

B-2. メタン・亜酸化窒素の放出源及び放出量の解明に関する研究

(3) 農耕地からの放出量の解明に関する研究

研究代表者 農業環境技術研究所環境管理部 鶴田治雄

農林水産省 農業環境技術研究所

環境管理部 影響調査研究室 鶴田治雄・八木一行
神田健一（平成2－5年度：現九州農業試験場）

環境資源部 大気保全研究室 野内 勇・細野達夫

資材動態部 多量要素動態研究室 尾和尚人（平成2年度：現肥料動態科長）

樋口太重（平成3－4年度）

杉戸智子（平成4年度：現北海道農業試験場）

農林水産省 国際農林水産業研究センター

環境資源部 加藤邦彦（平成5－6年度：現農業生物資源研究所）

平成2－6年度合計予算額 79,974千円
（平成6年度予算額 17,852千円）

〔要旨〕水田から大気中に放出されるメタンのフラックスを、日本、タイ及び中国で測定した。栽培期間中のメタンフラックスの季節変化は、常時湛水区では、日本では栽培初期から後期にかけて次第に増加する変化を示したが、タイではその他に栽培初期から大きい場合があった。日変化は両地域とも、午後の早い時間帯に最大となり夜間は低く一定であったが、その振巾はタイのほうが2倍も大きかった。さらに、水田からのメタンフラックスを自動で連続的に測定する装置を開発し、日本の水田で3年間使用することにより、フラックスの詳細な変化が明らかになった。これらの実測から推定した日本とタイにおける水田からのメタン発生量は、それぞれ、0.26、3.7TgCH₄/yearであった。水田からのメタン発生要因として、土壌の化学的性質が非常に重要であり、土壌の還元容量と酸化容量との差と、土壌の培養実験でのメタン生成量とが正比例関係にあった。また、水管理もメタンの発生に大きく影響を及ぼし、日本で通常行われている中干しなどの水管理をした間断湛水区は、常時湛水区と比較してメタンの発生が45%も少なかった。また、水稻体を通してのメタンフラックスを、1茎あたりの伝導度を用いてモデル化し、モデル式から計算したフラックス値と実測値とがよく一致した。異なる窒素肥料を施用した土壌からの亜酸化窒素の発生量は、有機質肥料、硫酸アンモニウム、緩効性窒素肥料の順に多かった。また、アンモニア態窒素肥料のほうが硝酸態窒素肥料よりも、亜酸化窒素の発生量は多かった。なお、施肥土壌からは、亜酸化窒素と同時に一酸化窒素も発生し、一酸化窒素のほうが発生量が多かった。さらに、水田土壌で、メタンとともに亜酸化窒素のフラックスを年間を通じて測定した。その結果、亜酸化窒素は、メタンが発生していた湛水期間中は発生も吸収もみられなかったが、メタンが発生しなくなる最終落水後から翌春の再湛水時までの8ヶ月間、連続して水田土壌から発生していた。

〔キーワード〕メタン、水田、亜酸化窒素、施肥土壌、発生量

1. はじめに

大気中に存在するメタン(CH_4)と亜酸化窒素(N_2O)は、温室効果ガスなので、その増加は地球温暖化に寄与すると推測されている。また、 CH_4 は地球大気化学で重要な役割を担っており、 N_2O は成層圏に輸送されてオゾン層を破壊する物質の一つでもある。これらのガスは、自然界だけでなく、農耕地からも放出されている。農耕地からの主要な発生源は、 CH_4 は水田、 N_2O は窒素肥料を施用した畑地であり、地球全体からの総放出量に占める農耕地からの割合は、それぞれ、約12%、最大30%前後と推定されている¹⁾。しかし、フラックスの実測データが非常にわずかなので、それらの推定値の不確実性は非常に大きい。現在、水田からの CH_4 発生量と施肥土壌からの N_2O の発生量をより正確に推定することが、地球温暖化研究の中で求められている重要課題の一つである。世界の水田面積の約90%はアジアに集中しており、日本は約2%と少ないので、この研究は、アジア各国と協力しながら実施する必要がある。

そこで、この5年間、日本だけでなくアジア地域で、農耕地からの CH_4 と N_2O に関する研究を、タイと中国との共同研究を含めて実施したので、その成果をここに報告する。なお、水田からの CH_4 の発生に関する研究を、 N_2O の発生に関する研究よりも優先して実施した。

2. 研究目的

この研究の目的は、つぎのことを明らかにすることである。

(1) 水田からのメタン発生に関する研究

メタンは、絶対性嫌気状態のなかでメタン生成菌の働きにより生成される。

①水田からの CH_4 のフラックスの季節変化と日変化

水田からの CH_4 の発生の実態を把握するために、一栽培期間中のフラックスの季節変化、および日変化を、日本、タイおよび中国の実際の水田圃場で測定する。これまで、熱帯地域の水田でのフラックス測定は行われておらず、その発生量は、温帯地域で得られた地温とフラックスとの関係から外挿して、推定されていた。そこで、熱帯地域のタイの水田からの CH_4 発生に関する研究を開始し、熱帯地域での実態を把握する。

②日本とタイにおける水田からの CH_4 発生量の推定

それらの結果を用いて、一栽培期間中の CH_4 発生量を計算し、さらに、日本とタイの2カ国の国別総発生量を推定する。

③水田からの CH_4 の発生要因と CH_4 発生のモデル化

CH_4 発生に影響を及ぼす要因を明らかにし、水田土壌から大気中への CH_4 フラックスのモデル化を検討する。

(2) 窒素施肥土壌および水田からの亜酸化窒素の発生に関する研究

N_2O は、微生物により脱窒作用および硝化作用で生成され、大気中へ放出される。アジアにおいては、農耕地からの N_2O の発生に関する研究は非常に少ないので、まず日本で次の研究を行うことを計画した。

①各種窒素肥料からの N_2O の発生量の比較

窒素肥料の種類による施肥土壌からの N_2O 発生量の違いを把握する。

②窒素施肥土壌からの N_2O と一酸化窒素(NO)のフラックスの経日変化

窒素施肥土壌からは、 N_2O だけでなく、 NO も発生することが最近わかったので、これらのガスのフラックスを同時に測定し、その発生量比や発生要因などを検討する。また、大気中へのこれらのガスの発生量の、施肥窒素総量に対する割合を求める。

③水田土壌からの N_2O のフラックスの測定

水田土壌からは、 CH_4 だけでなく N_2O も発生している可能性があるが、過去に報告されたフラックス測定は、湛水期間中に測定されたものであり、その発生量は非常にわずかであった。しかし、落水後は土壌が還元状態から酸化状態に変化するので、硝化作用により N_2O が発生すると予想される。そこで、 N_2O のフラックスを1年間を通して測定し、水田土壌からの N_2O 発生の実態を明らかにする。

3. 研究方法

(1) メタン

①フラックスの測定場所および測定期間

ア. 日本----茨城県農業試験場竜ヶ崎試験地（現茨城県農業総合センター農業研究所水田利用研究室）の水田圃場、および農業環境技術研究所内のライシメータ水田（全期間を通じて測定）

