

水管理と含鉄資材を活用した「コシヒカリ」の玄米中無機ヒ素濃度の低減

楠田理恵*1・武久邦彦・野雄大・猪田有美*2・河村紀衣*3・蓮川博之

Reduction of brown rice (*Oryza sativa* L. cv. Koshihikari) inorganic arsenic concentration by water-saving management and iron amendments

Rie KUSUDA, Kunihiko TAKEHISA, Takehiro NO, Yumi INODA*, Kie KAWAMURA, Hiroyuki HASUKAWA

キーワード：玄米中カドミウム濃度, 酸化的水管理, ゼロ価鉄, トレードオフ

水稲の出穂前後各3週間における酸化的な水管理の省力化技術による玄米中無機ヒ素および玄米中カドミウム濃度の同時低減効果を評価検証した。さらに、入水前の含鉄資材施用と湛水管理を組み合わせた、ヒ素およびカドミウムの同時低減効果について評価検証した。

水稲の出穂前後各3週間に異なる酸化的な水管理、すなわち間断湛水(3日間湛水4日間落水を繰り返す)、落水3回(出穂前後各3週間の中で出穂期を除く期間において4日間の落水を3回実施)、落水2回(同左、落水を2回実施)、落水1回(出穂期前や出穂期に4日間の落水を1回実施)を実施した結果、湛水管理に対する異なる酸化的な水管理による玄米中無機ヒ素濃度の低減率は44~48%となり、落水回数の省力化が可能であることを明らかにした。また、玄米中カドミウム濃度は、本試験では水管理に関わらず低い値であり、同時低減が可能であった。なお、水稲の収量および品質は、落水管理を実施しても、湛水管理と大差なかった。

さらに、水田入水前に3種類の含鉄資材(FM:転炉さい、FB:非結晶性水酸化鉄、F₀:ゼロ価鉄)を各々の試験区に1回、多量施用(1,000~2,000 g m⁻²)し、出穂前後各3週間に湛水管理を実施した結果、含鉄資材施用から3年目まで玄米中無機ヒ素濃度の無施用区に対する低減率はいずれの含鉄資材でも約30~50%となり、特にF₀では低減率が大きかった。玄米中カドミウム濃度は、すべての試験区において定量下限値未満であり、同時低減が可能であった。

含鉄資材施用後の玄米中無機ヒ素低減率については、年次経過に伴い低下する傾向が認められたが、F₀では施用後10年目においても低減率は約10%を維持し、持続的な低減効果が認められた。なお、水稲の収量に年次間差は認められたものの、含鉄資材施用の低減技術を導入しても、無施用と有意差はなく、同水準を確保することが可能であり、品質についても同様の傾向にあった。

1. 緒言

水稲は土壌に微量に含まれる無機ヒ素やカドミウムを生育過程で吸収し、一部が玄米に移行する^{1), 2)}。無機ヒ素については、人体への発がん性等があることが指摘されており³⁾、コメ中無機ヒ素濃度の国際基準値(精米:0.2 mg kg⁻¹(2014年7月)、玄米:0.35 mg kg⁻¹(2016年6月))がコーデックス委員会により定められている⁴⁾。一方、カドミウムについては、暴露量が増加するにつれて、非特異的疾患やカドミウム腎症を引き起こすことが指摘されており^{2), 5)}、コメ中カド

ミウムの国際基準値(精米0.4 mg kg⁻¹(2006年7月))および食品衛生法による国内基準値(精米および玄米0.4 mg kg⁻¹(2011年2月))が、コーデックス委員会および厚生労働省により、それぞれ定められている^{4), 5)}。

ヒ素とカドミウムの土壌中の動態および玄米中への蓄積は、水稲栽培中の水管理に伴う酸化還元状態の変化によって変動する。土壌中のヒ素は酸化的な水管理下では溶出しにくい形態で存在し、水稲への吸収が抑制されるが、湛水による還元進行に伴い溶出しやすくなり、水稲へ吸収され蓄積する⁵⁾。一方、土壌中のカドミウムは酸化的な水管理下では溶出しや

*1Corresponding author, *2 東近江農業農村振興事務所 - 1 -

*3 湖東農業農村振興事務所

2025年3月24日受付, 2025年6月25日受理

すい形態に変化し、水稻に吸収されやすくなるが、還元状態では不溶化し、水稻に吸収されにくい。このように水稻によるヒ素とカドミウムの吸収には、水管理による土壌の酸化と還元との間でトレードオフの関係がある^{2), 5)}。

滋賀県の生産現場においては、白未熟粒等の発生を軽減し、玄米中カドミウム濃度の上昇を抑えるために、出穂前後各3週間の常時湛水管理が行われている⁶⁾。しかし、このような湛水管理方法では、5価のヒ酸(As(V))として土壌に吸着していたヒ素が、微生物作用によって3価の亜ヒ酸(As(III))に還元されて土壌溶液中に溶出し^{7), 8)}、水稻の根から吸収されやすくなるため、玄米中無機ヒ素濃度が上昇することが懸念される。このため、玄米中無機ヒ素濃度上昇とカドミウム濃度上昇の同時低減を可能とするには、水稻が無機ヒ素を吸収しやすい出穂前後各3週間の湛水管理期間中に一時的に土壌を酸化的に保つ水管理技術の開発が求められている⁹⁾。

酸化的になる期間を可能な限り短くし、玄米中カドミウム濃度の大幅な上昇を避けながら、玄米中無機ヒ素濃度を低減する技術として、中村ら¹⁰⁾は、出穂期の前3週間から後3週間の計6週間の間に3日間の湛水と4日間の落水を6回繰り返す間断灌漑3湛4落(以下、「間断灌漑」)による同時低減効果を報告している。しかし、この間断灌漑による方法は、水管理に労力を要することが課題とされている。

その一方で、玄米中カドミウム濃度が基準値を超過する可能性のある地域においては、出穂前後各3週間、湛水管理を実施しながら玄米中無機ヒ素濃度を低減する必要がある。これまで、湛水条件下における土壌中のヒ素を低減する技術として、含鉄資材の活用が研究されてきた。培養試験において土壌中ヒ素の溶出低減効果が認められた含鉄資材を用い、出穂前後各3週間に湛水管理下で圃場試験を行った結果、土壌中ヒ素の不溶化による水稻のヒ素吸収低減効果が認められたことが複数報告されている(Makino *et al.*, 2016; Honma *et al.*, 2016)。

そこで、本研究では、滋賀県農業技術振興センター内に供試圃場を設置し、水稻の出穂前後各3週間における間断灌漑の水管理によるヒ素とカドミウムの同時低減効果を確認した上で、酸化的な水管理の省力化技術による同時低減効果の評

価検証した。また、入水前の含鉄資材施用と湛水管理を組み合わせた、玄米中無機ヒ素および玄米中カドミウム濃度の同時低減効果を評価検証した。

2. 材料および方法

2.1 供試圃場、土壌理化学性、施肥設計、生育概要

本研究は、滋賀県近江八幡市の滋賀県農業技術振興センター(35° 18' N, 136° 1' E)内の隣接する水田2圃場、A圃場およびB圃場(各800 m²)で実施した。供試圃場の土壌は、包括的農耕地土壌分類第1次試案¹³⁾では中粒質斑鉄型グライ低地土に分類される。作土の粒径組成はピペット法¹⁴⁾で測定した。

水稻栽培開始前に圃場の作土を対角線採土法(5点法)により採取して混合した後に風乾し、目開き2.0 mmの篩で調製後分析に供した¹⁴⁾。pHは土壌に対する蒸留水の比を1:2.5として調整した懸濁液を測定し、可給態リン酸はトルオグ法、遊離酸化鉄はジチオナイトークエン酸塩還元溶解法、非晶質鉄は酸性シュウ酸塩溶解法、可給態ケイ酸含量は湛水保温静置法により分析した^{14), 15)}。交換性Mnは中性1 M酢酸アンモニウム液抽出法を用い、得られた抽出液を原子吸光法で測定した¹⁴⁾。

供試作物は、2013年(前作:水稻)から水稻「コシヒカリ」を滋賀県稲作技術指導指針⁶⁾に基づき栽培した。耕種概要を表1に示した。基肥施用、耕起および代かきは5月上旬、移植は5月中旬、出穂期は7月下旬~8月初め、成熟期は8月末~9月上旬であった。

2.2 水管理試験(試験1)

2.2.1 試験区構成(水管理概要)

各年次の水管理を表2に示した。一筆の圃場内に水管理の異なる試験区を設けるため、試験区の境界に畦波(厚さ約0.5 mm, 高さ300 mm)および畦波板(厚さ約4.5 mm, 高さ300~600 mm)を設置した。2015年~2017年までの試験区および2022年の落水2回はB圃場で実施した。

試験で実施した各水管理の方法を図1に示した。試験区は

表1 供試圃場の耕種概要

年次	圃場	基肥	追肥	穂肥I	穂肥II	P ₂ O ₅ -K ₂ O総計 (g m ⁻²)	移植日	出穂期 (月/日)	成熟期
2013	A	2	1	2	2	3-8	5/10	7/26	8/30
2014	A	6	-	-	-	6-6	5/14	7/28	9/3
2015	A	7	-	-	-	7-7	5/15	7/31	9/3
2016	A	7	-	-	-	7-7	5/19	8/1	9/2
2017	A	7	-	-	-	7-7	5/16	7/29	9/4
2018	B	5	-	-	-	5-5	5/16	7/30	8/30
2019	A	6	-	-	-	6-6	5/16	7/31	9/4
2019	B	5	-	-	-	5-5	5/16	7/31	9/4
2020	B	4	-	-	-	4-4	5/20	8/1	9/1
2021	B	3	-	-	-	3-3	5/17	7/29	9/1
2022	A	4	-	-	-	4-4	5/16	7/29	8/29
2022	B	3	-	-	-	3-3	5/16	7/29	8/29

