

農業集落排水汚泥の特徴と利用

袖垣一也・浅野雄二*・矢野秀治

Characteristic of Rural Sewerage Sludge and its Utilization as Fertilizer

Kazuya SODEGAKI, Yuuji ASANO and Hideji YANO

要約：乾燥した農業集落排水汚泥は鶏糞に類似した窒素無機化特性を有しており、含有窒素の無機化率は30%~50%が見込まれ窒素肥料としての利用が可能である。しかし、一般の化学肥料に比べ銅及び亜鉛を比較的高濃度に含有することから、多量施用や連用には注意が必要である。供試した汚泥は窒素含量に対するカドミウム及び鉛の含量が相対的に低かったことから、汚泥に含まれるカドミウム・鉛による農地の汚染は問題とならないと考えられた。

キーワード：農業集落排水汚泥、窒素無機化特性、重金属

結言

農業集落排水事業が制度化されてから平成12年度末までに事業が採択された地区数は全国で約4,400にのぼり、今後も増加することが想定される。それに伴い処理施設から発生する汚泥も今後増え続けることが予想され、本県においてもその有効利用法の確立が急務となっている。農業集落排水処理施設から排出される汚泥には窒素が比較的高濃度に含まれるため窒素肥料としての利用が見込まれているが肥効特性が不明であり、また農地還元した場合、汚泥が含有するカドミウム等の重金属の挙動が明らかでないことから、施用法は未だ確立していない。

そこで、本県で排出された代表的な乾燥方法の二種類の汚泥を用い、肥効特性並びに汚泥に含まれるカドミウム、鉛、銅及び亜鉛の挙動からその安全性を検討したので報告する。

供試汚泥

益田郡萩原町営施設から排出された機械乾燥汚泥（以下萩原汚泥）及び可児市営施設から排出された天日乾燥汚泥（以下可児汚泥）の二種類を以下の試験に供した。

1. 汚泥の含有する成分の特徴及び時期別変動の把握

[材料及び方法]

平成10年4月から平成11年1月にかけて、三ヶ月に一度の頻度でそれぞれの農業集落排水処理施設から乾燥済み汚泥を定期的に採取し以下の分析に供した。

- (1) 水分（加熱減量法）
- (2) 全炭素及び全窒素（絶乾・粉碎後CNコーダー法）
- (3) pH（同ガラス電極法）
- (4) 電気伝導率（同電気伝導率計法）

- (5) 磷酸（絶乾・粉碎試料を湿式分解後バナドモリブデン酸アンモニウム法）
- (6) 石灰（同原子吸光測光法）
- (7) 苦土（同）
- (8) 銅（同）
- (9) 亜鉛（同）
- (10) カドミウム（同）
- (11) 鉛（同）
- (12) 加里（同フレイム光度法）
- (13) ナトリウム（同）

[結果及び考察]

分析結果を表1に示した。供試した汚泥は全窒素が6~8%、全磷酸が5%程度含まれており、これらの給源としての利用が可能と考えられた。機械乾燥の萩原汚泥はアンモニア態窒素含量が高く、天日乾燥の可児汚泥に比べ窒素の無機化がやや進んでいた。萩原汚泥は可児汚泥より水分率が大きく時期毎の変動も大きかったが、これは機械乾燥では水分率60%程度までしか乾燥されず、特に冬期に事後乾燥が進まないことが原因していると考えられた。両汚泥ともアンモニア態窒素の時期別変動がやや大きかった。

2. 汚泥の窒素無機化特性値の把握

[材料及び方法]

それぞれの農業集落排水処理施設から乾燥済み汚泥を採取し、畑（沖積土、土性L）及び水田（沖積土、土性CL）の篩別した未風乾作土と一定割合で混合後、畑（最大容水量の40%）及び水田（湛水密栓）の2水分状態、それぞれ温度20℃、25℃、30℃の3段階で最長140日間の培養を行い、培養開始後0、7、14、28、56、84、112、140

* 現在、中山間農業技術研究所

表1 汚泥の含有する成分と時期別変動

種別	採取日	pH	EC dS/m	水分率 %	T-C %	T-N %	C/N	T-P205 %	T-K20 %	T-CaO %	T-MgO %	T-Na %	NH4-N mg/100g	Cu ppm	Zn ppm	Pb ppm	Cd ppm
萩原	H10/4	8.6	3.4	58.4	42.0	7.2	5.8	5.17	0.75	0.11	0.40	0.13	1954	216	406	17.00	1.65
萩原	H10/7	7.6	0.7	26.1	40.6	7.4	5.5	4.59	0.54	0.15	0.26	0.10	763	211	504	ND	1.55
汚泥	H10/10	8.5	1.5	19.5	43.5	8.8	5.0	7.12	0.93	0.19	0.22	0.24	1731	227	394	26.00	1.99
汚泥	H11/1	8.9	2.0	39.8	44.6	8.3	5.4	5.01	0.65	0.25	0.26	0.13	605	162	315	ND	1.25
	平均値	8.4	1.9	36.0	42.7	7.9	5.4	5.47	0.72	0.18	0.29	0.15	1263	204	405	21.50	1.61
	標準偏差	0.6	1.1	17.2	1.7	0.7	0.4	1.13	0.17	0.06	0.08	0.06	678	29	78	6.36	0.31
可児	H10/4	5.9	0.7	13.7	34.2	5.8	5.9	5.04	0.48	0.11	0.16	0.13	125	195	240	6.00	1.05
可児	H10/7	6.0	0.9	13.8	36.6	6.0	6.1	5.43	0.51	0.11	0.22	0.10	127	247	278	ND	1.00
汚泥	H10/10	6.9	0.3	12.0	33.4	5.5	6.1	6.33	0.81	0.22	0.22	0.13	57	248	314	19.00	1.19
汚泥	H11/1	6.9	0.1	15.4	38.0	6.3	6.1	4.11	0.75	0.20	0.28	0.13	24	256	333	ND	1.15
	平均値	6.4	0.5	13.7	35.6	5.9	6.0	5.23	0.64	0.16	0.22	0.12	83	237	291	12.50	1.10
	標準偏差	0.6	0.4	1.4	2.1	0.3	0.1	0.92	0.17	0.06	0.05	0.02	51	28	41	9.19	0.09

表2 汚泥の窒素無機化特性値 (水田条件)

種別	N1	N2	K1	K2	Ea1	Ea2	C
萩原汚泥	2.11	6.43	0.195	0.00582	16144	16122	0.7
可児汚泥	1.85	5.32	0.286	0.00715	6522	18492	0.21

注) モデル式 $N = N1(1 - \exp(-K1*t)) + N2(1 - \exp(-K2*t)) + C$

N: 生成した無機態窒素量(g/N10g), N1, N2 可分解性有機態窒素量(g/N10g)

K1, K2: 速度定数(1/日), Ea1, Ea2: 活性化エネルギー(cal/mol), C: 定数(g/N10g), t: 培養日数(日)

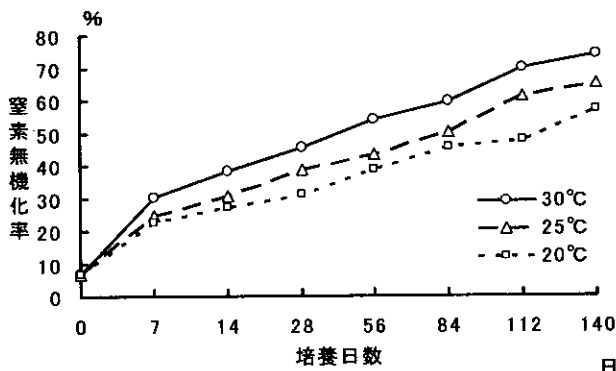


図1 萩原汚泥の窒素無機化率 (水田)

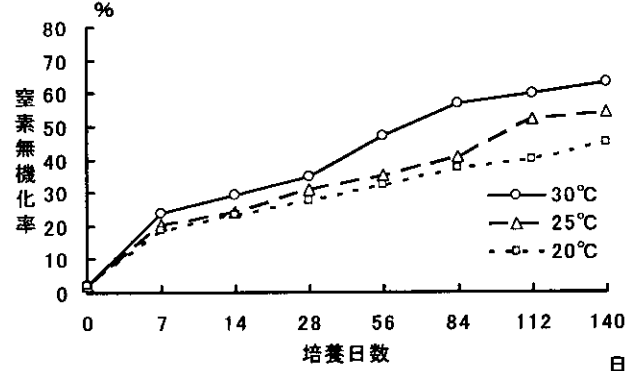


図2 可児汚泥の窒素無機化率 (水田)

表3 汚泥の窒素無機化特性値 (畑条件)

種別	N1	N2	K1	K2	Ea1	Ea2	C
萩原汚泥	3.02	1.72	0.1036	0.00595	8788	11823	1.062
可児汚泥	2.78	2.16	0.1228	0.00754	10060	14752	0.228

注) モデル式 $N = N1(1 - \exp(-K1*t)) + N2(1 - \exp(-K2*t)) + C$

N: 生成した無機態窒素量(g/N10g), N1, N2 可分解性有機態窒素量(g/N10g)