イ. タイ----9地点のタイ農業局稲作試験場内の水田圃場（1991年から開始）

ウ. 中国----6地点の水田圃場（1992年から開始）

②フラックスの測定方法

ア. バッチ式測定----クロズドチャンバー法を用いて、チャンバー（高さ1 m）内の大気を連続してテドラーバッグあるいは真空バイアル瓶に採取し、その後、研究室でFID付きガスクロマトグラフを用いて定量分析を行った。

イ. 連続測定----水田からの CH_4 フラックスを全自動で連続測定するシステムを開発し、竜ヶ崎試験地に1991年に設置してから3カ年にわたり、水稻栽培期間中に連続測定を実施した。

③水田土壌の化学分析----日本および世界各地の水田土壌を採取し、易分解性有機物量、アンモニウム、硝酸イオン、鉄、マンガン、硫酸イオンなどの定量分析を行った。

④土壌の培養実験---土壌のインキュベーション実験を行い、 CH_4 や CO_2 などの生成速度などを求めた。

⑤その他----フラックス測定時に、土壌の酸化還元電位（Eh）、地温、水温、田面水の水位などを測定した。また、ライシメータ水田では、土壌溶液中の CH_4 濃度を分析した。

(2) 亜酸化窒素

①フラックスの測定場所および測定期間

ア. 農業環境技術研究所内の黒ボク土が充填されているライシメータ圃場（1990～1993年）

イ. 竜ヶ崎試験地---- CH_4 を測定した水田圃場と同じ場所（1992～1995年）

②フラックスの測定方法----クロズドチャンバー法により、チャンバー（高さ15cm）内の大気をテドラーバッグあるいは真空バイアル瓶に採取し、研究室でECD付きガスクロマトグラフを用いて定量分析した。

③その他----フラックス測定時に、地温を測定し、随時土壌を採取して土壌中の水分量、 NH_4^+ 、 NO_3^- 濃度を測定した。

4. 調査結果

(1) フラックスの季節変化

①日本における季節変化

常時湛水した水田で、 CH_4 のフラックスの季節変化の1例を図1に示す²⁾。これからわかるように、フラックスは栽培初期は小さかったが、次第に増大して、出穂期あるいは最終落水直前に最大となり、最終落水後は CH_4 は発生しなくなった。土壤の酸化還元電位は、フラックスと負の相関を示し、湛水後次第に低くなって、 -200mV 前後で一定となり、この状態で CH_4 のフラックスは大きくなった。一方、日本では、栽培期間中の中ごろに、中干しを行い、約1週間落水し、土壤中に酸素を与えて、根を活性化させることが、通常行われている。この場合には、中干しのときに CH_4 フラックスは非常に小さくなることが特徴である。再湛水後は、フラックスは再び大きくなり始めて、最終落水直前まで増大する。

②タイにおける季節変化

タイの水田からの CH_4 フラックスの栽培期間中の経日変化は、2通り観測された³⁻⁵⁾。一つは、日本での季節変化と同様であり、水稻移植後から栽培後半にかけてフラックスが次第に増加し、落水後に発生がみられなくなった。もう一つは、図2に示すように、フラックスが移植直後から前半にかけて非常に大きく、むしろ後半になるとやや減少するような季節変化であった。この原因は、移植前に早くから湛水状態にしておいて稲わらがすきこまれていると、地温が高いために有機物が早く分解するためであることがわかった。なお、後者の季節変化は、日本ではこれまで測定されたことがないが、中国でも、後期作に同様な変化が測定された。

(2) フラックスの日変化

①日本における日変化

フラックスの日変化は、自動連続装置での測定により、詳細に解明された²⁾。図3に示すように、晴れて気温の日較差の大きい日は、午後の早い時間帯に最大となり、夜間は低く一定である、という規則的な変化をしめすことがわかった。しかし、曇りや雨のために気温の日変化が大きい日には、日変化はほとんどなかった。日変化を示す原因は、またよくわかっていないが、同時に測定した気温や地温との比較により、湛水後約70日までは地温と正の相関があり、その後は、気温（および0cmの地温）との正の相関が得られた。このことは、フラックスの日変化が水稻体内でのガス輸送能力と密接な関係があることを、示唆している。なお、フラックスの日変化は、中国での過去の測定によれば、日中だけでなく、真夜中ごろにも大きくなるような変化を示すという報告がある。したがって、フラックスの日変化はどの地域でも同じではなく、その地域特有の現象があると考えられる。

②タイにおける日変化

タイにおける日変化は、日本で測定された変化と同様に、天気の良い、気温の日較差の大きい日に出現し、午後の早い時期に最大となり、夜間は小さく一定であった⁵⁾。しかし、その最大値は最小値の約5倍であり、日本での2～3倍よりも大きかったことが特徴である。この原因としては、地温が、タイのほうが日本より高いために、日中の CH_4 発生が多くなったと推測される。タイの水田では、日中に地温が $30\sim 35^\circ\text{C}$ 以上に高くなり、土壤中の気泡が田面水を通して大気中に放出される現象がしばしばみられており、この気泡中の CH_4 濃度は数10%にも達していることが測定から明らかになった。したがって、タイで午後に非常に高くなる原因の一つとして、この気

泡による影響が考えられた。また、地温が非常に高いために、水稻体によるCH₄の輸送能力が大きくなるため、という可能性もある。

以上のように、CH₄フラックスの季節変化および日変化について、熱帯地域のタイでは、温帯地域の日本ではみられない現象が観測された。したがって、CH₄の発生量を推定するには、これらの現象を考慮する必要のあることがわかった。

(3) アジアの国々の水田からのメタン発生量推定

①日本の水田からのメタン発生量の推定

日本での水田からのフラックスの実測データは、現段階では茨城県内での測定結果しかないの、そのデータをもとに、発生量の推定を行った。表1は、土壌および有機物施用の違いによる処理区からのメタン発生量を示している。これによれば、土壌の種類、稲わら施用の有無により、メタン発生量が異なっていることがわかる。日本の水田土壌の種類を、沖積土、火山灰土、泥炭土、およびその他に分類して、メタン発生量を計算すると、0.26Tg/yearとなった。なお、現在、日本では、各自治体でメタン発生に関する調査が実施されているので、そのデータをもとにすれば、より正確な発生量を推定することができる。

②タイの水田からのCH₄発生量の推定

これまでに、タイの中央部、北部、東北部の9地点において、雨期と乾期にCH₄のフラックス調査を実施した。それらの地点を図4に、CH₄発生量を表2に示す。一栽培期間中のCH₄発生量は、大きな巾があり、最小値は、日本での値よりも小さかったが、最大値は、日本よりも大きかった。つぎに、これらのデータと、タイの水稲作付け面積の資料を用いて、タイ全体の水田からのCH₄発生量を3.7TgCH₄/yearと推定した^{4, 5)}。なお、タイ南部では測定を実施していないので、他の地域の実測データを利用して推定した。また、フラックスの測定地点は、すべて試験場で実施したので、一般の農家とは、施肥や有機物管理などが異なっていると推測される。したがって、最終的には、農家の管理している水田からのCH₄発生量は、この値とは異なることが予想される。現在、この発生量を補正するための調査を実施中である。

