

石膏による代掻き濁水の浄化と水田土壌の分散凝集構造

赤江 剛 夫*

Clarification of Puddled Water by Gypsum and Dispersion-Flocculation of Paddy Field Soil

Takeo Akae*

Faculty of Environmental Science and Technology, Okayama University

Abstract

Discharge from paddy fields after puddled is regarded as one of causes of water pollution of rivers and lakes. The problem is considered to be most serious on Uso-river basin in Shiga prefecture. The author investigated a practical method to clarify the puddled water by gypsum addition to it.

A critical coagulation condition of the puddled water was estimated on the basis of the Hetero coagulation theory. The calculated results showed the Ca ion concentration greater than 2m mol/l will flocculate the puddled water. The estimated value agreed well with experimental results. Then the most favorable flocculation aid was searched among eight soil amendments and fertilizers. Gypsum was found to be the best aid because it showed most effective flocculation and moderate pH change.

The optimum gypsum application rate was examined in test plots made on two paddy fields of the area. The rate of 30 kg/10a gypsum decreased the suspended solid concentration below 0.1% in 12 hours. The critical Ca ion concentration at rapid flocculation was found to be ranging from 1 to 2m mol/l, which agreed with the estimated critical concentration. The rate of 30 kg/10a gypsum was estimated to reduce 70 to 80% of the whole effluents of the suspended solids of the puddled water.

Key words : paddy field, puddled water, dispersion-flocculation, gypsum, critical coagulation concentration

1. はじめに

近年、自然環境や生態系保全に対する関心の高まりの中で、農地開発事業や営農など人為的行為に伴う濁水の発生は厳しい指弾を浴びる情勢となっている。下流の河川や湖へ排出される代掻き濁水についても、営農にともなう人為的な原因によって発生するものであることから、その排出抑制は、農業側にとって重要な環境課題の一つであると考えられている。

滋賀県でも河川や琵琶湖に流入する代掻き濁水が、アユ、フナなどの漁獲量の減少、琵琶湖水質悪化の原因と目され、効果的な抑止策が検討されてきた。県では、「み

ずすまし」計画と呼ばれる濁水排出抑止計画を策定し、実行してきている。具体的には、浅水代掻き、表層代掻きの励行と掛け流し防止、落水口からの漏水防止の徹底、畦畔板、ビニール畦畔、コンクリート畦畔などによる畦畔浸透防止対策など圃場レベルの管理から、排出された濁水の反復利用施設の整備など地域レベルのハードな施設整備が含まれている。しかし、これまでのさまざまな対応によっても、問題は解決したとはいえない現状であり、引き続き効果的な代掻き濁水浄化法が求められている。

濁水対策の一方法として凝集資材による沈降浄化法も検討された。合成凝集資材には凝集効果の優れたものも

* 岡山大学環境理工学部 〒700-8530 岡山市津島中2丁目1-1
キーワード: 水田, 代掻き水, 分散凝集, 石膏, 限界凝集濃度

あったが、中には魚毒性が報告されたものもあり(藤原, 1987), 実際に利用されるには至っていない。

濁水発生の著しい水田土壌を対象に, その凝集機構に関する理論的, 実験的検討を行ったところ, 濁水溶液中の陽イオンの種と濃度で水田土壌の凝集が大きく支配され, ヘテロ凝集理論によって凝集条件が予測可能であることが分かった(赤江, 1992a)。そこで, 作物へも安全な代掻き濁水の発生源対策の観点から, 農業上良く利用される土壌改良資材のなかから有効な資材の検索をこころみた。結果を総合的に判断すると, もっとも成績がよかったのは石膏であった(赤江, 1992b)。その効果は, 現地試験でも確かめられた(赤江, 1994)。

本報告は, 水田土壌の凝集機構を検討し, 代掻き濁水浄化のための凝集条件, 凝集資材の選定と必要施用量と施用法, 濁水排出負荷削減量の推定について, 滋賀県での事例を実証的に検討した結果をとりまとめたものである。主要な成果については, すでに報文として報告しており, 本文はそれらを再整理したものである。

