

生物酸化処理水の土壌・植物系による浄化に関する研究 I

誌名	草地試験場研究報告 : s chi shikenj kenky h koku = Bulletin of the National Grassland Research Institute
ISSN	03850196
著者名	尾形,保 山口,幹周 石居,企救男 畠中,哲哉
発行元	農林省草地試験場
巻/号	13号
掲載ページ	p. 63-78
発行年月	1978年11月

農林水産省 農林水産技術会議事務局筑波産学連携支援センター
Tsukuba Business-Academia Cooperation Support Center, Agriculture, Forestry and Fisheries Research Council
Secretariat



生物酸化処理水の土壌・植物系による浄化に関する研究

I. 処理水の土壌浸透による浄化

尾形 保¹・山口幹周²・石居企救男²・畠中哲哉¹

¹環境部土壌肥料第1研究室, ²埼玉県農業試験場化学部

(昭和53年6月15日受理)

要 約

尾形 保・山口幹周・石居企救男・畠中哲哉 (1978): 生物酸化処理水の土壌・植物系による浄化に関する研究. I. 処理水の土壌浸透による浄化. 草地試研報 13: 63-78.

畜舎廃水の土壌浸透による浄化効果を明らかにするため、生物酸化処理により、BOD 約 60 mg/l、含有 N (100 mg/l) の約 60% を亜硝酸性 N に酸化した豚舎廃水を、2 種類の土壌(腐植質火山灰土壌、沖積土壌)を用いてそれぞれ作成したカラム(長さ 1m と 2m)に添加頻度を 3 段階設けて浸透させ、廃水含有成分の変化と、カラム中の土壌の理化学性に及ぼす影響を調べた。130 日の浸透期間中の添加水量は、火山灰土壌で 3,832-6,707 mm、沖積土壌で 4,823-10,554 mm、その浸透率は前者で 72-90%、後者で 84-93% であった。廃水の PO₄-P (7 mg/l) の除去率は両土壌とも 99.5% 以上で、全窒素の負荷量 (g/m²) と除去率 (%) は、それぞれ火山灰土壌で、400-656, 45-92、沖積土壌で 465-1,113, 37-55 となり、火山灰土壌の方が除去率はまさった。両土壌とも浸透率が低く、脱窒作用に好条件で N の除去率は高まった。廃水の浸透により、両土壌とも塩類が顕著に蓄積し、窒素の蓄積に対しては沖積土壌で NH₄⁺ の吸着の影響が大きかった。炭素の蓄積は両土壌とも一部を除きほとんどなかった。

緒 言

家畜排せつ物の合理的な処理・利用法の確立は、今や畜産の基盤を支える柱の一つとして重視されているが、その基本的方向が土壌還元利用にあることは衆目の一致するところである。

しかして、ふんなど固形物の処理・利用に関しては、最近の試験研究の進歩により、実際面でも著しく改善され、技術的問題は比較的少ない状態になってきた。しかし尿や畜舎洗浄水などを主体とする畜舎廃水の処理・利用に関しては、なおかなり遅れた段階にあって、水質汚濁の原因となっている場合も少なくない¹²⁾。

畜舎廃水の浄化処理が困難な理由は、一般にその汚染物質濃度が高く、かつ変動も大きいため、活性汚泥法など現行技術を十分適用しがたいためである。しかし一方では、環境保全のための法的規制はますます厳しくなる方向にあり、既往の易分解性有機物などを対象にするだけでなく、窒素やりんなどの規制や、いわゆる総量規制をも検討されている現状である。

したがって、畜舎廃水の浄化処理技術も、これらの規制に対応できる内容を持ち、しかも畜産経営で採用しうる低コストで簡易な方法の確立が強く要請されている。

廃水のいわゆる土壌処理 (Land Treatment or Land disposal) は、その省エネルギー、省資源の処理技術として、また、水および含有成分の再利用技術の一つとして、世界的に大きな関心と呼び多くの試験研究が行われている^{8,9)}。わが国では、最近主に人の生活廃水の 3 次処理の方法として注目され、若干の研究が開始された段階である⁸⁾。

著者¹⁹⁻²²⁾らは、このような畜舎廃水浄化技術の一つとして可能性の高い土壌の浄化機能の利用に関して研究を進めてきたが、特に上述のような最近の情勢をふまれば、畜舎廃水といえども既往のような“浄化→放流”の方式ではなく、固形物と同様に“処理(浄化)→利用”の方式をとる方向での技術開発を進めるべきものと思われる。

すなわち、土壌の廃水浄化機能を一歩進めて、“土壌・植物系”の利用ということで作物など植物の存在によって、土壌の持つ廃水浄化機能を一層高めると共に、作物の生産もあげて資源の活用を図り、経営への積極的な貢献を果すための技術の確立が必要な段階にあるものと思われる。しかし畜舎廃水のように悪臭が強く、汚染成分も大腸菌群など病原性微生物も多く含む場合には、土壌・植物系に導入する前に、これらに由来する障害を軽減

するための何らかの前処理もまた要望される。

このような前処理法の一つとして既に化学処理法の検討を行った¹⁸⁾。しかし一般的には、廃水の好氣的条件下の生物作用、いわゆる生物酸化が適当と思われる。既に諸外国では、好氣的ラグーン法や酸化溝法などが用いられている⁹⁾。著者らはわが国の条件では、これらの方式より高濃度の廃水を効率的に生物酸化しうる装置の必要性を痛感し、まずこのような装置の開発に着手し、“サイフォン環流式濾床”(以下S式と略す)と命名している方法に到達した^{23-25, 27, 28)}。よってこのS式による生物酸化処理液と土壌・植物系との結合により、廃水の浄化と利用に関する研究を推進中である。

本報告では、まずS式による豚舎廃水処理水の土壌のみの場合の浸透浄化について検討し、土壌・植物系における土壌の機能を明らかにしようとしたものである。既に化学処理水の土壌浸透については報告している^{14, 15)}、本報告では、化学処理水と生物酸化処理水の土壌浸透による浄化効果の相違についても比較検討した。また廃水の土壌処理における重要問題である窒素の行動とも関連し、前処理で窒素酸化物を相当高い割合に生成させ、この廃水の土壌浸透による窒素除去に重点をおいた。さらに廃水の土壌浸透速度と窒素除去に関連し、廃水添加の頻度と土壌の種類の影響についても検討した。

本報告は、農林省別枠研究「家畜排泄物の処理・利用に関する研究」における「畜舎汚水の土壌処理」の事項の一部として、草地試験場より埼玉県農業試験場への委託試験として実施したものである。

試験設計, 材料および実験方法

1. 試験設計

表1のように、火山灰および沖積の2種類の土壌を用いて作成した1mおよび2mの土壌カラムに、供試廃水の添加頻度を毎日1回、2日に1回および4日に1回の3段階に変えた試験区をそれぞれ設定し、下記のような浸透実験を行った。

2. 材料

供試廃水: 肥育豚舎の廃水をS式テストプラントにより24時間環流処理したもので、ふん尿臭をはじめ汚物感はほとんどない。この処理廃水とその原廃水の各種成分濃度は表2に示した。

供試廃水の特徴は表2より明らかなように、S式によ

表1. 試験区の設計

土壌の種類	処理水の添加頻度	カラムの長さ (m)	試験区略号
火山灰土壌	1日に1回	1	1/1-1
		2	1/1-2
	2日に1回	1	1/2-1
		2	1/2-2
	4日に1回	1	1/4-1
		2	1/4-2
沖積土壌	1日に1回	1	1/1-1
		2	1/1-2
	2日に1回	1	1/2-1
		2	1/2-2
	4日に1回	1	1/4-1
		2	1/4-2

表2. 供試豚ふん尿廃水の化学組成 (mg/l)

化学成分	原 水		処 理 水	
	平均値	範 囲	平均値(除去率 %)	範 囲(除去率 %)
BOD	390	234-614	57 (87)	24-115 (81-90)
COD	589	545-640	78 (87)	69-94 (85-88)
SS	2,067	1,832-2,532	149 (93)	102-236 (91-94)
pH	7.3	7.2-7.4	7.2 (...)	7.1-7.3 (...)
EC ^a	1,030	730-1,250	844 (...)	670-952 (...)
NH ₄ -N	103	56.0-135	36.9 (65)	16.5-50.6(62-70)
NO ₂ -N	0.0	0.0-0.0	58.2 (...)	29.5-80.0(...)
NO ₃ -N	0.0	0.0-0.0	1.5 (...)	0.0-4.4 (...)
無機 N	103	56-135	97 (...)	47-131 (...)
有機 N	91	74-113	9.7 (...)	0-29 (...)
T-N	194	169-222	107 (46)	76-131 (41-55)
PO ₄ -P	24.9	16.6-30.7	7.6 (...)	5.8-10.3(...)
T-P	48.6	41.5-56.0	18.8 (61)	16.0-22.8(58-67)
TOC	73.4 (...)	60.5-87.9(...)

a) 電気伝導度 $\mu\text{S}/\text{cm}$

る処理によって、相当強い生物酸化を受けた状態にあった。すなわち、生物化学的酸素要求量 (BOD) や浮遊物 (SS)、有機性窒素、アンモニア性窒素 ($\text{NH}_4\text{-N}$) などは、原廃水に比べて著しく減少し、硝酸性窒素 ($\text{NO}_3\text{-N}$) の濃度は低いが、亜硝酸性窒素 ($\text{NO}_2\text{-N}$) の生成は顕著であった。つまり易分解性有機物の分解は進み、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の酸化も亜硝酸化成分までは相当に進んだ状態で、供試廃液の全窒素 (T-N) はほとんど $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_2\text{-N}$ で占められていた。なお、S式処理により、オルトリン酸 ($\text{PO}_4\text{-P}$) は $6\text{-}10\text{ mg/l}$ にまで減少していたが、全リン (T-P) としては $18\text{-}23\text{ mg/l}$ が残っていた。

