

短 報

チモシーを栽培したライシメーター地下排水からの
溶存 N_2O 排出澤本 卓治[†]・西田 拓生・松中 照夫

摘 要

農地に施用される肥料窒素の一部は、土壤表層における硝化あるいは脱窒により亜酸化窒素 (N_2O) となり大気に排出 (直接排出) される。これに対して、窒素溶脱により生成した N_2O が排水に過飽和で溶存し、これが地表水となった場合、二次的に大気に排出 (間接排出) される。バイオガスプラントでつくられた乳牛ふん尿のメタン発酵消化液を散布し、牧草のチモシーを栽培したライシメーター地下排水からの溶存 N_2O 排出を、秋の多雨期間 (2ヶ月間) に調査した。その結果、 N_2O 間接排出量と N_2O 直接排出量および硝酸イオン (NO_3^-) 溶脱量との間に正の有意な相関関係が認められた。今後、同様な調査を年間を通して実施する必要があるが、施用窒素が効果的に作物に吸収されるような肥培管理が NO_3^- 溶脱、さらに間接・直接 N_2O 排出を抑制するために重要であると示唆された。

キーワード：亜酸化窒素 (N_2O)、間接排出、硝酸イオン溶脱、メタン発酵消化液、ライシメーター

1. はじめに

家畜排泄物を環境負荷に配慮しながら処理し、再利用することは循環的農業を実現するための課題である。道央に位置する酪農学園大学 (以下、本学) においては、2000年3月に乳牛ふん尿を処理するためのバイオガスプラントが建設され、同年11月より本格的に稼動し、消化液が学内の農地に還元されている。バイオガスプラントでは乳牛ふん尿をメタン発酵させ、その過程で再生可能エネルギーを取得しながら、乳牛ふん尿を肥効性が高く、悪臭や病原性微生物の少ない消化液に変えている^{1~4)}。

化学肥料や有機質肥料で与えられた窒素のうち、アンモニウムイオン (NH_4^+) の一部はアンモニア (NH_3) 揮散として大気に排出される場合があるが、無機化 (有機態窒素が NH_4^+ に変化すること)、硝化 (NH_4^+ が硝酸イオン (NO_3^-) に変化すること)、脱窒 (NO_3^- が窒素ガス (N_2) まで変化すること) といった形態変化を受ける。無機態窒素 (NH_4^+ および NO_3^-) は作物に吸収されるが、 NO_3^- の一部は地下へ溶脱する。また、硝化と脱窒では、それぞ

れ副産物あるいは中間産物として亜酸化窒素ガス (N_2O) が発生し、大気に拡散する。 NH_3 は酸性雨、 NO_3^- は水質汚濁、 N_2O は温室効果に寄与する環境負荷物質である。

土壌-作物系の物質収支を検討する場合、ライシメーターが使用される場合がある。これは金属やコンクリート製の大きな容器であり、地中に埋設される場合が多い。この中に土壌を充填し作物を栽培する。底部からは排水が可能であり、肥料や収穫等の調査と同時に、排水量や水質を計測することで、物質収支を検討することができる。本学では、1基の面積が $3 \times 3 \text{ m}^2$ で深さ 1.7 m のライシメーターが 12基配列されたものが設置されている。

このライシメーターに本学のバイオガスプラントでつくられた消化液を散布、牧草のチモシー (*Phleum pratense* L.) を栽培し、消化液中の窒素の有効利用に関して3年間 (2000年10月から2004年4月) にわたる調査を実施した⁵⁾。結果の概要を表1に示す。消化液の施用時期と量の効果を検討するために、春と秋、標準量と多量を組み合わせた4処理を設けた。これに硫酸を北海道施肥標準に準拠

2009年6月4日受付, 2010年2月15日受理

酪農学園大学酪農学部, 〒069-8501 北海道江別市文京台緑町 582

[†] Corresponding author: sawataku@rakuno.ac.jp

した慣行法で施用する処理と無施用をあわせた6処理2反復で調査を行った。ライシメーターに流入する窒素として消化液と硫安の窒素量や大気からの窒素降下物に由来する窒素量も測定し、流出する窒素としてチモシーの吸収、 NH_3 揮散、 NO_3^- の溶脱、土壌表面から大気への N_2O 排出を測定した。その結果、春に標準量で消化液を施用することが、乾物生産に対する窒素利用効率を高め、窒素による環境負荷(NH_3 揮散、 NO_3^- 溶脱、 N_2O 排出)を低減させることを明らかにした。

