

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 22 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24380130

研究課題名(和文) 土壌中の封入空気が湿潤気候下の地表面限界領域における物質移動に与える影響

研究課題名(英文) Effects of entrapped air on mass transport through surface critical zone under humid climate

研究代表者

西村 拓(Nishimura, Taku)

東京大学・農学生命科学研究科・教授

研究者番号：40237730

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,000,000円

研究成果の概要(和文)：土壌の水分状態には飽和と不飽和がある。土壌の物理性は、水分飽和と水分不飽和で大きく異なる。土中に封入空気が存在すると見かけ上、水分飽和に見える土中の移動現象が大きく変わる。これを念頭に封入空気の影響の把握、土中の気相の状態をモニタリングするシステムの構築、水溶性化学物質やコロイドの土中の移動現象の解明ならびに原位置で水、コロイドの土中の移動の実態把握を行う装置の開発を行った。特に、封入空気の存在は、わずか数%の体積含水率の変化を通じて土中の移動現象を大きく変える可能性があることが示唆された。

研究成果の概要(英文)：Mass and energy transport through soils is strongly affected degree of water saturation. Entrapped air in the soil may affect mass and energy transport even though the soil still seems to be water saturation. Decrease in water saturation for a few percentiles due to entrapped air bubbles may affect water flow through the soil. Considering these points of view we conducted following items, such as, to evaluate effect of entrapped air on hydraulic conductivity of quasi-saturated soils, to construct a monitoring system to grasp conditions of air phase in a partially saturated soil, to discuss reactive transport of ions and colloids through the soil and design and construct an experimental tool based on the concept of tension disk infiltrometer to study saturated and unsaturated water and solute transport in situ.

研究分野：環境地水学

キーワード：封入空気 溶質移動 イオン交換 吸着等温線 透水係数

1. 研究開始当初の背景

土壌の水分状態として、飽和と不飽和がある。不飽和状態にはさらに、気相が大気と連結する開放不飽和と気相が孤立する封入不飽和がある。土壌の物理性や生化学的条件は、飽和状態と不飽和状態で大きく異なる。孤立した気相(以下、封入空気)の発生は様々な土壌条件下で生じる普遍的な現象である。実際には成層土壌でなくとも、圃場含水量程度のまだ十分水分を持っている不飽和土壌に降雨が与えられた時に、土壌中に封入空気が生じることが知られている。

土壌の体積含水率に応じて透水性が変化する不飽和透水係数は土壌物理学の基礎的知見の一つである。飽和状態では気相を通じたガスの移動が無いため、土中への酸素の供給は液相を通じたものだけに制限され、その結果、Fe や Mn といった金属イオンは還元状態を示し、土中の C や N は、CH₄ やアンモニアイオンの形を取ることが多い。他方、開放不飽和の場合は、金属イオンは酸化状態になり、C、N は、CO₂ や硝酸イオンの形をとることが多い。微生物の群生生態もまた、酸素の供給に応答して変化する。封入不飽和の場合は、どちらかという飽和状態と類似すると考えられている。また、土中の化学物質の移動に寄与すると指摘されているコロイドの移動も、土中の気相の有無やその状態に影響されることが指摘されている(Flury & Qui (2008)).

参考文献: Flury & Qui (2008) Vadose Zone J. 7:682-697

2. 研究の目的

本研究では、

- 1) 封入不飽和状態の実態把握と Sakaguchi モデル*の検証
- 2) 土中の気相の状態をモニタリングするシステムの構築
- 3) 水溶性化学物質やコロイドの土中の移動現象の解明
- 4) 原位置で封入不飽和、開放不飽和が生じるような水分条件を人工的に創出し、この条件下で、水、コロイドの土中の移動の実態把握を行う装置の開発を目的とする。

*Sakaguchi et al. (2005) Vadose Zone J. 4: 139-144

3. 研究の方法

(1) 封入不飽和状態の実態把握と Sakaguchi モデル*の検証

Sakaguchi et al. (2005)(既出)と同様に一定体積の金属円筒に土を充填し、飽和—排水—飽和を繰り返すことで土中に封入空気を生じさせる。封入空気の量は、排水時の負圧ならびに排水時間を操作することで調整する。その後、飽和透水係数を測定し、封入空気量と透水係数の関係を得る。さらに 100mL 容量

