

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 27 日現在

機関番号：14101

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23380140

研究課題名(和文) 土壌圏における水分・窒素・炭素統合循環モデルの構築

研究課題名(英文) Fate and Transport of Nitrogen and Organic Matter in Soils based on a Coupled Nitrogen-Carbon Cycling Model

研究代表者

取出 伸夫 (TORIDE, Nobuo)

三重大学・生物資源学研究科・教授

研究者番号：70212074

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,300,000円、(間接経費) 4,590,000円

研究成果の概要(和文)：不飽和土中の有機物分解に伴う窒素成分の移動予測を行うために、LEACHMの窒素・炭素循環連結モデルをPHREEQCプログラムで表現し、HP1プログラムを用いてHYDRUSと連結した。それにより、非等温の不飽和土中の有機物分解と窒素成分の移動予測が可能となった。また、還元状態の生じる水田土に対して、湛水条件下の土カラム中の酸化還元電位と溶存酸素のモニタリング実験を行い、表面酸化層、還元層の発達過程を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In order to predict the fate and transport of nitrogen in soils as a result of decomposition of organic matter, we implemented a coupled carbon and nitrogen cycling model based on the LEACHM code using the PHREEQC program. The carbon and nitrogen cycling model described with PHREEQC was linked with HYDRUS-1D using the HP1 code. Various nitrogen transport scenarios could be demonstrated for the application of organic matter to a variable-saturated soil under nonisothermal conditions. Furthermore, oxidation-reduction potential and dissolved oxygen were monitored in a ponded saturated paddy soil column to observe the formation of the surface oxidation layer and the reduced layer.

研究分野：農学

科研費の分科・細目：農業工学・農業土木学・農村計画学

キーワード：土壌圏 窒素循環 炭素循環 水循環 不飽和水分移動 有機化 無機化

1. 研究開始当初の背景

近年、農地への有機物連用が土壌炭素の蓄積を促進するため温暖化緩和技術として期待されている。しかし、有機物の多量投入は亜酸化窒素 (N_2O) 発生と窒素溶脱を増加させる懸念がある。農地への過剰な肥料成分の投入は、窒素成分による地下水汚染を引き起こしている。土壌中の窒素循環は、窒素成分の有機化、無機化といった形態変化が土中の炭素循環と連動して進行する現象である。そのため、土中の窒素循環と炭素循環の連結モデルが開発されてきた。一方、窒素成分の溶脱は、土中水分の移動により生じる。そのため、土中の窒素循環と移動の予測のためには、窒素と炭素の連結循環モデルに加えて、土中の水分移動モデルとの結合が必要である。しかし、作物の根群域である水分不飽和帯では、降雨、灌漑、排水、蒸発、蒸散、凍結、融解などにより、水分飽和から乾燥状態の土中を水分が移動する極めて複雑な現象である。窒素・炭素の連結モデルに対応した不飽和水分移動モデルは限られている。水分移動の適用条件が限定される場合や、開発後のサポートが終了して、さらなる改良が実質上不可能な場合が多い。そのため、土中の窒素循環と移動モデルは、不飽和水分移動モデルとの結合が残された最も大きな課題である。また、このモデルは、公開を前提にプログラム開発を行う必要がある。

2. 研究の目的

土壌圏中の窒素は、有機態窒素の無機化、硝化、脱窒、無機態窒素の有機化といった形態変化を繰り返しながら循環し、土中水分の移動に伴い溶脱により下方へと移動する。本研究では、土中の水分溶質移動モデル、窒素の形態変化モデル、炭素の形態変化モデルを連結した水分・窒素・炭素統合循環モデルを提案し、より高い精度の土中の窒素の循環と移動予測を行う。そのために、窒素と炭素循環を結合する C/N 比と窒素の形態変化および分解反応の速度定数の検討、飽和から乾燥領域までの不飽和透水係数の高精度の測定に重点的に取り組む。また、水分飽和の水田土カラム中の窒素成分の動態に関するモニタリングを行う。さらに、プログラムは公開し、幅広く現場圃場での窒素成分の動態データを解析し、土中の窒素循環と移動現象の体系化を図る。