ところで、表層土壌中の NO_3^- の一部は地下へ溶脱するが、この際、土壌表層で生成した N_2O の一部が土壌水に溶存し地下へ輸送されるとともに、溶脱した NO_3^- の一部が脱窒作用を受け、中間産物として N_2O が生成し土壌水(地下水)に溶存すると考えられる。この溶存はヘンリーの法則に従うが、この土壌水が暗渠排水、湧水、河川水等として排水され大気に解放されると、過飽和で溶存していた場合、溶存していた N_2O は脱ガスにより大気に排出される。これを、施肥窒素から発生する N_2O の「間接排出 (Indirect emission)」と呼んでいる。これに対し、施用窒素の硝化と脱窒により土壌表面から大気に放出される N_2O は「直接排出 (Direct emission)」と呼ばれる。

著者らは現地調査や既往事例のレビューを行い、物質収支、あるいは直接排出と比較して、無視できない量の N_2O が間接排出されている実態を明らか

にしてきた^{6~8)}。また、排出係数(N_2O 間接排出量/窒素溶脱量)を提示し、温室効果ガス排出インベントリ作成のIPCCガイドラインに採用された⁹⁾。しかしながら、既往の事例は依然として少なく、土壌水・地下水の経路は複雑であるため、現地調査の積み重ねが必要である⁸⁾。そのため、3年間にわたるライシメーター試験のように窒素収支が明らかとなっているような事例において、窒素収支と比較しながら、排水からの N_2O 間接排出を調査することには意義がある。

表1に示されているように窒素による環境負荷の主体は NO_3^- 溶脱であり、それは消化液を春に標準量で施用した場合に最も低かった。そのため、ひとつの仮説として、同処理で N_2O 間接排出が最も低い、といったことが考えられる。3年間にわたる調査の最終年において、降水量の多い9~10月の2ヶ月間であるが、ライシメーター地下排水からの溶存 N_2O 排出の計測を行った。本論文では上記仮説の検証ならびに得られた知見を報告する。

2. 材料と方法

ライシメーター試験の概要については前述した(表1)。溶存 N_2O 濃度の測定は2003年9~10月の2ヶ月間に行った。なお、本調査期間には施肥は行われなかった。塩ビ管を組み合わせて凹んだ配管を作成し、その底部に穴を開け採取用針を刺すことができるシリコンセプタムをはめ込んだ。これを排

表1 チモシーを栽培したライシメーター試験における3年間の窒素収支 ($\text{g N m}^{-2} \text{ 3yrs}^{-1}$)

処理区名	無施用 (Ctrl)	消秋標 (SA)	消春標 (SS)	消秋多 (HA)	消春多 (HS)	化肥 (MF)
施用資材	なし	消化液	消化液	消化液	消化液	硫安
施用時期	-	秋 (10月下旬)	春 (4月下旬)	秋 (10月下旬)	春 (4月下旬)	#2
施用量	-	標準	標準	多量	多量	#2
窒素流入 ^{#1}						
$\text{NH}_4^+\text{-N}$	10.4	42.4	42.4	74.4	74.4	58.4
org-N	0.0	36.0	30.0	74.0	59.0	0.0
Total-N	10.4	78.4	72.4	148.4	133.4	58.4
窒素流出						
吸収	37.0	49.3	55.4	61.1	67.5	67.6
NO_3^- 溶脱	15.4	22.8	17.1	31.4	28.5	18.9
NH_3 揮散	0.0	8.9	8.2	18.7	15.6	0.0
N_2O 排出	0.2	0.3	0.2	0.3	0.3	0.3
正味の窒素効率						
乾物生産 ^{#3}	-	24.1	31.6	19.3	24.1	31.4
環境流出 ^{#4}	-	25.9	15.8	37.7	26.3	3.7

