

8 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)

— 2014年冬作・2015年夏作 —

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

キーワード 汚泥肥料, 連用試験, カドミウム

1. はじめに

肥料の公定規格¹⁾では汚泥肥料中の含有を許されるカドミウムの最大量(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2014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、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⁾、7号⁴⁾及び8号⁵⁾で報告した。2014年冬作及び2015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) 2014年冬作の連用試験(2014年11月7日～2015年3月12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(電気伝導率)、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)をTable 1に示した。

(2) 供試肥料等

施用する汚泥肥料に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

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

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)福岡センター

触ばっ気を組合せた方式により排水処理して発生した汚泥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、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℃, 28日間培養)であり、窒素全量及び無機化率は一般的なし尿汚泥肥料の中では低めであるため、長期連用や大量施用した場合も作物への生理障害等は発現しにくく、カドミウム負荷量を高く保ちつつ長期連用試験が可能な肥料と考えられる。

補正肥料として特級試薬の尿素、りん酸一アンモニウム及び塩化カリウムを使用した。汚泥肥料及び補正肥料の各成分の分析は肥料等試験法⁶⁾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(pH7.0)可溶カドミウム(以下、「1 mol/L 酢安(pH7.0)-Cd」という)濃度は、汚泥肥料1 gを1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液(pH7.0)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 2014 crop

	Unit	Year	AP ^{a)} -1	AP ^{a)} -2	SP ^{b)} -1	SP ^{b)} -2
pH (H ₂ O) ^{e)}		2009 ^{g)}	6.1	6.1	6.2	6.2
		2014 ^{h)}	6.9	6.8	6.8	6.8
EC ^{d)}	mS/m	2009	10.0	10.3	14.0	11.6
		2014	16.9	17.7	15.4	16.9
Phosphate absorption coefficient ^{e)}	mg/100 g	2009	5.8	6.1	7.7	6.9
		2014	8.4	7.9	11.4	10.8
Total nitrogen ^{e)}	% ^{f)}	2014	0.42	0.42	0.38	0.38
Total carbon ^{e)}	% ^{f)}	2014	5.7	5.8	5.4	5.5
0.1 mol/L HCl-Cd ^{e)}	mg/kg	2009	0.18	0.19	0.18	0.21
		2014	0.20	0.21	0.15	0.15
Kind of soil	Andosol					
Soil texture	Light clay					

a) Sludge-fertilizer-application plot

b) Standard plot

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

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

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

f) Mass fraction

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

h) The year when the study was conducted

Table 2 Properties of sludge fertilizer

Item	Unit	Content	Item	Unit	Content
Total nitrogen	% ^{a)}	3.3	Total copper	mg /kg	546
Total phosphorus ^{b)}	% ^{a)}	5.2	Total Zinc	mg /kg	1760
Total potassium ^{c)}	% ^{a)}	0.4	Carbon to nitrogen ratio	-	7.1
Total calcium ^{d)}	% ^{a)}	2.1	Total cadmium ^{e)}	mg /kg	3.6 ^{f)}
Organic carbon	% ^{a)}	23.6	Acid-solubility-cadmium ^{g)}	mg /kg	3.2
Moisture	% ^{a)}	26.1	Excangeable-cadmium ^{h)}	mg /kg	0.32

a) Mass fraction

b) Content as P₂O₅

c) Content as K₂O

d) Content as CaO

e) Content of cadmium dissolved with aqua regia

f) 4.9 mg /kg in the dry matter

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

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

Table 3 Properties of reagent

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

a) Mass fraction

b) Content as P₂O₅

c) Content as K₂O

(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。施肥量は埼玉県の高レンソウ施肥基準⁷⁾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⁸⁾。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^{9～11)}。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¹²⁾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。

汚泥肥料の窒素肥効率は前作までの標準区との生育量の差から 0 % 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)。りん酸施用については 2012 年夏作以降融成りん肥を使用していたが、汚泥肥料施用区の有効態りん酸の増加率が鈍いため、2014 年夏作ニンジン作付け時

に同区に熔成りん肥を多量(標準区の 10 倍量)に施用したところ、有効態りん酸は増加したが、標準区と比較して汚泥肥料施用区の交換性苦土が大幅に上昇したため、苦土を含む熔成りん肥の施用は中止し、2014年冬作からはりん酸一アンモニウムを施用した。なお、前作の跡地土壌を分析したところ、標準区の有効態りん酸は、11.1 mg/100 g 乾土となり地力増進基本指針¹³⁾における有効態りん酸の改善目標(10 mg/100g 乾土)に達したため、施肥基準のりん酸量を施肥した。汚泥肥料施用区は 8.2 mg/100 g 乾土であったため、有効態りん酸の改善目標に到達するよう施肥基準を上回る量のりん酸施用を行った(Table 4)。

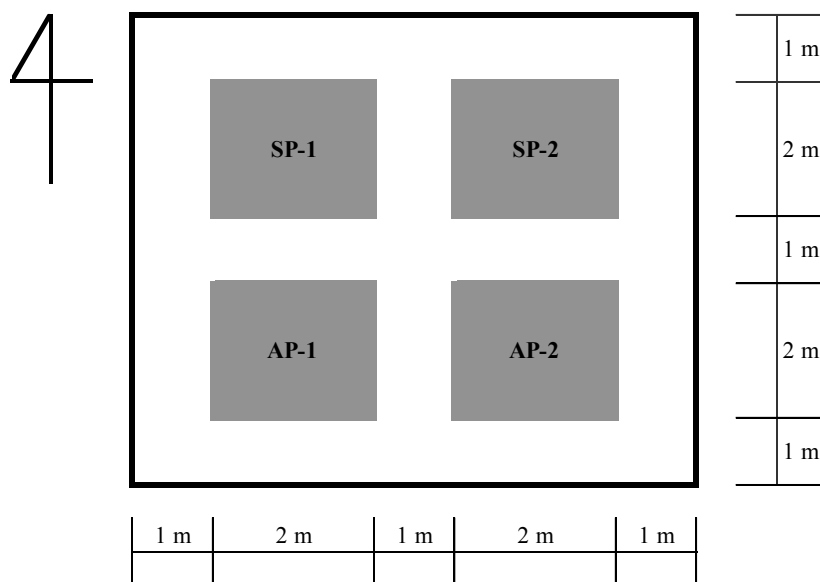


Fig.1 Plot plan of the test field

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

Table 4 The fertilization design of the test plots where spinach was cultivated in winter 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 ^{a)} (g)	K ^{b)} (g)	Cd (mg)		N (kg)	P ^{a)} (kg)	K ^{b)} (kg)	Cd (g)
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>										
Sludge fertilizer	2000	66	104	7	7.3	500	16.6	26.1	1.8	1.8
Urea	99	46	—	—	—	25	11.4	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	285	34	174	—	—	71	8.6	43.5	—	—
Potassium chloride	103	—	—	65	—	26	—	—	16.2	—
Total		146	278	72	7.3		36.6	69.6	18.0	1.8
<Standard plot (SP)>										
Urea	136	63	—	—	—	34	15.7	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	144	17	88	—	—	36	4.3	22.0	—	—
Potassium chloride	114	—	—	72	—	29	—	—	18.0	—
Total		80	88	72	—		20.0	22.0	18.0	—

a) Content as P₂O₅b) Content as K₂O

(4) 栽培方法

供試作物はホウレンソウ(品種名:ニューアンナ R4)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2014年10月30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7日にシーダーテープ種子により行った。

間引きは11月21日及び12月5日に行い、農薬散布はヨ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2015年3月12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器にて65 °Cで1昼夜乾燥した。重量を測定した後、目開き500 µmのふるいを通すまで粉砕機(ZM200:Retsch ローター回転数6000 rpm)で粉砕し分析用試料とした。

カドミウム含有量は、分析試料0.5 gに硝酸5 mL及び過酸化水素水2 mLを加えマイクロ波分解装置(Multiwave 3000:Perkin Elmar)¹⁴⁾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¹⁵⁾により採取した。各試験区の作物体の分析用試料を収穫した場所と同じ試験区中央1 m²の四隅及び中央の計5か所より、採土器(内径50 mm×長さ250 mm)を用いて表層から約15 cmまで採取、混合した。通風乾燥器により35 °Cで一晩乾燥後、目開き2 mmのふるいを通したものと及び更に全量分析用として目開き500 µmのふるいを通すまで粉砕機(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、省令¹⁶⁾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¹⁷⁾、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^{18~19)}交換態カドミウム(1 mol/L 酢安(pH 7.0)-Cd)を選択した。

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) 2015年夏作の連用試験(2015年6月17日~2015年9月30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)¹⁵⁾, 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 2015 crop

	Unit	Year	AP ^{a)} -1	AP ^{a)} -2	SP ^{b)} -1	SP ^{b)} -2
pH (H ₂ O) ^{c)}		2009 ^{g)}	6.1	6.1	6.2	6.2
		2015 ^{h)}	6.1	6.3	6.4	6.5
EC ^{d)}	mS/m	2009	10.0	10.3	14.0	11.6
		2015	11.4	10.8	10.2	10.7
Available phosphate ^{e)}	mg/100 g	2009	5.8	6.1	7.7	6.9
		2015	12.8	10.6	11.4	8.4
Total nitrogen ^{e)}	% ^{f)}	2015	0.40	0.38	0.32	0.35
Total carbon ^{e)}	% ^{f)}	2015	5.3	5.1	4.5	5.0
0.1 mol/L HCl-Cd ^{e)}	mg/kg	2009	0.18	0.19	0.18	0.21
		2015	0.22	0.20	0.15	0.16
Kind of soil	Andosol					
Soil texture	Light clay					

a) Sludge-fertilizer-application plot

b) Standard plot

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

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

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

f) Mass fraction

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

h) The year when the study was conducted

(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。

(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⁷⁾を基に設計した。汚泥肥料の施用量は、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)。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汚泥肥料施用区11.7 mg/100 g 乾土, 標準区9.9 mg/100 g 乾土であり, 地力増進基本指針における有効態りん酸の改善目標(10 mg/100 g 乾土)に比べて高い又は同等な値であった。このため, 施肥基準のりん酸量を施肥した。

Table 6 The fertilization design of the test plots where carrot was cultivated in summer 2015

