

水と溶存イオンの移動に対する畑土壌粒団のsource-sink効果

誌名	日本土壌肥料学雑誌 = Journal of the science of soil and manure, Japan
ISSN	00290610
著者	波多野, 隆介 斉藤, 英樹 江, 耀宗
巻/号	59巻3号
掲載ページ	p. 253-259
発行年月	1988年6月

水と溶存イオンの移動に対する畑土壌粒団の source-sink 効果

D₂O を水のトレーサーとして

波多野隆介*・江 耀宗**・齊藤英樹*・佐久間敏雄*・岡島秀夫*

キーワード 物質移動, 畑土壌粒団, source-sink 効果, D₂O の利用

1. はしがき

土壌中にはさまざまな大きさの粒団が含まれており、これが物質の移動に影響を与える場面が少なくない。しかしながら、土壌中の物質移動の研究は NIELSEN と BIGGAR¹⁻⁵⁾ の一連の報告を緒にして、水理学的手法をそのまま適用しようとするあまりに土壌のもつ不均一な要素を分散係数に集約させる形でなされてきた。その後これらの研究は土壌粒子の荷電とイオンの反応を移動現象のなかに取り込む方向に進み、吸着、負吸着の効果についての解析⁶⁻⁹⁾ が主体となっている。

物質移動における土壌の不均一性の影響についての検討は、PASSIOURA¹⁰⁾ により分散係数の見直しを通して粒団間粗孔隙と粒団内細孔隙を分けて考える必要性が論じられたのを始めとして、徐々に移動の場としての粒団間粗孔隙と貯留・放出の場としての粒団内細孔隙の役割が明らかにされてきている¹¹⁻¹³⁾。

このように移動場が複合系となってきた場合には、土壌粒子の荷電がイオンの移動に及ぼす影響も複雑になってくることが予想される。とくに水の挙動を正確に把握できなければ、これとイオンの挙動の違いを定量的に評価することは困難である。本研究では、粉碎土壌試料と現地の土壌構造をふるい分けた試料により畑土壌が含んでいる粒団の水とイオンの移動に対する影響をカラム実験によって追究した。その際、注入水のトレーサーとして D₂O を用い、同時に KCl 溶液を浸透させて、水と K⁺、Cl⁻ の分布状態を比較検討した。

2. 試料および実験方法

1) 試料

褐色低地土(生振, II AB 層), ローム質褐色火山性土(月寒, II B 層, 恵庭岳起源)を用いた。第 1 表に試料

の理化学性を示した。生振は月寒に比べて粘土質であり、容積重も高い。CEC も生振で高いが、0.2 N KCl 溶液によるバッチ法で得られた AEC は生振では負の値を示した。塩基飽和度は生振で 67.3% と大きく、月寒では 30.5% と小さい。これはとくに生振で Ca²⁺、Mg²⁺ が多かったことによる。

試料は若干乾燥させた後、粗大な有機物やれきを除去するさいに、5mm 程度の土壌粒団をふるい分け(粒団試料)、次いで 2mm 以下に粉碎した(細土試料)。

2) カラム実験

供試したカラムは内径 79mm、厚さ 25mm のアクリル製円筒を 10 個つなぎあわせたものである。試料は適度の毛管水不足(20~40mm)が得られるように初期水分率を pF 水分曲線から pF 3 相当に調整し、細土試料は現地仮比重相当、粒団試料は粒団を破壊しない程度の密状態(生振: 0.73 g/cm³, 月寒: 0.64 g/cm³)に充填した。ただし最上層には、同一試料に D₂O を 500 mg, KCl を 20 meq 相当を前もって均一に添加して、一夜熟成させたものを充填した。カラム底部には排水溜めとして 50mm のガラスビーズ層(粒径 0.4 mm)を配した。かん水量は細土区では 24mm, 40mm (それぞれ 118 ml, 196 ml)であり、粒団区では 24mm かん水のみとした。24mm かん水は 1 時間, 40mm かん水は 2 時間かけて徐々に間断かん水した。かん水終了後、カラム上部をビニール袋で覆い、室温で 24 時間放置した後、厚さ 25mm ごとに切り取った。得られた試料の分析項目と方法は以下のとおりである。