供試土壌：表3に示した理化学性の腐植質火山灰土壌と沖積土壌の2種類を、風乾細土として用いた。採取現地の土壌統は、前者が米神 (兜山) 統に⁸¹⁾、後者が新戒統に属している⁸²⁾。

表より明らかのように両土壌には相当大きな相違が見られる。すなわち、沖積土壌に比べて火山灰土壌の方は腐植含量が高いので、当然、全炭素 (T-C)、T-N 含量をはじめ、塩基交換容量 (CEC) もかなり大きい。しかしカラム一定容積当りの乾土量としては少なく、孔隙は多い。一般にこのような腐植質火山灰土壌は毛管孔隙が多いので保水力は強い。沖積土壌では乾土 100 g 当りの CEC は低いが、カラム当りの乾土量は多いので、一定のカラム当りの塩基交換容量としては火山灰土壌より約 14% も高い値である。しかし孔隙量は少なく、保水力は弱い。りん酸吸収力は火山灰土壌の方がカラム当りでも2倍以上の値である。

3. 実験方法

土壌カラムの作成：有効直径 7 cm 、長さ $1.5\text{-}2.5\text{ m}$ の塩ビ管を垂直に立て、この下方の口をガーゼで包み底とした。まず、この底の上に高さ 2 cm に石英砂を入れ、ついで上記の各土壌を管を軽くたたきながら充填し、土壌の高さが 1 m および 2 m のカラムを作った。図1に示すように、このカラムは支持台に固定し、上部には供試廃水を入れる 1 l ポリビンを取り付けた。カラム内の土壌表面には濾紙を敷き、廃水添加の際の表層土壌の攪乱を防いだ。カラムの下底はロートに載せ、カラムからの浸透水は下のポリビンに集めた。このカラムは室内に設

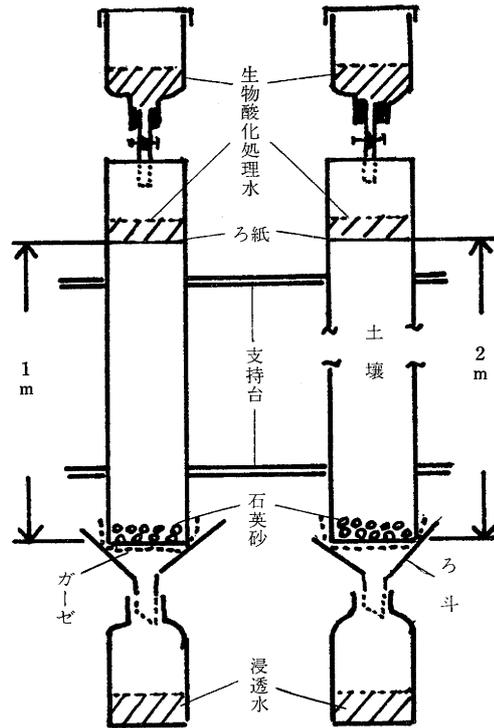


図1. 浸透実験用土壌カラム

置した。

廃水の添加と浸透水の採取：実験は、まず、1974年9月24日から1975年1月11日まで106日にわたって行った。この期間の終り頃よりカラムの透水性は著しく低下する区もあったので、1月11日から2月1日までの21日間は廃水添加を中止し、土壌は自然に乾燥するままの状態においた。そして、2月1日から2月25日までの24日間、再び前同様の廃水添加と浸透水の採取を行った。

土壌カラムへの廃水添加は次のように行った。すなわち、試験設計の処理区に応じて、試験開始後しばらくは 200 mm 相当の廃水を、毎日、1日おき、3日おきにカラム上部より添加し、廃水の土壌浸透を図った。しかし廃水添加を続けているうちに、土壌の透水性は次第に低下し、特に沖積土壌の各区および火山灰土壌の $1/1$ 区で

表3. 供試土壌の理化学性 (乾土 100 g 当り)

土壌の種類	土性	T-C %	T-N %	CEC me	P_2O_5 吸収量 mg	乾土重量 kg/1 m カラム	CEC me/1 m カラム	P_2O_5 吸収量 g/1 m カラム
火山灰土壌	埴壤土	5.90	0.50	22.9	2,580	2.70	618	69.7
沖積土壌	埴壤土	0.76	0.13	15.2	700	4.65	707	32.6

T-C: 全炭素, T-N: 全窒素, CEC: カチオン交換容量

は前回の添加液がカラム上部に湛水状態として溜るようになった。よってこのような状態になった以後は、各処理区とも浸透水量とはほぼ同量の廃水を添加することにした。

採水ビンに溜った浸透水は容積測定後、その一部を採取し、添加廃水と共に冷蔵庫に保存した。添加廃水と浸透水の分析試料は、図2に示すように、実験開始後4-6グループにまとめて混合試料として調整した。

以下の図表に示す実験期間中の添加(負荷)水量、浸透水量および水の成分濃度は、図2に示したI-VIの混合試料についての値である。

浸透実験中の室温は7.2-21.5°Cにわたったが、平均

値としては最低12.0, 最高14.9, 平均13.1°Cであった。

カラム土壌の調査: 廃水浸透終了後、カラム内の土壌の理化学性の変化を明らかにするため、塩ビ管内の土壌は、0-50 cm, 50-100 cm, 100-200 cmに分けて押し出し、それぞれ混合し、分析用試料として採取した。いずれも風乾細土として分析に供した。

分析法: 廃水および浸透水の成分分析は、主に下水道試験方法¹⁾に、また、土壌の成分は土壌養分分析法⁴⁾によった。ただし、全有機炭素(TOC)はTOC分析計(東芝ベックマン102型)によった。また、土壌の水溶性化学的酸素要求量(COD)の抽出は風乾土に5倍量の水を

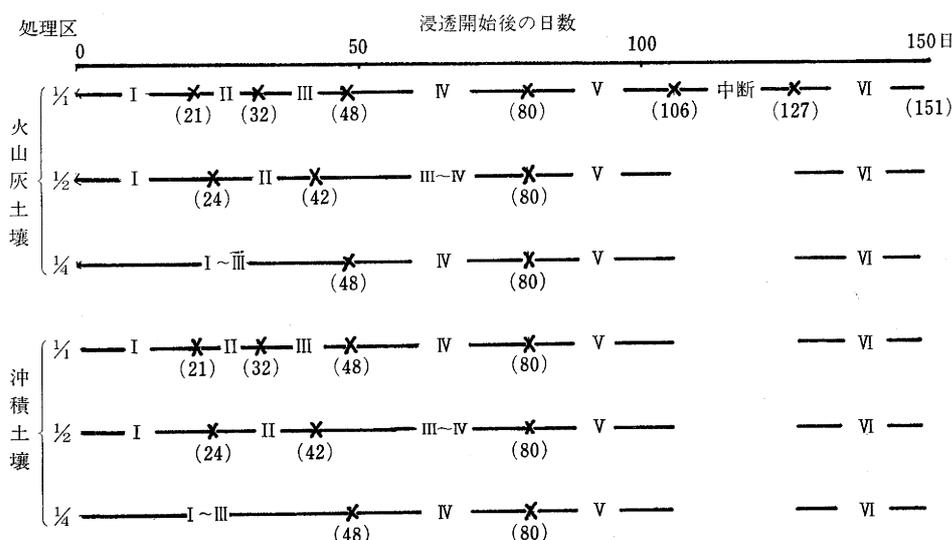


図2. 分析試料の区分
カッコ内の数字は浸透開始後の日数を示す

表4. 負荷水量と浸透水量, 浸透率

土壌の種類	試験区	負荷水量 (mm)		浸透水量 (mm)		浸透率 (%) ^{a)}		
		I-V ^{b)}	I-VI	I-V	I-VI	I-V	I-VI	
火山灰土壌	1/1	1	4,194	5,337	3,577	4,671	85	88
		2	3,286	3,832	2,294	2,764	70	72
	1/2	1	5,642	6,707	4,964	6,015	88	90
		2	3,406	4,134	2,452	3,078	72	74
	1/4	1	4,511	5,343	3,966	4,748	88	89
		2	3,952	4,888	3,092	3,984	78	82
沖積土壌	1/1	1	6,310	7,532	5,844	6,995	93	93
		2	7,721	10,554	6,971	9,704	90	92
	1/2	1	6,078	7,638	5,630	7,162	93	94
		2	5,044	6,604	4,264	5,713	85	87
	1/4	1	4,043	4,823	3,585	4,334	89	90
		2	4,069	4,849	3,341	4,061	82	84

a) 浸透率=浸透水量/負荷水量
b) 浸透期間(図2参照)を示す。

加えて振盪，この抽出液についてアルカリ過マンガン酸法により定量した。

実験結果

1. 廃水の負荷量と浸透量，浸透率

表4に廃水の負荷量と浸透量を，廃水添加中断までと実験終了時までの，それぞれの積算値として示し，また負荷量に対する浸透量の割合を浸透率として示した。

土壌の透水性は，全実験期間を通じて沖積土壌の方が火山灰土壌にまさった。両者の差は廃水添加頻度の高い1/1区と2mカラム区で大きかった。火山灰土壌では，廃水添加頻度が高く，また土壌カラムの長い場合の浸透率は低かったが，沖積土壌では必ずしもこのような傾向はみられなかった。

このような現象は，沖積土壌のカラムは孔隙率としては少ないが，添加水が重力水として降下移動し得る大孔隙の割合は高い状態にあり，一方，火山灰土壌では，毛管孔隙に富み，添加水が重力水としての浸透に抵抗が大きい状態にあったためと思われる。考察の項で述べるように，廃水添加の頻度が高いときは，土壌の孔隙は減少する傾向にあるし，また土壌カラムが長いほど，毛管水の保持力は強いのである。しかし両土壌とも廃水添加を中止して21日間放置したあとでは，透水性は著しく良好になった。

