

12 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)

－2019年冬作・2020年夏作－

浅尾直紀¹，村山和晃²，松尾信吾³，小塚健志⁴，阿部文浩⁵

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への吸収量を確認している。

1年目(2009年)夏作から11年目(2019年)夏作にかけては，汚泥肥料を施用した区及び施用していない区の2試験区を設け，ニンジン，ホウレンソウ，ホウレンソウ，チンゲンサイ，カブ，ホウレンソウ，以後ニンジン，ホウレンソウの繰返しの順で栽培し，土壌中のカドミウム濃度の変化及び作物体のカドミウム吸収量を確認した。その結果は既に肥料研究報告第4号³⁾～13号⁴⁾で報告しているが，引き続き，11年目(2019年)冬作及び12年目(2020年)夏作においても栽培試験を実施したのでその結果を報告する。

2. 材料及び方法

(1) 肥料等

施肥する肥料は市販されているし尿汚泥肥料を使用した。成分分析結果は Table 1 のとおり。標準区に施肥する肥料及び汚泥肥料施用区で補正肥料として特級試薬の尿素，リン酸一アンモニウム及び塩化カリウムを使用した。汚泥肥料及び補正肥料の各成分の分析は肥料等試験法⁵⁾によった(補正肥料の成分量は Table 2 に示した)。この他，塩基バランスの改善のため特級試薬の硫酸マグネシウムを使用した。

¹ 独立行政法人農林水産消費安全技術センター肥飼料安全検査部

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)農薬検査部

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

⁴ 独立行政法人農林水産消費安全技術センター肥飼料安全検査部 (現)神戸センター

⁵ 独立行政法人農林水産消費安全技術センター肥飼料安全検査部 (現)名古屋センター

Table 1 Properties of sludge fertilizer

Item	Unit	Content	Item	Unit	Content
Total nitrogen	% ^{a)}	5.8	Moisture	% ^{a)}	11.2
Total phosphoric acid ^{b)}	% ^{a)}	4.7	Total copper	mg/kg	329
Citric acid-soluble phosphoric acid ^{b)}	% ^{a)}	2.2	Total Zinc	mg/kg	1038
Total potassium ^{c)}	% ^{a)}	0.4	Carbon to nitrogen ratio	-	6.3
Total calcium ^{d)}	% ^{a)}	1.4	Total cadmium ^{e)}	mg/kg	2.8 ^{f)}
Organic carbon	% ^{a)}	36.0	Acid-solubility-cadmium ^{g)}	mg/kg	1.8

a) Mass fraction

b) Content as P₂O₅c) Content as K₂O

d) Content as CaO

e) Content of cadmium dissolved with aqua regia

f) 4.9 mg/kg in the dry matter

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

Table 2 Properties of reagent

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

a) Mass fraction

b) Content as P₂O₅c) Content as K₂O

(2) 土壌の理化学性

本試験は当センター岩槻圃場(埼玉県さいたま市)で実施した。土壌の種類は黒ボク土であり、土性は軽しょく土である。1年目夏作から11年目夏作までの土壌の理化学性のうち、pH、電気伝導率(EC:Electrical Conductivity, 以下ECと記す)、陽イオン交換容量(CEC:Cation Exchange Capacity, 以下CECと記す)、窒素全量(TN:Total Nitrogen, 以下TNと記す)、炭素全量(TC:Total Carbon, 以下TCと記す)、有効態りん酸、交換性加里、交換性石灰及び交換性苦土)をFigure 1に示す。

pHは、土壌中のCd蓄積量に与える影響が大きいため、pH 6~pH 7となるように、試験開始から3年目、5年目、6年目及び7年目に炭酸苦土石灰及び消石灰を用いてpH調整を行った。7年目冬作から11年目夏作までpH 6.4程度で安定して推移していたが、11年目冬作、12年目夏作とpH 6.0付近に下がっている。

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

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

11年目夏作跡地土壌の理化学性を確認したところ、主要農作物施肥基準(埼玉県)⁶⁾に記された土壌管理目標値を参考として、土壌中の交換性塩基3成分(交換性加里、交換性石灰、交換性苦土)のうち、交換性苦土の成分が低い傾向が見られたため、硫酸マグネシウムを施肥することにより、交換性塩基のバランスの改善を

図った(硫酸マグネシウムの分量は Table 3-2 に示した).

