

## もみ殻炭のリン除去効果の検証(その4) . 水路レーン方式

船越 章裕、玉屋 千晶、成田 修司\*、山内 康生

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 1 g あたりのリン除去効果は、約 1 ヶ月で小さくなるが、もみ殻炭を 1 ヶ月毎に攪拌することで 4 ヶ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。

キーワード: もみ殻炭、リン吸着、水質浄化

## はじめに

2008 年度から諫早湾干拓事業により出来上がった干拓地での営農が始まった。現在、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とさらなる水質保全に向けた取組み、並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<sup>1)</sup>。遊水池では九州農政局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<sup>2)</sup>。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、リンを吸着後は土壌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<sup>3,4)</sup>。

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<sup>5)</sup>。調整池水、調整池に流入する水及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、リン除去効果は約 1 ヶ月で小さくなるが、2 ヶ月間でも効果が持続することが示唆された<sup>6,7)</sup>。

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、もみ殻炭のリン除去効果について、図 1 に示すフィールドにて検証した。

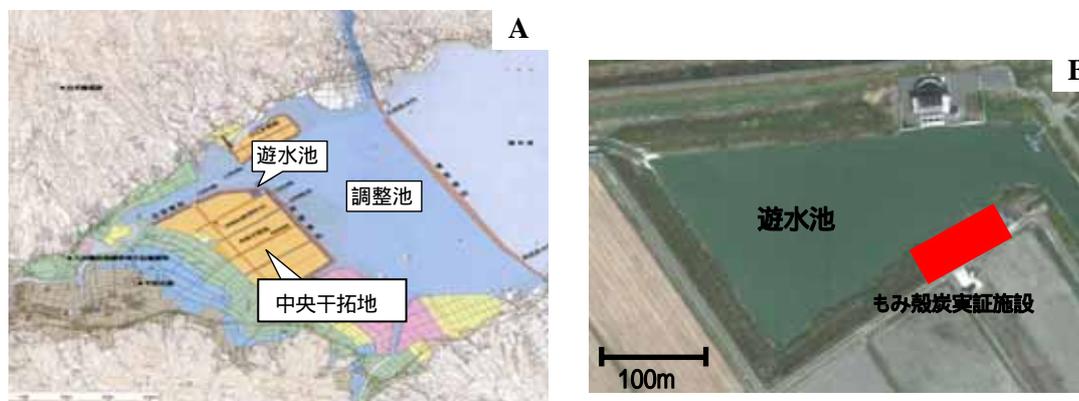


図 1 調整池(A)および遊水池(B)