	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 ^{a)} (g)	K ^{b)} (g)	Cd (mg)		N (kg)	P ^{a)} (kg)	K ^{b)} (kg)	Cd (g)
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>										
Sludge fertilizer	2000	66	104	7	7.3	500	16.6	26.1	1.8	1.8
Urea	93	43	—	—	—	23	10.7	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Potassium chloride	90	—	—	57	—	23	—	—	14.2	—
Total		109	104	64	7.3		27.3	26.1	16.0	1.8
<Standard plot (SP)>										
Urea	120	56	—	—	—	30	13.9	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	170	20	104	—	—	42	5.1	26.1	—	—
Potassium chloride	101	—	—	64	—	25	—	—	16.0	—
Total		76	104	64	—		19.0	26.1	16.0	—

a) Content as P₂O₅

b) 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2015年6月15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17日にシーダーテープ種子を用いて行った。

間引きは7月21日から8月3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2015年9月30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、通風乾燥器により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、通風乾燥器により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 ローター回転数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。

土壌の分析は、2.1) (6)の項目 (0.1 mol/L HCl-Cd を除く)に加えて全カドミウムを分析した。

土壌中の全カドミウムは、分析試料 0.5 g に、硝酸約 10 mL, 過酸化水素水約 3 mL, 及びフッ化水素酸約 5 mL を加え、マイクロ波分解装置 (Multiwave 3000:Perkin Elmar) により分解し試料溶液とした。測定は ICP 質量分析装置 (ICPM-8500 :島津製作所) により行った。

3. 結果

1) 2014 年冬作連用試験(冬作ホウレンソウ:2014 年 11 月 7 日~2015 年 3 月 12 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 4 ヶ月であり、その間に異常な症状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 14.75 kg と 13.55 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 109 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 0.43 mg/kg, 標準区は 0.28 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)²⁰⁾ 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 0.65 mg/試験区, 標準区は 0.42 mg/試験区であり、汚泥肥料施用区が高い傾向にあった。

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

	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Yield index ^{d)}	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>								
Fresh weight	kg	14.75		14.75		14.75	109	-
Dry weight	kg	1.49		1.55		1.52	102	-
Cadmium concentration ^{a)}	mg/kg	0.45	0.44	0.42	0.40	0.43	-	Significance ^{e)}
Cadmium concentration ^{b)}	mg/kg	0.045	0.044	0.044	0.043	0.044	-	-
Quantity of cadmium uptake ^{c)}	mg/plot	0.67	0.65	0.65	0.63	0.65	-	Pending ^{f)}
<Standard plot(SP)>								
Fresh weight	kg	14.00		13.10		13.55	100	-
Dry weight	kg	1.53		1.46		1.49	100	-
Cadmium concentration ^{a)}	mg/kg	0.30	0.32	0.26	0.25	0.28	-	-
Cadmium concentration ^{b)}	mg/kg	0.033	0.034	0.029	0.028	0.031	-	-
Quantity of cadmium uptake ^{c)}	mg/plot	0.46	0.48	0.37	0.37	0.42	-	-

a) Content in the dry matter

b) Content in the fresh matter

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

d) Yield of Standard plot was indexed as 100

e) It was significantly different for processing examination section

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

f) It was pending decision to be significantly different for interaction

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

(2) 跡地土壌のカドミウム濃度

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 0.21 mg/kg, 標準区は 0.15 mg/kg であり, 汚泥肥料施用区が高い傾向にあった. 1 mol/L 酢安 (pH 7.0)-Cd 濃度は, 平均値で汚泥肥料施用区は 0.039 mg/kg, 標準区は 0.026 mg/kg であり, 汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p < 0.05$).

Table 8 Characteristics of cultivated soil in winter 2014

	Unit	Test prot-1		Test prot-2		Average	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>							
0.1 mol /L HCl-Cd ^{a)}	mg/kg	0.22	0.22	0.20	0.20	0.21	Pending ^{e)}
Exchangeable-Cd ^{b)}	mg/kg	0.039	0.038	0.040	0.039	0.039	Significance ^{f)}
pH (H ₂ O) ^{c)}		6.1		6.3			
EC ^{d)}	mS/m	11.4		10.8			
<Standard plot(SP)>							
0.1 mol /L HCl-Cd ^{a)}	mg/kg	0.15	0.15	0.15	0.16	0.15	
Exchangeable-Cd ^{b)}	mg/kg	0.027	0.025	0.028	0.027	0.026	
pH (H ₂ O) ^{c)}		6.4		6.5			
EC ^{d)}	mS/m	10.2		10.7			

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

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

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

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

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

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

2) 2015 年夏作連用試験(夏作ニンジン:2015 年 6 月 17 日～2015 年 9 月 30 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 ヶ月半であり, その間に異常な症状は確認されなかった.

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 7.28 kg と 6.38 kg, 葉部がそれぞれ 8.80 kg と 7.20 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 114, 葉部が 122 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 0.19 mg/kg と 0.15 mg/kg, 葉部がそれぞれ 0.23 mg/kg と 0.19 mg/kg であり, 葉部については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 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 0.14 mg/試験区と 0.10 mg/試験区, 葉部がそれぞれ 0.22 mg/試験区と 0.15 mg/試験区であり, 葉部については汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p < 0.05$). 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 0.36 mg/試験区, 標準区で 0.26 mg/試験区であり, 汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p < 0.05$).

Table 9 Cadmium uptake and yield of carrot in the test

	Part	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Yield index ^{d)}	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>									
Fresh weight	Root	kg	7.25		7.30		7.28	114	-
	Leaf	kg	7.50		10.1		8.80	122	-
	Total	kg	14.75		17.40		16.08	118	-
Dry weight	Root	kg	0.75		0.75		0.75	108	-
	Leaf	kg	0.86		1.06		0.96	117	-
	Total	kg	1.61		1.80		1.71	113	-
Cadmium concentration ^{a)}	Root	mg/kg	0.22	0.22	0.17	0.17	0.19	Pending ^{e)}	
	Leaf	mg/kg	0.26	0.26	0.20	0.20	0.23	Significance ^{f)}	
Cadmium concentration ^{b)}	Root	mg/kg	0.023	0.022	0.017	0.017	0.020	-	
	Leaf	mg/kg	0.030	0.030	0.021	0.021	0.025	-	
Quantity of cadmium uptake ^{c)}	Root	mg/plot	0.16	0.16	0.13	0.13	0.14	Pending	
	Leaf	mg/plot	0.22	0.22	0.22	0.21	0.22	Significance	
	Total	mg/plot	0.39	0.38	0.34	0.34	0.36	Significance	
<Standard plot(SP)>									
Fresh weight	Root	kg	5.90		6.85		6.38		
	Leaf	kg	6.60		7.80		7.20		
	Total	kg	12.50		14.65		13.58		
Dry weight	Root	kg	0.64		0.74		0.69		
	Leaf	kg	0.79		0.85		0.82		
	Total	kg	1.43		1.59		1.51		
Cadmium concentration ^{a)}	Root	mg/kg	0.17	0.17	0.14	0.13	0.15		
	Leaf	mg/kg	0.20	0.21	0.18	0.16	0.19		
Cadmium concentration ^{b)}	Root	mg/kg	0.018	0.018	0.015	0.014	0.016		
	Leaf	mg/kg	0.023	0.025	0.019	0.017	0.021		
Quantity of cadmium uptake ^{c)}	Root	mg/plot	0.11	0.11	0.10	0.10	0.10		
	Leaf	mg/plot	0.15	0.16	0.15	0.14	0.15		
	Total	mg/plot	0.26	0.27	0.25	0.24	0.26		

a) Content in the dry matter

b) Content in the fresh matter

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

d) Yield of Standard plot was indexed as 100

e) It was pending decision to be significantly different for interaction

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

f) It was significantly different for processing examination section

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

(2) 跡地土壤のカドミウム濃度

跡地土壤の全 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. 全 Cd 濃度は,

汚泥肥料施用区は 0.57 mg/kg, 標準区は 0.46 mg/kg で, 汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p < 0.05$). 1 mol/L 酢安 (pH 7.0) -Cd 濃度は, 汚泥肥料施用区は 0.034 mg/kg, 標準区は 0.024 mg/kg で, 汚泥肥料施用区が有意に高かった ($p < 0.05$).

Table 10 Characteristics of cultivated soil in summer 2015

	Unit	Test prot-1		Test prot-2		Average	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>							
Total-Cd ^{a)}	mg/kg	0.55	0.56	0.57	0.58	0.57	Significance ^{e)}
Exchangeable-Cd ^{b)}	mg/kg	0.034	0.032	0.037	0.033	0.034	Significance
pH (H ₂ O) ^{c)}		6.8		6.9			
EC ^{d)}	mS/m	11.9		10.8			
<Standard plot(SP)>							
Total-Cd ^{a)}	mg/kg	0.45	0.45	0.47	0.47	0.46	
Exchangeable-Cd ^{b)}	mg/kg	0.024	0.023	0.025	0.024	0.024	
pH (H ₂ O) ^{c)}		6.9		6.8			
EC ^{d)}	mS/m	9.6		10.4			

a) Content in the dry matter

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

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

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

e) It was significantly different for processing examination section

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

4. 考 察

1) 2009 年連用試験開始時からの推移からみる 2014 年冬作及び 2015 年夏作の成績について

2009 年の試験開始時から, これまで 7 年間, 年 2 作, 計 13 作の試験を行った. 各試験結果等の推移から考えられる 2014 年冬作及び 2015 年夏作の傾向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. 試験開始当初, 汚泥肥料施用区の施肥設計においては, 汚泥肥料の連用による残効²¹⁾を考慮して, 窒素肥効率を 100 % として計算していたが, 汚泥肥料施用区の収量が標準区に比べて低い傾向にあることから, 供試肥料であるし尿汚泥肥料の窒素無機化率について 2012 年に改めて無機化試験(恒温槽 30 °C で 240 日間培養)を実施したところ, 培養期間 90 日までに無機化率 30 % となり, その後ほぼ一定で推移したことから, 2012 年冬作以降, 汚泥肥料の窒素肥効率を 30 % として施肥した. その後, 試験区間での収量差及び気温による無機化率の違いを考慮し汚泥肥料の窒素肥効率を調整して施肥を行ってきた. 2014 年冬作ホウレンソウ試験においては, 汚泥肥料の窒素肥効率を 0 %. 2015 年夏作ニンジンにおいては, 汚泥肥料の窒素肥効率を 50 % として施肥を行った.

