

令和元年6月10日現在

機関番号：12605

研究種目：基盤研究(C) (特設分野研究)

研究期間：2015～2018

課題番号：15KT0116

研究課題名(和文)有機栽培土壌における銅・亜鉛の過剰蓄積と抗生物質耐性菌の食料・環境影響

研究課題名(英文) Accumulation of copper and zinc in organic farming soils and their food and environmental impacts

研究代表者

橋本 洋平 (Hashimoto, Yohey)

東京農工大学・(連合)農学研究科(研究院)・准教授

研究者番号：80436899

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、銅・亜鉛・リンの蓄積状況とそれらの化学形態に関して、有機栽培圃場における実態を明らかにしたることである。濃度と化学形態の両面について明らかにしていくことを主眼とした。豚ふん堆肥に含まれる銅と亜鉛の多くは、水抽出画分(Cu 31%, Zn 12%)および硝酸抽出画分(Cu 31%, Zn 60%)に存在した。豚ふん堆肥の運用によって、土壌のリン・銅・亜鉛の濃度が増加することが確認された。土壌におけるリンの化学形態は、主にFe(水)酸化物に結合した形態が主体であった。Znの化学形態は、層状ケイ酸塩の一種であるkaoliniteに結合した形態がみられた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

豚ふん堆肥を長期に施用することによって、土壌のリン・銅・亜鉛の濃度が増加することが確認された。銅と亜鉛に関しては、一部が水に溶解する形態として存在することも確認されたことから、条件によっては農地からこれらの元素が流出する可能性がある。豚ふん堆肥ならびに豚ふん堆肥に含まれる、リンと亜鉛の化学形態を分子分光分析を導入して明らかにした点は、学術面での成果といえる。

研究成果の概要(英文)：The objective of this study was to investigate P, Cu and Zn accumulation and their chemical species in soils where swine manure compost has been repeatedly applied. Zinc and Cu in swine manure compost occurred mainly in the fractions extracted by water and nitric acid. The continual application of swine manure compost remarkably increased P, Cu and Zn concentration in soils. Phosphorus in soils was mainly associated with iron oxides. Zinc was mainly associated with phyllosilicates (e.g., kaolinite).

研究分野：環境化学

キーワード：リン 銅 亜鉛 土壌

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

食の安全と環境負荷の低減を目指した有機農業栽培には、農作物の生産性を高めるため、土壌へ家畜ふん堆肥が積極的に施用されている。家畜の飼料には成長促進や耐病性向上を目的として銅・亜鉛・抗生物質が添加されており、家畜ふん堆肥の長期的施用によってこれらの物質が土壌および作物可食部に蓄積することが指摘されている。家畜ふんの中でも、特に豚ふんによる寄与が大きいことが知られており、申請者らの研究でも、豚ふんスラリーの施用が、イネ可食部中の亜鉛濃度を有意に上昇させたことを確認している (Toyota2014)。しかし、有機栽培土壌における銅・亜鉛・耐性菌の蓄積に関する実態調査は不足しており、作物生産・環境・ヒトに及ぼす潜在的な影響は明らかにされていない。この問題は国際的にも看過されており、取り組みが遅れている。これまで土壌中の銅・亜鉛の環境基準や生物利用は、固相および液相中の「濃度」によって一元的に議論されてきた。しかし、濃度による評価では、土壌において元素がどのような化学形態で存在しているのかは明らかにすることができないため、溶解性や生物利用性を支配する本質的な情報が得られないという問題点がある。

2. 研究の目的

本研究の目的は、銅・亜鉛・リンの蓄積状況に関して、有機栽培圃場における実態を明らかにすることである。濃度と化学形態の両面について明らかにしていく。有機栽培土壌における銅・亜鉛の蓄積状況に関するデータがほとんどないため、家畜ふん堆肥 (特に豚ふん) の施用を実施している圃場を対象にした調査事例を積み上げ、実態を明らかにすることが重要である。

3. 研究の方法

有機肥料連用圃場の銅・亜鉛・リンの実態調査を実施した。農研機構綾部拠点の豚ふんを20年以上連用している圃場を対象とした。土壌への銅・亜鉛・リン蓄積がみられやすい豚ふん堆肥を施用している圃場の表層土壌を採取した。土壌および作物組織中の銅・亜鉛の濃度、ならびに土壌中の銅・亜鉛の化学形態を分析した。

