

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K07649

研究課題名(和文) 有機汚濁が進む閉鎖性水域の水環境保全に向けたLED水環境修復技術の実用化と高度化

研究課題名(英文) Advancement and Practical Application of Water Quality Improvement Technology by using LED Irradiation for Aquatic Environmental Preservation of Organically Polluted Water Body

研究代表者

原田 昌佳 (Harada, Masayoshi)

九州大学・農学研究院・准教授

研究者番号：80325000

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：ダム貯水池のような水深の深い閉鎖性水域では、寡少な水中光環境を要因とする長期的な無酸素化とこれに起因する水環境劣化が大きな問題となる。そこで、このような有機汚濁水域の水環境修復対策として、水中LEDを光源とする藻類の光合成の活性化を利用した水質改善技術の可能性について室内実験より検討した。本研究の成果は、長期的な無酸素期間が水質改善効果に及ぼす影響、ならびに植物プランクトンに加えて付着性藻や糸状藻の大型藻類が良好なDO環境の維持に与える影響について、照射光の光質・光強度と関連付けて定量的に評価したことに集約される。

研究成果の概要(英文)：This study examines a water quality improving technology through the alleviation of anoxia via the activation of phytoplankton photosynthesis by LED irradiation under water. This technology can be proposed by focusing on the occurrence of anoxia in closed water body with advanced organic pollution due to the poor underwater lighting environment. In particular, laboratory experiments were conducted to consider the possibility of using algal photosynthesis with LEDs as their activating light source as a technology for improving water quality, particularly as a way to take aquatic environmental remediation measures in organically polluted waters where anoxic conditions could persist. The main focus of this present study was to relate the quality and intensity of irradiated light to the impact which the macroalgae and the long-term anoxic state have on its ability to improve water quality, including the level of dissolved oxygen.

研究分野：環境水理学

キーワード：水質改善技術 有機汚濁 閉鎖性水域 無酸素化解消 水質実験

1. 研究開始当初の背景

近年の農業農村地域では、有機汚濁・富栄養化による水域水環境の劣化が進み、湖沼・貯水池などが有する水域の多面的機能が失われている。また、このような水域の水質汚濁の影響は下流域の沿岸浅海域にまで及び、大きな水環境問題を引き起こす。持続的な農業農村の発展の観点から考えると、水環境の改善・修復は重要な課題である。現在、様々な水質改善技術が実験室レベルで開発されているものの、実水域へのスケールアップは不十分である。技術の実用化に向けて、水環境問題の原因メカニズムの究明と改善技術の定量的評価との連携が必要不可欠である。これらの双方向的な融合によって水質汚濁に対する水環境リスクヘッジが達成される。研究代表者・分担者は、環境水理学的観点から閉鎖性水域を対象とした水環境の解析・予測に関する研究を行ってきた。本研究課題では、このような数理解析技術を水質改善技術の開発に活用することで、実水域に対応した水環境修復技術の実用化・高度化を目指した。

2. 研究の目的

地域水資源の持続的な保全に向けた対策として、水中 LED を光源とする藻類の光合成を利用した水環境修復技術を提案し、その効果を検討した。長期間にわたる無光状態と無酸素状態によって生じる、藻類の光応答性の生理的要因による鈍化、栄養塩の溶出、第一鉄イオンや硫化水素などの還元性物質の増大は、DO の生産量と消費量に大きな影響を与える。そのため、上記の観点を踏まえた本技術の検討は実水域への適用に向けて重要な課題である。また、研究代表者によって、LED 照射による健全な DO 環境の維持に、光合成能力の高い大型藻類の寄与が高いことを指摘している。そこで、無光・無酸素期間と光強度を実験条件とする円筒水槽内での LED 照射実験により、これらの条件が DO や植物体の動態に及ぼす影響を検討した。また、付着性藻や糸状藻の大型藻類の植物相が、DO・水質改善効果に与える影響を調べるために、コンテナボックスを用いた照射実験を行い、照射光の光質・光強度と関連付けて検討した。さらに、水中 LED 照射による水環境改善効果の定量的評価手法に向けて、室内実験で得た知見を基に、生態系モデルをベースとする水質予測モデルを新に構築した。

