアロフェンと混同する恐れがあることから、本論文では、「アロフェンを主成分とする火山灰土由来の無機凝集剤」を適宜、「火山灰土凝集剤 A」と記述する。

表-3.1.1 火山灰土由来の無機凝集剤の化学成分¹⁵⁾

成分	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	その他
含有率[%]	50.0	43.2	3.6	1.1	2.1

3.2 火山灰土由来の無機凝集剤の凝集・分散

前述の通り、アロフェンは水中に懸濁させると、周辺の pH 環境により凝集や分散現象を生じる。本研究で取り扱う火山灰土凝集剤 A についてもアロフェンを主成分としていることから、当該凝集剤の基本的な性状を把握することを目的に、異なる pH 環境における凝集・分散現象を把握する実験を行った (3.2.1)。次に、模擬濁水として使用する関東ローム懸濁液の凝集・分散現象について把握し (3.2.2)、模擬濁水に火山灰土凝集剤 A を投入して凝集処理を試みた (3.2.3)。

3.2.1 火山灰土由来の無機凝集剤の pH 条件と濁度の経時変化

(1) 実験方法

異なる pH 環境における火山灰土凝集剤 A の凝集・分散現象を把握する実験を行った。目標とする pH は、pH3~pH10 の範囲に 8 段階設定した。本実験では pH 環境を調整するために滴下する電解質の影響を低減させるため、懸濁液に NaCl を 0.01mol/L の濃度で混合した。実験手順は、次の

とおりとした。

- 1) 乾燥重量 0.9g に相当する火山灰土凝集剤 A を、湿潤状態で 2.16g 取り分ける。
- 2) 純水約 100mL に火山灰土凝集剤 A を懸濁させる。
- 3) NaCl 0.1mol/L を 100mL メスシリンダーに入れる。
- 4) 1L メスシリンダーに火山灰土凝集剤 A 懸濁液・NaCl 水溶液・純水を加え、全体で 1L とする。
900mg-dry/L 火山灰土凝集剤 A 懸濁液 NaCl 0.01M ができあがる。
- 5) 火山灰土凝集剤 A 懸濁液をビーカーに取り分ける。取り分けたサンプルは、約 60mL。
- 6) pH 無調整の段階で、pH を測定。測定の結果、pH6.50。
- 7) マイクロピペットを用いて HCl 0.1M, NaOH 0.1M を少量滴下し、pH を調整する。調整中は、マグネットスターラーを用いて攪拌。

以上の手順で試料を作成した後、静置して濁度の経時変化を測定した。濁度の測定には、ホルマジン溶液により校正した濁度計（HACH 社製 2100P）を使用した。

(2) 実験結果

静置直後から 120 min 経過までの濁度の経時変化を、図-3.2.1 に示す。濁度を測定した結果、pH 3.00 の検体を除き、凝集が進行する結果となった。pH8.10 の検体を例に、濁度の経時変化を概観する。静置直後に 550 NTU の懸濁液は時間の経過に伴い急速に濁度が低減する状況が観察された。静置後 30 min 経過した段階では 42.4 NTU、60 min 経過後には 14.6 NTU となり、60 min で濁度が約 1/38 に低減した。その後の濁度の低減は緩やかで、120 min 経過後の濁度は、8.99 NTU となった。検体間で濁度の差が比較的大きく現れた 60 min 経過時点では、pH7.00 の検体で 12.3 NTU、pH8.10 の検体で 14.6 NTU、pH9.00 の検体で 12.8 NTU となり、pH7~pH9 の範囲で凝集が進行する結果となった。一方、pH3.00 の検体については、60 min 経過後の濁度が 188 NTU、120 min 経過後の濁度が 97.8 NTU となり、pH8.10 の検体に比べ 10 倍以上高い値を示し、凝集が進行しない結果となった。

ここで、濁度の低減程度を示す無次元量として濁度比 R_T を導入し、pH による凝集現象を比較する。

$$R_T = \frac{T_n}{T_b} \quad (3.1)$$

ここに、 R_T : 濁度比 [無次元]、 T_n : n min 静置後の濁度 [NTU]、 T_b : 静置直後の濁度 [NTU]。30min 経過後と 60min 経過後の濁度比 R_T を、図-3.2.2 に示す。軽部らは、脱鉄アロフェンで pH4.5~pH6、非脱鉄アロフェンで pH5.5~pH7 の範囲で凝集が進行したと報じている⁵⁾。本研究で用いたアロフェンを主成分とする火山灰土凝集剤は、軽部らの報告に比べ、広い範囲の pH で凝集が進行する結果となった。

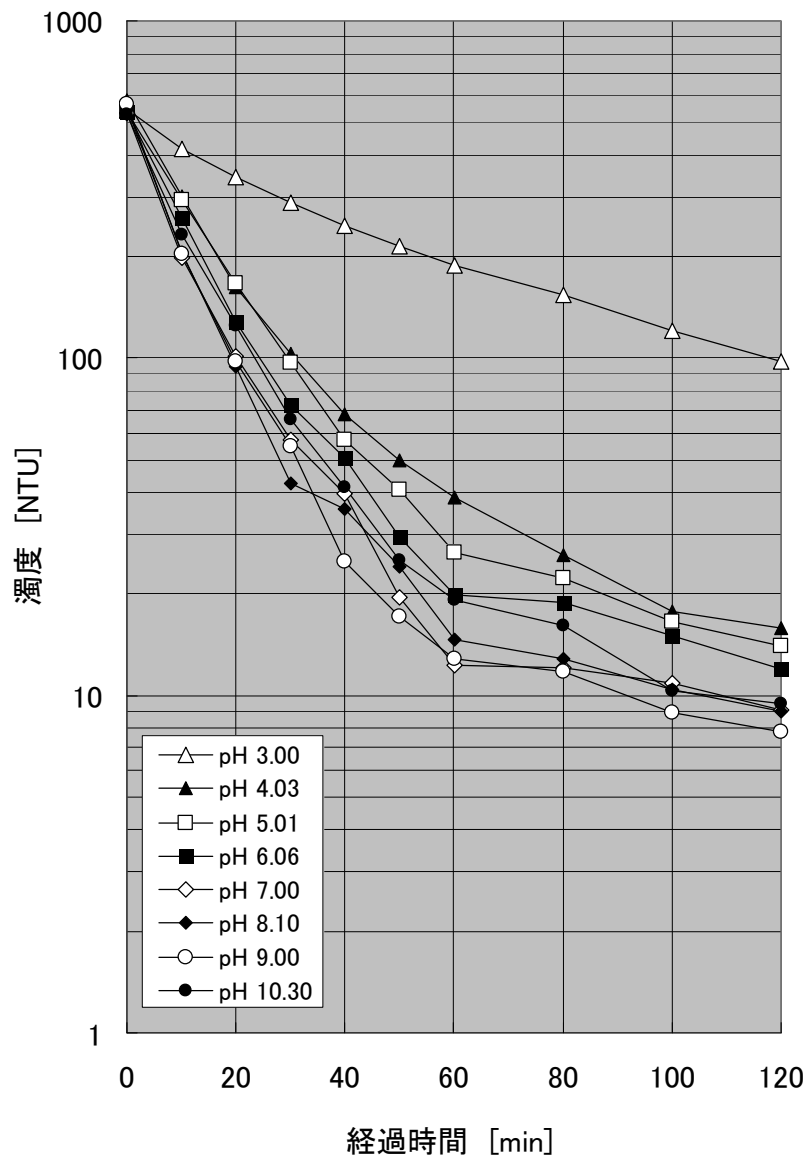


図-3.2.1 火山灰土凝集剤 A 懸濁液の濁度の経時変化
(濃度 C=900mg/L, NaCl 0.01M)

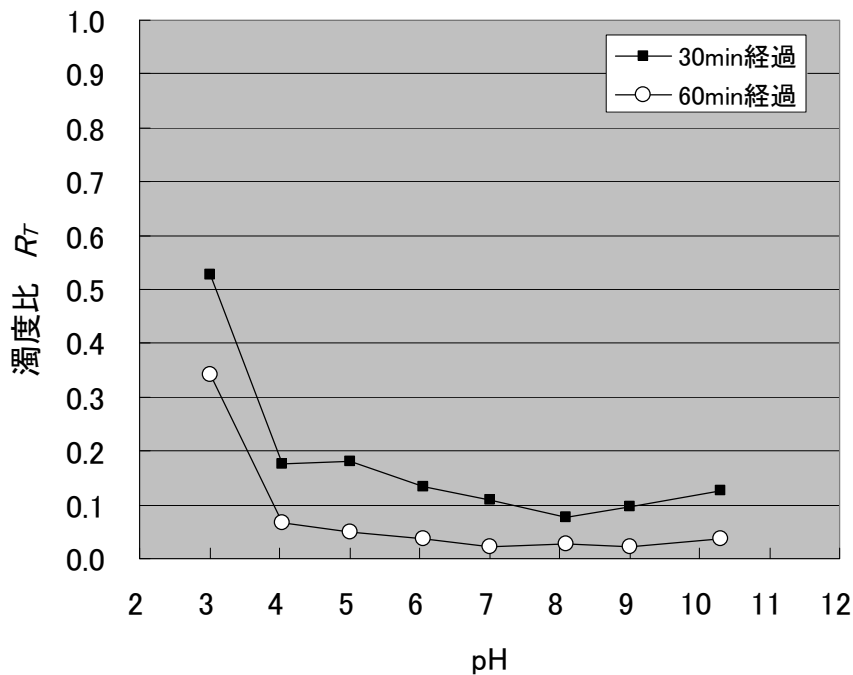


図-3.2.2 火山灰土凝集剤 A 懸濁液の pH と濁度比
(濃度 C=900mg/L, NaCl 0.01M)

3.2.2 関東ローム懸濁液の pH 条件と濁度の経時変化

(1) 実験方法

模擬濁水として使用する関東ローム懸濁液の凝集・分散現象について把握することを目的に、異なる pH 環境に懸濁させた関東ロームの濁度の経時変化を測定した。目標とする pH は、pH3~pH10 の範囲に 5 段階設定した。ここでは、pH 環境を調整するために滴下する電解質の影響を低減させるため、懸濁液に NaCl を 0.01mol/L の濃度で混合した。実験手順は、次のとおりとした。

- 1) 標準関東ローム 50g を純水に懸濁させ、全体を 1L とする。
- 2) 超音波洗浄器 (東京硝子器械 (株) 製 FU-10C 出力 60W 発振周波数 28kHz) を用いて 20min 間超音波分散する。
- 3) 静置した後に沈殿成分を廃棄し、浮遊成分を採取し原液とする。
- 4) 原液から 3 サンプル採取し、体積を測定し、原液を炉で乾燥させ、原液の濃度を測定する。測定の結果、濃度 C=18,516 mg/L。
- 5) 関東ローム原液 (濃度 C=18,516 mg/L) を 100mL, NaCl 水溶液 0.1M (=0.1 mol/L) を 100 mL, 純水を 800 mL とり、1,000 mL のメスシリンダーに投入し、関東ローム希釈液とする。関東ローム希釈液の濃度は 1,852 mg/L, NaCl 濃度は 0.01M。

- 6) メスシリンダーの関東ローム希釈液を 70 mL ごと採取し、5 個のビーカーへ移す。
- 7) 各ビーカーの関東ローム希釈液について、NaOH または HCl を滴下し、目標 pH (3,5,7,9,10) に合うよう調整する。

以上の手順で試料を作成した後、静置して濁度の経時変化を測定した。濁度の測定には、ホルマジン溶液により校正した濁度計 (HACH 社製 2100P) を使用した。実験に使用した関東ロームの成分を、表-3.2.1 に示す。

表-3.2.1 標準関東ロームの成分

化学成分		粒径成分(質量基準)	
成分	質量%	粒径 μm	オーバーサイズ[%]
SiO ₂	34~40	5	61±5
Fe ₂ O ₃	17~23	10	43±3
Al ₂ O ₃	26~32	20	27±3
CaO	0~3	30	15±3
MgO	0~7	40	9±3
TiO ₂	0~4	75	3以下
強熱減量	0~4	粒子密度	2.9~3.1[g/cm ³]

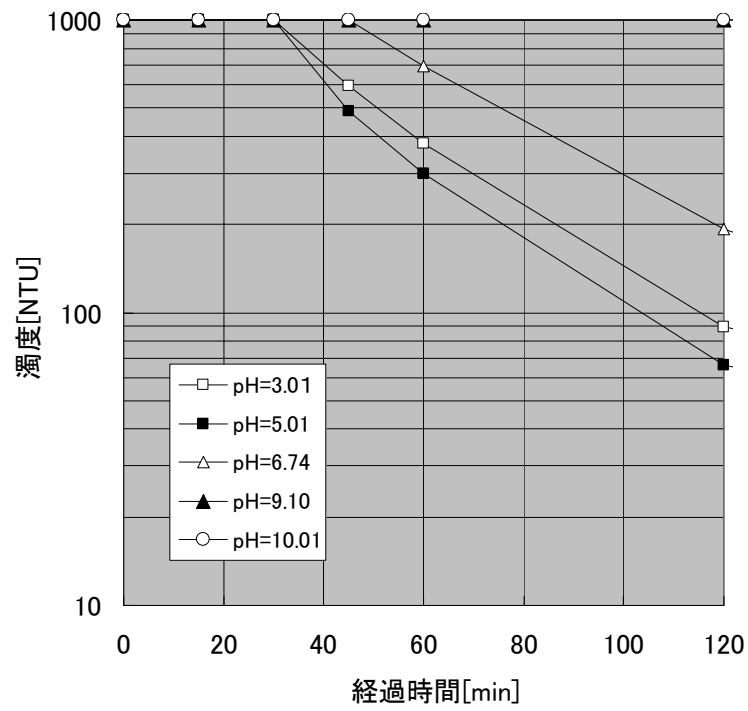
(2) 実験結果

静置直後から 120 min 経過までの濁度の経時変化を、図-3.2.3 に示す。濁度計の測定可能範囲は 1,000 NTU 以下であることから、静置直後はすべての検体について測定可能範囲を超える濁度を示した。静置後は低い pH の検体で濁度の低減が進み、静置後 45 min 経過した段階で pH3.01, pH5.01 の検体が、また、60 min 経過した段階で pH6.74 の検体が測定可能な濁度に低減した。静置後 60min 経過した時点の濁度は、pH3.01 の検体で 380 NTU, pH5.01 の検体で 299 NTU, pH6.74 の検体で 696 NTU となり、pH5.01 の検体をはじめ pH3.01, pH6.74 の検体で凝集が緩やかに進行する結果となった。一方、アルカリ側の pH9.01, pH10.01 の検体では分散状態が維持され、120min 経過後の濁度も測定可能範囲を超える濁度となった。

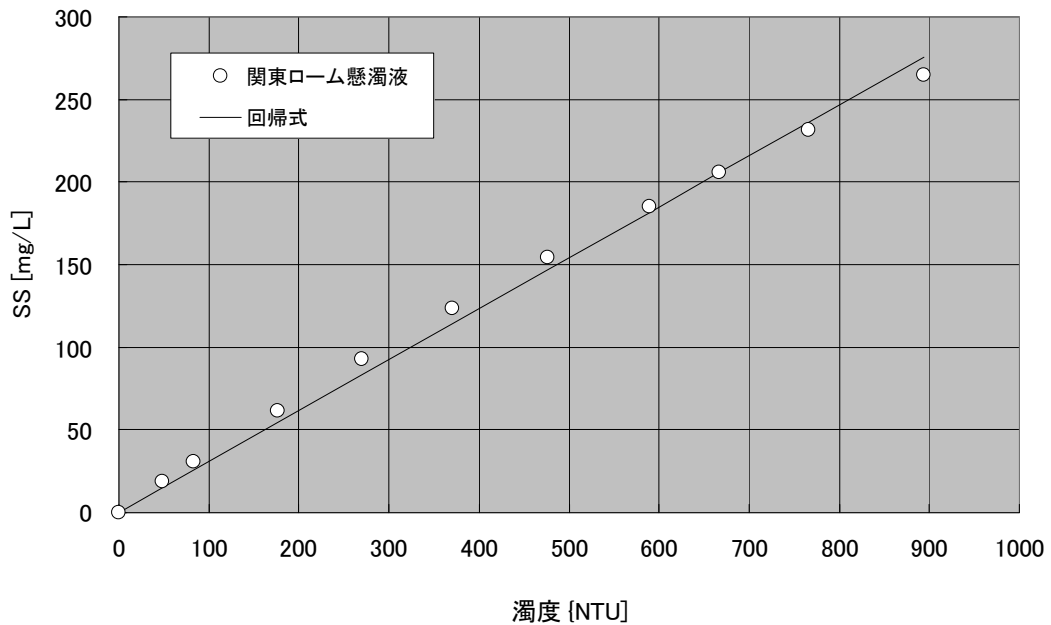
ここで、静置直後の濁度が不明であることから、試料を希釈し、濁度を測定するとともに、既知の SS との関係を示す回帰式を求めた (図-3.2.4)。

$$Sus = 0.308 Tur \quad (3.2)$$

ここに、 Sus : SS[mg/L], Tur : 濁度[NTU]である。式(3.2)に関東ローム懸濁液の SS:1,852 mg/L を代入し濁度を求めると、静置直後の濁度は 6,012NTU と推定された。静置後 60min 経過した時点の濁度は、最も凝集の進んだ pH5.01 の検体で 299 NTU であったことから、60 min で濁度が約 1/20 に低減したと推定される。しかしながら、60 min で濁度が約 1/38 に低減した火山灰土凝集剤 A の pH8.10 の検体に比べて、関東ローム懸濁液の凝集の進行は緩やかな結果となった。



図—3. 2. 3 関東ローム懸濁液の濁度の経時変化
(濃度 C=1,852mg/L, NaCl 0.01M)



$$SS [mg/L] = 0.308 \times \text{濁度} [NTU]$$

図—3. 2. 4 関東ローム懸濁液の濁度と SS (NaCl 0.01M)

3.2.3 火山灰土由来の無機凝集剤を用いた関東ローム懸濁液の凝集

(1) 実験方法

火山灰土凝集剤 A の凝集特性を把握することを目的に、異なる pH 条件のもと関東ローム懸濁液を模擬濁水として凝集処理を行い、濁度の経時変化を測定した。実験手順は、次のとおりとした。

- 1) 3.2.2 で作成した NaCl 0.01M の関東ローム懸濁液 1,852 mg/L を 25mL 取り分ける。
- 2) 凝集剤濃度 3,700 mg/L, NaCl 0.01M の火山灰土凝集剤 A 懸濁液を作成し、25mL 取り分ける。
- 3) 関東ローム懸濁液ならびに火山灰土凝集剤 A 懸濁液を混合し、HCL を用いて pH を 3.00 に調整する。
- 4) 同様の手順で目標 pH5, 7, 8, 10 の試料を作成する。アルカリ側の試料作成には、NaOH 水溶液を用いる。
- 5) 超音波洗浄器（東京硝子器械（株）製 FU-10C 出力 60W 発振周波数 28kHz）を用いて 20 min 間超音波分散する。
- 6) マグネットスターラーを用いて、15 min 間攪拌する。

以上の手順で試料を作成した後、静置して濁度の経時変化を測定した。濁度の測定には、ホルマジン溶液により校正した濁度計（HACH 社製 2100P）を使用した。

(2) 実験結果

静置直後から 120 min 経過までの濁度の経時変化を、図-3.2.5 に示す。また、静置直後の濁度を 1,000NTU と仮定し、30min 経過後、60min 経過後の濁度比 R_T を求め、図-3.2.6 に示す。濁度計の測定可能範囲は 1,000 NTU 以下であり、静置直後はすべての検体について測定可能範囲を超える濁度を示した。前述の通り、関東ローム懸濁液の凝集剤投入前の濁度は 6,012 NTU 程度と推定されるが、ここでは静置直後の濁度を 1,000NTU と仮定し、検体間の濁度の経時変化を比較した。

静置後は、時間の経過に伴い pH3.00 の検体を除き凝集が進行し、特に中程度の pH の検体で濁度が大幅に低減した。静置後 60 min 経過した時点の濁度は、pH6.53 の検体で 35.6NTU、pH8.17 の検体で 25.2 NTU となり、pH8.17 の検体では、関東ローム懸濁液の推定濁度 6,012NTU の約 1/240 の値に低減した。一方、酸性側の pH3.00 の検体では凝集の進行は遅く、120min 経過後においても濁度 79.6NTU の懸濁状態が見られた。

pH3 を除く検体で凝集が見られた結果は 3.2.1 で報じた火山灰土凝集剤 A の凝集現象と類似している。本実験では火山灰土凝集剤 A の濃度を関東ロームの約 2 倍に設定したことから、火山灰土凝集剤 A の凝集が卓越していたものと考えられる。濁度の経時変化を見ると、先ず、火山灰土凝集剤 A の凝集が進行し、それを追って関東ロームの凝集が進行したと考えられる。

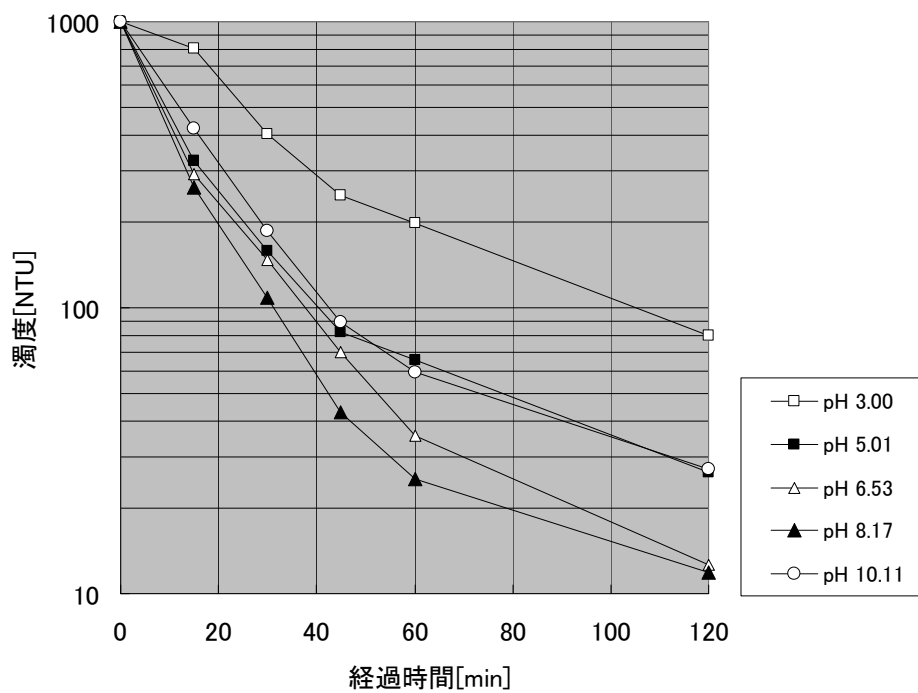


図-3.2.5 火山灰土凝集剤 A を用いた凝集における関東ローム懸濁液の濁度の経時変化
(関東ローム濃度 $C=1,852\text{mg/L}$, 火山灰土凝集剤 A の濃度 $C=3,700\text{mg/L}$, $\text{NaCl } 0.01\text{M}$)

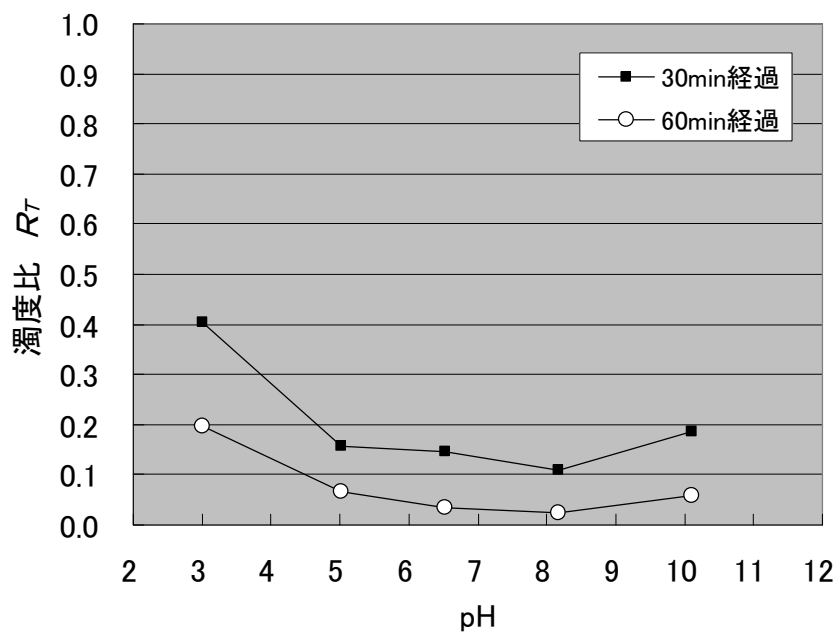


図-3.2.6 火山灰土凝集剤 A を用いた凝集における pH と濁度比
(関東ローム濃度 $C=1,852\text{mg/L}$, 火山灰土凝集剤 A の濃度 $C=3,700\text{mg/L}$, $\text{NaCl } 0.01\text{M}$)

凝集が進んだ pH8.17 の検体のほか、火山灰土凝集剤 A 懸濁液、関東ローム懸濁液のうち凝集が進んだ検体を抽出して濁度の経時変化を比較する（表-3.2.2）。比較した結果、関東ローム懸濁液に火山灰土凝集剤 A を投入した検体について、高い凝集効果が見られる結果となった。一方、関東ローム懸濁液では 60min 経過後で凝集剤投入の検体に比べ 10 倍以上の濁度があり、関東ローム単独では pH の条件を変化させても凝集の進行は緩やかな結果となった。

表-3.2.2 凝集が進んだ検体を対象とした濁度の経時変化の比較

		火山灰土凝集剤A 900[mg/L]		関東ローム 1852[mg/L]	関東ローム + 火山灰土 凝集剤A 1852[mg/L] 3700[mg/L]
懸濁液pH		7.00	8.10	5.01	8.17
濁度 [NTU]	0min	531	550	1000以上	1000以上
	60min	12.3	14.6	299	25.2
	120min	9.03	8.99	40.5	11.9

3.3 火山灰土由来の無機凝集剤の荷電特性

本節では、前節で取り上げた火山灰凝集剤 A ならびに関東ロームを対象に、pH の異なる分散媒に懸濁させた粒子の荷電特性について考察する。さらに、電子顕微鏡を用いて 2 種類の火山灰土凝集剤の粒子径状を観察した結果を報告する。

3.3.1 火山灰土由来の無機凝集剤の荷電特性

アロフェン、イモゴライトなどのコロイド粒子は、周辺の pH 環境により凝集や分散現象を生じることが知られている。小林らはイモゴライトを取り上げ、pH の異なる懸濁液中の凝集・分散挙動を報告した^{8), 9)}。ここでは小林らの研究を参考に、火山灰土凝集剤 A の荷電特性について検討する。具体的には、pH 環境の異なる懸濁液中の火山灰土凝集剤 A について、電気泳動移動度を測定し、さらに、超音波分散の有無によるゼータ電位について比較した。

(1) 調査方法

濃度が 900mg/L となるよう火山灰土凝集剤 A を純水中で解きほぐし、塩濃度が 0.01 mol/L となるよう NaCl を加え、火山灰土凝集剤 A 懸濁液を作成した。次に、火山灰土凝集剤 A 懸濁液を 2 等分し、一方については、超音波を照射して試料を分散させた。超音波分散については、出力 60W、周波数 2.8kHz の装置を用い、火山灰土凝集剤 A 懸濁液 0.5L に対し 20 min 間照射した。さらに、2 種

の懸濁液をそれぞれ 8 等分し、0.1mol/L の HCl あるいは 0.1mol/L の NaOH を滴下し、pH3～pH10 の懸濁液を 8 検体ずつ 2 組、計 16 検体作成した。HCl または NaCl の滴下中は、マグネットスターラーを用いて攪拌し、各試料の pH が容器内で均質となるよう留意した。各懸濁液の pH の実測値を、表-3.3.1 に示す。

作成した各試料について、Malvern 社製 Zetasizer Nano ZS を用いて電気泳動移動度を測定し、ゼータ電位を算定した。電気泳動移動度は、式(3.3.1)により定義される。ゼータ電位の算定には、式(3.3.2)に示すスモルコフスキー (Smoluchowski) の式¹⁶⁾を用いた。

$$\mu = \frac{U}{E} \quad (3.3.1)$$

$$\mu = \frac{\epsilon_r \epsilon_0}{\eta} \zeta \quad (3.3.2)$$

ここに、 μ : 電気泳動移動度 [$\text{m}^2 / \text{V} \cdot \text{s}$],

U : 粒子の移動速度 [m / s]

E : 電場の強さ [V / m]

ϵ_r : 媒体の比誘電率 [無次元] (20°Cの水の場合 80.4)

ϵ_0 : 真空の誘電率 [F / m] ($=8.854 \times 10^{-12}$)

ζ : ゼータ電位 [V]

η : 媒体の粘性係数 [$\text{Pa} \cdot \text{s}$] (20°Cの水の場合 1.002×10^{-3})

表-3.3.1 火山灰土凝集剤 A 懸濁液の pH

目標pH	実測pH値	
	分散なし	分散20分
3.00	3.00	3.00
4.00	4.03	4.00
5.00	5.01	5.00
6.00	6.06	6.01
7.00	7.00	6.94
8.00	8.10	8.14
9.00	9.00	9.12
10.00	10.30	9.98

(2) 調査結果

電気伝導度の測定結果を図-3.3.1に示す。水中に分散したコロイド粒子は周囲の電解質濃度の増加により凝集が進行することから、異なる試料のゼータ電位の測定にあたっては分散媒の電解質濃度を等しくすることが求められる。本調査では pH 環境を調整するための電解質滴下の影響を低減させるため、あらかじめ NaCl を 0.01mol/L の濃度で混合した。その結果、図-3.3.1に示すとおり pH3 の検体を除き電気伝導度はほぼ一定となり、電解質濃度を等しくするという条件は、ほぼ整えられた。

電気泳動移動度の測定結果を図-3.3.2に、ゼータ電位の計算値を図-3.3.3に示す。超音波分散を加えない試料のゼータ電位は pH7 より酸性側で正の値、また、pH9 よりアルカリ側で負の値を示した。また、同じ pH の検体について比較すると、超音波分散を加えることによりゼータ電位が正の方向に移動した。この傾向は、特にゼータ電位が正の値を示す pH7 より酸性側で顕著に表れ、pH9 よりアルカリ側では差異が縮まる結果となった。これは超音波分散を照射することにより火山灰土凝集剤 A のフロックが破壊され、各粒子が分散媒と接する面積が増大したことに起因すると考えられる。

ダム貯水池の懸濁化の原因となる微細な土粒子の多くは、負に帯電している。ダム貯水池の pH 環境として一般的な pH7 近傍では、火山灰土凝集剤 A に超音波分散を加えることにより電位が正の方向に高まった。火山灰土凝集剤 A を用いた貯水池濁水処理については第 6 章で取り扱うが、火山灰土凝集剤 A に超音波を照射することにより凝集剤が分散し、その結果として土粒子を吸着する能力が高まることが期待された。

