

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：82111

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26450083

研究課題名(和文) 窒素肥沃度の低下に関わる粘土質転換畑圃場に特有な窒素流出特性の解明

研究課題名(英文) Specific property of nitrogen discharge in clayey ex-paddy fields related with decline of soil nitrogen fertility

研究代表者

鈴木 克拓 (SUZUKI, Katsuhiko)

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 水田利用研究領域・上級研究員

研究者番号：90354068

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：近年、転換畑圃場における収量低下が問題になっている。そこで、圃場測定により粘土質転換畑に特有の窒素流出動態と窒素肥沃度低下との関係を明らかにする。窒素の主要な暗渠流出形態は硝酸態で、個々の降雨で濃度が経時的に低下し、慣行暗渠圃場では流出量の2割が消失した。窒素・酸素安定同位体比からこれが脱窒に因ることが分かった。窒素は溶存有機態でも流出し、最高で硝酸態の7割を占めた。作土の水抽出窒素は有機態が卓越し、可給態窒素の最高3割であった。本研究の結果から、これまで着目されなかった、流出時に脱窒で失われる硝酸態窒素と溶存有機態での流出が粘土質転換畑の窒素肥沃度に影響を与えると結論づけた。

研究成果の概要(英文)：Recently, declining yields are of concern in the ex-paddy fields, that were previously used to cultivate paddy. We investigated the specific properties of nitrogen (N) discharge in clayey ex-paddy fields related with decline of soil N fertility. Nitrate was the main form of N in tile drainage. Nitrate concentrations decreased gradually during each rainfall event, with loss of more than 20% nitrate in the fields with conventional drainage. Stable isotope studies of N and O in the form of nitrate ion suggested that the decline of nitrate is caused by denitrification. Additionally, dissolved organic N (DON) was found in the drainage water, and the DON concentration was up to 70% of nitrate. Water-extractable N in the topsoil was primarily in the organic form and represented up to 30% of the available N. From these results, we concluded that the nitrate loss by denitrification and discharge as DON seemed to affect the soil nitrogen fertility in the clayey ex-paddy fields.

研究分野：土壌学

キーワード：粘土質転換畑 窒素流出 脱窒 溶存有機態窒素 窒素・酸素安定同位体比 窒素肥沃度

1. 研究開始当初の背景

水田転換畑は、国内の麦の6割、大豆の8割が作付けされている、わが国の重要な食糧生産の場である。しかし、近年、畑状態を継続した転換畑圃場における収量の減少が問題になっている。住田ら(2005)は、畑状態を継続することにより、作土中の可給態窒素含量が低下すると指摘している。転換畑の状態では、無機化した窒素は速やかに硝酸イオンに酸化され、作物に利用されるとともに、土壤に吸着されにくい性質のため、溶脱する。わが国の平野部などに分布する粘土質土壤の転換畑では、乾燥に伴い土壤が収縮することにより、下層に亀裂が生成する。また、排水性を良くするための弾丸暗渠や本暗渠などの人為的な粗大孔隙も存在する。この土壤のマトリクス部分の透水係数は非常に低いため、水、溶質および懸濁物質はもっぱらこれらの粗大孔隙を通して暗渠へと流出し、その移動速度は極めて高い(バイパス流と言う)。そのため、硝酸態窒素を含む水が作土から流出すると、下層の粗大孔隙に流入し、作物に利用されることなく、速やかに根群域外に溶脱すると考えられる。

これだけでなく、通常の畑土壤では土壤マトリクスに収着されるアンモニア態窒素、土壤マトリクスに捕捉される懸濁態窒素(PN)および微生物などによる代謝を受ける溶存有機態窒素(DON)も粗大孔隙を通り、そのまま下方に流出する可能性がある。このように、粘土質転換畑は、一般の畑土壤に比べてあらゆる形態の窒素が溶脱しやすいと考えられる。

しかも、降水時に容易に流出する窒素は、作物が利用しやすい形態であると考えられる。そのため、想定外の形態での窒素流出が土壤の窒素肥沃度の低下に影響する可能性がある。しかし、畑圃場からの窒素流出の研究は、地下水汚染関連での硝酸態窒素に関心が向けられており、粘土質転換畑における様々な形態の窒素流出特性の解明の必要性について十分認識されているとは言えない現状にある。

