

牛ふん堆肥等有機質資材施用による農作物のカドミウム濃度低減効果の解明

吉川 那々子*・瀧 勝俊*

摘要：牛ふん堆肥等有機質資材施用による大豆子実およびホウレンソウの地上部カドミウム(Cd)濃度低減効果を調査し、その土壌要因の解明を行った。

- 1．牛ふん堆肥の施用量増加に伴い、大豆子実およびホウレンソウ地上部のCd濃度が低下し、また土壌全炭素含量が増加した。
- 2．堆肥施用に伴い、土壌中Cdの形態分布は、可給性の高い交換態Cdの割合が低下し、有機結合態Cdの割合が増加した。
- 3．土壌全炭素含量と交換態Cd濃度の間に負の相関が認められたことから、土壌全炭素含量の増加により、交換態Cd濃度が低下すると考えられた。
- 4．交換態Cd濃度とホウレンソウ地上部Cd濃度の間に、正の相関が認められた。

以上の結果より、牛ふん堆肥など有機質資材施用による農作物のCd濃度低減効果は、資材施用による土壌全炭素含量の増加により、交換態Cd濃度が低下するため、農作物のCd濃度が低下すると考えられた。

キーワード：カドミウム、牛ふん堆肥、土壌炭素、形態分別、ホウレンソウ

The Effect of Applying Organic Matters, for Example Cattle Manure, That Decrease Cadmium Concentrations in Crops

Nanako YOSHIKAWA and Katsutoshi TAKI

Abstract: We investigated the effect of applying organic matters, for example cattle manure, that decreased cadmium (Cd) concentrations of soybean seeds and spinach leaves and stems, and soil factors concerned with it.

1. When we fed cattle manure for soybeans and spinaches, their Cd concentrations fell down and the amount of soil carbon increased.
2. In soils the ratio of exchangeable Cd that plants could easily absorb decreased and the ratio of Cd combined to humic substances increased when we fed cattle manure.
3. We found inverse proportion between the amount of soil carbon and the concentration of exchangeable Cd, so we thought increase of the amount of soil carbon led to decrease of the concentration of exchangeable Cd.
4. We found direct proportion between the concentration of exchangeable Cd and Cd concentration of spinaches.

Hereinbefore, we concluded that applying organic matters led to increase of the amount of total carbon and the decrease of the concentration of exchangeable Cd in soils, so Cd concentrations of crops decreased.

Key Words: Cadmium , Cattle manure , Soil carbon , Fractionation , Spinach

緒言

Cdは低濃度の暴露であっても、長期間の摂取により肝臓および腎臓に蓄積され、有害レベルに達すると腎機能障害を引き起こす。近年、食品中のCd濃度の新しい国際基準値がFAO/WHO合同食品規格委員会（Codex委員会）により制定され¹⁾、国内基準値も今後より厳しいものへと改定される予定である。このような中、農業現場における農作物のCd濃度低減対策が必要となっている。

現在、土壌管理技術によるCd濃度低減対策として、炭酸カルシウムなど土壌改良資材施用による土壌pHの調整^{2, 3)}や水田における湛水管理⁴⁾、また土壌中のCdの除去技術として土壌洗浄⁵⁾や植物浄化（ファイトレメディエーション）^{6, 7)}など様々な対策手法が研究されている。今後は汚染の程度など、ケースに応じ、これらの技術を組み合わせた対策が必要である。

土壌管理による農作物のCd濃度低減技術の一つとして堆肥など有機質資材施用⁸⁾が報告されている。この技術は土壌洗浄に比べコストが安く、植物浄化よりも労力がかからないという利点をもつ。そこで、大豆およびCd吸収性が高いとされるホウレンソウを用いて、有機質資材施用によるCd濃度低減効果に関するいくつかの知見を得たので報告する。