なお、本研究で使用した火山灰土凝集剤 A の等電点（ゼータ電位が 0 となる点）は「分散なし」の試料で pH8 付近となり、軽部らの報告⁵⁾にある pH5.1（脱鉄試料）あるいは pH5.9（非脱鉄試料）よりもアルカリ側に位置する。これは、本研究で用いた火山灰土凝集剤 A の原料の採取地（栃木県真岡市）が軽部らの報告にある採取地（栃木県鹿沼市）と異なること、本研究で用いた火山灰土凝集剤には、主成分とされる SiO₂、Al₂O₃ 以外にも Fe₂O₃、CaO などの化学成分が 6.8% 含まれ、例えば、Fe、Ca などの成分が懸濁液中で正電荷を発現したこと、本凝集剤は、アロフェンを主成分としつつも少量の量のイモゴライトが混合し、その結果としてアルカリ側においてゼータ電位が正の方向に移動したみられることなどの理由が考えられる。なお、小林らは、イモゴライトの等電点を pH9 付近とし、アロフェンに比べイモゴライトの等電点を与える pH が高いことを報告している^{8),9)}。

火山灰土凝集剤 A の「分散なし」試料のゼータ電位と 3.2.1 で求めた 30min 経過後、60min 経過後の濁度比 R_T をまとめたものを、図-3.3.4 に示す。ゼータ電位が 0 に近い検体のほか、-22mV ~ 23mV の検体についても凝集が進み、30min 経過後に濁度比 R_T が 0.2 以下、60min 経過後には濁度比 R_T が 0.1 以下となった。濃度 C=900mg/L の火山灰土凝集剤 A の凝集・分散特性として、ゼータ

電位の絶対値が 23mV 程度以下であれば、ある程度凝集が進行する結果となった。これは、懸濁液の塩分濃度を 0.01M に調整したことにより電解質濃度が高まり、その結果、粒子を取り巻く電気二重層が圧縮され静電的反発力が弱まり、分子間力が卓越して凝集が進行したこと¹⁷⁾、凝集剤自体が形成するフロックが網目の様な役目を果たし、スイープ凝集 (sweep flocculation) が作用したことによると考えられる⁸⁾。

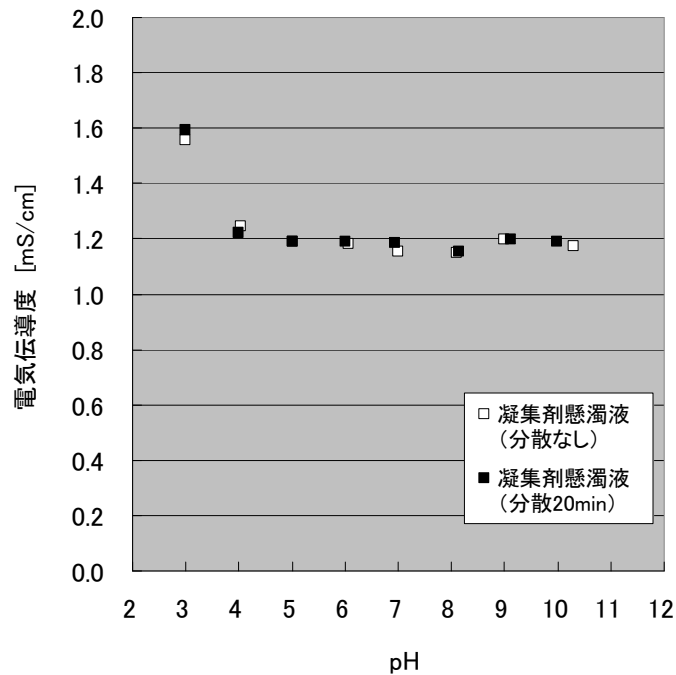


図-3.3.1 火山灰土凝集剤 A 懸濁液の pH と電気伝導度
(濃度 C=900mg/L, NaCl 0.01M)

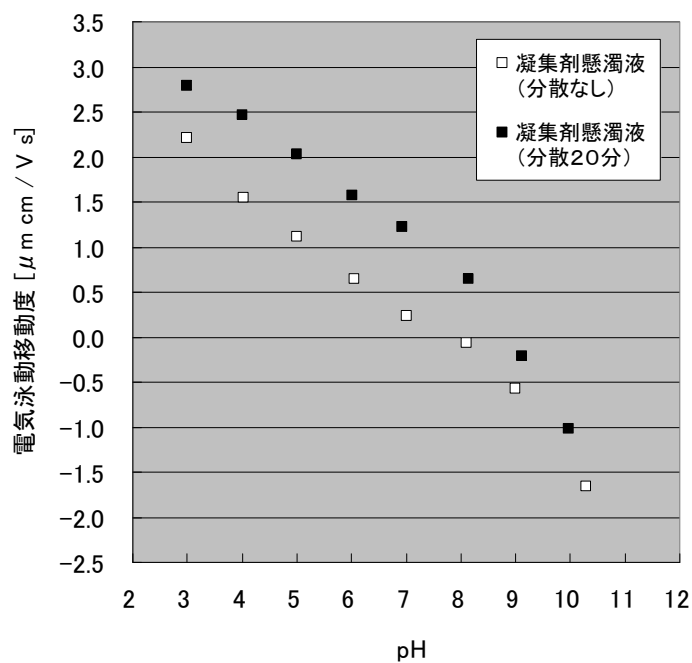


図-3.3.2 火山灰土凝集剤 A 懸濁液の pH と電気泳動移動度
(濃度 C=900mg/L, NaCl 0.01M)

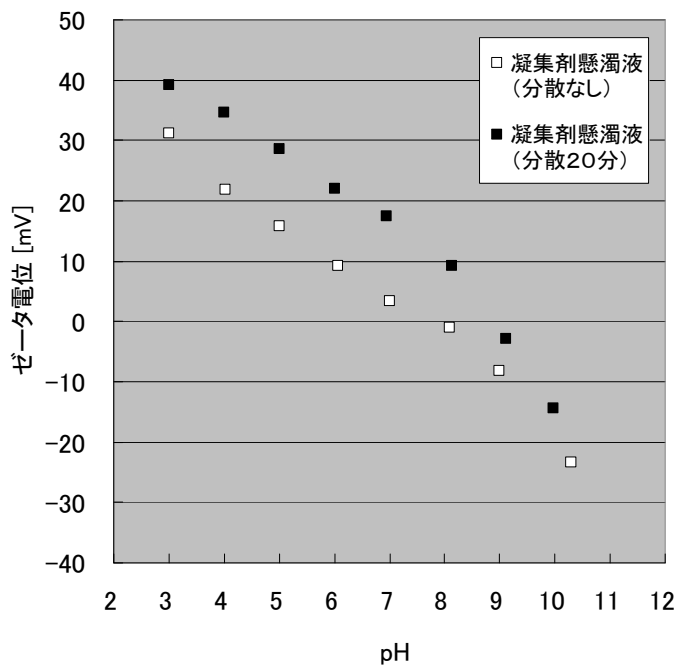


図-3.3.3 火山灰土凝集剤 A 懸濁液の pH とゼータ電位
(濃度 C=900mg/L, NaCl 0.01M)

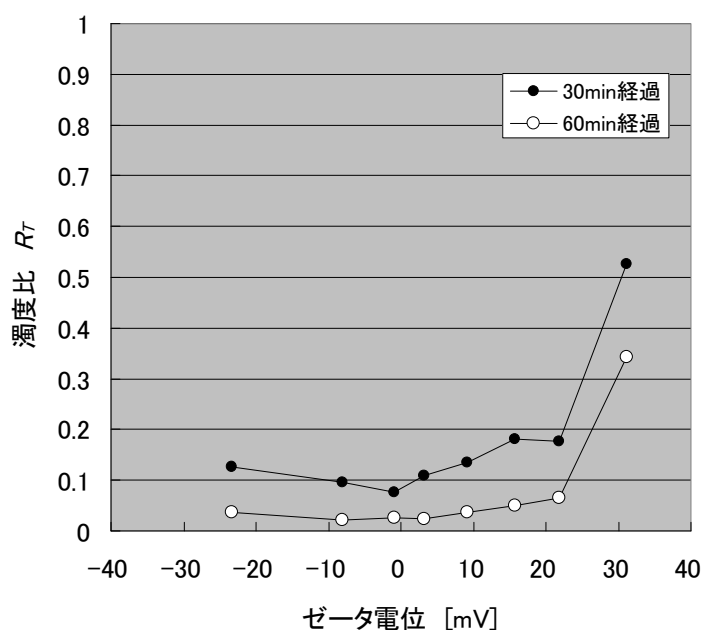


図-3.3.4 火山灰土凝集剤 A 懸濁液の pH・ゼータ電位と濁度比
(濃度 C=900mg/L, NaCl 0.01M)

3.3.2 関東ローム懸濁液の荷電特性

関東ローム懸濁液の pH 条件と濁度の経時変化については、3.2.2 で報告した。ここでは、3.2.2 で作成した試料と同一の条件で試料を作成し、電気泳動移動度を測定した結果を報告する。作成した関東ローム希釈液の濃度は 1,852 mg/L, NaCl 濃度は 0.01M, 目標とする pH は pH3~pH10 の範囲に 5 段階設定した。電気泳動移動度の測定は、3.3.1 と同様、Malvern 社製 Zetasizer Nano ZS を用いた。ゼータ電位の算定には、スモルコフスキー (Smoluchowski) の式を用いた。

電気泳動移動度の測定結果を図-3.3.5 に、ゼータ電位の計算値を図-3.3.6 に示す。また、参考までに火山灰土凝集剤 A 懸濁液 (分散なし) のデータを併記する。ゼータ電位は pH6 より酸性側で正の値、また、pH7 よりアルカリ側で負の値を示した。等電点は pH6 と pH7 の間にあると見られるが、火山灰土凝集剤 A (分散なし) よりも酸性側に位置する。異なる pH 条件における関東ローム懸濁液のゼータ電位は、火山灰質凝集剤 A 懸濁液 (分散なし) と類似した傾向が見られた。これは、関東ロームにもアロフェンが含まれ、酸性側で正に帯電、アルカリ側で負に帯電という火山灰度凝集剤 A の荷電特性が強く影響したものと考えられる。3.2.2 では関東ローム懸濁液について pH5.01 の検体をはじめ pH3.01, pH6.74 の検体で凝集が緩やかに進行すると記述した。等電点よりも酸性側で凝集が緩やかに進行した理由については、関東ロームの凝集が粒子表面の荷電状態のほかには何らかの別の要素が働いたと考えられるが、詳細については不明である。

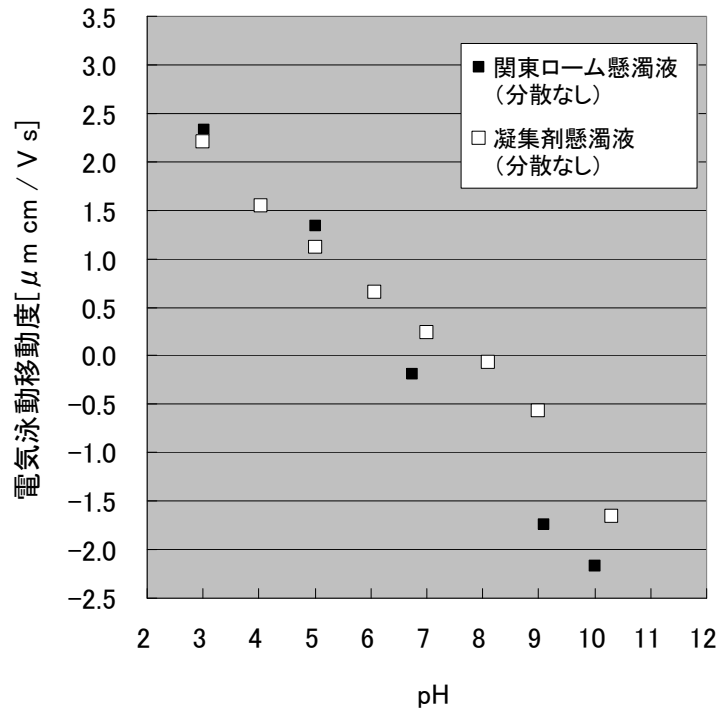


図-3.3.5 関東ローム懸濁液の pH と電気泳動移動度
(濃度 C=1,852mg/L, NaCl 0.01M)

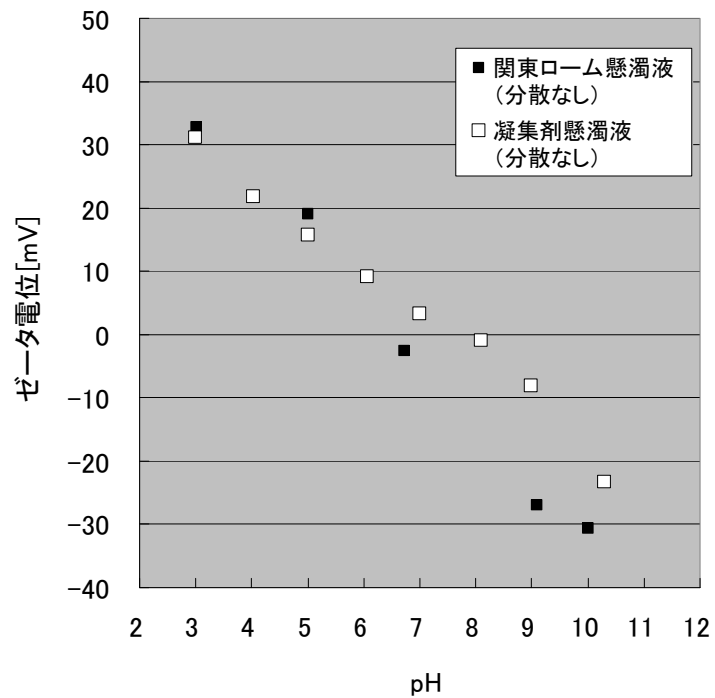


図-3.3.6 関東ローム懸濁液の pH とゼータ電位
(濃度 C=1,852mg/L, NaCl 0.01M)

3.3.3 凝集フロックを含む懸濁液の荷電特性

火山灰土凝集剤 A を用いた関東ローム懸濁液の凝集については、3.2.3 で報告した。ここでは、3.2.3 で作成した凝集フロックを含む懸濁液を採取し、電気泳動移動度を測定した結果を報告する。なお、凝集フロックの作成からゼータ電位の測定までに期間が経ったことから、凝集フロックを含む懸濁液の pH を再度測定し、表-3.3.2 にまとめた。電気泳動移動度の測定は、3.3.1 と同様、Malvern 社製 Zetasizer Nano ZS を用いた。ゼータ電位の算定には、スモルコフスキー (Smoluchowski) の式を用いた。

電気泳動移動度の測定結果を図-3.3.7 に、ゼータ電位の計算値を図-3.3.8 に示す。また、参考までに火山灰土凝集剤 A 懸濁液（分散 20min）のデータを併記する。凝集フロックの懸濁液の pH は、42 day の間に酸性の検体・アルカリ性の検体とも中性の方向に収束した。これは、凝集フロックに多くのアロフェンが含まれ、酸性の検体にあつては正電荷を、また、アルカリ性の検体にあつては負電荷を吸着したことが原因と推定される。ゼータ電位は pH7 より酸性側で正の値、アルカリ側で負の値を示した。等電点は pH7 近傍にあると見られるが、火山灰土凝集剤 A（分散 20min）よりも酸性側に位置する。

凝集フロックを含む懸濁液のゼータ電位と 3.2.3 で求めた 30min 経過後、60min 経過後の濁度比 R_T をまとめたものを、図-3.3.9 に示す。ゼータ電位が 0 に近い検体については凝集が最も進行し、ゼータ電位の絶対値が増加するに従い凝集の進行が遅れる傾向が見られた。pH6.53 では、火山灰土凝集剤 A 懸濁液（分散 20min）は正に（図-3.3.3）、また関東ローム懸濁液は、わずかながら負に帯電している（図-3.3.6）。火山灰土凝集剤 A を用いた関東ローム懸濁液の凝集については、荷電中和による凝集のほか、凝集剤自体が形成するフロックが網目の様な役目を果たし、関東ローム粒子を絡み取るようなスイープ凝集 (sweep flocculation) が作用したと考えられる⁸⁾。

表-3.3.2 凝集フロックを含む懸濁液の pH

凝集時 pH 2012/08/09	ゼータ電位 測定時pH 2012/09/20
3.00	4.12
5.01	6.02
6.53	6.53
8.17	7.21
10.11	8.01

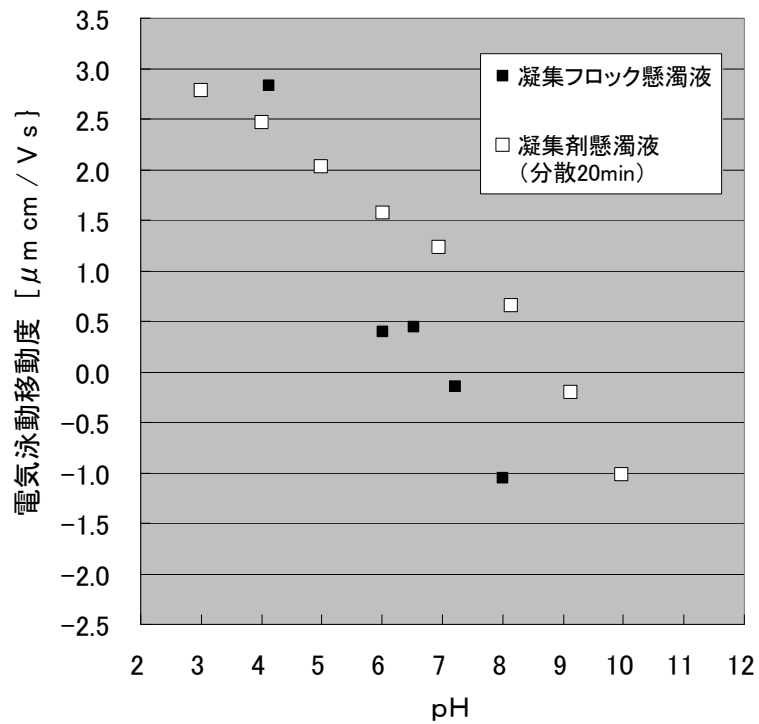


図-3.3.7 凝集フロックを含む懸濁液の pH と電気泳動移動度

(関東ローム濃度 C=1, 852mg/L, 火山灰土凝集剤 A の濃度 C=3, 700mg/L, NaCl 0.01M)

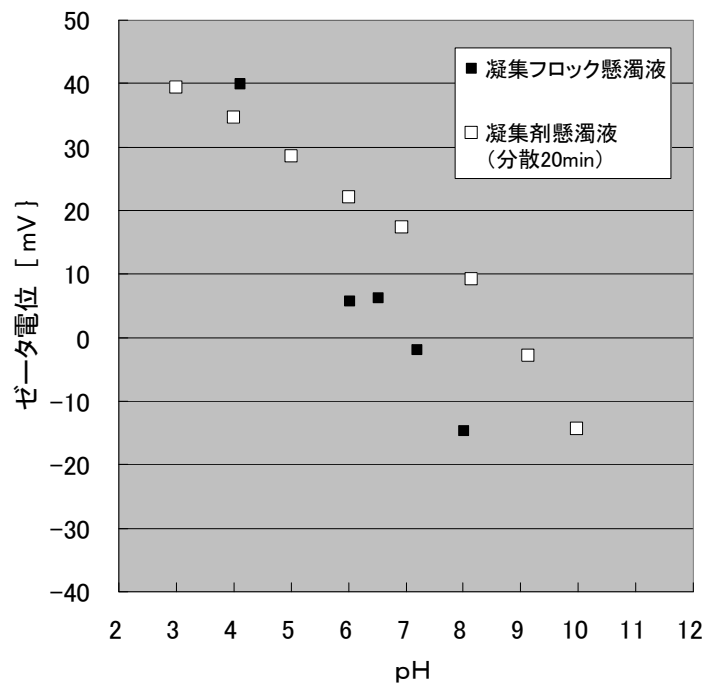


図-3.3.8 凝集フロックを含む懸濁液の pH とゼータ電位

(関東ローム濃度 C=1, 852mg/L, 火山灰土凝集剤 A の濃度 C=3, 700mg/L, NaCl 0.01M)

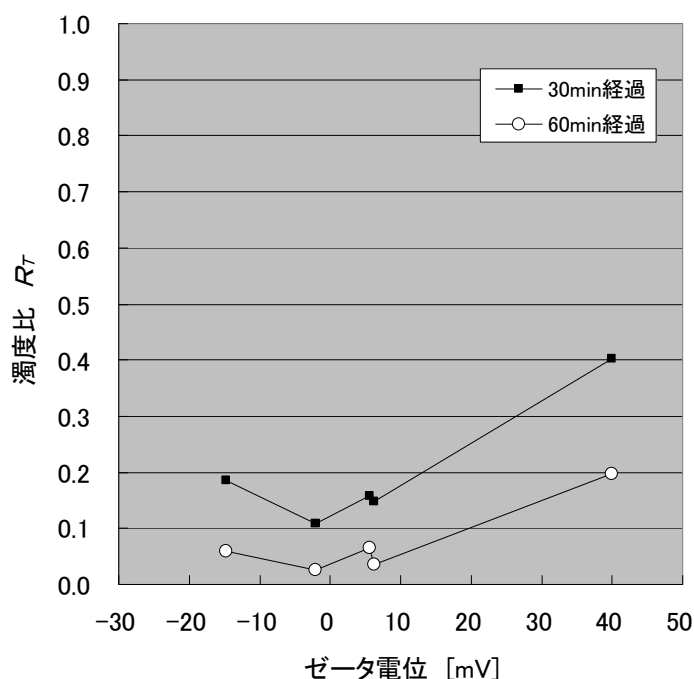


図-3.3.9 凝集フロックを含む懸濁液の pH・ゼータ電位と濁度比

(関東ローム濃度 C=1, 852mg/L, 火山灰土凝集剤 A の濃度 C=3, 700mg/L, NaCl 0.01M)

3.3.4 火山灰土由来の無機凝集剤の形状観察

3.3.1 では、火山灰土凝集剤 A の荷電特性について検討した。電気泳動移動度を測定した結果、火山灰土凝集剤 A の等電点は「分散なし」の試料で pH8 付近となり、軽部らの報告⁵⁾にある pH5.1 (脱鉄試料) あるいは pH5.9 (非脱鉄試料) よりもアルカリ側に位置した。その理由の一つに、火山灰土凝集剤 A はアロフェンを主成分としつつも少量のイモゴライトが混合し、その結果としてアルカリ側においてゼータ電位が正の方向に移動したと考えられた。ここでは、電子顕微鏡を用いて火山灰土凝集剤 A ならびに (株) アステックより市販されている火山灰土凝集剤 (ここでは、「火山灰土凝集剤 B」と略す。) の形状を観察し、凝集剤を構成する鉱物について考察する。火山灰土凝集剤 B は既報¹⁸⁾によると、火山灰土中のプラスの電荷をもつ粘土鉱物を水によく分散させたものであり、原液の比重は 1.1, pH はやや酸性の 4.5~5.5 とされる。凝集剤の形状観察には、日本電子 (株) 製走査型電子顕微鏡 JSM-7001F ならびに同社製透過型電子顕微鏡 JEM-2100F を用いた。

撮影した画像を、写真-3.3.1~3.3.8 に示す。走査型顕微鏡で撮影した画像は、粒子の立体感がよく表現されている。一方、透過型顕微鏡で撮影した画像は、粒子の輪郭が明瞭に現れている。火山灰土凝集剤 A は、基幹となる糸状の粒子の周辺に球状の粒子が絡みついて団粒を形成している状況が観察される。試料が火山灰土であることを考慮すると、糸状の粒子はイモゴライト、団粒状の粒子はアロフェンと見られる。写真-3.3.4 に示した火山灰土凝集剤 A の画像は軽部らの報告⁵⁾にある

黒ボク土下層土と類似した形状を示している。画像を見る限り火山灰土凝集剤 A に含まれるイモゴライトは少量と観察されるが、試料の荷電特性、つまり、等電点が「分散なし」の試料で pH8 付近となった状況から判断すると、少量のイモゴライトが火山灰土凝集剤 A の凝集・分散特性を支配しているものと考えられる。

一方、火山灰土凝集剤 B については、ほとんど繊維状粒子で占められている。写真-3.3.8 に示した火山灰土凝集剤 B の画像は軽部らの報告⁵⁾にある脱鉄イモゴライト(pH7.8)と類似した形状を示している。製造元によると当該凝集剤の材料は火山灰土中のプラスの電荷をもつ粘土鉱物であることから、火山灰土凝集剤 B の成分の多くは、イモゴライトが占めていると考えられる。

以上の観察により、火山灰土凝集剤 A はアロフェンを主成分としつつも少量のイモゴライトが混合し、この少量のイモゴライトが荷電特性ならびに凝集・分散特性を大きく支配しているものと考えられた。

