

下水汚泥の多量連用が土壌および作物に及ぼす影響

誌名	千葉県農業試験場研究報告 = Bulletin of the Chiba-Ken Agricultural Experiment Station
ISSN	05776880
著者名	真行寺, 孝 日暮, 規夫 安藤, 光一 松本, 直治
発行元	千葉県農業試験場
巻/号	27号
巻号補足	
掲載ページ	p. 61-70
発行年月	1986年3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



下水汚泥の多量連用が土壤および作物に及ぼす影響

真行寺孝・日暮規夫・安藤光一・松本直治*

キーワード：下水汚泥, 亜鉛, 全重金属, 可溶性重金属, イネ科作物

I 緒 言

近年, 下水道の普及に伴って下水汚泥が年々増加し¹³⁾, 下水汚泥の農地への施用やコンポスト化に関する試験が行なわれている^{1, 4, 8)}。しかし, 下水汚泥の施用試験はポット試験や棹試験がほとんどで, 試験期間も比較的短いものが多い⁸⁾。

千葉県でも各種の汚泥が農地の客土資材や堆肥の代替物として多量に施用される事例が増えているので, 筆者らは昭和52年から6年間にわたり, 黒ボク土畑地ほ場へ毎年下水汚泥を多量に施用し, 土壤および作物への影響を検討した。その結果, 重金属等を含む下水汚泥の多量連用により土壤中に重金属等の蓄積を認めたので, ここに報告する。

試験の遂行に際し, 千葉市中央下水処理場に汚泥の提供を頂き, 当场公害研究室に協力を頂いた。また本報告をまとめるにあたり, 当場地力保全研究室渡辺春朗室長, 安西徹郎技師並びに農業化学検査所金子文宣技師に適切

な助言を頂き, 千葉大学園芸学部広保正教授に御指導, 御校閲を頂いた。これらの方々に記して謝意を表する。

II 材料および方法

供試した下水汚泥(以下汚泥とする)は千葉市中央下水処理場で発生したもので, 凝集剤として消石灰を添加した石灰処理汚泥が約80%, 高分子系凝集剤を使用した汚泥が約20%で, 含水率が平均79%の脱水ケーキである。この汚泥の組成は第1表に示すとおりである。

試験ほ場は千葉県農業試験場の緩傾斜下部の平坦地で, 土壤は腐植層が70~80cmの壤質厚層腐植質黒ボク土(全国土壤統名: 大津統)である。試験開始前の土壤の化学性はCEC 約30 me, リン酸吸収係数約2000で, 概略は第2表に示した。試験区は汚泥の施用区と無施用区を1区10m²の2連制にした。汚泥の施用は毎年, 夏作の作付1~2週間前に乾物換算で5t/10aの脱水ケーキを表上に均一に散布し, 10cmまで耕うんして土壤と混和した。

第1表 供試汚泥の組成

施用年度 (昭和)	水分 (%)	PH (H ₂ O)	T-C (%)	T-N (%)	T-P ₂ O ₅ (%)	T-CaO (%)	T-MgO (%)	T-K ₂ O (%)	T-Na ₂ O (%)	T-Zn (ppm)	T-Cu (ppm)	T-Pb (ppm)	T-Cd (ppm)	T-Ni (ppm)	T-Mn (ppm)	T-Fe (%)	T-Al (%)
52, 53年	76	9.9	18.7	2.06	1.02	8.22	0.82	0.13	0.25	883	112	72	2.09	50.2	307	5.31	1.63
54, 55年	78	7.7	13.8	1.73	0.94	8.19	0.93	0.23	0.23	1000	195	178	1.19	63.7	428	5.79	2.67
56 年	79	9.4	12.6	1.11	1.13	7.39	1.25	0.15	0.17	1155	226	67	1.98	79.1	261	5.95	1.72
57 年	81	8.9	15.0	1.99	1.09	8.56	0.86	0.14	0.21	823	168	68	1.75	61.5	578	5.63	1.76
平 均	79	9.0	15.1	1.74	1.05	8.09	0.97	0.16	0.22	955	175	96	1.73	63.5	394	5.67	1.95
				(2.3)	(2.3)	(12.3)	(12.5)	(28.1)		(0.17)	(7.6)	(20.3)	(18.6)				

注: 1) 単位: 乾物当り

2) 水分率は脱水ケーキ中の水分率を示す。

3) 平均の()内はT-NのNO₃-N, T-P₂O₅中の有効態P₂O₅, T-CaO, MgO, K₂O中の交換性塩基, Totalの各重金属中の可溶性重金属の含量率を示す。

* 現 千葉県暖地園芸試験場

試験期間は6年間、夏作と冬作の年2作で、夏作には1年目陸稲、2年目ソルゴー、3年目以降は青刈トウモロコシ、冬作には1年目大麦、2年目以降は小麦を栽培した。施肥は播種時に陸稲は高度化成(10-18-16)を50 kg/10 a, 大麦と2年目の小麦は燐硝安加里(14-14-14)を100 kg/10 a, ソルゴーは硫安・過石・塩加をN・P₂O₅・K₂Oとして各々6 kg/10 a, 3年目以降の小麦は落花生専用化成(6-15-20)を120 kg/10 a, 青刈トウモロコシは硫加燐安(15-15-15)を67 kg/10 aの割合で、汚泥施用区と無施用区に同等量施用した。

作物の生育量は収穫時に試験区の中央2.5 m²内を調査し、地上部乾物生産量として求めた。土壌は収穫時にオーガを用い、地表下60 cmまで15 cmごとに採土した。