(a) 水分率: 105°C で炉乾燥。

(b) D₂O 濃度: 土壌試料をそのまま真空蒸留することにより精製した後、TCD ガスクロマトグラフ法により定量した¹⁴⁾。

(c) Cl⁻ 濃度: 土液比 1:5 で水抽出した後、イオンクロマトグラフ法により定量した¹⁵⁾。

(d) 交換性陽イオン: 土液比 1:10 で 1 N 酢酸アンモニウム(pH 7)抽出した後、Ca²⁺、Mg²⁺を原子吸光法により、K⁺、Na⁺を炎光法により定量した。

* 北海道大学農学部(060 札幌市北区北 9 条西 9 丁目)

** 同上(現在, 中華人民共和国吉林省延辺農学院)

昭和 62 年 8 月 24 日受理

日本土壌肥科学雑誌 第 59 巻 第 3 号 p. 253~259 (1988)

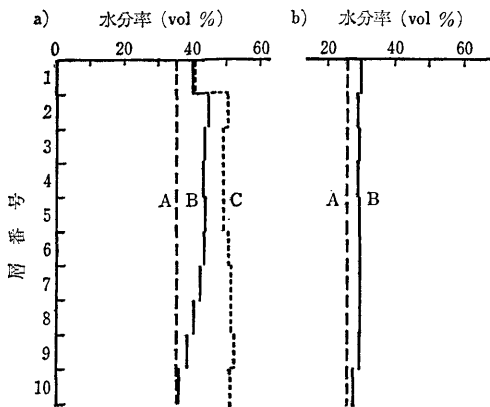
第 1 表 供試土壤の理化学性

土 壤	土性	容積重 (g/cm ³)	pH (H ₂ O)	CEC (meq/100 g)	AEC (meq/100 g)	交換性陽イオン (meq/100 g)			
						Ca	Mg	K	Na
生振褐色低地土	SiC	0.94	6.2	26.6	-2.9	10.2	6.7	0.6	0.4
月寒ローム質火山性土	LiC	0.86	6.1	16.7	2.1	1.4	1.6	0.9	1.2

3. 結 果

1) 水分分布

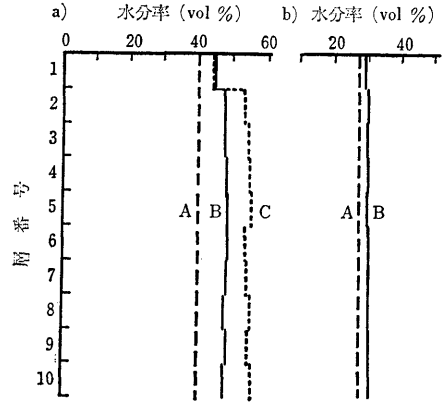
かん水終了後 24 時間目の水分率分布を第 1, 2 図に示



第 1 図 生振カラムのかん水後 24 時間目の水分率分布 (a, 細土区; b, 粒団区)

