

不飽和泥炭土のガス拡散係数の測定と予測モデルの構築・検証

Gas Diffusion Coefficient in Unsaturated Peat Soil: Measurements, Development and Tests of Predictive Models

川本 健*, 海野将孝*, 飯塚健仁*, 小松登志子*

Ken KAWAMOTO, Masataka UNNO, Kenji IIDUKA, and Toshiko KOMATSU

The soil-gas diffusion coefficient (D_p) and its dependency on air-filled porosity (ϵ) govern the gas diffusion and reaction processes in soil. Accurate $D_p(\epsilon)$ prediction models for unsaturated saturated peat soils are needed to evaluate vadose zone transport and fate of greenhouse gases such as methane in peaty wetlands. In this study, we measured D_p on peat soil samples at different pF conditions, and developed new expressions for describing and predicting $D_p(\epsilon)$. Undisturbed peat soil samples were taken from Bibai wetland, Hokkaido, Japan. By modifying existing $D_p(\epsilon)$ models, the Buckingham model and the Macroporosity-Dependent model, we suggested two new $D_p(\epsilon)$ models for peat soils. To validate the new $D_p(\epsilon)$ models, we tested the models against independent datasets for peat soil samples from literatures. The modified Buckingham type model performed the best against independent datasets.

Keywords: Soil-Gas Diffusion Coefficient, Peat Soil, Air-Filled Porosity, Predictive Model

1. はじめに

ラムサール条約（1971 年）に代表されるように湿地の保全は強く求められている。日本や欧米諸国では周辺環境との調和を考慮した、いわゆる環境共生型の開発・保全事業が積極的に行われている。一方で、湿地は開発途上国においては重要な開発（農地・宅地・社会基盤整備）候補地であり、急速な湿地開発が行われている。湿地は、固有生態系を形成する貴重な自然財産であるのみならず、高い洪水調整機能や水質浄化機能を有するが、同時に還元的な湿地環境は温室効果ガスであるメタン放出を促進するといった負の側面も有

する。さらに、湿地開発における客土や排水は、広大な周辺領域の地盤沈下を引き起こす。このように、湿地の環境共生型開発・保全事業の計画には、湿地およびその周辺環境における物質循環・地盤工学的挙動の適切な把握が極めて重要な課題となる。

湿地を構成する土壌は、一般に高有機質であり、その代表例として植物遺体が未分解のまま堆積した泥炭土が挙げられる。泥炭土は高い間隙率（概ね 0.8 以上）を有することから、通常の鉱物土壌と比較して、非常にユニークな物質移動特性や力学特性を示すことが知られている^{1),2)}。しかし、これまでの泥炭土研究は飽和状態での泥炭土の透水性や圧密挙動に注目したものが大半であり、不飽和泥炭土のガス移動に関する研究は少ない。地表面直下に存在する不飽和泥炭土は、地中の飽和泥炭土（地下水面下）と大気との間に存在し、水・ガス・エネルギー（熱）といった物質交換が直接的に行なわれる場であり、湿地における物質循環を考

*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

（原稿受付日：平成 21 年5月29日）

える際に重要な境界となる。

本研究では、不飽和泥炭土の物質移動の中でも、特にガス拡散に注目した。ガス拡散は不飽和土壌内におけるガス移動を支配する重要なメカニズムであり、ガス拡散移動量の大小を決定する土壌ガス拡散係数 (D_p) は、湿地表層と大気間のガス交換や、温室効果ガスの放出を予測・評価する際に必要となる。本研究では、試料として北海道美唄湿地より採取した泥炭土を用いて、不飽和水分状態における D_p を測定した。これらの測定データに基づき既存の D 予測モデルを修正し、不飽和泥炭土に適用し得る新たな D_p 予測モデルを提案した。さらに、新たな D_p 予測モデルの有効性を、文献データを用いて検証した。

