

10 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)

—2018年冬作・2019年夏作—

松尾信吾¹, 浅尾直紀², 村山和晃², 青山恵介³, 小塚健志³, 阿部文浩⁴

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,「第2章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,「連用試験で用いた土壌で, 通常に比べカドミウムの蓄積が進んでいる場合には, この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.」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2018年夏作にかけ, 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, 年間, 夏作と冬作の二毛作を基本として連用試験を行ってきた. 農作物については, 試験を開始した2年目(2010年)の夏にホウレンソウ, 同年冬にチンゲンサイ, 3年目(2011年)の夏にカブを作付けした以外は, 夏作にニンジン, 冬作にホウレンソウを基本として栽培を行ってきた. また, これまでの結果は, 肥料研究報告第4号³⁾~12号⁴⁾に収載されているとおり, 現在まで土壌中の全カドミウム濃度は上昇傾向を示しているが, 作物体のカドミウム濃度は上昇傾向を示していないと報告している. このことから, 汚泥肥料中のカドミウムは主に 0.1 mol/L 塩酸可溶の形態(以下,「塩酸可溶カドミウム」)で存在しているが, 土壌に施肥した後は不溶化されることにより, 作物体が吸収しにくい状態で存在しているとの仮説が立てられた. これを受け, 肥料研究報告第12号では, カドミウムの不溶化の限界(以下,「臨界点」)を調査するための試験を行い, その結果が報告されている.

2018年冬作及び2019年夏作についても引き続き圃場での汚泥肥料の連用試験を行い, また, 実験室レベルで臨界点の調査を行ったので, その概要を報告する.

2. 材料及び方法

1) 試験圃場及び供試土壌

本試験は, 独立行政法人農林水産消費安全技術センター岩槻圃場(埼玉県さいたま市)にて実施した.

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(現)福岡センター

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

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)神戸センター

⁴ 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

供試土壌の種類は黒ボク土，土性は軽しよく土である。また，供試土壌は，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）とした。供試土壌のうち施用履歴がある土壌は 2004 年及び 2006 年に汚泥肥料（し尿汚泥肥料及び下水汚泥肥料）を施用しており，この時の汚泥肥料由来のカドミウム負荷量は，試験区（4 m²）当たり約 100 mg であった。

2) 試験区の構成

試験区の構成は，Figure 1 のとおり全体で 49 m²（縦 7 m×横 7 m）を設置し，その内側に汚泥肥料を施用する汚泥肥料施用区（AP）と，補正肥料を施用する標準区（SP）を配置した。各試験区あたりの面積は 4 m²（縦 2 m×横 2 m）とし，2 試験区 2 反復の計 4 試験区とした。また，各試験区の周辺 1 m の部分はガードプランツとして，試験区の保護及び風雨や耕耘等による汚泥肥料の混入防止の目的で配置した。

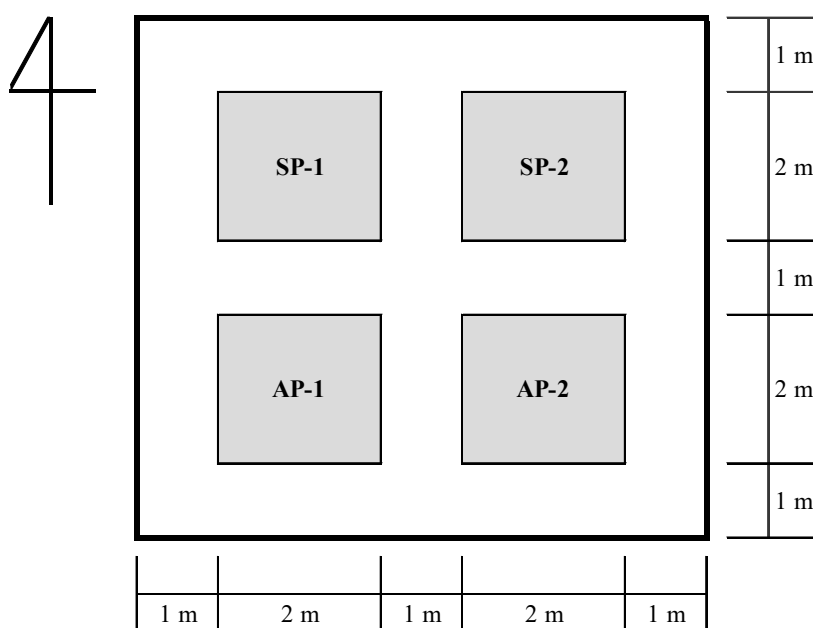


Figure 1 Plot plant of the test field

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

3) 供試肥料等

本試験に用いた汚泥肥料は，市場に流通している市販肥料であり，一般家庭から排出されるし尿汚泥及び浄化槽汚泥を脱水し，高分子凝集剤（カチオン系）を加え乾燥させた黒色，粒径約 3 mm のし尿汚泥肥料である。また，補正肥料には，JIS 規格に規定されている試薬特級の尿素，りん酸二水素アンモニウム及び塩化カリウムを使用した。し尿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。ただし，し尿汚泥肥料中の塩酸可溶カドミウムは肥料等試験法に定めがないため，粉碎した試料 1 g を 0.1 mol/L 塩酸 50 mL で 60 分間振とう抽出し，その液の一定量を 105 °C で加熱し，放冷後，適宜希釈（塩酸 1+23）したものを原子吸光分析装置（Z-2310: HITACHI, 波長 228.8 nm）により測定した⁶⁾。また，前回（2012 年夏作から 2018 年夏作）まで使用していたし尿汚泥肥料の在庫がなくなったことから，新たにし尿汚泥肥料を入手し，今回の試験から施用した。なお，新しく入手したし尿汚泥肥料の成分分析結果を Table 1 に，補正肥料の成分量を Table 2 に示す。

Table 1 Properties of sludge fertilizer

Components	Unit	Content	Components	Unit	Content
Total nitrogen	% ^{a)}	5.8	Total copper	mg/kg	329
Total phosphorus (P ₂ O ₅)	%	4.7	Total Zinc	mg/kg	1038
Total potassium (K ₂ O)	%	0.4	Carbon to nitrogen ratio	-	6.3
Total calcium (CaO)	%	1.4	Total cadmium	mg/kg	2.7 ^{b)}
Organic carbon	%	36.0	Acid-solubility-cadmium ^{c)}	mg/kg	1.8
Moisture	%	11.2			

a) Mass fraction

b) 2.84 mg/kg in the dry matter

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

Table 2 Properties of reagent

Components	Unit	Urea	Ammonium dihydrogen phosphate	Potassium chloride
Total nitrogen	% ^{a)}	46.1	12.0	—
Total phosphorus ^{b)}	%	—	61.0	—
Total potassium ^{c)}	%	—	—	63.1

a) Mass fraction

b) Content as P₂O₅c) Content as K₂O

4) 施肥設計及び施肥履歴

し尿汚泥肥料及び補正肥料の施用量は、埼玉県の主要農作物施肥基準⁷⁾を参考として、1 試験区あたりに必要となる窒素、りん酸、加里の各肥料成分量を算出することで設計した。ただし、し尿汚泥肥料の施用量については、農林水産省の実施したアンケート調査によると1 作あたり 500 kg/10 a 程度が最も一般的との回答であったこと⁸⁾。また、いくつかの自治体によると、汚泥肥料中の重金属が農地へ蓄積するのを抑制するために、汚泥肥料の施肥量の上限は 500 kg/10 a~1000 kg/10 a 程度が目安として示されていること^{9)~11)}。さらに、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 が低下することが知られていること¹²⁾等の知見を考慮し、1 試験区 (4 m²) あたりのし尿汚泥肥料の施肥量は、500 kg/10 a (1000 m²) の 250 分の 1 量となる 2 kg とした。

汚泥肥料施用区の窒素の施用量を設計するため、Table 1 のし尿汚泥肥料について無機化試験を実施し、窒素効率を求めた。すなわち、黒ボク土 (乾土 50 g 相当) とし尿汚泥肥料 (窒素 25 mg 相当) を混合し、30 °C のインキュベーターで、7, 14, 21, 28, 35, 42, 70 及び 98 日間培養後、蒸留法にて無機態窒素を測定し、無機化率を算出した。その結果、培養期間 42 日以降からほぼ一定となり、無機化率は 33 % となった。前回までのし尿汚泥肥料は無機化率が 30 % のところ、窒素効率を冬作 20 %、夏作 50 % として施肥設計を行っており、今回のし尿汚泥肥料についても無機化率がほぼ同等であったことから、窒素効率も同等と見積もり、その際の窒素の不足分を補正肥料で補った。一方、汚泥肥料施用区のりん酸の施用量については、し尿汚泥肥料中のりん酸量で作物の栽培に必要な主要農作物施肥基準を満たしていた。前作 (2018 年夏作後) の跡地土壌を分析したところ、汚泥肥料施用区の有効態りん酸が 14.5 mg/100 g 乾土であり、地力増進基本指針¹³⁾における有効態りん酸改善目標値 (10 mg/100 g 乾土) を満たしていたことから、補正肥料によるりん酸の追肥は行わなかった。また、加里の施用量については、主要農作物施肥基準と比較して、し尿汚泥肥料の加里量の不足を補正肥料で補った。

