

土壌の物理性

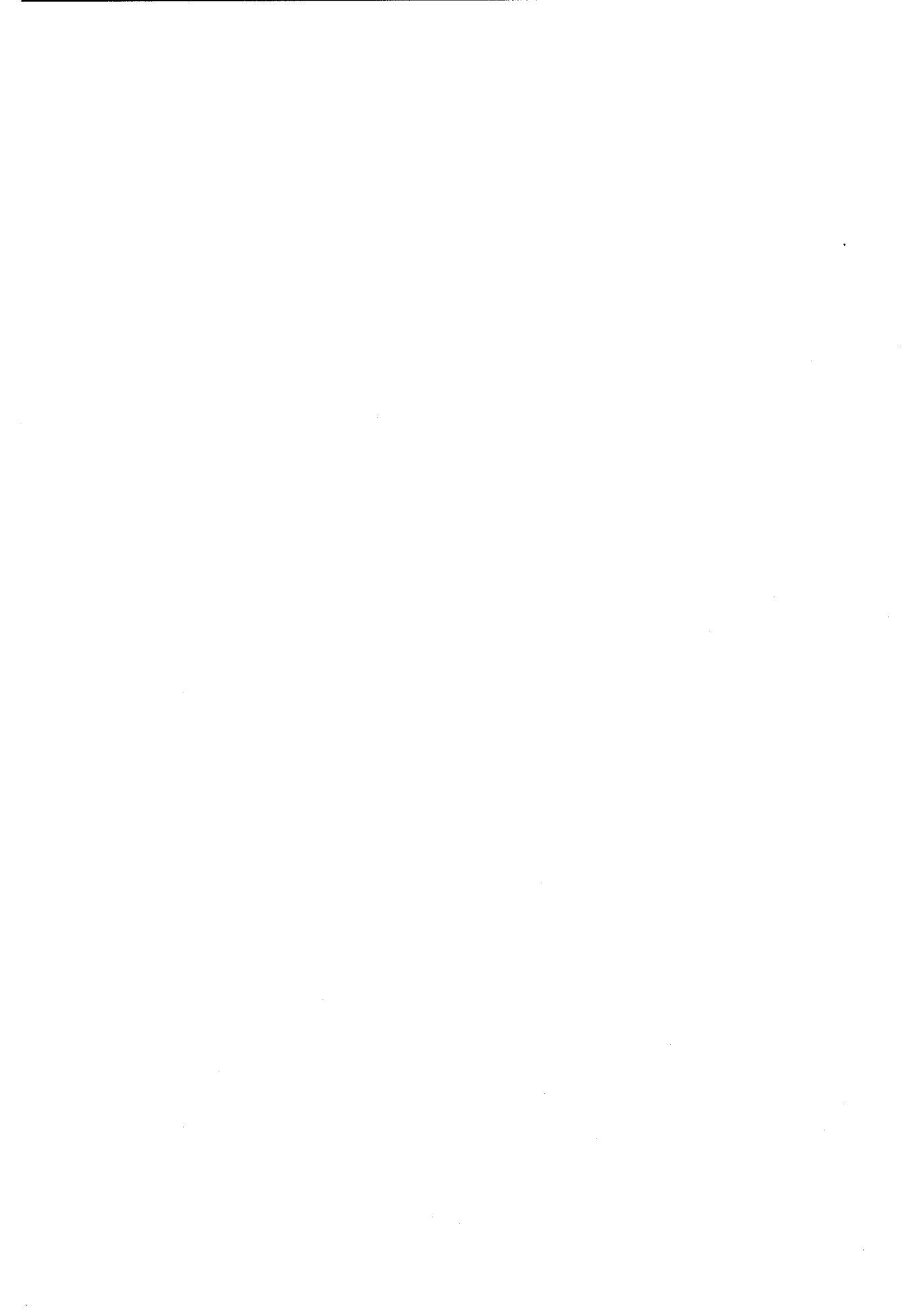
第 65 号

1992年7月

巻 頭 言	佐藤 晃	1
報 文		
大気境界層における炭酸ガス輸送の測定	大滝 英治	3
水田土壌中におけるCO ₂ とCH ₄ の動態 — 大気へのフラックス —	木村 真人・村瀬 潤	11
土壌・堆積物の一酸化二窒素還元活性 (英文)	吉田 尚弘・山崎 岳	21
農業生態系から放出される含硫ガス	陽 捷行	29
生態系における腐植生成と脂肪族成分の変動	米林 甲陽	35
コメ ン ト		
土壌中での温室効果ガスの生成と放出に対する植物の役割 —メタンを中心に—	笹川 英夫	43
「土壌中の非保存性物質の動態」に関する土壌物理学ならびに農業土木学の観点からのコメント	三野 徹	45
総 合 討 論		
第33回シンポジウム「土壌中における非保存性物質の動態と土壌物理性」より		47
解 説		
TDR による土壌の体積含水率及び電気伝導度の測定について	堀野 治彦・丸山 利輔	55
書 評		
「Transfer Functions and Solute Movement through Soil Theory and Application」 (William A. Jury, Kurt Roth著)	取出 伸夫	62
「生物にやさしい知能ロボット工学」(岡本嗣男ほか著)	濫澤 栄	63
会 務 報 告		66
編 集 後 記		

土 壌 物 理 研 究 会

土 壌 の 物 理 性 Soil Phys. Cond. Plant Growth, Jpn.
--



土壤物理研究会
第34回シンポジウムのお知らせ
(予告)

1991年度第1回評議員会において、土壤物理研究会第34回シンポジウムのテーマや日程等が下記のように決定されましたので、お知らせ致します。話題テーマは仮称です。詳細は土壤の物理性第66号ならびにポスターでお知らせ致します。

記

日 時；平成4年11月6日(金)

会 場；岡山大学大学院自然科学研究科大会議室

テーマ；土壤中における保存性物質の動態と土壤物理性

趣 旨；塩類集積と砂漠化問題，重金属汚染やヘドロ処理問題，放射性廃棄物の処理，原子力発電所の事故対策の問題など，今後土壤物理に寄せられる期待もますます大きくなる状況にある。

しかしながら，これらの諸問題はまさしく学際領域に位置し，責任を持って対処できる分野の無いのが現状であろう。この状況の中で土壤物理分野が中心となって，将来，研究をオーガナイズして行く必要があるように思える。そこで，このシンポジウムで，土壤物理の観点から課題の整理と今後の展開方向を論議したい。

- 話 題；
1. 土壤中における溶解物質の輸送と集積（特別講演）
 2. アルカリ金属およびアルカリ土類金属の輸送と集積
 3. 鉄・マンガンの溶解・析出と輸送
 4. 重金属の土壤中での動態
 5. 放射性同位元素（核廃棄物）の土壤中での動態

連絡先：土壤物理研究会（岡山大学農学部農地整備学研究室内）

岡山市津島中1-1-1 Tel 0862-51-8359（直通）

巻 頭 言

A SHITANO DO JYO

— さざれ石の巖となりて —

佐 藤 晃 一

文部省の中庭にある”さざれ石”は、年輪の重みを感じさせる。

土壌を研究する人は、構成する要素 — 鉱物質・土壌溶液・土壌気体・微生物・小動物・根や生物遺体など — とその構成（構造）、平面的・立体的広がり、働き、など非常に広い範囲にわたって考察し、かつ生物生産や構造物（総合的な）安定などを思考の根底に置いている点で極めて柔軟かつ HOLISTIC な考えの持ち主が多い。植物生育や気象条件なども土壌研究には欠くことができないし、総合的考察なしには土壌は語れない。

しかしながら、これら空間的あるいは質的なスケールからの研究に比較して、時間的なスケールでの研究が（無いわけではないが）少ないように思われる。長期的に受ける自然的・人工的外因による土壌の物理性変化とその（作物生育・構造物特性などへの）影響については、手法が難しいこともあるが究明が進んでいない。

私も、かつて100年近くに及ぶ岡山の干拓地で、各種年代の土壌をサンプリングしたことがあるが、関与するファクターが余りに多いために結局塩分濃度しか対比できなかった経験がある。また、牧野造成に当たり、既往の年代別造成牧野について調査し、地形や管理良否が土壌物理変化に関与することを知った。

時の経過は、いろいろな外因によって当初に計測され特定された土壌特性に、予測しなかった変化をもたらすかもしれない。

1991年、崩壊による土石流で死者までだした造成農地の調査をした。設計・施工に問題点は見あたらず、結局強い集中豪雨に加えてなんらかのアクシデントが重なったものと考えられた。しかし、造成後20年という時間経過がいかなる関与をしたかに関心を持った。①まさ土の物理・力学など特性変化がなかったのか。②柑橘園として造成されたものが、社会情勢によってスイカ畑となり（ビニールマルチ）、耕作者が高齢化したことで農地管理（耕耘、耕作道管理・排水路整備、斜面整備など）にも変化を生じ、流出特性・地下水・構造物安定などに影響しなかったのか。③下流の人工樹林は人手不足で放置され、崩壊し易くなって土石流を助長したのではないか。④昔は危険な場所として（経験的に）家など建てなかったところにも、家が建てられるようになってはいないか。⑤⑥…。

これら、社会情勢も含む環境変化の中で、土壌の物理性はどのような影響を受けるであろうか。

特に近年、酸性雨など人間活動の影響が加速される世界にあって、“あしたの土壌”を見つめる眼が必要のように思える。



大気境界層における炭酸ガス輸送の測定

大 滝 英 治

Measurements of Turbulent Transport of Carbon Dioxide in the Atmospheric Boundary Layer

Eiji OHTAKI

Faculty of General Education, Okayama University

Summary

The fast response instrument designed to measure simultaneous fluctuations of carbon dioxide and water vapor is described. The measuring frequency was 30 Hz. The sensing path length of the instrument was 20 cm. This is compatible with the path length of the standard type of a sonic anemometer. The noise level was about 0.8 ppm for carbon dioxide measurement and about 0.02 g/kg for water vapor measurement. The cospectrum estimate of carbon dioxide and vertical wind velocity showed that the high frequency loss due to smoothing effect of sensing path length was about 2% for $w'c'$ measurement. This denotes that the present instrument is promising for flux measurements of carbon dioxide by the eddy correlation technique in conjunction with a sonic anemometer.

The carbon dioxide flux measured by the eddy correlation technique showed a well defined diurnal variation over a paddy field characterized by the negative values in the daylight hours and positive values in the nighttime. Examination of the stability dependency of eddy diffusivities for carbon dioxide (K_c), sensible heat (K_h), and momentum (K_m) showed that the ratio K_h/K_c is unity, but the ratio K_c/K_m increases with increasing instability of the air layer as a function of $(1-16z/L)^{1/4}$.

Key words : Carbon dioxide, Eddy correlation

(Soil Phys. Cond. Plant Growth, Jpn., 65, 3-9, 1992)

1. はじめに

大気境界層での炭酸ガスの輸送量を気象学的方法で最初に測定したのは Huber である。彼は、工業用の赤外線ガス分析計 (URAS) を使って芝生上 5 cm と 5 m の 2 高度の炭酸ガス濃度を測定し、昼間は炭酸ガス濃度が植被直上で低く、夜間は逆に炭酸ガス濃度が植被直上で高くなることを示した¹⁾。そして、炭酸ガス輸送量が、2 高度間の炭酸ガス濃度差と風速の鉛直分布から求めた拡散係数との積として算出される、いわゆる空気力学的傾度法によって推定できることを示した。その後、空気力学的傾度法は井上等の先駆的研究²⁾を経て、作物群落上での炭酸ガス輸送量の測定に広く適用されている^{3,4,5)}。また、拡

散係数をエネルギー収支の関係から求める熱収支法も開発され、炭酸ガス輸送量の測定に使用されている^{6,7,8)}。しかし、Huber も指摘しているように、運動量輸送や熱輸送に対する拡散係数が炭酸ガス輸送の場合に適用されるかどうかは未定の問題であった。そこで、Inoue は炭酸ガス輸送量を、渦相関法によって直接測定すべきであることを示唆した⁹⁾。渦相関法による炭酸ガス輸送量の測定には、後で述べるように、炭酸ガス濃度と風の鉛直成分の 5 Hz 程度までの変動を正確に測定する必要がある。風の鉛直成分の変動量の測定は、超音波風速計の実用化によって解決された¹⁰⁾。他方、炭酸ガス濃度の変動測定は、空気をサンプルする従来の赤外線ガス分析計では不可能であり¹¹⁾、開光路を持つ応答の速い炭酸ガス変動計の開発が必要であった。

現在、炭酸ガス変動計は日本¹²⁾、カナダ¹³⁾、米国¹⁴⁾、ソ連¹⁵⁾で開発されているが、いずれの炭酸ガス変動計の場合

も測定原理は同じで、炭酸ガス分子が4.3ミクロンの赤外線吸収する性質を利用している。そこで、ここでは、我々が開発している炭酸ガス変動計の概要を紹介し、続いて、炭酸ガス変動計を使って測定した大気中の炭酸ガス濃度変動の特性や乱流輸送の特性について紹介する。

2. 炭酸ガス変動計としての必要要件

開発当初、渦相関法に適用する炭酸ガス変動計は、次のような要件を満たす必要があると考えた。

- 1) 大気中の炭酸ガス濃度は、作物群落上では約300ppmであり、その変動成分は数ppmである¹⁶⁾。このため、炭酸ガス変動計の分解能は1ppmよりよくなければならない。
- 2) 渦相関法では炭酸ガス輸送量 (F) は次式で与えられる。

$$F = \overline{w'c'} \\ = \int_{n_L}^{n_H} C_{wc}(n) dn \quad (1)$$

ここで、 w は風速の鉛直成分、 c は炭酸ガス濃度である。 $'$ は平均値からの変動量を意味し、 $\overline{\quad}$ は測定時間についての平均値を意味している。また、 $C_{wc}(n)$ は w と c のコスペクトル密度であり、 n_L と n_H は炭酸ガスの乱流輸送に寄与している下限および上限の周波数である。顕熱や潜熱の乱流輸送の場合、 $n_L=0.001$ Hz、 $n_H=5$ Hz程度なので¹⁷⁾、炭酸ガスの場合も同様に考え、0.001 Hzから5 Hz程度の炭酸ガスの濃度変動を正確に測定する必要がある。

- 3) 測定感部での空間平均の影響を少なくするために、測定感部の長さは20cm程度が望ましい。20cmの光路長は標準型の超音波風速計のスパン長と同じである。

3. 炭酸ガス変動計の概要

図1は、以上のような要件を満たすように設計した、炭酸ガス変動計の光学計である。この炭酸ガス変動計では、炭酸ガスと水蒸気の濃度変動が同時に測定できる。約1,000Kに熱したセラミックヒーターから放射された赤外線は、フッ化カルシウムレンズによって平行光線にされ、20cmの開光路に射出されている。開光路内に存在する炭酸ガス分子によって吸収された赤外線は、別のフッ化カルシウムレンズで-10℃に電子冷却されている赤外線検出器 (PbSe) 上に集光されている。PbSe 検出器の直前には、30Hzで回転しているチョッパーディスクがある。このチョッパーディスクには、炭酸ガスと水蒸気の固有吸収帯の赤外線を分光する干渉フィルターと参照用の赤

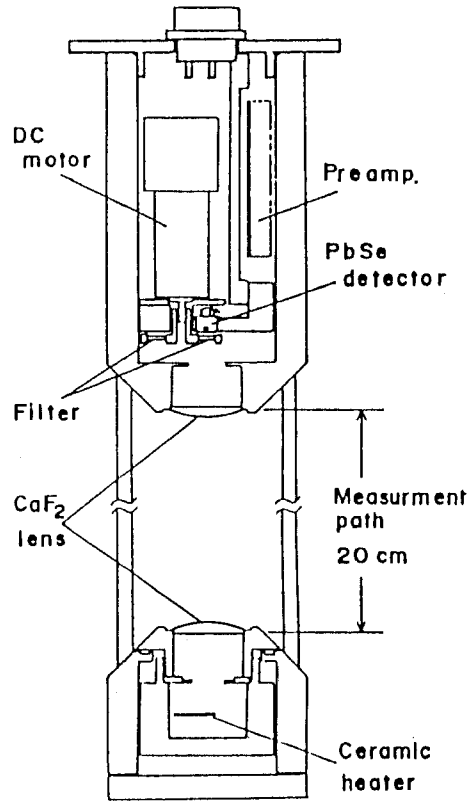


図-1 炭酸ガス変動計の光学系

Fig. 1 Opto-mechanical details of fast response carbon dioxide instrument

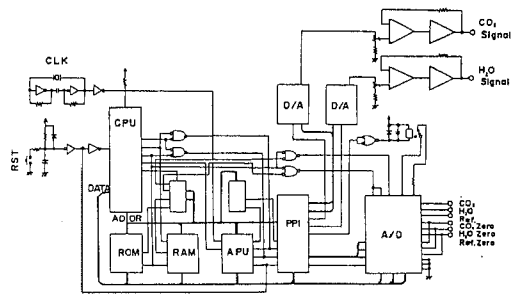


図-2 炭酸ガス変動計の電気系ブロック図

Fig. 2 Electronic block diagram of fast response carbon dioxide instrument

外線を分光する干渉フィルターが固定されている。それぞれのフィルターを透過した信号は、光反射型のホテルセンサーを使ってサンプルホールドされる。

図2は、サンプルホールドされた炭酸ガスと水蒸気濃度の信号がA/D変換され、デジタル演算されて、最終

段階で再び D/A 変換されている電気系ブロック図を示している。ここでの注目は演算プロセッサ (APU) の働きである。炭酸ガスと水蒸気濃度の変化を線形の信号に変換するために、APU で割算と対数演算が実行されている。この演算プロセッサの採用により、炭酸ガスと水蒸気濃度の広い範囲にわたる変化に対して、リニアな出力信号が得られるようになり、雑音レベルを著しく低下させることができた。変動計の雑音は、炭酸ガス変動計としては約 0.8 ppm 、水蒸気変動計としては約 0.02 g kg^{-1} である。

4. 炭酸ガス輸送量の測定例

図 3 は 1989 年 8 月 17 日、岡山大学農学部附属八浜農場の水稲群落上で測定した風の鉛直成分 (w)、気温 (T)、炭酸ガス (c)、水蒸気 (q) 乱流変動の典型的なモニター記録を示している。 w が上向きの時、 c は低下し、 w が下向きの時、 c が増加していることが分かる。また、 c の

変化が q や T の変化と逆位相になっていることも注目される。これらの変化は、水稲群落が炭酸ガスの吸収源として働き、顕熱や潜熱の湧源として働いていることを示している。更に、 c の変化には、短周期の乱流変動に加えて、20–30 秒周期の鋸歯状型の変化が重ね合わさっているように見える。もちろん、鋸歯状型の変化は q や T の記録にも認められる。このような変化は、水稲群落上で、対流性のプルームが存在¹⁸⁾していることを示している。

図 4 は、モニター記録で示した 8 月 17 日 12 時 30 分から 12 時 45 分までの 15 分間の w と c の変動値を使用して算出したコスペクトル、 $nC_{wc}(n)$ 、を周波数 (n) の関数としてプロットしている。 $nC_{wc}(n)$ 曲線は測定された全周波数帯で負の成分を有し、炭酸ガスが大気から水稲群落の方に鉛直下向きに輸送されていることを示している。炭酸ガスの輸送に最も大きな寄与をしている周波数は 0.1 から 0.2 Hz の領域である。炭酸ガス輸送に寄与している下限の周波数 n_L は解析時間の長さによって決まるが、図

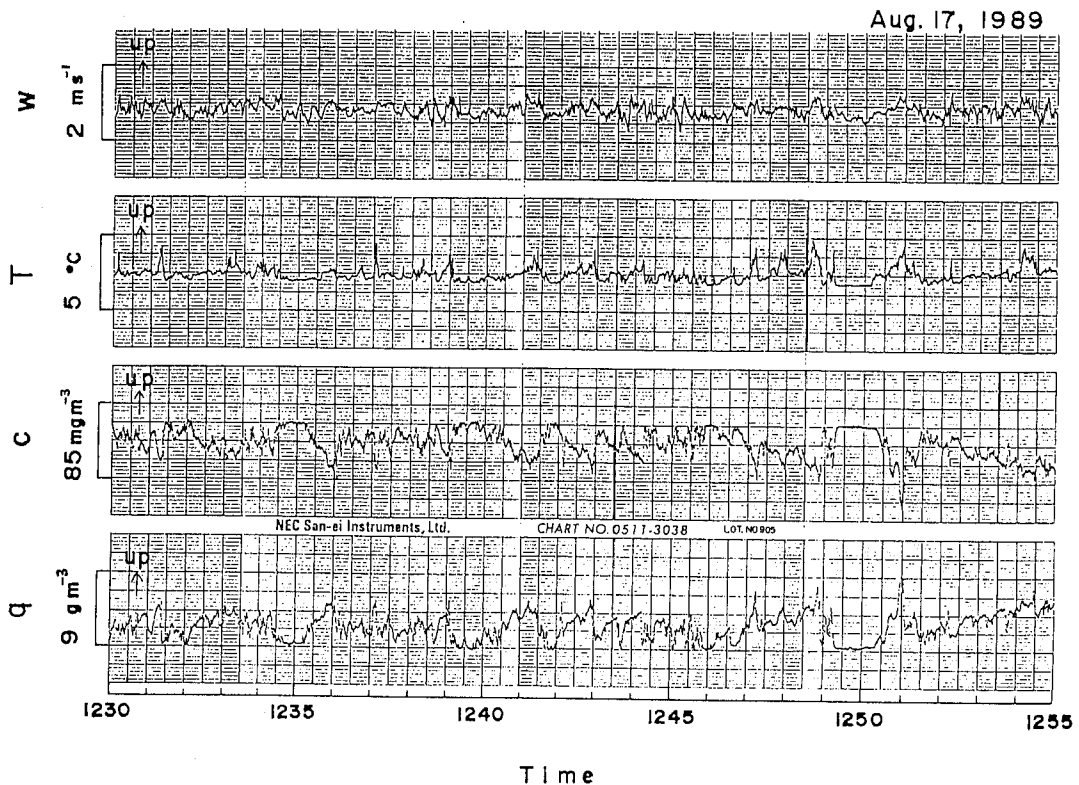


図-3 水稲群落上での炭酸ガス (c)、風速の鉛直成分 (w)、気温 (T)、水蒸気 (q) のモニター記録例

Fig. 3 Typical records of turbulent fluctuations of carbon dioxide (c), vertical wind velocity (w), temperature (T), and water vapor (q), measured over paddy field on August 17, 1989

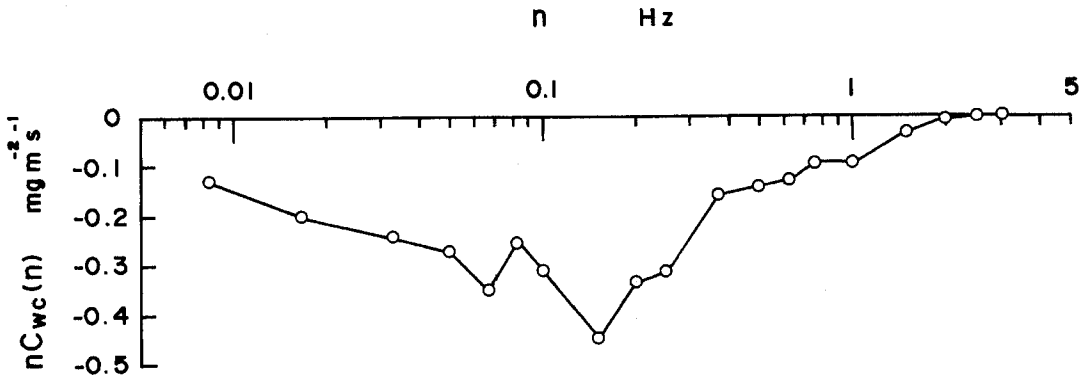


図-4 1989年8月17日12時30分-12時45分に水稻群落上で測定された炭酸ガスと風速の鉛直成分とのコスペクトル

Fig. 4 Cospectral estimate of carbon dioxide and vertical wind velocity over paddy field. Spectral calculation was made using data obtained from 12:30-12:45, August 17, 1989

に示した値を外挿すると、0.002Hz程度である。また、炭酸ガス輸送に寄与している上限の周波数 n_H は 2 Hz 程度である。これらの上、下限周波数の値は、炭酸ガス変動計の必要要件のところでも検討していた周波数の範囲内である。

今回使用した炭酸ガス変動計と超音波風速計は20cmの測定スパンを有しているため、高周波数の炭酸ガスの濃度変動と風速の変動成分は平滑される。この平滑化による影響は、炭酸ガスの場合は Silverman¹⁹⁾が与えた表を使って算出でき、風速の場合は Kaimal 等²⁰⁾が与えた表を使って算出することができる。図4の w と c のコスペクトルでは、高周波領域での過少評価量は約2%であった。この測定誤差は実質的には無視できる大きさであり、炭酸ガス変動計と超音波風速計とを組み合わせ使用すれば、炭酸ガス輸送量がほぼ正しく測定できると考えてよい。

図5は、1989年8月17日から18日にかけて、渦相関法で測定された炭酸ガスの乱流輸送量 (F) と純放射 (Rn)、顕熱 (H)、潜熱 (λE) の時間変化を示している。夜間 F は正で、炭酸ガスが上向きに輸送されていることを示している。観測時には、水田圃場は約10cmの灌漑水で覆われていたため、この上向きの炭酸ガス輸送量は水稻群落の呼吸の強さを示している。日以後、 F は負となり、炭酸ガスが下向きに輸送され、水稻群落に固定されていることを示している。群落が固定する炭酸ガス量は、正午頃最大となり、その値は約 $-1.3 \text{ mgm}^{-2}\text{s}^{-1}$ である。この値は水稻群落の生育ステージで異なる。

昼間、 H は λE と比べると非常に小さく、水稻群落上では、熱が主として潜熱の形で輸送されていることが分かる。 λE は Rn の約50%である。また、正午頃の λE

$= 370 \text{ Wm}^{-2}$ という値は、約 0.5 mmh^{-1} の蒸発散に相当している。 λE が終日正の値を示しているが、これは、圃場が灌漑水で覆われていることによる。

固定される炭酸ガス量は水稻群落の生育ステージによって異なる。図6は、岡山大学農学部附属八浜農場で測定した水稻群落が1日に固定した炭酸ガスの季節変化を示している。固定される炭酸ガス量は、田植後、徐々に増加して、出穂期の8月下旬に最大となる。その値は、 4 mg/cm^2 である。9月以降、固定される炭酸ガス量は急速に低下し、収穫直前の10月下旬にはほとんどゼロとなる。固定される炭酸ガス量の季節変化を考慮すれば、田植から収穫に至るまでに、水稻群落は約28トンの炭酸ガスを固定したことがわかる。

渦相関法で炭酸ガスの輸送量が測定できれば、炭酸ガスに対する拡散係数、 $K_c = \overline{w'c'}/(\Delta C/\Delta z)$ 、を計算することができ、熱や運動量に対する拡散係数 (K_h , K_m) の値と比較することができる。それには、データがたくさん蓄積されている、以下に示す無次元勾配と呼ばれるパラメーターを用いるのが好都合である。

$$\phi_c = (kz/c_*) \cdot (\Delta C/\Delta z)$$

$$\phi_h = (kz/T_*) \cdot (\Delta T/\Delta z)$$

$$\phi_m = (kz/u_*) \cdot (\Delta U/\Delta z)$$

ここで、 k はカルマン定数 (0.4)、 $z = \sqrt{z_1 \cdot z_2}$ は勾配を表す高度である。 u_* , c_* , T_* はスケールパラメーターと呼ばれ、それぞれ次のように定義されている。

$$u_* = \sqrt{-\overline{w'u'}}; c_* = -\overline{w'c'}/u_*; T_* = -\overline{w'T'}/u_*$$

拡散係数と無次元勾配の定義式から次の関係式を得る。

$$K_c/K_h = \phi_h/\phi_c$$

$$K_c/K_m = \phi_m/\phi_c$$

従って、 K_c と K_h あるいは K_c と K_m の関係を知るには

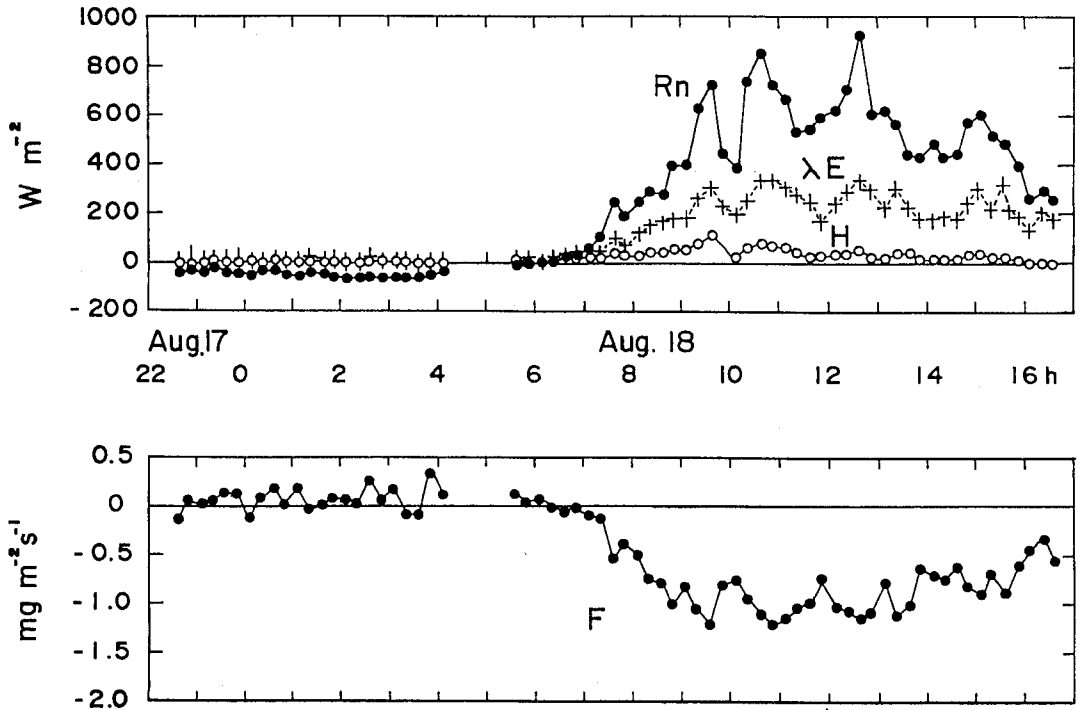


図-5 水稲群落上での炭酸ガス (F), 純放射 (Rn), 顕熱 (H), 潜熱 (λE) 輸送量の時間変化
 Fig. 5 Time variation of vertical fluxes of carbon dioxide (F), latent heat (λE), sensible heat (H), and net radiation (Rn) over paddy field

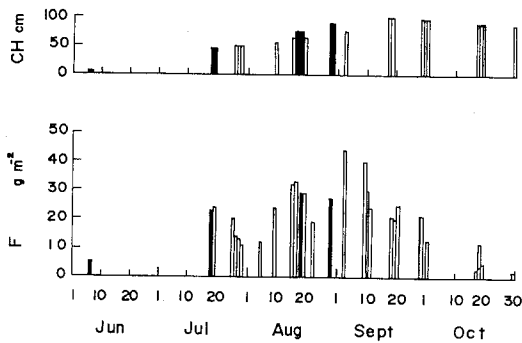


図-6 水稲群落上で測定した1日当りの炭酸ガス固定量と草高の季節変化
 ■ : 1989年の渦相関法による測定値
 □ : 空気力学的傾度法と熱収支法による測定値⁷⁾

Fig. 6 Seasonal variation of daytime flux of carbon dioxide over paddy field, and paddy height. Solid bars indicate data measured by the eddy correlation technique in 1989; open bars indicate data measured aerodynamic and heat balance techniques in 1969

ϕ_c と ϕ_h あるいは ϕ_c と ϕ_m の関係を知ればよい。 ϕ_h と ϕ_m については, Dyer and Hicks は, モニオン・オブコフの大気不安定度のパラメーターを z/L とすると,

$$\phi_h = (1 - 16z/L)^{-1/2}$$

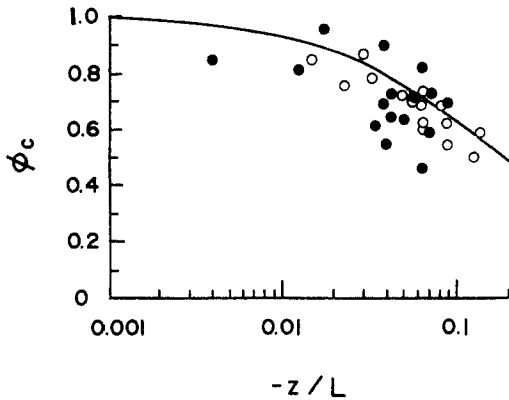
$$\phi_m = (1 - 16z/L)^{-1/4}$$

で表わせることを示した²¹⁾。 ϕ_c と z/L の関係を知るために, 上で示した式から ϕ_c の値を算出し, z/L に対してプロットした(図7)。プロットされた値は, z/L の狭い領域に限られているが, 図中の曲線, $(1 - 16z/L)^{-1/2}$ によく合っている。このことは, 炭酸ガスの無次元勾配が温度の無次元勾配と同じ関数形で表され, 風の無次元勾配とは少し異なった関数関係にあることを意味している。拡散係数の関係に直すと次のように書ける。

$$K_c = K_n$$

$$K_c = (1 - 16z/L)^{1/4} \cdot K_m$$

つまり, 炭酸ガスの拡散係数はスカラー量である熱輸送の拡散係数を使って代用することができるが, ベクトル量である運動量の拡散係数で代用するときには不安定度による補正が必要である。実際の野外観測でよく経験する大気不安定度 $z/L = -1$ の場合には, K_c が K_m の2倍にもなり得ることを示している。



図一七 炭酸ガスの無次元勾配の安定依存性。図中の曲線は安定度の関数 $(1-16z/L)^{-1/2}$ である
 ● : 1982年8月31日—9月1日の水稲群落上での測定値
 ○ : 1982年8月13日のソルガム群落上での測定値

Fig. 7 Non-dimensional gradient ϕ_c for carbon dioxide as a function of the Monin-Obukhov stability parameter z/L . Solid line represents the empirical relationship : $\phi_c = (1 - 16z/L)^{-1/2}$. Solid circles indicate data measured over paddy field on August 31 to September 1, 1982, and open circles indicate data measured over sorghum field of August 13, 1982

4. おわりに

大気中の炭酸ガスの収支を解明する直接的な方法は、炭酸ガスの大気—海洋、大気—植物間の輸送量を測定することである。このような研究目的に応えるために炭酸ガス変動計の開発が行われている。しかし、現在の炭酸ガス変動計は、渦相関法に適用するセンサーとしての必要要件をきろうじて満たしているにすぎない。ドリフトの減少、測定感度の増加等炭酸ガス変動計は改良すべき問題を多く残している。炭酸ガスの乱流輸送量を正確に測るために、上のような基本的な問題の改善はもとより、大気の流れ場を乱さない、全天候型の炭酸ガス変動計の完成をめざして努力していきたい。

参考文献

1) Huber, B.: Registrierung des CO_2 -Gefälles und Berechnung des CO_2 -Stromes über Pflanzengesellschaften mittels Ultrarot-Absorptionsschreiber. Ber.