土壌の化学性は「土壌環境基礎調査における土壌・水質及び作物体分析法」に準じ¹⁰⁾、土壌、汚泥および作物体の重金属の全量(以下元素名の前にTをつける)は三混酸湿式分解後、原子吸光光度法によって定量した。土壌、汚泥のT-CdはDDTC-MIBK、作物体のT-CdおよびT-PbはAPDC-MIBKによる濃縮操作を併用し、それ以外の成分は直接霧法によった。土壌、汚泥の可溶性重金属(以下元素名の前にSをつける)はS-Zn, S-Cu, S-Cdを0.1N塩酸抽出法、S-PbはpH4.5, 1N酢酸アンモニウム抽出法によった⁶⁾。

Ⅲ 結 果

1. 汚泥の施用と作物の生育

汚泥の施用と作物の生育の関係を第1図に示した。夏作では、1作目の陸稲の生育は汚泥施用区が無施用区よりまさっていた。しかし、5作目以降の青刈トウモロ

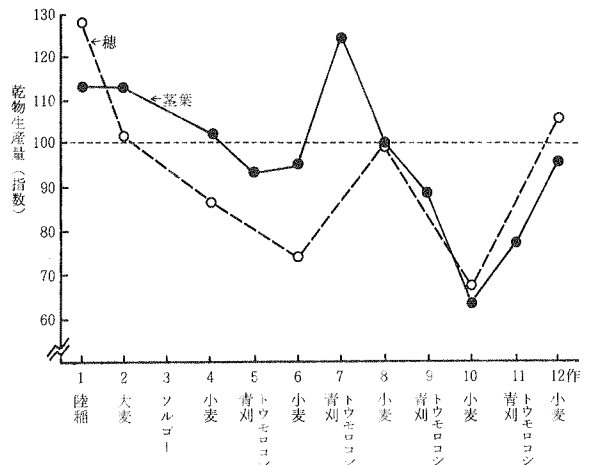
コシの生育は7作目を除くと汚泥施用区での生育は無施用区より悪くなった。一方冬作では、2作目の大麦の生育は汚泥施用区が無施用区より良かったが、それ以後の小麦では施用区が悪くなる傾向があった。

したがって、汚泥施用により1年目の作物生育は良くなったが、汚泥施用が継続されるにつれ、生育量が無施用区より減少する傾向があった。

2. 汚泥の施用と土壌の化学性

冬作跡地土壌の深さ別の化学性を第2図に示した。汚泥の施用によって、表層土(0~15 cm)の全窒素、全炭素、硝酸態窒素、有効態リン酸、置換性石灰および苦土が増加し、とくに硝酸態窒素は次層土(15~30 cm)、置換性石灰は下層土(30~60 cm)まで高くなった。しかし置換性加里についてはほとんど変化がなかった。

