

令和 6 年 6 月 17 日現在

機関番号：82111

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K05883

研究課題名（和文）土壌中酸素濃度制御条件下における一酸化二窒素の生成・消費速度の定量とそのモデル化

研究課題名（英文）Modeling of nitrous oxide emission based on quantification of its production and consumption rate based on soil incubation under low soil oxygen concentration conditions

研究代表者

片柳 薫子（Nobuko, Katayanagi）

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・農業環境研究部門・上級研究員

研究者番号：20455265

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：一酸化二窒素（N₂O）は土壌から排出される温室効果ガスの1つである。本研究では酸素濃度を極低濃度に制御しながら温度と水分量を制御した条件下で土壌を培養できるシステムを用いてN₂Oの生成・消費速度を実測することにより、土壌中の水分量および酸素量とN₂O生成・消費速度の関係を定量化し、N₂O排出を予測するモデルの予測精度を改善することを目的として研究をおこなった。N₂O発生量の多い茶園土壌と発生量の少ない森林土壌を用いて実験をおこなった結果、プロセスモデル改良のための本質的なデータを得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

温室効果ガスである一酸化二窒素（N₂O）生成・消費には土壌中の酸素（O₂）量が関わっており、土壌中のO₂量は土壌水分量と微生物活動によるO₂消費によって決定される。そのため、プロセスモデルにおいてもそのようなプロセスを仮定して計算がなされている。しかし、圃場においてはこの水分量とO₂量は独立したパラメータとして扱うことができないため、どちらがどの程度速度に影響しているのか区別できない。本研究で用いたO₂を極低濃度に制御可能なガス交換量自動測定システムは水分量とO₂量を独立して制御することが可能な革新的な機器であり、本研究における実験結果は非常に高い学術的意義があるといえる。

研究成果の概要（英文）：Nitrous oxide (N₂O) is one of greenhouse gases. This study was conducted to quantify the relationship between the amount of water and oxygen in the soil and the rate of N₂O production and consumption by using a system that can incubate soil under controlled temperature and moisture conditions while controlling the oxygen concentration to extremely low levels, and to improve the prediction accuracy of the model that predicts N₂O. The results of experiments using tea plantation soils with high N₂O production and forest soils with low N₂O production provided essential data for improving the process model.

研究分野：環境農学

キーワード：土壌 一酸化二窒素 茶園

1. 研究開始当初の背景

土壌は微量温室効果ガスであるメタン (CH₄) および一酸化二窒素 (N₂O) の排出源であり、CH₄ は水田を、N₂O は畑地をその主要排出源としている。DNDC-Rice は水田由来 CH₄ 排出量を予測するモデルのひとつであるが、その開発の歴史は長く、圃場スケールの検証 (Katayanagi et al. 2012 Soil Sci. Plant Nutr.) を経て国スケールの CH₄ 排出量予測に適用できるまでに至っている (Katayanagi et al. 2016, 2017)。これに対し N₂O 排出量は、同モデルで比較的精度よく予測できるものの (Katayanagi et al. 2013 Nutr. Cycling Agroecosys.)、圃場への施肥量等を説明変数とした経験モデル (Katayanagi et al. 2009 Soil Sci. Plant Nutr.) を上回る予測精度を持っておらず、未だ排出量を予測するには対象地点における測定値を用いた検証を欠くことができない。

N₂O は土壌が嫌氣的な環境でも好氣的な環境でも生成され、また、嫌氣的な環境においては消費もされる。不飽和土壌には一般的に嫌氣的な領域と好氣的な領域の 2 つが同時に存在する。そのため、DNDC-Rice ではこの 2 つの領域が同時に存在すると仮定して N₂O の生成・消費量を計算している。2 つの領域の比率は土壌の酸素 (O₂) 飽和度から計算される (図 1)。算出された比率は、N₂O 生成・消費の基質となる亜硝酸態窒素等を各領域に割り振り、領域ごとに N₂O の生成・消費量を計算するために用いられる。しかし、DNDC-Rice におけるこの 2 つの領域の比率はあくまで仮想的に設定されたものであり、最終的には N₂O 生成・消費速度を調整することにより N₂O 排出量の予測精度を調整している。しかし、この速度が真に妥当な数値なのかは定かではない。そのため、この速度を実験によって実測すれば、モデルで用いられている速度パラメタの妥当性を検証でき、また、モデルを N₂O 未測定圃場にも適用可能なものに改良できる可能性があると考えた。