3. 研究の方法

本研究では、主に次の4点についての焦点を当て、それぞれの要素に対する発展を図る。

(1) 水分・窒素・炭素統合循環モデルの構築

土中の窒素の形態変化の無機化、硝化、脱窒に加えて、有機炭素の分解反応も一次分解反応で表し、その上で窒素の有機化に C/N 比を考慮した窒素・炭素の循環モデルを不飽和水分移動モデルに組み込んだ水分・窒素・炭

素統合循環モデルを構築する。窒素・炭素循環モデル反応は、LEACHM モデル (Hutson, 2005) に基づき PHREEQC を用いて開発する。そして、HP1 プログラムを用いて不飽和水分・溶質移動プログラム HYDRUS との連結を行う。

(2) 有機物分解における分解速度定数と反応パラメータの検討

一連の有機物分解の一次分解反応定数と諸反応パラメータを、既往の水田土を用いた有機物分解のインキュベーション試験の NH_4 ガスの発生量の時間変化に基づき決定する。PHREEQC による窒素・炭素の循環モデルに対して最適化プログラム (PEST) を用いて、 NH_4 ガスのデータとモデルの計算値を適合するパラメータ値を決定する。

(3) 水田土カラム中の窒素移動実験

微生物活動は、土中の水分量、温度、pH、酸化還元状態 (Eh) などに影響されるが、水田では畑と異なる還元状態が窒素の形態変化に影響を与える。そこで、水分飽和した水田土をアクリル円筒カラムに充填して湛水したときの、地表面付近に酸化還元電位、溶存酸素濃度、電気伝導度の経時変化を測定する。浸透水中の硝酸濃度、水分フラックスなどが異なる条件下での表面酸化層、脱窒による土の還元の前進行の観察を行う。

(4) 不飽和透水係数の推定精度の向上とデータの蓄積

吸引法、加圧板法、水分吸脱着水ポテンシャル装置により広範囲に水分保持特性を測定した土に対して、蒸発法を用いて不飽和透水係数の逆解析による推定を行う。とりわけ、我が国広く分布し、団粒構造の発達した黒ボク土に対して、Durner モデルを用いて不飽和透水係数の決定を行う。

4. 研究成果

(1) 水分・窒素・炭素統合循環モデル

Fig.1 は、LEACHM の炭素・窒素分解モデルの模式図である。

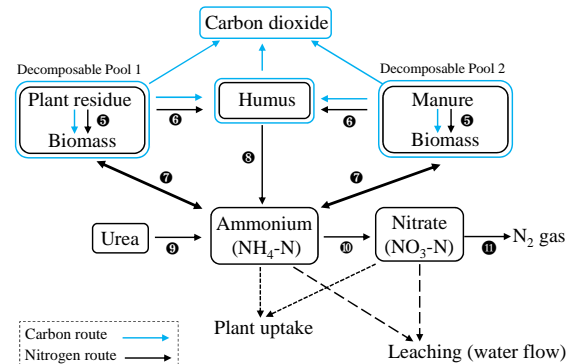
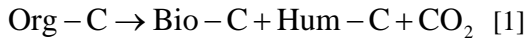


Fig. 1 LEACHM の水分・窒素・炭素統合循環モデル

2種類の有機物分解プール*i* (*i* = 1, 2)中の有機態炭素(Org-C)は、バイオマスの炭素画分(Bio-C)、腐植の炭素画分(Hum-C)、CO₂に分解される(経路1, 2, 3)。



有機態炭素の分解速度は、一次分解反応で与える。

$$\frac{dC_{\text{Org-Ci(d)}}}{dt} = -k_{\text{Orgi}} C_{\text{Org-C}} \quad [2]$$

$$\frac{dC_{\text{Org-Ci(d)}}}{dt} = -k_{\text{Orgi}} C_{\text{Org-C}} \quad (1)$$

有機物分解プール中で生成されるバイオマスは、再び有機物として分解される。分解反応におけるそれぞれの生成割合を一定と仮定すると、Bio-C、Hum-C、CO₂の生成速度をOrg-Cの分解速度で表すことができる。異なる経路で分解と生成が生じるそれぞれの成分の正味の変化速度は、分解速度と生成速度の和として[2]式に基づき Org-C 濃度の関数として表せる。

