

3：農林業生態系を対象とした温室効果ガス吸収排出制御技術の開発と評価

(3 a) 農業生態系におけるCH₄、N₂Oソース抑制技術の開発と評価

(1) わが国とアジア諸国の農耕地におけるCH₄、N₂Oソース制御技術の開発と広域評価

(3) 水田からのメタン発生量広域評価を目指した水田土壌化学性のパラメーター化 (国際交流研究)

独立行政法人農業環境技術研究所

地球環境部 温室効果ガスチーム (現：物質循環研究領域) 八木一行・程 為国

| | |
|---------------|----------|
| 平成16年度合計予算額 | 1,949千円 |
| (うち、平成19年度予算額 | 0千円) |
| 上記の予算額には、間接経費 | 449千円を含む |

[要旨] 水田からのCH₄発生量広域評価において、水田からのCH₄発生量を制御する土壌の化学性をパラメーター化することが必要である。そこで、日本全国の7府県から、圃場試験を行っている10種類の水田土壌を収集し、同一条件での室内培養実験を行なった。土壌は風乾処理後、WFPS 40%に調整し、2週間前培養した。その後、16週間の嫌気培養実験を行ない、CO₂、CH₄、被還元性鉄量 (二価鉄生成量) および可給態窒素量を測定した。

収集した10種類の水田土壌の理化学性は大きく異なり、また、それらのCH₄生成量 (P_{CH_4}) も異なった。CH₄生成量を制御する最も重要な要因は易分解性炭素量 (二酸化炭素とCH₄の生成量) と被還元性鉄量であることが明らかになった。また、易分解性炭素量と可給態窒素量 (N_{ava}) との間には強い正の相互関係が認められたほか、土壌全鉄量 (Fe_{total}) と被還元性鉄量との間にも有意な相互関係が認められた。これらのことから、CH₄生成量と可給態窒素量および全鉄量のあいだに、以下の数式の成立することが示された。

$$P_{CH_4} = 1.916N_{ava} - 2.395Fe_{total}/1000$$

[キーワード] メタン、易分解性炭素、被還元性鉄、可給態窒素、土壌全鉄

1. はじめに

大気中のメタン (CH₄) はもともと影響の大きな温室効果ガスのひとつとして認識されており、人間活動による地球温暖化への寄与率は約20%である。大気中のCH₄の多くは、自然湿地と人工湿地、堆積物、下水、埋立地や草食動物の反芻のような極端な嫌気性生態系の中の微生物活動によって生成されている。水田から発生するCH₄は人為的要因による発生源の約17%を占めている (IPCC、1995)。水田土壌において生成され排出されたCH₄の量は、主にCH₄生成基質の有無と環境要因によって制御されるが、CH₄生成に影響を及ぼす環境要因には、土壌の理化学性、気候や耕作管理などがある。土壌が違えばCH₄生成量も大幅に異なる。土壌の理化学性はメタン

生成を支配する本質的で重要な要素であることがわかっている。したがって、土壌理化学性の異なるさまざまな地域からのCH₄排出量を正しく推計し、さらに水田からのCH₄排出量を減らすためには、土壌の主な化学性のパラメーター化とモデルによる広域評価が必要である。

2. 研究目的

親課題テーマ3a（農業生態系におけるCH₄、N₂Oソース制御技術の開発と評価）では、わが国とアジア地域の農業生態系における、実効的なCH₄、N₂Oソース制御技術の定量化とその広域評価を目的としている。しかし、水田からのCH₄発生量には、主として土壌の化学性に起因する最大100倍程度の空間変動のあることが知られている。したがって、本親課題で行われている圃場試験結果を比較する場合、それぞれの水田土壌の化学性を検討する必要がある。一方、広域評価に使用する水田の物質循環プロセスモデルを検討した結果、水田土壌での酸化還元反応に関するプログラムの改良と化学性に関するパラメーター化の必要性が示された。そこで、本研究では、圃場試験を行っている水田土壌の化学性とCH₄発生量の関係を定量化し、圃場間の発生量やソース制御技術による削減量の違いを一般化することを目的とする。定量化されたパラメーターはプロセスモデルに導入することによりモデルを改良し、ソース制御技術の広域評価の精度を高めることが期待される。

