

3 汚泥肥料の連用によるカドミウム等の土壌への

蓄積, 作物への吸収試験(継続)

—2021年冬作・2022年夏作—

小林涼斗¹, 増井亮太², 日比野洋¹, 阿部文浩¹, 浅尾直紀³

キーワード 汚泥肥料, 連用試験, カドミウム

1. はじめに

肥料の公定規格¹⁾では汚泥肥料中の含有を許されるカドミウム(Cd)の最大量(以下、「含有許容値」という。)は0.0005%と定められており, 汚泥肥料はこの範囲内において流通, 施用されている。仮に汚泥肥料中のカドミウム濃度が含有許容値に達しなくとも, 長期の汚泥肥料の連用により土壌に負荷されたカドミウムが蓄積し, 更に長期に施用すると土壌の保持力を超えて農作物へ移行し, 人畜に有害な農作物が生産されることが懸念されている。2009年3月に農林水産省から発表された「汚泥肥料の規制のあり方に関する懇談会報告書」²⁾において, 「3 将来実施することが必要な調査研究課題」として, カドミウム含有許容値の科学的知見を集積するため, 「汚泥肥料の連用により通常に比べカドミウムの蓄積が進んでいる土壌を活用し, カドミウムを吸収しやすい農作物を栽培し, 植物への吸収の有無, 程度を調べる必要がある」と記載された。このことから, 肥料の有効性及び安全の確保に必要な課題に関する調査研究として, 汚泥肥料の連用施用試験を実施し, カドミウムの土壌への蓄積量及び作物体への吸収量を確認している。

1年目(2009年)夏作から13年目(2021年)夏作にかけては, 汚泥肥料を施用した区及び施用していない区の2試験区を設け, ニンジン, ホウレンソウ, ホウレンソウ, チンゲンサイ, カブ, ホウレンソウ, 以後ニンジン, ホウレンソウの繰返しの順で栽培し, 土壌中のカドミウム濃度の変化及び作物体のカドミウム吸収量を確認した。その結果は既に肥料研究報告第4号³⁾~15号⁴⁾で報告しているが, 引き続き, 13年目(2021年)冬作及び14年目(2022年)夏作においても栽培試験を実施したのでその結果を報告する。

また, 施用している汚泥肥料由来の土壌に蓄積し得る全カドミウム濃度に対して, 実際に測定した跡地土壌の全カドミウム濃度に乖離があることから, 当試験区において土壌中のカドミウムが垂直方向へどの程度移動し, 全カドミウム濃度の乖離に影響を与えているのかを調査したのでその結果も併せて報告する。

¹ 独立行政法人農林水産消費安全技術センター肥飼料安全検査部

² 独立行政法人農林水産消費安全技術センター肥飼料安全検査部 (現)神戸センター

³ 独立行政法人農林水産消費安全技術センター肥飼料安全検査部 (現)名古屋センター

2. 材料及び方法

1) 肥料等

施肥する肥料は市販されているし尿汚泥肥料を使用した。成分分析結果は Table 1 のとおり。

標準区に施肥する肥料及び汚泥肥料施用区で補正肥料として特級試薬の尿素, リン酸二水素アンモニウム及び塩化カリウムを使用した。汚泥肥料及び補正肥料の各成分の分析は肥料等試験法⁵⁾によった(補正肥料の成分量は Table 2 に示した)。その他, 塩基バランスの改善のため苦土石灰(炭酸カルシウム肥料)を使用した。

Table 1 Properties of sludge fertilizer

Item	Unit	Content	Item	Unit	Content
Total nitrogen	% ^{a)}	5.5	Moisture	% ^{a)}	11.2
Total phosphoric acid ^{b)}	% ^{a)}	4.7	Total copper	mg/kg	329
Citric acid-soluble phosphoric acid ^{b)}	% ^{a)}	2.2	Total zinc	mg/kg	1038
Total potassium ^{c)}	% ^{a)}	0.4	Carbon to nitrogen ratio	-	6.3
Total calcium ^{d)}	% ^{a)}	1.4	Total cadmium ^{e)}	mg/kg	2.8 ^{f)}
Organic carbon	% ^{a)}	36.0	Acid-solubility-cadmium ^{g)}	mg/kg	1.8

a) Mass fraction

b) Content as P₂O₅

c) Content as K₂O

d) Content as CaO

e) Content of cadmium dissolved with aqua regia

f) 3.2 mg/kg in the dry matter

g) Content of cadmium dissolved with 0.1 mol/L hydrochloric acid

Table 2 Properties of reagent

Item	Unit	Urea	Ammonium dihydrogen phosphate	Potassium chloride
Total nitrogen	% ^{a)}	46.1	12	—
Total phosphorus ^{b)}	% ^{a)}	—	61	—
Total potassium ^{c)}	% ^{a)}	—	—	63.1

a) Mass fraction

b) Content as P₂O₅

c) Content as K₂O

2) 土壌の理化学性

本試験は当センター岩槻圃場(埼玉県さいたま市)で実施した。土壌の種類は黒ボク土であり、土性は軽しよく土である。1年目夏作から14年目夏作までの収穫後の跡地土壌について、pH、電気伝導率(Electrical Conductivity, 以下 EC と記す)、陽イオン交換容量(Cation Exchange Capacity, 以下 CEC と記す)、窒素全量(Total Nitrogen, 以下 TN と記す)、炭素全量(Total Carbon, 以下 TC と記す)、有効態りん酸、交換性加里、交換性石灰及び交換性苦土の測定結果を Fig.1 に示した。

pHは、土壌中のカドミウム蓄積量に与える影響が大きいため、pH6.5付近となるように、試験開始から3年目、5年目、6年目及び7年目に消石灰を用いてpH調整を行った。7年目冬作から11年目夏作までpH6.4程度で安定して推移していたが、11年目冬作、12年目夏作とpH6.0付近に下がったため、13年目及び14年目夏作の播種前に炭酸カルシウム肥料(苦土石灰)を用いてpH調整を実施し、6.5付近まで回復した。

ECは、試験開始以降、0.1 mS/cm~0.2 mS/cmの範囲で上昇傾向を示していたことから、6年目の夏作以降、窒素肥料として使用していた硫酸アンモニウムを尿素に変更した結果、上昇傾向から転じて0.1前後で安定した推移を示している。

有効態りん酸は、地力増進基本指針において黒ボク土における有効態りん酸含有量の目標値が乾土100g当たり10mg以上100mg以下と定められているのに対して、試験開始時から10mg以下で推移していたことから、りん酸肥料の施肥量を調整したところ、8年目冬作以降は10mg以上を推移している。

11年目夏作跡地土壌の理化学性を確認したところ、主要農作物施肥基準(埼玉県)⁶⁾に記された土壌管理目標値を参考として、土壌中の交換性塩基3成分(交換性加里、交換性石灰、交換性苦土)のうち、交換性苦土の成分が低い傾向が見られたため、12年目夏作及び冬作播種前に硫酸マグネシウムを施肥することにより、交換性塩基のバランスの改善を図った。また、13年目及び14年目夏作播種前にpH調整も兼ねて炭酸カルシウム肥料(苦土石灰)を施用し、不足している苦土成分を補填したところ、交換性苦土は基準値下限付近まで回復した。

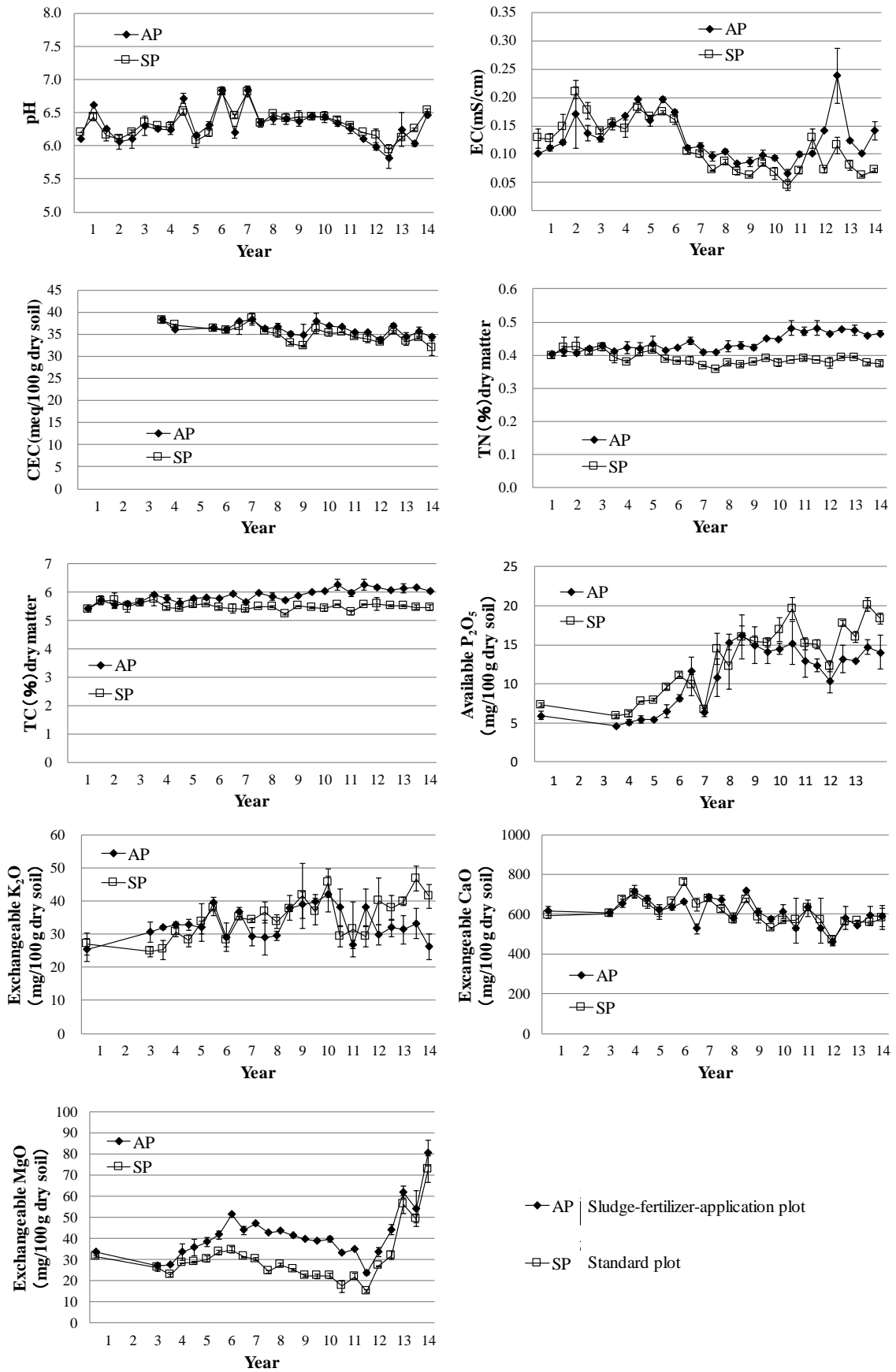


Fig.1 Transition of the characteristics of the soil

3) 試験区の構成

試験区は1試験区の面積を4 m²(縦2 m×横2 m)とし、汚泥肥料施用区及び標準区それぞれ2反復の計4試験区を配置した。

4) 施肥設計

13年目冬作ホウレンソウ及び14年目夏作ニンジン⁹の施肥設計をTable 3-1及びTable 3-2に示した。施肥設計は、主要農作物施肥基準(埼玉県)を参考に設計した。