材料及び方法

栽培概要

試験1 牛ふん堆肥施用が大豆子実中Cd濃度と土壌pHに与える影響

供試植物として大豆（品種：フクユタカ）を1/2000aワグネルポットに2株仕立てで栽培した。2007年7月6日に播種し、2007年11月19日に収穫した。供試土壌はグライ土（0.1M塩酸可溶性Cd:0.30ppm）、供試資材は市販の牛ふん堆肥および苦土石灰を用いた。処理区分は無施用区、堆肥区（1, 3, 10t/10a）および苦土石灰区（pH6.4, pH6.7）とした。なお、苦土石灰区は苦土石灰を用いて土壌pHを調整した。これら7処理区とも各区3連とした。

試験2 牛ふん堆肥施用がホウレンソウ地上部Cd濃度と土壌全炭素含量に与える影響

供試植物としてホウレンソウ（品種：サマンサ）を直径15cmのポットに4株仕立てで栽培した。2008年6月5日に播種し、2008年7月8日に収穫した。供試土壌は黄色土、黒ボク土、灰色低地土の3種類に、Cdを1mg/kg乾土相当量をCdCl₂で添加し、さらに堆肥施用後の土壌pHが7.1となるよう、炭酸カルシウムを用いて調整した。供試資材として試験1と同様の市販の牛ふん堆肥を用いた。処理区分は堆肥区（0, 1, 3, 5, 10t/10a）を各土壌の種類毎に設置し、これら15処理区とも各区3連とした。

表1 試験区分

試験	供試植物	供試資材	供試土壌	土壌処理	試験区
1	大豆	牛ふん堆肥 苦土石灰	グライ土	-	無施用区、堆肥区（1, 3, 10t/10a） 苦土石灰区（pH6.4, pH6.7）
2	ホウレンソウ	牛ふん堆肥	黄色土 黒ボク土 灰色低地土	Cd: 1mg/kg乾土添加 土壌pH7.1に調整	堆肥区（0, 1, 3, 5, 10t/10a）
3	ホウレンソウ	腐植酸質資材	灰色低地土	Cd: 1mg/kg乾土添加 土壌pH7.1に調整	腐植酸質資材区（0, 0.5, 1, 5 t/10a）

表2 供試土壌の化学性

	pH(H ₂ O)	EC	T-C	T-N	C/N	Cd	
						0.1M-HCl	Total
		dS/m	g/kg	g/kg		mg/kg	mg/kg
グライ土	6.1	0.13	14.1	1.4	10.3	0.30	0.52
黄色土	5.0	0.05	3.5	0.4	8.5	0.01	0.03
黒ボク土	5.9	0.08	44.2	3.1	14.5	0.07	0.23
灰色低地土	6.3	0.06	10.6	0.9	11.8	0.11	0.18

表3 供試資材の化学性

	水分	pH(H ₂ O)	EC(1:10)	T-C	T-N	C/N	T-Cd
	g/kg		dS/m	g/kg	g/kg		mg/kg
牛ふん堆肥	432	9.3	4.1	354	24.4	14.5	0.5
腐植酸質資材	153	5.7	4.6	364	29.1	12.5	0.4

注) 水分、pHおよびECは現物あたり、その他は乾物あたりの分析値。

試験3 腐植酸質資材施用がハウレンソウ地上部Cd濃度と土壤全炭素含量に与える影響

供試土壤は灰色低地土、供試資材は市販の腐植酸質資材（アヅミン）を用いた。試験区分は腐植酸質資材区（0, 0.5, 1, 5t/10a）の全4処理区を各区3連とした。その他、供試植物、栽培概要および土壤処理などは試験2と同様とした。

なお、試験区分、供試土壤および供試資材の化学性を表1～3に示した。

植物体分析

大豆は風乾後の子実を粉碎し、ハウレンソウは地上部（葉および葉柄）を加熱乾燥（70℃）後、粉碎し試料とした。試料をマイクロウェーブ加熱分解法（硝酸-過酸化水素）により分解し、ICP発光光度法（IRIS/AP.SSEA）でCdの定量を行った。

