

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 23 日現在

機関番号：82107

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23310017

研究課題名(和文) 土壌ガス交換の動的解明

研究課題名(英文) Dynamic study of soil gas exchange

研究代表者

米村 正一郎 (YONEMURA, SEIICHIRO)

独立行政法人農業環境技術研究所・その他部局等・研究員

研究者番号：20354128

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,400,000円、(間接経費) 4,620,000円

研究成果の概要(和文)：土壌ガス交換量自動測定システムを2系統開発し、二酸化炭素、吸収ガス(メタン、一酸化炭素、水素)、窒素ガス(亜酸化窒素、一酸化窒素)の土壌による交換過程を動的にとらえ、以下のことを明らかにした。二酸化炭素についてはクロボク土壌では非生物的吸着過程が重要な役割を果たし、その生物的呼吸量の推定法を提示するとともに、同位体分別過程まで解明した。吸収ガスについては、吸収速度の短期的・長期的温度応答性の違い解明を解明した。窒素ガスについては複雑なため(硝化・脱窒過程が含まれるため)、このシステムによる測定方法についての確立を行い、一酸化窒素については純放出量と吸収速度を分別して求める新手法を提示した。

研究成果の概要(英文)：We developed original systems to continuously and dynamically measure soil gas exchange with changes of various conditions such as soil temperature and moisture. The target gases are direct/indirect greenhouse gases such as carbon dioxide, uptake gases (methane, carbon monoxide, hydrogen), and nitrogen gases (nitrous oxide, nitrogen monoxide). CO<sub>2</sub> sorption to volcanic soil was found to play important role in soil CO<sub>2</sub> dynamics and we further investigated fractionation of CO<sub>2</sub> stable isotopes resulting from this sorption processes. Long-term and short-term responses of uptake rates of uptake gases were revealed in view of the difference of arable field and forest. Uptake rates were reduced to a great extent after heat stresses. We tested dynamic gas exchange of nitrogen gases and proposed a new method to simultaneously estimate gross production and uptake rates.

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：生物地球化学 土壌圏科学 大気質変動 温度応答 同位体分別

### 1. 研究開始当初の背景

土壌において交換される温室効果ガス(CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O など)や温室効果関連ガス(NO, CO, H<sub>2</sub>)、成層圏オゾン破壊ガス(N<sub>2</sub>O, COS)、雲物理寄与ガス((CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>S)は、大気を通して地球環境の成り立ちに重要な存在である。そして、着々濃度上昇する温室効果ガスの発生・吸収メカニズムの解明ならびにその背景となる物質循環の解明、人間が管理できる農業生態系では温室効果(関連)ガス発生量を削減し吸収量を増大させる研究が喫緊の推進課題と位置付けられている。

CO<sub>2</sub>は土壌微生物代謝から発生するが、最近のホットピックは、炭素循環に関連して、CO<sub>2</sub>発生(土壌有機物の分解)応答が温度(温暖化)によってどう変化するかである。CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>, COについては、微生物代謝により土壌吸収されるが、化石燃料社会の後続の水素社会ではH<sub>2</sub>濃度が大きく上昇する可能性も示唆されている。N<sub>2</sub>O, NOの多くは、窒素施肥に伴い微生物代謝により土壌から発生し、農業生産増大(世界人口増大)とともに施肥使用量が増えているため、発生量が増大している。

現在のガス交換の主流の研究では、実学的な観点からフィールドでガス発生・吸収量を、気温、地温、土壌水分、pH、酸化還元電位などの環境要因と対照させた実験研究が行われ、必要な対処策が考えられてきた5,6。しかしながら、各フィールドでの個別研究にとどまり一般化が難しかった。ガス交換量実験の室内実験の方法として、伝統的に閉鎖チャンバー法が用いられているが、この方法では以下の問題が存在する：

