

水田における窒素の動態に関する15Nトレーサー法の理論的展開

誌名	日本土壌肥料学雑誌 = Journal of the science of soil and manure, Japan
ISSN	00290610
著者	山室, 成一
巻/号	59巻6号
掲載ページ	p. 538-548
発行年月	1988年12月

水田における窒素の動態に関する ^{15}N トレーサー法の理論的展開*

山 室 成 一**

キーワード トレーサー ^{15}N , 無機化モデル式, 有機化・脱窒・吸収のモデル式

水田における施肥窒素および土壌無機化窒素の動態解明は土壌中の全窒素および現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ の推移から大部分の研究が進められてきた。しかし、その動態の主要部分であるアンモニアプールへの無機化とアンモニアプールからの有機化、脱窒、吸収等への移行のくわしい動きは全窒素および現存アンモニアの推移だけでは自由度不足で求められない。このため、窒素動態のくわしい解明はトレーサー ^{15}N を加え、全窒素と現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ の ^{14}N と ^{15}N の量的推移から検討される必要がある。いいかえれば、窒素動態解明に関する ^{15}N トレーサー法の理論的展開は土壌肥沃度研究の新たな発展のための現時点における重要な羅針盤になると考えられる。すでに、筆者は土壌有機態窒素からの無機化¹⁾、施肥窒素および土壌無機化窒素の有機化、脱窒、吸収への移行の動態¹⁻⁵⁾ については前報等で検討してきたが、これらの理論の深化と統一的展開について圃場無窒素区のデータをもとに検討したので報告する。

1. 試験方法

1) 供試水田および圃場試験区

供試水田は九州農業試験場構内の緒方統に分類される細粒質灰色低地土である。土壌有機態窒素からの無機化とその有機化、脱窒、吸収への移行などに関して検討した圃場無窒素区の面積は 70m^2 であり、基肥に 1m^2 当たり P_2O_5 (熔成リン肥) 18g , K_2O (塩化カリウム) 12g 施用した。供試品種はニシホマレであり、移植は1986年6月20日、栽植様式は $30\text{cm} \times 15\text{cm}$, 3~4本植えであった。

2) 圃場無窒素区でのトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の設置および ^{15}N 試料採取方法

移植時から登熟後期(9月26日)までの期間を1週間

ずつに細分し、それぞれの期間のスタート時にトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ を施用し、その期間の終時に試料採取した。各期間とも基数調査による平均基数株を選び、そこに栽植様式単位の鉄棒(高さ 30cm) を水稲株が中心になるように深さ 20cm 程度に入れた。トレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ は $95.7\text{atom}\%$ ^{15}N 塩化アンモニウム試薬を 1442ppm 濃度の水溶液とし、針長 10cm , 太さ 0.7mm の 20ml 容注射器で無作為に数十カ所作土全層 10cm の深さに注入した。その施用量は窒素成分で 1m^2 当たり 0.321g (0.300g の ^{14}N と同グラム当量) であった。施用1週間後に枠内の水稲を抜き取り、生土 9000g を上層から順に採取した。水稲試料は乾物重を求め、粉碎し均一にした。土壌試料は手で十分に攪拌した後、その一定量 (2kg 程度) を採取し、直径 2mm のふるいを通した。このようにして篩別した生土をスプーンで攪拌しながら 200g (8月1日からは 300g) をとり、 10% KCl 溶液でアンモニア態窒素を抽出後にケルダール蒸留し、現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ を測定しその $^{15}\text{N}\text{atom}\%$ 測定用塩酸中性試料⁶⁾ を作成した。また、篩別した生土 20g , 水稲乾物試料 1g (6月27日~7月11日までは全量) をとり、硫酸分解、ケルダール蒸留後に全窒素を測定しその $^{15}\text{N}\text{atom}\%$ 測定用塩酸中性試料⁶⁾ を作成した。

3) 試料の $^{15}\text{N}\text{atom}\%$ 測定法

試料の $^{15}\text{N}\text{atom}\%$ の測定は発光分光分析法⁶⁾ で行った。

2. 試験結果と窒素動態解明の理論的考察

1) 窒素循環の様相

窒素循環の全体像は第1図のようである⁷⁾。ここで、ammonium nitrogen は現存 $\text{NH}_4\text{-N}^0$ のことであり、これはかつて無機化してきた $\text{NH}_4\text{-N}$ および施肥 $\text{NH}_4\text{-N}$ のうち、まだアンモニアプールに残っているもののことである。この $\text{NH}_4\text{-N}$ 量はここに示す mineralization の窒素量ではない。ある与えられた期間 T_j (これは順に $t_{j0}, t_{j1}, \dots, t_{ji}, \dots, t_{jn}$ 時から成り立っている) に無機化してきた窒素 M_{jn} およびアンモニアプールから移行

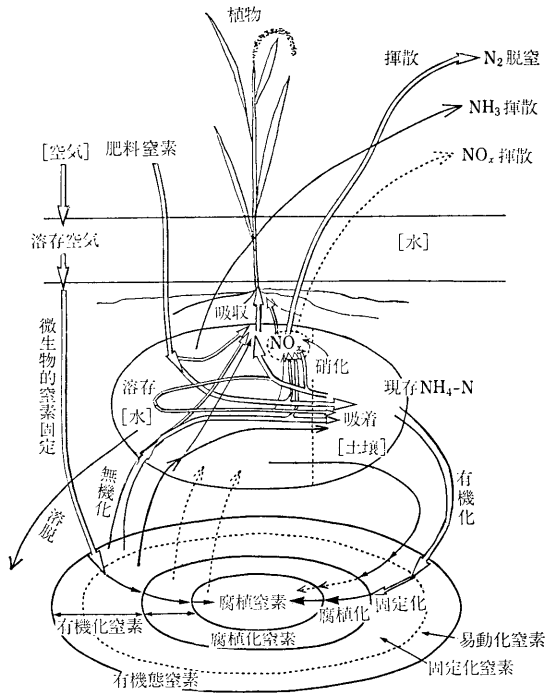
* 水田における窒素の循環に関する研究(第11報)

本報告の一部は、1987年9月、日本土壌肥科学会九州支部大会において発表した。

** 九州農業試験場(833 筑後市大字和泉 496)

昭和62年12月7日受理

日本土壌肥科学雑誌 第59巻 第6号 p. 538~548 (1988)



していった窒素 G_{jn} と現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ との間には第1図から明らかなように、

$$M_{jn} - G_{jn} = \text{NH}_4\text{-N}_{jn} - \text{NH}_4\text{-N}_{j0} \quad (1)$$

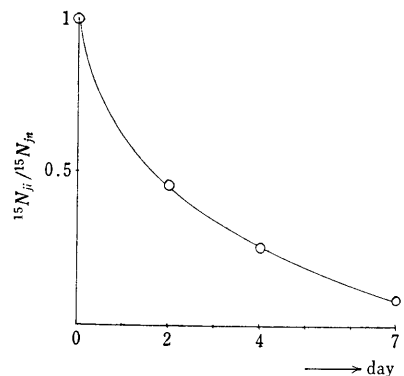
の関係が成立している。ここで、 N_{j0} および N_{jn} は t_{j0} および t_{jn} 時の現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ 量である。 G_{jn} のなかには有機化 assimilation (微生物体内に入ること、同化)、揮散 volatilization, 吸収 absorption 等の窒素が入っており、このうち、assimilation の窒素 A_{jn} は再び無機化しただす部分 mobilization があるため、(1)式が成立するためにはある与えられた期間 T_j を t_{j0} 時に有機化した窒素の再無機化がまだ起こらない期間とし、次の期間 T_{j+1} を設けていく必要がある。ここでは供試水田で同じ時期2日間の無機化量が 0.563 g 、7日間の無機化量が 1.89 g/m^2 であったので T_j 期間を1週間とした。volatilization は動きがやや複雑である。酸性土壌では99%以上が N_2 脱窒 denitrification であり²⁾、 NH_3 揮散は $\text{mg/m}^2\cdot\text{week}$ 単位、 NO_x 揮散はその1/10弱程度である⁸⁾。しかし、アルカリ土壌では NH_3 揮散は N_2 脱窒と同じ程度の強さになってくると考えられる⁹⁾。 NH_3 揮散は溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ からの揮散であり、 N_2 脱窒や NO_x 揮散のように硝化 nitrification を通るそれと区別される。有機化とその再無機化 remineralization (有機化された窒素からみれば易動化 mobilization) および固定化 immobilization

の動きもやや複雑である。われわれがトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ を加え、土壌を分析して現存 ^{15}N 量マイナス現存 $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ 量としてわかることはトレーサー ^{15}N の現存有機化 assimilated nitrogen のことである。これは、トレーサー ^{15}N 施用1週間後ぐらいまではその再無機化がほとんど起こっていないため、assimilated ^{15}N = assimilation ^{15}N になっている。しかしそれを過ぎるとまだ残っているトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ からの assimilation が続くと同時に、assimilated ^{15}N からの再無機化も起こってくるため、現存有機化と有機化の各割合は次第に異なってくる。しかし、さらに時間がたつと、トレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ もなくなり、再無機化もなくなってくるため、assimilated ^{15}N = immobilization ^{15}N になってくる¹⁰⁾。

