

平成 30 年 5 月 30 日現在

機関番号：17401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H05631

研究課題名(和文) 栄養塩類動態において水田土壌が系として機能する空間スケールの抽出と緩衝能力の評価

研究課題名(英文) Estimation of spatial scale where paddy soils act as system for nutrient dynamics and assessment of its buffering capacity

研究代表者

濱 武英 (Hama, Takehide)

熊本大学・くまもと水循環・減災研究教育センター・准教授

研究者番号：30512008

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 10,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、土壌の通水性(滞留時間)と土壌を通過する栄養塩類濃度の変化を定量的に評価した。浸透速度の増加にともない、土壌カラムの長さによらず、土壌カラムを通過する栄養塩類の変化量は低下した。特に、リンでは、浸透速度の増加に伴い土壌内の分布が均一になる傾向が顕著に見られた。土壌カラムを通過するリン濃度は浸透速度が遅いほど低く、土壌による吸着の効果(吸着率)が高いと判断される。一方で、浸透速度が速いほど供給リン量は多くなり、土壌に吸着されたリンの量も多くなった。つまり、土壌は高い物質緩衝能力を持つが、常にその最大を発揮するわけではなく、浸透速度によって変わることが示された。

研究成果の概要(英文)：In this research, the effect of hydraulic retention time on nutrient concentrations of effluent water from a soil column was evaluated. The change of nutrient concentrations in the effluent water decreased by the increase of the infiltration rate. In particular, phosphorus concentration in the soil column tended to become homogeneous by the increase of the infiltration rate. Phosphorus concentration in the effluent water was lower when phosphorus was supplied to the soil column by the slower the infiltration rate. However, the amount of phosphorus absorbed by the soil increased with the infiltration rate. It is confirmed that the nutrient buffering capacity of soils depends on the supply rate of nutrient.

研究分野：農業水文学

キーワード：水田土壌 窒素 リン 黒ボク土壌

### 1. 研究開始当初の背景

持続可能な水資源利用の実現に向けて、各産業の水利用に伴う環境影響評価を国際的に規格化する動きがある中、日本では、主要な水消費産業である水田農業における水・物質フローを定量的に評価することが求められている。他方、下流域の水質悪化問題やリン資源価格の高騰を背景に、水田農業における栄養塩類の適切な管理が今後ますます重要になる。

水質における水田農業の環境影響には、濁水や栄養塩類を排出して下流域の富栄養化を引き起こすというマイナス面と、用水源の硝酸態窒素濃度が高い場合に水田土壌微生物の脱窒作用によって窒素が浄化される<sup>3), 4)</sup>などのプラス面の効果が並存する。これは、土壌吸着の有無や微生物分解特性の違いから、主要な評価対象物質(窒素, リン, 炭素など)間でも大きく異なる。さらに、水田農業はその水管理や営農が地理的条件と気象条件に大きく左右されるために、他の農業に比べて、環境影響の地域性が強くまた季節変動も大きい。したがって、水田農業の環境影響をプラス・マイナス面を含めて正しく評価するためには、これら3つのばらつき(地域性(空間的ばらつき), 季節変動(時間的ばらつき), 対象物質によるばらつき)の大きさを正確に把握することが必要不可欠である。

### 2. 研究の目的

水田の排出負荷に関する上記の3つのばらつきは、この土中にストックされた栄養塩類の放出を考慮することによって十分に説明することができ、水田地区における水・物質フローは、土壌・底泥の物質緩衝能力(流入する栄養塩類に応じて土中から栄養塩類を放出する能力)の推定によってマクロ的に評価することができる。既往の研究から、定常的な条件下における土壌・底泥の物質緩衝能力の大きさやその因子は明らかになってきたといえる。しかし、物理・化学的環境条件の変化に対する緩衝能力の大きさやその因子の経時変化についてはほとんど何もわかっておらず、それが水田農業に何らかの改善策を実施した後の水・物質フローの変化予測が困難な原因となっている(水質保全対策の評価が主に実施前後の状況変化の比較によって行われる理由となっている)。そこで本研究課題は、土壌・底泥の物質緩衝能力およびその支配因子の経時的な変化過程の解明を目的とした。

### 3. 研究の方法

実験試料とする水田土壌および排水路底泥を水田地区(熊本県:黒ボク土, 茨城県:灰色低地土)から採取し、その物理化学的特性を把握する。土壌試料の物理化学特性の計測には、沈降分析、連続抽出や吸着試験など従来の方法を用いる。