\* 秋田県健康環境センター 主任研究員

材料及び方法

もみ殻炭(図2)については、既報<sup>7)</sup>のとおりである。



図2 もみ殻炭の外観

調査地点

もみ殻炭実証施設のフローと採水地点を図3に示す。

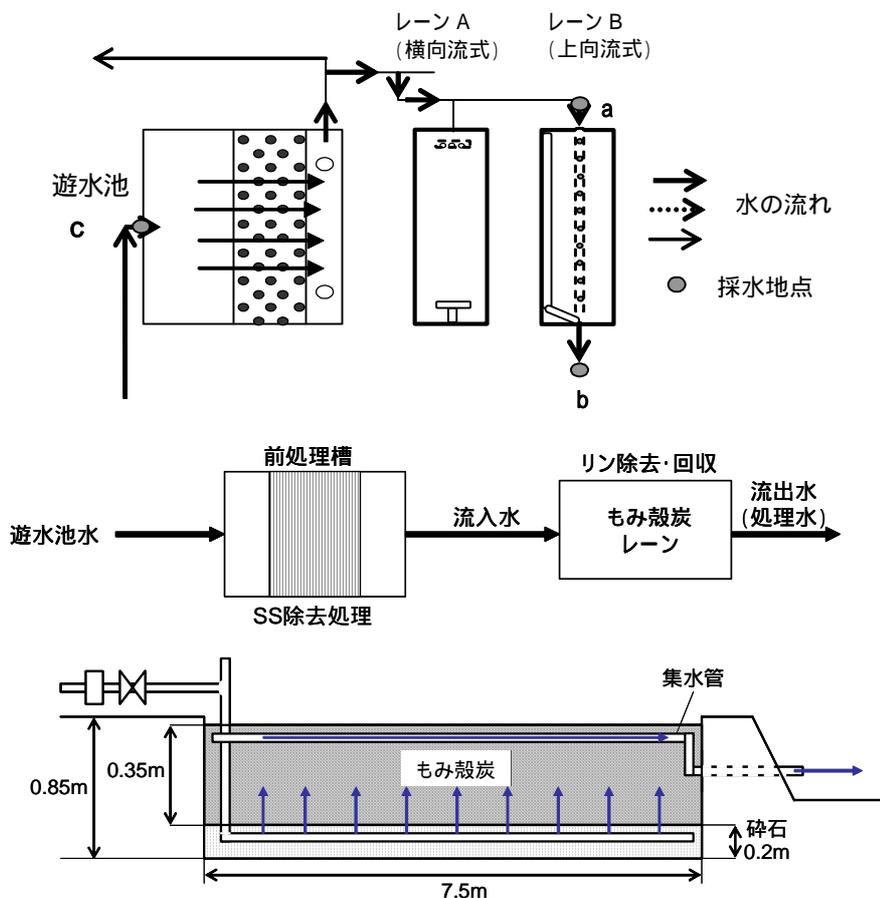


図3 遊水池実験施設(平面図、断面図)、採水地点及び処理フロー

調査方法

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。レーンは2種類のうち、下から上向きに通水する方法(上向流式)のレーンにもみ殻炭を投入した。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)からの流出水及びc)遊水池水である。

もみ殻炭によるリン吸着除去効果を検証するため、レーン B にもみ殻炭 1,000 kg 投入し、遊水池水を通水してから約 4 ヶ月間、経過日数毎に採水し、T-P 濃度及び浮遊物質質量(SS)を測定した。最初の 1 ヶ月間は、もみ殻炭内に仕切り板を図 4 に示すように導入し、1 ヶ月後(28 日後)、2 ヶ月後(55 日後)、3 ヶ月後(84 日後)にもみ殻炭を攪拌した。流入水の設定流量は上限 20 L/min とした(表 1)。

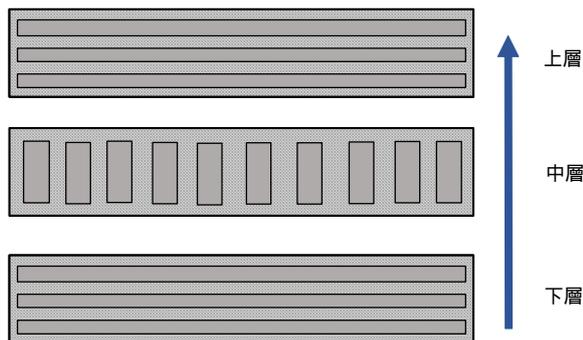


図4 もみ殻炭に仕切り板を導入したイメージ図(レーン B を上から見た図)

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 20 L/min
もみ殻炭使用量	1,000 kg(5 m <sup>3</sup> )
調査期間	2014年7月15日～11月4日
調査条件	1ヶ月後までは、もみ殻炭内に仕切り板を導入 1ヶ月後、2ヶ月後、3ヶ月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(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

結果及び考察

1 試験結果

(1) 流速の推移

通水開始からの流速の推移を図5に示す。流速は各調査日間の平均値とし、期間毎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、棒グラフは期間毎の流量を示す。試験開始当初は、設定流量(上限 20 L/min)をやや超過していたが、その後は流量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 9.3 L/min であった。また、平均滞留時間は、使用したもみ殻炭の体積(5 m<sup>3</sup>)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。

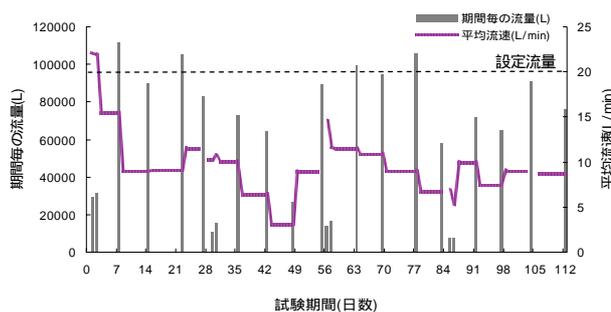


図5 流速の推移

(2) T-P 測定結果

通水開始からの T-P 濃度の推移を図 6 に示す。全期間を通しての T-P の平均濃度は、流入水が 0.83 mg/L、流出水が 0.62 mg/L であった。試験後 1 ヶ月までに流入水と流出水の差は小さくなっていったが、1 ヶ月後、3 ヶ月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 ヶ月以降は、流入水の濃度が 0.5 mg/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 0.5 mg/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。

