

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 5 月 28 日現在

機関番号：17401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24780231

研究課題名(和文)水田地区内に存在する有機態窒素の化学形態分画とその分解過程および動態の解明

研究課題名(英文)Chemical fraction of organic nitrogen in paddy fields and its decomposition process and dynamics

研究代表者

濱 武英(Hama, Takehide)

熊本大学・自然科学研究科・准教授

研究者番号：30512008

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：これまで農業排水路底泥に存在する窒素の分解や移動に関する知見は十分でない。本研究の目的は、水田地区における窒素の動態を明らかにすることである。特に、水田土壌や排水路底泥の主要成分である有機態窒素に注目し、分解や溶出特性を明らかにする。現地調査と室内実験により底泥中の窒素動態を明らかにした。調査地は琵琶湖に隣接する3つの水田地区を選定した。水田地区の排水路底泥には高濃度の窒素が含まれており、底泥中の有機態窒素の分解・溶出が晴天日における排水の窒素濃度を決定すると結論付けられた。

研究成果の概要(英文)：There are few researches on decomposition and transport of nitrogen of the sediment in drainage canals. The objective of this study is to clarify the nitrogen dynamics in paddy fields. In particular, this study focused on organic-state nitrogen, which is the main pool of nitrogen in paddy soil and canal sediments, and clarify the characteristics of decomposition and release. Nitrogen dynamics were clarified by investigation in the field and experiments in the laboratory. Three study sites were located around Lake Biwa. It was concluded that the canal sediments in the paddy fields had high concentration of nitrogen and the decomposition and release of organic nitrogen could determine the nitrogen concentration in the drainage water during non-rainy days.

研究分野：農業水文学

キーワード：有機態窒素 水田 排水路

### 1. 研究開始当初の背景

日本をはじめ多くの国や地域において、湖沼の閉鎖性水域の富栄養化および水質悪化は依然として深刻な問題である。現在、工場などのポイントソースから排出される負荷の削減対策が進んだ先進諸国では、農業地域などのノンポイントソースからの排出負荷の削減が水質対策における主要な目的となっており、特に、日本を含むアジア地域では、国内の用水使用量の約6割を占める水田地区からの栄養塩類の排出負荷の削減が重要とされている。

日本の主要な湖である琵琶湖、霞ヶ浦、八郎潟湖では、水田地区からの排出負荷削減対策として、循環灌漑の実施が進められている。循環灌漑は、農地からの排水を灌漑用水として再利用する灌漑方式である。そして循環灌漑は、隣接する下流域との間に浄化施設を設置する余地のない湖岸の水田地区にとって、唯一といえる地区単位の水質対策である。

研究代表者は、循環灌漑を導入した水田地区の調査事例から、濁水やリンの排出削減量は排水の再利用率（＝用水に占める排水の再利用量の割合）に比例し、70%を超える高い再利用率では地区外へのリンの排出量は0になること、一方で、窒素の排出削減量は必ずしも再利用率に比例せず、中程度（40～60%）の再利用率の循環灌漑はむしろ窒素の排出負荷を増大させることを明らかにした。しかしながら、これまで排水路底泥に存在する窒素の分解や移動に関する知見は十分でなく、循環灌漑における排水中の窒素濃度増加について、その原因の特定には至らなかった。したがって、排水路底泥中の窒素の動態の解明が重要であると考えた。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、水田地区における窒素の動態を明らかにすることである。特に、水田土壌や排水路底泥の主要成分である有機態窒素に注目し、分解特性の違いや溶出現象を明らかにする。

### 3. 研究の方法

#### (1) 現地調査

調査地：図1に示すように、琵琶湖に隣接する水田地区を3箇所選定した。1つ目の調査地は琵琶湖北東部に位置し（Site 1, 35°24'N, 136°13'E）、地区面積は約13haである。平均気温および降水量は、それぞれ13.9℃と1553mmであった。2つ目の調査地は琵琶湖南部に位置し（Site 2, 35°08'N, 136°02'E）、地区面積は約8haである。平均気温および降水量は、それぞれ14.9℃と1530mmであった。3つ