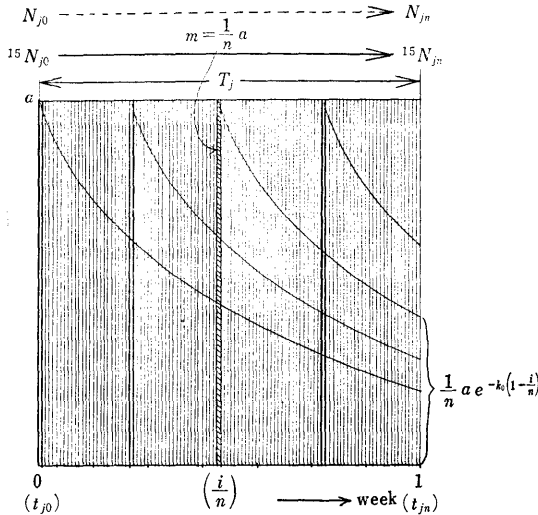
2) 土壌有機態窒素からの無機化量定量モデル式

微生物による有機態窒素の無機化は作土全層に一律にたえず起こっており、微生物体内で無機化され排出された溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ はすぐに土壌粒子に吸着されていく。したがって、ある与えられた期間 T_j の t_{j0} 時に作土全層に無作為に注射器で溶存状態で加えられた微量のトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の動きは t_{j0} 時に無機化してきた窒素の動きと同じようであると考えられる。

(1) モデル式の基本型：まず、分けつ盛期に施用されたトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の推移は第2図のとおりである。この対数値をグラフ上に図示してみればほとんど直線であることから、 $^{15}\text{N}_{jt} = ^{15}\text{N}_{j0} e^{-k_0 t}$ なる関係があることがわかる。ただし、 $^{15}\text{N}_{j0}$ 、 $^{15}\text{N}_{jt}$ は t_{j0} 時、 t_{jt} 時におけるトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ 量である。また、 $t = t_{jt} - t_{j0}$ 、 k_0 は定数である。そこで、 T_j 期間の各時点における無機化窒素の出方とその推移の基本モデル図は第3図のようになる。ここでは無機化窒素は $1/n$ 時間に $(1/n)a$ ずつたえず連続的に出てきており、それらの総量は a になっ



第2図 分けつ盛期に施用されたトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の推移



第 3 図 T_j 期間の各時点における無機化窒素の出方と
その推移のモデル図

ている。 t_{j_i} 時から $t_{j_{i+1}}$ 時にかけて $(1/n)a$ 出てきた無機化窒素は t_{j_n} 時には $(1/n)a e^{-k_0(1-\frac{i}{n})}$ になる。したがって、微小な各 $1/n$ 時間に $(1/n)a$ ずつたえず連続的に無機化してきた窒素の t_{j_n} 時における現存量は $(\frac{1}{n})a \sum_{i=0}^{n-1} e^{-k_0(1-\frac{i}{n})}$ になる。一方、 t_{j_0} 時に現存していた N_{j_0} は t_{j_0} 時に溶存状態で加えたトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の動きと同じならば t_{j_n} 時には $N_{j_0}e^{-k_0 \times 1}$ になるので、この仮定が満たされるならば t_{j_n} 時の現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ の N_{j_n} はこの $(\frac{1}{n})a \sum_{i=0}^{n-1} e^{-k_0(1-\frac{i}{n})}$ と $N_{j_0}e^{-k_0}$ の合計量に等しくなる。すなわち、

$$\left(\frac{1}{n}\right)a \sum_{i=0}^{n-1} e^{-k_0(1-\frac{i}{n})} + N_{j_0}e^{-k_0} = N_{j_n} \quad (2)$$

である。(2)式には前述のように t_{j_0} 時にあった溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ と吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の t_{j_n} 時における残存割合は等しいという仮定が入っている。ここで、 $1/n$ 時間単位をかぎりなく細分し、 $\lim_{n \rightarrow \infty} 1/n$ 時間単位とすれば、瞬間、瞬間にたえず無機化してきた窒素の t_{j_n} 時における現存量は $\lim_{n \rightarrow \infty} \left(\frac{1}{n}\right)a \sum_{i=0}^{n-1} e^{-k_0(1-\frac{i}{n})} = a \int_0^1 e^{-k_0(1-t)} dt$ であるから、ある与えられた期間 T_j の無機化窒素 $a = M_{j_n}$ は、

$$M_{j_n} = (N_{j_n} - N_{j_0}e^{-k_0}) / \int_0^1 e^{-k_0(1-t)} dt = \frac{\{N_{j_n} - ({}^{15}N_{j_n}/{}^{15}N_{j_0})N_{j_0}\} \ln({}^{15}N_{j_0}/{}^{15}N_{j_n})}{1 - ({}^{15}N_{j_n}/{}^{15}N_{j_0})} \quad (3)$$

となる¹⁾。(3)式は次の微分方程式からも導かれる。

$$dN/dt = m - k_0N, \quad (d^{15}N/dt = -k_0^{15}N, \quad d^{14}N/dt = m - k_0^{14}N) \quad (4)$$

$$R = {}^{15}N / ({}^{14}N + {}^{15}N) \quad (5)$$

ただし、 $N (= {}^{14}N + {}^{15}N)$, ${}^{14}N, {}^{15}N$ は t 時の現存 $\text{NH}_4\text{-N}$, 現存 $\text{NH}_4\text{-}^{14}\text{N}$ (natural の ${}^{15}\text{N}$ を含む), 現存トレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ 量である。また、 m は微小時間における無機化量 $(1/n)a$ である。(5)式を微分して(4)式を代入すれば、

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\partial R}{\partial {}^{15}N} \left(\frac{d^{15}N}{dt}\right) + \frac{\partial R}{\partial {}^{14}N} \left(\frac{d^{14}N}{dt}\right) = \frac{{}^{14}N}{({}^{14}N + {}^{15}N)^2} (-k_0^{15}N) + \frac{-{}^{15}N}{({}^{14}N + {}^{15}N)^2} \times (m - k_0^{14}N) = \frac{-mR}{N}$$

$$\frac{dR}{R} = -\left(\frac{m}{N}\right)dt = -\left(\frac{m}{N}\right) \frac{dN}{(m - k_0N)} = -\left(\frac{1}{N} + \frac{k_0}{m - k_0N}\right) dN$$

$$\therefore \int_{R_{j_0}}^{R_{j_n}} \frac{dR}{R} = - \int_{N_{j_0}}^{N_{j_n}} \frac{dN}{N} - \int_{N_{j_0}}^{N_{j_n}} \frac{k_0 dN}{m - k_0N} \rightarrow \ln\left(\frac{R_{j_n}}{R_{j_0}}\right) = \ln\left(\frac{N_{j_0}}{N_{j_n}}\right) + \ln\left(\frac{m - k_0N_{j_n}}{m - k_0N_{j_0}}\right) = \ln\left\{\left(\frac{N_{j_0}}{N_{j_n}}\right)\left(\frac{m - k_0N_{j_n}}{m - k_0N_{j_0}}\right)\right\}$$

一方、 $\ln(R_{j_n}/R_{j_0}) = \ln\{(N_{j_0}/N_{j_n})({}^{15}N_{j_n}/{}^{15}N_{j_0})\}$, よって、 $({}^{15}N_{j_n}/{}^{15}N_{j_0}) = (m - k_0N_{j_n}) / (m - k_0N_{j_0})$, また、 $k_0 = \ln({}^{15}N_{j_0}/{}^{15}N_{j_n}) / (t_{j_n} - t_{j_0})$ より、 $M_{j_n} (= m \times (t_{j_n} - t_{j_0}))$ は(3)式と同様の結果になる。(4)式で、 $k_0N = g$ (一定)とすると、BLACKBURN¹¹⁾ のモデル式が、

$$M_{j_n} = \frac{-(N_{j_n} - N_{j_0}) \ln(R_{j_n}/R_{j_0})}{\ln(N_{j_n}/N_{j_0})} = \frac{-(N_{j_n} - N_{j_0}) \ln\{(N_{j_0}/N_{j_n})({}^{15}N_{j_n}/{}^{15}N_{j_0})\}}{\ln(N_{j_n}/N_{j_0})} \quad (6)$$

と導かれる。ここでの考え方はある空間全体に ${}^{14}\text{N}$ と ${}^{15}\text{N}$ が均一にまざりあったときに成立する同位体希釈分析法^{10,13)}を基本としており、(3)式を導いた考え方はある空間内に存在する多くの系のなかで一つの系内の ${}^{14}\text{N}$ と ${}^{15}\text{N}$ がスタート時に均一にまざりあったときに成立する同位体トレーサー法^{12,14)}である。したがって、(3)式には空間全体に ${}^{14}\text{N}$ と ${}^{15}\text{N}$ が均一にまざりあうという条件はない。

