

栄養剤添加による重油分解・除去技術試験 (第3報)

— 模擬潮汐による室内実験 —

加藤賢二・松崎雅之・白崎健一・内田利勝・山口慎一
近藤竜二・広石伸互 (福井県立大学海洋生物資源学科)

A Study on Bioremediation of Heavy oil Contamination by Addition of Fertilizers (3) — A Laboratory Experiment Simulating Ebb and Flow —

Kenji KATO, Masayuki MATSUZAKI, Ken-ichi SHIRASAKI, Toshikatsu UCHIDA, Sin-ichi YAMAGUCHI
Ryuji KONDO, Shingo HIROISI (Department of Marine Bioscience, Fukui Prefectural University)

Abstract

Effects of fertilizers on bioremediation were examined using an apparatus simulating ebb and flow. Oil-polluted stones were collected from the polluted area and placed in the apparatus. The amounts of heavy oil components did not change for 30 days although oil-degrading bacteria proliferated.

The results obtained by a series of experiments indicated that the fertilizers although promoting the proliferation of oil-degrading bacteria did not contribute to the degradation of the heavy oil collected about 9 months after the pollution.

1 はじめに

平成9年10月～11月に実施した屋外での模擬実験の結果、栄養剤添加直後には重油分解細菌が 10^4 CFU/cm²のレベルであったが、栄養剤添加後2週間目には重油分解細菌が全く検出されなくなった¹⁾。そこで、この変化を明らかにするとともに、潮汐を利用することによる重油分解効果を確認した。

2 実験方法

2.1 実験に供した漂着重油付着砂利

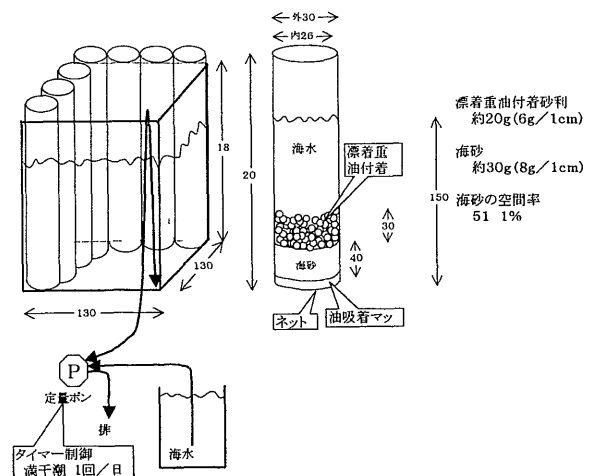
実験に供した漂着重油付着砂利は、平成9年10月28日、ナホトカ号の船首が座礁した海岸で採取した。その粒径は3～7mmの小石である。

2.2 実験装置

模擬潮汐装置は『漁場油濁被害防止対策事業報告書』²⁾を参考にして作成した(図1～2)。

実験は満干潮を模擬して1日1回とした。

その条件は、約4時間かけて満水状態・約8時間停止後・約4時間かけて放水・約8時間停止というサイクルである。また、実験装置全体は25℃の恒温槽に沈めて行っ



実験スケジュール (サンプリング間隔)

	0日目	2日目	5日目	10日目	30日目	60日目
B剤	3検体	3検体	3検体	3検体	3検体	3検体
I剤	〃	〃	〃	〃	〃	〃
コントロール	〃	〃	〃	〃	〃	〃

* 細菌検査用は、3系列より抜き取り方式。

図1 実験装置概略図

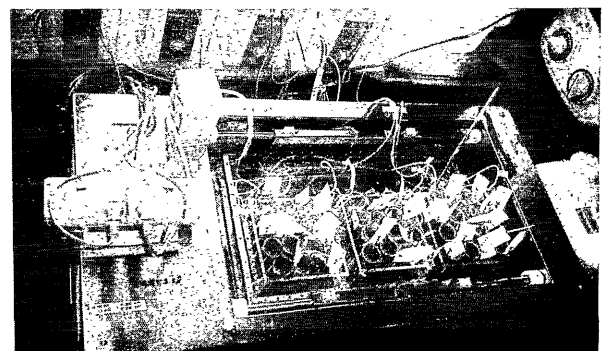


図2 実験装置状況図

表1 栄養剤の種類と添加量

	N社製 B剤	E社製 I剤
添加量	付着重油の重量に対して20%	付着重油の重量に対して10%
成分	オレイン酸アミド オレイン酸 7-トリオクタノール など 窒素含有量 0.75% リン含有量 0.45%	尿素 オレイン酸 7-トリオクタノール など 窒素含有量 7.4% リン含有量 0.7%

た。

漂着重油付着砂利は、内径26mm、高さ200mmのシリンダーに厚さが約4 cmとなるように海砂（和光試薬製）を詰めたその上に厚さが約3 cmとなるように充填した。

なお、栄養剤は、漂着重油付着砂利をシリンダーに充填する前に、表1に示した濃度になるようにあらかじめ調製した。

海水は、飼育海水として海（海岸から約40mの沖合の水深2～3 m）から揚水している水族館（ナホトカ号の船首が座礁した付近にある越前松島水族館）から、補給を受け、No.2ろ紙でろ過したものを使用した。

なお、実験は1栄養剤当たり3連を1実験区として実施した。

2.3 試料採取および分析法

2.3.1 油成分分析用試料

重油分の分析は、シリンダー内の小石と海砂を区別せず、混合した全量を1検体とした。

油成分分析法は、前報と同じである¹⁾。

なお、分析は栄養剤添加直後の重油と重油分解細菌の経時変化を把握するために、栄養剤添加前、栄養剤添加後（0日目、2日目、5日目、12日目、30日目、61日目）で実施した。

2.3.2 重油分解細菌計数用試料

サンプリングは毎回、各区の石を上から3個ずつ抜き取り、滅菌海水20ml入りの遠沈管（50ml容量）に入れ、振盪器を用いて60分間攪拌した。この液を原液として、10倍ずつ滅菌海水で希釈し、原液および希釈液を0.2mlずつ重油寒天培地に接種した¹⁾。20℃、暗所で3週間培養後、出現したコロニーを計数した。計数値は、3連の平均値を用い、石に付着していた重油1g当りの値として表わした。