の金属円筒を 5 倍程度長いプラスチック円筒にスケールアップし、溶質移動実験を行う。

(2) 土中の気相の状態をモニタリングするシステムの構築

土中の気相にシリンジなどを挿入してガスを採取し、ガスクロマトグラフなどで定量する方法がよく用いられるが、この方法では、土中に気圧勾配を生じる可能性が高い。すなわち、シリンジの先端の吸引部で気圧が下がり、これに起因する圧力勾配に寄って、通常土中では生じないようなガスの移流分散が生じる可能性が高い。これが発生すると、土中のガス濃度分布にも影響を与え、実験の信頼性が低下する。そこで、土中のガス分布に極力外乱を与えないことを目的にモニタリング装置を製作した。

具体的には、近赤外 CO₂ センサーを気体を通過させる樹脂のフィルムで包み、水が浸入しないように丁寧に封印する。強度を補強するため、多孔性の薄板円筒(素材はプラスチックもしくは金属)で周囲をカバーする。これを土中に埋設し、一定の時間間隔でフィルム内のガス濃度を測定する。樹脂フィルムの素材と厚さによってガスの透過し易さが変わるため、予め複数の素材、厚さのフィルムを使用して予備実験を行い、強度とガス透過性が高く、耐水性のあるものを選んでセンサーを製作した。

作成したセンサーを土壌に挿入し、モニタリングしたガス濃度値と従来通りにシリンジでサンプリングした試料のガス濃度を比較して性能評価を行った。

(3) 水溶性化学物質やコロイドの土中の移動現象の解明

① 土中の水溶性物質の移動は多くの場合、イオン交換または吸着を線形の交換等温線と近似したモデルが使われる。しかし、実際に液相の濃度範囲を非常に狭くしない限り、線形の交換等温線になることは多くない。そこで、フロイドリッヒ式、ラングミュア—式といった非線形の交換等温線と線形交換等温線が水溶性化学物質の移動に影響する程度を評価した。検討は主として PhreeqC、Hydrus-1D といった実績がありながらフリーウェアとして入手可能な数値計算コードを使用した。

② イオン交換とは別に、液相のコロイド粒子が化学物質移動に大きく寄与する可能性がある。また、開放不飽和、封入不飽和においては、土中の気液界面においてコロイドがトラップされる可能性も指摘されている(Flury and Qui 2008) 既出)。そこで、溶存有機物の有無と化学物質移動の程度、固体の有機性・無機性コロイドの有無と化学物質移動の程度をカラム実験で検討した。

(4) 原位置で封入不飽和、開放不飽和が生じるような水分条件を人工的に創出し、この条件下で、水、コロイドの土中の移動の実態把握

を行う装置の開発

負圧浸入計装置を応用し、土中に一次元下方の流れを作るようにパイプを打ち込み、これに水分や電気伝導度を測定する TDR センサーを側面から挿入する。負圧浸入計をパイプ上端に載せ、任意の給水圧力で給水することで飽和→不飽和→飽和というように土中水分制御を行いながら給水を行う。溶質の移動について検討する際は、負圧浸入計を 2 台用意し、一方には水を、他方には電解質溶液を満たし、途中で給水ディスクを交換することで室内カラム実験と同様にモデル化学物質の負荷を行うことができる。

4. 研究成果

(1) Sakaguchi et al.(2005)と同様に水分飽和に見えても封入空気が体積割合で 10%程度になる場合があること、すなわち、飽和に見えても実際の体積含水率は間隙率よりも最大で 10%程度低くなる場合があることが確認された。既往の研究で、土壌の生物性を検討する際に圃場用水量や飽和含水量といった概念を適用することがあるが、この図が示唆するように、飽和と誤っていても最大体積含水率で 10%程度、透水性で数分の一程度の違いが出てくることに注意する必要がある。

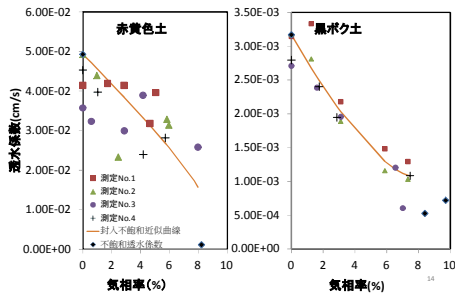


図 封入空気量(m³ m⁻³)と透水係数

水溶性物質の土中の移動に関しては、わずかに封入空気が入ることで、見かけ上は飽和水分量とほとんど変わらないような水分量であっても水溶性化学物質の混和移動に違いが生じる可能性があることが明らかになった。