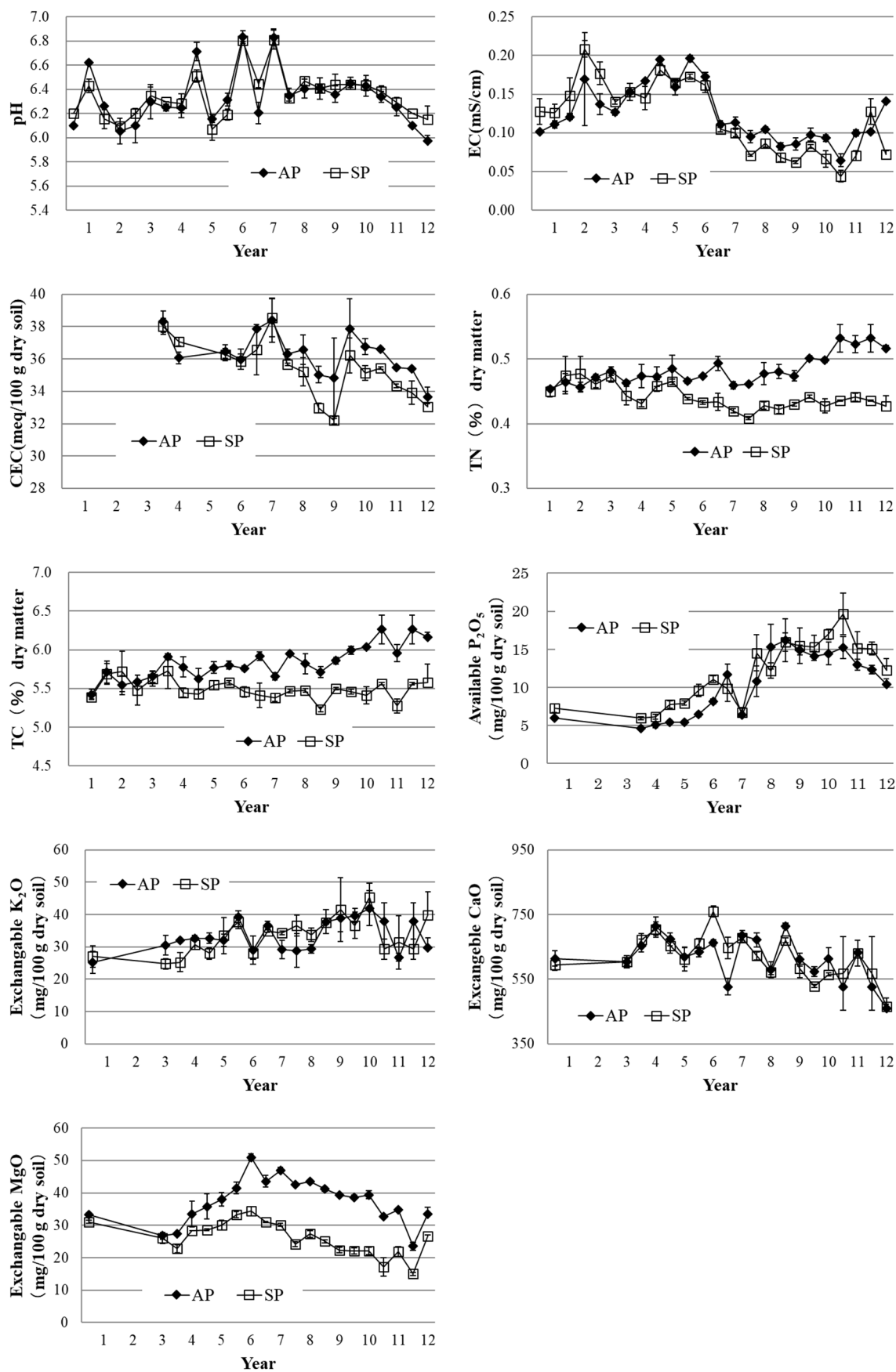


Figure 1 Transition of the characteristics of the soil

(3) 試験区の構成

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

(4) 施肥設計

11年目冬作ホウレンソウ及び12年目夏作ニンジン⁹の施肥設計をTable 3-1及びTable 3-2に示した。施肥設計は、主要農作物施肥基準(埼玉県)を参考に設計した。

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

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

Table 3-1 The fertilization amount (spinach in winter 11th)

Types of fertilizer	Amounts (g/4 m ²)	Components (g/4 m ²)				Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)			
		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>										
Sludge fertilizer	2000	115	95	9	5.7	500	28.8	23.7	2.2	1.4
Urea	123	57	—	—	—	31	14.3	—	—	—
Potassium chloride	100	—	—	63	—	25	—	—	15.8	—
Total		172	95	72	5.7		43.0	23.7	18.0	1.4
<Standard plot (SP)>										
Urea	133	61	—	—	—	33	15.3	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	155	19	95	—	—	39	4.7	23.7	—	—
Potassium chloride	114	—	—	72	—	29	—	—	18.0	—
Total		80	95	72	—		20.0	23.7	18.0	—

Table 3-2 The fertilization amount (carrot in summer 12th)

Types of fertilizer	Amounts (g/4 m ²)	Components (g/4 m ²)					Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)				
		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	MgO	Cd		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	MgO	Cd
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>												
Sludge fertilizer	3000	164	142	12	—	8.5	750	40.9	35.6	3.1	—	2.1
Urea	23	11	—	—	—	—	5.7	2.6	—	—	—	—
Potassium chloride	82	—	—	52	—	—	20	—	—	12.9	—	—
Magnesium sulfate	100	—	—	—	33	—	25	—	—	—	8.4	—
Total		174	135	64	33	8.5		43.6	35.6	16.0	8.4	2.1
<Standard plot (SP)>												
Urea	136	63	—	—	—	—	34	15.7	—	—	—	—
Ammonium dihydrogen phosphate	109	13	67	—	—	—	27	3.3	16.6	—	—	—
Potassium chloride	101	—	—	64	—	—	25	—	—	16.0	—	—
Magnesium sulfate	100	—	—	—	33	—	25	—	—	—	8.4	—
Total		76	67	64	33	—		19.0	16.6	16.0	8.4	—

Table 4 The fertilizer application log of the test plots

Year	Season	Crop	Types of fertilizer	<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>				<Standard plot (SP)>					
				Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)				Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)			
					N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd		N	P ₂ O ₅	K ₂ O	Cd
2009	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	332	11	17	1	1.2	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	52	11	—	—	—	104	22	—	—	
			Potassium dihydrogen phosphate	3	—	2	1	—	36	—	19	12	
			Potassium chloride	28	—	—	18	—	12	—	—	8	
			Total		22	19	20	1.2		22	19	20	
2009	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	302	10	16	1	1.1	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	47	10	—	—	—	95	20	—	—	
			Potassium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	30	—	16	10	
			Potassium chloride	27	—	—	17	—	12	—	—	8	
			Total		20	16	18	1.1		20	16	18	
2010	Summer	Spinach	Sludge fertilizer	227	8	12	1	0.8	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	36	8	—	—	—	71	15	—	—	
			Potassium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	23	—	12	8	
			Potassium chloride	15	—	—	9	—	3	—	—	2	
			Total		15	12	10	0.8		15	12	10	
2010	Winter	Qing	Sludge fertilizer	181	6	9	1	0.7	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	28	6	—	—	—	57	12	—	—	
			Potassium dihydrogen phosphate	5	—	3	2	—	23	—	12	8	
			Potassium chloride	15	—	—	10	—	6	—	—	4	
			Total		12	12	12	0.7		12	12	12	
2011	Summer	Turnip	Sludge fertilizer	227	8	12	1	0.8	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	33	7	—	—	—	57	12	—	—	
			Potassium dihydrogen phosphate	6	1	3	—	—	24	3	15	—	
			Potassium chloride	22	—	—	14	—	24	—	—	15	
			Magnesia lime (pH adjustment)	—	—	—	—	—	35	—	—	—	
			Total		15	15	15	0.8		15	15	15	
2011	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	483	16	25	2	1.8	—	—	—	—	
			Urea	22	10	—	—	—	43	20	—	—	
			Potassium dihydrogen phosphate	1	—	1	1	—	50	—	26	17	
			Potassium chloride	25	—	—	16	—	1	—	—	1	
			Slaked lime (pH adjustment)	176	—	—	—	—	216	—	—	—	
			Total		26	26	18	1.8		20	26	18	
2012	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	65	14	—	—	—	80	17	—	—	
			Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
			Potassium chloride	29	—	—	18	—	32	—	—	20	
			Fused magnesium phosphate	50	—	10	—	—	50	—	10	—	
			Total		30	36	20	1.8		22	36	20	
2012	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	71	15	—	—	—	71	15	—	—	
			Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
			Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18	
			Fused magnesium phosphate	50	—	10	—	—	50	—	10	—	
			Total		32	36	18	1.8		20	36	18	
2013	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	81	17	—	—	—	80	17	—	—	
			Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
			Potassium chloride	29	—	—	18	—	32	—	—	20	
			Fused magnesium phosphate	50	—	10	—	—	50	—	10	—	
			Total		34	36	20	1.8		22	36	20	
2013	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
			Ammonium sulfate	87	18	—	—	—	71	15	—	—	
			Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
			Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18	
			Fused magnesium phosphate	250	—	25	—	—	250	—	25	—	
			Slaked lime (pH adjustment)	196	—	—	—	—	218 ^{a)}	—	—	—	
			Total		35	51	18	1.8		20	51	18	
2014	Summer	Carrot	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
			Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—	
			Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—	
			Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16	
			Fused magnesium phosphate	291	—	58	—	—	33	—	7	—	
			Slaked lime (pH adjustment)	—	—	—	—	—	196	—	—	—	
			Total		27	84	16	1.8		19	33	16	
2014	Winter	Spinach	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—	
			Urea	25	11	—	—	—	34	16	—	—	
			Ammonium dihydrogenphosphate	71	9	43	—	—	36	4	22	—	
			Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18	
			Total		37	70	18	1.8		20	22	18	

