

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2014

課題番号：23380096

研究課題名(和文)日本の森林土壌における有機物分解性の定量化とその支配要因の解明

研究課題名(英文)Quantifying the biodegradability of soil organic matter in Japanese forest surface soils

研究代表者

小嵐 淳(Koarashi, Jun)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター・研究主幹

研究者番号：30421697

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：土壌に有機物として大量に蓄積している炭素が地球温暖化に伴ってどれだけ大気中へ放出されるかを正確に予測するためには、土壌有機物の分解特性の解明が不可欠である。本研究では、土壌有機物の分画、放射性炭素(14C)分析、13C-NMR測定及び土壌の培養実験を駆使することで、我が国の森林表層土壌に蓄積する有機物の鉱物粒子との結合形態、化学構造、土壌中における平均滞留時間、分解速度の温度依存性を定量的に明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Understanding the biodegradability of soil organic matter (SOM) is a key to accurately predicting the response of soil C to global warming. In this study, we quantified the mineral-organic matter associations, the diversity of chemical structures and mean residence times of SOM, and the temperature sensitivity of SOM decomposition in Japanese forest surface soils by using SOM fractionation techniques, 14C analysis, 13C-NMR measurements, and soil incubation studies.

研究分野：生物地球科学

キーワード：土壌有機物分解 森林土壌 放射性炭素(14C) 地球温暖化 有機物分画 土壌鉱物特性 有機物化学構造

1. 研究開始当初の背景

全球の土壤が有機物として貯留している炭素は1500 Pgに及ぶと推定され、植物体が保持している炭素の約3倍、大気中炭素量の約2倍に相当する。地球温暖化に伴う気温上昇は、微生物による土壤有機物の分解を促進し、土壤からのCO₂放出量の増大によって、さらに温暖化を加速させる可能性が危惧されている。

土壤微生物は、土壤に供給された植物遺体を分解し、その一部をCO₂に変換してエネルギーを得るため、その分解残渣は様々な形態の土壤有機物となる。分解されやすい土壤有機物は、さらに微生物による分解を受けるため、より分解されにくい安定な構造の有機物が残る。結果として、土壤には分解程度や分解に対する安定性の大きく異なる有機物が混在することになる。加えて、気候、植生、土壤の物理・化学的性質なども、土壤有機物の安定性を大きく左右する要因となる。したがって、土壤に蓄積している炭素が、温暖化に伴ってCO₂としてどれだけ大気中へ放出されるかを的確に予測するためには、土壤炭素の貯留「量」の算定だけでは不十分であり、その「質」、すなわち、「様々な要因によって規定される複雑かつ多様な微生物分解特性」を定量的に把握することが不可欠である。

我々は、これまで、土壤有機物中に存在する放射性炭素(¹⁴C)の同位体比を分析することにより、土壤有機物の分解性を滞留時間の異なる炭素プールの複合体(滞留時間別炭素貯留量)として定量化することに成功している。

2. 研究の目的

本研究では、我が国の森林表層土壤に貯留している有機物の分解性を定量的に解明することを目的とした。放射性炭素を利用した方法を国内の気候帯や土壤学的分類の異なる森林土壤に展開することで、森林表層土壤における滞留時間別炭素貯留量を明らかにする。さらに、森林表層土壤における有機物の分解性を規定する要因を、特に気候学的要因、土壤鉱物学的特性及び、土壤有機物の化学構造に着目して探求するとともに、それらの土壤有機物の分解が温暖化に対してどのように応答するかを室内培養実験により明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 試料の採取

国内の森林10地点(北海道、青森県、岩手県、茨城県、東京都、愛知県)において、落葉堆積層(リター層)と深さ20 cmまでの土壤を採取した。採取した試料を乾燥し、土壤試料については、2 mmのふるいにかけた。

試料採取地点の年平均気温と年間降水量はそれぞれ6.1~14.1°C、1207~1972 mmの範囲であった。調査対象の森林は、ブナやミズナラの天然林、カラマツやスギの人工林な

