第Ⅲ編　総合考察

北海道農業の環境についてみると[20]，寒冷な気象条件があげられるが，気候的にはカナダ南部，アメリカ北部あるいは北欧諸国と類似している。また，無霜期間も一般に本州にくらべると極めて短い。すなわち，関東地方で220日，東北地方で180日程度であるが，北海道は南部の渡島地方でも150日，中央部の上川地方で133日，東部の十勝地方で124日内外であり，さらに北部および東部の周縁地域では一層短い。このように，農期間が短い反面，高緯度にある関係から夏季の日長期間が長く日照時間は必ずしも短くない。降水量は倶知安の1559mmから網走の845mmの間にあって，わが国では少ない方である。

また，土壌条件は既述したように，泥炭土，黒ボク土，重粘土等の特殊土壌と呼ばれる不良土壌が全農耕地の約90%を占めている。

したがって，このような立地条件下にある北海道の農耕地土壌における重金属の諸問題を総合的に考案し，地域土壌の特異性との関連を明らかにして土壌中重金属の基準策定の一助としたい。

まず，北海道の農耕地における主な重金属の濃度分布を調べた結果，農耕形態の違いや近縁における鉱床の分布の影響を受けていると思われるいくつかの特徴が見出された。

以下，個々の元素の概要をみると，Pb（全含量平均36ppm，n＝335）は樹園地（全含量平均70ppm，n＝8）で高い。また樹園地のAs全含量は平均43ppmであり，As高含量土壌（全含量20～60ppm）での全含量に対する1N塩酸のAs可溶率は水田，畑土壌の平均値で20%強であるのに対して，樹園地では70%弱の高可溶率であることが報告されている[106]。これは自然に存在するAsのようにAlやFeと結合している難溶性化合物と異なり，ヒ酸鉛やヒ酸石灰のような比較的容易に溶解しやすい形態の化合物が多いためと推定されている。このように，樹園地でのPbやAsが高い原因は上記農薬の蓄積によると思われ，このことは他府県でも樹園地のAsの高いことが報告されている[15]のと符合する。しかし，北海道の樹園地の歴史は浅く，土壌への集積量は他府県ほどではないと思われる。幸いにして，Asはその化学的性質上畑土壌のような酸化条件下では作物に対する害作用が小さく，Asによる農作物被害は認められていないが，遠い将来においてはこのような果樹栽培土壌でも水田に転換される可能性があるので，この種の農薬の使用に当っては充分な注意となんらかの規制が必要になるものと思われる。

Ni（全含量平均32ppm）については，高Ni含有蛇紋岩の分布が襟裳岬近くから稚内の近くに至る北海道のほぼ中心地帯に多いことが判明している[71]。

また，Mn（全含量平均871ppm）についてみると，畑（全含量平均1023ppm，n＝167）の方が水田（全含量平均687ppm，n＝160）よりも高い傾向にあり，水田土壌で低い理由はたん水状態下での溶解，溶脱が生じやすいためであろう。Mnの可溶化はそのEh－pHの関係において，理論的計算からみても明らかなように，Feよりも高い電位で比較的容易に溶解してくる。量的には圧倒的にFeよりも少ないMnが，わずか半世紀しか経過していない北海道の水田において，開田前はそれほど大差があったとは考えられない畑土壌よりも明らかに低濃度になっているということは，将来水田土壌においてMn欠乏の発生する可能性を暗示しているものと思われる。反面，このことはMn鉱床を生む結果となっているし，農耕地においても，これを反映して高Mn含量の土壌が点在している。現に，水田転換畑等では一部に大豆などにMn過剰害の発現が観察されている。

一方，作物生育と関係あると思われる易還元性Mn濃度は一般畑の方が水田のよりも低い。これは第5章でのべたように土壌中のCa含量と密接な関係があり，畑の方が水田よりもpH調整などに石灰の施与が多いことを反映している。すなわち，炭酸カルシウムなどの添加によってMn酸化速度は増

加する[5]ということから，畑の方が水田よりも不溶性のMnO_2が多いためであろう。したがって，畑土壌で多量の石灰投与の行われた地帯では，水田とは異なった形でMn欠乏の発生原因を作っていることになる。すなわち，この場合は溶脱や流亡によるのではなく，農業資材の施用が土壌成分のバランスを崩しつつあることを示すものといえよう。

今までに水稲のMn過剰害に関する研究は数多く報告されているが，その場合の水稲体や土壌のMn濃度に関しては必ずしも明らかになっていない。北海道においては渡島，桧山，後志や網走などMn鉱山の比較的多い地域にMn含量の高い土壌があるが，これらの一部の地帯について実態調査した結果，水田土壌の易還元性Mn濃度が1000ppm以上では水稲はMn過剰害を受けていることが推定されたが，それ以上の場合は判然としなかった。一方，Mn添加試験の結果，収穫期水稲体茎葉のMn濃度が3000～4000ppm以下ではMn過剰害は発現しなかった。また，出穂開花期頃の落水によって茎葉のMn濃度が高くなることが認められている。しかし，圃場での中干し等の有無による茎葉Mnの濃度差が明確でなく，かつ北海道では通常，これらの作業は行われていないため，水稲体Mn濃度からもMn過剰害の推定は可能であろう。

Zn（全含量平均80ppm），Cu（全含量平均28ppm）は各地帯，各土壌とも大差なかったが，植物残渣が主体である泥炭土だけは，一般に各重金属とも低い傾向にあった。