注) B圃場の施肥量は、土壌分析値に基づきA圃場より減肥した。

表2 水管理試験の概要

年次	圃場	試験区	中干し		水管理方法および水管理期間			反復数		
			開始	終了	出穂前3週間	出穂期	出穂後3週間	水管理区	慣行区	
			(月/日)	(日)						(日)
2015	A	間断灌漑区	6/17	6/24	7	3日間湛水4日間落水	湛水	3日間湛水4日間落水	3	3
2016	A	間断灌漑区	6/17	7/3	16	3日間湛水4日間落水	湛水	3日間湛水4日間落水	4	3
2017	A	間断灌漑区	6/20	7/3	13	3日間湛水4日間落水	湛水	3日間湛水4日間落水	4	3
2018	B	落水3回区	6/14	6/26	12	落(7/16-7/20)	湛水	落水(8/4-8/8, 8/13-8/17)	4	4
2019	B	落水3回区	6/17	6/27	10	落水(7/5-7/10)	湛水	落水(8/1-8/6, 8/9-8/14)	4	4
2020	B	落水2回区	6/17	7/6	19	落水(7/16-7/21)	湛水	落水(8/11-8/16)	4	4
2021	B	落水2回区	6/14	6/28	14	落水(7/12-7/18)	湛水	落水(8/6-8/11)	4	4
2021	B	落水1回区	6/14	6/28	14	湛水	落水(7/27-8/1)	湛水	2	2
2022	B	落水2回区	6/13	6/28	15	落水(7/6-7/26)	湛水	落水(8/8-8/12)	4	4
2022	A	落水1回区	6/13	6/28	15	湛水	落水(7/23-7/27)	湛水	3	3

注) 各年次の試験区には、慣行区を設置した。慣行区の中干しは、各年次の試験区と同期間実施し、水管理方法は、出穂前後各3週間、常時湛水とした。

常時湛水管理（以下：慣行区）を対照とし、一定期間酸化的な水管理を組み入れた試験区を2~4反復で設置した。具体的な水管理として、2015年~2017年は中干し後の出穂前後各3週間の期間に3日間湛水と4日間落水を交互に繰り返す間断灌漑区を設置し、計6回の落水を実施した。2018年~2019年は間断灌漑区からの水管理の省力化を図るため、落水の回数を減らし、降雨のない時を見計らって、同期間に4日間の落水を3回実施する落水3回区を設置した。年次ごとに落水スケジュールの省力化を図り、2020年~2022年は同期間に4日間の落水を2回実施する落水2回区を設置し、2021

年~2022年は、出穂期直前または直後に4日間の落水を1回実施する落水1回区を2~3反復で設置した。落水1回区以外は、出穂期の約1週間落水を行わず、湛水期間とした。

2019年~2022年の試験では、落水期間中の降雨に対応するための基準を下記の通り年次ごとに3区分設定した。

2019年の落水3回区における落水期間中の降雨に対応するための基準は、降雨により再湛水した場合、4日間の落水を再度行った。降雨により再湛水には至らなかった場合、落水4日間の累積降雨量に応じて次式に従い落水期間を延長した。

$$\text{延長日数 (d)} = \text{落水4日間の累積降雨量 (mm)} /$$

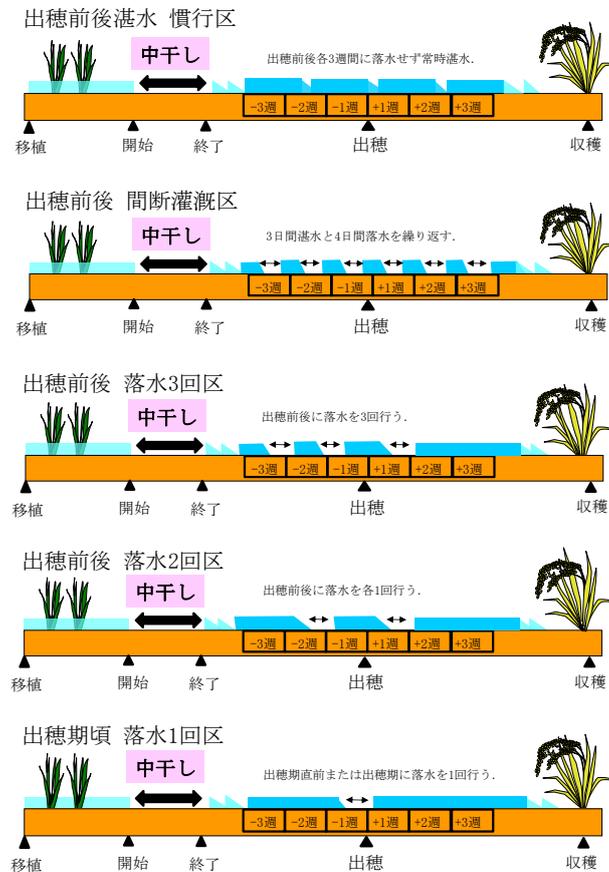


図1 各試験区における水管理の方法

日蒸発散量 (mm/d)

2020年の落水2回区における基準は、降雨が観測された場合、落水開始日からの経過日数により落水をやり直す期間を定めた。落水開始後2日(48時間)経過前の降雨により再湛水した場合、落水をやり直し、4日間(96時間)連続して土壌を乾かした後、入水した。落水開始後2日(48時間)経過後の降雨により再湛水した場合、落水をやり直し、3日間(72時間)連続して土壌を乾かした後、入水した。

2021年、2022年の落水2回区および落水1回区における基準は、落水開始後3日(72時間)経過前の降雨により再湛水した場合、落水をやり直し、4日間(96時間)連続して土壌を乾かした後、入水した。落水開始後3日(72時間)経過後に再湛水した場合は、落水をやり直し、3日間(72時間)連続して土壌を乾かした後、入水した。

2. 2. 2 調査方法

2. 2. 2. 1 玄米中無機ヒ素の分析

玄米は粉碎機(シェイクマスターオート, バイオメディカルサイエンス, JP)を用いて、ポリプロピレン製50 mL遠沈管に玄米粒とステンレスビーズを入れ、振動させ粉碎した。粉碎した玄米粉末に0.28 mol L⁻¹硝酸を加えて無機ヒ素を110°C, 2時間加熱抽出し、希釈およびろ過後、HPLC-ICP-MS(高速液体クロマトグラフ, HPLC: Flexar, PerkinElmer, MA; ICP-MS: NexION300xx, PerkinElmer, MA)誘導結合プラズマ質量分析法によりヒ素の化学形態別分析を行った(Baba *et al.*, 2014)。玄米粉末の水分率を送風定温恒温器にて135°C, 3時間乾燥により求め、その水分率から玄米水分率15%として換算した玄米中無機ヒ素濃度を算出した。分析精度の確認には白米認証標準物質であるNMIJ CRM 7503-a, 7503-bを用いた。

2. 2. 2. 2 玄米中カドミウムの分析

玄米粉末中におけるカドミウムの分析は、フローインジェクション(FI)-誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)によるBabaら¹⁰⁾の報告を一部修正し、実施した。

玄米粉末0.5 gを50 mLデジチューブ(SCP Science)に入れ、60~70%硝酸を5 mL加えて一晩以上置き玄米粉末の予備分解を行った後、デジプレッ加熱分解システム(SCP Science)またはアルミブロック恒温槽(タイテック)とアルミブロック(AL-3009, タイテック)を用いて110°Cで2時間加熱した。放冷後、30%過酸化水素水1 mLを添加し、110°Cで1時間加熱した。放冷後、超純水を加え50 mLに希釈し、内容物を振り混ぜた後、ポリプロピレン製シリンジとポリエーテルスルホンメンブレンのシリンジフィルター(エコノフィルタ, アジレントテクノロジーズ)を用いてろ過した。内部標準元素としてインジウムをろ液に添加後、カドミウムを

FI-ICP-MS(FI: Flexar, PerkinElmer, MA; ICP-MS: NexION300xx, PerkinElmer, MA)により定量した。分析精度の確認には、玄米あるいは白米の認証標準物質であるNMIJ CRM 7532-a, 7533-a, 7502-a, 7503-a, 7503-b, NIST SRM 1568bの中から複数を用いた。

2. 2. 2. 3 土壌溶液の採取および土壌溶液中の溶存ヒ素濃度の測定

土壌溶液を採取する機材を中干し開始の2週間以上前に、供試圃場の各試験区へ各々1か所設置した。0.15 μm孔径の樹脂製土壌溶液サンプラー(Rhizon mom 19. 21. 21, Rhizosphere Research Products, NL)に、50 cm延長チューブ(X1-L50, 株トップ)を接続した後、サンプラーと反対側の延長チューブに、ルアーコネクター(19. 21. 08F, Rhizosphere Research Products, NL)を接続した。サンプラーは土壌面に対して平行に深さ10 cmに設置し、サンプラーと土壌が密着するように土壌の構造を十分に乱しながら埋め戻した後、土壌面を平らにした。土壌に挿した支持棒に延長チューブを固定し、土壌面から高さ約30 cmにルアーコネクターを設置した。

土壌溶液を採取する前に、ルアーコネクターに採血針ホルダー付ルアー(33-151, ニプロ株式会社)を接続後、真空採血管(採血量7 mL, ベノジェクトII VP-P070K30, テルモ株式会社)をセットし、土壌溶液の初流を採取した。約7 mL採取した初流は分析には使用せず廃棄した。次に、9~10%の硝酸を予め少量添加しておいた別の真空試験管に分析用の土壌溶液を採取した。硝酸添加量は真空採血管の規定量(7 mL)を採取すると約1%硝酸となる液量とした。土壌溶液の採取時期は中干し開始前、出穂10日前、出穂5日後および出穂15日後を基準とした。土壌溶液中の総ヒ素濃度は、内部標準元素としてインジウムを添加後、FI-ICP-MS(2. 2. 2. 2と同様)により定量した。分析精度の確認には、地下水認証標準物質ERM-CA615および河川水認証標準物質NMIJ CRM 7202-cを用いた。

