特集号論文

砂質帯水層における物質移行特性の評価に基づく 原位置バイオレメディエーションの設計について

川端淳一*・中村充利*・河合達司*・山本毅史*

A Designing Method for In-situ Bioremediation of Groundwater with Evaluation of Transport Characteristics in Sand Aquifers

Junichi KAWABATA*, Mitsutoshi NAKAMURA*,
Tatsushi KAWAI* and Tsuyoshi YAMAMOTO*

Abstract

Advective-dispersive analysis is performed to establish an engineering approach that would allow effective in-situ bioremediation of groundwater contaminated with organic matter. The principal consideration involved in the design of in-situ bioremediation is twofold: 1) to understand the biodegradability conditions; 2) to make sure that the contaminated groundwater to be cleaned up should be mixed with the stimulated microbes based on the hydraulic and transport characteristics specific to the site. This study reviews methods of mixing a number of substances to enhance the microbial co-oxidation activity in an in-situ aquifer, which is to be efficient for trichloroethylene contaminated groundwater. It then proposes a method of evaluating the key elements in dealing with mixture in an aquifer bioremediation, that is characteristics such as degree of dispersion. Advection-dispersion analyses are carried out, assuming various substances injected into the aquifer through a well during the treatment process. In so doing, this study presents the basic design principles of in-situ bioremediation.

Key Words: groundwater contamination, advective-dispersive analysis, bioremediation, trichloroethylene, In-situ tracer test

* 鹿島技術研究所 (

e-mail;

)

要 旨

有機物によって汚染された地下水を、帯水層中の微生物の働きによって浄化する原位置バイオレメディエーションを、合理的に設計する手法について物質移行解析を用いて検討を行った。帯水層中へ複数の物質投入が必要な共代謝を利用したバイオスティミュレーションの設計においては、原位置における生物学的な分解活性条件を把握すること、人工的に注入する複数の物質同士を混合させ必要な条件を作り出すことが基本的に重要である。そこで、まず基本的な物質の注入手法を整理した上で、砂質帯水層中での混合を評価する上で、もっとも重要となる物質移行特性について評価を行った。次に井戸を通じて注入する物質の移流分散解析及び浄化シミュレーションの予測解析を行い、共代謝を利用した地下水のバイオレメディエーションにおける設計の考え方を帯水層の種類や微生物特性の関係から整理考察し、基本的な浄化システムの特徴を明らかにした。

キーワード：地下水汚染、移流分散解析、バイオレメディエーション、原位置トレーサ実験、トリクロロエチレン

1. はじめに

有機塩素化合物等によって汚染された地下水のレメディエーション手法には様々な方法があるが、汚染漏洩地点近くの原液(NAPL)が存在するような高濃度汚染に対しては、まずガス吸引法や揚水処理といった物理的な抽出方法が用いられる場合が多い。こうした手法は、ある濃度レベルまで汚染を低減させるには効率的であるが、低濃度になるにしたがって効率が低下していくため、物理的手法のみで汚染を完全に無害化することは非常に難しい。一方、原位置バイオレメディエーションは、微生物分解という自然現象を人工的に活性化させ、原位置で汚染物質を分解する手法である。したがってある有機汚染物質についての微生物分解可能な生化学的条件が満足されている場合には、濃度があるレベル以下であれば比較的短時間で無害化できる可能性が生ずる。すなわちバイオレメディエーションは物理的な方法とはまったく異なる特徴を持つ浄化技術であり、その意味で将来性が期待されている。

原位置バイオレメディエーションには、汚染された帯水層内に微生物を増殖させるエネルギー源となる基質や、微生物の増殖因子である栄養塩を

供給することにより土着の微生物を増殖させ微生物分解を行うスティミュレーションと、汚染物質を分解する微生物を直接帯水層内に注入するオーグメンテーションという二つの方法がある。本報文は、トリクロロエチレン等多くの有機塩素系化合物に対して有効であるとされる、好気条件下での共代謝を利用したバイオスティミュレーションを対象として、人工地下水流を利用した設計手法の基本的な検討を行ったものである。共代謝を利用したバイオレメディエーションの場合、浄化対象となる汚染物質が微生物増殖のための基質とならないため、油等の場合とは異なり基質を別途投入する必要がある。したがってこの方法では、複数の物質を帯水層中へ投入しなければならないことから、帯水層内での微生物活性条件の設定が困難な部類に属するものであり、その意味で設計手法上の応用性も高いものと考えられる。

人工地下水流を利用した原位置バイオレメディエーションシステムの設計を考えるにあたっては、以下の条件を把握することが基本的に重要である。

- ①帯水層中で微生物分解活性を高めるための条件(基質濃度や栄養塩濃度)。
- ②投入する物質同士、あるいはそれらと汚染物質

との混合状況の予測に必要な物理的な条件(透水性、物質移行特性)。

表1は、今回対象とするトリクロロエチレン等のバイオレメディエーションに必要なメタン、酸素等の基質やリン酸塩等の栄養塩を帯水層へ注入する方法を、上記2点を考慮して整理したものである。この表より、井戸注入方式は、地下水中の複数物質の混合が難しいという欠点はあるものの、それらを制御、予測することが可能であり、また安全性も高いことから、実現性の高い方法であることがわかる。