2. 試料と実験

2.1 泥炭土と試料特性

本研究に使用した泥炭試料 (Peat 1) は、北海道の美唄湿原内 (中央付近, Fig. 1) より採取した。美唄湿原は東西約440m, 南北約550mの湿原であり、その周囲は農地化されている。近年は周辺排水路の影響により、地下水位が湿原の辺縁部で顕著に低下し、湿原の北側ではササ群落およびウルシ群落の侵入が確認されている。土壌ガス拡散係数用の不攪乱コア試料は、体積 100cm^3 (高さ4.1cm, 直径5.6cm) のコアサンプラーを使用し、深さ0-30cmの6深さより、各2本ずつ採取した (計12試料)。

後述する修正予測モデルの提案には、Peat 1試料の他に、同湿原内 (西側排水路付近, Peat 2, 12試料) ならびに同湿原に隣接する防風林内 (Peat 3, 12試料) より採取した不攪乱コア試料を用いて測定された土壌ガス拡散係数データも用いた (Peat 1, 2, 3の位置関係はFig. 1を参照) ^{3), 4)}。各地点における泥炭土の基本物理化学量をTable 1に示した。

2.2 測定方法

不飽和泥炭土試料の水分調整および水分特性曲線の測定は、サンドボックス法 (吸引法) ⁵⁾を用いて、飽和からの脱水過程で行なった。設定pFは、1.0, 1.5, 1.8,

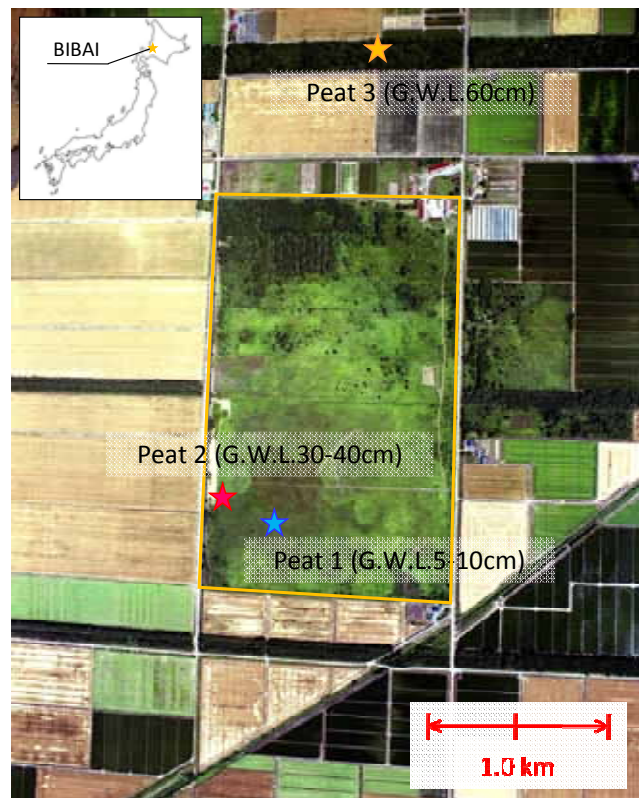


Fig. 1 Sampling points at Bibai wetland, Hokkaido, Japan.

2.0 の4段階とした。水分特性曲線の実測値にCampbellの水分特性モデル⁶⁾で回帰を行い、保水係数 b を求めた。

土壌ガス拡散係数の測定は各水分状態に調整した試料に対して行なった。測定は、遅沢⁷⁾やRolston and Moldrup⁸⁾の方法に従い、非定常法で行なった (Fig. 1)。この方法は、コアサンプラーと連結した拡散容器に窒素ガスを充填し、試料を通して大気と拡散ガスを相互拡散させ、拡散容器内のガス (酸素) 濃度変化を測定する。所定の初期・境界条件で次のFickの第2法則を解くことにより、土壌ガス拡散係数 D_p ($\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$) を決定する。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D_p}{\varepsilon} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad [1]$$

ここで、 C : 拡散ガスの濃度 (g cm^{-3}), ε : 気相率 ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$), x : 流れの方向距離 (cm)。

式(1)に対して、本測定装置の初期・境界条件 (Fig. 2) を用いて解いた解として、次式が得られる⁹⁾。

Table 1. Soil physical and chemical properties for peat soil samples.