標準区については、補正肥料のみを用いて汚泥肥料施用区と同等の窒素、りん酸、加里量となるよう調整した。また、標準区の前作跡地土壌 (2018 年夏作後) の有効態りん酸は 17.0 mg/100 g 乾土であり、地力増進基本

指針の改善目標を満たしていたことから，汚泥肥料施用区のりん酸と同量までとして，追加の補正は行わなかった。

なお，2018年冬作ホウレンソウの施肥設計を Table 3-1, 2019年夏作ニンジン施肥設計を Table 3-2 に，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 2018)

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	115	95	9	5.7	500	28.8	23.7	2.2	1.4
Urea	123	57	—	—	—	31	14.3	—	—	—
Potassium chloride	100	—	—	63	—	25	0.0	0.0	15.8	—
Total		172	95	72	5.7		43.0	23.7	18.0	1.4
<Standard plot (SP)>										
Urea	133	61	—	—	—	33	15.3	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	155	19	95	—	—	39	4.7	23.7	—	—
Potassium chloride	114	—	—	72	—	29	—	—	18.0	—
Total		80	95	72	—		20.0	23.7	18.0	—

Table 3-2 The fertilization amount (carrot in summer 2019)

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	115	95	9	5.7	500	28.8	23.7	2.2	1.4
Urea	40	18	—	—	—	10	4.6	—	—	—
Potassium chloride	88	—	—	55	—	22	—	—	13.8	—
Total		134	95	64	5.7		33.4	23.7	16.0	1.4
<Standard plot (SP)>										
Urea	124	57	—	—	—	31	14.3	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	155	19	95	—	—	39	4.7	23.7	—	—
Potassium chloride	101	—	—	64	—	25	—	—	16.0	—
Total		76	95	64	—		19.0	23.7	16.0	—

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
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 dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	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 dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	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 dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	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 dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	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

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)			
				N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd
2014	Summer	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	—
		Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—	—
	Carrot	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	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	—
		Urea	25	11	—	—	—	34	16	—	—	—
	Spinach	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	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	—
		Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—	—
	Carrot	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	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	—
		Urea	21	10	—	—	—	15	7	—	—	—
	Spinach	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	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	—
		Urea	—	—	—	—	—	30	14	—	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogenphosphate	89	11	54	—	—	42	5	26	—	—
		Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16	—
		Total		27	80	16	1.8		19	26	16	—
2016	Winter	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	—
		Urea	36	17	—	—	—	32	15	—	—	—
	Spinach	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—	—
		Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18	—
		Total		33	26	18	1.8		20	26	18	—
2017	Summer	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	—
		Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—	—
		Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16	—
		Total		27	26	16	1.8		19	26	16	—
2017	Winter	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	—
		Urea	36	17	—	—	—	32	15	—	—	—
	Spinach	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—	—
		Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18	—
		Total		34	26	18	1.8		20	26	18	—
2018	Summer	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	—
		Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—	—
		Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16	—
		Total		28	26	16	1.8		19	26	16	—
2018	Winter	Sludge fertilizer	500	29	24	2	1.4	—	—	—	—	—
		Urea	31	14	—	—	—	33	15	—	—	—
	Spinach	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	39	5	24	—	—
		Potassium chloride	25	—	—	16	—	29	—	—	18	—
		Total		43	24	18	1.4		20	24	18	—
2019	Summer	Sludge fertilizer	500	29	24	2	1.4	—	—	—	—	—
		Urea	10	5	—	—	—	31	14	—	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	39	5	24	—	—
		Potassium chloride	22	—	—	14	—	25	—	—	16	—
		Total		34	24	16	1.4		19	24	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)

5) 施肥及び栽培方法

施肥及び栽培方法については、冬作ホウレンソウ及び夏作ニンジンともに、ほぼ同様な作業を行った。

施肥は各試験区(4 m²)の表層土約 12 kg を袋に入れ、Table 3-1 及び Table 3-2 の施肥設計にしたがって各肥料を加えて混合し、元の試験区表層に均等になるよう散布した。その後、耕耘機を用いて深さ約 15cm まで耕耘し、1 週間程度の期間を空けた。播種前にはヨトウムシ等の害虫防除の目的としてダイアジノン粒剤を散布し、深さ約 15 cm まで耕耘し、表層をレーキで平らにならした後、試験区内を 9 条(条間 20 cm)間隔でシーダーテープ種子を用いて播種した。作物は発芽後、2 回に分けて間引きを行い株間 5 cm~8 cm とした。また、栽培期間中、試験区及びガードプランツ内に雑草が繁殖した場合や作物を食害する害虫が発生した場合はできる限り速やかに排除し、意図しないカドミウムの流出を防ぐよう努めた。ただし、農作業は天候等により予定を変更することがあった。

ホウレンソウの品種は 2012 年冬作に「オーライ」、2013 年冬作に「強力オーライ」、2014 年以降は「ニューアンナ R4」を栽培している。ニンジンの品種は 2014 年以降「恋ごころ」を栽培している。なお、今回の試験のホウレンソウ及びニンジンの品種、栽培期間の概要を Table 5 に示した。

Table 5 Cultivation summary

	Spinach	Carrot
Species	New Anna R4	Koigokoro
Fertilization	2018.11.13	2019.6.6
Pesticide application	11.16	6.18
Seeding	11.16	6.18
Thinning (first)	12.7	8.9
Thinning (second)	12.19	8.16
Harvest	2019.3.18	10.10
Cultivation period	122 days	144 days

6) 収量調査及び作物体の前処理

収量は、各試験区(4 m²)から収穫された作物を計量した。カドミウム分析用の試料は、各試験区のさらに内側中央部分(1 m² = 5 条分)から収穫されたものについて前処理を行った。

(1) 冬作ホウレンソウ

ホウレンソウの収穫は地際をハサミで切断して地上部を収穫した。ホウレンソウの収量は、試験区ごとに収穫後、直ちに作物体の全株重量を計量した。また、分析用の試料は、水道水、イオン交換水の順で洗浄し、ガラス室で数日間自然乾燥した後、さらに通風乾燥器(45 °C)にて十分に乾燥させた。乾燥後、目開き 500 µm の網ふるいを通過するまで粉砕機(ZM200:Retsch ローター回転数 6000 rpm)で粉砕したものを分析試料とした。

作物体カドミウムの測定は、マイクロ波分解装置(Multiwave 3000:Perkin Elmar)で分解¹⁴⁾したものを、ICP 質量分析装置(UltiMate 3000:Thermo Fisher Scientific)により行った。

(2) 夏作ニンジン

ニンジンの収穫は根部を傷つけないように掘り起こし、葉部も含め全株を収穫した。ニンジンの収量は、試験区ごとに収穫後、水道水で根部を洗浄し全株重量を計量した。さらに、分析用の試料は、セラミック包丁で葉部と根部に切断し、部位別に重量を測定した。その後、葉部はイオン交換水で洗浄し、ガラス室で数日間自然乾燥後、目開き 500 µm の網ふるいを通過するまで粉砕機で粉砕したものを分析試料とした。根部についてもイオン交換水で洗浄し、その後セラミック包丁で薄く切り分け、通風乾燥器(65 °C)にて十分に乾燥させ、目開き 500

μm の網ふるいを通過するまで粉砕機で粉砕したものを分析試料とした。カドミウムの測定は根部及び葉部ともに冬作ホウレンソウと同じ方法とした。

7) 跡地土壌の分析

分析用の跡地土壌は，収穫後に対角線採土法¹⁵⁾により採取した。各試験区の中央部分(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。採取した土壌は通風乾燥器(35℃)で12時間乾燥後，目開き2 mmのナイロン製ふるいを通過させたもの(以下，「風乾土」とし，水分，pH，電気伝導率(以下，「EC」)，陽イオン交換容量(以下，「CEC」)，有効態りん酸，交換性塩基(石灰，苦土，加里)及び塩酸可溶カドミウムの分析に供した。風乾土をさらに乳鉢ですりつぶしたものを全窒素(以下「TN」)及び全炭素(以下「TC」)用の分析試料とした。また，風乾土をさらに粉砕機で粉砕したものを全カドミウム用の分析試料とした。

