

9 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(続報)

—2016年冬作・2017年夏作—

青山恵介¹, 八木寿治², 齋藤晴文¹, 佐久間健太²,
鈴木時也³, 田中雄大¹, 橋本良美¹, 阿部文浩¹

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.一方,汚泥肥料の施用により土壌に負荷された重金属が蓄積し,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及び作物体の吸収量を確認する.

2009年夏作から2016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⁾~10号⁴⁾で報告した.引き続き,2016年冬作及び2017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.

2. 材料及び方法

1) 2016年冬作の連用試験(2016年11月14日~2017年3月17日)

(1) 試験圃場及び供試土壌

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.試験は,汚泥肥料の施用履歴がある土壌(汚泥肥料施用区)と施用履歴がない土壌(標準区)を供試土壌とし,2試験区2反復とした.土壌の種類,土性,前作跡地のpH(H₂O),EC(電気伝導率),有効態リン酸,全窒素,全炭素及び0.1 mol/L 塩酸可溶カドミウム(以下,0.1 mol/L HCl-Cd)をTable 1に示す.

(2) 供試肥料等

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)名古屋センター

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)農林水産省消費・安全局

施用する汚泥肥料はし尿汚泥肥料を使用した。し尿汚泥肥料は、し尿及び生活雑排水を沈殿分離及び接触ばっ気を組合せた方式により排水処理して発生した汚泥に高分子凝集剤を添加し、脱水、加熱乾燥した黒色、粒径約3 mmの市販肥料である。し尿汚泥肥料の成分分析結果をTable 2に示した。カドミウム濃度は3.6 mg/kg(現物)、その乾物濃度は4.9 mg/kgであり、肥料公定規格の含有許容値(5 mg/kg)(乾物値)付近である。窒素全量(現物値)は質量分率3.3%及び窒素無機化率約30%(30 °C, 28日間培養)であり、窒素全量及び無機化率は一般的なし尿汚泥肥料の中では低めであるため、長期連用や大量施用した場合も作物への生理障害等は発現しにくく、カドミウム負荷量を高く保ちつつ長期連用試験が可能な肥料と考えられる。

補正肥料として特級試薬の尿素、リン酸一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 3に示した)。

なお、汚泥肥料中の0.1 mol/L HCl-Cdは、汚泥肥料1 gを0.1 mol/L 塩酸50 mLで1時間振とうして抽出したカドミウムについて、フレイム原子吸光分析装置(Z-2310:日立ハイテクノロジーズ)で測定した。

Table 1 Characteristics of soil for using in winter 2016 crop

	Unit	Year	AP ^{a)} -1	AP ^{a)} -2	SP ^{b)} -1	SP ^{b)} -2
pH (H ₂ O) ^{c)}		2009 ^{g)}	6.1	6.1	6.2	6.2
		2016 ^{h)}	6.3	6.5	6.4	6.5
EC ^{d)}	mS/cm	2009	0.10	0.10	0.14	0.12
		2016	0.10	0.11	0.08	0.09
Phosphate absorption coefficient ^{e)}	mg/100g	2009	5.8	6.1	7.7	6.9
		2016	17.9	12.8	13.1	11.4
Total nitrogen ^{e)}	% ^{f)}	2016	0.44	0.41	0.38	0.37
Total carbon ^{e)}	% ^{f)}	2016	5.9	5.8	5.5	5.5
0.1 mol/L HCl-Cd ^{e)}	mg/kg	2009	0.18	0.19	0.18	0.21
		2016	0.20	0.18	0.12	0.13
Kind of soil	Andosol					
Soil texture	Light clay					

a) Sludge-fertilizer-application plot

b) Standard plot

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) Content in the dry matter, average (n=2)

f) Mass fraction

g) The year when the study was designed to evaluate the effects of sludge fertilizer applications on soil intended for long-term use

h) The year when the study was conducted

Table 2 Properties of sludge fertilizer

Item	Unit	Content	Item	Unit	Content
Total nitrogen	% ^{a)}	3.3	Total copper	mg /kg	546
Total phosphorus ^{b)}	% ^{a)}	5.2	Total Zinc	mg /kg	1760
Total potassium ^{c)}	% ^{a)}	0.4	Carbon to nitrogen ratio	-	7.1
Total calcium ^{d)}	% ^{a)}	2.1	Total cadmium ^{e)}	mg /kg	3.6 ^{f)}
Organic carbon	% ^{a)}	23.6	Acid-solubility-cadmium ^{g)}	mg /kg	3.2
Moisture	% ^{a)}	26.1			

a) Mass fraction

b) Content as P₂O₅c) Content as K₂O

d) Content as CaO

e) Content of cadmium dissolved with aqua regia

f) 4.9 mg/kg in the dry matter

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

Table 3 Properties of reagent

Item	Unit	Urea	Ammonium dihydrogen phosphate	Potassium chloride
Total nitrogen	% ^{a)}	46.2	12.0	—
Total phosphorus ^{b)}	% ^{a)}	—	61.5	—
Total potassium ^{c)}	% ^{a)}	—	—	63.1

a) Mass fraction

b) Content as P₂O₅c) Content as K₂O

(3) 試験区の構成

試験区は Fig.1 のとおり 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。施肥量は埼玉県のコウレンソウ施肥基準⁶⁾を基に設計した (Table 4)。

汚泥肥料の施肥量は、1 作当たり 500 kg/10 a 程度が一般的⁷⁾であり、自治体によって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 500~1000 kg/10 a としている^{8~10)}。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⁾ことがわかっている。これらのことを考慮し、汚泥肥料の施用量を 500 kg/10 a (現物)とした。

汚泥肥料の窒素肥効率を前作までの汚泥肥料施用区と標準区の生育量の差から 20 %として計算し、窒素の不足分を補正肥料で補った。加里についても不足分は補正肥料で補った。標準区については、補正肥料を汚泥肥料施用区と同じ分量になるよう施用した (Table 4)。

りん酸施用については 2012 年夏作以降は成りん肥を使用していたが、交換性苦土が大幅に上昇したため、2014 年冬作以降はリン酸一アンモニウムを施用しており、今回も引き続きリン酸一アンモニウムを施用した。なお、施肥前の跡地土壌の有効態リン酸を分析したところ、汚泥肥料施用区は 15.3 mg/100 g 乾土、標準区は 12.2 mg/100 g 乾土であり、地力増進基本指針¹²⁾における有効態リン酸の改善目標下限値 (10 mg/100 g 乾土) を満たしていたことから、りん酸の追肥はしなかった。

なお、これまでの試験における施肥履歴を Table 5 に示した。試験開始当初、汚泥肥料施用区の施肥設計においては、汚泥肥料の連用による残効¹³⁾を考慮して、窒素肥効率を 100 %として計算していたが、汚泥肥料施

用区の収量が標準区に比べて低い傾向にあることから、供試肥料であるし尿汚泥肥料の窒素無機化率について2012年に改めて無機化試験(恒温槽 30 °C で 240 日間培養)を実施したところ、培養期間 90 日までに無機化率 30 %となり、その後ほぼ一定で推移したことから、2012年冬作以降、汚泥肥料の窒素肥効率を 30 %として施肥した。その後、試験区間での収量差及び気温による無機化率の違いを考慮し汚泥肥料の窒素肥効率を調整して施肥を行った。2015年冬作ハウレンソウ試験においては、汚泥肥料の窒素肥効率を 10 %、2016年夏作ニンジンにおいては、汚泥肥料の窒素肥効率を 50 %として施肥を行った。

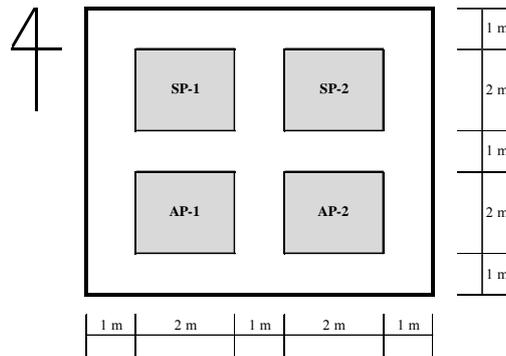


Fig.1 Plots plan of the test field

(AP: Sludge-fertilizer application plot SP: Standard plot)

Table 4 The fertilization amount (spinach in winter 2017)

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	2000	66	104	7	7.3	500	16.6	26.1	1.8	1.8
Urea	145	67	—	—	—	36	16.7	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Potassium chloride	103	—	—	65	—	26	—	—	16.2	—
Total		133	104	72	7.3		33.2	26.1	18.0	1.8
<Standard plot (SP)>										
Urea	129	59	—	—	—	32	14.8	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	171	21	104	—	—	43	5.2	26.1	—	—
Potassium chloride	114	—	—	72	—	29	—	—	18.0	—
Total		80	104	72	—		20.0	26.1	18.0	—