	完全飽和	封入不飽和
水フラックス [q: cm s⁻¹]	8.54×10⁻³	1.97×10⁻³
体積含水率	0.77	0.71
間隙流速 [v: cm s⁻¹]	1.10×10⁻⁴	2.73×10⁻⁵
溶質分散係数 [D: cm² s⁻¹]	7.50×10⁻⁵	2.84×10⁻⁵
分散長 [cm]	0.68	1.04
測定位置/カラム長 [cm]	9/10	9/10

表 混和移動実験の結果のまとめ

(2) 土中の気相の状態をモニタリングするシステムの構築

試行錯誤の結果、下図に示すようなセンサ

ーを土中に埋設することで土中ガス濃度を気相への外乱なく測定できるようになった。

実際に従来から行われてきたガス採取管をもちいたサンプリングによる測定結果と比較した結果、埋設したセンサーの出力は、サンプリングによるガス濃度測定の結果と大差なく、性能についても問題がないと考えられた。さらには、3 時間程度の時間分解で経時的に測定できるため、従来のサンプリング法では見ることができなかった時間変動も検出できることがわかった。

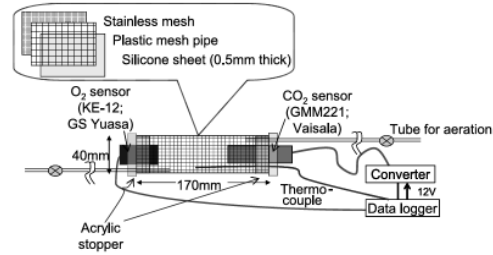


図 Compact-Buried Tube Gas Monitoring system(C-BT-GMS)の概要 (加藤他, 2013)

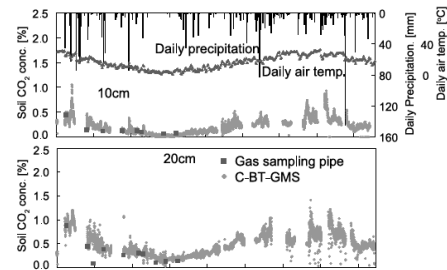


図 C-BT-GMS とガス採取管を用いて測定した深さ 10, 20, 50cm の位置の土壌中 CO2 濃度(加藤他, 2013)

(3) 水溶性化学物質やコロイドの土中の移動現象の解明

① 通常、土中の反応性化学物質の移動をモデル化する場合、簡単のため、線形の吸着等温線を仮定し、これと水溶性化学物質の移流分散方程式を結合することで、吸着（イオン交換）反応による化学物質移動の遅延を評価することが多い。この場合、遅延係数 R は

$$R = 1 + \frac{k_d \rho_d}{\theta}$$

となる。ここで k_d は分配係数 ($L \text{ kg}^{-1}$), ρ_d は土の乾燥密度 ($M \text{ L}^{-3}$), θ は体積含水率である。実際に吸着等温線は、線形よりも非線形の Freundlich 式や Langmuir 式であらわされることが多い。そこで、次式のように吸着等温線を Freundlich 式($\eta=0$)や Langmuir 式($\eta \neq 0$)で仮定すると遅延係数 R は、

$$S = \frac{k_d C^\beta}{1 + \eta C^\beta}$$

$$R = 1 + \frac{\rho_d}{\theta} \left(\frac{k_d \beta \cdot C^{\beta-1} \cdot (1 + 2\eta C^\beta)}{(1 + \eta C^\beta)^2} \right)$$

となる。ここで C は、液相における対象化学物質の濃度を表す。この式は、溶質の移動速度と水の移動速度の違い（溶質移動の遅延）が液相の濃度に依存することを示唆している。

Freundlich 式を仮定してパラメータを適当に与えると次図のような吸着等温線が得られる。

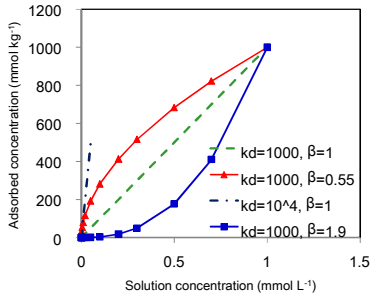


図 Freundlich 式のパラメータと吸着等温線の概要(西村, 2014)