(3)式の M_{j_n} は微小期間における無機化窒素量 m が一定、その期間における移行量 g が現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ 量に比例するという条件から導かれたものである。ある与えられた期間 T_j が非常に短期間のとき(3)式より求められる M_{j_n} はよい測定値になると考えられる。しかし、 T_j の期間が1週間程度の長期間になるとこれらの条件は満たされていないことがわかる。圃場無窒素区に施用したトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の1週間後における残存割合 ${}^{15}N_{j_n}$

第1表 圃場無窒素区における無機化窒素の出方(その1)
(g/m²)

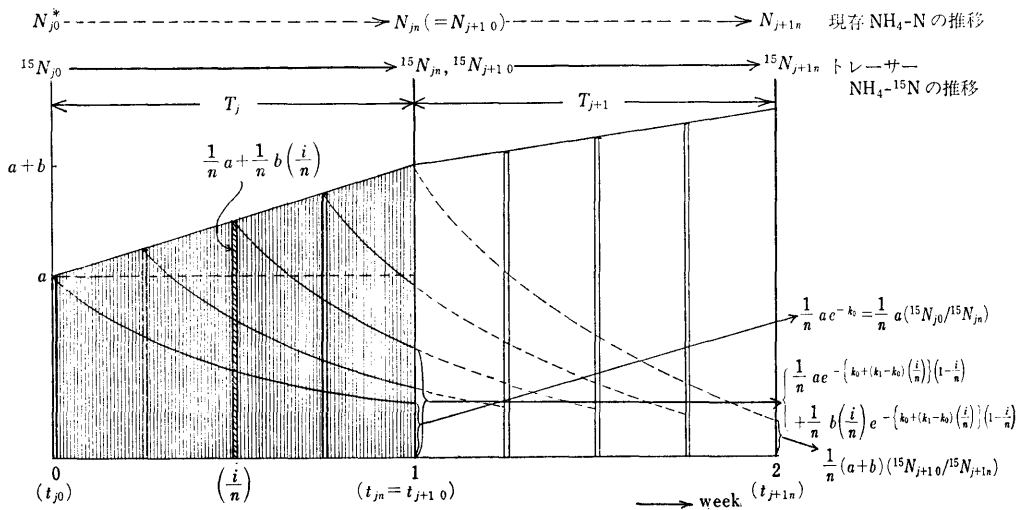
T_j	N_{j0}	N_{jn}	$\frac{^{15}N_{jn}}{^{15}N_{j0}}$	M_{jn}	k_0^*
6/20~6/27	1.11	0.96	0.327	0.99	1.1180
6/27~7/ 4	0.96	1.26	0.249	1.89	1.3903
7/ 4~7/11	1.26	1.21	0.204	1.90	1.5896
7/11~7/18	1.21	0.94	0.123	1.89	2.0956
7/18~7/25	0.94	0.66	0.047	1.98	3.0576
7/25~8/ 1	0.66	0.52	0.016	2.14	4.1352
8/ 1~8/ 8	0.52	0.48	0.013	2.08	4.3428
8/ 8~8/15	0.48	0.35	0.010	1.61	4.6052
8/15~8/22	0.35	0.37	0.026	1.35	3.6497
8/22~8/29	0.37	0.42	0.053	1.24	2.9375
8/29~9/ 5	0.42	0.46	0.080	1.13	2.5257
9/ 5~9/12	0.46	0.53	0.107	1.20	2.2349
9/12~9/19	0.53	0.50	0.151	0.93	1.8905
9/19~9/26	0.50	0.51	0.219	0.78	1.5187

* 時間単位を1週間としたので $e^{-k_0} = ^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0}$
すなわち、 $k_0 = \ln(^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0})$ とした。

$^{15}N_{j0}$ と N_{j0} および N_{jn} から(3)式より求めた圃場無窒素区の M_{jn} は第1表のとおりである。これより明らかのように、各期間 T_j の t_{j0} 時に施用したトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の t_{jn} 時における残存割合 $^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0}$ およびその逆数の対数値 $k_{j0} = \ln(^{15}N_{j0}/^{15}N_{jn})$ はそれぞれ経時的にかなり異なっているものが多い。すなわち、 t_{ji} 時に施用したトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の t_{j+1i} 時における残存割合および k_{ji} は $^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0}$ および $\ln(^{15}N_{j0}/^{15}N_{jn})$ ではないことは明らかである。 t_{j0} 時に無機化してきた窒素の t_{jn} 時における k 値すなわち k_{t_0} は $\ln(^{15}N_{j0}/$

$^{15}N_{jn})$ 、 t_{j+10} 時に無機化してきた窒素の t_{j+1n} 時における k_{j+10} は $\ln(^{15}N_{j+10}/^{15}N_{j+1n})$ であるので、 t_{j0} から t_{jn} 時のある時点 t_{ji} 時に無機化してきた窒素の t_{j+1i} 時における k_{ji} は $k_{ji} = k_{j0} + (k_{j+10} - k_{j0})\left(\frac{i}{n}\right)$ としたほうが妥当である(ここではこれらを $k_{(i)}$ $=k_0 + (k_1 - k_0) \times \left(\frac{i}{n}\right)$ と略記する)。また、無機化量も経時的にかなり増減の傾向があるので各微小期間における無機化量も t_{j0} 時から t_{jn} 時へと経過するにつれて各時点の無機化量が直線的に増加(減少)しているとしたほうがよいと考えられる。

(2) モデル式の一般型: まず、 T_j 期間の各時点における無機化窒素の出方とその推移の一般モデル図は第4図のようである。これは第3図を一般化し、各時点の無機化速度が時間とともに直線的に増加(減少)し、しかも移行量を左右する定数 k_0 も時間とともに直線的に変化している。同じく $1/n$ 時間単位を考え、 t_{j0} 時から t_{j1} 時にかけて $\left(\frac{1}{n}\right)a$ 無機化してきた窒素は t_{jn} 時には $\left(\frac{1}{n}\right)ae^{-k_0}$ になる。次の期間 T_{j+1} の t_{j+10} 時から t_{j+11} 時にかけて無機化してきた窒素を $\left(\frac{1}{n}\right)(a+b)$ とすると、 t_{ji} 時から t_{j+1i} 時にかけて $\left(\frac{1}{n}\right)a + \left(\frac{1}{n}\right)b\left(\frac{i}{n}\right)$ 無機化してきた窒素は t_{j+1n} 時には $\left(\frac{1}{n}\right)ae^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)\left(\frac{i}{n}\right)\}} \times \left(1 - \frac{i}{n}\right) + \left(\frac{b}{n}\right)\left(\frac{i}{n}\right)e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)\left(\frac{i}{n}\right)\}} \left(1 - \frac{i}{n}\right)$ になる。ただし、 $k_1 = -\ln(^{15}N_{j+1n}/^{15}N_{j+10})$ 、 $^{15}N_{j+10}$ 、 $^{15}N_{j+1n}$ は T_{j+1} 期間の t_{j+10} 、 t_{j+1n} 時におけるトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ 量である。また、 t_{j0} 時に N_{j0} あった $\text{NH}_4\text{-N}$ は t_{jn} 時



第4図 T_j 期間の各時点における無機化窒素の出方とその推移のモデル図
* N_{j0} には全層に吸着した $\text{NH}_4\text{-N}$ や表層に溶存した $\text{NH}_4\text{-N}$ などがある。

第 2 表 圃場無窒素区における無機化窒素の出方と移行量 (その 2)

(g/m²)

T_j	¹⁵ R	k	$M_{jn'}$	a	b^*	M_{jn}	G_{jn}
6/20~6/27	0.285	1.2540	1.047	0.496	0.916	0.954	1.104
6/27~7/ 4	0.225	1.4900	1.963	1.641	0.520	1.901	1.601
7/ 4~7/11	0.158	1.8426	2.086	2.008	0.121	2.069	2.119
7/11~7/18	0.0760	2.5766	2.206	2.139	0.096	2.187	2.457
7/18~7/25	0.0274	3.5960	2.277	2.283	-0.008	2.279	2.559
7/25~8/ 1	0.0144	4.2390	2.191	2.243	-0.067	2.210	2.350
8/ 1~8/ 8	0.0114	4.4740	2.142	2.435	-0.372	2.249	2.299
8/ 8~8/15	0.0161	4.1274	1.448	1.799	-0.454	1.572	1.702
8/15~8/22	0.0371	3.2936	1.234	1.336	-0.139	1.267	1.247
8/22~8/29	0.0651	2.7316	1.170	1.211	-0.058	1.182	1.132
8/29~9/ 5	0.0925	2.3803	1.118	1.130	-0.017	1.122	1.082
9/ 5~9/12	0.127	2.0627	1.136	1.216	-0.121	1.156	1.086
9/12~9/19	0.182	1.7046	0.875	1.001	-0.198	0.902	0.932
9/19~9/26	0.251	1.3835	0.740	0.861	-0.198	0.762	0.752

* $\left(\frac{M_{jn'}+M_{j+1n'}}{2}\right) - \left(\frac{M_{j-1n'}+M_{jn'}}{2}\right)$ として求めた.

