

## もみ殻炭のリン除去効果の検証(その4) ・ 土壌浸透浄化方式

玉屋 千晶、船越 章裕、富永 勇太、陣野 宏宙、成田 修司\*、山内 康生

圃場排水中のリンを除去、有効活用することを目的に、中央干拓地排水(遊水池)においてリン吸着効果のあるカルシウム含有もみ殻炭(秋田県特許)を用いて、フィールドでのリン吸着効果の検証を行った。試験はもみ殻炭の上に土壌を被覆し、土壌層を通過した水をもみ殻炭で処理する土壌浸透浄化方式で行った。試験の結果、リン除去効果はもみ殻炭のみの区画が、浮遊物質量の除去効果はもみ殻炭と土壌の両方を用いた区画が最も高かった。また、もみ殻炭のみの区画は、攪拌することで一定のリン除去効果が認められた。

キーワード：もみ殻炭、リン吸着、土壌浸透、水質浄化

### はじめに

国営諫早湾干拓事業により出来上がった中央干拓地(556 ha)での営農が2008年度より始まった<sup>1)</sup>。また、調整池の水質は、水質保全目標値(化学的酸素要求量 COD :5 mg/L、全窒素 T-N :1 mg/L、全リン T-P :0.1 mg/L)に対し、現状(2012年度)は COD :8.3 mg/L、T-N :1.1 mg/L、T-P :0.21 mg/L と超過しており、さらなる水質保全に向けた取り組みが重要な課題となっている。特に T-P については水質保全目標の2倍ほどの値であり、リン対策が必要である。

現在、中央干拓地からの排水が集合する遊水池では水質浄化対策の一環として、九州農政局が使用済み上水場発生土によるリンの吸着除去試験を実施しているが、リン吸着後の上水場発生土は再利用の方法が確立できなければ産業廃棄物として処理しなければならないという課題がある<sup>2)</sup>。一方、米収穫後に大量に排出されるもみ殻の処理に課題を抱える秋田県では、もみ殻を循環利用することを目指して、リン酸イオンを吸着するもみ殻炭を開発した。このリン吸着材は、指定湖沼となった「八郎湖」の富栄養化の原因物質であるリンを吸着除去することができ、水質保全対策に寄与すると共に、リン吸着後も土壌改良剤や肥料として農業者に還元するなど有効利用が見込めるものである<sup>3,4)</sup>。

これまでに、2011年に調整池への流入負荷削減を目的に秋田県開発のもみ殻炭を用いて、リン除去効果の検証を室内試験(ピーカー試験)で行った。その結果、農業集落排水や中央干拓地内にある遊水池からの排水といった調整池への流入水

や調整池内の水において、リン吸着除去効果があることを確認した<sup>5)</sup>。

2012年には、もみ殻炭のフィールドでの実用化可能性調査として、遊水池に実験施設(水路レーン方式)を設け実証試験を行った。その結果、室内試験と同等のリン除去効果を確認できたが、同時に浮遊物質量(SS)分による施設内での目詰まり等の課題も確認された<sup>6)</sup>。

2013年には、2012年の実証試験より得られたSS対策の改善と併せて、新たにもみ殻炭と土壌の組み合わせによる土壌浸透方式のフィールド試験施設におけるリン除去効果の検証を行った結果、「使用済みもみ殻炭+土壌」のリン吸着効果は、「新品のもみ殻炭+土壌」の結果とほぼ同等(T-P:44%除去)であり、もみ殻炭使用後であっても乾燥・攪拌工程により接触部分が露出し、吸着効果が再度発現することが示唆された。また、土壌のみでも一定の効果(T-P:28%除去)があることがわかった<sup>7)</sup>。

今回は、もみ殻炭のリン吸着能の回復および吸着能の飽和状態を確認するため、前年度に実証試験で使用した土壌、もみ殻炭を継続利用し、試験を実施した。また、もみ殻炭のみの試験区では、攪拌行程を入れた長期にわたる検証を行った。