これを用いて土中の水溶性化学物質の移動にイオン交換反応の及ぼす影響についてシナリオスタディを行った結果が次の図になる。同じ $K_d=1000$ において、 $\beta=0.55$ と $\beta=1.5$ は非常に面白い違いを与える。いずれも同じ K_d 値のため、液相の対象化学物質濃度が 1 mmol L^{-1} の時の吸着量は同じである。しかし、 $\beta=0.55$ の場合、低濃度の時に液相の濃度変化に対する吸着量の増加が著しいのに対して $\beta=1.5$ の場合はある程度以上の濃度にならないと吸着が顕著にならない。結果として濃度ピークの移動は β 値に依らずほぼ同じであるが、ピーク下方の濃度の逡減の傾向が大きく異なる。

低濃度において吸着の著しい $\beta=0.55$ (▲) は、低濃度における吸着が抑制されている $\beta=1.5$ (■) のケースに比べて下方における濃度低下が著しい。

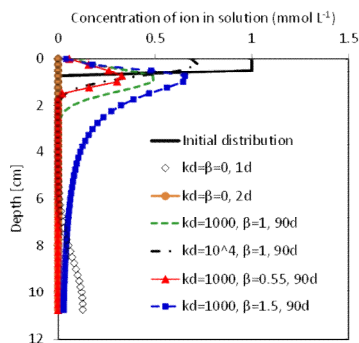


図 Freundlich 吸着等温線の β 値と土中のイオン分布 (西村, 2014)

② 液相にコロイド粒子がある場合は、水溶性イオンの移動だけではなく、コロイドに吸着したイオンの移動も考慮する必要がある。そこで、福島第一原子力発電所の事故で放出された放射性 Cs が沈着した森林の林床のリターを採取し、これから抽出したコロイド粒子を含む懸濁液を土壤に流入してコロイドが懸濁液中の化学物質の移動に及ぼす影響を検討した。

リターから抽出したコロイドは、レーザー散乱装置 (ELSZ 型, 大塚電子) で粒径を確認したところ $0.1 \sim 1 \mu\text{m}$ (最頻値: $0.28 \mu\text{m}$) という粒径分布を持っていた。これは、 $0.45 \mu\text{m}$ メッシュのメンブレンフィルターを通過する大きさである。これを二分割し、一方は蒸留水で希釈し(懸濁液 A)、他方は過酸化水素水で有機物を分解した後に蒸留水を加え(懸濁液 B) 1000 Bq L^{-1} 程度の放射性 Cs 濃度にした。これらの懸濁液を土壤カラムに負荷した際の下端からの排出液中の放射性 Cs 含量が次の図である。

リターから抽出したコロイド懸濁液を負荷した際、2 ポアボリューム程度から下端排出液中の放射性 Cs 濃度が上昇し始め、4 ポアボリューム程度から負荷した物質の 6 割程度が定常的に流出した。これに対して過酸化水素水で有機物を改変した懸濁液 B では、9 ポアボリューム(給水深換算で 240 mm 程度)懸濁液を与えても大部分が土壤カラム内に補足され、下端から排出液中に放射性 Cs は検出されなかった。

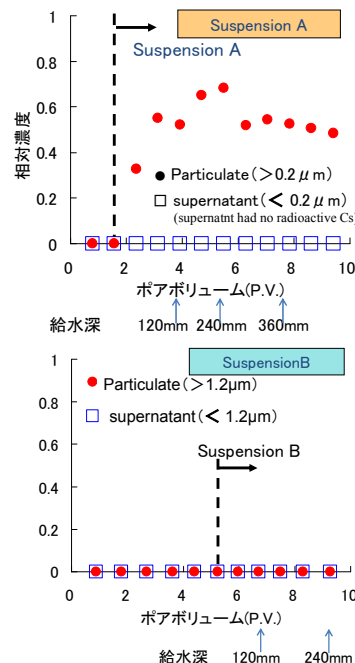


図 土壤カラム下端排出液中の放射性 Cs 含量。

実験後に土壤カラムから深さ毎に試料を採取してカラム内に残存した放射性 Cs を測定した結果が次の図になる。図中、懸濁液 A と懸濁液 B の間で顕著に土中の放射性 Cs 分布

