

鉛の土壌および農作物汚染に関する最近の研究動向

誌名	日本土壌肥料学雑誌 = Journal of the science of soil and manure, Japan
ISSN	00290610
著者	前島, 勇治 川崎, 晃
巻/号	77巻1号
掲載ページ	p. 119-124
発行年月	2006年2月

鉛の土壌および農作物汚染に関する最近の研究動向

前島 勇治*・川崎 晃*

キーワード 鉛汚染土壌, 農作物の鉛汚染, 存在形態, 浄化技術

1. はじめに

平成3年に策定された土壌環境基準¹⁾では、汚染土壌がヒト健康に影響を及ぼす経路として土壌汚染に由来して汚染した地下水を飲用する経路や、汚染土壌で生育した農作物を摂取する経路が想定されていた。しかし、平成15年2月に新たに施行された土壌汚染対策法²⁾では、上記の経路に加えて、土ほこりを吸い込んでしまう場合や子供が手に付いた土を口にしてしまう場合など汚染土壌の摂食および皮膚接触(吸収)などの土壌そのものを直接摂取する経路³⁾を取り上げている。そして、それに対する基準値を鉛(Pb)、カドミウム(Cd)、ヒ素(As)など9元素について、1 mol L⁻¹ 塩酸を用いて振とうにより土壌から溶出される量を「含有量基準値」として設定している⁴⁾。ところで、Pbに関しては、1970年代まで使用されていた有鉛ガソリンの排気ガス中のPbが道路沿いの土壌汚染の主要な汚染源であることが、Pb同位体比の研究から明らかにされている。また、農耕地土壌へのPbのインプットとしては、自動車の排気ガスの他に、非鉄金属の燃焼、肥料、除草剤、殺虫剤、下水汚泥の施用などが挙げられている^{5,6)}。

一方、国際的には食品中Pbの基準設定値は、既にコーデックス基準値(CODEXSTAN 230-2001)として決定されており、穀類・豆類では現物当たり0.2 mg kg⁻¹となっている。現在、Cdに関しては、さまざまな対策が行われているところであるが、日本のCd汚染地域の多くは同時にPbによっても汚染されている場合がある^{7,8)}ので、今後、Pb汚染についても十分な調査を行う必要がある。そこで国内および海外のPbの土壌汚染に関する最近の研究例をできる限り広く集めて、ここに資料としてまとめた。

2. 土壌中におけるPbの存在形態と移動性

浅見ら⁹⁾、Asamiら^{10,11)}は、McLaren and Crawford¹²⁾の方法を改良し、非汚染および汚染土壌中Cd, 亜鉛(Zn), Pb, 銅(Cu)を5つの画分(交換態, 無機結合態, 有機結合態, 吸蔵態および残渣態)に分画した。その結果、最も可動性に富み、植物によって吸収されやすいと考えられる交換態画分としての存在割合は、Cdでは全量の約45%であるのに対し、Pb, Cu, Znでは10%以下であった。一方、有機結合態画分としての存在割合は、PbとCuでは約30%、CdとZnでは10%以下であることから、PbとCuの土壌有機物への親和性は、CdやZnに比べて高いことが示唆された。

Li・大坪¹³⁾はカナダの高速道路沿いの排気ガスで汚染された土壌中のPb含有量と炭素含量の間に有意な正の相関を認め、有機物含量が土壌によるPbの吸着能の指標となることを報告している。また、蒸留水(pH 5.6)と希硝酸溶液(pH 4.0)による土壌からのPbの溶出濃度は概ね2 mg L⁻¹以下であったため、土壌中でのPbの移動性はきわめて低いものと考えられている。しかし、カナダと比較して日本では道路に隣接して多くの農地、商業地、住宅地があり、土壌汚染に伴うリスクは大きいと指摘している。

Pueyoら¹⁴⁾は、Community Bureau of Reference (BCR)の提案する3段階逐次抽出法を改良した方法で汚染土壌中のAs, ビスマス(Bi), Cd, Cu, Pb, タリウム(Tl), Znの形態別分析を行い、その移動性を評価した。1段階目の0.11 mol L⁻¹ 酢酸を用いた抽出では、Cdが最も多く抽出され、ZnとCuがそれに次いだが、Pb, Tl, BiおよびAsはほとんど抽出されなかった。したがって、土壌中において移動性に富む元素(Cd, Zn, Cu)とほとんど移動しない元素(Pb, Tl, Bi, As)に分けられると報告している。

McBrideら¹⁵⁾は、汚染土壌におけるCu, Zn, CdおよびPbの溶解性について調べ、土壌pH, 有機物含量, 全重金属含量から各重金属の溶出予測式を提案している。これによると、土壌からのPbの溶出特性と土壌中の全Pb含量との間に一定の関係が見出せず、Pbは他の重金属と

Yuji Maejima and Akira Kawasaki: Recent Research on Lead Contamination in Soils and Crops

* (独) 農業環境技術研究所 (305-8604 つくば市観音台 3-1-3)

2005年9月28日受付・受理

日本土壌肥科学雑誌 第77巻 第1号 p.119~124 (2006)

