

(平成26年7月)

目 次

窒素を多量施用した農地からの環境負荷窒素化合物の放出に関する研究

－施肥量の多い畑地からの一酸化二窒素発生と牛ふん堆肥を多量施用した飼料イネ栽培水田
からの窒素の浸透流出－

…………… 草 佳那子

1-65

**BULLETIN OF THE
NARO AGRICULTURAL RESEARCH CENTER
No. 22**

July 2014

CONTENTS

Kanako Kusa

Nitrogen Compounds Emission from Agricultural Lands
with Heavy Application of Nitrogen Fertilizer

– Nitrous Oxide Emission from Upland Fields and Leaching of Nitrogen from
Forage Rice Paddies with Heavy Application of Cattle Manure – 1 – 65

窒素を多量施用した農地からの 環境負荷窒素化合物の放出に関する研究 －施肥量の多い畑地からの一酸化二窒素発生と牛ふん堆肥を 多量施用した飼料イネ栽培水田からの窒素の浸透流出－

草 佳那子

目 次

I はじめに.....	2	5. 結論.....	33
II 方法.....	3	VI 土壌構造が土壌中の一酸化二窒素の生成放 出に与える影響の検討.....	34
1. 調査地概要.....	3	1. はじめに.....	34
2. 土壌の物理性等の測定.....	4	2. 材料と方法.....	34
3. ガスフラックスの測定.....	6	3. 結果.....	35
III 土壌構造が発達した灰色低地土からの一酸 化二窒素および一酸化窒素放出量の推定お よび放出要因の解明.....	7	4. 考察.....	43
1. はじめに.....	7	5. 結論.....	45
2. 材料と方法.....	8	VII 牛ふん堆肥の多量施用が飼料用イネ栽培水 田からの窒素浸透流出に与える影響.....	46
3. 結果.....	8	1. はじめに.....	46
4. 考察.....	16	2. 材料と方法.....	46
5. 結論.....	18	3. 結果および考察.....	47
IV 黒ボク土からの一酸化二窒素および一酸化 窒素放出量の推定および放出要因の解明.....	18	4. 要約.....	49
1. はじめに.....	18	VIII 総合考察.....	50
2. 材料と方法.....	19	1. 土壌の違いが土壌から大気への一酸化二 窒素放出に与える影響.....	50
3. 結果.....	19	2. 土壌から放出される一酸化二窒素の起源.....	50
4. 考察.....	26	3. 既往の研究事例と本調査地における一酸 化二窒素および一酸化窒素放出の比較.....	51
5. 結論.....	28	4. 農地由来の環境負荷に対する施肥の影響.....	53
V チャンバー法と拡散法で求めた土壌から大 気へのガスフラックスの比較.....	28	5. 結論.....	54
1. はじめに.....	28	IX 摘要.....	54
2. 材料と方法.....	29	謝辞.....	56
3. 結果.....	29	引用文献.....	56
4. 考察.....	32	Summary.....	63

I はじめに

20世紀における世界的な農産物増産の要因として、品種改良、生産技術の向上および灌漑面積の増加等があるが、このうち窒素肥料投入の影響は非常に大きい。窒素施肥量の増加に伴い、単位面積当りの収量は飛躍的に向上した。一方で、農地では施肥窒素に由来する一酸化二窒素 (N_2O) や一酸化窒素 (NO) といったガス態の窒素化合物の発生量の増加や硝酸態窒素等の流出に伴う地下水・河川・湖沼などの水質汚染等の様々な環境問題が浮上してきている⁽¹¹⁴⁾。

N_2O は二酸化炭素 (CO_2) と同様の温室効果ガスの一種であり、近年の大型台風、ハリケーン、集中豪雨、熱波、寒波および干ばつといった気象災害との関係に関心が高まっている地球温暖化問題に関与している⁽⁶¹⁾。気候変動に関する政府間パネル (IPCC: Intergovernmental Panel on Climate Change) 第一作業部会第10回会合において受諾された IPCC 第4次評価報告書によると、最近12年 (1995-2006) のうちの11年は1850年以降の最も温暖な12年の中に入り、過去100年の温度上昇は 0.74°C (1906-2005年) だった。これは、第3次報告書で示された 0.6°C (1901-2000年) に比べて大きく、雪氷の広範囲な融解や世界平均海面水位上昇も観測されていることから、地球の気候システムに温暖化が起こっていることが認められた⁽⁵⁴⁾。日本においても、真夏日や熱帯夜の日数が各地で記録更新され、紅葉の遅れやナガサキアゲハの生育地域が北上するなど、温暖化の影響が現れてきている⁽⁶¹⁾。化石燃料を重視した高成長型社会を想定したシナリオでは、最悪の場合2100年には 4.0°C ($2.4\text{--}6.4^\circ\text{C}$) 気温が上昇し、 $0.26\text{--}0.59\text{ m}$ 海面が上昇するが、高効率技術の普及と環境負荷の低減による持続的発展型社会を想定した場合の気温および海面の上昇は 1.8°C ($1.1\text{--}2.9^\circ\text{C}$) および $0.18\text{--}0.38\text{ m}$ と予測されており、人間の行動と社会のあり方によって地球温暖化の程度は大きく変わるため、早急に対策を取る必要がある⁽⁵⁴⁾。

太陽からの日射をうけた地球が放射した熱を大気に含まれる CO_2 を主体とする温室効果ガスが吸収し地表に再放射することで、地球は 15°C 程度の平均気温を維持し、生物が生存できる環境を保ってお

り、本来温室効果ガスは必要なものである。しかし、産業革命以降の化石燃料の使用、農業および土地利用の変化といった人間活動に由来する温室効果ガス排出量の増加により、大気中の温室効果ガスが増え続けており、これが地球温暖化の原因となっている^(54, 61, 85)。 N_2O に注目すると、大気中濃度は産業革命以前では 270 ppb 程度であったが、20世紀後半からの森林伐採や化学肥料の使用量の増加に伴う急激な濃度上昇により、2005年には 319 ppb まで上昇したと報告されている^(54, 68, 105)。 N_2O の大気中での寿命と地球温暖化係数 (GWP: Global Warming Potential) は約120年および296といわれており、同じ温室効果ガスであるメタン (CH_4) は寿命が10年程度で、GWPが23であることと比べると、大気中での存在量の増加が少量であっても温暖化への寄与は高く、その影響は長期間に及ぶ⁽¹⁰⁵⁾。さらに、 N_2O は成層圏オゾン (O_3) を消滅させるラジカルを供給するため、大気中の N_2O 濃度の上昇は成層圏 O_3 の減少も引き起こす。このため、大気中の N_2O 濃度上昇による地球温暖化とオゾン層の破壊が懸念される^(53, 140)。

全 N_2O 放出量 17.7 Tg-N yr^{-1} ($6.7\text{--}36.6\text{ Tg-N yr}^{-1}$) のうち、土壌由来の N_2O 放出量は 10.2 Tg-N yr^{-1} ($3.9\text{--}24.5\text{ Tg-N yr}^{-1}$) と土壌は N_2O の主な放出源であるが、その中でも農地由来の放出量は 4.2 Tg-N yr^{-1} ($0.6\text{--}14.8\text{ Tg-N yr}^{-1}$) と全放出量約4分の1を占め⁽¹⁰⁵⁾、IPCC 第4次評価報告書では N_2O の濃度上昇の最大要因は農業であり、農耕地への施肥の影響が大きいとも指摘されている^(9, 54)。従って、施肥された農耕地からの N_2O 放出量を正確に把握することは、地球温暖化問題解決のために重要である。しかしながら、 N_2O 放出は時間的・空間的変動が非常に大きいため N_2O 放出量の推定が難しく、前述のように推定値の幅が非常に大きい⁽¹⁰⁵⁾。土壌から大気への N_2O 放出を低減するためには、 N_2O 放出量の実測値を更に積み上げて推定値の精度を上げるとともに、放出要因の解明を進める必要がある。

また、 NO は土壌微生物の硝化および脱窒過程で N_2O とともに生成され土壌から大気へ放出される。 NO は NO_x の主成分であり、対流圏 O_3 の前駆物質として地球温暖化に、大気由来の窒素沈着の原因物

質として酸性雨に関与している^(17, 37, 51)。大気へ放出されるNO_xの約80%は人為起源で、化石燃料の燃焼が主な放出源であるが、土壌由来の推定NO放出量21 Tg-N yr⁻¹は、化石燃料由来のNO放出量に匹敵し、土壌由来NO放出量の20%以上を占める農耕地は主要なNO放出源かつNO放出量の増加原因でもある^(17, 19, 131)。NO放出量を抑制するために土壌からのNO放出についての研究が必要であるの言うまでもないが、土壌中では硝化と脱窒両方から生成されるN₂Oと主に硝化で生成されるNOを同時に調査することで^(15, 78, 118)、硝化と脱窒のどちらが活発化しているかを推定でき、N₂O放出要因の解明に役立てることができる。

近年、我が国では、食料自給率を向上させるため水田での飼料用イネの作付けが奨励されている⁽⁹⁷⁾。飼料用イネ栽培では耕種農家と畜産農家の関係が密接となり、牛ふん堆肥が水田に施用される事例が増えている⁽⁹⁸⁾。水田への牛ふん堆肥散布量は様々であり、畜産農家が管理する水田には多量の牛ふん堆肥が施用されている事例もある。牛ふん堆肥の多量施用は水田への窒素施肥量の増大につながるため、その結果として浸透水を經由した窒素流出が増大することが懸念される。また、土壌からの施肥由来窒素の溶脱はN₂Oの間接放出の原因とされており⁽¹⁰⁴⁾、水田からの窒素流出量の増加はN₂Oの間接放出量の増加につながる可能性もある。

そこで本研究では、施肥量の多い畑地からのN₂Oフラックスの季節推移やN₂O放出量に対する気候および土壌条件（水分、養分、構造）の影響解明とN₂Oの年間放出量を推定するために、土壌構造の異なる灰色低地土タマネギ畑と黒ボク土飼料用トウモロコシ畑の二つの畑地の主に4-11月の作物栽培期間において、土壌から大気へのN₂Oフラックスおよび土壌中のN₂O濃度とこれらに関係する

土壌水分等の要因を3または6年間調査した。さらに、微生物活動の指標となるCO₂や土壌微生物による硝化および脱窒過程でN₂Oとともに生成されるNOについても調査を行った。また、牛ふん堆肥を多量施用した飼料用イネ栽培水田からの窒素流出量を明らかにするために、小型ライシメータを用いて牛ふん堆肥、雨水および灌漑水からの水田への窒素供給と飼料用イネによる窒素吸収および浸透水經由での窒素流出量を4年間調査した。

本論文では、IIでN₂Oフラックスの調査に関する方法を述べる。IIIとIVは土壌の異なる二つの畑地（灰色低地土と黒ボク土）においてN₂Oフラックスの季節推移、作物栽培期間のN₂O放出量およびN₂Oの生成・放出に関連する要因を土壌ごとに解析する。また、土壌から大気へのN₂O放出に対する土壌の影響を明らかにするためには、土壌中のN₂O濃度やフラックスを把握する必要がある。そこでVでは、土壌中のガス移動の測定に使用される拡散法と、土壌から大気へのガスフラックスの測定に使用されるチャンバー法で測定した土壌から大気へのN₂Oフラックスを比較し、拡散法の有効性について検討する。VIでは、IIIおよびIVで個別検討した粗孔隙の発達程度が異なる灰色低地土と黒ボク土において、土壌中のN₂O濃度やチャンバー法と拡散法を用いて測定したN₂Oフラックスを比較し、土壌中におけるN₂Oの生成・移動への土壌構造の影響を検討する。VIIでは牛ふん堆肥多量施用が水田からの窒素流出量に及ぼす影響について検討する。

VIIIでは、以上の結果から、農地からのN₂O放出に影響を与える要因を総合的に検討するとともに、農地由来の環境負荷に対する施肥の影響を考察する。IXでは本論文の要旨を述べる。

なお、本論文は著者が北海道大学に提出した学位論文を加筆修正したものである。

II 方法

1. 調査地概要

調査地は、北海道中央部に位置する三笠市の約20000 m² (2 ha)のタマネギ畑(43° 14' N, 141° 50' E)と札幌市の北海道農業研究センター内の約18000 m² (1.8 ha)のトウモロコシ畑(43° 00' N, 141° 24' E)

である。三笠市のタマネギ畑は腐植質灰色低地土⁽⁹³⁾、札幌市のトウモロコシ畑は恵庭火山灰由来の多湿黒ボク土⁽⁵⁹⁾である。灰色低地土では1995-2000年、黒ボク土では1998-2000年において4-10または11月の無積雪期に週一回程度調査を行った。

灰色低地土では午後2時前後、黒ボク土では午前11時前後に調査を行った。また、灰色低地土は1999および2000年、黒ボク土は2000年の積雪期(1-3月)に月1回程度調査を行った。

1) 灰色低地土タマネギ畑

灰色低地土は平坦地の水田転換畑で深さ0.8-1.0 mに12 m間隔で暗渠管が埋設され、地下水位は一年を通して深さ0.7-0.8 mに存在していた。深さ0.48 mまでの土性はSiCであり、割れ目状粗孔隙が確認されている。飽和透水係数は、深さ0.28 mまででは $1.0 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1}$ と低い、それ以下の深さでは粗孔隙が存在するため $1.8 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1}$ より高かった⁽⁴²⁾。この地域の年平均気温は7.4℃、年間降水量は1155 mmであり、このうち12月から3月の降雪期の降水量は370 mmである(岩見沢測候所1971-2000年の平年値)⁽⁶⁴⁾。灰色低地土では4月下旬に化学肥料が約30 g-N m⁻²施用された。タマネギは5月初めに定植され(約31個 m⁻²)、9月上旬に根切りおよび9月下旬に収穫された。収穫後は石灰が散布された。土壌の理化学性を表1, 2に示した。

2) 黒ボク土トウモロコシ畑

黒ボク土では、深さ0.35 mまでの土性はCL (rich in humus)であった。また、地下約1.3 mに難透水層があり、大量降雨時および春の融雪時には地下水位は地表近くまで上昇した。深さ0.35 mおよび0.35-0.5 mまでの飽和透水係数は、それぞれ $5.63 \times$

10^{-7} m s^{-1} および $9.67 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ であった⁽⁵⁹⁾。この地域の年平均気温は8.5℃、年間降水量の平年値は1128 mmであり、このうち12月から3月の降雪期の降水量は391 mmである(札幌管区気象台1971-2000年の平年値)⁽⁶⁴⁾。黒ボク土では5月中旬に全面に牛ふん堆肥(窒素量として3.0 g-N m⁻²)が施用された後畝立され、化学肥料(窒素成分は硫酸アンモニウム+磷酸アンモニウム+尿素)13 g-N m⁻²(内アンモニア態窒素10 g-N m⁻²)が株間に側条施肥された。この圃場の畝幅は0.75 m、畝間は0.25 mだった(図1)。飼料用トウモロコシの播種は5月中旬、9月下旬には収穫がおこなわれた。トウモロコシの栽植密度は6.5株 m⁻²であった。土壌の理化学性を表1, 2に示した。黒ボク土では深度別の土壌空気の採取および経時的な土壌水分吸引圧の測定は株間のみ、その他の項目は株間と畝間に分けて調査を行った。

2. 土壌の物理性等の測定

1) 土壌の物理性の測定

ガスフラックスの測定時に、チャンバー設置場所付近の深さ0.05および0.1 mの地温をデジタル温度計で測定した。100 mLのステンレス製円筒管を用いて、深さ0-0.05および0.05-0.1 mの不攪乱土壌を3つずつ採取した。黒ボク土の畝間は深さ0-0.05 mのみ不攪乱土壌を採取した。採取試料の三相分布を測定し、土壌水分の指標となるWFPSを以下の式より求めた⁽²²⁾。

表1 灰色低地土と黒ボク土の土壌の物理性

層位	深さ (m)	土性	構造		種類	飽和透水係数 (m s ⁻¹)
			発達程度	大きさ		
灰色低地土						
Ap	0-0.28	SiC	強度	中	亜角塊状	1.0×10^{-7}
B	0.28-0.48	SiC	中度	中	亜角塊状	1.8×10^{-6}
C1	0.48-0.68	HC	中度	大	亜角塊状	4.6×10^{-6}
C2	0.68-1.0+	SiC	-	-	壁状	2.2×10^{-4}
黒ボク土						
Ap	0-0.3	CL	弱度	-	粒状 亜角塊状	3.3×10^{-6}
AB	0.3-0.37	LiC	中度	中	亜角塊状	2.2×10^{-5}
B	0.37-0.47	LiC	中度	中	亜角塊状	2.3×10^{-5}
BC1	0.47-0.75	CL	弱度	大	亜角塊状	4.3×10^{-5}
BC2	0.75-0.9	LiC	弱度	大	亜角塊状	ND
C	0.9-1.0+	SL	-	-	壁状	ND

表2 灰色低地土と黒ボク土の土壌の化学性

層位	pH (H ₂ O) (1:2.5)	全炭素 (%)	全窒素 (%)	CEC (cep kg ⁻¹)
灰色低地土				
A	5.5	2.9	0.27	25.5
B	4.4	3.5	0.30	24.6
C1	4.4	4.9	0.39	27.1
C2	4.7	5.1	0.32	33.1
黒ボク土				
Ap	5.6	5.1	0.66	28.3
AB	5.8	1.5	0.16	19.1
B	5.8	0.8	0.11	17.8
BC1	5.8	0.4	0.05	15.0
BC2	5.7	0.4	0.05	16.8
C	6.0	0.3	0.04	18.7

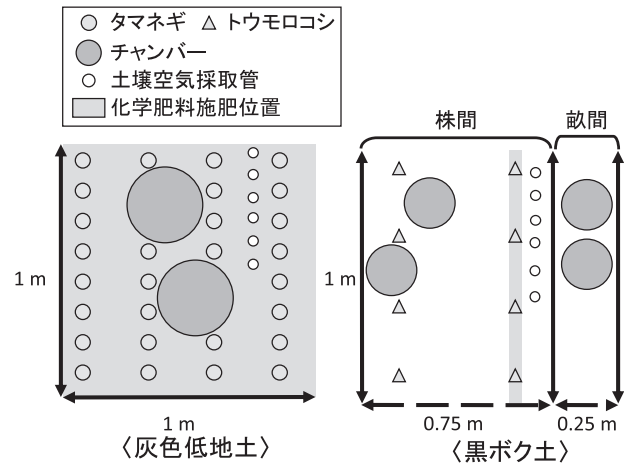


図1 チャンバーおよび土壌空気採取管設置場所

年は0-0.05 m, 1996-1998年は0-0.1 m, 1999-2000年は0-0.15 mである。

$$\text{WFPS (\%)} = (\text{液相率} / (\text{気相率} + \text{液相率})) \times 100 \quad (\text{式1})$$

また、拡散係数装置 (KK-320 型, 木屋製作所) を用いて, 相対ガス拡散係数 (D/D_0) も測定した⁽¹⁰¹⁾. WFPS および D/D_0 の値は3反復の平均値を示した. 深さ 0.1, 0.2, 0.3, 0.4 および 0.5 m に 0.1 m 間隔で 2本ずつテンションメータを設置し, 土壌水分吸引圧を経時的に測定した⁽³⁵⁾.

調査開始時に 100 mL のステンレス製円筒管を用いて層位別 (灰色低地土: 0.05-0.10, 0.15-0.20, 0.23-0.28, 0.32-0.37, 0.43-0.48 および 0.54-0.60 m, 黒ボク土: 0.0-0.3, 0.30-0.37, 0.37-0.47 および 0.47-0.75 m) の不攪乱土壌を3反復で採取した. これらの試料の土壌水分吸引圧を順次, 0.098 (水飽和), -0.31, -0.98, -3.1, -9.8, -31 kPa に調整し, それぞれの気相率と D/D_0 を測定した⁽¹⁰⁰⁾. ここで, 水飽和時の D/D_0 は0とした. 以上のデータを用いて, 土壌水分吸引圧 $-D/D_0$ 曲線を作成し, 経時的に測定した土壌水分吸引圧から土層別の気相率および D/D_0 を計算した.

2) 土壌養分の測定

ガスフラックス測定用チャンバーを設置した付近の表層土壌を採取し, 採取日に生土を脱塩水で抽出し (1:5 = 土壌: 水), 抽出液中の NO_3^- および NH_4^+ 濃度を測定した. NO_3^- 濃度はイオンクロマトグラフィ, NH_4^+ 濃度はインドフェノール青比色定量法^(22, 92) で分析した. 採取した土壌の深さは, 1995

3) 作物による窒素吸収量の測定

灰色低地土ではタマネギ地上部, 黒ボク土ではトウモロコシ地上部を播種および定植から収穫までの間に数回採取し, 乾物重と窒素含有率を測定した. 窒素吸収量を栽植密度に乗じて, 面積当たりの窒素吸収量を求めた. 窒素含有率の測定にはケルダール法⁽¹¹⁵⁾を用いた.

4) 気象データと蒸発散量の推定

灰色低地土では岩見沢測候所 (43° 12.6N', 141° 47.3E'), 黒ボク土では北海道農業試験場 (現在, 北海道農業研究センター) で測定された気温および降水量のデータを用いた⁽¹¹⁰⁾.

灰色低地土では1995-1999年, 黒ボク土では1998-2000年の5-10月の気温, 相対湿度, 風速の月平均値と月別降水量を用いてPenman法に基づいて蒸発散量を推定した^(62, 103). また, 灰色低地土では1996と1997年に熱収支法⁽⁸⁶⁾を用いて蒸発散量を実測し, 蒸発散量の实測値とPenman法による推定値を単回帰して得られた次式を用いて各年のPenman法による蒸発散量の推定値を補正した.

$$\text{推定月別蒸発散量 (mm month}^{-1}\text{)} = 0.3682 \times$$

$$(\text{Penman の推定月別蒸発散量}) + 31.935$$

$$(r = 0.74, p < 0.01, n = 11)$$

$$(\text{式2})$$

蒸発散量を測定しなかった黒ボク土では補正を行わなかった. 月別降水量 (R) と推定月別蒸発散量 (E) の差は土壌中の余剰水分量の推定値であり, 以下

R-Eを推定月別余剰水分量(mm month⁻¹)と示した。

5) 深度別の土壌空気の採取

内径0.013 m, 外径0.016 mの塩ビパイプ(以下土壌空気採取管)を深度別に土壌に打ち込み, この上部に三方コックをつけゴムチューブを通したシリコン栓を接続した。表層から0.05および0.1 mの深さには20本, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5および0.6 mの深さには10本の土壌空気採取管を埋設し, 土壌空気採取管中の空気を0.01 Lのシリンジを用いて1 Lのテドラーバックに採取し, 10または20本の空気を混合して各深度の土壌空気とした。一本の土壌空気採取管からの空気採取量は深さ0.1 mまでは0.01 L, それより深いところは0.02 Lとした。土壌空気採取管の埋設位置は図1に示した。

6) ガス濃度の分析

サンプルガス中のN₂O濃度はECD付きガスクロマトグラフ(GC-14B, 島津製作所), NO濃度はNO_x計((株)紀本電子工業 Model 265P)およびCO₂濃度は赤外CO₂濃度分析計(ZFP-5, 富士電機)を用いて測定した。

3. ガスフラックスの測定

1) クローズドチャンバー法による土壌から大気へのガスフラックスの測定 (N₂O, NO および CO₂)

金属製の円筒形チャンバー(灰色低地土は高さ0.3 m × 直径0.3 m 底面積0.07 m² 容積0.21 m³, 黒ボク土は高さ0.2 m × 直径0.2 m 底面積0.03 m² 容積0.006 m³)を用いて土壌から大気へのガスフラックスの測定を行った。チャンバーの上部にはガス採取口とチャンバー内の圧力調整用の袋を取り付けた(図2)。灰色低地土において1995-1997年の測定はチャンバー内にタマネギの地上部を含んだ。1998-2000年の測定では灰色低地土および黒ボク土ともにチャンバー内にはタマネギおよびトウモロコシの地上部を含めなかった。チャンバーは深さ0.02 m程度まで土壌表面に差し込み, 設置してから15分後に50 mLのシリンジを用いてガスを1 Lのテドラーバックに採取した。チャンバー設置直前に地表から0と2 mの高さの大気を採取し, この大気濃度の平均値をチャンバー内ガス濃度の初期値とし

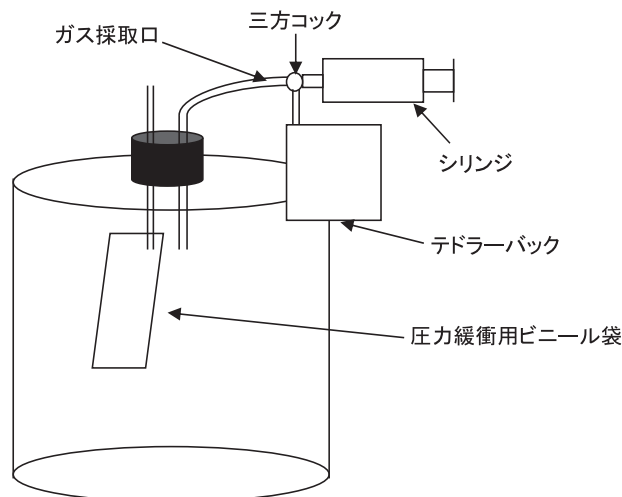


図2 チャンバーの構造と大きさ

灰色低地土では直径0.3m × 高さ0.3m, 黒ボク土では直径0.2m × 0.2mの金属製チャンバーを使用

た。チャンバー設置時とガス採取時においてチャンバー内の気温を測定し, この平均値をチャンバー内気温とした。サンプルガス中のN₂O, NOおよびCO₂濃度の測定法は前述(第2節6))の通りである。NO濃度は1999および2000年においてのみ測定を行った。ガスフラックスは以下の式より求めた⁽²²⁾。

$$F_c = \rho \times \frac{V}{A} \times \frac{dC}{dt} \times \frac{273}{273+T} \times \frac{P}{1} \quad (\text{式3})$$

FCは上向きのガスフラックス(mg m⁻² h⁻¹), ρは標準状態(273 K, 1 atm)におけるガス密度(mg m⁻³)でN₂O, CO₂ともに1.98 × 10⁶ (mg m⁻³), NOは1.34 × 10⁶ (mg m⁻³), Vはチャンバーの体積(m³), Aはチャンバーの底面積(m²), [dC/dt]はt時間の間に生じたチャンバー内空気のガス濃度変化(10⁻⁶ m³ m⁻³ h⁻¹), Tはチャンバー内気温(°C), Pは気圧(atm)であり, ここでは1 atmとした。N₂OフラックスはF_cに28/44, NOフラックスはF_cに14/30, CO₂フラックスはF_cに12/44を乗じて窒素および炭素当たりのフラックス量を計算した。ガスフラックスの測定は灰色低地土では4反復, 黒ボク土では株間と畝間でそれぞれ2反復行い平均値を示した。チャンバーの設置場所を図1に示した。無積雪期における土壌から大気への積算ガス放出量は直線補完法によって見積もった。なお, 本報告における「積算放出量」は毎年4月から10または11月の無積雪期の積算放出量を意味し, 引用文献にお

ける「積算放出量」は同様に作物栽培期間の積算放出量を示すが(測定期間が90日以上のもを引用)、積算期間は調査地、年次および文献により異なる。また、積算放出量の単位は gN m^{-2} として表記を統一した。黒ボク土における無積雪期の圃場全体のガス放出量は、株間と畝間の面積比を用いて算出した。積雪期は雪上にチャンバーを設置して、チャンバー法による N_2O フラックスの測定を行った。ガスフラックスの対数値と各種要因との相関関係の解析を行った。

2) 拡散法による土壌中のガスフラックスの測定 (N_2O および CO_2)

Fick の第一法則を適用した拡散式を用いて、土壌から大気へのガスフラックスを以下の式から算出した⁽³⁰⁾。

$$F_D = D \frac{dC}{dz} = \left(\frac{D}{D_0} \right) \times D_0 \times \left(\rho \times \frac{C_b - C_a}{b-a} \times \frac{273}{273+T} \right) \quad (\text{式4})$$

ここで、 F_D は深さ $(a+b)/2$ m を通過する上向きのガスフラックス ($\text{mg m}^{-2} \text{s}^{-1}$)、 D は土壌のガス拡散係数 ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)、 $[dC/dz]$ は濃度勾配 ($\text{mg m}^{-3} \text{m}^{-1}$)、 D/D_0 は測定した深さ $a-b$ の相対ガス拡散係数、 D_0 は N_2O または CO_2 空気相互拡散係数 ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)、 ρ は標準状態におけるガス密度 (mg m^{-3}) (前

出)、 C_a および C_b は深さ a および b m のガス濃度 ($\text{m}^3 \text{m}^{-3}$)、 $b-a$ は深さ $a-b$ の距離 (m)、 T は深さ $a-b$ の平均地温 ($^{\circ}\text{C}$) である。例えば深さ 0.3 m を通過するガスフラックスは深さ 0.2 および 0.4 m のガス濃度と深さ 0.3 m の D/D_0 の値を使用して計算した。標準状態における、 N_2O または CO_2 空気相互拡散係数 D_s ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$) はそれぞれ、 0.143×10^{-4} および 0.139×10^{-4} であり⁽¹⁰⁶⁾、気圧 1 (atm)、地温 T ($^{\circ}\text{C}$) 条件下における D_0 は次式によって計算した⁽¹⁰⁶⁾。

$$D_0 = D_s \times \left(\frac{273+T}{273} \right)^{1.79} \quad (\text{式5})$$

ここで、深さ 0.05 および 0.1 m の地温は実測値、それ以下の深さは地温 20°C として計算した。 N_2O フラックスは F_D に 28/44 を、 CO_2 フラックスは F_D に 12/44 を乗じて窒素および炭素当たりのフラックス量を計算し、チャンバー法に合わせて時間当たりのフラックス量 ($\text{mg m}^{-2} \text{h}^{-1}$) に換算した。深さ別の積算放出量は直線補完法によって見積もった。黒ボク土において深度別のガス濃度の測定は株間のみで行ったため、株間からの積算放出量のみを見積もった。

III 土壌構造が発達した灰色低地土からの一酸化二窒素および一酸化窒素放出量の推定および放出要因の解明

1. はじめに

施肥された農耕地では施肥直後に著しい N_2O フラックスのピークが認められており、これが測定期間中の最大ピークとなった事例が多い^(1, 8, 11, 26, 75, 120, 125, 139)。しかしながら、北海道中央部の5月に施肥された灰色低地土タマネギ畑において、8月上旬の 80 mm day^{-1} を超える降雨後に著しく N_2O フラックスが上昇し、これは施肥後の N_2O フラックスよりも大きかったことが報告された⁽³⁹⁾。Hansen⁽³¹⁾ は施肥一週間後の 40 mm day^{-1} を超える雨によって著しく N_2O フラックスが上昇したことを報告している。このように、降雨や灌漑後の N_2O フラックスの上昇を報告した例も多いが^(2, 11, 75, 87, 88)、

その多くは施肥後の N_2O フラックスが調査期間の最大ピークとなっている。Hatano と Sawamoto⁽³⁹⁾ のように施肥後以外の時期に N_2O フラックスの最大ピークが認められた事例は少なく、類似事例としては、春に施肥したトウモロコシおよび大麦畑において、施肥後と7月下旬の大雨後に同程度の N_2O フラックスのピークを認めた Mosier らの報告⁽⁸⁷⁾ がある。北海道は4-6月の降水量は少なく、7月以降に降水量が増加し、9月に降水量が最大となる傾向がある⁽⁶⁹⁾。このため、夏作の施肥が行われる4-5月は降水量が少なく、収穫期前後の8-10月に降水量が増加する。Hatano と Sawamoto⁽³⁹⁾ の報告でも施肥後の5月の降水量は比較的少なく、8月以降に

降水量が増加した傾向が認められている。これより、HatanoとSawamoto⁽³⁹⁾が調査を行った北海道の灰色低地土で、既往の報告と異なる N_2O フラックスの季節推移が認められた原因として、北海道の降雨パターンの影響が考えられる。土壌から大気への N_2O 放出量は空間的・時間的変動が大きく、今もなお地球規模での N_2O 放出量の推定値には大きな幅があるのが実態であり⁽¹⁰⁵⁾、今後より正確な N_2O 放出量の推定や放出量を抑制するためには様々な気象や土壌条件における N_2O 放出の調査と要因解析の蓄積が必要である。また、土壌から大気への N_2O 放出量を正確に見積もるためには、同一圃場における長期間の N_2O フラックスの測定が必要である。

従って本研究では、HatanoとSawamoto⁽³⁹⁾の調査で8月頃に N_2O フラックスのピークが認められた北海道の灰色低地土タマネギ畑において、1995–2001年の6年間にわたり、 N_2O フラックスと土壌水分、地温等の測定を行い、 N_2O フラックスの季節推移と N_2O の放出要因の解明および無積雪期における土壌から大気への N_2O 放出量を見積もることを目的した⁽⁷⁰⁾。また、土壌中においてNOは主に硝化から生成し、 N_2O は硝化と脱窒の両方から生成されると考えられていることから⁽¹¹⁸⁾、 N_2O の生成経路を推定するためにNOについても土壌から大気へのフラックスの測定を行った。また、1999および2000年は年間放出量を推定するために積雪期にもフラックスの測定を行った。

2. 材料と方法

1) 調査地概要

主な内容は、II 1.の調査地概要に記載した。1999および2000年には施肥とタマネギ植栽の有無で4処理区（施肥植栽区、施肥無植栽区、無施肥植栽区、無施肥無植栽区）を設けた。処理区の面積は約40 m²であり、処理をした2年間は場所を固定した。施肥植栽区は1995–2000年の無積雪期(4–10月)に、その他の3処理区は2000年の無積雪期に調査を行った。

2) ガスフラックスおよび土壌の物理性等の経時的な調査

土壌から大気へのガスフラックスの測定についてはII 3.ガスフラックスの測定に記載した。1995–

1997年はチャンバー内にタマネギを含め、1998–2000年はチャンバー内にタマネギを含めなかった。土壌水分や NO_3^- 、 NH_4^+ 濃度等の測定や余剰水分量の推定についてはII 2.土壌の物理性等の測定に記載した。

3) 調査圃場の東側半分における50点サンプリング

1999年8月17日にタマネギ畑の中央(100×100 m)の東側半分に10 m格子上の50点の測定点を設置した。各測定点において、土壌から大気への N_2O 、NOおよび CO_2 フラックス、直径0.14 m、深さ0.1 mの円筒形コアを用いて採取した土壌の三相分布および土壌水分(WFPS)、深さ0.1 mの地温、風乾土壌の全窒素、全炭素、可溶性窒素、水溶性 NH_4^+ および NO_3^- を測定した。可溶性窒素は密栓湛水状態にて30℃で4週間培養する前後に存在する NH_4^+ および NO_3^- を比色法(NH_4^+ はインドフェノール青法、 NO_3^- は亜硝酸に還元後スルファニルアミド-ナフチルエチレンジアミン法)で定量し、それらの差として求めた^(22,67)。全炭素および全窒素は乾式燃焼法(NCアナライザー、SUMIGRAPH NC-800-13N)で測定した。

3. 結果

1) 1995–2000年における N_2O フラックスと他の要因の季節変動

毎年、降水量は収穫期前後に増加する傾向だった(図3-a)。4–7月における月降水量の範囲は66–145 mm month⁻¹であり、この時期の平均月降水量は91 mm month⁻¹であった。一方、8–10月の月降水量の範囲は99–159 mm month⁻¹であり、月平均降水量は144 mm month⁻¹であった。このように、降水量は収穫時期前後の8–10月に大きかった(図3-a)。土壌水分(WFPS)は春(4および5月)と秋(9および10月)に高く、夏(6–8月)に低く推移し、大雨や連続降雨の後にはWFPS値は上昇した(図3-a)。地温は春から夏にかけて上昇し、夏から秋にかけて低下した(図3-b)。深さ0.1 mの地温の範囲は0.6–33.1℃であり、調査期間の平均地温は20.1℃であった。タマネギ地上部による窒素吸収量は7–8月にかけて大きくなった(図3-b)。窒素吸収量の範囲は10–17 g-N m⁻²であり、平均値は14

