

もみ殻炭のリン除去効果の検証*

船越章裕**・玉屋千晶**・成田修司***・山内康生**

キーワード ①もみ殻炭 ②リン吸着 ③水質浄化

要 旨

圃場からの排水中のリンの除去を目的に、干拓地排水(遊水池)においてリン吸着に効果のあるカルシウム含有もみ殻炭(秋田県特許)を利用し、当該もみ殻炭のリン除去効果についてフィールドでの検証を行った。試験は上向流式レーンで実施した。その結果、もみ殻炭1g当たりのリン除去効果は約1カ月で小さくなるが、もみ殻炭を1カ月ごとに攪拌することで4カ月間は持続すること、また攪拌時にもみ殻炭が湿潤状態を脱するほどリン除去効果が回復しやすいことが確認された。

1. はじめに

2008年度から諫早湾干拓事業により、できあがった新干拓地(581ha)での営農が始まった。現在、同湾干拓事業により湾奥が潮受堤防によって締め切られてできた湖(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)を超過しており、その水質動向の把握、さらなる水質保全に向けた取組み、ならびに自然干陸地等の利活用の推進が重要な課題となっている¹⁾。遊水池では農林水産省九州農政局(以降、「九州農政局」という。)が使用済み上水場発生土を用いてリンの吸着試験を実施²⁾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。

一方でリンは枯渇資源であることから、排水中から回収し再利用する試みが20年以上前から行わ

れている。湖沼の富栄養化等の課題を抱える秋田県では、その対策としてリン酸イオンを吸着するもみ殻炭を開発した。もみ殻炭は水中に含まれるリンの除去だけでなく、リンを吸着後は土壤改良や肥料として農業者へ還元するなど有効利用が見込めるものである^{3,4)}。

長崎県環境保健研究センターでは、2011年度に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室内実験を行い、リン除去効果を検証した室内試験(バッチ式)を行った⁵⁾。調整池内の水、調整池に流入する水および前処理水を用いた実験により、もみ殻炭は模擬水での実験結果と同様のリン吸着能を発揮し、さらにリンの初期濃度によって吸着量に違いがあることもわかった。2012、2013年度には遊水池でのフィールド試験を行い、室内実験とほぼ同レベルのリン除去効果が得られ、流入するT-P濃度が高くなるとリン除去量は増加すること、リン除去

*Effect of Carbonized Rice Husk on Phosphorus Removal in Water

** Akihiro FUNAGOSHI, Chiaki TAMAYA, Yasuo YAMAUCHI (長崎県環境保健研究センター) Nagasaki Prefectural Institute of Environment and Public Health

*** Shuji NARITA (秋田県健康環境センター) Akita Research Center for Public Health and Environment Senior Researcher

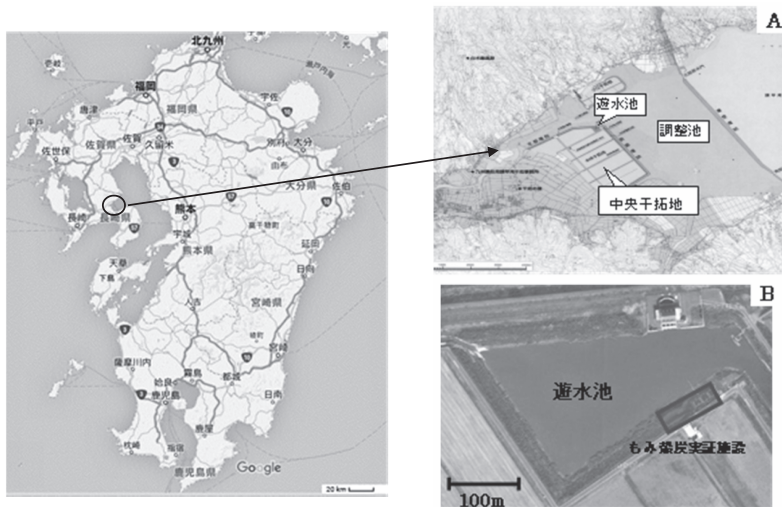


図1 調整池(A)および遊水池(B)



