

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)

— 2013 年冬作・2014 年夏作 —

廣井利明¹, 五十嵐総一², 鈴木時也³, 橋本良美³, 田中雄大³, 阿部文浩³, 加島信一²

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2013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,ニンジン,ホウレンソウ,ニンジンの順で栽培し,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6号³⁾及び7号⁴⁾で報告した.2013年冬作及び2014年夏作においてはそれぞれホウレンソウ,ニンジンを用いて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) 2013年冬作の連用試験(2013年11月5日~2014年3月11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,EC,有効態りん酸,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)及び,参考に2012年夏作の作付け前土壌のリン酸吸収係数,陽イオン交換容量をTable 1に示す.

(2) 供試肥料等

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

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)仙台センター

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 (現)福岡センター

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

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を高分子凝集剤を用いて脱水、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) であり (Table 2), その乾物濃度は肥料公定規格の含有許容値付近 (約 5 mg/kg) である。窒素全量 (現物値) 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硫酸アンモニウム、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 3 に示した)。

なお、汚泥肥料中の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度は、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を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。汚泥肥料中の 1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液 (pH 7.0) 可溶カドミウム (以下、1 mol/L 酢安 (pH 7.0) -Cd) 濃度は、汚泥肥料 1 g を 1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液 (pH 7.0) 50 mL で 1 時間振とうして抽出したカドミウムを ICP 質量分析装置 (ICPM-8500: 島津製作所) で測定した。

Table 1 Characteristics of soil for using in winter 2013 crop

	Unit	Year	AP ¹⁾ -1	AP ¹⁾ -2	SP ²⁾ -1	SP ²⁾ -2
pH (H ₂ O) ³⁾		2009 ⁷⁾	6.1	6.1	6.2	6.2
		2013 ⁸⁾	6.1	6.2	6.0	6.1
EC ⁴⁾	mS/m	2009	10.0	10.3	14.0	11.6
		2013	15.1	16.8	16.3	16.7
Phosphate absorption coefficient ⁵⁾	mg/100 g	2012 ⁹⁾	2370	2380	2360	2420
CEC ⁵⁾	cmol/kg	2012 ⁹⁾	37.8	38.8	37.7	38.4
Available phosphate ⁵⁾	mg/100 g	2009	5.8	6.1	7.7	6.9
		2013	5.4	5.5	8.1	7.8
Total nitrogen ⁵⁾	% ⁶⁾	2013	0.44	0.43	0.42	0.41
Total carbon ⁵⁾	% ⁶⁾	2013	5.8	5.7	5.5	5.6
0.1 mol/L HCl-Cd ⁵⁾	mg/kg	2009	0.18	0.19	0.18	0.21
		2013	0.20	0.20	0.15	0.17
Kind of soil			Andosol		Andosol	
Soil texture			Light clay		Light clay	

1) Sludge-fertilizer-application plot

2) Standard plot

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

4) Soil electrical conductivity determined on 1:5 (soil:water) susensions with an electrical conductivity meter, $n = 1$

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

6) Mass fraction

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

8) The year when this study was conducted

9) The year when the study was conducted in summer 2012 crop

Table 2 Properties of sludge fertilizer

Item	Unit	Content	Item	Unit	Content
Total nitrogen	% ¹⁾	3.3	Total copper	mg /kg	546
Total phosphorus ²⁾	% ¹⁾	5.2	Total zinc	mg /kg	1760
Total potassium ³⁾	% ¹⁾	0.4	Carbon to nitrogen ratio	-	7.1
Total calcium ⁴⁾	% ¹⁾	2.1	Total cadmium ⁵⁾	mg /kg	3.6 ⁶⁾
Organic carbon	% ¹⁾	23.6	Acid-solubility-cadmium ⁷⁾	mg /kg	3.2
Moisture	% ¹⁾	26.1	Exchangeable-cadmium ⁸⁾	mg /kg	0.32

1) Mass fraction

2) Content as P₂O₅

3) Content as K₂O

4) Content as CaO

5) Content of cadmium dissolved with aqua regia

6) 4.9 mg/kg in the dry matter

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

8) Content of cadmium dissolved with pH 7.0, 1 mol/L ammonium acetate solution

Table 3 Properties of the reagent

Item	Unit	Ammonium sulfate ⁴⁾	Urea ⁵⁾	Ammonium dihydrogenphosphate	Potassium chloride
Total nitrogen	% ¹⁾	21.1	46.2	12.0	-
Total phosphorus ²⁾	% ¹⁾	-	-	61.5	-
Total potassium ³⁾	% ¹⁾	-	-	-	63.1

1) Mass fraction

2) Content as P₂O₅

3) Content as K₂O

4) Ammonium sulfate was used in winter 2013 crop

5) Urea was used in summer 2014 crop

(3) 試験区の構成

汚泥肥料施用区及び標準区は、1 試験区の面積を 4 m²(縦 2 m×横 2 m)とし、各試験区 2 反復の計 4 試験区を Fig.1 のとおり配置した。施肥量は埼玉県のカレンソウ施肥基準⁶⁾を基に施肥設計した。

汚泥肥料の施肥量は、農林水産省のアンケート調査結果では 1 作当たり 2 t/10 a 程度施用している農家も存在するが、施肥量は、500 kg/10 a 程度が最も一般的であった⁷⁾。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上限量の目安を示しており、年間 500 kg/10 a～1000 kg/10 a としている事例がある^{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 pH が低下する¹¹⁾ことが知られている。連用施用による土壌理化学性への影響等を考慮し、ここでは、1 作当たりの施肥量は 500 kg/10 a (現物)とした。

窒素肥効率は前作までの標準区との生育量の差から 10 %として計算し、不足分を補正肥料で施用した。りん酸及び加里についても不足分は補正肥料を用いて補った。標準区については、補正肥料を用いて汚泥肥料施

用区と同様の成分量になるよう施用した (Table 4). なお, 前作までの跡地土壌を分析したところ, 各試験区の有効態りん酸は 5.4 mg/100 g 乾土~8.1 mg/100 g 乾土であり, 地力増進基本指針¹²⁾における有効態りん酸の改善目標 (10 mg/100 g 乾土) と比較して低い値であった. このため, 溶成りん肥 (く溶性りん酸 20 % 含有) を 1 試験区当たり 500 g 施用した (Table 4).

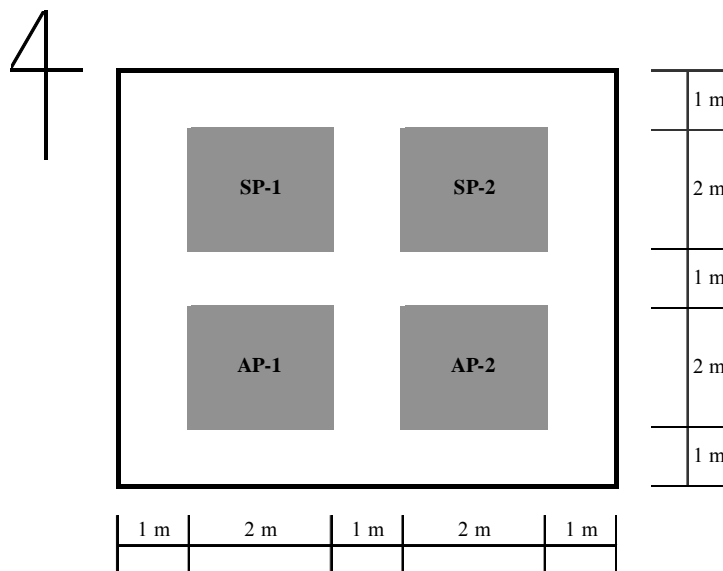


Fig.1 Plot plan of the test field

AP: Sludge-fertilizer-application plot

SP: Standard plot

Table 4 The fertilization design of the test plots where spinach was cultivated in winter 2013

	Amount of application per 4 m ² (g)	The applied components per 4 m ²				Amount of application per 10 a (kg)	The applied components per 10 a			
		N (g)	P ¹⁾ (g)	K ²⁾ (g)	Cd (mg)		N (g)	P ¹⁾ (g)	K ²⁾ (g)	Cd (g)
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>										
Sludge fertilizer	2000	66	104	7	7.3	500	16550	26100	1800	1.8
Ammonium sulfate	348	73	—	—	—	87	18345	—	—	—
Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Potassium chloride	103	—	—	65	—	26	—	—	16200	—
Fused magnesium phosphate	500	—	100	—	—	250	—	25000	—	—
Total		140	204	72	7.3		34895	51100	18000	1.8
<Standard plot (SP)>										
Sludge fertilizer	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Ammonium sulfate	283	60	—	—	—	71	14907	—	—	—
Ammonium dihydrogenphosphate	170	20	104	—	—	42	5093	26100	—	—
Potassium chloride	114	—	—	72	—	29	—	—	18000	—
Fused magnesium phosphate	500	—	100	—	—	250	—	25000	—	—
Total		80	204	72	0.0		20000	51100	18000	0.0

1) Content as P₂O₅

2) Content as K₂O

(4) 栽培方法

供試作物はホウレンソウ(品種名:強力オーライ)とし、埼玉県の施肥基準を基に栽培した。各試験区の周辺部にはガードプランツとして供試作物を栽培した。

施肥は2013年11月1日に、各試験区の表層土約12 kgを袋に取り、肥料を入れ混合し、各試験区表層に均等に散布し、耕耘機で深さ約15 cmまで耕耘した。

試験区内は9条(条間約20 cm)とし、播種は11月5日にシーダーテープ種子により行った。

間引きは11月20日及び11月29日に行い、農薬散布はヨトウムシ等の害虫防除のため播種時にダイアジノン粒剤を散布した。雑草防除は手除草により適宜実施した。

収穫は2013年3月11日に行い、地際をハサミで切断して地上部を収穫した。

(5) 作物体のカドミウム分析

収穫したホウレンソウは直ちに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、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機にて65 °Cで1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)¹³⁾で分解したものを50 mLに定容し試料溶液とした。測定はICP質量分析装置(ICPM-8500:島津製作所)により行った。

(6) 跡地土壌の分析

収穫後の跡地土壌は、対角線採土法¹⁴⁾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。通風乾燥機により35 °Cで一晩乾燥後、目開き2 mmのふるいを通過したもの及び更に全量分析用として目開き500 µmのふるいを通過するまで粉砕機(ZM200:Retsch ロータ回転数6000 rpm)で粉砕したものを分析用試料とした。

風乾した土壌の水分は、ハロゲン水分計(HG53:メトラー・トレド)により測定した。

土壌pH及びECは風乾土壌1に対して純水5を加え1時間振とう後、pHはガラス電極法(F-23:HORIBA)により、ECは電気伝導率計(F-54:HORIBA)により測定した。

土壌中のカドミウム分析については、形態別カドミウムを分析した。土壌中カドミウムの形態(可溶性)別評価法については、土壌の種類による溶出傾向や作物体の吸収との相関などに対応するための様々な方法が検討されているものの、万能と呼べる方法がない状況にある。そこで統一的な尺度として、政令¹⁵⁾で定められた0.1 mol/L HCl-Cd、及び交換性陽イオンの測定に用いられており¹⁶⁾、0.1 mol/L HCl-Cdと比較してより多くの各種作物体のカドミウム濃度と相関があると報告されている^{17~18)}交換態カドミウム(1 mol/L 酢安(pH 7.0)-Cd)を選択した。また、参考として供試汚泥肥料中にカドミウムと比較して多量に含まれる銅及び亜鉛の土壌蓄積状況を確認するため、1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液(pH 7.0)可溶銅及び亜鉛(以下、1 mol/L 酢安(pH 7.0)-Cu及びZn)についても測定した。

土壌中の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1時間振とうして抽出したカドミウムをICP質量分析装置(ICPM-8500:島津製作所)により測定した。

土壌中の1 mol/L 酢安(pH 7.0)-Cd、Cu及びZnは、土壌2.5 gに対し1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液(pH 7.0)50 mLを加え約25 °C~30 °Cに保ち1時間振とうして抽出したカドミウムをICP質量分析装置(ICPM-8500:島

津製作所)により測定した。

2) 2014年夏作の連用試験(2014年6月19日~2014年9月19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)の試験の汚泥肥料施用区及び標準区の跡地を引き続き使用した。土壌の種類、土性、及び前作跡地の pH, EC, 有効態りん酸(トルオーグ法)¹⁴⁾, 全窒素, 全炭素及び 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度を Table 5 に示す。

Table 5 Characteristics of soil for using in summer 2014 crop

	Unit	Year	AP ¹⁾ -1	AP ¹⁾ -2	SP ²⁾ -1	SP ²⁾ -2
pH (H ₂ O) ³⁾		2009 ⁷⁾	6.1	6.1	6.2	6.2
		2014 ⁸⁾	6.3	6.4	6.2	6.2
EC ⁴⁾	mS/m	2009	10.0	10.3	14.0	11.6
		2014	19.3	19.8	17.3	17.3
Total nitrogen ⁵⁾	% ⁶⁾	2014	0.42	0.41	0.39	0.39
Total carbon ⁵⁾	% ⁶⁾	2014	5.8	5.8	5.6	5.6
Available phosphate ⁵⁾	mg/100 g	2009	5.8	6.1	7.7	6.9
		2014	6.7	6.2	10.2	9.0
0.1 mol /L HCl-Cd ⁵⁾	mg/kg	2009	0.18	0.19	0.18	0.21
		2014	0.22	0.21	0.16	0.16
Kind of soil			Andosol		Andosol	
Soil texture			Light clay		Light clay	

