



Title	下水汚泥焼却灰の農地利用に関する研究
Author(s)	早川, 修
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(農学)
Dissertation Number	乙第3916号
Issue Date	1991-03-25
DOI	https://doi.org/10.11501/3052875
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/49665
Type	doctoral thesis
File Information	000000238026.pdf



下水汚泥焼却灰の
農地利用に関する研究

早 川 修

①

下水汚泥焼却灰の 農地利用に関する研究

早川 修

1990年

下水汚泥焼却灰の農地利用に関する研究

目次

	頁
第 1 章 緒論	1
第 2 章 供試下水汚泥材料の性質および加熱焼却処理が汚泥の化学性に及ぼす影響	28
第 1 節 供試下水汚泥材料の化学的性質	28
第 2 節 供試下水汚泥が含有する磷酸の形態	34
第 3 節 供試下水汚泥が含有する重金属の形態	36
第 4 節 焼却処理による下水汚泥吸着重金属の難溶化	39
考 察	43
第 3 章 下水汚泥およびその焼却灰施用が土壌の化学性に及ぼす影響	47
第 1 節 下水汚泥およびその焼却灰施用が土壌の pH, EC, 水溶性イオンおよび交換性塩基含量に及ぼす影響	47
第 2 節 下水汚泥およびその焼却灰施用土壌中の形態別磷酸含量の経時変化	54
第 3 節 下水汚泥およびその焼却灰施用土壌中の可溶性重金属量の経時変化	59
第 4 節 抽出液の塩酸濃度が下水汚泥およびその焼却灰施用土壌中の溶出金属量に及ぼす影響	67
考 察	74

第 4 章 下水汚泥焼却灰施用が作物生育に及ぼす影 響	82
第 1 節 下水汚泥とその焼却灰における肥料的効 果の比較	82
第 2 節 下水汚泥焼却灰の多量施用が作物生育と 各種元素の吸収に及ぼす影響	89
第 3 節 汚泥および焼却灰多量施用下における作 物生育	95
考 察	99
第 5 章 総合考察	115
要 約	131
謝 辞	135
引用文献	136

表 一 覧

	頁
第1表 わが国における下水汚泥の処分状況 (1986.4.1~1987.3.31) -----	10
第2表 わが国における下水汚泥の有効利用実施状況 (1986.4.1~1987.3.31) -----	10
第3表 供試試料の理化学的特性 -----	31
第4表 供試試料中の各種元素の全含量 (乾物当たり) -----	32
第5表 供試試料中の水可溶性成分量 (乾物当たり) -----	33
第6表 供試試料中の形態別磷酸含量 ($\text{mg}\cdot\text{P}_2\text{O}_5/\text{g}$, 乾物当たり) -----	35
第7表 汚泥収着重金属の各形態別含量 ($\mu\text{g}/\text{g}$, 乾物当たり) -----	42
第8表 供試土壌(ローム質褐色火山性土B, 風乾細土)の理化学的特性(乾土当たり) ---	47
第9表 土壌培養実験に供試した資材の施用量 (乾物当たり) -----	48
第10表 土壌培養実験における分析項目と分析方法 (風乾土について分析) -----	48
第11表 施用資材中の各形態磷酸の割合と資材施用区の全磷酸 増加量に占める各形態磷酸増加量の割合 (乾土当たり) -----	57
第12表 各種有機資材施用区における有機磷含量と無機化率 (乾土当たり) -----	58
第13表 各区における平均重金属全含量 ($\text{mg}/\text{kg}\cdot\text{乾土}$) -----	60
第14表 各抽出塩酸濃度における溶出液 pH -----	68
第15表 各処理区の構成 -----	83
第16表 エンバク地上部の生長量と多量要素含有率 (乾物当たり) -----	84
第17表 エンバクの重金属含有率 (ppm, 乾物当たり) -----	86
第18表 各処理区の構成 -----	90
第19表 エンバク地上部の生長量と多量要素含有率 (乾物当たり) -----	91
第20表 磷酸施用資材を施用して5日後の土壌溶液組成 -----	92
第21表 エンバクの重金属含有率 (ppm, 乾物当たり) -----	94
第22表 コマツナ地上部の乾物重と多量要素含有率 (乾物当たり) -----	96
第23表 オオムギの部位別乾物重と多量要素含有率 (乾物当たり) -----	97
第24表 コマツナの重金属含有率 (ppm, 乾物当たり) -----	98
第25表 オオムギの部位別重金属含有率 (ppm, 乾物当たり) -----	99
第26表 化学肥料, 汚泥および焼却灰に含有するN・P・Kの エンバクによる利用率と代替率 -----	101

図 一 覧

	頁
第1図 わが国における下水汚泥発生量の経緯(体積基準)-----	6
第2図 わが国における下水汚泥発生量の経緯(脱水汚泥乾燥固形物の重量基準に換算) --	8
第3図 汚水・汚泥処理のフローシート-----	29
第4図 Mn, Zn, Cuにおける全含量に対する各画分量の割合-----	37
第5図 Cr, Pb, Niにおける全含量に対する各画分量の割合-----	38
第6図 重金属添加汚泥の収着重金属分別方法-----	41
第7図 焼却処理に伴う汚泥収着重金属量に対する各画分量の割合の変化-----	42
第8図 各区におけるpHおよびECの経時変化-----	49
第9図 各区における水溶性イオン含量(乾土当たり)の経時変化-----	51
第10図 各区におけるCEC, 交換性塩基含量および塩基飽和度(乾土当たり) の経時変化-----	53
第11図 各区における形態別磷酸含量(乾土当たり)の経時変化-----	56
第12図 各区におけるDTPA可溶のFe, Mn, Zn量(乾土当たり)の経時変化---	61
第13図 各区におけるDTPA可溶のCu, Pb量(乾土当たり)の経時変化-----	62
第14図 各区における0.1N-塩酸可溶のFe, Mn, Zn量(乾土当たり)の経時変化--	63
第15図 各区における0.1N-塩酸可溶のCu, Pb, Cr量(乾土当たり)の経時変化--	64
第16図 資材施用区のDTPAによるMn, Zn, Cu抽出率(乾土当たり) の経時変化-----	66
第17図 資材施用区の0.1N-塩酸によるMn, Zn, Cu抽出率(乾土当たり) の経時変化-----	67
第18図 各抽出塩酸濃度における溶出液pHとFe溶出量(乾土当たり)の関係-----	70
第19図 各抽出塩酸濃度における溶出液pHとMn溶出量(乾土当たり)の関係-----	71
第20図 各抽出塩酸濃度における溶出液pHとZn溶出量(乾土当たり)の関係-----	72
第21図 各抽出塩酸濃度における溶出液pHとCu溶出量(乾土当たり)の関係-----	73
第22図 汚泥併用と焼却灰併用によるエンバク地上部の重金属吸収の比較-----	107
第23図 汚泥併用と焼却灰併用によるエンバク根部の重金属吸収の比較-----	108
第24図 焼却灰施用によるZn施用量とエンバクのZn含有率の関係-----	110
第25図 焼却灰施用によるCu施用量とエンバクのCu含有率の関係-----	111
第26図 焼却灰施用によるCr施用量とエンバクのCr含有率の関係-----	112

第 1 章 緒 論

わが国の1988年度における下水道普及率は、総人口の39%であり⁶⁰⁾、イギリス：95%（1982年）、西ドイツ：91%（1983年）、アメリカ：73%（1986年）等の欧米先進国に比較すると著しく遅れている。しかも、下水道の整備状況には大都市と地方都市の間に大きな格差があり、政令指定都市では下水道普及率が80%弱であるに対し、その他の一般都市では20%程度に過ぎない。特に、人口10万人未満の都市における普及率は10%にも満たない。しかし、下水道は快適な生活環境を築く上で不可欠なものであり、わが国における下水道普及率は着実に上昇していることから、今後は中小都市を中心に益々普及して行くものと考えられる。このような下水道の普及および環境問題を重要視する世論の要請を背景とした汚水処理の高度化に伴い、下水汚泥の発生量も増加の一途を辿り、1988年には2,065千 m^3 に達し⁶⁰⁾、その処分が問題となっている⁵³⁾。

わが国は肥料資源に乏しく、そのほとんどを輸入に頼っていることから、廃物利用による資源再循環の必要性が指摘されている¹¹⁸⁾。下水汚泥は、多量の有機物を含み、窒素やリン酸に富んでいるので、農耕地（農地）や公園、ゴルフ場等の緑地に肥料として還元する方法が肥料資源を節約し、有効利用するために望ましいと考えられる。農地は食物や飼料を生産する場であり、緑地とは性格を異にするため、後に述べる様々な理由から下水汚泥の農地利用は必ずしも順調に行なわれておらず、下水汚泥の多くは焼却処理をされた後に、焼却灰として埋立等に処分・利用されているのが実態である。

一方、世界のリン資源の枯渇が危惧されている^{5, 32)}。リン資源が不足

して磷酸肥料の供給が減少する場合には、世界の農業生産は著しく減じ、世界の人口を支えることはできなくなるであろう。世界の人口は発展途上国を中心に依然として増加しており、その食糧を供給するためには、農業生産を増加することが不可欠である。そのためには化学肥料の増産が必須となる。しかし、現在使用されているような良質の磷鉱石は、今後数十年でそのほとんどが消費しつくされ、低品質の磷鉱石やそれ以外の磷資源の活用が必要であるとの予測がなされている⁵⁾。磷資源の再循環を図る上で、磷を豊富に含む下水汚泥の農地における利用を積極的に進める必要がある。

下水汚泥焼却灰は、含有する有機物が燃焼揮散するために、窒素質肥料としての肥効は期待できないが、磷酸は濃縮されるので、磷酸質肥料としての活用が期待できる。窒素資源は、空気中の窒素を固定できる限り、枯渇の心配はない。空気中の窒素の固定には、現在化石燃料が使用されているが、化石燃料は磷資源ほど枯渇が逼迫しておらず、将来、新エネルギーの利用あるいはバイオマスの利用によって窒素が固定できる可能性もある。これに対し、磷資源は新たに製造することが困難であり、廃棄物等から回収する以外に方法がない。

そこで、筆者は下水汚泥焼却灰の磷酸質肥料としての肥効、および、焼却灰の施用が土壌に与える影響を明らかにし、農地（特に畑地）における焼却灰の有効利用法を確立することを目的として研究を実施した。

研究実施に先立ち、この課題に関連した下水汚泥の農地利用に関する知見を総合的に検討する必要があると考え、以下にその概要を紹介し、下水汚泥の農地利用に残された問題を指摘する。

1. 下水汚泥農地利用の歴史的経緯

下水および下水道とは、下水道法により次のように定義されている。すなわち、下水とは”生活若しくは事業に起因し、若しくは付随する廃水（以下、汚水という）または雨水をいう”であり、下水道とは”下水を排除するために設けられる排水管、排水渠その他の排水施設（灌漑排水施設を除く）、これに接続して下水を処理するために設けられる処理施設（し尿浄化槽を除く）またはこれらの施設を補完するために設けられるポンプ施設その他の施設の総体をいう”である。

わが国は、古来より農業が経済的な基盤であって、極めて最近までし尿を有力な肥料として農地に還元してきた。し尿を堆積しておくために、便所の構造は汲み取り式であり、溝渠にし尿が流出することはなかった。その結果、河川や堀あるいは水路等の環境水系を汚濁する程度が比較的軽微であった。これらの事情が主な原因となり、汚水の排除を目的とした下水道施設の発達が欧米諸国に比べて遅れた。しかし、道路側溝の様な下水道の概念は、遠く弥生時代から存在しており、雨水の排除を目的とした下水道整備は江戸時代までに全国各地で行なわれていた。そして、明治時代に入ってから近代的下水道が造られた。

下水の排除が円滑に行なわれなければ、雨水による浸水や停滞した汚水による衛生環境の悪化の原因となる。このため、1900年に下水道法が制定されたが、東京や大阪ではそれ以前にも下水道事業として溝渠や污水管が築造されていた。しかし、1900～1910年代における下水道は下水排除を目的としたものであり、汚水を処理して放流する下水処理場は、1922年に完成した東京三河島処理場が最初で

あった。この処理場においては標準散水汙床方式が採用され、下水処理残渣としての下水汚泥が、わが国で初めて登場した。続いて、1930年にはわが国最初の活性汚泥方式の処理場である名古屋市堀留および熱田の両処理場が運転を開始した。

下水処理場が稼働すると同時に、下水処理汚泥の農業利用に関する研究も着手された。三河島処理場の汚泥については、麻生⁶⁾が「東京市下水道改良実施調査報告書」の第7章「沈渣処理ニ関スル報告」の中で詳細に検討している。それによると、肥料として速効性のあるアンモニア態窒素は極めて少なく、硝酸態窒素は痕跡程度であるが、徐々に分解して肥効を呈すであろうこと、リン酸は大部分が不溶態であり、有効態リン酸量は極めて少ないこと、カリ含量が0.4%と少ないこと、主として窒素質肥料として利用すべきであることなどが述べられている。さらに、鉢試験、圃場試験、農家への依頼試験も行なって、農作物に対する有効性が確認されている。特に注目すべき点は、汚泥を農業利用するにあたり、肥効および使用方法について農家に指導宣伝する必要性と汚泥を簡便に経済的に運搬する方法についての調査研究の必要性を指摘していることである。

活性汚泥法による処理汚泥の農業利用については、平井⁴³⁾が大都市における大量の汚泥発生を予測し、その肥効は菜種油粕等に比べても遜色が無いことを報告した。林ら³⁹⁾は汚泥の肥料的価値に着目し、合理的な施用法の確立を要請した。鹽入ら¹⁰⁶⁾はオオムギ、水稻およびコマツナに対する汚泥の窒素的肥効を詳細に検討した。その当時の名古屋市では、汚泥から製造された肥料の成分保証を肥料取締規則によって行い、汚泥肥料は農村組合や農業団体を通じて販売されおり、この方式は1960年代前半まで続いていた⁵¹⁾。

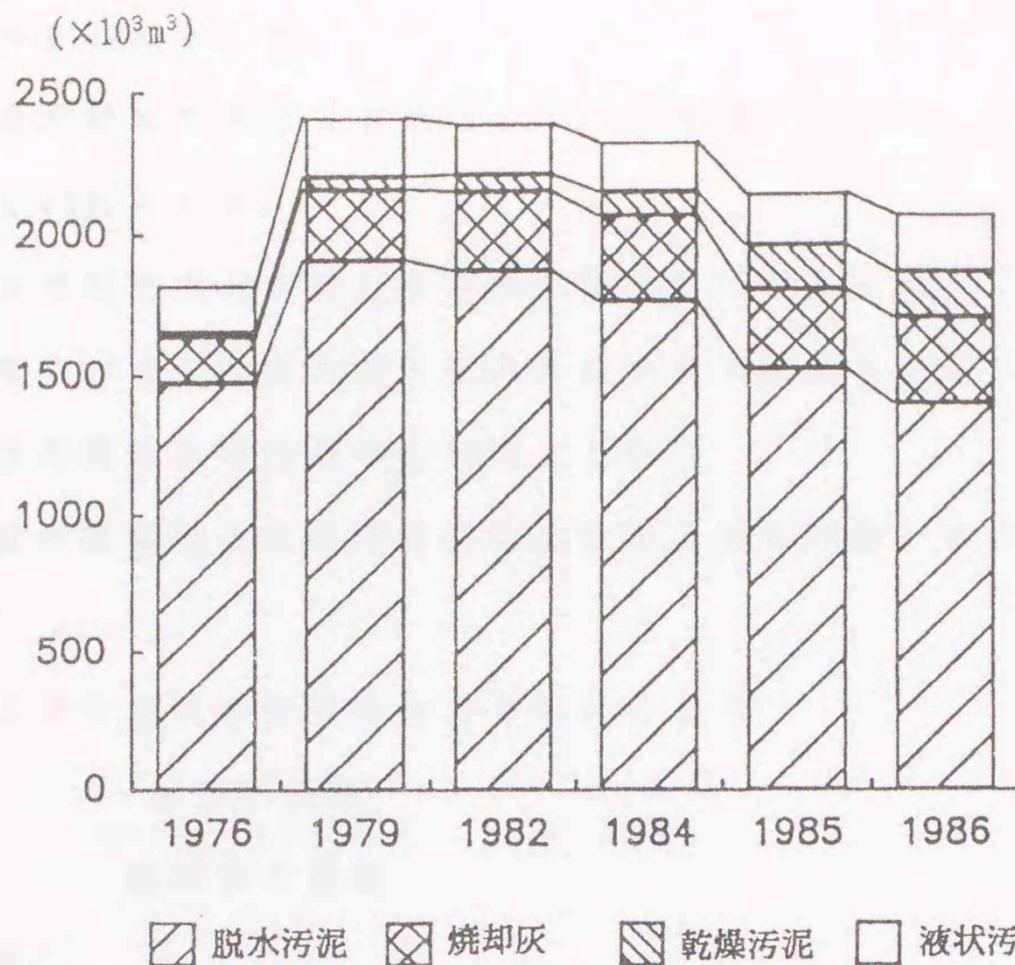
しかし、その後は高度経済成長期に入り、いわゆる三ちゃん農業に示される農業人口の減少、安価な化学肥料の普及等の理由から下水汚泥の農業利用は進まなかった。一方、この時期は下水道が人口の密集地区を中心に普及し、汚泥の発生量が急激に増加した時期でもある。多量の下水汚泥の処分が大きな問題となり、1968年度から建設省が土木学会に「下水汚泥の農業利用に関する調査研究」を委託し、農業利用に対する本格的な調査研究が開始された¹⁹⁾。さらに、1973年の第一次石油危機とそれに続く1979年の第二次石油危機を契機として省エネルギー、省資源が大きく叫ばれるようになった。また、化学肥料の多投による弊害を指摘する「土づくり」運動の台頭が、土壌への有機物の施用を促したことによって、有機質下水汚泥の農地利用に関する研究は大きな「追い風」を受け、今日に至っている。

2. 下水汚泥発生量の現状

わが国における最近10年間の下水汚泥発生量の経緯を第1図に示した。この図は、建設省都市局下水道部から毎年発表されている資料⁶⁰⁾を基に作図したものである。単位は体積基準で表わされ、最終処分時の処理性状別に分けられており、コンポストは乾燥汚泥の中に含まれている。この図から次のことが指摘できる。

[1]下水汚泥の発生量は1976年から1979年にかけて増加し、その後は減少している。この要因として、汚泥の脱水技術が進歩したことによる水分含有率の低下、および高分子凝集剤の進歩による凝集剤添加量の減少等が挙げられる。

[2]消化・濃縮汚泥は、体積基準で表わした場合、乾燥汚泥よりも



第1図 わが国における下水汚泥発生量の経緯(体積基準)

高い比率を占めているが、この形態は液状汚泥であり、水分含有率が著しく高いため固形分含量は低い。したがって、下水汚泥の最終処分時の形態は、脱水処理工程を経たものが主体である。

第1図は体積基準で示したものであり、前記の[2]でも触れたように発生した汚濁成分の固形物量を反映したものとはいえない。また、焼却灰は有機汚濁物質が燃焼揮散しているために、脱水汚泥ベースと比較して体積が1/8~1/10程度に減少している。そこで、以下の仮定に基づき乾燥固形物の重量基準に換算し、第2図に示した。

1. 脱水汚泥の水分含有率(含水率)を80%とした。
2. 焼却灰は運搬時の飛散を防止するため加湿するので、その水分含

有率を30%とした。

3. 乾燥汚泥は作業性と飛散防止のため加湿するので、その水分含有率を40%とした。
4. 脱水汚泥を処分するときの密度を0.6 t/m³とした。
5. 焼却灰および乾燥汚泥を処分するときの密度を0.8 t/m³とした。
6. 液状汚泥の水分含有率を98%とした。
7. 汚泥の乾燥固形物中の有機物含有率（強熱減量）を70%とした。

ここでいう水分含有率は含水率のことで

$$\frac{\text{水分の質量}}{\text{湿潤物の質量}} \times 100$$

をいう。

換算式

* 脱水汚泥として処分した乾燥固形物量 =

$$[\text{体積基準での脱水汚泥量}] \times [(100 - \text{水分含有率}) / 100] \times$$

[脱水汚泥密度]

* 焼却処理を行った乾燥固形物量 =

$$[\text{体積基準での焼却灰量}] \times [(100 - \text{水分含有率}) / 100] \times [\text{焼却灰密度}] \\ / [(100 - \text{有機物含有率}) / 100]$$

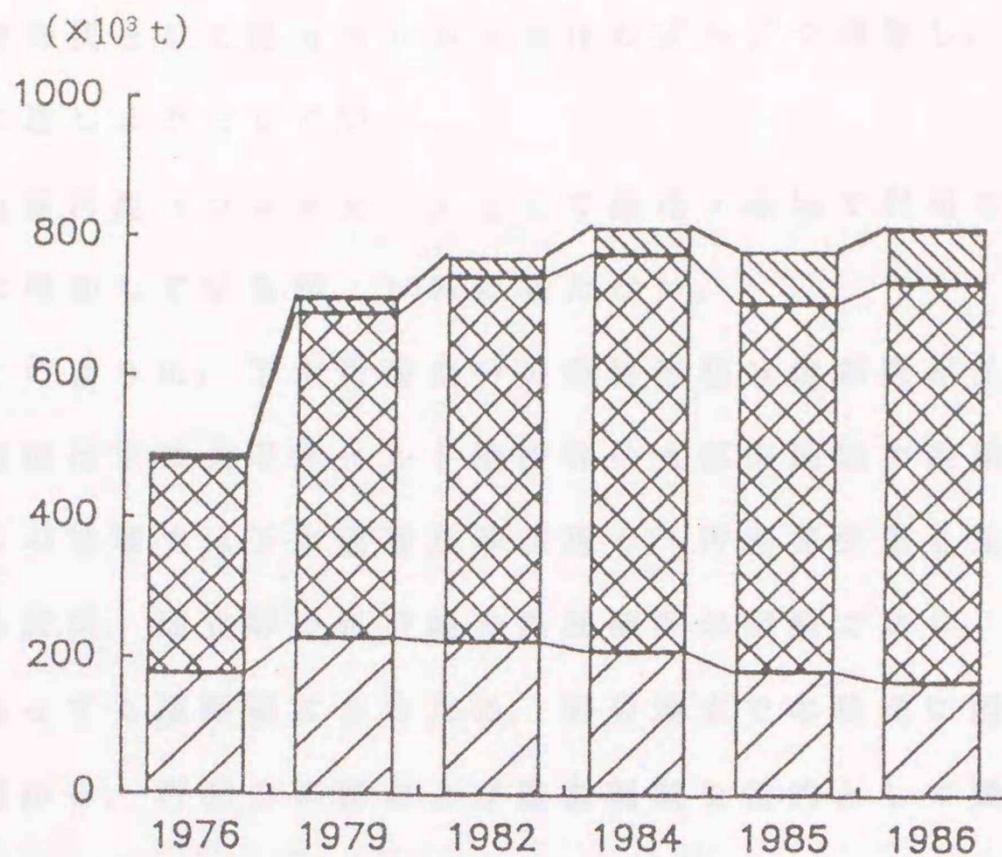
* 乾燥（コンポスト化）を行った乾燥固形物量 =

$$[\text{体積基準での乾燥汚泥量}] \times [(100 - \text{水分含有率}) / 100] \times$$

[乾燥汚泥密度]

* 液状汚泥として処分した乾燥固形物量 =

$$[\text{体積基準での液状汚泥量}] \times [(100 - \text{水分含有率}) / 100]$$



脱水汚泥
 焼却灰
 乾燥汚泥

第2図 わが国における下水汚泥発生量の経緯
(脱水汚泥乾燥固形物の重量基準に換算)

液状汚泥として処分した乾燥固形物量の割合は一定であり、ほとんど皆無に近かったので、作図対象から外した。第2図から以下のことが指摘できる。

[1]下水汚泥の発生量は、乾燥固形物の重量基準では、添加凝集剤の量が減っているにもかかわらず、年とともに増加している。この要因としては、下水道整備の進行および汚水の高度処理の実現による回収汚濁物質量の増加が考えられる。

[2]液状汚泥として処分される割合が、皆無に近かったことから、ほとんど全ての汚濁物質は脱水工程を経ている。

[3]脱水汚泥として処分される割合が年とともに減少し、1986年には20%まで減少した。

[4]焼却灰として処分される割合はわずかずつ増加し、1986年には70%に達しようとしている。

[5]乾燥汚泥（コンポスト）として農地・緑地で利用される割合は着実に増加しているが、10%に満たない。

以上のように、下水汚泥処分の最終形態は焼却灰が主流であり、焼却処理は主に太平洋ベルト地帯等の大都市地域で採用されている。これらの地域では下水道普及率が高く、汚泥発生量も急激に増加している反面、埋立等の処分地の長期確保が困難であり、たとえ処分地があっても遠距離にあるため、処分地までの輸送に困難が伴う等の理由から、汚泥の体積および重量軽減を目的として焼却処理をしている。省エネルギー、省資源の立場から焼却処理は資源の浪費であるという観点があるが、焼却による体積・重量の軽減も省エネルギー、省資源につながるとも考えられる。実際には、焼却処理される汚泥の割合は増加しており、焼却灰が汚泥の最終処分の形態として大きな割合を占めることはこれからも続くであろうと予測される。なお、ヨーロッパにおいても焼却処理を見直す気運がある⁷⁴⁾ことをつけ加えておく。

一方、下水汚泥の処理・処分およびその有効利用状況について、1986年度における下水汚泥体積基準の処分実態から比較すると（第1表）、全体の68%は埋立処分され、有効利用されているのは17%に過ぎない。また、処理性状別に見ると、乾燥汚泥は有効利用の目的のために乾燥あるいはコンポスト化の処理工程を経ているので74%と高い比率で有効利用されているが、脱水汚泥や焼却灰は発生する量の13%程度しか有効利用されていない。一方、有効利用の用途はほとんどが農地・緑地利用であり（第2表）、脱水汚泥およびコ

第1表 わが国における下水汚泥の処分状況⁵⁸⁾ (1986.4.1~1987.3.31)
(千 m^3 /年)

処理性状	処分形態				計 (%)
	陸上埋立	海面埋立	有効利用	その他	
脱水汚泥	777	327	187	107	1398(68)
焼却灰	162	94	41	6	303(14)
乾燥汚泥*	16	5	119	20	160(8)
消化・濃縮汚泥**	16	0	1	187	204(10)
計 (%)	971(47)	426(21)	348(17)	320(15)	2065(100)

*: コンポストを含む

** : 液状汚泥

第2表 わが国における下水汚泥の有効利用実施状況⁵⁸⁾ (1986.4.1~1987.3.31)
(千 m^3 /年)

区 分	処理性状	脱水汚泥	焼却灰	乾燥汚泥	コンポスト	液状汚泥	計
緑地	自治体で実施	48	0	16	63	1	128
農地	肥料会社引渡し	139	7	3	37	0	186
利用	小 計	187	7	19	100	1	314
建設資材利用		0	34	0	0	0	34
合 計		187	41	19	100	1	348

ンポストに加工したものが主体を占めている。これに対し、焼却灰の有効利用の用途は、建設資材としての利用が主体であり、農地・緑地で利用されているのは発生した30万 m^3 の焼却灰のうち、僅か7千 m^3 である。農地・緑地で利用されている焼却灰は、石灰系の凝集剤を添加した汚泥焼却灰であり、土壌の酸性矯正を目的とした土壌改良剤に利用されている⁹⁰⁾。

3. 下水汚泥の農地利用とその施用効果

下水汚泥の農地利用についての研究や実施例は、これまでのところ、脱水汚泥、乾燥汚泥およびコンポストに関するものが主体を占めており、その施用効果や問題点が明らかとなってきている¹⁾²⁾。

1) 下水汚泥の含有成分

下水汚泥は、下水中の汚濁成分を固形分として回収したものである。液相からの汚濁成分の分離を下水処理といい、下水処理には主に標準活性汚泥方式が採用されている。1986年度末の実態ではわが国の下水処理場では662ヶ所のうち、495ヶ所の処理場でこの処理法が採用されている。下水から分離された汚濁成分は、その後の様々な工程（汚泥処理）を経て最終処分されるが、この工程の組合せ方により性質の異なる下水汚泥が発生する。

汚泥処理方式の工程には、〔濃縮〕、〔嫌氣的消化〕、〔好氣的消化〕、〔薬品添加〕、〔熱処理〕、〔脱水〕等がある。これらの工程のうち、汚泥最終処分形態の成分組成に大きく影響するのは、〔消化〕および〔薬品添加〕過程の有無である。また、〔薬品添加〕は汚泥の凝集のために行なわれるが、凝集剤として、消石灰（以下、石灰と略す）や塩化第二鉄（以下、塩化鉄と略す）のような無機凝集剤を用いるか、あるいは、ポリアクリルアミド等のポリマーのような高分子凝集剤を用いるかによっても成分組成は影響される。

脱水汚泥の原料ともいえる濃縮汚泥の乾物当たりの有機物含量は、30～70%であるが、〔消化〕過程により有機物の約50%程度が分解される。また、〔薬品添加〕過程で、無機凝集剤の場合はCaやFeの含有率が上昇し、有機物含量は凝集剤添加による希釈効果によって

低下するが、高分子凝集剤の場合は添加量が少ないために希釈効果による影響は小さい。

肥料成分としての全含量は、山添¹³⁷⁾によれば乾物で窒素が2~4%、 P_2O_5 が2~3%、 K_2O が0.3~0.6%、 CaO が1.6~19%、 MgO が0.6~1.2%程度であり、肥料三要素のうちカリウムの含量が著しく低く、無機凝集剤を添加した汚泥ではカルシウム含量が高い。マグネシウム含量もかなり高い。

逐次抽出法により有機物の組成を調べた結果¹⁾では、下水汚泥は稲わら堆肥に比べ、冷水および熱水可溶部と希アルカリ可溶部が少なく、硫酸可溶部（主としてセルロース）、不溶部（主としてリグニン）およびアルコール・ベンゼン可溶部などの部分が多い。各種余剰汚泥中の窒素を無機態、タンパク態等に分別して分析した結果⁶⁹⁾では、アンモニア態や硝酸態といった無機態のものは少なく、大部分は菌体に由来するタンパク態であり、都市下水処理の余剰汚泥では比較的無機態が多く、全窒素に対してアンモニア態約12%、硝酸態約4%、タンパク態約68%という値が得られている。また、酸加水分解による形態別窒素画分では、下水汚泥には非加水分解性窒素がほとんどなく、大半が加水分解性窒素によって構成されている。すなわち、下水汚泥の特徴は微生物関与の生成物である加水分解性の未同定態窒素の画分が著しく多く、全窒素の40~43%であって、その含量は稲わら堆肥より多い⁶⁴⁾。

一方、下水汚泥中の磷組成を抽出法により分析した結果³⁾では、金属磷酸塩と低分子ポリ磷酸が多く、高分子ポリ磷酸と全核酸がそれに次ぎ、磷脂質画分は少なく、全磷酸に対して金属磷酸塩約26%、低分子ポリ磷酸約21%、高分子ポリ磷酸約19%、全核酸約15%、磷

脂質約3%という値が得られている。味埜ら²⁾は、金属磷酸塩とそれと同時に抽出される金属量との関係を調べ、金属磷酸塩量はCaおよびFe量と密接な関係があったと報告している。Stottら¹⁰⁷⁾は、高速液体クロマトグラフィーによって磷脂質を分離したところ、ホスファチジルコリン、ホスファチジルエタノールアミン、ホスファチジリンイノシトール、ホスファチジルセリンが検出されたとしている。

2) 作物栽培における下水汚泥の施用効果

作物に対する汚泥の施用試験は、多くの作物種にわたって行なわれている。古くは、麻生⁹⁾が水稻、陸稻、オオムギ、コムギおよびカラシナに対して、鹽入と小林¹⁰⁶⁾はオオムギ、水稻およびコマツナに対して、1960年から東京都農業試験場¹²²⁻¹²⁸⁾で陸稻、コマツナ、オオムギ、馬鈴薯、山東菜、コカブ等に対して行なわれた。また、1968年から土木学会に委託された「下水汚泥の処理、処分及び利用に関する調査研究」¹⁹⁾により、全国的な規模で組織的な研究が開始され、キャベツ、タマネギ、水稻、ハクサイ、ニンジン、ゴボウ、コムギ、メロン、ハウレンソウ、カンショ、キウリ、プリンスメロン、ミカン幼木、ダイコン、トウモロコシ、エンバク等に対して下水汚泥の施用試験が行なわれた。これらの結果を要約すると、以下の通りである。

下水汚泥の肥効の主体は窒素成分であると考えられ、作物の窒素要求性の大小によって、その効果が異なる。すなわち、水稻に対する施用は、施用量の増加に伴い生育は良好となるが、玄米収量は施用量が少ない段階で頭打ちとなり、多すぎる場合は過繁茂のため倒伏したり、イモチ病が発生したり、稔実不良のため収量が低下した

りする。葉菜類では、生育量の増大がそのまま収量増に結びつく場合が多いので、汚泥施用によって生育が旺盛となり、収量を増加させる効果大きい。根菜類に対しては、あまり効果の認められない事例が多く、効果が認められる場合でも、施用量の適量は低いところにある。これは、一般に根菜類では、地上部の過剰生育が収穫目的物である主根の肥大を妨げ、収量を低下させる傾向があるためと考えられている。果菜類に対しては、全般に収量増および品質向上の効果が認められている。普通畑作物では、子実を収穫目的物とするムギなどの作物に対しては、水稻の場合と同様に、茎葉の過繁茂による倒伏、稔実不良、病害の多発等によって、収量が低下するが、施用限界量は水稻よりも多く、適量施用の範囲内であれば効果は大きい。カンショでは、窒素要求量が少なく、過剰施用の場合は地上部が過繁茂となり、収量が低下するので、施用限界量は少ない。飼料作物や飼料用のため青刈りする作物では、窒素要求量が多いので、汚泥施用の効果は大きく、施用限界量も多い。

以上のように、畑作物に対する下水汚泥の施用適量は水稻に比較して高いレベルにある。しかし、施用適量は作物種によって異なり、各作物の窒素成分に対する感受性と要求量によって規制されるので、窒素要求量の多少により3つのグループに区分された¹⁹⁾。そのグループとは、窒素要求量の少ない順からそれぞれ、①カンショ、豆類等、②麦類、多くの根菜類、バレイショ等、③多くの葉菜類、多くの果菜類、多くの飼料作物等である。畑作の場合は、輪作体系を取る場合が多く、①～③の作物が輪作体系の中に混在しており、後述するように汚泥の残効もあるので、施用適量の判断を困難なものとしている。

下水汚泥の施用効果試験は、化学肥料との併用による試験がほとんどであり、前述の汚泥の施用効果も化学肥料と併用した場合の試験結果である。藤井ら²⁵⁾は、有機廃棄物に関する一連の研究の中で、化学肥料と併用せずに下水汚泥単独の施用効果をコムギ、陸稲、コカブ、ナス、ソルガム、ハウレンソウについて調べた¹³⁴⁾。それによれば、各作物の汚泥施用区の収量は無施用区における収量より多く、下水汚泥が肥料としての効果を持ち、乾物15t/ha連用の2年目で化学肥料区の収量とほぼ同等、あるいはそれ以上となる場合があったと報告している。

磷の肥効についての試験も行なわれている。能代ら⁹¹⁾は、過石、溶磷、鶏糞、石灰汚泥コンポスト、石灰汚泥および高分子汚泥のコマツナに対する磷の利用率を検討した。その結果では、汚泥資材の磷利用率は8.4~19.4%と高い値であり、その肥効発現パターンは、コンポストおよび石灰汚泥では溶磷と類似しており、高分子汚泥では過石とやや類似していると報告している。また、服部³⁸⁾は、発生源を異にする6種類の汚泥中の磷の形態を調べ、全磷酸含量は炭素や窒素ほど汚泥間の差はないが、有機態磷酸の割合や形態別の無機態磷酸含量は汚泥によって大きく異なると報告しており、磷の肥効は汚泥の種類によって異なることが予想される。

下水汚泥中の窒素や磷は残効があり、その施用効果は下水汚泥施用後の第1作として栽培される作物だけでなく、次作の作物にも認められる。山口ら¹³⁵⁾は、ナス、コムギ、陸稲、コカブ、フダンソウおよびソルガムに対して下水汚泥の連用試験を行ない、第1作と第2作で吸収される窒素の約60%が第1作に、約40%が第2作に吸収され、また磷については、第1作で約70%、第2作で約30%が吸

収されたとしている。Hardingら⁹¹⁾は、3年間汚泥を施用した土壌の5年後における窒素供給力とトウモロコシによる窒素吸収を調べ、多重回帰分析の結果から窒素吸収量や吸収率に与える影響は、生育期間中に無機化した窒素量よりも植付け時に存在した無機化窒素残量の方が大きいとし、汚泥の残効を認めている。

3) 下水汚泥施用による土壌改良効果

Lunt⁷⁷⁾は、消化下水汚泥の施用によって土壌の水分含有率、孔隙率および団粒生成率が高まるとし、Lawら⁷⁴⁾は、下水汚泥の施用は土壌の有機物含量を増加させ、土壌の物理、化学性を改善するための有効な手段であるとしている。Metzgerら⁸³⁾は、土壌物理性の改善効果は施用される汚泥有機物の量と質に影響され、特に、水分保持力と耐水性団粒の生成に効果があるとしている。高橋ら¹¹³⁾は、下水汚泥の施用により土壌の固相率の低下、液相及び気相率の上昇、耐水性団粒の増加等の改善効果が見られたとしているが、乾物で50 t/ha程度の多量施用しないとその効果が期待できない⁴⁸⁾。また、石灰汚泥であれば土壌の酸性矯正の効果が期待でき⁹⁰⁾、オガクズ、モミガラ等の副資材を用いてコンポスト化されたものは、堆肥に近いので、土壌物理性を改善する効果が期待できる⁹⁴⁾。

4. 下水汚泥の農地利用に関する問題点

1) 下水汚泥施用が土壌環境に及ぼす影響

下水汚泥を土壌に施用した場合、その分解に伴う土壌化学性や土壌溶液成分に及ぼす影響はこれまでに種々の報告があり、次のようなことが明らかになっている。

汚泥の施用が土壌の化学的性質に及ぼす影響としては、①高レベルのカルシウムを含有する汚泥を連用する場合には土壌pHが顕著に上昇し、低カルシウム含有汚泥の連用の場合には土壌pHが低下すること²⁷⁾、②高カルシウム含有汚泥の施用で塩基飽和度が増加し、100%を大きく越えること³⁴⁾、③電気伝導度が高まり、その変動パターンは土壌中の硝酸態窒素($\text{NO}_3\text{-N}$)の変動パターンに酷似していること³⁴⁾などがある。

また、汚泥の有機炭素の分解による二酸化炭素(CO_2)の発生^{33, 95)}は、土壌に添加された直後の1~7日後から始まり、その後は低下し、炭素含有率が高い汚泥ほど分解率が高い。下水汚泥添加量とその分解の関係について、Terryら^{119, 120)}は、添加量に比例して分解量が増加したとし、Hsiehら⁴⁹⁾は、添加量が土壌に対して乾物で4%までは添加量に比例して分解が進むが、8%になると分解率が低下したと報告している。

有機態窒素は、土壌中で分解されてアンモニア態窒素($\text{NH}_4\text{-N}$)を生成し、亜硝酸を経て、 $\text{NO}_3\text{-N}$ に変換される。Voosら¹³¹⁾は、無機化窒素総量は汚泥添加量の増加に伴って増加し、この増加は $\text{NH}_4\text{-N}$ によるものであり、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は同様な傾向は示さず、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 増加量は土壌試料に依存したと報告している。 $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成とそれに続く硝化作用は、1ヶ月程度の比較的短期間に起こり、硝化作用は段階的に進行する。これらの有機態窒素の分解とそれに伴う無機態窒素の生成過程は、ピーカー^{33, 89)}、室内ライシメーター³⁵⁾、屋外ライシメーター³⁶⁾および圃場³⁷⁾の各レベルで確認されている。Parkerら⁹⁷⁾は、汚泥試料24種の土壌中における有機態窒素の無機化を16週間にわたって検討し、窒素の無機化率(%)と汚泥の有機態窒素含有率(%)

を次式のように数式化できたとしている。

$$\text{添加汚泥 N 無機化率} = 6.37 \times \text{汚泥有機態 N 含有率} + 4.63$$

これら初期に分解する汚泥の量は、汚泥の種類によって異なると同時に⁹⁵⁾、環境条件、特に温度によっても影響される¹²⁰⁾ことが明らかにされている。

一方、汚泥を土壤に多量施用した場合、土壤中で急激に有機物が分解して酸素が著しく欠乏すると、汚泥が嫌氣的に分解され、植物の生育に有毒な物質を生成し、根腐れの原因となる恐れがある⁹⁴⁾。汚泥の嫌気発酵は、汚泥処理工程の〔消化〕過程に應用されており、この方面における研究が進んでいる¹⁰³⁾。すなわち、汚泥が嫌気発酵すると汚泥中の炭水化物、脂肪、タンパク質等の有機物が分解して、主として酢酸、プロピオン酸、酪酸、イソ酪酸、吉草酸、イソ吉草酸等の揮発性有機酸が生じる¹⁰²⁾。さらに、有機酸と溶解性窒素化合物が分解して、アンモニア、アミン、カルボン酸およびメタンが生成し、インドール、スカトール、硫化水素、メルカプタン等の悪臭物質の生成量も多くなる⁹⁸⁾。このように、汚泥が嫌氣的に分解されて生成する物質は、そのほとんどが植物の生育にとって有毒であり、汚泥の無制限な多量施用を行なうことはできず、水田への施用にも注意を要する。

磷については、消化汚泥を土壤に施用した場合、水溶性磷酸が蓄積したという報告²⁶⁾がある一方で、28°C、4週間の培養期間中に砂質土では数十%が無機化したのが、火山灰土では全く無機化しなかったという報告³⁸⁾もある。Gestringら²⁹⁾は、pH5.0の酸性およびpH7.7アルカリ性土壤において、下水汚泥と磷酸カルシウムの肥効が

等しかったと報告し、Changら¹²⁾は、2種類の土壌に堆肥化汚泥と液状汚泥を5年間にわたって施用した結果、水溶性リン酸が増加したとし、O'Connorら⁹²⁾は、石灰質土壌に嫌気性消化汚泥を施用したところ、水溶性リン酸、 NaHCO_3 可溶リン酸およびレタスによるリン酸吸収量が増加したとしている。McCoyら⁸¹⁾は、2種類の土壌に2種類の堆肥化汚泥を施用し、トウモロコシによるリン吸収と土壌中のリン酸の形態を調べた結果、施用した汚泥中に含まれるリンの量が $100\text{kg}\cdot\text{P}_2\text{O}_5/\text{ha}$ 以下ではリンの施用量と吸収量に明瞭な関係がなかったことから、トウモロコシのリン吸収は下水処理場におけるリン除去の工程と土壌のリン酸固定力に左右されると述べている。このように、リンに関しても様々な報告があるが、リンが難溶性無機塩を生成し易いという性質を有することから、リン除去の工程における凝集剤等によってリンの溶解性が左右され、肥効の発現は土壌の性質および汚泥の種類によって異なるものと考えられる。しかし、群馬県で実施された試験例において、有効態リン酸が $200\text{mg}\cdot\text{P}_2\text{O}_5/100\text{g}$ でトマト、キュウリ、ダイズの生育にリン酸過剰障害が発現したとされており⁹⁴⁾、汚泥を連用した場合や多量施用を行なった場合にはリン酸の過剰障害が発現する可能性もある。