比較してその溶出量を予測しにくい元素であると指摘している。

Kabala and Singh¹⁶⁾ は、銅製錬工場付近の土壤について土壤層位ごとに Tessier ら¹⁷⁾ の方法を一部改良した Salbu ら¹⁸⁾ の方法を用いて Cu, Pb, Zn の存在形態を調べ、重金属の移動性を“Mobility Factor (土壤中の全 Pb 含量に対する交換態および酸可溶態 Pb 含量の割合)”¹⁹⁾ により評価した。これによると、Pb の Mobility Factor は、土壤中の全 Pb 含量と強い正の相関関係が認められ、人工的に加わった重金属は比較的弱い結合形態で土壤中に存在していると結論付けている。この結果は McBride ら¹⁵⁾ の結果と一見相反しているようだが、今後の課題として、Pb やその他微量重金属の土壤中におけるエージング (土壤中における重金属の安定化もしくはより抽出されにくい形態への変化) という観点から研究を行う必要がある。

Ettler ら¹⁹⁾ は、鉛冶金によって高濃度に汚染された森林下およびこれに隣接した耕地の土壤中 Pb の形態分析を行った結果、森林土壤中の Pb は主に交換態および有機物結合態に多く、耕地土壤中の Pb は鉄マンガ酸化吸蔵態に多く存在することを明らかにした。さらに、Kabala and Singh¹⁶⁾ と同様に土壤層位ごとに Mobility Factor を算出し、土壤断面内における Pb の移動性を評価したところ、森林土壤中の Pb は耕地土壤中の Pb に比べて非常に移動性が高いことが明らかとなった。

3. 資材からの Pb の土壤負荷

家畜ふん堆肥の重金属含有量に関しては、折原ら²⁰⁾ が神奈川県内で生産されている牛ふん堆肥、豚ふん堆肥および鶏ふん堆肥を調査している。その結果、As, Cd, 水銀 (Hg) および Pb は全体的に少なかったが、一部の堆肥では、Zn, Cu, マンガン (Mn) および Pb が高濃度に含有されていることが分かり、これらの高濃度に含有された重金属は、主におがくずやチップなどの木質系副資材に由来することが示唆された。

森ら²¹⁾ は、日本全国から収集した堆肥、牧草および飼料作物、草地飼料畑の表層土壤中の Cu, Zn, Cd, Pb 濃度をそれぞれ測定し、その分析値と堆肥生産量、作物収量等の統計資料に基づき、我が国の草地飼料畑における微量重金属の堆肥による投入量と牧草および飼料作物による収奪量を推定した。また、EU 諸国の畜産農家における微量重金属収支の推定結果²²⁾ と照らし合わせ、我が国の草地飼料畑における微量重金属の投入量と収奪量について考察を行った。これによると、堆肥中の Pb 濃度は、牛ふん堆肥、豚ふん堆肥、鶏ふん堆肥といった畜種間差は認められず、作物中の Pb 濃度も牧草、ソルガム、トウモロコシにおいて作物間差は認められなかった。しかし、EU 諸国の畜産農家における微量重金属収支の推定結果と同様、我が国の草地飼料畑においても Cu, Zn, Cd, Pb の堆肥による投入量は、牧草および飼料作物による収奪量より大きく、これらの微量重金属は草地飼料畑において蓄積傾向に

あると推定している。

下水汚泥に関しては、後藤ら²³⁾ が下水汚泥コンポストを 20 余年連用した試験圃場の深さ 10 cm までの土壤中の Zn, Cu, Cd, Pb 含有量の経年変化と水平方向 (試験区外) への移行について調べている。

Oliver ら²⁴⁾ は、オーストラリアにおいて 2001 年と 1983 年の下水汚泥バイオソリッド中の Pb 含量を測定した結果、Pb 含量が 18 年間で大幅に減少していた。この理由として、有鉛ガソリンから無鉛ガソリンに切り替わり、都市および工業地域における大気由来の Pb 降下量が減少したためであると推察している。

4. 土壤、各種農作物および食品中 Pb 濃度

農耕地土壤中の Pb 濃度の実態や農作物への影響に関する試験・研究例は非常に少ない。前野ら²⁵⁾ によると、農作物中 Pb 濃度は、0.3~3.3 mg kg⁻¹ の範囲でかなり幅があり、玄米で最も少なく、ダイコン、ネギ、キュウリ、ジャガイモ、キャベツ、トマト、ハクサイ、ハウレンソウで比較的多いと報告している。しかし、その生育、収量に及ぼす影響は比較的小さく、土壤中の Pb 濃度が 1,600 mg kg⁻¹ でラッカセイに対して、また 20,000 mg kg⁻¹ で水稻に対してやや収量の減少傾向がみられたのみであるとの報告がある²⁵⁾。また、前野ら²⁵⁾ は土壤中 Pb 濃度の上昇とともに農作物中の Pb 濃度は著しく増大するが、その影響は根に最も顕著に現れ、地上部特に子実への移行は少ないと判断している。

