稲わらを利用した土壌浸透水からの窒素除去

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 公開日: 2017-10-03 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 川西, 琢也, 姜, 志恒, 稲垣, 道弘, 清水, 宣明, 林, 良茂 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/2297/24739

〔水環境学会誌　第18巻 第12号　993—1000　1995〕

〈論　　文〉

稲わらを利用した土壌浸透水からの窒素除去

川　西　琢　也*　　姜　　志　恒**　　稲　垣　道　弘***
清　水　宣　明*　　林　　良　茂*

Nitrogen Removal from Soil Percolate by Using Rice Straw

Takuya KAWANISHI*, Zhiheng JIANG, Michihiro INAGAKI***, Nobuaki SHIMIZU* and Yoshishige HAYASHI***

*　Faculty of Technology, Kanazawa University, 2-40-20, Kodatsuno, Kanazawa 920 Japan
**　Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University, ditto
***　Graduate School of Technology, Kanazawa University (Japan Tobacco Inc.), ditto

Abstract

We intend to use rice straw as a organic substance for denitrification to remove nitrogen from soil percolate, and examined its feasibility by column experiments. We prepared the soil columns of 52 mm inner diameter with rice straw put in as a mono-layer, and supplied 20 mg-N per litter potassium nitrate solution to them from the upper surface at the rate of 24, 47 or 94 mm per day. Nitrate hardly was observed in the effluent from the column supplied at 94 mm per day for 114 days, and nitrate nitrogen removal during the period was 490 mg-N, which was roughly 5% of the amount of rice straw. Other columns fed at lower rate exhibited much lower nitrogen removal, the decrease in nitrogen concentration did not observed after 40 days of operation in these columns.

From the fact that the column fed at the largest flow rate showed the largest amount of denitrification, and from the examination of mass balance of nitrogen in soil and rice straw, we concluded that the removal of nitrogen by the column fed at 94 mm per day was mainly due to denitrification.

We conclude that we can use rice straw as a organic material source for denitrification to remove nitrate from soil percolate. The anoxic condition at the place where rice straw should be put in is essential to the effective use of rice straw.

Key words: nitrogen removal, soil percolate, denitrification, rice straw, solid organic matter

1．はじめに

閉鎖性水域の富栄養化や地下水の硝酸態窒素汚染が問題となって久しい。そもそもこれらの問題は人類が空中から過剰の窒素を固定したものが水環境中に流れ込んで生じているわけであるが，今後予想される食料供給の逼迫を考えると窒素肥料の利用削減は魅力的な方策とは考え難く，従って，排水処理や自然浄化能の有効利用という形で窒素を大気へ戻してやる様々な努力を継続する必要があると考えられる。

我々は，稲わらなどのC/N比の高い固形有機物を用いて脱窒を行う方法の可能性について検討を進めて

*　金沢大学工学部　〒920　金沢市小立野2-40-20
**　金沢大学大学院自然科学研究科　同上
***　金沢大学大学院工学系研究科（現　日本たばこ産業㈱）　同上

いる。稲わら利用脱窒法の考え得る適用対象としては，稲わらを充填したバイオリアクターや排水の土壌浸透処理場・排水処理水の地下水函養サイトなど高濃度の硝酸態窒素が浸透している土壌中への投入などが考えられるが，著者らが，稲わらのみを充填したカラムで窒素除去を試みた結果では有機物の脱窒への利用効率が低くまた満足な窒素除去率も得られなかった[1]。このため，本研究では土壌中に稲わらを投入し，土壌浸透水から窒素を除去する方法について検討する。

自然土壌における脱窒速度がしばしば新鮮な有機物の供給により制限されていること[2),3)]，有機物の投入が脱窒の著しい促進を引き起こすこと[4)]が知られており，固形有機物投入が土壌の脱窒能を飛躍的に高め得ることは十分に期待される。

また，排水の土壌浸透処理法では，有機物の処理はほぼ完全に行われるが窒素の除去能が低い。このため排水の供給を間欠的に行い硝化・脱窒を交互に起こすAlternate wet and dry[5),6)]法や固形有機物（ジュート）を土壌に投入した多段土壌層法[7)~9)]などが試みられている。窒素除去能が低い主原因は，排水中の有機物の分解が硝化よりも先に生ずるため，硝化が完了した段階で有機物が不足するためと考えられる。前者は時間差によって，後者は固形有機物の投入によってこの問題の解決を図っているわけである。特に後者では優れた窒素除去効果が報告されており固形有機物を利用する方法が有効であることは既に示されていると言って良い。