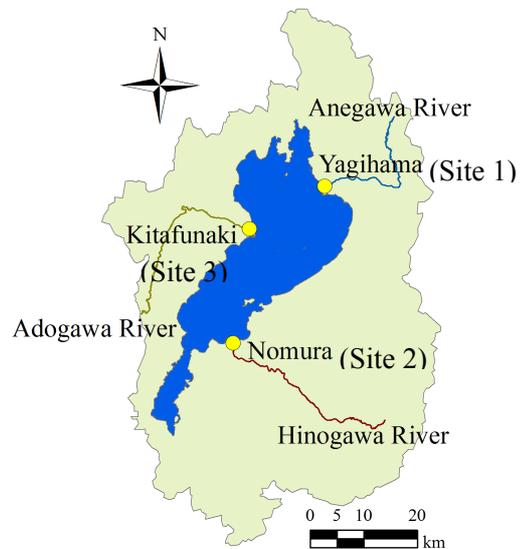


図1 調査地

目の調査地は、琵琶湖北西部に位置し（Site 3, 35°20'N, 136°04'E）、地区面積は約53haである。平均気温および降水量はSite 2と同様であった。

調査方法：毎週、現地に赴き、灌漑用水、幹線排水路の排水を採取した。また、毎月、排水路の底泥と水田土壌を採取した。底泥の採取は柱状の採泥器を用いて行い、採取後の底泥を上層（表層0cm～5cm）と下層（5cm～10cm）に分けた。

水質・底質分析：現地にて採水した試料の主な水質分析項目は、懸濁物量、全窒素（T-N）、全溶存態窒素（TD-N）、アンモニア態窒素（NH<sub>4</sub>-N）、硝酸態窒素（NO<sub>3</sub>-N）、亜硝酸態窒素（NO<sub>2</sub>-N）、全有機態炭素（TOC）である。NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N濃度の総和を全無機態窒素（TI-N）と仮定し、有機態窒素（TO-N）濃度はT-NとTI-Nの差から求めた。T-NおよびTD-Nは酸化分解と紫外線吸光度法、NH<sub>4</sub>-Nは吸光度法、NO<sub>3</sub>-NおよびNO<sub>2</sub>-Nはイオンクロマトグラフィー法により計測した。ただし、懸濁態成分と溶存態成分の分離には、0.45μmの濾紙を使用した。TOCは燃焼法により計測した。一方、底泥の分析項目は、全窒素、全炭素、吸着態アンモニア態窒素である。全窒素および全炭素は乾式燃焼法により分析した。吸着態アンモニア態窒素は、1M KCl溶液の添加によって抽出したNH<sub>4</sub>-Nを計測して求めた。

#### (2) 底泥培養試験

アクリル製円筒（直径91mm、高さ300mm）を用いて、排水路底泥を採取した。直上の排水を排出後、水深が約10cmとなるように600mLの蒸留水を添加し、20±1℃の恒温暗

**表1** 現地観測された排水中の窒素と炭素の平均濃度

Site	Parameter	Depth (cm)	T-N (mg/L)	TO-N (mg/L)	TD-N (mg/L)	NH <sub>4</sub> -N (mg/L)	NO <sub>2</sub> -N (mg/L)	NO <sub>3</sub> -N (mg/L)	TOC (mg/L)	DOC (mg/L)
Site 1	Ave.	31.0	1.77	0.60	1.57	0.14	0.01	1.06	2.25	2.21
	S.D.	17.4	1.24	0.30	1.28	0.13	0.01	1.03	0.95	1.06
Site 2	Ave.	15.2	2.32	1.43	1.86	0.26	<0.01	0.62	7.24	7.23
	S.D.	4.2	1.44	0.86	1.45	0.51	0.01	1.08	3.24	3.82
Site 3	Ave.	20.1	1.10	0.82	0.85	0.20	<0.01	0.07	4.39	4.25
	S.D.	11.2	0.60	0.43	0.47	0.26	0.01	0.07	2.15	2.19