汚泥肥料は、汚泥肥料中の重金属の農地への蓄積を抑制するために、施用量の上限の目安を年間500 kg/10 a～1000 kg/10 aとしている^{7~9}自治体があり、一般的に1作当たり500 kg/10 a程度施用されている¹⁰。また、高分子凝集剤を使用した汚泥肥料を連用した場合、土壌のpHが低下する¹¹。これらから、4年目夏作から11年目冬作までの試験において、1作あたりの汚泥肥料の施用量を500 kg/10 aとした。しかしながら、本試験の目的の一つである土壌への蓄積量を確認するには供試汚泥肥料中のカドミウム濃度が低いため、本試験の12年目夏作以降における汚泥肥料の施用量は1作当たり750 kg/10 aとした。汚泥肥料の窒素の無機化率は、前作までの収量を考慮して決定しており、12年目夏作以降、冬作は20%、夏作は40%として窒素の成分量を算出し、不足分については尿素を用いて補正した。

りん酸については、地力増進基本指針¹²における有効態りん酸の改善目標下限値(10 mg/100g 乾土)を満たすように設計した。なお、供試肥料である汚泥肥料は溶出率を考慮し、含有する可溶性りん酸の値を設計に用い、加里については、主要農作物施肥基準のとおり設計した。なお、これまでの試験における施肥履歴をTable 4に示した。

Table 3-1 The fertilization amount (spinach in winter 13th)

Types of fertilizer	Amounts (g/4 m ²)	Components (g/4 m ²)				Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)			
		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>										
Sludge fertilizer	3000	164	142	12	0.0085	750	41	36	3	0.0021
Urea	93	43	—	—	—	23	11	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	35	4	21	—	—	9	1	5	—	—
Potassium chloride	94	—	—	60	—	24	—	—	15	—
Total		211	164	72	0.0085		53	41	18	0.0021
<Standard plot (SP)>										
Urea	136	63	—	—	—	34	16	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	144	17	88	—	—	36	4	22	—	—
Potassium chloride	114	—	—	72	—	29	—	—	18	—
Total		80	88	72	—		20	22	18	—

Table 3-2 The fertilization amount (carrot in summer 14th)

Types of fertilizer	Amounts (g/4 m ²)	Components (g/4 m ²)					Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)				
		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	MgO	Cd		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	MgO	Cd
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>												
Sludge fertilizer	3000	164	142	12	—	0.0085	750	41	36	3	—	0.0021
Urea	15	7	—	—	—	—	4	2	—	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	29	3	17	—	—	—	7	1	4	—	—	—
Potassium chloride	82	—	—	52	—	—	20	—	—	13	—	—
Magnesium lime	800	—	—	—	136	0.0008	200	—	—	—	34	0.0002
Total		174	160	64	136	0.0093		44	40	16	34	0.0023
<Standard plot (SP)>												
Urea	129	59	—	—	—	—	32	15	—	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	138	17	84	—	—	—	34	4	21	—	—	—
Potassium chloride	101	—	—	64	—	—	25	—	—	16	—	—
Magnesium lime	800	—	—	—	136	0.0008	200	—	—	—	34	0.0002
Total		76	84	64	136	0.0008		19	21	16	34	0.0002

Table 4 The fertilizer application log of the test plots

Year	Season	Crop	Types of fertilizer	<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>				<Standard plot (SP)>				
				Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)				Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)		
				N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd
1st	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	332	11	17	1	0.0012	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	52	11	—	—	—	104	22	—	—
			Potassium dihydrogen phosphate	3	—	2	1	—	36	—	19	12
			Potassium chloride	28	—	—	18	—	12	—	—	8
			Total		22	19	20	0.0012		22	19	20
1st	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	302	10	16	1	0.0011	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	47	10	—	—	—	95	20	—	—
			Potassium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	30	—	16	10
			Potassium chloride	27	—	—	17	—	12	—	—	8
			Total		20	16	18	0.0011		20	16	18
2nd	Summer	Spinach	Sludge fertilizer	227	8	12	1	0.0008	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	36	8	—	—	—	71	15	—	—
			Potassium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	23	—	12	8
			Potassium chloride	15	—	—	9	—	3	—	—	2
			Total		15	12	10	0.0008		15	12	10
2nd	Winter	Qing	Sludge fertilizer	181	6	9	1	0.0007	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	28	6	—	—	—	57	12	—	—
			Potassium dihydrogen phosphate	5	—	3	2	—	23	—	12	8
			Potassium chloride	15	—	—	10	—	6	—	—	4
			Total		12	12	12	0.0007		12	12	12
3rd	Summer	Turnip	Sludge fertilizer	227	8	12	1	0.0008	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	33	7	—	—	—	57	12	—	—
			Potassium dihydrogen phosphate	6	1	3	—	—	24	3	15	—
			Potassium chloride	22	—	—	14	—	24	—	—	15
			Total		15	15	15	0.0008		15	15	15
3rd	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	483	16	25	2	0.0018	—	—	—	—
			Urea	22	10	—	—	—	43	20	—	—
			Potassium dihydrogen phosphate	1	—	1	1	—	50	—	26	17
			Potassium chloride	25	—	—	16	—	1	—	—	1
			Slaked lime (pH adjustment)	176	—	—	—	—	216	—	—	—
			Total		26	26	18	0.0018		20	26	18
4th	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	65	14	—	—	—	80	17	—	—
			Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—
			Potassium chloride	29	—	—	18	—	32	—	—	20
			Fused magnesium phosphate	50	—	10	—	—	50	—	10	—
			Total		30	36	20	0.0018		22	36	20
4th	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	71	15	—	—	—	71	15	—	—
			Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—
			Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18
			Fused magnesium phosphate	50	—	10	—	—	50	—	10	—
			Total		32	36	18	0.0018		20	36	18
5th	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	81	17	—	—	—	80	17	—	—
			Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—
			Potassium chloride	29	—	—	18	—	32	—	—	20
			Fused magnesium phosphate	50	—	10	—	—	50	—	10	—
			Total		34	36	20	0.0018		22	36	20
5th	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	87	18	—	—	—	71	15	—	—
			Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—
			Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18
			Fused magnesium phosphate	250	—	25	—	—	250	—	25	—
			Slaked lime (pH adjustment)	196	—	—	—	—	218 ^{a)}	—	—	—
			Total		35	51	18	0.0018		20	51	18
6th	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—
			Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—
			Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—
			Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16
			Fused magnesium phosphate	291	—	58	—	—	33	—	7	—
			Slaked lime (pH adjustment)	—	—	—	—	—	196	—	—	—
			Total		27	84	16	0.0018		19	33	16
6th	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—
			Urea	25	11	—	—	—	34	16	—	—
			Ammonium dihydrogenphosphate	71	9	43	—	—	36	4	22	—
			Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18
			Total		37	70	18	0.0018		20	22	18

Year	<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>						<Standard plot (SP)>				
Season	Types of fertilizer	Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)				Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)			
Crop			N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd
7th Summer Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—	
	Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—	
	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
	Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16	
	Slaked lime (pH adjustment)	196	—	—	—	—	—	—	—	—	
Total			27	26	16	0.0018	—	19	26	16	—
7th Winter Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—	
	Urea	21	10	—	—	—	15	7	—	—	
	Ammonium dihydrogenphosphate	72	9	44	—	—	109	13	67	—	
	Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18	
	Total			35	70	18	0.0018	—	20	67	18
8th Summer Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—	
	Urea	—	—	—	—	—	30	14	—	—	
	Ammonium dihydrogenphosphate	89	11	54	—	—	42	5	26	—	
	Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16	
	Total			27	80	16	0.0018	—	19	26	16
8th Winter Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—	
	Urea	36	17	—	—	—	32	15	—	—	
	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—	
	Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18	
	Total			33	26	18	0.0018	—	20	26	18
9th Summer Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—	
	Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—	
	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—	
	Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16	
	Total			27	26	16	0.0018	—	19	26	16
9th Winter Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—	
	Urea	36	17	—	—	—	32	15	—	—	
	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—	
	Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18	
	Total			33	26	18	0.0018	—	20	26	18
10th Summer Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	0.0018	—	—	—	—	
	Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—	
	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—	
	Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16	
	Total			27	26	16	0.0018	—	19	26	16
10th Winter Spinach	Sludge fertilizer	500	29	24	2	0.0014	—	—	—	—	
	Urea	31	14	—	—	—	33	15	—	—	
	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	39	5	24	—	
	Potassium chloride	25	—	—	16	—	29	—	—	18	
	Total			43	24	18	0.0014	—	20	24	18
11th Summer Carrot	Sludge fertilizer	500	29	24	2	0.0014	—	—	—	—	
	Urea	10	5	—	—	—	31	14	—	—	
	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	39	5	24	—	
	Potassium chloride	22	—	—	14	—	25	—	—	16	
	Total			33	24	16	0.0014	—	19	24	16
11th Winter Spinach	Sludge fertilizer	500	29	24	2	0.0014	—	—	—	—	
	Urea	31	14	—	—	—	33	15	—	—	
	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	39	5	24	—	
	Potassium chloride	25	—	—	16	—	29	—	—	18	
	Total			43	24	18	0.0014	—	20	24	18
12th Summer Carrot	Sludge fertilizer	750	41	36	3	0.0021	—	—	—	—	
	Urea	6	3	—	—	—	34	16	—	—	
	Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	27	3	17	—	
	Potassium chloride	20	—	—	13	—	25	—	—	16	
	Magnesium sulfate	25	—	—	—	—	25	—	—	—	
Total			44	36	16	0.0021	—	19	17	16	—
12th Winter Spinach	Sludge fertilizer	750	41	36	3	0.0021	—	—	—	—	
	Urea	23	11	—	—	—	34	16	—	—	
	Ammonium dihydrogen phosphate	9	1	5	—	—	36	4	22	—	
	Potassium chloride	24	—	—	15	—	29	—	—	18	
	Magnesium sulfate	25	—	—	—	—	25	—	—	—	
Total			53	41	18	0.0021	—	20	22	18	—