汚泥成分の土壌中における挙動について、広木ら⁴⁶⁾は淡色黒ボク土に石灰汚泥を施用して、汚泥成分の地下への浸透を調べている。その結果では、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ および PO_4 は下層へはほとんど浸透しないのに対し、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 Cl 、 Na 、 Mg および Ca は汚泥施用により土壌溶液中の濃度が上昇し、その影響は55cm以下の層まで及んだとしている。特に、汚泥中に多量に含まれる Cl 、 Ca および汚泥の分解に伴って多量に生成される $\text{NO}_3\text{-N}$ は、土壌溶液中の濃度が著しく高くなる時があ

ったとし、表層における $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度上昇の影響が100cmの下層にまで及ぶのに約14ヶ月の期間を要したとしている。

以上のことより、下記のことから下水汚泥の農地還元に伴う問題点として指摘することができる。

1. 石灰処理汚泥の連用によるpHの上昇
2. 高分子凝集剤処理汚泥施用による土壌の酸性化
3. 汚泥有機物の分解に伴う窒素過剰による作物への影響
4. 有効態リン酸の過剰による作物への影響
5. 土壌ECおよび塩基飽和度の上昇による栄養塩類の溶出が周辺水域に及ぼす影響
6. 汚泥有機物の急激な分解に伴うガス障害による発芽不良、根腐れの可能性

これらの問題点は、汚泥の連用や多量施用時に顕在化してくるであろう。さらに、下水汚泥は汚物であることから、人に不快感を与え、次のことも問題となる。

7. 病原菌、寄生虫等の公衆衛生面への影響
8. 臭気等による影響

これらの問題点を解決するために、現状では汚泥の処理性状を改善して施用している。通常、下水汚泥の安定化、減量化、衛生面の安全化を図るため、脱水汚泥をコンポスト化する場合が多い。コンポスト化には、オガクズ、モミガラ等の副資材を混合する場合と、副資材を混合せず、脱水汚泥のみでコンポスト化する場合の2通りの方法がある。コンポスト化は、好氣的条件下で発酵させることにより、70°C前後まで温度が上昇するので、①病原菌がほとんど死滅し、易分解性物質が分解されるので、②汚泥が安定化し、施用直後

の有機物の急激な分解が抑制され、③臭気の発生も抑制され、さらに、水分が40～50%に減少するので、④取扱性が向上し、土壌との混和も容易になる等の利点がある。また、嫌気性消化により、汚泥の安定化、臭気の低下を図ったり、熱処理により、汚泥の脱水性、衛生面で改善を図る等の対策を講じている。

2) 下水汚泥が含有する有害物質の土壌蓄積による作物への影響

下水汚泥が含有する有害物質として、重金属とPCB等の微量有機化合物が挙げられる。

下水汚泥の農地還元において、汚泥含有重金属の蓄積による土壌汚染は、最も障害となる問題の一つである。汚泥を農地に還元した場合、汚泥含有重金属が農地に持ち込まれる。この持ち込まれた重金属によって作物生育が阻害される可能性は、Cuのように過剰障害の発現する濃度が極めて低い元素¹¹⁶⁾や複数の重金属元素の相乗作用が起こり得る場合⁶⁷⁾に存在すると考えられる。しかし、一般的には、作物の吸収した重金属が、食物連鎖によって人体に蓄積し、人の健康に害を及ぼすことが懸念されている¹⁶⁾。

下水汚泥への重金属の取り込みは、Lungmiur吸着等温式に従う汚泥負荷電との静電気結合^{96, 100)}や、有機物との不溶性錯体の形成による静電氣的結合より強い結合などが考えられており⁹⁶⁾、微生物の増殖過程でさらに濃縮される。また、汚泥中の重金属含量は、流入下水の種類によって異なり、生活排水よりも工場排水で多い^{68, 111)}。稲森ら⁵²⁾は、し尿および雑廃水からなる生活のみに起因して発生した生活廃水汚泥の重金属含量を分析した結果、その平均含有量はCr:22.8, Cu:200, Zn:1030, Fe:9000, Mn:136, Pb:59.6 mg/kg・乾

物という値を得て、これらの値は下水汚泥を農地還元する場合のバックグラウンド値とみることができるとしている。Stoverら¹⁰⁸⁾は、下水汚泥は土壌と同様に陽イオン交換、吸着、キレート作用、沈澱物生成等により金属元素を保持していると仮定し、McLaren・Crawfordの土壌中のCuの連続抽出法⁷⁹⁾を改良して下水汚泥中の重金属元素を形態別に連続抽出する方法を提案した。これによれば、 KNO_3 画分は交換態、KF画分は吸着態、ピロリン酸ナトリウム(PYR)画分は有機結合態、エチレンジアミン四酢酸(EDTA)画分は炭酸塩、 HNO_3 画分は硫化物およびその他の沈澱物主体としたものであり、重金属元素の種によって、これらの存在形態の割合が異なることを示した。

土壌中において、重金属は様々な物理化学的形態で存在しているものと考えられる。すなわち、(1)土壌溶液中で単独のイオンあるいは錯イオンとして溶存している形態、(2)交換態、(3)有機結合態、(4)金属酸化物や炭酸塩、磷酸塩あるいは他の無機物と結合または共沈した形態、(5)一次鉱物の結晶格子中に取り込まれた形態等である。(1)~(3)までの形態はその他の形態と平衡関係にあると考えられ、土壌のpHやEhおよび金属や配位子の濃度に影響される。土壌中の重金属の存在形態として、これら三つの形態が作物に対する可給性が最も大きく、(1)の形態から順次可給性が減少するとされている⁷²⁾。

下水汚泥施用によって土壌に持ち込まれる金属種のうち、Cd、Zn、Cu等の金属が植物によって吸収・蓄積されることが知られており^{21, 42, 50)}、植物によるこれら重金属の吸収は、土壌への負荷量およびジエチレントリアミン五酢酸(DTPA)等の抽出試薬による重金属抽出量と密接な関係にあることが、これまでの報告により示されている^{41, 72, 73, 99, 109, 129)}。しかし、連続抽出法により分別された重

金属の形態と植物による重金属吸収には必ずしも明確な関係は得られていない¹⁴⁾。また、汚泥施用によって土壌に持ち込まれた金属の可給性は、無機試薬のそれよりも小さく^{96, 130)}、土壌pHにより大きく左右され^{80, 98, 129)}、経時的に測定した結果では施用後一時的に可給性が増加するが、その後は次第に減少し⁶⁵⁾、作物による吸収も減少していく⁵⁸⁾。このような重金属における可給性の経時的な変化は、土壌中での存在形態が変化するためと考えられる。下水汚泥施用によって土壌に持ち込まれる重金属は、多量の有機物と共に持ち込まれるので、有機物の分解過程における有機配位子との錯化反応などの多種多様な反応^{7, 8, 59)}および粘土鉱物、鉄・マンガン酸化物等の土壌固相との物理的、化学的反応が考えられるため、土壌中における重金属の挙動は複雑である。

Korcakら⁶⁵⁾は、堆肥化汚泥の施用により、DTPAで抽出される土壌中のZn, Cd, Cu濃度が施用後一次的に増加したが、その後は経時的に減少したとし、Emmerichら²³⁾は、汚泥施用土壌の重金属の形態を連続抽出法により検討し、Cd, Ni, Znが施用後25カ月後にはかなり安定な形態に移行したとしている。また、Dudleyら²²⁾は、汚泥施用土壌からの0.01M-CaCl₂に可溶性有機物、Cu, NiおよびZnの経時的変化を調べ、施用後2週間目までは可溶性炭素およびCu濃度が上昇し、さらに4週間以上の長期培養ではCu濃度は低下したが、Zn, Ni濃度は上昇したことを認めている。このZn, Ni濃度の上昇の原因は、可溶性炭素がCO₂への酸化により減少したためと推察している。一方、Changら¹³⁾は、植物中のCd, Zn濃度yは汚泥の累積施用量xの関数として定式化が可能であるとして、次式を示した。

$$y = a + b(1 - e^{-cx})$$

ここで、定数 a , b , c は施用量や季節別に異なる定数であり、植物中の金属蓄積に影響を及ぼす主要因子は、土壌 pH, 土壌 EC, 土壌温度および生育期間であるとしている。

汚泥有機物と重金属の関係について、Bahamら^{7, 8)}は、下水汚泥から水抽出された有機物はポリペプチド, アミノ糖, 窒素質塩基含有化合物に富み、この有機物の55%が遷移金属と可溶性錯体を形成し得るとし、CuはCdより安定な錯体を生成するとした。Knudtsenら⁵⁹⁾は、下水汚泥中に存在するFeとZnの化学形態を同定かつ定量し、汚泥中のFe, Znは有機物と錯体を形成するものが多く、そのうち可溶性錯体の占める割合は1%以下であり、FeとZnで形態が異なると述べている。また、Behel¹⁰⁾らは、酸性土壌の改良剤として下水汚泥を50~800t/ha 4年間施用した土壌における施用後3年目の土壌溶液中金属濃度を分析し、汚泥施用量の多い場合にZn, Mn濃度が上昇し、Cu, Ni, Pbは検出限界以下であったとしている。さらに、有機、無機の配位子と錯体を形成しているCd, Zn, Mnの割合は、それぞれ可溶性金属総量の9~37%, 3~22%, 3~31%であったと報告している。

土壌中における重金属の挙動については不明な点が多く、長期的には難溶化するとされているが、施用後数週間に限れば重金属の可溶性は増加する場合もある。わが国においては、下水汚泥等有機性廃棄物を再生し原料とした資材を肥料または土壌改良資材として使用する場合の土壌の管理基準を、環境庁が暫定的に定め、1984年11月に都道府県知事あてに通知した。それによれば、管理指標としてZnを指標物質とし、過塩素酸分解法により測定した汚泥等施用土壌中のZn濃度が120ppm以内であることとしている。このように、汚泥

施用の管理基準には土壌中における重金属の全量が用いられている。さらに、Changら¹⁵⁾は、コンポストや液状汚泥を6年間連続施用した土壌における重金属の集積を調べ、重金属は90%以上が0~15cmの土層に存在し、30cm以下には移動しなかったと報告し、Williamsら¹³²⁾は、表層から20cmの土層に8年間にわたって施用した土壌における重金属の移動を調べた結果、重金属の移動は施用した位置から5cm以内の土層中に限られていたと報告していることから、汚泥施用によって土壌に持ち込まれた重金属の移動性は低いようである。したがって、下水汚泥と共に持ち込まれる重金属は施用位置に留まると考えられるので、流入下水中の重金属濃度を低下させ、下水汚泥中の重金属含量を減少させなければ、コンポスト化等の処理を行なっても重金属含量の絶対量は変化しないのであるから、その累積施用量には限界がある。

また、汚泥は各種の有害な合成有機化合物を含んでいる可能性がある。PCB等の有機塩素化合物は難分解性であり、汚泥中に存在する。Clevengerら¹⁷⁾は74の処理場の汚泥中の有機塩素化合物を調べ、その平均値はPCBで0.99 ppm乾物(以下、同)、リンデンで0.11、クロルデンで2.75、アルドリンで0.08、エンドリンで0.14、DDTで0.09、BHCで検出限界以下であったとしている。このように、有害有機化合物の量はごく僅かであり、土壌-植物-(家畜)-人間の食物連鎖においては危険なレベルに達していないと考えられている¹⁷⁾。また、近年になって環境基準や排出基準が定められたトリクロロエチレンやテトラクロロエチレンのような低沸点の有機塩素化合物は、エアレーションタンクにおける曝気過程でそのほとんどが揮散している⁷⁸⁾、汚泥中に残存する可能性は少ない。し

かし、汚泥を乾物で200t/haを施用した例¹⁸⁾では、241日後でも土壌表層に各種の合成有機化合物が残存しており、一部の化合物は土壌下層に移動していることから、汚泥の連用はこれら有機化合物による地下水汚染が懸念される。

3) 下水汚泥の農地利用における流通の問題点

経済的に考えれば、運搬コストの面から、生産地と消費地が近い方がよい。これを下水汚泥の農地・緑地利用について考えてみると、生産物である下水汚泥が大量に排出されるのは、人口が密集し、下水道が発達した大都市地域である。しかし、大都市地域およびその周辺では消費地となる農地・緑地が少ないのが現状である。さらに、下水汚泥はその性状から追肥として用いることが困難であり、消費時期が播種前か収穫後の年2～3回であるために、貯蔵コストがかかるという問題が追加される。

5. 下水汚泥焼却灰の農地利用

前述したように、わが国において下水汚泥焼却灰を農地・緑地に利用する場合は、石灰系汚泥の焼却灰を、アルカリ分および可溶性ケイ酸を主成分として、酸性矯正の目的で利用しているのが現状であり⁹⁰⁾、建設資材化としての利用に関する研究も進められている^{45, 71)}。

下水汚泥焼却灰に含有される燐の肥効についての報告は極めて少ない。Mellbyeら⁸²⁾が、土壌に焼却灰を施用した場合のトウモロコシの収量と重金属含有率に対する影響を2年間にわたって調べた研究が目につく程度である。その結果では、焼却灰の施用により葉中

のZn含有率は上昇するが、葉と子実中のCu, Cd, Cr, Mo, Ca, Pb含有率には変化がなく、収量と葉、子実中の磷含有率が2年目で上昇し、肥料的効果が認められたとしている。しかし、汚泥と焼却灰の起源を同じくする資材を用いて、磷の肥効を検討した報告は見受けられない。

本研究は、磷資源の再循環を図るという観点から、脱水方式を異にする2種類の汚泥、すなわち、石灰・塩化鉄薬注汚泥と熱処理無薬注汚泥について、焼却処理が理化学的性状に及ぼす影響を明らかにし、脱水汚泥とそれと起源を同じくする焼却灰を土壤に施用した場合に、土壤成分に与える影響および作物への肥効を比較・検討し、さらに、下水汚泥の土壤還元において提起されている下記の問題点

1. 石灰処理汚泥の連用によるpHの上昇
2. 高分子凝集剤処理汚泥施用による土壤の酸性化
3. 汚泥有機物の分解に伴う窒素過剰による作物への影響
4. 有効態磷酸の過剰による作物への影響
5. 土壤ECおよび塩基飽和度の上昇による栄養塩類の溶出が周辺水域に及ぼす影響
6. 汚泥有機物の急激な分解に伴うガス障害による発芽不良、根腐れの可能性
7. 病原菌、寄生虫等の公衆衛生面への影響
8. 臭気等による影響
9. 下水汚泥が含有する有害物質の土壤蓄積による作物への影響

が焼却灰においても問題となり得るか否かを検討し、下水汚泥焼却灰を磷酸質肥料として利用するための基礎的知見を得ることを目的として実施したものである。

第2章 供試下水汚泥材料の性質および加熱焼却処理が汚泥の化学性に及ぼす影響

第1節 供試下水汚泥材料の化学的性質

本節では、実験に供試した下水汚泥およびそれらから調製した焼却灰のpH、EC、各種元素の全含量および水可溶性成分量等の化学的性質を明らかにすることを目的とした。

実験方法

1) 供試材料

札幌市内の下記に述べるA、B、C、D4ヶ所の下水処理場のうち、石灰・塩化鉄薬注加圧脱水法で処理した脱水汚泥（以下、薬注汚泥と略す）をA、B処理場から、ポーチャス式熱処理法で処理した脱水汚泥（以下、無薬注汚泥と略す）をC、D処理場から、それぞれ採取して汚泥試料とした。また、A処理場に隣接するコンポスト工場からコンポストを採取してコンポスト試料とした。なお、各処理場の概要は次の通りであり¹⁰⁾、各処理場とも水処理方式は標準活性汚泥法を採用し、汚泥の最終処分は、コンポスト化して農業利用するA処理場を除き、焼却処理を原則としている。

A処理場：札幌市の東部を処理区域とする処理場である。流入下水は処理区内に食品工業を主体とする軽工業団地を含むものの、大部分は住宅地域からの排水で占められており、質的には生活排水由来のものである。

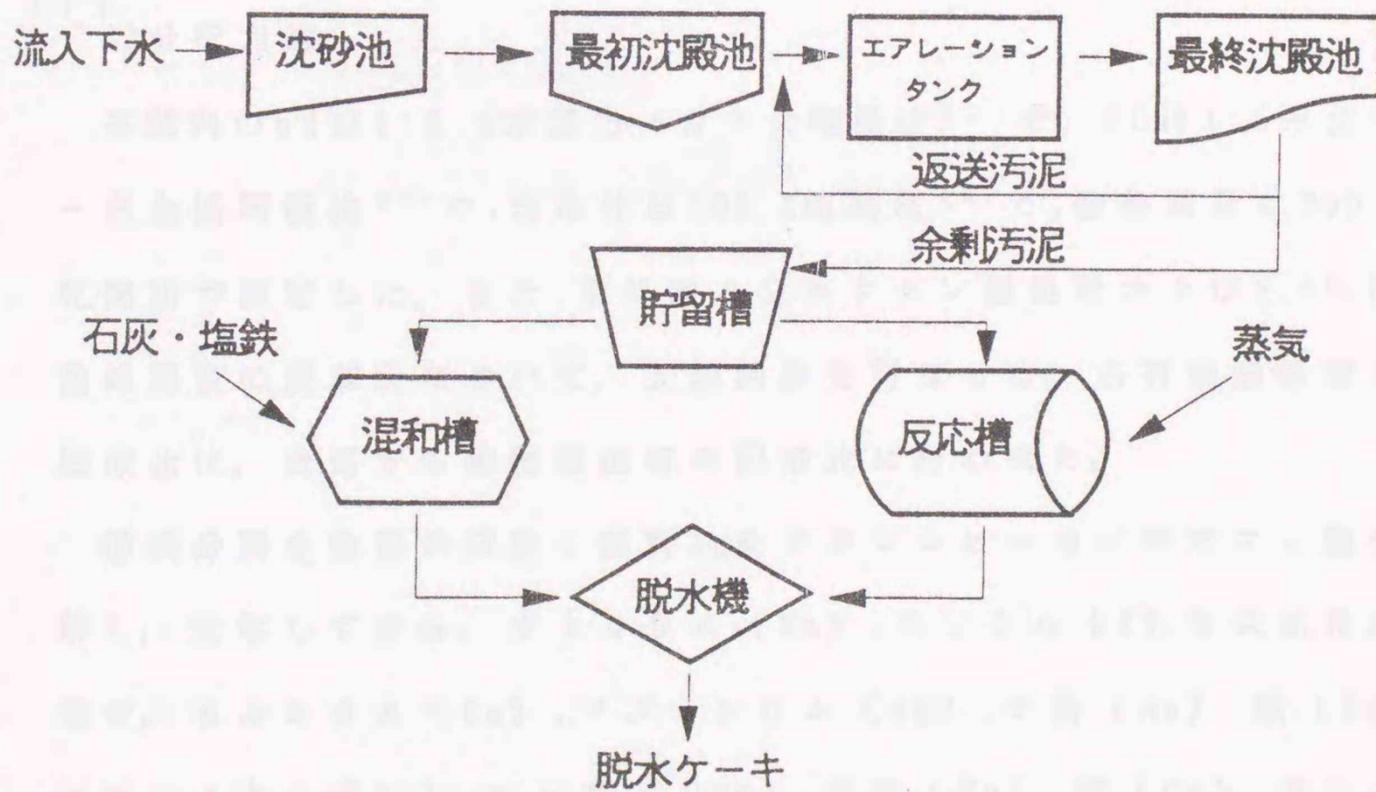
B処理場：市の西部地区を処理区域とする処理場であり、流入下

水は処理区内に工業団地を含むため、量は少ないが工場排水を含む。

C 処理場：市の中心部を処理区域とする処理場で、流入下水は処理区内に官庁、銀行、病院、商店街、飲食店街等の事業所を含む都市型排水である。

D 処理場：A と C の処理区域に挟まれた地区を処理区域とする処理場であり、流入下水は処理区内に工業地域、商業地域を含んでいるが、大部分は住宅地域からの排水である。

ここで汚水、汚泥処理の概略を示す（第3図）。流入した汚水は、沈砂池、最初沈澱池を通りエアレーションタンクで活性汚泥により処理される。最終沈澱池から一部返送された汚泥が、活性汚泥の種汚泥となる。最終沈澱池からの余剰汚泥が貯溜槽にたまるまでは薬注汚泥も無薬注汚泥も同じである。薬注汚泥では混和槽で石灰と塩



第3図 汚水・汚泥処理のフローシート

化鉄を混入して凝集させるのに対し、無薬注汚泥では反応器において焼却炉の余熱を利用したボイラーからの蒸気で、200°C程度まで加熱して凝集させる。この後、脱水工程を経て脱水汚泥となる。

コンポストは、A処理場の脱水汚泥を破砕機で碎き、種汚泥の一次発酵返送汚泥を混合し、通気と切り返しを行いながら約2週間一次発酵させた後、約2ヶ月間二次発酵を行った製品である。

2) 試料の調製

前述した薬注汚泥2点、無薬注汚泥2点およびコンポスト1点を風乾後、粉碎して分析に供した。また、各汚泥の一部をとってマッフル炉で800°C・5hの焼却処理を施し、各々の焼却灰を得て分析に供した。

3) 分析方法

各試料のpHは1:2.5水浸出—ガラス電極法²⁰⁾で、ECは1:5水浸出—白金黒電極法²⁰⁾で、含水比は105°C乾熱法²⁰⁾で、強熱減量は600°C乾熱法で測定した。また、未処理と2%クエン酸処理および2.5%酢酸処理後の焼却灰について、X線回折を行なった。各有機酸処理の固液比は、後述するリン酸溶出時の固液比に合わせた。

①成分別全含量の分析：試料1gをテフロンビーカー中でフッ酸分解し、定容してから、ナトリウム(Na)、カリウム(K)を炎光光度法で、カルシウム(Ca)、マグネシウム(Mg)、ヒ素(As)、鉄(Fe)、アルミニウム(Al)、マンガン(Mn)、亜鉛(Zn)、銅(Cu)、クロム(Cr)、鉛(Pb)、ニッケル(Ni)、カドミウム(Cd)を原子吸光光度法で、リン酸(P₂O₅)をバナドモリブデン酸法で定量した。また、

珪酸 (SiO₂) はニッケル坩堝中でアルカリ溶融してモリブデンブルー法¹²⁾で比色定量した。炭素 (C), 窒素 (N) は柳本社製 CN コーダーで測定した。

② 水可溶性成分の分析：試料 2g を 200ml 三角フラスコに取り，水 80ml を加えて 2h 振とうし，その濾液について P₂O₅, Na, K, Ca, Mg, As, Fe, Al, Mn, Zn, Cu, Cr, Pb, Ni, Cd を ①と同じ方法で定量した。

実験結果

A, B の薬注汚泥とそれらの焼却灰はともに pH が 12 以上と高く，EC も 5mS/cm 前後と高かった (第 3 表)。これに対し，C, D の無薬注汚泥とそれらの焼却灰はともに pH は 7 前後であり，EC も薬注汚泥に比べて低かった。コンポストは pH が無薬注汚泥に近く，EC が薬注

第 3 表 供試試料の理化学的特性

	A 処理場			B 処理場		C 処理場		D 処理場	
	コンポスト	薬注汚泥	焼却灰	薬注汚泥	焼却灰	無薬注汚泥	焼却灰	無薬注汚泥	焼却灰
pH(H ₂ O)	7.64	12.58	12.56	12.61	12.57	6.50	7.07	6.25	7.65
EC(mS/cm)	5.70	4.71	4.77	5.99	5.29	0.69	1.70	0.78	1.64
含水率 (%)	20.2	56.6	ND	54.8	ND	43.7	ND	50.4	ND
強熱減量 (%)	44.9	61.6	ND	58.0	ND	66.4	ND	50.6	ND

ND: 未測定

汚泥に近かった。含水比，強熱減量は各汚泥に比べてコンポストで低かったが，各汚泥間の差は小さかった。X線回折の結果では，全ての焼却灰に石英や長石の明瞭なピークが認められ，薬注汚泥では Ca や Fe の化合物に由来すると考えられるいくつかのピークが存在したが，結晶鉱物の同定はできなかった。さらに，可溶性磷酸を溶解するため，2% クエン酸や 2.5% 酢酸で処理をした後においても，処

理前とピークの高さ・位置のX線回折像に変化がなかったことから、
 磷酸塩のピークは存在しなかったと考えられる。

各試料の成分別全含量分析の結果を第4表に、水可溶性成分量を
 第5表に示した。ここで()内の数値は焼却灰中の含量を元の各汚
 泥の乾物単位重量当たりに換算した値である。

第4表 供試試料中の各種元素の全含量(乾物当たり)

	A処理場			B処理場		C処理場		D処理場	
	コンポスト	薬注汚泥	焼却灰	薬注汚泥	焼却灰	無薬注汚泥	焼却灰	無薬注汚泥	焼却灰
P ₂ O ₅ (%)	3.54	2.49	7.43(2.48)	2.63	7.03(2.62)	3.36	10.3 (3.44)	2.37	4.70(2.32)
C (%)	20.2	27.7	tr.	26.3	tr.	37.8	tr.	26.0	tr.
N (%)	1.9	3.4	tr.	2.8	tr.	1.6	tr.	1.3	tr.
SiO ₂ (%)	7.16	6.01	22.7 (7.55)	7.14	20.3 (7.57)	13.6	46.0(15.3)	25.5	54.5(26.9)
Cl (%)	ND	ND	0.74	ND	ND	ND	0.15	ND	ND
S (%)	ND	ND	0.98	ND	ND	ND	0.36	ND	ND
Na (%)	0.34	0.58	1.06(0.35)	0.52	1.05(0.39)	0.87	1.52(0.51)	1.00	1.51(0.75)
K (%)	0.40	0.42	0.98(0.33)	0.43	0.77(0.29)	0.67	1.56(0.52)	0.95	1.64(0.81)
Ca (%)	14.6	8.74	25.1 (8.35)	10.0	25.1 (9.35)	2.22	5.92(1.98)	2.27	4.32(2.13)
Mg (%)	0.83	0.64	1.49(0.50)	0.66	1.46(0.54)	0.88	2.44(0.82)	0.90	1.62(0.80)
Fe (%)	4.83	4.65	13.9 (4.63)	5.70	16.6 (6.19)	2.41	7.63(2.55)	3.32	6.52(3.22)
Al (%)	1.33	0.89	2.57(0.85)	1.01	2.80(1.04)	2.50	7.65(2.56)	4.46	8.74(4.32)
Mn (ppm)	2077	1326	3811(1269)	1657	4324(1613)	503	1484 (497)	808	1587 (784)
Zn (ppm)	564	432	759 (252)	528	1280 (477)	889	2421 (811)	659	1183 (584)
Cu (ppm)	125	94	257 (86)	102	271 (101)	205	602 (202)	143	287 (142)
Cr (ppm)	50	29	71 (24)	90	253 (94)	62	162 (54)	82	141 (70)
Pb (ppm)	37	17	14 (4.7)	23	28 (10)	29	92 (31)	37	67 (33)
Ni (ppm)	29	12	31 (10)	13	43 (16)	25	67 (22)	22	41 (20)
As (ppm)	10.3	9.8	28.8 (9.6)	13.1	34.2(12.8)	7.7	22.3(7.5)	11.6	23.8(11.8)
Co (ppm)	6.9	3.4	11.1 (3.7)	7.4	17.5 (6.5)	7.0	20.8(7.0)	9.9	17.9 (8.8)
Cd (ppm)	4.1	tr.	tr.	0.27	tr.	1.06	tr.	0.47	tr.

()内の数値は各汚泥の乾物単位重量当たりに換算
 tr.: 検出限界以下
 ND: 未測定

各成分の全含量: P₂O₅は各汚泥, コンポストで2.37~3.54%であ
 り, 焼却灰で4.70~10.3%であって, 焼却処理により濃縮された。
 炭素は各汚泥, コンポストで20.2~37.8%, 窒素は1.3~3.4%であ
 り, C/N比が高く, 焼却処理により炭素および窒素は燃焼揮散した。
 SiO₂, Na, K, Mgは薬注汚泥で無薬注汚泥より低く, Caは薬注汚泥
 で無薬注汚泥より高かった。Asは全ての試料で比較的高く, 重金属

含量は、多くの試料で $Fe > Al > Mn > Zn > Cu \gg Cr > Pb \approx Ni > Co > Cd$ の順であったが、薬注汚泥を起源とする試料で Al と Mn の順序が、C 処理場の汚泥で Mn と Zn の順序がそれぞれ逆転した。焼却処理に伴う減量分を考慮して、焼却灰中の含量を各汚泥の乾物単位重量当たりに換算すると、 P_2O_5 , SiO_2 , Ca, Mg, Fe, Al, Mn, Cu, Cr, Ni, Co では各汚泥と差がなく、Na, K, Zn, Cd など沸点の比較的低い元素では焼却処理により減少し、加熱により揮散する傾向にあった。なお、薬注汚泥では Pb で単体の沸点が $1750^\circ C$ と高いのにもかかわらず、焼却処理により減少していたが、Pb では $500^\circ C$ 以上で容器への吸着率が高いので⁸⁵⁾、容器へ吸着した可能性がある。

第5表 供試試料中の水可溶性成分量 (乾物当たり)

	A 処理場			B 処理場		C 処理場		D 処理場	
	コンポスト	薬注汚泥	焼却灰	薬注汚泥	焼却灰	無薬注汚泥	焼却灰	無薬注汚泥	焼却灰
P_2O_5 ($\mu g/g$)	44	51	5.7 (1.9)	23	5.3 (2.0)	771	209 (70)	539	176 (87)
Na ($\mu g/g$)	239	249	376 (125)	214	863 (321)	62	140 (47)	72	149 (74)
K ($\mu g/g$)	1160	773	410 (137)	645	1638 (611)	241	95 (32)	297	92 (45)
Ca ($\mu g/g$)	3460	6530	7890(2630)	7200	6090(2270)	140	2500 (840)	200	1950 (960)
Mg ($\mu g/g$)	458	257	0.68(0.23)	125	0.88(0.33)	89	305 (102)	77	99 (49)
Fe ($\mu g/g$)	11.3	5.5	tr.	2.1	tr.	17.6	tr.	19.1	tr
Al ($\mu g/g$)	tr.	37	183 (61)	113	86 (32)	tr.	tr.	tr.	tr
Mn ($\mu g/g$)	0.86	0.22	tr.	tr.	tr.	0.60	1.3 (0.44)	2.6	0.16(0.08)
Zn ($\mu g/g$)	2.1	0.29	tr.	tr.	tr.	0.98	tr.	0.98	tr
Cu ($\mu g/g$)	5.5	23.1	tr.	18.8	tr.	tr.	tr.	tr.	tr
Cr ($\mu g/g$)	0.20	tr.	0.76(0.25)	tr.	52.8(19.7)	tr.	tr.	tr.	0.64(0.32)
Pb ($\mu g/g$)	1.0	tr.	tr.	1.2	tr.	tr.	tr.	tr.	tr
Ni ($\mu g/g$)	0.88	2.3	tr.	tr.	tr.	0.68	tr.	tr.	tr
As ($\mu g/g$)	tr.	0.08	tr.	0.13	tr.	tr.	tr.	tr.	tr
Co ($\mu g/g$)	0.50	tr.	tr.	0.14	tr.	0.84	tr.	0.21	tr
Cd ($\mu g/g$)	tr.	tr.	tr.	tr.	tr.	tr.	tr.	tr.	tr

()内の数値は各汚泥の乾物単位重量当たりに換算
tr.: 検出限界以下

水可溶性成分量：各汚泥とコンポストを比較すると、 P_2O_5 は無薬注汚泥で薬注汚泥より高かったが、Na, K, Ca, Mgは薬注汚泥で無薬注汚泥より高く、このために薬注汚泥で無薬注汚泥よりECが高くな

ったものと考えられる。Asを含めた重金属では、各汚泥ともに測定した金属元素のうちCdを除く全ての金属元素で検出限界以上の溶出が認められたが、焼却灰では、As, Fe, Zn, Cu, Pb, NiおよびCoの溶出が認められなかった。各試料で溶出が認められた金属元素のうち、FeとAlおよび糞注汚泥のCuで比較的多く溶出した。しかし、各汚泥およびコンポストのMn, Zn, Cr, Pb, NiおよびCoの溶出量は少なかった。各汚泥の乾物単位重量当たりで見ると、焼却処理により、 P_2O_5 は減少し、Na, K, Ca, Mgは変化がないかあるいは減少し、重金属はCrを除いて減少し、難溶となっていた。

第2節 供試下水汚泥等が含有する磷酸の形態

本節では、供試下水汚泥および汚泥焼却灰が含有する磷酸の形態を明らかにするとともに、その形態が焼却処理に伴ってどのように変化するかを検討した。

実験方法

本章第1節と同様の試料を供試した。無機態磷酸の形態分画は、関谷の方法¹⁰⁴⁾に準じて行った。すなわち、2.5%酢酸可溶画分をカルシウム型磷酸(以下、Ca-Pと略す)、1Nフッ化アンモニウム可溶画分をアルミニウム型磷酸(以下、Al-Pと略す)、0.1N水酸化ナトリウム可溶画分を鉄型磷酸(以下、Fe-Pと略す)とし、各形態磷酸含量をバナドモリブデン酸法で比色定量した。また別に、固液比1:150、1h振とうにおける2%クエン酸可溶の磷酸(以下、ク溶性Pと略す)をバナドモリブデン酸法で比色定量した。

実験結果

無機態リン酸の各画分量を第6表に示した。ここでいう未分画Pとは、全リン酸から形態別無機態リン酸の含量を差し引いた値であり、有機態リン酸と難溶性無機態リン酸の一部が含まれると考えられる。

第6表 供試試料中の形態別リン酸含量 (mg・P₂O₅/g, 乾物当たり)

	A処理場			B処理場			C処理場			D処理場		
	コンポスト	薬注汚泥	焼却灰	薬注汚泥	焼却灰	無薬注汚泥	焼却灰	無薬注汚泥	焼却灰	無薬注汚泥	焼却灰	
全リン酸	35.4	24.9	74.3 (24.8)	26.3	70.3 (26.2)	33.6	103 (34.4)	23.7	47.0(23.2)			
Ca-P	8.72	1.15	16.57 (5.52)	1.24	14.51 (5.41)	8.63	41.89(14.03)	6.80	17.07(8.43)			
Al-P	9.31	1.79	6.69 (2.23)	2.12	6.66 (2.48)	12.01	20.40 (6.83)	8.93	8.73(4.31)			
Fe-P	5.23	9.98	0.023(0.008)	12.34	0.025(0.009)	6.05	1.28 (0.43)	4.87	1.79(0.88)			
未分画P*	12.0	12.0	51.0 (17.0)	10.8	49.1 (18.3)	6.9	39.2 (13.1)	3.1	19.4 (9.6)			
ク溶性P**	25.0	13.3	73.1 (24.3)	15.0	62.0 (23.1)	28.6	85.0 (28.5)	16.9	38.5(19.0)			

()内の数値は各汚泥の乾物単位重量当りに換算

*:全リン酸-(Ca-P + Al-P + Fe-P)

** :2%クエン酸可溶リン酸

薬注汚泥では未分画P ≒ Fe-P ≫ Al-P > Ca-Pの順であり、薬注汚泥の焼却灰では未分画P > Ca-P > Al-P ≫ Fe-Pの順であった。一方、無薬注汚泥ではAl-P > Ca-P > Fe-P ≒ 未分画Pの順であり、無薬注汚泥の焼却灰ではCa-P ≒ 未分画P > Al-P ≫ Fe-Pの順であった。また、コンポストでは未分画P > Al-P ≒ Ca-P > Fe-Pの順であった。

焼却灰中の形態別リン酸含量を各汚泥の乾物単位重量当りに換算した値で比較すると、焼却処理によりCa-Pが1.2~4.8倍に、ク溶性Pが1.1~1.8倍に増加し、薬注汚泥で無薬注汚泥より増加の割合が大きかった。また、焼却処理により、Fe-Pは各汚泥ともに大きく減少したが、Al-Pは薬注汚泥では変化せず、無薬注汚泥では減少した。

第3節 供試下水汚泥が含有する重金属の形態

本節では、供試下水汚泥および汚泥焼却灰が含有する重金属の形態を明らかにするとともに、その形態が焼却処理に伴ってどのように変化するかを検討した。

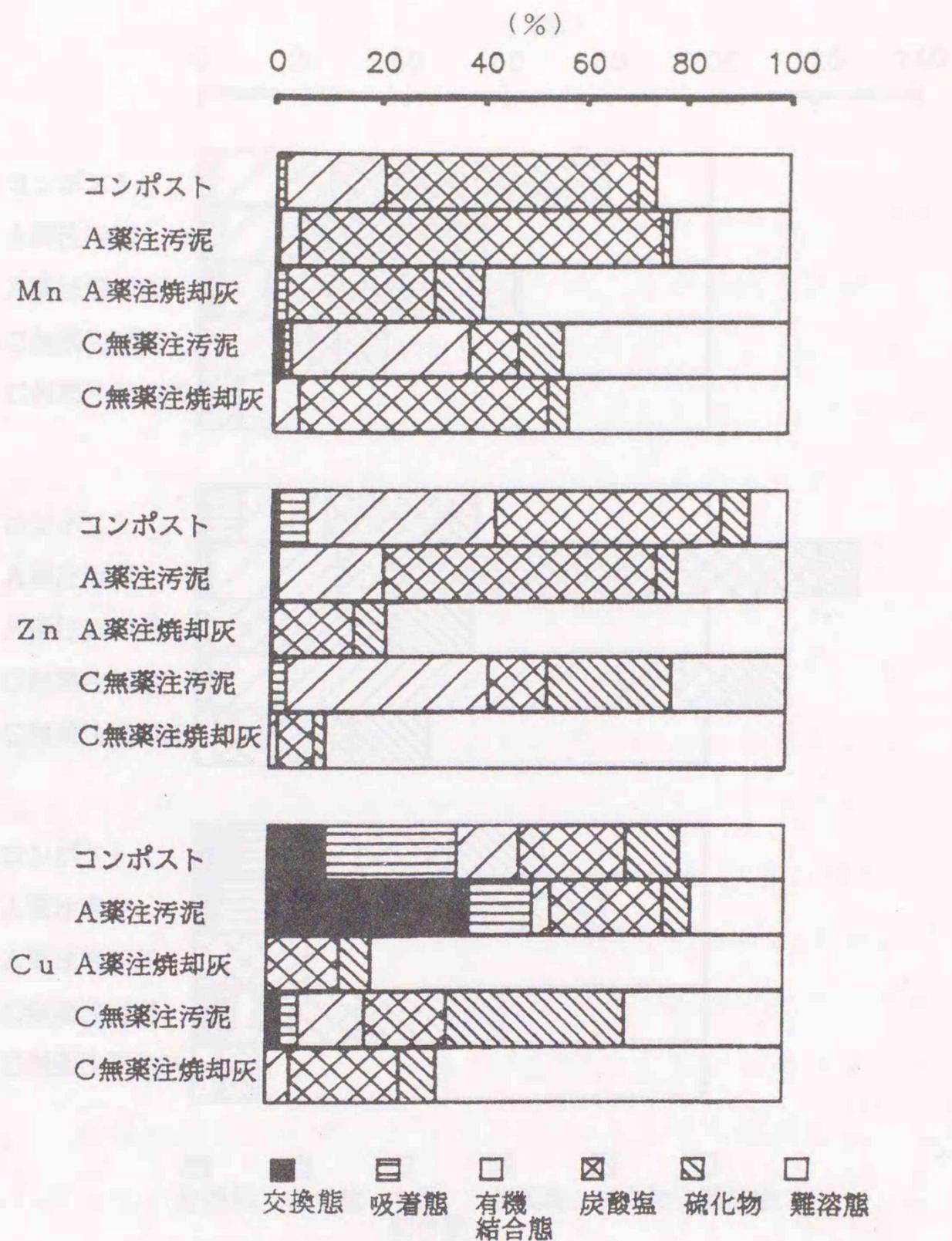
実験方法

コンポスト、A処理場の薬注汚泥とその焼却灰（以下、それぞれA薬注汚泥およびA薬注焼却灰とする）およびC処理場の無薬注汚泥とその焼却汚泥（以下、それぞれC無薬注汚泥およびC無薬注焼却灰とする）を供試した。これら試料に含まれるMn, Zn, Cu, Cr, Pb, Niの形態同定をStoverら¹⁰⁸⁾の連続抽出法に準じて測定した。すなわち、それぞれの重金属を硝酸カリウム (KNO_3)、フッ化カリウム (KF)、ピロリン酸ナトリウム ($\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_7$: PYR)、エチレンジアミン4酢酸2ナトリウム (EDTA)、硝酸 (HNO_3) を用いて連続抽出した後、供試液中の重金属を原子吸光法で定量した。各抽出液の濃度と固液比および抽出時間は次の通りである。1M- KNO_3 ; 1:50, 16h。0.5M-KF; 1:80, 16h。0.1M-PYR; 1:80, 16h。0.1M-EDTA; 1:80, 8h (2回抽出)。1M- HNO_3 ; 1:50, 16h。

なお、各抽出液で抽出後、次の抽出に移る前に水25mlで1回洗浄した。

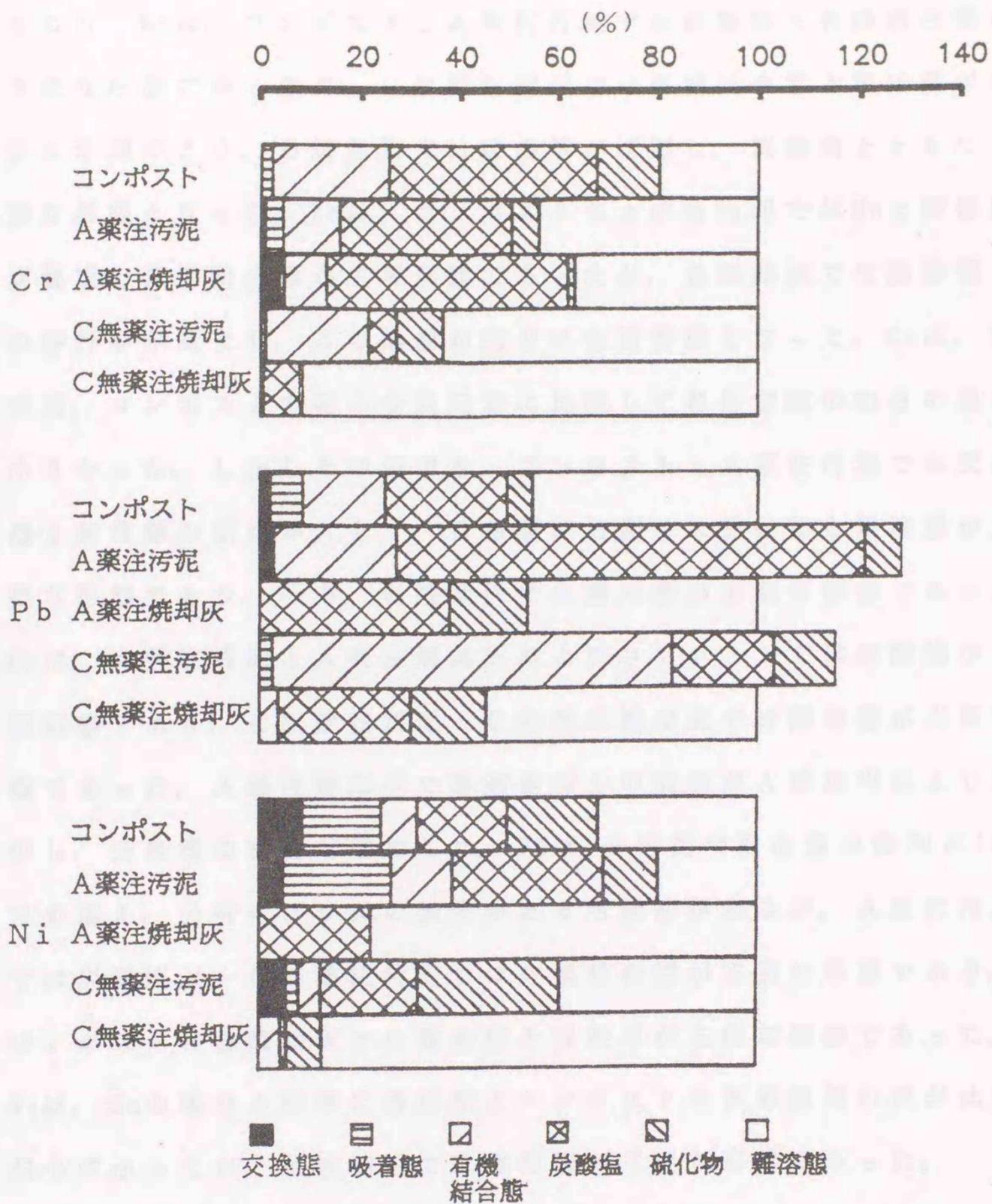
実験結果

Stoverらの方法¹⁰⁸⁾によるMn, Zn, Cu, Cr, Ni, Pbの形態別含量の全含量に対する割合を第4, 5図に示した。ここで、全含量と抽



第4図 Mn, Zn, Cuにおける全含量に対する各画分量の割合

出量の総和との差である残渣画分を難溶態とした。フッ酸分解で得た全含量に対する全抽出量の割合は、Mnでは40~77%、Znでは11~92%、Cuでは20~80%、Crでは8.3~80%、Pbでは46~129%、Niで