Table 5 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	
2009	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	332	11	17	1	1.2	—	—	—	—
			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	1.2	—	22	19	20	—
2009	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	302	10	16	1	1.1	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	47	10	—	—	—	95	20	—	—
			Potassium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	30	—	16	10
			Potassium chloride	27	—	—	17	—	12	—	—	8
			Total	20	16	18	1.1	—	20	16	18	—
2010	Summer	Spinach	Sludge fertilizer	227	8	12	1	0.8	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	36	8	—	—	—	71	15	—	—
			Potassium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	23	—	12	8
			Potassium chloride	15	—	—	9	—	3	—	—	2
			Total	15	12	10	0.8	—	15	12	10	—
2010	Winter	Qing	Sludge fertilizer	181	6	9	1	0.7	—	—	—	—
			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	0.7	—	12	12	12	—
2011	Summer	Turnip	Sludge fertilizer	227	8	12	1	0.8	—	—	—	—
			Ammonium sulfate	33	7	—	—	—	57	12	—	—
			Potassium dihydrogen phosphate	6	1	3	—	—	24	3	15	—
			Potassium chloride	22	—	—	14	—	24	—	—	15
			Magnesia lime (pH adjustment)	—	—	—	—	—	35	—	—	—
			Total	15	15	15	0.8	—	15	15	15	—
2011	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	483	16	25	2	1.8	—	—	—	—
			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	1.8	—	20	26	18	—
2012	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
			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	1.8	—	22	36	20	—
2012	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
			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	1.8	—	20	36	18	—
2013	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
			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	1.8	—	22	36	20	—
2013	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
			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	1.8	—	20	51	18	—
2014	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
			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	1.8	—	19	33	16	—
2014	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
			Urea	25	11	—	—	—	34	16	—	—
			Ammonium dihydrogenphosphate	71	9	43	—	—	36	4	22	—
			Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18
			Total	37	70	18	1.8	—	20	22	18	—
2015	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
			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	1.8	—	19	26	16	—
2015	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
			Urea	21	10	—	—	—	15	7	—	—
			Ammonium dihydrogenphosphate	72	9	44	—	—	109	13	67	—
			Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18
			Total	35	70	18	1.8	—	20	67	18	—
2016	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
			Urea	—	—	—	—	—	30	14	—	—
			Ammonium dihydrogenphosphate	89	11	54	—	—	42	5	26	—
			Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16
			Total	27	80	16	1.8	—	19	26	16	—

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)

(4) 栽培方法

2016年11月7日に施肥を行った。各試験区の表層土約12 kgを袋に取り、Table 4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。さらに、ヨトウムシ等の害虫防除を目的としてダイアジノン粒剤を散布した。その後、耕耘機を用いて深さ約15 cmまで耕耘した。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。

2016年11月14日に播種を行った。供試作物はホウレンソウ(品種名:ニューアンナ R4)を用い、試験区内を9条(条間約20 cm)間隔でシーダーテープ種子を用いて播種した。

2016年12月2日及び12月15日に間引きを行った。

2017年3月17日に収穫を行った。地際をハサミで切断して地上部を収穫した。

播種から収穫までの栽培期間は約4ヶ月であり、その間に異常な症状は観察されなかった。

(5) 作物体のカドミウム分析

収穫した後、直ちにホウレンソウの全株重量を試験区毎に測定した。さらに、分析用試料として試験区中央の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。重量を測定した後、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。

カドミウム含有量は、分析試料0.5 gに硝酸5 mL及び過酸化水素水2 mLを加えマイクロ波分解装置(Multiwave 3000:Perkin Elmar)で分解¹⁴⁾したものを50 mLに定容し、ICP質量分析装置(UltiMate 3000:Thermo Fisher Scientific)を用いて測定した。

(6) 跡地土壌の分析

収穫後、跡地土壌を対角線採土法¹⁵⁾により採取した。各試験区の作物体の分析用試料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35 °Cで一晩乾燥後、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。

水分は、ハロゲン水分計(HG53:メラー・トード)を用いて測定した。

pH及びECは風乾土壌1に対して水5を加え1時間振とうした後、pHはガラス電極法(F-23:HORIBA)、ECは電気伝導率計(F-54:HORIBA)を用いて測定した。

0.1 mol/L HCl-Cdは、土壌10 gに対し0.1 mol/L 塩酸50 mLを加え、約30 °Cに保ちながら1時間振とうして抽出した試料液についてICP質量分析装置(UltiMate 3000:Thermo Fisher Scientific)を用いて測定した¹⁶⁾。

2) 2017年夏作の連用試験(2017年6月20日～2017年10月12日)

(1) 試験圃場及び供試土壌

試験圃場及び供試土壌として2.1)の試験で使用した汚泥肥料施用区及び標準区の跡地を用いた。土壌の種類、前作跡地のpH、EC、有効態リン酸、全窒素、全炭素及び0.1 mol/L HCl-CdをTable 6に示す。

Table 6 Characteristics of soil (summer 2016)

	Unit	Year	Ap ^{a)} -1	Ap ^{a)} -2	Sp ^{b)} -1	Sp ^{b)} -2
pH (H ₂ O) ^{c)}		2009 ^{b)}	6.1	6.1	6.2	6.2
		2017 ^{c)}	6.3	6.5	6.4	6.4
EC ^{d)}	mS/cm	2009	0.10	0.10	0.14	0.12
		2017	0.09	0.08	0.06	0.07
Available phosphate ^{e)}	mg/100 g	2009	5.8	6.1	7.7	6.9
		2017	18.7	13.8	16.8	15.2
Total nitrogen ^{e)}	% ^{f)}	2017	0.44	0.42	0.37	0.37
Total carbon ^{e)}	% ^{f)}	2017	5.8	5.7	5.2	5.2
0.1 mol/L HCl-Cd ^{e)}	mg/kg	2009	0.18	0.19	0.18	0.21
		2017	0.17	0.17	0.11	0.12
Kind of soil	Andosol					
Soil texture	Light clay					

a) Sludge-fertilizer-application plot

b) Standard plot

c) Determined on 1:5 (soil : water) suspensions with a glass electrode, average ($n=2$)d) Determined on 1:5 (soil : water) suspensions with an electrical conductivity meter, average ($n=2$)e) Dry matter, average ($n=2$)

f) Mass fraction

(2) 供試肥料等

供試肥料及び補正肥料は 2.1) (2) と同じものを用いた。

(3) 試験区の構成

試験区の構成は 2.1) (3) と同様に配置した。施肥量は埼玉県のニンジン施肥基準⁶⁾を基に設計した (Table 7)。汚泥肥料の施用量は 500 kg/10 a (現物) とし、その窒素肥効率を 50 % として計算し、窒素の不足分を補正肥料で補った。加里についても不足分は補正肥料で補った。標準区については、補正肥料を用いて汚泥肥料施用区と同じ成分量になるよう施用した。前作の跡地土壌を分析したところ、各試験区の有効態リン酸は汚泥肥料施用区 16.2 mg/100 g 乾土、標準区 16.0 mg/100 g 乾土であり、地力増進基本指針¹²⁾における有効態リン酸の改善目標下限値 (10 mg/100 g 乾土) を満たしていたことから、りん酸は追加しなかった。

Table 7 The fertilization amount (carrot in winter 2017)

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	2000	66	104	7	7.3	500	16.6	26.1	1.8	1.8
Urea	93	43	—	—	—	23	10.7	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Potassium chloride	90	—	—	57	—	23	—	—	14.2	—
Total		109	104	64	7.3		27.3	26.1	16.0	1.8
<Standard plot (SP)>										
Urea	120	55	—	—	—	30	13.8	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	171	21	104	—	—	43	5.2	26.1	—	—
Potassium chloride	101	—	—	64	—	25	—	—	16.0	—
Total		76	104	64	—		19.0	26.1	16.0	—

(4) 栽培方法

2017年6月2日に施肥を行った。各試験区の表層土約12 kgを袋に取り、Table 7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。さらに、ヨトウムシ等の害虫防除を目的としてダイアジノン粒剤を散布した。その後、耕耘機を用いて深さ約15 cmまで耕耘した。なお、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。

2017年6月20日に播種を行った。供試作物はニンジン(品種名:恋ごころ)を用い、試験区内を9条(条間約20 cm)間隔でシーダーテープ種子を用いて播種した。

2017年8月2日及び8月17日に間引きを行った。

2017年10月12日に収穫を行った。

播種から収穫までの栽培期間は約3ヶ月半であり、その間に異常な症状は確認されなかった。

(5) 作物体のカドミウム分析

収穫したニンジンは水道水で洗浄後、試験区毎に全株重量を測定した。分析用試料として試験区中央の1 m²分全てを根部と葉部に切り分け、部位別に重量を測定した。根部についてはさらにイオン交換水で洗浄して自然乾燥し、薄く切り分けたものをさらに通風乾燥器を用いて65 °Cで24時間乾燥した後、重量を測定した。葉部については自然乾燥し、さらに通風乾燥器を用いて65 °Cで24時間乾燥した後、重量を測定した。乾燥した根部及び葉部は、それぞれ目開き1 mm及び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)を用いて粉砕した。

