# 科学研究費助成事業 研究成果報告書



平成 29 年 6 月 22 日現在

機関番号: 32658

研究種目: 基盤研究(C)(一般)

研究期間: 2014~2016

課題番号: 26450347

研究課題名(和文)窒素・リンを対象とした資源循環型浄化システムの構築に関する研究

研究課題名(英文)Development of environmental resource recycling system intended for N and P

#### 研究代表者

岡澤 宏(Okazawa, Hiromu)

東京農業大学・地域環境科学部・教授

研究者番号:30385504

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): 本研究では,クリンカアッシュの粒径組成と窒素・リンの吸着能との関係を明らかにした。フルイを用いてクリンカアッシュを6種の粒径に区分し,これらの混合割合を調整して粒径組成が異なる11種類のクリンカアッシュを作成した。そして,カラム試験によって,窒素・リンの吸着能を検討した。そして,クリンカアッシュの窒素・リンの吸着能は粒径の小さいものに限られることが明らかになった。 吸着試験で使用したクリンカアッシュを水田土壌に混入し,コマツナの栽培試験を行ってクリンカアッシュに吸着した窒素・リンの更なる再利用法を検討した。そして,クリンカアッシュを混入することで,コマツナの成長速度が増すことを明らかにした。

研究成果の概要(英文): This study clarified N and P adsorption ability of clinker ash(CA) by grain size. The possibility of returning nitrogen-adsorbed CA for crop cultivation was also examined. CA was categorized into 6 different particle sizes through a sieve. 30 g of each particle size were filled in a cylindrical container. We poured 200 ml of polluted water into the container and sampled the water which went through theCA in the container. Then we measured the concentration of N and P in the extracted water. For a vegetation experiment, spinach was planted on the clinker ash that had been used in the nitrogen adsorption experiment. The stem height of the plant was measured. The adsorption experiment showed a tendency that the concentration of the pollutants is decreased after going through CA when its particle size is 425 micrometers or smaller than that. In the vegetation experiment for spinach using N adsorbed clinker ash, it was found that the plant cultivated in CA showed the greatest growth.

研究分野: 水質環境工学

キーワード: 石炭灰 クリンカアッシュ 窒素 リン 再利用 資源循環 農業 吸着

### 1.研究開始当初の背景

日本では、2011年に発生した東日本大震災以降、火力発電によるエネルギー供給量が増えている。火力発電には、LNGや重油、石炭が使用される。特に石炭は輸送が容易であり、運搬中の危険性も低いことから扱いやすいエネルギー資源である。

2001 年に「資源の有効な利用の促進に関する法律」(改正リサイクル法)が制定され、「循環型社会の形成」が重要視されている。石炭灰にも改正リサイクル法が適用され、事業者に対してリサイクル対策に係る計画利用が強化されている。石炭灰は「フライアッシュ」に分類され、フライアッシュについては排出される大部分が建設資材に再利用されているが、クリンカアッシュについては凍上抑制剤等の土木材料として再利用されているものの、未だに未利用分が大半を占めており、さらなる利用の拡大が求められている。

クリンカアッシュは非常に多孔質な材料であるため(図1),汚濁水をろ過させることで吸着作用が発現する。既往の研究では,浮遊物質,BOD,COD,大腸菌群数に関して高い浄化能を示すことが検証されている。しかし,農業由来の窒素,リンを対象とした吸着能については検討がなされていない。