なお，各測定方法は以下のとおりである。

(1) 水分

水分は，ハロゲン水分計(HG:メラー・ドレド)を用いて測定した。

(2) pH 及び EC

pH 及び EC は，風乾土 1 に対して水 5(重量比)を加え 60 分間振とうした後，pH はガラス電極(F-23: HORIBA)，EC は電気伝導率計(F-54: HORIBA)を用いて測定した。

(3) CEC 及び交換性塩基(石灰，苦土，加里)

CEC 及び交換性塩基(石灰，苦土，加里)は，土壌抽出装置を用いてショーレンベルガー法¹⁶⁾により抽出を行った。分析試料は，1N 酢酸アンモニウム溶液(2N アンモニア水+2N 酢酸=1+1，pH 7)で抽出し，その後10%塩化ナトリウム溶液で抽出した。抽出液のうち，1N 酢酸アンモニウム溶液は原子吸光分析装置(AA-6800: SHIMADZU)により交換性塩基(石灰，苦土，加里)を定量し，10%塩化カリウム溶液はホルムアルデヒド法⁵⁾により滴定し，CEC を定量した。

(4) 有効態りん酸

有効態りん酸は，Truog 法¹⁷⁾及び Murphy and Riley 法¹⁷⁾により定量した。分析試料 1.00 g を 0.002N 硫酸で抽出，ろ過し，発色試薬溶液(5N 硫酸 500 mL，4.8%モリブデン酸アンモニウム溶液 125 mL 及び酒石酸アンチモニルカリウム溶液(酒石酸アンチモニルカリウム 0.1454 g を水 50 mL に溶解) 50 mL を混合し水で 1000 mL に定容した溶液 200 mL と，L(+)-アスコルビン酸 1.06 g を混合した溶液)を加え，分光光度計(UV-1800: SHIMADZU，波長:880nm)により測定した。

(5) TN 及び TC

TN 及び TC は，燃焼法全窒素測定装置(NC-220F: SUMIGRAPH)による燃焼法⁵⁾で測定した。

(6) 塩酸可溶カドミウム

塩酸可溶カドミウムは，土壌 10 g に対し 0.1 mol/L 塩酸 50 mL を加え，約 30℃ に保った状態で 60 分間振とう抽出した試料液をろ過し，加熱濃縮後，1%硝酸で定容し，ICP 質量分析装置により測定した¹⁸⁾。

(7) 全カドミウム

土壌中の全カドミウムは，作物体カドミウムと同じ方法とした。分析試料 0.5 g に，硝酸 10 mL，過酸化水素水 3 mL，及びフッ化水素酸 5 mL を加え，マイクロ波分解装置により分解し，加熱濃縮後，1%硝酸で定容し，ICP 質量分析装置により測定した。

8) 近似直線によるカドミウム塩酸不溶化の臨界点の推定

試験圃場での汚泥肥料の連用試験を開始してから 11 年が経過し、ある程度データを蓄積してきたことにより、全カドミウムは増加傾向を示すが、塩酸可溶カドミウムは一定で推移するとの知見を得るに至った。また、汚泥肥料由来のカドミウムは土壌中の有機物と結合し不溶化することが知られており²³⁾、FAMIC での結果⁴⁾からも、汚泥肥料中の塩酸可溶カドミウムは土壌においては不溶化していることが考えられた。

汚泥肥料を施用していない区の土壌中の塩酸不溶カドミウムをゼロと仮定し、以下の実験により供試土壌中の塩酸不溶カドミウム飽和量を求めた。求めた数値を、圃場試験から得られている試験結果の全カドミウムから塩酸可溶カドミウムを差し引いた塩酸不溶カドミウムの散布図から求めた近似直線に代入し、臨界点までの年数として推定した。分析は 3 点併行で行い、前項 2. 7) (6) の塩酸可溶カドミウムと同じ方法で測定した。そして供試土壌の塩酸不溶カドミウム飽和量を、B 及び C の分析値の和から A の分析値を差し引くことで求めた。

A: 土壌に保持されなかった塩酸可溶カドミウム(添加量－土壌吸着塩酸不溶カドミウム)

高純度ポリプロピレン製分解チューブ (DigiTUBEs: GL.Sciences) にカドミウム標準液 (Cd: 100 µg/mL) (富士フィルム和光純薬株式会社; JCSS) 25 µg 相当を加え 105 °C で乾固させた。そこへ汚泥肥料を施用していない試験区内の供試土壌 10 g 及び水 50 mL を加え 60 分間水平振とうした。その後、塩酸 (JIS 試薬特級) を濃度 0.1 mol/L になるよう加え、さらに 60 分間水平振とうし、前項 2. 7) (6) の塩酸可溶カドミウムと同じ方法で測定し、土壌に保持されなかったカドミウムを塩酸可溶カドミウム量とした。

B: 供試土壌ブランク(土壌に含まれる塩酸可溶カドミウム)

カドミウム標準液を添加せず、供試土壌について A と同様の操作をした。

C: 添加標準液の塩酸可溶カドミウム(塩酸抽出)

A と同様にカドミウム標準液 25 µg 相当を分解チューブに加え乾固し、土壌は加えず A と同様の操作をした。

9) 培養によるカドミウム塩酸不溶化の臨界点の推定

標準区から採土、風乾し、目開き 2 mm のふるいを通過した土壌 50 g と、風乾後 0.5 mm スクリーンを通過するまで粉碎した 2. 3) のし尿汚泥肥料を混合し、ポリ製袋に入れ、最大容水量の 60 % 相当量の水を加えてインキュベーターで 5.0 °C、77 日間培養した。し尿汚泥肥料の混合割合は段階的に 1 g から 50 g (1 g は 3 年分の施肥量に相当) とした。培養期間中は、2, 3 日おきにポリ袋内の土壌と肥料の混合物を混和し、また、水分が減少した場合は適宜水を加えて最大容水量の 60 % 相当を維持した。培養終了後、風乾し、目開き 2 mm のふるいを通過した試料を塩酸可溶カドミウムの分析に、ふるい後乳鉢ですりつぶした試料を全カドミウムの分析に供した。なお、塩酸不溶カドミウム濃度は、全カドミウム濃度から塩酸可溶カドミウム濃度を差し引き算出した。

3. 結果及び考察

1) 作物体の収量、カドミウム濃度及びカドミウム吸収量

(1) 冬作ホウレンソウ

2018 年の冬作ホウレンソウの収量、カドミウム濃度及びカドミウムの吸収量を Table 6 に示した。また、本試験開始から現在まで (2009 年から 2018 年) までの冬作の収量を Figure 2 に、カドミウム濃度 (現物) 及び吸収量の推移を Figure 3 に示した。

2018 年冬作ホウレンソウの播種から収穫までの栽培期間は約 4 ヶ月であり、期間中に異常な症状等は観察されなかった。ホウレンソウの汚泥肥料施用区及び標準区の収量は、生体重平均値でそれぞれ 14.73 kg と 15.53

kg であり，標準区の収量を 100 とした場合の収量指数は 95 であった．また，埼玉県的主要農作物施肥基準に記載されている目標収量(6.4 kg/試験区面積)を満たしており，作物の成長も順調であった．

カドミウム濃度(乾物)については，汚泥肥料施用区は 0.69 mg/kg，標準区は 0.33 mg/kg であった．一元配置分散分析による有意差 ($p < 0.05$)を確認したところ，汚泥肥料施用区が有意に高い結果であった ($p = 0.0052$)．現物濃度については，汚泥肥料施用区は 0.068 mg/kg，標準区は 0.031 mg/kg であり，両試験区ともに Codex 基準値¹⁹⁾(葉菜類 0.2 mg/kg)未満であった．ホウレンソウの乾物重にカドミウム濃度(乾物)を乗じて算出したカドミウム吸収量は，汚泥肥料施用区が 1.00 mg，標準区が 0.51 mg であり，汚泥肥料区が有意に高かった ($p = 0.028$)．なお，ホウレンソウ中のカドミウム濃度(現物)及びカドミウム吸収量は 3 年目(2011 年)以降，汚泥肥料施肥区が標準区より高い傾向が続いている．

Table 6 Cadmium uptake and yield of spinach in the test

	Unit	Test plot-1	Test plot-2	Average	Yield index ^{b)}
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>					
Fresh weight	kg	14.90	14.55	14.73	95
Dry weight	kg	1.48	1.41	1.45	93
Cadmium concentration (fresh matter)	mg/kg	0.72	0.66	0.69	-
Cadmium concentration (dry matter)	mg/kg	0.071	0.064	0.068	-
Quantity of cadmium uptake ^{a)}	mg/plot	1.06	0.94	1.00	-
<Standard plot (SP)>					
Fresh weight	kg	14.90	16.15	15.53	100
Dry weight	kg	1.73	1.38	1.55	100
Cadmium concentration (dry matter)	mg/kg	0.33	0.33	0.33	-
Cadmium concentration (fresh matter)	mg/kg	0.031	0.031	0.031	-
Quantity of cadmium uptake ^{a)}	mg/plot	0.56	0.45	0.51	-

