

汚泥類の連用が畑土壌及び作物に及ぼす影響(2)

長期連用に伴う理化学性の変化,重金属の土壌集積と作物吸収

誌名	大分県農業技術センター研究報告 = Bulletin of the Oita Prefectural Agricultural Research Center
ISSN	03888576
著者名	深田,久成 安倍,世紀 野地,良久
発行元	大分県農業技術センター
巻/号	21号
巻号補足	
掲載ページ	p. 43-62
発行年月	1991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



汚泥類の連用が畑土壌及び作物に及ぼす影響

第2報 長期連用に伴う理化学性の変化、重金属 の土壌集積と作物吸収

深 田 久 成・安 倍 世 紀・野 地 良 久

Effects of a Long-term Application of Sludges to an Upland Field on Soil Fertility and Plant Growth

2. Changes of Physical and Chemical Properties of Soil, Heavy Metals Accumulation in Soil and Their Uptake by Plants

Hisanari FUKATA, Seiki ABE and Yoshihisa NOJI

目 次

I 緒 言	43
II 試験方法	44
1. 供試圃場	44
2. 供試資材	44
3. 試験区の構成	44
4. 供試作物	44
5. 分析方法	45
III 結果及び考察	45
1. 供試資材の分析結果	45
2. 土壌の理化学性及び微生物性	45
3. 重金属等の土壌への集積	49
4. 作物の生育、収量	55
5. 作物の重金属濃度	56
6. 重金属の収支	58
IV 総 括	59
V 摘 要	60
引用文献	60
Summary	62

I 緒 言

各種廃棄物が年々増加する中で、埋立処分地確保の困難性や燃料費節減対策等から、廃棄物を再利用資源として見直し、土壌改良資材あるいは有機質肥料として農用地へ還元しようという動きが活発化している。

しかしながら、これらの資材のなかには、重金属等の有害物質を高濃度に含むものもあることから、これらの連用による土壌汚染が生じることが懸念されている。そこで汚泥類の長期連用が土壌、作物へ及ぼす影響を重金属に重点をおき調査した。

本報は、再利用資源の畑地への連用が土壌環境に及ぼす影響を調査するため、1984年から1988年にかけて環境庁の委託により実施した再利用資源土壌還元影響調査の結果を中心に取りまとめたものである。また、本調査は、これに先立って1979年から1983年までに実施された汚泥等土壌還元影響調査の延長線上にあるもので、前調査の結果はすでに第1報で報告済みである。本報は前調査との継続性が甚だ大である点を考慮し、10年間の総

※ 現宇佐農業改良普及所

合考察とした。

なお、この間、関係者から有益な助言をいただいた。ここに感謝する。

II 試験方法

1. 供試圃場

試験は大分県宇佐市大字北宇佐の大分県農業技術センターの洪積台地上の粘質土壌で行った。この圃場の土性はLiC/LiC、土壌類型は細粒褐色森林土（貝原統）で下層の透水性は不良である。土壌の化学性は第1表に示すとおり、腐植に乏しく、主要粘土鉱物は1:1型で保肥力、固定力が小さく、重金属濃度は全量Cdが0.16ppm、全量Cuが9.5ppm、全量Znが38ppmと低い。

2. 供試資材

汚泥は、塩化第二鉄と消石灰を凝集剤とした脱水ケーキを約200℃で乾燥処理した石灰処理下水汚泥（以下A汚泥）と凝集剤として硫酸ばん土及び若干量の高分子凝集剤を併用したパルプ工場排水

製紙スラッジ（以下B汚泥）の2種類を使用した。堆肥は稲わら堆肥を用いた。

3. 試験区の構成

試験区の構成、汚泥等資材の施用量、施肥量は第2表に示すとおりである。両汚泥とも各作ごとに10a当たり乾物で0.5t、1t、2t施用の3水準とし、汚泥類無施用の化学肥料単用区を対照とした。さらに稲わら堆肥の1t区を設けた。化学肥料の施用量は各区一律としたが、B汚泥区については当初より汚泥量の0.5%相当の窒素を硫酸で上乘せした。10年間、19作に施用された汚泥及び化学肥料の成分別総量は、第3表に示すとおりである。

4. 供試作物

供試作物は、夏作ソルガム、冬作キャベツとし、10年間、19作を交互に連作した。ソルガムの品種は、1979～1981年にスイートソルガム、1982年以降ハイブリットを用いた。5月中旬播種、播種量は4kg/10a、条間を50cmとし、収穫は1番刈りが7月下旬、2番刈りが9月上旬の2回とした。キャベツの品種は1979、1982年に秋蒔中生2号、そ

第1表 供試前土壌の化学性

(乾土当)

層 位	深さ cm	pH (H ₂ O)	T-C %	T-N %	CEC meq/100g	交換性meq/100g			可給態 りん酸 mg/100g	りん酸 吸収 係数mg	T-Cd ppm	T-Cu ppm	T-Zn ppm
						Ca	Mg	K					
作土層	0～15	5.9	0.89	0.10	10.8	4.1	1.4	0.3	5.6	480	0.16	9.5	38.3
次 層	15～30	6.2	0.60	0.08	9.2	—	—	—	0.2	660	0.17	9.9	38.1

注) 主要粘土鉱物は1:1型

第2表 試験区の構成

試 験 区		供試資材施用量 kg/10a/作	備 考
対 照		0	
A 汚 泥	0.5 t	500	化学肥料施用量は、夏作ソルガムがN:20、P ₂ O ₅ :15、K ₂ O:20、冬作ソルガムが、N:25、P ₂ O ₅ :20、K ₂ O:25kg/10a。
	1 t	1000	
	2 t	2000	
B 汚 泥	0.5 t	500	但し、B汚泥の各区は、汚泥量の0.5%相当量のNを増施した。 石灰資材施用による土壌pH矯正は、対照区のみ行った。
	1 t	1000	
	2 t	2000	
稲わら堆肥		1000	

第3表 供試資材及び化学肥料の由来別成分総量

試 験 区		汚 泥 出 来 (kg/10a)				化学肥料由来 (kg/10a)				合 計 (kg/10a)				
		施用量 (t)	N	P ₂ O ₅	K ₂ O	CaO	N	P ₂ O ₅	K ₂ O	CaO	N	P ₂ O ₅	K ₂ O	CaO
対 照		—	—	—	—	—	428	313	421	43	428	313	421	43
A 汚 泥	0.5 t	9.83	297	247	12	1640	419	308	420	—	716	555	432	1640
	1.0 t	19.62	592	493	23	3281	414	300	420	—	1006	793	443	3281
	2.0 t	39.26	1185	1126	45	6547	404	288	420	—	1589	1414	465	6547
B 汚 泥	0.5 t	9.46	70	33	10	468	489	313	421	—	559	346	431	468
	1.0 t	18.93	140	68	19	935	537	313	421	—	629	381	440	935
	2.0 t	37.85	280	135	38	2036	639	313	421	—	919	448	459	2036
稲わら堆肥		19.00	386	87	451	885	426	313	420	—	812	400	971	885

注) 汚泥施用量は乾物量

れ以外の年には耐寒大御所を用い、9～11月に畦幅120cm、株間40cmの2条植で定植し、翌年1～3月に収穫した。

5. 分析方法

資材中の一般成分並びに重金属類の分析は「肥料分析法」(農林水産省農業技術研究所)によった。土壌の理化学性及び作物体成分の分析は「土壌環境基礎調査における土壌、水質及び作物体分析法」(農林水産技術会議事務局)に準拠して行った。ただし、土壌の可溶性A_{el}はpH4.0・酢酸ナトリウム抽出—アルミニウム比色法で、土壌の全量Hgは還元気化法で、また無機態りん酸の分別定量は関谷の方法で、重金属の形態分別はMclarenらの方法に準じて行った。土壌の微生物性は、アンモニア酸化菌、亜硝酸酸化菌が最確値法で、その他のものについては希釈平板法によった。

III 結果及び考察

1. 供試資材の分析結果

供試資材は毎作ごとに分析し、その結果を第4表に示した。

水分は、A汚泥が平均40%でCV値が大きく乾燥程度の変動が大きかったが、B汚泥は変動幅は小さく平均60%であった。pHは凝集剤として添加された消石灰の量に左右され、石灰処理系のA汚泥で平均的に高く、B汚泥は年次により石灰含量が異なり高pHを示す場合もみられた。全窒素は、A汚泥が平均3%と一般的な下水汚泥の平均的な値を示した。これに対してB汚泥では0.7%と低く変

動幅もA汚泥に比べてやや大きかった。全りん酸は、稲わら堆肥と比較するとA汚泥は5倍程度高いがB汚泥はやや低かった。加里は両汚泥とも極めて少なく一般的に言われている汚泥の特徴と一致した。石灰は、いずれの資材とも変動幅が大きく、ことにB汚泥で著しかった。

Cd、Cu、Zn、As、Pb、Ni、Hg、A_{el}は、両汚泥とも稲わら堆肥よりも高かった。A汚泥ではZn含量が平均1300ppmと高く下水汚泥の平均的な値を示した。B汚泥では、As、PB、Cr及びA_{el}がA汚泥よりも高かった。

汚泥類は水との親和力が強いのでろ過効率を高めるため凝集剤が使用される。本試験に供試した汚泥のうちA汚泥は、凝集剤として塩化第二鉄及び凝集助剤として消石灰を用いたもので、それら成分の平均値はFeが4%、石灰が17%で下水汚泥の平均的な含有量を示した。B汚泥は、凝集剤として硫酸ばん土を使用しているため、A_{el}の平均含有量は8%と多かった。汚泥の連用で、これら凝集剤が土壌の化学性に及ぼす影響が大きいことはすでに前報でも報告した。

2. 土壌の理化学性及び微生物性

1) 土壌の化学性的変化

(1) 土壌pHの変化

第19作跡地土壌の化学性を第5表に示した。土壌pHの変化は、前報でも報告したように、A汚泥の1t及び2t区は、連用当初急な上昇を示したが、以後第19作まで横ばい状態で、0.5t区は、全試験期間を通して5～6内で推移し、連用に伴う変化は小さかった。B汚泥の1t及び2t区は第6作目まで