Table 11 The fertilizer application log of the test plots

Year	Season	Fertilizer	<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>				<Standard plot(SP)>					
			Amount of application per 10 a (kg)	The applied components per 10 a				Amount of application per 10 a (kg)	The applied components per 10 a			
Test crops			N (kg)	P ^{a)} (kg)	K ^{b)} (kg)	Cd (g)	N (kg)	P ^{a)} (kg)	K ^{b)} (kg)	Cd (g)		
2009	Summer	Sludge fertilizer	332	11	17	1	1.2	—	—	—	—	
		Ammonium sulfate	52	11	—	—	—	104	22	—	—	
		Potassium dihydrogen phosphate	3	—	2	1	—	36	—	19	12	
	Carrot	Potassium chloride	28	—	—	18	—	12	—	—	8	
		Total		22	19	20	1.2		22	19	20	0
2009	Winter	Sludge fertilizer	302	10	16	1	1.1	—	—	—	—	
		Ammonium sulfate	47	10	—	—	—	95	20	—	—	
		Potassium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	30	—	16	10	
	Spinach	Potassium chloride	27	—	—	17	—	12	—	—	8	
		Total		20	16	18	1.1		20	16	18	0
2010	Summer	Sludge fertilizer	227	8	12	1	0.8	—	—	—	—	
		Ammonium sulfate	36	8	—	—	—	71	15	—	—	
		Potassium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	23	—	12	8	
	Spinach	Potassium chloride	15	—	—	9	—	3	—	—	2	
		Total		15	12	10	0.8		15	12	10	0
2010	Winter	Sludge fertilizer	181	6	9	1	0.7	—	—	—	—	
		Ammonium sulfate	28	6	—	—	—	57	12	—	—	
		Potassium dihydrogen phosphate	5	—	3	2	—	23	—	12	8	
	Qing geng cai	Potassium chloride	15	—	—	10	—	6	—	—	4	
		Total		12	12	12	0.7		12	12	12	0
2011	Summer	Sludge fertilizer	227	8	12	1	0.8	—	—	—	—	
		Ammonium sulfate	33	7	—	—	—	57	12	—	—	
		Potassium dihydrogen phosphate	6	1	3	—	—	24	3	15	—	
	Turnip	Potassium chloride	22	—	—	14	—	24	—	—	15	
		Magnesia lime ^{c)}	—	—	—	—	—	35	—	—	—	
		Total		15	15	15	0.8		15	15	15	0
2011	Winter	Sludge fertilizer	483	16	25	2	1.8	—	—	—	—	
		Urea	22	10	—	—	—	43	20	—	—	
		Potassium dihydrogen phosphate	1	—	1	1	—	50	—	26	17	
	Spinach	Potassium chloride	25	—	—	16	—	1	—	—	1	
		Slaked lime ^{c)}	176	—	—	—	—	216	—	—	—	
		Total		26	26	18	1.8		20	26	18	0
2012	Summer	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
		Ammonium sulfate	65	14	—	—	—	80	17	—	—	
		Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
	Carrot	Potassium chloride	29	—	—	18	—	32	—	—	20	
		Fused magnesium phosphate	50	—	10	—	—	50	—	10	—	
		Total		30	36	20	1.8		22	36	20	0

a) Content as P₂O₅b) Content as K₂O

c) It was used for pH adjustment

d) 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)

Table 11 Continue

Year	Season	Fertilizer	<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>				<Standard plot(SP)>					
			Amount of application per 10 a (kg)	The applied components per 10 a				Amount of application per 10 a (kg)	The applied components per 10 a			
Test crops			N (kg)	P ^{a)} (kg)	K ^{b)} (kg)	Cd (g)	N (kg)	P ^{a)} (kg)	K ^{b)} (kg)	Cd (g)		
2012	Winter	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
		Ammonium sulfate	71	15	—	—	—	71	15	—	—	
		Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
	Spinach	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	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
		Ammonium sulfate	81	17	—	—	—	80	17	—	—	
		Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
	Carrot	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	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
		Ammonium sulfate	87	18	—	—	—	71	15	—	—	
		Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
	Spinach	Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18	
		Fused magnesium phosphate	250	—	25	—	—	250	—	25	—	
		Slaked lime ^{c)}	196	—	—	—	—	218 ^{d)}	—	—	—	
		Total		35	51	18	1.8		20	51	18	0
2014	Summer	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
		Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—	
		Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
	Carrot	Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16	
		Fused magnesium phosphate	291	—	58	—	—	33	—	7	—	
		Slaked lime ^{c)}	—	—	—	—	—	196	—	—	—	
		Total		27	84	16	1.8		19	33	16	0
2014	Winter	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
		Urea	25	11	—	—	—	34	16	—	—	
		Ammonium dihydrogen phosphate	71	9	43	—	—	36	4	22	—	
	Spinach	Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18	
		Total		37	70	18	1.8		20	22	18	0
2015	Summer	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
		Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—	
		Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
	Carrot	Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16	
		Slaked lime ^{c)}	196	—	—	—	—	—	—	—	—	
		Total		27	26	16	1.8		19	26	16	0

(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。

これまでの収量は、ホウレンソウに関して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。

ニンジンに関しては 2012 年夏作より自治体施肥基準に記載されている目標収量を下回っている。これは、通

常, ニンジン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⁷⁾が, 本試験では試験設計上, 緩効性肥料の使用及び追肥が行えないことが一因と考えられる. また, 2015 年夏作では, ニンジン根部の収量としては試験開始以降最も低くなった. これは, 8 月中旬以降の長雨と日照不足が大きく影響し根部の肥大が悪かったこと及びりん酸の施用量が例年に比べて少なかったことが原因と考えられた. また, 標準区に比べて汚泥肥料施用区の収量が多かったのは, 2014 年冬作ホウレンソウで汚泥肥料の窒素肥効率を 0%としており, 前作の残効により差が生じた可能性が考えられる.

Table 12 The yield of each crop body of 2009 to 2015 (fresh weight)

Year	Season	Test Crops	Part	AP ^{a)}	SP ^{b)}	Aim yield ^{c)} (kg/plot)	Fresh weight index of AP ^{d)}
				Fresh weight (kg/plot)	Fresh weight (kg/plot)		
2009	Summer	Carrot	Root	18.0 (0.1) ^{e)}	17.9 (1.0)	14	101
			Leaf	10.5 (0.4)	9.6 (0.9)	–	109
			Total	28.5 (0.4)	27.6 (1.8)	–	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)	16	95
			Leaf	8.7 (1.0)	10.0 (1.3)	–	88
			Total	17.6 (1.5)	19.3 (2.2)	–	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)	14	101
			Leaf	10.0 (0.6)	9.7 (0.8)	–	103
			Total	22.3 (0.1)	21.8 (0.5)	–	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)	14	118
			Leaf	5.4 (0.3)	4.6 (0.6)	–	119
			Total	17.6 (1.2)	14.9 (2.0)	–	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)	14	100
			Leaf	6.1 (0.6)	6.2 (0.8)	–	98
			Total	15.0 (0.9)	15.1 (1.0)	–	99
2014	Winter	Spinach	Edible portion	14.8 (0.0)	13.6 (0.6)	8	109
2015	Summer	Carrot	Root	7.3 (0.0)	6.4 (0.7)	14	114
			Leaf	8.8 (1.8)	7.3 (0.9)	–	121
			Total	16.1 (1.9)	13.6 (1.6)	–	118

a) Sludge-fertilizer-application plot

b) Standard plot

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

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

e) Standard deviation ($n = 2$ (2 repetition))

(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 6.0～6.9 の範囲内で試験区間差も小さく推移している。本試験では pH 6.0 を下回らず、且つ試験区間で差が出ないよう、適宜、石灰資材による pH の補正を行っている。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。

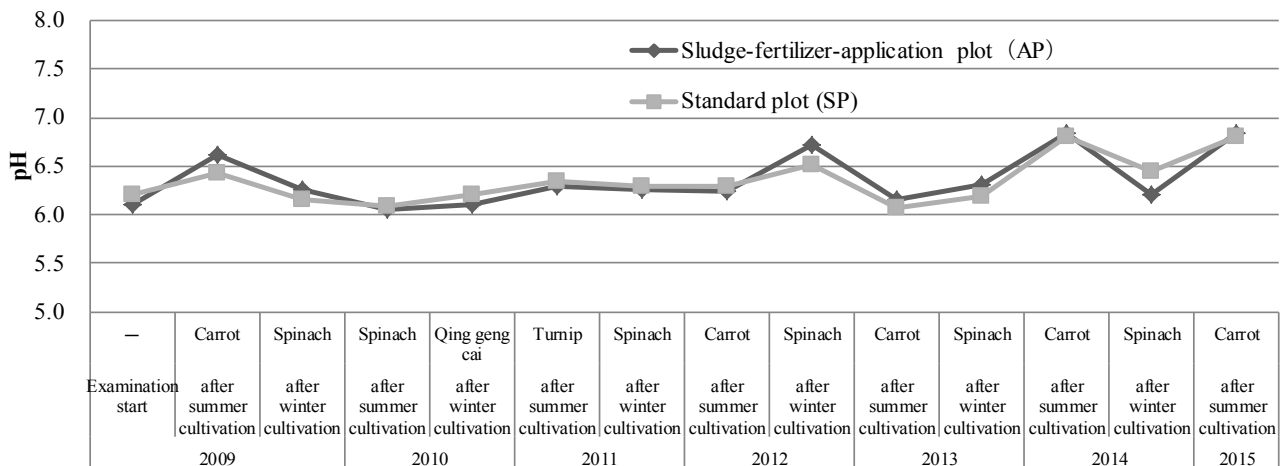


Fig.2 Changes in the pH of soil after harvest

(3.2) 跡地土壌の EC (電気伝導率)

跡地土壌 EC の推移は Fig.3 のとおりである。試験開始以降、2013 年冬作跡地までは年々上昇傾向となっていたが、2014 年夏作跡地以降は下降傾向が見られた。これは、EC 上昇防止及び肥効の緩効化をはかるため、2014 年夏作から窒素肥料をそれまで使用していた硫酸アンモニウムから尿素に変更したためと考えられる。