- Dtsch. Bot. Ges., **63**, 52—63 (1950).
- 2) 井上栄一, 谷 信輝, 今井和彦, 磯部誠之: 麦畑における炭素同化作用の空気力学的測定, 農業気象, **13**, 121—125 (1958).
- 3) Lemon, E.R.: Photosynthesis under field conditions. II. An aerodynamic method for determining the turbulent carbon dioxide exchange between the atmosphere and a corn field. Agron. J., **52**, 697—703 (1960).
- 4) Monteith, J.L.: Measurement and interpretation of carbon dioxide fluxes in the field. Neth. J. Agric. Sci., **10**, 334—346 (1962).
- 5) Yabuki, K. and Aoki, M.: The effect of wind speed on the photosynthesis of rice field. Monsi, M. and Saeki, T. (ed.) *Ecophysiology of photosynthetic productivity*, Univ. Tokyo Press, 152—159 (1978)
- 6) Monteith, J.L. and Szeicz, G.: The carbon dioxide flux over a field of sugar beet. Quart. J. Roy. Met. Soc., **86**, 205—214 (1960).
- 7) Seo, T. and Ohtaki, E.: Atmospheric flux of carbon dioxide over paddy fields estimated by heat balance approach. Ber. Ohara Inst. landw. Biol. Okayama Univ., **16**, 79—92 (1974).
- 8) Uchijima, Z. and Udagawa, T.: Carbon dioxide environment and CO_2 -transport above and within crop canopies — Measurements and simulation —. Monsi, M. and Saeki, T. (ed.) *Ecophysiology of photosynthetic productivity*, Univ. Tokyo Press, 129—139 (1978).
- 9) Inoue, E.: Turbulent fluctuations in atmospheric CO_2 concentration over the vegetated fields. Yoshida, K. (ed.) *Studies on Oceanography*, Univ. Tokyo Press, 232—237 (1964).
- 10) Mitsuta, Y.: Sonic anemometer-thermometer for general use. J. Met. Soc. Japan, **44**, 12—24 (1966).
- 11) Desjardins, R.L. and Lemon, E.R.: Limitations of an eddy-correlation technique for the determination of the carbon dioxide and sensible heat fluxes. Boundary-Layer Met., **5**, 475—488 (1974).
- 12) Ohtaki, E. and Matsui, T.: Infrared device for simultaneous measurement of carbon dioxide and water vapor. Boundary-Layer Met., **24**, 109—119 (1982).
- 13) Brach, E.J., Desjardins, R.L. and StAmour, G.T.: Open path CO_2 analyser. J. Phys. E. Sci. Instrum., **14**, 1415—1419 (1981).

- 14) Anderson, D.E., Verma, S.B. and Rosenberg, N.J. : Eddy correlation measurements of CO₂, latent heat and sensible heat fluxes over a crop surface. *Boundary-Layer Met.*, **29**, 263—272 (1984).
- 15) Elagina, L.G. and Lazarev, A.I. : Measurements of the frequency spectra of turbulent CO₂ fluctuations in the atmospheric surface layer. *Izvestiya, Atmos. and Ocean. Phys.*, **20**, 502—506 (1984).
- 16) Ohtaki, E. and Seo, T. : Measurement of gradient of carbon dioxide and estimation of its flux over a paddy field (1). *Ber. Ohara Inst. landw. Biol. Okayama Univ.*, **15**, 89—110 (1972).
- 17) Dyer, A.J., Hicks, B.B. and King, K.M. : The fluxatron — A revised approach to the measurement of eddy fluxes in the lower atmosphere —. *J. Appl. Met.*, **6**, 408—413 (1967).
- 18) Kaimal, J.C. and Businger, J.A. : Case studies of a convective plume and a dust devil. *J. Appl. Met.*, **9**, 612—620 (1970).
- 19) Silverman, B.A. : The effect of spatial averaging on spectrum estimation. *J. Appl. Met.*, **7**, 168—172 (1968).
- 20) Kaimal, J.C., Wyngaard, J.C. and Haugen, D.A. : Deriving power spectra from a three-component sonic anemometer. *J. Appl. Met.*, **7**, 827—837 (1968).
- 21) Dyer, A.J. and Hicks, B.B. : Flux-gradient relationships in the constant flux layer. *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, **96**, 715—721 (1970).

(受稿年月日1991年12月2日)

報 文

水田土壌中における CO₂ と CH₄ の動態
— 大気へのフラックス —

木村 眞人・村瀬 潤

Dynamics of CO₂ and CH₄ in Paddy Soils and Their Fluxes to the Atmosphere

Makoto KIMURA and Jun MURASE
School of Agriculture, Nagoya University

Summary

The earth warming is now one of the most serious environmental problems. Of all the greenhouse gases, carbon dioxide (CO₂), methane (CH₄), and nitrous oxide (N₂O) are deeply related to agriculture. Methane is emitted from paddy fields, and nitrous oxide from upland fields according to fertilizer application, respectively. As is well known, paddy fields are one of the most important sources of methane fluxes. Hitherto, studies on methane fluxes from paddy fields have mainly focused on their quantitative estimation, while production and movement of methane in paddy soils have not been major concern among researchers.

Paddy soils are microbially dynamic environment, in which carbon dioxide and methane are produced and emitted through various processes. In this paper, the processes involved in the production and movement of carbon dioxide and methane in paddy soils were reviewed with special consideration to chemical properties of these two gases and the role of percolation water on their fates in paddy soils.

Key words : Paddy soil, Methane, Carbon dioxide, Soil microorganisms, Rice plant, Water management, Midsummer drainage

(Soil Phys. Cond. Plant Growth, Jpn., 65, 11-20, 1992)

1. はじめに

現在地球温暖化が深刻な社会問題を引き起こしているが、その温室効果ガスのうち農業との係わりの深いのは、二酸化炭素 (CO₂)、メタン (CH₄)、亜酸化窒素 (N₂O) の3つである。水田では特にメタンが、また畑では施肥に伴う N₂O が問題とされている。メタンの大気中の濃度は現在約1.65ppm と一見低いが、温室効果への寄与率は約15~20%と二酸化炭素に次いで大きい^{1,2)}。しかもその濃度上昇率が毎年約1%と他の温室効果ガスに比較して高いことが注目される。³⁻⁸⁾ このメタンの発生源としては、水田が最も大きく、全発生量の約15~20%と見積られている (表1) ⁹⁻²²⁾。

ところで、これまで水田からのメタンフラックスに関

する研究は、その量的把握に重点が置かれ、水田土壌中の生成とその後の動態に関しては余り関心が払われてこなかったように思われる。しかし、水田は、以下に述べるように微生物環境としてダイナミックな環境であり、メタンが生成されてから大気へ放出されるまでに、さまざまな過程を経由する。

以下、二酸化炭素とメタンを対比させつつ、水田土壌各部位の特徴に考慮を払い、その生成とその後の動態につき概説する。

2. CO₂, CH₄の生成・移行によって水田土壌とはどのような環境か?

水田土壌から大気へのCO₂, CH₄のフラックスを考える場合、3つの点を考慮することが重要である。要約するならば、

① 土壌中の炭素は大部分が有機物の形態で存在し、微生物の分解にともなってCO₂, CH₄が生成する。水田

名古屋大学農学部 〒464-01 名古屋市千種区不老町

キーワード: 水田土壌, メタン, 二酸化炭素, 土壌微生物, 水稲, フラックス, 水管理, 中干し

における CO₂, CH₄の動態を考える場合、まず土壌微生物による有機物の分解を考慮することが肝要である。

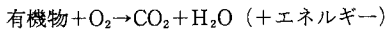
② この微生物分解は主に作土還元層で進行し、この層の上には作土酸化層、田面水が、下には心土層が位置し、いずれも酸化的環境である。また、水稻はこの作土還元層に根を張っており、これら気体の大気へのフラックスに大きな影響を及ぼしている。

③ 水稻は、作土還元層に根を伸長させている。根は単に養分を吸収するばかりでなく、同時に CO₂, 各種有機物を根圏土壌に供給している。

その結果、水田土壌中における CO₂, CH₄の生成とその後の動態、大気へのフラックスは、極めてダイナミックな挙動を示す。

3. CO₂, CH₄の生成

水田土壌が畑や草地の土壌と異なる特徴は、土壌が還元状態を呈することである。この還元状態は土壌中に生息する微生物の活動によりもたらされる。



この式は通常の有機物分解を示したもので、微生物は有機物を酸化分解し、この過程で生成したエネルギーを利用し増殖する。酸素は有機物の酸化剤であり、酸素自身は電子 (e⁻) を受け取り CO₂, H₂O に還元される。しかし作土還元層は有機物量に比べ溶存酸素の量が極めて少なく、湛水後速やかに酸素は消失する。そこで微生物は酸素の代わりに、別の物質を酸化剤として利用する。酸素の消失後、O₂ → NO₃⁻ → MnO₂ → Fe(OH)₃ → SO₄²⁻ → CO₂の順に逐次的にこれらの物質を利用・還元し、還元生成物である N₂, Mn²⁺, Fe²⁺, S²⁻, CH₄が集積する。この一連の逐次還元反応にともなって酸化還元電位 (E_h) は低下する。メタンが最も還元した環境で生成するのに

対し、炭酸ガスは微生物の活動にともなって絶えず生成している²³⁾。

なお微生物は種類により利用する酸化剤を異にする。表 2 に示すように、硝酸の消失、窒素ガスの生成は脱窒菌と呼ばれる一群の微生物によって、Mn²⁺, Fe²⁺の生成は微生物の代謝生産物による間接的または直接的還元により行われる。ここまでの還元は第 1 段階の好氣的・半嫌氣的分解過程であり、主に好気性菌や条件的嫌気性菌により行われる。ついで、絶対嫌気性菌による第 2 段階の硫酸還元、メタン生成が進行し、酸化還元電位は -200 mV 以下の低い値に達する。有機物の分解にともなって、硫酸還元の前段階までは、絶えず CO₂ が生成し、最後のメタン生成の前段階ではじめて CH₄ が生成する²³⁾。

従って、土壌が“肥沃”で有機物に富む土壌ほど、また有機質肥料を施用した場合、メタン生成量が増加する。特に、稲ワラや刈株・残根は堆肥に比べメタン発生を著しく増加させることが明らかにされている^{16,18,24)}。また、

表一 各種発生源からのメタン発生量 (10⁶ト 炭素/年: Bouwman, 1990)

水田	60-140
低湿地	60-160
埋立地	30-70
海洋、湖沼その他(生物起源)	15-35
反うす動物腸内	66-90
シロアリ	2-42
天然ガス採掘	30-40
石炭採掘	35
木材の燃焼	55-100
その他(非生物起源)	1-2
合計	337-714

表二 湛水土壌中の還元過程と微生物代謝

湛水後の経過日数	物質変化	反応の起る土壌E _h , V.	CO ₂ 生成	微生物の代謝形式	有機物の分解形式
初期	分子状酸素の消失	+0.6 ~ +0.3	活発に進行する	酸素呼吸	好氣的半嫌氣的分解過程
	硝酸の消失	+0.4 ~ +0.1		亜硝酸型および脱窒型の硝酸還元	
	Mn(II)の生成	+0.4 ~ -0.1		Mn(IV, III)の還元	
	Fe(II)の生成	+0.2 ~ -0.2		Fe(III)の還元	
	S(II)の生成	0 ~ -0.2		硫酸還元	
後期	CH ₄ の生成	-0.2 ~ -0.3	緩慢に生成するか、停滞ないし減少する	メタン発酵	嫌氣的分解過程

水田土壌からのメタン発生においては、水稻根の枯死体、根からの分泌物が重要なメタンの起源であることは、以下に述べる通りである¹⁷⁾。

ところで、酸化剤は NO₃⁻ を除き、大気に曝されると、再度酸化状態となり、再生が可能である。他方、有機物は分解に伴い減少する。そこで、この酸化剤の再生能力を利用し、水田土壌の Eh を高く維持しようとする技術が、中干しであり、間断灌漑である。

4. 各種有機物のメタン生成への寄与率とその時期

表3はこれまで世界各地で観測された1作期間に水田から発生するメタン量の推定値を示したものである¹⁹⁾。ところで、水田土壌における有機物の起源としては、土壌有機物、稲ワラなどの植物遺体、堆肥などの施用有機物、さらに水稻根から供給される各種有機物が挙げられる。そこで上記4者のいずれが主要なメタンの給源であるかを考えてみる。

1) 土壌有機物由来メタンの生成量推定

土壌有機物の分解に伴うメタン生成量を直接測定したデータはほとんどない。他方、土壌有機物の分解にともなって生成するアンモニア量に関する研究は膨大である。そこで、アンモニア生成量からメタン生成量を推定した(表4)。推定方法の詳細は省略するが以下の順序で求め

たものである。

a) 土壌の化学性(全窒素含量, 遊離鉄含量など)から窒素無機化量を推定²⁵⁾

b) 各地の温度, 稲作期間を考慮し現地窒素無機化量を計算²⁵⁻²⁷⁾

c) 無機化窒素量に係数を掛け無機化炭素量を推定²⁸⁾

d) 無機化炭素中にしめるメタンの割合を算出²⁹⁾

e) 各土壌につき同一の土壌統分布面積を積算²⁹⁾

f) 各地より発生するメタン生成量推定

表4の推計には、全国地力基本調査事業の総合成績書に記載されている全国3343地点の水田土壌の性質、同一土壌統の分布面積を利用した。なお、本推定値は土壌が湛水状態で維持され、外部から空気の更新のない場合の結果であり、メタン生成量の最大値を示すものである³⁰⁾。

全国の水田から土壌有機物の分解にともなって1.1×10⁴トンのメタンが生成し、単位面積あたりのメタン生成量は南の地方ほど多くなると推察された。また、表4に示したメタン生成量は表3に示した値の1/5以下であり、メタンの主要な起源が他の形態の有機物に由来すると判断された。

2) 稲ワラ施用にともなうメタンフラックス

表5は水田土壌に稲ワラを施用し、稲作期間に土壌から大気中へ放出される炭酸ガス、メタンさらに田面水中

表-3 1作期間に水田土壌より発生するメタン量 (Bouwman, 1990)

発生速度 g(CH ₄ m ⁻² d ⁻¹)	年間発生量 (gm ⁻² y ⁻¹)	施肥量
	210	
0.15-0.18	42	140kg硫安
0.22-0.28	25	元肥220kgリン安+硫安(16-20-0) 追肥113kg尿素
0.1	12	160kgN(元肥)+ 40kgN(追肥)硫安
0.2-0.58	54	各種処理/無肥料含む
0.15-0.42	36.3	記載無し
8×10 ⁻³ -8×10 ⁻⁴	7	
0.16-0.38	17-42	無肥料, 4年間
0.47-0.60	53-68	6-12トン稲ワラ+200kgN尿素/硫安
0.1-0.3	35	石灰窒素
0.12-0.15	14-16	200kgN硫安
0.18-0.21	19-22	100/50kgN硫安
0.19-0.38	21-42	100-200kgN尿素
0.23-0.68	24-77	3-12トン稲ワラ

表-4 日本各地水田より発生するメタン量

地方	メタン発生量	
	gCm ⁻² y ⁻¹	10 ³ トン炭素
東北	2.4~2.7	1.3~1.5
関東	3.4~3.7	1.7~1.8
北陸	3.0~3.1	0.73~0.75
東海	3.7~3.8	0.69~0.72
近畿	4.0~4.4	0.77~0.83
中国・四国	5.2~5.4	1.7~1.8
九州	4.6~4.8	1.4~1.5
	(平均) 3.7~3.8	(合計) 8.5~8.7

北海道はデータ不足のため推定より除外した。

表-5 施用稲ワラ炭素の分解

(伊藤・飯村, 1989)

処理区	施用C量	CO ₂ -C	CH ₄ -C	溶液中C
小量区*	6.07g	2.79g	0.59g	0.76g
中量区	12.18	5.03	1.70	1.32
多量区	20.28	6.73	3.79	1.44

*10 a 当たり稲ワラ300kg, 600kg, 1000kg施用に相当

に溶存する炭酸ガス量を測定したものである。水稻体は含まれず、無作付土壌からの放出量である³¹⁾。施用した稲ワラ炭素の10~19%がメタンとなって大気に放出されその割合は施用量の増加にともない増大していた。この量は10アール当たり10~69kgのメタン (CH₄-C) に相当し、表3に示すメタンフラックスの範囲内に入る。植物遺体の寄与の大きいことが推察される。なお、この実験において稲ワラ無添加区ではメタンの生成がほとんど見られず、先の土壌有機物の寄与の少ないとする推定を支持するものであった。

3) 堆肥施用にともなうメタンフラックス

図1は施肥の種類を異にする4つの処理区を設けて水稻をポット栽培し、経時的に水稻体を通して大気に放出されるメタンフラックスを測定したものである²⁴⁾。本図では出穂期を境として、その前後のメタンフラックス総量を示した。測定期間は出穂期前後の約40日間である。

前期におけるメタンフラックスは、稲ワラ添加区で著しく多く、堆肥区を含む他の区間ではいずれもわずかで処理区間で顕著な相違が認められなかった。他方後期には無肥料区を除くいずれの区からも多量のメタンフラックスが観察され、大局的には稲ワラ添加区を含む各区間のフラックスは類似したものであった。

本実験の結果から、生育前期(出穂期前)のメタンフラックスは一般に少なく、出穂期以降にその大半が発生すると言える。また、施肥の種類や土壌の種類とその来歴(化学肥料、稲ワラ連用)の影響は、生育前期に主に反映し、特に稲ワラの直接還元は水田からのメタンフラックスを著しく増大させた。しかし、堆肥を施用した場合には化学肥料区よりやや多い程度で大差の無い値であった。ところで、堆肥として土壌に投入される有機物量は、土壌に本来存在する有機物量の10%以下であり、その分解が緩慢であることから、施用にともなうメタン生成量の増加はそれほど多くないと推論された³²⁾。

4) 水稻根の供給する有機物に由来するメタンフラックス

図1において、生育後期の多量のメタンフラックスが、化学肥料区と他の有機物施用区との間で互いに類似していたことより、水稻根に由来する有機物を基質とするメタンフラックスと推察された。本実験において、水稻体の発達の悪い無肥料区でのみ、生育後期のメタンフラックスが低い値に留まっていたこと、Texasの水田においてメタンフラックスと水稻根量の高い相関関係のあることが観察されたこと¹⁷⁾も、この推察を支持していると考えられる。

水田に直接ワラを施用することは希であり、本結果から水稻根に由来する有機物がもっとも大きなメタンフラ

ックスの起源と言えるであろう。

ところで、農業研究センター旧鴻巣試験地の水田圃場で行なった試算によると、水稻根から供給される有機物量は、当圃場に供給される全有機物量の約11~13%に相当していた³²⁾。この値は、一見それ程大きな値とはいえないが、その供給部位が根周辺であり、しかも水稻生育時期に相当することから、上述のようなメタンフラックスの起源として大きな意義を有していたのであろう。

5. CO₂, CH₄の大気, 心土へのフラックス

水稻根圏において生成したCO₂, CH₄のその後の移動は、これら気体の土壌への溶解度の違いから異なった挙動を示す。

1) CO₂の大気中へのフラックス

根圏土壌中のCO₂は一部水稻により経根的に吸収され速やかに地上部へと移行する。その際一部は大気中に排出されるが、残りは体内を移行中に光合成の基質として利用される。

和田らが、長野土壌を用いて水稻をポット栽培し、移植後40日目の根圏土壌に¹⁴CでラベルしたNaHCO₃を注入しその後の¹⁴Cの分布を調べたところ、地上部へ移行した¹⁴Cのうち、明条件下では約70%が地上部に取り込まれ

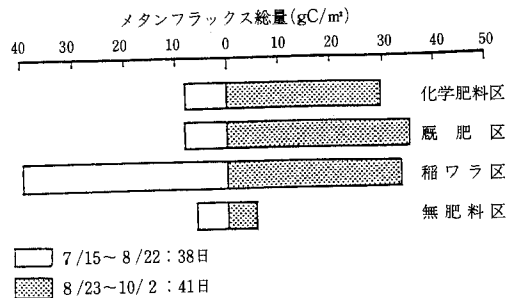


図-1 メタンフラックス総量の比較

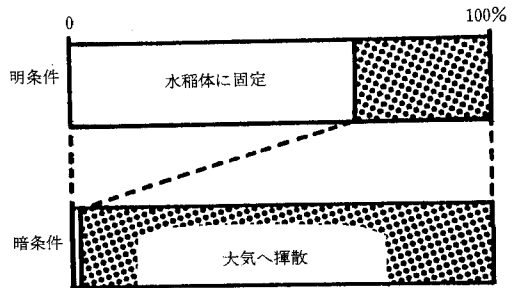


図-2 水稻根圏に注入したNaH¹⁴CO₃の水稻による根上部への移行に対する光の影響

暗条件下ではほぼ全量が大気中に排出されていた（図2）³³⁾。

また、水耕栽培した登熟期の水稻を用いて調べられたこの CO₂ の移行速度は³H (³H₂O) を用いて測定した水分吸収速度にほぼ等しいこと、導管内の溶液の pH が 5.7 程度であることから、H₂CO₃ の形態で蒸散流に伴い地上部へと移行したものと推察された³⁴⁾。また、同様に水耕栽培した最高分けつ期の水稻の場合には CO₂ 吸収速度の方が水吸収速度よりも早い結果が得られており、CO₂ の積極的吸収が推察されている³⁵⁾。

一方樋口らは、¹⁴CO₂ で飽和した水耕液で生育させた水稻を図3のように水中において根の節近くで切断し、根から発生してきた気泡を採取し分析したところ、¹⁴CO₂ が検出された。さらに、水中で節の根元から空気を注入すると葉鞘の向軸側から気泡が漏れてくる現象を認め、これらの結果をもとに CO₂ が細胞間隙、破生間隙をガス状で移行すると推察した^{36,37)}。

2) CO₂ の下方へのフラックス

他方、土壤中に残った CO₂ は主に HCO₃⁻ として浸透水の下降に伴い下層へと運ばれる。水稻根は作土からの CO₂ の溶脱量を変化させることが知られている。

図4は異なる量の乾燥稲わらを添加した長野土壤に水稻を作付した区と、無作付の区を設け、25℃ または 30℃ でポット栽培し、ポットの下部から採取した浸透水中に

含まれる炭酸量を経時的に測定したものである。

無作付区では稲わら添加量の増加や温度が高くなるにつれて、浸透水中の炭酸量 (Σ CO₂, HCO₃⁻) が増加したのに対し、水稻作付区ではそのような傾向は明らかでなかった。水稻の栽培は、水稻生育初期や有機物含量が少なく還元状態の発達しにくい土壤では Σ CO₂ (HCO₃⁻) の溶脱を促進させ、同時に対イオンとして Fe²⁺ や各種陽イオンの溶脱も促進していた。他方還元状態が発達しや

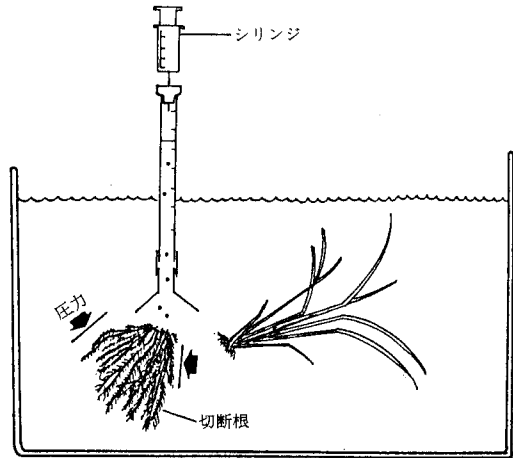


図-3 植物根からのガス採取法

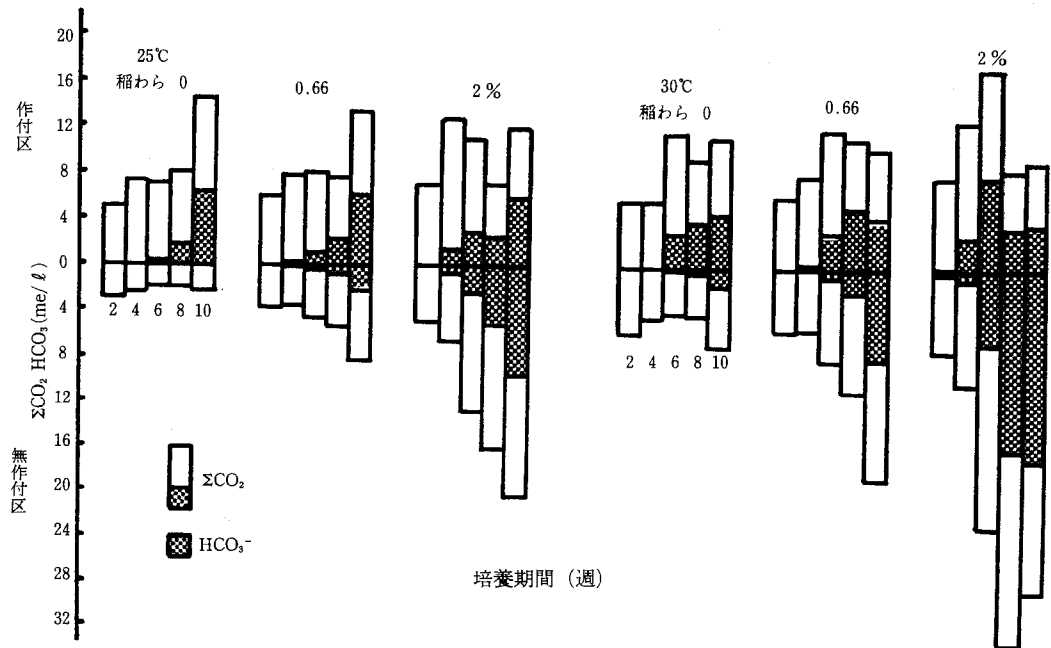


図-4 CO₂ および HCO₃⁻ の溶脱におよぼす温度および稲わら添加の影響

すい土壤では、 ΣCO_2 (HCO_3^-) の溶脱を湛水前期には促進したが、湛水後期には抑制する傾向を示した³⁸⁻⁴⁰⁾。このように、水稻根はその根圏環境を“一定環境”に維持する緩衝能力を有しており、土壤の有機物含量、温度の相違に関わらず、ほぼ一定の ΣCO_2 を土壤水中に溶存させていると考えられた。

3) メタンの大気へのフラックス

近年、メタンの発生源である水田圃場からの発生量推定・季節変動が活発に研究され、その主要な経路が水稻体であることを Cicerone and Shetter が初めて見出した^{11,41)}。これに対し土壤中から直接大気へと気泡や拡散で運ばれるメタン量はフラックス全量の1割にも満たないものと考えられている^{12,16,41-44)}。

Seiler ら (図5)¹²⁾は、水稻地上部を田面水下で切除すると (△のプロットC) メタン発生量が切除しない場合 (■のプロットA) に比べて著しく低下し、無作付区 (●のプロットD) とほぼ等しい低い値になるのに対し、水面より上で切除した場合 (○のプロットB) には、切除しない場合とメタンフラックスに差異が認められなくなるのを見いだした。このようにメタンの土壤からのフラックスが、茎葉の有無によらずほぼ同量であったことより、メタンの水稻体内の移行が蒸散流に乗っての移行ではなく、破生間隙を通しての拡散による移行であると推察されている。

そこで、分けつ期の水稻根が、若く破生間隙の発達も未熟な根と、成熟し十分破生間隙の発達した根から構成されていることに注目し、この時期の2つの水稻作付ポットを実験に供試した⁵⁰⁾。まず、地上部を水面上で切除した水稻体からの CH_4 発生量を測定し、ついで葉鞘の半数

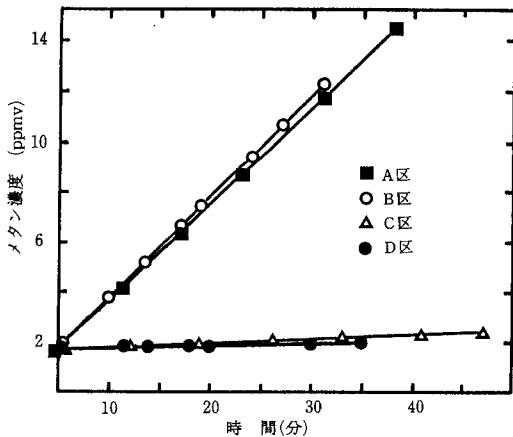


図-5 水田からのメタンの移行経路
 A区：作付 B区：水面上5cmで切断
 C区：水田下5cmで切断 D区：無作付

を若いものから順に水面下でさらに切除し古い葉鞘のみを水面上に残したポットと、反対に葉鞘の半数を古いものから順に水面下でさらに切除したポットからのメタンフラックスを測定した (図6)。その結果、若い葉鞘だけを水面上に残したポットでは初めのメタンフラックスの半量以下にまで低下したのに対し、古い葉鞘を残したポットでは初めのフラックスと差異が認められなかった。従って、根圏で生成したメタンの地上部への主要な移行経路は破生間隙の発達した成熟根とそれにつながる葉鞘であると判断された。

4) 透水によるメタンの心土への移行

Yagi らは透水によりメタンの大気へのフラックスが顕著な減少を示すことを見だし、この原因が透水に伴う土壤 Eh の上昇の結果と推察している⁴⁹⁾。

透水は溶存酸素を土壤中に運び込むとともに、土壤中の水溶性物質—微生物の基質となる易分解性有機物と微生物の生育を阻害する代謝生産物より構成—を溶脱する。従って、易分解性有機物が多量に供給されている条件下では、透水によって除かれる基質の量は土壤からの供給量に比べて比較的少なく、むしろ生育阻害因子の除去作用が効いて、透水により有機物の分解が促進され、土壤 Eh が低下する。一方、易分解性有機物の供給が乏しい条件下では、溶存酸素の侵入と基質の溶脱除去の作

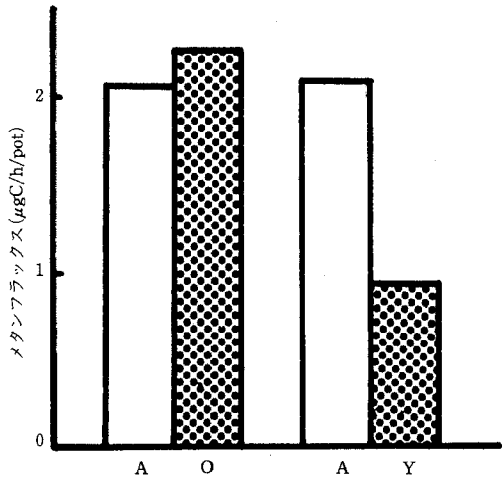


図-6 水稻茎の主要メタン発生経路 (2つのポットを供試)
 A：全ての水稻茎は水面上 (第1回測定)
 O：若い茎をさらに水面下で切除 (第2回測定：左ポット)
 Y：古い茎をさらに水面下で切除 (第2回測定：右ポット)

用が強く効いて、逆に土壌 Eh の上昇を招く⁴⁶⁾。

我々が稲ワラを添加した土壌に水稻を作付し、浸透速度を0, 5, 15mm/日とする3区を設け、水稻体を通してのメタンフラックスを測定したところ、図7にすように区間で差異が認められなかった⁴⁹⁾。このように、土壌の種類(主に土壌有機物含量)の違いにより、メタンフラックスに対する透水の影響は異なる。

ところで、浸透に伴う土壌水の流下は、溶存したメタンを心土へと運搬する。図7に、浸透水中の溶存メタン量の測定結果も合わせ示した。大気へのメタンフラックスの結果とは異なり、浸透速度の上昇にともない心土へ運ばれるメタンの量は増加した。

この心土へのメタンの移行は生育時期に伴って変化し、水稻移植直後は、水根の発達が不十分であること、添加稲ワラの分解が活発なため、浸透水中に飽和量のメタンが観察された(土壌中に気泡が生成していることが観察されており、この気泡のメタン分圧を約0.9気圧と推察)。その後、水稻の生育にともない、土壌中のメタンは主に水稻体を通して大気へと運ばれ、浸透水中のメタン量は減少した。特に、根の供給する有機物がメタンの主要な給源となる生育後期には、心土へ移行するメタンはごく少量であった。しかし、9月に入り根の老化・枯死が顕著となり、また気温も低下すると、大気へのメタンフラックスが減少し、反対に心土へのフラックスが再び増大した。また、生育全期間を通してのメタンフラックスのうち、大気へのフラックスは浸透速度0, 5, 15mm/日の区においてそれぞれポット当たり2730, 2500, 2650mg炭素と区間でほとんど差が認められなかったのに対し、心土への移行量は0, 71, 251mg炭素/ポット(0, 3.5, 12.5g/m²)と浸透速度の増加にともなって増大した。その結果、浸透速度が0, 5, 15mm/日の区における心土へのメタンの移行は、大気へのそれぞれのそれぞれ0, 2.8, 9.5%