Site	depth (cm)	Particle density ρ_s (g/cm ³)	Dry Bulk density ρ_d (g/cm ³)	Gravimetric water content w (%)	Porosity ϕ (cm ³ /cm ³)	Saturated hydraulic conductivity Ks (cm/s)	Loss-on -ignition Li (%)	SOC (%)	SON (%)	C/N	Fiber content H*
Peat 1	0	1.42	0.061	1407	0.96	4.26E-03	70.8	38.3	1.1	33.9	70.7
	5	1.44	0.090	992	0.94	4.29E-03	60.6	34.6	1.3	27.4	89.1
	10	1.42	0.092	966	0.93	3.68E-03	61.6	34.3	1.2	28.9	84.4
	15	1.65	0.104	912	0.92	3.90E-03	58.0	27.8	0.9	33.6	88.1
	20	1.49	0.158	638	0.86	3.96E-03	50.2	52.3	1.5	35.6	91.0
	30	1.37	0.108	1206	0.92	3.69E-03	82.0	28.7	1.0	27.4	86.9
Peat 2	12.5	2.63	-	283	0.88	5.75E-03	78.8	89.7	2.1	41.7	63.1
	22.5	1.86	-	700	0.94	-	94.6	72.9	1.3	54.5	18.3
	32.5	1.70	0.078	959	0.95	1.09E-03	95.7	86.7	1.0	84.7	11.4
	42.5	1.44	-	922	0.91	-	96.7	86.6	1.1	81.3	-
	52.5	1.80	-	955	0.94	1.72E-03	96.8	72.8	0.9	85.0	19.4
	62.5	1.51	-	763	0.94	-	97.7	71.3	0.8	90.8	-
Peat 3	15	1.58	-	315	0.90	1.83E-03	32.8	52.6	2.4	21.7	80.2
	30	1.54	0.122	720	0.92	4.61E-04	93.8	64.8	2.9	22.4	3.8
	40	1.52	-	833	0.94	2.79E-03	92.7	81.2	2.8	28.7	19.6
	60	1.48	0.099	953	0.93	1.64E-03	88.7	81.6	2.3	36.2	6.8

*HCl washing (ASTM)

$$C(L_s, t) - C_i = 2\epsilon \frac{\exp(-D_p \alpha_1^2 t / \epsilon)}{L_a L_s \{\alpha_1^2 + (\epsilon / L_a^2)\} + \epsilon / L_a} \quad [2]$$

ここで、 L_s ：試料の高さ (cm)， L_a ：拡散容器の高さ (cm)， $C(L_s, t)$ ：拡散容器中の拡散ガス濃度 (g cm⁻³)， C_i ：外気中の拡散ガス濃度 (g cm⁻³)， C_0 ： $t=0$ における拡散容器内の拡散ガス濃度 (g cm⁻³)， α_1 ： $\alpha \tan(\alpha L_s)$ の1番目の正の根。

実際の D_p の算出にあたっては、 $\ln \{(C_t - C_i) / (C_0 - C_i)\}$ を時間 t に対してプロットし、得られた直線の傾き $-D_p \alpha_1^2 / \epsilon$ から D_p を求めた。算出した土壌ガス拡散係数 D_p は、大気中における酸素のガス拡散係数 D_0 ($= 2.04 \times 10^{-1}$ cm² s⁻¹)との比をとり、相対土壌ガス拡散係数 D_p / D_0 として評価した。

2.3 予測モデルと実測データの適合性評価

土壌ガス拡散係数 (D_p) の実測データと予測モデルとの適合性評価には二乗平均平方根誤差 (Root Mean Square Error, 以下RMSE) とバイアス (bias) を用いた。RMSEは次式で表される。