0.1N塩酸可溶Zn濃度は畑，水田とも大差なかったが，0.1N塩酸可溶Cu濃度は一般に畑の方が水田のよりも低い。さらに，畑のうちでもCu濃度の低い黒ボク土，褐色森林土，泥炭土の変異係数が大きい。また，黒ボク土では可溶性Al濃度や腐植含量の多い土壌ほどCu濃度が低い傾向にあった。したがって，これらの土壌の中にはCu欠乏を生じる土壌が潜在していることがうかがわれた。事実，近年，北海道における小麦の栽培面積の急激な増大に伴って，Cu欠乏の問題が派生してきた。これまで国内におけるCu欠乏発生土壌は火山性土壌や凝灰岩質土壌のみで，他の土壌には見出されていなかったが，今まで小麦が栽培されていなかった褐色森林土や泥炭土にも小麦の不稔が発生し，大きな問題になった。このような小麦の不稔現象は現地調査と試験の結果，土壌のCu欠乏に帰因することが明らかになり，さらに，土壌と作物体からみたCu欠乏の判定基準を提唱した。

以上が北海道の農耕地土壌に対する重金属の調査および試験結果であるが，一般的な農耕地の重金属全含量を全国平均と比較してみるとほぼ同程度であることが認められた。

つぎに，鉱工業等による人為的汚染について検討する。

後志管内における水田地帯の一部で玄米のCd濃度が0.4ppmを越えるものがみられた。この汚染の程度は他府県の汚染地区にくらべると軽度ではあったが，明らかに鉱山排水の影響を受けていることが認められた。

Cd汚染水田での現地試験の結果，玄米へのCd吸収抑制に対して各種の客土による効果が顕著に認められたが，置土では最低20cm程度は必要であることがわかった。また，第73表に示したように落水時期を遅らせることによる効果も認められ，出穂後20日程度経過した後の中期落水区では早期落水区にくらべて玄米Cd濃度は10～25%低下した。しかし，褐色低地土とグライ土を比較すると，前者の方が落水によるEhの上昇が早いため，湿潤土壌の0.1N塩酸可溶Cd濃度および玄米Cd濃度が高く，土壌間に違いがみられた。また，土壌のEhと玄米Cd濃度は両土壌間で必ずしも一致しないが，跡地風乾土壌の0.1N塩酸可溶Cd濃度が2.5ppm前後の場合，グライ土では落水時期を遅らせることにより玄米Cd濃度が0.4ppm以下になったが，褐色低地土ではその効果がみられるものの玄米濃度は0.4ppm以下にはならなかった。したがって，礫質土壌のようなタイプでは客土による土地改良がより安全と思われる。このように，土壌の種類と落水時期によって玄米中のCd濃度は変わるため，跡地土壌のCd含量から玄米のCd濃度を予測することはできないが，玄米へのCd吸収の最も旺盛な出穂後10～20日頃[7]における湿潤土壌の可溶性Cd濃度を測定すればその予測が可能かもしれない。

Table 73. Influence of the surface drainage on Cd concentration in brown rice

Soil	Stage of surface drainage	Brown rice* Cd ppm	Moist soil (Aug 25) 0.1NHCl Cd ppm	Moist soil (Aug 25) Eh mV	Air-dried soil 0.1NHCl Cd ppm
Brown lowland soil	Early (Aug 14)	0.88	2.94	+327	2.60
	Middle(〃 21)	0.79	2.36	+212	2.86
	Late (〃 28)	0.52	2.29	− 65	2.77
Glei soil	Early (Aug 14)	0.50	2.18	+216	2.30
	Middle(〃 21)	0.37	1.91	+210	2.52
	Late (〃 28)	0.33	1.75	− 28	2.66

* Average of Yūnami, sorachi and matsumae

つぎに，工場廃棄物からの重金属汚染として，クロム鉱さいからのCr^{6+}汚染の問題がある。空知管内栗山町において，1936年から1971年までの間にクロム製造工場から排出された鉱さいは24.4万tに及ぶと推定され，その大部分が町内に埋め立てられている。また各地の工場排水由来による局所的かつ不定期なCrの灌漑用水汚染も多い。Cr^{6+}による水稲の過剰害発現は生育時期や土壌条件によって変る。また，Cr^{3+}はCr^{6+}よりも水稲に対する障害が小さいため，Cr^{6+}が還元されてCr^{3+}になるグライ土や低地土のように，たん水によって比較的還元化の速い土壌ではCr^{6+}の影響は高濃度でなければ現われないが，可給体Fe含量が少なく，還元化の遅い礫質土壌などではCr^{6+} 80ppm添加でかなりの障害を受けている。Cr^{6+}過剰害の一つの特徴は水際茎稈部が黒褐色に変色することであり，これはCr^{6+}の酸化作用によるものであろう。また，Cr^{6+}は水溶性であるから，土壌の蓄積よりもCr^{6+}に汚染された灌漑用水のCr^{6+}濃度を調査することが水稲の生育障害を判定するのにより有効であろう。この場合は，生育初期ほどCr^{6+}は低濃度で障害を発現することが認められた。

さて，北海道における今後の重要な重金属問題としては下水汚泥の農地利用による重金属蓄積があげられる。

近年，下水道の拡張，整備に伴って下水汚泥発生量が増大しており，1985年には33.6万tに達することが予想されており，また，既述したように緑農地利用が全体の61%を占めている。一方，全国の下水汚泥処分状況をみると[79]，1985年では緑農地等の有効利用25.9%，陸上埋め立て29.2%，海面埋め立て36.6%，海洋処分8.3%であり，北海道における下水汚泥の緑農地利用は周辺農地が比較的広大であるため極めて多い。また，北海道内における下水汚泥中重金属の全含量はTaiら[96]が調査した生活排水汚泥中の含量とほぼ同程度に低い傾向にあり，これよりも低くすることはかなり困難と思われる。しかしながら，いずれにしても堆きゅう肥等にくらべると各重金属とも高く，これを連用していくと重金属の蓄積問題が起きる。さらに，汚泥中には種々の重金属が含まれているため，各重金属毎に蓄積を問題にすべきなのか，ある元素を指標にすればその目安がつくかについては明確でない。したがって，これらの基本問題について検討した。

