

# 酸性硫酸塩土壌の乾燥過程が微生物活性および鉄の形態に与える影響

上野 薫\*・足立忠司\*\*・成岡 市\*\*

## Effects of Drying on Bacterial Activity and Iron Formation in Acid Sulfate Soils

Kaoru UENO\*, Tadashi ADACHI\*\* and Hajime NARIOKA\*\*

\* The Graduate School of Natural Science and Technology, Okayama University,  
3-1-1 Tsushima-naka, Okayama 700-8530, Japan

\*\* Faculty of Environmental Science and Technology, Okayama University,  
3-1-1 Tsushima-naka, Okayama 700-8530, Japan

### Abstract

In acid sulfate soils, the heavy acidity is caused by the oxidation of sulfate, mainly pyrite ( $\text{FeS}_2$ ). In the primal acidify stage chemical and bacterial acidify work together. These bacteria (*Thiobacillus ferrooxidans*, *Thiobacillus thiooxidans*) have a huge role as a catalyst.

This studies were examined the effects of drying on bacterial acidification, mainly on *Thiobacillus ferrooxidans*, and the formation of iron in the soil by the incubate experimentation. Five water content stages were set (1.30~0.25 kg/kg) by drying process in the incubator at 30°C for water adjustment. After the treatment, these samples were contained in the each bottles and started to culture at 30°C.

*Thiobacillus ferrooxidans* propagated rapidly in the water content of Liquid Limit (LL)~Plastic Limit (PL). Near the water content of PL, the propagation of the bacteria became slow, and they became decline near by the water content of Shrinkage Limit (SL).

Amorphous - free - iron increased at the primal of acidification and changed for crystallized - free - iron. Around SL, the water content that the soil pH was stable, the propagation of the bacteria became slow, and the formation of iron became stable. In the range of water content 1.00~0.70 kg/kg (LL~PL), the samples acidified strongly.

**Key words** : acid sulfate soils, water content, microorganisms, pH, iron

### 1. はじめに

沿岸浅海域に堆積した土壌は、その土地が干陸作業の対象となると、還元条件下の泥土中で生成した硫黄化合物（主としてパイライト： $\text{FeS}_2$ ）が酸化し、硫酸の生成とともに強酸性土壌となる可能性がある。この酸化過程は、純化学的に進行する過程と鉄酸化細菌等が働くことで進行する微生物的な過程が同時に起こる（久馬、

2001）。土壌の初期的酸化段階では、微生物的酸化の働きが大きく（久馬、1986；小川ら、1990）、温度、土壌水分および塩分濃度が酸性硫酸塩土壌の生成速度に影響する（村上、1968；足立ら、1992）。また、乾燥による土壌水分の減少過程では、pF3の土壌水分までの高含水比領域では微生物的な酸化が主体であり、低含水比領域では化学的酸化が主体となっている（足立ら、1992）。土壌の乾燥によって将来酸が生成されるような潜在的酸性硫酸塩土

\* 岡山大学大学院自然科学研究科 〒700-8530 津島中 3-1-1

\*\* 岡山大学環境理工学部 〒700-8530 津島中 3-1-1

キーワード：酸性硫酸塩土壌、水分条件、微生物、pH、鉄

壤の酸性化の基礎的研究では、乾燥にともない土壌の理化学性が複雑に変化する特性のために、土壌中の微生物の働きに不明な部分が多い。また、酸性硫酸塩土壌の永続的な管理利用のためには、土壌の酸性化機構のより詳細な把握が必要である。

本論では、酸性硫酸塩土壌の乾燥過程において土壌水分条件が鉄酸化細菌 (*Thiobacillus ferrooxidans*) の増殖に及ぼす影響を、本菌との関わりが深く土壌の理化学性を決定する重要な成分である鉄 (中井ら, 1987) の形態変化とともに追跡した。

## 2. 材料および方法

供試土は島根県中海干拓地安来工区下層 (採土深 185~210 cm) より採取し、冷暗所で密封保存した還元土壌 (表-1) とした。この土壌は、貝等の混入物をほとんど含まない粘土分 40% を含むシルト質埴土であったことから、2 mm ふるいの通過は行わなかった。保存中に酸化し変色した部分を排除し必要量を一つの容器に入れ、一晩ねかせて水分状態を均質化した後に以下の処理を行った。

土壌水分状態を初期含水比 (1.325 kg/kg) 以下から、土壌の力学的変移点である塑性限界 (PL), 収縮限界 (SL) が含まれる含水比範囲で 30°C 恒温器内にて乾燥させて 5 段階 (含水比 1.30, 1.00, 0.70, 0.50, 0.25 kg/kg : 以後 1.30 kg/kg 区等と表記) に設定した。乾燥のためにバットに約 1.5 cm 厚に広げたペースト状の供試土は、一定時間内にゴムベラで攪拌し、土壌構造の不均質性をなるべく抑えた。PL よりもやや高い水分状態 (含水比 0.80 kg/kg 付近) からの乾燥では、土壌がまとまりにくくなり、放置すると出来上がり時の土塊の径が大きく不均一になるため、これを回避するためにステンレス製のヘラで約 1 cm 四方に土壌を分画し、乾燥攪拌の度に大きな土塊を指で崩し径の均一化を目指した。