第4表 供試資材の分析結果

(乾物)

項 目	A汚泥 (1~19作 19点)				B汚泥 (1~19作 19点)				稲わら堆肥 (1~19作 19点)			
	最高	最低	平均	C V	最高	最低	平均	C V	最高	最低	平均	C V
水分 (%)	65.7	6.6	39.8	46	75.7	52.0	62.9	11	82.6	32.1	72	16
pH (1:10)	11.3	7.3	8.5	11	8.3	6.8	7.7	4	9.6	6.8	8.4	8
EC (mS)	4.42	1.98	3.29	6	1.87	0.58	0.93	37	5.96	0.69	3.47	44
T-N (%)	3.88	2.04	3.02	15	1.30	0.49	0.74	27	2.63	1.00	2.03	17
T-C (%)	36.1	21.8	28.9	12	39.7	24.9	34.4	10	32.3	22.6	26.6	11
T-P ₂ O ₅ (%)	3.33	1.63	2.51	18	0.57	0.26	0.36	22	0.67	0.30	0.46	23
T-K ₂ O (%)	0.24	0.05	0.11	46	0.12	0.05	0.09	26	3.98	1.70	2.32	42
T-CaO (%)	25.1	10.3	16.8	24	16.5	0.4	5.7	87	11.5	0.7	4.77	60
T-Cd (ppm)	2.85	1.62	2.12	16	5.04	1.61	2.48	29	0.87	0.23	0.44	38
T-Cu (ppm)	159.0	68.0	99.5	20	138.1	74.7	104.9	20	12.4	4.5	8.1	29
T-Zn (ppm)	2058	496	1274	32	496	239	381	17	174	41	69	48
T-As (ppm)	6.20	2.10	3.27	33	15.3	5.1	8.6	28	6.10	0.70	2.09	62
T-Pb (ppm)	45.0	8.2	24.6	43	70.3	18.0	35.4	37	9.6	1.1	4.3	49
T-Ni (ppm)	50.4	10.9	20.3	52	46.1	18.0	29.0	29	15.4	1.0	7.1	51
T-Cr (ppm)	41.9	17.8	28.1	26	84.1	34.4	63.0	28	19.2	1.6	6.9	80
T-Hg (ppm)	25.4	0.74	1.53	33	1.73	0.22	0.49	78	0.48	0.06	0.20	57
T-Fe (%)	5.28	1.82	3.83	25	0.75	0.30	0.52	26	1.47	0.09	0.25	127
T-Al (%)	2.79	0.05	0.88	75	11.3	5.6	8.23	22	0.97	0.14	0.35	69

注) C N比 A汚泥:10.1、B汚泥:46.2、稲わら堆肥:13.3

低下する傾向を示したが、汚泥中の石灰含量が高かった第10作から第12作にかけて上昇した。0.5t区は連用当初から徐々に低下した。

第19作跡地では、A汚泥は作土層で0.5t区が6.3、1t区が7.3、2t区が7.8まで達した。次層も作土層の影響が認められ、1t及び2t区は作土層と同程度に高まった。B汚泥は、作土層で0.5t区が4.6、1t区が5.6と低かった。次層は供試前に比べ0.5t区が低下したが、1t及び2t区は差がなかった。

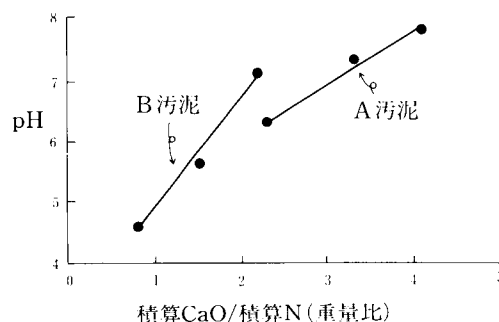
A汚泥区で土壌pHが上昇したのは、A汚泥が多量の石灰を含有するためCa²⁺の溶脱及び収奪量より負荷量の方が多いためと考えられ、石灰含量の少ないB汚泥では、石灰負荷量よりも溶脱及び収奪量の方が多いため土壌pHは低下したのと考えられた。汚泥から土壌に搬入される石灰(CaO)と汚泥及び化学肥料から搬入される窒素(N)の積算量の比と土壌pHの間には、第1図にみられるようにほぼ直線的な関係が認められた。

(2)りん酸

第19作跡地土壌の可給態りん酸(トルオーグリン酸)は、A汚泥が、作土層で施用量が多い程高く、2t区では140mg/100gまで上昇した。この影響

は次層にも認められ、いずれの施用区も対照区よりも高かった。B汚泥は、作土層でいずれの区も対照区よりも低く、次層では対照区とはほぼ同程度であった。これらの結果から、汚泥に含有される凝集剤由来のAlやFe及びCaがりん酸の形態に及ぼす影響が極めて大きいことが示唆されたため、第18作跡地の作土層についてりん酸の分別定量を行い、その結果を第6表に示した。

りん酸含有量の多いA汚泥は、全りん酸が対照区に対し0.5t区で35%、1t区で74%、2t区で225%の増であった。無機態りん酸は、Ca型が0.5t区



第1図 積算CaO/N比と土壌pH

第5表 第19作跡地土壌の化学性

(乾土当)

層位	試験区		pH (H ₂ O)	T-N (%)	T-C (%)	CEC (meq)	交換性(meq)			塩基 飽和度 (%)	可給態 りん酸 (mg/100g)
							Ca	Mg	K		
作 土 層	対	照	6.2	0.09	1.08	11.3	7.9	2.6	0.3	96	27.0
	A	0.5 t	6.3	0.13	1.29	12.5	10.2	0.5	0.2	87	38.5
	汚	1 t	7.3	0.18	1.52	14.7	18.7	0.8	0.2	134	81.1
	泥	2 t	7.8	0.24	2.57	16.8	48.7	1.3	0.2	299	139.8
	B	0.5 t	4.6	0.12	1.67	10.8	3.0	0.3	0.3	33	14.7
	汚	1 t	5.6	0.18	2.51	10.6	7.2	0.4	0.3	75	15.3
	泥	2 t	7.1	0.23	3.52	12.2	13.1	0.5	0.2	113	13.4
	稲	わら堆肥	4.6	0.15	1.73	13.3	5.7	0.5	0.7	52	20.4
	対	照	6.9	0.09	0.80	10.3	7.4	2.3	0.1	76	3.5
	A	0.5 t	6.8	0.09	0.80	10.2	9.5	0.5	0.1	99	10.2
次 層	汚	1 t	7.6	0.08	0.81	10.9	12.6	0.6	0.1	122	14.6
	泥	2 t	7.9	0.09	0.93	11.2	22.1	0.9	0.1	206	33.4
	B	0.5 t	4.8	0.08	0.75	9.6	3.6	0.4	0.2	44	2.5
	汚	1 t	5.6	0.09	0.84	9.1	6.8	0.5	0.1	81	4.0
	泥	2 t	6.6	0.10	0.93	10.0	8.7	0.5	0.1	93	5.0
	稲	わら堆肥	5.8	0.08	1.25	9.3	6.8	0.7	0.4	85	5.6

て18%、1 t区が140%、2 t区が300%、Fe型は、それぞれ45%、48%、110%と増加が著しかった。これに対しA_{el}は6～22%の増加に留まった。B汚泥は、A_{el}型が1 t及び2 t区で対照区に対し44%の増加がみられたものの、Fe型、Ca型はいずれの区も対照区よりも10～50%低下し、低下率は施用量の多い区ほど大きかった。また、全りん酸に対する無機態りん酸の構成割合は、対照区がA_{el}型>Fe型>Ca型の順であったのに対し、A汚泥の0.5 t区はFe型>A_{el}型>Ca型、1 t区がFe型>Ca型>A_{el}型、2 t区はCa型>Fe型>A_{el}型の順となり施用量が多くなるほどCa型の割合が高くなった。一方、B汚泥では、いずれの区もA_{el}型>Fe型>Ca型の順位であった。

このようにA汚泥の施用で、植物に可給性が高いとされるCa型とFe型が増加したのに対し、B汚泥では難溶性のA_{el}型が増加し、Ca型は逆に減少した。汚泥中のりん酸の形態については未検討であるが、汚泥中の無機態りん酸の形態は含有されるFeとA_{el}に左右されたとした服部らの報告から類推するのに、A汚泥中の無機態りん酸はFe型が多く、B汚泥はA_{el}型が多いことが予想された。従ってこれらの施用によりFe型やA_{el}型のりん酸は必然的に高まるものと考えられた。また、汚泥中

の有機態りん酸が無機化する過程で、土壌中に集積したCa、FeまたはA_{el}の存在によりりん酸がCa型やFe型またはA_{el}型に形態変化するものと思われる。

(3)りん酸吸収係数

りん酸吸収係数は、両汚泥とも施用量の多いほど増加する傾向が認められたが、その原因は、第6表の分別定量の結果からA汚泥はFe、B汚泥はA_{el}によるりん酸固定によるものと推察された。土壌pHの変動の比較的小さいB汚泥1 t区の跡地土壌における可溶性A_{el}と、それに対応して変化したりん酸吸収係数の関係を第2図に示した。その結果、可溶性A_{el}の増加に応じてりん酸吸収係数は高まり、その関係は1次式 $Y = 456 + 2200X$ ($r = 0.911$)で表わせた。

(4)その他の化学性

全窒素は、作土層では両汚泥とも増加が認められ、A汚泥で0.13～0.24%、B汚泥で0.12～0.23%であった。しかしながらこれに伴う次層への影響はほとんど認められなかった。

全炭素は、両汚泥とも作土層で増加が認められ、A汚泥で1.29～2.57%、B汚泥で1.67～3.52%であった。集積量を同一施用量(1 t)で比較すると、A汚泥<稲わら堆肥<B汚泥の順で高く、A