有機態窒素(Org-N)は、バイオマスの窒素画分(Bio-N)と腐植の窒素画分(Hum-N)に利用される。



この窒素経路の分解と生成速度は、有機物、バイオマス、腐植の C/N 比を用いて、[1]式の有機炭素の分解、生成速度と関連づけられる。この Org-N の分解過程で、Org-N の分解による窒素成分の供給が Bio-N と Hum-N の生成の要求を上回ると、余剰分は NH₄ として無機化される。逆に、供給が不足すると、土中の NH₄ が有機化されて利用される。バイオマス、腐植の C/N 比が、10 で[1]式の CO₂ の生成割合が 0.5 のとき、C/N 比 20 以上の有機物では有機化、20 以下の有機物では無機化が生じる。有機態窒素のそれぞれの成分の正味の変化速度も、有機態炭素の場合と同様に Org-C の濃度の関数として表せる。

有機化が生じるとき、NH₄ の利用可能量が少なくなると、NH₄ の存在量が有機物分解を制限し、分解速度を遅くする。ここで、1 日間の NH₄ の利用可能最大量として、トータル濃度 C_{NH4} の 1/10 を仮定する。そして、1 日間の有機物の最大分解量 C_{Org-Ci, max} を定義する。この C_{Org-Ci, max} と[2]式の分解量の大きさに応じて、3 段階の有機化過程を定義する。

[第 1 段階] 十分な NH₄ が存在するため、C_{NH4} は有機物分解に影響を及ぼさない。

[第 2 段階] NH₄ の存在量が少ないため、有機物の分解速度を C_{Org-Ci, max} に減少させる。

[第 3 段階] さらに NH₄ の存在量が少ないため、アンモニアの有機化を停止させる。そして、バイオマスと腐植の生成をゼロとし、[2]式の分

解速度を 0.1 倍とした有機物分解が生じ、炭素経路では二酸化炭素のみ、窒素経路では NH₄ の無機化のみが生じると仮定する。

なお、非常に C/N 比が高い有機物が NH₄ のない土中に投入されると、C/N 比を保ちながらゆっくり第 3 段階の分解が進行し、NH₄ が蓄積した段階で第 2 段階が始まり、バイオマスのリサイクルと NH₄ の有機化により C/N 比は低下し始める。その後 NH₄ が増加する状況であれば第 1 段階に移行し、最終的には NH₄ の無機化に転じる。

また、土中に投入された尿素肥料は、有機物の分解経路とは別に、NH₄ に無機化される。そして、さらに硝化、脱窒により形態変化する。これらの分解および生成反応も、有機物分解と同様に一次反応で表す。

有機物分解と形態変化による炭素と窒素成分の連鎖反応は、PHREEQC プログラムで表現できる。それにより、HP1 プログラムを用いて、非等温、非定常水分流れの生じる土中の有機物分解と窒素成分の移動の計算が可能となる。Fig. 2, 3 は、異なる CN 比の有機物を初期の C_{NH4} が非常に小さい表層 25cm のシルト土層に与えたときの、それぞれ硝化が生じない場合の浸潤過程の Org-C 濃度と C_{NH4} 分布の変化の計算例である。NH₄ の有機化が生じる条件では、C_{NH4} に応じて有機化の 3 段階が生じるので、複雑な分布となる。なお、同じ条件では、HP1 と LEACHM の計算結果はほぼ一致した。

窒素・炭素循環連結モデルは、3 個以上の有機物プール、NH₄⁺ と NO₃⁻ の植物根の選択的吸収、気相中の CO₂ の拡散、NH₄⁺ の陽イオン交換と NO₃⁻ の陰イオン交換による変異荷電への吸着などを考慮することなどの改良を行う予定である。その際、PHREEQC プログラムの部分を独立して変更が可能なのが HP1 を用いる利点である。