カドミウム含有量の分析は、2.1(5)と同様に行った。

(6) 跡地土壌の分析

収穫後の土壌は、2.1(6)と同様に採取及び調製し、全カドミウム分析用試料については、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)で粉砕し調製をした。

土壌の分析は、2.1(6)の項目に加えて全カドミウムを分析した。

土壌中の全カドミウムは、分析試料0.5 gに、硝酸約10 mL、過酸化水素水約3 mL、及びフッ化水素酸約5 mLを加え、マイクロ波分解装置(Multiwave 3000:Perkin Elmar)により分解し試料溶液とした。測定はICP質量分析装置(UltiMate 3000:Thermo Fisher Scientific)により行った。

3. 結果

1) 2016年冬作連用試験(冬作ホウレンソウ:2016年11月14日～2017年3月17日)

(1) 作物体の収量及びカドミウム吸収量

ホウレンソウの収量、カドミウム濃度及びカドミウム吸収量(収量(乾物重)×カドミウム濃度(乾物値)により算出)をTable 8に示した。汚泥肥料施用区及び標準区の収量は、生体重でそれぞれ10.90 kgと10.45 kgであり、標準区の収量を100とした汚泥肥料施用区の収量指数は104であった。カドミウム濃度(乾物)については、汚泥肥料施用区は0.44 mg/kg、標準区は0.40 mg/kgであり、汚泥肥料施用区が有意に高かった($p=1.4\times 10^{-4}$)。現物濃度については、汚泥肥料施用区は0.055 mg/kg、標準区は0.054 mg/kgであり、いずれの試験区においてもCodex基準値¹⁷⁾(0.2 mg/kg)未満であった。カドミウム吸収量については、汚泥肥料施用区は平均値で0.60 mg/試験区、標準区は0.57 mg/試験区であり、汚泥肥料施用区が有意に高かった($p=2.2\times 10^{-3}$)。

Table 8 Yield of spinach (edible portion) and Cadmium uptake (winter 2016)

	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Yield index ^{b)}	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>								
Fresh weight	kg	12.15		9.65		10.90	104	-
Dry weight	kg	1.46		1.24		1.35	95	-
Cadmium concentration (fresh matter)	mg/kg	0.46	0.45	0.43	0.42	0.44	-	Significance ^{c)}
Cadmium concentration (dry matter)	mg/kg	0.055	0.054	0.055	0.054	0.055	-	-
Quantity of cadmium uptake ^{a)}	mg/plot	0.67	0.66	0.53	0.52	0.60	-	Pending ^{d)}
<Standard plot (SP)>								
Fresh weight	kg	11.40		9.50		10.45	100	-
Dry weight	kg	1.55		1.30		1.42	100	-
Cadmium concentration (fresh matter)	mg/kg	0.42	0.42	0.37	0.37	0.40	-	-
Cadmium concentration (dry matter)	mg/kg	0.057	0.057	0.051	0.051	0.054	-	-
Quantity of cadmium uptake ^{a)}	mg/plot	0.65	0.64	0.48	0.49	0.57	-	-

a) Quantity of cadmium uptake = Yield (dry weight) × Cadmium concentration (dry matter)

b) Yield of Standard plot was indexed as 100

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

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

(2) 跡地土壌の理化学性

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 9 に示した. 0.1 mol/L HCl-Cd は, 汚泥肥料施用区は 0.17 mg/kg, 標準区は 0.11 mg/kg であり, 汚泥肥料施用区の方が有意に高かった ($p=2.4 \times 10^{-4}$).

Table 9 Characteristics of cultivated soil in winter 2016

	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>							
0.1 mol/L HCl-Cd ^{a)}	mg/kg	0.17	0.18	0.17	0.17	0.17	Significance ^{d)}
pH (H ₂ O) ^{b)}		6.3		6.5			
EC ^{c)}	mS/m	8.5		7.9			
<Standard plot(SP)>							
0.1 mol/L HCl-Cd	mg/kg	0.12	0.11	0.12	0.11	0.11	
pH (H ₂ O)		6.4		6.4			
EC	mS/m	6.4		7.3			

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 × number of samples))

2) 2017 年夏作連用試験(夏作ニンジン:2017 年 6 月 20 日~2017 年 10 月 12 日)

(1) 作物体の収量及びカドミウム吸収量

ニンジンの収量, カドミウム濃度及びカドミウム吸収量を Table 10 に示した.

ニンジンの収量(生体重)は, 根部については汚泥肥料施用区 10.28 kg, 標準区 10.00 kg, 葉部については汚泥肥料施用区 5.70 kg, 標準区 6.03 kg であり, 根部と葉部の合計は汚泥肥料施用区 15.98 kg, 標準区 16.03 kg であった. 標準区の収量を 100 とした汚泥肥料施用区の収量指数は根部が 103, 葉部が 95, 根部と葉部の合計が 100 であった.

カドミウム濃度(乾物値)は, 根部については汚泥肥料施用区 0.12 mg/kg, 標準区 0.10 mg/kg, 葉部については汚泥肥料施用区 0.19 mg/kg, 標準区 0.15 mg/kg であった.

根部のカドミウム濃度(現物値)は、汚泥肥料施用区 0.013 mg/kg, 標準区 0.017 mg/kg であり, Codex 基準値¹⁾ (0.1 mg/kg) 未満であった。

試験区当たりのカドミウムの吸収量は、根部については汚泥肥料施用区 0.13 mg/試験区, 標準区 0.12 mg/試験区であり, 葉部については汚泥肥料施用区 0.14 mg/試験区, 標準区 0.12 mg/試験区であり, 根部と葉部の合計は汚泥肥料施用区 0.27 mg/試験区, 標準区 0.24 mg/試験区であった。

Table 10 Cadmium uptake and yield of carrot in the test

	Part	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Yield index ^{b)}	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>									
Fresh weight	Root	kg	10.25		10.30		10.28	103	-
	Leaf	kg	5.80		5.60		5.70	95	-
	Total	kg	16.05		15.90		15.98	100	-
Dry weight	Root	kg	0.96		1.21		1.08	88	-
	Leaf	kg	0.71		0.72		0.72	93	-
	Total	kg	1.67		1.93		1.80	90	-
Cadmium concentration (dry matter)	Root	mg/kg	0.13	0.12	0.12	0.12	0.12		Pending ^{c)}
	Leaf	mg/kg	0.19	0.19	0.19	0.19	0.19		Pending ^{c)}
Cadmium concentration (fresh matter)	Root	mg/kg	0.012	0.012	0.014	0.014	0.013		-
	Leaf	mg/kg	0.023	0.024	0.024	0.025	0.024		-
Quantity of cadmium uptake ^{a)}	Root	mg/plot	0.12	0.12	0.15	0.14	0.13		Pending ^{c)}
	Leaf	mg/plot	0.14	0.14	0.14	0.14	0.14		Pending ^{c)}
	Total	mg/plot	0.26	0.26	0.28	0.28	0.27		Pending ^{c)}
<Standard plot (SP)>									
Fresh weight	Root	kg	9.65		10.35		10.00		
	Leaf	kg	6.20		5.85		6.03		
	Total	kg	15.85		16.20		16.03		
Dry weight	Root	kg	1.19		1.28		1.24		
	Leaf	kg	0.80		0.75		0.77		
	Total	kg	1.99		2.03		2.01		
Cadmium concentration (dry matter)	Root	mg/kg	0.10	0.11	0.08	0.08	0.10		
	Leaf	mg/kg	0.17	0.17	0.13	0.14	0.15		
Cadmium concentration (fresh matter)	Root	mg/kg	0.013	0.013	0.022	0.022	0.017		
	Leaf	mg/kg	0.010	0.010	0.017	0.017	0.014		
Quantity of cadmium uptake ^{a)}	Root	mg/plot	0.12	0.13	0.11	0.11	0.12		
	Leaf	mg/plot	0.14	0.14	0.10	0.10	0.12		
	Total	mg/plot	0.26	0.26	0.21	0.21	0.24		

a) Quantity of cadmium uptake = Yield (dry weight) × Cadmium concentration (dry matter)

b) Yield of Standard plot was indexed as 100

c) It was pending decision to be significantly different for Standard plot and for interaction (two-way ANOVA 5 % of both sides levels of significance, $n=4$ (2×2) (repetition × number of samples))

(2) 跡地土壌の理化学性

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 11 に示した。

全カドミウム濃度は、汚泥肥料施用区は 0.61 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 ($p=1.4 \times 10^{-5}$)。

0.1 mol/L HCl-Cd は、汚泥肥料施用区は 0.21 mg/kg, 標準区は 0.14 mg/kg であり、汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p=2.1 \times 10^{-6}$)。