Year	Season	Types of fertilizer	<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>				<Standard plot (SP)>				
			Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)			Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)			
Crop			N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd	N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd	
13th	Summer	Sludge fertilizer	750	41	36	3	0.0021	—	—	—	—
		Urea	4	2	—	—	—	32	15	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogen phosphate	7	1	4	—	—	34	4	21	—
		Potassium chloride	20	—	—	13	—	25	—	—	16
		Magnesium lime (pH adjustment)	200	—	—	—	0.0002	200	—	—	—
		Total		44	40	16	0.0023		19	21	16
											0.0002
13th	Winter	Sludge fertilizer	750	41	36	3	0.0021	—	—	—	—
		Urea	23	11	—	—	—	34	16	—	—
	Spinach	Ammonium dihydrogen phosphate	9	1	5	—	—	36	4	22	—
		Potassium chloride	24	—	—	15	—	29	—	—	18
		Total		53	41	18	0.0021		20	22	18
											—
14th	Summer	Sludge fertilizer	750	41	36	3	0.0021	—	—	—	—
		Urea	4	2	—	—	—	32	15	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogen phosphate	7	1	4	—	—	34	4	21	—
		Potassium chloride	20	—	—	13	—	25	—	—	16
		Magnesium lime (pH adjustment)	200	—	—	—	0.0002	200	—	—	—
		Total		44	40	16	0.0023		19	21	16
											0.0002

a) The average value of the two district for changing the amount used by each of the experimental plot (SP-1:240 kg, SP-2:196 kg)

5) 栽培方法

栽培の概要は Table 5 のとおり。施肥は、各試験区の表層土約 12 kg を袋に採り、Table 3-1, 3-2 の施肥設計にしたがって肥料を加えて混合し、各試験区表層に均等に散布した。なお、各試験区の周辺 1 m の部分(ガードプランツ)には、標準区の施肥設計と同じ割合で施肥した。その後、耕耘機を用いて深さ約 15 cm まで耕耘した。

農薬は播種する前にヨトウガの幼虫等の害虫防除を目的としたダイアジノン粒剤を散布し、深さ約 15 cm まで耕耘して表面を平らにならした後、試験区内を 9 条(条間約 20 cm)間隔でシーダーテープ加工された種子を播種した。なお、ニンジン栽培時には黒葉枯病対策として殺菌剤のダコニール 1000 を使用した。

Table 5 Cultivation summary

	Spinach	Carrot
Species	Mirage	Koigokoro
Fertilization	2021.10.7	2022.4.11
Pesticide application	10.7	4.18
Fungicide application	-	6.16
Seeding	10.15	4.18
Thinning (first)	10.29	5.19
Thinning (scond)	11.12	5.30
Harvest	2022.2.17	8.3
Cultivation period	125 days	107 days

6) 作物体の前処理

ホウレンソウの葉部(可食部)を収穫した後、土壌を払い落とし、作物体の重量を試験区毎に測定した。さらに、試験区中央の 1 m² 分全てを、水道水、イオン交換水の順に洗浄し、ガラス室で自然乾燥した後に通風乾燥器にて 65 °C で一昼夜乾燥した。

ニンジンについては根についた土壌を水道水で洗い落とし、セラミック製包丁を用いて葉部と根部(可食部)に切断し、それぞれの重量を試験区毎に測定した。さらに、試験区中央の 1 m² 分全てを、水道水、イオン交換水

の順に洗浄し、葉部はガラス室で自然乾燥した後に通風乾燥器にて 65 °Cで一昼夜乾燥した。根部はセラミック製包丁を用いて細かく切断した後、通風乾燥器にて 65 °Cで一昼夜乾燥した。

乾燥した試料を目開き 500 μm のふるいを通過するまで粉砕機(ZM200:Retsch ローター回転数 6000 rpm)で粉砕し分析用試料とした。

7) 作物体のカドミウム分析

分析試料 0.5 g に硝酸 4 mL 及び過酸化水素水 1 mL を加えマイクロ波分解装置(ETHOS EASY:マイルストーンゼネラル株式会社)で分解¹³⁾したもの(未分解残渣が生じる場合は、さらに硝酸 1 mL を加えて処理)を 50 mL に定容し、ICP 質量分析装置(iCAP RQ :Thermo Fisher Scientific)を用いて測定した。

8) 跡地土壌の分析

収穫後、跡地土壌を対角線採土法¹⁴⁾により採取した。各試験区の作物体を収穫した場所と同じ試験区中央 1 m² の四隅及び中央の計 5 か所より、採土器(内径 50 mm×長さ 250 mm)を用いて表層から約 15 cm まで採取、混合した。通風乾燥器を用いて 45 °Cで一晩以上乾燥させ、目開き 2 mm のふるいを通過したものを分析用試料とした。

土壌中の全カドミウムは、分析試料 0.5 g に、硝酸約 5 mL、過酸化水素水約 2 mL、及びフッ化水素酸約 1 mL を加え、マイクロ波分解装置により分解した後、硝酸 1 mL、過塩素酸 1 mL を加え再度マイクロ波分解装置により分解し、試料溶液とした。測定は ICP 質量分析装置により行った。

0.1 mol/L 塩酸可溶カドミウム(0.1 mol/L HCl-Cd)は、分析試料 10 g に対し 0.1 mol/L HCl 50 mL を加え、約 30 °Cに保ちながら 1 時間振り混ぜて抽出した試料液について ICP 質量分析装置を用いて測定した¹⁵⁾。

9) 跡地土壌の垂直方向のカドミウム分析

13 年目の冬作跡地土壌(汚泥肥料施用区 2 区、標準区 2 区)の 5 cm 毎のカドミウム濃度を確認するため上記 2. 8) で示した方法で採土器に目印を付け 0 cm から 5 cm の土壌を採取後、同じ採土穴より 5 cm から 10 cm、10 cm から 15 cm、15 cm から 20 cm をそれぞれ採取した。通風乾燥器を用いて 45 °Cで一晩乾燥後、目開き 2 mm のふるいを通過し混合したものを分析用試料とした。

分析試料 0.5 g に、硝酸約 5 mL、過酸化水素水約 2 mL、及びフッ化水素酸約 1 mL を加え、マイクロ波分解装置により分解した後、硝酸 1 mL、過塩素酸 1 mL を加え再度マイクロ波分解装置により分解し、試料溶液とした。測定は ICP 質量分析装置により行った。

3. 結果及び考察

1) 冬作ホウレンソウ

(1) 作物体の収量、カドミウム濃度

13 年目冬作ホウレンソウの結果を Table 6 に示した。

収量は、汚泥肥料施用区で 12.1 kg、標準区で 11.8 kg であり、標準区に対する汚泥肥料施用区の収量指数は 103 であった。1 年目から 13 年目の冬作の収量の推移を Fig.2 に示した。ホウレンソウ現物中のカドミウム濃度は、汚泥肥料施用区で 0.081 mg/kg、標準区で 0.054 mg/kg であった。1 年目から 13 年目のホウレンソウ現物中のカドミウム濃度の推移は Fig.3-1 に示したとおり、食品規格委員会(以下、「Codex 委員会」という。)が定める基準値¹⁷⁾(0.2 mg/kg)に対して低い濃度で推移していた。

また、ホウレンソウ乾物中のカドミウム濃度について各区を比較したところ、汚泥肥料施用区で 0.53 mg/kg、標準区で 0.33 mg/kg であり、汚泥肥料施用区が有意に高い結果であった ($p=9.4 \times 10^{-6}$)。

汚泥肥料の連用によるホウレンソウ乾物中のカドミウム濃度の推移を Fig.3-2 に示した。1 年目から 13 年目までを回帰分析したところ、汚泥肥料施用区及び標準区共に増加傾向は認められなかった。

Table 6 Yield of spinach (edible portion) and Cadmium concentration (winter 13th)

	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Yield index ^{a)}	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>								
Fresh weight	kg	12.1		12.0		12.1	103	-
Cadmium concentration (fresh matter)	mg/kg	0.080	0.078	0.083	0.083	0.081		-
Cadmium concentration (dry matter)	mg/kg	0.52	0.51	0.55	0.55	0.53		Significance ^{b)}
<Standard plot (SP)>								
Fresh weight	kg	11.8		11.7		11.8		
Cadmium concentration (fresh matter)	mg/kg	0.055	0.059	0.050	0.051	0.054		
Cadmium concentration (dry matter)	mg/kg	0.33	0.36	0.31	0.31	0.33		

a) Yield of Standard plot was indexed as 100

b) It was significantly different for standard plot (two-way ANOVA 5 % of both sides levels of significance, n=4 (2×2) (repetition × number of samples))