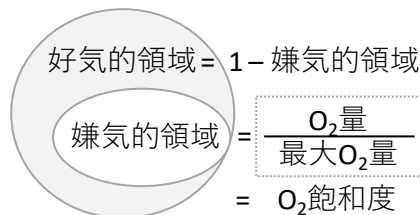


図 1 DNDC-Rice における土壌中の嫌氣的領域と好氣的領域およびその割合計算

2. 研究の目的

本研究においては DNDC-Rice モデルにおける好氣的・嫌氣的領域の割合と N₂O 生成・消費速度の関係を、土壌培養実験結果を用いて検証することにより、DNDC-Rice モデルの N₂O 生成・消費量の予測精度を改善し、N₂O を観測していない圃場にも適用可能なモデルにすることを目的として研究をおこなった。

3. 研究の方法

本研究では低 O₂ 濃度下で土壌を培養することにより、土壌 O₂ 量と N₂O の生成・消費速度の関係を数式化し、DNDC-Rice モデルの N₂O 生成・消費量予測精度を改善して N₂O 未測定圃場の排出量予測にも利用可能なものにするために研究をおこなった。

(1) 土壌培養実験を実施し N₂O の生成・消費速度を算出する

まず、培養に供試する土壌 2 種 (茶園土壌・鷹ノ巣山土壌；以下森林土壌と表記) を入手し土壌理化学性 (土壌水分率、土壌 pH、無機態窒素含量、溶存有機態炭素量等) を分析した。そして既存の土壌ガス交換量自動測定システムに N₂O・NO 濃度制御機能を実装し、N₂O・NO 濃度を制御して土壌を培養できるようにしたうえで、構築したシステムを用いて土壌水分量・温度・O₂・NO・N₂O 濃度を変化させながら 2 種の土壌を脱窒条件 (極低酸素条件)・硝化条件 (大気レベル酸素濃度) で培養し、N₂O の生成・消費量を実測して N₂O 生成・消費速度を算出した。併せて、培養後、モデル化に必要な土壌の無機態窒素含量・溶存有機態炭素含量等を測定した。

(2) DNDC-Rice の検証と実験結果の反映

本研究の実験結果と DNDC-Rice の計算値を比較するために、まず、圃場条件で茶園土壌の N₂O 放出予測が可能か検証した。また、実験系の条件を再現できるようにプログラムの修正を試みた。

4. 研究成果

(1) 土壌培養実験

脱窒過程における NO, N₂O, N₂ の放出速度に対する温度、土壌水分量の影響を評価するために、含水率を最大容水量の 30% および 60% に調製した土壌 (それぞれ 30% 含水率土壌、60% 含水率土壌とする) を用いて極低酸素条件下の 5、15、25、30℃ で培養実験をおこなった。その結果、水分量に関係なく温度が高くなるにつれて NO, N₂O, N₂ の放出量が増加する傾向が見られた (図 2)。また、水分の違いによる放出量に着目すると特に 25℃ や 30℃ では 60% 含水率で N₂O や N₂ の放出量が多くなっていた。いずれも同じ極低酸素条件下であるため、水分量の多い 60% 含水率土壌で