井戸注入方式で原位置バイオレメディエーションの検討を行ったものとして、以下の例が挙げられる。Semprini & McCarty(1998)は、一対の揚水井と注水井において、井戸の目詰まりを避けるため、注水井から汚染物質と共にメタンと酸素を交互に注入するパルス注入を行い生物分解を促進させた。同じサイトにおいて McCarty et al. (1989)は、一対の揚水井と注入井を用いて、揚水した地下水を再び帯水層内に再循環させる方法で、原位置バイオレメディエーションの効果の評価を行った。Shouche et al.(1994)は一対の井戸で交互に注入と揚水を入れ替えて運転することで汚染物質と注入した栄養物質の混合を試み、汚染物質の分解の促進と均一な微生物の増殖を現場実験にて実証した。また汚染された地下水の実用的な浄化システムについての検討を行った例として、Devlin & Barker(1994)は、自然地下水流に直行するように注入井と揚水井を設け、帯水層内に基質や栄養物質を交互に注入した後、自然地下水流中の汚染物質を混合させる方法を試みた。以上の過去の検討例においては、設計・評価に必要な物質移行特性を原位置におけるトレーサ実験で

把握しているが、本来帯水層の性質(透水係数等)によって異なるはずの混合方法等について一般的な議論がなされているわけではない。バイオレメディエーションの設計においては、対象範囲における注入物質の濃度をコントロールするための実用的な物質移行評価が必要である。そこで、本報文では図1に示すようなフローに基づいて検討を行うものとし、2章で砂質帯水層地盤におけるバイオレメディエーション設計で設定すべき物質移行特性について考察した後、3章以降で3種の異なる透水係数を持つ帯水層を対象として2種の基本的な浄化システムを適用した場合の設計ならびに浄化予測計算を行い、考察した。

2. 物質移行特性の評価

2.1 物質移行特性の評価手法

帯水層中の物質移行特性は、主に分散特性を表す指標である分散係数、拡散係数、吸脱着特性を表す指標である遅延係数等で評価される。このうち人工地下水流中での濃度分布決定の支配要因である分散現象を、定量的に評価するためには、帯水層の性質、地下水流速及び対象とする現象のスケールに応じた適切な分散度を設定する必要がある。この問題に対しては均質なポーラスメディア中での微視的な分散、透水特性の不均一性が卓越する場での巨視的な分散に分けた形で物理的な説明がなされてきており、その評価手法についての研究も進んでいる(神野、1990；中川他、1998)。また実帯水層での評価については、Fick型の拡散モデルのみで場の分散現象を正確に表現することの限界が指摘され初めて以来、様々な評価手法が提案されている(例えば Neuman et al., 1990)。

表1 原位置バイオレメディエーションにおけるプロセス制御手法

注入方式	長所	短所
井戸注入	・プロセスの制御予測が可能	・複数の注入物質や汚染地下水との混合が難しい
表層からの浸透注入	・コストが安い ・汚染地下水との注入物質との接触容易	・帯水層内での濃度及び地下水との混合の制御困難 ・不飽和層の厚さにより適用性が左右される
ガス注入	・地下水との混合が行いやすい	・メタンガス等安全上の問題がある

今回は、実際の砂地盤の帯水層でバイオレメディエーション浄化システムの設計検討を行うことを想定して、ある対象範囲での物質移行特性を決定論的に評価することを目的とした検討を行った。

2.2 原位置トレーサ実験

(1) 実験方法

本トレーサ実験は、実際のバイオレメディエーションを想定し、洪積細砂の不圧帯水層において揚水を行って発生した人工地下水流場での分散特性を評価するために行ったものである。実験概要及び地盤条件を図2に、対象となる帯水層の粒度分布は図5中a砂に相当するものである。実験方

法は、注入井に連続的に一定量の注入を行い、注入物質をある時点でトレーサに切り替える方式を用いた。実験を行った帯水層は洪積細砂層であり、事前に揚水試験により求められた透水係数は $2 \sim 3 \times 10^{-3} \text{ cm/s}$ 、地下水の電気伝導度(EC)は共に $200 \mu\text{S/cm}$ 程度であった。また使用したトレーサはNaCl、KBr混合溶液0.08%、電気伝導度約 $1200 \mu\text{S/cm}$ であり、注入流量は 1 l/min であった。実験開始後下流の複数の観測井で、経時的に電気伝導度の変化を連続的に自動測定すると同時に、地下水をサンプリング後イオンクロマトグラフによるトレーサ濃度の分析を行った。