浅見ら²⁶⁾ は、神通川流域の婦中土壤と亜鉛製錬工場近くの安中土壤を用いて、水稻のポット栽培試験を行っている。幼穂形成期以後、灌漑水をできるだけ少なくした落水区は、常時湛水区と比べて重金属の植物体への吸収移行率は高くなるが、その程度は Cd が 4.2~4.4 倍で最も著しく、Zn が 2.3~2.5 倍でこれに次いだ。Pb は根、葉、茎中の濃度はいずれも落水区/湛水区が 1.9~2.3 倍であり、葉、茎における Cd や Zn のような水管理の著しい影響は認められなかった。Pb の植物体部位別濃度は、前野ら²⁵⁾ と同様、根>茎葉>モミガラとなったが、玄米中濃度は検出限界以下となり、Pb の玄米への移行は僅かであることを明らかにしている。

しかし、最近、佐々木ら²⁷⁾ は土壤から農作物へのウラン (U), トリウム (Th), ラジウム (Ra) および Pb の移行係数と線量評価を行い、イネ (精米・玄米)、バレイショ、タマネギ、キャベツ、ハウレンソウ、ミカンおよびリンゴへの Pb の移行係数 (土壤中元素濃度に対する農作物中元素濃度) を調査しており、イネ>ハウレンソウ>その他の順となることを明らかにしている。また、ハウレンソウ葉面への Pb の沈着量を測定した結果、ハウレンソウに含まれる Pb の約半分は大気からの直接沈着経路による可能性が高いことを指摘している²⁷⁾。

海外では Dalenberg and Driel²⁸⁾ が放射性同位体である ¹⁰⁹Cd および ²¹⁰Pb を土壤に添加後、イタリアンライグ

ラス、ハウレンソウ、ニンジンおよび小麦を栽培し、同位体希釈法により、農作物中 Cd および Pb 濃度への大気沈着の寄与を調べた。その結果、いずれの作物の茎葉、および小麦子実・稈中 Pb 濃度の 73~95% が大気沈着に由来することを明らかにした。

Berthelsen ら²⁹⁾ は、ノルウェーにおいて 1982 年と 1992 年に採取した植物およびその近傍の表層土の Pb 含量を測定し、10 年間における変化を比較したところ、表層土の Pb 濃度は変化しなかったのに対し、植物中 Pb 含量が明らかに減少していた。その結果、植物中 Pb 含量に及ぼす大気沈着の影響はかなり大きく、大気由来の Pb 沈着量は 10 年間で 70% も大幅に減少したことが明らかとなった。

Takeda ら³⁰⁾ は日本の土壌 514 点の 57 元素を測定し、日本の土壌中の元素組成を明らかにしている。Pb 含量は褐色森林土や赤黄色土と比較して火山灰土壌で低く、また母材の岩質では苦鉄質よりも珪長質のほうが多く含まれる傾向があることが示唆された。また、農耕地と非農耕地土壌における Pb 含量の表層/次表層の比がどちらも 1 を超えることから、農耕地利用によるだけでなく、大気由来や植物による吸収などによる表層への集積が示唆された。

(独) 産業技術総合研究所³¹⁾ は、日本全国から系統的に採取された約 3,000 個の河川堆積物中の有害元素を同一手法で定量し、全国規模の地球化学図を作成し、日本全土における有害元素 (As, Hg, Cd, アンチモン (Sb), Bi, Pb 等) をはじめとする 53 元素の濃度分布とバックグラウンドを明らかにしている。データは「日本の地球化学図」^{32,33)} として地質調査総合センターより出版されているほか、ホームページでも公開されている。

成田ら³⁴⁾ は、リンゴ園における土壌およびリンゴ果肉中の Pb 濃度を測定し、リンゴ園表層土壌中に農薬散布 (主にヒ酸鉛) に由来する Pb が蓄積していること、および果実中の Pb 含量と土壌中 Pb 含量との関係は認められなかったことを報告している。樹体各部の Pb 濃度は、細根で最高値となり、収穫果で最低値を示した。また、部位別配分率では、地上部よりも地下部で大きく、さらに蓄積量が多いほど地下部への配分率が高いという傾向を明らかにした。

Yaman ら³⁵⁾ によると、エチレンジアミン四酢酸 (EDTA) 抽出による土壌中 Pb 濃度とクワの子実中 Pb 濃度との間に正の相関が認められ、イチゴやリンゴでも土壌中 Pb 濃度の増加に伴い果実中 Pb 濃度が増加する傾向が認められたと報告している。しかし、樹園地の土壌中 Pb 含量と各種果実中の Pb 濃度との関係に関する研究は少なく、また、可食部となる果実中の Pb は極微量であることが多いので、高感度の Pb 測定法の開発が求められている。

Jin ら³⁶⁾ は、中国の茶園土壌において 0.5 mol L^{-1} 塩化カルシウム (CaCl_2) 溶液で土壌から抽出される Pb 量と茶葉中の Pb 含量との間に有意な正の相関関係を見出し

た。また、 $0.5 \text{ mol L}^{-1} \text{ CaCl}_2$ 抽出 Pb 量と土壌の炭素含量および pH との間に有意な正の相関関係が認められたことから、土壌有機物の集積と土壌の酸性化が Pb の可給性を増している結論づけている。