K1, K2: 速度定数(1/日), Ea1, Ea2: 活性化エネルギー(cal/mol), C: 定数(g/N10g), t: 培養日数(日)

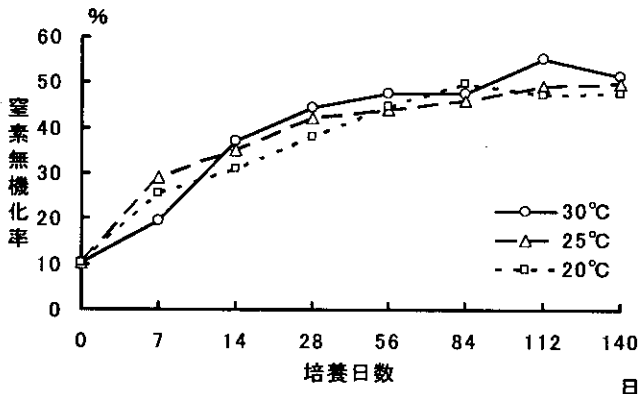


図3 萩原汚泥の窒素無機化率 (畑)

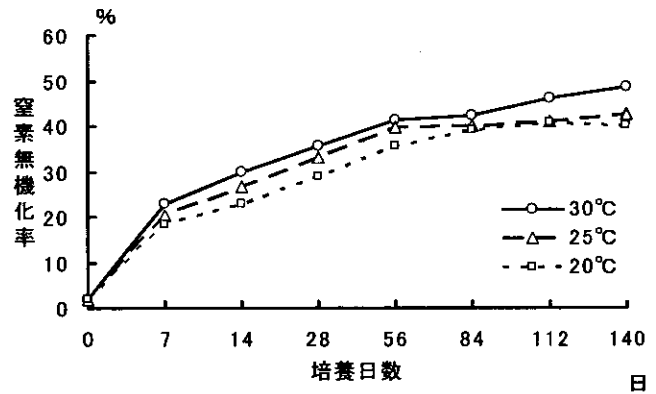


図4 可児汚泥の窒素無機化率 (畑)

日目に土壌に含まれる無機態窒素を測定した。別途汚泥を添加しない土壌のみの試料を同条件で培養し、窒素測定の都度土壌由来の無機態窒素を差し引き、汚泥に由来する無機態窒素量を算出した。得られたデータを金野らの速度論的方法で解析し、水田・畑それぞれの水分状態における汚泥の窒素無機化特性値を求めた。

[結果及び考察]

(1) 水田条件

水田条件で推定された各パラメーターを表2に示す。水田条件の窒素無機化モデルは、両汚泥ともに含まれる有機態窒素が二画分に分かれる単純並行型が適合したが、N1、N2ともに萩原汚泥が可児汚泥より含量が高かった。培養中の無機化率の推移を図1、図2に示す。両汚泥の無機化パターンは類似しており、培養開始から1週間の初期にやや急激に無機化し、以後は水稻の収穫期以降まで穏やかに無機化が続くパターンを示した。

(2) 畑条件

畑条件で推定された各パラメーターを表3に示す。畑条件においても両汚泥ともに無機化モデルは単純並行型が適合し、水田条件と同様に無機化が速いと考えられるN1画分は萩原汚泥の方が含量が高かった。培養中の無機化率の推移を図3、図4に示す。このように、両汚泥ともに畑条件で20℃から30℃の範囲内では無機化率に及ぼす温度の影響は比較的少ないと考えられた。

3. 汚泥連用水田における水稻の栽培試験

[材料及び方法]

当研究所内水田において、萩原汚泥及び可児汚泥を用い、1998年から2002年までの通算5年間にわたり、1作当たりの汚泥施用量を、水田状態における汚泥の無機化パターンからみた適量、その二倍量及び三倍量の三段階で毎作施用して水稻を栽培し、生育・収量、栽培後の土壌化学性、カドミウム、鉛、銅、亜鉛の栽培後土壌の含量及び水稻の吸収量を求めた。比較のため慣行施肥区及び無施肥区を設けた。連用最終年に当たる2002年は特に汚泥の安全性を確認する観点から、カドミウムの吸収を促すために節水栽培とした。

(1) 土壌条件：細粒灰色低地土、灰色系、宝田統

(2) 一作の施肥量：水稻を1998年-2002年に5連作、一作の汚泥施用量はT-N換算で、萩原汚泥は適量7.5と倍量の15、三倍量の22.5kg/10a相当量、可児汚泥は適量9、倍量の18、三倍量の27kg/10a相当量の各三段階で毎作同一の設計で汚泥施用。

(3) 5年間の汚泥通算施用量

萩原汚泥 適量区：723kg/10a 倍量区：1,456kg/10a
三倍量区：2,174kg/10a

可児汚泥 適量区：819kg/10a 倍量区：1,617kg/10a
三倍量区：2,376kg/10a

• 比較のため慣行施肥区及び無施肥区を設けた

(4) 調査項目：生育・収量、栽培後の土壌化学性及び重金属含量、水稻の重金属吸収量

(5) 土壌のカドミウム、鉛、銅、亜鉛の形態別抽出法
岡本¹⁾の方法に準じて行った。すなわち、試料を遠沈管にとり、抽出試薬をpH7の1M塩化アンモニウム(交換態)、pH5の1M酢酸アンモニウム(炭酸塩態)、0.04M塩化ヒドロキシルアミン(Fe・Mn酸化物態)、過酸化水素処理後3.2M酢酸アンモニウム(有機結合態)の順に逐次抽出し、別に過塩素酸+フッ化水素酸により全含量を定量し、差し引きを鉍物態とした。

(6) カドミウム、鉛、銅、亜鉛の分析法

• 原子吸光度法(日立Z-5000)

(7) 品種と耕種概要

1998年：コシヒカリ(移植5月11日、収穫8月31日)

1999年：コシヒカリ(移植5月10日、収穫8月31日)

2000年：コシヒカリ(移植5月11日、収穫8月31日)

2001年：コシヒカリ(移植5月10日、収穫8月27日)

2002年：ハツメ(移植5月28日、収穫10月4日)

• 1998年-2001年は通常の水管理、2002年は節水管理とし比較のため近傍田に慣行水管理区を設けた。

[結果及び考察]

(1) 汚泥の窒素肥効と生育・収量及び食味

水管理及び品種が同一の1998年から2001年までの収量と収量構成要素の推移を図5から図11に示す。連用開始1年目では両汚泥ともに汚泥の施用量にほぼ比例して穂数が増加し、籾数も確保されたことから増収したが、連用2年目以降は汚泥施用量を増やすと穂数の増加により面積当たり籾数は増加するものの登熟がやや劣る傾向に陥り、汚泥施用区の収量は倍量区で慣行区と同等か慣行区よりやや多い程度にとどまった。また、汚泥の窒素肥効が比較的長期に及ぶことから汚泥施用各区の玄米中タンパク含量は増加しており、食味への影響が懸念された(表4)。

(2) 玄米中重金属濃度と5連作後の土壌中重金属濃度
年次ごとの玄米中の銅・亜鉛濃度を図12、図13に、カドミウム・鉛濃度を図14、図15にそれぞれ示した。

連用1年目から4年目までは玄米中銅濃度はいずれの汚泥でも施用量が増えるに従ってわずかに増加する傾向であったが、節水栽培とした連用5年目は汚泥の施用量と玄米中銅濃度との関係は明らかでなかった。玄米中亜鉛濃度は連用1年目から4年目までは汚泥の施用量との関係は明らかでなかったが、いずれの試験区も連用年数の増加に伴いやや増加する傾向を示した。連用5年目に

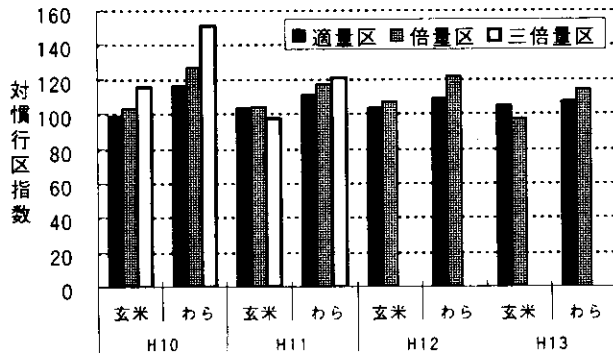


図5 慣行区を100とした水稻収量指数の推移 (萩原汚泥)

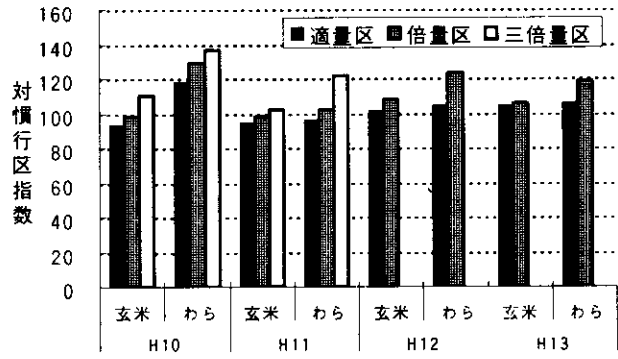


図6 慣行区を100とした水稻収量指数の推移 (可児汚泥)

