

中海干拓地農業への都市下水利用に関する基礎的研究 IV

都市下水処理汚泥の投与に伴う土壌化学成分の変化

松井 佳久^{*}・小林 裕明^{*}・寄藤 信明^{*}
大森 和彦^{*}・加藤とし子^{**}・寺田 俊郎^{***}

Yoshihisa MATSUI, Hiroaki KOBAYASHI, Nobuaki YORIFUJI,
Kazuhiko OMORI, Toshiko KATO, and Toshiro TERADA
Basic Research on the Application of Municipal Sewage
to the Agriculture at the Reclaimed Lands of Nakanoumi Area. IV.
Change of Chemical Components in Soil with
the Addition of Municipal Sewage Sludges

中海の掛屋干拓地の一部には、いわゆる酸性硫酸塩土壌が分布しており、そのままでは作物栽培が困難な状態^{1),2)}にある。筆者らは、掛屋干拓地に隣接する松江地区環境衛生組合川向処理場において産出される都市下水処理汚泥が、酸性硫酸塩土壌の改良に効果的であることをポット試験³⁾によって見出した。ついで1978年4月以降、掛屋干拓地内に設けた約 20a の試験圃場において、汚泥による土壌改良と作物栽培の現地試験を行ってきた。すなわち、圃場全体を3区画に分け、それぞれに深さ 15cm までの土壌重量の5または10%に当る量の都市下水処理汚泥、あるいは1%に当る量の炭カルを投与した後、イタリアン・ライグラス、チューリップ、加工トマト等の栽培を行った。いずれの作物においても、収穫量は10%汚泥区が最も高く、通常の畑地に匹敵する結果をえた。ついで5%汚泥区の収穫量が大きく、石灰区の収穫量が最も低かった。栽培期間中の土壌の化学分析を通じて、汚泥の投与が土壌の酸性化防止とリン酸の補給に寄与⁴⁾していることが判明した。

本報では、汚泥の土壌改良効果をより深く理解するため、汚泥投与後約2年を経た1980年3月から6月にかけて採取した土壌について、さらに多くの化学種を分析した結果について述べる。

実験方法

⁴⁾ 試験圃場の概要は前報において詳述した。土壌試料

* 土壌物理化学研究室

** コンピューター・コンサルタント社(旧専攻生)

*** 附属農場

は、土の表面から約 10~15cm 層のものを主として採取し、風乾後 10 mesh のふるいを通し、分析に供した。試料採取は1980年3月3日、3月11日、4月17日、5月20日および6月16日の5回行った。同一区画内では最低4地点から試料を採取し、それぞれを個別に分析した。

化学分析法

土壌 pH の測定および土壌中に含まれる塩化物イオン (Cl⁻)、硝酸態窒素 (NO₃-N)、アンモニア態窒素 (NH₄-N)、熱塩酸可溶性リン酸態リン (PO₄-P) および Ca や Cd の抽出と定量は前報⁴⁾と同じ方法で行った。土壌中の無機態リン酸の分別定量は、関谷⁵⁾の方法で行った。土壌の塩基置換容量 (CEC) および置換性塩基類 (Na, K, Mg, Ca) の定量は常法⁶⁾に基づいて行い、全置換性塩基としては、上記4種のカチオンの総和として求めた。土壌有機物の定量は、重クロム酸カリウムによる酸化滴定法⁷⁾によって行った。また土壌中の C, H, N の定量は柳本MT-2型CHNコーダーにより⁸⁾行った。腐植の抽出には0.5% NaOH を用い、熊田の方法により分別した。腐植酸およびフルボ酸溶液については、0.1N 過マンガン酸カリウムによる酸化滴定を行い、腐植酸溶液についてはさらに日立 124型 自記分光光度計によって吸収スペクトルを測定した。

実験結果および考察

1. 土壌 pH

採取した土壌試料のうち、石灰投与後3ヶ月を経ない

地点のものは省き、各区それぞれ20個の土壤試料の pH を測定し、区毎に平均値・標準偏差・最小値・最大値を求めた（第1表）。また測定値を pH 1 の間隔尺度に分類し、ヒストグラムを作成した（第1図）。この際、例えば pH 6.50~7.49 の間に入る測定値は、pH 7 の区間に属せしめた。