- 1) 培養温度を一定にしてガス交換量との関係が調べられているが、培養温度以外にコントロールしてガス交換量を見積もることが難しい(その場での温度制御が難しい)。
- 2) 複数ガスの同時測定・自動連続測定が困難である。特に吸収ガスはチャンバー内からガス自体がなくなってしまう、特に困難である。
- 3) 土壌環境ガス濃度を能動的に制御出来ず、対象ガス自体の濃度関数として交換量が求められない。
- 4) CO<sub>2</sub>に関しては、土壌液・固相内に貯留されているCO<sub>2</sub>と気相中のCO<sub>2</sub>の交換係数が小さい(未発表データより)ため、生物的代謝CO<sub>2</sub>発生を見るにあたって補正が必要だが難しい。

これを解決するために、我々のグループでは、ガス交換量(発生・吸収量)の背景となる環境要因を制御した精緻な実験(土壌を採取・調整後、培養)を行いはじめている。すなわち、技術的克服点の多さから実用されてこなかったが多くの長所を持つ通気式チャンバー法(土壌を入れたチャンバー内に、空気を流し、濃度差で交換量を見積もる方式)を用いた土壌ガス交換量自動測定システムを開発を開始している。

### 2. 研究の目的

土壌は、地球環境で重要な役割を果たしている多くのガス成分を大気との間で交換しているが、交換メカニズムを調べるための室内実験は、連続測定が難しい閉鎖チャンバー法で行われてきた。本研究では、新たに開発された土壌ガス代謝自動測定システムによる精緻な自動連続測定により、土壌によるガス(温室効果(関連)ガスである二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)、メタン(CH<sub>4</sub>)、水素(H<sub>2</sub>)、一酸化炭素(CO)、亜酸化窒素(N<sub>2</sub>O)、二酸化窒素(NO))交換のメカニズムを、各ガス交換量間の関係に着目して解明することを目的とする。次に、明らかにされた知見をもとに環境履歴(高温ストレスなど)を入れ込んだプロセス解明も目的とする。そして、地球環境における土壌の役割の更なる理解や、土壌における温暖化緩和策に資する。

### 3. 研究の方法

本研究は、通気式チャンバー法を原理とした測定方式により、連続測定が可能になる。また、チャンバーを温調機内に入れ込むことによって温度制御も可能となっている。作成されたシステムの基本的な部分については、本基盤研究開始に整備されていた(土壌ガス交換量自動測定システム1)が、これを改良するとともに、さらに多くの研究に資するためもう1つのシステム(土壌ガス交換量自動測定システム2)を整備した。また、同時に多成分ガスの測定に資するように、電磁弁でサイクリックで分析計に導入できるようにした。

システムは、土壌が乾かないように飽和水蒸気のキャリアアフローをチャンバーに導入すること、チャンバー内にはファンを入れてチャンバー内の空気を一様にするなど様々な工夫を行った。

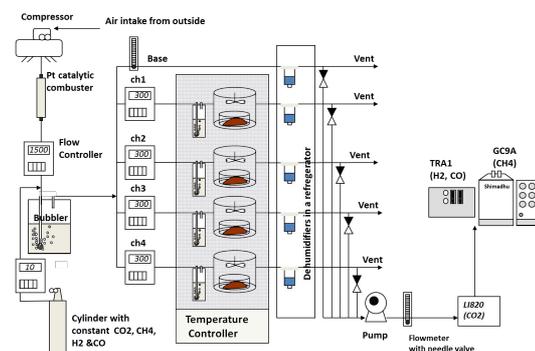


図1 測定システム

ガス分析にあたっては、CO<sub>2</sub>は非分散型赤外線分析計LI820(LICOR社)、CH<sub>4</sub>はガスクロマトグラフ(FID付ガスクロマトグラフGC9A)、H<sub>2</sub>, COについては水銀置換法ガスクロマトグラフ(ラウンドサイエンス、TRA1)、N<sub>2</sub>Oについてはガス相関法(サーモ、MODEL46C)、NOについては化学蛍光法(サーモ、MODEL42i)で

測定を行った。なお、ガスクロマトグラフについては連続測定というよりバッチ測定であるが、チャンバーからの切り替えタイミングにあわせて分析タイミングを設定した。

データとしては、  
 各種ガス分析計  
*RS232C などの通信*  
 分析計管理 PC または データロガー  
*バックアップソフトによる*  
 ネットワークハードディスク