このように水分条件を設定した土壌は、バイアル瓶に移し替えて密閉 (瓶内空気は毎日交換) し、30°C 恒温器内で培養した。水分設定後の各土壌の状態は、含水比 1.30, 1.00 kg/kg 区ではペースト状、0.70 kg/kg 区以下では土塊状であった。土塊の平均的な径は 5~8 mm であった。バイアル瓶に各土壌を充填する際には道具は用いず、空気の層が生じないように留意し少量づつ行った。

鉄酸化細菌 (*Thiobacillus ferrooxidans*) は  $Fe^{2+}$  を  $Fe^{3+}$  に酸化することで ATP を合成する (千田ら, 1996)。その過程を追跡するために、土壌 pH, 鉄酸化細菌の生菌数 (MPN 法: 土壌微生物研究会, 1992), 二価鉄および三価鉄濃度 (pH3.0, 2.5M-酢酸緩衝液抽出, 比色法: 土壌養分測定委員会, 1994), 水置換全鉄イオン濃

表-1 供試土の基本的理化学性  
(中海干拓地下層還元土壌, 採土深 185~210 cm)

Table 1 Fundamental physical and chemical properties of sample soils (in subsoils Polder-Nakaumi, Shimane, depth; 185~210 cm)

土性 <sup>1)</sup>	SiC (粘土 40%)
土粒子密度 (Mg/m <sup>3</sup> ) <sup>2)</sup>	2.58
初期含水比 (kg/kg)	1.32
液性限界 LL (kg/kg)	1.59
塑性限界 PL (kg/kg)	0.56
収縮限界 SL (kg/kg)	0.32
塑性指数 Ip	102.44
粘土活性度 A <sup>3)</sup>	7.59
pH (H <sub>2</sub> O; 1:5)	6.25
pH (H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> )	2.05
EC (1:5; mS/cm)	4.41
パイライト含有量 (wt.%) <sup>4)</sup>	4.99

<sup>1)</sup> ハイドロメーター法 (国際土壌学会)

<sup>2)</sup> ピクノメーター法

<sup>3)</sup>  $A = Ip / 2\mu m$  以下粘土含有率 (%)

<sup>4)</sup> 酸可溶性イオウの半定量法 (村上, 1961)

度 (蒸留水抽出, 原子吸光法: 同上, 1994) さらに結晶質遊離鉄 (Fed: ジチオナイト可溶鉄と Feo (後述) の差) および非結晶質遊離鉄 (Feo: 酸性シュウ酸塩可溶鉄), (いずれも日本第四紀学会, 1993) を経時測定した。これによりパイライト等の硫黄化合物の酸化に関わる鉄酸化細菌の増殖と土壌水分状態および鉄の形態を検討した。なお、供試微生物の鉄酸化細菌は、増殖 pH が 1.5~4.5, 栄養要求性は硫黄 (+), 四チオン酸 (+), 二価鉄 (+) であり、固体平板法によるコロニーの形態観察と併せ (田野ら, 1993), "*Thiobacillus ferrooxidans*" に近い種であると判断した。

ここで、本論で分析した鉄の形態を以下に示す。

① 結晶質遊離鉄: 土壌中の下記②以外の遊離鉄 (ヘマタイトやゲータイト等の物質)。

② 非晶質遊離鉄: 土壌中の  $Fe^{2+}$ ,  $Fe^{3+}$ ,  $Fe(OH)_2$ ,  $Fe(OH)_3$ , 有機および無機鉄錯体の総量。

③ 水置換全鉄イオン: 土壌中の交換性  $Fe^{2+}$  と  $Fe^{3+}$  の総量。水酸化鉄は含まない。

④ 酢酸緩衝液抽出による二価鉄・三価鉄: 土壌中の  $Fe(OH)_2$  と  $Fe^{2+}$  の総量, および  $Fe(OH)_3$  と  $Fe^{3+}$  の総量。

### 3. 結果および考察

#### 3.1 水分調整期間の pH と鉄酸化細菌の生菌数

本実験では、乾燥過程で水分調整を実施した直後の試料は、その乾燥期間に対応して酸性化が生じていた。この調整期間の含水比、pH、生菌数の変化を図-1に示した。

pH は、含水比 1.30 kg/kg 区から 0.25 kg/kg 区に乾燥する間に 6 から 4 まで低下した。とくに含水比 1.00 kg/kg 区から 0.70 kg/kg 区の間で大きく低下していた。一方、生菌数は 1.30 kg/kg 区から 0.50 kg/kg 区では微量な増減であり、0.50 kg/kg 区から 0.25 kg/kg 区の間では大きく減少していた。

この pH の変化から、含水比 1.00 kg/kg 区から 0.70 kg/kg 区の間で酸の生成が促進される水分状態があると考えられた。さらに、この水分状態で生菌数が微増したことから、鉄酸化細菌の増殖も促進する水分状態であると推定された。

また、15 日間にわたる水分調整期間では生菌数に大きな増加がなかったことから、30℃での連続した乾燥は鉄酸化細菌の増殖を抑制すると考えられた。バット上に薄く広げられ、30℃恒温器内で開放状態にある土壌は、常に水分が蒸発しており、土壌水分と土壌内ガスは常に土壌と大気との接触面（土層表面）の方向へ移動していると推定できる。30℃恒温器内で容器に密閉した状態で土壌を静置すると、その土層の厚みが 1 cm 程度であっても鉄酸化細菌は活発に増殖することから、上記のような増殖の停滞は、土壌水分の移動方向や土壌の厚み、定期的な攪拌に由来する現象ではないと判断された。容器が開放状態にあり、土壌内ガスの移動方向が常に土層表面に向いていたことにより、鉄酸化細菌が菌体形成に唯一利用できる二酸化炭素の土壌内部での欠乏が生じていたための現象と考えた。