第5図 Cr, Pb, Niにおける全含量に対する各画分量の割合

は13~80%であり、各汚泥およびコンポストで高く、各焼却灰では低かった。各金属元素ともに形態別含量の割合はA薬注汚泥、C無薬注汚泥、コンポストさらには各焼却灰により大きく異なった。す

なわち、Mnは、コンポストとA薬注汚泥では炭酸塩と有機結合態が主要な形態であったが、C無薬注汚泥では有機結合態と難溶態が主要な形態であり、各焼却灰では難溶態が増加し、炭酸塩とともに主要な形態となった。Znは、コンポストおよび各汚泥ではMnと同様に、炭酸塩と有機結合態が主要な形態であったが、各焼却灰では難溶態への移行率が高まり、この形態が完全に主要な形態となった。Cuは、各汚泥、コンポストで他の金属元素に比較して各形態間の割合の差が小さかった。しかしその中でも、コンポストとA薬注汚泥では交換態と吸着態の割合が大きく、C無薬注汚泥では硫化物と難溶態が主要な形態であり、一方、各焼却灰では難溶態が主要な形態であった。Crは、A薬注汚泥とA薬注焼却灰およびコンポストでは炭酸塩が主要な形態であり、C無薬注汚泥とC無薬注焼却灰では難溶態が主要な形態であった。A薬注焼却灰で難溶態画分の割合がA薬注汚泥より減少し、交換態の割合が増加した。Pbは、各汚泥で抽出量の総和が100%を越え、分析にプラスの誤差がある可能性があるが、A薬注汚泥では炭酸塩が、C無薬注汚泥では有機結合態が主要な形態であり、コンポストと各焼却灰では難溶態と炭酸塩が主要な形態であった。Niは、Cuの場合と同様に各汚泥とコンポストで各形態間の差が比較的小さかったが、各焼却灰では難溶態が主要な形態であった。

第4節 焼却処理による下水汚泥吸着重金属の難溶化

本節では、重金属を吸着させた下水汚泥を焼却処理することによって、吸着された重金属の形態がどのように変化するかを検討した。

実験方法

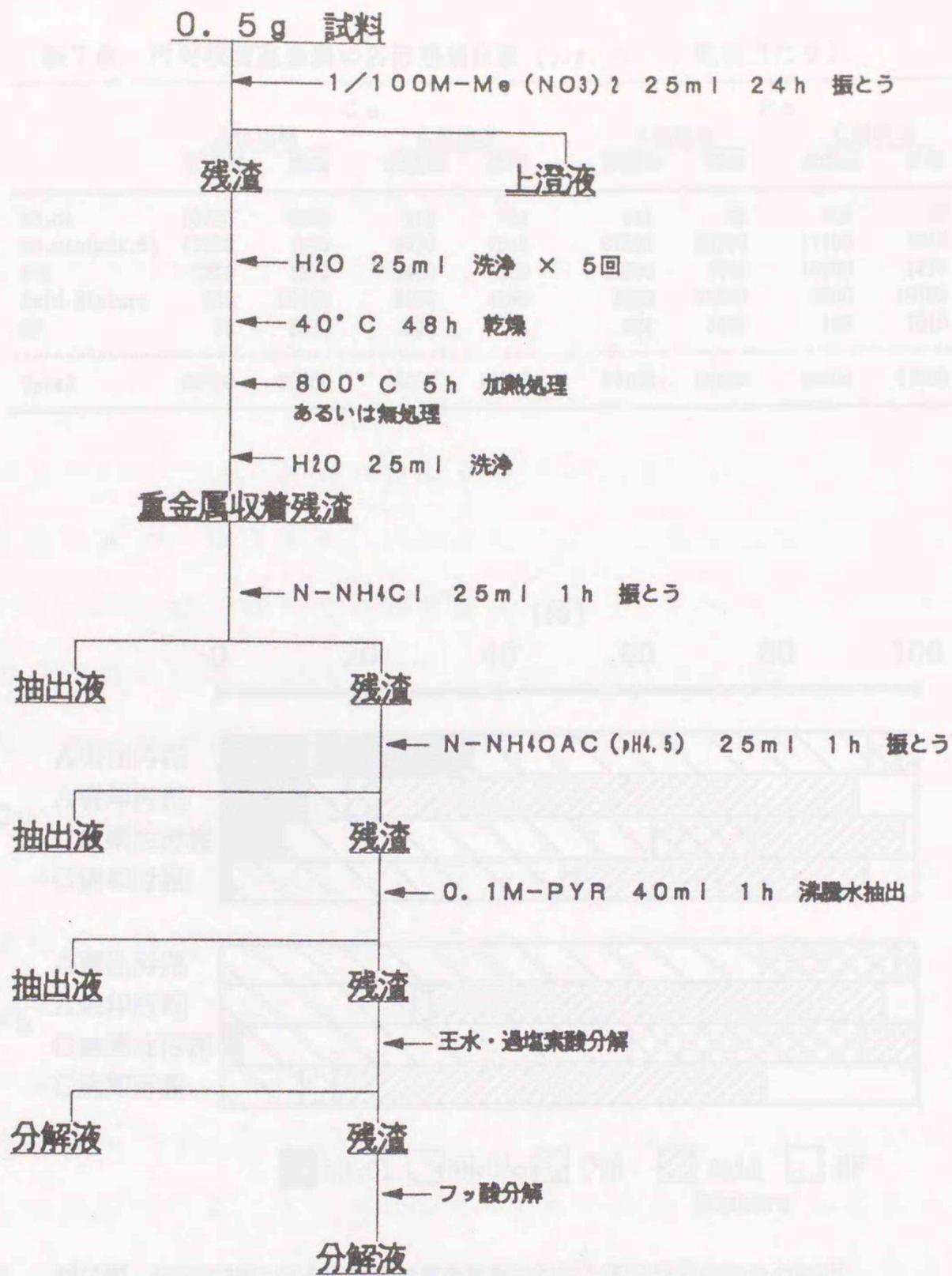
試料として、A薬注汚泥とC無薬注汚泥を供試した。これら供試試料の風乾物0.5gを50ml容の共栓付遠沈管に取り、1/100M濃度のCuあるいはPbの硝酸塩溶液25mlを加え、24h振とうし、添加重金属を下水汚泥に収着させた。振とう後、遠心分離し、残渣を水25mlで5回洗浄した。その後、残渣を真空乾燥器中で乾燥させ、マッフル炉で800°C、5hの焼却処理を施し、水25mlで1回洗浄した後、第6図に記す方法で収着重金属を連続抽出した。

なお、各抽出液で抽出後、次の抽出に移る前に水25mlで1回洗浄し、また別に、重金属を収着させた後、焼却処理を施さなかった試料についても同様の操作を行なった。各抽出液中のCu、Pbは原子吸光光度法により定量した。

実験結果

Cu、Pbともに、全抽出量すなわち収着重金属量は、A薬注汚泥でC無薬注汚泥より多かった(第7表)。これはA薬注汚泥のpHが高く(第3表)、添加重金属が水酸化物として沈澱したためと考えられる。また、Cu、Pbの全抽出量は、汚泥種の違いにかかわらず、焼却処理の有無による差はなかった。

A薬注汚泥における収着Cuの形態別抽出量は、 $\text{NH}_4\text{OAC} > \text{NH}_4\text{Cl} \gg \text{PYR} > \text{Acid Mix} \gg \text{HF}$ の順であり、焼却A薬注汚泥のそれは、 $\text{Acid Mix} \gg \text{NH}_4\text{Cl} > \text{HF} > \text{NH}_4\text{OAC} > \text{PYR}$ の順であった(第7表)。また、C無薬注汚泥のそれは、 $\text{NH}_4\text{OAC} > \text{Acid Mix} > \text{PYR} > \text{NH}_4\text{Cl} > \text{HF}$ の順であり、焼却C無薬注汚泥のそれは、 $\text{NH}_4\text{OAC} \cong \text{Acid Mix} \gg \text{HF} > \text{PYR} > \text{NH}_4\text{Cl}$ の順であった。一方、A薬注汚泥における収着Pbの形態別抽出量は、

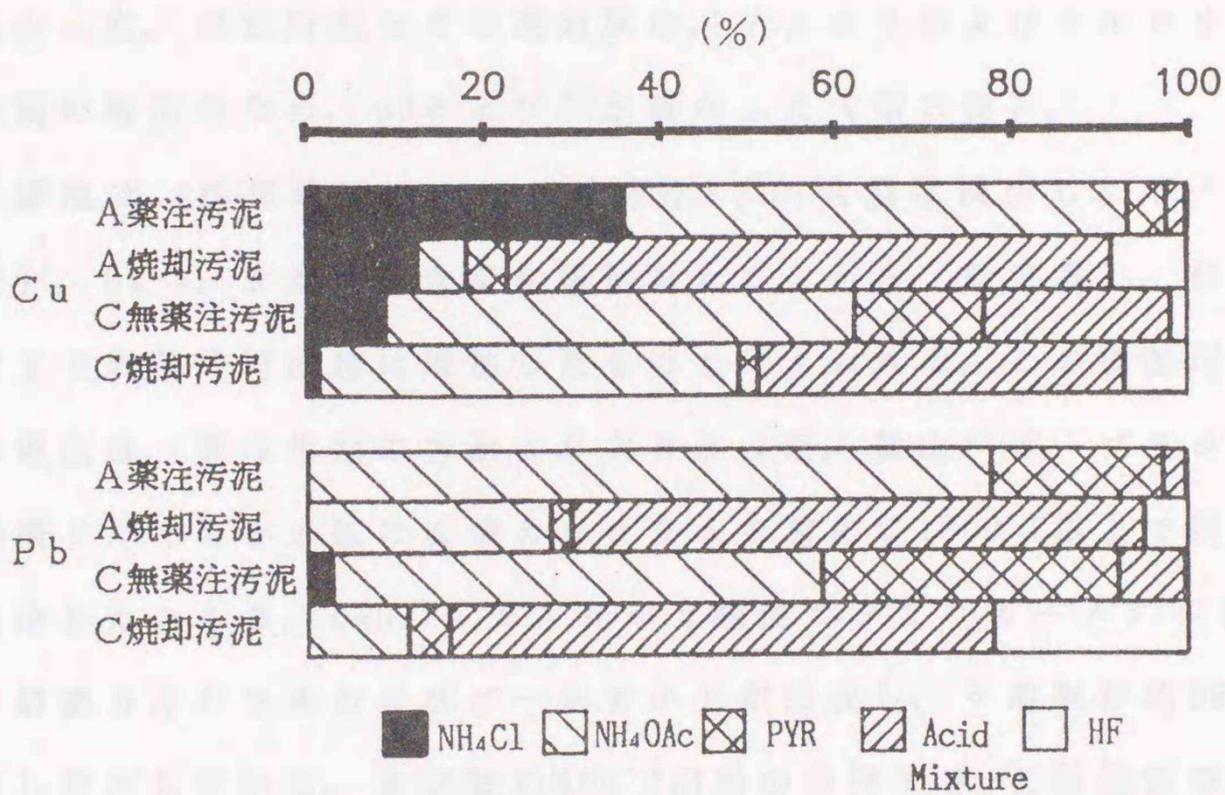


第6図 重金属添加汚泥の収着重金属分別方法

NH₄OAC ≧ PYR ≧ Acid Mix > NH₄Cl ≧ HF の順であり、焼却A薬注汚泥のそれは、Acid Mix > NH₄OAC ≧ HF > PYR ≧ NH₄Cl の順であった。また、C無薬注汚泥のそれは、NH₄OAC > PYR > Acid Mix > NH₄Cl ≧ HF の順で

第7表 汚泥収着重金属の各形態別含量 ($\mu\text{g}/\text{g}$, 乾物当たり)

	Cu				Pb			
	A処理場		C処理場		A処理場		C処理場	
	未焼却	焼却	未焼却	焼却	未焼却	焼却	未焼却	焼却
NH ₄ Cl	10700	3680	914	184	244	36	928	10
NH ₄ OAc(pH4.5)	17000	1810	5470	4910	67500	23700	17100	3640
PYR	1290	1370	1490	228	16900	2000	10300	1470
Acid Mixture	658	20100	2160	4290	2260	55800	2300	19700
HF	78	2570	208	744	204	4280	128	7010
Total	29700	29800	10200	10300	87100	85800	30800	31900



第7図 焼却処理に伴う汚泥収着重金属量に対する各画分量の割合の変化

あり, 焼却C無薬注汚泥のそれは, Acid Mix > HF > NH₄OAc > PYR > NH₄Clの順であった。

焼却処理により, Cu, PbともにPYRまでに抽出される金属量が大き

く減少し、強酸およびフッ酸分解によって溶出する金属量が増加した。すなわち、PYRまでに抽出された金属量の全抽出量に対する割合は、焼却処理により、A薬注汚泥ではCuで98%が24%に、Pbで97%が30%に減少し、C無薬注汚泥ではCuで77%が51%に、Pbで92%が16%にまで減少した（第7図）。

考 察

汚泥のpHやECは、汚泥の脱水工程での凝集助剤としての石灰添加の有無に大きく左右され、焼却処理による影響はほとんど認められなかった。薬注汚泥とその焼却灰は、アルカリおよびアルカリ土類金属の溶出のため、pHおよびECが高かった（第3表）。

磷酸は、焼却処理により水可溶性 P_2O_5 含量は減少したが（第5表）、Ca-P、ク溶性P含量が増加したことから（第6表）、作物に対する磷酸の可給性は増加したものと考えられる。この磷酸可給性の増加は、薬注汚泥の方がより大きかった。秋山⁴⁾は、ブラジル産磷酸アルミニウム鉱に炭酸カルシウムを加えて1300°C以上で焼成し、徐冷したところ、CaO/ PO_4 モル比が4程度でシリコカーノタイト、 α -磷酸カルシウムおよびゲーレンナイトが生成し、ク溶率が約95%増加したとしている。本実験の800°C加熱の条件では、X線回折の結果、結晶性の磷酸塩は確認できなかったが、焼却灰中の磷酸可給性の増加には、カルシウムが関与している可能性がある。

下水汚泥に、流入下水中に溶存している重金属が混入することは避けられない。尾和^{9,6)}は人工汚泥と放射性標識重金属を用いて実験し、排水中の重金属は比較的短時間で汚泥に取り込まれ、 Zn^{2+} 、 Mn^{2+} 、 Cd^{2+} は汚泥の負荷電と静電的に結合しており、 Pb^{2+} 、 Hg^{2+}

は電氣的結合よりも強く結合し、微生物の増殖過程でさらに濃縮されるとしている。このように、下水汚泥に重金属が取り込まれる過程は、重金属の種類によって異なることが予想される。Stoverら¹⁰⁸⁾は、下水汚泥中の重金属の形態分画を試み、 KNO_3 画分を交換態、 KF 画分を吸着態、 PYR 画分を有機結合態、 EDTA 画分を炭酸塩、 HNO_3 画分を硫化物およびその他の沈澱物とした。

全含量の定量分析を過塩素酸分解法で行ったStoverらによると、12点の試料における全含量に対する全抽出量割合の平均は、Znで80%、Cuで85%、Pbで104%、Niで76%とし、鎌田・南ら⁵⁴⁾はStoverらの方法を21点の試料に適用し、Znで107~111%、Cuで64~86%、Pbで104~121%、Niで65~88%と報告しており、本実験とはフッ酸分解と過塩素酸分解の差異はあるものの焼却灰で著しく低かった(第4, 5図)。残渣画分形態の重金属は、極めて難溶な形態であり、作物にもほとんど吸収されないものと考えられ、焼却処理により重金属が難溶化したために、この形態の割合が増加して焼却灰における抽出量が減少したものと考えられる。

水溶性、交換態および吸着態等の植物に比較的吸収され易いと考えられる形態の重金属量は、焼却処理によりCrを除いて著しく減少し、逆に難溶態画分の割合が著しく増加した(第5表, 第4, 5図)。Kistlerら⁶³⁾は、下水汚泥の低酸素条件下における熱分解時の重金属の挙動を調べた結果、Cdは600°C以上で還元気化し、Hgは350°C以上で完全に気化し、Cr, Ni, Cu, Zn, Pbの溶解性が500~600°C以上の加熱で低下したと報告し、Francisら²⁴⁾は、4ヶ所のゴミ焼却灰からの有害重金属の溶出試験を行なった結果、蒸留水ではほとんど溶出せず、有機酸を含むゴミ浸出水ではシカゴのゴミ焼却灰でCd, Pb,

SeがEPA（アメリカ環境保護庁）の暫定一次飲料水基準を越える場合が一時期あったと報告している。Crを除き、Asを含めた水溶性重金属量が焼却処理により減少し（第5表）、下水汚泥に多量の重金属を収着させた後に焼却処理を行なった結果からも、収着重金属の溶解性は著しく低下した（第7図）。したがって、Crを除き、下水汚泥中の重金属の難溶化には、焼却処理が有効であると考えられる⁴⁴⁾。

Crは石灰汚泥の焼却により、水溶性および交換態が増加した（第5表、第5図）。これは、酸化条件下での焼却では、Cr(III)が酸化されてCr(VI)になるという報告^{61, 62)}があることから、汚泥中の難溶なCr(III)が可溶性Cr(VI)になった可能性があるためと考えられる。なお、柏原らの報告^{55, 56)}によれば、このCr(VI)への変換は、Caの共存下で著しく促進され、また、還元的条件下では抑制され、一酸化炭素気流中で800°C、1hrの条件で焼成することにより、焼成物からのCr, Cd, Cu, Mn等全ての有害金属の溶出を抑制できたとしている。実際の汚泥焼却では、低酸素条件下で焼却し、Cr(VI)生成の低減化を図っている。

また、薬注汚泥と無薬注汚泥の各重金属の形態別含量を比較すると（第4, 5図）、交換態や吸着態など比較的植物が吸収し易いと考えられる形態は、Cu, Niで鎌田・南らの報告⁵⁴⁾と同様に、薬注汚泥の方が高かった。コンポストと薬注汚泥を比較すると、Cu, Ni, Crはコンポストで低く、Mn, Zn, Pbはコンポストで高かった。鎌田・南らは、消化槽による発酵によりZn, Cu, Ni, Pbの吸着態と交換態の画分が減少したと報告しているが、コンポスト製造における発酵ではMn, Pbで異なった傾向を示した。

以上のように、下水汚泥は焼却処理により、磷酸の作物に対する有効性は増加し、Asを含め重金属は難溶となる。焼却灰を磷酸質肥料として利用する場合、汚泥やコンポストと乾物中の単位磷酸量当たりで比較すると、①作物に有効な磷酸量は増加し、②土壤に負荷される重金属の絶対量には差がないかあるいは揮発性の金属では減少しており、③さらに重金属が難溶化していることが、焼却灰の有利な点として挙げられる。

第3章 下水汚泥およびその焼却灰施用が土壌の化学性に及ぼす

影響

第1節 下水汚泥およびその焼却灰施用が土壌のpH, EC,

水溶性イオンおよび交換性塩基含量に及ぼす影響

本節では、下水汚泥焼却灰の施用が土壌のpH, EC, 水溶性イオンおよび交換性塩基含量に及ぼす影響について各種下水汚泥と比較しながら検討した。

実験方法

実験に供試したコンポスト, 汚泥および焼却灰の供試資材は第2章と同様である。また, 供試土壌は, 施肥歴のない土壌である北海道農業試験場の林地内の下層土壌(ローム質褐色火山性土B)を用いた。供試土壌の化学的性質は第8表に示すとおりである。この土壌は, 磷酸吸収係数が高く, 有効態磷酸および0.1N-塩酸可溶のZn, Cuが少なかった。

供試風乾細土1.5kgに風乾, 粉碎したコンポスト, 汚泥あるいは

第8表 供試土壌(ローム質褐色火山性土B, 風乾細土)の理化学的特性(乾土当たり)

pH	EC* H ₂ O KCl (μS/cm)	含水比 (%)	CEC (meq/100g)	交換性塩基(meq/100g)				塩基飽和度 (%)	全炭素 (%)	全窒素 (%)	C/N	
				Ca	Mg	Na	K					
5.9	4.5	26.8	17.1	16.2	2.73	1.52	0.71	0.92	36.3	1.29	0.12	11
全磷酸 (mg-P ₂ O ₅ /100g)	磷酸吸収係数	可給態磷酸(mg-P ₂ O ₅ /100g)			0.1N-HCl 可溶金属 (mg/kg)							
		Truog	BrayII	Olsen	Mn	Zn	Cu	Cr	Pb	Cd		
95.6	1660	2.56	3.87	0.44	26.9	0.98	0.02	0.11	0.57	0.002		

*: 1:5水浸出

汚泥から調製した焼却灰を混合し、2ℓポットに詰めた。なお、混合した資材の量は、それらに含有される P_2O_5 の2gに相当する量（第9表）とし、他に、資材を施用しない無施用区を設けた。この施用量は、有効土層の厚さを15cm、土壌の仮比重を1.0とすると、コンポストで56t/ha、汚泥で60～85t/ha、焼却灰で20～43t/haに相当する。

第9表 土壤培養実験に供試した資材の施用量（乾物当たり）

処理区	コンポスト区	薬注汚泥区		無薬注汚泥区		薬注焼却灰区		無薬注焼却灰区	
	コンポスト	A汚泥	B汚泥	C汚泥	D汚泥	A焼却灰	B焼却灰	C焼却灰	D焼却灰
資材施用量 (g/ポット)	56.4	80.3	76.0	59.6	84.5	26.9	28.5	19.5	42.6

数カ所穴をあけて通気性を持たせたラップで容器の表面を覆い、ほぼ5日ごとに最大容水量の60%に脱塩水で調整し、暗所下において30°Cで培養した。培養開始後1週、13週、26週および52週間目に土壌を採取し、風乾後、分析に供した。分析項目および分析方法は第10表に示した。

第10表 土壤培養実験における分析項目と分析方法（風乾土について分析）

分析項目	分析方法	測定方法
pH	1:2.5 水浸出 ²⁰⁾	ガラス電極法
EC	1:5 水浸出 ²⁰⁾	白金黒電極法
CEC	ショーレンベルグ法 ²⁰⁾	ホルモル法 ¹³⁶⁾
交換性陽イオン (Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+)	N酢酸アンモニウム(pH7)浸出 ²⁰⁾	Ca^{2+} , Mg^{2+} : 原子吸光光度法 Na^+ , K^+ : 炎光光度法
水溶性陽イオン (Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+)	1:5 水浸出 ²⁰⁾	Ca^{2+} , Mg^{2+} : 原子吸光光度法 Na^+ , K^+ : 炎光光度法
水溶性陰イオン (SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^-)	1:5 水浸出 ²⁰⁾	イオンクロマトグラフィー

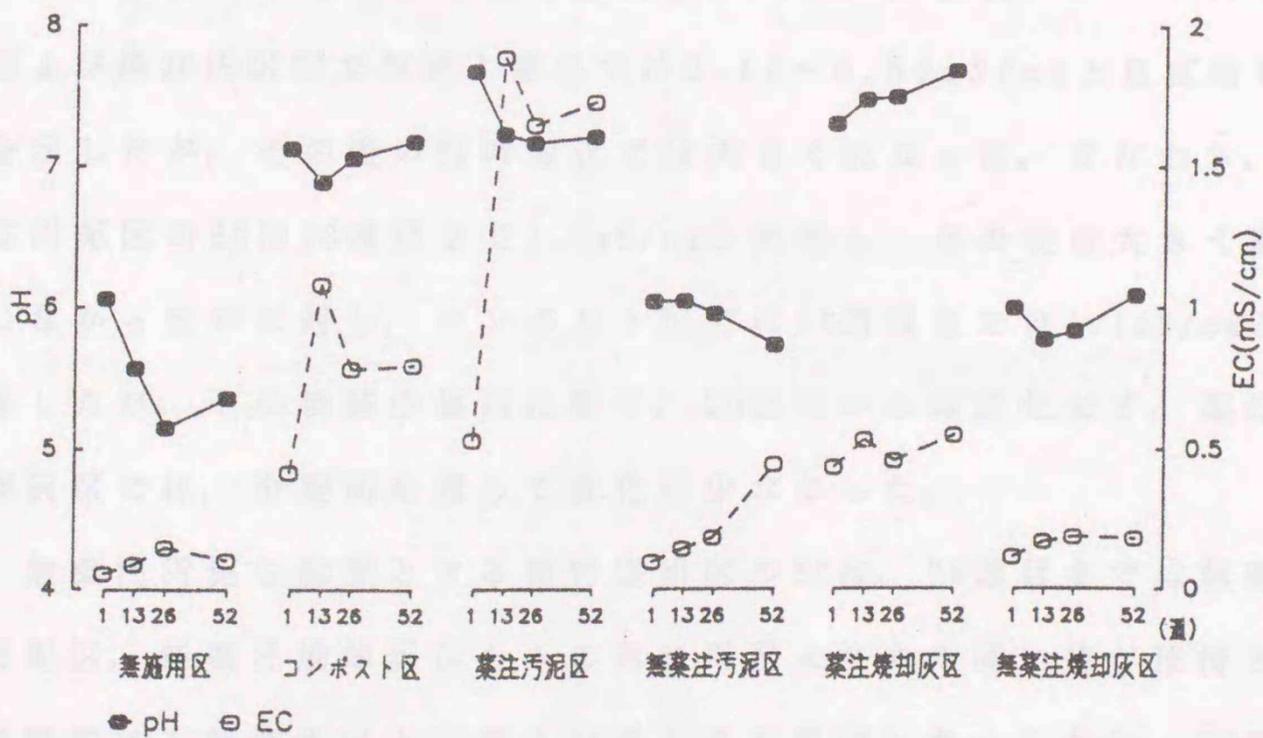
注：肩数字は文献番号

実験結果

各分析項目の分析値は省略したが、これらの値は石灰・塩化鉄薬注汚泥であるAとBの汚泥施用区間あるいはその焼却灰施用区間で類似しており、また、熱処理無薬注汚泥であるCとDの汚泥あるいはその焼却灰施用区でも類似していたので、それらについて、それぞれAとBあるいはCとDの平均値を求めた。以下、AとBの汚泥施用区の平均を薬注汚泥区、AとBの焼却灰施用区の平均を薬注焼却灰区、CとDの汚泥施用区の平均を無薬注汚泥区、CとDの焼却灰施用区の平均を無薬注焼却灰区として表わす。なお、結果は全て乾土当たりの数値で作図した。

1) pHおよびEC

無施用区のpHは、1週目で6.1であり、26週目までは経時的に5.2



第8図 各区におけるpHおよびECの経時変化

まで低下し、26週以降は変化しなかった（第8図）。

薬注汚泥を起源とする資材施用区のpHは、コンポスト、汚泥、焼却灰にかかわらず、全培養期間を通じて無施用区より高い7.0以上の値が維持された。pHを経時的に比較すると、コンポスト区では変化せず、薬注汚泥区では低下する傾向があり、薬注焼却灰区では1週目では薬注汚泥区より低かったが、経時的に上昇した。

無薬注汚泥を起源とする資材施用区のpHは、汚泥、焼却灰にかかわらず、培養開始1週目は無施用区とほぼ同じ値であり、日数の経過に伴って無薬注焼却灰区では変化しなかったが、無薬注汚泥区では低下する傾向にあった。

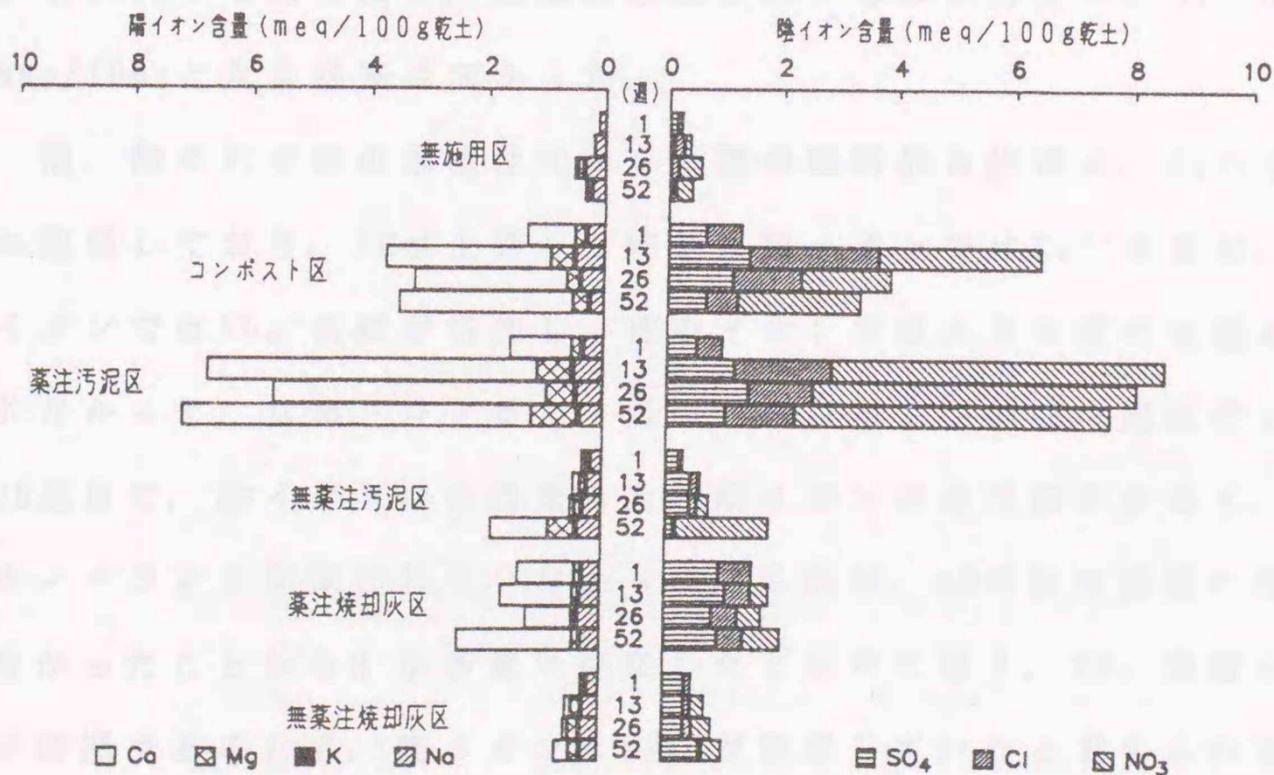
一方、無施用区のECは、開始1週目の 0.05mS/cm から26週目までは微増し、 0.15mS/cm になったが、全培養期間を通じてあまり変化しなかった。

薬注汚泥を起源とする資材施用区のECは、汚泥区、コンポスト区および焼却灰区間で開始1週目では $0.42\sim 0.53\text{mS/cm}$ とほぼ同じ値を示したが、その後の経時変化では大きく異なった。すなわち、薬注汚泥区のECは13週目まで 1.9mS/cm と急増し、その後は大きく変化しなかったのに対し、コンポスト区では13週目までは 1.1mS/cm と上昇したが、その後減少傾向に転じ、26週目からは変化せず、薬注焼却灰区では、全期間を通じて変化は少なかった。

無薬注汚泥を起源とする資材施用区のECは、26週目までは無薬注汚泥区、無薬注焼却灰区ともに無施用区よりやや高い値が維持され、経時的にも無施用区と同様に26週目まで微増した。しかし、26週目以降においては、無薬注焼却灰区のECは変化しなかったのに対し、無薬注汚泥区では 0.45mS/cm まで上昇した。

2) 水溶性イオン含量

水溶性陽イオンの中でナトリウムイオン (Na^+) およびカリウムイオン (K^+) 含量は、資材施用の有無および経時的に大きな差は認められなかった (第9図)。また、マグネシウムイオン (Mg^{2+}) 含量は無施用区で少なく、薬注汚泥区およびコンポスト区で多い傾向にあった。 Mg^{2+} 濃度の経時的な変化は、コンポスト区と薬注汚泥区および無薬注焼却灰区では13週目に増加し、無薬注汚泥区では52週目に増加した。これら陽イオンに対し、カルシウムイオン (Ca^{2+}) 含量は施用資材の種類によって大きく異なった。すなわち、 Ca^{2+} 含量は薬注汚泥区 > コンポスト区 > 薬注焼却灰区 > 無薬注汚泥区 > 無薬注焼却灰区 > 無施用区 の順であり、薬注汚泥区およびコンポスト区で他の資材施用区を大きく上回った。 Ca^{2+} 含量の経時的な変化は、コンポスト区と薬注汚泥区で13週目に急激に増加し、その後の変化



第9図 各区における水溶性イオン含量 (乾土当たり) の経時変化

は小さく、無薬注汚泥区と薬注焼却灰区では52週目に増加した。

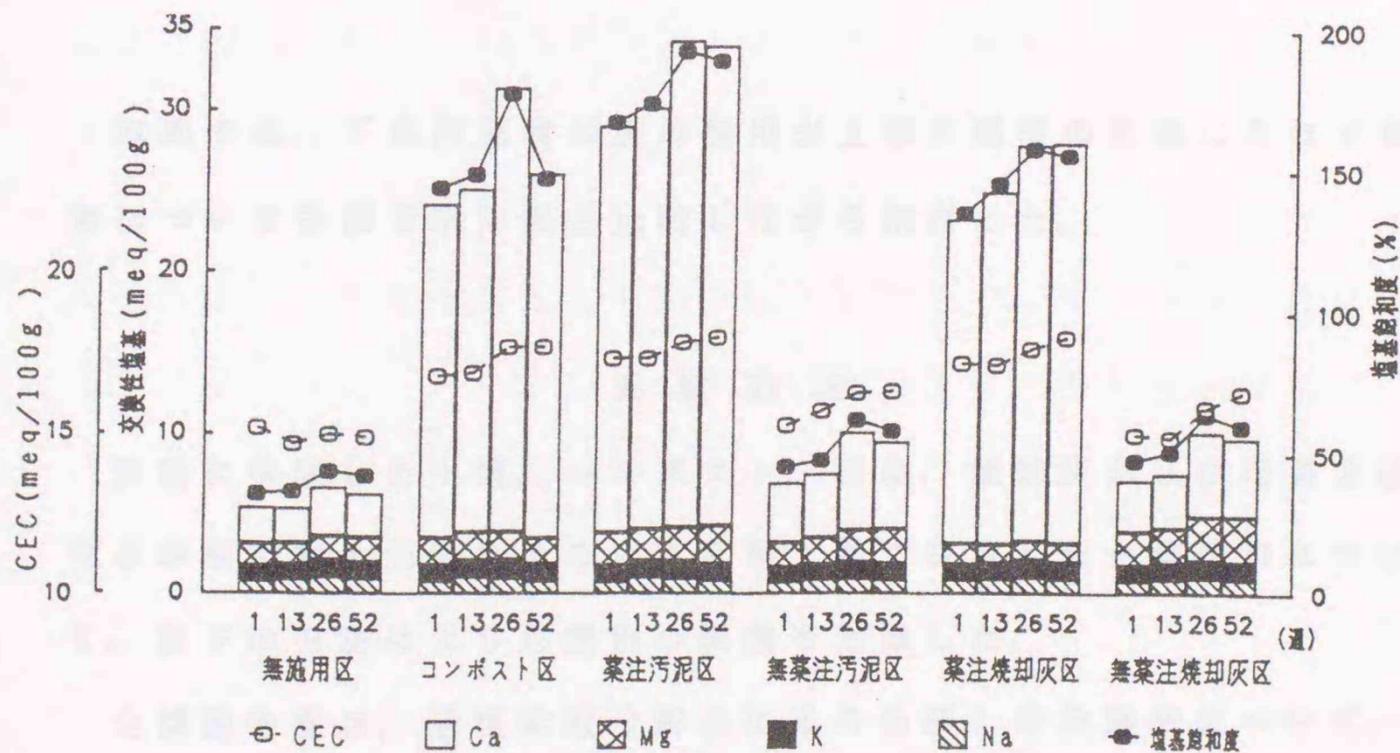
水溶性陰イオン含量は、硫酸イオン (SO_4^{2-}) および塩素イオン (Cl^-) で、無施用区と比較して資材施用区が上回り、経時的に大きな変化はなかった。各資材施用区におけるこれらのイオン含量を薬注と無薬注の脱水方式の違いに着目して比較すると、薬注汚泥を起源とする資材施用区でそれぞれ多かった。また、これらのイオン含量の多かった薬注汚泥を起源とする資材施用区について、薬注汚泥区と薬注焼却灰区におけるイオン含量を比較すると、それぞれ薬注汚泥区で多く、薬注焼却灰区で少なかった。一方、硝酸イオン (NO_3^-) 含量は各区分間および経時的に大きな差が認められた。薬注汚泥区およびコンポスト区の NO_3^- 含量は13週目に $2.78 \sim 5.68 \text{ meq}/100\text{g}$ と急増し、その後コンポスト区ではやや減少したが、薬注汚泥区では変化しなかった。無薬注汚泥区の NO_3^- 含量は52週目で $1.63 \text{ meq}/100\text{g}$ と増加したが、無薬注焼却灰区では無施用区の $0.01 \sim 0.42 \text{ meq}/100\text{g}$ と大きな差はなかった。

陽、陰それぞれの水溶性イオン含量の経時的な推移は、ECのそれに類似しており、ECが上昇した時期に陽イオンでは Ca^{2+} 含量が、陰イオンでは NO_3^- 含量が増加し、他のイオンでは大きな変化は認められなかった。なお、コンポスト区の13週目および薬注汚泥区の13、26週目で、陰イオンの全当量に比べ陽イオンの全当量が少なく、イオンバランスが保たれていなかった。これは、pHの値が極端に低くなかったことから H^+ が多量に存在したとは考え難く、 NO_3^- 濃度が高い時期であるため、陽イオンに NH_4^+ が存在していたと考えられる。

3) C E C, 交換性塩基含量および塩基飽和度

無施用区のCECは全培養期間を通じて14.7~15.2meq/100gと経時的な変化がなかった(第10図)。1週目における各資材施用区のCECは、薬注汚泥を起源とする資材施用区では無施用区と比較して2~3meq/100g程度高く、無薬注汚泥を起源とする資材施用区では無施用区と大きな差はなかった。しかし、全ての資材施用によりCECは経時的にやや上昇し、52週目では薬注汚泥を起源とする資材施用区で17.7~18.0meq/100gに、無薬注汚泥を起源とする資材施用区で16.3meq/100gまで上昇した。

交換性塩基含量のうち、ナトリウム、カリウムには、資材施用の有無および経時的に大きな変化はなかった。交換性マグネシウム含量は、薬注焼却灰区で無施用区より少なかったが、他の資材施用区では無施用区より多く、全ての区で経時的変化は少なかった。交換



第10図 各区におけるCEC, 交換性塩基含量および塩基飽和度(乾土当たり)の経時変化

性カルシウム含量は、交換性塩基中最も大きな割合を占め、その量は薬注汚泥区>コンポスト区 \cong 薬注焼却灰区 \gg 無薬注汚泥区 \cong 無薬注焼却灰区>無施用区の順であった。経時的には、無施用区では変化はなく、資材の施用により26週目までは経時的に増加し、その後は52週で減少したコンポスト区を除いて、大きな変化はなかった。

塩基飽和度の経時変化は、交換性カルシウム含量と同様の傾向を示した。これは、交換性塩基中に占めるでカルシウムの割合が最も大きいためであろう。無施用区では36~45%、無薬注汚泥を起源とする資材施用区では46~64%であったが、薬注汚泥を起源とする資材施用区で100%を越え、特に薬注汚泥区では最高で190%にも達した。

第2節 下水汚泥およびその焼却灰施用土壌中の

形態別磷酸含量の経時変化

本節では、下水汚泥焼却灰の施用が土壌の磷酸の形態に及ぼす影響について各種下水汚泥と比較しながら検討した。

実験方法

実験に供試した土壌、コンポスト、汚泥、焼却灰および培養方法は本章第1節と同様である。本章第1節で採取した土壌試料について、以下の方法により形態別の磷酸を定量した。

全磷酸含量は、過塩素酸分解法により分解した分解液について、バナドモリブデン酸法により比色定量し、形態別無機磷酸を関谷の方法¹⁰⁴⁾に準じて、Ca-P、Al-P、Fe-Pに分別し、アスコルビン酸還