として逐次データを蓄えるようにした。それぞれの分析計管理 PC、データロガーおよびネットワークハードディスクは LAN アドレスが振り分けられ、総合的なデータ解析が可能ないようにした。本システムでは連続的にデータが得られるため、自動図化するためネットワークハードディスクに蓄えられたデータ（ガス濃度、チャンバー温度、流量、リレーの制御状況）は実験棟にある LINUX サーバにより逐次グラフ化を行った（図 2）。

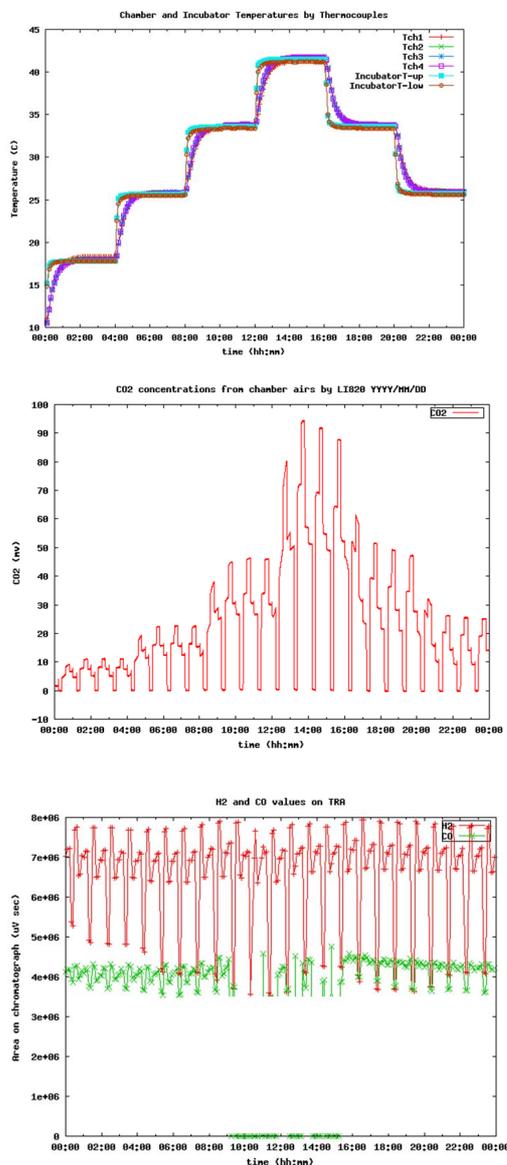


図 2 得られたデータの自動グラフ化。上から温度、CO<sub>2</sub> 濃度（放出ガスの例）、H<sub>2</sub> 濃度（吸収ガスの例）、CO<sub>2</sub> の場合はベース（グラフの下の方の濃度）から 4 つのチャンバーそれぞれで濃度上昇がみられ、H<sub>2</sub> の場合はベース（グラフ上で上の方の濃度）から濃度減少が見られる。そして温度に対して明確な応答を示している。

また、大量のデータからプログラムで発生・吸収量、吸収速度 (uptake rate) まで計算できるプログラムを c または perl で作成した。これらのプログラムには土壌乾重、流量（石鹸膜流量計の値）を入れ込むことにより、発生・吸収量、吸収速度の自動的な計算が可能になっている。

#### 4. 研究成果

本研究では、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、H<sub>2</sub>、CO、N<sub>2</sub>O、二 NO の土壌のガス交換量を同時に測定することが可能であるが、それぞれのガスで現象が異なるため、CO<sub>2</sub> およびその安定同位体、吸収ガス (CH<sub>4</sub>、H<sub>2</sub>、CO)、窒素ガス (N<sub>2</sub>O、NO)、に分けて、研究成果の報告を行う。