この研究で，我々は，土壌中に稲わらを投入し窒素除去を行う技術について，1）そもそも稲わらがこの様な目的での脱窒に利用することができるのか，2）また単位重量の稲わらでどの程度の窒素が除去できるのかに主眼をおいて検討を加える。

このために土壌と稲わらを充填したカラムに硝酸態窒素を含む溶液を供給し，地下への窒素浸透抑制効果を評価し，窒素，炭素のマスバランスを検討する。固形有機物を用いる点では若月らの多段土壌層法[7)~9)]と同じであるが，稲わら利用の可能性とマスバランスを検討の主眼とするため，カラムを使った小規模の実験を行い，有機物の投入も多段ではなく単層にした。

稲わらを土壌にすき込むことにより，農地からの窒素の流出が抑制されることはこれまでも指摘されてきたが，このメカニズムとしては，稲わらのC/N比が高いため，微生物活動により窒素分が土壌（あるいはデトリタス）中に蓄積されているためと考えられている。本報では，窒素マスバランス等から，主な窒素除去のメカニズムが脱窒によるのか微生物の同化によるのかについても検討を加える。

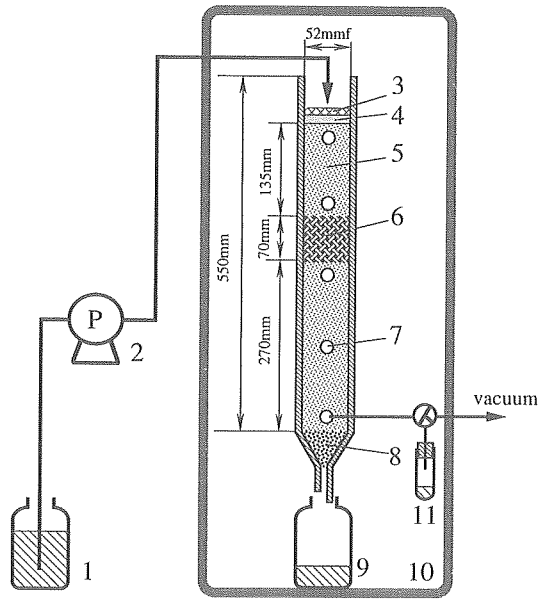
2．実験装置および方法

稲わらは農林水産省農業研究センターの圃場より収穫されたものを用いた。稲わらの収穫後直ちに風乾しその後2年ほど室温で保存した物を実験に供した。稲わらのC，N含有量（風乾基準）はそれぞれ34.6%，0.649%で，C/N比は53.3であった。

土壌は石川県農業総合試験場の畑より採取したものを風乾後使用した。土壌のC，N含有量（乾燥基準）はそれぞれ0.312%，0.0373%であった。

Fig. 1 に実験装置の概念図を示す。内径52mm，高さ550mmの透明な塩ビ管に土壌および稲わらを図の様に充填した。カラム中に各5カ所，図に示す位置に土壌溶液採取用のポーラスカップ（外径3 mm：大起理化製）を設置しカラム内の溶液をサンプリングできるようにした。稲わらを10.0g投入したカラムを3本，対照として稲わらを投入しないカラムを1本用意した。

各カラムには上端からマイクロチューブポンプで硝酸カリウム溶液（硝酸態窒素として20mg・l^{-1}）を供給した。溶液供給に際して土壌表面が攪乱されることを防ぐために土壌表面にグラスウールを少量敷いて溶液



1. potassium nitrate solution
2. peristaltic pump
3. glass wool
4. sand
5. soil
6. rice straw
7. porous cup
8. pebbles
9. effluent
10. thermostat chamber
11. water sampler

Fig. 1　Experimental apparatus

Table 1 Amount of rice straw input and feed rate of nitrate solution into columns

column	amounto of rice straw [g]	feed rate of nitrate solution [ml d^{-1}]	([mm d^{-1}])
A	0	100	(47)
B	10.0	50	(24)
C	10.0	100	(47)
D	10.0	200	(94)

を分散させた。溶液供給量は，稲わらを投入したカラムB，C，Dへはそれぞれ50ml・d^{-1}，100ml・d^{-1}，200ml・d^{-1}，稲わらを投入しないカラムA(対照)へは100ml・d^{-1}とした。各カラムへの溶液供給量および稲わら投入量を**Table 1**にまとめた。