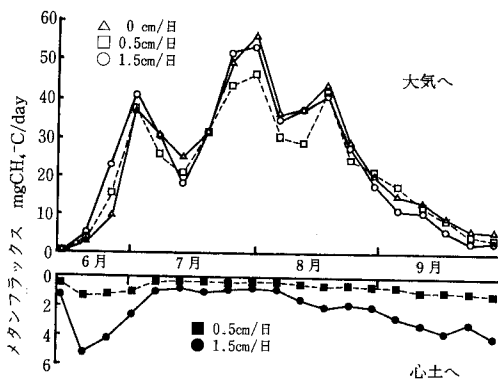


図-7 透水がメタンの大気および心土層への移行におよぼす影響

に相当していた。

CH_4 は土壌水への溶解度が CO_2 に比べ1/100以下(pH=7.0)と少なく、湛水土壌中では気泡状態で存在し、下層への浸透はほとんど無いものとこれまで推察されてきた。しかし、浸透速度が10mm/日の条件下では、100日間に心土へと運ばれるメタンの総量はメタン分圧が1気圧の場合、飽和条件下では約16g/m²(25°C)に達する。この量は、表3に示した水田からのメタンフラックスの数割に相当し、浸透にともない心土へのメタンフラックスの重要性が再認識されるであろう。

なお、メタン生成の抑制のための水管理としては、中干しがもっとも効果的である²⁴⁾。また、中干し以降になされる間断灌漑もメタン生成を顕著に抑制しているものと考えられる。

6. 大気への CH_4 フラックスに及ぼす各種肥培管理の影響

CH_4 の大気へのフラックスは、土壌中での CH_4 生成量と、その後の移行の結果と言える。3.で述べたように、メタンの作土中での生成量は有機物量と酸化剤の量により決まり、①施肥^{11,13,16,18,24,41)}、②土壌の種類^{17,18,24,44)}、③土壌のこれまでの来歴²⁴⁾、④生育温度^{13,16-18,44,47)}、などがその生成に影響を及ぼすことがこれまでの研究で明らかにされている。施肥は、水稻体を増加させ、根からの有機物供給量を増大させる結果、大気への CH_4 フラックスを増加させた¹⁷⁾。

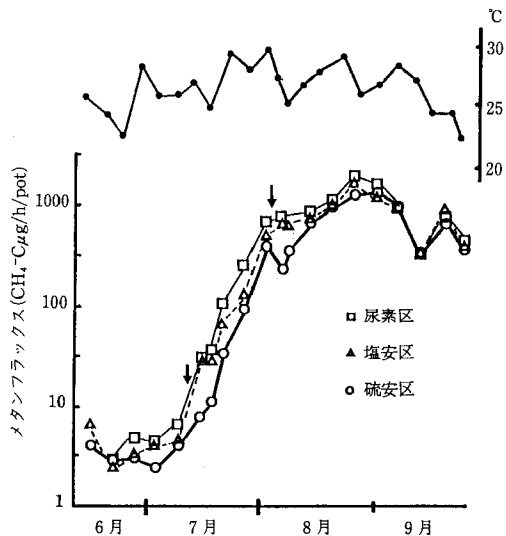


図-8 メタンフラックスにおよぼす施肥窒素の種類の影響(矢印は追肥時期を示す)

表一六 異なる窒素肥料を追肥した水田土壌から発生したメタン総量

	(mgCH ₄ -C/pot)		
	硫安区	塩安区	尿素区
土壌表面散布	1,103(100*)	1,136(112)	1,320(130)
葉面散布	557(55)	451(45)	1,056(104)

測定期間：1991年6月8日(移植日)～9月25日(収穫日), 109日間

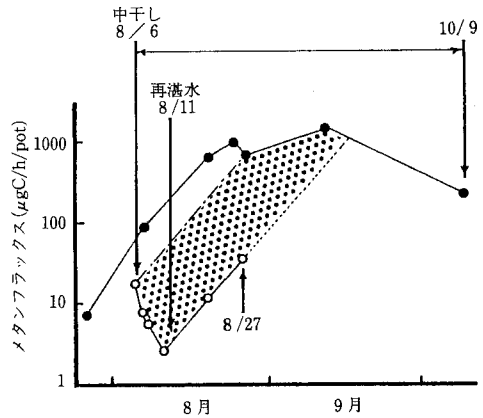
*：硫安土壌表面散布区に対する相対値

ここでは、施肥の種類と施肥法、中干しの影響を取り上げ、営農行為がメタンフラックスにいかに関連しているか、その一端を示すことにする。

1) 施肥と施肥法の影響

農業現場ではさまざまな窒素質肥料が使用されており、その中でも硫安、塩安、尿素は最もポピュラーな肥料である。そこで、これら肥料を用いて水稻をポット栽培し、メタンフラックスに及ぼす施肥窒素の種類の影響を検討した(図8)⁴⁸⁾。生育期間中基肥と2回の追肥を行ったが、1回目の追肥までは3区でほとんど差異がなく低い発生量であった。しかし、2回の追肥の結果、移植期から刈取り期までに測定されたメタンフラックスの総量は硫安、塩安、尿素区でそれぞれ1010、1140、1320mg炭素であり、尿素区は硫安区に比べ30%多くメタンが発生していた(表6)。尿素に比べて硫安施肥によるメタンフラックスの減少はイタリアの水田においても同様に観察されている¹⁶⁾。なお、追肥によるメタンフラックスの減少は追肥直後に特に顕著であり、追肥直前の1/10以下にまで低下する場合も観察されているほどである¹⁶⁾。

メタンの発生量は、施肥法によっても大きく相違する。同じ日に土壌表面ではなく、葉面に散布した場合、表6に示すように、メタンフラックスは著しく抑制され、その効果は硫安で顕著であった。塩安の場合も抑制効果が顕著であったが、葉面散布により葉身に'肥料焼け'の症状が観察され、生育が阻害されたこともメタンフラックスが低下した一因と判断された。生育期間中のメタンフラックス総量は硫安、塩安、尿素区でそれぞれ560、450、1060mg炭素を記録し、硫安を土壌表面に散布した場合に比べ、硫安葉面散布区では45%抑制されていた。基肥の施用方法の影響に関し、施用する肥料をそれぞれ表面施用、表層土壌に混和して施用、深層へ施用し、メタンフラックスを比較したところ、深層施用>表層土壌へ施用>表面施用、の順にメタンフラックスは抑制されることが見いだされている¹⁶⁾。



図一九 メタン発生におよぼす中干しの影響
○ 中干し区 ● 対照区(常時湛水)
図中斜線部分は中干しによるメタンフラックス量の減少を示す

2) 中干しの影響

図9は、湛水状態でポット栽培した水稻を8月6日から5日間中干しし、その後湛水状態に戻した場合、常時湛水状態で栽培した場合に比べ大気へのメタンフラックスがどの程度減少するかを調査したものである。図から明らかなように、常時湛水区ではメタンフラックスが8月から上昇し、10月にかけて高い値を維持したのに対し、中干し区では8月27日まで低い値に留まっていた。その結果、図中斜線で示した領域を中干しによるメタンフラックスの減少量と仮定し(中干し区の測定は8月27日で中止)、8月6日から10月9日までのメタンフラックスを求めたところ、中干しによる減少量は約50%と計算された²⁴⁾。従って、3. で述べたように、わずか5日間の中干しによる'酸化剤の再生'は、土壌のEhを上昇させ、その結果顕著なメタンフラックスの減少をもたらすことが明らかとなった。

以上、水田土壌中におけるCO₂、CH₄の動態を述べた。水田土壌から大気へのこれら気体のフラックスは決して単純ではなく、極めて多くの過程がその背後で進行している。このことは、CH₄フラックスを制御することが容易でないことを示唆するものであるが、他方制御に際してさまざまな方策が考えられることを暗示するものといえるであろう。

引用文献

- 1) Hansen, J., Fung, I., Lacis, A., Rind, D., Lebedeff, S., Ruedy, R., and Russell, G. : Climate changes as forecast by Goddard Institute for Space Studies three-dimensional model. *J. Geophys. Res.*, **93**, 9341—9364 (1988)
- 2) Bouwman, A. F. : Introduction. In "Soils and The Greenhouse Effect" Ed. by Bouwman, A. F., 25—32, John Wiley and Sons, Chichester (1990)
- 3) Khalil, M. A. K. and Rasmussen, R. A. : Sources, sinks, and seasonal cycles of atmospheric methane. *J. Geophys. Res.*, **88**, 5131—5144 (1983)
- 4) Ehhalt, D. H., Zander, R. J. and Lamontagne, R. A. : On the temporal increase of tropospheric CH₄. *J. Geophys. Res.*, **88**, 8442—8446 (1983)
- 5) Rinsland, C. P., Levine, J. S. and Miles, T. : Concentration of methane in the troposphere deduced from 1951 infrared solar spectra. *Nature*, **318**, 245—249 (1985)
- 6) Rasmussen, R. A. and Khalil, M. A. K. : Atmospheric trace gases : trends and distributions over the last decade. *Science*, **232**, 1623—1624 (1986)
- 7) Steele, L. P., Fraser, P. J., Rasmussen, R. A., Khalil, M. A. K., Conway, T. J., Crawford, A. J., Gammon, R. H., Masarie, K. A. and Thoning, K. W. : The global distribution of methane in the troposphere. *J. Atmos. Chem.*, **5**, 125—171 (1987)
- 8) Blake, D. R. and Rowland, F. S. : Continuing worldwide increase in tropospheric methane, 1978 to 1987. *Science*, **239**, 1129—1131 (1988)
- 9) Ehhalt, D. H. and Schmidt, U. 1978 : Sources and sinks of atmospheric methane. *Pageoph.*, **116**, 452—464
- 10) Sheppard, J. C., Westberg, H., Hopper, J. F., Ganesan, K. and Zimmerman, P. : Inventory of global methane sources and their production rates. *J. Geophys. Res.*, **87**, 1305—1312 (1982)
- 11) Cicerone, R. J., Shetter, J. D. and Delwiche, C. C. : Seasonal variation of methane flux from a California rice paddy. *J. Geophys. Res.*, **88** (C), 7203—7209 (1983)
- 12) Seiler, W., Holzapfel-Pschorn, A., Conrad, R. and Scharffe, D. : Methane emission from rice paddies. *J. Atmos. Chem.*, **1**, 241—268 (1984)
- 13) Holzapfel-Pschorn, A. and Seiler, W. : Methane emission during a cultivation period from an Italian rice paddy. *J. Geophys. Res.*, **91** (D), 11803—11814 (1986)
- 14) Cicerone, R. J. and Oremland, R. S. : Biogeochemical aspects of atmospheric methane. *Global Biogeochem. Cycles*, **2**, 299—327 (1988)
- 15) Aselmann, I. and Crutzen, P. J. : Global distribution of natural freshwater wetlands and rice paddies, their net productivity, seasonality and possible methane emissions. *J. Atmos. Chem.*, **8**, 307—358 (1989)
- 16) Schütz, H., Holzapfel-Pschorn, A., Conrad, R., Rennenberg, H. and Seiler, W. : A 3-year continuous record on the influence of daytime, season, and fertilizer treatment on methane emission rates from an Italian rice paddy. *Geophys. Res.*, **94** (D), 16405—16416 (1989)
- 17) Sass, R. L., Fisher, F. M., Harcombe, P. A. and Turner, F. T. : Methane production and emission in a Texas rice field. *Global Biogeochem. Cycles*, **4**, 47—68 (1990)
- 18) Yagi, K. and Minami, K. : Effect of organic matter application on methane emission from some Japanese paddy fields. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **36**, 599—610 (1990)
- 19) Bouwman, A. F. : Exchange of greenhouse gases between terrestrial ecosystems and the atmosphere. In "Soils and The Greenhouse Effect" Ed. by Bouwman, A. F., 61—128 John Wiley and Sons, Chichester (1990)
- 20) Khalil, M. A. K., Rasmussen, R. A., Ming-Xing Wang and Lixin Ren : Methane emissions from rice fields in China. *Environ. Sci. Technol.*, **25**, 979—981 (1991)
- 21) Matthews, E., Fung, I. and Lerner, J. : Methane emission from rice cultivation : geographic and seasonal distribution of cultivated areas and emissions. *Global Biogeochem. Cycles*, **5**, 3—24 (1991)
- 22) 八木一行：土壌生態系のガス代謝と地球環境2。—水田からのメタン発生—。日土肥誌, **62**, 556—562 (1991)
- 23) 高井康雄：水田土壌の動態に関する微生物学的研究 I, 肥料科学, **3**, 17—55 (1980)
- 24) Kimura, M., Miura, Y., Watanabe, A., Katoh, T. and Haraguchi, H. : Methane emission from paddy field (Part 1) Effect of fertilization, growth stage and midsummer drainage : Pot experiment. *Environ. Sci.*, **4**, 265—271 (1991)
- 25) 鬼鞍 豊・吉野 喬・前田乾一：稲作期における土壌

- 窒素の有効化過程, 日土肥誌, **46**, 255-259 (1975)
- 26) 作物統計 No.19: 農林水産省経済局統計情報部編, 東京農林統計協会 (1977)
- 27) 日本気象総覧: 東洋経済新報社編, 東洋経済新報社 (1983)
- 28) Inubushi, K. and Wada, H.: Mineralization of carbon and nitrogen in chloroform-fumigated paddy soil under submerged conditions. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **34**, 287-291 (1988)
- 29) 織田健次郎・三輪睿太郎・岩元明久: 地力保全基本調査代表断面データのコンパクトデータベース, 日土肥誌, **58**, 112-131 (1987)
- 30) Kimura, M., Ando, H. and Haraguchi, H.: Estimation of potential CO₂ and CH₄ production in Japanese paddy fields. *Environ. Sci.*, **4**, 15-25 (1991)
- 31) 伊藤滋吉・飯村康二: 北陸地方の細粒質強グライ土水田における有機物の分解とガス発生量について, 土肥誌, **60**, 290-297 (1989)
- 32) 木村真人・高井康雄: 水田における有機物の供給と分解, 「微生物の生態12-有機物負荷と環境浄化」, pp. 42-60, 学会出版センター (1984)
- 33) 和田秀徳・横山 正・高井康雄: 水稲根圏から地上部・大気への CO₂ の移行, 土肥誌, **54**, 217-222 (1983)
- 34) 横山 正・和田秀徳・高井康雄: 水稲の経根的炭酸吸収と吸収炭酸の輸送過程, 土肥誌, **54**, 223-227 (1983)
- 35) 横山 正・和田秀徳・高井康雄: 水稲の経根的炭酸吸収に影響を与える因子, 土肥誌, **55**, 361-366 (1984)
- 36) Higuchi, T.: Gaseous CO₂ transport through the aerenchyma and intercellular spaces in relation to the uptake of CO₂ in rice roots. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **28**, 491-497 (1982)
- 37) Higuchi, T., Yoda, K. and Tensho, K. Further evidence for gaseous CO₂ transport in relation to root uptake of CO₂ in rice plant. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **30**, 125-136 (1984)
- 38) 和田秀徳・土屋一成・高井康雄: 水田土壌からの物質の溶脱に関する研究 (第1報), 水田土壌からの主要無機成分の溶脱過程, 土肥誌, **50**, 511-516 (1979)
- 39) 土屋一成・和田秀徳・高井康雄: 水稲栽培が主要無機成分の溶脱に及ぼす影響と温度因子, 土肥誌, **52**, 27-30 (1981)
- 40) 土屋一成・和田秀徳・高井康雄: 水稲栽培が主要無機成分の溶脱に及ぼす影響と環境因子, 土肥誌, **55**, 213-219 (1984)
- 41) Cicerone, R. J. and Shetter, J. D.: Sources of atmospheric methane, Measures in rice paddies and a discussion. *J. Geophys. Res.*, **86** C8, 7203-7209 (1981)
- 42) Holzapfel-Pschorn, A., Conrad, R. and Seiler, W.: Effects of vegetation on the emission of methane from submerged paddy soil. *Plant Soil*, **92**, 223-233 (1986)
- 43) 犬伏和之・堀 謙三・松本 聰・梅林正直・和田秀徳: 水稲体を経由したメタンの大気への放出, 土肥誌, **60**, 318-324 (1989)
- 44) Sass, R. L., Fisher, F. M. and Harcombe, P. A.: Mitigation of methane emissions from rice fields: Possible adverse effects of incorporated rice straw. *Global Biogeochem. Cycles*, **5**, 275-287 (1991)
- 45) Yagi, K., Minami, K. and Ogawa, Y.: Effects of water percolation on methane emission from paddy fields. 農業環境技術研究所資源・生態管理科研究収録, **6**, 105-112 (1990)
- 46) Takai, Y., Wada, H., Kagawa, H. and Kobo, K.: Microbial mechanism of effects of water percolation on Eh, iron, and nitrogen transformation in the submerged paddy soils. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **20**, 33-45 (1974)
- 47) Schütz, H., Seiler, W. and Conrad, R.: Influence of soil temperature on methane emission from rice paddy fields. *Biogeochemistry*, **11**, 77-95 (1990)
- 48) Kimura, M., Asai, K., Watanabe, A., Murase, J. and Kuwatsuka, S. 投稿中: Suppression of methane fluxes from flooded rice-grown paddy soil by foliar spray of nitrogen fertilizers. *Soil Sci. Plant Nutr.*
- 49) Murase? J., Kimura, M., and Kuwatsuka, S. 投稿中: Methane production and its fate in rice paddies (Part 3) Effects of percolation in paddy field on methane flux distribution to the atmosphere and to subsoil. *Soil Sci. Plant Nutr.*
- 50) Miura, Y., Watanabe, A., Kimura, M. and Kuwatsuka, S. (印刷中): Methane emission from paddy field (Part 2) Main route of methane transfer through rice plant, and temperature and light effects on diurnal variation of methane emission. *Environ. Sci.* **5** (1992)

(受稿年月日1991年12月15日)

Originals

Potential of Soil and Sediment for the Reduction of Nitrous Oxide

Naohiro YOSHIDA*¹ and Takeshi YAMAZAKI*²

*¹Department of Earth Sciences, Faculty of Science, Toyama University, Gofuku, Toyama 930, Japan.

*²Department of Environmental Sciences, College of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima University, Hiroshima 730, Japan.

Abstract

Potential activity of soil and sediment samples along a watershed is determined for the reduction of nitrous oxide (N₂O), which is a doubly important trace gas controlling the energy budget of the troposphere and the ozone level in the stratosphere. ¹⁵N tracer technique is applied for the determination of the potential activity using labelled N₂O. Most of the soil and sediment samples have been proved to have large potential activity for reduction of N₂O. The potential activity is highest for the river and bay subsurface sediment at the coast, where anaerobic micro site predominates. The present results indicate that the nitrate reduction system of soil and sediment, especially in coastal area is an important process in consuming N₂O.

Introduction

Nitrous oxide is one of the most important trace gases which have a potential to destroy ozone layer in the stratosphere¹⁾ and to control the temperature of the Earth by greenhouse effect²⁾. New approaches to the geochemical cycle of nitrous oxide through the natural nitrogen isotope abundance in N₂O³⁻⁶⁾ have provided additional information on the budget of N₂O. One of the great achievements of them is about the contribution of two important processes, denitrification and nitrification, for the cycle of N₂O. Nitrous oxide was considered to be mainly produced by denitrification and nitrification process in terrestrial

and aquatic systems. A considerable attention has been focused on N₂O production during denitrification. However, much less emphasis has been laid on denitrification process as N₂O consuming process. In fact, in an initial few days of incubation of pure culture of denitrifying or soils, significant amount of N₂O accumulates, but its concentration decreases in the latter period of incubation⁷⁾. Therefore, studies on the short period of denitrification reaction tend to give higher N₂O producing activity of the systems by denitrification. Former estimates based on the shorter period of incubation experiments favored over estimates of N₂O production during denitrification process.

Production and/or consumption of N₂O by denitrification process are determined by the subtle balance of the kinetics of nitrate reduction to N₂O, diffusion of N₂O between reaction site and atmosphere, and N₂O reduction⁸⁾. Almost all the studies on the kinetics of denitrification process included either the kinetics of all these three processes or the kinetics of the two preceding processes. The purpose of this study is to estimate the contribution of last process individually in the whole process of nitrate reduction in natural environments.

Very little is known about the N₂O reductase system⁹⁾ as well as N₂O reduction activity in natural environments because of the faintness of the enzyme¹⁰⁾ and of lack in ¹⁵N-tracer studies using ¹⁵N labelled N₂O. So, the number of studies have been limited concerning the N₂O reduction activities of soil and sediments¹¹⁻¹⁴⁾.

In this study, ¹⁵N tracer technique has been firstly applied to measure N₂O reducing activity of natural soils and sediments using ¹⁵N labelled N₂O. The

Key words : Nitrous oxide (N₂O), Nitrogen isotope ratio, ¹⁵N, Denitrification, N₂O reduction, Soil and sediment, Geochemical cycle

potential activity of soil and sediments was measured along the watershed to clarify where the N_2O reduction can proceed actively. A relation between N_2O and nitrate reduction activity has been studied precisely to provide useful information for the global estimate of N_2O reduction on the basis of a number of denitrification data hitherto obtained in various ecosystems.

Materials and Methods

Locations and sampling

Samples of soil and sediment are collected along the watershed of the Otsuchi River, Iwate Pref. Japan for the following reasons ;

- 1) The watershed is in appropriate size for a model ecosystem including forest areas, river valleys, a small town and coastal area. So that the sampling is relatively easy.
- 2) There have been an accumulation of available information obtained by interdisciplinary studies, organized by Otsuchi Marine Research Center, Ocean Research Institute, University of Tokyo.
- 3) The disturbance of the ecosystem by human activities is localized and small.

The sampling locations are shown in Fig. 1. Surface soil sample and river floor sediments at shallow sites have been collected by shovel and a scoop from 0 to 5 cm depth with least disturbance of the sample. Sediments in the bay have been collected by an Ekman Birge sampler from the surface to 15 cm depth and also by a gravity core sampler for the core sample of 36 mm in diameter from the surface to 34 cm depth. All the samples have been through a 2 mm sieve as soon as possible and subjected to the activity measurements.

Potential activity measurements for reduction of N_2O and nitrate

Potential activity of N_2O reduction has been measured using an incubation vessel as shown in Fig. 2-a. Sample of about 5 g in wet weight is put in the vessel. The atmosphere inside the vessel is replaced with 99.999 % N_2 of which nitrogen isotope composition was measured in advance, by flushing through a syringe needle plunged to the bottom of the vessel and

capped with rubber cap. Reduction of N_2O is started by breaking the capillary tube which contains ^{15}N labelled N_2O of ca. 0.1 cc STP with a stainless steel ball. The preparation of ^{15}N labelled N_2O ($^{15}N^{14}NO$; 51.8 atm % ^{15}N at the labelled position) is described elsewhere¹⁵⁾. The vessel is incubated at 20 °C for a desired period. At the end of the reaction, $HgCl_2$ solution is added and the vessel is stored at -20 °C until analysis. Analytical procedures are as follows ; the vessel is attached to the vacuum system through a syringe needle and the atmosphere inside the vessel is collected via liq. N_2 traps by the help of a Toepfer pump. Thorough purification of N_2 from ^{15}N labelled N_2O is executed by trap work using the vapor pressure difference between N_2 and N_2O at the liq. N_2 temperature. Nitrogen isotope ratio of purified N_2 is determined on a precise ratio determining mass spectrometer VG 602E (VG Isogas, Cheshire, U.K.). Potential activity (A) of the sample for the reduction of N_2O to N_2 is calculated by the following equation.

$$A = fVS^{-1}T^{-1} \\ = \frac{u(uR-2t)}{xu+yt-2tu-u(y-u)R} VS^{-1}T^{-1} \quad (1)$$

where f is the fraction of $^{15}N_2$ in total N_2 , V is the amount of total N_2 , S is the amount of soil or sediment, T is the duration of the incubation, R is $^{29}N_2/^{28}N_2$ ratio of total N_2 , x is the atomic fraction of ^{15}N at $^{*}N$ of $^{*}NNO$, y is the atomic fraction of ^{14}N at $^{*}N$ of $^{*}NNO$, t is the atomic fraction of ^{15}N of bomb N_2 , and u is the atomic fraction of ^{14}N of N_2 .

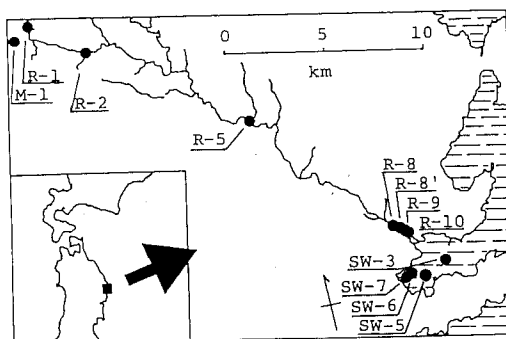


Fig. 1 Sampling locations for soil and sediments at Otsuchi, Iwate Pref. Japan.

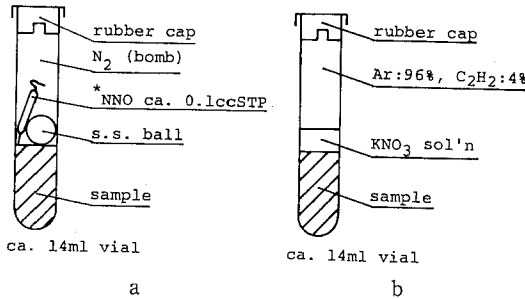


Fig. 2 Arrangements of incubation experiments for the measurement of activities for the reduction of N₂O (a) and nitrate (b).

Potential activity of nitrate reduction is measured using a reaction vessel as shown in Fig. 2-b. Sample of about 5 g in wet weight is put in the vessel. One ml of 0.5 mg-N/l nitrate solution is added to the sample. The atmosphere inside the vessel is replaced with research grade mixed gas of Ar (96 %) and C₂H₂ (4 %) which prevents further reduction of N₂O, in the same manner as described above. The accumulation of N₂O is measured by TCD gas chromatograph (GC-4APT, Shimadzu, Kyoto) and the potential activity of nitrate reduction is estimated¹⁹.

Both activities are measured once more by using the same sample stored at 4 °C two months later. Other characteristics of soil and sediment samples are determined by ordinary methods.

N₂O reduction activity as a function of partial pressure of N₂O

Dependence of the N₂O reduction on the partial pressure of N₂O is investigated for the sample R-10 at 5 different magnitudes of partial pressure between 1.5×10^{-7} and 5.9×10^{-3} atm. For the N₂O partial pressure between 10^{-2} and 10^{-4} , the same vessel as mentioned above is used. For ca. 10^{-5} atm, sample is incubated in ca. 130 ml flask, and for the lower N₂O partial pressures, each sample is put in the flask of about 1000 ml with ca. 0.1 ml of ¹⁵N labelled N₂O. The low partial pressure of N₂O is achieved by diluting the ¹⁵N labelled N₂O with CO₂ and the amount of the mixed gas is precisely measured by McLeod gauge.

Results and Discussion

Time course of N₂O reduction

In order to determine the adequate duration of incubation, the time course of N₂O reduction is checked using the sample R-10. The result is shown in Fig. 3. The reduction rate is rather constant until 24 hours. Because of the high sensitivity of this method, a few to a few tens of minutes incubation is sufficient for the determination of N₂O reduction. N₂O reduction activity is determined by taking the average of the data at 3 and 24 hours incubation for practical reason.

Potential activity for the reduction of N₂O and nitrate

The results of incubation experiments are summarized in Table 1 (Series I) and schematically illustrated in Fig. 4. Both activities are unexpectedly high for particular samples such as the soil (M1) and the river floor sediment at the river head (R1). This fact may be due to high standing stock of micro-organisms together with high nitrate concentration¹⁷. It is an additional reason for high activity for the soil sample M1 that the high water content is favorable for the existence of anaerobic micro site to proceed denitrification including N₂O reduction. Except for these two exceptions, general trend is shown in Fig. 4. That is, both activities are high for the estuarine river floor sediments and the bay sediments. Potential activity of sediments is concluded to be promoted by the increase in the anaerobic site in sediments and also by the increase in nitrate concentration in the lower reaches of the river¹⁷.

Accordingly, estuarine area and bay are considered to be greatly responsible for the consumption of N₂O. This is supported by a large extent of undersaturation of N₂O in the water column of bay where anaerobic conditions are developed in subsurface layer¹⁸⁻²⁰.

In order to obtain more information on the bay sediments other than SW-3 (SW-5, 6 and 7), another set of incubation are carried out as shown in Series II in Table 1. The general trend is conserved and the higher activities are also observed in estuarine and bay sediments. Some characteristics are, however, disturbed; both activities are reduced for the sample M-1 from the mountain area. The soil materials with

Table 1 Experimental results and some characteristics of soil and sediments

Sample	pH		Water (%)	Fe ²⁺ (mg/g)	Kjeldahl-N		Munsell color	Series I *		Series II *		
	H ₂ O	KCl			mgN/g	permil		N ₂ O	NO ₃ ⁻	N ₂ O	NO ₃ ⁻	CO ₂
M- 1	4.84	4.07	53.6	0.12	2.52	9.5	7.5R2/1	13.58	13.65	1.44	4.04	9.27
R - 1	6.54	5.51	47.6	0.07	0.97	0.6	10 Y R3/4	6.22	4.67	15.54	3.41	10.32
R - 2	7.40	6.26	25.6	0.04	0.31	3.5	10 Y R3/3	0.85	2.28	2.29	1.55	4.80
R - 5	7.22	5.86	19.4	0.02	0.19	4.1	2.5Y R4/3	1.33	1.42	1.08	0.45	1.18
R - 8	7.31	6.08	20.1	0.02	n.d.	n.d.	2.5Y R5/3	5.82	6.32	4.64	1.34	2.79
R - 8'	7.11	5.93	21.1	0.36	0.33	5.1	2.5Y R4/2	5.07	6.57	2.35	4.05	9.32
R - 9	7.81	6.38	19.7	0.18	0.29	5.4	10 Y R3/2	5.28	4.16	3.16	4.18	10.19
R-10	7.80	6.80	23.7	0.47	0.43	3.1	2.5G Y2/1	13.53	10.27	70.63	26.37	36.79
SW-7 (7)	7.66	7.50	38.6	1.10	0.56	0.8	2.5Y3/2	n.d.	10.57	1.28	3.47	8.49
SW-6 (10)	7.65	7.55	53.7	2.32	0.86	-0.7	5 Y2/2	n.d.	11.16	6.80	5.83	19.61
SW-5 (20)	7.50	7.54	56.9	1.19	1.06	1.4	2.5Y3/2	n.d.	6.06	8.19	5.89	23.73
SW-3 (32)	7.66	7.49	58.4	1.85	1.19	3.7	5 Y2/2	8.67	11.73	22.16	11.19	28.28
SW-3F-1 (0- 2)			63.8	1.08			5 Y3/2			9.33	9.32	53.24
SW-3F-2 (4- 6)			58.4	2.13			5 Y3/2			13.55	5.03	26.88
SW-3F-3 (6- 8)			59.1	2.30			7.5Y2/2			9.88	6.24	26.73
SW-3F-4 (10-12)			57.0	1.68			7.5Y2/2			3.93	0	13.67
SW-3F-5 (24-26)			57.1	1.39			7.5Y2/1			0.74	0	6.65

* : Results of the incubation series I and II are expressed in terms of reduction and production potential activities for N₂O, NO₃⁻ and CO₂, respectively in the unit of $\mu\text{l STPg}^{-1}\text{day}^{-1}$.

Figures in the parenthesis indicate the water depth for the samples SW-3-7 in metre, and the core depth for the samples SW-3F-1-5 in cm. n.d. : not determined.

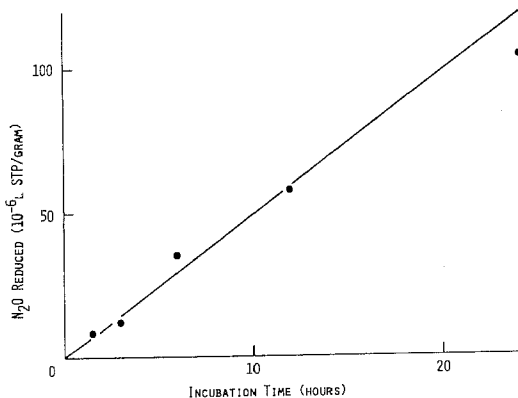


Fig. 3 Time course of N₂O reduction for the sediment sample R-10.

high porosity seemed to be suppressed of its activities under anaerobic conditions. Generally in Series II, potential activity for the reduction of N₂O increased almost twice as much as that of nitrate.

Detailed study is conducted on the vertical profile for the bay sediment core sample SW-3-F, which is collected by a gravity corer. As shown in Table 1,

N₂O reduction activity is the highest at the subsurface layer and decreased with depth but does not vanish even at the depth of 24-26 cm. On the other hand, nitrate reducing activity is limited to the depth of 0 to 8 cm and vanish for the deeper samples, which can still reduce N₂O and produce CO₂.

The assimilation of N₂O by the samples is not observed, which is checked by the fact that the nitrogen isotope ratio of organic nitrogen (Kjeldahl-N) is not altered after incubation.

As expected from Fig. 4, the N₂O reducing activity is closely correlated with that of nitrate reduction. Both activities for the reduction of N₂O and nitrate correspond to each other as shown in Fig. 5 (Note that the units for both activities are the same). This indicates that both potential activities are almost the same for all the samples.