ど多様であり、土壤型は黒ボク土または褐色森林土であった。

(2) 土壤の鉱物学的特性の分析

土壤試料(0-20 cm)に対して、ピロリン酸、シュウ酸塩、ジチオナイトによってアルミニウム(Al)と鉄をISRICの方法により抽出し、ICP発光分光分析法(ICP-AES)により測定した。

(3) 土壤有機物の分画

土壤試料(0-20 cm)に対して、比重による分画を行い、有機物主体の低比重画分(fLF:比重<1.6 g cm⁻³)、鉱物粒子や団粒と結合した低比重画分(mLF:超音波処理後に<1.6 g cm⁻³)、鉱物粒子主体の高比重画分(HF:≥1.6 g cm⁻³)に分けた。

10地点のうち4地点(北海道、岩手県、茨城県、愛知県)を選定し、化学分画を行った。土壤試料を数cm程度の深さごとに採取し、それぞれの深さの試料に対して、植物残渣を取り除き、塩酸と水酸化ナトリウム溶液による逐次抽出を行うことで、植物残渣画分、酸不溶性画分、及びアルカリ不溶性画分を得た。

(4) 炭素同位体の分析

リター、土壤、及び有機物分画試料は、粉碎して均質化した後、炭素・窒素含有量を元素分析装置により測定した。炭素安定同位体比($\delta^{13}\text{C}$)の測定は、同位体比質量分析装置(IRMS)を用いて行った。放射性炭素同位体比($\Delta^{14}\text{C}$)の分析は、日本原子力研究開発機構の加速器質量分析装置(AMS)を用いて行った。

(5) 土壤有機物の滞留時間の推定

各有機物画分に対して得られた¹⁴C同位体比($\Delta^{14}\text{C}$ 値)に基づいて、次の方法で土壤炭素の平均滞留時間を推定した。(a) ¹⁴Cの放射壊変が有意に認められる画分($\Delta^{14}\text{C}$ <-20‰):平均滞留時間の長い炭素プールであると考えられるため、年代測定法を利用した。(b) 核実験起源の放射性炭素の混入が認められる画分($\Delta^{14}\text{C}$ >+35‰):滞留時間が短い炭素プールであると考えられる。核実験以降(1963年以降)に土壤に供給された有機物(¹⁴C)が土壤採取時においてどれだけ残存しているかを、分解速度(滞留時間の逆数)をパラメータとして表したモデルを利用して、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値と平均滞留時間の関係を得る方法により平均滞留時間を推定した。(c) 核実験起源¹⁴Cのピークよりも深い土壤層で、かつ、有意な放射性壊変が認められない画分:中間的な滞留時間の炭素プールであると考えられ、上記2つの方法による平均滞留時間の推定範囲を考慮して決定した。

推定した平均滞留時間を指標として、土壤炭素を7つの炭素プール(平均滞留時間:<10年(リター層)、<20年、20-100年、100-200年、200-500年、500-1000年、>1000年)に

分け、それぞれの炭素プールの炭素貯留量を算定した。

(6) 土壌有機物の化学構造の解析

リター、土壌、及び有機物分画試料に対して、フッ化水素酸 (HF) 処理によって鉱物を除去した後、固体 ^{13}C -NMR (核磁気共鳴) を用いた有機物の化学構造解析を行い、脂肪族態炭素 (0-45 ppm)、0-アルキル態炭素 (45-110 ppm)、芳香族態炭素 (110-160 ppm)、カルボニル態炭素 (160-190 ppm) の割合を決定した。