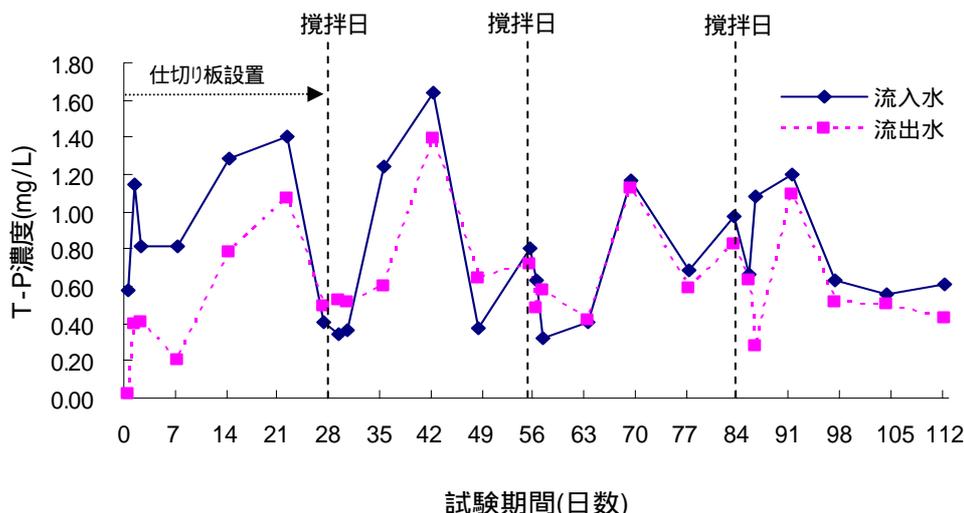


図 6 T-P 濃度の推移

(3) リン吸着除去率及び除去量

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 1 g あたりの T-P 吸着除去量(積算値)の推移を図 7 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 1 ヶ月後まで右肩下がりだった。1 ヶ月後(28 日)、3 ヶ月後(84 日)のもみ殻炭の攪拌後は、T-P 吸着除去率が回復したが、2 ヶ月後(55 日)のもみ殻炭の攪拌は、T-P 吸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 1 g あたりの積算 T-P 吸着除去量は 0.33 mg 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。1 ヶ月後、3 ヶ月後の攪拌のときは、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、2 ヶ月後の攪拌のときは、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。

次に、もみ殻炭内に仕切り板を設置した 1 ヶ月後までの結果と仕切り板を設置せずに試験をした 2013 年度の 1 ヶ月後までの結果を表 3 に示す。今回の結果は、もみ殻炭 1 g あたりの積算 T-P 吸着除去量は、1 ヶ月後で 0.20 mg となった。今回と 2013 年度の結果と比較したところ、2013 年度夏季は、積算流入 T-P 量が 1.37 倍でもみ殻炭 1 g あたりの T-P 除去量が 1.60 倍(0.32 mg)、2013 年度秋冬季は、積算流入 T-P 量が 0.83 倍でもみ殻炭 1 g あたりの T-P 除去量が 0.85 倍(0.32 mg)となり、ほぼ変化はなかった。このことは、仕切り板を設置しても、もみ殻炭内ではほぼ固定され、水ともみ殻炭との接触効率を高める効果は変わらなかったためと思われる。