2. 2. 2. 4 酸化還元電位の測定

土壌の酸化還元電位(土壌Eh)は、1試験区あたり白金電極(EP201-5-1. 0, 株式会社藤原製作所)2本を土壌面と水平になるように、2015年は深さ5 cm, 2019年および2022年は深さ10 cmに設置し、土壌Eh測定器(PRN-41, 比較電極4400型, 株式会社藤原製作所)を用いて測定した。2015年はデータロガー(CR1000, Campbell Scientific, Inc.)およびマルチプレクサー(AM16/32B, Campbell Scientific, Inc.)に白金電極(EP201-5-1. 0, 株式会社藤原製作所)および比較電極(4400型, 株式会社藤原製作所)を接続し、Ehを1時間毎に連続測定した。2019年、2022年は、中干し開始時、中干し

終了時、出穂期前後の落水期に測定した。白金電極は、水稻の移植から約1週間後に各試験区に設置し、中干し前までに測定値が安定していることを確認した。

2. 2. 2. 5 作物体調査項目

1 試験区あたり 30 株を抽出して採取し、収量（精玄米重）および品質（整粒粒比）を測定した。外観品質は、1.80 mm で選別した試料を用い、穀粒判別器 (RGQI10B, 株式会社サタケ) により測定し、粒数比で算出した。精玄米重は、1.80 mm 以上で水分 15% 換算値として算出した。

2. 2. 3 データ解析

本試験では実施した水管理が年次ごとに異なり、全ての水管理を同一年では実施していない。

玄米中無機ヒ素濃度は、対照となる慣行区でも毎年変動するため、異なる水管理間の濃度の年次間の比較では玄米中無機ヒ素の低減効果を正しく評価できない。そのため、水管理間の玄米中無機ヒ素濃度の比較は、慣行区からの低減率を用いた。なお、玄米中無機ヒ素の低減率は以下の式で求め、実施年の異なる水管理間で比較するため、統計解析を行わなかった。

$$\text{玄米中無機ヒ素濃度低減率 (\%)} = (1 - \text{各水管理区の玄米中無機ヒ素濃度} / \text{慣行区の玄米中無機ヒ素濃度}) \times 100$$

各水管理の玄米中無機ヒ素濃度は、年次ごとに計算された玄米中無機ヒ素低減率を平均して値を算出した。

また、慣行区の玄米中カドミウム濃度が、全ての年次において定量下限値未満であったため、玄米中カドミウム濃度の統計解析を行わなかった。

精玄米重および整粒粒比は、年次の異なる値を平均し比較しているため、水管理処理による統計解析を行わなかった。

2. 3 含鉄資材施用試験 (試験 2)

2. 3. 1 試験区構成

ヒ素溶出低減資材として、3 種類の含鉄資材を 2013 年の入水前に A 圃場に施用した。試験区および含鉄資材の概要を表 3 に記す。試験区は、転炉さい区 (以下: 「FM 区」, FM ゴールド, 鉄含有量 19%, 施用量 2,000 g m⁻², 内鉄 380 g m⁻²), 非結晶性水酸化鉄資材区 (以下: 「FB 区」, フィックスオール, 鉄含有量 56%, 施用量 1,000 g m⁻², 内鉄 560 g m⁻²), ゼロ価鉄区 (以下: 「F₀ 区」, エコメル, 鉄含有量 99%, 施用量 1,000 g m⁻², 内鉄 990 g m⁻²), とし、対照区として「無施用区」を設置した。中干し後の水管理は、いずれの区においても出穂前後各 3 週間、常時灌水とした。

2. 3. 2 調査方法

表3 含鉄資材施用試験の試験区構成

試験区	含鉄資材	鉄含量 (%)	施用量 (g m ⁻²)
	資材名		
FM区	FMゴールド	19	2,000
FB区	フィックスオール	56	1,000
F ₀ 区	ゼロ価鉄	99	1,000
無施用区	-	-	-

注) 施用日: 2013年4月26日。

供試圃場の土壌化学性、施肥設計、生育概要は 2. 1 に準じた。土壌は、表層部を薄く剥いだ後の土壌面から深さ約 15 cm までの作土層を採取した¹⁴⁾。土壌採取は、2013 年の含鉄資材施用前および 2014 年、2016 年、2017 年、2019 年、2022 年の水稻栽培前に行い、土壌 pH、遊離酸化鉄、可給態ケイ酸について 2. 1 の方法に準じて分析した。

なお、玄米中無機ヒ素およびカドミウム濃度、精玄米重、整粒粒比は、2. 2 の水管理試験に準じて調査した。

2. 3. 3 データ解析

玄米中無機ヒ素濃度は、対照となる無施用区でも毎年変動するため、異なる年次間の比較では玄米中無機ヒ素濃度の低減効果を正しく評価できない。そのため、各含鉄資材施用区間の玄米中無機ヒ素濃度の比較は、無施用区からの低減率を用いて行った。なお、玄米中無機ヒ素濃度の低減率は以下の式で求め、無施用区に対する各含鉄資材施用区の低減率で年次ごとに比較するため、統計解析を行わなかった。

$$\text{玄米中無機ヒ素濃度低減率 (\%)} = (1 - \text{各含鉄資材施用区の玄米中無機ヒ素濃度} / \text{無施用区の玄米中無機ヒ素濃度}) \times 100$$

玄米中カドミウム濃度は、定量下限値未満もしくは濃度が低く、無施用区と比較して値の上昇は認められなかったことから、統計解析を行わなかった。年次ごとの精玄米重および整粒粒比は、一元配置分散分析を行った後、Tukey HSD による多重比較を行った (BellCurve[®]エクセル統計, 2022)。

3. 結果

3. 1 水管理試験 (試験 1)

3. 1. 1 供試圃場の土壌

供試圃場の土壌粒径組成および土性を表 4 に示す。作土の土性区分は砂壤土 (SL) であり、土性区分の細分は FSL (細砂 40% 以上、かつ粗砂 45% 以下の SL) に分類された¹⁴⁾。

供試圃場の土壌化学性を表 5 に示す。A 圃場の pH は、改良目標値 (5.5~6.5) の下限値以下、B 圃場の pH は、改良目標値の範囲内であった。A および B 圃場の可給態リン酸含有量は、滋賀県の改良目標値 (P₂O₅ として 100 mg~200 mg 乾土 1

表4 供試圃場の土壌粒径組成および土性

圃場	砂 (%)			シルト (%)	粘土 (%)	土性 (%)
	粗砂	細砂	計			
A	20.2	48.7	68.8	17.4	13.8	砂壤土 (SL)
B	20.9	49.7	70.7	16.4	13.0	砂壤土 (SL)

注1) 粗砂 (2.0 mm未満-0.2 mm), 細砂 (0.2 mm-0.02 mm), シルト (0.02 mm-0.002 mm), 粘土 (0.002 mm未満).
 注2) A圃場は12試験区, B圃場は10試験区の平均値を示す.

表5 供試圃場の土壌化学性

圃場	pH	炭素	窒素	CEC	可給態リン酸	鉄		交換性Mn	可給態Si	ヒ素	カドミウム
		含量	含量			遊離酸化鉄	非晶質鉄				
		(g kg ⁻¹)	(g kg ⁻¹)	(cmol _c kg ⁻¹)	(mg P ₂ O ₅ kg ⁻¹)	(g Fe kg ⁻¹)	(g Fe kg ⁻¹)	(mg Mn kg ⁻¹)	(mg Si kg ⁻¹)	(mg As kg ⁻¹)	(mg Cd kg ⁻¹)
A	5.4	20.7	1.65	13.2	131	9.0	5.5	28.7	54.0	1.69	0.14
B	5.7	21.6	1.72	12.6	143	8.1	6.3	41.9	61.2	1.65	0.20

注) 土壌採取時期: A圃場は2013年4月, B圃場は2018年4月.

kg⁻¹)の範囲内であった¹⁷⁾. AおよびB圃場の遊離酸化鉄含有量は、滋賀県の改良目標値 (8 g~20 g 乾土 1 kg⁻¹)の範囲内であった¹⁷⁾. 1 M塩酸抽出性ヒ素濃度はA圃場 1.69 mg kg⁻¹, B圃場 1.65 mg kg⁻¹であり、農用地土壌汚染防止法に基づく農用地土壌汚染対策地域の指定要件 (水田: 15 mg kg⁻¹以上 (1 M塩酸抽出))と比べて顕著に低かった¹⁸⁾. 0.1 M塩酸抽出性カドミウム濃度は、A圃場 0.14 mg kg⁻¹, B圃場 0.20 mg kg⁻¹であった.

3. 1. 2 水管理による土壌Ehの推移

2015年の慣行区と間断灌漑区における水稻栽培期間中の土壌Ehの推移を図2に示す. 2015年の中干し期間中における慣行区および間断灌漑区の土壌Ehの値は、+584 mVおよび+420 mVまで各々上昇した. 間断灌漑区では、中干し後から8月21日までの期間に落水を6回実施した. この内、土壌Ehの上昇が+100 mVに達しなかったのは1回、中干し終了時の土壌Ehと同程度まで上昇した回数は3回 (落水3回目~5回目, +557 mV~613 mV)であった. 土壌が十分に酸化した状態であっても、落水開始後、土壌Ehは速やかにマイナス値に低

下した.

2019年の慣行区と落水3回区における水稻栽培期間中の土壌Ehの推移を図3に示す. 中干し前の湛水終了時に-176 mVであった土壌Ehは、中干し終了時に慣行区+571 mV, 落水3回区+602 mVまで上昇した. 落水3回区における4日間の落水期間終了直前の土壌Ehは、落水1回目-19 mV, 2回目+486 mV, 3回目+478 mVであった.

2022年の慣行区、落水2回区および落水1回区の土壌Ehの推移を図4に示す. 中干し前の湛水終了時に-150 mV前後であった土壌Ehは、中干し終了時には落水2回区の対照区であるB圃場の慣行区+571 mV, 落水1回区の対照となるA圃場の慣行区+661 mV, 落水2回区+596 mV, 落水1回区+643 mVであった. 落水2回区の落水期間終了直前の土壌Ehは、落水1回目+707 mV, 2回目+697 mVまで上昇した. 落水1回区の落水1回目終了直前の土壌Ehは、+650 mVまで上昇した.