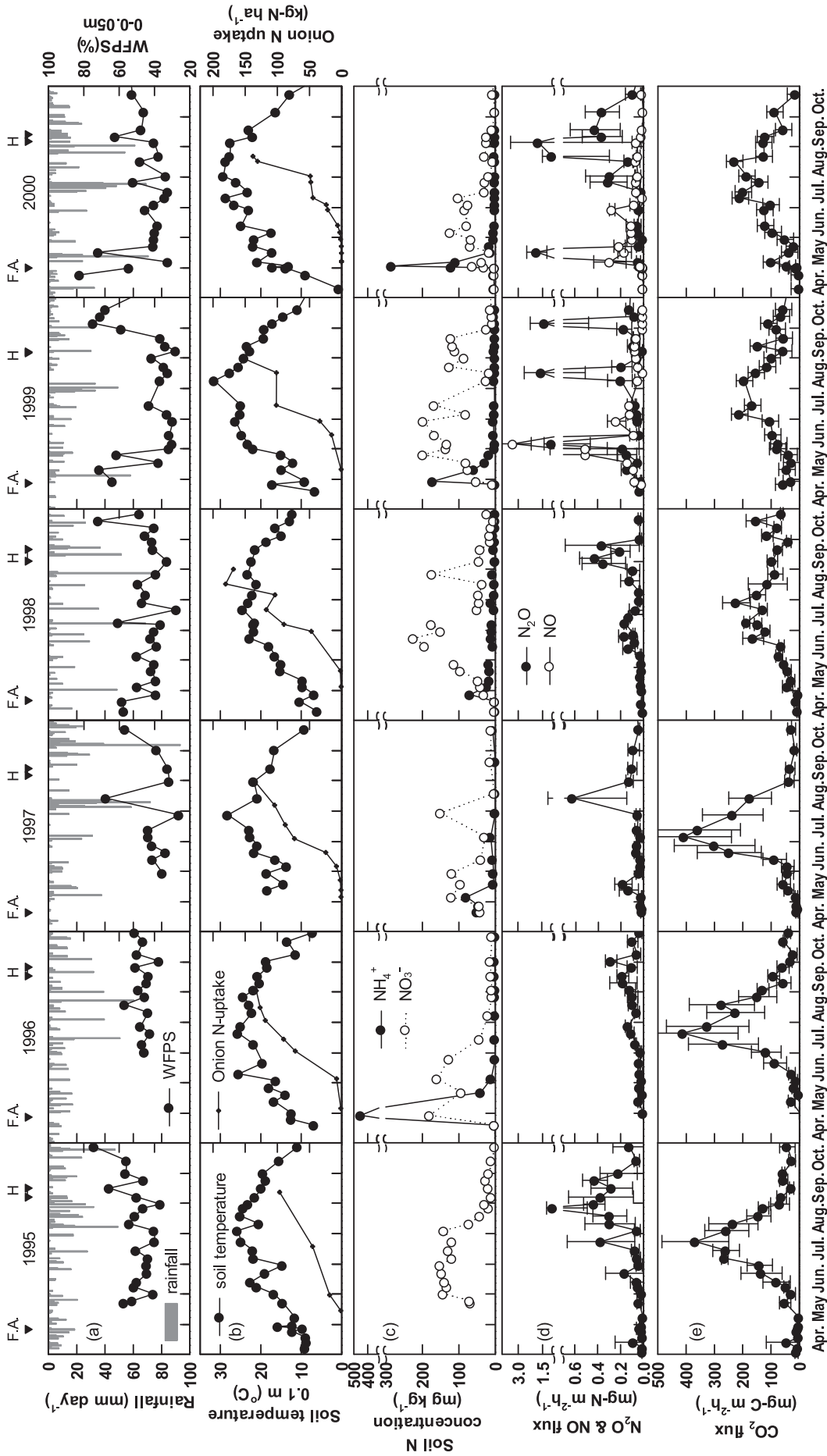


図3 灰色低地土における降水量、地温、N₂OおよびNO放出速度および土壌呼吸速度等の季節推移(1995-2000年)

(a) は日降水量と土壌水分 (WFPS), (b) は深さ 0.1m の地温とタマネギの窒素吸収量, (c) は表土の硝酸およびアンモニウム濃度, (d) N₂O・NO フラックス, (e) 土壌呼吸速度を示す。F.A. は施肥, H は収穫時期を示す。1995 年は NH₄⁺ 濃度の測定を行っていない。ガスフラックスのエラーバーは標準偏差を示す。

g-N m⁻²であった。表層土壌中の NH₄⁺ 濃度は施肥後に 69–450 mg-N kg⁻¹ 程度の最高値に達した後 10 mg-N kg⁻¹ 程度まで低下した (図 3-c)。表層土壌中の NO₃⁻ 濃度は施肥後から 6 月までの間に 100–250 mg-N kg⁻¹ 程度まで上昇し、7 月頃に低下し、9 月以降は 30 mg-N kg⁻¹ 以下で推移した。1999 年の 8–9 月には NO₃⁻ 濃度の上昇が認められた (図 3-c)。この結果は、他の年に比べて地温が高く、土壌水分も低く推移した 1999 年の 8–9 月では、窒素の無機化が起こっていたことを示した (図 3-a, b, c)。その年の最も大きい N₂O 放出は 5 月の施肥直後ではなく、収穫時期前後 (8–10 月) に認められた。6 年間の N₂O フラックスの範囲は 0.00–1.86 mg-N m⁻² h⁻¹ であり、平均フラックスは 0.16 mg-N m⁻² h⁻¹ であった。6 年間を通して、降水量と N₂O 放出は収穫期前後に大きい傾向が認められた (図 3-a, d)。反対に、NO フラックスの著しい上昇は施肥直後に認められた (図 3-d)。NO フラックスの範囲は 0.00–3.30 mg-N m⁻² h⁻¹ であり、調査期間の平均 NO フラックスは 0.16 mg-N m⁻² h⁻¹ であった。CO₂ フラックスは春から夏にかけて上昇し、夏から秋にかけて低下し、地温と同様の推移を示した (図 3-e)。タマネギの生育期間の CO₂ フラックスは、チャンバー内にタマネギ地上部を含めなかった 1998–2000 年に比べて、タマネギ地上部を含めて測定した 1995–1997 年の値が高かった。CO₂ フラックスの範囲は 0–411 mg-C m⁻² h⁻¹ であり、平均 CO₂ フラックスは 98.5 mg-C m⁻² h⁻¹ であった。6 年間の N₂O フラックス、CO₂ フラックス、地温、WFPS および降水量の月平均値から計算した CV 値はそれぞれ、86、49、8、14 および 39% であり、N₂O フラックス、CO₂ フラックスおよび降水量の年次間変動は地温や土壌水分に比べて大きかったことが示された。

2) 月別 N₂O 放出量と降水量の関係

6–7 月の月降水量と月降水量から月蒸発散量を差し引いた値 (以下 R-E 値とする) は、負または非常に低い値であった (図 4)。蒸発散量が低下し、降水量が増加する 8 月以降では R-E 値の増加が認められた。8 月以降の R-E 値の増加期に、N₂O の月放出量も増加する傾向であった。平年値の 2.5 倍程度の月降水量であった 1997 年 10 月を除いた場合、

N₂O の月放出量と R-E 値の間には 1% 水準で有意な関係が認められた ($r = 0.46, p < 0.01, n = 35$)。R-E 値 (mm month⁻¹) を x (範囲: -72–168)、月 N₂O 放出量 (mg-N m⁻² month⁻¹) を y としたときの近似曲線は $y = 68.278e^{0.078x}$ であった。

3) ガスフラックスと各種環境要因の関係

N₂O フラックスの対数値と深さ 0.1 m の地温の間では 1% 水準で有意な正の相関関係、土壌中の NH₄⁺ 濃度とは 5% 水準で負の相関関係が得られた (表 3)。N₂O フラックスの対数値と深さ 0–0.05 m の気相率および WFPS の間には有意な相関関係は認められなかった (表 3)。しかしながら、N₂O フラックスと深さ 0–0.05 m の WFPS および深さ 0.05 m の地温の重回帰分析では、5% 水準で有意な関係が認められた (N₂O flux = -0.68 + 0.021 × 地温 + 0.0094 × WFPS, $r = 0.32, n = 112, p < 0.05$, 標準偏回帰係数: 地温 0.41, WFPS 0.35)。NO フラックスの対数値と深さ 0.1 m の地温、深さ 0–0.05 m

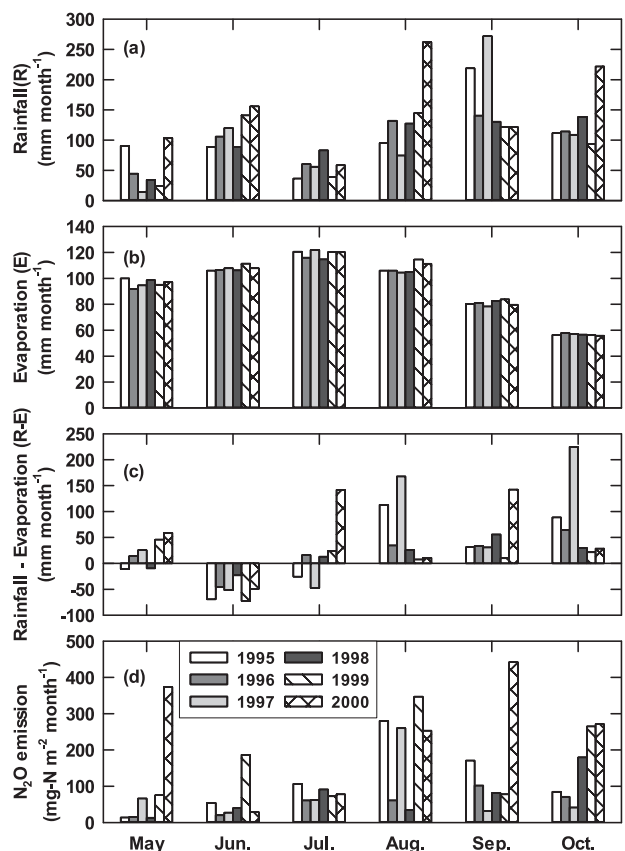


図 4 灰色低地土における月別の余剰水分量および N₂O 放出量等の推移 (1995–2000 年)

(a) 月降水量, (b) 月蒸発量, (c) 余剰水分量 (降水量 - 蒸発量), (d) N₂O の月放出量

表3 灰色低地土におけるガスフラックスの対数値と放出要因の相関関係 (1995-2000)

	Log (N ₂ O フラックス)			Log (NO フラックス)			Log (フラックスの N ₂ O-N/NO-N 比)			Log (CO ₂ フラックス)		
	r	p	n	r	p	n	r	p	n	r	p	n
地温												
(0.1 m)	0.30**	<0.01	131	0.57**	<0.01	44	-0.32*	0.04	42	0.58**	<0.01	129
気相率												
(0-0.05 m)	0.13	0.17	110	0.50**	<0.01	41	-0.31*	0.05	39	0.28**	0.01	111
WFPS												
(0-0.05 m)	-0.10	0.29	110	-0.54**	<0.01	41	-0.37*	0.02	39	-0.23*	0.01	111
NH ₄ -N												
濃度	-0.22*	0.04	86	0.05	0.73	45	-0.20	0.19	43	-0.41**	<0.01	86
NO ₃ -N												
濃度	-0.15	0.11	106	0.63**	<0.01	45	-0.62**	<0.01	43	0.12	0.21	106
Log (NO フラックス)	0.23	0.13	43							0.21	0.18	42
Log (CO ₂ フラックス)	0.59**	<0.01	132									

*は p<0.05, **は p<0.01 を示す。

の気相率および土壌中の NO₃⁻ 濃度の間には 1 % 水準で有意な正の相関関係、深さ 0-0.05 m の WFPS の間には 1 % 水準で有意な負の相関関係が認められた (表3)。CO₂ フラックスの対数値と深さ 0.1 m の地温および深さ 0-0.05 m の気相率の間には 1 % 水準で有意な正の相関関係、深さ 0-0.05 m の WFPS の間には負の相関関係が認められた (表3)。N₂O フラックスと CO₂ フラックスの対数値の間には 1997 および 1999 年を除いた各年次と、チャンバー内にタマネギを含んだ 1995-1997 年、含まなかった 1998-2000 年および全調査期間において 1 % 水準で有意な正の相関関係が認められた (図5, 表3)。回帰直線の傾きはチャンバー内にタマネギを含んだ年次で低く、タマネギの有無が同じ年次では同程度の傾きだった (図5)。

4) N₂O と NO フラックスの比の推移

施肥直後から 7 月下旬において N₂O と NO フラックスの比 (N₂O-N/NO-N 比) は 1 より小さく、N₂O よりも NO が多く放出される傾向であった (図6)。しかし、8 月以降において N₂O-N/NO-N 比は 1 から 1000 程度まで上昇し、夏以降は NO よりも N₂O が多く放出された。N₂O-N/NO-N 比は深さ 0-0.05 m の WFPS と 5 % 水準で有意な正の相関関係、深さ 0.05 m の地温、深さ 0-0.05 m の気相率お

よび土壌中の NO₃⁻ 濃度の間には 5 % 水準で有意な負の関係が認められた (表3)。

5) 無積雪期 (4-10 月) における N₂O, NO 放出量および CO₂ 放出量

6 年間の無積雪期における各年の N₂O 放出量の範囲と平均値は、それぞれ 0.35-1.56 g-N m⁻² および 0.78 g-N m⁻² であった (表4)。6 年間の N₂O 放出量の CV 値は 49.6 % であった。施用窒素量に対する N₂O 放出量の割合は 1.1-6.4 % の範囲であり、6 年間の平均値は 2.9 % であった。4-7 月の N₂O 放出量は無積雪期の放出量の 30 % 以下であり、8-10 月の放出量の方が大きかった (図7)。1999 および 2000 年の無積雪期における NO 放出量および施肥窒素量に対する NO 放出量の割合は 0.99, 0.34 g-N m⁻² および 3.1, 1.4 % であった (表4)。6 年間の無積雪期における CO₂ 放出量の範囲と平均値は 0.43-0.52 kg-C m⁻² および 0.48 kg-C m⁻² であった (表5)。6 年間の CO₂ 放出量の CV 値は 8.3 % であり、N₂O よりも年次変動が小さかった。

6) 施肥とタマネギ植栽の有無を変えた場合のガスフラックスの推移とガス放出量

土壌水分 (WFPS) および地温は処理に関わらず同様の推移を示した (図8-a, b)。5 月の土壌中

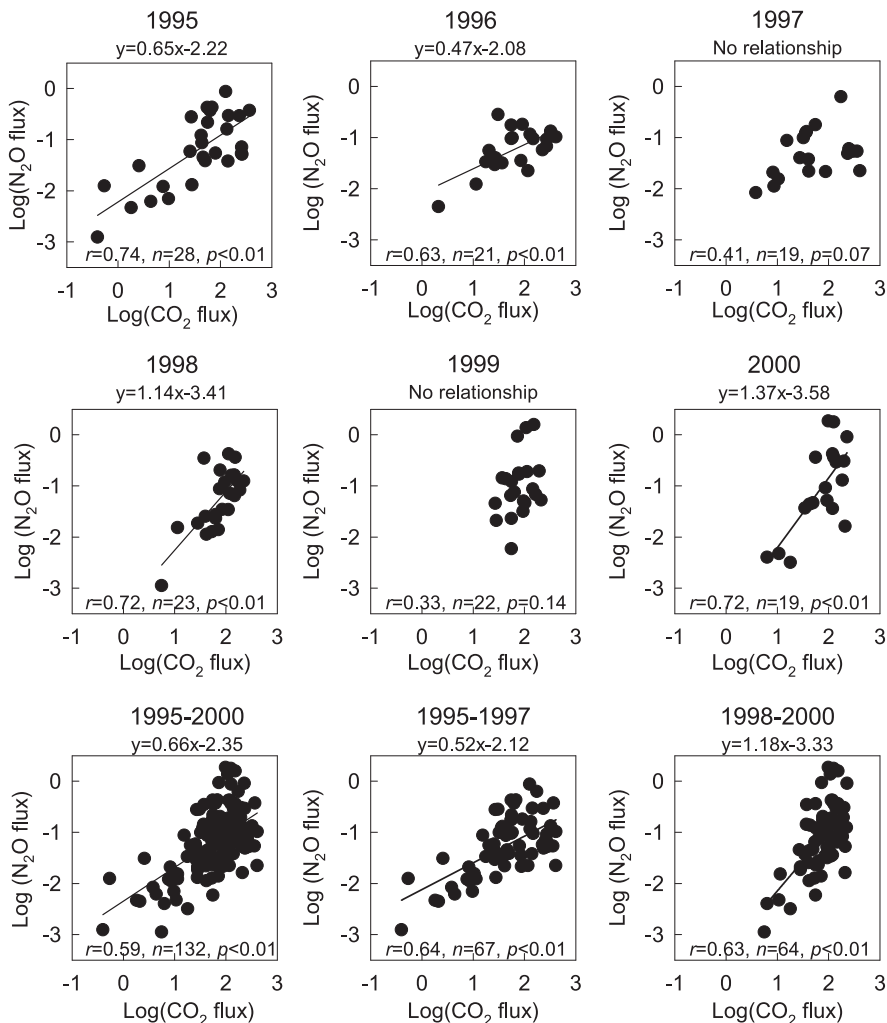


図5 灰色低地土の1995-2000年における N_2O フラックスと CO_2 フラックスの対数値の関係

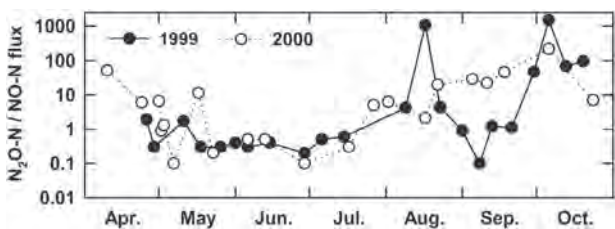


図6 灰色低地土における $\text{N}_2\text{O-N}$ と NO-N フラックスの比の季節推移(1999-2000年)

NH_4^+ 濃度の著しい上昇は施肥区のみで認められ、無施肥区の NH_4^+ 濃度はほぼ 5 mg-N kg^{-1} 以下で推移した(図8-c)。 NH_4^+ 濃度と同様に、施肥区の土壌中の NO_3^- 濃度は施肥後に著しく上昇した後低下した。施肥の有無に関わらず、無植栽区では7-8月にかけて、土壌中 NO_3^- 濃度の上昇が認められた(図8-d)。施肥直後の著しい N_2O フラックスの上昇は施肥区のみで認められ、7-9月にかけての N_2O フ

ラックスの上昇は全処理区で認められた(図8-e)。7-9月の N_2O フラックスの上昇は無植栽区よりも植栽区で高い傾向だった。NOフラックスの上昇は施肥後に施肥区のみで認められ、無施肥区では調査期間を通してNOフラックスの大きな上昇は認められなかった(図8-f)。タマネギの生育期間の5-9月は、無植栽区よりも植栽区の CO_2 フラックスが高く推移した(図8-g)。タマネギの乾物収量および窒素吸収量は無施肥区よりも施肥区で大きかった(表4)。

無積雪期の N_2O 放出量は無施肥無植栽区で最も小さく、施肥無植栽区および無施肥植栽区が同程度、施肥植栽区が最も大きかった(表4)。施肥区のNO放出量は無施肥区の10倍程度大きく、植栽の有無による違いは認められなかった。植栽区の CO_2 放出量は無植栽区の2倍程度大きかった(表5)。

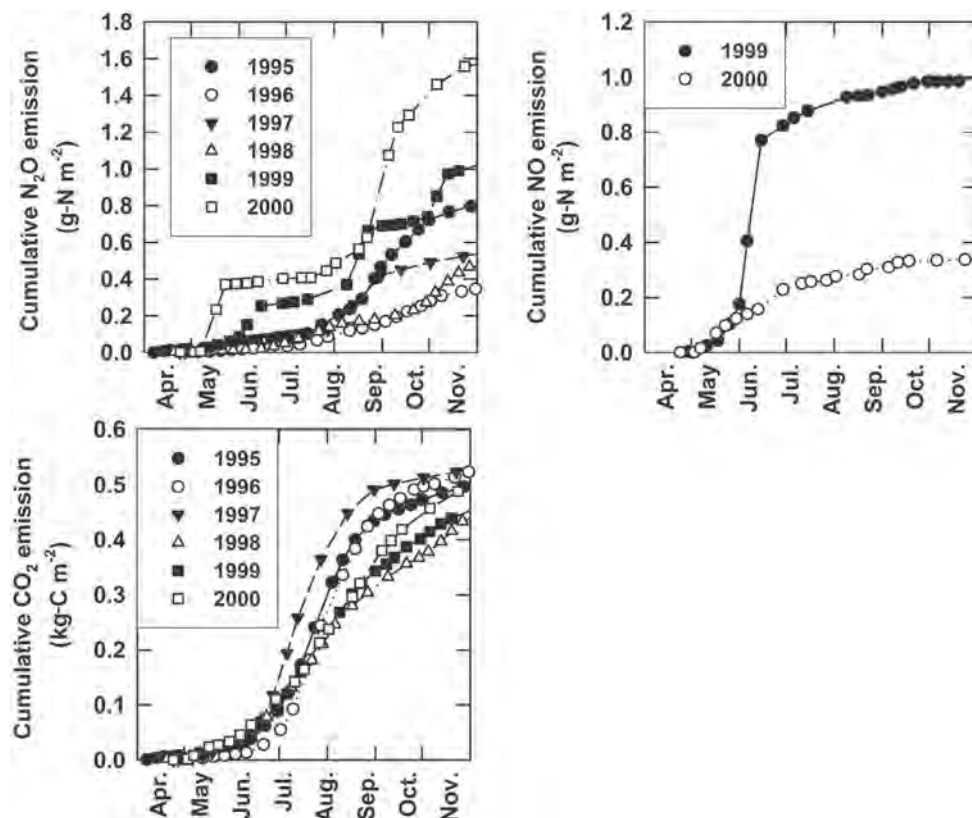


図7 灰色低地土における積算 N₂O, NO 放出量および土壌呼吸量の推移 (1995-2000 年)

表4 灰色低地土における無積雪期の N₂O および NO 放出量等 (1995-2000)

年次	処理*	調査期間	施肥 N g-N m ⁻²	放出量 (g N m ⁻²)			タマネギ の乾物重 g m ⁻²	タマネギの N 吸収量 g-N m ⁻²	施肥窒素に対する N ₂ O, NO 放出量の割合 (%)		
				N ₂ O	NO	N ₂ O+NO			N ₂ O	NO	N ₂ O+NO
1995	FP	4/3-10/28	27	0.80 ± 0.14	ND	ND	480	10	3.0	ND	ND
1996	FP	5/1-10/31	31	0.35 ± 0.03	ND	ND	670	13	1.1	ND	ND
1997	FP	4/21-10/23	28	0.53 ± 0.20	ND	ND	680	14	1.9	ND	ND
1998	FP	4/10-10/27	32	0.47 ± 0.08	ND	ND	890	17	1.5	ND	ND
1999	FP	4/26-10/20	32	0.99 ± 0.25	0.99 ± 0.21	2.0	540	16	3.1	3.1	6.2
2000	FP	4/10-10/24	24	1.56 ± 0.46	0.34 ± 0.04	1.9	690	14	6.7	1.4	8.1
2000	FNP	4/10-10/24	24	0.88 ± 0.36	0.28 ± 0.04	1.2	0	0	3.7	1.2	4.8
2000	NFP	4/10-10/24	0	0.99 ± 0.22	0.03 ± 0.00	1.0	420	8	-	-	-
2000	NFNP	4/10-10/24	0	0.45 ± 0.10	0.03 ± 0.00	0.48	0	0	-	-	-
平均	FP		29	0.78	0.67		660	14	2.9		

*FP: 施肥植栽区, FNP: 施肥無植栽区, NFP: 無施肥植栽区, NFNP: 無施肥無植栽区
±は標準偏差を示す。

7) ガスフラックスとその他の要因の空間変動

1999年8月17日に50点サンプリングを行った圃場の東半分において、N₂Oフラックスの範囲および平均値は0.01-5.98 mg-N m⁻² h⁻¹および0.56 mg-N m⁻² h⁻¹であった。NOフラックスの範囲および平均値は0.00-0.11 mg-N m⁻² h⁻¹および0.02 mg-N m⁻² h⁻¹であり、CO₂フラックスの範囲および平

均値は36-554 mg-C m⁻² h⁻¹および140 mg-C m⁻² h⁻¹であった。N₂O, NOおよびCO₂フラックスのCV値は、それぞれ174, 118および67%であり、CO₂フラックスに比べてN₂OおよびNOフラックスの圃場内変動は大きかった。

固相率, 液相率, 気相率, WFPS, 地温, 土壌中全窒素および全炭素含有率のCV値は3-13%の範

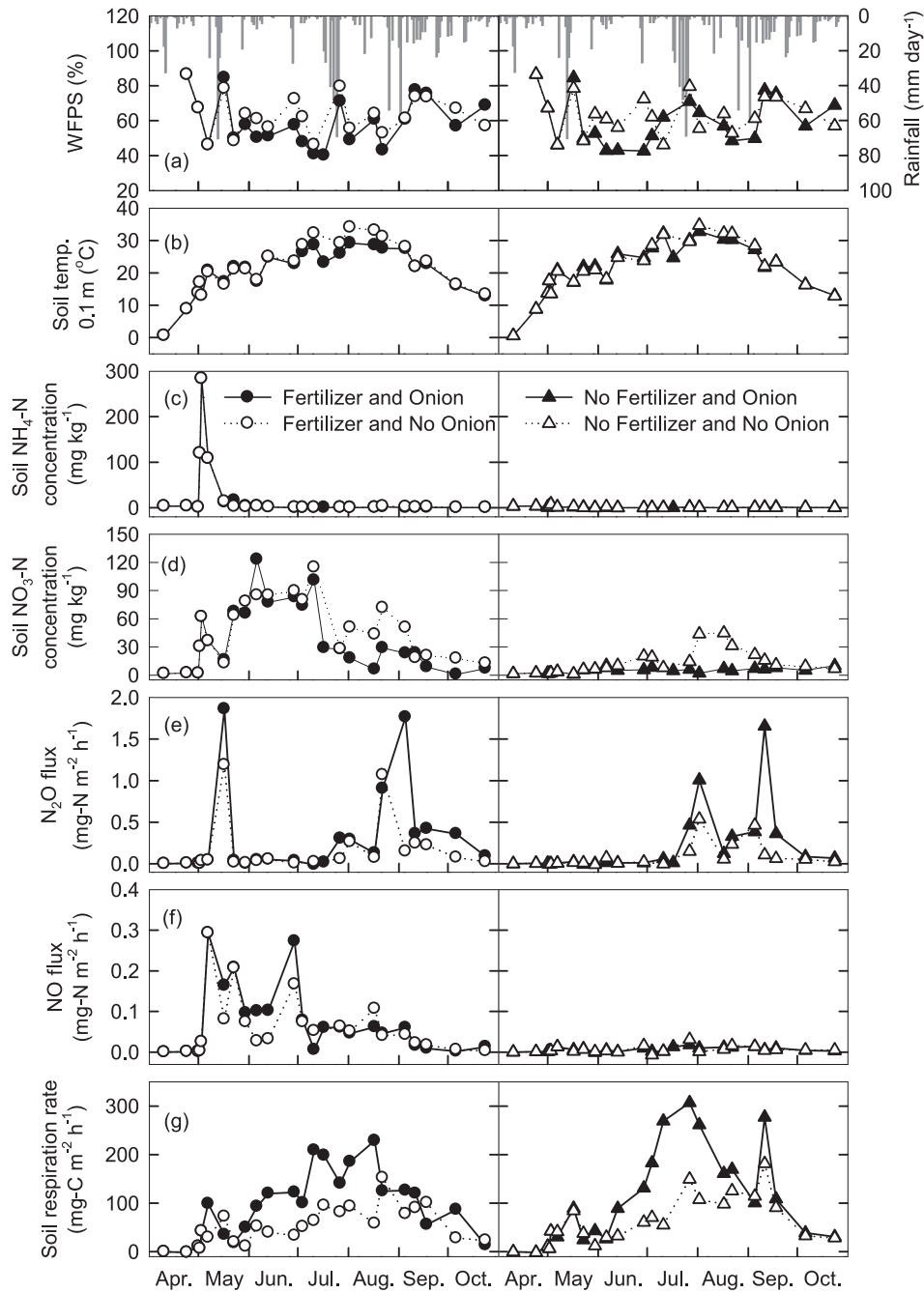


図8 灰色低地土の施肥と植栽の有無が異なる4処理区におけるガス放出速度等の季節推移(2000年)

(a) は日降水量と土壌水分(WFPS), (b) は深さ0.1mの地温とタマネギの窒素吸収量, (c) 表土の硝酸およびアンモニウム濃度, (d) N₂O・NOフラックス, (e) 土壌呼吸速度を示す。F.A.は施肥, Hは収穫時期を示す。

表5 灰色低地土における無積雪期のCO₂放出量(1995-2000)

年	CO ₂ 放出量 (kg-C m ⁻²)						平均
	1995	1996	1997	1998	1999	2000	
調査期間	4/3-10/28	5/1-10/31	4/21-10/23	4/10-10/27	4/26-10/20	4/10-10/24	
FP	0.50	0.52	0.52	0.43	0.44	0.47	0.48
FNP	ND	ND	ND	ND	ND	0.26	-
NFP	ND	ND	ND	ND	ND	0.49	-
NFNP	ND	ND	ND	ND	ND	0.29	-

* FP: 施肥植栽区, FNP: 施肥無植栽区, NFP: 無施肥植栽区, NFNP: 無施肥無植栽区

圃であり、これらの値の圃場内変動はガスフラックスに比べて小さかった。土壌中の可溶性窒素、水溶性 NH_4^+ および NO_3^- 濃度の CV 値は 36, 61 および 77 % であり、圃場内変動は他の要因に比べて大きかったが、 N_2O および NO フラックスより小さかった。 N_2O フラックスと気相率、全窒素および全炭素含有率の間には 1 % 水準、可溶性窒素の間には 5 % 水準で有意な正の関係が、深さ 0.1 m の地温および固相率との間には 1 % 水準、WFPS との間には 5 % 水準で負の相関関係が得られた(表 6)。 NO フラックスと深さ 0.1 m の地温、水溶性 NO_3^- 濃度の間に 5 % 水準で有意な正の関係、液相率との間には 5 % 水準で負の相関関係が認められた(表 6)。 N_2O フ

ラックスと CO_2 フラックスの間には相関係数 0.84 という強い正の関係が認められた(図 9)。

8) 積雪期の N_2O フラックス

1999 年 1, 2 月および 2000 年 1-3 月に測定した雪の上から大気への N_2O フラックスの大部分は $0.001 \text{ mg N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 程度であった(図 10)。積雪期の平均 N_2O フラックス $0.003 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ を用いて、積雪期を 12-3 月の 4 ヶ月と仮定したときの積雪期の N_2O 放出量は 0.009 g-N m^{-2} となり、無積雪期の平均 N_2O 放出量 0.78 g-N m^{-2} の 1.2 % 程度に相当した。

表 6 灰色低地土における 1999 年の 50 点サンプリング時のガスフラックスの対数値と要因の相関係数

	相関係数 (r)		
	Log (N_2O フラックス)	Log (NO フラックス)	Log (CO_2 フラックス)
Log (NO フラックス)	-0.10		
Log (CO_2 フラックス)	0.84**	-0.16	
固相率 (0-0.1m)	-0.62**	0.12	-0.55**
液相率 (0-0.1m)	-0.14	-0.30*	-0.24
気相率 (0-0.1m)	0.49**	0.09	0.51**
WFPS (0-0.1m)	-0.37**	-0.19	-0.43**
地温 (0.1 m)	-0.40**	0.37*	-0.16
TN	0.48**	-0.25	0.39**
TC	0.46**	-0.25	0.37*
C/N 比	-0.31*	0.11	-0.27
可溶性 N	0.36*	0.061	0.30*
水溶性 NH_4^+	-0.18	-0.04	-0.34*
水溶性 NO_3^-	0.23	0.29*	0.15
水溶性 N	0.21	0.267	0.10

$p < 0.05^*$, $p < 0.01^{**}$, $n = 50$. 土壌中の各窒素および炭素濃度は深さ 0-0.1 m の濃度である。

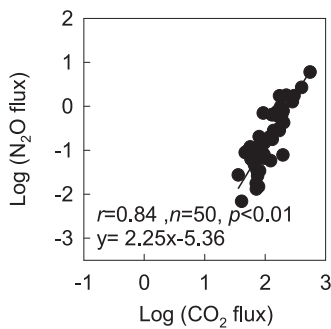


図 9 灰色低地土における 50 点サンプリング時の N_2O フラックスと CO_2 フラックスの対数値の関係 (1999 年)

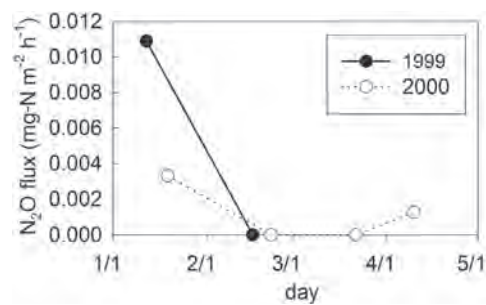


図 10 灰色低地土における雪上調査下の N_2O フラックス (1999 および 2000 年)

例年の積雪期間は 11 月中旬から 4 月中旬

4. 考察

1) N_2O と NO フラックスの季節変動

農地においては、窒素肥料の施用直後に著しい N_2O フラックスの上昇が認められた例が多い(1, 8, 13, 26, 63, 120, 125, 136, 137, 139)。施肥後約1ヶ月以内における N_2O フラックスの最高値は $0.1-0.3 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 程度であった例が多いが^(13, 63, 120, 136, 137, 139)、施肥直後の N_2O フラックスの最高値は $2.9 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 程度や⁽¹²⁵⁾ や $0.04 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 程度の報告⁽¹²⁷⁾ もある。本調査地の施肥直後の N_2O フラックスの最高値は1995, 1996 および1998年では $0.04 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 以下であったが、1997, 1999 および2000年では $0.2, 0.2$ および $1.9 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ と比較的高い値であった。しかしながら、これらの値よりも収穫期前後(8-10月)の N_2O フラックスの方が高かった(図3)。施肥直後の大きな N_2O 放出は施肥直後から6週間程度⁽²⁶⁾ または10日程度^(127, 139) 続くことが報告されている。本灰色低地土では週1回程度調査をしており、もし施肥直後に著しい N_2O フラックスの上昇が起こっていれば、これを検出できたと考えられる。従って、本灰色低地土では、施肥直後も文献値と同程度の N_2O フラックスの上昇が認められたが、施肥直後よりも収穫期前後に大きく N_2O フラックスが上昇し、これら値はこれまで報告された N_2O フラックスと比べて大きかったことが示された。

N_2O フラックスは夕方または昼にピークをもつという日変動が報告されている^(7, 20, 108, 124)。これまでに $0.07-0.18 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ⁽²¹⁾、 $0.16-0.22 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ⁽¹²⁰⁾ または $0.01-0.03 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ⁽¹³⁶⁾ のような日変動が報告されており、日変動のパターンと大きさは報告により異なる。本調査では毎回の調査をほぼ同じ時間に行ったため、 N_2O 放出量を過小評価もしくは過大評価している可能性は考えられる。しかしながら、本圃場の N_2O フラックスの範囲は $0.00-1.86 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ であり、日変動より季節変動の方が大きかったことは明らかであり、 N_2O フラックスの季節変動は降雨イベント、根きりや収穫等の耕種的活動に起因したと考えられた。

N_2O と同様に NO フラックスの上昇は施肥直後や^(125, 127, 135)、乾燥土壤が湿っていく過程^(16, 112, 124) で認められている。本圃場における NO フラックスの著しい上昇は、土壤の NH_4^+ 濃度の低下および NO_3^-

濃度の上昇が起こった施肥直後のみ認められ(図3)、施肥窒素の硝化時に NO 放出が起こったと考えられた。Carpenter ら⁽¹²⁾ と畠山と嵯峨井⁽³⁷⁾ によると大気 NO 濃度は早朝に最も高く、日変動は $0-70 \text{ ppbv}$ の範囲であった。日中に比べて早朝と夕方の NO フラックスが高いという、 $0.07-0.29 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 程度範囲のフラックスの日変動も認められている⁽⁵⁸⁾。このため、 N_2O と同様に推定 NO 放出量の過少もしくは過大評価の可能性はあるものの、2年間同様の季節推移だったことから、 N_2O とは異なり NO は施肥後のみフラックスが上昇する季節推移であったことが示された。

無積雪期と比べて積雪期の N_2O フラックスは低く推移し、2000年の融雪期には N_2O フラックスの上昇は認められなかった(図10)。積雪を取り除いて土壤凍結させた場合は凍結土壤の融解期に著しい N_2O 放出が起こったが、攪乱しなかった場合は積雪により土壤は凍結せず、融雪期の N_2O フラックスの上昇も小さかったことが報告されている⁽⁸⁰⁾。従って、積雪地域では土壤凍結地域よりも春先の N_2O 放出リスクが低いことが推察された。

2) N_2O と NO の生成過程

施肥直後の N_2O フラックスの上昇時は、表層土壤中の NH_4^+ 濃度の上昇と NO_3^- 濃度低下がおり、この N_2O フラックスの上昇は無施肥区では認められなかったことから、施肥直後の N_2O 放出は施肥窒素の硝化に由来すると考えられた(図3, 8)。同様に、Smith ら⁽¹²⁰⁾ は施肥土壤では施肥直後に N_2O フラックスが上昇したが、無施肥土壤では顕著な N_2O フラックスの上昇が認められなかったことを示している。一方、収穫期前後の N_2O 放出時は、土壤中の NH_4^+ および NO_3^- 濃度の推移に様の傾向が無く、施肥の有無に関わらず N_2O フラックスの上昇が認められたことから、これは施肥窒素の硝化以外に起因したと考えられた(図3, 8)。Lipschultz ら⁽⁷⁸⁾ は硝化菌と脱窒菌の培養実験により、 N_2O/NO 生成比は硝化菌では $0.2-1.0$ 、脱窒菌では 100 程度であると報告した。Akiyama ら⁽³⁾ はフラックスの N_2O/NO 比は土壤水分と正の関係にあることを報告した。他の研究でも、土壤水分が上昇すると NO よりも N_2O フラックスが大きく上昇することを示している^(15, 16, 47)。これらは、フラック

