

様 式 C - 1 9、F - 1 9 - 1、Z - 1 9 (共通)

科学研究費助成事業

研究成果報告書



平成 2 9 年 5 月 2 4 日現在

機関番号： 1 4 1 0 1

研究種目： 基盤研究(B) (一般)

研究期間： 2014 ~ 2016

課題番号： 2 6 2 9 2 1 2 6

研究課題名 (和文) 土壌圏の有機物分解による窒素・炭素循環と水分・溶質・ガス移動の予測

研究課題名 (英文) Modeling of water, solute, and gas transport in a soil as a result of a coupled nitrogen-carbon cycling with decomposition of organic matter

研究代表者

取出 伸夫 (TORIDE, NOBUO)

三重大大学・生物資源学研究科・教授

研究者番号： 7 0 2 1 2 0 7 4

交付決定額 (研究期間全体) : (直接経費) 12,400,000 円

研究成果の概要 (和文) : 土中の有機物分解に伴う窒素・炭素成分の移動予測を行うために、LEACHMモデルに基づく有機物分解モデルに対して、植物根による養分吸収、イオン交換、有機物分解反応に伴う一連のプロトン反応、土のpH緩衝能、気相中のガス拡散、水田土中を想定した酸化還元反応を考慮したより汎用的なモデルをHP1プログラムにより構築した。また、様々な畑土や還元状態の水田土に対して、有機物分解に伴う窒素成分のカラム実験を行い、形態変化を伴う窒素成分の移動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 and carbon in soils as a result of decomposition of soil organic matter (SOM), we modified the LEACHM SOM decay model to include plant root uptake, ion exchange, proton reactions, soil pH buffering, gas transport, and oxidation-reduction reactions for reduced paddy soils using the PHREEQC program. The modified SOM decay model was linked with HYDRUS-1D using the HP1 code. Furthermore, various saturated and unsaturated soil column experiments were conducted to monitor fate and transport of nitrogen with the SOM decomposition.

研究分野： 土壌物理

キーワード： 土壌圏 窒素循環 炭素循環 水循環 水分移動 溶質移動 ガス移動 シミュレーション

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有機物分解に伴う土中の炭素循環と連動して進行する現象であるため、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・炭素成分の移動は、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。

研究代表者らは、既往の窒素・炭素循環モデルとして我が国でも用いられている LEACHM モデルを生物地球科学反応プログラム PHREEQC へ移植し、HP1 により土中の水分・溶質移動予測汎用プログラム HYDRUS との連結を行った。そして、有機物分解過程の窒素・炭素循環に対して、C/N 比に応じた無機態窒素の有機化と無機化過程、無機態窒素の硝化、脱窒過程の窒素成分の移動を明らかにした。さらに精度の高い予測を行うためには、不均一な流れ、植物根による吸水、吸収、イオン交換、また有機物分解を制限する土の pH 予測には、一連の有機物分解反応に伴うプロトン反応、土の緩衝能などの諸反応を加える必要性が明らかになった。

2. 研究の目的

土壌圏に投入された有機物は、微生物バイオマス、腐植に分解され、さらに二酸化炭素、無機態窒素へと無機化される。この窒素・炭素循環過程で生成する可溶成分は、様々な形態変化、土粒子への吸着、離脱などを繰り返しながら液相中を移動し、ガス態成分は気相中を拡散する。本研究では、これまでの土壌圏中の有機物分解モデルをさらに汎用的モデルと発展させるために、植物根による吸水と溶質吸収、イオン交換、土の pH、水田土中を想定した酸化還元反応などを加える。水分飽和の水田土や水分不飽和の不攪乱畑土を用いた土カラム実験を行い、窒素成分や二酸化炭素等の移動形態に対してモデルの検証と改良を行い、土中の窒素・炭素循環と移動現象の体系化を図る。なお、プログラムは公開し、幅広く現場圃場での解析ツールとして提供する。

本研究では、主にモデル化と窒素・炭素成分の移動実験の 2 点から取り組んだ。以下、モデルについては全体概要、一連の移動実験については、その一部の実験について示す。