このような結果，全実験期間中の負荷水量は，火山灰土壌で3,832(1/1-2区)-6,707(1/2-1区)mm，沖積土壌で4,823(1/4-1区)-10,554(1/1-2区)mmで，火山灰土壌より1,000-4,000mmも多い量であった。また火山灰土壌では，添加頻度の高い1/1区より，1/2区や1/4区のように添加頻度の低い区の方が積算負荷量が多い結果となったが，これは後者の方が終始高い透水性を維持できたからである。浸透率は火山灰土壌で72-

90%，沖積土壌で84-94%であった。

土壌の浸透性の変化を平均浸透速度(mm/日)として，添加水量の増加に伴う推移を図3-4に示した。図中の点は，各処理区とも左より図2のIよりVIまでの試料区分に相当する。

図3によれば，火山灰土壌の1/1区では，1m，2mカラムともに，廃水の添加量を増すに従って浸透性は急速に低下し，平均浸透速度は9-10mm/日になった。しかし廃水添加を中断したあとでは，浸透性の回復は著しく，20-46mm/日となった。1/2-2区でも上述と類似の傾向ながら，その変化の程度は少なかった。その他の区では，試験期間中の浸透性の変動は比較的少なく，ほぼ40mm/日の平均浸透速度を維持した。

沖積土壌では図4に示すように，負荷水量が火山灰土壌の場合より相当多量になったこともあるが，いずれの区でも試験期間中にかなりの透水性の低下が見られ，また廃水添加中断後の回復効果も顕著であった。しかし，処理区による差は大きい，透水性が最低になった点を除けば，平均浸透速度はほぼ20-150mm/日を維持した。

2. 窒素成分の推移

廃水による全窒素(T-N)の積算負荷量とその土壌浸透による積算除去量および除去率を表5に示した。この負荷量をカラム表面積(38.5cm²)より単位面積当りの値(g/m²)として示せば，全試験期間中に，火山灰土壌で400-656g/m²，沖積土壌で465-1,113g/m²にも達した。

これらのNの除去率は，前者の土壌で48-92%，後者で40-58%であったが，処理区間の相違は火山灰土壌で大きく，沖積土壌では小さかった。なおここでのNの除去率は，添加N量に対する土壌浸透の結果除去されたN量の割合を示し，土壌自体より浸出されるNについての考慮はしてない見掛上のものである。したがって，廃水

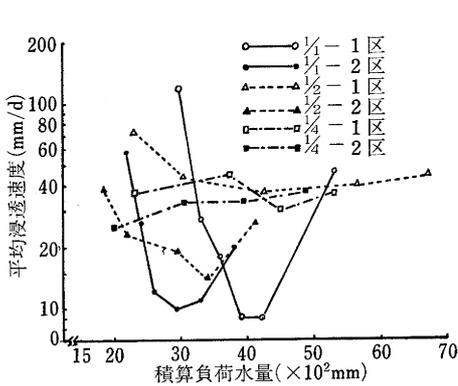


図3. 廃水の積算負荷量と浸透速度—火山灰土壌
凡例は表1を参照

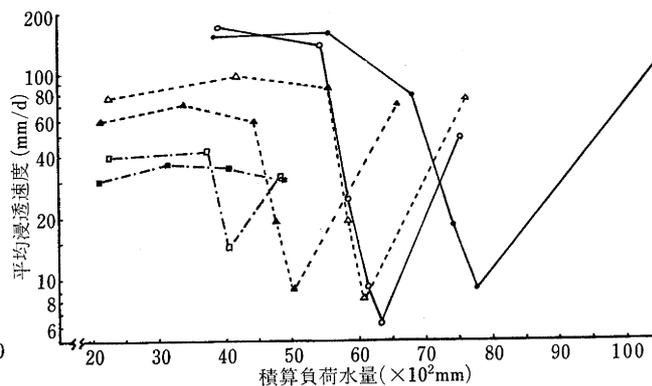


図4. 廃水の積算負荷量と浸透速度—沖積土壌
凡例は図3に同じ

表 5. 全窒素負荷量と除去量

土 壌 の 種 類	試 験 区	負荷量(mg/カラム)		除去量(mg/カラム)		除去率 (%)		
		I-V ^{a)}	I-VI	I-V	I-VI	I-V	I-VI	
火山灰土壌	1/1	1	1,787	2,129	1,279	1,363	72	64
		2	1,371	1,538	1,262	1,422	92	92
	1/2	1	2,212	2,523	1,053	1,138	48	45
		2	1,379	1,599	1,208	1,355	88	85
	1/4	1	1,684	1,957	817	944	49	48
		2	1,481	1,785	1,022	1,162	69	65
沖積土壌	1/1	1	2,867	3,231	1,655	1,779	58	55
		2	3,447	4,282	1,738	2,042	50	48
	1/2	1	2,571	3,034	1,121	1,129	44	37
		2	2,119	2,582	1,128	1,350	53	52
	1/4	1	1,547	1,790	646	719	42	40
		2	1,540	1,806	863	972	56	54

a) 浸透期間 (図2参照)を示す。

中のNの実際の除去率はこの値をうわまわるものと推定される。

図5—6に、カラムへのN負荷量の増加に伴うNの除去率の変化を示した。

まず火山灰土壌では、図5に示すように、1/1-2区では実験期間中90—99%の除去率を維持し、その変動はきわめて少なかった。しかし1/2-1区や1/4-1区では、除去率は70%台より1%近くに激減し、再び25%以上に上昇するなど変動は大きかった。その他1/1-1区、1/2-2区、1/4-2区での除去率は、N負荷量の増大に伴って減少傾向にあった。

沖積土壌では、図6のようにすべての区でかなりの変動が示された。特に注目されるのは、実験開始後しばらくは横ばいまたは低下傾向にあった除去率が、廃水の浸透速度の低下が著しくなった頃より上昇し、ほぼ廃水添加中断の直前の時期に最高値となり、中断後の浸透性回復時に再び低下したことである。

以上のように両土壌とも、Nの除去率は廃水の浸透速度や土壌の水分状態の影響を大きく受け、N負荷量の多少の影響は必ずしも直接的ではないようであった。

つぎに添加廃水と土壌浸透水中のNの形態を試料区分別に示せば図7—8のようである。

まず添加廃水に関しては、既に表2にも示したように窒素酸化物の割合が高い。浸透水中の有機Nは、両土壌ともほとんど定量できなかったため、浸透水は無機性Nのみで示した。

図7の火山灰土壌における浸透水のN組成の消長より、つぎのような点が明らかである。

すなわち、カラム1mの場合には2mの場合に比べて、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度はいずれの処理区でも著しく高い。これは本実験条件での添加廃水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ を、土壌により吸着除去するために、1mカラムの土壌量では不十分で、2mカラムの土壌量を必要としたことを示している。

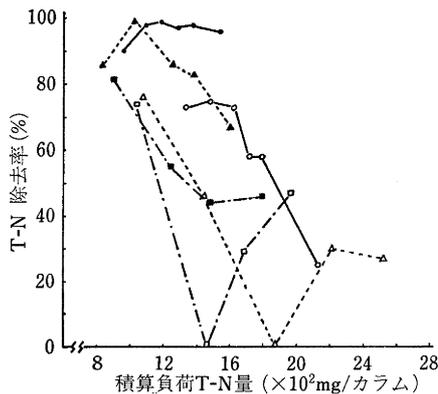


図 5. 廃水の積算負荷全窒素量と窒素の除去率—火山灰土壌 凡例は図3に同じ

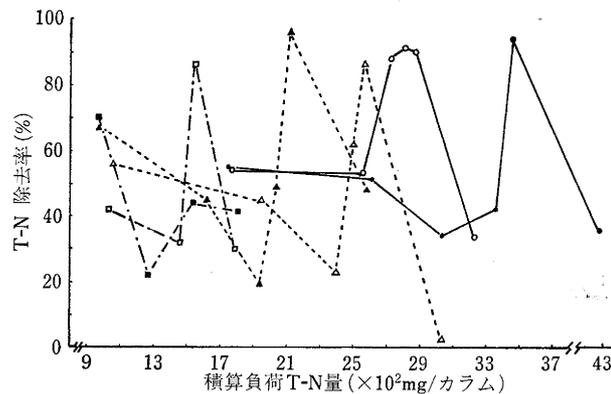


図 6. 廃水の積算負荷全窒素量と窒素の除去率—沖積土壌 凡例は図3に同じ

一方、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の濃度は、1/2 区と 1/4 区では 1/1 区に比べて著しく高い。またこれら N 酸化物は、1/1-2 区を除き廃水添加中断後の増加が目立っている。すなわち、1/1 区のように高い頻度での廃水の添加により、土壌が高い水分含量の状態に維持される場合には、酸化型 N はかなり除去されやすいことがなかる。

逆に 1/2 区や 1/4 区のように廃水添加頻度の低い場合

と添加中断後の土壌では水分は過湿とはなりにくいため、硝化作用は容易に進行し、N は $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ としたの流出が著しくなったものと思われる。

沖積土壌の場合の結果は図 8 に示した。全般に $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は低く、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度が高い。特に実験前半での $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度が高い特徴が見られる。 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は 1 m と 2 m カラムとの差が少なく、火山灰土壌の