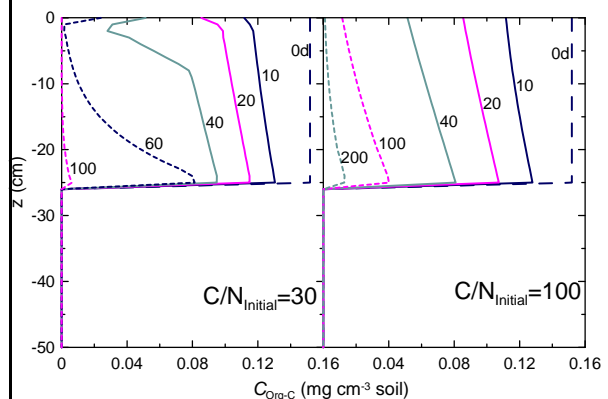


Fig. 1 土中の有機物分解に伴う有機炭素分布の変化

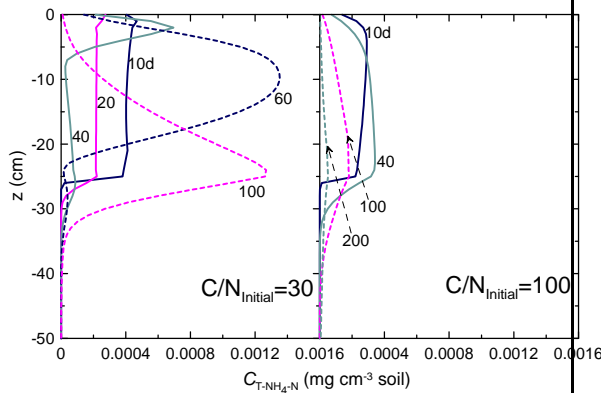


Fig. 2 土中の有機物分解に伴う全アンモニア濃度分布の変化

(2) 有機物分解における分解速度定数と反応パラメータの検討

広瀬 (1973) は、乾田作土層から採取した風乾土 (水田土) 100g に対して炭素 400mg 相当の C/N 比が異なる様々な 10 種類の植物遺体を加え、70 日間の無機態窒素量と炭酸ガス量を測定した。無機態窒素量については継時的に測定されていたが、炭酸ガスについては 70 日後の発生量しか測定されていなかった。そのため、今回は無機態窒素量の変化に対して窒素・炭素循環モデルを適用した。

まず、水田土のみの無機態窒素量から水田土の分解定数を決定した。次に、水田土と植物遺体を 2 種類の分解プールと考え、無機態窒素の測定値は、水田土のみの窒素生成量と植物遺体からの生成量の和と仮定し、植物遺体の分解定数を決定した。その際、70 日間で有機物は完全に分解すると仮定して、腐植の生成割合を決定し、無機態窒素量の測定値と計算値を適合させた。ただし、C/N 比が小さく分解の遅い植物遺体に対しては、140 日後の無機態窒素量を推定し、腐食の生成割合を決定した。

Fig. 3 は、各植物遺体の無機態窒素量の実測値と計算結果である。C/N 比が 20 程度以下の植物遺体では、分解初期から無機化が進行し、無機態窒素は増加した。C/N 比が小さいほど分解が速い。特に C/N 比が 10 以下の植物遺体は、10 日程度で無機化はほぼ終了した。C/N 比が高いウィーピンググラスと稲わらでは、分解初期において有機化が生じ、無機態窒素は減少した。

実測値に適合した計算値により、C/N 比が 20 以上の植物遺体では、分解初期において土から無機化された無機態窒素の有機化が生じること、さらに分解が進行すると、CO₂ の発生により C/N 比は 20 以下に低下し、窒素の無機化が生じる有機物分解過程へと変化し、最終的に NH₄ と腐植に分解される過程が明らかになった。