3. 研究方法

(1) 土壌の採取

日本の7つの府県から10種類の土壌を採取した(表1)。このうち、Nos. 2~6の5種類の土壌は、親課題サブサブテーマ(1)-①で現地試験を行っている圃場の土壌である。供試した土壌のタイプである黒ボク土、灰色低地土、およびグライ低地土は日本のすべての水田のそれぞれ10%、37%、および31%を占めている。土壌は2004年5月の水稻移植の前に採取したが、No. 7の土壌のみ、屋外に2年間積み置かれた後に湿度の低い状態で1年間保存されたものである。すべての土壌は、使用前に風乾した上でふるい(2 mm)にかけた。

表1. 供試した水田土壌と採取場所

| No. | 土壌タイプ | 耕作管理方法 | 採集場所 | 北緯 | 東経 |
|-----|--------|-------------|---------|---------|----------|
| 1 | 黒ボク土 | 慣行 | 岩手県雫石 | 39° 40' | 141° 00' |
| 2 | 灰色低地土 | 慣行(稲藁5年間) | 山形県山形 | 38° 16' | 140° 19' |
| 3 | 灰色低地土 | 慣行(牛糞堆肥5年間) | 山形県山形 | 38° 16' | 140° 19' |
| 4 | グライ低地土 | 基盤整備済み | 新潟県長岡 | 37° 26' | 138° 53' |
| 5 | グライ低地土 | 基盤整備なし | 新潟県長岡 | 37° 26' | 138° 53' |
| 6 | 灰色低地土 | 慣行 | 福島県郡山 | 37° 24' | 140° 21' |
| 7 | 灰色低地土 | 慣行 | 茨城県谷和原 | 35° 59' | 140° 01' |
| 8 | 砂質グライ土 | 慣行 | 千葉県九十九里 | 35° 33' | 140° 28' |
| 9 | 灰色低地土 | 慣行(化学肥料) | 京都府亀岡 | 35° 01' | 135° 37' |

| | | | | | |
|----|-------|-----------|-------|---------|----------|
| 10 | 灰色低地土 | 化学肥料+牛糞堆肥 | 京都府亀岡 | 35° 01' | 135° 37' |
|----|-------|-----------|-------|---------|----------|

(2) 土壌の分析と前培養

風乾した土壌を用いて、土壌標準分析測定法により、全炭素量と全窒素量、土壌仮比重、pH、EC、遊離鉄量、および全鉄量を測定した。嫌気培養実験を開始する前に、すべての土壌サンプルを2週間WFPS（充水間隙（water filled pore space））40%で前培養した。

(3) 嫌気培養実験

40%のWFPSで2週間前培養した各土壌サンプルを、68-mlの血清ボトル18本に乾土換算で5gずつ入れた。次に、10 mLの純水を各々のボトルに注入し、ブチルゴム栓で蓋をして、ボトル内の空気を真空ガス置換装置でN₂ガスに置換した。ボトルを30°Cで16週間培養し、ヘッドスペースの空気試料について、CO₂およびCH₄濃度をガスクロマトグラフを用いて測定した。

(4) 計算と統計分析

ヘッドスペース中のCO₂、CH₄およびN₂O濃度を用いて、ヘンリー法によりボトル内のCO₂、CH₄およびN₂O生成量（気相および液相中）を算定した。16週間の培養期間中に分解された有機態炭素量をC-CO₂とC-CH₄と算出した。16週間の培養中に生成された2価鉄（Fe²⁺）を各土壌サンプル中の被還元性鉄量とした。16週間の培養期間中のNH₄⁺生成量（16週間後のNH₄⁺から培養前のNH₄⁺を差し引いた量）を各土壌中の可給態窒素量とした。ANOVA法を用いて、10種類の土壌のすべてのパラメーターの統計的有意性を検定した。10種類の土壌の間に有意差がある場合には、各パラメーターについてLSD値（*P*<0.01）を用いて検定した。相関係数を用いてパラメーター間の相互関係の有意性を評価した。