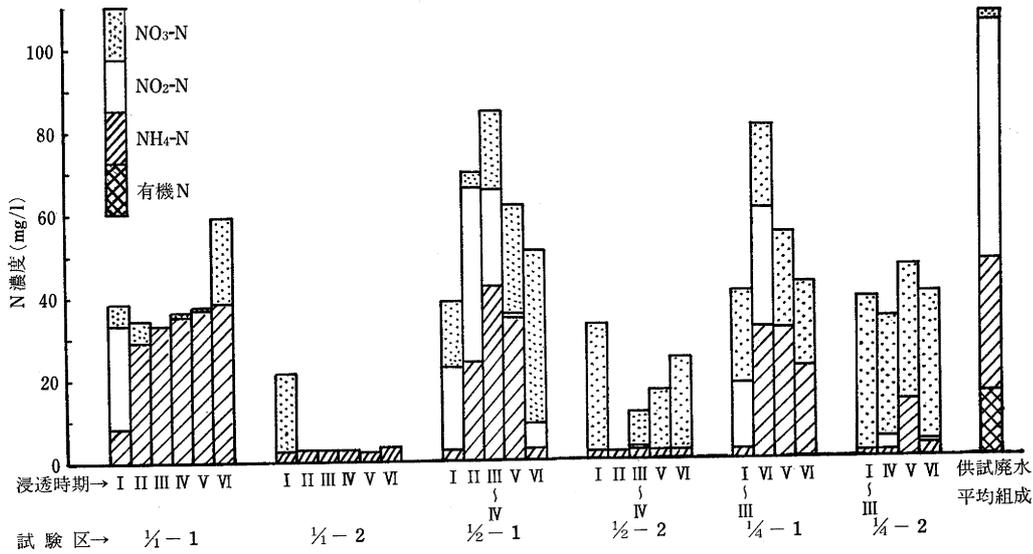


図 7. 浸透水の窒素化合物濃度の推移—火山灰土壌
浸透時期は図 2，試験区は表 1 を参照

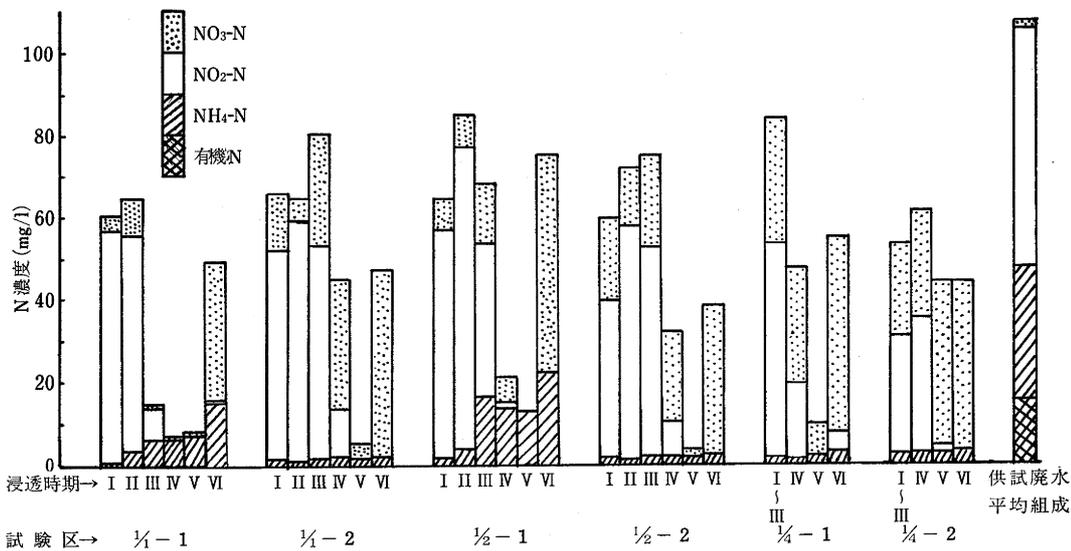


図 8. 浸透水の窒素化合物濃度の推移—沖積土壌
浸透時期は図 2，試験区は表 1 を参照

場合と違って、1 m の土壌量でも添加 $\text{NH}_4\text{-N}$ をかなり吸着除去する能力を有していたものと思われる。しかし浸透速度の速かった 1/1-1 区や 1/2-1 区では、なお比較的高い $\text{NH}_4\text{-N}$ が流出しているの、このような場合には 2 m の土壌量が望ましいものと思われた。

浸透速度が最低になった時期 (V) では、1/4-2 区を除き、各処理区とも浸透水中の N 濃度は最低になり 8 mg/l 以下で、N 酸化物濃度も著しく低かった。すなわち、この時期では N 除去効率が高かったのは、主に脱窒作用によるものと推定される。しかし 1/4-2 区では透水性の低下は見られず (図 2)、土壌は終始酸化状態にあったため、N 酸化物は流出し、N 除去率は 44% にとどまった。

いずれの処理区も廃水添加中断後では、浸透水に $\text{NO}_3\text{-N}$ が激増し、土壌の好氣的条件と硝化作用の回復が示された。

以上、両土壌とも、N 除去効率の高い場合は、脱窒作用が進みやすい条件と $\text{NH}_4\text{-N}$ を吸着するに十分な土壌量のあるときであった。後者の条件は、火山灰土壌のように 1 価カチオンの吸着力の弱い場合¹⁰⁾ に特に顕著であった。

3. リン成分の推移

供試廃水中のりん濃度は、表 2 に示したように全りん (T-P) として 16~23 mg/l、うち $\text{PO}_4\text{-P}$ は 6~10 mg/l で大半は固形物に含まれる有機性 P である。廃水の土壌浸透においては、添加廃水中の固形物は土壌の表面およびごく表層部で篩別されるので^{14,15)}、浸透中の P の形態はほとんど水溶性の $\text{PO}_4\text{-P}$ であり、土壌表層部に蓄積した有機りんの無機化によって放出される P も $\text{PO}_4\text{-P}$ と思われる^{2,9,30)}。よって本実験では $\text{PO}_4\text{-P}$ についてのみ負荷量と除去率を算出した。

まず浸透水中の $\text{PO}_4\text{-P}$ の濃度は、両土壌を通じ 0.0~0.17 mg/l の範囲にあり、大部分は 0.1 mg/l 以下で、土壌および処理区間に大差は認められなかった。また $\text{PO}_4\text{-P}$ の負荷量はカラム表面積当り 30~82 g P/m² に相当したが、除去率はいずれも 99.5% 以上に達し、きわめて高い除去効果が認められた。よってこの濃度に関するデータの表示は省略する。

4. 全有機炭素の推移

TOC の供試廃水中の濃度は、61~88 mg/l で平均 74 mg/l であったが、浸透水の濃度は、火山灰土壌で 0.0~15 mg/l、沖積土壌で 7~84 mg/l で、土壌の種類間の違いが大きかった。図 9 に TOC の負荷量と浸透水中の濃度の関係を示したが、火山灰土壌では初期の頃、1/1 区、1/2 区の濃度が高く 1/4 区では低いが、いずれも負荷量を増すに従い浸透水の TOC 濃度は減少し、処理区

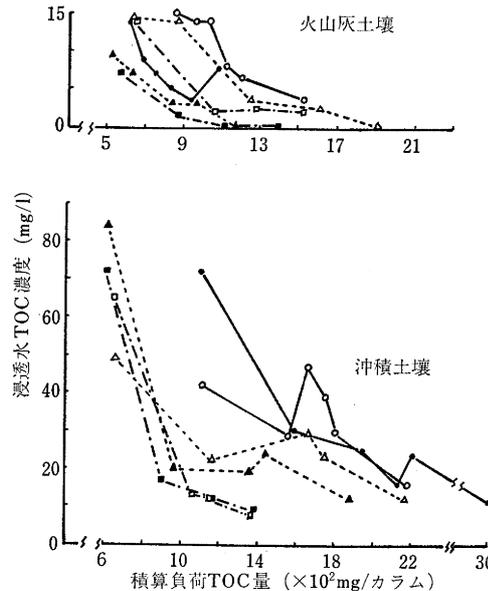


図 9. 廃水の積算負荷 TOC 量と浸透水の TOC 濃度
凡例は図 3 に同じ

間の違いは少なくなった。全般に毎日添加区のように、比較的土壌が嫌氣的になりやすい場合に濃度は高いが、廃水添加の頻度が低く土壌が好氣的となりやすい場合に低い濃度となった。すなわち、かなり易分解性有機物の影響が現われているものと思われる。

沖積土壌の場合には、火山灰土壌に比べて全体に高い濃度であったが、その実験期間中の消長や処理区間の差異については火山灰土壌の場合と同じ傾向にあって、好氣的条件の方が TOC の減少は大きかった。

後記図 10-11 にも見られるように、本供試土壌は実験開始時の水溶性 COD がかなり高い。COD は TOC と高い正の相関があるので、TOC の back ground も著しく高いと思われるので、廃水に由来する TOC の土壌浸透による除去率の算出は行わなかった。

しかし上述のように、両土壌とも、TOC の負荷量を増大して行っても、浸透水の TOC 濃度はすべての区で減少しているように、廃水中の TOC は土壌中ではかなり容易に分解されたことがうかがわれる。

5. 土壌の理化学性への影響

供試廃水の大量な浸透が、土壌の理化学性に及ぼす影響について調べた。図 10-11 に実験開始前と浸透終了時の土壌の分析値を、カラムの深さ別〔上層 (0~50 cm)、中層 (50~100 cm)、下層 (100~200 cm)〕に示した。

全炭素 (T-C)、COD : T-C 含量の変化に見るように、廃水由来の有機物の土壌蓄積は、僅かに沖積土壌の 1/1 区の上層に明らかに見られたのみで、他は試験開始時と