1) Sludge-fertilizer-application plot

2) Standard plot

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

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

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

6) Mass fraction

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

8) The year when this study was conducted

(2) 供試肥料等

供試肥料及び補正肥料は 2.1) (2)と同様のものを用いた。ただし、補正肥料のうち、窒素肥料は硫酸アンモニウムではなく尿素を使用した。これは土壌の EC 上昇防止及び比較的緩効性の肥料とするためである。

(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。汚泥肥料の施用量は、前作同様 500 kg/10 a(現物), 窒素肥効率を 50 %として計算し、不足分を補正肥料で施用した。りん酸及び加里についても不足分は補正肥料を用いて補った。標準区については、補正肥料を用いて汚泥肥

料施用区と同様の成分量になるよう施用した(Table 6)。

また、前作(2013年冬作)までの跡地土壌を分析したところ、各試験区の有効態りん酸は汚泥肥料施用区 6.2 mg/100 g 乾土、標準区 10.2 mg/100 g 乾土であり、地力増進基本指針¹⁾²⁾における有効態りん酸の改善目標(10 mg/100g 乾土)に比べて低い又は同等な値であった。このため、過去の有効態りん酸の推移を基に、不足分のりん酸として、溶成りん肥(く溶性りん酸 20%含有)を汚泥肥料施用区は 1162 g、標準区は 133 g 施用した。

Table 6 The fertilization design of the test plots where carrot was cultivated in summer 2014

	Amount of application per 4 m ² (g)	The applied components per 4 m ²				Amount of application per 10 a (kg)	The applied components per 10 a			
		N (g)	P ¹⁾ (g)	K ²⁾ (g)	Cd (mg)		N (g)	P ¹⁾ (g)	K ²⁾ (g)	Cd (g)
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>										
Sludge fertilizer	2000	66	104	7	7.3	500	16550	26100	1800	1.8
Urea	93	43	—	—	—	23	10725	—	—	—
Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Potassium chloride	90	—	—	57	—	23	—	—	14200	—
Fused magnesium phosphate	1162	—	232	—	—	291	—	58100	—	—
Total		109	337	64	7.3		27275	84200	16000	1.8
<Standard plot (SP)>										
Sludge fertilizer	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Urea	120	56	—	—	—	30	13907	—	—	—
Ammonium dihydrogenphosphate	170	20	104	—	—	42	5093	26100	—	—
Potassium chloride	101	—	—	64	—	25	—	—	16000	—
Fused magnesium phosphate	133	—	27	—	—	33	—	6640	—	—
Total		76	131	64	0.0		19000	32740	16000	0.0

1) Content as P₂O₅

2) Content as K₂O

(4) 栽培方法

供試作物はニンジン(品種名:恋ごころ)とした。各試験区の周辺部にはガードプランツとして供試作物を栽培した。

施肥は 2014 年 6 月 16 日に行った。各試験区の表層土約 12 kg を袋に取り、肥料を入れ混合し、各試験区表層に均等に散布し、耕耘機で深さ約 15 cm まで耕耘した。

試験区内は 9 条(条間約 20 cm)とし、播種は 6 月 19 日にシーダーテープ種子を用いて行った。

間引きは 7 月 22 日及び 7 月 30 日に行い、収穫時の株間が約 8 cm となるようにした。

農薬散布はヨトウムシ等の害虫防除のため、施肥時にダイアジノン粒剤を散布した。雑草防除は手除草により適宜実施した。適宜水道水によるかん水を行った。

収穫は 2014 年 9 月 19 日に行い、葉部と根部を収穫した。

(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。根部はイオン交換水ですすぎ、自然乾燥して薄く

切り分けた後、通風乾燥機により 65 °C で 24 時間乾燥を行い重量を測定した。葉部は葉が重ならないように広げ、自然乾燥し、その後、通風乾燥機により 65 °C で 24 時間乾燥を行い、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 のふるいを通すまで粉砕機 (ZM200:Retsch ロータ回転数 6000 rpm) で粉砕した。

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た。また、カドミウムの垂直分布を調査するため、表層から約 15 cm まで採取した際と同じ穴から、採土器 (内径 30 mm×長さ 100 cm) を用いて約 15 cm から 25 cm までの土壌を採取し同様に調製した。

土壌の分析は、2.1).(6) の項目に加えて全カドミウム (全 Cd) を分析した。

土壌中の全 Cd 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 (ICPM-8500:島津製作所) により行った。

3. 結果

1) 2013 年冬作連用試験 (冬作ホウレンソウ:2013 年 11 月 5 日～2014 年 3 月 11 日)

(1) 作物体の収量及びカドミウム吸収量

播種から収穫までの栽培期間は約 5 ヶ月であり、その間に異常な症状等は観察されなかった。

ホウレンソウの収量、カドミウム濃度及び吸収量を Table 7 に示した。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 16.65 kg と 17.90 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 93 であった。カドミウム濃度 (乾物) については、汚泥肥料施用区は平均値で 0.45 mg/kg、標準区は 0.30 mg/kg であり、汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p < 0.05$) が、その現物濃度は Codex 基準値 (0.2 mg/kg) の 1/4 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 0.73 mg/試験区、標準区は 0.53 mg/試験区であり、汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p < 0.05$)。

(2) 跡地土壌のカドミウム濃度

跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度、1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cd 濃度、pH 及び EC を Table 8 に示した。0.1 mol/L HCl-Cd 濃度は、平均値で汚泥肥料施用区は 0.22 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 ($p < 0.05$)。1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cd 濃度は、平均値で汚泥肥料施用区は 0.041 mg/kg、標準区は 0.029 mg/kg であり、汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p < 0.05$)。

Table 7 Cadmium uptake and yield of spinach (edible portion) in the test

	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Yield index ⁴⁾	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>								
Fresh weight	kg	17.50		15.80		16.65	93	-
Dry weight	kg	1.66		1.54		1.60	90	-
Cadmium concentration ¹⁾	mg/kg	0.46	0.47	0.42	0.46	0.45	-	significance ⁵⁾
Cadmium concentration ²⁾	mg/kg	0.044	0.045	0.041	0.045	0.044	-	-
Quantity of cadmium uptake ³⁾	mg/plot	0.77	0.78	0.65	0.71	0.73	-	significance
<Standard plot (SP)>								
Fresh weight	kg	18.45		17.35		17.90	100	-
Dry weight	kg	1.85		1.72		1.78	100	-
Cadmium concentration ¹⁾	mg/kg	0.32	0.32	0.28	0.27	0.30	-	-
Cadmium concentration ²⁾	mg/kg	0.032	0.032	0.028	0.027	0.030	-	-
Quantity of cadmium uptake ³⁾	mg/plot	0.59	0.59	0.48	0.47	0.53	-	-

1) Content in the dry matter

2) Content in the fresh matter

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

4) Yield of Standard plot was indexed as 100

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

Table 8 Characteristics of cultivated soil in winter 2013

	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	significance test
< Sludge-fertilizer-application plot(AP) >							
0.1 mol /L HCl-Cd ¹⁾	mg/kg	0.22	0.22	0.22	0.21	0.22	significance ⁵⁾
Exchangeable-Cd ²⁾	mg/kg	0.038	0.039	0.046	0.040	0.041	significance
pH (H ₂ O) ³⁾		6.3		6.4			
EC ⁴⁾	mS/m	19.3		19.8			
< Standard plot (SP) >							
0.1 mol /L HCl-Cd ¹⁾	mg/kg	0.16	0.16	0.17	0.16	0.16	
Exchangeable-Cd ²⁾	mg/kg	0.028	0.027	0.031	0.031	0.029	
pH (H ₂ O) ³⁾		6.2		6.2			
EC ⁴⁾	mS/m	17.3		17.3			

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

2) Content of cadmium dissolved with pH 7.0, 1 mol/L ammonium acetate solution in the drying soil

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

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

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

Table 9 Cadmium uptake and yield of carrot in the test

	Part	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Yield index ⁴⁾	Significance test
< Sludge-fertilizer-application plot (AP) >									
Fresh weight	Root	kg	9.15		8.65		8.90	100	-
	Leaf	kg	6.45		5.65		6.05	98	-
	Total	kg	15.60		14.30		14.95	99	-
Dry weight	Root	kg	1.01		0.94		0.97	98	-
	Leaf	kg	0.88		0.88		0.88	101	-
	Total	kg	1.89		1.82		1.85	99	-
Cadmium concentration ¹⁾	Root	mg/kg	0.17	0.17	0.15	0.17	0.17	-	Significance ⁵⁾
	Leaf	mg/kg	0.25	0.25	0.26	0.25	0.25	-	Pending ⁶⁾
Cadmium concentration ²⁾	Root	mg/kg	0.019	0.019	0.017	0.018	0.018	-	-
	Leaf	mg/kg	0.034	0.034	0.040	0.039	0.037	-	-
Quantity of cadmium uptake ³⁾	Root	mg/plot	0.17	0.18	0.14	0.16	0.16	-	Significance
	Leaf	mg/plot	0.22	0.22	0.23	0.22	0.22	-	Pending
	Total	mg/plot	0.39	0.40	0.37	0.38	0.38	-	Pending
< Standard plot (SP) >									
Fresh weight	Root	kg	9.00		8.85		8.93		
	Leaf	kg	6.80		5.60		6.20		
	Total	kg	15.80		14.45		15.13		
Dry weight	Root	kg	0.98		1.01		0.99		
	Leaf	kg	0.96		0.79		0.87		
	Total	kg	1.94		1.79		1.87		
Cadmium concentration ¹⁾	Root	mg/kg	0.13	0.14	0.12	0.12	0.13		
	Leaf	mg/kg	0.20	0.20	0.17	0.17	0.18		
Cadmium concentration ²⁾	Root	mg/kg	0.015	0.015	0.013	0.013	0.014		
	Leaf	mg/kg	0.029	0.028	0.024	0.023	0.026		
Quantity of cadmium uptake ³⁾	Root	mg/plot	0.13	0.14	0.12	0.12	0.13		
	Leaf	mg/plot	0.19	0.19	0.13	0.13	0.16		
	Total	mg/plot	0.33	0.33	0.25	0.25	0.29		

1) Content in the dry matter

2) Content in the fresh matter

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

4) Yield of Standard plot was indexed as 100

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

6) 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) 2014年夏作連用試験(夏作ニンジン:2014年6月19日～2014年9月19日)

(1) 作物体の収量及びカドミウム吸収量

播種から収穫までの栽培期間は約3ヶ月であり、収穫直前には、一部の葉にうどん粉病と思われる病徴や虫による葉の食害が認められた。また、過去の試験結果と比較して早期に下葉が黄化する窒素欠乏症状が認められ収量も低くなったが、それ以外の異常な症状等は観察されなかった。

ニンジンの収量、カドミウム濃度及び吸収量を Table 9 に示した。汚泥肥料施用区及び標準区の収量は、生体重平均値で根部がそれぞれ 8.90 kg と 8.93 kg、葉部がそれぞれ 6.05 kg と 6.20 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根部が 100、葉部が 98 でほぼ同じ収量であった。

汚泥肥料施用区及び標準区のカドミウム濃度(乾物)については、平均値で根部がそれぞれ 0.18 mg/kg と 0.15 mg/kg、葉部がそれぞれ 0.33 mg/kg と 0.28 mg/kg であり、根部については汚泥肥料施用区が有意に高かった($p < 0.01$)が、その現物濃度は Codex 基準値の 1/4 以下であった。汚泥肥料施用区及び標準区の試験区当たりのカドミウム吸収量については、平均値で根部がそれぞれ 0.17 mg と 0.13 mg、葉部がそれぞれ 0.25 mg と 0.18 mg であり、根部については汚泥肥料施用区が有意に高かった($p < 0.01$)。作物体全体の試験区当たりのカドミウム吸収量の平均値は汚泥肥料施用区で 0.38 mg、標準区で 0.29 mg であった。

(2) 跡地土壌のカドミウム濃度

跡地土壌の全 Cd 濃度(作土層(表層から 0 cm -15 cm)及びその下層(15 cm -25 cm))、0.1 mol/L HCl-Cd 濃度、1 mol/L 酢安(pH 7.0)-Cd 濃度、pH 及び EC を Table 10 に示した。作土層の全 Cd 濃度は、汚泥肥料施用区は 0.57 mg/kg、標準区は 0.47 mg/kg で、汚泥肥料施用区が有意に高かった($p < 0.01$)。下層(表層から 15-25 cm)の全 Cd 濃度は、汚泥肥料施用区は 0.46 mg/kg、標準区は 0.44 mg/kg で、試験区間で有意差は確認できなかった。0.1 mol/L HCl-Cd 濃度は、汚泥肥料施用区は 0.20 mg/kg、標準区は 0.15 mg/kg で、汚泥肥料施用区が有意に高かった($p < 0.01$)。1 mol/L 酢安(pH 7.0)-Cd 濃度は、汚泥肥料施用区は 0.038 mg/kg、標準区は 0.026 mg/kg で、汚泥肥料施用区が有意に高かった($p < 0.01$)。