土壤分析

土壤中全Cd濃度の定量は、風乾細土2.5gを過塩素酸分解法により湿式分解した試料を用いて行った。

また、土壤の形態別Cd濃度を定本らの土壤中重金属の形態別分析法⁹⁾を用いて調査した。なお、その方法は、風乾細土1.5gを0.05M $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 15mLと混和攪拌（30、24時間）し、遠心分離（3000rpm, 10min）した上澄みを交換態画分とした。その沈殿に2.5%酢酸15mLを混和攪拌（30、24時間）し、遠心分離（3500rpm, 15min）した上澄みを無機結合態画分とした。その沈殿と6%過酸化水素水25mLを混和後、温浴して蒸発濃縮した後、2.5%酢酸15mLを混和攪拌（30、24時間）し遠心分離（3500rpm, 20min）した上澄みを有機結合態画分とした。

各抽出液または分解液を直接または溶媒抽出（MIBK-DDTC法）後、フレイム原子吸光法（日立Z-5310）を用いて測定した。なお、土壤中全Cd濃度から、交換態、無機結合態および有機結合態Cd濃度の和を除いた値を、残渣のCd濃度とした。

なお、土壤分析には表2の供試土壤の化学性を除き、他はすべて栽培後の土壤を用いた。供試土壤の化学性の分析には、資材及びCdCl₂添加前の土壤を用いた。

試験結果

試験1 牛ふん堆肥ならびに苦土石灰施用が大豆子実中Cd濃度と土壤pHに与える影響

牛ふん堆肥ならびに苦土石灰施用が大豆子実中のCd濃度と栽培後の土壤pHに与える影響を図1に示した。牛ふん堆肥の施用量増加により、大豆子実中のCd濃度が低下した。無施用区の子実中Cd濃度が0.19mg/kgDWに対し、愛知県の大豆に対する牛ふん堆肥の施用基準である3t/10aを施用した堆肥3t区では、子実中Cd濃度が0.09mg/kgDWとなり、無施用区の46.1%に低下した。

また、苦土石灰の施用により、同様に大豆子実中のCd濃度が低下した。牛ふん堆肥10t区と苦土石灰区の土壤pHと子実中Cd濃度を比較すると、土壤pHは堆肥10t区

でpH6.0、苦土石灰区でpH6.2と2区は同程度の値を示したが、子実中Cd濃度は堆肥10t区で0.07mg/kgDW、苦土石灰区で0.18mg/kgDWと堆肥10t区の方が低く、同程度の土壤pHの場合、堆肥区の方が子実中Cd濃度が低くなっていた。

試験2 牛ふん堆肥施用がハウレンソウ地上部Cd濃度と土壤全炭素含量に与える影響

牛ふん堆肥を施用したときの、ハウレンソウ地上部Cd濃度と土壤全炭素含量の変化を図2に示した。牛ふん堆肥の施用量増加により、黄色土、黒ボク土、灰色低地土の3種類の土壤で、土壤全炭素含量が上昇し、ハウレンソウ地上部Cd濃度が低下した。土壤の種類別に比較すると、土壤全炭素含量の高い黒ボク土では、他の土壤に比べ、地上部Cd濃度が低くなっていた。

また、各土壤の無施用区の地上部Cd濃度100とし、各区の濃度をそれに対する比で示した値を、図2の地上部Cd濃度の棒グラフ上に示した。その値は、堆肥3t区で黄色土46、黒ボク土55、灰色低地土41、堆肥5t区で黄色土41、黒ボク土36、灰色低地土37となり、3種類の土壤で比較的近い値を示していた。

次に、牛ふん堆肥施用による土壤中Cdの形態分布の変化を図3に示した。土壤中Cdの形態分布は各土壤ともに、牛ふん堆肥の施用量増加に伴い、可給性の高い交換態Cdの割合が低下し、有機結合態Cdの割合が増加した。また、土壤全炭素含量の高い黒ボク土では、無施用区でも、交換態Cdの割合が低く、有機結合態Cdの割合が高くなっていた。