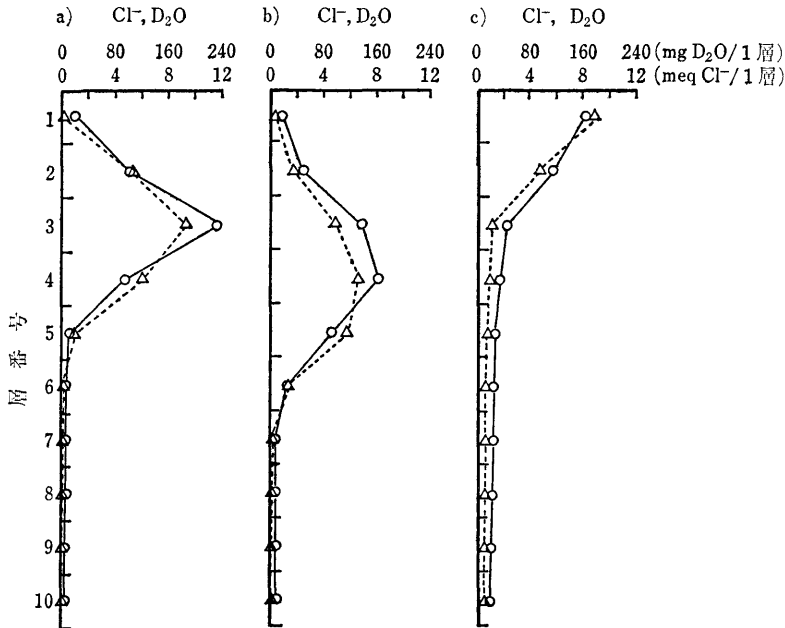
A, 初期状態; B, 24 mm かん水; C, 40 mm かん水.

した. 生振の細土区の 24mm かん水では 2 層目で高く以下漸減し, 10 層目では初期水分率に等しくなっている. 40mm かん水では全層ほぼ一様に増加していた. 粒団区(24mm かん水)では細土区と異なり, 24mm かん水



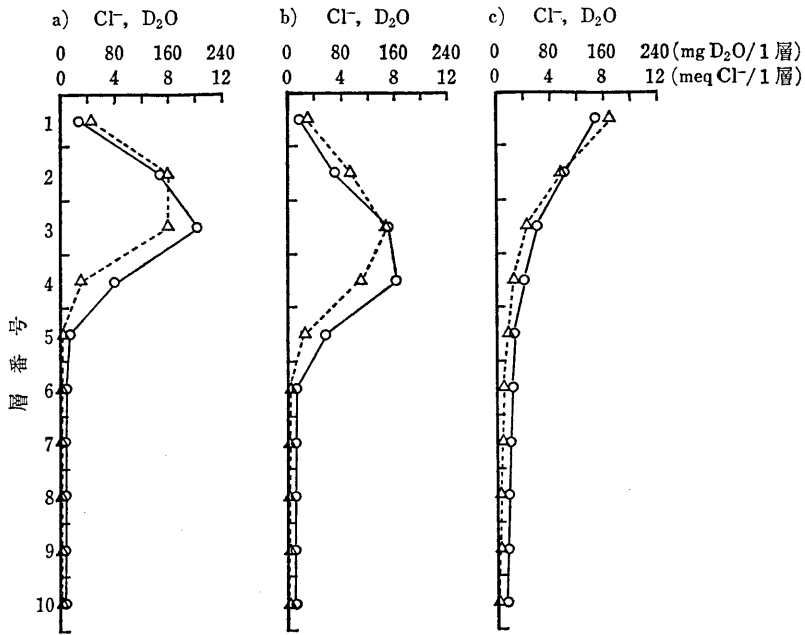
第 2 図 月寒カラムのかん水後 24 時間目の水分率分布 (a, 細土区; b, 粒団区)

A, 初期状態; B, 24 mm かん水; C, 40 mm かん水.