3. 研究の方法

(1)円筒水槽を用いた LED 照射実験

図 1 に示すアクリル製円筒水槽と RGB フルカラー LED 水中灯を用いた照射実験を行った。20℃の恒温暗所室にて、流動パラフィンで大気と遮断した上で、点灯・消灯を各 12

時間とする 24 時間周期の照射を約 2 か月間行った。照射光は、赤色光と青色光の光量子量の比が概ね 1 の混合色光とした。実験期間中、DO の連続観測ならびに植物プランクトンの Chl.a、窒素・リン、全鉄イオン、硫化物などの定期観測を行った。また、大型藻類の出現状況を目視による観察にて確認するとともに、実験終了時にその Chl.a を測定した。

実験開始までの無光・無酸素期間と LED 光の光強度を設定条件とする計 9 ケースの実験を行った。各ケースの実験開始時点における水質の初期条件は、無酸素期間を反映して次のように特徴付けられる。Case A (無光期間 30 日、無酸素期間 5 日) と Case C (無光期間 60 日、無酸素期間 50 日) では、底質近傍の嫌气的状態によって NH₄-N や PO₄-P の栄養塩と Fe²⁺ や硫化物の還元性物質の濃度が高く、無酸素期間の長い Case C でその高濃度は顕著である。一方、Case B (無光期間 60 日、無酸素期間 0 日) では実験開始までの DO を 2~4mg/l の貧酸素で管理したことで、栄養塩は低濃度、還元性物質は概ねゼロである。植物プランクトンの光合成有効光量子量の最適範囲を踏まえて光強度を設定し、Case 1, 2, 3 の順に、最適範囲内での強光条件 (約 80μmol/m²/s) と弱光条件 (約 40μmol/m²/s)、光合成の光制限を著しく受けるような最適範囲外の弱光条件 (約 12μmol/m²/s) を表す。

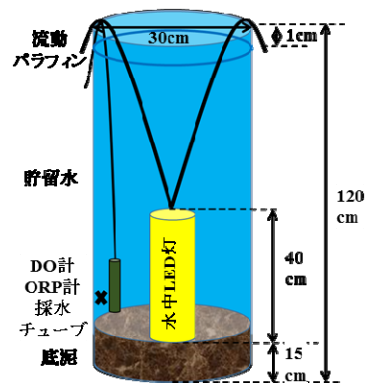


図 1 円筒水槽実験の概要

(2)コンテナボックスを用いた LED 照射実験

実験準備として、底泥と環境水を入れたコンテナボックス (64cm×44cm×38cm) の水面を流動パラフィンで覆った状態で 20℃の恒温暗所室に管理することにより、実水域での無酸素領域を再現した。このような無酸素水に対して、点灯・消灯を各 12 時間とする 24 時間周期の LED 照射を約 2 か月間行った。本実験では、LED 灯設置の影響を受けずに生育する糸状藻と底質表面への付着性藻を対象とするために、水面直上から光を照射した。室内用単色 LED を用いて、白色 LED と赤・青色 LED (以下、混合 LED) の二つの光質条件による照射実験を光強度の異なる条件のもとで計 2 回行った。第 1 回目では光合成

に最適な光強度（約 $60\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ ）を、第 2 回目では有効な光量子量よりも小さい弱光条件（約 $15\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ ）を設定した。各回ともに、対照実験として無光状態の実験水槽を準備した。実験期間中、DO の連続観測ならびに植物プランクトンの藻類綱別 Chl.a などの定期観測を行った。また、付着性藻と糸状藻の出現状況を目視にて観察するとともに、実験終了時にそれぞれの Chl.a を測定した。

4. 研究成果

(1) 水質初期条件が改善効果に及ぼす影響

まず、光合成最適範囲内での強光条件下において無光・無酸素期間が LED 照射に伴う水質動態に及ぼす影響を検討した。図 2 に Case A-1, Case B-1, Case C-1 の測定結果の一部を示す。表 1 に、大型藻類の出現と最大繁茂を最初に確認できた日（実験開始からの経過日数）、および実験終了日に測定した Chl.a をまとめる。3 ケースに共通の DO の動態特性として以下の 3 点が挙げられる。すなわち、①照射実験開始と DO 増加のタイミングとのタイムラグ、②無酸素化解消からピーク値までの 24 時間周期の変動を有する DO の単調な増加、③ピーク値以降の緩やかに変化する減少・増加の過程である。相違点として、①に関しては無酸素化解消に要する時間、②については増加速度およびピーク濃度が