第6表 第18作跡地土壤（作土層）のりん酸の形態

試験区		全りん酸 (%)	無機態りん酸(%)			可給態 りん酸 (%)	りん酸 吸収係 数
			Ca型	Al型	Fe型		
対 照		0.289 (100)	0.017 (100)	0.032 (100)	0.031 (100)	0.037 (100)	580
A 汚 泥	0.5 t	0.391 (135)	0.020 (118)	0.038 (119)	0.045 (145)	0.044 (119)	630
	1 t	0.503 (174)	0.041 (241)	0.034 (106)	0.046 (148)	0.111 (300)	820
	2 t	0.938 (325)	0.069 (406)	0.039 (122)	0.065 (210)	0.138 (373)	1090
B 汚 泥	0.5 t	0.306 (106)	0.014 (82)	0.033 (103)	0.028 (90)	0.028 (76)	720
	1 t	0.313 (108)	0.009 (53)	0.046 (144)	0.025 (81)	0.018 (49)	910
	2 t	0.361 (125)	0.009 (53)	0.046 (144)	0.024 (77)	0.017 (46)	1270

注) 1. () は指数、2. 可給態りん酸はTruog-P₂O₅。

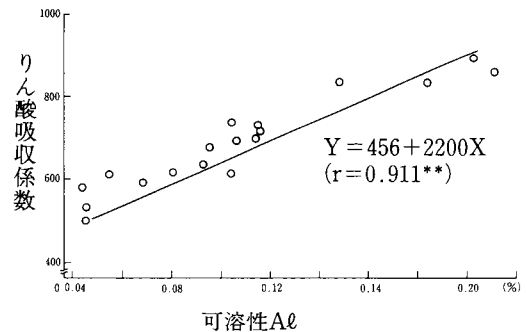
汚泥は稲わら堆肥に比べて土壤有機物の集積が小さく、土壤中で容易に分解することが伺えた。

陽イオン交換容量は、汚泥の種類で傾向が明瞭に異なった。A汚泥は、作土層で対照区に対し著しい増大が認められ、12.5～16.8meqになった。これに対し、B汚泥では2t区で12.2meqになったが、他の区は逆に対照区よりもわずかながら低下し、全炭素含量は高まるものの、陽イオン交換容量の増大にはならなかった。次層は、A汚泥の1t及び2t区、B汚泥の2t区で対照区よりも若干高かったが他の区では影響が認められなかった。

交換性Caは、作土層では、A汚泥で各区とも施用量に比例した増加が認められ、10～49meqまで高まった。これに対しB汚泥では、0.5t及び1t区が対照区よりも低く、2t区でも13meqと差はわずかであった。次層は、A汚泥の各区で作土層の集積量に比例した増加が認められたが、B汚泥の各区では対照区と同水準であった。交換性Mgは、Caと同様の傾向が認められたが、交換性Kは、連用による変化が小さかった。

2) 土壤の物理性の変化

第19作跡地土壤の物理性を第7表に示した。A汚泥は、2t区の作土層で固相率がわずかに低下したのに対して、B汚泥ではいずれの区も作土層で固相率の低下、液相率及び気相率の増大が認めら



第2図 可溶性Al とりん酸吸収係数との関係

れた。容積重はA汚泥の2t区とB汚泥の各区が作土層で減少した。透水係数はB汚泥の2t区が作土層で著しく増大した。

一般に下水汚泥はリグニン等の繊維分に乏しいため土壤の物理性改善効果は期待できないとされる。鉾質土壤において下水汚泥の多量連用を4年間続けた愛知農試の試験結果でも、物理性の明らかな変化はみられなかったとしている。また石灰系下水汚泥の連用が土壤の三相分布に影響を与えるまでには長期間を要するとした山口¹⁷⁾らの報告もあるが、A汚泥は、10年間と長期にわたる多量連用をしても物理性に与える影響は極めて小さかった。

3) 跡地土壤の微生物性

第7表 第19作跡地土壌の物理性 (pH1.5)

層位	試験区		三相分布(%)			容積重 (g/m ³)	透水係数 (cm/s)
			固相	液相	気相		
作土層	対照		53.9	33.8	12.4	134.2	5.1 ^{×10⁻⁴}
	A汚泥	0.5 t	52.5	34.7	12.9	129.9	
		1 t	52.2	37.5	10.4	130.5	
		2 t	47.7	40.6	11.7	118.1	4.3
	B汚泥	0.5 t	48.0	34.7	17.4	119.0	
		1 t	44.4	35.3	20.4	109.1	
		2 t	41.3	40.7	18.1	97.1	40
	対照		62.0	35.6	2.4	157.0	8.2
次層	A汚泥	0.5 t	60.2	34.4	5.4	153.0	
		1 t	61.0	34.9	4.1	152.9	
		2 t	57.7	32.6	9.7	150.2	2.5
	B汚泥	0.5 t	59.6	32.6	7.8	149.7	
		1 t	56.3	34.4	9.3	145.1	
		2 t	59.4	36.1	4.5	148.2	3.8
	対照		62.0	35.6	2.4	157.0	8.2
	対照		62.0	35.6	2.4	157.0	8.2

第19作跡地土壌の微生物性を第8表に示した。A汚泥の2t区では、全細菌数と放線菌数は対照区と同水準であったが、糸状菌、アンモニア酸化菌及び色素耐性菌は高水準となった。これに対し、B汚泥の2t区はいずれも対照区とほぼ同水準であった。

藤井らは、汚泥類連用土壌において、5年間に渡り微生物数の調査を行った結果をもとに、土壌微生物数は、汚泥の連用初期に増大し、特に細菌において著しいが、長期の連用を続けると無施用と同水準になると予測した。これに対し、本結果では、A汚泥でアンモニア酸化菌や色素耐性菌及び糸状菌が10年連用後も依然として高水準であった。しかしながら、本調査結果において、対照区と土壌反応が著しく異なった汚泥施用区を直接比較することはやや難があると考えられるため、微生物性についてはさらに慎重な検討が必要であろう。

3. 重金属等の土壌への集積

1) 土壌中Cd、Cu、Zn濃度の推移

Cd：土壌中のCd濃度の推移を第3図に示した。作土層の全量Cdは両汚泥の各区とも8作までは前報でも報告したように急速に上昇した。それ以後2t区は上昇・下降を繰り返しながら全体では上昇傾向を示したが、0.5t及び1t区は横ばいで推移し

た。第19作跡地土壌では、A汚泥の2t区が0.57ppm増加したのに対し、B汚泥の2t区は0.47ppmとやや低かった。次層の全量Cdは、両汚泥の各区ともばらつきが大きかったが、ほぼ一致した動きを示した。B汚泥の0.5t区は10作以降他の区よりも若干高い濃度で推移した。作土層の0.1MHC抽出(以下可溶性)Cdは、16作までは作土中全量Cdとほぼ類似した推移傾向を示したが、18作以降は低下あるいは横ばいで推移した。

Cu：土壌中のCu濃度の推移を第4図に示した。作土層の全量Cu濃度は、両汚泥の2t区が、12作まで直線的な上昇傾向を示した。0.5t及び1t区も12作までは上昇傾向を示したが、それ以後横ばいで推移した。10年間の連用でA汚泥、B汚泥とも2t区で20ppm程度増加した。次層の全量Cu濃度は、両汚泥の各区ともばらつきが大きく明瞭な傾向は認められず、第19作跡地では、両汚泥のいずれの区とも対照区との差は小さかった。作土層の可溶性Cuは、A汚泥の0.5t及び1t区とB汚泥の各区で8作目まで全量Cuに対応した上昇傾向を示したが、それ以後は上昇・下降を繰り返しながら横ばいあるいは低下傾向を示した。A汚泥の2t区は、4作目まで急速に上昇したが、6作目で低下し10作以後対照区よりも低く推移した。

Zn：土壌中のZnの推移を第5図に示した。作土

第8表 第19作跡地土壌の微生物フロア

(数/g乾土)

試験区	細菌	放線菌	糸状菌	アンモニア酸化菌	亜硝酸酸化菌	色素耐性菌
	$\times 10^7$	$\times 10^7$	$\times 10^4$	$\times 10^4$	$\times 10^4$	$\times 10^6$
対照	7.4	1.3	8.8	1.7	10	2.7
A汚泥2t区	8.4	4.2	64	40	20	20
B汚泥2t区	8.3	3.2	33	2.9	6.5	4.8

層の全量Zn濃度は、A汚泥の各区ともいずれも上昇しながら推移したが、上昇率は経年的に緩やかになり、2t区は18作以降で、0.5t及び、1t区は14作以降で頭打ちの状況を呈した。10年間の連用により、2t区では230ppm程度増加し、1t区でも130ppm程度の増加が認められた。B汚泥区では、A汚泥ほどではないが作土層への集積が認められ、2t区では10年間の連用で70ppm程度増加した。

次層においては、両汚泥のいずれの区も10年間の施用により20~40ppm程度増加した。このうち、対照区との処理間差が判然としているのはA汚泥の1t及び2t区のみで、6作以降終始対照区を上回って推移したが、その他の区は対照区と同水準で推移した。

作土層の可溶性Znは、A汚泥の2t区が4作目まで急速に上昇し、その後緩やかな上昇を示した後16作以降急激に低下した。0.5t及び1t区は18作目まで上昇傾向で推移した。B汚泥の各区は、8作目まで緩やかに上昇した後、横ばいで推移した。

作土中重金属濃度の増加量と土壌への累積負荷量との関係の回帰式を第9表に示した。全量Cdは、分析精度等の問題で土壌中濃度のばらつきが大きく、相関の高い回帰式は導けなかった。全量Cuは、両汚泥のいずれの区も $Y=a+bX$ の一次関数で表せ、回帰式の相関係数は、施用量の多い区ほど高い傾向があった。

全量Znは、B汚泥の0.5t及び1t区が一次関数の当てはまりが良好であった。これに対し、集積量の多いA汚泥の各区とB汚泥の2t区は、連用前期では相関の高い一次関数で表せたが、連用後期では土壌中濃度の上昇率が緩慢となるため一次関数よりもむしろ $Y=aX^b$ のべき関数の当てはまりが良好であった。この結果は、汚泥コンポストの施用で、土壌中のZn濃度が一定限度を越えると、作