図1 原位置バイオレメディエーション設計フロー

図2 原位置トレーサ実験概念図

(2) 実験結果

観測井においては、トレーサの到達と考えられる明確な電気伝導度の変化があり、注入したトレーサと同様の $1200\mu\text{S}/\text{cm}$ 程度まで電気伝導度が上昇した。図3に、各観測井で観測された伝導度の変化を比濃度(観測されたトレーサ濃度のピークを1とした場合の濃度)の経時変化で示した。また、各観測井でトレーサの比濃度が0.5となる時間を到達時間とし平均実流速、有効間隙率を算定した後、さらにその値を用いて式(1)を基礎式とする風上式有限要素法による平面2次元移流分散解析を実施し(Kawabata and Nakamura, 1997)、実測値に適合する分散度を求めた結果を図中に示した。

$$\begin{aligned} & \rho \theta R_k \frac{\partial C_k}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho \theta C_k u_i) \\ &= \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho \theta D_{ij} \frac{\partial C_k}{\partial x_j}) - \rho \theta \lambda_k R_k C_k \\ &+ \sum_{l=1}^{1+k} \xi_{kl} \rho \theta \lambda_l R_l C_l + \rho Q_k \end{aligned} \quad (1)$$

ρ : 密度、 θ : 間隙率、 D_{ij} : 分散テンソル、 u_i : 実流速、
 C_k : 物質 k の濃度、 R_k : 物質 k の遅延係数、
 λ_k : 物質 k の分解係数、 ξ_{kl} : 物質 l から k への変換率、
 Q_k : 物質 k の生成率

その結果、有効間隙率 n_e は33%程度であった。分散度については、0.05m~0.2m となり観測井の位置が注入井から遠くなるに従って、大きくなる結果が得られ、分散度のトレーサ流下距離への依

存性が示唆された。なお本実験における移流分散現象はペクレ数10以上であり、十分力学的分散が卓越する場での現象であった。

2.3 室内カラム実験

(1) 実験概要

室内実験装置の概念図を図4に、使用した2種類のカラムと実験ケースの関係を表2に、実験条件を表3に示す。また図5には、今回の実験に使用したa~c砂の粒度分布を示す。なおこのうちa砂は、原位置トレーサ実験を実施した帯水層の砂と同様の粒度に調整したものである。

実験及び解析は以下に示す手順で行った。

- ①透水カラム内に模擬帯水層を作成する (CaseB1 については、観測点に伝導度センサーを埋設)。
 この際a砂を用いる場合は、原位置トレーサ実験を実施した帯水層と同様の密度($\rho_d=1.9\text{g}/\text{cm}^3$)で、またb砂、c砂については別途実施した締

図4 室内カラム実験概念図

図3 トレーサ濃度の経時変化

表2 使用したカラムと各評価項目

	カラム長L(m)	カラム径φ(m)	評価項目	
			分散特性	遅延特性
カラムA	0.10	0.02	—	○(Case A)
カラムB	0.35	0.20	○(Case B 1)	○(Case B 2)

表3 実験ケース一覧

実験ケース	Case A	Case B 1	Case B 2
動水勾配 i	0.049	0.014~0.142	0.142
使用した砂	a 砂	a, b, c 砂	a 砂
観測点(cm)	0.10	0.02, 0.15, 0.25	0.35
使用した トレーサ	NaBr, NaNO ₂ , NaNO ₃ , Na ₂ HPO ₄	NaCl	NaBr, NaNO ₂ , NaNO ₃ , Na ₂ HPO ₄
トレーサ濃度(%)	0.1	1	0.1
トレーサ濃度 測定方法	イオンクロマトグラフ による定量分析	電気伝導度測定	イオンクロマトグラフ による定量分析

図5 使用した砂の粒度分布

図6 トレーサ濃度の経時変化(case A)

め固め試験結果から最適含水比の条件(b 砂、c 砂ともに $\rho_s = 1.8 \text{ g/cm}^3$)で締め固めた。

- ②水頭差により模擬帯水層内に水流を発生させた後、上流部から供給する水をトレーサに置換し、定期的に観測点で電気伝導度測定(Case B1)または下流端でサンプリング(Case A, B2)を行う。
- ③観測したデータより得られた破過曲線により物質移行特性値を推定する。

(2) 実験結果

実験結果を図6~8に示す。各ケースともに実験値を一次元の移流分散方程式に基づく理論曲線

式(2)で同定し、分散度を求めた。その結果、各ケースで用いた異なるトレーサから同様の分散特性値が得られた。一方Case A、B2においては、リン酸イオンについて土粒子への吸着に起因するものと思われるトレーサの移動の遅れがみられた。この場合、各トレーサで比濃度が0.5となる時間をトレーサ到達時間として、非吸着性のトレーサ(塩素、臭素イオン、硝酸イオン、亜硝酸イオン)とリン酸イオンを比較して遅延係数Rを求めた結果、約2.5前後の値となった。