イネの栽培品種間差異については、Liu ら³⁷⁾ がインディカとジャポニカを含むイネの 20 栽培品種について Pb 汚染土壌 ($800 \text{ mg Pb kg}^{-1}$) を用いてポット栽培試験を行って、Pb の吸収と移行に関して品種間に有意な差は認められなかったことを報告している。また、部位別濃度も前野ら²⁵⁾ および浅見ら²⁶⁾ の報告と同様、根 > 茎葉 > モミガラとなり、玄米中濃度は他の部位に比べてきわめて少なくなっている。しかし、出穂期の茎葉中 Pb 濃度と登熟期の玄米中 Pb 濃度との間に有意な正の相関関係が認められることから、出穂期の茎葉中 Pb 濃度は、玄米中 Pb のリスク評価手法の一つとして有効であると考えられる。また、Pb は玄米中に一様に分布するのではなく、精白米中の Pb 含有率は玄米全体に対して約 30% であることを明らかにしている。

Zhang ら³⁸⁾ は、隣接する圃場で栽培された水稻と小麦中の Cd および Pb 濃度を測定したところ、玄米よりも玄麦のほうが統計的に有意に高いことを明らかにしている。また、Cd および Pb 濃度ともに精米により、米中濃度は低下するが、小麦の場合、製粉により Pb 濃度がやや増加するとの報告もある。

池田・今泉³⁹⁾ は、土壌 pH を調整した沖積土および黒ボク土に Pb を添加し、ハウレンソウ、コカブおよび小麦を栽培し、その生育、収量および Pb 吸収に与える影響を検討した。その結果、沖積土の低 pH 区において $1,000 \text{ mg kg}^{-1}$ の添加でハウレンソウ、コカブの可食部重量が 2~3 割減少し、各作物の Pb 含量は、黒ボク土に比べて沖積土で高く、高 pH 区に比べて低 pH 区で高かった。また、可食部 Pb 含量と、土壌の 1 mol L^{-1} 酢酸アンモニウム (pH 4.5) による抽出 Pb 量との間に正の相関関係が認められ、同抽出法による可食部 Pb 含量の推定が可能であることが示唆された。

食品中の Pb 含量に関しては、寺岡ら⁴⁰⁾ が食品中の Pb 濃度と 1 日摂取量を求めている。その結果、野菜類が比較的高く、新鮮物当たり平均 0.50 mg kg^{-1} であるが、そのなかでもかぶ葉 (2.3)、あおじそ (1.9)、さんしょ (1.6) などに多く、次いできのこ類 (平均 0.34) に多かった。逆に白米 (0.067)、ミルク (0.065)、果実 (0.12) などには少なかった。また、平均成人男子 1 人 1 日当たりの Pb 摂取量は、 $220 \mu\text{g}$ という値を算出している。

一方、田中ら⁴¹⁾ によると、日本の各種野菜中の Pb 濃度は、現物当たり $\leq 0.05 \sim 0.89 \text{ mg kg}^{-1}$ の範囲にあり、食用油、菓子、魚介類、肉、加工食品などからの摂取量も合わせて、日本人が 1 日に摂取する Pb 量は 68 (不検出 ~ 310) μg と推定している。内山⁴²⁾ のデータによると、柑橘類、ハウレンソウ、一部の魚介類でコーデックス基準値を超える可能性が示されている。菊地ら⁴³⁾ によると、各

種食用きのこに関しては、最高 2.0 mg kg^{-1} を示すものもあるが、その大半では不検出であると報告している。

また、食品中の Pb 濃度に関する池辺ら⁴⁴⁻⁴⁶⁾の一連の報告によると、野菜類、果実類、芋類およびきのこ類では、いずれも 0.1 mg kg^{-1} 以下であった⁴⁴⁾。穀類、豆類およびその加工品および種子・子実類はいずれも低い値を示しているが、海藻類で平均約 0.3 mg kg^{-1} 含まれていた⁴⁵⁾。また、菓子類で平均 0.18 mg kg^{-1} 、調理加工品類で平均 0.13 mg kg^{-1} 、嗜好飲料類で平均 0.11 mg kg^{-1} 、調味料類で平均 0.08 mg kg^{-1} を示している⁴⁶⁾。魚介類ではシジミの 0.15 mg kg^{-1} を除けば、他はすべて 0.10 mg kg^{-1} 以下を示している⁴⁷⁾。食肉およびその加工品類では大部分が 0.20 mg kg^{-1} 以下であり、豚肉では低い値が (平均 0.08 mg kg^{-1})、その加工品類 (焼き豚; 平均 0.12 mg kg^{-1} 、ハム; 平均 0.10 mg kg^{-1}) でやや高い値を示している⁴⁸⁾。さらに池辺らは陰膳方式による 15 金属元素の 1 日摂取量についても一連の調査⁴⁹⁻⁵³⁾を行い、Pb の 1 日摂取量を $14 \sim 124 \mu\text{g}$ と算出し、平均 $32 \mu\text{g}$ という値を報告している⁴⁹⁾。