土層から次層へと移行し、作土層のZn濃度が頭打ちになるとしたH向の報告と一致した。Znの挙動を規制する要因の一つに、H向は土壌の最大重金属吸着量を挙げている。すなわち、重金属濃度が最大重金属吸着量を越えた場合には、保持されないイオンが下層へ移行するとしている。

作土層の可溶性重金属濃度は、上述したように土壌pHの高まった区でいずれの重金属も低下し、低下順位はCuが最も速く、次いでZn、Cdの順であった。これは土壌中に多量の石灰が含まれると、抽出時の平衡pHが上昇し、抽出率が低下するためと考えられた。第6図に、酸性化した土壌に石灰を添加し、抽出液の平衡pHを段階的に変えたときの平衡pHと抽出率との関係を示した。この結果、石灰の添加により抽出時のpHが上昇し、それに伴って抽出率の低下が認められ、低下順位は、Cu、Zn、Cdの順に速く、連用試験での低下順位と一致した。

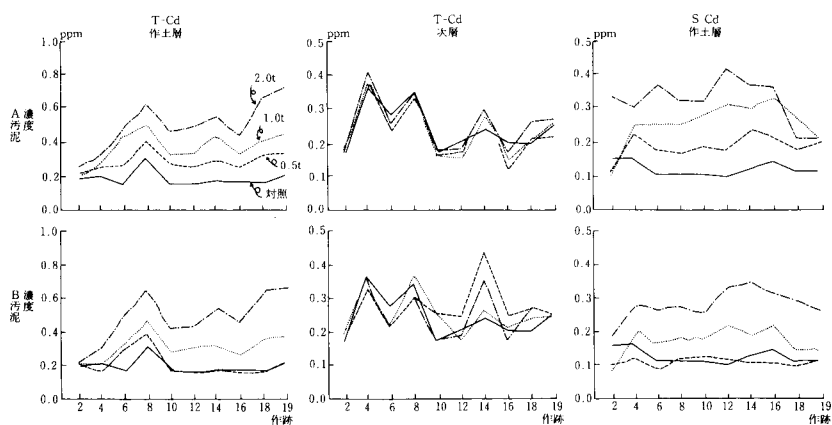
2) 土壌中のAs、Pb及びHg濃度の変化

第19作跡地土壌中の全量As、Pb及びHg濃度を第7図に示した。

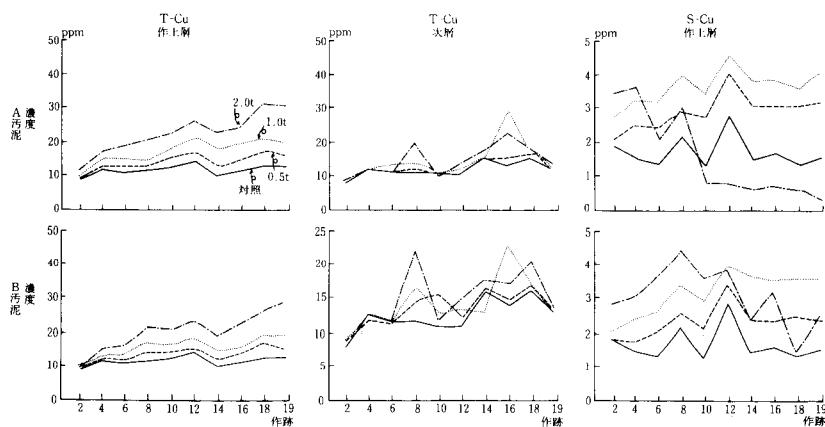
全量As濃度は、供試前土壌が作土層で8.4、次層で9.4ppmであった。10年間の連用で両汚泥の各区とも集積が認められたが、増加量は作土層で1.7~2.8ppm、次層で0.2~1.8ppmと自然賦存量に対する増加率はわずかであった。

全量Pb濃度は、供試前土壌が作土層で19.1、次層で19.3ppmであった。10年間の連用で両汚泥の各区とも集積が認められ、A汚泥区は作土層に12~16ppm、次層に3~7ppm、またB汚泥区は作土層に9~13ppm、次層へ3~5ppm増加した。

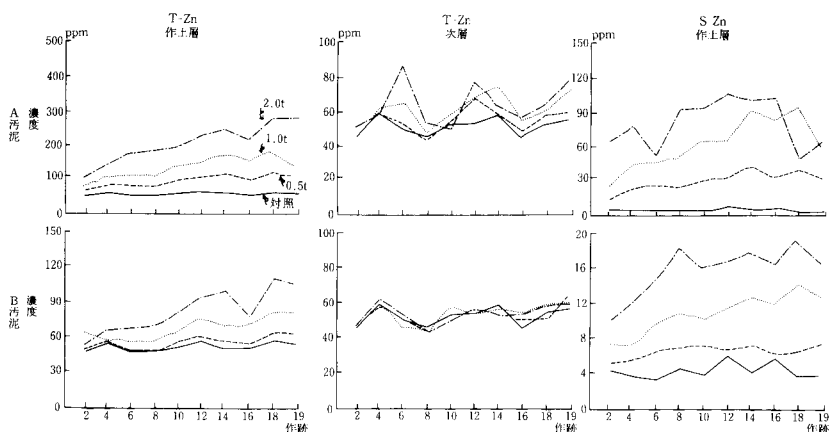
全量Hg濃度は、供試前土壌が作土層、次層とも0.09ppmであった。作土層への集積は、A汚泥区で著しく、2t区で0.33ppmと初期濃度の3倍程度



第3図 土壤中Cd濃度の推移
(T:全量, S:0.1MHCℓ可溶)



第4図 土壤中Cu濃度の推移



第5図 土壤中Zn濃度の推移

第9表 重金属の負荷量と濃度推移の関係

試験区	T-Cd			T-Cu		T-Zn	
	回帰式	r		回帰式	r	回帰式	r
A	0.5 t	—	—	Y=1.71+0.006X	0.585	Y=22.9X ^{0.40}	0.787**
汚	1 t	—	—	Y=2.36+0.005X	0.729*	Y=21.8X ^{0.52}	0.873**
泥	2 t	Y=0.14+0.005X	0.601	Y=3.41+0.005X	0.873**	Y=27.9X ^{0.53}	0.952**
B	0.5 t	—	—	Y=1.10+0.006X	0.600	Y=12.0+3.3X	0.497
汚	1 t	—	—	Y=1.42+0.004X	0.824**	Y=16.2+3.5X	0.711*
泥	2 t	Y=0.13+0.004X	0.506	Y=1.72+0.004X	0.830**	Y=13.5X ^{0.59}	0.855**

注) 1. n=10、2. Y=作土中重金属濃度 (ppm) の増分 X=重金属の累積負荷量 (g/10 a、Znはkg/10 a)。

まで達し、自然賦存量に対する増加割合はZnやCdと同程度に高かった。

3) 土壤中Cu、Znの形態

重金属の作物への可給性と重金属の形態は関連性が深いと考えられる。しかしながら、汚泥を土壤に施用した場合の重金属の形態変化並びに土壤中の可溶性重金属濃度との関係については不明な点が多く知見も少ない。汚泥を施用した土壤の重金属の形態を明らかにすることは、土壤中重金属の挙動や農作物への影響を調査する上できわめて重要であると考えられる。そこで土壤中のCu及びZnの形態分別を第2作跡地土壤及び第19作跡地土壤で行い、結果を第10、11表に示した。試料は風乾土を、第2作跡地土壤は採集後風乾し10年間保存したものを供した。

Cu: 対照区は、第2作跡地に対し第19作跡地では、土壤溶液及び交換態 (以下CA態)、有機物結合態 (以下PYR態) は差が認められなかったが、無機物結合態 (以下AAC態) は明らかに増加し、遊離酸化物結合態 (以下OX態) もわずかであるが増加した。

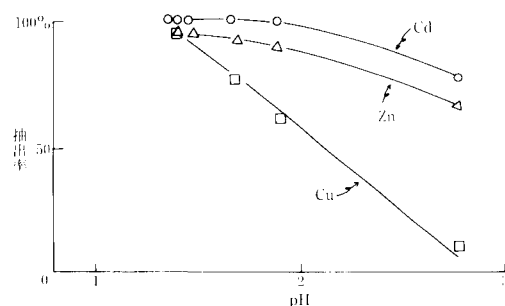
稲わら堆肥区は、次層でAAC態が明らかに増加した以外は同程度かあるいは減少した。

A汚泥区は、作土層でいずれの形態も全量の増加に応じた増加傾向が認められた。OX態は、全量に対する割合が若干減少した。次層では、CA態、AAC態が明らかに増加したが、PYR態、OX態に明瞭な差は認められなかった。

B汚泥は、各区とも作土層で全量の増加に応じていずれの形態も増加したが、CA態は土壤pHの影響が認められ0.5t区の増加率が著しかった。全量に対する割合は、PYR態、OX態でやや低下したもの

の、AAC態は明らかに増加した。次層では、CA態、AAC態の増加が顕著であり、PYR態は0.5t区のみ増加が認められた。

Cuの形態順位はいずれの区もOX態>PYR態>AAC態>CA態の順となった。



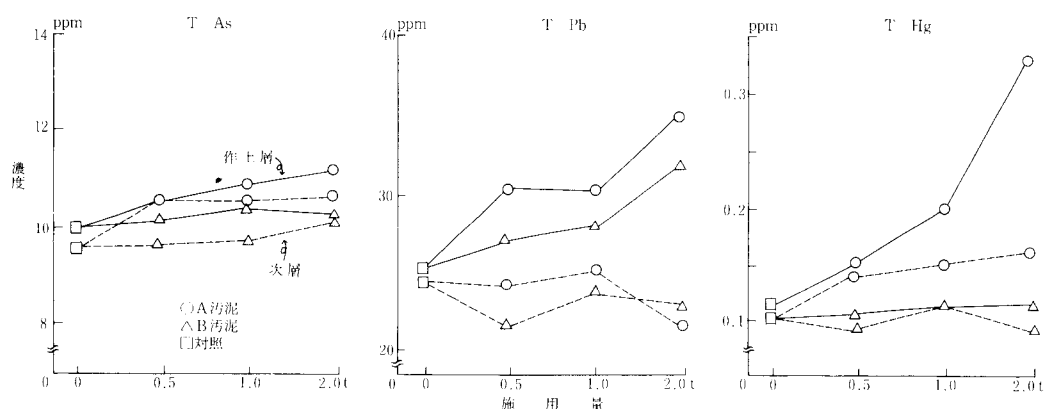
第6図 0.1M HCl 抽出液の平衡pHと抽出率の関係 (石灰無添加の抽出率を100%とする)