### 材料及び方法

材料は、秋田県健康環境センターが開発したもみ殻炭を試験に供した。実証試験は、既報<sup>7)</sup>と同様の方法で実施した。今回の調査概要を表1に示

\* 秋田県健康環境センター 主任研究員

す。

もみ殻炭のみの試験区については、2013 年度に水路レーン試験で使用したもみ殻炭を 7 m<sup>3</sup>追加

して試験を実施した。また、もみ殻炭のみの試験区(区画 2)では、試験開始から 1 ヶ月後と 3 ヶ月後に攪拌を実施し、攪拌によるリン除去効果を検証した。

表 1 土壤浸透浄化方式による実用化可能性調査方法

試験期間	2014年7月15日～11月18日
調査頻度	0日、1日後、2日後、1週間後、以後1週間おきに調査
通水方式	下横向流式
設定流量	5 L/min. (滞留時間は約1日)
調査区画	区画 1及び区画 3(もみ殻炭 8 m <sup>3</sup> + 土壌 8 m <sup>3</sup> )
	区画 2 (もみ殻炭のみ 15 m <sup>3</sup> )
	区画 4 (土壌のみ 14 m <sup>3</sup> )
調査項目	全リン(T-P)及び浮遊物質(SS)
分析方法	T-P:ペルオキシ二硫酸カリウム分解法(JIS K0102 46. 3. 1) SS:環境省告示第59号

結果と考察

1 T-P 濃度の推移について

図 1 に試験期間中の T-P 濃度、T-P 吸着除去率の推移を示す。T-P 濃度は、各調査日間の平均値を用いた。各区画からの流出水の T-P 濃度は、試験開始から 1 ヶ月間は流入水の T-P 濃度と同じ変動であるが、2 ヶ月目以降は、0.2～0.4 mg/L と低い濃度で推移した。これに呼応し、T-P 吸着除去率は、

試験開始から 1 ヶ月間は区画 1～3 で約 40%、区画 4 で約 20%となり、2 ヶ月目からは区画 2 で 60%以上、区画 1、3、4 で約 50%と向上した。

区画 1、3、4 は前年度に設置した土壌ともみ殻炭を継続利用し、区画 2 は、前年度に水路レーン試験で使用したもみ殻炭を 7 m<sup>3</sup>追加したものであ