図2 もみ殻炭の外観

効果は約1カ月で小さくなるが、2カ月間でも効果が持続することが示唆された^{6,7)}。

本研究では、調整池への流入負荷削減のための水質浄化材として期待できる、諫早湾干拓もみ殻炭のリン除去効果について、図1に示す場所にて検証を行った。

2. 材料および方法

2.1 材 料

秋田県が開発したもみ殻炭(図2)は、リンとの親和性が高いカルシウムをもみ殻に担持させ炭化することで、リン酸イオンを選択的に回収する機能を持つだけでなく、リン回収後に肥料として再利用可能である⁵⁾。本研究ではこのもみ殻炭を実

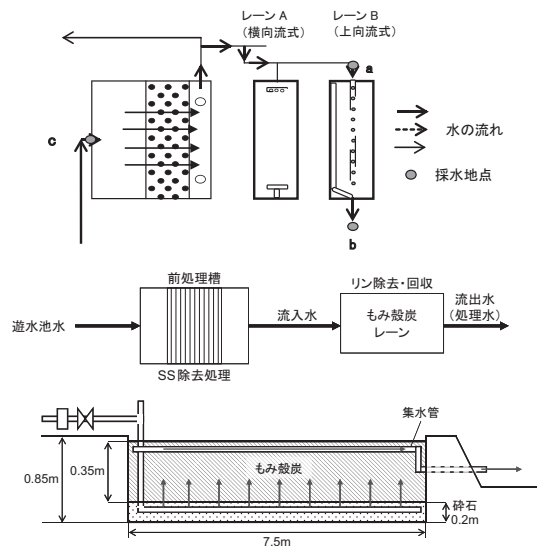


図3 もみ殻炭実証施設のフローと採水地点

験に使用した。

2.2 方 法

もみ殻炭実証施設のフローと採水地点を図3に示す。

遊水池から取水された水(以降、「遊水池水」という。)は、前処理槽を通過後もみ殻炭実証施設内レーンに供給される。もみ殻炭は下から上向きに通水する方法(上向流式)のレーンに投入した。採水地点は、a レーン導入前(以降、「流入水」とい

う。), b 上向流式レーン(以降, 「レーンB」という)からの流出水および c 遊水池水である。

もみ殻炭によるリン除去効果を検証するため, レーン B にもみ殻炭1,000kg 投入し, 遊水池水を通水してから4カ月間, 経過日数ごとに採水し, T-P 濃度および浮遊物質量(SS)を測定した。3カ月後まで1カ月ごと(28, 55, 84日後)にもみ殻炭を攪拌した。流入水の設定流速は上限20L/minとした(表1)。

3. 結果および考察

3.1 流速の推移

通水開始からの流速の推移を図4に示す。流速は各調査日間の平均値とし, 期間ごとの流量は平均流速に時間を乗じて算出した。線グラフは平均流速を, 棒グラフは期間ごとの流量を示す。試験開始当初は, 設定流速(上限20L/min)をやや超過していたが, その後は流速を上限近くまで調整することが困難となり, 全期間を通しての平均流速は9.3L/minであった。また, 平均滞留時間は,

表1 もみ殻炭における実用化可能性調査方法

通水方式	上向流式(レーンB)
流速(目標値)	上限20L/min
もみ殻炭使用量	1,000kg(5m ³)
調査期間	2014年7月15日~11月4日
調査条件	3カ月後まで1カ月ごと(28, 55, 84日後)にもみ殻炭を攪拌
採水地点	流入部(地点a), 流出部(地点b)
調査項目	全リン(T-P), 浮遊物質量(SS)
分析方法	T-P: JIS K0102 46.3.1(ペルオキシ二硫酸カリウム分解法) SS: 環境庁告示第59号 付表9

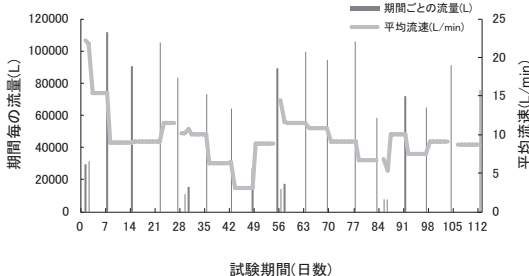


図4 流速の推移

使用したもみ殻炭の体積(5m³)を平均流速で割って求めたところ, 0.37日(約9時間)と算出された。なお, もみ殻炭の攪拌日(28, 55, 84日)と施設調整日(104, 105日)は, 通水を停止した。

