

令和 5 年 5 月 25 日現在

機関番号：82111

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2022

課題番号：19K15826

研究課題名（和文）有機物施用による土壌ヒ素の可溶化：有機物の「分解性」に着目したリスクの予測と低減

研究課題名（英文）Prediction and reduction of arsenic solubilization by bio-decomposability of organic amendments applied to soils.

研究代表者

須田 碧海（Suda, Aomi）

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・農業環境研究部門・主任研究員

研究者番号：20789573

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：有機質資材の施用は、水田土壌からのヒ素の可溶化（水に溶けることでイネに吸収されやすくなる）を促進する可能性がある。本研究から、微生物に分解されやすいとされる「酸性デタージェント可溶有機物」の含量が高い資材ほど、ヒ素可溶化促進リスクが大きいことが明らかになった。また、同じ有機質資材を施用しても、黒ボク土では低地土よりヒ素の可溶化が著しく少なく、資材施用による影響の大きさは施用された土壌の性質にも強く依存していると推察された。さらに、土壌中で資材を十分に分解させてから湛水することで、施用にともなう土壌ヒ素の可溶化を抑制できることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、有機質資材による土壌ヒ素可溶化促進リスクの指標として、資材の「酸性デタージェント可溶有機物含量」を提示できた。これまで、資材施用にともなう土壌ヒ素の可溶化と資材の特性についての関係は未解明であり、学術的に価値のある成果である。さらに、湛水前に土壌中で有機質資材を好氣的に分解させることで土壌ヒ素の可溶化を軽減できることを明らかにした。農業現場では、有機質資材の施用から短期間で湛水することが奨励されることもあるが、ヒ素の可溶化という新たな視点から再検討が必要である。以上のように、本研究の成果は水田における有機質資材の適正利用に重要な知見を提供し、大きな社会的意義があると言える。

研究成果の概要（英文）：Organic amendments (OAMs) have potential to enhance arsenic dissolution from paddy soils depending on their chemical properties. Arsenic dissolution from submerged soils increased with the increase of amount of acid-detergent soluble organic matter (ADSOM) in applied OAM. The results suggested that ADSOM is a critical chemical property to evaluate the potential of OAMs enhancing arsenic dissolution from soils under anoxic condition. In addition, arsenic dissolution was lower in an Andosol sample compared to in an Entisol sample when same OAM was added. This indicates that the soil properties strongly control the amounts of arsenic dissolved under submerged conditions. Decomposition of OAM in soils under aerobic conditions prior to the soil submergence can attenuate enhancement of arsenic dissolution by OAM application.

研究分野：土壌化学

キーワード：土壌化学 ヒ素 有機質資材 水田土壌 酸化還元

1. 研究開始当初の背景

人体に有害な元素であるヒ素 (As) は、自然界に広く分布し、非汚染土壌中にも低濃度に含まれている。水田のように長期間湛水された土壌では、微生物の働きによって還元的 (嫌氣的) な環境になり、土壌から As が可溶化する。堆肥等の有機質資材が水田に施用されると、土壌 As の可溶化が加速し、イネによる As 吸収が増加してコメ中の As 濃度が上昇することがある。一方で、資材の施用による土壌 As の可溶化はかならず起こるわけではない。既存研究の大半は、少数の有機質資材について施用効果を示したケーススタディに過ぎず、しかも資材の特性についてはほとんど議論されてこなかった。したがって、「どのような特性を持つ有機質資材が土壌 As を可溶化しやすいのか」についての体系的な研究がなく、生産現場における有機質資材の利用に活かせる知見が不足していた。

2. 研究の目的

研究代表者らのこれまでの研究から、「土壌微生物に分解されやすい有機質資材ほど、施用した時に土壌 As の可溶化を促進しやすい」という仮説を立てた。本課題では、この仮説を基に、①有機質資材の分解性から土壌 As 可溶化促進リスクを予測する方法、および、②資材施用時の As 可溶化促進リスクを低減する方法を確立する。それにより、有機質資材の施用によるコメ中 As 濃度の上昇を回避・軽減するための基盤となる知見を提供することを目的とした。

3. 研究の方法

研究① 有機質資材の分解性から土壌 As 可溶化促進リスクを予測する方法の検討

研究①では、有機質資材の酸性デタージェント可溶有機物含量 (ADSOM) と炭素窒素比 (C/N) を微生物分解性の指標とし、土壌に施用した際の As 可溶化促進リスクを説明できるか検討した。