には $N_{j0}e^{-k_0 \times 1}$ になると考えられるので、 t_{jn} 時に N_{jn} あった $\text{NH}_4\text{-N}$ はこの両者の合計量に等しい。すなわち、 $\left(\frac{1}{n}\right)a \sum_{i=0}^{n-1} e^{-\{k_0+(k_1-k_0)\left(\frac{i}{n}\right)\}(1-\frac{i}{n})} + \left(\frac{1}{n}\right)b \sum_{i=0}^{n-1} \left(\frac{i}{n}\right) \times e^{-\{k_0+(k_1-k_0)\left(\frac{i}{n}\right)\}(1-\frac{i}{n})} + N_{j0}e^{-k_0} = N_{jn}$ となる。ここで $1/n$ 時間単位をかぎりなく細分し、そのときの a を求めれば、

$$a = \left[\frac{N_{jn} - ({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})N_{j0}}{-b \int_0^1 t e^{-\{k_0+(k_1-k_0)t\}(1-t)} dt} \right] / \int_0^1 e^{-\{k_0+(k_1-k_0)t\}(1-t)} dt \quad (7)$$

となる。そして T_j 期間の無機化量 M_{jn} は第 4 図から明らかのように $a + \left(\frac{1}{2}\right)b$ になる。(7)式の不定積分 $\int_0^1 e^{-\{k_0+(k_1-k_0)t\}(1-t)} dt$ は初等関数では表わすことができないので、計算機による近似計算か次に示す近似式(8)から求められよう。

$$a \doteq \frac{(N_{jn} - N_{j0}e^{-k_0}) - b \int_0^1 t e^{-k(1-t)} dt}{\int_0^1 e^{-k(1-t)} dt} = \left[\frac{N_{jn} - ({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})N_{j0}}{\ln(1/{}^{15}\text{R})} - b \left\{ 1 - \frac{1 - ({}^{15}\text{R})}{\ln(1/{}^{15}\text{R})} \right\} \right] / (1 - {}^{15}\text{R}) \quad (8)$$

ただし、

$$k = \ln \sqrt{({}^{15}\text{N}_{j0}/{}^{15}\text{N}_{jn})({}^{15}\text{N}_{j+1}/{}^{15}\text{N}_{j+1n})},$$

$${}^{15}\text{R} = \sqrt{({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})({}^{15}\text{N}_{j+1n}/{}^{15}\text{N}_{j+1})}$$

である。これより、

$$M_{jn} \doteq \left[\frac{N_{jn} - ({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})N_{j0} \ln(1/{}^{15}\text{R})}{-b \left\{ \frac{1}{2} + \left(\frac{1}{2}\right){}^{15}\text{R} - (1 - {}^{15}\text{R})/\ln(1/{}^{15}\text{R}) \right\}} \right] / (1 - {}^{15}\text{R}) \quad (9)$$

である。(9)式で $b=0$ とおくと、

$$M_{jn'} \doteq \left[\frac{N_{jn} - ({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})N_{j0}}{\times \ln(1/{}^{15}\text{R})} \right] / (1 - {}^{15}\text{R}) \quad (10)$$

(9)式および(10)式より求めた M_{jn} および $M_{jn'}$ は第 2 表のとおりである。第 1 表の M_{jn} と第 2 表の $M_{jn'}$ とを比較すれば明らかのように、 ${}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0}$ 値の推移が減少傾向にあるときには(3)式より求めた無機化窒素は若干過小評価になっており、増加傾向にあるときは若干過大評価になっていると考えられる。また、第 2 表の M_{jn} と $M_{jn'}$ を比較すれば明らかのように、(10)式より求めた無機化窒素はその値が急増か急減しているとき以外は(9)式より求めたそれとほとんど同じになっている。したがって、無機化窒素定量モデル式の一般型は、(7)式で $b=0$ とおいて、

$$M_{jn} = \frac{N_{jn} - ({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})N_{j0}}{\int_0^1 e^{-\{k_0+(k_1-k_0)t\}(1-t)} dt} \quad (11)$$

で示されよう。ただし、有機物が多量に連用されたような肥沃な土壌では b を初期に考慮する必要があると考えられる。

(3) 圃場試験適応モデル式への一般型の変形：第 1 図に示したように、現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ は土壤溶液中への溶存 dissolution と土壤粒子への吸着 adsorption の interchange のなかで存在している。しかし、ある与えられた期間 T_j における無機化窒素は前述してきたように t_{j0} 時の現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ と t_{j0} 時に加えたトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ が t_{jn} 時まででどのように推移したかが明らかになれば interchange に関係なく求められる。これらの推移を明らかにするためには、各無機化窒素の推移を追求するためのトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ のほかに、 t_{j0} 時の現存 $\text{NH}_4\text{-}$

Nである N_{j_0} を層位と溶存吸着の存在様式別にそれぞれの系を考え、その系の数だけそれぞれのトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ 区を別々に作ればよいことになる。この考えは同位体トレーサー法の原理に何ら矛盾するものではない。基肥窒素は多くの場合全層に一樣に施用され多くは吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ になっているので、かつて無機化してきた窒素の t_{j_0} 時における残存量と同じような取扱いができると考えられる。これに対して、追肥窒素は多くは表層に施用されるだけで攪拌されないの、施用時は溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ になっている。これらのことを考慮すれば、圃場無窒素区やインキュベート試験区における無機化窒素定量モデル式の一般型は、

$$M_{j_n} = \frac{N_{j_n} - ({}^{15}\text{N}_{j_n}/{}^{15}\text{N}_{j_0})_{\text{ad.}} \cdot N_{j_0}}{\int_0^1 e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}(1-t)} dt} \quad (12)$$

である。ただし、 $({}^{15}\text{N}_{j_n}/{}^{15}\text{N}_{j_0})_{\text{ad.}}$ は t_{j_0} 時吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の t_{j_n} 時における残存割合である。また、圃場施肥窒素区における無機化窒素定量モデル式の一般型は、

$$M_{j_n} = \frac{\{N_{j_n} - ({}^{15}\text{N}_{j_n}/{}^{15}\text{N}_{j_0})_{\text{ad.}}(N_{j-1n} + N_{b,j_0}) - ({}^{15}\text{N}_{j_n}/{}^{15}\text{N}_{j_0})_{\text{td.}} N_{t,j_0}\}}{\int_0^1 e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}(1-t)} dt} \quad (13)$$

である。ただし、 N_{j-1n} はスタート時施肥直前の現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ である。また、 N_{b,j_0} および N_{t,j_0} はそれぞれ全層施肥および表層施肥の窒素量である。 $({}^{15}\text{N}_{j_n}/{}^{15}\text{N}_{j_0})_{\text{ad.}}$ および $({}^{15}\text{N}_{j_n}/{}^{15}\text{N}_{j_0})_{\text{td.}}$ は t_{j_0} 時作土全層に一樣に吸着した $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ および表層に溶存した施肥 $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の t_{j_n} 時における残存割合である。

(4) 施用有機態窒素からの無機化窒素定量モデル式：第1図から明らかなように、現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ や無機化窒素は土壌有機態窒素（微生物により固定された空中窒素を含む）由来、施肥窒素由来、施用有機物由来等のものによって構成されている。アンモニアプールからのこれらの移行動態は同じと考えられるので、ある与えられた期間 T_j における土壌由来無機化窒素 M_{s,j_n} 、施肥 $\text{NH}_4\text{-N}$ 由来再無機化窒素 M_{f,j_n} 、施用有機物由来無機化窒素 M_{c,j_n} は無機化窒素全体を $M_{j_n}(N_{j_0}, N_{j_n})$ と表示すると、 $M_{s,j_n} = M_{j_n}(N_{s,j_0}, N_{s,j_n})$ 、 $M_{f,j_n} = M_{j_n}(N_{f,j_0}, N_{f,j_n})$ 、 $M_{c,j_n} = M_{j_n}(N_{c,j_0}, N_{c,j_n})$ で示される、たとえば、 M_{c,j_n} は (11) 式と同型のモデル式で示せば、

$$M_{c,j_n} = \frac{N_{c,j_n} - ({}^{15}\text{N}_{j_n}/{}^{15}\text{N}_{j_0}) N_{c,j_0}}{\int_0^1 e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}(1-t)} dt} \quad (14)$$

である。ただし、 N_{s,j_0} 、 N_{f,j_0} 、 N_{c,j_0} および N_{s,j_n} 、 N_{f,j_n} 、 N_{c,j_n} は t_{j_0} 時および t_{j_n} 時における土壌由来、施肥由来、施用有機物由来の現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ である。(14) 式から明らかなように、施用有機物窒素からの無機化量を定量す

るためには現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ 中の施用有機物由来 $\text{NH}_4\text{-N}$ の N_{c,j_0} や N_{c,j_n} を求めるための施用 ^{15}N -有機物区と施用 ^{14}N -有機物区中の無機化窒素の動態を追跡するためのトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ 区を作り、この両者のデータを (14) 式に入れて M_{c,j_n} を求める。ここで、たとえば、 t_{j_0} 時の施用有機物由来現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ と t_{j_0} 時から t_{j_n} 時にかけてたえず無機化してきた施用有機物由来の M_{c,j_n} からの移行量の合量を G_{c,j_n} とすると、 $M_{c,j_n} - G_{c,j_n} = N_{c,j_n} - N_{c,j_0}$ なる (1) 式と同様の関係が成立する。