カラムは25°Cの恒温層中に設置し，藻類の繁殖を防ぐためにアルミホイルで表面を覆い遮光した。供給溶液は冷蔵庫で5°C以下に保存した。

流出液は週に1回～2回採取し，秤量により流出液量を測定した後，化学分析に供した。また，供給液の減少量から溶液流入量を算出した。装置内の溶液分布は適宜測定した。114日間の運転後，カラムを分解し，稲わら層より上部の土壌，稲わら，稲わら層より下部の土壌に分けて回収し，乾燥・秤量後十分に攪拌してC,N含有量を測定した

水質分析は流出液に関してはDOC, NH_4^+-N, NO_3^--N，NO_2^--N，T-N，pHについて，カラム内の分布に関してはNO_3^--N，NO_2^--Nについて測定した。DOC測定には島津TOC-500を使用し，硝酸態，亜硝酸態窒素についてはイオンクロマトグラフを用いた。アンモニア態窒素についてはインドフェノール青法，T-Nについては過硫酸カリウム分解法により測定した。稲わら，土壌のC,N含有量は住友化学SUMIGRAPH-Nを用いて測定した。

3．結果および考察

3.1 流出液の水質の経時変化

この実験ではそれぞれ定めた一定流量で溶液を供給したが，実験期間を通じてカラムA-Cは湛水状態にはならなかった。カラムDでは一時期湛水状態となったが，その数日後水は引き，湛水は見られなくなった。このことから，すべてのカラムは，ほぼ，不飽和流で浸透したと考えられ，また，カラムDでは一時期は飽和流で，それ以外の時期も飽和流に近い流れであったと考えられる。

Fig. 2に流出液中の硝酸態窒素濃度の経時変化を

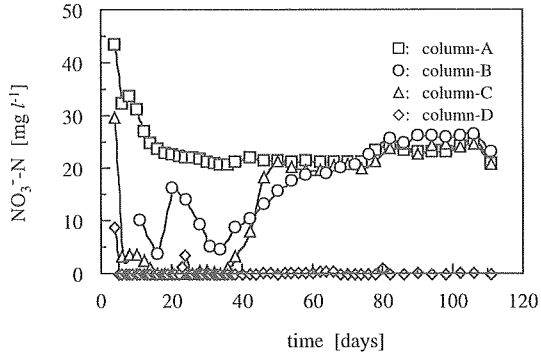


Fig. 2 Changes in nitrate nitrogen concentration in effluents

示す。稲わらを投入しない対照カラムでは，最初から硝酸態窒素が流出しており，全く除去が生じなかった。初期の濃度が著しく高いのは土壌に含まれている硝酸態窒素が流出したためであると考えられる。その後も濃度は供給濃度20mg・l^{-1}より高くなっているが，これは水分の蒸発があるためである。

供給水量が50ml・d^{-1}であったカラムBでは，初期の段階から10mg・l^{-1}前後の硝酸態窒素の流出が見られ，60日を越えるころからはその除去効果は全く見られなくなった。供給水量が約100ml・d^{-1}であったカラムCでは土壌中の硝酸態窒素の流出の終わったあと実験開始後10日から40日の間はほとんど硝酸態窒素が流出しなかったが，その後濃度が上昇し50日を越える頃からはほとんど除去効果が見られなくなった。

これに対し，供給水量が約200ml・d^{-1}と今回の実験では最も大きく，従って窒素の供給負荷も最も大きかったカラムDではごく初期の土壌由来のものの流出を除いては，実験開始から114日の間ほとんど硝酸態窒素の流出が見られなかった。供給流量が最も大きいカラムDで窒素除去効果が最も大きかったが，これは流量が大きかったために，カラム内がよりanoxicになり，そのため脱窒が起こり易かったためと推測され