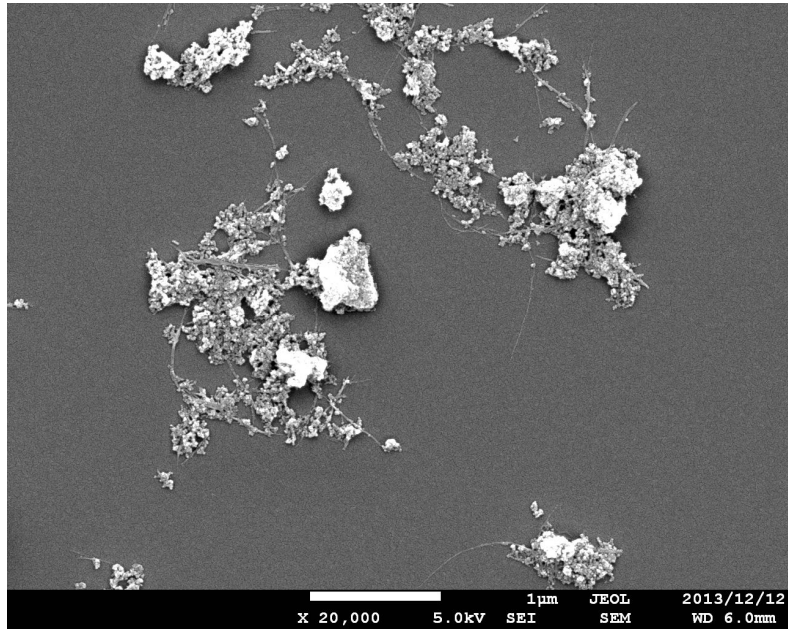


写真-3.3.1 火山灰土凝集剤 A ×20000 走査型顕微鏡

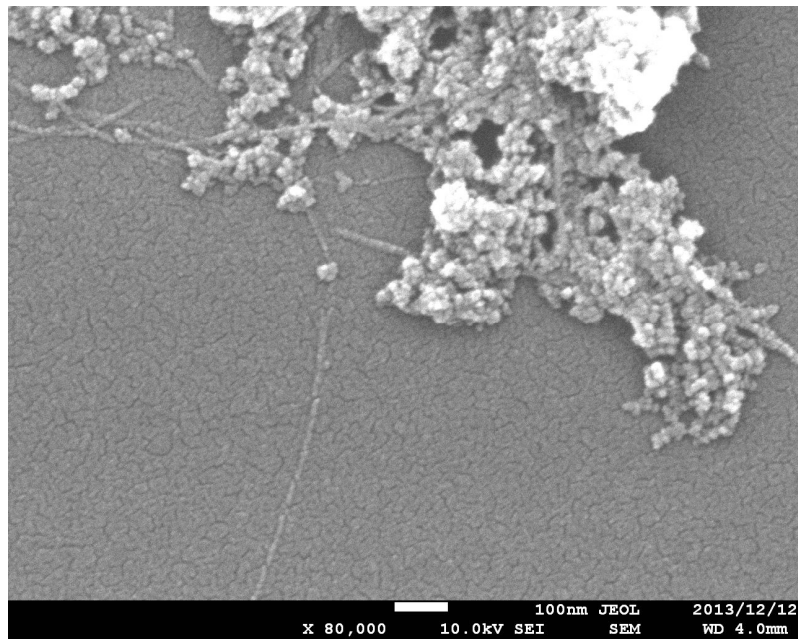


写真-3.3.2 火山灰土凝集剤 A ×80000 走査型顕微鏡

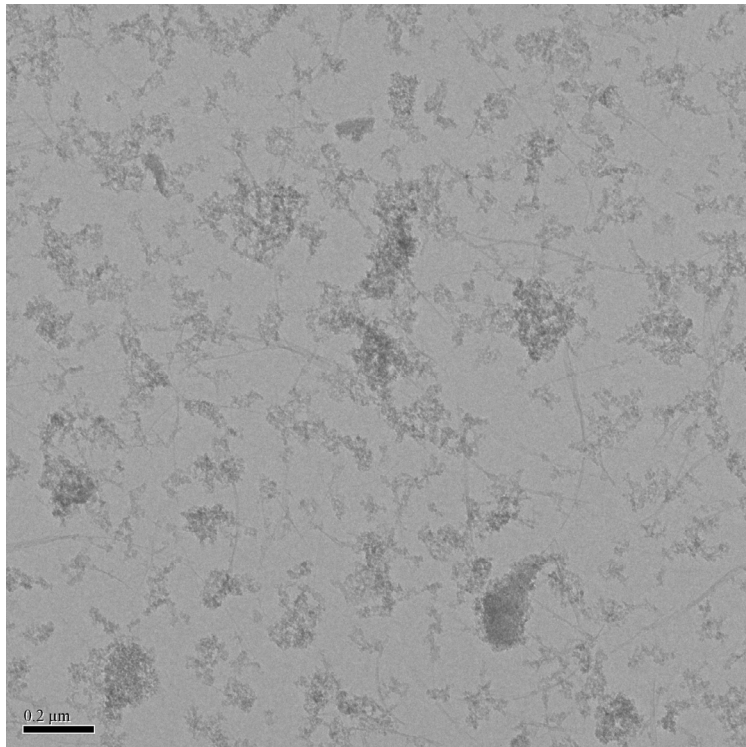


写真-3.3.3 火山灰土凝集剤 A ×10000 透過型顕微鏡

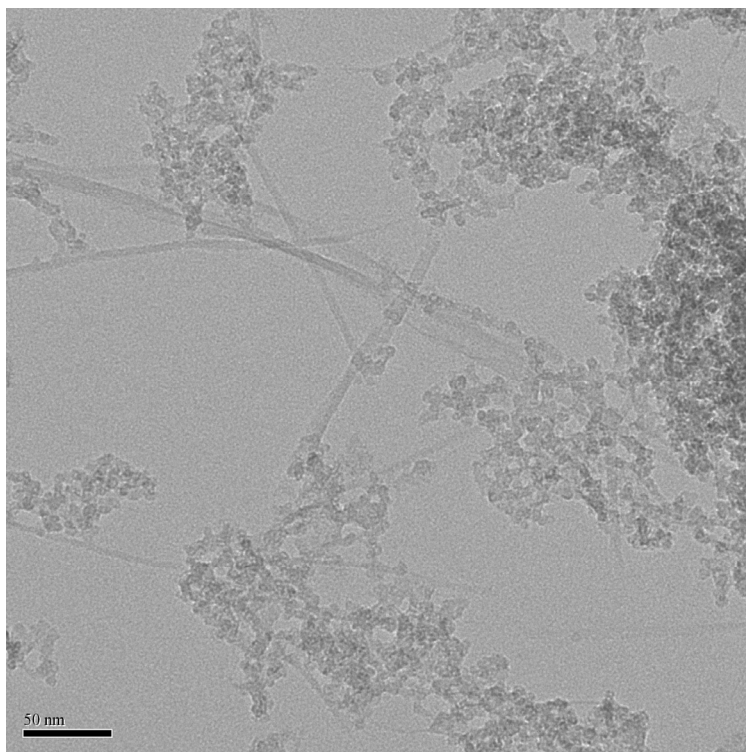


写真-3.3.4 火山灰土凝集剤 A ×50000 透過型顕微鏡

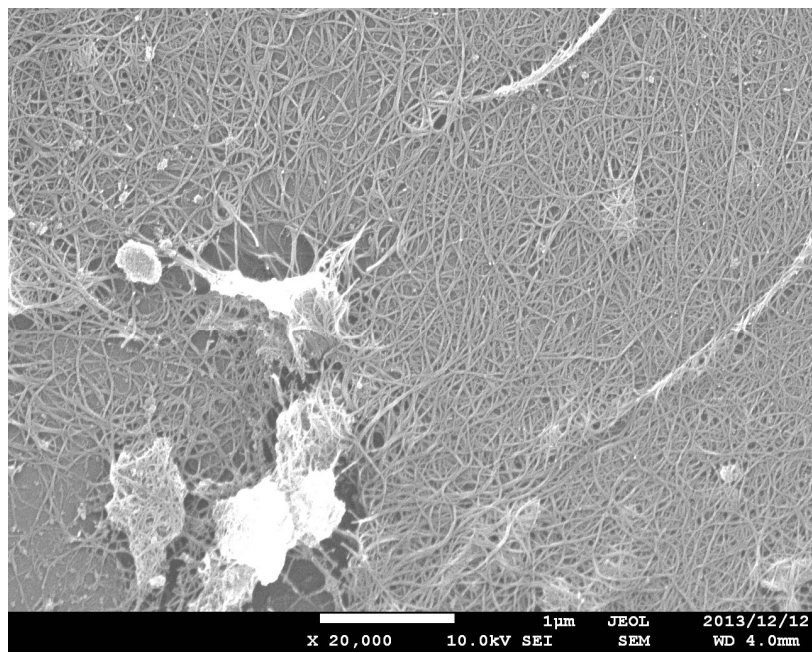


写真-3.3.5 火山灰土凝集剤 B ×20000 走査型顕微鏡

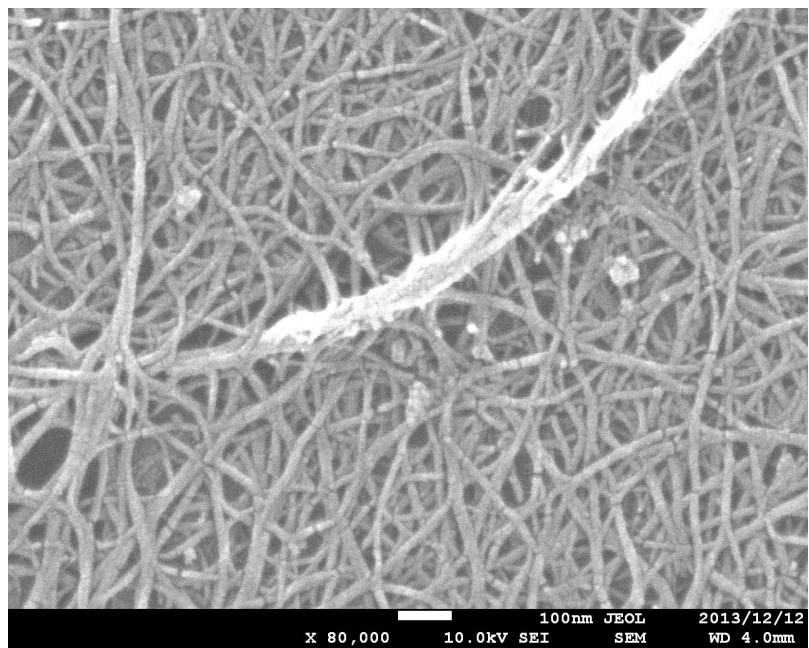


写真-3.3.6 火山灰土凝集剤 B ×80000 走査型顕微鏡

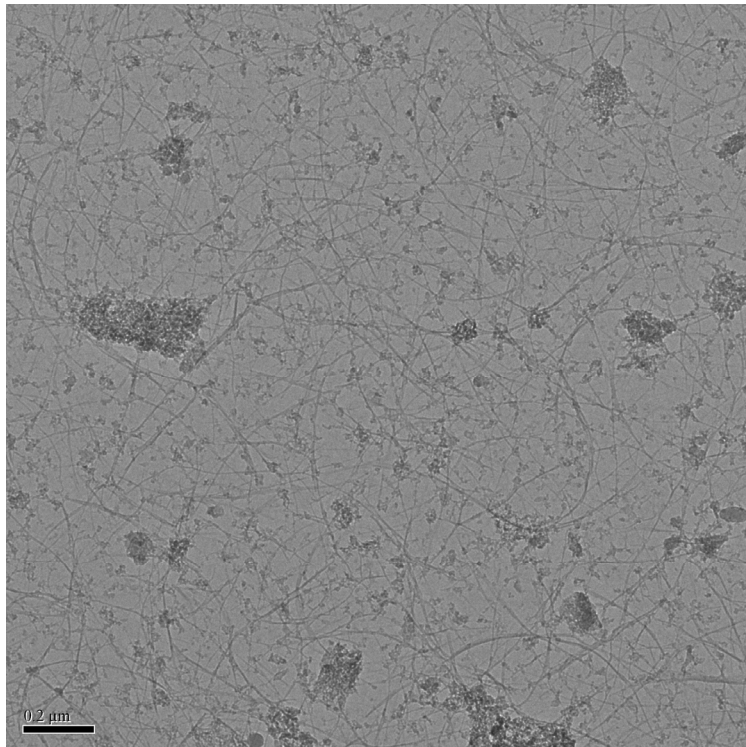


写真-3.3.7 火山灰土凝集剤 B ×10000 透過型顕微鏡

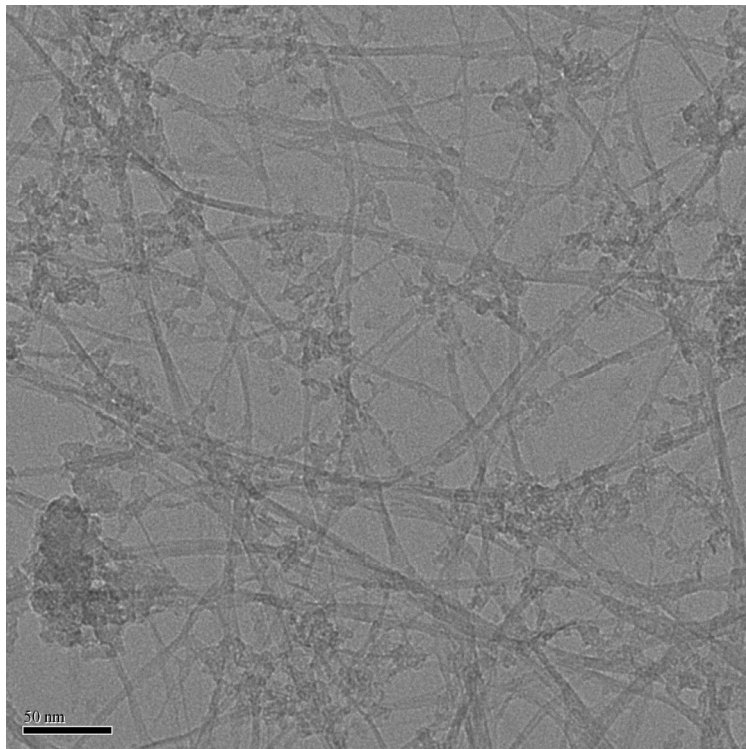


写真-3.3.8 火山灰土凝集剤 B ×50000 透過型顕微鏡

3.4 まとめ

わが国の既設ダムの中には、大規模出水後の貯水池の懸濁化により、下流河川に濁水を長期間放流する事例も見られ、問題解決が急務である。貯水池の濁水長期化の対応として凝集剤を用いた土粒子の強制沈降が考えられるが、一般に用いられる人工の合成材料では、沈降した凝集フロックを別途処理する必要も生じることから、運用実績はほとんど見あたらない。本研究では、凝集剤として環境負荷の少ない火山灰土由来の無機凝集剤を取り上げ、凝集特性を明らかにするとともに貯水池における利用方法について提案する。

天然由来の土コロイドのうち、アロフェンおよびイモゴライトは凝集剤としての活用が考えられる。アロフェンならびにイモゴライトについては、凝集・分散機構を把握した既往研究がいくつか挙げられる。しかしながら、既往研究では、粘土鉱物の特性を的確に把握する都合上、試料の精製に多大な労力を要しており、貯水池に散布する凝集剤の製造法としては採用することが難しい。第3章では、既往研究では紹介されていない安価でかつ大量に調達可能な火山灰土由来の無機凝集剤（火山灰土凝集剤 A）を取り上げ、当該凝集剤の特性を把握することを目標に、凝集剤の凝集・分散と荷電特性について整理した。第3章の結論を、以下にまとめる。

- ・火山灰土凝集剤 A のゼータ電位は、超音波分散を加えない試料で pH7 より酸性側で正の値、また、pH9 よりアルカリ側で負の値を示した。
- ・火山灰土凝集剤 A のゼータ電位は、超音波分散を加えることにより正の方向に移動した。これは超音波を照射することにより火山灰土凝集剤 A のフロックが破壊され、各粒子が分散媒と接する面積が増大したことに起因すると考えられる。
- ・火山灰土凝集剤 A の等電点（ゼータ電位が 0 となる点）は「分散なし」の試料で pH8 付近となり、軽部らの報告⁵⁾にある pH5.1（脱鉄試料）あるいは pH5.9（非脱鉄試料）よりもアルカリ側に位置した。これは、本研究で用いた火山灰土凝集剤 A には、主成分とされる SiO₂、Al₂O₃ 以外にも Fe₂O₃、CaO などの化学成分が 6.8%含まれ、例えば、Fe、Ca などの成分が懸濁液中で正電荷を発現したこと、本凝集剤は、アロフェンを主成分としつつも少量のイモゴライトが混合し、この少量のイモゴライトが荷電特性ならびに凝集・分散特性を大きく支配しているものと考えられた。
- ・火山灰土凝集剤 A 懸濁液、関東ローム懸濁液に比べ、関東ローム懸濁液に火山灰土凝集剤 A を投入した検体に、高い凝集効果が見られた。
- ・火山灰土凝集剤 A を用いた関東ローム懸濁液の凝集については、荷電中和による凝集のほか、凝集剤自体が形成するフロックが網目の様な役目を果たし、関東ローム粒子を絡み取るようなスイープ凝集（sweep flocculation）が作用したと考えられた。

本章の検討により，安価でかつ大量に調達可能な火山灰土由来の無機凝集剤について，貯水池の利用を考える上で必要不可欠な情報である凝集・分散と荷電特性が明らかとなった．当該凝集剤を用いた効果的・効率的な凝集処理手法については，第5章で取り扱う．

第3章の参考文献

- 1) 坂本博文：真名川ダムの濁水長期化対策について，ダム技術No.263, pp.82-86, 2008.8
- 2) 左近重信, 杉村重憲, 中田朋樹：早明浦ダム選択取水設備運用方法の構築について，ダム技術No.178, pp.57-73, 2001.7
- 3) 高橋剛：川治ダムにおける濁水長期化軽減対策について，平成17年度国土交通省国土技術研究会自由課題，2005.10
- 4) 鈴木弘二，小林俊英：浦山ダム清水バイパスの初年度の運用と効果，ダム技術No.269, pp.40-49, 2009.2.
- 5) 軽部重太郎，杉本英夫，藤平雅巳，中石克也：アロフェンとイモゴライトの分散凝集と荷電特性，農業土木学会論文集，No.196, pp.103-110, 1998.8
- 6) Y. Adachi, S. Koga, M. Kobayashi and M. Inada: Study of colloidal stability of allophane dispersion by dynamic light scattering, *Colloids and Surfaces A*, No.265, pp.149-154, 2005.
- 7) H. Tsuchida, S. Oki, K. Nakaishi, and Y. Adachi: Effects of pH and ionic strength on electrokinetic properties of imogolite, *Colloids and Surfaces A*, No.265, pp.131-134, 2005.
- 8) 小林幹佳，似内美貴，大内岳，高橋政之輔，颯田尚哉，足立泰久：モデルコロイドの凝集沈降実験に基づく天然粘土鉱物イモゴライトの濁水凝集機構，土木学会論文集B1（水工学）Vol.68, No.4, I_787-I_792, 2012.
- 9) M. Kobayashi, M. Nitani, N. Satta and Y. Adachi: Coagulation and charging of latex particles in the presence of imogolite, *Colloids and Surfaces A*, No.435, pp.139-146, 2013.
- 10) 中原治：アロフェン・イモゴライト，土のコロイド現象，pp.40，学会出版センター，2003.
- 11) 柏井条介，結城和宏：天然凝集材（アロフェン）の濁水凝集効果，ダム技術 No.239, pp.20～28, 2006.8
- 12) 足立泰久：コロイド界面現象の動的基礎（上），pp.133～135，イセブ，2003.2
- 13) 近藤保，大島広行，村松延弘，牧野公子：生物物理化学，pp.110～113, pp.120～122，三共出版，1992.3
- 14) J. Gregory and J. Duan: Hydrolyzing metal salts as coagulant, *Pure and Applied Chemistry*, No.73, pp.2017-2026, 2001.
- 15) 品川化成（株）ホームページ，<http://www.shinagawa.co.jp/>
- 16) 例えば，足立泰久：コロイド界面現象の動的基礎（上），pp.146，イセブ，2003.2
- 17) 例えば，足立泰久：コロイド界面現象の動的基礎（上），pp.111，イセブ，2003.2
- 18) 尾崎哲二，高田史朗，家永陽二郎，内海太陽，来嶋泰志，和田信一郎：火山灰土を原料とした凝集剤による水質浄化事例，土木学会第64回年次学術講演会概要集第VII部門，pp.51-52，2009.9.

第4章 微細粒子土砂の沈降現象

第2章では、従来から一般的に用いられているレーザー回折法を用いた粒度分布にストークス式を当てはめた場合、沈降速度を大きく算定する傾向があると報告した。沈降速度が過大に算定される原因としては、土粒子の形状が球形ではなく不均一であること、沈降速度が土粒子の濃度によっても変化すること、土粒子が単一粒子のみではなく、フロックを形成していることなどが考えられた。一方、土粒子の粒度分布・沈降速度分布を論じた既往文献においても、レーザー回折法による粒度分布を基に設定した沈降速度が沈降実験により計測した沈降速度と異なる場合があるとの指摘がなされている¹⁾。しかしながら、既往文献では粒度分布の補正方法、沈降速度分布の補正方法については言及しておらず²⁾、沈降速度分布の適切な設定方法の提案が望まれる。

本研究では、従来行われていたレーザー回折法による粒径分布にストークス式やルベイス式等を適用して沈降速度分布を設定する手法に問題意識を持ち、沈降速度を適切に評価する手法の提案を目指す。本章では、第2章、第3章で取り扱った凝集フロックならびに土粒子を対象に沈降速度を直接計測し、粒径との関係を明らかにする。さらに、レーザー回折法を用いて得られた粒度分布に土粒子の沈降速度の計測により得られた密度関数を適用し、沈降速度分布の新たな設定方法を提案する。

4.1 モデルフロックの沈降現象

粘土などの自然界のコロイド粒子は、不規則な形状をしており、球であることはほとんどない。また、小さなコロイド粒子どうしはファンデルワールスカにより凝集し、内部に大きな空隙を有したフロックを形成する³⁾。ここでは第3章で作成した関東ロームの凝集フロックならびに関東ロームと火山灰土凝集剤Aの凝集フロックを取り上げ、水中における沈降現象を把握する。

4.1.1 フロックの粒径と沈降速度

フロックの粒径と沈降速度については、足立らの研究がある^{3), 4)}。足立らは、フロックを構成する粒子数*i* [個]とフロック径 D_f [m]との関係は近似的に、

$$i = \left(\frac{D_f}{d_0} \right)^D \quad (4.1.1)$$

と記述できるとしている。ここで、 d_0 は粘土粒子1個の粒径[m]、 D はフラクタル次数である。一方、沈降するフロックを球と仮定し、流体の抵抗則としてストークス則を用いれば、流体から受ける抵抗と密度差による沈降の駆動力が等しいと置いて、沈降時の釣り合いが、

$$3\pi D_f \mu V_f = \frac{\pi}{6} D_f^2 \Delta\rho_{f_e} g \quad (4.1.2)$$

と表わされる．ここで， μ は粘性係数[Pa·s]， V_f はフロクの沈降速度[m/s]， $\Delta\rho_{f_e}$ はフロクの沈降に有効となるフロクの占める部分と周囲の流体との密度の差[kg/m³]， g は重力加速度[m/s²]である．ここで， $\Delta\rho_{f_e}$ は，

$$\Delta\rho_{f_e} = \frac{d_0^3 i (\rho_s - \rho_w)}{D_f^3} = \left(\frac{D_f}{d_0} \right)^{D-3} (\rho_s - \rho_w) \quad (4.1.3)$$

と表される． ρ_s は粘土粒子の密度[kg/m³]， ρ_w は流体の密度[kg/m³]である．式(4.1.3)を，フロクの密度関数と称する．式(4.1.3)を式(4.1.2)に代入して V_f について解くと，

$$V_f = \frac{g}{18\mu} (\rho_s - \rho_w) d_0^{3-D} D_f^{D-1} \quad (4.1.4)$$

となる．式 (4.1.4) に基づいて V_f を D_f の関数として測定することによって，フラクタル次数 D や単一粒子の粒径 d_0 が求められ，フロクの有効密度 $\Delta\rho_{f_e}$ を求められる．フラクタル次数 D は3より小さく，フロク径が増加するとともにフロクの有効密度 $\Delta\rho_{f_e}$ は， $\left(\frac{D_f}{d_0} \right)$ のべき乗の関係で減少する．

4.1.2 実験方法

第3章で述べた関東ローム懸濁液の凝集フロクならびに関東ローム懸濁液と火山灰土凝集剤Aの凝集フロクを採取し，水中に滴下し粒径と沈降速度を測定した．対象とした試料の諸元と測定倍率を，表-4.1.1に示す．

粒径と沈降速度の測定には，図-4.1.1に示す測定装置を用いた．測定装置は恒温装置，恒温水槽，ビデオカメラ，モニターならびにビデオデッキから構成され，恒温水槽内には沈降管を設置した．恒温水槽には水道水を満たし，沈降管には純水を満たして，水槽内は常時20℃を維持した．測定に先立ち，沈降管内に鋼尺を浸漬させ，モニター上で目盛りを読み取り，倍率を確認した．倍率はビデオカメラのズーム機能を用いて150～200倍程度と260～290倍程度の2段階に設定した（表-4.1.1）．凝集フロクの滴下にはマイクロピペットを用い，沈降管の上部から少量滴下した．滴下後はモニターでフロクの沈降を監視するとともに，動画を記録した．動画の記録は各倍率とも30min～60min間とした．沈降現象を記録後にテープを再生し，モニター上で一定距離（沈降管内で0.5mmまたは1.0mm）の沈降に要する時間と鉛直方向に投影した粒径を記録した．また，粒径の測定にはノギスを用いた．測定したフロクの数，各試料40個である．

表-4.1.1 粒径、沈降速度測定対象試料

試料No.	1	2	3	4
試料区分	関東ローム	関東ローム + 火山灰土凝集剤A	関東ローム + 火山灰土凝集剤A	関東ローム + 火山灰土凝集剤A
懸濁液pH	3.01	6.53	8.17	10.01
NaCl濃度	0.01M	0.01M	0.01M	0.01M
測定倍率	200倍 290倍	150倍 290倍	150倍 274倍	150倍 264倍

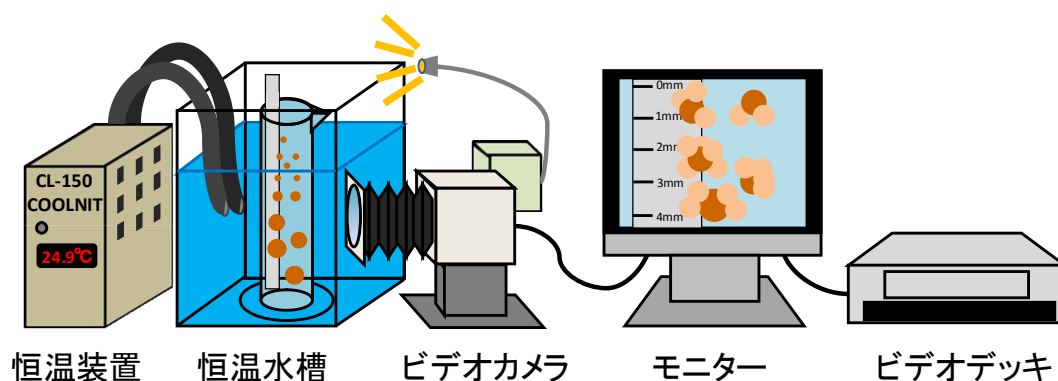
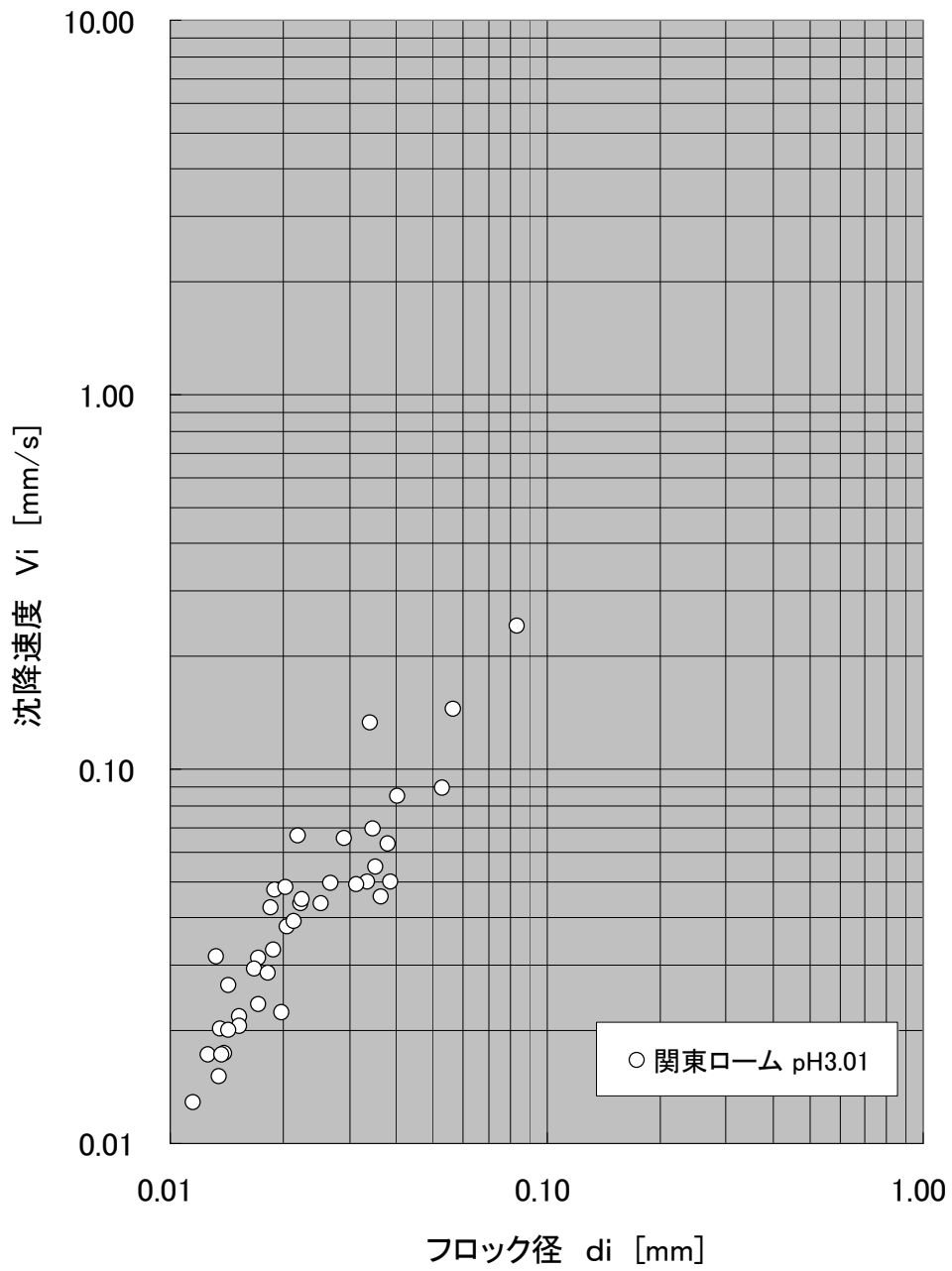


図-4.1.1 粒径・沈降速度測定装置

4.1.3 実験結果

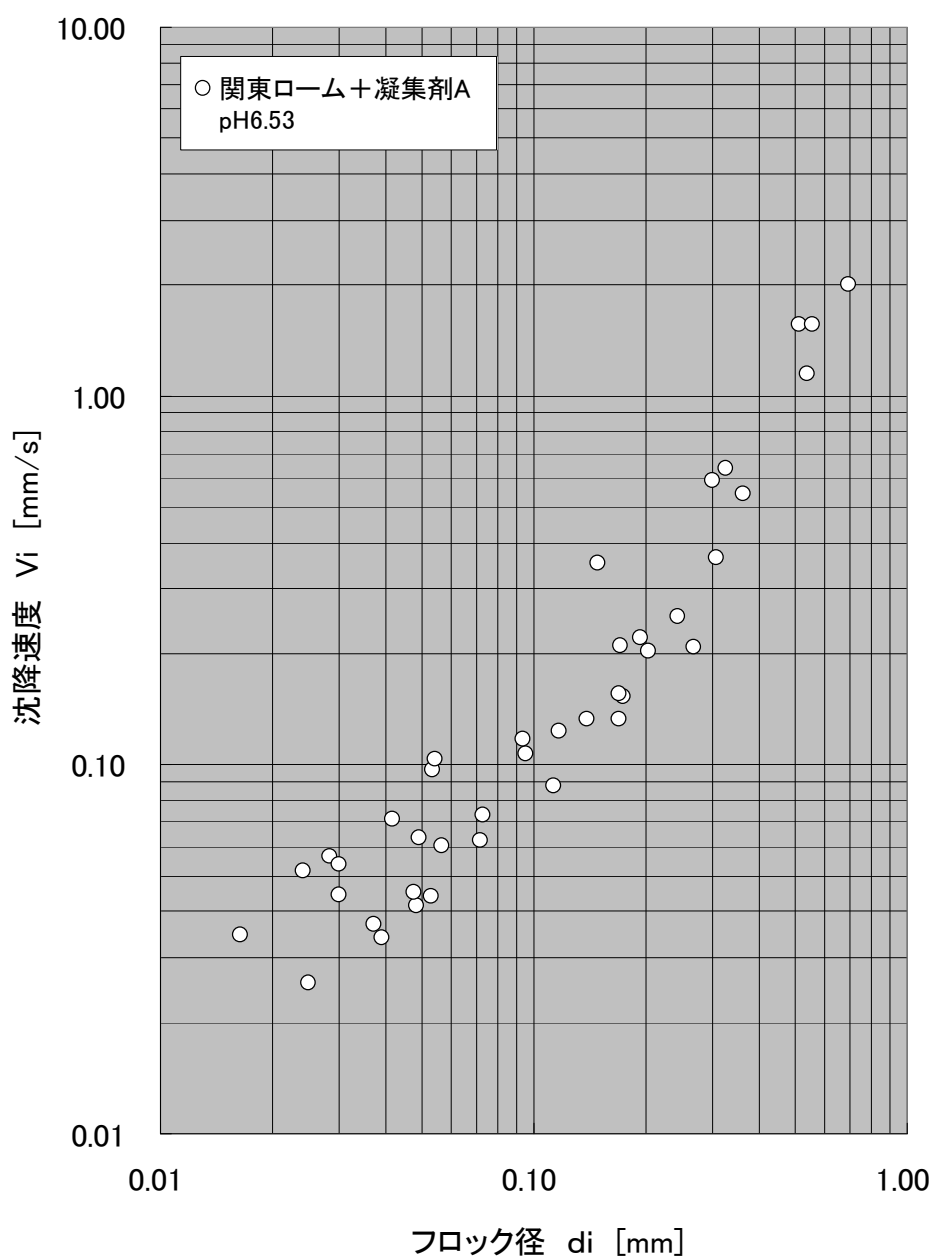
測定した各試料の粒径と沈降速度を、図-4.1.2～図-4.1.5に示す。測定した粒径の範囲は試料1では約10～100 μm 、試料2～4では、約15～900 μm である。各試料ともフロックの粒径と沈降速度は両対数紙上でほぼ直線上にプロットされ、良好な相関が得られた。フロックの形状の1例として、試料3 (pH8.17)の画像を写真-4.1.1～写真-4.1.2に示す。関東ロームと火山灰土凝集剤Aによって形成されたフロックはポーラスで、フロックの有効密度が単一の土粒子の有効密度より小さいことがうかがえる。それぞれの試料について直線回帰分析をおこないフラクタル次数 D を求めた結果を表-4.1.2に示す。フラクタル次数 D は2.08～2.38の間に分布し、試料間に大きな差異は見られなかった。これは、各試料とも電解質としてNaCl濃度を0.01Mに固定したことから、類似した縮まり具合のフロックが形成されたことによると考えられる。



$D = 2.26$

図-4.1.2 フロック径と沈降速度 (試料1)