いずれにしても，下水汚泥中の重金属の形態は元素によって違ってくるが，消化，発酵が進むにつれて，作物に直接影響すると思われる置換態－吸着態の部分は減少していることがわかった。また，下水汚泥施用に伴う土壌中の重金属蓄積比率はZnが各元素中最も大きく，かつ，作物吸収にも反映していることが認められた。これらのことから，当面，下水汚泥中のZnを重金属蓄積の指標とし，農耕地の天然賦存量の上限値を限界濃度とするのが妥当と考えられる。

以上のことから，北海道の農耕地における重金

属過剰問題は施肥などの農耕による原因は認められず，鉱山や工場の排水，廃棄物などによるものである。重金属の欠乏による問題は研究上重要であるが，実際の農業的見地からみると一般にその対策は容易である。これに対して過剰害の対策は極めて困難なものが多く，高価な代償を支払わされる場合が多い。この中には当然石灰資材やでん粉排液の多用によるCa，Kの蓄積等，土壌成分バランスの崩壊も入ってこよう。長い間使用しなくてはならない農地をこのような形で荒廃させないよう充分な注意と監視を続ける必要がある。

上述したことをまとめると，北海道の農耕地土壌の各重金属含量は泥炭土を除いて全国の天然賦存量とほぼ同程度であり，また，北海道内における重金属問題はこれまで肥料などからの蓄積は認められず，鉱山や工場由来の土壌汚染である。さらに，農耕地そのものに欠陥のある土壌もあり，それらの地域における実態調査，現地実験ならびにポット試験から，重金属の欠乏および過剰害の限界濃度についてはつぎのようにいえよう。

Cu欠乏（畑）：

小麦のCu欠乏発現土壌の0.1N塩酸可溶Cu濃度は各土壌とも容積当り0.15～0.20μg/mℓ以上，収穫期小麦体地上部のCu/Fe値は0.01以下附近がその境界線になる。また，Cu欠乏土壌に対する硫酸銅4kg/10a施用で小麦の生育，収量は回復する。

Cd汚染（水田）：

水稲の玄米Cd濃度は落水時期を出穂後20日頃に遅らせることによってある程度低下する。したがって，風乾土壌の0.1N塩酸可溶Cd濃度がおよそ2ppm以下の場合は玄米Cd濃度を0.4ppm 以下にする効果がある。しかし，礫質土壌のようにEhが高く，かつ低下しにくい土壌ではCd濃度が2ppm以下の場合でも客土以外にその対策がない。また，客土の場合では最低20cmの客土が必要である。

Cr^{6+}汚染（水田）：

各土壌とも，Cr^{6+}400ppm添加程度まではFe^{2+}資材や有機物資材の施用によってその障害を軽減ないしは回避できる。また，Cr^{6+}生育障害の発現しない灌漑水中のCr^{6+}上限濃度は，代かき前1ppm，移植期3～5ppm，移植後30日目20ppm，穂ばらみ期20～50ppmである。

Mn過剰（水田）：

各土壌とも，風乾土壌の易還元性Mn濃度が約1000ppm以上と収穫期の水稲体茎葉Mn濃度3000～4000ppm以上がMn過剰害発現の目安となる。

下水汚泥施用に伴う農耕地の重金属蓄積指標：

下水汚泥の農地施用に伴って重金属ではZnが最も蓄積されやすいため，一般的には土壌と下水汚泥のZn全含量の濃度段階によって下水汚泥の施用限界量が推定できる。この場合，北海道における農耕地土壌の上限値であるZn120ppm を限度とすることが妥当であろう。

第Ⅳ編　摘　　要

北海道の農耕地は重粘土，泥炭土や未風化，瘠薄な火山性土等の不良土が多い。

本報告はこれら農耕地における重金属の濃度分布と，さらに，主な重金属問題として自然条件下でのCu欠乏問題，また，人為的に生じたCd，Cr^{6+}，Mnなどの汚染問題，そして今後廃棄量が増大すると思われる下水汚泥の農地施用に伴う重金属蓄積問題について検討したものである。

1　北海道の農耕地における主な重金属の濃度分布

1）　Ni全含量は蛇紋岩分布ならびにその流入地帯で高い。Pb全含量は樹園地がやや高い。1N酢酸アンモニウム（pH4.5）抽出Ni，Pb濃度も同様な傾向を示した。

2）　Mn全含量は地目別では樹園地，畑，水田の順に高いが，易還元性Mn濃度は水田の方が畑よりも高く，Ca全含量と易還元性Mn濃度/Mn 全含量比の間には－0.620***（n＝335）と負の相関関係が認められた。また，桧山，後志，渡島や網走地域には高Mn含量の地点がみられた。一方，泥炭土はMnが極めて低い傾向にあった。

3）　Cu全含量は地目別，土壌別で大差ないが，泥炭土（畑）だけは低い。しかし，0.1N塩酸可溶Cu濃度は水田≒樹園地＞畑の順に高い。また，畑の中でも黒ボク土，泥炭土および褐色森林土がやや低い傾向にあった。

4）　Zn全含量は地目別，地帯別に大差なく，かつ泥炭土（畑）が低い以外は土壌間差も余りみられなかった。0.1N塩酸可溶Zn濃度は各土壌とも大差なかった。

5）　農耕地と未耕地の重金属全含量の比較から一般畑に対する重金属の蓄積は現在までほとんど起っていないことが認められた。

2　水稲のカドミウム汚染

1）　後志管内の一部水田で，鉱山排水によるCd汚染が見出されたが，その程度は比較的軽度であった。

2）　土地改良による玄米Cd吸収抑制効果は客土10cm，客土20cm，反転客土，排水客土20cmの各区とも顕著に認められたが，客土10cm区だけは施工後2年目の玄米および客土のCd濃度が高くなっていた。したがって，客土では20cmの置土が必要と推定された。