3. 1. 3 土壌溶液中の溶存ヒ素濃度

2022年の落水1回区および落水2回区について、深さ10 cmから採取した土壌溶液中の溶存ヒ素濃度を図5に示す.

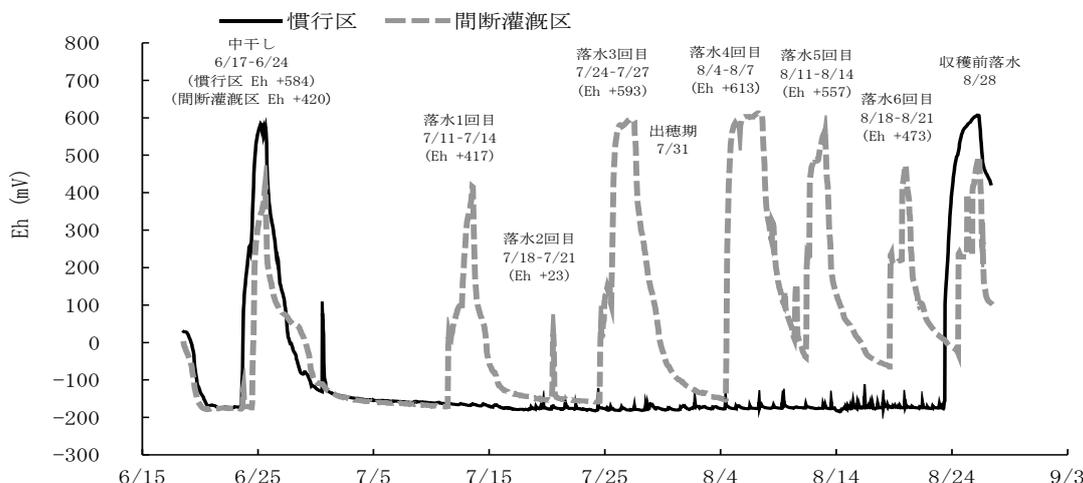


図2 間断灌漑区における土壌Ehの推移 (2015年)

注) ()内の数字は、中干しおよび落水期間中における土壌Ehの最高値を示す.

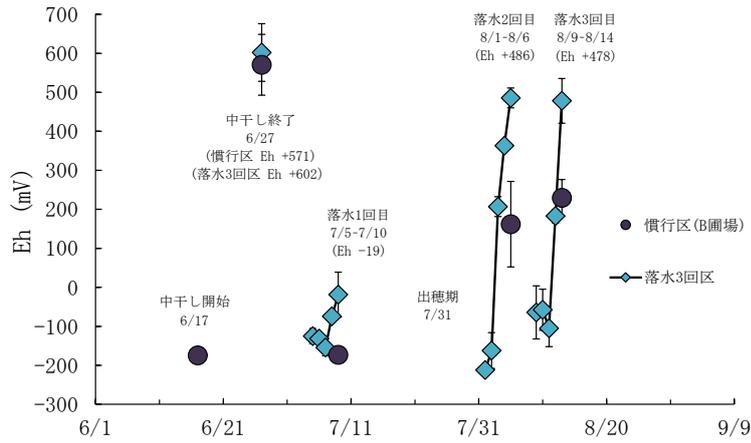


図3 落水3回区における土壌Ehの推移(2019年)

注1) ()内の数字は、中干しおよび落水期間中における土壌Ehの最高値を示す。
 注2) エラーバーは、標準偏差を示す。

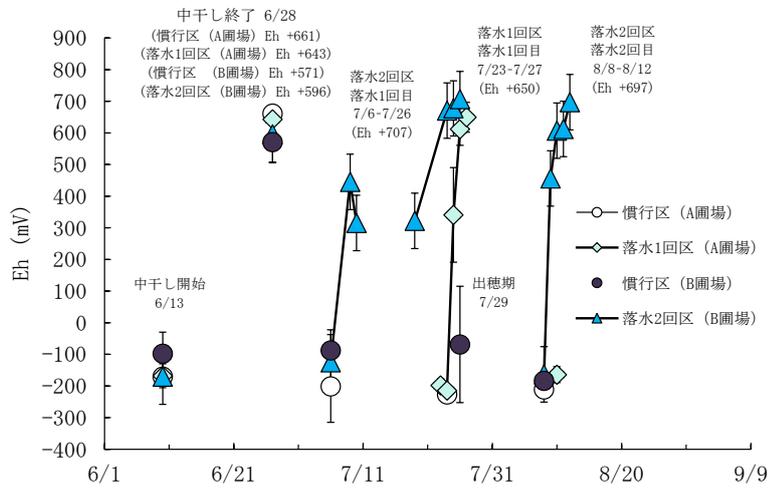


図4 落水2回区および落水1回区における土壌Ehの推移(2022年)

注1) ()内の数字は、落水期間中における土壌Ehの最高値を示す。
 注2) 落水2回区 落水1回目において、7/11~7/18にかけて断続的な降雨により再湛水したため、この期間の土壌Ehは測定していない。
 注3) エラーバーは、標準偏差を示す。

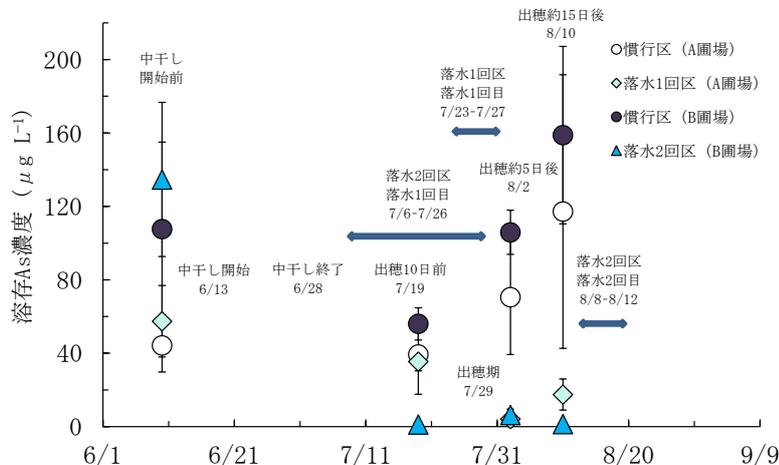


図5 落水1回区および落水2回区における溶存ヒ素濃度の推移(2022年)

注) エラーバーは、標準偏差を示す。

土壌溶液中の溶存ヒ素濃度は、中干し開始前に慣行区(B圃場)および落水2回区では高い値を示し、出穂10日前に一旦低下した。その後、慣行区(A, B圃場)では、出穂約15日後に著しく上昇した。その一方、落水2回区では、落水1回目の期間中(7月6日~7月26日)の7月19日に土壌溶液を採取したところ、溶存ヒ素濃度が $0 \mu\text{g L}^{-1}$ 付近まで低下し、その後湛水時の溶存ヒ素濃度の上昇も抑制され、慣行区および落水1回区よりも低い濃度で推移した。

落水1回区では、7月19日に土壌溶液を採取したところ、溶存ヒ素濃度が $35.4 \mu\text{g L}^{-1}$ であり、慣行区(A圃場, $39.3 \mu\text{g L}^{-1}$)と同程度であったが、落水1回目(7月23日~7月27日)後の8月2日に溶存ヒ素濃度は $4.1 \mu\text{g L}^{-1}$ まで低下するとともに、慣行区(A圃場, $70.5 \mu\text{g L}^{-1}$)と比較しても顕著に低い値であった。落水1回区の溶存ヒ素濃度の上昇は、8月10日においても緩やかであった。

3. 1. 4 玄米中無機ヒ素濃度および玄米中カドミウム濃度

出穂前後各3週間の水管理を行った試験区について、慣行区に対する玄米中無機ヒ素濃度の低減率を図6に示す。

出穂前後各3週間に、3日間の湛水と4日間の落水を6回繰り返す間断灌漑区の水管理において、玄米中無機ヒ素濃度の慣行区に対する低減率は48%であった。

間断灌漑区から省力化を図る酸化的な水管理である落水3回区の玄米中無機ヒ素濃度の慣行区に対する低減率は47%となり、間断灌漑区と同様の低減効果が認められた。また、落水2回区の玄米中無機ヒ素濃度の慣行区に対する低減率は46%、落水1回区は44%となり、間断灌漑区と同水準の低減効果が認められた。

水管理試験における玄米中カドミウム濃度は、慣行区ではいずれの年次においても、定量下限値未満であった。また、

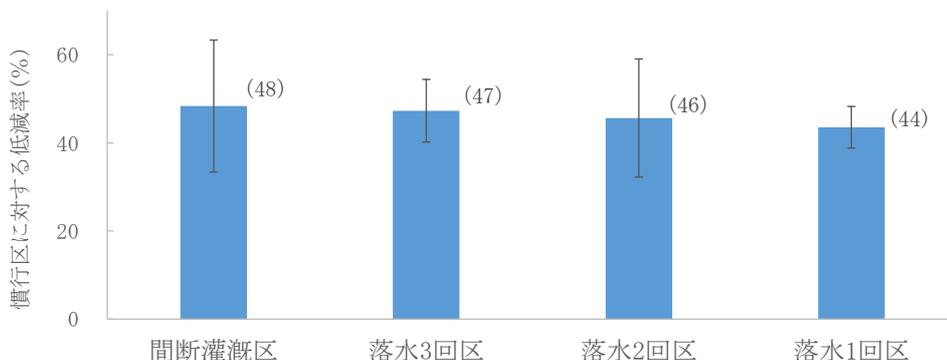


図6 水管理試験における玄米中無機ヒ素濃度の慣行区に対する低減率

- 注1) 玄米中無機ヒ素低減率 (%) = $(1 - \text{各水管理区の玄米中無機ヒ素濃度} / \text{慣行区の玄米中無機ヒ素濃度}) \times 100$
 注2) 間断灌漑区：2015年-2017年の平均値，落水3回区：2018年-2019年の平均値，落水2回区：2020年-2022年の平均値，落水1回区：2021年-2022年の平均値。
 注3) エラーバーは、標準偏差を示す。