③その他の国々の発生量推定

アジアの国々における水田からのメタン発生に関する調査は、最近になって多くの地域で独自に実施されている。そのおもな結果を表3に示す。インドと中国の水田面積は、全体の30%および25%を占めているが、CH₄の発生量は、それぞれ4、15Tg/yearと、面積の割合とは非常に異なった結果を示している^{6, 7)}。その他の国では、タイが今回の推定では約3.7Tg/year（今後変化する可能性あり）、インドネシアが約2～4 Tg/year、フィリピンが1.1～2.0Tg/yearであり、面積が3番目に多いバングラディッシュでは、データがない。IPCC¹⁾では、世界全体の発生量を60(20-150)Tg/yearと推定しているが、インドと中国の推定値が大きく影響してくるので、今後とも、調査が望まれる。

現在、中国との共同研究で、水田からのメタンフラックスの詳細な測定が実施中である。中国においては、水田の作付け地帯は、図5に示すように、7区に区分される。中国の水田からのCH₄フラックスの測定は、現在、6地点で実施されている。一栽培期間中の発生量は、タイと同様に、大きな巾があり、最小値は黄河流域で1g/m²以下であるが、最大は、100g/m²以上と大きな値である。これらについての解析は今後行う予定である。

(4) メタンの発生要因

水田からのメタン発生要因としては、おもに次のようなものがある。

- (1) 土壌の種類及び化学的性質
- (2) 水稻の品種、根の活性度
- (3) 有機物の施用
- (4) 栽培体系
- (5) 施肥管理
- (6) 水管理
- (7) 気温、地温、日射量等の気象要素

ここでは、メタン発生要因のなかでも重要な、土壌の化学的性質および水管理を中心に検討して結果を述べる。

①水田土壌の化学的性質とメタン生成・発生の関係

水田が湛水した後に土壌が次第に還元されていく過程は、大別して2段階に区分することができる。第1段階は、土壌中の有機物分解が進み、二酸化炭素とアンモニウムの生成が活発に行われ、酸化還元電位が低下する過程である。第2段階は、さらに還元状態が発達して、最終的にCH₄生成細菌により、CH₄が生成される過程である。土壌中に酸素、硝酸イオン、鉄やマンガンなどがあると、これらの物質が酸化されるので、土壌の還元状態が発達せず、CH₄が生成しにくくなる。高井⁸⁾は、易分解性有機炭素量あるいは可給態窒素量（アンモニウムイオンを指標とする）を還元容量と定義し、また、酸素、硝酸イオン、生成した第2鉄、易還元性マンガン量の和を酸化容量と定義した。これによれば、還元容量が多いほどCH₄生成能力が大きく、酸化容量が多いほどCH₄生成能力が小さいことを示している。したがって、還元容量が多く酸化容量が少ない土壌ほどCH₄の生成能力は大きいことを意味する。高井は、水田土壌中で生成されるCH₄と二酸化炭素の比は、土壌の還元容量と酸化容量の比で決定されることを明らかにした。

そこで、CH₄発生量の実測が行われている地点の土壌のインキュベーション実験で得られたCH₄生成量と、土壌の余剰還元容量（ $ERC = [\text{還元容量}] - [\text{酸化容量}]$ ）との関係を図6に示す。ERCが正の範囲で、両者は強い相関があることがわかった。一方、野外でのCH₄フラックスの実測値と土壌の余剰還元容量との間にはよい対応がみられず、CH₄発生には他の要因を同時に考慮することが必要であることを示している。この関係から、既存のタイの土壌の性質の分析データを用いて、タイの水田からのCH₄発生量を推定した。その値は $3.2 \pm 1.0 \text{ Tg/year}$ であり、前述した野外での実測値から推定した値よりもやや少なかった。

②水管理

土壌が還元状態にならないと、CH₄は発生しにくいので、水管理によって、CH₄の発生は大きく変化することが予想される。そこで、水田が常時湛水している区（常時湛水区）と通常の水管理を行う区（間断湛水区）におけるCH₄のフラックスを、自動フラックスモニタリング装置で連続測定した結果を図1に示した。常時湛水区のフラックスは、湛水後次第に大きくなり、最終落水の直前に最大となり、落水後は、急減して、CH₄の発生がみられなくなった。一方、間断湛水区では、湛水してから約60日後に中干しを3日間行ったとき、間断湛水区ではCH₄フラックスが減少

し、再湛水した後も常時湛水区よりフラックスは常に小さかった。このため、栽培期間中のCH₄発生量は、常時湛水区が9.5g/m²であるのに対して、間断湛水区は5.2g/m²と常時湛水区の55%であった。

これは、中干しによって、表層土壌が還元されにくくなるため、図1の酸化還元電位(Eh)の表層2cmの深さでの値は、常時湛水区と比較するとしばしば高くなっていることからわかる。この中干しは、そのときの水稻の生育状況や天候によって、短くしたり長くしたりするが、このときは比較的短かったのでCH₄の減少割合も少なかった。しかし、1週間ぐらい実施して雨が降らなければ、CH₄フラックスは、0にまで減少する場合もある。このように、日本で通常行われている水管理は、常時湛水している場合よりも、CH₄の発生を減少させることが明らかになった。

③有機物管理

日本では、収穫した時に、稲わらを土壌にかえすことが、多くの地点で行われている。これにより、土壌に有機物が投入されるので、稲わらをすきこまない区に比較して、CH₄の発生量は、多くなることが予想される。これまでの調査によれば、CH₄発生量は、稲わらを添加した処理区のほうが、他の処理区よりも発生量が多くなることがわかった²⁾。したがって、CH₄発生の観点からみれば、稲わらをすきこまないほうが良いが、かつて、稲わらを燃やすとその煙が周囲にたどり、稲わら公害として問題になったため、その後燃やさないようになった経緯がある。稲わらをすきこむにしても、春にすきこむよりは、秋にすきこんだほうが、CH₄発生量は少ないことが知られている。

この有機物管理は熱帯地域ではより大きな問題であり、今後の研究課題である。

(6) 水稻体を経由するメタン輸送のモデル化

水田土壌中のCH₄は、おもに水稻を介して大気中へ放出される、と推測されている^{9, 10)}。そこで、水田からのCH₄フラックスの季節変化を、土壌中CH₄濃度と水稻のサイズおよび温度をパラメータとして、モデル化することを検討した。

水稻は土壌中で生成されたCH₄を大気中へ放出する通導パイプであると考え、また、CH₄は濃度勾配による分子拡散で放出すると考えると、フラックスは、パイプの伝導度と濃度勾配を用いて次式で表される。

$$F = (C_s - P_a / H) \cdot D \quad (1)$$

F : フラックス(mg/m²/hour)

C_s : 土壌中のCH₄濃度(ug/ml)

P_a : 大気中のCH₄濃度

H : ヘンリー定数

D : 伝導度

大気中のCH₄濃度は土壌中に較べて非常に小さいので、(1)式は次のように表される。

$$F = C_s \cdot D \quad (2)$$

水稻を介したCH₄の輸送では、伝導度は水稻のサイズにより変化する。ここでは水稻の莖数に比例するとして、一莖あたりの伝導度という概念を導入すると、式(2)は次のように示される。

$$F = C_s \cdot D I \cdot N \quad (3)$$

$D I$: 一茎あたりの伝導度($\text{cm}^3/\text{h}/\text{shoot}$)