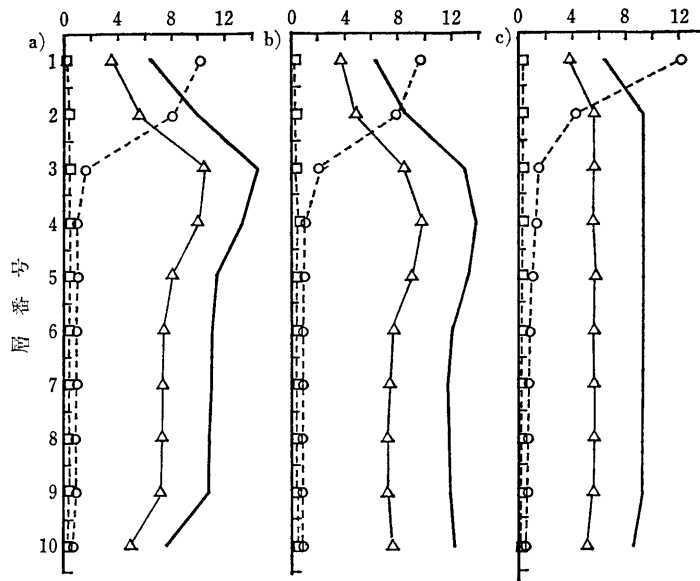


第 3 図 生振カラムのかん水後 24 時間目の D₂O と Cl⁻ の分布

a, 細土区 24 mm かん水; b, 細土区 40 mm かん水; c, 粒団区 24 mm かん水. ○, D₂O; △, Cl⁻.



第4図 月寒カラムのかん水後24時間目の D_2O と Cl^- の分布
 a, 細土区 24 mm かん水; b, 細土区 40 mm かん水; c, 粒団区 24 mm かん水。○, D_2O ; △, Cl^- 。
 交換性陽イオン ($meq/1$ 層)

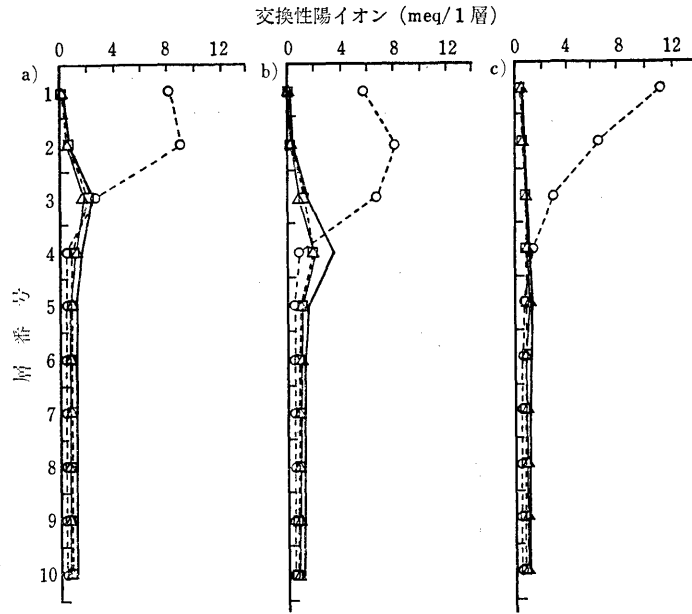


第5図 生振カラムのかん水後24時間目の交換性陽イオンの分布
 a, 細土区 24 mm かん水; b, 細土区 40 mm かん水; c, 粒団区 24 mm かん水。
 ○, K^+ ; □, Na^+ ; —, Ca^{2+} ; △, Mg^{2+} 。

後ほぼ様な水分分布を示した(第1図)。月寒では細土区、粒団区ともほぼ全層一様に増加していた(第2図)。

2) D_2O と Cl^- の分布

D_2O と Cl^- の分布を第3, 4図に示した。回収率は D_2O で96~105%, Cl^- で97~103%である。生振(第



第6図 月寒カラムのかん水後24時間目の交換性陽イオンの分布
 a, 細土区 24mm かん水; b, 細土区 40mm かん水; c, 粒団区 24mm かん水。
 ○, K^+ ; □, Na^+ ; —, Ca^{2+} ; △, Mg^{2+} 。

3図)では細土区24mm かん水の場合 D_2O , Cl^- とも3層目にピークを示し, 6層目以下にはほとんど到達していない。40mmかん水でもピークは4層目に移りピーク幅が拡大したが, 7層目以下には到達していなかった。また, 両かん水処理ともに Cl^- の分布域は D_2O のそれよりも深い。粒団区(24mmかん水)における D_2O , Cl^- の分布は細土区とは著しい違いがある。 D_2O , Cl^- とも1層目(添加層)にその多くが残存し, 下層にむかって漸減している。ただし, Cl^- は D_2O よりも1層目に多く残存していた。