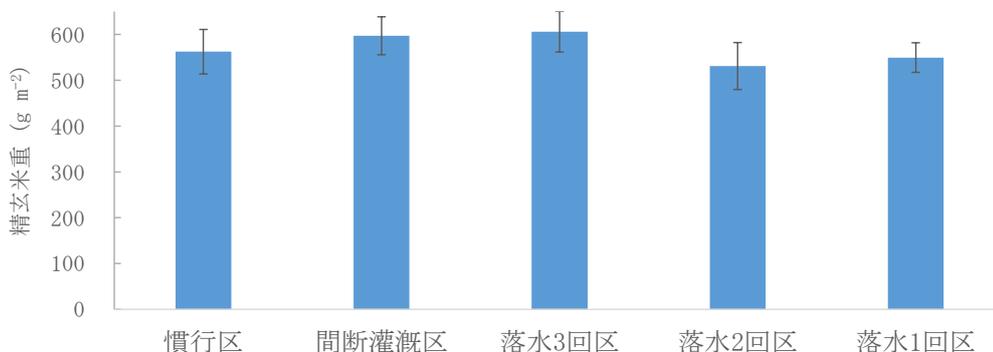
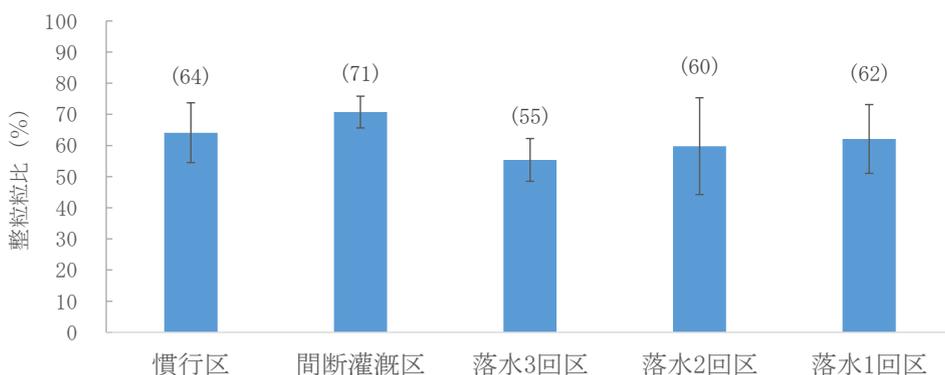


図7 水管理試験における精玄米重

- 注1) 慣行区：2015年~2017年の平均値 (562g m^{-2})，間断灌漑区：2015年~2017年の平均値 (597g m^{-2})，落水3回区：2018年~2019年の平均値 (595g m^{-2})，落水2回区：2020年~2022年の平均値 (534g m^{-2})，落水1回区：2021年~2022年の平均値 (549g m^{-2})。
 注2) エラーバーは、標準偏差を示す。



注1) 間断灌漑区：2015年～2017年の平均値，落水3回区：2018年～2019年の平均値，落水2回区：2020年～2022年の平均値，落水1回区：2021年～2022年の平均値。
注2) エラーバーは，標準偏差を示す。

2021年の落水2回区および落水1回区，2022年の落水1回区においても，定量下限値未満であった。間断灌漑区，落水3回区，2020年および2022年の落水2回区では，低濃度であるものの，玄米中カドミウムが検出された（データ略）。

3.1.5 水稻の収量および品質

水稻の収量（精玄米重）および品質（整粒粒比）をそれぞれ図7, 8に示す。慣行区ならびに出穂前後各3週間に水管理を行った各試験区における精玄米重および整粒粒比について，落水管理を実施しても，慣行区と大差なかった。

3.2 含鉄資材施用試験（試験2）

3.2.1 供試圃場の土壌，土壌pH，遊離酸化鉄，可給態ケイ酸

供試圃場の土壌粒径組成および土性区分，土壌化学性を3.1.1に記す。

図9-1に含鉄資材施用2年目（2014年）から10年目（2022年）までの土壌pHの推移を示す。FM区の土壌pHは，施用後初めて測定した施用2年目（2014年）に最も高く，その後低下傾向であったものの，施用5年目（2017年）にかけて他試験区より高く推移し，施用7年目（2019年）に他試験区と同

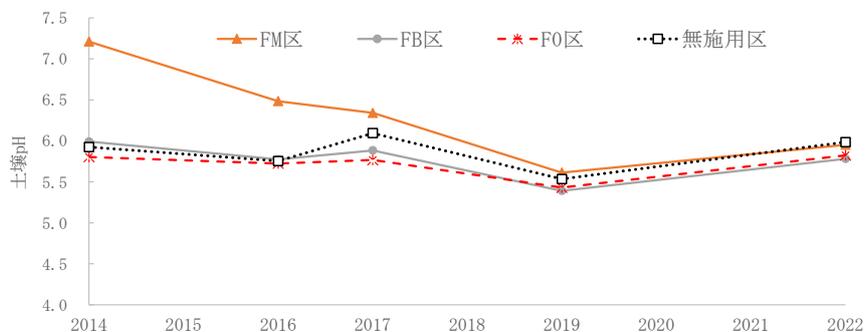


図9-1 含鉄資材施用試験における土壌pHの推移

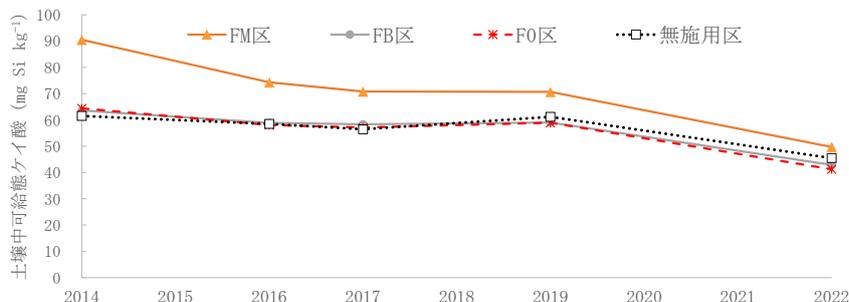


図9-2 含鉄資材施用試験における土壌中可給態ケイ酸(Si)の推移

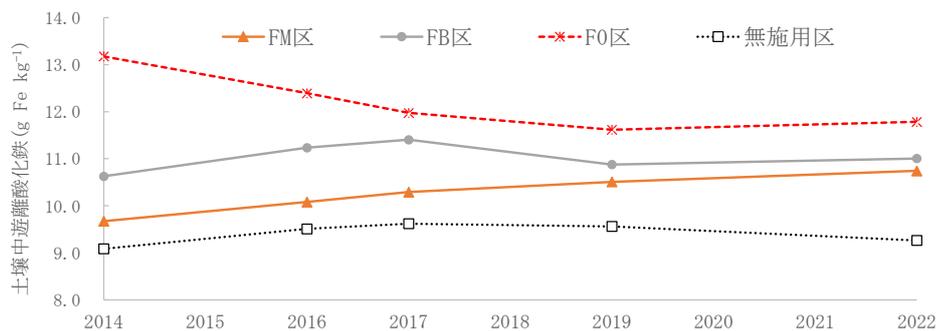


図9-3 含鉄資材施用試験における土壤中遊離酸化鉄(Fe)の推移

水準となった。FB区およびF₀区の土壌pHは6前後で推移し、無施用区と同水準であった。

図9-2に土壌中の可給態ケイ酸の推移を示す。FM区の土壌中の可給態ケイ酸は、施用後初めて測定した施用2年目(2014年)に最も高くなり、その後徐々に低下傾向で、施用10年目(2022年)に他試験区と同水準となった。施用2年目(2014年)から施用10年目(2022年)にかけて、F₀区、FB区の可給態ケイ酸は、無施用区と同水準であった。

図9-3に土壌中の遊離酸化鉄の推移を示す。F₀区の土壌中の遊離酸化鉄は、施用後初めて測定した施用2年目(2014年)に最も高く、いずれの各鉄資材施用区でも施用10年目(2022年)まで無施用区と比較して高い値で推移した。

3. 2. 2 玄米中無機ヒ素濃度および玄米中カドミウム濃度

玄米中無機ヒ素濃度の無施用区に対する低減率の年次推移

について図10に示す。

鉄資材を1回、多量施用(1,000~2,000 g m⁻²)すると、出穂前後各3週間に湛水管理を行った場合でも、施用開始から3年目(2015年)まで無施用区に対する玄米中無機ヒ素濃度の低減率を約30~50%にすることが可能であり、特にF₀区では低減率が大きかった。各含鉄資材施用区における施用後4年目(2016年)の玄米中無機ヒ素低減率は、無施用区の約20~30%となり、以降年次経過に伴い低減効果は小さくなる傾向が認められた。施用後7年目(2019年)の玄米中無機ヒ素濃度の低減率は、無施用区の8~16%であった。

施用後10年目(2022年)においてもF₀区の玄米中無機ヒ素濃度の低減率は、無施用区の約10%であり、F₀区の低減効果は他の含鉄資材施用区と比較して10年間持続した。