To estimate the global amplitude of N₂O reduction, it is one of the best ways to utilize abundant estimates of denitrification in both local and global, on the basis of the relationship between two activities. Therefore, it must be the next step in the present study to

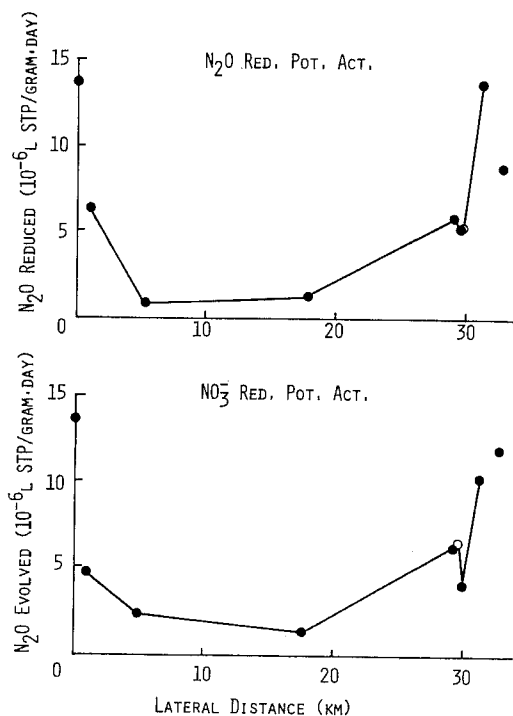


Fig. 4 Potential activities of soil and sediment for the reduction of N_2O (top) and nitrate (bottom).

determine the relationship of substrate concentration dependence on both activities. Fig. 6 depicts the dependence of the N_2O reduction activity for the sample R-10 on the partial pressure of N_2O . The dependence could be approximated by Michaelis-Menten type saturation curve. The substrate concentration that gives the reaction velocity half of that at the maximum (half saturation constant : K_s) is 1.88×10^{-4} atm. This K_s value corresponds to the dissolved N_2O concentration of 5.68×10^{-6} mol/l calculated from the solubility data²¹⁾, assuming that N_2O is in dissolution equilibrium with pore water of the sediments. The K_s value of N_2O is almost the same as that of nitrate for estuarine sediments, which is about 5×10^{-6} mol/l²²⁾. Accordingly, N_2O reduction activity at lower N_2O concentration is also related to nitrate reduction activity at lower nitrate concentration.

Several more steps are required to estimate the global amplitude of N_2O reduction ; such as diffusion studies of N_2O of soil and sediment between atmosphere and/or pore water micro site where reaction

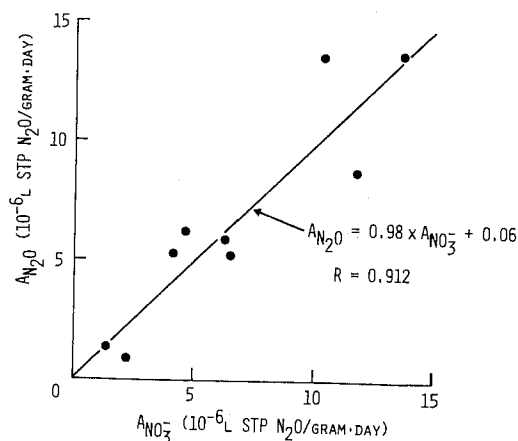


Fig. 5 Relationship between reduction potential activity of soil and sediments for N_2O and for nitrate.

takes place and detailed analysis of sequential kinetics. However, it may be concluded that denitrification system plays an important role in regulating the atmospheric concentration of N_2O through suppressing the enhanced level of N_2O in soil and sediment.

Summary

Soil and sediment samples are collected along a watershed from mountain area to a bay via coastal area. The potential activity of soil and sediment for N_2O reduction is found to be significantly high. The N_2O reduction activity is highest for the sediment of the river mouth, where anaerobic micro site prevails. The vertical profile of N_2O reduction activity is studied for a bay sediment core to reveal that the subsurface is responsible for suppressing the N_2O level of the pore water in the sediment column. There is a good correlation between potential activity of N_2O and that of nitrate, which indicates the possibility to estimate the global amplitude of N_2O reduction through abundant nitrate reduction estimates.

Nitrogen and oxygen isotope studies are another important approaches to the global cycle of N_2O . Combination of isotope studies with flux studies is expected to provide comprehensive information for the global budget of N_2O .

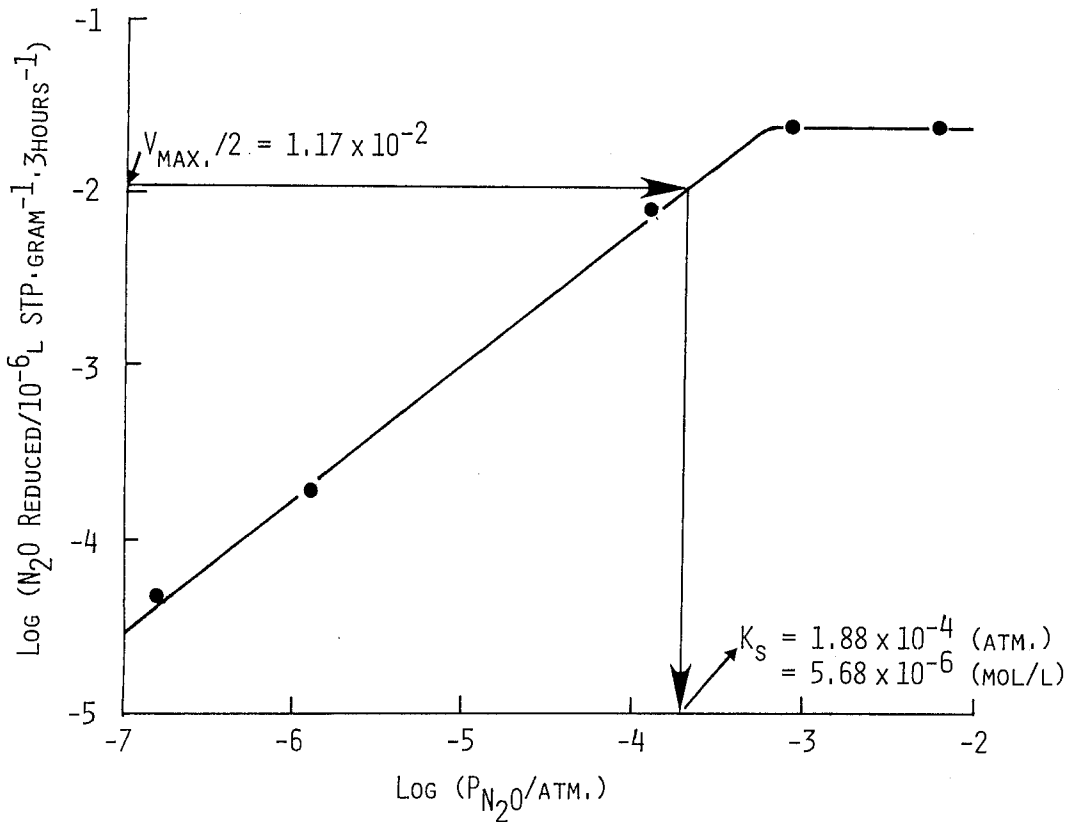


Fig. 6 Dependence of reduction rate on partial pressure of N₂O for sediment sample R-10.

Acknowledgments

The authors are greatly indebted to Drs. E. Wada, M. Minagawa, H. Mizutani, T. Tsuji, Mrs. R. Imaizumi, and K. Karasawa of Mitsubishi Kasei Institute of Life Sciences, and Drs. M. Terazaki and T. Shiba of Ocean Research Institute, University of Tokyo for their kind arrangements for sampling at Otsuchi, especially to Dr. E. Wada for critical reading the early version of the manuscript.

References

- 1) Johnston, H.: Newly recognized vital nitrogen cycle, Proc. Nat. Acad. Sci. USA, **69**, 2369–2372 (1972).
- 2) Hansen, J., I. Fung, A. Lacis, D. Rind, S. Lebedeff, R. Ruedy, G. Russell, and P. Stone: Global climate changes as forecast by Goddard Institute for Space Studies three-dimensional model, J. Geophys. Res., **93**, 9341–9364 (1988).
- 3) Yoshida, N and S. Matsuo: Nitrogen isotope ratio of atmospheric N₂O as a key to the global cycle of N₂O, Geochem. J., **17**, 231–239 (1983).
- 4) Yoshida, N., A. Hattori, T. Saino, S. Matsuo, and E. Wada: Nature, **307**, 442–444 (1984).
- 5) Yoshida, N.: ¹⁵N-depleted N₂O as a product of nitrification, Nature, **335**, 528–529 (1988).
- 6) Yoshida, N., H. Morimoto, M. Hirano, I. Koike, S. Matsuo, E. Wada, T. Saino, and A. Hattori: Nitrification rates and ¹⁵N abundances of N₂O and nitrate in the western North Pacific, Nature, **342**, 895–897 (1990).
- 7) e.g., Firestone, M.K. and J.M. Tiedje: Temporal change in nitrous oxide and dinitrogen from denitrification following onset of anaerobiosis, Appl. Environ. Microbiol., **38**, 673–679 (1979).
- 8) Focht, D.D.: The effect of temperature, pH, and

- aeration on the production of nitrous oxide and gaseous nitrogen — A zero order-kinetic model, *Soil Sci.*, **118**, 173—179 (1974).
- 9) Bryan, B.A. : Physiology and biochemistry of denitrification, In : Denitrification, nitrification, and atmospheric nitrous oxide, ed. C.C. Delwiche, Wiley-Interscience, New York, pp. 67—84 (1981).
 - 10) Matsubara, T. and T. Mori : Studies on denitrification. IV. Nitrous oxide, its production and reduction to nitrogen, *J. Biochem.*, **64**, 863—871 (1968).
 - 11) Terry, R.E. and R.L. Tate : The effect of nitrate on nitrous oxide reduction in organic soils and sediments, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **44**, 744—746 (1980).
 - 12) Betlach, M.R., and J.M. Tiedje : Kinetic explanation for accumulation of nitrate, nitric oxide, and nitrous oxide during bacterial denitrification, *Appl. Environ. Microbiol.* **42**, 1074—1084 (1981).
 - 13) Lety, J., M. Vaoras, D.D. Focht, and J.C. Rydey : Nitrous oxide production and reduction during denitrification as affected by redox potential, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **45**, 727—730 (1981).
 - 14) Gaskell, J.F., A.M. Blackmer, and J.M. Bremner : Comparison of effects of nitrate, nitrite, and nitric oxide on reduction of nitrous oxide to dinitrogen by soil micro-organisms, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **45**, 1124—1127 (1981).
 - 15) Friedman, L. and J. Bigeleisen : Oxygen and nitrogen isotope effects in the decomposition of ammonium nitrate, *J. Chem. Phys.*, **18**, 1325—1331 (1950).
 - 16) Nishio, T., I. Koike, and A. Hattori : Denitrification, nitrate reduction, and oxygen consumption in coastal and estuarine sediments, *Appl. Environ. Microbiol.*, **43**, 648—653 (1982).
 - 17) Wada, E., M. Minagawa, H. Mizutani, T. Tsuji, R. Imaizumi, and K. Karasawa : Biochemical studies on the transport of organic matter along the Otsuchi River watershed, Japan. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **25**, 321—336 (1987).
 - 18) Cohen, Y. and L. I. Gordan : Nitrous oxide in the oxygen minimum of the eastern tropical North Pacific : Evidence for its consumption during denitrification and possible mechanisms for its production. *Deep-sea Research*, **25**, 509—524 (1978).
 - 19) Elkins, J.W., S.C. Wofsy, M.B. McElroy, C.E. Kolb, and W.A. Kaplan : Aquatic sources and sinks for nitrous oxide. *Nature*, **275**, 602—607 (1978).
 - 20) Liu, K. : Geochemistry of inorganic nitrogen compound in two marine environments : The Santa Barbara basin and the ocean off Peru, ph.D. thesis. Univ. California Los Angeles (1979).
 - 21) Battino, R. and H.L. Clever : The solubility of gases in liquids, *Chem. Rev.*, **66**, 395—463 (1966).
 - 22) Koike, I. and A. Hattori : Estimates of denitrification in sediments of the Bering Sea shelf. *Deep-sea Research*, **26**, 409—415 (1979).

(Received 2nd Dec. 1991)

土壌・堆積物の一酸化二窒素還元活性

吉田尚弘*¹・山崎岳*²*¹富山大学理学部 〒930 富山市五福3190*²広島大学総合科学部 〒730 広島市中区東千田町1-1-89

要 約

岩手県大槌川水系に沿って、森林土壌から湾内堆積物にいたる土壌・堆積物試料を採取し、¹⁵Nで標識をつけた一酸化二窒素(N₂O)を用いて、地球温暖化とオゾン層の消長に重要な役割を果たすN₂Oの還元活性を測定した。いずれの土壌・堆積物も高い還元活性を示し、もっとも高い活性を示したのは嫌気的な部位の卓越する河口の堆積物であった。湾内の堆積物コア試料についてN₂O還元活性の鉛直分布を調べたところ、亜表層の堆積物が、堆積物中の間隙水のN₂O濃度の上昇を抑制していることが明らかにされた。N₂Oの還元活性と硝酸の還元活性の間には非常によい相関があり、これを利用することですでに数多く研究されている硝酸還元活性の見積もりから地球規模の還元によるN₂O消滅量を推定することが可能になると思われる。一方、N₂OとN₂Oに関わる化合物について窒素と酸素の安定同位体比を指標とする研究はN₂Oの地球化学的循環を理解するための有効なアプローチである。安定同位体による研究とフラックスの測定により得られた知見の重ね合わせを通して、N₂Oの地球化学的循環の全体像が明らかにされると考えられる。

キーワード：一酸化二窒素(N₂O)、窒素安定同位体比、¹⁵N、脱窒反応、N₂O還元、土壌・堆積物、地球化学的循環

農業生態系から放出される含硫ガス

陽 捷 行

Emission of Biogenic Sulfur Gases from Agricultural Land

Katsuyuki MINAMI

Division of Environmental Planning
National Institute of Agro-Environmental Sciences

Summary

Interest in the atmospheric sulfur (S) budget has developed rapidly because anthropogenic activities are increasing the rates of emission of S gases into the atmosphere. These increase are important because S gases are oxidized in the atmosphere with formation of sulfate, the resulting contributes to environment problems associated with acid rain. There also is evidence that S gases may alter the optical properties of clouds and which could affect global climate.

Large uncertainties remain concerning the chemical speciation and the magnitude of natural emission of S gases to the atmosphere. It has been well documented that dimethylsulfide (DMS) is most important in ocean, which have been estimated to contribute 40 Tg or 15 TgS to the atmosphere as S gases each year. The annual amounts of S evolved from soil have been estimated to be 7 to 77 TgS. Very little is known concerning emissions from paddy field, which are abundant in many parts of the world.

The purpose of this report is to summarize the results of recent measurements of emissions of biogenic S gases from rice paddies in Japan. Emissions were measured in laboratory studies to learn more about the kinds and sources of S gases produced. Emissions were measured in paddy lysimeters and in paddy fields to gain better information about the amounts of DMS, carbonyl sulfide (COS), and carbon disulfide (CS₂) emitted, the seasonal and diurnal patterns of emission, and the factors affecting emissions of these gases under field conditions.

Key words : S-containing Gas, Carbon Disulfide, Dimethyl Sulfide, Carbonyl Sulfide, Flux

(Soil Phys. Cond. Plant Growth, Jpn., 65, 29-33, 1992)

1. はじめに

石炭や石油などの化石燃料の消費量の増加とともに、二酸化イオウ (SO₂) として大気へ放出されるイオウの量が増加している。人為起源のイオウの大気への放出量は、化石燃料の燃焼および工場からの排出物などを含めて年間約80 Tg (Tg=10¹²g) と推定されている¹⁾。大気に放出されたこれらのイオウ成分は雨水に溶解し耐酸イオンとなり、酸性雨として環境汚染の原因物質となっている。

また、これらのイオウ成分は大気中では主にエアロゾルとして存在しているが、エアロゾルは雲核として雲の形成に寄与する。これらの雲は太陽光線を反射するので、地表に到達する太陽エネルギー量を減少させる役割をもち、太陽からの照射量を減少させる可能性があり、その結果気候変動にも影響を及ぼすことになる²⁾。

イオウの大気への放出源には、これらの人為起源のほかに自然起源として火山噴火、海洋および陸生起源の含硫ガスがある。火山からの放出量は年間3 Tg (10¹²g) と推定されており、SO₂が主で、それ以外に硫化水素 (H₂S) が少し含まれる³⁾。海洋から放出される含硫ガスのほとんどはジメチルサルファイド (CH₃SCH₃=DMS) で、この放出量は年間40 Tg または15-16 Tg とも見積られ

ている^{4,5)}。陸生起源のイオウの大気への放出量については土壌、植生、河川、海岸湿地帯および湖沼などの個々のデータはあるが、まだはっきりした全体の見積が行われていない。

IPCC (気候変動に関する政府間パネル) はこれらの放出量を発生源別にまとめた (表1)⁶⁾。これによると、含硫ガスの大気への放出量の約4割は自然起源であり、人為起源の8分の1は土壌や陸上植物に由来する。この推定値には、不確定な要素が多く含まれているが、現在のところもっとも確信できる値であろう。この値は、データの蓄積とともに今後成長していくものであろう。

ここでは、大気中での含硫ガスの挙動、農業生態系とくに土壌生態系で生成される含硫ガスの生成メカニズムおよび農業生態系からの含硫ガスの放出量について述べ、世界の水田からの硫黄の放出量を推定する。

2. 含硫ガスの大気での挙動

イオウの大部分は岩石圏 ($24.3 \times 10^{18} \text{kg S}$) に含まれる。大気圏 ($4.8 \times 10^9 \text{kg S}$) および土壌圏 (2.6×10^{14}) に存在するイオウはきわめてすくないが、自然界でのイオウの循環には重要な役割をはたしている。特に、大気圏への含硫ガスの放出は植物を含めた土壌圏が強く関与している。

含硫ガスは一般に活性が高いため、大気での滞留時間が短い。もっとも高い濃度で大気中に存在するのは、硫化カルボニル (COS) で、濃度範囲は100—560pptである。このガスは160日という比較的長い滞留時間を有するので、成層圏まで移行したあとは SO_2 に酸化される。二硫化炭素 (CS_2) の濃度は、70—370pptの範囲にあり、光化学反応で COS と SO_2 に変化する。COSの一部は H_2S に変化する。DMSは大気中で約58pptの濃度で存在する。このガスは、酸化され SO_2 や硫酸イオンとなるが、一部はメタンスルホン酸に変わる⁷⁾。

このように、 SO_2 に変化したイオウは乾性沈着または硫

表-1 大気中の含硫ガスの発生源の推定

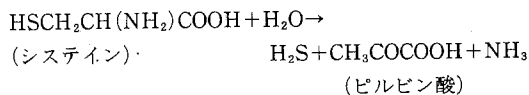
発生源	発生量 (Tg S/yr)
人為(おもに化石燃料の燃焼による SO_2)	80
バイオマス燃焼(SO_2)	7
海洋(DMS)	40
土壌と植物(H_2S , DMS)	10
火山(H_2S , SO_2)	10
合計	147

酸イオンの雨水による湿性沈着物として地上に還える。

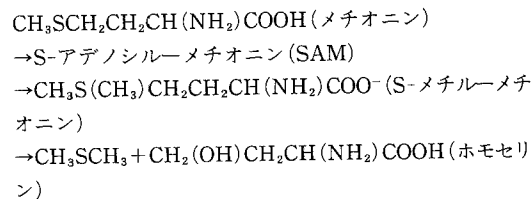
3. 土壌生態系における含硫ガスの生成メカニズム

土壌に含硫化合物や各種の有機物を添加すると、含硫ガスが検出される⁸⁻¹⁵⁾。これまで、土壌生態系では6種類の含硫ガス (H_2S , COS, CS_2 , メチルメルカプタン (CH_3SH), CH_3SCH_3 , チメチルチサルファイド ($\text{CH}_3\text{SSCH}_3 = \text{DMDS}$) が生成され、その一部は大気に放出されていることが明らかにされている¹⁶⁾。生成メカニズムの詳細については、神田の報文¹⁷⁾を参照されたい。ここでは概略を紹介する。

1) 硫酸還元および H_2S の生成: 硫酸塩の還元には異化と同化がある。異化的硫酸還元では、硫酸塩は有機物の嫌氣的酸化に対する電子受容体となる。この過程はイオウ還元菌によって行われ、有機物と硫酸塩を含む無酸素環境では一般的な現象である。水田および湖沼などの還元的な環境条件で生成されることは古くから知られている。同化的還元は動物以外の全ての生物で行われる。例えば、硫酸塩はシステインなどの含硫アミノ酸に同化される。土壌にシステインやシスチンを添加すると H_2S が生成される。これはシステインが分解した結果である。反応は次の式で示される。



2) DMS: 土壌にメチオニンを添加すると DMS が生成する。このことから、メチオニンの分解産物が DMS であることが解る。メチオニンは ATP と反応して S-アデノシルメチオニン (SAM) を生成する。SAM からメチオニンにメチル基が転移すると、S-メチルメチオニンが生成される。この化合物は DMS の前駆物質と考えられている。反応は次式で示される。



3) CH_3SH および $\text{CH}_3\text{SSCH}_3 = \text{DMDS}$: 土壌にメチオニンを添加すると CH_3SH および DMDS が生成する。 CH_3SH はメチオニンから生成される。また、 CH_3SH は酸化すると DMDS になる。反応は次式で示される。

$$\text{CH}_3\text{SCH}_2\text{CH}_2\text{CH}(\text{NH}_2)\text{COOH} \text{ (メチオニン)}$$

$$\rightarrow \text{CH}_3\text{SH} + \text{CH}_3\text{CH}_2\text{COCOOH} \text{ (}\alpha\text{-ケトブチル酸)} + \text{NH}_3$$

$$\rightarrow \text{CH}_3\text{SSCH}_3$$

4) COS および CS₂：各種含硫化合物を土壤に添加した結果、COS は含硫アミノ酸であるシスチン、システイン、ランチオニンおよびジェンコール酸、さらにチオシアン酸から生成することが明らかになっている。CS₂はシスチン、システイン、ランチオニン、ジェンコール酸およびチオ硫酸塩から生成する。一方、海水表面では COS は含硫有機化合物と光反応によって生じると考えられており¹⁹⁾、土壤でも同様な可能性が考えられる。また、無生物的反応で CS₂から生成される可能性もある。

以上の結果を表2にまとめた¹¹⁾。なお、土壤中での存在量がきわめて少ない含硫化合物については省略した。詳しくは文献¹²⁻¹⁵⁾を参照されたい。

4. 農業生態系から放出される含硫ガス

農業生態系においては、土壤および植物から含硫ガスが放出される。

1) 植物：植物体内では、含硫アミノ酸の代謝産物として含硫ガスが生成する。植物から放出されるガスに H₂S がある。このガスの放出は光に依存するため、暗条件での放出量は少ない。陸上植物から放出される H₂S 量は、7.4から54 Tg S と推定されており^{19,20)}、推定幅が大きい。

Lovelockら²¹⁾は、樹木から DMS が放出されていることを最初に発見した。植物から発生する主要なガスは DMS である。トウモロコシからは DMS が、アルファアルファやコムギからは DMS、CH₃SH、H₂S や CS₂の発生が認められる。これらの作物からのフラックスは60から500ng S kg⁻¹の範囲にある²²⁾。その他、樹木からの放出量の研究もある。詳しくは文献¹⁷⁾を参照されたい。

植物から発生する含硫ガスに影響を及ぼす主要な環境因子は、光と温度であろう。

2) 土壤：土壤からもっとも多く発生するガスは、これまで H₂S と考えられてきた。しかし、最近の測定結果によると、発生量のもっとも多いガスは COS または DMS のようである²³⁾。

無機質土壤に比べて、有機質土壤からの放出量は多

表—2 土壤中で生成される含硫ガスとその主な起源

化合物	H ₂ S	COS	CH ₃ SH	(CH ₃) ₂ S	CS ₂	(CH ₃) ₂ S ₂
硫酸塩	+	-	-	-	-	-
チオ硫酸塩	-	-	-	-	+	-
メチオニン	-	-	+	+	-	+
シスチン	+	+	-	-	+	-
システイン	+	+	-	-	+	-
チオシアン酸塩	-	+	-	-	-	-

い²³⁾。有機質土壤からは、DMS、COS および H₂S が多く、湛水土壤では CS₂が多いという報告がある²⁴⁾。これまでの報告を総合すると、土壤からの含硫ガスの放出量は、単に地温とのみ関係するのではなく、植物の生育過程に伴う土壤微生物の活性とも関係しているものと考えられるが、詳細は今後の研究に待ちたい。

土壤から放出される含硫ガスの、これまでの推定結果を表3に示した^{6,10)}。放出量は5から77 Tg Sの範囲にある。この値の精度を高めるための研究が今後必要であろう。

これまでの研究は、ほとんどが畑に関するものであった。したがって、われわれは水田から放出される含硫ガスについての研究をこれまで行ってきた。

水田から放出されるガスとして、まず H₂S が考えられるが、このガスは土壤中の二価鉄などと容易に化学反応をおこす上、水に溶解し易い。したがって、還元状態で生成した H₂S が大気に放出される可能性はきわめて少ないと考えてさしつかえないであろう。しかし水田の場合、排水により田面水が消失したときに H₂S が放出する可能性はあるが、現在のところそのような測定例はない。

著者らは、ライシメータおよび沖積水田から放出され

表—3 土壤から放出される含硫ガス (Tg S/yr)

Eriksson(1960)	77	Ryaboshapko(1983)	17(5-32)
Junge(1963)	70	Moller(1984)	35
Robinson & Robbins(1968)	68	Smill(1985)	65(30-80)
Friend(1973)	58	Warneck(1988)	7
Granat et al.(1976)	5	IPCC(1990)	10(含植物)

表—4 竜ヶ崎沖積水田から発生する含硫ガス

ガス	処理区	発生量(mg S/m ²)		
		栽培期間	収穫後	合計
DMS	化成区	3.2	0.6	3.8
	無窒素区	2.2	0.3	2.5
	稲わら+化成区	3.0	0.4	3.4
COS	化成区	-0.3	0.2	-0.1
	無窒素区	-0.1	0.3	0.2
	稲わら+化成区	-0.1	1.1	1.0
CS ₂	化成区	0.2	0.4	0.6
	無窒素区	0.2	0.2	0.5
	稲わら+化成区	0.2	0.9	1.1
合計	化成区	3.1	1.2	4.3
	無窒素区	2.3	0.9	3.2
	稲わら+化成区	3.0	2.5	5.5

るDMS, COSおよびCS₂のフラックスを3年間測定し、一定の成果を得た^{17,25,26)}のでその結果の一部を紹介する。

茨城県竜ヶ崎市の沖積水田の化成区、無窒素区および化成区+稲わら区からのDMS, COSおよびCS₂発生量を表4に示した。DMS, COSおよびCS₂の年間発生量は、それぞれ2.5から3.8, -0.1から1.0および0.5から1.1 mg S/m²の範囲であった。

全世界の水田収穫面積(148×10⁶ha, 世界の耕地面積の9.5%に相当)と、ここで得られた値から計算すると、世行の水田から年間当り0.004から0.01 Tgのイオウが、ガスとして大気に放出されていると推定される。もちろん、この推定値は初めての試みであるから、今後多くのデータをもとに改訂される必要があることはいうまでもない。推定値はつねに成長するものである。この値は、他の発生源の放出量と比較するうえで意味のある数字であると考えられる。

5. おわりに

現在の地球の気候を維持するためには、二酸化炭素、メタン、亜酸化窒素などの温室効果ガスは必要不可欠なものである。もし、これらのガスが存在しないとすれば、地球の気温は今よりおよそ33℃低下すると考えられている。逆に、温室効果ガスの濃度が上昇したらどうなるのであろうか。そのことが今、対流圏で現実起こっている。そのため、地球規模での温暖化が懸念されており、躍起になってその対策がねられているのが現状である。

地球が一つの生命体であるとするれば、生物に由来して大気に放出されている含硫ガスもまた、他のガスと同様に地球環境の保全になんらかの貢献をしていることはまちがいないであろう。この意味で、今後このガスの人為および自然からの発生メカニズムとその動態、さらには大気での濃度変化に注目しつづける必要がある。

引用文献

- 1) Varhelyi, G.: Continental and global sulphur budgets, 1. Anthropogenic SO₂ emission, Atmos. Environ., **19**, 1029—1040 (1985)
- 2) Charlson, R. J., J. E. Lovelock, M. O. Andreae and S. G. Warren: Oceanic phytoplankton, atmospheric sulfur, cloud albedo and climate, Nature, **326**, 665—661 (1987)
- 3) Moller, D.: On the global natural sulphur emission, Atmos. Environ., **18**, 29—39 (1984)
- 4) Andreae, M. O. and H. Raemdonck: Dimethyl sulfide in the surface ocean and the marine atmosphere: A global view, Science, **221**, 744—747 (1983)
- 5) Erickson, D. J., S. J. Ghan and J. E. Penner: Global ocean-to-atmosphere dimethyl sulfide flux, J. Geophys. Res., **95**, 7543—7552 (1990)
- 6) Houghton, J. T., G. J. Jenkins and J. J. Ephraus: Climate change, The IPCC Scientific Assessment, 1—40, Cambridge Univ. Press, New York (1990)
- 7) Sze, N. D. and K. W. Ko: Photochemistry of COS, CS₂, CH₃SCH₃ and H₂S: Implications for the atmospheric sulfur cycle, Atmos. Environ., **14**, 1223—1239 (1980)
- 8) Banwart, W. L. and J. M. Bremner: Formation of volatile sulfur compounds by microbial decomposition of sulfur-containing amino acids in soils, Soil Biol. Biochem., **7**, 359—364 (1975)
- 9) Banwart, W. L. and J. M. Bremner: Identification of sulfur gases evolved from animal manure, J. Environ. Quality, **4**, 3363—3366 (1975)
- 10) Banwart, W. L. and J. M. Bremner: Evolution of volatile sulfur compounds from soils treated with sulfur-containing organic materials, Soil Biol. Biochem., **8**, 439—441 (1976)
- 11) Minami, K.: Volatilization of sulfur from paddy soils, J. Agri. Res. Quart., **15**, 167—171 (1982)
- 12) Minami, K. and S. Fukushi: Volatilization of carbonyl sulfide from paddy soils treated with sulfur-containing substances, Soil Sci. Plant Nutr., **27**, 339—345 (1981)
- 13) Minami, K. and S. Fukushi: Detection of carbonyl sulfide among gases produced by the decomposition of cystine in paddy soils, Soil Sci. Plant Nutr., **27**, 117—121 (1981)
- 14) Minami, K. and S. Fukushi: Detection of carbon disulfide among gases produced by the addition of thiosulfate and tetrathionate in paddy soils, Soil Sci. Plant Nutr., **27**, 541—543 (1981)
- 15) 陽 捷行・岡山清司・福土定雄: 有機物添加土壌から発生する含硫ガス成分, 土肥誌, **52**, 375—380 (1981)
- 16) Aneja, V. A.: Natural sulfur emissions into the atmosphere, J. Air Waste Manage. Assoc., **40**, 469—476 (1990)
- 17) 神田健一: 土壌生態系のガス代謝と地球環境 4, 農耕地からの含硫ガスの発生, 土肥誌, **63**, 91—96 (1992)
- 18) Ferek, R. J. and M. O. Andreae: Photochemical production of carbonyl sulphide in marine surface

- waters, *Nature* **307**, 148—150 (1984)
- 19) Winner, W. K., C. L. Smith, G. W. Koch, H. A. Mooney, J. D. Bewley and H. K. Krouse : Rates of emission of H₂S from plants and patterns of stable sulphur isotope fractionation, *Nature*, **289**, 672—673 (1981)
- 20) Filner, P., H. Rennenberg, J. Sekiya, R. A. Bressan, L. Wilson, L. Le Cureux, and T. Shimei : Biosynthesis and emission of hydrogen sulfide by higher plants ; in *Gaseous air pollutants and plant metabolism*, Ed. Koziol, M. J. and P. R. Whatley, p291—312, Butterworth, Stoneham (1984)
- 21) Lovelock, J. E., R. J. Maggs and R. A. Rasmussen : Atmospheric dimethyl sulfide and the natural sulphur cycle, *Nature*, **237**, 452—453 (1972)
- 22) Fall, R., D. L. Albritton, F. C. Fehsenfeld, W. C. Kuster and P. D. Golden : Laboratory studies of some environmental variables controlling sulfur emissions from plants, *J. Atmos. Chem.*, **6**, 341—362 (1988)
- 23) Lamb, B., H. Westberg, G. Allwine, L. Barnesberger and A. Guenther : Measurement of biogenic sulfur emissions from soils and vegetation ; Application of dynamic enclosure methods with Natusch filter and GC/FPD analysis, *J. Atmos. Chem.*, **5**, 469—491 (1987)
- 24) Staubes, R., H. W. Georgii and G. Ockelmann : Flux of COS, DMS and CS₂ from various soils in Germany, *Tellus*, **41**, 305—313 (1989)
- 25) 神田健一・陽 捷行 : ライシメータ水田から発生するジメチルサルファイド (DMS) のフラックスの測定, *土肥誌*, **62**, 35—40 (1991)
- 26) Minami, K., K. Kanda and H. Tsuruta : Emission of biogenic sulfur gases from rice paddies in Japan, 10th Int. Symp. Environ. Biogeochem., Chapman Hall Inc., (1992) in press

(受稿年月日1991年12月18日)



報 文

生態系における腐植生成と脂肪族成分の変動

米 林 甲 陽

Chemical Alteration of Humic Substances as revealed by Component Analysis using Adsorption Chromatography

Koyo YONEBAYASHI

Faculty of Agriculture, Kyoto Prefectural University

Summary

To estimate the average chemical structure of humic acids, structural parameters were calculated from the elemental and functional groups analysis and hydrogen distribution estimated by $^1\text{H-NMR}$: carbon aromaticity f_a , hydrogen to carbon ratio in hypothetical unsubstituted aromatic material Hau/Cau , and number of aliphatic substituent n_a . From the Hau/Cau value, condensation degree of aromatic ring was estimated. Number average molecular weight of humic acids were measured by the vapor pressure osmometry. Consequently, Andisol humic acids consist of a few structural subunits assumed to be condensed aromatic rings with short aliphatic substituents and many carboxyl and carbonyl groups. Aquent and Ochrept humic acids consist of many structural subunits assumed to be aromatic ring with relatively long aliphatic substituents.

