

## 降雨による土壌コロイドと溶存有機物の流出特性

**Leaching Characteristics of Soil Colloids and Dissolved Organic Carbon During Irrigation**

川本 健\*, 小松登志子\*\*, Per MOLDRUP\*\*\*

Ken KAWAMOTO, Toshiko KOMATSU, and Per MOLDRUP

Transport of pesticides, heavy metal, PAHs, radionuclide, and other strongly sorbing contaminants in soils is enhanced by colloid-facilitated transport. This study investigated mobilization and leaching of colloidal matter and dissolved organic carbon from two aggregated soils (Andisols) and a single grain soil (sand) during rainfall irrigation using column experiments. Results show that the cumulative colloid leaching from both aggregated and single-grained soils increased linearly with the square root of time at low EC effluents. This suggests that the colloid leaching is controlled by diffusion-limited kinetics. The mechanism of colloid detachment was also examined based on the relationship between the colloid concentration and the reciprocal of the square root of EC.

**Keywords: Colloid, Dissolved Organic Carbon, Leaching, Soil Structure, Rainfall Irrigation****1. はじめに**

土壌に存在する様々な物質がコロイドに吸着して土壌内を移動する。コロイドによる物質輸送は土壌・地下水汚染と密接に関連し、農薬、重金属、各種非水溶性物質のコロイド吸着による土壌内輸送が数多く研究されている<sup>1), 2), 3)</sup>。

---

\*埼玉大学 工学部 建設工学科

Department of Civil & Environmental Engineering,  
Faculty of Engineering, Saitama University, 255  
Shimo-Okubo, Sakura-ku, Saitama, Saitama, 338-8570,  
Japan

\*\*埼玉大学大学院 理工学研究科

Graduate School of Science and Engineering, Saitama  
University, 255 Shimo-Okubo, Sakura-ku, Saitama,  
Saitama, 338-8570, Japan

\*\*\* Department of Life Sciences, Aalborg University,  
Denmark.

コロイドに吸着した汚染物質の輸送機構を解明するためには、土壌内でのコロイドの生成・移動機構の解明が不可欠である。しかし、これらの機構には pH やイオン強度といった土壌溶液の化学的性質や、降雨強度や土壌構造といった物理的条件など、様々な要因が複雑に影響を及ぼすことが知られ<sup>4)</sup>、その解明にはより一層の知見の蓄積が必要とされている。本研究では、団粒構造と単粒構造の異なる土壌構造を有する試料を用いてカラム実験を行い、降雨時における土壌コロイドや溶存有機物の流出特性を調べることを目的とした。

なお、本報ではコロイドの流出特性についての結果と考察のみを報告する。

**2. コロイド相の定義と分画**

本研究では、本下ら<sup>5)</sup>に準じて、コロイド相の定義・分画を行った。彼らはコロイド粒子と溶存有機物の両者に注目し、コロイド相を粒子径が 1 μm 以下の無機性

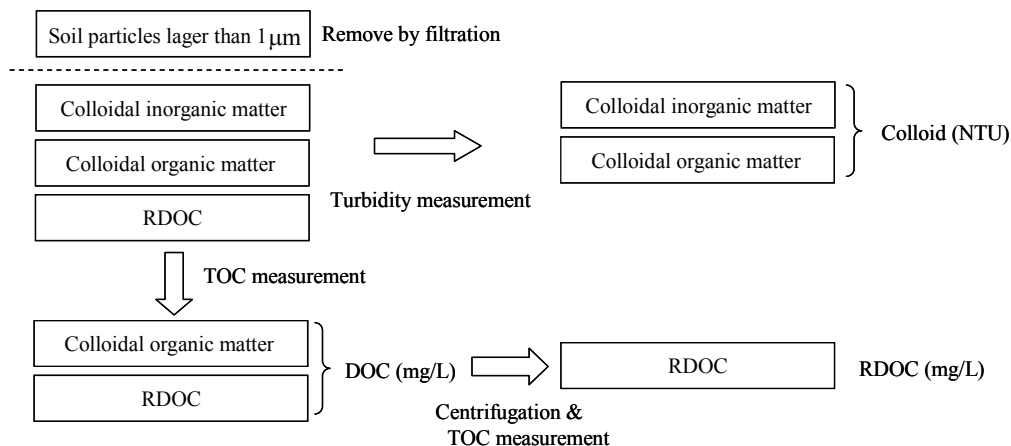


Fig. 1 Experimental procedure for determining concentration of each colloid and DOC fraction.