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n d_i^2} \quad [3]$$

ここで、 d_i は予測値と実測値との差、 n は測定数である。予測値と実測値との差が小さいほどRMSEは0に近くなり、両者の適合性が良いことを意味する。バイアス

は次式で表される。

$$bias = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n d_i \quad [4]$$

バイアスの値が正の場合は、予測値が実測値を過大評価し、逆に負の場合は予測値が実測値を過小評価していることを示す。

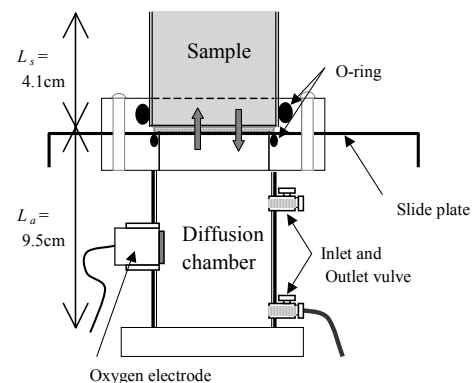


Fig. 2 Experimental device for measuring the soil-gas

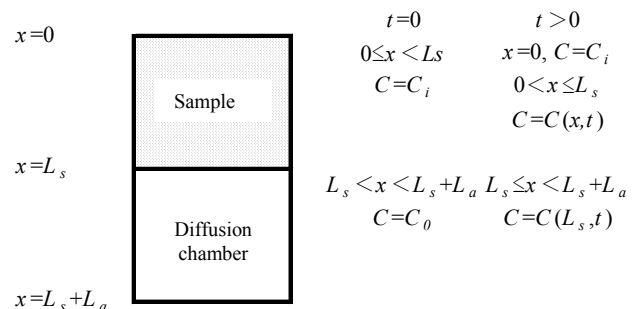


Fig. 3 Initial and boundary conditions for calculating the soil-gas diffusion coefficient.

3.1 既存の予測モデル

土壌ガス拡散係数 D_p の予測モデルは、経験式^{10), 11), 12)}や理論式によるモデル¹³⁾、半理論式で表現されるモデル^{14), 15)}など、これまで数多く提案されている。

Buckinghamモデル¹¹⁾は、間隙の連結度を表す指標 X を用いて、次式で表される：

$$D_p / D_0 = \varepsilon^X \quad [5]$$

ここで、 ε は気相率 ($\text{cm}^3 \text{ cm}^{-3}$) である。 X は、実測データから次式で算出される¹⁶⁾：

$$X = \frac{\log(D_p / D_0)}{\log(\varepsilon)} \quad [6]$$

一般鉱物土壌では、 $X=2$ となることが報告されている¹¹⁾。

Millington and Quirk (MQ)モデル¹³⁾は最も普及しているモデルであり、全間隙率 ϕ ($\text{cm}^3 \text{ cm}^{-3}$) を用いて、次式で表される：

$$D_p / D_0 = \varepsilon^{10/3} / \phi^2 \quad [7]$$

Macropore-dependent (MPD)モデル¹⁵⁾は、ヨーロッパ土壌 126 個の不攪乱試料の D_p の実測データを基に構築されたモデルである。基準気相率となるpF2.0における気相率 ε_{100} ($\text{cm}^3 \text{ cm}^{-3}$) との関係である[8]式とCampbellの保水係数 b を用いて、[9]式のように記述される：

$$D_{p,100} / D_0 = 2\varepsilon_{100}^3 + 0.04\varepsilon_{100} \quad [8]$$

$$D_p / D_0 = (D_{p,100} / D_0)(\varepsilon / \varepsilon_{100})^{2+3b} \quad [9]$$

3.2 予測モデルの改良

本研究では、既存の予測モデルの中で、Buckinghamモデルと MPD モデルを用いて、実測データを基に両モデルに改良を加え、新たな 2 タイプの予測モデルを提案した。