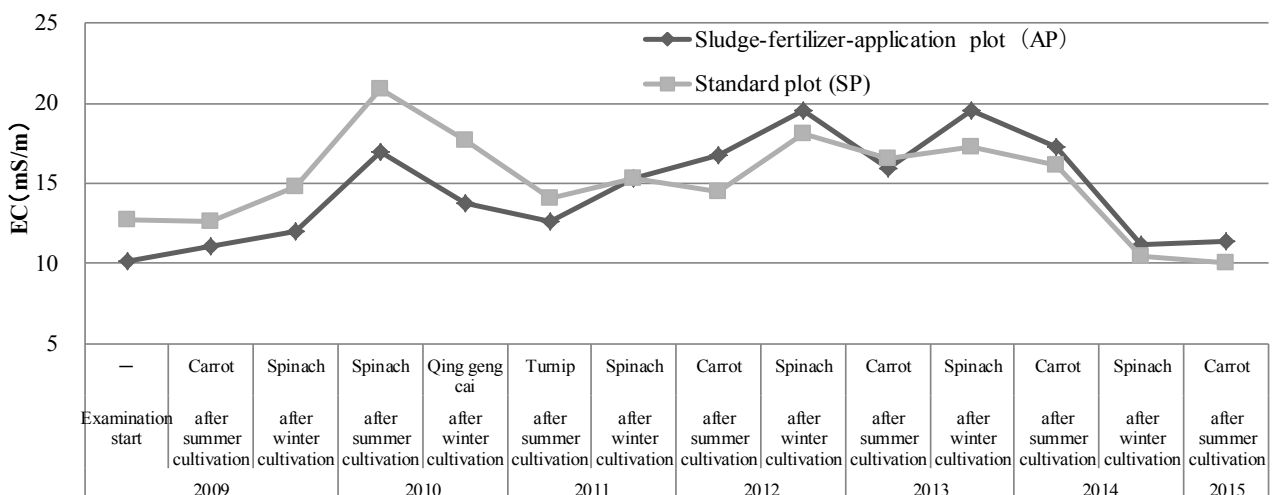


Fig.3 Changes in the EC of soil after harvest

(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 に試

験区間でほとんど差が見られなかったが、2011年冬作跡地以降、TN及びTC共に汚泥肥料施用区の方が標準区に比べて高い傾向にあった。これは、汚泥肥料施用区には汚泥肥料由来の有機物が施用されているが、標準区においては有機物の施用がない状態で連作が行われているため、標準区の有機物濃度が減少したことによると考えられる。

2014年冬作及び2015年夏作の跡地土壌についても同様の傾向が見られた。

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。

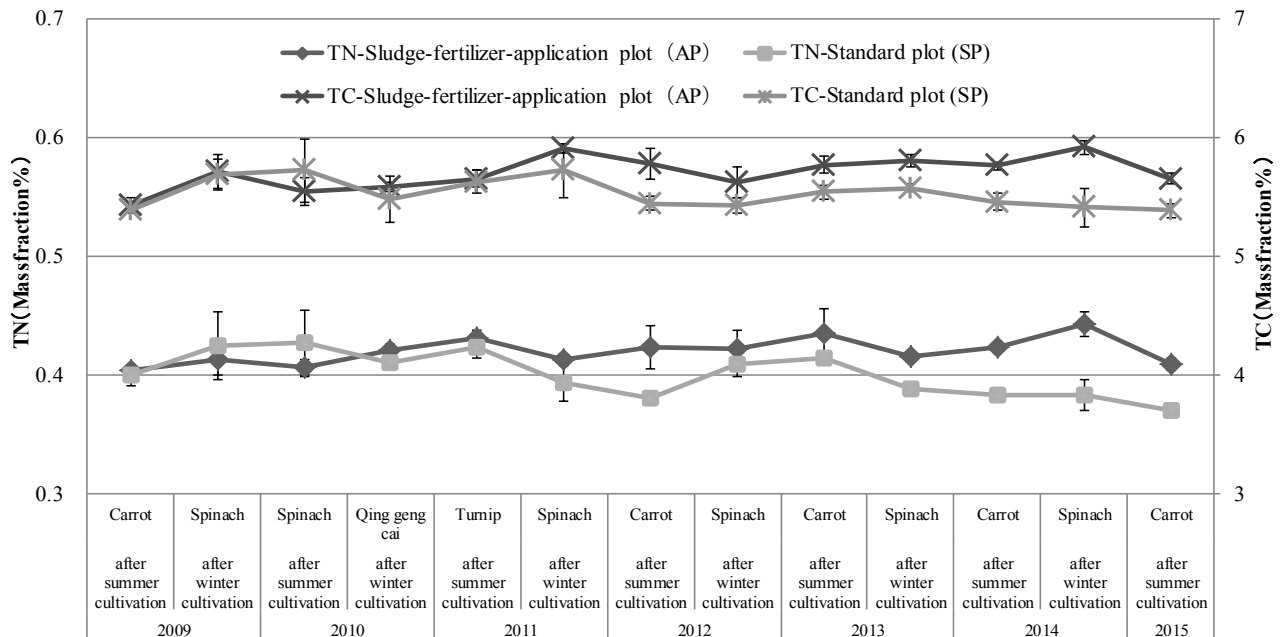


Fig.4 Changes in the total nitrogen (TN) and total carbon (TC) of soil after harvest (The error bar indicating the standard deviation)

(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たが、2014年冬作跡地では汚泥肥料区の有効態りん酸が急激に増加した。これは、2014年夏作時に汚泥肥料施用区に大量に施肥した溶成りん肥の影響によるものと推察された。前作に施肥した溶成りん肥により有効態りん酸が上昇する傾向は、標準区においても2014年夏作跡地で確認されている。

また、2015年夏作跡地については、有効態りん酸が地力増進基本指針の改善目標である 10 mg/100 g を下回った。これは、2014年冬作以降溶成りん肥の施用を中止したことにより緩効性のりん酸成分が減少したこと及び前作の跡地については、有効態りん酸が 10 mg/100 g と同程度もしくはそれ以上の値であったため土壌改良分として施肥していたりん酸一アンモニウムの追加を2015年夏作時に行わなかったためと考えられる。

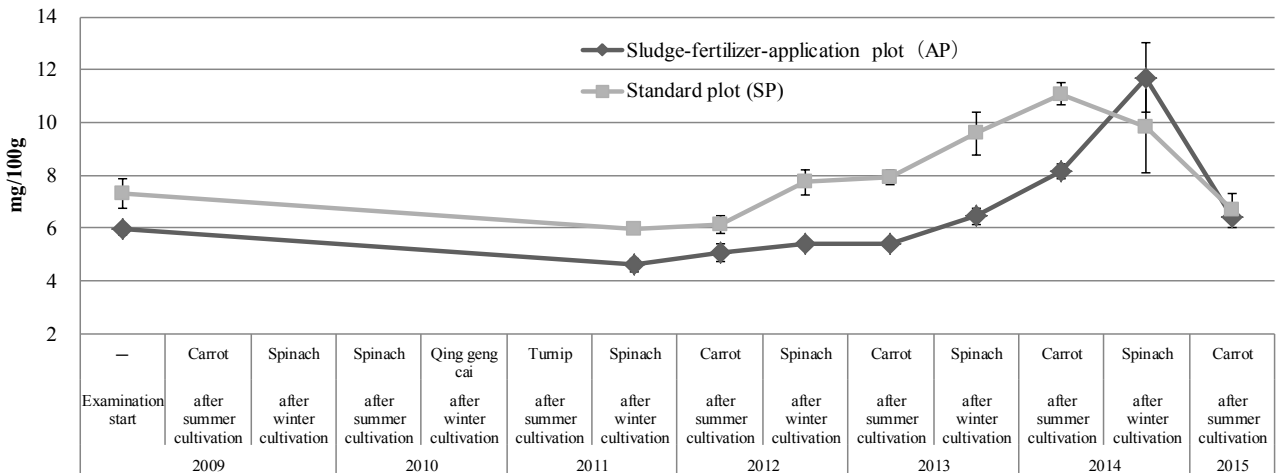


Fig.5 Changes in the available phosphate of soil after harvest
(The error bar indicating the standard deviation)