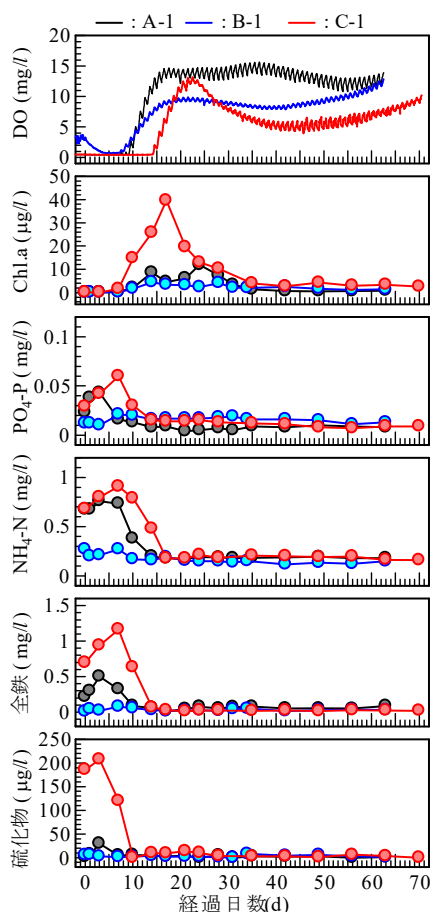


図 2 強光条件（Case 1）での実験結果

表 1 大型藻類の観察結果と Chl.a 測定結果

Case	大型藻類の出現日 (day)	大型藻類の最大繁茂日(day)	実験終了時の大型藻類の Chl.a($\mu\text{g}/\text{l}$)
A-1	7	14	122.2
B-1	7	17	125.3
C-1	14	20	-
A-2	10	28	201.0
B-2	14	24	109.7
C-2	18	28	-
A-3	14	31	209.8
B-3	21	56	109.3
C-3	21	35	148.5

挙げられる。また、③の時間変化では、ピーク値以降の減少過程が確認されるタイミングやその減少の程度が実験条件によって異なる。そこで、上記①~③について DO の生産・消費に関わる水質項目と関連付けて考察し、無光・無酸素期間の影響を検討した。

照射実験開始から無酸素化解消までの期間は、Case A-1, B-1 で 7 日間、Case C-1 で 14 日間であった。表 1 より全ケースで無酸素化解消以降に大型藻類の出現が観察された。また、3 ケースともに植物プランクトンの Chl.a の顕著な増加に約 7 日を要し、この間の DO はゼロで推移もしくは減少した。この点から、藻類の光応答性の鈍化による光合成の制限を確認でき、この制限期間は無光・無酸素期間に因らない。つまり、1~2 か月間の無光状態により藻類の光応答性は低下し、これが光照射開始と DO 増加の間にタイムラグが生じる要因となる。Case A-1, B-1 において Chl.a の増加、大型藻類の発生と無酸素化解消が一致したことから、両ケースでの DO 環境の回復の制限要因は光合成による酸素生産の遅れと考えられる。Case C-1 では、Chl.a の大幅な増加から 7 日遅れて無酸素化解消された。硫化物や全鉄イオンが概ねゼロまで減少した時点で DO が増加したことから、同ケースでは無光状態の影響に加えて、還元性物質の増加に伴う DO 消費量の増大により無酸素化解消に時間を要したと考えられる。Case A-1 との比較より、2 か月程度の無酸素期間の長期化は DO 環境の回復の強い制限要因になり得る。

次に、無酸素化解消後の DO 増加期間に着目すると、3 ケースともに DO ピーク時と大型藻類の最大繁茂の時期が概ね一致したが、植物プランクトンの Chl.a は Case A-1, B-1 で $10\mu\text{g}/\text{l}$ 未満の低濃度、Case C-1 では $20\sim 40\mu\text{g}/\text{l}$ の高濃度であった。これより、DO の増大に対して、Case A-1, B-1 では大型藻類が、Case C-1 では植物プランクトンと大型藻類の両者が寄与した。ただし、目視観測結果より、Case C-1 の大型藻類の繁茂量は他の 2 ケースに比べて少なく、同ケースの DO 増加