採取した土壌試料は、ふるいによって均質

にした後にカラムに充填し、一定の環境条件下で培養する(図1)。培養時は、実験装置に培養液(炭素源を含み、O<sub>2</sub>ガスで曝気)を供給し続ける。まず前培養として、実験装置の排出水の電気伝導度(EC)や水質項目(pH, 溶存酸素量(DO), 酸化還元電位)をセンサーで連続的に計測し、土壌カラム内が平衡状態に達して計測値が安定するまで培養する。

土壌の緩衝能力の支配因子の計測には土壌試料を破壊する必要があるため、緩衝能力測定用とは別に試験体を複数培養したものを適宜取り出し、支配因子を計測する。排出水の栄養塩類や土壌の物質の分析には従来の化学分析法、細菌群の同定や量的解析には遺伝子解析手法(PCR-DGGE法と定量PCR法)を用いる。

さらに、複数の土壌カラムを連結して長期培養後(図1の右上)、各土壌カラムの緩衝能力と支配因子を計測する。現地でコアサンプリングした水田土壌・底泥の鉛直分布と実験結果を比較する。また、連結土壌カラムのマクロな緩衝能力を推定する。カラム連結数と緩衝能力についても検討する。

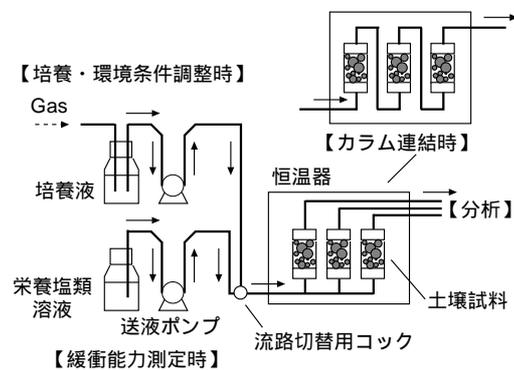


図1 実験システム

### 4. 研究成果

水田土壌カラムに5 mg/Lの硝酸態窒素を通水条件(供給速度=約3 cm/h)で連続的に供給した際の浸透水の窒素濃度の経時変化を図2に示す。この長期培養試験では、試験初期からNO<sub>3</sub>-N濃度は増加傾向を示し3日目にピークを迎えた。5日目に低いNO<sub>3</sub>-N濃度を示し、その濃度は3.99 mgN/Lであった。NO<sub>3</sub>-N濃度が、その後再び増加し、培養終了まで4.14~4.39 mgN/Lの範囲で安定して推移した。排出水のNO<sub>3</sub>-N濃度が安定した期間における平均的な窒素除去能は約0.39 mg/dであった。NO<sub>3</sub>-N濃度の平均除去率としては、約13%であった。以上のことから、水田土壌の硝酸態窒素除去能は、炭素源の供給がなくとも土壌に存在する炭素により、少なくとも3か月は持続することが示された。また、脱窒の過程で生成される中間産物の亜硝酸イオンは、2日目にピークが認められた。このことは硝酸イオンが流入するとカラム内で脱窒が直ちに進行し始め、亜硝酸還元活性

も1~2日程度で高まったことを示唆する。

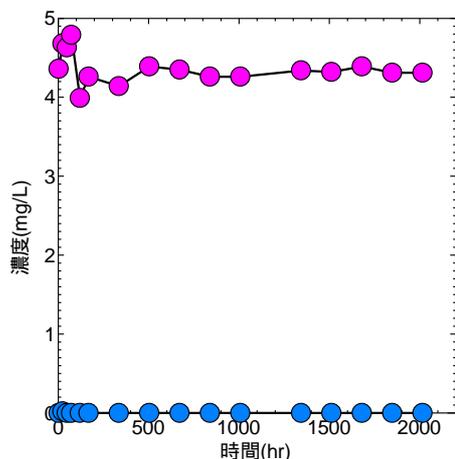


図2 連続的な通水条件で窒素を供給した土壌カラムからの浸出水の窒素濃度変化

上記の結果は、灰色低地土壌によるものであるが、九州の水田土壌として広く見られる黒ボク土においても、浸透速度（通水速度）が小さく炭素源の供給がない条件では、 $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度の平均除去率は約 20% であった。一方で、微生物の栄養源である炭素を供給して試験を行った場合は、平均除去が約 38% となった。また、浸透速度を倍程度にした条件では、 $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度平均除去率として約 17% となり、窒素除去速度は著しく低くなった。