Matsunaka et al. (2006) を改変した。数値は2反復の平均値である。

#1 造成時の施肥と窒素降下物が含まれている。

#2 融雪後(4月下旬)に 11 g N m^{-2} 、一番草収穫後(6月下旬)に 5 g N m^{-2} で分施。

#3 乾物生産に対する正味の窒素効率。単位は $\text{g DW} [\text{g N}]^{-1}$ 。

#4 単位乾物生産あたりの環境への窒素流出。単位は $\text{mg N} [\text{g DW}]^{-1}$ 。

水口に接続し、流水時のみシリンジと注射針を用いて排水を採取することとした。以上により、脱ガスで溶存 N₂O 濃度が低下する前の排水を採取することが可能となった。

内容積約 30 mL のバイアルビン（ブチルゴム栓）にあらかじめ窒素ガスを充填した。針を接続したシリンジで排水を 2 mL 採取し、直ちにバイアルビンに注入した。ヘッドスペース気体の N₂O 濃度を ECD 付ガスクロマトグラフで分析し、溶存 N₂O ガス濃度を計算した。実験室内の温度はおおむね 20℃ 前後であったので、同温度下で 1 atm の N₂O と純水が平衡状態にあるとき、その N₂O は純水に 0.79 g N₂O-N L⁻¹ で溶存する¹⁰⁾ ことを用いた。なお、清浄な大気中の N₂O 濃度は約 310 ppb であるので、大気平衡濃度は 0.25 μg N₂O-N L⁻¹ である。これより高濃度は過飽和で溶存していることとなる。溶存 N₂O 濃度の測定は 12 回実施し、同時に pH、電気伝導度 (EC)、NO₃⁻ 濃度を測定した。

ライシメーター底部の排水タンクで適時排水量を計測し、積算排水量の推移を得た。この推移と溶存 N₂O 濃度測定間隔を考慮し、排水量と濃度の積を合計することで、溶存 N₂O 排出量および NO₃⁻ 溶脱量の積算値を求めた。

土壌表面から大気への N₂O フラックスは、チャンバー法を用いて測定した^{5, 11)}。9～10月の測定回数は 39 回であった。深さ 5cm の地温、ならびに深さ 30 cm と 90 cm の土壌水分マトリックポテンシャルをテンシオメータ法¹²⁾ で測定した。

3. 結果および考察

図 1 に日降水量、地温、積算降水量、積算排水量、土壌水分の推移を示す。9～10月の降水量は 309 mm であった。地温は 10 月下旬に約 10℃ まで低下した。降水後に土壌水分マトリックポテンシャルが上昇、すなわち、土壌水分が上昇した。降水とともに積算排水量も増加した。調査期間におけるライシメーター 12 基の積算排水量は 155～240 mm（平均 188）、pH と EC の排水量加重平均値はそれぞれ 5.9 から 6.1（平均 6.0）、0.25～0.37 mS cm⁻¹（平均 0.31）であった。一元分散分析の結果、これらの値に処理区による有意性は認められなかった。

図 2 に土壌表面から大気への N₂O フラックス、排水中の NO₃⁻ 濃度、および溶存 N₂O 濃度の推移を示す。土壌表面から大気への N₂O フラックスは -0.5～64 μg N₂O-N m⁻² h⁻¹ の範囲を示し、バラツキは大きいものの降水量が多かった 9 月下旬から 10