Table 4 continue

Year	Season	Types of fertilizer	<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>				<Standard plot (SP)>				
			Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)			Amounts (kg/10 a)	Components (kg/10 a)			
				N	P ₂ O ₅	K ₂ O		Cd	N	P ₂ O ₅	K ₂ O
2015	Summer	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
		Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	42	5	26	—
		Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16
		Slaked lime (pH adjustment)	196	—	—	—	—	—	—	—	—
		Total		27	26	16	1.8		19	26	16
2015	Winter	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
		Urea	21	10	—	—	—	15	7	—	—
	Spinach	Ammonium dihydrogenphosphate	72	9	44	—	—	109	13	67	—
		Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18
		Total		35	70	18	1.8		20	67	18
2016	Summer	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
		Urea	—	—	—	—	—	30	14	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogenphosphate	89	11	54	—	—	42	5	26	—
		Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16
		Total		27	80	16	1.8		19	26	16
2016	Winter	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
		Urea	36	17	—	—	—	32	15	—	—
	Spinach	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—
		Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18
		Total		33	26	18	1.8		20	26	18
2017	Summer	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
		Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—
		Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16
		Total		27	26	16	1.8		19	26	16
2017	Winter	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
		Urea	36	17	—	—	—	32	15	—	—
	Spinach	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—
		Potassium chloride	26	—	—	16	—	29	—	—	18
		Total		34	26	18	1.8		20	26	18
2018	Summer	Sludge fertilizer	500	17	26	2	1.8	—	—	—	—
		Urea	23	11	—	—	—	30	14	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	43	5	26	—
		Potassium chloride	23	—	—	14	—	25	—	—	16
		Total		28	26	16	1.8		19	26	16
2018	Winter	Sludge fertilizer	500	29	24	2	1.4	—	—	—	—
		Urea	31	14	—	—	—	33	15	—	—
	Spinach	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	39	5	24	—
		Potassium chloride	25	—	—	16	—	29	—	—	18
		Total		43	24	18	1.4		20	24	18
2019	Summer	Sludge fertilizer	500	29	24	2	1.4	—	—	—	—
		Urea	10	5	—	—	—	31	14	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	39	5	24	—
		Potassium chloride	22	—	—	14	—	25	—	—	16
		Total		34	24	16	1.4		19	24	16
2019	Winter	Sludge fertilizer	500	29	24	2	1.4	—	—	—	—
		Urea	31	14	—	—	—	33	15	—	—
	Spinach	Ammonium dihydrogenphosphate	—	—	—	—	—	39	5	24	—
		Potassium chloride	25	—	—	16	—	29	—	—	18
		Total		43	24	18	1.4		20	24	18
2020	Summer	Sludge fertilizer	750	41	36	3	2.1	—	—	—	—
		Urea	6	3	—	—	—	34	16	—	—
	Carrot	Ammonium dihydrogen phosphate	—	—	—	—	—	27	3	17	—
		Potassium chloride	20	—	—	13	—	25	—	—	16
		Magneium sulfate	25	—	—	—	—	25	—	—	—
		Total		44	36	16	2.1		19	17	16

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

(5) 栽培方法

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

農薬は播種する前に行った。ヨトウガの幼虫等の害虫防除を目的としたダイアジノン粒剤を散布し、深さ約 15 cm まで耕耘して表面を平らにならした後、試験区内を 9 条(条間約 20 cm)間隔でシーダーテープ加工された種子を播種した。

Table 5 Cultivation summary

	Spinach	Carrot
Species	Mirage	Koigokoro
Fertilization	2019.11.15	2020.5.12
Pesticide application	11.15	5.11
Seeding	11.21	5.22
Thinning (first)	2020.1.9	7.7
Thinning (second)	—	7.16
Harvest	2020.3.18	10.1
Cultivation period	118 days	132 days

(6) 作物体の前処理

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

ニンジンについては根についた土壌を水道水で洗い落とし、セラミック製包丁を用いて葉部と根部(可食部)に切断し、それぞれの重量を試験区毎に測定した。さらに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、葉部はガラス室で自然乾燥した後に通風乾燥器にて 65 °C で一昼夜乾燥した。根部はセラミック製包丁を用いて細かく切断した後、通風乾燥器にて 65 °C で一昼夜乾燥した。

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

(7) 作物体のカドミウム分析

分析試料 0.5 g に硝酸 5 mL 及び過酸化水素水 2 mL を加えマイクロ波分解装置(Multiwave 3000:Perkin Elmar)で分解¹³⁾したものを 50 mL に定容し、ICP 質量分析装置(iCAP RQ :Thermo Fisher Scientific)を用いて測定した。

(8) 跡地土壌の分析

収穫後、跡地土壌を対角線採土法¹⁴⁾により採取した。各試験区の作物体の分析用試料を収穫した場所と同じ試験区中央 1 m² の四隅及び中央の計 5 か所より、採土器(内径 50 mm×長さ 250 mm)を用いて表層から約 15 cm まで採取、混合した。通風乾燥器を用いて 35 °C で一晩乾燥後、目開き 2 mm のふるいを通したものを分析用試料とした。

土壌中の全カドミウムは、分析試料 0.5 g に、硝酸約 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により分解し試料溶液とした。測定は ICP 質量分析装置により行った。

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

3. 結果及び考察

1) 冬作ホウレンソウ

(1) 作物体の収量, カドミウム濃度

11年目冬作ホウレンソウの結果を Table 6 に示した.

収量は, 汚泥肥料施用区で 12.1 kg, 標準区で 13.0 kg であり, 標準区に対する汚泥肥料施用区の収量指数は 93 であった.

ホウレンソウ現物中のカドミウム濃度は, 汚泥肥料施用区で 0.055 mg/kg, 標準区で 0.042 mg/kg であった.

また, ホウレンソウ乾物中のカドミウム濃度について各区を比較したところ, 汚泥肥料施用区で 0.485 mg/kg, 標準区で 0.334 mg/kg であり, 汚泥肥料施用区が有意に高い結果であった ($p=3.3 \times 10^{-4}$).

1年目から11年目の冬作の収量の推移を Figure 2 に示した.

作物体の現物中のカドミウム濃度は Figure 3-1 に示すとおり Codex 基準値¹⁶⁾ (0.2 mg/kg) に対して低い濃度で推移していた. 汚泥肥料の連用によるホウレンソウ乾物中のカドミウム濃度の変化は Figure 3-1 に示すとおり濃度上昇は今のところ認められなかった.

Table 6 Yield of spinach (edible portion) and Cadmium concentration (winter 11th)

	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Yield index ^{a)}	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>								
Fresh weight	kg	11.75		12.35		12.05	93	-
Cadmium concentration (fresh matter)	mg/kg	0.054	0.057	0.052	0.058	0.055	-	-
Cadmium concentration (dry matter)	mg/kg	0.47	0.49	0.47	0.52	0.48	-	Significance ^{b)}
<Standard plot (SP)>								
Fresh weight	kg	13.80		12.15		12.98	100	-
Cadmium concentration (fresh matter)	mg/kg	0.042	0.042	0.042	0.042	0.042	-	-
Cadmium concentration (dry matter)	mg/kg	0.35	0.35	0.32	0.32	0.33	-	-

a) Yield of Standard plot was indexed as 100

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

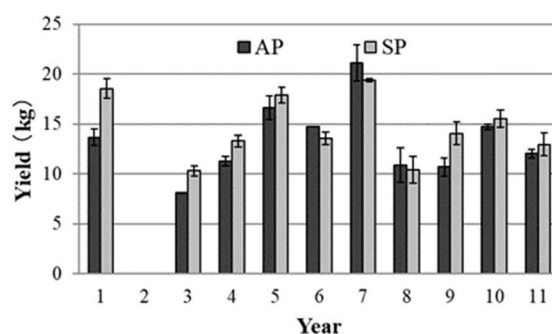


Figure 2 The yield of the spinach in winter (Note: 2nd year (qinggengcai))