Table 10 Characteristics of cultivated soil in summer 2014

	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Significance test
< Sludge-fertilizer-application plot (AP) >							
Total-Cd ¹⁾ , upper layer soil ²⁾	mg/kg	0.54	0.54	0.61	0.59	0.57	Significance ⁸⁾
Total-Cd ¹⁾ , lower layer soil ³⁾	mg/kg	0.48	0.48	0.44	0.43	0.46	Pending ⁹⁾
0.1 mol/L HCl-Cd ⁴⁾	mg/kg	0.19	0.20	0.21	0.21	0.20	Significance
Exchangeable-Cd ⁵⁾		0.038	0.038	0.038	0.039	0.038	Significance
pH (H ₂ O) ⁶⁾		6.9		6.8			
EC ⁷⁾	mS/m	16.9		17.7			
< Standard plot (SP) >							
Total-Cd ¹⁾ , upper layer soil ²⁾	mg/kg	0.43	0.47	0.48	0.50	0.47	
Total-Cd ¹⁾ , lower layer soil ³⁾	mg/kg	0.44	0.45	0.43	0.43	0.44	
0.1 mol/L HCl-Cd ⁴⁾	mg/kg	0.14	0.15	0.15	0.16	0.15	
Exchangeable-Cd ⁵⁾		0.025	0.024	0.026	0.027	0.026	
pH (H ₂ O) ⁶⁾		6.8		6.8			
EC ⁷⁾	mS/m	15.4		16.9			

1) Content in the dry matter

2) 0 cm - 15 cm depth

3) 15 cm - 25 cm depth

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

5) Content of cadmium dissolved with pH 7.0, 1 mol/L ammonium acetate solution in the drying soil

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

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

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

9) 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))

4. 考 察

1) 2009 年連用試験開始時からの推移について

2009 年の試験開始時から、これまで 6 年間、年 2 作、計 11 作の試験を行った。各試験結果等の推移については下記のとおりであった。

(1) 施肥履歴

これまでの試験における施肥履歴を Table 11 に示した。

Table 11 The fertilizer application log of the test plots

Year	Season	Test crops	Fertilizers	<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>				<Standard plot (SP)>					
				Amount of application (kg/10 a)	The applied components per 10 a				Amount of application (kg/10 a)	The applied components per 10 a			
					N	P ¹⁾	K ²⁾	Cd		N	P ¹⁾	K ²⁾	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	—	—	—	—	12	—	—	8	
			Total		22	19	20	1.2		22	19	20	0
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	—	—	—	—	12	—	—	8	
			Total		20	16	18	1.1		20	16	18	0
2010	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	227	8	12	1	0.8	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	36	8	—	—	—	71	15	—	—	
			Potassium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	23	—	12	8	
			Potassium chloride	15	—	—	—	—	3	—	—	2	
			Total		15	12	10	0.8		15	12	10	0
2010	Winter	Qing geng cai	Sludge fertilizer	181	6	9	1	0.7	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	28	6	0	0	—	57	12	—	—	
			Potassium dihydrogen phosphate	5	—	3	2	—	23	—	12	8	
			Potassium chloride	15	0	0	10	—	6	—	—	4	
			Total		12	12	12	0.7		12	12	12	0
2011	Summer	Turnip	Sludge fertilizer	227	8	12	1	0.8	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	33	7	—	—	—	57	12	—	—	
			Ammonium dihydrogenphosphate	6	1	3	—	—	24	3	15	—	
			Potassium chloride	22	—	—	—	—	24	—	—	15	
			Total		15	15	15	0.8		15	15	15	0
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	
			Total		26	26	18	1.8		20	26	18	0
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	0
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	0
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	0
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	—	
			Total		35	51	18	1.8		20	51	18	0
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	—	
			Total		27	84	16	1.8		19	33	16	0

1) Content as P₂O₅

2) Content as K₂O

(2) 作物体の収量

作物体の収量(生体重)の推移は Table 12 のとおりである。これまでの試験の収量は、参考にした自治体施肥基準に記載されている目標収量と同等以上であり、一定の収量を確保できていると考えられる。標準区に対する汚泥肥料施用区の生体重指数を見ると、試験開始から主に葉菜類において、汚泥肥料施用区の収量が 8 割程度で推移した。これは、汚泥肥料施用区の施肥設計において、汚泥肥料の連用による残効¹⁹⁾を考慮して、窒素肥効率を 100 %として計算していたが、連用 6 作目の 2011 年冬作ホウレンソウにおいても収量が標準区に対して 8 割程度であった。この原因として、窒素要求量の比較的少ないニンジン(2009 年夏作)では両試験区間での収量が同程度であったことから、汚泥肥料の窒素肥効率は標準区の試薬よりも低いことが考えられる。そこで、改めて供試肥料であるし尿汚泥肥料の窒素無機化率を確認するため、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。この結果から、2012 年冬作ホウレンソウは汚泥肥料の窒素肥効率を 30 %として施肥したところ、標準区の生体重を 100 とした汚泥肥料施用区の生体重指数は 85 となった。冬は地温が低いため、無機化試験の温度 30 °C と比較して無機化率が低くなっていると考えられる。2013 年夏作ニンジンは汚泥肥料の窒素肥効率を 30 %として施肥したところ、標準区の生体重を 100 とした汚泥肥料施用区の生体重指数は 118 となった。これは、前作である冬作の残効があることが考えられる。以上のことから、供試肥料としているし尿汚泥肥料については、窒素肥効率を夏作ニンジンでは 50 %、冬作ホウレンソウでは 10 %として施肥設計を計算することが適当と考えられる。窒素肥効率を 10 %として施肥した 2013 年冬作ホウレンソウでは、標準区を 100 とした汚泥肥料施用区の生体重指数は 93 となり、汚泥肥料施用区の生体重指数は増加したものの、同等の収量とはならなかった。現在試験中の 2014 年冬作ホウレンソウ試験においては、供試汚泥肥料の窒素肥効率を 0 %として施肥している。

また、2014 年夏作ニンジンにおいて過去の試験結果と比較して下葉が黄化する窒素欠乏症状が早期に認められ収量も低かった。これは、施肥設計において参考とした自治体施肥基準が減肥設計に改訂され(窒素施用量(改訂前) 22 kg/10a(改訂後) 19 kg/10a)、栽培した品種も減肥栽培が推奨されているもののため、改訂された施肥基準に従い過去の試験と比較して窒素施用量を少なく施用したことが影響したと考えられる。通常、ニンジンは自治体施肥基準では堆肥により土づくりを行い、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⁾。しかし、本試験では堆肥による土づくり、緩効性肥料の使用及び追肥が困難なため基肥のみの施肥方法としている。基肥のみで一定の収量を確保するためには窒素施用量は、施肥基準の量 19 kg/10a よりも多くし 2013 年夏作以前と同量(22 kg/10a)程度とする必要があると考えられる。

(3) 跡地土壌の理化学性の推移

(3.1) 跡地土壌の pH

跡地土壌 pH の推移は Fig.2 のとおりである。pH 6.0~pH 6.9 の範囲内で試験区間差も小さく推移している。石灰含量の低い高分子凝集汚泥を連用施用した場合に土壌 pH が低下することが知られている¹¹⁾が、本試験では pH 6.0 を下回らないよう、適宜、石灰資材による pH の補正を行っている。また、供試土壌が黒ボク土であることや、高分子凝集剤を使用したし尿汚泥肥料の施用量が極端には多くないため、連用施用による pH の変動は比較的少ないものとなっていると考えられる。土壌 pH の変動は、土壌中カドミウムの作物体への可給性に影響を及ぼすことが知られている^{20, 21)}。本試験では、汚泥肥料施用区と標準区の跡地土壌 pH はほぼ同程度で推移していることから、各試験でのカドミウム動態の処理間差に土壌 pH はほとんど影響していないものと考えられる。

Table 12 The yield of each crop body of 2009 to 2014 (fresh weight)

Year	Season	Test Crops	Part	AP ¹⁾	SP ²⁾	Aim	Fresh
				Fresh weight (kg/plot)	Fresh weight (kg/plot)	yield ³⁾ (kg/plot)	weight index of AP ⁴⁾
2009	Summer	Carrot	Root	18.0 (0.1) ⁵⁾	17.9 (1.0)	-	101
			Leaf	10.5 (0.4)	9.6 (0.9)	-	109
			Total	28.5 (0.4)	27.6 (1.8)	16	104
2009	Winter	Spinach	Edible portion	13.7 (0.8)	18.6 (1.0)	8	74
2010	Summer	Spinach	Edible portion	4.5 (0.1)	5.8 (0.6)	4	77
2010	Winter	Qing geng cai	Edible portion	22.4 (0.7)	26.9 (0.8)	12	83
2011	Summer	Turnip	Root	8.9 (0.6)	9.4 (0.9)	-	95
			Leaf	8.7 (1.0)	10.0 (1.3)	-	88
			Total	17.6 (1.5)	19.3 (2.2)	16	91
2011	Winter	Spinach	Edible portion	8.1 (0.0)	10.3 (0.5)	8	79
2012	Summer	Carrot	Root	12.3 (0.5)	12.1 (0.2)	-	101
			Leaf	10.0 (0.6)	9.7 (0.8)	-	103
			Total	22.3 (0.1)	21.8 (0.5)	14	102
2012	Winter	Spinach	Edible portion	11.3 (0.5)	13.3 (0.6)	8	85
2013	Summer	Carrot	Root	12.2 (0.9)	10.3 (1.4)	-	118
			Leaf	5.4 (0.3)	4.6 (0.6)	-	119
			Total	17.6 (1.2)	14.9 (2.0)	14	118
2013	Winter	Spinach	Edible portion	16.7 (1.2)	17.9 (0.8)	8	93
2014	Summer	Carrot	Root	8.9 (0.4)	8.9 (0.1)	-	100
			Leaf	6.1 (0.6)	6.2 (0.8)	-	98
			Total	15.0 (0.9)	15.1 (1.0)	14	99

1) Sludge-fertilizer-application plot

2) Standard plot

3) This value is shown in the recommending rate of fertilizer application (local government) exchanging aim yield (kg/10 a) to 4 m².

4) Fresh weight index of sludge-fertilizer-application plot when standard plot assume 100.

5) Standard deviation (*n* = 2 (2 repetition))