2. 調査地点土壌の基礎的性質と代掻き濁水の現状

(1) 調査対象地点と土壌の基礎的性質

滋賀県では, 琵琶湖の富栄養化の防止を期して, 毎年代掻き濁水について発生状況調査を行っている。最近の結果では, 宇曾川流域の湖東町, 五の谷川, 澗川でもっとも高い濁度が検出されている(滋賀県農林部, 1991)。調査対象として, この両支流流域に含まれる湖東町中一色地区, 大沢, 中里地区を選んだ(図-1)。

本地域の土壌は, 強粘質細粒褐色低地土(中島統)に分類されており, この土壌の分布する流域の排水路の濁度が最も高い。中島統に含まれる3地区(中一式, 大沢, 中里)の水田より, 土壌を採取した。

土壌の基礎的性質を表-1に示した。X線回折で同定した粘土鉱物は, 3地点ともハロイサイト(7A)を主体とすることがわかった。

また, 本地区の土壌は, 機械的分散程度の強さと, 化学的分散条件に大きく影響される特徴を持つ。図-2に中一式地区表土の分散条件の違いによる粒径分布の変化を示している。化学的分散剤(ヘキサメタリン酸ナトリウム)を加え, 超音波分散をあたえると, 粘土分は攪拌のみの20%から36%まで増大した。大沢下層土では, 6%から45%に増大した。

中島統土壌の粘土荷電のpH依存性を顕微鏡電気泳動法で測定し, ゼータ電位をもとめた。pH7以上では-40

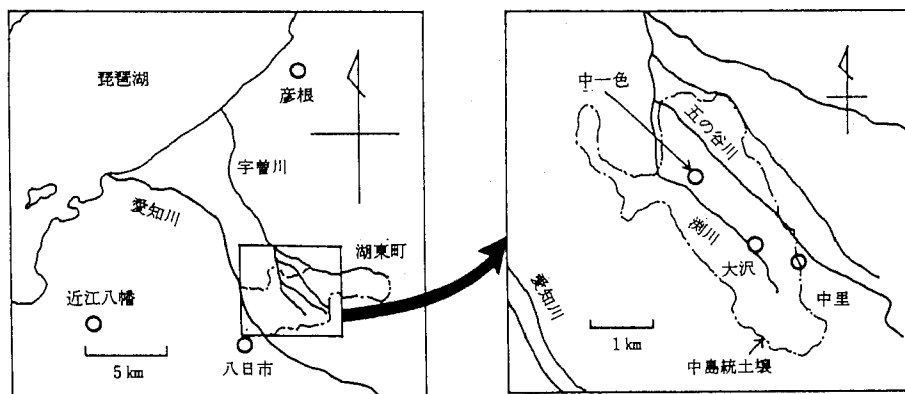


図-1 宇曾川水系と調査対象地点⁷⁾

Fig. 1 Uso-river basin and soil sampling points.

表-1 土壌の基礎的性質

Table 1 Fundamental properties of soils

土 壤 名	真比重	土 性	pH (H ₂ O)	CEC (meq/100 g)	液性限界 (%)	塑性限界 (%)	塑性指数
短大農場土	2.515	L	6.6	—	43.0	22.5	20.5
中一色表土	2.574	LiC	6.2	11.0	48.0	25.9	22.1
大沢下層土	2.675	LiC	6.9	12.1	49.2	25.4	23.8
中里表土	2.511	L	6.5	—	46.4	23.9	22.5

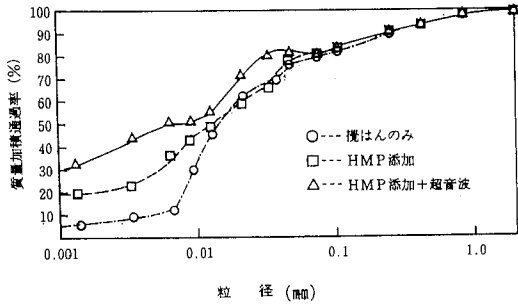


図-2 分散処理が粒径分布に及ぼす影響 (中一色表土)

Fig. 2 Dependence of particle size distribution on dispersion methods (Top soil of Nakaisshiki).