Zn: 対照区は、第2作跡地に対し第19作跡地では、作土層、次層ともAAC態、OX態がやや増加したが、PYR態、CA態がわずかに低下した。

稲わら堆肥区は、いずれの形態も作土層で増加したのに対し、次層では減少し全量とは逆の傾向を示した。

A汚泥区は、作土層でいずれの形態も全量の増加量に対応した増加傾向を示したが、ことにPYR態の増加率が最も高く、AAC態がこれに次いだ。次層では、AAC態、PYR態、OX態は増加したが、CA態は減少した。

B汚泥は、作土層ではCA態が1t及び2t区で減少したのに対し、その他の形態は全量の増加に対応した増加傾向を示した。次層では、AAC態、PYR



第7図 第19作跡地土壤の全量As, Pb及びHg濃度

第10表 跡地土壤中重金属の形態 (Cu)

(乾土当ppm)

層位	試験区	T		CA		AAC		PYR		OX	
		2作跡	19作跡	2作跡	19作跡	2作跡	19作跡	2作跡	19作跡	2作跡	19作跡
作 土 層	対 照	8.9	13.2	0.03 (0.34)	0.02 (0.15)	0.30 (3.4)	0.45 (3.4)	2.23 (25.1)	1.93 (14.6)	3.79 (42.6)	3.98 (44.7)
	A汚泥 0.5 t	9.3	16.2	0.03 (0.32)	0.05 (0.31)	0.33 (3.5)	0.89 (5.5)	2.81 (30.2)	4.47 (27.6)	5.27 (56.7)	6.18 (38.1)
	A汚泥 1 t	10.0	19.7	0.04 (0.40)	0.06 (0.30)	0.37 (3.7)	0.93 (4.7)	3.30 (33.0)	5.94 (30.2)	4.81 (48.1)	6.40 (32.5)
	A汚泥 2 t	11.5	30.5	0.09 (0.78)	0.11 (0.36)	0.55 (4.8)	1.41 (4.6)	5.12 (44.5)	11.03 (36.2)	6.27 (5.45)	12.28 (40.3)
	B汚泥 0.5 t	9.2	15.7	0.02 (0.22)	0.11 (0.70)	0.32 (3.5)	1.21 (7.7)	2.50 (27.2)	3.66 (23.3)	3.90 (42.4)	6.16 (39.2)
	B汚泥 1 t	10.2	19.4	0.02 (0.20)	0.04 (0.21)	0.46 (4.5)	1.98 (10.2)	3.46 (33.9)	5.01 (25.8)	4.46 (43.7)	7.49 (38.6)
	B汚泥 2 t	9.1	28.6	0.02 (0.33)	0.03 (0.10)	0.54 (5.9)	2.29 (8.0)	4.09 (44.9)	6.55 (22.9)	4.62 (50.8)	8.91 (31.2)
	稲わら堆肥	8.8	16.6	0.03 (0.34)	0.04 (0.24)	0.25 (2.8)	0.20 (1.2)	2.45 (27.8)	1.96 (11.8)	4.20 (47.7)	4.39 (26.4)
	対 照	8.1	12.7	0.01	0.02	0.29	0.92	2.31	2.32	3.83	4.34
	A汚泥 0.5 t	8.4	12.6	0.01	0.03	0.29	0.73	2.72	2.20	6.08	5.90
次 層	A汚泥 1 t	8.7	13.7	0.02	0.04	0.35	0.67	2.41	3.00	3.55	5.51
	A汚泥 2 t	9.4	14.0	0.02	0.04	0.32	0.75	2.81	2.81	4.97	5.16
	B汚泥 0.5 t	8.6	13.1	0.02	0.07	0.30	0.86	2.37	3.31	3.96	3.91
	B汚泥 1 t	9.1	12.8	0.01	0.03	0.30	0.68	2.24	2.25	4.44	5.18
	B汚泥 2 t	8.8	12.9	0.02	0.02	0.34	0.79	2.57	2.26	3.65	4.41
	稲わら堆肥	8.6	15.2	0.02	0.02	0.30	0.48	2.26	1.53	3.67	3.65

注) () は、Tに対する割合。T：全量 CA：土壤溶液及び交換態、AAC：無機物結合態、PYR：有機物結合態、OX：遊離酸化物結合態。

第11表 跡地土壤中重金属の形態 (Zn)

(乾土当ppm)

層位	試験区	T		CA		AAC		PYR		OX		
		2 作跡	19作跡	2 作跡	19作跡	2 作跡	19作跡	2 作跡	19作跡	2 作跡	19作跡	
作土層	対 照	48.6	55.3	1.34 (2.8)	0.28 (0.5)	2.3 (4.7)	2.9 (5.2)	6.3 (13.0)	5.6 (10.1)	15.8 (32.5)	18.5 (33.5)	
	A汚泥	0.5 t	63.2	99.6	0.90 (1.4)	2.64 (2.7)	6.9 (10.9)	21.8 (21.9)	12.8 (20.3)	35.6 (35.7)	17.2 (27.2)	28.3 (28.4)
		1 t	73.3	131.2	0.25 (0.3)	0.27 (0.2)	12.8 (17.5)	41.1 (31.3)	20.8 (28.4)	57.8 (44.1)	20.6 (28.1)	37.5 (28.6)
		2 t	102.8	272.5	0.19 (0.2)	0.22 (0.1)	37.9 (36.9)	98.7 (36.2)	50.8 (49.4)	129.4 (47.5)	24.5 (23.8)	52.8 (19.4)
	B汚泥	0.5 t	51.8	63.4	1.30 (2.5)	3.43 (5.4)	2.2 (4.2)	3.7 (5.8)	6.7 (12.9)	9.7 (15.3)	15.0 (29.0)	19.6 (30.9)
		1 t	65.2	81.6	1.21 (1.9)	0.67 (0.8)	3.7 (5.6)	10.9 (13.4)	8.3 (12.7)	17.9 (21.9)	15.2 (23.3)	26.1 (32.0)
		2 t	55.4	106.4	0.41 (0.7)	0.20 (0.2)	5.7 (10.3)	13.6 (12.8)	8.4 (15.2)	23.8 (22.4)	19.9 (35.9)	32.3 (30.4)
	稲わら堆肥	52.5	47.0	1.18 (2.2)	2.32 (4.9)	1.8 (3.4)	2.7 (5.7)	6.2 (11.8)	8.1 (17.2)	14.8 (28.2)	16.5 (35.1)	
次層	対 照	45.0	55.8	0.33	0.25	2.0	2.9	4.8	4.6	15.7	17.6	
	A汚泥	0.5 t	45.0	59.1	0.46	0.34	2.5	5.9	5.4	8.3	18.1	19.7
		1 t	44.0	72.1	0.58	0.24	2.7	9.2	6.5	11.7	16.1	21.6
		2 t	50.0	78.5	0.28	0.20	6.8	19.1	9.4	25.4	15.7	26.1
	B汚泥	0.5 t	47.0	65.7	0.57	0.30	2.6	3.1	5.2	9.2	16.5	17.5
		1 t	48.5	59.8	0.48	0.67	2.2	3.0	5.3	6.5	15.8	18.3
		2 t	46.5	58.8	0.32	0.23	2.2	3.3	5.8	6.4	18.0	19.3
稲わら堆肥	47.8	53.6	0.44	0.41	2.7	2.4	5.2	4.4	17.3	16.0		

注) () は、Tに対する割合。T：全量 CA：土壤溶液及び交換態、AAC：無機物結合態、PYR：有機物結合態、OX：遊離酸化物結合態。

態、OX態が増加した。また0.5t区で、PYR態の増加率が、他の区の増加率より高いのが特徴的であった。

Znの形態順位は、対照区、稲わら堆肥区及びB汚泥区が、OX態>PYR態>AAC態>CA態であった。これに対し、A汚泥区は第2作跡地で、PYR態≒OX態≒AAC態>CA態であったが、第19作跡地では、PYR態>AAC態>OX態>CA態と形態間の差が明瞭になった。

以上のように、汚泥の連用によりCu、Znの各種形態濃度は、汚泥の種類や層位間、さらに土壤反応等により異なった変動傾向を示した。汚泥中の重金属の形態については未検討であるが、鎌田ら⁹⁾は、下水汚泥中の重金属の形態分別をStoverらの

提唱した連続抽出法により行い、下水汚泥中の重金属の存在形態は、Znが有機結合態及び炭酸塩、Cuが炭酸塩、有機結合態及び交換態が支配的である場合が多いことを報告した。A汚泥でZnのPYR態の増加率が著しく大きかったことは、鎌田らの報告から推定して、汚泥連用土壤中の重金属の形態には、汚泥中重金属の形態特性が直接反映するものと考えられた。また、土壤pHの低いほどCA態の増加率が大きかったことは、CA態、AAC態及びPYR態の間には平衡関係が成り立ち、土壤pHが酸性に傾くとCA態が増加するとしたMclaren¹¹⁾らの結果と一致した。

土壤pHの低下したB汚泥の0.5t区では次層への溶脱により次層の全量が増加し、形態別では、PYR

態に著しい増加が認められた。これは、土壌の酸性化によって土壌溶液（水溶性または水溶性キレート態）の画分が増加し、それが溶脱して次層に移行した後、PYR態に形態変化し安定化したものと推察された。

