研究ノート

間伐材と鉄バクテリアを用いた自然水域からの
リンの回収とその農業利用

武田 育郎*・宗村 広昭*

要 旨

自然水域の底質とともに存在する鉄バクテリア集積物は、リン吸着能を持つ鉄化合物を多く含むので、リン資源の循環利用に重要な役割を果たすことができる。しかしながら自然水域の鉄バクテリア集積物は、容易に水流によって流されてしまうこと、また、嫌気性の泥を含む底質からの収集が困難である事などから、有効な利用が行われていない。本研究では、鉄バクテリア集積物を収集する担体を水中に浸漬させ、鉄バクテリア集積物をリン酸肥料またはリン吸着材として利用できる形態で効率的に収集する方法の開発を試みた。

キーワード：間伐材、鉄バクテリア、リン酸肥料、リン吸着材

1. はじめに

地下水や浸透水の流入が多い河川、水路、沼沢などの自然水域の底部では、しばしば底質とともに赤褐色、黄褐色または茶褐色を呈する浮泥状または膜状の柔らかな塊がみられるが、これらの多くは鉄バクテリアの作用によって集積した鉄バクテリア集積物である。なお、ここでは鉄バクテリア集積物とは、鉄バクテリアが集積した不溶性の第二鉄化合物と、これに混入することもある自然酸化によって生成した不溶性の第二鉄化合物を含む集積物を意味するものとする。

一方、わが国がその使用量のほぼ全量を輸入に依存しているリンは、今後数十年でリン鉱石の枯渇が懸念されるため、リン鉱石産出国においては重要な貿易戦略物資となっている。また、リンは窒素や炭素などと異なり、水域と陸域との間でほとんど循環しない¹⁾。このため、リンを水中から回収し、リン使用の約8割を占める肥料用途に資源化する技術の開発が重要な課題となっている。

これに関しては、河川の底部に堆積する鉄バクテリア集積物には、リン吸着能を持つ鉄化合物とそれに吸着したリンが多く存在しているので、鉄バクテリア集

積物が、水中からのリンの回収や資源化に重要な役割を果たしうることが報告されている²⁾。

しかしながら、鉄バクテリアを利用する技術としては、浄水場や鉱山湧水における除鉄³⁾やバクテリアリーチングによる銅の浸出⁴⁾などが知られているが、自然水域における鉄バクテリア集積物を、リンと関連づけて利用することは行われていない。その理由として、鉄バクテリア集積物が浮遊性に富んでいるので、雨天時には拡散して褐色の濁り水となり、多くの場所では忌避されていること、また、鉄バクテリア集積物の堆積する表層数cmより下部の底質はしばしば悪臭を放つ嫌気的なヘドロであるため、鉄バクテリア集積物のみを水中から効率的に回収することが困難であることが挙げられる。また、鉄バクテリア集積物は高含水物質であるため、乾燥に時間と手間がかかることも理由として挙げられる。

このようなことから本研究では、自然水域において、鉄バクテリア集積物を収集する担体を水中に浸漬させ、鉄バクテリア集積物をリン酸肥料またはリン吸着材として利用できる形態で効率的に回収することを試みた。ここでは、いくつかの試験を行い、有用な結果を得たので報告するものである。

*鳥根大学生物資源科学部 Ikuo TAKEDA, Hiroaki SOMURA

2007年10月9日受付
2007年12月19日受理

なお、ここで「肥料」とは、国連工業開発機構の肥料マニュアルによる定義「植物に対してその正常な生育のために必要な元素の一つまたはそれ以上を供給する全ての物質をいい、有機質または無機質のいずれでもよく、また、天然産または合成品のいずれでもよい」、およびわが国の肥料取締法による定義「植物の栄養に供すること、または植物の栽培に資するため土壌に化学変化をもたらすことを目的として土地に施される物、および植物の栄養に供することを目的として植物に施される物」によるものとし⁵⁾、含有成分が詳細に規定されている登録肥料よりも広義に用いることとする。

2. 材料および方法

2.1 担体および浸漬容器

鉄バクテリアは多様で、独立栄養細菌に分類されるものと従属栄養細菌に分類されるものがあるとされているが⁶⁻⁹⁾、農業排水路などで流速が緩やかな場所では、鉄バクテリア集積物が木片や水生植物などの有機物質に特に多く肥厚することが確認された。そこで、本研究では、鉄バクテリアの生息する水中において、有機物質を含む担体を入れた微細孔のある容器を浸漬させ、一定期間の後、鉄バクテリア集積物が担持した担体を回収することとした。