Macroporous, nonionic Amberlite XAD-8 resin was used for fractionation of soil humic acids in order to reduce their complexity. H^+ -saturated humic acid was adsorbed onto the resin at pH 3 and fractionated into four components by stepwise elution using universal buffers adjusted to pH 7, to pH 11, water, and 50% ethanol. The first components consists of a few structural subunits, assumed to be condensed aromatic rings with short aliphatic substituents and many carboxyl groups. The second component was characterized by phenolic groups, and the third by relatively long aliphatic chains. The fourth component consists of many structural subunits, assumed to be aromatic rings with long aliphatic substituents. These components were termed as carboxylic, phenolic, semi-aliphatic, and aliphatic components, respectively. Andisol humic acids contained abundant amounts of carboxylic component. Aquatic sediment humic acids contained ample amount of aliphatic components. Phenolic component was dominant in humic acids of tropical peats sublayer soils.

Component analysis could lead to a new way to estimate the humification processes of humic substances.

Key words: Humic Substances, Structural Parameter, Adsorption Chromatography, $^1\text{H-NMR}$, Aliphatic Component

(Soil Phys. Cond. Plant Growth, Jpn., 65, 35-41, 1992)

土壌腐植物質は、無機成分と複合体を形成して安定に存在しており、その存在形態も多岐にわたっている。また、それ自身が複雑な高分子物質の混合物であるため、その化学構造を推定することは容易ではない。

最近、統計的構造解析法を腐植物質に適用して、平均

的な化学構造を推定することが出来るようになった。さらに、腐植物質を構造タイプの等しい構成成分に分別することが可能になったことから、腐植物質の生成過程における構造変化を推測することが出来る。

本稿では最初に、腐植物質の土壌中における存在形態を概観した後、土壌の違いが腐植酸の化学的性質にどの様に反映するかを述べる。次いで腐植酸の平均化学構造推定法と構成成分の新分別法を紹介し、最後に腐植物質の生成過程において構成成分の存在比がどのように変化

京都府立大学農学部 〒606 京都市左京区下鴨半木町

キーワード: 腐植物質, 構造指数, 吸着クロマトグラフィー, $^1\text{H-NMR}$, 脂肪族性成分

するかについてふれる。

1. 腐植物質の存在様式

有機・無機複合体を形成している無機質粒子の粒径によって、結合している腐植物質の性質は非常に異なっている。土壌を Na で飽和した後、超音波処理を繰り返して十分に分散させ、化学的にあまり変性させることなく、細粘土、粗粘土、シルト、細砂相当画分に分離して、有機物の性質を調べると、粒径による差異が認められる。有機物の集積度は、粒径が細くなるに従って増大し、細粘土複合体でやや減少する。有機物の C/N 比は粒径が細くなるほど減少する。また腐植酸の腐植化度は粒径の低下と共に上昇するが、細粘土複合体で低下する。これらの事は、粒径の粗い複合体には C/N 比の高い腐植植物遺体が主に存在し、もっとも腐植化度の高い腐植酸は粗粘土やシルト複合体を形成している事を意味している。細粘土は、微生物由来と考えられる腐植化度の低い腐植物質と複合体を形成している³⁾。

粗粘土・腐植複合体は、熱重量分析の結果によれば、粗粘土 - Fe - 腐植または粗粘土 - Al - 腐植複合体を形成しており、アルカリ抽出される腐植物質は主に後者から抽出されている⁴⁾。

カオリナイト粘土に腐植酸を吸着させると、腐植酸は粘土鉱物外縁部だけでなく、粘土鉱物の結晶表面上に存在する成長ステップに吸着している事が明らかにされている⁵⁾が、天然の粘土・腐植複合体の場合もまったく同様である事が、デコレーション法を用いた電子顕微鏡観察で見いだされた⁶⁾。

また、腐植・粘土複合体の粘土鉱物がスメクタイトの場合、X線回折によれば腐植物質の一部はスメクタイトの層間に侵入吸着している⁷⁾。

2. 腐植酸の化学的性質による土壌の判別

土壌から抽出される腐植酸の化学的性質は土壌型によって異なっており、腐植酸の H/C 原子数比は、底質土、褐色森林土、沖積水田土壌、泥炭質土壌、黒ボク土壌の順に低下し、腐植酸 1% 溶液の 600nm における吸光係数はこの順に高まる。黒色化度の高まりは腐植化の進行を現すと考えられるため、腐植化にともなう化学変化を、H/C 及び O/C 原子数比の変化から類推すると(第 1 図)、脱メタン反応が起こっていることは明らかであるが、脱水反応は余り起こっていないように見える。しかし、官能基分析を行うと腐植化過程でカルボキシル基の増加とアルコール性水酸基の減少が起こっていることから、両

者の競合が O/C 比の変化を見かけ上少なくしていることがわかる⁸⁾。また、脱メタン反応に関しては ¹H-NMR 分析の結果からメトキシル基や脂肪族側鎖の離脱が起こることが確かめられている⁹⁾。

腐植化過程で起こる化学変化を検討するため、腐植酸の光学的特性値、元素分析値、官能基分析値、¹H-NMR 分析値について因子分析を行うと、4 因子によって全分散の 75% が説明される。第 1 表に示すように、第 1 因子は脂肪族鎖や窒素成分を現し、第 2 因子は官能基や光吸収特性を現し、第 3 因子は炭水化物、第 4 因子はラク톤環を現す。従って、腐植酸の腐植化は、まず側鎖と含窒素成分の変化となって現れるものであり、次いで光学的性質や官能基量に変化することになる¹⁾。

黒ボク土壌、石灰質土壌、褐色森林土、沖積水田土壌、泥炭質土壌、草地土壌、底質土について、因子分析で負荷量の高い腐植酸の化学的性質を基に、土壌型を判別するための判別分析を行った。腐植酸の判別基準から土壌の推定確率を求めると、41 試料中 40 試料は正しく分類さ

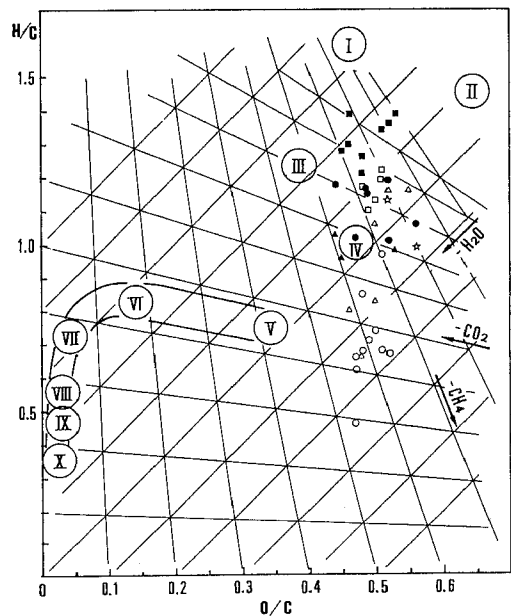


Fig. 1 Elemental composition of humic acids. Atomic H/C vs. O/C. I, plankton; II, wood; III, lignin; IV, peat; V, brown coal; VI, low rank bituminous coal; VII, medium rank bituminous coal; VIII, high rank bituminous coal; IX, semi-anthracite; X, anthracite. ○, Andisol; △, Mollisol/Vertisol; □, Ochrept; ●, Aquent; ▲, Histosol; ☆, Oxisol; ■, aquatic sediment.

れた¹⁾。このことは、腐植酸の分析値から腐植の生成した土壌環境を推察することが可能なことを意味している。

3. 腐植物質の平均化学構造

腐植物質は高分子化合物の混合物から構成されているため、化学分解によって得られる構成単位の化合物数は想像を絶する数となり、これらを同定して、もとの腐植物質を再構築することは非常に困難である。そこで、腐植物質と同様に混合物から構成されている石炭の化学構造を解明するために開発された統計的構造解析法¹⁰⁾を土壌腐植酸に適用した。この解析法は類似した構造を持つ物

質の集合体に対して、平均値としてその構造を把握するものである。元素分析値と¹H-NMRスペクトルを基に芳香族環と側鎖の炭素数を求め、芳香族指数、芳香環縮合度指数、芳香環置換度指数、脂肪族鎖指数などの構造パラメーターを計算し平均化学構造が推定される¹⁾。

腐植酸は石炭に比べカルボキシル基やカルボニル基などの官能基を多く含むため、Brownら¹¹⁾の構造指数計算法をそのまま適用できない。そこで、官能基はすべて芳香環に結合しており、ジフェニルやジフェニルメタン構造をとらないと仮定¹²⁾して計算法に改良を加えた。

元素分析、官能基分析、¹H-NMR分析の結果を基に、第2表に示すように、各種結合様式の水素数を求め、そ

Table 1 Factor loading matrix after varimax rotation.

Variable	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4
E $\frac{1\%}{600}$	-0.52	<u>0.66</u>	-0.47	0.09
$\Delta \log K$	0.19	-0.65	0.60	0.07
Carbon	-0.68	0.21	-0.31	-0.56
Hydrogen	<u>0.74</u>	-0.52	0.36	-0.06
Nitrogen	<u>0.92</u>	-0.13	-0.03	0.07
H/C ratio	<u>0.77</u>	-0.48	0.37	0.02
O/C ratio	0.07	0.02	0.31	<u>0.82</u>
N/C ratio	<u>0.91</u>	-0.12	0.04	0.08
Carboxyl	-0.04	<u>0.84</u>	-0.15	-0.04
Phenolic OH	0.02	-0.46	0.08	-0.10
Carbonyl	-0.20	<u>0.81</u>	-0.16	0.00
Alcoholic OH	0.11	-0.19	<u>0.89</u>	0.07
α -CH ₃ , α -CH ₂	-0.52	0.34	0.21	-0.27
β -CH ₂ , β -CH	<u>0.65</u>	0.02	0.18	-0.55
Remote CH ₃	<u>0.82</u>	0.08	0.05	-0.43
OCH ₃ -H	0.12	-0.74	0.11	0.34
Lactone-H	-0.04	0.01	0.11	<u>0.63</u>
Aromatic-H	-0.54	<u>0.61</u>	0.23	-0.21

Table 2 Number of various types of hydrogen and carbon per molecule.
(Hypothetical molecular weight : 10000, SUS-1 ; Mollisol)

	COOH	C = O	Ph-OH	Al-OH	Lact.	Aro.	OCH ₃	H α	H β	H γ	Total
H	48	20	10	43	40	73	69	18	42	15	378
Cfun	48	20					23				91
Cali				43				9	21	5	78
Car	48	40	10	43		73	23	9			246
Ccor											43

Average molecular structure parameters, equations
 $H_{au}/C_a = Car / (Car + Ccor) = 246 / (246 + 43) = 0.85$
 $n = (C\beta + C\gamma) / C\alpha + 1 = (21 + 5) / 9 + 1 = 3.9$

$f_a = (Car + Ccor) / C = (246 + 43) / 458 = 0.63$
 $\sigma = (Car - C_{Aro}) / Car = (246 - 73) / 246 = 0.70$
 $Ccor = TC - Cfun - Cali - Car$

れそれぞれに対応する炭素数をすべて計算し、残りの炭素が芳香環の縮合環を形成していると考え、芳香族指数(f_a)、芳香環縮合度指数(Hau/Ca)、芳香環置換度指数(σ)、脂肪族鎖指数(n)を次のように計算した。

$$f_a = \text{芳香族炭素} / \text{全炭素}$$

$$\text{Hau/Ca} = \text{置換可能な芳香族炭素} / \text{全芳香族炭素}$$

$$\sigma = \text{既置換芳香族炭素} / \text{置換可能な芳香族炭素}$$

$$n = (\beta \text{位以上側鎖炭素} / \alpha \text{位側鎖炭素}) + 1$$

腐植化度が高まると芳香族指数は増加し、芳香環縮合度指数は減少した。モデル化合物の芳香環縮合度指数を参考にして腐植酸の縮合度を推定することが出来る。第3表に示すように、黒ボク土壌腐植酸のHau/Caは0.62~0.89であるため、縮合環数は2~4環、褐色森林土腐植酸では0.95~1.15であるためベンゼン環と推定された。その他の土壌腐植酸のHau/Caは0.74~1.18であり、縮合環数は1~2環と推定された。なお、底質土腐植酸の縮合度指数は1.15以上となり、縮合環数は1以下になることになる。直鎖状構造や飽和環の占める割合が高いためであり、飽和環数を別の計算法で求める必要がある¹⁾。

脂肪族側鎖を直鎖状と仮定すると、その長さは β 位以上炭素数と α 位炭素数の比から計算される。底質土腐植酸の脂肪族鎖の平均長さは非常に長く、炭素数13~19となる。褐色森林土腐植酸では炭素数4~6となり、埋没黒ボク土では非常に短く2以下となる。その他の土壌腐植酸の脂肪族鎖長さは3~13の範囲にあり、土壌型による一定の傾向は認められない¹⁾(第3表)。

腐植酸分子量は、その多分散性の故に、測定法によって非常に異なる平均分子量が報告されている。超遠心法(Mz)では22000~230000、光散乱法(Mw)では65000~66000、凝固点降下法(Mn)では25000などの報告がされている。数平均分子量(Mn)を蒸気圧浸透圧法によって測定する場合、腐植酸の水溶液中での解離に基づく誤差を補正しなければならない。Hansen & Schnitzerの方法¹²⁾に従いpHによる補正を行い数平均分子量を求めた。黒ボク土壌腐植酸の数平均分子量は1700~4600、

褐色森林土や沖積水田土壌腐植酸では7500~8900、底質土では3500~5600であった¹³⁾。また、分子量分布をゲル浸透クロマトグラフィーで調べると、黒ボク土壌腐植酸は比較的せまい分子量分布を示すが、その他の土壌腐植酸は非常に幅広い分子量分布を示した¹⁴⁾。このことから、平均分子量の絶対値を比較することは余り意味を持たないことになるが、平均化学構造を推定するためには必要に数値である。

底質土を除き、腐植化度の低い腐植酸ほど分子量が大きいのはリグニンなどの高分子構造が腐植酸中に存在するためであり、幅広い分子量分布を示す理由でもあろう。一方、腐植化度の高い腐植酸(黒ボク土)ほど平均分子量は小さいにもかかわらず、構造指数から推定される平均構造単位の芳香環数は大きく、構造単位の分子量は大きい。これは、腐植化度が低い場合は構造単位の連結数が多く、腐植化度が高いほど平均構造単位の連結数が少ないことを意味している。第2図に、非常に大胆ではあるが腐植酸の平均化学構造モデルを示した。しかし、これはあくまでも平均化された構造モデルであって、このような構造が実際に存在することを示しているわけではない。いずれにしても、腐植化の進行を分子量の変化から低分子化と考えるべきではない。腐植化の進行に伴う縮合環数の増加は構造指数の変化から明らかであり、低分子化した前駆物質が縮合して腐植化が進行すると考えられる¹⁵⁾。

4. XAD 樹脂による腐植物質の分画

腐植物質のより精密な特徴付けのためには、構造タイプの等しい化学的性質の類似した構成成分に分離することが重要となる。そのため古くから多くの試みがなされ、酸沈澱、塩析、金属塩による沈澱、溶媒抽出、イオン交換、電気泳動、液体クロマトグラフィーなどが行われてきた。液体クロマトグラフィーでは、分子の大きさ、イオン排除効果、アニオン交換樹脂との水素結合に基づく分離機構によって腐植物質が分離されてきている。しか

Table 3 Structural parameters of humic acids.

Soil Group	Number	f_a	Har/Car	n
Andisol	10	0.59~0.75	0.62~0.89	1.4~13.1
Mollisol/Vertisol	6	0.52~0.69	0.74~1.01	2.5~10.1
Inceptisol (Ochrept)	5	0.45~0.51	0.95~1.15	4.1~6.4
Entisol (Aquent)	7	0.51~0.61	0.84~1.14	3.9~12.1
Histosol	3	0.58~0.62	0.84~0.93	3.8~8.9
aquatic sediment	8	0.35~0.48		12.9~19.4

し何れの分画法も、各種腐植物質から構造タイプの等しい構成成分を分画できるものではなかった。

MacCarthy ら¹⁶⁾と Thurman & Malcolm¹⁷⁾は、非イオン性疎水性樹脂 XAD-8 を用い、水成腐植酸を pH 2 で吸着させ pH 勾配による溶出を行うと、2つの溶出ピークが得られることを認めた。これは、pKa の異なる成分が pH 上昇と共に解離し、樹脂から脱着するためである事がモデル化合物を用いて確かめられた。しかし、土壤腐植酸は XAD 樹脂に吸着する以前に pH 2 で一部洗脱し、pH12でも溶出しにくい部分が多い。

著者らは、水素型にした土壤腐植酸の水溶液が約 pH 3 を示すため、pH 3 緩衝液で緩衝化した XAD 樹脂に H⁺型腐植酸を吸着させた後、段階溶出によって4成分に分離する手法を開発した²⁾。溶離液を、pH 7、pH11緩衝液(0.02M-リン酸、酢酸、ホウ酸の等モル溶液+NaOH)、水、50%エタノールの順に溶離すると、まず pH 7 で腐植酸のカルボキシル基が解離して親水性となって溶出する。次いで pH11 でフェノール性水酸基が中和されて親水性が高まり脱着する。水溶媒でカラムが脱塩されると比較的疎水性の成分が溶出し、アルコール性溶媒によってさらに疎水性の成分が脱着する。

このことは、腐植化度の異なる黒ボク土壌、褐色森林土、沖積水田土壌、泥炭質土壌腐植酸の4成分を分離し、その化学性を元素分析、官能基分析、¹H-NMR 分析で調べて確かめられた¹⁸⁾。溶出順に A、B、C、D とすると、いずれの腐植酸も炭素含量は A < B < C < D の順に高く、酸素含量は A > B > C > D の順に低下した。カルボキシル基、カルボニル基は A > B > C > D の順に低下し、フェノール性水酸基含量は B 成分で高く、アルコール性水酸基は D 成分でもっとも高い(第4表)。また、¹H-NMR による芳香族プロトンの存在割合は A > B > C > D の順

に低下し、芳香環から β 位以上の脂肪族プロトンの割合は A < B < C < D の順に高まる(第5表)。

従って、成分 A はカルボキシル基とカルボニル基が多く、側鎖は短く芳香環が発達している。成分 B は A の特徴に加えてフェノール性水酸基が多い。成分 C は比較的長い側鎖を持つ。成分 D は非常に長い側鎖を持ち、芳香環は発達しておらず、アルコール性水酸基が多い。このように生成過程の異なる腐植酸を、化学的性質の類似した構成成分に分離することが出来たため、これらの成分をカルボキシル性成分、フェノール性成分、準脂肪族性成分、脂肪族性成分と呼ぶ¹⁸⁾。

腐植物質の各成分の存在割合は土壌によって異なっており、4成分の存在割合の違いこそが、腐植酸自体の性質の違いを支配するものである。準脂肪族性成分はいずれの土壌でも非常に少ないため、脂肪族性成分と合わせて第3図に示した。フルボ酸と黒ボク土壌腐植酸はカルボキシル性成分が非常に多く、底質土腐植酸は脂肪族性成分が非常に多い。熱帯泥炭土壌下層土の腐植酸はフェノール性成分が多く、褐色森林土や沖積水田土壌腐植酸

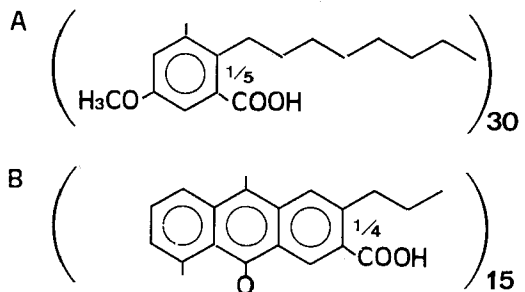


Fig. 2 Hypothetical average chemical structure of humic acids. A, Aquent; B, Andisol.

Table 4 Elemental and functional group compositions of the four components of Inceptisol and Entisol humic acids.

Humic acid	Component	C (%)	H (%)	N (%)	O (%)	H/C atomic ratio	O/C atomic ratio	functional groups (meq/g)			
								COOH	C=O	phenolic-OH	alcoholic-OH
Inceptisol	A	49.0	3.8	2.9	44.3	0.93	0.68	4.2	6.6	0.8	4.6
	B	50.0	4.5	3.4	42.1	1.08	0.63	4.0	5.4	1.2	4.3
	C	53.4	5.1	3.4	38.1	1.15	0.54	3.2	3.8	1.1	1.3
	D	58.1	6.6	3.5	31.8	1.36	0.40	2.5	1.3	0.5	5.5
Entisol	A	48.3	3.9	4.1	43.7	0.96	0.68	4.2	5.0	0.7	1.7
	B	51.4	4.1	4.3	40.2	0.97	0.59	3.7	ND	1.1	ND
	D	55.9	6.2	4.5	33.4	1.33	0.45	2.2	1.7	0.6	5.9

Components A, B, C, and D were eluted with universal buffer adjusted to pH 7, to pH 11, water, and 50% aqueous ethanol, respectively.

Table 5 Proton distribution of the four components of Inceptisol and Entisol humic acids

Humic acid	Component	Aromatic -H (%)	Lactone -H (%)	OCH ₃ -H OH-H (%)	α -H CH ₂ , CH-H (%)	β -H CH ₂ , CH-H (%)	γ -H CH ₃ -H (%)
Inceptisol	A	65.5	12.0	13.0	3.2	2.9	3.4
	B	52.8	15.3	20.1	3.2	5.1	3.5
	C	50.8	12.8	12.1	3.3	16.8	4.2
	D	16.3	24.2	15.7	3.9	35.0	4.9
Entisol	A	16.7	42.3	27.7	6.2	4.3	2.8
	B	16.8	43.5	25.2	5.9	5.1	3.6
	C	16.1	33.7	33.9	2.2	9.3	4.8
	D	12.4	5.1	50.5	1.9	22.1	7.9

Components A, B, C, and D were eluted with universal buffer adjusted to pH 7, to pH 11, water, and 50% aqueous ethanol, respectively.

The area of each peak in the ¹H-NMR spectra is given as the percentage of the total area of all the peaks in the spectrum.

引用文献

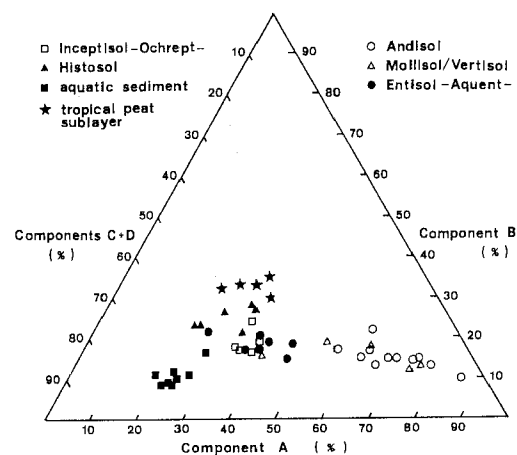


Fig. 3 Distribution of soils in the triangular diagram for humic acids components. A, carboxylic; B, phenolic; C, semi-aliphatic; D, aliphatic component.

は中間的性質を示す¹⁸⁾。

腐植化の進行とともに腐植酸の側鎖の長さが減少することを平均化学構造から推定したが、腐植酸の成分組成も腐植化にともない脂肪族性成分が減少していることが認められる。従って、腐植化過程は、側鎖の長い脂肪族性成分が脱離して、芳香環の発達したカルボキシル性成分の存在割合が増加することを意味していると推定される。このように、腐植酸の成分組成分析法は、腐植化過程を考察する有効な手法となると考えられる。

- 1) Yonebayashi, K. and Hattori, T.: Numerical classification and structural features of soil humic acids. Trans. XIV Congr. Inter. Soc. Soil Sci. V, 230-235 (1990)
- 2) Yonebayashi, K. and Hattori, T.: A new fractionation of soil humic acids by adsorption chromatography. Geoderma, 47, 327-336 (1990)
- 3) 米林甲陽・久馬一剛・川口桂三郎: 土壌中の有機・無機複合体とその有機物の特性, 土肥誌, 45, 416-420 (1974)
- 4) 米林甲陽・久馬一剛・川口桂三郎: 土壌中の有機物・粘土複合体の熱重量分析, 土肥誌, 45, 421-425 (1974)
- 5) 米林甲陽・服部共生: カオリナイト表面にみられる結晶成長ステップについて - デコレーション法・電子顕微鏡観察による -, 土肥誌, 47, 349-354 (1976)
- 6) 米林甲陽・服部共生: デコレーション法による粘土・腐植複合体表面の電子顕微鏡観察, 土肥誌, 47, 355-360 (1976)
- 7) 米林甲陽: 土壌中の有機・無機複合体に関する研究, 京都府大学報・農学, 28, 121-171 (1976)
- 8) Yonebayashi, K. and Hattori, T.: Chemical and biological studies on environmental humic acids. I. Composition of elemental and functional groups of humic acids. Soil Sci. Plant Nutr., 34, 571-584 (1988)
- 9) Yonebayashi, K. and Hattori, T.: Chemical and biological studies on environmental humic acids. II. ¹H-NMR and IR spectra of humic acids. Soil Sci. Plant Nutr., 35, 203-212 (1989)

- 10) Brown, J.K. and Ladner, W. R. : A study of the hydrogen distribution in coal-like materials by high-resolution nuclear magnetic resonance spectroscopy II. A comparison with infra-red measurement and the conversion to carbon structure. *Fuel*, **39**, 87-96 (1960)
- 11) 岡 宏・佐々木満雄・伊藤光臣・鈴木 章：泥炭フミン酸の構造に関する研究(1) — NMRによる泥炭フミン酸の構造解析 —, *燃協誌*, **48**, 295-302 (1969)
- 12) Hansen, E. H. and Schnitzer, M. : Molecular weight measurements of polycarboxylic acids in water by vapor pressure osmometry. *Anal. Chim. Acta*, **46**, 247-254 (1969)
- 13) 米林甲陽：講座, 腐植物質研究法, III, ペドロジスト, **33**, 129-143 (1989)
- 14) Yonebayashi, K. and Hattori, T. : Surface active properties of soil humic acids. *Sci. Total Environ.*, **62**, 55-64 (1987)
- 15) 米林甲陽：土壤腐植物質の化学構造と機能に関する研究, *土肥誌*, **61**, 231-234 (1990)
- 16) MacCarthy, P., Peterson, M. J., Malcolm, R. L., and Thurman, E. M. : Separation of humic substances by pH gradient desorption from a hydrophobic resin. *Anal. Chem.*, **51**, 2041-2043 (1979)
- 17) Thurman, E. M. and Malcolm, R. L. : Structural study of humic substances : new approaches and methods. *In* "Aquatic and Terrestrial Humic Materials", Eds. R. F. Christman and E. T. Gjessing, pp. 1-23, Ann Arbor Sci., Michigan (1983)
- 18) 米林甲陽・山田 亨：XAD樹脂吸着クロマトグラフィによる腐植酸の成分組成, *土肥要旨集*, **38**, 印刷中 (1992)
(受稿年月日1992年2月20日)



コメント

土壌中での温室効果ガスの生成と放出に対する植物の役割
— メタンを中心に —

笹川 英夫

Hideo SASAKAWA

The Graduate School of Natural Science and Technology, Okayama University

(Soil Phys. Cond. Plant Growth, Jpn., 65, 43-44)

以前より、環境保全の問題や地球の温暖化問題に対しては興味をもっていたということ、主として植物を材料に研究を行っているということから、土壌中での温室効果ガスの生成と放出に対する植物の役割について、若干コメントさせていただきます。

すでに何人かの方から指摘されていますように、大気を構成するガスの生成や放出に際して植物群落や海洋がきわめて重要な役割を果たしています。植物が関与するガスの動態の中で最も主要なものはCO₂であります。植物は光合成作用によってCO₂を体内に取り込み、有機物に変換する一方、呼吸作用によってその有機物の一部を分解し、CO₂を大気中に放出します。その量的関係はおよそ2:1であり、この点だけを見れば植物はCO₂の有効な吸収者ということになります。しかし、植物は落葉や枯死により有機物を土壌中に還元し、やがてはその有機物は微生物によって分解され、CO₂として再び大気に戻されます。したがって、長期的な地球規模での炭素の循環で見ますと、植物を介したCO₂の固定と放出はバランスがとれているということになります。ただし近年の急速な森林の伐採によって有機物の分解が促進され、毎年1-2 GtのCO₂が大気中に放出され、大気中のCO₂濃度を上昇させる一原因になっていることは重要な問題ではありますが、CO₂に関する限り、農業生産活動が直接的な被告の立場にはならないだろうと言えます。

これに対して、メタンやN₂Oの問題はかなり農業生産活動と直接結び付いています。メタンでは人為発生源の5割以上が農業生産活動に伴って放出され、N₂Oでは人為発生源の割合は小さいものの、その大部分は施肥土壌から放出されています。植物との関わりということで、話をメタンにしばさせていただきます。

農業生産活動に伴うメタン生成の筆頭は水田でありま

す。第1図はHolzapfel-Pschorn等が1986年に報告したものです。水稲を植えた場合、植物を植えない場合やカヤツリグサ、イなどの雑草を植えた場合に比べてメタンの生成量は生育後期に顕著に増加します。その主たる原因は、水稲根からの分泌物や根の自己分解によってメタン生成の基質となる有機物が供給されたためであろうと考えられています。

供給される有機物の種類によってもメタンの生成量は大きく異なります。第2図はNouchi等が1990年に発表したデータです。メタンの生成は土壌表面から5-10cmの深さの所で起こり、稲わらを施用した場合にその生成が顕著であり、コンポストの場合はほとんど認められません。土壌圏で生成されたメタンは主として植物体を介して大気中に放出されます。特に水稲の植鞘が重なった茎の根元5-15cmの範囲から大部分放出され、葉からの放出はわずかでありま

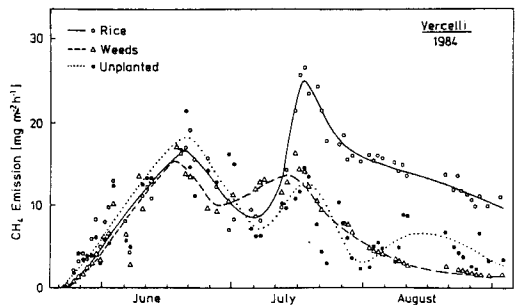


Fig. 1 Seasonal change of CH₄ emission rates from paddy fields. The fields were flooded on May 3, planted on May 5, 1984. The first CH₄ emission was recorded on May 22. The data points are daily mean values of 8 individual determinations by automated flux measurements in 3 hour rhythm. (Holzapfel-Pschorn *et al.*, 1986)

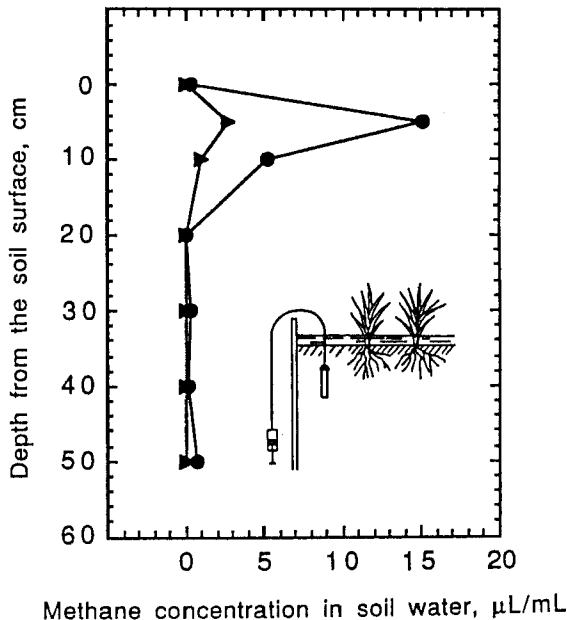


Fig. 2 Profile of methane concentration in soil water layer in fertilized straw (●) and compost plots (▲). The polyethylene filter cups were connected to Teflon tube and were inserted at 5, 10, 20, 30, 40, and 50 cm depths. Soil water was extracted by siphoning and taken with a microsyringe. (Nouchi *et al.*, 1990)

これらのデータを元に、土壌からの植物体によるメタンの吸収と放出のメカニズムは、次のように考えられています。土壌中で生成されたメタン（大部分は土壌水に溶解）は拡散によって植物体の表皮細胞に取り込まれ、さらに濃度勾配によって皮層細胞に移されます。皮層細胞に達したメタンはそこでガス化され、破生細胞間隙や細胞間隙を通して地上部に運ばれ、主として下位葉の葉鞘に存在する microspore（細孔）より大気中に放出されます。

以上の結果を総合的に見ますとメタンの生成・放出は水田で水稻を栽培する限り、避け得ない問題のように思われます。しかし、果してその発生を抑制する方策はま

ったくないのかということであります。その点について、最後に若干述べたいと思います。

前述しましたように、メタンと N_2O の生成・放出は農業生産活動と密接に結び付いています。水田から放出されるメタンは年間 $\times m^2$ 当り 5—120 g、家畜(牛)では年 \times 頭当り 40—60 kg と推定されています。水田では生成量を抑制するための放策として、(1) 水管理の適正化による土壌の還元化を抑制すること、(2) 有機物の施用を工夫すること、(3) 施用する肥料を選択すること、(4) 品種を選択すること、などが考えられます。家畜については、(1) 飼料の与え方を改善すること、(2) 発酵を抑制する飼料添加剤を使用すること、(3) 鶏などの腸内発酵の少ない家畜の利用を促進すること、などが考えられます。

N_2O は土壌中での硝化過程で施用窒素の 1—2 % 程度が生成・放出されると推定されています。その対策としては、(1) 硝酸化成が起りにくい肥料に転換すること、(2) 硝化抑制剤を添加すること、などが考えられます。

このような対策を行えば、年間 0.5% 程度のメタンなり、 N_2O の大気中への放出が削減可能と試算されています。この 0.5% という数字を価値あるものと見るか、あるいは無意味と見るかは判断の分かれるところでありましようが、農業活動が温室効果ガス放出という環境破壊の加害者と指弾されないためにも、本日のテーマである「土壌中における非保存性物質の動態」に今後とも注意を向けて行かなければならないだろうと考える次第です。

参考文献

- 1) Holzappel-Pschorn, A., R. Conrad and W. Seiler : Effects of vegetation on the emission of methane from submerged paddy soil. *Plant and Soil*, **92**, 223—233 (1986).
- 2) Nouchi, I., S. Mariko and K. Aoki : Mechanism of methane transport from the rhizosphere to the atmosphere through rice plants. *Plant Physiol.*, **94**, 59—66 (1990).
- 3) 「地球温暖化を防ぐ」, 環境庁「地球温暖化問題研究会」編, 日本放送出版協会 (1990).