**表2** 現地観測された用水中の窒素と炭素の平均濃度

Site	Parameter	T-N (mg/L)	TO-N (mg/L)	TD-N (mg/L)	NH <sub>4</sub> -N (mg/L)	NO <sub>2</sub> -N (mg/L)	NO <sub>3</sub> -N (mg/L)	TOC (mg/L)	DOC (mg/L)
Site 1	Ave.	0.37	0.25	0.32	0.03	<0.01	0.10	1.98	1.83
	S.D.	0.12	0.07	0.15	0.01	<0.01	0.07	0.29	0.19
Site 2	Ave.	0.70	0.55	0.44	0.02	0.01	0.12	2.15	2.02
	S.D.	0.18	0.19	0.09	0.01	0.01	0.04	0.27	0.22
Site 3*	Ave.	0.24	0.15	-	<0.01	<0.01	0.10	1.22	1.12
	S.D.	0.06	0.02	-	<0.01	<0.01	0.07	0.14	0.12

\* Data was lake water quality obtained from Water Information System (Sotogahama-oki, MLIT, 2014)

**表3** 現地観測された用水中の窒素と炭素の平均濃度

Site	T-N	TO-N	TD-N	NH <sub>4</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	TOC	DOC
Site 1	4.7	2.4	4.9	5.5	10.7	1.1	1.2
Site 2	3.3	2.6	4.3	16.7	5.0	3.4	3.6
Site 3	4.6	5.5	-	-	0.7	3.6	3.8

条件で4週間の培養を行った。

培養終了後に直上水に溶出した窒素および炭素の濃度を計測した。計測項目および方法は現地調査と同様である。

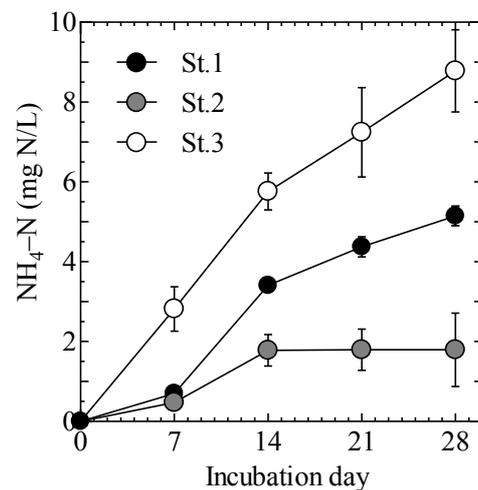
#### 4. 研究成果

##### (1) 水田地区の用排水中の窒素

**表1** に調査地区の排水の平均水質を示す。T-Nの平均濃度はそれぞれ1.77 mg/L (Site 1), 2.32 mg/L (Site 2), 1.10 mg/L (Site 3)であった。また, TD-NはT-Nの79~85%を占めており, 排水路の窒素は主に溶存態として存在することが示された。NH<sub>4</sub>-Nは0.14~0.20 mg/Lであった。NO<sub>3</sub>-Nは0.07~1.06 mg/Lであり, NO<sub>2</sub>-Nはほとんど検出されなかった。したがって, TI-Nはそれぞれ1.20 mg/L (Site 1), 0.89 mg/L (Site 2), 0.28 mg/L (Site 3)であり, TO-Nの平均濃度は0.58 mg/L (Site 1), 1.43 mg/L (Site 2), 0.82 mg/L (Site 3)と推定された。また, TOCの平均濃度はそれぞれ2.25 mg/L (Site 1), 7.24 mg/L (Site 2), 4.39 mg/L (Site 3)であった。