試験3 腐植酸質資材施用がハウレンソウ地上部Cd濃度と土壤全炭素含量に与える影響

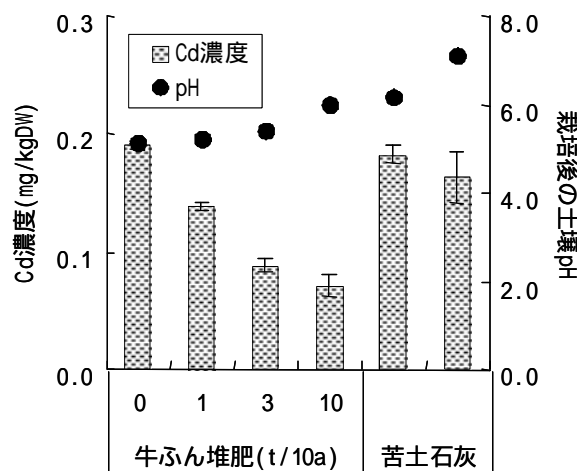


図1 牛ふん堆肥施用が大豆子実中Cd濃度と栽培後の土壤pHに与える影響

注) 苦土石灰区は土壤pHを pH6.4 pH6.7を目標に調整した。供試土壤はグライ土。

牛ふん堆肥同様、土壤全炭素含量を高める資材として、腐植酸質資材を施用したときの、ハウレンソウ地上部Cd濃度、および土壤全炭素含量の変化を図4に示した。腐植酸質資材の施用量増加により、堆肥同様に、土壤全炭素含量が増加し、ハウレンソウ地上部Cd濃度が低下した。

また、腐植酸質資材の施用による土壤中Cdの形態分布の変化を図5に示した結果、腐植酸質資材の施用量増加により、堆肥同様に、交換態Cdの割合が低下し、有機結合態Cdの割合が増加した。

さらに、試験2および試験3の結果について、土壤全炭素含量とハウレンソウ地上部Cd濃度の関係を、図6で示したところ、各土壤で土壤全炭素含量が高いほど地上部Cd濃度が低い傾向が認められた。

また、土壤全炭素含量と土壤中Cdの各形態の関係を調べたところ、図7で示すように、土壤全炭素含量と有機結合態Cd濃度の間に、正の相関が認められた。一方、図8のように、土壤全炭素含量と交換態Cd濃度の間に、負の相関が認められた。