含水比 1.00 kg/kg から 0.70 kg/kg への乾燥過程で細菌の微増が見られたのは、この間に土壌構造がペースト状から土塊状になり、土層内部へのガスの供給量が増えたためと説明できる。また、含水比 0.50 kg/kg から 0.25 kg/kg の間での細菌の激減は、ガス供給の問題ではなく、土壌水分量あるいは土壌水分状態（土塊表面での圧力）そのものが細菌の生育環境として適さなかったことを示している。

水分調整期間では、このように鉄酸化細菌の増殖力が微弱でも、好気条件下でかつ含水比 0.50 kg/kg 以上の土壌水分状態であれば、酸が十分に発現していた。これは、土壌の乾燥初期段階において、保存状態時の還元条件から酸化・好気条件へ環境が変化することにより

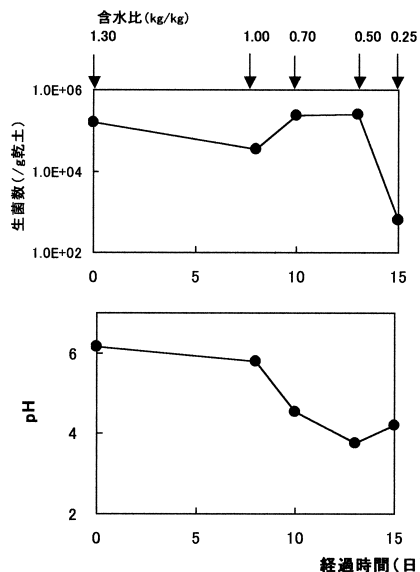


図-1 水分調整期間における含水比、pH、生菌数の変化

Fig. 1 Changes in water content, pH and the number of bacteria (live) in the period of water adjustment.

鉄酸化細菌の代謝が活性化し、土壌を迅速に酸性化するための酸化剤である Fe<sup>3+</sup> を生成する鉄酸化細菌の触媒的機能が働き始めたことで純化学的な酸性化の反応が進行し、結果として pH の急激な低下が生じたと考えた。

以上より、ある程度の水分が存在する環境であれば、水分条件よりも好気条件が酸性化に優位に影響したといえる。村上 (1968) は、酸性硫酸塩土壌の微生物的酸化は、水分、温度、空気が適当であれば著しく速いことを示したが、本論では、温度条件を一定とした場合に、微生物的酸化に適する水分条件の幅は比較的広く、この酸化を大きく左右する条件として空気条件（通気条件、好気条件）が位置付けられることを示した。

#### 3.2 培養期間の諸現象

##### 3.2.1 pH

培養期間の pH の変化を図-2 に示した。各水分区の試料は、水分調整期間に生じた pH の差を縮めながら徐々に低下した。

0.70 kg/kg 区では 4 週目に最低値をとり、6 週目には値が上昇していた。6 週目は、細菌の増殖が停滞し始めた時期であった (図-7)。この区では、主に微生物的酸化が土壌酸性化の駆動力となっていたために、細菌活動の低下により土壌酸性化が停滞し、土壌の緩衝能が強く現れた結果と考えた。0.50 kg/kg 区および 0.25 kg/kg 区

はどちらも菌の増殖力は低く(図-7)、主に純化学的酸化が働いていたために、pHの上昇が生じなかったと考えられる。

3.2.2 結晶質遊離鉄

結晶質遊離鉄の変化を含水比を横軸にとり、図-3(左)に示した。結晶質遊離鉄の含有量は、FedとFeoの差で表すが、土壤中の全遊離鉄量を示すFedの測定値には溶出時間が要因と考えられるばらつきが生じた。ジチオナイト可溶鉄Fedは、バイアル瓶の系外から系内への鉄の移入がない限り理論上一定と考えられる。したがって測定値の最大を本供試土のFed値として結晶質遊離

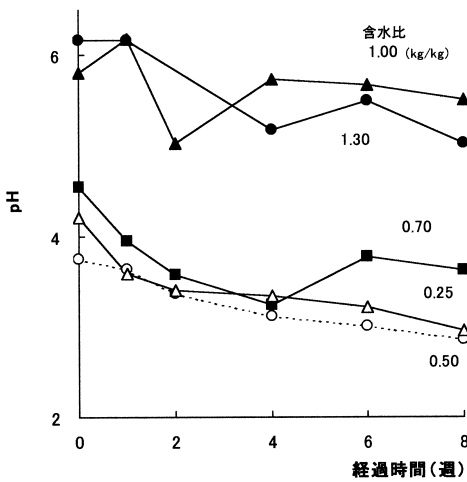


図-2 培養期間におけるpHの変化

Fig. 2 Changes in pH in the culture period.