3.2 T-P 測定結果

通水開始からの T-P 濃度の推移を図5に示す。全期間を通しての T-P の平均濃度は, 流入水が0.83mg/L, 流出水が0.62mg/Lであった。試験28日後までに流入水と流出水の差は小さくなっていったが, 28日後, 84日後のもみ殻炭の攪拌後は, 流入水と流出水の濃度差が大きくなった時期があり, 攪拌によりもみ殻炭のリン吸着効果が回復することが確認できた。なお, 試験後1カ月以降は, 流入水の濃度が0.5mg/L未満となると流出水の濃度が高くなっていった。このことは, 一定のリン吸着後は, 流入水の濃度が0.5mg/Lまで低下するとリン吸着機能も低下しやすいことが示唆され, また施設内に付着した汚れが流出したことの影響もあると考えられた。

3.3 リン吸着除去率および除去量

リン除去率を求める際に用いた T-P 濃度は, 各調査日間の平均値とした。この T-P 濃度と各調査日間の流量を乗じ, レーン内を通過した T-P 量ともみ殻炭によって除去された T-P 量を算出し, T-P 除去率を求めた。T-P 吸着除去率ともみ殻炭1g当たりの T-P 吸着除去量(積算値)の推移を図6に示す。折れ線グラフは T-P 吸着除去率を, 棒グラフは T-P 吸着除去量を示す。

T-P 吸着除去率は, 試験開始当初約75%で, 以降28日後まで右肩下がりだった。28日後, 84日後のもみ殻炭の攪拌後は, T-P 吸着除去率が回復したが, 55日後のもみ殻炭の攪拌は, T-P 吸

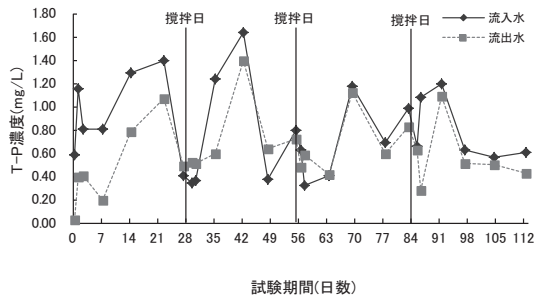


図5 T-P 濃度の推移

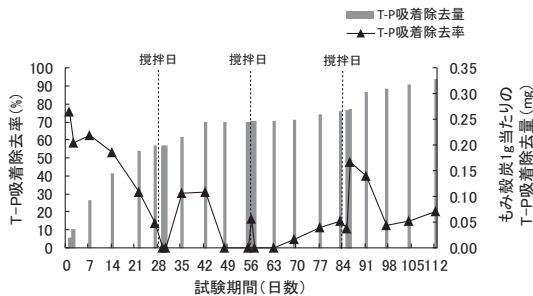


図6 T-P 吸着除去率ともみ殻炭 1g 当たりの T-P 吸着除去量(積算値)の推移

表2 もみ殻炭攪拌作業のための通水停止時間

攪拌時期	通水停止日時	攪拌作業開始日時	通水停止時間
28日後	2015/8/11 11:30	2015/8/12 9:30	22:00
55日後	2015/9/8 9:50	2015/9/8 14:30	4:40
84日後	2015/10/6 12:20	2015/10/7 10:00	21:40

着除去率があまり回復していなかった。全期間を通してのもみ殻炭 1g 当たりの積算 T-P 吸着除去量は 0.33mg となった。

もみ殻炭攪拌作業のための通水停止時間を表2に示す。28日後、84日後の攪拌のときは、攪拌作業前の前日にレーンの水抜きをし、レーンへの通水停止は約22時間であったが、55日後の攪拌のときは当日午前水抜きし、午後から攪拌作業でレーンへの通水停止は約5時間であり、目視でもレーン底部に水がやや残っている状態であった。よって、もみ殻炭の攪拌は、もみ殻炭が湿潤状態を脱するほどもみ殻炭に接触する夾雑物が離脱すること、水の表面張力により特定の「水みち」しか通らないという「水みち」の通水障害が解消されることなどで、カルシウム接触部が露出することによりリン除去効果が高まったと考えられる。