(受稿年月日 1992 年 2 月 3 日)

コメント

「土壌中の非保存性物質の動態」に関する
土壌物理学ならびに農業土木学の観点からのコメント

三 野 徹

Toru MITSUNO

Faculty of Agriculture, Okayama University

(Soil Phys. Cond. Plant Growth, Jpn., 65, 45-46)

本日のシンポジウムでは、大滝先生の大気中のガス輸送に関する講演をはじめ、4名の先生からは、大気を構成するガスの生成や放出に際して、土壌や植物群落、あるいは海洋がきわめて重要な役割を果たしているという大変興味あるお話をうかがいました。一つひとつのご講演に関連しても、それだけで半日や一日の討論時間が必要になるほど濃い内容のお話ではなかったかと思えます。このように多方面の、しかも最先端の研究のお話を伺ったわけでありますが、本日のシンポジウムに参加されておられるのは、土壌肥料や農業土木分野の関係の方々であり、それぞれのお話が私どもの研究とどの様に関わりがあり、あるいは今後どの様な関わりを持つかということに、大きな関心をお持ちのことと思われまふ。後ほどの総合討論ではそのようなお話が多数ではないかと思えます。私がコメントを仰せつかったのは、多分、土壌物理学あるいは農業土木の立場で、総合討論へのつなぎをせよとのことと勝手に解釈をいたしまして、以下、若干のコメントをさせていただきますと思えます。

と言いましても、大変範囲の広い、しかも私の力では理解できない専門的な難しい内容もありました。現在、私の頭の中が多少混乱状態にあるというのが正直なところでありまふ。したがって、とてもまとまったコメントはできないと思えますが、ご容赦願いたいと思えます。

土壌微生物の役割とその活動環境の形成：前置きが長くなってしまいましたが、このようなガスの生成過程に土壌がどの様な関わりを持つかを考えるとき、木村先生のお話にもありまふとおり、土壌微生物の活動を抜きにしては考えられないと思われまふ。微生物の活動は、自らの活動と土壌の物理性の相互作用によって形成される土壌中の環境に決定的に依存していることになりまふ。その結果生成されたガスは、確かに土壌中における生

学反応の結果生成されたものには違いないのですが、微生物と土壌の相互作用によって形成される総合的現象のなかの一つの切口に過ぎないように思いまふ。その意味で、実験室において生じる純化された化学反応過程とは違い、そのような反応が生じる土壌と微生物系のシステムとしての総合性にこそ、ここで取り上げたガス生成問題の本質があるように思いまふ。

総合的反應空間としての土壌圏：そのような意味から、土壌を物質概念でとらえることに加えて、そのような反応が生じる空間、すなわち土壌圏という概念がとくに重要な意味を持つてくるのではないかと思いまふ。土壌を、物質、すなわち反応の原料物質ならびに反応の結果生じた生成物を含めた物質の総体として見るとともに、さらにエネルギーやエントロピーの変化と移動の場と見る必要があります。とくに、エネルギーやエントロピーを運ぶ物質の通過特性が、そのような空間概念の中できわめて重要な意味を持つてくることになりまふ。結局、ガス生成反応と、物やエネルギー、そしてエントロピーの輸送メカニズムが一体となって微生物の活動環境を作り上げ、しかも微生物は自らの生育条件の整っている部分を選び、そこでコロニーを形成するというように、生物の自立活動が展開する空間として土壌圏が機能することを考えなければならぬことになりまふ。私がこれまで関係してきた、無機的な環境を主たる対象とする土壌物理とはかなり異なった対応が、これからの土壌物理研究には必要となることを、本日これらのご講演をお聞きする中で、改めて痛感いたしました。

土壌圏と土壌の機能構造：一つのマイクロコスモスを形成する土壌圏という多様な空間を考えるとき、とりわけ、土壌構造がこの空間の多様性を表現する一つの方法でなかったかと思つた次第です。この多様な空間によって、一見あい矛盾するような土壌の機能、例えば、排水性と保水性のような機能が土壌に付与されるように、微生物と無機的環境の相互作用が保たれるような土壌空間、す

なわち土壌圏が構成される。まさにこの空間的多様性が、土壌圏の本質のような気がしました。

非保存性物質と土壌水：本日のテーマであります土壌中の非保存性物質の中で最大の物質が、本日の話題の中で欠落していることにいま気づきました。それは水であります。これまでの土壌物理分野の研究は、この水の挙動に集中していたように思います。特殊な場合を除いて、水の動態に微生物活動が直接的に大きな影響を与えないこと、土壌中に存在する水が他の非保存性物質の存在に比べて著しく多く、その化学反応が保存則を決定的に乱すことはないことなどから、土壌水は他の非保存性物質と切り離して取り扱うことができました。そのために、炭素や窒素、硫黄などは区別して取り扱われてきたように思われます。しかしながら、土壌中の水の存在は、間隙中のガス拡散空間に大きな影響を与え、土壌中のガス輸送特性に決定的な影響を与えます。そのために大気中の酸素ガスの輸送を通じて土壌中の酸化・還元状態を決定づけ、微生物の種類やガス生成反応の種類を決定づけることとなります。また、水の運動を通じて化学反応の原料となる溶解物質や、微生物の栄養源の供給、廃物の排出などに重要な影響を与え、さらに微生物の生息環境の形成に当たって、水の存在は欠かせないものとなることは想像に難くないと思われます。

ガス生成制御のための土壌水の制御：その意味で、土壌圏における環境を作り上げる上で、やはり水の存在と移動の問題はきわめて重要な意味を持っており、あらためて、私ども土壌物理分野で取り組んで来た土壌水の運動と存在状態の研究の意義を理解しました。ガス生成のメカニズムの話題の中でも出てきましたが、その制御が

これから大きな課題になってくるものと思われま。メタン生成や一酸化窒素、また含硫ガス生成などで、水田や湿地帯の役割が取り上げられていましたが、土壌水の制御を通じたこれらガス類の生成制御では、これまでの土壌物理分野や農業土木分野で蓄積されているノウハウが大きく貢献できることになると思います。

土壌有機物について：最後の米林先生のお話は、先の3つの話題とは少し観点が異なった話題ではなかったかと思われま。しかしながら、土壌圏で微生物と土壌とが互いに相互作用を及ぼしながら各種の反応と生成物を作り上げて行くことを考慮して、生成物、つまり腐食によって逆に土壌圏のおかれていた環境や土壌そのものの特性が明らかにできることを示されたご研究と、私は理解しました。このご研究は土壌調査法の基礎としてきわめて興味深い内容であるとともに、すでに述べてきた空間概念としての土壌の機能調査で、今後有力な方法になるものと考えられます。土壌を微生物活動と無機的環境の総体として考える点では、先の3つのご報告とおなじ観点に立つものといえると思います。

総合的土壌空間指標としての三つの“p”：最後になりましたが、このコメントをしている間にふと感じたことがあります。微生物の活動空間、化学反応の生じる空間、そして土壌水の存在と動く空間である、総合空間、土壌圏の状態を示す指標として、“pH”、“pe”、“pF”という3つの“p”による状態表示が今後、土壌物理分野の研究においてますます重要性を持ってくるものと思われま。

大変つたないコメントとなりましたが、このあたりで終えさせていただきます。と思われま。

(受稿年月日1992年3月2日)

総 合 討 論

本総合討論は、下記の第33回シンポジウムに関するものである。
各講演内容は本誌に報文あるいはコメントとして掲載されている
が、各々に適した内容で掲載されている。

記

日 時：平成3年11月6日（水）10：00～17：00
会 場：岡山大学大学院自然科学研究科大会議室
テーマ：土壌中における非保存性物質の動態と土壌物理性
特別講演

大気中でのガス輸送とその計測
大滝 英治（岡山大学教養部）

講 演

1. 水田土壌中における CO₂と CH₄の動態
— 大気へのフラックス —
木村 真人（名古屋大学農学部）
2. 大気—生態系の含窒素ガスの交換
吉田 尚弘（富山大学理学部）
和田英太郎（京都市大学生態学研究センター）
3. 農業生態系から放出される含硫ガス
陽 捷行（農業環境技術研究所）
4. 生態系における腐植生成と脂肪族成分の変動
米林 甲陽（京都府立大学農学部）

コメント I

笹川 英夫（岡山大学大学院自然科学研究科）

コメント II

三野 徹（岡山大学農学部）

総合討論司会：中野 政詩（東京大学農学部）
岩間 秀矩（草地試験場山地支場）

【司 会】

それでは総合討論に入りたいと思います。今回大変内容が濃くて、しかも広範囲にわたるお話をうけたまわりましたので、私どもで項目を整理しご討論頂くことも考えてみましたが、むしろまとめるよりは皆さまがたから、各講師の先生がたにご質問がまだいくつか、というより相当残っているのではないかと思いますので、はじめにご質問を頂いて、その後二人のコメントーターの先

生がご指摘下さったような内容も参考にしながら議論を進めてゆきたいと考えます。

質問用紙を頂いている方が3人いらっしゃいます。まず最初にこの3名の方からご質問を改めて口頭でお伝え頂いて、講師の先生から返事を頂く、その間に皆さまがたにはご質問などをまた整理して頂く、このように考えておりますのでよろしくお願い致します。もしなにか進め方にご意見がありましたら、ひとつこういうふうに、この点を集中的にやってくれ、というようなコメントを適宜頂ければ幸いです。

講師の先生がたもよろしくお願い致します。

それではさっそく質問用紙の方にまいりたいと思いますが、大滝先生おいででしょうか。特別講演ということですので恐縮ですが、東京大学の塩沢さんから質問がございます。塩沢さん、口頭で詳しく質問して下さい。

【塩 沢・東京大】

エディコリレーション法（渦相関法）で炭酸ガスの濃度を測定できるということですが、微量成分のメタンだとか N₂O についてこれを使える可能性があるのでしょうか。

【大 滝】

近赤外にうまく吸収体があり、それが強い吸収体でかつメタン等の濃度がかなり大きい場合、その時には測定機は作成可能だと思っております。けれども現時点でメタンの濃度が PPB とか言われて、またその変動がその一桁ぐらい小さいことが予測されますので、今のままのディテクターの状況とか、光源の強さとか考えると難しいんじゃないかなと思っております。もう少し別のレーザーとかなんとかっていうディテクターが赤外の方まで、今は1ミクロンぐらいなんです、4ミクロンぐらいまでのびてくると、そういうレーザーなんかを使うと可能なんじゃないかと思っています。

【司 会】

どうもありがとうございました。よろしいでしょうか。突然ですが、関連して微量ガスの分析の現状について、陽先生にお話をうかがいたいとおもいます。

【陽】

微量のナイトラスオキシドの分析につきましては、吉田先生がお詳しいのですが、まずナイトラスオキシドは現在 ECD で測定致しております。310PPB というオーダーでございまして、このオーダーで測定するのは、フラックスを測るのが精一杯といいますが、あるいは310PPB を正確に測定するのが精一杯でありまして、ある方法によれば逆にこんどは ECD という検出機を使わないで、ウルトラソニックディテクターというのを使うなどしております、なかなか正確な値を出すのがしんどい場面があります。炭酸ガスの354PPM というようなものに較べると約千倍の違いですから、自動的にナイトラスオキシドを測定するのは、いま現在は困難に思っております。

それからメタンにつきましては FID という検出機で測定しております、大気の濃度が1800PPB、1.8PPM でございますので、これは現在既に自動分析装置が開発されておまして、もちろん FID を使用しておりますが、これでメタンにつきましては自動測定ということは可能であると思っております。

Sの方は FPD という検出機で検出しておりますが、これも大変難しく今のところはトラップという、一定量の空気を一度捕まえて、それを溶かして測定するという方法で、とうてい自動測定ということは難しいだろうと思っております。

【司会】

ありがとうございます。実は司会2名で相談した時に測定法の問題が一つの討論の議題になるのではないかと話しておりました。もしなにか測定法、測定上の問題ということに関連して、ここで自由に質問をお受けしたいとおもいますが、いかがでしょうか。よろしいですか。

それでは、次の質問票に移りたいと思います。木村先生に農業工学研究所の石黒さんから質問が出てますが、口頭でお願い致します。

【石黒・農工研】

いずれも土壌微生物の活動に関係することなんですけれども、まず CO₂ とか CH₄ とかを発生させる微生物の活動位置、水田作土中で特定に活発に活動する位置がありましたら、教えていただきたいと思っております。マクロにみると、根圏土壌内という考えもあるでしょうし、また、代かきして均一になった状態でもやはり不均一でしょうからどこか特定の位置で活動するのかなども教えていただきたいと思っております。

【木村】

微生物の活動が活発である場所ということですが、メタンにしましても、炭酸ガスにしましてもいずれも有機

物の分解が起源だと思いますので、ひとつは植物の根圏、もうひとつは植物遺体が水田の土壌中には多いと考えられますので一種の植物遺体圏というものを考えていいと思います。

ただ植物遺体と水稻の根との違いというのは、水稻の根というのは時期によりまして、特に生育の初期ですけれども、酸素を出すという特徴がありますので、有機物は出てくるけれどもそこに酸素があるために炭酸ガスまではいくけれどもメタンまでいくかどうかというところに植物の根と植物遺体というものに違いがあると思います。

それと確か笹川先生のコメントの中で10センチぐらいの所まででメタンが非常によく出ていたというのがありますが、やはりあれも代かきをしまして軽い有機物、あるいは粘土質のもの、このようなものはかなり有機物を含んでおりますので、それが土壌の表層の方に蓄積しているということで、もう少しマクロにみたときにも、かなり表層の方のところ、粘土画分の多い所に有機物が集まる、そういうようなヘテロ性というのはあると思えます。よろしいでしょうか。

【石黒】

それとガス発生反応速度がわかりましたらぜひお願いします。

【木村】

例えば1日当たり何グラムぐらい、何ミリグラムぐらいが出るか、ということは今日のスライドでお見せ致しましたけれども、「もう少しミクロになると」ということですが、どのあたりのレベルでしょうか。

【石黒】

とりあえずどのレベルでもいいんですが微生物の一個体が、どの程度の反応時間を示すか、ということなんですすがいかがでしょうか。

【木村】

それは私ではお答えできませんが。

【司会】

今のその反応速度の問題は後回しにさせていただきました、質問が3つあったということですからさきをお願いします。

【石黒】

pH の問題と CO₂ が溶解して降下浸透していくというお話がありましたけど、心土中や地下水中に流れてこれは変化するものなんですか。

【木村】

まず下にいったらどうなるかですが、炭酸ガスの場合ですとこれ以上は還元されないと思っておりますので、炭酸ガスは炭酸ガスのままでないか、ただこれは pH と溶解度が

非常にからまっておりまして、あるいは溶解しきれずに気泡になる、いわゆる分子状の炭酸ガスになるかもしれませんが、化学的な形態というのは変わらないと思います。

メタンに関しては、陽先生のどこまで酸化するのかというご質問がありましたけれども、ある程度まで酸化するだろうと思っておりますが、炭酸ガスは変化しないと思っております。

【石 黒】

還元状態であれば相当地下、そういう状態があればですが、微生物はやはりかなり地下深くでも活動することはあるのでしょうか。

【木 村】

問題は有機物だと思いますが、作土を離れた例えば水田をずっと降りていきますとあと残るのは泥炭のようなところかどうか、ということがありますけど、それほどメタンはつくられないと考えます。おそらく有機物もそれほど活性のあるものでないと思えます。ただ泥炭のようなところで水を落としたりすると、急にメタン発生とか、あるいは有機物分解があると思えますが、そうでない限りはそれほど変化しないと思えます。

【石 黒】

pHの変化についてはいかがでしょうか。

【木 村】

微生物の活動とということでしょうか。

【石 黒】

まず微生物がガスを出して、ガスの溶解によってpHが変化するということだと思んですが、それと微生物の活動時に、あるイオンを取り出すとどうかということなんですが。

【木 村】

はいわかりました。いままで普通は酸素にしましても、硝酸、マンガン、鉄、こういうもの全部酸化系であるということは、還元系に較べてpHが低い方だと思います。ですから普通は水田土壌を湛水致しますと、初めはpH5とか6ぐらいですけども、最終的には7ぐらいに収斂致します。そういう意味ではpHは上ってまいります。ですから微生物の活動に伴って、pHが上がる、下がるという意味では炭酸ガスに関しては溶容量が増える環境に進んでいくと考えていいと思います。ただこれは塩類土壌とかもっと別の地域ですと、むしろpHは、水田土壌でも高いところから、pH8以上のところからだんだん7に収斂するところがあります。それは逆転すると思えますけども、日本のような水田においては酸性から中性に向かう方ですから、溶解度は上がる方に行くというように理解していいのではないかと思います。

【司 会】

よろしいでしょうか。ガスとその溶解している成分、溶解したものと気体状のものとはいつも平衡状態にあるとみていいのでしょうか。

【木 村】

はい、そうじゃないでしょうか。

【司 会】

そうしますと、土中水からガスが放出される、それからガス体のものが水に溶解する、と言うのは瞬間的に起こると、それから有機物が分解して、ガスが出てくるといったときにはこれも瞬間的に反応が起こるとどうみていいんですか。やはり反応速度論みたいなものを考えないといけないんですか。

【木 村】

そうですね、ではこういうことでよろしいでしょうか。今日のお話の中でひとつだけ、心土のほうにいきますとトータルな炭酸ガスのデータをお出ししたと思えますが、あれは土屋さんたちのデータなんですが、あの根拠の背景になっておりますのはpHを測ってありましてそれと炭酸ガス全部を測ってあります。で、そのときには平衡系として理解して計算上合っていたと思えます。ですから、その範囲内では一応いまおっしゃる平衡状態が維持されていてその状態でもって心土の方に水が流れていく、ということが起こっていたといえる一つの例だといえます。

ただメタンの生成した周辺のところでは、平衡状態に達しているかどうか、これに関しては時間のファクターをいれる必要があるかも分かりませんが少しマクロにみるとpHと溶解度でもって説明できるようであります。

【司 会】

ありがとうございます。硫黄では、陽先生、どのように考えたらよろしいのでしょうか。

【陽】

その前に先ほどのご質問の反応速度が関係してくると思うのですが。メタンが生成されるのは炭酸還元反応、要するに炭酸ガスがメタンになる系と、メチルキチン反応、メチル基が後でメタンになるという2つの反応があるわけです。それでその反応に関与するもっとも大きいファクターは、その培地、といえますかその環境にある基質と、温度、そして還元状態という3つのものが一番大きなわけですし、大変なファクターがありますので、例えばいまご質問にあったようにですね、いっぴきの微生物がどれだけのメタンをつくるかという反応速度なんて、とても計算できないし、誰もやっていないわけで、例えばケミカルな反応速度論というものはほとんど当てはまらないし、誰もやっていないと私は理解しています。

それからもう一点、ガスの溶解度の問題ですが、先ほどの話の中で、ガスの溶解度がそれぞれ、 N_2O にしてもメタンにしてもあるんですが、ガスに溶解しているもの以上のものが水の中にあるんです。それは溶解度を越えた、いわゆるオクルードされたものと呼んでいますが、水の中に一緒にその気体のガスが入っているという状態で、通常例えば、 N_2O なんていうものは地下に水が流れていって、地下水に N_2O が沢山あるのですが、従来の溶解平衡以上のものが水の中に溶けておりますので、単なる溶解度でその話は終わらないという問題があります。一方では海底にオクルードされたメタンというものがあまして、それなんかは溶解度というものとは違った話のようです。ですからガスそのものとして水の中に入っているという話がありますので、溶解度との平衡状態というものとは全然違った話だと思っております。

それでその後Sに話をふってこられた訳ですが、Sについての溶解度なんていうものは、硫化水素やメタンについては溶解度積がきちっと出ておりますけれども、他の成分については一応化学式が、一気圧何度の時どうかという様なものはありますが、現実的にはさきほど N_2O の時にお話したように、溶解度とうまく適合する様なものではないと考えておりますが、それでよろしいでしょうか。

【司 会】

どうもありがとうございます。先ほどの石黒さんからのご質問の時間の問題をこういう問題にすり替えさせていただきます。失礼致しましたけど、よろしいでしょうか。また、そのこととコメント2として三野先生がさりげなくおっしゃったことで耳に残っているのですが、それは土の中あるいは大気、海洋についてもそうでなかろうかと思っているんですが、土壌圏、圏という言葉をお互いに使われて、そこではいくつかの現象をセットとして考えるべきであると、こういうことをおっしゃったと思うのですが、これを私なりに、ある1つの物質に注目して、あるいはいくつかの物質に注目して、これの非定常な状態を刻々と見ていこうというような場合を考えた時には、どうしても分解速度とか発生速度とかいうようなものがないと計算に乗らないと、つまりダイナミクスを土の中、大気の中あるいは植物体の中、これをダイナミクスとして考えた時にこれと言った化学変化をつなげるときに、実はこの分解速度、発生速度がどうしても不可欠で、知らなければならないファクターになっていると、こんなことを考えてたものですから、時間という問題にも一つそういうものがあるかな、ということもあって先ほどの話をここにつなげさせていただいたわけです。何かこの辺でご意見ある方どうぞ。

【塩 沢】

N_2O が溶解度を超えて存在すると言うのはどういう意味なんでしょうか。飽和以上に存在するということでしょうか。

【陽】

飽和以上に存在するということです。

【塩 沢】

どうしてなんでしょうか。

【陽】

例えば土壌に窒素をやります。そうしますと硝酸化作用がおきます。アンモニウムイオンが硝酸になる過程で N_2O が出てくるという話は吉田先生がお話になりましたけれども、それが本来ならガスとして大気に出ているのですけれども、一緒に水が流れていく時に、空気あるいは気泡と言った方がよいのでしょうか、それが水と一緒に流れて行ってしまうという話なんです。

【司 会】

よろしいですね。勝手なことを話しているうちに時間がなくなってしまうので、次の質問に移らせていただきます。

【岩 間】

吉田先生に。まあ講演をちゃんと聞いていれば分かったことじゃないかと思うんですが、地球規模で海洋の状態、地表の状態、そういうものを総合的に備えていく時に $N15$ とか $O18$ の同位体比の分析っていうのが非常にいい方法になるっていうお話だったんですけども、そこらへんで、 $N15$ と $O18$ を組み合わせる時に、何が明確になるのかって言うことをもう一回整理して教えていただきたいのです。それから海洋の役割っていうのは N_2O のときにはあったわけですけども、メタンに関してはどうなんですかって言うことなんですけれど、いわゆるメタンの発生には硫黄の還元と非常に競合するというところで、海水には硫黄のイオンがありますからそれで海水からは多いのか少ないのか、ということをお話いただきたいんですが。

【吉 田】

最初のご質問の方ですが、同位体と言うのは、ひとつは積分的なパラメーターだということです。ですからフラックス、あるいはそのある時の濃度というもの以外に、何からつくられて、どういうふうになくなって非常に積分的なパラメーターだという点が一つあります。ですから地球規模の問題を考えるには有効な指標になるだろうと思っているわけです。

それでご質問の主旨はたぶん窒素だけではなくて酸素をパラメーターとしていた時に何が分かってくるかという点なわけですけども、まあ一つは簡単に言うと呼

報量が多いほど、制限が因子として働く可能性があるのですが、窒素・酸素両方使えばいいという点なわけです。で、まだ出しはじめて間がないものですから一番最後のスライドをきちんとご説明しなかった点が、たぶん問題だと思うのもう一度これをお見せしてお話をさせていただければと思うんですが、簡単に5分以内でご説明させていただきます。

縦軸が窒素で横軸が酸素同位体比になっています。大気を調べるとこの辺になる、そして海洋に溶残するものを調べると少し大きいんですけども、一部硝酸還元系にはいっているものですからたかい同位体比が多いわけです。それから縦軸の窒素が、私が求めた N_2O とか硝酸とかアンモニウムとか、そう言ったものしかエンドメンバーとしておいてないので実は非常に不完全な図なんです。で、こう言ったエンドメンバーをもっときちんとしたものに、つまり2次元にしていくともっといろんなところにプロットされてくるはずで、その内の一つとして、例えば、今もうはっきりしているのは、もちろん調べるべきなんです、化石燃料起源のものはここにきています、それで例えば引っ張られる方向がこちらに引っ張られるのか、あるいは先ほど申しましたように肥料を起源としたものではもっと下にくるわけですから、この傾きがもっと下に向くわけです。そういった情報がこの絵からもっときちんと出るはずで、それから先ほど陽先生がお話になったように、地下水は非常に重要な N_2O のソースというか、リザーブとして重要になってきそうなんです。もちろん地下水の絶対量は非常に限られてますけれども、その濃度が高いという点で非常に重要なんです。で、これについては最近、アメリカの吉成先生のグループが仕事を始めておまして、実は私どもと連絡をとりながらやっているのですけれども、これに関しましては窒素の同位体比が非常に低いところ、酸素の同位体比は30ぐらい、これは私のデータではないので本当は明らかにしてはいけないものだったんでここだけに止めておいていただきたいんですが、こう言ったものがあるというわけで、そう言ったものがどういうふうに混ざるか、という点です。

それから後もうひとつは、この値がどうして決まっているのか、というのをきちんと決めなくてはいけなくて、ソースはこちらにだけある訳で、ところがどうしてこちらになっているかという、きちんと申し上げませんが成層圏で高分解を受けている、それからこれはこの会が土壤に関わっているからわざと云ってるわけではないのですが、土壤圏が N_2O のシンクとして非常に重要な可能性がある、一部私のデータもいれてお話ししたんですが、そう言った際の同位体分別を受けて重くな

っているわけです。おもに軽いものから反応していくので、残ったガスは重くなるという一般則にはあっているわけです。窒素酸素のパラメーターを使うことによって、窒素の一次元だけでは見にくかったものが見えてくるはずであるということなんです。

二番目の方の質問の海洋はメタンにとってソースか、シンクかと言うのは本来私が申し上げるべきではないんですが、最近いろいろな方がいまして、いま現在海洋は弱いソースであろうと言われてると思っております。これは文献、それから海洋学者、あるいは気象研の方がいろいろな観測をされてお仕事をされております。

【司 会】

私どものところにきている質問は以上ですが、どうぞ皆さまがたから質問でもコメントでもお出しただけだとおもいます。

【西 村・東京大】

腐植酸の平均化学構造の違いについて米林先生にお教えたいただきたいのですが、黒ぼくとか沖積の水田土壤とかで溶け出した平均化学構造とか違いがあるということの、その原因について教えていただきたいんですけども、おもに土壤の生成過程における環境の違いというふうに考えてよろしいことなんでしょうか。それとも例えば粘土鉱物の違いとか、粘土のどの部分に腐植酸が、有機物が吸着しているかというあたりも、平均化学構造の違いに影響を与えるものなのかどうか、ということについて教えていただきたいのですが。

【米 林】

平均化学構造が生成過程とどう影響しているか、ということですが、ご承知のように私どもが腐植を扱うときにその生成過程と言うのは非常に難しいのです。と申しますのは、ひとつの土壤型、例えば水田土壤について、その腐植化過程をずっと追っかけるということはございません。黒ぼく土壤は比較的最初から最後まで年代をおって追っかけることはできますが、その他の土壤について、特に褐色森林土壤などについては、同じ土壤について生成の直後から現在の状態までを連続的に追っかけることは不可能でございます。

それでいま私どもが腐植化過程と称しておりますのは、日本において非常に黒い黒ぼくを一方の端におきまして、そして比較的黒くない土を一方の端において、その過程をもって腐植化過程と呼んでる訳でございます。だから方法論的に非常に飛躍があるといえはその通りですが、一応そういう手法をとらざるを得ないわけです。そう致しますと黒ぼくでああ腐植酸がとれて核構造が多くなったようなものができあがってる、それはひとつの事実です。ただそれをその方向しかないとすることに

なると、これはなんとも言えないとしかいいようがございません。ただ黒ぼくについていうならば非常に若いところから古いところまでのものだったらひとつの連続性を持った、例えば核構造が一つのものからどんどん増えていって三つも四つもくっついたものができあがっている、そういう過程は間違いございません。ただこれが沖積土壌にそのまま適用できるかということそれはちょっと不可能だと思います。あと粘土鉱物との関連ですが、これは推測しかできませんが、ただ現象として非常にその土の中で腐植化度の高いものはコースクレイとシルト、シルトは表面活性がそんなに高いわけでもないですし、面積的にも多くないですからどうして腐植化度が高いのがあるのかわからないのですが、いずれにしても粗粘土部分が非常に腐植物質の変化にとって重要であろうということだけは言えると思います。それでは黒ぼくの場合どうなのかと申しますと、それは現在、私はなにも答えを持っておりません。

【西村】

ちょっとそれに関して素人的な質問で申し訳ないんですが、その粗粘土っていうのは、例えば腐植なんかで結び付けられてある程度粒径の大きな粗粘土になったっていうのはあるんですか。

【米林】

アグリゲートの可能性という意味でしょうか。

【西村】

そうです。

【米林】

アグリゲートはまずないという条件で分析しております。それはセメンティングしている状態ではございませんので。

【西村】

どうもありがとうございました。

【陽】

先ほどの海洋はソースかシンクかというお話ですが、いろいろありますが数字だけ申し上げます。IPCCの報告では年間450から650テラグラムのメタンが発生致しております。そのうち海洋は5から20テラグラム、大まかに言って10テラグラム、従って500分の10ぐらいが海洋に由来している、ということになります。当然SO₄イオンがありますからメタン生成についてはいろいろ問題があります。先ほど笹川先生の中に海洋が出ていたか忘れしたけれども数字としてはこういう数字がIPCCの報告です。

【司会】

ありがとうございました。さらにご質問の方を続けたいと思いますが。

【青山・岡山大】

地球環境汚染物質として現在問題になっております、炭酸ガスやメタン、硫黄化合物の生成メカニズムについてお話いただき、大変興味深く聞かしていただいたんですが、最後の三野先生のコメントの中で土壌圏をシステムとして総合的に捉えることができるようだ、というお話があり、今日お話いただいた先生がたのおっしゃったような生成メカニズムに基づいて地球環境問題を考えると、制御という方向が一つの方向性かもわかりませんが、その場合に制御の方法はいろいろあるのでしょうか、無理矢理に押え込むということをした場合に、生産の場としての土壌圏の持続的な維持と言うのは果して可能なかどうか、そう言った点での研究が必要かと思うのですが、そう言った点での現在の研究状況と、そうしてそう言ったことを考慮した上での制御のあり方についての先生がたのお考えをお聞かせ下さい。

【司会】

それは大変重要なことで、実は今日の最後の討議事項にしようと思っていたものですから、これで今日のディスカッションを終わらせていただきまして、講師の先生がたに今の問題についてコメントいただきたいと思っております。

【木村】

では今考えていることを申し上げます。現在メタンに対する研究において制御が考えられているか、ということについては私は疑問に思います。ただし、今までは硫酸還元が非常に水稻栽培において問題だったものですから、それをできるだけ生成しないような環境をつくろうというのが、水管理だったと思います。そういう意味では制御を考えながら増産を考えていたと思います。ただそれはメタンを対象としたものではないと思います。

笹川先生のコメントで品種に関する話が出たと思えます。結局硫化水素をいつ最も多く生成するかということ、確か8月のはじめもしくは8月中が問題だったということ、千葉の方ではできるだけ早場米にしようとする作期を前に持っていった、そのために品種もついでにこなければ駄目だと言うことで、品種まで変えていったわけです。結局それは最終的に増産に結び付いたということからしますと、ある意味では考えずにメタンを押え込んでいた、ということでは案外制御しながら増産も伴うのではないかとこのように考えます。

【吉田】

私こそ専門ではないもんですから、知ってる限りで申し上げますと、人工肥料としてはアンモニア態の施肥が一番強いと思うんですが、その際にきいてくるのは硝化反応で、N₂Oが生成するわけですけれども、それを抑え

るための努力というのはされてるようでして、これは耳学問あるいはお手紙などでご連絡いただいたなかでの話ですが、遅効性、緩やかに溶けていくような肥料が開発されていて、すでに製品化されているという話です。それによって硝化過程で N_2O の生成が抑えられるという話です。ですから増産と地球環境問題と言うのはある意味では裏腹の関係ではないと思っています。どう共存していくかという問題なので、これらは N_2O だけでなく温暖化ガス全体に言える問題であります。ただ一つだけ申し上げますと、一番大事なものは、木村先生あるいは私の研究もそうなんですが、ミクロな場でどういう反応が起こっているのかということがまだきちんとされてないという点でして、技術の方は非常に進歩できる素地を持っていると思うのですが、もっと基礎的なところをきちんとおさえるべきだと思っております。