鉄量の算出を行った。結晶質遊離鉄量は、1.30~0.70 kg/kgに乾燥するにつれて値が減少し、さらに乾燥すると値が増加する傾向にあった。

3.2.3 非晶質遊離鉄および結晶質遊離鉄との関係

非晶質遊離鉄(Feo値)の変化を図-3(右)に示した。非晶質遊離鉄は、高水分区では多く、低水分区では少なく安定した値を示す傾向があった。上記結晶質との相関は図-4に示したように強い負の関係にあり、非晶質遊離鉄の増減は結晶質への変化あるいは結晶質からの変化に由来していると言える。

上記のような非晶質および結晶質遊離鉄量の変化は以下のようなプロセスが背景となっていたと考えた。

① 乾燥初期から中期(この場合1.30~0.70 kg/kg)では結晶質遊離鉄は少量、あるいは0.70 kg/kgに向かって減少しており、非晶質遊離鉄は逆に含有量が多く、「結晶質→非晶質」への変化が生じていた。

この現象は、パイライトを主成分とする硫黄化合物(4.99%、表-1)が、乾燥に伴って純化学的および鉄酸化細菌等の活性化による微生物的酸化により硫酸に変化し始める。結晶質遊離鉄のひとつであるパイライトが減少し始め、土壤中には化学的酸化により生成されたFe<sup>2+</sup>が増加、あるいはそれを鉄酸化細菌が利用してFe<sup>3+</sup>に変化させ、これが土壤中のS<sup>0</sup>と化学的に反応し、さらにFe<sup>2+</sup>が増加した状態(Darrell, 1982)と考えられた。

② 乾燥が進行するとパイライトが一層酸化され、土壤が酸性(pH5~4)になる。このために水酸化鉄が遊離のFe<sup>2+</sup>やFe<sup>3+</sup>として存在しやすくなり、これが酸化、再結晶化して酸性硫酸塩土壌の特徴的な鉱物であるジャロサイト(KFe<sub>3</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>(OH)<sub>6</sub>)やゲータイト(α-FeO

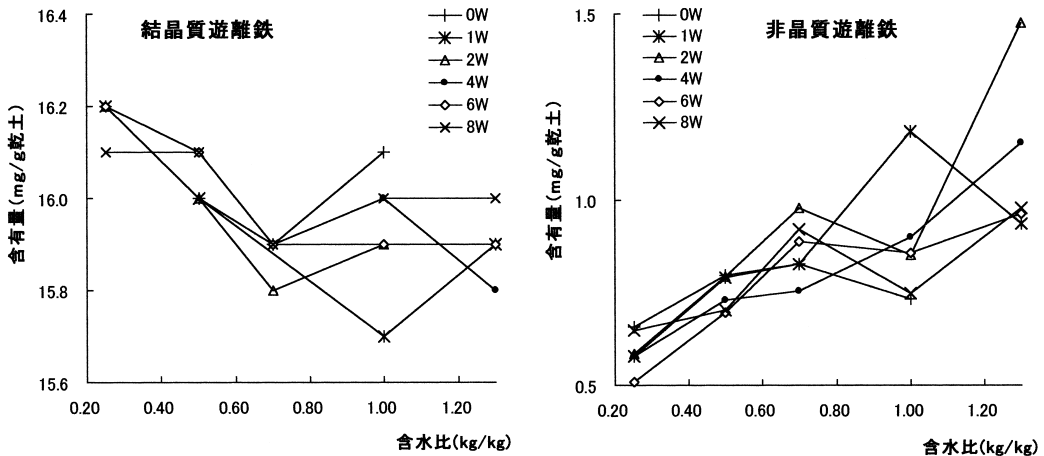


図-3 乾燥による結晶質および非晶質遊離鉄の変化(培養期間)

Fig. 3 Changes in crystallized-free-iron and amorphous-free-iron as drying (in the culture period).

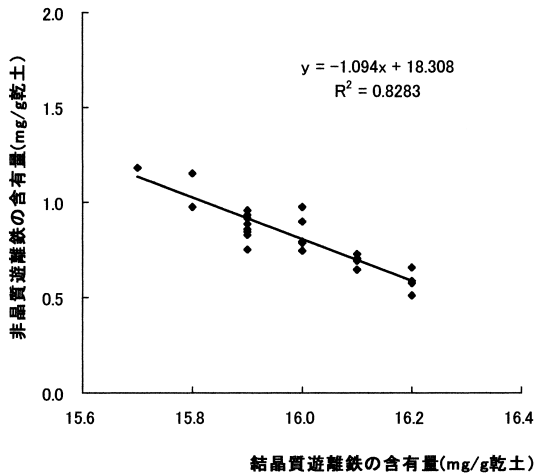


図-4 結晶質遊離鉄と非晶質遊離鉄の相関

Fig. 4 Relation between crystallized-free-iron and amorphous-free-iron.

(OH)等の結晶質遊離鉄に変化する「非晶質→結晶質」の形態変化が生じ、非晶質遊離鉄が減少する。

したがって低含水区分ほど非晶質遊離鉄の変化が小さいのは、パイライト等の硫黄化合物の酸化が十分に進行した結果、酸の生成が停滞してpH3付近で安定し、pHに影響される鉄の形態変化が小さくなったためと考えた。

なお、現場ではジャロサイトを含む層で、水酸化鉄が土壌の乾燥および土壌構造の発達にともないゲータイトになり、脱水によりヘマタイト ( $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ )に変化する(久馬, 2001)ことも知られており、上述のプロセスが本実験で生じていたことを示唆している。