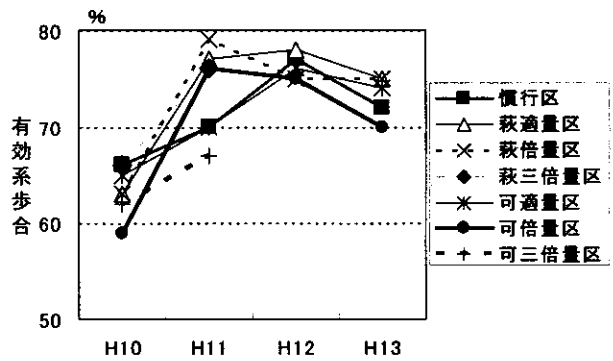


図7 有効茎歩合の推移

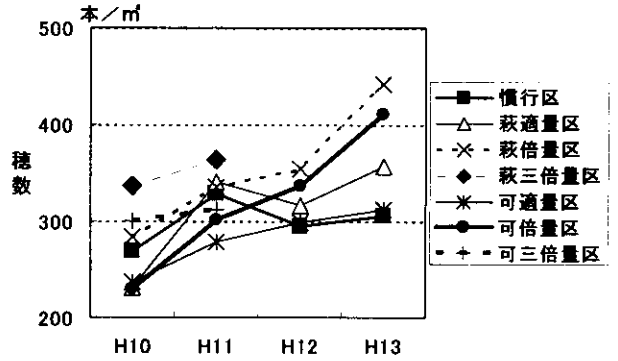


図8 穂数の推移

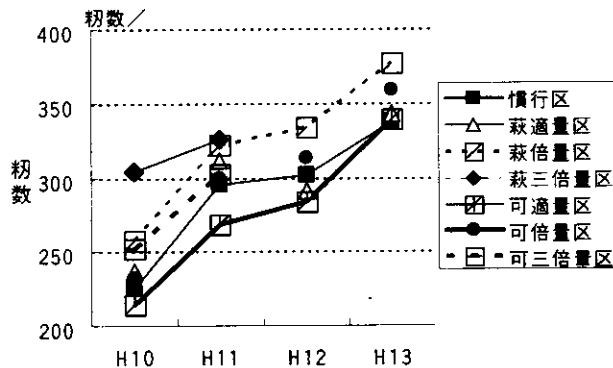


図9 m²当りの粒数の推移

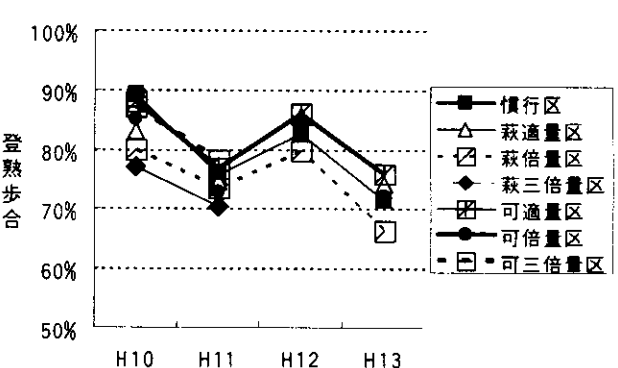


図10 登熟歩合の推移

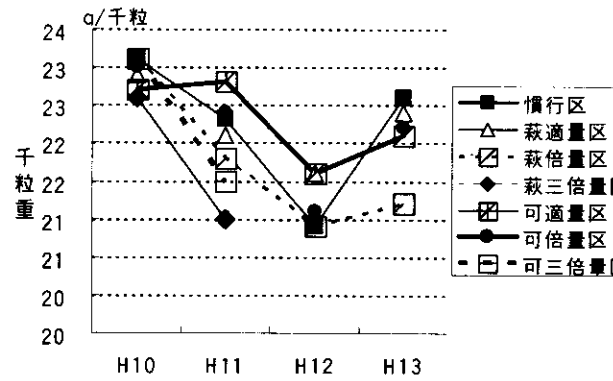


図11 千粒重の推移

表4 精米のタンパク質含有量の推移

	H10	H11	H12	H13
慣行区	6.88 (100)	7.20 (100)	6.64 (100)	7.49 (100)
萩適量区	6.99 (102)	7.87 (109)	7.21 (109)	7.80 (104)
萩倍量区	7.49 (109)	8.43 (117)	8.21 (124)	8.37 (112)
萩三倍量区	7.77 (113)	7.80 (108)	7.44 (112)	8.42 (112)
可適量区	6.94 (101)	7.71 (107)	7.31 (110)	7.66 (102)
可倍量区	6.96 (101)	7.79 (108)	7.59 (114)	8.20 (109)
可三倍量区	7.07 (103)	7.28 (101)	6.77 (102)	7.64 (102)

注) 分析はニレコ社製食味計NIRA6500。カッコ内は対慣行区指数。

おいてはそれまでの年より玄米中亜鉛濃度が低下した。玄米中のカドミウム濃度はいずれの汚泥も施用量との関係は明らかでなかった。節水栽培とした連用5年目には濃度が急増したが、両汚泥ともに3倍量区の濃度がやや低い傾向がみられた。

5年間連用・連作後の土壌中のカドミウム、鉛、銅、亜鉛の形態別濃度を図16から図23に示す。作土においては交換態カドミウムが汚泥施用区でやや高い傾向であったが、他はいずれの形態も汚泥の施用量との関係は不明であった。下層土においては両汚泥とも適量区、倍量区の総カドミウム含量及び交換態カドミウム含量がやや高く、三倍量区はこれらがやや低い傾向が認められた。土壌中鉛は有機結合態及び鉱物態が含量の大部分を占めており、いずれの形態も汚泥の施用量との関係は不明であった。土壌中銅は有機結合態及び鉱物態が含量の大部分を占めており、作土においては汚泥施用量の増加に伴い若干銅含量が増加したが下層土においては汚泥の施用量と銅含量との関係は不明であった。また慣行水管理区の銅濃度は節水栽培各区に比べ作土で低く下層土で高い傾向であった。土壌中亜鉛は有機結合態及び鉱物態が含量の大部分を占めており、作土においては汚泥施用量の増加に伴い亜鉛含量が若干増加した。また下層土においては両汚泥とも適量区、倍量区の総亜鉛含量がやや高く、三倍量区はやや低い傾向が認められ、カドミウムの傾向と類似していた。

以上のように、水田に対する1作・10a当たり全窒素換算で27kg以下の汚泥施用量では、5年間の連用下においてもカドミウム及び鉛の土壌中における蓄積、あるいは水稻のこれらの吸収への影響は判然としなかった。

4. 汚泥連用水田土壌の窒素無機化特性値

[材料及び方法]

試験3の水田から、4年間の連作後に相当する2002年春(施肥前)に土壌を採取し、湛水密栓状態で温度20℃、25℃、30℃の三段階を設定し、一定温度で最長140日間の培養を行い、培養開始後0, 7, 14, 28, 56, 84, 112, 140日目に土壌に含まれる無機態窒素を測定した。得られたデータを金野らの速度論的方法で解析し、水田状態における汚泥連用水田土壌の窒素無機化特性値を求めた。

[結果及び考察]

推定結果を表5に示した。窒素無機化モデルはいずれも単純型が適合した。慣行区と汚泥施用区を比較すると、可分解性有機態窒素は両汚泥とも連用によって富化されていたが、可児三倍量区を除き活性化エネルギーは慣行区よりやや低かった。いずれのパラメーターも汚泥の施用量に対する量的関係は不明であった。推定された各パラメーターを用い、平成14年の所内水田地温をあてはめた窒素無機化パターンを図24に示す。これによれば、5月下旬移植のハツシモの収穫期に相当する10月上旬の時点で、汚泥施用各区の窒素無機化量は慣行区に対し約50%

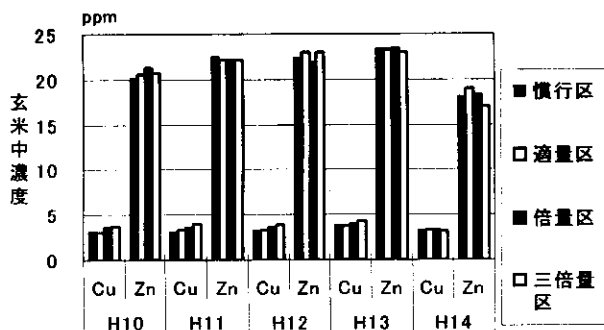


図12 水田への萩原汚泥の連用と玄米中銅・亜鉛濃度 (水分15%概算値)

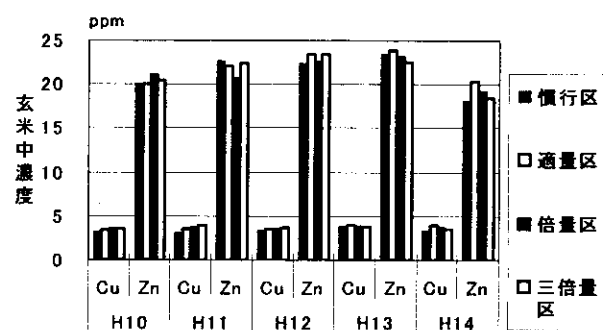


図13 水田への可児汚泥の連用と玄米中銅・亜鉛濃度 (水分15%概算値)