(1) 土壌と有機質資材

土壌試料は、農研機構内の試験水田圃場 (低地土および黒ボク土) の作土層から採取し、新鮮土壌 (<2 mm) のまま後述の培養試験にもちいた。有機質資材は、材料や製法が異なる様々な有機質資材 (堆肥、発酵家畜ふん、未分解植物体など) 24 種類を風乾後、微粉碎してもちいた。

(2) 有機質資材の分解性の指標

有機質資材の分解性の指標として、資材の ADSOM 含量および C/N を検討した。ADSOM は、飼料分析における常法に準じ、硫酸酸性下において臭化セチルトリメチルアンモニウムにより煮沸抽出した。ADSOM 含量は主に非繊維性有機物およびヘミセルロースから構成され、好気土壌中で 3 か月以内に分解する有機物量とほぼ一致するとされる。C/N は資材中の炭素と窒素の重量比であり、乾式燃焼法で炭素と窒素を測定して算出した。C/N も分解性の指標としてしばしば利用されており、研究代表者らは、発酵家畜ふんや堆肥など、特定の有機物に限れば分解性の指標として有効であることをすでに明らかにしている (Suda et al. 2016)。

(3) 湛水土壌培養試験

水田を模した環境をラボスケールで再現するために、湛水土壌培養試験をおこなった。ガラスバイアルに新鮮土壌 (乾物 10g 相当量) と有機質資材 (乾物 0.05g 相当量) を添加し、総水分量が 30mL になるように超純水を加えた。窒素ガスで液中の酸素を追い出し、プチルゴムとアルミキャップで密封した。2~3 日ごとに振とうして混和しつつ、所定の期間 (0, 1, 2, 4, 6, 9, 14 週間)、30°C で培養した。培養後、土壌懸濁液の pH/酸化還元電位 (複合電極法)、土壌溶液の溶存元素濃度 (誘導結合プラズマ質量/発光分光分析法)、土壌固相の As 化学形態 (As K 吸収端 X 線吸収微細構造分析法) と二価鉄 (Fe(II)) 生成量 (酢酸塩緩衝液抽出-比色法) を測定した。

研究② 有機質資材の施用にともなう As 可溶化促進リスクを低減する方法の検討

研究①の結果より、有機質資材の施用による As の可溶化は、資材中の有機物の分解にともなう土壌還元が発達が主因と考えられた。そこで研究②では、資材にふくまれる易分解性の有機物の一部をあらかじめ土壌で分解することで、湛水後の土壌 As の可溶化促進リスクを軽減できるか検討した。

(1) 土壌と有機質資材

研究①と同じ低地土をもちいた。ただし、後述する好気培養に先立ち、最大容水量の 50% になるように超純水を土壌に添加し、25°C で 7 日間にわたり培養した。有機質資材は、研究①で使用した資材のうち、As 可溶化促進リスクが小さい「稲わら堆肥 (ADSOM 含量 80 g/kg)」とリスクが大きい「発酵鶏ふん (ADSOM 含量 490 g/kg)」を選択した。

(2) 好気土壌培養

有機質資材の易分解性有機物を土壌湛水の前に分解するため、好気土壌培養をおこなった。ガ

ラスバイアルに土壌試料(乾物 10g 相当量)と稲わら堆肥または発酵鶏ふん(乾物 0.05g 相当量)を添加してよく混合した。5~7 日毎に換気とバイアル内試料の混和を行いながら、5, 16, 37 日間グローブボックス内(温度 25°C, 相対湿度 100%)で好気培養した(最後の 5 日間は後述する土壌呼吸量の測定)。

(3) 土壌呼吸量の測定

好気培養している土壌を処理ごと(無添加, 稲わら堆肥添加, 発酵鶏ふん添加)に分け, それぞれを水酸化ナトリウム溶液とともに密閉容器に入れ, 5 日間にわたり湿度 25°C, 相対湿度 100% の条件で好気培養した。その間に水酸化ナトリウム溶液に吸収された二酸化炭素を滴定法により測定し, ブランク値を差し引いた値を土壌呼吸量(土壌微生物の好気呼吸により消費された有機質資材および土壌有機物に由来する有機炭素量)とした。