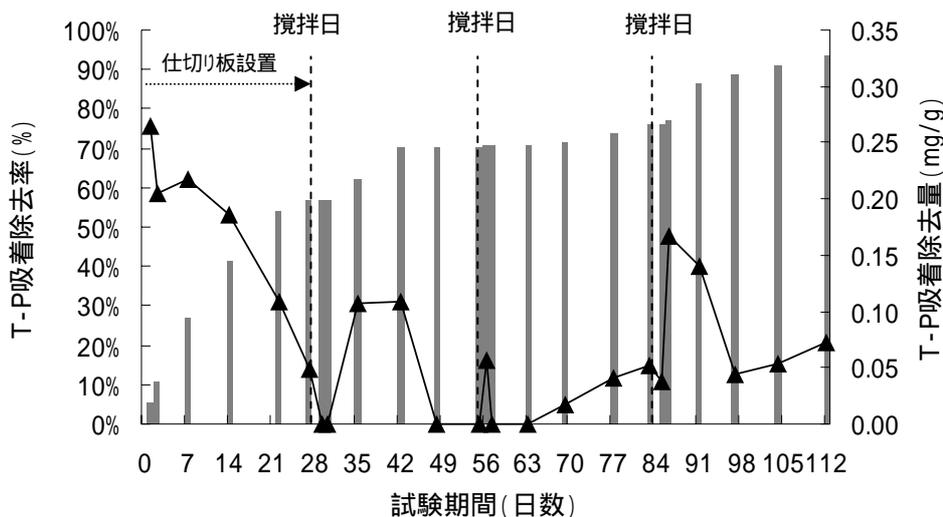


図7 T-P 吸着除去率ともみ殻炭 1g あたりの除去量の推移

表2 もみ殻炭攪拌時の通水停止時間

攪拌時期	通水停止日時	攪拌作業開始日時	通水停止時間
1ヶ月後	8/11 11:30	8/12 9:30	22:00
2ヶ月後	9/8 9:50	9/8 14:30	4:40
3ヶ月後	10/6 12:20	10/7 10:00	21:40

表3 試験1ヶ月後までのもみ殻炭 1g あたりの T-P 除去量の比較

	2013 夏季	2013 秋冬季	2014
もみ殻炭 1g あたりの T-P 除去量(mg/g)	0.32	0.17	0.20
(比)	(1.60)	(0.85)	(1)
積算流入 T-P 量(g)	630	380	460
(比)	(1.37)	(0.83)	(1)
条件	仕切り板なし		仕切り板あり

(4) SS 測定結果

通水開始からの SS 濃度の推移を図 8 に示す。各ライ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 90 mg/L、流出水が 45 mg/L であった。

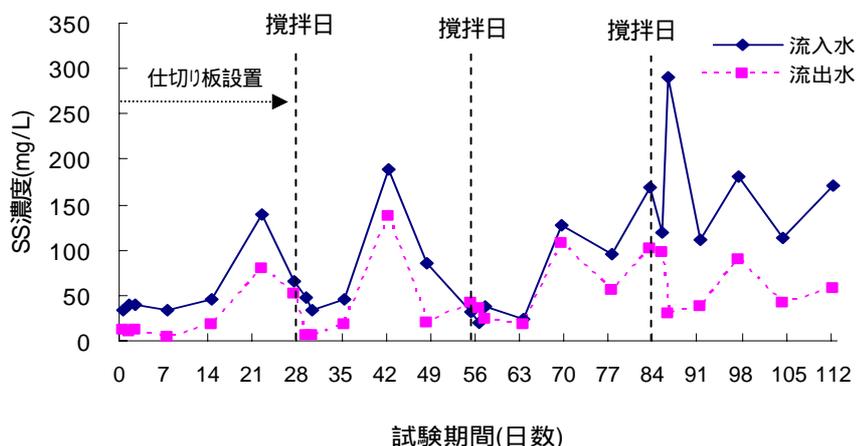


図8 SS 濃度の推移

(5) SS 除去率及び除去量

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 9 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 1 ヶ月ま

で右肩下がりとなったが、T-P 測定結果と同様、1 ヶ月後、3 ヶ月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 66 kg となった。