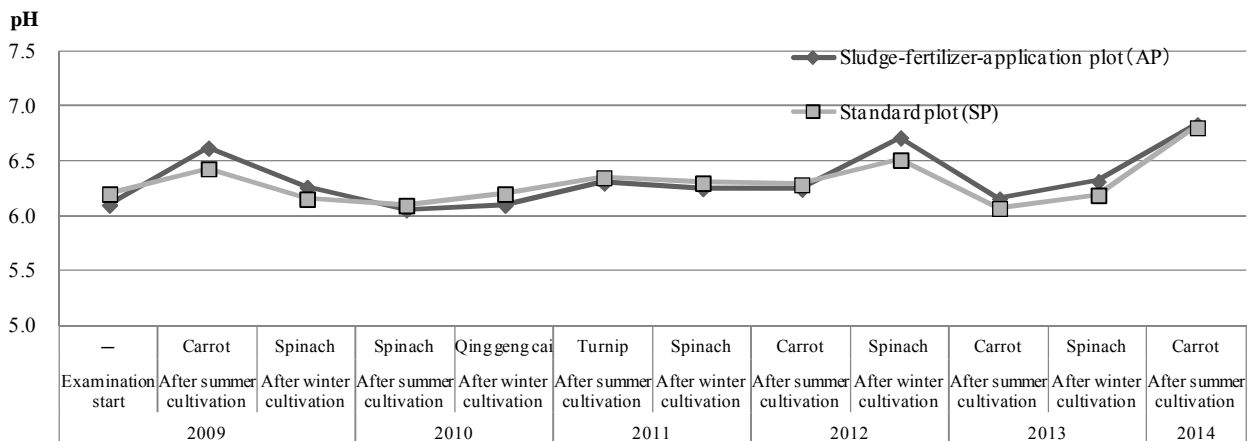


Fig. 2 Changes in the pH of soil after harvest

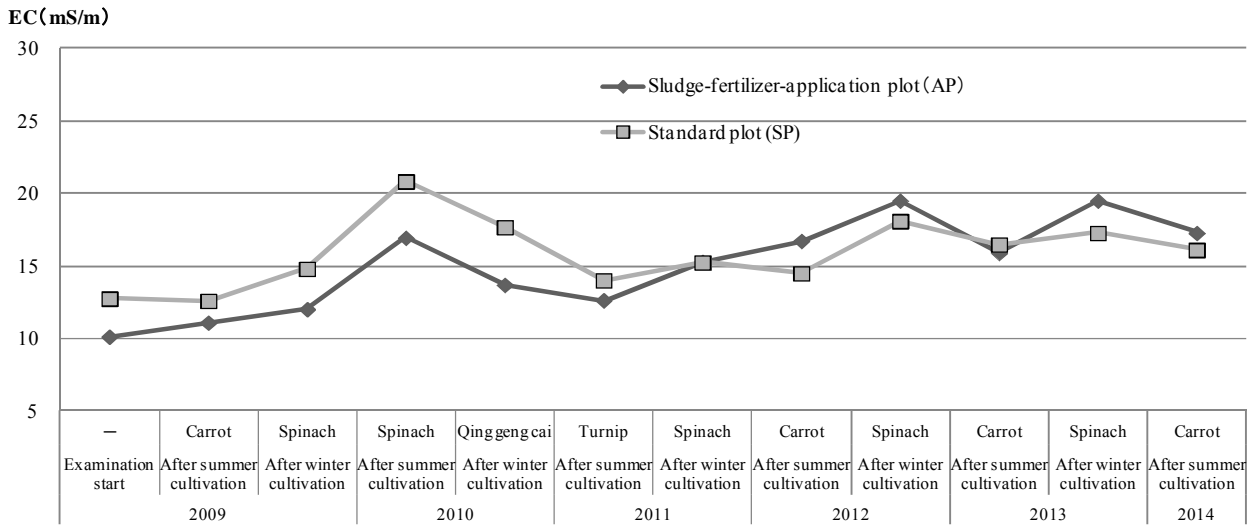


Fig. 3 Changes in the EC of soil after harvest

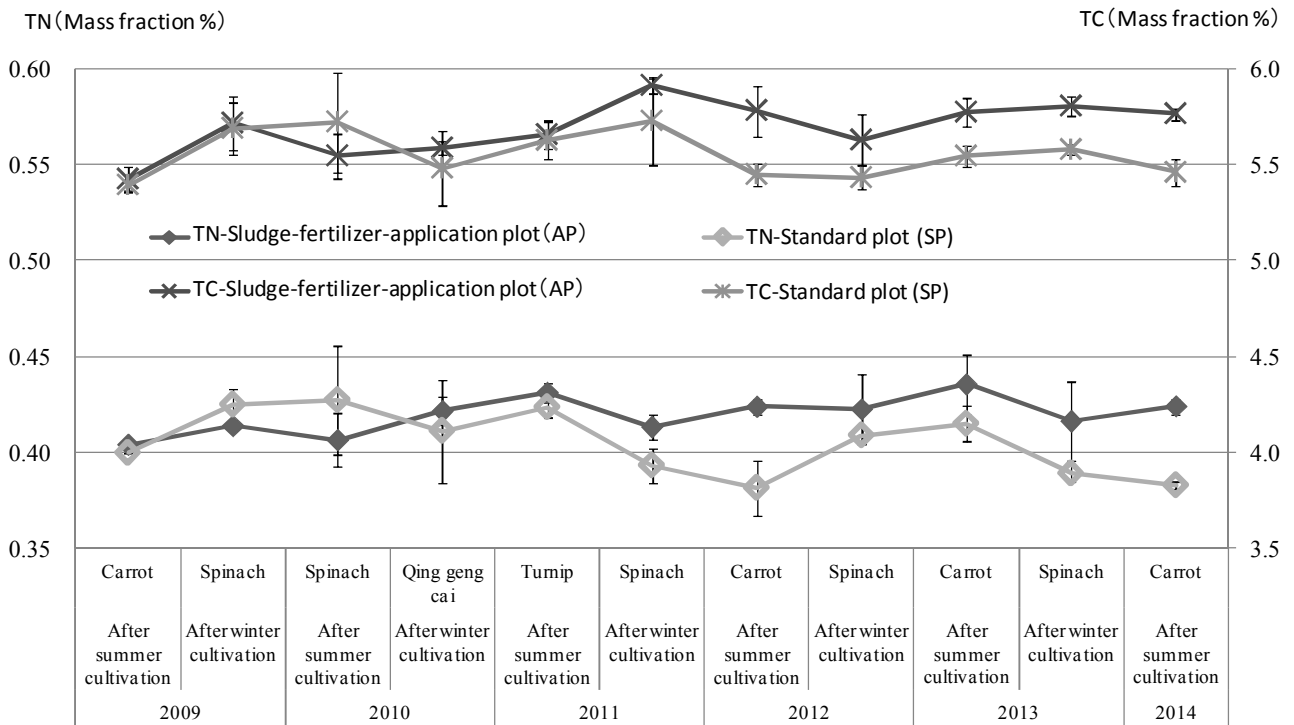


Fig. 4 Changes in the total nitrogen (TN) and total carbon (TC) of soil after harvest (The error bar indicating the standard deviation)

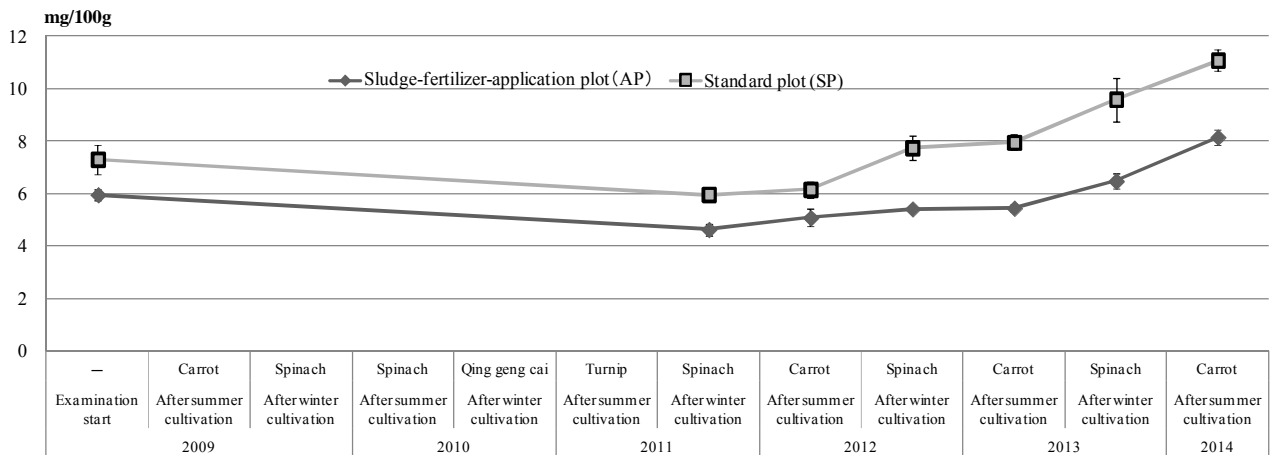


Fig. 5 Changes in the available phosphate of soil after harvest (The error bar indicating the standard deviation)

(3.2) 跡地土壌の EC

跡地土壌 EC の推移は Fig.3 のとおりである。試験開始以降、年々上昇傾向となっている。これは、肥料由来の塩類が土壌中に蓄積しているためと考えられる。冬作跡地土壌において EC が上昇する傾向があり、これは、夏作よりも降水量が少ないことが一因として考えられる。地力増進基本指針¹²⁾における EC(電気伝導度)の改善目標は黒ボク土で 30 mS/m 以下とされている。作物の種類により最適 EC は異なるが、今後、EC が上昇を続けた場合、作物生育に影響を及ぼす可能性もあるため、推移を確認する必要がある。2014 年夏作ニンジン試験では、EC 上昇防止及び比較的緩効性の肥料とするため、これまで使用していた窒素肥料を硫酸アンモニウムから尿素に変更したところ、EC の上昇は比較的少なかった。

(3.3) 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.4 のとおりである。試験開始当初は TN 及び TC において試験区間でほぼ同等であったが、2011 年冬作ホウレンソウ以降、常に汚泥肥料施用区の方が高く推移している。これは、汚泥肥料施用区は汚泥肥料由来の有機物が毎回施用されているが、標準区は有機物の施用がない状態で連作しているため、土壌中の有機物濃度が減少する傾向にあると考えられる。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²²⁾、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。

(3.4) 跡地土壌の有効態りん酸

跡地土壌の有効態りん酸の推移は Fig.5 のとおりである。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る。供試土壌が黒ボク土のため試験開始当初から有効態りん酸が比較的低いことが作物生育の制限となる可能性が考えられる。そのため、2012 年夏作試験から地力増進基本指針¹¹⁾の改善目標である 10 mg/100g を目標に試験毎に溶成りん肥を施用した結果、2014 年夏作跡地土壌において標準区は 10 mg/100g 以上となったが、汚泥肥料施用区は標準区と比較して有効態りん酸の上昇率が低かった。これは、汚泥肥料由来のりん酸が無機肥料由来のリン酸と比較して肥効率が低いこと、また、汚泥肥料に含まれる凝集剤等と結合しりん酸が不可給態化していることが考えられる。土壌の pH が中性に近づくと、土壌のカドミウムは、りん酸イオンと結合して水に溶けにくい化学形態のものが増加することが知られている²⁰⁾。今後は、りん酸の施肥設計を見直し、両試験区の有効態りん酸を 10 mg/100g 程度に保ち、カドミウムの動態を観察する必要がある。

と考えられる。

(3.5) 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.6 のとおりである。

交換性石灰及び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 年冬作跡地土壌を比較するとやや減少していた。その後 2012 年夏作の作付け前から、各試験区の有効態りん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た。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、上記(3.4)のとおり、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りん酸の増加率が低いため、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。交換性塩基の違いが、作物生育及びカドミウムの動態に影響があるか今後の推移を確認する必要があると考えられる。

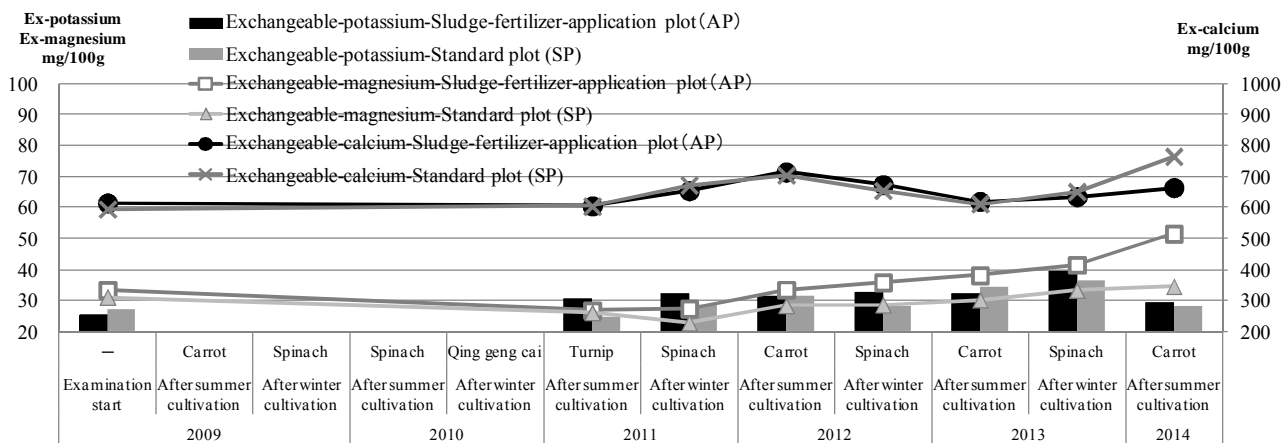


Fig. 6 Changes in the exchangeable base of soil after harvest

(4) 跡地土壌のカドミウム等濃度の推移

(4.1) 跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度

跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度の推移は Table 13 及び Fig.7 のとおりである。

汚泥肥料施用区及び標準区の 0.1 mol/L HCl-Cd 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、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 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 13). 2014 年夏作跡地までの汚泥肥料施用区の回帰は有意でなく ($p=0.30$) 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 ($p<0.05$), 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 濃度が標準区に比べて有意に高くなり、以後同様の結果が続いている。これは、標準区は肥料由来のカドミウム負荷がないため、各試験において作物体の収穫により土壌中カドミウムの圃場外への持ち出しが継続されること等により、跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度についても減少する傾向となっていると考えられる。

Table 13 Changes in the 0.1 mol/L HCl-Cd concentration¹⁾ of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	AP ²⁾	SP ³⁾	Significance test (difference between the processing)	p-value of single regression analysis ⁴⁾	
			(mg/kg)	(mg/kg)		AP ²⁾	SP ³⁾
2009	Start	—	0.19 (0.01) ⁵⁾	0.20 (0.02)	N.S. ⁶⁾	—	—
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 ⁷⁾	—	—
2010	Summer	Spinach	0.19 (0.01)	0.17 (0.02)	Pending	—	—
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)	N.S.	0.41	0.11
2011	Winter	Spinach	0.20 (0.01)	0.17 (0.01)	Significance ⁸⁾	0.63	< 0.05 ⁹⁾
2012	Summer	Carrot	0.19 (0.005)	0.15 (0.01)	Significance	0.41	< 0.01
2012	Winter	Spinach	0.21 (0.01)	0.17 (0.01)	Significance	0.98	< 0.01
2013	Summer	Carrot	0.20 (0.004)	0.16 (0.01)	Significance	0.89	< 0.01
2013	Winter	Spinach	0.22 (0.01)	0.16 (0.00)	Significance	0.34	< 0.01
2014	Summer	Carrot	0.20 (0.006)	0.15 (0.00)	Significance	0.30	< 0.01

1) Content in the drying soil

2) Sludge-fertilizer-application plot

3) Standard plot

4) The p-value which calculated from dispersion analysis for linear regression by examination start of each examination plot.