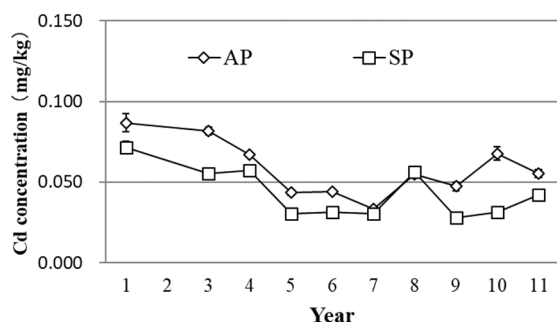


Figure 3-1 Cd concentration (content in the fresh matter) in spinach (Note: 2nd year (qinggengcai))

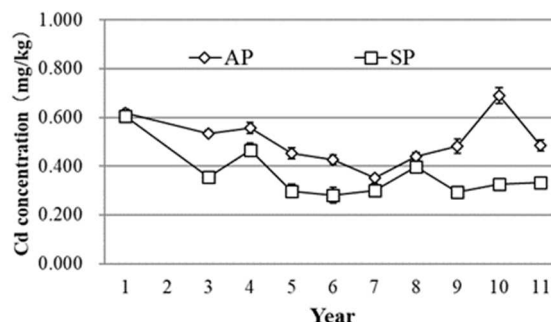


Figure 3-2 Cd concentration (content in the dry matter) in spinach (Note: 2nd year (qinggengcai))

(2) 跡地土壌のカドミウム

11年目冬作ホウレンソウ跡地土壌の0.1 mol/L HCl-Cd, pH(H₂O)及びECを分析した結果をTable 7に示した。0.1 mol/L HCl-Cdは、汚泥肥料施用区は0.32 mg/kg, 標準区は0.20 mg/kgであり、汚泥肥料施用区で有意に高かった($p=1.9 \times 10^{-5}$)。

Table 7 Characteristics of cultivated soil in winter 2019

	Unit	Test prot-1		Test prot-2		Average	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>							
0.1 mol/L HCl-Cd ^{a)}	mg/kg	0.32	0.31	0.33	0.33	0.32	Significance ^{d)}
pH (H ₂ O) ^{b)}		6.1		6.1			
EC ^{c)}	mS/cm	0.10		0.10			
<Standard plot(SP)>							
0.1 mol/L HCl-Cd	mg/kg	0.21	0.20	0.20	0.21	0.20	
pH (H ₂ O)		6.2		6.2			
EC	mS/cm	0.14		0.14			

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

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

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

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

2) 夏作ニンジン

(1) 作物体の収量, カドミウム濃度

12年目夏作ニンジンの結果をTable 8に示す。

収量は、汚泥肥料施用区で12.2 kg(葉部 6.8 kg, 根部 5.4 kg), 標準区で8.8 kg(葉部 4.8 kg, 根部 4.0 kg)であり、収量指数は142(葉部 142, 根部 134)であった。ニンジン現物中のカドミウム濃度は、汚泥肥料施用区で根部0.041 mg/kg, 葉部0.051 mg/kgであり、標準区で根部0.017 mg/kg, 葉部0.021 mg/kgであった。

また、ニンジン乾物中のカドミウム濃度について各区を比較したところ、汚泥肥料施用区で根部0.42 mg/kg, 葉部0.41 mg/kg, 標準区で根部0.16 mg/kg, 葉部0.17 mg/kgであり、根部($p=1.7 \times 10^{-8}$), 葉部($p=4.5 \times 10^{-6}$)の両部位で汚泥肥料区が有意に高い結果であった。

1年目から12年目における夏作の収量の推移をFigure 4-1(葉部), Figure 4-2(根部)に示した。12年目は播種後から雨天が続いた影響で試験区に水がたまり、標準区内に発芽しない箇所があった。その後の生育もあまり良くなかったため、標準区は例年に比べ収量が少ない結果となった。汚泥肥料施用区は11年目の収量と

同程度であった。

根菜類の Codex 基準値¹⁶⁾ (0.1 mg/kg) は可食部の根部について定められており、ニンジン現物中のカドミウム濃度は Figure5-1 に示した。根部のカドミウム濃度は Codex 基準値に対し、低い濃度で推移していた。汚泥肥料の連用によるニンジン乾物中のカドミウム濃度の推移は Figure 5-2 に示した。汚泥肥料施用区において本試験の乾物中カドミウム濃度は葉部 0.410 mg/kg, 根部 0.416 mg/kg であり、前年 11 年目の葉部 0.268 mg/kg, 根部 0.206 mg/kg と比較すると急激に上昇していた。

Table 8 Yield of carrot and Cadmium concentration (summer 2020)

	Part	Unit	Test plot-1		Test plot-2		Average	Yield index ^{b)}	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>									
Fresh weight	Root	kg	10.25		10.30		10.28	103	-
	Leaf	kg	5.80		5.60		5.70	95	-
	Total	kg	16.05		15.90		15.98	100	-
Cadmium concentration (dry matter)	Root	mg/kg	0.13	0.12	0.12	0.12	0.12	Pending ^{b)} Significance ^{c)}	
	Leaf	mg/kg	0.19	0.19	0.19	0.19	0.19		
Cadmium concentration (fresh matter)	Root	mg/kg	0.012	0.012	0.014	0.014	0.013	-	
	Leaf	mg/kg	0.023	0.024	0.024	0.025	0.024	-	
<Standard plot (SP)>									
Fresh weight	Root	kg	9.65		10.35		10.00		
	Leaf	kg	6.20		5.85		6.03		
	Total	kg	15.85		16.20		16.03		
Cadmium concentration (dry matter)	Root	mg/kg	0.10	0.11	0.08	0.08	0.10		
	Leaf	mg/kg	0.17	0.17	0.13	0.14	0.15		
Cadmium concentration (fresh matter)	Root	mg/kg	0.013	0.013	0.022	0.022	0.017		
	Leaf	mg/kg	0.010	0.010	0.017	0.017	0.014		

a) Yield of Standard plot was indexed as 100

b) 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))

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

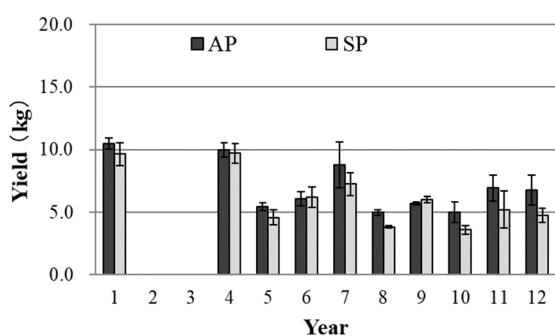


Figure 4-1 The yield of the carrot (leaf) in summer (Note: 2nd year (spinach), 3rd year (trunip))

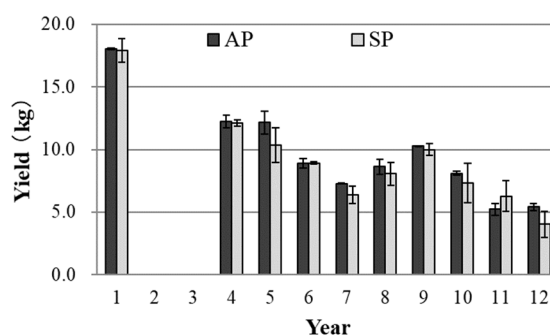


Figure 4-2 The yield of the carrot (root) in summer (Note: 2nd year (spinach), 3rd year (trunip))