は植物プランクトンによる光合成の影響を強く受けたと推察される。DO のピークまでの増加速度とその濃度に着目すると、Case A-1, C-1 は同程度の時間変化率・ピーク値をとり、Case B-1 と比較しても大きい。この結果は、Case A-1, C-1 の光合成速度が Case B-1 と比べて高められたことを意味し、その要因として、栄養塩の高濃度化が挙げられる。照射実験開始までの無酸素状態によって底質から $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{PO}_4\text{-P}$ が供給され、藻類の種によらず、DO のピーク値までの濃度上昇に対して栄養塩の増大が与える影響が大きい。

ピーク値以降の DO の動態について注目すべき点は、Case C-1 の DO はピーク直後に低下し始め、 5mg/l 程度まで減少すると、再び 10mg/l まで増加したことであり、このような大きな変動で減少・増加する点で他の 2 ケースと異なる。Case A-1, B-1 では、DO のピーク値以降も Chl.a は低濃度で推移した一方で、大型藻類は時間の経過とともに枯死と増殖を繰り返すことで安定的に繁茂した。このような大型藻類により、DO は $10\sim 15\text{mg/l}$ の過飽和状態で推移した。一方、Case C-1 では、DO のピーク値以降に植物プランクトン、大型藻類ともに急激に減少し、その後、大型藻類の顕著な増殖が再度観測された時点から DO が再び増大した。すなわち、動物プランクトンによる捕食や大型藻類との競争により植物プランクトンが減少し、また大型藻類の増殖速度が何らかの環境要因によって制限された。後者に関しては水温・光・栄養塩以外の要因が考えられ、長期的な無酸素化による強い嫌氣的状態が大型藻類の増殖の制限因子として作用したと推測される。

図 3 に二つの弱光条件に対する 6 ケース DO と Chl.a の測定結果を示す。図 2 の結果も踏まえると、無光・無酸素期間の実験条件に関わらず、弱光であるほど、無酸素化解消までの期間が長期化し、その後の DO 増加期間の時間変化率はより小さくなった。ただし、

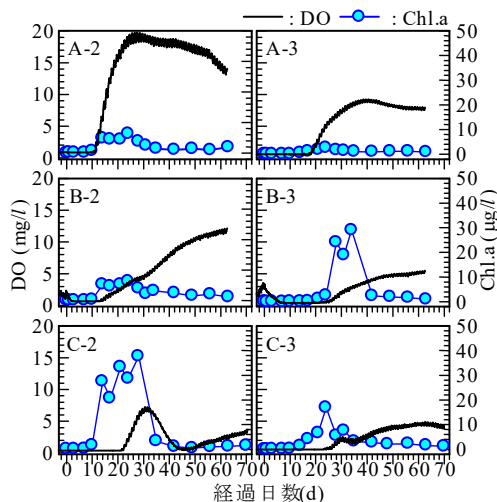


図 3 弱光条件 (Case 2,3) での実験結果

Case A と Case C では、弱光条件であっても、図 2 の DO の時間変化特性と類似の特徴を示し、両ケースでの光強度による主な影響は上記の 2 点である。一方、Case B-2 と Case B-3 の DO は経時変化にピーク値を持たず、緩やかな単調増加を示した点で Case B-1 と大きく異なった。両ケースの DO 動態は、弱光条件に加えて照射開始時点の栄養塩の低濃度の影響を受けたと考えられる。

(2) 生態系モデルに改善効果の数理的評価

生態系モデルをベースとする水質予測モデルを通じて LED 照射による水環境改善効果を評価するにあたり、本実験結果より、無光・無酸素期間と大型藻類が与える影響を考慮することの重要性が示された。そこで、一般的な低次生態系モデルでは考慮されない還元性物質と大型藻類を状態変数として組み込み、図 4 に示すモデルを構築した。まず、還元性物質として Fe^{2+} と硫化物を考慮し、それぞれの酸化反応による酸素消費を 0 次反応式で表した。また、大型藻類については、光合成、呼吸、枯死による生物化学的な物質循環を考え、いずれも 1 次反応式でモデル化した。なお、光合成に関しては水温・光・栄養塩の影響を制限因子としてモデル式に組み込むとともに、無光条件による光応答性の鈍化も考慮に入れた。さらに、照射実験期間中に大型藻類の種の遷移が観察によって確認された。これを踏まえて、大型藻類の経時変化をその Chl.a 量によって 3 つの期間に分け、期間に応じて成長速度、呼吸速度、枯死速度、CNP 比の 4 つのパラメータを設定した。