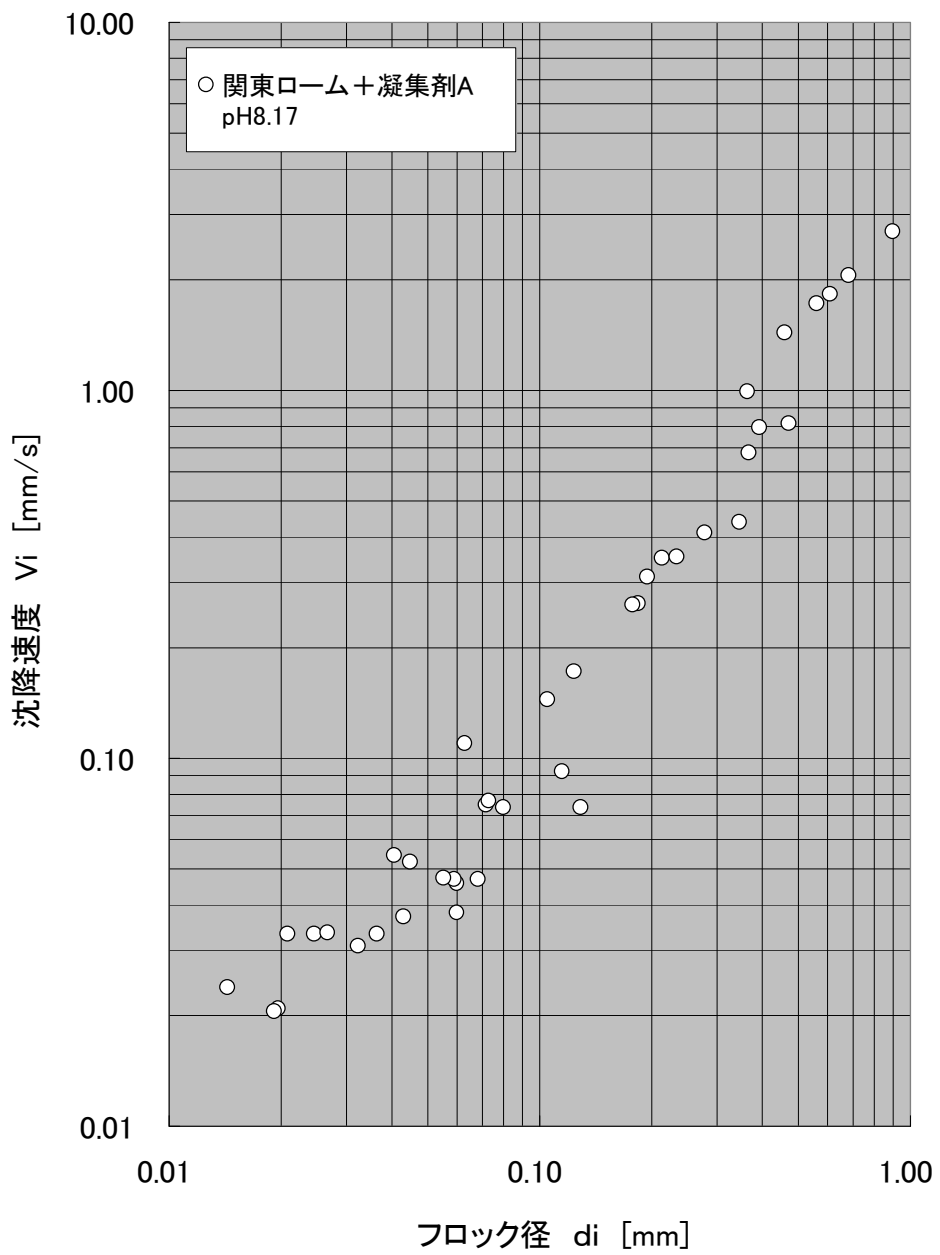
(関東ローム懸濁液 NaCl 0.01M pH3.01)



$D = 2.08$

図-4.1.3 フロク径と沈降速度 (試料2)

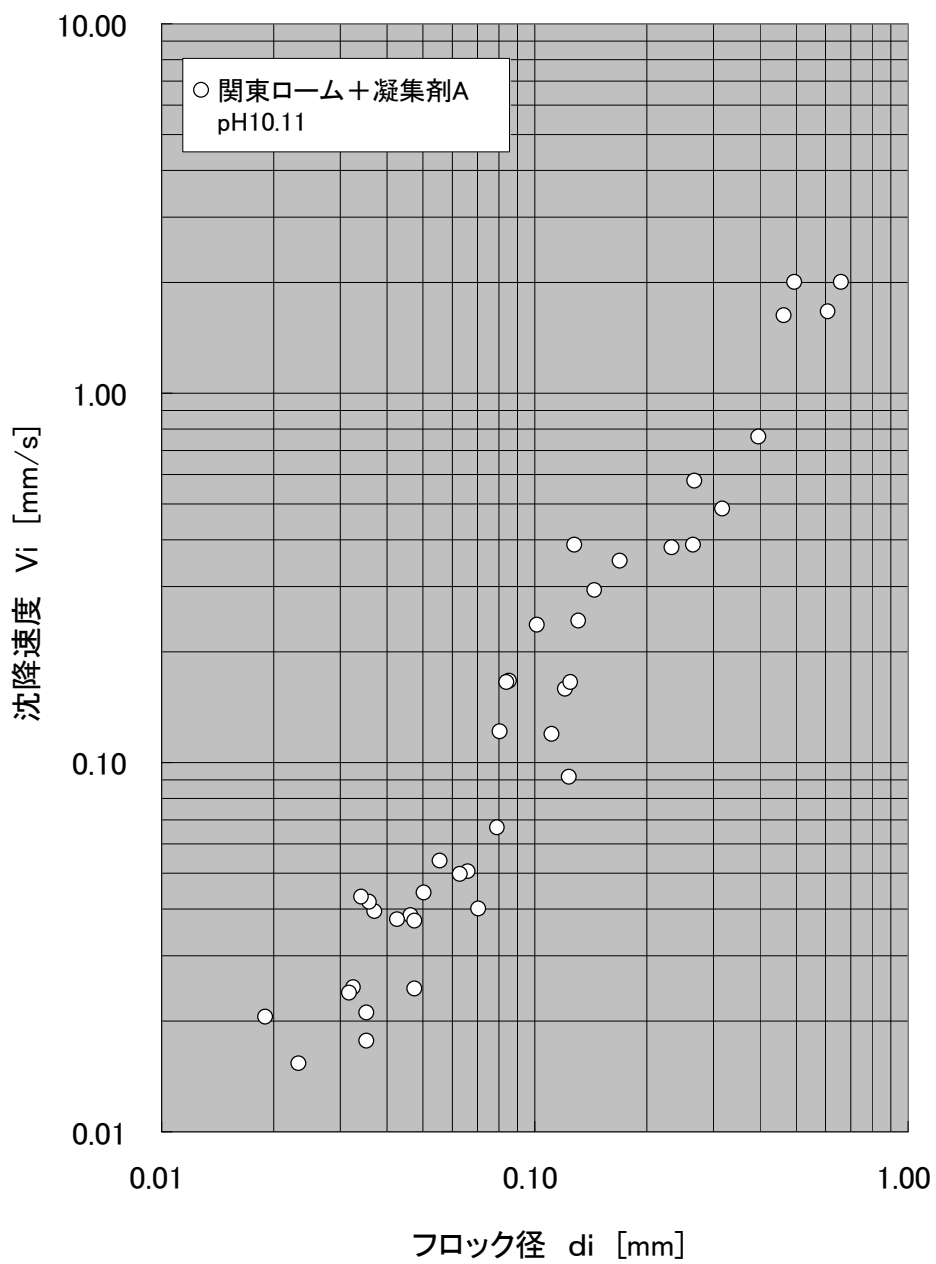
(関東ローム+火山灰土凝集剤A 懸濁液 NaCl 0.01M pH6.53)



$D = 2.25$

図-4.1.4 フロック径と沈降速度 (試料3)

(関東ローム+火山灰土凝集剤A 懸濁液 NaCl 0.01M pH8.17)



$$D = 2.32$$

図-4.1.5 フロック径と沈降速度 (試料4)

(関東ローム+火山灰土凝集剤A 懸濁液 NaCl 0.01M pH10.11)

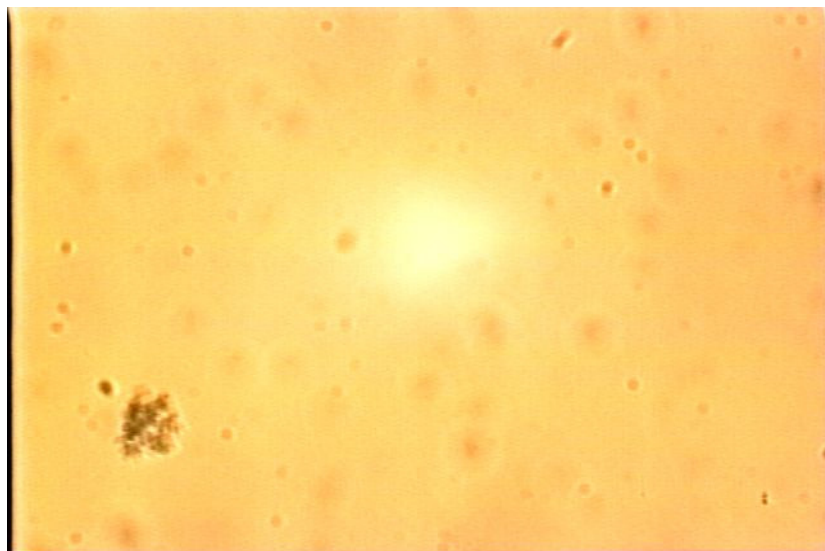


写真-4.1.1 フロックの形状 (試料3) (1)

(関東ローム+火山灰土凝集剤A懸濁液 NaCl 0.01M pH8.17)

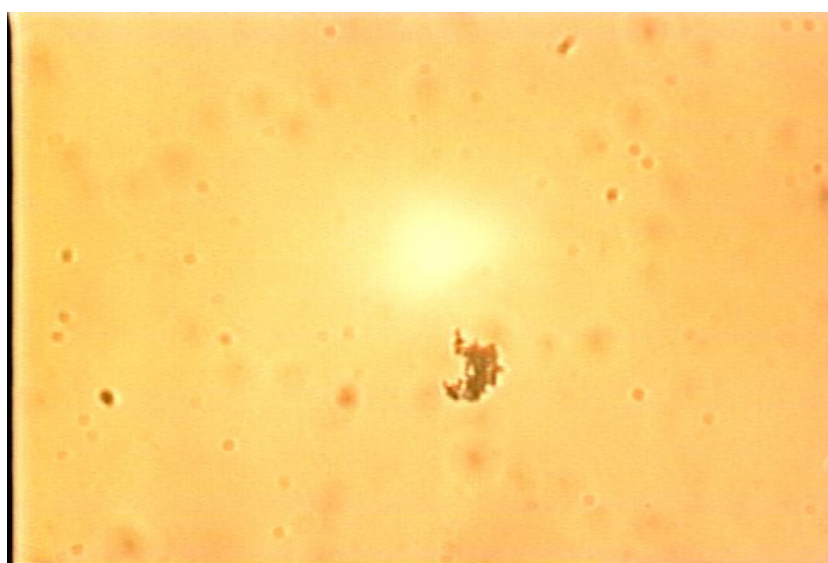


写真-4.1.2 フロックの形状 (試料3) (2)

(関東ローム+火山灰土凝集剤A懸濁液 NaCl 0.01M pH8.17)

表-4.1.2 各試料のフラクタル次数

試料No.	1	2	3	4
フラクタル 次数 D	2.26	2.08	2.25	2.32

4.2 現地採取した土粒子の沈降現象

前節では、関東ロームの凝集フロックならびに関東ロームと火山灰土凝集剤 A の凝集フロックを取り上げ、水中における沈降現象を把握した。本節では、出水時に河川を流下する土粒子を取り上げ、前節と同様の手法により水中での沈降現象を把握する。

4.2.1 実験方法

出水時に現地より採取した濁水を対象に、土粒子の粒径と沈降速度を測定した。測定対象とした試料は、2.1.4 で前述した濁水で、利根川水系山口川（茨城県桜川市）において採取したものである。測定には、1 L のポリビンに保管した試料を用いた。測定前にポリビンを数回転倒攪拌したのち、マイクロピペットを用いて土粒子を少量採取し、沈降管の上部から滴下した。粒径と沈降速度の測定方法、記録方法は、4.1.2 と同様である。濁水の諸元と測定した土粒子の数を、表-4.2.1 に示す。

表-4.2.1 濁水の諸元と測定した土粒子数（山口川）

試料No.	1	2	3	4
採水日	2010.9.16	2010.9.16	2010.9.16	2010.9.16
採水時刻	10:55	11:25	12:35	13:50
分析時濁度[NTU]	787	432	143	59
分析時SS[mg/L]	944	466	189	93
測定した土粒子[個]	264	55	53	40
測定倍率	160倍	150倍	150倍	150倍
	300倍	280倍	280倍	280倍

4.2.2 実験結果

測定した各試料の粒径と沈降速度を図-4.2.1～図-4.2.4 に示す。これらの図には、ストークス式より求めた沈降速度ならびに $R_e = 1$ となる沈降速度を併記する。測定した粒径の範囲は試料により異なるが、概ね 10～800 μm である。各試料ともフロックの粒径が増大するに従い沈降速度が上昇する傾向が見られたが、前節で取り上げた凝集フロックのような良好な相関は見られなかった。同一粒径の土粒子に対し、試料 1 では最大 2 オーダー、試料 2～4 では最大 1 オーダー程度の沈降速度の差が見られた。特に、試料 1 では数多くの土粒子を測定したことから、沈降速度のばらつきが大きくなったものと考えられる。測定された沈降速度の多くはストークス式より求めた沈降速度より遅いことから、超音波分散せずに試料をレーザー回折法で分析し、ストークス式を適用して沈降速度を求めた場合、沈降速度を過大に評価することが裏付けられた。

測定した土粒子の形状の1例として、試料1 (SS=944mg/L) の画像を写真-4.2.1~写真-4.2.2に示す。出水時に河川から採取した土粒子も、複数の粒子が凝集してフロックを形成している様子が見られる。しかしながら、写真-4.2.2に見られる様に、単一粒子と見られる土粒子も観察された。特にこのような土粒子は粒径に比べて沈降速度が速く、同一粒径に対し沈降速度がばらつく原因となっている。また、関東ロームの場合、粒度が調整されているのに対し、現地採取した土粒子はフロックを形成する単一粒子の粒径が様々であり、同一フロック径に対して有効密度の差異が大きいことも沈降速度のばらつく原因と考えられた。

各試料について直線回帰分析をおこないフラクタル次数 D を求めた結果を表-4.2.2に示す。フラクタル次数 D は1.67~2.12の間に分布し、前節で取り上げた関東ロームの凝集フロックよりも小さな値を示した。これは、関東ロームの凝集フロックについてはNaCl濃度を0.01Mに固定したのに対し、山口川から採取した土粒子については自然状態での沈降現象を把握する必要上電解質を加えず、その結果として関東ロームよりも緩い締まり具合のフロックを測定したと考えられる。

以上の実験で測定可能な範囲は、概ね10 μ m~900 μ mである。一方、2.2.2では、粒径10 μ m以下の粒径範囲に着目し、レーザー回折法では微細粒子の占める割合を過小評価すると指摘した。試料4を例に、レーザー回折法で求めた粒度分布に実験から求めたフロックの密度関数を当てはめ、沈降速度分布を求めたものを図-4.2.5に示す。密度関数を用いて求めた沈降速度分布は、沈降筒により求めた沈降速度分布に比べ粗粒側で遅く、また、細粒側で速い結果となったが、ストークス式をあてはめて求めた沈降速度分布に比べて整合性が大きく向上する結果となった。沈降速度が0.1mm/s以下の範囲については沈降筒との差異が依然残るものの、ストークス式に比べ、フロックの密度関数を適用した場合の方が沈降速度をより適切に評価できることが判明した。

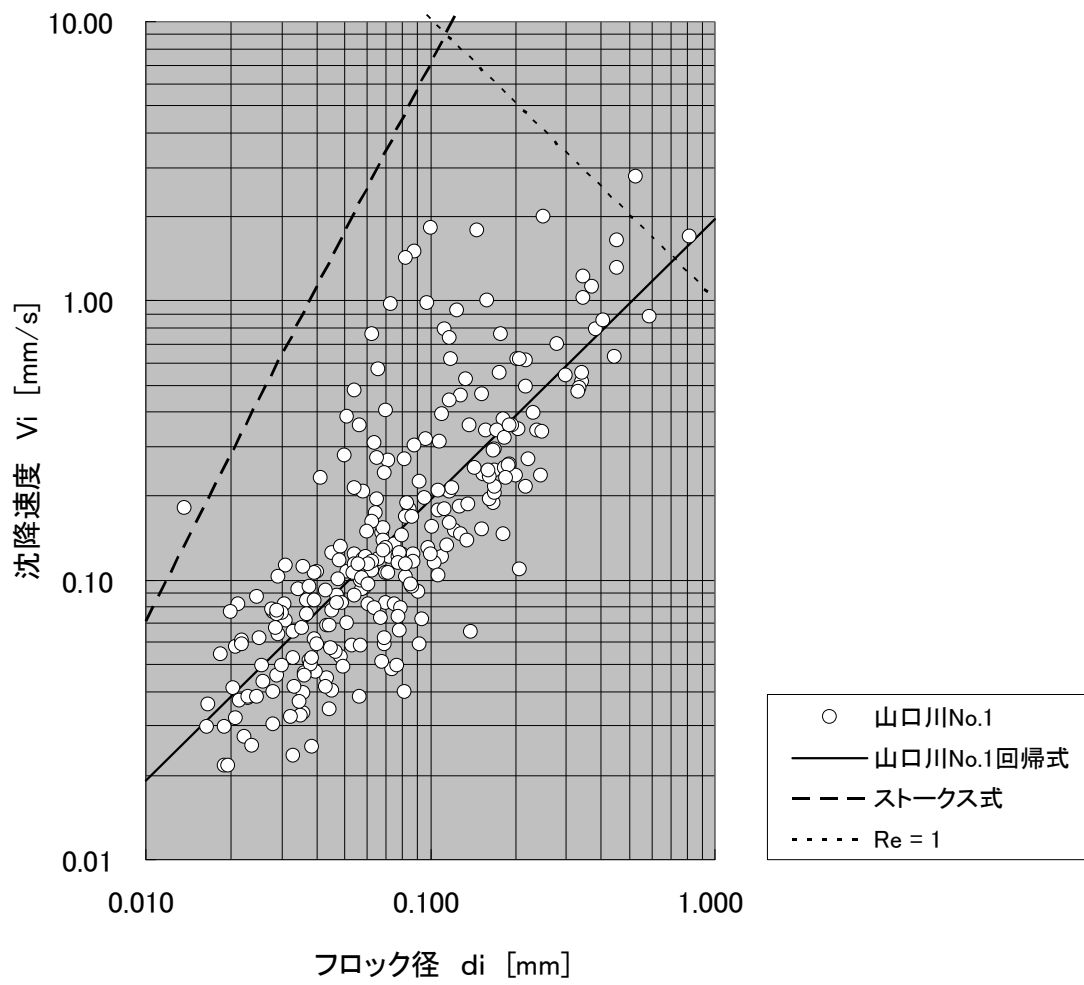
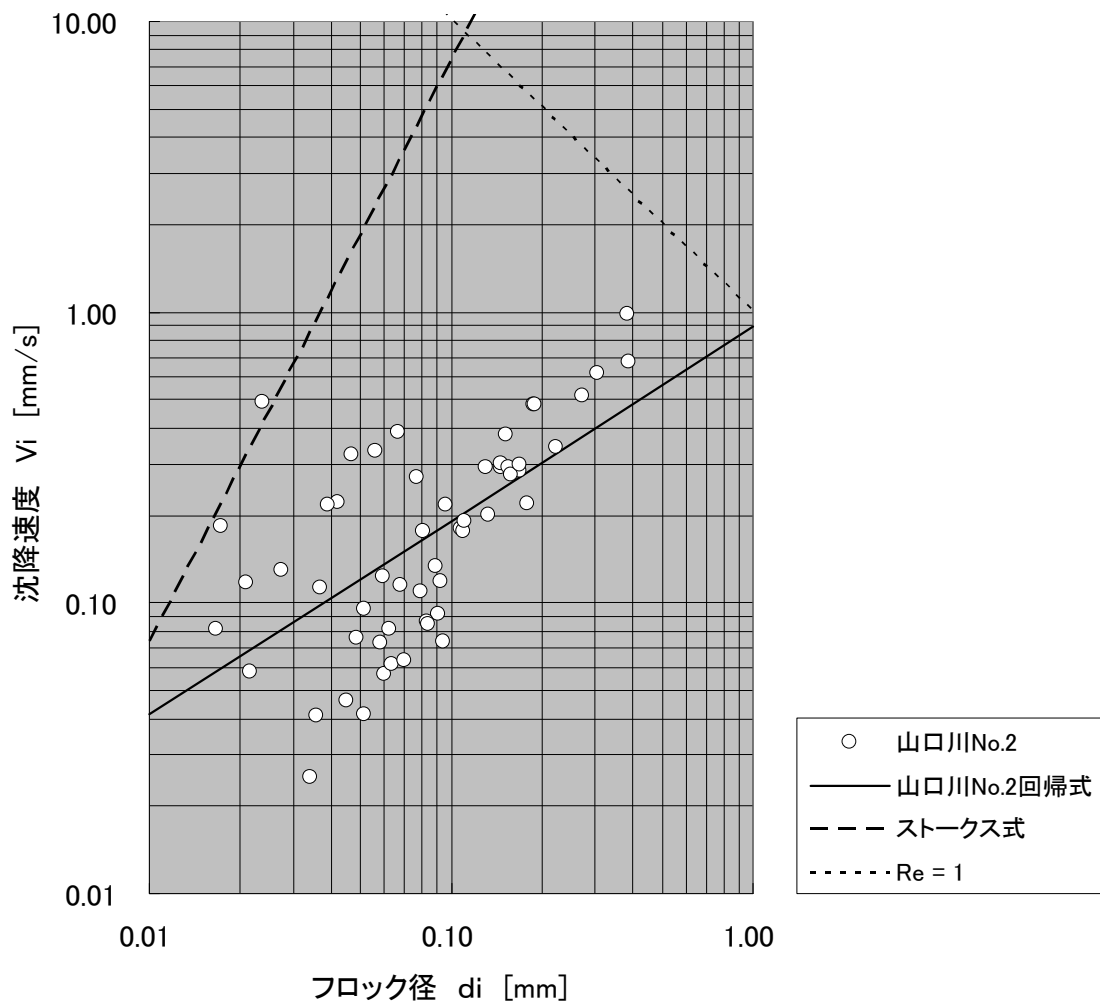


図-4.2.1 フロック径と沈降速度 (山口川 No. 1)



$$\text{Log}_{10} V_i = -0.048903 + 0.667994 \text{Log}_{10} d_i$$

$$D = 1.67$$

図-4.2.2 フロック径と沈降速度（山口川 No. 2）

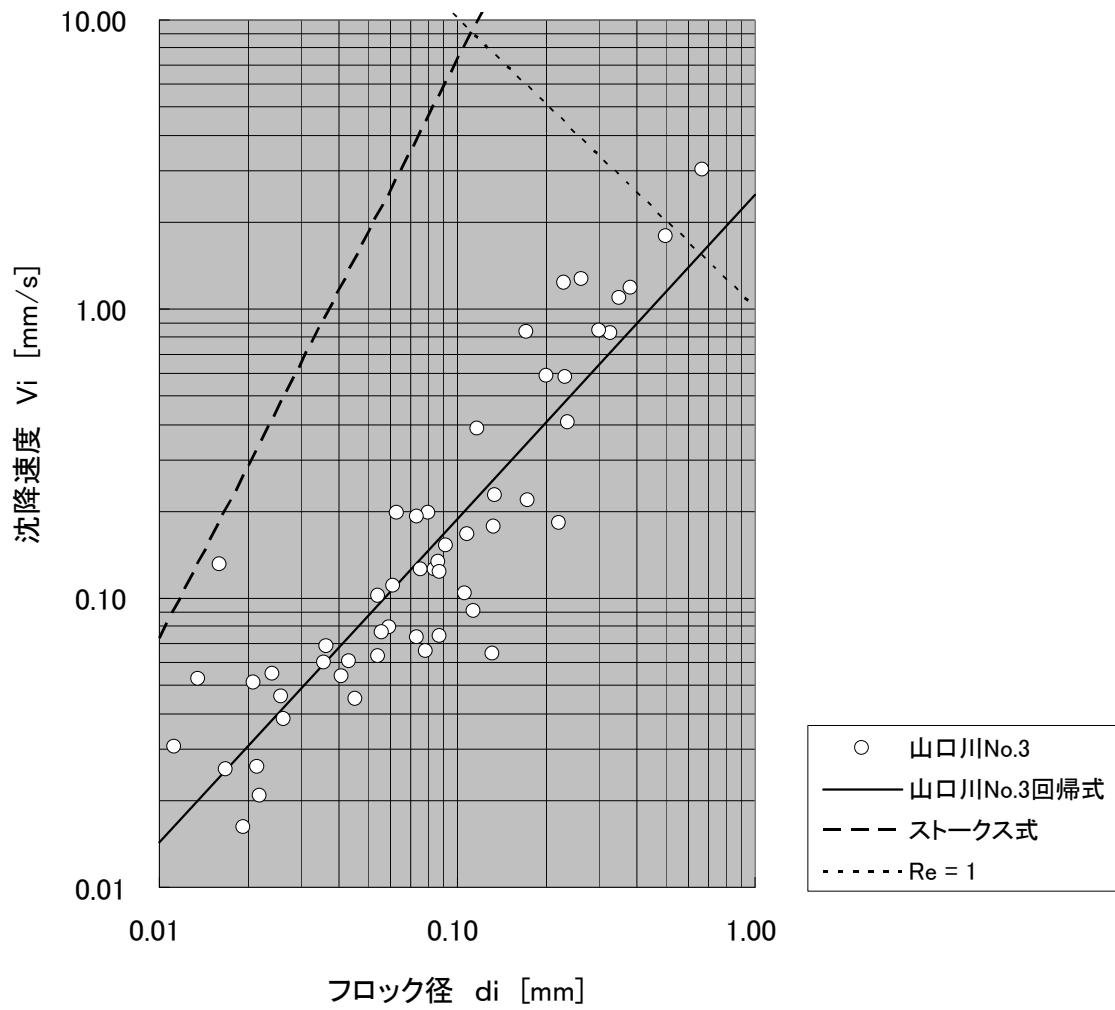
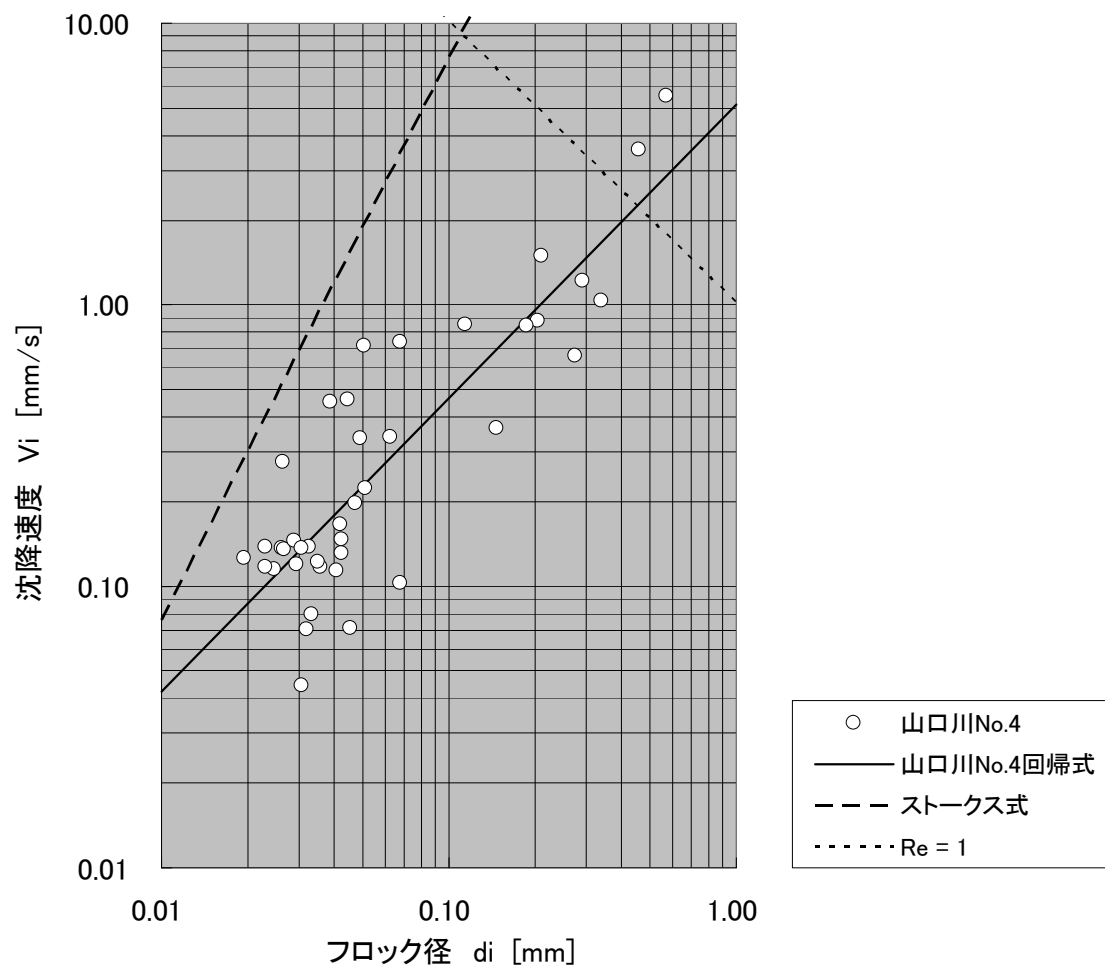


図-4.2.3 フロック径と沈降速度 (山口川 No. 3)



$$\text{Log}_{10} V_i = 0.710116 + 1.042755 \text{Log}_{10} d_i$$

$$D = 2.04$$

図-4.2.4 フロック径と沈降速度 (山口川 No. 4)

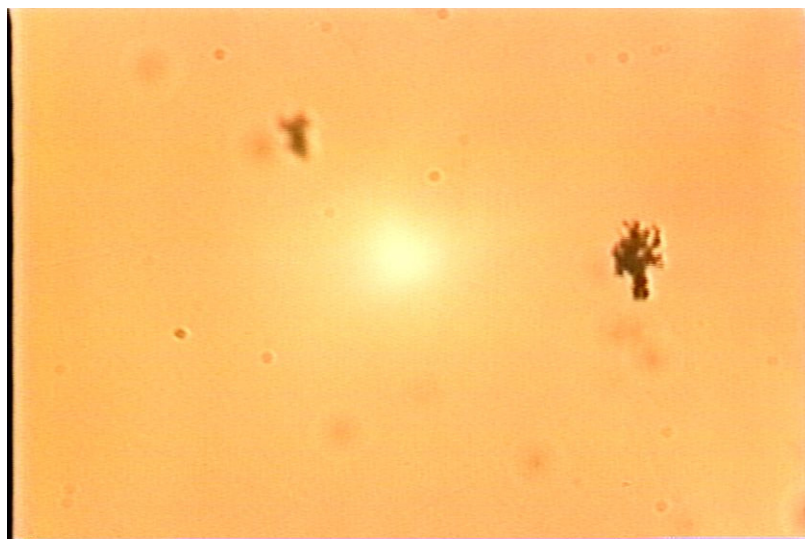


写真-4.2.1 フロックの形状 (山口川 No.1) (1)