表層土のECは第3図に示したように年々上昇し、最

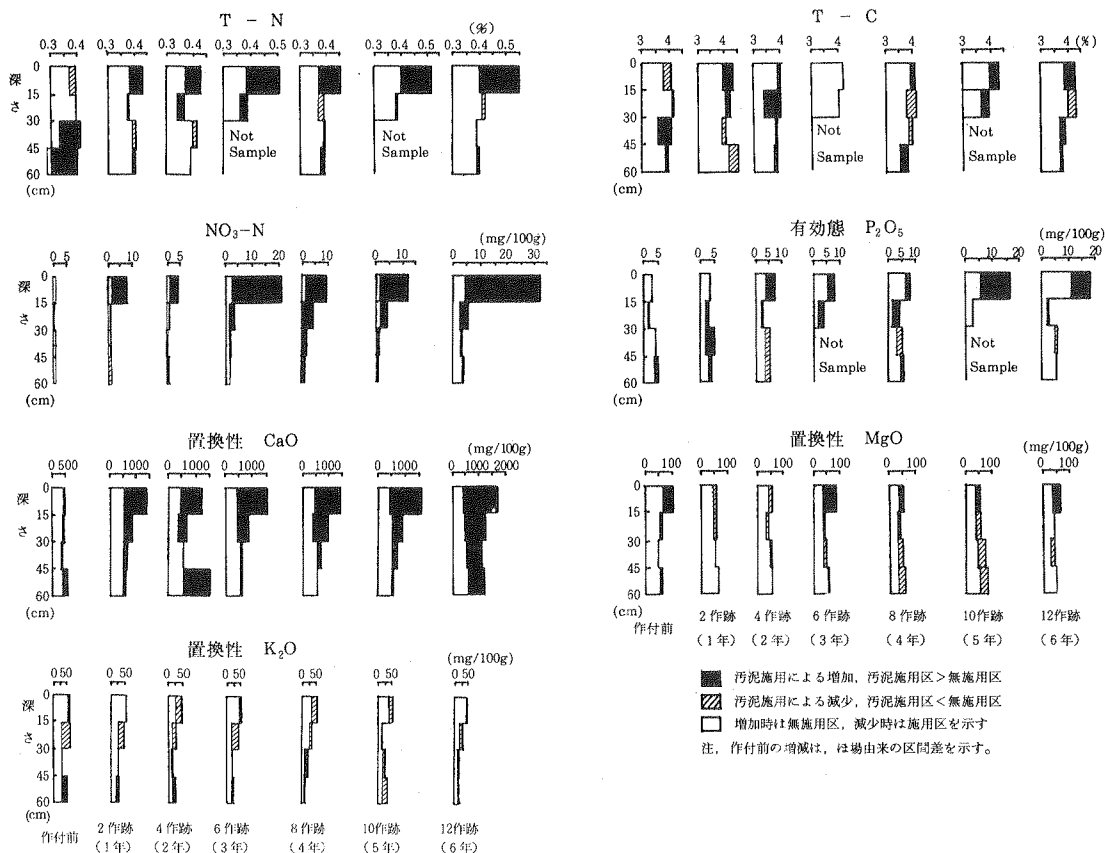


注、無施用区の生産量を100とした時の汚泥施用区の指数

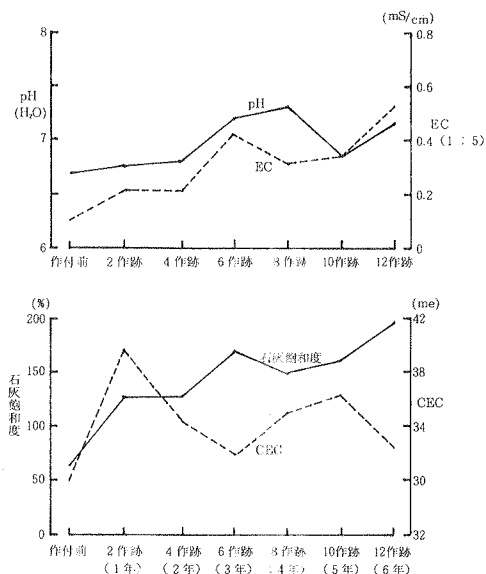
第1図 汚泥の施用と作物の生育

第2表 供試場の土壌の化学性

区	深さ (cm)	pH (H ₂ O)	EC (mS/cm)	T-N (%)	T-C (%)	CEC (me)	置換性塩基 (mg/100 g)			石 灰 飽和度 (%)	有効態 りん酸 (mg/100g)	りん酸 吸 収 係 数
							CaO	MgO	K ₂ O			
無 施 用 区	0-15	6.7	0.081	4.11	0.39	31.2	498	65	59	57	2.4	1970
	15-30	6.7	0.087	4.16	0.39	29.3	435	59	64	53	0.9	1980
	30-45	6.5	0.087	3.52	0.33	26.7	380	43	34	50	3.5	2060
	45-60	6.6	0.105	3.82	0.28	26.0	418	55	35	56	3.0	2030
汚 泥 施 用 区	0-15	6.7	0.105	3.82	0.37	30.0	526	109	67	63	2.5	2120
	15-30	6.6	0.094	4.22	0.39	30.1	516	54	36	61	1.5	1960
	30-45	6.4	0.104	4.12	0.41	30.9	499	49	33	58	3.6	2010
	45-60	6.8	0.129	4.01	0.40	32.5	633	66	55	69	4.8	2000