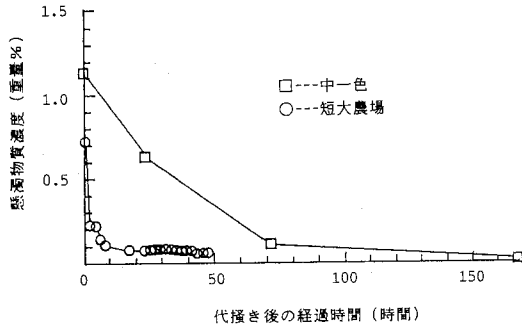


図-3 代かき水中の懸濁物質濃度の経時変化⁷⁾

Fig. 3 Time dependent change of suspended solid concentration in puddled water.

~45 mV であるゼータ電位が pH 7 以下では大きく低下し、pH 5 で -10 mV の最小値を示した。このことから pH 5 付近が pH 依存荷電の等電点であると推定された。

(2) 代掻き濁水の実態調査

1991 年 4 月末に代掻き濁水発生状況の実態調査を行った。中一色地区で、代掻き直後、代掻き終了後 1 日、3 日、7 日経過した 4 筆の水田からそれぞれ 3 カ所において表面水を採取した。対照として、滋賀県立短大農場の 3 筆の水田で、代掻き直後から 1~数時間間隔で 2 日間、代掻き水をそれぞれ 3 カ所から採水した。灼乾法で懸濁物質濃度を測定した。

図-3 は、代掻き後の経過時間と採水した代掻き水中の懸濁物質濃度の関係を示す。中一色土壌が長期間にわたって懸濁し、沈降しにくい土壌であることがよく分かる。河川的环境基準は農業用水利用の浮遊物質質量 (SS) が 100 ppm 以下であることを求めている。中一色水田水はこの基準をはるかに超えている。

3. Ca 塩による水田土壌の凝集条件⁸⁾

コロイド粒子間の凝集は、粒子間の電気的反発力とファンデルワールス引力のバランスで決まるとするヘテロ凝集理論で説明されており、比較的純粋な粘土ではその成立が確かめられている。これが一般の水田土壌の分散凝集に適用できるのか、本地区土壌を例として、凝集

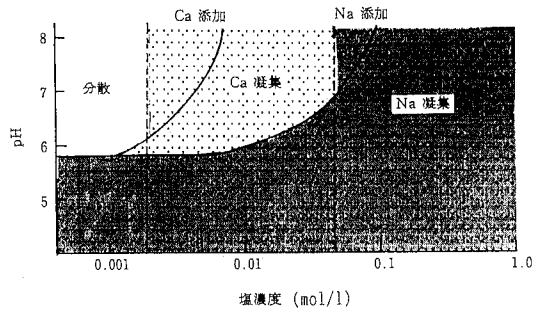


図-4 Ca, Na イオン添加時のハロイサイトの限界凝集条件

(実線：永久荷電粒子間、破線：永久荷電-pH 依存荷電間)

Fig. 4 Critical coagulation condition of Halloysite (Solid line: between permanent charges, Broken line: between permanent charges and pH dependent charges).

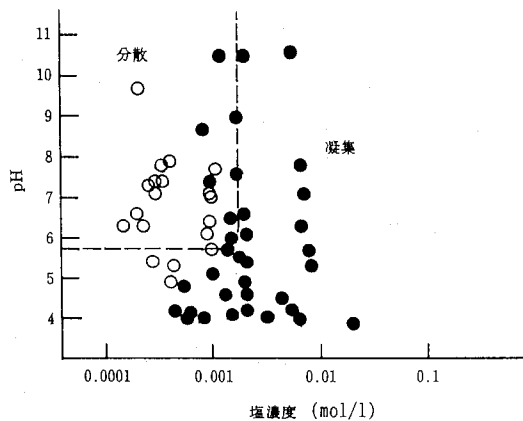


図-5 Ca イオン添加時の凝集 (中一色表土)

(○: 分散, ●: 凝集, 破線: 推定限界凝集条件)

Fig. 5 Dispersion-flocculation condition of Nakaisshiki top soil under Ca ion addition (○: Dispersed, ●: flocculated, Broken line: Calculated boundary between dispersion and flocculation)