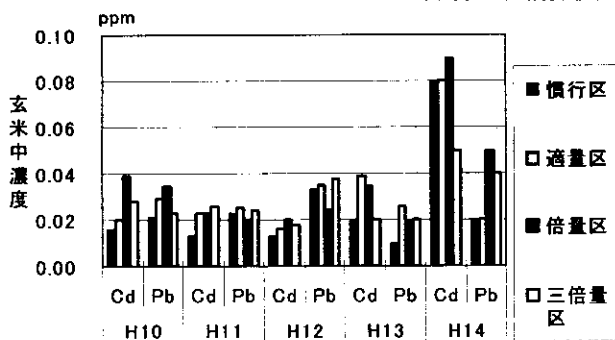


図14 水田への萩原汚泥の連用と玄米中カドミウム・鉛濃度 (水分15%概算値)

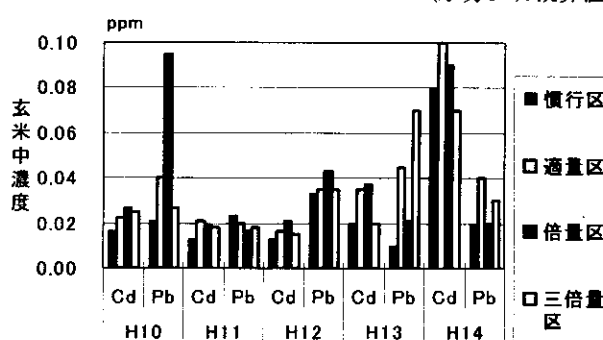


図15 水田への可児汚泥の連用と玄米中カドミウム・鉛濃度 (水分15%概算値)

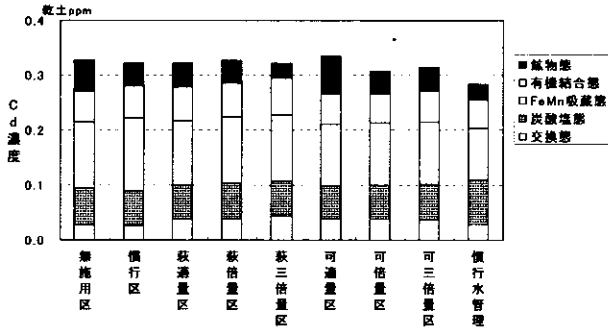


図16 汚泥連用後作土の形態別カドミウム濃度

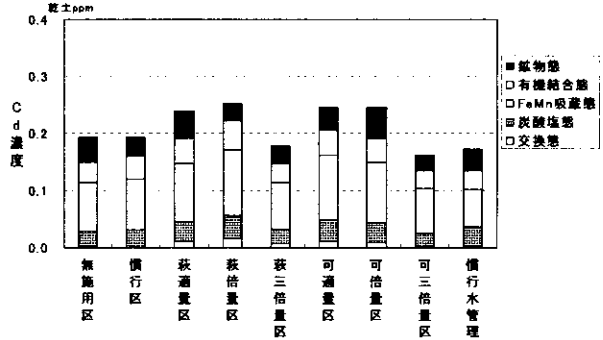


図17 汚泥連用後下層土の形態別カドミウム濃度

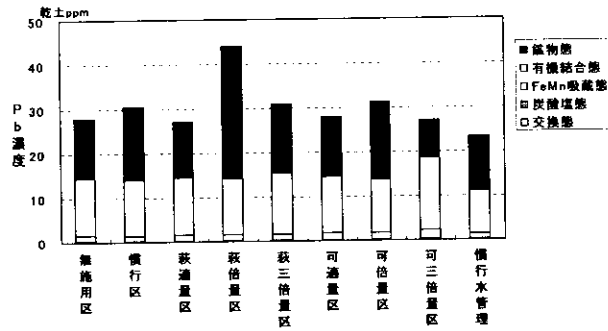


図18 汚泥連用後作土の形態別鉛濃度

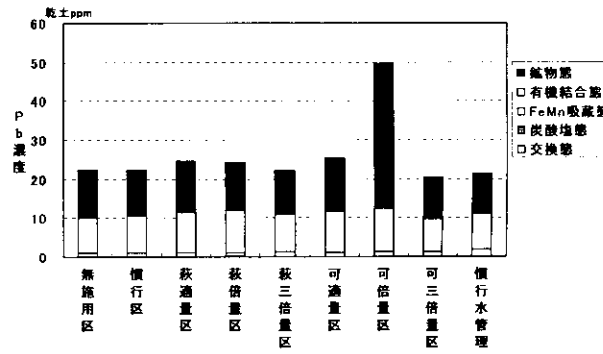


図19 汚泥連用後下層土の形態別鉛濃度

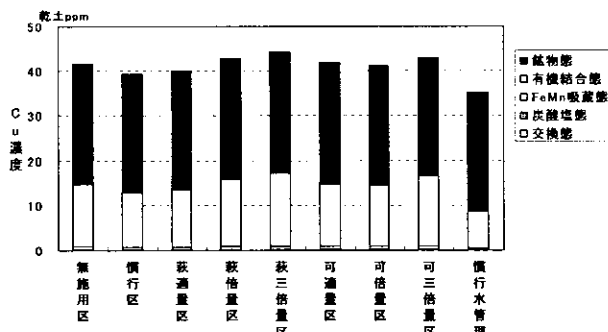


図20 汚泥連用後作土の形態別銅濃度

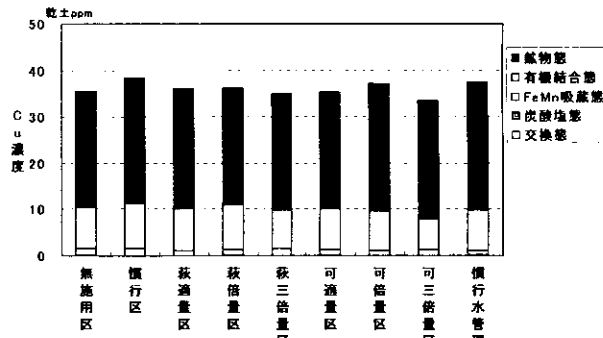


図21 汚泥連用後下層土の形態別銅濃度

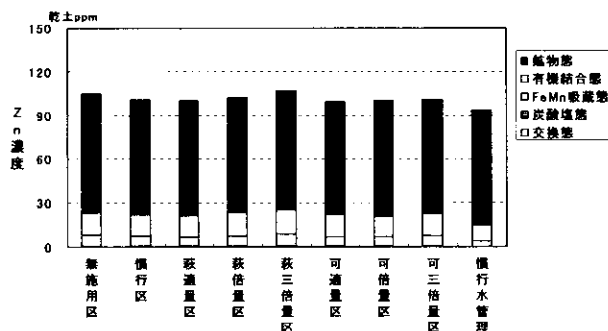


図22 汚泥連用後作土の形態別亜鉛濃度

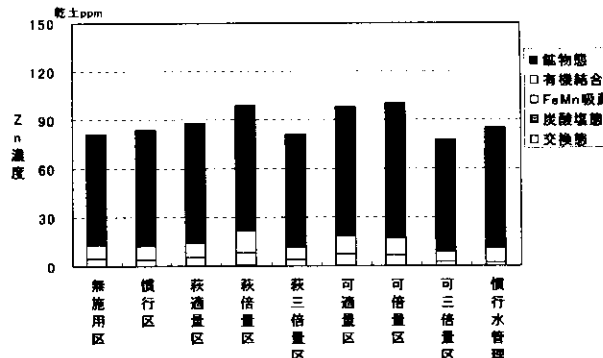


図23 汚泥連用後下層土の形態別亜鉛濃度

表5 汚泥4年連用後の窒素無機化特性値

パラメータ	慣行区	萩適量区	萩三倍量区	可適量区	可三倍量区
Ea	23457	19294	18603	16683	28232
N0	9.28	44.1	19.89	36.05	12.98
k	0.003	0.001	0.002	0.001	0.003
b	0.005	0.05	0.133	0.017	0.285