畑作を主体とする農業流域では,降雨時に 雨滴によって地表面がかく乱され,土壌侵食 が発生する。そして,土粒子などの懸濁成分 を含む流出水が河川へと流れ出る。また,降 雨時には地中を浸透した水とともに,窒素成 分も河川へと輸送され,河川水質濃度が高濃 度になる。この様に,降雨流出時に短時間で 大量の汚濁物質が畑地から河川へと流出し、 地域環境・生態系に影響を及ぼしている。そ の対策として,植生帯による汚濁物質の流出 抑制に関する研究が国内外で多数報告され てきた。植生帯とは畑地の周辺に設置された 幅  $1\sim5m$  程度の植生エリアであり,畑地か らの流出水がこのエリアを通過することで 植生が懸濁成分を捕捉し,流出水中の汚濁物 質濃度が低下する。そして,懸濁成分につい ては植生帯による高い浄化作用が発現する ことが知られている。また,植生帯による窒 素、リンの浄化機能についても研究が行われ てきた。一方,降雨時の汚濁物質を限られた 土地で管理される植生帯で軽減するには限 界がある。

# 2.研究の目的

このような背景から,本研究課題では降雨時に発生する畑地からの流出水を対象に,植生帯とクリンカアッシュを組み合わせた水質浄化システムの構築を目指している(図2)畑地から流出する汚濁水の有効な浄化システムである植生帯に加えて,クリンカアッシュを活用することで汚濁水を浸透させ,懸濁態成分と溶存態成分の両者の流出抑制効果が発揮できると考えられる。具体的には,本

研究では,植生帯とクリンカアッシュによる 緩衝帯の浄化能力を試験枠レベルで明らか にすることを研究の目的としている。そこで 必要となるクリンカアッシュの基本的特性, なかでも,クリンカアッシュの窒素吸着作用 をクリンカアッシュの粒径別に明らかにす ることとしている。

また,窒素やリンを吸着したクリンカアッシュは農業分野にとって貴重な肥料資源なり得る。特に,世界的にもリンの枯渇がさけばれており,リンのリサイクル循環を構っることは今後の資源循環を考える上、要な課題の一つとなる。そこで,吸着シカーで、窒素が吸着している)クリンカアッシュを済期して栽培実験を行い,栽培へのないのが、カリンカアッシュを活用して栽培実験を行い,栽培である、カリンカアッシュを活用して栽培実験を行い,表現である。

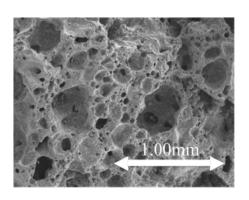
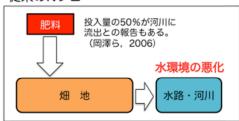


図1 クリンカアッシュの拡大図

### 従来のNフロー



本システムを適用した場合

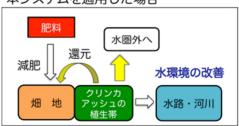


図2 研究のコンセプト

### 3.研究の方法

本研究では,3つの実験を行い,クリンカアッシュの再利用方法について検討した。(1)クリンカアッシュの粒径分布と窒素・リンの吸着能に関する検討

(2)栄養塩類を吸着したクリンカアッシュの植生利用に関する検討

それぞれの実験方法について述べる。

(1)クリンカアッシュの粒径分布と窒素・リンの吸着能に関する検討

クリンカアッシュは多岐にわたる粒径を含む多孔質体である。ここでは,クリンカアッシュの粒径区分と窒素・リンの吸着能との関係について検討を行った。

東北電力株式会社より得たクリンカアッシュを, ふるいを用いて次の様に3つに分類した。

Large particle size(L):  $850 \mu m^2 mm$  Medium particle size(M):  $425-850 \mu m$  Small particle size(S):  $425 \mu m$  以下

この3種類のクリンカアッシュを混合して, 粒度分布の異なる 11 種類の実験用サンプル を作成した(図3)。さらに,Sと窒素・リン の吸着能との関係を詳細に検討するため,S をさらに3つに区別した。

Small-large(SL): 212-450 µm Small-medium(SM): 150-212 µm Small-small(SS): 150 µm 以下

そして, SL, SM, SS が各々100%で構成される 3 種類の実験用サンプルと, SL,SM, SS が均等に配合された 1 種類のサンプル, 合計で 4 種類のサンプルを更に作成した(図4)。