Fig. 4 に[6]式により得られた X と ε の関係を示す。 X は ε の増加とともに増加し、一般鉱物土壌における $X=2$ から大きく乖離することが分かる。このため、 X と ε の

関数として扱い、その直線回帰式、 $X = 1.7(1+2\varepsilon)$ ($r^2 = 0.58$)、を求めた。この回帰式を[5]式に代入すると、次式が得られる：

$$D_p / D_0 = \varepsilon^{1.7(1+2\varepsilon)} \quad [10]$$

Fig. 5 には、pF2.0 において測定された $D_{p,100}/D_0$ と ε_{100} の関係を示した。MPDモデルで用いられる関係式 ([8]式) は、不飽和泥炭土の $D_{p,100}/D_0$ - ε_{100} 関係を上手く表現することはできないことが分かる。このため、MPDモデルの[8]式を、実験データを直線回帰して得られた式、 $D_{p,100}/D_0 = 0.23(\varepsilon_{100}-0.04)$ ($r^2 = 0.83$)、で置き換え、修正MPDモデルを得た：

$$D_p / D_0 = [0.23(\varepsilon_{100} - 0.04)] / (\varepsilon / \varepsilon_{100})^{2+3/b} \quad [11]$$

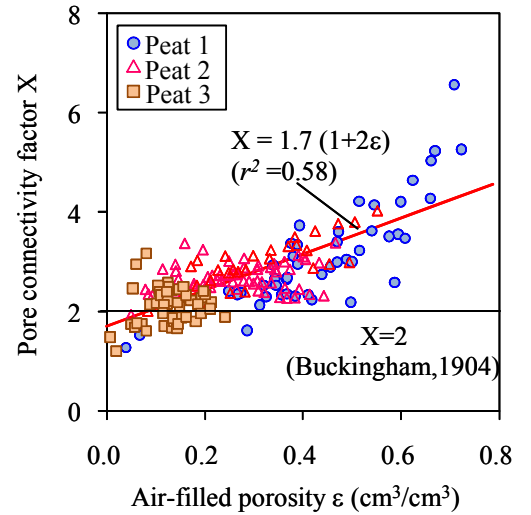


Fig. 4 Pore connectivity factor X as a function of ε .

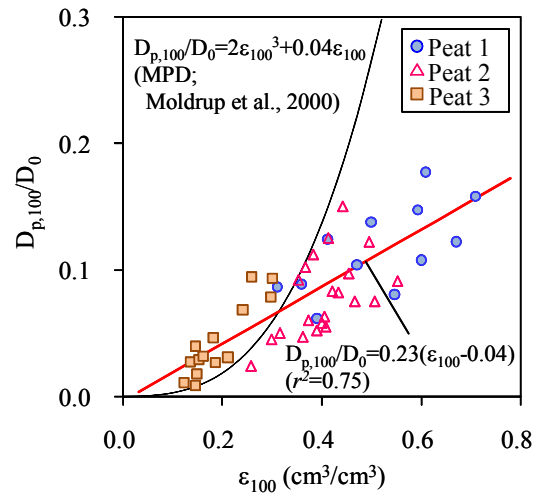


Fig. 5 Soil-gas diffusivity ($D_{p,100}/D_0$) as a function of air-filled porosity (ε_{100}) at pF2.0.

本研究で新たに得られた修正Buckinghamモデル ([10]式) と修正MPDモデル ([11]式) を、既往の研究で報告されている高有機質土ならびに泥炭土の土壌ガス拡散係数のデータ^{15), 16), 17)}に適用し、その有効性を検討した。文献データの土壌特性をTable 2に示した。モデルの検証では、比較のため、既存予測モデルであるBuckinghamモデル ([5]式, $X=2$)、MQモデル ([7]式)、MPDモデル ([9]式) の適合性も検討した。