第2図 汚泥の施用と土壌の化学性



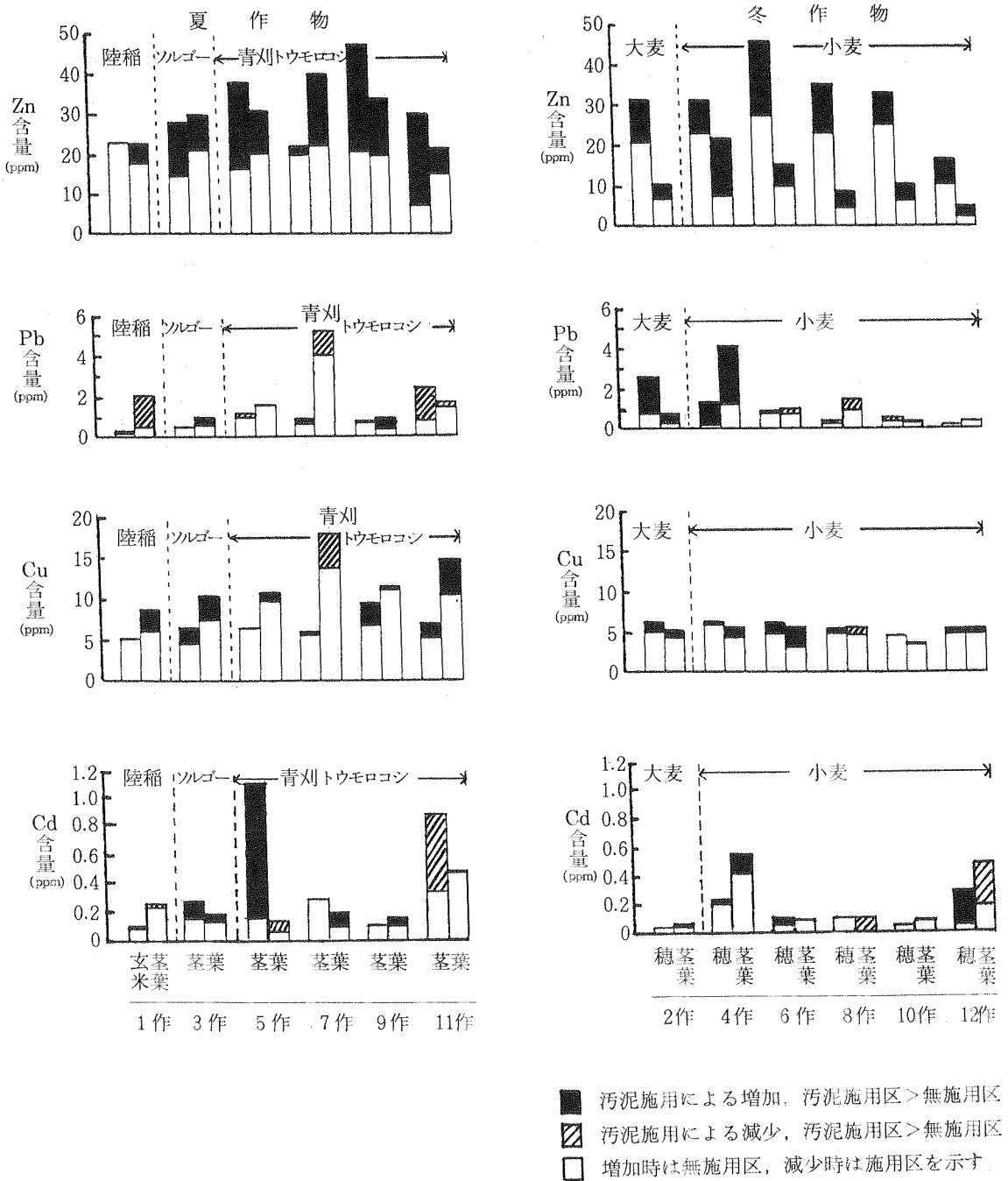
第3図 汚泥施用土壌(0~15cm)のpH, EC, CEC, 石灰飽和度

終12作では0.52 mS/cmに達した。また pH は3年目6作までは高くなったが、それ以後はあまり変化がなく6.9~7.3であった。しかし石灰飽和度は汚泥の施用によって著しく上昇し、12作では200%になった。次層でもこれらの変化が同様に確認されたが、下層では大きな変化は認められなかった。

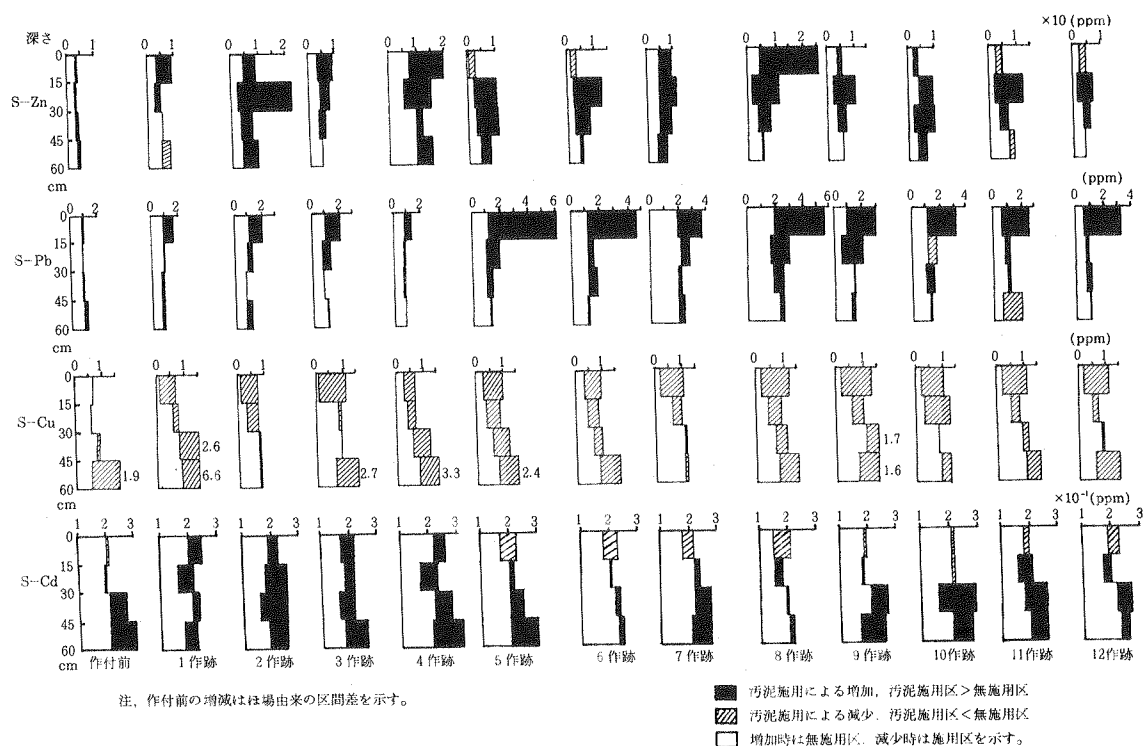
3. 汚泥の施用と作物体中の重金属含量

第4図に作物体中の重金属含量を示した。夏作物の Zn 含量は汚泥の施用によって茎葉とも著しく増加し、施用区で21~47 ppm, 無施用区で7~23 ppmであった。Pb 含量は両区とも、こん跡~5 ppmで汚泥施用区で低いことがあった。Cu 含量は4~13 ppmで施用区が無施用区より1~2 ppm高い傾向があった。Cd 含量はこん跡で、両区に一定した差はないが、施用区は3年目5作に著しく増加し、最終年11作に減少した。

冬作物の Zn 含量は汚泥施用区が17~46 ppm, 無施用区10~27 ppmで、汚泥施用により2~6作までは著しく増加したが、8作以降の増加は少なかった。Pb 含



第4図 汚泥の施用と作物体中の重金属含量(乾物)



第5図 汚泥の施用と土壌中の可溶性重金属含量

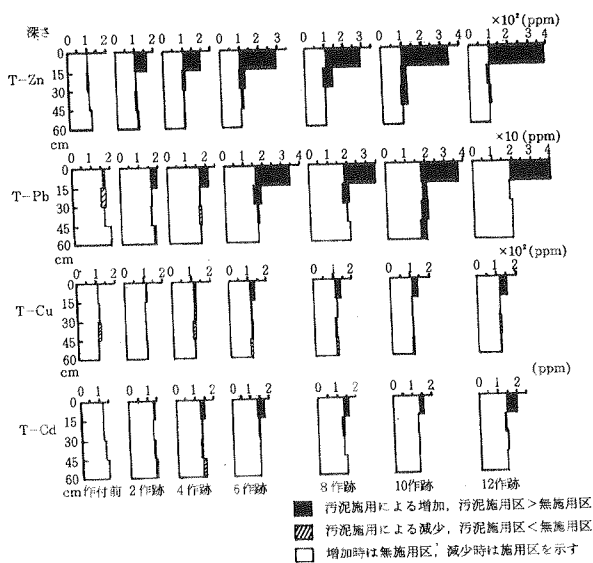
量は4作まで汚泥施用により著しく増加し、その後は増加しなかった。Cu 含量も6作までは施用区が高まったが、それ以後は無施用とあまり変らなかった。Cd 含量は施用と無施用で一定の傾向が認められなかった。