土壤 pH の平均値は、石灰区と5%汚泥区がほぼ等しく、10%汚泥区がそれらより約1だけ高かった。しかしながら標準偏差が全般的に大きいことから分るように、pH 値はかなり大きな変動を示した。pH 測定値のヒストグラムを見ると、各区とも pH 4 付近と7~8 付近を示す回数が多く、中間の pH 5~6 付近を示す回数が少ない。化学的性質の安定した土壤では、ヒストグラムはほぼ正規分布を示すはずである。試験圃場の土壤 pH が正規分布とはほど遠い分布を示したことは、土壤改良作業後約2年を経た時点においても、化学的に安定した土壤となっていないことを示している。特に石灰区と5%汚泥区において pH 4~5 の領域に入る回数が多い、観測数のほぼ半数に達した。これに対して10%汚泥

第1表 試験圃場土壤の pH

| 区 画 | 試料数 | pH | | | |
|--------|-----|------|------|------|------|
| | | 平均値 | 標準偏差 | 最低値 | 最高値 |
| 1%石灰区 | 20 | 5.75 | 1.48 | 3.94 | 7.79 |
| 5%汚泥区 | 20 | 5.76 | 1.50 | 4.12 | 7.74 |
| 10%汚泥区 | 20 | 6.88 | 1.37 | 4.16 | 8.04 |

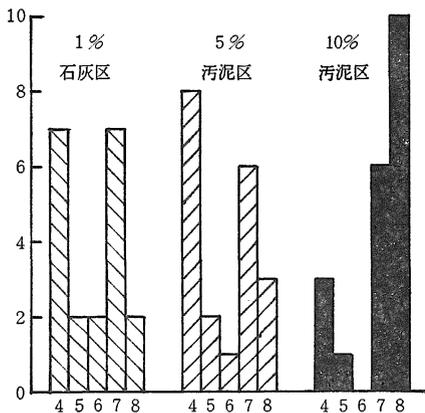


図1 土壤 pH のヒストグラム
間隔尺度：pH 1
各区試料数：20

区では観測数の1/4がその領域に属しているにすぎない。これとほぼ同じ傾向が、1979年の観測でもえられている。土壤中にはパイライト (FeS₂) が依然として残存しており、その酸化による硫酸生成反応がなお進行しているのであろう。土壤中の石灰分が生成する硫酸より過剰に存在する間は、pH の低下は起らないが、石灰が欠乏してくると急速に pH は低下し、4 付近にまで達すると考えられる。ちなみに1979年秋に採取した土壤中のパイライト量を第2表に示す。干拓当初の1977年に比較すると、パイライトは1/2~1/3に減少しているものの、明らかになお残存している。パイライトの減少は石灰区と5%汚泥区において著しく、酸性化が起る回数の多かったことに対応している。また土壤 pH と熱塩酸可溶 Ca 量との関係を調べた結果を第3表に示す。酸性化の進行と Ca 量の低下とがほぼ対応していることは明らかである。

2. リン・窒素・塩化物イオン

作物の生育上必須の成分である無機態リンと窒素について、土壤濃度を測定した結果を第4表に示す。リンとしては 6N 熱塩酸可溶 PO₄-P を、窒素としては 0.5 M Na₂SO₄ 可溶 NO₃-N および NH₄-N を求めた。なお同表には Cl⁻ 濃度も示した。

前報⁴⁾における結果と同様に、PO₄-P は石灰区、5%汚泥区、10%汚泥区の順に増大し、作物収獲量の増加と

第2表 土壤中のパイライト^{a)}

| 区 画 | 試料数 | 含有量 (mg/g 乾土) |
|--------|-----|---------------|
| 1%石灰区 | 3 | 3.6±0.6 |
| 5%汚泥区 | 3 | 3.5±0.2 |
| 10%汚泥区 | 3 | 7.6±0.5 |

a) 1977年1月(干拓当初)の含有量=11.3 mg/g 乾土。

第3表 土壤 pH と熱塩酸可溶性カルシウム含有量との関係

| 土壤 pH | 試料数 | Ca 含有量 (mg/g 乾土) |
|-----------|-----|------------------|
| 3.50~4.49 | 15 | 3.0±0.5 |
| 4.50~5.49 | 5 | 6.6±1.0 |
| 5.50~6.49 | 2 | 7.3±1.9 |
| 6.50~7.49 | 13 | 8.9±0.4 |
| 7.50~8.49 | 13 | 13.8±1.0 |

よく対応していた。元肥・追肥は各区とも同じ様に施用しているの、区間差は主に汚泥中に含まれるリンに起因しているものと考えられる。しかし各区毎に土壌 pH と PO₄-P との関係求めたところ、pH の低い土壌の方が高い土壌より熱塩酸可溶 PO₄-P 濃度も低い傾向が認められた(第5表)。したがって、pH の低下に伴って、土壌吸着された PO₄-P の一時的な可溶化が起こり、土壌間隙水とともに流失したことも考えられる。