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

6) It is no 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))

7) 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))

8) It is 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))

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

(4.2) 跡地土壌の 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cd 濃度

跡地土壌の 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cd 濃度の推移(2009 年冬作～2014 年夏作まで)は Table 14 及び Fig.8 のとおりである。

汚泥肥料施用区及び標準区の 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cd 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 年冬作からの経過月(各試験の間隔は 6 ヶ月とした)に対する 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cd 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). 2014 年夏作跡地までの汚泥肥料施用区の回帰は有意でなく($p > 0.05$), 一定で推移している傾向であった。一方, 標準区では, 2012 年夏作跡地以降, 回帰が有意となり($p < 0.05$) 下降傾向が認められ, 両試験区間の差は大きくなる傾向であった。この傾向は 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度と同様であった (Table 13 及び Fig.7)。

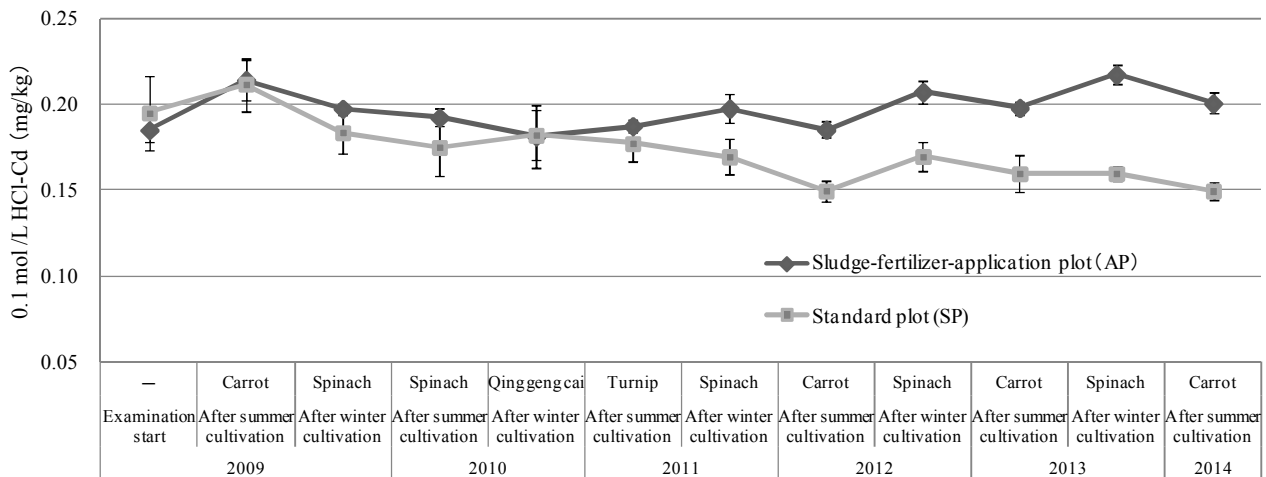


Fig. 7 Changes in the 0.1 mol/L HCl-Cd concentration of soil after harvest
(The error bar indicating the standard deviation)

Table 14 Changes in the exchangeable-Cd concentration¹⁾ of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	AP ²⁾	SP ³⁾	Significance test (difference between the processing)	p-value of single regression analysis ⁴⁾	
			(mg/kg)	(mg/kg)		AP ²⁾	SP ³⁾
2009	Winter	Spinach	0.036 (0.002) ⁵⁾	0.037 (0.002)	N.S. ⁶⁾	—	—
2010	Summer	Spinach	0.038 (0.002)	0.036 (0.003)	N.S.	—	—
2010	Winter	Qing geng cai	0.041 (0.001)	0.037 (0.001)	Significance ⁷⁾	—	—
2011	Summer	Turnip	0.036 (0.0004)	0.035 (0.003)	Pending ⁸⁾	—	—
2011	Winter	Spinach	0.039 (0.001)	0.035 (0.002)	Significance	0.58	0.13
2012	Summer	Carrot	0.037 (0.001)	0.032 (0.001)	Significance	0.93	< 0.05 ⁹⁾
2012	Winter	Spinach	0.038 (0.001)	0.032 (0.003)	Significance	0.93	< 0.01
2013	Summer	Carrot	0.038 (0.001)	0.031 (0.001)	Significance	0.91	< 0.01
2013	Winter	Spinach	0.041 (0.003)	0.029 (0.002)	Significance	0.34	< 0.01
2014	Summer	Carrot	0.038 (0.0005)	0.026 (0.001)	Significance	0.38	< 0.01

1) Content of cadmium dissolved with pH 7.0, 1 mol/L ammonium acetate solution in the drying soil

2) Sludge-fertilizer-application plot

3) Standard plot

4) The p-value which calculated from dispersion analysis for linear regression by examination start of each examination plot.

5) Standard deviation (n = 4 (2 × 2) (repetition × number of samples))

6) It is no significantly different for processing examination section (t-test, 5 % of both sides levels of significance, n = 4 (2 × 2) (repetition × number of samples))

7) It is significantly different for processing examination section (t-test, 5 % of both sides levels of significance, n = 4 (2 × 2) (repetition × number of samples))

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

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

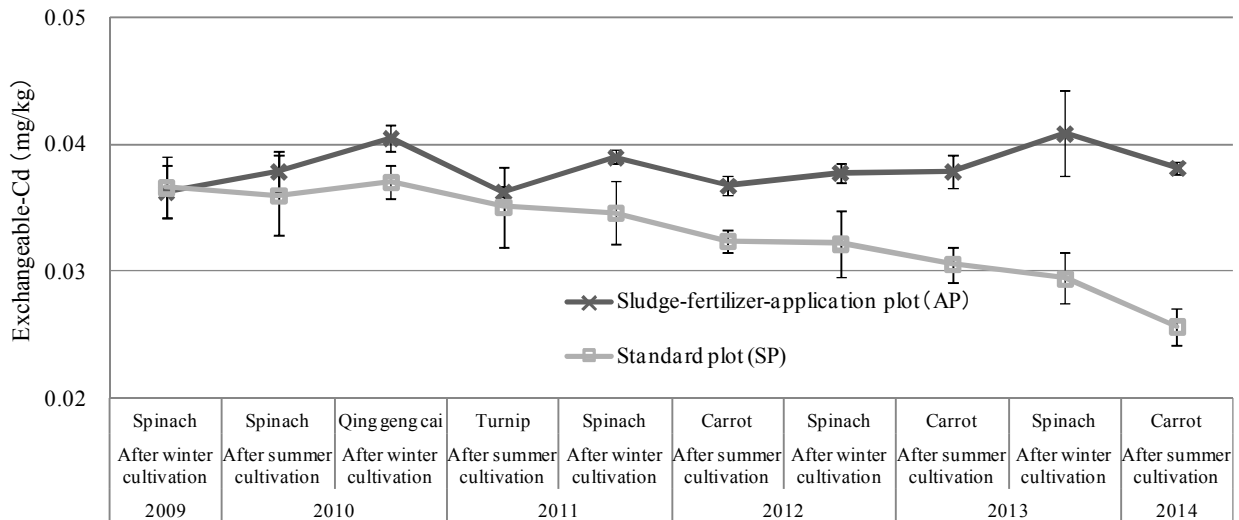


Fig. 8 Changes in the exchangeable-Cd concentration of soil after harvest
(The error bar indicating the standard deviation)

(4.3) 跡地土壌の 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cu 及び Zn 濃度

跡地土壌の 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cu 及び Zn 濃度の推移 (2009 年冬作～2014 年夏作まで) は Table 15 及び Fig.9 のとおりである。汚泥肥料中にカドミウムと比較して多量に含まれる銅及び亜鉛について、カドミウムの土壌蓄積の参考とするため推移を確認した。

汚泥肥料施用区及び標準区の 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cu 及び Zn 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 年冬作からの経過月 (各試験の間隔は 6 ヶ月とした) に対する 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cu 及び Zn 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%)。1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cu については、2014 年夏作跡地までの汚泥肥料施用区及び標準区の回帰は有意でなく ($p > 0.05$), 一定で推移している傾向であった。1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Zn については、汚泥肥料施用区では、2011 年冬作跡地以降、回帰が有意となり ($p < 0.05$) 上昇傾向が認められた。一方、標準区は一定で推移しており ($p > 0.05$), 両試験区間の差は大きくなる傾向であった。

黒ボク土を用い、高分子凝集剤を使用した汚泥の連用ポット試験において、汚泥の連用によって土壌中の可溶性のカドミウム、銅及び亜鉛の増加が認められ、施肥量が多いほど蓄積量は多く、銅及びカドミウム濃度の増加傾向は亜鉛ほど顕著ではなかったことが報告されており²³⁾、この報告と今回の結果は矛盾しないものであった。

土壌では粘土や有機物に重金属は吸着され蓄積する。その吸着の強さは腐植質火山灰土壌の腐植酸を用いた測定では pH 5 の場合「銅 > 亜鉛 > カドミウム」となっている²⁴⁾。1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cu が一定で推移している理由として、土壌有機物等への吸着が比較的に強いこと、現状の負荷量では可溶化する銅が増加していないことが考えられる。一方、1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Zn が上昇傾向である理由は、供試汚泥肥料中の亜鉛濃度が 1760 mg/kg (Table 2) と銅やカドミウムと比較して非常に高く、銅よりも土壌中で動きやすいため汚泥肥料の連用施用により上昇傾向となっていると考えられる。カドミウムについては、亜鉛及び銅と比較して連用による負荷量は少ないものの、亜鉛よりも土壌中で動きやすいため、汚泥肥料を長期連用した場合や大量施用により負荷量が増大した場合は、亜鉛と同様に作物に吸収可能なカドミウム濃度が上昇傾向となる可能性が考えられる。

また、亜鉛濃度の高い汚泥肥料を連用した試験において、負荷量が多い試験区(1 作当たり 2 t/10a 及び 6 t/10a)の 7 作目(コマツナ)及び 9 作目(コカブ)において土壌の pH 6.0 未満という条件で亜鉛の過剰症状(クロロシス及び生育抑制)が認められたという報告がある²⁵⁾。本試験では土壌 pH を 6.0 以上に保っているため影響は少ないと考えられるが、亜鉛を多く含む汚泥肥料を多量に長期連用する場合には、土壌 pH の変動とともに亜鉛の過剰症状についても注意する必要があると考えられた。

Table 15 Changes in the exchangeable-Cu and Zn concentration¹⁾ of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	Cu		Zn	
			AP ²⁾ (mg/kg)	SP ³⁾ (mg/kg)	AP ²⁾ (mg/kg)	SP ³⁾ (mg/kg)
2009	Winter	Spinach	0.40 (0.07) ⁴⁾	0.40 (0.03)	1.3 (0.1)	1.2 (0.2)
2010	Summer	Spinach	0.37 (0.02)	0.36 (0.04)	1.3 (0.04)	1.2 (0.2)
2010	Winter	Qing geng cai	0.35 (0.004)	0.33 (0.004)	1.3 (0.1)	1.1 (0.1)
2011	Summer	Turnip	0.29 (0.002)	0.28 (0.01)	1.5 (0.1)	1.3 (0.3)
2011	Winter	Spinach	0.46 (0.01)	0.39 (0.02)	1.6 (0.2)	1.3 (0.3)
2012	Summer	Carrot	0.40 (0.04)	0.37 (0.02)	1.6 (0.1)	1.1 (0.1)
2012	Winter	Spinach	0.35 (0.02)	0.33 (0.03)	1.7 (0.1)	1.3 (0.1)
2013	Summer	Carrot	0.33 (0.02)	0.31 (0.01)	1.9 (0.2)	1.2 (0.1)
2013	Winter	Spinach	0.36 (0.13)	0.25 (0.05)	1.9 (0.1)	1.1 (0.1)
2014	Summer	Carrot	0.41 (0.04)	0.34 (0.06)	2.2 (0.1)	1.0 (0.1)

1) Content of copper and zinc dissolved with pH 7.0, 1 mol/L ammonium acetate solution in the drying soil

2) Sludge-fertilizer-application plot

3) Standard plot

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

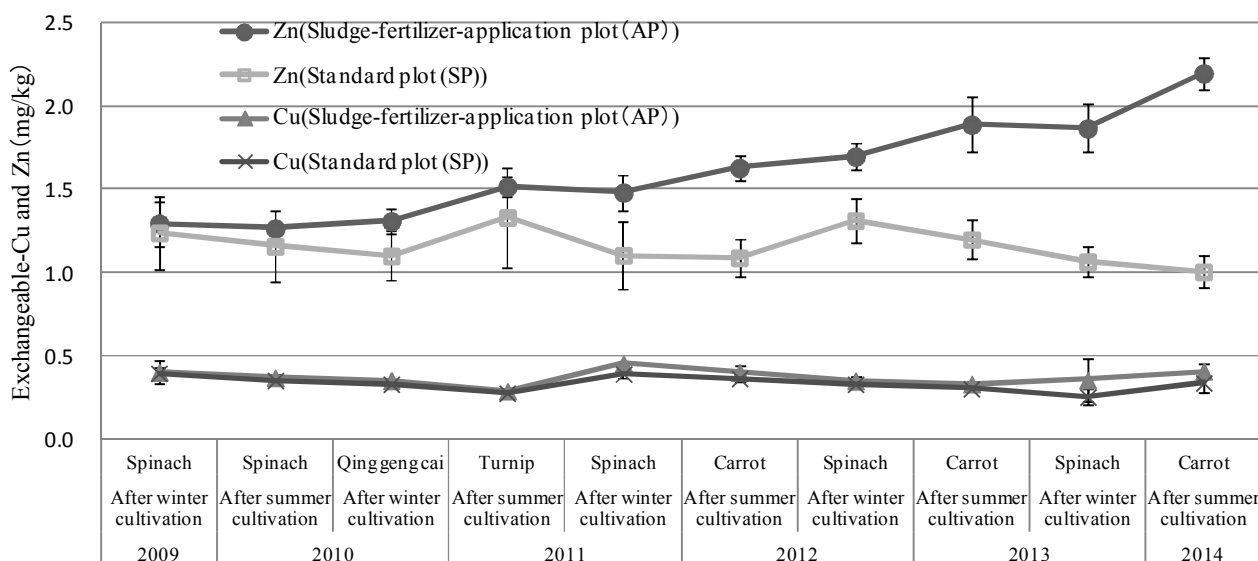


Fig. 9 Changes in the exchangeable-Cu and Zn density of soil after harvest

(The error bar indicating the standard deviation)

(4.4) 跡地土壌の全 Cd 濃度

跡地土壌の全 Cd 濃度の推移は Table 16 及び Fig.10 のとおりである。

汚泥肥料施用区及び標準区の全 Cd 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(夏作から冬作までの間隔は 6 ヶ月とした)に対する全 Cd 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 16). 2014 年夏作跡地までの汚泥肥料施用区は上昇傾向($p < 0.05$)が認められ, 標準区の回帰は一定で推移している傾向であった($p > 0.05$).