3.4 SS 測定結果

通水開始からの SS 濃度の推移を図7に示す。各レーン通過後の流出水の SS は、もみ殻炭によるろ過効果でほとんどの期間で流入水よりも低かった。全期間を通しての SS の平均濃度は、流入水が 90mg/L、流出水が 45mg/L であった。

3.5 SS 除去率および除去量

SS 除去率を求める際に用いた SS 濃度は各調査日間の平均値とした。この SS 濃度と各調査日間の流量を乗じ、レーン内を通過した SS 量と除去

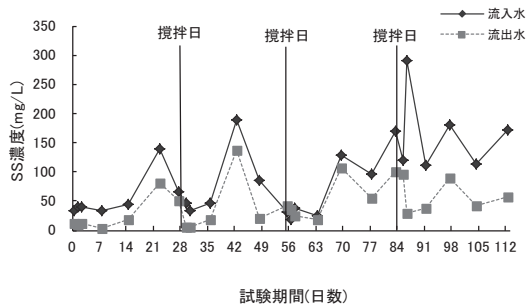


図7 SS 濃度の推移

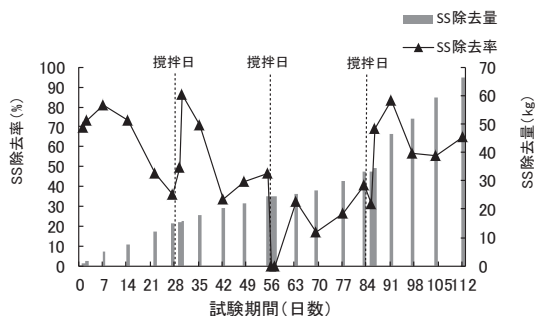


図8 SS 除去率とレーンの SS 除去量(積算値)の推移

された SS 量を算出し、SS 除去率を求めた。SS 除去率とレーンの SS 除去量(積算値)の推移を図8に示す。折れ線グラフは SS 除去率を、棒グラフは SS 除去量を示す。

SS 除去率は、試験開始当初約70%で以降28日後まで右肩下がりとなったが、T-P 測定結果と同様、28日後、84日後のもみ殻炭の攪拌後は SS 除去率が回復することが確認できた。SS についても、もみ殻炭の攪拌はもみ殻炭の水分を除去するほど SS 除去効果が高まると考えられる。全期間を通してのレーンの SS 除去量は 66kg となった。

3.6 リン吸着後のもみ殻炭の再利用

リン吸着後のもみ殻炭は、長崎県農林技術開発センター果樹研究部門(大村市)へ搬出した。今後、農業者が利用する予定となっている。

3.7 これまでの試験結果との比較

3.7.1 リン除去効果

3.7.1.1 2012-2013年度試験との比較

もみ殻炭 1g 当たりの T-P 吸着除去量の結果(2012-2014年度)を表3に示す。試験期間および方法は、2012、2013年度は2カ月間(もみ殻炭の

表3 もみ殻炭 1g 当たりの T-P 吸着除去量の結果 (2012-2014年度)

年度	試験期間	平均流速(L/min) (実測値)	流入水の T-P 平均濃度(mg/L)	もみ殻炭 1g 当たりの T-P 吸着除去量(mg)
2012	2カ月(秋冬季 9/13-11/16)	6.2(前半), 17(後半)*1	0.49	0.24
	2カ月(冬季 11/26-1/24)	12	0.40	0.23
2013	2カ月(夏季 7/10-9/11)	17	0.87	0.45
	2カ月(秋冬季10/7-12/10)	17	0.52	0.24
2014	4カ月(夏秋季 7/15-11/4)	9.3	0.83(0.96)*2	0.33(0.25)*2