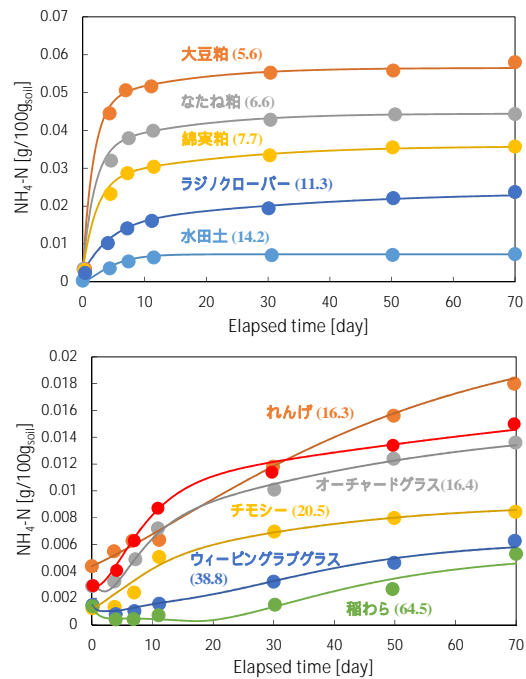


Fig. 3 無機態窒素生成量の実測値と適合値

(3) 水田土カラム中の窒素移動実験

水田における作物の生育やメタン・亜硝酸ガスの発生に関与する土中の炭素・窒素循環を考えるには、炭素や窒素の形態変化を規定する表面酸化層と還元層の形成過程を理解する事が重要である。そこで、空間分解能 500 μm で酸化還元電位 (Eh) と溶存酸素量 (DO) を測定できるマイクロセンサを用いて土壌表面と下層の還元の進行の違いや表面酸化層の形成に、浸透速度が与える影響を明らかにすることを目的に次元カラム実験を行った。

畑土試料に乾土あたり 5 mg のグルコースを基質として加え、内径 5 cm、高さ 15 cm のアクリル円筒カラムに乾燥密度 1.4 g/cm³ で均一に充填した。試料表面から 0.2 cm 深に Eh と DO 測定用のマイクロセンサを鉛直方向に、2.5 と 7.5 cm 深に Eh 測定用の白金電極を設置した。試料下端から毛管飽和後、マリOTT管を用いて試料上端に 1 cm の湛水を与えた。浸透水の Eh は 280 mV で DO は 6.5 mg/L である。また任意の時間にマイクロセンサを地表から 10 μm/s で土中へ挿し込み、表面から 2 cm 深の Eh と DO のプロフィールを 100 μm 間隔で測定した。

試料や実験条件が等しくても、実験毎に浸透速度が異なった (Fig. 4)。条件 Flux_L は実験開始から浸透速度が一定で 0.02 cm/d であり、条件 Flux_H は 4 日以降に浸透速度が上昇し 10 cm/d となった。Fig. 5 は、Flux_L と Flux_H の 0.2 cm、2.5 cm 深の Eh の経時変化である。いずれの条件でも、2.5 cm 以深

の Eh は試料飽和後 300 mV 以下まで急降下し、しばらく安定した後に上昇し、3 日以降に再び下降した。これは有機物分解による電子の放出と H₂ ガスの発生、酸化物の還元それぞれに対応する。一方、0.2 cm 深の Eh は 2.5 cm 深よりの高く不安定で、浸透速度によって異なった。Flux_L では 100 mV で安定したが、Flux_H では 5 日以降から 300 mV まで上昇し酸化化した。

Fig. 6 は、1, 2, 12 日後の Eh と DO 分布である。初期の Eh は全層で 300 mV 以下と還元的で DO も 0.1 mg/L 以下と嫌気的だった。通水から 1 日後では、Flux_L では変化が見られなかったが、Flux_H では表面近傍の Eh と DO がやや上昇した。通水を 10 日以上継続させても Flux_L の Eh と DO の分布は通水 1 日後からほとんど変化が見られなかった。Flux_H では土壌表面近傍に Eh が 400 mV 以上で DO も 2 mg/L 以上の酸化的で好気的な層が 0.6 cm 形成された。浸透速度の違いによって表面酸化層の形成に有無が生じたのは、DO の供給量によると考えられる。