##### (1) CO<sub>2</sub> について：

まず、農業環境技術研究所の火山灰土を中心に実験を行った。

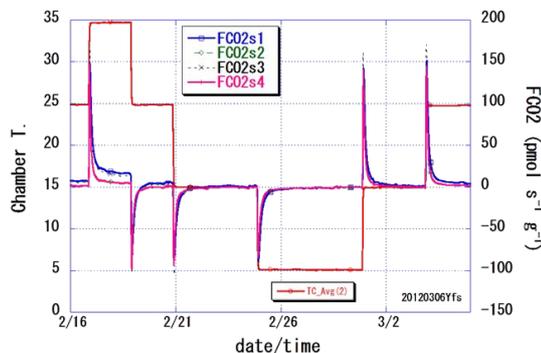


図 3 温度を変化させた場合 (10 ステップ) の CO<sub>2</sub> 放出・吸収量の変化。赤が温度画変化、ピンクが深層土壌、青が表層土壌 (0-20cm) を示す。上流側の CO<sub>2</sub> 濃度は 400ppm に制御。

温度を変化させた場合の CO<sub>2</sub> の放出量は微生物活性を反映して、温度とともに綺麗に変動すると予想された。しかしながら、温度を変化させて、土壌からの CO<sub>2</sub> 放出量を測定したところ、温度を上昇させた場合には急激な発生、下降させた場合には急激な吸収が見られた。また、この変化は、温度を上昇させた場合の放出と下降させた場合の吸収とで同程度のものであった。そして、同じ 10 の変化でも低温側の方が放出・吸収量が大きかった。また、濃度を変えた場合には、濃度を高めると吸収、濃度を下げると土壌からの放出

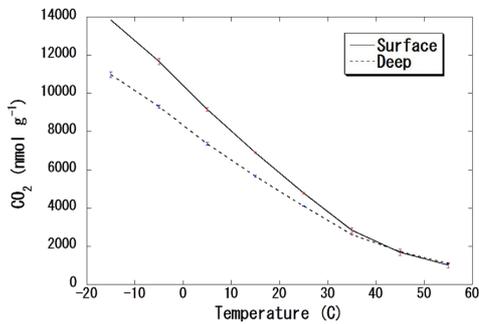


図4 温度と図3の現象から土壤に貯留されていると考えられる推定CO<sub>2</sub>量

が観察され見られた。これらの関係から、図4を得た。貯留量は全炭素量の0.01%程度のオーダーで大きいものではなかったが、土壤微生物呼吸量(後述)に比べると大きな量であった。

また、以上の現象は土壤が吸収など、生物的には考えられない現象であると予想されたが、検証のため2つの実験を行った。1つは放射線滅菌を行った。滅菌によっても温度を変化させた際のCO<sub>2</sub>の放出・吸収の現象には変わりがなかった。2つは、乾燥土壤でも同様な現象があることを確かめた。これらの論拠から非生物的なおそらく物理的な吸着であることは間違いないものと考えられる。

非生物吸着が土壤に存在するために、微生物呼吸は非常に測りにくいものになっている。このため、微生物呼吸についてはCO<sub>2</sub>の土壤への吸着量を最小限にするためには、濃度を減少させることが重要と考え、チャンバーに流す上流側のCO<sub>2</sub>を完全に除去して、下流側のCO<sub>2</sub>濃度変化を調べた(図5)。この結果、温度に対応した綺麗な放出量カーブを得ることが出来た。すなわち、これが微生物呼吸量に対応するものであると考えられる。

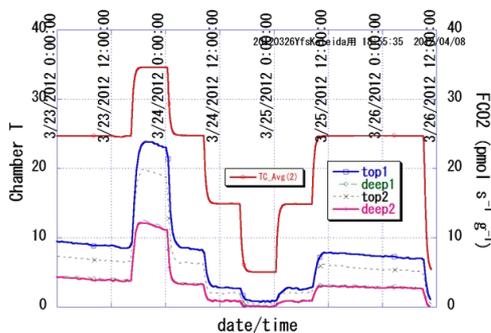


図5 温度変化(赤)と耕起層と深層から発生するCO<sub>2</sub>量。上流側のCO<sub>2</sub>濃度をゼロ、温度を25に設定した。

耕起層土壤が深層の土壤より有機物量が大きいのでCO<sub>2</sub>発生量が多いのは当然と考えられる。温度係数について調べるためアレニウスプロットの活性化エネルギーを比較