4. 作物生育、収量

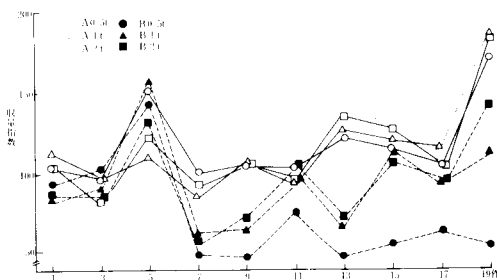
1) ソルガムの収量

第8図に夏作ソルガムの収量指数の経年推移を示した。第9作までの生育、収量状況は前報で報告した。A汚泥はいずれの区も9作までの平均収量が、対照区よりも高く、施用量の少ない区程高収量であったが、B汚泥はいずれの区も対照区よりも低収となる場合が多く、この低収の原因を土壌pHの低下並びにそれにより活性化されたAlによる生育阻害とした。

第12表 作物収量の平均値とその有意性
(乾物 kg/10 a)

試験区	ソルガム	キャベツ	
		全重	結球重
対 照		1579 ^a	1108 ^a
A 汚泥	0.5 t	1722 ^b	1169 ^a
	1 t	1782 ^b	1241 ^b
	2 t	1760 ^b	1211 ^c
B 汚泥	0.5 t	921 ^c	917 ^d
	1 t	1387 ^a	1092 ^a
	2 t	1438 ^a	1099 ^a
稲わら堆肥		1847 ^b	1216 ^b

注) 1. 両作物とも1984～1988年度の5作について平均値を比較した。2. ソルガムは1番草、2番草合計収量。3. 平均値間の有意性は5%水準で検定した。(上付きアルファベットが異なる場合は有意であることを示す。)



第8図 ソルガム収量の推移

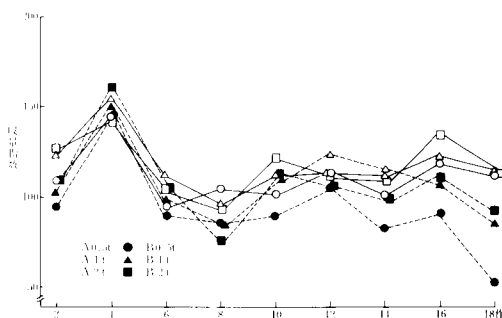
11作以降も、A汚泥の各区は対照区よりも高く推移した。これに対しB汚泥は、1t及び2t区が13作を除いて対照区と同等かそれ以上であった。0.5t区は、11作以降も低収で収量指数50～80で推移した。

第9作～第17作の5作における収量の平均値間の差を危険率5%水準で検定し、その結果を第12表に示した。A汚泥は、いずれの区も対照区に対し有意に高収となったが、施用量間に有意な差は認められなかった。B汚泥では、0.5t区が対照区に対し有意に低収であったが、1t及び2t区は対照区と有意な差は認められなかった。また稲わら堆肥区と比較すると、A汚泥はいずれの区も有意な差はなく、ほぼ同程度であったが、B汚泥の各区は明らかに劣った。

2) キャベツの収量

第9図にキャベツの収量指数の経年推移を示した。

10作までの平均収量は、A汚泥のいずれの区も対照区よりも高く、収量指数は0.5t区が116、1t区が126、2t区が129と施用量の多い区高収量となっ



第9図 キャベツ(結球重)収量の推移

た。B汚泥区は、0.5t区が99と収量差が認められなかったのに対し、1t及び2t区が107とやや高収であった。

12作以降では、A汚泥はいずれの区とも対照区に対し安定的に高収量で推移した。これに対しB汚泥は0.5t区が低収量で推移し、他の区も作付回数が多くなる程低下する傾向が認められた。

10作～18作までの5作における収量の平均値の有意性は、第11表にみられるように、結球重ではA汚泥の各区及びB汚泥の1t区、2t区で対照区に対し有意に高収量となった。これに対し、B汚泥の0.5t区は有意に低収であった。施用量間では、A汚泥の0.5t区と1t区の間有意差はなく、2t区は

有意に高収であった。全体重は、結球重とほぼ類似した傾向を示した。

以上のように、汚泥類を化学肥料に上乘せ施用して作物を栽培した結果、B汚泥の施用では化学肥料単用区に対する増収効果は認められなかったが、A汚泥の施用ではソルガム、キャベツの両作物に稲わら堆肥と同程度の明らかな増収効果が認められた。下水汚泥中の窒素の肥料的効果は極めて大きいことは知られている。しかしながら、その一方で下水汚泥の増収効果に対する評価は様々であり、作物別の効果の差が大きいとした報告もある。また、下水汚泥の増収効果を制限する要因としては、土壌のアルカリ化や窒素、りん酸の過剰害等が考えられ、今後、土壌pHや窒素等に対し感受性を異にする作物への施用データの蓄積が必要であろう。

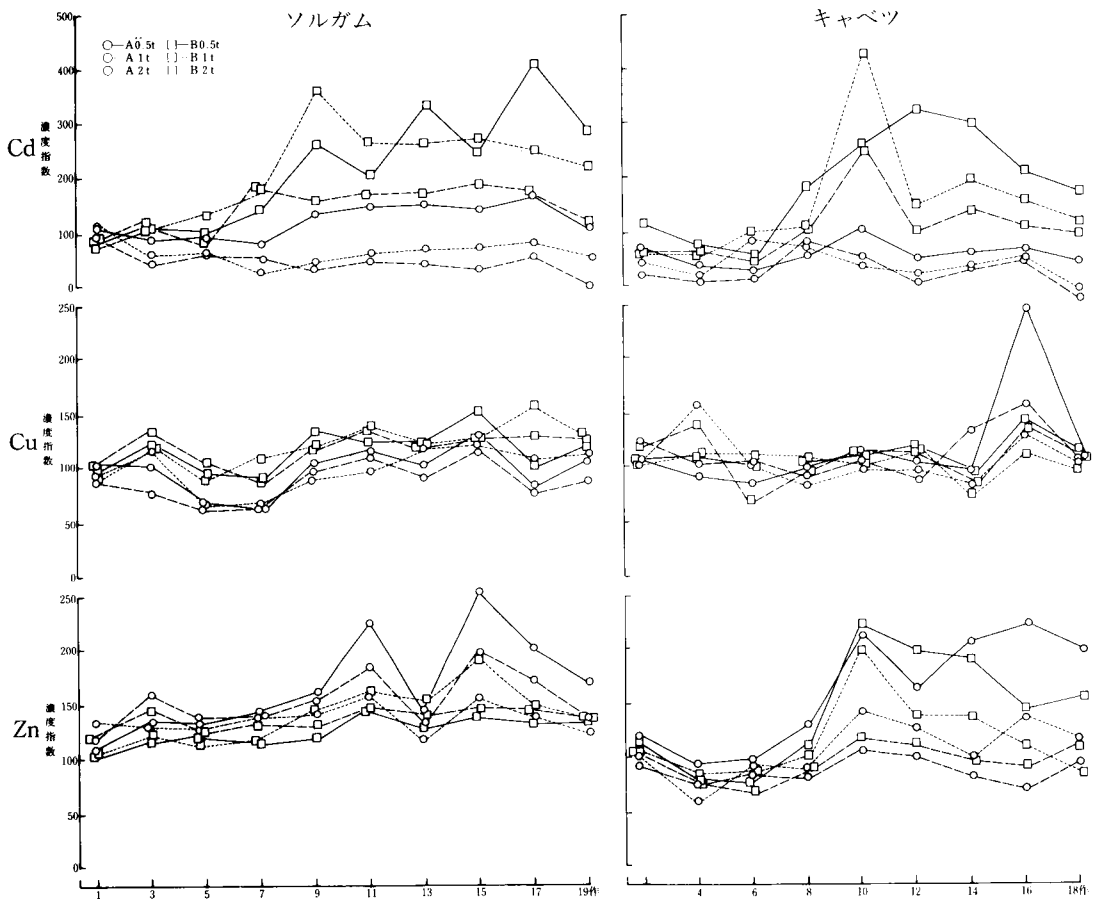
5. 作物の重金属濃度

作物体の重金属濃度を対照区に対する濃度指数

として、その推移を第10図に示した。

Cd：ソルガムでは、A汚泥の1t及び2t区は、3作以降より指数30～90の範囲で推移した。A汚泥の0.5t区及びB汚泥の2t区は、9作以降指数150～190の範囲で推移した。B汚泥の0.5t区は、上昇・下降を繰り返しながらも全体ではわずかに上昇する傾向を示した。B汚泥の1t区は、初年より徐々に上昇するが、9作目をピークにその後は漸次低下した。

キャベツでは、A汚泥がいずれの区とも指数100を下回ってほぼ横ばいで推移した。B汚泥の0.5t区は、初年度から低下した後8作以降急速に上昇し、12作目をピークにその後低下傾向を示した。1t及び2t区は10作目で急速に上昇したが、12作以降は漸次低下傾向で推移した。以上のように、Cd濃度の推移は、ソルガムとキャベツでほぼ類似した傾向を示した。B汚泥の各区が、8作目から12作目にかけて上昇した後急速に低下したのは、この時期に土壌pHの矯正を行った対照区で土壌pHが高ま



第10図 作物中重金属濃度の経年推移

第13表 作物体の重金属濃度の平均値とその有意性

(ppm/乾物)

試験区		ソルガム			キャベツ全体			キャベツ結球		
		Cd	Cu	Zn	Cd	Cu	Zn	Cd	Cu	Zn
対 照		0.18 ^a	6.83 ^a	20.5 ^a	0.12 ^a	2.99 ^a	27.1 ^a	0.06 ^a	3.48 ^a	27.8 ^a
A	0.5 t	0.25 ^a	7.21 ^b	41.2 ^b	0.08 ^a	4.04 ^b	54.5 ^b	0.03 ^a	5.78 ^b	52.4 ^b
汚	1 t	0.12 ^c	7.48 ^b	27.3 ^c	0.04 ^b	3.01 ^a	30.8 ^c	0.02 ^b	3.86 ^a	34.1 ^a
泥	2 t	0.07 ^c	6.70 ^a	32.9 ^d	0.04 ^b	3.82 ^a	23.4 ^a	0.02 ^b	3.50 ^a	25.6 ^a
B	0.5 t	0.52 ^d	7.96 ^b	27.8 ^c	0.31 ^c	3.31 ^a	46.1 ^d	0.09 ^c	3.39 ^a	44.4 ^c
汚	1 t	0.47 ^d	9.13 ^d	32.0 ^e	0.19 ^d	2.84 ^a	32.1 ^c	0.08 ^d	3.40 ^a	32.2 ^a
泥	2 t	0.29 ^e	8.76 ^d	27.6 ^c	0.14 ^e	3.25 ^a	26.8 ^a	0.06 ^a	4.18 ^a	28.2 ^a
稲わら堆肥		0.28 ^e	5.43 ^a	23.6 ^a	0.15 ^e	3.35 ^a	39.9 ^e	0.06 ^a	3.22 ^a	38.8 ^d