2. 研究の目的

粘土質転換畑に特徴的な窒素の流出実態を降雨イベントスケールで通年測定し、窒素流出動態と窒素肥沃度の低下との関係を解明することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 測定圃場

測定は、新潟県上越市の農研機構 中央農業研究センター 北陸研究拠点内の複数の水田転換畑圃場(細粒質斑鉄型グライ低地土、作土粘土含量32~50%)で行った。すなわち、2006年から畑状態を継続し、2010年に地下水位制御システム(FOEAS;小野寺・藤森,2005)を施工することにより暗渠排水性を大きく改善し、その後も高排水性が維持されて

いる圃場(主にエダマメ作付、面積4a;圃場A)、2010年にFOEASを施工し、2011年からイネ-オオムギ-ダイズ2年3作を行った圃場(オオムギおよびダイズ期間に測定、面積20a;圃場B)、1996年から畑状態を継続し、2002年からダイズを継続して栽培した慣行暗渠圃場(面積30a;圃場C)、1996年から畑状態を継続した後、2015年に復田し、2016年にダイズを栽培した慣行暗渠圃場(ダイズ期間、面積30a;圃場D)である。いずれの圃場についても、測定期間には堆肥を施用しなかった。圃場Bについてはイネとオオムギのわら残渣を、圃場Dについては、イネのわら残渣をすき込んだ。施肥および防除については、地域の慣行に準じた。

(2) 採水と流量測定

降雨時に圃場において試料水を2~3時間間隔で採取した。暗渠流出水は、暗渠出口においてポリエチレン製ポンプで吸引し、ポリプロピレン製容器に採取した。また、作土直下の鋤床上に停滞する正圧の水(鋤床上停滞水)を、ポリ塩化ビニルチューブを用いて吸引採取した。採取した試料水は直ちに一定量をあらかじめ105°Cで恒量とした孔径0.2µmのメンブレンフィルタでろ過し、乾燥後のフィルタの重量の増分と通過流量から懸濁物質濃度を測定した。ろ液は直ちに凍結し、残りの試料水は分析まで5°C以下の暗所で保存した。暗渠流出水量は電磁流量計(SW50およびSA50、愛知時計電機)を用いて連続測定した。

(3) 試料水の形態別窒素の測定

ろ過していない試料水については、アルカリ性ペルオキシ二硫酸カリウム溶液を加えて、オートクレーブで窒素成分を硝酸イオンに変換し(細見・須藤,1983)、硝酸イオン濃度を銅・カドミウム還元ナフチルエチレンジアミン法でオートアナライザー(TRACCS800,ブランルーベ)で測定した。これを、試料水の全窒素濃度とした。

ろ液については、試料水と同様にペルオキシ二硫酸カリウム溶液で窒素を硝酸イオンに変換し、溶存全窒素濃度を測定した。また、アンモニア態窒素濃度と硝酸態窒素濃度をオートアナライザーで測定した。これらから溶存有機態および懸濁態の各窒素濃度を算出した(図1)。

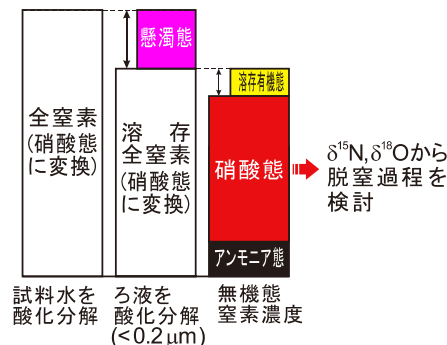


図1 形態別窒素濃度の算出

(4) 硝酸イオンの窒素・酸素安定同位体比
 硝酸イオンの窒素・酸素安定同位体比は、試料水のろ液と作土中の硝酸イオンについて、脱窒菌法 (Sigman *et al.*, 2001; Casciotti *et al.*, 2002) を用いて測定した。すなわち、脱窒菌を用いて試料中の硝酸イオンを一酸化二窒素 (N₂O) に変換し、窒素と酸素の安定同位体比を質量分析計で測定した。安定同位体比は、以下の式で定義される。

$$\delta (\%) = [(R_{\text{sample}} - R_{\text{standard}}) / R_{\text{standard}}] \times 1000 \quad \dots(1)$$