Fig. 6に予測モデルと文献データとの比較を示した。また、適合性の指標となるRMSE ([3]式) とbias ([4]式) の一覧をTable 3に示した。本研究で提案した修正Buckinghamモデル ([10]式) と修正MPDモデル ([11]式) は、低 ε の範囲 ($0.2 < \varepsilon < 0.4$) において文献データを過大評価するものの、既存モデルよりも良い適合性を示した。特に、修正Buckinghamモデルは高 ε の範囲 ($0.5 < \varepsilon < 0.9$) において非常に良い適合性を示した。このことから、本研究で提案した修正予測モデルは他の高有機質土ならびに泥炭土の D_p 予測にも十分適用可能であると言える。

5. まとめ

本研究では、不飽和泥炭土を対象として、既存のBuckinghamモデルとMPDモデルを用いて、実測データを基に両モデルに改良を加え、新たな2タイプの予測モデルを提案した。

本研究では、北海道美唄湿地より採取した泥炭土試料の土壌ガス拡散係数 (D_p) を実測した。これらの測定データに基づき既存の D_p 予測モデルを修正することにより、新たに2つの D_p 予測モデルを提案した。これらの D_p 予測モデルの有効性を、文献データを用いて検証した結果、修正Buckinghamモデルは不飽和泥炭土の D_p を非常に良く表現することが示された。

今後は、泥炭土の間隙構造解析から得られる間隙情報 (粗大間隙分布・屈曲度・連結度・異方性など) を予測モデル構築に取り込む予定である。

Table 2. Soil physical properties for independent data

Soil	Fiber/mineral density (g/cm ³)	Dry bulk density (g/cm ³)	Total Porosity (cm ³ /cm ³)	Reference
Organic soil A	1.78	0.30	0.83	Freijer (1994)
Organic soil B	1.59	1.50	0.91	Freijer (1994)
Peat soil A	1.41	0.084	0.90	King & Smith (1987)
Peat soil B	-	-	0.5 at pF 1.1	Gislerod (1982)

Table 3. Model performance against independent datasets.

Model	RMSE	bias
Buckingham (1904)	0.186	0.151
MQ (1961)	0.144	0.101
MPD	0.343	0.239
Buckingham-based	0.036	0.013
MPD-based	0.068	0.041
PC-based	0.075	-0.030

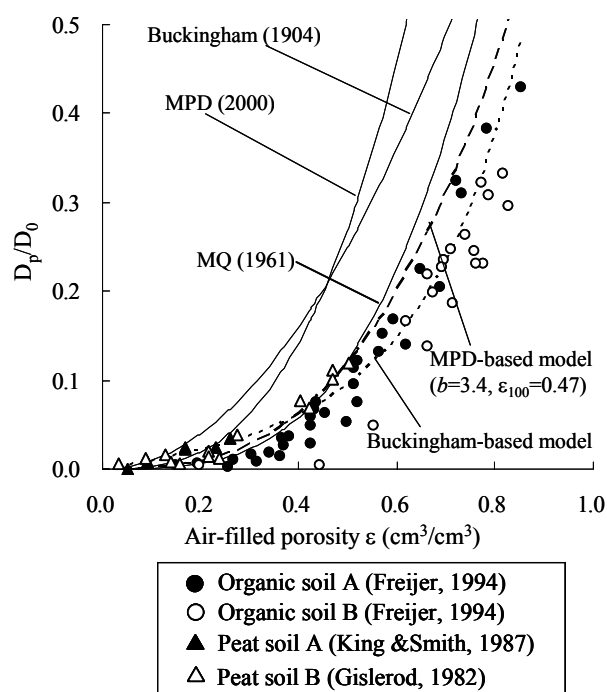


Fig. 6 Independent measured D_p/D_0 values and predictions by existing and newly-developed models.