条件を検討した。

本土壌の主要粘土鉱物であるメタハロイサイトの粒子形状を球と仮定し、Na および Ca イオンの濃度と土壌溶液 pH を変えたときの 1 結合当たりの相互作用エネルギーをヘテロ凝集理論に基づいて計算した。相互作用エネルギーが 15kT 以下で凝集が生じるとして、限界凝集条件を塩濃度、pH 平面上に推定した (図-4)。

推定した限界凝集条件と中一色表土に Ca, Na を添加した分散凝集試験結果は、たがいにほぼ一致した (図-5)。凝集領域は pH 5.7 以下か、Na イオン添加では 50 m mol/l 以上、Ca イオン添加では 2 m mol/l 以上の領域となり、現状で 0.2 m mol/l の濁水中 Ca 濃度を 2 m mol/l に高めることで凝集沈降浄化が可能であることが分かった。

4. 各種土壌改良資材の凝集効果試験

(1) 試験方法

農業上よく使用されており、安全性に不安のない土壌改良資材および肥料のうち Ca 成分を比較的多く含むものを対象に凝集効果を検討した (表-2)。なお、凝集試験は 3 地点のうちもっとも分散しやすい中一色表土に対して行った。

中一色表土の風乾土 75 g と 700 ml の蒸留水を加えてよく混合し、振とう機で 1 時間振とうし、蒸留水を加えて 1,000 ml とした。再度手で振とうした後、各凝集剤を 0.1, 0.25, 0.5, 1.0 g/l 散布し、ガラス棒で約 10 秒間静かに掻き混ぜ静置した。代掻き時の水深を 10 cm とすると、これらの添加量はそれぞれ 10, 25, 50, 100 kg/10 a の散布量に相当する。静置後 1, 3, 6, 24, 48 時間後に、水面下 5 cm の位置から懸濁液を 10 ml 採取し、懸濁物質濃度、pH、電気伝導度、平衡外液中の Ca イオン濃度を測定した。

(2) 凝集試験結果

石膏添加の場合、0.1 g/l 添加では 3 時間後 0.38%、0.20 g/l 添加では 0.17% の懸濁物質濃度であるのに対し、0.25 g/l では 3 時間後ほぼ 0% となっている (図-6)。これ以上の添加量では 1 時間後ですでに 0.05% 以下となっている。対照の場合 48 時間を経過しても 0.35% もの懸濁物質濃度があるのに対比、著しい凝集効果を発揮した。他に凝集効果が認められたのは、消石灰 1.0 g/l の場合であった。これ以外の資材については顕著な凝集効果は認められなかった。添加量と濁度の低下速度から凝集効果を総合的に評価すると、石膏>消石灰>石灰窒素>炭酸カルシウム>過リン酸石灰≒ヨウリン≒苦土石灰≒ケイカルとなった。

凝集剤を添加した時、Ca 濃度の変化とともに、pH の変化も生じた。図-7 に凝集剤を添加した時の懸濁液の状態を Ca 濃度-pH 平面上に示した。この図から凝集効果

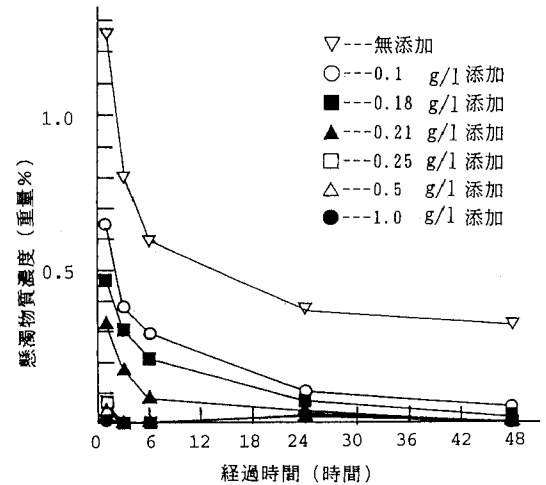


図-6 セッコウ添加後の経過時間と懸濁物質濃度
Fig. 6 Suspended solid concentration change after gypsum addition.