図7 トレーサ濃度の経時変化(case B1)

図8 トレーサの経時変化(case B2)

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \left\{ \operatorname{erfc} \left(\frac{x - ut/R}{2\sqrt{(D_1 t/R)}} \right) + \exp \left(\frac{ux}{D_1} \right) \cdot \operatorname{erfc} \left(\frac{x + ut/R}{2\sqrt{(D_1 t/R)}} \right) \right\} \quad (2)$$

C: 測定濃度、 C_0 : 投入トレーサ濃度、
 x : 上流端からの距離、 u : 実流速 ($u = v/n_e$)、
 n_e : 有効間隙率、 t : トレーサ投入後の経過時間、
 D_1 : 分散係数 ($D_1 = u \alpha_1 + D_{me}$)、 α_1 : 縦方向分散度、
 R : 遅延係数、
 D_{me} : 有効拡散係数 ($2.3 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ (寺島ら、1976) とした)

2.4 物質移行特性値の評価

(1) 分散係数の評価

室内カラム実験により求めた分散係数 D_1 /水の動粘性係数 ν とレイノルズ数 Re ($=$ 平均粒径 $d_{50} \times$ 実流速 u /水の動粘性係数 ν) との関係帯水層の粒度で整理したものを図9に示す。この結果、どの試料を用いた場合でも D_1/ν と Re は正の相関があり、したがって室内試験で得られたデータは、従来微視的な分散現象として整理されてきた現象と同様の傾向を示している。また図中にはガラスビーズを試料として求められた実験公式 (Harleman & Rumor, 1963) も同時に示したが、a砂、b砂、c砂いずれもこれらより大きく、粒度分布を持つ実際の帯水層においては高い分散係数が得られるものと考えられる。また異なる粒度(粒度分布の拡がり程度)によって異なる傾向を示しており、特に実際の帯水層を模擬して作製した、構成する砂の粒径の範囲が最も大きいa砂で構成さ

図9 室内カラム実験における D_1/ν と Re 数との関係

れる帯水層が最も分散係数が大きい結果となった。これより粒度分布による間隙構造の変化が微視的な分散係数に影響を与えていることが示唆された。

また、室内カラム実験結果と原位置トレーサ実験を、トレーサ流下距離 L との関係で整理したものを図10に示す。また図中には過去に実施された室内カラム実験、原位置トレーサ実験から得られた分散度も併せてプロットしている。この図より、原位置実験と室内実験の値はトレーサ流下距離に応じて連続的に評価できること、また原位置実験においては、同一の実験でも流下距離が大きくなるほど分散度が大きくなる傾向があること、また地盤工学的にいわゆる粒度分布の悪い(粒度分布の傾きが大きい)b砂、c砂は、やや小さい分散度となっている傾向があること、等が示唆された。これより対象範囲に対して分散度を評価しようとする場合、地質学的に同一の帯水層であっても、比較的短い距離からトレーサの流下距離に応じた

分散度の評価をする必要性のあることがわかった。また図中には Nueman (1990) が過去の実帯水層での実験試験結果を元に整理した式を併せて示したが、室内カラム実験、原位置トレーサ実験で得られる分散度と観測スケールとの関係は、この関係式に比較的良好に一致している。また透水係数が大きくより広い範囲でのバイオレメディエーションを考慮する必要がある場合については、観測スケールは必然的に大きな範囲で評価する必要があり、この式は統計的にそれらも考慮したものであることから、次章以降の解析において、分散度はこの Nueman (1990) の関係を元に設定するものとした。

(2) 遅延係数の評価

2.3 で示した室内カラム実験結果では、リン酸イオンの遅延係数は約2.5前後であり、カラムの大きさの異なる二つの実験(2cm 及び35cm)で同様の値となった。これより、小さいカラムで遅延係数を測定した場合でも、その実験で得られた分散係数が妥当な値であれば、そこで得られた遅延係数を実用上解析評価に用いることができることが示唆された。すなわち今回の実験からはバイオレメディエーションに使用される栄養塩の内、特にリン酸塩についてはその遅延を考慮する必要があり、地下水流速やカラムの大きさによらず同等の遅延係数を用いればよいものと考えられる。今回使用したその他の栄養塩については、塩水の挙動と同様、遅延は見られなかった。