3）　珪カル200kg，重焼リン400kg/10a施用によって玄米Cd濃度は漸減した。

4）　出穂後20日目頃からは落水は，気象条件，土壌，品種によって若干の差はあるが，玄米Cd吸収抑制効果がかなり認められた。

5）　水汚染地区水田土壌における重金属の移動率はZn：Cd：Cuが10：6.1：3.4であり，Cd はZnとCuの中間にあることが認められた。

6）　精白による玄米中のCd減少率は20～30％であった。

3　水稲の6価クロム過剰

1）　空知管内栗山町におけるクロム鉱さいから水田土壌へのCr蓄積は局所的で比較的工場周辺に限られていた。

2）　Cr^{6+}の水稲生育障害は可溶体Fe含量の多い褐色低地土の方がFe含量の少ない台地土よりもその程度が小さかった。

3）　Cr^{6+}は水田土壌中では経時的に還元され，再酸化しないことが認められた。

4）　Cr^{3+}は400ppm添加でも水稲の生育障害を起さない。したがって，この範囲内のCr^{6+}濃度までは有機物やFe^{2+}資材の施用による還元処理によって，水稲の被害を回避ないしは軽減できる。

5）　Cr^{6+}による水稲生育障害は土壌蓄積よりもCr^{6+}汚染灌漑水による直接害作用を重視すべきである。また，Cr^{6+}の被害は生育初期ほど低濃度で発現する。

6）　水稲のCr^{6+}過剰害の特徴は水際茎稈部が黒褐色に変色することである。

4　水稲のマンガン過剰

1）　現地調査とポット試験の結果から，跡地風乾土壌の易還元性Mn濃度が約1000ppm，収穫期の

水稲体茎葉3000～4000ppm以上でMn過剰害が発現する。

2）出穂開花期の落水によって茎葉Mn濃度は増大するが，一方では土壌溶液のMn濃度も高くなることから，これが作物体に反映したと推定される。

5　小麦の銅欠乏

1）空知管内，石狩管内の褐色森林土，泥炭土，さらにその他の地区にCu欠乏による小麦の不稔が発生した。

2）小麦不稔発生土壌の0.1N塩酸可溶Cu濃度は0.15～0.20μg/mℓ以下であった。また，Cu全含量と小麦の不稔発生との間には明瞭な関係は得られなかった。

3）褐色森林土では火山性土の性質を帯びるほどCuの不溶化が起っていた。

4）植物体からみると，小麦の不稔は収穫期の小麦体地上部のCu濃度よりもCu/Fe値との間に明瞭な関係があり，Cu/Fe値が0.01以下では不稔現象を示した。

6　下水汚泥の農地施用による重金属蓄積の問題

1）北海道内の主な下水処理場から，高分子汚泥7点，石灰汚泥14点を採取し，重金属含量やその形態を検討した。これら下水汚泥中の重金属濃度範囲はZn397～1932ppm，Cu67～289ppmと相当に幅が広い。

2）下水汚泥中の重金属の存在形態は汚泥の種類によって異なるが，Znは有機結合態と炭酸塩，Cuは炭酸塩，有機結合態と置換態がそれぞれ支配的な形態であった。

3）下水汚泥中のZnとCuの形態は消化，発酵が進むにつれて置換態－吸着態の部分が減少して炭酸塩等が増加していた。

4）下水汚泥施用土壌中Znの経時的な形態変化をみると，作物の吸収により影響すると思われる置換態－吸着態の部分は高分子汚泥区が増加傾向、石灰汚泥区が減少傾向にあり作物体のZn吸収量にも反映していた。

5）下水汚泥施用に伴う土壌中の重金属蓄積はZn＞Hg＞Cuの順に大きい。

6）以上のことから，下水汚泥施用による土壌中重金属蓄積の指標としてZnを目安にするのが望ましいと考えられる。この場合，北海道における農耕地土壌の上限値であるZn120ppmを限界濃度とすることが妥当であろう。

文　献

1．Alexander, M.（1961）. Introduction to soil microbiolology. P.408.

2．青木茂一.（1958）. 土壌と植生. 東京，養賢堂. P.344.

3．Broadbent, F.F.（1957）. Soil organic matter - metal complexes, II, Cation-exchange chromatography of copper and calcium complexes. Soil sci. 84, 127－131.

4．Brown, J. C., Devine, T. E.（1980）. Inheritance of tolerance or resistance to manganese toxicity in soybeans. Agron. J. 72, 898－904.

5．Charlot, G.（1974）. 定性分析化学II－溶液中の化学反応－. 曽根興三，田中元治訳. 東京，共立出版. P.298－313.

6．茅野充男，北畠確三.（1965）. 重金属元素の過剰による水稲の被害に関する研究，第1報，銅，ニッケル，コバルト，亜鉛およびマンガンの処理濃度を変えたときの水稲の生育. 土肥誌. 37, 342－347.

7．茅野充男.（1973）. 重金属の吸収時期および吸収経路と水稲玄米中への重金属とりこみ量との関係. 土肥誌. 44, 204－210.

8．海老原武久，渡辺光昭，栗原淳.（1978）. 各種下水，し尿汚泥の性質について. 土肥要旨集. 24, PartII, 141.

9．江川友治，佐藤昭夫，西村利幸.（1960）. 陰イオンによる粘土鉱物のOH離脱－特にアロフエンにおける特異性. 粘土科学の進歩，2．粘土研究会編. 東京，技報堂. P. 261.

10．Fielders, M., Perrott, K. W.（1966）. The nature of allophane in soils, Part 3, Rapid field and laboratory test for allophane. N. Z. J. Sci. 9, 623－629.

11．藤原彰夫，大平幸次，黒沢諦.（1959）. 高等植物における燐の生理的機能に関する研究（水稲編），第3報，燐と鉄，マンガン，窒素の相互関係が水稲茎葉中の無機代謝に及ぼす影響について. 土肥誌. 30, 269－277.