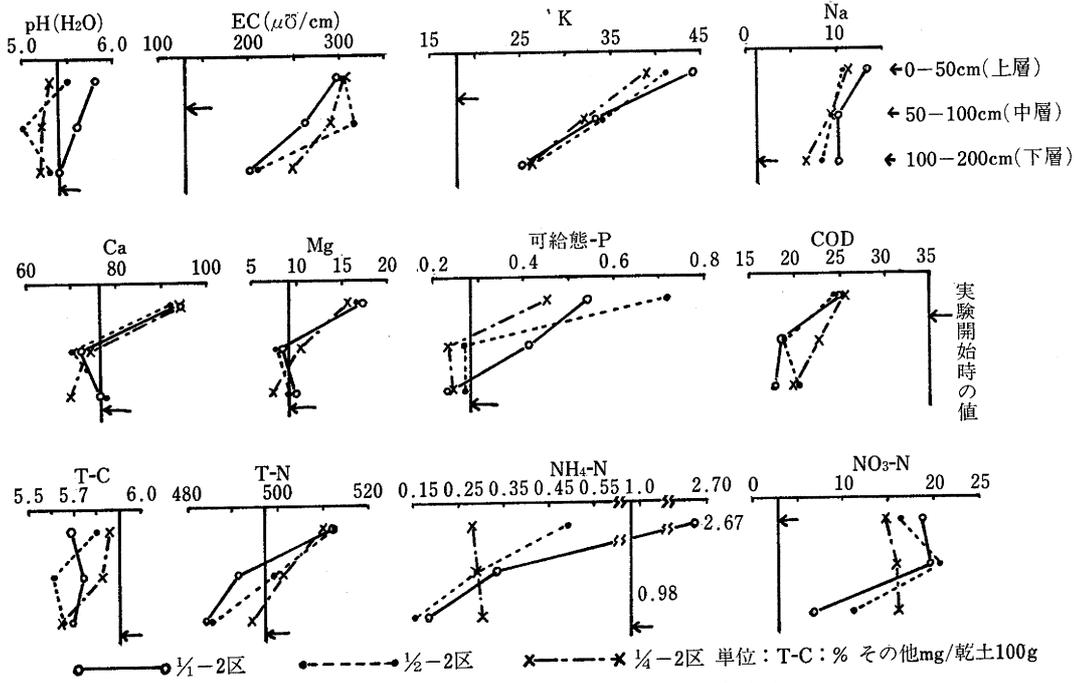


図 10. 廃水浸透による土壌の化学性の変化—火山灰土壌
実験開始時の値 ← は各図共通

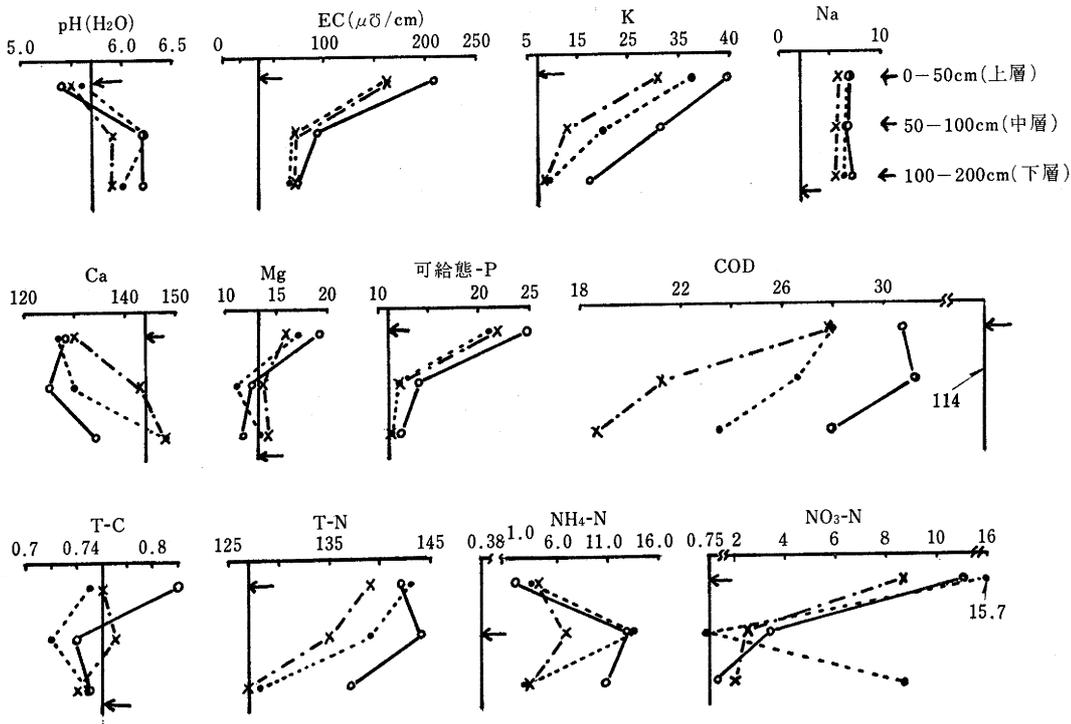


図 11. 廃水浸透による土壌の化学性の変化—沖積土壌
凡例, 単位は図 10 に同じ

同等または多少減少の傾向にあった。特に火山灰土壌での減少傾向は大きかった。水溶性 COD も、両土壌ともに、実験開始前に比べてかなり減少したが、その変化は特に沖積土壌の場合に顕著であった。

以上の T-C, COD の分析結果より、本実験のように相当高い水量負荷の条件でも、既報¹⁰⁾の家畜ふん尿廃水の場合と同様に、その有機物は土壌中に蓄積されにくいことを知った。特に腐植質火山灰土壌のように、元来土壌自体の有機物含量が高い場合には、廃水浸透によって、むしろ土壌有機物の消耗が促進されるようであった。

T-N: 上層では両土壌の各区に N の増加が見られ、沖積土壌の方がこの変化は大きい。カラム表層附近の土壌では、廃水固形物や菌体の集積があり¹⁰⁾、また土壌粒子による $\text{NH}_4\text{-N}$ の吸着も大きく作用したと思われる。沖積土壌での T-N 増加が著しいのは、N 負荷量が大きかったうえに、表 1 のカラム当りの塩基交換容量 (CEC) にも見られるように、この $\text{NH}_4\text{-N}$ 吸着力も大きかったためと思われる。火山灰土壌で N 除去率が最大であった 1/1-2 区の中一下層など、脱窒作用の高いと思われる層では T-N の減少傾向が見られた。しかし沖積土壌では中層までの T-N の増加は明らかで、特に 1/1 区では下層まで増加が見られた。これは火山灰土壌の場合よりも $\text{NH}_4\text{-N}$ の吸着力が大きく、また、全体として硝化作用もやや進みにくい状態にあったためと思われる。

$\text{NH}_4\text{-N}$: 両土壌の NH_4^+ に対する吸着力の違いは、土壌の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度 (mg/乾土 100 g) に明らかに示され、火山灰土壌では 0.15—2.67 mg で、試験開始時より高い値を示したのは 1/1-2 区のみであったのに対し、沖積土壌では 1.79—13.43 mg で、すべての試料で実験開始時より明らかに増加していた。土壌中の $\text{NH}_4\text{-N}$ は、硝化作用と K^+ など他の陽イオンによる置換浸出の影響を受けるから、土層における分布状況はかなり複雑である。火山灰土壌の 1/1 区で高い $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度を示しているのは、硝化作用が進みにくい条件にあったことを示し、沖積土壌の場合、上層よりも中層、下層で $\text{NH}_4\text{-N}$ が多い傾向を示したのは、廃水中の K^+ など陽イオンの置換浸出の結果が強く現われたものと推定される。

$\text{NO}_3\text{-N}$: 土壌中の濃度 (Nmg/乾土 100 g) は、火山灰土壌で 6.6—20.5 mg, 沖積土壌で 0.7—11.0 mg で明らかに前者が高い状態にあり、いずれも試験開始時より増加していた。また脱窒作用を生じやすい火山灰土壌の 1/1-2 区では、下層の値は 6.6 mg に過ぎなかったが、この作用の進みにくい 1/2 区、1/4 区の場合には、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は下層までかなり高い値を示した。沖積土壌では、

1/1 区、1/4 区では中層、下層で、1/2 区では中層で $\text{NO}_3\text{-N}$ は著しく低い濃度となった。

pH: 火山灰土壌の pH は、上層では塩基の集積に伴って実験開始時に比べやや上昇したが、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が高い場合には低下した。沖積土壌では、いずれの区も上層では低下し、中・下層では上昇した。これは交換性 NH_4^+ や Ca^{++} の上層よりの流亡、集積などに関連しているものと思われる。

電気伝導度 (EC): 両土壌とも全層にわたって実験開始時より増大した。沖積土壌では上層の増加が大きく、また全体として火山灰土壌の方が沖積土壌より高い値を示した。

交換性 K: 両土壌とも全層にわたって増加したが、その量と土層間の分布は、火山灰土壌の方が全体に大きく、また下層での増加も著しいのに対し、沖積土壌の下層での増加は小さい。これは火山灰土壌では K^+ に対する吸着力が比較的弱く、添加 K^+ がかなり下層まで浸透するのにに対し、沖積土壌では吸着力が強いため上層で吸着され、下層まで移行する量が少なかったものと思われる。

交換性 Na: 両土壌とも全層でほぼ均一に増加した。特に火山灰土壌での増加は著しく、試験開始時の値に対する増加は最高濃度のときで 11.1 倍を示し、K の場合の 2.5 倍よりかなり大きい。これに対し沖積土壌での増加は 3.5 倍で K の場合の 5.6 倍より小さく、1 価カチオンに対する両土壌の吸着力の相違がこの点からもうかがわれる。

交換性 Ca: 両土壌とも土層間の差が大きかった。火山灰土壌では上層ではやや増加したが、中、下層ではほとんど変化がなしか、やや減少の傾向にあった。沖積土壌では上層でも明らかに減少し、下層に移行した状況がうかがわれる。特に水量負荷量が多かった 1/1 区では、下層に至るまで減少していた。

交換性 Mg: 両土壌とも、負荷水量が少ない場合には、上、中層で蓄積し、負荷水量を増せば中、下層で減少の傾向が見られた。沖積土壌の場合、Ca とは異なる行動を示した。

以上のように、廃水浸透により土壌の交換性塩基にはかなりの影響が認められたので、その塩基組成の変化を明らかにするために表 6 を示した。この表より明らかに、両土壌とも廃水添加により全交換性塩基中に占める K, Na の割合は著しく増加し、一方 Ca はかなり減少し、Mg については処理区によって傾向を異にした。また火山灰土壌では、沖積土壌に比べて全交換性塩基中に占める K が多く、Ca は少なく、さらに廃水添加による