Table 1 Soil physical characteristics.

Soil	Depth cm	Soil mineral density g/cm <sup>3</sup>	Dry bulk density g/cm <sup>3</sup>	Total porosity cm <sup>3</sup> cm <sup>-3</sup>	Organic matter content of soil* %	Initial water content %	Particle size distribution		
							Clay %	Silt %	Sand %
Tachikawa loam	5-10	2.70	0.62	0.77	7.8	56.1	8.4	55.6	36.0
Fukushima loam	5-15	2.46	0.56	0.77	11.0	95.7	17.6	27.3	55.1
Toyoura sand	-	2.64	1.58	0.40	0.0	0.0	0.0	0.0	100.0

\* Organic matter content of soil was determined by dichromic acid method.

コロイド (Colloidal inorganic matter), 有機性コロイド (Colloidal organic matter), 眞の溶存有機物 (Real dissolved organic carbon, RDOC) の3つのフラクションに分画した。

試料水の測定手順および各フラクションの濃度の同定法を Fig. 1 に示した。孔径 1 μm のろ紙でろ過したろ液の濁度 (2100P 型濁度計, HACH 社製) よりコロイド濃度を求め, TOC 計 (TOC-5000, SHIMADZU 社製) より溶存有機物 (Dissolved organic carbon, DOC) 濃度を求めた。そして, ろ液を遠心分離することにより得られた上澄み液の TOC 濃度から RDOC 濃度を求めた。

ここで, 有機性コロイドと RDOC の分画は, 20000g の回転数で所定の時間遠心分離を行い, 沈降するものを有機性コロイド, 沈降しないものを RDOC とした。遠心分離時間は, 立川ロームが 3 時間, 福島ロームと豊浦砂が 8 分とした (試料については後述)。

### 3. 試料およびカラム実験

試料は東京都西東京市と福島県西郷村より採取した黒ボク土 (以下, 立川ロームと福島ローム) と豊浦砂

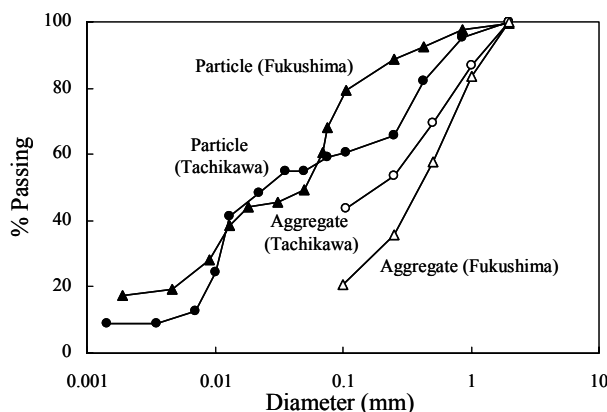


Fig. 2 Aggregate size and particle size distributions for Tachikawa and Fukushima loam soils.

の3種類の土壌試料を用いた。立川ロームは畑地, 福島ロームは林地より採取し, 2mm 篩で篩別後の通過分を試料に用いた。豊浦砂は, 中性洗剤で洗浄後, 蒸留水を用いて十分にリンスしたものをを用いた。試料の物理特性を Table 1 に示した。

Fig. 2 に両ロームの団粒分布, 粒径分布曲線を示した。一般に, 団粒分布と粒径分布曲線の差は団粒化の度合いを反映し, その差が大きくなるほど団粒構造の発達を示す。図より, 立川ロームと福島ロームの両試料とも団粒構造を有し, 福島ロームの方が立川ロームより

もその差が大きいことから、前者の方が団粒化の度合いが大きいことが分かる。また、豊浦砂は 99.7%質量が 0.105-0.21mm 篩に保持される均一な砂で、土壌構造は単粒構造となる。

カラム実験の装置を Fig. 3 に示した。カラムは内径 4.9cm、高さ 15cm のアクリル製のカラムを用いた。試料高さを 10cm とし、試料上下には供給・排出溶液がカラム断面に均一に広がるようにガラスビーズを 1cm 高さに充填した。