クリンカアッシュによる窒素・リンの吸着試験には、PVC製の円筒容器を使用した。円筒容器のなかに30gの実験用サンプルを充填した。ただし、容器の底面には排水用の孔が空けてあるので、この孔からクリンカアッシュが流出しないように、円筒容器の上部で設定した。円筒とで深水を設置した。円筒とで深水を調整した。四人はカーで採水を再び容器の上部から通水の底面から流水でで採水を再び容器の上部から通水のに通水ので採水を再び容器の上部から通水のに通水ので採水を再び容器の上部から通水のに通水ので採水を再び容器の上部から通水の窓とリンの濃度を測定した。窒素とリンの濃度を測定した。

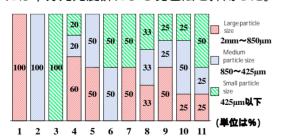


図3 クリンカアッシュの配合割合

(2)栄養塩類を吸着したクリンカアッシュの 植生利用に関する検討

(1)の実験方法で使用したクリンカアッシュを用いて,植生実験を行った。粒径が L,M,S からなるクリンカアッシュに水田土壌を混合して,図 5 に示す 12 種類のサンプルを作成した。そして,内容量が 500~cc の塩ビプラスチック容器に充填し,コマツナを栽培

して,成長速度を観察した。調査期間は,コマツナを播種した後の 31 日間である。コマツナの主茎高さを計測し,一日当たりの生長量を成長速度とした。

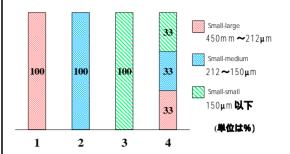


図 4 クリンカアッシュの配合割合

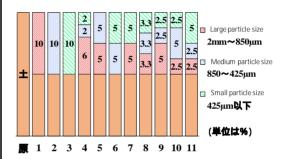


図 5 クリンカアッシュと土壌の配合割合

### 4. 研究成果

(1)クリンカアッシュの粒径分布と窒素・リンの吸着能に関する検討

図 6 に , L , M , S の粒径からなる実験用サンプルを用いて行った , 窒素・リンの吸着試験の結果を示す。

通水前の溶液の窒素濃度は、1.0 mg/L である。この溶液をクリンカアッシュに通水した結果、濃度が  $0.7\sim0.8 \text{ mg/L}$  を示し、通水前よりも溶液の濃度が低下した。そして、S を含むサンプルは濃度の低下が大きい傾向が見られた。このことから、クリンカアッシュには水中の窒素成分を吸着する機能があることが示された。

リンについても,同様の試験を行った。リンの結果を図 7 に示す。リンについても,クリンカアッシュを通すことで濃度が低下する傾向が見られた。すなわち,通水前のリン濃度が 0.13 mg/L であったのに対して,No.1から 11 の濃度は  $0.11\sim0.12$  mg/L であった。ただし,No.4,No.8,No.11 については通水前の濃度との違いは極めて小さかった。以上のことから,クリンカアッシュにはリンを吸着する性質があることがわかった。しかし,窒素と同様で,粒径組成による吸着能の違いは確認できなかった。

L,M,Sの粒径を用いてクリンカアッシュによる窒素・リンの吸着能を調べたが,粒径組成による吸着能の違いは明確には確認できなかった。しかし,窒素についてはSを含む場合に吸着能が高い傾向が見られた。そ

こで,Sをさらに細かく分類をした3種類のクリンカアッシュ(SL,SM,SS)を用いて同様の試験を行った。そして,細かな粒径とクリンカアッシュによる窒素・リンの吸着能との関係を検討した。