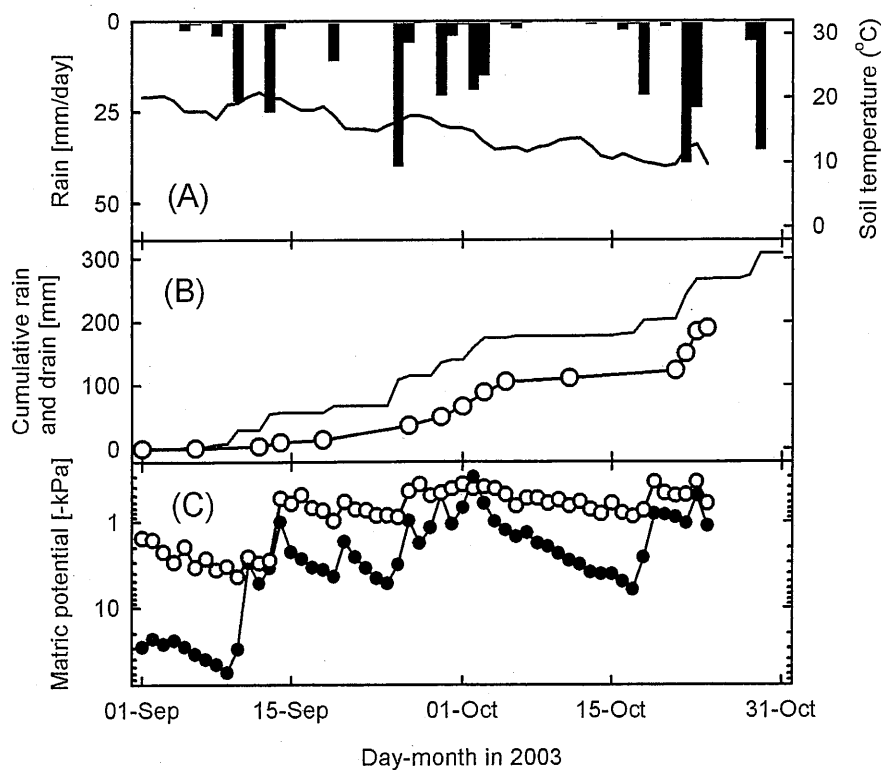


図 1 測定期間における (A) 日降水量 (棒) と地温 (線), (B) 積算降水量 (線) と積算排水量 (○と線: ○は排水タンク計測日を示す), および (C) 土壌水分 (●は 30cm 深, ○は 90cm 深) の推移。(A) の降水以外は、ライシメーター「消春多」の推移を示す。

月下旬にかけて、9月上旬よりも高い傾向を示した。Kusa et al. (2002)¹³⁾は本調査地と同じ道央地域の野菜畑において本結果と同様に夏から秋にかけてフラックスが上昇する結果を示しており、それは脱窒過程による N_2O の発生と推察している。本結果においても土壌水分が高まっており、施肥から時間が経っていることから N_2O フラックスの上昇は脱窒によりもたらされたものと思われる。

地下排水中の NO_3^- 濃度は、 $0.4 \sim 25 \text{ mg } NO_3^- \text{ N L}^{-1}$ の範囲を示し、同じ排水内で大きな時間変動が認められた。Hayashi & Hatano (1999)¹⁴⁾に示されているようなバイパス流による効果があったと思われる。10月下旬にむけて濃度が上昇しているようにもみえるが、これはチモシーの窒素吸収が緩慢となったうえに降水による排水が増大し、 NO_3^- 溶脱を増加させた可能性がある。

排水中の溶存 N_2O 濃度は $3.7 \sim 123 \mu\text{g } N_2O \text{ N L}^{-1}$ を示し、大気平衡濃度の $15 \sim 495$ 倍の過飽和であった。すなわち、このような排水が暗渠排水等で大気開放されると脱ガスにより N_2O が排出されると考えられる。濃度は10月上旬までに大きく上昇、その後低下する推移を示した。これは土壌水分の上昇とよく一致していたため、溶存 N_2O 濃度の上昇は、

NO_3^- 溶脱が生じている環境下で脱窒過程で生成した N_2O によるものと推定される。

NO_3^- 溶脱量、直接 N_2O 排出量、および間接 N_2O 排出量のそれぞれについて、一元分散分析の結果、処理による有意性は認められなかった。よって、消化液を春に標準量で施用した場合に最も低くなるといった仮説は認められなかったといえる。これは、測定期間が短いことが一因と考えられる。Minamikawa et al. (2010)¹⁵⁾のライシメーター試験のように年間を通した検討が望まれる。特に本地域では融雪期の排水が重要であると思われる。しかしながら、興味深いことに、三者の間には正の有意な相関関係が認められた(図3)。これは、 NO_3^- 溶脱が低いと土壌表面からの直接 N_2O 排出および地下水からの間接 N_2O 排出の両方が抑制される可能性があることを意味している。Matsunaka et al. (2006)⁵⁾の結果と併せて考えると、施用した窒素が効果的に作物に吸収されるような肥培管理が NO_3^- 溶脱、さらに直接・間接 N_2O 排出を抑制するために重要であると示唆される。