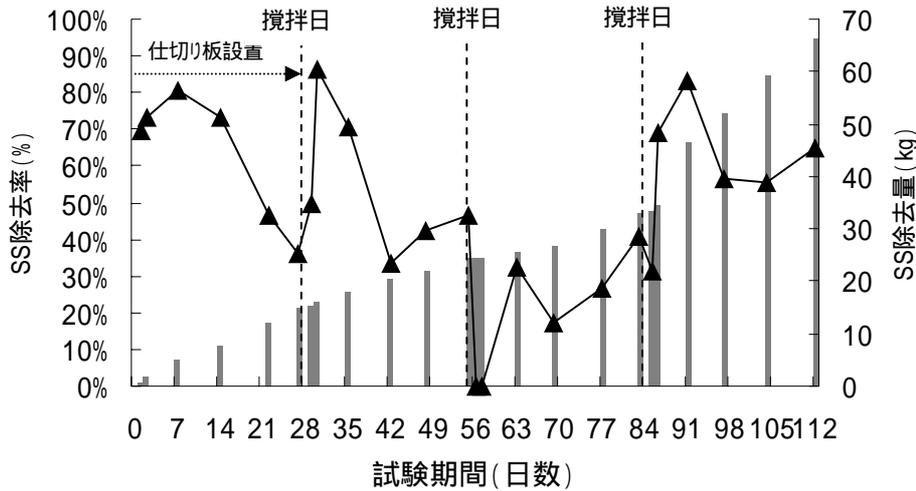


図 9 SS 除去率及び除去量の推移

(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、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。

2 これまでの試験結果との比較

(1) リン除去効果

2012、2013 年度試験との比較

2012-2014 年度の流入水の T-P 平均濃度とレーン B におけるもみ殻炭 1 g あたりの T-P 吸着除去量の結果を表 4 に示す。試験期間及び方法は、2012、2013 年度は約 2 ヶ月(もみ殻炭の攪拌なし)、2014 年度は約 4 ヶ月(もみ殻炭を 1 ヶ月後、2 ヶ月後、3 ヶ月後に攪拌)であった。2014 年度の試験開始約 2 ヶ月後のもみ殻炭 1g あたりの T-P 吸着除去量は 0.25 mg 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。また、2014 年度の試験は、当初約 1 ヶ月間、もみ殻炭内に仕

切り板を導入することで、リン吸着効果の向上を図ったが、2013 年度までの結果と比較して、あまり変化はみられなかった。2014 年度の最終的(約 4 ヶ月後)なもみ殻炭 1 g あたりの T-P 吸着除去量は 0.33 mg 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 20 L/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分かっている。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かかわらず、もみ殻炭 1 g あたりの 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 9.3 L/min と目標の 20 L/min が確保できなかったのが原因と思われる。

表 4 2012 年度から 2014 年度までの試験結果の比較

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 1 g あたりの T-P 吸着除去量(mg)
2012	約 2 ヶ月(秋冬季, 9/13-11/16)	6.2(前半), 17(後半) <sup>*1</sup>	0.49	0.24
	約 2 ヶ月(冬季, 11/26-1/24)	12	0.40	0.23
2013	約 2 ヶ月(夏季, 7/10-9/11)	17	0.87	0.45
	約 2 ヶ月(秋冬季 10/7-12/10)	17	0.52	0.24
2014	約 4 ヶ月(夏秋季 7/15-11/4)	9.3	0.83(0.96) <sup>*2</sup>	0.33(0.25) <sup>*2</sup>

\*1: 目標流速は前半 10 L/min、後半 20 L/min として実施

\*2: ( )内は約 2 ヶ月後の結果

#### バッチ式試験(ピーカー試験)との比較

模擬水のリン初期濃度ともみ殻炭 1 g あたりのリン除去量について、2011 年度に行ったバッチ式試験結果をプロットしたグラフ<sup>7)</sup>を図 10 に示す。このグラフの直線式を用いて算出される流入するリン濃度に対応する除去量の予測値と今回のフィールド試験の結果(実測値)を比較した結果を表 5 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(20 L/min)を確保できなかったこと、試験期間が約 2 ヶ月から約 4 ヶ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 6 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。3 回目攪拌後は、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。1 回目攪拌後の理論除

去可能量に対する除去率が低かったのは、図 6 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 0.5 mg/L 以下だ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。2 回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 1 回目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 ヶ月以降のもみ殻炭の継続使用を検討した場合、実測値の 1 g あたりのリン除去量 0.33 mg を図 10 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 0.68 mg/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 0.68 mg/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。