(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.6-1~6-3 のとおりである。

交換性加里は、ほぼ一定で推移していた。

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

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

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。

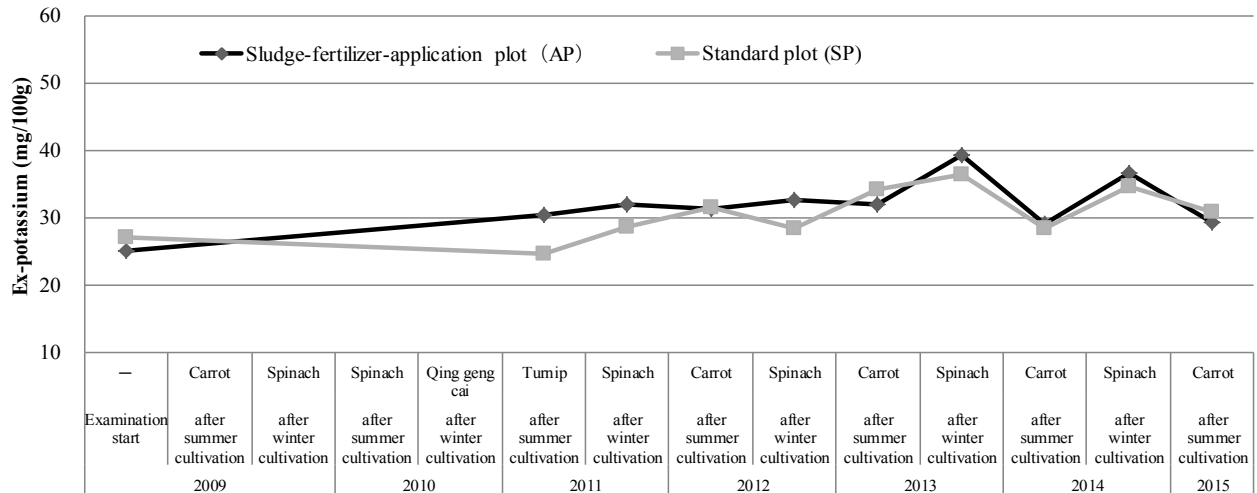


Fig.6-1 Changes in the exchangeable-potassium of soil after harvest

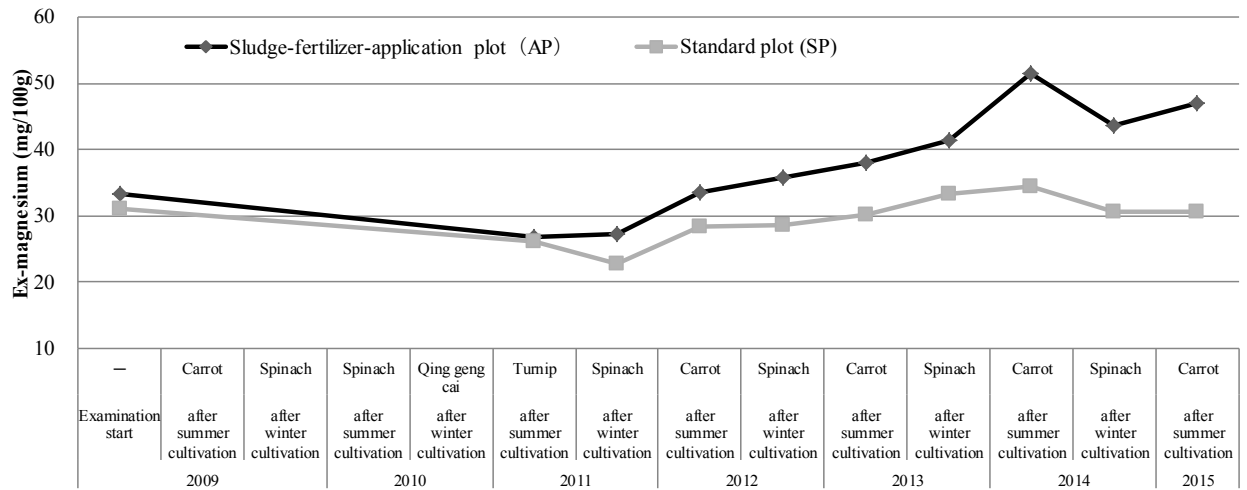


Fig.6-2 Changes in the exchangeable-magnesium of soil after harvest

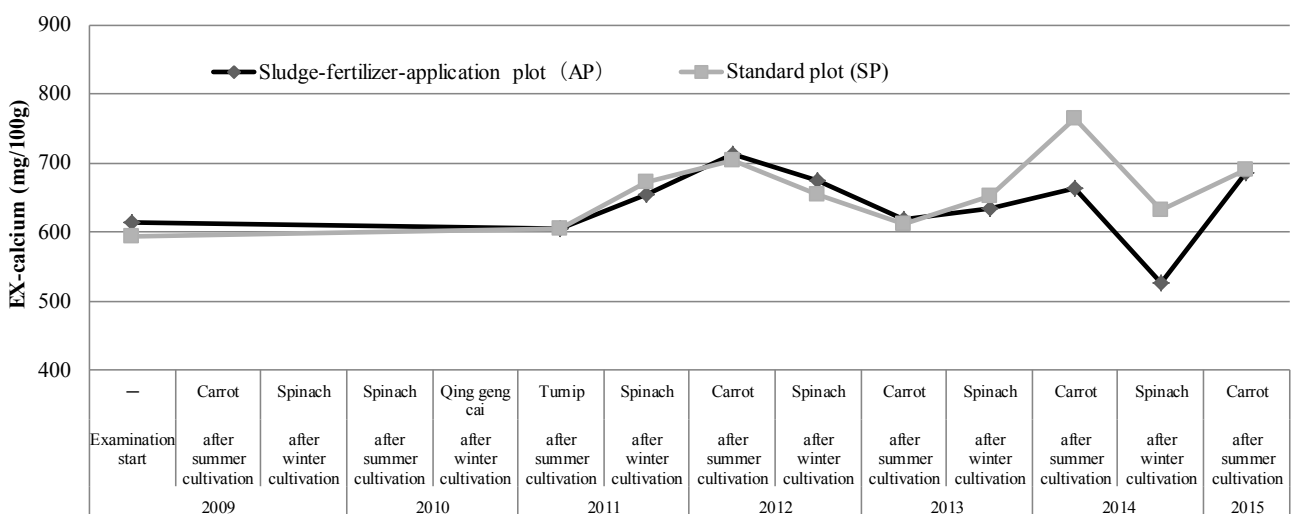


Fig.6-3 Changes in the exchangeable-calcium of soil after harvest

Table 13 Changes in the 0.1 mol/L HCl-Cd concentration^{a)} of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	AP ^{b)}	SP ^{c)}	Significance test	<i>p</i> -value of single regression analysis ^{d)}	
			(mg/kg)	(mg/kg)	(difference between the processing)	AP ^{b)}	SP ^{c)}
2009	Start	—	0.19 (0.01) ^{e)}	0.20 (0.02)	N.S. ^{f)}	—	—
2009	Summer	Carrot	0.21 (0.01)	0.21 (0.02)	N.S.	—	—
2009	Winter	Spinach	0.20 (0.003)	0.18 (0.01)	Pending ^{g)}	—	—
2010	Summer	Spinach	0.19 (0.01)	0.17 (0.02)	Pending	—	—
2010	Winter	Qing geng cai	0.18 (0.02)	0.18 (0.01)	N.S.	0.55	0.20
2011	Summer	Turnip	0.19 (0.004)	0.18 (0.01)	Pending	0.41	0.11
2011	Winter	Spinach	0.20 (0.01)	0.17 (0.01)	Significance ^{h)}	0.63	< 0.05
2012	Summer	Carrot	0.19 (0.005)	0.15 (0.01)	Significance	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 (0.004)	Significance	0.34	< 0.01
2014	Summer	Carrot	0.20 (0.01)	0.15 (0.005)	Significance	0.30	< 0.01
2014	Winter	Spinach	0.21 (0.01)	0.15 (0.003)	Pending	0.17	< 0.01

a) Content in drying soil

b) Sludge-fertilizer-application plot

c) Standard plot

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

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

f) It was not significantly different for processing examination section

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

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

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

h) It was significantly different for processing examination section

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

(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 年冬作跡地までの汚泥肥料施用区の回帰は有意でなく($p=0.17$)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た。2014 年冬作跡地では交互作用が確認されたが, 引き続き汚泥肥料施

用区が高い傾向にあった。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を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。

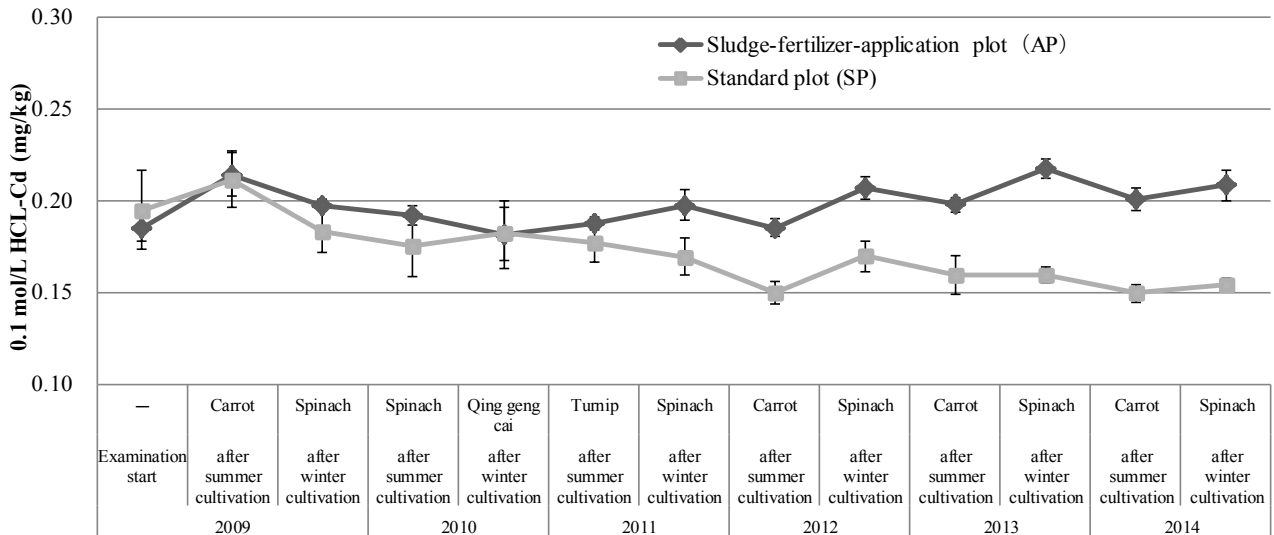


Fig.7 Changes in the 0.1 mol/L HCl-Cd concentration of soil after harvest
(The error bar indicating the standard deviation)

(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). 2015 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)。

Table 14 Changes in the exchangeable-Cd concentration^{a)} of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	AP ^{b)}	SP ^{c)}	Significance test (difference between the processing)	<i>p</i> -value of single regression analysis ^{d)}	
			(mg/kg)	(mg/kg)		AP ^{b)}	SP ^{c)}
2009	Winter	Spinach	0.036 (0.002) ^{e)}	0.037 (0.002)	N.S. ^{f)}	—	—
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 ^{g)}	—	-
2011	Summer	Turnip	0.036 (0.0004)	0.035 (0.003)	Pending ^{h)}	—	-
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
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
2014	Winter	Spinach	0.039 (0.001)	0.026 (0.001)	Significance	0.31	< 0.01
2015	Summer	Carrot	0.034 (0.002)	0.024 (0.001)	Significance	0.38	< 0.01

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

b) Sludge-fertilizer-application plot

c) Standard plot

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

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

f) It was not significantly different for processing examination section (two-way ANOVA 5 % of both sides levels of significance, $n=4 (2 \times 2)$ (repetition \times number of samples))

g) It was 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))