NO₃-N 濃度は石灰区と5%汚泥区がほぼ等しく、10%汚泥区が若干高かった。NH₄-N 濃度は石灰区が最も高く、5%汚泥区、10%汚泥区の順に低下した。これらの成分は土壌間隙水に溶け易く、流失しやすい。したがって汚泥中の窒素分を直接反映したものとは考えられない。上記の区間差は恐らく硝酸化成菌の活動力の区間差を反映しているのであろう。硝酸化成作用の最適 pH は 6.8~7.3 であり、pH 4.5 以下で反応は遅くなる⁹⁾。

土壌 pH と NO₃-N および NH₄-N 濃度との関係を調べた結果(第6表)をみても、低 pH (3.50~5.49) の土壌は高 pH (6.50~8.49) の土壌と比較して、NO₃-N 濃度が約 1/10 と少なく、NH₄-N 濃度が約 5 倍多くな

第4表 土壌中のリン・窒素・塩化物イオン

| 区 画 | 乾土 100g 中の含有量 (mg) | | | |
|--------|----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|-------------------------------|
| | PO ₄ -P ^{a)} | NO ₃ -N ^{b)} | NH ₄ -N ^{b)} | Cl ⁻ ^{b)} |
| 1%石灰区 | 74±9 | 11±4 | 3.8±1.5 | 13±2 |
| 5%汚泥区 | 141±13 | 9±3 | 2.5±0.9 | 20±7 |
| 10%汚泥区 | 249±25 | 17±5 | 1.7±0.5 | 22±6 |

a) 6N 熱塩酸抽出,
b) 0.5M Na₂SO₄抽出。

第5表 土壌 pH と熱塩酸可溶 PO₄-P との関係 (括弧内は試料数を示す)

| 土壌 pH | 熱塩酸可溶 PO ₄ -P (mg/100g 乾土) | | |
|-----------|---------------------------------------|------------|------------|
| | 1%石灰区 | 5%汚泥区 | 10%汚泥区 |
| 3.50~5.49 | 64±12(8) | 109±11(10) | 112±6(4) |
| 6.50~8.49 | 75±15(9) | 144±18(10) | 229±16(16) |

第6表 土壌 pH と NO₃-N および NH₄-N との関係 (括弧内は試料数)

| 土壌 pH | 乾土 100g 中の含有量 (mg) | |
|-----------|--------------------|--------------------|
| | NO ₃ -N | NH ₄ -N |
| 3.50~5.49 | 1.9±0.6(22) | 5.1±1.4(24) |
| 6.50~8.49 | 18.7±2.8(35) | 1.1±0.3(44) |

第7表 リン酸の分別定量

| 区 画 | 試料数 | 乾土 1g 中の含有量 (mg) | | | Ca-P Total-P |
|--------|-----|------------------|-----------|-----------|--------------|
| | | Ca-P | Al-P | Fe-P | |
| 1%石灰区 | 4 | 0.04±0.01 | 0.09±0.01 | 0.23±0.03 | 0.12 |
| 5%汚泥区 | 4 | 0.16±0.04 | 0.35±0.07 | 0.72±0.12 | 0.13 |
| 10%汚泥区 | 4 | 0.64±0.17 | 0.66±0.11 | 1.19±0.11 | 0.26 |

っている。土壌 pH の低下しやすい石灰区、5%汚泥区では、硝酸化成菌の活動が抑制され、NO₃-N の減少と NH₄-N の増加が起こったものと思われる。

Cl⁻ 濃度は石灰区、5%汚泥区、10%汚泥区の順に増加する傾向がみられたものの、大差はなかった。またその濃度は、作物の生育に支障をきたすレベルから相当低く、塩害の恐れはなかった。

3. 無機態リン酸の分別定量

土壌中の無機態リン酸の分別定量を行った結果を第7表に示す。Ca-P、Al-P、Fe-P とともに石灰区、5%汚泥区、10%汚泥区の順に増加した。特に作物に吸収される Ca-P において区間差が著しく、作物の生育における区間差とよく対応していた。酸性硫酸塩土壌においては、リン酸の Al、Fe による固定が大きな問題とされているが、今回の測定結果でも、70~90%のリン酸が作物に吸収されない型(Al-P および Fe-P)となっており、問題の深さが再認識された。