4. 汚泥の施用と土壌中の可溶性重金属含量

0.1 N塩酸抽出 (Pb は 1 N酢酸アンモニウム) による各作跡地の可溶性重金属含量を深さ別に第5図に示した。S-Znは汚泥施用によって著しく増加し、施用区は1~26 ppm、無施用区は2~10 ppmであった。しかし3年目以降の表層土の S-Zn は第8作を除くと増加はほとんどなく、次層および下層土で高くなる傾向が認められた。S-Pbは汚泥施用区で1~6 ppm、無施用区で1~2 ppmで、表層土に増加していた。S-Cuは前述のZn、Pbと異なり、汚泥の施用により全層において減少した。またS-Cdは4作目まで施用により全層とも増加する傾向があったが、5作以降の表層土では逆に減少した。

5. 汚泥の施用と土壌中の全重金属含量

冬作跡地土壌の三混酸分解法による全重金属含量を深さ別に第6図に示した。表層土のすべての全重金属含量は汚泥の施用によって年々増加し、最終6年目の汚泥施



第6図 汚泥の施用と全重金属含量

用区と無施用区の T-Zn は前者が390 ppm, 後者が103 ppm, T-Pb は各々 41 ppm と 11 ppm, T-Cu は157 ppm と 113 ppm, T-Cd は 2.0 ppm と 1.4 ppm であった。次層土の重金属の増加は T-Zn, T-Pb でわずかに認められたものの, T-Cu, T-Cd ではほとんど認められなかった。

IV 考 察

汚泥の施用によって、土壌および作物体中の重金属濃度が高まることは広く知られているが⁷⁾、重金属の収支面から検討を加えた報告は少ない¹¹⁾。本試験では汚泥の肥効よりも重金属の挙動に重点を置き、施用適量とされている 1 t/10 a⁹⁾ よりかなり多量の汚泥（毎年乾物として 5 t/10 a）を連用した。6年間に投入された汚泥は総量で 30 t/10 a となるので、これは汚泥施用量の限界値を知る上でも参考になると考える。

1. 汚泥の多量連用による土壌の化学性と作物生育

供試汚泥は普通の石灰処理汚泥¹²⁾に比べ全石灰含量は約 9% と低いが、多量の連用により土壌中の置換性石灰の増加は顕著であった。しかし土壌 pH は最高でも 7.3 で、石灰汚泥の連用時のような土壌 pH の過度な上昇⁹⁾は認められなかった。この原因としては、降雨による石灰の流亡と同時に硝酸態窒素の増加、汚泥中の硫黄の酸化⁴⁾、炭酸ガスの発生などによる石灰の中和が考えられる。石灰含量の少ない高分子系凝集汚泥では、土壌 pH の低下による酸性障害が認められているが⁴⁾、汚泥中の石灰含量によっては連用しても土壌 pH を適正に保つことは可能であることが示唆された。しかし pH の上昇がゆるやかであっても石灰飽和度の上昇は著しく、置換性加里の増加もないことから、汚泥の施用に際しては塩基バランス、石灰飽和度を考慮して投入量を決めることは必要であろう。

汚泥連用土壌の全炭素含量の増加はわずかで、これは橋元⁹⁾が指摘するように、汚泥の多量連用によっても堆肥にみられる土壌有機物の増大、土壌の物理性改善などの効果があまりないことを示すものと思われる。したがって、汚泥を堆肥の代替物として利用する場合は、オガクズ等の有機物を加えたコンポスト化⁹⁾が必要と考えられる。

汚泥の連用で土壌中の成分は富化されたが、作物の生育は年々低下する傾向があった。窒素要求量が高い青刈トウモロコシ⁸⁾でも 4 年目までが施用の限界であった。窒素要求量の中の小麥⁸⁾は 2 年目より低収傾向を示した。

これらは微量な重金属の吸収による影響とは考えられず^{2, 7)}、全窒素、硝酸態窒素の過剰な増加や置換性石灰の増加による¹¹⁾ものと思われる。

2. 作物の重金属吸収と土壌中の可溶性重金属の挙動

汚泥の連用により土壌への重金属投入量は年々増加し、作物体中の Zn も著しく増加したが、冬作では 2~6 作に比べ、8~12 作の吸収が少なかった。また Cu, Pb, Cd は汚泥の施用によってもあまり増加しなかった。このように作物体中の重金属はいずれも連用に比例した含有量の増大傾向は認められず、重金属積算投入量との相関はなかった。

この原因は供試汚泥中の重金属含量が Zn を除いて Cu, Pb, Cd では少ないことと、Chaney²⁾が指摘した“土壌—植物障壁”によるものと考ええる。すなわち、作物の側面からは自己防御作用として体内中の重金属濃度を抑制する機能“植物の障壁”があり、Pb, Cr, Hg, Cu は植物に吸収されにくい。一方、土壌の側面からは存在する重金属の作物への可給性が重要な問題で、土壌 pH の上昇などにより作物への重金属の可給性が低下した場合は“土壌の障壁”としている。