表 6. カラム土壌の交換性塩基組成

土壌の種類	試験区	土層の深さ	me/100 g 乾土					全交換性塩基中の%				
			K	Na	Ca	Mg	計	K	Na	Ca	Mg	
火山灰土壌	1/1-2	0-50	1.13	0.58	4.70	1.42	7.83	14.4	7.4	60.0	18.1	
		50-100	0.86	0.42	3.61	0.68	5.56	15.5	7.6	64.9	12.2	
		100-200	0.63	0.44	3.82	0.81	5.70	11.1	7.7	67.0	14.2	
	1/2-2	0-50	1.04	0.47	4.61	1.38	7.50	13.9	6.3	61.5	18.4	
		50-100	0.87	0.41	3.52	0.66	5.46	15.9	7.5	64.5	12.1	
		100-200	0.66	0.37	3.83	0.76	5.62	11.7	6.6	68.1	13.5	
	1/4-2	0-50	0.99	0.48	4.71	1.30	7.48	13.2	6.4	63.0	17.4	
		50-100	0.83	0.40	3.70	0.87	5.80	14.3	6.9	63.8	15.0	
		100-200	0.67	0.28	3.48	0.61	5.04	13.3	5.6	69.0	12.1	
		試験開始時	0.46	0.052	3.82	0.75	5.08	9.1	1.0	75.2	14.8	
	沖積土壌	1/1-2	0-50	1.00	0.30	6.40	1.60	9.30	10.8	3.2	68.8	17.2
			50-100	0.80	0.28	6.25	1.04	8.37	9.6	3.3	74.7	16.7
100-200			0.43	0.30	6.95	0.97	8.65	5.0	3.5	80.3	11.2	
1/2-2		0-50	0.96	0.30	6.35	1.44	9.05	10.6	3.3	70.2	15.9	
		50-100	0.51	0.27	6.50	0.92	8.20	6.2	3.3	79.2	11.2	
		100-200	0.24	0.27	7.40	1.12	9.03	2.7	3.0	81.9	12.4	
1/4-2		0-50	0.79	0.26	6.50	1.32	8.87	8.9	2.9	73.3	14.9	
		50-100	0.33	0.24	7.15	1.07	8.79	3.8	2.7	81.4	12.2	
		100-200	0.21	0.24	7.40	1.15	9.00	2.3	2.7	82.2	12.8	
		試験開始時	0.18	0.087	7.20	1.10	8.57	2.1	1.0	84.0	12.8	

Na 増加の割合は大きい。しかし、K 増加の割合は沖積土壌の方が大きい特徴があった。

可給態 P：りん酸吸収力の低い沖積土壌の方が火山灰土壌より、いずれの試料でも著しく高い濃度を示したが、廃水添加による影響は、両土壌とも上層での集積が顕著であった。しかし火山灰土壌では 1/1-2 区、沖積土壌でも負荷水量の多い 1/1-2 区では中層ないしは下層までも増加し、嫌氣的土壌中での P の移動が示唆された。

以上のように廃水の大量浸透によって、全体として土壌の無機成分の濃度は著しく高まった。しかし個々の成分の土壌中での行動は、土壌とそれぞれの成分の性質によりかなり異なるものようである。

考 察

本報告では、生物酸化によって豚舎廃水の易分解性有機物の大部分を除去し、かつ N の相当量を亜硝酸性窒素にまで酸化した処理水を土壌浸透させた場合に主に窒素およびリンの除去効率、ならびに廃水浸透が土壌の理化学性に及ぼす影響について、2 種類の土壌を用いて検討した。

1. 土壌カラムの透水性に及ぼす影響

廃水の土壌浸透においてまず問題になるのは、その浸透速度の大小と浸透の永続性である。これは廃水の土壌処理における必要土地面積や処理能力、さらに持続性を規定する基本的事項である^{3,9)}。

本実験においては、土壌カラムに対する添加廃水の水頭を必ずしも一定の高さに維持できず、また風乾細土を

あらかじめ一定水分の湿潤状態にすることなく、すぐ廃水の浸透を開始した。このようなために、厳密な透水性の比較はできないが、処理区間のある程度の相対的な比較は可能と思われるので、まずこの点について考察したい。

すなわちカラムの透水性は、土壌間には明らかな差が見られ、沖積土壌が火山灰土壌にまさった。この結果廃水の合計負荷量は、沖積土壌の方が火山灰土壌の場合よりかなり高い値となった。これは廃水の添加を浸透水量に応じて行ったからである。

本実験条件では、浸透水は専ら重力水として流下排出されている。このような重力水は、土壌中で PF 約 1.6—1.8 以下の力で保持され、いわゆる粗孔隙(直径約 0.08—0.05 mm 以上)内に存在する⁷⁾。したがって、沖積土壌カラムではこの粗孔隙の割合が高かったものと思われる。一方、火山灰土壌カラムでは容積重は小さく孔隙率は大きい、その孔隙は毛管孔隙が多く¹⁰⁾、粗孔隙の割合は少なかったものと思われる。このため添加水の浸透流出割合は減少し、逆に保水力は高まった。

本実験での廃水添加(負荷)量は、通常の畑かんがいの場合よりかなり高く(平均 1 日当り 23—118 mm)、いわゆる High Rate Infiltration 方式²⁾に相当するものである。このような場合の土壌の透水性の低下、すなわち土の目づまりの発生に関しては、廃水中の粗大固形物のみならず、水溶性の易分解性有機物もまた大きく影響することが知られている^{2,16)}。後者は土壌中で微生物の著しい増殖を促進し、その菌体と、Polysaccharide のよ

うな代謝産物により、土壌孔隙が閉塞されるからである。

粗大固形物は篩別や沈殿処理などの物理的方法によりかなり効率的に除去しうるが、水溶性成分の除去はできない。水溶性および微粒子の易分解性有機物の除去には生物酸化が効率的かつ実用的である⁹⁾。本試験での土壌浸透供試液は、S式より原廃水のCODを約87%除去し、COD約80 mg/lにしたものである。

この結果、先に報告した化学処理水(COD 543 mg/l)の土壌浸透の場合¹⁶⁾に比べ、高い負荷水量にもかかわらず、カラムの透水性はかなり長期にわたって維持できた。すなわち、両実験に共通である腐植質火山灰土壌と比較すれば次のようである。化学処理水の平均浸透速度は、毎日100 mm添加区で積算負荷量3,000 mmのとき77 mm/日、毎日200 mm添加区で積算負荷量1,900 mmのとき42 mm/日に過ぎなかったが、本生物酸化処理水の場合には、毎日200 mm、積算負荷量2,990 mmでなお117 mm/日の平均浸透速度を維持していた。このように土壌中での微生物増殖の大きなエネルギー源となる易分解性有機物をあらかじめかなりの程度に除去しておくことは、廃水の高い土壌浸透速度の維持に相当役立った。

しかし本実験でも長期にわたる大量の廃水の浸透の結果、両土壌とも透水性は低下した。これは低濃度になったとはいえ、易分解性有機物の連続的な供給による上述のような微生物代謝の影響が主要要因として作用したのと思われる。

このような原因での土壌の目づまり防止に関しては、廃水の土壌添加を間欠的に行い、土壌の乾燥を図り、その内部に酸化的状態をつくるのが効果的とされている²⁾。酸化的条件では土壌中に集積した有機物の分解が促進されるからである。本実験で廃水添加の頻度を3段階に変えた処理区を設けた目的は、この間欠的添加の効果を見るためである。

実験の結果は表4に見るように、透水性の低い火山灰土壌では、廃水添加頻度の低い1/4区や1/2区が、頻度の高い1/1区よりも高い浸透率を示した。特に2mカラムで差が見られたが、処理区間の差異は大きいものではなかった。沖積土壌ではこのような処理効果は明らかでなかった。しかし図3-4のように、21日間の廃水添加中断により、土壌を相当乾燥したあとの透水性の回復は著しいもので、本実験条件では、1-3日程度の放置では透水性に対する所期の効果を十分発揮させるには不十分だったものと思われる。しかし後述のように、Nの行動に関してはこの程度の間欠添加処理でも、かなりの影

響が現われている。

2. 窒素の除去

廃水の土壌浸透によるN除去の良否も、その土壌処理における負荷量や適応性をきめる重要因子である。特に硝酸性窒素による地下水汚染を生じやすい条件では重視すべきである^{2,9,30)}。

廃水の土壌浸透におけるNの主な除去機構は、土壌のカチオン吸着基による NH_4^+ の吸着除去と、生物学および純化学的作用によるNの揮散除去である。 NH_4^+ の吸着除去は、吸着基が NH_4^+ で飽和されるまでに限られ、また吸着された NH_4^+ は、好氣的条件では早晚N酸化物に酸化され、結局は条件によるが後述のような機構で揮散される。したがって土壌に入ったNが環境に無害な状態になるには、このNの揮散作用が最も重要なものと思われる。もちろん植物が存在する場合、そのN吸収力の影響はきわめて大きい^{2,5,9)}。

さて、既報¹⁶⁾の豚舎廃水の化学処理の場合、その上澄液のNはすべて $\text{NH}_4\text{-N}$ であった。したがって、この土壌浸透においてはまず NH_4^+ の吸着除去は行われるが、吸着された NH_4^+ は硝化作用のあと、N酸化物として流出する割合が高く、Nの除去効率は土壌カラムを長くしても高まらなかった。

よって今回の実験では、土壌導入前の廃水の前処理において、含有Nの約60%を $\text{NO}_3\text{-N}$ にまで酸化した状態で土壌浸透を行った。N酸化物として土壌に加えれば、廃水有機物の土壌中での分解過程で、このN酸化物は脱窒菌に利用され、 N_2 や N_2O として揮散される可能性が十分期待され、また NO_3^- は土壌中で純化学的にも変化し^{3,33)}、ガス化することも考えられるからである。