図10 分散度 α_1 とトレーサ流下距離 L との関係

3. 原位置バイオレメディエーションを想定した物質移行解析

3.1 物質移行特性値に基づく検討

(1) 検討条件

原位置バイオレメディエーションの浄化システム設計においては、注入する物質を帯水層内で混合させ所定の微生物活性条件を与える必要がある。この際、基質等の物質を一本の井戸より一度に注入する方法が考えられるが、この方法では井戸周辺部での急激な微生物増殖により井戸の目詰まりが生じやすい。したがって井戸閉塞をさせずに複数の注入物質を帯水層中で混合させる方法としては、これらの物質を距離もしくは時間的に隔てて注入する二つのシステム、つまり複数の井戸による注入方法(A案)や間欠的なパルス注入(B案)が基本的な方法であり、これらの方法の特性を把握することが、共代謝を利用したバイオレメディエーションの浄化システムを合理的に設計する上での基本となるものと考えられる。したがって、ここではこれらの手法を、透水係数の異なる様々な帯水層(帯水層厚10m)で適用する場合を想定して、その混合特性効果について物質移行解析を用いて一般的な議論を行おうとした。図11にA案、B案の概念を、表4、5にそれぞれの計算条件を示す。揚水量、注水量、井戸間隔などは、実際に微生物活性条件を作ることを想定して制御し

図11 井戸配置概念図

表4 設計条件(A案:計3ケース)

A 案	ケース名	ケース1	ケース2	ケース3
	注入方法	3点同時注入		
	透水係数	10^{-3} cm/s	10^{-2} cm/s	10^{-1} cm/s
	分散度	0.01m	0.5m	5 m
	揚水量	18l/min	200l/min	2000l/min
	注水量	3 l/min	30l/min	300l/min

表5 設計条件(B案:計2ケース)

B 案	ケース名	ケース 4	ケース 5
	注入方法	2 物質, 1 点間欠注入	
	透水係数: 10^{-3} cm/s, 分散度: 0.01m		
	間欠時間	500 min	5,000 min
	注水量	1 l/min	3 l/min

やすい期間すなわち注入井から揚水井までの物質移動時間が、10日～20日程度となるような条件で、それぞれの透水係数に合わせて設定した。したがって透水係数が大きくなれば、当然対象範囲は広範囲となる。但しB案については浄化可能範囲が単に透水係数に一義的に依存するため、透水係数の小さいケース(10^{-3} cm/s)についてのみ計算を行うものとした。また分散度については対象領域のスケールに応じて、図10に基づき決定し、横分散度はその1/10の値を用いた。またここで注入を想定する物質の内ガス溶解物質(酸素、メタン)等の物質移行特性については、通常の溶解物質の移行に比べて大きな分散が発生するとの報告もあるが(Fry et al., 1996)、ここでは安全側の設計を行うとの観点から通常の移流分散と同等に扱うものとした。また物質移行解析は、式(1)を基礎式とする平面2次元移流分散方程式を風上式有限要素法によって離散化し数値解析を行うものとした。

帯水層中の微生物の分解活性を高めるために井戸に注入する物質は、対象となる汚染物質、微生物の種類、注入物質の濃度等の諸条件によって物質の注入条件が大きく異なる。ここでは、原位置トレーサ実験を実施した帯水層の砂を使用して別途実施した生物学的なカラム室内実験の実績(Eguchi et al. 1998)から、トリクロロエチレンの分解に必要な酸素とメタンが飽和溶液の10%以上の濃度で混合されれば、分解活性が有意に高ま

るものとして、設計条件を設定した。これについて Semprini et al. (1989)は、酸素濃度 1 ppm、メタン濃度 1～5.5 ppm を飽和定数(分解活性が最大の1/2に低下する値)として設定している。飽和濃度は圧力や温度等の条件により異なるが、酸素やメタンの飽和濃度は室温、大気圧の条件では20～40ppm になることから、飽和濃度の10%以上という条件は Semprini et al. (1989)の検討事例と比較して安全側に設定したものといえる。

(2) 検討結果

計算結果のうち流線の概念図を図12に、物質移行解析結果を図13～17に示す。ここで、シミュレーションを行った時間については図中に示したが、いずれも注入井から投入した物質が揚水井に達した後、分解活性領域として想定される部分についてはほぼ定常的な状態になったと判断した。これらの計算結果は以下のようにまとめられる。

- A案
- ・透水係数が 10^{-2} cm/s より低い地盤では、投入物質の総量の内、混合される割合が非常に少なく効率が悪い(図13、17)。
 - ・透水係数が 10^{-2} cm/s より低い地盤では混合領域の面積が、浄化対象領域に対して小さく、浄化範囲が狭い(図13)。
 - ・透水係数が 10^{-1} cm/s の場合では投入物質の混合割合が高く、混合領域も両端の井戸による注入物質が混合されることにより大きくなる(図15)。

図12 各案の地下水流速ベクトル、流線図
(上：A案、下：B案)

図13 ケース1の物質移行解析結果
(注入物質投入後12,000分経過時)

図14 ケース2の物質移行解析結果
(注入物質投入後20,000分経過時)

図15 ケース3の物質移行解析結果
(注入物質の28,000分経過時)

図16 ケース4の解析結果
(注入開始後10,000分経過時)

図17 ケース5解析結果
(注入開始後10,000分経過時)