実験結果の再現計算を行い、計算結果の一部を実測値と併せて図 5, 6 に示す。両図に一般的な生態系モデルによる DO と Chl.a の計算結果も示すが、いずれも実測値と大きく乖離し、良好な再現性が得られなかった。一方、本モデルでは、図 5 に示すように、無光・無酸素期間によって異なる DO の動態特性や、光強度による DO 改善効果の違いが良好に再現された。また、図 6 の植物プランクトンの Chl.a の計算結果より、増加開始時点やそれ以後の経時変化が概ね再現できた。同図中の大型藻類についても、増加や減少の傾向が観察結果と概ね一致し、種の遷移が表現できた。

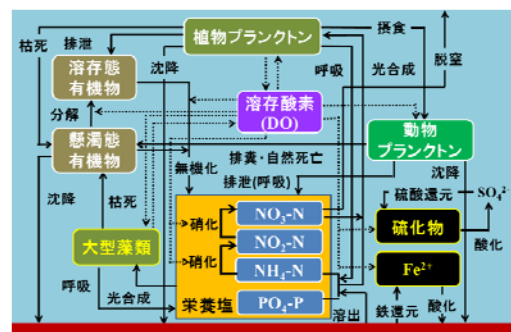


図 4 生態系モデル概要図

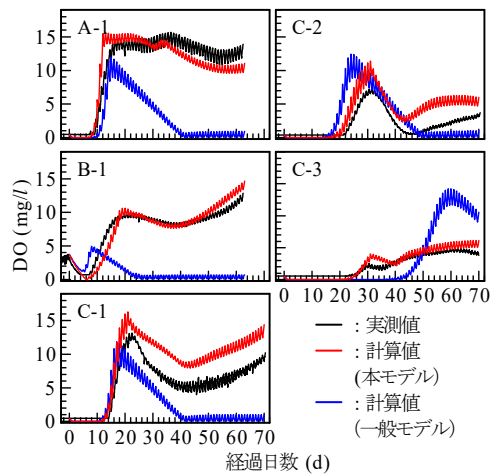


図 5 DO の実測値と計算結果

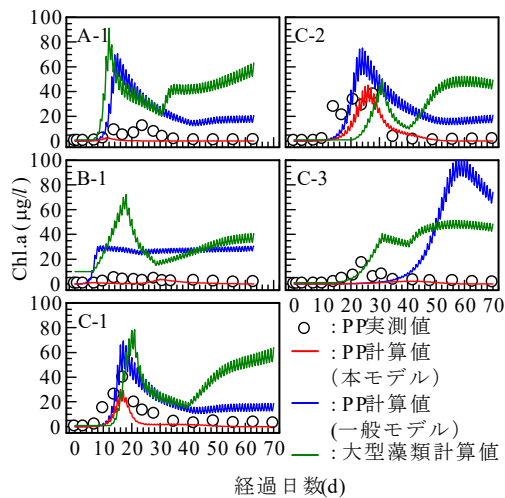


図 6 Chl.a の実測値と計算結果

栄養塩や還元性物質に関しても良好な再現性が得られたことから、パラメータの設定も併せて適切なモデルを構築できたといえる

(3) 大型藻類の影響を考慮した水質改善効果
 コンテナボックスを用いた第1回目照射実験の結果の一部を図7に示す。同図の下段に、藻類の発生量・出現状況を簡潔にまとめた。二つの光質条件に共通して、植物プランクトン、付着性藻、糸状藻の出現状況の観点から、照射期間を区間①～④に分割できたため、各区間でDOの動態特性を考察した。