注)モデル式 $N=N_0(1-\exp(-kt))+b$

N:無機化したN量(mg/100g), N0:可分解性有機態窒素量(mg/100g)

k:速度定数, Ea:活性化エネルギー(cal/mol), b:定数(mg/100g), t:培養日数

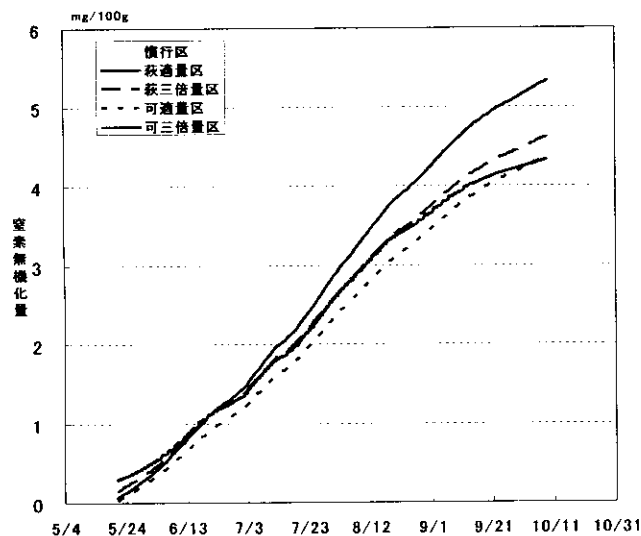


図24 2002年の水田地温をあてはめた窒素無機化パターン

～80%程度上回っていた。

以上のことから汚泥を水稻基肥として施用する場合、窒素肥料としての1作当たりの施用量が窒素の無機化パターンからみて概ね適量であっても、同一圃場への連用を行うと易分解性有機態窒素が土壤に蓄積して後年の肥培管理に影響を及ぼすことが示唆された。

5. 汚泥連用跡地におけるダイズ栽培試験

[材料及び方法]

当研究所内普通畑において、両汚泥を1998年から2001年までの通算4年間にわたり施用量三段階で毎作施用し野菜を栽培した。この跡地において2002年に無肥料でダイズを栽培し、作物体のカドミウム、鉛、銅、亜鉛濃度、栽培後土壤のカドミウム、鉛、銅、亜鉛の形態別含量及び土壤化学性を検討した。

(1) 土壤条件：細粒褐色低地土、斑紋なし、新戒統

(2) 栽培履歴：H10 コマツナ、H11 コマツナ、ホウレンソウ、H12エダマメ、H13スイートコーン（毎作とも施用量3段階で汚泥施用、比較のため無肥料区及び慣行施肥区を設置）

(3) 4年間の汚泥の通算施用量/10a

萩原汚泥少量2,171kg、中量3,392kg、多量5,312kg

可児汚泥少量3,019kg、中量4,898kg、多量7,928kg

(4) 調査項目：生育・収量、栽培後土壤の化学性及び重金属含量

(5) 品種：アキシロメ

(6) 耕種概要：播種2002年6月28日、収穫11月11日

[結果及び考察]

表6に示したようにダイズの生育・収量には過去の汚泥施用の影響は認められなかった。表7は収穫したダイズ子実の重金属濃度である。カドミウム及び鉛については子実中濃度と過去に施用した汚泥の種類・量との関係は明らかでなかったが、萩原汚泥連用区においては過去の汚泥の施用量が増すにしたがって子実の銅、亜鉛濃度が若干増加した。表8に収穫時の子実部と茎部の重金属濃度及び土壤からの収奪量を示した。子実部と茎部との含量の比較ではカドミウム及び鉛については茎>子実、銅、亜鉛については子実>茎であった。収穫時の植物体全体の収奪量では萩原汚泥施用区では銅及び亜鉛が、可児汚泥施用区ではカドミウム及び亜鉛がそれぞれ汚泥の施用量が増すにしたがって増加する傾向であった。

表9は栽培後の土壤化学性である。栽培後の作土は過去の汚泥施用量が増すにしたがいpHが低下し、T-C、T-Nが増加していた。

図25から図32に栽培後土壤に含まれる重金属の形態別含量を示した。栽培後作土の総カドミウム含量はいずれの汚泥でも多量施用区で若干高い傾向が認められたが、過去に汚泥を施用していない慣行区及び無肥料区の間でも約0.05ppmの差がみられ、汚泥の施用量との関係は明らかではなかった。作土においては、ダイズに最も吸収されやすいと考えられる交換態カドミウムは無肥料区では検出されなかったが、両汚泥区とも施用量が増すにしたがって増加する傾向であり、また慣行区、萩原中量区、可児少量区の作土の交換態カドミウム含量は同程度であった。下層土においては交換態カドミウムは検出されず、また各形態の含量と汚泥施用量との関係は不明であった。土壤中鉛は鉱物態及び有機結合態の形態が大部分を占めており、交換態は検出されなかった。いずれの形態も過去に施用した汚泥の種類、量による影響は明らかでなかった。土壤中の銅は鉱物態の形態が大部分を占めており、有機結合態がこれに次ぐ含量であった。また下層土は作土に比べ有機結合態がやや少なかった。銅についてはいずれの形態も過去に施用した汚泥の種類、量による影響は明らかでなかった。土壤中亜鉛は鉱物態の形態が大部分を占めており、炭酸塩態がこれに次ぐ含量であった。下層土は作土に比べ含量のバラツキがやや多かった。いずれの形態も過去に施用した汚泥の種類、量による影響は明らかでなかった。

図33に示したように、栽培後土壤の土壤pHと交換態カ

表6 収穫時のダイズの生育及び収量

	主茎長cm	分枝数	節数	収量kg/a
無肥料区	56.4	4.2	13.8	32.3
慣行区	56.1	3.4	14.0	33.4
萩少量区	69.5	5.5	16.3	31.0
萩中量区	65.1	2.8	15.2	33.1
萩多量区	54.8	3.2	13.8	34.2
可少量区	73.6	4.1	15.5	30.6
可中量区	71.8	3.9	16.5	29.9
可多量区	68.8	2.8	16.0	34.2

表7 ダイズの子実中重金属濃度

試験区	Cd	Pb	Cu	Zn
無肥料区	0.06	0.06	8.6	33.4
慣行区	0.07	0.11	10.6	40.9
萩少量区	0.06	0.02	8.9	38.1
萩中量区	0.07	0.05	9.1	42.5
萩多量区	0.07	0.03	9.5	45.8
可少量区	0.05	0.13	10.1	41.7
可中量区	0.08	0.16	9.7	45.2
可多量区	0.08	0.11	9.1	43.6

水分15%換算値

表8 成熟期のダイズ植物体の重金属濃度と収量

	部位	乾物ppm				収量mg/10a			
		カリウム	鉛	銅	亜鉛	カリウム	鉛	銅	亜鉛
慣行区	子実	0.08	0.13	12.52	48.09	28	45	4,460	17,127
	茎	0.12	0.37	3.60	7.45	36	106	1,035	2,142
	計					64	151	5,495	19,268
萩少量区	子実	0.07	0.02	10.43	44.84	23	8	3,508	15,089
	茎	0.10	0.21	3.10	5.95	30	64	949	1,821
	計					53	72	4,457	16,910
萩中量区	子実	0.08	0.06	10.72	49.97	29	21	3,796	17,698
	茎	0.16	0.37	3.20	10.10	45	104	906	2,860
	計					74	125	4,702	20,558
萩多量区	子実	0.08	0.03	11.20	53.93	29	11	4,067	19,583
	茎	0.14	0.13	3.05	6.70	39	38	870	1,911
	計					68	48	4,937	21,494
可少量区	子実	0.06	0.16	11.90	49.01	18	52	3,954	16,293
	茎	0.11	0.29	3.00	5.65	36	90	939	1,769
	計					54	143	4,893	18,062
可中量区	子実	0.09	0.19	11.36	53.19	31	61	3,709	17,369
	茎	0.15	0.21	3.10	7.20	43	62	914	2,122
	計					74	123	4,622	19,492
可多量区	子実	0.09	0.13	10.75	51.27	34	46	3,911	18,650
	茎	0.16	0.03	3.15	8.55	46	8	921	2,499
	計					81	54	4,832	21,149

表9 ダイズ栽培後の土壌化学性

試験区	層位	pH	EC dS/m	CaO mg/100g	MgO	K2O	CEC me	塩基飽 和度%	av-P2O5 mg/100g	T-C %	T-N %
無肥料	1	7.50	0.38	157	32	32	10.9	72.7%	58	0.67	0.07
	2	7.45	0.32	148	31	29	10.7	69.8%	28	0.48	0.06
慣行区	1	6.74	0.27	135	28	20	10.9	61.1%	50	0.69	0.07
	2	7.09	0.36	158	34	22	11.2	69.9%	56	0.59	0.06
萩少量区	1	6.98	0.26	148	31	18	11.2	64.4%	59	0.81	0.08
	2	7.18	0.34	138	32	26	10.5	67.2%	34	0.52	0.06
萩中量区	1	6.63	0.29	148	27	18	12.0	58.5%	67	0.91	0.09
	2	7.09	0.39	156	35	25	11.4	69.1%	61	0.77	0.08
萩多量区	1	6.33	0.37	142	26	17	11.9	56.6%	62	1.03	0.11
	2	7.09	0.34	154	33	25	11.0	69.9%	52	0.60	0.07
可少量区	1	6.73	0.21	143	24	19	11.0	60.8%	57	0.84	0.08
	2	7.05	0.30	147	34	27	11.2	67.2%	64	0.58	0.06
可中量区	1	6.32	0.23	151	25	19	11.7	60.2%	65	0.94	0.10
	2	7.11	0.28	134	25	18	11.5	55.8%	54	0.51	0.06
可多量区	1	6.19	0.21	137	25	18	12.0	54.2%	60	1.01	0.10
	2	6.97	0.30	154	34	23	11.0	69.7%	60	0.68	0.07