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

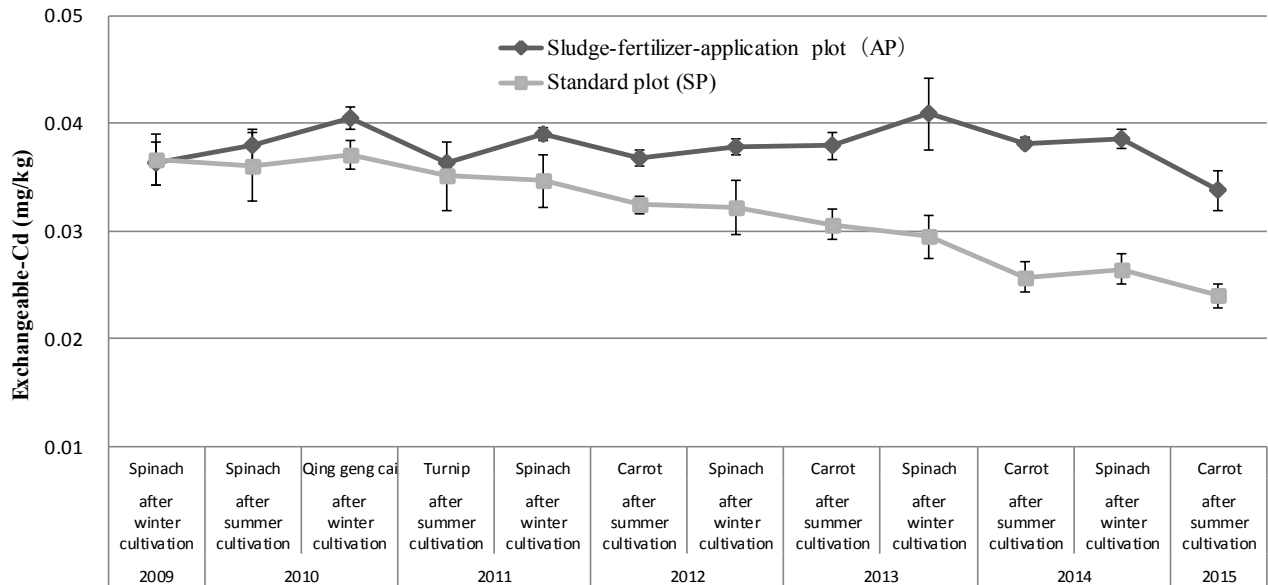


Fig.8 Changes in the exchangeable-Cd concentration of soil after harvest
(The error bar indicating the standard deviation)

(4.3) 跡地土壤の全カドミウム濃度

跡地土壤の全カドミウム濃度の推移は Table 15 及び Fig.9 のとおりである。

汚泥肥料施用区及び標準区の全カドミウム濃度の推移について傾向を把握するため、それぞれの処理区における、2009 年夏作からの経過月(夏作から冬作までの間隔は 6 ヶ月とした)に対する全カドミウム濃度の線形単回帰分析を行った(単回帰式の分散分析表の p 値により評価, 両側有意水準 5 %) (Table 15). 2015 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カドミウム濃度を比較したところ, 調査した 2009 年夏作から汚泥肥料施用区が標準区より有意に高くなっており, その差は 2012 年夏作以降, 顕著なものとなり以後同様の結果が続いている. これは, 汚泥肥料施用区は汚泥肥料由来のカドミウム負荷量が, 作物体の収穫による土壤中カドミウムの圃場外への持ち出し量よりも多いため, カドミウムが蓄積する傾向にあるが, 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.

Table 15 Changes in the total-Cd concentration^{a)} of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	AP ^{b)}	SP ^{c)}	Significance test (difference between the processing)	<i>p</i> -value of single regression analysis ^{d)}	
			(mg/kg)	(mg/kg)		AP ^{b)}	SP ^{c)}
2009	Summer	Carrot	0.51 (0.02) ^{e)}	0.48 (0.03)	Significance ^{f)}	—	—
2010	Summer	Spinach	0.52 (0.01)	0.49 (0.03)	Significance	—	—
2011	Summer	Turnip	0.51 (0.02)	0.48 (0.02)	Significance	—	—
2012	Summer	Carrot	0.52 (0.02)	0.46 (0.03)	Significance	—	—
2013	Summer	Carrot	0.53 (0.01)	0.46 (0.03)	Significance	—	—
2014	Summer	Carrot	0.57 (0.03)	0.47 (0.03)	Significance	0.030 ^{g)}	0.16
2015	Summer	Carrot	0.57 (0.01)	0.46 (0.01)	Significance	0.005	0.06

a) Content in the drying soil

b) Sludge-fertilizer-application plot

c) Standard plot

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

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

f) It was significantly different for processing examination section

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

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

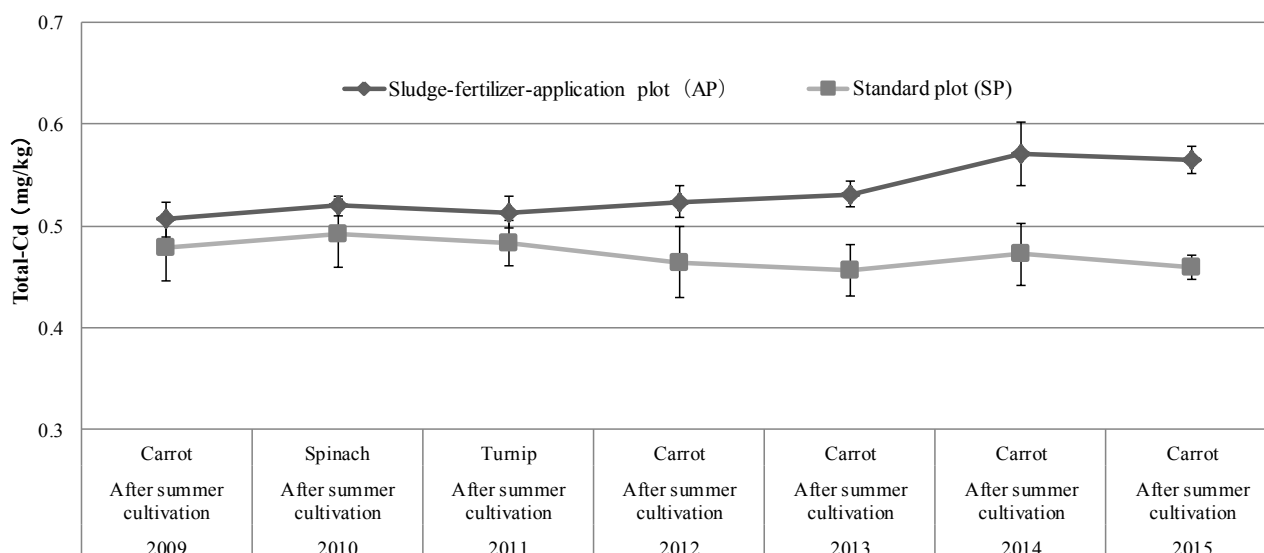


Fig.9 Changes in the total-Cd concentration of soil after harvest

(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年夏作から2015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 16 及び

Fig.10 に示した.

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.

Table 16 Continue

Table 16 Absorption and the amount of cadmium concentration of each crops in 2009~2015

Year	Season	Test Crops	Part	Cadmium Concentration ^{a)}				Quantity of cadmium uptake			
				AP ^{b)} (mg/kg)	SP ^{c)} (mg/kg)	Significance test	Rate ^{d)} (%)	AP ^{b)} (mg/plot)	SP ^{c)} (mg/plot)	Significance test	Rate ^{d)} (%)
2009	Summer	Carrot	Root	0.12	0.11	N.S. ^{f)}	103.3	0.21	0.20	N.S.	108.8
				(0.01) ^{e)}	(0.02)			(0.02)	(0.03)		
			Leaf	0.24	0.22	N.S.	109.2	0.32	0.31	N.S.	105.3
			Total	-	-			0.54	0.50	N.S.	106.7
								(0.03)	(0.04)		
2009	Winter	Spinach	Edible portion	0.62	0.61	N.S.	102.2	1.18	1.34	N.S.	88.1
				(0.01)	(0.02)			(0.004)	(0.02)		
2010	Summer	Spinach	Edible portion	1.40	1.56	N.S.	89.7	0.72	0.96	N.S.	74.9
				(0.10)	(0.07)			(0.04)	(0.01)		
2010	Winter	Qing geng cai	Edible portion	0.20	0.17	Signifi- cance ^{g)}	113.1	0.21	0.21	N.S.	101.5
				(0.01)	(0.01)			(0.01)	(0.01)		
2011	Summer	Turnip	Root	0.08	0.08	N.S.	100.4	0.04	0.04	N.S.	99.3
				(0.01)	(0.002)			(0.003)	(0.00)		
			Leaf	0.16	0.17	N.S.	96.6	0.10	0.11	Pending ^{h)}	89.8
				(0.01)	(0.01)			(0.01)	(0.01)		
			Total	-	-			0.15	0.16	Pending	92.4
								(0.01)	(0.01)		
2011	Winter	Spinach	Edible portion	0.53	0.36	Signifi- cance	150.0	0.68	0.58	Signifi- cance	117.7
				(0.01)	(0.02)			(0.02)	(0.05)		

a) Content in the dry matter

b) Sludge-fertilizer-application plot

c) Standard plot

d) AP/ SP

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

f) It was not significantly different for processing examination section
(two-way ANOVA 5 % of both sides levels of significance, $n=4$ (2×2) (repetition \times number of samples))

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

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

Table 16 Continue

Year	Season	Test Crops	Part	Cadmium Concentration ^{a)}				Quantity of cadmium uptake			
				AP ^{b)} (mg/kg)	SP ^{c)} (mg/kg)	Significance test	Rate ^{d)} (%)	AP ^{b)} (mg/plot)	SP ^{c)} (mg/plot)	Significance test	Rate ^{d)} (%)
2012	Summer	Carrot	Root	0.24 (0.01)	0.23 (0.01)	Pending	106.3	0.32 (0.01)	0.30 (0.02)	Pending	106.5
			Leaf	0.31 (0.01)	0.29 (0.02)	Pending	107.5	0.41 (0.005)	0.38 (0.04)	Pending	107.3
			Total	-	-			0.73 (0.02)	0.68 (0.06)	Pending	106.9
2012	Winter	Spinach	Edible portion	0.56 (0.02)	0.47 (0.03)	Significance	119.2	0.75 (0.01)	0.75 (0.08)	N.S.	100.6
2013	Summer	Carrot	Root	0.18 (0.02)	0.15 (0.02)	N.S.	117.4	0.22 (0.02)	0.17 (0.004)	Significance	134.3
			Leaf	0.33 (0.02)	0.28 (0.03)	Significance	117.4	0.24 (0.01)	0.18 (0.01)	Pending	133.3
			Total	-	-			0.46 (0.03)	0.34 (0.01)	Significance	133.8
2013	Winter	Spinach	Edible portion	0.45 (0.02)	0.30 (0.03)	Significance	152.1	0.73 (0.06)	0.53 (0.07)	Significance	136.4
2014	Summer	Carrot	Root	0.17 (0.01)	0.13 (0.01)	Significance	129.6	0.16 (0.01)	0.13 (0.010)	Significance	127.4
			Leaf	0.25 (0.00)	0.18 (0.02)	Pending	137.3	0.22 (0.00)	0.16 (0.03)	Pending	137.3
			Total	-	-			0.38 (0.01)	0.29 (0.04)	Pending	132.9
2014	Winter	Spinach	Edible portion	0.43 (0.02)	0.28 (0.03)	Significance	151.2	0.65 (0.02)	0.42 (0.06)	Pending	153.8
2015	Summer	Carrot	Root	0.19 (0.03)	0.15 (0.02)	Pending	128.0	0.14 (0.02)	0.10 (0.004)	Pending	139.5
			Leaf	0.23 (0.03)	0.19 (0.02)	Significance	124.0	0.22 (0.01)	0.15 (0.01)	Significance	143.9
			Total	-	-			0.36 (0.03)	0.26 (0.02)	Significance	142.1
The sum total				-	-			7.55 (0.17)	7.03 (0.31)	Pending	107.4