4. 塩基置換容量および置換性塩基

各区における塩基置換容量(CEC)および置換性塩基の測定結果を第8および9表に示す。CEC、置換性全塩基および置換性 Ca において、10%汚泥区は他の区より若干大きい傾向がみうけられたが、大きな差はなかった。CEC は主として土壌中の粘土、腐植などのコロイドが示す性質である。粘土に関する区間差はほとんどないであろうから、もし CEC に区間差が生じれば、それは腐植量の区間差に対応しているものと思われる。しか

しながら各区を設定して約2年の短期間に、腐植量が大きく増加するとは考えられないので、CECの区間差が小さいのも当然である。むしろ誤差範囲を越える差が石灰区と10%汚泥区の間に生じていたことに注目すべきであろう。

5. 土壤有機物

各区の土壤について、有機物量と C, H, N 量とを測定した結果を第10表に示す。土壤有機物は石灰区、5%汚泥区、10%汚泥区の順にわずかながら増加する傾向がみられた。C および N量も10%汚泥区が若干大きかったが、C/N 比には区間差は認められなかった。汚泥中に含まれている有機物は極く少量なので、これが区間差となったとは考えられない。むしろ作物栽培期間中に、生育の良好な10%汚泥区の土壤中に多くの有機物が蓄積したと考える方が妥当であろう。

各区の土壤中に含まれる腐植酸とフルボ酸の量および腐植酸溶液の色調係数 ($\Delta \log K$)、相対色度 (RF) を求めた結果を第11表に示す。目立った区間差は見出されないが、この試験圃場の腐植酸量は通常の畑地土壤と比較して相当少ない点が注目される。 $\Delta \log K$ と RF とを用いた腐植酸の分類方法に基づけば、当圃場の腐植酸はほぼ Rp 型に属することになる。Rp 型は Simon の腐朽物質、Springer のフモリゲニン酸とリグノフミン酸、Kononova の新生腐植酸に相当し、未熟で、腐植化の初期段階に位置するとされている。今後この腐植酸がどの様に変化していくかは、土壤の性質との関係が深いだけに興味深いことであろう。

6. カドミウム

第8表 土壤の塩基置換容量および置換性全塩基

| 区 画 | 試料数 | 乾土 100g 中の me 数 | |
|--------|-----|-----------------|----------|
| | | 塩基置換容量 | 置換性全塩基 |
| 1%石灰区 | 4 | 25.2±1.0 | 42.1±8.8 |
| 5%汚泥区 | 4 | 27.7±5.0 | 41.9±6.9 |
| 10%汚泥区 | 4 | 27.7±0.4 | 53.7±4.4 |

第9表 土壤中の置換性塩基 (mg/g 乾土)

| 区 画 | Na | K | Ca | Mg |
|--------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| 1%石灰区 | 0.27±0.04 | 0.85±0.07 | 7.13±1.58 | 0.39±0.07 |
| 5%汚泥区 | 0.23±0.03 | 0.78±0.06 | 7.21±1.26 | 0.36±0.04 |
| 10%汚泥区 | 0.30±0.10 | 0.80±0.09 | 9.54±0.68 | 0.33±0.04 |

6N の熱塩酸で抽出される Cd を定量し、各区毎に平均をとり、昨年度の結果と比較した (第12表)。両年度とも石灰区、5%汚泥区、10%汚泥区の順に Cd 量は増大し、汚泥中に含まれていた Cd の影響がみうけられた。石灰区の Cd 量は昨年と今年とでほとんど変化しなかったが、汚泥区ではかなり減少していた。Cd 減少の一因として、土壤 pH の低下に伴う Cd の可溶化が考えられる。しかし最も酸性化しにくい10%汚泥区において、Cd の減少が著しいこと、および土壤 pH と Cd 濃度との間に明白な相関が存在しなかったことから、これが主な原因であるとは思えない。土壤有機物とのキレート化を通して Cd は可溶化し、土壤中から流失したか植物に吸収されていたものと推定される。いずれにせよ、昨年までの結果と同様、今回の測定でも土壤汚染につながる程の Cd は観察されなかった。