3. 研究の方法

(1) 水分・窒素・炭素循環移動改良モデル

これまでに開発した LEACHM モデル(Hutson, 2005)に基づく有機物分解モデル(Fig. 1)に対し

て、植物根による養分吸収、イオン交換、有機物分解反応に伴う一連のプロトン反応、土の pH 緩衝能、気相中のガス拡散、水田土中を想定した酸化還元反応を考慮したより汎用的なモデルを構築する。一連の有機物分解と窒素・炭素の形態変化は 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。

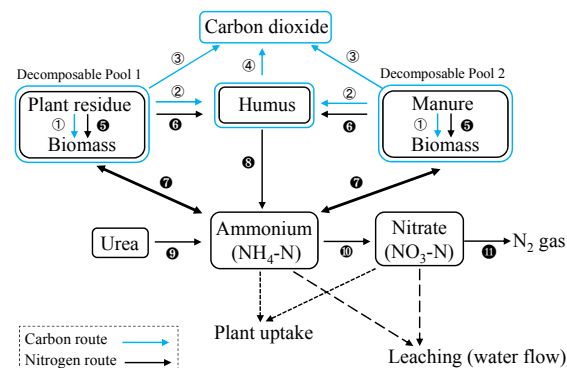


Fig. 1 LEACHM の有機物分解モデル

(2) 不飽和土中の窒素成分移動実験

試料は、三重大学内圃場土(沖積土 1:CEC = 8 cmol_c/kg)、三重大学と岩手大学の附属農場の畑土(沖積土 2:CEC = 15, 黒ぼく土:CEC = 46)の風乾土 2 mm 篩通過分を使用した。

パッチ試験では、試料に硫酸 5 cmol-N/L 水溶液を全体に少しずつ混ぜ、気相率 20%で内径 5 cm, 50 cm^3 の 11 個の円筒に詰めた。その後、一定水分量、25°C でインキュベートした。35 d までの適当な時間毎に 1 個ずつ試料を解体し、土中の pH と EC を測定し、10 %KCl 水溶液および純水を用いて土中水を抽出した。そして吸光度計により抽出液の窒素濃度を測定した。KCl と純水で抽出し測定した NH_4^+ は、それぞれ全量と溶存量とみなした。

浸透実験では、高さ 20 cm, 内径 5 cm のカラムに、純水で湿らせた土を詰めた。上端から純水を 5 d, 硫酸 5 cmol-N/L を 9 d, 純水を 18 d (計 32 d)、一定滴下速度 0.8 cm/d で与えた。カラムの 3 深度に 4 極センサとデンスイオメータを設置し、電気伝導度 EC と圧力水頭を 10 分間隔で測定した。また、下端から 35.5 cm 下方に排水口を設け、排液を 30 mL 毎に採取した。14 d と 32 d にカラムを解体し、各深さの含水比と pH, 土中水の窒素濃度を測定した。排液は、窒素濃度と pH, EC をそれぞれ測定し、陽イオン濃度を液体イオンクロマトグラフィーで測定した。実験は 25°C の恒温室で行った。また、 NH_4^+ の硝化反応の様子を、水分移動式とイオン交換反応式、一次分解の連鎖反応式を用いて解析した。反応には、 NH_4^+ の溶存態と吸着態の反応速度定数 k_a , k_i をそれぞれ与え、計算は HP-1 で行った。

4. 研究成果

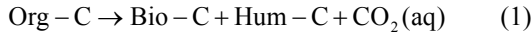
(1) 水分・窒素・炭素循環移動改良モデル

① 酸化還元反応とプロトン反応

Fig.2 は、プロトン反応、酸化還元反応を加え

た改良有機物分解モデルの模式図である。

土中に投入された有機態炭素 (Org-C) は、一次分解反応によりバイオマスの炭素成分 (Bio-C)、腐植の炭素成分 (Hum-C)、 $\text{CO}_2(\text{aq})$ に分解される。生成されたバイオマスは、再び有機物として分解される。