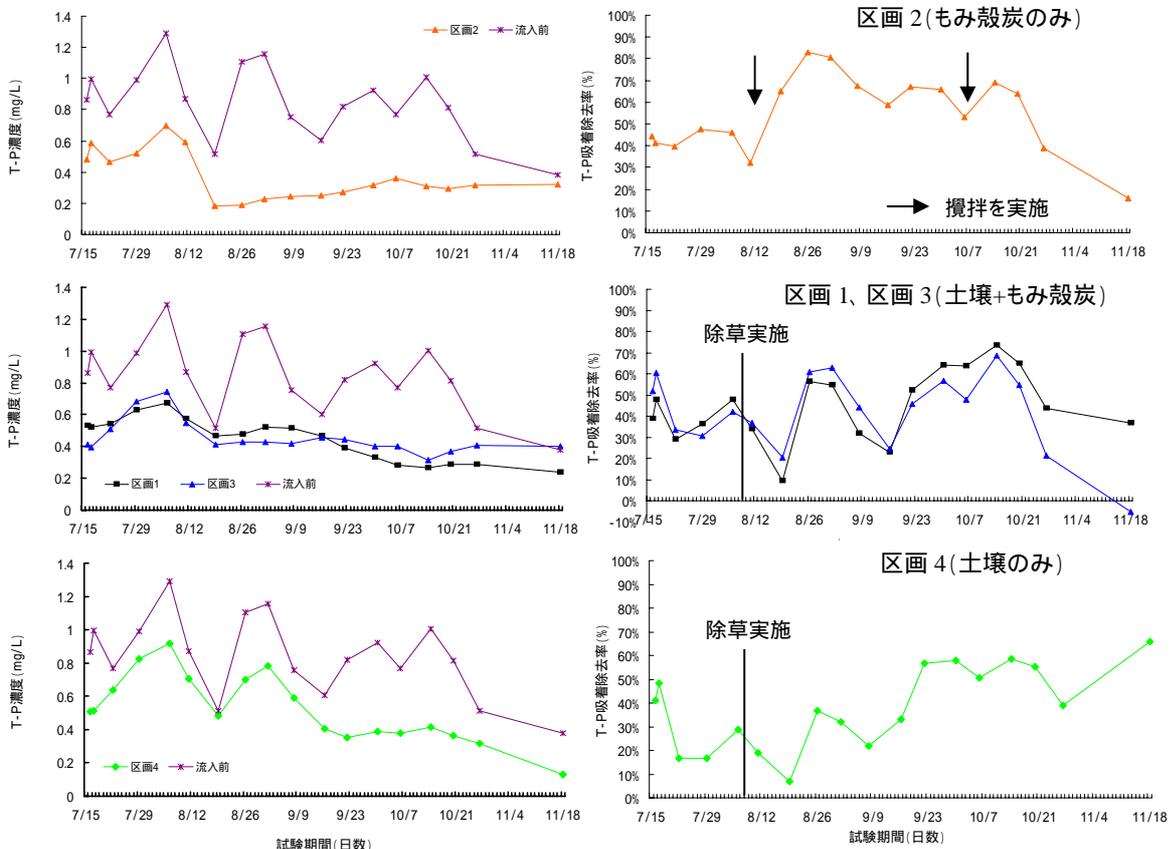


図 1 土壤浸透浄化方式試験における T-P 濃度、T-P 吸着除去率の推移

る。これらもみ殻炭によるリン吸着効果は、設置から1年経過後であっても持続していた。

2013年度の試験結果において、一度利用したもみ殻炭であっても、乾燥・攪拌によりもみ殻炭の繰り返し使用の可能性が示唆されたため、2014年度は、区画2において、もみ殻炭の攪拌による繰り返し利用の効果を検証した。

もみ殻炭の攪拌は、8月12日(試験開始から1ヵ月後)と10月7日(試験開始から3ヵ月後)に実施した。攪拌作業は、前日までに施設内から水を抜いて行い、攪拌から1週間後に遊水池水を通水し、翌日採水した。

区画2では、1回目の攪拌において、攪拌前の除去率は40%以下だったが、攪拌後70%以上となり、その状態を1ヶ月以上維持した。除去率が60%以下になった頃、2回目の攪拌を行ったところ、除去率は再び70%以上となった。しかし、攪拌から3週間後にはT-P濃度が再び低下することから、もみ殻炭のリン吸着能の低下は、SS等の夾雑物によるもみ殻炭の目詰まりや、遊水池から供給される水に含まれる腐植酸(フミン酸)のキレート作用により、もみ殻炭表面のカルシウムとリン酸との結合が

阻害されるためと推測された。

## 2 T-P 吸着除去量

各区画における期間毎のT-P流入量とT-P吸着除去量を図2に示す。また、各区画の4ヶ月間のT-P流入量とT-P吸着除去量を表2に示す。T-P流入量は、T-P除去率を求める際に用いたT-P濃度に各調査日間の流量を乗じ算出した値である。T-P吸着除去量は、流入量と流出量の差である。4ヶ月間で、もみ殻炭のみの区画、土壌ともみ殻炭の区画、土壌のみの区画とも210g程度のT-Pを吸着除去した。全ての区画のT-P吸着除去量は前年度より増加したが、これはT-P流入量が前年度より増加したことによるものと考えられる。区画4のT-P吸着除去量は、前年度の約5.9倍に増加したが、これは前年度の試験開始初期にみられたリンの溶脱の影響がなかったことやT-P吸着除去率の高くなった試験後半にT-P流入量が多かったことによるものと考えられる。