(7) 土壌の室内培養実験

3 地点 (岩手県、茨城県、愛知県) を選定し、土壌の培養実験を行った。土壌を深さごと (0-2 cm、2-4 cm、4-6 cm、6-8 cm、8-10 cm、10-15 cm、15-20 cm) に採取し、乾燥させずに 20°C と 30°C で約 150 日間培養した。培養期間中、土壌からの CO_2 放出速度を定期的に測定した。異なる温度条件下での培養実験で得られた CO_2 放出速度の経時変化に対して、分解速度の異なる 3 炭素プールモデルを仮定してフィッティングを行い、3 つの炭素プールの大きさ、分解速度、及び分解速度の温度依存性 (Q_{10} : 温度が 10°C 上昇したら分解速度が何倍になるかを示す指標) を決定した。

4. 研究成果

(1) 炭素貯留量と A1-有機複合体形成の寄与

森林 10 地点のリター層と表層土壌 (0-20 cm) における炭素貯留量は、 $3.8\sim 12.6\text{ kgC m}^{-2}$ と地点によって大きく異なっていた。全炭素貯留量のうちリター層が占める割合は 2.5~21.0% であり、森林土壌における炭素の多く ($3.1\sim 11.9\text{ kgC m}^{-2}$) は鉱物土壌層に蓄えられていた。

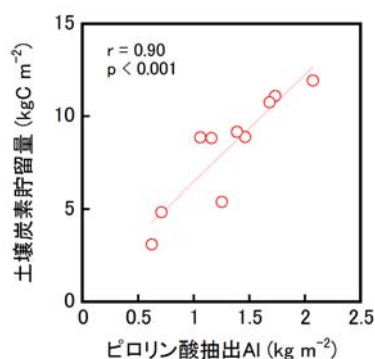


図 1. 土壌 (0-20 cm) の炭素貯留量とピロリン酸抽出 A1 量との関係

炭素貯留量が多い土壌ほど、ピロリン酸抽出 A1 量が多く、両者の間に強い正の相関関係 ($r=0.90$, $p<0.001$) が見出された (図 1)。一方、炭素貯留量と、シュウ酸塩抽出 A1 量からピロリン酸抽出 A1 量を差し引いた A1 量との間には相関は見られなかった。このことから、A1 による有機-無機複合体の形成が森

林土壌中での炭素の蓄積に寄与していることが示唆された。

(2) 鉱物粒子との結合形態から見る炭素貯留

比重によって分けた画分のうち、鉱物粒子主体の高比重画分 HF が土壌全重量の 84~97% を占め、有機物主体の低比重画分 fLF や鉱物粒子や団粒と結合した低比重画分 mLf の重量は、それぞれ 2~12%、1~6% にとどまった。各分画の炭素の含有量は、fLF、mLF、HF でそれぞれ $21\pm 6\%$ 、 $41\pm 4\%$ 、 $7\pm 4\%$ と低比重画分が高かったが、炭素貯留量では HF が最も大きく全体の 59~76% を占めていた (図 2)。fLF、mLF の炭素貯留量はそれぞれ 8~20%、11~20% であった。全土壌炭素貯留量と、mLF や HF の炭素貯留量との間に強い正の相関関係 (mLF : $r=0.93$, $p<0.001$ 、HF : $r=0.97$, $p<0.001$) が認められたことから、有機物と鉱物粒子との結合が土壌中での炭素貯留の重要なプロセスであると考えられた。