カラム実験では供給溶液として、人工雨水を用いた。人工雨水は、自然の雨水の組成に近づけるため、0.085 mM NaCl + 0.015mM CaCl<sub>2</sub> の混合溶液を用いた。立川ロームは、10 時間もしくは 30 時間の連続降雨を降雨強度 80mm/hr で与えた。福島ロームと豊浦砂は、降雨強度 20mm/hr で 39, 26, 26 時間の 3 回に分けて降雨イベントを与えた。各降雨イベントの時間間隔は 24 時間とした。供給溶液は、pH=5.5-5.9, EC=2.0-2.3 mS/m, 濁度=0.17-0.47 NTU, DOC と RDOC はいずれも 0 mg/L であった。実験中、カラム下端からの排水溶液の採取を行い、排水溶液の pH, EC, 濁度, TOC 濃度 (DOC, RDOC 測定) を測定した。

#### 4. 結果および考察

##### 4.1 コロイドの流出特性

コロイド濃度と累積排水量の関係を Fig.3 に示した。立川ロームは排水にともない、コロイド濃度の上昇、

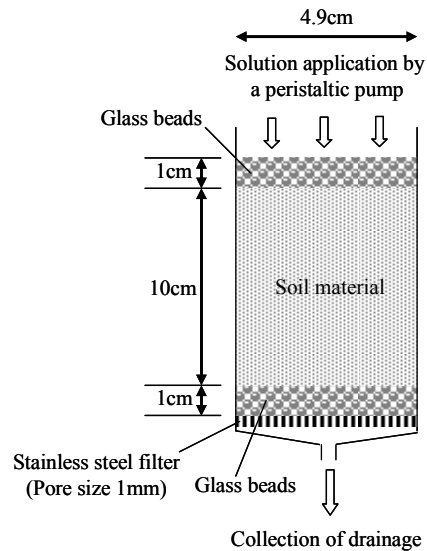


Fig. 3 Experimental apparatus for leaching tests.

ほぼ一定値の継続、その後緩やかな低下を示した。これに対し、福島ロームと豊浦砂は、いずれの降雨イベントにおいても排水開始時に大きな値を示した後に低下し、再び上昇して一定値を継続する変化を示した。また、立川ロームの流出コロイド濃度は福島ロームに比べ大きな値を示した。

土壌からのコロイドの流出は拡散律速のプロセスに従い、コロイドの累積流出量と時間の平方根  $t^{1/2}$  に線形の関係があることが報告されている<sup>5), 6), 7), 8)</sup>。Fig.5 に本研究で得られたコロイドの累積流出量と時間の平方根の関係を示した。また、同図の右縦軸には流出溶液の EC 変化を示した。立川ロームと福島ロームは、排水初期では直線性を示さないものの、排水中期から後期にかけては良い直線性を示した (図中の回帰式, 相