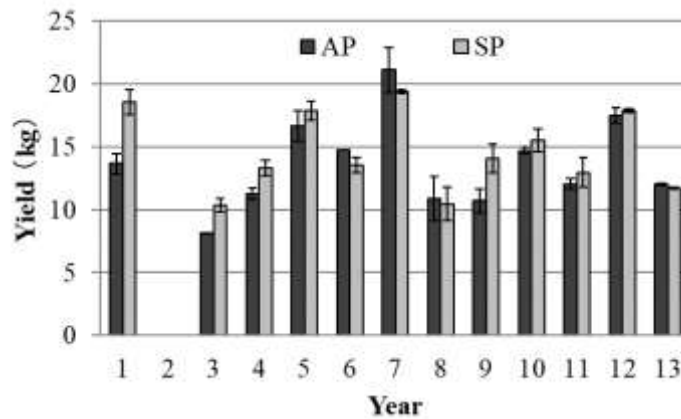


Fig.2 The yield of the spinach in winter (Note: 2nd year (qinggengcai))

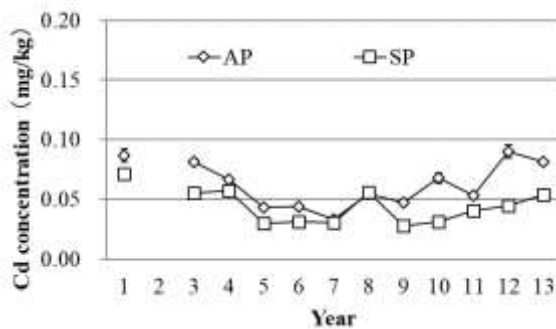


Fig.3-1 Cd concentration (content in the fresh matter) in spinach (Note: 2nd year (qinggengcai))

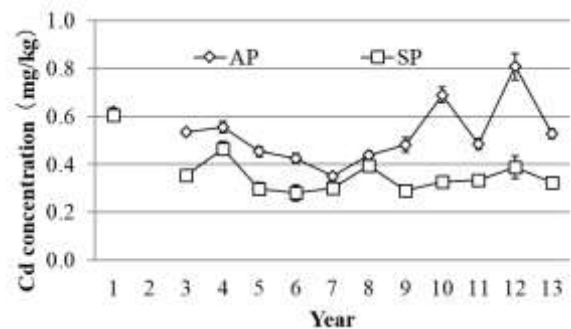


Fig.3-2 Cd concentration (content in the dry matter) in spinach (Note: 2nd year (qinggengcai))

(2) 跡地土壌のカドミウム

13年目冬作ホウレンソウ跡地土壌の0.1 mol/L HCl-Cd, pH(H₂O)及びECを分析した結果をTable 7に示した。0.1 mol/L HCl-Cdは、汚泥肥料施用区は0.28 mg/kg, 標準区は0.16 mg/kgであり、汚泥肥料施用区で有意に高かった($p=7.9 \times 10^{-5}$)。

Table 7 Characteristics of cultivated soil (winter 13th)

	Unit	Test prot-1		Test prot-2		Average	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>							
0.1 mol/L HCl-Cd ^{a)}	mg/kg	0.26	0.29	0.27	0.28	0.28	Significance ^{d)}
pH (H ₂ O) ^{b)}		6.0		6.0			-
EC ^{c)}	mS/cm	0.10		0.10			-
<Standard plot(SP)>							
0.1 mol/L HCl-Cd	mg/kg	0.16	0.15	0.16	0.16	0.16	
pH (H ₂ O)		6.3		6.2			
EC	mS/cm	0.06		0.06			

a) Content of cadmium dissolved with 0.1 mol/L hydrochloric acid in the drying soil

b) Soil pH determined on 1 : 5 (soil : water) suspensions with a glass electrode, $n=2$

c) Soil electrical conductivity determined on 1 : 5 (soil : water) suspensions with an electrical conductivity meter, $n=2$

d) It was significantly different for standard plot (two-way ANOVA 5 % of both sides levels of significance, $n=4 (2 \times 2)$ (repetition \times number of samples))

2) 夏作ニンジン

(1) 作物体の収量, カドミウム濃度

14年目夏作ニンジンの結果をTable 8に示した。

収量は、汚泥肥料施用区で17.1 kg(根部12.5 kg, 葉部4.7 kg), 標準区で17.0 kg(根部12.2 kg, 葉部4.8 kg)であり、標準区に対する汚泥肥料施用区の収量指数は101(根部102, 葉部97)であった。

1年目から14年目における夏作の収量の推移をFig.4-1(葉部), Fig.4-2(根部)に示した。昨年13年目のニンジン栽培期間は天候不順で雨が降り続き、高気温の日が続いた。その影響から試験区で黒葉枯病と思われる症状が発生し、葉が黄化した後、枯死する個体が見られたため、14年目夏作の際は殺菌剤による防除対策を行った。さらに、播種時期を昨年よりも1ヶ月ほど早めて栽培を行った結果、汚泥肥料施用区、標準区の両区において根部収量は例年よりも多くなった。

ニンジン現物中のカドミウム濃度は、汚泥肥料施用区で根部0.021 mg/kg, 葉部0.041 mg/kgであり、標準区で根部0.017 mg/kg, 葉部0.026 mg/kgであった。

Codex委員会によって根菜類の基準値¹⁶⁾(0.1 mg/kg)は可食部の根部について定められている。ニンジン現物中のカドミウム濃度はFig.5-1に示したが、根部のカドミウム濃度は基準値に対し、低い濃度で推移していた。ニンジン乾物中のカドミウム濃度について各区を比較したところ、汚泥肥料施用区で根部0.16 mg/kg, 葉部0.21 mg/kg, 標準区で根部0.13 mg/kg, 葉部0.14 mg/kgであり、根部($p=3.2 \times 10^{-4}$), 葉部($p=1.2 \times 10^{-5}$)の両部位で汚泥肥料区が有意に高い結果であった。

汚泥肥料の連用によるニンジン乾物中のカドミウム濃度の推移はFig.5-2に示した。

Table 8 Yield of carrot and Cadmium concentration (summer 14th)

	Part	Unit	Test plot-1	Test plot-2	Average	Yield index ^{a)}	Significance test	
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>								
Fresh weight	Root	kg	12.4	12.5	12.5	102	-	
	Leaf	kg	5.2	4.1	4.7	97	-	
	Total	kg	17.6	16.6	17.1	101	-	
Cadmium concentration (fresh matter)	Root	mg/kg	0.017	0.020	0.023	0.022	0.021	-
	Leaf	mg/kg	0.035	0.034	0.047	0.046	0.041	-
Cadmium concentration (dry matter)	Root	mg/kg	0.13	0.15	0.19	0.18	0.16	Significance ^{b)}
	Leaf	mg/kg	0.20	0.19	0.22	0.22	0.21	Significance
<Standard plot (SP)>								
Fresh weight	Root	kg	11.5	12.8	12.2			
	Leaf	kg	4.8	4.8	4.8			
	Total	kg	16.3	17.6	17.0			
Cadmium concentration (fresh matter)	Root	mg/kg	0.018	0.018	0.015	0.015	0.017	
	Leaf	mg/kg	0.028	0.028	0.023	0.024	0.026	
Cadmium concentration (dry matter)	Root	mg/kg	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13	
	Leaf	mg/kg	0.16	0.15	0.13	0.13	0.14	

a) Yield of Standard plot was indexed as 100

b) It was significantly different for standard plot (two-way ANOVA 5 % of both sides levels of significance, n=4 (2×2) (repetition × number of samples))

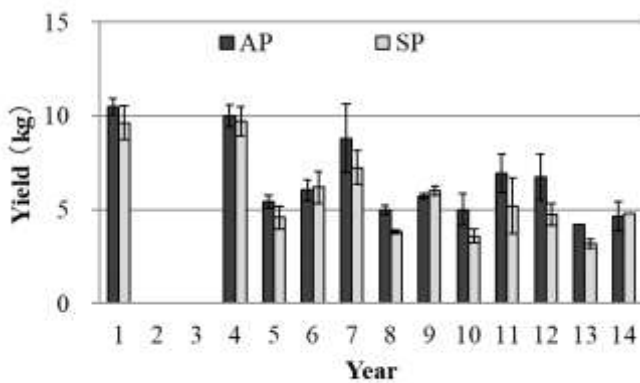


Fig.4-1 The yield of the carrot (leaf) in summer (Note: 2nd year (spinach), 3rd year (trunip))

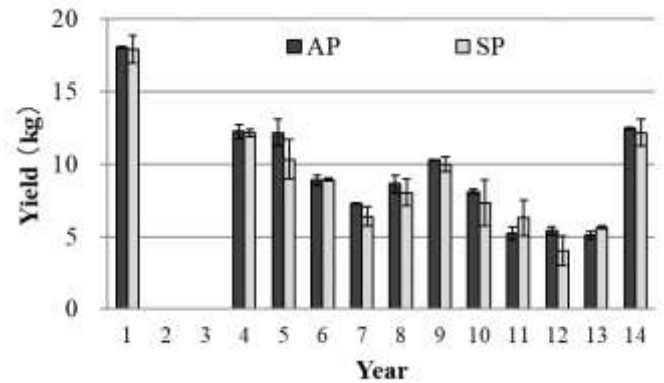


Fig.4-2 The yield of the carrot (root) in summer (Note: 2nd year (spinach), 3rd year (trunip))

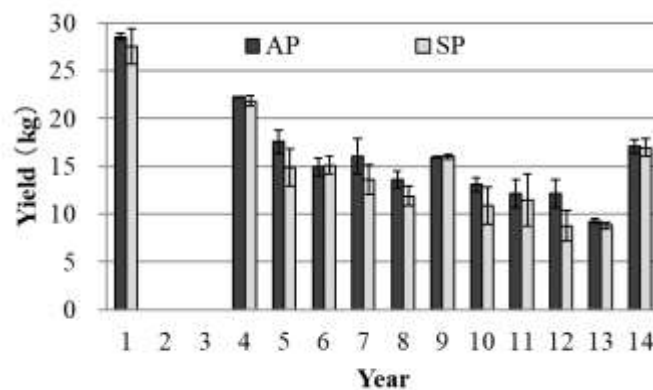


Fig.4-3 The yield of the carrot (total) in summer (Note: 2nd year (spinach), 3rd year (trunip))