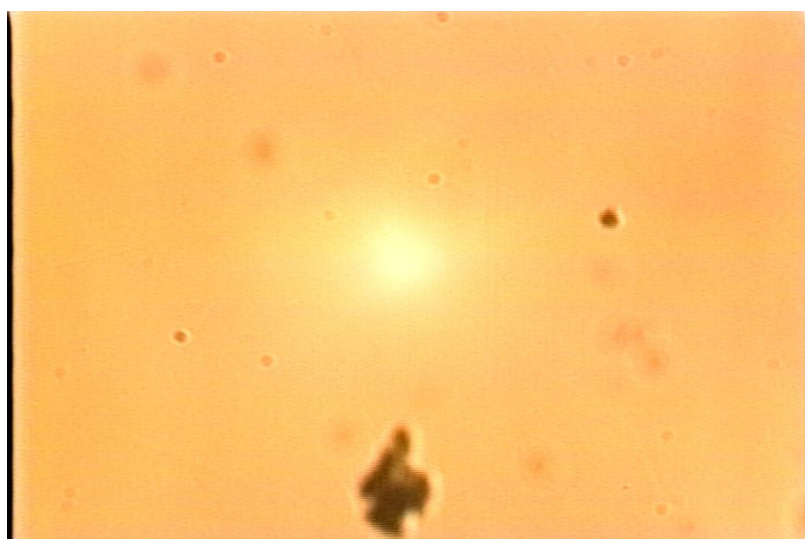


写真-4.2.2 フロックの形状 (山口川 No.1) (2)

表-4.2.2 各試料のフラクタル次数

試料No.	1	2	3	4
フラクタル 次数 D	2.00	1.67	2.12	2.04

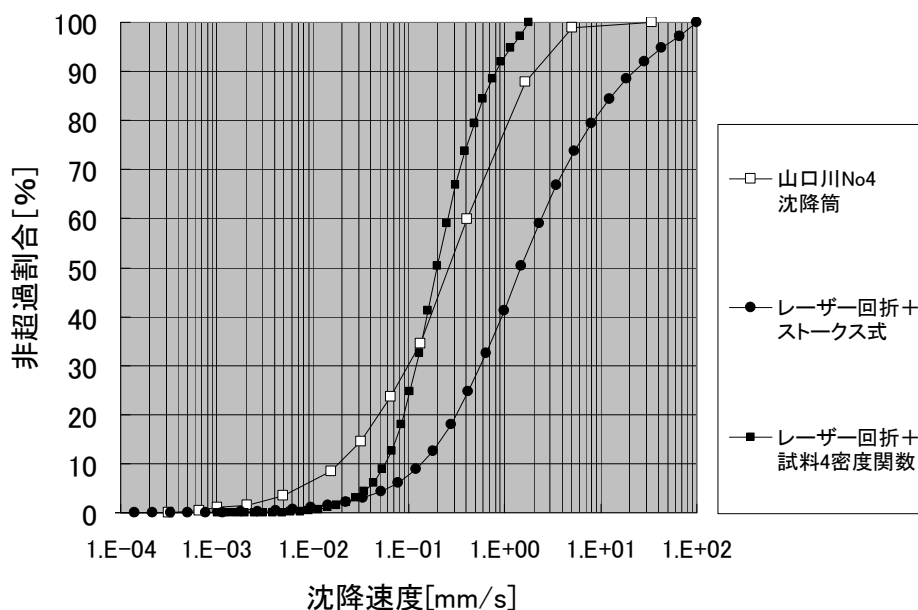


図-4.2.5 沈降速度と非超過の割合（山口川 No. 4）

4.3 まとめ

第2章では、従来から一般的に用いられているレーザー回折法を用いた粒度分布にストークス式を当てはめた場合、沈降速度を大きく算定する傾向があると報告した。沈降速度が過大に算定される原因としては、土粒子の形状が球形ではなく不均一であること、沈降速度が土粒子の濃度によっても変化すること、土粒子が単一粒子のみではなく、フロックを形成していることなどが考えられた。一方、土粒子の粒度分布・沈降速度分布を論じた既往文献においても、レーザー回折法による粒度分布を基に設定した沈降速度が沈降実験により計測した沈降速度と異なる場合があるとの指摘がなされている³⁾。しかしながら、既往文献では粒度分布の補正方法、沈降速度分布の補正方法については言及しておらず⁴⁾、沈降速度分布の適切な設定方法の提案が望まれる。

第4章では、第2章、第3章で取り扱った凝集フロックならびに土粒子を対象に沈降速度を直接計測し、粒径との関係を明らかにした。さらに、レーザー回折法を用いて得られた粒度分布に土粒子の沈降速度の計測により得られた密度関数を適用し、沈降速度分布の新たな設定方法を提案した。第4章の結論を、以下にまとめる。

- ・モデルフロックの沈降現象を把握することを目的に、関東ローム懸濁液の凝集フロックならびに関東ローム懸濁液と火山灰土凝集剤Aの凝集フロックを採取し、水中に滴下し粒径と沈降速度を測定した。各試料ともフロックの粒径と沈降速度は両対数紙上でほぼ直線上にプロットされ、良好な相関が得られた。
- ・モデルフロックの形状を観察した結果、フロックはポーラスで、フロックの有効密度が単一の土

粒子の有効密度より小さいことがうかがえた。

- モデルフロクのフラクタル次数 D は 2.08～2.38 の間に分布し、試料間に大きな差異は見られなかった。これは、各試料とも電解質として NaCl 濃度を 0.01M に固定したことから、類似した締め具合のフロクが形成されたことによると考えられた。
- 現地採取した土粒子の沈降現象を把握することを目的に、利根川水系山口川において採取した 4 検体の試料の粒径と沈降速度を測定した。各試料とも粒径が増大するに従い沈降速度が上昇する傾向が見られたが、モデルフロクのような良好な相関は見られなかった。
- 現地採取した土粒子も、複数の粒子が凝集してフロクを形成している様子が見られた。しかしながら、単一粒子と見られる土粒子も観察され、同一粒径に対し沈降速度がばらつく原因と考えられた。
- 現地採取した土粒子のフラクタル次数 D は 1.67～2.12 の間に分布し、モデルフロクよりも小さな値を示した。
- 現地採取した土粒子の沈降速度はストークス式より求めた沈降速度より遅い結果となった。超音波分散せずに試料をレーザー回折法で分析し、ストークス式を適用して沈降速度を求めた場合、沈降速度を過大に評価することが裏付けられた。
- 現地採取した土粒子のうち試料 4 を例に取り上げ、レーザー回折法で求めた粒度分布にフロクの密度関数を当てはめ、沈降速度分布を求めたところ、ストークス式をあてはめて求めた沈降速度分布に比べて、沈降筒との整合性が大きく向上した。沈降速度が 0.1mm/s 以下の範囲については沈降筒との差異が残るとはいえ、ストークス式に比べ、フロクの密度関数を適用した場合の方が沈降速度をより適切に評価できることが判明した。

第4章の参考文献

- 1) 横山勝英：濁度計の粒径依存特性と現地使用方法に関する考察，土木学会論文集 No.698/II-58, pp93-pp98, 2002.2
- 2) 柏井条介，結城和宏：天然凝集材（アロフェン）の濁質凝集効果，ダム技術 No.239, pp.20～28, 2006.8
- 3) 足立泰久：コロイド現象の光学的測定，土のコロイド現象，pp117-pp120, 学会出版センター，2003.2
- 4) Y. Adachi and Y. Tanaka: Settling velocity of an Aluminium-kaolinite floc, Water Resources, Vol.31, No.3, pp449-454, 1997.

第5章 火山灰土を用いた貯水池濁水の凝集と沈降

わが国の既設ダムの中には、大規模出水後の貯水池の懸濁化により、下流河川に濁水を長期間放流する事例も見られ、問題解決が急務である。本研究では、凝集剤として環境負荷の少ない火山灰土由来の無機凝集剤を取り上げ、凝集特性を明らかにするとともに貯水池における利用方法について提案することを目的としている。第3章では、既往研究では紹介されていない安価でかつ大量に調達可能な火山灰土由来の無機凝集剤を取り上げ、当該凝集剤の特性を把握することを目標に、凝集剤の凝集・分散と荷電特性について整理した。第5章では、火山灰土由来の無機凝集剤を用いた効果的・効率的な凝集処理手法の提案を目指す。

火山灰土の凝集剤としての利用について、既往研究をレビューする。堀岡は、アロフェンに硫酸を添加することにより凝集性能を高める方法を提案した¹⁾。尾崎らは、火山灰土に pH 調整剤を添加した凝集剤の製法を提案した²⁾。しかしながら、堀岡の研究は現地への適用にまでは言及しておらず、一方、尾崎らの報告には凝集機構を具体的に説明する実験結果が見あたらない。また、堀岡、尾崎らの報告は、いずれも凝集性能を高めることを目的に化学薬品を添加しており、貯水池に投入した場合、長期滞留後の水質に与える影響について別途検討が必要となる。貯水池に凝集剤を投入し、堆砂の一部として長期間存置する利用を考えると、薬品を添加することなく火山灰土の凝集性能を引き出す方法を開発することが求められる。

柏井らはアロフェンを主成分とする火山灰土を材料とし、超音波分散、急速攪拌および緩速攪拌の各処理を行うことにより、濁水を凝集処理できると報告した³⁾。しかしながら、柏井らの既往研究はジャーテスターを用いた小規模な室内実験に基づく報告である。火山灰土の凝集剤としての利用と凝集処理手法の実用化にあたっては、実験規模を拡大するとともに、より効果的・効率的な凝集処理手法を提案することが求められている。

本章では、アロフェンを主成分とする火山灰土由来の無機凝集剤（本章では以下、「火山灰土凝集剤 A」と略す。）を用いて貯水池に滞留する濁水の効果的・効率的な凝集処理手法を提案することを目指す。当該凝集剤は pH 調整剤を添加していないことから、貯水池の環境に及ぼす影響も軽微と考えられる。さらに、実際の貯水池での利用を想定し、凝集剤の凝集効果の下方持続性について検討し、結果を報告する。

5.1 効率的な凝集処理^{4), 5), 6)}

本節では、柏井らの研究³⁾を参考に、火山灰土凝集剤 A を用いた凝集処理の効率化について報告する。

5.1.1 実験概要

土砂による貯水池の濁りについては、貯水池から採取した底泥を用いた柏井らの研究により、その凝集特性が報告されている³⁾。この報告には、8ダム1遊水地の底泥を試料とした模擬濁水を用いた凝集実験が記述されている。実験の結果、凝集材を添加しなくても、濁水の水素イオン濃度(pH)を調整することにより、凝集効果が得られること、また、天然凝集材を使用した実験では、濁水の種類に応じて最適な凝集材添加量が存在すること、事前に凝集材を超音波分散機により分散の上、濁水に混合した後に攪拌することにより、凝集効果が得られることが示されている。

筆者は柏井らの研究を踏まえ、pH7に調整した模擬濁水を効率的に凝集させる分散方法・攪拌方法を見いだすことを目的に、実験を行った。実験には、ジャーテスター(試水凝集反応装置)を用いた。凝集の目安として、模擬濁水の初期濁度50NTUを凝集後5NTU程度とする目標を設定した。

5.1.2 実験準備

実験には、十分な量の濁水を確保する都合上、模擬濁水を製造して用いた。模擬濁水の材料は、関東地方にある渡良瀬遊水地と川治ダム貯水池から採取した底泥を用いた。模擬濁水の製造は、濁りの長期化した貯水池の濁水を想定し、細粒分を多く含むよう行った。手順は先ず、7 μ mの網目を透過した底泥粒子を純水と混合し、超音波分散機で分散のうえ、24時間静置後、水面から17cm以内の範囲内で上澄み液を採取した。ストークス式により算定される沈降速度からは、24時間の静置により水面から17cm以内の範囲に残存する濁質の粒径は、1.5 μ m以下となる。次に、この上澄み液を蒸留水で希釈し、また、pH調整剤を添加し、濁度50NTU、pH7.0になるよう調整した。作業は室温20 $^{\circ}$ Cに設定した恒温室で行った。実験には凝集剤として、第3章と同様、火山灰土凝集剤Aを使用した。

5.1.3 凝集実験の手順

1回の実験には、1Lの濁水と湿潤重量450mg(=乾燥重量180mg)の火山灰土凝集剤Aを用いた。実験手順は、以下のとおり。

1) 投入前分散：

450mgの火山灰土凝集剤Aを50mLの濁水に懸濁させ、超音波分散機で分散。分散は周波数28kHz、出力60Wの装置を使用(写真-5.1.1)。

2) 投入後分散：

50mLの火山灰土凝集剤A・濁水混合液を、950mLの濁水とビーカー内で混合し、超音波分散機で分散。

3) 急速攪拌：

火山灰土凝集剤 A・濁水混合液をジャーテスターにかけ、150rpm で攪拌（写真-5.1.2）。

4) 緩速攪拌：

さらに、40rpm で攪拌。

以上の手順の全部または一部を経た後、ビーカーを静置の上、水面下 4cm の濁度の経時変化を測定した。濁度の測定には、ホルマジン溶液により校正した濁度計（HACH 社製 2100P）を使用した。実験ケースを、表-5.1.1 に示す。

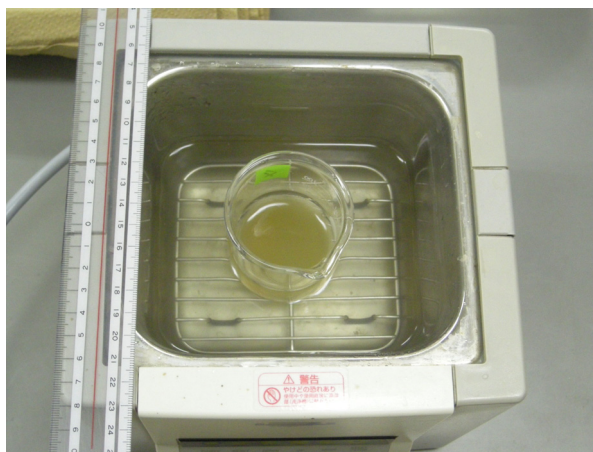


写真-5.1.1 投入前分散

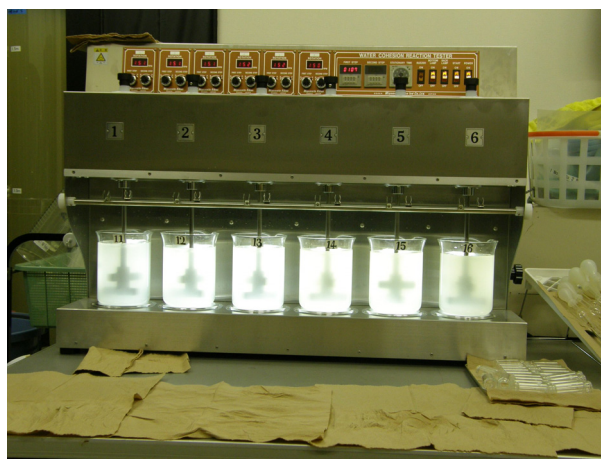


写真-5.1.2 ジャーテスターによる攪拌

表-5.1.1 ビーカー実験ケース

ケース No.	1.1	1.2	2.1	2.2	2.3	2.4
底泥採取地点	渡良瀬	川治	渡良瀬	渡良瀬	渡良瀬	渡良瀬
投入前分散 [分]	0	0	0	1	5	15
投入後分散 [分]	3	3	0~15	0~15	0~15	0~15
急速攪拌 [分]	3	3	0	0	0	0
緩速攪拌 [分]	0	0	0	0	0	0

ケース No.	3.1	3.2	4.1	4.2	4.3	4.4
底泥採取地点	渡良瀬	渡良瀬	渡良瀬	渡良瀬	渡良瀬	渡良瀬
投入前分散 [分]	0	0	0	1	5	15
投入後分散 [分]	3	5	3	3	3	3
急速攪拌 [分]	0~9	0~9	0	0	3	3
緩速攪拌 [分]	0	0	0	3	0	3

5.1.4 実験結果

(1) 濁度の経時変化

実験全体を通じて十分な凝集効果の得られた2ケース（ケース1.1~1.2）について、濁度の経時変化について考察する（図-5.1.1）。これらのケースは、火山灰土凝集剤Aを投入後に3minの超音波分散を行い、さらに3minの急速攪拌を施したものである。ビーカー静置後の濁度の経時変化は、1min、5min、15min、30min、60min、360min、1,440minの7回にわたって測定した。

濁質と火山灰土凝集剤Aによるフロックの形成は急速攪拌開始直後から始まり、攪拌中にもフロックの数が増え、濁水の濁りが徐々に低減する様子が肉眼でも確認された。ビーカー静置後の濁度は、静置後5~15minで急速に低減し、その後は緩やかな変化となった。15min経過後には、渡良瀬遊水地・川治ダムともに3NTU前後にまで低減し、ビーカー内での凝集効果を確認した。

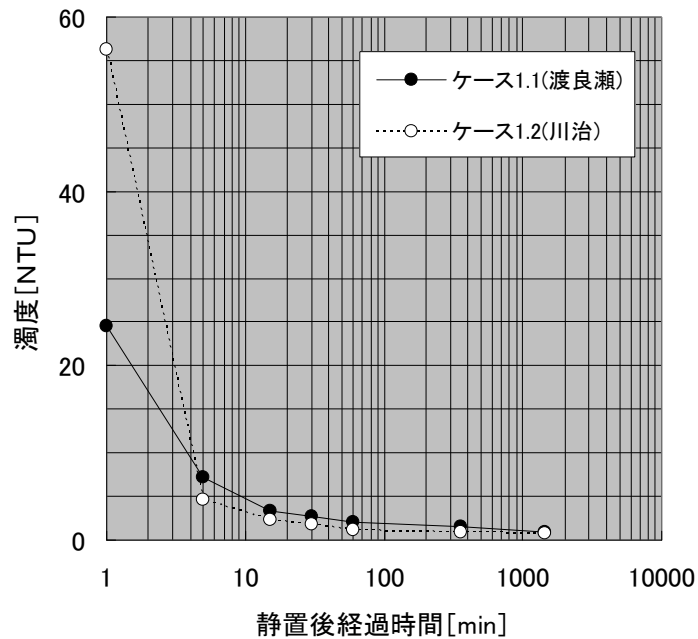


図-5.1.1 濁度の経時変化（投入後分散3分+急速攪拌3分）

(2) 超音波分散の効果

超音波分散の効果を検討することを目的に、渡良瀬遊水地の模擬濁水を試料に、急速攪拌・緩速攪拌を省略して超音波分散のみをおこない、濁度の変化を測定した。ここで、投入前分散は、0 min～15 minの4段階に、また、投入後分散は、0 min～15 minの5段階に設定した（ケース2.1～2.4）。

処理後15 min静置後の濁度（以下、「15 min濁度」と記述）を、図-5.1.2に示す。急速攪拌・緩速攪拌を省略して3 min～5 minの投入後分散を行ったケースでは、15 min濁度で20 NTU以下程度の凝集効果が得られたものの、5 NTU程度にまで低減する目標は達成されない結果となった。目標を達成するには、攪拌が必要であると考えられた。

一方、測定した15 min濁度は、投入前分散時間にはあまり依存せず、投入後分散時間に大きく依存する結果となった。これは、投入前分散に比べ、投入後分散の効果が大きいことを示唆している。凝集剤を濁水に投入後に分散をさせることで、凝集剤が濁水中に満遍なく分散し、凝集剤と濁質粒子とが結合する機会が増え、凝集が促進したためと推察される。

投入後分散時間については、0 minから5 minに増大させるに従い、一部ケースを除き15 min濁度は低減する傾向が見られたが、投入後分散時間5 minと15 minの比較では、低減効果の差異はほとんど見られなかった。これは、投入後3～5 minの分散で凝集剤が十分に分散され、分散時間をこれ以上延長しても分散が促進しないことを示している。

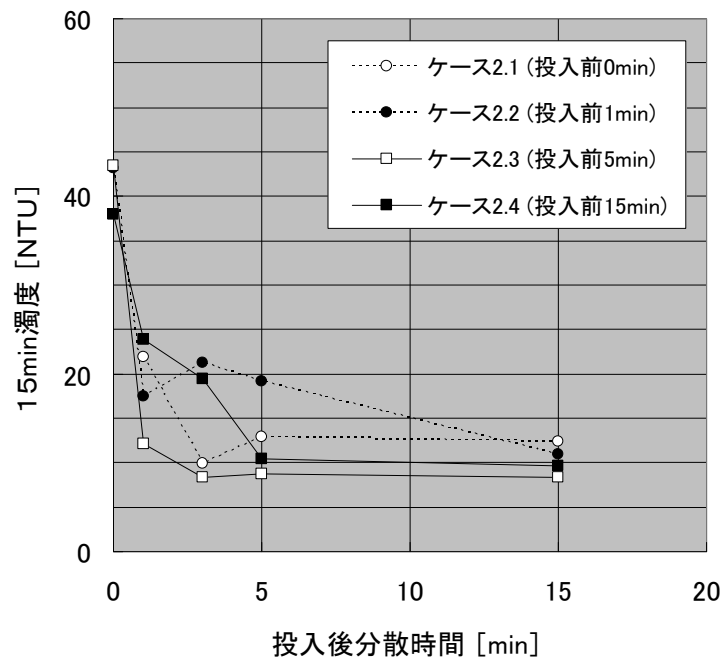


図-5.1.2 投入後分散時間と凝集効果（急速攪拌・緩速攪拌なし）

(3) 急速攪拌・緩速攪拌の効果

ここでは、効果的な攪拌方法について検討する。前項で、一定の凝集効果の得られた投入後分散 3 min, 5 min のケースについて、緩速攪拌は行わず、急速攪拌を 0 min~9 min に 4 段階に設定し（ケース 3.1~3.2）、急速攪拌の効果を比較した（図-5.1.3）。

急速攪拌時間を 0 分から 1 min, 3 min と増大させるに従い、15 min 濁度は低減する傾向が見られたが、急速攪拌 6 min と 9 min の比較では、低減効果の差異はほとんど見られなかった。急速攪拌 3min~5min のケースで 15 min 濁度がほぼ 5 NTU 以下となり、急速攪拌のみで目標とする凝集効果が得られる結果となった。

次に、緩速攪拌の効果を検討するため、3 min の急速攪拌をしたケースと 3 min の急速攪拌に加え 3 min の緩速攪拌をしたケース、3 min の緩速攪拌のみを行ったケースについて、15 min 濁度を比較した。3 min の緩速攪拌の追加により、15 min 濁度は 3.3 NTU から 2.8 NTU に低減し、より高い凝集効果を得る結果となった（表-5.1.2）。一方、急速攪拌を省略し緩速攪拌のみを行ったケースでは、15 min 濁度は 6.8 NTU にとどまり、緩速攪拌のみでは目標とする凝集効果は得られない結果となった。

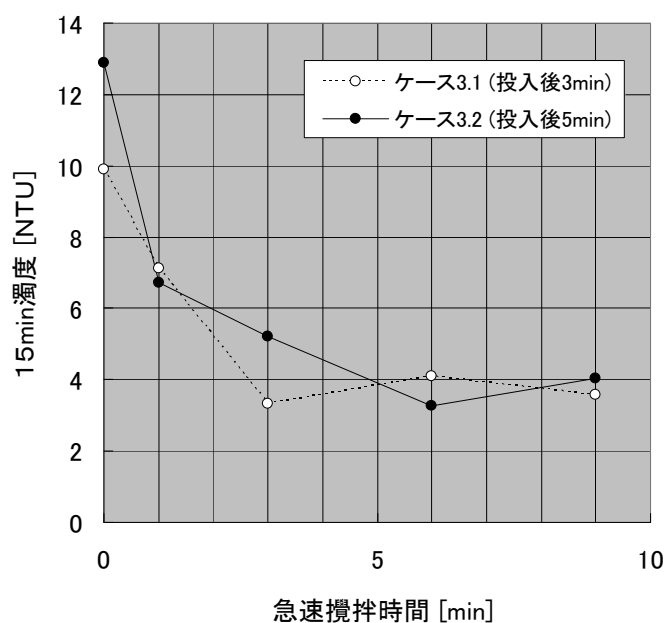


図-5.1.3 急速攪拌時間と凝集効果（緩速攪拌なし）

表-5.1.2 攪拌時間と凝集効果（投入後分散3min）

	急速 0 min	急速 3 min
緩速 0 min	9.89	3.33
緩速 3 min	6.8	2.82

単位:NTU

5.2 濁水の特性と凝集効果

本節では、前節の検討結果を基に凝集処理装置の構成について提案するとともに、現地より採水した濁水を用いて凝集実験を行い、濁水の特性と凝集効果について考察する。

5.2.1 凝集実験装置の構成

ここでは、凝集実験装置の機器構成として、先行研究の成果も踏まえ^{4), 5), 6)}、分散装置と攪拌装置の組み合わせについて検討する。筆者の使用実績のある分散装置は、次の3機種である。

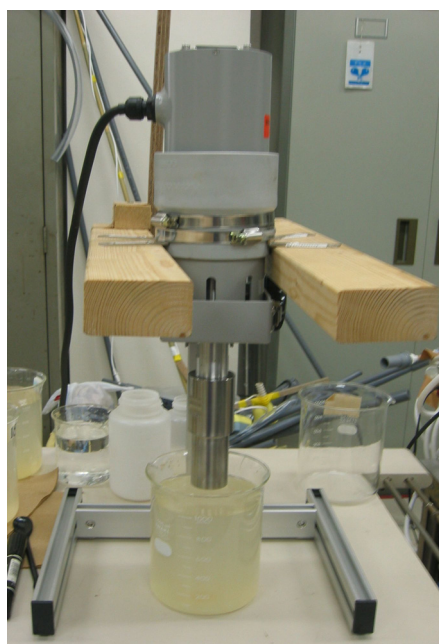
- 1) 東京硝子器械（株）製超音波洗浄器 FU-10C 出力 60W 発振周波数 28kHz
- 2) (株) エス・エム・テー製超音波分散機 UH-600S 出力 600W 発振周波数 20kHz±3kHz
- 3) (株) エス・エム・テー製 浸漬型超音波洗浄機 SC600D 出力 600W
発振周波数 20kHz±3kHz

一方、攪拌装置として使用実績のある機器は、

4) 宮本理研工業（株）製試水凝集反応装置（ジャーテスター）JT-66D

5) 家庭用水中ポンプ 13L/min ほか

である。これらのうち、「2) 超音波分散機 UH-600S 出力 600W 発振周波数 20kHz±3kHz」（写真－5.2.1）については少量の試料（500mL）から大量の試料(3.8m³)まで超音波分散した実績があり、また、「4) ジャーテスター JT-66D」（写真－5.2.2）については、複数の試料を同時に比較検討できることから、ここではこれらの機器を凝集実験装置として選定し、火山灰土凝集剤 A を用いた凝集の効果について検討する。



写真－5.2.1 超音波分散装置



写真－5.2.2 試水凝集反応装置

5.2.2 大夕張ダム流入水

(1) 実験方法

貯水池に流入し、濁水放流の長期化の原因となる濁水を対象に、凝集実験装置を用いて凝集実験を行った。試料は、大夕張ダムに流入する夕張川から採取した河川水を用いた。実験ケースを表－5.2.1に示す。実験手順は、以下のとおり。

1) 超音波分散

22.5～225 mg の火山灰土凝集剤 A を 50 mL の河川水に混合し、火山灰土凝集剤 A 懸濁液を作成した。この懸濁液を 450 mL の河川水とビーカー内で混合し、超音波分散機で 10 sec 間超音波分散

した。

2) 急速攪拌

分散終了後、試料をジャーテスターにセットし、150 rpm で 180 sec 間攪拌した。

3) 試料静置と濁度測定

急速攪拌終了後に試料を静置し、水面下 4 cm の位置で濁度の経時変化を測定した。濁度の測定には、ホルマジン溶液により校正した濁度計（HACH 社製 2100P）を使用した。

以上の実験は、すべて室温 20℃に設定した恒温室内で実施した。

表-5.2.1 実験ケース（夕張川）

ケース No.	1	2	3	4	5	6	7
採取地点	夕張川	夕張川	夕張川	夕張川	夕張川	夕張川	夕張川
サンプル濁度 [NTU]	70.5	70.5	70.5	70.5	70.5	70.5	70.5
サンプルpH	7.71	7.71	7.71	7.71	7.71	7.71	7.71
アロフェン濃度 [mg/L]	45	90	180	270	360	450	---
超音波分散 [sec]	10	10	10	10	10	10	---
急速攪拌 [sec]	180	180	180	180	180	180	---

(2) 実験結果

濁水に投入する火山灰土凝集剤 A の量を 6 段階に変化させ、濁度の経時変化を比較した（写真-5.2.3）。このうち、静置直後から 60 min 経過するまでの濁度を抽出し、図-5.2.1 に示す。

ケース 3 を例に、濁度の経時変化を概観する。初期濁度 70.5 NTU の河川水は凝集剤の添加により濁度が上昇し、静置直後には 198 NTU を示した。その後は時間の経過に伴い徐々に低減する状況が把握された。処理後 15 min 経過した段階では 32.5 NTU、60 min 経過後には 12.5 NTU となり、60 min で濁度が約 1/5 に低減した。

次に、火山灰土凝集剤 A の投入量と 60 min 経過後の濁度について考察する。ケース 3～ケース 6 ではいずれも 60 min 経過後の濁度が 7～13 NTU となり、ある程度の凝集効果が確認された。本結果より、夕張川河川水については試料の濁度 70.5 NTU に対し 180 mg/L 以上の火山灰土凝集剤 A を投入することにより、凝集の有効性が確認された。