**表2** に調査地の用水の平均水質を示す。た

だし, Site 3は用水路と排水路が分離されていない地区であったため, 用水源の水質として国交省が計測した琵琶湖水の水質を示した。用水のT-Nはそれぞれ0.37 mg/L (Site 1), 0.70



**図2** 底泥から溶出するNH<sub>4</sub>-N

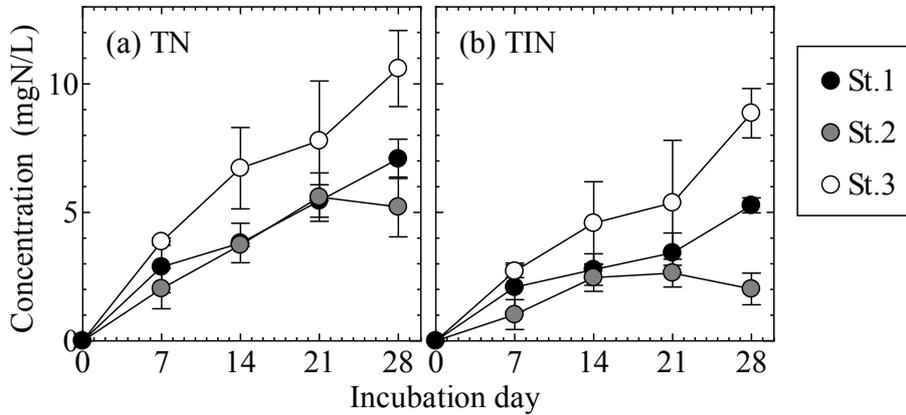


図3 底泥から溶出する T-N と TI-N

表4 培養後の底泥の窒素と炭素

Site	Parameter	C/N ratio	STN (g/kg)	STC (g/kg)	ANH <sub>4</sub> -N (mg/kg)
Site 1	Ave.	9.7	3.38	32.8	54.7
	S.D.	0.3	0.48	3.9	7.6
Site 2	Ave.	10.8	1.95	21.2	37.4
	S.D.	0.3	0.80	8.9	3.7
Site 3	Ave.	9.6	2.83	27.3	101.8
	S.D.	0.09	0.07	0.5	2.8

mg/L (Site 2), 0.24 mg/L (Site 3)であった。用水の T-N は、排水の T-N (表1)と比較すると、いずれの地区も低濃度であった。TD-N の割合は、Site 1 と Site 2 でそれぞれ 86% と 62% であった。NO<sub>3</sub>-N は 0.1 ~ 0.12 mg/L であったが、NH<sub>4</sub>-N と NO<sub>2</sub>-N 濃度は低かった。TO-N はそれぞれ 0.25 mg/L (Site1), 0.55 mg/L (Site2), 0.15 mg/L (Site 3)であった。また、TOC は 1.98 mg/L (Site 1), 2.15 mg/L (Site 2), 1.22 mg/L (Site 3)であった。

低平地水田地区においては、水田の灌漑に利用されない余剰用水が晴天日の排水の所要な要因である。そして、用水と排水の濃度比は底泥からの内部負荷によって汚染された程度を示す指標となる。表3は、調査地区における窒素と炭素の濃度比を示したものである。T-N では 3.3 ~ 4.7 など、Site 3 の NO<sub>3</sub>-N を除き、全ての項目において濃度比は 1 以上となった。これは、調査地の排水路が窒素や炭素の汚染源として働いたことを示唆する。特に、NH<sub>4</sub>-N については 5.5 (Site 1) と 16.7 (Site 2) という高い値を示した。これは、取水された琵琶湖水が水田地区内の排水路を流下する際に濃度が 5.5 ~ 16.7 倍になる可能性を示すものである。

#### (2) 排水路の底泥における窒素分解

図2に培養期間に底泥から溶出した NH<sub>4</sub>-N 濃度の経時変化を示す。4週間後の最終的な溶出 NH<sub>4</sub>-N 濃度は、現地で観測された値に比