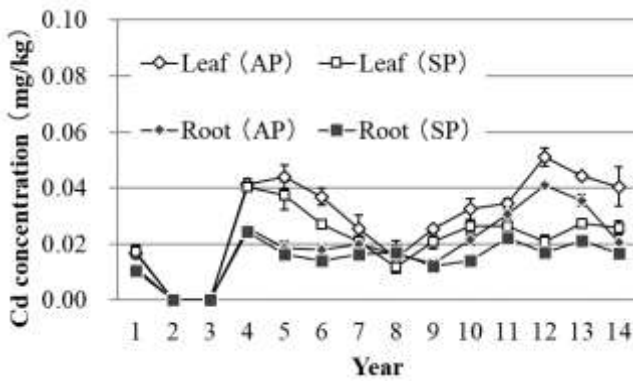


Fig.5-1 Cd concentration (content in the fresh matter) in carrot(Note: 2nd year (spinach), 3rd year (trunip))

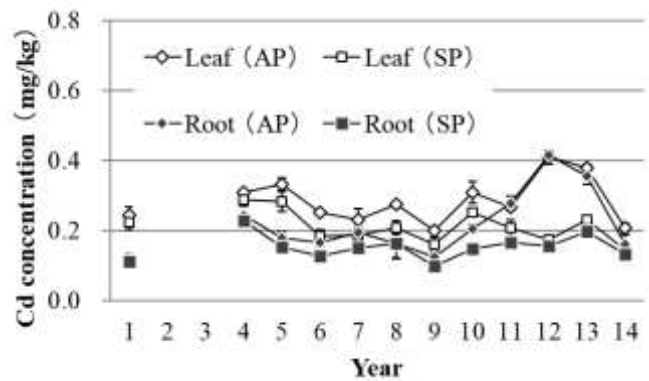


Fig.5-2 Cd concentration (content in the dry matter) in carrot(Note: 2nd year (spinach), 3rd year (trunip))

(2) 跡地土壌のカドミウム

跡地土壌の全カドミウム, 0.1 mol/L HCl-Cd, pH(H₂O)及びECの分析結果を Table 9 に示した.

全カドミウム濃度は, 汚泥肥料施用区は 0.64 mg/kg, 標準区は 0.46 mg/kg で, 汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p=1.1 \times 10^{-5}$).

0.1 mol/L HCl-Cd は, 汚泥肥料施用区は 0.26 mg/kg, 標準区は 0.16 mg/kg であり, 汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p=1.2 \times 10^{-6}$).

Table 9 Characteristics of cultivated soil (summer 14th)

	Unit	Test prot-1		Test prot-2		Average	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>							
Total-Cd ^{a)}	mg/kg	0.64	0.62	0.64	0.65	0.64	Significance ^{e)}
0.1 mol/L HCl-Cd ^{b)}	mg/kg	0.27	0.27	0.26	0.26	0.26	Significance ^{e)}
pH (H ₂ O) ^{c)}		6.5		6.4			-
EC ^{d)}	mS/cm	0.13		0.15			-
<Standard plot (SP)>							
Total-Cd ^{a)}	mg/kg	0.46	0.45	0.46	0.46	0.46	
0.1 mol/L HCl-Cd ^{b)}	mg/kg	0.15	0.16	0.16	0.16	0.16	
pH (H ₂ O) ^{c)}		6.5		6.5			
EC ^{d)}	mS/cm	0.07		0.07			

a) Content in the dry matter

b) Content of cadmium dissolved with 0.1 mol/L hydrochloric acid in the drying soil

c) Soil pH determined on 1:5 (soil : water) suspensions with a glass electrode, $n=2$

d) Soil electrical conductivity determined on 1:5 (soil : water) suspensions with an electrical conductivity meter, $n=2$

e) It was significantly different for standard plot (two-way ANOVA 5 % of both sides levels of significance, $n=4$ (2×2) (repetition × number of samples))

3) 跡地土壌中のカドミウムの推移

(1) 跡地土壌の全カドミウム濃度

跡地土壌の全カドミウム濃度の推移を Table 10 に示した. また, 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度の推移とともに Fig.6-1 (汚泥肥料施用区) Fig.6-2 (標準区) に示した.

汚泥肥料施用区及び標準区の全カドミウム濃度の推移について傾向を把握するため、それぞれの処理区における、1年目夏作からの経過月(夏作から次の夏作までの間隔は12ヶ月とした)に対する全カドミウム濃度の線形単回帰分析を行った(単回帰式の分散分析表の p 値により評価、両側有意水準5%) (Table 10). 14年目夏作跡地までの汚泥肥料施用区は上昇傾向($p=4.2 \times 10^{-6}$)が認められ、標準区は下降傾向($p=1.8 \times 10^{-3}$)が認められた。

汚泥肥料施用区及び標準区の全カドミウム濃度を比較したところ、調査した1年目夏作から汚泥肥料施用区が標準区より有意に高くなっており、その差は4年目夏作以降、顕著なものとなり以後同様の結果が続いている。これは、汚泥肥料施用区は汚泥肥料由来のカドミウムの供給量が、作物体の収穫による土壤中カドミウムの圃場外への持ち出し量よりも多いため、カドミウムが蓄積する傾向にあることを示している。

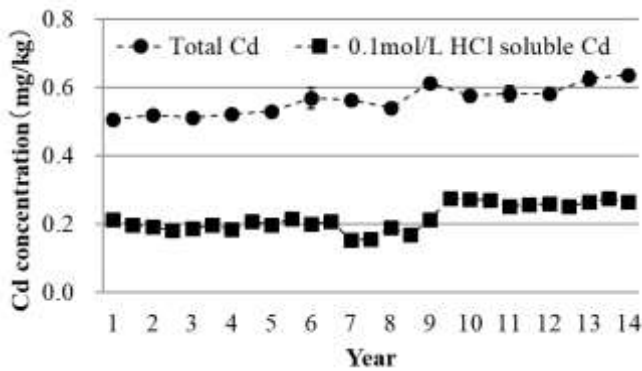


Fig.6-1 Cd concentration of cultivated soil
(AP: Sludge-fertilizer-application plot)

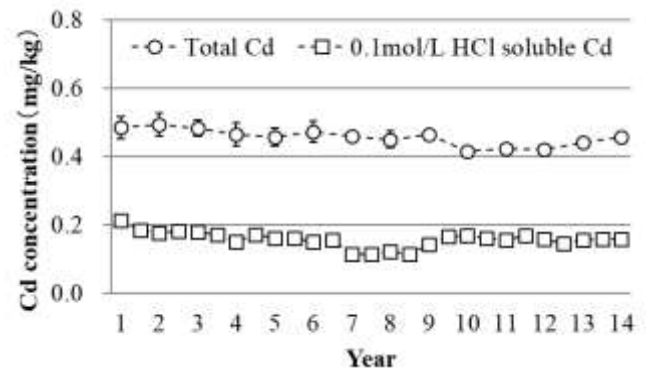


Fig.6-2 Cd concentration of cultivated soil
(SP: Standard plot)

Table 10 Changes in the total-Cd concentration^{a)} of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	AP ^{b)} (mg/kg)	SP ^{c)} (mg/kg)	Significance test (difference between the processing)	<i>p</i> -value of single regression analysis ^{d)}	
						AP ^{b)}	SP ^{c)}
1st	Summer	Carrot	0.51	0.48	Significance ^{e)}	—	—
2nd	Summer	Spinach	0.52	0.49	Significance	—	—
3rd	Summer	Turnip	0.51	0.48	Significance	—	—
4th	Summer	Carrot	0.52	0.46	Significance	—	—
5th	Summer	Carrot	0.53	0.46	Significance	—	—
6th	Summer	Carrot	0.57	0.47	Significance	<i>p</i> < 0.05 ^{f)}	0.16
7th	Summer	Carrot	0.57	0.46	Significance	<i>p</i> < 0.01 ^{g)}	0.06
8th	Summer	Carrot	0.54	0.45	Significance	<i>p</i> < 0.05	<i>p</i> < 0.05
9th	Summer	Carrot	0.61	0.46	Significance	<i>p</i> < 0.01	<i>p</i> < 0.05
10th	Summer	Carrot	0.58	0.41	Significance	<i>p</i> < 0.01	<i>p</i> < 0.01
11th	Summer	Carrot	0.58	0.42	Significance	<i>p</i> < 0.01	<i>p</i> < 0.01
12th	Summer	Carrot	0.58	0.42	Significance	<i>p</i> < 0.01	<i>p</i> < 0.01
13th	Summer	Carrot	0.63	0.44	Significance	<i>p</i> < 0.01	<i>p</i> < 0.01
14th	Summer	Carrot	0.64	0.46	Significance	<i>p</i> < 0.01	<i>p</i> < 0.01

a) Content in the drying soil

b) Sludge-fertilizer-application plot

c) Standard plot

d) The *p*-value which calculated from dispersion analysis for linear regression by examination start of each experimental plot

e) It was significantly different for processing examination section

(two-way ANOVA 5 % of both sides levels of significance, $n=4(2 \times 2)$ (repetition \times number of samples))

f) It show that regression is significant in $p < 0.05$ (5 % of both sides levels of significance)

g) It show that regression is significant in $p < 0.01$ (1 % of both sides levels of significance)

(2) 跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd の推移

跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度の推移を Table 11 に示した。また、全カドミウム濃度の推移とともに Fig.6-1(汚泥肥料施用区), Fig.6-2(標準区)に示した。

汚泥肥料施用区及び標準区の 0.1 mol/L HCl-Cd の推移について傾向を把握するため、それぞれの処理区における試験開始時からの経過月(各試験の間隔は 6 ヶ月とした)に対する 0.1 mol/L HCl-Cd の線形単回帰分析を行った(単回帰式の分散分析表の *p* 値により評価, 両側有意水準 5 %) (Table 11)。14 年目夏作跡地までの汚泥肥料施用区の回帰は有意となり, 上昇傾向が認められた($p=1.6 \times 10^{-5}$)。10 年目夏作までの各採取時期時点における汚泥肥料施用区回帰は有意でなく一定で推移している傾向であったが, 10 年目冬作以降上昇に転じた。その後は, 0.26 mg/kg の濃度付近において一定で推移している。