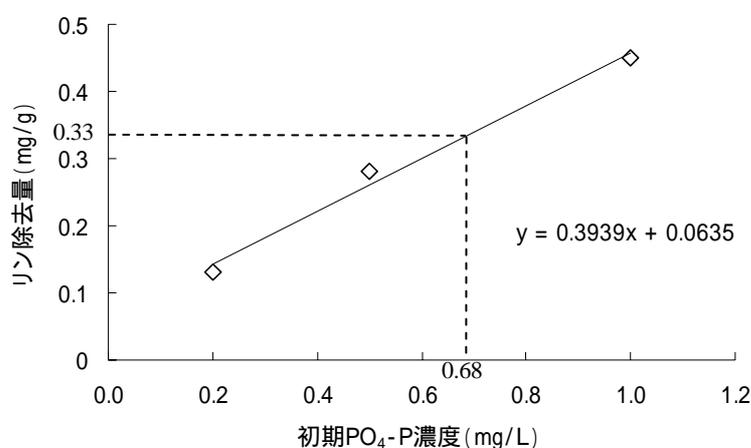


図 10 模擬水のリン初期濃度ともみ殻炭 1 g あたりのリン除去量

表 5 バッチ式試験結果からの予測値とフィールド試験結果の比較

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

表 6 試験期間ごとのもみ殻炭 1 g あ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 1 g あたりの		理論除去可能量 に対する除去率 (%)
		理論除去可能量*	実測除去量	
0 ~ 28 日	1.02	0.47	0.20	43
28 ~ 55 日(1 回目攪拌後)	0.86	0.20	0.05	25
55 ~ 84 日(2 回目攪拌後)	0.61	0.05	0.02	40
84 ~ 112 日(3 回目攪拌後)	0.79	0.10	0.06	60

\* 理論除去可能量 =  $0.3939 \times \text{平均流入濃度} + 0.0635$  - 積算実測除去量

#### 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<sup>8)</sup>と比較した。

表 7 にもみ殻炭と上水場発生土によるリン除去効果を示す。平均流入負荷量にほぼ差はなかったが、単位容積あたりの 1 日あたりの削減負荷量は、もみ殻炭が 0.59 g、上水場発生土が 0.20 g ともみ殻炭の方が約 3 倍高く、リン吸着効率も、もみ殻炭の方がよいことがわかった。

表 7 もみ殻炭と上水場発生土とのリン除去効果の比較

試験 期間	施設 容量 (m <sup>3</sup> )	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)	単位容積あたり T-P 削減負荷量 (g/日/m <sup>3</sup> )	
上水場発生土	約 6 ヶ月*	37.2	0.31	24	7.4	7.5	0.20
もみ殻炭	約 4 ヶ月	5.0	0.83	9.3	7.5	2.9	0.59

\* : 試験期間は 2010.1.23 ~ 7.21

#### (2) SS 除去効果

2013、2014 年度の流入水及び流出水の SS の平均濃度とレーン B における SS 除去量の結果を表 8 に示す。2013 年度夏季の結果が 1 レーンあたりの SS 除去

量が最も良い結果であった。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。

表 8 2013-2014 年度の試験結果の比較

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

## ま と め

諫早干拓調整池の水質保全目標値は、T-P:0.1 mg/L であるが、目標値を超過している状況が続いている。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水路レーンでは以下の結果が得られた(表9)。

表9 まとめ

検証方法	試験結果
もみ殻炭内に仕切り板の設置	リン除去効果に変化なし
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 あたりのリン吸着量	(流入 T-P 平均濃度)0.83 mg/L (除去量)0.33 mg
効果の持続について	リン吸着除去効果が低下しても、1ヶ月毎の攪拌により、4ヶ月間は効果が持続する。

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を以下のとおり明らかにした。

- ・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20 L/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ヶ月を目途にもみ殻炭を乾燥・攪拌する。

もみ殻炭は、上水場発生土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的な課題があり、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あたり、もみ殻炭の提供及び有用な情報を提示いただきまし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いたします。

## 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: 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) 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)
- 8) 諫早湾干拓調整池水質検討委員会資料 九州農政局 平成22年度

# Effect of Carbonized Rice Husk on Phosphorus Removal in Water by Water Flow Lane System - The Fourth Report -

Akihiro Funagoshi, Chiaki Tamaya, 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 effect in the field using the calcium-containing carbonized rice husk (Akita Prefecture patent). We tested upward-flow lane, for the purpose of phosphorus removal in the reclaimed land (flood control basin) drainage from the agricultural field.

As a result, phosphorus removal effect of carbonized rice husk per 1g is reduced by about a month, but the effect is remained effective for about four months by agitating the carbonized rice husk per month. Also recovery ease of phosphorus removal ability was confirmed

Key words: carbonized rice husk, phosphorus adsorbent, water purification

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