また、図9のように、交換態Cd濃度とハウレンソウ

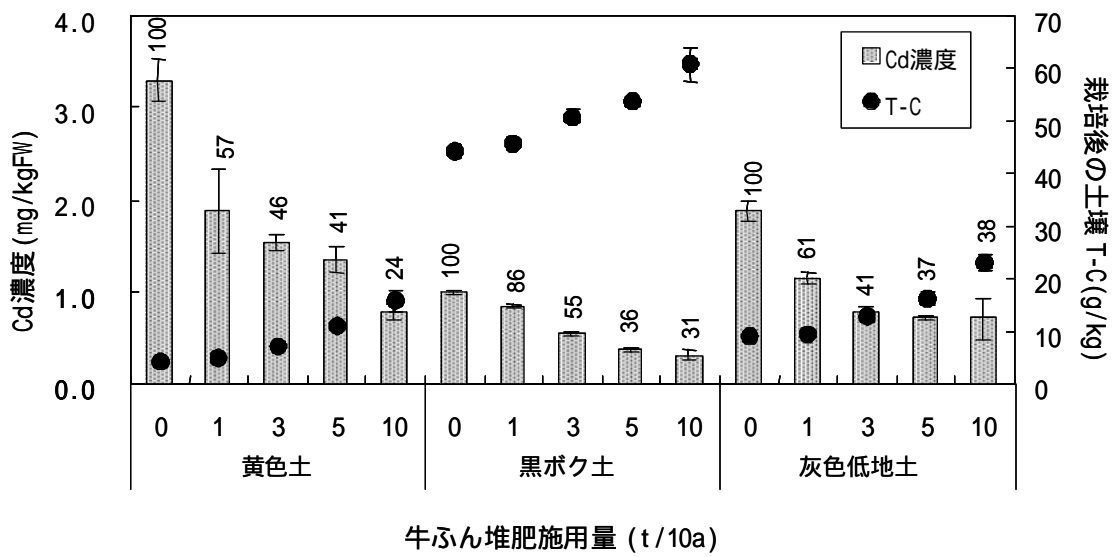


図2 牛ふん堆肥施用がハウレンソウ地上部Cd濃度と土壤全炭素含量に与える影響
注) 棒グラフ上の数値は各土壤の無施用区のCd濃度を100としたときの比率を示す。

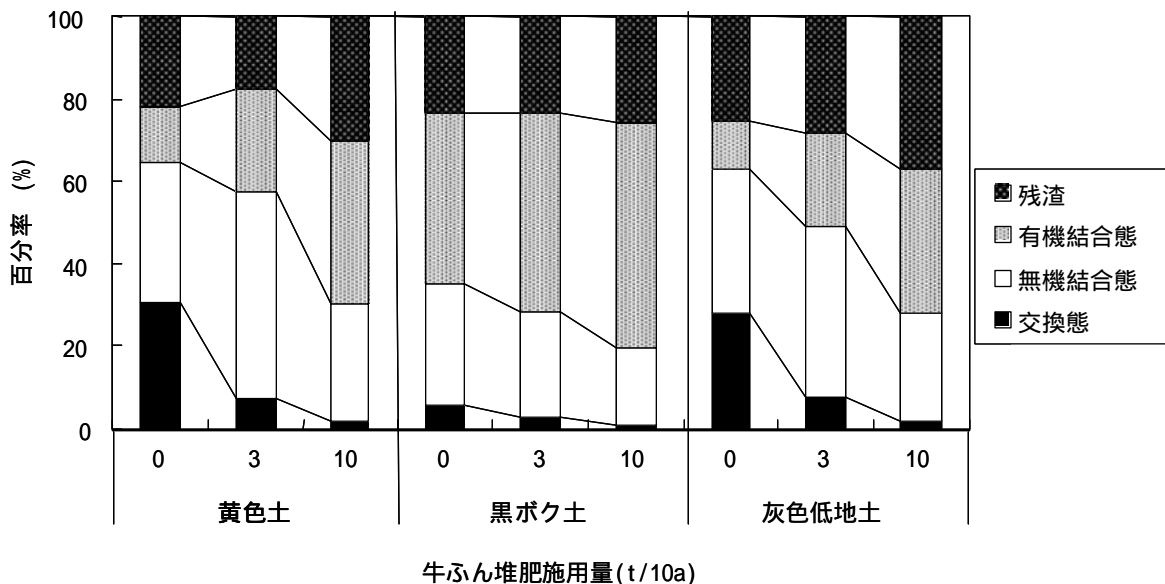


図3 牛ふん堆肥施用がハウレンソウ栽培後の土壤中Cdの形態分布に与える影響
注) 土壤中全Cd濃度を100%とし、そのうち各画分が占める割合を百分率で示す。

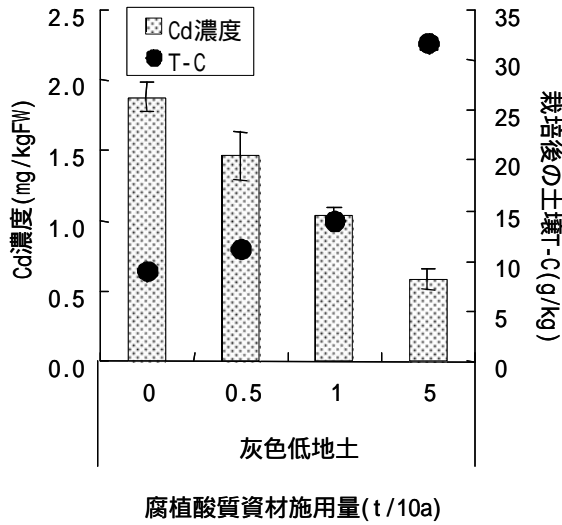


図4 腐植酸質資材施用がハウレンソウ地上部Cd濃度と土壤全炭素含量に与える影響

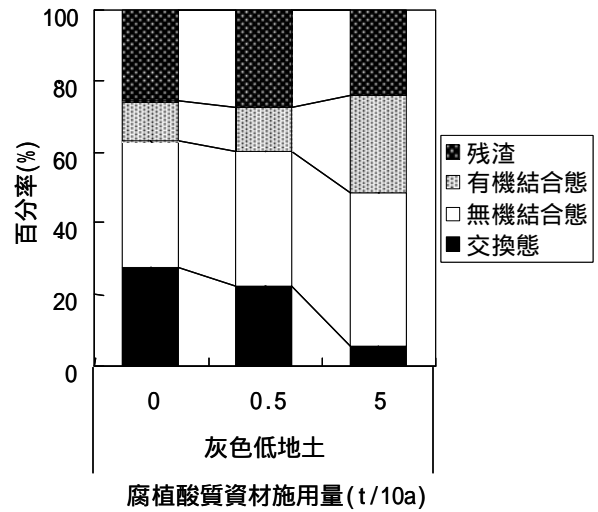


図5 腐植酸質資材施用がハウレンソウ栽培後の土壤中Cdの形態分布に与える影響
注) 土壤中全Cd濃度を100%とし、そのうち各画分が占める割合を百分率で示す。