連用土壌の pH は 1 年目 6.76, 2 年目 6.80, 3 年目 7.22 とわずかな変化であったが、小麦の重金属吸収が 3~4 年以降の後期に低くなったことから、pH 7.0 付近で土壌中の重金属が作物に吸収されない形態になったことが考えられる。なお本試験の供試作物はすべてイネ科であり、比較的重金属吸収の低い作物とされているので²⁾、今後汚泥の施用による重金属の汚染を検討するときは、作物の重金属吸収特性を考慮する必要がある⁹⁾。

0.1 N 塩酸抽出法による土壌中の可溶性重金属は作物に吸収される形態かどうかは明確でないが⁷⁾、簡易な方法なので一般的に用いられている。この方法によると、表層土の S-Zn, S-Cd は連用 3 年目あたりで減少する傾向があり、S-Cu は 1 年目より減少していた。このように可溶性重金属の減少は、汚泥施用区の土壌 pH の変化がわずかであったにもかかわらず顕著に認められた。

この理由を検討するため、第 3 表に 0.1 N 塩酸抽出時の抽出液 pH を示した。無施用区の pH は約 2.2 と一定であったが、汚泥施用区は年々上昇し、最終年では pH 5.24 になった。したがって、0.1 N 塩酸抽出法では連用年数によって抽出 pH に著しい差を生じ、同一条件で測定していないことが示され、水野⁹⁾の報告と似た結果が得られた。汚泥施用区では連用に伴って石灰が増加し、これが塩酸と反応して抽出液の pH を上昇させ、各重金

属の抽出性を低下させたものと思われる。

さらに、S—Zn、S—Cd と S—Cu 間の抽出性の差異は、前述の理由に加えて山本¹²⁾の報告によって説明される。すなわち、火山灰土壤のアロフェン粘土鉱物は Zn、Cu などの重金属を特異的に吸着し、pH 4～7 の範囲では pH の上昇に伴って吸着量が増え、 $Pb > Cu > Zn > Cd$ であったとしている。また吸着された Zn は Cu よりも吸着度が低く、Ca イオンが存在すると Zn の吸着力はさらに低下するとしている。このほかにも重金属吸着要因として、土壤中の腐植によるキレート結合があり、この影響も考えられるが、施用 1 年目から S—Cu が著しく減少したことは、汚泥施用以前に元々存在した土壤中の S—Cu が施用によって、かえって吸着されたことを示すと考える。したがってアロフェン粘土鉱物への Cu の吸着が石灰を含んだ汚泥の施用によって相対的に強められ、本試験の可溶性重金属の動向に差異を生じたと思われる。

第 3 表 土壤中の可溶性重金属定量時の 0.1 N 塩酸抽出液の pH

年 数	作 順	0.1 N 塩酸抽出時の抽出液 pH	
		無施用区	汚泥施用区
試験開始前	0 作	2.27	2.45
1	2	2.24	3.12
2	4	2.21	3.18
3	6	2.25	4.08
4	8	2.21	4.35
5	10	2.19	4.96
6	12	2.25	5.24

注、1) 0.1 N 塩酸抽出液（ブランク）の pH 1.01

昭和53年の供試汚泥の抽出液 pH 7.92

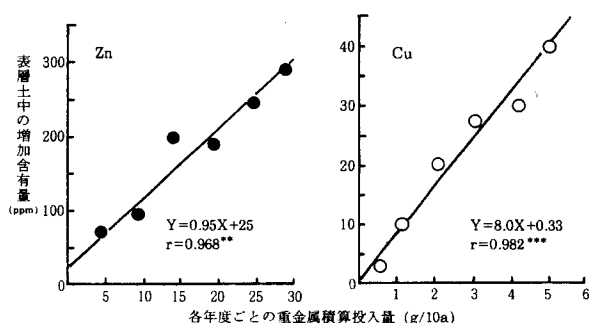
2) 供試土壤は冬作跡地の表層土 0～15cm

3. 土壤中の全重金属等の含量増加と指標としての Zn

前述のように、土壤中の可溶性重金属は石灰処理汚泥と火山灰黒ボク土壤の組み合わせによって減少したが、全含量は各重金属とも年々増加の方向にあった。そこで第 7 図と第 4 表に示すように、重金属等の投入量と表層および次層土に増加した全含量の相関を直線回帰式から求めた。相関係数は大半の成分が表層土で高く、これら汚泥中の成分が表層に年々蓄積されることを示した。

表層土の重金属に限ると、相関順位は T—Cu > T—Zn > T—Ni > T—Pb > T—Cd で、T—Mn、T—Fe はほとんど相関がなかった。

このことは、これら二つの金属が土壤に元々多量に存在し、汚泥中の含有量と比べて相対的に高いために、連用に伴う蓄積が起こらなかったと考え、汚泥中の全成分含量に対する土壤中の全成分含量の比率（以下汚泥/土壤比とする）を求めた。その結果、概ね Mn 0.4、Fe 0.8 で、相関の高い重金属では Zn 9.0、Pb 4.8、Cu 1.9、Cd



注、増加含有量は汚泥施用区—無施用区（試験開始前は場間差は補正した）より求めた。回帰式は 6 年間（n=6）について行なった。

第 7 図 汚泥の連用による Zn、Cu 積算投入量と表層土中に増加した含量の相関

第 4 表 汚泥の連用による重金属等の積算投入量と土壤中に増加した成分含量の相関（上段）及び表層土の増加 Zn と他成分の増加含量の相関（下段）係数

深さ (cm)	Zn	Cu	Pb	Ni	Cd	Mn	Fe	Al	Ca	Mg	K	Na	P	N	C
0—15	**	***	**	**							*		**	*	
0—15	0.968	0.982	0.919	0.925	0.673	0.032	0.135	-0.049	0.684	0.413	0.825	0.743	0.921	0.859	0.746
15—30	0.343	0.384	0.377	0.265	0.022	-0.214	0.496	0.436	0.561	0.923	0.304	0.269	0.097	-0.554	0.005
0—15		**	***	*					*		*		*	**	
0—15		0.973	0.981	0.887	0.705	-0.179	0.026	-0.256	0.826	0.440	0.826	0.624	0.828	0.952	0.244
15—30	0.375	0.272	0.330	0.195	0.051	-0.158	0.540	0.243	0.616	0.877	0.452	0.353	0.124	-0.434	-0.608