は水分量の少ない 30%含水率土壌と比べ、NO が大気中に拡散しにくいために N₂O および N₂ に変換される割合が高くなったと考えられた。

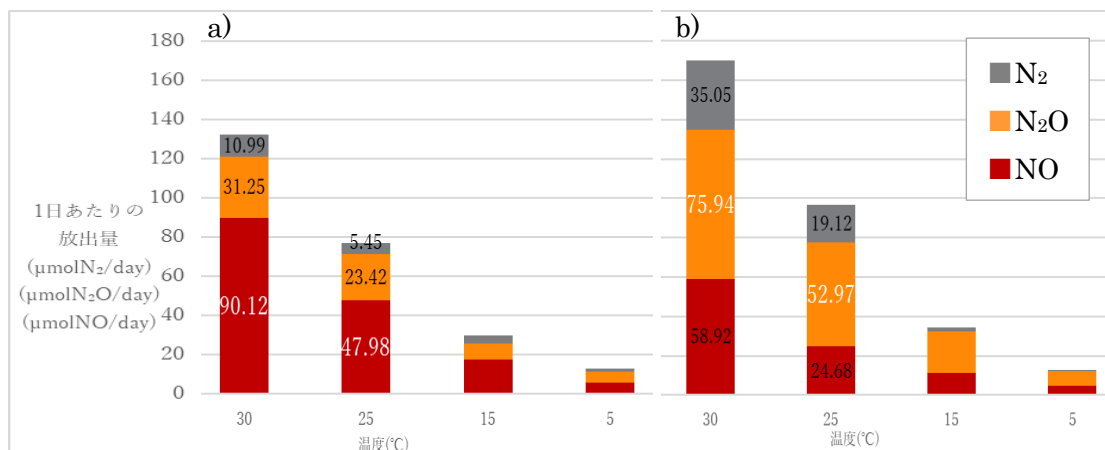


図 2 含水率が最大容水量の a) 30% および b)60%の場合の温度変化に伴う NO、N₂O、N₂の放出量

次に、硝化過程における NO、N₂O、N₂の放出速度に対する温度、土壌水分量の影響を評価するために、硫化アンモニウムを加え、含水率を最大容水量の 30%および 60%に調製した土壌を用いて大気酸素条件下の 5、15、25、30°Cで培養実験をおこない、培養開始後 2・4・7・12 週目の NO および N₂O 生成量を測定した (図 3)。

その結果、60%含水率土壌の場合、日数が経過するにつれて NO 放出量は徐々に増加したが、30%含水率土壌の場合 NO 放出量は徐々に減少した。また、N₂O 放出量は 60%含水率土壌の場合徐々に増加したが、30%含水率土壌ではほとんど増加はみられなかった。

30%含水率土壌で NO が徐々に減少した一方で、N₂O の増加がほとんどみられなかったことから、硝化が進むことによって硝化の基質となるアンモニウムの減少に伴い NO の生成量が減少し、またこの硝化過程では N₂O はほぼ生成されなかった可能性が考えられた。併せて、硝化によって生成された硝酸は脱窒されず、土壌中に蓄積している可能性が考えられた。

60%含水率土壌の場合は、2 週目においては 30%含水率土壌の場合と同様、硝化の進行による NO 生成が起きていたと考えられるが、同時に、高い含水率によって NO の大気中への拡散が阻害されると同時に、土壌中に嫌氣的な領域が生じ、脱窒によって NO が消費されたために、30%含水率土壌よりも NO 放出量が低かった可能性が考えられた。このとき N₂O 生成量が 30%含水率土壌とほぼ同程度であったが、これは N₂O の一部が N₂にまで還元されたためと考えられる。

また、60%含水率土壌の場合、NO と N₂O が比例して徐々に増加しているため、硝化由来の NO 生成が減少する一方で、脱窒由来の NO 生成が増加し、NO 増加に伴い、脱窒過程で生成される N₂O が増加したためと考えられた。そのため、土壌中に残存する NO₃量は 30%含水率の土壌に比べ、低くなっている可能性が示唆された。