玄米中カドミウム濃度は、全ての試験区において、定量下限値未満であった(データ略)。

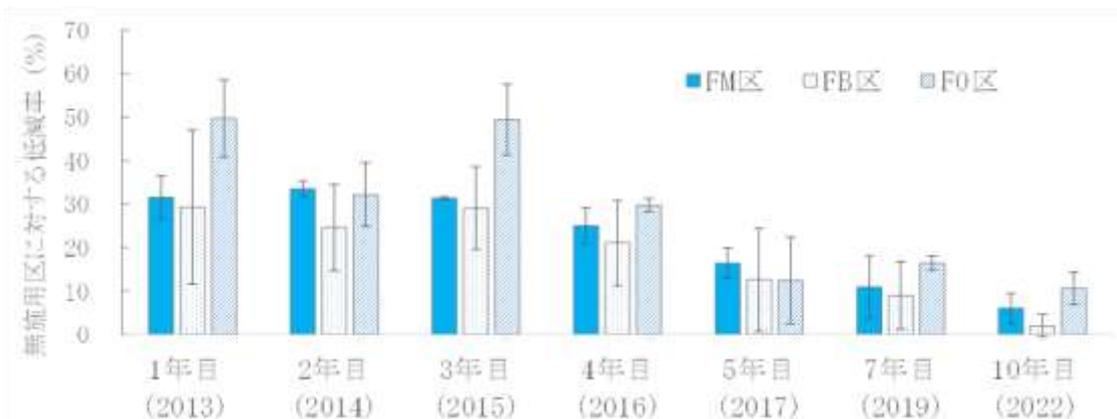


図10 含鉄資材施用試験区における玄米中無機ヒ素濃度の無施用区に対する低減率

注1) 玄米中無機ヒ素低減率(%)=(1 - 各含鉄資材施用区の玄米中無機ヒ素濃度 / 無施用区の玄米中無機ヒ素濃度) × 100

注2) エラーバーは、標準偏差を示す。

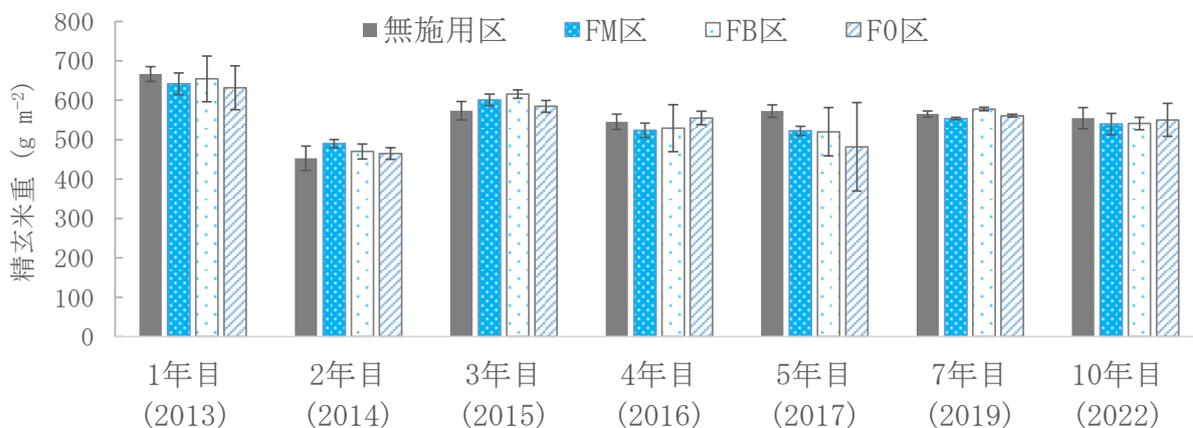


図11 含鉄資材施用試験区における精玄米重

注1) 各年次とも5%水準の有意差は認められなかった (Tukeyによる多重比較検定.)
 注2) エラーバーは、標準偏差を示す。

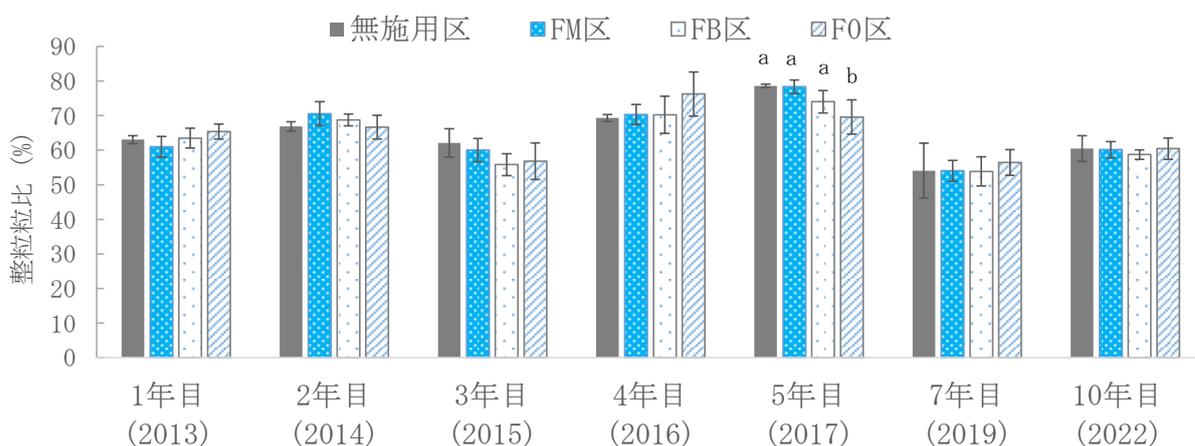


図12 含鉄資材施用試験区における整粒粒比

注1) 異符号間に5%水準で有意差あり (Tukeyによる多重比較検定.)
 注2) エラーバーは、標準偏差を示す。

3. 2. 3 水稻の収量および品質

水稻の収量 (精玄米重) および品質 (整粒粒比) の年次推移を図11, 12に示す。精玄米重について年次間差は認められたものの、含鉄資材施用の低減技術を導入しても、無施用区と有意差はなく、同水準を確保することが可能であった。整粒粒比について、FM区およびFB区では無施用区との有意差は認められなかった。F₀区の施用5年目 (2017年) では他試験区と比較し有意に低下したが、他の年度では無施用区との有意差は認められなかった。

4. 考察

4. 1 水管理試験 (試験1)

本研究における出穂前後各3週間の間断灌漑の水管理により、湛水管理に対する玄米中無機ヒ素濃度の低減率は最大50% (2016年) となり、中村ら¹⁰⁾の報告 (慣行区に対する低減率: 最大55%) と同様の効果が認められた。

2015年の間断灌漑区における栽培期間中の土壌Ehの推移 (5cm深) から、落水期間中の降雨の影響により、土壌Ehの上昇が緩慢になる場合がみられた (図2 落水1回目, 落水2回目, 落水6回目)。このため、4日間の落水期間中に無降雨日を確保し、中干しと同程度に土壌を酸化状態に管理することができたのは、落水6回の内3回であった。この結果から、供試圃場では落水を3回実施する期間に無降雨日を確保し、

土壌を乾かすことができれば、慣行区の50%程度の玄米中無機ヒ素低減効果が期待できると考えられた。また、中村ら¹⁹⁾によると、落水3回の水管理は、間断灌漑と同程度の玄米中無機ヒ素濃度の低減に有効であると報告されていた。そこで、2018年～2019年に落水3回区を設置したところ、慣行区に対する玄米中無機ヒ素濃度の低減率は47%となり、これを裏付ける結果となった(図6)。

水管理を行う際、夏季に入排水を繰り返すための排水口の開閉作業は、労力負担も大きく、病害虫防除および穂肥時期との作業重複も懸念される。そこで、中村ら²⁰⁾は、段階的に水管理の回数を削減し、出穂前後各3週間の期間に圃場を4日間連続して2回乾かす落水2回の水管理試験を行ったところ、水稻のヒ素吸収を抑制し、玄米中無機ヒ素濃度を低減する効果が認められたことを報告している。本研究においても2020年～2021年に、落水2回区を設置し、中村ら²⁰⁾が考案した水管理期間中の降雨に対応するための基準をもとに出穂前後各3週間の期間の土壌を十分に酸化状態にしたところ、玄米中無機ヒ素濃度の慣行区に対する低減率は46%となり、落水3回区と同様の低減効果が認められた(図6)。また、水稻の収量(図7)および品質(図8)も慣行区と同水準であったことから、落水2回はヒ素低減対策に有効であり、水稻の収量および品質についても問題はないと考えられた。

さらに水管理の省力化を図るため、2021年～2022年に落水1回区を設置し、水稻地上部のヒ素蓄積量が急激に高まるとされている出穂期^{21), 22)}に酸化的な水管理を行ったところ、玄米中無機ヒ素濃度の慣行区に対する低減率は44%となり、落水2回と同様の低減効果が認められた。一方で、中村ら²³⁾によると、全国の複数圃場試験における、落水1回管理による玄米中無機ヒ素濃度の低減率は平均で19%にとどまり、中村ら^{10), 20)}の以前の試験で得られた間断灌漑や落水2回管理の低減率(38%)と比較し、低減効果は小さかったと報告している。しかしながら、玄米中無機ヒ素濃度の低減効果が最も高いとされているのは出穂期頃の水管理であり²¹⁾、中村ら²³⁾によると、落水1回による玄米中無機ヒ素濃度低減効果について十分な効果が得られなかった圃場では、出穂10日前に土壌が最も乾燥しており、出穂期より近い時期に土壌を乾かすことができれば、高い低減効果が期待できると考察している。今回の調査では、出穂期もしくは出穂期直前に適切な落水1回管理を行ったことが高い低減効果に繋がったと推察された。今後は、水稻の収量・品質を維持しながら、玄米中無機ヒ素濃度と玄米中カドミウム濃度を同時低減可能な落水1回について継続した調査を進める必要があると考えられた。

松島²⁴⁾によると、減数分裂期や開花期等の最も水を必要とする時期でも、田面が黒色をしていれば水不足による減収はほとんどみられないとしており、本研究においても減収は認

められなかった。その一方で、Tsujiimotoら²⁵⁾は、水不足と高温の両方のリスクをもつ熱帯(ガーナ北部)の水田において、現地の代表的な水稻品種を用いて乾季の出穂期間中に非湛水管理を行ったところ、常時湛水に比べて日没前後3時間の群落内気温差の平均値が0.7～0.9℃高くなり、収量が有意に低下した要因の一つであると報告している。これらのことから、出穂期頃の落水1回による収量および品質への影響については、近年の夏季高温条件下において、今後確認を進める必要があると考えられた。