3 結果と考察

3.1 油成分分析結果

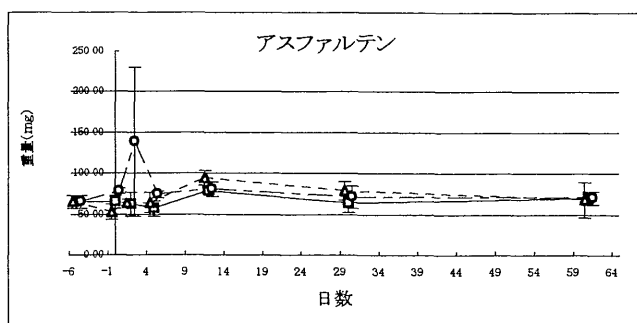
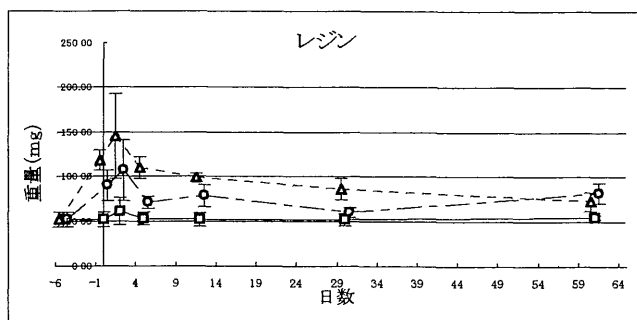
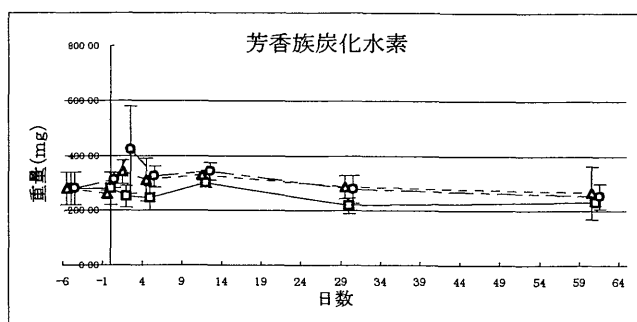
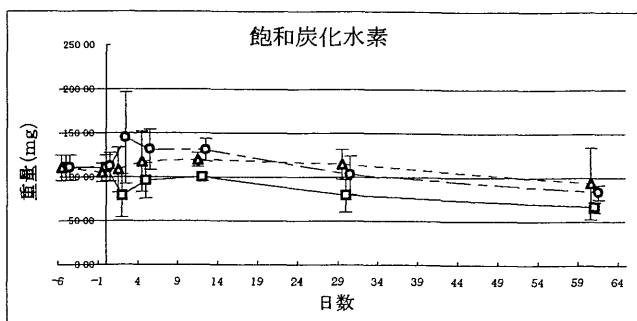
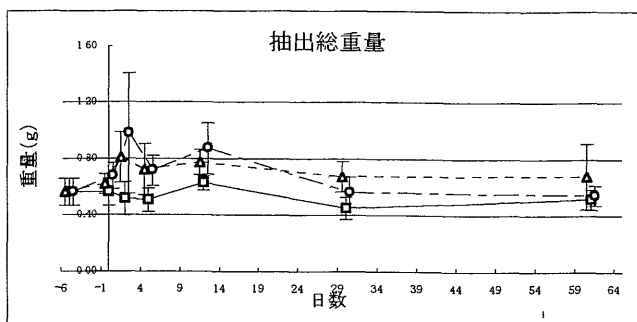
重油の油成分分析結果を別表1-1～3、油分解の経時変化状況を図3～4に示した。

図3には、抽出総重量（クロロホルム抽出）ならびに各成分の重量を示した。

図4には、各成分のアスファルテン比およびC17/プリスタン、C18/フィタン比を示した。

バラツキについては、各測定値の誤差範囲を1σで示した。t検定および分散分析の結果、おおむね誤差範囲が重ならないければ5%の危険率で有意の差があると推定できた。

また、各測定値のプロット位置については試料採取日を中心前後1日ずつずらして誤差範囲が重ならないようにした。なお、マイナス1～6日目のグループについては、別表1-1のコントロール（0日目）の平均値である。



凡例
 —□— コントロール
 ---△--- B剤
 —○— I剤

図3 抽出後および分画後の重量の経時変化

3.1.1 抽出総重量の経時変化

図3の抽出総重量の経時変化によると、コントロールでは、抽出総重量による変化はほとんど認められなかった。

しかし、各栄養剤を添加した実験区では添加後2日目に最も多く抽出され、その後、徐々に減少する傾向がみられ、栄養剤添加後30日目～61日目に栄養剤添加前の値に近くなった。

このことは、各栄養剤に親油性の化合物が配合されているためにクロロホルムにより抽出されたものと考えられる。

3.1.2 各成分（飽和炭化水素、芳香族炭化水素、レジン、アスファルテン）の抽出量経時変化

各成分の抽出量経時変化は、以下のとおりであった。

- ・コントロール、B剤、I剤とも飽和炭化水素で僅かに減少する傾向がみられたが、芳香族炭化水素、レジンではほとんど変化が認められなかった。
- ・B剤では、栄養剤添加後から飽和炭化水素、レジンが、I剤では飽和炭化水素、芳香族炭化水素、アスファルテンの各成分が増加し、その後徐々に減少し、添加後30日目～61日目では栄養剤を添加する前の状態までにはほぼ減少した。

3.1.3 各成分比の経時変化

3.1.2の経時変化から、栄養剤の効果を明らかにすることが出来なかったため、アスファルテンに対する各成分（飽和炭化水素、芳香族炭化水素、レジン）比とC17/プリスタン、C18/フィタン比の変化で評価し、その結果を図4に示した。

アスファルテンに対する各成分比は栄養剤を添加した直後に、その比は増加の傾向（バラツキは大きい）にあるがその後、徐々に減少する傾向がみられた。

また、統計結果からは、0日目と60日目の差およびコントロールと各栄養剤添加との差において、項目によっては若干の差を認めるものの、いずれも栄養剤添加のほうがコントロールより減少割合が少なかった。

C17/プリスタン、C18/フィタン比の変化では、栄養剤添加後30日目まで減少するが、その後の61日目には上昇する傾向にあった。これは、C17、プリスタン、C18、フィタンの各成分が極微量のため、誤差が大きく、その比が大きく変動したのと考えられる。そこで、栄養剤添加後30日目までについて評価すると、経時的に減少傾向に有るもののコントロールと栄養剤添加との差は認められなかった。

3.2 重油分解細菌計数結果

図5および表2に、漂着重油付着砂利の重油分解細菌数の経時変化を示した。なお、菌数は付着重油1g当たりで表わした。

実験期間中の細菌数の経時変化をみると、コントロールでは開始直後から10日目までに約10倍（ 10^7 CFU/gから 10^8 CFU/g）に増加したがその後はほぼ一定の状態を