表-2 試験した土壌改良資材と肥料

Table 2 Soil amendments and fertilizers tested

凝集剤名	形態	主要化学組成	含有アルカリ分 (%)	水稲作への通常施用量 (kg/10 a)
セッコウ	粉状	CaSO ₄ ·2H ₂ O	40	20~60 (中期施用)
(苦土)消石灰	粉状	Ca(OH) ₂ , Mg(OH) ₂ (5%)	60	20~60 (")
炭酸カルシウム	粉状	CaCO ₃	56	20~60 (")
石灰窒素	粉状	CaCN ₂ , CaO	55	10~100
過リン酸石灰	粒状	Ca(H ₂ PO ₄) ₂ , CaSO ₄	30	—
熔リン	粒状	α-Ca ₃ (PO ₄) ₂	45	40~80
アヅミン苦土石灰	粒状	Ca(OH) ₂ , Mg(OH) ₂	50	100~160
砂状ケイカル	砂状	CaO, Al ₂ O ₃ , SiO ₂	47	200~300

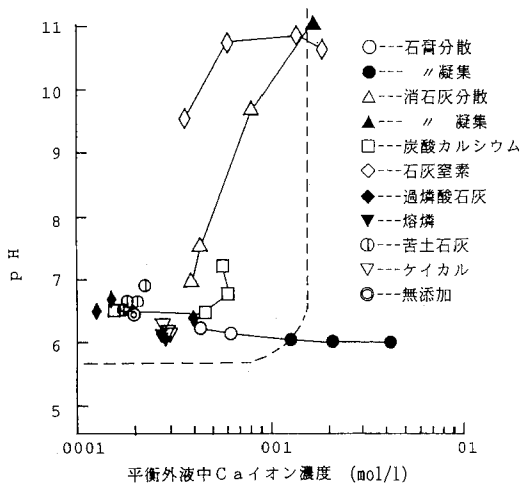


図-7 各凝集剤添加後の濁水中のCaイオン濃度とpH

Fig. 7 Calcium ion concentration and pH of the suspension after addition of flocculation aids.

が発揮されたのは、石膏あるいは消石灰添加によってCaイオン濃度が1.5 mol/lを越えた時に限られることが分かる。このCa濃度は計算による限界凝集濃度2 mol/lとほぼ一致している。石膏添加では添加量の増加とともにpHはやや低下した。消石灰添加ではpHが大きく上昇し、凝集効果のみられた1.0 g/l添加でpH 11以上の値を示した。

凝集効果、pH変化の両方からみて、検索した資料の中で石膏がもっとも有効であると判定された。

(3) 施用方法について

石膏の混合方法による凝集効果の違いを検討した。予め石膏を必要量溶解させた溶液に土壌を添加し1時間振とうした試料(完全混合)と、懸濁水面に凝集剤を散布し、ガラス棒で軽く攪はんした試料の懸濁物質濃度を比較した。

その結果、完全混合法の方は、散布攪拌法よりも限界凝集濃度以下でいくぶん小さい濃度を示したが、その差はわずかであった。しかも限界凝集添加量は混合法にかかわらず、おなじ0.25 g/l以上であった。よって、混合処理の違いによる影響は小さく、代掻き水面に散布するだけで充分に期待される凝集効果が得られるものと考えられた。

5. 現地試験による石膏の濁水凝集浄化効果の確認

(1) 現地試験の方法

中一式地区、大沢地区で試験用代掻き用水が得られる水田を2カ所選定した。慣行の代掻き手順にしたがって代掻きを再現した。あら起こしを行い、水深5 cmまで取水した。塩化ビニル製の畦畔板で圃場の一部20 m×40 mを仕切って試験区とし、その内部をロータリー耕耘機で念入りに代掻きした。代掻き後、試験区内を畦畔板で仕切り、5 m×5 mの6連2列の枠を設けた(図-8)。それぞれの枠には、ただちに石膏を0, 10, 20, 30, 50, 100 kg/10 a均一に散布した。12区のうち半分の6区には、石膏散布に先立ち、元肥を標準量(20 kg/10 a)施用した。