3) アンモニアプールからの有機化、脱窒、水稲吸収等への移行量定量モデル式

ある与えられた期間 T_j における総移行量 G_{j_n} は (1) 式より第2表に示したように求められる。この移行量には t_{j_0} 時の現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ からの移行量 G_0 と t_{j_0} 時から t_{j_n} 時にかけてたえず無機化してきた窒素からの移行量 G_m が入っている。前述したように、 G_{j_n} には総有機化量 A_{j_n} 、総脱窒量 D_{j_n} 、総吸収量 P_{j_n} 等が含まれる。アンモニアプールからの移行動態を $\mathbf{G}_{j_n} = (A_{j_n}, D_{j_n}, P_{j_n})$ とすると、これは t_{j_i} 時に無機化してきた $\text{NH}_4\text{-N}$ の t_{j_n} 時における有機化割合を a_{j_in} 、脱窒割合を d_{j_in} 、吸収割合を p_{j_in} としたときのその成分表示 \mathbf{g}_{j_in} を $(a_{j_in}, d_{j_in}, p_{j_in})$ とすると、第4図より明らかなように、

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_{j_n} = & N_{j_0\text{-ad.}}(\mathbf{g}_{j_0n})_{\text{ad.}} + N_{t,j_0}(\mathbf{g}_{j_0n})_{\text{d.}} \\ & + \lim_{n \rightarrow \infty} \left[\left(\frac{1}{n}\right) a \mathbf{g}_{j_0n} + \dots + \left\{ \left(\frac{1}{n}\right) a + \left(\frac{1}{n}\right) b \left(\frac{i}{n}\right) \right\} \right. \\ & \left. \times \mathbf{g}_{j_1n} + \dots + \left\{ \left(\frac{1}{n}\right) a + \left(\frac{1}{n}\right) b \left(\frac{n-1}{n}\right) \right\} \mathbf{g}_{j_{n-1}n} \right] \quad (15) \end{aligned}$$

となる。ただし、 $(\mathbf{g}_{j_0n})_{\text{ad.}}$ と $(\mathbf{g}_{j_0n})_{\text{d.}}$ は t_{j_0} 時の吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ と t_{j_0} 時表層に溶存した施肥 $\text{NH}_4\text{-N}$ の t_{j_n} 時における有機化、脱窒、吸収の割合の成分表示である。 $N_{j_0\text{-ad.}} + N_{t,j_0} = N_{j_0}$ である。

$N_{j_0\text{-ad.}}$ からの移行量を求めるにはトレーサー ^{15}N を吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ としなければならないので土壌を十分に攪拌しなければならない。しかし、圃場試験区では水稲根を切断してしまうので、ここではまず、 t_{j_0} 時から t_{j_n} 時にかけてたえず無機化してきた窒素からの同じ期間中における移行量の成分表示 $\mathbf{G}_m = (A_m, D_m, P_m)$ を求め、総移行量の成分表示 $\mathbf{G}_{j_n} = (A_{j_n}, D_{j_n}, P_{j_n})$ より差し引いて、 N_{j_0} からの移行量の成分表示 $\mathbf{G}_0 = (A_0, D_0, P_0)$ を求める必要がある。 $G_0 = G_{j_n} - G_m$ 、 $P_0 = P_{j_n} - P_m$ と G_0 および P_0 が求まり、 $A_{j_n} + D_{j_n}$ および $A_0 + D_0$ も $G_{j_n} - P_{j_n}$ および $(G_{j_n} - G_m) - (P_{j_n} - P_m)$ として求めることができる。ただし、 P_{j_n} は水稲平均茎数株の抜取りによって求める必要がある。

(1) 無機化窒素からの移行量定量モデル式：ある与えられた期間にたえず無機化してきた窒素の同期間中における移行量 G_m の成分表示 $G_m = (A_m, D_m, P_m)$ の一般型は、

$$G_m = \lim_{n \rightarrow \infty} \sum_{i=0}^{n-1} \left\{ \left(\frac{1}{n} \right) a + \left(\frac{1}{n} \right) b \left(\frac{i}{n} \right) \right\} g_{j i n} \quad (16)$$

である。しかし、われわれが入手するデータは T_j 期間のスタート時 t_{j0} に加えたトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の $t_{j n}$ 時における $g_{j0 n}$ と次の期間のそれの $g_{j+1 0 n}$ である。いま、 $t_{j i}$ 時に $\left(\frac{1}{n} \right) a + \left(\frac{1}{n} \right) b \left(\frac{i}{n} \right)$ 無機化してきた窒素は 1 週間後の $t_{j+1 i}$ 時には、 $\left(\frac{1}{n} \right) a e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0) \frac{i}{n}\}} + \left(\frac{1}{n} \right) \times b \left(\frac{i}{n} \right) e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0) \frac{i}{n}\}}$ になり、 $\left(1 - \frac{i}{n} \right)$ 週間後の $t_{j n}$ 時には $\left(\frac{1}{n} \right) a e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0) \frac{i}{n}\}} \left(1 - \frac{i}{n} \right) + \left(\frac{1}{n} \right) b \left(\frac{i}{n} \right) \times e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0) \frac{i}{n}\}} \left(1 - \frac{i}{n} \right)$ になる。すなわち、 $t_{j i}$ 時に無機化してきた窒素の $t_{j n}$ 時までに移行したものと $t_{j+1 i}$ 時までに移行したものの比は $(1 - e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0) \frac{i}{n}\}}) \left(1 - \frac{i}{n} \right) / (1 - e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0) \frac{i}{n}\}})$ になる。また、 $t_{j i}$ 時に加えられたトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の $t_{j+1 i}$ 時における移行量の各成分割合である $g_{j i n+i}$ は $g_{j0 n} + (g_{j+1 0 n} - g_{j0 n}) \left(\frac{i}{n} \right)$ となるので、その $t_{j n}$ 時におけるその $g_{j i n}$ は、 $\{g_{j0 n} + (g_{j+1 0 n} - g_{j0 n}) \left(\frac{i}{n} \right)\} (1 - e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0) \frac{i}{n}\}}) \left(1 - \frac{i}{n} \right) / (1 - e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0) \frac{i}{n}\}})$ となる。したがって、(16) 式の G_m は、

$$\begin{aligned} G_m &= \int_0^1 (a + bt) \{g_{j0 n} + (g_{j+1 0 n} - g_{j0 n})t\} \\ &\quad \times \{(1 - e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}}) (1 - t)\} / \\ &\quad (1 - e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}}) dt \quad (17) \\ &\doteq \int_0^1 (a + bt) \{g_{j0 n} + (g_{j+1 0 n} - g_{j0 n})t\} \\ &\quad \times \{(1 - e^{-k(1-t)}) / (1 - e^{-k})\} dt \\ &= \frac{1}{1 - e^{-k}} \left[\left[\left(\frac{a}{2} + \frac{b}{3} \right) + \frac{(a+b)(1 - e^{-k})}{\ln e^{-k}} \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \frac{(a+2b) \{1 - e^{-k}\} (1 - \ln e^{-k})}{(\ln e^{-k})^2} \right] g_{j+1 0 n} \right. \\ &\quad \left. + \left[\left(\frac{a}{2} + \frac{b}{6} \right) + \frac{(a+b) \{1 - e^{-k}\} (1 - \ln e^{-k})}{(\ln e^{-k})^2} \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \frac{b \{2 - e^{-k}\} ((\ln e^{-k})^2 - 2 \ln e^{-k} + 2)}{(\ln e^{-k})^3} \right] g_{j0 n} \right] \quad (18) \end{aligned}$$

(18) 式で $b=0$ において、

第 3 表 トレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の 1 週間後における動態* (割合)

期 間 $t_{j0} \sim t_{jn}$	有機化 a_{j0n}	脱 窒 d_{j0n}	吸 収 p_{j0n}
6/20~6/27	0.449	0.210	0.014
6/27~7/ 4	0.378	0.298	0.075
7/ 4~7/11	0.456	0.197	0.143
7/11~7/18	0.307	0.318	0.252
7/18~7/25	0.200	0.433	0.367
7/25~8/ 1	0.161	0.372	0.451
8/ 1~8/ 8	0.260	0.243	0.484
8/ 8~8/15	0.283	0.216	0.491
8/15~8/22	0.277	0.184	0.513
8/22~8/29	0.267	0.210	0.475
8/29~9/ 5	0.329	0.133	0.458
9/ 5~9/12	0.376	0.082	0.435
9/12~9/19	0.394	0.028	0.427
9/19~9/26	0.400	0.028	0.353

* 9/26~10/3 の動態は (0.406, 0.028, 0.279) とした。

第 4 表 各期間に無機化した $\text{NH}_4\text{-N}$ の有機化, 脱窒, 吸収への移行量と残存量 (g/m²)