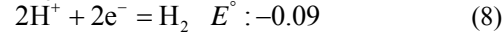
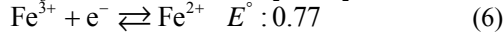
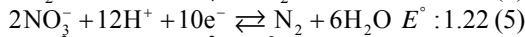
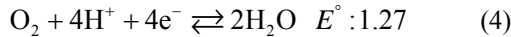
$$\frac{dC_{\text{Org-C}}}{dt} = -k_{\text{Org}} \times e_{\text{O}_2, \text{Org}} \times C_{\text{Org-C}} \quad (2)$$

ここで、 $C_{\text{Org-C}}$ は有機態炭素の土単位体積あたり濃度 [$\text{mmol cm}^{-3} \text{soil}$]、 k_{Org} は分解定数 [day^{-1}] である。異なる有機物に対しては分解定数の異なる複数の有機物分解プールを定義する。また、溶存酸素濃度 $[\text{O}_2]$ の低下に伴う分解速度の減少は次式の補正関数 e_{O_2} で与えた。

$$e_{\text{O}_2, \text{Org}} = e_{\text{O}_2, \text{Org}}^{\min} + (1 - e_{\text{O}_2, \text{Org}}^{\min}) \left(\frac{[\text{O}_2]}{[\text{O}_2]_{\text{atm}}} \right)^N \quad (3)$$

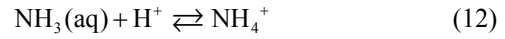
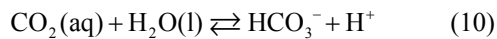
ここで、 $[\text{O}_2]_{\text{atm}}$ は土中空気の酸素分圧 (0.21 atm) と平衡する溶存酸素濃度、 $e_{\text{O}_2}^{\min}$ 、 N は経験的パラメータである。発生した CO_2 は溶液中の溶存態と気相中のガス態が平衡し、気相中の $\text{CO}_2(\text{g})$ は拡散により移動して地表面から放出される。気相は大気圧で一定と仮定した。

$\text{CO}_2(\text{aq})$ の生成は C の酸化過程であるため、土中水に含まれる電子受容体に応じた還元反応が同時に起こる (呼吸)。本研究では、有機物分解に伴い以下の還元反応が進行するとした。 E° は標準電極電位 [V] であり、値が大きい電子受容体ほど還元されやすい。酸素を用いない (5) 式以降は、嫌気呼吸と呼ばれる。必要に応じて他の還元反応を追加することは可能である。

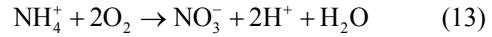


有機態窒素 (Org-N) は、バイオマスの窒素成分 (Bio-N) と腐植の窒素成分 (Hum-N) に利用され、その余剰分は NH_3 として無機化される。逆に、供給が不足すると、土中の NH_3 が有機化されて利用される。

$\text{Org-N} \rightarrow \text{Bio-N} + \text{Hum-N} \pm \text{NH}_3(\text{aq}) \quad (9)$
窒素と炭素成分の分解は各成分の C/N 比で関係づけられる。 $\text{CO}_2(\text{aq})$ と NH_3 は液相中で次の電離反応が生じる。



NH_4^+ から NO_3^- への硝化は、 O_2 の消費と H^+ の生成を伴う一次分解反応として表現し、有機物分解と同様に分解速度の $[\text{O}_2]$ 依存性を与えた。



$$\frac{dC_{\text{NH}_4^+}}{dt} = -k_{\text{nit}} \times e_{\text{O}_2, \text{nit}} \times C_{\text{NH}_4^+} \quad (14)$$