石膏を散布して1, 2, 3, 6, 12, 24, 48時間後、表面水を採取し、pH、懸濁物質濃度(SS)、Caイオン濃度、電気伝導度(EC)を測定した。

(2) 現地試験の結果

中一式試験区の懸濁物質濃度と石膏散布後の時間の関係を図-9に示す。対照区の懸濁物質濃度は代掻き直後約4%と非常に濃厚であり、その後懸濁物質濃度は徐々に減少するものの、24時間後で0.7%、48時間後でも0.3%と長期間にわたって高い濃度が続いた。

一方、石膏を添加した場合には懸濁物質濃度の低下が散布直後の比較的短かい時間帯に集中的に生じた。懸濁物質濃度が0.1%に低下する時間は、100 kg/10 aで3時間、50 kg/10 aで6時間、30 kg/10 aで12時間、20 kg/10 a以下でも24時間後であった。このように対照区と比べ高濃度の濁水を速やかに0.1%程度の濃度まで落とす顕著な浄化効果が認められた。元肥を施用すると、元肥なしの場合より幾分低い値を示したが、30 kg/10 a以上では、石膏の効果が卓越した。

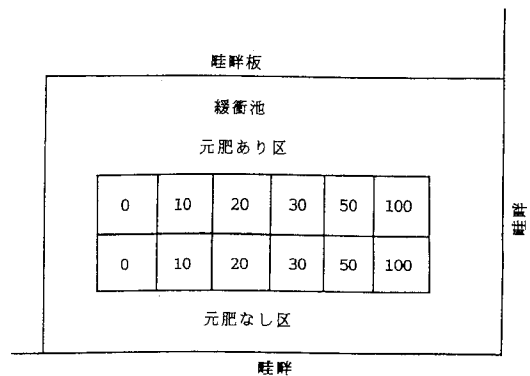


図-8 現地試験区の概要

Fig. 8 Diagram of test plots established in paddy fields. Numbers in each section denote rates of applied gypsum in kg/10 a.

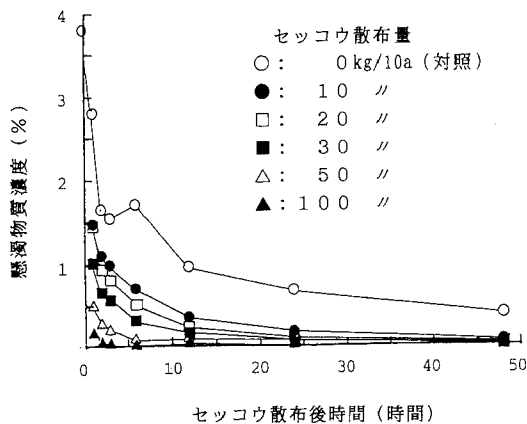


図-9 セッコウ散布後の時間と懸濁物質濃度 (中一色)

Fig. 9 Change of suspended solid concentration in puddled water after gypsum application (Nakaishiki without basal dressing). Gypsum application rates are ; ○ : 0, ● : 10, □ : 20, ■ : 30, △ : 50, ▲ : 100 kg/10 a, respectively.

大沢試験区では対照区の懸濁物質濃度は、代掻き直後1.05%と中一色試験区の3.8%よりもかなり小さく、その後の濁水濃度減少も速やかに進み、24時間で0.1%以下となった。石膏添加の効果は、中一色試験区よりも顕著で、10 kg/10 aの添加量で6時間後に0.1%以下となった。30 kg/10 aで1時間後に0.1%以下となり、これ以上添加量を増大しても凝集効果の増大はみられなかった。元肥を施用した場合、石膏無添加時においても対照の約1/2程度に懸濁物質濃度が減少し、10時間後には0.1%を下回った。元肥と石膏同時施用の効果は著しく、10 kg/10 aで3時間後に0.1%以下となった。

以上のように中一色、大沢試験区とも、石膏の凝集効果は著しく、添加量としては30 kg/10 aで十分な効果が得られた。元肥は凝集浄化に対し、副次的な効果をもたらした。