まず、区間①(照射開始後8日間)では植物相の存在やDOの変化は確認されなかった。この要因として、実験開始までの無光状態による藻類の光応答性への鈍化が考えられる。また、区間②(実験開始後8～15日)では、クリプト藻を主とする植物プランクトンのみが発生したもののDO=0で推移した。この結果は、無酸素期間に増加した還元物質の酸化によるDO消費が光合成によるDO生産を上回ったことを意味する。この区間のChl.aの平均値は白色LEDで23.5µg/l、混合色LEDで42.8µg/lとなり、植物プランクトンの増殖量に光質条件による相違点を見出せる。さらに、区間③(実験開始後15～29日)では、

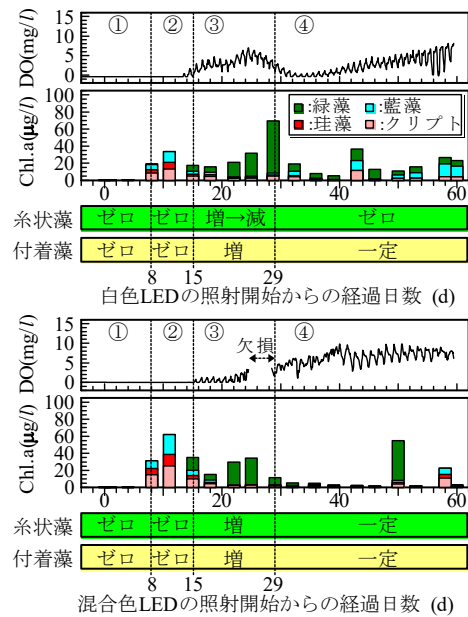


図 7 コンテナボックスを用いた照射実験(強光条件)の測定結果

光質条件に共通して、緑藻類の優占とともに糸状藻と付着性藻が発生し、DOは5mg/lを超えて増加した。白色LEDのDOは25日のピーク以降に低下し始め、この要因として、糸状藻の枯死によるDO生産量の減少やPOC・動物プランクトンの増加に起因したDO消費量の増大が挙げられる。一方、混合色LEDでは、22日経過までの期間で貧酸素状態にあり、これは植物プランクトンの増加の影響を受けて糸状藻の増加のタイミングが遅れたことを反映した。22日経過以降、糸状藻が経時的に増大した結果、DOはLED点灯時の顕著なDO生産によって持続的に増加した。この点に光質条件によるDO動態と藻類の出現特性の違いを見出せる。最後に、区間④(実験開始後29～60日)の植物相は光質条件によって異なり、DOの動態特性にも違いが見られた。白色では32日経過後までの期間で、植物プランクトン・糸状藻の低濃度の影響を受けてDO生産量が低下し、LED消灯時では無酸素状態に至ったが、36日経過以降、植物プランクトンの再増加に伴ってDOは約10mg/lまで上昇した。一方、混合色LEDでは、植物プランクトン量は少ないものの、糸状藻と付着性藻が安定して繁茂したことでDOは増大し、39日経過以降、5～10mg/lの範囲で定常的に推移した。ところで、実験終了時の付着性藻のChl.aは光質条件に関係なく約1200µg/m²であった。一方、白色LEDと混合色LEDの糸状藻Chl.aはそれぞれ4.2µg/l、83.4µg/lであり、両条件で大きな違いがあった。以上から、持続的なDO改善効果に対して糸状藻によるDO生産への寄与は高く、その光合成速度は可視光全波長域ではなく赤色・青色の両波長域の光量子量に強く