スの $\text{N}_2\text{O}/\text{NO}$ 比が高い条件では硝化菌よりも脱窒菌の活動が活発になることを示している。本調査地において、降水量が増加する収穫期前後ではフラックスの $\text{N}_2\text{O}/\text{NO}$ 比も高く推移しており、収穫期前後の N_2O 放出は脱窒に由来したと考えられる (図 3, 4, 6)。主に脱窒で N_2O が生成されたと考えられる時期に行った空間変動の調査では、水溶性の NO_3^- および NH_4^+ と N_2O フラックスの間に有意な相関関係はなかったが、可溶性窒素量および全窒素と N_2O フラックスの間に有意な正の相関関係が得られ (表 6)、土壌中の窒素量が多いほど大きな N_2O 放出が起こることが示唆された。

NO 生成は主に硝化過程で起こると報告されており⁽¹¹⁸⁾、施肥直後に施肥区のみで NO フラックスが著しく上昇した本結果と一致した (図 8)。 NO は不安定で酸化されやすい物質であるため、砂質土壌でガス拡散性が高い土壌で NO 放出量が大きかったことが報告されている⁽¹¹²⁾。本圃場において、 NO フラックスは土壌中 NO_3^- 濃度と気相率が高く、土壌水分が低い条件で上昇しており、施肥窒素の硝化過程で生成された NO が土壌から大気へ放出されたと考えられた (図 3, 表 3)。

3) N_2O フラックスに影響を与えた要因

地温 $20\text{--}40^\circ\text{C}$ の範囲では、地温の上昇に伴い N_2O 生成速度は上昇する⁽³⁰⁾。 N_2O フラックスと地温の間に有意な正の関係が認められたことから (表 3)、地温上昇に伴う土壌中 N_2O 生成速度の上昇により N_2O フラックスが上昇したことが示された。

Linn と Doran⁽⁷⁷⁾ は WFPS が 60 % 以上の場合、土壌水分の上昇に伴い脱窒活性が高まることを報告した。本研究では土壌水分と N_2O フラックスの間に有意な関係は認められなかったが、収穫期前後の大雨による土壌水分上昇時に著しい N_2O フラックスの上昇が認められた (表 3, 図 3)。また、 N_2O フラックスと土壌水分および地温の重回帰分析では有意な関係が得られたことから、 N_2O フラックスの上昇は地温と土壌水分の上昇に伴って起こることが示された。Smith ら⁽¹²⁰⁾ は地温が高い条件であっても、乾燥条件では N_2O フラックスが低かったことを示している。このように、土壌水分と地温の両方が N_2O 放出に大きな影響を与えていることが示唆された。

降雨や灌漑による土壌への水添加によって大きな N_2O および NO 放出が起こるといわれている^(8, 75, 124, 134, 136)。培養実験では、圃場で乾燥した土壌に水を加えた後数分以内に N_2O および NO の生成が認められている⁽¹⁶⁾。サバンナの乾季後期における圃場調査では、水添加後 30 分以内に N_2O および NO フラックスが大きく上昇し、このピークは 2-5 時間続いたことが報告されている⁽¹¹²⁾。本研究では特に 7-8 月の降水量増加期に N_2O フラックスが上昇した (図 3)。しかし、1998 年 7 月の降雨前後の調査では降雨後に土壌水分は上昇したが N_2O フラックスは低下した。乾燥土壌が湿っていく過程で N_2O が放出されることから^(16, 112)、降雨は重要な因子であるが、これだけでは N_2O 放出を十分に説明できないと考えられる。一方で、推定月別余剰水量と月別 N_2O 放出量の間には有意な相関関係が得られ (図 4)、降水量および蒸発散量が N_2O 放出に大きな影響を与える気象要因であることが推察された。Scholes ら⁽¹¹²⁾ は、乾季に微生物が利用可能な窒素基質の蓄積が起こったために、雨季に入って初めの降雨後に大きな N_2O 放出が生じたと報告した。このように、土壌の乾湿過程における微生物活性、拡散や土壌水分といった土壌の物理性等の N_2O 放出に影響を与える要因の変化が、 N_2O の生成と放出を支配していたと考えられた。

有機物を加えると N_2O の大きな放出が起こるといわれている^(20, 124)。Thomson ら⁽¹²⁴⁾ は植物残渣を加えたとき、 CO_2 フラックスの上昇後に N_2O フラックスの上昇を認めた。また有機物は従属栄養の脱窒菌の水素供与体として、また有機物分解による酸素消費により、脱窒を促進するといわれている⁽²⁸⁾。さらに Bremner⁽¹⁰⁾ は、大部分の鉱質土壌における脱窒の制限要因は、脱窒菌が NO_3^- を還元する際に必要とする有機物であり、水溶性有機物または易分解性有機物の供給が脱窒を支配しているとも報告している。灰色低地土の収穫期前後において、植栽区では無植栽区よりも N_2O 放出量が大きく (図 8)、 N_2O フラックスと CO_2 フラックスの間には時系列および空間変動の両方において有意な正の関係が認められ、チャンバー内にタマネギを含むかどうかの条件が同じ場合は、回帰直線の傾きは年次によらず同程度であり、時系列と空間変動それぞれの回帰直線も同程度の傾きだった (表 3, 6, 図 5, 9)。従っ

て、 N_2O フラックスと CO_2 フラックスの関係は年次や空間変動によらず一定であり、 CO_2 フラックスが上昇する条件で N_2O フラックスが上昇したことが推察された。また、空間変動の調査時に N_2O フラックスと土壤中の全炭素含有量の間に有意な正の相関関係が得られ (表6)、有機物が多い場所で N_2O 生成が活発だったことが推察された。これより、作物残渣等の有機物の供給により微生物活性が高まった結果、脱窒による N_2O 生成が促進されたと考えられた。

4) 無積雪期の N_2O 放出量

調査した6年間において、灰色低地土の無積雪期における N_2O 放出量の範囲は $0.35\text{--}1.56\text{ g-N m}^{-2}$ であり、年次変動が大きかった (表4)。積雪期 (12-3月) の推定 N_2O 放出量は無積雪期 (4-11月) の約1.2%程度であり、年間 N_2O 放出量の大部分は無積雪期に放出されたと考えられた。しかしながら、雪上のフラックスを測定した事例は少なく、土壤凍結した場合は凍結土壤の融解時に著しい N_2O 放出が起こったことも指摘されていることから⁽⁸⁰⁾、今後、融雪期の N_2O フラックスの推移を明らかにする必要があると考えられた。測定した2年間の NO 放出量も3倍程度の違いがあり、 N_2O と同様年次変動が大きいと考えられた。これに比べて CO_2 放出量はチャンバー内のタマネギの有無が同一の条件では毎年同程度であった (表4)。積算 N_2O 放出量の推移は CO_2 放出量に比べて変動が大きかったが、8月以降の放出量が大い傾向は毎年同じであった (図7)。従って、これまで議論してきたように N_2O フラックスは降雨パターンの影響を強く受けたが、降

雨のタイミング、降雨時の土壤水分や土壤中の窒素および有機物の存在量によってフラックスの大きさが異なったことが、無積雪期の N_2O 放出量の変動の原因であったと考えられた。また、既往の報告^(81,106)と同様に、土壤から大気への N_2O フラックスの空間変動は CO_2 フラックスと比べて大きかった。同一年次内はある程度固定した場所で調査を行ったが、調査場所が移動した年もあったことから、年次変動の一部に空間変動も含まれたと考えられた。従って、 N_2O フラックスの季節推移や放出量を見積もる際は、過小または過大評価をする危険性は残るが、一様の傾向を掴むためには、ある程度固定した場所で測定を行うことも必要だと考えられた。他の事例の N_2O 放出量との比較は第8章総合考察で行った。

5. 結論

1995-2000年における無積雪期の N_2O 放出量は $0.35\text{--}1.56\text{ g-N m}^{-2}$ で、これは施肥窒素量の1-3%程度に相当した。土壤中の NH_4^+ および NO_3^- 濃度、フラックスの N_2O/NO 比、施肥および植栽の異なる区のフラックスの推移等の比較から、収穫期前後 (8-10月) は主に脱窒で生成された N_2O が土壤から大気へ放出されており、比較的地温が高いこの時期は、土壤中余剰水分が多く、作物残渣による有機物供給等、微生物活性を高める要因が揃うため脱窒による N_2O 生成が活発化し、著しい N_2O 放出が起こったと考えられた。本圃場では施肥直後 (5月) よりも施肥をしていない収穫期前後の N_2O 放出量が大きく、年間 N_2O 放出量を見積もる際には、年間を通した N_2O フラックスの測定が必要である。

Ⅳ 黒ボク土からの一酸化二窒素および一酸化窒素放出量の推定 および放出要因の解明

1. はじめに

Ⅲでは北海道中央部の灰色低地土タマネギ畑において、施肥後よりも収穫期前後に大きな N_2O 放出が起こり、この収穫期前後の N_2O 放出は主に脱窒に由来することを報告した。このような N_2O フラックスの季節推移には北海道の降雨パターンが大きな影響を与えていたことが推察されたため、北海道中

央部の他の畑においても N_2O フラックスが同様の季節推移をするのかを検証する必要がある。また、鶴田⁽¹²⁷⁾は日本各地の畑地からの N_2O 放出量を取りまとめた際に、HatanoとSawamoto⁽³⁹⁾や北海道立農業試験場の報告⁽⁴⁵⁾では栽培期間の後半において N_2O フラックスの上昇が認められており、このような地域では他の地域よりも N_2O 放出量と施肥窒

素に対する放出割合が高いことが特徴であると報告している。茨城県つくば市の黒ボク土の畑からの N_2O 放出量は 0.016 g-N m^{-2} 程度と報告されており⁽³⁾、これはⅢで示した灰色低地土からの N_2O 放出量 $0.35\text{--}1.56 \text{ g-N m}^{-2}$ と比べて非常に低い値であった。北海道立農業試験場の調査では、火山放出物未熟土と比べて灰色低地土からの N_2O 放出量は大きく⁽⁴⁵⁾、土壌の種類が N_2O 放出に大きな影響を与えていたことが考えられる。従って、畑地からの N_2O 放出パターンの解明やモデル等を用いた N_2O 放出量の予測を進めていくためには、土壌の違いが N_2O フラックスの季節推移、放出メカニズムおよび無積雪期の N_2O 放出量にどのような影響を与えているのかを解明することが必要である。そこで、本章ではⅢで調査した灰色低地土と同様に北海道中央部に位置する黒ボク土トウモロコシ畑において1998–2000年の無積雪期に N_2O と NO フラックスおよびそれに関連する要因を調査し、灰色低地土と同様に栽培期間後半に N_2O フラックスの著しい上昇が認められるのか、 N_2O 放出の主要因は何であるのかを解明するとともに、無積雪期の N_2O 放出量を推定することを目的とした⁽⁷¹⁾。また、年間放出量を推定するために2000年の積雪期にフラックスの測定を行った。

2. 材料と方法

1) 調査地概要

主な内容は、Ⅱ 1. 調査地概要に記載した。本圃場は化学肥料の施用時に畝立てされ、畝幅は 0.75 m 、畝間は 0.25 m であり畝部と畝間（以下株間と畝間）において調査を行った（図1）。毎年無積雪期（4–11月）に調査を行った。

2) ガスフラックスおよび土壌の物理性等の経時的な調査

土壌から大気へのガスフラックスの測定についてはⅡ 3. ガスフラックスの測定に記載した。チャンバー内にはトウモロコシの地上部を含めなかった。土壌の物理性や表層土壌の NO_3^- 、 NH_4^+ 濃度等の測定および余剰水分量の推定についてはⅡ 2. 土壌の物理性等の測定に記載した。

3. 結果

1) 降雨、土壌水分および地温の季節推移

降水量の推移には年次変動があったが、7月以降に降雨頻度が高まり、降水量は7–9月に増加する傾向だった（図11）。1998、1999年に比べて2000年の降水量は多かった（表7）。9月以降は蒸発散量が低下したため、降水量と蒸発散量の差（余剰水量）は9および10月に増加した（図12）。1998年には9月中旬に、1999年と2000年においては7月中旬に大雨が降り（図11-a）、WFPSは畝間で80%以上、株間で60%以上となった。WFPSは降水量の少なかつた施肥後では低く推移し、降水量が増加した夏期および収穫期前後では高く推移した。WFPSは常に株間より畝間で高く推移した（paired t-test: $|t| = 4.22, p < 0.01, n = 52$ ）（図11-a）。深さ 0.1 m の地温は春から夏にかけて上昇、夏から冬にかけて低下した（図11-b）。調査期間の深さ 0.1 m の地温の範囲は、株間で $0.6\text{--}26.4 \text{ }^\circ\text{C}$ 、畝間で $0.6\text{--}25.6 \text{ }^\circ\text{C}$ であり、平均値はそれぞれ $16.6 \text{ }^\circ\text{C}$ および $16.5 \text{ }^\circ\text{C}$ であった。畝間より株間の地温が少し高い傾向だった（paired t-test: $|t| = -1.98, p = 0.05, n = 56$ ）。WFPSおよび地温ともに年次間では有意な差は認められなかった（表7）。

2) トウモロコシによる窒素吸収と土壌中の無機態窒素濃度の季節推移

トウモロコシの窒素吸収量は7–9月に大きく増加した（図11-b）。1998–2000年における平均窒素吸収量は 20 g-N m^{-2} （範囲： $13\text{--}29 \text{ g-N m}^{-2}$ ）であった。株間土壌の NH_4^+ 濃度は施肥直後に大きく上昇し、最高値（ $210\text{--}460 \text{ mg-N kg}^{-1}$ ）に達し、その後 10 mg-N kg^{-1} 以下まで低下した。株間土壌の NO_3^- 濃度は NH_4^+ 濃度よりも遅れて上昇し、6–7月に最高値（ $180\text{--}230 \text{ mg-N kg}^{-1}$ ）に達した。 NH_4^+ 濃度と同様に、その後は 10 mg-N kg^{-1} 以下まで低下した（図11-c, d）。化学肥料が施用されなかつた畝間では、土壌中 NH_4^+ 濃度の急激な上昇はなく $0\text{--}60 \text{ mg-N kg}^{-1}$ の範囲だった。また、畝間土壌の NO_3^- 濃度の小さな上昇が6–7月に認められた。

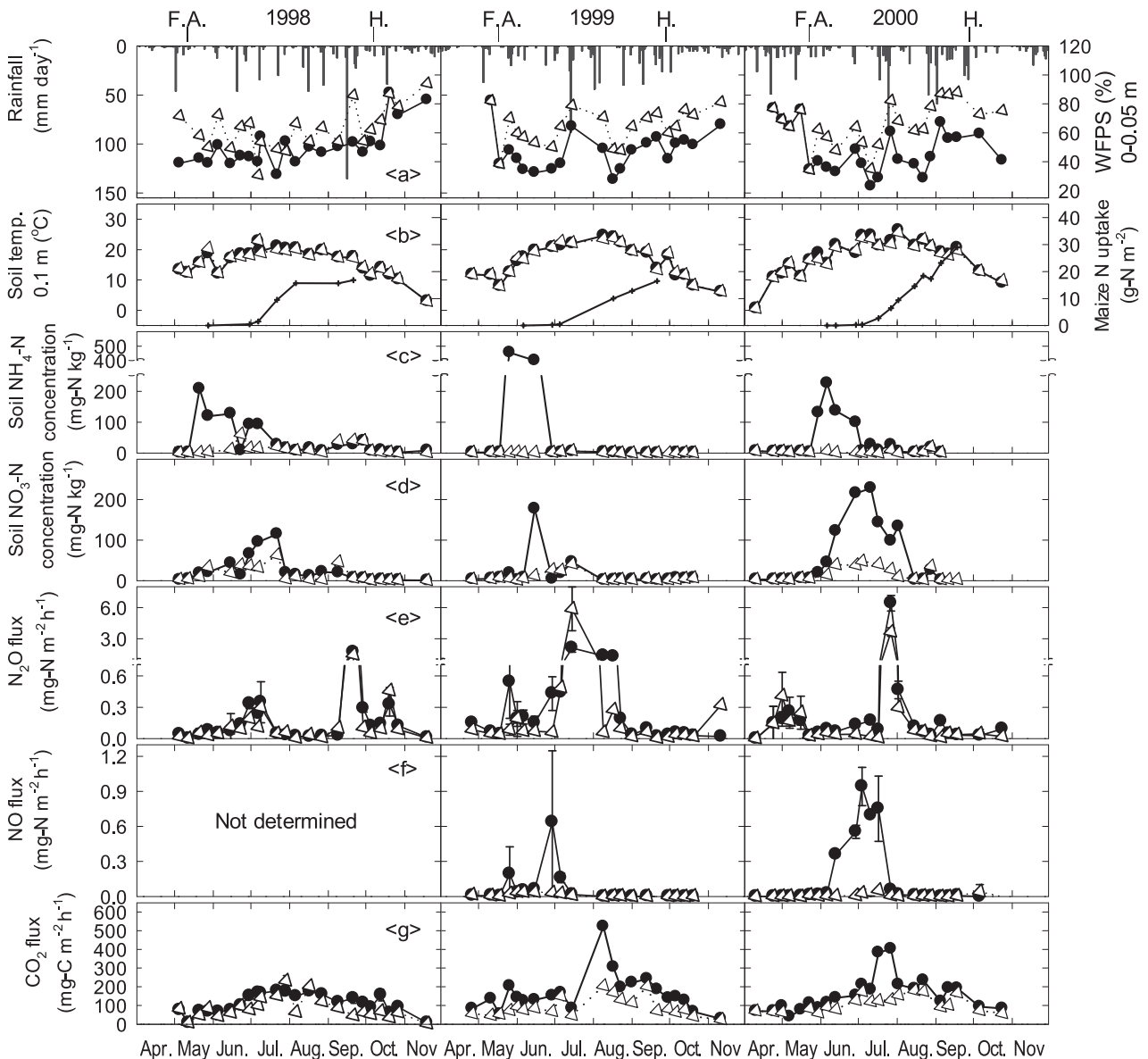


図 11 黒ボク土におけるガスフラックスと他の要因の季節推移 (1998-2000)

(a) は日降水量と土壌水分 (WFPS), (b) は深さ 0.1m の地温とトウモロコシの窒素吸収量, (c) 表土のアンモニウム濃度, (d) 表土の硝酸濃度, (e) N_2O フラックス, (f) NO フラックス, (g) 土壌呼吸速度を示す。●と△は株間および畝間のデータ, (a) の棒グラフおよび (b) の+はそれぞれ降水量と窒素吸収量を示す。ガスフラックスのエラーバーは標準偏差を示す。F.A. は施肥, H は収穫時期を示す。

3) N_2O および NO フラックスの季節推移

N_2O フラックスは, 1998 年では 9 月中旬, 1999 年と 2000 年では 7-8 月に著しく上昇し, それほどの年も 80 mm day^{-1} を超える大雨直後だった (図 11-a, e)。株間および畝間の平均 N_2O フラックスは, それぞれ $0.30 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (範囲: $0.00\text{--}6.42 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$) および $0.26 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (範囲: $0.00\text{--}5.87 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$) であった。株間と畝間の N_2O フラックスの間には有意な差はなかった (paired t-test: t

$= 0.74, p = 0.46, n = 66$)。 N_2O とは異なり, NO フラックスの大きさおよび季節推移は株間と畝間で大きく異なった (図 11-f)。畝間では顕著な NO 放出は認められなかったが, 株間では施肥後の 6-7 月に大きな NO 放出が起こった。1999-2000 年の平均 NO フラックスは株間および畝間においてそれぞれ $0.07 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (範囲: $0.00\text{--}0.94 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$) および $0.00 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (範囲: $0.00\text{--}0.05 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$) であった。株間の NO フラックスは畝間よ

表7 黒ボク土の無積雪期における気温、降水量、土壌水分等（1998-2000）

年次	(単位)	1998	1999	2000
<i>気象要因 (4-11月)</i>				
平均気温	(℃)	13.2	13.8	13.6
降水量	(mm)	765	769	1035
<i>株間</i>				
深さ 0.1m の地温				
平均	(℃)	16.0	16.2	17.7
範囲	(℃)	(3.0-22.8)	(6.1-24.6)	(0.6-26.4)
分散		20.9	31.4	37.3
分散分析の結果		n.d.	n.d.	n.d.
深さ 0.05-0.1m の WFPS				
平均	(%)	50.5	47.4	48.1
分散		200	178	257
分散分析の結果		n.d.	n.d.	n.d.
<i>畝間</i>				
深さ 0.1m の地温				
平均	(℃)	16.0	16.3	17.4
範囲	(℃)	(2.9-23.0)	(6.2-23.8)	(0.6-25.6)
分散		19.7	30.7	33.9
分散分析の結果		n.d.	n.d.	n.d.
深さ 0.05-0.1m の WFPS				
平均	(%)	62.8	64.2	66.1
分散		224	148	233
分散分析の結果		n.d.	n.d.	n.d.

n.d は 5% 水準で有意な差が無いことを示す。

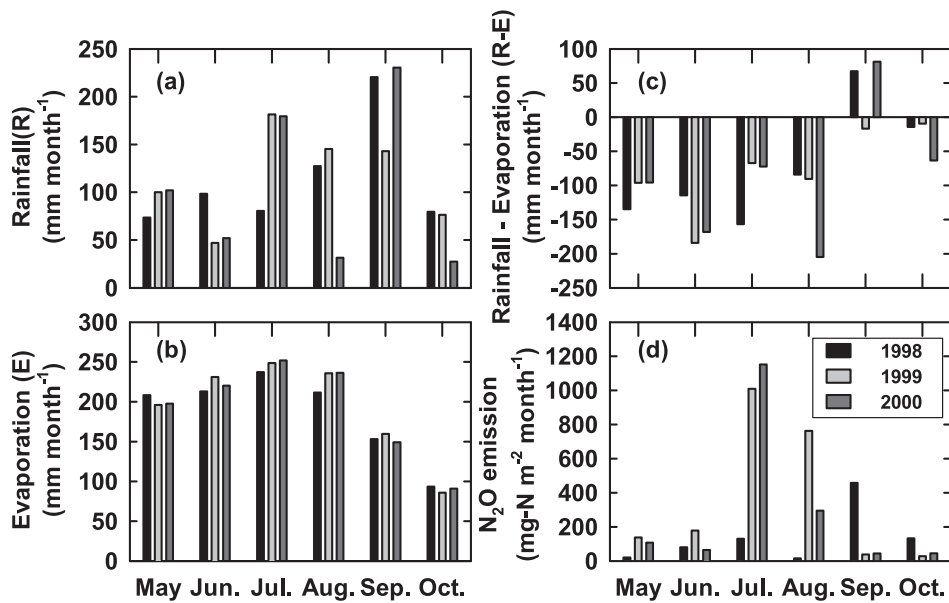


図12 黒ボク土における月別の余剰水分量および N₂O 放出量等の推移（1998-2000）

(a) は月期降水量, (b) は月降水量と蒸発量の差, (c) 月蒸発量, (d) 月 N₂O 放出量を示す。

りも有意に高かった (paired t-test: $|t| = 2.79, p < 0.01, n = 43$). 月別 N_2O 放出量は1998年では9月, 1999および2000年では7月に最大となり, その年の月降水量が最大になった月と一致した (図12). 余剰降水量と株間の N_2O 放出量の間には有意な関係は無かった.

4) CO_2 フラックスの季節推移

CO_2 フラックスは5-7月に上昇し, 9-11月に低下した (図11-g). 1998-2000年の株間および畝間

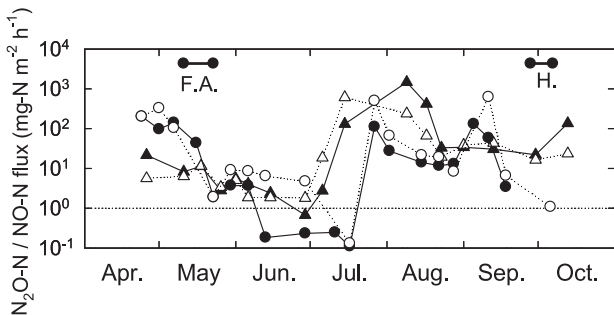


図13 黒ボク土におけるフラックスの $N_2O-N/NO-N$ 比の季節推移 (1999-2000)

▲および△は1999年の株間および畝間, ●および○は2000年の株間および畝間の値を示す. F.A. は施肥, Hは収穫時期を示す.

の平均 CO_2 フラックスは, それぞれ $140 \text{ mg-C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (範囲: $7.1\text{-}520 \text{ mg-C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$) および $95 \text{ mg-C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (範囲: $2.0\text{-}230 \text{ mg-C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$) であった. トウモロコシの定植後の CO_2 フラックスは畝間より株間で有意に高く推移した (paired t-test: $|t| = 5.93, p < 0.01, n = 56$).

5) N_2O と NO フラックスの比 ($N_2O-N/NO-N$) の季節推移

フラックスの $N_2O-N/NO-N$ 比は施肥後の5月下旬から6月に低く, 7月中旬以降に上昇した (図13). 施肥直後の5月中旬から7月上旬におけるフラックスの $N_2O-N/NO-N$ 比の平均値は, 株間では3.0 (1999) および1.4 (2000), 畝間では5.4 (1999) および4.4 (2000) だった (表8). 7月中旬から10月におけるフラックスの $N_2O-N/NO-N$ 比の平均値は, 株間では290 (1999) および46 (2000), 畝間では130 (1999) および180 (2000) だった. フラックスの $N_2O-N/NO-N$ 比は, 施肥直後から7月中旬までは畝間よりも株間で低く (paired t-test: $|t| = 2.02, p = 0.06, n = 14$), 7月下旬以降は同程度であった (paired t-test: $|t| = 0.4, p = 0.89, n = 15$).

表8 黒ボク土の N_2O および NO 放出量と放出量の $N_2O-N/NO-N$ 比 (1999-2000)

年次	5月中旬 - 7月上旬		7月中旬 - 10月	
	1999	2000	1999	2000
株間				
放出量の $N_2O-N/NO-N$ 比				
平均	3.0	1.4	290	46
ガス放出量				
N_2O (g-N m ⁻²)	0.34	0.15	1.77	1.45
NO (g-N m ⁻²)	0.24	0.55	0.03	0.11
無積雪期の放出量に対する各時期の放出量の割合				
N_2O (%)	16	8.5	82	84
NO (%)	89	83	10	17
畝間				
放出量の $N_2O-N/NO-N$ 比				
平均	5.4	4.4	130	180
ガス放出量				
N_2O (g-N m ⁻²)	0.13	0.15	2.57	0.84
NO (g-N m ⁻²)	0.04	0.02	0.01	0.03
無積雪期の放出量に対する各時期の放出量の割合				
N_2O (%)	4.7	6.6	91	79
NO (%)	72	34	18	64

6) ガスフラックスと環境要因の関係

株間において N_2O フラックスの対数値と有意な相関関係が認められた項目は地温のみであった (表 9)。畝間では N_2O フラックスの対数値と WFPS の間に正の相関関係が認められた。 N_2O フラックスを目的変数、深さ 0.05 m の地温と深さ 0-0.05 m の WFPS を説明変数としたときの重回帰分析では 5% 水準で有意な関係が得られた (株間: $N_2O \text{ flux} = -2.21 + 0.078 \times \text{地温} + 0.023 \times \text{WFPS}$, $r = 0.41$, $p < 0.05$, $n = 63$, 標準偏回帰係数 地温 0.48, WFPS 0.39, 畝間: $N_2O \text{ flux} = -2.89 + 0.071 \times \text{地温} + 0.033 \times \text{WFPS}$, $r = 0.52$, $p < 0.05$, $n = 62$, 標準偏回帰係数 地温 0.42, WFPS 0.55)。株間では NO フラックスの対数値と地温および土壤中 NH_4^+ および NO_3^-

濃度の間に有意な正の相関関係、WFPS との間に有意な負の相関関係が認められた (表 9)。畝間では NO フラックスの対数値と土壤中 NO_3^- 濃度の間に有意な正の関係が認められた。株間と畝間両方において、 CO_2 フラックスの対数値と地温の間に正の相関関係、WFPS との間に負の相関関係が認められた。株畝間ともに、フラックスの $N_2O-N/NO-N$ 比の対数値と WFPS の間に有意な正の相関関係が認められた (表 9)。さらに株間ではフラックスの $N_2O-N/NO-N$ 比の対数値と土壤中 NH_4^+ および NO_3^- 濃度の間にも有意な相関関係が認められた。1998 年を除き、株間では N_2O フラックスと CO_2 フラックスの対数値の間に有意な相関関係が得られたが、畝間では有意な関係はなかった (図 14)。株間

表 9 黒ボク土におけるガスフラックスの対数値とその他の要因の相関関係

	Log (N_2O フラックス)		Log (NO フラックス)		Log (CO_2 フラックス)		Log (フラックスの $N_2O-N/NO-N$ 比)	
	株間	畝間	株間	畝間	株間	畝間	株間	畝間
地温 (0.1m)	$r=0.47^{**}$	$r=0.17$	$r=0.47^{**}$	$r=0.27$	$r=0.76^{**}$	$r=0.73^{**}$	$r=-0.10$	$r=0.16$
WFPS (0-0.05 m)	$r=0.00$	$r=0.30^*$	$r=-0.48^{**}$	$r=-0.32^*$	$r=-0.44^{**}$	$r=-0.44^{**}$	$r=0.52^{**}$	$r=0.55^{**}$
土壤中の NO_3-N 濃度	$r=0.17$	$r=0.06$	$r=0.64^{**}$	$r=0.40^*$	$r=0.24$	$r=0.19$	$r=-0.57^{**}$	$r=-0.17$
土壤中の NH_4-N 濃度	$r=0.09$	$r=0.25$	$r=0.33^*$	$r=0.09$	$r=-0.04$	$r=0.03$	$r=-0.33^*$	$r=0.17$

*と**はそれぞれ $p < 0.05$ と $p < 0.01$ を示す。

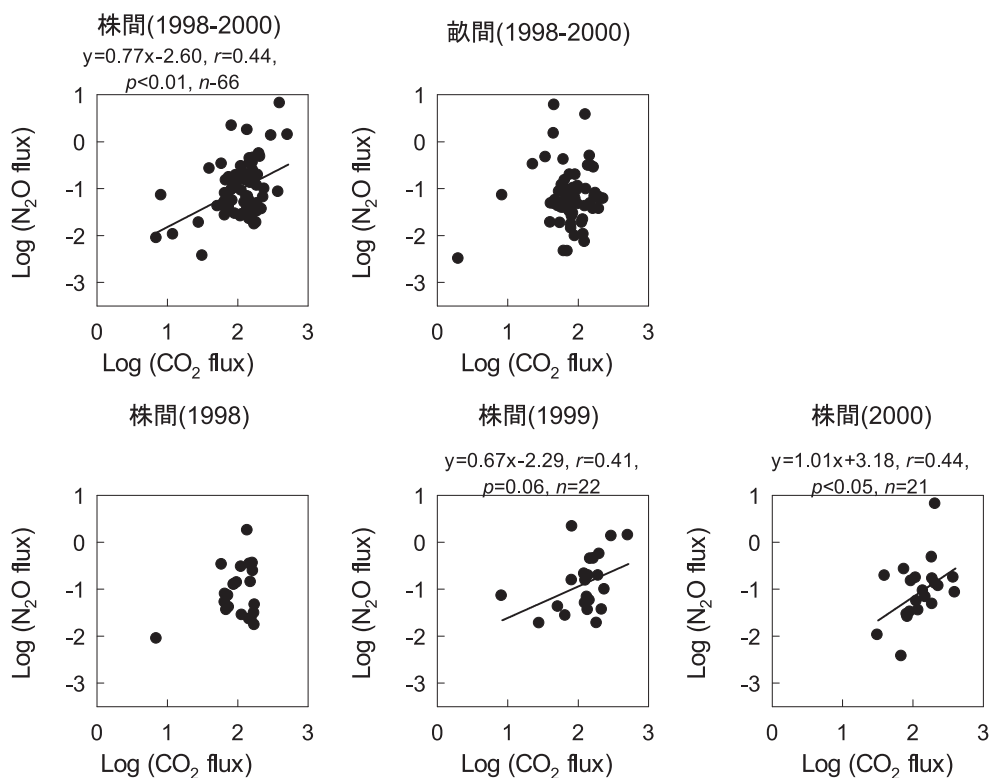


図 14 黒ボク土における N_2O フラックスと CO_2 フラックスの対数値の関係

の回帰式の傾きは0.8前後だった。

7) 無積雪期におけるガス放出量の推定

1998-2000年における無積雪期(4-11月)の平均 N_2O 放出量は株間及び畝間で、それぞれ 1.6 g-N m^{-2} ($0.87\text{--}2.2 \text{ g-N m}^{-2}$) および 1.5 g-N m^{-2} ($0.73\text{--}2.8 \text{ g-N m}^{-2}$) であった(表10)。化学肥料が施用された株間と施用されなかった畝間の無積雪期における

N_2O 放出量は同程度であり、季節推移も同様だった(図15)。フラックスの $N_2O\text{-N}/NO\text{-N}$ 比が低下した施肥直後(5月中旬-7月上旬)の N_2O 放出量は、無積雪期の N_2O 放出量の20%以下であり、 N_2O フラックスが著しく上昇し、フラックスの $N_2O\text{-N}/NO\text{-N}$ 比が上昇した(7月中旬-10月)の N_2O 放出量は、無積雪期の N_2O 放出量の80%以上を占めた(表8, 図13, 15)。調査した3年間において施

表10 黒ボク土における無積雪期の施肥窒素量, ガス放出量等 (1998-2000)

調査年次	(単位)	1998	1999	2000
調査日数	(day)	198	199	197
<i>株間</i>				
施肥窒素量				
化学肥料	(g-N m^{-2})	13.0	13.0	13.0
牛ふん堆肥	(g-N m^{-2})	3.0	3.0	3.0
ガス放出量				
N_2O	(g-N m^{-2})	0.87 ± 0.09	2.2 ± 0.24	1.7 ± 0.15
NO	(g-N m^{-2})	ND	0.27 ± 0.16	0.66 ± 0.06
N_2O+NO	(g-N m^{-2})	ND	2.4 ± 0.29	2.4 ± 0.16
施肥窒素量に対する放出窒素量の割合				
N_2O	(%)	5.4	14	11
NO	(%)	ND	1.7	4.1
N_2O+NO	(%)	ND	15.0	15.0
<i>畝間</i>				
施肥窒素量				
化学肥料	(g-N m^{-2})	0.0	0.0	0.0
牛糞堆肥	(g-N m^{-2})	3.0	3.0	3.0
ガス放出量				
N_2O	(g-N m^{-2})	0.73 ± 0.17	2.8 ± 0.86	1.1 ± 0.10
NO	(g-N m^{-2})	ND	0.05 ± 0.01	0.05 ± 0.02
N_2O+NO	(g-N m^{-2})	ND	2.9 ± 0.86	1.1 ± 0.10
施肥窒素量に対する放出窒素量の割合				
N_2O	(%)	24	94	36
NO	(%)	ND	1.7	1.7
N_2O+NO	(%)	ND	96	37
<i>圃場全体*</i>				
施肥窒素量				
化学肥料	(g-N m^{-2})	9.8	9.8	9.8
牛ふん堆肥	(g-N m^{-2})	3.0	3.0	3.0
トウモロコシの窒素吸収量	(g-N m^{-2})	13	17	29
ガス放出量				
N_2O	(g-N m^{-2})	0.83 ± 0.08	2.3 ± 0.28	1.6 ± 0.12
NO	(g-N m^{-2})	ND	0.21 ± 0.12	0.51 ± 0.05
N_2O+NO	(g-N m^{-2})	ND	2.6 ± 0.30	2.1 ± 0.13
N_2O+NO	(% for applied N)	ND	20	16

* 株間と畝間の幅はそれぞれ0.75および0.25 mであり、圃場全体の放出量は株間と畝間の面積を加重平均して求めた(図1参照)。NDはデータ無し、±は標準偏差を示す。

肥窒素に対する無積雪期の N_2O 放出量の割合は株間および畝間で、それぞれ 5.4-13.6 % および 24.3-94.0 % であった (表 10)。

無積雪期の NO 放出量は、畝間よりも株間で大きかった (表 10, 図 15)。株間では、フラックスの $N_2O-N/NO-N$ 比が低下する施肥直後 (5月中旬-7月上旬) に放出された NO は無積雪期に放出された NO の 80-90 % を占めた (表 8, 図 13)。施用窒素に対する NO 放出量の割合は、株間では 1.7 (1999) および 4.1 % (2000) であり、畝間では両年ともに 1.7 % であった (表 10)。

株間、畝間の両方において N ベースで NO よりも N_2O の放出量は大きかった。畝間と株間の面積を加重平均した算出した圃場面積当たりの無積雪期の N_2O および NO 放出量は、それぞれ $0.83-2.33 \text{ g-N m}^{-2}$ および $0.21-0.51 \text{ g-N m}^{-2}$ であった。圃場全体における施肥窒素量に対する N_2O と NO の合計放出量の割合は 20 % 程度だった (表 10)。

無積雪期の CO_2 放出量は株間では $0.53-0.82 \text{ kg-C m}^{-2}$ 、畝間では $0.40-0.50 \text{ kg-C m}^{-2}$ であり、畝間よ