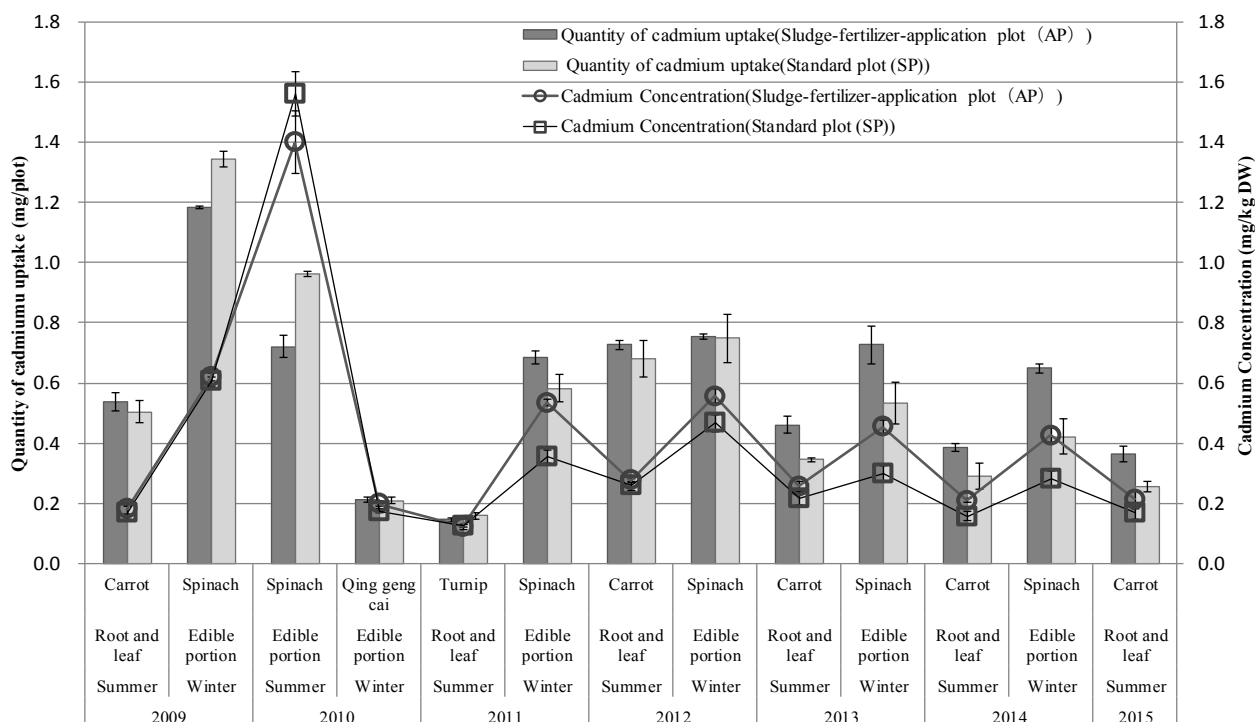


Fig.10 Cadmium concentration and absorption amount of each crops in 2009~2015
(The error bar indicating the standard deviation)

(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 5 回のニンジン試験及び過去 6 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 17 に示した。試験開始時から 2015 年夏作までの作物体のカドミウム濃度は、概ね Codex 基準値の 1/4 以下で推移している。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。

ニンジンの品種は、2014 年夏作から「恋ごころ」に変更した。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²³⁾、夏の高温に比較的強い品種として選定した。

ホウレンソウ品種は 2012 年冬作では、「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²⁴⁾、冬の低温に比較的強い品種として選定した。その後、2013 年冬作では「オーライ」よりも病害抵抗性が高い「強力オーライ」、2014 年冬作からはよりカドミウム濃度が高まりやすいとされる品種²⁴⁾である「ニューアンナ R4」と品種を変更した。

これまでの試験結果からは品種による吸収率の差は判然としなかった。本試験では同一条件で複数の品種を栽培していないため、品種の影響による吸収率の差を比較するのは困難と判断せざるを得ず、今後は、品種の変更を行わず可能な限り同一品種で試験することにより検討要素を絞りこむ必要があると考えられる。

Table 17 Changes of the cadmium concentration of carrot and spinach in 2009~2015

Test Crops	Variety	Year	Season	Cultivation Days	Part	Cadmium Concentration ^{a)}				CODEX Cadmium Standard ^{e)} (mg/kg)	
						AP ^{b)}		SP ^{c)}			
						Dry ^{d)} (mg/kg)	Fresh ^{e)} (mg/kg)	Dry ^{d)} (mg/kg)	Fresh ^{e)} (mg/kg)		
Carrot	Bêtâricch	2009	Summer	90	Root	0.12	0.01	0.11	0.01	0.1	
					Leaf	0.24	0.03	0.22	0.03		
		2012	Summer	105	Root	0.24	0.03	0.23	0.02		
					Leaf	0.31	0.04	0.29	0.04		
		2013	Summer	97	Root	0.18	0.02	0.15	0.02		
					Leaf	0.33	0.04	0.28	0.04		
	Koigokoro	2014	Summer	92	Root	0.17	0.02	0.13	0.01		
					Leaf	0.25	0.04	0.18	0.03		
		2015	Summer	105	Root	0.19	0.02	0.15	0.02		
					Leaf	0.23	0.03	0.19	0.02		
	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	
Ōrai		2011	Winter	99	Edible portion	0.53	0.08	0.36	0.05		
		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		
New Anna R4		2014	Winter	124	Edible portion	0.43	0.04	0.28	0.03		

- a) $n=4$ (2×2) (repetition × number of samples)
- b) Sludge-fertilizer-application plot
- c) Standard plot
- d) Content in the dry matter
- e) 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 18 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て算出した.

カドミウム持出し量については, これまで実施した 13 作の試験の合計は, 汚泥肥料施用区で 7.55 mg/試験区, 標準区で 7.03 mg/試験区であった.

汚泥肥料施用区では, 各試験において, カドミウム負荷量と比較して持出し量が少ないことから土壌のカドミウム収支がプラスとなるため, 汚泥肥料の連用によるカドミウム負荷量の増加に伴って土壌蓄積するカドミウムが高まる傾向であることが考えられる. 実測値においても跡地土壌の全カドミウム濃度の増加傾向が認められている(上記(4.3)). 過去 13 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 76.48 mg/試験区 (191 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 0.115 mg/kg となった (Table 18).

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 19 及び Fig.11 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 18 で算出したカドミウム蓄積濃度を累積し算出した. 標準区は実測値と理論値がほぼ一致して推移していた. 一方、汚泥肥料施用区は、理論値と比較して実測値の方が低い傾向で推移していた. その理由として、土壌中のカドミウムが垂直方向に移動した可能性が考えられたため 2014 年夏作跡地において作土層の下層 (15-25 cm) の全カドミウム濃度を分析した. その結果、汚泥肥料施用区 (0.46 mg/kg) 及び標準区 (0.44 mg/kg) の全カドミウム濃度に有意差はなかった ($p > 0.05$)⁵⁾. そのため、全カドミウム濃度の理論値と実測値に差が生じるのは耕耘等により一部のカドミウムが水平移動し作土に留まらないことによると考えられる²⁵⁾.

Table 18 Changes of the 2009~2015 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 ^{a)}			Concentration of cadmium accumulation ^{e)}	Quantity of cadmium ^{a)}			Concentration of cadmium accumulation ^{e)}
			Load ^{b)}	Removal ^{c)}	Accumulation ^{d)}		Load ^{b)}	Removal ^{c)}	Accumulation ^{d)}	
(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/kg)	(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/kg)			
2009	Summer	Carrot	4.84	0.54	4.30	0.007	0	0.50	-0.50	-0.001
2009	Winter	Spinach	4.40	1.18	3.22	0.005	0	1.34	-1.34	-0.002
2010	Summer	Spinach	3.30	0.72	2.58	0.004	0	0.96	-0.96	-0.002
2010	Winter	Qing geng cai	2.64	0.21	2.43	0.004	0	0.21	-0.21	-0.0003
2011	Summer	Turnip	3.30	0.15	3.15	0.005	0	0.16	-0.16	-0.0003
2011	Winter	Spinach	7.04	0.68	6.35	0.011	0	0.58	-0.58	-0.001
2012	Summer	Carrot	7.28	0.73	6.55	0.011	0	0.68	-0.68	-0.001
2012	Winter	Spinach	7.28	0.75	6.53	0.011	0	0.75	-0.75	-0.001
2013	Summer	Carrot	7.28	0.46	6.82	0.011	0	0.34	-0.34	-0.001
2013	Winter	Spinach	7.28	0.73	6.55	0.011	0	0.53	-0.53	-0.001
2014	Summer	Carrot	7.28	0.38	6.90	0.011	0	0.29	-0.29	-0.0005
2014	Winter	Spinach	7.28	0.65	6.63	0.011	0	0.42	-0.42	-0.001
2015	Summer	Carrot	7.28	0.36	6.92	0.012	0	0.26	-0.26	-0.0004
Total			76.48	7.55	68.93	0.115	0.00	7.03	-7.03	-0.0117

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 = 2) - 3)

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

Table 19 Changes in the actual total-Cd concentration and the theoretical total-Cd concentration^{a)} of soil after harvest