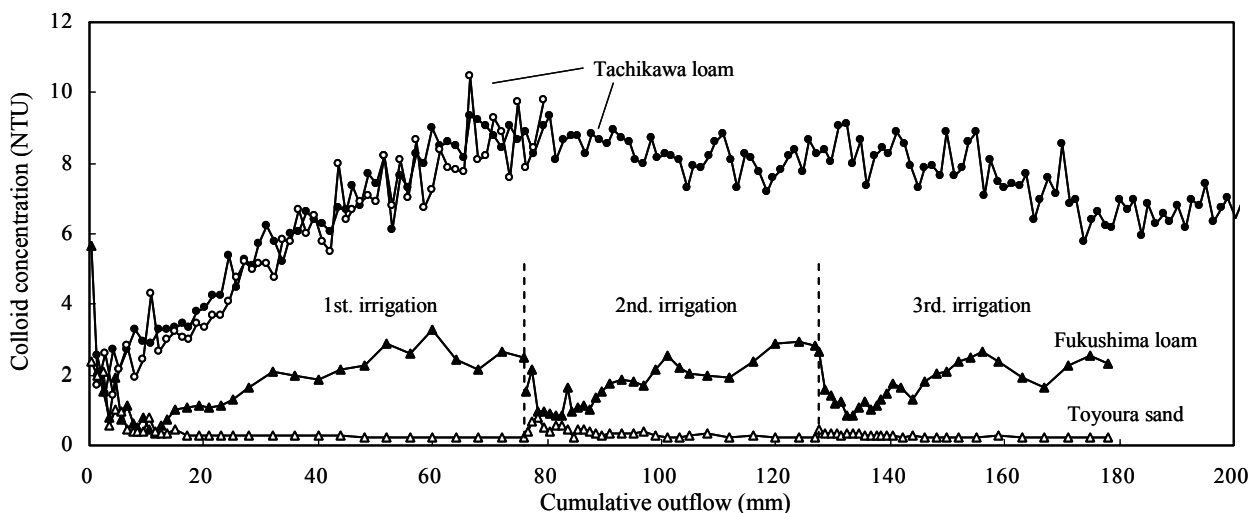


Fig. 4 Colloid concentration as a function of cumulative outflow.

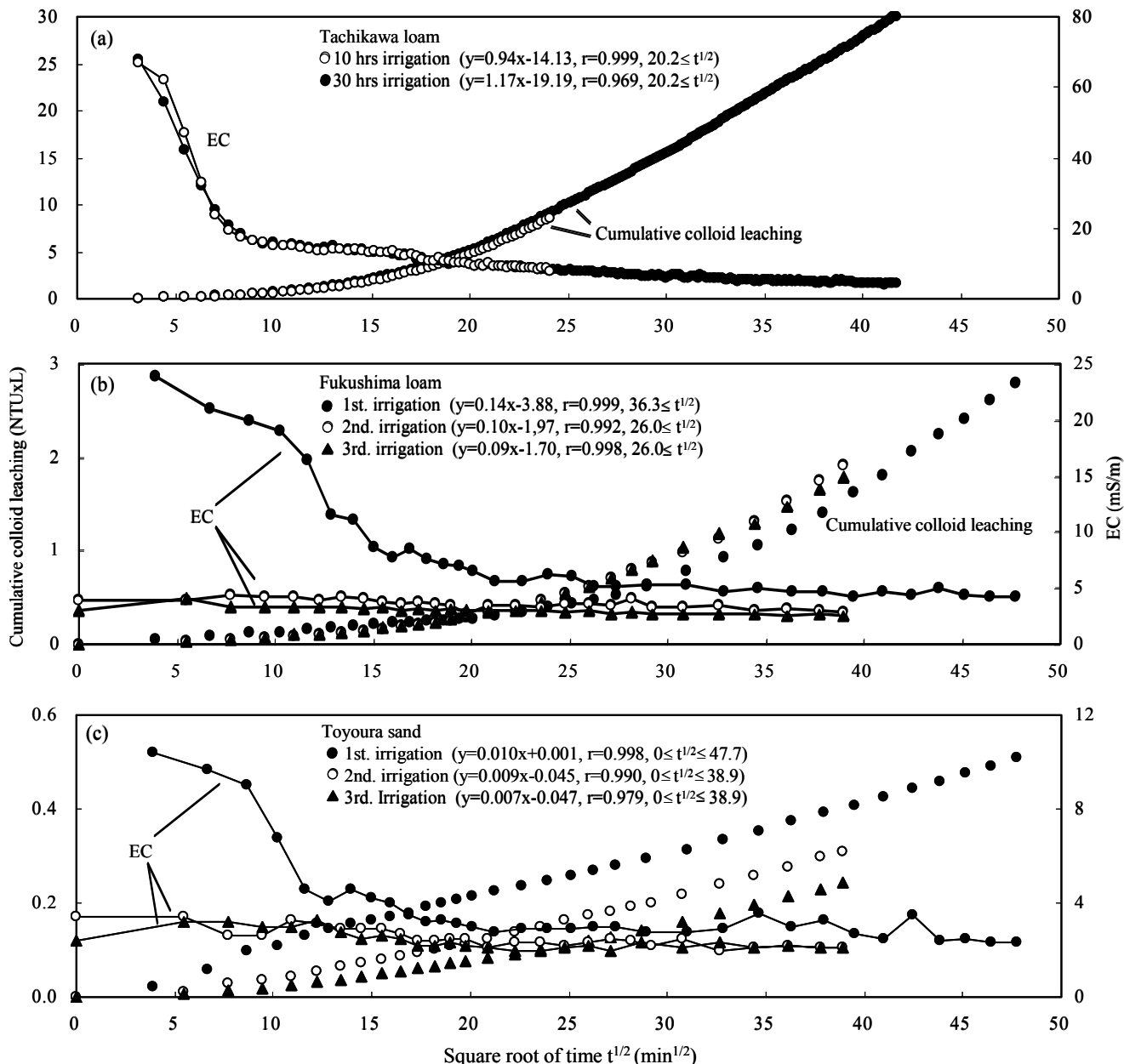


Fig. 5 Cumulative colloid leaching as a function of square root of time. The linear regression equations and the coefficients of regression ( $r$ ) for cumulative colloid leaching are given.