ここで、 R は ¹⁵N/¹⁴N または ¹⁸O/¹⁶O である。スタンダードとして、窒素は大気窒素、酸素は標準海水 (VSMOW) の酸素を用いた。

このようにして求めた窒素・酸素安定同位体比について、 $\delta^{15}\text{N}$ に対する $\delta^{18}\text{O}$ のプロットの傾きと、以下の式

$$\delta = \delta_{\text{ini}} + \epsilon \ln(C/C_{\text{ini}}) \quad \dots(2)$$

C は NO₃⁻濃度、添え字 ini は初期値

で表される同位体濃縮係数 ϵ から、流出過程における窒素形態変化の機構を考察した。

(5) 土壌の測定

各測定圃場において、鋤床上停滞水位および降雨時における鋤床上の酸化還元電位を測定した。

測定圃場から採取した作土を風乾細土に調製し、全窒素含量、30°C 4 週間畑条件培養における可給態窒素含量および交換態窒素含量を測定した。上記のように、一部については土壌中硝酸イオンの窒素・酸素安定同位体比を測定した。さらに、降雨時における作土からの窒素流出特性を検討するために、固液比 1:10 で 1 時間、蒸留水で振とう抽出し、試料水の形態別窒素の測定と同様の方法で、作土中の水抽出硝酸態、アンモニア態および有機態窒素の各含量を算出した。

4. 研究成果

(1) 流出水中の窒素の形態

圃場 A~D のいずれにおいても、全体としては硝酸態が優勢であった。溶存有機態窒素濃度は、多くの場合、全窒素の 1~2 割であ

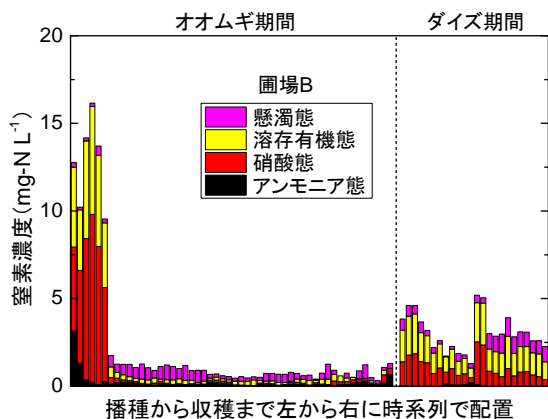


図2 流出水中の形態別窒素濃度

った。しかし、圃場 B におけるオオムギ・ダイズ作付期間には、溶存有機態が硝酸態の 7 割を占める場合があった (図 2)。測定圃場のうち、有機物として作物残渣を施用したのは圃場 B と圃場 D であったが、流出水における溶存有機態の割合と有機物施用の関係は判然としなかった。

懸濁態窒素濃度については、最高で 4.9 mg/L で、全体的には全窒素の 2 割程度であった。ただし、溶存有機態も懸濁態も硝酸態窒素濃度に依らず、ある程度の濃度で常に流出する傾向があり、硝酸態窒素濃度が低い条件では、主要な流出形態になる場合があった。特に、冬期には降水量が多いことも相まって、溶存有機態等での流出量が無視できない場合もある。流出水中窒素の主要な給源と考えられる作土からの溶存有機態窒素の流出の可能性については、後段で検討する。

(2) 流出水中硝酸態窒素濃度の変化

流出水中の硝酸態窒素濃度は、ダイズ栽培期間については、6 月から梅雨明けの 7 月中旬まで高く、オオムギ栽培期間では、9 月下旬から 10 月上旬に行われる施肥・播種の直後に高く、その後低下した。個々の降雨イベントについては、暗渠流出水では測定したほぼすべての降雨イベントにおいて流出の進行につれて硝酸態窒素濃度が徐々に低下した。圃場間で比較可能な降雨事例について見ると、濃度の低下は、暗渠排水性が高い圃場 A では低下の程度が小さく、慣行の排水対策をした圃場 D で程度が大きかった (図 3)。