(4) 湛水土壌培養試験

上記で土壌呼吸量を測定した土壌をもちいて湛水培養した。超純水の添加以降の操作は研究①(3)と同様であるが, 温度は 25°C, 湛水培養期間は 10, 42, 82 日間とした。したがって, 好気・湛水培養期間の組み合わせは, 好気 5 日湛水 10 日, 好気 5 日湛水 40 日, 好気 5 日湛水 82 日, 好気 16 日湛水 10 日, 好気 16 日湛水 40 日, 好気 16 日湛水 82 日, 好気 37 日湛水 10 日, 好気 37 日湛水 40 日, 好気 37 日湛水 82 日の 9 通りである。培養後, 土壌懸濁液の pH/酸化還元電位, 土壌溶液の溶存元素濃度を測定した。

4. 研究成果

研究① 有機質資材の分解性から土壌 As 可溶化促進リスクを予測する方法の検討

ADSOM は, 発酵豚ふん・鶏ふん, 稲わらや緑肥などで高く, よく腐熟が進んだ牛ふん堆肥や植物質堆肥では少なかった。C/N は ADSOM と逆の傾向を示したが, 例外的に未分解植物体の一部(稲わら, もみがら, 麦稈)は ADSOM と C/N のどちらも高い値となった。

土壌に添加した資材の ADSOM 含量と湛水培養後の溶存 As 濃度との関係を図 1 に抜粋して示した。ADSOM 含量が高い資材ほど溶存 As 濃度を上昇させることがわかる。培養 14 週間後までの溶存 As 累積濃度と資材の C/N との間には, 低地土・黒ボク土ともに $p = -0.4 \sim -0.5$ ($p < 0.05$) 程度の順位相関関係が認められたが, 未分解植物体の一部(稲わら, もみがら, 麦稈)が明らかな外れ値となった。一方で, 溶存 As 累積濃度と資材の ADSOM 含量との間には, 低地土・黒ボク土ともに $p = 0.94$ ($p < 0.001$) の極めて強い順位相関関係が得られ, 上記の未分解植物体も問題なく評価できた。また, 低地土と黒ボク土は大きく異なる土壌特性を持ち, 後述するように溶存 As 濃度には顕著な差があった。それにもかかわらず, 溶存 As 累積濃度の資材間順位は 2 土壌でほぼ一致した。したがって, 有機質資材の ADSOM 含量は, 様々な特性の水田土壌において, 幅広い種類の有機質資材の As 可溶化促進リスクを予測できる優れた指標であり, 生産現場での適正な資材施用の一助となると期待できる。例えば, ある資材の ADSOM 含量が高い場合には, もともとコメの As 濃度が高めの圃場では施用を避けるか, 後述するリスク回避対策を検討するといった判断に利用できる。

本研究では, 有機質資材の施用による As の可溶化促進のメカニズムについても知見を得ることができた。ADSOM と土壌の酸化還元電位, 溶存 As・Fe 濃度, 固相 As の化学形態(図 2), Fe(II) 生成量などの相互関係から, ADSOM として評価される分解性の高い有機物が微生物呼吸にともなう As の還元 ($As(V) \rightarrow As(III)$) や As を吸着する Fe 酸化物の還元溶解を加速することにより, As の可溶化が促進されたことが強く示唆された。

興味深いことに, 本研究で使用した 2 つの土壌の総 As 濃度は同等であるにも関わらず, 黒ボク土の溶存 As 濃度は低地土よりも 2 桁低い水準であった(図 1)。黒ボク土では溶存 As 濃度がきわめて低いことは以前にも指摘しているが(Suda & Yamaguchi 2021), 資材を添加して土壌還元を急速に進行させても同様であることがわかった。また, 黒ボク土では土壌固相の As の還元が起こりにくい(図 2)ことがその一因であることが強く示唆された。

以上の成果は Scientific Reports に掲載済みである(Suda et al. 2023)。

研究② 有機質資材の施用にともなう As 可溶化促進リスクを低減する方法の検討

どちらの有機質資材(稲わら堆肥, 発酵鶏ふん)も, 添加された土壌の土壌呼吸量を増加させた。好気培養 0~5, 11~16, 33~38 日目における土壌呼吸量は, 無添加土壌と比較して, 稲わら堆肥添加土壌ではそれぞれ 2.0, 1.1, 1.3 倍, 発酵鶏ふん添加土壌では 22 倍, 3.8 倍, 2.4 倍となった。発酵鶏ふん添加による土壌呼吸量の増加は稲わら堆肥添加と比較して著しく多く, ADSOM 含量から予想される通り微生物が利用できる易分解性有機物を多く含んでいることがわかる。