期 間 $t_{j0} \sim t_{jn}$	有機化 A_m	脱 窒 D_m	吸 収 P_m	残 存 R_m
6/20~6/27	0.209	0.124	0.020	0.601
6/27~7/ 4	0.464	0.294	0.118	1.025
7/ 4~7/11	0.529	0.322	0.245	0.973
7/11~7/18	0.400	0.549	0.449	0.789
7/18~7/25	0.315	0.698	0.686	0.580
7/25~8/ 1	0.348	0.550	0.801	0.511
8/ 1~8/ 8	0.483	0.416	0.873	0.477
8/ 8~8/15	0.350	0.254	0.623	0.345
8/15~8/22	0.257	0.183	0.469	0.358
8/22~8/29	0.243	0.150	0.391	0.398
8/29~9/ 5	0.266	0.087	0.344	0.425
9/ 5~9/12	0.296	0.048	0.334	0.478
9/12~9/19	0.233	0.017	0.236	0.416
9/19~9/26	0.194	0.013	0.157	0.398

$$G_m \doteq \frac{M_{jn}}{1 - e^{-k}} \left[\left\{ \frac{1}{2} + \frac{1 - e^{-k}}{\ln e^{-k}} - \frac{e^{-k}(1 - \ln e^{-k}) - 1}{(\ln e^{-k})^2} \right\} g_{j+1 0 n} + \left\{ \frac{1}{2} + \frac{e^{-k}(1 - \ln e^{-k}) - 1}{(\ln e^{-k})^2} \right\} g_{j0 n} \right] \quad (19)$$

となる。これは (10) 式に対応するものであり、普通の試験区ではこれで十分と考えられる。

圃場無窒素区に施用したトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の 1 週間後における有機化, 脱窒, 吸収の割合 $g_{j0 n} = (a_{j0 n}, d_{j0 n}, p_{j0 n})$ は第 3 表のとおりである。したがって、第 2 表および第 3 表の各数値を(18)式に代入して求めた各期間に無機化してきた窒素のその期間における有機化, 脱窒, 吸収への移行量および残存量は第 4 表のとおりで

第5表 N_{j0} からの有機化, 脱窒, 吸収への移行量と残存量 (g/m²)

期間 $t_{j0} \sim t_{jn}$	有機化* A_0	脱窒* D_0	吸収** P_0	残存 R_0
6/20~6/27	0.455	0.267	0.029	0.359
6/27~7/ 4	0.400	0.255	0.070	0.235
7/ 4~7/11	0.568	0.347	0.108	0.237
7/11~7/18	0.428	0.518	0.113	0.151
7/18~7/25	0.272	0.504	0.084	0.080
7/25~8/ 1	0.211	0.333	0.107	0.009
8/ 1~8/ 8	0.245	0.213	0.069	0.003
8/ 8~8/15	0.134	0.098	0.243	0.005
8/15~8/22	0.051	0.037	0.250	0.012
8/22~8/29	0.108	0.078	0.162	0.022
8/29~9/ 5	0.188	0.117	0.080	0.035
9/ 5~9/12	0.321	0.052	0.035	0.052
9/12~9/19	0.408	0.018	0.020***	0.084
9/19~9/26	0.355	0.023	0.010***	0.112

* 有機化・脱窒比をトレーサー ¹⁵N のそれと同じとして計算した。

** 各 t_{jn} 時水稲吸収量の実験値 (0.076, 0.116, 0.304, 0.813, 1.23, 1.96, 2.96, 3.67, 4.48, 5.51, 5.92, 6.32, 7.06, 7.86, 7.24) を P_i とし, $\ln P_i = \beta_0 + \beta_1 t_i + \beta_2 t_i^2 + \beta_3 t_i^3 + \epsilon_i$ の最小自乗法による推定値 $\ln P_i$ より求めた P_i の各期間における増加量を P_{jn} として, $P_0 = P_{jn} - P_m$ より求めた。ただし, *** は P_0 を8月下旬~9/12の傾向からおよその推定値として記入した。

第6表 N_{j0} の1週間後における動態(割合)

期間 $t_{j0} \sim t_{jn}$	有機化 (a_{j0n}) _{ad.}	脱窒 (d_{j0n}) _{ad.}	吸収 (p_{j0n}) _{ad.}	残存 (r_{j0n}) _{ad.}
6/20~6/27	0.410	0.241	0.026	0.323
6/27~7/ 4	0.417	0.266	0.073	0.245
7/ 4~7/11	0.451	0.275	0.086	0.188
7/11~7/18	0.354	0.428	0.093	0.125
7/18~7/25	0.289	0.537	0.089	0.085
7/25~8/ 1	0.320	0.505	0.162	0.014
8/ 1~8/ 8	0.300*	0.355*	0.359*	0.006
8/ 8~8/15	0.279	0.204	0.506	0.010
8/15~8/22	0.286**	0.208**	0.472**	0.034
8/22~8/29	0.292	0.211	0.438	0.059
8/29~9/ 5	0.448	0.279	0.190	0.083
9/ 5~9/12	0.698	0.113	0.076	0.113
9/12~9/19	0.770	0.034	0.038	0.158
9/19~9/26	0.710	0.046	0.020	0.224

*, ** 計算上は (0.471, 0.410, 0.133)*, (0.146, 0.106, 0.714)** となったが, (p_{j0n})_{ad.} は (採取株の吸収増量 - P_m)/ N_{j0} であるので, 誤差大なる場合も起こりうると考え,

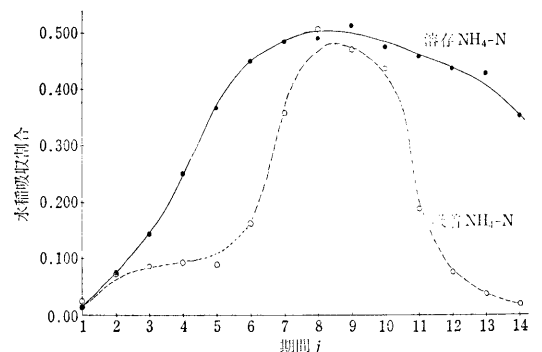
$$(a_{j0n})_{ad.} = \frac{(a_{j-1,0n})_{ad.} + (a_{j+1,0n})_{ad.}}{2},$$

$$(d_{j0n})_{ad.} = \frac{(d_{j-1,0n})_{ad.} + (d_{j+1,0n})_{ad.}}{2}$$

であるのが自然であると考え, 先に (a_{j0n})_{ad.}, (d_{j0n})_{ad.} を求め, (p_{j0n})_{ad.} を次いで計算した。

ある。第3表より明らかなように, トレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の1週間後における吸収割合は幼穂形成期の7月25日にはかなり高く, 出穂期の8月29日を過ぎててもかなり高く経過していることがわかる。すなわち, 水田土壌中に無機化溶存した窒素の吸収割合は高く, 安定的であることがわかる。第4表より明らかなように, 各期間の無機化窒素が少なくなってくる8月中旬からは各期間に無機化してきた窒素のその期間における吸収量は急に少なくなってきた。

(2) 各期間スタート時吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の有機化, 脱窒, 吸収の動態: (15)式より, 表層施肥窒素がないときは (g_{j0n})_{ad.} = ($G_{jn} - G_m$)/ N_{j0} であるから, (p_{j0n})_{ad.} = ($P_{jn} - P_m$)/ N_{j0} , ($a_{j0n} + d_{j0n}$)_{ad.} = {($A_{jn} + D_{jn}$) - ($A_m + D_m$)} / N_0 = {($G_{jn} - P_{jn}$) - ($G_m - P_m$)} / N_{j0} である。また, N_{jn} は t_{j0} 時の N_{j0} の t_{jn} 時における残存量 R_0 と T_j 期間に無機化してきた $\text{NH}_4\text{-N}$ の t_{jn} 時における残存量 R_m の合量であるので, $R_0 = N_{jn} - R_m$ である。したがって, N_{j0} からの有機化, 脱窒, 吸収への移行量および残存量は第5表のとおりである。これより, 各期間スタート時吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の1週間後における有機化, 脱窒, 吸収の割合 (g_{j0n})_{ad.} = ((a_{j0n})_{ad.} + (d_{j0n})_{ad.} + (p_{j0n})_{ad.}) は第6表のとおりである。また, 残存割合 (r_{j0n})_{ad.} = 1 - ((a_{j0n})_{ad.} + (d_{j0n})_{ad.} + (p_{j0n})_{ad.}) も第6表に示した。これより明らかなように, (r_{j0n})_{ad.} の推移は第1表に示したトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の残存割合, すなわち, $^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0}$ の推移とほとんど同じであることがわかった。(3)式の $N_{jn} - (^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0})N_{j0}$ の ($^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0}$) は吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ である N_{j0} の残存割合であるから正しくは (r_{j0n})_{ad.} であるが, トレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ (溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$) の残存割合 $^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0}$ を無窒素区の場合には用いてもよいことがわかった。各期間 T_j のスタート時溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ と吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の終時における吸収



第5図 各期間のスタート時溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ と吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の終時における吸収割合の推移