### 3.2.4 その他の鉄イオンと非晶質遊離鉄

水置換全鉄イオン(図-5)は、とくに含水比0.70 kg/kg以下の低水分区分で高く、その値は時系列の初期に高く、後に低下し後期に再び高まる傾向があった。1.00 kg/kgおよび1.30 kg/kg区では、常に低い値で推移したが、1.30 kg/kg区は8週目でやや上昇した。

0.70 kg/kg以下の低水分区分において、時系列初期で高い値を示した後に減少した理由は、pHが低いために鉄イオンが多く存在し、他の物質と結合、結晶化したため、pH5.6程度の蒸留水では抽出できなくなったためと考えられた。

緩衝液抽出による二価鉄量(図-6)は、乾燥すると高い値になる傾向にあった。1.30, 1.00 kg/kg区では時間の経過につれて微増し、0.70 kg/kg以下の水分区分では、時間の経過につれて低下する傾向にあった。0.50 kg/kg区はとくに初期で値が高く、8週目で微増していた。

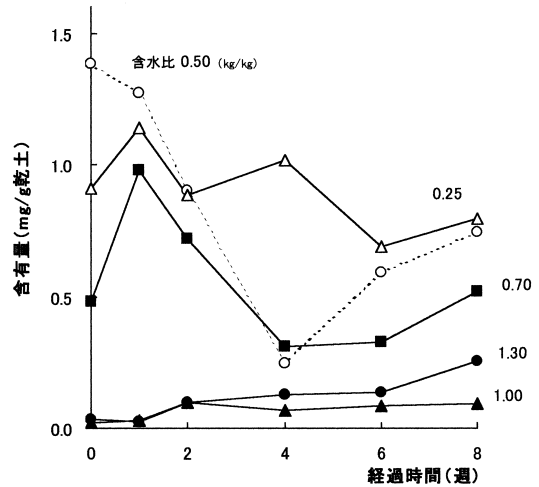


図-5 培養期間における水置換全鉄イオンの変化

Fig. 5 Changes in water-changeable Fe ion in the culture period.

緩衝液抽出による三価鉄量(図-6)は、絶対量が少なく、とくに1.30, 1.00 kg/kg区では微量で、変化は微小であった。0.70 kg/kg区は、2週目まで微増したが、後に微減し4週目からは一定となった。0.25 kg/kg区は、1週目に減少した後、一定となった。0.50 kg/kg区は最も変動が大きく、2週目まで減少し4週目に増加した後、最も高い値で一定となった。土壌の酸性化が進行している間では、 $\text{Fe}^{3+}$ は生成されても酸化剤としてすぐに利用されるために一貫して低い値であったと考えられた。

緩衝液抽出による二価鉄および三価鉄の合計量(図-6)は、高水分区分(1.00, 1.30 kg/kg区)では値が低く、低水分区分では高い傾向にあった。これは、とくに時系列の初期で顕著に表れており、時間の経過につれてそれぞれの値は一定値(約1 mg/g 乾土)に収束していた。0.50 kg/kg区ではとくに値が高かったが、これは0週目からpHが4以下であり、他の区に比べ鉄イオンがより安定して存在しやすかったためと考えた。時系列では、ピーク値の直後で減少する傾向があり、この減少量が結晶化した量にあたる考えられた。この減少の後の微増については不明である。

また、水置換全鉄イオンの量は緩衝液抽出による二価鉄と三価鉄の合計量に比べ常に低く、土壌中では、水酸化鉄がイオンの形態の数倍多く存在していたことを示唆していた。

一方、非晶質遊離鉄は、上述の鉄イオンの総量を反映するはずだが、この量よりも少ない値で推移しており(図-3)、非晶質遊離鉄量が実際よりも少なく評価された

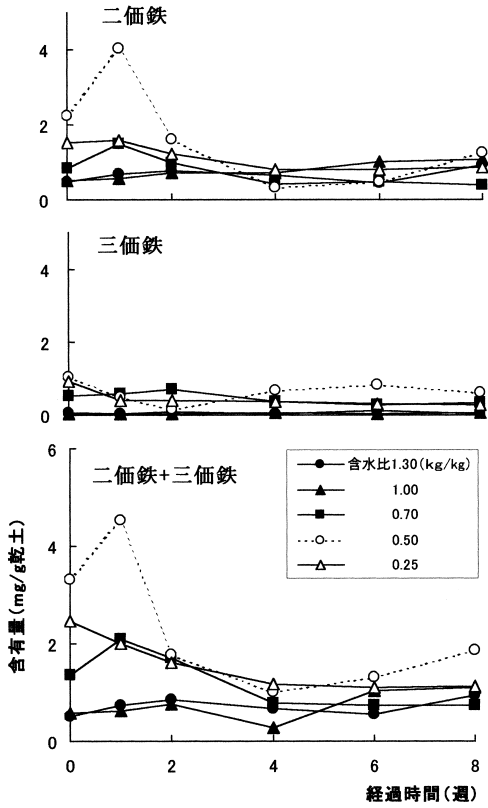


図-6 培養期間における二価鉄、三価鉄の変化  
Fig. 6 Changes in ferrous and ferric iron in the culture period.