玄米中カドミウム濃度については、慣行区や落水1回区、落水2回区を中心に、定量下限値(0.006～0.04 mg kg⁻¹)未満の値が多くみられ、落水3回区や間断灌漑区においても低い値となった。Nakamuraら²⁶⁾の報告によると、落水管理後の水田土壌中におけるカドミウムの可溶化およびヒ素の不溶化は、同時に起こる現象ではなく、ヒ素の不溶化が完了した時点においてもカドミウムの溶出は継続している。すなわち、落水管理に対する土壌中のカドミウムの可溶化速度は、ヒ素の不溶化速度と比較して遅いことが明らかとなっている。また、Honmaら¹²⁾の報告によると、落水後の入水開始から1週間以内に溶存カドミウム濃度は急激に低下する。これらの報告から、玄米中カドミウムおよびヒ素についてトレードオフの関係が認められるものの、落水1回では他の水管理と比較し、出穂前後各3週間の落水回数が少ないうえに、土壌が酸化的状態となる期間も短いため、玄米中カドミウム濃度の上昇リスクを緩和できる可能性があるのではないかと考えられた。

次に、落水1回管理の開始については、水稻の出穂約10日前から天気予報を確認し、無降雨日が継続する気象条件で、出穂期に可能な限り近い時期に、水管理を行う。滋賀県的水稻栽培面積の6割を占める(滋賀県, 2024)「コシヒカリ」、 「みずかがみ」、および「キヌヒカリ」の出穂期前後の期間(7/20～8/5)における滋賀県近江八幡市の過去5年間(2018年～2022年)の気象データを確認したところ、いずれの年においても連続した4日間(96時間)の無降雨期間を確保することが可能であった。また、土壌の酸化状態の目安としての土壌Eh最大値は、+500 mV以上が望ましいと考えられた(2021年+530 mV, 2022年+650 mV)。

今回の試験において、出穂前後各3週間に水管理を実施することにより、水稻の収量および品質は慣行と同水準を確保しつつ、玄米中無機ヒ素濃度の低減が可能であった。水管理回数の頻度による玄米中無機ヒ素の低減率は、間断灌漑、落水3回区、落水2回区および落水1回区において、同程度であり、現時点で最も実用的な水管理は、落水1回であると示唆された。玄米中カドミウム濃度については、全ての試験区において低い値で、特に慣行区は全て定量下限値未満、落水1回区では定量下限値未満の値が多くみられた。このことから

ら、落水1回は玄米中カドミウムのリスクをある程度抑えつつ、玄米中無機ヒ素濃度の同時低減が可能であると考えられた。今後は落水1回管理による低減効果のデータを蓄積し、収量および品質への影響調査と併せて、玄米中カドミウム濃度が上昇しやすい水田において評価する必要があると考えられた。

4.2 含鉄資材施用試験 (試験2)

今回の試験結果では、水稻の出穂前後各3週間に湛水管理を行った場合においても、含鉄資材施用により、玄米中無機ヒ素濃度が低下した(図10)。Sudaら²⁸⁾によると、含鉄資材中の鉄に還元状態の土壌から溶出する亜ヒ酸を吸着する性質が認められると報告している。また、Yamaguchiら²⁹⁾のポット試験によると、含鉄資材施用により土壌中の遊離酸化鉄が増加し、鉄に無機ヒ素が吸着される。その結果、土壌溶液中の無機ヒ素濃度が含鉄資材無施用の場合と比較して低下することで、水稻根からの無機ヒ素の吸収が抑制されると報告している。今回の調査においても、含鉄資材施用により土壌中の遊離酸化鉄が増加し(図9-3)、土壌溶液中のヒ素濃度が低下したことを確認しており(データ略)、これら既存の報告と同様の結果が認められた。

次に、牧野³⁰⁾によると、F₀、FB、FM施用後初年目に、玄米中無機ヒ素濃度は、無施用区と比較して20~50%低減したと報告している。今回の調査においても、含鉄資材施用区の玄米中無機ヒ素濃度は、無施用区と比較して約30~50%低減し、牧野³⁰⁾の報告と同様の低減効果が認められた。また、玄米中無機ヒ素濃度の低減率は、F₀区>FB区>FM区の順であり、資材として施用した鉄の量が多いほど高くなる傾向にあった。山口³¹⁾によると、玄米中無機ヒ素濃度が高くなる圃場ほど、含鉄資材施用による低減率が高くなる傾向であったことから、玄米中無機ヒ素濃度が十分に低い圃場では、鉄資材施用による同様の低減効果が得られるとは限らないことを留意する必要があると報告している。

含鉄資材施用区における玄米中無機ヒ素濃度の低減効果の持続については、施用4年目(2016年)においても、無施用区と比較して約20~30%低減することが確認された(図10)。含鉄資材別にみると、F₀区の玄米中無機ヒ素濃度については、施用7年目(2019年)および10年目(2022年)においても、無施用区と比較して10%以上の低減効果の持続性を認めることができた(図10)。

FM区の土壌pHについては、無施用区、F₀区およびFB区と比較して施用4年目(2016年)まで有意に高く推移した。土壌pHの上昇については、FMに含まれるアルカリ成分(FM2tで900g m⁻²含有)および可給態ケイ酸(FM2tで300~400g m⁻²含有)の影響によるものと考えられた。F₀やFBについては、アルカリ成分を含まず、可給態ケイ酸を少量含む含鉄

資材(SiO₂1tで0.5~4g m⁻²含有)であり、無施用区と比較して土壌pHの上昇効果は認められなかった。

土壌中の遊離酸化鉄含有量については、2014年~2017年までFB区の方がFM区と比較して約1%高かった(図9-3)、玄米中無機ヒ素濃度の低減率については、FM区の方がやや高い傾向であった(図10)。Seyfferthら³²⁾によると、水稻のヒ素吸収については、ケイ酸供給量が多いほど減少すると報告されている。一方、山口³¹⁾によると、FM区の土壌の可給態ケイ素については、無施用区、FB区、F₀区と比較して増加したが、FMに含まれていたケイ酸成分が玄米中無機ヒ素濃度の低減に直接関与したかは不明であると報告している。今回の試験結果についても、FMに含まれるアルカリ成分および可給態ケイ酸と玄米中無機ヒ素濃度の関連性は、判然としなかった。

玄米中カドミウム濃度については、出穂前後各3週間に湛水管理を行った本調査では無施用区を含む全ての区において非常に低く、定量下限値未満で推移した(データ略)。Makinoら¹¹⁾によると、出穂前後各3週間の湛水管理を実施することにより、硫酸の還元にともない生成する硫化物イオンがカドミウムイオンと反応し、極めて難溶性の硫化カドミウムが生成されることで、水稻へのカドミウム吸収が抑制されると報告している。

玄米収量および品質については、山口³¹⁾の試験結果から無施用区と含鉄資材施用区では同程度と報告されており、本調査においても精玄米重は同程度で、整粒粒比は施用5年目(2017年)のF₀区でやや減少したものの、大きな低下は認められず、同様の傾向が認められた。

これらのことから、玄米中カドミウム濃度が懸念される地域で、出穂前後各3週間の湛水管理と含鉄資材施用の組み合わせにより、水稻の収量および品質について同水準を確保しつつ、玄米中無機ヒ素濃および玄米中カドミウム濃度の同時低減が可能であると考えられた。特に、鉄含有率99%のF₀を水稻栽培前に1,000g m⁻²施用すると、無施用区に対する玄米中無機ヒ素濃度の低減率が施用4年目(2016年)まで約30%認められ、施用10年目(2022年)においても低減率が約10%と持続的な低減効果が認められた。今後は、滋賀県内で流通する含鉄資材の活用、施用時期、施用量、水管理試験との併用による、玄米中無機ヒ素および玄米中カドミウム濃度の低減効果について、費用対効果も考慮し、総合的に検証していく必要があると考えられた。

5. 謝辞

本研究は農林水産省委託プロジェクト研究の「水稻におけるヒ素のリスクを低減する栽培管理技術の開発」(2013~2017年度)、「省力的かつ現場で使い易いコメの無機ヒ素低減技術の開発」(2018~2022年度)により実施したものである。ま

た、とりまとめにあたり、国立研究開発法人 農業・食品産業技術総合研究機構 農業環境研究部門の板橋直博士、山口紀子博士、中村乾博士、高度分析研究センターの馬場浩司博士には、本稿のご校閲と有益なご助言を頂いた。滋賀県農業技術振興センター環境研究部の諸氏には、多方面からご協力いただいた。ここに記して、感謝の意を表します。