割合の推移は第 5 図のとおりである。溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ の吸収割合の推移は水稻の養分吸収能の相対値を表わしているものと考えられるが、溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ の吸収割合に対する吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ のその比 $(p_{j0n})_{ad}/p_{j0n}$ は吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ への動きを反映しているものと考えられる。吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の吸収割合が溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ のそれに比べて小さいときには吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の有機化、脱窒の割合は溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ のそれに比べて反対に大きい。また、吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の吸収割合が大きいときは吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ 量が少なく、かつ水稻養分吸収能が高いときであり、このときは溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ のそれに近づく。これらの動きは水稻が溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ を利用している^{15,16)} ためと考えられる。

4) 吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ から溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ への移行

吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ から溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ への移行速度は吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ 量、水稻の養分吸収速度、土壤窒素の無機化速度等が関係していると考えられるが、微少時間でのこの移行速度は一定と考えることができる。いま、微少時間における吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ への移行量を $(\frac{1}{n}) \times N_a$ (一定) とすると、ある与えられた期間 T_j の t_{j0} 時から t_{j1} 時にかけて $(\frac{1}{n}) N_a$ 移行してきたものの t_{j1} 時における水稻吸収量は $(\frac{1}{n}) N_a p_{j1n}$ 、そのうち N_{j0} 由来のそれは $(\frac{1}{n}) N_a p_{j1n} e^{-k_0(\frac{t}{n})}$ となる。同様に、 t_{j1} 時から t_{j1+i} 時にかけてのこの移行量の t_{j1+i} 時における水稻吸収量は $(\frac{1}{n}) N_a p_{j1+i}$ 、そのうち N_{j0} 由来のそれは $(\frac{1}{n}) N_a \times p_{j1+i} e^{-k_0(\frac{t}{n})}$ となる。したがって、 T_j 期間における N_{j0} 由来のそれらの合計値 P_0 は $\lim_{n \rightarrow \infty} N_a (\frac{1}{n}) \sum_{i=0}^{n-1} p_{j1+i} e^{-k_0(\frac{t}{n})} \doteq \lim_{n \rightarrow \infty} N_a (\frac{1}{n}) \sum_{i=0}^{n-1} p_{j1+i} e^{-k_0(\frac{t}{n})}$ となる。ただし、 $k_{(t)} = k_0 + (k_1 - k_0) (\frac{i}{n})$ である。前述の G_m を求めたときと同様に

$$\begin{aligned}
 P_0 &\doteq \lim_{n \rightarrow \infty} N_a \frac{1}{n} \sum_{i=0}^{n-1} \left\{ p_{j1+i} + (p_{j1+i} - p_{j1}) \left(\frac{i}{n} \right) \right\} \\
 &\quad \times e^{-k_0(\frac{t}{n})} \left\{ (1 - e^{-k_0(1-\frac{t}{n})}) / (1 - e^{-k_0}) \right\} \\
 &= \{ N_a / (1 - e^{-k_0}) \} \int_0^1 \{ p_{j1+i} + (p_{j1+i} - p_{j1}) t \} \\
 &\quad \times e^{-k_0 t} (1 - e^{-k_0(1-t)}) dt \\
 &= N_a \left\{ \frac{p_{j1}}{\ln(1/15R)} + \frac{p_{j1+i} - p_{j1}}{(\ln(1/15R))^2} - \frac{15R}{1-15R} \right. \\
 &\quad \left. \times \left(\frac{p_{j1+i} - p_{j1}}{\ln(1/15R)} - \frac{p_{j1+i} - p_{j1}}{2} \right) \right\} \\
 \therefore N_a &\doteq P_0 / \left\{ \frac{p_{j1}}{\ln(1/15R)} + \frac{p_{j1+i} - p_{j1}}{(\ln(1/15R))^2} - \frac{15R}{1-15R} \right. \\
 &\quad \left. \times \left(\frac{p_{j1+i} - p_{j1}}{\ln(1/15R)} - \frac{p_{j1+i} - p_{j1}}{2} \right) \right\} \quad (20)
 \end{aligned}$$

第 7 表 吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ から溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ への移行量 (g/m^2)

T_j $t_{j0} \sim t_{j1}$	N_a^*	N_{j0a}^{**}	N_{j0a}/N_{j0}
6/20~6/27	2.26	1.29	1.16
6/27~7/4	1.94	1.01	1.05
7/4~7/11	1.76	0.80	0.64
7/11~7/18	1.61	0.58	0.48
7/18~7/25	0.85	0.23	0.24
7/25~8/1	1.06	0.25	0.37
8/1~8/8	1.83	0.40	0.78
8/8~8/15	2.11	0.50	1.05
8/15~8/22	1.19	0.35	0.99
8/22~8/29	1.11	0.38	1.03
8/29~9/5	0.53	0.20	0.49
9/5~9/12	0.22	0.09	0.21
9/12~9/19	0.12	0.06	0.11
9/19~9/26	0.08	0.04	0.09

N_a : T_j 期間における吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ から溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ への移行量。

N_{j0a} : T_j 期間における N_{j0} からの溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ への移行量。

また、 N_{j0} の T_j 期間における溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ への移行量 N_{j0a} (N_{j0} は全部吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ とする) は $N_{j0a} = \lim_{n \rightarrow \infty} N_a (\frac{1}{n}) \sum_{i=0}^{n-1} e^{-k_0(\frac{t}{n})} \doteq N_a \int_0^1 e^{-k_0 t} dt$ であるから、

$$N_{j0a} \doteq N_a (1 - 15R) / \ln(1/15R) \quad (21)$$

である。(20) 式および (21) 式の N_a 、 N_{j0a} のなかには溶存 \rightarrow 吸着をくりかえしたのものも含まれているので、それらはその N 量 \times 溶存回数として加わっている。吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ から溶存 $\text{NH}_4\text{-N}$ への移行量は第 7 表のとおりである。 N_{j0a}/N_{j0} 値から明らかのように、現存吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ が多いとき、その溶存への動きは大きい。しかし、無機化窒素が多く出てくると、その溶存への動きは小さくなる。無機化窒素の出方が少なくなり、水稻吸収能力がまだ高いときはその溶存への動きは大きい。これも、水稻吸収能力が低くなってくるとその溶存への動きは急に小さくなってくると考えられる。

3. 要 約

水田における施肥窒素および土壤無機化窒素の動態に関する ^{15}N トレーサー法の理論的展開を試みた。

1) 現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ とトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の推移から求めた有機態窒素からの無機化定量モデル式の基本型は、

$$M_{j1n} = \{ N_{j1n} - (15 N_{j1n} / 15 N_{j0}) N_{j0} \} / \int_0^1 e^{-k_0(1-t)} dt$$

である。ただし、 N_{j0} 、 N_{j1n} および $^{15}N_{j0}$ 、 $^{15}N_{j1n}$ はある与えられた期間 T_j における t_{j0} 、 t_{j1n} 時の現存 $\text{NH}_4\text{-N}$ およびトレーサー $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ の量である。また、 k_0 は

¹⁵N_{j0}/¹⁵N_{jn} の対数値である。一般型は、

$$M_{jn} = \{N_{jn} - (^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0})N_{j0}\} / \int_0^1 e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}(1-t)} dt$$

である。ただし、 k_1 は T_j の次の期間の k_0 である。圃場試験区における一般モデル式の変形は、

$$M_{jn} = \{N_{jn} - (^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0})_{ad} \cdot (N_{j-1n} + N_{bj0}) - (^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0})_{td} \cdot N_{tj0}\} / \int_0^1 e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}(1-t)} dt$$

である。ただし、 N_{j-1n} は t_{j0} 時施肥直前の現存 NH₄-N である。また、 N_{bj0} および N_{tj0} はそれぞれ基肥全層施肥および追肥表層施肥の窒素量である。 $(^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0})_{ad}$ および $(^{15}N_{jn}/^{15}N_{j0})_{td}$ は t_{j0} 時作土全層に様に吸着した NH₄-¹⁵N および表層に溶存した施肥 NH₄-¹⁵N の t_{jn} 時における残存割合である。

2) T_j 期間における土壤由来無機化窒素 M_{sjn} 、施肥 NH₄-N 由来再無機化窒素 M_{fjn} 、施用有機物由来無機化窒素 M_{cjn} は無機化窒素全体を $M_{jn}(N_{j0}, N_{jn})$ と表示すると、 $M_{sjn} = M_{jn}(N_{sj0}, N_{sjn})$ 、 $M_{fjn} = M_{jn}(N_{fj0}, N_{fjn})$ 、 $M_{cjn} = M_{jn}(N_{cj0}, N_{cjn})$ で示される。ただし、 N_{sj0} 、 N_{fj0} 、 N_{cj0} および N_{sjn} 、 N_{fjn} 、 N_{cjn} は t_{j0} 時および t_{jn} 時における土壤由来、施肥由来、施用有機物由来の現存 NH₄-N である。