注、1) Y は汚泥の連用に伴い土壤中に蓄積した増加含量を示す。X は上段が積算投入量、下段が表層土中に増加した T—Zn 含量である。

2) 各年次ごとの X、Y を求め、6 年間について直線回帰式より相関を求めた。有意水準は * 5%、** 1%、*** 0.1% を示す。

第5表 汚泥の連用により土壌および作物中に蓄積した重金属の収支

連用年数	土壌0～30 cm中に蓄積した割合 (%)								作物中に蓄積した割合 (%)			
	T-Zn	T-Cu	T-Pb	T-Cd	S-Zn	S-Cu	S-Pb	P-Cd	Zn	Cu	Pb	Cd
1	191	217	200	223	47	-17	31	107	0.23	0.14	-0.06	0.28
2	133	56	105	174	21	7	3	45	0.06	0.02	0.07	0.23
3	220	92	158	205	5	-4	22	-14	0.37	0.16	-0.03	8.45
4	128	125	96	167	14	-5	18	20	0.45	0.07	-0.03	0.90
5	111	101	86	67	0.9	-4	3	-5	0.35	0.10	0.03	-0.27
6	104	85	100	135	0.5	-2	11	2	0.35	-0.07	-0.24	-0.53

注、1) 重金属の収支は各年度ごとに単位面積当りの $\frac{\text{土壌, 作物中に蓄積した重金属総量}}{\text{汚泥による重金属積算投入量}} \times 100$ より求めた。

2) 蓄積量は汚泥施用区一無施用区より求めた。試験開始前の区間差は補正した。

3) 表中の負の数値は汚泥施用区の方が減少したことを示す。

2.8, Ni 1.6であった。したがって、汚泥の投入に比例した重金属の土壌への蓄積は、汚泥/土壌比が1以上に限られることが示唆された。

T-Zn は汚泥/土壌比が最も高く、汚泥投入量との相関も T-Cu に次いで高い。また第4表下段に示すように、表層土に蓄積増加したT-Znを汚泥による各重金属投入量と代替してもほぼ同様の相関が得られたことから、表層土のT-Zn は汚泥の施用による重金属の蓄積を把握する指標として有効であると考えられる。

4. 重金属の収支

汚泥の施用により投入された重金属の収支を第5表に示した。土壌に蓄積した重金属は、主に0～30 cm深の土層に限られていたので、この土量に増加した重金属含量を乗じて求め、作物に吸収された重金属量は乾物生産量に増加した含量を乗じて求めた。

作物に吸収された重金属の割合は3年目のCdが8.5%で、ほかは1%以下で低く、投入された重金属のほとんどは土壌に蓄積されていた。すなわち、土壌中に蓄積した重金属の収支は、試験終了6年目でZn 104%, Cu 85%, Pb 100%, Cd 135%と算出された。連用開始2～3年の収支は実際の収入量と計算値で大差があったが、最終的には汚泥施用の繰り返しによって、汚泥と土壌の混和が進められるためか、投入量と計算値はほぼ一致した。可溶性の重金属は年々割合が減少し、不溶態として土壌中に蓄積するものと思われる。

以上より、汚泥の連用は土壌中に重金属を加算的に蓄積し、土壌汚染を引き起こす可能性がある。したがって、汚泥の施用に際しては総重金属投入量を求めることがき

わめて重要であると考えられる。

V 摘 要

下水汚泥(脱水ケーキ)を黒ボク土畑地は場に、毎年乾物換算で5 t/10 a相当投入し、6年間イネ科作物を栽培した。汚泥施用区と無施用区の比較より、土壌および作物に及ぼす多量連用の影響を主に重金属の挙動から検討した。この結果は以下のように要約される。

1. 汚泥施用1年目の供試作物の生育量は増加したが、2年目以降の小麦と青刈トウモロコシは連用に伴い次第に減少した。表層土0～15 cm深は汚泥の施用により、置換性石灰、置換性苦土、有効態リン酸、硝酸態窒素が顕著に増加し、石灰は下層60 cmまで高まった。表層土のpHは7.3以下であったが、石灰飽和度は著しく高まり、作物生育が低下した原因と思われた。

2. 汚泥の連用により作物体中のZnは著しく増加し、Cu, Pb, Cdも施用開始2～3年までは微増した。しかし汚泥による重金属積算投入量に比例した増加は認められなかった。

3. 土壌中の0.1 N塩酸可溶性重金属(PbはpH 4.5, 1 N酢酸アンモニウム可溶性)は連用によりS-Zn, S-Pbが増加し、S-Cuは逆に減少した。表層土のS-Zn, S-Cdは連用3年以降の増加はあまりなかったが、これは0.1 N塩酸抽出時のpHが連用に伴って上昇するためと考えられた。しかし表層土のT-Zn, T-Cu, T-Pb, T-Cdは連用により顕著に増加した。

4. 汚泥による重金属投入量と表層土の増加重金属含量

の相関が高いのは $T-Cu > T-Zn > T-Pb$, $T-Ni$ で, $T-Cd$ の相関は低かった。 $T-Mn$, $T-Fe$ は汚泥と土壤中の重金属含量の比率(汚泥/土壤比)が1以下で相関がなかった。表層土の $T-Zn$ は汚泥/土壤比が9と高く、他の重金属の蓄積指標として有効であった。