りも株間の CO_2 放出量は大きかった (表 11)。畝間と株間の面積を加重平均して算出した圃場面積当たりの CO_2 放出量は $0.50-0.73 \text{ kg-C m}^{-2}$ であった。 CO_2 放出量の年次変動は N_2O や NO 放出量よりも小さかった。株間および畝間における CO_2 放出量の積算値の推移は、 N_2O および NO 放出量と異なり緩やかなシグモイド曲線を描いた。4-6月および7-9月の降水量は無積雪期の降水量の 25 % および 50 % 程度だった (図 15)。

8) 積雪期の N_2O 放出量の推定

2000年1-4月の積雪期の平均 N_2O フラックスは $0.005 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ であり、無積雪期の平均 N_2O フラックス $0.30 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ の 1/60 程度の大きさだった (図 16)。積雪期の N_2O フラックスを $0.005 \text{ mg N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、積雪期を 12-3月の4ヶ月と仮定したときの積雪期の N_2O 放出量は 0.015 g-N m^{-2} と見積もられ、これは無積雪期の平均放出量 0.83 g-N m^{-2} の 1.8 % 程度に相当した。

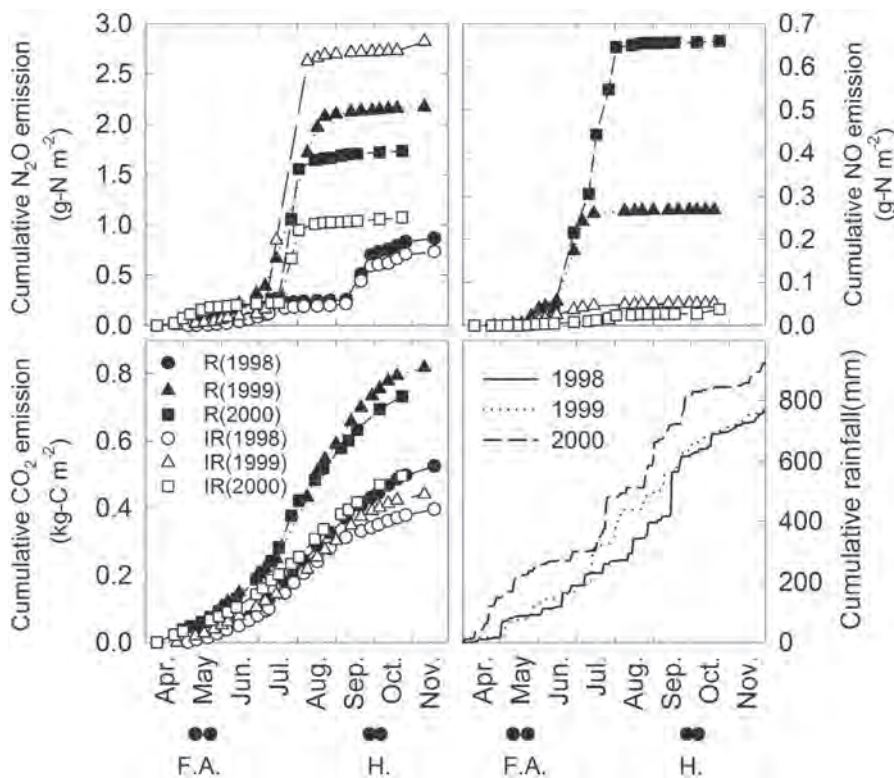


図 15 黒ボク土における積算ガス放出量の推移 (1998-2000)

図中の R は株間、IR は畝間の値を示す。F.A. は施肥、H は収穫時期を示す。

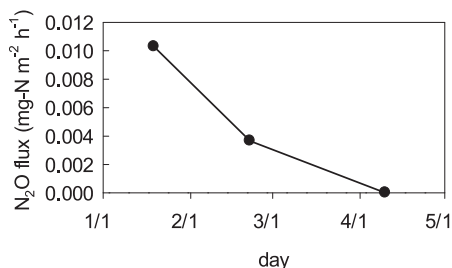


図16 黒ボク土における雪上調査下のN₂Oフラックス (2000)

例年の積雪期間は11月下旬から4月中旬

4. 考察

1) N₂O および NO フラックスの季節推移

Ⅲまででも述べたように、農耕地においては施肥直後に0.1-1.0 mg-N m⁻² h⁻¹程度の顕著な施肥窒素に由来するN₂Oフラックスの上昇が起こり、このフラックスの上昇が調査期間中において最高であったという報告は多い^(1, 2, 3, 26, 58, 75, 117, 120, 125, 136, 137)。本圃場の施肥後1月以内のN₂Oフラックスの最高値は0.08-0.54 mg-N m⁻² h⁻¹であり、上記の文献値と同等だった。これより、本圃場においても既往の報告と同様に施肥直後にN₂Oフラックスが上昇したことがわかる。本州の施肥された農耕地の多くでも、一年で最も大きいN₂Oフラックスの上昇は施肥直後に認められている^(2, 127)。一方で、本圃場では大雨後のN₂Oフラックスは1.73-6.42 mg-N m⁻² h⁻¹を示し、施肥直後の放出に比べて極めて高かった(図11-a, e)。同様に、施肥直後よりも降水量が増加する収穫期前後にN₂Oフラックスが上昇する季節推移は、Ⅲで述べた灰色低地土と同様であり、北海道ではこの他に東部の黒ボク土⁽⁶⁶⁾や中央部⁽⁴⁵⁾でもこのようなN₂Oフラックスの季節推移が報告されている。従って、降水量の増加時期または大雨後に起こる著しいN₂O放出は北海道の特徴である可能性が高い。また、本圃場では化学肥料は株間のみにも施用されたが、株間と畝間においてN₂Oフラックスは同様の季節推移を示した(図11)。

N₂Oと異なり、化学肥料を施用した株間では施肥直後にNOフラックスが著しく上昇した(図11-f)。同様に多くの施肥された農耕地において、施肥直後に著しいNO放出が認められている^(1, 2, 125, 127, 131, 135)。本圃場では株間のみにも局所的に化学肥料を施用したため、株間においてのみ施肥直後に著しくNOフ

ラックスが上昇した(図11-f)。

黒ボク土は通常午前11頃、灰色低地土は午後2時頃に調査を行ったため、昼または夕方にピークを持つと報告されているN₂Oフラックス^(7, 20, 108, 124)および早朝または夕方にピークをもつと報告されているNOフラックス^(12, 37)の日変動の影響を受け、これが両土壌の積算放出量に影響を与えている可能性も考えられるが、これまで報告されている日変動よりも季節変動や土壌間の違いの方が明らかに大きかった(図2, 10, Ⅲ章4-1)。

灰色低地土と同様に無積雪期と比べて積雪期のN₂Oフラックスは低く推移した(図15)。Maljanenら⁽⁸⁰⁾の報告のように雪上から大気へのN₂Oフラックスは低く、大気へ放出されたN₂Oの大部分が無積雪期に放出され、積雪期の寄与は小さかったと考えられた。

2) 土壌中におけるN₂OとNOの生成

株間では、施肥直後における施肥窒素の硝化に由来する土壌のNH₄⁺濃度の上昇低下とこれに続くNO₃⁻濃度の上昇時期にNOフラックスが著しく上昇した(図11)。この時期ではフラックスのN₂O-N/NO-N比は低く推移した(図13)。これより、施肥直後の主なN₂OとNOの生成過程は硝化だったと考えられた。逆にフラックスのN₂O-N/NO-N比が上昇する7月以降では、土壌のNO₃⁻濃度は低下または低い値で推移し、著しいN₂Oフラックスの上昇が認められた。N₂Oフラックスの著しい上昇が認められた大雨直後では(図11)、深さ0.0-0.05 mおよび0.05-0.1 mのWFPS値は脱窒が起こるとされる50%後半⁽¹⁵⁾を超えた。また、重回帰分析の結果、地温と土壌水分の上昇に伴いN₂Oフラックスが上昇することが示された。これより、N₂Oフラックスが上昇する7月以降のN₂O生成は主に脱窒によるものと考えられた。株間ではN₂OとCO₂フラックスの間に有意な正の相関関係が得られ、Ⅲの灰色低地土と同様に作物残渣由来の有機物供給や土壌微生物の呼吸が増加する条件下で脱窒が活性化したことが考えられた(図14)。

畝間は株間よりも常に土壌水分が高く推移したためガス拡散が抑制され、株間よりも相対的に嫌気的な条件だったと考えられる(図11-a)。また、化学肥料によるNH₄⁺の供給がなかったため、畝間では

株間よりも硝化の基質となる NH_4^+ 濃度が低かった。一方、畝間土壌の NO_3^- 濃度の小さな上昇が認められた (図 11-c, d) が、これは、株間で生成した NO_3^- が降雨によって溶脱したか、堆肥中窒素の無機化と硝化のどちらかあるいは両方によるものと考えられる。すなわち、畝間は株間よりも硝化は起こりにくい、脱窒は促進される条件であったと考えられた。このため、 N_2O フラックスは株間同様、夏から秋にかけて著しく上昇したが、主に硝化で生成される NO フラックスは測定期間を通して明確に上昇しなかったと考えられた (図 11-f, g)。

N_2O -N/ NO -N 比は7月中旬以降に上昇した (図 13)。この期間に放出された N_2O は主に脱窒で生成されたと仮定すると、積算 N_2O 放出量の 80% 程度は脱窒由来であると推察された (表 9)。

3) N_2O 放出に対する大雨の影響

N_2O 放出量よりも CO_2 放出量の年次変動は小さく、根呼吸と微生物呼吸に影響を与える因子の年次変動よりも N_2O 放出量に影響を与える因子の年次変動は大きかったことが示唆された (表 10, 11, 図 11, 15)。Ⅲの灰色低地土でも同様の傾向が認められた。これまでに、培養実験やサバンナの乾季における試験において乾燥土壌への水添加による N_2O 放出が認められている^(16, 112)。他の試験では、施肥後 30 日間の N_2O 放出量の年次変動は降雨パターンの違いに起因すること、施肥直後に降雨が無い場合はその後の降雨後に N_2O フラックスが顕著に上昇したことが報告されている^(2, 136)。Ⅲや本章 2. 3) で述べたように、降水量増加期に著しい N_2O フラックスの上昇が認められたことから^(39, 45, 66)、降雨による土壌への水分供給が N_2O 放出に与える影響は大きいと考えられる。図 12 に示したように、本調

査期間において日降水量の推移および積算降水量の年次変動は比較的大きく (図 11, 15)、毎年、降水量が最大であった月に N_2O 放出が最大となったことから (図 12)、降雨パターンと N_2O フラックスの季節推移が連動していたと考えられた。Ⅲの灰色低地土とは異なり、月別の余剰水量と N_2O 放出量の間に関連性はなく、これは多雨期に持続的な N_2O 放出が起こった灰色低地土と大雨後に一度だけ著しい N_2O 放出が起こった黒ボク土の N_2O 放出パターンの違いによるものと考えられた (図 3, 4, 11, 12)。

調査開始後の初めて日降水量が 80 mm を超えた直後に N_2O フラックスが著しく上昇した傾向は毎年同様だったが、 N_2O フラックスの大きさは年次により大きく異なった (図 11, 15)。1999 年と 2000 年の大雨 (7-8 月) は施肥窒素の硝化に由来する NO_3^- が土壌に多く存在した時期だった。一方、1998 年は土壌の NO_3^- 濃度が低い収穫期前後 (9-10 月) に大雨が降った (図 11)。これまでの議論から大雨直後の N_2O フラックスの上昇は脱窒によるものと推察されており、基質となる NO_3^- が多量に脱窒で生成される N_2O が増加したと考えられる。これより、1999 および 2002 年では、土壌に施肥窒素由来の NO_3^- が残存している条件下で、大雨により土壌へ多量の水が添加され、脱窒を活性化させる条件が揃ったため N_2O フラックスが 2-6 $\text{mg-N m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 程度まで大きく上昇したと考えられた。Scholes ら⁽¹¹²⁾ は乾季の土壌に水を加えると著しく NO と N_2O フラックスが上昇したが、 NO と N_2O の基質が急減するため乾季后一度だけの現象であると報告しており、黒ボク土でも調査期間中の最初の大雨で著しく脱窒が活発化し基質が急減したため、その後比較的大きい降雨があっても著しい N_2O フラックスの上昇が認められなかったと考えられた (図 11)。

表 11 黒ボク土の無積雪期における CO_2 放出量 (1998-2000)

調査場所 / 調査年次	CO_2 放出量 (kg-C m^{-2})		
	1998	1999	2000
調査日数 (days)	198	199	197
株間	0.53	0.82	0.73
畝間	0.40	0.44	0.50
圃場全体*	0.50	0.73	0.67

* 株間と畝間の幅はそれぞれ 0.75 および 0.25 m であり、圃場全体の放出量は株間と畝間の面積を加重平均して求めた (図 1 参照)。

4) 日本の黒ボク土における N_2O 放出量の調査事例との比較

日本の黒ボク土からの N_2O 放出量およびその施肥窒素量に対する割合は 0.034-0.082 g-N m^{-2} および 0.1-0.5 % と報告されている^(1, 2, 66, 127)。このような日本の黒ボク土の施肥窒素に対する N_2O 放出量の割合は、日本の黒ボク土以外の土壌や世界の土壌

に比べて、低いことが報告されている⁽²⁾。しかし、黒ボク土である本圃場の N_2O 放出量は $0.87\text{--}2.82\text{ g-N m}^{-2}$ 、その施肥窒素量に対する割合は $5.4\text{--}13.6\%$ (株間)、 $24.3\text{--}94.0\%$ (畝間) と高かった (表 5-3)。Koga ら⁽⁶⁶⁾ は北海道十勝地方の黒ボク土とⅢで示した北海道中央部の灰色低地土の N_2O 放出量 ($0.35\text{--}1.56\text{ g-N m}^{-2}$ ^(70,111)) の違いは、土壤水分に大きな影響を与える土壤の乾燥密度等の土壤物理性の違いに起因すると報告した。しかし、本黒ボク土の表層 0.05 m の乾燥密度は 0.78 Mg m^{-3} (株間) および 0.85 Mg m^{-3} (畝間) であり、 N_2O 放出量を調査した日本の黒ボク土の乾燥密度 $0.70\text{--}0.92\text{ Mg m}^{-3}$ ^(3,66) の範囲内だった。本圃場は地下 1.3 m に不透水層があり、常に地下水位が高く推移し、大雨時には地下水位が地表近くまで上昇した⁽⁵⁹⁾。 N_2O 放出量が報告されたつくば市や十勝地方の黒ボク土圃場は排水性が良い圃場であり^(2,66)、土壤水分に大きな影響を与える地下水位の高低の違いにより、 N_2O 放出量が大きく変化することが考えられた。これより、黒ボク土であっても本圃場のように地下水位が高く、排水性の悪い圃場では大きな N_2O 放出が起こると推察さ

れた。

5. 結論

化学肥料を施肥した株間と施肥しなかった畝間において N_2O フラックスの大きさと季節推移は同様であり、Ⅲの灰色低地土と同様に施肥後よりも大雨後に著しく N_2O フラックスが上昇した。反対に NO 放出は株間のみで認められた。土壤中 NH_4^+ および NO_3^- 濃度および N_2O と NO フラックスの比 ($N_2O\text{--}N/NO\text{--}N$) から、施肥直後は主に硝化により N_2O および NO が生成され、大雨後は主に脱窒で N_2O が生成されたと考えられた。 $2\text{--}6\text{ mg-N m}^{-2}\text{ h}^{-1}$ に達する著しく高い N_2O フラックスは比較的土壤中 NO_3^- 濃度が高い時期に大雨により土壤に多量の水が供給された結果だと考えられた。このように、 N_2O 放出量が比較的低いといわれている日本の黒ボク土においても、本圃場のように地下水位が高く排水性が悪い場合は大きな N_2O 放出が起こりうること、施肥後ではない時期に著しい N_2O フラックスの上昇が起こる季節推移は北海道の特徴である可能性が高いことが推察された。

V チャンバー法と拡散法で求めた土壤から大気へのガスフラックスの比較

1. はじめに

ⅢおよびⅣでは、土壤の異なる二つの畑地における土壤から大気への N_2O フラックスの季節変動、 N_2O 放出量および N_2O の放出要因について個別に検討を行った。しかしながら、畑地からの N_2O 放出パターンの解明やモデル等を用いた N_2O 放出量の予測を進めていくためには、 N_2O の土壤中での生成と大気への放出に土壤の違いがどのような影響を与えているのかを解明することが必要であり、そのためには土壤中での N_2O の移動を把握しなくてはならない。しかしながら、これまで検討してきたチャンバー法を用いた N_2O フラックスの測定では、土壤中の N_2O フラックスを測定することはできない。そこで、Fick の法則を用いて土壤中のガス濃度の濃度勾配からガスフラックスを計算する方法⁽³⁰⁾ (Ⅱ 3. のガスフラックスの測定で示した拡散法) による N_2O フラックスの測定に着目した。しかしながら、拡散法には次に述べるように土壤から

大気へのガスフラックスを測定する際の欠点が多く指摘されている。まず始めにチャンバー法と拡散法の概要について述べる。

チャンバー法の利点として、チャンバーが比較的安価で単純な構造であり、設置と撤去が簡単である上、電気の供給が不要であることが挙げられている⁽²⁴⁾。一方で、チャンバー法では、設置時に土壤表面を攪乱すること、クローズドチャンバー法では外気圧とチャンバー内の圧力が変わることで、チャンバー内のガス濃度が高い場合は土壤からのガス拡散が抑制されること、植物によっては設置が困難なことが不利点として挙げられている^(24,30)。近年では、Nakano ら⁽⁹¹⁾ によってチャンバーの設置時間等について議論され、自動開閉チャンバーを用いた土壤から大気へのガスフラックスの連続測定が行われている^(95,96)。このようにチャンバー法には利点・不利点があるが、 CH_4 や N_2O といった微量ガスの検出に優れているため⁽⁷⁴⁾、土壤から大気へのガスフラッ

クスの測定にはチャンバー法が用いられることが多い。

一方で、拡散法は土壌中のガスフラックスを測定できるものの、土壌中でのガス拡散性や土壌中の濃度勾配の不確かさや空間変動が大きい等の欠点が指摘されている^(6, 30, 48, 107)。表層でN₂Oの消費が起こった土壌ではチャンバー法と拡散法のN₂Oフラックスが大きく異なったなど、拡散法の有効性は土壌状態に依存すると報告されているが^(5, 6)、Maljanenら⁽⁸¹⁾のように、土壌から大気へのN₂Oフラックスをチャンバー法と拡散法の両方で一年以上測定した事例やN₂OとCO₂フラックスを同時に測定した事例はほとんどない。また、土壌中のN₂OやCO₂濃度を測定した事例の多くは土壌中の濃度分布からガスの生成部位を推定するにとどまっている^(29, 36, 57, 76, 88)。土壌中のガスフラックスは拡散法でしか測定できないが、前述のように土壌から大気へのガスフラックスの測定に対する拡散法の有効性はまだ議論が残されている。土壌の違いを比較するには土壌から大気および土壌中のフラックスの両方が必要であり、土壌から大気へのフラックスも拡散法で測定した値を用いることができるのかどうか検討する必要がある。

そこで、ⅢおよびⅣで調査を行った灰色低地土と黒ボク土において、チャンバー法と拡散法を用いてN₂OおよびCO₂フラックスを測定し、土壌から大気へのガスフラックスに対する拡散法の有効性を検討することを目的とし、得られた結果を基にⅥにおいて土壌から大気および土壌中のN₂OおよびCO₂フラックスを用いて、灰色低地土と黒ボク土のN₂O生成・放出メカニズムについて検討を行った⁽⁷²⁾。

2. 材料と方法

調査地概要およびチャンバー法と拡散法によるガスフラックスの測定法はⅡに示したとおりである。黒ボク土では株間で測定したフラックスについて比較を行った。

3. 結果

深さ0-0.05 mのD/D₀値の変動係数(CV)は50%程度であり、D/D₀は大きな季節変動を示した(表12)。同様に、深さ0.05 mのN₂O、CO₂濃度およびチャンバー法で測定したN₂O、CO₂フラックスも変動係数は大きかった(表12, 図17, 18, 19)。特に、CO₂よりもN₂Oの変動係数が大きい傾向だった。

表12 深さ0.05 mのN₂OおよびCO₂濃度と相対ガス拡散係数(D/D₀)

土壌	(単位)	灰色低地土				黒ボク土			
		平均	範囲	CV (%)	n	平均	範囲	CV (%)	n
深さ0-0.05 mのD/D ₀		0.11	0.00-0.22	48	115	0.12	0.00-0.26	56	61
深さ0.05 mのN ₂ O濃度	(10 ⁻⁶ m ³ m ⁻³)	2.2	0.1-21.3	140	96	8.3	0.1-92.5	260	35
深さ0.05 mのCO ₂ 濃度	(10 ⁻⁶ m ³ m ⁻³)	2060	780-10800	69	96	3410	910-9140	56	36

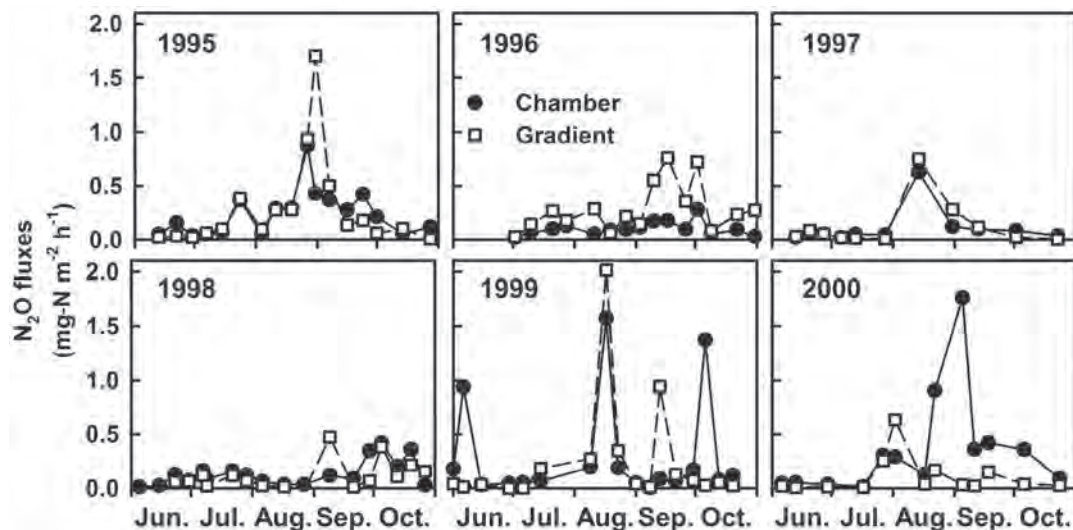


図17 灰色低地土におけるチャンバー法と拡散法で測定した土壌から大気へのN₂Oフラックスの季節推移(1995-2000) Chamberはチャンバー法, Gradientは拡散法を示す。

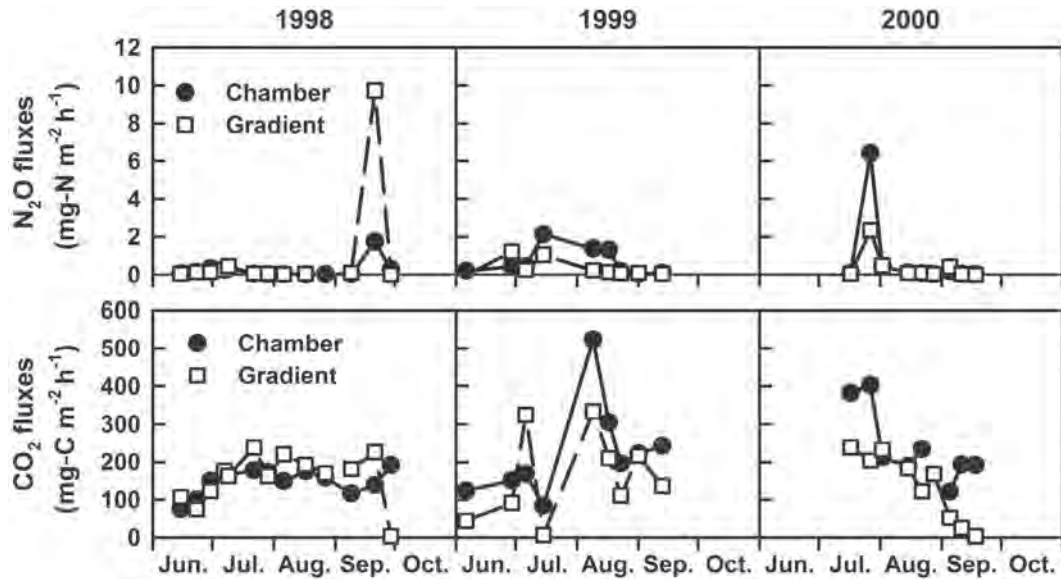


図18 黒ボク土におけるチャンバー法と拡散法で測定した土壌から大気への N_2O および CO_2 フラックスの季節推移 (1998-2000)

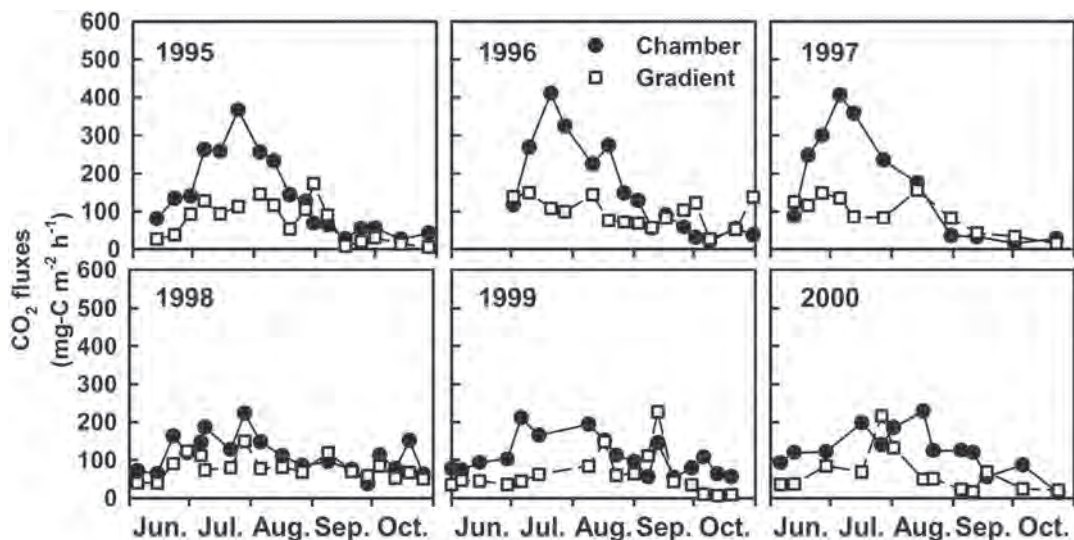


図19 灰色低地土におけるチャンバー法と拡散法で測定した土壌から大気への CO_2 フラックスの季節推移 (1995-2000)

両土壌において、チャンバー法と拡散法で求めた土壌から大気への N_2O フラックスは同様の季節推移を示した(図17, 18)。Smirnov-Grubbs' outlier test ($p < 0.01$)で外れ値となった $0.63 \text{ mg N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 以上の著しく高い N_2O フラックスを除くと、チャンバー法と拡散法で測定した N_2O フラックスの間には有意な正の相関関係が得られた($p < 0.01$, $r = 0.54$, $n = 104$) (図20)。しかしながら、 N_2O フラックスが著しく高い場合は、両方法で求めた N_2O フラックスに有意な関係は認められなかった(図20)。チャンバー法と拡散法で求めた N_2O フラックスの間には有意な差は認められなかった(paired t -

test: $|t| = 0.15$, $p = 0.88$, $n = 120$)。1995-1997年の灰色低地土ではチャンバーの中にタマネギを含めてフラックスの測定を行い、土壌空気採取管よりもチャンバーの方がタマネギに近い位置に設置された(図1)。このようなチャンバー内の植物の有無および植物とチャンバーの距離の違いは、チャンバー法と拡散法を用いた N_2O フラックスの測定に影響を与えなかった(図17, 18)。

両土壌において、チャンバー法と拡散法で求めた土壌から大気への CO_2 フラックスは同様の季節推移を示した(図19)。 N_2O と同様にチャンバー法と拡散法の間には有意な正の相関関係がえられた

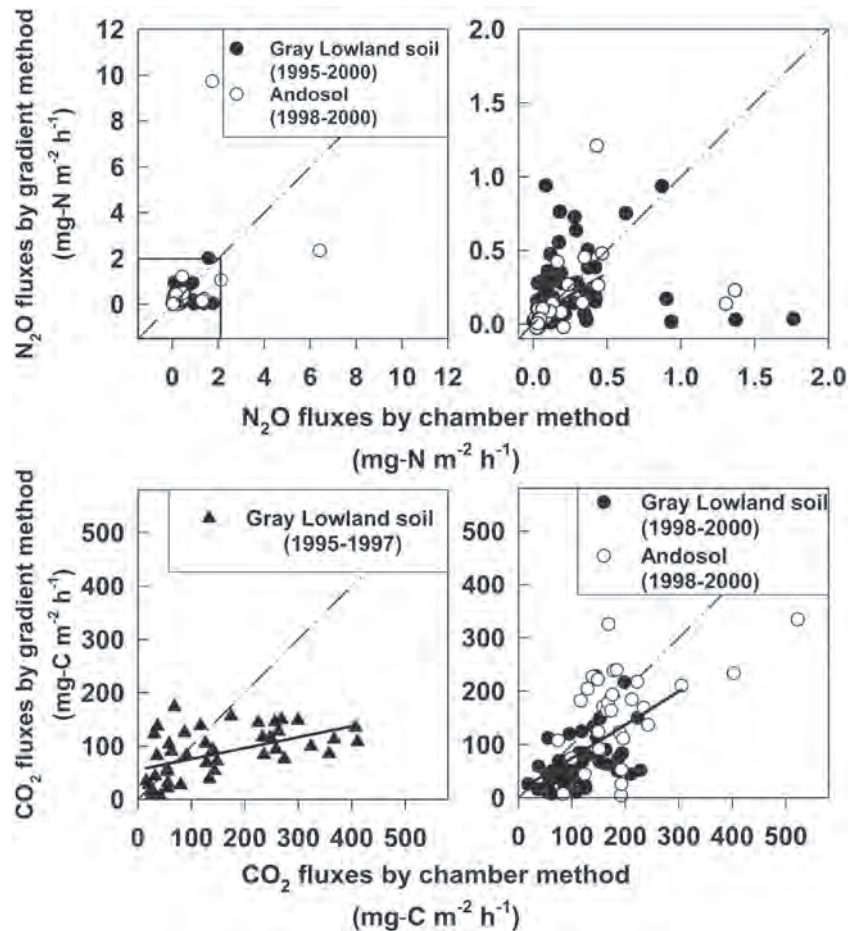


図 20 拡散法とチャンバー法で測定した土壌から大気へのガスフラックスの比較

直線は回帰直線，破線は 1:1 のラインを示す。フラックスの測定値のうち，Smirnov-Grubb's outlier test で $p < 0.01$ だったものをはずれ値とし，回帰直線の計算からは除外した。

右上図は左上図の枠内を拡大したものを示した。

N_2O の回帰直線: $y = 0.610x + 0.0416$, $p < 0.01$, $r = 0.54$, $n = 104$

CO_2 の回帰直線: $y = 0.204x + 55.6$, $p < 0.01$, $r = 0.52$, $n = 43$ (1995—1997),

$y = 0.623x + 12.4$, $p < 0.01$, $r = 0.49$, $n = 77$ (1998—2000)

Chamber method はチャンバー法，Gradient method は拡散法を示す。

($p < 0.01$, $r = 0.52$, $n = 43$ (1995—1997), $p < 0.01$, $r = 0.49$, $n = 77$ (1998—2000)) (図 20)。 N_2O と異なり，拡散法よりもチャンバー法で求めた CO_2 フラックスが有意に高かった (paired t -test: $|t| = 4.2$, $p < 0.01$, $n = 43$ (1995—1997 年の灰色低地土), $|t| = 5.4$, $p < 0.01$, $n = 78$ (1998—2000))。灰色低地土ではチャンバーの中にタマネギを含めたため，1995—1997 年の値は 1998—2000 年の値に比べて著しく高かった (図 19)。チャンバーは土壌空気採取管よりもタマネギに近い位置に設置されたため，拡散法よりもチャンバー法の方が根呼吸を検出しやすい環境だったと考えられる (図 1)。このため，タマネギやトウモロコシの呼吸がチャンバー法で測定した CO_2 フラックスの値を上昇させたことが推察された。

調査期間中のチャンバー法および拡散法で測定した土壌から大気への N_2O 放出量の範囲は灰色低地土では 0.31 – 1.2 $g-N m^{-2}$ および 0.35 – 0.84 $g-N m^{-2}$ ，黒ボク土では 0.63 – 2.0 $g-N m^{-2}$ および 0.68 – 2.6 $g-N m^{-2}$ だった (表 13)。チャンバー法と拡散法で測定した N_2O 放出量の間には有意な差はなかった (paired t -test: $|t| = 0.033$, $p = 0.98$, $n = 9$)。同様に，調査期間中のチャンバー法および拡散法で測定した CO_2 放出量の範囲は，灰色低地土では 0.36 – 0.48 $kg-C m^{-2}$ および 0.22 – 0.27 $kg-C m^{-2}$ ，黒ボク土では 0.34 – 0.54 $kg-C m^{-2}$ および 0.23 – 0.44 $kg-C m^{-2}$ だった (表 14)。1998 から 2000 年の CO_2 放出量は拡散法よりもチャンバー法で有意に高かった (paired t -test: $|t| = 3.1$, $p < 0.05$, $n = 6$)。

表13 チャンバー法および拡散法による調査期間中の土壌から大気へのN₂O放出量

年次	調査期間	N ₂ O 放出量 (g-N m ⁻²)			
		チャンバー法	拡散法	チャンバー法	拡散法
		灰色低地土		黒ボク土	
1995	6/13-10/28	0.76	0.84	ND	ND
1996	7/2-10/31	0.31	0.82	ND	ND
1997	6/13-10/23	0.45	0.51	ND	ND
1998	6/23-10/27	0.43	0.37	0.63	2.6
1999	5/26-10/20	0.93	0.82	2.0	1.1
2000	5/30-10/24	1.2	0.35	1.4	0.68
	平均	0.68	0.62	1.4	1.4

*ND は測定なし。

表14 チャンバー法および拡散法による調査期間中の土壌から大気へのCO₂放出量

年次	調査期間	CO ₂ 放出量 (kg-C m ⁻²)			
		チャンバー法	拡散法	チャンバー法	拡散法
		灰色低地土		黒ボク土	
1995	6/13-10/28	0.46	0.23	ND	ND
1996	7/2-10/31	0.47	0.27	ND	ND
1997	6/13-10/23	0.48	0.27	ND	ND
1998	6/23-10/27	0.36	0.26	0.38	0.44
1999	5/26-10/20	0.41	0.22	0.54	0.37
2000	5/30-10/24	0.43	0.22	0.34	0.23
	平均	0.44	0.25	0.42	0.34

ND は測定無し。

4. 考察

1) チャンバー法と拡散法の比較

本調査の結果から著しくN₂Oフラックスが高い場合(>0.63 mg-N m⁻² h⁻¹)を除いて、拡散法は土壌から大気へのN₂Oフラックスを見積もるのに有効であると考えられた(図17, 18, 20)。同様に、土壌からのN₂Oフラックスの推定に拡散法が有効であることが示されている^(23, 81)。しかしながら、拡散法とチャンバー法で測定したN₂Oフラックスは必ずしも完全に一致せず、特にN₂Oフラックスが著しく高い場合は値が異なった(図17, 18, 19)。これが、二つの方法で測定したN₂O放出量の差につながった(表13)。

ⅢおよびⅣにおいて調査した2つの畑地では、N₂Oフラックスは降雨頻度が高まるか大雨後に著しく上昇したことを述べた。土壌水分が高まると脱窒は活発化するが、土壌から大気へ放出されるガス中のN₂/N₂O比は土壌水分の影響を受け^(8, 15, 30)、湛水条件や土壌水分が非常に高い場合は脱窒で生成されたN₂Oは完全にN₂に還元されたという報告もあ

る^(112, 119)。従って、N₂O生成は土壌への水添加により促進されるが、土壌水分が非常に高い場合はN₂まで還元される。Arahら⁽⁵⁾は深さ0—0.05 mのN₂O濃度勾配の形から0.05 mより浅い層でN₂Oが消費されたことを示した。HutchinsonとLivingston⁽⁴⁸⁾は拡散法を用いたガスフラックス測定の不確かさは非常に短い距離の土壌中のガス拡散や濃度勾配を正確に測定できないことで生じ、目的とするガスの生成・消費源が土壌表層に分布する場合は特に不確かさが大きくなることを指摘している。Fiererら⁽²⁵⁾はFickの法則を用いると表層土壌のCO₂生成が過小評価される理由として、表層土壌(深さ0.1 m程度)ではCO₂の移動速度が高いため、土壌空気採取管内の空気中のCO₂濃度が大気濃度に近づき、濃度勾配が過小評価されること、土壌空気採取管より上層のCO₂生成や土壌表面の粗孔隙(特に土壌が乾いていく過程において)を通したCO₂の移動を考慮できないことを挙げている。降雨後のように土壌に水が添加されて土壌空気採取管よりも浅い層(0.05 mより浅い深さ)のN₂O生成と消費が活発化