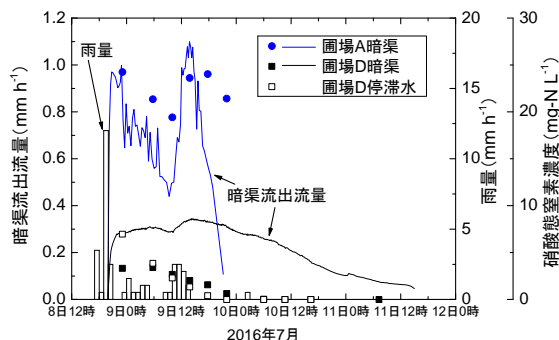


図3 降雨時における試料水中硝酸イオン濃度の変化

鋤床上停滞水についても、慣行暗渠の圃場の多くの場合で、暗渠流出水と同様に濃度が低下した。しかし、場所によっては濃度が低下しない場合があった。暗渠流出水の挙動と合わせて考えると、圃場全体としては濃度が低下する傾向にあるものの、その低下には場所による不均一性があると推定される。降雨時の鋤床上の酸化還元電位 E_H は、脱窒が生じるとされる 0.1~0.4 V の範囲にあった。

(3) 硝酸イオンの窒素・酸素安定同位体比

降雨イベントにおける硝酸イオン濃度の低下過程を検討するために、硝酸イオンの窒素・酸素安定同位体比を測定した。一般に、NO₃⁻が脱窒する際には、¹⁴N や ¹⁶O からなる軽い硝酸イオンの方が消費されやすい。その

ため、 ^{15}N や ^{18}O を含む硝酸イオンが多く残り、 NO_3^- は反応前より重くなる (δ が増加する) 傾向にある。土壌溶液中の硝酸イオンの $\delta^{15}\text{N}$ は $-0.7\sim 1.0\text{‰}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ は $1.5\sim 2.9\text{‰}$ の範囲にあった。いずれの圃場においても、流出の進行とともに、流出水および鋤床上停滞水中の $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{18}\text{O}$ は増加した。図 3 で示した降雨イベントでは、排水性の高い圃場 A については、慣行暗渠の圃場 D に比べて増加の程度は小さかった (図 4)。式 2 に従って、濃度の

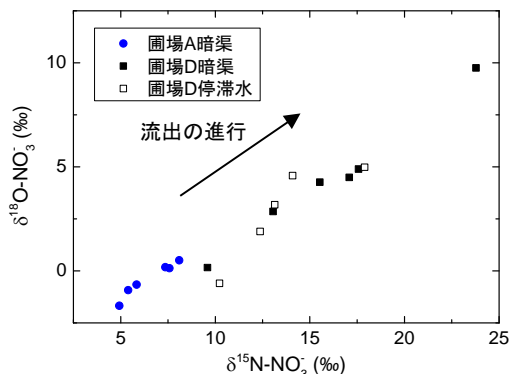


図 4 図 3 の降雨における試料水中硝酸イオンの窒素・酸素安定同位体比の変化
自然対数と $\delta^{15}\text{N}$ から求めた同位体濃縮係数 $^{15}\epsilon$ は、 $6.4\sim 11.2$ (平均 8.6) の範囲にあった。さらに、夏作期間における圃場 A~D の暗渠流出水および鋤床上停滞水について、降雨時における $\delta^{18}\text{O}$ に対する $\delta^{15}\text{N}$ の傾き ($^{18}\epsilon/^{15}\epsilon$) は平均すると約 0.5 であった (図 5)。慣行暗