N : 単位面積あたりの水稻の茎(shoot)数 (=23)

ここでは、 C_s は実測値を用い、 $D I$ を推定することにより、フラックス F を求めた。

$D I$ は、図7に示すように、水田でのフラックス測定時の気温と非常に強い相関があることがわかった。その関係式を(4)に示す。

$$D I (T) = 0.308 \exp(0.126 T) \quad (4)$$

T : 測定時の気温($^{\circ}\text{C}$)

これから、フラックス F は、最終的に式(5)で表される。

$$F = C_s (23 \times S_n \times 0.308 \times \exp(0.126 T)) / 1000 \quad (5)$$

23 : 1 m^2 あたりの茎数

式(5)から計算されたフラックスと実測されたフラックスとの間には、図8に示すように、非常に強い相関が得られた。この関係は、稲わら区および化成肥料区でも共通に得られたので、一般的な関係を示すものであることがわかった。

(7) 各種窒素肥料からの亜酸化窒素の発生量の比較

畑地からの N_2O の発生要因としては、土壌の種類、窒素肥料の種類、地温、土壌水分量などがある。ここでは、窒素肥料の種類と土壌の種類に注目して、ライシメータ畑圃場で調査を行った。土壌は黒ボク土および黄色土の2種類で、使用した肥料は、有機質肥料(ナタネ粕、魚粕、粉骨の混合物)、硫酸アンモニウム、尿素系の緩効性窒素肥料(スーパーIB)であり、さらに無窒素区を設けた。施肥した土壌で、オープンチャンバー法で約1ヶ月フラックスを測定した結果によれば、測定期間中の発生量は、両方の土壌とも、有機質肥料、硫酸アンモニウム、緩効性肥料の順に発生量が多かった。また、黒ボク土のほうが黄色土よりも発生量が多かった。土壌分析結果によれば、 N_2O の生成はおもに硝化作用によるものであった。

(8) 施肥土壌から発生する亜酸化窒素と一酸化窒素の測定

窒素肥料を施用した土壌からの N_2O と NO のフラックスの調査を、1992年の夏期に、硫酸アンモニウム(硫安区)と硝酸カルシウム(硝酸区)を施肥して、約1ヶ月間実施した^{11, 12)}。その結果を表4に示す。まず、硫安区のほうが硝酸区よりも、 N_2O と NO の発生量は多く、両区とも NO の発生量のほうが N_2O よりも大きかった。硫安区での N_2O と NO のフラックスは、施肥後1~2日後に最大となり、1週間後には非常に少なくなった。同時に測定した土壌中の NH_4^+ 、 NO_3^- 濃度の変化から、これらの生成はおもに硝化作用によるものであった。施肥土壌から大気中への窒素($[\text{N}_2\text{O}-\text{N}] + [\text{NO}-\text{N}]$)の総発生量は、施肥窒素総量の0.1~1.0%であった。これらから、黒ボク土では、 N_2O および NO の生成はおもに硝化作用によるものであり、 NO のほうが N_2O よりも発生量が3~10倍と多かったことが特徴である。

(9) 水田からの亜酸化窒素の発生

水田からの N_2O フラックスの測定結果を図9、図10に示す¹³⁻¹⁵⁾。水稻栽培期間中で湛水期間中は、 N_2O の発生も吸収もみられなかった。しかし、収穫のために最終落水した後には、 CH_4 は発生

しなくなったが、 N_2O は発生し始めた。このとき、土壌は、Ehのデータにみられるように、還元状態から酸化状態に変化したので、それまで土壌中に蓄積された有機物が分解してアンモニウムとなり、さらに微生物の硝化作用で分解して N_2O を生成したためと、推測された。日本では、収穫したあと、次の春に再湛水するまでの間、土壌は酸化状態なので、図10に示すように、この期間中、 N_2O は常時発生していた。 N_2O のフラックスの経日変化は、最終落水から収穫時期を含めた数カ月間、比較的高く、地温が $10^{\circ}C$ 以下に低くなる冬の間は小さかった。これらのことは、水田土壌からは、湛水期間中は CH_4 が発生しており、非湛水期間中は N_2O が発生していることを示しており、 CH_4 と N_2O は、トレードオフの関係にある。したがって、土壌をできるだけ還元状態にしないようにして CH_4 の発生を抑制しようとするれば、 N_2O が多く発生することを示唆している。今後、水田から温室効果ガスの発生を少なくするときには、このジレンマに直面することになり、今後の大きな課題である。

5. まとめと今後の課題

以上の結果を次のようにまとめた。

(1) 水田からのメタン発生

- ①日本、中国、熱帯のタイの水田からのメタンフラックスを測定して、栽培期間中の季節変化と日変化、および国全体からのメタン発生量を推定した。その結果、温帯の日本と熱帯のタイとでは、季節変化が異なっている場合があることがわかった。日変化では、パターンは同じであったが、振巾はタイのほうが大きかった。タイと日本の水田からのメタン発生量は、それぞれ、 3.7 、 $0.26Tg/year$ と推定された。
- ②メタンの発生要因を検討し、土壌の化学的性質、水管理、有機物管理について検討した。各地域の土壌の化学分析結果から、還元容量と酸化容量との差と培養実験によるメタンの生成量とは、比例関係にあることがわかったが、実測値との対応はあまりよくなかった。水管理については、栽培期間中に落水することによって、メタンの発生が少なくなり、日本で通常行われている中干しなどの水管理は、メタンの発生を少なくする効果があることがわかった。
- ③水稻体を通じてのメタン発生を1茎あたりの伝導度を用いることによってモデル化し、モデルから計算した値と実測のフラックス値は、よく一致した。
- ④水田からのメタンフラックスを自動連続測定する装置を開発した。それにより、フラックスの日変化や季節変化などが詳細に明らかになった。

(2) 施肥土壌および水田からの亜酸化窒素の発生

- ①3種類の窒素肥料からの N_2O の発生量を比較すると、有機質肥料、硫酸アンモニウム、緩効性窒素肥料の順に、発生量が多かった。
- ②硫酸アンモニウム肥料と硝酸ナトリウム肥料を施用した土壌からの N_2O と NO のフラックスを測定したところ、 NO のほうが N_2O よりも発生量が多く、前者の肥料のほうが後者の肥料よりも発生量が多かった。これから、 N_2O と NO の生成は、おもに硝化作用によると推測された。
- ③水田土壌からのフラックスを、 CH_4 だけでなく N_2O について年間を通じて測定した。その結果、湛水期間中はメタンは発生したが N_2O は発生も吸収もみられなかった。しかし、最終落水後は、メ