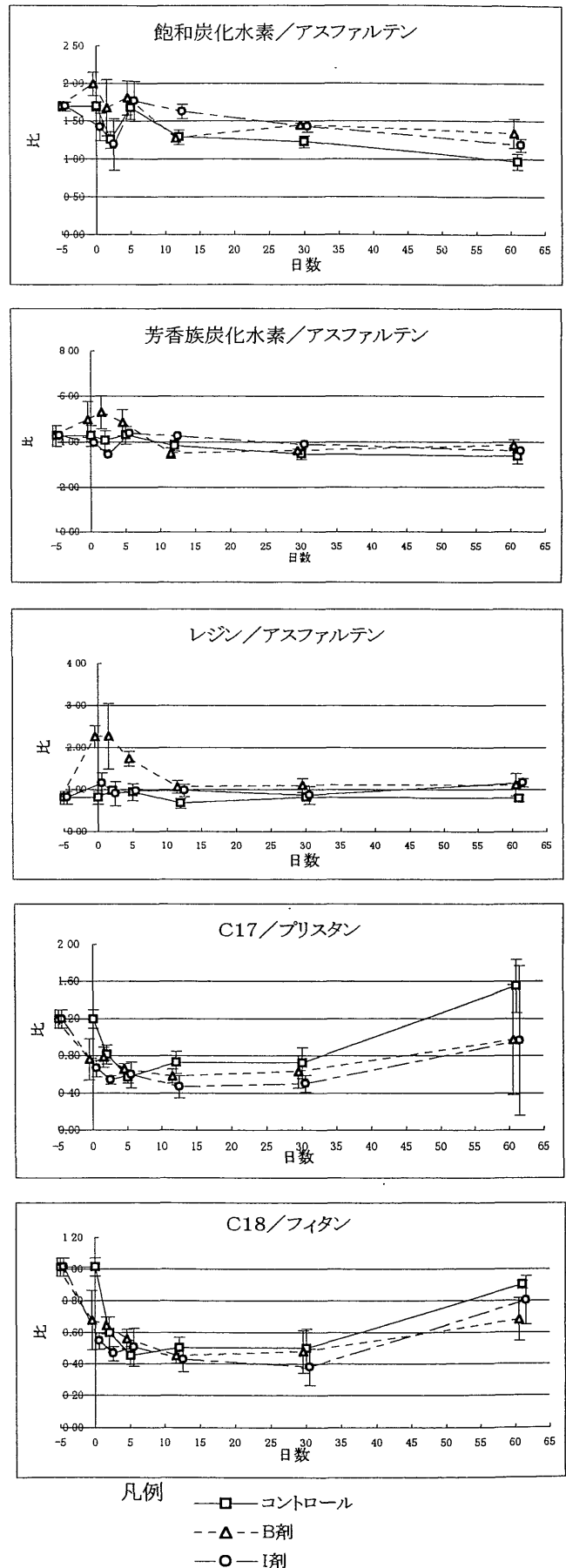


図4 飽和炭化水素等とアスファルテン等の比の経時変化

示した。一方、栄養剤を添加した実験区（B剤、I剤ともに）では開始直後から2日目までに約100倍（ 10^7 CFU/g から 10^9 CFU/g）に増加したが、その後は上昇の傾向は認められなかった。

ただし、B剤では、実験終了時（63日目）においても添加前の100倍（ 10^9 CFU/g）、コントロールの10倍の菌数を保持していた。

4 まとめ

屋外における模擬実験の結果、栄養剤添加後（B剤、I剤）13日目には、重油分解細菌が全く検出されなくなった。そこで、重油分解細菌数を減少させた要因を明らかにし、併せて潮汐を利用することによる重油分解効果を確認するため模擬潮汐装置を用いた実験を実施した。その結果は、以下のとおりである。

1) クロロホルム抽出による総重量の経時変化では、栄養剤添加系は親油性の化合物が配合されているために、栄養剤添加直後の2日目に最も多く抽出されたが、30日目～61日目には、栄養剤添加前の抽出総重量まで減少する傾向がみられた。

2) 各成分（飽和炭化水素、芳香族炭化水素、レジン、アスファルテン）の抽出量経時変化においては、コントロール、B剤、I剤とも飽和炭化水素で僅かに減少する傾向がみられたが、芳香族炭化水素、レジンではほとんど変化が認められなかった。また、各栄養剤添加系は栄養剤添加直後、飽和炭化水素等が増加したが、添加後30日目～61日目ではほぼ栄養剤を添加する前の状態までに減少した。

3) 重油分の分解の評価については、重油分解細菌に比較的分解されにくいと言われているアスファルテン分を基準として、アスファルテンに対する各成分（飽和炭化水素、芳香族炭化水素、レジン）の比とC17/プリスタン、C18/フィタン比を求めて検討を行った。

その結果、アスファルテンに対する各成分比は栄養剤を添加した直後に、その比は増加の傾向（バラツキは大きい）にあるがその後、徐々に減少する傾向がみられた。統計結果からは、0日目と60日目の差およびコントロールと各栄養剤添加との差において、項目別には若干の差を認めるものの、いずれも栄養剤添加のほうがコントロールより減少割合が少なかった。

4) 実験期間中の細菌数の経時変化をみると、コントロールでは開始直後から10日目までに約10倍に増加したがその後はほぼ一定の状態を示した。一方、栄養剤を添加した実験では開始直後から2日目までに約100倍に増加したが、その後は上昇の傾向は認められなかった。

ただし、B剤では、実験終了時においても添加前の100倍、コントロールの10倍の菌数を保持していた。

5 総括

栄養剤添加による重油分解・除去技術試験として第1

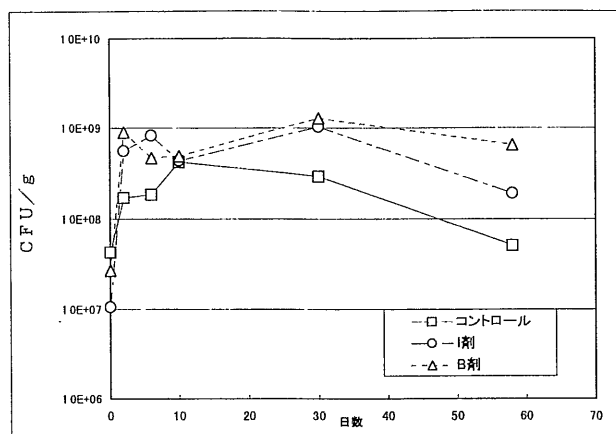


図5 付着重油1g当りの重油分解細菌数の経時変化

表2 付着重油1g当りの重油分解菌数の経時変化

	0日目	2日目	6日目	10日目	30日目	58日目
コントロール	4.2E+07	1.7E+08	1.8E+08	4.2E+08	2.9E+08	5.1E+07
I 剤	1.1E+07	5.5E+08	8.1E+08	4.4E+08	1.0E+09	1.9E+08
B 剤	2.7E+07	9.0E+08	4.6E+08	4.9E+08	1.3E+09	6.5E+08

