

令和 5 年 6 月 14 日現在

機関番号：82111

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H03098

研究課題名(和文) 三酸素同位体を指標とする土壌～流域レベルでの硝酸イオンおよび亜酸化窒素の動態解析

研究課題名(英文) Nitrate and nitrous oxide dynamics at the soil to watershed level using trioxide isotopes as indicators Analysis

研究代表者

中島 泰弘 (Nakajima, Yasuhiro)

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・高度分析研究センター・上級研究員

研究者番号：10354086

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：陸域生態系から発生する温室効果ガスの一酸化二窒素(N₂O)の農業生態系における発生について、窒素源を把握するため、窒素源として15Nおよび17Oに富んだアンモニウムイオンおよび硝酸イオンを施用し、生成したN₂Oの安定同位体比を元に評価する解析手法を開発した。また農業流域での硝酸態窒素汚染源の把握と水田・湿地帯等による脱窒量の把握のため、窒素酸化物の17Oを第三の指標とし、土壌・圃場・流域スケールでの硝酸態窒素の窒素源(由来物質)および脱窒量を解明する手法を確立した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

温室効果ガスである一酸化二窒素(N₂O)の農業生態系における発生は、複数の窒素源から複数のプロセスを経る複雑な過程を経ており、その発生削減には農業生態系での動態の把握が必須である。本課題では土壌中NO₃-に一定量含まれる17Oアノマリーを保存性の良いトレーサーとみなして、N₂Oの窒素源の特定やNO₃-流出における流出経路および脱窒割合の同時解析のためのツールとして利用可能であることを示した。

研究成果の概要(英文)：We developed an analytical method to evaluate the production of nitrogen monoxide (N₂O), a greenhouse gas emitted from terrestrial ecosystems, in agricultural ecosystems by applying ammonium and nitrate ions rich in 15N and 17O as nitrogen sources, based on the stable isotope ratios of the N₂O produced. In addition, to identify the source of nitrate-nitrogen pollution in agricultural watersheds and the amount of denitrification by rice paddies and wetlands, we established a method to identify the nitrogen source (source material) and denitrification of nitrate-nitrogen at the soil, field, and watershed scales by using 17O as the third indicator.

研究分野：土壌化学

キーワード：硝酸イオン 亜酸化窒素 窒素安定同位体 酸素安定同位体

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

生物学的な N_2O 生成は硝化、脱窒、カビ脱窒など複数のプロセスが関与している。そこで N_2O 安定同位体比を比較することで N_2O 発生プロセスの解析が可能である。しかしながら、モデル微生物が発見されるにつれ、エンドメンバーにばらつきが認められつつあり、安定同位体的アプローチのみでは N_2O 発生機構の全容解明は難しい状況となっている。

地下水、湧水、農業廃水、河川水中等での硝酸態窒素の負荷源の解析および脱窒による硝酸態窒素除去量の評価においては、 NO_3^- の窒素 (^{15}N) および酸素安定同位体 (^{18}O) を用いた二次元的解析が有用な手段となっているが、この手法には限界もある。森林の表層土壌、化成肥料や家畜ふん堆肥を施用した農耕地土壌、水田や湿地で脱窒が起こったあとの硝酸イオンなど、それぞれの窒素源の特徴を強く反映するような地点・地域では明確な差異が認められる一方、各窒素源がよく混じり合った複雑な地形や河川水等では各窒素源の寄与を定量的に把握するのは困難な点も多かった。特に、 $^{18}O-NO_3^-$ の変動は高い $^{18}O-NO_3^-$ を持つ大気由来の硝酸イオンの流入と脱窒による $^{18}O-NO_3^-$ の上昇の 2 つの要因が考えられるため、両者を区別することは難しかった。

これら安定同位体分析による N_2O および NO_3^- の動態解析の弱点を補強するため、近年注目されつつある第三の酸素安定同位体「 ^{17}O 」の特異な挙動を利用した動態解析手法を提案する。