タンの発生がみられなくなると同時に、 N_2O が発生し始め、翌春の再湛水期までのあいだ、 N_2O は連続して発生していた。

つぎに今後の研究課題を示す。

- (1) 中国との共同研究を継続して、中国における水田からの CH_4 発生量を推定する。
- (2) CH_4 発生要因、とくに有機物管理による影響を解明する。
- (3) CH_4 の生成および酸化過程に関する研究をさらに進め、 CH_4 発生のモデルを完成させる。
- (4) 世界の水田からの CH_4 発生量を、フラックス測定およびモデルから推定し、比較検討する。
- (5) 水田からのメタンの発生抑制技術を開発する。
- (6) 施肥土壌と水田からの N_2O のフラックスをアジア各地で、共同研究として実施する。
- (7) 農耕地からの N_2O の発生要因を解明し、発生のモデル化を行う。
- (8) アジアおよび世界からの農耕地からの N_2O の発生量を推定する。
- (9) 窒素施肥土壌からの N_2O の発生抑制技術を開発する。

6. 本研究により得られた成果

- (1) 温帯地域および熱帯地域において、水田から発生するメタンのフラックスの季節変化と日変化が明らかになった。
- (2) 日本とタイの水田からのメタン発生量を推定した。
- (3) 水田からのメタン発生に及ぼす要因として、土壌の化学的性質、水管理、有機物管理などが非常に重要であることが明らかになった。
- (4) 水稻体を通して大気中へ放出されるメタンフラックスをモデル化することができた。
- (5) 施肥土壌から発生する亜酸化窒素は、アンモニウム態窒素肥料のほうが硝酸態窒素肥料よりも発生量が多く、脱窒作用よりもおもに硝化作用で生成していることが明らかになった。
- (6) 窒素肥料を施用した土壌からは、一酸化窒素も同時に発生しており、亜酸化窒素よりも一酸化窒素のほうが発生量が多いことが明らかになった。
- (7) 水田土壌からは、収穫のための最終落水後から翌春の再湛水時までの約8ヶ月間、亜酸化窒素が連続して発生していることが明らかになった。
- (8) 以上から、水田は、湛水期間中はメタンが発生し、非湛水期間中は亜酸化窒素が発生していることが明らかになった。

7. 参考文献

- (1) IPCC, 1992: Climate Change: The supplementary report to the IPCC scientific assessment, eds. Houghton, J.T., Callendar, B.A., Varney, S.K., Cambridge University Press, UK.
- (2) 八木一行・鶴田治雄・神田健一(1994): 水管理が水田からのメタン発生に及ぼす影響、農業環境技術研究所資源・生態管理科研究集録、第10号、61-70.
- (3) Yagi, K. and Minami, K. (1990): Effect of organic matter application on methane emission from some Japanese rice paddy fields, Soil Sci. Plant Nutr., 36, 599-610.

- (4) Tsuruta, H., Yagi, K., Kanda, K., Kato, K., Chairaj, P., Cholitkul, W., and Minami, K. (1994): Methane emission rate to the atmosphere from rice paddy fields in Thailand, in Proceedings of the International Symposium on Global Cycles of Atmospheric Greenhouse Gases, March 7-10, 1994, Sendai, pp. 90-93.
- (5) Kato, K., Chairaj, P., Cholitkul, W., Tsuruta, H., Yagi, K. (1995): Mechanism of methane formation and development of methods to decrease methane emission in humid tropical paddy fields, Japan International Research Center for Agricultural Sciences.
- (6) Parashar, D.C. et al. (1994): Methane budget from Indian paddy fields, in "CH₄ and N₂O: Global emissions and controls from rice fields and other agricultural and industrial sources", ed. Minami, K., Mosier, A., and Sass, R., NIAES, 27-39.
- (7) Wang, M.X., Dai, A., Shangguan, X., Ren, L., Shen, R., Schutz, H., Seiler, W., Rasmussen, R. a., and Khalil, M. A. K. (1994): Sources of Methane in China, in "CH₄ and N₂O: Global emissions and controls from rice fields and other agricultural and industrial sources", ed. Minami, K., Mosier, A., and Sass, R., NIAES, 9-26.
- (8) 高井康雄・加村崇雄(1961): 水田の微生物の動態－水田土壌の還元機構－、科学、31、618-624.
- (9) Nouchi, I. (1994): Mechanisms of methane transport through rice plants, in CH₄ and N₂O: Global emissions and controls from rice fields and other agricultural and industrial sources (eds. by K. Minami, A. Mosier and R. Sass), pp. 87-104, Youkendo Publisher, Tokyo.
- (10) Nouchi, I., Hosono, T., Aoki, K. and Minami, K. (1994): Seasonal variation in methane flux from rice paddies associated with methane concentration in soil water, rice biomass and temperature, and its modelling, Plant and Soil, 161, 195-208.
- (11) Tsuruta, H., Tanizaki, T., Yagi, K., Kanda, K., and Minami, K. (1992): N₂O and NO emissions from fertilized soils in Tsukuba, Japan, in Proceedings of the 5th International Workshop on Nitrous Oxide Emissions, 1-3 July 1992, Tsukuba, pp. 651-655.
- (12) Tsuruta, H. (1995): N₂O and NO emissions from fertilized soils, livestock wastes and rice paddy fields, in Proceedings of the UK-Japan Workshop on controlling methane and the nitrogen cycles on farms, 19-24 March, 1995, Silsoe, UK, pp. 97-100.
- (13) 鶴田治雄・神田健一・八木一行(1994): 水田と大気との間のガス交換過程に関する年間調査、農業環境技術研究所資源・生態管理科研究集録、第10号、43-55.
- (14) Tsuruta, H., Yagi, K., and Minami, K. (1994): CH₄ and N₂O emissions from rice paddy fields, in Proceedings of the 7th IUAPPA Regional Conference on Air Pollution and Waste Issues, 2-4 November 1994, Taipei, pp. 131-137.
- Tsuruta, H. (1995): N₂O emission from a Japanese rice paddy field (to be published in 1995).

[国際共同研究等の状況]

(1) 平成2年度からタイ国農業局との間で共同研究「タイの水田からのメタン発生に関する研究」を実施している。共同研究者名は、タイ農業局のDrs. Prapai Chairaj, Wisit Choltikulである。

(2) 平成4年度から中国科学院南京土壤研究所との間で共同研究「中国の水田からのメタン発生に関する研究」を実施している。共同研究者名は、南京土壤研究所の邪光喜、祭祖聰氏である。

[研究発表の状況]

熊谷勝巳・八木一行・鶴田治雄・陽 捷行(1993): 水田からのメタン発生と水田土壌におけるメタン生成・酸化分解、日本土壤肥料学会誌、64、368-376.

熊谷勝巳・八木一行・鶴田治雄・陽 捷行(1993): 水田土壌におけるメタン生成・酸化分解能の測定、日本土壤肥料学会誌、64、431-434.

Nouchi, I. and Mariko, S. (1993): Mechanism of methane transport by rice plants, in Biogeochemistry of Global Change (ed. by R. S. Oremland), Chapman & Hall, New York pp. 336-352.

Nouchi, I., Hosono, T., Aoki, K. and Minami, K. (1994): Seasonal variation in methane flux from rice paddies associated with methane concentration in soil water, rice biomass and temperature, and its modelling, Plant and Soil, 161, 195-208.