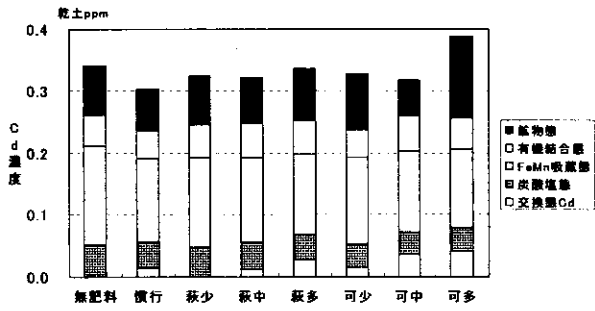


図25 ダイズ栽培後作土の形態別カドミウム濃度

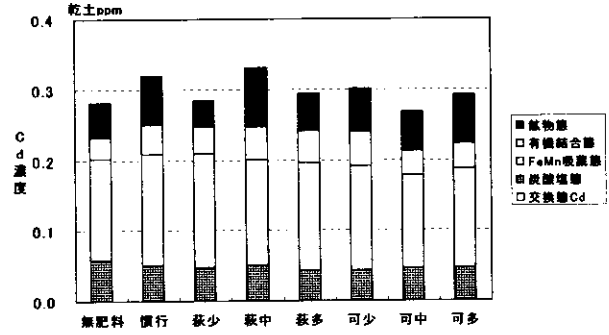


図26 ダイズ栽培後下層土の形態別カドミウム濃度

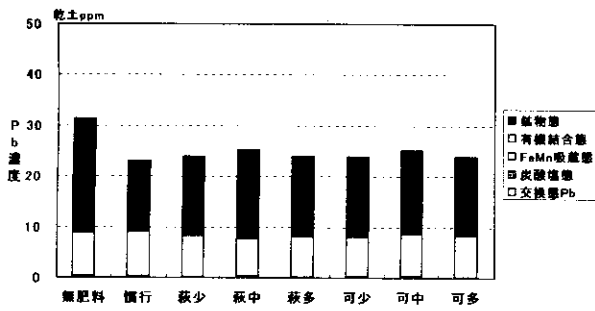


図27 ダイズ栽培後作土の形態別鉛濃度

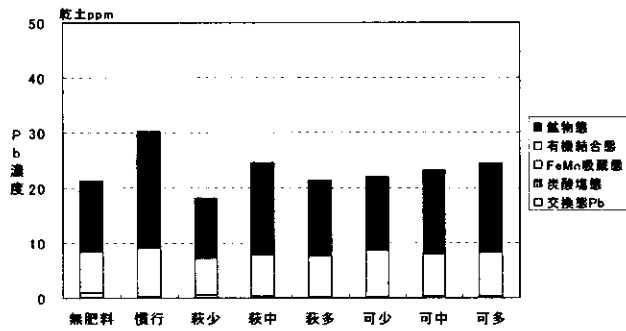


図28 ダイズ栽培後下層土の形態別鉛濃度

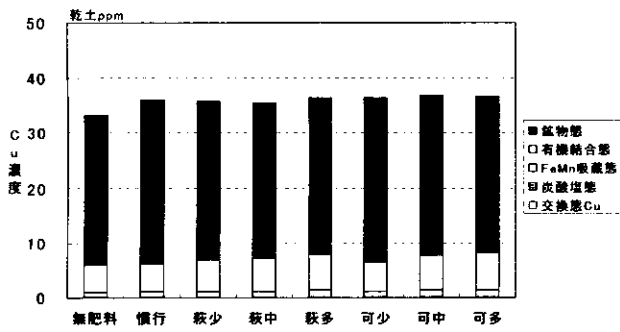


図29 ダイズ栽培後作土の形態別銅濃度

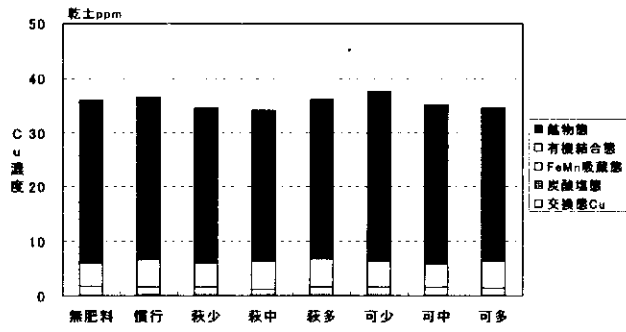


図30 ダイズ栽培後下層土の形態別銅濃度

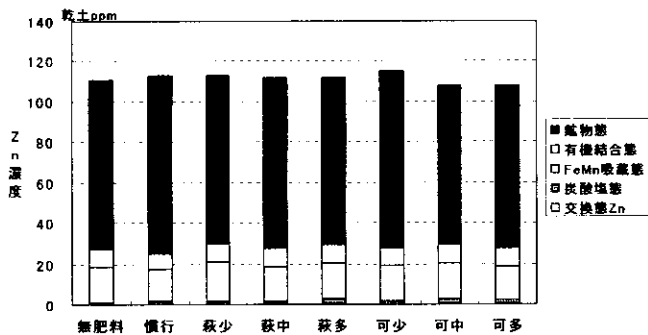


図31 ダイズ栽培後作土の形態別亜鉛濃度

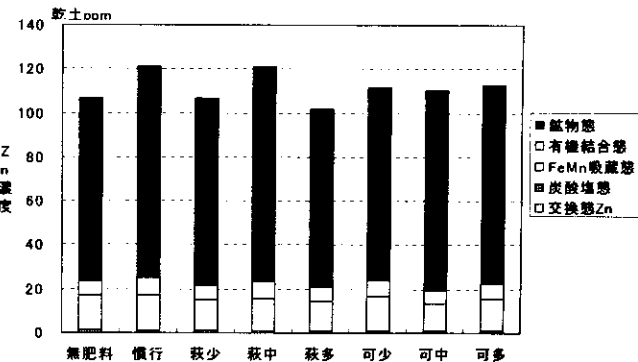


図32 ダイズ栽培後下層土の形態別亜鉛濃度

ドミウムとの間には負の相関が認められ、pHの低下に伴い交換態カドミウムが増加する傾向であった。また、交換態カドミウム含量がほぼ等しい慣行区と萩原中量区及び可児少量区のpHは近似した値であった。図34には栽培後土壌の塩基飽和度とpHとの関係を示した。このように栽培後土壌の塩基飽和度とpHとの間には明瞭に正の相関が認められたことから、汚泥施用区及び慣行区で見られる土壌pHの低下は塩基の溶脱によるものと考えられた。

以上のように汚泥連用跡地で栽培されたダイズの子実中カドミウム及び鉛の含量には過去の汚泥の施用量の影響はみられなかったが、ダイズ収穫後土壌においては過去の汚泥の施用量が増えるにしたがって交換態カドミウムが増加する傾向がみられ、これには汚泥の連用過程において土壌塩基が流亡したことによる土壌pHの低下が大きく影響しているものと考えられた。これらのことから作物の窒素要求量を超えた多量施用・連用を行うと、土壌塩基の流亡等によるpHの低下を来し、場合によっては作物の重金属吸収が高まる可能性が示された。

6. 汚泥の重金属含量の化学肥料との比較

[材料及び方法]

汚泥及び各種肥料のカドミウム・鉛・銅・亜鉛の含量を比較した。

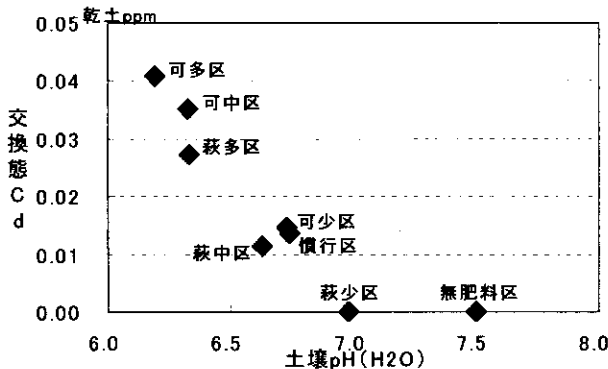


図33 ダイズ栽培後作土の土壌 pH と交換態カドミウム

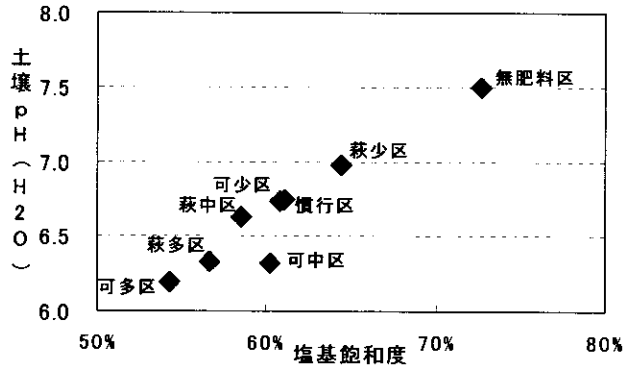


図34 ダイズ栽培後作土の塩基飽和度と土壌 pH

(1) 供試材料

萩原汚泥及び可児汚泥、化成肥料 A (5-5-5) 同 B (14-18-14) 及び同C (10-15-10)、過磷酸石灰、苦土重焼燐の計7資材

(2) 分解・定量方法

硝酸-過塩素酸抽出により湿式分解し分解液を適当に希釈して原子吸光度計(日立Z-5000)により定量した。

[結果及び考察]