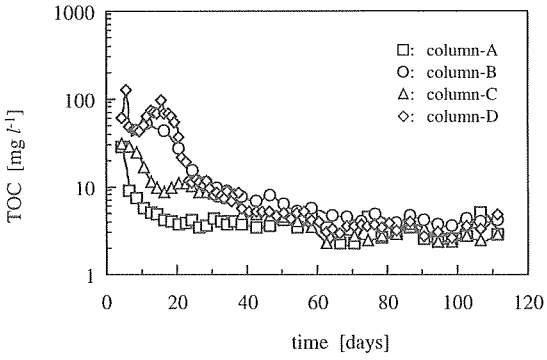


Fig. 3 Changes in organic carbon concentration in effluents

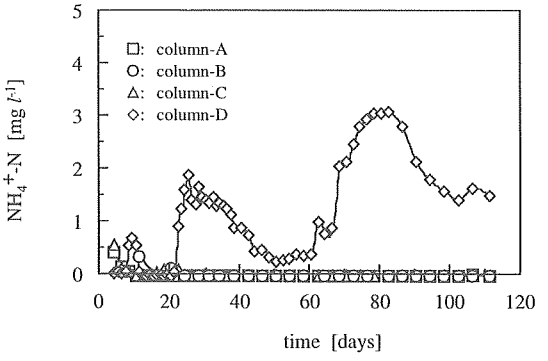


Fig. 4 Changes in ammonium nitrogen concentration in effluents

る。窒素除去機構についてはマスバランスをふまえて後で考察する。

カラムDでは水の浸透速度は約94mm・d^{-1}であり，急速浸透法の浸透速度としてはやや遅いものの，目詰まりを考慮した一般の排水の土壌処理法での浸透速度としては遅い方ではない。また窒素濃度20mg・l^{-1}は雑排水や下水処理水の窒素濃度としては標準あるいは少し高いくらいの値である。従って，うまく条件を設定してやれば，排水の土壌浸透処理法サイトに稲わらを投入しておくことによって窒素を除去できる可能性が十分にあることが示されたと考えられる。

Fig. 3 に流出液の有機炭素濃度の経時変化を示す。カラムAでは初期に数十mg・l^{-1}の濃度を示したが，その後すぐに減少して数mg・l^{-1}となりその後も安定した。カラムB, C, Dについては，初期に数十から100 mg・l^{-1}程度の有機炭素の流出を見たが，その後減少し，50日を経過した頃からすべてほぼ数mg・l^{-1}となった。カラムCのみ他の2つより初期から濃度が低かったが，この原因は不明である。

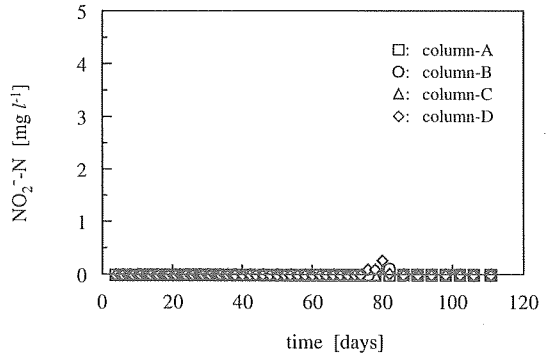


Fig. 5 Changes in nitrite nitrogen concentration in effluents

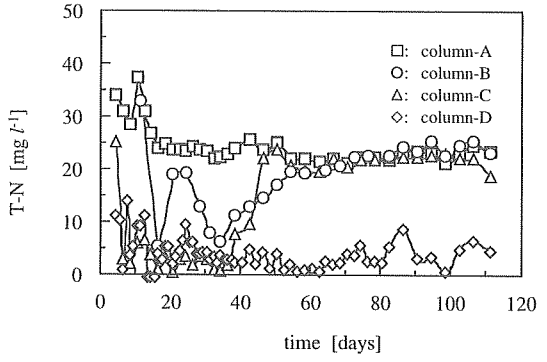


Fig. 6 Changes in total nitrogen in effluents

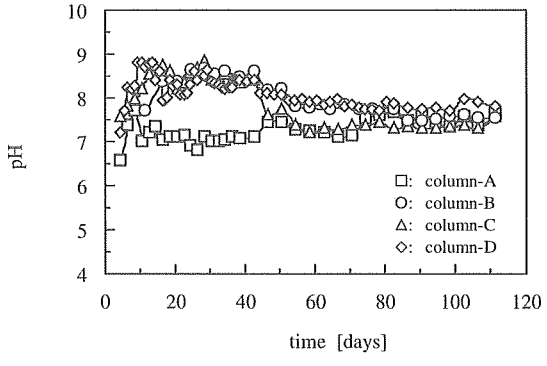


Fig. 7 Changes in pH of effluents

Fig. 4 にアンモニア態窒素濃度の経時変化を示す。カラムA, B, Cからはアンモニア態窒素の流出はほとんど観測されなかった。カラムDからは若干のアンモニア態窒素の流出が見られたが，その濃度はせいぜい3 mg・l^{-1}程度で，供給した硝酸態窒素濃度に比べれば1オーダー低い値であった。