された場合、測定した土壤中の濃度勾配は実際の表層の N_2O 生成を反映していないことが推察される。従って、土壤空気採取管よりも上の層において N_2O 生成と消費が活発であるときは、拡散法を用いて正確な N_2O フラックスを測定することはできない。

さらに、土壤からの N_2O フラックスは空間変動を持つことが報告されている^(83, 107, 138)。土壤構造(粒団等)や土壤中で生成・消費される N_2O はばらつきが大きく、これは土壤中の N_2O 濃度勾配の変動を引き起こす。従って、拡散法は物理的に均一な条件(例えば雪で覆われた土壤など)でより有効性が高まる^(5, 48, 82)。チャンバーと土壤空気採取管はできるだけ近くに設置したが、お互いに離れていたため(図1)、空間変動は二つの方法で測定した N_2O フラックスに違いが生じた一因と考えられる。Maljanenら⁽⁸²⁾も拡散法とチャンバー法で測定した N_2O フラックスの違いの原因について同様のことを指摘している。

チャンバー法と拡散法で測定した N_2O フラックスが異なった例では、深さ0.05 mより浅い層で N_2O の消費が起きていたことに加え、拡散法の計算に調査期間中の平均 D/D_0 と気相率を使用していた⁽⁵⁾。 D/D_0 および土壤中の N_2O と CO_2 濃度の季節変動は大きく(表12)、本研究では調査期間を通して D/D_0 と土壤中のガス濃度は毎回測定した。これより、拡散法を用いてガスフラックスを測定する場合は D/D_0 および土壤中のガス濃度を同時に測定することが必要であると考えられる。

いくつかの研究で、 CO_2 フラックス測定における拡散法の有効性が示されている^(6, 25, 100, 109)。反対に、拡散法とチャンバー法の CO_2 フラックスの間に有意な相関関係が認められなかった例もある⁽²⁷⁾。彼らは、拡散法では土壤空気採取管よりも上層(深さ0.05 mより上)の根呼吸を検出できなかったことが原因であると報告している。本研究では、二つの土壤において拡散法は CO_2 フラックスの季節推移を調べることは可能であるが、チャンバー法と比べてフラックスを過小評価することが示された(図18, 19, 表14)。土壤と植生の呼吸によって CO_2 は大気へ放出されるため⁽¹¹⁹⁾、根や植物地上部に近いほど CO_2 フラックスは上昇する。これより、チャンバー法よりも拡散法の CO_2 フラックスが有意に低かった原因として、拡散法は表層土壤の CO_2 生

成を過小評価したこと、土壤空気採取管の設置位置はチャンバーよりも植物から遠く(図1)、拡散法はチャンバー法よりも根呼吸の検出が少なかったことが考えられた。

2) N_2O と CO_2 の比較

灰色低地土において、 CO_2 フラックスはチャンバー内にタマネギを含む場合は含めない場合よりも高かったが(図18, 19)、 N_2O フラックスはチャンバー内のタマネギの有無の影響を受けなかった(図17, 18)。また、植物と機材の設置位置の違いから、チャンバー法は拡散法よりも根呼吸を多く検出したと考えられた(図1)。一般的に、 N_2O は脱窒菌と硝化菌によって生成される⁽⁸⁾。植物は分解性の有機物を土壤に供給すると同時に土壤から硝化と脱窒の基質となる NH_4^+ と NO_3^- を持ち出すが、植物が収穫等で持ち出されて根が土壤に残った際に N_2O フラックスが上昇したことも報告されている⁽³⁰⁾。Ⅲではタマネギ無植栽区よりもタマネギ植栽区からの N_2O 放出量が大きく(図8, 表4)、ⅢおよびⅣではタマネギやトウモロコシから供給される分解性の有機物が土壤から大気への N_2O フラックスの季節推移に影響を与えたことが推察された。しかしながら、チャンバーおよび土壤空気採取管と植物の位置の違いは土壤から大気への N_2O 放出に大きな影響を与えなかった(図1, 17, 18)。いくつかの植物、特に水稻は土壤中の N_2O を大気へ放出する通路を持つことが知られている⁽⁸⁹⁾。しかし、本結果ではタマネギを通して土壤から大気へ放出される N_2O は少ないことが推察された(図17)。以上より、チャンバーおよび土壤空気採取管の設置位置と植物の関係は N_2O よりも CO_2 フラックスを測定する際に重要であることが示された。

5. 結論

著しく高い N_2O フラックスおよび CO_2 フラックスを拡散法で測定するとチャンバー法と比べて過大または過小評価する可能性があるが、拡散法は通常のレベルの N_2O フラックスの測定や、 CO_2 フラックスの季節推移の調査には有効である。拡散法は土壤空気採取管の設置深さ(0.05 m)より浅い層の N_2O および CO_2 の生成と消費を測定できないため不確実性を伴う。しかしながら、チャンバー法では

土壌中のガスフラックスを測定できないため、拡散法は土壌中および土壌から大気へのガスフラックスを同時に測定する際に有効である。但し、チャンバー法と拡散法の両方を用いて土壌から大気および土壌中のガスフラックスを測定した場合は、土壌から大

気へのガスフラックスはチャンバー法、土壌中のガスフラックスは拡散法を用いるのが良いと考えられた。植物とチャンバーおよび土壌空気採取管の距離の影響は N_2O よりも CO_2 フラックスの測定時に大きいため注意が必要である。

Ⅵ 土壌構造が土壌中の一酸化二窒素の生成放出に与える影響の検討

1. はじめに

ⅢおよびⅣにおいて、灰色低地土および黒ボク土から大気への N_2O フラックスは降雨による土壌への水供給の影響を強く受けたことを示した。また、施肥後よりも降雨頻度が高まるか大雨が降った栽培中後期に著しく N_2O が放出される傾向は両土壌で同様であったが、 N_2O 放出が持続的な灰色低地土と大雨後に短期間の著しい放出が起こった黒ボク土というように、細部では違いが認められた。このような灰色低地土と黒ボク土における降雨後の土壌から大気への N_2O 放出の違いの原因の一つとして、土壌中での水や N_2O 生成の基質となる NO_3^- および生成された N_2O の移動に関与する土壌構造の違いが考えられた。

ここで、粗孔隙の発達程度が異なる灰色低地土と黒ボク土では、次のように土壌中での水やガスの移動が異なることが報告されている。灰色低地土のような塊状構造による粗孔隙や亀裂が発達した粘土質土壌では、水は主に粗孔隙を通して移動し^(33, 42, 52)、粗孔隙を通じたガス交換特性を持つこと⁽¹⁰⁰⁾が報告されている。また、本調査地の灰色低地土では、暗渠流量が大きいときに、表土の土壌水と混合し硝酸濃度が上昇した雨水や融雪水が下層の粗孔隙を通過して直接暗渠へ流出した⁽⁴²⁾。一方で、黒ボク土のように、ほぼ均質な粒状構造を持ち、粗孔隙や亀裂が発達していない火山灰土壌では、大雨後に一部粗孔隙流の発生が認められているが、年間浸透水量の約75%がマトリックス流であり⁽³⁴⁾、通常の畑状態では粗孔隙を通じたガス拡散は少ないといわれている⁽¹⁰⁰⁾。このように、降雨により土壌へ供給された水や表土に多く存在する硝酸等の養分の下層への移動と、土壌中で生成されたガスの上層への移動は土壌構造により異なる。このように、降雨後の土壌水分やガス拡散性の影響を受ける土壌中の N_2O 生成

と土壌から大気への放出は、粗孔隙の発達度合いによって異なることが考えられる。従って、灰色低地土と黒ボク土のような粗孔隙の発達程度の違う土壌からの大気への N_2O 放出と土壌中の N_2O 濃度分布やフラックスを比較することで、 N_2O 放出に対する土壌構造の影響を明らかにすることができる。また、 CO_2 は土壌表層に多く分布する土壌微生物や根の呼吸で生成されるため、主に土壌表層で生成された CO_2 が土壌から大気へ放出されたと報告されている^(18, 90, 100)。このように、土壌中での生成過程が異なる CO_2 と N_2O を比較することは、土壌中での N_2O の動態を把握する手がかりとなる。そこで本章では、ⅢおよびⅣで調査を行った土壌構造が発達し亀裂を含む粘土質の灰色低地土と土壌構造が発達していない火山灰土壌の黒ボク土において、土壌から大気への N_2O および CO_2 フラックス、土壌中の深度別の N_2O および CO_2 濃度と深さ0.3 mを通過する N_2O および CO_2 フラックス等を調査し、土壌構造が N_2O の生成・放出に及ぼす影響を検討した⁽⁷³⁾。

2. 材料と方法

1) 調査圃場概要

主な内容は、Ⅱ 1. 調査地概要に記載した。黒ボク土では株間のみ調査した。

2) ガスフラックス等の測定法

土壌中のガス濃度の測定およびチャンバー法と拡散法によるガスフラックスの測定法はⅡ 3. ガスフラックスの測定に記載した。その他の土壌の物理性等の測定についてはⅡ 2. 土壌の物理性等の測定に記載した。各ガスフラックス等の測定期間は、灰色低地土の N_2O は1995-2000年、 CO_2 は1998-2000年、黒ボク土の N_2O および CO_2 は1998-2000年である。

3) 物質収支法を用いた表層の N_2O および CO_2 生成量の計算

Vで示したように、拡散法を用いた土壌から大気へのガスフラックスの測定は不確実性が大きいいため、チャンバー法で測定したガスフラックスを土壌から大気へのガスフラックスとした。チャンバー法で測定した地表面から大気中に放出されるガスフラックスと拡散法を用いて測定した深さ 0.3m を通過する上向きのガスフラックスを用いて、表層 (0-0.3 m) の N_2O および CO_2 生成量は物質収支法を用いて以下の式から推定した。

$$P = E_0 - E_{0.3} + (M_e - M_s)$$

ここで P は深さ 0-0.3 m における調査期間中の N_2O あるいは CO_2 生成量 ($mg\ m^{-2}$)、 E_0 および $E_{0.3}$ は深さ 0 および 0.3 m の調査期間中 N_2O あるいは CO_2 放出量 ($mg\ m^{-2}$)、 M_s および M_e は深さ 0-0.3 m の調査開始時および終了時の気相中 N_2O および CO_2 存在量 ($mg\ m^{-2}$) とし、これは気相率とガス濃度を乗じて求めた。土壌から大気へのガス放出量に対する表層 (深さ 0.0-0.3 m) 生成量の寄与率は、 P/E_0 として計算した。 N_2O あるいは CO_2 生成量は窒素および炭素当たりに換算した。

3. 結果

1) 灰色低地土と黒ボク土における降雨と土壌の物理性の推移

1998-2000 年において、深さ 0-0.05, 0.05-0.1, 0.3

および 0.6 m の気相率の平均値はそれぞれ、灰色低地土では 31.8, 23.0, 5.5 および 4.9 %, 黒ボク土では 34.8, 28.7, 8.7 および 7.6 % だった。全ての深度において気相率は灰色低地土よりも黒ボク土で高い傾向だった (paired t-test: 深さ 0-0.05 m $|t|=1.86$, $p = 0.07$, $n = 129$, 深さ 0.05-0.1 m $|t|=3.56$, $p < 0.01$, $n = 126$, 深さ 0.3 m $|t|=6.04$, $p < 0.01$, $n = 88$, 深さ 0.6 m $|t|=8.20$, $p < 0.01$, $n = 83$)。深さ 0-0.05, 0.05-0.1, 0.3 および 0.6 m の D/D_0 の平均値は (1998-2000 年), それぞれ灰色低地土では 0.097, 0.048, 0.003 および 0.003, 黒ボク土では 0.150, 0.080, 0.004 および 0.003 であった。両土壌において 0.3 m 以下の D/D_0 は常に 0.01 以下であり, 0.1 m より浅い層に比べて非常に低い値で推移した (図 21)。深さ 0.1 m までの D/D_0 は灰色低地土よりも黒ボク土で高かったが, 深さ 0.3 m 以下では有意な差はなかった (paired t-test: 深さ 0-0.05 m $|t|=3.55$, $p < 0.01$, $n = 126$, 深さ 0.05-0.1 m $|t|=3.91$, $p < 0.01$, $n = 124$, 深さ 0.3 m $|t|=1.29$, $p = 0.20$, $n = 79$, 深さ 0.6 m $|t|=0.93$, $p = 0.36$, $n = 83$)。

両土壌において、毎年 7 月以降に降雨頻度が高まった (図 22, 23)。深さ 0-0.05 および 0.05-0.1 m の平均 WFPS 値は (1998-2000 年), 灰色低地土では 45.3 および 59.0 %, 黒ボク土では 47.9 および 56.5 % だった (図 24, 25)。深さ 0-0.1 m において, WFPS が 60 % を超えると D/D_0 が 0.02 以下となり, WFPS が 60 % 以下において, 同じ WFPS 値では

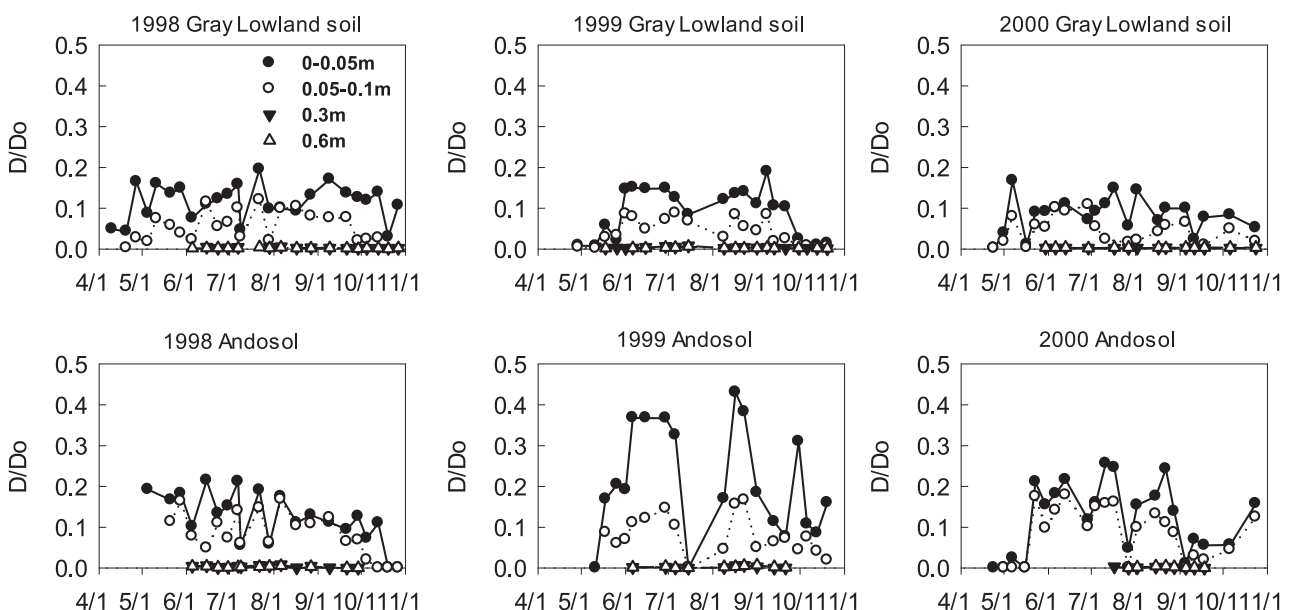


図 21 灰色低地土と黒ボク土における相対ガス拡散係数 (D/D_0) の季節推移 (1998-2000)

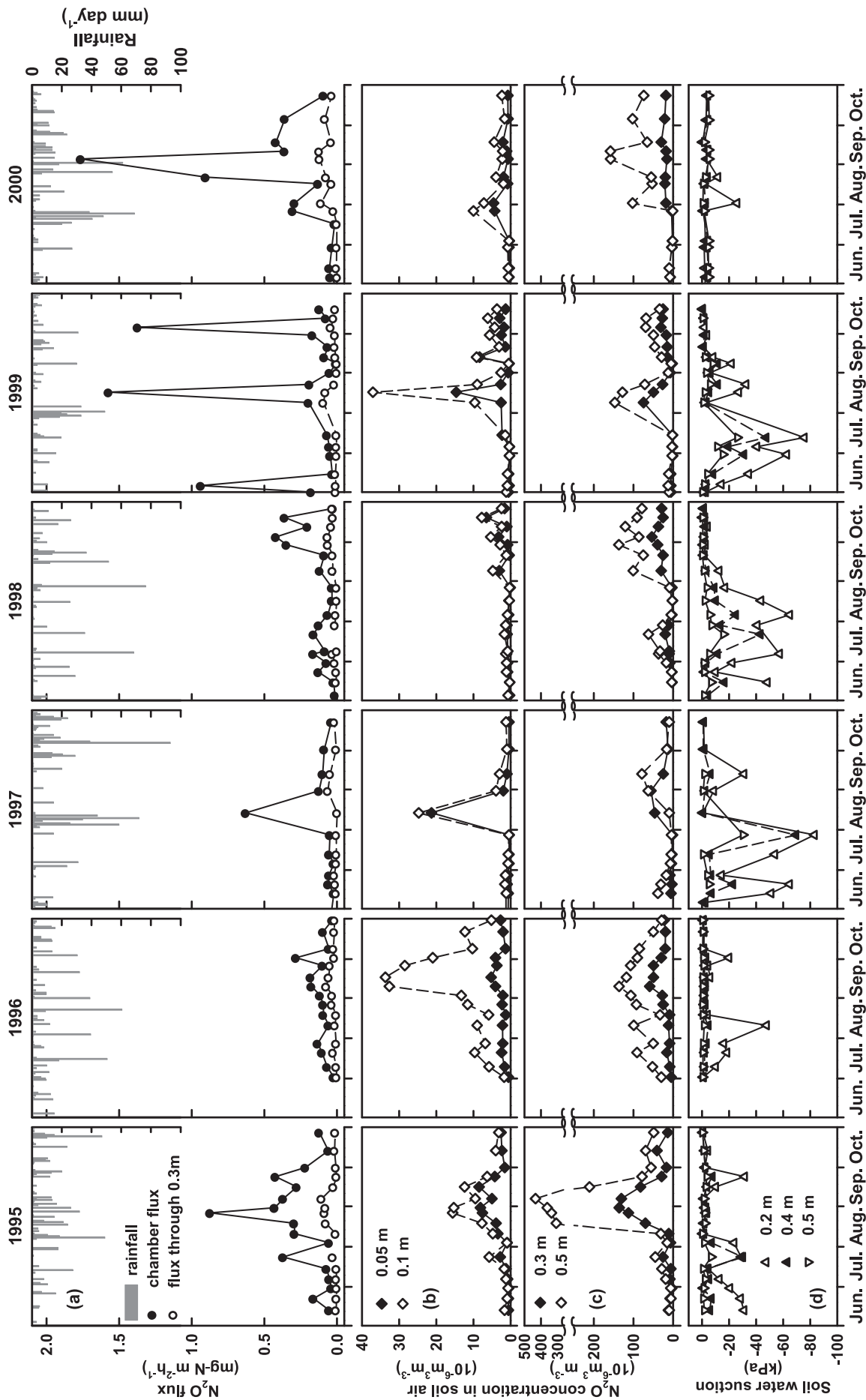


図22 灰色低地土におけるN₂Oフラックス等の季節推移 (1995-2000)

(a) は日降水量と土壌水分 (WFPS), (b) はチャンバー法と深さ0.3mを通過するN₂Oフラックス, (c) は深さ別のN₂O濃度, (d) は深さ0.1mの地温を示す.

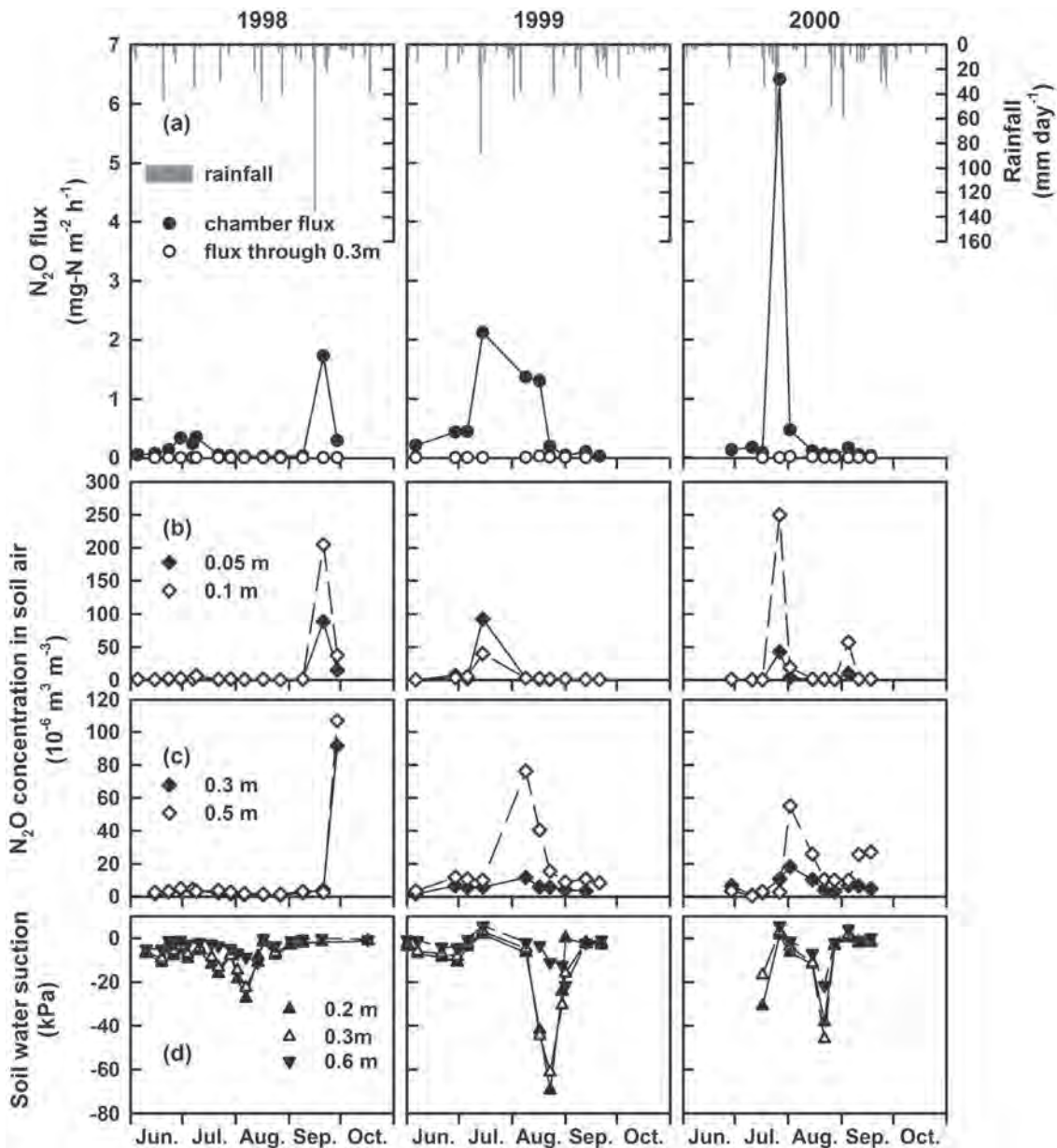


図 23 黒ボク土における N_2O フラックス等の季節推移 (1998-2000)

(a) は日降水量と土壌水分 (WFPS), (b) はチャンバー法と深さ 0.3m を通過する N_2O フラックス, (c) は深さ別の N_2O 濃度, (d) は深さ 0.1m の地温を示す。

灰色低地土よりも黒ボク土の D/D_0 が高かった (図 26)。深さ 0.2, 0.3 および 0.6 m の平均土壌水分吸引圧 (1998-2000 年) はそれぞれ, 灰色低地土では -15.6, -10.9 および -3.2 kPa 黒ボク土では -10.5, -9.9 および -3.6 kPa だった WFPS および土壌水分吸引圧は黒ボク土と灰色低地土で差はなく, 両土壤において土壌水分吸引圧は深くなるほど上昇し, 降雨後に WFPS および土壌水分吸引圧が上昇した (図 22, 23, 24, 25)。深さ 0.1 m の地温は春から夏にかけて上昇し, 夏以降低下した (図 24, 25)。調査

期間における 5-10 月の地温の範囲および平均値は, それぞれ灰色低地土で 7.1-31.5 °C および 19.8 °C, 黒ボク土で 8.0-26.4 °C および 17.4 °C だった。

2) N_2O フラックスと土壌中の N_2O 濃度

灰色低地土ではチャンバー法で測定した土壤から大気への N_2O フラックスの範囲は 0.00-1.86 $mg-N m^{-2} h^{-1}$ であり, 調査期間中の N_2O 放出量は 310-1190 $mg-N m^{-2}$ だった (表 15)。黒ボク土では, 土壤から大気への N_2O フラックスの範囲は 0.02-6.42

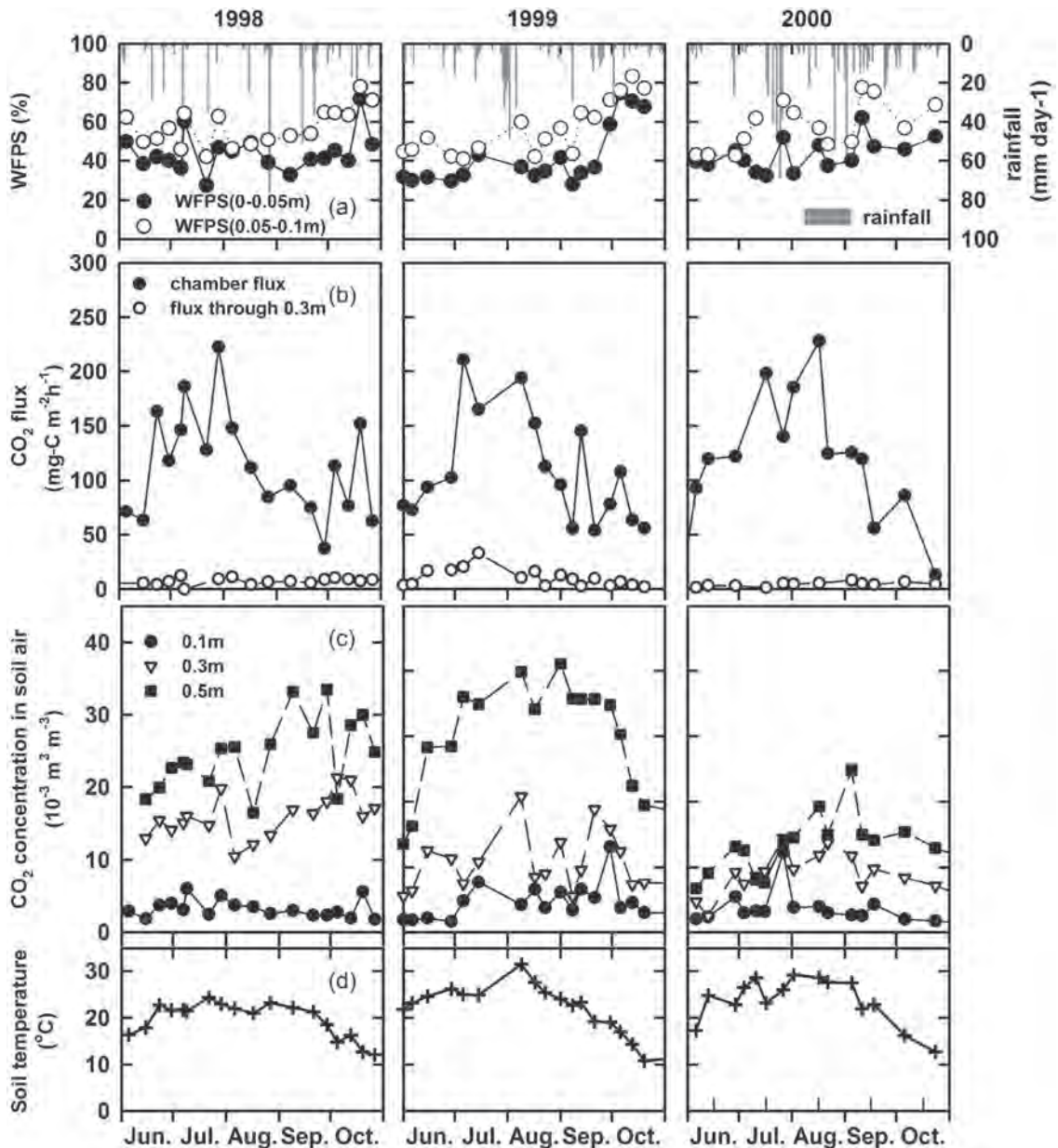


図24 灰色低地土における1998-2000年生育期のCO₂フラックス等の季節推移

(a) は日降水量と土壤水分 (WFPS), (b) はチャンバー法と深さ0.3mを通過するCO₂フラックス, (c) は深さ別のCO₂濃度, (d) は深さ0.1mの地温を示す。

mg-N m⁻² h⁻¹であり, 調査期間中のN₂O放出量は634-1980 mg-N m⁻²だった(表15)。1998-2000年の灰色低地土と黒ボク土における土壌から大気へのN₂O放出量は5%水準で有意な差はなかった(t-test: |t|=1.11, p=0.33, n=6)。ⅢおよびⅣで示したように, 灰色低地土では降水量が増加する時期(図22-a), 黒ボク土では日降水量が80mmを超える大きな降雨後にN₂Oフラックスが著しく上昇した(図23)。

両土壌において深さ0.05mのN₂O濃度は大気中

濃度約0.3ppmv(10⁻⁶m³m⁻³=ppmv)よりも常に高く推移した。灰色低地土で降水量の増加する7月以降と黒ボク土の日降水量が80mmを超える大雨後に土壌中のN₂O濃度は著しく上昇し, これは施肥後の濃度上昇よりも大きかった(図22, 23)。このように, 土壌中のN₂O濃度とチャンバー法のフラックスは同様の季節推移を示した。深さ0.05, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5および0.6mの土壌空気中のN₂O濃度はそれぞれ, 灰色低地土では2.2, 5.8, 15, 22, 54, 62および59ppmv, 黒ボク土では8.4, 18, 7.7,

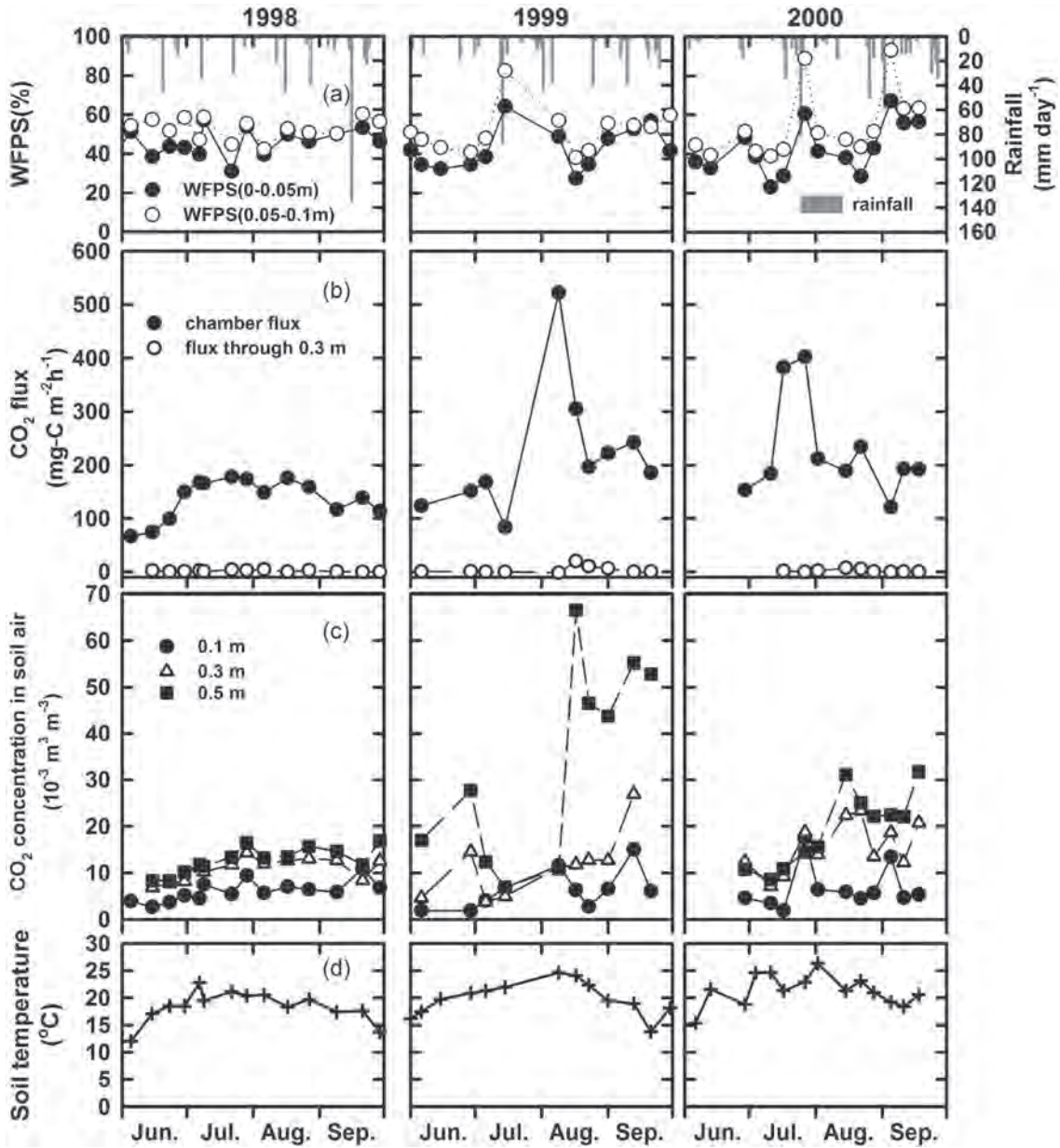


図 25 黒ボク土における CO₂ フラックス等の季節推移 (1998-2000)

(a) は日降水量と土壌水分 (WFPS), (b) はチャンバー法と深さ 0.3m を通過する CO₂ フラックス, (c) は深さ別の CO₂ 濃度, (d) は深さ 0.1m の地温を示す。

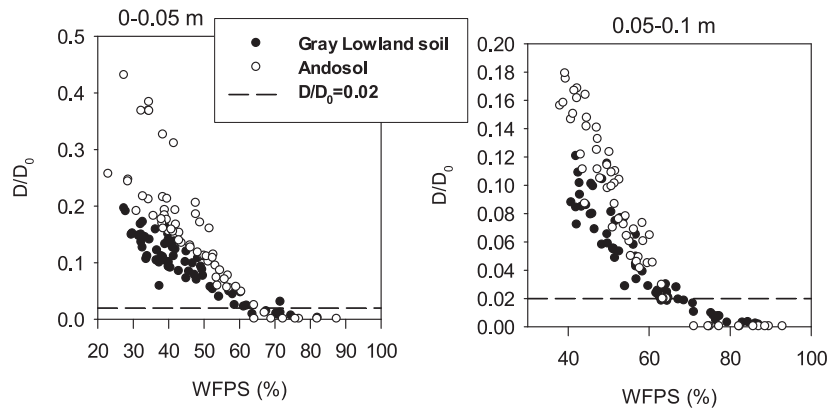


図 26 相対ガス拡散係数 (D/D_0) と土壌水分 (WFPS) の関係 (1998-2000)

7.2, 11, 16 および 10 ppmv だった。各深度の最高 N_2O 濃度はそれぞれ、灰色低地土で 21, 37, 83, 140, 240, 430 および 370 ppmv, 黒ボク土で 93, 250, 55, 18, 59, 110 および 35 ppmv だった。灰色低地土では深さ 0.4 m までは深くなるほど N_2O 濃度が上昇する傾向だったが、0.4 m 以下では同様の傾向は無かった (図 27)。8-10 月は表層に比べて下

層の N_2O 濃度が高くなったため、土壌中の N_2O 濃度勾配が大きくなった (図 22, 27)。黒ボク土では、 N_2O フラックスが上昇しなかった 6 月は、土壌中の N_2O 濃度の勾配は認められなかったが、 N_2O フラックスが著しく上昇した際には (1998 年 9 月, 1999 年 7 月, 2000 年 7 月, 2000 年 9 月), 深さ 0.1 m の N_2O 濃度が 40 ppmv を超えるほど大きく上昇

表 15 灰色低地土および黒ボク土における深度別 N_2O 放出量・通過量および生成量等

年	調査期間	調査期間中の N_2O 放出量と通過量		深さ 0.3m より上 (表層) の N_2O 存在量		表層の N_2O 生成量	表層の寄与率
		土壌から大気へ (F_{cham})	深さ 0.3 m を通過 ($F_{0.3}$)	調査開始時 (Ms)	調査終了時 (Me)	(P)	(P/F_{cham})
		(mg-N m ⁻²)		(mg-N m ⁻²)		(mg-N m ⁻²)	
灰色低地土							
1995	6/13-10/28	760	86	0.35	0.55	670	0.89
1996	7/2-10/31	310	71	0.26	1.02	240	0.77
1997	6/13-10/23	450	56	0.32	0.56	390	0.88
1998	6/23-10/27	430	65	0.20	0.83	370	0.85
1999	5/26-10/20	930	80	0.69	0.64	850	0.91
2000	5/30-10/24	1190	160	0.21	0.70	1030	0.86
	平均値	680	87	0.34	0.72	590	0.86
黒ボク土							
1998	6/15-9/29	630	1.3	0.23	8.37	640	1.01
1999	6/6-9/13	1980	6.2	0.12	0.30	1980	1.00
2000	7/17-9/18	1430	7.8	0.20	0.33	1420	0.99
	平均値	1350	5.1	0.18	3.00	1350	1.00