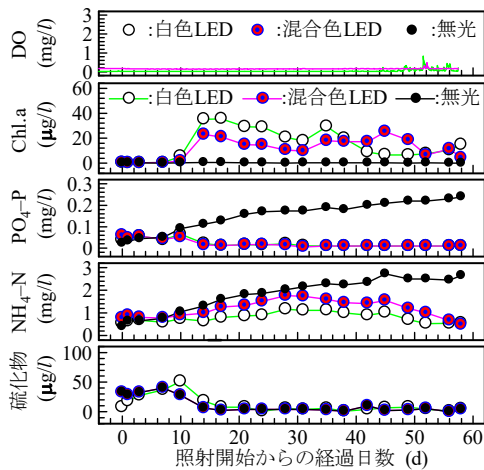


図 8 コンテナボックスを用いた照射実験(弱光条件)の測定結果

依存することが示された。

第2回目の照射実験結果を図8に示す。白色LEDと混合色LEDともに、DOは概ねゼロで推移し、無酸素化は解消されなかった。しかし、実験開始後10~14日の期間でChl.aが10µg/lを超える植物プランクトンが増殖し、また付着性藻も観察されたことから、光合成によるDO生産を確認できる。また、嫌気的条件下での特徴的な水質動態であるNH₄-N、PO₄-Pおよび硫化物の増加傾向が見られず、鉄還元や硫酸還元が抑制されたことを判断できる。また、ORPは負から正に転じ、DO=0にも関わらず好気的状態であった。以上から、弱光条件によってDO消費を大きく上回るほどのDO生産がなかったため、DO増加には至らなかったが、栄養塩の溶出や硫化水素の発生が抑制されたという点で水環境の改善効果を見出せる。ところで、白色・混合色LEDともに、実験終了時の糸状藻Chl.aは1µg/l以下と極めて低く、また付着性藻Chl.aは約2000µg/m²と高い結果を得た。このことから、光制限による糸状藻の増殖の抑制がDO生産量の低下に繋がったと考えられる。

(4)まとめ

有機汚濁水域の長期的な無光層と嫌気的狀態は、無酸素化解消に強い影響を及ぼす。また、LED照射光の光質・光強度が良好なDO環境の維持に与える影響は、糸状藻の光合成速度に対する光制限因子として現れる。さらに、還元性物質と大型藻類を考慮に入れた構築した水質予測モデルを用いることで、実水域でのLED照射による水質改善効果について有益な知見を得ることができると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4件)

- ①Thach, T. T., Harada, M., Oniki, A., Hiramatsu, K., and Tabata, T., Experimental Study on the Influence of Dissolved Organic Matter and

Redox State of Bottom Sediment on Water Quality Dynamics under Anaerobic Conditions due to Organic Pollution, Paddy and Water Environment, 15(4), pp.889-906, 2017, 査読有

- ②鬼木彩香・原田昌佳・平松和昭・田畑俊範：硝酸態窒素に着目した無酸素化水域の底質近傍での水質動態特性に関する実験的研究, 雨水資源化システム学会誌, 22(2), pp.31-39, 2017, 査読有
- ③原田昌佳・川野陽介・平松和昭・田畑俊範：クロロフィルaの光吸収特性を考慮した水中LEDによる有機汚濁水域のDO環境の改善効果に関する実験的研究, 応用水文, 28, pp.1-10, 2016, 査読有
- ④西岡尊寿・原田昌佳・平松和昭・田畑俊範：有機汚濁化水域の嫌気的条件下での水質動態に関する実験的研究, 雨水資源化システム学会誌, 21(2), pp.13-21, 2016, 査読有

〔学会発表〕(計 4件)

- ①原田昌佳・一安美希・平松和昭・田畑俊範(2017):大型藻類の酸素生産に対する影響を考慮したLED照射による水質改善効果の検討, 平成29年度農業農村工学会大会講演会(藤沢市)
- ②鬼木彩香・原田昌佳・平松和昭・田畑俊範(2016):長期的な無酸素化が水中LEDによる有機汚濁水域のDO改善効果に及ぼす影響, 平成28年度農業農村工学会大会講演会(仙台市)
- ③西岡尊寿・原田昌佳・平松和昭(2015):有機汚濁化水域の水底近傍における嫌気的条件下での水質動態特性, 平成27年度農業農村工学会大会講演会(岡山市)
- ④原田昌佳・待鳥かえで・平松和昭(2015):水中LEDを用いた有機汚濁化水域の水質改善技術に関する基礎的研究, 平成27年度農業農村工学会大会講演会(岡山市)

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

- 出願状況(計 0件)
○取得状況(計 0件)

〔その他〕

ホームページ等 なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

原田昌佳 (HARADA, Masayoshi)
九州大学・大学院農学研究院・准教授
研究者番号: 80325000

(2)研究分担者

平松和昭 (HIRAMATSU, Kazuaki)
九州大学・大学院農学研究院・教授
研究者番号: 10199094