元法により比色定量した。また、有機態リン酸を熱アンモニア水抽出法¹⁰⁴⁾により、有効態リン酸をBray II変法²⁰⁾により定量した。

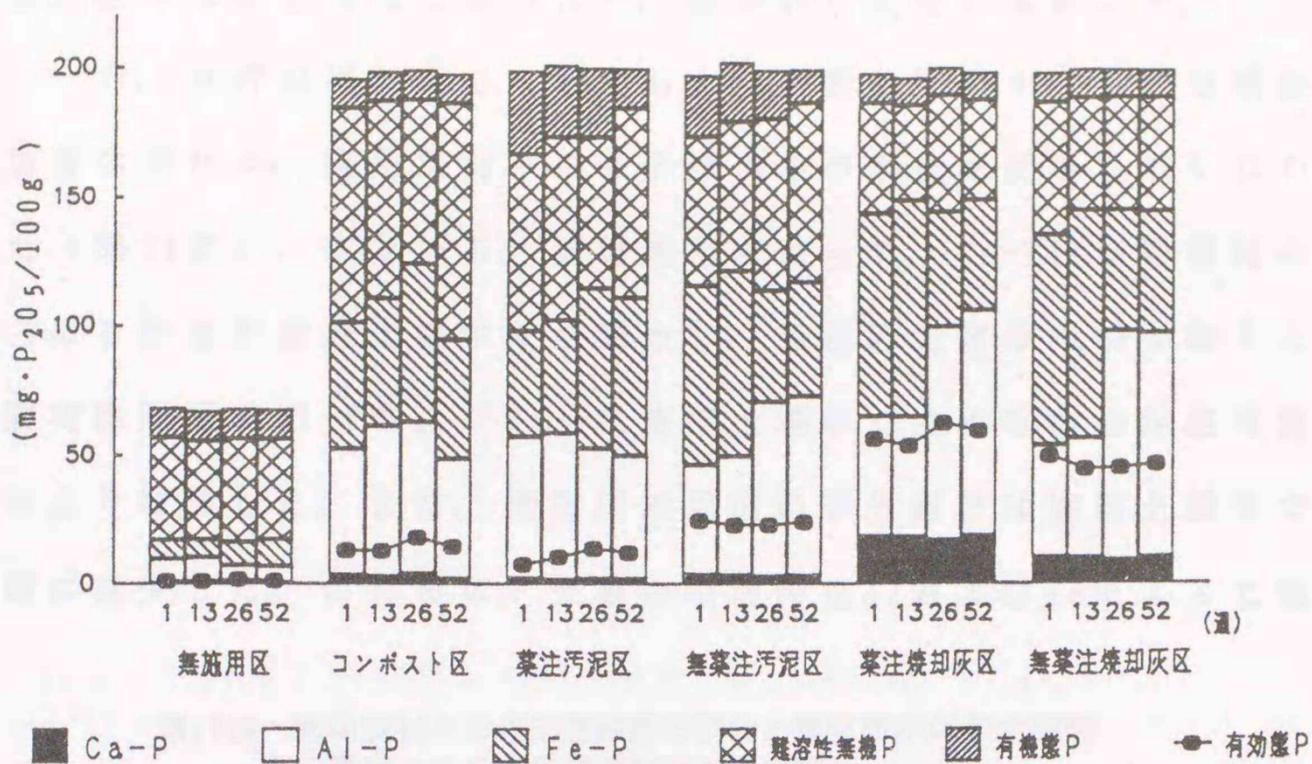
実験結果

各形態リン酸量の分析値は省略したが、これらの値は石灰・塩化鉄薬注汚泥であるAとBの汚泥あるいはその焼却灰施用区で類似しており、また、熱処理無薬注汚泥であるCとDの汚泥あるいはその焼却灰施用区でも類似していたので、第1節と同様に各石灰・塩化鉄薬注汚泥系および熱処理無薬注汚泥系施用区の平均値を求めた。以下、各区の表記を第1節と同様に行なう。形態別無機リン酸および有効態リン酸（以下、有効態Pと略す）含量の経時変化を第11図に示した。ここで未分画Pとは、全リン酸量から形態別無機リン酸の含量を差し引いた量であり、結果は全て乾土当たりで作図した。

全リン酸含量は、無施用区で $70\text{mg}\cdot\text{P}_2\text{O}_5/100\text{g}$ 程度であり、資材施用により $200\text{mg}\cdot\text{P}_2\text{O}_5/100\text{g}$ 程度までと、ほぼ計算量通りに増加し、経時的には変化がなかった（第11図）。

Ca-P含量は、薬注焼却灰区 > 無薬注焼却灰区 > コンポスト区 \cong 無薬注汚泥区 > 薬注汚泥区 > 無施用区の順であり、その起源が薬注汚泥、無薬注汚泥にかかわらず、焼却灰施用区で汚泥施用区およびコンポスト区より3倍以上上回った。また、汚泥施用区では無薬注汚泥区で、焼却灰施用区では薬注焼却灰区で多く、全ての区で経時変化はなかった。

Al-P含量は、無薬注焼却灰区 \cong 薬注焼却灰区 > 無薬注汚泥区 \cong コンポスト区 \cong 薬注汚泥区 > 無施用区の順であり、1週目における各資材施用区の差は小さかったが、薬注汚泥区およびコンポスト区を



第11図 各区における形態別磷酸含量(乾土当たり)の経時変化

除いて26週目から増加した。

Fe-P含量は、13週目までは無薬注焼却灰区 \geq 薬注焼却灰区 $>$ 無薬注汚泥区 $>$ コンポスト区 \geq 薬注汚泥区 $>$ 無施用区の順であった。しかし、26週以降は薬注焼却灰区、無薬注焼却灰区および無薬注汚泥区でAl-P含量の増加に伴ってFe-P含量が減少し、Fe-P含量は薬注汚泥区 \geq コンポスト区 $>$ 無薬注焼却灰区 \geq 薬注焼却灰区 \approx 無薬注汚泥 $>$ 無施用区の順となった。

主要な磷酸の形態は、未分画Pを除くと無施用区、薬注汚泥区、無薬注汚泥区およびコンポスト区ではAl-PとFe-Pであり、薬注焼却灰区および無薬注焼却灰区では13週目まではFe-Pであったが、26週以降はAl-Pであった。

有機態磷酸は、薬注汚泥区および無薬注汚泥区で無施用区より多く、経時的に減少したが、コンポスト区、薬注焼却灰区、無薬注焼

却灰区では無施用区と差がなく，経時的に変化しなかった。

一方，資材施用によって増加した全リン酸量に対する各形態リン酸増加量の割合は，施用資材中の各形態リン酸の割合を反映していなかった（第11表）。すなわち，資材施用によって，Ca-Pは施用資材中に占める割合が施用土壌中では減少し，薬注汚泥区のFe-Pを除くと各資材施用区のAl-PおよびFe-Pは施用土壌中で占める割合が施用資材中より増加した。また，焼却灰施用区の未分画Pは施用土壌中で大幅に減少した。これらは，土壌中の活性なAlおよびFeによって施用

第11表 施用資材中の各形態リン酸の割合と資材施用区的全リン酸増加量に占める各形態リン酸増加量の割合

	添加資材	経過週数				
		1	13	26	52	
コンポスト区	Ca-P	24.6	2.7	2.0	3.0	1.4
	Al-P	26.3	30.8	36.8	39.4	30.8
	Fe-P	14.8	32.4	32.1	39.6	27.2
	未分画P	33.9	34.1	29.1	17.9	40.6
薬注汚泥区	Ca-P	4.7	1.6	1.0	1.4	1.2
	Al-P	7.6	34.7	35.1	33.0	31.3
	Fe-P	43.5	25.5	27.2	39.9	38.1
	未分画P	44.2	38.2	36.7	25.8	29.3
無薬注汚泥区	Ca-P	27.2	2.8	2.3	2.0	2.2
	Al-P	36.7	25.6	26.8	46.3	47.8
	Fe-P	19.3	47.8	47.8	25.8	25.5
	未分画P	16.8	23.8	23.1	26.0	24.4
薬注焼却灰区	Ca-P	21.5	14.2	13.8	12.6	14.0
	Al-P	9.2	28.4	28.3	57.1	61.8
	Fe-P	0.0	54.7	59.4	26.7	24.8
	未分画P	69.2	2.7	-1.5	3.6	-0.6
無薬注焼却灰区	Ca-P	38.5	7.9	7.4	6.7	7.6
	Al-P	19.2	26.0	27.4	62.1	61.0
	Fe-P	2.5	56.9	61.3	28.7	27.8
	未分画P	39.7	9.2	3.9	2.5	3.5

資材中の各形態リン酸が土壌中で再配分されたためと考えられる。

また、資材中の有機態リン酸含量から計算した薬注汚泥区、無薬注汚泥区およびコンポスト区への有機態リン酸の負荷量をもとに、各時期における各区の有機態リン酸無機化率を算出した（第12表）。コンポスト区では1週目ですでに100%に達しており、薬注汚泥区では1週目の38.4%から経時的に上昇し、52週目では87.5%に達した。無薬注汚泥区では、13週目までは10%台と低かったが、26週目以降は薬注汚泥区と同様の値であった。

第12表 各種有機資材施用区における有機リン含量と無機化率^{*}（乾土当たり）

	コンポスト区		薬注汚泥区		無薬注汚泥区		無施用区 有機リン含量 (mg/kg)
	有機リン含量 (mg/kg)	無機化率 (%)	有機リン含量 (mg/kg)	無機化率 (%)	有機リン含量 (mg/kg)	無機化率 (%)	
施用資材	440	—	680	—	320	—	—
負荷量 ^{**}	15.9	—	33.6	—	14.2	—	—
1週目	11.6	100	32.3	38.4	24.0	12.7	11.6
13週目	11.5	100	28.1	51.2	23.2	19.0	11.7
26週目	11.6	100	27.1	53.9	19.0	47.9	11.6
52週目	11.6	100	15.8	87.5	13.2	88.7	11.6

*: $(1 - (\text{各区の有機リン含量} - \text{無施用区の有機リン含量}) / \text{各区の有機リン負荷量}) \times 100$

** : 施用資材有機リン含量と施用量から算出

Bray II 変法で測定した有効態P含量は（第11図），薬注焼却灰区 \geq 無薬注焼却灰区 $>$ 無薬注汚泥区 \geq コンポスト区 \approx 薬注汚泥区 $>$ 無施用区の順であり，全培養期間を通じて焼却灰施用区が汚泥およびコンポスト施用区を上回り，その差は薬注汚泥を起源とする施用区で43.4～49.0 mg・P₂O₅/100g，無薬注汚泥を起源とする施用区で21.7～24.8 mg・P₂O₅/100gあった。経時的な変化は，薬注汚泥を起源とする施用区では，薬注汚泥区，コンポスト区，薬注焼却灰区ともに26週目まではやや増加したが，それ以後はやや減少した。無薬注

汚泥を起源とする施用区では、無薬注汚泥区には経時的な変化はなく、無薬注焼却灰区では13週でやや減少したが、それ以後は変化がなかった。

第3節 下水汚泥およびその焼却灰施用土壤中の 可溶性重金属含量の経時変化

本節では、下水汚泥焼却灰の施用が土壤の可溶性重金属量に及ぼす影響について各種下水汚泥と比較しながら検討した。

実験方法

実験に供試した土壤、コンポスト、脱水ケーキ、焼却灰および培養方法は本章第1節と同様である。本章第1節で採取した土壤試料について、全重金属含量を過塩素酸分解法で定量し、可溶性重金属含量を以下の方法により定量した。

分析は、ジエチレン三アミン五酢酸(DTPA)可溶および0.1N-塩酸可溶のFe, Mn, Zn, Cu, PbおよびCrを原子吸光光度法により定量した。0.1N-塩酸抽出は常法に従い、DTPA抽出はLindsay・Norvellらの方法⁷⁵⁾によって行った。すなわち、DTPA抽出液は、0.005M-DTPA, 0.01M-塩化カルシウム, 0.1M-トリエタノールアミンから成り、pHを1:1塩酸で7.30に調整した。風乾土10gに対し、この抽出液を20ml加え、2h振とう後、ワットマンNo.42の濾紙で濾過し、供試液を得た。

実験結果

各重金属の全含量および溶出量の分析値は省略したが、これらの

値は石灰・塩化鉄薬注汚泥であるAとBの汚泥あるいはその焼却灰施用区で類似しており、また、熱処理無薬注汚泥であるCとDの汚泥あるいはその焼却灰施用区でも類似していたので、第1節と同様に各石灰・塩化鉄薬注汚泥系および熱処理無薬注汚泥系施用区の平均値を求めた。以下、各区の表記を第1節と同様に行なう。各土壌採取時期を通じての重金属全含量の平均値を第13表に、溶出量の平均値の経時変化を第12図から第15図に図示し、結果は全て乾土当たりで示した。

1) 重金属全含量

Mnは606mg/kg（無施用区）～690mg/kg（コンポスト区）に、Znは65.7mg/kg（無施用区）～91.0mg/kg（無薬注汚泥区）に、Cuは10.3mg/kg（無施用区）～16.9mg/kg（無薬注汚泥区）に、Crは19.1mg/kg（無施用区）～21.9mg/kg（薬注汚泥区）に、Pbは15.1mg/kg（無施用区）～16.4mg/kg（無薬注汚泥区）に分布した（第13表）。

第13表 各区における平均重金属全含量* (mg/kg・乾土)

	Mn	Zn	Cu	Cr	Ni	Co	Pb
無施用区	606	65.7	10.3	19.1	10.7	11.2	15.1
コンポスト区	690	84.4	14.8	21.7	11.6	11.6	16.3
薬注汚泥区	685	82.3	14.2	21.9	11.2	11.5	15.6
無薬注汚泥区	641	91.0	16.9	20.8	11.1	11.7	16.4
薬注焼却灰区	684	79.7	14.1	21.8	11.0	11.5	15.6
無薬注焼却灰区	640	89.9	16.2	21.0	11.0	11.6	16.3

*: 4回の分析時の平均

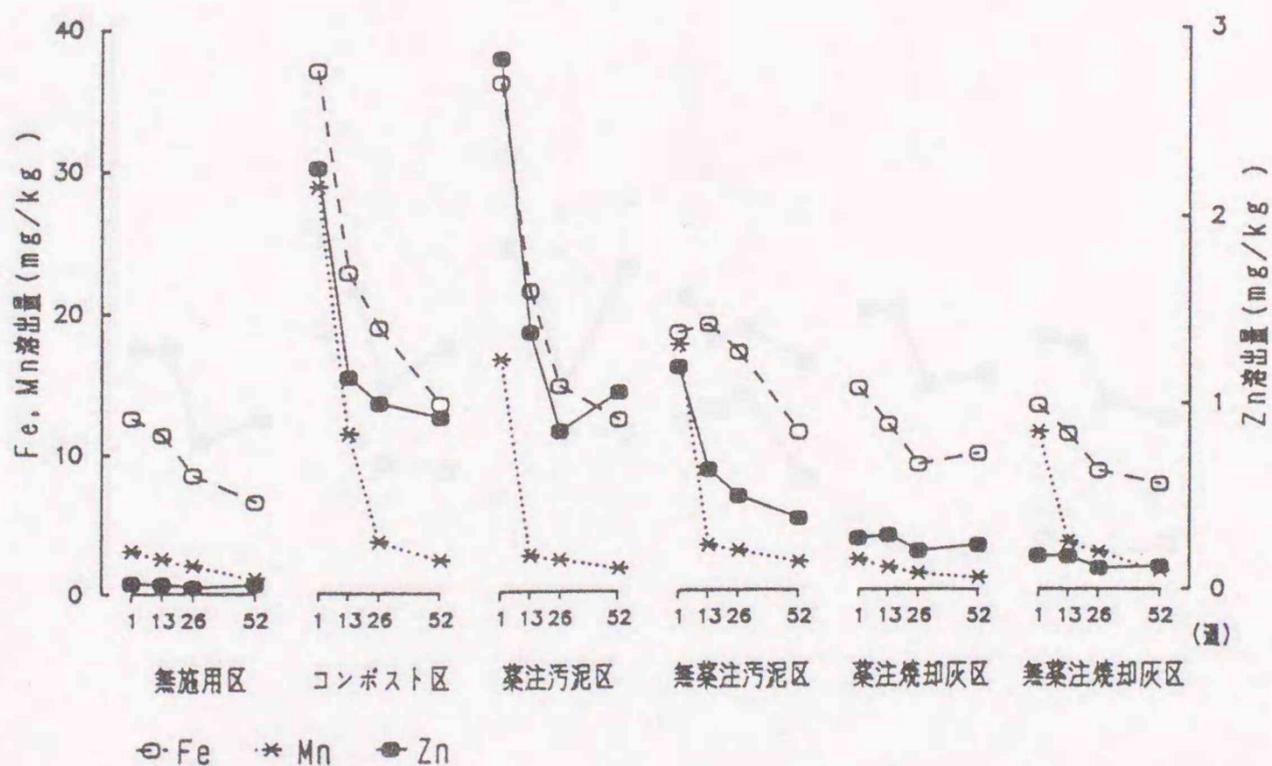
2) DTPA可溶重金属含量

DTPAによるFeの溶出量は、6.6～12.6mg/kg（無施用区）から13.5～37.1mg/kg（コンポスト区）に分布した（第12図）。Fe溶出量は全

での区で経時的に減少する傾向にあり、特に、コンポスト区と薬注汚泥区で経時的に急減し、52週目では全ての資材施用区で無施用区と大差なかった。

Mnの溶出量は(第12図), 1.07~3.06mg/kg(無施用区)から2.33~28.9mg/kg(コンポスト区)に分布した。無施用区と薬注焼却灰区で経時的に変化なく、低い値で推移したが、それ以外の資材施用区では培養開始1週目に無施用区より高い値を示し、13週あるいは26週目までに急減し、それ以降では全ての資材施用区で無施用区と差がなくなった。

Znの溶出量(第12図)は, 0.04~0.06mg/kg(無施用区)から0.86~2.84mg/kg(薬注汚泥区)に分布した。無施用区ではほとんど溶出せず、焼却灰施用区で微量の溶出が認められたが、経時的な変化はなく低い値が維持された。これに対し、コンポストおよび薬注あ

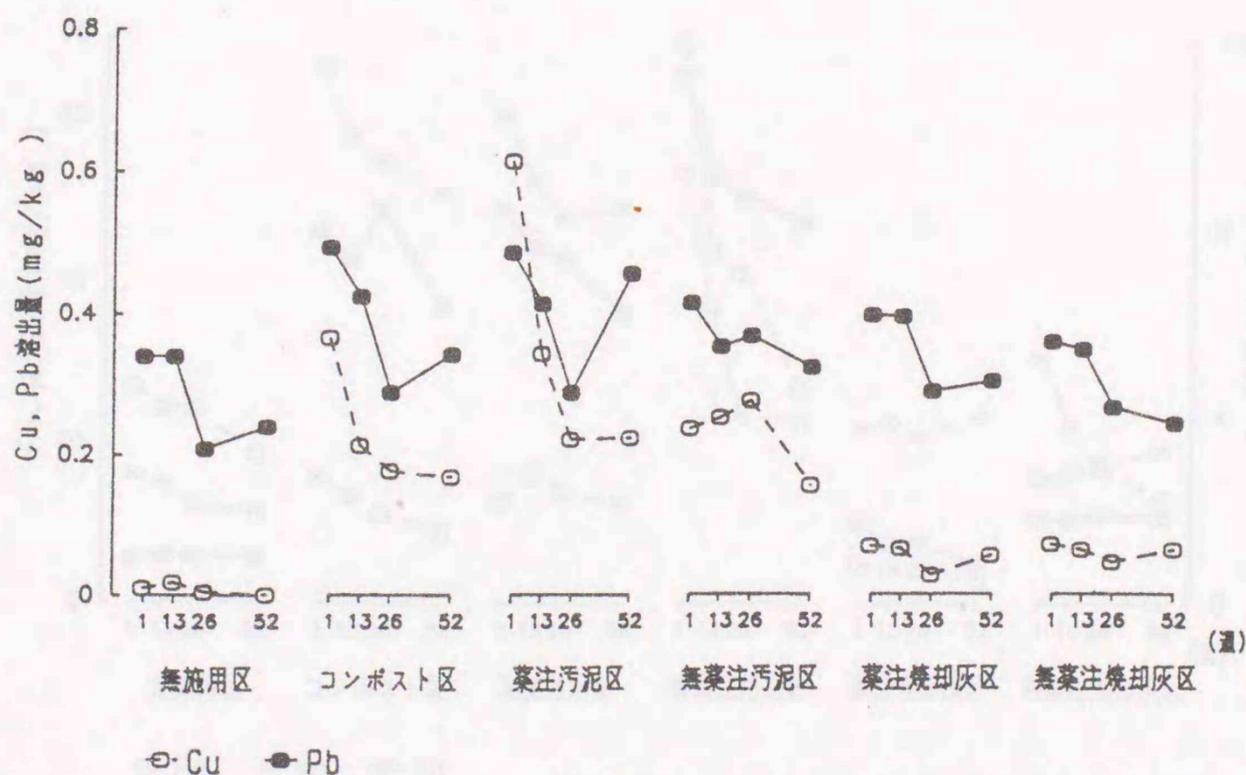


第12図 各区におけるDTPA可溶のFe, Mn, Zn量(乾土当たり)の経時変化

るいは無薬注の汚泥区では培養開始1週後には無施用区と比べてかなり高い値を示し、経時的に溶出量は減少したが、焼却灰よりは高い値で推移した。薬注汚泥起源の資材施用区と無薬注汚泥起源の資材施用区を比較すると、脱水ケーキ、焼却灰ともに薬注汚泥起源の資材施用区で高かった。

Cuの溶出量は(第13図)、 $tr. \sim 0.02 \text{ mg/kg}$ (無施用区)から $0.22 \sim 0.62 \text{ mg/kg}$ (薬注汚泥区)に分布し、Znの溶出量と同様な経時的变化を示した。すなわち、無施用区と薬注焼却灰区あるいは無薬注焼却灰区では経時的に変化なく、低い値で推移し、コンポスト区、薬注汚泥区あるいは無薬注汚泥区では経時的に減少する傾向にあった。汚泥区とそれと起源を同じくする焼却灰区を比較すると、焼却灰区で汚泥区より低かった。

その他の重金属では、Crは、全ての測定で検出限界以下であり、



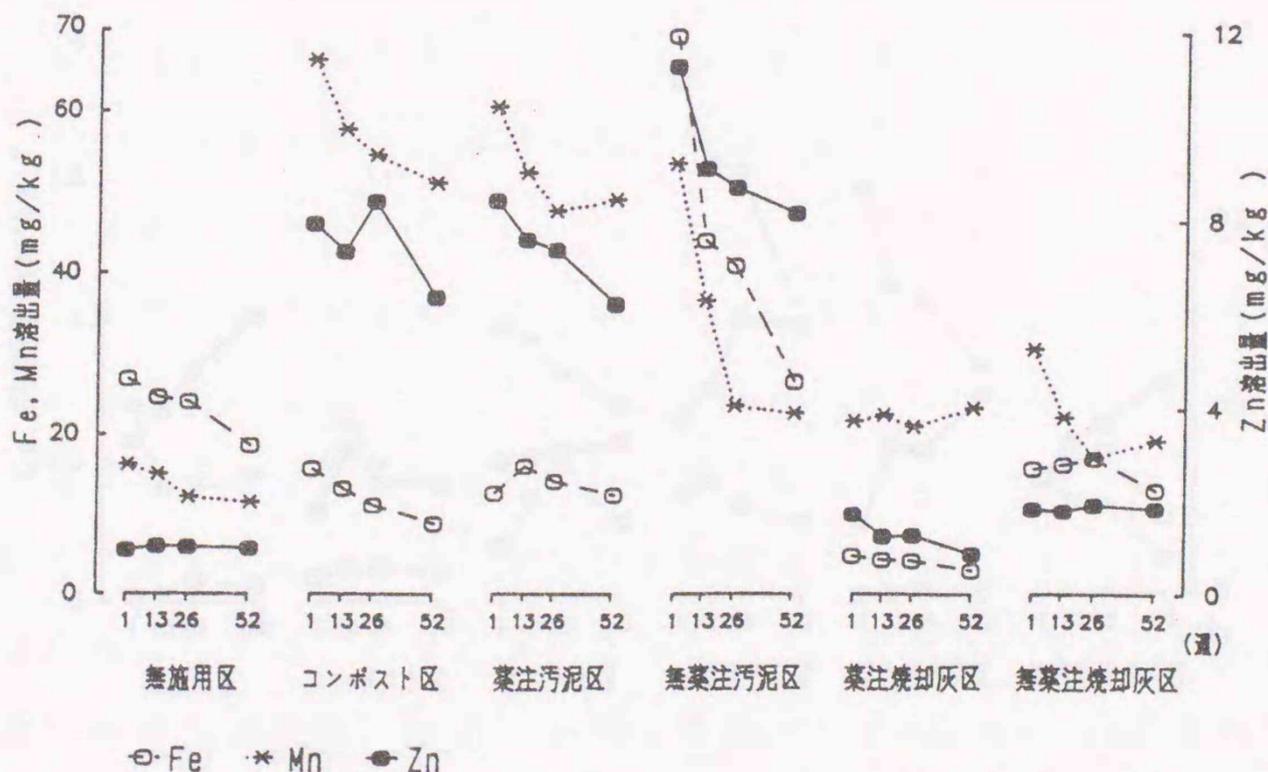
第13図 各区におけるDTPA可溶のCu, Pb量(乾土当たり)の経時変化

Pbは、0.21~0.34mg/kg（無処理）から0.29~0.49mg/kg（コンポスト）に分布し、全体的に経時的には減少する傾向であり、資材施用により無施用区を上回ったが、他の金属種に比べてその差は小さく、汚泥区と焼却灰区との差も明瞭ではなかった（第13図）。

3) 0.1N-塩酸可溶重金属量

0.1N-塩酸によるFeの溶出量は、3.0~4.8mg/kg（薬注焼却灰区）から26.6~69.5mg/kg（無薬注汚泥区）に分布した（第14図）。無薬注汚泥区で無施用区より高く、経時的に減少したが、他の資材施用区では無施用区より低く、経時的に大きな変化はなかった。

Mnの溶出量は（第14図）、11.5~16.2mg/kg（無施用区）から51.1~66.3mg/kg（コンポスト区）に分布した。薬注汚泥区およびコンポスト区で経時的に減少したが、52週目でも無施用区と比較して、

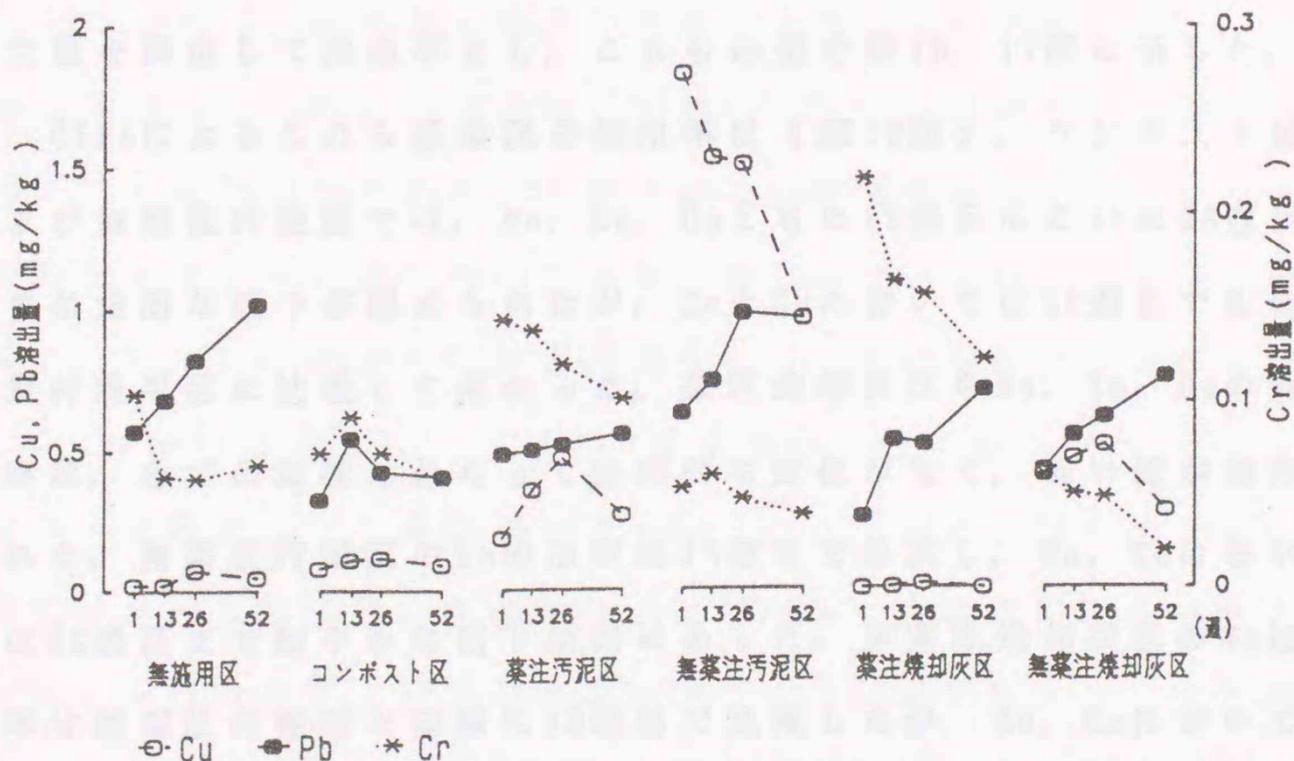


第14図 各区における0.1N-塩酸可溶のFe, Mn, Zn量（乾土当たり）の経時変化

4倍以上も多かった。これに対し、薬注焼却灰区では全ての期間にわたり、無施用区と大きな差がなかった。無薬注汚泥区と無薬注焼却灰区では26週目までに急減し、無施用区と大きな差がなくなった。

Znの溶出量は(第14図), 0.94~1.02mg/kg(無施用区)から8.2~11.3mg/kg(無薬注汚泥区)に分布し, 溶出量の多い薬注, 無薬注の汚泥およびコンポスト区と溶出量の少ない無施用区および焼却灰区とに大きく2極化した。前者は経時的に減少したが, 後者は経時的に変化しなかった。

Cuの溶出量は(第15図), tr.~0.02mg/kg(薬注焼却灰区)から0.97~1.84mg/kg(無薬注汚泥区)に分布した。無施用区と薬注焼却灰区やコンポスト区で経時的に変化なく, 低い値で推移した。薬注汚泥区は26週目までやや増加し, その後減少に転じた。無薬注汚泥区では溶出量が多く, 経時的に減少したが, 52週目でも他の区と



第15図 各区における0.1N-塩酸可溶のCu, Pb, Cr量(乾土当たり)の経時変化

比較してかなり高かった。

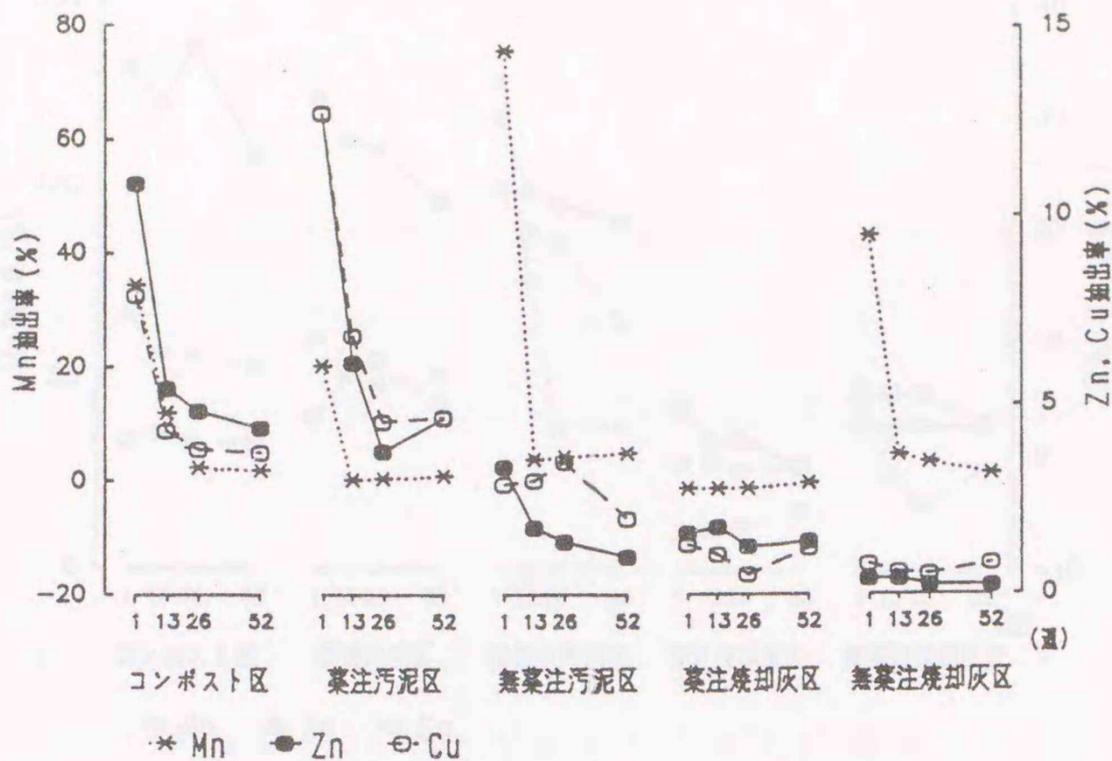
Crの溶出量は(第15図), 0.02~0.04mg/kg(無薬注焼却灰区)から0.12~0.22mg/kg(薬注焼却灰区)に分布し, 全体として経時的に減少する傾向であったが, 薬注焼却灰区で薬注汚泥区より高く, 石灰薬注汚泥の焼却処理においてCr(VI)生成に起因するCrの可溶化が窺えた。

Pbの溶出量は(第15図), 0.33~0.55mg/kg(コンポスト区)から0.57~1.02mg/kg(無施用区)に分布し, 全体として経時的に増加する傾向であったが, 全ての資材施用区ともに無施用区とほぼ同じかあるいは少なかった。

4) Mn, Zn, Cuの抽出率

各資材施用区のMn, Zn, Cu溶出量から無施用区の溶出量を差し引き, それを資材施用に伴って土壤に混入した重金属の施用量で除した値を算出して抽出率とし, これらの値を第16, 17図に示した。

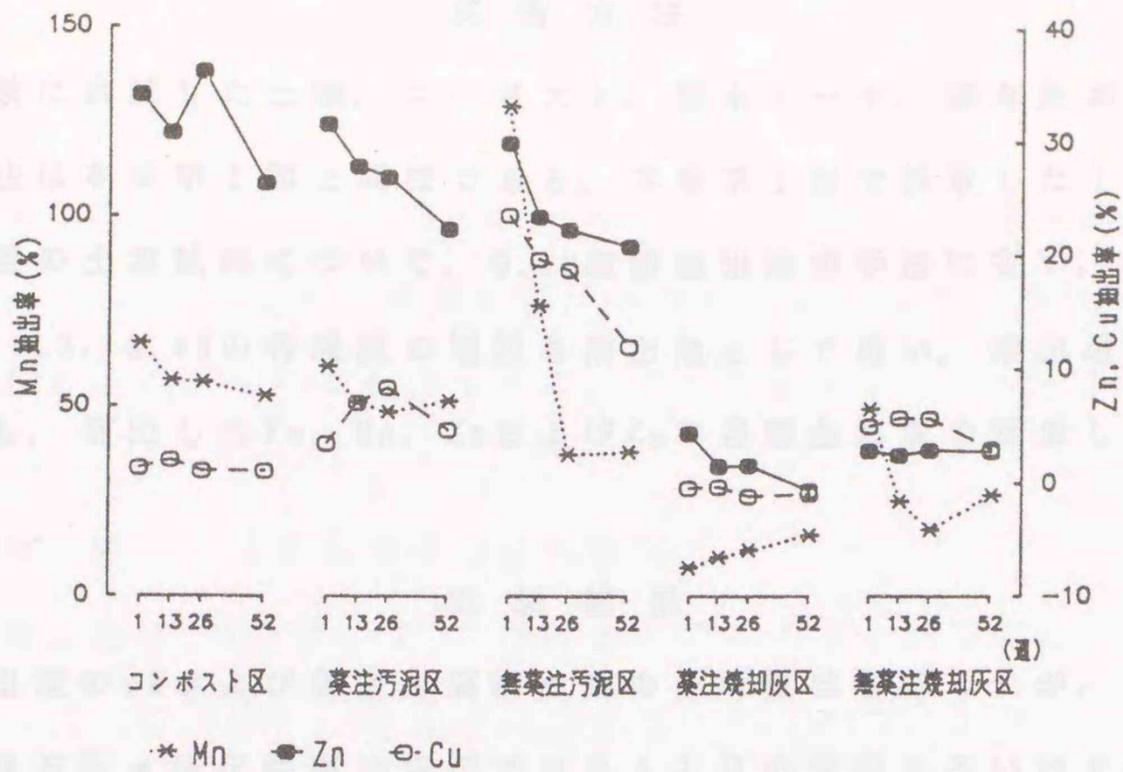
DTPAによるこれら重金属の抽出率は(第16図), コンポスト区および無薬注汚泥区では, Mn, Zn, Cuともに13週目あるいは26週目までに急激な低下が認められたが, ZnとCuにおいては52週目でも他の資材施用区に比較して高かった。薬注焼却灰区のMn, Zn, Cuの抽出率は, 全ての期間にわたって経時的な変化がなく, 低い値が維持された。無薬注汚泥区のZn抽出率は13週目で急減し, Mn, Cuにおいては52週目まで緩やかな低下傾向にあった。無薬注焼却灰区のMn抽出率は無薬注汚泥区と同様に13週目で急減したが, Zn, Cuにおいては経時的な変化がなく, 低い値が維持された。52週目のMn, Zn, Cuの抽出率は, 薬注汚泥区でMn: 0.9%, Zn: 4.7%, Cu: 4.7%, 無薬



第16図 資材施用区のDTPAによるMn, Zn, Cu抽出率(乾土当たり)の経時変化

注汚泥区でMn: 4.9%, Zn: 1.0%, Cu: 2.0%, 薬注焼却灰区でMn: 0%, Zn: 1.4%, Cu: 1.2%, 無薬注焼却灰区でMn: 1.2%, Zn: 0.2%, Cu: 0.8%であった。これら52週目における抽出率を, 薬注および無薬注の脱水方式の違いで比較すると, 汚泥および焼却灰ともに, Mnは無薬注汚泥を, ZnおよびCuは薬注汚泥を起源とする資材施用区でそれぞれ高い傾向にあり, 焼却処理の有無について比較すると, Mn, Zn, Cuともに焼却処理を施した資材施用区で低かった。

0.1N-塩酸によるMn, Zn, Cuの抽出率は(第17図), DTPAによる抽出率と比較すると, 概ね高い値を示し, コンポスト区および薬注汚泥区における経時的な変化割合が小さかった。焼却処理を施さなかったコンポストおよび汚泥の施用区では, コンポスト区と薬注汚泥区のCuを除いて経時的に低下し, 焼却灰施用区では無薬注焼却灰区のMnを除いて経時的な変化は小さかった。52週目のこれら重金属の



第17図 資材施用区の0.1N-塩酸によるMn, Zn, Cu抽出率(乾土当たり)の経時変化

抽出率は、薬注汚泥区でMn: 52%, Zn: 22%, Cu: 4.7%, 無薬注汚泥区でMn: 38%, Zn: 21%, Cu: 12%, 薬注焼却灰区でMn: 16%, Zn: 0%, Cu: 0%, 無薬注焼却灰区でMn: 27%, Zn: 2.8%, Cu: 3.0%であり、起源とする汚泥の脱水方式にかかわらず、焼却灰区が汚泥区を下回った。

第4節 抽出液の塩酸濃度が下水汚泥およびその焼却灰

施用土壤中の溶出重金属量に及ぼす影響

本節では、塩酸抽出液濃度を变化させ、溶出液pHを低下させた場合における溶出重金属量を、下水汚泥焼却灰施用土壤と各種下水汚泥施用土壤とを比較しながら検討した。

実験方法

実験に供試した土壌，コンポスト，脱水ケーキ，焼却灰および培養方法は本章第1節と同様である。本章第1節で採取した1週目と52週目の土壌試料について，0.1N塩酸抽出法の手法に従い，0.15，0.2，0.3，0.4Nの各濃度の塩酸を抽出液として用い，溶出液のpHを測定し，溶出したFe，Mn，ZnおよびCuの各重金属量を定量した。

実験結果

溶出液のpHおよび各重金属溶出量の分析値は省略したが，これらの値は石灰・塩化鉄薬注汚泥であるAとBの汚泥あるいはその焼却灰施用区で類似しており，また，熱処理無薬注汚泥であるCとDの汚泥あるいはその焼却灰施用区でも類似していたので，第1節と同様に各石灰・塩化鉄薬注汚泥系および熱処理無薬注汚泥系施用区の平均値を求めた。以下，各区の表記を第1節と同様に行なう。

1) 抽出塩酸濃度の上昇に伴う溶出液pHの変化

1週目の溶出液pHは（第14表），塩酸濃度が0.1Nでは2.20（無施用区）～2.85（薬注汚泥区）に分布し，酸濃度が上昇するにしたが

第14表 各抽出塩酸濃度における溶出液pH

塩酸濃度 (N)	pH											
	無施用区		コンポスト区		薬注汚泥区		無薬注汚泥区		薬注焼却灰区		無薬注焼却灰区	
	1週目	52週目	1週目	52週目	1週目	52週目	1週目	52週目	1週目	52週目	1週目	52週目
0.1	2.25	2.16	2.52	2.53	2.85	2.54	2.25	2.12	2.65	2.89	2.20	2.26
0.15	1.58	1.56	1.88	1.83	2.10	1.86	1.66	1.55	2.12	2.15	1.67	1.64
0.2	1.42	1.36	1.61	1.54	1.68	1.53	1.43	1.37	1.66	1.68	1.43	1.39
0.3	1.05	1.04	1.16	1.16	1.24	1.16	1.10	1.07	1.22	1.23	1.09	1.09
0.4	0.89	0.89	0.96	0.98	1.01	0.96	0.92	0.91	1.02	1.00	0.91	0.91

って低下し、0.4Nでは0.89（無施用区）～1.02（薬注焼却灰区）となった。52週目の溶出液pHは、pH(H₂O)が経時的に低下した無施用区、薬注汚泥区および無薬注汚泥区では（第8図）1週目より低く、pH(H₂O)が上昇した薬注焼却灰区、無薬注焼却灰区では高かったが、酸濃度が上昇するにしたがってそれぞれの差は小さくなった。