2. 研究の目的

本課題では、上述した安定同位体分析による N_2O および NO_3^- の動態解析の弱点を補強するため、近年注目されつつある第三の酸素安定同位体「 ^{17}O 」の特異な挙動を利用した動態解析手法を提案する。

^{17}O の持つ特異な性質を利用し、土壌中および硝化によって生じた ^{17}O の異なる NO_3^- をエンドメンバーとし、エンドメンバーズ法を適用して窒素源を解析すると共に、 ^{18}O や ^{15}N の測定によるプロセス解析も同時に行い、この手法の確立を目指す。具体的には、 N_2O および NO_3^- をターゲットとして、

- I. N_2O 発生時の窒素源(土壌中 NO_3^- か NH_4^+ か)および生成プロセス(硝化か脱窒か)の同時解析
- II. NO_3^- 流出における流出経路および脱窒割合の同時解析を行う。

3. 研究の方法

I. ^{17}O 安定同位体自然存在比を用いた N_2O の動態解析手法の確立

バックグラウンドとしてそれぞれ少量の $^{15}N-NH_4^+$ 、 $^{15}N-NO_3^-$ 、 ^{17}O および $^{18}O-NO_3^-$ を土壌に添加し、 NH_4^+ および $^{15}N-NO_3^-$ がそれぞれ $0.15\text{mgN/kg soil DW}$ となるよう非標識物質を添加し、培養を開始した。3 日後までに生成した N_2O の濃度および安定同位体比 (^{15}N 、 ^{17}O 、 ^{18}O) を測定した。施用した窒素と生成した N_2O の安定同位体比の比較から、施用した窒素が生成した N_2O に占める割合(寄与率)を求めた。

II. 降下物由来 ^{17}O 安定同位体自然存在比を用いた硝酸イオンの動態解析手法の確立

圃場試験、流域での観測を行った。

圃場スケールでの硝酸イオンの動態解析については、粘土質転換畑(大豆連作圃場、細粒質斑鉄型グライ低地土)において、降雨時に暗渠流出水を経時的に採取し、硝酸イオン濃度および窒素・酸素安定同位体比 (^{15}N 、 ^{18}O および ^{17}O) の分析を行った。

流域スケールでの硝酸イオンの動態解析((a)逆川および(b)銚田川)については、 NO_3^- 濃度・安定同位体比 (^{17}O 、 ^{15}N 、 ^{18}O) から硝酸イオンの脱窒量の推定を行った。

4. 研究成果

I. ^{17}O 安定同位体を用いた N_2O の動態解析手法の確立

施用した窒素が生成した N_2O に占める割合(寄与率)を表 1 に示す。 ^{15}N のみを使用し、 $^{15}N-NH_4^+$ および $^{15}N-NO_3^-$ をそれぞれ個別に施用した場合の NH_4^+ および NO_3^- の寄与率はそれぞれ 0.57、0.27 であった。これはすなわち生成した N_2O のうち約 6 割が NH_4^+ 由来、約 3 割が NO_3^- 由来であったことを示唆する。また $^{15}N-NH_4^+$ および $^{17}O^{18}O-NO_3^-$ を同時に施用した場合の NH_4^+ および NO_3^- の寄与率はそれぞれ 0.60、0.18 (^{18}O から算出)-0.14 (^{17}O から算出) であった。また $^{15}N^{17}O^{18}O-NO_3^-$ を施用した場合の NO_3^- の寄与率はそれぞれ 0.34 (^{15}N から算出)、0.18 (^{18}O から算出)-0.14 (^{17}O から算出) であった。総合的には、57-60% が NH_4^+ 由来、14-34% が NO_3^- 由来と推定されており、 $^{17}O^{18}O-NO_3^-$ を用いた N_2O の動態解析は比較的良好な発生源推定手法であると考えられる。