抽出操作による元素の化学形態分析は、定本ら (1994) や Hedrey らの連続抽出法を適用し、抽出液中の銅・亜鉛を ICP 発光法で測定した。放射光源 X 線分析 (XAFS 法) によって、土壌中の銅・亜鉛の化学形態を定性・定量した。実験は高輝度光科学センターなどのビームラインで実施した。風乾したバルク土壌 (< 0.1 μm 篩別) をそのまま分析に供試した。ただし、銅・亜鉛濃度が低い (500 ppm) 土壌の場合は、質の良いデータ (X 線吸収スペクトル) を得るため測定を複数回実施して、スペクトルデータを平滑化する方法を用いた。購入および調製したリン、銅・亜鉛の標準試料 (20 種) も併せて測定し、これらと土壌中の銅・亜鉛のスペクトルを最小二乗法フィッティングによって化学形態の定性・定量を実施した。当初、抗生物質耐性菌の実態も調査する予定であったが、進捗が思わしくなく、結果として銅・亜鉛・リンの蓄積と化学形態の研究に特化して実施することになった。

4. 研究成果

豚ふん堆肥に含まれる元素

豚ふん堆肥に含まれる Cu および Zn の濃度を明らかにするとともに、逐次抽出法を用いて堆肥中のこれら元素の溶解性を明らかにした。豚ふん堆肥に含まれる Cu および Zn の全濃度はそれぞれ 328, 1296 mg/kg であった。Cu と Zn の多くは、水抽出画分 (Cu 31%, Zn 12%) および硝酸抽出画分 (Cu 31%, Zn 60%) に存在した。水溶性の Cu および Zn は特に溶解性が高いことから、土壌ならびに水域への影響が懸念された。また、リンも豊富に含まれており、XAFS 測定の結果 76% が struvite (リン酸マグネシウムアンモニウム) として存在することが確認された (図 1、図 2)。

豚ふん堆肥を連用した土壌の元素の逐次抽出

豚ふん堆肥の連用は、土壌の pH および層状ケイ酸塩鉱物や Al/Fe (水) 酸化物の組成を変化させることで、リン・銅・亜鉛の蓄積形態に大きく影響を及ぼした。豚ふん堆肥の連用によって土壌に蓄積したリンの大部分は、無機態 (Pi) であり、特に NH₄F 溶液によって抽出される形態 (土壌中の Al と結合)、および塩酸によって抽出される形態 (Ca と結合) が、堆肥連用の開始前と比べて 1.5-4.5 倍に増加した。豚ふん堆肥の連用は、土壌中の mica 様層状ケイ酸塩鉱物、ならびに非晶質の Al/Fe (水) 酸化物を増加させたことから、これらの新規に生成した二次鉱物が新たなリンの吸着サイトとして寄与している可能性がある。豚ふん堆肥の連用によって、Zn は酢酸によって抽出される形態 (層状ケイ酸塩・酸化物と結合) が約 4.0-7.8 倍に増加した。

連用土壌のリン・亜鉛の化学形態分析 (XAFS 法)

豚ふん区および豚ふん肥料を三倍量添加した (豚 3 倍区) 土壌全体 (< 2 mm) における P の化学形態は、主に Fe (水) 酸化物に結合した形態 (Fe-P : 81-89%) と Ca 鉱物に結合した形態 (Ca-P : 11-19%) であった。豚 3 倍区は豚ふん区に比べて Ca-P の割合が高く、施用した豚ふん堆肥にも Ca-P (41%) が高い割合で含まれていたことから、豚ふん堆肥の連用によって、堆肥に含まれる Ca-P が土壌中に蓄積したと考えられる。これらの土壌から分画したコロイド粒子に含まれる P の化学形態は、豚ふん区では Fe-P (100%)、豚 3 倍区では Fe-P (89%) および Ca-P (11%) が主

要な形態であった。豚3倍区の土壤全体 (< 2 mm) における Zn の化学形態は、層状ケイ酸塩の一種である kaolinite に結合した形態 (Zn-kaolinite : 65%) と $Zn_3(PO_4)_2$ (35%) であった。