謝辞

本研究の遂行にあたり、長谷川周一氏、永田修氏、常田岳氏、飯山一平氏からご協力・ご助言を頂いた。本研究は、埼玉大学総合研究機構プロジェクト経費、平成20年度平和中島財団国際学術共同研究助成、日本学術振興会科学研究費（No.18360224）の補助を得た。ここに記して謝意を表す。

参考文献

- 1) 木暮敬二, 高有機質土の地盤工学, 東洋書店, 1995.
- 2) 山口晴幸, 松尾啓, 大平至徳, 木暮敬二, 泥炭および泥炭地盤の土質工学的性質, 土木学会論文集, No.370/III-5, pp.271-280, 1986.
- 3) Iiyama, I., and Hasegawa, S., Gas diffusion coefficient of undisturbed peat soils, *Soil Sci. Plant Nutr.* 51, pp. 431-435, 2005.
- 4) Iiduka, K., K. Kawamoto, T. Komatsu, and S. Hasegawa, Effect of shrinkage following drainage on soil-gas diffusivity and air conductivity in peat soil., *J. Jpn. Soc. Civil Engineers* 64(3), pp. 242-249, 2008 (in Japanese with English summary).
- 5) Klute, A., Water retention: Laboratory methods. pp. 635-662, *In* A. Klute (ed.). *Methods of Soil Analysis: Part I. Agron. Monogr. 9.* ASA and SSSA, Madison, WI, 1986.
- 6) Campbell, G.S., A simple method for determining unsaturated conductivity from moisture retention data, *Soil Sci.* 117, pp.311-314, 1974.
- 7) 遅沢省子, 土壌ガス拡散係数測定と土壌診断, 土壌の物理性 55, pp.53-60, 1987.
- 8) Rolston, D. E. and Moldrup, P., Gas Diffusivity, *In* J. H. Dane and G. C. Topp (eds.), *Methods of Soil Analysis, Part 4.* SSSA Book Ser.5, ASA and SSSA, Madison, WI, pp.1113-1139, 2002.
- 9) Currie, J. A., Gaseous diffusion in porous media: Part 1. A non-steady state method, *Br. J. Appl. Phys.*, No.11, pp.314-317, 1960.
- 10) Penman, H. L., Gas and vapor movements in soil: The diffusion of vapors through porous solids, *J. Agric. Sci.* 30, pp.437-462, 1940.
- 11) Buckingham, E., Contributions to our knowledge of the aeration of soils, *USDA Bur. Soil Bul.* 25. U.S. Gov. Print. Office, Washington, DC, 1904.
- 12) Call, F., Soil fumigation: V. Diffusion of ethylene dibromide through soils, *J. Sci. Food Agric.* 8, pp.143-150, 1957.
- 13) Millington, R.J., and J.M. Quirk, Permeability of porous solids, *Trans. Faraday Soc.* 57, pp.1200-1207, 1961.
- 14) Moldrup, P., T. Olsen, T. Yamauchi, P. Schjønning, and D.E. Rolston. Modeling diffusion and reaction in soils: IX. The Buckingham-Burdine-Campbell equation for gas diffusivity in undisturbed soil, *Soil Sci.* 164, pp. 542-551, 1999.
- 15) Moldrup, P., T. Olsen, P. Schjønning, T. Yamauchi, and D.E. Rolston, Predicting the gas diffusion coefficient in undisturbed soil from soil water characteristics, *Soil Sci. Soc. Am. J.* 64, pp.94-100, 2000.
- 16) Currie, J.A., Gaseous diffusion in porous media: Part 1. A non-steady state method, *Br. J. Appl. Phys.* 11, pp.314-317, 1960.
- 17) King, J.A., and Smith, K.A., Gaseous diffusion through peat, *J. Soil Sci.* 38, pp.173-177, 1987.
- 18) Freijer, J.I., Calibration of jointed tube model for the gas diffusion coefficient in soil, *Soil Sci. Soc. Am. J.* 58, pp.1067-1076, 1994.
- 19) Gislerod, H.R., Physical conditions of propagation media and their influence on the rooting of cuttings. *Plant Soil* 69, pp.445-456, 1982.