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

b) Yield of Standard plot was indexed as 100

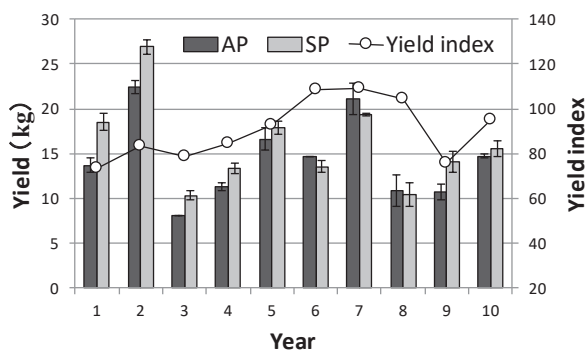


Figure 2 The yield of the spinach in winter
(Note: 2nd year (Qinggengcai))

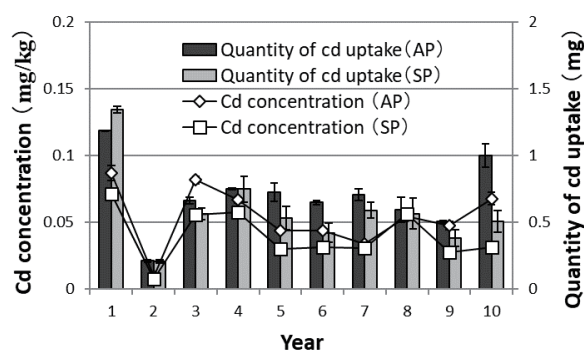


Figure 3 Cd concentration and quantity of Cd uptake
(Note: 2nd year (Qinggengcai))

(2) 夏作ニンジン

2019 年の夏作ニンジンの収量，カドミウム濃度及びカドミウムの吸収量を Table 7 に示した．また，本試験開始から現在まで(2009 年から 2019 年)までの夏作の収量を Figure 4 に，カドミウム濃度(現物)及び吸収量の推移を Figure 5 に示した．

2019年夏作ニンジンの播種から収穫までの栽培期間は約4ヶ月であり、期間中に異常な症状等は観察されなかった。ニンジンの汚泥肥料施用区及び標準区の収量は、生体重平均値で全株重量12.15kgと11.48kgであり、標準区の収量を100とした場合の収量指数は106であった。しかし、埼玉県の主要農作物施肥基準に記載されている目標収量(14kg/試験区面積)を満たしておらず、今期のニンジンの生育は、葉が生い茂り、代わりに可食部の根が細めなのが特徴的であった。通常、ニンジンの栽培は根の肥大化を促進するため基肥を緩慢性肥料として施肥し、加えて追肥を行うこととなっているが、本試験では追肥が行えないことが一因と考えられる。

カドミウム濃度(乾物)については、汚泥肥料施用区の根部0.28mg/kg、葉部0.27mg/kg、標準区の根部0.17mg/kg、葉部0.21mg/kgであった。一元配置分散分析による有意差($p < 0.05$)を確認したところ、汚泥肥料施用区の根部は有意に高く($p = 0.032$)、葉部は両試験区の間には有意差は認められなかった($p = 0.10$)。根菜類のCodex基準値¹⁹⁾(根菜類0.1mg/kg)は、現物値として可食部の根部について定められており、汚泥肥料施用区の根部0.031mg/kg、標準区の根部0.022mg/kgと、いずれも基準値未満であった。試験区当たりのカドミウムの吸収量は、汚泥肥料施用区が0.40mg(根部0.16mg、葉部0.24mg)、標準区が0.28mg(根部0.14mg、葉部0.14mg)であった。吸収量について、根部は有意差が認められなかった($p = 0.088$)が、葉部及び合計については有意差が認められた(葉部 $p = 0.036$ 、合計 $p = 0.043$)。なお、ニンジン中のカドミウム濃度(現物)及びカドミウム吸収量は4年目(2012年)以降、汚泥肥料施肥区が標準区より高い傾向が続いている。

Table 7 Cadmium uptake and yield of carrot in the test

	Part	Unit	Test plot-1	Test plot-2	Average	Yield index ^{b)}
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>						
Fresh weight	Root	kg	4.90	5.55	5.23	83
	Leaf	kg	6.20	7.65	6.93	133
	Total	kg	11.10	13.20	12.15	106
Dry weight	Root	kg	0.53	0.63	0.58	70
	Leaf	kg	0.84	0.94	0.89	127
	Total	kg	1.36	1.57	1.46	96
Cadmium concentration (dry matter)	Root	mg/kg	0.29	0.26	0.28	-
	Leaf	mg/kg	0.27	0.27	0.27	-
Cadmium concentration (fresh matter)	Root	mg/kg	0.032	0.029	0.031	-
	Leaf	mg/kg	0.036	0.033	0.035	-
Quantity of cadmium uptake ^{a)}	Root	mg/plot	0.16	0.16	0.16	-
	Leaf	mg/plot	0.22	0.25	0.24	-
	Total	mg/plot	0.38	0.42	0.40	-
<Standard plot (SP)>						
Fresh weight	Root	kg	5.40	7.15	6.28	100
	Leaf	kg	4.15	6.25	5.20	100
	Total	kg	9.55	13.40	11.48	100
Dry weight	Root	kg	0.73	0.92	0.83	100
	Leaf	kg	0.58	0.82	0.70	100
	Total	kg	1.32	1.74	1.53	100
Cadmium concentration (dry matter)	Root	mg/kg	0.18	0.16	0.17	-
	Leaf	mg/kg	0.23	0.19	0.21	-
Cadmium concentration (fresh matter)	Root	mg/kg	0.024	0.020	0.022	-
	Leaf	mg/kg	0.032	0.021	0.026	-
Quantity of cadmium uptake ^{a)}	Root	mg/plot	0.13	0.14	0.14	-
	Leaf	mg/plot	0.13	0.15	0.14	-
	Total	mg/plot	0.26	0.29	0.28	-

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

b) Yield of Standard plot was indexed as 100

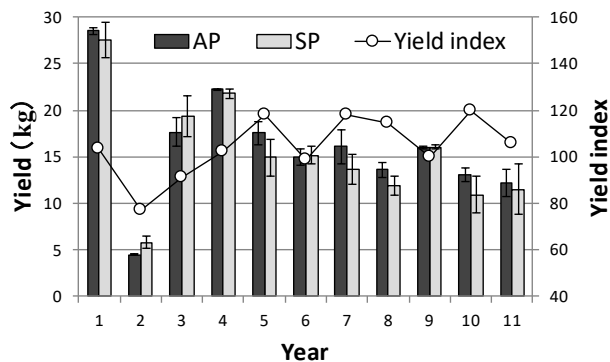


Figure 4 The yield of the carrot (Total) in summer (Note:2nd year (spinach), 3rd year (turnip))

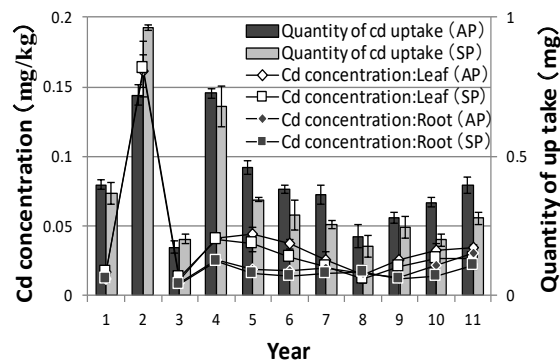


Figure 5 Cd concentration and quantity of Cd uptake in carrot (Note:2nd year (spinach), 3rd year (turnip))

2) 跡地土壌の理化学性

試験開始時と現在(2019 年夏作後)の土壌の理化学性(pH, EC, CEC, TN, TC, 有効態りん酸, 交換性石灰, 交換性苦土, 交換性加里)を Table 8 に示した. また, これまでの土壌の理化学性の推移を Figure 6 に示した.