Nouchi, I. (1994): Mechanisms of methane transport through rice plants, in CH₄ and N₂O: Global emissions and controls from rice fields and other agricultural and industrial sources (eds. by K. Minami, A. Mosier and R. Sass), pp. 87-104, Youkendo Publisher, Tokyo.

Tsuruta, H., Tanizaki, T., Yagi, K., Kanda, K., and Minami, K. (1992): N₂O and NO emissions from fertilized soils in Tsukuba, Japan, in Proceedings of the 5th International Workshop on Nitrous Oxide Emissions, 1-3 July 1992, Tsukuba, pp. 651-655.

Tsuruta, H., Yagi, K., Kanda, K., Kato, K., Chairaj, P., Choltikul, W., and Minami, K. (1994): Methane emission rate to the atmosphere from rice paddy fields in Thailand, in Proceedings of the International Symposium on Global Cycles of Atmospheric Greenhouse Gases, March 7-10, 1994, Sendai, pp. 90-93.

Tsuruta, H., Yagi, K., and Minami, K. (1994): CH₄ and N₂O emissions from rice paddy fields, in Proceedings of the 7th IUAPPA Regional Conference on Air Pollution and Waste Issues, 2-4 November 1994, Taipei, pp. 131-137.

Tsuruta, H. (1995): N₂O and NO emissions from fertilized soils, livestock wastes and rice paddy fields, in Proceedings of the UK-Japan Workshop on controlling methane and the nitrogen cycles on farms, 19-24 March, 1995, Silsoe, UK, pp. 97-100.

Tsuruta, H. (1995): N₂O emission from a Japanese rice paddy field (to be published in 1995).

Tyler, S. C., Brailsford, G. W., Yagi, K., Minami, K., and Cicerone, R. J. (1994): Seasonal variations in methane flux and $\delta^{13}\text{C}$ CH₄ values for rice paddies in Japan and their implications, Global Biogeochem. Cycles, 8, 1-12.

- Yagi, K. and Minami, K. (1993): Spatial and temporal variations of methane flux from a paddy fields, in "Biogeochemistry of global change", (ed. by Oremland, R. S.), Chapman & Hall, New York, pp. 53-368.
- Yagi, K., Chairaj, P., Tsuruta, H., Cholitkul, W., and Minami, K. (1994): Methane emission from rice paddy fields in the central plain of Thailand, Soil Sci. Plant Nutr., 40, 29-37.
- Yagi, K., Tsuruta, H., Minami, K., Chairaj, P., and Cholitkul, W. (1994): Methane emission from Japanese and Thai paddy fields, in "CH₄ and N₂O: Global emissions and controls from rice fields and other agricultural and industrial sources", (eds. by Minami, K., Mosier, A., and Sass, R.), NIAES, pp. 41-53.
- Yagi, K., Kumagai, K., Tsuruta, H., and Minami, K. (1994): Emission, production, and oxidation of methane in a Japanese rice paddy fields, in "Soil management and greenhouse effect", (eds. by Lal, R., Kimble, J., Levine, E., and Stewart, B. A.), Lewis Pbl., pp. 231-243.

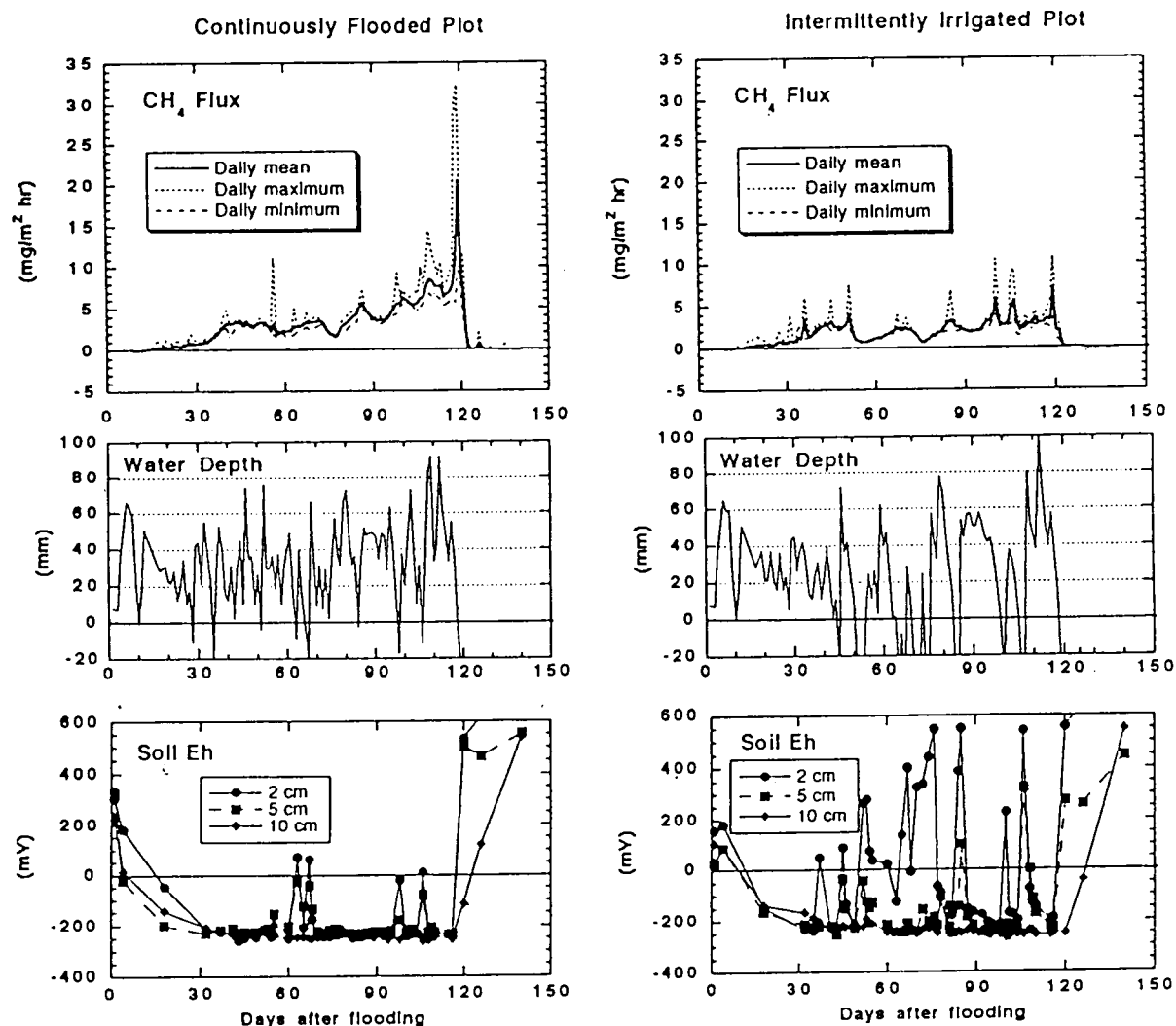


図1 自動測定装置で1993年に竜ヶ崎の水田で測定されたメタンフラックスの季節変化（上図）、田面水位（中図）、および土壌のEh（下図）。左図が常時湛水区、右図が間断湛水区。