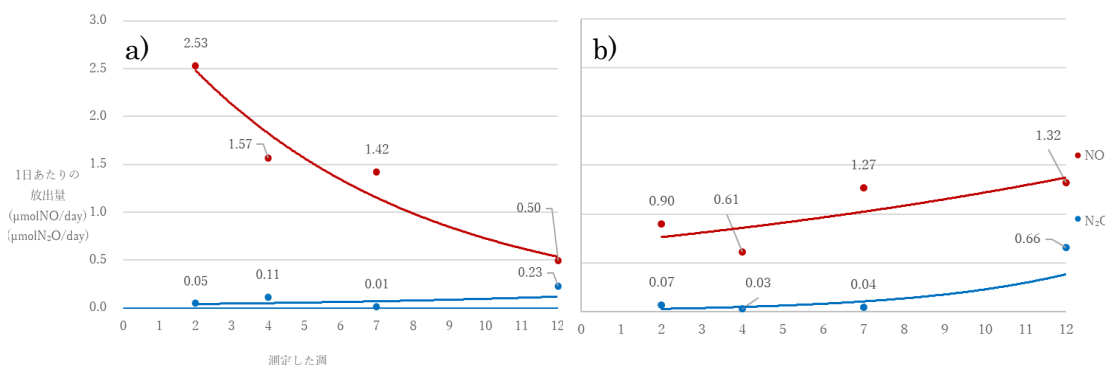


図 3 25°C・大気酸素濃度条件下で実験した際の NO 及び N₂O の放出量 (含水率が最大容水量の a) 30% および b)60%の場合)

さらに茶園土壌と森林土壌を用いて N₂O 及び NO の放出量と土壌水分との関係を調査した。最大容水量 (water holding capacity; WHC) の 60%含水率を初期の土壌水分条件として調製し、25°Cに保った調製試料をキャリアガスで約 0.8%(/WHC) hour⁻¹の速度で乾燥させつつ放出量の変化を評価した (土壌乾燥法と名付ける)。キャリアガスは硝化が起こりえる環境を模す場合は精

製空気を、脱室の場合は N_2 ガスを用いた。先に述べた脱室実験では N_2 放出量算出のためにアセチレン阻害法を用いたが、土壤乾燥法では用いなかった。

硝化条件での実験の結果、茶園・森林ともに N_2O 放出量は水分条件に対して不規則であった(図4)。また、 NO は茶園では22.5%/WHCで、森林では42.5%/WHCで放出量ピークがみられた(図5)。

脱室条件での実験の結果、茶園・森林ともに、土壤水分が増加するほど N_2O 放出量は増加する傾向にあった(図6)。 NO の放出量について茶園土壤の場合、土壤水分が実験開始時から27.5%/WHCまではほぼ一定であったが、22.5%/WHC以降は土壤水分の減少に伴って減少する傾向にあった(図7左)。また、森林土壤の場合、土壤水分が32.5%/WHCで放出量が落ち込んだものの、全体的には土壤水分が増加するほど N_2O 放出量は増加する傾向にあった(図7右)。

土壤pH測定の結果を表1に示す。表中の「湿潤」は土壤採取した後の状態、すなわち実験開始前の土壤の状態を指す。

図4で森林土壤のほうが茶園土壤よりも N_2O 放出量が多くなっている。これは、土壤pHが高いほど硝化反応に関わる微生物の活性が高いことを示している。微生物の活性が高いことで硝化反応が進行しやすくなったため、 N_2O への変換が盛んにおこなわれた可能性がある。また硝化菌数とCN比には関連性があり、一般的にCN比が低いほど硝化菌数は多くなる傾向がある。茶園土壤と森林土壤を比較した際、CN比の差があまりないことも要因として考えられる(表2)。図5において、茶園土壤からの NO 放出は土壤水分が減少することにより NO が大気中に拡散しやすくなったために、 N_2O に変換される前として放出される割合が高くなったと考えられた。