最近では、Simbo ら⁵⁴⁾ が 1998~2000 年にかけて日本国内の精米、パン、めん類、小麦粉など 4,113 点を収集し、その Cd および Pb 含量を測定した結果、精米および製粉中の Pb 含量は $2 \sim 3 \mu\text{g kg}^{-1}$ であることを明らかにしている。

山野辺ら⁵⁵⁾ は、1984 年から 1987 年の 4 年間に東京都内に搬入される玄米約 600 検体から各年ごとに無作為に 100 検体を選び、玄米中 Pb 濃度を測定した結果、 $0.006 \sim 0.096 \text{ mg kg}^{-1}$ の範囲にあり、平均 $0.033 \pm 0.019 \text{ mg kg}^{-1}$ であることを報告している。

5. Pb 汚染土壌の修復技術

1) ファイトレメディエーション (植物による土壌修復)

海外では 1990 年代から植物による重金属の吸収・蓄積能力を高め、ファイトエクストラクション (植物による回収) を促進するために、キレート剤の利用により、Pb の可給性を増す研究が行われている^{56,57)}。具体的には、汚染土壌にエチレンジアミン四酢酸 (EDTA)⁵⁷⁻⁵⁹⁾ や生分解性のエチレンジアミンジコハク酸 (EDSS)^{60,61)} などをキレート資材として施用し、Pb の可給性を増した後、ファイトエクストラクションを行う試験研究が行われている。例えば、Blaylock ら⁵⁷⁾ は Pb 汚染土壌に EDTA を添加し、カラシナ (*Brassica juncea*) を用いた栽培試験を行った結果から、年間 1 ha 当たり 180 kg の Pb を除去できると試算している。

国内でも、実用化に向けてカラシナ (*Brassica juncea*) とヒマワリ (*Helianthus annuus*) を利用した Pb 汚染土壌に対するファイトレメディエーション技術が開発されている^{62,63)}。近年、射撃場散弾の Pb による土壌・地下水汚染が各地で問題となっており、射撃場の高濃度 Pb 汚染土

壤を用いて栽培したソバ (*Fagopyrum esculentum*) が高濃度に Pb を地上部に蓄積することが報告され⁶⁴⁾、ソバによる Pb 汚染土壌の浄化や汚染の拡散抑制が試みられている⁶⁵⁻⁶⁷⁾。さらに、緑化用ソバの Pb 集積性と耐性メカニズムを遺伝子的に解明する試みも行われている^{68,69)}。

2) 各種化学資材による農作物への Pb 吸収抑制効果

Chen ら⁷⁰⁾ は、Cd と Pb で汚染された土壌に各種化学資材を加えて小麦のポット栽培試験を行っている。その結果、炭酸カルシウム、マンガン酸化物およびゼオライトの添加で小麦子実中の Cd および Pb 濃度の低下が認められたと報告している。

Yang ら⁷¹⁾ は、製錬工場近郊の都市土壌を対象に、リン酸添加による Pb の固定と植物への可給性の低減を試み、リン酸添加量の増加に伴い、土壌から 0.011 mol L^{-1} 塩酸で抽出される Pb 量が低下することを明らかにし、Pb の原位置 (土壌内) 封じ込めへの可能性を示唆している。

3) 化学的および電気化学的手法による土壌修復

Neilson ら⁷²⁾ は、環境に配慮した無害の土壌洗浄薬剤としてラムノ脂質界面活性剤やカルボキシメチル- β -シクロデキストリン (CMCD) を用いた重金属汚染土壌の洗浄試験を行っている。これによると、CMCD による汚染土壌からの重金属の除去率は、硝酸カリウムを用いた場合より高いが、ジエチレントリアミン 5 酢酸 (DTPA) には劣ることを明らかにしている。

Kawachi and Kubo⁷³⁾ および川地⁷⁴⁾ は、直流電圧を利用して、重金属汚染土壌を電気化学的に修復する方法を開発し、汚染土壌中の Cu, Pb, クロムや水の挙動について検討し、汚染土壌を持ち出さず、原位置での修復を目指している。

6. 今後の展開

以上のように、Pb の土壌汚染に関する最近の研究は土壌の修復に関する研究例が多いようである。Pb の農作物への影響に関する研究例は、この元素の吸収・移行性が Cd や他の重金属に比べて比較的低いことから、非常に少ない。しかし、すでにコーデックスでは食品中 Pb 濃度が決定されており、一部の食品ではその基準設定値を上回る危険性が指摘されているものがある。今後は、土壌・農作物の Pb 汚染に関する基礎的なデータの集積とそのリスク評価が早急に必要となると考えられる。

謝辞 本稿をまとめるにあたって (独) 農業環境技術研究所 小野信一博士ならびに大谷 卓博士には、有益な助言をいただいた。ここに記して感謝の意を表します。

文 献

- 1) 土壌の汚染に係る環境基準について (平成 3 年 8 月 23 日、環境庁告示第 46 号)
- 2) 土壌汚染対策法 (平成 14 年 5 月 29 日、法律 53)
- 3) 荒木真一: 土壌の直接摂取によるリスク評価, 土肥誌, 73, 79~80 (2002)
- 4) 社団法人日本分析化学会「土壌分析技術セミナー」実行