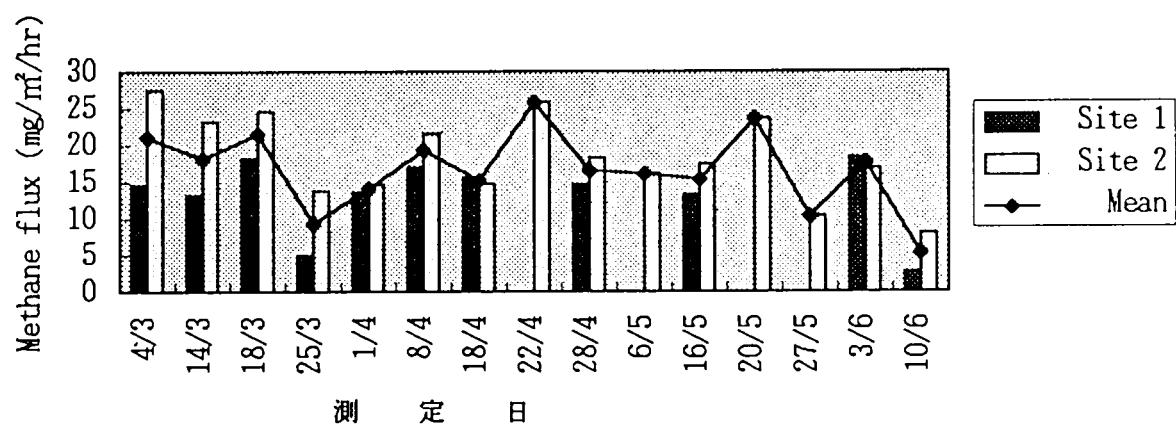


図2 タイの水田におけるメタンフラックスの季節変化の1例（1994年乾期に午前中に2連で測定した。測定地点はプレー）。

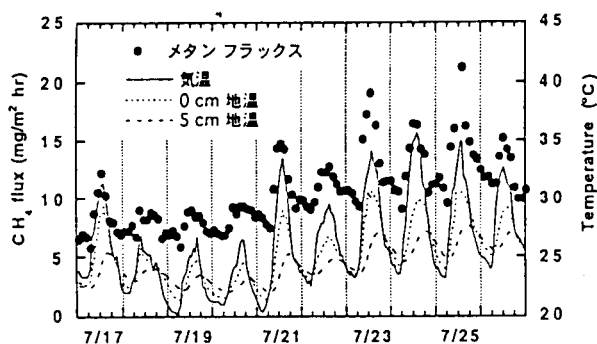


図3 竜ヶ崎の水田でのメタンフラックスと地温の日変化の例(1991年に自動測定装置で測定)

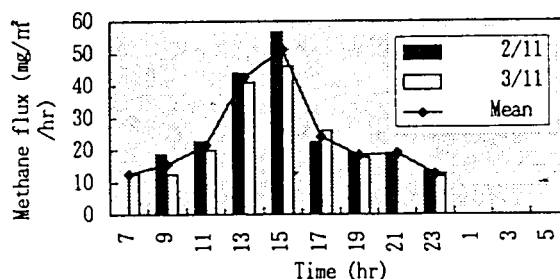


図4 タイの水田におけるメタンフラックスの日変化(1993年11月2-3日にバンケンで測定)

表1 茨城県内の各種土壌におけるメタンフラックスの測定

圃場	土壌	試験区	CH ₄ 年間発生量 (g/m ² ・y ⁻¹)
竜ヶ崎	グライ土	無窒素区	8.0
		(1) 化成肥料区	8.2
		(2) 堆肥区 (1200kg/10a)	10.5
		(3) 稲わら区 (600kg/10a)	27.0
河内	泥炭土	稲わら区 (600kg/10a)	44.8
水戸	多湿黒ボク土	無窒素区	4.1
		(4) 化成肥料区	3.6
		(5) 堆肥区 (1200kg/10a)	5.9
		(6) 稲わら区 (600kg/10a)	9.8
		稲わら区 (900kg/10a)	12.6
筑波	淡色黒ボク土	化成肥料区	0.6
		稲わら区 (600kg/10a)	1.1

表2 日本における水田からのメタン発生量の推定例(環境庁、1994)。排出係数の()内の数値は実測値と推定値である。

土壌種類	排出係数(g-CH ₄ /m ² /年)	作付面積(10 ⁴ m ²)	排出量(Gg-CH ₄)
沖積土	13.4(8.0~27.0)	1,486(72.3%)	199
火山灰土	5.9(3.6~9.8)	245(11.9%)	14
泥炭土	22.3(13.3~44.8)	132(6.4%)	29
その他	9.6(5.9~18.4)	193(9.4%)	19
合計	—	2,055	261

表3 アジアの主要国の水田面積 (FAO、1990) とメタン発生量 (各国独自の調査による)

国名	水田面積 (x10 ⁶ ha) %	メタン発生量 (TgCH ₄ /year)
インド	41.8 32.0	4.0
中国	32.9 25.2	13-17
バングラディシュ	10.6 8.1	
インドネシア	10.3 7.9	2-4
タイ	8.9 6.8	3.7
ヴェトナム	5.9 4.5	
ミャンマー	4.8 3.7	
フィリピン	3.3 2.5	1.1-2.0
パキスタン	2.1 1.6	
日本	2.1 1.6	0.26
その他の国々	7.9 6.1	



- I: 華南二期水稻作区
- II: 長江中下流早・二期稲作区
- III: 雲南高原稲作区
- IV: 四川盆地丘陵稲作区
- V: 華北粳稲区
- VI: 東北早熟粳稲区
- VII: 西北乾燥地稲作区

図5 中国の稲作区域(中国統計年鑑1984より)

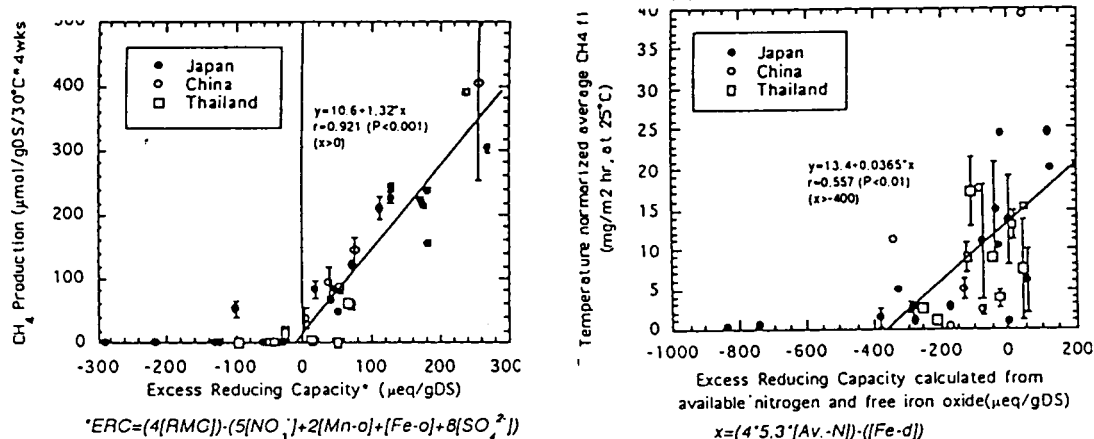


図6 世界各地の水田土壌の余剰還元容量(ERC)とインキュベーション実験で得られたメタン生成量との関係(右図は余剰還元容量とメタン発生量の実測値との関係)