地下水浄化の概念(方法1:平面図)

地下水浄化の概念(方法2:平面図)

図18 浄化手法の概念図

B案 ・基本的に間欠時間の短い方が、混合ゾーンが大きくなり、投入物質の内の混合効率も非常に高くなる(図16、17)。

以上の計算結果と微生物学的見解を併せて、今回の基本的な方法について明らかになった事柄を表6にまとめるものとする。

図19 浄化効果のシミュレーション予測結果
(A案: 揚水量2000l/min、浄化開始後15000分経過時)

図20 浄化効果のシミュレーション予測結果
(B案: 揚水量3l/min、浄化開始後10000分経過時)

3.2 浄化効果の予測

(1) 微生物の効果による汚染物質の分解係数について

3.1では原位置バイオレメディエーションを設計する上で留意しなければならない注入物質の帯水層内での混合状況を、基本的な二種のシステムについて検討した結果を示した。ここでは、これらをもとにトリクロロエチレンで汚染された帯水層を対象とし、これらのシステムを用いて原位置バイオレメディエーションによる浄化効果を予測した結果を示す。

まず、微生物による汚染物質の分解について基本的な考え方を述べる。トリクロロエチレンを微生物により分解する場合、酸素及びメタンやトル

表6 シミュレーションによる浄化システムの検討結果まとめ

A 案	
長所	・ 分解微生物への物質の供給が定常的であり、注入速度や量による増殖及び分解の制御が容易である。 ・ 注入装置の運転・制御が容易。
短所	・ 流線が定常であることから基本的には横分散による混合となり混合しにくく、投入した基質のうち有効に微生物に利用される割合が少ない。 ・ 透水係数が 10^{-2} cm/s 以下の地盤では有効な浄化効果は得られない。
B 案	
長所	・ 縦分散による混合となり、菌体として活性が維持できれば、透水係数が 10^{-3} cm/s 程度の帯水層でも汚染地下水との接触・混合が容易。 ・ 目詰りが生じても投入した基質は効率よく利用され、間欠時間が短い程混合効率も高まる。
短所	・ 分解微生物への物質の供給が定常状態に達するのにある程度の時間が必要。すなわち基本的に濃度分布が非定常になるので、微生物増殖等の制御や予測がA案と比較して難しい。 ・ 間欠時間が短い程目詰まりの危険性が高い。

エン等の芳香族炭化水素の基質を供給する必要がある。この場合、トリクロロエチレンの分解は Double Monod 式を用いて式(3)で表せることが知られている (Moltz et al., 1986 ; Strand et al., 1989)。

$$\frac{dC_c}{dt} = -kx \frac{C_A}{K_A + C_A} \frac{C_c}{K_c + C_c} \quad (3)$$

C_A : 酸素、 C_c : トリクロロエチレン濃度、 x : 微生物量
 k : 微生物量あたりの分解係数、 K_A 及び K_c : 各々飽和定数

ここで酸素の飽和定数 K_A については、例えばメタン資化細菌で 0.01-0.1 (mg/l) の報告があるが (Wilkinson et al., 1974 ; Morinaga et al., 1979)、一方酸素の溶解濃度 C_A は、純酸素を溶解した状態で 15℃ 程度の水に対して 40mg/l 程度である。したがって酸素濃度が十分に高い地下水では、 $C_A \gg K_A$ の条件を仮定することが可能であり、酸素やメタンの注入が定常に達した状態では、分解微生物の微生物量 x もそれに応じて定常に達すると見なして良い。また現場のトリクロロエチレン濃度 C_c が、揚水処理等の物理的処理が非効率となる数 100ppb オーダであると仮定すれば、メタン資化細菌のトリクロロエチレン濃度に対する飽和定数 K_c 1 ~ 2 mg/l に比して非常に小さいことになる。すなわち $C_A \gg K_A$ 、 $K_c \gg C_c$ 、 x (mg/l) = x_0 。一定の条件より式(4)のような 1 次反応式とし

て近似することができる。移流分散現象中でこの微生物分解をシミュレーションするには、式(4)の右辺を式(1)右辺の第 3 項に置き換える事によって可能となる。Roat et al. (1989) の室内カラム実験においてトリクロロエチレンを分解するためにメタン資化細菌、トルエン資化細菌を用いた報告によれば、分解定数はメタン資化細菌で 1.74×10^{-4} /min、トルエン資化細菌で 6.24×10^{-4} /min となる。今回は、これら 2 種類の分解係数を用いて浄化効果の予測を行った。なおトリクロロエチレンの帯水層中の遅延特性については無視して計算を行った。

$$\frac{dC_c}{dt} = -k' C_c \quad (4)$$

k' : 微生物量を一定 (x_0) としたときの分解係数

(2) 物質移行解析による予測

予測計算は、3.1 の結果より効率的なバイオレメディエーションが可能であると考ええる二つの条件すなわちケース 3 及び 4 の条件を前提に実施した。本解析では、これらの条件で示した混合領域を、メタンやトルエンと酸素の混合領域とみなし、その場を微生物分解活性ゾーンとした。それぞれの浄化手法の概念は以下に通りである (図 18 参照)。