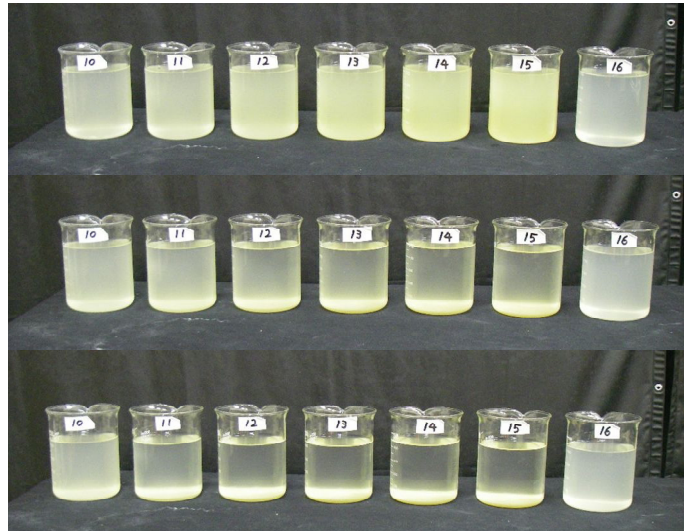


写真-5.2.3 静置後の濁度の変化（夕張川）

（上から静置直後，15分後，60分後）（左からケース1，ケース2，……）

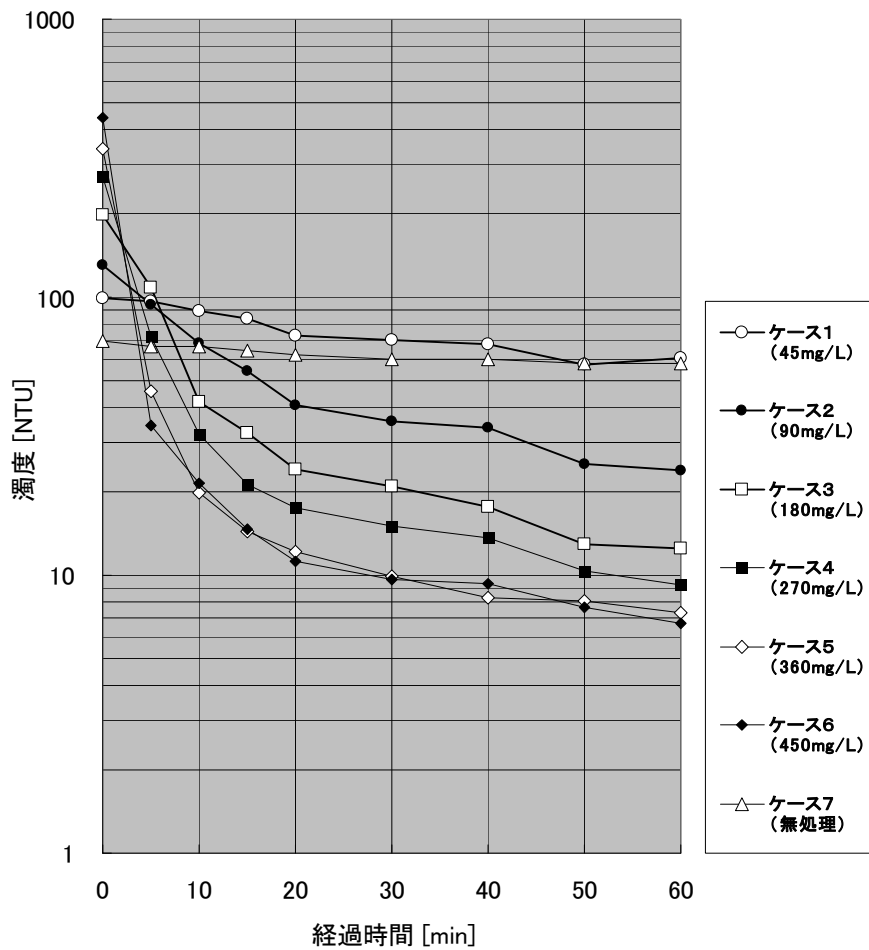


図-5.2.1 濁度の経時変化（夕張川）

5.2.3 鹿野川ダム貯水池濁水

湖内工事の行われている鹿野川ダム貯水池（写真－5.2.4）において，工事により生じる濁水を採取し，凝集実験を行った．実験ケースを表－5.2.2に示す．実験手順は，前節（大夕張ダム流入水）と同様である

実験結果について述べる．濁水に投入する火山灰土凝集剤 A の量を 7 段階に変化させ，濁度の経時変化を比較した（写真－5.2.5）．このうち，凝集処理直後から 60 min 経過するまでの濁度を抽出し，図－5.2.2 に示す．

ケース 3 を例に，濁度の経時変化を概観する．初期濁度 200 NTU の河川水は凝集剤の添加により濁度が上昇し，静置直後には 432 NTU を示した．その後は時間の経過に伴い徐々に低減する状況が把握された．処理後 15 min 経過した段階では 30.1 NTU，60 min 経過後には 8.56 NTU となり，60 min で濁度が 1/20 以下に急速に低減した．

次に，火山灰土凝集剤 A の投入量と 60 min 経過後の濁度について考察する．ケース 3～ケース 7 ではいずれも 60 min 経過後の濁度が 3～9 NTU となり，十分な凝集効果が認められた．本結果より，鹿野川ダム貯水池濁水については試料の濁度 200 NTU に対し 270 mg/L 以上の火山灰土凝集剤 A を投入することにより，凝集の有効性が確認された．



写真－5.2.4 湖内工事の行われている鹿野川ダム貯水池（2012年12月）

表-5.2.2 実験ケース（鹿野川ダム）

ケース No.	1	2	3	4	5	6	7	8
採取地点	鹿野川 ダム	鹿野川 ダム	鹿野川 ダム	鹿野川 ダム	鹿野川 ダム	鹿野川 ダム	鹿野川 ダム	鹿野川 ダム
サンプル濁度 [NTU]	200	200	200	200	200	200	200	200
サンプルpH	7.74	7.74	7.74	7.74	7.74	7.74	7.74	7.74
凝集材濃度 [mg/L]	90	180	270	360	540	720	900	---
超音波分散 [sec]	10	10	10	10	10	10	10	---
急速攪拌 [sec]	180	180	180	180	180	180	180	---

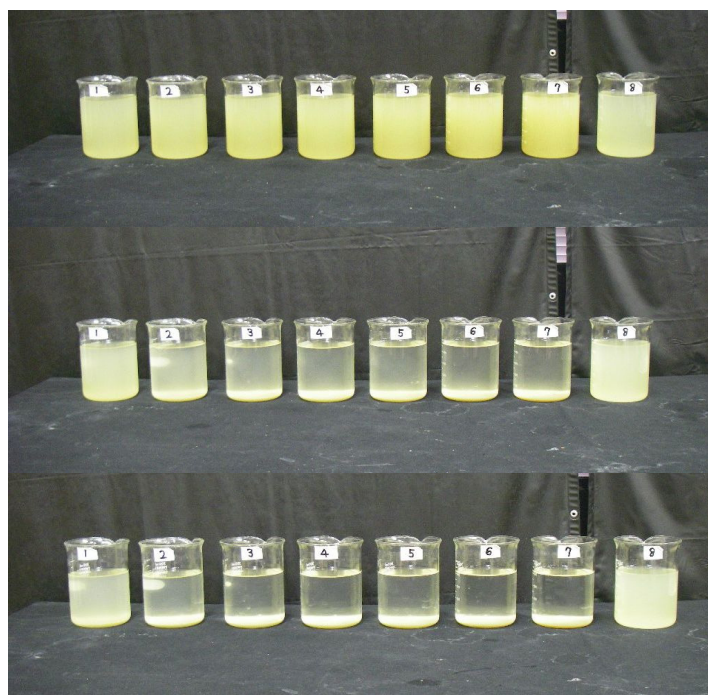


写真-5.2.5 静置後の濁度の変化（鹿野川ダム）

（上から静置直後、15分後、60分後）（左からケース1、ケース2、……）

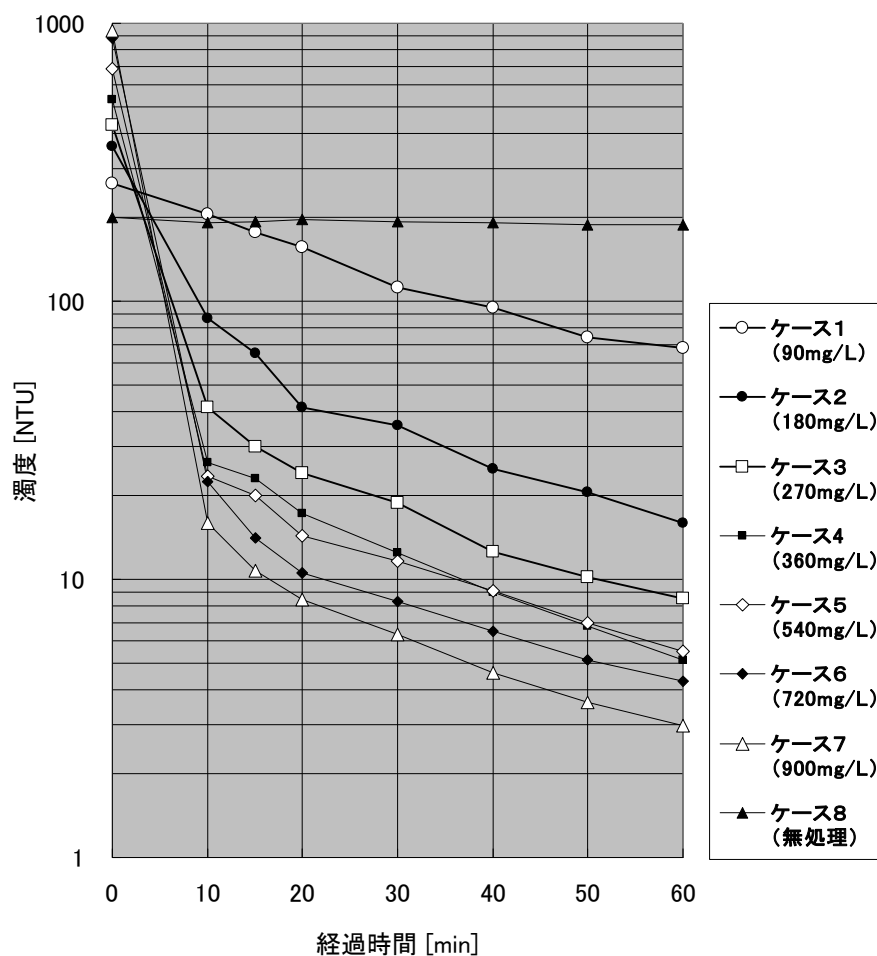


図-5.2.2 濁度の経時変化 (鹿野川ダム)

5.2.4 濁水の特性と凝集効果

(1) 概要

前述の通り、夕張川河川水ならびに鹿野川ダム貯水池濁水に対して火山灰土凝集剤 A による凝集効果を確認した。しかしながら、濁度の経時変化を例示したケースでは、夕張川で 60 min 経過後に濁度が約 1/5 に低減したのに対し、鹿野川ダムでは 1/20 以下と急速に低減し、濁度の低減に大きな差異が生じた。凝集効果は、濁水の pH、濁水を構成する土粒子のゼータ電位、粒度分布などの特性に依存すると考えられることから、ここでは、濁水の特性と凝集効果について検討する。

試料とした濁水の濁度、SS、pH ならびにゼータ電位の測定値をまとめたものを表-5.2.3 に、このうち、ゼータ電位については、15 min 超音波分散した試料と超音波分散をしない試料の両方について測定した。超音波分散については、東京硝子器械 (株) 製超音波洗浄器 FU-10C 出力 60W 発振周波数 28kHz を用いた。ゼータ電位の測定には、Malvern 社製 Zetasizer Nano ZS を用いた。粒

濁度分布は、レーザー回折散乱光法を用い、測定機器は（株）島津製作所製 SALD 2300 を使用した。

表-5.2.3 試料の濁度・SS・pH・ゼータ電位

	濁度 [NTU]	SS [mg/L]	pH	ゼータ電位	
				分散なし [mV]	分散15min [mV]
夕張川	70.5	49.1	7.71	-17.1	-19.8
鹿野川 ダム	200	90.8	7.74	-16.8	-18.5

(2) 濁水の濁度・SS と凝集効果

濁水の濁度と SS の関係について整理した結果を図-5.2.3 に示す。同一の濁度で比較した場合には、夕張川の SS は鹿野川ダムの約 1.5 倍となった。試料の濁度が同一の場合、夕張川の方がより多くの凝集剤の投入を必要とすると推察される。

濁度の低減効果は、投入する凝集剤の量に依存する。ここで、凝集剤の投入量を示す無次元量として凝集剤投入比 R_C を、また、濁度の低減程度を示す無次元量として濁度比 R_T を導入し、凝集効果を比較する。

$$R_C = \frac{C_A}{C_S} \quad (5.2.1)$$

$$R_T = \frac{T_n}{T_b} \quad (5.2.2)$$

ここに、 R_C : 凝集剤投入比 [無次元]、 C_A : 凝集剤投入濃度 [mg/L]、 C_S : 試料の SS [mg/L]、 R_T : 濁度比 [無次元]、 T_n : n min 静置後の濁度 [NTU]、 T_b : 凝集処理前の濁度 [NTU]。

夕張川ならびに鹿野川ダムについて、凝集剤投入比と濁度比との関係を整理した結果を、図-5.2.4 に示す。ここで、60 min 静置後の濁度比が 0.1 となる凝集剤投入比について比較する。凝集剤投入比は鹿野川ダムでは 2 程度であるのに対し、夕張川では 8~9 となり、同じ SS の濁水に対し、夕張川では鹿野川ダムの 4~4.5 倍の凝集剤の投入が必要となった。

実験では、濁度の測定を水面下 4 cm の位置で行った。実際の貯水池の回転率を仮に $5[\text{year}^{-1}]$ とすると、滞留期間は、73 日となる。1 時間に 4 cm 沈降する土粒子は 73 日間に 70 m 沈降することから、ここで、60 min 経過後の土粒子の沈降を取り上げると水深 70 m の貯水池における 73 日間の沈降と考えることができる。

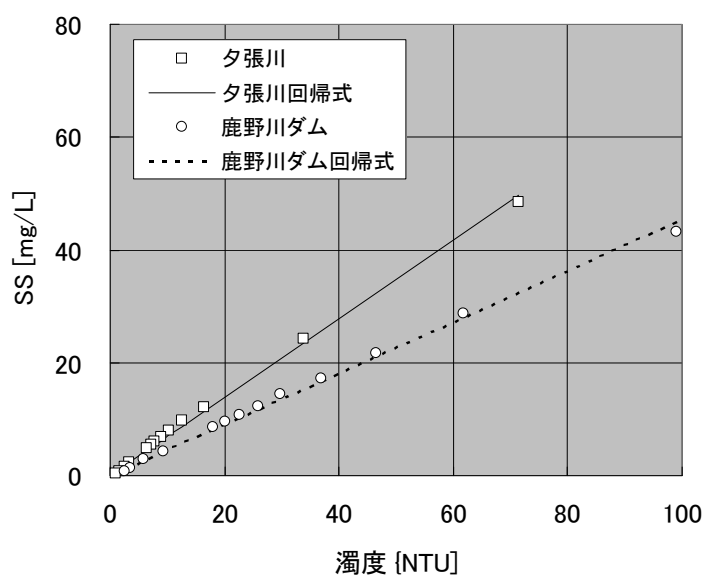


図-5.2.3 試料の濁度とSS

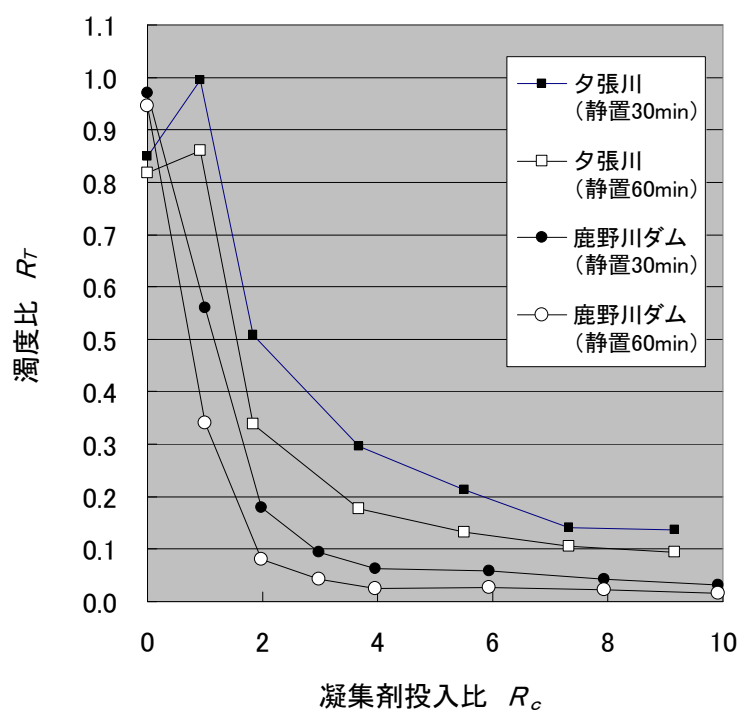


図-5.2.4 凝集剤投入比と濁度比

(3) 濁水の pH, ゼータ電位, 粒度分布と凝集効果

夕張川と鹿野川ダムの pH について比較する (前出表-5.2.3). 火山灰土凝集剤 A のゼータ電位は pH 7 より酸性側で正の値を示すことから, pH が低い濁水には凝集剤の効果が出現しやすいと考

えられる。しかしながら、夕張川・鹿野川ダムとも pH の測定値に大きな違いは見られず、pH の差異が凝集効果に影響しているとは考えられない。

ゼータ電位について比較する（前出表-5.2.3）。ゼータ電位は、夕張川・鹿野川ダムとも負の値を示すことから、中性付近で正に帯電する凝集剤を用いると荷電中和による凝集が進行すると考えられる。ただし、ゼータ電位についても類似した数値を示し、ゼータ電位の差異が凝集効果に影響しているとは考えにくい。

濁水を構成する土粒子の粒度分布について比較する（図-5.2.5）。粒度分布についてもゼータ電位の測定と同様、超音波分散した試料としない試料の両方について測定した。測定の結果、夕張川の粒度分布は、鹿野川ダムの粒度分布に比べ粗粒化傾向を示した。凝集剤を加えずに静置したケースと比較しても、鹿野川ダムの方が濁度の低減が緩やかなことから、夕張川よりもむしろ鹿野川ダムの方が凝集しにくい濁水と考えられる。

以上より、夕張川と鹿野川ダムについて凝集効果の差異を pH、ゼータ電位、粒度分布の観点から合理的に説明することは難しい結果となった。このほか、凝集効果を左右する要因として、凝集フロックの密度の差、凝集フロックの形状の差などが考えられるが、これらの要因分析については今後の課題としたい。

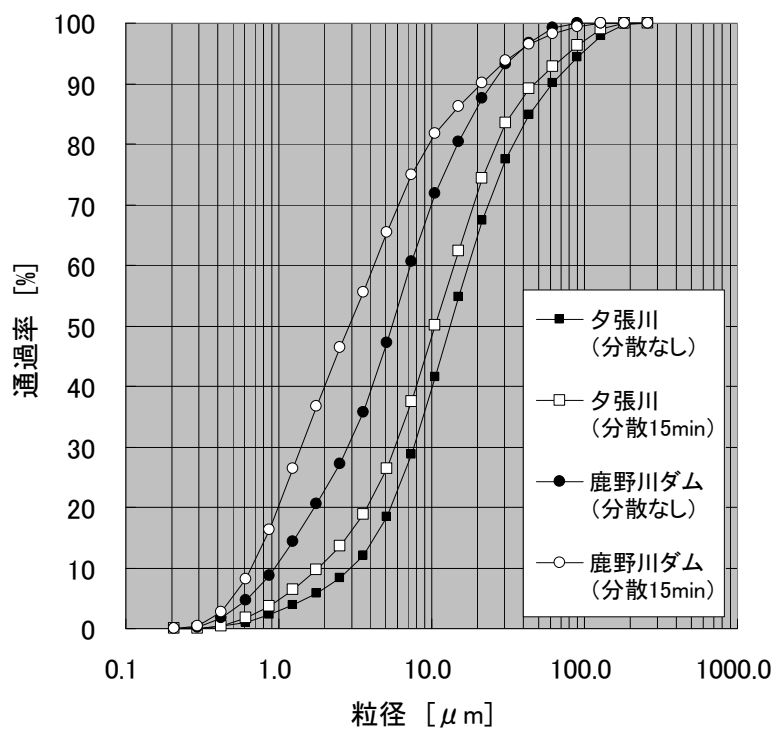


図-5.2.5 試料の粒度分布

5.3 貯水池濁水の凝集と沈降^{5),6)}

前節までの実験は、すべてジャーテスターを用いたビーカー実験であり、規模としては小規模な実験であった。本節では実験規模を拡大し、沈降筒実験を行って凝集特性を検討する。沈降筒実験はジャーテスターによる実験に比べ規模が大きく、鉛直方向の濁度分布も測定できることから、貯水池とある程度類似した条件のもとで、凝集過程を観察できると考えた。なお、実験には懸濁現象が長期化した貯水池から採取した濁水を用いた。

5.3.1 濁水の採水

2007年9月、関東地方では大きな出水を記録し、複数のダムで濁水の長期化が見られた。そこで、実験に必要な試料を、川治ダムおよび下久保ダム貯水池から採水した。ここで、川治ダム貯水池の濁度の変化についてまとめる（図-5.3.1）。

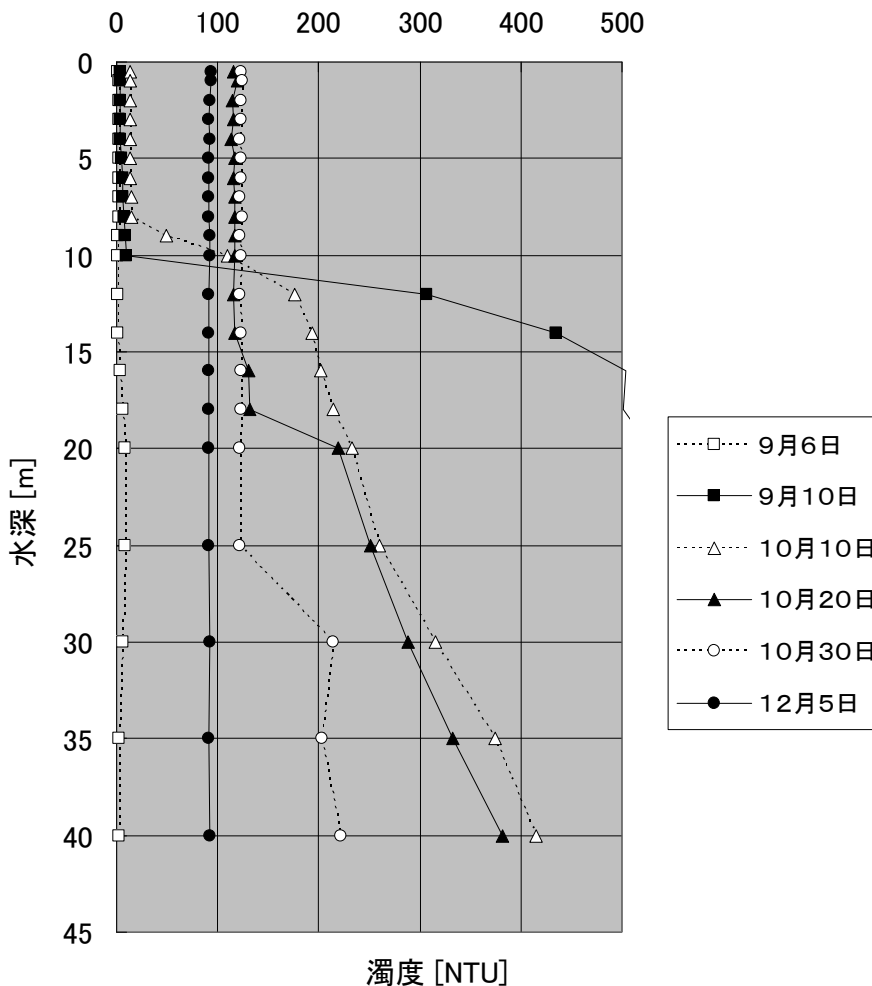


図-5.3.1 貯水池における濁度の鉛直分布（川治ダム, 2007）

出水前の9月6日は、水面から水深40mの範囲で、濁度10NTU以下の値を示し、貯水池はほぼ清澄な状況にあった。9月7日には洪水が流入したものの、貯水池には濁水の流動防止フェンスが2条設置されていたこと、また、貯水池に水温躍層が形成されていたことから、出水直後の9月10日時点では、表層部で濁度10NTU以下の清澄な状態が維持されていた。10月に入ると、貯水池表層が徐々に冷却され、貯水池の温度躍層が崩れ始めた。表層の濁度も上昇し、10月20日には全層で濁度100NTU以上を記録し、貯水池全体が懸濁化した。洪水発生からほぼ3か月経過した12月5日においても全層で濁度90NTU程度を記録し、出水後の貯水池濁水現象が長期化する事態となった。12月6日に採水した際も、貯水池は全面的に濁った状況を呈していた（写真－5.3.1）。



写真－5.3.1 採水日の川治ダム（2007年12月6日）

5.3.2 実験方法

実験には、直径 0.39m、深さ 2.2m のアクリル製沈降筒を使用した（図－5.3.2）。沈降筒の上部には、火山灰土凝集剤 A を分散させるための超音波分散機を、また、沈降筒の底面から 0.5m の位置には、濁水を攪拌してフロックの形成を促すための水中ポンプを設置した。作業は室温 20℃に設定した恒温室で行った。

本実験に先立ち、凝集剤の分散方法、混合水の攪拌方法については、沈降筒を用いた予備実験を、また、火山灰土凝集剤 A の投入量の設定については、ジャーテスターを用いた予備実験を実施した。これらの結果をもとに、分散方法については、(株)SMT 製超音波分散機(UH-600S, 出力 600W, 周波数 20kHz)を用いて 6 min ないし 12 min の分散、攪拌方法については揚水量 13L/min の家庭用水中ポンプを用いて、超音波分散中ならびに分散終了後 3 min 間の運転とした。

火山灰土凝集剤 A の投入量については、川治ダム 200 NTU 程度の濁水に対して 360 mg/L、下久保ダム 50NTU 程度の濁水に対して 32 mg/L を目安として設定した。

凝集効果の把握は、凝集剤投入後の濁度の経時変化を観察する方法とし、濁度は沈降筒に充填した濁水の水面から下方4cmの位置の他、沈降筒側面に50cm間隔に3か所設置した取水コックの位置で測定した。濁度の測定には、ホルマジン溶液により校正した濁度計（HACH社製2100P）を使用した。実験ケースの一覧を、表-5.3.1に示す。川治ダムについては、採水日の異なる3試料について、下久保ダムについては、1試料について実験を行った。各試料について、分散時間の異なる2ケースならびに凝集処理を実施しない1ケースの合計3ケースを設定した。実験の目標として、川治ダムの平常時の表層部における濁度を参考に、凝集処理から24時間経過後に5NTU程度にまで低減することを目指した。

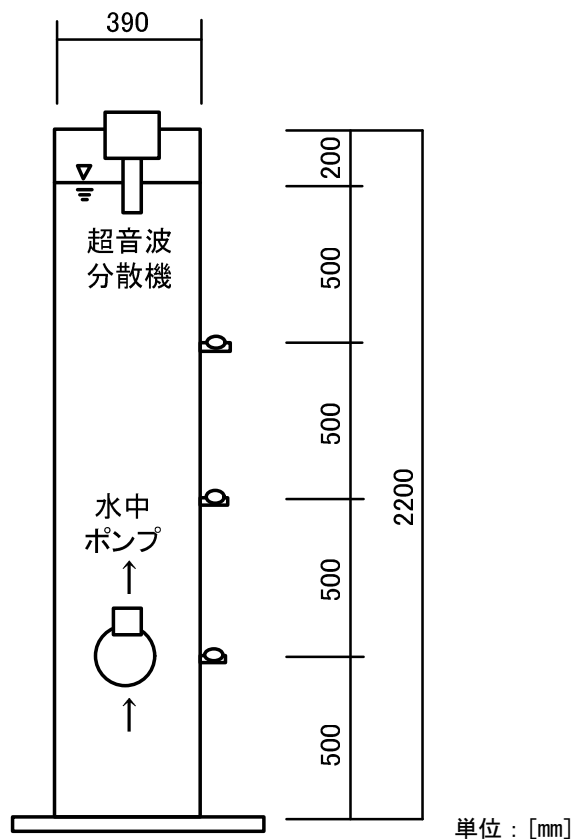


図-5.3.2 φ390 沈降筒

表-5.3.1 沈降筒実験ケース

ケース No.	1.1	1.2	1.3	2.1	2.2	2.3
採水地点	川治	川治	川治	川治	川治	川治
試料の濁度 [NTU]	240	240	240	85.5	85.5	85.5
凝集剤投入量 [mg/L]	360	360	0	180	180	0
超音波分散時間 [min]	6	12	—	6	12	—
攪拌時間 [min]	9	15	—	9	15	—

ケース No.	3.1	3.2	3.3	4.1	4.2	4.3
採水地点	川治	川治	川治	下久保	下久保	下久保
試料の濁度 [NTU]	55.0	55.0	55.0	37.0	37.0	37.0
凝集剤投入量 [mg/L]	90	90	0	32	32	0
超音波分散時間 [min]	6	12	—	6	12	—
攪拌時間 [min]	9	15	—	9	15	—

5.3.3 実験結果

実験結果の一例として、ケース 2.2 における濁度の経時変化を図-5.3.3、写真-5.3.2 に示す。濁度の測定は、凝集処理後 1 min, 5 min, 15 min, 30 min, 60 min, 180 min, 360 min, 720 min, 1,440 min の 9 回にわたって実施した。

濁度の経時変化を概観する。濁度測定は前述のとおり、沈降筒の深さ方向に 4 点測定した。図-5.3.3 より、凝集処理直後の濁度は、火山灰土凝集剤 A の投入に伴う懸濁化により、投入前の試料の濁度を一時的に上回るものの、時間の経過に伴い徐々に低減する状況が把握された。水面から 4cm における濁度は他の測定点に比べ、凝集処理直後から低い値を示すが、時間の経過に伴い、他の測定点も追隨して濁度が低下する傾向が見られた。処理後 12 hr 時間経過した段階では各測定点とも 6 ~8NTU の範囲に、また、24 hr 経過後には 3~6NTU の範囲に分布し、沈降筒全体で凝集・沈殿の効果が確認された。

実験を行った全ケースについて、濁度の経時変化を図-5.3.4~図-5.3.7 に示す。図示した濁度は、4 測点の平均値である。実験を行った 12 ケースのうち、超音波分散を 12min 行った 4 ケースについては凝集剤投入後 24 hr で濁度が 5NTU 程度にまで低減し、目標をほぼ達成する凝集効果が確認された。また、試料・火山灰土凝集剤投入量の条件が同一であれば、超音波分散時間の長いケースの方がより高い凝集効果が得られる結果となった。一方、火山灰土凝集剤を投入せずに濁水を静置したケース（ケース 1.3, ケース 2.3, ケース 3.3, ケース 4.3）では、濁度の低減はごくわずかで、貯水池の濁水長期化を裏付ける結果となった。