窒素 0.75 mg/L の溶液を使用して通水試験を行った。その結果を図 8 に示す。通水前の窒素濃度に対して,通水後の窒素濃度は 0.58  $\sim 0.68 \text{ mg/L}$  へと減少した。通水前の窒素濃度を 100%とすると,20%程度の窒素がクリンカアッシュに吸着されることがわかった。この割合は先の実験結果よりも高かった。この割合は先の実験結果よりも高かった。この目にど,クリンカアッシュの粒径が細かいほど,そして細かなクリンカアッシュを含むほど,クリンカアッシュによる窒素吸着能は大きくなることがわかった。ただし,SM 、SS との間に違いは見られなかった。

次に、リンの結果を示す(図 9)。通水前のリン濃度は、0.14~mg/L 程度であった。そして、 $No.1 \sim 4$  までのリン濃度は 0.11~mg/L 程度であった。このことから、リンについても窒素と同様でクリンカアッシュに吸着する性質があることが認められた。また、No.1 が最もリンを吸着すること、No.2 と No.3 と No.4 との間に有意な違いがないことがわかった。

以上の結果から,クリンカアッシュには窒素とリンの吸着能を有することがわかった。また,窒素については粒径が細かい 450 μm以下の粒径のクリンカアッシュが窒素の吸着能が比較的高いことがわかった。リンについては,窒素ほどの吸着能は認められなかった。また,粒径組成の違いがリンの吸着能に及ぼす影響は明らかにできなかった。

今後は,その他のイオン成分についても, クリンカアッシュがどの程度の吸着能を有 するか検討する必要がある。

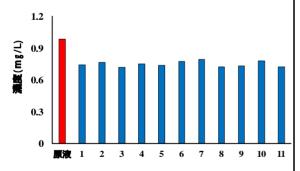


図 6 クリンカアッシュの窒素吸着試験

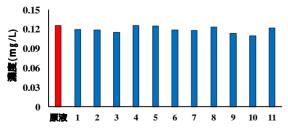


図7 クリンカアッシュのリン吸着試験

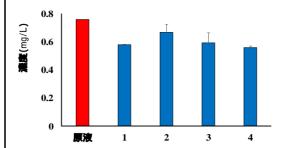


図8 クリンカアッシュのリン吸着試験

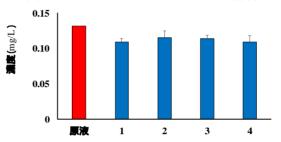


図 9 クリンカアッシュのリン吸着試験

(2)栄養塩類を吸着したクリンカアッシュの植生利用に関する検討

図 10 に,播種後 31 日目のコマツナの茎の長さを各試料別に示す。コマツナの生長量(茎の長さ)は, $9{\sim}19$  cm であり,各試料で生長量が異なった。そして,試料にLLの粒径を含む場合,総じて生長量が大きくな力リンカを農地土壌に混合することで,作り、立を農地土壌に混合することで,作り、立ち、立ち、力リンカアッシュに吸着されることがわかったこと影響を受けて土壌で吸着が改善されることから,粒径が大きくなるこ土壌での通気性等が改善されることから,土壌理的な作用によって作物栽培が改善されたと推察した。

次に,クリンカアッシュを混ぜた試料と混ぜなかった試料とで,コマツナの生長量を比較した。クリンカアッシュを混ぜたものから得られたデータの平均値をクリンカアッシュの平均値とした。図 11 をみると,土のみよりもクリンカアッシュを混合した方がコマツナの生長が早いことが明らかになった。このことから,クリンカアッシュに吸着した窒素成分がコマツナの栽培に活用されているためと推察した。

今回の実験では,窒素吸着した試料のみで 栽培実験を行った。今後はリンについても同 様の実験をし,作物栽培へのさらなる利用法 について明らかにする必要がある。

### 参考文献

山本仁, 岡澤宏, 竹内康, 村上由紀 (2013) 「クリンカアッシュの粒径組成が窒素吸着 効果に及ぼす影響」 農業農村工学会論文集, No. 285, pp.  $19 \sim 24$ .