Fig. 5 に流出液の亜硝酸態窒素の経時変化を示す

が実験期間を通じて亜硝酸態窒素はほとんど検出されなかった。

Fig. 6 に全窒素濃度の経時変化を示す。流出全窒素のうち，ほとんどの場合は硝酸態窒素が主成分であるが，硝酸態窒素の流出がゼロの場合にも，有機物の形で流出する窒素が若干あることが分かる。

Fig. 7 に pH の経時変化を示す。硝酸カリウムを供給したカラム B, C, D では初期の段階で pH の上昇が

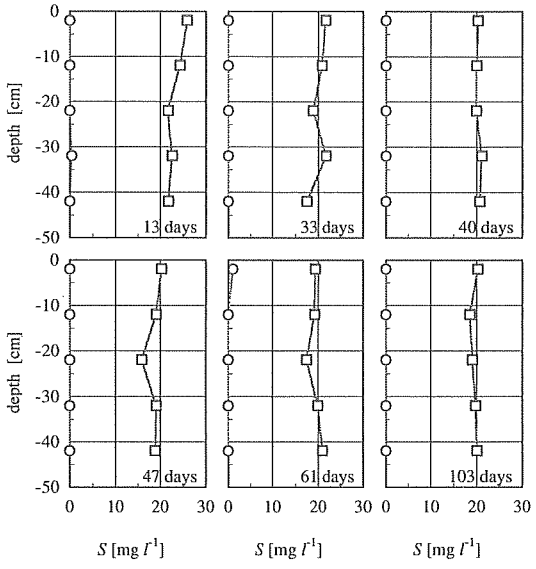


Fig. 8a Changes in nitrate and nitrite nitrogen distribution in column A
□: nitrate nitrogen, ○: nitrite nitrogen

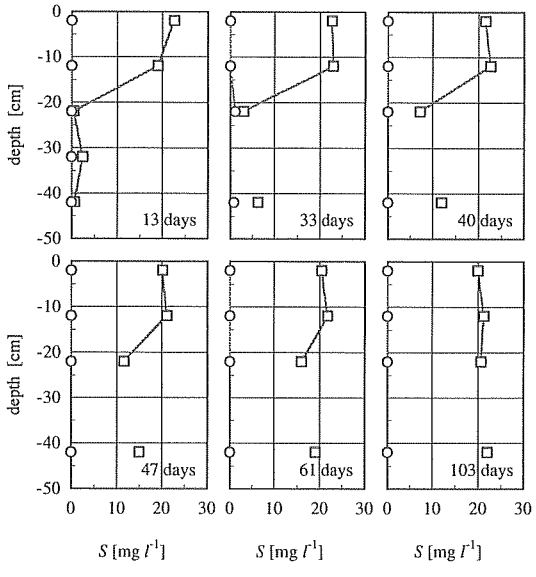


Fig. 8b Changes in nitrate and nitrite nitrogen distribution in column B
□: nitrate nitrogen, ○: nitrite nitrogen

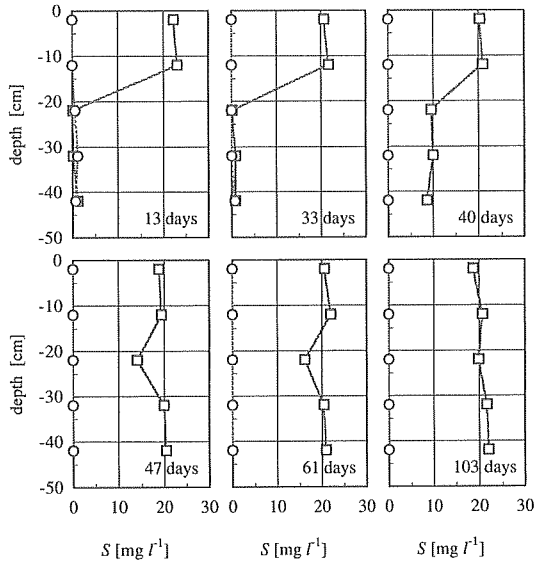


Fig. 8c Changes in nitrate and nitrite nitrogen distribution in column C
□: nitrate nitrogen, ○: nitrite nitrogen