報の屋外における模擬実験、第2報の室内補足実験、第3報の模擬潮汐による室内実験と実施してきた。

これらの実験は、第1報にも示したとおり人が入れない岩場や、海岸でも海水があまり浸らない場所を想定し、栄養剤添加により微生物の活性を促進し浄化能力を向上するためのバイオレメディエーションの有効性について検討したものである。

屋外模擬実験（第1報）では、アスファルテンに対する各成分比を見るとレジンを除いて栄養剤添加区、コントロールとも実験開始時（栄養剤添加前）に比べ減少傾向が見られたが、コントロールと統計的に比較すると栄養剤添加区は有意な差が見られなかった。

しかし、目視的には栄養剤添加区、特にB剤において砂への移行があった。これはB剤がムースを乳化し、流動性が高まった余分重油を砂や石に再吸着させることにより、重油分解細菌と重油の接触面積が大きくなるように設計されているためと考えられた。

つぎに、この実験で重油分解細菌が約2週間で検出されなくなったことについて、その要因を明らかにするために室内補足実験（第2報）と模擬潮汐による室内実験（第3報）を実施した。

その結果、両実験とも重油分解細菌は増加しており、模擬潮汐実験においては、栄養剤、特にB剤では実験終了時（63日目）においても添加前の100倍（ 10^9 CFU/g）、コントロールの10倍の菌数を保持していた。したがって、屋外模擬実験での重油分解細菌の減少は栄養剤自体の影響ではないことが確認されたが、その減少要因については明らかにできなかった。

今回の一連の実験を通して言えることは実験系によっても異なるが、栄養剤添加によって重油分解細菌は増殖するが、重油の分解にはあまり寄与していないという結

論が得られた。

この原因として、室内補足実験では通気が不十分であったことから、重油分解細菌の増殖が抑制された可能性があったこと、屋外における模擬実験、および模擬潮汐による室内実験では、実験に供した漂着重油付着砂利がナホトカ号の船首が座礁した海岸で数ヶ月が経過したものであったため、すでに生物分解されやすい重油成分が自然の風化を受けてしまっていたことが考えられた。このため、このような砂利に対して栄養剤を添加しても効果が現れなかったと推察された。

参考文献

- 1) 加藤賢二他：栄養剤添加による重油分解・除去技術試験（第1報），福井県環境科学センター年報，27，pp.48-60，1997．
- 2) 財漁場油濁被害救済基金：平成9年度 漁場油濁被害防止対策事業報告書 石油分解微生物による油濁処理技術の開発，平成10年3月．

別表 1-1 重油分析結果

コントロール

	0日目						2日目					
	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$
石+重油重量(g)	20.65	23.72	21.71	22.03	1.56	7.08	21.09	22.38	21.00	21.49	0.77	3.59
抽出油総重量(g)	0.46	0.58	0.65	0.56	0.10	17.06	0.41	0.49	0.64	0.51	0.12	22.75
飽和炭化水素(mg)	95.30	111.60	124.10	110.33	14.44	13.09	65.00	64.30	106.90	78.73	24.40	30.99
芳香族炭化水素(mg)	223.30	275.50	340.30	279.70	58.61	20.96	209.90	252.60	289.00	250.50	39.59	15.81
レジン(mg)	52.10	43.80	60.20	52.03	8.20	15.76	46.10	59.90	76.50	60.83	15.22	25.02
アスファルテン(mg)	55.90	68.80	71.00	65.23	8.16	12.50	51.60	56.50	78.80	62.30	14.50	23.27
分画後の総重量(mg)	426.60	499.70	595.60	507.30	84.76	16.71	372.60	433.30	551.20	452.37	90.81	20.08
分画による回収率(%)	92.74	86.16	91.63	90.18	3.53	3.91	90.88	88.43	86.13	88.48	2.38	2.69
付着油量(mg/g-石)(抽出油ベース)	20.66	21.07	27.43	23.05	3.80	16.48	17.67	19.36	26.25	21.09	4.54	21.55
付着率(%) (抽出油ベース)	2.07	2.11	2.74	2.31	0.38	16.48	1.77	1.94	2.62	2.11	0.45	21.55
HC/AS	1.70	1.62	1.75	1.69	0.06	3.78	1.26	1.14	1.36	1.25	0.11	8.75
BZ/AS	3.99	4.00	4.79	4.26	0.46	10.74	4.07	4.47	3.67	4.07	0.40	9.87
RE/AS	0.93	0.64	0.85	0.81	0.15	18.89	0.89	1.06	0.97	0.97	0.08	8.56
アスファルテン(%)	13.10	13.77	11.92	12.93	0.94	7.24	13.85	13.04	14.30	13.73	0.64	4.64
飽和炭化水素(%)	22.34	22.33	20.84	21.84	0.87	3.97	17.44	14.84	19.39	17.23	2.29	13.27
芳香族炭化水素(%)	52.34	55.13	57.14	54.87	2.41	4.39	56.33	58.30	52.43	55.69	2.99	5.36
レジン(%)	12.21	8.77	10.11	10.36	1.74	16.77	12.37	13.82	13.88	13.36	0.85	6.40
C17	8,741	8,866	6,405	8,004	1,386	17	1,320	1,527	2,018	1,622	359	22
PRISTAN	6,943	7,093	5,938	6,658	628	9	1,828	1,653	2,559	2,013	481	24
C18	13,249	12,362	9,944	11,852	1,711	14	2,080	3,027	4,413	3,173	1,173	37
PHYTAN	12,843	11,668	10,487	11,666	1,178	10	4,269	4,420	7,178	5,289	1,638	31
C17/PRISTAN	1.26	1.25	1.08	1.20	0.10	8.50	0.72	0.92	0.79	0.81	0.10	12.66
C18/PHYTAN	1.03	1.06	0.95	1.01	0.06	5.71	0.49	0.68	0.61	0.60	0.10	16.82