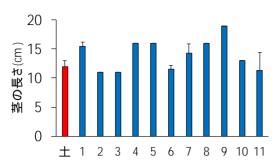


図 10 コマツナの栽培試験結果(31日)

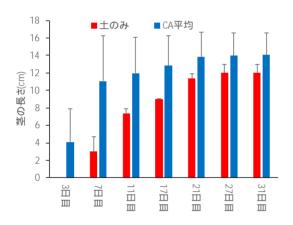


図 11 コマツナの栽培比較

謝辞:水質分析,現地調査,データ解析にご協力いただいた東京農業大学地域環境科学部生産環境工学科水利施設工学研究室の学生諸氏,並びに大学院農学研究科農業工学専攻の大学院生諸氏,特定非営利活動法人環境修復保全機構研究センターの関係各位に謝意を表する.

# 5 . 主な発表論文等 (研究代表者 研究分担者及び連携研究

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に は下線)

### 〔雑誌論文〕(計2件)

Hitoshi Yamamoto, <u>Hiromu Okazawa</u>, Yasushi Takeuchi, <u>Machito Mihara</u>, Effectiveness of Clinker Ash in Removing Nitrogen from Agricultural Waste Water, Agriculture and Forestry, 查読有, 62, 2016, pp.37-42

<u>Hiromu Okazawa</u>, Tomonori Fujikawa, Nitrogen Adsorption Ability in Clinker Ash and Utilization of Nitrogen Adsorbed Clinker Ash to Promote Vegetation Growth, Agriculture and Forestry, 查読有, 60, 2014, pp.15-20

### 〔学会発表〕(計5件)

Sergio Azael May Cuevas, Hiromu Okazawa,

<u>Takashi Ueno</u>, <u>Machito Mihara</u>, Evaluation of Clinker Ash Bioreactor for Water Pollution, International Conference on Environmental and Rural Development, 2017.2.25-26, Nonthaburi, Thailand

Sergio Azael May Cuevas, <u>Takashi Ueno</u>, <u>Hiromu Okazawa</u>, <u>Machito Mihara</u>, Potential of Pollution Control System Using Clinker Ash in Tea Plantation, 8<sup>th</sup> International Conference on Environmental and Rural Development, 2017/2/25-26, Nonthaburi, Thailand

Hitoshi Yamamoto, <u>Hiromu Okazawa</u>, Yasushi Takeuchi, <u>Machito Mihara</u>, Effectiveness of Clinker Ash in Removing Nitrogen from Agricultural Waste Water, VI International Scientific Agriculture Symposium "Agrosym2015", 2015/10/15-18, Sarajevo, Bosnia and Herzegovina (招待講演)

<u>Hiromu Okazawa</u>, Chinatsu Tanabe, Yasushi Takeuchi, Nitrogen Adsorption Characteristics of Clinker Ash and Use of Clinker Ash in Plant Cultivation, 6<sup>th</sup> International Conference on Environmental and Rural Development, 2015/3/7-8, Bohol Island, Philippine

Hiromu Okazawa, Tomonori Fujikawa, Nitrogen Adsorption Ability in Clinker Ash and Utilization of Nitrogen Adsorbed Clinker Ash to Promote Vegetation Growth, V International Scientific Agriculture Symposium "Agrosym2015", 2014/10/23-26, Sarajevo, Bosnia and Herzegovina (招待講演)

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

岡澤 宏 ( OKAZAWA , Hi romu ) 東京農業大学・地域環境科学部・教授 研究者番号: 30385504

# (2)研究分担者

三原 真智人 (MIHARA, Machito) 東京農業大学・地域環境科学部・教授 研究者番号: 00256645

### (3)研究分担者

上野 貴司 (UENO, Takashi) 特定非営利活動法人環境修復保全機構 ・研究センター・研究員 研究者番号:60713766

### (4)研究分担者

石川 裕太 (ISHIKAWA, Yuta) 特定非営利活動法人環境修復保全機構 ・研究センター・研究員 研究者番号:90735309