関係数)。一方、豊浦砂は排水初期から直線性を示した。

団粒構造を有する立川ロームと福島ロームが排水初期において直線性を示さない理由として流出溶液の EC 変化が挙げられる。立川ローム (Fig. 5(a)) を例に説明すると、EC は流出開始時に  $\text{EC} = 68 \text{mS/m}$  を示し、流出継続にともない急激に低下し、直線性が開始する時点 ( $t^{1/2} = 20.2$ ) で  $9.3 \text{mS/m}$  となった。その後、緩やかに低下し、流出終了時 ( $t^{1/2} = 41.7$ ) に  $4.4 \text{mS/m}$  となった。一般に、土壌溶液の EC (もしくはイオン強度) の低下にともないコロイドは土壌内を移動しやすくなることから、流出初期は高い EC のため、コロイド粒子が凝

集し、土壌からの流出が抑制されたものと考えられる。逆に、排水中期から後期にかけては、低 EC のためコロイド粒子が分散し、流出が促進されたものと考えられ、この流出は拡散律速に従うものと考えられる。

一方、単粒構造の豊浦砂は、流出溶液の EC は最大で流出開始時の  $10.4 \text{mS/m}$  と低く、このため流出初期からコロイド流出が拡散律速に従ったものと考えられる。

#### 4.2 コロイド濃度と EC の関係

前述の通り、土壌溶液のイオン強度の低下にともないコロイドの流出量が大きくなる。これは、イオン強

度の低下にともない電気二重層の層厚が増加し、コロイド粒子間の反発力が増加することにより、コロイド粒子が分散して流出しやすくなるためである<sup>9)</sup>。この時、電気二重層の層厚とイオン強度の平方根の逆数は理論的に比例することから、コロイド濃度はイオン濃度の平方根の逆数に比例して増加する。Laegdsmandら<sup>8)</sup>は、イオン強度の代わりにECを用いて、コロイド濃度とECの平方根の逆数 $EC^{-1/2}$ の関係を調べ、流出溶液のECが18.0mS/m以上で $0.08 < EC^{-1/2} < 0.25$ の範囲において両者が比例関係を有することを示した。

Fig. 6に本研究で得られたコロイド濃度とECの平方根の逆数 $EC^{-1/2}$ の関係を示した。立川ローム (Fig. 6(a)) では流出初期の累積流出量78mm未満 ( $t^{1/2} < 23.9$ ) における、 $EC > 7.8\text{mS/m}$ ,  $0.23 < EC^{-1/2} < 0.36$ のECの範囲において直線性が見られ、電気二重層の層厚変化がコロイド流出を左右しているものと考えられる。しかし、 $EC^{-1/2} > 0.36$ の低ECでは比例関係が見られず、コロイド流出が電気二重層の層厚変化以外の別のメカニズムに支配されるものと考えられる。一方、流出溶液の大半が低ECの範囲 ( $EC^{-1/2} > 0.36$ ) である福島ロームと豊浦砂 (Fig. 6(b)) は、いずれの降雨イベントにおいても比例関係を示さず、電気二重層の層厚変化の影響は小さいものと思われる。

前節において、立川ロームからのコロイド流出は、高ECである流出初期は拡散律速に従わず、ECが低下した流出中期以降に拡散律速に従うことを示した。このことから、高EC下における電気二重層の層厚変化はコロイド流出を左右するものの、拡散律速型のコロイド流出を与えないことが示唆される。逆に、低EC下では、コロイド流出は電気二重層の層厚変化以外のメカニズムに支配されるものの、拡散律速型のコロイド流出となる。