したところ、深層土壤(105kJ程度)が耕起層土壤(80kJ程度)より大きな活性化エネルギーであった。一般的に、難分解性有機物の比率が高いほど活性化エネルギーは大きくなると考えられるが、深層土壤は新鮮有機物が供給される耕起層土壤よりも難分解性有機物が比率として多いためであると考えられる。

なお、沖積土である熊谷の土壤を調べたところ、土壤へのCO<sub>2</sub>吸着量は小さく、火山灰度が持つ吸着能が大きく関係しているものと考えられた。なお、熊谷土壤の微生物呼吸の温度依存性は65kJ程度であり、逆に火山灰度では難分解性の吸着有機物の存在が温度依存性を高めていると予想された。

また、安定同位体比(<sup>13</sup>CO<sub>2</sub>)を測定した。そして、チャンバー前後の差およびキーリングプロットによる値を比較したところ、吸着効果を反映した同位体分別効果が観察された。キーリングプロットに関しては、吸着・脱着双方について同様な時系列変化が見られた(図6)。

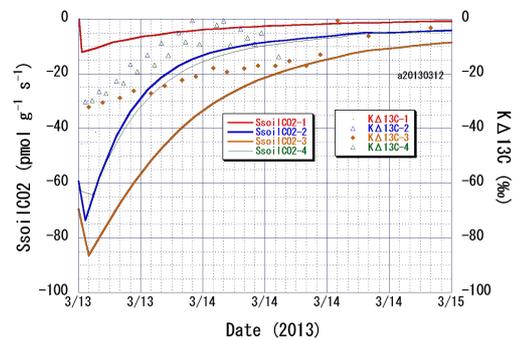


図6 5条件で濃度を0から400ppmに上げた際の土壤によるCO<sub>2</sub>吸収量(線)およびキーリングプロットによる(点)。赤茶は耕起層土壤、青緑は深層土壤のデータであることを示す。

吸脱着過程では軽いCO<sub>2</sub>の交換が起きやすいことを図6は示している。吸脱着過程ではたとえば分子拡散なども効くのでその分別効果などが考えられる。そして、生態系での<sup>13</sup>CO<sub>2</sub>を利用した研究では吸脱着過程も考慮しなくてはならないことを示している。

## (2)吸収ガス(CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>, CO)について

本システムでは、長期的な温度変化(数日から数か月など培養期間に応じて)と短期的な温度変化(数時間から日スケール)に対するガス交換量の応答を区別することが可能である。どう変わるか吸収ガスの温度応答に関して、農業環境技術研究所の畑地土壤および林地土壤を用いて調べてみた。

全体的な吸収速度は、H<sub>2</sub>>CO>CH<sub>4</sub>の順であった。また、どのガスでも林地の方が吸収速度が大きかった。長期的および短期的な温度応答に関して科学的にいえることは3つのガ

スで共通していたため、ここではH<sub>2</sub>についてのみ説明する。

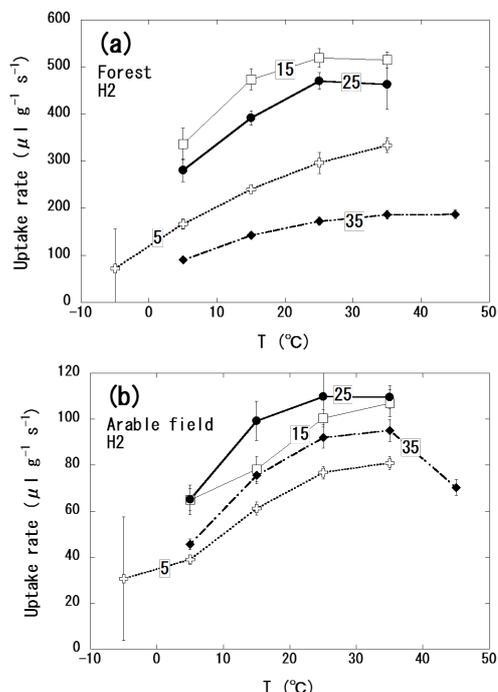


図7 x 軸は短期的な温度制御、表中に示す数字は長期的な温度制御（培養温度）を示す（1ヶ月培養）

林地土壌では最適培養温度が 15 であるのに対して、畑地土壌では 25 で高めであることがわかる。畑地の方が高温にさらされることが大きいためであると考え、その分ストレスが受けて畑地の方が吸収速度は低くなっている。また、短期的な温度制御の極大値もそれぞれの条件で異なっていることがわかる。