図1は6連カラム通水試験によるカラム土壌通過水の  $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度である。ここで, sample はカラム土壌を1本通過し, sample はカラム土壌を6本通過したことになる。なお、通水速度は 74.9 mL/h であった。試験開始 24 h 後の  $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度は sample で 3.49 mg/L, sample で 1.21 mg/L, sample で 0.86 mg/L, sample で 0.62 mg/L, sample で 0.26 mg/L, sample で 0.10 mg/L であった。したがって、土壌が通過したリンをほとんど吸着することが確認される。しかし、試験を継続する中でカラムから排出される溶液の  $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度は上昇し、試験開始 sample は 48 h, sample は 96 h, sample は 144 h, sample は 216 h, sample は 264 h, sample は 288 h 後にそれぞれ 4 mg/L を超える高い濃度の  $\text{PO}_4\text{-P}$  が検出された。また、試験開始後 500 h あたりから 5 mg/L 以上のリンが検出されることもあり、土壌のリン吸着能力の飽和している可能性が示唆された。別途実施した吸着試験により推定される土壌へのリン最大吸着量は 0.47 mg/g であった。したがって、カラム1本分の土壌は 4.59 mg のリンを吸着すると計算できる。6連カラム試験の通水速度よりリンの土壌通過量は1時間あたり 0.374 mg でカラム1本分の土壌は12hリンを全て吸着し続ける能力がある。したがって、各 sample 試験開始から 12, 24, 36, 48, 60, 72 h まではリンは検出されないと考えられるが、実際には

5 h 後の段階で sample と sample においてそれぞれ 2.15 mg/L と 1.21 mg/L のリンが検出された。26 h 後では sample において 0.86 mg/L, sample において 0.623 mg/L, 50 h 後では sample において 2.85 mg/L, sample において 2.59 mg/L のリンが検出された。つまり、黒ボク土壌は想定されるリン吸着能力を発揮していないことが確認された。

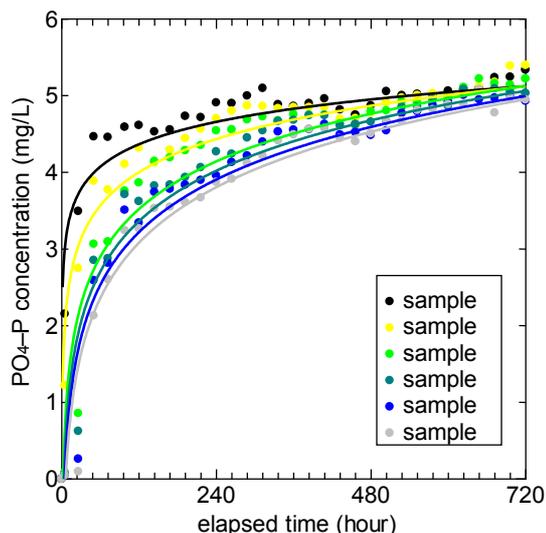


図3 連続的な通水条件でリンを供給した土壌カラム（6連続）からの浸出水のリン濃度変化

6連カラム通水試験についてこの近似曲線によると、土壌リン蓄積最大量は column で 1.089 mg/g, で 0.969 mg/g, で 1.115 mg/g, で 0.900 mg/g, で 1.137 mg/g, で 0.628 mg/g であった。このうち通水開始から 720 h 後での蓄積量は column は 99%, は 98%, は 99%, は 86%, は 66%, は 95% であり, column, , はほぼリン吸着が飽和状態であるといえる。試験結果よりリンは土壌表面から順に吸着され、土壌の深さが深くなるほどリンの蓄積は少なくなることが予想される。

6連カラム通水試験において、土壌カラムのリンの最大可能保持土壌量は 0.628 mg/g ~ 1.137 mg/g と推定される。また、通水速度 85.1 mL/h でのカラム通水試験での土壌リン最大蓄積量も 0.730 mL/h であり、いずれにおいても吸着試験で得られた最大吸着量よりも大きい結果であった。土粒子そのものの吸着能力 (0.47 mg/g) だけではなく、土粒子が集合した土壌カラムの蓄積能力も高いことがいえる。

図4は通水速度別カラム通水試験によるカラム土壌通過水の  $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度である。試験開始 720 h 後の検出された  $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度は通水速度 11.2 mL/h で 3.88 mg/L, 24.8 mL/h で 4.19 mg/L, 62.6 mL/h で 4.36 mg/L, 85.1 mL/h で 4.66 mg/L であった。通水速度が遅いほど浸透水のリン濃度は低くなった。しかし、図中の近似曲線より通水速度 62.6 mL/h と