今後は、流出溶液の溶存有機物 (DOC, RDOC) の流出挙動、流出メカニズムについて考察を行う予定である。

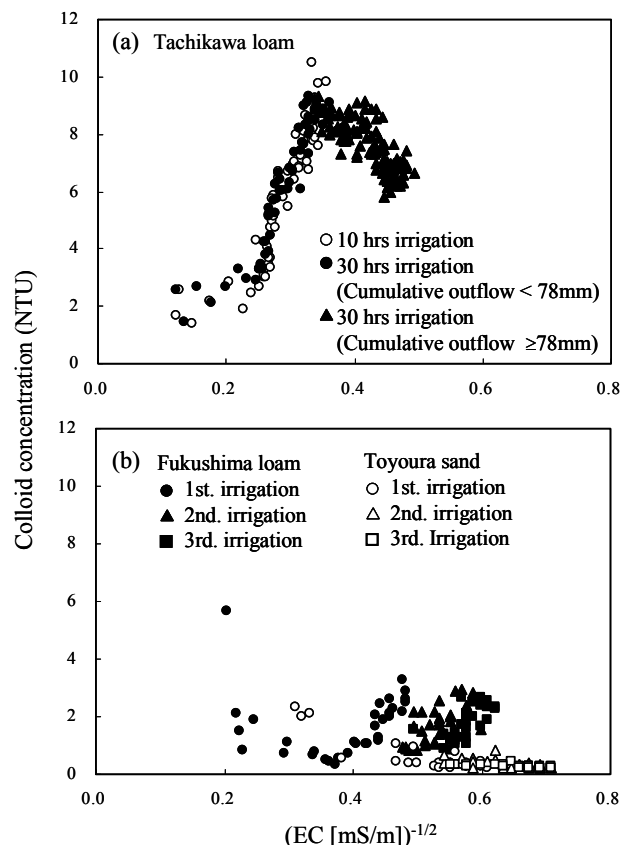


Fig. 6 Relationship between colloid concentration and the reciprocal of square root of EC.

## 謝辞

本研究は埼玉大学 21 世紀総合研究機構研究プロジェクト、ならびにマツダ財団研究助成 (2003-2005 年) の補助を受けた。ここに謝意を表する。

## 参考文献

- 1) McCarthy, J.F., and Zachara, J.M., Subsurface Transport of Contaminants, Environ. Sci. Technol, 23, 496-502, 1997.
- 2) Nyhan, J.W., Drennon, B.J., Abeele, W.V., Wheeler, M.L., Purtymun, W.D., Trujillo, G., Herrera, W.J., and Booth, J.W., Distribution of Plutonium and Americium Beneath a 33-Year-Old Liquid Waste Disposal Site, J. Environmental Quality, 14, 501-9, 1985.
- 3) Kersting, A.B., Efurud, D.W., Finnegan, D.L., Rohop, D.J., Smith, D.K. and Thompson, J.L., Migration of plutonium in groundwater at the Nevada Test Site,

- Nature, 397, 56–59, 1999.
- 4) de Jonge, L.W., Kjaergaard, C., and Moldrup, P., Colloids and Colloid-Facilitated Transport of Contaminants in Soils: An Introduction, *Vadose Zone Journal*, 3, 321-325, 2004.
  - 5) 本下晶晴, 小松登志子, 下所諭, Per Moldrup, 尾崎則篤, 福島武彦, 降雨による表層土壌カラムからのコロイド粒子と溶存有機物の流出特性, *土木学会論文集*, 706, VII-23, 61-76, 2002.
  - 6) 本下晶晴, 小松登志子, Per Moldrup, 尾崎則篤, 福島武彦, 降雨時における土壌カラムからのコロイド粒子の流出挙動, *土木学会論文集*, 678, VII-19, 111-122, 2001.
  - 7) Jacobsen, O.H., Moldrup, P., Larsen, C., Konnerup, L., and Petersen, L.W., Particle transport in macropores of undisturbed soil columns, *J. Hydrol.*, 196, 185-203, 1997.
  - 8) Laedsmand, M., Villholth, K.G., Ullum, M., and Jensen, K.H., Processes of colloid mobilization and transport in macroporous soil monoliths, *Geoderma*, 93, 33-59, 1999.
  - 9) 足立泰久, 岩田進午編著, 土のコロイド現象 土・水環境の物理化学と工学的基礎, 学会出版センター, 2003.