このように廃水の生物酸化処理は、土壌浸透におけるN除去効率に直接的に影響する重要な手段である。しかし、廃水含有Nを高い割合で酸化物にする場合には、当然共存する易分解性有機物も相当程度失われるので^{24,25,27)}、脱窒菌のエネルギー不足のため脱窒作用による土壌中でのN除去効率の低下も考えられる。もっともこの原因による効率低下は、土壌への適当な有機質資材の施用によって解消される可能性は高い。

また廃水のNの大部分を $\text{NO}_3\text{-N}$ としてとどめる場合は、 $\text{NO}_3\text{-N}$ にまで酸化するより、一般に処理時間は短く、省エネルギー的であり、窒素除去は効率のみを目的とする場合には有望な方法と思われる。しかし、作物生産をも望む場合には、 NO_3^- が作物に有害な点より十分考慮する必要はある。いずれにせよ、生物酸化による廃水Nの酸化程度は、その土壌・植物系における行動とも関連し、今後十分検討すべき事項である。

実験の結果はつぎのようであった。すなわち、まず既報¹⁾の化学処理水浸透の場合と比較すれば、千葉表土1mカラムでNの積算負荷量 522 g/m² の場合の除去率は43%に過ぎなかったのに対し、本実験の火山灰土壌 1/1-1区では、N積算負荷量 465 g/m² での除去率は72%に達した。すなわち、NH₄⁺としてよりNO₂⁻として土壌に入れた方が、予想のようにN除去効率を高めた。

しかし、NO₂⁻はNH₄⁺と異って土壌に吸着されないから、廃水の土壌浸透速度が速く、脱窒条件が不十分なときは、NO₂⁻のまま流出する可能性が高い。この点は図8に示したように、沖積土壌のI-IIIの浸透時期に見られ、浸透水中のNO₂-Nは、供試廃水と大差ない30-75 mg/lの濃度となった。しかし土壌の透水性がかなり低下したIV-Vの時期では、NO₂-N濃度は著しく低く、そのT-N除去率は最高になり、NO₂-Nはほとんどなかった。つまりNO₂-Nの土壌浸透除去には、脱窒作用に好適な条件の確保が不可欠である。

一方、火山灰土壌の場合には、図7にも示すように浸透水のNO₂-N濃度は一部を除きかなり低かった。これは透水性が低く保水力に富み、全般にカラムの土壌中で脱窒作用を生じやすい嫌氣的部分が多かったものと思われる。また、NO₂⁻と純化学的に反応する腐植酸等にも富むことも、Nの除去に貢献した可能性として考えられる^{3,33)}。しかし本実験では脱窒作用が主体をなしたものと判断される。なぜなら、純化学的反應を生じやすいと思われる腐植質火山土壌でも、廃水添加の頻度が高く、土壌の還元を生じやすい区の方がそうでない区より、浸透水のNO₂⁻濃度が著しく低いからである。

また両土壌とも、浸透水中のNO₂-NおよびNO₃-Nの濃度は、1/1区が1/2区および1/4区よりかなり低く、また、T-N除去率も高い傾向にあった。すなわち、廃水の添加頻度が高く土壌が過湿になりやすい条件では、その還元化も進み、脱窒作用もかなり進む状態にあったものと思われる。逆に廃水の添加頻度の少ない場合には硝化作用は進むが、脱窒作用には不十分な条件になったものと考えられる。廃水添加を中断し土壌の乾燥と酸化を図ったあとの浸透水には、火山灰土壌の1/1-2区を除き、NO₂-Nの顕著な増加が見られたのはこの証拠である。

供試廃水中のNH₄⁺の吸着除去に対しては、明らかに沖積土壌が火山灰土壌にまさった。これは前者の土壌では、モンモリロナイト、パーミキュライト、カオリナイトなどの結晶性粘土鉱物が相当含まれ¹⁾、吸着基はi-chargeが主体であるのに対し、後者はアロフェンおよび腐植のO-chargeが主体となっているためと思われる¹⁰⁾。

したがって、沖積土壌の場合には1mカラムでも、廃水を毎日頻加して、浸透速度が遅い条件ではT-N除去率は90%以上になった。すなわちNH₄-Nの吸着除去とNO₂-Nの脱窒揮散が効率よく進んだためと思われる。火山灰土壌では、NH₄-Nの除去を効果的にするには、カラムの長さは2mを必要とした。

以上より、本実験では全期間の総計としてのN除去率は、沖積土壌が火山灰土壌に劣る結果となったが、廃水の添加法と浸透速度を適当にコントロールすれば、本供試廃水のようにN酸化物の割合が高い場合には、比較的土壌の種類や条件の影響も少なく、高いN除去効果をあげうるものと思われる。すなわち、廃水の生物酸化処理の重要な利点の一つである。

3. りんの除去

土壌浸透による廃水Pの除去は両土壌ともきわめて高く、除去率99.5%以上で、浸透水のP濃度は0.00-0.17 mg/lに過ぎなかった。Pは水質の富栄養化要因物質として非常に重視されているから³⁰⁾、このような土壌浸透の効果は、実用上きわめて貴重である。

土壌浸透における廃水Pの除去機構は主に土壌粒子による吸着、固定などの物理化学的反應である^{2,9)}。したがって、P除去に対する土壌の機能の持続性、すなわちP吸着容量の大小が問題になる。表1に示したりん酸吸収係数は、土壌のP吸着容量を比較する便宜的方法ではあるが、その吸着の絶対的容量を正確に示すものではない。一般にPの土壌粒子による吸着反應は緩徐に進むので、反應時間を長期的にとれば、P吸収係数で示される値より相当高いPの吸着量をうる可能性がある⁴⁾。

本実験でのP吸収係数を仮りに最大P吸着容量と見た場合、1mカラム当りで、Pとして火山灰土壌30.4g、沖積土壌14.2gまでの吸着は可能である。廃水による最高のP負荷量は、それぞれ217mgと314mgであったから、この可能量に対しては、火山灰土壌で0.71%、沖積土壌で2.2%に過ぎなかった。土壌のP除去能力はきわめて大きいことがうかがわれる。しかし跡地土壌の分析結果よりも明らかのように、このような廃水Pの添加により土壌の可給態Pは相当増加した。すなわち、水溶性Pとしては減少してもなお作物には十分利用できる形態として土壌中に蓄積しているのである。当然作物の導入によって吸収利用され、土壌のP吸着機能は一層高まり永続することが期待される。

4. 有機物の除去

供試廃水中の有機物の物理的形態は浮遊固形物(SS)と水溶性がある。このうち水溶性有機物は、あらかじめS式によってBOD除去率90%に達する生物酸化処理を

行っているため、含有される有機物 (TOC) は、生物的には比較的安定な状態にあると思われたにもかかわらず、土壌浸透によって廃水 TOC は著しく除去され、高い浄化効率が示された。一方、SS は土壌孔隙の篩別作用によって、カラムの表層付近の土壌で除去され、さらに既往の実験よりも、この SS および可溶性有機物は好氣的土壌条件では、微生物により比較的容易に分解されることは明らかである。これは土壌中の微生物相は S 式の処理槽における微生物相に比べれば、遙かに複雑で、かつ、栄養物の連続的豊富な供給により、その活性も著しく高いためである^{17,18)}。このことは浸透処理跡土に、炭素や水溶性 COD がほとんど増加してなかった事実 (図 10-11) よりも明らかである。

またこのように、廃水中の TOC が土壌中で分解されやすいことは、既述の脱窒作用におけるエネルギー供給とも関連し、N の除去効率を高めるために重要な意義を有している。

5. 跡地土壌の理化学性の変化

畜舎廃水のように有機物と塩類濃度が高い場合には、特にその大量かつ長期にわたる土壌浸透が、土壌自体の性質にどのような影響を与えるかを明らかにしておくことは、その浄化機能の永続性、2次汚染発生の可能性および作物生産への影響などの関連から重要である。

ところで有機物に関しては、本供試廃水のように強力な生物酸化処理をすれば、土壌浸透前に相当程度減少させることができる。しかも既述のように、好氣的な土壌条件では、土壌微生物による分解除去効率も著しく高いので、土壌への有機物蓄積が問題になる可能性は少ない。

窒素もまた前処理としての生物酸化の過程で相当程度除去できる^{9,25,28)}。さらに本実験でも明らかのように、土壌中では脱窒作用をかなり効率的に進めるコントロールもできるので、土壌への蓄積は少ない成分である。

しかし、塩類など無機物は、前処理では、余剰汚泥として生物菌体および化学反応沈殿物となったものは除去できるが、一般にはこれはごく一部に過ぎず、大部分は水溶性として土壌系に持ち込まれる。しかも土壌中でガス化除去はできないので、土壌系から浸透水として流出または植物に吸収除去されない限り、土壌中に蓄積する。廃水の大量連用においては大きな問題である^{2,5,6,18,29,34)}。

実験の結果も、EC ならびに各種交換性塩基含量の著しい増大や交換性塩基組成が変るなどの変化が顕著であった。

しかし土壌微生物によるふん尿有機成分の無機化に対しては、土壌の塩類集積はかなりの高濃度までは、ほと

んど悪影響は与えないことは知られているから¹⁸⁾、塩類集積も土壌の有機質廃水浄化そのものへの影響は比較的少ないものと思われる。

一方、土壌塩類の蓄積と塩基組成のアンバランスが、作物の生育、収量および品質に悪影響を与えることは周知の事実である。本実験でも見られたような交換性 K, Na の集積, Ca の流出等の現象は、土壌の肥沃性維持上も重要問題であり、廃水の作物栽培利用において重視すべき点である。

本報告の一部は、日本土壌肥料学会関東支部会 (昭和 51 年 9 月) および日本水質汚濁研究会主催の第 11 回水質汚濁に関するシンポジウム (昭和 52 年 2 月) で発表された。