- 委員会：環境省告示第19号によるJSAC土壌標準物質のPb, Cd, As含有量測定共同実験, 分析化学, **53**, 1177~1181 (2004)
- 5) Allowey, B. J.: Heavy Metals in Soils, 2nd ed., p. 384, Blackie Academic & Professional, London (1995)
 - 6) Kabata-Pendias, A. and Pendias, H.: Trace Elements in Soils and Plants, 3rd ed., p. 413, CRC Press, Boca Raton, FL, USA (2000)
 - 7) 浅見輝男：日本の有害金属汚染, p. 402, アグネ技術センター, 東京 (2001)
 - 8) Kitagishi, K. and Yamane, I., eds.: Heavy Metal Pollution in Soils of Japan, p. 302, Japan Scientific Societies Press, Tokyo (1981)
 - 9) 浅見輝男・久保田正亜・折笠清人：土壌中カドミウム等重金属の分画と水稲による吸収, 第1回土壌・地下水汚染シンポジウム報告, p. 109~118, 国立公害研究所 (1986)
 - 10) Asami, T., Kubota, M. and Orikasa, K.: Forms of cadmium, zinc, lead, and copper in soils. Trans. 14th Intern. Cong. Soil Sci., Vol. 2, p. 365~366, Kyoto (1990)
 - 11) Asami, T., Kubota, M. and Orikasa, K.: Distribution of different fractions of cadmium, zinc, lead, and copper in unpolluted and polluted soils. *Water Air Soil Pollut.*, **83**, 187~194 (1995)
 - 12) McLaren, R. G. and Crawford, D. V.: Studies on soil copper I. The fractionation of copper in soils. *J. Soil Sci.*, **24**, 172~181 (1973)
 - 13) Li, L. Y.: 大坪政美：高速道路沿いの土壌の鉛汚染—カナダブリティッシュコロンビア州での事例, 土と基礎, **52**, 20~22 (2004)
 - 14) Pueyo, M., Sastre, J., Hernández, E., Vidal, M., López-Sánchez, J. F. and Rauret, G.: Prediction of trace element mobility in contaminated soils by sequential extraction. *J. Environ. Qual.*, **32**, 2054~2066 (2003)
 - 15) McBride, M., Sauvé, S. and Hendershot, W.: Solubility control of Cu, Zn, Cd and Pb in contaminated soils. *Eur. J. Soil Sci.*, **48**, 337~346 (1997)
 - 16) Kabala, C. and Singh, B. R.: Fractionation and mobility of copper, lead, and zinc in soil profiles in the vicinity of a copper smelter. *J. Environ. Qual.*, **30**, 485~492 (2001)
 - 17) Tessier, A., Campbell, P. G. C. and Bisson, M.: Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. *Anal. Chem.*, **51**, 844~851 (1979)
 - 18) Salbu, B., Krekling, T. and Oughton, D. H.: Characterization of radioactive particles in the environment. *Analyst*, **123**, 843~849 (1998)
 - 19) Ettler, V., Vaněk, A., Mihaljevič, M. and Bezdička, P.: Contrasting lead speciation in forest and tilled soils heavily polluted by lead metallurgy. *Chemosphere*, **58**, 1449~1459 (2005)
 - 20) 折原健太郎・上山紀代美・藤原俊六郎：家畜ふん堆肥の重金属含有量の特性, 土肥誌, **73**, 403~409 (2002)
 - 21) 森 昭憲・寶示戸雅之・近藤 熙・松波寿弥：我が国の草地飼料畑における微量重金属の堆肥による投入量と牧草および飼料作物による収奪量, 同上, **75**, 651~658 (2004)
 - 22) Römken, P.: Heavy metal balances: concepts, applicability and results. Proceedings of Workshop on Assessments and Reduction of Heavy Metal Inputs into Agro-Ecosystems, p. 29~32 (2003)