Year	Season	Test Crops	Actual measurement		Theoretical value	
			AP ^{b)} (mg/kg)	SP ^{c)} (mg/kg)	AP ^{b) d)} (mg/kg)	SP ^{c) e)} (mg/kg)
2009	Summer	Carrot	0.51 (0.02) ^{f)}	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
2015	Summer	Carrot	0.57 (0.01)	0.46 (0.01)	0.62	0.47

a) Total-Cd concentration in the drying soil

b) Sludge-fertilizer-application plot

c) Standard plot

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

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

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

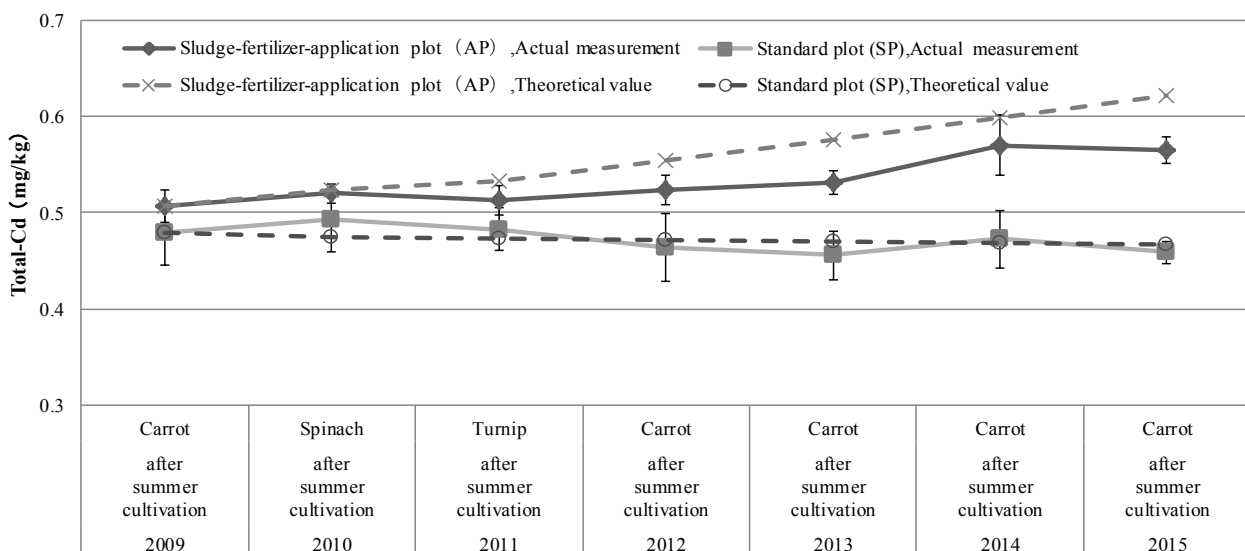


Fig.11 Changes in the actual total-Cd concentration and the theoretical total-Cd concentration of soil after harvest (The error bar indicating the standard deviation)

汚泥肥料施用区のカドミウム負荷量及び蓄積量と土壌中 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度の推移を Fig.12 に示した。土壌中 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度は試験開始時から 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 ($p > 0.05$)。

他の試験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²⁶⁾。

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、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において、土壌中 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度が減少傾向 ($p < 0.05$) となることは作物収穫による持出しによるものと考えられる。また、カドミウム負荷がある汚泥肥料施用区の土壌中 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度が、ほぼ一定で推移 ($p > 0.05$) していることは、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^{27~28)} 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。

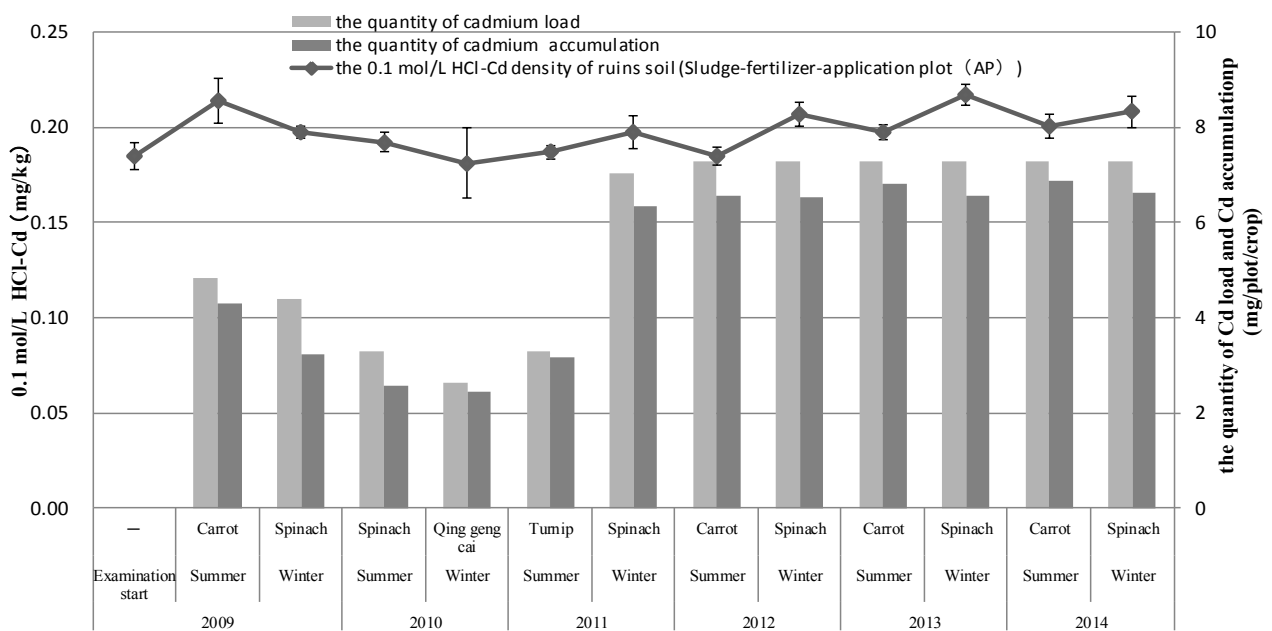


Fig.12 Changes of the 2009~2014 year of the quantity of cadmium load by fertilizer, the quantity of cadmium accumulation to soil, and the 0.1 mol/L HCl-Cd concentration of soil after harvest in sludge fertilizer application plot (AP) (The error bar indicating the standard deviation)

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、2014年冬作としてハウレンソウを、2015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、2015年夏作ニンジンの跡地土壌の全カドミウム濃度は汚泥肥料施用区が標準区に比べて有意に高かった($p < 0.05$)。作物体のカドミウム濃度は2014年冬作ハウレンソウ及び2015年夏作ニンジンの葉部で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吸収量については、2015年夏作ニンジンの葉部及び全体(葉+根)で、汚泥肥料施用区が標準区に比べて有意に高かった($p < 0.05$)。また、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6年半13作の跡地土壌のカドミウム濃度及び作物体カドミウム濃度、吸収量の推移について整理した。跡地土壌の全カドミウム濃度は、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。

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～483 kg/10 a(現物)を施用、2012年夏作～2015年夏作までの7作は500 kg/10 a(現物)を施用し、年2作の試験を6年半、13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2年半及びカドミウム負荷量年間約15 mg/4 m²(36 g/ha)での4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ぼく土より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の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, 恵智正宏, 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, 恵智正宏, 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) 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: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), 肥料研究報告, 8, 79~113, (2015)
- 6) 独立行政法人農林水産消費安全技術センター(FAMIC):肥料等試験法
< <http://www.famic.go.jp/ffis/fert/sub9.html> >

- 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
< <http://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)
< http://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_hiryo/odei_hiryo/pdf/03_data1.pdf >
- 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)
< <http://www.pref.chiba.lg.jp/ninaite/network/h21-fukyuu/documents/kakakukoutou.pdf> >
- 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)
- 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) 農林省令:農用地土壌汚染対策地域の指定要件に係るカドミウムの量の検定の方法を定める省令, 昭和 46 年 6 月 24 日農林省令第 47 号, 最終改正平成 24 年 8 月 6 日環境省令第 22 号(2012)
- 17) 日本土壌肥料学会監修:土壌環境分析法, 215~219, 博友社, 東京 (1997)
- 18) 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)
- 19) 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)
- 20) 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/ >
- 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, 106, 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, p49, (2011)
- 23) 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)
- 24) 伊藤純雄, 菊地 直, 加藤直人:ホ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)
- 25) 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)
- 26) 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)
- 27) 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)
- 28) 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 2014 and Summer 2015 -

Shin ABE¹, Tokiya SUZUKI², Yudai TANAKA², Fumihiro ABE², Yoshimi HASHIMOTO²,
Toshiaki HIROI¹ and Shinichi KASHIMA³

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

³ Food and Agricultural Materials Inspection Center, Fertilizer and Feed Inspection Department
(Now) Fukuoka Regional Center

The aim of this research is to monitor the change of cadmium dissolved with 0.1 mol/L hydrochloric acid (acid-solubility-Cd) and pH 7.0, 1 mol/L ammonium acetate solution (exchangeable-Cd) in the soil. We have been investigating the cadmium absorption by crop since 2009. We have tested in the upland fields in which the soil is composed of the Andosol. And we have used sludge fertilizer and chemical reagents. We cultivated spinach in winter 2014 and carrot in summer 2015. Those crops were cultivated in the standard plot (SP) and the sludge-fertilizer-application plot (AP). In the SP, we used only chemical reagents for the crops. In the AP, we used 500 kg/10 a (fresh weight) of the sludge fertilizer and chemical reagents for the crops. The amount of nitrogen, phosphorus and potassium applied to each plot was designed on the basis of the fertilization standard shown on the Saitama prefecture's web site. The concentration of total cadmium in the crop, acid-solubility-Cd and exchangeable-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 significant high concentration of the exchangeable-Cd compared with the soil in the SP since winter 2011. The concentration of total-Cd in the soil (from summer 2009 to summer 2015) showed significant increasing trend in the AP. Although the concentration of the acid-solubility-Cd (from summer 2009 to winter 2014) and exchangeable-Cd (from summer 2009 to summer 2015) in the soil showed significant decreasing trend in the SP, the concentration of those Cd in the soil did not show significant fluctuations in the AP. The concentrations of cadmium in each crop harvested (from summer 2009 to summer 2015) in the SP and AP were less than that of the CODEX standard. We consider that it is necessary to be conducted further monitoring of the cadmium-transition in the soil from now on.

Key words sludge fertilizer, continuous application, cadmium

(Research Report of Fertilizer, **8**, 77~109, 2016)