土壌の pH は, Cd 蓄積量に与える影響が大きいので, 供試土壌は pH6~pH7 になるように, 試験開始から 3 年目(2011 年), 5 年目(2013 年), 6 年目(2014 年)及び 7 年目(2015 年)に炭酸苦土石灰及び消石灰を用いて調整を行っている. 7 年目の冬作以降は pH 6.4 程度で安定しているため, その後の pH 調整は行っていない. また, これまでの試験期間中, pH が作物栽培の好適範囲(ハウレンソウ pH 6.0~pH 7.5, ニンジン及びカブ pH 5.5~pH 7.0, チンゲンサイ pH 5.5~pH 7.2)を逸脱する事例はなかった. また, この間, 汚泥肥料施用区と標準区の試験区間で跡地土壌の pH はほぼ同程度で推移してきたことから, カドミウムの動態の処理間差に pH の影響はほぼないと考えた.

試験開始当初は TN 及び TC ともに試験区間差はなかったが, 2011 年冬作跡地以降, 汚泥肥料施用区が標準区より高い傾向にあり, その差は徐々に大きくなっている. また, 汚泥肥料施用区は増加傾向にあるが, 標準区は減少傾向にあることから, 汚泥肥料中に含まれる有機物が由来のものと考えられる.

EC は, 試験開始以降 6 年目の冬作まで, 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ところ, 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, 黒ボク土中の目標値が乾土 100 g 当たり 10 mg 以上 100 mg 以下と定められている. 一方試験区は, 試験開始時から 10 mg 以下で推移していたため, 2012 年夏作から 2014 年夏作にかけて溶成りん肥を施用してきた. 近年では, 有効態りん酸の目標値を目処に, 補助肥料としてりん酸二水素アンモニウムにより調整を行っており, 8 年目(2016 年)の冬作以降は 10 mg 以上で推移している.

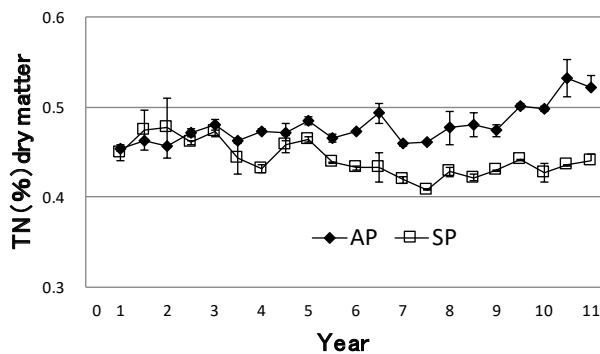
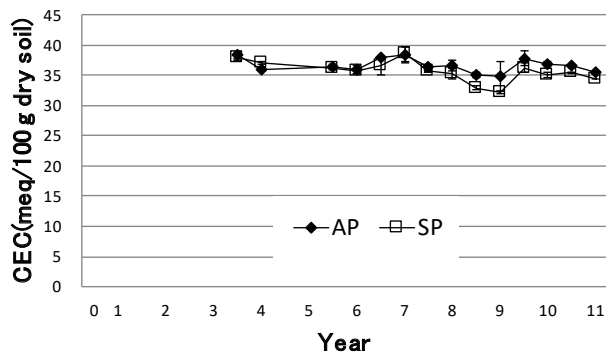
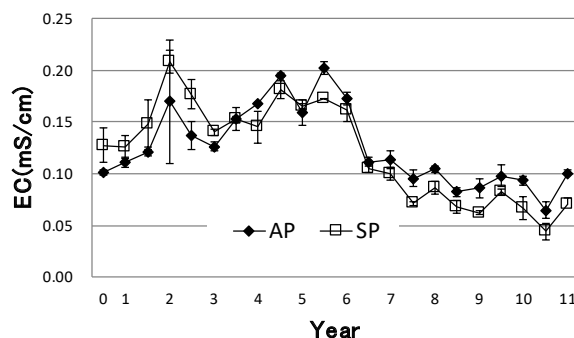
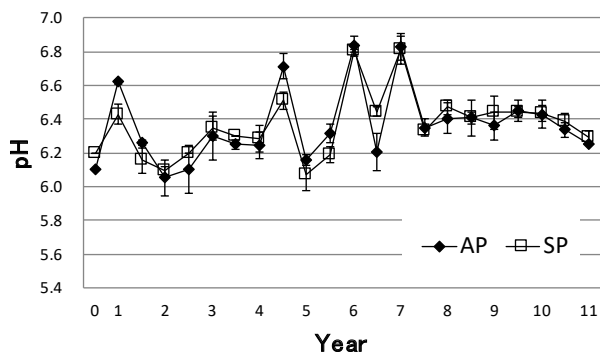
交換性塩基のうち, 交換性石灰は試験開始当初に, 試験区間の差は特に見られなかったが, 2014 年夏作に標準区のみ消石灰を施用したことで増加が確認された. この差は 2015 年夏作で汚泥肥料施用区にのみ消石灰を施用することで解消している. また, 試験期間中は常に高めで推移している. 交換性苦土は, マグネシウムが溶成りん肥に含まれており, 有効態りん酸増加の目的で同資材を施用していた期間に増加している. 特に 2014 年夏作時に汚泥肥料施用区で多めに施用したことから, 試験区間に差が生じている. 2014 年冬作以降は溶成りん肥の施用を行っておらず, 交換性苦土の減少が確認されるが, 試験区間の差は解消されていない. なお, 交換性加里は, ほぼ一定で推移している. 土壌中の交換性塩基 3 成分の塩基バランスを考慮すると交換性

石灰が高めで、他 2 成分は低めのため、今後改善の必要があると考える。

Table 8 Characteristics of soil

	Unit	Year	AP-1	AP-2	SP-1	SP-2
pH (H ₂ O) ^{a)}		2009 ^{e)}	6.1	6.1	6.2	6.2
		2019 ^{f)}	6.3	6.2	6.3	6.3
EC ^{b)}	mS/cm	2009	0.10	0.10	0.14	0.12
		2019	0.10	0.10	0.08	0.07
CEC ^{c)}	meq/100 g dry soil	2019	35.4	35.5	34.3	34.4
Total nitrogen ^{c)}	% ^{d)}	2019	0.48	0.46	0.39	0.40
Total carbon ^{c)}	% ^{d)}	2019	6.0	5.9	5.2	5.3
Available phosphate ^{c)}	mg/100 g dry soil	2009	5.8	6.1	7.7	6.9
		2019	13.5	12.5	16.6	13.6
Exchangeable CaO ^{c)}	mg/100 g dry soil	2009	597.5	631.5	582.2	606.6
		2019	630.8	633.7	602.0	659.2
Exchangeable MgO ^{c)}	mg/100 g dry soil	2009	32.9	33.8	30.8	31.4
		2019	34.8	34.7	20.8	23.0
Exchangeable K ² O ^{c)}	mg/100 g dry soil	2009	22.8	27.6	24.7	29.3
		2019	26.0	27.6	37.2	25.6
Kind of soil	Andosol					
Soil texture	Light clay					

- a) pH 1 : 5 (soil : water), *n* = 2
- b) Soil electrical conductivity determined on 1:5 (soil:water)
- c) Content in the dry matter, average (*n* = 2)
- d) Mass fraction
- e) At the start of research (Per-summer 2009)
- f) Latest results (After-summer 2019)