コントロール

	5日目						12日目					
	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$
石+重油重量(g)	21.30	20.29	20.95	20.85	0.51	2.46	21.63	21.09	22.56	21.76	0.74	3.42
抽出油総重量(g)	0.44	0.48	0.60	0.51	0.08	16.43	0.65	0.57	0.66	0.63	0.05	7.87
飽和炭化水素(mg)	78.30	91.30	117.60	95.73	20.02	20.91	99.60	96.50	104.80	100.30	4.19	4.18
芳香族炭化水素(mg)	202.40	239.40	290.00	243.93	43.98	18.03	304.90	282.10	309.00	298.67	14.49	4.85
レジン(mg)	59.90	45.60	51.90	52.47	7.17	13.66	49.90	45.70	60.20	51.93	7.46	14.37
アスファルテン(mg)	52.10	51.20	67.60	56.97	9.22	16.18	82.10	77.00	75.20	78.10	3.58	4.58
分画後の総重量(mg)	392.70	427.50	527.10	449.10	69.75	15.53	536.50	501.30	549.20	529.00	24.82	4.69
分画による回収率(%)	89.25	89.06	87.85	88.72	0.76	0.86	82.54	87.95	83.21	84.57	2.95	3.49
付着油量(mg/g-石)(抽出油ベース)	18.44	21.07	25.16	21.56	3.39	15.72	24.80	23.77	24.34	24.31	0.52	2.13
付着率(%) (抽出油ベース)	1.84	2.11	2.52	2.16	0.34	15.72	2.48	2.38	2.43	2.43	0.05	2.13
HC/AS	1.50	1.78	1.74	1.68	0.15	9.00	1.21	1.25	1.39	1.29	0.09	7.36
BZ/AS	3.88	4.68	4.29	4.28	0.40	9.23	3.71	3.66	4.11	3.83	0.24	6.37
RE/AS	1.15	0.89	0.77	0.94	0.19	20.83	0.61	0.59	0.80	0.67	0.12	17.33
アスファルテン(%)	13.27	11.98	12.82	12.69	0.66	5.17	15.30	15.36	13.69	14.79	0.95	6.40
飽和炭化水素(%)	19.94	21.36	22.31	21.20	1.19	5.63	18.56	19.25	19.08	18.97	0.36	1.88
芳香族炭化水素(%)	51.54	56.00	55.02	54.19	2.34	4.32	56.83	56.27	56.26	56.46	0.32	0.58
レジン(%)	15.25	10.67	9.85	11.92	2.91	24.44	9.30	9.12	10.96	9.79	1.02	10.38
C17	2,067	3,418	4,403	3,296	1,173	36	1,376	1,234	1,021	1,210	179	15
PRISTAN	4,156	5,614	7,399	5,723	1,624	28	1,595	1,889	1,542	1,675	187	11
C18	3,116	4,618	6,437	4,724	1,663	35	2,170	2,049	1,855	2,025	159	8
PHYTAN	8,069	9,653	13,210	10,311	2,633	26	3,752	4,376	4,124	4,084	314	8
C17/PRISTAN	0.50	0.61	0.60	0.57	0.06	10.72	0.86	0.65	0.66	0.73	0.12	16.31
C18/PHYTAN	0.39	0.48	0.49	0.45	0.06	12.43	0.58	0.47	0.45	0.50	0.07	13.94

コントロール

	30日目						61日目					
	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$
石+重油重量(g)	23.31	21.66	22.88	22.62	0.86	3.78	21.38	21.86	22.35	21.86	0.49	2.22
抽出油総重量(g)	0.39	0.54	0.42	0.45	0.08	17.64	0.46	0.60	0.49	0.52	0.07	14.27
飽和炭化水素(mg)	61.40	97.80	77.40	78.87	18.24	23.13	66.30	72.50	60.80	66.53	5.85	8.80
芳香族炭化水素(mg)	196.30	250.50	209.70	218.83	28.23	12.90	233.10	240.20	220.70	231.33	9.87	4.27
レジン(mg)	44.60	57.50	53.10	51.73	6.56	12.68	55.10	56.80	52.20	54.70	2.33	4.25
アスファルテン(mg)	52.80	74.60	64.30	63.90	10.91	17.07	78.60	68.40	62.10	69.70	8.33	11.95
分画後の総重量(mg)	355.10	480.40	404.50	413.33	63.12	15.27	433.10	437.90	395.80	422.27	23.05	5.46
分画による回収率(%)	91.05	88.96	96.31	92.11	3.79	4.11	94.15	72.98	80.78	82.64	10.71	12.96
付着油量(mg/g-石)(抽出油ベース)	15.23	22.18	17.68	18.36	3.52	19.18	20.26	20.03	17.71	19.33	1.41	7.30
付着率(%) (抽出油ベース)	1.52	2.22	1.77	1.84	0.35	19.18	2.03	2.00	1.77	1.93	0.14	7.30
HC/AS	1.16	1.31	1.20	1.23	0.08	6.24	0.84	1.06	0.98	0.96	0.11	11.38
BZ/AS	3.72	3.36	3.26	3.45	0.24	6.98	2.97	3.51	3.55	3.34	0.33	9.81
RE/AS	0.84	0.77	0.83	0.81	0.04	4.72	0.70	0.83	0.84	0.79	0.08	9.84
アスファルテン(%)	14.87	15.53	15.90	15.43	0.52	3.37	18.15	15.62	15.69	16.49	1.44	8.73
飽和炭化水素(%)	17.29	20.36	19.13	18.93	1.54	8.16	15.31	16.56	15.36	15.74	0.71	4.48
芳香族炭化水素(%)	55.28	52.14	51.84	53.09	1.90	3.59	53.82	54.85	55.76	54.81	0.97	1.77
レジン(%)	12.56	11.97	13.13	12.55	0.58	4.61	12.72	12.97	13.19	12.96	0.23	1.80
C17	432	2,978	1,387	1,599	1,286	80	506	1,055	1,163	908	352	39
PRISTAN	790	3,998	1,593	2,127	1,669	78	276	680	921	626	326	52
C18	752	4,286	2,052	2,363	1,787	76	1,010	2,039	2,014	1,688	587	35
PHYTAN	2,124	7,618	3,557	4,433	2,850	64	1,088	2,318	2,247	1,884	691	37
C17/PRISTAN	0.55	0.74	0.87	0.72	0.16	22.65	1.83	1.55	1.26	1.55	0.29	18.42
C18/PHYTAN	0.35	0.56	0.58	0.50	0.12	25.06	0.93	0.88	0.90	0.90	0.02	2.74