汚泥肥料施用区及び標準区の全 Cd 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負荷量が, 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負荷がないためと考えられる.

(4.5) 跡地土壌の全 Cd 濃度の垂直分布

連用試験開始から 6 年目 11 作目である 2014 年夏作ニンジンの跡地土壌について, 全 Cd 濃度の垂直分布を調査するため, 作土層(表層から 0 cm -15 cm)及びその下層(15 cm -25 cm)の全 Cd 濃度を分析した結果を Table 16 及び Fig.10 に示した. 汚泥肥料施用区作土層の全 Cd 濃度は, 汚泥肥料施用区下層, 標準区作土層及び標準区下層と比較して有意に高かった($p < 0.05$). 汚泥肥料施用区下層及び標準区作土層, 下層の全 Cd 濃度に有意差はなかった($p > 0.05$).この結果から, 現状, 全 Cd としての評価では両試験区ともカドミウムの下層への移行はほとんどないと考えられる. 黒ボク土の場合, 肥料由来のカドミウムはほとんどが作土層に留まり, 下層にはほとんど溶出しないことが報告されており²⁶⁾, これと矛盾しない結果であった. 上記(4.1)及び(4.2)において標準区の土壌中 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度及び 1 mol/L 酢安(pH 7.0)-Cd 濃度が減少傾向($p < 0.05$)となっている主な要因は, 下層への移行よりも, 作物収穫による持出し及び土壌中の有機物等と結合すること²²⁾により 0.1 mol/L 塩酸又は 1 mol/L 酢安(pH 7.0)には不溶な形態として作土中に蓄積していることが考えられる.

Table 16 Changes in the total-Cd concentration¹⁾ of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	Upper layer soil of 0 cm - 15 cm depth				Lower layer soil of 15 cm - 25 cm depth			
			AP ²⁾	SP ³⁾	Significance test	p-value of single regression analysis ⁴⁾		AP ²⁾	SP ³⁾	Significance test
			(mg/kg)	(mg/kg)		AP ²⁾	SP ³⁾	(mg/kg)	(mg/kg)	
2009	Summer	Carrot	0.51 (0.02) ⁵⁾	0.48 (0.03)	Significance ⁶⁾	—	—	—	—	—
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	0.03 ⁷⁾	0.16	0.46 (0.03)	0.44 (0.01)	Pending ⁸⁾

1) Content in the drying soil

2) Sludge-fertilizer-application plot

3) Standard plot

4) The p-value which calculated from dispersion analysis for linear regression by examination start of each examination plot.

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

6) It is 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))

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

8) 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))

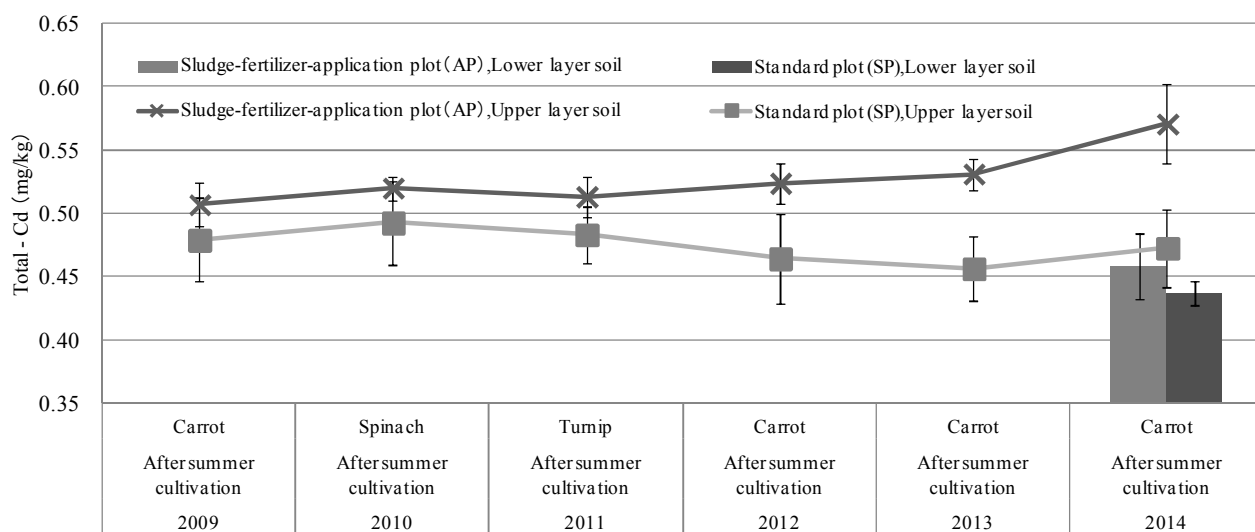


Fig. 10 Changes in the total-Cd concentration of soil after harvest
(The error bar indicating the standard deviation)

(5) 作物体のカドミウム濃度及び吸収量

2009 年夏作～2014 年夏作までの各試験での作物体のカドミウム濃度及び吸収量の推移を Table 17 及び Fig.11 に示した. ニンジン及びホウレンソウについては, それぞれ過去 4 作及び過去 5 作の品種別の推移を Fig.11 下段に示した.

2010 年冬作チンゲンサイのカドミウム濃度は, 汚泥肥料施用区が標準区に比べて有意に高かった($p < 0.01$) が, カドミウム吸収量は両試験区間で同程度であった($p > 0.05$). これは, 汚泥肥料施用区に比べて標準区の収量が 2 割程度多かった (Table 12) ためと考えられる.

2011年冬作ホウレンソウにおいて、試験開始から初めて汚泥肥料施用区が標準区に比べてカドミウム濃度及び吸収量の両方で有意に高かった($p < 0.01$)。この差は、跡地土壌の0.1 mol/L HCl-Cd濃度においても認められており(Table 13)、ホウレンソウは土壌中の交換態のカドミウムを主体に吸収し、無機結合態カドミウムなど他形態のカドミウムも吸収し、ホウレンソウのカドミウム吸収と土壌の0.1 mol/L HCl-Cd濃度に相関があるという報告²⁷⁾と一致する結果であった。

その後に実施した2012年夏作ニンジンでも、跡地土壌の0.1 mol/L HCl-Cd濃度は引き続き汚泥肥料施用区が有意に高かった($p < 0.01$)が、作物体のカドミウム濃度及び吸収量に試験区間での有意差は判然としなかった。これは、ニンジンのカドミウム吸収と土壌の0.1 mol/L HCl-Cd濃度との相関は認められないという報告²⁸⁾と一致する結果であった。

2011年以降、冬作ホウレンソウのカドミウム濃度は、汚泥肥料施用区が標準区に比べて有意に高かった($p < 0.05$)。これは、汚泥肥料施用区ではホウレンソウが吸収可能な形態のカドミウム濃度が標準区と比較して高い状態が2011年冬作以降続いていることが原因と考えられる。しかし、作物体中のカドミウム濃度はCodex基準値に比べて低い濃度で推移している。

(6) ニンジン及びホウレンソウの品種別カドミウム濃度の推移

過去4回のニンジン試験及び過去5回のホウレンソウ試験について、その品種別作物体中カドミウム濃度の推移をTable 18に示した(Fig.11 下 Fig.参照)。ニンジン品種はベーターリッチを2009年、2012年及び2013年夏作の3作試験したところ、汚泥肥料の施用量や連用回数に関わらず、試験を行った年によって作物体カドミウム濃度は変動していた。3作の結果では、栽培日数が長いほど、カドミウム濃度が高まる傾向があった。2014年夏作では、ニンジン品種を「恋ごころ」に変更し試験を行った。この品種は、ベーターリッチよりもカドミウム濃度が高まりやすいとされており²⁹⁾、夏の高温に比較的強い品種として選定した。しかし、カドミウム濃度は2012年及び2013年夏作のベーターリッチよりも低い結果となり、品種の影響は判然としなかった。

ホウレンソウ品種はサンライトを2009年冬作、2010年夏作及び2011年冬作の3作試験したところ、汚泥肥料の施用量や連用回数に関わらず、試験を行った年や季節によって作物体のカドミウム濃度は変動していた。これは、栽培期間中の降水量や気温等の気象条件が影響していると考えられる³⁰⁾。2012年冬作では、ホウレンソウ品種を「オーライ」に変更し試験を行った。これは、サンライトよりもカドミウム濃度が高まりやすいとされており³¹⁾、冬の低温に比較的強い品種として選定した。しかし、カドミウム濃度は2009年冬作のサンライトよりも低く、品種の影響は認められなかった。

試験開始時(2009年夏作)から2014年夏作までの作物体のカドミウム濃度は、概ねCodex基準値³²⁾の1/4以下で推移している。しかし、2010年夏作ホウレンソウのカドミウム濃度は、汚泥肥料施用区及び標準区ともにCodex基準値の2/3程度と顕著に高い濃度であった。冬作ホウレンソウと比較して夏作ホウレンソウのカドミウム濃度は高まりやすいことが知られており、夏の高温等の気象条件が影響していると考えられる。

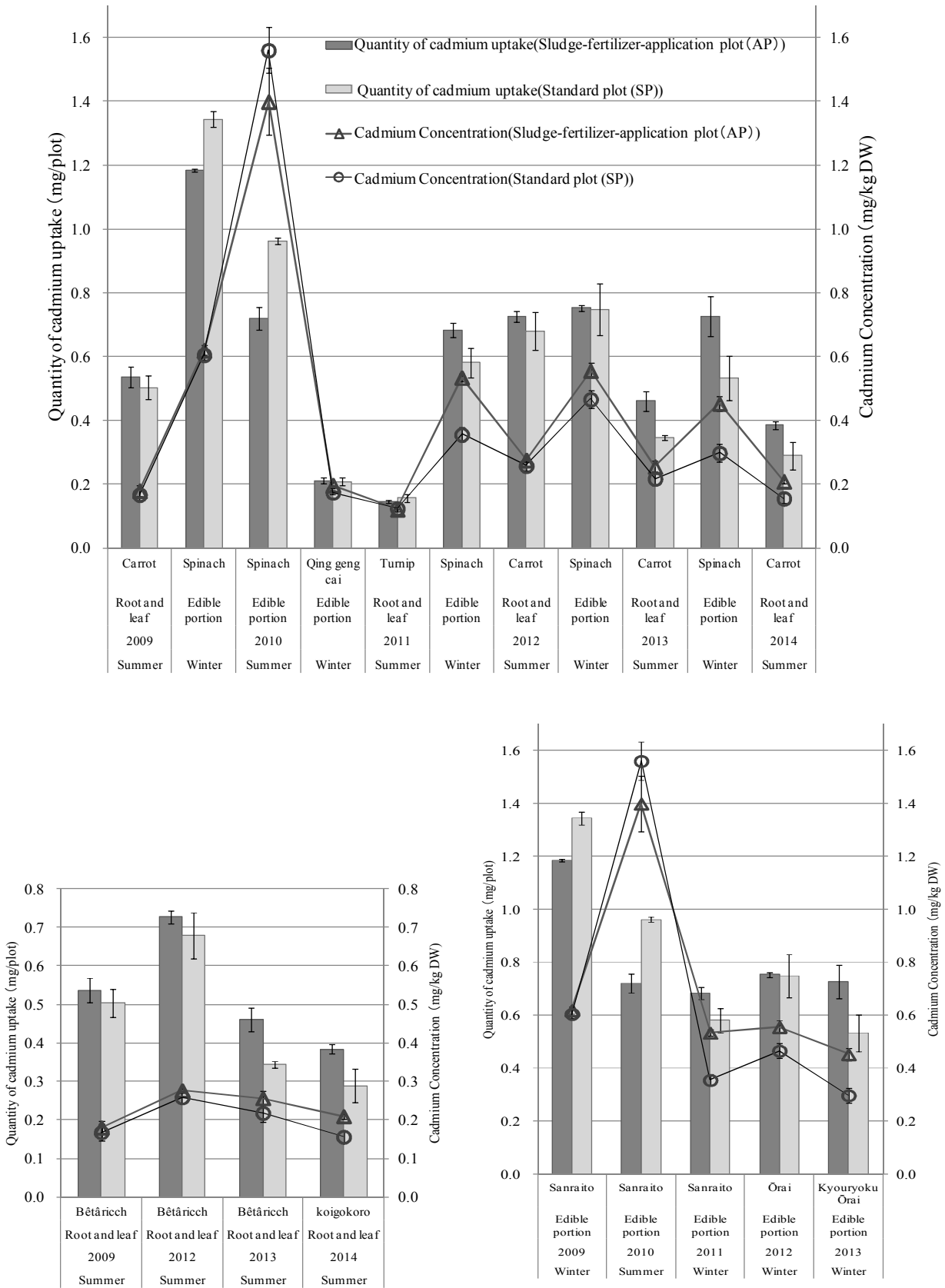


Fig. 11 Absorption and the amount of cadmium concentration of each crops in 2009~2014 (The upper graph shows the all crops. The left lower graph shows the carrot. And the right lower graph shows the spinach. These error bars indicate the standard deviation.)