 - 23) 後藤茂子・林 浩明・山岸順子・米山忠克・茅野充男：下水污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, 土肥誌, **73**, 391~396 (2002)
 - 24) Oliver, I. W., McLaughlin, M. J. and Merrington, G.: Temporal trends of total and potentially available element concentrations in sewage biosolids: a comparison of biosolid surveys conducted 18 years apart. *Sci. Total Environ.*, **337**, 139~145 (2005)
 - 25) 前野道雄・和地 清・岩村紅美子：農作物の鉛吸収に関する研究, 神奈川農総研報, **117**, 23~36 (1977)
 - 26) 浅見輝男・折笠清人・久保田正亜：重金属によって汚染された婦中土壌と安中土壌で生育した水稲によるCd, Zn, Pb, Cuの吸収に及ぼす影響, 人間と環境, **21**, 54~60 (1995)
 - 27) 佐々木朋三・田代純利・藤永英司・石井友章・軍司泰義：土壌から農作物へのウラン, トリウム, ラジウム及び鉛の移行係数と線量評価, 保健物理, **37**, 208~221 (2002)
 - 28) Dalenberg, J. W. and Driel, W. V.: Contribution of atmospheric deposition to heavy metal concentrations in field crops. *Neth. J. Agric. Sci.*, **38**, 369~379 (1990)
 - 29) Berthelsen, B. O., Steinnes, E., Solberg, W. and Jingsen, L.: Heavy metal concentration in plants in relation to atmospheric heavy metal deposition. *J. Environ. Qual.*, **24**, 1018~1026 (1995)
 - 30) Takeda, A., Kimura, K. and Yamasaki, S.: Analysis of 57 elements in Japanese soils, with special reference to soil group and agricultural use. *Geoderma*, **119**, 291~307 (2004)
 - 31) 今井 登：日本の有害元素の分布, 土壌汚染の評価と環境調和型対策技術の展望, 平成17年度産総研 環境・エネルギーシンポジウムシリーズ1, p. 7~12, 産業技術総合研究所, つくば (2005)
 - 32) 今井 登・寺島 滋・太田充恒・御子柴真澄・岡井貴司・立花好子・富樫茂子・松久幸敬・金井 豊・上岡晃：日本の地球化学図, 地質調査総合センター, つくば (2004)
 - 33) 産業技術総合研究所地質調査総合センター：日本の地球化学図 (2004), <http://www.aist.go.jp/RIODB/geochemmap/>
 - 34) 成田春蔵・相馬盛雄・加藤 正・櫻田 哲・今 智之・岩谷 斉：リンゴ園における重金属塩類の蓄積とその影響, 青森りんご試報, **24**, 49~82 (1987)
 - 35) Yaman, M., Dilgin, Y. and Gucer, S.: Speciation of lead in soils and relation with its concentration in fruits. *Anal. Chim. Acta*, **410**, 119~125 (2000)
 - 36) Jin, Y. F., Zheng, S. J., He, Y. F., Zhou, G. D. and Zhou, X. Z.: Lead contamination in tea garden soils and factors affecting its bioavailability. *Chemosphere*, **59**, 1151~1159 (2005)
 - 37) Liu, J., Li, K., Xu, J., Zhang, Z., Ma, T., Lu, X., Yang, J. and Zhu, Q.: Lead toxicity, uptake, and translocation in different rice cultivars. *Plant Sci.*, **165**, 793~802 (2003)
 - 38) Zhang, Z.-W., Moon, C.-S., Watanabe, T., Shimbo, S. and Ikeda, M.: Contents of pollutant and nutrient elements in rice and wheat grown on the neighboring fields. *Biol. Trace Element Res.*, **57**, 39~50 (1997)
 - 39) 池田彰弘・今泉諒俊：土壌の重金属診断基準の策定 (第1報)—鉛の畑作物に及ぼす影響, 愛知農総試研報, **23**, 289~296 (1991)
 - 40) 寺岡久之・森井ふじ・小林 純：食品中に含まれる24種の元素量および1日の元素摂取量について, 栄養と食糧,