月寒(第4図)では, 細土区, 粒団区とも D_2O , Cl^- の分布パターンは生振のそれと類似していた。ただし, 細土区をみると, 生振では Cl^- が D_2O よりも分布域が深かったのに対して, 月寒では逆に D_2O が Cl^- よりも深い分布域を示している。粒団区では生振と同様, 1層目に Cl^- が多く残存している。

3) K^+ の分布と交換性陽イオンの再分配

かん水終了24時間目の交換性陽イオンの分布状態を第5, 6図に示した。添加 K^+ の回収率は96~100%であった。生振(第5図)では細土区24mm, 40mmかん水ともに1層目に添加された K^+ はほとんど1層目に集中しており, 3層目以下への移動はごくわずかであったことがうかがわれ, その分布域は明らかに D_2O , Cl^- の分布域より浅い。 Ca^{2+} , Mg^{2+} は1, 2層目で固相から放出

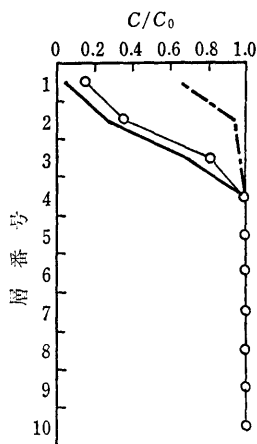
されており, 以下の分布は Cl^- の分布とほぼ対応しており, かん水量の増加に伴って下層にその分布域を広げている。粒団区では Cl^- の分布に対応していたものは K^+ であり, その分布は細土区のそれと類似していたが1層目の K^+ の残存量は細土区よりも多かった。 Ca^{2+} , Mg^{2+} は1層目で減少しており, 以下の層では一様な分布を示している。

月寒(第6図)では細土区24mm, 40mm かん水ともに K^+ の分布は2層目にピークを示し, 生振よりも K^+ が下層に多く移動したことを示していた。 Ca^{2+} , Mg^{2+} の分布は K^+ のピークの下限にピークを示していた。これはちょうど Cl^- の分布域の下限にもあたる。その上方では Cl^- との対応は Ca^{2+} , Mg^{2+} よりもむしろ K^+ で強い。粒団区では生振と同様の傾向にあり, Cl^- 分布と K^+ の対応は細土区に比べてますます強まっている。

4. 考 察

1) D_2O の分布状態からみた粒団の効果

生振, 月寒とも細土区と粒団区の D_2O の分布パターンは著しく異なっていた(第3, 4図)。細土区では従来報告されている分散による凸型のピークを示す分布が明瞭であったのに対して, 粒団区では添加層に多く残存し, 従来の分散理論では説明できない。このことは両処理区の孔隙の分布状態が著しく異なっていたことに起因



第7図 比積算分布曲線による吸着、負吸着の推定
C, 積算 D₂O, イオン量; C₀, 全 D₂O, イオン量。
○, D₂O; —, 負吸着; - - -, 吸着。

していると思われる。すなわち、細土区では孔隙分布は比較的連続的であり、流速分布も空間的に連続的であったと思われる。したがって、平均流速によって分散が与えられるとされるこれまでの報告に一致した分布がみられたのであろう。これに対して、粒団区では粒団間の粗孔隙を多く含み、かん水時の流速が粒団内と粒団間で著しく異なっていたと思われる。

粒団区では、かん水の多くは粒団間の粗孔隙に選択的に流入し、そのためにまず粒団表面近くの D₂O が洗脱される。ついで、粒団表面の濃度低下により粒団内に保持されていた D₂O が粒団表面に拡散し洗脱を受ける。洗脱された D₂O, Cl⁻ は次層の粒団中に再び拡散し、希釈される。このように D₂O は粒団による source-sink (放出・貯留) 効果を順次受けながら移動していったと考えられる。