82 日間の湛水培養後における溶存 As 濃度に対する資材添加の影響は, 事前の好気培養期間が長いほど小さくなった(図 3)。特に発酵鶏ふんで顕著であり, 好気培養が 5 日間のみ土壌では, 無添加土壌と比較した溶存 As 濃度上昇量は 200 $\mu\text{g}/\text{kg}$ に達したが, 37 日間継続した土壌では約 70 $\mu\text{g}/\text{kg}$ まで軽減した。稲わら堆肥では, 好気培養 5 日間のみ土壌では上昇量 23 $\mu\text{g}/\text{kg}$ であり, 37 日間継続した土壌の 18 $\mu\text{g}/\text{kg}$ と大きな違いはなかった。この傾向は 40 日間の湛水培養後においても同様だったが, 10 日間の湛水培養後は As が十分に可溶化するほど還元が進行せず, 判然としなかった。

発酵鶏ふんは易分解性有機物が多いため、土壌と混和後すぐに湛水すると急激に有機物の分解が起きて還元が進行し、多量の As が可溶化してしまう。裏を返せば、土壌と混和した後は速やかに分解されるので、しばらく好気的な状態を維持すれば湛水後の As 可溶化促進リスクを大幅に軽減できる (図 3)。一方、稲わら堆肥は堆肥化の過程で大半の易分解性有機物が分解され、残存する有機物の大部分は難分解性である。そのため、好気培養による有機物の急激な減少 (分解) がおきず、湛水後の As 可溶化促進を軽減する効果は大きくなかった。以上より、ADSOM 含量が高い資材を水田土壌に施用することは、As 可溶化促進リスクの観点から望ましくないが、土壌と混和した後に好気分解させてから入水することで、リスクを軽減できることがわかった。

まとめ

- ・土壌微生物に分解されやすい「酸性デタージェント可溶有機物 (ADSOM)」が多い資材ほど、土壌 As の可溶化を促進するリスクが大きい。
- ・資材施用による As 可溶化の促進程度は土壌側の特性にも強く依存し、黒ボク土では低地土より著しく少ない。
- ・土壌中で資材を好気分解させてから湛水すれば土壌 As の可溶化促進を軽減できる。