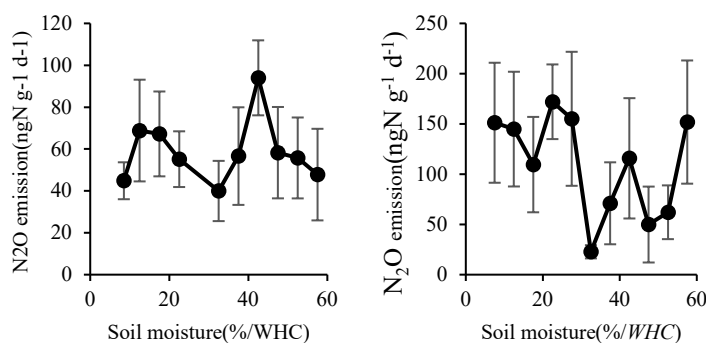


図4 25°C硝化条件における茶園土壤(左)及び森林土壤(右)の N_2O 放出量の違い。エラーバーは標準偏差($n=4$)を示す。

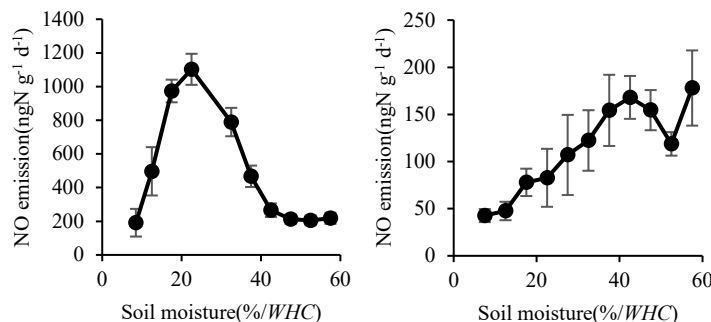


図5 25°C硝化条件における茶園土壤(左)及び森林土壤(右)の NO 放出量の違い。エラーバーは標準偏差($n=4$)を示す。

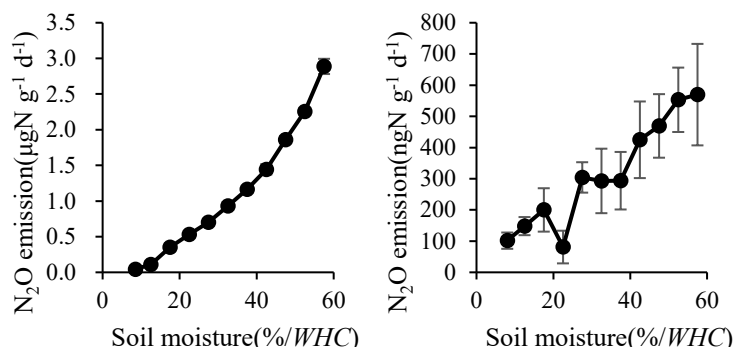


図6 25°C脱室条件における茶園土壤(左)及び森林土壤(右)の N_2O 放出量の違い。エラーバーは標準偏差($n=4$)を示す。

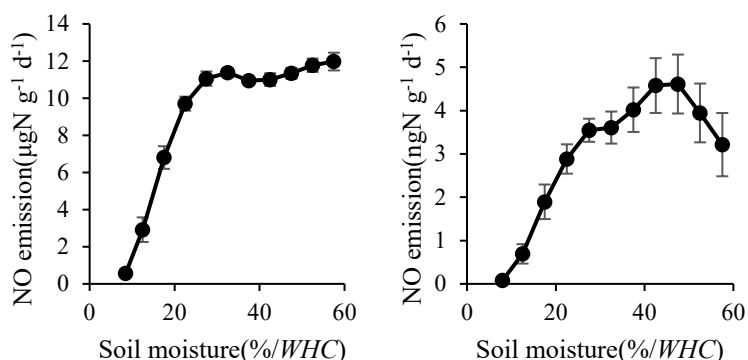


図7 25°C脱室条件における茶園土壤(左)及び森林土壤(右)の NO 放出量の違い。エラーバーは標準偏差($n=4$)を示す。

脱室条件(図6, 7)において、含水率が高いほど NO の大気中への拡散が妨げられたために N_2O

放出量が増加した可能性が考えられた。さらに N₂ ガスを通気したことにより、土壌中の嫌氣的領域がより増大したことも N₂O 放出量増加に起因している可能性が高い。