図-10は、中一色試験区で採水したすべての代掻き水サンプルの懸濁物質濃度を、Caイオン濃度に対しプロットしたものである。Caイオン濃度が1.3 mmol/l以上では、全てのサンプルの懸濁物質濃度が0.1%以下の値を示している。大沢土壌についても、全体的に懸濁物質濃度が低いものの、1時間後に採取した10 kg/10 aの1点を除いて、2 mmol/l以上のCaイオン濃度では、懸濁物質濃度はすべて0.1%以下を示した。この関係は元肥を加えた場合も成立した。現地試験において懸濁物質濃度が0.1%以下になるCa濃度は、ハロサイトの凝

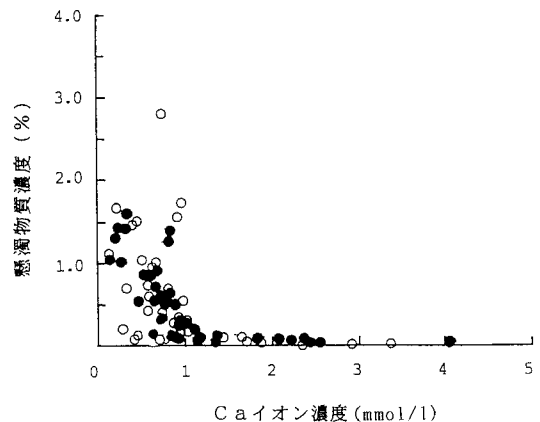


図-10 代かき水の懸濁物質濃度とCaイオン濃度 (中一色)

(○:元肥なし, ●:元肥あり)

Fig. 10 Suspended solid concentration and Ca concentration in puddled water of Nakaishiki. ○: Without basal dressing, ●: with basal dressing.

集に関して理論的にもとめた限界凝集Ca濃度、2 mmol/lとはほぼ一致している。

なお、代掻き水のpHは6.3であったものが最初の2時間にわずかな低下(pH 5.7-6.0)を示し、その後24時間後にはほぼ6.5の値に回復した。中一式、大沢を問わず、また、対照、添加量の多少、元肥施用にかかわらずpHへの大きな影響は認められなかった。

6. 濁水排出負荷量の削減効果

圃場に発生した濁水は、落水口を通して、あるいは、畦畔からの漏水によって排出されることで排出負荷量が発生する。ある時間における懸濁物質の排出負荷量 Q_{ss} は、その時間の濁水の濃度 $c_{ss,i}$ と濁水排出量 Q_i の積を、時間的に積算して求められる。

$$Q_{ss} = \sum_{i=1}^{i=n} c_{ss,i} \times Q_i \quad (1)$$

ただし、 n は排水終了までの時間ステップ数である。

圃場の下層土や畦畔の浸透特性は石膏の散布により変化しないと仮定すると、排出負荷量は実質的には排出される濁水濃度に支配される。濁水濃度を実測した濁水濃度で与え、無添加の時の排出量 $Q_{ss,0}$ とすると、石膏散布による懸濁物質排出負荷の削減率 R (%)は、次式で評価できる。

$$R(\%) = (Q_{ss,0} - Q_{ss}) / Q_{ss,0} \times 100 \quad (2)$$

図-11は、中一色試験区元肥無添加における排出負荷の削減率と石膏添加量の関係を計算したものである。石

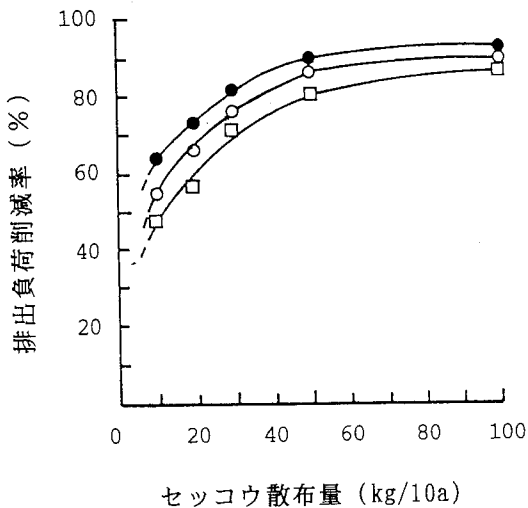


図-11 セッコウ散布後時間と排出負荷削減量 (中一色)
(散布後 □: 12 時間後, ○: 24 時間後, ●: 48 時間後)

Fig. 11 Reduction rate of suspended solid effluent load and rates of gypsum application (Nakaishshiki without basal dressing). Symbols denote elapsed time after gypsum application; □: 12, ○: 24, ●: 48 hours, respectively.