Table 11 Characteristics of cultivated soil in summer 2017

	Unit	Test prot-1		Test prot-2		Average	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>							
Total-Cd ^{a)}	mg/kg	0.61	0.60	0.62	0.61	0.61	Significance ^{e)}
0.1 mol/L HCl-Cd ^{b)}	mg/kg	0.22	0.21	0.21	0.21	0.21	Significance
pH (H ₂ O) ^{c)}		6.3		6.4			
EC ^{d)}	mS/m	0.093		0.079			
<Standard plot (SP)>							
Total-Cd ^{a)}	mg/kg	0.45	0.46	0.48	0.47	0.46	
0.1 mol/L HCl-Cd ^{b)}	mg/kg	0.15	0.14	0.14	0.14	0.14	
pH (H ₂ O) ^{c)}		6.4		6.5			
EC ^{d)}	mS/m	0.064		0.061			

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))

4. 考 察

1) 作物体の収量の推移

2009年夏作以降の作物体の収量の推移を Fig.2 に示した。

ホウレンソウについては参考にした自治体施肥基準⁶⁾に記載されている目標収量(8 kg/試験区)と同等以上であり、一定の収量が確保されている。

ニンジンについては2012年夏作以降、自治体施肥基準⁶⁾に記載されている目標収量(14 kg/試験区)を下回っている。これは、通常、ニンジンは根の肥大を促進するため基肥は緩効性肥料を使用し、加えて追肥を行うこととされている⁶⁾が、本試験では試験設計上、緩効性肥料の使用及び追肥が行えないことが一因と考えられる。

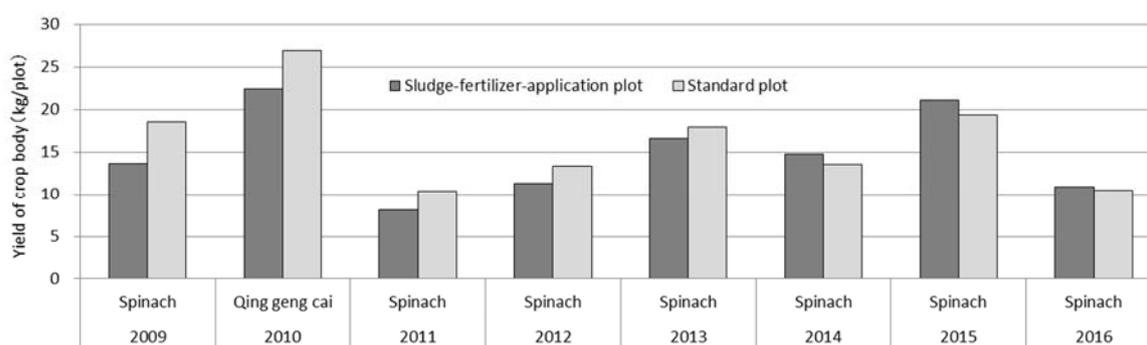


Fig.2-1 The yield of each crop body from 2009 to 2016 (in winter)

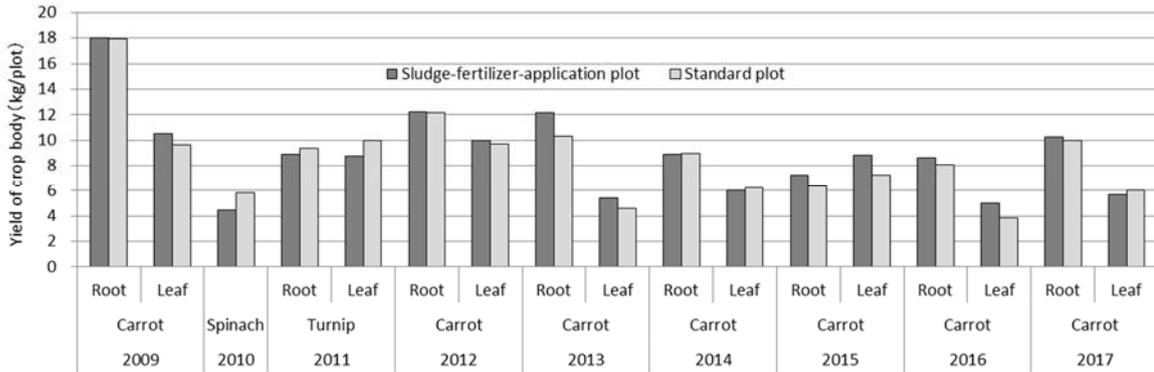


Fig.2-2 The yield of each crop body from 2009 to 2017 (in summer)

2) 作物体のカドミウム濃度及び吸収量の推移

2009 年夏作から 2017 年夏作までの各試験での作物体中のカドミウム濃度及び試験区当たりのカドミウム吸収量の推移を Fig.3 に示した。

2011 年以降、標準区よりも汚泥肥料施用区の方が作物体中のカドミウム濃度及びカドミウム吸収量が高い傾向が続いていることから、汚泥肥料の施肥によって作物体のカドミウム濃度が高くなると考えられる。しかし、これまで汚泥肥料施用区から収穫した作物体のカドミウム濃度が Codex 基準値¹⁷⁾(葉菜:0.2 mg/kg, 根菜:0.1 mg/kg)を超えることはなかった。

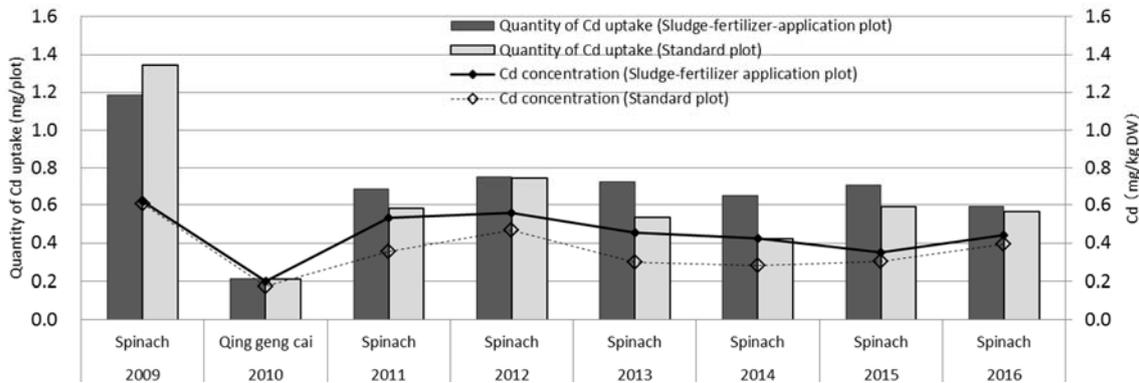


Fig.3-1 Cadmium concentration and absorption amount of each crops from 2009 to 2016 (in winter)

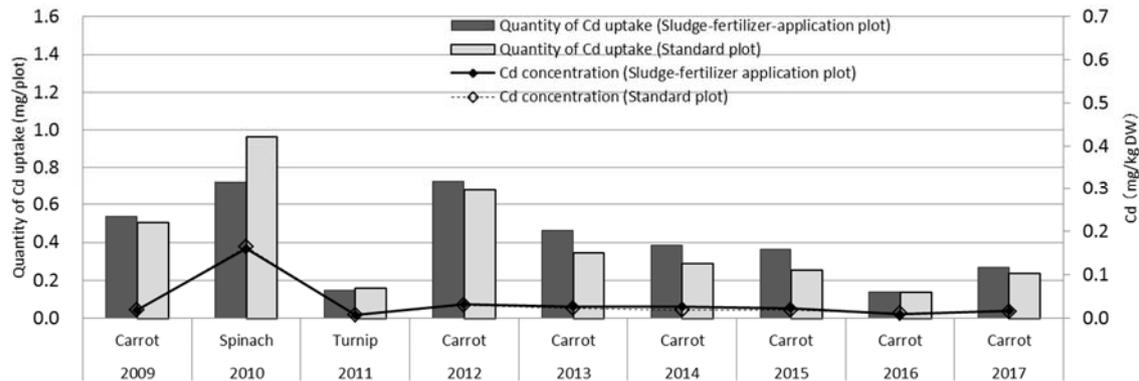


Fig.3-2 Cadmium concentration and absorption amount of each crops from 2009 to 2017 (in summer)

3) 跡地土壌中のカドミウムの推移

(3.1) 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 の推移を Table 12 及び Fig.4 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 13）。2017 年夏作跡地までの汚泥肥料施用区の回帰は有意でなく（ $p=0.45$ ）一定で推移している傾向であった。一方，標準区では，2011 年冬作跡地以降，回帰が有意となり下降傾向が認められ（ $p=3.2 \times 10^{-7}$ ），両試験区間の差は大きくなる傾向であった。また，2011 年冬作以降，汚泥肥料施用区の 0.1 mol/L HCl-Cd が標準区に比べて有意に高くなった。それ以降，汚泥肥料施用区の方が高い傾向が続いている。これは，標準区は肥料によるカドミウムの供給がなく，作物体の持ち出しがあるのに対し，汚泥肥料施用区は汚泥肥料によって供給されたカドミウムの一部は作物体の吸収によって持ち出されるが，それ以外は土壌に残留していることが要因と考えられる。