土壌から大気への放出量 (F_{cham}) はチャンバー法, 深さ 0.3 m の通過量 ($F_{0.3}$) は拡散法で測定した。

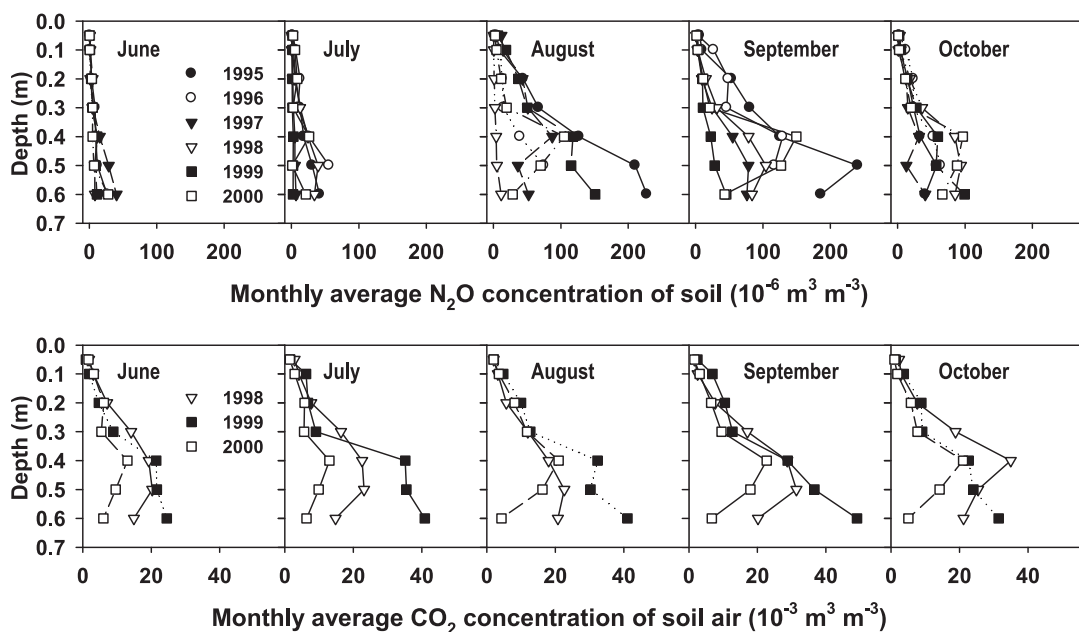


図 27 灰色低地土における土壌中の N_2O および CO_2 濃度月平均値の季節推移

し、0.2 m 以下の濃度よりも高かった（図 23, 28）。

灰色低地土および黒ボク土において、深さ 0.3 m を通過する N₂O フラックスの平均値は、0.026 mg-N m⁻² h⁻¹ および 0.002 mg-N m⁻² h⁻¹ であり、深さ 0.3 m を通過する N₂O フラックスは土壌から大気への

フラックスよりも非常に低い値で推移した（図 22, 23）。灰色低地土では深さ 0.3 m を通過する N₂O フラックスと土壌から大気への N₂O フラックスの間に有意な正の相関関係があったが、黒ボク土では有意な関係はなかった（図 29）。

無積雪期における深さ 0.3 m を通過する N₂O フ

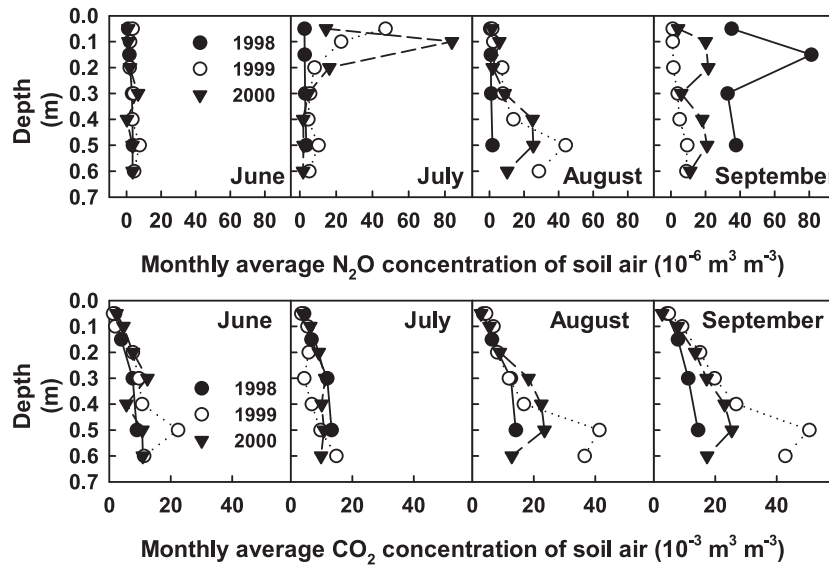


図 28 黒ボク土における土壌中の N₂O および CO₂ 濃度月平均値の季節推移

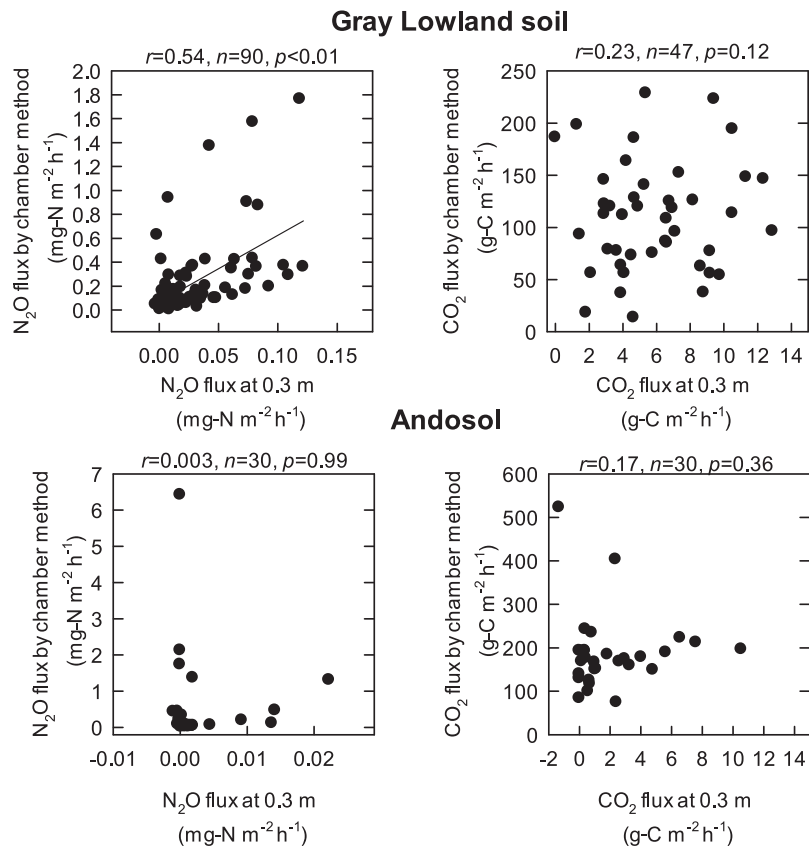


図 29 土壌から大気および深さ 0.3m を通過する N₂O および CO₂ フラックスの関係

ラックスの積算値（通過量）は灰色低地土で 56–160 mg-N m⁻²（平均 87 mg-N m⁻²），黒ボク土では 1.3–7.8 mg-N m⁻²（平均 5.1 mg-N m⁻²）であり，1998–2000 年の深さ 0.3 m における N₂O 通過量は 5 % 水準で有意に黒ボク土よりも灰色低地土で高かった（t-test: $|t|= 3.21, p < 0.05, n = 6$ ）（表 15）。両土壌とも土壌から大気への N₂O 放出量と比べて，深さ 0.3m の N₂O 通過量は小さかった。無積雪期に深さ 0.3m 以上で生成された N₂O 量は，灰色低地土では 240–1030 mg-N m⁻²（平均 590 mg-N m⁻²），黒ボク土では 640–1980 mg-N m⁻²（平均 1350 mg-N m⁻²）だった。土壌から大気への N₂O 放出量に対する表層（深さ 0.3m 以上）の N₂O 生成量の寄与率は，灰色低地土で 0.77–0.91，黒ボク土では 0.99–1.01 だった（表 15）。いかえれば，土壌から大気に放出された N₂O のうち 9–23（灰色低地土），0–1 %（黒ボク土）が深さ 0.3 m 以下で生成された。1998–2000 年において，灰色低地土よりも黒ボク土の表層の寄与率は 1 % 水準で有意に高かった（t-test: $|t|= 6.40, p < 0.01, n = 6$ ）。

3) CO₂ フラックスと土壌中の CO₂ 濃度

灰色低地土では，チャンバー法で測定した土壌から大気への CO₂ フラックスの範囲は 15.4–411 mg-C m⁻² h⁻¹ であり，調査期間中の CO₂ 放出量は 356–429 g-C m⁻² だった（表 16）。黒ボク土では，土壌から大気への CO₂ フラックスの範囲は 66.6–522

mg-C m⁻² h⁻¹ であり，調査期間中の CO₂ 放出量は 320–539 g-C m⁻² だった（表 16）。灰色低地土と黒ボク土の土壌から大気への CO₂ 放出量は 5 % 水準で有意な差は無かった（t-test: $|t|= 0.20, p = 0.85, n = 6$ ）。地温が高く推移する 7，8 月に CO₂ フラックスの上昇が認められた（図 24，25）。

深さ 0.05，0.1，0.2，0.3，0.4，0.5 および 0.6 m の土壌中の平均 CO₂ 濃度はそれぞれ，灰色低地土では 2.1，3.5，7.6，12，20，21 および 21 × 10³ ppmv，黒ボク土では 3.5，6.4，10，13，17，22 および 21 × 10³ ppmv だった。これらの CO₂ 濃度は大気中濃度（約 0.36 × 10³ ppmv）よりも高かった。土壌中の CO₂ 濃度勾配は地温の上昇する 7–9 月に大きく，土壌空気中の CO₂ 濃度と土壌から大気への CO₂ フラックスは同様の季節推移を示した（図 24，25）。土壌中の CO₂ 濃度は深さ 0.4 m までは深くなるほどに上昇したが，それ以下の深度では同様の傾向は無かった（図 27，28）。

深さ 0.3 m を通過する CO₂ フラックスは土壌から大気への CO₂ フラックスよりも著しく低く，灰色低地土および黒ボク土の深さ 0.3 m を通過する CO₂ フラックスの平均値は，5.5 mg-C m⁻² h⁻¹ および 2.6 mg-C m⁻² h⁻¹ だった（図 24，25）。深さ 0.3 m を通過するフラックスと土壌から大気への CO₂ フラックスの間には有意な相関関係はなかった（図 29）。無積雪期における深さ 0.3 m の CO₂ 通過量は灰色低地土で 16–44 g-C m⁻²，黒ボク土では 3.7–7.1

表 16 灰色低地土および黒ボク土における深度別 CO₂ 放出量・通過量および生成量等

年	調査期間	調査期間中の CO ₂ 放出量と通過量		深さ 0.3m より上（表層）の CO ₂ 存在量		表層の CO ₂ 生成量	表層の寄与率
		土壌から大気へ (F _{cham})	深さ 0.3 m を通過 (F _{0.3})	調査開始時 (Ms)	調査終了時 (Me)	(P)	(P/F _{cham})
		(g-C m ⁻²)		(g-C m ⁻²)		(g-C m ⁻²)	
灰色低地土							
1998	6/23-10/27	356	22	0.32	0.23	334	0.94
1999	5/26-10/20	414	44	0.12	0.13	370	0.89
2000	5/30-10/24	429	16	0.12	0.16	413	0.96
	平均値	400	27	0.22	0.22	372	0.93
黒ボク土							
1998	6/15-9/29	381	4.8	0.34	0.70	376	0.99
1999	6/6-9/13	539	7.1	0.25	1.30	533	0.99
2000	7/17-9/18	320	3.7	0.53	0.47	316	0.99
	平均値	413	5.2	0.37	0.83	409	0.99

土壌から大気への放出量 (F_{cham}) はチャンバー法，深さ 0.3 m の通過量 (F_{0.3}) は拡散法で測定した。

g-C m^{-2} であり、5%水準で有意な差はなかったが、黒ボク土よりも灰色低地土で高い傾向だった (t -test: $|t|=2.51$, $p=0.07$, $n=6$) (表16)。両土壌とも土壌から大気への CO_2 放出量と比べて、深さ0.3mの CO_2 通過量は少なかった。無積雪期に深さ0.3m以上で生成された CO_2 量は、灰色低地土では334–413 g-C m^{-2} (平均372 g-C m^{-2})、黒ボク土では316–533 g-C m^{-2} (平均409 g-C m^{-2}) だった。土壌から大気への CO_2 放出量に対する表層(深さ0.3m以上)の CO_2 生成量の寄与率は灰色低地土で、0.89–0.96、黒ボク土で0.99であった(表16)。

4. 考察

1) 土壌中の N_2O 濃度

灰色低地土と黒ボク土において、 N_2O フラックスと土壌空気中の N_2O 濃度は同様の季節推移を示し、フラックスの著しい上昇時期では土壌中 N_2O 濃度の勾配は拡大した(図22, 23, 27, 28)。これより、土壌中で生成された N_2O が土壌から大気へ放出されたことが確認された。施肥直後や降雨および灌漑後にも同様の N_2O フラックスと濃度勾配の推移が報告されている(14, 29, 44, 75, 76, 79, 88, 130)。ⅢおよびⅣにおいて灰色低地土および黒ボク土では、土壌水分上昇時や大雨直後に土壌から大気への N_2O フラックスが著しく上昇し、これらは主に脱窒由来であることを報告した。土壌水分が高い下層(0.2 m以下)では、土壌中の NO_3^- 濃度が低くても、脱窒により N_2O が生成されており、脱窒による N_2O 生成は土壌中の NO_3^- 濃度よりも、土壌水分の影響を強く受けたことが示唆されている(76, 79, 130)。灰色低地土および黒ボク土において、土壌水分上昇時や大雨直後に N_2O フラックスが著しく上昇した時期は、土壌中の N_2O 濃度の著しい上昇と土壌水分吸引圧の低下が同時に起こっており(図22, 23)、脱窒が土壌中における N_2O の主生成過程であったことを裏付ける結果が得られた。

深さ0.1 m付近の土壌空気中 N_2O の最高濃度は0.9–180 ppmv程度の報告がある(5, 29, 55, 57, 75, 76, 79, 88, 130)。灰色低地土における深さ0.1mの土壌中の最高 N_2O 濃度37 ppmv (この時の N_2O フラックス1.5 $\text{mg-N m}^{-2} \text{h}^{-1}$) (図22) は既往の報告の範囲内であり、これは Mosier と Hutchinson⁽⁸⁸⁾によるコロラド州のトウモロコシ畑の報告と類似していた(深さ0.1 mの

N_2O 濃度が約40 ppmvの時の N_2O フラックスは約2.3 $\text{mg-N m}^{-2} \text{h}^{-1}$)。一方で、日本の黒ボク土では、施肥直後の最高 N_2O フラックス(0.04–0.2 $\text{mg-N m}^{-2} \text{h}^{-1}$) が観測された時の深さ0.1m付近の最高 N_2O 濃度は0.4–4.2 ppmv程度と報告されており(44, 76, 126, 139)、他の土壌の調査結果と比べて低い濃度だった。これは、日本の黒ボク土は日本や世界の他の土壌と比べて N_2O 放出量が低いという Akiyama と Tsuruta⁽²⁾の指摘と一致している。Li⁽⁷⁶⁾は、日本の黒ボク土の表層土壌中の N_2O 濃度が低かった理由として、孔隙率が高いためにガス拡散が活発だったこと、脱窒による N_2O 生成が大きくなかったことをあげている。しかしながら、我々の調査した黒ボク土では、深さ0.1 mの N_2O 濃度の最高値が250 ppmv (この時の N_2O フラックス6.4 $\text{mg-N m}^{-2} \text{h}^{-1}$) と既往の報告よりも高く(図22, 23)、特に日本の黒ボク土と比べて高かった。これはⅣで述べた N_2O 放出量の結果とも一致し、日本の黒ボク土であっても排水性が悪く大雨後に表層の土壌水分が著しく上昇した本調査地のような黒ボク土では、脱窒に由来する表層土壌中の N_2O 濃度の著しい上昇に伴い、土壌から大気へ大きな N_2O 放出が起こる可能性があるかと推察された。

土壌中の N_2O 濃度の垂直分布は土壌により異なった(図27, 28)。灰色低地土と同様に、深くなるほど土壌中の N_2O 濃度が上昇した事例がいくつか報告されている(5, 11, 57, 76, 79, 88, 130, 139)。一方で、日本の黒ボク土では本調査地の黒ボク土と同様に、下層よりも表層(深さ0.1–0.2 m)の N_2O 濃度が高かったことが認められている(44, 55, 124)。しかしながら、日本の黒ボク土でも深くなるほど濃度が上昇した例や、乾季と雨季で異なる濃度分布だった例があり(76, 132, 139)、一様な結果は得られていない。

栽培期間の最初の大雨后に短期間の著しい N_2O 放出が起こった黒ボク土では(図11)、 N_2O 放出時のみ表層土壌中の N_2O 濃度が著しく上昇し(図28)、多雨期に持続的な N_2O 放出が起こった灰色低地土では(図3)、 N_2O 放出時期に全ての深さの N_2O 濃度が持続的に上昇し、深くなるほど濃度が高かった(図21, 27)。このような土壌中の N_2O 濃度の垂直分布の違いが、降雨後の N_2O 放出パターンの違いを引き起こしたと考えられた。従って、以下3)で灰色低地土と黒ボク土の土壌構造の違いが

N₂O生成と放出に与えた影響について詳しく検討した。

2) 土壌中のCO₂濃度

灰色低地土と黒ボク土において、土壌中のCO₂濃度は春から夏に上昇、秋から冬にかけて低下し、土壌から大気へのCO₂フラックスと同様の季節推移を示した(図24, 25)。さらに、深さ0.05 mの土壌中のCO₂濃度は大気の大気濃度よりも常に高く推移し、土壌中で生成されたCO₂が大気へ放出されたと考えられた。このような報告は多い^(18, 43, 57, 100)。また土壌中のCO₂濃度の垂直分布については、作物の生育が進むとCO₂濃度のピークが深さ0.2-0.4 m付近から次第に降下したこと、休耕地や秋以降は深さとともにCO₂濃度が単調増加したことが報告されている^(18, 43, 57, 100)。本調査地でも同様の土壌中のCO₂濃度の垂直分布および季節推移が認められた(図24, 25, 27, 28)。

3) 降雨後のN₂OおよびCO₂濃度とフラックス

大雨後は土壌間隙が水で満たされるため浅い層のCO₂濃度が上昇し、その後排水と蒸発散が進むにつれ浅い層のCO₂が上下方向に拡散し、土壌全体のCO₂濃度は表層から低下するというように、土壌中のCO₂濃度は降雨の影響を強く受ける⁽¹⁰⁰⁾。調査日前一週間の降水量が約80 mmを超えた2000年7月(調査日前一週間の降水量199 mm)の灰色低地土、1999年7月(調査日前一週間の降水量114 mm)および2000年9月(調査日前一週間の降水量79 mm)の黒ボク土では、深さ0.1 mのCO₂濃度は上昇したが、逆にCO₂フラックスは低下した(図24, 25)。この時の表層土壌のD/D₀は拡散が抑制される0.02程度かそれ以下であり⁽³⁸⁾、遅滞の報告⁽¹⁰⁰⁾のように、降雨によって土壌から大気へのガス拡散が抑制されたと考えられた。しかしながら、同時期に表層のN₂O濃度と土壌から大気へのN₂Oフラックスは上昇した(図22, 23)。従って、降雨後の土壌水分の上昇とガス拡散の抑制により表層土壌が嫌氣的となり、脱窒によるN₂O生成が活発化したことが推察された。

降雨後では表層のNO₃⁻の下層へ移動に伴いN₂Oの生成部位が下層へ移動したことが報告されてい

る⁽²⁹⁾。降雨後の深さ0.3 m以下の土壌中N₂O濃度のピークは、灰色低地土では表層と同時または遅れて、黒ボク土では常に遅れて現れる傾向だった(図22, 23)。これより、降雨後のN₂O生成部位の下方移動と表層で生成されたN₂Oの下層への拡散により下層のN₂O濃度が上昇したため、表層と下層のN₂O濃度のピークに時間差が生じたと考えられた。また、灰色低地土では降雨後の土壌中のN₂O濃度のピークは深さ0.3 mの方が0.1 mよりも大きかったのに対し、黒ボク土では逆の結果だった(図22, 23)。この原因として、N₂O生成部位の降下とそこで生成されたN₂Oの上方への移動性が粗孔隙の発達程度によって異なったことが考えられた。

4) 土壌構造がN₂Oの生成と放出に与える影響

降雨後の土壌表層から下層へのNO₃⁻溶脱に伴うN₂Oの生成部位の降下により、下層でもN₂Oが生成されたことが報告され^(29, 79, 130)、土壌中のN₂O生成部位は土壌中の水とNO₃⁻の移動の影響を大きく受けたことが示唆されている。我々が調査した灰色低地土は、降雨後に表層のNO₃⁻が粗孔隙を通過して下層へ溶脱しており⁽⁴²⁾、黒ボク土に隣接する草地では、スラリー堆積後に地下水の全窒素濃度が速やかに上昇したことから⁽⁵⁹⁾、調査した二つの畑地において、降雨後は水とともに土壌表層に存在したNO₃⁻が下層へ移動したと考えられた。灰色低地土では深さ0.7 mの土壌水のNO₃⁻濃度が常に3 mg-N L⁻¹より低かったにも関わらず、暗渠排水からは常に10 mg N L⁻¹程度のNO₃⁻が流出しており⁽⁴²⁾、下層の粗孔隙周辺の土壌は高い濃度のNO₃⁻と接触したと推察された。一方で、黒ボク土では深さ0.8 mの土壌水と浸透水のNO₃⁻濃度は同程度だったことが報告されており⁽¹²²⁾、水とNO₃⁻はマトリックス流によって徐々に下層に浸潤し、表層土壌は下層よりも高い濃度のNO₃⁻と接触したと考えられた。従って、比較的高い濃度のNO₃⁻と接触した灰色低地土の下層の粗孔隙周辺土壌は黒ボク土の下層よりも脱窒によるN₂O生成が活発だったことが推察され、これは土壌から大気へのN₂O放出に対する0.3 m以下で生成されたN₂Oの寄与率の結果と一致した(表15)。

以上より、灰色低地土の下層の粗孔隙周辺土壌で

は黒ボク土の下層よりも N_2O 生成が活発であった可能性が示唆されたが、土壤中で生成された N_2O が大気へ放出されるためには下層の生成部から大気へのガス拡散が重要な要因となる。通常の畑水分条件において、黒ボク土は気相率が灰色低地土に比べて大きいのでガス拡散が生じやすいが、亀裂構造や塊状構造が発達していないため粗孔隙を通るマスフローは生じにくい、構造が発達し亀裂を持つ灰色低地土では反対のガス交換特性を持つことが示されている⁽¹⁰⁰⁾。本調査地においても、全ての深度において灰色低地土よりも黒ボク土の気相率が高く、深さ 0.1 m までの D/D_0 も灰色低地土より黒ボク土で高かった (図 21)。また図 26 に示したように、同じ土壌水分では灰色低地土よりも黒ボク土のガス拡散性が高かったことから、耕起により攪乱されている表層 (0-0.1 m) では、粘土質土壌の灰色低地土よりも粒状構造をもつ黒ボク土の方が、水およびガスの移動が速やかだったことが考えられる。一方で、0.3 m 以下の D/D_0 は土壌による差がなく、均質な粒状構造を持つ黒ボク土よりも粗孔隙を持つ灰色低地土のガス交換性が高かったと考えられた。従って、灰色低地土下層の粗孔隙周辺土壌ではガス交換性が確保されるため、 O_2 の供給および生成した N_2O の大気への放出が黒ボク土よりも容易であったことが推察される。反対に、粗孔隙が発達していない黒ボク土の下層では大気とのガス交換が悪いので、脱窒で N_2O が生成されても下層から大気へ移動する間に N_2 まで還元される可能性が高い。以上より、灰色低地土では粗孔隙を通じた NO_3^- の下層への移動により粗孔隙周辺土壌の N_2O 生成が促進された上に、下層で生成された N_2O が速やかに粗孔隙を通じ大気へ放出されたため、粗孔隙が発達していないため NO_3^- や N_2O の移動性が悪い黒ボク土よりも下層の N_2O 生成および放出の寄与が高かったと説明できた (図 27, 28, 29, 表 15)。このような粗孔隙の発達の違いに伴う N_2O 生成部位の下方移動および土壌中の N_2O の移動性の違いが、灰色低地土と黒ボク土の土壌中の N_2O 濃度の垂直分布やフラックスの季節推移の違いの主要因であったと考え

られた。

土壌から大気へ放出される CO_2 は植物根や土壌微生物の呼吸によって生成される⁽¹¹⁹⁾。土壌微生物や根の多くが表層に分布していることから、 CO_2 は土壌に関わらず主に表層で生成される^(90,100)。灰色低地土と黒ボク土において、土壌から大気へ放出された CO_2 の 90 % 以上が 0.3 m より浅い層で生成され (表 16)、深さ 0.3 m を通過する CO_2 フラックスと大気への CO_2 フラックスの間に有意な相関関係が得られなかったことから、下層に粗孔隙をもつ灰色低地土においても粗孔隙を通じた下層から上方への CO_2 の移動は N_2O より少なかったと推察された。

以上より、灰色低地土と黒ボク土において、大気へ放出された N_2O の多くは深さ 0.3 m 以上で生成されたが、灰色低地土の下層の粗孔隙周辺土壌では粗孔隙を通じた水、 NO_3^- およびガスの移動により粗孔隙が発達していない黒ボク土の下層よりも N_2O 生成および大気への放出が起こりやすかったことが示唆された。一方で、 CO_2 は両土壌ともに表層で生成されるため、土壌中の CO_2 生成および大気への放出に対する粗孔隙の影響は N_2O より小さかったことが示唆された。

5. 結論

灰色低地土と黒ボク土において N_2O は主に表層 (0-0.3 m) で生成されていたが、灰色低地土では粗孔隙を通じた NO_3^- の溶脱により、粗孔隙周辺土壌の N_2O 生成が促進された上に、そこで生成された N_2O が速やかに大気へ放出されたため、 NO_3^- や N_2O の移動性が悪い粗孔隙が未発達な黒ボク土よりも下層の N_2O 生成および放出の寄与が高かった。このような土壌構造による N_2O 生成部位の下方移動および土壌中のガス交換性の違いが、灰色低地土と黒ボク土の土壌中の N_2O 濃度の垂直分布やフラックスの季節推移の違いの主要因であったと考えられた。微生物および根呼吸により土壌表層で生成される CO_2 は、粗孔隙が発達した灰色低地土においても下層の寄与は低く、土壌構造の影響はほとんどなかったことが示された。

VII 牛ふん堆肥の多量施用が飼料用イネ栽培水田からの窒素浸透流出に与える影響

1. はじめに

畜産農家が所有する飼料用イネ水田では、ふん尿処理対策として牛ふん堆肥の積極的な利用と高乾物生産を目的として、毎年冬に5-15 kg m⁻²の多量の牛ふん堆肥を施用したり、化成肥料を使わずに牛ふん堆肥のみで生産を行う地域もある⁽¹¹³⁾。これまで水田は施肥および田植え時に窒素やリンの排出量が増えるが^(60, 129)、栽培期間中は水田系外への窒素負荷量よりも浄化量が大きく、茶園や畜産等から流出する硝酸態窒素濃度の高い水の浄化も試みられているように^(94, 99, 128)、窒素流出が大きな問題とされていない。しかしながら、飼料用イネの栽培に多量の牛ふん堆肥を施用した場合、浸透水を通した窒素流出量の増加やこれに付随するN₂Oの間接放出量の増加、土壌への窒素蓄積が懸念される。これまでの研究では、水田への牛ふん堆肥施用によって硝酸の溶脱量が増加したという報告もあるが^(32, 40, 123)、牛ふん堆肥を施用した水田からの窒素浸透流出の調査事例は少なく、飼料用イネ水田のように多量の牛ふん堆肥を施用した影響については未解明の部分が多い。そこで、本研究では小型ライシメータを用いて、飼料用イネ水田への牛ふん堆肥の多量施用が、窒素流出量、窒素収支および土壌の窒素濃度に与える影響を明らかにすることを目的とした。

2. 材料と方法

1) 小型ライシメータの概要

2003年3月に底面0.5×1.0 m、高さ0.5 mのステンレス製の小型ライシメータ2基(図35)の底面に砂利(鬼怒川産、13-25 mm程度)を敷き、その上に茨城県つくばみらい市に位置する中央農業総合研究センター谷和原水田圃場の灰色低地土を高さ0.3 mまで充填した(乾燥密度0.85 Mg m⁻³)。充填した土壌の土性は壤土、粒径組成は砂487 g kg⁻¹、シルト276 g kg⁻¹および粘土237 g kg⁻¹、全窒素3.0 g kg⁻¹、全炭素39 g kg⁻¹であった。小型ライシメータは茨城県つくば市に位置する中央農業総合研究センター観音台地区(東経140度5分、北緯36度1分)に設置した。

2) 栽培概要

2003年4月に完熟牛ふんおがくず堆肥(以下牛ふん堆肥と記載)をそれぞれのライシメータに現物で0および18 kg m⁻²(以下それぞれの試験区は0kgおよび18kg区と記載)相当施用し、作土約0.1 mと混和した。使用した牛ふん堆肥の成分は乾物率0.56、乾物中の全窒素と塩化カリウム抽出性硝酸態窒素とアンモニア態窒素の合計量は18 g-N kg⁻¹および1.7 g-N kg⁻¹であった。2003-2006年に飼料用イネ専用品種「ホシアオバ」(*Oryza sativa* L. cv.Hoshiaoba)を栽培し、2004年以降は牛ふん堆肥無施用とした。化成肥料は施用しなかった。5月中旬に入水し、代かき後にポット苗を移植(20株 m⁻²)、7月に中干し、9月中旬の黄熟期(出穂後約35日)に地上部を地際で刈り取り持ち出した。イネ栽培期間中は、イネの最適日浸透水量とされる5-15 L m⁻²⁽⁵⁶⁾を目標に浸透水の採取口(図35)の高さを可変して浸透水の流出量を調整し、水道水(窒素濃度の平均値0.4 mg L⁻¹)を給水した。実際の日当たりの平均給水量および浸透水量は7.1 L m⁻²および3.4 L m⁻²であった。調査期間は2003年4月-2006年3月の4年間である。

3) 水質調査

栽培期間は浸透水採取口から、非栽培期間はライシメータ下端の排水口から浸透水を採取し、流出水量を求めた(図35)。浸透水、降水および給水中の窒素濃度を測定し、降水および給水経路での窒素投入量と浸透水経路での窒素流出量を見積もった。4月1日から翌年3月31日までを1年として窒素の

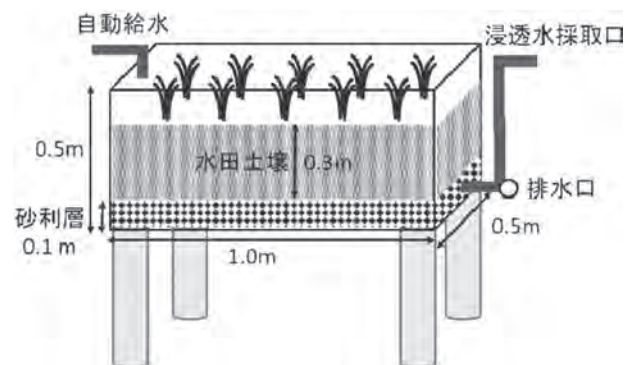


図35 小型ライシメータの概要

年間累積浸透流出量を計算した。全窒素は窒素分析装置（三菱化学アナリティック、常圧化学発光法 TN-100 型）で分析した。

4) 飼料用イネによる養分吸収量の調査

黄熟期に刈り取ったイネを 80℃ で 3 日乾燥後、乾物重を測定し粉碎した。イネの全窒素濃度は NC アナライザー（SUMIGRAPH NC-22）で測定した。窒素濃度と乾物重を用いてイネの窒素吸収量を計算した。

5) 土壌分析と気象データ

ライシメータの充填土壌および作付け前の深さ 0.1m までの土壌の可給態窒素量を pH7.0 リン酸緩衝液抽出法⁽²²⁾で、全窒素濃度を NC アナライザー（SUMIGRAPH NC-22）で測定した。2004 年 6 月 -2007 年 3 月 31 日において深さ 0.05 m の地温を 1 時間ごとに測定し、日平均地温を計算した。降水量は農業環境技術研究所総合気象観測データを用いた。

3. 結果および考察

1) 浸透水経由での窒素流出

牛ふん堆肥施用直後の 2003 年 4 月 -7 月にかけて、牛ふん堆肥を多量施用した 18kg 区で全窒素の日浸透流出量が増加し、牛ふん堆肥由来の窒素の浸透流出が認められた（図 36-b）。2003 年の 7 月以降は両試験区ともに、入水前と収穫後のうち地温が比較的高い 10 および 11 月の降雨後に全窒素の日浸透流出量が増加するという同様の季節推移を示し、日浸透流出量は 0kg 区よりも 18kg 区で大きかった（図 36-a, b）。窒素の年次ごとの累積浸透流出量（年間浸透流出量）は 0kg 区では 0.4-1.0 g-N m⁻² の範囲で平均値は 0.8 g-N m⁻²、18kg 区では 1.1-1.6 g-N m⁻² の範囲で平均値は 1.4 g-N m⁻² であった（表 17）。調査をした 4 年間に於いて窒素の年間浸透流出量は 0kg 区よりも 18kg 区で毎年大きく、調査期間の累積窒素浸透流出量の差は徐々に拡大した（表 17, 図 36-c）。また、18kg 区からの窒素の年間浸透流出量は牛ふん堆肥後の経過年数によって増減する傾向は認められなかった（表 17）。牛ふん堆肥を施用した水田からの窒素の浸透流出量を調査した事例は少ないが、牛ふん堆肥 2 kg m⁻² を長期連用す

ると稲わら堆肥連用よりも硝酸態窒素の浸透流出が増加したこと⁽¹²³⁾、水稻を含めた年 2 作の体系で牛ふん堆肥 2 kg m⁻² または 4 kg m⁻² を年 2 回施用した場合、4 kg m⁻² 施用では水稻作付け期間の浸透水の硝酸態窒素濃度が上昇したが 2 kg m⁻² は無施用と変わらなかったこと⁽³²⁾、春の牛ふん堆肥施用は水田からの窒素浸透流出に影響を与えないが、秋施用として冬期に作付けを行わない場合窒素流出が増加したことが報告されている⁽⁴⁰⁾。従って、牛ふん堆肥の施用により水田からの窒素の浸透流出が増加する可能性は高いが、どの程度の施用量から影響が大きくなるかは事例により異なり、更なる調査が必要である。また、単年度の牛ふん堆肥施用が施用翌年以降の窒素流出量に与えた影響を調査した事例は著者らの知る限りではなかった。少なくとも本調査結果からは単年度であっても 18 kg m⁻² 程度の多量の牛ふん堆肥の施用は浸透水経由での窒素流出を増加させ、その影響は少なくとも 3 年以上続くと考えられた（図 36-b, c）。

これまでの調査事例では、化成肥料を 8-11 g-N m⁻² 程度施用した食用米水田における全窒素の浸透流出量はイネ栽培期間では 0.1-1.2 g-N m⁻²、イネ非栽培期間は 0.2-1.3 g-N m⁻² であった^(41, 60, 65, 123)。また、武久ら⁽¹²³⁾や原ら⁽⁴¹⁾は牛ふん堆肥の施用により非栽培期間の窒素の浸透流出量が増加したことを報告している。0kg および 18kg 区からの全窒素の浸透流出量はイネ栽培期間ではそれぞれ 0.3-0.5（4 年の平均値 0.4）および 0.7-0.8（0.7）g-N m⁻²、非栽培期間（収穫後から翌年の入水まで、2006 年収穫後は 2007 年 3 月 31 日まで）ではそれぞれ 0.2-0.7（0.4）および 0.5-0.9（0.7）g-N m⁻² であった（図 37）。イネ栽培期間よりも収穫後の窒素の浸透流出量の年次変動が大きかった（図 37）。非栽培期間は大きな降雨後速やかに大きな窒素の浸透流出のピークが起こったことから（図 36-b）、中干しや収穫期の落水時以外は常に湛水状態下にあるイネ栽培期間よりも、非湛水状態となる収穫後は降雨の影響を受けやすかったことが原因と考えられた。どの時期も 18kg 区の窒素の浸透流出量は 0kg 区よりも大きく、牛ふん堆肥施用によりイネの栽培・非栽培期間に関わらず、窒素の浸透流出が増加した。しかしながら、どちらも既往の食用米水田からの窒素浸透流出量の範囲内であった。牛ふん堆肥の多量施用により既往