12．深町和美，吉田直子，柳川正男，森本昌宏.（1974）. ゼフィラミンによるクロム(VI)の溶媒抽出を利用する微量クロム(VI)の原子吸光分析法. 分化. 23, 187－192.

13．下水汚泥資源利用協議会編.（1980）. 下水汚泥コンポストの指標. P. 1－3.

14．Graham, R. D.（1975）. Male sterity in wheat

plants deficient in copper. Nature. 254, 514－515.
15. 花田慧, 中野雅章, 斉藤寛, 望月武雄. (1975). リンゴ園表層土壌の重金属塩類汚染とその改良に関する研究, 第1報, アズキ(宝)のヒ素過剰による生育障害. 弘大農報. 25, 13－24.
16. 半谷高久. (1966). 水質調査法. 東京, 丸善. P.229－231.
17. 羽根田利吉, 坂上朗. (1969). 水稲に対する重金属イオンの影響. 静岡県農試報. 14, 7－18.
18. 長谷部俊雄, 水野直治. (1969). 北海道網走地方にみられる麦類の生育異常に関する研究, 第1報, 発生地の分布とその土壌的特性ならびに予備的対策試験. 北海道立農試集報. 19, 63－79.
19. 長谷部俊雄, 宮脇忠, 水野直治. (1970). 北海道網走地方にみられる麦類の生育異常に関する研究, 第2報, 醸造用大麦に対する硫酸銅施用効果と土壌化学性との関係. 北海道立農試集報. 21, 103－111.
20. 北海道農業試験場編. (1968). 北海道農業技術研究史. P. 23－25.
21. 北海道立中央農業試験場. (1971). 土壌汚染防止対策細密調査成績書. P. 1－3.
22. 北海道立中央農業試験場. (1971). 土壌肥料に関する試験成績書. 1－55.
23. 北海道立中央農業試験場. (1973). カドミウム汚染土壌対策試験成績書. P. 1－20.
24. 北海道立中央農業試験場. (1977). 環境保全に関する試験成績(休廃止鉱山関係農作物被害調査成績書). P. 1－55.
25. 北海道立中央農業試験場. (1981). 環境保全に関する試験成績. 7－16.
26. 北農会編. (1969). 北海道農業と土壌肥料. p. 15－33.
27. 北陸農業試験場, 東海近畿農業試験場, 岐阜農業試験場, 中国農業試験場編. (1972). 土壌肥料関係専門別総括会議資料. P. 1－5.
28. 市倉恒七, 清水武, 前田正男. (1971). マンガンスラッグ溶出物が水稲の生育におよぼす影響. 大阪府農林技術センター研究報告. 8, 13－16.
29. 飯村康二. (1961). アロフェンの酸性とイオン置換. 粘土科学の進歩, 3. 粘土研究会編. 東京. 技報堂. P. 101.
30. 飯村康二. (1973). 土壌中のカドミウムの形態と水稲による吸収. 近代農業における土壌肥料の研究. 4, 46－52.
31. 石田博, 藤原彰夫. (1965). 冷害稲の栄養生理, 第4報, 培地中の可給態マンガン量の変動と水稲によるマンガンの吸収. 土肥誌. 36, 107－112.
32. 石塚喜明, 田中明, 藤田収. (1961). 水稲の要素代謝に関する研究, 第6報, 培養液中, 鉄, マンガン及び銅濃度の水稲の生育ならびに要素含有率に及ぼす影響, 土肥誌. 32, 97－100.
33. 石塚喜明, 田中明. (1969). 水稲の栄養生理. 東京, 養賢堂. P. 180.
34. 伊藤秀文, 飯村康二. (1975). 土壌の酸化還元状態の変化と水稲のカドミウム吸収応答. 土肥誌. 46, 82－88.
35. 岩井俊治, 喜田健治, 山田信明, 柳沢宗男. (1972). 水稲の重金属吸収に関する試験, 第3報, 水管理がカドミウムの吸収に及ぼす影響について. 土肥要旨集. 18, 122.
36. 岩田久敬. (1981). 食品化学各論. 東京, 養賢堂. P. 2－3.
37. James, Z. E. (1969). Microbial, leaching of Zinc. Microbial Biochemistry. P. 140－150.
38. 鎌田賢一, 皆川勝. (1974). 水田土壌中におけるカドミウムの挙動, 第2報, 土壌中のCdS溶解に及ぼす二, 三の要因. 北海道立農試集報. 29, 98－107.
39. 鎌田賢一, 土岐和夫. (1974). 土壌中における6価クロムの還元とクロムの直接原子吸光法測定について. 土肥誌. 45, 597－599.
40. 鎌田賢一, 土岐和夫. (1975). たん水土壌中のクロムの動向と水稲の生育, 第1報, 2種類の土壌による6価クロムの経時的還元の差異とその要因. 土肥誌. 46, 478－482.
41. 鎌田賢一, 土岐和夫. (1977). たん水土壌中のクロムの動向と水稲の生育, 第2報, 6価クロムの水稲生育障害におよぼす土壌間差と2価鉄添加の影響. 土肥誌. 48, 457－465.
42. 鎌田賢一, 水野直治, 兼田裕光, 目黒孝司. (1976). 北海道の農耕地における銅, 亜鉛含量とそれらの抽出率に関する若干の検討. 北海道立農試集報. 35, 53－63.
43. 鎌田賢一, 土岐和夫. (1979). たん水土壌中のマンガンの動向と水稲の生育, 第1報, マンガンの硫酸塩ならびに塩化物添加が土壌成分と水稲の生育におよぼす影響. 土肥誌. 50, 487－493.
44. 鎌田賢一. (1980). たん水土壌中のマンガンの動向と水稲の生育, 第2報, 水稲体と土壌溶液の重金属濃度に及ぼす畑処理の影響. 土肥誌. 51, 275－280.
45. 鎌田賢一, 水野直治. (1980). 道央地帯の水田土壌における塩基, 重金属の分布と水稲成分含有率の関係. 北海道立農試集報. 43, 52－62.
46. 鎌田賢一, 南松雄. (1981). 下水汚泥中の重金属の形態. 土肥誌. 52, 385－391.
47. 加村崇雄, 西谷和博. (1977). 土壌中のマンガン酸化機構, 第2報, マンガン酸化に及ぼす土壌反応の影響. 土肥誌. 48, 103－106.
48. 加村崇雄. (1979). 土壌中のマンガン酸化機構, 第3報, ポット栽培の水稲根圏におけるマンガン酸化. 土肥誌. 50, 561－562.
49. 兼田裕光, 鎌田賢一, 目黒孝司, 土岐和夫, 水野直治, 南松雄. (1980). 北海道の有機性廃棄物の性状と化学成分. 北海道立農試資料. 11, P. 11－46.
50. 環境庁土壌農薬課編. (1973). 土壌汚染. 東京, 白亜書房. P. 146－229.
51. 環境庁水質保全局編. (1973). 土壌及び農作物中の水銀等の分析法. P. 35－40.
52. 狩野徳太郎. (1968). 灌漑排水. 東京, 養賢堂. P. 64－86.
53. Kelling, K. A. (1977). A field study of the agricultural use of sewage sludge, I, Effect on crop yield and