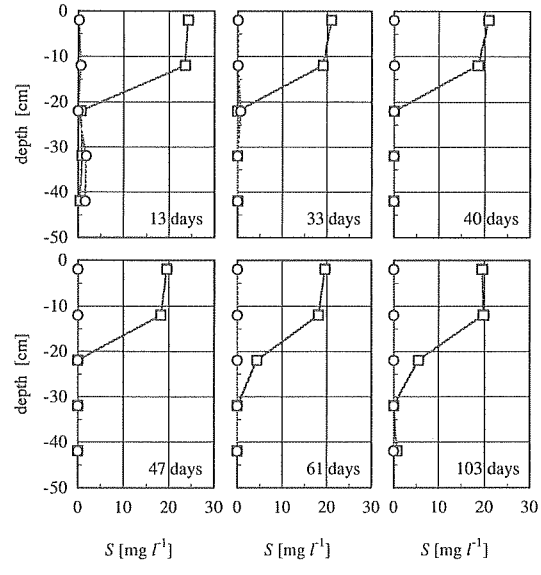


Fig. 8d Changes in nitrate and nitrite nitrogen distribution in column D
□: nitrate nitrogen, ○: nitrite nitrogen

Table 2 Cumulative amount of components flowed out of columns

column	NO_3^--N [mg-N]	NO_2^--N [mg-N]	NH_4^--N [mg-N]	T-N [mg-N]	DOC [mg-C]
A	322	0	0.1	336	59
B	121	0	0.1	132	66
C	189	0	0.2	201	86
D	5.3	0.2	29.0	96	359

Table 3 Mass balance of nitrogen

column	NO_3^--N inflow [mg-N]	NO_3^--N_{in} - NO_3^--N_{out} [mg-N]	NO_3^--N_{in} - T-N_{out} [mg-N]
A	310	-11	-26
B	162	41	30
C	292	103	91
D	492	487	396

観察され，8.5前後で推移したが40日以降減少し，最終的にはほぼ7.5から8.0の間に落ちついた。

3.2　土壌中の硝酸態窒素・亜硝酸態窒素の分布

Fig. 8にカラム内の土壌溶液中の硝酸態窒素および亜硝酸態窒素の分布の経時変化を示す。

すべてのカラムで実験期間を通じて土壌中で亜硝酸態窒素はほとんど観測されなかった。

カラムAでは実験期間を通じてほぼ均一なプロファイルが得られた。カラムB, C, Dで窒素の除去が生じている段階では，濃度減少はほとんどの場合稲わらを挟んだ層に集中した。このことは窒素除去が主に稲わら層で生じていることを示している。

ただし，カラムDの61日目と103日目のプロファイルでは，上から3つめの溶液採取点と4つめの溶液採取点間でも窒素濃度の減少が認められ，明らかに稲わら層下の土壌中でも窒素の除去が生じていることが分かる。稲わらから流出した有機物がこの部分で微生物に利用されていると考えられる。

3.3　マス・バランス

Table 2に各成分の実験期間における積算の流出量をまとめる。カラムDにおいて硝酸態窒素の流出が他に較べて著しく少ないこと，これに対し有機炭素の流出は他に較べて多くなっており，また有機態で流出する窒素量も他に比べて多くなっていることが分かる。

Table 3に窒素のマスバランスとして，硝酸態窒素の除去量と全窒素の除去量を示してある。流出した成分のうち，アンモニア態窒素および有機態窒素は稲わらまたは土壌由来だと考えられるので，窒素除去が脱窒によって行われる場合，硝酸態窒素の除去量が脱窒量に相当すると考えられる。亜硝酸態窒素の流出はほとんどなかったので無視できる。

最も窒素除去量の多かったカラムDで積算の硝酸態窒素除去量は約490mgで，トータルでの窒素除去量は約400mgであった。これは投入した稲わら（風乾）重量のそれぞれ4.9%，4.0%に相当する。われわれのこれまでの検討で，土壌を用いず，稲わらのみをカラムに充填し，溶存酸素を取り除いた硝酸カリウム溶液を飽和流で供給した実験では，窒素除去が認められなくなるまでの稲わら単位重量あたり積算脱窒量で最大のものは稲わら風乾重量の約1.9%であった[1]。今回の実験でカラムDではまだ窒素の流出が観測されていないことから，土壌に稲わらを投入することにより，稲わらのみをカラムに充填した場合に較べて，稲わら量に対する脱窒量の効率が少なくとも数倍に向上したことが分かる。この原因としては，土壌に潜在的な脱窒菌が多く存在していたこと，土壌から微生物の活動に必要な他の栄養素が供給されたこと，稲わらから溶出した有機物がその下の土壌層で微生物に利用された