なお、「間接 N_2O -N排出量/直接 N_2O -N排出量」および「間接 N_2O -N排出量/ NO_3^- -N溶脱量」はそれぞれ、 $0.33 \sim 0.94$ (平均0.55) および 0.0035

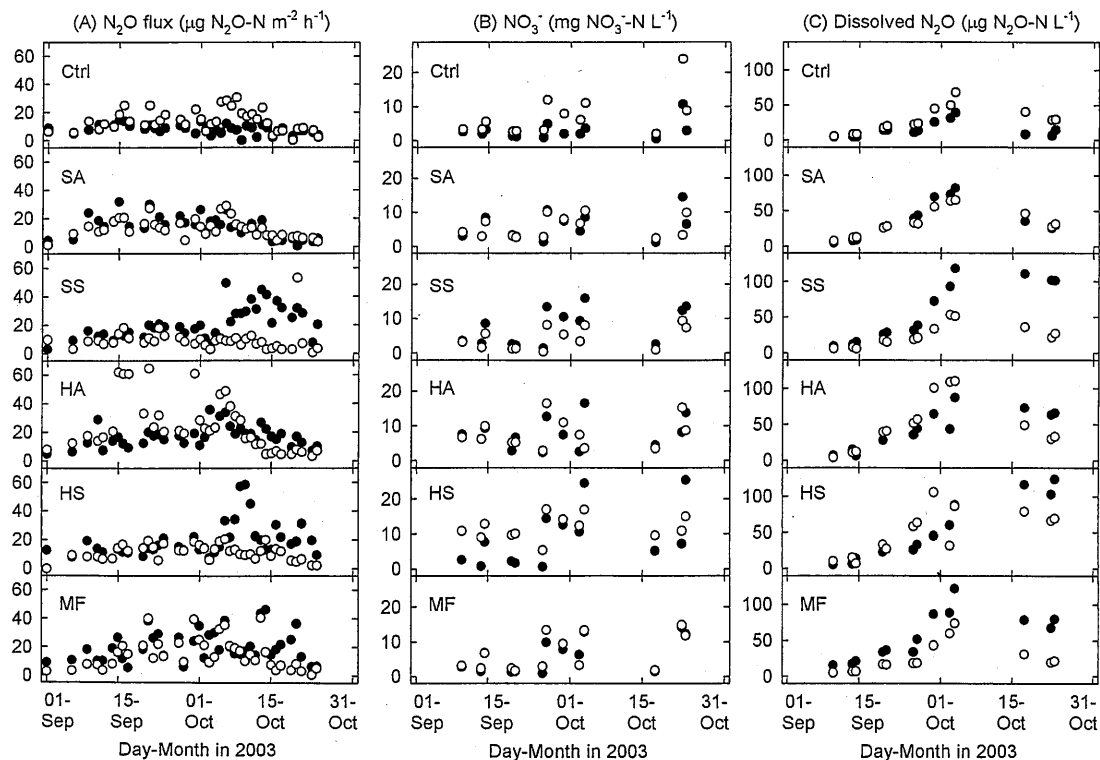


図2 測定期間における(A) 土壌表面から大気への N_2O フラックス、(B) 排水の NO_3^- 濃度、および(C) 排水の溶存 N_2O 濃度の推移。各処理で●と○はふたつのライシメーターを示す。Ctrlは「無施用」、SAは「消秋標」、SSは「消春標」、HAは「消秋多」、HSは「消春多」、MFは「化肥」を示す(表1参照)。