なお、硝化速度は有機物分解とは独立した分解定数により与えられるが、(5) 式の脱窒速度は有機物分解速度で与える。

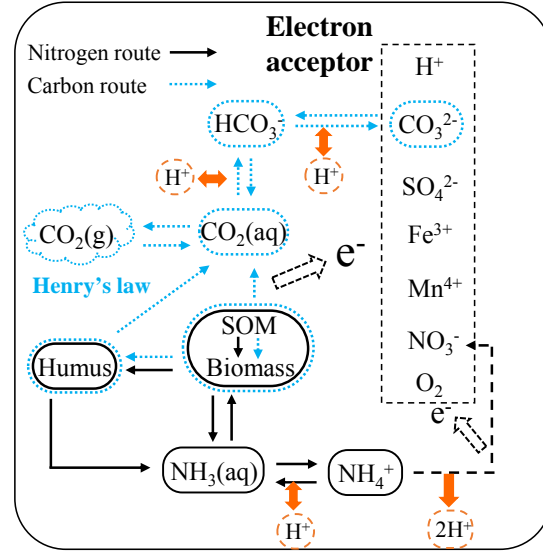
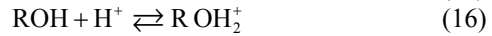


Fig. 2 酸化還元反応とプロトン反応を考慮した有機物分解モデル

② pH 緩衝能とイオン交換

プロトンの吸脱着により変異正負荷電の発現を表す変異荷電モデルを用いて、土の陽イオン交換容量 (CEC) と陰イオン交換容量 (AEC) の pH 依存性を与え、土の pH 緩衝能を表現した。負荷電の発現は (15) 式、正荷電の発現は (16) 式で表される。



発現した負荷電と土の持つ永久荷電に対しては陽イオン交換、変異荷電の正荷電に対しては陰イオン交換が生じる。

③ 植物根の養分吸収

NO_3^- などの植物根の養分吸収は、吸水に伴う受動吸収と積極的に取り込む能動吸収が生じる。受動吸収は、根の吸水速度と溶質濃度から吸収速度を与える。能動吸収速度は、受動吸収量と植物の要求量との差に対して Michaelis-Menten 式を適用して与える。

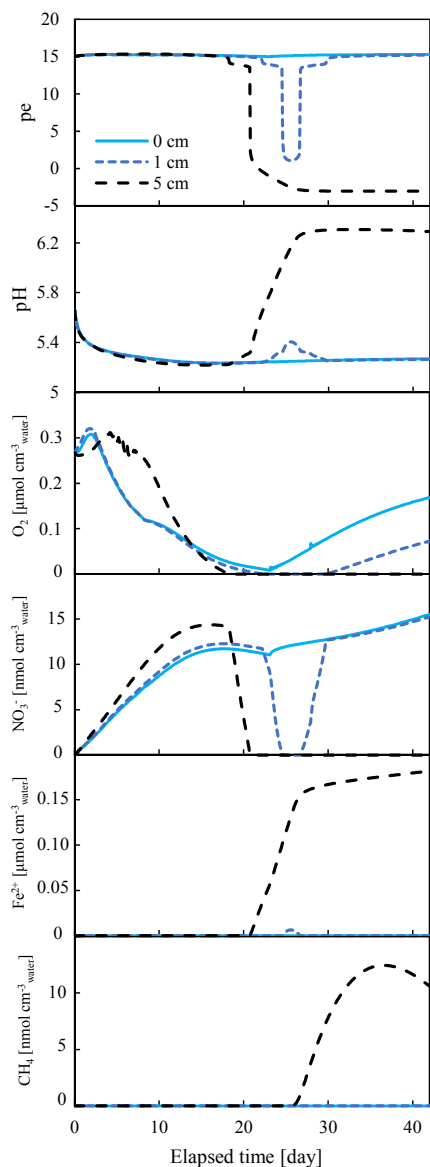


Fig. 3 還元状態の土中の有機物分解

④酸化還元反応を含む有機物分解の計算例

10cm 長のカラムにシルト質粘土を乾燥密度 1.5 g cm^{-3} で充填した。全土層に渡って C/N 比 10 の有機物を炭素量にして $11.9 \text{ μg cm}^{-3} \text{ soil}$ 与えた。分解開始後 21 日間は湛水の生じる $0.051 \text{ cm day}^{-1}$ の灌漑を与え、その後は重力排水させた。液相はゲータイト (FeOOH) と平衡しており、初期溶存酸素濃度は $[\text{O}_2]_{\text{atm}}$ とした。