【陽】

メタンと酸化窒素がなければ大変な話でありまして、地球の温度はもし今メタンと炭酸ガスと N_2O がなければ、 -33 度下がるわけです。従いましてメタンと N_2O は我々の大気圏に不可欠なものであると認識しなければならないと思ってまして、 N_2O とメタンが悪いものではなくて、大事なものでありまして、例えば古い話になりますとメタンができてくれたために水や酸素が成層圏でできたという話や、また亜酸化窒素があるからオゾン層が300ドクソンぐらいで維持できた訳で、もっと沢山のオゾンがあったら我々は大変困るわけです。従いまして温室効果という概念と温暖化という概念を必ず整理していかなければならないと思っております。

それで、例えばメタンにつきましても、メタンができるから水田では立派な稲ができるわけです。もしメタンができなければ蟻酸や酢酸が溜まりまして稲の根に弊害を起こして稲が大きく育たないわけです。従いましてメタンと言うのは稲の生産に極めて重要なものだという理解もできると思います。で、メタンの抑制と言うのもそういうことを頭の中において抑制を考えなければならないと思っております。

我々の環境問題と言うのはつねに、「風がふけば桶屋が儲かる」式の関係と関係の学問というのを頭の中においていなかったから弊害と言うものが出てきたわけです。従いまして慎重に抑制、制御の問題を考えることが必要で、同じ失敗を繰り返すとこれはまた環境の問題につながると思います。だからメタンの制御をするということは必要であります。メタンを制御することを関係と関係の学問においてちゃんと整理する論理をつくらなければならないと思っております。そして具体的な話になると、いま木村さんの話にあったように、メタンは水管理

やあるいは有機物の施用によって管理することはできるだろうということです。そういう例はいろいろなところで書かれております。

それから亜酸化窒素につきましては、吉田さんがお話になりましたように、要するにナトリファイケーションをコントロールすれば良いわけですから、緩行性肥料だとかコーティング肥料だとか、今までの施肥技術の体系をうまく活用すれば抑制できるというデータはいくつか出ております。例えば硝化抑制剤を使ったら N_2O が半分くらい制御できるという問題はあるわけですが、これもやはり単なる技術として硝化抑制剤を使って制御できたということではなくて、このことをやることで関係と関係の問題はうまくできているのかということをしなければならぬと思うわけです。

それともうひとつの質問は、これとサステイナブルアグリカルチャーとをどういうふうにつなぐかということが問題だと思うんですが、冒頭会長のお話にもありましたように、地球人口はいま53億です、それで2,000年には63億になります、そして2,025年には86億になります、そして2,100年には138億になります。そして今から生産をしていくわけですが、人口の増加は12%の割合に対して、土地をもし最大限にフル活用しても9%ぐらいの土地しか拡張できない。あ、長すぎましたか(笑)。

【司 会】

もうすこしまとめてください(笑)。

【陽】

1つずつまとめたつもりなのでこれで終わります(笑)。

【米 林】

今日お話した中で腐植物質が、一番安定なものであるだろうとおっしゃいましたが、実は私共は決してその安定なところだけを考えているわけではございませんで、ずいぶんオーバーしているのだと思っています。が、まあ捉えているところは確かに安定なところを捉えているかもしれないけれども、ずいぶん不安定なところもいっぱいあるんだということを申し上げたかったわけです。

【岩 間】

最後に締めを言えということですが、地球環境問題はガスの問題に限らず、土壌侵食あり、硝酸態窒素あり、確かに陽先生が言われたように、窒素の過剰な水質を浄化するには脱窒をやはり利用することを考えなければならない、というような相反する問題もござります。そういうことを視野に入れて土壌物理研究を地球規模の問題、それから土壌を中心にした発生・消長のメカニズム、そしてその制御、その基礎になるような分析法、調査法という様なものを、これから勉強し発展させていくのが我々

の任務ではないかと思っております。つたない締めですがこれで終りにします。

【司 会】

時間がまいりました。これで総合討論を終わらせてい

たきます。講師の先生がた、どうもありがとうございました。

解 説

TDR による
土壌の体積含水率および電気伝導度の測定について

堀野 治彦・丸山 利輔

Measurement of Soil Volumetric Water Content
and Electrical Conductivity Using Time Domain Reflectometry

Haruhiko HORINO and Toshisuke MARUYAMA
Faculty of Agriculture, Kyoto University

(Soil Phys. Cond. Plant Growth, Jpn., 65, 55-61, 1992)

I. はじめに

土壌中の水分量や電気伝導度の測定は、いうまでもなく、多くの分野の研究者の関心事である。従来、水分量の測定には、採土・炉乾による重量測定法、中性子法、 γ 線法などがよく用いられているが、これらの測定法は測定に時間がかかり、特に野外での測定では水分量の急速な時間変化を捉えきれないこと、後者の放射線法では危険が伴うこと（このため日本では中性子法において線源の弱い水分計しか用いられない）、前者では現場土壌を乱す可能性のあることなどの問題が指摘されている。また、電気伝導度の測定法である遠心分離抽出法、石膏ブロック法などについても、同様に時間・労力がかかること、測定範囲や耐久性に問題があることなどの欠点がある。

こうした問題を克服できる可能性の高い、土壌水分量（体積含水率）、（土壌水 or 土壌の）電気伝導度の測定法として、TDR と呼ばれる方法が1970年代後半から検討されはじめ、1980年代に入ってその成果が発表されるようになった。この方法は、土壌中に埋設された金属に瞬間的に与えられた電気パルスの伝達速度や波形の減衰をもとに、先の物性値を測定する方法であり、Fellner-Feldegg¹⁾によって初めてその基本原理が示されたものである。

ここでは、この TDR の基本測定原理とその適用例をいくつか紹介し、その利点・欠点を整理することにする。

II. 測定原理

1. 伝送線 (transmission line) のパルス伝達特性

TDR 装置は、基本的にパルス発生装置、電磁波のサンプリングレシーバ、オシロスコープ（あるいは他のディスプレイ）から成り、その最小構成単位は Fig. 1 に示すとおりである。さらに、パソコン、データロガー、外部データ記憶装置などを組み合わせることもある。

さて、Fig. 1 において、パルス発生器から出力されたステップパルスは、 Z_0 なるインピーダンスを持つ同軸ケーブルに沿って、まず A 点を通り (Fig. 2 の①に対応)、B 点に到達する。ここで点 B、C 間のケーブル内に何か試料が充填されており異なるインピーダンス Z を持つとすると、ステップパルスの一部は B 点で反射し発生器に戻って行く。この反射波が A 点を通り (Fig. 2 の②に対応) することによって信号が変化する (Fig. 2 の②に対応)。すなわち、①、②間の伝達時間はパルスが A → B → A と移動した時間を意

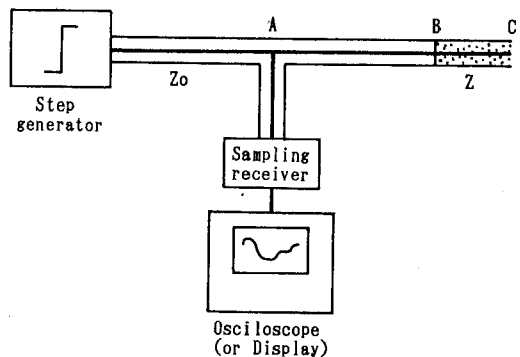


Fig. 1 Time domain reflectometer system (after Fellner-Feldegg, 1969¹⁾).

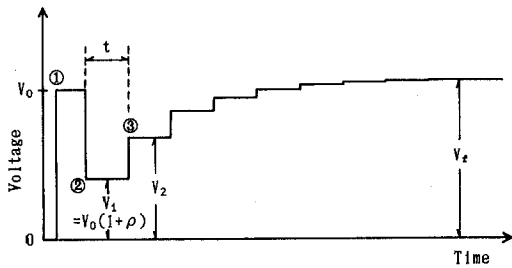


Fig. 2 An idealized TDR trace with time

味する。B点で反射せず通過した残りのパルスはC点まで到達し、(ここで放射による損失がなければ)同じ位相で完全反射して戻ってくる。この反射波がB点まで戻ると、ここでまた一部が反射し、残りはA点へと向かって信号を変化させる (Fig. 2の③に対応)。よって、②、③間の時間は、パルスがB→C→Bと伝達した時間を表す。以後、B、C間を反復し続けるパルスの一部が次々にB点を抜け出し、A点を通過していくことになる。

2. 体積含水率の測定

通常 TDR のセンサーとしては、Fig. 1 に示した同軸ケーブル型のホルダーよりも、現場での設置を考え、Fig. 3²⁾ に示すような 2 線の平行な電極 (以下プローブとする) がよく用いられる。いま、プローブ (あるいは同軸ホルダー) の長さを L とすると、試料内を通過する電磁波 (パルス) の速さ v は明らかに次式で表される。

$$v = 2L/t \tag{1}$$

ここで、 t は Fig. 2, 3 に示すとおりである。

電磁気学的に、ある複素誘電率 $\epsilon^* (= \epsilon - (\epsilon' + \sigma_{ac}/\omega\epsilon_0))$ を持つ媒体中を通過するパルスの速さは、

$$v = \frac{c}{[\epsilon\{1 + (1 + \tan^2\delta)^{1/2}\}/2]^{1/2}} \tag{2}$$

となる³⁾。ここで、

$$\tan \delta = \{\epsilon' + \sigma_{ac}/\omega\epsilon_0\}/\epsilon \tag{3}$$

であり、 ϵ 、 ϵ' はそれぞれ ϵ^* の実数部、虚数部である。また、 σ_{ac} は dc 導電率、 ω は角周波数、 ϵ_0 は自由空間の誘電率、 c は自由空間での電磁波の速さである。

一般に土壌では、1 MHz ~ 1 GHz³⁾ の高周波領域において、 ϵ は周波数にほとんど影響されず、また、

$$\epsilon \gg \epsilon' + \sigma_{ac}/\omega\epsilon_0 \tag{4}$$

が成立するとされている⁴⁾ため、(2)式は次のようになる。

$$v = c/\epsilon^{1/2} \tag{5}$$

したがって、(1)、(5)式より、

$$\epsilon = (ct/2L)^2 \tag{6}$$

が得られ、TDR によって試料の誘電率が測定できることになる。

土壌を構成する土粒子、水、空気 (の比) 誘電率は、

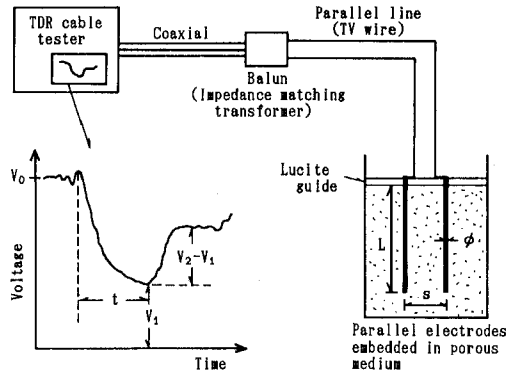


Fig. 3 Schematic diagram of the TDR system with parallel electrodes. A typical signal is shown with the important characteristics identified (after Dalton *et al.*, 1984²⁾).

それぞれ 3 ~ 5, 81, 1 であるため、土壌の誘電率は水分量に大きく左右される。よって、予め土壌の体積含水率 θ と誘電率の関係をキャリブレーションしておけば、TDR によって θ を測定することができる。

3. 電気伝導度の測定

TDR システムの出力インピーダンスを Z_u 、土壌のインピーダンスを Z_s とすると、土壌表面でのパルスの反射係数 ρ は、次式で与えられる。

$$\rho = (Z_s - Z_u)/(Z_u + Z_s) \quad -1 \leq \rho \leq 1 \tag{7}$$

この ρ は、また TDR のパルス跡からも、

$$\rho = V_1/V_0 - 1 \tag{8}$$

で求められる。土壌の場合、 $\rho < 0$ となる。

土壌内に進入したパルス $V_1 (= V_0(1+\rho))$ は、土壌の導電性により減衰しながら、再び $V_2 - V_1$ の (Fig. 3 参照) の大きさで戻ってくる。このとき減衰特性は次式で表される。

$$V_2 - V_1 = V_1 \exp(-2\alpha L) \tag{9}$$

ここに、減衰係数 α は、

$$\alpha = \frac{60\pi(\omega\epsilon_0\epsilon' + \sigma_{ac})}{[\epsilon\{1 + (1 + \tan^2\delta)^{1/2}\}/2]^{1/2}} \tag{10}$$

である⁴⁾が、(4)式の仮定から、結局、

$$\alpha = 60\pi(\omega\epsilon_0\epsilon' + \sigma_{ac})/\epsilon^{1/2} \tag{11}$$

となる。したがって、土壌の見かけの電気伝導度である $\sigma (= \omega\epsilon_0\epsilon' + \sigma_{ac})$ は、(9)、(11)式より、

$$\sigma = \frac{\epsilon^{1/2}}{120\pi L} \cdot \ln \frac{V_1}{V_2 - V_1} \tag{12}$$

で求められる。

さらに、土壌水の電気伝導度 σ_w は次の関係式から求めることができる²⁾。

$$\sigma = \sigma_w \theta T(\theta) + \sigma_s \tag{13}$$

ここに、 $T(\theta)$ は透過係数 (transmission coefficient), σ_s は土粒子の電気伝導度である。 $T(\theta)$ については, Rhoades *et al.*⁹⁾によって経験的に次式が与えられており,

$$T(\theta) = 1.29\theta - 0.116 \quad (14)$$

σ_s については、例えば 0.25 dS/m とされている。

III. 体積含水率の実測例

1. キャリブレーション

高周波数領域における TDR によって、 ϵ と θ の関係を初めて詳細に検討したのはおそらく Topp *et al.*³⁾であろう。彼らは、同軸型ホルダーによる TDR を用いて、有機質含量の少ない 4 種類の土壌 (砂質ローム, 2つの粘土質ローム, 粘土) を試料とした実験を行い、 ϵ と重量法による θ について Fig. 4 に示すような結果を得ている。この結果から、彼らは、 $\epsilon - \theta$ の関係は土性や密度に依らないとして、 ϵ と θ について次のような回帰式を求め、標準誤差 1.3% の精度で θ が推定できるとしている。

$$\begin{aligned} \theta = & -5.3 \times 10^{-2} + 2.92 \times 10^{-2} \epsilon \\ & - 5.5 \times 10^{-4} \epsilon^2 + 4.3 \times 10^{-6} \epsilon^3 \end{aligned} \quad (15)$$

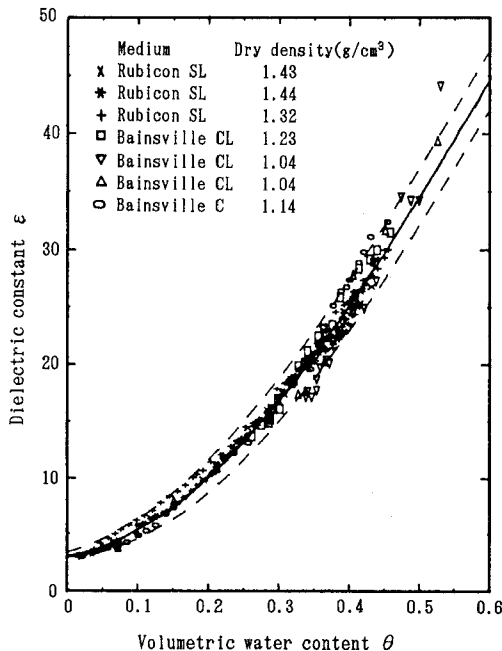


Fig. 4 Relationship between ϵ and θ for the four mineral soils. The solid line is the empirical best-fit equation (eq. (15)) and the dashed lines are shifted ± 0.025 in θ (after Topp *et al.*, 1980³⁾).

さらに、彼らは、 ϵ が温度にほとんど左右されないことや、土壌中の溶存塩がパルスの伝搬速度に影響を与えない (波形の減衰には影響あり) ことも実験的に確認している。

次に、Ledieu *et al.*⁶⁾は、2線平行プローブ (電極径 $\phi = 5$ mm, 電極長 $L = 100$ cm, 電極間隔 $s = 25$ mm, ステンレス製) による TDR を用い、ロームを試料として、パルスの伝達時間 t と γ 線法による θ の間に次式が成立することを示した。

$$\theta = 5.69t - 17.58 \quad (SD = 1.3\%, r = 0.97) \quad (16)$$

SD: 標準偏差 r : 相関係数

また、最近になって、Harkelrath *et al.*⁷⁾は、現場土壌 (有機質含量の高いローム質土) を乱さず採取し、2線平行プローブ ($\phi = 3$ mm, $L = 50$ cm, $s = 50$ mm, ステンレス製) を用いてキャリブレーションしている。彼らは、その結果をパルス伝搬速度の逆数 $1/v$ と重量法による θ について Fig. 5 のように整理した。この結果から回帰式として次式が得られており、

$$\theta = 38.2/v - 0.051 \quad (17)$$

この係数 38.2 は、Alharthi and Lange⁸⁾が理論的に示した値と非常によく一致している。また、Fig. 5 中に示した先の Topp *et al.* の結果³⁾とのズレは、有機質分の影響であろうと考えている。

なお、理論的な $\epsilon - \theta$ 関係の考察については、Ansout *et al.*⁹⁾も確率モデルをもとに行っており、Topp *et al.* の結果³⁾とよい一致をみたことを報告している。

2. 予備的実験

ここでは、Topp *et al.* が行った実験^{10,11)}を紹介する。彼らは、シルトロームを充填した土壌カラムに 2線平行プローブを鉛直に埋設し、給排水しながら土壌の平均水

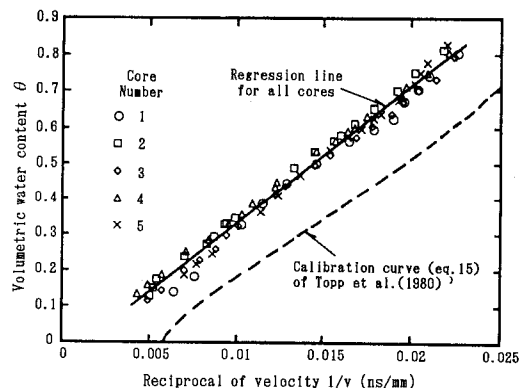


Fig. 5 Relationship between $1/v$ and θ for five soil cores obtained from the field site (after Harkelrath *et al.*, 1991⁷⁾).

分量や浸潤面の深さを測定している。このとき、プローブには、真鍮製の均質なプローブ（連続プローブ）と、適当な間隔でプローブに凹みをつけ異なる材質を埋め込んだ（すなわち、インピーダンスが所々異なる）プローブ（不連続プローブ）を用いている。不連続プローブを用いたのは、インピーダンスの不連続部でパルス跡に印が残り、したがって、1つのプローブで水分プロファイルを得ることができると考えたためである。また、連続プローブでは水の浸入による浸潤面部でパルスの反射が生じ、これをもとに浸潤面の深さが決定できるとしている。

実験の結果、連続プローブは非常によい精度でカラム内の平均含水量を測定できること、不連続プローブにおいては、多少バラツキがあるものの水分プロファイルの傾向を捉えることができることなどが明らかになっている。また、浸潤面深さについては、給水量から計算される同深さとのよい対応が得られている。

3. 現場への適用

Topp and Davis¹²⁾は亀裂のある圃場に先の不連続プローブを埋設し、人工降雨による土壌中の水分量変化を追跡した。その結果、TDRによってほぼうまく水の浸潤を捉えることができ、亀裂内ではそれ以外の土壌の3倍の深さまで浸潤が達していることが推定された。

また、Topp and Davis¹³⁾は3つの異なる土壌のコーン畑においても、TDRによる水分測定を行っている。ここでは、長さの異なるいくつかの連続プローブ、不連続プローブを用いており、さらに、連続プローブを深さを変えて水平に埋設した測定も行っている。その結果、どの畑においても、TDRによる θ はサンプリング重量法による θ とはほぼ一致し、両者の標準誤差は全体として1.5%以下であることが示された。より詳細にみると、鉛直不連続プローブ、鉛直連続プローブ、水平連続プローブの順に測定精度は高くなっている。しかし、プローブを水平に埋設するには多大な労力と圃場の乱れを伴う欠点がある。一方、不連続プローブの場合は、1組で水分プロファイルが測定できる構造になっているが、ここでの試験では、50cm以深の不連続部での反射パルスが減衰のため小さくなり、検知不可能であったことから、現場への適用にはまだ検討が必要であるとしている。

ところで、実際に水分量の現場観測となると、多くの地点での値を必要とするのが通常である。これまでのTDRでは、測定が容易になったとはいえ、多地点を測定するにはその都度本体をセンサーに接続しなければならない不便な点があった。そこで、Baker and Allmaras¹⁴⁾、Harkelrath *et al.*⁷⁾は、TDRシステムを自動化し、多重チャンネル装置を用いて1つのケーブルテスタ（パルス

発信、受信装置）で複数のプローブに対応できるよう工夫した。Harkelrath *et al.*⁷⁾は、2線平行プローブ（ $\phi=3\text{ mm}$, $L=50\text{ cm}$, $s=50\text{ mm}$, ステンレス製）をセンサーとしたこのTDR装置によって、試験流域の土壌水分量を4時間間隔で1年にわたり計測し、土壌水分の変化が降雨による影響をよく捉えていることを確認した。なお、12のプローブでの計測には約6分の時間を要するとしている。

この他にも、例えばStein and Kane¹⁵⁾は、TDRを用いて凍土あるいは雪中の未凍結水分量の測定を行っている。

IV. 電気伝導度の実測例

1. 電気伝導度、体積含水率の同時計測

Dasberg and Dalton¹⁶⁾は、12の箱型圃場において塩水を灌漑し、灌漑前後の θ , σ を測定している。 θ については、2線平行プローブ（ $\phi=3.2\text{ mm}$, $L=20\text{ or }30\text{ cm}$, $s=50\text{ mm}$, 真鍮製）によるTDR、中性子水分計、サンプリング重量法で測定し、 σ については、TDR、4電極プローブ（4P）法（非常に精度よく σ が測定できるとされている^{17,18)}、遠心分離抽出法によって測定している。その結果は次のとおりである。

1) θ について：各方法による θ の関係式として次の回帰式が得られた。

$$\theta_{TDR}=1.02\theta_{grav}-0.023 \quad (r=0.92) \quad (18)$$

$$\theta_{neutr}=0.86\theta_{grav}+0.031 \quad (r=0.91) \quad (19)$$

ここに、添字TDRはTDR、neutrは中性子水分計、gravは重量法による値であることを意味する。この結果からだけでは、TDRと中性子水分計の優劣は明確ではないが、少なくとも θ_{TDR} と θ_{grav} はほぼ1:1の勾配関係にあることがわかった。

2) σ について：TDR、4P法による σ は、両者とも抽出液の σ_w から先の(13)式によって計算された σ とよい相関があった。

さらに、Dalton and van Genuchten¹⁹⁾は、この実験結果やDalton *et al.*の実験結果²⁾を参考に、土壌中の塩濃度が増加すると、 α の増加により反射波の跡が分析不可能となることを指摘し、プローブの長さによって測定できる θ , σ の範囲が異なることを理論的に示している。

2. 電気伝導度計算式の改良

Topp *et al.*²⁰⁾は、以前用いた同軸ホルダー²¹⁾によるTDRによって、水、KCl溶液、土壌（砂質ローム、粘土質ローム）を試料とした σ の測定を行っている。彼らは、前もって行った理論的検討²¹⁾から、それまで用いられていた、（プローブ末端からの1回目）の反射波すべてが試料か

解説：TDRによる土壌の体積含水率および電気伝導度の測定について

ら抜け出るとした(9)式では厳密性に欠けるとして、 V_2 を次式のように修正し、これをもとに $\sigma(\sigma_T)$ を求めた(後出(20)式参照)。

$$V_2 = V_0(1+\rho) + V_0(1-\rho^2)f^2 \quad (20)$$

ここに、

$$f = \exp(-aL) \quad (21)$$

さらに、薄いサンプルについて別途検討された、多重反射波を考慮した次式による $\sigma(\sigma_{cr})$ についても計算している。

$$\sigma = (\epsilon_0 c/L)(Z_0/Z_u)\{(2V_0/V_f) - 1\} \quad (22)$$

ここに、 Z_0 は同軸ケーブルの特性インピーダンス、 V_f は多重反射後のパルス電圧 (Fig. 2 参照) である。

彼らは、この σ_T 、 σ_{cr} とホイートストーンブリッジ抵抗測定器によって測定した σ_m とを整理し、土壌では σ_T は σ_m より大きくなりその関係もやや曲線的になっていること、一方 σ_{cr} は σ_m とほぼ1:1関係にあることなどを示した。

V. プローブの改良

従来の2線平行プローブでは、バラン (インピーダンス整合装置) を用いているとはいえ、プローブと同軸ケーブルの間のインピーダンスの不連続性により、不確定ノイズや情報の損失が生じていた。そこで、Zegelin *et al.*²²⁾はこの問題に対処するため、バランを必要とせず、またプローブ周辺の電場の集中の大きい、対称な3線 (Fig. 6

参照) あるいは4線平行プローブを考察し、測定精度の向上を図っている。こうした多線平行プローブでは、2線平行のプローブに比べ、より明確な電圧の変化を受信できることが確認されている。

Nadler *et al.*²³⁾は、この3線平行プローブと従来の2線平行プローブ (両者とも $\phi = 3\text{mm}$, $L = 20\text{cm}$, $s = 50\text{mm}$) を用いて、カラムに充填した土壌 (シルト質ローム) の θ , σ を測定している。また、4P法による σ の測定も行っている。TDRデータによる σ の計算には、Dalton *et al.*による簡易式 ((12)式)、1回目の反射波の減衰・反射率を考慮した Topp *et al.*の式²⁰⁾、

$$\sigma = \frac{\epsilon^{1/2}}{120\pi L} \cdot \ln \frac{V_1(2V_0 - V_1)}{V_0(V_2 - V_1)} \quad (23)$$

(無限の) 多重反射波を考慮した Yanuka *et al.*の式²¹⁾、

$$\sigma = \frac{\epsilon^{1/2}}{120\pi L} \cdot \ln \frac{V_1 V_f - V_0(V_1 + V_f)}{V_0(V_1 - V_f)} \quad (24)$$

同じく多重反射波を薄いサンプルについて検討した Zegelin *et al.*の式²²⁾ (もともとは Giese & Tiemann によるもので、(20)式と基本的に同じ)、

$$\sigma = \frac{\epsilon^{1/2}}{120\pi L} \cdot \frac{V_1}{V_f} \cdot \frac{2V_0 - V_f}{2V_0 - V_1} \quad (25)$$

を用い、また、自ら簡易で精度のよい方法として、次の2式から $\sigma(\sigma_{ref})$ を求める方法を提案している。

$$\rho = (R_L - Z_0)/(R_L + Z_0) \quad (26)$$

$$K_c = \sigma_{ref}(25^\circ)R_L/f_t \quad (27)$$

ここに、 R_L は土壌中のプローブの負荷であり、 f_t は温

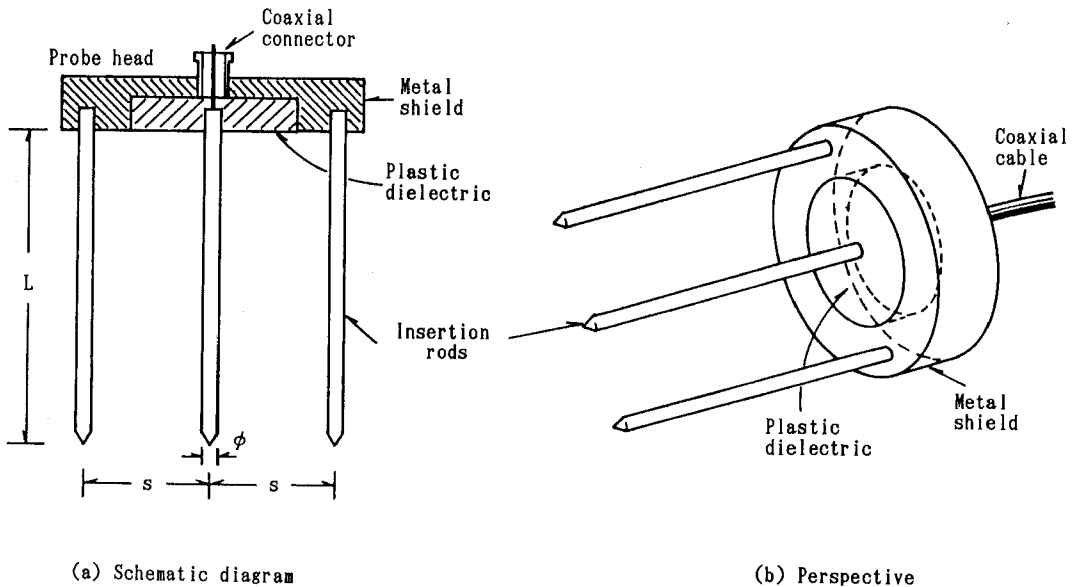


Fig. 6 Three-rod TDR probe (after Zegelin *et al.*, 1989²²⁾).

度補正係数, K_c は幾何定数である。パルス跡から, この場合 ρ として V_i/V_0-1 を算定し, これを(26)式に代入して R_L を求める。 K_c については別途キャリブレーションにより決定するとしている。

実験の結果, カラム内の平均の θ については, 成層化, 塩濃度, プローブの種類に依らずほぼ同様の回帰式で ε をもとに近似でき, Topp *et al.* が示した式 (15) とよく似た傾向にあることが確認された。一方, σ については, Fig. 7, 8 に示すように, 2線式, 3線式に関わらず, 4P法による値と最もよい 1:1 関係にあったのは σ_{ref} であり, 2線式の場合は Dalton *et al.* による簡易式もよい対応を示した。このことは, (25)式が最もよい推定式となった Topp *et al.*²⁰⁾や Zegelin *et al.*²²⁾の結果と異なっている。また, 結果としてこの実験の条件下においては, 3線プローブの優位性は特にみられなかったようである。

Nadler²⁴⁾は他にも, 3線式のプロープによる TDR を用いて, 構造発達異なる4種類の土壌の σ を, 乱し具合を変えながら測定し, 土壌の攪乱の程度による σ の差はそれほど大きくないという結果を得ている。

VI. 国内での研究例

国内での TDR 研究は諸外国に比べかなり遅れ, 最近になってようやく数例がみられるにすぎない。その中で, ここでは, 開発, 安原ら, 安池らの研究を紹介する。

開発は⁴⁾, 6本の2線平行プローブ ($\phi=3\text{ mm}$, $L=16\text{ cm}$, $s=50\text{ mm}$, ステンレス製)による TDR 試験を, 豊浦標準砂を試料として行い, 各プローブごとにキャリブ

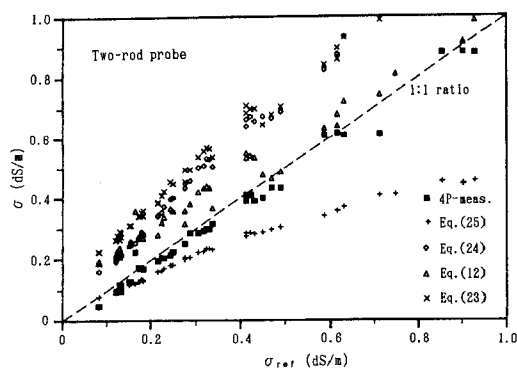


Fig. 7 Relationship between σ values obtained by measuring with 4P and two-rod probe and by using eq. (25), eq. (24), eq. (12), and eq. (23) as a function of σ_{ref} (after Nadler *et al.*, 1991²³⁾).

レーション曲線を得ている。この結果から, 彼は, より正確な水分量を得るためには, 各プローブごとにキャリブレーションすることを推奨している。

次に, 安原ら²⁵⁾, 安池ら²⁶⁾は, TDR によって測定される θ がどの程度の土壌範囲の代表値となるのか, 高水分領域 ($\theta > 60\%$) を持つ土壌での $\varepsilon - \theta$ の関係はどうなるかなどについて検討している。彼らはまず, 径の異なるいくつかの土壌 (豊浦標準砂) カラムを用いて, θ を調整しながら ε を測定し, 電極間隔 s の2倍程度の直径の円筒 (高さはプローブの長さ) 土壌圏内において, 電磁波エネルギーの大部分が消費されることを明らかにした。この結果は, Ledieu *et al.* の研究⁹⁾中に示されている範囲と類似している。また, 関東ロームに対する野外 TDR 試験を行い, θ が50%を越える高水分領域でのキャリブレーション線は, 従来報告されていた低含水領域でのものと比較して, $d\theta/d\sqrt{\varepsilon}$ の値が小さくなるという結果を得ている。

VII. おわりに

以上 TDR についての様々な研究を紹介してきたが, 最後に, TDR の利点, 欠点を簡単に整理すると以下のよう考えられる。

利点:

- ① 詳細な θ を必要としない限り, 基本的に土性, 密度, 温度, 塩濃度, プローブのタイプなどによらず, 1つのキャリブレーション曲線で ε より θ を求めることができる。
- ② θ のみならず σ についても同時計測できる (ただし,

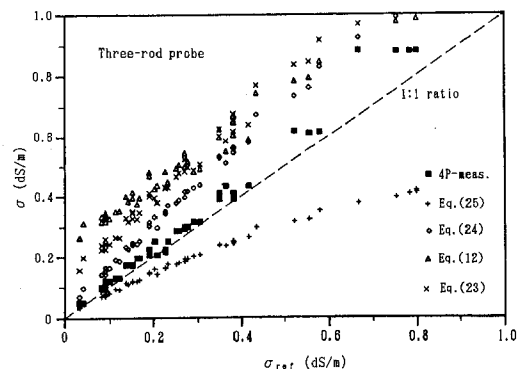


Fig. 8 Relationship between σ values obtained by measuring with 4P and three-rod probe and by using eq. (25), eq. (24), eq. (12), and eq. (23) as a function of σ_{ref} (after Nadler *et al.*, 1991²³⁾).