Table 12 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)	P-value of single regression analysis ^{d)}	
						Ap ^{b)}	SP ^{c)}
2009	Start	—	0.19 (0.01) ^{e)}	0.20 (0.02)	N.S. ^{f)}	—	—
2009	Summer	Carrot	0.21 (0.01)	0.21 (0.02)	N.S.	—	—
2009	Winter	Spinach	0.20 (0.003)	0.18 (0.01)	Pending ^{g)}	—	—
2010	Summer	Spinach	0.19 (0.01)	0.17 (0.02)	Pending ^{g)}	—	—
2010	Winter	Qing geng cai	0.18 (0.02)	0.18 (0.01)	N.S.	0.55	0.20
2011	Summer	Turnip	0.19 (0.004)	0.18 (0.01)	Pending ^{g)}	0.41	0.11
2011	Winter	Spinach	0.20 (0.01)	0.17 (0.01)	Significance ^{h)}	0.63	< 0.05
2012	Summer	Carrot	0.19 (0.005)	0.15 (0.01)	Significance ^{h)}	0.41	< 0.01
2012	Winter	Spinach	0.21 (0.01)	0.17 (0.01)	Significance ^{h)}	0.98	< 0.01
2013	Summer	Carrot	0.20 (0.004)	0.16 (0.01)	Significance ^{h)}	0.89	< 0.01
2013	Winter	Spinach	0.22 (0.01)	0.16 (0.004)	Significance ^{h)}	0.34	< 0.01
2014	Summer	Carrot	0.20 (0.01)	0.15 (0.005)	Significance ^{h)}	0.30	< 0.01
2014	Winter	Spinach	0.21 (0.01)	0.15 (0.003)	Pending ^{g)}	0.17	< 0.01
2015	Summer	Carrot	0.15 (0.01)	0.11 (0.005)	Significance ^{h)}	0.80	< 0.01
2015	Winter	Spinach	0.16 (0.01)	0.11 (0.001)	Pending ^{g)}	0.29	< 0.01
2016	Summer	Carrot	0.19 (0.02)	0.12 (0.005)	Pending ^{g)}	0.30	< 0.01
2016	Winter	Spinach	0.17 (0.01)	0.11 (0.002)	Significance ^{h)}	0.16	< 0.01
2017	Summer	Carrot	0.21 (0.002)	0.14 (0.004)	Significance ^{h)}	0.45	< 0.01

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

f) It was not 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))

g) It was pending decision to be significantly different for Standard plot and for interaction

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

h) 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))

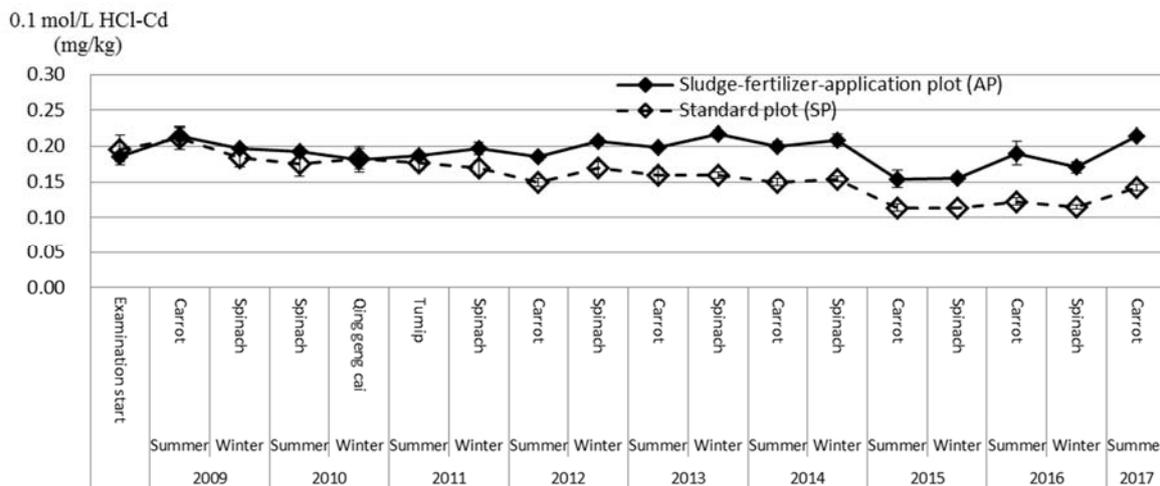


Fig.4 Changes in the 0.1 mol/L HCl-Cd concentration of soil after harvest

(The error bar indicating the standard deviation)

(3.2) 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 13 及び Fig.5 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、2009年夏作からの経過月(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 14). 2017年夏作跡地までの汚泥肥料施用区は上昇傾向($p=3.4 \times 10^{-3}$)が認められ、標準区は下降傾向($p=2.6 \times 10^{-2}$)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2009年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2012年夏作以降、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壌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が、標準区は肥料由来のカドミウムの供給がないためと考えられる。

跡地土壌の全カドミウム濃度について、2009年夏作跡地からの実測値と理論値の推移を Fig.5 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、2009年夏作跡地土壌の実測値を起点として、Table 16 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。これは、土壌中のカドミウムの水平方向への移動^{4), 18)~20)}があり、一部のカドミウムが試験区内に留まらないことによるものと考えられた。

Table 13 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)	p-value of single regression analysis ^{d)}	
						Ap ^{b)}	SP ^{c)}
2009	Summer	Carrot	0.51 (0.02) ^{e)}	0.48 (0.03)	Significance ^{f)}	—	—
2010	Summer	Spinach	0.52 (0.01)	0.49 (0.03)	Significance	—	—
2011	Summer	Turnip	0.51 (0.02)	0.48 (0.02)	Significance	—	—
2012	Summer	Carrot	0.52 (0.02)	0.46 (0.03)	Significance	—	—
2013	Summer	Carrot	0.53 (0.01)	0.46 (0.03)	Significance	—	—
2014	Summer	Carrot	0.57 (0.03)	0.47 (0.03)	Significance	$p < 0.05^g)$	0.16
2015	Summer	Carrot	0.57 (0.01)	0.46 (0.01)	Significance	$p < 0.01$	0.06
2016	Summer	Carrot	0.54 (0.00)	0.45 (0.02)	Significance	$p < 0.05$	$p < 0.05$
2017	Summer	Carrot	0.61 (0.01)	0.46 (0.01)	Significance	$p < 0.01$	$p < 0.05$

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

f) 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))

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

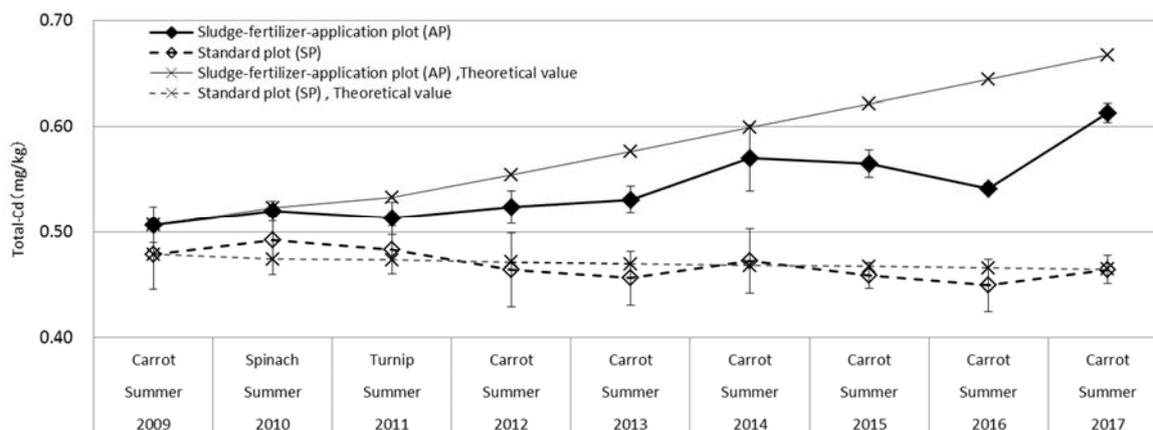


Fig.5 Changes in the actual total-Cd concentration and the theoretical total-Cd concentration of soil after harvest (The error bar indicating the standard deviation)

(3.3) 土壌中の全カドミウムの蓄積量と 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度

各試験での肥料由来のカドミウム負荷量, 作物体によるカドミウム持出し量, 土壌へのカドミウム蓄積量及び蓄積濃度の推移を Table 14 に示した. カドミウムの負荷量は, 施用肥料のカドミウム含有量に施用量を乗じて算出した. 作物体によるカドミウム持出し量は, 収穫した作物体のカドミウム吸収量とした. 土壌へのカドミウム蓄積量は, 施用肥料によるカドミウム負荷量と作物体によるカドミウム持出し量の差により算出した. 土壌へのカドミウム蓄積量は, カドミウム蓄積量を試験区当たりの土壌量(作土の深さ 15 cm, 土壌の仮比重 1.0 とし,

試験区 4 m² 当たりの土壌量を 600 kg とした)で除して算出した。これは、土壌の作土の深さ及び仮比重が常に一定で、かつ肥料由来のカドミウムが全て作土に蓄積したと仮定して算出した。