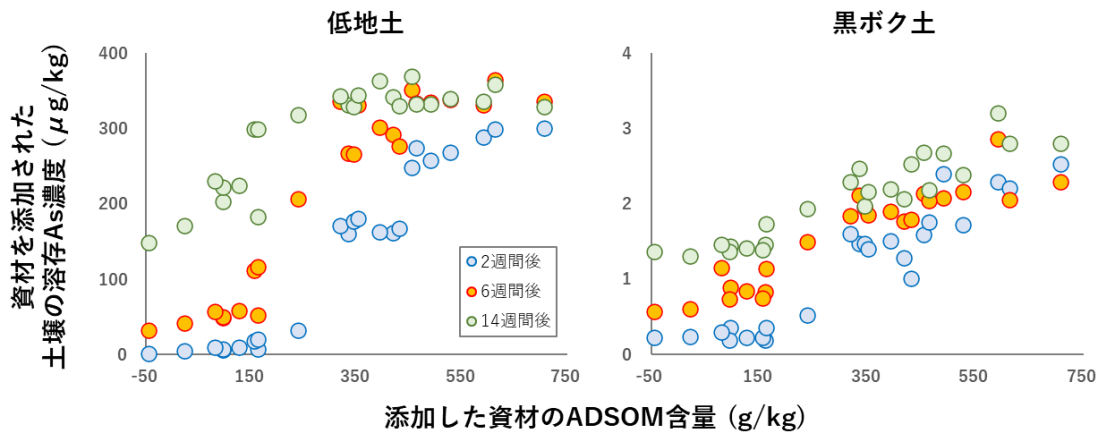


図 1. 土壌に添加した資材の ADSOM 含量と湛水培養 2, 6, 14 週間後の溶存 As 濃度との関係

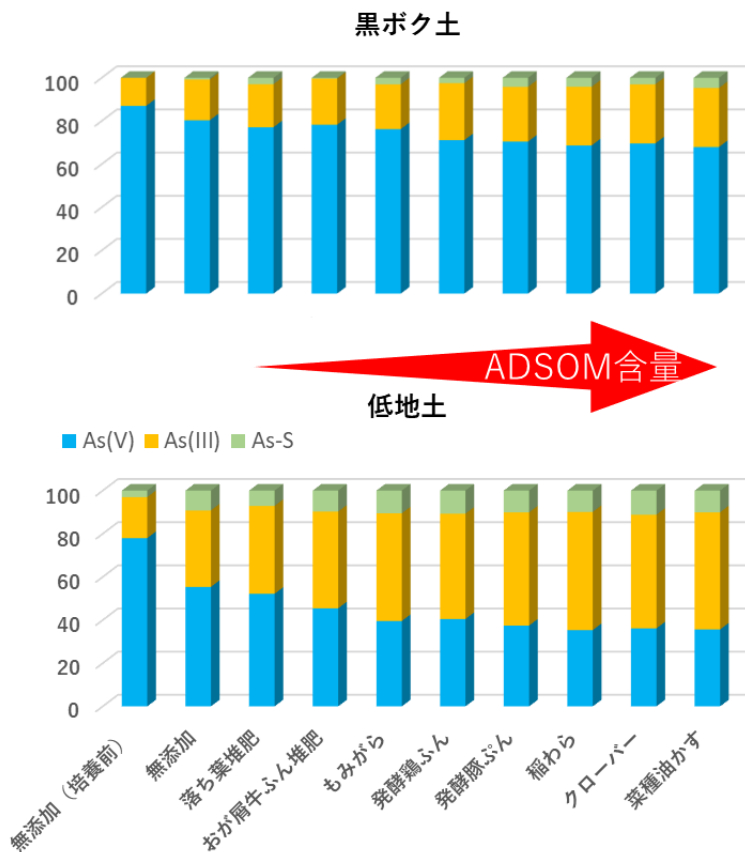


図 2. 土壌に添加した資材と湛水培養 6 週間後の土壌固相の As 化学形態との関係

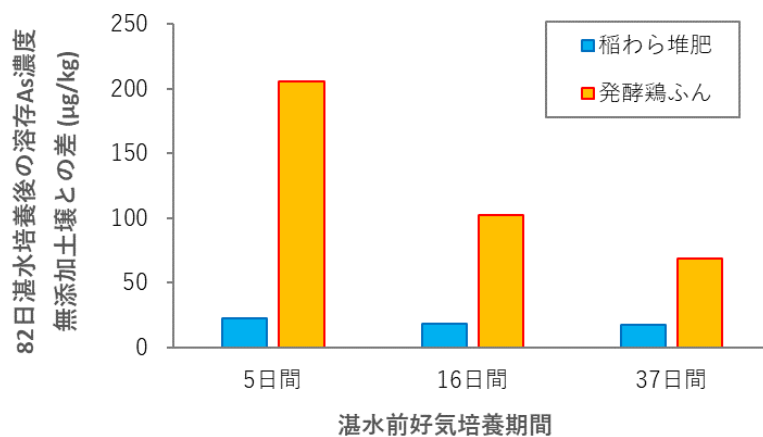


図3.資材添加による湛水培養82日後の溶存As濃度上昇量と湛水前の好気培養期間との関係。

<引用文献>

- (1) Suda, A., Makino, T. Effect of organic amendments on arsenic solubilization in soils during long-term flooded incubation. *Int. J. Environ. Sci. Technol.* 13, 2375–2382 (2016).
- (2) Suda, A., Yamaguchi, N. Inhibitory effect of active aluminum on arsenic solubility in anaerobic soils. *Geoderma* 385, 114887 (2021).
- (3) Suda, A., Baba, K., Sakurai, G., Furuya, M., Yamaguchi, N. Enhanced dissolution of arsenic in anaerobic soils upon organic amendment application: acid detergent-soluble organic matter as a potential indicator. *Sci. Rep.* 13, 217 (2023).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Suda Aomi, Baba Koji, Sakurai Gen, Furuya Manami, Yamaguchi Noriko	4. 巻 13
2. 論文標題 Enhanced dissolution of arsenic in anaerobic soils upon organic amendment application: acid detergent-soluble organic matter as a potential indicator	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-022-27325-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 須田碧海, 山口紀子
2. 発表標題 有機質資材添加による湛水土壤のヒ素溶出の加速化 - 酸性デタージェント可溶有機物含量との関係 -
3. 学会等名 日本土壌肥料学会 北海道大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	山口 紀子 (Yamaguchi Noriko)		
研究協力者	馬場 浩司 (Baba Koji)		
研究協力者	櫻井 玄 (Sakurai Gen)		

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	古屋 愛珠 (Furuya Manami)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関