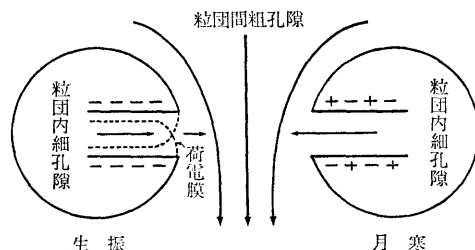
2) 吸着、負吸着現象と粒団の source-sink 効果

Cl⁻, K⁺ の移動が土壌粒子の荷電の影響を受けていたことは、両イオンと D₂O の分布状態を比較してみれば明らかである。一般にイオンの移動時における土壌粒子の荷電の影響は該当するイオンと水の移動速度との差から定量的に求められる¹⁶⁾。すなわち、吸着の影響はイオンの移動を遅らせ、結果的にその分布域は水よりも上方に位置することになる。その逆に、負吸着の場合にはイオンの移動は速まり、分布域は水よりも下方となる。ここでは、初期に保持されていた D₂O, Cl⁻, K⁺ 量を取り除いた後、D₂O, Cl⁻, K⁺ のそれぞれの分布曲線を積算し、第7図のようにその上方の面積を求めることによって吸着、負吸着の効果をみた。すなわち、D₂O の面積

第2表 Cl⁻, K⁺ の移動に対する土壌粒子の荷電状態の影響度 (r_{Cl}, r_K⁺)

	生振		月寒			
	細土		粒団			
	24mm**	40mm	24mm	24mm	40mm	24mm
r _{Cl}	-19	-23	40	19	15	24
r _K	73	79	37	58	44	32

* 本文参照; ** かん水量。



第8図 粒団内の Cl⁻ 移動模式図

(S_D) に対して K⁺ あるいは Cl⁻ の面積 (それぞれ S_K, S_{Cl}) が小さければ吸着、大きければ負吸着を示すことになり、その程度を次式によって表した。

$$r_{Cl} = \frac{S_D - S_{Cl}}{S_D} \times 100, \quad r_K = \frac{S_D - S_K}{S_D} \times 100$$

第2表はその結果である。Cl⁻ についてみると、月寒では粒団区でやや高い値を示したものの、いずれの処理とも正の値を示していた。すなわち、吸着の効果がみられ、このことはパッチ法で測定した細土の AEC が 2.1 meq/100g であったことから妥当な結果であったといえる。一方、生振では細土区では負となり、これもパッチ法による AEC が -2.9 meq/100g であったことから妥当な結果である。しかし粒団区では、生振は月寒よりもむしろ高い正の値を示していた。このことは実際の土壌粒子の荷電状態からは明らかに矛盾する結果であり、吸着とは呼びがたい。この原因を第8図の模式図にそって考えてみたい。

先にも述べたように、粒団区は粒団間の粗孔隙と粒団内の細孔隙の孔隙径の不連続性によって source-sink 効果が現れる。D₂O と同様、初期第1層目に添加された Cl⁻ は選択的に粒団間粗孔隙に流入した浸透水によりまず表面近くのもの洗脱され、粒団表面の塩濃度は急速に濃度低下をおこすであろう。このとき、電気2重層は濃度低下によって孔隙壁から中心にむかって広がることになるが、孔隙径との関係で両側の電気2重層の重なりが生じると、Cl⁻ のような陰イオンは排除され孔隙が閉塞したかのような状態となる。D₂O は粒団内部から拡散

し順次洗脱されていくと考えたが、 Cl^- は粒団表面の孔隙の多くが閉塞され放出されにくくなり、洗脱が抑えられたものと思われる。希薄な溶液状態にある粗大な粘土質粒団においては、粒団表面の孔隙が電気 2 重層の重なりによって閉塞し、粒団内の細孔隙の多くが陰イオンの移動に関与しにくいことが溶脱実験によって示されている¹³⁾が、このことは本実験においても塩添加層以下の層で生じているものと思われる。土壌粒子が負吸着の効果を示す場合には、粒団は陰イオンの放出・貯留をその表面において抑制しているのである。

月寒のように本来土壌粒子が吸着効果を示す場合には、電気 2 重層の重なりによる孔隙閉塞はおこりにくい(第 8 図)。したがって、かん水により粒団内孔隙に保持されていた Cl^- は徐々に拡散し溶出してくるため、source-sink 効果が働いて細土よりもみかけの吸着効果は強いが、生振の粒団の保持効果より劣ったものと思われる。