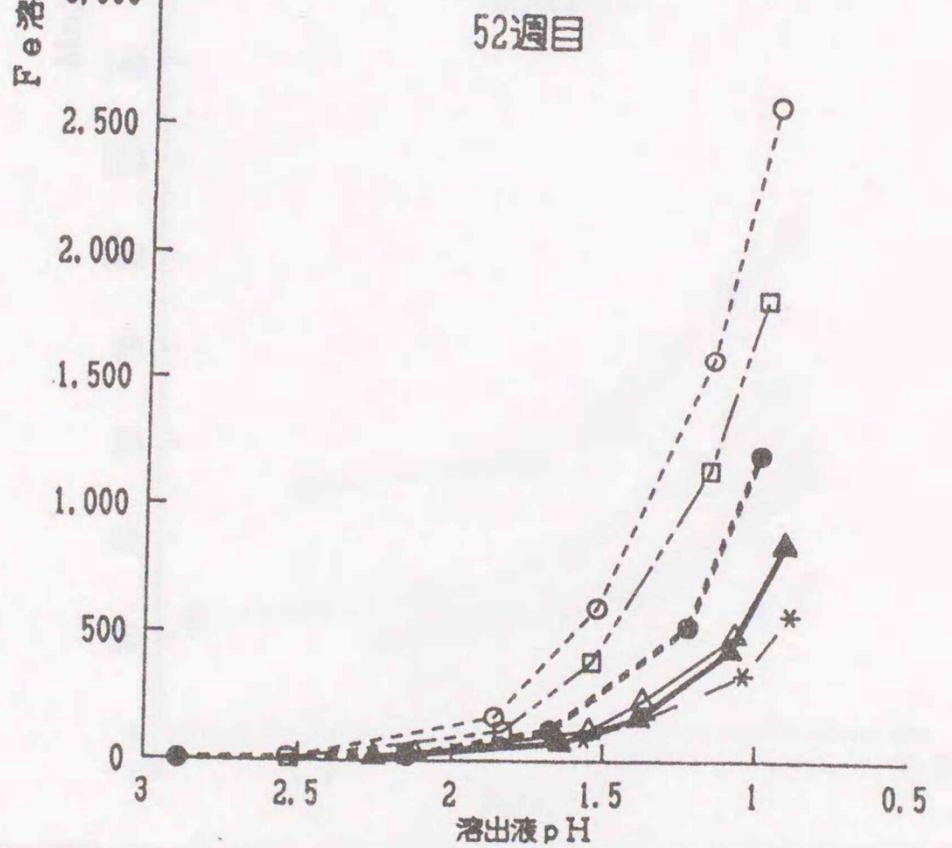
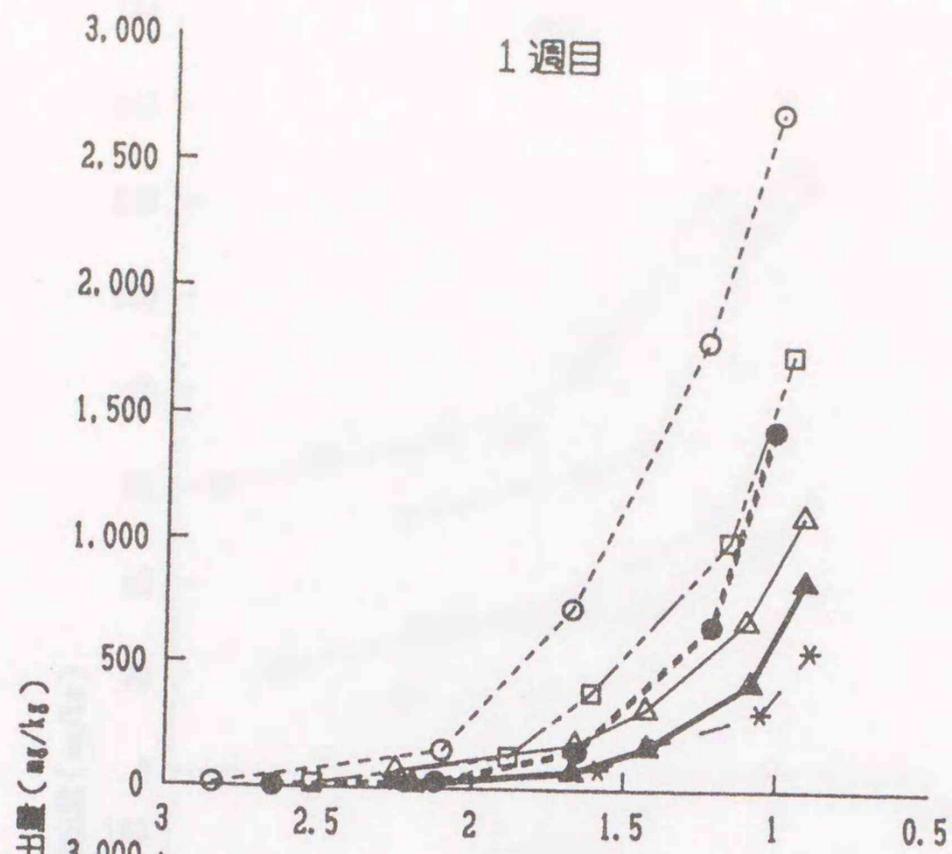
2) 溶出液pHと各重金属溶出量の関係

Fe溶出量は、溶出液pHが1.8程度より低下するとFe溶出量は急激に増加した（第18図）。溶出液pHの低下に伴うFe溶出量増加の割合は、塩化第二鉄を凝集剤として使用している薬注汚泥を起源とする資材施用区で高く、薬注汚泥区では0.4N-塩酸抽出におけるFe溶出量は2500mg/kgを越え、0.1N-塩酸抽出と比較すると200倍以上の溶出量であった。

Mn溶出量は、Fe溶出量と同様に溶出液pHの低下に伴い増加した（第19図）。しかし、Mn溶出量増加の割合は、Fe溶出量より小さく、0.1Nと0.4N-塩酸抽出時の溶出量を比較すると、最も差の大きかった薬注汚泥区で0.4N-塩酸抽出は0.1N-塩酸抽出の2.2（52週目）～2.4（1週目）倍であった。

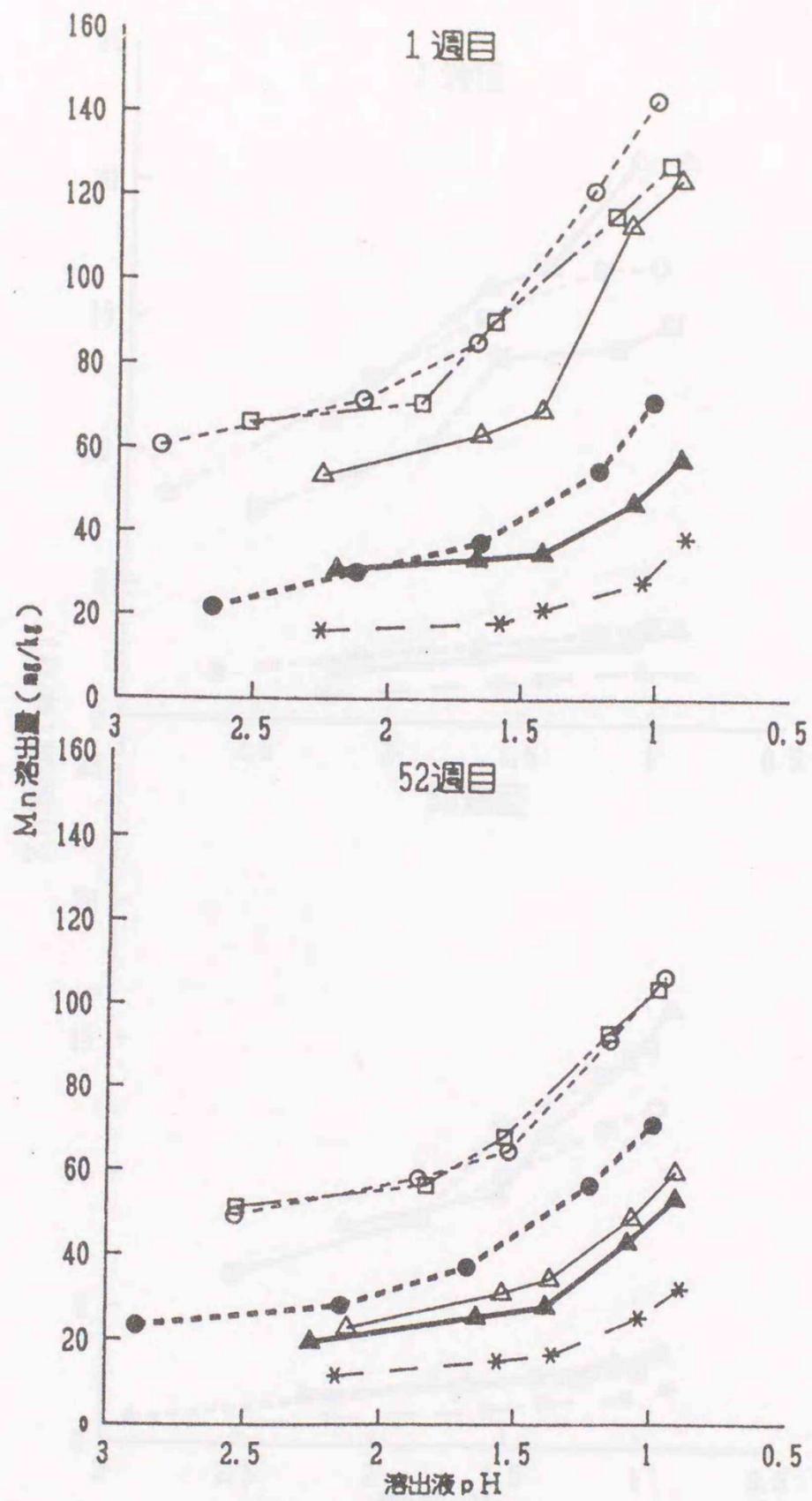
Zn溶出量も溶出液pHの低下に伴い増加した（第20図）。Zn溶出量増加の割合は、薬注、無薬注の汚泥およびコンポスト区で大きく、無施用区および焼却灰区で小さかった。0.1Nと0.4N-塩酸抽出時の溶出量を比較すると、最も差の大きかった無薬注汚泥区で0.4N-塩酸抽出は0.1N-塩酸抽出の1週目、52週目ともに1.9倍であり、Mn溶出量の場合とほぼ同程度であった。

Cu溶出量も溶出液pHの低下に伴い増加した（第21図）。Cu溶出量



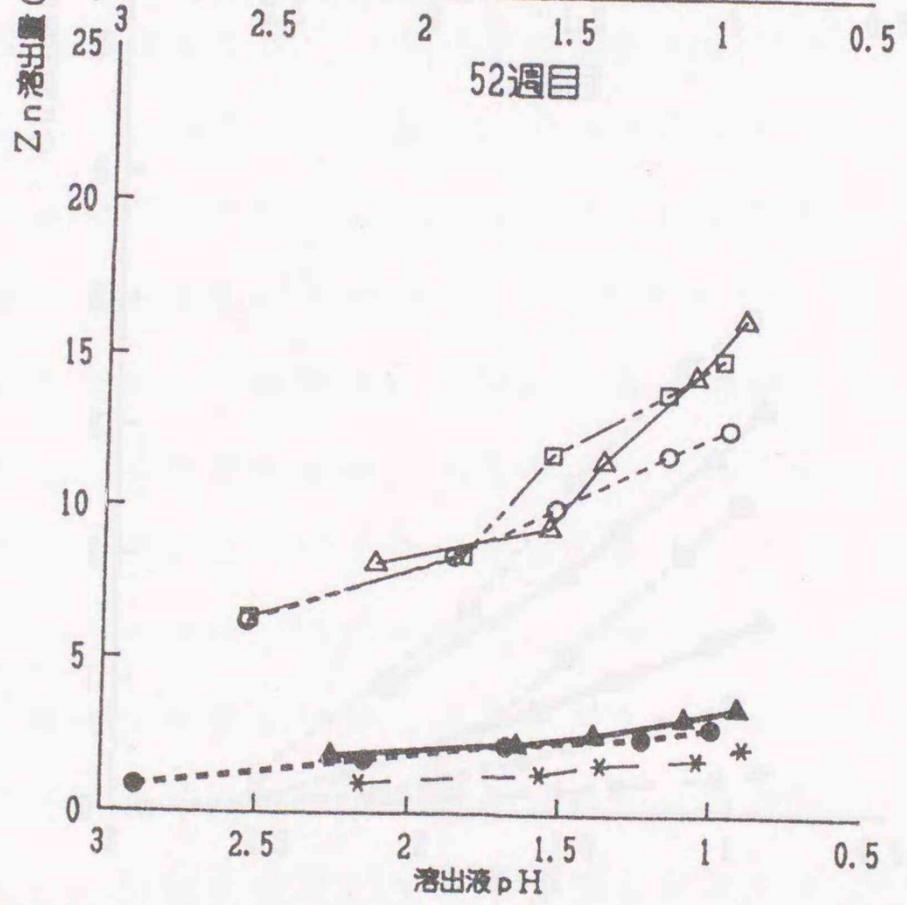
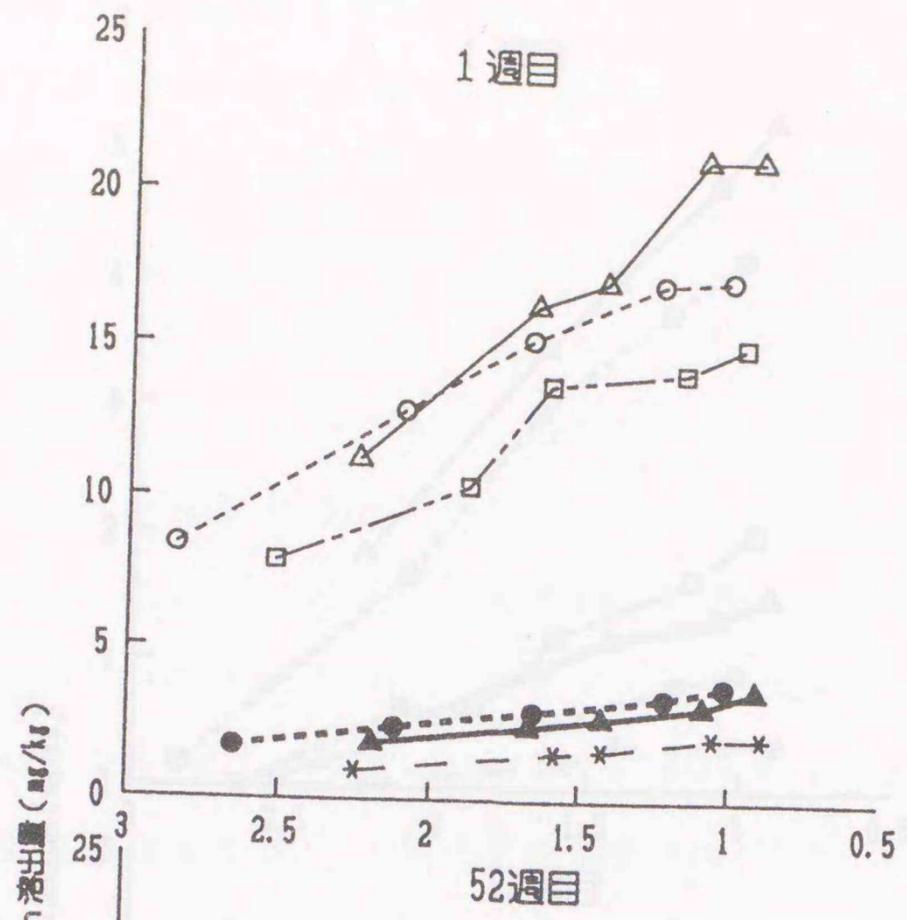
無施用区 * コンポスト区 □ 糞注汚泥区 ○ 無糞注汚泥区 △ 糞注焼却灰区 ● 無糞注焼却灰区 ▲

第18図 各抽出塩酸濃度における溶出液pHとFe溶出量(乾土当たり)の関係



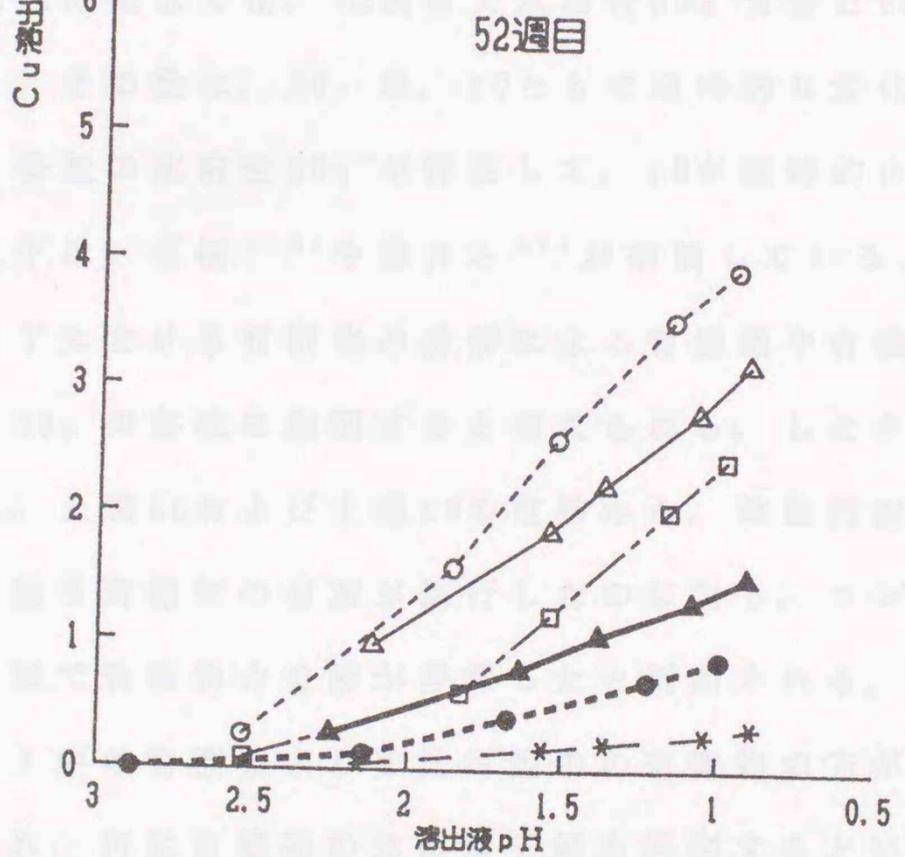
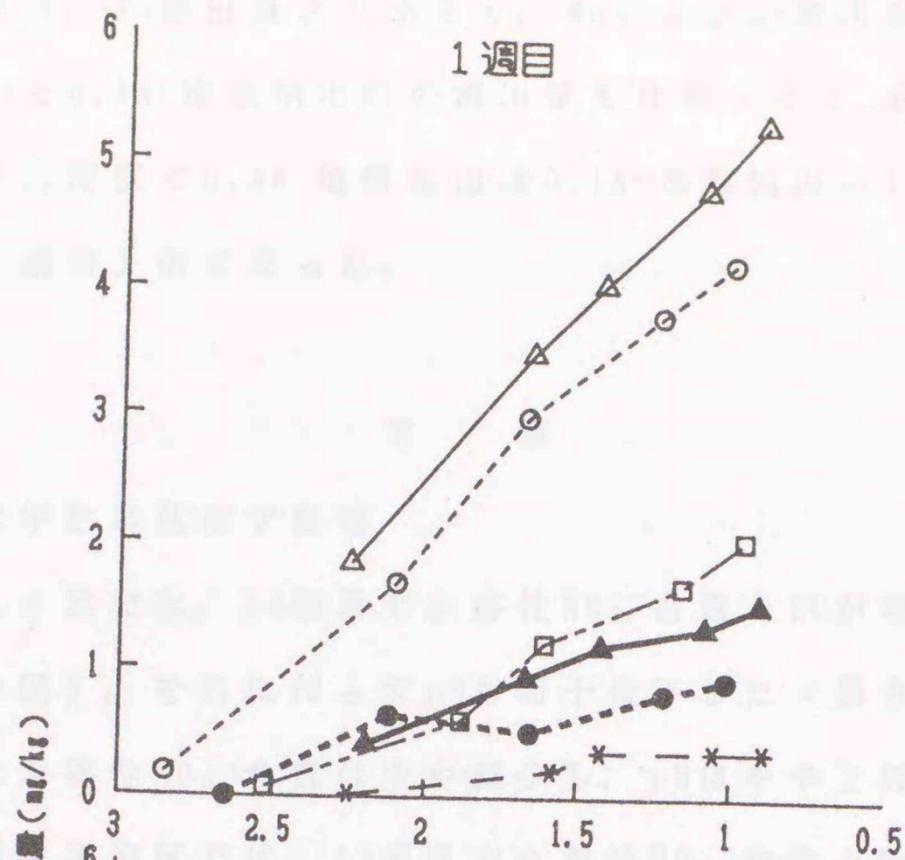
無施用区 コンポスト区 薬注汚泥区 無薬注汚泥区 薬注焼却灰区 無薬注焼却灰区
 * □ ○ △ ● ▲

第19図 各抽出塩酸濃度における溶出液pHとMn溶出量(乾土当たり)の関係



無施用区 コンポスト区 糞注汚泥区 無糞注汚泥区 糞注焼却灰区 無糞注焼却灰区
 * □ ○ △ ● ▲

第20図 各抽出塩酸濃度における溶出液pHとZn溶出量(乾土当たり)の関係



無施用区 コンポスト区 糞注汚泥区 無糞注汚泥区 糞注焼却灰区 無糞注焼却灰区
 * □ ○ △ ● ▲

第21図 各抽出塩酸濃度における溶出液pHとCu溶出量(乾土当たり)の関係

増加の割合は、Fe溶出量より小さく、MnおよびZn溶出量より大きかった。0.1Nと0.4N-塩酸抽出時の溶出量を比較すると、最も差の大きかった薬注汚泥区で0.4N-塩酸抽出は0.1N-塩酸抽出の14.6(52週目)~22.5(1週目)倍であった。

考 察

1) 土壌化学性に及ぼす影響

コンポスト区では、13週目で水溶性 NO_3^- 含量とECが増加、上昇し(第8, 9図)、それに伴ってpHも若干低下した(第8図)が、それ以降では水溶性 NO_3^- 含量はやや減少し、pHはやや上昇した。これに対し、薬注汚泥区では、13週目で水溶性 NO_3^- 含量とECが急激に増加、上昇し、その後は、 NO_3^- 量、ECともに経時的な変化が小さく、52週目でも多量の水溶性 NO_3^- が存在して、pHが経時的に低下した。このpHの低下は、高橋¹¹³⁾や藤井ら²⁷⁾が指摘しているように、30°Cの保温静置下における有機物の分解による有機酸や有機態窒素の無機化による NO_3^- の蓄積に起因すると考えられる。したがって、水溶性 NO_3^- 含量、土壌ECおよび土壌pHの推移から、薬注汚泥区では13週目以降も引続き有機物の分解が進行したのに対し、コンポスト区では13週目以降で有機物の分解が停滞したと判断される。このことからコンポスト中の有機物より薬注汚泥中の有機物の方が分解され易いと考えられ、汚泥有機物の急激な分解を抑制するという観点から、コンポスト化はある程度有効であろう。しかし、薬注焼却灰では、有機物を含んでいないために、経時的にpHがやや上昇したが、ECおよび水溶性イオン濃度は大きくは変化せず、薬注汚泥やコンポストと比較するとより低いレベルで推移した。

一方、無薬注汚泥区では、26週目までは水溶性イオンの組成に変化がなく、52週目で初めて NO_3^- 含量およびECが増加、上昇したことは、無薬注汚泥中の有機物が、非常に分解され難いことを示すと考えられる。このことは、古山ら⁶⁶⁾も、熱処理汚泥（無薬注汚泥）では窒素の無機化率が著しく低いことを報告しており、脱水処理過程の 200°C 以上の加熱工程における、含有成分中の易分解性部分の溶出、脱離およびタンパク質等高分子有機化合物の凝固変性⁵⁷⁾が原因と考えられる。無薬注焼却灰区は、pH、ECおよび水溶性イオン組成ともに変化せずに推移し、対照区である無施用区と大差なかった。

CECは、コンポスト区、薬注汚泥区および薬注焼却灰区で無施用区よりやや増加した（第10図）。しかし、これらの区では交換性Caが増加し、塩基飽和度が100%を大きく越えた。一方、無薬注汚泥区、無薬注焼却灰区では、塩基飽和度が最高で60%程度に留まった。

したがって、薬注汚泥やそのコンポストを施用する場合には、有機物の分解に伴う水溶性 NO_3^- 含量の増加と塩基飽和度の上昇を伴うので、多量施用をする場合や施用土壌のCECが小さい場合には、既に指摘⁹⁴⁾されているような施用直後における高塩濃度障害による発芽障害や生育障害あるいは地下水その他周辺水域への栄養塩の溶出の問題が発現する可能性があるので注意を要する。一方、無薬注汚泥を施用する場合は、ECや水溶性イオン含量および塩基飽和度に及ぼす影響が小さく、発芽障害や生育障害あるいは栄養塩溶出の危険性は小さいとみることができるとは、含有有機物が難分解性であるので、速効性の窒素質肥料としての効果は期待できない。これに対し、焼却灰を施用する場合には、その起源となった汚泥を施用する場合より土壌の化学性に及ぼす影響は小さくなる。特に、無薬注焼

却灰の場合には、pH、EC、CECおよび塩基飽和度に及ぼす影響は非常に小さいので、施用の限界量は高いと考えられる。しかし、薬注焼却灰を施用する場合には高pHとなること、および、塩基飽和度を上昇させることから、多量施用や経年的な施用には注意が必要である。

2) 磷酸の形態に及ぼす影響

磷酸の形態別含量（第11図）は、薬注焼却灰区、無薬注焼却灰区や無薬注汚泥施用区では26週以降にFe-Pが減少し、Al-Pが増加したことから、これらの資材施用では、磷酸はより可溶性形態に移行したといえる。しかし、服部³⁸⁾は、砂質土（中粗粒強グライ土の下層土）および火山灰土（淡色黒ボク土の表土）に対して発生源と処理法の異なる6種類の汚泥を乾物で5%加え、28°C、4週間の培養で、わずかながらAl-Pが減少し、Fe-Pが増加したことから、より難溶性形態に移行したとしている。本実験の結果においては、薬注汚泥およびコンポスト施用では服部の報告と同様の傾向がみられたが、焼却灰や無薬注汚泥施用では服部の報告と異なる結果となった。焼却灰や無薬注汚泥には易分解性の有機物が含まれていないことから、磷酸の難溶化には易分解性有機物が関与している可能性がある。あるいは、薬注汚泥には凝集剤としてFeが多量に混入しているので、土壌中ではAl含量に比較してFe含量が増加するため、Fe-Pが増加したとも考えられる。

また、服部は同じ報告の中で、施用資材由来の有機態磷酸が砂質土では約50%無機化したのが、火山灰土ではほとんど無機化しなかったと報告している。腐植をほとんど含まない火山灰土を供試した本

実験の結果では、有機態リン酸の無機化が進んでおり（第12表）、服部の報告でいう砂質土の場合と類似していた。土壌有機物含量の少ない土壌では無機化が進行しているのので、汚泥中の有機態リン酸の無機化は土壌有機物含量に影響される可能性がある。

一方、Ca-PおよびBray II変法で測定した有効態リン酸含量は共に焼却灰の施用区で汚泥およびコンポストの施用区を大きく上回っており（第11図）、経時的な変化が少なかった。土壌リン酸の難溶化には、土壌中の活性なAl、Fe含量およびリン酸吸収係数が影響を及ぼすと考えられる。供試土壌は火山性土であり、リン酸吸収係数が1,660と高いにもかかわらず（第8表）、焼却灰施用区で有効態リン酸量が高く維持されたことは、第2章で指摘したように焼却処理によって有効化したリン酸は水に難溶性であり、土壌と吸着その他の反応をする可溶性リン酸量が少なかったことに起因すると考えられる。したがって、焼却灰中の有効なリン酸は、土壌中においてもその形態の変化は遅く、有効性は持続するものと考えられる。

3) 可溶性重金属量に及ぼす影響

前述したように、下水汚泥等有機性廃棄物を再生し原料とした資材を肥料または土壌改良資材として使用する場合の環境庁が提示した暫定的な土壌管理基準は、Znを指標物質とし、過塩素酸分解法により測定した汚泥等施用土壌のZn濃度で120ppmを限度としている。本実験の施用量は、汚泥の乾物ベースで60~85t/haであり、北海道農務部の汚泥施用指針であるヘクタール当たり10tの施用限度を6~8.5倍上回っているが、施用土壌中のZn濃度は82~91ppmであり、土壌管理基準の範囲内であった。土壌管理基準は土壌中の重金属量

の全量で規制しているが、重金属の植物に対する可給性は、土壌中における重金属の存在形態によって大きく異なる。

土壌中の重金属の存在形態を推定する手段として、化学的処理により分別的に溶解させる連続抽出法が数多く提案されている⁷²⁾。また、作物への可給性を推定する手段として、単一の抽出液による抽出法も多数提案されている⁷²⁾。本実験では、DTPAおよび0.1N-塩酸に可溶性重金属量の経時変化を検討した。

DTPAによる抽出法は、LindsayとNorvell⁷⁵⁾により、中性あるいは石灰質土壌でのZn, Fe, Mn, Cuなどの微量元素の欠乏を判定するために開発された方法で、下水汚泥施用土壌に適用された多数の報告がある。それらによると、概ね、植物体中の重金属濃度とDTPAにより抽出された重金属量には高い相関関係が認められたと報告されている^{9, 21, 73, 109, 129)}が、有意な相関関係が認められなかったという報告⁹⁹⁾もあり、O'Connor⁹³⁾は資材等の施用による金属負荷量が多い場合には、可給態の金属量が過剰に評価される恐れがあることから、DTPA試験の適用は注意すべきであると述べている。

一方、0.1N-塩酸抽出法は、わが国においてはCdとCuについて「農用地の土壌の汚染防止等に関する法律」に基づく検定方法に採用されているが、土壌pH等土壌自体の特性により大きく変動する可能性がある。本実験の結果でも、0.1N-塩酸可溶性重金属量のうち、薬注汚泥を起源とした資材施用区でFeとCuの溶出量が少なかったのは、これら資材の施用による土壌pHの上昇のため、0.1N程度の薄い酸では溶出液のpHを低く保つことができないことに起因すると考えられる。このことは、Cuの溶出量が薬注汚泥施用で26週までは増加している(第15図)が、同時期におけるpHの低下(第8図)と対応している

ことから推察された。また、薬注汚泥を起源とする資材は、Feを多量に含有しているにもかかわらず、Fe溶出量がこれら資材の施用区で無施用区より少なかったことから、0.1N-塩酸で抽出される金属量には、土壌pHの上昇が大きく関与しているものと考えられる。一方、抽出液の塩酸濃度を上げ、溶出液のpHを低下させるとFeとCuの溶出量は急激に増加した（第18, 21図）。したがって、0.1N-塩酸抽出法は、石灰系の汚泥施用によってpHが上昇した土壌中の可溶性重金属量を評価する場合、難溶性水酸化物を形成する金属種では適当でないと考えられる。しかし、CdやCuの検定法として認知されていることから、本研究においても0.1N-塩酸による可溶性重金属量を検討した。

DTPAおよび0.1N-塩酸可溶の重金属量の変化を概観すると次のような傾向が指摘できる。

(1) 脱水方式を同じくする汚泥を起源とした資材施用を比較した場合、薬注および無薬注にかかわらず、汚泥あるいはコンポスト施用よりも焼却灰施用で溶出量が少ない。この減少割合は、金属種や抽出方法により異なったが、ZnやCuでは抽出方法にかかわらず1/3以下となった。

(2) 汚泥あるいはコンポスト施用では、溶出量が経時的に減少する傾向であるが、焼却灰施用では経時的な変化が少ないか、あるいは認められない。

また、これらの傾向は、抽出率においても認められた。

下水汚泥への重金属の取り込みは、Lungmiur吸着等温式に従う汚泥負荷電との静電気結合^{96, 100}や、有機物との不溶性錯体の形成による静電氣的結合より強い結合などが考えられている⁹⁶。汚泥施用

土壌において抽出剤に対する溶解性が経時的に変化するということは、これらの結合により汚泥に取り込まれた重金属の形態が変化することを示唆している。汚泥施用後の1週間程度では土壌との混和が進んでおらず、汚泥そのものの重金属溶解性が反映して溶出量が多いが、施用後の日数が13週、26週と経過するにしたがって、汚泥有機物の分解が進み、それに伴って汚泥から土壌溶液相に遊離した重金属が、土壌固相と種々の物理的あるいは化学的反応によって、あるいは、有機物との難溶性錯体の形成等によって、抽出剤に難溶性形態に移行していったものと考えられる。これに対し、汚泥重金属は焼却処理により難溶化するので、焼却灰施用では、施用初期の段階から土壌溶液相に重金属が放出されず、したがって土壌固相との相互作用もなく、その重金属難溶性が維持され、抽出剤による重金属濃度および抽出率が経時的に変化しなかったものと考えられる。供試土壌は、可溶性のCu、Znの極めて少ない土壌であり、資材施用区におけるこれら金属の溶出は資材由来のものと考えられる。さらに、供試土壌の有機物含量が少なかったことから、Cuなど有機物と難溶性錯体を形成し易い金属種でも土壌由来の有機物と反応して難溶となったとは考え難い。このような土壌中において、①焼却灰を土壌に施用後、52週（1年）を経過しても可溶性重金属量が少なかったこと、②焼却灰施用土壌でZnおよびCuの抽出率が低く維持されたこと、また、③抽出液の酸濃度を変化させた場合、ZnとCuの溶出量は溶出液pHの低下に伴いほぼ直線的に増加したが（第18、21図）、この直線の傾きは汚泥施用よりも焼却灰施用で小さかったことから、これらの元素が少なくとも1年間は、かなり安定な形態で存在していたと考えられる。一般に、重金属は低Ehで硫化物等を形成するた

めに難溶化し、高Ehで可溶化する。この土壤培養実験の水分条件は畑水分状態に設定したことから、土壤Ehは比較的高いレベルにあったと考えられる。したがって、焼却灰中の重金属は、高Eh条件下では可溶化しなかったが、水田等の湛水下における低Eh条件での重金属の挙動は不明である。Asは還元が進んだ低Eh条件において可溶化すること、Cdも乾湿が繰り返される、すなわち、Eh条件が変動することにより可溶化することが知られている。供試焼却灰には水溶性Asは少なかったものの比較的高濃度のAsが存在したため、低Eh条件となる水田への焼却灰の施用は注意を要する。

以上のように、薬注汚泥を起源とする焼却灰の施用は、土壤pHおよび塩基飽和度を上昇させるので、この種の焼却灰を磷酸質肥料として利用することは困難であると考えられる。一方、無薬注汚泥を起源とする焼却灰の施用は、土壤のpH、EC、CECおよび塩基飽和度等の土壤化学性に及ぼす影響が非常に小さく、かつ、磷酸の有効性も高く維持されるので、無薬注汚泥を起源とする焼却灰を磷酸質肥料として利用することは可能であると考えられる。また、焼却灰施用の場合には可溶性重金属量が少なく、1年間にわたって低いレベルで維持されたことから、焼却処理によって重金属が難溶化した形態はかなり安定な形態であり、畑水分状態の土壤中においても不活性な形態として存在しているものと推察された。

第4章 下水汚泥焼却灰施用が作物生育に及ぼす影響

第1節 下水汚泥とその焼却灰における肥料的効果の比較

本節では、下水汚泥焼却灰の作物に対する肥効と作物による重金属吸収について、下水汚泥と比較しながら検討した。

実験方法

供試資材として、第2章の実験におけるA薬注汚泥とC無薬注汚泥およびそれらの焼却灰（A薬注焼却灰，C無薬注焼却灰）を供試した。供試土壌は、第3章の実験と同じく施肥歴のない土壌である北海道農業試験場の林地内の下層土壌（ローム質褐色火山性土B）を用いた。この土壌を風乾後、5mmの篩を通してから、その1.5kgを2ℓ容ポットに詰めて実験に供した。

処理区の構成は第15表に示すように、化学肥料単独系列と4種類の資材併用系列に系列別の処理区を設けた。まず、化学肥料単独系列を構成する処理区として、各要素を窒素（N）は硫酸アンモニウム（硫安）で、リン（P）は過リン酸石灰（過石）で、カリウム（K）は硫酸加里（硫加）で与えた標準区（ポット当たりNを0.25g、 P_2O_5 を0.5g、 K_2O を0.25g施用）に対し、各要素を欠如した-N区、-P区、-K区および無肥料の-F区を設けた。さらに、資材併用系列として、A薬注汚泥またはC無薬注汚泥を化学肥料単独系列の全ての区に、A薬注焼却灰またはC無薬注焼却灰をPおよびKの欠如区にそれぞれ施用した区を設けた。ここで焼却灰では窒素は完全に揮散しており、Nの効果は期待できないと考えられるので、PとKの

第15表 各処理区の構成

化学肥料単独系列					
処理	略号				
NPK	標準				
-F	-F				
-N	-N				
-P	-P				
-K	-K				

A薬注汚泥併用系列 ^{*1}		C無薬注汚泥併用系列 ^{*2}	
処理	略号	処理	略号
NPK	A薬注汚泥:完全	NPK	C無薬注汚泥:完全
-F	A薬注汚泥:-F	-F	C無薬注汚泥:-F
-N	A薬注汚泥:-N	-N	C無薬注汚泥:-N
-P	A薬注汚泥:-P	-P	C無薬注汚泥:-P
-K	A薬注汚泥:-K	-K	C無薬注汚泥:-K

A薬注焼却灰併用系列 ^{*3}		C無薬注焼却灰併用系列 ^{*4}	
処理	略号	処理	略号
-P	A薬注焼却灰:-P	-P	C無薬注焼却灰:-P
-K	A薬注焼却灰:-K	-K	C無薬注焼却灰:-K

注1)化学肥料単独系列のO:Cont区を標準区とし、乾土1.5kgを詰めた2ℓ容ポット当りNを0.25g、P₂O₅を0.5g、K₂Oを0.25g施用した。

注2)-Fは無肥料、-N、-P、-KはそれぞれN、P₂O₅、K₂Oを無施用とした。

*1:A薬注汚泥を46.3g/ポット施用した系列

*2:C無薬注汚泥を26.5g/ポット施用した系列

*3:A薬注焼却灰を6.73g/ポット施用した系列

*4:C無薬注焼却灰を4.86g/ポット施用した系列

効果のみを判定するために、焼却灰併用系列は-P区、-K区のみで構成した。全ての区は2反復とし、汚泥または焼却灰の施用量は、0.5g・P₂O₅に相当する量を全層に混合した。

供試作物はエンバク（品種：前進）とし、ポット当たり10粒を播種し、1週間後に間引きしてポット当たり5本立てとした。水分条件は最大容水量の60%として脱塩水で毎日補給し、温室内で38日間栽培した。収穫後、地上部と根部に分けて、乾燥し、地上部の乾物重

を測定してから、地上部のN, P₂O₅, K, Ca, Mgおよび地上部と根部のMn, Zn, Cu, Pb, Cd, As含有率を定量した。

実験結果

1) 地上部乾物重

標準区におけるポット当たりの地上部乾物重は8.61gであった。これを100としたときの相対生長量は、化学肥料単独系列では標準 > -K > -N > -F ≧ -P の順であった(第16表)。A薬注汚泥併用系列では化学肥料単独系列より各区の相対生長量は上昇したが、系列内の各区間の大小の順序は化学肥料単独系列の場合と同じであった。C無薬注汚泥併用系列では完全 > -K > -P ≧ -N > -F の

第16表 エンバク地上部の生長量と多量要素含有率(乾物当たり)

区	乾物重 (g/ポット)	相対 生長量	N含有率 (%)	P ₂ O ₅ 含有率 (%)	K含有率 (%)	Ca含有率 (%)	Mg含有率 (%)
標準	8.61	100	2.06	0.30	3.77	0.18	0.14
-F	0.95	11	1.14	0.12	3.57	0.10	0.22
-N	1.77	21	0.85	0.59	3.29	0.11	0.19
-P	0.71	8	3.42	0.14	3.81	0.11	0.19
-K	4.75	55	2.55	0.36	3.68	0.22	0.21

A薬注汚泥:完全	9.94	115	3.38	0.48	4.31	0.33	0.21
A薬注汚泥:-F	4.09	48	2.84	0.27	3.30	0.27	0.20
A薬注汚泥:-N	6.15	71	2.74	0.47	4.16	0.32	0.20
A薬注汚泥:-P	1.97	23	3.02	0.24	3.28	0.23	0.20
A薬注汚泥:-K	8.20	95	3.22	0.38	3.31	0.33	0.23

C無薬注汚泥:完全	10.11	117	1.47	0.35	3.65	0.23	0.17
C無薬注汚泥:-F	1.03	12	0.87	0.26	3.21	0.09	0.20
C無薬注汚泥:-N	1.66	19	0.81	0.69	3.31	0.20	0.25
C無薬注汚泥:-P	1.87	22	2.83	0.29	3.60	0.19	0.22
C無薬注汚泥:-K	7.70	89	1.85	0.38	3.46	0.27	0.23

A薬注焼却灰:-P	4.19	49	2.59	0.23	3.94	0.28	0.24
A薬注焼却灰:-K	11.77	137	1.66	0.44	3.03	0.34	0.23

C無薬注焼却灰:-P	4.17	48	2.57	0.19	3.42	0.13	0.19
C無薬注焼却灰:-K	9.21	107	1.92	0.37	3.16	0.26	0.23

順であり、-N区と-F区で化学肥料単独系列と同様の相対生長量であり、その他の区では化学肥料単独系列よりも上昇した。A薬注汚泥：完全区、C無薬注汚泥：完全区ともに相対生長量が100を越え、汚泥併用による生育阻害は認められなかった。一方、分散分析の結果では相対生長量のLSD（最小有意差）が5%水準で28となり、汚泥および焼却灰の資材併用系列では-F、-Nおよび-P区で標準区より有意に低下した。しかし、これら系列の-K区では標準区と比較して低下せず、A薬注焼却灰：-K区では有意に上昇した。-P区の相対生長量をみると、A、Cともに焼却灰併用系列では50程度であったが、汚泥併用系列より2倍以上も大きかった。

2) 多量要素含有率

エンバク地上部のN含有率は、標準区では2.06%であり（第16表）、化学肥料単独系列およびC無薬注汚泥併用系列ともに-F、-N区で0.81~1.14%と低く、これらの区ではN欠乏によって生育が劣った。汚泥併用系列を資材別に比較すると、A薬注汚泥併用系列では2.74~3.38%と全ての区で高く、C無薬注汚泥併用系列では生長量の小さい-P区を除いて、0.81~1.85%と低かった。また、相対生長量が100を越えた区ではA薬注汚泥：完全区を除いて1.66~1.92%と標準区よりやや低かった。

P_2O_5 含有率は、標準区では0.30%であり、生育状況からP欠乏と見られる化学肥料単独系列の-Fおよび-P区で0.12~0.14%と低く、N欠乏のために生長量の小さかった-N区では0.47~0.69%と高く、資材併用系列の-P区では0.19~0.29%と標準区より低かった。

K含有率は、標準区で3.77%であり、全ての処理区で大差なかった。

その他、Ca含有率は、標準区で0.18%であり、A薬注汚泥およびA薬注焼却灰併用系列で0.23~0.34%と高かった。Mg含有率は、標準区で0.14%であり、他の区では全て標準区より高かった。

3) 重金属含有率

エンバクの地上部および根部における重金属含有率を第17表に示した。

第17表 エンバクの重金属含有率 (ppm, 乾物当たり)

区	Mn		Zn		Cu		Pb		Cd	
	Top	Root	Top	Root	Top	Root	Top	Root	Top	Root
◎ 標準	116	293	18.7	56.0	4.2	18.0	0.27	7.11	0.29	1.12
-F	173	289	13.5	67.7	6.3	19.0	0.54	5.38	0.09	1.02
-N	185	235	11.9	63.1	7.1	17.1	0.49	4.79	0.15	1.26
-P	109	119	20.8	53.6	9.7	15.5	0.39	5.33	0.18	0.34
◎ -K	104	204	18.6	62.7	6.9	13.5	0.66	3.48	0.34	1.68

◎ A薬注汚泥:完全	75	135	23.5	94.2	15.8	37.4	0.13	1.34	0.20	0.90
◎ A薬注汚泥:-F	59	153	20.0	152.5	13.8	24.8	0.45	2.98	0.08	0.76
◎ A薬注汚泥:-N	69	141	26.8	117.5	16.5	38.0	0.46	1.99	0.15	1.89
A薬注汚泥:-P	50	241	21.9	127.3	13.8	39.1	0.80	6.85	0.10	0.80
◎ A薬注汚泥:-K	67	215	25.2	87.7	8.4	22.3	1.33	1.51	0.22	1.11

◎ C無薬注汚泥:完全	153	312	19.6	51.8	7.2	26.4	0.64	2.08	0.22	1.46
C無薬注汚泥:-F	152	253	12.3	46.2	7.6	30.6	1.30	1.90	0.05	0.56
C無薬注汚泥:-N	235	391	13.5	74.6	7.1	52.5	1.04	2.40	0.15	1.73
C無薬注汚泥:-P	129	168	12.3	103.4	7.7	71.2	0.64	1.84	0.14	1.26
◎ C無薬注汚泥:-K	160	237	24.0	74.4	6.1	44.5	0.23	2.36	0.21	2.08