Table 14 Changes of the 2009 ~2017 years of the quantity of cadmium load by fertilizer, quantity of peculating due to the crops body, and quantity of cadmium accumulation to the soil

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)			
2009	Summer	Carrot	4.84	0.54	4.30	0.007	0	0.50	-0.50	-0.001
2009	Winter	Spinach	4.40	1.18	3.22	0.005	0	1.34	-1.34	-0.002
2010	Summer	Spinach	3.30	0.72	2.58	0.004	0	0.96	-0.96	-0.002
2010	Winter	Qing geng cai	2.64	0.21	2.43	0.004	0	0.21	-0.21	-0.0003
2011	Summer	Turnip	3.30	0.15	3.15	0.005	0	0.16	-0.16	-0.0003
2011	Winter	Spinach	7.04	0.68	6.35	0.011	0	0.58	-0.58	-0.001
2012	Summer	Carrot	7.28	0.73	6.55	0.011	0	0.68	-0.68	-0.001
2012	Winter	Spinach	7.28	0.75	6.53	0.011	0	0.75	-0.75	-0.001
2013	Summer	Carrot	7.28	0.46	6.82	0.011	0	0.34	-0.34	-0.001
2013	Winter	Spinach	7.28	0.73	6.55	0.011	0	0.53	-0.53	-0.001
2014	Summer	Carrot	7.28	0.38	6.90	0.011	0	0.29	-0.29	-0.0005
2014	Winter	Spinach	7.28	0.65	6.63	0.011	0	0.42	-0.42	-0.001
2015	Summer	Carrot	7.28	0.36	6.92	0.012	0	0.26	-0.26	-0.0004
2015	Winter	Spinach	7.28	0.71	6.57	0.011	0	0.59	-0.59	-0.001
2016	Summer	Carrot	7.28	0.23	7.05	0.012	0	0.19	-0.19	-0.0003
2016	Winter	Spinach	7.28	0.60	6.68	0.011	0	0.57	-0.57	-0.0009
2017	Summer	Carrot	7.28	0.28	7.00	0.012	0	0.24	-0.24	-0.0004
Total			105.60	9.36	96.24	0.160	0.00	8.62	-8.62	-0.0144

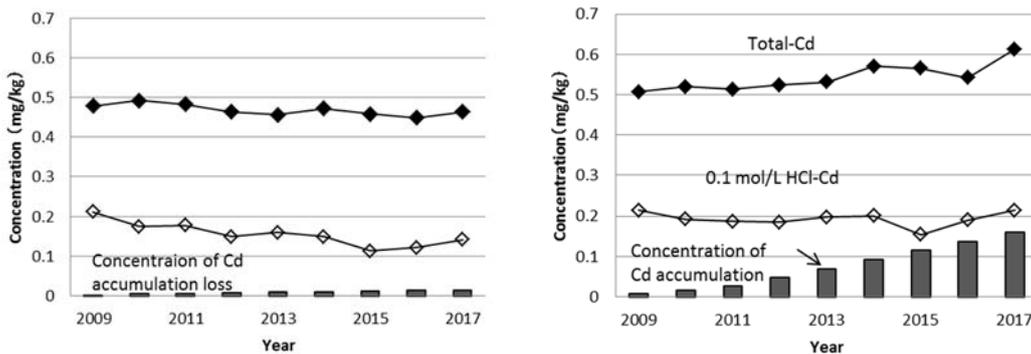
- a) It show every test plot 4 m²
- b) Quantity of cadmium load by fertilizer = Total cadmium concentration of the fertilizer × Amount of the fertilizer application
- c) Quantity of peculating due to the crops body = Yield (dry weight) × Cadmium concentration (dry matter)
- d) Quantity of cadmium accumulation to the soil = b) - c)
- e) Concentration of cadmium accumulation to the soil = d) / Amount of test plot soil (600 kg)

Table 14 の結果から、標準区は作物体によるカドミウムの持ち出し量(累積), 汚泥肥料施用区はカドミウム蓄積量(累積)を算出した結果を土壌中全 Cd 及び 0.1 mol/L HCl-Cd の推移とともに Fig.6 に示した。

標準区については、作物体による Cd の持ち出し量は、全カドミウムの減少幅とほぼ同じだが、0.1 mol/L HCl-Cd の減少幅はそれに対してやや大きい。これは、土壌由来の 0.1 mol/L HCl-Cd の不溶化が徐々に進んでいることによるものと推察される。

汚泥肥料施用区については、肥料由来のカドミウム蓄積量(累積)が試験開始時の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度に近づいているにもかかわらず、0.1 mol/L HCl-Cd 濃度の増加傾向は認められない。これは、作物による持ち出し、土壌中に負荷されたカドミウムの水平移動^{4), 18)~20)}の他に、土壌中の有機物等と結合する²¹⁾ことによつて 0.1 mol/L HCl-Cd が不溶化していることが要因と考えられる。作物体のカドミウム濃度が標準区と汚泥肥料区の間で大差がないのは、肥料中の 0.1 mol/L HCl-Cd の多くが作物体に吸収される前に不溶化していることが考えられる。

カドミウムを含有する汚泥肥料の連用により、0.1 mol/L HCl-Cd の不溶化が飽和状態に達した場合、これまで増加傾向が認められなかった土壌中の 0.1 mol/L HCl-Cd が増加傾向に転じることが予想される。その場合は、作物体のカドミウム濃度にも影響することが考えられることから、今後も土壌のカドミウム蓄積量(累積)と 0.1 mol/L HCl-Cd の関係については引き続き調査する必要がある。



(Standard plot)

(Sludge-fertilizer-application plot)

Fig.6 Changes of Cd concentration in the soil

(4) 跡地土壤の理化学性の推移

(4.1) 跡地土壤の pH

跡地土壤の pH の推移は Fig.7 のとおりである. 汚泥肥料施用区及び標準区ともに pH 6.0~6.9 の範囲内で試験区間差も小さく推移している.

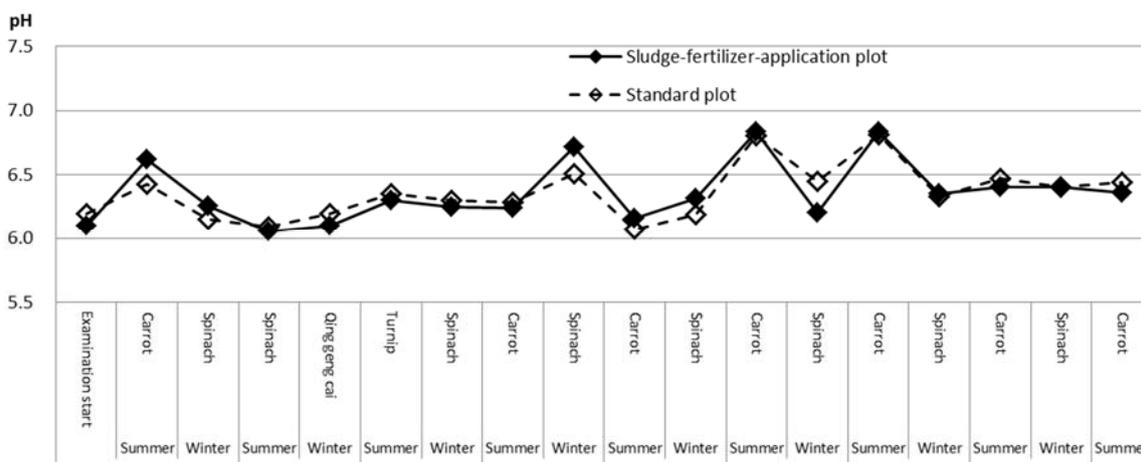


Fig.7 Changes in the pH of soil after harvest

(4.2) 跡地土壤の EC(電気伝導率)

跡地土壤 EC の推移は Fig.8 のとおりである. 試験開始以降, 2013 年冬作跡地までは年々上昇傾向となっていたが, 2014 年夏作跡地以降は下降傾向が見られた. これは, EC 上昇防止及び肥効の緩効化をはかるため, 2014 年夏作から窒素肥料をそれまで使用していた硫酸アンモニウムから尿素に変更したためと考えられる.