4. 結果・考察

(1) 10種類の土壌特性

No. 1の黒ボク土は全炭素量と全窒素量が最高であり、仮比重は最低だった。No. 8の砂質グライ土は全炭素量と全窒素量が最低であり、仮比重が最高であった。平均土壌pHは6.24であり、変動係数（CV）は10.0%であったが、すべての土壌が中性土壌または酸性土壌だった。全鉄と全マンガンの平均含有量はそれぞれ40.3 mg g⁻¹と0.8 mg g⁻¹、CVはそれぞれ20.7%と27.1%であり、平均的には全鉄量は全マンガン量（total-Mn）の約50倍であることがわかった。遊離鉄量は平均で7.8 mg g⁻¹、CVは31.3%であり、NO₃⁻-Nは平均で50.0 μg g⁻¹、CVは81.8%であった。

(2) 嫌気培養中のFe²⁺、CO₂、CH₄およびN₂Oの生成

Fe²⁺、CO₂、CH₄およびN₂O生成量の変化を図1に示した。CO₂の生成量はNos. 1、4および5において急増し、Nos. 7、8および9において緩やかに増加した。10種類の土壌のCO₂生成量の増加はFe²⁺生成量と一致した。すべての土壌の中でNo. 5のサンプルにおいてFe²⁺生成が最速であった。Nos. 1、4、5および10のサンプルでは、培養開始後8週間以内にFe²⁺生成量が最大となり、特にNo. 5のサンプルでは培養開始後4週間以内にFe²⁺生成量が最大となった（図1b）。Nos. 1、4、5および10のサンプルでは、Fe³⁺が完全に還元されるのとほぼ同時にCH₄生成量が急増した（図1bおよびd）。また、CO₂とCH₄の生成比率は、Fe³⁺が完全に還元された段階ではモル比で約1:1となった。

(3) 16週間嫌気培養後の炭素分解と窒素無機化

16週間培養後の全分解炭素量 (C-CO₂ + C-CH₄) は10種類の土壌の間で有意に異なっていた。全分解炭素量とCH₄生成量との間には有意な相互関係があった ($r^2 = 0.821^{**}$)。生成された可溶性有機態炭素の量はNos. 7と8のサンプルにおいてごく僅かであり (10 μg g⁻¹未満)、No. 10において最高 (155.37 μg g⁻¹) であった。平均無機化窒素量は117.36であり、CVは61.9%であった。全分解炭素量と無機化窒素量の平均比率は5.75であり、CVは低かった (18.8%)。表1に示された土壌の平均C/N比 (11.49) と比べると、水田土壌中の容易に分解される有機物は、土壌中の有機物全体に比べてC/N比が低いことが示唆された。また、全分解炭素量と無機化窒素量との間には有意な相互関係があった ($r^2 = 0.969^{**}$)。