K^+ の移動に対する吸着の影響 (r_K) についてみると(第 2 表)、両土壌ともに粒団区では細土区よりも著しく低下しており、 r_{Cl} と同程度であった。このことは、 Cl^- と異なり K^+ のように本来土壌粒子への吸着の程度の強いイオンは、粒団の保持効果よりむしろ、より多くの土壌粒子との接触の機会を増やすことがその移動を抑制するというを示している。

以上のように、畑土壌に一般にみられる粒団は陰イオンの施肥層からの溶脱を抑制する。一方、陽イオンの移動は陰イオンの移動に伴いやすく、いったん施肥層からの放出がおこった後には、粒団は陽イオンの溶脱を促進する効果を示すといえる。すなわち、畑土壌の CEC の有効性は土壌粒団に強く支配されていることを示唆している。

5. 要 約

水と溶存イオンの動態におよぼす畑土壌粒団の影響をみるためにカラム実験を行った。水のトレーサーとして D_2O を用い、 Cl^- 、 K^+ の挙動との比較を行った。供試土壌は、陰イオンを負吸着する生振褐色低地土と陰イオン吸着を示す月寒ローム質火山性土である。実験には、両試料の 2mm 以下に粉碎した細土と 5mm 程度の現地土壌構造を用いた。以下に得られた結果を要約する。

1) 両試料ともかん水後の D_2O の分布は細土区では凸型のピークを示したが、粒団区では最上層の添加層にその多くが残存し、以下漸減する分布を示した。このことは、粒団区では粒団表面の D_2O が粒団間粗孔隙を通る早い浸透水により洗脱されるが、粒団内部から表面へ

の拡散は粗孔隙浸透に比べて遅いことを示しており、また浸透水により運ばれた D_2O は以下の層で粒団内に徐々に拡散し、貯留されたことを示している。すなわち、粒団は浸透過程において source-sink 効果を示す。

2) 生振細土区では Cl^- は D_2O に比べて負吸着により分布域を下層に広げ、月寒では吸着効果によりその分布域は縮小していた。しかし、粒団区では生振は月寒より強いみかけの吸着効果を示した。このことは、粒団表面の Cl^- 濃度が低下することにより、本来負吸着を示す生振も粒団表面の細孔隙中の電気 2 重層が拡大し、孔隙の閉塞状態が生じ Cl^- が内部に閉じ込められることによると考えられた。

3) 両土壌とも粒団区における K^+ の保持能は低下した。このことは、畑土壌の CEC の有効性は土壌粒団に強く支配されていることを示唆している。

文 献

- 1) NIELSEN, D.R. and BIGGAR, J.W.: Miscible Displacement in Soils. I. Experimental Information. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, **25**, 1~5 (1961)
- 2) BIGGAR, J.W. and NIELSEN, D.R.: Miscible Displacement. II. Behavior of Tracers. *ibid.*, **26**, 125~128 (1962)
- 3) NIELSEN, D.R. and BIGGAR, J.W.: Miscible Displacement. III. Theoretical Considerations. *ibid.*, **26**, 216~221 (1962)
- 4) NIELSEN, D.R. and BIGGAR, J.W.: Miscible Displacement. IV. Mixing in Glass Beads. *ibid.*, **27**, 10~13 (1963)
- 5) BIGGAR, J.W. and NIELSEN, D.R.: Miscible Displacement. V. Exchange Processes. *ibid.*, **27**, 623~627 (1963)
- 6) LAI, S.H. and JURINACK, J.J.: Numerical Approximation of Cation Exchange in Miscible Displacement through Soil Columns. *ibid.*, **35**, 894~899 (1971)
- 7) 佐久間敏雄・飯塚文男・岡島秀夫: 畑土壌における水分と無機塩類の挙動(第 2 報), イオン交換をとまなう流出過程の検討, 土肥誌, **47**, 470~476 (1976)
- 8) MIWA, E.: Simulation of Behavior of Fertilizer Materials in Soil. I. Model of Tri-component Exchange Chromatographic Transport. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **26**, 175~184 (1980)
- 9) SMITH, S.J.: Relative Rate of Chloride Movement in Leaching of Surface Soils. *Soil Sci.*, **114**, 259~263 (1972)
- 10) PASSIOURA, J.B.: Hydrodynamic Dispersion in Aggregated Media. 1. Theory. *ibid.*, **111**, 339~344 (1971)
- 11) RAO, P.S.C., GREEN, R.E., AHUJA, L.R. and DAVIDSON, J.M.: Evaluation of a Capillary Bundle Model for Describing Solute Dispersion in Aggregated Soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **40**, 815~820 (1976)