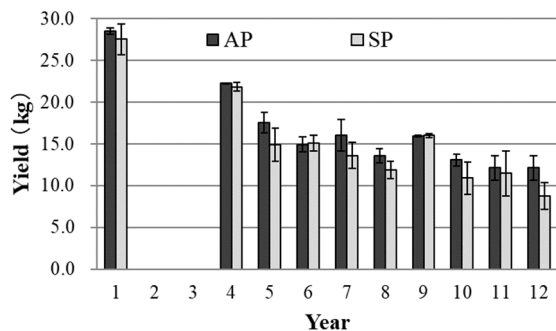


Figure 4-3 The yield of the carrot (total) in summer
(Note: 2nd year (spinach), 3rd year (trunipp))

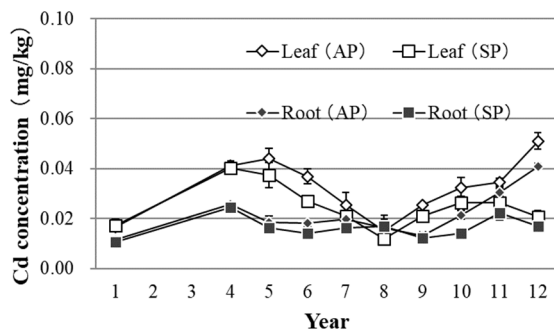


Figure 5-1 Cd concentration (content in the fresh matter) in carrot (Note: 2nd year (qinggengcai))

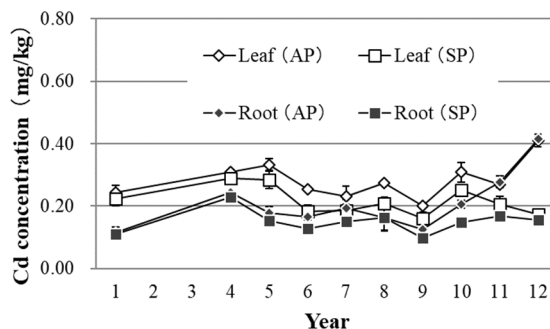


Figure 5-2 Cd concentration (content in the dry matter) in carrot (Note: 2nd year (qinggengcai))

(2) 跡地土壌のカドミウム

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

全カドミウム濃度は，汚泥肥料施用区は0.58 mg/kg，標準区は0.42 mg/kgで，汚泥肥料施用区が有意に高かった($p=2.1 \times 10^{-5}$)。

0.1 mol/L HCl-Cdは，汚泥肥料施用区は0.33 mg/kg，標準区は0.20 mg/kgであり，汚泥肥料施用区が有意に高かった($p=9.1 \times 10^{-6}$)。

Table 9 Characteristics of cultivated soil in summer 2020

	Unit	Test prot-1		Test prot-2		Average	Significance test
<Sludge-fertilizer-application plot (AP)>							
Total-Cd ^{a)}	mg/kg	0.58	0.58	0.59	0.58	0.58	Significance ^{e)}
0.1 mol/L HCl-Cd ^{b)}	mg/kg	0.33	0.31	0.34	0.34	0.33	Significance
pH (H ₂ O) ^{c)}		6.0		5.9			
EC ^{d)}	mS/cm	0.14		0.14			
<Standard plot (SP)>							
Total-Cd ^{a)}	mg/kg	0.41	0.43	0.42	0.42	0.42	
0.1 mol/L HCl-Cd ^{b)}	mg/kg	0.20	0.20	0.21	0.20	0.20	
pH (H ₂ O) ^{c)}		6.1		6.2			
EC ^{d)}	mS/cm	0.08		0.07			

a) Content in the dry matter

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

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

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

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

3) 跡地土壌中のカドミウムの推移

(1) 跡地土壌の全カドミウム濃度

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

汚泥肥料施用区及び標準区の全カドミウム濃度の推移について傾向を把握するため、それぞれの処理区における、1 年目夏作からの経過月 (夏作から次の夏作までの間隔は 12 ヶ月とした) に対する全カドミウム濃度の線形単回帰分析を行い (単回帰式の分散分析表の p 値により評価した (両側有意水準 5 %) (Table 10)). 2020 年夏作跡地までの汚泥肥料施用区は上昇傾向 ($p=3.00 \times 10^{-4}$) が認められ、標準区は下降傾向 ($p=1.42 \times 10^{-4}$) が認められた。

汚泥肥料施用区及び標準区の全カドミウム濃度を比較したところ、調査した 1 年目夏作から汚泥肥料施用区が標準区より有意に高くなっており、その差は 2012 年夏作以降、顕著なものとなり以後同様の結果が続いている。これは、汚泥肥料施用区は汚泥肥料由来のカドミウムの供給量が、作物体の収穫による土壌中カドミウムの圃場外への持ち出し量よりも多いため、カドミウムが蓄積する傾向にあるが、標準区は肥料由来のカドミウムの供給がないことを示している。

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

Year	Season	Test Crops	Ap ^{b)} (mg/kg)	SP ^{c)} (mg/kg)	Significance test (difference between the processing)	p-value of single regression analysis ^{d)}	
						Ap ^{b)}	SP ^{c)}
1st	Summer	Carrot	0.51 (0.02) ^{e)}	0.48 (0.03)	Significance ^{f)}	—	—
2nd	Summer	Spinach	0.52 (0.01)	0.49 (0.03)	Significance	—	—
3rd	Summer	Turnip	0.51 (0.02)	0.48 (0.02)	Significance	—	—
4th	Summer	Carrot	0.52 (0.02)	0.46 (0.03)	Significance	—	—
5th	Summer	Carrot	0.53 (0.01)	0.46 (0.03)	Significance	—	—
6th	Summer	Carrot	0.57 (0.03)	0.47 (0.03)	Significance	$p < 0.05^g)$	0.16
7th	Summer	Carrot	0.57 (0.01)	0.46 (0.01)	Significance	$p < 0.01$	0.06
8th	Summer	Carrot	0.54 (0.00)	0.45 (0.02)	Significance	$p < 0.05$	$p < 0.05$
9th	Summer	Carrot	0.61 (0.01)	0.46 (0.01)	Significance	$p < 0.01$	$p < 0.05$
10th	Summer	Carrot	0.58 (0.03)	0.41 (0.03)	Significance	$p < 0.01$	$p < 0.01$
11th	Summer	Carrot	0.58 (0.00)	0.42 (0.00)	Significance	$p < 0.01$	$p < 0.01$
12th	Summer	Carrot	0.58 (0.01)	0.42 (0.01)	Significance	$p < 0.01$	$p < 0.01$

a) Content in the drying soil

b) Sludge-fertilizer-application plot

c) Standard plot

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

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

f) It was significantly different for processing examination section

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

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

(2) 跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd の推移

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

汚泥肥料施用区及び標準区の 0.1 mol/L HCl-Cd の推移について傾向を把握するため，それぞれの処理区における試験開始時からの経過月（各試験の間隔は 6 ヶ月とした）に対する 0.1 mol/L HCl-Cd の線形単回帰分析を行った（単回帰式の分散分析表の p 値により評価，両側有意水準 5 %）（Table 11）。12 年目夏作跡地までの汚泥肥料施用区の回帰は有意となり，上昇傾向が認められた ($p=5.4 \times 10^{-4}$)。10 年目夏作までの各採取時期時点における汚泥肥料施用区の回帰は有意でなく一定で推移している傾向であったが，直近 2 回（11 年目冬作及び 12 年目夏作）の分析値が高い値を示し，上昇に転じた。