べてずっと大きいものであった。濃度を培養日数で割って求まる溶出速度は、それぞれおよそ 24, 13, 41 mg N/m<sup>2</sup>/d であった。

図3に培養期間に底泥から溶出した T-N および TI-N 濃度の経時変化を示す。最も高い TN 濃度はそれぞれ 7.08 mg N/L (Site 1), 5.21 mg N/L (Site 2) 10.6 mg N/L (Site 3)であった。NH<sub>4</sub>-N と同様に、これらの値は現地で観測された T-N 濃度 (表1) よりも大きかった。溶出した T-N のうち、TI-N はそれぞれ 78 ~ 91% (Site 1), 61 ~ 85% (Site 2), 78 ~ 87% (Site 3)を占めていた。また、NH<sub>4</sub>-N が主要な無機態成分であった。

表4は培養後の底泥の窒素および炭素量である。底泥の窒素量は 3.38 g/kg (Site 1), 1.95 g/kg (Site 2), 2.83 g/kg (Site 3)であった。一方、吸着態アンモニア態窒素は 37.4 ~ 101.8 mg/kg であり、全窒素量に比べて2桁ほど小さかった。C/N 比はおよそ 10 であった。吸着態アンモニア態窒素は培養後に溶出した直上水中の NH<sub>4</sub>-N と強い相関を示した (図4)。

底泥の直上水に対する寄与は  $C = Q \rho_s v_s / v$  で概算することができる。ここで、 $C$  は底泥から溶出しうる窒素濃度であり、 $Q$  は底泥中の窒素量、 $\rho_s$  は底泥の密度、 $v_s$  と  $v$  はそれぞれ底泥と直上水の体積である。仮に底泥の密度を 2.65 (g/cm<sup>3</sup>) とすると、吸着態アンモニア態窒素 (54.7 ~ 101.8 mg/kg, 表4) から、 $Q \rho_s$  が 99 ~ 270 mg/L に等しくなる。さらに、底泥と水の比を ( $v_s / v$ ) を 1:1000 とすれば、最終的

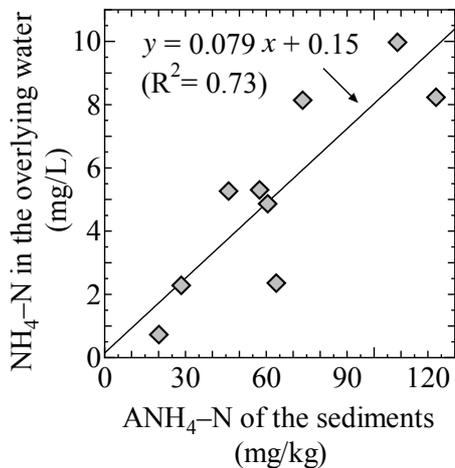


図4 吸着態アンモニア濃度と溶出するNH<sub>4</sub>-N濃度の関係

な溶出可能濃度は  $C = 0.099\text{--}0.27$  mg/L と推定される。この濃度は現地で観測された NH<sub>4</sub>-N 濃度 (表1) と同等である。また、この事実は、1 cm の厚さの底泥が直上水柱 5~10m の窒素濃度に影響を及ぼしうることを示唆する。したがって、底泥の窒素が排水の窒素濃度を決定しうると結論付けられた。

しかし、上記のように推定された NH<sub>4</sub>-N 濃度 (0.099~0.27 mg/L は、培養で溶出した NH<sub>4</sub>-N よりもずっと小さい。これは、培養期間中に有機態窒素が分解されたためと推察される。有機態窒素の減少量から推定される分解速度は 1.00 mg/kg/d (Site 1) および 1.60 g/kg/d (Site 2) であり、既往の報告例と同程度であった。

### (3) 総合考察

水田地区の排水路底泥には高濃度の窒素が含まれており、底泥中の有機態窒素の分解・溶出が晴天日における排水の窒素濃度を決定すると結論付けられた。

## 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)

Jikumaru Chinami, Hama Takehide, Nagai Tomohisa, Iwasaki Daichi, Kawagoshi Yasunori, Nitrogen release from sediments in agricultural drainage canals, Journal of Water and Environment Technology, 査読有, Vol.13(2), 2015, pp.99-105.