◎ A薬注焼却灰:-P	72	288	24.5	60.7	10.2	34.1	0.57	2.94	0.10	1.22
◎ A薬注焼却灰:-K	70	274	22.1	64.9	8.3	29.6	0.09	3.87	0.18	1.11

◎ C無薬注焼却灰:-P	104	288	18.8	54.2	8.5	28.7	0.22	2.51	0.16	0.74
◎ C無薬注焼却灰:-K	111	276	23.4	60.5	8.1	25.9	0.37	2.23	0.24	2.00

F値	2.58**	2.13	1.61	16.33**	21.79**	5.16**	3.57*	17.16**	17.58**	14.78**
LSD(5%)	33.9	-	-	23.2	2.6	12.0	0.55	1.22	0.05	0.38

注) Topは地上部, Rootは根部を示す

◎: 統計解析に使用した相対生長量44以上の区

*, **: 5%, 1%水準で有意

地上部：Mn含有率は、標準区で116ppmであり、A薬注汚泥およびA薬注焼却灰併用系列で50～75ppmと標準区より低く、C無薬注汚泥併用系列では129～235ppmと標準区を上回ったが、C無薬注焼却灰併用系列では標準区と差がなかった。Zn含有率は、標準区で18.7ppmであり、A薬注汚泥およびA薬注焼却灰併用系列で20.0～26.8ppmと標準区よりやや高い傾向にあり、C無薬注汚泥およびC無薬注焼却灰併用系列では-K区を除いて標準区と差がないか、あるいは下回った。Cu含有率は、標準区では4.2ppmであり、各資材併用系列で標準区を上回り、特にA薬注汚泥併用系列で8.4～16.5ppmと上昇した。しかし、汚泥と焼却灰について起源を同じくするA薬注汚泥併用系列とA薬注焼却灰併用系列およびC無薬注汚泥併用系列とC無薬注焼却灰併用系列をそれぞれ比較すると、A薬注焼却灰併用系列はA薬注汚泥併用系列より低く、C無薬注汚泥併用系列とC無薬注焼却灰併用系列では差がなかった。その他の重金属含有率は、Pbで0.09～1.33ppm、Cdで0.08～0.34ppmであり、各区間で差があったものの明瞭な傾向は認められなかった。

根部：Mn含有率は、化学肥料単独系列の標準区で293ppmであり、A薬注汚泥併用系列で標準区を下回り、他の資材併用系列ではC無薬注汚泥併用系列の完全区と-N区を除き標準区を下回った。Zn含有率は、標準区で56.0ppmであり、A薬注汚泥、C無薬注汚泥併用系列では標準区より高い区が多く、特にA薬注汚泥併用系列で87.7～152.5ppmと標準区を大きく上回った。しかし、A薬注焼却灰、C無薬注焼却灰併用系列では標準区と差がなかった。Cu含有率は、標準区で18.0ppmであり、各資材要素併用系列では25.9～71.2ppmと標準区を上回った。その他の重金属含有率は、Pbで1.34～7.11ppm、Cdで

0.34~2.08ppmであり、各区間で差があったものの明瞭な傾向は認められなかった。

供試汚泥に比較的高濃度のAsを含有していたので、エンバク中のAs含有率も測定したが、地上部で検出限界以下~1.11ppm、根部で検出限界以下~2.56ppmであって各区間で明瞭な差は認められなかった。

生長量が小さい区では多量要素欠乏による生育障害が強く現われたため、見かけ上の重金属含有率が高くなっている可能性がある。そこで、標準区に対して、相対生長量がそのLSD 28の2倍以上低下した区、すなわち、相対生長量が44未満であった区を除き、相対生長量が44以上であった区について各重金属含有率の分散分析を行い、LSDを求めた(第17表)。その結果、地上部では、Cu, Mn, Cdで1%水準で各区間に処理による有意な差があり、Pbで5%水準で有意な差があったが、Znでは各区間に差が認められなかった。根部では、Zn, Cu, Pb, Cdで1%水準で有意な差があり、Mnでは差が認められなかった。

Mnは、地上部で薬注汚泥を起源とする資材併用により含有率が標準区より有意に低下した。この含有率の低下は、薬注汚泥のpHが高いので、その施用による土壌pHの上昇が関係している可能性がある。一方、無薬注汚泥を起源とする資材併用ではC無薬注汚泥併用系列で標準区より有意に上昇し、C無薬注焼却灰併用系列では有意な差が認められなかったことから、焼却処理によりMnが難溶化し、その吸収が抑制されたものと考えられる。

Znは、A薬注汚泥併用系列の根部で標準区より有意に高かったが、A薬注焼却灰併用系列では標準区と有意な差が認められなかったこ

とから、Mnと同様に焼却処理によりZnが難溶化し、その吸収が抑制されたものと考えられる。

Cuは、地上部で化学肥料単独系列の-K区の含有率6.9ppmと比較すると、汚泥または焼却灰の併用により有意に上昇した区は、A薬注汚泥：完全，A薬注汚泥：-F，A薬注汚泥：-NおよびA薬注焼却灰：-P区であり，C無薬注汚泥併用系列およびC無薬注焼却灰併用系列では差がなかった。これら有意に高くなった区のうち，A薬注汚泥併用系列とA薬注焼却灰併用系列を比較すると，A薬注焼却灰併用系列で有意に低い値となった。したがって，Cuにおいても焼却処理によって難溶化した結果，その吸収が抑制されたものと考えられる。

その他の重金属は，地上部のCdと根部のPbで資材併用により標準区より低下したが，地上部のPbおよび根部のCdでは一定の傾向は認められなかった。

第2節 下水汚泥焼却灰の多量施用が作物生育と

各種元素の吸収に及ぼす影響

本節では，下水汚泥焼却灰を多量に施用した場合における作物の生育と作物による各種元素の吸収について検討した。

実験方法

本章第1節と同じ土壌，A薬注焼却灰とC無薬注焼却灰を供試して，試験規模も同様とした。全区にN， K_2O を硫安，硫加でそれぞれ0.25g相当量を施用し， P_2O_5 は0.5g/ポットを基準として，その1，

2, 4, 8, 16倍の P_2O_5 に相当する量を焼却灰で与えた区を設け(以下, 焼却灰施用系列とする), 他に過石を0.5および1.0g・ P_2O_5 相当量施用した区(それぞれ, 標準区, 標準2倍量区)および-P区を設けた(第18表)。その他に, 下水汚泥コンポストの燐の肥効を明らかにするために, コンポストで P_2O_5 基準量を施用した区を設けた。供試作物はエンバク(品種: 前進)とし, ポット当たり10粒を播種し, 1週間後に間引きしてポット当たり5本立てとした。水分条件は最大容水量の60%として脱塩水で毎日補給し, 温室内で47日間栽培した。収穫後, 地上部と根部に分け, 乾燥し, 地上部の乾物重を測定してから, 地上部および根部を粉碎し, N, P, K, Ca, Mg, Fe, Mn, Zn, Cu, Cr, Pb, Cdを定量した。

第18表 各処理区の構成

処理区	-P	標準	標準2倍量	Ax1	Ax2	Ax4	Ax8	Ax16	Cx1	Cx2	Cx4	Cx8	Cx16
燐酸施用資材		過燐酸石灰		A 薬注焼却灰					C 無薬注焼却灰				
施用量(g/ポット)	0	2.78	5.56	6.73	13.5	26.9	53.8	107.7	4.86	9.73	19.5	38.9	77.8

また, 上記と同様の処理を施し, 作物を栽培せずに, 室温で5日間放置後の土壌溶液を遠心法により採取し, そのpH, ECおよび陽イオンとして Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , 陰イオンとして NO_3^- , SO_4^{2-} 濃度を測定した。

実験結果

標準区におけるポット当たりの地上部乾物重は8.07gであり, これを100としたときの各区の地上部乾物重相対値を相対生長量とした(第19表)。

相対生長量は、A薬注焼却灰施用系列では全ての区で76以下であり、2倍区までは増加したが4倍量以上の区では低下した。これに対し、C無薬注焼却灰施用系列の相対生長量は、施用量の増加に伴い上昇し、2倍区では標準区にほぼ等しく、4倍区では標準2倍量区にほぼ等しく、8倍区では121に達したが、16倍区では頭打ちとなった。コンポスト区では55であり、 P_2O_5 で同量施用した焼却灰の1倍区より生育が劣った。

第19表 エンバク地上部の生長量と多量要素含有率（乾物当たり）

処理	乾物重* (g/ポット)	相対 生長量	含有率 (%)				
			N	P_2O_5	K	Ca	Mg
-P	0.95	12	5.21	0.17	4.50	0.19	0.29
標準	8.07	100	2.49	0.43	5.55	0.29	0.20
標準2倍量	9.13	113	2.36	0.76	5.62	0.31	0.21
コンポスト	4.42	55	3.82	0.33	5.27	0.28	0.21
A x 1	5.66	70	3.03	0.29	5.49	0.28	0.20
A x 2	6.17	76	2.68	0.31	5.48	0.30	0.20
A x 4	5.91	73	2.93	0.33	5.40	0.32	0.20
A x 8	4.11	51	3.29	0.29	5.38	0.41	0.21
A x 16	1.80	22	4.36	0.23	4.40	1.03	0.19
C x 1	6.17	76	2.85	0.30	5.32	0.21	0.21
C x 2	8.31	103	2.33	0.42	5.34	0.23	0.26
C x 4	9.41	117	2.30	0.75	4.86	0.23	0.29
C x 8	9.78	121	2.10	1.55	5.32	0.21	0.32
C x 16	9.78	121	2.26	2.64	5.20	0.22	0.37

* : LSD(1%) = 1.24

一方、処理開始後5日目の土壌溶液組成をみる（第20表）と、A薬注焼却灰施用ではpH、ECともに施用量の増加に伴い上昇し、16倍区ではpHが9.1に、ECが4.4mS/cmに達した。イオン濃度は、陽イオンでは Ca^{2+} 、陰イオンでは Cl^- および SO_4^{2-} 濃度が著しく上昇した。こ

第20表 磷酸施用資材を施用して5日後の土壌溶液組成

処理	pH	EC (mS/cm)	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ -P (ppm)	全イオン濃度 (mmol/l)
-P	5.7	0.69	3.71	0.38	1.34	0.95	0.54	0.20	5.33	tr.	8.64
標準	6.0	1.27	4.55	0.49	6.87	2.75	0.47	0.22	12.15	tr.	16.61
標準2倍量	5.9	2.10	5.08	0.57	16.39	5.16	0.41	0.23	24.42	0.003	29.27

A x 1	6.7	1.51	5.12	0.53	9.69	2.90	3.07	0.23	14.95	tr.	22.73
A x 2	6.8	2.40	5.25	0.52	21.98	4.12	6.76	0.21	25.48	tr.	38.53
A x 4	6.9	2.76	4.71	0.49	29.47	2.25	8.14	0.18	25.30	tr.	42.03
A x 8	7.5	3.95	4.67	0.44	43.13	0.88	16.42	0.22	31.28	0.003	59.39
A x 16	9.1	4.41	4.05	0.37	49.26	0.08	23.83	0.21	30.22	0.009	68.25

C x 1	6.1	0.79	3.61	0.40	2.49	1.27	0.52	0.18	7.48	tr.	10.32
C x 2	6.2	1.09	4.63	0.48	3.94	2.54	0.61	0.23	10.40	tr.	14.39
C x 4	6.3	1.25	4.51	0.54	5.35	3.71	0.72	0.20	12.65	tr.	16.82
C x 8	6.5	1.52	5.12	0.59	7.80	6.47	0.73	0.22	19.56	0.005	23.58
C x 16	6.8	2.80	6.54	0.65	17.34	14.24	0.73	0.22	31.84	0.087	39.87

tr. : 検出限界以下

* : 最大容水量の80%において遠心法により採取

の系列におけるCa²⁺, Cl⁻濃度上昇の原因は、石灰・塩化鉄薬注汚泥を起源とするA薬注焼却灰が多量に与えられたためと理解される。なお、焼却灰中のS含有率は、A薬注焼却灰で0.98%、C無薬注焼却灰で0.36%であり、薬注汚泥起源で無薬注汚泥起源より高く、これはSO₄²⁻が添加薬剤中の不純物として混入したことに起因すると考えられる。また、C無薬注焼却灰施用系列では、土壌ECは、16倍区で2.8mS/cmまで上昇したが、これは主に2価イオンであるCa²⁺, Mg²⁺, SO₄²⁻濃度の上昇によるもので、Cl⁻濃度はほとんど上昇しなかった。

多量要素含有率を第19表に示した。N含有率は、標準区で2.49%であり、生長量の小さかった-P区やAx16区で4%を越え、他の処理区では標準区との差が小さかった。

P₂O₅含有率は、標準区で0.43%であり、-P区で低かった。A薬注焼却灰施用系列は全ての処理区で0.33%以下であり、4倍区まで

は施用量の増加に伴い上昇したが、8倍区以降は低下した。C無薬注焼却灰施用系列では施用量の増加に伴い上昇し、2倍区では標準区にほぼ等しく、4倍区では標準2倍量区にほぼ等しく、16倍区では2.64%に達した。

K含有率は、標準区で5.55%であり、-P区とAx16区で低かったが、他の区では差がなかった。

Ca含有率は、標準区で0.29%であり、A薬注焼却灰施用系列では施用量の増加に伴い上昇し、16倍区では1.03%に達し、C無薬注焼却灰施用系列では標準区と差がなかった。

Mg含有率は、標準区で0.20%であり、A薬注焼却灰施用系列では標準区と差がなく、C無薬注焼却灰施用系列では施用量の増加に伴い上昇し、16倍区では0.37%に達した。A薬注焼却灰施用系列では、土壌溶液pHが施用量の増加に伴い上昇し（第20表）、それに伴ってMg濃度が減少しているが、生長量が小さかったためにMg欠乏には到らなかった。

コンポスト区の多量要素含有率は、全ての要素で標準区と大差なかった。

重金属含有率を第21表に示した。Fe含有率は、地上部では標準区で188ppmであり、焼却灰施用区では標準区より低く、根部では標準区で1.66%であり、各区間に差がみられたものの統計的に有意ではなかった。

Mn含有率は、標準区の地上部で104ppm、根部で299ppmであり、焼却灰施用系列では地上部、根部とも施用量の増加に伴い低下する傾向を示し、A薬注焼却灰施用系列では全ての区が、C無薬注焼却灰施用系列では4倍区以降の区が標準区より低かった。

第21表 エンバクの重金属含有率 (ppm, 乾物当たり)

処理	Fe		Mn		Zn		Cu		Cr		Pb		Cd	
	Top	Root	Top	Root	Top	Root	Top	Root	Top	Root	Top	Root	Top	Root
-P	232	19800	89	188	23.6	55.0	10.1	8.0	0.10	9.31	6.17	6.73	1.09	0.48
標準	188	16600	104	299	21.4	61.1	8.6	18.0	0.57	7.41	5.52	6.56	0.72	2.89
標準2倍量	184	13100	92	300	22.2	63.6	7.3	14.3	0.66	7.38	4.55	6.21	0.51	2.88
A x 1	144	21500	64	253	20.7	76.1	7.2	23.3	0.80	8.41	5.46	6.46	0.13	1.02
A x 2	125	18700	45	215	21.9	72.8	8.1	25.7	1.31	6.66	3.61	6.30	0.19	0.60
A x 4	130	14900	44	167	30.6	84.6	9.1	24.9	0.94	7.34	5.43	5.70	0.13	0.16
A x 8	140	20700	44	212	33.7	91.6	9.8	25.1	0.54	11.66	5.90	6.13	0.15	0.19
A x 16	161	20800	43	225	25.3	130.4	10.4	24.4	0.89	16.94	4.11	8.56	0.11	0.27
C x 1	154	21200	98	306	17.7	72.5	7.5	29.6	0.68	7.82	3.06	5.89	0.21	0.93
C x 2	134	20400	94	302	19.3	75.1	7.4	29.5	0.51	7.09	4.37	3.98	0.38	0.83
C x 4	129	12200	71	184	19.0	71.8	7.1	28.9	0.63	6.99	5.72	6.50	0.38	0.78
C x 8	134	17200	74	232	23.4	86.8	8.7	30.1	0.48	9.57	5.42	5.54	0.19	0.86
C x 16	129	14600	79	242	31.4	120.7	9.9	28.3	0.48	8.64	5.92	6.46	0.29	0.75
F値	11.48**	1.46	26.71**	2.80*	17.25**	6.18**	3.47*	14.74**	0.57	2.44	1.48	2.57	0.84	7.76**
LSD(5%)	29	-	13	89	3.7	27.1	2.0	5.3	-	-	-	-	-	0.99

注) Topは地上部, Rootは根部を示す
*,** : 5%, 1% 水準で有意

Zn含有率は, 標準区の地上部では21ppm, 根部で61ppmであり, 焼却灰施用施用系列では地上部, 根部とも施用量の増加に伴い上昇する傾向にあった。

Cu含有率は, 標準区の地上部で8.6ppm, 根部で18ppmであり, Zn含有率と同様に地上部, 根部とも焼却灰施用量の増加に伴い上昇する傾向にあった。

Cr含有率は, 地上部では標準区で0.57ppmであり, 処理間に明瞭な傾向は認められなかったが, 根部では標準区で7.4ppmであり, A薬注焼却灰施用系列で施用量の増加に伴い上昇する傾向が認められ, 16倍区では17ppmに達したが, C無薬注焼却灰施用系列では標準区と差が認められなかった。水耕栽培において, エンバクでは根部Cr含有率が2500ppmでも CrO_4^{2-} による過剰障害が現れなかったことから(17), A薬注焼却灰施用系列での生育低下は, Cr過剰によるもので

はないと考えられる。

Cd含有率は、標準区の地上部で0.72ppm,根部で2.9ppmであり、地上部、根部ともに化学肥料施用区で高く、焼却灰施用により低下した。Pb含有率は、標準区の地上部で5.5ppm,根部で6.6ppmであり、処理による有意な差は認められなかった。

第3節 下水汚泥およびその焼却灰多量施用が作物生育

と可食部への重金属の移行に及ぼす影響

? 目次にはない

本節では、下水汚泥焼却灰を多量施用した場合、作物生育と可食部への重金属の移行について、下水汚泥と比較しながら検討した。

実験方法

重金属の可食部への移行を調査するために、コマツナ（品種：ミスギ）とオオムギ（品種：ホシマサリ）を供試作物として本章第2節でいう8倍量の P_2O_5 に相当するA薬注汚泥およびC無薬注汚泥とそれらと起源を同じくする焼却灰を与えて、過燐酸石灰を $1g \cdot P_2O_5$ /ポット相当量を与えた区を標準区として、ガラス室内で収穫期（コマツナは40日、オオムギは78日間）まで栽培した。なお、コマツナはポット当たり5本立て、オオムギは2本立てである。水分条件は本章第1節と同様であり、Nは基肥として硫安を $0.3g \cdot N$ /ポット相当量施用し、Kは硫加で $0.25g \cdot K_2O$ /ポット相当量を全区に施用した。オオムギには出穂期に硝酸アンモニウムを $0.3g \cdot N$ /ポット相当量追肥した。収穫後、コマツナは地上部と根部に、オオムギは部位別に分け、本章第2節と同様の項目を分析した。

実験結果

ポット当たりの地上部生長量は、コマツナでは標準区で12.1gであり（第22表）、AおよびCの焼却灰施用区では共に13.7～14.1gと標準区を越えたが、オオムギでは標準区で生育障害が起こり、生長量が13.4gと焼却灰施用区の34.8～40.1gに比較して大幅に減じた（第23表）。オオムギにおける標準区の生育は、出穂期までは正常であったが出穂期に至って生育が急激に停滞し、そのまま登熟せずに不稔のままであった。一方、各焼却灰施用区では生育障害は認められず、登熟した。したがって、子実収量は、各焼却灰施用区では17.6～18.0gであったのに対し、標準区では0gであった。また、汚泥施用区においては、汚泥の脱水方式の違いにかかわらず、コマツナ、オオムギともに発芽期の段階から、強い生育障害が現われた。その後も生育は快復せず、コマツナではA薬注汚泥施用区で0.65g、C無薬注汚泥施用区で0.08gであり、オオムギでは収穫前に枯死した。このように汚泥施用区での生長量が極端に小さかったので、以下、汚泥施用区の作物体中要素含有率は議論の対象外とする。

第22表 コマツナ地上部の乾物重と多量要素含有率（乾物当たり）

処理	乾物重 (g/ポット)	含有率 (%)				
		N	P ₂ O ₅	K	Ca	Mg
-P	0.15	ND	0.03	1.67	0.41	0.47
標準	12.1	2.41	1.05	1.04	1.13	0.47
A薬注汚泥	0.65	ND	0.86	0.34	1.14	0.31
A薬注焼却灰	13.7	1.83	0.60	0.81	1.43	0.21
C無薬注汚泥	0.08	ND	0.07	2.75	1.68	0.73
C無薬注焼却灰	14.1	2.01	1.10	1.06	1.68	0.53

ND：未測定

多量要素含有率は、コマツナでは（第22表）、A薬注焼却灰施用区でN、 P_2O_5 、K、Mg含有率が標準区より低かったが、生長量が標準区を越えていることから、問題となるほど低い含有率ではないと考えられる。C無薬注焼却灰施用区では、N含有率が標準区よりやや低かったが、他の要素では標準区とほぼ同じか、それより多かった。オオムギは（第23表）、標準区との比較は困難であるが、AとCの各焼却灰施用区を比較すると、A薬注焼却灰施用区で P_2O_5 含有率が低く、これはA薬注焼却灰が石灰薬注汚泥であるために、土壌pHの上昇による磷酸の不溶化のためと考えられる。C無薬注焼却灰施用区ではCa含有率が低く、N、K含有率には差がなかった。

第23表 オオムギの部位別乾物重と多量要素含有率（乾物当たり）

処理	部位	乾物重 (g/束 ¹ ト)	含有率 (%)				
			N	P_2O_5	K	Ca	Mg
-P*		0.37	ND	0.06	2.41	0.06	0.35
標準	茎葉	11.6	3.89	0.39	4.03	0.58	0.29
	穂	1.9	ND	1.00	2.57	0.12	0.22
	子実	0	-	-	-	-	-
A薬注汚泥*		2.2	4.51	0.26	1.88	2.04	0.75
A	茎葉	17.9	0.45	0.03	3.66	1.00	0.19
薬注	穂	22.3	2.09	0.39	0.83	0.13	0.14
焼却灰	子実	17.6	2.45	0.47	0.71	4.30	0.12
	粃殻	4.7	0.73	0.07	1.25	0.03	0.18
C無薬注汚泥*		0.74	ND	0.26	2.08	0.66	0.29
C	茎葉	15.5	0.34	0.07	3.05	0.31	0.15
無薬注	穂	22.9	1.73	0.65	0.85	0.08	0.16
焼却灰	子実	18.0	2.01	0.81	0.73	0.02	0.15
	粃殻	4.8	0.69	0.08	1.28	0.30	0.20

*：全地上部についての分析結果

ND：未測定

重金属含有率は、コマツナでは（第24表），地上部において，A薬注焼却灰施用区でFe，Mn含有率が標準区より低く，これは土壌pHが高くなったためと考えられ，根部では，A薬注焼却灰施用区のCu，Cr含有率で標準区より高かったが，他の含有率は，標準区と差がないか，あるいは低かった。有害重金属（Pb，Cd）含有率は，焼却灰

第24表 コマツナの重金属含有率（ppm，乾物当たり）

処理	Fe		Mn		Zn		Cu		Cr		Pb		Cd	
	Top	Root	Top	Root	Top	Root	Top	Root	Top	Root	Top	Root	Top	Root
標準	1525	18200	380	435	40.8	45.6	7.8	20.8	0.50	8.10	1.85	2.28	1.86	0.70
A薬注焼却灰	528	19900	82	441	42.3	92.3	6.0	26.6	0.56	16.6	0.92	1.20	tr.	tr.
C無薬注焼却灰	1129	11200	366	433	46.0	49.3	8.0	18.0	0.34	5.65	1.36	1.74	0.61	tr.

注) Topは地上部，Rootは根部を示す
tr.: 検出限界以下

施用によって地上部，根部共に標準区より低下した。一方，オオムギでは（第25表），全地上部含有率で比較すると，Cu含有率が焼却灰施用区の3.94～5.69ppmに対し，標準区で1.65ppmと極端に低かった。黒沢ら⁷⁰⁾は3ppm前後でCu欠乏症が発現するとしており，田中・但野ら¹¹⁶⁾はCu欠乏症発現時の地上部Cu含有率が多くの作物で2～3ppmであったと報告しているので，この生育障害はその症状からもCu欠乏症であると考えられる。可食部の要素含有率も標準区との比較は困難であるが，穂の重金属含有率はMn，Zn，Cr，Pbで標準区よりも低かった。焼却灰施用区における子実中の重金属含有率は，Feで86～118ppm，Mnで12～14ppm，Znで12.4～19.2ppm，Cuで1.63～4.30ppm，Crで0.32～0.38ppm，Pbで1.32～1.38ppm，Cdで0.02～0.06ppmであって，標準区の茎葉や穂の含有率と比較しても極端に高い含有率ではなく，Cu含有率を除けば焼却灰施用区の方が低かった。根

第25表 オオムギの部位別重金属含有率 (ppm, 乾物当たり)

処理	部位	Fe	Mn	Zn	Cu	Cr	Pb	Cd
標準	茎葉	1264	139	22.8	1.83	1.03	2.95	0.34
	穂	153	37	27.2	0.51	1.23	3.03	tr.
	全地上部	1108	125	23.7	1.65	1.05	2.63	0.29
	根部	4511	209	14.0	7.52	2.89	2.51	2.61

A 薬注 焼却灰	茎葉	649	71	20.7	3.25	1.42	1.95	tr.
	穂	196	21	17.6	7.65	0.28	1.40	0.08
	子実	118	12	19.2	4.30	0.32	1.38	0.06
	粉殻	487	57	11.5	20.3	0.14	1.46	0.15
	全地上部	460	78	19.0	5.69	0.79	1.65	0.14
	根部	14700	251	29.5	20.2	10.1	1.77	0.34

C 無薬注 焼却灰	茎葉	508	93	11.9	1.96	0.82	0.92	tr.
	穂	191	27	13.3	5.27	0.47	1.31	0.05
	子実	86	14	12.4	1.63	0.38	1.32	0.02
	粉殻	581	75	16.2	18.6	0.77	1.24	0.16
	全地上部	318	69	12.7	3.94	0.61	1.15	0.03
	根部	11700	284	37.5	25.2	3.58	3.77	0.87

tr. : 検出限界以下

部では、標準区と比較してFe, Zn, Cu含有率が焼却灰施用により、また、Cr含有率がA薬注焼却灰施用により上昇した。

考 察

各資材の肥料的効果を第1節の生長量および各多量要素含有率(第16表)から評価することにする。

窒素について各系列の-N区をそれぞれ比較すると、A薬注汚泥併用系列では相対生長量、含有率ともに化学肥料単独系列を上回ったが、C無薬注汚泥併用系列では化学肥料単独系列と差がなかった。したがって、A薬注汚泥の窒素供給力は大きいのに対し、C無薬注汚泥では小さいとみなすことができる。

リン酸について各系列の-P区をそれぞれ比較すると、相対生長量は、A薬注汚泥およびC無薬注汚泥併用系列では化学肥料単独系列

より2.8倍程度に上昇し、A薬注焼却灰およびC無薬注焼却灰併用系列ではさらに化学肥料単独系列の6倍程度にまで上昇した。したがって、リン酸供給力は汚泥より焼却灰の方が高く、脱水方式を異にする汚泥の種類による差はないとみなすことができる。また、第2節の結果から、コンポストよりも焼却灰でリン酸供給力が大きいといえる。

カリウムについて各系列の-K区をそれぞれ比較すると、相対生長量は各資材併用系列で化学肥料単独系列より上昇したが、含有率は低下しているので、相対生長量の上昇が各資材からのカリウムによる効果であるのか不明であった。

これら各資材の肥料的効果をはっきりさせるために、化学肥料、汚泥および焼却灰に含有したN、P、Kのエンバクによる資材由来の吸収量および利用率と化学肥料代替率を以下の方法により算出した。まず、資材由来の吸収量とは、硫安、過石および硫加の化学肥料の場合は標準区の各要素のポット当たりの吸収量から化学肥料単独系列における当該要素欠如区の吸収量を差し引いた値とし、汚泥あるいは焼却灰の場合は各要素欠如下でその資材を併用した区のポット当たりの各要素吸収量から化学肥料単独系列における当該要素欠如区の吸収量を差し引いた値とした。利用率とは、資材由来の吸収量を、資材を施用したことによる各要素の施用量で除した値とした。また、代替率とは、各資材の利用率を化学肥料のそれで除した値とし、これらの結果を第26表に示した。コンポストについては第27表に示した。

資材由来のN吸収量は(第26表)、硫安で $160.5\text{mg}\cdot\text{N}$ 、A薬注汚泥で $154.0\text{mg}\cdot\text{N}$ であったが、C無薬注汚泥ではほぼ0に近い負の値であ

第26表 化学肥料，汚泥および焼却灰に含有するN・P・Kの
エンバクによる利用率と代替率

資材	資材由来のN吸収量 (mg・N)	N施用量 (mg・N)	利用率 (%)	硫安代替率 (%)
硫安	160.5	250	64.2	—
A薬注汚泥	154.0	685	22.5	35.0
C無薬注汚泥	-1.5	239	0	0

資材	資材由来のP吸収量 (mg・P ₂ O ₅)	P施用量 (mg・P ₂ O ₅)	利用率 (%)	過石代替率 (%)
過石	24.87	500	4.97	—
A薬注汚泥	3.69	500	0.74	14.9
C無薬注汚泥	4.39	500	0.88	17.7
A薬注焼却灰	8.64	500	1.73	34.8
C無薬注焼却灰	7.06	500	1.41	28.4

資材	資材由来のK吸収量 (mg・K ₂ O)	K施用量 (mg・K ₂ O)
硫加	183.9	250
A薬注汚泥	120.6	101.7
C無薬注汚泥	112.0	79.5
A薬注焼却灰	218.4	120.5
C無薬注焼却灰	140.9	91.4

注)資材由来の吸収量，利用率，代替率の算出方法は，本文を参照

った。各資材のN利用率は，硫安で64.2%，A薬注汚泥で22.5%であり，A薬注汚泥の硫安代替率は35.0%であった。C無薬注汚泥では利用率，代替率ともに0であり，この違いは，両処理場の脱水方式の違いによるものと考えられる。すなわち，A処理場では石灰・塩化鉄を薬注して凝集させているが，C処理場では約200°Cの加熱により凝集させているので，易分解性窒素が溶出し，さらにタンパク質が熱変性のため⁵⁷⁾，土壤中で無機化せずに⁶⁶⁾，作物に利用され難い形態になっていることによると推察される。第3章で示した

ように、無葉注汚泥の有機物は難分解性であり、少なくとも施用後26週間は土壌中の水溶性 NO_3^- 含量を増加させなかったことから、熱処理汚泥においてはNの肥効は期待できないものと考えられる。

資材由来のP吸収量（第26表）は、過石で $24.87\text{mgP}_2\text{O}_5$ 、汚泥で $3\sim 4\text{mg}\cdot\text{P}_2\text{O}_5$ 、焼却灰で $8\text{mg}\cdot\text{P}_2\text{O}_5$ 前後であって、起源とする汚泥の脱水方式の種類による差は小さく、汚泥より焼却灰でより多くの P_2O_5 を吸収していた。施用量は $500\text{mg}\cdot\text{P}_2\text{O}_5$ に設定してあることから、利用率および過石代替率ともに吸収量と同様の傾向であり、焼却灰で汚泥の2倍近い値となり、汚泥よりも焼却灰の方が磷酸の肥効は大きい。コンポストも吸収量および利用率が焼却灰を下回り、焼却灰の方が磷酸の肥効が大きい（第27表）。

第27表 エンバクによるコンポストおよび焼却灰に含有する磷酸の吸収量($\text{mg}/\text{ポット}$)と利用率

処理	P_2O_5 施用量	吸収量	資材由来の 吸収量	利用率 (%)
—P	0	1.6	0	0
標準	500	34.6	32.9	6.59
標準2倍量	1000	69.8	68.2	6.82

コンポスト	500	14.6	13.0	2.60

A x 1	500	16.4	14.8	2.96
A x 2	1000	19.2	17.6	1.76
A x 4	2000	19.4	17.8	0.89
A x 8	4000	11.8	10.2	0.25
A x 16	8000	4.1	2.5	0.03

C x 1	500	18.7	17.1	3.42
C x 2	1000	34.5	32.9	3.29
C x 4	2000	70.2	68.6	3.43
C x 8	4000	151.4	149.8	3.75
C x 16	8000	257.9	256.2	3.20

資材由来のK吸収量（第26表）は、化学肥料である硫加施用を除いてK施用量を上回ったため、Kの利用率を算出することは不可能であった。これは、①供試土壤中に豊富な交換性Kが存在したことに加えて、②資材中の K_2O 含有率が低いこと、および③供試土壤が強い磷欠乏土壤であり、かつ、磷酸吸収係数も大きいことと、④これらの区のP施用量が過石と資材からの P_2O_5 の合計で、標準区の倍量であったことにより、磷の多量施用による生育改善効果が大きく、根量も増加し、その結果、K吸収量が増加したことによると考えられる。

汚泥焼却灰の肥料的効果は磷酸質肥料としての効果であることが明らかとなったことから、次に、焼却灰の多量施用の影響および過石と比較した磷酸質肥料としての有効性を第2節および第3節の結果から判断する。

エンバクに焼却灰を段階的に施用した場合、A薬注焼却灰施用系列の地上部乾物重は、標準区と比較すると全ての区で有意に低下し、C無薬注焼却灰施用系列では1倍区のみ有意に低下した（第19表）。

また、各区の P_2O_5 吸収量から-P区の P_2O_5 吸収量を差し引いた資材由来の吸収量は（第27表）、標準区で $32.9\text{mg}\cdot P_2O_5$ 、標準2倍量区で $68.2\text{mg}\cdot P_2O_5$ であった。A薬注焼却灰施用系列では全ての処理区で $18\text{mg}\cdot P_2O_5$ 以下であり、4倍区までは施用量の増加に伴い増加したが、8倍区以降は減少した。C無薬注焼却灰施用系列では施用量の増加に伴い増加し、2倍区では標準区にほぼ等しく、4倍区では標準2倍量区にほぼ等しく、16倍区では標準区の7.8倍にも達した。 P_2O_5 利用率は化学肥料である過石では6%を越え、A薬注焼却灰施用系列では1倍区で2.96%であり、施用量の増加に伴い低下し、C無

薬注焼却灰施用系列では全ての処理区で3.5%前後の値が維持された。

A薬注焼却灰のような石灰や塩化第二鉄を薬注している汚泥焼却灰の施用は、土壌溶液中の Ca^{2+} および Cl^{-} 濃度を増加させる(第20表)。したがって、この系列における生育低下は、高塩濃度障害によるものと考えられる。田中ら¹¹⁵⁾は、 $NaCl$ によって Cl^{-} 濃度を43.5 mmol/lとしたとき著しい生育低下が認められたことから、エンバクは高 Cl 耐性が弱いとしている。本実験における土壌溶液中の Cl^{-} 濃度は、A薬注焼却灰施用量の増加に伴って著しく上昇し、16倍区では23.8 meq/lに達しており、生育低下は高 Cl による濃度障害の可能性が強い。一方、C無薬注焼却灰施用系列では、2倍量以上の施用によって生育が改善されていることから、1倍区において標準区より生育が劣ったことはPの不足によるものと考えられる。焼却灰中の P_2O_5 が過石中のそれよりも有効性が少なかったためであろう。

第3節の実験に供試したコマツナおよびオオムギは $NaCl$ による高塩濃度耐性が強いとされており¹¹⁰⁾、このような作物に8倍量の焼却灰を施用し、収穫期まで栽培した実験では、コマツナおよびオオムギともに起源汚泥の脱水方式にかかわらず、生育促進の効果が認められた(第22, 23表)。しかし、汚泥を8倍量施用した場合は、発芽時から生育障害を受けた。これは、A薬注汚泥施用においては、第3章で示したように、4倍量を施用して培養した場合に13週目で土壌ECが1.9 mS/cmと急激に上昇したこと(第8図)から、高塩濃度障害による発芽障害や生育障害と考えられ、高pHによる生育障害も考えられる。一方、C無薬注汚泥施用においては無薬注汚泥の有機物が難分解性であり、第3章の実験では土壌ECが26週目までは0.15

ms/cmとそれほど上昇していなかった（第8図）ことから、高塩濃度障害とは考え難い。C無薬注汚泥施用区では腐敗臭が強かったことから、汚泥有機物の嫌氣的腐敗に伴うメタンガス等のガス障害によって、根部が生育阻害を受けたためである⁹⁾と考えられる。この実験では極端な多量施用を行なった場合の作物生育に対する影響を調査したものであり、8倍量という施用量は、実際の農地施用に換算すると、有効土層の厚さを15cm、仮比重を1.0と仮定して、A薬注汚泥乾物で80t/ha、C無薬注汚泥乾物で60t/haに相当する。年間の汚泥施用量を乾物で10t/haを限度とするように指導されている現状では、60tを越える施用量は土壌の許容能力を大幅に上回ってしまったと考えざるを得ない。

このように、脱水方式にかかわらず汚泥の多量施用は、作物生育に対し非常な悪影響を及ぼすが、焼却灰施用では作物種によってはある程度まで耐え得る。しかし、石灰・塩化鉄薬注汚泥焼却灰の施用は、①土壌EC（特にCl⁻濃度）を上昇させるので、高塩濃度障害を受けやすい（特に高Cl濃度耐性の弱い）作物の生育に悪影響を及ぼす恐れがあり、さらに②土壌pHを上昇させる（第8図、第20表）ので、P₂O₅、Mg、FeおよびMnの吸収を低下させる恐れがある。したがって、薬注汚泥焼却灰を磷酸質肥料として、経年的に連用したり、一時的に多量施用することは避けるべきである。高塩濃度に対する耐性の強い作物種では、薬注汚泥焼却灰の施用により生育促進の効果が認められたことから、薬注汚泥焼却灰は磷酸質肥料としての効果を潜在的に持っているものと考えられるので、磷資源の再循環を図るならば、汚泥の脱水方式に石灰・塩化鉄等の無機凝集剤を添加する方式は好ましくない。

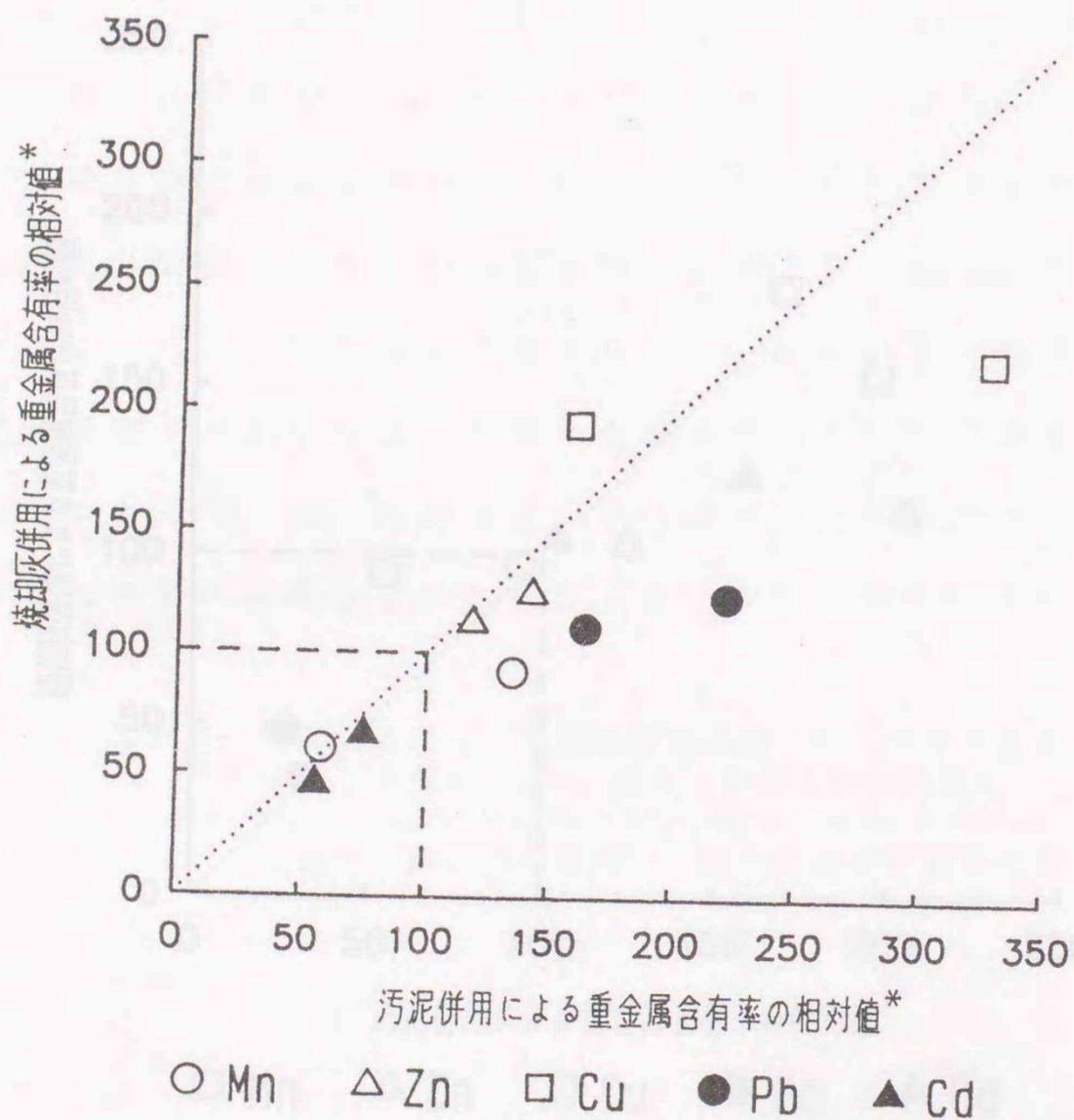
これに対し、C無薬注焼却灰のように、無薬注汚泥を起源としている焼却灰では、16倍もの多量施用を行なっても生育障害は受けず、磷酸利用率も変化しなかった（第27表）。また、C無薬注焼却灰施用区において、生長量、磷酸の含有率および吸収量が、磷酸として過石の2倍量を与えた区において過石施用区とほぼ同じ値を示した（第19、27表）。したがって、この焼却灰の磷酸質肥料としての有効性は過石の約50%程度と考えられるので、磷酸質肥料として利用する場合は、必要な過石施用量に含有する P_2O_5 の2倍量程度を含む焼却灰を施用すれば、その効果が期待できるであろう。過石の2倍量のC無薬注焼却灰施用が土壌溶液に与える影響を過石とC無薬注焼却灰で比較すると（第20表）、ECは標準区の 1.27mS/cm 、標準2倍量区の 2.10mS/cm に対し、2倍区の 1.09mS/cm 、4倍区の 1.25mS/cm とC無薬注焼却灰施用の方が低かった。したがって、過石の2倍量程度の無薬注焼却灰施用は、土壌に与える影響も小さいので、過石と同様の経年的な施用が可能であると考えられる。