有機物質を含む担体は、自然水域における浸漬期間中の腐食・分解による水質汚濁の影響が無視できるものが好ましいが、試行錯誤の後、針葉樹の木質材料に着目した。一般に木材は、基本的には細胞壁のみで構成されているため、樹種によらず構成要素の99.5%以上が炭素、水素、酸素であり、窒素は0~0.5%、リンをはじめカルシウムやマグネシウムなどの元素の含有量はきわめて微量とされている¹⁰⁾。そして、針葉樹の木質組織には、腐朽菌に対する分解抵抗性が大きいリグニンを多く含み¹¹⁾、また、中空の細長いパイプ状細胞である仮道管が木質組織全体の約97%を占めるため¹²⁾、細かく破碎すると大きな比表面積が期待できるという利点がある。このようなことから、本研究では、ヒノキ間伐材の心材を自然乾燥の後、0.2~2 mmに破碎して作製した木質担体を用いた。なお、心材を用いた理由は、防食物質であるフラボノイドを多く含むことにある。

担体を入れる容器については、担体の散逸防止を考えると、容器に設けた孔のサイズが担体サイズよりも小さいことが必要であるので、ここでは、ポリエステル

ルおよびレーヨンからなる袋状の不織布を用いた。

2.2 浸漬試験

この木質担体を袋状の不織布に入れて封をし、鉄バクテリアによって底部が赤褐色になった島根県東部の水田地域のA川（浸漬期間中の10回の平均水質がT-P = 0.168mg/ℓ, PO₄-P = 0.018mg/ℓ, pH = 6.6）において浸漬させ、一定期間の経過後、回収した。そして、担体に担持された鉄を、酸可溶性の鉄としてフェナントロリン法¹³⁾で定量し、リンを植物に利用可能な画分としてBray No2法¹⁴⁾で定量した。なお、木質担体を腐食させる腐朽菌の活動には空気が必要であるので、木質担体が常に水中に存在するように浸漬させた。また、鉄バクテリアの中性付近での生育条件は酸化還元電位 = 0~500mV 程度¹⁵⁾であるので、担体を入れた容器が底質中に埋没しないようにした。

2.3 コマツナ栽培試験

木質担体に吸着したリンが植物に吸収可能かどうかを確かめるため、ここでは結果が早期に判別できるものとして、コマツナの栽培試験を行った。すなわち、回収した後乾燥させた木質担体を、縦2 cm、横2 cm、深さ2 cmの容器に充填し、コマツナの種子を蒔いて成長量を測定した。ここでは、浸漬前の木質担体のみを充填したもの、浸漬の後回収した木質担体と浸漬前の木質担体を1 : 1で混合して充填したもの、浸漬の後回収した木質担体のみを充填したものの3種類を用意し、コマツナの地上部と地下部の長さを計測し、比較した。そして、浸漬前の木質担体には窒素（水溶性アンモニアにより定量）、リンが検出されなかったため、浸漬前の木質担体のみを充填した場合のコマツナの成長量は、養分転換期以前に利用される種子に含まれる貯蔵養分および水と光合成に由来するものであり、これとの差が、回収した木質担体の肥料効果の発現であると考えた。なお、試験期間は一部の容器でコマツナの根が充満したため、30日である。

2.4 リン吸着試験

木質担体を浸漬させた河川のリン濃度は必ずしも高くなく、また、回収後の担体には十分なリン吸着能があることが予想されたため、回収の後、乾燥させた木質担体0.1 gを、リン酸濃度 = 2 mg/ℓの溶液50mlに添加し、実験室において常温で静置させ、溶液のリン濃度の推移を測定した。また、対照サンプルとして、リン酸溶液に浸漬前の担体を添加したものとリン酸溶液のみのものを用意し、リン濃度の推移を測定した。

3. 結果および考察

3.1 浸漬試験の結果

回収した不織布の袋の中には、全体が茶褐色に変色した木質担体が確認され、また、顕微鏡による観察の結果、赤褐色の鉄バクテリア集積物が木質組織に担持されていることを確認した(写真)。また、その形状から、*Leptothrix ochracea* および、*Siderocapsa* sp. と考えられる微生物を観察しているが、現在のところ、厳密な同定に至っていない。

図1は、木質担体の河川での浸漬期間と木質担体に担持した鉄の関係を表している。浸漬期間が10日で8 mg/g 程度、20日で12mg/g 程度、30日で14mg/g 程度の鉄の担持が確認され、鉄の担持速度は浸漬期間が20日以降はやや低下した。なお、浸漬期間が0日のプロットは浸漬前の木質担体を意味しており、鉄は検出されなかった。