uptake of N and P. J. Environ. Qual. 6, 339－345.
54. 小林宏信，津村昭人，石川美佐子．(1969)．水稲のCd吸収と体内挙動に関する研究，第1報，水耕栽培による生育時期別の吸収と挙動について．土肥要旨集．15，55.
55. 小林純．(1971)．水の健康診断．東京，岩波書店．P.附表16－17.
56. 越野正義，中島秀治．(1974)．肥料中の有害成分の分析法に関する研究，第2報，原子吸光法によるクロムの定量．農技研肥料化学科資料第175号．1.
57. 熊沢喜久雄監修．(1979)．下水汚泥の堆肥化実例集．東京，アイピーシ．P.20.
58. 黒沢順平，中野信夫．(1962)．岩手県における麦類に対する銅欠乏の被害状況とその対策．農及園．37，1738.
59. 増田敏春，佐藤亮八．(1962)．蛇紋岩土壌における作物生育障害について，第1報，Ni，Ca，Mgの相互関係．土肥誌．33，201－204.
60. 松尾英俊，後藤重義．(1962)．水田土壌における酸化還元電位と鉄，硝酸系の変化について．九州農試彙報．7，325－333.
61. 松岡義浩，白鳥孝司，松本直治．(1962)．水稲の塩害と土壌間差．土肥要旨集．8，67.
62. McLaren, R. C., Crawford, P. V. (1973). Studies of soil copper, I, The fractionation of copper in soils. J. Soil Sci. 24, 172.
63. 皆川勝，鎌田賢一．(1973)．水田土壌中のカドミウムの挙動，第1報，CdSの可溶化に及ぼす要因．北海道立農試集報．27，65－76.
64. 皆川勝，鎌田賢一，岩渕晴郎．(1974)．水田土壌中におけるカドミウムの挙動，第3報．水稲のCd吸収に及ぼす落水時期の影響．北海道立農試集報．29，110－118.
65. 南松雄．(1970)．北海道における壌土の成因，理化学的特性とその生産性向上に関する研究．北海道立農試報告．18，4－8.
66. 南松雄．(1980)．北海道農業と環境保全－試験研究からの展望．北海道立中央農業試験場環境保全部編．P．37.
67. 水野直治．(1967)．北海道蛇紋岩質土壌の化学的特性に関する研究，第1報，土壌と植物中のニッケルとモリブデン含有量の差異．北海道立農試集報．15，48－55.
68. 水野直治．(1972)．土壌中の酸化還元電位による土壌中のカドミウムの挙動と米のカドミウム含量に関する一考察．土肥誌．43，179－181.
69. 水野直治．(1976)．希塩酸による土壌中銅抽出の限界．土肥誌．47，251－255.
70. 水野直治，兼田裕光，鎌田賢一，日黒孝司，土岐和夫，後藤計二．(1977)．北海道農用地の土壌成分．北海道立農試資料．8，36－45.
71. 水野直治．(1979)．蛇紋岩質土壌の化学的特性と農作物の生理障害に関する研究．北海道立農試報告．29，7－8.
72. 水野直治，鎌田賢一，稲津修．(1981)．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.
73. 水野直治，鎌田賢一，山田進．(1981)．泥炭地土壌におけるコムギの銅欠乏．土肥誌．52，381－384.
74. 本村悟．(1964)．水田土壌中の酸化沈積物に関する研究，第1報，マンガンの酸化沈積について．土肥誌．35，431－437.
75. 中西秋四郎，中村逸夫．(1968)．塩素濃度および冠潮稲の施用が水稲ならびに養分吸収に及ぼす影響．土肥要旨集．14，167.
76. 直原毅，宗野重徳，日下昭二，今井太磨雄．(1970)．各種過剰元素の障害性について，第1報，水稲に対するCrの影響．中国農業研究．41，21－22.
77. Nelson, L. G., Berger, K. C., Andries, H. J. (1956). Copper requirements and deficiency symptoms of a number of field and vegetable crops. Soil Sci. Soc. Am. Proc. 20, 69－72.
78. 日本分析化学会北海道支部編．(1976)．新版水の分析．京都，化学同人．P. 209－221.
79. 日本土壌肥料学会編．(1979)．下水汚泥－リサイクルのために－．東京，博友社．P. 19－20，70，187.
80. 農林水産技術会議事務局．(1972)．土壌および作物体中の重金属の分析法(2)．土肥誌．43，305－311.
81. 農林水産省北海道統計情報事務所．(1981)．北海道農林水産統計年報（農業統計市町村別編）．6.
82. 農林省農業技術研究所化学部土壌第3科．(1977)．土壌統の設定基準および土壌一覧表，第2次案．P. 1－67.
83. 鬼鞍豊，後藤重義，仲谷紀男．(1967)．疎大有機物施用水田における湛水時の還元の進行と水稲の生育．九州農試彙報．13，157－161.
84. 小野富三，高野明富．(1976)．クロム鉱さいより溶出する6価クロムの還元処理，第3報．水質汚濁に関する研究集報．9，123.
85. Randhawa, N. S., Kanwar, J. S., Nijhawan, S. D. (1960). Distribution of different forms of manganese in the punjab soils. Soil Sci. 89, 106－112.
86. 斎藤喜亮，鈴木清志．(1961)．鉱害地産植物成分に関する研究，第3報，水稲中のマンガン含量について．土肥誌．32，90－93.
87. 坂井弘．(1974)．農業公害ハンドブック．東京，地人書館．P. 82.
88. 作物分析法委員会編．(1976)．栄養診断のための栽培植物分析測定法．東京，養賢堂．P. 123－127.
89. 渋谷政夫編著．(1979)．土壌汚染の機構と解析－環境科学特論－，東京，産業図書．P. 112－118.
90. 渋谷政夫，小山雄生，渡辺久男．(1980)．重金属測定法，土壌汚染元素と定量法の解説．東京，博友社．P.129－137.
91. 渋谷政夫，山添文雄，尾形保，能勢和夫．(1980)．環境汚染と農業．東京，博友社．P. 279－283.
92. 相馬暁，多賀辰義，石井忠雄，平井義孝，岩渕晴郎．(1980)．北海道・道央地区における野菜畑土壌の実態とその問題点について．北海道立農試集報．44，25－36.
93. 相馬暁，岩渕晴郎．(1981)．北海道・道央地区のタマネギ栽培土壌の実態とその問題点．北海道立農試集報．45，17－26.
94. Sommers, L. E. (1977). Chemical composition of