6. 引用文献

- 1) Takahashi, Y., Minamikawa, R., Hattori, KH., Kurishima, K., Kihou., and Yuita, K. 2004. Arsenic behavior in paddy fields during the cycle of flooded and non-flooded periods. *Environ Sci Technol*, **38**, 1038-1044.
- 2) 浅見輝男 2001. データで示す-日本土壌の有害金属汚染, 株式会社アグネ技術センター, 東京: 114-115, 121-129, 138-145, 222-226.
- 3) IARC Working Group on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans 2012. Arsenic, metals, fibers, and dusts. Volume 100C. International Agency for Research on Cancer, Lyon. 46-53.
- 4) Codex 2023 一部改変. Codex Alimentarius International Food Standards : 55-56
https://www.fao.org/fao-who-codexalimentarius/sh-proxy/en/?lnk=1&url=https%253A%252F%252Fworkspace.fao.org%252Fsites%252Fcodex%252Fstandards%252FCXS%2B193-1995%252FCXS_193e.pdf
- 5) 農林水産省 2024. コメ中のカドミウム及びヒ素低減のための実施指針 : 3-7
https://www.maff.go.jp/j/syuan/nouan/kome/k_cd/attach/pdf/sisin1.pdf
- 6) 滋賀県 2010. 稲作技術指導指針 : 19, 61, 82-84, 174-175.
- 7) Yamaguchi, N., Nakamura, T., Dong, D., Takahashi, Y., Amachi, S., and Makino, T. 2011. Arsenic release from flooded paddy soils is influenced by speciation, Eh, pH, and iron dissolution. *Chemosphere*, **83**, 925-932.
- 8) Ohtsuka, T., Yamaguchi, N., Makino, T., Sakurai, K., Kimura, K., Kudo K., Homma, E., Dong, DT., and Amachi, S. 2013. Arsenic dissolution from Japanese paddy soil by a dissimilatory arsenate-reducing bacterium *Geobacter sp.* OR-1. *Environ Sci Technol*, **47**, 6263-6271.
- 9) 中村 乾 2016. 第33回土・水研究会, 水稻におけるヒ素吸収抑制技術, 4. 水稻のヒ素吸収抑制 (1) 水管理, 国立研究開発法人農業環境技術研究所 : 17-20.
- 10) 中村 乾, 加藤英孝, 牧野知之, 伊藤正志, 本間利光, 鉢巢恒平, 太田黒駿, 西 英輝, 野 雄大, 佐野修司, 原田夏子, 白尾謙典, 松本真悟, 春日純子, 西村誠一, 戸上和樹, 江波戸宗大, 平内央紀, 松森堅治, 長田健二, 望月秀俊, 森 伸介, 原 嘉隆, 藤井はるか, 藤澤春樹, 葉上恒寿, 杉沼千恵子, 関谷尚紀, 中田 均 2018. 出穂期前後の間断灌漑3湛4落による溶存および玄米ヒ素・カドミウム濃度の同時抑制 (1) 間断灌漑が玄米ヒ素・カドミウム濃度および収量・品質に与える影響. 土肥誌講演要旨 **64** : 2
- 11) Tomoyuki, Makino., Ken, Nakamura., Hidetaka, Katou., Satoru Ishikawa., Masashi, Ito., Toshimitsu, Honma., Naruo, Miyazaki., Kunihiko, Takehisa., Shuji, Sano., Shingo, Matsumoto., Aomi, Suda., Koji, Baba., Akira, Kawasaki., Noriko, Yamaguchi., Ikuko, Akahane., Miki, Tomizawa., and Tomohito, Arao. 2016. Simultaneous decrease of arsenic and cadmium in rice (*Oryza sativa L.*) plants cultivated under submerged field conditions by the application of iron-bearing materials, *Soil Science and Plant Nutrition*, **62**, 340-348.
- 12) Toshimitsu, Honma., Hiroto, Ohba., Ayako, Kaneko., Ken, Nakamura., Tomoyuki, Makino., and Hidetaka, Katou. 2016. Effects of soil amendments on arsenic and cadmium uptake by rice plants (*Oryza sativa L. cv. Koshihikari*) under different water management practices. *Soil Science and Plant Nutrition*, **62**, 349-356.
- 13) 農業独立行政法人農業環境技術研究所 2011年3月. 農業環境技術研究所報告第29号, 研究資料, 包括的土壌分類第1次試案 : 50-51.
- 14) 財団法人日本土壌協会 2015. 土壌機能モニタリング調査のための土壌, 水質及び植物体分析法, 大雄社, 東京 : 3-5, 10-17, 9-84, 86-91, 136-139.
- 15) 滋賀県 2003年3月. 土壌, 作物体および水質分析の手引き : 46-47, 72-75.
- 16) Baba, K., Arao, T., Yamaguchi, N., Watanabe, E., Eun, Heesoo., and Ishizuka, M., 2014. Chromatographic separation of arsenic species with pentafluorophenyl column and application to rice. *J. Chromatogr. A*, **1354**, 109-116.
- 17) 滋賀県 2002年3月. 土づくり技術対策指針 : 57.
- 18) 農林水産省 2010年6月16日施行, 農用地の土壌の汚染防止等に関する法律施行令,
<https://laws.e-gov.go.jp/law/346C00000000204>
- 19) 中村 乾, 加藤英孝, 山口紀子, 馬場浩司, 永田 修, 平内央紀, 松森堅治, 長田健二, 望月秀俊, 森 伸介, 葉上恒寿, 諸 人誌, 安藤 薫, 黒野綾子, 日置 雅之, 遠山孝通, 藤井琢馬, 伊藤正志, 太田黒駿, 西川英輝, 本間利光, 中田 均, 野 雄大, 佐野修司, 原田夏子, 松本慎悟, 春日純

- 子 2019. 出穂期前後に4日間落水を3回行うことによる玄米中ヒ素濃度の抑制. 土肥誌講演要旨 **65** : 2
- 20) 中村 乾, 加藤英孝, 山口紀子, 馬場浩司, 鈴木克拓, 徳田進一, 小林英和, 望月秀俊, 森 伸介, 清水裕太, 白木正俊, 島上卓也, 安藤 薫, 小田紫帆里, 遠山孝通, 藤井琢馬, 伊藤正志, 太田黒駿, 西川英輝, 本間利光, 中田 均, 楠田理恵, 荒川竜太, 藤村澄恵, 松本慎悟, 春日純子 2021. 出穂期前後の圃場を4日間連続して乾かす落水処理2回による玄米中無機ヒ素低減効果. 土肥誌講演要旨 **67** : 1.
- 21) 農林水産省 2024. コメ中のカドミウム及びヒ素低減のための実施指針 (別添) コメ中のカドミウム及びヒ素低減のための実施指針 (参考情報) : 8, 42
https://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_cd/attach/pdf/sisin-2.pdf
- 22) 農林水産省 2019, 2022 改定. コメ中ヒ素の低減対策の確立に向けた手引き : 17.
https://www.maff.go.jp/j/syouan/nouan/kome/k_as/As_tebiki.pdf
- 23) 中村 乾, 加藤英孝, 山口紀子, 馬場浩司, 鈴木克拓, 白木正俊, 佐々木俊祐, 島上卓也, 曾根原寛和, 安藤 薫, 日置雅之, 田中雄一, 遠山孝通, 薄井雄太, 松下みどり, 西川英輝, 土田 駿, 本間利光, 中田 均, 楠田理恵 2024. 出穂期前後に4日間連続して圃場を乾かす落水を1回行うことによる玄米中無機ヒ素低減効果. 土肥誌 講演要旨 **70** : 3
- 24) 松島省三 1971. イナ作診断と増収技術, 社団法人 農山漁村文化協会, 東京 : 190.
- 25) Yasuhiro, Tsujimoto., Abraham, Fuseini., Baba, I. Y., Inusah., Wilson Dogbe., Mayumi, Yoshimoto., and Minehiko, Fukuoka. 2021. Different effects of water-saving management on canopy microclimate, spikelet sterility, and rice yield in the dry and wet seasons of the sub-humid tropics in northern Ghana, *Field crops research*, **260**, 107978.
- 26) Ken, Nakamura., Hidetaka, Katou., Katsuhiko, Suzuki., and Toshimitsu Honma. 2018. Air-filled porosity as a key to reducing dissolved arsenic and cadmium concentrations in paddy soils, *Journal of Environmental Quality*, **47**, 496-503.
- 27) 滋賀県 2024, しがの農林水産業 : 3.
- 28) Aomi, Suda., Noriko, Yamaguchi., Hayato, Taniguchi., and Tomoyuki, Makino. 2018. Arsenic immobilization in anaerobic soils by the application of by-product iron materials obtained from the casting industry, *Soil Science and Plant Nutrition*, **64**, 210-217.
- 29) Noriko, Yamaguchi., Toshiaki, Ohkura., Atsuko, Hikono., Hiroshi, Yamaguchi., Yohey, Hashimoto., and Tomoyuki, Makino. 2017. Effects of iron amendments on the speciation of arsenic in the rice rhizosphere after drainage, *Soils* 2017, 1, 6; doi:10.3390/soils1010006.
- 30) 牧野知之 2016, 第33回土・水研究会, 水稻のヒ素吸収抑制 (2) 吸収抑制資材の利用, 国立研究開発法人農業環境技術研究所 : 21-24.
- 31) 山口紀子 2023. 第39回土・水研究会, コメ中無機ヒ素低減対策技術の進展, 2) 資材利用, 資材施用によるヒ素低減への取り組み, 農研機構農業環境研究部門 : 21-27.
- 32) Angelia L., Seyfferth., Matt A. Limmer., and Gretchen E. Dykes. 2018. On the use of silicon as an agronomic mitigation strategy to decrease arsenic uptake by rice, *Advances in Agronomy*, **149** ISSN 0065-2113 49-80.

7. Summary

We evaluated and verified that water-saving management under oxidizing conditions for three weeks each before and after paddy rice heading simultaneously decreased inorganic arsenic and cadmium concentrations in brown rice. Also evaluated was the simultaneous decrease of arsenic and cadmium by combined application of iron-containing materials and subsequent flooding management. Water management of different types practiced under oxidizing conditions was conducted before and after heading of paddy rice as follows: alternate wetting and drying (a cycle of three-day flooding and four-day drainage was repeated); three times drying (four-day drainage was conducted three times during three weeks each before and after heading excluding the heading period); two times drying (as above with two times drying); and one time drying (four-day drainage was conducted once before or during the heading period). Results show that the inorganic arsenic concentration in brown rice decreased by 44-48% when using the different types of water management under oxidizing conditions compared to flooding management, demonstrating that the drainage frequency can be reduced. Furthermore, the cadmium concentration in brown

rice was low irrespective of water management. It was decreased simultaneously. Little difference between the drainage groups and the conventional group was found in either yield or quality of paddy rice. Moreover, iron-containing materials of three types (converter furnace slag (FM), amorphous iron hydroxide (FB) and zerovalent iron (F_0)) were applied once in large quantities ($1,000\text{--}2,000\text{ g m}^{-2}$) to test groups before flooding the paddy field. Then flooding management was conducted for three weeks each before and after heading. Results showed a 30--50% decrease in the inorganic arsenic concentration found in brown rice from the application of iron-containing materials to the third year compared to the untreated group. The decrease ratio was more significant in F_0 . The cadmium concentration in brown rice was below the quantitation limit in all treatment groups, and was decreased simultaneously. The ratio of decrease in the inorganic arsenic concentration in brown rice after application of iron-containing materials tended to decrease over several years. However, it remained at approximately 10% in the tenth year after application of F_0 , exhibiting a continuous decreasing effect. Additionally, despite interannual differences in paddy rice yields, introduction of the iron-containing material application as an ameliorating technology led to no other marked difference from the untreated group, ensuring comparable yield, with a similar trend of quality.