一方, 標準区では, 減少傾向が認められた($p=1.3 \times 10^{-2}$)。減少傾向は 3 年目冬作以降継続している。

Table 11 Changes in the 0.1 mol/L HCl-Cd concentration^{a)} of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	AP ^{b)} (mg/kg)	SP ^{c)} (mg/kg)	Significance test (difference between the processing)	<i>p</i> -value of single regression analysis ^{d)}	
						AP ^{b)}	SP ^{c)}
—	Start	—	0.19	0.20	N.S. ^{e)}	—	—
1st	Summer	Carrot	0.21	0.21	N.S.	—	—
1st	Winter	Spinach	0.20	0.18	Significance ^{f)}	—	—
2nd	Summer	Spinach	0.19	0.17	Significance	—	—
2nd	Winter	Qing geng cai	0.18	0.18	N.S.	—	—
3rd	Summer	Turnip	0.19	0.18	Significance	—	—
3rd	Winter	Spinach	0.20	0.17	Significance	0.63	< 0.05
4th	Summer	Carrot	0.19	0.15	Significance	0.41	< 0.01
4th	Winter	Spinach	0.21	0.17	Significance	0.98	< 0.01
5th	Summer	Carrot	0.20	0.16	Significance	0.89	< 0.01
5th	Winter	Spinach	0.22	0.16	Significance	0.34	< 0.01
6th	Summer	Carrot	0.20	0.15	Significance	0.30	< 0.01
6th	Winter	Spinach	0.21	0.15	Significance	0.17	< 0.01
7th	Summer	Carrot	0.15	0.11	Significance	0.80	< 0.01
7th	Winter	Spinach	0.16	0.11	Significance	0.29	< 0.01
8th	Summer	Carrot	0.19	0.12	Significance	0.30	< 0.01
8th	Winter	Spinach	0.17	0.11	Significance	0.16	< 0.01
9th	Summer	Carrot	0.21	0.14	Significance	0.45	< 0.01
9th	Winter	Spinach	0.27	0.17	Significance	0.51	< 0.01
10th	Summer	Carrot	0.27	0.17	Significance	0.15	< 0.01
10th	Winter	Spinach	0.27	0.16	Significance	< 0.05	< 0.01
11th	Summer	Carrot	0.25	0.15	Significance	< 0.05	< 0.01
11th	Winter	Spinach	0.26	0.17	Significance	< 0.01	< 0.01
12th	Summer	Carrot	0.26	0.16	Significance	< 0.01	< 0.01
12th	Winter	Spinach	0.25	0.15	Significance	< 0.01	< 0.01
13th	Summer	Carrot	0.27	0.15	Significance	< 0.01	< 0.01
13th	Winter	Spinach	0.28	0.16	Significance	< 0.01	< 0.01
14th	Summer	Carrot	0.26	0.16	Significance	< 0.01	< 0.05

a) Content in drying soil

b) Sludge-fertilizer-application plot

c) Standard plot

d) The *p*-value which calculated from dispersion analysis for linear regression by examination start of each experimental plot

e) N.S. was not significantly different for processing examination section

(two-way ANOVA 5% of both sides levels of significance, $n=4$ (2×2) (repetition × number of samples))

f) Significance was significantly different for processing examination section

(two-way ANOVA 5% of both sides levels of significance, $n=4$ (2×2) (repetition × number of samples))

(3) カドミウムの負荷量, 持ち出し量及び蓄積量

1 年目夏作～14 年目年夏作の試験において, 施肥した汚泥肥料由来のカドミウム投入量である負荷量, 作物を栽培したことによるカドミウムの持ち出し量, 土壌への蓄積量及び乾土中のカドミウム蓄積濃度を Table 12 に示した. 表中, 試験区へのカドミウムの負荷量は, 汚泥肥料中のカドミウム含有量に試験区 (4 m²) への施用量を乗じて算出した. 作物によるカドミウムの持ち出し量は, 試験区における収穫した作物のカドミウム吸収量のこと, 作物の収量に作物中のカドミウム濃度を乗じて算出した. 土壌へのカドミウム蓄積量は, 汚泥肥料によるカドミウムの負荷量と作物によるカドミウムの持ち出し量の差により算出した. 土壌へのカドミウムの蓄積濃度は, カドミウムの蓄積量に試験区当たりの土壌量(作土の深さ 15 cm, 土壌の仮比重 0.7 とし, 試験区 (4 m²) 当たりの土壌量を 420 kg とした)で除して算出した.

汚泥肥料施用区では, 各試験において, カドミウム負荷量と比較して持ち出し量が少ないことから土壌のカドミウム収支がプラスとなるため, 汚泥肥料の連用によるカドミウム負荷量の増加に伴って土壌蓄積するカドミウムが高まる傾向であることが考えられる. 実測値においても跡地土壌の全カドミウム濃度の増加傾向が認められている. 過去 27 作の試験における汚泥肥料施用区のカドミウム蓄積量は 165.4 mg/試験区(413.5 g/ha), カドミウム蓄積濃度(カドミウム蓄積量と試験区土壌量から算出した理論上の土壌中カドミウムの上昇濃度)は 0.394 mg/kg となった.

Table 12 Changes in the quantity of cadmium load by fertilizer, quantity of peculating due to the crops body, and quantity of cadmium accumulation to the soil from the 1st year to the 14th year

Year	Season	Test Crops	Sludge-fertilizer-application plot (AP)				Standard plot (SP)			
			Quantity of cadmium ^{a)}			Concentration of cadmium accumulation ^{e)}	Quantity of cadmium ^{a)}			Concentration of cadmium accumulation ^{e)}
			Load ^{b)}	Removal ^{c)}	Accumulation ^{d)}		Load ^{b)}	Removal ^{c)}	Accumulation ^{d)}	
(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/kg)	(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/kg)			
1st	Summer	Carrot	4.84	0.39	4.45	0.011	0	0.36	-0.36	-0.001
1st	Winter	Spinach	4.40	1.18	3.22	0.008	0	1.34	-1.34	-0.003
2nd	Summer	Spinach	3.30	0.72	2.58	0.006	0	0.96	-0.96	-0.002
2nd	Winter	Qing geng cai	2.64	0.21	2.43	0.006	0	0.21	-0.21	0.000
3rd	Summer	Turnip	3.30	0.17	3.13	0.007	0	0.20	-0.20	0.000
3rd	Winter	Spinach	7.04	0.66	6.37	0.015	0	0.56	-0.56	-0.001
4th	Summer	Carrot	7.28	0.73	6.55	0.016	0	0.68	-0.68	-0.002
4th	Winter	Spinach	7.28	0.75	6.53	0.016	0	0.75	-0.75	-0.002
5th	Summer	Carrot	7.28	0.46	6.82	0.016	0	0.34	-0.34	-0.001
5th	Winter	Spinach	7.28	0.73	6.55	0.016	0	0.53	-0.53	-0.001
6th	Summer	Carrot	7.28	0.38	6.90	0.016	0	0.29	-0.29	-0.001
6th	Winter	Spinach	7.28	0.65	6.63	0.016	0	0.42	-0.42	-0.001
7th	Summer	Carrot	7.28	0.36	6.92	0.016	0	0.26	-0.26	-0.001
7th	Winter	Spinach	7.28	0.71	6.57	0.016	0	0.59	-0.59	-0.001
8th	Summer	Carrot	7.28	0.21	7.07	0.017	0	0.18	-0.18	0.000
8th	Winter	Spinach	7.28	0.60	6.68	0.016	0	0.57	-0.57	-0.001
9th	Summer	Carrot	7.28	0.28	7.00	0.017	0	0.24	-0.24	-0.001
9th	Winter	Spinach	7.28	0.51	6.77	0.016	0	0.38	-0.38	-0.001
10th	Summer	Carrot	7.28	0.33	6.95	0.017	0	0.20	-0.20	0.000
10th	Winter	Spinach	5.68	1.00	4.68	0.011	0	0.51	-0.51	-0.001
11th	Summer	Carrot	5.68	0.40	5.28	0.013	0	0.28	-0.28	-0.001
11th	Winter	Spinach	5.68	0.64	5.04	0.012	0	0.51	-0.51	-0.001
12th	Summer	Carrot	8.53	0.57	7.97	0.019	0	0.17	-0.17	0.000
12th	Winter	Spinach	8.53	1.58	6.96	0.017	0	0.81	-0.81	-0.002
13th	Summer	Carrot	9.30	0.37	8.93	0.021	0.76	0.21	0.56	0.001
13th	Winter	Spinach	8.53	0.98	7.56	0.018	0	0.63	-0.63	-0.001
14th	Summer	Carrot	9.30	0.44	8.86	0.021	0.76	0.33	0.43	0.001
Total			181.4	16.0	165.4	0.394	1.5	12.5	-11.0	-0.026

a) It show every test plot 4 m²

b) Quantity of cadmium load by fertilizer = Total cadmium concentration of the fertilizer × Amount of the fertilizer application

c) Quantity of peculating due to the crops body = Yield (dry weight) × Cadmium concentration (dry matter)

d) Quantity of cadmium accumulation to the soil = b) - c)

e) Concentration of cadmium accumulation to the soil = d) / Amount of test plot soil (420 kg)

跡地土壤の全カドミウム濃度について、1年目夏作跡地からの実測値と理論値の推移を Table 13 及び Fig.7 に示した。汚泥肥料施用区及び標準区の全カドミウム濃度の理論値は、1年目夏作跡地土壤の実測値を起点として、Table 12 で算出したカドミウム蓄積濃度を累積し算出した。標準区は実測値と理論値がほぼ一致して推移していた。一方、汚泥肥料施用区は、理論値と比較して実測値の方が低い傾向で推移していた。