第10表 土壤中の有機物量

| 区 画 | 乾土 100g 中の含有量 (g) | | | | |
|--------|-------------------|-----|------|------|------|
| | 有機物 ^{a)} | C | H | N | C/N |
| 1%石灰区 | 3.3±0.1 | 2.0 | 0.69 | 0.20 | 10.0 |
| 5%汚泥区 | 3.6±0.1 | 1.8 | 0.98 | 0.20 | 9.0 |
| 10%汚泥区 | 4.5±0.2 | 2.7 | 0.94 | 0.28 | 9.6 |

a) 各区とも試料数は10個。

第11表 土壤腐植酸の分析結果

| 区 画 | 腐植酸 ^{a)} | フルボ酸 ^{a)} | $\Delta \log K$ ^{b)} | RF ^{c)} |
|--------|-------------------|--------------------|-------------------------------|------------------|
| 1%石灰区 | 10.0 | 8.2 | 0.86 | 36 |
| 5%汚泥区 | 13.7 | 9.5 | 0.72 | 41 |
| 10%汚泥区 | 9.6 | 9.2 | 0.85 | 37 |

a) 抽出液 30ml 当りの 0.1N KMnO₄ 消費量 (ml)

b) 色調係数 [$\Delta \log K = \log K(400nm) - \log K(600nm)$]

c) 相対色度。

第12表 土壤中の熱塩酸可溶カドミウム ($\mu\text{g/g}$ 乾土)

| 区 画 | 1979年 | 1980年 |
|--------|-----------|-----------|
| 1%石灰区 | 0.16±0.02 | 0.14±0.02 |
| 5%汚泥区 | 0.26±0.02 | 0.18±0.02 |
| 10%汚泥区 | 0.31±0.03 | 0.22±0.02 |

ま と め

揖屋干拓地内の圃場に分布する酸性硫酸塩土壌を都市下水処理汚泥によって改良してから約2年を経た1980年3月から6月にかけて、この圃場から土壌試料を採取し、種々の化学成分を分析した。汚泥を十分に与えた土壌は、pHが7以上に保たれ、熱塩酸可溶 PO_4 -P や Ca 型リン酸に富み、作物の生育を十分に支えうるものであった。またその土壌の塩基置換容量や有機物含量も、炭カル投与によって改良された土壌と比較して、わずかではあるが明確に大きな値を示した。しかしながら、土壌中にはなお相当な量の可酸化性イオウが残存しており、石灰の欠乏した土壌では、pHの顕著な低下が観察された。土壌から抽出される腐植酸は少量であり、Rp型に属していた。

謝辞 本研究の実施に際して、農林水産省中海干拓事務所、鳥根県農林水産部、松江市環境部、および松江地区環境衛生組合の深い理解と協力をえた。原子吸光装置の利用に関しては、本学部耕地環境保全学研究室の達山和紀教授、山本広基助手の協力をえた。揖屋干拓地における土壌改良作業はすべて附属農場の教職員の力によった。ここに心からの謝意を表する。

引用文献

1. 村上英行：酸性硫酸塩土壌の特性と改良法に関する研究 京都大学学位論文 京都 1965, p.123
2. 松井佳久・帯刀奈津子・寺田俊郎・吉野蕃人・福田晟：鳥根大農研報 11：81-86, 1977.
3. 松井佳久・帯刀奈津子・鍋島浩・寺田俊郎・吉野蕃人・福田晟・津本潔：鳥根大農研報 12：121-130, 1978.
4. 松井佳久・鍋島浩・加藤とし子・寺田俊郎・吉野蕃人・福田晟：鳥根大農研報 13：116-123, 1979.
5. 関谷宏三：肥沃度測定のための土壌養分分析法 土壌養分測定法委員会編 養賢堂 東京 1970, p. 235
6. 蔵本正義・小菅伸郎・高橋和司：肥沃度測定のための土壌養分分析法 土壌養分測定法委員会編 養賢堂 東京 1970, p. 33
7. 立川涼：土肥誌 37：28-33, 1966.
8. 熊田恭一：土肥誌 34：388-393, 1963.
9. 船引真吾：土壌学講義 養賢堂 東京 1972, p.63
10. 熊田恭一：土壌有機物の化学 東京大学出版会 東京 1977, pp.44-45

Summary

A variety of chemical components were analyzed for soil samples collected from a farm-land in the reclaimed land of Iya over a period from March to June of 1980, the period corresponding to ca. two years after the acid sulfate soils distributing in the farm-land were improved by the addition of municipal sewage sludges. Soil improved by the addition of a sufficient amount of the sludge was held at pH 7 or above and was abundant in hot HCl-soluble PO_4 -P and Ca-type phosphate enough to maintain the growth of crops. In addition, the cation exchange capacity of the soil and the content of organic matter in the soil were slightly, but appreciably, larger than those for soil improved by the addition of $CaCO_3$. However, a significant amount of oxidizable sulfur remained still in the soil, so that a marked lowering of pH was observed for lime-deficient soil. Humic acid extracted from the soil was a small quantity and belonged to the Rp-type.