sewage sludges and analysis of their potential use as fertilizers. J. Environ. Qual. 6, 225−232.

95. Stover, R. C., Sommers, L. E., Silviera, D. J. (1976). Evaluation of metals in waste water sludge. Water Pollut. Control. 48, 2165−2175.
96. Tai, S., Okada, M., Sudo, R. (1980). Origin of heavy metal contained in domestic sewage sludge. Res. Rep. Natl. Inst. Environ. Stud. 14, 203−210.
97. 高井康雄. (1961). 水田土壌の還元と微生物代謝. 農業技術. 16, 1.
98. Tanaka, A., Navesero, S. A. (1966). Manganese content of rice plant under water culture conditions. Soil Sci. Plant Nutr. 12, 67−72.
99. 天正清, 箭木昭, 葉可霖. (1972). 土壌植物系におけるカドミウムの挙動に関するRI技法による検討. 土肥要旨集. 18, 50.
100. 寺沢四郎. (1970). 水田の落水後の水分状態, 第1報, 蒸発乾燥に伴う土壌水分吸引圧の変化. 土肥誌. 41, 383−388.
101. 寺島利男. (1973). マンガン過剰水田に関する研究. 福井県農業試験場特別報告. 5, 46.
102. 徳岡松雄, 魚秀辰. (1940). 水稲生育に対するマンガンの影響に就て. 土肥誌. 14, 335.
103. Truog, E. 谷田沢道彦訳. (1958). 植物栄養新説. 東京, 朝倉書店. P. 307.
104. 堤道雄, 大平幸次, 藤原彰夫. (1967). 腐植質火山灰土壌における銅欠乏について, 第1報, 大麦の生育に及ぼす銅およびその他の微量要素, 石灰, 堆肥の施用効果. 土肥誌. 38, 464.
105. 山県登, 水野直治. (1980). フィールドの化学. 東京, 産業図書. P. 16−26.
106. 山上良明, 水野直治, 鎌田賢一, 目黒孝司, 土岐和夫. (1975). 全含量と1N-HCl可溶抽出法による土壌中As含量の差異. 土肥要旨集. 21, PART II, 15.
107. Yamane, I., Kitagishi, K. (1981). Heavy metal pollution in soils of japan. Tokyo. Japan scientific societies. P. 17−26.
108. 山根一郎, 佐藤和夫. (1972). たん水土壌のEhにおよぼす硝酸塩, 硫酸塩, 二酸化マンガン添加の影響. 土肥誌. 43, 66−70.
109. Yamane, I., Sato, K. (1973). Effect of addition of some substances upon Eh-values in submerged soil. Rep. Inst. Agric. Res. Tohoku Univ. 24, 17−30.
110. 山崎伝. (1966). 微量要素と多量要素. 東京, 博友社. P. 273−286.
111. 山添文雄, 越野正義. (1970). クロム化合物の農作物による吸収, 第3報, 植物体中微量クロムの原子吸光光度法による定量. 農技研肥料化学科資料第138号. 1−29.
112. 横井義雄, 菊地晃二. (1977). 十勝地方におけるトウモロコシの亜鉛欠乏に関する研究, 第1報. 北農. 44, 7, 11−27.

Studies on the Problems of Heavy Metals in the Farmland of Hokkaido

by

Ken-ichi KAMADA

Summary

Defective soils, such as unweathered and infertile andosol, peat soil, and heavy clay, comprise about 90% of the farmland area in Hokkaido. However, the distribution of heavy metals has not been systematically examined until the present. In addition, there are complications of soil pollution by Cd, Cr, Mn, etc. caused by mine drainage, factory and waste matters, and accumulation of heavy metals from the use of sewage sludge on farmland. This paper attempts to clarify questions about heavy metals in Hokkaido's farmland.