別表1-2 重油分析結果

B剤 添加量: 油分に対して20%

	0日目						2日目					
	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$
石+重油重量(g)	23.68	23.24	22.73	23.22	0.48	2.05	21.28	23.14	22.24	22.22	0.93	4.19
抽出油総重量(g)	0.62	0.55	0.69	0.62	0.07	11.29	1.01	0.73	0.68	0.81	0.18	22.05
飽和炭化水素(mg)	104.90	94.50	115.30	104.90	10.40	9.91	132.20	111.00	81.10	108.10	25.67	23.75
芳香族炭化水素(mg)	274.10	245.00	258.50	259.20	14.56	5.62	389.20	321.80	311.40	340.80	42.24	12.39
レジジン(mg)	124.80	105.10	124.30	118.07	11.23	9.51	198.40	106.90	130.30	145.20	47.53	32.74
アスファルテン(mg)	50.70	44.90	63.50	53.03	9.52	17.95	63.70	68.60	60.80	64.37	3.94	6.13
分画後の総重量(mg)	554.50	489.50	561.60	535.20	39.74	7.42	783.60	608.30	583.60	658.47	108.98	16.55
分画による回収率(%)	89.44	89.00	81.39	86.61	4.52	5.22	77.57	83.33	85.82	82.24	4.23	5.14
付着油量(mg/g-石)(抽出油ベース)	23.42	21.06	24.71	23.06	1.85	8.01	36.82	26.29	26.24	29.78	6.09	20.46
付着率(%) (抽出油ベース)	2.34	2.11	2.47	2.31	0.18	8.01	3.68	2.63	2.62	2.98	0.61	20.46
HC/AS	2.07	2.10	1.82	2.00	0.16	7.89	2.08	1.62	1.33	1.68	0.37	22.32
BZ/AS	5.41	5.46	4.07	4.98	0.79	15.79	6.11	4.69	5.12	5.31	0.73	13.71
RE/AS	2.46	2.34	1.96	2.25	0.26	11.68	3.11	1.56	2.14	2.27	0.79	34.60
アスファルテン(%)	9.14	9.17	11.31	9.87	1.24	12.57	8.13	11.28	10.42	9.94	1.63	16.36
飽和炭化水素(%)	18.92	19.31	20.53	19.58	0.84	4.30	16.87	18.25	13.90	16.34	2.22	13.61
芳香族炭化水素(%)	49.43	50.05	46.03	48.50	2.17	4.46	49.67	52.90	53.36	51.98	2.01	3.86
レジジン(%)	22.51	21.47	22.13	22.04	0.52	2.38	25.32	17.57	22.33	21.74	3.91	17.97
C17	3,737	4,569	7,309	5,205	1,869	36	3,423	3,476	2,310	3,070	658	21
PRISTAN	5,432	4,530	12,499	7,487	4,364	58	4,901	4,664	2,545	4,037	1,297	32
C18	6,067	6,819	10,539	7,808	2,395	31	5,021	5,174	4,325	4,840	453	9
PHYTAN	9,783	7,693	20,283	12,586	6,747	54	8,467	8,172	6,180	7,606	1,244	16
C17/PRISTAN	0.69	1.01	0.58	0.76	0.22	29.06	0.70	0.75	0.91	0.78	0.11	14.01
C18/PHYTAN	0.62	0.89	0.52	0.68	0.19	28.06	0.59	0.63	0.70	0.64	0.05	8.41

B剤 添加量: 油分に対して20%

	5日目						12日目					
	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$
石+重油重量(g)	20.83	20.78	22.73	21.45	1.11	5.18	21.59	20.08	21.90	21.19	0.97	4.60
抽出油総重量(g)	0.57	0.92	0.67	0.72	0.18	25.04	0.86	0.78	0.68	0.77	0.09	11.66
飽和炭化水素(mg)	83.50	151.90	117.40	117.60	34.20	29.08	124.30	124.30	110.60	119.73	7.91	6.61
芳香族炭化水素(mg)	243.40	396.40	295.30	311.70	77.81	24.96	332.40	336.70	312.90	327.33	12.68	3.87
レジジン(mg)	96.30	120.70	112.40	109.80	12.41	11.30	95.60	96.50	104.20	98.77	4.73	4.79
アスファルテン(mg)	50.00	73.20	69.40	64.20	12.44	19.38	102.90	94.30	85.10	94.10	8.90	9.46
分画後の総重量(mg)	473.20	742.20	594.50	603.30	134.72	22.33	655.20	651.80	612.80	639.93	23.56	3.68
分画による回収率(%)	83.02	80.67	88.73	84.14	4.14	4.93	76.19	83.56	90.12	83.29	6.97	8.37
付着油量(mg/g-石)(抽出油ベース)	22.72	35.72	26.15	28.20	6.74	23.89	30.35	32.46	27.98	30.26	2.24	7.40
付着率(%) (抽出油ベース)	2.27	3.57	2.62	2.82	0.67	23.89	3.03	3.25	2.80	3.03	0.22	7.40
HC/AS	1.67	2.08	1.69	1.81	0.23	12.58	1.21	1.32	1.30	1.28	0.06	4.63
BZ/AS	4.87	5.42	4.26	4.85	0.58	11.98	3.23	3.57	3.68	3.49	0.23	6.68
RE/AS	1.93	1.65	1.62	1.73	0.17	9.76	0.93	1.02	1.22	1.06	0.15	14.25
アスファルテン(%)	10.57	9.86	11.67	10.70	0.91	8.53	15.71	14.47	13.89	14.69	0.93	6.32
飽和炭化水素(%)	17.65	20.47	19.75	19.29	1.47	7.60	18.97	19.07	18.05	18.70	0.56	3.01
芳香族炭化水素(%)	51.44	53.41	49.67	51.51	1.87	3.63	50.73	51.66	51.06	51.15	0.47	0.92
レジジン(%)	20.35	16.26	18.91	18.51	2.07	11.20	14.59	14.81	17.00	15.47	1.34	8.64
C17	2,195	10,084	5,247	5,842	3,978	68	880	1,825	1,469	1,391	477	34
PRISTAN	3,542	13,937	8,199	8,559	5,207	61	1,320	3,507	2,656	2,494	1,102	44
C18	3,368	11,978	7,111	7,486	4,317	58	1,377	2,610	2,046	2,011	617	31
PHYTAN	6,911	19,593	12,462	12,989	6,357	49	2,771	5,859	5,041	4,557	1,600	35
C17/PRISTAN	0.62	0.72	0.64	0.66	0.06	8.33	0.67	0.52	0.55	0.58	0.08	13.24
C18/PHYTAN	0.49	0.61	0.57	0.56	0.06	11.36	0.50	0.45	0.41	0.45	0.05	10.16