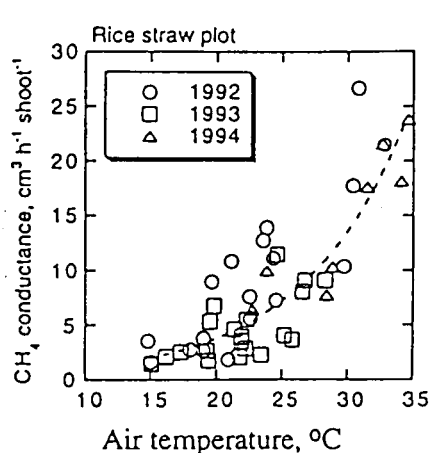


図7 水稻1茎あたりのコンダクタンスとフラックス測定時の気温との関係(ライシメータ水田の稲わら区:1992、1993、1994年の3年間のデータ)

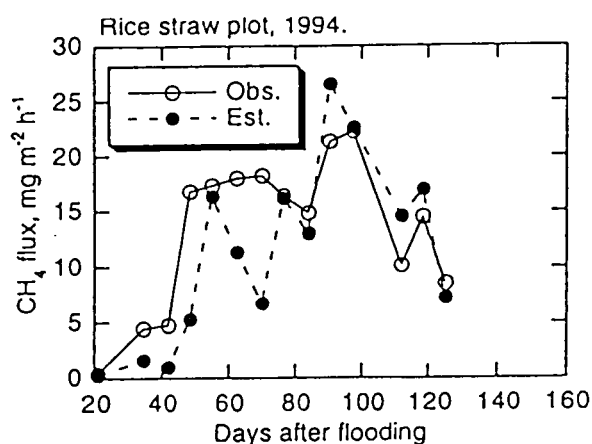


図8 ライシメータ水田の稲わら区での実測とモデル計算によるメタンフラックスの関係. 計算値は本文中の式(5)から求めた)

表4 窒素施肥土壌からのN₂OとNOの発生量(1992年夏期にライシメータ畑地で測定)(硫酸アンモニウムと硝酸ナトリウムを施肥)

Plot No.	N-fertilizer applied Type (kgN/10a)	Total emission	NO-N	(NO-N)+(N ₂ O-N)
		NO N ₂ O (mgN/m ²)	N ₂ O-N	N-fertilizer (%)
2	(NH ₄) ₂ SO ₄	20	84.0 12.3	6.8 0.48
4	(NH ₄) ₂ SO ₄	20	185.0 19.2	9.6 1.02
Mean		20	134.5 15.8	8.5 0.75
1	NaNO ₃	20	18.7 5.84	3.2 0.12
3	NaNO ₃	20	7.8 0.28	27.9 0.04
Mean		20	13.3 3.06	4.3 0.08

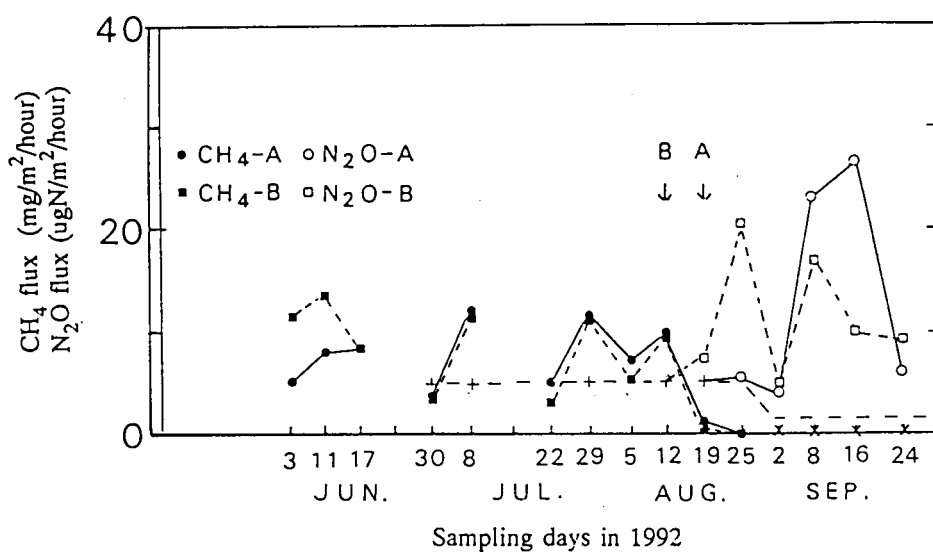


図9 竜ヶ崎の水田からのCH₄とN₂Oのフラックス（1992年6－9月にA，Bの2処理区で測定）．点線はN₂Oのフラックス値の定量限界を、xはメタンフラックスの定量限界値以下のデータを示す。

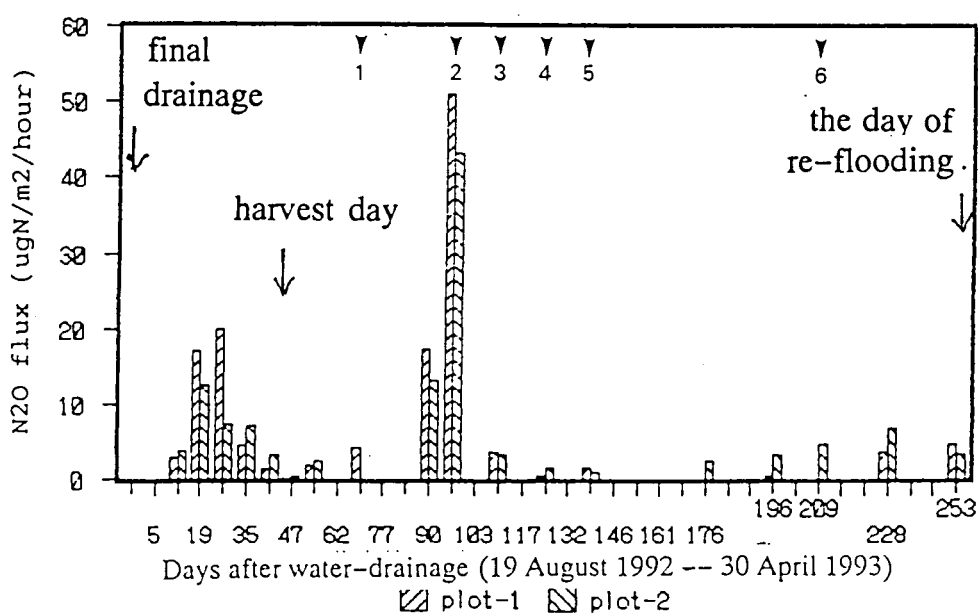


図10 竜ヶ崎の水田土壌からのN₂Oフラックスの経日変化（1992年8月19日－1993年4月30日）