一方，標準区では，3 年目冬作以降，11 年目冬作までの各採取時期時点における回帰は有意となり下降傾向が認められていたが，12 年目夏作を含めた回帰は有意でなく一定で推移している傾向となった。これは跡地土壌の 0.1 mol/L HCl-Cd 濃度が 11 年目冬作 0.20 mg/kg，12 年目夏作 0.20 mg/kg と直近 2 回の分析値が他の採取時期における分析値と比較して高い値を示したことによる。

また，高い値を示した 11 年目冬作 0.20 mg/kg，12 年目夏作の土壌の pH は上記 Table 7，Table 9 に示したとおり，汚泥肥料施用区 pH 5.9～6.1，標準区 pH 6.1～6.2 と過去と比較し，低い値であった。

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

Year	Season	Test Crops	Ap ^{b)} (mg/kg)	SP ^{c)} (mg/kg)	Significance test (difference between the processing)	P-value of single regression analysis ^{d)}	
						Ap ^{b)}	SP ^{c)}
—	Start	—	0.19 (0.01) ^{e)}	0.20 (0.02)	N.S. ^{f)}	—	—
1st	Summer	Carrot	0.21 (0.01)	0.21 (0.02)	N.S.	—	—
1st	Winter	Spinach	0.20 (0.003)	0.18 (0.01)	Pending ^{g)}	—	—
2nd	Summer	Spinach	0.19 (0.01)	0.17 (0.02)	Pending	—	—
2nd	Winter	Qing geng cai	0.18 (0.02)	0.18 (0.01)	N.S.	0.55	0.20
3rd	Summer	Turnip	0.19 (0.004)	0.18 (0.01)	Pending	0.41	0.11
3rd	Winter	Spinach	0.20 (0.01)	0.17 (0.01)	Significance ^{h)}	0.63	< 0.05
4th	Summer	Carrot	0.19 (0.005)	0.15 (0.01)	Significance	0.41	< 0.01
4th	Winter	Spinach	0.21 (0.01)	0.17 (0.01)	Significance	0.98	< 0.01
5th	Summer	Carrot	0.20 (0.004)	0.16 (0.01)	Significance	0.89	< 0.01
5th	Winter	Spinach	0.22 (0.01)	0.16 (0.004)	Significance	0.34	< 0.01
6th	Summer	Carrot	0.20 (0.01)	0.15 (0.005)	Significance	0.30	< 0.01
6th	Winter	Spinach	0.21 (0.01)	0.15 (0.003)	Pending	0.17	< 0.01
7th	Summer	Carrot	0.15 (0.01)	0.11 (0.005)	Significance	0.80	< 0.01
7th	Winter	Spinach	0.16 (0.01)	0.11 (0.001)	Pending	0.29	< 0.01
8th	Summer	Carrot	0.19 (0.02)	0.12 (0.005)	Pending	0.30	< 0.01
8th	Winter	Spinach	0.17 (0.01)	0.11 (0.002)	Significance	0.16	< 0.01
9th	Summer	Carrot	0.21 (0.002)	0.14 (0.004)	Significance	0.45	< 0.01
9th	Winter	Spinach	0.27 (0.004)	0.17 (0.005)	Significance	0.51	< 0.01
10th	Summer	Carrot	0.27 (0.01)	0.17 (0.003)	Significance	0.15	< 0.01
10th	Winter	Spinach	0.27 (0.01)	0.16 (0.01)	Significance	< 0.05	< 0.01
11th	Summer	Carrot	0.25 (0.003)	0.15 (0.002)	Significance	< 0.05	< 0.01
11th	Winter	Spinach	0.32 (0.01)	0.20 (0.01)	Significance	< 0.01	< 0.05
12th	Summer	Carrot	0.33 (0.01)	0.20 (0.003)	Significance	< 0.01	0.20

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) N.S. 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) Pending was pending decision to be significantly different for Standard plot and for interaction

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

h) Significance 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))

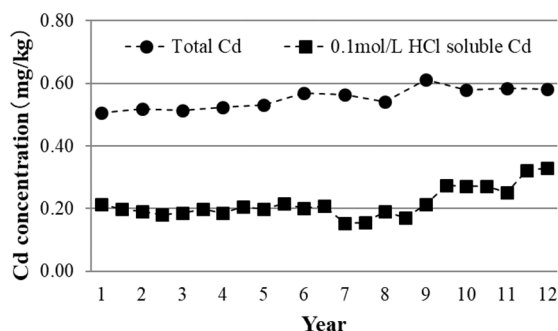


Figure 6-1 Cd concentration of cultivated soil
(AP: Sludge-fertilizer-application plot)

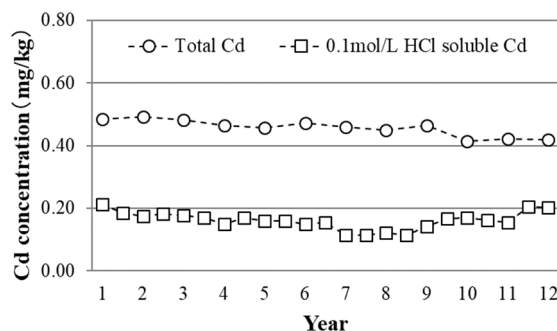


Figure 6-2 Cd concentration of cultivated soil
(SP: Standard plot)

(3) カドミウムの負荷量，持ち出し量及び蓄積量

1 年目夏作～12 年目年夏作の試験において，施肥した汚泥肥料由来のカドミウム投入量である負荷量，作物を栽培したことによるカドミウムの持ち出し量，土壌への蓄積量及び乾土中のカドミウム蓄積濃度を Table 12, Figure 7 に示した. 表中，試験区へのカドミウムの負荷量は，汚泥肥料中のカドミウム含有量に試験区(4 m²)への施用量を乗じて算出した. 作物によるカドミウムの持ち出し量は，試験区における収穫した作物のカドミウム吸収量のこと，作物の収量に作物中のカドミウム濃度を乗じて算出した. 土壌へのカドミウム蓄積量は，汚泥肥料によるカドミウムの負荷量と作物によるカドミウムの持ち出し量の差により算出した. 土壌へのカドミウムの蓄積濃度は，カドミウムの蓄積量に試験区当たりの土壌量(作土の深さ 15 cm, 土壌の仮比重 0.7 とし，試験区(4 m²)当たりの土壌量を 420 kg とした)で除して算出した.

汚泥肥料施用区では，各試験において，カドミウム負荷量と比較して持ち出し量が少ないことから土壌のカドミウム収支がプラスとなるため，汚泥肥料の連用によるカドミウム負荷量の増加に伴って土壌蓄積するカドミウムが高まる傾向であることが考えられる. 実測値においても跡地土壌の全カドミウム濃度の増加傾向が認められている. 過去 23 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 131.7 mg/試験区(329 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 0.314 mg/kg となった.