方法 1 (ケース 3 (透水係数 $k = 10^{-1}$ cm/s)) : 複数

の井戸から一定期間注入後、注入を停止し、同様の揚水を継続することにより、汚染地下水がこのゾーンを通過し、汚染物質が分解される。汚染地下水は定常流動場を流下しながら分解され揚水井に達する。

方法2 (ケース4 (透水係数 $k=10^{-3}\text{cm/s}$) : 一本の井戸からメタンまたはトルエンと酸素を間欠注入し注入停止後、同一井戸から揚水し、汚染地下水を微生物活性ゾーンに通過させ、汚染物質を分解させる。

図19、20にシミュレーション結果を示す。方法1は15000分経過時、方法2は10,000分経過時での各地点でのトリクロロエチレンの比濃度を表している。

方法1の場合は透水係数が高い(透水係数 $k=10^{-1}\text{cm/s}$) ため微生物分解ゾーンが広く、広い範囲で効率的な浄化が予測される結果となった。すなわち透水係数の大きな帯水層においては、現実的に可能な微生物分解条件を用いて、方法1のような比較的制御のしやすい方法でバイオレメディエーションが可能になることが示唆された。また方法2は透水係数が小さい帯水層(透水係数 $k=10^{-3}\text{cm/s}$) においても、確実に汚染地下水を微生物活性の高い領域を形成することができ、さらにそのゾーンと汚染地下水の混合が可能となるという意味で有効な手段となりうる。またメタン酸化細菌とトルエン酸化細菌とではトルエン酸化細菌の方がかなり高い浄化効果を示しており、今回想定したシステム上では、分解係数が浄化効果に与える高い感度を与えることがわかった。

ここで示した方法1、方法2は帯水層中での混合を考える上で基本的な方法を示したものであり、実際にはこれらの方法を組合せるなど様々なバリエーションがあり得る。今後様々な方法を考えていく上で、水理学的な調査及び微生物学的な検討に基づき、ここで示したような浄化予測を行うと共に、微生物増殖が透水係数へ与える影響、また特定の条件下で活性化された微生物の活性持続時間を考慮した浄化システムの設計についても考えていきたい。

4. まとめ

まず本報文で明らかにした事項を以下にまとめる。

①原位置バイオレメディエーション設計の基本条件

有機物による地下水汚染へ対応するための共代謝を利用した原位置バイオレメディエーションを合理的に設計するにあたっては、微生物分解活性特性及び人工注入物質の水理学的な混合状況を定量的に把握すると同時に、地盤に応じた効率的な混合手法を検討することが基本的に重要である。地盤中で複数物質混合させる基本的な手法としては、異なる場所から複数物質を注入する手法と間欠的に注入する手法がある。

②物質移行特性の評価

帯水層中の物質の混合状況を定量的に予測評価するために必要な物質移行特性について、構成粒子の粒度分布が分散度に影響を与えること、地質学的に同一の帯水層中でも、分散度は比較的短い距離(数m程度)からトレーサの流下距離と正の相関を持っており、Neuman (1990) の式でほぼ近似できること、またリン酸塩を栄養塩として利用する場合には、砂質の帯水層であっても2.5程度の遅延係数を考慮する必要があることが明らかになった。

これらに基づけば、透水係数や対象範囲に応じて分散度の設定をして一般的な設計検討が可能である。

③注入物質の物質移行解析結果

上記の評価に基いて実施した物質移行シミュレーション解析によれば、透水係数が 10^{-3}cm/s 程度の地盤において、定常的な流動場で人工注入物質を効率的に混合し原位置バイオレメディエーションを可能とするためには、縦分散を利用する必要があること、すなわち間欠的な注入が必要になることがわかった。また透水係数が 10^{-1}cm/s 程度の地盤では、横分散のみによっても比較的効率よく複数物質の混合を行うことができ浄化システムに組み込むことが可能であることがわかった。

④浄化効果予測

①～③により分解活性が高まる領域の予測ができ、その持続時間が十分に有れば、活性が高まる

ゾーンに汚染地下水を流入させることによって、効率的な原位置バイオレメディエーションが原理的には可能となることが明らかになった。またその定量的な浄化効果の予測についても別途分解活性条件を把握することにより可能であり、実際の原位置システム上で浄化効果をメタン酸化細菌とトルエン酸化細菌と比較した場合、後者の方がかなり高い浄化効果となることが示された。

今後は、微生物活性の持続時間を考慮した浄化システムについての検討を行うと同時に、微生物反応モデルの高精度化を図っていきたいと考えている。なお本報文中の結果の一部は、新エネルギー産業技術総合開発機構(NEDO)より委託を受け、(財)地球環境産業技術研究機構(RITE)が実施している国の研究開発事業「土壤汚染等修復技術開発」から得られたものである。