図2は、木質担体の河川での浸漬期間と木質担体に吸着したリンの関係を表している。浸漬期間が10日で0.08mg/g 程度、20日で0.11mg/g 程度、30日で0.13mg/g 程度のリンの吸着が確認された。なお、浸漬期間が0日のプロットは、図1と同様に浸漬前の木質担体を意味しており、リンは検出されなかった。ここで、農地土壌のリン酸肥沃度の指標である Bray No2リン酸の通常の表示方法によれば、浸漬期間20日のリン吸着量は約25mgP₂O₅/100 g となった。これについては、暖地水田では20 mgP₂O₅/100 g 以上が「高リン酸区」に分類される¹⁶⁾ことから、回収した木質担体はリン酸肥沃度に十分富んでいるといえる。

3.2 コマツナ栽培試験の結果

図3は、コマツナ栽培試験終了後のコマツナの地上

写真 木質担体に担持した鉄バクテリア集積物
(矢印は特に大きい塊)

図1 浸漬期間と担体に担持した鉄

図2 浸漬期間と担体に吸着したリン

部の長さの平均値と標準偏差(サンプル数=8)を表している。ここで、「浸漬前担体」は浸漬前の木質担体のみを充填したもの、「浸漬担体50%」は浸漬の後回収した木質担体と浸漬前の木質担体を1:1で混合して充填したもの、「浸漬担体100%」は浸漬の後回収した木質担体のみを充填したものを意味している。コマツナの地上部の長さの平均は、浸漬前担体=1.58cm、浸漬担体50%=1.78cm、浸漬担体100%=1.82cmであり、浸漬担体が多いものほど地上部の長さは長くなった。ただし、統計的な有意差は確認できなかった。

また図4は、図3と同様の試験における地下部の長さを表している。コマツナの地下部の長さの平均は、浸漬前担体=1.19cm、浸漬担体50%=2.38cm、浸漬担体100%=3.63cmであり、浸漬担体が多いものほど地下部の長さは長くなった。また、浸漬前担体と浸漬担体100%の間では1%水準の統計的な有意差が認めら

図3 コマツナ栽培試験における地上部長さの比較

図4 コマツナ栽培試験における地下部長さの比較

れた。これらのことから、回収した木質担体は、リン酸肥料として土壌のリン酸肥沃度改善のために利用可能であると考えられる。なお、ここで用いた担体のリン吸着量は 0.062mg/g であった。

3.3 リン吸着試験の結果

リン吸着試験における溶液のリン濃度の推移(図5)では、担体1(担体に担持した鉄量 $=15.5\text{mg/g}$ 、担体に吸着したリン量 $=0.110\text{mg/g}$)および担体2(担体に担持した鉄量 $=12.3\text{mg/g}$ 、担体に吸着したリン量 $=0.040\text{mg/g}$)において、19日後にはリン濃度は半減したが、対照サンプル(リン酸溶液に浸漬前の担体を添加したもの、リン酸溶液のみのもの)では、リン濃度はほぼ一定であった。したがって、回収した木質担体は、リン吸着能を持つと考えられるが、その十分な発現には20日程度が必要であった。なお、ここでリン酸濃度ではなく全リン(T-P)濃度を測定した理由は、木質担体に吸着されず、懸濁態の形態で水中にリンが存在する可能性が考えられたからである。また、吸着試験中の溶液のpHは $5.2\sim 6.8$ で推移していた。

図5 リン吸着試験におけるリン濃度の推移

3.4 回収された担体の利用可能性

本研究によれば、自然水域から鉄バクテリア集積物を効率的に回収することができ、回収した担体は、リン酸肥料またはリン吸着材として利用可能であると考えられた。しかしながら、リン吸着試験では、20日ほどの期間を要して濃度が半減するに過ぎないため、処理場等でのリン除去ではなく、リン濃度の高い自然水域における水質浄化対策の一つとして、有用であると考えられる。また、高含水物質である鉄バクテリア集積物が担体に担持されるので、本研究で用いた担体は、乾燥と運搬が容易であるといえる。

ところで、鉄バクテリア集積物には、リンのほかヒ素、カドミウム、鉛などの重金属を吸着する性質があるので、鉄バクテリアを利用した水質浄化材¹⁷⁾や土壌浄化材¹⁸⁾が提案されている。しかしながら、これらの浄化材は、鉄バクテリア集積物に加えて製造過程で添加される多くの化学物質を含むため、リンのみを選択的に吸着した場合においても、肥料用途の農業利用につながるものではなく、また、製造過程において、多くのコストとエネルギーを投入する必要がある。本研究におけるA川の浸漬では木質担体に対して1%の鉄の担持に過ぎないが、わずかなコストとエネルギーの投入によって、これらの物質の吸着材を得ることができる可能性がある。

また、前述のように、鉄バクテリア集積物は自然水域では忌避される傾向にあるが、なかでも、暗渠排水やパイプラインによる送水を行う場所では、鉄バクテリア集積物がポンプやパイプの詰まりの原因となるた