土壌のみでもリン除去効果はあるが、もみ殻炭を用いることで効率よくリン除去できることがわかった。

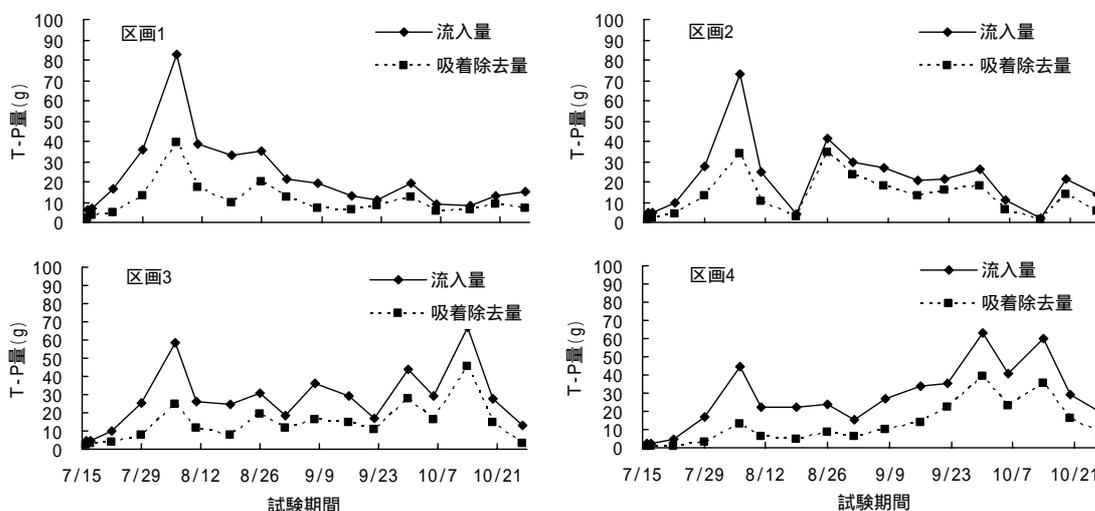


図2 各区画の期間毎のT-P流入量とT-P吸着除去量の推移

表2 各区画のT-P流入量とT-P吸着除去量

試験区	T-P流入量(g)		T-P吸着除去量(g)	
	2014年度	2013年度	2014年度	2013年度
もみ殻炭のみ 区画2	340	220	220 吸着除去率63%	150 吸着除去率66%
土壌 + もみ殻炭	420(平均)	220(平均)	210(平均) 吸着除去率51%	100(平均) 吸着除去率45%
区画1	380	250	180	110
区画3	460	190	240	80
土壌のみ 区画4	470	140	210 吸着除去率45%	40 吸着除去率28%

### 3 T-P 吸着除去可能量の予測

2011 年度に行ったバッチ式試験では、任意の濃度のリン溶液にもみ殻炭 1 g を接触させるとリンがもみ殻炭に吸着され、24 時間後には平衡に到達する<sup>5)</sup>。その結果から、初期濃度(以降、流入濃度という。)  $x$  (mg/L) に対してのもみ殻炭 1 g あたりの平衡吸着量(以降、予測値という。)  $y$  (mg/g) は、次式で表される<sup>8)</sup>。

$$y = 0.3939x + 0.0635 \quad (1)$$

予測値は、流入濃度が高いほど大きいので、ある濃度において予測値に達しても、さらに高い濃度の溶液に浸すとその濃度条件における予測値に達するまでもみ殻炭はリン吸着を継続すると考えられる。

区画 2 では、2013 年度に水路レーン試験(第 1 期)で使用したもみ殻炭 7 m<sup>3</sup> を追加して試験を実施した。2013 年度の試験時の流入濃度(平均)は、0.87 mg/L、(1) 式より、吸着除去量の予測値は 0.41 mg/g であった。このときの実測値は、0.45 mg/g であり、流入濃度に対応する量を吸着除去していた<sup>8)</sup>。一方、今回の実証試験における流入濃度(平均)は、0.87 mg/L と、2013 年度の試験時と同じ濃度であったことから、追加した分のもみ殻炭によるリン吸着除去効果は、ほとんどないとみなして考察した。

今回の試験における流入濃度(平均)は、0.87 mg/L、吸着除去量の実測値は、0.23 mg/g であった。(1) 式より、予測値は 0.41 mg/g であったため、その差である 0.17 mg/g(T-P 吸着除去可能量)は、残されたリン吸着能力分として見込まれた。来年度も同程度の濃度が施設内に流入すると仮定すると、2 年間にわたって試験に使用したもみ殻炭は、攪拌等を繰り返すことで、さらにリンを吸着できると考えられる。

### 4 SS 除去効果について

課題となっていた流入水の SS 除去 について、図 3 に各試験区の除去率の推移を示す。当該土壌浸透方式のフィールド施設の試験期間中、概ね 80% 以上の SS 除去率を保持していた。

また、表 3 に試験期間中流入及び流出の SS 量(積算)及び SS 平均除去率 を示す。表 3 から、平均 SS 除去率は、全ての区画で 94 % 以上と除去効

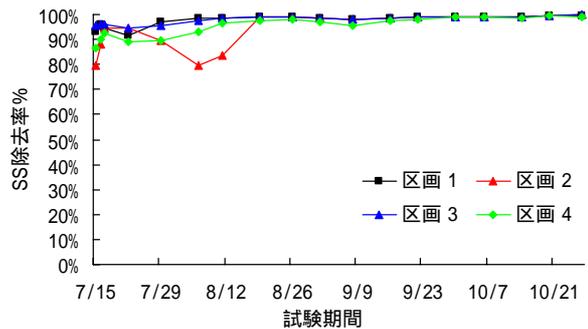


図 3 各区画の SS 除去率推移

果を示した。

表 3 試験期間における SS 除去量及び SS 平均除去率

	区画 1	区画 2	区画 3	区画 4
除去量 (kg)	28	28	39	42
除去率 (%)	98	94	98	95

### ま と め

本研究では、調整池への流入負荷削減を目的として秋田県が開発したもみ殻炭を用いたリンの吸着除去効果の検証を行ったところ以下の結果が得られた。

#### (1) もみ殻炭のリン除去効果について

各試験区の 4 ヶ月間の T-P 吸着除去率および SS 除去率は、表 4 の通りである。前年度から施設を継続利用して試験を実施した。各試験区では 2 年目の試験においても、リン吸着除去効果が示された。区画 1、3、4 において T-P 吸着除去率、SS 除去率は前年度<sup>7)</sup>より上昇していた。