B剤 添加量: 油分に対して20%

	30日目						61日目					
	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$
石+重油重量(g)	21.82	23.26	21.42	22.17	0.97	4.37	22.36	20.87	21.59	21.61	0.75	3.45
抽出油総重量(g)	0.67	0.78	0.57	0.67	0.11	15.60	0.92	0.66	0.46	0.68	0.23	33.92
飽和炭化水素(mg)	116.60	130.90	97.00	114.83	17.02	14.82	136.30	91.20	54.30	93.93	41.07	43.72
芳香族炭化水素(mg)	288.60	327.00	242.80	286.13	42.15	14.73	364.70	262.10	171.70	266.17	96.56	36.28
レジジン(mg)	99.90	81.00	77.30	86.07	12.12	14.08	84.50	65.10	68.10	72.57	10.44	14.39
アスファルテン(mg)	82.20	88.90	66.80	79.30	11.33	14.29	90.60	66.10	48.00	68.23	21.38	31.33
分画後の総重量(mg)	587.30	627.80	483.90	566.33	74.21	13.10	676.10	484.50	342.10	500.90	167.60	33.46
分画による回収率(%)	87.66	80.49	84.89	84.35	3.62	4.29	73.49	73.41	74.37	73.76	0.53	0.72
付着油量(mg/g-石)(抽出油ベース)	26.92	26.99	22.59	25.50	2.52	9.88	30.24	23.22	15.85	23.10	7.20	31.16
付着率(%) (抽出油ベース)	2.69	2.70	2.26	2.55	0.25	9.88	3.02	2.32	1.58	2.31	0.72	31.16
HC/AS	1.42	1.47	1.45	1.45	0.03	1.88	1.50	1.38	1.13	1.34	0.19	14.19
BZ/AS	3.51	3.68	3.63	3.61	0.09	2.41	4.03	3.97	3.58	3.86	0.24	6.31
RE/AS	1.22	0.91	1.16	1.09	0.16	14.75	0.93	0.98	1.42	1.11	0.27	24.00
アスファルテン(%)	14.00	14.16	13.80	13.99	0.18	1.27	13.40	13.64	14.03	13.69	0.32	2.32
飽和炭化水素(%)	19.85	20.85	20.05	20.25	0.53	2.61	20.16	18.82	15.87	18.29	2.19	12.00
芳香族炭化水素(%)	49.14	52.09	50.18	50.47	1.49	2.96	53.94	54.10	50.19	52.74	2.21	4.19
レジジン(%)	17.01	12.90	15.97	15.30	2.14	13.97	12.50	13.44	19.91	15.28	4.03	26.40
C17	990	1,419	1,628	1,346	325	24	3,466	1,312	570	1,783	1,504	84
PRISTAN	2,164	2,288	2,001	2,151	144	7	6,096	1,896	346	2,779	2,975	107
C18	1,538	1,965	2,161	1,888	319	17	5,814	2,151	926	2,964	2,543	86
PHYTAN	3,934	4,804	3,416	4,051	701	17	9,691	3,559	1,104	4,785	4,423	92
C17/PRISTAN	0.46	0.62	0.81	0.63	0.18	28.28	0.57	0.69	1.65	0.97	0.59	60.92
C18/PHYTAN	0.39	0.41	0.63	0.48	0.13	28.19	0.60	0.60	0.84	0.68	0.14	20.06

別表 1-3 重油分析結果

I剤 添加量: 油分に対して10%

	0日目						2日目					
	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$
石+重油重量(g)	21.91	20.37	23.74	22.01	1.69	7.67	21.79	21.60	22.07	21.82	0.24	1.08
抽出油総重量(g)	0.58	0.69	0.76	0.68	0.09	13.41	0.94	0.57	1.42	0.98	0.43	43.64
飽和炭化水素(mg)	95.50	111.40	127.90	111.60	16.20	14.52	136.80	96.40	199.60	144.27	52.00	36.05
芳香族炭化水素(mg)	283.10	310.30	337.00	310.13	26.95	8.69	407.40	268.50	584.50	420.13	158.38	37.70
レジジン(mg)	71.70	105.90	91.90	89.83	17.19	19.14	116.60	69.30	135.00	106.97	33.89	31.69
アスファルテン(mg)	78.60	75.30	81.90	78.60	3.30	4.20	111.30	64.00	239.80	138.37	90.97	65.75
分画後の総重量(mg)	528.90	602.90	638.70	590.17	56.00	9.49	772.10	498.20	1158.90	809.73	331.95	41.00
分画による回収率(%)	91.19	87.38	84.04	87.54	3.58	4.09	82.14	87.40	81.61	83.72	3.20	3.83
付着油量(mg/g-石)(抽出油ベース)	24.14	29.60	26.90	26.88	2.73	10.15	35.43	23.06	52.51	37.00	14.79	39.96
付着率(%) (抽出油ベース)	2.41	2.96	2.69	2.69	0.27	10.15	3.54	2.31	5.25	3.70	1.48	39.96
HC/AS	1.22	1.48	1.56	1.42	0.18	12.77	1.23	1.51	0.83	1.19	0.34	28.48
BZ/AS	3.60	4.12	4.11	3.95	0.30	7.55	3.66	4.20	2.44	3.43	0.90	26.26
RE/AS	0.91	1.41	1.12	1.15	0.25	21.62	1.05	1.08	0.56	0.90	0.29	32.36
アスファルテン(%)	14.86	12.49	12.82	13.39	1.28	9.59	14.42	12.85	20.69	15.98	4.15	25.97
飽和炭化水素(%)	18.06	18.48	20.03	18.85	1.04	5.50	17.72	19.35	17.22	18.10	1.11	6.15
芳香族炭化水素(%)	53.53	51.47	52.76	52.59	1.04	1.98	52.77	53.89	50.44	52.36	1.76	3.37
レジジン(%)	13.56	17.57	14.39	15.17	2.12	13.95	15.10	13.91	11.65	13.55	1.75	12.94
C17	1,964	2,812	2,088	2,288	458	20	2,302	1,215	4,773	2,763	1,823	66
PRISTAN	2,793	3,909	3,705	3,469	594	17	3,916	2,283	9,521	5,240	3,796	72
C18	3,424	4,264	3,210	3,633	557	15	3,934	1,991	7,583	4,503	2,839	63
PHYTAN	5,935	7,478	6,680	6,698	772	12	7,752	4,772	16,425	9,650	6,054	63
C17/PRISTAN	0.70	0.72	0.56	0.66	0.09	12.94	0.59	0.53	0.50	0.54	0.04	8.11
C18/PHYTAN	0.58	0.57	0.48	0.54	0.05	9.92	0.51	0.42	0.46	0.46	0.05	9.77