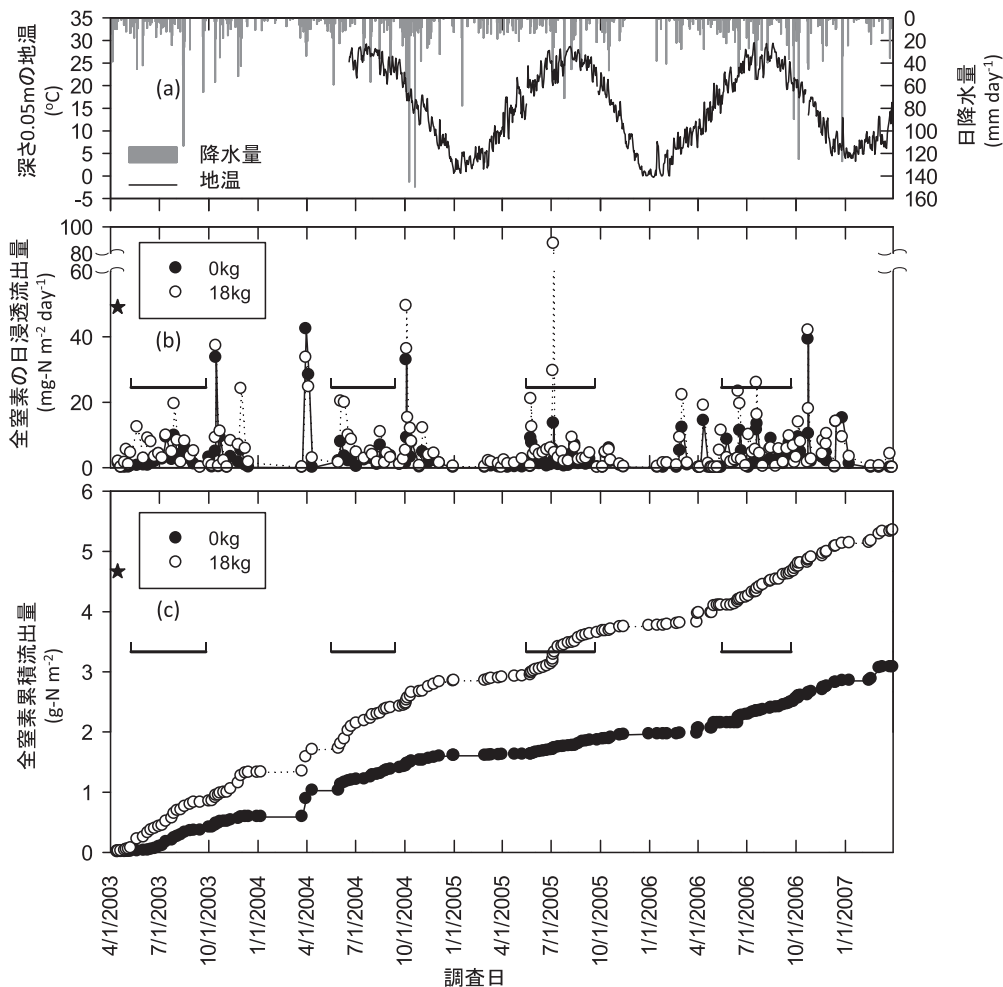


図 36 小型ライシメータにおける降水量，地温，全窒素の日浸透流出量および累積浸透流出量の推移

(a) は深さ 0.05m の地温と日降水量，(b) は日当たりの全窒素の浸透流出量，(c) は全窒素の浸透流出量の累積値を示す。0kg 区は牛ふん堆肥無施用，18kg 区は★で示した日に 18kg m^{-2} の牛ふん堆肥を施用，- は栽培期間（入水から収穫まで）を示す。地温は 2004 年 6 月から測定した。

の結果よりも窒素浸透流出が著しく増加しなかった一因として，本研究では牛ふん堆肥施用の影響を明らかにするため化成肥料を使用しなかったことが考えられた。

2) ライシメータ水田の窒素収支等

灌漑水量および浸透水量は各年の降水量の影響を大きく受けたため，水の流入と流出量の年次変化は大きかったが，処理間の大きな違いは認められなかった。年間降水量の平均値は 1380 L m^{-2} ，0kg および 18kg 区の年間給水量と浸透水量の平均値はそれぞれ 630 および 710 L m^{-2} ， 850 および 870 L m^{-2} と小林ら⁽⁶⁵⁾の水田圃場での結果と同様であり，本研究の小型ライシメータ試験の結果は水田圃場の実態と乖離していなかったことが確認された。イネの

地上部乾物重および窒素吸収量は 0kg 区より 18kg 区で大きく，牛ふん堆肥施用によって増加した（表 17）。窒素収支をみると投入窒素の大部分は牛ふん堆肥由来であり，主にイネの窒素吸収により窒素がライシメータ水田系外に持ち出された（表 17）。18kg 区では，持ち出し窒素量よりも投入窒素量が多く（表 17），牛ふん堆肥施用後に土壤の全窒素濃度が大きく上昇したことから，土壤中に牛ふん堆肥由来の窒素が蓄積したと考えられた（図 37）。しかし，0kg 区に比べ 18kg 区では，土壤の全窒素および可給態窒素の経年的な減少が大きいことから（図 38），牛ふん堆肥によって土壤に加えられた窒素の無機化が 4 年間継続し，これが窒素の浸透流出量の増加に寄与したと推察された（表 17）。

表 17 小型ライシメータにおける 2003 年 4 月-2007 年 3 月の窒素収支とイネの乾物重

区名	調査年次 (4月-翌年3月)	イネ乾物重 (kg m ⁻²)	投入窒素量 (g-N m ⁻²)			持ち出し窒素量 (g-N m ⁻²)			窒素収支 (g-N m ⁻²)
			合計	牛ふん堆肥	降水+灌漑水	合計	イネ吸収	浸透流出	
0kg	2003年	1.5	1.5	0	1.5	11.6	11	0.9	-10
	2004年	1.0	2.1	0	2.1	8.0	7	0.7	-6
	2005年	1.1	1.2	0	1.2	8.5	8	0.4	-7
	2006年	0.8	1.2	0	1.2	6.9	6	1.0	-6
	4年の合計	4.3	5.9	0	5.9	34.9	32	3.1	-29
18kg	2003年	2.2	185	183	1.5	19.0	17	1.6	166
	2004年	1.4	2.1	0	2.1	11.5	10	1.3	-9
	2005年	1.7	1.3	0	1.3	14.4	13	1.1	-13
	2006年	1.4	1.2	0	1.2	11.9	10	1.5	-11
	4年の合計	6.6	189	183	6.0	56.8	51	5.4	132

4. 要約

小型ライシメータを用いて 2003-2006 年に飼料用イネを栽培し、牛ふん堆肥の多量施用が水田からの窒素の浸透流出量、水田の養分収支および土壌の養分変動に与える影響を調査した。牛ふん堆肥 18 kg m⁻² の施用により、堆肥散布後から 7 月頃まで牛ふん堆肥由来の窒素が浸透水経路で流出したと推察された。その後は堆肥施用の有無に関わらず、窒素浸透流出の季節推移は同様であったが、流出量は調査期間を通して無施用区よりも牛ふん堆肥施用区で大きかった。牛ふん堆肥 18 kg m⁻² を施用すると窒素収支は投入過剰となり土壌の全窒素および可給態窒素濃度の推移から、牛ふん堆肥に由来し土壌に蓄積した窒素が浸透水経路で 4 年間に渡り流出したと考えられた。

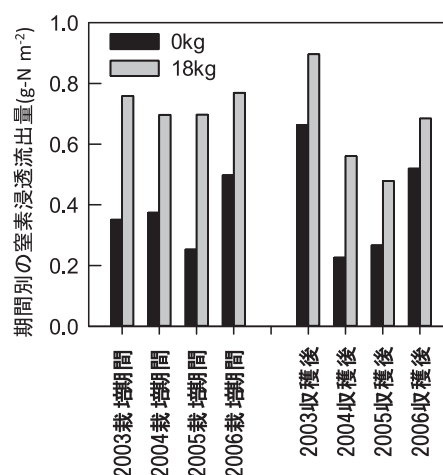


図 37 期間別の窒素の浸透流出量

0kg 区は牛ふん堆肥無施用、18kg 区は 2003 年の栽培前に 18 kg m⁻² の牛ふん堆肥を施用。栽培期間は入水～収穫までの期間、収穫後は収穫から翌年の入水までの期間を示す。但し 2006 年収穫後は収穫後から 2007 年 3 月 31 日までの期間である。

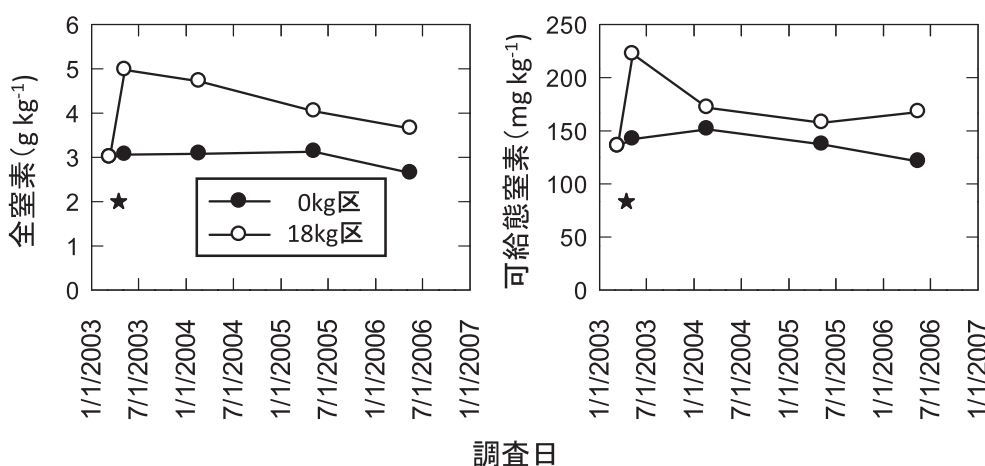


図 38 作付け前土壌の全窒素と可給態窒素量の推移

0kg 区は牛ふん堆肥無施用、18kg 区は★で示した日に 18kg m⁻² の牛ふん堆肥を施用。

VIII 総合考察

本研究では、粗孔隙の発達度合いが異なる二つの畑地（灰色低地土と黒ボク土）における無積雪期の N_2O 放出量および N_2O の生成・放出メカニズムと牛ふん堆肥を多量施用した飼料用イネ水田からの窒素の浸透流出を検討してきた。そこで、総合考察では、まず N_2O について1. 土壌の違いが土壌から大気への N_2O 放出に与える影響、2. 土壌から放出される N_2O の起源を検討し、3. 本調査地と既往の研究事例との比較を行う。また、4. として N_2O 放出や浸透水経路での窒素の流出といった農地由来の環境負荷に対する施肥の影響についても考察を行う。

1. 土壌の違いが土壌から大気への一酸化二窒素放出に与える影響

VIでは、灰色低地土のように粗孔隙が発達した粘土質土壌と黒ボク土のようにほぼ均質な粒状構造をもつ土壌では、土壌中における N_2O の生成深度および生成した N_2O の移動性が異なり、これが灰色低地土と黒ボク土の N_2O フラックスの季節推移や N_2O 放出量の違いを引き起こしたことが推察された。排水性の悪い畑からの N_2O 放出量は排水性の良い畑よりも大きかったことが報告されている⁽⁴⁾。一方で、施肥前後の3月は排水性の悪い粘土質土壌よりも排水性の良い土壌からの N_2O フラックスが高かったが、秋は逆の結果となったというように、 N_2O 放出に対する土壌タイプの影響は時期によって異なったことも報告されている⁽¹¹⁶⁾。このように、土壌構造は N_2O の生成・放出に大きな影響を与える。 N_2O 放出に対する土壌の影響としては他に、土性、pH、有機態炭素含有量の影響が検討されている⁽¹²¹⁾。有機態炭素含有率が3%を超える土壌、pHが7.3以下の土壌および細粒質土壌からの N_2O 放出が高い傾向が報告されている^(84, 121)。また、土粒子密度および粘土含有量と N_2O フラックスの間に正の相関関係が得られたことも報告されている⁽¹¹⁶⁾。 N_2O とは反対にNO放出は粗粒質土壌で大きかった^(84, 116)。灰色低地土の土性は主にシルト質壤土(SiC)、黒ボク土の土性は主に軽埴土(LiC)と埴壤土(CL)であり、どちらも中粒質土壌だった(表1)。土壌pHは灰色低地土で4.4-5.5、黒ボク土では5.6-6.0と、どちらも微酸性で大きな違いは無かつ

た(表2)。しかしながら、作土層の炭素含有率は灰色低地土よりも黒ボク土で高く、下層の炭素含有率は灰色低地土で高かった(表2)。また、灰色低地土の空間変動の調査では全炭素量と N_2O フラックスの間に有意な相関が得られ(表6)、下層の N_2O 濃度は黒ボク土よりも灰色低地土で高く推移した(図22, 23)。土壌中の有機炭素や易分解性の炭素量が多いほど脱窒が進みやすいことから⁽¹⁰²⁾、粗孔隙の存在とともに、下層の土壌炭素含有率が高かったことが、灰色低地土の下層の N_2O 濃度を高めた一因と考えられた。しかしながらVIの結果と合わせると、pH、炭素含有率等の土壌の化学性よりも、粗孔隙の発達程度の違いが土壌中での N_2O の生成および移動に与えた影響が大きかったと考えられた。

2. 土壌から放出される一酸化二窒素の起源

1) 施肥の影響

灰色低地土および黒ボク土の施肥区において、施肥直後は N_2O とNOフラックスの上昇と表層土壌中の NH_4^+ 濃度の上昇、 NO_3^- 濃度の低下が同時に起こった(図3, 7, 11)。一方、灰色低地土の無施肥区では N_2O およびNOフラックスが上昇しなかった。これより施肥された畑において、施肥直後の N_2O 放出は施肥窒素の硝化に由来したと考えられた。同様に、Smithら⁽¹²⁰⁾は施肥土壌では施肥直後に N_2O フラックスが上昇したが、無施肥土壌では顕著な N_2O フラックスの上昇が認められなかったことを示している。一方、降雨頻度が高まる収穫前後(灰色低地土)の時期または大雨直後(黒ボク土)の著しい N_2O 放出時は、土壌中の NH_4^+ および NO_3^- 濃度の推移に一樣の傾向が無く、施肥の有無に関わらず N_2O フラックスの上昇が認められた。IIIおよびVIで議論したように、この時期は主に脱窒によって N_2O が生成されたことから、これは当年に施肥された窒素ではなく、土壌中に残存する無機態窒素に由来するものと推察された(図3, 7, 11)。

2) 有機物の影響

Ⅲで示したように、灰色低地土の収穫期前後において、植栽区では無植栽区よりも N_2O 放出量が大きく (図 7, 表 3), N_2O フラックスと CO_2 フラックスの間には時系列および空間変動の両方において有意な正の相関関係が認められた (表 3, 6). 黒ボク土においても株間では, N_2O と CO_2 フラックスの間に有意な正の相関関係が得られた (図 14). この回帰式の傾きは年次によらず同程度であったが, 灰色低地土と黒ボク土では回帰式の傾きは異なり, N_2O と CO_2 フラックスの関係は土壤ごとに異なっていたことが推察された. 他の研究においても, 土壤に作物残渣を加えると CO_2 フラックス上昇後に N_2O フラックスが上昇し, 両者の間に有意な相関関係があること, 田面水に NO_3^- を添加しても NO_3^- 濃度は低下しないが, これに微生物のエネルギー源としてグリセロールを加えると急激に NO_3^- 濃度が低下し N_2O が生成されたことが報告されている^(20, 124). 従って, 灰色低地土では収穫期前後において枯死した根等の作物残渣由来の有機物が土壤に供給され微生物活性が高まった結果, 脱窒による N_2O 生成が促進されたと考えられた. 黒ボク土の株間では, 灰色低地土と同様に作物残渣由来の有機物供給で脱窒が活性化したが, 畝間は株間よりも常に土壤水分が高く, 脱窒が促進されやすい条件であったため, 作物残渣による有機物供給以外の条件で脱窒が促進されたと考えられた (図 11, 14).

3. 既往の研究事例と本調査地における一酸化二窒素および一酸化窒素放出の比較

ⅢおよびⅣで述べたように, 農耕地では窒素肥料の施用直後に著しく N_2O フラックスが上昇し, 施肥後約 1 ヶ月以内における N_2O フラックスの最高値は $0.1\text{--}0.3 \text{ mg-N m}^{-2}\text{h}^{-1}$ 程度であった例が多く報告されている^(8, 13, 26, 120, 125, 127, 136, 137, 139). また, この施肥直後の N_2O フラックスの上昇が調査期間中において最高であった例も多い^(1, 2, 3, 58, 117). 調査を行った 6 年または 3 年間の施肥後 1 ヶ月間の N_2O フラックスの最高値は, 灰色低地土タマネギ畑では $0.03\text{--}1.86 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (図 3), 黒ボク土トウモロコシ畑では $0.08\text{--}0.54 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (図 11) であり, 両土壤ともに, 施肥直後に文献値と同程度の N_2O フ

ラックスの上昇が認められた. しかし, どちらの土壤においても無積雪期の N_2O 放出量に対する施肥後約 1 ヶ月間の N_2O 放出量の割合は 30 % 以下と低く (図 6, 13), 収穫期前後または大雨後といった施肥後以外の時期に N_2O フラックスが上昇した傾向は, 土壤の違いに関わらず同じであった. 北海道東部の黒ボク土の事例では, 調査期間中の $0.3 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 以下の低い N_2O フラックスであったが, N_2O フラックスの最高値は, 施肥直後ではなく, 収穫期前後の降雨直後に見られている⁽⁶⁶⁾. しかしながら, 本州の施肥された農耕地の多くでは, 一年で最も大きい N_2O フラックスの上昇は施肥直後に認められている^(2, 127). これより, 降水量の増加時期または大雨後に起こる著しい N_2O 放出は北海道の特徴である可能性がある. 日本の雨期は大きく梅雨 (6-7 月) と秋の長雨 (9-10 月) があるが, 北海道では本州と異なり梅雨が明瞭ではなく, 9 月に降水量が最大となる傾向がある⁽⁶⁹⁾. 9 月の降水量増加は北海道以外でも認められるが, 北海道以外の地域では台風の影響が大きく, 降雨パターンは北海道と本州では異なる⁽¹³³⁾. このように降水量や降雨パターンの季節推移が北海道と本州で異なることが, N_2O フラックスの季節推移が異なった原因の一つと推察される. しかしながら, 北海道だけではなく本州や他の地域においても, 大雨や土壤中の NO_3^- の存在等, 脱窒に適した状況が揃えば, 収穫期前後において著しく N_2O が放出されることが推察された.

N_2O と同様に農耕地土壤においては, 施肥直後に NO フラックスが上昇したという報告が多い^(1, 2, 3, 125, 127, 131, 135). これらの既往の報告と同様に, 灰色低地土および黒ボク土における NO フラックスの著しい上昇は, 土壤の NH_4^+ 濃度の低下および NO_3^- 濃度の上昇が起こった施肥直後のみに認められ (図 3, 11), 化学肥料無施用区では NO フラックスの顕著な上昇がなかった. これより, 施肥窒素の硝化時に土壤中生成された NO が土壤から大気へ放出されており, NO フラックスの季節推移は N_2O フラックスに比べて土壤や気候の影響を受けにくかったことが推察された.

日本の N_2O 放出量については, Akiyama ら⁽⁴⁾ が黒ボク土, 黄色土, 灰色低地土, 褐色低地土等の様々な土壤タイプと穀類, 野菜草地等の様々な土地利用における測定事例のうち調査期間が 90 日以上-1 年

以内の246事例(36カ所)を取りまとめている。これらは測定期間が様々であるが、調査期間の積算 N_2O 放出量を調査日数で除した N_2O 放出量の範囲は $0.02\text{--}12.8 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ で、 $0.5 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ 以下の事例が80%以上を占めた(図30)。調査期間中の積算 N_2O 放出量のほぼ半数は 0.1 g-N m^{-2} 以下であり、施肥窒素量に対する N_2O 放出量の割合も1%以下の事例が多い(図31)⁽⁴⁾。中でも、日本の黒ボク土以外の土壌や世界の土壌に比べて、低いことが報告されている⁽²⁾。これらの結果とは異なり、本灰色低地土および黒ボク土からの無積雪期の日 N_2O 放出量は $1.89\text{--}7.93 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ および $4.19\text{--}11.7 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ 。測定期間中の積算放出量は $0.35\text{--}1.56 \text{ g-N m}^{-2}$ および $0.83\text{--}2.3 \text{ g-N m}^{-2}$ であり、施肥窒素量に対する N_2O 放出量の割合は1.1–6.7%および6.3–18%と高かった(表4, 10)。

StehfestとBouwman⁽¹²¹⁾が集めた世界の農耕地土壌からの N_2O 放出量825事例(測定期間100日以上1年以内)では、 N_2O 放出量は $-2.06\text{--}526 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ 、測定期間中の積算 N_2O 放出量は $-0.75\text{--}165 \text{ g-N m}^{-2}$ 、施肥窒素量に対する N_2O 放出量の割合590事例は-1.5–89.4%と幅広い値であった(図32, 33, 34)。これらのデータと比較すると、本調査2圃場の N_2O 放出量は20–80%値が分布する範囲に属したが、測定期間中の積算 N_2O 放出量は上位から15%程度の範囲に属し、施肥窒素量に対する N_2O 放出量の割合も世界的にみても高い部類に属することが示された(図32, 33, 34)。日本の測定事例のとりまとめでは、排水性の良い土壌(黒ボク土, 黄色土および陸成未熟土)に比べて、排水性の悪い土壌(多湿黒ボク土, 褐色低地土, 灰色低地土, グライ土, 灰色台地土および沖積土)の N_2O 放出量が大きかったことが報告されており、本調査2圃場はどちらも排水性の悪い土壌に分類された⁽⁴⁾。従って、施肥後に加えて、降雨頻度が高まり土壌水分が上昇する夏から秋の収穫期前後に脱窒由来の著しい N_2O 放出が起こったことが、年間放出量が大きかった原因と考えられる。また、 N_2O 放出量を調査した既往の事例の中には、施肥後数ヶ月のみの調査を行っているものも少なくない^(121, 126)。調査期間が長い事例ほど N_2O 放出量が大きい傾向から、

調査期間の短い事例では N_2O 放出量を過小評価している可能性もある^(9, 121)。これは本圃場の測定期間の積算放出量を測定日数で除した N_2O 放出量は平均的な範囲であったが、測定期間中の積算 N_2O 放出量は高い部類に属した結果とも一致する(図32, 33)。特に、本調査圃場のように、施肥後よりも施肥をしていない収穫期前後や大雨後の N_2O 放出量が大きい圃場では、施肥後だけの調査では N_2O 放出量を過小評価する危険が高い。このため、年間 N_2O 放出量を見積もる際には、施肥後だけではなく栽培期間を通した N_2O フラックスの測定が必要である。

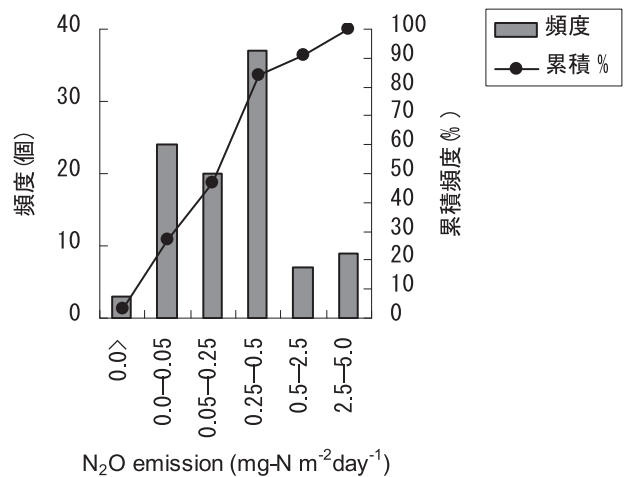


図30 日本の畑地における N_2O 放出量の分布

Akiyamaら(2006)より

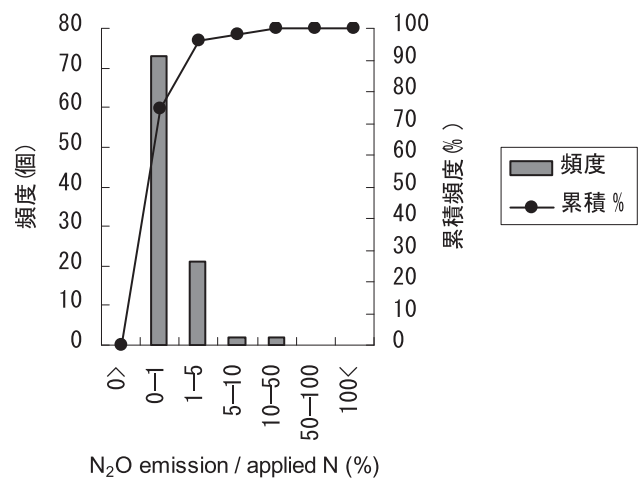


図31 日本の畑地における施肥量に対する測定期間の積算 N_2O 放出量の割合の分布

Akiyamaら(2006)より

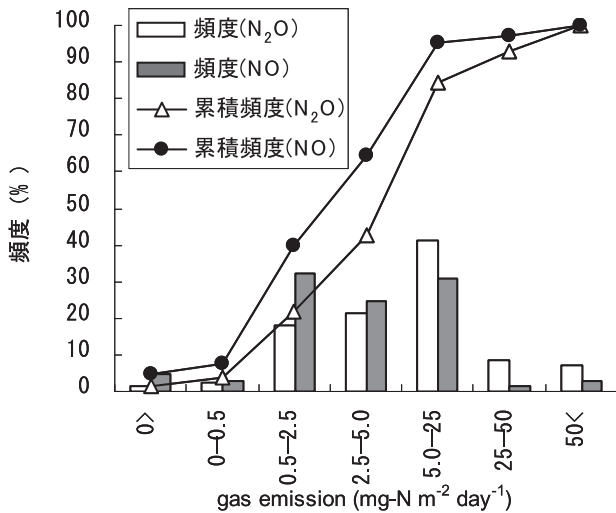


図 32 世界の農耕地における N₂O および NO 放出量の分布

Stehfest と Bouwman (2006) より

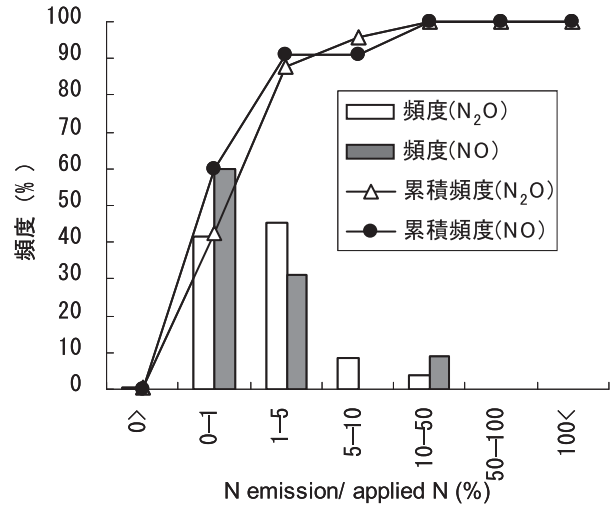


図 33 農耕地における測定期間中の N₂O および NO 積算放出量の分布

Stehfest と Bouwman (2006) より

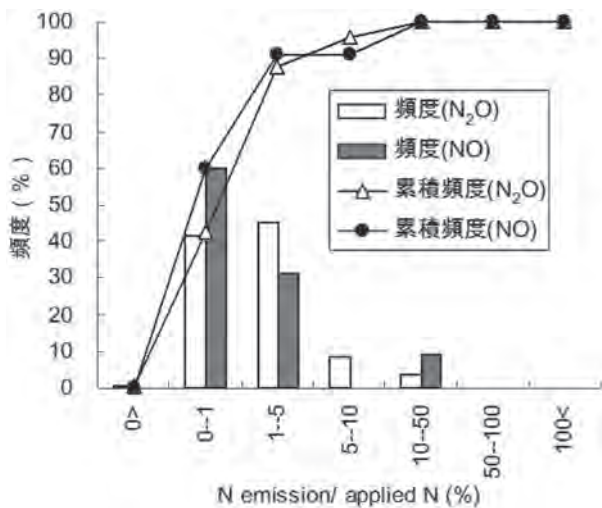


図 34 農耕地における施肥量に対する測定期間中の N₂O および NO 放出量割合の分布

Stehfest と Bouwman (2006) より

茨城県つくば市の黒ボク土の調査では、NO 放出量および施肥窒素量に対する NO 放出量の割合は、0.05 - 0.50 mg-N m⁻² day⁻¹ および 0.12 - 0.75 %^(1,2) だった。また、世界の農耕地からの NO 放出量は -1.20-87.7 mg-N m⁻² day⁻¹ の範囲であり、多くは 0.5 mg-N m⁻² day⁻¹ 前後もしくはそれ以下であった^(17,121)。図 34 に示したように施肥窒素量に対する NO 放出量の割合が 1 % 以下の事例が全体の 60 % を超えた⁽¹²¹⁾。本研究における灰色低地土および黒ボク土の NO 放出量および施肥窒素量に対する NO 放出量の割合は、それぞれ 1.73-5.57 および 1.06-2.59

mg-N m⁻² day⁻¹, 1.4-3.1 および 1.6-3.9 % であり、既往の事例と比べて比較的高い放出量だった。

4. 農地由来の環境負荷に対する施肥の影響

北海道および茨城県のタマネギの施肥窒素の基準量は 15-25 g-N m⁻² であり^(46,49)、調査した灰色低地土では例年 30 g-N m⁻² 程度の窒素が施肥された。同圃場で無肥料栽培したタマネギの収量は施肥した場合よりも 4 割程度低下し (表 4)、施肥による増収効果は大きかったと考えられた。一方で施肥後の土壌から大気への N₂O フラックスの上昇は無施肥区では認められず、作物栽培期間の積算 N₂O・NO 放出量は大きく低下し、これらの放出に対する窒素施肥の影響は大きいと推察された (表 4)。また、水稲栽培に対する家畜ふん堆肥の施用量の目安は 0.5-1 kg m⁻² とされている^(46,50)。ライシメータ試験では、18 kg m⁻² と多量の牛ふん堆肥の施用により、飼料用イネの乾物収量は増加したが、浸透水経路での窒素の流出が 4 年間に渡って増加した。牛ふん堆肥の多量施用は窒素の浸透流出を増加させ、それに伴う N₂O の間接放出量の増加が懸念された (図 36, 表 17)。従って、化成窒素肥料や牛ふん堆肥の多量施用は作物の収量を向上させるが、同時に農地からの窒素負荷を増加させる可能性も高いことが明らかとなった。

5. 結論

灰色低地土と黒ボク土において、施肥後よりも降雨頻度が高まる夏から秋の収穫期前後に大きい土壤から大気への N_2O 放出の季節推移は同様であり、これは梅雨がなく夏から秋に降雨頻度が高まる北海道中央部の降雨パターンの影響を強く受けていた。施肥直後の N_2O 放出は主に施肥窒素の硝化に由来し、降雨による水供給や作物残渣による有機物の供給が増加する夏から秋の収穫期前後の N_2O 放出は主に脱窒に由来すると考えられた。灰色低地土と黒ボク土ともに、土壤から大気へ放出された N_2O の大部分は深さ0.3 mより上で生成されたが、灰色低地土では下層で生成された N_2O も粗孔隙を通して大気へ放出されたと推察された。 N_2O 生成に影響を与える土壤の炭素含有率は作土では灰色低地土よりも黒ボク土で高く、下層では灰色低地土の方が高かった。脱窒は有機炭素が多いほど進みやすいため、

粗孔隙の存在とともに下層の有機炭素含有率が高かったことが、灰色低地土の下層の N_2O 濃度を高めた一因と考えられた。本調査2圃場からの N_2O 放出は日本国内や世界の測定事例と比べて高い値だった。これは、両圃場ともに排水性が悪い土壤であり、脱窒が起こりやすい環境だったことが原因と考えられた。このように、土壤中の水とガスの移動を支配する土壤構造と排水性は N_2O の生成・放出に大きな影響を与えたことが明らかとなった。本調査圃場のように施肥後で無い時期に著しい N_2O 放出が起こる場合は、施肥後を中心とした短期間の測定では N_2O 放出量を過小評価する危険が高く、 N_2O 放出量を推定するためには栽培期間を通した測定が必要である。また、畑や水田において、化成窒素肥料の施用や牛ふん堆肥の多量施用は作物の収量を向上させるが、同時に農地からの窒素負荷を増加させる可能性も高いことが明らかとなった。

IX 摘要

20世紀において、窒素施肥量の増加に伴い、単位面積当りの収量は飛躍的に向上したが、農地では施肥窒素に由来する一酸化二窒素(N_2O)や一酸化窒素(NO)といったガス態の窒素化合物の発生量の増加や硝酸態窒素等の流出に伴う地下水・河川・湖沼などの水質汚染等の様々な環境問題が浮上している。 N_2O は温室効果ガス的一种であり、長い寿命と高い地球温暖化係数を持つ。気候変動に関する政府間パネル(IPCC)は、 N_2O 濃度上昇の最大要因は農業と指摘し、農耕地由来の N_2O 放出を早急に低減させる必要がある。しかしながら、時間・空間的変動が非常に大きい N_2O 放出量の推定は難しく、IPCCの3次報告書で示された人為起源の N_2O 放出量は2-21 Tg-N yr⁻²の大きな幅があり、 N_2O 放出量の実測値の積み上げと N_2O 放出要因の解明を進めて、推定精度を上げる必要がある。また、我が国では、食料自給率向上のため水田での飼料用イネの作付けが奨励されており、水田への牛ふん堆肥の還元量が増えている。従って、牛ふん堆肥の多量施用による水田からの窒素流出の増大が懸念される。さらに、土壤から溶脱する窒素は N_2O の間接放出量の増加につながる。これより本研究では、北

海道中央部の灰色低地土と黒ボク土の畑地において、無積雪期の土壤から大気への N_2O フラックス等を3-6年間測定し、 N_2O 放出の季節推移やこれに対する気象および土壤環境の影響を明らかにし、無積雪期の N_2O 放出量を見積もることと牛ふん堆肥を多量施用した飼料用イネ栽培水田からの窒素浸透流出量を明らかにすることを目的とした。

1995-2000年の無積雪期(4-11月)に、灰色低地土において N_2O フラックスと関連要因を測定した。土壤から大気への N_2O フラックスは0.0-1.9 mg-N m⁻² h⁻¹の範囲で、施肥区では毎年5月の施肥直後と同等かそれ以上の N_2O が、降雨頻度が高まる収穫期前後に放出され、一酸化窒素(NO)フラックスは施肥直後のみに上昇した。無施肥区では NO および施肥直後の N_2O フラックスの上昇はなく、収穫期前後に N_2O フラックスが上昇した。土壤中の無機態窒素濃度およびフラックスの N_2O/NO 比より、施肥直後の N_2O 生成は主に硝化、収穫期前後の N_2O 生成は主に脱窒由来だと考えられた。収穫期前後の N_2O フラックスはタマネギの植栽によって上昇し、 N_2O と二酸化炭素(CO_2)フラックスの間には時系列および空間変動ともに有意な正の関係

が得られたため、降雨による土壌への水供給と、タマネギ由来の有機物が N_2O 生成を促進したと考えられた。各年の無積雪期の N_2O 放出量は $0.4\text{--}1.6 \text{ g-N m}^{-2}$ であり、この 70 % は 8–10 月に放出された。従って、施肥後中心の N_2O フラックスの測定では放出量を過少評価する可能性がある。

1998–2000 年の無積雪期において、黒ボク土からの N_2O フラックスと関連要因を調査した。 N_2O フラックスの範囲は $0.0\text{--}6.4 \text{ mg-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ であった。化学肥料の有無に関わらず、 N_2O フラックスは毎年最初の大雨直後に一度だけ大きく上昇し、これは施肥直後よりも大きかった。 NO フラックスは施肥後に化学肥料を施用した株間でのみ上昇した。土壌の無機態窒素濃度とフラックスの $\text{N}_2\text{O}/\text{NO}$ 比から、施肥直後に放出された N_2O は硝化由来、大雨後に放出された N_2O は脱窒由来と推定された。各年の無積雪期の N_2O 放出量は $0.8\text{--}2.3 \text{ g-N m}^{-2}$ であった。これまで比較的 N_2O 放出が小さいと言われている日本の黒ボク土でも、本圃場のように地下水位が高い条件では、大きな N_2O 放出が起こる可能性がある。

これまで検討してきた灰色低地土と黒ボク土は土壌中の水やガスの移動に大きく関与する粗孔隙の発達程度が異なる土壌であり、この違いが N_2O の生成放出メカニズムに与える影響を検討した。無積雪期に土壌中の N_2O の濃度分布を調査し、深さ 0.3 m を通過する N_2O フラックスを拡散法により求め、チャンバー法で測定した土壌から大気へのフラックスと比較した。下層の N_2O 濃度は黒ボク土よりも灰色低地土で高く、これが二つの土壌から大気への N_2O 放出の推移と量の違いの原因だと考えられた。両土壌ともに、土壌から大気へ放出された N_2O の大部分は深さ 0.3 m より上で生成されていたが、灰色低地土では下層で生成された N_2O も粗孔隙を通して大気へ放出されたと推察された。灰色低地土の下層の N_2O 濃度上昇の原因には、降雨時に粗孔隙を通して水とともに下層に輸送された NO_3^- が脱窒