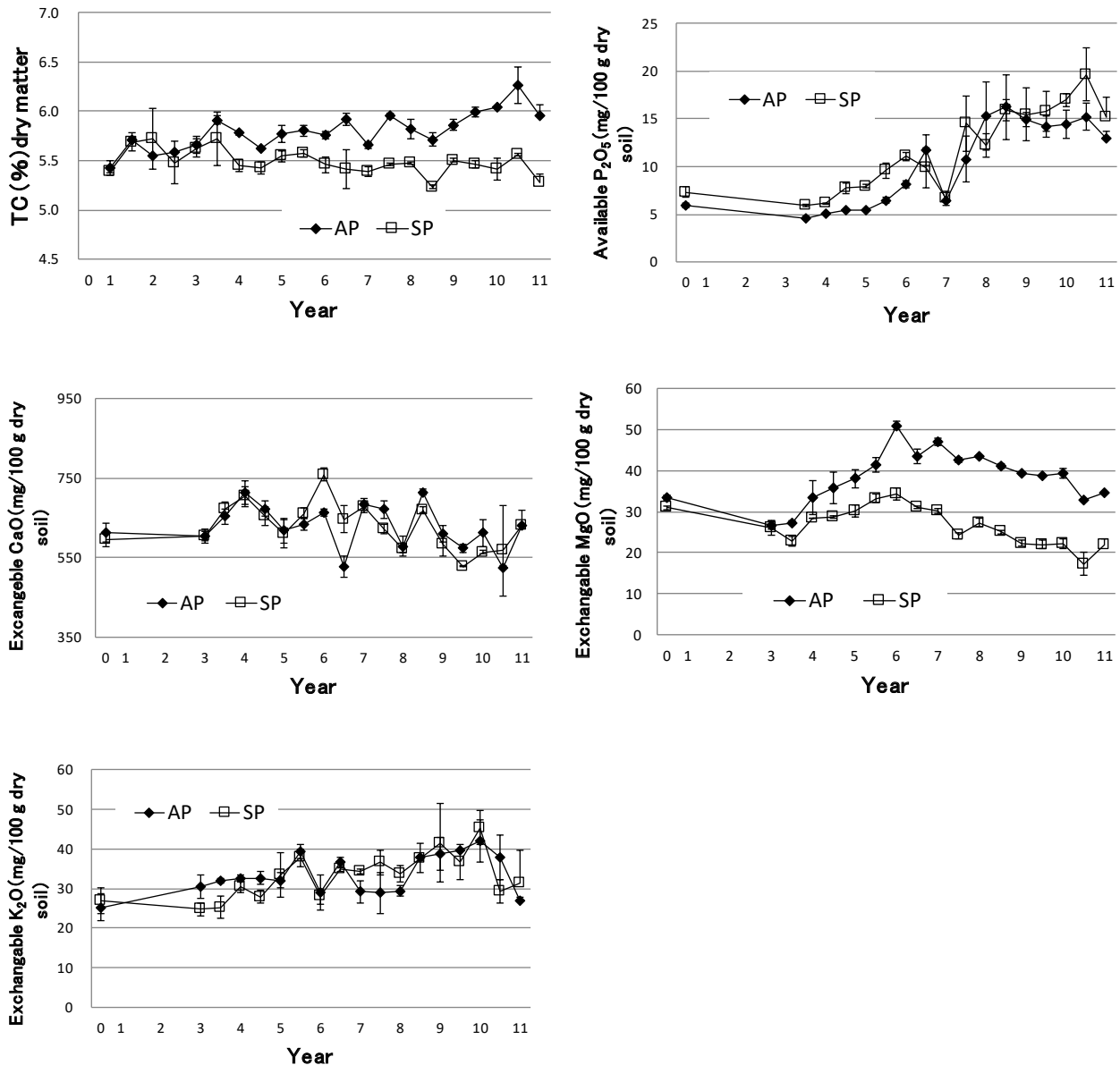


Figure 6 Transition of the characteristics of the soil

3) 跡地土壌のカドミウム濃度

(1) 跡地土壌のカドミウム濃度の推移

跡地土壌の全カドミウム濃度及び塩酸可溶カドミウム濃度の推移を Table 9 に示した。表中，塩酸不溶カドミウムとしたのは，全カドミウムの値から塩酸可溶カドミウムを差し引いた値とした。

2018 年冬作の跡地土壌を分析した結果，塩酸可溶カドミウムの濃度は，汚泥肥料施用区が 0.27 mg/kg，標準区が 0.16 mg/kg となった一元配置分散分析による有意差 ($p < 0.05$) を確認したところ，汚泥肥料施用区が標準区より有意に高い結果となった ($p = 0.0012$)。

2019 年夏作の跡地土壌を分析した結果，全カドミウムの濃度は，汚泥肥料施用区が 0.58 mg/kg，標準区が 0.42 mg/kg となり，汚泥肥料施用区が標準区より有意に高かった ($p = 0.0084$)。また，2019 年夏作の跡地土壌の塩酸可溶カドミウムの濃度は，汚泥肥料施用区が 0.25 mg/kg，標準区が 0.15 mg/kg であり，汚泥肥料施用区が標準区より有意に高かった ($p = 0.0006$)。

本試験を開始した 2009 年夏作から、汚泥肥料施用区の全カドミウム濃度は増加傾向 ($p=0.0006$) を示しているが、塩酸可溶カドミウムは一定に推移する傾向 ($p=0.103$) を示しており、土壌中では塩酸可溶カドミウムの状態では存在しにくいことが考えられた。また、標準区の全カドミウムも減少傾向 ($p=0.0009$) であり、塩酸可溶カドミウムは一定に推移する ($p=0.062$) 傾向を示した。

Table 9 Changes in cadmium concentration^{a)} of soil after harvest (mg/kg)

Year	Season	Test crops	Sludge-fertilizer-application plot (AP)			Standard plot (SP)		
			Total Cd ^{b)}	Hydrochloric acid soluble Cd ^{c)}	Hydrochloric acid insoluble Cd ^{d)}	Total Cd ^{b)}	Hydrochloric acid soluble Cd ^{c)}	Hydrochloric acid insoluble Cd ^{d)}
2009	Start	-	-	0.19 (0.007)	-	-	0.20 (0.021)	-
2009	Summer	Carrot	0.51 (0.002) ^{e)}	0.21 (0.012) ^{e)}	0.29	0.48 (0.039)	0.21 (0.015)	0.27
	Winter	Spinach	-	0.20 (0.002)	-	-	0.18 (0.015)	-
2010	Summer	Spinach	0.52 (0.009)	0.19 (0.004)	0.33	0.49 (0.038)	0.17 (0.019)	0.32
	Winter	Qinggengcai	-	0.18 (0.008)	-	-	0.18 (0.004)	-
2011	Summer	Turnip	0.51 (0.018)	0.19 (0.004)	0.33	0.48 (0.022)	0.18 (0.013)	0.31
	Winter	Spinach	-	0.20 (0.008)	-	-	0.17 (0.013)	-
2012	Summer	Carrot	0.52 (0.019)	0.19 (0.005)	0.34	0.46 (0.037)	0.15 (0.007)	0.31
	Winter	Spinach	-	0.21 (0.008)	-	-	0.17 (0.010)	-
2013	Summer	Carrot	0.53 (0.003)	0.20 (0.003)	0.33	0.46 (0.029)	0.16 (0.012)	0.30
	Winter	Spinach	-	0.22 (0.006)	-	-	0.16 (0.004)	-
2014	Summer	Carrot	0.57 (0.038)	0.20 (0.007)	0.37	0.47 (0.031)	0.15 (0.006)	0.32
	Winter	Spinach	-	0.21 (0.010)	-	-	0.15 (0.002)	-
2015	Summer	Carrot	0.57 (0.015)	0.15 (0.009)	0.41	0.46 (0.014)	0.11 (0.002)	0.35
	Winter	Spinach	-	0.16 (0.007)	-	-	0.11 (0.001)	-
2016	Summer	Carrot	0.54 (0.004)	0.19 (0.018)	0.35	0.45 (0.018)	0.12 (0.005)	0.33
	Winter	Spinach	-	0.17 (0.004)	-	-	0.11 (0.002)	-
2017	Summer	Carrot	0.61 (0.007)	0.21 (0.002)	0.40	0.46 (0.014)	0.14 (0.005)	0.32
	Winter	Spinach	-	0.27 (0.004)	-	-	0.17 (0.004)	-
2018	Summer	Carrot	0.58 (0.016)	0.27 (0.008)	0.31	0.41 (0.005)	0.17 (0.003)	0.25
	Winter	Spinach	-	0.27 (0.005)	-	-	0.16 (0.002)	-
2019	Summer	Carrot	0.58 (0.018)	0.25 (0.003)	0.33	0.42 (0.011)	0.15 (0.001)	0.27

a) Content in the drying soil

b) Cadmium total concentration

c) Concent of cadmium dissolved with 0.1 mol/L by hydrochloric acid in the drying soil

d) (Total Cd) - (Hydrochlorid acid soluble cd)

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

(2) カドミウムの負荷量, 持出し量及び蓄積量

各試験での汚泥肥料由来のカドミウムの負荷量, 作物を栽培したことによる持出し量, 土壌への蓄積量及びカドミウム蓄積濃度の推移を Table 10 に示した。表中, 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出し量は, 収穫した作物のカドミウム吸収量のこと, 作物の収量 (乾物) に作物中のカドミウム濃度 (乾物) 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 1.0 とし, 試験区当たりの土壌量を 600 kg とした。) で除して算出した。ただし, 作土の深さ及び仮比重が常に一定で, かつ汚泥肥料中のカドミウムがすべて作土に蓄積したと仮定した。

Table 10 Changes of 2009-2019 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	Quinggengcai	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
2017	Winter	Spinach	7.28	0.51	6.77	0.011	0	0.38	-0.38	-0.0006
2018	Summer	Carrot	7.28	0.33	6.95	0.012	0	0.20	-0.20	-0.0003
2018	Winter	Spinach	5.38	1.00	4.68	0.008	0	0.51	-0.51	-0.0008
2019	Summer	Carrot	5.38	0.40	5.28	0.009	0	0.28	-0.28	-0.0005
Total			131.52	11.60	119.92	0.200	0.00	9.99	-9.99	-0.0166