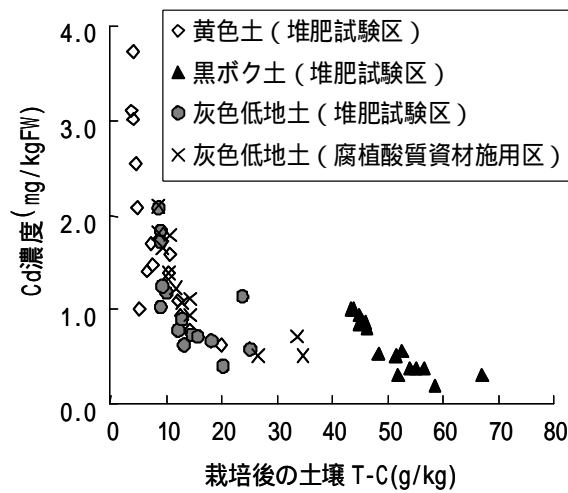


図6 ハウレンソウ地上部Cd濃度と土壤全炭素含量の関係

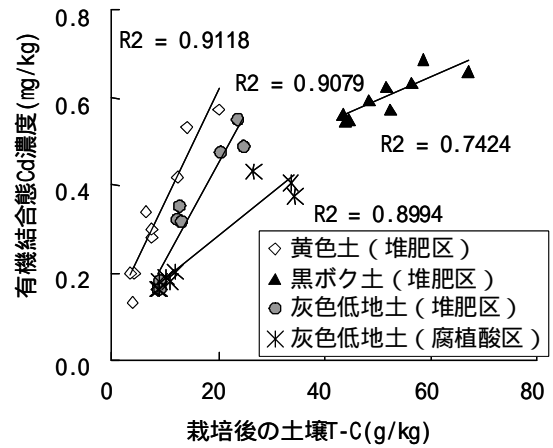


図7 土壤全炭素含量と有機結合態Cd濃度の関係

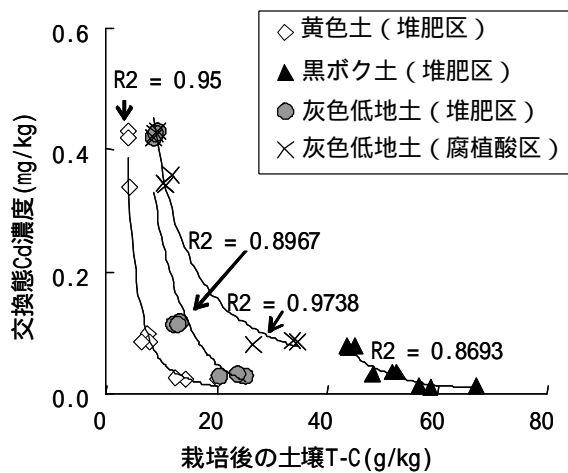


図8 土壤全炭素含量と有機結合態Cd濃度の関係

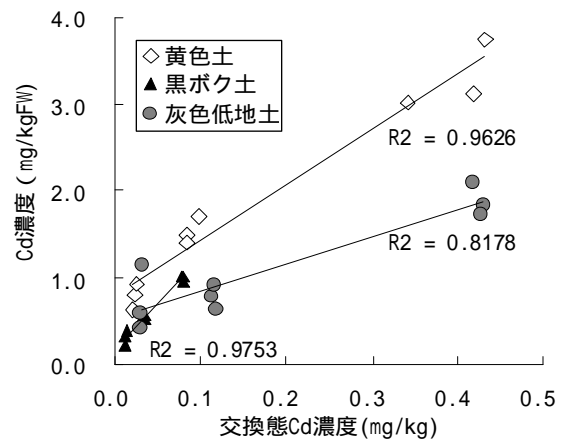


図9 交換態Cd濃度とハウレンソウ地上部Cd濃度の関係

地上部Cd濃度の間には正の相関が認められた。

考 察

土壌のpHを高く保つことで、作物のCd濃度を低減できることは多くの研究により報告されている^{2, 3)}。また、平成19年度に農林水産省が作成した「ダイズのカドミウム吸収抑制のための技術確立マニュアル」¹⁰⁾においても、炭酸カルシウムなどによる土壌pHの調整が、作物のCd吸収抑制対策の一つとして示されている。

本試験でも、苦土石灰施用により大豆子実中Cd濃度の低下が認められたことから、土壌pHの上昇により作物のCd吸収を抑制できることが確認された。牛ふん堆肥の施用も同様に土壌pHを上昇させることから、堆肥のCd濃度低減効果の土壌要因の一つとして、土壌pHの上昇が考えられる。しかし、土壌pHが同程度の場合、苦土石灰区より牛ふん堆肥区の方が子実中のCd濃度が低いことから、牛ふん堆肥施用によるCd濃度低減効果には、土壌pHの上昇だけでなく、他の土壌要因も関わると推察された。

堆肥など有機質資材の施用により土壌全炭素含量が高まることから、土壌全炭素含量と地上部Cd濃度の関係を調査した結果、全炭素含量が高いほど地上部Cd濃度が低い傾向が認められたため、土壌全炭素含量が土壌要因の一つである可能性が考えられた。

一方、堆肥および腐植酸質資材の施用が土壌中Cdの形態分布に与える影響を調べたところ、交換態Cdの割合が低下し、有機結合態Cdの割合が増加したことから、堆肥などの有機質資材の施用により、土壌中Cdの形態分布が変化することも明らかになった。