(4) 全鉄量、遊離鉄量、および被還元性鉄量の間相互関係

浅見&熊田法によって測定された遊離鉄量は、Nos. 4と5のサンプル、すなわち、2種類のグラ

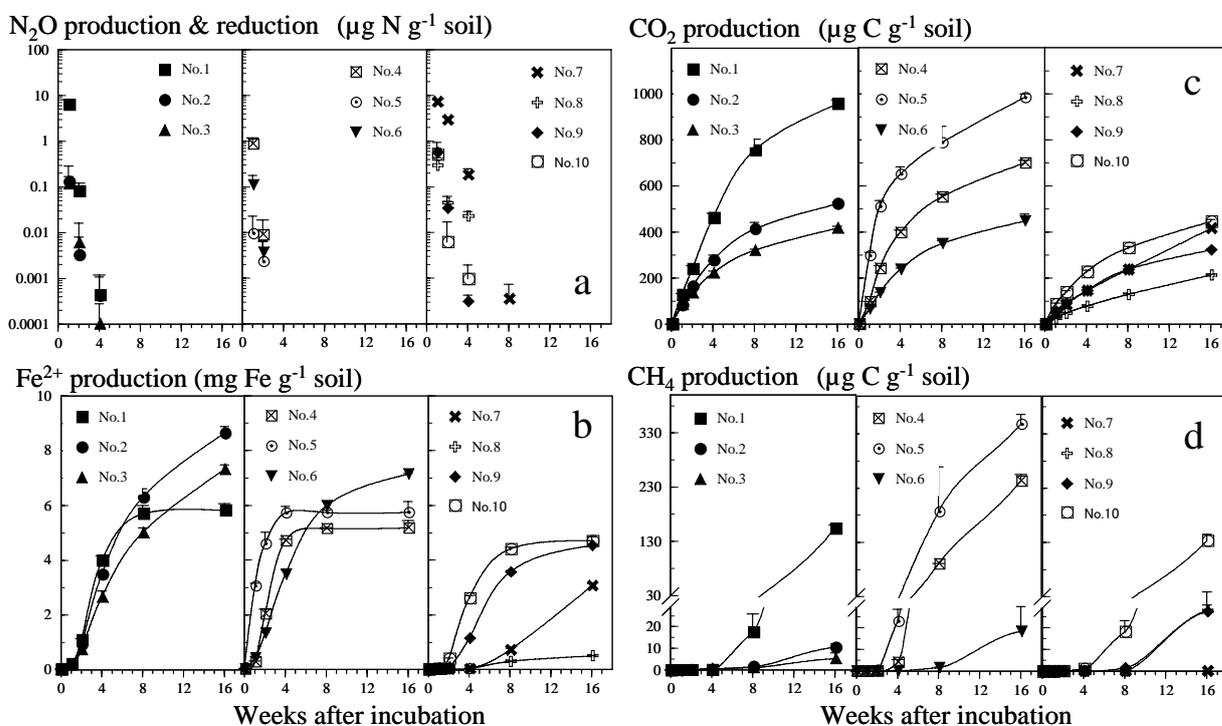


図1. 嫌気培養中のFe²⁺、CO₂、CH₄およびN₂Oの生成量の変化

イ低地土のサンプルにおいて被還元性鉄量とほぼ同じであった。Nos. 7と8のサンプルを除いて、全鉄量と被還元性鉄量との間には有意な相関があった ($r^2 = 0.837^{**}$)。他の土壌サンプルと比較すると、No. 7のサンプルの還元反応は非常に遅かったが (図1b)、おそらくその理由は、この土壌が屋外に2年間積み置かれた後に湿度の低い環境下で1年間保存されたからであろう。No. 8のサンプルは有機物の少ない砂質グライ土であるため (表2)、全鉄量と被還元性鉄量の比率は他を大きく上回った。

(5) メタン生成量の評価のための土壌化学性のパラメーター化

易分解性炭素量とCH₄生成量との間には有意な相関 ($r^2 = 0.821^{**}$) があった。また、易分解性

炭素量と可給態窒素量(N_{ava})との間には強い正の相関 ($r^2 = 0.969^{**}$) が認められたほか、土壤全鉄量(Fe_{total})と被還元性鉄量との間にも有意な相関 ($r^2 = 0.837^{**}$) が認められた (長期放置された灰色低地土と砂質グライを除く)。

CH_4 生成量は電子供与体 (易分解性有機物) 量と電子受容体 (ほとんどが Fe^{3+} による) 量との差に基づく、余剰還元容量に比例すると考えられることから、16週間の嫌気培養による易分解性炭素量、 CH_4 および Fe^{2+} の生成量を分子反応式を用いて解析した。その結果、 CH_4 生成量と、易分解性炭素量および被還元性鉄量との間には以下の式によって表される有意な相互関係があった (図2: $r^2 = 0.852^{**}$)。

$$P_{CH_4} = 0.294 (C_{\text{edc}} - 1/4 Fe_{\text{red}}) \quad (\text{モル単位}) \quad (\text{式1})$$

また、易分解性炭素量は以下の式によって表された。

$$C_{\text{edc}} = 6.53 N_{\text{ava}} \quad (\text{重量単位}) \quad (\text{式2})$$

さらに、被還元性鉄量も以下の式によって表された。

$$Fe_{\text{red}} = 0.152 Fe_{\text{total}} \quad (\text{重量単位}) \quad (\text{式3})$$

式2および式3を式1に代入すると、 CH_4 生成量を以下の式で推定することができる。

$$P_{CH_4} = 1.916 N_{\text{ava}} - 2.395 Fe_{\text{total}}/1000 \quad (\text{単位はいずれも } \mu\text{g g}^{-1}) \quad (\text{式4})$$

式4を用いて、可給態窒素量と土壤全鉄量により、 CH_4 生成量を予測し、その値を培養実験により実測した CH_4 生成量と比較した。その結果は有意な一致を示した (図3、 $r^2 = 0.816^{**}$)。