Fig.3 は 0 cm, 1 cm, 5 cm 深における溶液 pe と溶液 pH の経時変化、および 1 cm, 5 cm 深における O_2 , NO_3^- , Fe^{2+} , CH_4 の溶液濃度の経時変化である。いずれの深さも pe は酸素濃度がゼロになるまで約 15 を示し、その後 1 cm 深では 22 日、5 cm 深では 18 日に NO_3^- の還元に対応して約 14 まで低下した。また、1 cm 深では 25 日に、5 cm 深では 20 日に Fe^{3+} の還元に対応して pe が 1 近くまで低下したが、1 cm 深ではその後再び 15 まで上昇した。これは、上端からの溶存酸素の供給量が、有機物分解と硝化に伴う消費量を上回ったためである。一方、5 cm 深では溶

存酸素の供給量が少なく、26 日に pe は約 -3 まで低下し CH_4 が生成した。pH はいずれの深さにおいても pe の低下に対応した上昇がみられた。

(2) 不飽和土中の窒素成分移動実験

Fig. 4 に、沖積土 1 と黒ぼく土のバッチ試験の結果を示す。10 d までは、 NH_4^+ の減少よりも NO_3^- の増加が卓越した。 NH_4^+ の全量に占める溶存態の割合は、35 d 間で概ね変化せず、沖積土 1 で 53 %, 黒ぼく土で 31 % だった。Fig. 5 に、浸透実験の排液中 NO_3^- 濃度の変化を、 NH_4^+ 添加開始を 0 d として示す。約 9 d で 1 PV が流れた。10 d 以降の NO_3^- 流出は硝化由来と考えられ、10 - 28 d の流出量は沖積土 1 で 0.2 cmol, 沖積土 2 で 0.6 cmol, 黒ぼく土で 0.04 cmol となった。また、 NH_4^+ を添加し始めてから約 9 d 間、排液中の 2 価陽イオン (Mg^{2+} , Ca^{2+}) が計 3 cmol/L まで増加した。これは、土に吸着していた陽イオンが NH_4^+ とイオン交換したためである。Fig. 6 に、 NH_4^+ の吸着態および溶存態の 32 d の土中分布を示す。吸着態の NH_4^+ は上層に多く、黒ぼく土で最も多く分布した。溶存態の NH_4^+ は沖積土 1・2 に 0.06 cmol, 黒ぼく土に 0.03 cmol とわずかだった。32 d の NH_4^+ の全量に占める溶存態の割合は、沖積土 1 で 12 %, 沖積土 2 で 28 %, 黒ぼく土で 4 % だった。

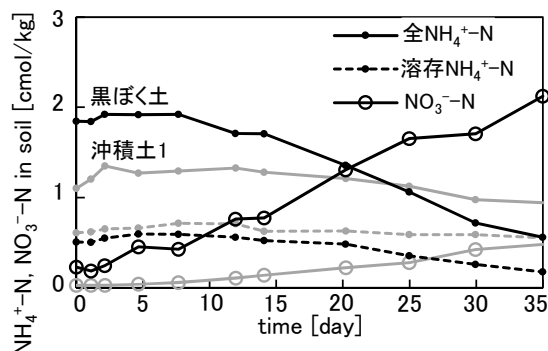


Fig. 4 窒素成分の時間変化(バッチ試験)

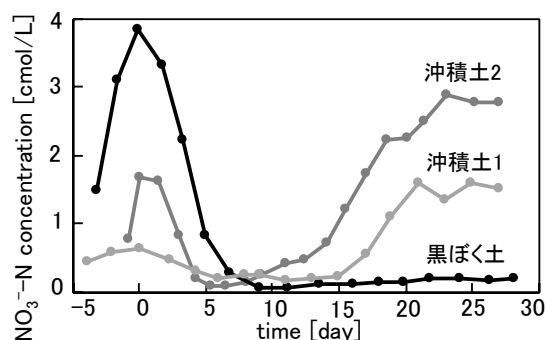


Fig. 5 排液中 NO_3^- -N 濃度の時間変化 (浸透実験)

試料の硝化速度や NH_4^+ の全量に占める溶存態の割合は、バッチ試験と浸透実験で異なった。硝化の反応速度定数は、 NH_4^+ の吸着態および溶存態の速度定数が等しい場合、バッチ試験では沖積土 1 で 0.01 /d, 黒ぼく土で 0.04 /d, 浸透