可能性が高かった。

3.2.5 鉄酸化細菌の増殖

3.2.5.1 鉄酸化細菌の増殖と土壤水分

培養期間における鉄酸化細菌の生菌数の変化を図-7に示した。生菌数は1.30~0.70 kg/kg区の高水分域で多く、0.50 kg/kg区以下では少なかった。1.30 kg/kg区は経過週0週目から指数的に増加した。1.00, 0.70 kg/kg区では、停滞期が経過週0週目から1~2週間続き、その後、指数的に増加した。0.50 kg/kg区では指数的な増加はなく、停滞傾向が続いた。0.25 kg/kg区はむしろ減少傾向にあった。

この結果から、含水比1.30~0.70 kg/kgの水分状態で鉄酸化細菌の増殖に適した環境があったと判断できた。これは、土壤水の移動性に関係があり、以下の現象が生じていたと考えた。

① 水の移動が比較的容易なLL~PLの間の水分状態(1.30~0.70 kg/kg区)では、鉄酸化細菌の唯一の炭素源である二酸化炭素やエネルギー獲得に必要な酸素が水

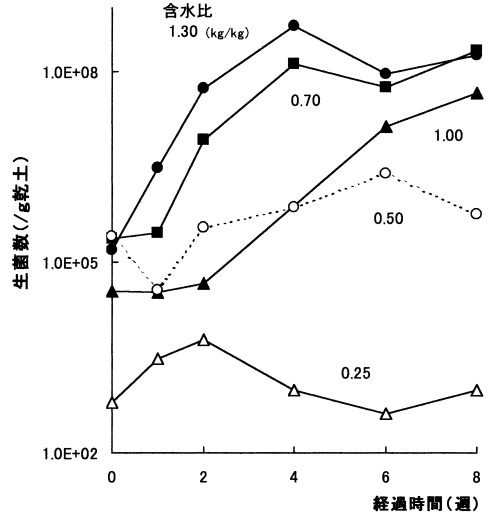


図-7 培養期間における生菌数の変化  
Fig. 7 Changes in the number of bacteria (live) in the culture period.

に溶けて供給された。

② この条件により活発に増殖した細胞は、1.30~1.00 kg/kg区では土層内部から土層表面へ、0.70 kg/kgでは土塊内部から表面への比較的容易な土壤水分の移動にともない、土層あるいは土塊表面に十分に移動することができ、土壤の広範囲でさらに増殖した。

③ PLよりやや低い水分状態(0.50 kg/kg区)では、土中水の移動は微少だが、生菌数の減少に至るほどの悪条件ではないため、停滞傾向を維持した。

④ SL以下の水分状態(0.25 kg/kg区)では、土中水の移動がほとんどなく、これが鉄酸化細菌の増殖や生育を抑制し、生菌数の減少に至った。

このように、土壤水分状態は細菌の増殖と生育に大きく影響を与える要素であると考えられた。本実験での水分は、1.30~0.70 kg/kg区で液状移動、0.50 kg/kg区以下では水蒸気拡散あるいは土壌粒子表面からの水分蒸発が主であると思われる。この水分形態が土粒子表面上に付着した細菌の活動に大きく影響を与えていたことになる。また、高水分区(1.00~0.70 kg/kg区)の測定初期で鉄酸化細菌の増殖に停滞期がみられた(図-7)が、これは乾燥過程が培養期間にも鉄酸化細菌の増殖を抑制する影響を与え続けた結果と考えた。

3.2.5.2 鉄酸化細菌の増殖とpH

鉄酸化細菌の増殖とpHの関係を図-8に示した。各水分区において、低いpHほど生菌数が多い傾向にあった。しかし、鉄酸化細菌の増殖を促進する特異的なpH

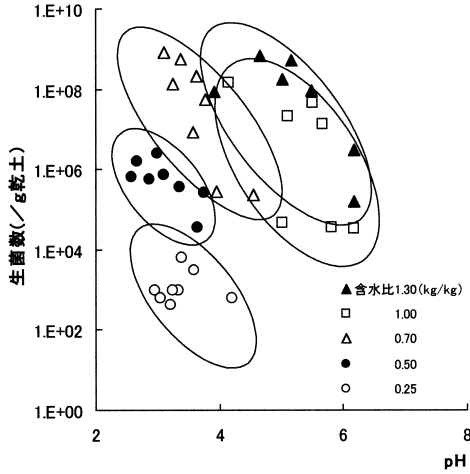


図-8 培養期間における pH と生菌数の関係

Fig. 8 Relation between pH and the number of bacteria (live) in the culture period.

は存在しなかった。

細菌の生育や増殖には増殖最適 pH が存在するとされ、液体培養では、鉄酸化細菌や硫酸化細菌においてもそれが該当する(加村, 1986; 小川ら, 1990)。しかし、土壌環境における pH と鉄酸化細菌の増殖に関しては、増殖最適 pH の概念は当てはまらず、土壌の理化学性に影響する土壌水分状態と好気条件が鉄酸化細菌の増殖率を決定する最も重要な要素であると考えられた。

3. 2. 5. 3 土壌水分と鉄の酸化活性および鉄酸化細菌との関係

鉄は土壌の酸化還元電位や pH の変化により形態が変化する(岩田ら, 1998)。したがって pH が時間の経過とともに低下する供試土の状態では、鉄酸化細菌による  $Fe^{2+}$  の消費や  $Fe^{3+}$  の生成量の定量は難しい。そこで、土壌における細菌の鉄酸化活性を把握する試みとして、土壌の二価鉄 ( $Fe(OH)_2$  と  $Fe^{2+}$  の総量) と三価鉄 ( $Fe(OH)_3$  と  $Fe^{3+}$  の総量) の含有量の変化を土壌の鉄酸化率 ( $[三価鉄含有量] / ([二価鉄含有量] + [三価鉄含有量]) \times 100\%$ ) として表し、生菌数との関係を示した(図-9)。