*1: 目標流速は前半10L/min, 後半20L/min で実施

*2: ()内は2カ月後の結果

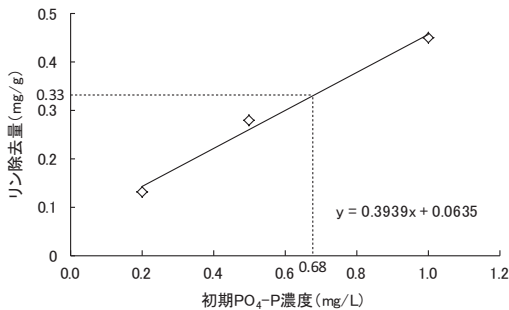


図9 模擬水のリン初期濃度ともみ殻炭 1g 当たりのリン除去量

攪拌なし), 2014年度は4カ月間(もみ殻炭を28, 55, 84日後に攪拌)であった。2014年度の試験開始55日後のもみ殻炭 1g 当たりの T-P 吸着除去量は0.25mg となり, 2012, 2013年度の秋冬季とほぼ同程度の結果が得られた。2014年度の最終的(4カ月後)なもみ殻炭 1g 当たりの T-P 吸着除去量は0.33mg となり, もみ殻炭の攪拌により T-P 吸着量が向上したものと考えられる。

これまで, 2012年度の結果では, 設定流速が10 L/min よりも20L/min の方が T-P 吸着除去率がよいこと, 2013年度の結果では, 流入する T-P 濃度が高いと T-P 吸着除去量が増加することがわかっている^{6,7)}。2014年度の流入の T-P 濃度が2013年度夏季と同程度で比較的高かったにも関わらず, もみ殻炭 1g 当たりの T-P 吸着除去量が2013年度夏季と同程度とならなかったのは, レーン内に流入する水の全期間を通しての流速が実測で9.3L/min と目標の20L/min が確保できなかったのが原因と思われる。

3.7.1.2 バッチ式試験(ピーカー試験)との比較

2011年度に行ったバッチ式試験で, 模擬水のリン初期濃度ともみ殻炭 1g 当たりのリン除去量の

表4 バッチ式試験結果からの予測値とフィールド試験結果(実測値)

試験期間	流入水の T-P 平均濃度(mg/L)	もみ殻炭 1g 当たりの T-P 吸着除去量(mg)	
		予測値	実測値
2013夏季(2カ月)	0.87	0.41	0.45
2013秋冬季(2カ月)	0.52	0.27	0.24
2014夏秋季(4カ月)	0.83	0.39	0.33

結果をプロットしたグラフ⁷⁾を図9に示す。このグラフの直線式を用いて算出される, バッチ試験結果からの予測値とフィールド試験結果(実測値)

表4に示す。今回のフィールド試験の結果は, 2013年度と比較して, 目標流速(20L/min)を確保できなかったこと, 試験期間が2カ月から4カ月になったという条件の差はあったものの, バッチ式試験からの予測値とほぼ同レベルの値となった。

また, リン除去量の予測値から積算の実測除去量を差し引いた量を理論除去可能量として, 試験開始から攪拌ごとの試験期間の除去量の結果, 理論除去可能量に対する除去率を表5に示す。理論除去可能量に対する除去率は, 25~60%となっていた。84日目攪拌後は, もみ殻炭導入時よりも理論除去可能量に対する除去率が高い結果となっていた。28日目攪拌後の理論除去可能量に対する除去率が低かったのは, 図5に示すようにリン吸着機能が低下しやすくなる流入濃度が0.5mg/L 以下であった期間が試験期間の半分くらいあったためと考えられる。55日目攪拌後の実測除去量は低かったものの, 平均流入濃度も低かったため, 理論除去可能量に対する除去率は28日目攪拌後よりも高い結果となっていたことがわかった。

今回の試験期間である4カ月以降のもみ殻炭の

表5 試験期間ごとのもみ殻炭 1g 当たり理論除去可能量に対する除去量、除去率

試験期間	平均流入濃度 (mg/L)	もみ殻炭 1g 当たりの		理論除去可能量 に対する除去率 (%)
		理論除去可能量* (mg/g)	実測除去量 (mg/g)	
0~28日	1.02	0.47	0.20	43
28~55日(28日目搅拌後)	0.86	0.20	0.05	25
55~84日(55日目搅拌後)	0.61	0.05	0.02	40
84~112日(84日目搅拌後)	0.79	0.10	0.06	60