5. 重金属の収支は Zn , Cu , Pb , Cd とも土壤中に投入量の約100%が残存しており、作物への吸収割合はほぼ1%以下であった。

引用文献

- 1) 安藤光一・岡部達雄・白崎隆夫・松本直治：野菜類に対する下水処理汚泥の施用効果。千葉農試研報23：99—105 (1982)。
- 2) Chaney, R. L. : 農地に施用した汚泥中の有害物質の挙動, 下水汚泥の緑農地利用—国際シンポジウム会議録—, 158—209, 下水汚泥資源利用協議会(1983)。
- 3) 土山和英・前田正男：数種野菜における銅および亜鉛の過剰障害について。大阪農技セ研報11：141—150 (1974)。
- 4) 海老原武久・山田 要・松村 蔚：汚泥の農地への利用に関する研究。第Ⅱ報 汚泥の連用が土壤・作物に及ぼす影響。群馬農試報22：49—58 (1982)。
- 5) 橋元秀教：有機物資源としての下水汚泥, 下水汚泥—リサイクルのために—, 105—122, 土肥学会編, 博友社, (1979)。
- 6) 環境庁土壤農薬課編：土壤汚染, 公害と防止対策, 251—318, (1973)。
- 7) 環境庁水質保全局：土壤中亜鉛の作物影響等に関する参考文献調査。(1980)。
- 8) 松崎敏英・和地 清：わが国における下水汚泥の農地還元, 下水汚泥の緑農地利用—国際シンポジウム会議録—, 26—42, 下水汚泥資源利用協議会, (1983)。
- 9) 水野直治：希塩酸による土壤中銅抽出の限界。土肥誌47：251—255 (1976)。
- 10) 農林水産省農蚕園芸局農産課編：土壤環境基礎調査における土壤・水質及び作物体分析法。(1979)。
- 11) 武市直己・尾和尚人・稲永 忍・保奈 寛・茅野充男：下水汚泥の連用土壤における重金属の挙動。土肥要旨集31：275 (1985)。
- 12) 山本克巳：アロフェンによる銅および亜鉛の吸着特性。土肥誌54：519—526 (1983)。
- 13) 山添文雄：下水汚泥の肥料化, 下水汚泥—リサイクルのために—, 45—66, 土肥学会編, 博友社, (1979)。

The Influence of Heavy and Continuous Application of Sewage Sludge on Soil Materials and Plant Growth

Takashi SHINGYOJI, Norio HIGURASHI,
Koichi ANDO and Naoharu MATSUMOTO

Key Words: sewage sludge, zinc, total heavy metal, soluble heavy metal, graminous plant

Summary

Sewage sludge was applied annually to the top 10 cm of a humic andosol in an upland field at a rate of 5 dry metric tons/10 a for a period of six years from 1978 onwards. Graminous plants (upland rice, barley, sorghum, wheat, corn) were grown in the sludge-applied plots and in control plots which were not treated with sludge. In both plots, chemical fertilizer was applied equivalently.

Thus, the soil chemical properties, plant growth and the heavy metal accumulation in soil and in plants in the sludge-applied plots were investigated as compared with those of the control plots. The following results were obtained.

1. Crop yields in the sludge-applied plots were higher than those in the control plots in the first

year, but were not superior to those in the control plots after the second year. Continuous application of sewage sludge increased the contents of exchangeable-CaO, exchangeable-MgO, available P_2O_5 and NO_3-N in the topsoil (0–15 cm) and furthermore the exchangeable-CaO in the subsoil (30–60 cm). With continuous application, the pH of topsoil increased but did not go beyond 7.3. However, the increase in the percentage of lime-saturation was remarkable.

2. Zn contents of plants in the sludge-applied plots were markedly increased as compared with those in the control plots every year, and also Cu, Pb and Cd contents of plants tended to exceed those in the control plots over the early few years. However, non of these heavy metals of plants had any correlation with the summed amount of heavy metals in sewage sludge applied every year.

3. As to 0.1 N HCl-soluble (S-Zn, S-Cd, S-Cu) and 1 N CH_3COONH_4 -soluble (S-Pb) heavy metals in soil, although the contents of S-Zn, S-Cd and S-Pb tended to increase with sludge application, the S-Zn and S-Cd in topsoil scarcely increased after the third year of application. In contrast, the S-Cu content of treated soil was always decreased. These phenomena were assumed to be caused by the pH increase of 0.1 N HCl extract solution with continuous sludge application yearly, while the total heavy metal content (T-Zn, T-Cu, T-Pb, T-Cd) in the topsoil which was treated with sludge increased yearly.

4. A significant correlation was observed between the summed amounts of heavy metals in sewage sludge applied and the total heavy metal increase observed in topsoil each year. T-Cu content of the topsoil showed the strongest correlation, followed by T-Zn, T-Pb, T-Ni and T-Cd in that order. However, T-Mn and T-Fe had no correlation and the ratio of these heavy metal contents in sewage sludge to those in soil (sewage sludge / soil ratio) was below 1. This ratio of T-Zn was highest at 9 of all the heavy metals measured. From these results, it was assumed that the T-Zn content of the topsoil was effective for assessing the accumulation of other heavy metals in soil treated with sewage sludge.

5. The fates of the heavy metals (Zn, Cu, Pb, Cd) in sewage sludge applied continuously were measured in the final year. The recoveries of each heavy metal in soil and in plants were almost 100% and below 1% of the theoretical amount of heavy metal in sewage sludge, respectively.