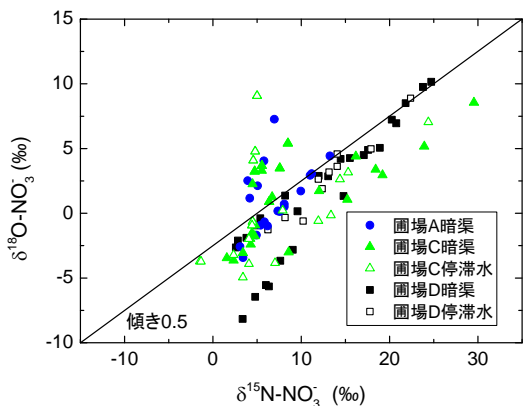


図 5 試料水中硝酸イオンの $\delta^{18}\text{O}$ に対する $\delta^{15}\text{N}$ の傾き ($^{18}\epsilon/^{15}\epsilon$)
渠圃場 C と D については、有機物施用の影響は判然としなかった。このことから、程度の差はあるが、いずれの圃場においても降雨イベント時に脱窒が優勢であることが明らかになった。ここで、排水性の高い圃場 A と慣行の圃場 D について、流出量を比較できる 4 降雨イベント (雨量合計 120.5 mm) について、窒素・酸素安定同位体比から脱窒の有無を判定し、硝酸イオン濃度と暗渠流出水量から降雨イベント中の硝酸イオン消失割合を推算すると、圃場 A では 5% であったのに対し、圃場 D では 24% に達し、排水性が脱窒量に影響を与えていることが明らかになるとともに、粘土質転換畑では、圃場の排水性を改善してもなお脱窒が発生し、流出量だけでは計

ることが出来ない土壌からの窒素の消失が生じていることが明らかになった。

窒素・酸素安定同位体比については、中島ら (2011) が、本研究の測定圃場のある北陸研究拠点で採取した水田土壌を用い、硝化抑制剤を併用した脱窒過程の培養実験を行い、 $^{18}\epsilon/^{15}\epsilon$ は約 1、 ^{15}N の同位体濃縮係数 $^{15}\epsilon$ は 18~22 であることを示した。本研究における $^{18}\epsilon/^{15}\epsilon$ は約 0.5、 $^{15}\epsilon$ は約 8.6 であり、いずれもこれに比べて小さかった。粘土質転換畑圃場の降雨流出過程における硝酸イオンの形態変化は脱窒が優勢であることは揺るぎないが、同位体比の異なる、 $\delta^{18}\text{O}$ の低い NO_3^- が混合した影響の可能性がある。ここで、降水中の NO_3^- の $\delta^{15}\text{N}$ は -0.5‰ 程度だが $\delta^{18}\text{O}$ は 70‰ 程度と高いため (三木ら, 2009), 混合したのは降水以外の $\delta^{18}\text{O}$ の低い NO_3^- であると考えられる。例えば、降雨中に作土中窒素が硝化したものや作土土塊内部から拡散したものが挙げられる。現時点では定量的な検討は困難だが、粘土質転換畑圃場での硝酸態窒素流出過程では、脱窒を主体に、硝化や拡散などが同時に進行している可能性がある。

なお、この安定同位体比を用いた解析については、脱窒菌の状態によっては正常な値が出ない、必ずしも同位体比だけで脱窒の寄与を定量出来ないなどの不十分な点もあるが、既存の水系・水域スケール、あるいは室内培養実験だけでなく、今回、圃場スケールにおける硝酸イオンの動態をある程度明らかに出来たことは、大きな進展と考えられる。

(4) 作土中窒素の形態と肥沃度との関連

測定を行った圃場 A, B, C のいずれについても、水抽出した作土中窒素は有機物施用や作目の違いによらず、有機態が最も多くを占めた (図 6)。経時的に作土を測定した圃場

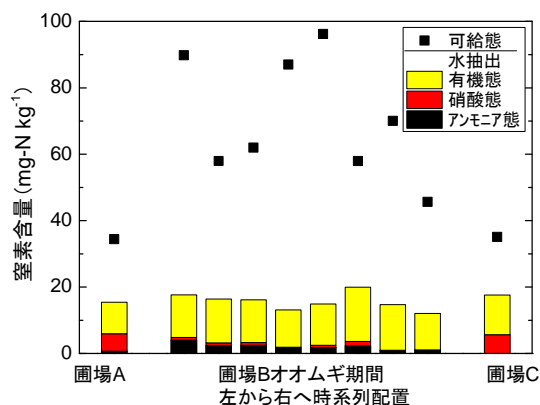


図 6 作土の水抽出形態別窒素および可給態窒素含量

B のオオムギ期間については、いずれの時期も水抽出窒素 (粒径 $< 0.2\ \mu\text{m}$, 平均 16 mg/kg) の 7~9 割 (平均 83%) が有機態で、可給態窒素の 1~3 割 (平均 20%) に相当した。水抽出有機態窒素は、播種から積雪期までの間に 7 割に減少した後、消雪までに播種時の含量程度まで回復し、その後、収穫までに再度 7 割に減少した。水抽出有機態窒素と有機物施用の関係は判然とせず、有機物無施用の圃