表 1 土壌 pH 測定結果

Soil sample	Sampled date/ Experimental conditions	pH (KCl)	pH (H ₂ O)
茶園湿潤土壌	Mid-February, 2022	3.20 ± 0.00 (n=3)	3.79 ± 0.01 (n=3)
森林湿潤土壌	August 10, 2021	3.89 ± 0.05 (n=3)	4.13 ± 0.01 (n=3)
茶園土壌	Nitrification	3.11 ± 0.03 (n=6)	3.67 ± 0.02 (n=6)
茶園土壌	Denitrification	3.13 ± 0.03 (n=4)	3.68 ± 0.01 (n=4)
森林土壌(0-5cm)	Nitrification	3.87 ± 0.03 (n=4)	4.10 ± 0.01 (n=2)
森林土壌(0-5cm)	Denitrification	3.94 ± 0.06 (n=4)	4.11 ± 0.01 (n=2)

表 2 CN 分析結果

Soil sample	Sampled date	C/N ratio
茶園湿潤土壌	Mid-February, 2022	11.84 ± 0.02 (n=3)
森林湿潤土壌(0-5cm)	August 10, 2021	15.82 ± 0.01 (n=3)

(2) DNDC-Rice モデルの検証

培養実験と並行して、DNDC-Rice モデルに本研究成果を反映するに先立ち、培養実験に用いた土壌を採取した農研機構 金谷茶業研究拠点における観測データ (Hirono & Nonaka 2014) を用いてモデルの検証を実施した。その結果、地温・土壌水分等は比較的精度よく予測できたが、硝化に影響を与える pH の変動がモデルでは再現できていないことが明らかとなった。また、土壌中の NH₄ 量を実測よりも低く予測し (実測最高値約 1900 mgN kg⁻¹ に対し、予測最高値約 270 mgN kg⁻¹)、一方で、NO₃ 量を高く予測した (実測最高値約 700 mgN kg⁻¹ に対し、予測最高値約 4700 mgN kg⁻¹)。N₂O 排出量については、排出パターンは異なるものの、実測と予測の最高値差はなかった (実測および予測最高値 約 3 mgN m⁻² h⁻¹) この結果より、DNDC-Rice モデルは実際よりも硝化速度を早く予測している可能性が示唆された。

<引用文献>

- Katayanagi et al. (2009) New method for the estimation of nitrous oxide emission rates from an agricultural watershed. *Soil Science and Plant Nutrition*, 55, 590-598
- atayanagi et al. (2012) Validation of the DNDC-Rice model by using CH₄ and N₂O flux data from rice cultivated in pots under alternate wetting and drying irrigation management. *Soil Science and Plant Nutrition*, 58, 360-372
- Katayanagi et al. (2013) Validation of the DNDC-Rice model to discover problems in evaluating the nitrogen balance at a paddy-field scale for single-cropping of rice. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 95, 255-268
- Katayanagi et al. (2016) Development of a method for estimating total CH₄ emission from rice paddies in Japan using the DNDC-Rice model. *Science of The Total Environment*, 547, 429-440
- Katayanagi et al. (2017) Estimation of total CH₄ emission from Japanese rice paddies using a new estimation method based on the DNDC-Rice simulation model, *Science of the Total Environment*, 601-602, 346-355
- Hirono & Nonaka(2014) Effects of application of lime nitrogen and dicyandiamide on nitrous oxide emissions from green tea fields, *Soil Science and Plant Nutrition*, 60:2, 276-285, DOI:10.1080/00380768.2014.890015

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 羽住政信、米村正一郎、猪俣敏、片柳薫子、廣野祐平
2. 発表標題 茶園土壌からの亜硝酸及び硝酸の検出と水分の関係
3. 学会等名 第28回大気化学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 羽住政信、片柳薫子、田端爽一、戸田求、廣野祐平、米村正一郎
2. 発表標題 茶園土壌・森林土壌における含窒素ガスの放出量と水分の関係
3. 学会等名 日本土壌肥料学会2024年度福岡大会
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	米村 正一郎 (Yonemura Seiichiro) (20354128)	県立広島大学・生物資源科学部・教授 (25406)	
研究分担者	廣野 祐平 (Hirono Yuhei) (10391418)	国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・果樹茶業研究部門・グループ長補佐 (82111)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------