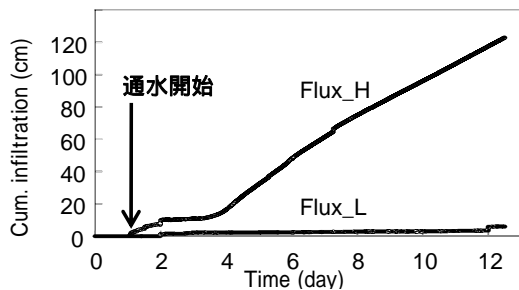


Fig. 4 浸透速度の変化

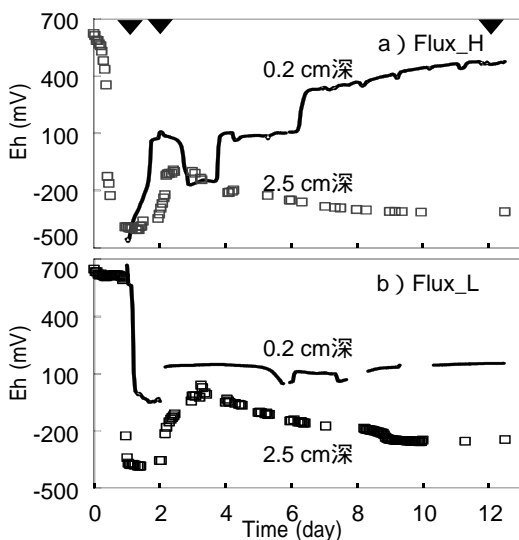


Fig. 5 0.2cm 深と 2.5cm 深の Eh 変化

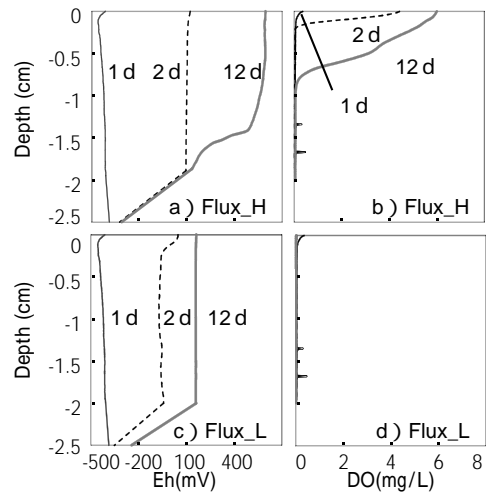
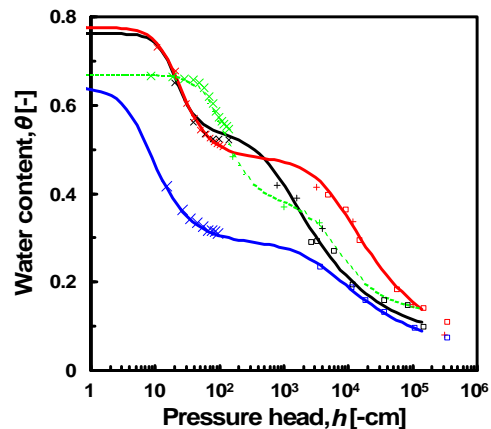


Fig. 6 Eh と DO 分布の時間変化

(4) 不飽和透水係数の推定精度の向上とデータの蓄積

日本各地の 4 種類の黒ボク土に対して、蒸発法を用いて bimodal van Genuchten (vG) モデルのパラメータを逆解析により決定した。モデルを水分保持曲線の実測値に適合した初期値を用いると、推定パラメータの数にかかわらず収束は速い。また飽和付近から低圧力水頭 h までの実測データに適合した bimodal VG モデルの水分保持曲線のパラメータ値を固定すると、透水係数の 2 個のパラメータ (K_s, ℓ) のみの最適化により不飽和透水係数 $K(h)$ の推定が可能であった。しかし階段状の水分保持曲線の平坦な中間圧力領域における正確な測定は難しいため、結果全体に対する最適な結果を得るために bimodal VG モデルのパラメータはすべて適合することが望ましい。乾燥領域の低圧力領域までの水分保持曲線のデータを目的関数に含めると、モデルの適用範囲は、 -10^4 cm 程度まで広がった。とりわけ、鏡面冷却露点式水ポテンシャル計 (WP4) による -5000 cm から -10^4 cm 程度までの水分保持曲線の測定が有効であることを示した。水分保持曲線の不飽和透水係数推定への重要性は他の土においても同じであり、本研により、低水分領域究の不飽和透水係数の測定精度を高めることができた (Fig. 7)。