場 C で有機態が可給態の 34% を占めた。鈴木ら (2014) は、圃場 B における 2 年 3 作期間の全窒素および硝酸態窒素流出量を測定し、畑作期間に流出した全窒素のうち硝酸態の割合は 35% であった。残りは本研究で重要性を指摘した溶存有機態や懸濁態であると考えられる。さらに、作土から溶脱した硝酸イオンの数割は脱窒で失われることから、粘土質転換畑の作土では、測定されるより多くの窒素が失われていると考えられる。

土壌の直接測定では、土壌の量が膨大であるため、短期間では土壌中成分含量の変化として現れにくい。流出量、収支、メカニズムの点で捉えると、有機物管理、作目、排水性などに依らず、粘土質圃場の畑地化により窒素が消失しやすい状態にあり、これまで、明らかにされなかった、脱窒による消失や溶存有機態・懸濁態での窒素の流出がいずれも数割程度あり、窒素肥沃度の低下に影響を与えうることが明らかになった。今後は、粘土質転換畑圃場の持続的利用において、これまで着目されてこなかった粘土質圃場に特有の窒素流出特性を考慮した肥培管理による窒素肥沃度の維持が必要と考えられる。

<引用文献>

Casciotti K.L. *et al.* (2002): Measurement of the oxygen isotopic composition of nitrate in seawater and freshwater using the denitrifier method. *Anal. Chem.*, 74: 4905–4921.

細見 正明・須藤 隆一 (1983) : 懸濁物を含む試水中の窒素とリンの同時分解定量法. 用水と廃水, 25 : 675–680.

三木 健太郎ら (2009) : 松江における降水中硝酸イオンの窒素酸素安定同位体比の季節変化. 日本陸水学会講演要旨集, 74 : 171.

中島 泰弘ら (2011) : 窒素・酸素安定同位体自然存在比を用いた地下水中の硝酸イオンの起源推定と脱窒過程の評価. 平成 22 年度研究成果情報, 農業環境技術研究所 : 62–63.

小野寺 恒雄・藤森 新作 (2005) : 地下灌漑システム. 特許第 3671373 号.

Sigman D.M. *et al.* (2001): A bacterial method for the nitrogen isotopic analysis of nitrate in seawater and freshwater. *Anal. Chem.*, 73: 4145–4153.

住田 弘一ら (2005) : 田畑輪換の繰り返しや長期畑転換に伴う転作大豆の生産力低下と土壌肥沃度の変化. 東北農研研報, 103 : 39–52.

鈴木 克拓ら (2014) : 多雪重粘土地帯の地下水位制御システム圃場における不耕起 V 溝直播水稲–冬作大麦–大豆 2 年 3 作体系下での水・窒素・リン・懸濁物質の流出. 土壌の物理性, 127 : 19–29.

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 3 件)

① 鈴木 克拓, 中島 泰弘.
粘土質転換畑での降雨流出過程における硝酸イオン NO 同位体分別係数比.

日本土壌肥料学会.

2017.9.6 東北大学 (宮城県・仙台市)

② 鈴木 克拓, 中島 泰弘.

粘土質転換畑に特有な窒素の流出–脱窒による消失と溶存有機態での流出.

日本土壌肥料学会.

2016.9.21 佐賀大学 (佐賀県・佐賀市)

③ 鈴木 克拓, 中島 泰弘.

粘土質転換畑における急激な脱窒–硝酸イオンの窒素・酸素安定同位体比による検討.

日本土壌肥料学会.

2014.9.10 東京農工大学 (東京都・小金井市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鈴木 克拓 (SUZUKI, Katsuhiko)

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 水田利用研究領域・上級研究員

研究者番号 : 9 0 3 5 4 0 6 8

(2) 研究分担者

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・農業環境変動研究センター 物質循環研究領域・主任研究員

研究者番号 : 1 0 3 5 4 0 8 6