また、高温条件(45 )にさらさらた場合、それから吸収速度の低下が見られたが、氷点下に制御した場合の吸収速度は復帰してきた。ガス吸収についての例を示したが、こうした温度履歴によって、発生・吸収量が異なってくる。

### (3)窒素ガス(N<sub>2</sub>O, NO)について

窒素ガスについては方法論をまず検討を行った。閉鎖チャンバー法との比較結果では良好な一致を示した。また、ファンの効果については、ファンを非常に強くした場合やファンを回さない場合でも大きな違いは見られなかった。流量依存性に関して250-1200ml min<sup>-1</sup>の範囲で調べたが計算発生量に大きな違いはみられなかった(数%以内で流量に対して一貫した傾向はなし)。

まず、窒素肥料を投与し、上流側から乾燥空気を与えて土壌を徐々に乾燥させて、土壌からのN<sub>2</sub>O, NO, CO<sub>2</sub>発生量を連続測定した(図8)。乾燥するにしたがって、脱窒から硝化に卓越するプロセスが変化するが、それに伴ってまずN<sub>2</sub>O発生量のピークが先行して後にNO発生量のピークが来ていることが確認さ

れた。なお、CO<sub>2</sub>に関しては両者の間にピークが観察された。

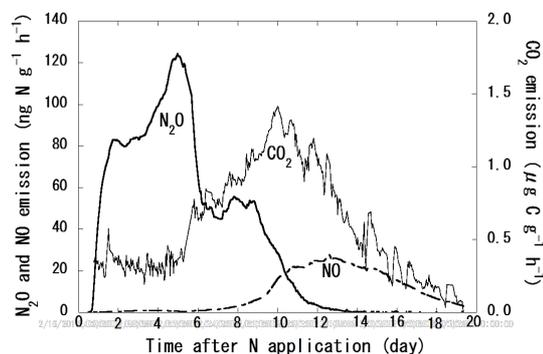


図8 肥料投入後のN<sub>2</sub>O, NO, CO<sub>2</sub>発生量の時系列

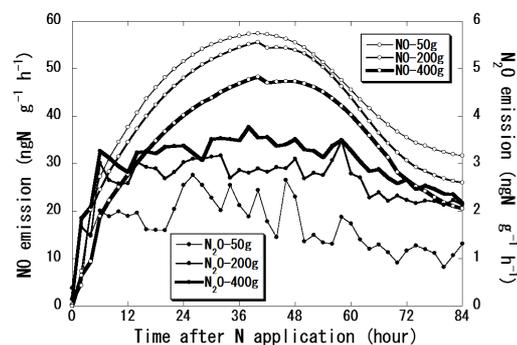


図9 測定する土壌量を変化させた場合の発生量の時系列。比較的、硝化が卓越する条件の場合

さらに、土壌量を変えて発生量に線形性が見られるかどうかを調べた(図9)。予想に反して線形性は成立せず、NOについては遞減的、N<sub>2</sub>Oについては遞増的となった。これは、土壌量が多いほどチャンバー内に土壌から発生するガスの濃度が上昇する。硝化の中間産物であるNO濃度が上昇し、NOよりさらに先の硝化の過程に進み、その結果NO放出量は減り、N<sub>2</sub>O放出量は増えたのではないかと考えられる。さらに土壌量とNO発生量からNOの純放出量と吸収速度を推定することが出来、放出と吸収のバランスで決まる補償濃度は9.4ppmと計算された。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計4件)