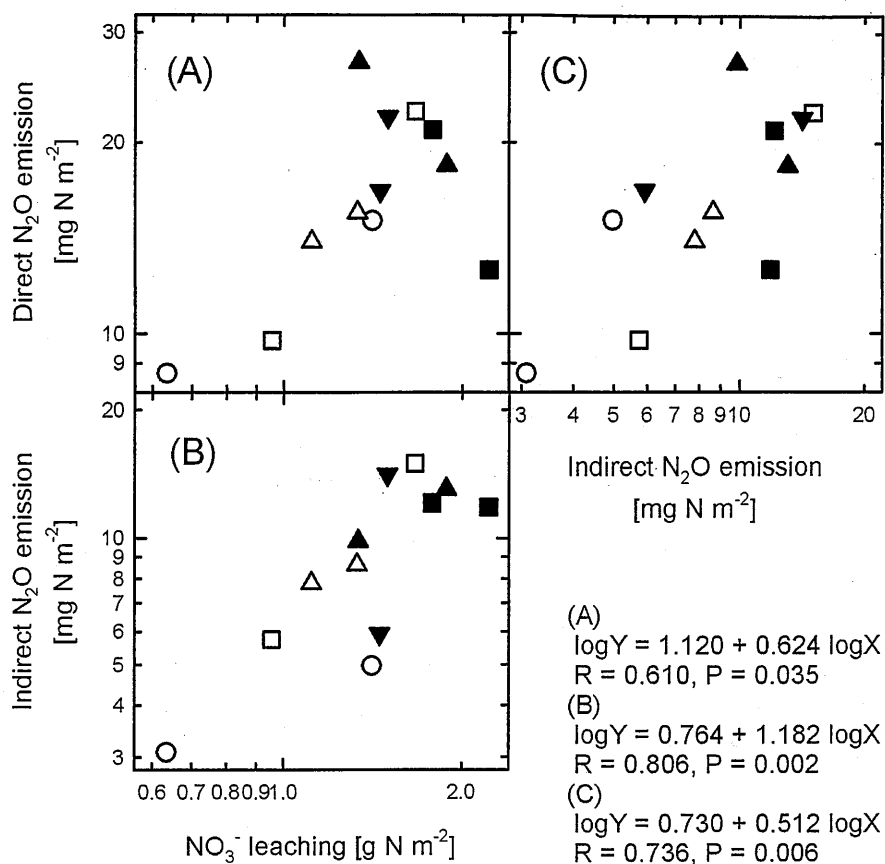


図3 測定期間における積算排出量の関係。(A) NO₃⁻溶脱量と直接 N₂O 排出量の関係、(B) NO₃⁻溶脱量と間接 N₂O 排出量の関係、(C) 間接 N₂O 排出量と直接 N₂O 排出量の関係。○は「無施用」、□は「消春標」、■は「消春多」、△は「消秋標」、▲は「消秋多」、▼は「化肥」を示す(表1参照)。

～0.0094 (平均 0.0064) であり、一元分散分析の結果、処理の有意性は認められなかった。後者の「間接 N₂O-N 排出量 / NO₃⁻-N 溶脱量」は IPCC ガイドライン⁹⁾の排出係数デフォルト値 0.0025 と同オーダーにあった。前者の「間接 N₂O-N 排出量 / 直接 N₂O-N 排出量」は直接排出と比べ間接排出も無視できない可能性を示しており、この値は、Minamikawa et al. (2010)¹⁵⁾のライシメーター試験と同程度であった。