- 12) 佐久間敏雄・老松博行・飯塚文男・岡島秀夫：粗大粒団を含むカラムからの NO_3^- の流出, 土肥誌, **50**, 17~24 (1979)
- 13) HATANO, R., SAKUMA, T. and OKAJIMA, H.: The Source-Sink Effect of Clayey Soil Peds on Solute Transport. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **31**, 199~213 (1985)
- 14) 鈴木大助・寿松木章・栗原 淳：重水利用による土壤中の物質移動の解析, 土肥誌, **53**, 467~470 (1982)
- 15) 波多野隆介・佐久間敏雄：イオンクロマトグラフィーの土壌溶液分析への適用, 同上, **54**, 161~163 (1983)
- 16) 波多野隆介：物質移動, 土壌の物理性, **50**, 62~68 (1984)

**On the Source-Sink Effect of Soil Aggregates on the
Transport of Water and Solutes
—By Using D_2O as Tracers of Water**

Ryusuke HATANO, YaoZong JIANG, Hideki SAITO,
Toshio SAKUMA and Hideo OKAJIMA
(*Fac. Agric., Hokkaido Univ.*)

We conducted column experiments to evaluate the source-sink effect of field soil aggregates on the movement of water and solutes. The soils used were Oyafuru brown lowland soil and Tukisamu loamy andosol. The former soil is characterized by anion exclusion and the later is characterized by anion adsorption. These soil materials, which were passed through a 2 mm sieve (fine earth) or were picked up from natural soil aggregates with the size of about 5 mm (aggregate), were packed into the columns 25 cm long and 7.9 cm in diameter. Similar soil samples labelled with D_2O and KCl were added to the top of the original soil columns. After leaching, the distributions of D_2O , Cl^- and K^+ in each soil column were analyzed.

The results obtained are summarized as follows:

1) The distribution of D_2O in the fine earth columns of both soils showed a convex peak in the middle of the column. On the other hand, in the aggregate columns of both soils, the D_2O remained at the top of the columns and tailed off downward through the columns. This shows that infiltration of D_2O undergoes the following process:

- a) At first, the D_2O near the surface of the aggregates was leached by percolated water.
- b) Secondly, the diffusion of D_2O from inside to the surface of aggregates occurs slowly.
- c) The D_2O that has transferred to the subsurface layer then diffused gradually into the aggregates.

These facts mean that the aggregates have a source-sink effect on infiltration.

2) In the Oyafuru fine earth column, the distribution of Cl^- expanded downward further than that of D_2O owing to anion exclusion. On the other hand, in the Tukisamu column, Cl^- was left behind D_2O . In the Oyafuru aggregate column, however, Cl^- was apparently much more adsorbed than that in Tukisamu. This is thought to be due to the salt-sieving effect which occurred at the surface of the Oyafuru aggregates where the Cl^- concentration was reduced by the rapid bypass flow.

3) The apparent capacity of either soil to adsorb K^+ decreased in the aggregate columns of both soils. This suggests that the efficiency of cation exchange capacity of field soils is strongly controlled by the soil aggregates.

Key words mass transfer, soil aggregates, source-sink effect, D_2O

(Jpn. J. Soil Sci. Plant Nutr., **59**, 253-259, 1988)