膏添加量の増大とともに削減率は急激に増大するものの、石膏添加量が 50 kg/10 a 以上になると排出負荷削減率の増大はほとんどみられなくなり、このときの最大削減率は約 90% である。散布後の経過時間が増大すると代掻き水の浄化が進み、削減率は増大する。48 時間での削減率を見てみると、10 kg/10 a で 63%、20 kg/10 a の添加で 73%、30 kg/10 a で 81% となっている。

大沢試験区では、中一色より石膏による濁水濃度の減少が著しかったので、削減効果も大きくなった。例えば、10 kg/10 a の添加ですでに 69% が削減でき、20 kg/10 a で 83%、30 kg/10 a で 87% が削減できるものと推定された。

なお、元肥施用区では、散布直後の削減率がやや高いが、時間が経過すると差は小さい。

以上のように、20~30 kg/10 a の石膏散布で、懸濁物質総排出負荷量の約 70%~80% 以上が削減できるものと推定された。

7. まとめと今後の課題

以上に述べたように、比較的少量の石膏で代掻き濁水

は効果的に沈降浄化されることが実証された。発生源での濃度減少が排出負荷量削減に大きく寄与することも推定された。また、室内実験および現地試験で凝集が生じた限界 Ca イオン濃度は 1.5 m mol/l であり、これは本土壌の主要粘土鉱物であるハロイサイトに対し、ヘテロ凝集理論で予測された限界凝集濃度 2 m mol/l にはほぼ一致した。

石膏施用が水稻に与える影響について、滋賀県農業試験場で生育・収量試験が行われている。過去の試験成績によると、150 kg/10 a 以上に及ぶ大量施用では、対照の 90% まで収量の減退がみられたものの、ここで提言した 30 kg/10 a 程度では生育・収量に対する影響は報告されていない (滋賀県農業試験場, 1994)。連用による影響については今後の試験成績を待たねばならないが、適正な量を施用すれば、水稻の生育、収量に大きな影響を与えることはないであろうと考えられる。

一方、石膏に含まれるイオウ分については、現在水田土壌への添加を支持する積極的な意義が認められていない。このことが実用化への歩みを遅らせていると考えられる。つまり濁水浄化の意義は認められても、土壌資源増進への寄与がなければ実際に投下する個々の農家側にとっての動機になりにくいのである。石膏投与の地力増進における総合的な意義の評価など、別の面からのメリットが明らかになれば、利用が進展するものと考えられる。

引用文献

- 赤江剛夫 (1992 a): 代掻き濁水の塩添加による凝集条件—代掻き濁水のカルシウム塩添加による凝集沈降浄化法 (1)—、土壌の物理性 **64**, 37~44.
- 赤江剛夫 (1992 b): 代掻き濁水の凝集沈降剤の検索と施用法の検討—代掻き濁水のカルシウム塩添加による凝集沈降浄化法 (2)—土壌の物理性 **64**, 45~52.
- 赤江剛夫 (1994): 現地試験による石膏の代掻き濁水浄化効果の検討—代掻き濁水のカルシウム塩添加による凝集沈降浄化法 (3)—土壌の物理性 **69**, 3~10.
- 藤原公一 (1987): 凝集沈殿剤 EB-a 145 および PAC のニゴロブナ、ホンモロコおよびアユに対する毒性、滋賀県水産試験場研究報告 **39**, 54~59.
- 滋賀県農林部 (1991): 平成 2 年度農業排水対策事業実績書, 6.
- 滋賀県農業試験場 (1994): 平成 5 年度試験研究成績概要.

受稿年月日: 1998 年 4 月 6 日
受理年月日: 1998 年 4 月 6 日