文 献

- 1) Clemens, J., M. Trimborn, P. Weiland and B. Amon (2006) Mitigation of greenhouse gas emissions by anaerobic digestion of cattle slurry. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 112, 171-177.
- 2) 松田従三 (2002) バイオガスシステムの基本的考え方, 酪農ジャーナル臨時増刊号 バイオガスシステムによる家畜ふん尿の有効利用, 酪農学園大学エクステンションセンター出版物, 8-14.
- 3) Pain, B.F., T.H. Misselbrook, C.R. Clarkson and Y.J. Rees (1990) Odour and ammonia emissions following the spreading of anaerobically-digested pig slurry on grassland. *Biological Wastes*, 34, 259-267.
- 4) Saxena, K.K., K. Nath and S.K. Srivastava (1989) The effect of using dung from cattle fed high-, low- or no-concentrate rations, on the quality and nutritive value of slurry from a biogas plant. *Biological Wastes*, 28, 73-79.
- 5) Matsunaka, T., T. Sawamoto, H. Ishimura, K. Takakura and A. Takekawa (2006) Efficient use of digested cattle slurry from biogas plant with respect to nitrogen recycling in grassland. *International Congress Series*, 1293, 242-252.
- 6) Sawamoto, T., K. Kusa, R. Hu and R. Hatano (2002) Dissolved N₂O, CH₄, and CO₂ in pipe drainage, seepage, and stream water on a livestock farm in Hokkaido, Japan. *Soil Science and Plant Nutrition*, 48, 433-439.
- 7) Sawamoto, T., K. Kusa, R. Hu and R. Hatano (2003) Dissolved N₂O, CH₄ and CO₂ emissions from subsurface-drainage in a structured clay soil

- cultivated with onion in Central Hokkaido, Japan. *Soil Science and Plant Nutrition*, 49, 31-38.
- 8) Sawamoto, T., Y. Nakajima, M. Kasuya, H. Tsuruta and K. Yagi (2005) Evaluation of emission factors for indirect N_2O emission due to nitrogen leaching in agro-ecosystems. *Geophysical Research Letters*, 32, L03403.
 - 9) IPCC (2006) Chapter 11: N_2O emissions from managed soils, and CO_2 emissions from lime and urea application. In Eggleston H.S., L. Buendia, K. Miwa, T. Ngara, K. Takabe (ed.), Volume 4: Agriculture, Forestry and Other Land Use; 2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories. IGES, 11.1-11.54.
 - 10) 日本化学会(編)(1984)化学便覧(改訂3版), 丸善, II-158.
 - 11) 八木一行(1997) III.8 温室効果ガス発生・吸収量, 土壤環境分析法, 土壤環境分析法編集委員会編, 博友社, 129-138.
 - 12) 谷山一郎(1997) II.9-E テンシオメータ法, 土壤環境分析法, 土壤環境分析法編集委員会編, 博友社, 59-62 pp.
 - 13) Kusa, K., T. Sawamoto and R. Hatano (2002) Nitrous oxide emissions for six years from a Gray Lowland Soil cultivated with onions in Hokkaido, Japan. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 63, 239-247.
 - 14) Hayashi, Y. and R. Hatano (1999) Annual nitrogen leaching to subsurface drainage water from a clayey aquic soil cultivated with onions in Hokkaido, Japan. *Soil Science and Plant Nutrition*, 45, 451-459.
 - 15) Minamikawa, K., S. Nishimura, T. Sawamoto, Y. Nakajima and K. Yagi (2010) Annual emissions of dissolved CO_2 , CH_4 , and N_2O in the subsurface drainage from three cropping systems. *Global Change Biology*, 16, 796-809.

Dissolved N₂O Emission through Drainage Water from Timothy (*Phleum pratense* L.) Sward in a Lysimeter Experiment

Takuji SAWAMOTO, Takuo NISHIDA and Teruo MATSUNAKA
(Rakuno Gakuen University
582 Bunkyou-dai-Midorimachi, Ebetsu, Hokkaido 069-8501, Japan)

Abstract

Some parts of nitrogen applied to arable land are directly emitted to the atmosphere as nitrous oxide (N₂O) gas, which is produced by nitrification and denitrification processes in the topsoil (direct N₂O emission). In addition, super-saturated dissolved N₂O in drainage water, originated from nitrogen leaching, is secondary emitted after discharging to the ground water (indirect N₂O emission). During pluvial autumn (two months), we measured N₂O emission through drainage water from timothy sward in a lysimeter experiment, where anaerobically digested cattle slurry had been applied. The amount of indirect N₂O emission was significantly related to that of direct N₂O emission and nitrogen leaching. It was suggested that management producing high nitrogen uptake by crop will suppress both indirect and direct N₂O emission as well as nitrate leaching from arable land, although the experiment through a whole year is required.

Key Words: Indirect emission, lysimeter, nitrate leaching, nitrous oxide (N₂O), slurry