Table 13 Changes in the actual total-Cd concentration and the theoretical total-Cd concentration^{a)} of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	Actual measurement		Theoretical value	
			AP ^{b)} (mg/kg)	SP ^{c)} (mg/kg)	AP ^{b) d)} (mg/kg)	SP ^{c) e)} (mg/kg)
1st	Summer	Carrot	0.51	0.48	0.51	0.48
2nd	Summer	Spinach	0.52	0.49	0.52	0.47
3rd	Summer	Turnip	0.51	0.48	0.53	0.47
4th	Summer	Carrot	0.52	0.46	0.56	0.47
5th	Summer	Carrot	0.53	0.46	0.60	0.47
6th	Summer	Carrot	0.57	0.47	0.63	0.46
7th	Summer	Carrot	0.57	0.46	0.66	0.46
8th	Summer	Carrot	0.54	0.45	0.69	0.46
9th	Summer	Carrot	0.61	0.46	0.73	0.46
10th	Summer	Carrot	0.58	0.41	0.76	0.46
11th	Summer	Carrot	0.58	0.42	0.78	0.46
12th	Summer	Carrot	0.58	0.42	0.81	0.45
13th	Summer	Carrot	0.63	0.44	0.85	0.45
14th	Summer	Carrot	0.64	0.46	0.89	0.45

a) Total-Cd concentration in the drying soil

b) Sludge-fertilizer-application plot

c) Standard plot

d) This value is the theoretical total-cadmium concentration of soil when assuming that there was accumulation of the whole quantity cadmium derived from fertilizer to the surface soil of the test plots in a starting point in summer 2009

e) This value is the theoretical total-cadmium concentration of soil when assuming that there was not accumulation of cadmium derived from fertilizer to the surface soil of the test plots in a starting point in summer 2009

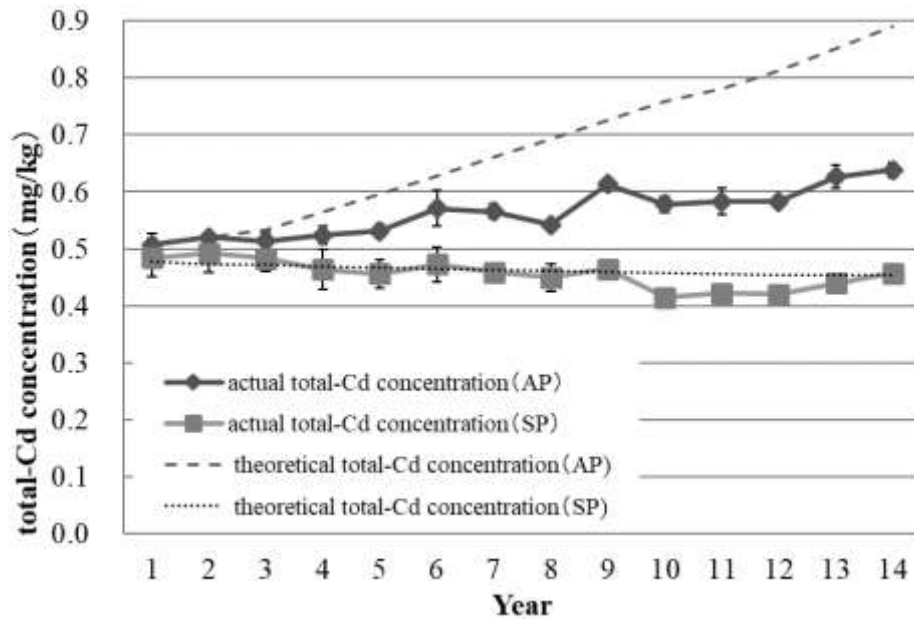


Fig.7 Changes in the actual total-Cd concentration and the theoretical total-Cd concentration of soil after harvest

4) 跡地土壌の垂直方向のカドミウム濃度

13年目の冬作跡地土壌の試験において、垂直方向5 cm おきに採取した各試験区の土壌全カドミウム濃度(乾物値)の結果を Table 14 に示した。全ての深度帯で汚泥肥料施用区が標準区よりも有意に高い結果となった(0-5 cm: $p=5.2 \times 10^{-5}$, 5-10 cm: $p=6.3 \times 10^{-7}$, 10-15 cm: $p=7.3 \times 10^{-6}$, 15-20 cm: $p=1.9 \times 10^{-2}$)。

Table 14 The total-Cd concentration moved vertically of soil after harvest

Depth (cm)	AP ^{a)} (mg/kg)		SP ^{b)} (mg/kg)		Significance test
0-5	0.69	(0.05) ^{c)}	0.44	(0.02)	Significance ^{d)}
5-10	0.60	(0.02)	0.42	(0.02)	Significance
10-15	0.58	(0.00)	0.42	(0.01)	Significance
15-20	0.47	(0.00)	0.42	(0.01)	Significance

a) Sludge-fertilizer-application plot

b) Standard plot

c) Standard deviation ($n=4$ (2×2) (repetition \times number of samples))

d) It was significantly different for standard plot (two-way ANOVA 5 % of both sides levels of significance, $n=4$ (2×2) (repetition \times number of samples))

土壌採取は5 cm おきに行っているため、仮にそれぞれの深度帯のカドミウム濃度を各深度帯の中央部分の深さにおける濃度とした場合(例えば、0 cm～5 cm の深度帯で測定されたカドミウム濃度を、その深度帯の中央部分の深さ2.5 cm で測定されるカドミウム濃度と仮定する)のグラフを Fig.8 に示した。折れ線グラフはカドミウムの濃度を、棒グラフは土壌中のカドミウムの含有量を表している。なお、土壌量は作土の深さ5.0 cm、土壌の仮比重0.7とし、試験区(4 m²)当たりで算出しているため、全ての深度帯で140 kgである。

本試験では作土層を 15 cm と設定しているが、15 cm よりも深い層においても汚泥肥料施用区のカドミウム濃度が標準区より有意に高いため、カドミウムは 15 cm よりも下へ移行しているものと考えられる。標準区では深さの違いによってカドミウム濃度に差はほとんど見られなかった。汚泥肥料施用区のカドミウム濃度が深くなるにつれて直線的に減少すると仮定すると、カドミウム濃度における汚泥肥料施用区の近似直線と標準区の近似直線が交わる部分以降の深さではカドミウムの移行が生じていないと考えられる。よって、深さ 15.0 cm から近似直線の交点 23.0 cm まではカドミウムが移行した可能性が示唆された。その深度帯の中央部分の深さは 19.0 cm であり、この深さにおける汚泥肥料施用区及び標準区の近似直線のカドミウム濃度の差は 0.05 mg/kg であった。上記で各深度帯の中央部分の深さにおける濃度をその深度帯のカドミウム濃度と考えると定義しているため、15.0 cm～23.0 cm の土壌における平均カドミウム濃度も同様に 0.05 mg/kg となる。これを 15.0 cm～23.0 cm の土壌量(深さ 8.0 cm, 土壌の仮比重 0.7 とし、試験区(4 m²)当たりで算出すると、約 223 kg である)で乗ずると約 10.9 mg のカドミウムが下層(15.0 cm～23.0 cm)へ移行している可能性が考えられる。

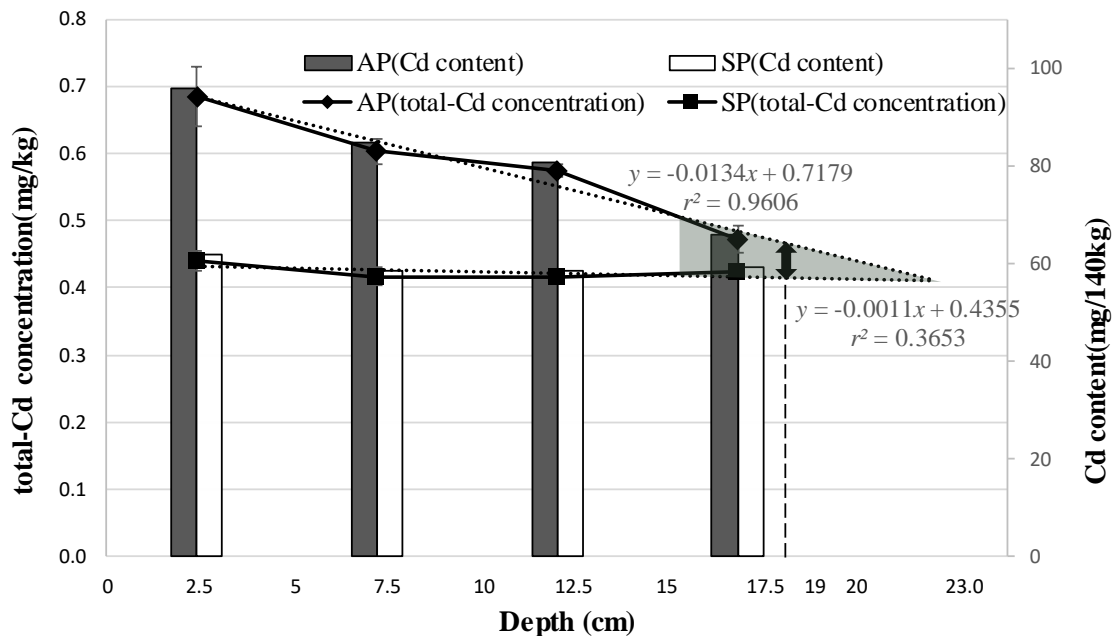


Fig.8 The total-Cd concentration moved vertically of soil after harvest and Cd content in a lower layer

5. まとめ

肥料の有効性及び安全の確保に必要な課題に関する調査研究として、汚泥肥料の連用施用試験を 2009 年より行っており、汚泥肥料施用区及び汚泥肥料無施用の標準区の 2 試験区に、13 年目冬作としてホウレンソウを、14 年目夏作としてニンジン栽培し、土壌中のカドミウム濃度の変化及び作物体中のカドミウム濃度を確認した。13 年目冬作ホウレンソウ現物中のカドミウム濃度は、汚泥肥料区で 0.081 mg/kg, 標準区で 0.054 mg/kg であり、Codex 委員会が定める基準値(0.2 mg/kg)に対して低い結果であった。