そこで、土壌全炭素含量と土壌中Cdの各形態との関係を調べると、土壌全炭素含量が高い黒ボク土では有機結合態Cdの割合が高くなっていること、また、土壌全炭素含量と有機結合態Cd濃度との間に正の相関が認められることから、土壌全炭素含量が高いほど有機結合態Cd濃度が高くなると考えられた。定元らも黒ボク土表層のような腐植の多い土壌ではCdが有機結合態として多く存在することを報告している⁹⁾。一方、土壌全炭素含量と交換態Cd濃度との間に負の相関が認められることから、土壌全炭素含量の増加により、交換態Cd濃度は低下すると考えられた。

加えて、交換態Cd濃度とハウレンソウ地上部Cd濃度との間に高い正の相関が認められることから、交換態Cd濃度の低下により、ハウレンソウ地上部Cd濃度は低下すると考えられる。

以上のことから、堆肥など有機質資材施用によるCd濃度低減効果は、資材施用による土壌全炭素含量増加により、有機結合態Cd濃度が上昇し、交換態Cd濃度が低下するため、農作物のCd濃度が低下すると考えられた。

現在、愛知県は畜産業の産出額が全国でも10位に位置し、そこから発生する多量の畜産廃棄物の循環利用が求められている。堆肥など有機質資材施用による農

作物のCd濃度低減効果は、それらの利用をはかる面でも有効であり、また、土作りの新しい意義の一つとしても考えられる。

今後の課題として、資材の分解による有機結合態Cdから交換態Cdへの再移行、資材施用中止後の土壌pHの低下による、土壌蓄積Cdの交換態への形態変化¹¹⁾も考えられることから、堆肥施用中止後のCdの動態と植物体への移行性を調べる必要がある。また、本試験は主に塩化カドミウムを添加した人工汚染土壌を用いて行ったが、今後はCd汚染土壌を用いた試験が必要である。

引用文献

1. 農林水産省 食品中のカドミウムに関する情報。
http://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_cd/kizyunti/index.html
2. 菊池直, 山崎浩道, 木村武, 宮地直道, 村上弘治. 野菜のカドミウム濃度に対する吸収抑制技術の効果. 野菜茶業研究所研究報告. 5, 25-32(2006)
3. 山田 宗孝, 織田 久男, 川崎 晃. カドミウムの畑作物への吸収と移行: 大豆のカドミウム吸収に対する土壌pH, 共存イオンの影響(中部支部講演会) 日本土壌肥料学会講演要旨集. 47, 350(2001)
4. 稲原誠, 雄川洋子, 東英男. 生育後期の湛水管理による水稻のカドミウム吸収抑制. 日本土壌肥料学雑誌 78(2), 149-155(2007)
5. 牧野知之, 前島勇治, 菅原和夫, 櫻井泰弘, 高野博幸(太平洋セメント). カドミウムで汚染された水田を修復するための土壌洗浄法. 農業環境研究成果情報. p.21(2006)
6. 伊藤正志, 中川進平, 伊藤千春, 金和裕. カドミウム高吸収イネ品種「長香穀」の土壌修復技術への利用. 東北農業研究成果情報. (2007)
7. 茨木俊行, 谷口彰. 農用地における重金属汚染土壌の対策技術の最前線 4. 植物による汚染農地の修復 - 実現可能なファイトレメディエーションを目指して -. 日本土壌肥料学会雑誌. 78(6), 627-632(2007)
8. 内藤健二, 佐藤賢一. 家畜ふん堆肥施用によるカドミウム, 亜鉛の作物への影響. 埼玉農総研研究報告. 7, 6-13(2007)
9. 定本裕明, 飯村康二, 本名俊正, 山本定博. 土壌中重金属の形態分別法の検討. 土壌肥料学会雑誌. 65(6), 645-653(1994)
10. 農林水産省 (独) 農業環境技術研究所. ダイズのカドミウム吸収抑制のための技術確立マニュアル. (2007) http://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_cd/taisaku/pdf/d_4.pdf
11. 岡本 保. 石灰系下水汚泥肥料施用中止後の土壌pH低下に伴う重金属類の存在形態, 移動性および可給性の変化 日本土壌肥料学雑誌. 72(1), 1-8