*理論除去可能量 = 0.3939 × 平均流入濃度 + 0.0635 - 積算実測除去量

表6 もみ殻炭と上水場発生土とのリン除去効果

水質浄化材	試験期間	施設容量 (m ³)	平均 T-P 流入水質 (mg/L)	平均 流入量 (L/min)	平均流入 負荷量 (mg/min)	T-P 削減 負荷量 (g/日)	単位容積当たり T-P 削減負荷量 (g/日/m ³)
上水場発生土	6カ月*	37.2	0.31	24	7.4	7.5	0.2
もみ殻炭	4カ月	5	0.83	9.3	7.5	2.9	0.59

*：試験期間は2010.1.23~7.21

表7 SS 除去量の結果(2013, 2014年度)

年度	試験期間	積算流量 (kL)	SSの平均濃度 (mg/L)		1レーン当たりの SS 除去量 (kg)
			流入水	流出水	
2013	2カ月(夏季)	1,300	71	14	94
	2カ月(秋冬季)	1,400	94	65	60
2014	4カ月(夏秋季)	1,400	90	45	66

継続使用を検討した場合、実測値の1g当たりのリン除去量0.33mgを図9に示す直線式のyにあてはめると、理論上、平均流入濃度xが0.68mg/L以下では、ほぼもみ殻炭のリン吸着が飽和状態に達しており、xが0.68mg/Lよりも高濃度の場合は、引き続きもみ殻炭を継続使用してもリン除去の可能性があったと考えられる。

3.7.1.3 上水場発生土を用いた試験との比較

九州農政局は、上水場発生土を用いた水質浄化対策を実施している。今回のもみ殻炭の結果と上水場発生土について、リン除去効果の比較を行った。なお、上水場発生土のデータは、今回のもみ殻炭と同じ通水方式である上向流式(ケース5)の調査結果²⁾と比較した。

もみ殻炭と上水場発生土によるリン除去効果を表6に示す。平均流入負荷量にはほぼ差はなかったが、単位容積当たりの1日当たりの削減負荷量は、もみ殻炭が0.59g、上水場発生土が0.20gともみ殻炭の方が約3倍高く、リン除去効率ももみ殻炭の方がよいことがわかった。

3.7.2 SS 除去効果

SS 除去量の結果(2013, 2014年度)を表7に示す。1レーン当たりのSS 除去量は、2013年度夏季の結果がもっともよかった。これは、2013年度秋冬季、2014年度には、試験中にレーン内に付着、蓄積した汚れの流出が2013年度夏季に比較して多くなったためと思われる。

4. ま と め

今回の調査で得られた結果を表8に示す。

なお、2012年度から2014年度までの検証において、もみ殻炭のリン除去効果を高めるための条件は、以下のようなことが明らかとなった。

- ・水路レーンの通水は、横向流式ではなく上向流式とする。
- ・流速は20L/minを上限とし、できるだけ上限に近い流速を得る。
- ・リン吸着除去効果が低くなった場合でも、リン吸着除去効果が低下する1カ月を目途にもみ殻炭を乾燥・搅拌する。

表8 まとめ

検証方法	試験結果
もみ殻炭の攪拌	攪拌時にもみ殻炭が湿潤状態を脱するほどリン除去効果が回復しやすい
もみ殻炭1g当たりのリン吸着量	(流入 T-P 平均濃度)0.83mg/L (除去量)0.33mg
効果の持続について	リン吸着除去効果が低下しても、1カ月ごとの攪拌により、4カ月間は効果が持続する。

もみ殻炭は、上水場発生水よりもリン除去効率がよいことが検証されており、また、リン吸着後のもみ殻炭は、土壌改良材などとして農業者に有効利用されている。

しかしながら、もみ殻炭は現時点で費用面の課題があり、今後この課題が解決されれば有力なリン除去材のひとつとして地域への展開が期待できる。

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当たり、もみ殻炭の提供およ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。

一引用文献一

- 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, 2007
- 2) 諫早湾干拓調整池水質検討委員会資料, 九州農政局, 2010
- 3) 成田修司: 初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: もみ殻炭を原料とした選択的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, 2010
- 6) 玉屋千晶 他: もみ殻炭のリン除去効果の検証(その2). 長崎県環境保健研究センター所報, 58, 52-58, 2012
- 7) 東川圭吾 他: もみ殻炭のリン除去効果の検証(その3) I.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, 2013