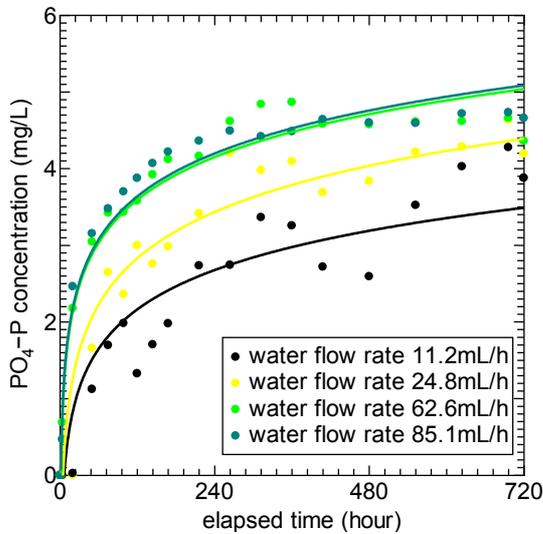


図4 さまざまな通水速度における土壤カラムを通過するリン溶液の濃度変化

84.1 mL/h の試験結果はほぼ同値を示していることが読み取れる。吸着量は浸透速度 24.8 mL/h と 62.8 mL/h の間で大きく減少することが示唆され、浸透速度がある程度、大きくなると、リン吸着機能は一定となることが推測される。なお、実際の農地土壤において透水係数は  $3.1 \times 10^{-3}$  cm/s が一般的であり、本実験の浸透速度に換算すると 78.8 mL/h に等しい。したがって、62.6 mL/h と 84.1 mL/h の試験結果が水田地区でのリンの動態を示すものと推測される。

通水速度別カラム通水試験についてリン最大蓄積量を求めると、11.2 mL/h で 0.022 mg/g、24.8 mL/h で 0.100 mg/g、62.6 mL/h で 0.397 mg/g、85.1 mL/h で 0.730 mg/g であり、通水速度が速いほどリン最大蓄積量が多い結果であった。通水速度が速いとリンのカラム通過量も多く、その分土壤に蓄積されていることがわかる。したがって、溶液の  $PO_4\text{-P}$  濃度も土壤のリンの蓄積に大きく影響を及ぼすことも推測できる。カラム通過水の  $PO_4\text{-P}$  濃度は浸透速度が遅いほど低く、土壤による吸着の効果(吸着率)が高いと判断される。一方で、蓄積量で見ると、浸透速度が速いほど供給リン量は多く、その分土壤に吸着されたリンの量も多くなった。つまり、土壤は高い吸着能力を持っているが、常にその最大を発揮するわけではなく、浸透速度によって、土壤表面や土壤構造でのリン吸着及び保持の形態が変わることが示される。

図5は通水速度別通水カラム試験後の試料を用いて吸着されているリンを分画した結果である。カラム通水試験前の土壤試料のリン吸着量は 1.76 mg/g であり、通水カラム試験による吸着量は通水速度 11.2 mL/h で 0.40 mg/g、24.8 mL/h で 0.52 mg/g、62.6 mL/h で 0.45 mg/g、85.1 mL/h で 0.58 mg/g であった。この結果は吸着試験による土壤最大リン吸着