Yonemura S., Nouchi I., Nishimura S., Sakurai G., Togami K., Yagi K. (2014) Soil respiration, N<sub>2</sub>O, and CH<sub>4</sub> emissions from an Andisol under conventional-tillage and no-tillage cultivation for 4 years, *Biol. Fertil. Soils*, 50(1), 2014, 63-74  
DOI 10.1007/s00374-013-0831-5

Yonemura S., Nishimura S., Kawashima S., Systematic formulation of equations for trace-gas uptake by soil, J. Agri. Met., 69(4), 2013, 277-287  
[https://www.jstage.jst.go.jp/article/agrmet/69/4/69\\_69.4.5/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/agrmet/69/4/69_69.4.5/_pdf)  
Moriyama A., Yonemura S., Kawashima S., Du M., Tang Y., Environmental indicators for estimating the potential soil respiration rate in alpine zone, Ecol. Indicators, 32, 2013, 245-252  
DOI: 10.1016/j.ecolind.2013.03.032  
Yonemura S., Yokozawa M., Sakurai G., Kishimoto-Mo AW., Lee N., Murayama S., Ishijima K., Shirato Y., Koizumi H., Vertical soil-air CO<sub>2</sub> dynamics at the Takayama deciduous broadleaved forest AsiaFlux site, J. Forest Res., 18(1), 2013, 49-59  
DOI: 10.1007/s10310-012-0385-7

〔学会発表〕(計6件)

米村正一郎, 安立美奈子, 唐艶鴻, マレーシア4つの生態系土壌のガス交換, 第61回日本生態学会大会, PB3-148, 2014

米村正一郎, 室内制御実験下における土壌のN<sub>2</sub>O, NO, CO<sub>2</sub>発生量の連続測定, 日本農業気象学会2014年全国大会 オーガナイズドセッション, SB-4, 2014

米村正一郎, 安立美奈子, 唐艶鴻: マレーシア熱帯土壌のガス交換特性, 第19回大気化学討論会講演要旨集, 9, 2013  
森山明敬, 米村正一郎, 岸本文紅, 内田雅己, 大浦典子, 川島茂人, 児玉直美, 北極土壌の微量ガス交換の室内実験, 生物起源微量ガスワークショップ2012プログラム, 10, 2012

Yonemura S., A consideration about H<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and CO uptake by soil and N<sub>2</sub>O and NO production in soil, Fifth EAFES International Congress Abstract, ES10-2, 2012

Yonemura S., Nishimura S., Yokozawa M., Laboratory-level experiments of trace GAS (H<sub>2</sub>, CO, CH<sub>4</sub>) uptake soil, iLEAPS International Science Conference 2011, 2011

〔図書〕(計0件)

なし。

〔産業財産権〕

なし。

〔その他〕

一連の成果が論文として公表後、ホームページ(研究所のホームページ)  
<http://www.niaes.affrc.go.jp/researcher>

([/yonemura\\_s.html](#) からリンクする)として公開する予定である。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

米村 正一郎 (YONERMURA, Seiichiro)  
(独) 農業環境技術研究所・主任研究員  
研究者番号: 20354128

(2) 研究分担者

岸本 文紅 (KISHIMOTO, Ayaka)  
(独) 農業環境技術研究所・主任研究員  
研究者番号: 60334033

児玉 直美 (KODAMA, Naomi)  
(独) 農業環境技術研究所・任期付研究員  
研究者番号: 60594611

横澤 正幸 (YOKOZAWA, Masayuki)  
静岡大学工学部・教授  
研究者番号: 80354124

川島 茂人 (KAWASHIMA, Shigeto)  
京都大学農学研究科・教授  
研究者番号: 40354039

(3) 連携研究者

西村 誠一 (NISHIMURA, Seiichi)  
(独) 農業・食品産業技術総合研究機構・中央農業研究所・主任研究員  
研究者番号: 70354090

和穎 朗太 (WAGAI, Rota)  
(独) 農業環境技術研究所・主任研究員  
研究者番号: 80456748

杜 明遠 (DU, Mingyuan)  
(独) 農業環境技術研究所・上席研究員  
研究者番号: 80354083