参考文献

- 桂山・福井(1976)：飽和多孔性媒質内における分子の拡散および分散現象に関する研究、土木学会論文集、246、73-82
- 神野(1990)：地下水汚染の解析とモニタリングの方法、土木学会水理委員会水工学シリーズ90-1-6、1-25
- 寺島、熊木(1976)：数種の多孔体材料中における水分子の有効拡散係数、土木学会論文集、256、91-94
- 中川・神野・細川・畑中・井尻・亘(1998)：不均一多孔媒体中の流れと物質輸送特性について、地下水学会誌、40(1)、1-16
- 中村、川端(1998)：帯水層中の物質移行特性評価手法についての検討、土木学会第53回年次学術講演会、1998
- 増井、森田(1989)：地下水汚染における移流拡散現象、奥村組年報、No.15、25-30
- Devlin, J.F. and Barker, J.F. (1994): A Semipassive Nutrient Injection Scheme for Enhanced In Situ Bioremediation, *Groundwater*, 32(3), 374-380
- Eguchi, M. and Sasaki, S.(1998): Biotreatability Studies for Remediation of TCE-Contaminated Groundwater, The Proceedings of The First International Conference on Remediation of Chlorinated and Recalcitrant Compounds, 187-192
- Fry, V.A., Istok, J.D., O' and Reilly, K.T.(1996): Effect of Trapped Gas on Dissolved Oxygen Transport-Implications for In Situ Bioremediation, *Groundwater*, 34(2), 200-210
- Harleman, D.R.F & Rumor, R.R.(1963): Longitudinal & Lateral Dispersion in an Isotropic Porous Media, *Journal of Fluid Mechanics*, 16, 385-394
- Roat, R., Semprini, L. and Roberts, P.(1989): In-situ Aquifer Restoration of chlorinated aliphatics by methanotrophic bacteria, EPA/600/2-89/033 section 11, 147-161
- Kawabata, J. & Nakamura, M.(1997): Evaluation of Contaminant Transport Characteristics through In-situ Tracer Test and Column Test, *Geo-environmental Engineering; Contaminant Ground:Fate of Pollutants and remediation*, Thomas Telford, 99-105
- McCarty, P.L., Goltz, M.N., Hopkins, G.D., Dolan, M.E., Allan, J.P., Kawakami, B.T. and Carrothers, T.J. (1998): Full-Scale Evaluation of In Situ Cometabolic Degradation of Trichloroethylene in Groundwater through Toluene Injection, *Environmental Science & Technology*, 32(1), 88-100
- Moltz, F.J., Widdowson, M.A., and Benefield, L.D. (1986): Simulation of Microbial Growth Dynamics Coupled to Nutrient and Oxygen Transport in Porous Media, *Water Research*, 22(8), 1207-1216
- Morinaga, Y., Yamanaka, S., Takinami, K. and Hirose, Y.(1979), Optimum Feeding Proportion of Methane and Oxygen in Cultivation of the Obligate Methane Utilizing Bacterium, *Methylomonas Flagellat*, in Batch Culture, *Agricultural Biology and Chemistry*, 443, 2447-2451
- Nueman, S.P.(1990): Universal Scaling of hydraulic Conductivities and Dispersivities in Geologic Media, *Water Resources Research*, 26(8), 1749-1758
- Nueman, S.P. & Zhang, Y.K.(1990): A quasi-linear Theory of Non-Fickian and Fickian Subsurface dispersion, 1, Theoretical analysis with application to isotropic media, *Water Resources Research*, 26(5), 887-902
- Semprini, L. and McCarty, P.L.(1989): In-situ Aquifer Restoration of chlorinated aliphatics by methanot-

- rophic bacteria, EPA/600/2-89/033 section 13, 172-196
- Shouche, M.S., Petersen, J.N., Skeen, R.S., and Hooker, B.S., (1994): Alternating Extraction/Injection Well Interactions for In Situ Bioremediation, *Applied Biochemistry and Biotechnology*, 45/46, 775-785
- Strand, S.E., Seamons, R.M., Bjelland, M.D., and Stensel, H.D. (1989): Kinetics of Methane-oxidizing Biofilms for Degradation of Toxic Organics, *Water Science Technology*, 20 (11/12), 167-173
- Wilkinson, T.G., Topiwala, H.H., Hamer, G.(1974): Interactions in a Mixed Bacterial Population Growing on Methane in Continuous Culture, *Biotechnology Bioengineering*, 16, 41-59
- Xu, M. & Eckstein, Y.(1995): Use of Least-Squares Method in Evaluation of relationship between Dispersion and Field Scale, *Groundwater*, 33(6), 905-908

(受付:1998年7月1日、受理:1998年10月9日)