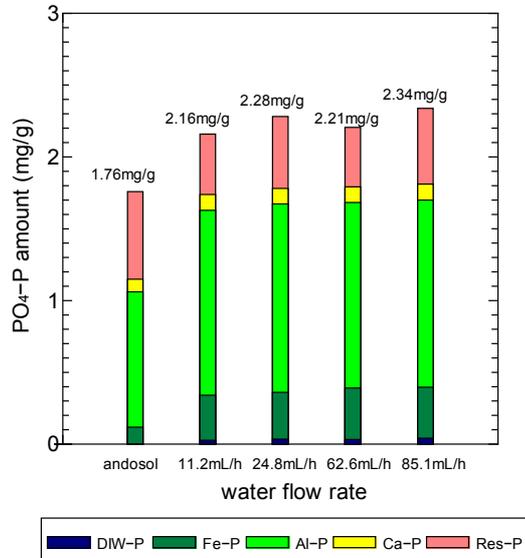


図5 通水速度と土壤カラムに吸着されたリン画分の関係

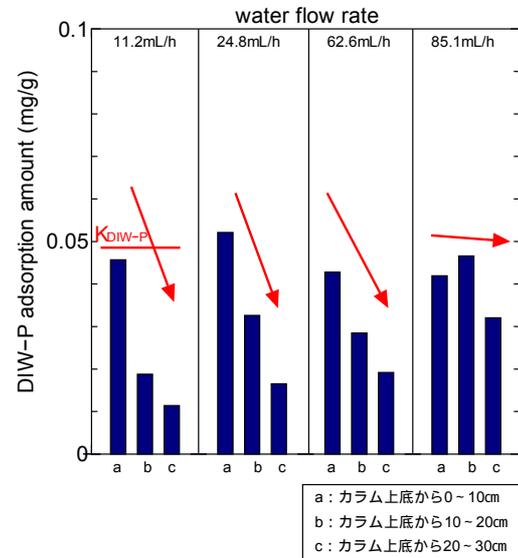


図6 通水速度と土壤カラムに吸着された可溶性リン画分の関係

量とほぼ一致し、土壤は最大リン吸着量に達しているといえる。農地土壤にリンが添加されるとカルシウム、アルミニウム、鉄などのイオンと結合し、難溶態に変化することで土壤に吸着される。この結合力の強さは鉄、アルミニウム、カルシウムの順に強いことが知られているが、土壤に吸着しているリンの画分の割合は Al-P が大半を占めていた。これは黒ボク土壤が活性アルミニウムを多量に含んでいるからであると推察できる。

可溶性リン画分(DIW-P)が占める割合は通水速度 11.2 mL/h で 4.3%、24.8 mL/h で 5.4%、62.6 mL/h で 4.7%、85.1 mL/h で 6.1% であり、DIW-P として吸着されるリン量は少なかった。また、図6より通水速度が遅いほど上層部で多く吸着され、下層部の吸着量が少ないこと

表-1 土壌リン吸着量の鉛直方向への減少率

	water flow rate			
	11.2mL/h	24.8mL/h	62.6mL/h	85.1mL/h
$K_{DIW-P}$	$1.7 \times 10^{-3}$	$1.8 \times 10^{-3}$	$1.2 \times 10^{-3}$	$0.49 \times 10^{-3}$
$K_{Fe-P}$	$2.5 \times 10^{-3}$	$1.8 \times 10^{-3}$	$2.0 \times 10^{-3}$	$3.6 \times 10^{-3}$
$K_{Al-P}$	$6.3 \times 10^{-1}$	$4.4 \times 10^{-1}$	$4.3 \times 10^{-1}$	$-3.5 \times 10^{-1}$
$K_{Ca-P}$	$6.0 \times 10^{-4}$	$0.28 \times 10^{-4}$	$-1.1 \times 10^{-4}$	$5.7 \times 10^{-4}$

がわかる。通水速度 85.1 mL/h においては吸着された DIW-P 量のピークはカラム中層部 10 cm である。DIW-P の吸着は化学吸着と比べ緩いため、脱着、溶出しやすく、浸透速度の上昇により吸着量のピークは下層に移動し、地下への浸透のリスクも高まるといえる。

土壌深さ方向の各リン画分吸着量減少率  $K_i$  を次式で求めた (表 1)。

$$K_i = \frac{Q_i}{L}$$

ここで  $Q_i$  は各リン土壌吸着量 (mg/g) ,  $L$  は土壌深さ (m) である。  $K_i$  値が正であると土壌深さが深くなるほど吸着量が少なくなることを示し、逆に負の値は下層ほど吸着量が多いことを示す。DIW-P と Al-P は、浸透速度の上昇に伴い、  $K_i$  値も上昇しており、浸透による吸着量の下方への推移がみとれる。

以上のように、本研究は、通水性と土壌体積 (間隙体積) から定まる滞留時間と土壌を通過する栄養塩類濃度の変化 (応答) を定量的に評価した。今後の課題は、土壌表面における栄養塩類のミクロな生物化学反応を明らかにし、土壌カラムと栄養塩類の応答関係について数値モデルの開発を行うことである。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

Duc, L. V., Song, B., Ito, H., Hama, T., Otani, M., Kawagoshi, Y., High growth potential and nitrogen removal performance of marine anammox bacteria in shrimp-aquaculture sediment, *Chemosphere*, 査読有, 196, 2018, pp.69-77.

Hong, N., Hama, T., Suenaga, Y., Huang, X., Ito, H., Kawagoshi, Y., Simplified lumped groundwater model to simulate nitrate concentration dynamics, *Journal of Hydrologic Engineering*, 査読有, 22(10), 2017, pp.04017043(1-8).