Table 4 Carbon and nitrogen balance of rice straw

column	initial* straw amount [g]	residual straw amount [g]	residual C content [%]	residual N content [%]	residual C amount [g]	residual N amount [g]	residual C/N ratio [-]	C loss [g]	N loss [g]
B	10	3.6	32.5	1.43	1.17	0.0514	22.8	2.29	0.014
C	10	3.9	32.3	1.36	1.26	0.0531	23.7	2.21	0.012
D	10	4.3	35.2	1.09	1.51	0.0467	32.4	1.95	0.018

* initial C and N content were 34.6% and 0.649% respectively (C/N=53.3).

Table 5 Carbon and nitrogen balance of soil

column		soil amount [g]	C content afterex. [%]	N content afterex. [%]	C amount afterex. [g]	N amount afterex. [g]	C* accumu-lated [g]	N** accumu-lated [g]
A	above straw	441	0.331	0.0363	1.46	0.160	0.08	-0.005
A	below straw	510	0.327	0.0352	1.67	0.180	0.08	-0.011
B	above straw	386	0.326	0.0352	1.26	0.136	0.05	-0.008
B	below straw	551	0.356	0.0363	1.96	0.200	0.24	-0.006
C	above straw	392	0.365	0.0342	1.43	0.134	0.21	-0.012
C	below straw	555	0.353	0.0404	1.96	0.224	0.23	0.017
D	above straw	369	0.332	0.0332	1.22	0.122	0.07	-0.015
D	below straw	572	0.383	0.0384	2.19	0.219	0.40	0.006

* initial C content was 0.312%　** initial N content was 0.0373%

ことなどが考えられるが，何が主要因であるかはこれまでの結果だけからは明らかでない。

Table 4 に実験後回収された稲わら量と，そのC，N含有量，その初期量に対する増減についてまとめた。カラムDに比べてカラムB,Cにおいて稲わら全体の分解量も大きく，また残存物のC/N比も小さくなっていた。これはカラムB,CではカラムDに比べて稲わらの好気的な分解がより進んだためであると考えられる。

また，カラムDにおいて炭素の減少量が1.95gであり，硝酸態窒素除去量の炭素減少量に対する比は約0.25である。セルロースをブドウ糖の固まりと考えた場合，量論的には炭素1gに対しおよそ0.93gの窒素が脱窒されることになる。これから，カラムDの硝酸態窒素減少量の理論脱窒量に対する比は0.27と計算された。カラムを灌水状態にするなど稲わら投入部のanoxicな状態を管理することによってこの効率をさらに向上させ得るかは，今後稲わらを窒素除去の目的に用いる際の一つの検討課題となろう。

稲わらからの窒素放出量は各カラムとも十数mgであった。カラムDではこれは流出窒素分の約20%にとどまっており，このカラムでは可溶化された土壌有機物の流出や，微生物同化された成分の無機化による流出などが生じていることが示唆される。

Table 5 に実験後の土壌の炭素・窒素の含有量およびその初期量に対する増減を，各カラムの稲わら層より上部，下部別にまとめる。計算上は各カラムとも炭素の蓄積が認められたが，稲わらを投入していないカラムAでも炭素含有量が増加している。この原因は不明であるが，測定値がこの増加分に相当する程度の誤差を含んでいる可能性は否定できない。窒素については増えているものもあり，減っているものもあるが，

カラムDの稲わらより下層の土壌においての蓄積量は計算上は6 mgとなった。誤差を考慮しても数百ミリグラムの窒素が稲わらの下層土壌に蓄積されたとは考え難い。

3.4 窒素除去の機構

少なくともカラムDについては，窒素除去は主に脱窒によって生じたと考えられる。なぜならば，1）もし微生物による同化が主原因だとすると，微生物を保持するための有機物の供給は主に稲わらによるわけであるから，負荷の一番大きかったカラムDから先に窒素除去効果がなくなるはずであり，2）実験後土壌にも稲わら部にも窒素の著しい蓄積が認められなかった，からである。また，流量の多いカラムDで窒素除去量が最も多かったが，これは流量が大きかったためにanoxicな条件が保ちやすかったことによると考えられる。