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

Year	Season	Test Crops	Sludge-fertilizer-application plot (AP)				Standard plot (SP)			
			Quantity of cadmium ^{a)}			Concentration of cadmium accumulation ^{e)}	Quantity of cadmium ^{a)}			Concentration of cadmium accumulation ^{e)}
			Load ^{b)}	Removal ^{c)}	Accumulation ^{d)}		Load ^{b)}	Removal ^{c)}	Accumulation ^{d)}	
(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/kg)	(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/plot)	(mg/kg)			
1st	Summer	Carrot	4.84	0.39	4.45	0.011	0	0.37	-0.37	-0.001
1st	Winter	Spinach	4.40	1.18	3.22	0.008	0	1.34	-1.34	-0.003
2nd	Summer	Spinach	3.30	0.72	2.58	0.006	0	0.96	-0.96	-0.002
2nd	Winter	Qing geng cai	2.64	0.21	2.43	0.006	0	0.21	-0.21	-0.0005
3rd	Summer	Turnip	3.30	0.17	3.13	0.007	0	0.20	-0.20	-0.0005
3rd	Winter	Spinach	7.04	0.66	6.37	0.015	0	0.56	-0.56	-0.001
4th	Summer	Carrot	7.28	0.73	6.55	0.016	0	0.68	-0.68	-0.002
4th	Winter	Spinach	7.28	0.75	6.53	0.016	0	0.75	-0.75	-0.002
5th	Summer	Carrot	7.28	0.46	6.82	0.016	0	0.34	-0.34	-0.001
5th	Winter	Spinach	7.28	0.73	6.55	0.016	0	0.53	-0.53	-0.001
6th	Summer	Carrot	7.28	0.38	6.90	0.016	0	0.29	-0.29	-0.001
6th	Winter	Spinach	7.28	0.65	6.63	0.016	0	0.42	-0.42	-0.001
7th	Summer	Carrot	7.28	0.36	6.92	0.016	0	0.26	-0.26	-0.001
7th	Winter	Spinach	7.28	0.71	6.57	0.016	0	0.59	-0.59	-0.001
8th	Summer	Carrot	7.28	0.21	7.07	0.017	0	0.18	-0.18	-0.0004
8th	Winter	Spinach	7.28	0.60	6.68	0.016	0	0.57	-0.57	-0.001
9th	Summer	Carrot	7.28	0.28	7.00	0.017	0	0.24	-0.24	-0.001
9th	Winter	Spinach	7.28	0.51	6.77	0.016	0	0.38	-0.38	-0.001
10th	Summer	Carrot	7.28	0.33	6.95	0.017	0	0.20	-0.20	-0.0005
10th	Winter	Spinach	5.38	1.00	4.38	0.010	0	0.51	-0.51	-0.001
11th	Summer	Carrot	5.38	0.40	4.98	0.012	0	0.28	-0.28	-0.001
11th	Winter	Spinach	5.38	0.67	4.71	0.011	0	0.53	-0.53	-0.001
12th	Summer	Carrot	8.08	0.57	7.52	0.018	0	0.17	-0.17	-0.0004
Total			144.38	12.67	131.71	0.314	0.000	10.568	-10.57	-0.025

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 applied

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

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

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

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

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

Year	Season	Test Crops	Actual measurement		Theoretical value	
			AP ^{b)} (mg/kg)	SP ^{c)} (mg/kg)	AP ^{b)d)} (mg/kg)	SP ^{c)e)} (mg/kg)
1st	Summer	Carrot	0.51 (0.02) ^{f)}	0.48 (0.03)	0.51	0.48
2nd	Summer	Spinach	0.52 (0.01)	0.49 (0.03)	0.52	0.47
3rd	Summer	Turnip	0.51 (0.00)	0.48 (0.00)	0.53	0.47
4th	Summer	Carrot	0.52 (0.02)	0.46 (0.02)	0.56	0.47
5th	Summer	Carrot	0.53 (0.00)	0.46 (0.00)	0.60	0.47
6th	Summer	Carrot	0.57 (0.02)	0.47 (0.03)	0.63	0.46
7th	Summer	Carrot	0.57 (0.00)	0.46 (0.00)	0.66	0.46
8th	Summer	Carrot	0.54 (0.01)	0.45 (0.03)	0.69	0.46
9th	Summer	Carrot	0.61 (0.00)	0.46 (0.00)	0.73	0.46
10th	Summer	Carrot	0.58 (0.03)	0.41 (0.03)	0.76	0.46
11th	Summer	Carrot	0.58 (0.00)	0.42 (0.00)	0.78	0.46
12th	Summer	Carrot	0.58 (0.01)	0.42 (0.01)	0.81	0.45

a) Total-Cd concentration in the drying soil

b) Sludge-fertilizer-application plot

c) Standard plot

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

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

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

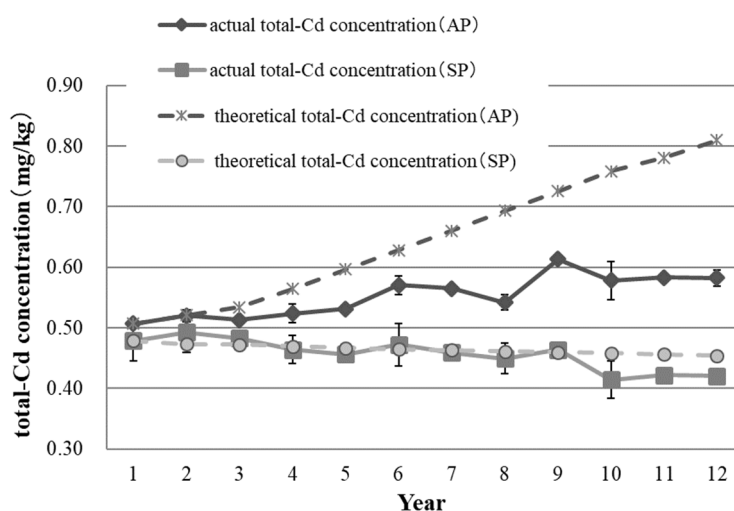


Figure 7 Changes in the actual total-Cd concentration and the theoretical total-Cd concentration of soil after harvest

5. まとめ

肥料の有効性及び安全の確保に必要な課題に関する調査研究として、汚泥肥料の連用施用試験を2009年より行っており、汚泥肥料施用区及び汚泥肥料無施用の標準区の2試験区に、11年目冬作としてホウレンソウを、12年目夏作としてニンジンを栽培し、土壌中のカドミウム濃度の変化及び作物体中のカドミウム濃度を確認した。11年目冬作ホウレンソウ現物中のカドミウム濃度は、汚泥肥料区で0.055 mg/kg、標準区で0.042 mg/kgであり、Codex基準値(0.2 mg/kg)に対して低い結果であった。また、ホウレンソウ乾物中のカドミウム濃度は汚泥肥料施用区が標準区に対して有意に高い結果であった。

ニンジン現物中のカドミウム濃度は、汚泥肥料施用区で葉部0.051 mg/kg、根部0.041 mg/kg、標準区で葉部0.021 mg/kg、根部0.017 mg/kgであった。可食部である根部の濃度はCodex基準値(0.1 mg/kg)に対して低い結果であった。

また、ニンジン乾物中のカドミウム濃度について各区を比較したところ、葉部及び根部の両部位で汚泥肥料施用区が有意に高い結果であった。12年目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。汚泥肥料施用区においてニンジンの乾物中カドミウム濃度は葉部0.410 mg/kg、根部0.416 mg/kgであり、前年(11年目)の葉部0.268 mg/kg、根部0.206 mg/kgと比較すると急激に上昇していた。