瀧 武英, 甲斐聡史, 永田 稔, 水稻生産における農業水利施設の寄与, *農業農村工学会誌*, 査読有, 85(3), 2017, pp.255-258.

Tanaka, Y., Kawashima, S., Hama, T., Nakamura, K., Thermal mitigation of

hydroponic green roof based on heat balance, *Urban Forestry & Urban Greening*, 査読有, 24, 2017, pp.92-100.

Kawagoshi, Y., Hama, T., Kakimoto, R., Nitrate contamination of groundwater and identification of its cause in Kumamoto City and neighboring area in Japan, *International Journal of Food Safety, Nutrition and Public Health*, 査読有, 6(1), 2016, pp.14-27.

Duc, L. V., Koga, Y., Wei, Q., Hama, T., Kawagoshi, Y., Effect of pretreatment on ammonium adsorption properties of Sepiolite: Equilibrium kinetics and thermodynamic studies, *Journal of Water and Environment Technology*, 査読有, 14(4), 2016, pp.260-272.

Hama, T., Nagai, T., Jikumaru, C., Kawagoshi, Y., Iwasaki, D., Role of organic nitrogen and carbon in canal sediments on drainage water in paddy fields, *Journal of Water and Environment Technology*, 査読有, 14(4), 2016, pp.211-217.

Aqili, S. W., Hong, N., Hama, T., Suenaga, Y., Kawagoshi, Y., Application of modified tank model to simulate groundwater level fluctuations in Kabul Basin, Afghanistan, *Journal of Water and Environment Technology*, 査読有, 14(2), 2016, pp.57-66.

Wei, Q., Kawagoshi, Y., Huang, X., Hong, N., Duc, L. V., Yamashita, Y., Hama, T., Nitrogen removal properties in a continuous marine anammox bacteria reactor under rapid and extensive salinity changes, *Chemosphere*, 査読有, 148, 2016, pp.444-451.

Huang, X., Sun, K., Wei, Q., Urata, K., Hong, N., Hama, T., Kawagoshi, Y., One-stage partial nitrification and anammox in membrane bioreactor, *Environmental Science and Pollution Research*, 査読有, 23(11), 2016, pp.11149-11162.

[学会発表] (計 10 件)

弓岡大亮, 瀧 武英, 他 3 名, 地下浸透に伴う農地土壌中のリン動態の解明, 日本水環境学会年会, 2018 年 3 月 15 日, 北海道

伊藤紘晃, 鶴巻慎也, 瀧 武英, 川越保徳, 熊本県白川河口域における有機物と金属の速い不溶化に關与する河川水構成物質の特性, 日本水環境学会年会, 2018 年 3 月 15 日, 北海道

川越保徳, 瀧 武英, 他 2 名, 2016 熊本地震の前後における地下水水質の変化について, 日本水環境学会年会, 2018 年 3 月 15 日, 北海道

蘭 暁輝, 瀧 武英, 他 3 名, 農業排水路の水質の形成過程, 土木学会西部支部研究発表会, 2018 年 3 月 3 日, 宮崎県

Hama, T., 他 6 名, Role of paddy fields on groundwater resource in Kumamoto , PAWEES2017 International Conference , 2017 年 11 月 9 日 , 台湾台中

Imafuji, K., Hama, T., 他 2 名, Land use of paddy field after Kumamoto Earthquake 2016, PAWEES2017 International Conference , 2017 年 11 月 9 日 , 台湾台中

瀧 武英, 他 6 名, 熊本地震が白川中流域の水田に与えた影響, 農業農村工学会大会 , 2017 年 8 月 30 日 , 神奈川県

大津里香保, 瀧 武英, 他 2 名, 白川中流域水田の窒素除去能力の解明, 日本水環境学会年会 , 2017 年 3 月 15 日 , 熊本

弓岡大亮, 瀧 武英, 他 2 名, 阿蘇カルデラの水田における水管理の違いと栄養塩類収支の特徴 , 2017 年 3 月 15 日 , 熊本

Hama, T., 他 3 名, Comparative study on water balance and nutrient effluent load of paddy fields in the northern Aso caldera, Water and Environment Technology 2016, 2016 年 8 月 28 日 , 東京都

## 6 . 研究組織

### (1) 研究代表者

瀧 武英 (HAMA TAKEHIDE)

熊本大学・くまもと水循環・減災研究教育センター・准教授

研究者番号 : 30512008