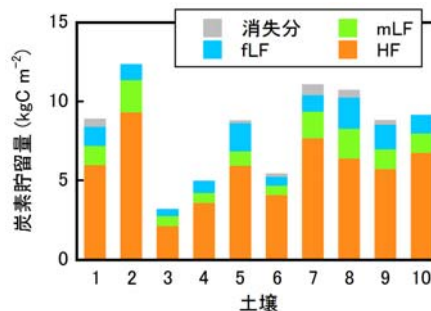


図 2. 比重画分ごとの土壌炭素貯留量

それぞれの画分の土壌有機物は、 ^{14}C 同位体比や化学組成・構造に違いが見られた。fLF は $\Delta^{14}\text{C}$ 値が最も高く (2 地点を除き 42~109%)、核実験起源 ^{14}C の混入が明確であり、平均滞留時間は 15 年程度以下であると推定された。 ^{13}C -NMR の結果、fLF は植物体内のセルロース等の多糖類を構成する 0-アルキル態炭素の割合が高かった (図 3、42~50%)。このことから、fLF は、主として比較的新鮮な植物遺体などで構成されていることが推察され、この結果は fLF の短い滞留時間を良く説明するものであった。mLF の $\Delta^{14}\text{C}$ 値も比較的高く (1 地点を除き 32~88%)、核実験起源 ^{14}C の寄与が認められた。mLF を構成する有機物は高い C/N 比 (21~36) を有していたが、一方で、微生物の代謝産物と考えられる脂肪族態炭素の割合が際立って高い (26~51%) という特徴を示した。HF は、3 つの画分の中で最も低い $\Delta^{14}\text{C}$ 値 (-38~+37%) を示し、平均として最も土壌中で長く (160~540 年) 留まっている有機物であると考えられたが、多くの土壌で核実験 (1960 年代前半) 以降に供給された有機物の相当量の寄与が確認された。有機物の化学構造は、カルボキシ基が発達した特徴を示し腐植化の進行をうかがわせたが、一方で 0-アルキル態炭素の

割合も高く、fLF と類似した特徴も見られた。したがって、鉱物粒子と強く結合した有機物は、滞留時間の大きく異なる有機物（数十年～数百年以上）から構成されていることが示唆された。

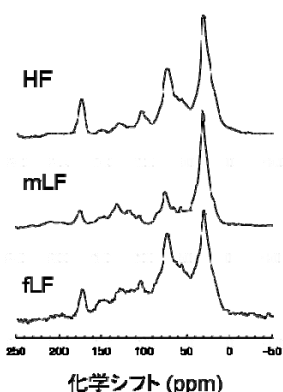


図3. 土壌1（岩手県の土壌、0-20 cm）の比重画分に対する¹³C-NMR スペクトル

(3) 土壌有機物の分解性の定量化

土壌有機物の化学分画の結果、森林土壌間で深さごと及び有機物画分ごとの¹⁴C 同位体比が異なり、したがって、土壌有機物の滞留時間及びその分布が異なっていることが明らかになった。リター層の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は、土壌採取年から数年前までの大気CO₂の $\Delta^{14}\text{C}$ 値と近い値を示し、数年～10年未満の滞留時間であると推定された。土壌中では、全体として、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値は、深さとともに、また、同じ深さでは植物残渣、酸不溶性画分、アルカリ不溶性画分の順に低くなった。マスバランス計算により酸可溶性及びアルカリ可溶性画分に対する $\Delta^{14}\text{C}$ 値を算出し、植物残渣、酸可溶性、アルカリ可溶性、アルカリ不溶性画分の有機物の平均滞留時間を推定することで、<10年～2300年までの平均滞留時間を持つ土壌有機物の検出に成功した。

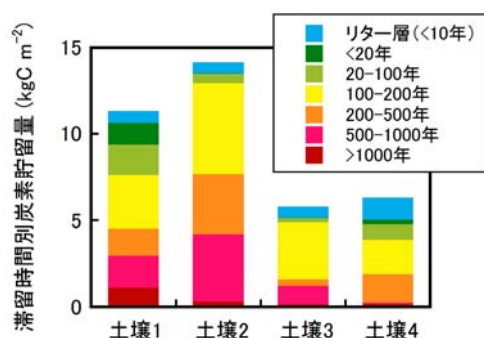


図4. 森林土壌4地点における滞留時間別炭素貯留量（リター層と土壌0-20 cmまで）

この結果に基づいて、滞留時間別炭素貯留量（リター層と表層0-20 cmまで）を算定したところ、土壌ごとに炭素の貯留量のみならず、その分解性（滞留時間の分布）が大きく異なることが明らかになった（図4）。土壌炭素の多く（61～91%）は、平均滞留時間が