本委託研究の実施に当っては、埼玉県農業試験場の関係各位の多大な協力を得た。ここに衷心からの謝意を表す。

引用文献

1. 青峰重範 (1966): 沖積土壌の粘土鉱物, 重粘土の物理性特別研究報告 昭和 41 年度研究概要。
2. Bouwer, H. & Chaney, R.L. (1974): Land treatment of Wastewater. p.133-176. In Brady, N.C. ed. *Advances in agronomy*. 26. Academic Press. N. Y.
3. Bremner, J.M. & Nelson, D.W. (1968): Chemical decomposition of nitrite in soils. 9th Int. Congr. Soil Sci. II 495-503.
4. 土壌養分測定法委員会編 (1970): 肥沃度測定のための土壌養分分析法 p.251-253. 養賢堂, 東京。
5. Hook, J.E. & Kardos, L.T. (1977): Nitrate relationships in the Penn. state. "living filter" system. p.181-198. In Loeher, R.C. ed. *Land as a waste management alternative*. Ann Arbor Science Publisher Inc. Ann Arbor. Mich.
6. Horton, M.L., Schnabel, R.R. & Wiersma, J.L. (1977): Soil and crop response to applied animal waste. p.703-712. In Loeher, R.C. ed. *Land as a waste management alternative*. Ann Arbor Science Publisher Inc. Ann Arbor. Mich.
7. 木下 彰 (1969): 畑土壌と水. 石沢修一・江川友治・村山登監修. 土壌肥料新技術. p.218-225. 技報堂. 東京。
8. 国松孝男 (1977): 都市下水の陸地還元に関する調査研究. II. p.1-125. 滋賀県立短期大学農業部。
9. Loeher, R.C. (1977): *Pollution control for agriculture*. Academic Press, Inc. N. Y. 383 p.
10. Ministry of Agriculture and Forestry Japanese Government (1964): *Volcanic Ash Soils in Japan*. p.1-211. Sakurai-kōsaidō Printing Co. Ltd., Tokyo.
11. 日本下水道協会編 (1974): 下水試験方法. 日本下水道協会. 東京. 507 p.
12. 農林省畜産局畜産経営課編 (1977): 畜産経営の動向 p.200-201.
13. 尾形 保・大嶋秀雄・田野良衛 (1970): 豚ふん尿汚水の固

- 形物分離液に対する凝集沈殿剤の比較. 畜試研報 21 : 25-34.
14. 尾形 保・大嶋秀雄・田野良衛 (1970) : 豚ふん尿汚水の土壌利用による浄化に関する研究. II. 土壌浸透による汚水成分の変化 (その1) 用水と廃水 12 (3) : 209-214.
 15. 尾形 保・大嶋秀雄・田野良衛 (1970) : 豚ふん尿汚水の土壌利用による浄化に関する研究. III. 土壌浸透による汚水成分の変化 (その2) 用水と廃水 12 (8) : 643-661.
 16. 尾形 保・大嶋秀雄・田野良衛 (1970) : 豚ふん尿汚水の土壌利用による浄化に関する研究. IV. 土壌浸透による汚水浄化の夏と冬の比較および目づまり現象の要因解析. 用水と廃水. 12 (10) : 879-887.
 17. 尾形 保・大嶋秀雄・田野良衛 (1970) : 豚ふん尿汚水の土壌利用による浄化に関する研究. V. 好氣的土壌の連続添加汚水有機物に対する分解力について. 用水と廃水 12 (11) : 975-979.
 18. 尾形 保・大嶋秀雄・田野良衛 (1973) : 豚ふん尿汚水の土壌利用による浄化に関する研究. VI. 汚水有機物の分解等に対する土壌の種類とパーライト混合割合の影響. 用水と廃水 15 (5) : 579-588.
 19. 尾形 保 (1971) : 土壌利用による豚ふん尿汚水の浄化—とくに土壌利用の散水濾床方式について—水処理技術 12 (3) : 1-10.
 20. 尾形 保 (1972) : 畜産廃棄物の土壌処理. 「近代農業における土壌肥料の研究」第3集日本土壌肥料学会編. p.121-130. 養賢堂. 東京.
 21. 尾形 保 (1972) : 土壌を利用した畜舎排水の浄化処理. I. 畜産の研究 26 : 1303-1306.
 22. 尾形 保 (1972) : 土壌を利用した畜舎排水の浄化処理. II. 畜産の研究 26 : 1412-1416.
 23. 尾形 保・島中哲哉・市来秀夫 (1973) : 土壌物質利用による汚水浄化装置の開発に関する研究(予報). サイフォン式浄化槽と固粒化粉体の利用による汚水浄化の可能性について. 水処理技術 14 (4) : 385-394.
 24. 尾形 保・島中哲哉 (1975) : サイフォン環流式ろ床の汚水浄化機能に関する研究. I. 汚水有機炭素の酸化分解および無機成分存在状態の変化. 水処理技術 16 (2) : 131-138.
 25. 尾形 保・島中哲哉 (1975) : サイフォン環流式ろ床の汚水浄化機能に関する研究. 第9回水質汚濁研究に関するシンポジウム講演集 : 23-28.
 26. 尾形 保 (1975) : 土壌の浄化力を利用した汚水の処理について. 水 17 (2) : 57-63.
 27. 尾形 保・島中哲哉 (1976) : サイフォン環流式ろ床による豚舎排水の浄化. 第13回下水道研究発表会講演集 : 455-457.
 28. 尾形 保 (1976) : 畜舎排水の新しい浄化装置, 「サイフォン環流式ろ床」について. 水 18 (7) : 62-67.
 29. Palazzo, A.J.(1977) : Forage growth and utilization of applied Nitrogen, phosphorus and potassium. p.171-198. *In* Loehr, R.C. Land as a waste management alternative. Ann. Arbor. Science Publisher Inc. Ann. Arbor. Mich.
 30. ボーター K.S. 編著 (松坂泰明・鈴木福松監訳) (1978) : 環境保全と窒素・リン, 農林統計協会. 東京. 369 p.
 31. 埼玉県農業試験場 (1971) : 地力保全調査研究報告書. (地図)
 32. 埼玉県農業試験場 (1975) : 地力保全調査研究報告書. (地図)
 33. Stevenson, F.J., Harrison, R.M., Wetselaar, R. & Leeper, R.A. (1970) : Nitrosation of soil organic matter. III. Nature of gases produced by reaction of nitrite with lignins, humic substances, and phenolic constituents under neutral and slightly acidic conditions. Soil Sci. Soc. Amer. proc. 34 : 430-435.
 34. Wallingford, G.W., Powers, W.L., Murphy, L.S. & Manges, H.L.(1977) : Salt accumulation in soil as a factor for determining application rates of beef-feedlot manure and lagoon water. p.713-726. *In* Loehr, R.C. ed. Land as a waste management alternative. Ann. Arbor. Science Publisher Inc. Ann. Arbor., Mich.

SUMMARY

Studies on Renovation of Bio-oxidized Wastewater in Soil-plant Systems.

I. Renovation of the Wastewater by Soil Infiltration.

Tamotsu OGATA¹, Mikichika YAMAGUCHI², Kikuo ISHII² and Tetsuya HATANAKA¹

1. *Environment division, National Grassland Research Institute.*

Nishinasuno, Tochigi, 329-27, Japan

2. *Saitama-Prefectural Agricultural Experimental Station.*

Kumagaya, Saitama, 360, Japan

Received June 15, 1978

The water pollutions caused by animal wastewater have been of serious concern in Japan and many attempts have been trying to establish the method for effective and economic

treatments of the waste.

The land treatment systems of wastewater have great public appeal, because of simplicity, reliability, and low energy requirement as contrasted with other complex and advanced treatment technology.

However, because of many problems for environment caused by application of raw wastewater to land under Japanese social and natural conditions, the least bio-oxidation of raw materials is thought to be necessary prior to the land treatment.

The present authors have begun the studies on renovation and utilization of bio-oxidized animal wastewater in soil-plant systems. The present paper deals with evaluation of soil infiltration for the renovation of bio-oxidized wastewater.

The experiment was carried out with infiltrating the bio-oxidized wastewater of hog excrements into the soil-columns in laboratory.

In the experimental treatments, the following three factors were investigated: kind of soil, length of soil-column and frequency of the wastewater application.

The soil used were volcanic ash soil and alluvial soil. The soil-columns were 1 m and 2 m in length and 7.0 cm in diameter. The frequency of the wastewater application on to the columns was once every day, every two days and every four days. The form of nitrogen in the wastewater for infiltration was nitrite in more than 50% of total nitrogen after treating with bio-oxidation facility.

The main results obtained were as follows:

1. During the experiment period of 130 days, the wastewater loaded on the surface of the soil-columns amounted to 3,832-6,707 mm for the volcanic ash soil and 4,823-10,554 mm for the alluvial soil, and the rates of infiltration of the wastewater were 72-90% for the former and 84-93% for the latter.

2. The removal rate of $\text{PO}_4\text{-P}$ exceeded 99.5% for both kinds of soils and the $\text{PO}_4\text{-P}$ concentrations of the infiltrates were 0.00-0.17 mg/l.

3. The total amounts of nitrogen loaded and removal rates of the element by infiltration were respectively 400-656 g/m², 45-92% for volcanic ash soil and 465-1,113 g/m², 37-55% for the alluvial soil. The highest removal rates of nitrogen were obtained under the favorable conditions for denitrification such as at the low rate infiltration and the high frequency of the wastewater applications in both of the soils.

4. The most remarkable influence of the wastewater infiltration on soil properties was the accumulation of salts for the both soils. Ammonium nitrogen was much more adsorbed in the alluvial soil having 2:1 type clay minerals than in the volcanic ash soil having allopahane and humus, while the accumulation of organic carbon of the treated wastewater into the soils were hardly observed for the both kinds of soil with few exceptions.

Bull. Natl. Grass. Inst. 13: 63-78 (1978)