実験では各土で 0.04, 0.005 /d となった。浸透過程では土中陽イオンの減少などが、 NH_4^+ の脱着や硝化に影響を与えられられる。また、吸着態と溶存態で硝化速度が異なることも考えられる。一連の窒素移動実験に関しては、今後、本研究で改良をした有機物分解モデルにより解析を進める予定である。

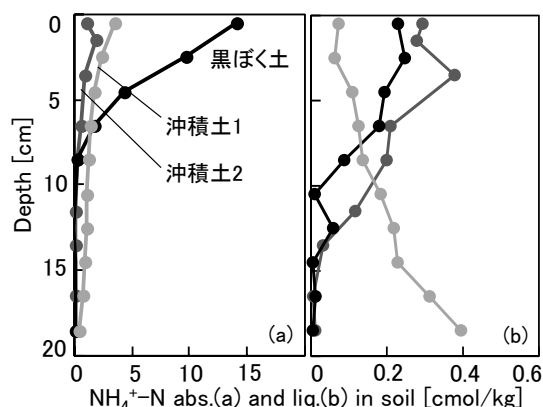


Fig. 6 NH_4^+ -N の(a)吸着態および(b)溶存態の土中分布

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 13 件)

- ① Kunio Watanabe and Yuki Kugisaki, 2017, Effect of macropores on soil freezing and thawing with infiltration, Hydrological Processes, 31, 270-278, doi: 10.1002/hyp.10939. 査読あり.
- ② Kunio Watanabe and Yurie Osada, 2016, Comparison of hydraulic conductivity in frozen saturated and unfrozen unsaturated soils, Vadose Zone Journal, 15, ページなし, doi: 10.2136/vzj2015.11.0154, 査読あり.
- ③ 坂井 勝, 取出伸夫, 坂本祐樹, プロファイルプローブ, 2015, Drill&Drop Probe の埋設方法と簡易補正の検討, 土壌の物理性, 130, 27-32, 査読あり.

〔学会発表〕 (計 40 件)

- ① 中西真紀, 渡辺晋生, 2016, 浸透過程にある 3 種の不飽和土における窒素の吸着と硝化, 土壌物理学会, 京都大学(京都府・左京区), 10 月 29 日
- ② 松岡健介, 取出伸夫, 2016, 土中の有機物分解に伴う窒素・炭素成分の移動と pH 緩衝能について, 日本土壌肥料学会, 佐賀大学(佐賀県・佐賀市), 9 月 20 日-9 月 22 日.
- ③ 取出伸夫, 松岡健介, 2016, HP1 プログラムによる土中の有機物分解に伴う窒素・炭素成分の移動と pH 変化の予測, 水文水資源学会, 9 月 15 日~9 月 17 日, コラッセふくしま(福島県・福島市).
- ④ 岡橋卓朗, 坂井 勝, 取出伸夫, 2016, ダイ

ズ栽培圃場における土壌水分変化から推定した蒸散割合 SCF と草高の関係, 農業農村工学会大会講演会, 2016 年 8 月 30 日~9 月 1 日, ホテル法華クラブ仙台(宮城県・仙台市).

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕 なし

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科・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科・教授
研究者番号:10335151

坂井 勝(SAKAI, Masaru)

三重大学・大学院生物資源学研究科・講師
研究者番号:70608934

斎藤 広隆(SAITO, Hiroataka)

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

橋本 洋平(HASHIMOTO, Yohei)

東京農工大学・(連合)農学研究科(研究院)・准教授
研究者番号:80436899

徳本 家康(TOKUMOTO, Ieyasu)

佐賀大学・農学部・助教
研究者番号:80445858

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

釘崎佑樹(KUGISAKI, Yuki)

岡橋卓朗(OKAHASHI, Takuto)

成毛千尋(NARUKE, Chihiro)

池田和弥(IKEDA, Kazuya)

松岡健介(MATSUOKA, Kensuke)

大西一平(OONISHI, Ippei)