図-9 によると、土壌の鉄酸化率は、1.30, 1.00 kg/kg 区では低く、0.70 kg/kg 以下の低水分区では高い傾向にあった。これは高含水比区で pH が高く、低含水比区で低かったことに影響されたと考えられた。土壌の鉄酸化率と生菌数の関係は、1.30, 1.00, 0.25 kg/kg 区では指数関数的関係、0.70 kg/kg 区は比例関係にあり、0.50 kg/kg 区では生菌数との関わりは低かった。0.70 kg/kg 区

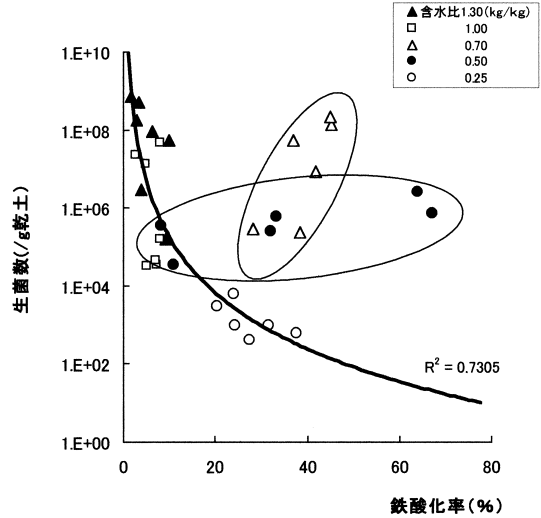


図-9 培養期間における土壌の鉄酸化率と生菌数の関係

Fig. 9 Relation between the ratio of iron oxidation of soil and the number of bacteria (live) in the culture period.

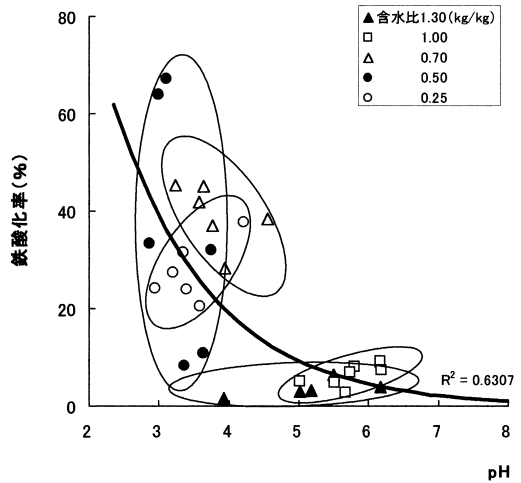


図-10 培養期間における pH と土壌の鉄酸化率の関係

Fig. 10 Relation between pH and the ratio of iron oxidation of soil in the culture period.

では鉄酸化細菌の増加に比例して鉄酸化率が高まっており、土壌の鉄酸化が鉄酸化細菌の増加によるものであったと判断できた。含水比 1.30~1.00 kg/kg 区と 0.70 kg/kg 区は、ともに細菌の増殖は活発であったが、図-9 に示すようにその鉄酸化率の傾向には大きな差がみられ、

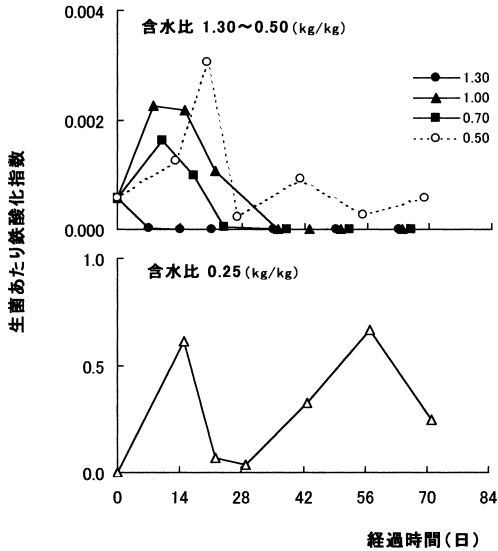


図-11 培養期間における生菌あたり鉄酸化指数の変化

Fig. 11 Changes in the iron-oxidize-index per bacteria (live) in the culture period.

これらの水分状態の間には鉄酸化のメカニズムに何らかの差異があることが示された。

土壌の鉄酸化率と pH の関係を図-10 に示した。土壌の鉄酸化率は pH に対して指数関数的に減少していた。とくに pH4 以下で鉄酸化率が高い傾向にあったが、同じ pH でも水分状態により鉄酸化率に差が生じていた。この差は、pH に依存した鉄の化学的な形態変化ではなく、水分状態の差から生じた細菌の鉄酸化活性の違いを反映した結果と推定した。

そこで、土壌の鉄酸化率を生菌数で除した値を生菌当たりの鉄酸化指数として図-11 に示した。1.30~0.50 kg/kg 区では、培養初期で生菌の鉄酸化活性が高く、0.25 kg/kg 区では 28 日付近で大きく減少したが、全期間を通じて生菌の鉄酸化活性が最も高い結果となった。しかし、ここで用いた土壌の鉄酸化率には、微生物的酸化と純化学的酸化との区別ができておらず、0.25 kg/kg 区では細菌の状態が衰退傾向にあったことを考慮すると、この区における上記結果は正しい評価とは考えにくい。細菌が衰退傾向にある場合には、別の指標を用いる必要があり、土壌中の鉄酸化細菌の鉄酸化活性を測定する方法は改良が必要といえる。