下水汚泥を農地利用する場合、最も障害となる問題の一つが重金属の問題である。

第1節において、各資材要素併用系列における重金属の吸収を比較するために、相対生長量が44以上の区について、標準区の重金属含有率を100としたときの地上部および根部の相対値をとり、A薬注汚泥併用系列、C無薬注汚泥併用系列、A薬注焼却灰併用系列およびC無薬注焼却灰併用系列の資材別に併用系列内の平均値を求めた。これらの平均値について、汚泥併用とその汚泥と起源を同じくする焼却灰併用とを比較したところ、第22、23図の関係が得られた。図中の点線は、汚泥併用における含有率と焼却灰併用における含有率

が等しい場合を示し、プロットが点線より下にある場合は、焼却灰併用における含有率が汚泥併用における含有率より低いことを示している。

地上部ではCu, Zn, Pbで標準区の含有率(100)より高かったが、ほとんどの金属で汚泥併用より焼却灰併用で含有率が下回った。根

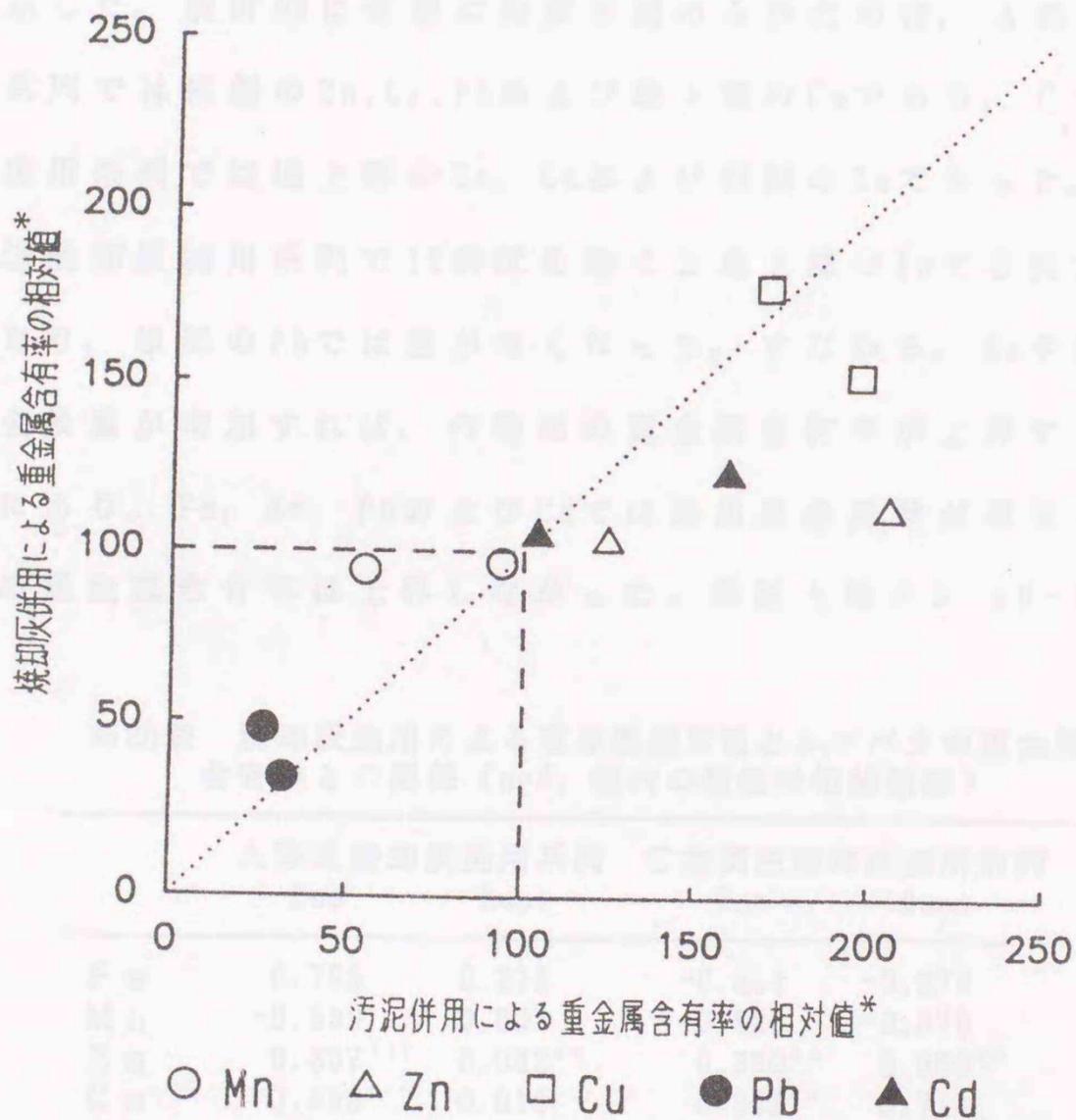


第22図 汚泥併用と焼却灰併用によるエンバク地上部の重金属吸収の比較**

*: 標準区の地上部含有率を100とした

** : 各資材併用系列内の平均値で起源の同じ汚泥と焼却灰を比較

部でもCu, Znなどで標準区の含有率より高かったが, 地上部と同様の傾向が認められた。CuやZnで汚泥または焼却灰の併用において, 標準区より含有率が高くなった理由は, 第8表に示したように供試土壌中の0.1N-HCl可溶のCuやZnの量が少なく, 作物根のこれら微量元素の吸収能が働いたことに起因すると考えられる。このように,



第23図 汚泥併用と焼却灰併用によるエンバク根部の重金属吸収の比較**

*: 標準区の根部含有率を100とした

** : 各資材併用系列内の平均値で起源の同じ汚泥と焼却灰を比較

地上部、根部ともに汚泥併用よりも焼却灰併用で重金属含有率が低下する傾向にあった。したがって、焼却処理による含有重金属の難溶化は、汚泥由来の重金属の吸収を抑制するという意味で、作物根による養分吸収の場においても有効であった。

一方、第2節において焼却灰施用により土壤中に持ち込まれた重金属量（施用重金属量）とエンバク中の重金属含有率の関係を第28表に示した。統計的に有意な関係が認められたのは、A薬注焼却灰施用系列では根部のZn, Cr, Pbおよび地上部のCuであり、C無薬注焼却灰施用系列では地上部のZn, Cuおよび根部のZnであった。また、A薬注焼却灰施用系列で16倍区を除くと地上部のZnで5%水準で有意となり、根部のPbでは差がなくなった。すなわち、ZnやCuでは施用重金属量が増加すれば、作物体の重金属含有率が上昇するという関係にあり、Fe, Mn, PbおよびCdでは施用重金属量が増加しても作物体の重金属含有率は上昇しなかった。供試土壌の0.1N-塩酸可溶

第28表 焼却灰施用による重金属施用量とエンバクの重金属含有率との関係 (n=5, 表内の数値は相関係数)

	A薬注焼却灰施用系列		C無薬注焼却灰施用系列	
	Top	Root	Top	Root
Fe	0.799	0.273	-0.554	-0.379
Mn	-0.539	0.005	-0.523	-0.379
Zn	0.307 ⁽¹⁾	0.982 ^{**}	0.990 ^{**}	0.969 ^{**}
Cu	0.899 [*]	0.013	0.952 ^{**}	0.714
Cr	-0.303	0.968 ^{**}	-0.678	0.601
Pb	-0.193	0.821 ^{*(2)}	0.720	0.459
Cd	-0.579	-0.574	-0.144	-0.654

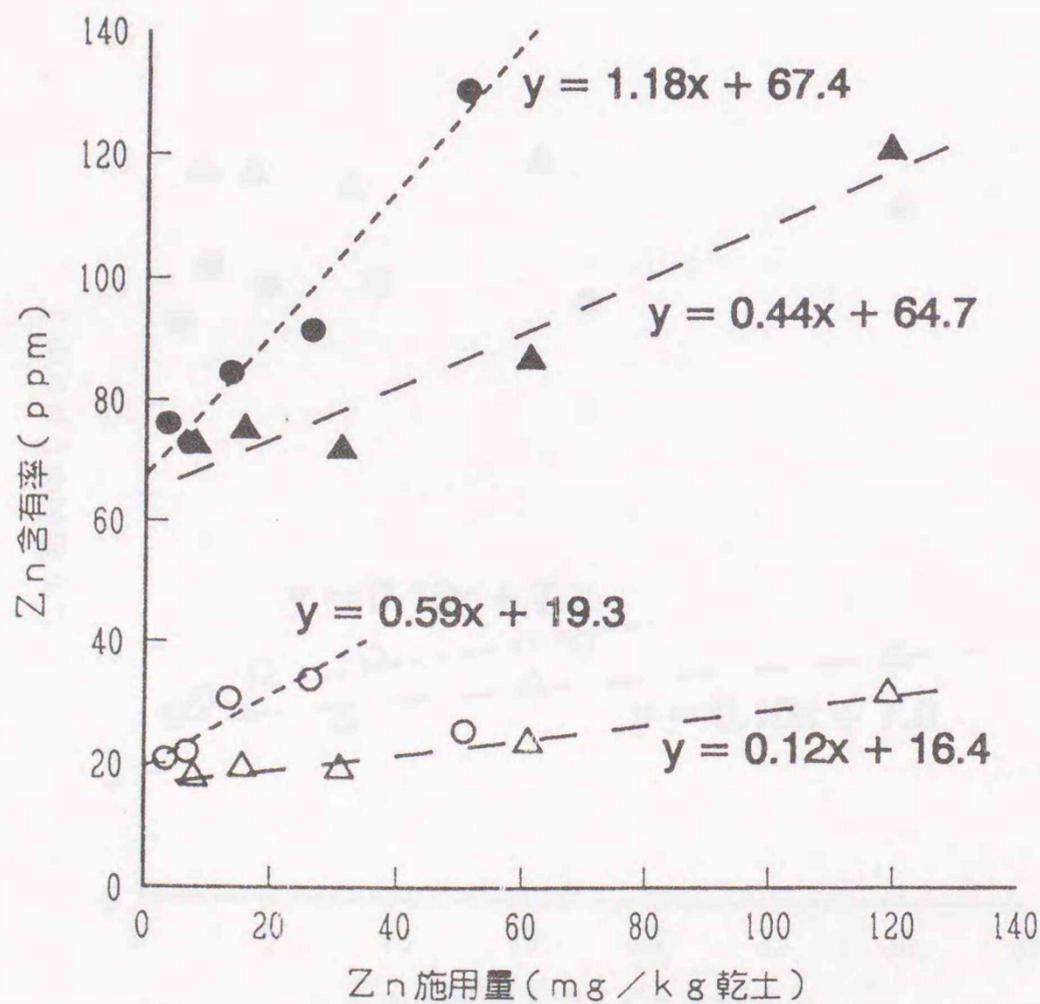
注) Topは地上部, Rootは根部を示す

*, ** : 5%, 1% 水準で有意

(1) 16倍施用を除いた場合 0.934^{*}

(2) 16倍施用を除いた場合 -0.432

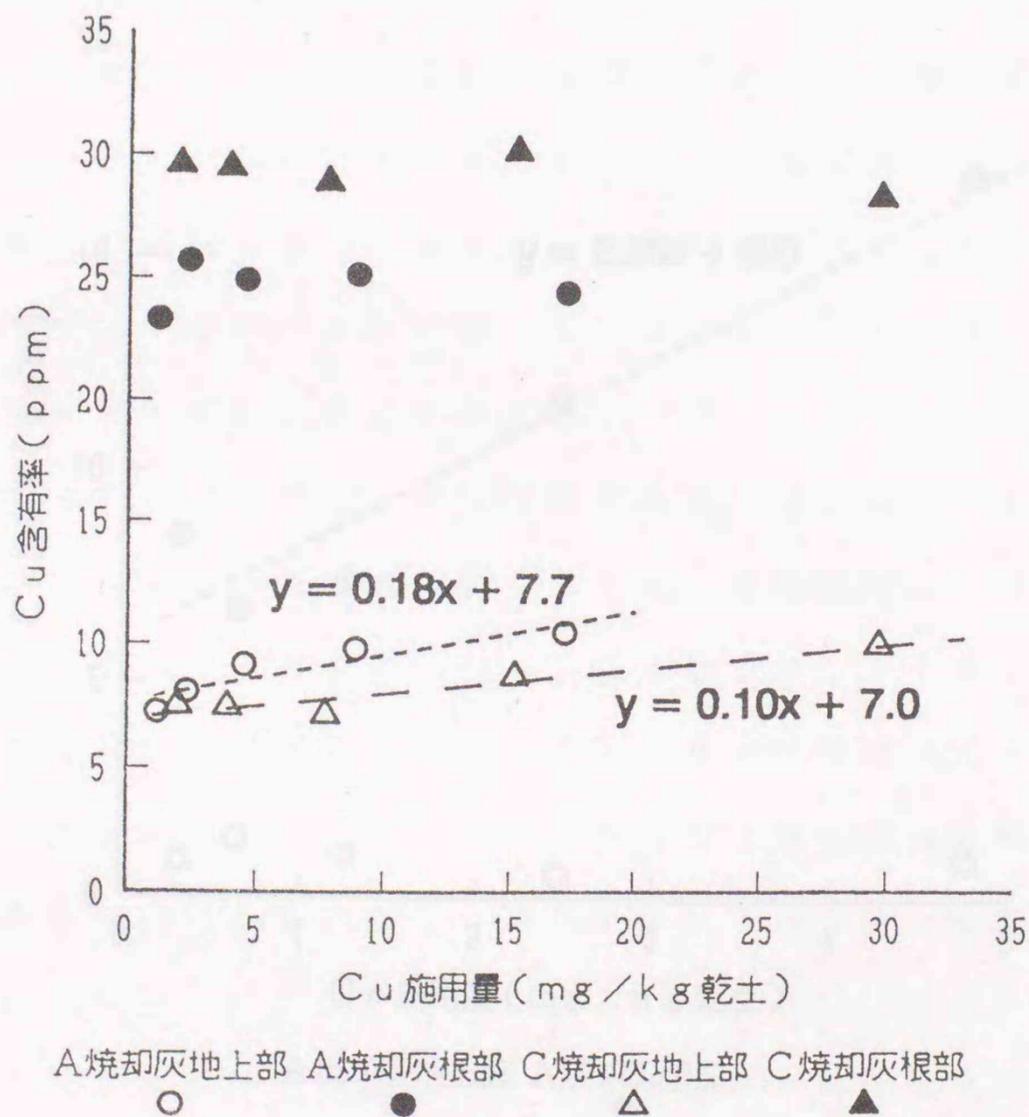
のZn, CuおよびCrは微量であることから(第8表), これらの重金属の含有率が施用重金属量の増加に伴って上昇したのは, 作物が焼却灰由来の重金属を吸収したためと考えられる。尾和⁹⁰⁾は, 放射性重金属を人工汚泥に取り込ませ, 汚泥由来のZnと土壌由来のZnを区別して, オオムギ幼植物体中の汚泥由来Zn濃度と土壌中の施用Zn濃度との間に高い相関関係があったと報告しており, 本実験の結果でもZnやCuで尾和の報告と同様の傾向が認められた。この相関図の回



A 焼却灰地上部 A 焼却灰根部 C 焼却灰地上部 C 焼却灰根部
 ○ ● △ ▲

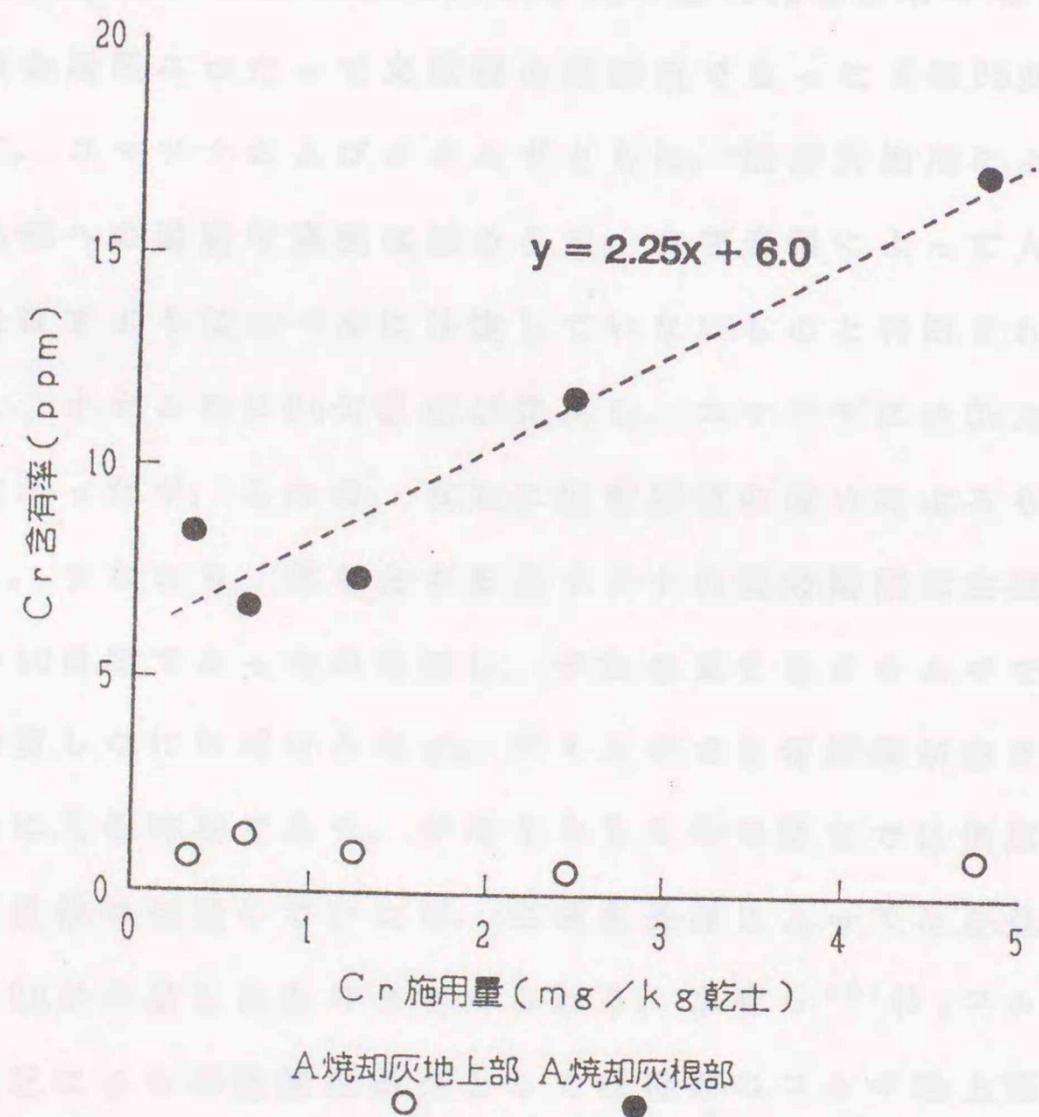
第24図 焼却灰施用によるZn施用量とエンバクのZn含有率の関係

帰直線の傾きは、A薬注焼却灰施用系列ではZnで0.59（地上部）～1.18（根部）、Cuで0.18（地上部）であり（第24、25図）、C無薬注焼却灰施用系列ではZnで0.12（地上部）～0.44（根部）、Cuで0.10（地上部）であった。この傾きは、焼却灰由来重金属の作物に対する供給性の大小を示す尺度と考えられる。A薬注焼却灰施用系列よりC無薬注焼却灰施用系列でこの傾きが小さかったことから、C無薬注焼却灰由来重金属は、A薬注焼却灰汚泥由来重金属よりも



第25図 焼却灰施用によるCu施用量とエンバクのCu含有率の関係

作物に対する供給性が小さいものと考えられる。また、A葉注焼却灰施用系列でCrの根部における傾きは2.25であり（第26図）、コマツナの根部でも標準区の2倍の含有率であったことから、ZnやCuに比べて大きな供給性を持っていた。これは、石灰系汚泥の焼却によるCr(VI)生成のため⁵⁵⁾と考えられるので、その焼却には低酸素条件の還元的雰囲気下で焼却するようなCr(VI)の生成を抑制する焼却条件をとる必要がある。



第26図 焼却灰施用によるCr施用量とエンバクのCr含有率の関係

高塩濃度耐性の強い作物に8倍量の焼却灰を施用し、収穫期まで栽培した第3節では、コマツナおよびオオムギの可食部中の重金属含有率を標準区のそれと比較すると、コマツナの地上部では、Pb, Cd等の有害重金属を含め測定した全ての金属種で標準区と差がないかあるいは低下した(第24表)。オオムギの子実では標準区で収穫がなかったため、焼却灰施用区の含有率と比較できなかったため、文献値⁴⁷⁾と比較した。それによると、Mn: 11~15ppm, Zn: 20~30ppm, Cu: 3.6~5.0ppm, Cr: 2ppm, Pb: tr.~3.5ppm, Cd: 0.06~0.15ppmであり、焼却灰施用区の子実の金属元素含有率は、測定した全ての金属種にわたって文献値の範囲内であった(第25表)。したがって、コマツナおよびオオムギともに、焼却灰施用による重金属の可食部への過剰な集積は認めらず、食物連鎖によって人の健康に害を及ぼすようなレベルには達していないものと判断された。

また、オオムギにCu欠乏症が発現し、コマツナにはCu欠乏症は発現しなかったが、これは、おもに生育期間の違いによるものと考えられる。すなわち、葉を食するコマツナの栽培期間は生殖生長に入る前の40日間であったのに対し、子実を食するオオムギでは登熟期まで栽培しなければならない。オオムギで生育停滞が始まったのは出穂期に入る時期であり、少なくともこの時期までは供試土壌からのCuの供給で充足していたが、生殖生長期に入ってから登熟に至るまでのCuが不足したものと考えられる。水野ら⁸⁶⁾は、コムギの場合でCu欠乏による不稔発生条件として収穫期のコムギ地上部のCu濃度よりもCu/Fe比と密接な関係があったとし、Cu/Fe比が0.008以下で確実に不稔が現れ、0.01以上では結実したと報告している。本実験においてCu欠乏症が発現したオオムギの標準区のCu/Fe比は0.0015で

あり、非常に小さい値であった。焼却灰施用区では、Cu含有率が標準区よりも上昇し、Cu/Fe比も0.012まで上昇して、Cu欠乏症は発現せずに結実した。したがって、焼却灰からの重金属の供給性は低い
が、Cu欠乏土壌のように微量要素欠乏土壌においては、焼却灰施用はその供給源となり得るものと考えられる。

以上のように、汚泥の肥料的効果はおもに窒素および磷酸の肥効であった。一方、焼却灰では磷酸の肥効が主体であり、起源とする汚泥の脱水方式の違いにかかわらず汚泥のそれを2倍近く上回った。A処理場の汚泥のように窒素の肥効が期待できる汚泥であれば、汚泥を焼却処理すると肥料成分である有機物や窒素が燃焼し揮散してしまうので、焼却処理は肥料効果的にマイナスになる。しかし、C処理場のように脱水方式に熱処理法を採用している汚泥では窒素の肥効は期待できないので、焼却処理は磷酸の肥効が上昇する分だけ肥料効果からみると有利である。また、焼却灰を多量施用すると、石灰・塩化鉄薬注汚泥起源の焼却灰では、高塩濃度障害を引き起こす恐れがあるが、熱処理無薬注汚泥起源の焼却灰であればその恐れはない。一方、作物による重金属の吸収は、汚泥施用よりも焼却灰施用で抑制されたことから、下水汚泥の焼却処理による磷酸の有効化と重金属の難溶化は、本実験における土耕試験による作物栽培において裏付けられた。

第 5 章 総合考察

現在、世界の磷資源の枯渇が危惧されている⁵⁾。磷鉱石の埋蔵量（トン当たり35ドル以下で採掘可能な量）は世界合計で140億t、埋蔵基礎量（トン当たり100ドル以下で採掘可能な量）は364億tと見積もられ、日本磷資源研究所によると、世界における磷鉱石の寿命は埋蔵量で50～60年、埋蔵基礎量で100～110年で枯渇すると予測されている³²⁾。トン当たり100ドル以上の鉱石を対象とすれば世界における磷鉱石の寿命はまだ延びるが、いずれにしても磷資源は有限であり、将来磷資源は枯渇するであろう。一方、農業系と人間摂取を一つの系と考え、わが国における磷資源の流れを見ると、系内への総持ち込み量は化学肥料や輸入農産物として1,022千tであって、生活および畜産廃棄物等による系外への損失全量は334千t、土壌残存量は688千tと試算されている¹⁸⁾。わが国においては磷資源の持ち込みをすべて輸入に頼っており、この系外への損失量を減少させることは、資源的にも、環境上からも重要なことである。人畜の排泄物として系外に放出される磷の形態は、下水処理設備が完備しているならば、下水汚泥に濃縮される。磷資源の再循環を考えるならば、下水汚泥の農地・緑地における利用を積極的に進める必要がある。

下水汚泥の農地・緑地における利用は、これまでのところ有機質資材としての利用が主体であり、その効果と問題点が明らかになっている。しかし、下水汚泥焼却灰の無機質資材としての利用は、石灰系汚泥の焼却灰を土壌の酸性を矯正する目的で行なわれているに過ぎない。

下水汚泥の有機質資材としての効果は、おもに土壤に有機物が施用されることによる土壤物理性の改善効果と有機物の分解に伴う無機態窒素の放出による窒素の肥料的効果からなると考えられている。リンの効果もあるが、窒素ほど顕著ではない。土壤物理性の改善効果は、多量施用時に顕著に現われるとされている^{48, 83)}が、本研究においては議論の対象としなかった。

本研究では、リン資源の有効利用を図るために、下水汚泥の焼却処理を採用することの妥当性を検討した。以下に、農地における下水汚泥利用の利点と問題点を明らかにし、焼却灰利用の利点と問題点を対比させて考察し、焼却灰の農地利用の可否を論じる。

1. 農地における下水汚泥利用の利点と問題点

下水汚泥の窒素質肥料としての効果は、石灰・塩化鉄薬注汚泥で顕著に認められ(第16表)、熱処理無薬注汚泥では認められなかった。リン酸質肥料としての生育改善効果は、窒素ほど顕著ではなかったが認められ、汚泥の脱水方式による差はなかった(第16, 26表)。

下水汚泥の有機物含有率は、強熱減量から判断すると(第3表)、50%以上であり、コンポスト化によって減少した。このうち、大部分は炭素化合物であり、窒素含量は1.3~3.4%と少なく(第4表)、下水汚泥はC/N比の高い資材である。脱水方式の違いから、薬注汚泥と無薬注汚泥を比較すると、無薬注汚泥で薬注汚泥より窒素含有率が低かった。これは、無薬注汚泥脱水工程における200°C以上の熱処理で、窒素化合物が可溶性有機物として溶出したことによると考えられる。

下水汚泥の理化学性は、無機凝集剤添加の有無により、大きく異

なっていた。すなわち、薬注汚泥は、凝集剤として石灰（カーバイト滓）および塩化第二鉄を添加しているために、強いアルカリ性を示し、溶出する無機性分量も多くECが高い（第3, 5表）。これに対し、無薬注汚泥は添加薬剤を使用していないために、pHは中性付近であり、資材から溶出する無機成分量が少ない。

土壌に薬注汚泥あるいはそのコンポストを施用すると、土壌pHが無施用土壌より上昇した（第8図）が、有機物の分解に伴う NO_3^- イオンの増加により（第9図）、pHは経時的に低下する傾向にあった。薬注汚泥施用土壌では、13週目以降も高い NO_3^- 含量が維持され、有機物の分解が引続き進行したのに対し、コンポスト施用土壌では、 NO_3^- 含量が経時的に減少し、有機物の分解が停滞したことから、コンポスト中の有機物は薬注汚泥のそれよりも難分解性であると判断された。したがって、汚泥有機物の安定化を図り、急激な分解で生ずる多量の分解生成物による作物の生育障害を防ぐという点で、汚泥のコンポスト化はある程度有効であろう。この有機物の分解に伴う NO_3^- の放出により、薬注汚泥では窒素質肥料としての効果が認められた（第16, 26表）。一方、薬注汚泥およびコンポストの施用土壌では、土壌ECも施用後1週目の時点から無施用土壌に比較して高いレベルにあり、汚泥有機物の分解に伴う NO_3^- の放出と、水溶性 Ca^{2+} 量の増加により（第9図）、13週目にかけて急激に上昇した（第8図）。さらに、交換性Ca含量も増加して、塩基飽和度が100%を大きく越えた（第10図）。したがって、薬注汚泥由来の資材施用では、土壌の化学性に対する影響が大きく、多量施用あるいは経年的施用によって高pH、高ECおよび塩基飽和度が高い土壌になる恐れがあり、 NO_3^- 等の栄養塩の地下水への浸透あるいは周辺水域への溶

出も問題となるので、土壌管理には細心の注意を払わなければならない。また、圃場ベースに換算して乾物で80t/haに相当する多量施用時においては、コマツナおよびオオムギの生育が発芽時から大きく阻害され（第22, 23表）、既に指摘されている施用直後の生育障害⁹¹⁾が確認された。この生育障害の要因は、有機物の分解に伴う NO_3^- の増加および添加薬剤中の Cl^- の溶出による高ECのためと考えられた。

これに対し、無薬注汚泥施用土壌では、薬注汚泥施用土壌で認められたような施用後初期の段階における有機態窒素の無機化が認められず、52週目に至って初めて僅かながらの NO_3^- 量の増加が認められた（第9図）。したがって、無薬注汚泥では窒素の肥料的効果が認められなかった（第16, 26表）。これは、汚泥脱水の熱処理工程で、可溶性有機物の溶出と、タンパク質が熱変性し⁵⁵⁾含窒素化合物が難分解性になったことによると考えられた。この資材施用土壌では土壌pH、ECともに無施用土壌と大きな差は認められなかったが、52週目に有機態窒素の無機化に伴う NO_3^- 量の増加（第9図）のためにECが上昇し（第8図）、薬注焼却灰施用土壌とほぼ同じレベルとなった。しかし、交換性塩基含量がわずかしか増加しなかったため、塩基飽和度は60%程度に留まった（第10図）。したがって、無薬注汚泥の施用が土壌の化学性に及ぼす影響は小さいとみなすことができる。しかし、多量施用時においては、コマツナとオオムギで薬注汚泥よりも強い生育障害が発現した（第22, 23表）。この時の無薬注汚泥施用ポットからは、強い腐敗臭が発生したことから、嫌気発酵によって生成した有機酸やメタンガス等による生育阻害である⁹⁴⁾と推定された。

このように、薬注汚泥は速効性の窒素質肥料としての効果はあるものの土壌の化学性に及ぼす影響が大きく、あるレベル以上に薬注汚泥を施用した場合には高pHや高ECによって作物生育に悪影響を及ぼす。また、無薬注汚泥は速効性の窒素質肥料としての効果がなく、多量施用時には、有機物の嫌気発酵によって作物が強い生育障害を受ける恐れがある。したがって、土壌の化学性や作物の生育に及ぼす影響から、農地に対し下水汚泥を一時的に多量施用することは好ましくないと判断できる。さらに、汚泥に含有する有害物質による土壌汚染の問題がある。本研究では定量しなかったので議論の対象から除外したが、有害な微量有機物による地下水の汚染が懸念されるという問題が加わり、重金属については後で論ずる。

2. 農地に対する下水汚泥焼却灰利用の利点と問題点

焼却灰の肥料的効果は、おもに燐酸の肥効であり、起源とする汚泥の脱水方式にかかわらず、汚泥のそれを2倍近く上回り（第16, 26表）、コンポストより大きかった（第19, 27表）。これは、①800°Cの焼却処理により燐酸が有効化したこと（第6表）、②有効化した燐酸は、土壌中においてもその形態の変化が遅く（第11図）、有効性は持続することに起因すると考えられた。また、焼却灰含有燐酸の有効性は、過石含有燐酸の約50%であり、焼却灰の施用適量は過石として施用する P_2O_5 量の2倍程度が適当であろう。すなわち、過石で $200\text{kg}\cdot P_2O_5/\text{ha}$ の施肥を行おうとすれば焼却灰で $400\text{kg}\cdot P_2O_5/\text{ha}$ 相当量を施用すればよい。

焼却灰の理化学性には、その起源とする汚泥の理化学性が大きく反映していた。すなわち、薬注汚泥を起源とする焼却灰のpHは高く

(第3表), この焼却灰を土壤に施用した場合には, 汚泥を施用した場合とは逆に土壤pHが経時的に上昇した(第8図)。また, Caの溶出によりECも高かったが, 汚泥の乾物単位重量当たりに換算すると, 焼却処理によってCaの溶出は抑制された(第5表)。一方, 無薬注汚泥を起源とする焼却灰のpHは中性付近であり, 溶出分量も少なかった(第3, 5表)。この焼却灰を土壤に施用した場合には, 土壤pHおよびECともに無施用土壤と大差なかったことから(第8図), 無薬注汚泥焼却灰の施用が土壤の化学性に及ぼす影響は非常に小さいとみなすことができる。

薬注汚泥焼却灰施用もその汚泥と同じく土壤の化学性に及ぼす影響が大きい。これは前述した通りである。しかし, 焼却灰は有機物含有せず, 有機物分解に伴う無機態窒素の放出がない。したがって, その施用土壤では, 土壤ECの経時的な上昇がなく(第8図), 土壤の化学性に対する影響は, 汚泥よりも焼却灰で小さい。磷酸量換算で同量の薬注汚泥とその焼却灰を施用してコマツナおよびオオムギを栽培した結果では, 薬注汚泥施用によって生育障害が発現したが, 焼却灰を施用した場合には生育障害が発現しなかった(第22, 23表)ことから, 作物生育に対する悪影響も汚泥施用より焼却灰施用で小さい。一方, 焼却灰の施用レベルを変えてエンバクを栽培した結果では, 多量施用により生育障害が発現した(第19表)。この栽培実験と同一条件にした土壤の土壤溶液を分析した結果では(第20表), 生育障害が発現した最小施用量区(20t/haに相当)における土壤溶液pHは6.9であり, 高pHによる生育障害とは考え難い。生育障害の要因としては, 高 Cl^- 濃度によるCl過剰障害が関与しているものと考えられた。しかし, この施用量を越えた量を施用した区では,

最高でpHは9.1に、全イオン濃度は68mmol/lに達しており、高pHおよび高塩濃度障害を複合的に受けて強い生育障害が発現したものと考えられる。したがって、薬注汚泥焼却灰の施用においても、その起源となった汚泥よりも多量施用に耐え得るが、焼却灰乾物で20t/haを越える多量施用や累積施用量が20t/ha以上となるような経年的な連続施用は避けるべきである。磷資源の再循環を考えるならば、汚泥の脱水方式に石灰・塩化鉄等の無機凝集剤を添加する方式は好ましくない。

これに対し、無薬注焼却灰を施用した場合では、資材含有成分の溶出による土壌化学性に及ぼす影響は小さかったので、作物生育に対する悪影響は小さい。この焼却灰の施用では、生育障害を受けた薬注汚泥焼却灰と同じレベルの施用を行なっても生育障害は発現しなかった（第18表）。また、土壌溶液成分組成に及ぼす影響を含有磷酸量当たりで比較すると（第20表）、化学肥料である過石より小さく、施用適量と判断した過石の倍量を施用した区と比較しても焼却灰施用区の方が小さかった。本研究で供試した無薬注焼却灰施用量の最大値は、圃場ベースに換算すると、80t/haに相当する。これだけの焼却灰多量施用を行なっても生育障害が発現しなかったので、無薬注焼却灰はかなりの多量施用あるいは経年的施用に耐え得ると考えられる。また、焼却灰では800°C以上に加熱されるため、有害な微量有機物は分解・揮散しているのでこれらの物質による土壌汚染が問題となることはないが、焼却灰施用の場合でも含有重金属による土壌汚染が問題となる。この点については次節で論ずる。

3. 資材含有重金属による土壌汚染

下水汚泥に重金属が混入している限り、その施用により土壤中に重金属が持ち込まれることは避けられない。この問題を根本的に解決するためには、下水汚泥に重金属が混入しないような対策を講じなければならない。その手段として考えられるのは、工場排水等の排水基準の強化、道路脇粉塵の混入を避けるための分流式への移行等がある。しかし、これらの対策が講じられ、流入下水の質が生活排水由来のものだけとなったとしても、ある程度の重金属は混入してくる。稲森ら⁵²⁾は、生活排水に起因して発生した汚泥中の重金属を分析して、下水汚泥を農地還元する場合のバックグラウンド値を示した。その値は、Cr: 22.8, Cu: 200, Zn: 1030, Fe: 9000, Mn: 136, Pb: 59.6 mg/乾物・kgである。このバックグラウンド値を持つ汚泥を施用する場合においても、ある程度の重金属が土壤に負荷され、現行の土壤管理基準の下では恒久的な農地還元はできないことになる。

すなわち、汚泥施用により、やむを得ず混入してくる重金属による土壤汚染を避けるためには、下水汚泥の緑地還元はまだしも農地還元はやめるべきであるという結論に達してしまうであろう。しかし、資源再循環の面から下水汚泥の農地還元を前提として考えれば、植物による重金属の吸収および地下水への浸透を最小限に抑えるためには、下水処理段階で何らかの方法により重金属を除去するか、あるいは、汚泥含有重金属を不活性にする以外にはないと考えられる。

下水汚泥の焼却処理により、汚泥が含有する重金属は、焼却前の乾燥下水汚泥当たりに換算すると、①低沸点の元素は揮発し(第4表)、②Crを除いて比較的溶解し易い形態の元素が減少し、難溶態

元素が増加した（第5表，第4，5図）。

焼却灰を含有する一成分，例えば磷酸に着目して施用する場合，その分量に対する重金属量の比率は，重金属が揮発していない限り変化しない。したがって，下水汚泥を磷酸質肥料として利用する場合には，焼却灰の形態で施用する方法が上記①，②の特性がそのまま利点となるので，下水汚泥の形態よりも重金属汚染の問題に関して有利となる。また，Crの溶解性が増加したのは，焼却によりCr(VI)が生成したためと考えられるので，汚泥の焼却には低酸素条件の還元的環境下で行なう必要がある。

下水汚泥の焼却処理によって難溶化した重金属の溶解性が，畑水分状態という酸化した土壌環境中において，①焼却灰を土壌に施用後，1年を経過しても可溶性重金属量が少なかったこと（第12～15図），②焼却灰施用土壌でZnおよびCuの抽出率が低く維持されたこと（第16，17図），また，③抽出液の酸濃度を変化させた場合，ZnとCuの溶出量は溶出液pHの低下に伴いほぼ直線的に増加したが（第18，21図），この直線の傾きは汚泥施用よりも焼却灰施用で小さかったことから，難溶化した重金属の形態は極めて安定な形態であることが示唆された。

一方，Stoverらの方法¹⁰⁸⁾による汚泥中のMn，Zn，Cuの各形態別抽出率と土壌培養試験におけるMn，Zn，CuのDTPA抽出率との関係を第29表に示した。ここで Σ EDTA， Σ HNO₃とは，EDTAあるいはHNO₃までに抽出された金属抽出率の和を表わしている。すなわち， Σ EDTAとは交換態＋吸着態＋有機結合態＋炭酸塩の含量であり， Σ HNO₃とは交換態＋吸着態＋有機結合態＋炭酸塩＋硫化物の含量である。

各時期におけるZnおよびCuのDTPA抽出率と Σ EDTAとの間には統計

第29表 Stover法による各資材からの重金属累積抽出率と土壌培養試験のDTPAによる重金属抽出率との関係 (n=5, 表内の数値は相関係数)

	Mn		Zn		Cu	
	Σ EDTA ¹⁾	Σ HNO ₃ ²⁾	Σ EDTA	Σ HNO ₃	Σ EDTA	Σ HNO ₃
1週目	0.111	0.153	0.917*	0.809	0.952*	0.815
13週目	0.465	0.486	0.893*	0.779	0.931*	0.885*
26週目	0.187	0.211	0.928*	0.822	0.883*	0.982**
52週目	0.057	0.121	0.869	0.740	0.966**	0.871

1): Stover法でいう (置換態+吸着態+有機結合態+炭酸塩) の重金属抽出率

2): Stover法でいう (置換態+吸着態+有機結合態+炭酸塩+硫化物) の重金属抽出率

*, ** : 5%, 1% 水準で有意

的に有意な関係が認められたが, Mnではその関係は認められなかった。また, Σ HNO₃との関係は, Cuにおいては一時期統計的に有意な関係にあったが, ZnにおいてはMnよりは相関係数が高いものの有意水準に達しなかった。

DTPAのようなキレート剤による土壌中微量元素の抽出法は, 次のような理論的根拠に基づいている。すなわち, キレート剤は, 土壌溶液中でフリーな金属イオンと結合し, 可溶性の錯体を形成する。その結果, 土壌溶液中でのフリーな金属イオンの活量が低下し, 土壌溶液と土壌固相との平衡関係から, 土壌固相からの金属イオンの溶出が起こる。したがって, キレート剤による土壌抽出時に溶液中に蓄積してくる金属錯体の量は, 土壌溶液中の金属イオン活量すなわち強度因子と, これら金属イオンを補充する土壌の能力すなわち容量因子の両因子と深く関わっている。

DTPAにより抽出されるZnやCuは, Stoverらのいう交換態, 吸着態, 有機結合態および炭酸塩等の比較的可溶性形態と密接な関係があったことから, 汚泥に含有する重金属のこれらの形態は, 土壌中にお

いて容量因子として働く可能性がある。一方、 HNO_3 抽出までに抽出されない形態，すなわち，難溶態とDTPA抽出率との相関係数は， Σ HNO_3 とDTPA抽出率との相関係数の符号を逆転させた値であるから，Cuの一時期などに有意な負の相関関係が認められたことになる。したがって，難溶態の重金属元素は容量因子となる可能性が低いことを示していると考えられる。

この土壌培養実験における汚泥の施用量は，乾土1.5kg当たりコンポストおよび下水汚泥の乾物で56.4~84.5gであるから，圃場ベースの施用量に換算すると，56.4~84.5t/haとなり， P_2O_5 としては2t/haとなる。1979年に設定された北海道農務部の汚泥の農地還元についての指導指針では，汚泥の施用量は年間ヘクタール当たり乾物で10tを限度としている。したがって，この実験の汚泥施用量は，北海道農務部の指導指針によれば5~8年分以上の施用量に相当するので，コンポストあるいは下水汚泥施用で，施用後初期の段階で可溶性重金属量が多かったのであろう。一方，焼却灰を磷酸質肥料として利用する場合， P_2O_5 としての施用量が基準となるから， $2\text{t}\cdot\text{P}_2\text{O}_5/\text{ha}$ という施用量は，限られた条件下ではあるが，本研究の結果から提案した $400\text{kg}\cdot\text{P}_2\text{O}_5/\text{ha}$ と比較すると5倍の施用量に相当する。焼却灰のこのような多量施用状況下においても，可溶性重金属量が少なく維持されたことは，作物による重金属吸収に与える影響が小さいとみなすことができる。

焼却灰由来の重金属の作物による吸収は，下水汚泥のそれよりも抑制され（第22，23図），焼却灰の多量施用によってもエンバク中のFe，Mn，Pb，Cdの含有率は上昇せず（第28表），ZnおよびCuの含有率がやや上昇するに留まった（第24，25図）。また，作物根部に