を受けたことが考えられる。脱窒は有機炭素が多いほど進みやすく、灰色低地土では粗孔隙の存在とともに下層の土壌炭素含量が黒ボク土よりも高かったことが、下層の高い N_2O 濃度の一因と考えられた。

既往の作物栽培期間の積算 N_2O 放出量の測定事例（測定期間が 90 日以上 1 年以内）と比較すると日本の事例の大部分は 0.1 g-N m^{-2} 以下、世界の測定事例の 80 % 程度は 0.5 g-N m^{-2} 以下で、これらと比べて本圃場の N_2O 放出量は高かった。これは、両圃場ともに、多くの事例で測定期間の最大 N_2O 放出が認められた施肥後以外の時期に、施肥後と同等かそれ以上の N_2O が放出されたためだと考えられた。

飼料イネ栽培水田では牛ふん堆肥 18 kg m^{-2} の施用により、堆肥散布後から 7 月頃まで牛ふん堆肥由来の窒素が浸透水経路で流出したと推察された。その後は堆肥施用の有無に関わらず、窒素浸透流出の季節推移は同様であったが、流出量は調査期間を通して無施用区よりも牛ふん堆肥施用区で大きかった。牛ふん堆肥 18 kg m^{-2} を施用すると窒素収支は投入過剰となり土壌の全窒素および可給態窒素濃度の推移から、牛ふん堆肥に由来し土壌に蓄積した窒素が浸透水経路で 4 年間に渡り流出したと考えられた。

以上のように、北海道中央部の灰色低地土と黒ボク土では、北海道の降雨パターンの影響を受けたため、施肥直後の硝化よりも夏から秋の脱窒由来の N_2O 放出が大きく、粗孔隙の有無による土壌中の N_2O 生成深度と大気への移動性の違いが、二つの土壌からの N_2O 放出の季節推移や量の違いの原因であったこと、本調査地の無積雪期の N_2O 放出量は世界的にみても大きかったこと、化成肥料や牛ふん堆肥による多量の窒素施肥は土壌から大気への $\text{N}_2\text{O} \cdot \text{NO}$ 放出や浸透水経路での窒素流出を増加させたことを明らかとした。

謝 辞

本論文のとりまとめにあたり、北海道大学大学院農学研究院地域環境学講座土壌学専門分野の波多野隆介教授、同地域環境学講座土壌保全学専門分野の長谷川周一教授、同地域環境学講座農林環境情報学分野専門分野の平野高司教授、中央農業総合研究センター土壌肥料研究領域の加藤直人領域長には適切かつ貴重なご意見を多く賜りました。深く感謝いたします。本研究の遂行にあたり、農家の森本猛氏、

北海道農業試験場生産環境部の早川嘉彦博士および吉田光二博士、北海道立中央農業試験場の大橋優二博士、酪農学園大学の澤本卓治博士、農業環境技術研究所の阿部薫博士、中央農業総合研究センターの石田元彦博士（現石川県立大学）、石川哲也博士（現東北農業研究センター）、白石典子さんをはじめとする多くの方々のご協力をいただきました。心より感謝いたします。

引用文献

1. Akiyama, H. Tsuruta, H. (2002) Effect of chemical fertilizer from on N_2O , NO and NO_2 fluxes from an Andosol field. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 63, 219-230.
2. Akiyama, H., Tsuruta, H. (2003) Effect of organic matter application on N_2O , NO and NO_2 fluxes from an Andisol field. *Global Biogeochem. Cycl.*, 17, 1100.
3. Akiyama, H., Tsuruta, H., and Watanabe, T. (2000) N_2O and NO emissions from soils after the application of different chemical fertilizers. *Chemosphere Global Change Sci.*, 2, 313-320.
4. Akiyama, H., Yan, X., and Yagi, K. (2006) Estimations of emission factors for fertilizer-induced direct N_2O emissions from agricultural soils in Japan: Summary of available data. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 52, 774-787.
5. Arah, J.R.M., Smith, K.A., Crichton, I.J., and Li, H.S. (1991) Nitrous oxide production and denitrification in Scottish arable soils. *J. Soil Sci.*, 42, 351-367.
6. Billings, S.A., Richter, D.D., and Yarie, J. (1998) Soil carbon dioxide fluxes and profile concentrations in two boreal forests. *Canadian Journal of Forest Research*, 28, 1773-1783.
7. Blackmer A.M., Robbins S.G., and Bremner J.M. (1982) Diurnal variability in rate of emission of nitrous oxide from soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 46, 937-942.
8. Bouwman, A.F. (1990) Exchange of greenhouse gases between terrestrial ecosystems and the atmosphere. In: Bouwman AF (ed) *Soil and the greenhouse effect*, John Wiley and Sons Ltd., 61-126p.
9. Bouwman, A.F. (1996) Direct emission of nitrous oxide from agricultural soils. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 46, 53-70.
10. Bremner, J.M. (1997) Source of nitrous oxide in soils. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 49, 7-16.
11. Burton, D.L., Beauchamp E.G. (1994) Profile nitrous oxide and carbon dioxide concentrations in a soil subject to freezing. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 58, 115-122.
12. Carpenter, L.J., Clemitshaw, K.C., Burgess, R.A., Penkett, S.A., Cape, J.N., and Mcfadyen, G.G. (1998) Investigation and evaluation of the NO_x/O_3 photochemical steady state. *Atmospheric Environment*. 32, 3353-3365.
13. Cates, R.L., Keeney, D.R. (1987) Nitrous oxide production throughout the year from fertilized and manured maize fields. *J. Environ. Qual.*, 16, 443-447.
14. Clough, T.J., Kelliher, F.M., Wang, Y.P., and Sherlock, R.R. (2006) Diffusion of ^{15}N -labelled N_2O into soil columns: a promising method to examine the fate of N_2O subsoils. *Soil Biol. Biochem.*, 38, 1462-1468.

15. Davidson, E.A. (1991) Fluxes of nitrous oxide and nitric oxide from terrestrial ecosystems. *Microbial production and consumption of greenhouse gases: Methane, nitrogen oxides and halomethanes*. Rogers, J.E. & Whitman, W.B. eds, American Society for Microbiology, Washington, D.C., 219-235p.
16. Davidson, E.A. (1992) Source of nitric oxide and N_2O following wetting of dry soil. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 56, 95-102.
17. Davidson, E.A., Kingerlee, W. (1997) A global inventory of nitric oxide emissions from soils. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 48, 37-50.
18. de Jong, E., Schappert, H.J.V. (1971) Calculation of soil respiration and activity from CO_2 profiles in the soil. *Soil Sci.*, 113, 328-333.
19. Delmas, R., Serça, D., and Jambert, C. (1997) Global inventory of NO_x sources. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 12, 51-60.
20. Denmead, O.T., Freney, J.R., and Simpson, J.R. (1979a) Nitrous oxide emission during denitrification in a flooded field. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 43, 716-718.
21. Denmead, O.T., Freney, J.R., and Simpson, J.R. (1979b) Studies of nitrous oxide emission from a grass sward. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 43, 726-728.
22. 土壤環境分析法編集委員会編 (1997) *土壤環境分析法*, 博友社, 東京.
23. Dunfield, P.F., Topp, E., Archambault, C., and Knowles, R. (1995) Effect of nitrogen fertilizers and moisture content on CH_4 and N_2O fluxes in a humisol: Measurements in the field and intact soil cores. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 29, 199-222.
24. FAO, IFA (2001) *Global estimates of gaseous emissions of NH_3 , NO and N_2O from agricultural land.*, Food and Agriculture Organization and International Fertilizer industry Association, Rome.
25. Fierer, N., Chadwick, O.A., and Trumbore, S.E. (2005) Production of CO_2 in soil profiles of a California annual grassland. *Ecosystems*, 8, 412-429.
26. Freney, J.R. (1997) Emission of nitrous oxide from soils used for agriculture. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 49, 1-6.
27. 藤川 知紀・高松 利恵子・中村 真人・宮崎 毅 (2007) 農耕地土壌から大気への二酸化炭素ガス発生量の変動性とその評価. *土肥誌*, 78, 487-495.
28. 古坂 澄石 (1981) *土の微生物*, 博友社, 東京.
29. Goodroad, L.L., Keeney, D.R. (1985) Site of nitrous oxide production in field soils. *Biol. Fertil. Soils*, 1, 3-7.
30. Granli, T., Bockman, C.O. (1994) Nitrous oxide from agriculture. *Norwegian Journal of agricultural science*, 12, 7-128
31. Hansen, S., Mælum, J.E., and Bakken, L.R. (1993) N_2O and CH_4 fluxes in soil influenced by fertilization and tractor traffic. *Soil Biol. Biochem.*, 25, 621-630.
32. 長谷川 清善・小林正幸・中村稔 (1985) 水田における有機物施用が水質に及ぼす影響 (第3報). *滋賀県農業試験場報告*, 26, 20-33.
33. 長谷川 周一 (1986) 転換畑土壌中の水分移動. *土壌の物理性*, 53, 13-19.
34. Hasegawa, S., Eguchi, S. (2002) Soil water condition and flow characteristics in the subsoil of a volcanic ash soil: Findings from field monitoring from 1997 to 1999. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 48, 227-236.
35. 長谷川 周一・粕渕 辰昭 (1988) 携帯型デジタルマノメータ利用による土壌水分吸引圧の測定. *土壌の物理性*, 58, 49-51.
36. Hashimoto, S., Suzuki, M. (2002) Vertical distributions of carbon dioxide diffusion coefficients and production rates in forest soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 66, 1151-1158.
37. 畠山 史郎・嵯峨井 勝 (1996) NO の大気中での反応. *NO-化学と生物*, 東京, 学会出版センター, 35-45p.
38. 波多野 隆介 (1997) 土壌の物理性. *最新土壌学*, 東京, 朝倉書店, 96-118p.
39. Hatano, R., Sawamoto, T. (1997) Emission on N_2O from a clayey aquic soil cultivated with onion plants. *Plant nutrition - for sustainable food production and environment.*, Kluwer Academic Publishers., Japan, 555-556p.
40. 原嘉隆・土屋一成・中野恵子・田中章浩 (2008) 熟度が異なる牛糞堆肥を飼料イネ栽培前後に施用した水田ポットにおける冬季の窒素溶脱. *日作九支報*, 74, 14-16.

41. 蓮川博之・柴原藤善・駒井佐知子・水谷智・大林博幸・藤井吉隆・須戸幹 (2009) 環境こだわり農業の取り組みによる水稻作付け期の流出負荷低減効果. *滋賀県農業試験場研究報告*, 48, 1-21.
42. Hayashi, Y., Hatano, R. (1999) Annual nitrogen leaching to subsurface drainage water from a clayey aquic soil cultivated with onions in Hokkaido, Japan. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 45, 451-459.
43. Hendry, M.J., Mendoza, C.A., Kirkland, R.A., and Lawrence, J.R. (1999) Quantification of transient CO₂ production in a sandy unsaturated zone. *Water resources research*, 35, 2189-2198.
44. 広瀬 竜郎・鶴田 治雄 (1996) 窒素施肥土壌から発生する NO と N₂O のフラックス測定. *農環研資源・生態管理科研究集録*, 12, 113-118.
45. 北海道立中央農業試験場・北海道立道南農業試験場 (1995) 道内の農耕地から発生する温室効果ガス 1. 畑における亜酸化窒素 (N₂O) の発生実態.
46. 北海道農政部 (2010) 北海道施肥ガイド 2010, 14-106p.
47. Hou, A., Akiyama, H., Nakajima, Y., Sudo, S., and Tsuruta, H. (2000) Effects of urea form and soil moisture on N₂O and NO emissions from Japanese Andosols. *Chemosphere Global Change Sci.*, 2, 321-327.
48. Hutchinson, G.L., Livingston, G.P. (2002) 4.5 Soil-atmosphere gas exchange. *Methods of Soil analysis Part 4 Physical Methods.*, Wisconsin, USA., Soil Science Society of America, Inc., 1159-1182p.
49. 茨城県農業総合センター (2009) 野菜栽培基準 II 葉菜類.
50. 茨城県農業総合センター (2010) 普通作物栽培基準.
51. 指宿 堯嗣 (1990) 酸性雨 (環境の酸性化) の原因物質. *大気科学*, 東京, 学会出版センター, 99-115p.
52. 井上 久義 (1988) 亀裂が発達した粘土質圃場における暗渠排水特性. *農土論集*, 137, 25-34.
53. IPCC (2001) *Climate Change 2001: The scientific basis. Contribution of working group I to the third assessment report of the intergovernmental panel on climate change.* Cambridge, United Kingdom and New York, USA., 881p.
54. IPCC (2007) *Climate Change 2007: Synthesis Report.*
55. 板橋 直・鶴田 治雄・秋山 博子・宝川 靖和・江口 定夫 (1998) 窒素施肥土壌からの NO および N₂O の発生 (3) - 硝酸系肥料, 被覆硝酸系肥料, 被覆尿素系肥料施用区における土壌ガス濃度の垂直分布. *農環研 資源・生態管理科研究集録*, 14, 47.
56. 五十崎恒・島田安二 (1959) 水田の適正減水深について (Ⅲ). *農業土木研究*, 27, 180-185.
57. Jacinthe, P.A., Lal, R. (2004) Effects of soil cover and land-use on the relations flux-concentration of trace gases. *Soil Sci.*, 169, 243-259.
58. Jambert, C., Serca, D., and Delmas, R. (1997) Quantification of N-losses as NH₃, NO, N₂O and N₂ from fertilized maize fields in southwestern France. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 48, 91-104.
59. Kanazawa, K., Miyaji, N., Kusaba, T., Ban, K., Hayakawa, Y., and Hatano, R. (1999) Groundwater pollution by cattle slurry stored in unlined lagoon. *JARQ*, 33, 7-13.
60. 金木亮一・須戸幹・芝原勉 (2006) 水田からの窒素・リン流出負荷の削減. *水文・水資源学会誌*, 19, 360-371.
61. 環境省 (2005) *STOP THE 温暖化*, 東京, 環境省地球環境局
62. 萱根 勇 (1973) *水の循環*, 東京, 共立出版
63. Keeney, D.R., Filley, I.R., and Marx, G.P. (1979) Effect of temperature on the gaseous nitrogen products of denitrification in a silt loam soil. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 43, 1124-1128.
64. 気象庁 HP: 札幌气象台および岩見沢測候所の平年値 (年・月ごとの値), 気象統計情報, (オンライン), 入手先 (<http://www.jma.go.jp/jma/menu/report.html>)
65. 小林敏正・小森信明・徳田裕二 (2005) 施肥改善および水管理の適正化によるグライ土水田からの栄養塩類等の流出負荷軽減対策. *滋賀県農総セ農試研報*, 45, 13-36.
66. Koga, N., Tsuruta, H., Sawamoto, T., Nishimura, S., and Yagi, K. (2004) N₂O emission and CH₄ uptake in arable fields managed under conventional and reduced tillage cropping systems in northern Japan. *Global Biogeochem. Cycles*, 18, GB4025.

67. 小崎隆 (2001) ベドメトリックスを用いた農地からの環境窒素負荷量の4次元的評価. *科学研究費補金 (基盤研究 (B)(1)) 研究成果報告書* 2001 23-29.
68. Kroeze, C., Mosier, A.R., and Bouwman, A.F. (1999) Closing the global N₂O budget: a retrospective analysis 1500-1994. *Global Biogeochem. Cycles*, 13, 1-8.
69. 倉島 厚 (1966) *日本の気候 グローバルシリーズ*, 東京, 古今書院
70. Kusa, K., Sawamoto, T., and Hatano, R. (2002) Nitrous oxide emissions for 6 years from a gray lowland soil cultivated with onions in Hokkaido, Japan. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 63, 239-247.
71. Kusa, K., Hu, R., Sawamoto, T., and Hatano, R. (2006) Three years of nitrous oxide and nitric oxide emissions from silandic andosols cultivated with maize in Hokkaido, Japan. *Soil. Sci. Plant Nutr.*, 52, 103-113.
72. Kusa, K., Sawamoto, T., Hu, R., and Hatano, R. (2008) Comparison of the closed-chamber and gas concentration gradient methods for measurement of CO₂ and N₂O fluxes in two upland field soils. *Soil. Sci. Plant Nutr.*, 54, 777-785.
73. Kusa, K., Sawamoto, T., Hu, R., and Hatano, R. (2010) Comparison of N₂O and CO₂ concentrations and fluxes in the soil profile between a Gray Lowland soil and an Andosol. *Soil. Sci. Plant Nutr.*, 56, 186-199.
74. Lapitan, R.L., Wanninkhof, R., and Mosier, A.R. (1999) Methods for stable gas flux determination in aquatic and terrestrial systems. *Approaches to scaling a trace gas fluxes in ecosystems*, Elsevier Science B.V., 29-66p.
75. Lessard, R., Rochette, P., Gregorich, E.G., Pattey, E., and Desjardins, R.L. (1996) Nitrous oxide fluxes from manure-amended soil under maize. *J. Environ. Qual.*, 25, 1371-1377.
76. Li, X., Inubushi, K., and Sakamoto, K. (2002) Nitrous oxide concentrations in an andisol profile and emissions to the atmosphere as influenced by the application of nitrogen fertilizers and manure. *Biol. Fertil. Soils*, 35, 108-113.
77. Linn, D.M., Doran, J.W. (1984) Effect of water-filled pore space on carbon dioxide and nitrous oxide production in tilled and nontilled soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 48, 1267-1272.
78. Lipschultz, F., Zafiriou, O.C., Wofsy, S.C., McElroy, M.B., Valois, F.W., and Watson, S.W. (1981) Production of NO and N₂O by soil nitrifying bacteria. *Nature*, 294, 641-643.
79. Müller, C., Stevens, R., Laughlin, R., and Jäger, H.J. (2004) Microbial processes and the site of N₂O production in a temperate grassland soil. *Soil Biol. Biochem.*, 36, 453-461.
80. Maljanen, M., Kohonen, A.R., Virkajärvi, P., and Martikainen, P.J. (2007) Fluxes and production of N₂O, CO₂ and CH₄ in boreal agricultural soil during winter as affected by snow cover. *Tellus*, 59B, 853-859.
81. Maljanen, M., Liikanen, A., Silvola, J., and Martikainen, P.J. (2003a) Measuring N₂O emissions from organic soils by closed chamber or soil/snow N₂O gradient methods. *Eur. J. Soil Sci.*, 54, 625-631.
82. Maljanen, M., Liikanen, A., Silvola, J., and Martikainen, P.J. (2003b) Nitrous oxide emissions from boreal organic soil under different land-use. *Soil Biol. Biochem.*, 35, 1-12.
83. Maljanen, M., Martikainen, P.J., Aaltonen, H., and Silvola, J. (2002) Short-term variation in fluxes of carbon dioxide, nitrous oxide and methane in cultivated and forested organic boreal soils. *Soil Biol. Biochem.*, 34, 577-584.
84. McTaggart, I.P., Akiyama, H., Tsuruta, H., and Ball, B.C. (2002) Influence of soil physical properties, fertilizer type and moisture tension on N₂O and NO emissions from nearly saturated Japanese upland soils. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 63, 207-217.
85. 陽 捷行 (1994) *土壌圏と大気圏-土壌生物系のガス代謝と地球環境*, 東京, 朝倉書店
86. 文字 信貴・平野 高司・高見 晋一・堀江 武・桜谷 哲夫 (1997) *農学・生態学のための農業環境学*, 東京, 丸善

87. Mosier, A.R., Guenzi, W.D., and Schweizer, E.E. (1986) Soil losses of dinitrogen and nitrous oxide from irrigated crops in Northeastern Colorado. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 50, 344-348.
88. Mosier, A.R., Hutchinson, G.L. (1981) Nitrous oxide emissions from cropped fields. *J. Environ. Qual.*, 10, 169-173.
89. Mosier, A.R., Mohanty, S.K., Bhadrachalam, A., and Chakravorti, S.P. (1990) Evolution of dinitrogen and nitrous oxide from the soil to the atmosphere through rice plants. *Biol. Fertil. Soils*, 9, 61-67.
90. 中元 朋実 (1993) 植物の根に関する諸問題 (6) 根系の分布. *農業および園芸*, 12, 1328-1332.
91. Nakano, T., Sawamoto, T., Morishita, T., Inoue, G., and Hatano, R. (2004) A comparison of regression methods for estimating soil-atmosphere diffusion gas fluxes by a closed-chamber technique. *Soil Biol. Biochem.*, 36, 107-113.
92. 日本分析化学会北海道支部編 (1991) 水の分析 - 第3版 -, 京都, 化学同人
93. 日本ペドロロジー学会編 (2003) 日本の統一的土壌分類体系, 博友社, 東京.
94. 新良力也・渥美和彦・宮地直道 (2005) 水田灌漑による茶園流出水中の硝酸性窒素の除去. *茶研報*, 100, 117-120.
95. Nishimura, S., Sawamoto, T., Akiyama, H., Sudo S., Cheng, W., and Yagi, K. (2005a) Continuous, automated nitrous oxide measurements from paddy soils converted to upland soil. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 69, 1977-1986.
96. Nishimura, S., Sudo, S., Akiyama, H., Yonemura, S., Yagi, K., and Tsuruta, H. (2005b) Development of a system for simultaneous and continuous measurement of carbon dioxide, methane and nitrous oxide fluxes from croplands based on the automated closed chamber method. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 51, 557-564.
97. 農林水産省 (2013b) 飼料をめぐる情勢 (平成25年4月).
http://www.maff.go.jp/j/chikusan/sinko/lin/1_siryo/index.html
98. 農林水産省 (2013c) 「水田・畑作物経営所得安定対策等」及び「農業者戸別所得補償制度」の実績等について.
http://www.maff.go.jp/j/kobetu_ninaite/keiei/kobetsu.html
99. 尾崎保夫 (1990) 農耕地からの窒素負荷の削減. *用水と廃水*, 32, 27-35
100. 遅澤 省子 (1998) 土壌中のガスの拡散測定法とその土壌診断やガス動態解析への応用. *農環研報*, 15, 1-66.
101. 遅澤 省子・久保田 徹 (1987) 土壌のガス拡散係数の測定法. *土肥誌*, 58, 528-535.
102. Paul, E.A., Clark, F.E. (1996) *The fate of nitrate. Soil microbiology and biochemistry 2nd edition*, California, USA., Academic Press Inc., 199-214p.
103. Penman, H.L. (1948) Natural evaporation from open water, bare soil and grass. *Proc. Roy. Soc. London A* 193, 120-145.
104. Penman, J. (2000) Chapter4 Agriculture. Good practice guidance and uncertainty management in national greenhouse gas inventories. Kruger, D. et al. eds., IPCC by the institute for global environmental strategies, Japan, 4.1-4.76.
105. Prather, M., Ehhalt, D., Dentener, F. et al. (2001) Atmospheric chemistry and greenhouse gases. *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Houghton, JT et al. eds., Cambridge University Press, Chambridge, United Kingdom and New York, NY, USA. 241-287.
106. Pritchard, D.T., Currie, J.A. (1982) Diffusion coefficients of carbon dioxide, nitrous oxide, ethylene and ethane in air and their measurement. *J. Soil Sci.*, 33, 175-184.
107. Rolston, D.E. (1978) Application of gaseous-diffusion theory to measurement of denitrification. *Nitrogen behavior in field soil*, New York, Academic press, 309-335p.
108. Ryden, J.C., Lund, L.J., and Focht, D.D. (1978) Direct in-field measurement of nitrous oxide flux from soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 42, 731-737.

109. 阪田 匡司・波多野 隆介・佐久間 敏雄 (1994) フロースルーチャンバーを用いた土壌呼吸測定の方法改良. *土肥誌*, 65, 334-336.
110. 札幌管区气象台 (1995-2000) *北海道気象月報*, 札幌, 札幌管区气象台
111. 澤本 卓治・波多野 隆介 (2000) 北海道の土壌構造が発達した灰色低地土タマネギ畑からの N_2O フラックス *土肥誌*, 71, 659-665.
112. Scholes, M.C., Martin, R., Scholes, R.J., Parsons, D., and Winstead, E. (1997) NO and N_2O emissions from savanna soils following the first simulated rains of the season. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 48, 115-122.
113. 千田雅之・大石亘・新井守・設楽秀幸 (2009) 購入飼料依存型酪農における稲発酵粗飼料利用の評価と利用促進条件. 地域農業確率総合研究 関東地域における飼料イネの資源循環型生産・利用システムの確立 最終報告書Ⅱ 研究報告編, p.331-334. (独) 農研機構 中央農業総合研究センター.
114. 新藤 純子 (2010) 食料生産・消費に伴う環境への窒素流出と水質汚染. *農業および園芸* 85, 8-14.
115. 植物栄養実験法編集委員会編 (1990) *植物栄養実験法*, 東京, 博友社
116. Skiba, U., Ball, B. (2002) The effect of soil texture and soil drainage on emissions of nitric oxide and nitrous oxide. *Soil Use Manage.*, 18, 56-60.
117. Skiba, U., McTaggart, I.P., Smith, K.A., Hargreaves K.J., and Fowler D. (1996) Estimates of nitrous oxide emissions from soil in the UK. *Energy Convers. Mgmt.*, 37, 1303-1308.
118. Skiba, U., Smith, K.A., and Fowler, D. (1993) Nitrification and denitrification as sources of nitric oxide and nitrous oxide in a sandy loam soil. *Soil Biol. Biochem.*, 25, 1527-1536.
119. Smith, K.A., Ball, B., Conen, F., Dobbie, K.E., Massheder, J., and Rey, A. (2003) Exchange of greenhouse gases between soil and atmosphere: interactions of soil physical factors and biological processes. *Eur. J. Soil Sci.*, 54, 779-791.
120. Smith, K.A., Thomson, P.E., Clayton, H., McTaggart, I.P., and Conen, F. (1998) Effects of temperature, water content and nitrogen fertilisation on emissions of nitrous oxide by soils. *Atmospheric Environment*, 32, 3301-3309.
121. Stehfest, E., Bouwman, L. (2006) N_2O and NO emission from agricultural fields and soils under natural vegetation: summarizing available measurement data and modeling of global emissions. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 74, 207-228.
122. 鈴木 慶次郎・志賀 弘行 (2004) 浸透水の硝酸性窒素濃度から見た網走地域の黒ボク土畑における投入窒素限界量. *土肥誌*, 75, 45-52.
123. 武久邦彦・小松茂雄・北浦裕之 (2002) 牛糞堆肥連用の細粒グライ土水田での栄養塩類等流出負荷量と $N \cdot P$ 収支. *近畿中国四国農業研究成果情報*, 2002, 153-154.
124. Thomson, P.E., Parker, J.P., Arah, J.R.M., Clayton, H., and Smith, K.A. (1997) Automated soil monolith-flux chamber system for the study of trace gas fluxes. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 61, 1323-1330.
125. Thornton, F.C., Valente, R.J. (1996) Soil emissions of nitric oxide and nitrous oxide from no-till corn. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 60, 1127-1133.
126. 鶴田 治雄 (1997) 日本の水田からのメタンと畑地からの亜酸化窒素の発生量 -3年間 (1992-1994) の全国調査結果の概要 -. *農環研 資源・生態管理科研究集録*, 13, 101-130.
127. 鶴田 治雄 (2000) 地球温暖化ガスの土壌生態との関わり 3. 人間活動による窒素化合物の排出と亜酸化窒素の発生. *土肥誌*, 74, 554-564.
128. 上園一郎 (2006) 水田転作作物栽培の灌漑水中硝酸態窒素に対する浄化能. *土肥誌*, 77, 687-690.
129. 宇土顕彦・笠文彦・大久保卓也・中村正久 (2000) 灌漑期の水田における水量収支と栄養塩収支. *水環境学雑誌*, 23, 298-304.
130. van Groenigen, J.W., Georgius, P.J., van Kessel, C., Hummelink, E.W.J., Velthof, G.L., and Zwart, K.B. (2005) Subsoil $15N-N_2O$ concentrations in a sandy soil profile after application of $15N$ -fertilizer. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 72, 13-25.

131. Veldkamp, E., Keller, M. (1997) Fertilizer-induced nitric oxide emissions from agricultural soils. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 48, 69-77.
132. Verchot, L.V., Davidson, E.A., Cattaneo, J.H., Ackerman, I.L., Erickson, H.E., and Keller, M. (1999) Land use change and biogeochemical controls of nitrogen oxide emissions from soils in eastern Amazonia. *Global Biogeochem. Cycles*, 13, 31-46.
133. 和達 清夫 (1958) *日本の気候*, 東京, 東京堂
134. Wangner-Riddle, C., Thurtell, G.W., King, K.M., Kidd, G.E., and Beauchamp, E.G. (1996) Nitrous oxide and carbon dioxide fluxes from a bare soil using a micrometeorological approach. *J. Environ. Qual.*, 25, 898-907.
135. Watanabe, T., Osada, T., Yoh, M., and Tsuruta, H. (1997) N₂O and NO emissions from grassland soils after the application of cattle and swine excreta. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 49, 35-39.
136. Williams, D.L., Ineson, P., and Coward, P.A. (1999) Temporal variation in nitrous oxide fluxes from urine-affected grassland. *Soil Biol. Biochem.*, 31, 779-788.
137. Yamulki, S., Goulding, K.W.T., Webster, C.P., and Harrison, R.M. (1995) Studies on NO and N₂O fluxes from a wheat field. *Atmospheric Environment*, 29, 1627-1635.
138. Yanai, J., Sawamoto, T., Oe, T. *et al.* (2003) Spatial variability of nitrous oxide emissions and their soil-related determining factors in an agricultural field. *J. Environ. Qual.*, 32, 1965-1977.
139. Yoh, M., Toda, H., Kanda, K., and Tsuruta, H. (1997) Diffusion analysis of N₂O cycling in a fertilized soil. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, 49, 29-33.
140. 吉田 尚弘・和田 英太郎 (1990) *大気主成分*. 大気の科学, 東京, 学会出版センター, 46-61p.

Nitrogen Compounds Emission from Agricultural Lands with Heavy Application of Nitrogen Fertilizer – Nitrous Oxide Emission from Upland Fields and Leaching of Nitrogen from Forage Rice Paddies with Heavy Application of Cattle Manure –

Kanako Kusa*

Summary

Nitrous oxide (N_2O) is a greenhouse gas that has a high global warming potential and a long atmospheric lifetime. The Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) pointed out that the main cause of the increase in N_2O concentration in the troposphere is agriculture. Therefore, it is necessary to find ways to decrease N_2O emission from agricultural fields. However, N_2O emission has large temporal and spatial variations. The third report from the IPCC illustrated the large range of N_2O emission (from 2 to 21 Tg-N yr⁻²). Long-term field monitoring and elucidation of the cause of N_2O emission are required for accurate estimations of global N_2O emission. In this study, we measured N_2O fluxes in Gray Lowland soil and Andosol during the snow-free season (from April to November) for either three or six years. The objectives of this study were to evaluate the seasonal patterns and amounts of N_2O emission, and to compare our results with values obtained in previous studies.

In Gray Lowland soil from 1995 to 2000, N_2O and nitric oxide (NO) fluxes from the soil to the atmosphere ranged from 0.00 to 1.86 mg-N m⁻² h⁻¹ and from 0.00 to 3.30 mg-N m⁻² h⁻¹, respectively. In the fertilized plot of the Gray Lowland soil, the highest N_2O emissions were observed around harvesting time, from August to October with a high rainfall frequency, as well or better immediately after fertilization in May. In contrast, the NO flux increased immediately after fertilizer application. In the non-fertilized plots of Gray Lowland soil, NO and N_2O flux did not increase immediately after fertilizer application, but only N_2O flux did increase around harvesting time. The seasonal patterns of soil nitrate (NO_3^-) and ammonium (NH_4^+) levels and the ratio of N_2O /NO flux indicated that the main process responsible for N_2O production after fertilization was nitrification and that the main process responsible for N_2O production around harvest time was denitrification. The increase in N_2O flux was enhanced by the addition of water from rainfall and of organic matter from onion planting. A significant correlation could be observed between N_2O and carbon dioxide (CO_2) flux. The cumulative N_2O flux during the snow-free season for six years ranged from 0.35 to 1.56 g-N m⁻², and about 70% of this flux occurred near harvesting time, from August to October. Therefore, it is necessary to monitor N_2O flux during the entire growing season in order to estimate the annual N_2O emission.

In Andosol from 1998 to 2000, the N_2O and NO fluxes ranged from 0.00 to 6.42 and from 0.00 to 0.94 mg-N m⁻² h⁻¹, respectively. N_2O flux increased markedly after only the first heavy rainfall each year, and it was higher than the N_2O flux that occurred immediately after fertilizer application. This seasonal pattern of N_2O flux from row was similar to the pattern from the furrow, even though no chemical fertilizer was applied to the furrow. The highest N_2O flux was observed after heavy rain, and an increase

*NARO Agricultural Research Center

in NO flux was recognized only from the row. Seasonal fluctuations in NO_3^- and NH_4^+ concentrations in soil and in the ratio of $\text{N}_2\text{O}/\text{NO}$ flux suggested that N_2O and NO fluxes occurring after fertilizer application (mid-May to early July) were mainly produced by nitrification and that the N_2O emitted after heavy rain was mainly produced by denitrification. The cumulative N_2O flux during the snow-free season ranged from 0.83 to 2.33 g-N m^{-2} over a three-year period. This flux was relatively high compared with those reported worldwide. In contrast, reported cumulative N_2O fluxes from agricultural Andosols in Japan are typically lower than those from other agricultural soils in Japan and around the world. Therefore, the results of our study suggest that high N_2O emissions may occur from Japanese agricultural Andosols with a shallow ground water level.

The Gray Lowland soil and the Andosol, as described previously, had a different soil structure, especially with regard to the distribution of macropores and cracks. The influence of this difference on the production and emission of N_2O was investigated. N_2O concentration profiles were measured in two soils during the snow-free season, and N_2O flux in the soil through to a depth of 0.3 m was calculated using the gradient method (using Fick's law). This flux was compared with the N_2O flux from the soil to the atmosphere using the chamber method. In the Gray Lowland soil, the N_2O concentration above 0.4 m increased with an increase in soil depth. In the Andosol, there were no distinctive N_2O concentration gradients in the topsoil when the N_2O flux did not increase. However, the N_2O concentration at a depth of 0.1 m increased significantly, and this concentration was higher than the concentration below 0.2 m when the N_2O flux increased significantly. The N_2O concentration profiles were thus different between these two soils. The contribution ratios of the N_2O produced in the top soil (0–0.3 m depth) to the total N_2O emitted from the soil to the atmosphere in the Gray Lowland soil and the Andosol were 0.86 and 1.00, respectively. This indicates that the N_2O emitted from the soil to the atmosphere was produced mainly in the top soil. However, the contribution ratio of the subsoil to the N_2O emitted from the Gray Lowland soil was higher than that of the Andosol. There was a significant positive correlation between the N_2O flux in the soil through to a 0.3 m depth and the flux from the soil to the atmosphere in only the Gray Lowland soil. These results suggest that N_2O production in the subsoil of the Gray Lowland soil could have been activated by NO_3^- leaching through macropores and cracks, and subsequently, the N_2O produced in the subsoil might have been rapidly emitted to the atmosphere through those macropores and cracks. The soil carbon content of subsoil in the Gray Lowland soil was higher than that in the Andosol. Denitrification was prompted by an increase in the soil organic carbon; therefore, it is believed that the high carbon content and macropores in the Gray Lowland soil caused the high concentration of N_2O in the subsoil.

In Japan, the annual N_2O emission from upland fields for various periods ranged from 0.01 to 0.87 g-N m^{-2} , with most measured values being less than 0.1 g-N m^{-2} . About 80 % of the measured N_2O emission worldwide was less than 0.5 g-N m^{-2} . The cumulative emissions in this study from the Gray Lowland soil and the Andosol were relatively high, compared with those reported worldwide. This suggests that the increases of the N_2O flux in the study fields after heavy rain and harvesting were equal to or higher than the increase that occurred immediately after fertilizer application.

The conclusion of this study was showed in the following text. In the Gray Lowland soil and the Andosol, the N_2O emission derived from denitrification, from summer to autumn, was larger than that from the nitrification occurring immediately after fertilizer application. This might be due to the seasonal pattern of rainfall, i.e., no distinct rainy season in the early summer (immediately after fertilizer application) and most rain occurring in September (nearly harvesting). The differences in the seasonal patterns and the amount of N_2O emission between the Gray Lowland soil and the Andosol might be due

to the differences in the depth of the N_2O production in the soil and the N_2O mobility from the soil to the atmosphere. The annual N_2O emissions from both types of soils were relatively high, compared with those reported worldwide.

We investigated the effects of heavy application of composted cattle manure on the leaching of nitrogen from small lysimeter paddies, where forage rice was cultivated from April 2003 to March 2007. Nitrogen leaching increased with manure application when adequate rainfall occurred after the application of cattle manure during investigated period. The amount of nitrogen leaching from the paddy to which 18 kg m^{-2} (18M-plot) manure was applied was higher than this amount from the paddy without manure application (0M-plot). Although the dry matter yield of forage rice increased in the 18M-plot, the losses of nitrogen was high, and the excessive input caused nitrogen to accumulate in the soil. It was determined that heavy application of manure increased the environment load.