め、鉄バクテリアの増殖を抑制するための閉塞防止材¹⁹⁾が開発されている。本研究においては、担体を水中に浸漬する過程において、水中の第一鉄を担体に固定することができるので、このような鉄バクテリア集積物が忌避される自然水域においては、鉄バクテリア集積物の発生を抑制できる可能性がある。

さらに、ほ場整備などの農地整備が行われた場所では、排水路を以前よりも深く掘るため、水路等に地下水や浸透水が多くなり、鉄バクテリア集積物の堆積に苦慮している事例が見受けられる。しかしながら、このような場所に担体を浸漬させ、鉄バクテリア集積物をリン資源の循環利用や水質浄化材の媒体として利用することができれば、環境保全や資源循環に配慮した各種地域整備に貢献できる可能性がある。

4. おわりに

本研究では、自然水域における鉄バクテリア集積物を、リン酸肥料またはリン吸着材として利用できる形態で効率的に回収することについて検討し、一定の成果を得た。しかしながら、コマツナ栽培試験が短いことなどの問題や、ここで述べた担体の利用可能性に関する課題が残っており、今後これらについても検証する必要がある。

文 献

- 1) 武田育郎;水と水質環境の基礎知識, オーム社, 67-71, 2001.
- 2) Takeda, I. and A. Fukushima; Phosphorus purification in a paddy field watershed using a circular irrigation

- system and the role of iron compounds, Water Research, **38**, (19), 4065-4074, 2004.
- 3) たとえば、八木正一;鉄バクテリアを利用した除鉄、除マンガン処理について, 環境技術, **30**, (12), 907-911, 2001.
- 4) 山中健生;環境にかかわる微生物入門, 講談社サイエンスフィック, 62-64, 2003.
- 5) 松坂泰明, 栗原淳 監修;土壌・植物栄養・環境辞典, 博友社, 230-231, 1994.
- 6) 柳田友道;微生物学 1 分類・代謝・細胞生理, 学会出版センター, 1980.
- 7) 今井和民;独立栄養細菌, 化学同人, 76-90, 1984.
- 8) 松下滋, 隅見彦;飲料水製造における生物処理の適用, 神鋼パナテック技報, **37**, (3), 24-31, 1993.
- 9) Pacini, V. A., A. M. Ingallinella and G. Sanguinetti; Removal of iron and manganese using biological roughing up flow filtration technology, Water Research, **39**, 4463-4475, 2005.
- 10) 桑原正章 編;もくざいと環境, 海青社, 31-39, 1994.
- 11) 城代進, 鮫島一彦 編;木材科学講座 4 化学, 海青社, 1993.
- 12) 古野毅, 澤辺攻 編;木材科学講座 2 組織と材質, 海青社, 1994.
- 13) 日本分析化学会北海道支部;水の分析, 化学同人, 185-189, 1994.
- 14) 土壌標準分析・測定法委員会 編;土壌標準分析・測定法, 博友社, 130-131, 1986.
- 15) 八木正一;鉄バクテリアの除鉄機構とその応用の紹介, 環境技術, **33**, (4), 278-283, 2004.
- 16) 日本土壌肥科学会 編;水田土壌とリン酸, 博友社, 59-126, 1984.
- 17) 大石徹;水質浄化材及びその製造方法, 特開2005-87833号公報, 2005.
- 18) 佐藤努, 福士圭介, 木田幸男, 池田穂高, 荻原正人, 荒美紀子;汚染土壌の浄化方法, 特開2003-112163号公報, 2003.
- 19) 北川巖, 竹内晴信, 木曾誠二;十勝岳泥流地帯における暗渠管閉塞要因の解明と回避対策, 農業土木学会論文集, **74**, (1), 112-122, 2006.

Phosphorus Recovery and Its Subsequent Agricultural Use from Natural Water Area by Using Wood Material by Thinning and Iron Oxidizing Bacteria

Ikuo TAKEDA, Hiroaki SOMURA

ABSTRACT

The metabolic accumulation of iron oxidizing bacteria in the sediments of natural water areas contains a large amount of iron-oxidized compounds that can adsorb phosphorus content. Therefore, this accumulation can play a significant role in the recycling of phosphorus resources. However, this type of phosphorus-rich accumulation cannot be efficiently utilized because it can be easily flushed by flowing water and because it is difficult to collect the accumulation from the sediments that usually contain anaerobic and malodorous mud. In this study, an effective method has been developed, in which a wood material carrier collecting the accumulation can directly be used as phosphorus fertilizer and/or a phosphorus adsorption.

Key Words : Iron oxidizing bacteria, , Phosphorus adsorption agent, Phosphorus fertilizer, Wood material by thinning