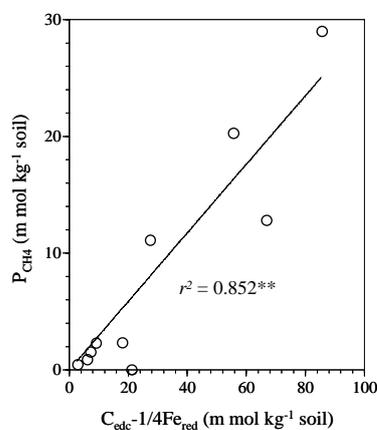


図2. 易分解性炭素量から被還元性鉄生成量を差し引いた値 (余剰還元容量) と CH_4 生成量との関係

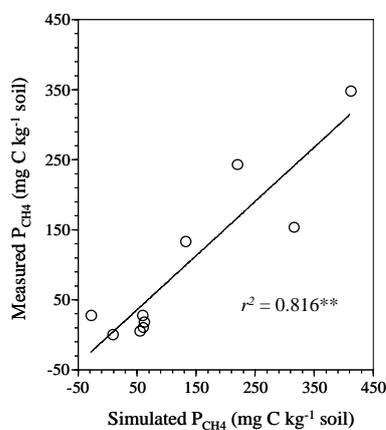


図3. 式4により予測した CH_4 生成量と実際の CH_4 生成量との比較

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

以上の結果は、水田土壤の CH_4 生成量が2つの土壤化学性、すなわち、可給態窒素量と土壤全鉄量により予測可能であり、これらのパラメーターを用いた推定が水田からの CH_4 発生量の広域評

価に有効であることを示している。ただし、今回の結果は実際の水田からではなく、実験室内での培養実験から得られたものであることに注意する必要がある。特に、易分解性炭素は土壌起源のものしか考慮していないが、水田では多くの炭素が稲の残渣と根の滲出物に起源をもつ。したがって、広域でのCH₄発生量を予測するためには、本研究で得られた土壌化学性のパラメーター化に加え、より多くの炭素起源や植物体の寄与、および環境要因と耕作管理を加えたモデルを確立する必要がある。

(2) 地球環境政策への貢献

本研究の成果はサブサブテーマ(1)-2)に受け渡され、Tier 3によるGHGソース削減効果の広域評価を行うためのプロセスモデルの開発に寄与するものである。これによって、わが国と世界のGHGインベントリおよび削減施策の策定に寄与することができる。

6. 引用文献

- (1) IPCC: Climate change 1994, radiative forcing of climate change, Cambridge University Press (1995).
- (2) Cheng, W., Yagi, K., Sakai, H., Xu, H. and Kobayashi, K.: Changes in concentrations and $\delta^{13}\text{C}$ values of dissolved CH₄, CO₂ and water-soluble organic carbon in rice paddies under ambient and elevated concentrations of atmospheric CO₂, *Organic Geochemistry*, 36, 813-823 (2005)

7. 国際共同研究等の状況

本研究を担当したエコフロンティアフェローは、研究期間終了後、米国フロリダ国際大学でポスドクとして研究を行った後、平成18年4月より独立行政法人農業環境技術研究所において、ふたたびポスドクとして研究を行っている。フェローは中国科学院および農業科学院下の研究機関、または米国の研究者と共同で研究した実績があるので、今後、フェローを通してこれらの研究機関との連携を図る予定である。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) W. Cheng, K. Yagi, H. Akiyama, S. Nishimura, S. Sudo, T. Fumoto, T. Hasegawa, A.E. Hartley and J.P. Megoniga: *J. Environ. Qual.*, 36, 1920-1925 (2007) "An empirical model of soil chemical properties that regulate methane production in Japanese rice paddy soils"

2)

<査読付論文に準ずる発表> (社会科学系の課題のみ記載可)

なし

〈その他誌上発表（査読なし）〉

なし

(2) 口頭発表

- 1) 程 為国, 秋山博子, 西村誠一, 須藤重人, 八木一行: 日本土壌肥料学会 (2005) 「水田からのメタン発生量広域評価を目指した水田土壌化学性のパラメーター化」

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

なし

(6) その他

なし