1 Concentration distribution of the more important heavy metals.

Farming areas were classified by land category (upland, paddy, or orchard fields), soil group (upland fields-andosol, gray lowland, brown lowland, gray upland, brown forest, peat; paddy fields-glei, gray lowland, brown forest, glei and gray upland, peat), and by agricultural zone.

At first, total concentrations of heavy metals were studied. The concentrations of Pb and As in orchard fields were slightly higher than those of these metals in other fields. However, it is suggested that the concentrations of these metals, by agricultural chemicals such as lead arsenate, are lower in Hokkaido than in other prefectures. The density of Ni is high in central Hokkaido, a serpentine rock zone. In general, the density of Mn in paddy fields is lower than in upland fields. It is therefore suggested that solution and leaching of Mn is promoted by water-saturated conditions. Yet, Mn mines are common in hiyama, shiribeshi, oshima, and abashiri districts, and soils of high Mn density exist in these zones as well. Zn and Cu are generally lower concentrations in peat soils than in other soils.

Next was studied soluble concentrations of heavy metals. Though 0.1N HCl-soluble Zn shows little difference in density between upland and paddy fields, easily reducible Mn and 0.1N HCl-soluble Cu are generally lower concentration in upland fields than in paddy fields. It is suggested that there is more insoluble MnO_2 in upland fields than in paddy fields. The coefficient of variation of 0.1N HCl-soluble Cu is extremely large in andosols, brown forest soils and peat soils of upland fields. The density of 0.1N HCl-soluble Cu in these soils tends to be lower than that in the other soils.

2 Mn toxicity in rice plants

There are zones of high Mn concentration where there are mines in Hokkaido. However, Mn

concentration which causes Mn toxicity in rice plants has not been investigated up to the present. From the results of field studies and pot tests, it became clear that Mn toxicity in rice plants occurs when the amount of easily reducible Mn in air-dried soil is more than about 1000ppm, and when Mn concentration in shoots at harvest time is more than 3000-4000ppm. Mn concentration in shoots of rice plants and in soil solution increased through surface drainage from the blooming period on.

3 Cu deficiency in wheat plants.

With the increasing acreage of wheat in Hokkaido Cu deficiency has become a problem in various parts of Hokkaido since 1979. Cu deficiency was found in some andosols, brown forest soils and peat soils, whose total Cu concentration ranged from 5.5 to 22.0ppm. Sterility of wheat plants was seen in soils whose soluble Cu concentration (soil : 0.1N HCl ratio, 1 : 5) was lower than 0.15ppm (mineral soils) or 0.20-0.25ppm (peat soils). It was difficult to determine Cu deficiency from the concentration of Cu in the tops of wheat plants. On the other hand, it was found that wheat plants deficient in Cu tended to have a high concentration of Fe. The Cu: Fe ratio in all wheat plants which became sterile through Cu deficiency was 0.003 to 0.01, whereas the same ratio in fructiferous wheat plants was mostly 0.01 to 0.1. Application of $CuSO_4 \cdot 5H_2O$ 4 kg／10a to Cu-deficient soils resulted in healthy wheat plant growth.

4 Cd pollution in paddy soil.

Soils which were polluted by Cd were found in some parts of paddy fields in shiribeshi district. From the result of field studies, though a soil dressing of 20cm and soil turning tillage effects a remarkable decrease of Cd concentration in brown rice, application of soil amendment inputs has little effect. Treatment to retard surface drainage has a little effect in decreasing Cd concentration in brown rice. The distribution of Cd in brown rice was about 20% in the bran layer and about 80% in the endosperm. The mobility ratios of metals were Zn 10.0: Cd 6.1: Cu 3.9 in paddy soil polluted by irrigation water.

5 Cr^{6+} pollution in paddy soil.

Recently, leaching of Cr^{6+} from furnace slag has become a serious problem, and injury to rice plants by Cr^{6+} is anticipated, too. The degree of toxicity in rice plant by Cr^{6+} varies with soil type, soil conditions, and growing times. Cr^{6+} is more toxic than Cr^{3+} in the growth of rice plants. Injury by Cr^{6+} to rice plant appears from a Cr^{6+} concentration of about 80ppm in gravelly soil, but it does not appear until there are high concentrations of Cr^{6+} in lowland soils because Cr^{6+} is reduced to Cr^{3+} in proportion to the reducible ratio of submerged soil. Injury by Cr^{3+} to the growth of rice plants did not occur until a concentration of 400ppm in this experiment. Therefore, injury by Cr^{6+} to rice plants can be avoided by application of organic matter, etc. Cr^{6+} concentration in irrigation water causes growth damage when above 1-5ppm during the transplanting period and when above 20ppm during 30 days after transplantation.

6 Accumulation of heavy metals by application of sewage sludge in farmland.

Accumulation of heavy metals in farmland becomes a serious problem in the case of continuous application of sewage sludge because the concentrations of heavy metals in sewage sludge are higher than in the other manures. In general, the relative concentrations of heavy metals in sewage sludge are Mn · Zn > Cu > Cr > Pb > Ni > As > Hg · Cd, and the coefficients of variation of Cd, Hg and As are higher than those of the other heavy metals. The ratios of accumulation of heavy metals in soil together with application of sewage sludge were relatively Zn > Hg > Cu.

Forms of Zn in sewage sludge are mainly organic-bound in polyion sewage sludge and mainly carbonates and organic-bound in calcareous sewage sludge. These forms of Zn increased in the soils where sewage sludge was applied. The amounts of exchangeabl-adsorbed Zn were gradually increasing in the soils where polyion sewage sludge was applied and were decreasing in the soils where calcareous sewage sludge was applied. Therefore, it was recognized that the influence of accumulated heavy metals on crops is more serious in polyion sewage sludge than in calcareous sewage sludge.

The amount of sewage sludge to be applied should be determined by the heavy metal concentrations in the soils and sludges. In the present case an upper value for Zn concentration was 120ppm in Hokkaido's farmland. This figure should be a standard for determining the amount of sewage sludge to be applied.