Table 17 Absorption and the amount of cadmium concentration of each crops in 2009~2014

Year	Season	Test Crops	Part	Cadmium Concentration ¹⁾			Quantity of cadmium uptake		
				AP ²⁾ (mg/kg)	SP ³⁾ (mg/kg)	Significance test	AP ²⁾ (mg/plot)	SP ³⁾ (mg/plot)	Significance test
2009	Summer	Carrot	Root	0.12 (0.01) ⁴⁾	0.11 (0.02)	N.S. ⁵⁾	0.21 (0.02)	0.20 (0.03)	N.S.
			Leaf	0.24 (0.02)	0.22 (0.02)	N.S.	0.32 (0.02)	0.31 (0.01)	N.S.
			Total	-	-	-	0.54 (0.03)	0.50 (0.04)	N.S.
2009	Winter	Spinach	Edible portion	0.62 (0.01)	0.61 (0.02)	N.S.	1.18 (0.004)	1.34 (0.02)	N.S.
2010	Summer	Spinach	Edible portion	1.40 (0.10)	1.56 (0.07)	N.S.	0.72 (0.04)	0.96 (0.01)	N.S.
2010	Winter	Qing geng cai	Edible portion	0.20 (0.01)	0.17 (0.01)	Signifi- cance ⁶⁾	0.21 (0.01)	0.21 (0.01)	N.S.
2011	Summer	Turnip	Root	0.08 (0.01)	0.08 (0.002)	N.S.	0.04 (0.003)	0.04 (0.003)	N.S.
			Leaf	0.16 (0.01)	0.17 (0.01)	N.S.	0.10 (0.01)	0.11 (0.01)	Pending ⁷⁾
			Total	-	-	-	0.15 (0.01)	0.16 (0.01)	Pending
2011	Winter	Spinach	Edible portion	0.53 (0.01)	0.36 (0.02)	Signifi- cance	0.68 (0.02)	0.58 (0.05)	Signifi- cance
2012	Summer	Carrot	Root	0.24 (0.01)	0.23 (0.01)	Pending	0.32 (0.01)	0.30 (0.02)	Pending
			Leaf	0.31 (0.01)	0.29 (0.02)	Pending	0.41 (0.005)	0.38 (0.04)	Pending
			Total	-	-	-	0.73 (0.02)	0.68 (0.06)	Pending
2012	Winter	Spinach	Edible portion	0.56 (0.02)	0.47 (0.03)	Signifi- cance	0.75 (0.01)	0.75 (0.08)	N.S.
2013	Summer	Carrot	Root	0.18 (0.02)	0.15 (0.02)	N.S.	0.22 (0.02)	0.17 (0.004)	Signifi- cance
			Leaf	0.33 (0.02)	0.28 (0.03)	Signifi- cance	0.24 (0.01)	0.18 (0.01)	Pending
			Total	-	-	-	0.46 (0.03)	0.34 (0.01)	Signifi- cance
2013	Winter	Spinach	Edible portion	0.45 (0.02)	0.30 (0.03)	Signifi- cance	0.73 (0.06)	0.53 (0.07)	Signifi- cance
2014	Summer	Carrot	Root	0.17 (0.01)	0.13 (0.01)	Signifi- cance	0.16 (0.01)	0.13 (0.01)	Signifi- cance
			Leaf	0.25 (0.003)	0.18 (0.02)	Pending	0.22 (0.003)	0.16 (0.03)	Pending
			Total	-	-	-	0.38 (0.01)	0.29 (0.04)	Pending
The sum total				-	-	-	6.54 (0.13)	6.35 (0.20)	Signifi- cance

1) Content in the dry matter

2) Sludge-fertilizer-application plot

3) Standard plot

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

5) It is no significantly different for processing examination section (t -test, 5 % of both sides levels of significance, $n = 4 (2 \times 2)$ (repetition \times number of samples))

6) It is 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))

7) 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))

Table 18 The cadmium concentration of carrot and spinach in 2009~2014

Test Crops	Variety	Year	Season	Cultivation Days	Part	Cadmium Concentration ¹⁾				CODEX Cadmium Standard ⁵⁾	
						AP ²⁾		SP ³⁾			
						Dry ⁴⁾	Fresh ⁵⁾	Dry ⁴⁾	Fresh ⁵⁾		
						(mg/kg)	(mg/kg)	(mg/kg)	(mg/kg)	(mg/kg)	
Carrot		2009	Summer	90	Root	0.12	0.01	0.11	0.01	0.1	
					Leaf	0.24	0.03	0.22	0.03		0.2
	Bêtâricch	2012	Summer	105	Root	0.24	0.03	0.23	0.02	0.1	
					Leaf	0.31	0.04	0.29	0.04		0.2
		2013	Summer	97	Root	0.18	0.02	0.15	0.02	0.1	
					Leaf	0.33	0.04	0.28	0.04		0.2
	koigokoro	2014	Summer	92	Root	0.17	0.02	0.13	0.01	0.1	
					Leaf	0.25	0.04	0.18	0.03		0.2
	Spinach	Sanraito	2009	Winter	156	Edible portion	0.62	0.09	0.61	0.07	0.2
			2010	Summer	38	Edible portion	1.40	0.16	1.56	0.17	
2011		Winter	99	Edible portion	0.53	0.08	0.36	0.05			
Ōrai		2012	Winter	131	Edible portion	0.56	0.07	0.47	0.06		
Kyouryoku Ōrai		2013	Winter	126	Edible portion	0.45	0.04	0.30	0.03		

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

2) Sludge-fertilizer-application plot

3) Standard plot

4) Content in the dry matter

5) Content in the fresh matter

(7) カドミウム負荷量, 持出し量及び蓄積量

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は Table 19 のとおりである. 施用肥料のカドミウム含有量に施用量を乗じて, 土壌へのカドミウム負荷量とした. 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. 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をカドミウム蓄積量とした. 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, 土壌へのカドミウム蓄積濃度とした. 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た算出した.

カドミウム持出し量については, これまで実施した 11 作の試験の合計は, 汚泥肥料施用区で 6.54 mg/試験区, 標準区で 6.35 mg/試験区と同程度であり, 有意差は認められなかった ($p > 0.05$) (有意差検定結果は, Table 17 カドミウム吸収量の総計を参照).

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方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 Cd 濃度の増加傾向が認められている(上記(4.4)). 過去 11 作の試験における汚泥肥料施用区のカドミウム負荷量は 62 mg/試験区 (155 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 0.092

mg/kg となった (Table 19).

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 Table 20 及び Fig.12 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 19 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、汚泥肥料施用区は実測値と理論値が上昇傾向であることは同じであるが、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、上記(4.5)において下層への移行はほとんどないと考えられることから、耕耘等による水平移動により作土に留まらないカドミウムがあるためと考えられる²⁶⁾。

Table 19 Changes of the 2009~2014 year 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 ¹⁾			Concentration of cadmium accumulation ⁵⁾	Quantity of cadmium ¹⁾			Concentration of cadmium accumulation ⁵⁾
			Load ²⁾	Removal ³⁾	Accumulation ⁴⁾		Load ²⁾	Removal ³⁾	Accumulation ⁴⁾	
(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	0.000
2011	Summer	Turnip	3.30	0.15	3.15	0.005	0	0.16	-0.16	0.000
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
Total			61.92	6.54	55.38	0.092	0.00	6.35	-6.35	-0.011

1) It show every test plot 4 m²

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

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

4) Quantity of cadmium accumulation to the soil = 2) - 3)

5) Concentration of cadmium accumulation to the soil = 4) / Amount of test plot soil (600 kg)

Table 20 Changes in the actual total-Cd concentration and the theoretical total-Cd concentration¹⁾ of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	Actual measurement ¹⁾		Theoretical value ¹⁾	
			AP ²⁾ (mg/kg)	SP ³⁾ (mg/kg)	AP ²⁾⁴⁾ (mg/kg)	SP ³⁾⁵⁾ (mg/kg)
2009	Summer	Carrot	0.51 (0.02) ⁵⁾	0.48 (0.03)	0.51	0.48
2010	Summer	Spinach	0.52 (0.01)	0.49 (0.03)	0.52	0.47
2011	Summer	Turnip	0.51 (0.02)	0.48 (0.02)	0.53	0.47
2012	Summer	Carrot	0.52 (0.02)	0.46 (0.03)	0.55	0.47
2013	Summer	Carrot	0.53 (0.01)	0.46 (0.03)	0.58	0.47
2014	Summer	Carrot	0.57 (0.03)	0.47 (0.03)	0.60	0.47

1) Total-Cd concentration in the drying soil

2) Sludge-fertilizer-application plot

3) Standard plot

4) 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

5) 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

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

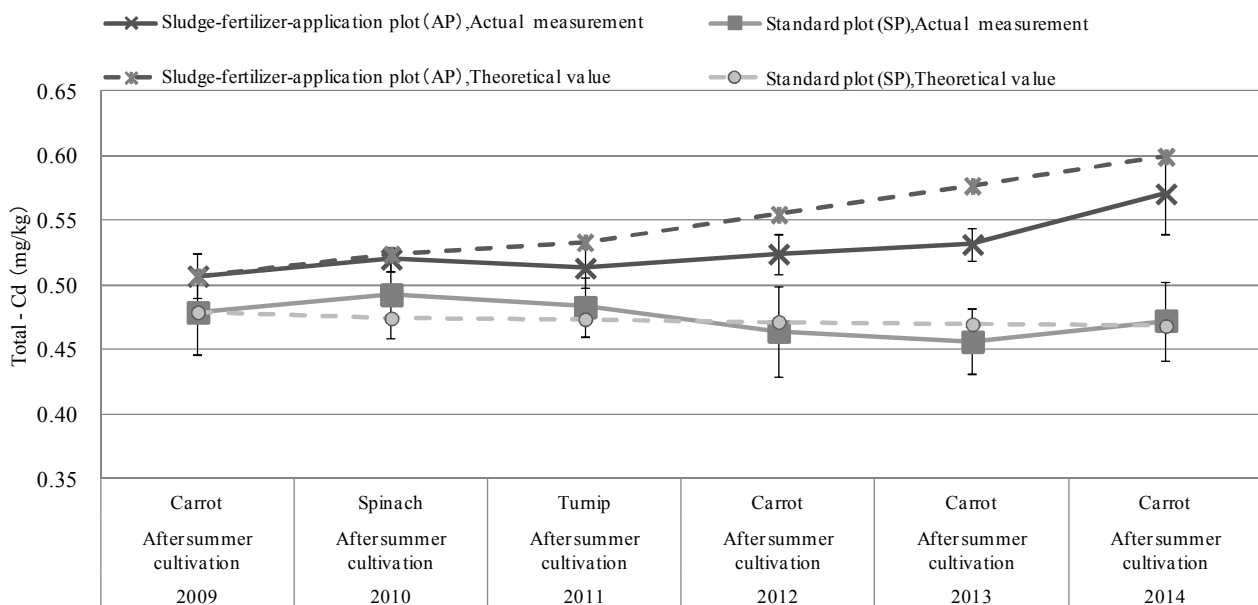


Fig. 12 Changes in the actual total-Cd concentration and the theoretical total-Cd concentration of soil after harvest

汚泥肥料施用区のカドミウム負荷量及び蓄積量と土壤中 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度の推移を Fig.13 に示した。土壤中 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度は試験開始時の 2009 年夏作から 2014 年夏作まで、ほぼ一定で推移しており、汚泥肥料の連用施用による有意な上昇又は下降傾向は認められなかった ($p > 0.05$)。しかし、カドミウム負荷量が 1 作当たり 5 mg/試験区 (12 g/ha) 以下であった 2009 年夏作から 2011 年夏作まで (Table 13) の推移を線形回帰分析したところ、回帰が有意となり ($p < 0.05$)、下降傾向が認められた (Fig.7)。2011 年冬作以降にカドミウム負荷量を 1 作当たり 7 mg/試験区 (18 g/ha) 以上とした後は、線形回帰分析 (両側有意水準 5%) では有意では

なく、下降傾向は認められなくなり ($p > 0.05$) 一定で推移していた。今後、データ数を増やして推移を確認する必要があると考えられる。

本試験以外で高分子凝集剤を使用した汚泥肥料を用い5年(5作)以上の黒ボク土圃場での連用試験を実施し、土壌の pH を 6.0~7.0 に維持した状態で作物を正常に生育させ、土壌中 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度の推移を確認した報告は見当たらない。類似の試験として黒ボク土に比べて腐植の少ない褐色森林土の圃場において水産系廃棄物由来堆肥を用い5年間5作の連用試験を実施した結果(カドミウム総負荷量は 91.1 g/ha, 跡地土壌の pH は 6.0~6.7 の間で推移しており、本試験に近い条件となっている)、跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度は 0.15 mg/kg から 0.17 mg/kg にわずかに増加したことが報告されている³³⁾。