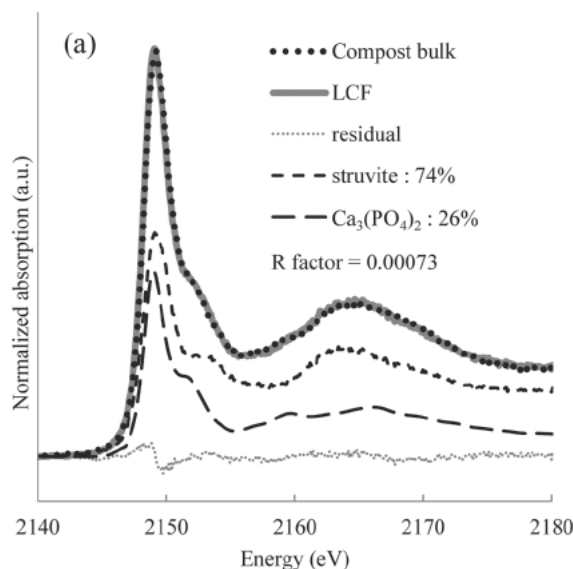


図1 豚ふん堆肥に含まれるリンの XAFS スペクトルと、最小二乗法により同定したリンの化学種とそれらの割合。76%が struvite、残りはリン酸カルシウムとして含まれていた。

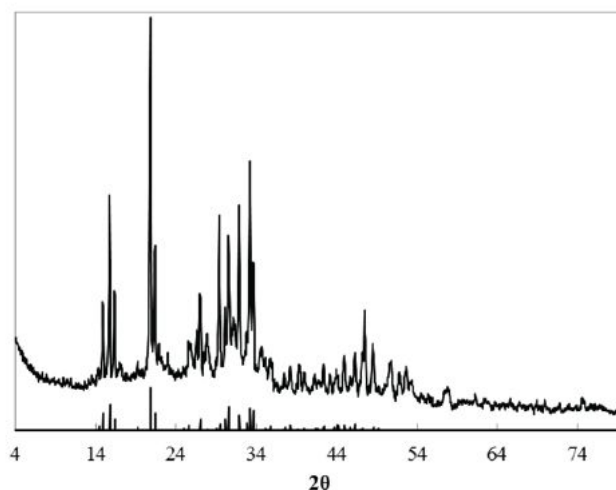


図2 豚ふん堆肥の XRD 分析。X 軸から鉛直に伸びている棒は、struvite の回折角に対応しており、堆肥中での存在が確認できる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

1) Yamamoto, K., and Y. Hashimoto. 2017. Chemical Species of Phosphorus and Zinc in Water-Dispersible Colloids from Swine Manure Compost. *Journal of Environmental Quality* 46:461-465. doi.org/10.2134/jeq2016.11.0433 (査読あり)

〔学会発表〕(計 3 件)

- 1) 長年にわたる堆肥の連用が土壤のコロイドに含まれるリンと亜鉛の化学形態に及ぼす影響、2017、山本航介・橋本洋平・佐藤恵利華・福永亜矢子、土壤物理学会、発表場所 北海道大学(札幌市) 2017-10-14
- 2) 豚ふん堆肥連用土壌およびコロイド粒子に蓄積したリン・銅・亜鉛の化学形態、2016、山本航介・橋本洋平・佐藤恵利華・福永亜矢子・豊田剛己、日本土壤肥料学会、発表場所 佐賀大学(佐賀県佐賀市) 2016-09-19
- 3) 豚ふん堆肥連用圃場におけるリン・銅・亜鉛の蓄積形態と経年変化、2015、山本航介・橋本洋平・佐藤恵利華・福永亜矢子・豊田剛己、日本土壤肥料学会、発表場所 京都大学(京

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

なし

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：豊田剛己

ローマ字氏名：Koki Toyota

所属研究機関名：東京農工大学

部局名：(連合)農学研究科(研究院)

職名：教授

研究者番号(8桁)：30262893

(2)研究協力者

研究協力者氏名：佐藤 恵利華、福永 亜矢子

ローマ字氏名：Erika Sato、Ayako Fukunaga

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。