(1) 汚泥と各種肥料に含まれる重金属濃度と形態

図35から図38に、供試肥料の重金属濃度を示した。汚泥のカドミウム含量は化成肥料に比べ低く、磷酸肥料では重焼燐のカドミウム含量が高かったが過磷酸石灰のカドミウム含量は他の肥料に比べ低かった。重焼燐の鉛含量は高く、他の肥料では萩原汚泥、可児汚泥及び化成Aで比較的鉛濃度が高かった。汚泥の銅・亜鉛の含量は供試肥料の中では極めて高かった。

(2) 汚泥と各種肥料の重金属の持ち込み量

表10から表13に、それぞれの肥料の主成分含量と主成分1%につき圃場に持ち込まれる重金属の量を示した。ここでは汚泥は窒素肥料として換算した。これによればカドミウムの持ち込み量は両汚泥とも他の肥料とほぼ同等であった。鉛については供試肥料中、比較的肥料成分含量が低い萩原汚泥、可児汚泥及び化成Aがやや高い部類に属した。銅及び亜鉛は汚泥の含量・持ち込み量ともに極めて高く、化成肥料Aがこれに次いだ。

以上のように汚泥に含まれる全窒素ベースの比較では、汚泥施用に伴う銅及び亜鉛の持ち込み量は市販の化学肥料より多く、カドミウム及び鉛の持ち込み量は市販の化学肥料とほぼ同等であった。

総合考察

1. 窒素肥料としての農業集落排水汚泥

農業集落排水汚泥は現在のところ窒素肥料としての利用が見込まれている。乾燥方法としては主として機械乾燥と天日乾燥の二方法が用いられるが、本研究の結果によれば機械乾燥汚泥は水分及び窒素のバラツキがやや大きく、また天日乾燥汚泥は含有する窒素の無機化がやや遅い特徴がある。

水稻への施用については、湛水培養実験の結果から基肥としての無機化率は約50%と考えられ、圃場での連用試験の結果からもこれが施用量の目安として概ね妥当であると判断できる。ただし施用直後にやや急激に窒素が無機化し、その後生育後半まで肥効が続くため穂数の確保は比較的容易であるが、品種や作期によっては出穂以降の窒素肥効により食味低下や倒伏を助長する懸念があり、汚泥は水稻にとって必ずしも好適な窒素肥料とは言

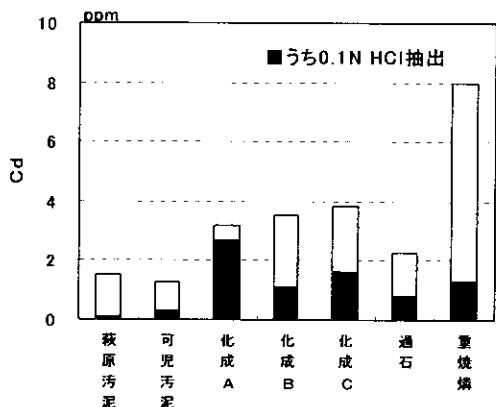


図35 供試汚泥と市販肥料のカドミウム含量

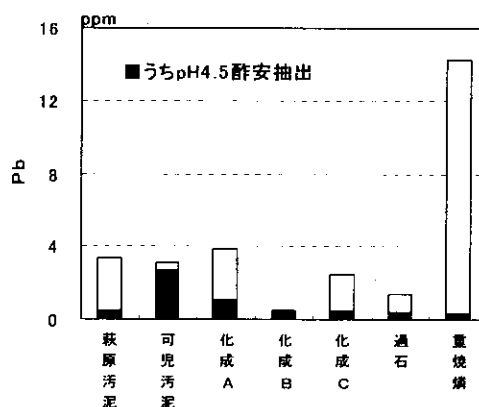


図36 供試汚泥と市販肥料の鉛含量

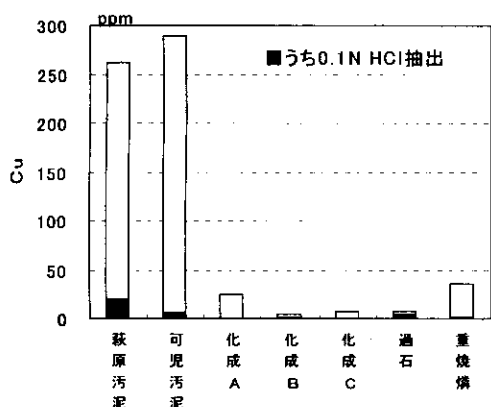


図37 供試汚泥と市販肥料の銅含量

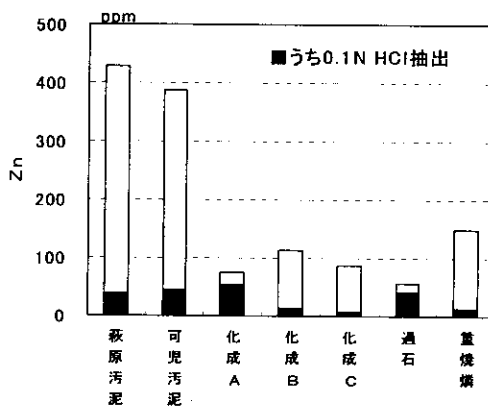


図38 供試汚泥と市販肥料の亜鉛含量

表10 供試汚泥と市販肥料の主成分1%当たりのカドミウム含量

Sample	硝酸-過塩素酸抽出Cd	主成分	%	ppm/主成分%
萩原汚泥	1.52	N	6	0.27
可児汚泥	1.28	N	6	0.22
化成A	3.16	N	5	0.63
化成B	3.55	N	14	0.25
化成C	3.84	N	10	0.38
過石	2.29	P2O5	18	0.13
重焼燐	8.00	P2O5	35	0.23

表11 供試汚泥と市販肥料の主成分1%当たりの鉛含量

Sample	硝酸-過塩素酸抽出Pb	主成分	%	ppm/主成分%
萩原汚泥	3.40	N	6	0.60
可児汚泥	3.12	N	6	0.55
化成A	3.88	N	5	0.78
化成B	0.50	N	14	0.04
化成C	2.46	N	10	0.25
過石	1.37	P2O5	18	0.08
重焼燐	14.25	P2O5	35	0.41

表12 供試汚泥と市販肥料の主成分1%当たりの銅含量

Sample	硝酸-過塩素酸抽出Cu	主成分	%	ppm/主成分%
萩原汚泥	262.00	N	6	46.54
可児汚泥	289.00	N	6	50.97
化成A	24.50	N	5	4.90
化成B	4.50	N	14	0.32
化成C	8.00	N	10	0.80
過石	7.50	P2O5	18	0.43
重焼燐	34.75	P2O5	35	0.99

表13 供試汚泥と市販肥料の主成分1%当たりの亜鉛含量

Sample	硝酸-過塩素酸抽出Zn	主成分	%	ppm/主成分%
萩原汚泥	429.00	N	6	76.20
可児汚泥	386.00	N	6	68.08
化成A	75.50	N	5	15.10
化成B	114.00	N	14	8.14
化成C	87.00	N	10	8.70
過石	55.75	P2O5	18	3.19
重焼燐	149.00	P2O5	35	4.26

い難い。また1作当たりの汚泥の施用量が含有する窒素の無機化率から判断して適量であっても、施用した年に無機化せず土壌に蓄積する窒素分によって翌年以降の肥培管理に影響する可能性があることから、同一水田への連用にあたってはこれらを考慮する必要がある。

畑作物への施用については、培養実験の結果から汚泥の窒素無機化率は冬期以外は概ね1ヶ月で30%~40%と判断できるため、これを目安に有機質の窒素肥料として使用できる。ただし汚泥の種類によっては多少の臭気を伴うので、他の有機質肥料と同様に栽培する作物によってはタネバエ等の発生に注意する必要がある。

2. 供試汚泥によるカドミウムと鉛の持ち込み

カドミウムについては、還元状態では土壌中の硫黄と化合して難溶性の硫化カドミウムとなるため、還元状態を保つことにより水稻のカドミウム吸収が抑えられることが報告されている²³⁾。本研究においても比較的還元状態を保つ通常の水管理と節水管理を汚泥の連用田で行い、節水管理によって玄米中カドミウム濃度は最大で10倍程度に上昇したが、玄米中カドミウム濃度と汚泥の施用量とは関連が認められなかった。すなわち、水田土壌においては水稻のカドミウム吸収に対しては水管理の影響が大きく、水稻に対する窒素肥料としての施用量の範囲内では汚泥施用に伴うカドミウムの持ち込みは問題とはならないと考えられた。