ニンジン現物中のカドミウム濃度は、汚泥肥料施用区で葉部 0.041 mg/kg, 根部 0.021 mg/kg, 標準区で葉部 0.026 mg/kg, 根部 0.017 mg/kg であった。可食部である根部のカドミウム濃度は Codex 委員会が定める基準値(0.1 mg/kg)に対して低い結果であった。また、ホウレンソウ(葉部)及びニンジン(葉部・根部)ともに標準区に比べて汚泥肥料施用区が有意に高い結果であった。

14年目夏作ニンジン跡地土壌の全カドミウム濃度は汚泥肥料施用区が標準区に比べて有意に高かった。

1年目から14年目の跡地土壌中の全カドミウム濃度及び0.1 mol/L HCl-Cd濃度の推移を解析したところ、汚泥肥料施用区的全カドミウム濃度は増加傾向を示しており、汚泥肥料に含有するカドミウムが土壌に蓄積していることが示された。一方で、汚泥肥料施用区の0.1 mol/L HCl-Cdについては10年目夏作までは一定に推移する傾向が示されていたが、10年目冬作以降は増加傾向を示した。汚泥肥料に含有するカドミウムは土壌中においては有機物等と結合¹⁷⁾することにより不溶化していると考えられているが、跡地土壌中のカドミウム量が増え、有機物と結合で処理する量を超えたことにより、0.1 mol/L HClに溶解する形態のカドミウム量も増加したと考えられた。近年は、0.26 mg/kgの濃度付近において一定で推移している。

標準区的全カドミウム濃度は減少傾向であり、0.1 mol/L HCl-Cdについても減少傾向を示した。標準区的全カドミウムは施肥によるカドミウムの供給がないため減少し、また、作物体が0.1 mol/L HCl-Cdを持ち出すため、土壌中の0.1 mol/L HCl-Cdも減少すると考えられた。

試験で施肥した汚泥肥料由来のカドミウム投入量である負荷量及び作物を栽培したことによるカドミウムの持ち出し量から、土壌に蓄積されているはずのカドミウムの量を算出したところ、標準区は実測値と理論値がほぼ一致して推移していた。一方、汚泥肥料施用区は、理論値と比較して実測値の方が低い傾向で推移していた。これは、後藤ら¹⁸⁾や過去の調査結果¹⁹⁾から、土壌中のカドミウムの水平方向への移行が認められたことから耕耘により一部のカドミウムが作土に留まらないことによるものと考えられた。

前述の我々の過去の調査結果からカドミウムの垂直方向への移動はほとんどないとのことで報告されていたが、本年度はさらに細かく5 cmおきに土壌を採取し、カドミウムの垂直方向への移動について追加で検討した。作土層15 cmより下層に存在するカドミウムについて、近似直線により推定し移行濃度を算出した。その結果、15.0 cm～23.0 cmの深さの層に汚泥肥料由来の0.05 mg/kg相当にあたる約10.9 mgのカドミウムが移行している可能性があることがわかった(試験区が4 m²であり、土壌の仮比重0.7とした場合の深さ15.0 cm～23.0 cmにおける土壌量約223 kg中のカドミウムとして算出)。この垂直方向へのカドミウムの移動は、耕耘の前に約25 cm長のスコップを用いて行う荒起こし作業の際に土壌がかき混ぜられ生じたものと考えられる。

文 献

- 1) 農林水産省告示:肥料の品質の確保等に関する法律に基づき普通肥料の公定規格を定める等の件,昭和61年2月22日,農林水産省告示第284号,最終改正令和4年2月15日,農林水産省告示第302号(2022)
- 2) 農林水産省 消費・安全局 農産安全管理課 肥料企画班:汚泥肥料の規制のあり方に関する懇談会報告書 平成21年3月,(2009)
< https://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_hiryo/odei/attach/pdf/kondankai-12.pdf >
- 3) 舟津正人,阿部文浩,添田英雄:カドミウムの土壌蓄積及び作物吸収における汚泥肥料連用の影響,肥料研究報告, **4**, 74~84, (2011)
- 4) 浅尾直紀,小林涼斗,増井亮太,村山和晃,阿部文浩:汚泥肥料の連用によるカドミウム等の土壌への蓄積,作物への吸収試験(継続)ー2020年冬作・2021年夏作ー,肥料研究報告, **15**, 108~134, (2022)
- 5) 独立行政法人農林水産消費安全技術センター(FAMIC):肥料等試験法(2022)
< http://www.famic.go.jp/ffis/fert/obj/shikengo/shikengo_2022.pdf#page=1 >
- 6) 埼玉県ホームページ:主要農作物施肥基準 平成25年3月
< <http://www.pref.saitama.lg.jp/a0903/sehikijun.html> >

- 7) 千葉県 農林水産技術推進会議農林部会:肥料価格高騰に伴う土壌管理・施肥適正化指導指針 平成 20 年 9 月, **20**, (2008)
< <http://www.pref.chiba.lg.jp/ninaite/network/h21-fukyuu/documents/kakakukoutou.pdf> >
- 8) 栃木県 農作物施肥基準—環境と調和のとれた土づくり・施肥設計の手引き 平成 18 年 1 月, **110**, (2006) < <http://www.pref.tochigi.lg.jp/g04/work/nougyou/keiei-gijyutsu/sehikijun.html> >
- 9) 群馬県 作物別施肥基準及び土壌診断基準 おでい肥料と土壌の重金属
< <http://www.aic.pref.gunma.jp/agricultural/management/technology/soil/01/index.html> >
- 10) 農林水産省 消費・安全局 農産安全管理課 肥料企画班:汚泥肥料の施用に係る指導実態等に関するアンケート結果(抜粋), 第 1 回懇談会における委員からの指摘事項, 11~13, (2008)
< https://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_hiryo/odei/attach/pdf/kondankai-19.pdf >
- 11) 有機性汚泥の緑農地利用委員会:有機性汚泥の緑農地利用, **183**, 博友社, 東京(1991)
- 12) 農林水産省:地力増進基本指針, 平成 20 年 10 月 16 日
< http://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyo/hozen_type/h_dozyo/pdf/chi4.pdf >
- 13) マイルストーンゼネラル株式会社:マイクロ波分解装置取扱説明書, セグメント高圧ローター SK-15ET 標準アプリケーションレポート
- 14) 財団法人日本土壌協会:土壌, 水質及び植物体分析法, 東京(2001)
- 15) 農林省省令:農用地土壌汚染対策地域の指定要件に係るカドミウムの量の検定の方法を定める省令, 昭和 46 年 6 月 24 日農林省令第 47 号, 最終改正平成 24 年 8 月 6 日環境省令第 22 号(2012)
- 16) 農林水産省ホームページ:コーデックス委員会が策定した国際基準値
< https://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_cd/04_kijyun/01_int.html >
- 17) 独立行政法人 農業環境技術研究所:農作物中のカドミウム低減対策技術集, 平成 23 年 3 月, 49, (2011)
- 18) 後藤茂子, 林浩昭, 山岸順子, 米山忠克, 茅野充男:下水汚泥コンポストの長期連用に伴う重金属の土壌への蓄積と水平方向への移行, 日本土壌肥科学雑誌, **73**(4), 391~396, (2002)
- 19) 阿部進, 鈴木時也, 田中雄大, 阿部文浩, 橋本良美, 廣井利明, 加島信一:カドミウムの土壌蓄積及び作物吸収における汚泥肥料連用の影響(継続)—2014 年冬作・2015 年夏作—, 肥料研究報告, **8**, 77~108, (2016)

Effect of Continuous Application of Sludge Fertilizer on Cadmium Absorption of the Crop and Accumulation of Cadmium in the Soil (Continued Report)
- Winter 2021 and Summer 2022 -

KOBAYASHI Ryoto¹, MASUI Ryota², HIBINO Hiroshi¹,
ABE Fumihiko¹ and ASAO Naoki³

¹ Food and Agricultural Materials Inspection Center (FAMIC), Fertilizer and Feed Inspection Department

² FAMIC, Fertilizer and Feed Inspection Department, (Now) FAMIC, Kobe Regional Center

³ FAMIC, Fertilizer and Feed Inspection Department, (Now) FAMIC, Nagoya Regional Center

We have been researching cadmium(Cd) absorption of the crop and accumulation in the soil used sludge fertilizer since 2009. The soil is composed of the Andosol. We cultivated spinach in winter 2021 and carrot in summer 2022. Those crops were cultivated in the standard plot (SP) and the sludge-fertilizer-application plot (AP). In the SP, we used only chemical reagents for the crops. In the AP, we used 750 kg/10 a (fresh weight) of the sludge fertilizer and chemical reagents for the crops. The amount of nitrogen, phosphorus and potassium applied to each plot was designed based on the fertilization standard shown on the Saitama prefecture's web site. The concentration of total Cd and acid-solubility-Cd in the soil and total Cd in the crop after each of the harvests were measured by the inductivity coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). As a result, the soil in the AP after the harvests has indicated a high concentration of the total-Cd compared with the soil in the SP since summer 2012 significantly. The concentration of total-Cd in the soil (from summer 2009 to summer 2022) showed significant increasing trend in the AP. Also, the accumulation of Cd in the soil was observed from the results of the total-Cd concentration in the former soil, and the amount of 0.1 mol/L HCl-Cd available to plants in the soil.

The concentrations of total-Cd in each crop harvested (from summer 2009 to summer 2022) in the SP and AP were less than that of the CODEX standard. We consider that it is necessary to be conducted further monitoring of the Cd-transition in the soil from now on.

In order to understand the Cd vertical distribution in the soil, the soil sampled at a depth of each every 5 cm (from 0 cm to 20 cm) was measured. As a result, the total-Cd was a statistically significant difference between the soil in the AP and the SP at the every area (0-5 cm, 5-10 cm, 10-15 cm, 15-20 cm). Moreover, the estimation of approximate straight line that was obtained by vertical distribution of the AP and the SP indicated what Cd were existed at a depth of approximately 23.0 cm.

Key words sludge fertilizer, continuous application, cadmium

(Research Report of Fertilizer, **16**, 24-48, 2023)