目標とする凝集効果を得るための火山灰土凝集剤 A 投入量・超音波分散時間・静置時間の組み合

わせは、複数存在すると考えられる。実際に現地に適用する場合は、必要とされる濁水処理仕様に
 応じて、凝集剤の購入費用、超音波分散・攪拌に必要な設備の費用、処理に係わる人件費など
 を総合的に判断し、最適な投入量と分散時間・攪拌時間を決定することが求められる。

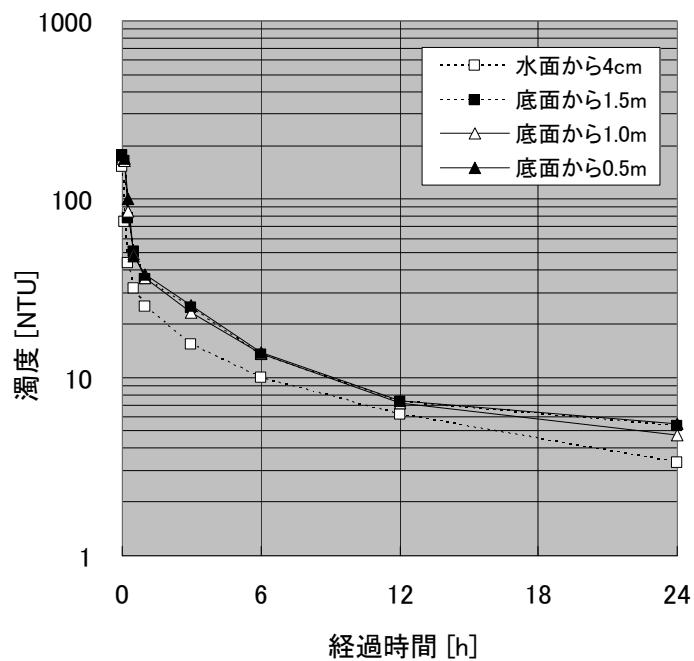


図-5.3.3 濁度の経時変化 (ケース 2.2)

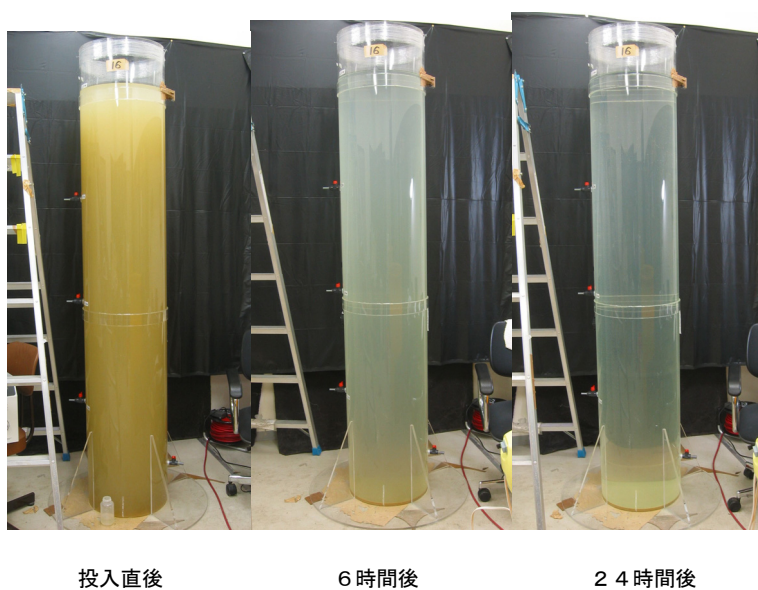


写真-5.3.2 沈降筒実験における濁度変化 (ケース 2.2; 川治ダム)

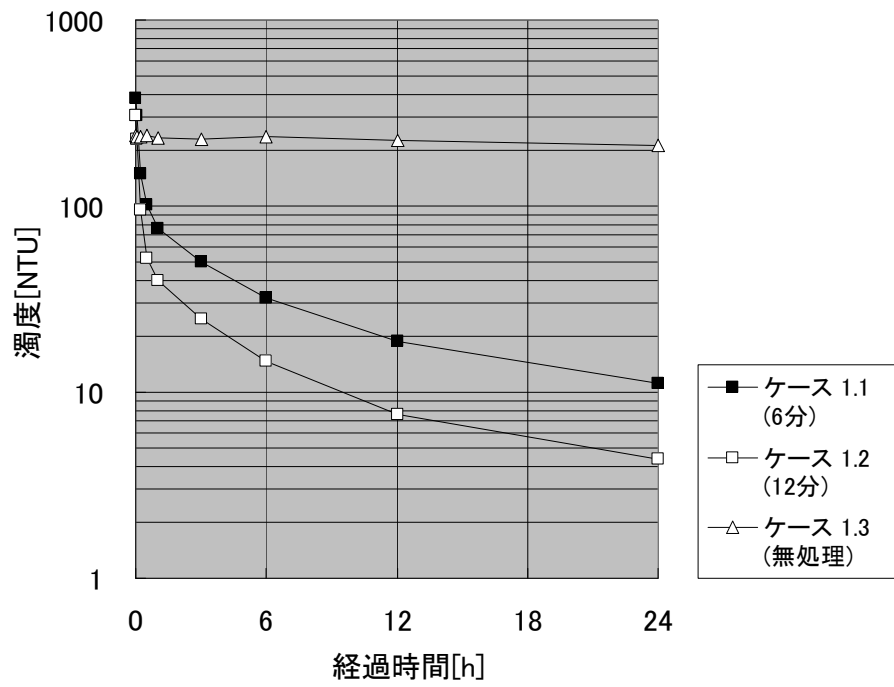


図-5.3.4 濁度の経時変化 (川治ダム-1)

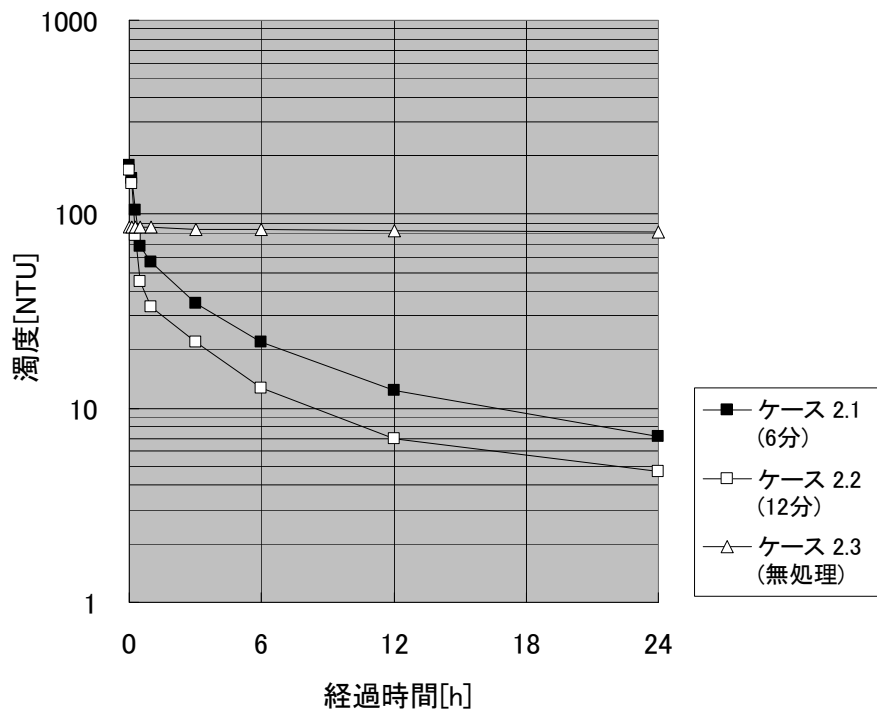


図-5.3.5 濁度の経時変化 (川治ダム-2)

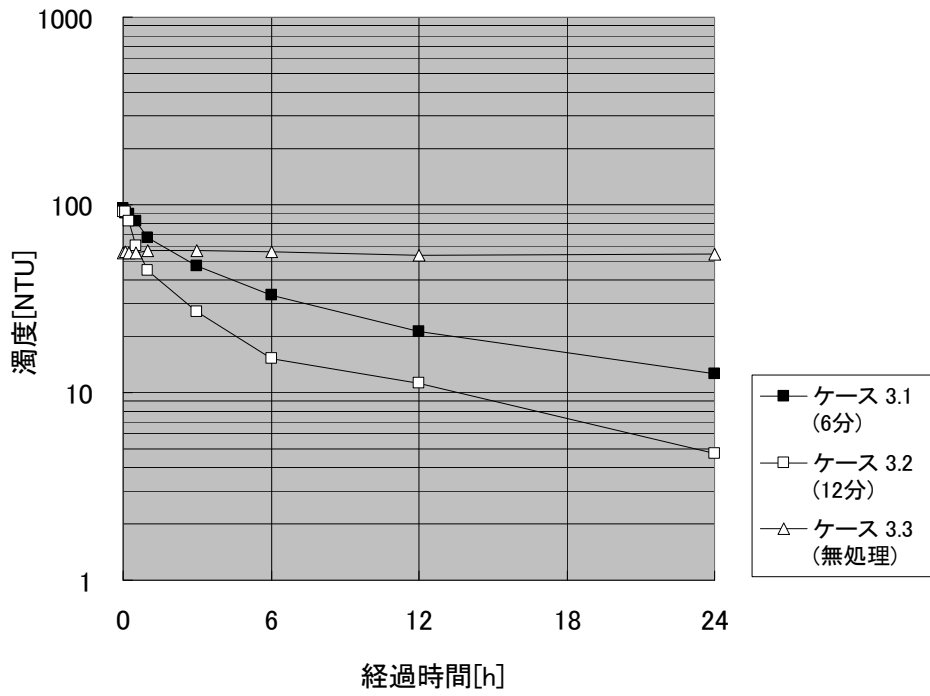


図-5.3.6 濁度の経時変化 (川治ダム-3)

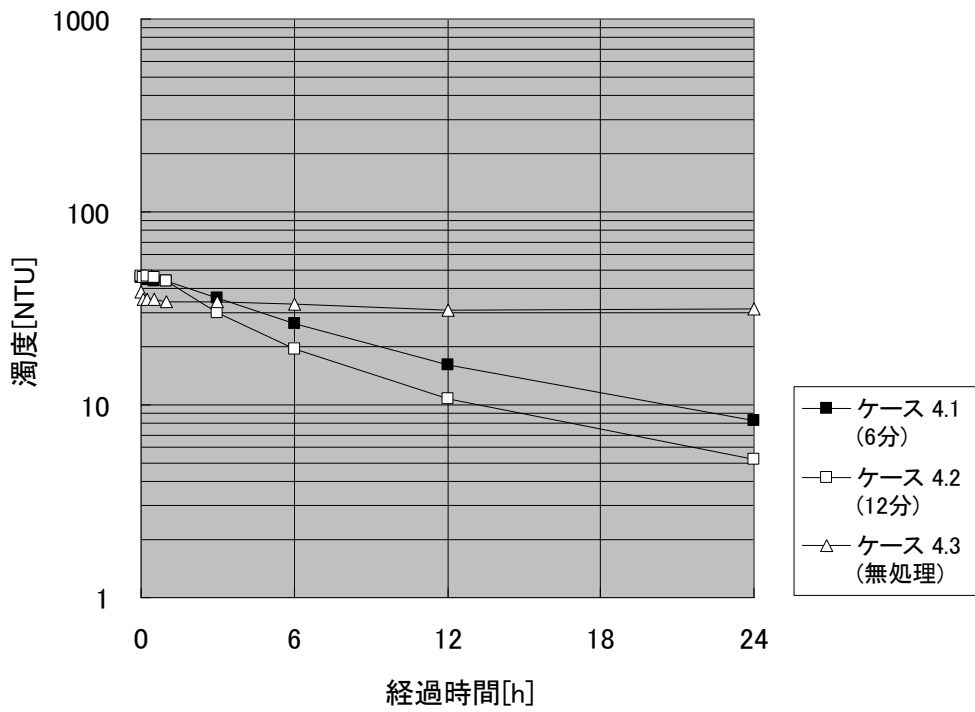


図-5.3.7 濁度の経時変化 (下久保ダム)

5.4 凝集効果の下方持続性^{7),8)}

前節までの検討で、火山灰土凝集剤 A を用いた凝集処理における凝集剤投入量、分散方法および攪拌方法が見出され、凝集特性についても相当程度明らかとなった。しかしながら、実際に濁水処理を貯水池に適用する際には、凝集効果の及ぶ範囲を適切に評価の上、凝集処理施設の諸元を検討する必要がある。

貯水池での凝集処理については、台船を使用して表層部を対象に処理することが考えられる。本節では、表層部を対象に凝集処理した場合の、凝集効果の下方への持続性と凝集余力について検討する。下方への持続については、長尺の沈降筒を使った実験が考えられるが、実験施設の制約があることから、ここでは長さ 2.2m の沈降筒を繰り返し用いる方法を採用した。

5.4.1 実験方法

沈降筒を用いた凝集実験をおこない、凝集効果の下方への持続性について検討した。凝集の目安として、濁水の初期濁度 50 NTU を凝集後 5 NTU 程度に低減させる目標を設定した。この目標値は、川治ダムの平常時の濁度を参考に設定した。実験には、十分な量の濁水を確保する都合上、模擬濁水を製造して用いた。模擬濁水の材料は、川治ダム貯水池から採取した底泥を用いた。

模擬濁水の製造は、5.1.2 と同様の方法とし、濁度が 50NTU になるよう調整した。濁度調整後の模擬濁水の pH は、7.48 であった。作業は室温 20℃ に設定した恒温室で行った。

実験には、5.3.2 と同様に、直径 0.39m、深さ 2.2m のアクリル製沈降筒を用いた(前出「[図-5.3.2](#)」)。沈降筒の上部には超音波分散機を、また、沈降筒の底面から 0.5m の位置には、水中ポンプを設置した。

分散方法については、出力 600W の超音波分散機を用いて 12 min の処理、攪拌方法については揚水量 13L/min の水中ポンプを用いて、超音波分散と同時に 12 min の運転とした。火山灰土凝集剤 A 投入量については、濁度 50 NTU の模擬濁水に対して 90mg/L と設定した。

凝集効果の把握は、凝集剤投入後の濁度の経時変化を観察する方法とした。濁度の測定には、ホルマジン溶液により校正した濁度計 (HACH 社製 2100P) を使用した。実験ケースは、凝集効果の下方への持続を確認することを目的に、1 本目の沈降筒実験 (Case 1)、1 本目の沈降筒の沈殿物を凝集剤として再利用した実験 (Case 2, Case 3)、2 本目の沈降筒の沈殿物を凝集剤として再利用した実験 (Case 4) の 4 ケース設定した(表-5.4.1)。さらに、火山灰土凝集剤 A、模擬濁水および凝集フロックについて、電気泳動法によるゼータ電位を測定し、それぞれの荷電特性を検討した。ゼータ電位の測定には、日機装(株)製 MT3300 を使用した。

表-5.4.1 実験ケース

実験ケース	試料	分散処理	攪拌処理	静置時間
Case 1	初期状態 (50NTU) の濁水に 90mg/L の濃度で凝集剤Aを添加。	12min	12min	24hr
Case 2	Case 1 の沈殿物 (底面より 20cm の範囲) を採取。沈殿物と濁水 (50NTU) を、容積比 1 : 9 の割合で混合。	---	12min	24hr
Case 3	Case 1 の沈殿物 (底面より 20cm の範囲) を採取。沈殿物と濁水 (50NTU) を、容積比 1 : 9 の割合で混合。	12min	12min	24hr
Case 4	Case 3 の沈殿物 (底面より 20cm の範囲) を採取。沈殿物と濁水 (50NTU) を、容積比 1 : 9 の割合で混合。	12min	12min	24hr

5.4.2 実験結果

濁度の測定は、凝集処理後 1 min, 5 min, 15 min, 30 min, 1 hr, 3 hr, 6 hr, 12 hr, 24 hr の 9 回実施した。各ケースの経時変化を図-5.4.1 に、また、火山灰土凝集剤、模擬濁水および凝集フロックのゼータ電位を測定した結果を、表-5.4.2 に示す。

Case 1 を例に、濁度の経時変化を概観する。凝集処理後の濁度は、時間の経過に伴い徐々に低減する状況が把握された。処理後 12 hr 経過した段階では 6.5 NTU, 24 hr 経過後には 4.0 NTU となり、「5NTU 以下」という目安を達成した。

Case 2 は、Case 1 の沈殿物の凝集余力を把握するため、採取した沈殿物を別の沈降筒内の濁水に投入したものである。水面から 4m の深さまで攪拌の効果が及ぶことを想定し、攪拌処理をおこなった。凝集対象の濁水の濁度 50 NTU に対し、24 hr 経過後 35.8 NTU となり、凝集効果はほとんど見られなかった。そこで、水面から 4m の深さまで分散と攪拌の効果が及ぶ状況を想定し、Case 3 として 12 min の超音波分散・攪拌処理を再度おこない静置した。濁度の経時変化を観察した結果、24 hr 経過後の濁度は 4.7 NTU にまで低減し、本ケースについても「5NTU 以下」という目標を達成した。

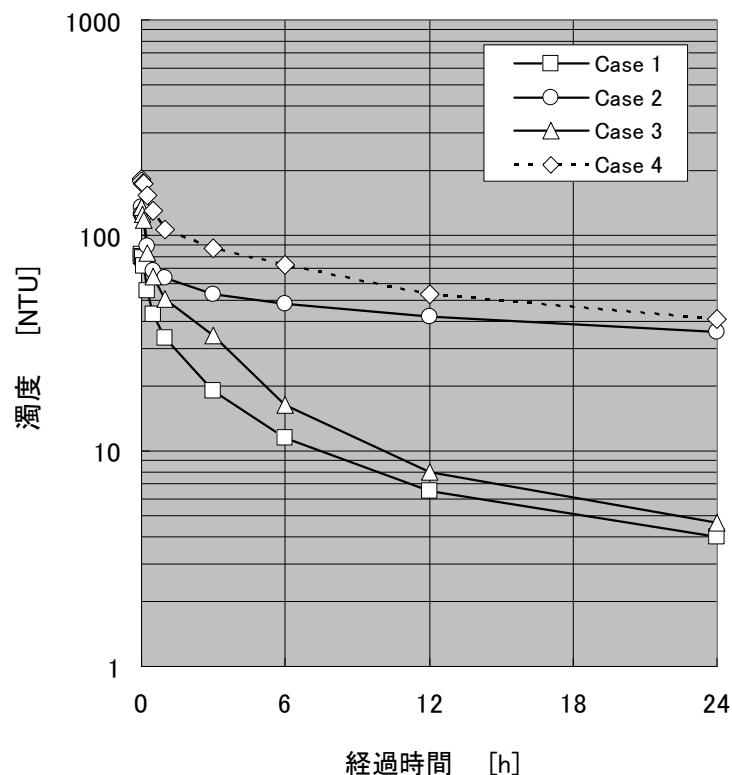


図-5.4.1 濁度の経時変化

表-5.4.2 ゼータ電位の測定結果

試料	ゼータ電位 [mV]
火山灰土凝集剤	2.0
模擬濁水	-23.3
沈殿物 (Case 1)	-11.4
沈殿物 (Case 3)	-20.5
沈殿物 (Case 4)	-19.7

Case 4 は、Case 3 の沈殿物の凝集余力を検討したものである。本ケースの 24 時間経過後の濁度は 40.8 NTU となり、凝集効果はほとんど見られない結果となった。

火山灰土凝集剤、模擬濁水および凝集フロックの荷電特性とゼータ電位について検討する(表-5.4.2)。測定したゼータ電位は、火山灰土凝集剤では正の値を、また、模擬濁水および沈殿物では負の値を示した。凝集剤と濁質の混合物である沈殿物の電位に着目すると、Case 1 では-11.4mV を示したものの、Case 3、Case 4 では-20mV 前後を示し、模擬濁水の電位に近い値を示した。実験では、Case 1 の沈殿物には凝集余力が見られたものの、Case 3 の沈殿物には凝集余力が見られなかつ

たことから、フロックの凝集余力が低減するに従い、フロックのゼータ電位は濁水のゼータ電位に近づくと考えられた。凝集済みフロックの凝集余力は、模擬濁水とフロックの両方のゼータ電位を測定することにより判断できると考えられる。

5.4.3 考察

凝集効果の下方持続性について考察する。下方持続性については、今までに2種類のシナリオを想定していた。一方のシナリオは、貯水池の表層部を対象に凝集処理をすれば、火山灰土凝集剤が土粒子を吸着しながら沈降する過程で深層部にまで凝集効果が及ぶというシナリオ、他方のシナリオは、凝集効果の及ぶ範囲は表層部だけで、凝集効果は深層部まで及ばないというシナリオである。沈降筒を用いた凝集実験の結果を考察すると、Case 1の沈殿物を再利用したCase 3は十分な凝集効果が得られる一方、沈殿物の再々利用にあたるCase 4では凝集効果がほとんど見られない結果となった。実際の貯水池では、超音波分散の効果・攪拌処理の効果は連続的に低減し、凝集処理の効果についても連続的に低減すると考えられるが、仮に、貯水池の水面から水深4mの範囲を対象に凝集処理をした場合、実験で採用した凝集剤投入量では表層部より4m以深における凝集効果はほとんど期待できないと考えられた。

5.5 まとめ

わが国の既設ダムの中には、大規模出水後の貯水池の懸濁化により、下流河川に濁水を長期間放流する事例も見られ、問題解決が急務である。第5章では、アロフェンを主成分とする火山灰土由来の無機凝集剤を用いて効果的・効率的な凝集処理手法を提案することを目的に、室内凝集実験を実施した。さらに、実際の貯水池での利用を想定し、凝集剤の凝集効果の下方持続性について検討した。本章の結論を、以下にまとめる。

- ・模擬濁水を試料に、効率的に凝集させる分散方法・攪拌方法を見いだすことを目的に、ジャーテスターを用いたビーカー実験を行った。実験の結果、凝集剤を濁水と混合後に超音波分散を行い、さらに、急速攪拌することにより、模擬濁水を効果的に凝集できることが判明した。超音波分散・急速攪拌については、ある一定の時間を越えた処理をしても、凝集効果は増大しないと考えられた。
- ・貯水池に流入し、濁水放流の長期化の原因となる濁水を対象に、分散装置・攪拌装置から構成される実験装置を用いて凝集実験を行った。試料は、夕張川ならびに鹿野川ダムから採取した。凝集剤の投入量を示す無次元量として凝集剤投入比 R_C を、また、濁度の低減程度を示す無次元量として濁度比 R_T を導入し、凝集効果を比較した結果、同じSSの濁水に対し、夕張川では鹿野川ダムの4~4.5倍の凝集剤の投入が必要となった。

- ・夕張川と鹿野川ダムについて凝集効果について試料の pH, ゼータ電位, 粒度分布の観点から検討したところ, 凝集効果の差異を合理的に説明することは難しい結果となった.
- ・ビーカー実験から規模を拡大し, 沈降筒実験を行って凝集特性を把握した. 試料は出水時あるいは出水後に川治ダムならびに下久保ダムから採取した. 試料の濁度に応じて凝集剤投入量を定め, また, 十分な分散時間を確保した結果, 良好な凝集効果が得られた.
- ・表層部を対象に凝集処理した場合の, 凝集効果の下方への持続性と凝集余力について検討した. 貯水池の表層部を対象に凝集処理をした場合, 実験で採用した凝集剤投入量では凝集効果は深部にはほとんど及ばないと考えられた. また, フロックの凝集余力が低減するに従い, フロックのゼータ電位は濁水を構成する土粒子のゼータ電位に近づくと考えられた.

以上は, 比較的規模の小さな室内凝集実験を通じて得られた知見である. 貯水池の濁水長期化対策として具体的に適用性を検討するには, 実際に貯水池において当該凝集剤を用いた現地実験をする必要がある. この現地実験については, 第 6 章で記述する.

第5章の参考文献

- 1) 堀岡正和：新しい凝集剤に関する研究（Ⅰ）－アロフェンを原料とする凝集剤の製法－，水道協会雑誌第398号，pp.9-16，1967.11
- 2) 尾崎哲二，口舩愛，森本辰雄，和田信一郎：火山灰土を原料とする新しい凝集剤の開発，土木学会誌 vol.93 No.6, pp.52-55, 2008.6
- 3) 柏井条介，結城和宏：天然凝集材（アロフェン）の濁質凝集効果，ダム技術No.239，pp.20-28，2006.8
- 4) 海野仁，箱石憲昭，星野公秀：天然凝集材アロフェンを使用した貯水池濁質凝集に関する一考察，土木学会第63回年次学術講演会概要集第Ⅱ部門，pp.259-260，2008.9
- 5) Hitoshi UMINO, Noriaki HAKOISHI: Turbid water treatment in a reservoir using natural coagulant, The 5th EADC International Symposium on Co-existence of Environment and Dams, October 2008.
- 6) 海野仁，箱石憲昭：天然凝集材アロフェンを用いた貯水池濁水凝集実験，ダム技術 No.267, pp.16-23, 2008.12.
- 7) 海野仁，箱石憲昭：天然凝集材を用いた貯水池濁水処理における凝集効果の下方伝播，土木学会第65回年次学術講演会概要集第Ⅱ部門，pp.45-46，2010.9
- 8) 海野仁，箱石憲昭：天然由来の凝集剤を用いた貯水池濁水処理における凝集特性の評価，土木学会論文集 B1（水工学）Vol.68, No.4, I_919-I_924, 2012.

第6章 貯水池濁水処理における適用^{1),2)}

ダム貯水池が懸濁化した場合の濁水対策として、凝集剤による土粒子の沈降処理が挙げられる。しかしながら、通常の凝集剤では処理後の泥土処理の問題が大きいことから、凝集後の貯水池還元が可能な凝集剤の開発が求められている。本研究では、凝集剤として環境負荷の少ない火山灰土由来の無機凝集剤を取り上げ、凝集特性を明らかにするとともに貯水池における利用方法について提案することを目的としている。第5章では、アロフェンを主成分とする火山灰土由来の無機凝集剤を用いて効果的・効率的な凝集処理手法を提案することを目的に、室内凝集実験を実施した。しかしながら、貯水池の濁水長期化対策として具体的に適用性を検討するには、実際に貯水池において当該凝集剤を用いた現地実験をする必要がある。

筆者らは、山須原ダム貯水池（九州電力（株）管理）をサイトに現地実験を実施した^{1),2)}。山須原ダムの位置する宮崎県は、耳川水系総合土砂管理計画を策定し、土砂に起因する課題の解決に取り組みを進めている³⁾。また、耳川水系に位置する3ダムでは、貯水池に堆積した土砂の移動と出水時の通砂運用を目指した放流設備の改造が行われている⁴⁾。第6章では、山須原ダム貯水池をサイトに実施した現地実験について報告するとともに、貯水池濁水処理の実用化に向けた課題を整理し、現地への適用についての評価手法を提案する。

6.1 現地実験

6.1.1 実験方法

山須原ダムでは、貯水池に堆積した土砂を湖内移動する試験工事が実施されている。現地実験では、堆積した土砂を陸揚げした際に生じる濁水を、湖岸に設置した2基の水槽に6.0m³ずつ導入して実施した。このうち、一方の水槽は凝集処理を行い（水槽1）、他方の水槽は何ら処理を行わず、そのまま静置した（水槽2）。現地実験は、2012年2月に実施した。実験中の濁水の水温は、水槽の上層部で8.9～1.3℃の範囲で、また、下層部で8.0℃～4.0℃の範囲で変化した。凝集処理の手順は次の通りとした。

1) 凝集剤懸濁液の作成

凝集剤投入量に関する予備実験の結果を基に¹⁾、試料となる濁水の濁度285～290 NTUに対し凝集剤投入量を450mg/Lに設定し、乾燥重量に換算して2.7kgの火山灰土凝集剤Aを準備した。次に、火山灰土凝集剤Aを少量の濁水に混ぜ合わせ、家庭用ミキサーでペースト状に混合した。ここで、ペースト状の凝集剤を直接水槽1に投入した場合、濁水と凝集剤とが混合せずに凝集剤のみ沈殿することも考えられることから、凝集剤をタンクに移し、0.5m³の濁水と混合して凝集剤懸濁液を作

成した。凝集剤懸濁液の作成に濁水を用いたのは、両水槽の試料の均質性を保つためである。

2) 超音波分散+攪拌

凝集剤懸濁液 0.5m^3 をタンクから水槽に移し、 5.5m^3 の濁水と混合し、凝集剤・濁水混合液を作成した。周波数 20kHz 、出力 600W の超音波分散装置を用いて 180min 間分散した（写真-6.1.1）。分散時間は体積 3.98m^3 の濁水を対象とした先行実験において効果の見られた実験ケースを参考に設定した。ここで、超音波は水面付近から照射し、効果が及ぶ範囲も限定されると考えられる。そこで、吸水量 $13\text{L}/\text{min}$ の水中ポンプ 4 台を用いて、凝集剤による濁質の吸着が進行するよう、水槽内を攪拌した（図-6.1.1）。以上の手順を経た後に静置し、2 基の水槽の上層部、下層部それぞれについて濁度の経時変化を測定した。濁度の測定には、ホルマジン溶液により校正した多項目水質計（東亜ディーケーケー社製 WQC-24）を使用した。

3) 試料分析

無処理のまま静置する水槽 2 より濁水を取り分け、SS を測定するとともに、試料を希釈して濁度を測定し、濁度と SS の関係を整理した。また、濁水を構成する土粒子のゼータ電位ならびに粒度分布を測定した。ゼータ電位と粒度分布については、超音波分散した試料としない試料の両方について測定した。ゼータ電位の測定には、Malvern 社製 Zetasizer Nano ZS を用いた。粒度分布の測定には、（株）島津製作所製 SALD 2300 を使用した。



写真-6.1.1 水槽に設置した超音波分散装置

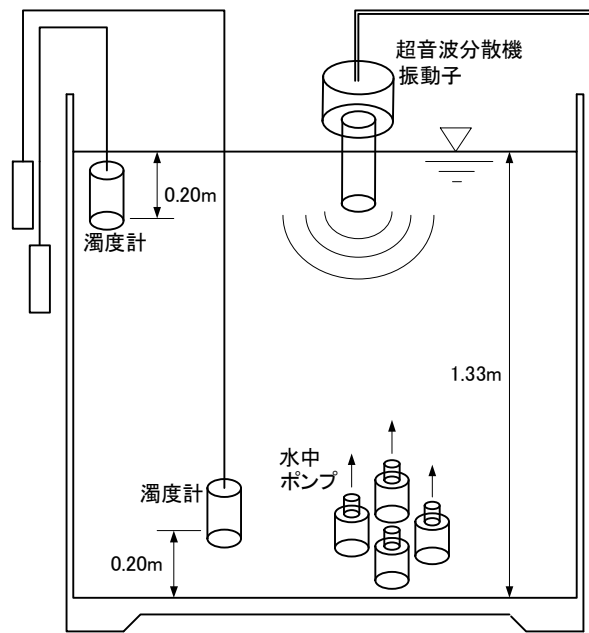


図-6.1.1 現地実験の機器

6.1.2 実験結果

凝集処理した水槽1, 無処理のまま静置した水槽2について, 静置後180 minの状況を写真-6.1.2に, 濁度の経時変化を測定した結果を, 図-6.1.2に示す. ここで, 分散・攪拌処理開始時刻を-180 min, 分散・攪拌処理終了時刻を0 minとし, -180 minから1440 minまでの濁度の経時変化を整理した.

