

[別紙 2]

論文審査の結果の要旨

申請者氏名 岡 本 保

下水汚泥は農業利用可能な有機資源であるが、重金属濃度が高いという欠点がある。汚泥由来の重金属の行動、すなわち作物への可給性や下層土への移動性には、土壌 pH が影響を及ぼすことが知られている。また重金属の行動を理解する上で、土壌中での存在形態を明らかにすることが重要である。ところが pH の変化が著しい石灰系汚泥連用土壌において、重金属の存在形態と可給性および移動性について、これまで研究は行われていない。本論文は、7年間の圃場での石灰系汚泥連用試験と、その連用土壌を用いた4年間の pH 低下影響試験により、土壌 pH の上下に伴う重金属の存在形態と可給性、移動性の変化について明らかにした。また農耕地土壌の亜鉛濃度の実態調査、微生物を利用した汚泥からの重金属除去法についても検討した。

第1章の序論では、下水汚泥の農業利用に関する研究の歴史と背景、および土壌中の重金属の存在形態に関するこれまでの知見と、本研究の目的について述べた。

第2章では、石灰を18%含有する下水汚泥を試験圃場に施用しながら、ハウレンソウおよびキャベツを7年間、計14回作付けし、その間の土壌に蓄積した重金属の存在形態を、交換態、炭酸塩態、Fe-Mn 酸化物態、有機結合態、鉍物態の5形態に分別定量した。石灰系汚泥連用土壌では、Fe-Mn 酸化物態および炭酸塩態が、蓄積した重金属の主要な存在形態であった。一方で、可給性や移動性の高い交換態の重金属濃度は、汚泥の連用により逆に減少した。このため、重金属の移動性や可給性は低かった。汚泥施用に伴う、Fe-Mn 酸化物態および炭酸塩態重金属の濃度上昇は、汚泥の多量施用を繰り返すことにより、上昇程度が頭打ちとなるプラトー現象が観察された。汚泥由来のカルシウムと重金属とが、土壌固相への吸着に対して競合することに加え、汚泥施用により土壌に蓄積した有機物と重金属とが、可溶性有機複合態として流亡することで、石灰系汚泥連用土壌独特の、高 pH 条件でのプラトー現象が発現すると考えた。

第3章では、石灰系下水汚泥の施用を中止し、生理的酸性肥料を施用しながらハウレンソウおよびキャベツを4年間、合計8回作付けし、土壌 pH が低下した場合の、汚泥連用土壌に蓄積した重金属の存在形態の再変化と、移動性や可給性について調査した。その結果、土壌 pH が低下すると、土壌に炭酸塩態または Fe-Mn 酸化物態として蓄積した重金属が、水溶態・交換態へと形態変化し、下層土への移動性や作物への吸収移行性が促進されることが明らかになった。

第4章では、神奈川県内の農耕地土壌の亜鉛濃度を詳細に調査し、土壌の種類や地目及び地域による変動並びに畑地土壌における経年変化について解析した。その結果、地目別には樹園地土壌の亜鉛濃度が高かった。土壌群別には腐植質または多腐植質黒ボク土の亜鉛濃度が高かった。亜鉛濃度が環境省基準値を越えた地点の、県内における分布を見ると、

畑地土壌では県東部に偏在した。これらの高濃度地点は CEC が高い細粒質の火山灰土壌の分布点と一致した。水田土壌では高濃度地点が県内全体に分布した。これらのことから、農地の亜鉛濃度は母材の影響とともに、水田土壌では灌漑水の影響、樹園地土壌では農薬散布の影響を受けていた。これに対して畑地土壌では人為的な影響が少ないと考えた。

第 5 章では、微生物を利用した嫌気消化汚泥からの重金属除去を試みた。硫黄を添加した嫌気消化汚泥に、硫黄酸化細菌 (*Thiobacillus thiooxidans*) および鉄酸化細菌 (*T. ferrooxidans*) を接種した場合と、pH を 4 に調整した嫌気消化汚泥に菌を接種した場合とで、重金属の除去率を比較した。その結果、嫌気消化汚泥に硫黄を添加し、両細菌を接種し培養すると、重金属の除去率は 8 日後から急増し、ニッケルおよび銅は 40 %、亜鉛は 80 %、カドミウムは 70 % 程度、汚泥固形物から除去された。しかしこのときの汚泥 pH は、硫黄細菌により同時に生成される硫酸の影響で 2.5 まで低下した。これに対して硫黄を添加しないで、希硫酸で pH4 に調整した汚泥に硫黄酸化細菌および鉄酸化細菌を接種した場合、重金属の除去率は、ニッケルが 35 %、亜鉛およびカドミウムが 50 % 程度であった。銅は殆ど除去されなかった。しかし汚泥の pH 低下がないため、処理後の汚泥の農業利用は、硫黄添加の場合より容易と思われた。

第 6 章では総合考察として、石灰系下水汚泥を安全に農業利用するための留意点と今後の方向について述べられている。第 7 章では本研究の成果を要約している。

以上本論文は石灰系下水汚泥の農地への長期連用により土壌に蓄積する重金属の存在形態と挙動、ならびに汚泥連用中止後のそれらの変化を圃場試験にて解析するとともに、神奈川県内農耕地土壌の亜鉛濃度の実態の調査、汚泥からの重金属除去の新たな方法の開発を行い、それらの結果に基づいて石灰系下水汚泥の農業利用上の留意点についての提案を行ったものであり、学術上、応用上貢献する所が少なくない。よって審査委員一同は本論文が博士（農学）の学位論文として価値あるものと認めた。