カラムB,Cの除去のメカニズムについてはこの結果だけからは詳細を論ずることはできない。初期に微生物による同化が著しく，微生物量が定常に達するに伴い窒素が流出したとも考えられるし，また，初期に稲わらからの有機物の供給が多いために，好気分解により酸素が消費しつくされた後にも有機物が残り，これが脱窒に用いられたとも考えられる。

いずれにせよ，十分な窒素除去を図るためには，稲わら投入部分をanoxicに保ち脱窒を生じさせる必要があることが実験結果より明らかである。

4．結　　論

本研究で以下のことが明らかとなった。

1）稲わらを土壌に投入することにより，排水の土壌浸透処理サイト等の硝酸態窒素を含む土壌浸透水から窒素を除去できることができる。

2）稲わら投入部分がanoxicとなる場合，除去の主要なメカニズムは脱窒になる。

3）長期的に安定した除去効果を得るためには，稲わら投入部をanoxicに保って脱窒を生じさせる必要がある。

4）畑土壌中に稲わらを単層状に投入しておいて20 mg・l^{-1}の硝酸カリウムを供給する実験で今回得られた最も優れた結果では，114日間にわたり硝酸態窒素の流出がみられなかった。114日間の脱窒量は約490mgでこれは投入した稲わらの重量の約4.9%に相当した。

5）稲わらのみをカラムに入れ飽和流の状態で硝酸カリウム溶液を供給した実験の結果に比べ，土壌中に稲わらを投入する方式では稲わら単位重量あたりの脱窒量は少なくとも数倍になっており，稲わらを脱窒に利用する場合，稲わらのみのリアクターを設計するよりも土壌に投入する形の方がはるかに効率のよいことが確認された。

今回の実験で，条件をうまく設定してやれば土壌浸透水から窒素除去をするための脱窒の有機物源として稲わらを利用できることが明らかとなった。この方法の実用化に際しては，土壌浸透処理場など目的とする場でいかに嫌気条件を確保するか，流れの制御をどのようにするかなどの具体的な検討が必要であろう。

謝　辞

本研究は平成4年度文部省科学研究費補助金奨励研究(A)の補助を受けて行われた。実験に際し金沢大学環境保全センター，石川県農業総合試験場，農林水産省農業研究センター水質保全研究室には機器使用，試料提供，助言と多大なる協力をいただいた。関係各位に謝意を表します。また実験に協力いただいた工学部学生（当時）松原文彦君，町田崇一郎君，松本智樹君に謝意を表します。

（原稿受付　1995年2月10日）
（原稿受理　1995年8月11日）

参　考　文　献

1）川西琢也，林良茂（1994）稲わらを利用した脱窒法，ケミカルエンジニアリング，**39**，41-44.

2）Aulakh, M.S., Doran, J.W. and Mosier, A.R. (1992) Soil denitrification-Significance, measurement, and effects of management, *Adv. Soil Sci.*, **18**, 2-57.

3）Bradley, P.M., Fernandez, Jr. M. and Chapelle, F.H. (1992) Carbon limitation of denitrification rates in an anaerobic groundwater system, *Environ. Sci. Technol.*, **26**, 2377-2381.

4）Beauchamp, E.G., Trevors, J.T. and Paul, J.W. (1989) Carbon sources for bacterial denitrification, *Advances in Soil Science*, **10**, 113-142.

5）Loehr,R.C., Jewell, W. J., Novak, J.D., Clarkson, W.W. and Friedman, G.S.(1979) Land Application of Wastes, Vol. II, Van Nostrand Reinhold Company.

6）Leach, L. E. and Enfild, C.G. (1983) Nitrogen control in domestic wastewater rapid infiltration system, *Journal WPCF*, **55**, 1150-1157.

7）若月利之，小村修一，安部裕治，泉一成（1989）多段土壌層法による生活排水中の窒素，リンおよびBOD成分の除去とその浄化能力の評価，日本土壌肥料学雑誌，**60**，335-344.

8）若月利之，小村修一，安部裕治，泉一成（1989）気温，流出浄化水の流出速度，pH，鉄およびマンガン濃度の経時的変化と浄化能力との関係，日本土壌肥料学雑誌，**60**，345-351.

9）若月利之，小村修一，沢田吉晴（1991）非湛水下における硝酸態窒素とリン酸の同時除去に対する金属鉄粒とジェート資材の効果，日本土壌肥料学雑誌，**62**，417-423.