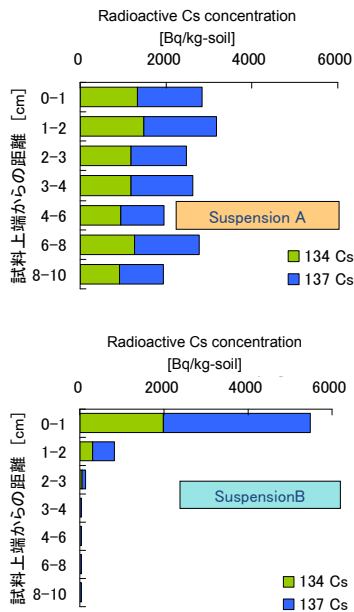


図 Cs 含有懸濁液を負荷した後の土壤中の放射性 Cs 分布

が異なることがわかる。懸濁液 A では、10 cmのカラムにほぼ均一に放射性 Cs が残存しているのに対して、懸濁液 B では、地表近傍で大半が捕捉されて下方への移行は少ない。すなわち、コロイドの表面の性質の違いによって土中におけるコロイドの移動さらには、コロイドに収着している化学物質の移動が大きく異なることが示唆された。

(4) 不飽和水分条件下で水・溶質移動の把握を行う原位置実験装置の開発

原位置で不飽和条件の下の物質移動を把握することは容易ではない。そのため、従来、不飽和透水係数、溶質分散係数の測定は室内実験として行うことがほとんどであった。近年、負圧浸入計(Perroux & White 1988)の装置ならびに解析手法の進歩によって、原位置でも不飽和透水係数や溶質移動の測定がある程度可能になってきた。そこで、図のような装置を製作し、原位置で水・溶質移動をモニタリングする実験を行った。

側面にセンサーを挿入する孔を事前に開けた塩ビパイプを土壌の側圧を減らすために適宜周囲を掘り出しながら地盤へ打ち込んでいく。所定の深さまで打ち込んだら、センサーを挿入する位置の外壁外側にセンサーのためのスペースを作り、センサーを挿入する。その後、パイプ上端に負圧浸入計を改良した給水装置を設置し、一次元で飽和不飽和の水移動を与える。このとき供給水に電解質を入れると、センサー部の EC の変化から電解質溶液の土中の移動を把握することができる。

負圧浸入計の給水圧力を変えて給水を行った結果、給水圧の変化と給水速度は、比較

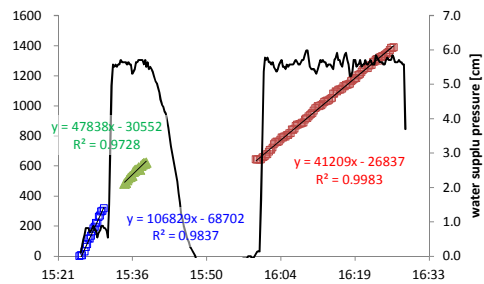


図 給水圧力と積算浸入量

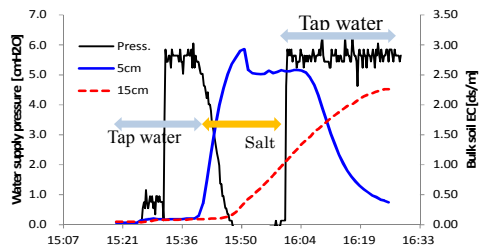


図 原位置実験中の土壌 EC の変化

的よく一致することが確認できた。1 回目の給水圧-6cmH₂O 時の給水速度よりも 2 回目の給水圧-6cmH₂O 時の給水速度が小さな値を示すのは、ヒステリシスの影響が推察される。

土壌 EC を測定するセンサーは、深さ 5 cm の位置のセンサーは供給水の切り替えに鋭敏に反応するのに対して、深さ 15cm のセンサーは想定通りに反応が遅延が生じており、原位置土壌の鉛直方向の溶質移動特性を反映していることがわかる。

参考文献

Perroux & White (1988) Soil Sci. Soc. Am. J. 52:1205-1215

5. 主な発表論文

(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 5 件)

1. 加藤千尋, 西村 拓: 農地土壌水分状態予測に向けた GCM 予測値の時間ダウンスケーリング手法の検討, 農業農村工学会論文集, 83(1), 11-18 (2015)
2. Guo, Linlin, T. Nishimura, and H. Imoto, Behavior of carbon dioxide in soils affected by tillage systems, Paddy and Water Environment, DOI 10.1007/s10333-014-0440-4 (2014)
3. 西村 拓, 土壌中の放射性 Cs の移動, 土壌の物理性, 126, 37-43(2014)
4. 加藤千尋, 井本博美, 西村 拓, 宮崎毅 (2013) 小型チューブ埋設型土壌ガスモニタリングシステムを用いた農地土壌中 CO₂ ガス濃度変動の検討、土壌の物理性、124, pp.25-33
5. Kato C., T. Nishimura, H. Imoto, and T.