100年以上の有機物として表層土壌に貯留されており、その貯留量はピロリン酸抽出AI量の多い土壌ほど大きかった。

化学分画により得られた有機物は異なる化学構造を示したが、その違いの傾向は土壌によって異なっていた。例として、土壌2（茨城県の土壌、深さ4-6 cm）では、酸不溶性画分において0-アルキル態炭素の割合が低下し、続くアルカリ処理で得られたアルカリ不溶性画分では脂肪族態炭素の割合が低下し、芳香族態炭素が主要な化学構造として残っていた（図5）。一方、土壌1（岩手県の土壌、深さ4-6 cm）では、酸不溶性画分においては土壌2と同様に0-アルキル態炭素の割合が低下したがアルカリ不溶性画分では0-アルキル態炭素とカルボニル態炭素の割合が低下し、脂肪族態炭素の割合が増加した。化学分画によって幅広い範囲の平均滞留時間を持つ有機物の検出に成功したが、土壌中における有機物の滞留時間を規定する様々なメカニズムの相対的重要性は土壌によって異なっていることが考えられ、更なる研究が必要である。

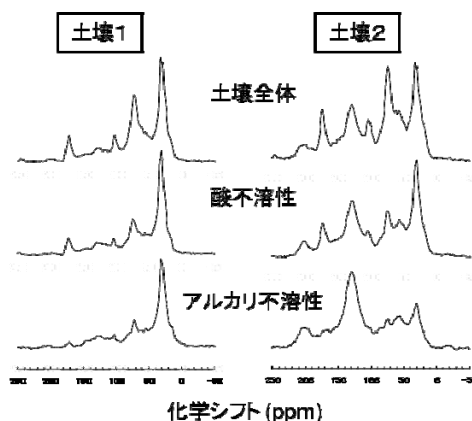


図5. 土壌1と2の深さ4-6 cmに対する化学分画された有機物の¹³C-NMR スペクトル

(4) 有機物の分解速度とその温度依存性

土壌培養実験と3炭素プールモデルにより、土壌有機物を、数十日程度以下、数年～100年未満、100年～1000年以上の大きく異なる滞留時間をもつ3つの炭素プールに分割し、それらの分解における温度依存性（ Q_{10} ）を決定した。滞留時間の最も短い炭素プールは、全土壌炭素のわずか2.6%未満であり、数年～100年の滞留時間を持つ炭素プールが全土壌炭素の21～52%を占めていた。 Q_{10} 値は1.2～3.9の範囲であり、滞留時間が10年～100年の有機物の Q_{10} 値は2.4以上と高く、滞留時間の増加とともに増加した。このことから、森林表層土壌に貯留する炭素の多く（1.4～3.2 kgC m⁻²）は、現在の地球炭素循環-気候変動モデルにおいて想定されている（ $Q_{10}=2$ ）よりも、温度上昇に対して敏感に応答しうることが示された。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 7 件)