#### 4. おわりに

本論は、乾燥過程により水分調整した潜在的酸性硫酸塩土壌を 30°C 恒温培養することにより、鉄酸化細菌の

増殖および鉄の形態変化を把握しようと試みた。その結果、液性限界 (LL) 以下の水分状態から塑性限界 (PL) 付近に至る乾燥過程では、土壌中の鉄酸化細菌の増殖は活発となり、PL 付近では増殖速度が低下し、収縮限界 (SL) 付近になって鉄酸化細菌が衰退へ向かうことが明らかとなった。鉄酸化細菌の鉄酸化活性は、0.70 kg/kg 区 (PL よりもやや高い水分状態)、および培養初期で高いことが分かった。

土壌水分と鉄酸化細菌の生育あるいは増殖の関係は、高水分状態から SL 付近までは土層あるいは土塊内部へのガスの供給と深く関わり、それ以降の低水分状態では土壌水分量あるいは土塊表面での圧力そのものが影響していると考えられた。

鉄の形態変化については、土壌が好気的環境におかれた直後から、酸性化原因物質であるパイライト等の硫黄化合物が酸化されて pH が低下するが、これにともない  $\text{Fe}^{2+}$ 、 $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Fe}(\text{OH})_2$ 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$  等の非晶質遊離鉄が増加し、pH5 以下で鉄イオンが安定化し存在量が増加すると、これらが結晶質に変化する傾向がみられた。非晶質遊離鉄と結晶質遊離鉄の存在量が安定するのは、鉄酸化細菌の増殖が低下し、pH が安定する SL 付近の土壌水分状態であることが分かった。また、pH の低下が最大となるのは鉄酸化細菌の増殖速度が低下し始めるまでの土壌水分状態 (含水比 1.00~0.70 kg/kg) であることを確認した。

今後は、鉄酸化細菌の分布域や、土壌内部におけるガスの状態と土壌酸性化の関係について検討を要する。

#### 謝 辞

本研究を遂行するにあたり、実験協力者の藤田尚美氏 (現岡山市役所農村整備課)、岡山大学環境理工学部土壌圏管理学専攻学生の皆様にここに記し感謝の意を表します。また、供試土採取にあたり島根県農林水産部農地整備課の浜崎修司氏に多大な御協力を頂きました。重ねて御礼申し上げます。

#### 文 献

- 足立忠司・松本康夫・原 徹夫 (1992) : 土壌水分から見た干拓地土壌の酸性硫酸塩土壌化過程, 農土論集, 162 : 89-96.
- 千田 信 (1996) : 微生物資源工学, pp. 56-74, コロナ社, 東京.
- Darrell Kirk Nordstrom, *et al.*, (1982) : Acid Sulfate Weathering, SSSA Special Publication Number 10, pp.37-56, Soil Science Society of America, Wisconsin.



- 土壌微生物研究会編 (1992)：新編 土壌微生物実験法，pp. 329-338，養賢堂，東京。
- 岩田進午・三輪睿太郎・井上隆弘・陽 捷行 訳 (1998)：土壌の化学 第4版，pp. 116-126，学会出版センター，東京。
- 加村崇雄 (1986)：火成性パイライト酸化による酸性硫酸塩土壌の生成と鉄・イオウ細菌，土肥誌，**57** (3)，252-256。
- 村上英行 (1961)：過酸化水素による干拓地土壌中の可酸化性イオウの半定量法，土肥誌，**32** (6)，276-279。
- 村上英行 (1968)：可酸化性イオウの酸化についての二三の問題，土肥誌，**39** (2)，116-120。
- 日本第四紀学会 (1993)：第4紀試料分析法，pp. 22-32，東京大学出版会，東京。
- 中井 信・吉永長則 (1987)：各種粘土鉱物の酸性しゅう酸塩による溶解，粘土科学，**27** (3)，153-161。
- 久馬一剛・古川久雄・山田 勇・福井捷朗 (1986)：東南アジアの低湿地，**61**，(財)農林統計協会，東京。
- 久馬一剛 (2001)：熱帯土壌学，pp. 206~209，(財)名古屋大学出版会，名古屋。
- 小川直人・犬伏和之・松本 聰・和田秀徳・高井康雄 (1990)：干拓地土壌の酸性化とそれに関する鉄・イオウ酸化細菌の動態，土肥誌，**61** (1)，42-47。
- 大坪政美・和田信一郎 (1988)：カオリナイト-非晶質水酸化鉄複合体のコンシステンシー限界と粒子間相互作用，粘土科学，**28** (2)，30-37。
- 高井康雄・小川直人・竹内えりか・犬伏和之・加藤茂・松本 聰・和田秀徳 (1989)：中海干拓地での溶脱・酸化過程と鉄・硫黄酸化細菌数の経年変化，土肥誌，**60** (2)，151-156。
- 田野達男・杉尾 剛 (1993)：*Thiobacillus ferrooxidans* と *T. thiooxidans* の分離，培養および同定，資源と素材，**109**，553-557。

受稿年月日：2002年1月4日  
受理年月日：2002年7月4日