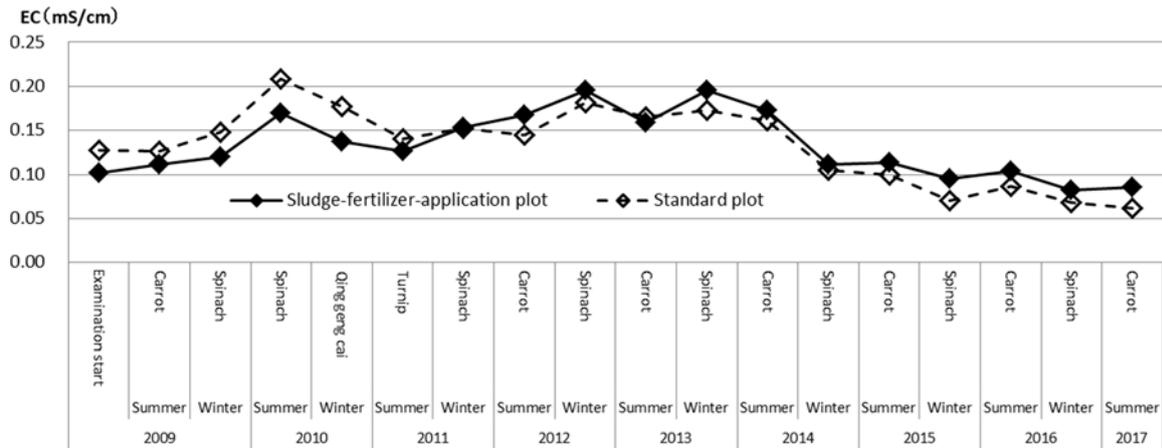


Fig.8 Changes in the EC of soil after harvest

(4.3) 跡地土壌の全窒素(TN)及び全炭素(TC)

跡地土壌の全窒素(TN)及び全炭素(TC)の推移はFig.9のとおりである。試験開始当初はTN及びTCに試験区間でほとんど差が見られなかったが、2011年冬作跡地以降、TN及びTC共に汚泥肥料施用区の方が標準区に比べて高い傾向にあった。これは、汚泥肥料施用区には汚泥肥料由来の有機物が施用されているが、標準区においては有機物の施用がない状態で連作が行われているため、標準区の有機物濃度が減少したことによると考えられる。

肥料由来のカドミウムは土壌中の有機物と結合し不可給態化することが知られており²¹⁾、有機物濃度の差が土壌中のカドミウムの動態や作物への可給性に影響する可能性があるため、推移を確認する必要がある。

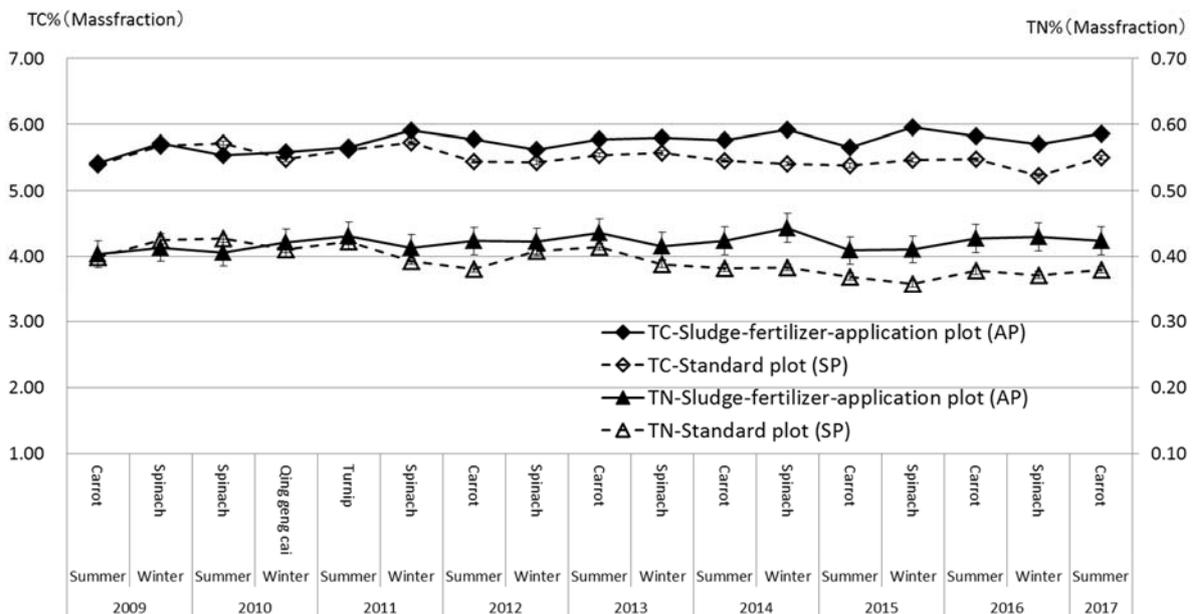


Fig.9 Changes in the total nitrogen (TN) and total carbon (TC) of soil after harvest
(The error bar indicating the standard deviation)

(4.4) 跡地土壌の有効態リン酸

跡地土壌の有効態リン酸の推移を Fig.10 に示した. 試験開始当初から汚泥肥料施用区と比較して標準区が高く推移していたが, 2014 年冬作跡地では汚泥肥料施用区の有効態リン酸が急激に増加した. これは, 2014 年夏作時に汚泥肥料施用区に大量に施肥した熔成りん肥の影響によるものと推察された. 前作に施肥した熔成りん肥により有効態リン酸が上昇する傾向は, 標準区においても 2014 年夏作跡地で確認されている.

また, 2016 年夏作は両試験区とも有効態リン酸を地力増進基本指針¹²⁾の改善目標内の 14 mg/100 g 乾土になるよう施肥を行ったが, 夏作跡地を確認すると汚泥肥料施用区は 15 mg/100 g 乾土, 標準区は 12 mg/100 g 乾土であった. 汚泥肥料施用区の収量は標準区に比べて多いため有効態リン酸は多く消費されたものと考えられたが, 汚泥肥料施用区の有効態リン酸が標準区に比べて高いことは, 前作に施用した汚泥肥料中のリンが夏に有効態化したこと, 及び土壌の改善効果を見込んで施肥したりん酸一アンモニウムの施用量の影響が考えられた.

なお, 2016 年冬作及び 2017 年夏作の跡地土壌の有効態リン酸については, 汚泥肥料施用区と標準区は同程度であった.

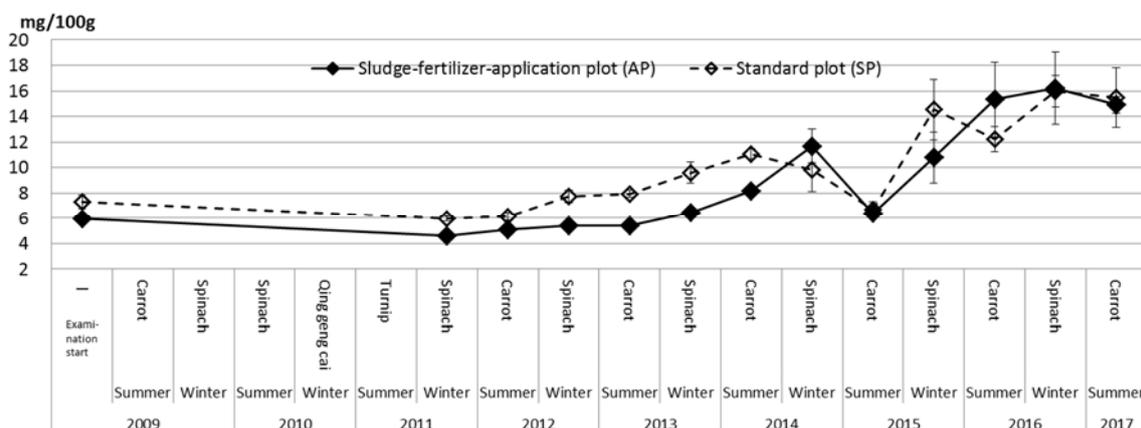


Fig.10 Changes in the available phosphate of soil after harvest

(4.5) 跡地土壌の交換性塩基(加里, 苦土, 石灰)

跡地土壌の交換性塩基(加里, 苦土, 石灰)の推移は Fig.11-1, Fig.11-2 及び Fig.11-3 のとおりである. 交換性加里は, ほぼ一定で推移していた.

交換性苦土は, 試験開始時と 2011 年冬作跡地を比較するとやや減少していた. その後, 2012 年夏作から, 各試験区の有効態リン酸を増加させることを目的として熔成りん肥の施用を開始し, 2013 年冬作までは全ての試験区に同量の熔成りん肥を施用していたが, 汚泥肥料施用区は標準区と比較して熔成りん肥施用量に対する有効態リン酸の増加率が低かったため, 2014 年夏作では標準区よりも熔成りん肥施用量を多く施用した. このため, 標準区と比較して汚泥肥料施用区の跡地土壌中の交換性苦土が高い状態となっていると考えられる.

交換性石灰は, 2014 年夏作跡地では標準区において増加傾向が見られた. これは 2014 年夏作時に標準区にのみ消石灰を施用したことによるものと考えられる. また, 2014 年冬作跡地では試験区間の差を維持したまま, 汚泥肥料施用区及び標準区で減少傾向が確認された. これは 2014 年冬作時に消石灰の施用を行わなかったことによるものと考えられる. 2015 年夏作においては汚泥肥料施用区にのみ消石灰を施用したため試験区間での差は解消され, それ以降は試験区間で大きな差は見られない.