注) 1. ソルガムは1984～1988年度の5作、キャベツは1984～1987年度の4作の平均値で示した。2. 平均値間の有意差は5%水準で検定した。

り、Cd濃度が低下したことも一因であると考えられた。

Cu：ソルガムでは、いずれの区も年次変動が大きく明瞭な傾向は認められなかった。キャベツでは、いずれの区とも区間差、年次変動が小さく対照区とはほぼ同水準で推移した。このことはCuの吸収特性が作物の種類間で異なること、またCuの吸収は、CdやZnと比較して土壌中重金属濃度や土壌pHの影響を受けにくいことを示している。

Zn：ソルガムでは、両汚泥のいずれの区も13作目で低下したが、これを除けば初年度から15作目までは概ね上昇傾向が認められた。処理間では、A汚泥の0.5t区が最も高い濃度で推移し、A汚泥の2t区がこれに次いだ。B汚泥では、1t区が他の区よりも高濃度で推移した。

キャベツでは、両汚泥のいずれの区も4作目から10作目にかけて上昇し、それ以後はA汚泥の0.5t区を除き低下傾向を示し、土壌pH上昇による吸収抑制効果が顕著であった。

土壌pHの変動幅の比較的小さい第11作～19作(ソルガム5作、キャベツ4作)における作物体の重金属濃度の平均値間の差の有意性を危険率5%水準で検定し、その結果を第13表に示した。

ソルガムについてみると、Cdは、A汚泥の0.5t区とB汚泥の各区が、対照区に対し有意に高かったが、A汚泥の1t及び2t区で有意に低く、また施用量の多い区ほど低濃度となった。Cuは、A汚泥では1t区のみが有意に高く、B汚泥ではいずれの

区にも有意差が認められたが、平均値間の差はわずかであった。Znは、両汚泥のいずれの区とも有意に高く、なかでもA汚泥の0.5t区で顕著であった。

次にキャベツについてみると、Cdは、A汚泥の各区が有意に低かったのに対し、B汚泥の各区は有意に高かった。またソルガムと同様に施用量の多い区ほど低濃度となった。Cuは、いずれの区も有意差は認められなかった。Znは、両汚泥の0.5t、1t区が有意に高かったのに対し、2t区に有意差は認められなかった。また施用量の多い区ほど低濃度となるのはCdと同様であった。

以上のように、作物体のCdは、作物や汚泥の種類の違いによる吸収特性の差は認められず、また施用量の多いほど濃度が低下したことから土壌pHの影響が顕著であった。これに対してZnでは、ソルガムとキャベツで吸収傾向が異なり、キャベツではCdと同様に土壌pHが支配的であったが、ソルガムでは、A汚泥の2t区が1t区よりも有意に高いこと、さらにB汚泥では、施用量間の差が小さいこと等から、土壌pHの影響とともに、土壌中に高濃度に集積したZn濃度の影響が強く表われた。

作物体の重金属濃度と土壌中重金属濃度は、多くの重金属で正の相関があることは知られている。また土壌pHの上昇は重金属吸収に抑制的に動くことも明らかにされている¹⁵⁾。土壌pHが比較的作物の生育好適pHを維持した両汚泥の1t区の作物体の重金属濃度と作土層中重金属濃度及び土壌pHとの

相関を第14表に示した。その結果、作物体の重金属濃度は、いずれの要因とも有意な関係は認められなかった。このうち0.1MHCℓ可溶性重金属は、Cd、Cu、Zn等の作物への可給性を評価するのに最も有効とされているが、本試験のように土壌pHが上昇した場合には前述したように重金属の抽出率が低下するため適当ではない。山田らは、下水汚泥連用土壌における作物の重金属吸収について、土壌中の重金属の全量や可給態量は容量因子的なものであり、強度因子は土壌溶液中濃度と考え、土壌pH測定液に溶出した重金属濃度を測定し、Znで有意な関係を得ている。また最近では、下水汚泥施用下において作物体の重金属濃度と相関の高い抽出法として、4 MHNO₃による方法がChang²⁾らによって提案されており、今後、高pH土壌における全量重金属濃度や作物体の濃度と相関の高い

抽出法の検討が必要と思われる。

6. 重金属の収支

重金属の負荷量と回収量との関係を第15表に示した。作物による吸収量と作土層及び次層への集積量の合量を回収量とし、汚泥からの負荷量に対する回収量の割合を回収率とした。作物による吸収量は、汚泥からの負荷量に対し、いずれの重金属も極めて少なくCdで4%以下、Cuで2%以下、Znで3%以下であった。

土壌への集積量は、Cdが、A汚泥で作土層に100~130%、次層へも20~40%が集積し、回収率が116~160%といずれの区も負荷量以上のものが回収された。B汚泥では、0.5t区で次層への集積量が極めて多く回収率は140%と高かったが、1t及び2t区内では、回収率はほぼ100%に近く、分配割合

第14表 作物体の重金属濃度と土壌中の重金属濃度、土壌pHとの関係

作物	試験区	全量			可溶性			土壌pH		
		Cd	Cu	Zn	Cd	Cu	Zn	Cd	Cu	Zn
ソルガム	A汚泥1t	-0.368	NO	-0.389	-0.600	NO	-0.278	-0.287	NO	NO
	n=10 B汚泥1t	0.230	NO	-0.376	NO	NO	NO	NO	NO	-0.297
キャベツ	A汚泥1t	NO	NO	NO	NO	NO	NO	NO	NO	NO
	n=10 B汚泥1t	NO	NO	-0.330	NO	NO	NO	NO	NO	-0.519

注) 1. 数字は相関係数、2. NOは無相関、3. 可溶性0.1MHCℓ可溶

第15表 重金属の負荷量と回収状況

(g/10a)

試験区		Cd					Cu					Zn				
		汚泥からの負荷量	作物による吸収量	作土層の増減分	次層の増減分	回収量(回収率)	汚泥からの負荷量	作物による吸収量	作土層の増減分	次層の増減分	回収量(回収率)	汚泥からの負荷量	作物による吸収量	作土層の増減分	次層の増減分	回収量(回収率)
A 汚 泥	0.5t	19.8	0.5 (2.5)	25.5 (129)	7.5 (37.9)	33.5 (169)	940	20 (2.1)	1200 (128)	1095 (116)	2315 (246)	12215	177 (1.4)	10680 (87.4)	2985 (24.4)	13842 (113)
	1t	39.5	0.3 (0.7)	39.0 (98.7)	7.5 (19.0)	46.8 (118)	1876	27 (1.4)	1740 (92.8)	1125 (60.0)	2892 (154)	24419	106 (0.4)	19845 (81.3)	3345 (13.7)	23296 (95.4)
	2t	79.1	0.2 (0.3)	76.5 (96.7)	15.0 (19.0)	91.7 (116)	3755	22 (0.6)	3285 (87.5)	1245 (33.2)	4552 (121)	48880	90 (0.2)	35310 (72.2)	3990 (8.2)	39390 (80.6)
B 汚 泥	0.5t	22.0	0.9 (4.1)	12.5 (56.8)	16.5 (75.0)	29.9 (136)	937	14 (1.5)	1185 (126)	1020 (109)	2219 (237)	3422	94 (2.7)	3945 (115)	1680 (49.1)	5719 (167)
	1t	44.0	0.7 (1.6)	30.0 (68.2)	10.5 (23.9)	41.2 (93.6)	1874	31 (1.7)	1500 (80.0)	1035 (55.2)	2566 (137)	6846	94 (1.4)	6585 (96.2)	3075 (44.9)	9754 (142)
	2t	88.0	0.6 (0.6)	72.0 (81.8)	16.5 (18.8)	89.0 (101)	3747	28 (0.7)	2490 (66.5)	1605 (42.8)	4123 (110)	13689	86 (0.6)	10965 (80.1)	2880 (21.0)	13931 (102)

注) () は、汚泥からの負荷量に対する割合。

は作土層中に70～80%、次層中に20%程度であった。Cuは、両汚泥とも、回収率は施用量が少ない区ほど高くなる傾向を示し、0.5t区ではいずれも240%程度と負荷量の倍以上のものが回収された。Znは、A汚泥の2t区が80%と極めて低い回収率となった。回収率がほぼ100%に近いA汚泥の0.5t及び1t区、B汚泥の2t区における分配割合は、作土層へ80～90%、次層へは15～25%程度であった。

以上のように回収率はいずれの重金属も施用量の少ない区で高めとなり負荷量以上のものが回収される傾向があった。この過剰回収分は、対照区にも集積が認められたことから、灌水や化学肥料等からの人為的負荷によるものと考えられた。また、施用量の多い区で過剰回収分が少なかったことから、農作業等による隣接処理区相互の混じり合いがあったことも予想され、それら出入り分がお互いに相殺されたものと考えられた。

IV 総 括

汚泥類は、作物の生育に有効な肥料効果及び土壌改良効果をもつ反面、一般的な農業生産資材に比べ重金属含量が高く、無秩序な施用は土壌汚染を引きおこす可能性が高い。しかしながら、汚泥類の連用により引きおこされる土壌環境や作物生育への直接的な悪影響は、重金属よりむしろ含有される凝集剤の方が優先的に発生した。凝集剤の影響が最も顕著に現れたのは、A汚泥では土壌pHであり、多量施用で著しく高まった。土壌に負荷されるCaOとNの比と土壌pHの間には直線的な関係が認められ、A汚泥では、CaO/Nを3程度に保つことにより、適正pHに維持できることが明らかになった。下水汚泥は農地還元において、石灰質資材としてよりもむしろ窒素肥料として利用される場合が多いことを考えると、CaO/N比は、汚泥施用における一つの指針となり得ると考えられた。