Miyazaki (2014) Predicting Soil CO₂ Dynamics in Arable Land of Andisol Using SOILCO₂ Model, Journal of Hazardous, Toxic, and Radioactive Waste (<http://ascelibrary.org/doi/pdf/10.1061/%28ASCE%29HZ.2153-5515.0000206>)

[学会発表] (計 17 件)

1. Kato, C. and T. Nishimura, 54-7 Effects of Climate Change on Soil Water Condition in Agricultural Lands in Japan, Inter. Annual Meeting of Soil Science Society of America, Long Beach CA, USA, Nov. 3, 2014.
2. 西村 拓, 山崎 琢平, 加藤千尋, 大澤 和敏, 溝口 勝, 伐採林地における土壌有機物と放射性 Cs の移動, 農業農村工学会全国大会講演要旨集, pp.96-97, (2014.8.27 朱鷺メッセ, 新潟市)
3. 辰野 宇大, 大澤 和敏, 西村 拓, 溝口 勝, GeoWEPP を利用した福島県飯館村における放射性セシウムの動態評価, 農業農村工学会全国大会講演要旨集 pp.98-99, (2014.8.27 朱鷺メッセ, 新潟市)
4. 西村 拓 土壌コロイドと放射性 Cs の移動, シンポジウム放射能汚染地区の復興支援を考える (2014.03.08 明治大学生田キャンパス, 川崎市)
5. Nishimura T. Colloid facilitated transport of radioactive cesium in a Fukushima soil, ASA, CSSA & SSSA International Annual meetings (Nov, 3-6, 2013, Tampa ,Florida, USA)
6. 加藤千尋, 林祐誠, 西村 拓, 農地土壌水分の広域予測に向けた不飽和水分移動特性の推定法の検討, 第 55 回土壌物理学学会大会(2013.10.26 福島大学, 福島市)
7. 西村 拓 コロイド性物質の移動に伴う Cs の移動, 第 55 回土壌物理学学会大会シンポジウム(話題提供, 2013.10.26 福島大学, 福島市)
8. 山崎琢平, 井本博美, 西村 拓, 斜面地下水中の圧力伝播機構に関する研究, 平成 25 年度農業農村工学会大会 (2013.09.05, 東京農大, 東京)
9. 伊田奈緒美, 西村 拓, 井本博美, 石灰施用に伴う土壌微生物群集の変化と CO₂ 発生, 平成 25 年度農業農村工学会大会 (2013.09.05, 東京農大, 東京)
10. 山崎 琢平, 井本博美, 西村 拓, 斜面地下水中の圧力伝播機構に関する研究, JpGU Meeting 2013 A-GE04 Subsurface Mass Transport and Environmental Assessment, AGE04-04, (2013.05.20, 幕張メッセ, 千葉)
11. Kato C., T. Nishimura, Imoto H., Predicting Soil CO₂ dynamics in the vadose zone of Andisol, JpGU Meeting A-GE04 Subsurface Mass Transport and Environmental Assessment (2013.5.20, 幕

張メッセ, 千葉)

12. Kato C., T. Nishimura, H. Imoto and T. Miyazaki: Predicting soil CO₂ dynamics in arable land of Andisol, 4th Inter. Conference “HYDRUS Software Applications to Subsurface Flow and Contaminant Transport Problems” (Mar. 21, 2013. Prague, Czech Republic)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
国内外の別 :

○取得状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
取得年月日 :
国内外の別 :

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

西村 拓 (Nishimura, Taku)

東京大学大学院農学生命科学研究科・教授

研究者番号 : 40237730

(2) 研究分担者

井本 博美 (Imoto Hiromi)

東京大学大学院農学生命科学研究科・技術職員

研究者番号 : 40419255

(3) 連携研究者

加藤 千尋 (Kato Chihiro)

弘前大学農学生命科学部・助教

研究者番号 : 60728616