Hama Takehide, Iwasaki Daichi, Jikumaru Chinami, Kawagoshi Yasunori, Nagai Tomohisa, Assessment of phosphorus buffering capacity of drainage canal sediments in paddy-field districts, Journal of Water and Environment Technology, 査読

有, Vol.13(1), 2015, pp.63-75.

Hama Takehide, Iwasaki Daichi, Jikumaru Chinami, Kawagoshi Yasunori, Nagai Tomohisa, Effect of bioturbation by tubificid worms on nutrient release from the sediment in an agricultural drainage canal, Journal of Water and Environment Technology, 査読有, Vol.12(3), 2014, pp.297-307.

Nagai Tomohisa, Hama Takehide, Sugiyama Sho, Iwasaki Daichi, Igarashi Fuminori, Kawashima Shigeto, Characteristics of decomposition of nitrogen and carbon in the sediments in agricultural drainage canals, Journal of Water and Environment Technology, 査読有, Vol.12(2), 2014, pp.151-160.

Sugiyama Sho, Hama Takehide, Effects of water temperature on phosphate adsorption onto sediments in an agricultural drainage canal in a paddy-field district, Ecological Engineering, 査読有, Vol.61, 2013, pp.94-99.

Sugiyama Sho, Hama Takehide, Osuga Katsuyuki, Iwasaki Daichi, Clarification of temporal variations in water temperature of drainage canals in a paddy-field district, Journal of Water and Environment Technology, 査読有, Vol.11(3), 2013, pp.197-207.

Hama Takehide, Osuga Katsuyuki, Sugiyama Sho, Iwasaki Daichi, Aoki Takeru, Assessment of the effect of cyclic irrigation on reducing nitrogen effluent loading from a paddy-field district, Journal of Water and Environment Technology, 査読有, Vol.11(3), 2013, pp.143-152.

Iwasaki Daichi, Hama Takehide, Osuga Katsuyuki, Sugiyama Sho, Characteristics of phosphorus in sediments in drainage canals in paddy-field districts around Lake Biwa, Journal of Water and Environment Technology, 査読有, Vol.11(2), 2013, pp.81-89.

Hama Takehide, Aoki Takeru, Osuga Katsuyuki, Sugiyama Sho, Iwasaki Daichi, Reducing phosphorus effluent load from a paddy-field district through cyclic irrigation, Ecological Engineering, 査読有, Vol.54, 2013, pp.107-115.

濱 武英, 大菅勝之, 青木 丈, 杉山 翔, 岩崎大知, 中村公人, 川島茂人, 循環灌漑を実施する水田地区の排水路底泥に含まれる窒素, リン, 炭素の特徴, 水環境学会誌, 査読有, 35 巻 7 号, 2012, pp.103-109

[学会発表](計3件)

Hama Takehide, et al., Role of organic nitrogen and carbon in canal sediments on drainage water in paddy fields, Agro ' 2014, 2014年11月24日,高知県.  
Jikumaru Chinami, Hama Takehide, Kawagoshi Yasunori, Decomposition characteristics of dissolved organic matter in paddy field, Agro ' 2014, 2014年11月24日,高知県  
濱 武英, 他4名, イトミミズが農業廃水路底泥からの栄養塩類溶出に与える影響, 日本水処理生物学会, 2013年11月13日, 兵庫県

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

濱 武英 (HAMA TAKEHIDE)  
熊本大学・大学院自然科学研究科・准教授  
研究者番号：30512008