畑状態でのカドミウム吸収に対する汚泥施用の影響は認められなかった。汚泥連用跡地の土壌においては汚泥の施用量の増加に伴って作物が吸収しやすいと考えられる交換態カドミウムが増加していたが、前述のように、これは汚泥に含まれるカドミウムに由来する土壌汚染ではなく、汚泥施用量の増加に伴う塩基の溶脱によって土壌pHが低下し、土壌中のカドミウムが可溶化したことによるものと考えられ、通算で萩原汚泥で約5 t以下、可児汚泥で約8 t以下の施用量では汚泥に由来するカドミウムの持ち込みによる土壌汚染のおそれは少ないと考えられる。鉛については土壌中濃度、作物体濃度ともに汚泥の施用量との関係は認められず、今回供試した汚泥については鉛についても土壌を汚染する可能性は低いと考えられた。

以上は作物の窒素要求量を超えた多量施用の結果であり、さらに全窒素当たり含量でカドミウム・鉛の持ち込み量を市販の化学肥料と比較した結果においても、汚泥由来のこれらの金属の持ち込み量は化学肥料と同等以下であったことから、供試した汚泥は通常窒素肥料としての施用量の範囲内では、カドミウム及び鉛の持ち込みに関して問題が発生する可能性は低いと結論づけられる。

3. 交換態カドミウムの抽出法

土壌の可吸態カドミウムについては厳密には植物種によって吸収する形態が異なることが予想され、現状では不明の点が多いが、中性塩溶液で抽出されるいわゆる交換態カドミウムは土壌に含まれるカドミウムの中で最も植物に吸収されやすい画分と考えられる。

土壌あるいは有機物中の重金属の交換態画分の抽出については、0.05Mの塩化カルシウム³⁾、1M硝酸カリウム⁴⁾、0.05M硝酸カルシウム⁵⁾、1M硝酸アンモニウム⁶⁾等の報告がある。本研究では石灰系下水汚泥の連用土壌から逐次抽出を行った岡本¹⁾の方法に準じて交換態画分を抽出し、抽出試薬としてはpH7の1M塩化アンモニウムを使用した。土壌の1M塩化アンモニウム抽出カドミウムはダイズ子実のカドミウム濃度と高い相関が認められている⁷⁾ことから、本法は土壌中の可吸態カドミウムの一評価法として有望と考えられるが、塩化物溶液を交換態カドミウムの抽出に用いるとCl⁻が土壌中の交換態以外の形態のカドミウムと錯体を形成して抽出されるため、交換態カドミウムが過大に評価されるとの指摘^{5) 8)}がある。筆者も同一土壌からの塩化アンモニウム抽出カドミウムは硝酸アンモニウム抽出カドミウムより過大に抽出されることを確認しており、交換態カドミウムの抽出には硝酸カルシウム、硝酸アンモニウム等の塩化物以外の溶液を用いるのが適当であると考えられる。

4. 汚泥の公定規格と重金属の負荷リスク

農業集落排水汚泥は磷酸肥料としても利用が可能であるので、その場合の安全性についてカドミウムを例に一般の磷酸肥料と比較した。磷酸鉱石の中には比較的高濃度のカドミウムが含有されることが知られており⁹⁾、磷酸肥料について、肥料取締法では保証磷酸形態に応じ、主成分たる磷酸1%につき1.5ppm以下という規制値が設けられている。この値は肥料が含有する磷酸当たりの含量であるので、磷酸含量が高ければ許容されるカドミウム濃度も高くなる。一方、農業集落排水汚泥は肥料取締法においてはし尿汚泥肥料に該当し、含まれるカドミウムの規制値は乾物換算で一律0.5ppmとなっている。これは磷酸肥料とは異なり含まれる肥料成分とは無関係である。図39に両者の規制値の関係を示した。磷酸肥料の磷酸の含量は実際にはこの図に示した範囲より遙かに高いが、公定規格からの単純計算では、例えば3%の磷酸を含有していれば4.5ppmまでカドミウムを含有できることになり、これは図39では右上がりの直線の右側のエリアに当たる。今回供試した二汚泥はいずれもこのエリア内に位置したが、し尿汚泥肥料のカドミウムの規制値は磷酸含量に関係なく5ppm固定であるから、磷酸含量が相対的に低くカ

ドミウム含量が高いものは図39の右上がりの直線より左側のエリアに入る可能性がある。ここに位置する汚泥のカドミウム濃度は5ppm以下であるので公定規格を満たしているが、磷酸源として施用した場合に一般の磷酸肥料よりカドミウムの持ち込み量が多くなる計算になる。

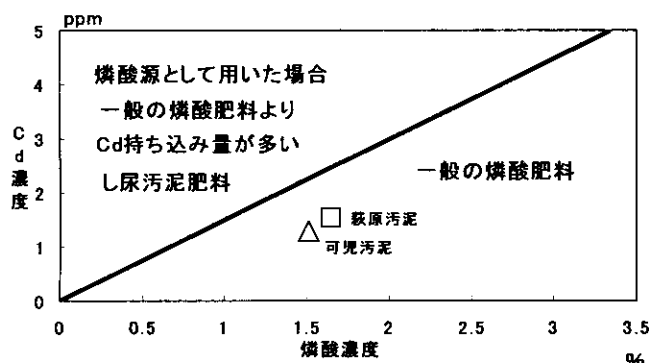


図39 肥料取締法におけるし尿汚泥肥料と磷酸肥料のカドミウム含量の規制値

また窒素肥料としての農業集落排水汚泥は、含有する全窒素当たりのカドミウム含量の比較では、今回供試した二汚泥については市販の化成肥料と同等以下であった。しかし培養実験からも明らかなように、有機質の窒素肥料は含有窒素の無機化率が100%ではないために窒素換算で化学肥料よりも多くの量が必要であり、今回供試した汚泥の例で言えば、例えば葉菜類のように比較的短期間の肥効を得ようとする場合には全窒素で化学肥料の3倍程度の量が要求される。このように汚泥を窒素肥料として使う場合には、施用に伴う重金属の持ち込み量は無機化率を加味した施用量をベースに考える必要があり、施用量は求める肥効期間すなわち作物の種類によって異なってくる。

以上のように、し尿汚泥肥料の公定規格では汚泥の含有する肥料成分や施用目的、施用法等については全く考慮されていないため、公定規格を満たした農業集落排水汚泥であっても、実際の施用場面では同じ肥効を持つ化学肥料より重金属の持ち込み量が多くなるケースも考えられる。農地への重金属の持ち込み量が絶対値としてどの程度まで許容されるのかという判断は根拠となる知見に乏しいため現状では非常に困難であるが、折しもコーデックス委員会においては食品中の重金属含量の新たな基準値を策定中であり、肥料や資材に含まれる重金属の農地への持ち込みに対しても、将来的には現状よりさらに厳しい歯止めが必要となる可能性もある。農業集落排水汚泥の農地還元にあたっては、肥料取締法上の登録を受けたものを使用するのは勿論であるが、さらに含有する重金属について具体的な汚泥の施用目的や施用法を想定した、慎重なリスク評価を行う必要がある。

謝 辞

本研究の実施に当たり、萩原町役場水環境課並びに飛騨地域益田農業改良普及センター、可児市水道部下水道課、金山町役場環境課、川上村役場建設課、平田町役場水道課並びに株式会社日本環境管理センター、前澤工業株式会社の各位には、汚泥サンプルの入手に際し多大なるご協力をいただきました。ここに記して心から感謝の意を表します。

引用文献

- 1) 岡本保：石灰系下水汚泥の長期連用により土壌に蓄積する重金属の存在形態と挙動，土肥誌. 71, 231-242 (2000)
- 2) 伊藤秀文・飯村康二：水稻によるカドミウムの吸収・移行および生育障害，北陸農試研報. 19, 112-120 (1976)
- 3) 浅見輝男・平田熙・能川浩二：土壌・植物・人体におけるカドミウムの挙動，土肥誌. 57, 521-531 (1986)
- 4) 鎌田賢一・南松雄：下水汚泥中の重金属の形態，土肥誌. 52, 385-391 (1981)
- 5) 定本裕明・飯村康二・本名俊正・山本定博：土壌中重金属の形態分別法の検討，土肥誌. 65, 645-653 (1994)
- 6) 久保井徹・野口章・矢崎仁也：硝酸アンモニウムによる可給態カドミウム抽出法の有効性と限界，土肥誌. 60, 22-28 (1989)
- 7) 袖垣一也・矢野秀治：ダイズ子実中カドミウムと土壌中カドミウム形態，土肥学会中部支部第82回例会講要, 82, 50-51 (2002)
- 8) 伊藤秀文・飯村康二：水田土壌中における重金属の行動と収支，北陸農試研報, 21, 119-120 (1978)
- 9) 越野正義編：詳解肥料分析法 201-202 (1988)

ABSTRACT

Dry rural sewerage sludge has a similarity of the nitrogen mineralization to the chicken manure. It is available as a nitrogen fertilizer if (or as) the mineralization rate of the included nitrogen is expected from 30 to 50 percent.

However, the sludge contains higher concentration of copper and zinc than a common chemical fertilizer. The use as fertilizer in the same farmland with much volume or annually requires many cautions. In addition, it contains cadmium and lead, too. But there was no problem about the farmland contamination as both content ratio per nitrogen was comparatively low in this study.

KEYWORDS

rural sewerage sludge, mineralization rate of nitrogen, heavy metal