一方、B汚泥はAlが集積し、りん酸固定力の増大による可給態りん酸の低下を引きおこした。可給態りん酸は無機態りん酸のうちCa型と一致した増減を示し、それらの密接な関連性が示唆された。また、可給性の高いCa型はB汚泥の各区で減少し、それに伴い作物中のりん酸濃度も低下した。

また、汚泥類の連用は、土壌中に各種の重金属の集積をもたらした。土壌中に負荷された重金属は、本圃場のような粘質土壌では動きにくく、ま

た作物による収奪量もわずかであるため、その大部分が作土層に集積し、一部は次層へも移行した。なかでもZnは、汚泥中含有量が多いため、多量施用により短期間で土壌中Zn濃度が管理基準の120ppmを越えた。

Znの作土層への集積傾向は、一次関数的に上昇するが、長期の連用では次第に上昇率が低下し頭打ちとなり、べき関数の当てはまりが良好となった。これは、土壌の最大吸着量を越えて作土層にZnが集積したため、保持されないZnが次層へ移行したことに起因すると考えられた。

重金属の次層への移行は、Znの他にCdやCu、Hg等でも認められた。Cuは土壌中では本来動きにくいとされているが、日向も、沖積土でCu²⁺の下層への移行を確認している。

重金属の移行性が、土壌の種類や性質、また重金属の種類間で異なり、土壌の酸性化で助長されるとした知見は多いが、本調査では、それら諸条件下における重金属の移行性の差は判然としない場合が多かった。従って、特に土壌中の移行率が大きいとされるCdやZn等については、汚泥の種類、土壌の種類、さらに土壌反応等の異なった条件下での移行特性を検討する必要がある。

土壌中の重金属の形態は、汚泥の連用により可給性の低い有機物結合態やFe・Mn酸化物結合態の画分が著しく増加した。また土壌pHが低下すると、可給性や移行性の高い土壌溶液や交換態の画分が増加した。

作物体の重金属濃度は、土壌中重金属濃度及びその形態、さらに土壌pHに大きく支配され、作物体の重金属濃度の年次推移が連用後期に頭打ち傾向となったのは、土壌pH上昇による吸収抑制が主因であると考えられた。また、重金属の作物吸収に影響する要因として、FeがCdの吸収を抑制することが確認¹²⁾されている。A汚泥は凝集剤として極めて多量のFeを含有するため、A汚泥の連用で連用後期にCdとZnの吸収が頭打ちになった一因として、FeがCdの吸収を抑制したことが予想された。さらに、CdとZn相互やFe、りん酸とZn相互の拮抗作用が働いたことも考えられた。

また土壌中のCdやZnは時間とともに不溶化し、植物移行性が低下する³⁾とした報告もある。一方、岡本¹³⁾らは、下水汚泥の連用土壌を強制的に酸性化すると作物への吸収が促進されることを確認している。このことは土壌中で一旦安定化し不溶化したものも、その後の管理の状況により作物への吸

収性が増すことがありえることを示唆している。

以上のように重金属の作物吸収に影響を及ぼす諸要因が明らかになりつつあるが、このような点を考慮においた重金属の挙動解明が今後の課題であろう。

V 摘 要

土壤養分、重金属濃度の低い畑地で、石灰処理下水汚泥とパルプ工場排水製紙スラッジを長期間連用して、土壤及び作物に及ぼす影響について検討した。

1. 下水汚泥の連用で、跡地土壤に全窒素、全炭素、可給態りん酸、交換性Caが集積し土壤pHが上昇した。製紙スラッジでは、全窒素、全炭素が集積したが、交換性Ca、可給態りん酸は低下した。
2. 土壤中のりん酸の形態は、汚泥に含有される凝集剤の影響を受け、下水汚泥の施用でCa型、Fe型が増加したのに対し、製紙スラッジはCa型が減少し、Al型が増加した。

3. 土壤の物理性は、製紙スラッジの施用で固相率、容積重の減少、透水係数の増大等土壤改善効果が明らかに認められたが、下水汚泥では、固相率が若干減少したのみで改善効果は認められなかった。

微生物性は、下水汚泥の施用で糸状菌、色素耐性菌、アンモニア酸化菌が増加した。

4. 土壤中の重金属濃度は、汚泥の施用回数に応じて上昇する傾向を示したが、連用後期には上昇率が緩慢となり、その傾向はZnで著しかった。重金属の汚泥からの累積負荷量と土壤中濃度の関係はCdとCuが一次関数、Znがべき関数で示された。

5. 土壤中重金属の形態は、可給性の低い有機物結合態や遊離酸化物結合態の画分の増加率が高く、CuとZnとでは形態順位が異なった。また、土壤の酸性化に伴って、可給性や移行性の高い土壤溶液及び交換態の画分が増加した。

6. 作物の収量は、下水汚泥の連用でソルガム、キャベツとも高収量となり、増収効果は大きかった。一方製紙スラッジには増収効果は認められなかった。

7. 作物の重金属吸収は、CdとZnが土壤pHの影響を強く受け、土壤pHの低い製紙スラッジで高濃度となり、逆に土壤pHの高い下水汚泥で低濃度となる傾向があった。また連用前期において体内濃度

が上昇したが、後期には頭打ちとなった。これに対しCuでは、土壤中濃度や土壤pHの変化に対する感受性が低く、処理間に明瞭な差は認められなかった。

8. 汚泥からの重金属の負荷量に対し、作物による吸収量は極めて少ないため、負荷量の大部分は作土層に集積しその一部は次層にも移行した。

引 用 文 献

- 1) 安倍世紀・林勝實・清末哲男・宮崎芳郎・吉浦昭二 (1986) 汚泥類の連用が畑土壤及び作物に及ぼす影響 (第1報) 作物の生育と土壤理化学性の変化
大分県農業技術センター研究報告 第16号 27~42
- 2) A.C.Chang・S.J.Kin and A.L.Page (1990) TRANSFER OF Cd FROM MUNICIPAL SLUDGE-TREATED SOILS TO SELECTED PLANTS Symposium Session of Commission IV 14th International Congress of Soil Science IV-180~185
- 3) 土木学会 (1975) 下水汚泥の処理・処分および利用に関する研究 126
- 4) 藤井國博・服部浩之・広木幹也 (1986) 汚泥の連用が土壤微生物フローラに与える影響 国立公害研究所研究報告 第93号 93~100
- 5) 橋元秀教 (1975) 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— 博友社 105~122
- 6) 服部浩之 (1986) 汚泥中のリンの形態と土壤中における形態変化 国立公害研究所研究報告 第93号 181~187
- 7) 日向進 (1981) 土壤中における銅の行動と形態について 日本土壤肥料科学会誌 第52巻 第4号 356~361
- 8) 日向進 (1989) 下水汚泥コンポストの有効利用法
再生と利用 No.46 下水汚泥資源利用協議会 33~46
- 9) 鎌田賢一・南松雄 (1981) 下水汚泥中の重金属の形態 日本土壤肥料科学会 第52巻 第5号 385~391
- 10) 越野正義 (1989) 有機性汚泥の農林業への利用に関する研究 再生と利用 No.46 下水汚泥

- 資源利用協議会 6～17
- 11) R.G.Mclaren and D.V.Crawford (1973) STUDIES ON SOIL COPPER
1. THE FRACTIONATION OF COPPER IN SOILS J.Soil Sci. 172～181
- 12) 日本土壌肥料学会 (1989) 再利用資源土壌還元影響調査に係る総合解析調査 171～172
- 13) T.Okamoto, M.Hirobe, K.Wachi and T.Matsuzaki (1990) CHANGES IN FORM MOBILITY AND AVAILABILITY OF SOME HEAVY METALS IN A SOIL WITH LONGTERM APPLICATIONS OF SEW-AGE SLUDGE Symposium Session of Commission IV 14th International Congress of Soil Science IV-216～221
- 14) 関谷宏三 (1970) リン酸 土壌養分分析法 土壌養分測定委員会 養賢堂 225～257
- 15) 渋谷政雄 (1975) 環境汚染と農業 博友社 161
- 16) 山田正幸・海老原武久也 (1985) 汚泥連用が土壌および作物に及ぼす影響 群馬農業研究 A総合第2号 43～52
- 17) 山口武則・藤井國博・麻生末雄 (1986) 石灰凝集生活排水汚泥中のMn、Zn、Cuの形態 国立公害研究所研究報告 第94号 1～9

Effects of a Long-term Application of Sludges to an Upland Field on Soil Fertility and Plant Growth

2. Changes of Physical and Chemical Properties of Soil, Heavy Metals Accumulation in Soil and Their Uptake by Plants

Hisanari FUKATA, Seiki ABE and Yoshihisa NOJI

Summary

Sewage sludge (A sludge) and woody sludge from a paper mill (B sludge) were applied to the upland field (Brown Forest soils) for ten years from 1979 onwards. Changes of physical and chemical properties of soil, heavy metals accumulation in soil and their uptake by plants were investigated.

1. The application of A sludge increased soil pH, and the contents of total nitrogen, exchangeable Ca and available P_2O_5 in soil. On the other hand, the application of B sludge didn't increase the content except for total nitrogen and carbon.
2. Forms of inorganic P in soil were influenced by the Al and Fe contents in the sludge. Namely, the application of A sludge increased Ca-P and Fe-P in the soil, but the application of B sludge increased Al-P only.
3. Heavy metal contents of soil increased after the application of each sludge. The relation between the amount of heavy metal deposited from sludges in soil and heavy metal contents of soil showed a linear function in Cd and Cu and an exponential function in Zn.
4. Forms of heavy metals in soil were determined. The percentage of organic and free oxides forms was high, but the percentage of soil solution and exchangeable form which increase in availability and mobility of the heavy metals was high in low soil pH.
5. Cd and Zn Contents of plants were affected by soil pH. Namely, these contents were higher at B sludge with low soil pH but lower at A sludge with high soil pH, and these contents increased gradually for the first half of application, but after that remained on the same level. Cu content of plants was insensitive to soil pH and Cu content of soil.