分散・攪拌開始時の濁度は, 水槽1の上層・下層平均で290 NTU, 水槽2の上層・下層平均で285 NTUであったが, 水槽1, 水槽2とも時間の経過とともに濁度が低減した. 特に, 凝集処理をした水槽1では, 凝集処理中にもフロックの形成が目で確認され, 濁度が大きく低減した. 実験の前半で, 上層の濁度が下層より大きい数値を示したが, これは強風により水面付近が攪乱され, 水槽上層部では土粒子の沈降が妨げられた一方, 下層部では土粒子が順調に沈降したためと考えられる. また, 実験の後半で水槽1の下層部に濁度の上昇が見られるが, これは, 水温が低下する過程で対流が生じ, 一旦沈降したフロックが再浮上したためと考えられる. 1440 min後の濁度は凝集処理した水槽1の上層・下層平均で13.6 NTU, 無処理である水槽2の上層・下層平均で186 NTUとなり, 火山灰土凝集剤Aによる凝集効果が現地実験においても確認された.

現地実験で用いた濁水の特性について, 「5.2.4 濁水の特性と凝集効果」で取り上げた夕張川河川水・鹿野川ダム貯水池濁水の分析結果と対比して検討する(表-6.1.1, 図-6.1.3, 図-6.1.4). 山須原ダムから採取した濁水(以下, 「山須原ダム」と略す.)は濁度290 NTUに対しSS 200 mg/Lとなり, SSは濁度の2/3程度の値を示した. 山須原ダムのSSに対する濁度の比は, 5.2.4で述べ

た夕張川と同等の値であり、鹿野川ダムよりも高い値である。現地実験では凝集剤投入量を 450 mg/L に設定したことから、 R_C （凝集剤投入比）は 2.25 となった。凝集剤投入比 2.25 は、鹿野川ダムビーカー実験において 60 min 静置後に濁度比が 0.1 に低減した凝集剤投入比 2 と同程度である。山須原ダムの pH は 7.36 であり、夕張川・鹿野川ダムと比較して低く、ほぼ中性の値を示した。ゼータ電位は -23.1 ~ -23.4 mV であり、超音波分散の有無でほとんど変化せず、また、夕張川・鹿野川ダムより大きな絶対値を示した。粒度分布を比較すると、山須原ダムでは夕張川・鹿野川ダムに比較して粒度が粗く、粒径 10 μ m 以下の粒子の占める割合を比較すると、いずれも分散なしの試料で夕張川 40%、鹿野川ダム 70% に対し、山須原ダムでは 25% となった。5.2.4 では、「凝集効果の差異を pH、ゼータ電位、粒度分布の観点から説明することは難しい」と記述したが、山須原ダムで凝集効果の得られる 1 つの要因として、ゼータ電位の絶対値が高いことが考えられた。



写真-6.1.2 静置 180 min 後の水槽 1(右手前)と水槽 2(左奥)

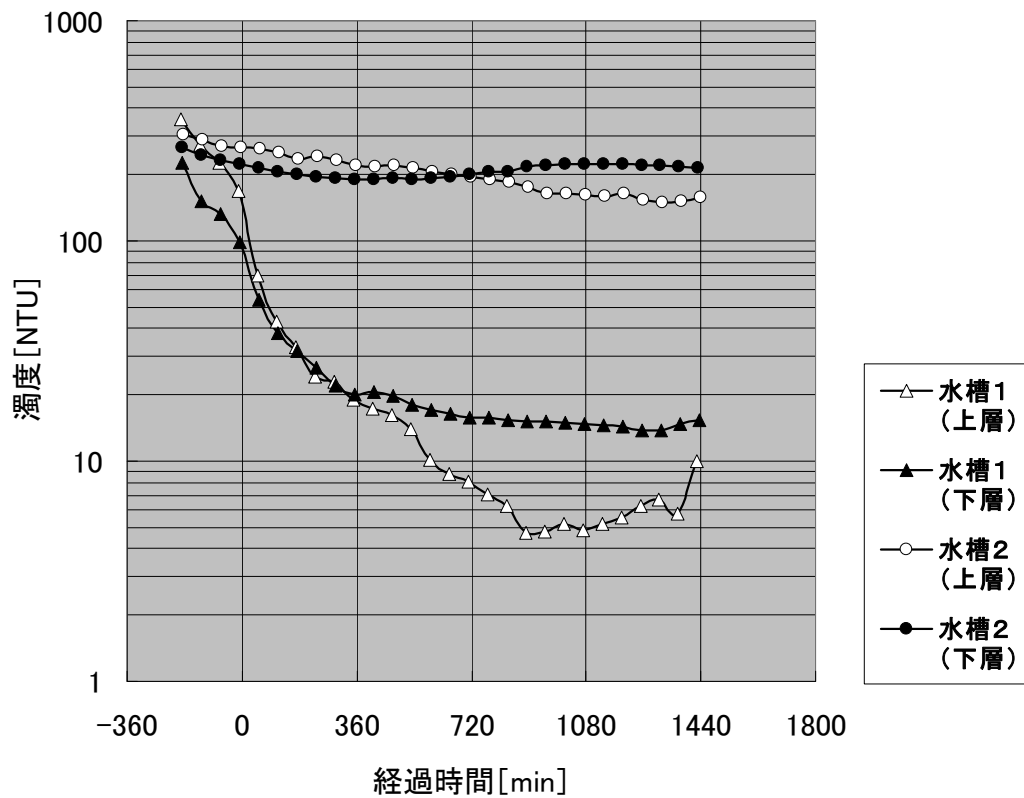


図-6.1.2 濁度の経時変化（現地実験）

表-6.1.1 試料の濁度・SS・pH・ゼータ電位

	濁度 [NTU]	SS [mg/L]	pH	ゼータ電位	
				分散なし [mV]	分散15min [mV]
山須原 ダム	290	200	7.36	-23.1	-23.4

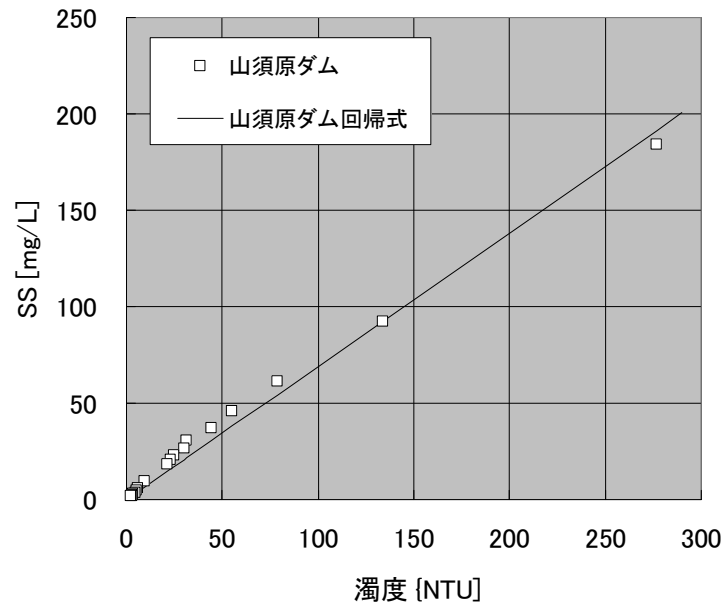


図-6.1.3 試料の濁度とSS

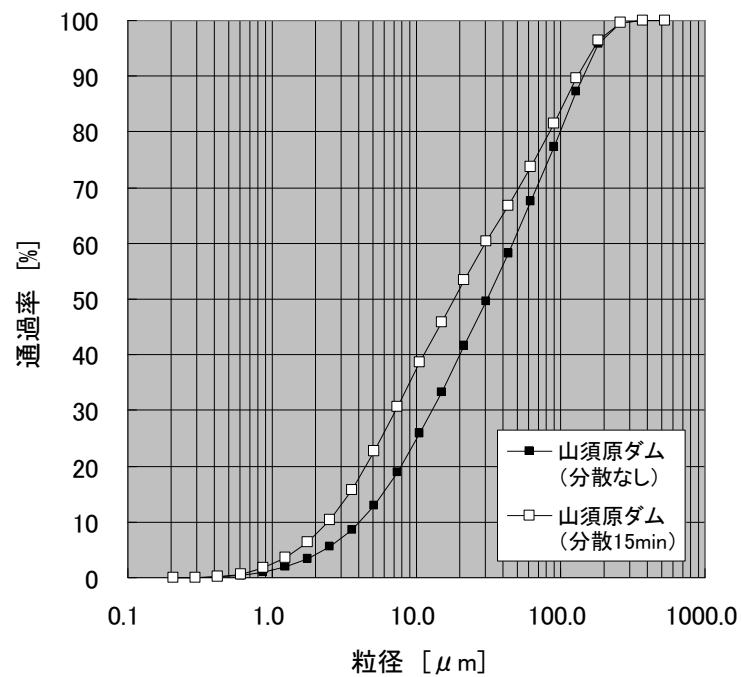


図-6.1.4 試料の粒度分布

6.1.3 実用化に向けた課題

凝集処理の実用化に向けた課題を整理する。現地実験では、濁度 285~290 NTU の原水に対して 450mg/L の濃度で火山灰土凝集剤 A を投入した。凝集剤投入比 R_c は 2.25 であり、濁水の SS の 2 倍以上の凝集剤を投入したことから、凝集剤投入量の縮減が課題として挙げられる。また、現地実験では室内実験と同様、火山灰土凝集剤 A を濁水と混合後に超音波分散した。火山灰土凝集剤 A を濁水と混合する前に超音波分散し、濁水との混合後まで凝集剤の分散状態が持続するような分散手法の開発が課題として挙げられる。

6.2 現地適用性の評価

本研究は、貯水池に流入し濁水放流の長期化の原因となる濁水、あるいは堆積土砂の湖内移動に伴い生じる濁水を対象に、貯水池への環境負荷を抑制しつつ有効な対策技術を開発することを目的としている。ここでは、火山灰土が凝集剤として現地に適用できるか評価する手法を提案する。

現場への適用性の評価にあたっては、まず、第一段階として対象とする濁水の特徴を把握することが必要である。具体的には、濁水の SS、濁度、粒径 10 μ m 以下の細粒分の占有率、濁水を構成する土粒子のゼータ電位、濁水の pH などの把握である。これらの基礎データを揃えた上で、第二段階として予備実験を実施する。予備実験では、対象とする濁水に対し、凝集剤投入量を変化させ、必要な投入量を把握する。また、超音波による分散時間を変化させ、効率的に凝集が進行するような分散時間を把握する。予備実験の終了後、第三段階として現地実験を実施する。ここでは、予備実験で得られた凝集剤投入量、超音波分散の照射時間に関するデータを活用し、現地実験の仕様を決定する。実際に現地で凝集実験を実施した上で、第四段階として火山灰土を用いた濁水処理が現地に適用可能かどうか検討する。検討項目としては、凝集剤投入量、超音波分散の方法、実施に伴う設備、作業人員、作業期間、処理費用等が挙げられる。以上の手順をフロー図にまとめ、図-6.2.1 に示す。

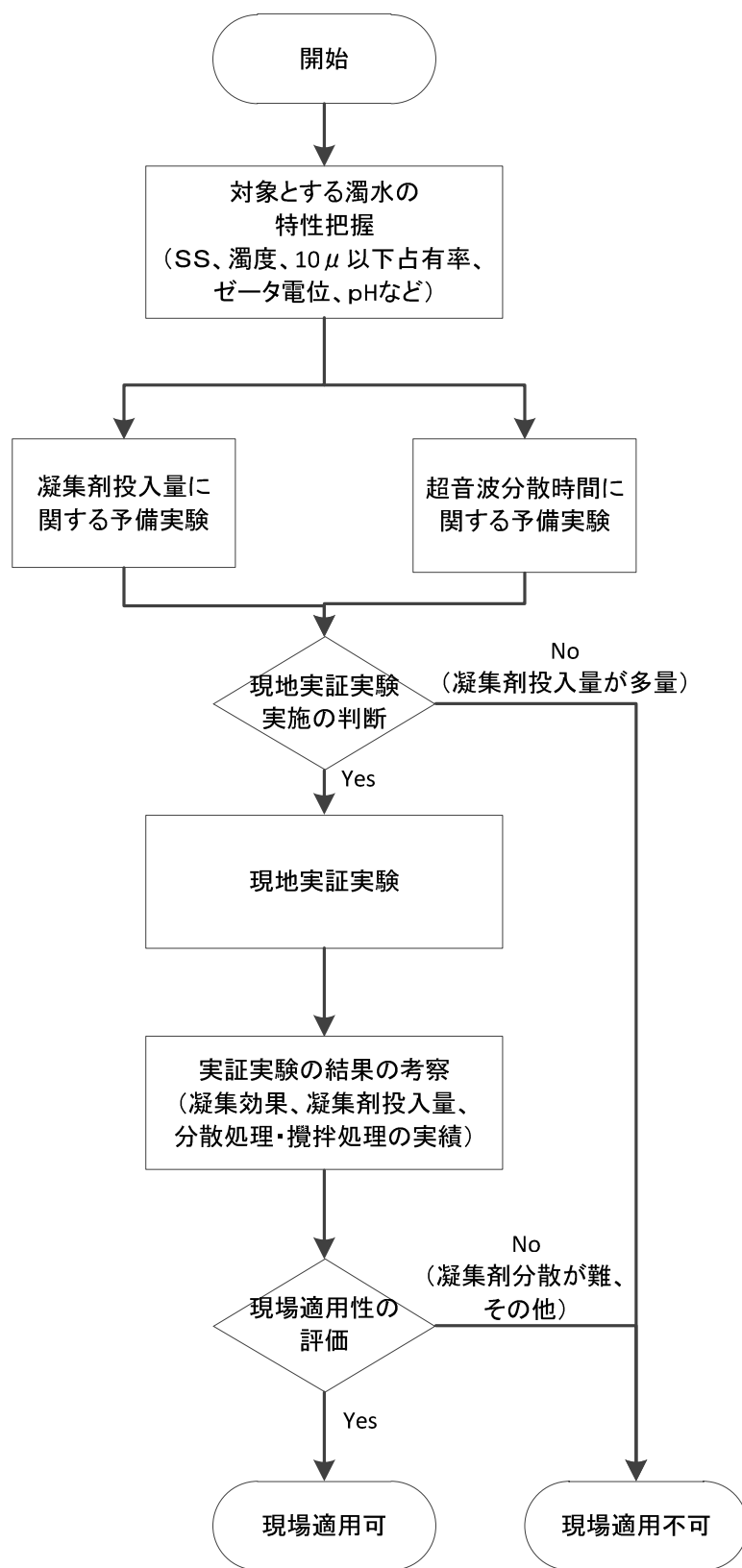


図-6.2.1 現場適用性評価フロー

6.3 まとめ

ダム貯水池が懸濁化した場合の濁水対策として、凝集剤による土粒子の沈降処理が挙げられる。しかしながら、通常の凝集剤では処理後の泥土処理の問題が大きいことから、凝集後の貯水池還元が可能な凝集剤の開発が求められている。本研究では、凝集剤として環境負荷の少ない火山灰土由来の無機凝集剤を取り上げ、凝集特性を明らかにするとともに貯水池における利用方法について提案することを目的としている。貯水池の濁水長期化対策として具体的に適用性を検討するには、実際に貯水池において当該凝集材を用いた現地実験をする必要がある。

第6章では、山須原ダム貯水池をサイトに実施した現地実験について報告するとともに、貯水池濁水処理の実用化に向けた課題を整理し、現地への適用についての評価手法を提案した。貯水池の濁水長期化対策として具体的に適用性を検討するには、実際に貯水池において当該凝集剤を用いた現地実験をする必要がある。第6章の結論を、以下にまとめる。

- ・現地実験は、山須原ダム貯水池の堆積土砂を湖内移動する際に生じる濁水を、湖岸に設置した水槽に注入して実施した。凝集剤投入量を 450mg/L に設定し凝集処理をしたところ、初期濁度 290 NTU に対し、1440 min 後の濁度は 13 NTU にまで低減した。火山灰土凝集剤 A による凝集効果が現地実験においても確認された。
- ・現地実験で用いた濁水のゼータ電位を測定したところ、-23.1~-23.4 mV であった。山須原ダムで凝集効果の得られる 1 つの要因として、ゼータ電位の絶対値が高いことが考えられた。
- ・凝集処理の実用化に向けた課題を整理した。現地実験では、濁水の SS の 2 倍以上の凝集剤を投入したことから、凝集剤投入量の縮減が課題として挙げられた。また、火山灰土凝集剤 A を濁水と混合する前に超音波分散し、濁水との混合後まで凝集剤の分散状態が持続するような分散手法の開発が課題として挙げられた。
- ・火山灰土凝集剤を用いた凝集処理の現地への適用について、評価手順をフロー図にまとめて提案した。

第6章の参考文献

- 1) 海野仁, 箱石憲昭: 天然凝集材を用いた濁水凝集処理に関する現地試験, 土木学会第 68 回年次学術講演会概要集第Ⅱ部門, pp201-202, 2013.9
- 2) 海野仁, 小林幹佳, 箱石憲昭: 火山灰土凝集剤の凝集・分散特性と貯水池濁水処理への適用, 水工学論文集, 第 58 巻, 2014.2 (投稿中) .
- 3) 宮崎県: 耳川水系総合土砂管理計画, 2011.10
- 4) Y. Yamagami, M. Kaku, K. Asazaki and Y. Tashiro: Approaches for Integrated Flow Management at Dams in the Mimikawa River Basin, *International Symposium on Dams for a Changing World, ICOLD Kyoto*, pp.2_143-2_148, 2012.

第7章 結論

ダム貯水池の水質問題のひとつに、濁水長期化問題があり、この対策として選択取水設備や流動制御フェンス等が用いられている。これらの施設の規模や運用方法を検討する場合は、土砂による水の濁りに関する数値シミュレーションを精度良く実施する必要がある。また、貯水池全体が懸濁化した際の対策として、清水バイパスの設置と運用のほか、凝集剤による土粒子の沈降処理が考えられる。しかしながら通常の凝集剤では処理後の泥土処理の問題が大きいことから、凝集後の貯水池還元が可能な凝集剤の開発が求められている。

本研究は、貯水池に流入し濁水放流の長期化の原因となる濁水、あるいは堆積土砂の湖内移動に伴い生じる濁水を対象に、貯水池への環境負荷を抑制しつつ有効な対策技術を開発することを目的に実施した。具体的には、貯水池の濁水長期化の原因となる土粒子について、粒度分布ならびに沈降速度の把握手法を提案すること、さらに、貯水池の懸濁化対策として、環境負荷の少ない火山灰土由来の無機凝集剤（以下、「火山灰土凝集剤 A」と略す。）を取り上げ、貯水池濁水対策としての利用方法について提案することを目的とした。本研究で得られた結論を、以下にまとめる。

洪水時に利根川水系山口川（茨城県桜川市）において河川水を採水し SS ならびに粒度分布を測定した。採水は、洪水のピーク時から減水時にかけて 4 回おこなった。分析の結果、洪水のピーク時以降、時間の経過に伴い SS も減少する傾向が見られた。さらに、SS の低下に伴い粒度分布も徐々に細粒化する傾向が見られた。今後は、増水時においても試料を採取し、SS・粒度分布の経時変化を把握することが課題と考えられた。

本研究では、従来行われていたレーザー回折法による粒径分布にストークス式やルベイ式等を適用して沈降速度分布を設定する手法に問題意識を持ち、沈降速度を適切に評価する手法について検討した。洪水時に現地から採取した濁水を試料に沈降実験を行い、測定した沈降速度からストークス式を用いて粒度分布を算定した。これを粒度分布の最確値と捉え、簡便的な手法であるレーザー回折法ならびに透過式遠心沈降法を用いて測定した粒度分布を比較したところ、従来から良く使用されているレーザー回折法による粒度分布が最も粗粒化傾向、つまり、沈降速度が大きく算定される傾向を示した。沈降筒法は、濁質の沈降速度を直接測定していることから、沈降現象を把握するには最も適した方法と考えられる。しかしながら、十分な量の試料が確保できない場合には、遠心沈降法（分散なし）あるいはレーザー回折法（分散 10 min）が代替法となり得ると考えられた。

本研究では、既往研究では紹介されていない安価でかつ大量に調達可能な火山灰土を取り上げ、ゼータ電位を測定して荷電特性について整理した。火山灰土凝集剤 A の等電点（ゼータ電位が 0 となる点）は「分散なし」の試料で pH8 付近となり、軽部らがアロフェンの等電点として報告した pH5.1（脱鉄試料）あるいは pH5.9（非脱鉄試料）よりもアルカリ側に位置した。本凝集剤は、アロ

フェンを主成分としつつも少量のイモゴライトが混合し、その結果として等電点がアルカリ側に移動したと考えられた。また、少量のイモゴライトが荷電特性ならびに凝集・分散特性を大きく支配しているものと考えられた。

土粒子の粒度分布・沈降速度分布を論じた研究は複数報告されているが、具体的に沈降速度分布を適切に設定する方法の提案が望まれる。そこで、本研究では凝集フロックならびに土粒子を対象に沈降速度を直接計測し、粒径との関係を明らかにした。恒温水槽に沈降管を静置し、土粒子の粒径と沈降速度の測定装置を設営した。モデルフロックとして関東ローム懸濁液と火山灰土凝集剤 A の凝集フロックを複数取り上げ、沈降管に滴下し粒径と沈降速度を測定した。各試料ともフロックの粒径と沈降速度は両対数紙上でほぼ直線上にプロットされ、良好な相関が得られた。モデルフロックのフラクタル次数は 2.08~2.38 の間に分布し、試料間に大きな差異は見られなかった。これは、各試料とも電解質として NaCl 濃度を 0.01M に固定したことから、類似した締まり具合のフロックが形成されたことによると考えられた。次に、現地採取した土粒子 4 検体について、粒径と沈降速度を測定した。各試料とも粒径が増大するに従い沈降速度が上昇する傾向が見られたが、モデルフロックのような良好な相関は見られなかった。現地採取した土粒子の沈降速度はストークス式より求めた沈降速度より遅い結果となった。超音波分散せずに試料をレーザー回折法で分析し、ストークス式を適用して沈降速度を求めた場合、沈降速度を過大に評価することが裏付けられた。現地採取した土粒子のうち 1 試料を取り上げ、レーザー回折法で求めた粒度分布にフロックの密度関数を当てはめ、沈降速度分布を求めたところ、ストークス式をあてはめて求めた沈降速度分布に比べて、沈降筒との整合性が大きく向上した。ストークス式に比べ、フロックの密度関数を適用した場合の方が沈降速度をより適切に評価できることが判明した。

火山灰土の利用について、既往研究は pH 調整剤を添加した凝集剤の製法を提案している、しかしながらこれらの凝集剤を貯水池に投入した場合、長期滞留後の水質に与える影響について別途検討が必要となる。本研究では、pH 調整剤を添加していない火山灰土凝集剤を取り上げ、効率的・効果的な凝集法の提案を目指した。複数の方法を試行したところ、凝集剤を濁水と混合後に超音波分散を行い、その後急速攪拌することにより、模擬濁水を効果的に凝集できることが判明した。次に、貯水池での利用を考慮し、沈降筒実験をおこなった。表層部を対象に凝集処理した場合の凝集効果の下方への持続性と凝集余力について検討したところ、実験で採用した凝集剤投入量では深部に凝集効果はほとんど及ばないと考えられた。また、フロックの凝集余力が低減するに従い、フロックのゼータ電位は濁水を構成する土粒子のゼータ電位に近づくと考えられた。

凝集処理の実用化を目指し、山須原ダム貯水池において現地実験を実施するとともに、現地への適用に関する評価手法を提案した。現地実験では、初期濁度 290 NTU、SS 200mg/L の濁水に対し、凝集剤投入量を 450mg/L に設定して超音波分散ならびに攪拌処理をしたところ、1440 min 後の濁度

は 13.6 NTU にまで低減し，火山灰土凝集剤 A による凝集効果が確認された．現地実験では，凝集剤投入量の縮減と凝集剤の分散手法の改良が課題として挙げられた．

以上，本研究では，貯水池の濁水長期化の原因となる土粒子について，粒度分布ならびに沈降速度の把握手法を提案した．また，貯水池の懸濁化対策として，環境負荷の少ない火山灰土由来の無機凝集剤を取り上げ，貯水池濁水対策としての利用方法について提案した．ここで提案した凝集処理は，既設ダム濁水長期化対策のみならず，新設ダム濁水対策の組み合わせの 1 手法としても活用が期待される．今後は本研究で得られた知見を踏まえ，室内実験・現地実験を継続し，火山灰土由来の無機凝集剤を用いた貯水池濁水対策の実現に向け，研究を前進させたい．

謝辞

本論文は、筆者が独立行政法人土木研究所に在職の傍ら、筑波大学大学院生命環境科学研究科に2年10か月在籍し、同大学院教員の研究指導を受けつつ成果をまとめたものです。同大学院では指導教員である足立泰久教授に、テーマの設定、研究の進め方、結果の取りまとめ等多方面にわたりご指導賜りました。ここに、厚くお礼申し上げます。また、同大学院小林幹佳准教授には、実験機器の操作方法、試料の分析と評価、査読付き論文の執筆等で大変お世話になりました。同大学院入江光輝准教授には、進捗報告の機会を捉え、貴重な意見を頂戴しました。さらに、論文審査では、同大学院京藤敏達教授よりアドバイスを頂戴しました。皆様のご指導の結果、本論文が無事完成したと感じております。ここに、お礼申し上げます。また、同大学院辻本陽子氏、山田健太氏をはじめ、環境コロイド界面工学研究室の学生の方々には、筆者の通学頻度が低いにもかかわらず暖かくお迎え下さり、さらに実験機器の使用等においてもご協力下さり、その結果、順調に研究を進めることができました。ここに、皆様にお礼申し上げます。

筆者が独立行政法人土木研究所を退職することなく大学院博士課程に在籍できたのは、勤務先の理解と協力のお陰と感謝しております。同所水工研究グループ安陪和雄グループ長、石神孝之上席研究員、水理チーム箱石憲昭上席研究員におかれては、筆者が大学院での研究が可能となるよう、多方面にわたり配慮下さいました。ここに、お礼申し上げます。特に、箱石憲昭上席研究員におかれては、本論文と直接関連した12報の論文執筆（うち、査読つき3報）にあたり、有意義なアドバイスを賜り、これらの論文発表なしに本論文が完成したとは考えられません。ここに、改めてお礼申し上げます。また、水理チーム坂野章総括主任研究員、宮脇千晴主任研究員、櫻井寿之主任研究員（現、国土技術政策総合研究所）、宮川仁主任研究員ならびにチーム諸氏におかれては、筆者の土木研究所での業務を多方面にわたりフォローして下さい、お礼申し上げます。

本論文の現地観測データならびに実験データは、筆者が担当者となり独立行政法人土木研究所が実施した研究を通じて得たものです。研究を実施するにあたり、国土交通省川治ダム管理支所、同省山鳥坂ダム工事事務所、独立行政法人水資源機構下久保ダム管理所、独立行政法人土木研究所水災害・リスクマネジメント国際センターの方々には、水文・水質データの収集、現地での採水等でご協力いただきました。また、実験場所の確保と資機材の貸与等で宮崎県県土整備部河川課ならびに九州電力（株）耳川水力整備事務所の方々にご協力頂きました。さらに、実験の多くを中根毅彦氏に担当していただきました。以上諸氏にお礼申し上げます。

最後に、筆者の大学院通学を理解・協力してくれた家族に、感謝いたします。

発表論文一覧（2011年4月～2014年2月）

(1) 学術雑誌等（紀要・論文集等を含む）に発表した論文または著書（査読あり）

- 1) 海野仁, 箱石憲昭: 出水時における土粒子の粒度分布に関する比較研究, 河川技術論文集, 第17巻, pp17-pp22, 2011.7
- 2) 海野仁, 箱石憲昭: 天然由来の凝集剤を用いた貯水池濁水処理における凝集特性の評価, 土木学会論文集B1 (水工学) Vol.68, No.4, I_919-I_924, 2012.2
- 3) 海野仁, 小林幹佳, 箱石憲昭: 火山灰土凝集剤の凝集・分散特性と貯水池濁水処理への適用, 水工学論文集, 第58巻, 2014.2 (投稿中) .

(2) 雑誌等に発表した論文または著書（査読なし）

- 1) 海野仁, 箱石憲昭: 貯水池濁水処理における天然凝集材の凝集特性, 土木技術資料 Vol.54, No.4, pp10-pp13, 2012.
- 2) 海野仁, 箱石憲昭: 天然由来の火山灰質凝集材を用いた濁水凝集処理に関する現地実験, 土木技術資料 Vol.55, No.11, pp11-pp14, 2013.

(3) 国際会議における発表

- 1) Hitishi Umino, Noriaki Hakoishi: An experimental study on turbid water coagulation method using natural coagulant, Dams and Reservoirs under changing Challenges, 79th Annual Meeting of ICOLD 2011. pp363-pp370, 2011. 6
- 2) Hitishi Umino, Noriaki Hakoishi: An Evaluation of Coagulation Performance on Turbid Water Treatment in a Reservoir Using Colloidal Coagulant, ABSTRACTS, The 10th International Symposium on Electrokinetic Phenomena, pp130, 2012. 5
- 3) Hitishi Umino, Noriaki Hakoishi: A Comparative Study on Grain Size Analysis for Sediments Flowing into Reservoirs, International Symposium on Dams for a Changing World, 2_0184, International Commission on Large Dams, 2012.

(4) 国内学会・シンポジウム等における発表（査読なし）

- 1) 海野仁, 箱石憲昭: 出水時に河川を流下する微細粒子土砂の粒度分布に関する比較検討, 土木学会第66回年次学術講演会概要集第II部門, pp.133-144, 2011.9.
- 2) 海野仁, 箱石憲昭: 貯水池濁水処理における土コロイドの凝集特性, 平成23年度ダム工学会研究発表会 pp21-pp24, 2011. 11

- 3) 海野仁, 箱石憲昭 : 天然凝集材を用いた濁水処理における凝集フロックの沈降特性, 土木学会第 67 回年次学術講演会第 II 部門, pp65-pp66, 2012. 9
- 4) 海野仁, 箱石憲昭 : 天然凝集材を用いた濁水凝集処理に関する現地試験, 土木学会第 68 回年次学術講演会概要集第 II 部門, pp201-202, 2013.9