表1 施用した窒素が生成したN₂Oに占める割合（寄与率）

標識物質の添加			¹⁵ N(NH ₄ ⁺ or NO ₃ ⁻)寄与率	¹⁸ O-NO ₃ ⁻ 寄与率	¹⁷ O-NO ₃ ⁻ 寄与率
¹⁵ N-NH ₄ ⁺	¹⁵ N-NO ₃ ⁻	¹⁷ O and ¹⁸ O -NO ₃ ⁻			
-	-	-	0.00		
+	-	-	0.57		
-	+	-	0.27		
+	-	+	0.60	0.18	0.14
-	+	+	0.34	0.22	0.31

II. 降水由来 ¹⁷O 安定同位体自然存在比を用いた硝酸イオンの動態解析手法の確立

圃場試験での硝酸イオンの動態解析

降雨時の暗渠流出水の硝酸イオン濃度は経時的に低下した。¹⁵N, ¹⁸O は経時的に増加し,¹⁵N 対 ¹⁸O のプロットの傾きは約 0.5 で、脱窒の発生を示唆した。硝酸イオン濃度は、6 月から 7 月上旬までは最高で 15 mg-N/L 程度だったが、同月中旬以降に急激に低下し、9 月上旬まで低濃度で推移した。その後、10 月中旬の収穫期にかけて再び増加した。各降雨イベントにおける ¹⁵N の最高値は、硝酸イオン濃度が高い 7 月は約 25‰だったが、それ以降の低濃度の期間は 10‰程度に抑制された。その後、収穫期は 20‰程度になった。一方、施肥・播種直後の 6 月上旬では、硝酸イオン濃度の割に値の上昇は 3‰程度と低く、脱窒を盛んに行うための条件がまだ整っていなかった可能性がある。¹⁷O については、施肥・播種直後の 6 月上旬は、降雨開始直後から流出終了近くまで 0‰前後で推移し、大気降水物の影響は小さいと見られた。

流域スケールでの硝酸イオンの動態解析

銚田川流域内の地下水における ¹⁷O_{NO3} 値は -0.57 ~ 1.18 であり、筑波山森林集水域の林外雨および林内雨の ¹⁷O_{NO3} 値 (16.16 ~ 21.07) や筑波山南麓に位置する水田を含む逆川集水域の ¹⁷O_{NO3} 値 (-0.46 ~ 3.59) よりも低く、降水由来の窒素負荷は少ないものと推察された (図 1)。

高い ¹⁸O_{NO3} 値は、降水由来の高い ¹⁸O_{NO3} 値を持つ硝酸イオンによるものと脱窒によって ¹⁸O_{NO3} が上昇したものと 2 種類考えられる。

¹⁸O_{NO3} 値が降水物との混合ラインに近い場合は ¹⁵N_{NO3} 値は低く、混合ラインから遠くなるに従って ¹⁵N_{NO3} 値は高くなる傾向にあった (図 1)。混合ラインから遠くなるほど脱窒による ¹⁵N_{NO3} 値および ¹⁸O_{NO3} 値の上昇が起きていると推察される。

降水物との混合ラインからのずれから脱窒による ¹⁸O_{NO3} 変化を求め、窒素源の ¹⁵N_{NO3}、¹⁸O_{NO3} および ¹⁷O_{NO3} 値を求め、エンドメンバー法で地下水中 NO₃⁻における窒素源ごとの濃度を求めた (図 2)。

NO₃⁻濃度が 17.5 mgN L⁻¹ より低い地点では化学肥料による窒素負荷および畜産系廃棄物 (堆肥等) による窒素負荷が混在していた (図 2)。これは畑地等由来 N の地下水への NO₃⁻負荷が反映されていると推察される。

NO₃⁻濃度が 17.5 mgN L⁻¹ より高い地点では畜産系廃棄物 (堆肥等) による窒素負荷がほとんどであった (図 2)。これは畜産系廃棄物等の地下水への NO₃⁻負荷が反映されていると推察される。