3) 無機化窒素 M_{jn} がわかると、有機化、脱窒、吸収等に移行する窒素 G_{jn} は次式 $M_{jn} - G_{jn} = N_{jn} - N_{j0}$ よりおのずと計算できる。 G_{jn} は N_{j0} から移行したものと M_{jn} から移行したものの合量であり、後者の有機化 A_m 、脱窒 D_m 、吸収 P_m の各成分表示 $G_m = (A_m, D_m, P_m)$ の一般モデル式は、

$$G_m = M_{jn} \int_0^1 \{g_{j0n} + (g_{j+10n} - g_{j0n})t\} \times \{(1 - e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}(1-t)}) / (1 - e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}})\} dt$$

である。ただし、 g_{j0n} は T_j 期間の t_{j0} 時に加えたトレーサー NH₄-¹⁵N の t_{jn} 時における有機化、脱窒、吸収の割合の成分表示 ($a_{j0n}, d_{j0n}, p_{j0n}$) であり、 g_{j+10n} は次の期間のそれである。また、 t_{j0} 時の現存 NH₄-N、すなわち吸着 NH₄-N の N_{j0ad} と溶存 NH₄-N の N_{tj0} の t_{jn} 時における有機化、脱窒、吸収の動態を $(g_{j0n})_{ad}$ と $(g_{j0n})_d$ とすると、 t_{j0} 時の現存 NH₄-N の t_{jn} 時までの移行量は $N_{j0ad} \cdot (g_{j0n})_{ad} + N_{tj0} \cdot (g_{j0n})_d$ である。

4) T_j 期間における吸着 NH₄-N から溶存 NH₄-N への移行量 N_d は、

$$N_d = (P_{jn} - P_m) / \left\{ \frac{p_{j0n}}{\ln(1/^{15}R)} + \frac{p_{j+10n} - p_{j0n}}{(\ln(1/^{15}R))^2} - \frac{^{15}R}{1 - ^{15}R} \right. \\ \left. \times \left(\frac{p_{j+10n} - p_{j0n}}{\ln(1/^{15}R)} - \frac{p_{j+10n} - p_{j0n}}{2} \right) \right\}$$

である。ただし、 P_{jn} は T_j 期間の水稲吸収量である。また、 N_{j0} の T_j 期間中の溶存 NH₄-N への移行量 N_{j0d} は $N_{j0d} = N_d(1 - ^{15}R) / \ln(1/^{15}R)$ である。

文 献

- 1) 山室成一：強粘質半湿田とその乾田化水田における土壤窒素の無機化とその有機化、脱窒および水稲による吸収、土肥誌, **58**, 309~315 (1987)
- 2) 山室成一：水田土壌中における施肥窒素の有機化、脱窒および水稲による吸収、同上, **52**, 141~148 (1981)
- 3) 山室成一：湿田と乾田における施肥および土壤無機化窒素の有機化、脱窒および水稲による吸収、同上, **55**, 557~563 (1984)
- 4) 山室成一：表層および全層施肥 NH₄-N と土壤無機化窒素の有機化、脱窒および水稲による吸収、同上, **57**, 13~22 (1986)
- 5) 山室成一：細粒質強グライ土水田における土壤無機化窒素の動態と堆肥 6 年連用との関係、同上, **57**, 551~557 (1986)
- 6) YAMAMURO, S.: The accurate determination of nitrogen-15 with an emission spectrometer. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **27**, 405~419 (1981)
- 7) YAMAMURO, S.: Behavior of nitrogen in paddy soils. *JARQ*, **20**, 100~107 (1986)
- 8) 伊藤滋吉・飯村康二：水田土壌中における窒素の動態に関する研究(第3報)。稲作期間における NH₃-N、NO₂-N の揮散量について、土肥要旨集, **23**, 88 (1977)
- 9) 岩田武司・奥田 東：土壌よりのアンモニアの揮散に就て、土肥誌, **11**, 185~187 (1937)
- 10) 山室成一：細粒質グライ土水田におけるたい肥および稲わら施用が土壤無機化窒素の動態に与える影響、同上, **59**, 131~139 (1988)
- 11) BLACKBURN, T.H.: Method for measuring rates of NH₄⁺ turnover in anoxic marine sediments, using a ¹⁵N-NH₄⁺ dilution technique. *Appl. Environ. Microbiol.*, **37**, 760~765 (1979)
- 12) HEVESY, G. and HOFER, E.: Elimination of water from the human body. *Nature*, **134**, 879 (1934)
- 13) 田中元治：同位元素希釈法、化学の領域, **8**, 698~706 (1954)
- 14) 吉川春寿：トレーサー法の基本操作、同上、増刊, **17**, 147~155 (1955)
- 15) OLSEN, R.A. and PEECH, M.: The significance of the suspension effect in the uptake of cations by plants from soil-water systems. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, **24**, 257~261 (1960)
- 16) YOSHIDA, S.: Nutrient availability in soil; in *Fundamentals of rice crop science*, p.118~123, IRRI, Los Baños, Philippines (1981)

A Theoretical Approach to the Fate of Nitrogen in Paddy Field by Using an $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ Tracer Technique

Shigekazu YAMAMURO

(Kyushu Natl. Agric. Exp. Stn.)

A theoretical approach to the fate of nitrogen in paddy field by using the ^{15}N tracer technique was attempted.

1) Mineralization: A basic model formula on mineralization (M_{jn}) of organic soil nitrogen during a period T_j (composed of successive times $t_{j0}, t_{j1}, \dots, t_{ji}, \dots, t_{jn}$) can be written:

$$M_{jn} = \{N_{jn} - ({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})N_{j0}\} / \int_0^1 e^{-k_0(1-t)} dt.$$

Where N_{j0} and ${}^{15}\text{N}_{j0}$ are the amount of $\text{NH}_4\text{-N}$ (including natural ^{15}N) and a tracer $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$, respectively, at t_{j0} ; N_{jn} and ${}^{15}\text{N}_{jn}$ are those at t_{jn} ; $k_0 = -({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})$. A general model formula can be written:

$$M_{jn} = \{N_{jn} - ({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})N_{j0}\} / \int_0^1 e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}(1-t)} dt.$$

Where k_1 is the k_0 in the next period T_{j+1} . A model formula in a fertilizer experiment plot can be written:

$$M_{jn} = \{N_{jn} - ({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})_{\text{ad.}}(N_{j-1n} + N_{bj0}) - ({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})_{\text{td.}}N_{tj0}\} / \int_0^1 e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}(1-t)} dt.$$

Where N_{bj0} and N_{tj0} are the amount of fertilizer $\text{NH}_4\text{-N}$ of basal dressing and top dressing, respectively, at t_{j0} ; $({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})_{\text{ad.}}$ and $({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})_{\text{td.}}$ are the rate of residual of N_{bj0} and N_{tj0} , respectively, at t_{jn} .

2) Transfer from $\text{NH}_4\text{-N}$ to assimilation, denitrification, and absorption by rice plants: The transfer (G_{jn}) of $\text{NH}_4\text{-N}$ can be calculated easily using the following equation: $M_{jn} - G_{jn} = \text{NH}_4\text{-N}_{jn} - \text{NH}_4\text{-N}_{j0}$. G_{jn} is composed of the transfer from N_{j0} and from nitrogen mineralized. A model formula on the transfer (G_m) from nitrogen mineralized to assimilation (A_m), denitrification (D_m), and absorption by rice plants (P_m) during a period T_j can be written:

$$G_m = M_{jn} \int_0^1 \{g_{j0n} + (g_{j+10n} - g_{j0n})t\} \{1 - e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}(1-t)}\} / \{1 - e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}}\} dt.$$

Where G_m is the vector (A_m, D_m, P_m), and g_{j0n} is the vector ($a_{j0n}, d_{j0n}, p_{j0n}$); a_{j0n}, d_{j0n} , and p_{j0n} are the ratios of distribution of tracer $\text{NH}_4\text{-}^{15}\text{N}$ applied at random into soil by an injection to each of assimilation, denitrification, and absorption by rice plants during a period T_j .

3) Mineralization of organic soil nitrogen and of organic matter applied and re-mineralization of organic nitrogen derived from fertilizer $\text{NH}_4\text{-N}$: The amount of mineralization M_{jn} is expressed as $M_{jn}(N_{j0}, N_{jn})$, a function of N_{j0} and N_{jn} , mineralization M_{sjn} of organic soil nitrogen as $M_{jn}(N_{sj0}, N_{sjn})$, M_{fjn} of organic nitrogen derived from fertilizer as $M_{jn}(N_{fj0}, N_{fjn})$, and M_{cjn} of organic matter applied as $M_{jn}(N_{cj0}, N_{cjn})$. For example, M_{cjn} can be written:

$$M_{cjn} = \{N_{cjn} - ({}^{15}\text{N}_{jn}/{}^{15}\text{N}_{j0})N_{cj0}\} / \int_0^1 e^{-\{k_0 + (k_1 - k_0)t\}(1-t)} dt.$$

Where $N_{sj0}, N_{fj0}, N_{cj0}$ and $N_{sjn}, N_{fjn}, N_{cjn}$ are the amount of $\text{NH}_4\text{-N}$ derived from soil, fertilizer, and organic matter, respectively, at the time of t_{j0} and t_{jn} .

Key words tracer ^{15}N , model formula, mineralization, transfer from nitrogen mineralized, re-mineralization.