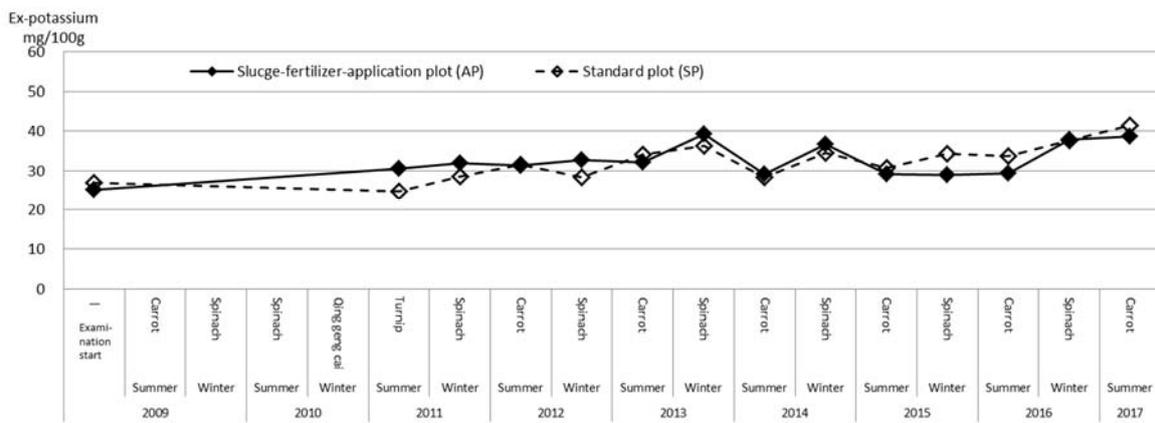


Fig.11-1 Changes in the exchangeable-potassium of soil after harvest

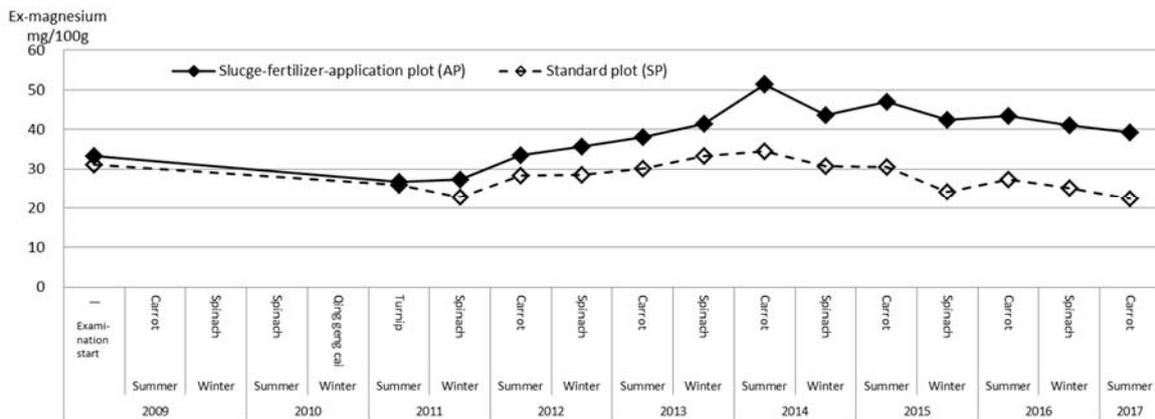


Fig.11-2 Changes in the exchangeable-magnesium of soil after harvest

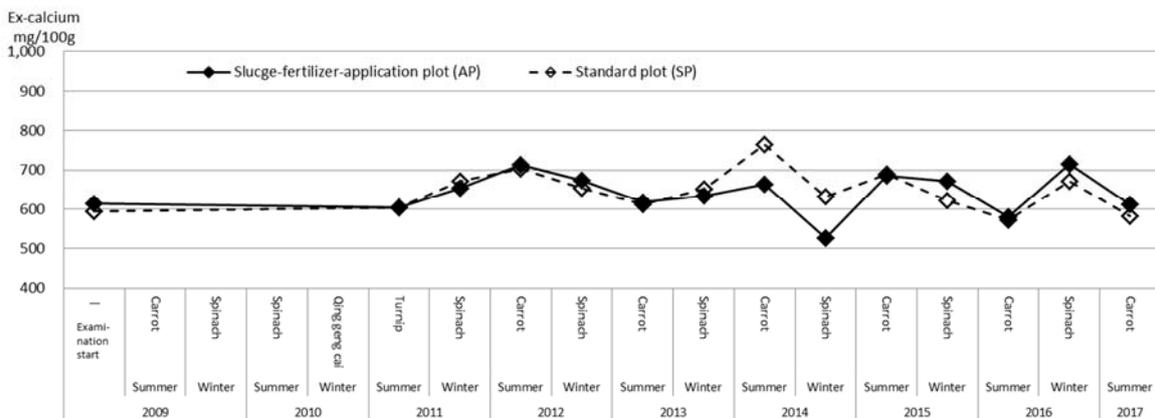


Fig.11-3 Changes in the exchangeable-calcium of soil after harvest

5. まとめ

2016年冬作のハウレンソウ、2017年夏作のニンジン¹の作物体の全カドミウムを分析した結果、ハウレンソウについては汚泥肥料施用区の方が有意に高く($p=1.4 \times 10^{-4}$)、ニンジンについても汚泥肥料施用区の方が高い傾向が確認された。

跡地土壌中の全カドミウムを分析した結果、2009年夏作から2017年夏作まで汚泥肥料施用区は上昇傾向、標準区は減少傾向が認められた。

跡地土壌中の0.1 mol/L HCl-Cdを分析した結果、2009年夏作から2017年夏作まで汚泥肥料施用区は一定で推移する傾向にあり、標準区は減少傾向が認められた。全カドミウムが上昇傾向にあるのに対し、0.1 mol/L HCl-Cdが一定で推移する傾向にあるのは、土壌中のカドミウムが水平方向へ移動することの他に、土壌中の有機物等により0.1 mol/L HCl-Cdが一部不溶化していると考えられた。カドミウムの0.1 mol/L HCl不溶化が飽和状態になれば、土壌中の0.1 mol/L HCl-Cdが上昇傾向に転ずる可能性があり、その場合は作物体中のカドミウム濃度にも影響があると考えられることから、今後も土壌のカドミウム蓄積量(累積)と0.1 mol/L HCl-Cdの関係については引き続き調査する必要がある。

文 献

- 1) 農林水産省告示:肥料取締法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, 最終改正平成30年9月5日, 農林省告示第1991号 (2018)
- 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)
<http://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_hiryo/odei_hiryo/pdf/honnun.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) 八木寿治, 鈴木時也, 田中雄大, 阿部文浩, 橋本良美, 田丸直子, 阿部進: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(続報)―2015年冬作・2016年夏作―, 肥料研究報告, 10, (2017)
- 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
<http://www.famic.go.jp/ffis/fert/obj/shikengo_2018.pdf>
- 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/schikijun.html>>
- 7) 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), (2008)
<http://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_hiryo/odei_hiryo/pdf/03_data1.pdf>
- 8) 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>>
- 9) 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/schikijun.html>>
- 10) 群馬県 作物別施肥基準及び土壌診断基準 おいでい肥料と土壌の重金属
<<http://www.aic.pref.gunma.jp/agricultural/management/technology/soil/01/index.html>>

- 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) 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, 106, 博友社, 東京(1991)
- 14) Perkin Elmer 社:マイクロ波分解装置取扱説明書, 分解メソッド集, ホウレンソウ
- 15) 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)
- 16) 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)
- 17) 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
< http://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_cd/kizyunti/ >
- 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, 日本土壌肥料学雑誌, 73(4), 391~396, (2002)
- 19) 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, 124~127, 博友社, 東京(1991)
- 20) 岡本 保:下水汚泥の農業利用上の留意点, 再生と利用, 34(127), 74~81, (2010)
- 21) 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, p49, (2011)

Effect of Continuous Application of Sludge Fertilizer on Cadmium Absorption of the Crop and Accumulation of Cadmium in the Soil (Continued Report)
- Winter 2016 and Summer 2017 -

Keisuke AOYAMA¹, Toshiharu YAGI², Harufumi SAITO¹, Kenta SAKUMA²,
Tokiya SUZUKI³, Yudai TANAKA¹, Yoshimi HASHIMOTO¹, Fumihiro ABE¹

¹ Food and Agricultural Materials Inspection Center, Fertilizer and Feed Inspection Department

² Food and Agricultural Materials Inspection Center, Fertilizer and Feed Inspection Department
(Now) Nagoya Regional Center

³ Food and Agricultural Materials Inspection Center, Fertilizer and Feed Inspection Department
(Now) Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries, Food Safety and Consumer Affairs Bureau

We have been researching 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 2016 and carrot in summer 2017. 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 500 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 on the basis of the fertilization standard shown on the Saitama prefecture's web site. The concentration of total cadmium in the crop, acid-solubility-Cd in the soil 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 winter 2011. The concentration of total-Cd in the soil (from summer 2009 to summer 2017) showed significant increasing trend in the AP. The concentrations of cadmium in each crop harvested (from summer 2009 to summer 2017) 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 cadmium-transition in the soil from now on.

Key words sludge fertilizer, continuous application, cadmium

(Research Report of Fertilizer, **11**, 106~128, 2018)