・降水由来の窒素負荷はほとんど観察されなかった (図 2)。

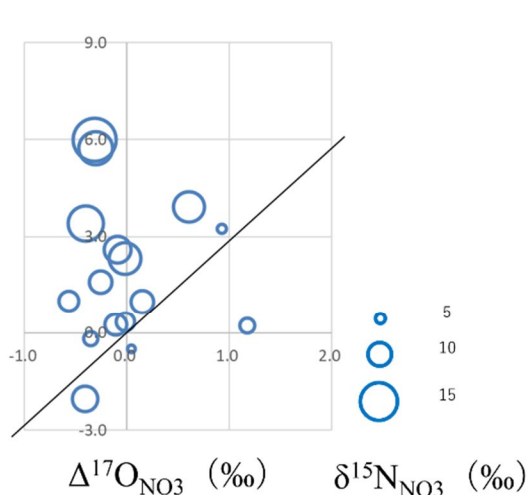


図1 硝酸イオン安定同位体比の $\Delta^{17}\text{O}_{\text{NO}_3}$ — $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ プロット

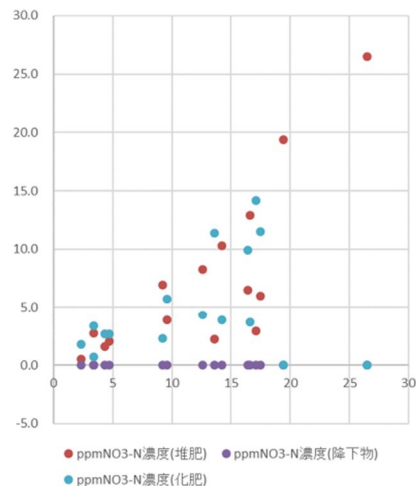


図2 総NO₃⁻濃度—窒素源毎のNO₃⁻濃度

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 中島 泰弘, 鈴木克拓, 鶴野 光
2. 発表標題 窒素・酸素安定同位体比および酸素同位体異常($\delta^{17}O$) を指標とした粘土質転換畑での降雨流出過程における硝酸イオンの動態評価
3. 学会等名 日本土壌肥料学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中島 泰弘, 箭田 佐衣子, 板橋 直, 平野 七恵, 大内 孝雄, 吉川 省子, 鶴野 光, 江口 定夫
2. 発表標題 窒素・酸素安定同位体比および酸素同位体異常($\delta^{17}O$) を指標とした茨城県鉾田川流域における地下水および河川水中の硝酸イオンの動態評価
3. 学会等名 日本土壌肥料学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中島 泰弘, 箭田 佐衣子, 伊藤 優子, 小林 政広, 板橋 直, 吉川 省子, 朝田 景, 堀尾 剛, 稲生 圭哉, 江口 定夫
2. 発表標題 硝酸イオンの窒素($\delta^{15}N$) ・酸素($\delta^{18}O$, $\delta^{17}O$) 安定同位体を指標とした霞ヶ浦用水を灌漑水源とする森林 - 水田集水域における窒素動態評価
3. 学会等名 第3回N研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Saeko Yada, Yasuhiro Nakajima, Kei Asada, Nanae Hirano, Seiko Yoshikawa, Sadao Eguchi
2. 発表標題 Identifying groundwater nitrate sources in a rice paddy watershed in Japan: A stable isotopic study
3. 学会等名 International workshop on improving nitrogen use efficiency in dairy farming system through crop-livestock integration (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鈴木克拓, 中島泰弘
2. 発表標題 粘土質転換畑圃場における暗渠流出中硝酸イオンの 15N, 180および 170の時期変動
3. 学会等名 日本土壌肥料学会
4. 発表年 2022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
研究分担者	秋山 博子 (Akiyama Hiroko) (00354001)	国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・農業環境変動研究センター・ユニット長 (82111)	
研究分担者	江口 定夫 (Eguchi Sadao) (30354020)	国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・農業環境変動研究センター・ユニット長 (82111)	
研究分担者	鈴木 克拓 (Suzuki Katsuhiro) (90354068)	国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・中央農業研究センター・上級研究員 (82111)	

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
---------	---------