- ① Nakanishi, T., Atarashi-Andoh, M., Koarashi, J., 他 2 名, Seasonal and snowmelt-driven changes in the water-extractable organic carbon dynamics in a cool-temperate Japanese forest soil, estimated using the bomb-¹⁴C tracer. *Journal of Environmental Radioactivity*, 査読有, 128, 27-32 (2014)
DOI:10.1016/j.jenvrad.2013.10.028
- ② 平舘 俊太郎, 核磁気共鳴法を利用した土壌中における元素動態の解明、日本土壌肥料学会誌、査読有、85、401-404 (2014)
<http://ci.nii.ac.jp/naid/110009909567>
- ③ 平舘 俊太郎, 三瓶山地域における火山灰土壌の生成と特性 (シンポジウム)、ペドロジスト、査読有、58、93-100 (2014)
<http://ci.nii.ac.jp/naid/40020381892>
- ④ Rennert, T., Eusterhues, K., Hiradate, S., 他 4 名, Characterisation of Andosols from Laacher See tephra by wet-chemical and spectroscopic techniques (FTIR, ²⁷Al-, ²⁹Si-NMR). *Chemical Geology*, 査読有, 363, 13-21 (2014)
DOI:10.1016/j.chemgeo.2013.10.029
- ⑤ Ota, M., Nagai, H., Koarashi, J. Root and dissolved organic carbon controls on subsurface soil carbon dynamics: a model approach. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 査読有, 118, 1646-1659 (2013)
DOI:10.1002/2013JG002379
- ⑥ Ota, M., Nagai, H., Koarashi, J. A land surface ¹⁴C transfer model and numerical experiments on belowground ¹⁴C accumulation and its impact on vegetation ¹⁴C level. *Journal of Environmental Radioactivity*, 査読有, 107, 13-22 (2012)
DOI:10.1016/j.jenvrad.2011.11.016
- ⑦ Nakanishi, T., Atarashi-Andoh, M., Koarashi, J., 他 2 名, Carbon isotopes of water-extractable organic carbon in a depth profile of forest soil imply a dynamic relationship with soil carbon. *European Journal of Soil Science*, 査読有, 63, 495-500 (2012)
DOI:10.1111/j.1365-2389.2012.01465.x

[学会発表] (計 9 件)

- ① Hiradate, S., Soil organic matter in Andosols: characteristics and genesis. MARCO International Workshop 2014, 2014年6月7日, Tsukuba, Japan.
- ② 竹内 絵里奈、安藤 麻里子、小嵐 淳、他

4 名、グラファイト生成の前処理の違いにおける ¹⁴C 測定への影響—サルフィックスと銀板の比較—、第 16 回 AMS シンポジウム、2014年3月19日~20日、東京大学。

- ③ 守屋 耕一、小嵐 淳、安藤 麻里子、他 2 名、植生が異なる森林表層土壌における有機物分解性の比較、第 124 回日本森林学会大会、2013年3月25日~28日、岩手大学。
- ④ 小嵐 淳、安藤 麻里子、石塚 成宏、他 3 名、放射性炭素を用いた土壌有機物の分解性の定量化、第 123 回日本森林学会大会、2012年3月26日~29日、宇都宮大学。
- ⑤ 守屋 耕一、小嵐 淳、安藤 麻里子、石塚 成宏、他 2 名、国内 4 地点の森林表層土壌における有機物分解の温度依存性、第 123 回日本森林学会大会、2012年3月26日~29日、宇都宮大学。
- ⑥ 石塚 成宏、小野 賢二、日本の森林土壌における各種糖の分解と合成、第 123 回日本森林学会大会、2012年3月26日~29日、宇都宮大学。
- ⑦ Moriya, K., Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Moriizumi, J., Yamazawa, H., Ishizuka, S., Soil organic matter degradability in four Japanese forest soils. American Geophysical Union, Fall Meeting 2011, 2011年12月5日~9日、San Francisco, USA.
- ⑧ 小嵐 淳、安藤 麻里子、石塚 成宏、他 3 名、放射性炭素を用いた土壌有機物動態の解明、2011年10月27日、むつ市。
- ⑨ 守屋 耕一、小嵐 淳、安藤 麻里子、森泉 純、山澤 弘実、石塚 成宏、国内 4 地点の森林における土壌有機物の分解性の比較、2011年度日本地球化学会年会、2011年9月14日~16日、北海道大学。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小嵐 淳 (KOARASHI, Jun)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター・研究主幹

研究者番号：30421697

(2) 研究分担者

安藤 麻里子 (ATARASHI-ANDOH, Mariko)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター・研究副主幹

研究者番号：20354855

石塚 成宏 (ISHIZUKA, Shigehiro)

独立行政法人森林総合研究所・立地環境研究領域・室長

研究者番号：30353577

平舘 俊太郎 (HIRADATE, Syuntaro)
独立行政法人農業環境技術研究所・生物多
様性研究領域・上席研究員
研究者番号：60354099