吸収された重金属は、土壤中に存在する形態と異なり、2作目以降に吸収される可能性がある。焼却灰施用による根部の有害重金属含有率は、薬注焼却灰のCrを除き、PbやCdでも標準区と差がなかったこと（第21表）から、その可能性は低いと考えられる。したがって、作物による重金属の吸収を抑制するという観点から、焼却処理による汚泥含有重金属の難溶化は有効であった。さらに、Cu欠乏土壌におけるオオムギの栽培において、焼却灰施用でCu欠乏症が発現しなかったことから、焼却灰中の重金属はその溶解性は低いものの、Cu等の微量要素欠乏土壌においては微量要素の供給源となることが示唆された。

以上のように、下水汚泥焼却灰中の重金属は難溶であり、土壌中において安定であり、作物にも吸収され難い。しかし、下水汚泥焼却灰は有機性廃棄物を原料とした資材であるから、その施用にあたっては、特殊肥料としての判定基準である水溶性有害物質濃度と全含量As: 50ppm, Cd: 5ppm, Hg: 2ppmの規制値は遵守されなければならない。水溶性有害物質濃度の規制値を越えれば埋立も不可能となるので、焼却灰では重金属の溶解性が低下していることもあり、流入下水が極端に汚染されない限りこの規制値を越えることは考えられない。また、Cd, Hgの全含量は、これら元素が低沸点元素であるので、焼却灰中の当該元素濃度が規制値を越える可能性は低い。Asについては焼却灰において強熱減量分だけ濃縮されるので、As濃度の比較的高い場合に規制値を越える可能性がある。本研究に供試した札幌市の汚泥の場合は、As濃度の比較的高い汚泥であった（第4表）。これは、市周辺に豊羽鉱山や現在は廃坑となっている手稲鉱山が存在し、Asを含む鉱物を産出していること³⁰⁾から、氾濫原堆積

物に比較的高濃度のAsが存在していることに起因すると考えられる。しかし、供試焼却灰の全As濃度は規制値の範囲内であり、その溶解性は低く（第5表）、作物体のAs含有率も上昇しなかった。さらに、磷酸施肥を焼却灰単独ではなく、過石等の化学肥料との併用で行なえば、土壤に負荷される重金属量も軽減できる。

4. 農地利用における下水汚泥と焼却灰との経済的比較

下水汚泥の肥料的効果はおもに窒素および磷酸の肥効であった（第26表）。一方、焼却灰では磷酸の肥効が主体であり、起源とする汚泥の脱水方式の違いにかかわらず汚泥の磷酸の肥効を2倍近く上回った。下水汚泥を焼却処理すると肥料成分である有機物や窒素は燃焼・揮散してしまう。有機物の経済的価値を算出することは困難であるが、残効を考慮せず速効性の窒素質肥料としての価値を第26表の硫安代替率と硫安の肥料価格から算出すると、A薬注汚泥では乾物1t当たり1,492円となり、C無薬注汚泥では窒素肥料としての価値は0である。一方、速効性の磷酸肥料（過石）としての価値は、乾物1t当たりA薬注汚泥で571円、C無薬注汚泥で1,081円、焼却灰を下水汚泥の乾物1t当たりに換算するとA薬注焼却灰で1,592円、C無薬注焼却灰で1,826円となる。なお、肥料価値は次式により算出した。ここで、肥料価格は61肥料年度生産者販売価格の有効成分1kg当たりとした（N;124円、P₂O₅;185円⁹⁰）。

肥料価値 =

$$1,000(\text{kg}) \times \frac{\text{含有率}(\%)}{100} \times \frac{\text{代替率}(\%)}{100} \times \text{肥料価格}$$

すなわち、A薬注汚泥では焼却することにより窒素肥料として1,492円の損失で、リン酸肥料として1,021円の付加価値が加わるが、C無薬注汚泥では窒素肥料としての損失はなく、リン酸肥料としての付加価値745円のみが加わる。A処理場の汚泥のように窒素の肥効が期待できる汚泥であれば、焼却処理は肥料効果的に不利になる。しかし、実際に農地に還元する場合は、臭気および公衆衛生上の問題から有機物の安定化を図るためにコンポスト化等の処理が必要となるであろうから、その処理費および運搬・在庫管理費を要する。一方、焼却灰として還元する場合には焼却処理に費用を要するが、容積・重量が1/10以下と大幅に減少するため運搬・在庫管理費はコンポストより少ない。1985年度の汚泥処理処分費の単価⁹⁾⁶⁾は下水汚泥の純固形物当たりで、A処理場の場合はコンポスト化等の経費を含めなくて58,480円/tであり、C処理場の場合は焼却、埋立の経費を含めて37,870円/tであった。年間の総流入下水量¹⁰⁾¹⁾は、A処理場で3,388万 m^3 、C処理場で7,100万 m^3 と、処理場の規模がC処理場で大きいために単位汚泥量当たりの処理費が安価であるということもあるが、コンポスト化の経費は下水汚泥純固形物当たりで54,430円/tであり、焼却よりもコンポスト化に多額の費用を要するのが実状である。この処理費単価は、人件費を含めた運転経費であり、焼却炉やコンポスト工場の建設費および減価償却費、埋立地の地価は含まれていない。さらに、近隣に農地等汚泥の消費地を持つか否かという処理場の立地条件も関与してくる。したがって、農地に還元する形態としてどちらを選択するかは、肥効および処理処分費全体を含めた比較の問題となる。しかし、C処理場の汚泥のように窒素の肥効が期待できない汚泥では、焼却処理は肥料効果的に

有利となり、さらに、C処理場では汚泥脱水のための凝集法に熱処理法を採用しており、汚泥の燃焼熱をその熱源としていることから、汚泥焼却は不可欠となっている。したがって、このような汚泥を農地に利用するには、焼却灰の形態がさらに有利であると考えられる。

以上、本研究の結果から、下記のことを明らかとなった。

①無薬注汚泥の焼却灰は、磷酸質肥料として利用し得る。

その理由として次のことが挙げられる。

1)焼却処理によって汚泥中に含まれる磷酸の有効性が増加する。また、焼却灰の磷酸質肥料としての肥効は、過石含有磷酸の50%程度である。

2)含有重金属が揮散または難溶化し、難溶化した重金属の形態は、畑水分状態の土壤中において安定であり、作物により吸収され難い。

3)Cuなど微量要素欠乏土壌では微量要素肥料としても利用し得る。

4)焼却灰施用による土壌の化学性に及ぼす影響は極めて小さく、経年的施用に耐え得る。

②薬注汚泥の焼却灰を磷酸質肥料として利用する場合には、①の1)~3)に記載した特性は無薬注汚泥焼却灰と同様であるが、多量施用により作物に対する高pHや高塩濃度障害を引き起こす恐れがあるので、多量施用を避けるべきである。汚泥脱水にあたり、石灰・塩化鉄等の無機凝集剤を添加する方式は、磷資源再循環の重要性からみて好ましくない。

但し、焼却にあたってはCr(VI)の生成を抑制するために低酸素

条件の還元的環境下で行なう必要があり、焼却灰の農地利用にあたっては特殊肥料の判定基準等の現行の関連法規を遵守しなければならない。

磷資源の枯渇が危惧されている現在、磷の再循環を図ることは資源的に重要であると考え、下水汚泥の焼却処理によって生じた焼却灰を磷酸質肥料として利用する上での基礎的知見を得ることを目的として、研究を行った。脱水方式を異にする2種類の汚泥、すなわち、石灰・塩化鉄薬注汚泥（以下、薬注汚泥）と熱処理無薬注汚泥（以下、無薬注汚泥）を供試して、これらに対する焼却処理がその理化学的性状に及ぼす影響を明らかにし、下水汚泥およびその焼却灰の施用が土壌環境に及ぼす影響および作物生育に及ぼす影響を比較・検討し、下記の結果を得た。

(1)下水汚泥の窒素質肥料としての効果は、薬注汚泥においては顕著に認められ、無薬注汚泥では認められなかった。磷酸質肥料としての生育改善効果は、薬注汚泥における窒素ほど顕著ではなかったが無薬注汚泥でも認められ、汚泥の脱水方式による差はなかった。

(2)焼却灰の肥料的効果は、おもに磷酸の肥効であり、起源とする汚泥の脱水方式にかかわらず、汚泥のそれを2倍近く上回った。これは、①焼却処理により鉄型磷酸が減少し、カルシウム型磷酸およびク溶性磷酸が増加するなど焼却灰含有磷酸が有効化したこと、②有効化した磷酸は、土壌中においてもその形態の変化が遅く、有効性は持続することに起因すると考えられた。また、焼却灰含有磷酸の有効性は、過石含有磷酸の約50%であった。

(3)薬注汚泥を土壌に施用した場合、添加薬剤の溶出と有機物の分解に伴う硝酸態窒素の放出のために、土壌のpH、ECおよび塩基飽和度が上昇した。その結果、薬注汚泥の多量施用下では作物に高塩濃

度障害および高pHによる生育障害が発現した。したがって、薬注汚泥を多量施用した場合には、高pHおよび高ECとなり作物生育に悪影響を及ぼす恐れがあり、さらに塩基飽和度が上昇するので周辺水域への栄養塩溶出の恐れもある。

(4)無薬注汚泥を土壤に施用した場合、土壤のpH、EC、塩基飽和度ともに無施用土壤と大差なく、無薬注汚泥の施用が土壤の化学性に及ぼす影響は小さかった。しかし、有機態窒素の無機化がほとんど起こらず、窒素の肥料的効果も認められなかった。したがって、無薬注汚泥は速効性の窒素質肥料としては利用できない。さらに、多量施用下では作物の生育が薬注汚泥より強く阻害された。作物の生育障害は汚泥中有機物の嫌気発酵生成物に起因すると推定された。

(5)薬注汚泥の焼却灰を土壤に施用した場合、有機物分解に伴う無機態窒素の放出がなく、無機成分の溶出も焼却処理により抑制された。その結果、土壤化学性に対する影響は薬注汚泥より焼却灰で小さく、多量施用による作物生育に対する悪影響も薬注汚泥より焼却灰で小さかった。しかし、極端な多量施用では、高Cl過剰障害、高塩濃度障害および高pHによる生育障害が発現した。したがって、薬注汚泥焼却灰の施用は、起源とする薬注汚泥より多量施用に耐え得るが、極端な多量施用や経年的な連続施用は好ましくない。

(6)無薬注汚泥の焼却灰を土壤に施用した場合、資材に含有する成分の溶出量は極めて少なく、極端な多量施用を行なっても作物に生育障害が発現しなかった。したがって、無薬注焼却灰はかなりの多量施用あるいは経年的施用に耐え得る。

(7)下水汚泥の焼却処理により、汚泥が含有する重金属は、低沸点の元素では揮発し、Crを除いて比較的溶解し易い形態が減少し、難

溶態が増加した。焼却処理によってCrの溶解性が増加したのは、Cr(VI)が生成したためと考えられるので、汚泥の焼却は低酸素条件の還元的環境下で行なう必要がある。

(8)下水汚泥の焼却処理によって難溶化した重金属は畑水分状態の土壤環境中で極めて安定な形態であり、土壤と混和後1年を経過しても可溶化しない形態であった。

(9)焼却灰由来の重金属の作物による吸収は、下水汚泥のそれより少なく、焼却灰を多量施用した場合でも作物中のFe, Mn, Pb, Cdの含有率は上昇せず、ZnおよびCuの含有率がやや上昇するに留まった。したがって、作物による重金属の吸収からみても、焼却処理による汚泥含有重金属の難溶化は有効であった。なお、Cu等の微量元素欠乏土壤においては微量元素の供給源となり得る。

以上の結果から、下記のことを明らかとなった。

①無薬注汚泥の焼却灰は、磷酸質肥料として利用し得る。

その理由として次のことが挙げられる。

1)焼却処理によって汚泥中に含まれる磷酸の有効性が増加する。

また、焼却灰の磷酸質肥料としての肥効は、過石含有磷酸の50%程度である。

2)含有重金属が揮散または難溶化し、難溶化した重金属の形態は、畑水分状態の土壤中において安定であり、作物により吸収され難い。

3)Cuなど微量元素欠乏土壤では微量元素肥料としても利用し得る。

4)焼却灰施用による土壤の化学性に及ぼす影響は極めて小さく、経年的施用に耐え得る。

②薬注汚泥の焼却灰を磷酸質肥料として利用する場合には、①の1)～3)に記載した特性は無薬注汚泥焼却灰と同様であるが、多量施用により作物に対する高pHや高塩濃度障害を引き起こす恐れがあるので、多量施用を避けるべきである。汚泥脱水にあたり、石灰・塩化鉄等の無機凝集剤を添加する方式は、磷資源再循環の重要性からみて好ましくない。

但し、焼却にあたってはCr(VI)の生成を抑制するために低酸素条件の還元的環境下で行なう必要があり、焼却灰の農地利用にあたっては特殊肥料の判定基準等の現行の関連法規を遵守しなければならない。

謝 辞

本研究の遂行およびとりまとめ全般について、終始ご懇切で多大なご指導を頂いた北海道大学農学部但野利秋教授に心から感謝の意を表します。

また、本論文をご校閲頂き、有益なご助言を頂いた北海道大学農学部佐久間敏雄教授ならびに前田 隆教授に厚く感謝いたします。

さらに、本研究の遂行において適切なるご助言・ご指導を賜り、各種のご配慮を頂いた北海道大学農学部田中 明名誉教授に厚く感謝いたします。

本研究に際し、始終各種のご配慮を頂いた北海道工業大学教養部渡辺紀元教授ならびに岸 政美講師に深謝いたします。また、本研究の遂行過程において各種のご配慮、ご指導を頂いた北海道大学農学部山口淳一助教授に深謝いたします。

汚泥の採取にご配慮を頂いた札幌市下水道局水質管理課尾崎恒一係長はじめ各下水処理場関係者各位および土壌の採取にご配慮を頂いた北海道農業試験場水落勤美博士に感謝いたします。

引用文献

- 1) 愛知県農業総合試験場：昭和47年度農林省指定土壌肥料試験成績書，p88 (1973)
- 2) 味埜 俊，松尾友矩，川上智規：活性汚泥のリン組成とリン代謝に関する研究（第1報）STS法を用いた汚泥内リン組成の分析，下水道協会誌，20(228)，28～36 (1983)
- 3) 味埜 俊，松尾友矩，川上智規：活性汚泥のリン組成とリン代謝に関する研究（第2報）各種リン組成を持つ汚泥の形成とそのリン組成の変化，下水道協会誌，20(229)，22～29 (1983)
- 4) 秋山 堯：ブラジル産リン酸アルミニウム鉱と炭酸カルシウムの焼成反応，土肥誌，59，260～265 (1988)
- 5) 安藤淳平：リン資源の将来とわが国の進むべき方向（総説），土肥誌，54，164～169 (1983)
- 6) 麻生慶次郎：沈渣処理ニ関スル報告，東京市下水道改良実施調査報告，第7章，461～508 (1924)
- 7) Baham, J. and G. Sposito: Chemistry of water-soluble, metal-complexing ligands extracted from an anaerobically-digested sewage sludge, *J. Environ. Qual.*, 12, 96～100 (1983)
- 8) Baham, J. and G. Sposito: Proton and metal complexation by water-soluble ligands extracted from anaerobically digested sewage sludge, *J. Environ. Qual.*, 15, 239～244 (1986)
- 9) Barbarick, K. A., and S. M. Workman: Ammonium bicarbonate-DTPA and DTPA extractions of sludge-amended soils, *J. Environ. Qual.*, 16, 125～130 (1987)
- 10) Behel, D. Jr., D. W. Nelson, and L. E. Sommers: Assessment of heavy metal equilibria in sewage sludge-treated soil, *J. Environ. Qual.*, 12, 180～186 (1983)
- 11) Cao, H.-F., A. C. Chang, and A. L. Page: Heavy metal contents of sludge-treated soils as determined by three extraction procedures, *J. Environ. Qual.*, 13, 632～634 (1984)
- 12) Chang, A. C., A. L. Page, F. H. Sutherland, and E. Grgurevic: Fractionation of phosphorous in sludge-affected soils, *J. Environ. Qual.*, 12, 286～290 (1983)

- 13) Chang, A.C., A.L. Page and J.E. Warneke: Long-term sludge applications on cadmium and zinc accumulation in swiss chard and radish, *J. Environ. Qual.*, 16, 217~221 (1987)
- 14) Chang, A.C., A.L. Page, J.E. Warneke, and E. Grgurevic: Sequential extraction of soil heavy metals following a sludge application, *J. Environ. Qual.*, 13, 33~38 (1984)
- 15) Chang, A.C., J.E. Warneke., A.L. Page, and L.J. Lund: Accumulation of heavy metals in sewage sludge-treated soils, *J. Environ. Qual.*, 13, 87~91 (1984)
- 16) 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—, 下水汚泥資源利用協議会, 158~209 (1983)
- 17) Clevenger, T.E., D.D. Hemphill, K. Roberts and W.A. Mullins: Chemical composition and possible mutagenicity of municipal sludges, *J. Water Pollut. Cont. Fed.*, 55, 1470~1475 (1983)
- 18) Demirjian, Y.A., A.M. Joshi and T.R. Westman: Fate of organic compounds in land application of contaminated municipal sludge, *J. Water Pollut. Cont. Fed.*, 59, 32~38 (1987)
- 19) 土木学会: 下水汚泥の処理・処分に関する研究報告書, 昭和44, 45, 46, 47, 48, 49年度 (1970, 1971, 1972, 1973, 1975)
- 20) 土壌標準分析・測定委員会編: 土壌標準分析測定法, 博友社 (1986)
- 21) Dowdy, R.H., W.E. Larson, J.M. Titrud, and J.J. Latterell: Growth and metal uptake of snap beans grown on sewage sludge-amended soil: A four year field study, *J. Environ. Qual.*, 7, 252~257 (1978)
- 22) Dudley, L.M., B.L. Mcneal, and J.E. Baham: Time-dependent changes in soluble organics, copper, nickel and zinc from sludge amended soils, *J. Environ. Qual.*, 15, 188~192 (1986)
- 23) Emmerrich, W.E., L.J. Lund, A.L. Page and A.C. Chang: Solid phase forms of heavy metals in sewage sludge treated soils, *J. Environ. Qual.*, 11, 178~181 (1981)
- 24) Francis, C.W. and G.H. White: Leaching of toxic metals from incinerator ashes, *J. Water Pollut. Cont. Fed.*, 59, 979~986 (1987)

- 25) 藤井國博：有機廃棄物，合成有機化合物，重金属等の土壤生態系に及ぼす影響と浄化に関する研究，昭和53/55年度特別研究総合報告，国立公害研究所研究報告，45，1～113（1983）
- 26) 藤井國博，服部浩之，広木幹也，久保井 徹：下水汚泥施用土壤の微生物フロラに関する研究（IV）下水汚泥施用砂丘地及び火山灰土壤における微生物数，国立公害研究所研究報告，46，57～75（1983）
- 27) 藤井國博，服部浩之，山口武則：汚泥の連用が土壤pHに与える影響，国立公害研究所研究報告，93，53～60（1986）
- 28) Garnett, K., P.W.W.Kilk, J.N.Lester, and R.Perry: The effect of nitrilotriacetic acid on the solubilities of metals in soil-sludge mixtures, J. Environ. Qual., 14, 549～553 (1985)
- 29) Gestring, W.D. and W.M. Jarrell: Plant availability of phosphorus and heavy metals in soils amended with chemically treated sewage sludge, J. Environ. Qual., 11, 669～675 (1982)
- 30) 原田準平，針谷 宥：北海道鉱物誌，北海道地下資源調査所（1984）
- 31) Harding, S.A., C.E. Clapp and W.E. Larson: Nitrogen availability and uptake from field soils five years after addition of sewage sludge, J. Environ. Qual., 14, 95～100 (1985)
- 32) 畑 孝夫：リン資源と世界肥料の展望，肥料の現状と将来—21世紀を目指す肥料に関するシンポジウム講演集—，日本土壤肥料学会，49～82（1989）
- 33) 服部浩之，山口浩一，久保井 徹，藤井國博，矢崎仁也：土壤中における各種汚泥の分解と分解に及ぼす高分子凝集剤の影響，国立公害研究所研究報告，47，1～11（1983）
- 34) 服部浩之，鷲沢清司，久保井 徹，藤井國博，松阪泰明，大羽 裕：下水汚泥施用土壤の理化学性，国立公害研究所研究報告，47，13～26（1983）
- 35) 服部浩之，豊田敏治，久保井 徹，広木幹也，藤井國博，松阪泰明：下水汚泥連用土壤における全炭素，全窒素及び無機態窒素量の変化，国立公害研究所研究報告，47，27～35（1983）
- 36) 服部浩之，藤井國博，久保井 徹，広木幹也：下水汚泥施用各種土壤における無機態窒素の経時変化，国立公害研究所研究報告，47，37～44（1983）

- 37) 服部浩之, 藤井國博, 久保井 徹, 広木幹也, 小林峰雄, 矢崎仁也, 大羽 裕: 下水汚泥施用淡色黒ボク畑土壤における無機態窒素の経時変化, 国立公害研究所研究報告, 47, 45~62 (1983)
- 38) 服部浩之: 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, 93, 181~188 (1986)
- 39) 林 義三, 矢木 博: 活性汚泥の製造過程並びに肥料価値について, 土肥誌, 8, 86~90 (1934)
- 40) Hickey, M.G., and J.A. Kittrick: Chemical partitioning of cadmium, copper, nickel, and zinc in soils and sediments containing high levels of heavy metals, *J. Environ. Qual.*, 13, 372~376 (1984)
- 41) Higgings, A.J.: Land application of sewage sludge with regard to cropping systems and pollution potential, *J. Environ. Qual.*, 13, 441~448 (1984)
- 42) Hinesly, T.D., E.L. Ziegler and G.L. Barret: Residual effects of irrigating corn with digested sewage sludge, *J. Environ. Qual.*, 8, 35~38 (1979)
- 43) 平井敬蔵: 活性汚泥について, 土肥誌, 4, 18~20 (1930)
- 44) 平岡正勝, 武田信生, 向井 明, 中島信顕: 重金属を含む汚泥の焼結処理に関する研究(2), 用水と排水, 15, 1426~1463 (1973)
- 45) 平岡正勝: 下水汚泥の溶融システムの現状と動向, 環境技術, 17, 345~351 (1988)
- 46) 広木幹也, 久保井 徹, 鷲沢清司, 豊田敏治, 服部浩之, 藤井國博, 松坂泰明: 下水汚泥施用土壤における物質の移動に関する研究—下水汚泥成分の地下浸透—, 国立公害研究所研究報告, 47, 107~118 (1983)
- 47) 細貝祐太郎, 堤 忠一, 高居百合子編: 食品微量元素マニュアル, 中央法規出版, 8~9, 374~377 (1980)
- 48) 広木幹也, 藤井國博, 服部浩之, 久保井 徹, 豊田敏治, 松坂泰明, 和田秀徳: 下水汚泥施用土壤の微生物フロラに関する研究(I) 石灰凝集下水汚泥の多量連用が淡色黒ボク土の微生物数に与える影響, 国立公害研究所研究報告, 46, 1~16 (1983)
- 49) Hsieh, Y.P., L.A. Douglas and H.L. Motto: Modeling sewage sludge decomposition in soil; I. Organic carbon transformation, *J. Environ. Qual.*, 10, 54~59 (1981)

- 50) Hue, N.V., J.A.Silva, and R.Arifin: Sewage sludge-soil interactions as measured by plant and soil chemical composition, *J. Environ. Qual.*, 17, 384~390 (1988)
- 51) 稲場紀久雄: 下水の資源利用の意味するもの—下水汚泥の緑農地還元を中心にして—, *下水道協会誌*, 15(170), 17~21 (1978)
- 52) 稲森悠平, 田井慎吾, 松重一夫, 須藤隆一: 廃水の生物処理施設から発生した汚泥中の重金属, *国立公害研究所研究報告*, 47, 119~123 (1983)
- 53) 石川忠男: 汚泥処理・処分の現状と課題, *下水道協会誌*, 21(243), 2~10 (1984)
- 54) 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)
- 55) 柏原太郎, 加藤敏春, 有馬純治, 毛利信幸: クロムを含む排水およびスラッジの処理に関する研究 III. CO気流中におけるクロム—カルシウム系の挙動について, *金属表面技術*, 24, 500~505 (1973)
- 56) 柏原太郎, 平岡一和, 加藤敏春, 有馬純治, 毛利信幸: クロムを含む排水およびスラッジの処理に関する研究 II. クロム—カルシウム系の高温酸化反応について, *金属表面技術*, 25, 380~385 (1974)
- 57) 川島 普: 下水・廃水・汚泥処理ガイドブック, *環境技術研究会*, 576~580 (1979)
- 58) Kelling, K.A., D.R.Keeney, L.M.Walsh and J.A.Ryan: A field study of agricultural use of sewage sludge: III. Effect on uptake and extractability of sewage sludge-borne metals, *J. Environ. Qual.*, 6, 352~358 (1977)
- 59) Knudtsen, K., and G.A.O'Connor: Characterization of iron and zinc in Albuquerque sewage sludge, *J. Environ. Qual.*, 16, 85~90 (1987)
- 60) 建設省都市局下水道部監修: 日本の下水道(昭和63年), *日本下水道協会* (1988)
- 61) 木原 博, 金本 正, 浜岡英男: メッキ工場排水処理スラッジについて II. メッキ廃泥に関する活用化について, *呉工業試験場報告*, 15, 18~20 (1972)
- 62) 木原 博, 森田健次, 清水加津子, 浜岡英男: メッキ工場排水処理スラッジについて III. メッキ廃泥の赤レンガの利用について, *呉工業試験場報告*, 15, 21~23 (1972)
- 63) Kistler, R.C., F.Widmer and P.H.Brunner: Behavior of chromium, nickel, copper, zinc, cadmium, mercury and lead during the pyrolysis of sewage sludge, *Environ. Sci. Technol.*, 21, 704~708 (1987)

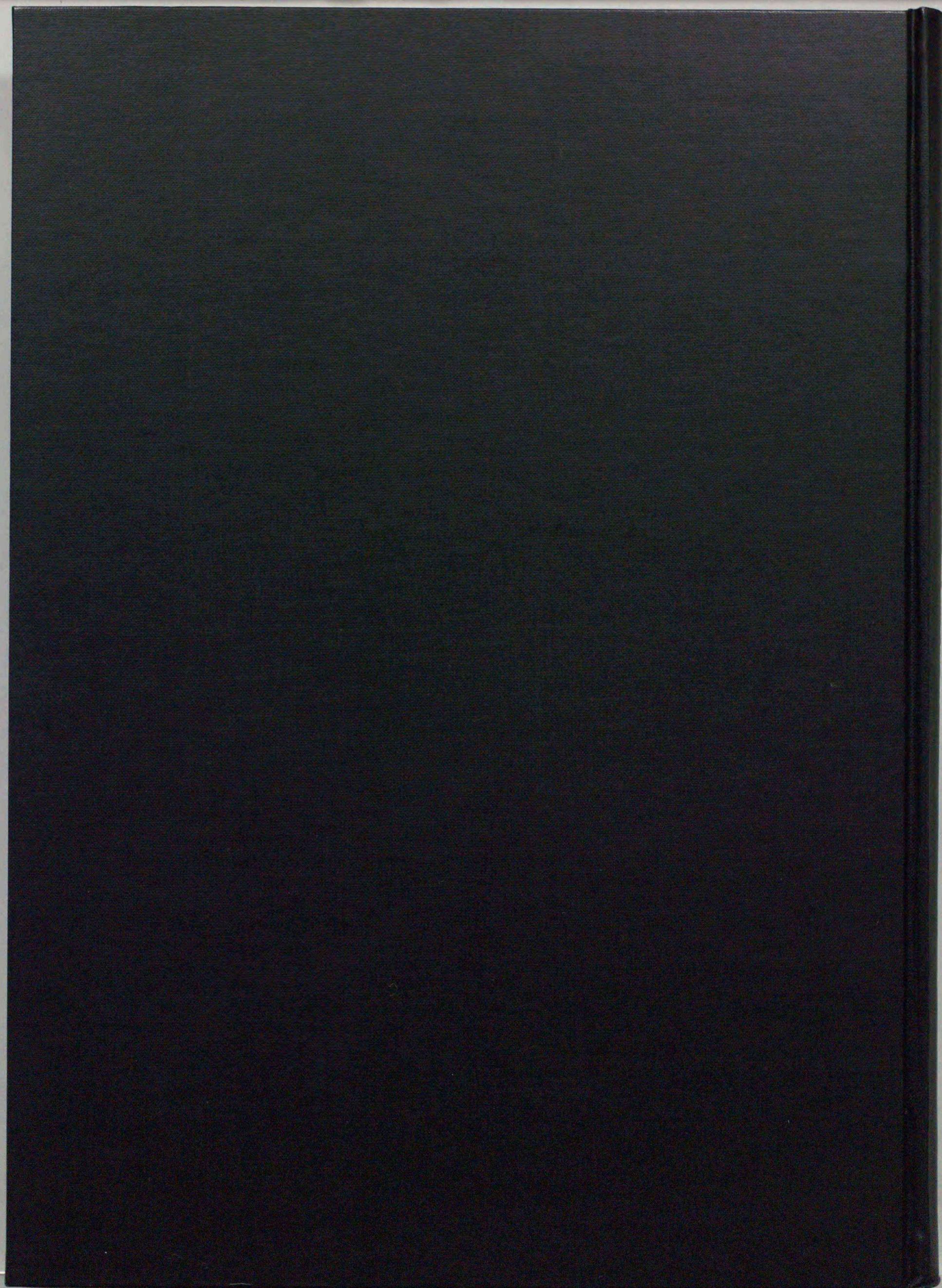
- 64) 河野通佳：汚泥と土壌の有機態窒素の比較，複合肥料，16(2)，14～21 (1978)
- 65) Korcak, R.F., F.R.Gouin and D.S.Fanning : Metal content of plants and soils in a tree nursery treated with composted sludge, *J. Environ. Qual.*, 8, 63～68 (1979)
- 66) 古山賢治，宗林 正，水田昌宏，田中康隆：下水汚泥の農業利用について（第1報）熱処理汚泥の窒素肥効，奈良県農業試験場報告，13，58～65 (1982)
- 67) 久保井 徹：植物における有害元素間の相互作用，土肥誌，60，246～256 (1989)
- 68) 熊沢喜久雄：下水汚泥の資源的利用の展望，下水汚泥－リサイクルのために－，博友社，187～207 (1979)
- 69) 栗原 淳，藤井國博：産業廃棄物の肥料化に関する研究，各種産業廃棄物に含有される肥料関連成分の分析結果，農技研肥料化学科資料，No.173，p1～23 (1974)
- 70) 黒沢順平ら：銅欠乏土壌に関する調査研究，岩手県農試報，8，1～32 (1965)
- 71) 京才俊則：汚泥の建設資材化の動向，下水道協会誌，21(243)，79～87 (1984)
- 72) Lake, D.L., P.W.W.Kirk and J.N.Lester : Fractionation, characterization and speciation of heavy metals in sewage sludge and sludge-amended soils: A review, *J. Environ. Qual.*, 13, 175～183 (1984)
- 73) Latterell, J.J., R.H.Dowd and W.E.Larson : Correlation of extractable metals and metal uptake of sup beans grown on soil amended with sewage sludge, *J. Environ. Qual.*, 7, 435～435 (1978)
- 74) Law, J.P. and R.S.Kerr : Agricultural utilization of sewage effluent and sludge, An annotated bibliography, Federal Water Pollution Control Administration. U.S. Department of the Interior, 28～29 (1968)
- 75) Lindsay, W.L. and W.A.Norvell : Development of a DTPA soil test for zinc, iron, manganese and copper, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 42, 421～428 (1978)
- 76) Lowep (Yorkshire Water, GBR) : Incineration of sewage sludge - A reappraisal, *J. Inst. Water Environ.*, 2, 416～422 (1988)
- 77) Lunt, H.A. : The case for sludge as a soil improver, *Waste Sewage Works*, 100, 8～295 (1953)
- 78) Lurker, P.A., C.S.Clark and V.J.Elia : Atmospheric release of chlorinated organic compounds from the activated sludge process, *J. Water Pollut. Cont. Fed.*, 54, 1566～1573 (1982)

- 79) McClaren, R.G. and Crawford, P.V. : Studies of soil copper I. The fractionation of copper in soils, *J. Sol. Sci.*, 24, 172~181 (1973)
- 80) Mahler, R.J., F.T. Bingham, A.L. Page and J.A. Ryan : Cadmium-enriched sewage sludge application to acid and calcareous soils : Effect on soil and nutrition of lettuce, corn, tomato and swiss chard, *J. Environ. Qual.*, 11, 694~700 (1982)
- 81) McCoy, J.L., L.J. Sikora and R.R. Weil : Plant availability of phosphorus in sewage sludge compost, *J. Environ. Qual.*, 15, 403~409 (1986)
- 82) Mellbye, M.E., D.D. Hemphill, Jr. and V.V. Volk : Sweet corn growth on incinerated sewage sludge-amended soil, *J. Environ. Qual.*, 11, 160~163 (1982)
- 83) Metzger, L. B. Yaron : Influence of Sludge organic matter on soil properties, *Advances in Soil Science*, 7, 141~163 (1987)
- 84) Miller, R.H. : Factors affecting the decomposition of anaerobically digested sewage sludge in soil, *J. Environ. Qual.*, 3, 376~380 (1974)
- 85) 三島昌夫 : 環境中の微量金属の測定 - 試料の前処理法 -, p20, 東京化学同人 (1985)
- 86) 水野直治, 鎌田賢一, 稲津 脩 : 三笠市丘陵地帯のコムギの銅欠乏と不稔発生条件, *土肥誌*, 52, 334~338 (1981)
- 87) Mullins, G.L. and L.E. Sommers : Characterization of cadmium and zinc in four soils treated with sewage sludge, *J. Environ. Qual.*, 15, 382~387 (1986)
- 88) 村田清美 : 下水・廃水・汚泥処理ガイドブック, 496~529, 環境技術研究会 (1979)
- 89) Nguyen, Quan-Lu, 大羽 裕 : 下水汚泥の有機態窒素の無機化, *土肥誌*, 52, 219~224 (1981)
- 90) 農林水産省肥料機械課監修 : ポケット肥料要覧, 農林統計協会 (1987)
- 91) 能代昌雄, 平井義孝 : 昭和60年度環境保全に関する試験成績, 北海道中央農業試験場, p1~6 (1986)
- 92) O'Connor, G.A., K.L. Knudtsen and G.A. Connell : Phosphorus solubility in sludge-amended calcareous soils, *J. Environ. Qual.*, 15, 308~312 (1986)
- 93) O'Connor, G.A. : Use and misuse of the DTPA soil test, *J. Environ. Qual.*, 17, 715~718 (1988)

- 94) 汚泥等の農地等への還元問題検討委員会：汚泥等の農地等への還元問題について，下水道協会誌，21(238)，128～147 (1984)
- 95) 大羽 裕，Nguyen, Quan-Lu：二酸化炭素発生量からみた畑土壌条件下の下水汚泥の分解，土肥誌，52，132～140 (1981)
- 96) 尾和尚人：下水汚泥施用に伴う重金属の挙動，下水汚泥の緑農地利用—国際シンポジウム会議録—，下水汚泥資源利用協議会，138～157 (1983)
- 97) Parker, C.F. and L.E. Sommers：Mineralization of nitrogen in sewage sludges, J. Environ. Qual., 12, 150～156 (1983)
- 98) Pepper, I.L., D.F. Bezdicek, A.S. Baker, and J.M. Sims：Silage corn uptake of sludge-applied zinc and cadmium as affected by soil pH, J. Environ. Qual., 12, 270～275 (1983)
- 99) Rappaport, B.D., D.C. Martens, R.B. Reneau, Jr. and T.W. Simpson：Metal availability in sludge-amended soils with elevated metal levels, J. Environ. Qual., 17, 42～47 (1988)
- 100) Riffaldi, R., R. Levi-Minzi, A. Saviozzi and M. Tropea：Sorption and release of cadmium by some sewage sludges, J. Environ. Qual., 12, 253～256 (1983)
- 101) 札幌市下水道局施設部：維持管理年報，昭和61年度 (1987)
- 102) 佐藤和明：嫌気性消化における揮発性有機酸構成の挙動，衛生工学研究討論会講演論文集，14，44～51 (1978)
- 103) 佐藤和明：下水汚泥の嫌気性消化処理技術，下水道協会誌，21(243)，59～66 (1984)
- 104) 関谷宏三：土壌養分分析法，養賢堂，235～238 (1986)
- 105) Singh, B.R., and R.P. Narwal：Plant availability of heavy metals in a sludge-treated soil：2. Metal extractability compared with plant metal uptake, J. Environ. Qual., 13, 344～349 (1984)
- 106) 鹽入松三郎，小林 嵩：活性汚泥の窒素の肥効に就て，土肥誌，9，159～170 (1935)
- 107) Stott, D.E. and M.A. Tabatabai：Identification of phospholipids in soils and sewage sludges by high-performance liquid chromatography, J. Environ. Qual., 14, 107～110 (1985)
- 108) Stover, R.C., L.E. Sommers and D.J. Silveira：Evaluation of metals in wastewater sludge, J. Water Pollut. Cont. Fed., 48, 2165～2175 (1976)

- 109) Street, J. J., W. L. Lindsay and B. R. Sabey: Solubility and plant uptake of cadmium in soils amended with cadmium and sewage sludge, *J. Environ. Qual.*, 6, 72~77 (1977)
- 110) 但野利秋: ストレス耐性資源作出におけるバイオテクノロジーと遺伝資源-3. 作物の耐塩性 b. 耐塩性の生理学的機構, *農業技術*, 41, 337~342 (1986)
- 111) 田井慎吾, 岡田光正, 須藤隆一: 生活廃水汚泥中の重金属の由来について, *国立公害研究所研究報告*, 14, 203~211 (1980)
- 112) 高橋和司: 都市廃棄物の特性と作物への施用効果(総説), *土肥誌*, 50, 273~284 (1979)
- 113) 高橋和司: 下水汚泥の土壌改良のための有機物資材としての利用, 汚泥の緑農地還元肥料化対策集, *フジテクノシステム*, 202~207 (1976)
- 114) 高橋和司, 今泉諒俊, 上村亀記, 河合仲二: 栽培作物が土壌に及ぼす影響(第一報) 野菜類と普通作物の栽培が土壌条件に及ぼす影響の相違, *愛知県農業総合試験場報告*, A8号, 54 (1976)
- 115) 田中 明, 但野利秋, 多田洋司: 塩基適応性の作物種間差(第3報) ナトリウム適応性, *土肥誌*, 45, 285~292 (1974)
- 116) 田中 明, 但野利秋, 三浦 周: 重金属適応性の作物種間差(第4報) 銅適応性, *土肥誌*, 49, 361~366 (1978)
- 117) 田中 明, 但野利秋, 早川 修: 重金属適応性の作物種間差(第5報) クロム適応性, *土肥誌*, 51, 113~118 (1980)
- 118) 田中 明: 農業・作物栄養・肥料, 肥料の現状と将来-21世紀を目指す肥料に関するシンポジウム講演集-, *日本土壌肥料学会*, 1~15 (1989)
- 119) Terry, R. E., D. W. Nelson and L. E. Sommers: Carbon cycling during sewage sludge decomposition in soils, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 43, 494~499 (1979)
- 120) Terry, R. E., D. W. Nelson and L. E. Sommers: Decomposition of anaerobically digested sewage sludge as affected by soil environmental conditions, *J. Environ. Qual.*, 8, 342~347 (1979)
- 121) 富川昭男, 大羽 裕: 無機応用比色分析5, 共立出版, 82~83 (1976)
- 122) 東京都農業試験場: 昭和34年度研究年報, 364~370 (1961)
- 123) 東京都農業試験場: 昭和35年度研究年報, 361~363 (1962)

- 124)東京都農業試験場：昭和36年度研究年報，370～371（1963）
- 125)東京都農業試験場：昭和39年度研究年報，70（1966）
- 126)東京都農業試験場：昭和40年度研究年報，60（1967）
- 127)東京都農業試験場：昭和41年度研究年報，58～59（1968）
- 128)東京都農業試験場：昭和42年度研究年報，61（1969）
- 129)Valdares, J.M.A.S., M.Gal, U.Mingelgrin and A.L.Page: Some heavy metals in soils treated with sewage sludge, their effects on yield and their uptake by plants, *J. Environ. Qual.*, 12, 49～56 (1983)
- 130)Verloo, M. and G.Willaert: Chemical characterization and biological effect of heavy metals in a sludge-amended soil, *Environ. Contam.*, 159～161 (1986)
- 131)Voos, G. and B.R.Sabey: Nitrogen mineralization in sewage-sludge-amended coal mine spoil and topsoils, *J. Environ. Qual.*, 16, 231～237 (1987)
- 132)Williams, D.E., A.H.Pukite and J.E.Corey: Metal movement in sludge-amended soils: A nine-year study, *Soil Sci.*, 143, 124～131 (1987)
- 133)山口武則，久保井 徹，服部浩之，広木幹也，藤井國博：下水汚泥の土壌施用が土壌の三相分布に及ぼす影響，国立公害研究所研究報告，46，125～131（1983）
- 134)山口武則，久保井 徹，服部浩之，広木幹也，藤井國博，小林峰雄，矢崎仁也：下水汚泥連用淡色黒ボク土における植物の生育－ほ場試験，国立公害研究所研究報告，46，147～174（1983）
- 135)山口武則，久保井 徹，服部浩之，広木幹也，藤井國博，高橋英一：下水汚泥連用土壌に生育した植物による汚泥中成分と重金属の吸収，国立公害研究所研究報告，46，189～221（1983）
- 136)山添文雄，越野正義，三輪審太郎：詳解肥料分析法，養賢堂，39～43（1973）
- 137)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－，博友社，45～66（1979）



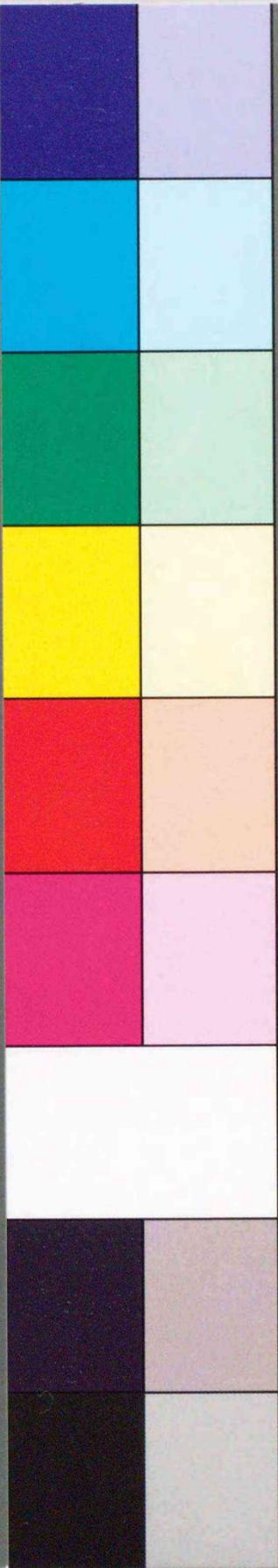
Inches 1 2 3 4 5 6 7 8
Centimetres 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19

KODAK Color Control Patches

© The Tiffen Company, 2000

Kodak
LICENSED PRODUCT

Blue Cyan Green Yellow Red Magenta White 3/Color Black



Kodak Gray Scale

A 1 2 3 4 5 6 M 8 9 10 11 12 13 14 15 B 17 18 19



© Kodak, 2007 TM: Kodak