I剤 添加量: 油分に対して10%

	5日目						12日目					
	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$
石+重油重量(g)	21.87	21.16	20.87	21.30	0.51	2.42	21.94	21.96	22.53	22.14	0.34	1.51
抽出油総重量(g)	0.78	0.59	0.77	0.71	0.11	14.99	0.75	0.78	1.08	0.87	0.18	20.98
飽和炭化水素(mg)	143.30	104.70	145.80	131.27	23.04	17.55	130.70	118.20	143.50	130.80	12.65	9.67
芳香族炭化水素(mg)	347.90	279.00	343.90	323.60	38.68	11.95	319.70	328.70	378.40	342.27	31.61	9.24
レジジン(mg)	76.90	63.40	72.30	70.87	6.86	9.68	64.00	85.90	85.30	78.40	12.47	15.91
アスファルテン(mg)	78.80	71.00	72.90	74.23	4.07	5.48	75.20	75.60	91.10	80.63	9.07	11.24
分画後の総重量(mg)	646.90	518.10	634.90	599.97	71.15	11.86	589.60	608.40	698.30	632.10	58.10	9.19
分画による回収率(%)	82.94	87.81	82.45	84.40	2.96	3.51	78.61	78.00	64.66	73.76	7.89	10.69
付着油量(mg/g-石)(抽出油ベース)	29.58	24.48	30.42	28.16	3.21	11.41	26.87	27.70	30.99	28.52	2.18	7.64
付着率(%) (抽出油ベース)	2.96	2.45	3.04	2.82	0.32	11.41	2.69	2.77	3.10	2.85	0.22	7.64
HC/AS	1.82	1.47	2.00	1.76	0.27	15.12	1.74	1.56	1.58	1.63	0.10	6.00
BZ/AS	4.41	3.93	4.72	4.35	0.40	9.13	4.25	4.35	4.15	4.25	0.10	2.28
RE/AS	0.98	0.89	0.99	0.95	0.05	5.56	0.85	1.14	0.94	0.97	0.15	15.02
アスファルテン(%)	12.18	13.70	11.48	12.46	1.14	9.12	12.75	12.43	13.05	12.74	0.31	2.43
飽和炭化水素(%)	22.15	20.21	22.96	21.77	1.42	6.50	22.17	19.43	20.55	20.72	1.38	6.65
芳香族炭化水素(%)	53.78	53.85	54.17	53.93	0.21	0.38	54.22	54.03	54.19	54.15	0.10	0.19
レジジン(%)	11.89	12.24	11.39	11.84	0.43	3.61	10.85	14.12	12.22	12.40	1.64	13.23
C17	3,850	3,010	4,751	3,870	871	22	1,249	790	1,637	1,225	424	35
PRISTAN	8,094	5,351	6,345	6,597	1,389	21	2,078	2,002	4,098	2,726	1,189	44
C18	5,761	4,625	7,096	5,827	1,237	21	1,942	1,356	2,557	1,952	601	31
PHYTAN	13,315	10,667	11,034	11,672	1,435	12	3,781	3,449	6,932	4,721	1,922	41
C17/PRISTAN	0.48	0.56	0.75	0.60	0.14	23.43	0.60	0.39	0.40	0.47	0.12	25.34
C18/PHYTAN	0.43	0.43	0.64	0.50	0.12	24.10	0.51	0.39	0.37	0.43	0.08	18.23

I剤 添加量: 油分に対して10%

	30日目						61日目					
	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$	①	②	③	平均	σ	$\sigma\%$
石+重油重量(g)	21.08	22.58	21.09	21.58	0.86	4.00	21.69	21.79	21.47	21.65	0.16	0.76
抽出油総重量(g)	0.44	0.62	0.63	0.56	0.11	18.98	0.61	0.47	0.55	0.54	0.07	12.93
飽和炭化水素(mg)	77.40	113.20	117.00	102.53	21.85	21.31	89.80	74.20	85.90	83.30	8.12	9.75
芳香族炭化水素(mg)	219.40	297.70	314.10	277.07	50.61	18.27	285.40	200.70	274.80	253.63	46.15	18.19
レジジン(mg)	60.80	54.20	64.90	59.97	5.40	9.00	74.30	76.60	94.70	81.87	11.17	13.65
アスファルテン(mg)	56.00	81.70	77.30	71.67	13.74	19.18	70.70	62.70	78.60	70.67	7.95	11.25
分画後の総重量(mg)	413.60	546.80	573.30	511.23	85.58	16.74	520.20	414.20	534.00	489.47	65.55	13.39
分画による回収率(%)	94.00	88.19	91.00	91.06	2.90	3.19	85.28	88.13	97.09	90.17	6.16	6.84
付着油量(mg/g-石)(抽出油ベース)	19.62	24.22	27.18	23.67	3.81	16.10	23.98	19.01	24.87	22.62	3.16	13.97
付着率(%) (抽出油ベース)	1.96	2.42	2.72	2.37	0.38	16.10	2.40	1.90	2.49	2.26	0.32	13.97
HC/AS	1.38	1.39	1.51	1.43	0.07	5.25	1.27	1.18	1.09	1.18	0.09	7.50
BZ/AS	3.92	3.64	4.06	3.88	0.21	5.50	4.04	3.20	3.50	3.58	0.42	11.85
RE/AS	1.09	0.66	0.84	0.86	0.21	24.58	1.05	1.22	1.20	1.16	0.09	8.12
アスファルテン(%)	13.54	14.94	13.48	13.99	0.83	5.91	13.59	15.14	14.72	14.48	0.80	5.52
飽和炭化水素(%)	18.71	20.70	20.41	19.94	1.07	5.38	17.26	17.91	16.09	17.09	0.93	5.42
芳香族炭化水素(%)	53.05	54.44	54.79	54.09	0.92	1.71	54.86	48.45	51.46	51.59	3.21	6.21
レジジン(%)	14.70	9.91	11.32	11.98	2.46	20.54	14.28	18.49	17.73	16.84	2.24	13.33
C17	245	613	2,098	985	981	100	123	693	908	575	406	71
PRISTAN	571	1,300	3,496	1,789	1,523	85	1,083	406	851	780	344	44
C18	402	994	3,285	1,560	1,523	98	1,893	1,074	1,472	1,480	410	28
PHYTAN	1,364	3,023	6,443	3,610	2,590	72	2,418	1,112	2,236	1,922	707	37
C17/PRISTAN	0.43	0.47	0.60	0.50	0.09	17.80	0.11	1.71	1.07	0.96	0.80	83.30
C18/PHYTAN	0.29	0.33	0.51	0.38	0.12	30.61	0.78	0.97	0.66	0.80	0.15	19.28