また、他機関の汚泥肥料の連用施用試験において、5年又は10作程度の連用により汚泥肥料施用区の作物体カドミウム濃度が対照区に対して有意に高い傾向を示した報告は確認できない。本試験で有意差が確認されている要因として、供試汚泥肥料のカドミウム濃度が含有許容量付近と高いものを使用し、対照とした標準区は施肥由来カドミウムがないように試薬を施肥しているため差を見やすい設計であること、1試験区 4 m² と通常より小さい面積であるため均一な施肥・栽培管理が可能であること、耕耘作業には手押しの耕耘機を使用し更にガードプランツ区を設けていることから試験区外の土壌との交叉汚染が少ないこと、作物体のサンプリングを試験区の中央 1 m² 分全てを粉碎混合し分析用試料とし2点併行で分析しているためサンプリングによるばらつきが比較的小さいこと等、試験設計が要因となっている可能性も考えられる。

以上のことから、本試験で用いた土壌、し尿汚泥肥料及び作物等における連用施用においては、1作当たり 7 mg/試験区(年間 14 mg/試験区(36 g/ha))よりカドミウム負荷量を多くした場合は、跡地土壌の全 Cd の増加傾向が認められており、今後、跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度が増加傾向となる可能性もあるため、推移を確認する必要があると考えられる。一方、肥料由来のカドミウム負荷がない標準区及び汚泥肥料由来のカドミウム負荷量が1作当たり 5 mg/試験区以下の場合に、土壌中 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度が減少傾向 ($p < 0.05$) となる理由としては、作物収穫による持出しの他、土壌中に負荷されたカドミウムは水平移動により作土に留まらないものがあること^{34~35)} や、土壌や汚泥肥料中の有機物等と結合すること²²⁾ により 0.1 mol/L 塩酸には不溶な形態として作土中に蓄積していることが考えられる。

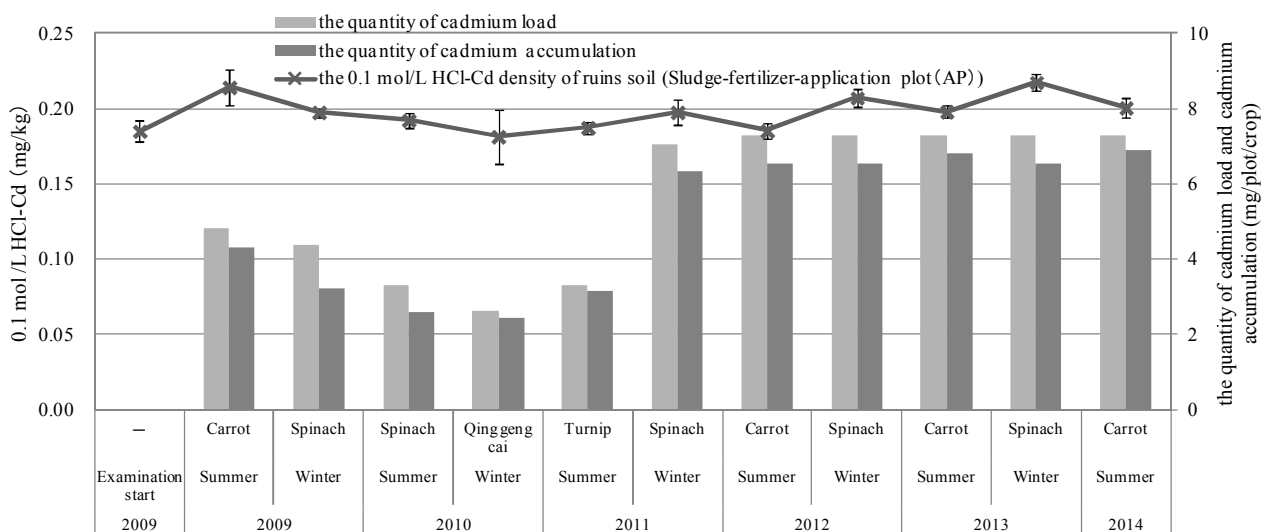


Fig. 13 Changes of the 2009~2014 year of the quantity of cadmium load by fertilizer, quantity of cadmium accumulation to the soil, and the 0.1 mol/L HCl-Cd concentration of soil after harvest in sludge fertilizer application plot (AP)

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年より引き続き行っており、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、2013年冬作としてハウレンソウを、2014年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へのカドミウム吸収量を確認した。その結果、跡地土壌の全 Cd 濃度、作物体の吸収と相関がある形態とされる跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度及び 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cd 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 ($p < 0.05$)。作物体のカドミウム濃度及び吸収量は2013年冬作ハウレンソウ及び2014年夏作ニンジンにおいて、汚泥肥料施用区が標準区に比べて有意に高かった ($p < 0.05$)。作物体のカドミウム濃度は Codex 基準値の 1/4 以下であった。

試験開始時の2009年夏作から5年半11作の跡地土壌の Cd 濃度及び作物体 Cd 濃度、吸収量の推移について整理した。跡地土壌の全 Cd 濃度は、汚泥肥料施用区で上昇傾向が認められ、標準区では一定で推移していることから、汚泥肥料の施用によりカドミウムが土壌蓄積していると考えられる。一方で、跡地土壌の Cd 濃度は汚泥肥料施用区と標準区で差がない状態が続いていたが、2011年冬作又は2012年夏作以降は、汚泥肥料施用区が標準区に比べて有意に高かった ($p < 0.05$)。ハウレンソウの Cd 濃度についても、2011年冬作以降は汚泥肥料施用区が有意に高くなっており、土壌 Cd 濃度と同様の傾向となっている。跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 及び 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cd 濃度の推移は、標準区では有意な下降傾向が認められた ($p < 0.05$) が汚泥肥料施用区はほぼ一定で推移しており ($p > 0.05$)、汚泥肥料の連用施用による有意な上昇又は下降傾向は認められなかった。しかし、汚泥肥料施用区のカドミウム負荷量が1作当たり 5 mg/試験区以下であった2011年夏作までは跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度の有意な下降傾向が認められていた ($p < 0.05$) が、カドミウム負荷量を1作当たり 7 mg/試験区 (18 g/ha) 程度とした2011年冬作以降は、下降傾向が認められなくなっていることから、データ数を増やし今後の推移を確認する必要があると考えられる。また、汚泥肥料中の濃度が比較的高く、カドミウムの同族元素である亜鉛については、汚泥肥料施用区において2011年冬作以降、跡地土壌の 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Zn の上昇傾向が認められた ($p < 0.05$)。

連用試験開始から5年半11作目である2014年夏作ニンジンの跡地土壌について、土壌中カドミウムの垂直分布を調査するため、作土層(表層から 0 cm -15 cm)及びその下層(15 cm -25 cm)の全 Cd 濃度を分析した結果、カドミウムの下層への移行は認められなかった。

汚泥肥料のカドミウム含有許容値付近(乾物濃度 4.9 mg/kg, 現物濃度 3.6 mg/kg)のし尿汚泥肥料を、2009年夏作~2011年冬作までの6作は1作当たりの施用量 181 kg/10 a (現物)~483 kg/10 a(現物)を施用、2012年夏作~2014年夏作までの5作は 500 kg/10a(現物)を施用し、年2作の試験を5年半、11作行った。これまでのところ、汚泥肥料を施用していない標準区の結果との比較から、汚泥肥料由来のカドミウムは作土中に蓄積し、作物に吸収されていると考えられるが、作物吸収と相関があるとされる土壌中の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度及び 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cd 濃度はほぼ一定で推移しており、作物体中のカドミウム濃度についても Codex 基準値に比べて低い濃度で推移している。本試験条件においてカドミウム負荷量年間 6 mg/4 m²~10 mg/4 m² (15 g/ha~26 g/ha)での3年半及びカドミウム負荷量年間約 15 mg/4 m² (36 g/ha)での3年間の汚泥肥料連用施用であれば、カドミウムの作物体への吸収量が増大する可能性は低いと考えられる。しかし、更に長期に連用を継続した場合や、汚泥肥料施用量を増加させた場合又は黒ボク土と比較して有機物含有量の少ない土壌の場合における汚泥肥料由来のカドミウムの土壌中への蓄積及び作物体の吸収については知見を集積する必要があると考えられる。

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 27 年 1 月 9 日, 農林省告示第 52 号 (2015)
- 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) 廣井利明, 惠智正宏, 山西正将, 阿部文浩: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, **6**, 43~60, (2013)
- 4) 廣井利明, 五十嵐総一, 惠智正宏, 橋本良美, 阿部文浩: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, **7**, 43~66, (2014)
- 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 (2015)
< http://www.famic.go.jp/ffis/fert/obj/shikenho_2015.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/page/sehikijun.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/sehikijun.html> >
- 10) 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> >
- 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) 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
- 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) 日本土壌肥料学会監修:土壌環境分析法, p.215~219, 博友社, 東京(1997)
- 17) 戸上和樹, 吉住佳与, 工藤一晃, 青木和彦, 三浦憲蔵:Bland-Altman 分析による土壌 pH を考慮した野菜可食部カドミウム濃度予測のための土壌抽出法の検証, 日本土壌肥料学雑誌, **83** (5), 564~573, (2012)
- 18) 農林水産技術会議事務局:農林水産省委託プロジェクト生産・流通・加工工程における体系的な危害要因の特性解明とリスク低減技術の開発, 技術情報集, 47, (2013)
- 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, p.106, 博友社, 東京 (1991)
- 20) 農林水産省, 独立行政法人農業環境技術研究所:ダイズのカドミウム吸収抑制のための技術確立マニユ

アル, 平成 19 年 4 月, p.4, (1991)

- 21) 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, p.119, 博友社, 東京(1991)
- 22) 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, p.49, (2011)
- 23) 海老原武久, 山田要, 松村尉:汚泥の農用地への利用に関する研究 第Ⅱ報 汚泥連用が土壌・作物に及ぼす影響, 群馬県農業試験場報告, **22**, 49~58, (1982)
- 24) 農林水産技術会議事務局:有機性汚泥の環境保全的評価及び農林業への利用に関する研究, 研究成果, 231, (1989)
- 25) 伊藤淳次, 田村明長, 山根忠昭:し尿処理汚泥の連用が作物および土壌に及ぼす影響, 島根農試報告, **25**, 83~100, (1991)
- 26) 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)
- 27) 砂川 匡, 袖垣一也, 安田雅晴, 沢野定憲:ハウレンソウのカドミウム吸収特性の解明と含量予測技術の開発, 岐阜県農業技術センター研究報告, **8**, 26~33, (2008)
- 28) 八槇 敦:各種抽出法による土壌のカドミウム含量と野菜のカドミウム吸収との関係, 日本土壌肥料学会講演要旨集, **55**, 283, (2009)
- 29) 伊藤純雄, 菊地直, 加藤直人:ニンジンおよびレタス類の品種別カドミウム濃度の相対的序列推定, 中央農研研究報告, **18**, 15~35, (2013)
- 30) 佐野健人・松本栄一・中村憲治:ハウレンソウのカドミウム吸収能に関する品種間差異のほ場における検証 (2), 農用地土壌のカドミウムによる農作物汚染リスク予測技術の開発に関する研究成果集(H17.12), 84~87, (2005)
- 31) 伊藤純雄, 菊地 直, 加藤直人:ハウレンソウ類のカドミウム吸収に関わる品種間差の生育条件による変動とそれに基づく吸収程度の相対的序列の推定, 中央農研研究報告, **14**, 1~15, (2010)
- 32) 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/ >
- 33) 農林水産技術会議事務局:農林水産生態系における有害化学物質の総合管理技術の開発, 研究成果, 471, 210~216, (2009)
- 34) 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)
- 35) 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)

Effect of Continuous Application of Sludge Fertilizer on Cadmium Absorption of the Crop and Accumulation of Cadmium in the Soil (Continued Report)

- Winter 2013 and Summer 2014 -

Toshiaki HIROI¹, Souichi IGARASHI², Tokiya SUZUKI³, Yoshimi HASHIMOTO³, Yudai TANAKA³,
Fumihiro ABE³ and Shinichi KASHIMA²

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

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

³ Food and Agricultural Materials Inspection Center, Fertilizer and Feed Inspection Department

This research is monitoring the change of the cadmium which was dissolved with 0.1 mol/L hydrochloric acid (acid-solubility-Cd) and pH 7.0, 1 mol/L ammonium acetate solution (exchangeable-Cd) from the soil. We are investigating the cadmium absorption by the crop since 2009. The test field is the upland fields derived from Andosol. And the used fertilizer is sludge fertilizer and chemical reagent. We cultivated the spinach in winter 2013 and carrot in summer 2014. Those crops were cultivated in the standard plot (SP) and the sludge-fertilizer-application plot (AP). The SP used only reagents. The AP used the sludge fertilizer of 500 kg/10a (fresh weight). Other ingredients used reagents. The amount of nitrogen, phosphorus and potassium applied to each plot was designed on the basis of fertilization standard showed by Saitama prefecture web site. Total cadmium concentration of the crop, acid-solubility-Cd and exchangeable-Cd of soil after harvest were measured by the inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). As a result, the soil in the AP after harvest was indicated a significant high acid-solubility-Cd and exchangeable-Cd concentration compared with the soil in the SP after the winter 2011. Total-Cd concentration of soil from summer 2009 to summer 2014 showed significant increasing trend in the AP. Although acid-solubility-Cd and exchangeable-Cd concentration of soil from summer 2009 to summer 2014 showed significant decreasing trend in the SP, those Cd concentration of soil did not show significant fluctuations in the AP by the continuous application of sludge fertilizer. The cadmium concentration of crops harvested from summer 2009 to summer 2014 in the SP and AP was less than the CODEX standard. It is considered that it is necessary to check future transition.

Key words sludge fertilizer, continuous application, cadmium

(Research Report of Fertilizer, **8**, 79~113, 2015)