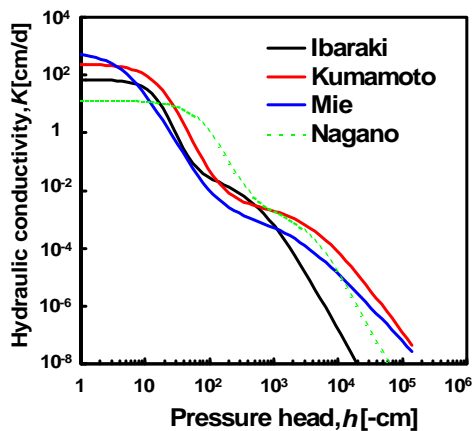


Fig. 7 4種類の黒ボク土の水分保持曲線と不飽和透水係数

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 18件)

Rudiyanto, N. Toride, M. Sakai, and M. Th., van Genuchten, 2013. Estimating the unsaturated hydraulic conductivity of Andisols using the evaporation method, J. Jpn. Soc. Soil Physics, 査読有, 125, 3-15.

渡辺晋生, 長田友里恵, 坂井勝, 取出伸夫 2013, 水分級脱着測定装置 "AquaLab VSA" を用いた低水分領域の水分保持曲線の測定, 土壌の物理性, 査読有, 124, 43-49. Rudiyanto,

Toride, N., M. Sakai, and J. Šimůnek, A hysteretic model of hydraulic properties for dual-porosity soils, Soil Sci. Soc. Am. J., 査読有, 77, 1182-1188, doi:10.2136/sssaj2012.0339n, 2013.

Toride, N., and D. Chen, Fate and transport of nitrogen in soils based on a coupled nitrogen-carbon cycling model using the HP1 code., Proceedings of the 4th International Conference "HYDRUS Software Applications to Subsurface Flow and Contaminant Transport Problems", edited by J. Šimůnek, M. Th. van Genuchten, and R. Kodešová, March 21-22, 2013, Dept. of Soil Science and Geology, Czech University of Life Sciences, Prague, Czech Republic, 査読有, ISBN: 978-80-213-2380-3, pp. 365-376, 2013.

陳代文, 取出伸夫, 2012, HP1 プログラムを用いた窒素・炭素循環連結モデルによる土中の有機物分解と窒素移動の予測, 2012 土壌水分ワークショップ論文集, 査読

無, 46-51.

[学会発表](計 35件)

三木真隆, 取出伸夫, 窒素・炭素循環連結モデルによる土中の有機物分解の検討, 土壌物理学学会, 2013.10.26, 福島
竹内萌実, 渡辺晋生, 取出伸夫, 湛水土壌表面近傍の Eh と D0 の空間分布, 土壌物理学学会, 2013.10.26, 福島
長田友里恵, 渡辺晋生, 取出伸夫, 2013. 鏡面冷却式露点計を用いた土の水分保持曲線の測定法, 日本土壌肥料学会, 2013.9.13, 名古屋,
陳代文, 取出伸夫, 2012, HP1 プログラムを用いた窒素・炭素循環連結モデルによる土中の有機物分解と窒素移動の予測, 2012 土壌水分ワークショップ 2012.12.21, 東京

[図書](計 0件)

[産業財産権]
出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

取出伸夫 (TORIDE, Nobuo)
三重大学・大学院生物資源学研究所・教授
研究者番号: 70212074

(2) 研究分担者

渡辺晋生 (WATANABE, Kunio)
三重大学・大学院生物資源学研究所・准教授
研究者番号: 10335151

斎藤広隆 (SAITO, Hirotaka)
東京農工大学・(連合)農学研究科(研究院)・准教授
研究者番号: 70447514

坂井勝 (SAKAI, Masaru)
三重大学・大学院生物資源学研究所・講師
研究者番号: 70608934

橋本洋平 (HASHIMOTO, Yohei)
東京農工大学・生物資源学研究所・准教授
研究者番号: 80436899