- 34, 221~239 (1981)
- 41) 田中涼一・池辺克彦・田中之雄・国田信治：加工食品中の重金属の含有量及び重金属の1日摂取量, 食衛誌, **24**, 488~499 (1983)
- 42) 内山 充：食品汚染モニタリングデータ (1971~1980) (1982年1月), p. 139, 厚生省国立衛生試験所 (1982)
- 43) 菊地正行・玉川勝美・広島紀以子・相原良之・三島靖子・関 敏彦・角田 行：食用きのこの金属濃度に関する調査研究, 食衛誌, **25**, 534~542 (1984)
- 44) 池辺克彦・西宗高弘・田中涼一：ICP 発光分析法による食品中の17金属元素量について—野菜類, 果実類, 芋類及びびきのこ類—, 同上, **31**, 382~393 (1990)
- 45) 池辺克彦・西宗高弘・田中涼一：ICP 発光分析法による食品中の17金属元素量について—穀類, 豆類及びその加工品, 海藻類及び種実類—, 同上, **32**, 48~56 (1991)
- 46) 池辺克彦・西宗高弘・田中涼一：ICP 発光分析法による食品中の17金属元素量について—菓子類, 調理加工品類, 嗜好飲料類及び調味料類—, 同上, **32**, 183~185 (1991)
- 47) 池辺克彦・西宗高弘・田中涼一：ICP 発光分析法による食品中の17金属元素量について—魚介類—, 同上, **32**, 336~350 (1991)
- 48) 池辺克彦・西宗高弘・田中涼一：ICP 発光分析法による食品中の17金属元素量について—食肉およびその加工品類—, 食衛誌, **35**, 323~327 (1994)
- 49) 池辺克彦・田中之雄・田中涼一：陰膳方式による15金属元素の1日摂取量について, 同上, **29**, 52~55 (1988)
- 50) 池辺克彦・田中之雄・西宗高弘・田中涼一：陰膳方式による15金属元素の季節変動並びに年齢別1日摂取量について, 同上, **29**, 440~444 (1988)
- 51) 池辺克彦・田中之雄・西宗高弘・田中涼一：陰膳方式による15金属元素の1日摂取量の地域差の検討, 同上, **30**, 444~446 (1989)
- 52) 池辺克彦・西宗高弘・田中涼一：モデル献立における15金属元素の1日摂取量, 同上, **31**, 280~284 (1990)
- 53) 池辺克彦・西宗高弘・田中涼一：熟年世代の食事における15金属元素の1日摂取量, 同上, **35**, 66~71 (1994)
- 54) Simbo, S., Zhang, Z.-W., Watanabe, T., Nakatsuka, H., Masuda-Inoguchi, N., Higashikawa, K. and Ikeda, M.: Cadmium and lead contents in rice and other cereal products in Japan in 1998-2000. *Sci. Total Environ.*, **281**, 165~175 (2001)
- 55) 山野辺秀夫・竹内正博・水石和子・江波戸舉秀・中村弘：玄米中の微量元素濃度, 東京衛研年報, **42**, 90~94 (1991)
- 56) Huang, J. W., Chen, J., Berti, W. R. and Cunningham, S. D.: Phytoremediation of lead-contaminated soils: Role of synthetic chelates in lead phytoextraction. *Environ. Sci. Technol.*, **31**, 800~805 (1997)
- 57) Blaylock, M. J., Salt, D. E., Dushenkov, S., Zakharova, O., Gussman, C., Kapulnik, Y., Ensley, B. D. and Raskin, I.: Enhanced accumulation of Pb in Indian mustard by soil-applied chelating agents. *ibid.*, **31**, 860~865 (1997)
- 58) Shen, Z.-G., Li, X.-D., Wang, C.-C., Chen, H.-M. and Chua, H.: Lead phytoextraction from contaminated soil with high-biomass plant species. *J. Environ. Qual.*, **31**, 1893~1900 (2002)
- 59) 松尾浩一・江頭和彦：ハカラシナによる鉛除去へのファイトレメディエーション, 土肥誌, **73**, 769~771 (2002)
- 60) Grěman, H., Vodnik, Š., Veleikonja-Bolta, S. and Leštan, D.: Ethylenediaminedisuccinate as a new chelate for environmentally safe enhanced lead phytoextraction. *J. Environ. Qual.*, **32**, 500~506 (2003)
- 61) Kos, B. and Leštan, D.: Induced phytoextraction/soil washing of lead using biodegradable chelate and permeable barriers. *Environ. Sci. Technol.*, **37**, 624~629 (2003)
- 62) 北島信行・永島玲子・近藤敏仁・矢島 聡・佐竹英樹：鉛汚染土壌に対するファイトレメディエーション, 土肥要旨集, **49**, 178 (2003)
- 63) 近藤敏仁：ヒ素・鉛汚染土壌のファイトレメディエーション, 第21回土・水研究会資料, No. 21, p. 26~34, 農業環境技術研究所 (2004)
- 64) 田村英生・梅田 哉・佐藤 健・木村 努・本田宗央・長谷川功：ソバを用いた鉛汚染土壌浄化に関する研究—鉛を高濃度に蓄積する植物の探索—, 土肥要旨集, **50**, 297 (2004)
- 65) 田村英生・梅田 哉・本田宗央・日比野陽子・佐藤 健：植物による鉛汚染土壌の浄化 (1)—ソバの鉛蓄積能力—, 同上, **50**, 175 (2004)
- 66) 本田宗央・田村英生・木村 努・日比野陽子・小島淳一・佐藤 健：植物による鉛汚染土壌の浄化 (2)—現地実証試験の概要—, 同上, **50**, 176 (2004)
- 67) 佐藤 健・田村英生・木村 努・日比野陽子・小島淳一・本田宗央：植物による鉛汚染土壌の浄化 (3)—原位置封じ込め効果—, 同上, **50**, 176 (2004)
- 68) 小野 浩・杉浦大介・長屋祐一・小畑 仁・水野隆文：鉛汚染土壌におけるファイトレメディエーション (1) 鉛集積性ソバからのMRP遺伝子のクローニングとPbに対する応答性, 同上, **50**, 176 (2004)
- 69) 杉浦大介・小野 浩・長屋祐一・小畑 仁・水野隆文：鉛汚染土壌におけるファイトレメディエーション (2) 鉛集積性ソバからのフィトケラチン合成酵素遺伝子のクローニングと機能解析, 同上, **50**, 177 (2004)
- 70) Chen, Z. S., Lee, G. J. and Liu, J. C.: The effects of chemical remediation treatments on the extractability and speciation of cadmium and lead in contaminated soils. *Chemosphere*, **41**, 235~242 (2000)
- 71) Yang, J., Mosby, D. E., Casteel, S. W. and Blanchar, R. W.: Lead immobilization using phosphoric acid in a smelter-contaminated urban soil, removal from contaminated soils by nontoxic soil-washing agents. *Environ. Sci. Technol.*, **35**, 3553~3559 (2001)
- 72) Neilson, J. W., Artiola, J. F. and Maier, R. M.: Characterization of lead removal from contaminated soils by nontoxic soil-washing agents. *J. Environ. Qual.*, **32**, 899~908 (2003)
- 73) Kawachi, T. and Kubo, H.: Model experiment study on the migration behavior of heavy metals in electrokinetic remediation process for contaminated soil. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **45**, 259~268 (1999)
- 74) 川地 武：電気泳動を用いた重金属汚染土壌の修復技術の開発, 第21回土・水研究会資料, No. 21, p. 42~51, 農業環境技術研究所 (2004)