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 9 の結果によると 2009 年夏作後の標準区の全カドミウムは 0.48 mg/kg であった。この値に 1 試験区あたりの供試土壌量の 600 kg を乗ずると、試験開始時は 1 試験区当たり 288 mg ほどの全カドミウムが存在していたと推定される。試験開始時の全カドミウム 288 mg と、Table 10 の結果から求められた汚泥肥料施用区の全カドミウム蓄積量 119.92mg を加えると、現在は 1 試験区あたり 407.92 mg の全カドミウムが理論的に残存しているとされる。よって現在は、汚泥肥料施用区の跡地土壌には全カドミウムとして 0.68 mg/kg が理論的に含有されていることになる。一方、全カドミウムの実際の分析結果は Table 9 によると、2019 年夏作後は 0.58 mg/kg であり、理論的に算出された量より低い値であった。同様に標準区は理論的に 0.46 mg/kg が含有されているところ、分析値は 0.42 mg/kg であった。肥料研究報告第 8, 10 号²⁰⁾²¹⁾やその他の既報²²⁾によると、作土中の全カドミウムは垂直方向への移動は認められず、水平方向への移動は認められるとの報告がある。全カドミウムの分析値が理論的に算出された量より低いのは、長年繰り返されてきた作付け時の耕耘による土壌の水平移動のほか、風雨による試験区場外への流出、夏場は特に顕著となる雑草や害虫の発生により意図せざる流出があった等、これらが複合的に重なったものと考えた。

4) 近似直線によるカドミウム塩酸不溶化の臨界点の推定

これまでの 11 年間の試験圃場での汚泥肥料連用試験において、全カドミウムは増加傾向を示すが、塩酸可溶カドミウムは一定で推移する傾向が示された。また、汚泥肥料由来のカドミウムは土壤中の有機物と結合して不溶化することが知られている²³⁾ことから、試験圃場においても一定量まで不溶化が進み、これ以上不溶化できなくなることで塩酸可溶カドミウムが増加する時(臨界点)が来るのではないかと考えられていた⁴⁾。

土壤中の全カドミウム、塩酸可溶カドミウム及び全カドミウムから塩酸可溶カドミウムを差し引いた塩酸不溶カドミウムについて、これまでの推移を Figure 7 に示した。また、この図から汚泥肥料施用区における塩酸不溶カドミウムの線形近似直線(回帰直線: $y=0.0039x+0.3208$, y =塩酸不溶カドミウム濃度(mg/kg), x =年)を求めた。

2. 8)の試験で求めたカドミウム量を、供試土壤中の塩酸不溶カドミウム飽和量として Table 11 に示した。塩酸不溶カドミウム飽和量は 0.47 mg/kg と算出されたので、Figure 7 で求められた式に代入したところ、供試土壤におけるカドミウム塩酸不溶化の臨界点までは 38.3 年と推定された。

試験圃場のように開放された気象条件での試験と、実験室での結果は単純に比較できないが、この結果をひとつの目安と考えた。

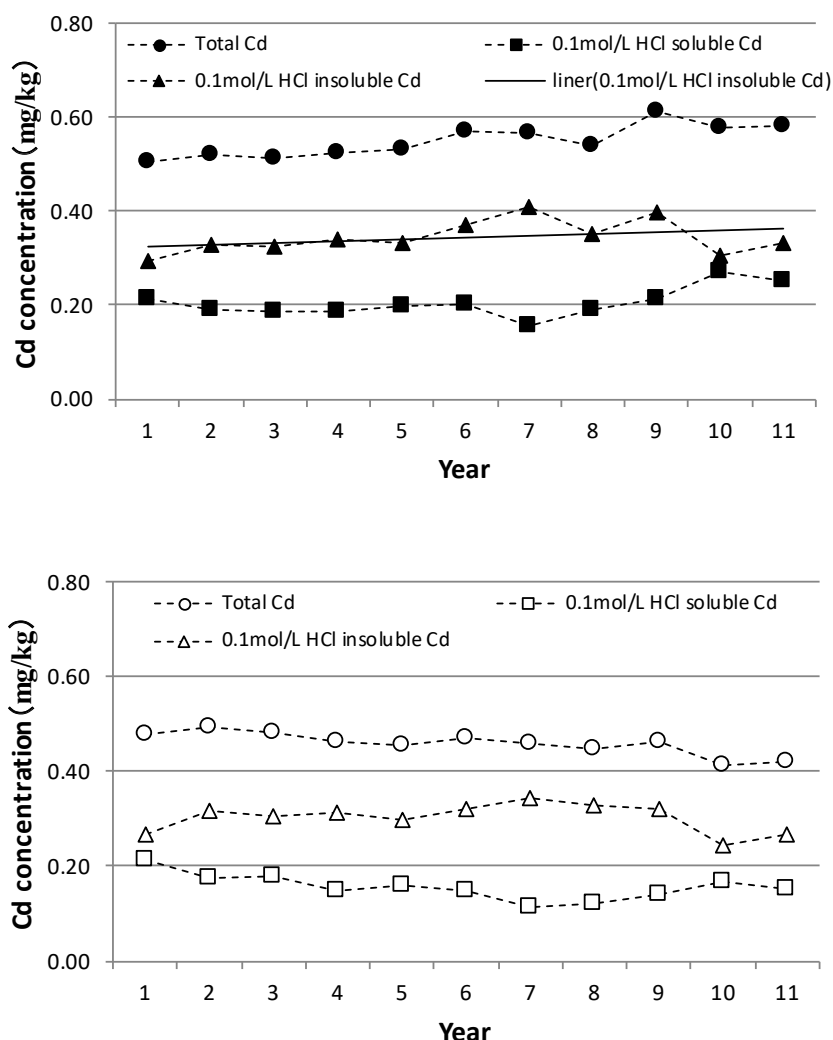


Figure 7 Cadmium concentration of cultivated soil
(up: Sludge-fertilizer-application plot, down: Standard plot)

Table 11 Saturation of cadmium in the soil

	0.1mol/L HCl soluble Cd (mg/kg)	
Cadmium saturated soil ^{a)}	1.93	(0.044) ^{e)}
Sample of soil ^{b)}	0.11	(0.003)
Cadmium standard solution ^{c)}	2.29	(0.078)
Amount of cadmium saturation (0.1mol/L HCL insoluble Cd) ^{d)}	0.47	-

a) Soil saturated with cadmium

b) No cadmium added to the soil

c) As a result of seeping out a known concentration of cadmium with 0.1mol/L HCl

d) b) + c) - a)

e) Standard deviation ($n=3$)

5) 培養によるカドミウム塩酸不溶化の臨界点の推定

肥料調査研究報告 12 号⁴⁾では 30 °C, 77 日間の培養で試験を行っていた. その結果, 培養した土壌の pH は, 実際の試験圃場の pH より低く 4.9~5.8 の範囲であったことから, 汚泥肥料中のカドミウムは不溶化が進みにくいとの報告があった. また結果の考察では, 培養の温度が 30 °C の場合, 土壌と混和した汚泥肥料の分解がより進行しやすく, 発生した硝酸態窒素が閉鎖した容器の中にとどまり, さらに pH の低下が進行しやすいと推察されていた.

そこで今回は, 培養時の温度を冬のさいたま市の平均気温(4.8 °C)を想定し, 5.0 °C で 77 日間の培養を行った. その結果, pH は 6.4~8.6 の範囲となり, し尿汚泥肥料の割合が高くなるほど pH も高くなる傾向であった. また, 塩酸可溶カドミウムと塩酸不溶カドミウムは, し尿汚泥肥料が 25 g (圃場での試験 75 年目を想定)まで混合割合が高くなるほど増加していたが, それ以降塩酸可溶カドミウムは一定に推移し, 逆に塩酸不溶カドミウムはさらに増加傾向を示した. これは, 前項 3. 4) の試験得られた結果からは想定外となった. 前項及び本項の臨界点の推定試験は実験室レベルの閉鎖された環境で行っており, 圃場の露地栽培の試験結果と単純に比較することはできないが, 実験室の試験で臨界点を推定することは困難であると考えた. よって, 今後も圃場での試験を継続し, 土壌へのカドミウムの蓄積と, それに伴う作物への吸収量を実地にて調査していく必要があると考えた. なお, 今回の低温培養の結果を Figure 8 に, 肥料調査研究報告 12 号の高温培養の結果を Figure 9 に示した.