1年目から12年目の跡地土壌中の全カドミウム濃度及び0.1 mol/L HCl-Cd濃度の推移を解析したところ、汚泥肥料施用区の全カドミウム濃度は増加傾向を示しており、汚泥肥料に含有するカドミウムが土壌に蓄積していることが示された。一方で、汚泥肥料施用区の0.1 mol/L HCl-Cdについては10年目夏作までは一定に推移する傾向が示されていたが、10年目冬作以降は増加傾向を示しており、特に直近2作(11年目冬作及び12年目夏作)の分析値が高い値を示していた。汚泥肥料に含有するカドミウムは土壌中では有機物等と結合¹⁷⁾することにより不溶化していると考えられている。しかしながら、汚泥肥料施用区において10年目夏作まで6.4付近で安定していた跡地土壌のpHが、11年冬作6.1、12年目夏作6.0と下がったことにより、カドミウムが0.1 mol/L HClに溶ける状態となったため高い値を示したと考えられる。

標準区の全カドミウム濃度は減少傾向であり、0.1 mol/L HCl-Cdについては11年目冬作までは減少傾向を示していたが、12年目夏作を含めた傾向は一定推移に変化した。標準区の跡地土壌においても、11年目夏作まで6.4付近で安定していたpHが、11年目冬作6.2、12年目夏作6.2と下がったことにより、汚泥肥料区と同じ事由からカドミウムが0.1 mol/L HClに溶ける状態となったと考えた。そのため、今回「横ばいで推移」との解析結果が得られたが、pHの低下がなければ前年までの報告どおり、標準区の全カドミウムは施肥によるカドミウムの供給がないため減少し、また、作物体は0.1 mol/L HCl-Cdを持ち出すため、土壌中の0.1 mol/L HCl-Cdも減少すると考えられた。

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

これまでの汚泥肥料の試験区への連用の結果、収穫された作物のCd濃度及び土壌へのCdの蓄積について当分は問題ないと言える。しかしながら、作物や土壌への影響について明確な傾向が把握されたとは言えず、今後もモニタリングしていく必要がある。

文 献

- 1) 農林水産省告示:肥料取締法に基づき普通肥料の公定規格を定める等の件, 昭和 61 年 2 月 22 日, 農林水産省告示第 284 号, 最終改正令和 3 年 6 月 14 日, 農林水産省告示第 1010 号(2021)
- 2) 農林水産省 消費・安全局 農産安全管理課 肥料企画班:汚泥肥料の規制のあり方に関する懇談会報告書 平成 21 年 3 月, (2009)
< http://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_hiryo/odei_hiryo/pdf/honnun.pdf >
- 3) 舟津正人, 阿部文浩, 添田英雄:カドミウムの土壌蓄積及び作物吸収における汚泥肥料連用の影響, 肥料研究報告, **4**, 74-84, (2011)
- 4) 松尾信吾, 浅尾直紀, 村山和晃, 青山恵介, 小塚健志, 阿部文浩:汚泥肥料の連用によるカドミウム等の土壌への蓄積, 作物への吸収試験(継続)－2018年冬作・2019年夏作－, 肥料研究報告, **10**, 146-167, (2020)
- 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(2020)
< http://www.famic.go.jp/ffis/fert/obj/shikengo_2020.pdf >
- 6) 埼玉県ホームページ:主要農作物施肥基準 平成 25 年 3 月
< <http://www.pref.saitama.lg.jp/a0903/sehikijun.html> >
- 7) 千葉県 農林水産技術推進会議農林部会:肥料価格高騰に伴う土壌管理・施肥適正化指導指針 平成 20 年 9 月, **20**, (2008)
< <http://www.pref.chiba.lg.jp/ninaite/network/h21-fukyuu/documents/kakakukoutou.pdf> >
- 8) 栃木県 農作物施肥基準－環境と調和のとれた土づくり・施肥設計の手引き 平成 18 年 1 月, **110**, (2006) < <http://www.pref.tochigi.lg.jp/g04/work/nougyou/keiei-gijyutsu/sehikijun.html> >
- 9) 群馬県 作物別施肥基準及び土壌診断基準 おでい肥料と土壌の重金属
< <http://www.aic.pref.gunma.jp/agricultural/management/technology/soil/01/index.html> >
- 10) 農林水産省 消費・安全局 農産安全管理課 肥料企画班:汚泥肥料の施用に係る指導実態等に関するアンケート結果(抜粋), (2008)
< http://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_hiryo/odei_hiryo/pdf/03_data1.pdf >
- 11) 有機性汚泥の緑農地利用委員会:有機性汚泥の緑農地利用, **183**, 博友社, 東京(1991)
- 12) 農林水産省:地力増進基本指針, 平成 20 年 10 月 16 日
< http://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyo/hozen_type/h_dozyo/pdf/chi4.pdf >
- 13) 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) 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/ >
- 17) 独立行政法人 農業環境技術研究所:農作物中のカドミウム低減対策技術集, 平成 23 年 3 月, **49**, (2011)
- 18) 後藤茂子, 林浩昭, 山岸順子, 米山忠克, 茅野充男:下水汚泥コンポストの長期連用に伴う重金属の土壌への蓄積と水平方向への移行, 日本土壌肥科学雑誌, **73**(4), 391-396, (2002)

- 19) 阿部進, 鈴木時也, 田中雄大, 阿部文浩, 橋本良美, 廣井利明, 加島信一:カドミウムの土壌蓄積及び作物吸収における汚泥肥料連用の影響(継続)－2014年冬作・2015年夏作－, 肥料研究報告, **8**, 77-108, (2016)

Effect of Continuous Application of Sludge Fertilizer on Cadmium Absorption of the Crop and Accumulation of Cadmium in the Soil (Continued Report)
- Winter 2019 and Summer 2020 -

ASAO Naoki¹, MURAYAMA Kazuaki², MATSUO Shingo³,
KOZUKA Kenji⁴, ABE Fumihiko⁵

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

² Food and Agricultural Materials Inspection Center, Fertilizer and Feed Inspection Department
(Now) Agricultural Chemicals Inspection Station

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

⁴ Food and Agricultural Materials Inspection Center, Fertilizer and Feed Inspection Department
(Now) Kobe Regional Center

⁵ Food and Agricultural Materials Inspection Center, Fertilizer and Feed Inspection Department
(Now) Nagoya Regional Center

We have been researching Cd absorption of the crop and accumulation in the soil used sludge fertilizer since 2009. The soil is composed of the Andosol. We cultivated spinach in winter 2019 and carrot in summer 2020. 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 in winter 2019 (750 kg/10 a in summer 2020) of the sludge fertilizer and chemical reagents for the crops. The amount of nitrogen, phosphorus and potassium applied to each plot was designed based on the fertilization standard shown on the Saitama prefecture's web site. The concentration of total cadmium in the crop, acid-solubility-Cd in the soil after each of the harvests were measured by the inductivity coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). As a result, the soil in the AP after the harvests has indicated a high concentration of the total-Cd compared with the soil in the SP since summer 2012. The concentration of total-Cd in the soil (from summer 2009 to summer 2020) showed significant increasing trend in the AP. The concentrations of cadmium in each crop harvested (from summer 2009 to summer 2020) 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, **14**, 141-161, 2020)