表 4 各試験区の T-P 吸着除去率及び SS 除去率

	T-P 吸着除去率	SS 除去率
区画 1	49%	98%
区画 2	63%	94%
区画 3	52%	98%
区画 4	45%	95%

また、もみ殻炭は、除去効果が低下しても平衡吸着量に達しない限り、攪拌することで、除去効果が回復することが明らかとなった。流入水の平均濃度 0.87 mg/L においては、もみ殻炭のリン吸着能力は飽和状態に達しておらず、来年度以降も同様の濃度であれば、さらにリン吸着除去可能なことがわかった。

## (2) SS の効果について

課題となっていた流入水の SS 除去 について、SS 除去率は、試験期間中において、概ね 80%以上の SS 除去率を保持していた。平均 SS 除去率は、「土壌 + もみ殻炭」の区画では 98 %以上あった。

本試験では、もみ殻炭と土壌により効果的に T-P, SS を除去できることを明らかにした。現時点ではもみ殻炭の購入費用の課題はあるが、諫早湾干拓調整池がリンや SS が高いことから、今後費用が低減した場合は、調整池流域に適したモデルとして期待できる。

なお、本研究は、九州農政局「平成 26 年度国営干拓環境対策調査水質負荷削減調査検討委託事業」として実施した。

## 謝 辞

本研究を遂行するにあたり、もみ殻炭の提供及び有用な情報を提示いただいた秋田県健康環境センター成田修司主任研究員に厚く御礼申し上げます。また、本研究の趣旨をご理解いただき、研究遂行のご協力をいただいた九州農政局、秋田県の関係各位に深く感謝する。

## 参 考 文 献

- 1) 第2期諫早湾干拓調整池水辺環境の保全と創造のための行動計画 長崎県 平成 19 年度
- 2) 九州農政局資料 2010 年度
- 3) 成田修司: 籾殻を原料としたリン回収材の合成とそのリン回収挙動, 秋田県健康環境センター年報, 2, 101-104 (2006)
- 4) 成田修司 他: もみ殻炭を原料としたリン回収材の開発と利用・応用への展開, 秋田県健康環境センター年報, 7, 96-101 (2011)
- 5) 小橋川千晶 他: もみ殻炭のリン吸着効果の検証, 長崎県環境保健研究センター所報, 57, 65-68(2011)
- 6) 玉屋千晶 他: もみ殻炭のリン吸着効果の検証 (その 2), 長崎県環境保健研究センター所報, 58, 52-58 (2012)
- 7) 富永勇太 他: もみ殻炭のリン除去効果の検証 (その 3) 2 土壌浸透浄化方式, 長崎県環境保健研究センター所報, 59, 38-51(2012)
- 8) 東川圭吾 他: もみ殻炭のリン除去効果の検証 (その 3) 1 水路レーン方式, 長崎県環境保健研究センター所報, 59, 28-37(2012)

# Effect of Carbonized Rice Husk on Phosphorus Removal in Water by Soil Treatment - The 4th Report -

Chiaki Tamaya, Akihiro Funagoshi, Yuta Tominaga, Hirooki Jinno, Shuji Narita\*, Yasuo Yamauchi

Nitrogen and phosphorus have been the problem as the factor of eutrophication in semi-closed water area. For example, nitrogen and phosphorus in the farm drainage are one of them.

We have verified phosphorus removal ability in the field using the calcium-containing carbonized rice husk developed by Akita Research Center for Public Health and Environment (Akita Prefecture patent).

We tested soil treatment systems to remove phosphorus in the farm drainage.

As a result, test group of carbonized rice husk only, total phosphorus (T-P) removal effect was the highest and T-P removal effect by stirring the rice husk has been confirmed. Test group using both of carbonized rice husk and soil, suspended solid (SS) removal effect was the highest.

Keywords: carbonized rice husk, phosphorus adsorbent, soil treatment, water purification

\*Akita Research Center for Public Health and Environment Senior Researcher