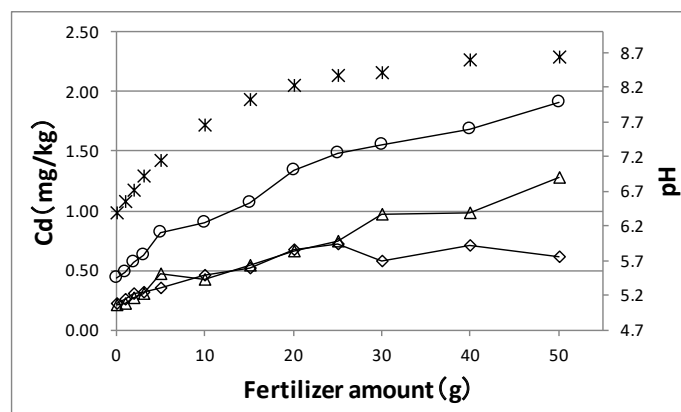


Figure 8 Culture of cadmium-containing soil (5 °C, 77 days)

* : pH, ○ : Total cadmium, ◇ : 0.1mo/L HCl soluble Cd, △ : 0.1mol/L HCl insoluble Cd

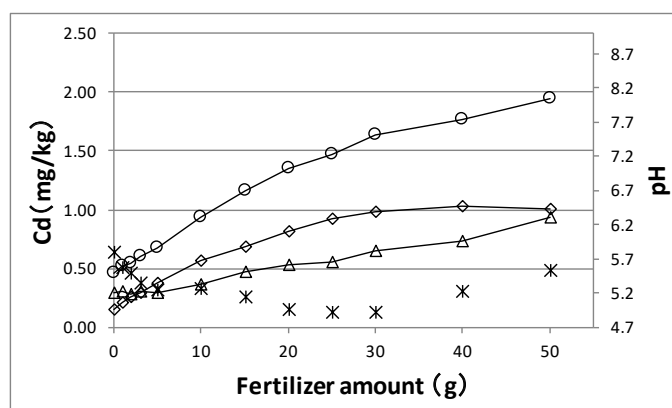


Figure 9 Culture of cadmium-containing soil (30 °C, 77 days)

* : pH, ○ : Total cadmium, ◇ : 0.1mo/L HCl soluble Cd, △ : 0.1mol/L HCl insoluble Cd

4. まとめ

2018 年冬作ホウレンソウのカドミウムを分析した結果, 乾物値で汚泥肥料施用区 0.69 mg/kg, 標準区 0.33 mg/kg であった. 汚泥肥料施用区が有意に高い($p=0.0052$) 値を示した. 現物濃度は, 汚泥肥料施用区 0.068 mg/kg, 標準区 0.031 mg/kg となり Codex 基準値¹⁹⁾ (0.2 mg/kg) 未満であった.

2019 年夏作ニンジンのカドミウムを分析した結果, 乾物値で汚泥肥料施用区の根部 0.28 mg/kg, 葉部 0.27 mg/kg, 標準区の根部 0.17 mg/kg, 葉部 0.21 mg/kg であった. 汚泥肥料施用区の根部は有意に高く($p=0.032$), 葉部は両試験区に有意差は認められなかった($p=0.10$). 現物濃度は, 汚泥肥料施用区の根部 0.031 mg/kg, 標準区の根部 0.022 mg/kg となり Codex 基準値¹⁹⁾ (根菜類 0.1 mg/kg) 未満であった.

ホウレンソウの跡地土壌の塩酸可溶カドミウムを分析した結果, 汚泥肥料施用区 0.27 mg/kg, 標準区 0.16 mg/kg であった. 汚泥肥料施用区が有意に高い($p=0.0012$) 値を示した.

ニンジンの跡地土壌の塩酸可溶カドミウムを分析した結果, 汚泥肥料施用区 0.25 mg/kg, 標準区 0.15 mg/kg であった. 汚泥肥料施用区が有意に高い($p=0.0084$) 値を示した. また, 全カドミウムについては, 汚泥肥料区 0.58 mg/kg, 標準区 0.42 mg/kg であった. 全カドミウムも汚泥肥料施用区が有意に高い($p=0.0006$) を示した.

2009 年夏作から 2019 年夏作までの土壌中のカドミウムを解析したところ, 汚泥肥料施用区的全カドミウムは増加傾向($p=0.0006$) を示し, 土壌にカドミウムが蓄積していることが確認された. しかし, 塩酸可溶カドミウムについては一定に推移する傾向($p=0.103$) を示していることから, 汚泥肥料中の塩酸可溶カドミウムは土壌においては不溶化していることが考えられる. また, 標準区についても全カドミウム濃度は減少傾向($p=0.0009$) であるが, 塩酸可溶カドミウムは一定で推移する傾向($p=0.062$) を示した.

供試土壌の全カドミウムの分析値が, 試験区に蓄積された全カドミウムの理論値より低いのは, 長年の試験で土壌の水平移動があった等, 意図せざる流出によるものと考えた.

11 年間の連用試験で得られた全カドミウム及び塩酸可溶カドミウムの分析結果から, 塩酸不溶カドミウムを算出し, 散布図の回帰直線式を求めた. また実験室で供試土壌の塩酸不溶カドミウム飽和量を求めた. 塩酸不溶カドミウム飽和量を回帰直線式に代入し, 供試土壌にカドミウムが吸着できなくなるまでの年数を算出したところ約 38 年と推定され, この連用試験を同条件で継続した場合, 約 27 年後から塩酸可溶カドミウムの量が増加すると見積もられた. 一方, インキュベーターの培養試験(5.0 °C, 77 日間)では, 全カドミウムの蓄積にともなって

塩酸不溶カドミウムは増加傾向を示したが，塩酸可溶カドミウムは供試土壌とし尿汚泥肥料を同量混合（連用試験 75 年目を想定）したあたりから一定に推移する傾向を示した．以上の結果から，実験室レベルでの塩酸不溶カドミウムの臨界点の推定は困難であり，今後も圃場での試験が必要であると考えた．

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, 最終改正令和 2 年 2 月 28 日, 農林水産省告示第 401 号(2020)
- 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/honnbun.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) 青山恵介, 松尾信吾, 小塚健志, 村山和晃, 八木寿治, 齋藤晴文, 佐久間健太, 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(続報), 肥料研究報告, 12, 123~135, (2019)
- 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(2019)
< http://www.famic.go.jp/ffis/fert/obj/shikenho_2019.pdf >
- 6) 井塚進次郎, 及川裕美, 白井裕治, 阿部文浩, 藤田卓:汚泥肥料施用土壌におけるカドミウムの溶出形態の推移, 肥料研究報告, 3, 60~72, (2010)
- 7) 埼玉県ホームページ:主要農作物施肥基準 平成 25 年 3 月
< <https://www.pref.saitama.lg.jp/a0903/sehikijun.html> >
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 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> >
- 11) 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> >
- 12) 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)
< http://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_hiryo/odei_hiryo/pdf/03_data1.pdf >
- 13) 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 >
- 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) 土壌標準分析・測定委員会:土壌標準分析・測定法, p150~154, 博友社, 東京(1986)
- 17) 財団法人日本土壌協会:土壌機能モニタリング調査のための土壌, 水質及び植物体分析法, p79~81, 大雄社, 東京(2001)
- 18) 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)

- 19) 農林水産省ホームページ:食品中のカドミウムに関する基準値,コーデックス委員会が策定した国際基準値(CXS 193-1955)
< https://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_cd/04_kijyun/01_int.html >
- 20) 廣井利明,五十嵐総一,鈴木時也,橋本良美,田中雄大,阿部文浩,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(続報),肥料研究報告, 8, 79~113, (2015)
- 21) 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),肥料研究報告, 10, 101~140, (2017)
- 22) 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,日本土壌肥料学会雑誌, 73(4), 391~396, (2002)
- 23) 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 2018 and Summer 2019-**

MATSUO Shingo¹, ASAO Naoki², MURAYAMA Kazuaki², AOYAMA Keisuke³,
KOZUKA Kenji³ and ABE Fumihiko⁴

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

² FAMIC, Fertilizer and Feed Inspection Department

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

⁴ FAMIC, Fertilizer and Feed Inspection Department (Now) Nagoya Regional Center

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 2018 and carrot in summer 2019. 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, 0.1 mol/L HCl soluble-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 2019) showed significant increasing trend in the AP. However the concentration of 0.1mol/L HCl soluble-Cd in the soil (from summer 2009 to summer 2019) did not increase. We thought that it was because cadmium was changed into the 0.1 mol/L HCl insoluble-Cd in the soil. Therefore, the critical point of 0.1 mol/L HCl insoluble Cd in soil was tested in the laboratory, but no estimation was possible. The change in cadmium concentration in the soil should be tested in the field, we thought. The concentrations of cadmium in spinach (winter in 2018) and carrot (summer in 2019) were less than that of the CODEX standard.

Key words sludge fertilizer, continuous application, cadmium

(Research Report of Fertilizer, **13**, 146-167, 2020)