解説：TDRによる土壌の体積含水率および電気伝導度の測定について

σ の精度についてはまだ検討の余地あり)。

- ③ 現場土壌をほとんど攪乱しないで測定できる。
 - ④ 測定に要する時間が短く、かつ容易に測定できる。
- 欠点：
- ① 有機物の含有量に測定値が左右される。
 - ② 塩濃度の高い土壌についてはプローブの長さが制約される。
 - ③ 高含水量まで含めたキャリブレーションの確立がまだ不十分である。
 - ④ サンプリング重量法のように小さな土壌容積を対象とすることは困難である。

ここで示したTDRの基本原理を拡張していけば、土壌中の水分子の存在状態に関する詳細な情報を得ることも不可能ではない。そのためには、より詳細な電磁波の理論展開および精度の高い測定機器の開発が必要となるであろう。いずれにせよ今後さらなる発展と普及が期待される測定法と思われる。

引用文献

- 1) Fellner-Feldegg, H.: J. Phys. Chem., **73**, 616—623 (1969).
- 2) Dalton, F.N., W.N. Herkelrath, D.S. Rawlins, and J. D. Rhoades: Science, **224**, 889—890 (1984).
- 3) Topp, G.C., J.L. Davis, and A.P. Annan: Water Resour. Res., **16** (3), 574—582 (1980).
- 4) 開発一郎: ハイドロロジー, **20** (3), 141—150 (1990).
- 5) Rhoades, J.D., P.A.C. Raats, and R.J. Prather: Soil Sci. Soc. Am. J., **40**, 651—655 (1976).
- 6) Ledieu, J., P. De Ridder, P. De Clerck, and S. Dautrebande: J. Hydrol., **88**, 319—328 (1986).
- 7) Herkelrath, W.N., S.P. Hamburg, and F. Murphy: Water Resour. Res., **27** (5), 857—864 (1991).
- 8) Alharthi, A., and J. Lange: Water Resour. Res., **23** (4), 591—595 (1987).
- 9) Ansoult, M., L.W. De Backer, and M. Declercq: Soil Sci. Soc. Am. J., **49**, 47—50 (1985).
- 10) Topp, G.C., J.L. Davis, and A.P. Annan: Soil Sci. Soc. Am. J., **46**, 672—678 (1982).
- 11) Topp, G.C., J.L. Davis, and A.P. Annan: Soil Sci. Soc. Am. J., **46**, 678—684 (1982).
- 12) Topp, G.C., and J.L. Davis: Geoderma, **26**, 13—23 (1981).
- 13) Topp, G.C., and J.L. Davis: Soil Sci. Soc. Am. J., **49**, 19—24 (1985).
- 14) Baker, J.M., and R.R. Allmaras: Soil Sci. Soc. Am. J., **54**, 1—6 (1990).
- 15) Stein, J., and D.L. Kane: Water Resour. Res., **19** (6), 1573—1584 (1983).
- 16) Dasberg, S., and F.N. Dalton: Soil Sci. Soc. Am. J., **49**, 293—297 (1985).
- 17) Rhoades, J.D., and J. van Schilfgaarde: Soil Sci. Soc. Am. J., **40**, 647—651 (1976).
- 18) Nadler, A., and H. Frenkel: Soil Sci. Soc. Am. J., **44**, 1216—1221 (1980).
- 19) Dalton, F.N., and M.Th. Van Genuchten: Geoderma, **38**, 237—250 (1986).
- 20) Topp, G.C., M. Yanuka, W.D. Zebchuk, and S. Zegelin: Water Resour. Res., **24** (7), 945—952 (1988).
- 21) Yanuka, M., G.C. Topp, S. Zegelin, and W.D. Zebchuk: Water Resour. Res., **24** (7), 939—944 (1988).
- 22) Zegelin, S.J., I. White, and D.R. Jenkins: Water Resour. Res., **25** (11), 2367—2376 (1989).
- 23) Nadler, A., S. Dasberg, and I. Lapid: Soil Sci. Soc. Am. J., **55**, 938—943 (1991).
- 24) Nadler, A.: Soil Sci., **152** (3), 199—203 (1991).
- 25) 安原正也, 安池真治, 丸井敦尚, 鈴木裕一, 高山茂美: ハイドロロジー, **19** (2), 96—102 (1989).
- 26) 安池真治, 安原正也, 丸井敦尚, 鈴木裕一, 高山茂美: ハイドロロジー, **20** (3), 133—139 (1990).

(受稿年月日1992年2月6日)

 書 評

Transfer Functions and Solute Movement through Soil Theory and Application

William A. Jury, Kurt Roth 著

Birkhäuser Verlag Publ.

地球環境問題への関心の高まりから、たとえば地下水汚染といった大きなスケールの土中の物質移動現象の解明が、土壌物理に対する時代的要請となっている。その際、従来の室内実験を中心とする土壌物理と、自然界で現実に生じる複雑な移動現象との大きなギャップは、多くの土壌物理研究者を悩ます大きな課題である。

この土中の溶質移動を数学的モデルで記述するとき、その特徴は、非線型性（パラメータが溶質濃度に依存する）と不均一性（パラメータが空間的に分布する）である。しかし、そうした非線型システムの場合であっても、第一近似としてシステムを線型とみなすことは、システムの特徴を理解する上で非常に有用である。Transfer function（伝達関数）とは、パルス入力への応答関数として定義される、工学の分野で広く用いられている線型システムの解析手法である。本書は、カリフォルニア大学リバーサイド校の Jury 教授が、長年にわたって行ってきた圃場実験とその解析をもとに、スイス人若手研究者の Roth 博士と共に、土中の溶質移動現象の解析手法を transfer function を用いて整理したものである。

Transfer function の適用が土中の溶質移動に有用な理由は、第一に、土の表面に与えられた溶質のパルス入力に対応する流出液濃度曲線として測定可能な点である。この流出液濃度曲線は、土中を溶質が通過する際の様々な性質の影響を受けており、あらゆるシステム内部の情報を含んでいる。また、第二に、transfer function は、あらゆる溶質移動の線型モデルを等価なかたちで表現できる点である。そのため様々な形で提案されているモデルを容易に比較することができ、モデルの特性を的確に把握できる。

本書の構成は、前半が、transfer function の基本的理

論と測定を中心とした解説である。そして、均一な土中の溶質移動に最も広く用いられている分散移流モデルの特性と限界を、明確に示している。また、後半は、その応用として、不均一な溶質移動に対する種々の確率モデル、成層土の溶質移動、非定常な不飽和水分移動のもとの溶質移動などへの transfer function の適用となっている。こうした展開の理論的背景は、線型システムの重ね合わせである。しかしその単純なシステムから、複雑なシステムへと問題を整理していく展開は、筆者独特の物理的洞察に基づくものであり、非常に明解で説得力のあるものである。

また本書の特徴は、各章ごとの練習問題により理解を深められる点である。Transfer function を理解する上で必要なラプラス変換を中心とする若干の数学的テクニックは、初級者が巻末の解答と Appendix を用いて、独学できるよう配慮されている。また後半の練習問題は、現在議論されている問題を、筆者が整理したものを多く含んでおり、新たな理論展開を模索している研究者に対しても、有益である。

我々の関心事が圃場レベルの現象である限り、現場での測定、実験はもちろん必要不可欠である。しかしその困難さは、時として我々を悲観的にしてしまうこともまた事実である。本書を通じ、たゆまず理論と実験を前進させていく筆者らのたくましい研究姿勢を感じとることができる。できればゼミ形式で引用文献と共に読破したいテキストである。また Jury 教授らが中心となって最近大幅改訂されたテキスト、Soil Physics Fifth Edition (John Wiley & Sons, Inc.) も、より広く土壌物理を理解するために、併せて読むことを薦めたい。

(東京大学農学部 取出伸夫)

 書 評

生物にやさしい知能ロボット工学

岡本嗣男・白井良明・藤浦建史・近藤 直 共著

実教出版株式会社 1992年刊

A 5 版 215pp. 3,000円

近年、ロボットの開発研究が急速に進み、工業分野を中心として種々のロボットが普及している。しかし、生物生産の分野への導入は緒についたところであり、十分成長した作物を対象として、マニピュレータにより作業を行うタイプのロボットは実用にはもう一歩のところまで、足踏みしている。その最も大きな原因として、土壌、植物、大気の相互作用およびその複合系に対する機械技術の関わりが明らかにされていないことがあげられる。さらに生物生産という循環型の環境生態系のなかで開発される技術は、従来の機械工学、電気工学等だけでは限界があり、生物、物理、化学等の種々の分野の学際的な学問交流が必要とされる。

本書は、従来のロボット工学の基礎知識だけでなく、上述したファイトテクノロジーの構想を展開する上で有力なツールとなる生物生産ロボットに必要な技術をやさしく解説したものである。したがって、大学の学部・大学院生の教科書として、あるいは複雑な環境化で多様な対象を扱うロボットの開発・研究にたずさわる技術者・研究者の参考書として、お勧めできる好著であると言える。本書は以下の6章で成り立っており、その内容をかいつまんで説明する。

- 第1章 生物生産とロボット
- 第2章 生物生産ロボットの構成
- 第3章 生物生産ロボットの知能化
- 第4章 生物生産におけるロボット
- 第5章 バイオテクノロジーロボット
- 第6章 21世紀の生物生産システムとロボット

まず、第1章では、生物生産における作業の特徴を述べた上で、ロボット化の意義および解決すべき課題が記述されている。第2章では、マニピュレータ、ハンド、

生物生産ロボットに欠かせない各種センサ、移動機構、および制御装置等が詳しく、ていねいに解説されている。特に対象が規格化された工業製品と異なり、その色、寸法、形状、位置等が多様な生物体のハンドリング、環境が時々刻々と変化するなかでの視覚技術、ほ場内の不整地走行のための自律移動技術等が述べられており、他書には見られないオリジナリティのある章である。第3章では、生物生産ロボットの知能化のための手法において重要である画像理解、知識工学、ファジィ制御、ニューラルネットワークについて、その基礎が述べられている。第4章では、国内外で今までに研究された生物生産ロボットが豊富に紹介されている。その主なものをあげると、接木・育苗ロボット、薬剤散布、施肥等の栽培管理ロボット、トマト、キュウリ、オレンジ、ブドウ等の果実収穫ロボット、搾乳ロボット、羊毛刈取りロボット、枝打ちロボット等である。第5章では、現在注目を集めているバイオテクノロジーの技術、ならびに培養組織の植え継ぎロボット、幼植物の分割・移植、苗の選別等を行うロボットが詳しく説明されている。第6章では、今後ロボットと共に変化するであろう各種の生物生産システムの形態とそのなかでのロボットの役割について述べられている。

ロボットは、その汎用性により、季節に依存する多種類の農作業を行える可能性を有し、ますます進展すると考えられる農山村の人手不足の解決策として期待が持たれている。本書はこのような生物生産に関わるロボットに興味を持たれる人の必携書になるほか、幅広い読者にも対応できるよう、やさしく記述されている。

(島根大学農学部 濫澤 栄)

学術国際貢献特別委員会設置される

平成4年5月 日本学術会議広報委員会

日本学術会議は、去る4月15日から17日まで第114回総会（第15期3回目の総会）を開催し、新たに「学術国際貢献特別委員会」を設置しました。今回の日本学術会議だよりでは、同総会の議事内容及び3月に開催されたAASSREC執行委員会等についてお知らせいたします。

旧ソ連邦の科学者に対する緊急の支援措置について（会長談話）

平成4年2月25日
日本学術会議
会長 近藤次郎

ソ連邦が解体したことに伴い、旧ソ連邦における多くの科学者は、研究の継続が困難となり、研究組織も崩壊の危機に直面していると伝えられており、これが事実とすれば、世界に与えるその影響は計り知れないものがあると思われる。

いうまでもなく、人類の進歩にとって科学の向上発展は不可欠のものであり、その意味で、今日の旧ソ連邦の実情は憂慮に堪えないところである。

この際、我々日本の科学者は、学協会等を通じる等の方法で、旧ソ連邦の科学者に対し、能う限りの支援を行う必要があると考える。

なお、旧ソ連邦の科学者と我が国の科学者との間の一般的な国際学術交流・協力をより一層充実するための方策等については、我が国の学術の分野における国際貢献の一環として、日本学術会議において引き続き検討することとしたい。

（注）

本談話は、日本学術会議において国際交流・協力問題について調査・審議を行っている第6常置委員会から2月14日(金)の連合部会に問題提起され、各部会で検討され審議を経た後、2月25日(火)の第785回運営審議会に提案され審議されたものである。

日本学術会議第114回総会報告

日本学術会議第114回総会（第15期3回目の総会）は、4月15日～17日の3日間開催された。

第1日（4月15日）の午前。まず、会長からの前回総会以後の経過報告及び各部・各委員会等の報告が行われた。次いで、今回総会に提案されている2案件について、それぞれ提案説明がなされた後、質疑応答が行われた。

第1日の午後。各部会が開催され、午前中に提案説明された総会提案案件の審議が行われた。

第2日（4月16日）の午前。前日提案された案件の審議・採決が順次行われた。

まず、「副会長世話担当研究連絡委員会の運営について（申合せ）の一部改正」が採択された。これは、「副会長世話担当研究連絡委員会運営協議会」という名称を「複合領域研究連絡委員会運営協議会」に改めるとともに、運営協議会のより円滑な運営を図るために、必要な措置を講じたものである。

次いで、「学術国際貢献特別委員会の設置について（申合せ）」が採択された。これは、学術の分野における我が国の国際貢献の在り方について検討するための特別委員会を設置したものである。

なお、審議・採決の終了後、さきに会長談話として発表した「旧ソ連邦の科学者に対する緊急の支援措置について（平成4年2月25日）」に関連して、旧ソ連邦の科学者の実情調査のために、当会議からロシアに派遣された第6常置委員会幹事の宅間会員から、その調査結果について報告が行われた。

第2日の午後。各部会が開催され、各部における懸案事項について審議が行われた。

第3日（4月17日）午前には、各常置委員会が、午後には、各特別委員会がそれぞれ開催された。

学術国際貢献特別委員会の設置

本会議は、昨年10月に開催した第113回総会における内閣官房長官からの学術の分野における我が国の国際貢献の在り方についての検討依頼を踏まえ、今回の第114回総会において学術国際貢献特別委員会を設置した。

AASSREC執行委員会の開催

去る3月23日から26日にかけて4日間、AASSREC (Association of Asian Social Science Research Councils) 執行委員会が日本学術会議の会議室で開催された。外国代表団は前AASSREC会長で現副会長のR・トリニダド教授(フィリピン社会科学協議会)、同じく副会長代行のJ・J・スモリッツ教授(オーストラリア社会科学アカデミー)、AASSREC事務局長のD・N・ダナガーレ教授(インド社会科学協議会)、同じく事務幹事のV・K・メータ博士(同上)のAASSREC側4理事と、タイ国バンコック駐在のUNESCO人間社会科学地域アドヴァイザーのY・アタル博士の5名。

日本側は、現AASSREC会長の川田侃日本学術会議副会長のほか、来年9月に川崎市のKSP(神奈川サイエンス・パーク)で日本学術会議が共催して開く予定の「AASSREC第10回日本総会」の組織運営委員会委員長山田辰雄教授(慶応義塾大学、アジア政経学会理事長)、同事務局長・平野健一郎教授(東京大学、アジア政経学会前理事長)、及び日本学術会議AASSREC専門委員会幹事浦田賢治会員(第2部)の3名がオブザーヴァーの資格で参加、連日、時間を惜しむかのように、AASSRECの運営や来たるべき第10回総会の打合せなどについて、熱心な討議が続けられた。

また討議の合間を縫うようにして、外国代表団は近藤次郎日本学術会議会長表敬訪問、日本学術会議運営審議会における挨拶などのほか、川崎市にも赴き市長表敬訪問、KSP視察などを精力的に行った。日本学術会議も、近藤会長主宰のレセプションを催し、関係諸国の東京駐在大使館スタッフなどを招いて、アジア・太平洋地域における学術交流と発展のための意見交換の場を設け、友好的な雰囲気の中で談論が風発、至るところで談笑の花が開いた。

AASSRECはアジア・太平洋地域の社会科学領域における国際学術上部組織で、いわゆるアンブレラ・オーガニゼーションである。1973年にインドのシムラで「社会科学の教育・研究に関するアジア会議」が開かれた際に設立が合意され、それ以来UNESCOの協力のもとに発展を遂げてきた。AASSRECは加盟各国それぞれの文化的伝統を尊重しつつ、社会科学の研究、教育、知識の普及などを促進することを通して、この地域における社会科学の発達を図ることを目的に、加盟諸国の社会科学協議会、またはこれに類する団体(1国1会員)により構成されている。

加盟国はオーストラリア、インド、中国、ニュージーランド、フィリピンなど、1991年8月現在、15カ国であるが、国(くに)会員のほかに、準会員の制度もあり、将来この地域の各国の学協会や研究所等が準会員としてAASSRECの活動に参加する道も開かれている。出版活動としては、隔年に開催される総会における諸報告やシンポジウムなどの出版のほか、定期刊行物「aassrec panorama」が年2回出されている。

AASSRECには最高決定機関である総会のほかに、会長、副会長(2名制)、事務局長の4名で構成される理事会が置かれているが、これにさらにUNESCOの地域アドヴァイザーが加わって開かれる執行委員会に事実上の運営権限があるようにみえる。今回、日本学術会議で開かれた会議はAASSRECとしては極めて重要な会議であったといえる。AASSRECはUNESCOによって承認された「非政府機関(NGO)」の地位をもち、絶えずUNESCOと緊密な関係を保っているが、同じくUNESCOによって承認されたNGOの地位をもつIFSSO(国際社会科学団体連盟)とも相互協力関係にある。

平成4年(1992年)度共同主催国際会議

日本学術会議では、我が国において開催される学術関係国際会議のうち毎年おおむね6件について、学・協会と共同主催している。

本年もまた、6件の国際会議を共同主催することとしており、その概要は、次のとおりである。

◆第5回世界臨床薬理学会議(7月26日~31日)

この会議は、臨床薬理学に関する研究を進展させるため討論を行い、最新の研究情報を交換することを目的として横浜市(横浜国際平和会議場)において開催される。

参加予定人数は3,000人(国外1,500人,国内1,500人)、参加予定国数は49か国。

◆第14回国際平和研究学会総会(7月27日~31日)

この会議は、平和学に関する研究を進展させるため討論を行い、最新の研究情報を交換することを目的として京都市(国立京都国際会館及び立命館大学)において開催される。

参加予定人数は450人(国外250人,国内200人)、参加予定国数は45か国。

◆第8回国際バイオレオロジー会議(8月3日~8日)

この会議は、バイオレオロジー学に関する研究を進展させるため討論を行い、最新の研究情報を交換することを目的として横浜市(横浜国際平和会議場)において開催される。

参加予定人数は500人(国外150人,国内350人)、参加予定国数は26か国。

◆国際地質科学連合評議会及び第29回万国地質学会議

(8月24日~9月3日)

国際地質科学連合評議会は、同連合の最高決定機関であり、運営事項を協議、決定することを目的とするものである。また、万国地質学会議は、地質学に関する研究を進展させるため討論を行い、最新の研究情報を交換することを目的として京都市(国立京都国際会館)において開催される。

参加予定人数は5,300人(国外3,200人,国内2,100人)、参加予定国数は94か国。

◆第9回国際光合成会議(8月30日~9月5日)

この会議は、光合成に関する研究を進展させるため討論を行い、最新の研究情報を交換することを目的として名古屋市(名古屋国際会議場)において開催される。

参加予定人数は1,000人(国外500人,国内500人)、参加予定国数は41か国。

◆第11回国際光生物学会議(9月7日~12日)

この会議は、光生物学に関する研究を進展させるため討論を行い、最新の研究情報を交換することを目的として京都市(国立京都国際会館)において開催される。

参加予定人数は1,000人(国外600人,国内400人)、参加予定国数は52か国。

御意見・お問い合わせ等がありましたら、下記までお寄せください。

〒106 東京都港区六本木7-22-34

日本学術会議広報委員会 電話03(3403)6291

会務報告

諸会議開催経過

1. 事務局会議（'92.4.23, 岡大農）
 - 1) 第34回シンポジウムの準備について
 - 2) 1991年度第1回評議員会の開催について
2. 事務局会議（'92.4.28, 岡大農）
 - 1) 評議員選挙管理委員会の設置について
 - 2) 評議員会議題ならびに準備資料確認
 - 3) 編集委員会報告（会誌編集状況について）
3. 1990年度第1回評議員会（'92.4.30, 岡大農学部会議室）

議題

 - 1) 入退会者の報告と承認
 - 2) 編集委員会報告
 - 3) 第34回シンポジウムについて
 - 4) 次期評議員選挙について
 - 5) 土壌物理研究会の名称変更について
 - 6) その他
4. 編集委員会（'92.5.30, 岡大農）
 - 1) 65号の編集状況について
 - 2) 66号の編集状況について
 - 3) 投稿規定について
 - 4) その他
5. 事務局会議（'92.6.13, 岡大農）
 - 1) 評議員選挙事務打合せ
 - 2) イスラエル・日本ジョイントセミナーの協賛について
 - 3) 学術会議学術団体調査票に対する回答について

会員の動向

1. 会員数（1992.6現在）

会員種別	会員数
正・学生会員	550
北海道	66
東北	59
関東	189
中部	41
近畿	60
中四国	78
九州	54
海外	3
賛助会員	7
購読会員	60
合計	617

2. 新入会員（1992.2-1992.6）

氏名	種別	連絡先
吉永秀一郎	正	305 稲敷郡基崎町松の里の1 森林総合研究所 環境部
吉田 正則	正	305 つくば市観音台 3-1-1 農業環境技術研究所

3. 住所変更（1992.2-1992.6）

氏名	旧	新連絡先
天谷 孝夫	岡山	501-11 岐阜市柳戸 1-1 岐阜大学農学部
赤江 剛夫	滋賀	700 岡山市津島中 1-1-1 岡山市大学農学部
松原 利文	佐賀	849-03 佐賀県小城郡牛津町 柿樋瀬 867-19 佐賀県中部農林事務所
中川昭一郎	東京	157 世田谷区成城 5-1-21（自宅）
權藤 昭博	北海道	062 札幌市豊平区羊ヶ丘1 北海道農業試験場
仲谷 紀男	新潟	305 つくば市大わし 1-2 熱帯農業研究センター
日本道路公団試験所	—	194 町田市忠生 1-4-1 日本道路公団試験研究所 （名称変更）
長利 洋	岩手	100 千代田区霞ヶ関 1-2-1 農林水産技術会議事務局
間組技術研究所	埼玉	305 つくば市荻間字西向 515-1 間組技術研究所
渡辺 春朗	—	266 千葉市緑区大膳野町 808 千葉県農業試験場 （住居表示変更）
荒木 誠	茨城	612 京都市伏見区桃山町 永井久太郎官有地 森林総合研究所関西支所
秋山 良司	東京	221 横浜市神奈川区羽沢町 1150 旭硝子中央研究所
中本 洋	北海道	095 北海道士別市東山町 3294 道立上川農業試験場
本田 親史	—	300-15 茨城県北相馬郡藤代町 光風台 1-16-10 （自宅, 住居表示変更）
安田 環	静岡	305 つくば市観音台 3-1-1 農業環境技術研究所
山田 一郎	茨城	861-11 熊本県菊池郡西合志町 大字須屋 2421 九州農業試験場

氏名	旧	新連絡先
宮脇 忠	北海道	069-13 北海道夕張郡長沼町1区 道立中央農業試験場
熊本県農業 試験場	熊本	861-11 熊本県菊池郡合志町 大字栄 3801 熊本県農業研究センター 農産園芸研究所 (名称も変更)
小濱 節雄	茨城	100 千代田区大手町 1-8-3 全農・肥料農業部
奥山 武彦	茨城	020-01 盛岡市下厨川字赤平 4 東北農業試験場
根本 清一	茨城	961-04 福島県西白河郡表郷村 大字小松字上高萩 121 (自宅)
遅沢 省子	茨城	765 善通寺市生野町 2575 四国農業試験場
高橋市十郎	北海道	098-57 北海道枝幸郡浜頓別町字 緑ヶ丘 道立天北農業試験場
大阪府立大 学農学部	大阪	593 堺市学園町 1-1 (住所表示変更)

虎谷 博一	大阪	593 堺市学園町 1-2 大阪府立大学附属研究所 (住居表示変更)
小倉 力	広島	305 つくば市観音台 2-1-2 農業工学研究所
大城 晃	静岡	438 静岡県磐田郡豊田町富丘678-1 静岡県農業試験場
足立一日出	茨城	943-01 上越市稲田1-2-1 北陸農業試験場
山本 博	北海道	765 善通寺市生野町2575 四国農業試験場
中井 久	山口	753-02 山口市大内御堀1419 山口県農業試験場
小川 和夫	北海道	340-02 埼玉県北葛飾郡鷺宮町 桜田4-3-1-14-101 (自宅)
川原 祥司	北海道	098-57 北海道枝幸郡浜頓別町字 緑ヶ丘 道立天北農業試験場
長谷川 徹	愛知	446 安城市昭和町4-3 (自宅)

4. 退会会員 (1992. 2—1992. 6)

16名 (正会員14名)

(1984・11・22改正)

土壌物理研究会会則

- 第1条 本会は土壌物理研究会 (Research Association of Soil Physics, Japan) と称する。
- 第2条 本会は土壌の物理性を中心とする試験研究の発展と農業技術への貢献を図ることを目的とする。
- 第3条 本会はその目的を達成するため次の事業を行う。
- (1) 研究発表会, 討論会及び見学会などの開催
 - (2) 土壌の物理性 (Soil Physical Conditions and Plant Growth, Japan 会誌という) 並びにその他の印刷物の発行
 - (3) 内外の研究, 技術の交流及び他の学会, 諸団体との協力
 - (4) その他本会の目的を達成するため必要な事業
- 第4条 本会の会員は, 正会員, 学生会員及び賛助会員, 購読会員の4種とする。
会員となるには評議員会の承認を受けなければならない。
- 第5条 会員は次の会費を所定の期日までに納めるものとする。
- | | | | |
|-----------|------|---|---------|
| 正会員 | 年 | 額 | 3,500円 |
| 学生会員 | " | | 2,000円 |
| (大学院生を含む) | | | |
| 賛助会員 | 1口年額 | | 15,000円 |
| 購読会員 | 会誌年額 | | 4,500円 |

広告料 賛助会員 実費
賛助会員以外 実費の5割増

- 第6条 本会に次の会員をおく。任期は2年とする。ただし, 3期連続の重任は認めない。選出方法は別に定める。
- (1) 会長1名, 副会長1名
正会員の中から評議員会によって選出される。
 - (2) 評議員
イ 15名 正会員から互選する。
ロ 3名以内 会長が委嘱する。
 - (3) 会計監査 2名
正会員の中から評議員会によって選出される。
 - (4) 幹事 若干名
会長委嘱
- 第7条 会長は毎年1回以上総会並びに評議員会を招集する。
- 第8条 本会に次の委員会をおく。
- (1) 選挙管理委員会
正会員の中から評議員会によって選出され, 本会の評議員選挙を管理する。
 - (2) 編集委員会
正会員の中から評議員会によって選出される委員によって構成され, 会誌その他の印刷物の編集に当る。
- 第9条 本会の経費は会費その他の収入をもってあてる。
- 第10条 本会の会務執行に必要な規定は別に定める。

「土壌の物理性」投稿規定 (1992・5・30改定)**1. 投稿要領**

- 1) 投稿は本会会員に限る。ただし共著者の場合また編集委員会が依頼した場合はこの限りではない。
- 2) 投稿原稿の採否は, 編集委員会において別途定める閲読基準により審査し決定する。なお, 「報文」は2名, その他は1名の閲読者を編集委員会において決定し, 閲読を依頼する。
- 3) 投稿は以下に示す種別にしたがい, その内容は土壌の物理性に主体をおくものとする。
「報文」一編ごとに報文としての体裁を整え, 独創性があり, 土壌の物理性に関する研究および技術に寄与するとみなされるもの。他誌に未発表のものに限る。
「論説・総説」土壌の物理性に主眼をおき, 広い視野に立って記述したもの。
「資料」既に発表した報文または発表予定の内容を各分野の参考資料となるように書き改めたもの。
「解説」土壌の物理性に関する諸事項の理解を計るための平易な解説ならびに研究技術の普及交換を進めるための紹介など。
「その他」土粒子, 書評など。
- 4) 投稿には下記形式の送り状を付け, 正原稿1部, コピー2部の計3部を送付する。初校のみ著者校正とし, 印刷済みの原稿は返さない。別刷は30部を著者に贈呈する。それ以上希望する場合は実費を申し受ける。
- 5) 本誌に掲載された論文の著作権は, 土壌物理研究会に帰属する。

発表年月日		受付年月日	
種 別		原稿枚数	
表 題		図表数	表 枚 図 枚,
著 者 名		写 真 数	葉
所 属		別 刷	30部+ 部
キーワード (和文・英文)			

付記：投稿は下記宛のこと
「土壌物理研究会編集幹事」

2. 原稿執筆要領

- 1) 原稿には400字詰横書きの原稿用紙を用いる。
- 2) 原稿の枚数は、刷り上がり6ページ以内(図表を含めて32枚程度)を基準とする。超過ページならびに写真、図表など、特に多額の経費を要するときは実費を申し受ける。
- 3) 文体 平かな漢字混りの横書き口語文として、できるだけわかりやすい表現にする。
- 4) 術語以外はなるべく常用漢字を用い、かなは現代かなづかいとする。
- 5) 句読点、括弧、ハイフンには一画を与える。数字、ローマ字は一画に二字までとする。
- 6) 数字 アラビア数字を用い、漢数字は普通の字句についてのみ用いる。
- 7) 外国人名は欧字とする。最初の文字のみ大文字とする。
- 8) 外国地名はカタカナを原則とするが、必要に応じて欧字を用いる。
- 9) 字体の指定は、**ゴシック**、*italic*、boldのように鉛筆で指定する。紛らわしい文字は誤植防止のための指示を鉛筆で記入する。(例：Iーエル、Iーイチ、Iーアイ、 x^2 、 Na_2CO_3 など)
- 10) 術語 原則として文部省編：学術用語集による。普通に用いられる外国語の術語、物質名などはカタカナで書く。
- 11) 略字、略号を使うときは、はじめにそれが出る個所で正式の名称とともに記す。例：液性限界(LL)
- 12) 数量の単位は原則としてSIを用いる。(但し、当分の間はCGSの併用を認める)
- 13) 表・図・写真などは必要最小限とし、同一事項を表と図に重複して示すことは避ける。
- 14) 表・写真は本文のあとに1枚ごとに原稿用紙あるいはこれとほぼ同大の別紙に書き、またははり付ける。1枚ごとに著者および表題を鉛筆で略記して事故の発生を避ける。本文中欄外に挿入位置を指定し空白はあけない。ただし指定の位置にはならないことがある。
- 15) 空欄の多い表は避け、注を使うなどして紙面の節約をはかる。
- 16) 表の番号は「表ー1」のようにし、説明とともに表の上に記入する。
- 17) 図はそのまま製版にとれるようトレーシングペーパー等(白か透明)に黒インクで明確に書く。製版に適しない図は書き直しを要求することがある。図中の文字は鉛筆でうすく記入することにとどめる。図の番号は「図ー1」のようにし、説明とともに図の下に鉛筆で記入する。
- 18) 図は刷り上がりの大きさを指定し、1.5~2倍ぐらい大きく書く。ただし必ずしも指定の大きさにならないことがある。図中の字の大きさおよび線の太さは刷り上がりを考慮して定める。
- 19) 地図には定尺をつけ、何万分の1など縮尺を指定しない。
- 20) 文献は本文のあとにまとめて通し番号順に書く。通し番号は引用の順序または著者名のABC順とする。本文の引用個所の右肩に番号を片括弧で小さく入れる。論文名は記載しなくてもよい。
- 21) 題名、著者名、所属、報文の図、表および写真の表題には英文を併記するものとし、さらに報文については、300語以内の英文要約をつけるものとする。
- 22) 英文原稿も上記の規定に準ずる。
- 23) 原稿に使用する年号は全て西暦に統一する。但し、引用文献等でタイトルの中に元号が入っている場合は変更する必要はない。
- 24) 「報文」「論説・総説」「資料」「解説」には5語程度のキーワード(日本語と英語の両方)をつける。記入箇所は表題記入頁最下段と英文要約の末尾とする。

土壌物理研究会編集幹事

〒700 岡山市津島中1-1-1

岡山大学農学部

三浦健志

電話 0862-52-1111 (EXT. 8354)

〒501-11 岐阜市柳戸1-1-1

岐阜大学農学部

千家正照

電話 0582-30-1111

— 編 集 後 記 —

本号はシンポジウム特集号です。昨秋行われましたシンポジウム「土壌中における非保存性物質の動態と土壌物理性」で話題提供して頂いた方に、その内容をもとにオリジナリティのある報文としてまとめて頂きました。そのためシンポジウムのときの講演題目と報文のタイトルが少し変わっているものもあります。非保存性物質としてCO₂, CH₄, N₂O, 含硫ガスさらには腐植等が取り上げられました。これらは温暖化や酸性雨などの原因物質として指摘されているもので、それぞれの動態と土壌の物理性との関係などを勉強するよい機会でした。また、温暖化や酸性雨等の地球規模の問題に対しても、個々の場面での地道な研究の蓄積が重要であることを改めて認識しました。

投稿規定を少し手直しました。その主な点は、レフエリー性を採っていることを明文化したこと、論文の著作権の記述を追加したことです。投稿規定は巻末に掲載しています。

本会誌の論文は「報文」「論説・総説」「資料」「解説」からなっています。会誌は発表のみならず会員間の情報交換の場でもあります。眠っている貴重なデータはありませんか？「資料」「解説」を活用して気軽に投稿して頂ければと思います。現場での調査報告等も歓迎致します。

会誌は皆様方からの投稿で成り立っております。より良い会誌にするため皆様のご協力をお願い致します。

(三浦健志)



— 土 壌 物 理 研 究 会 —

事務局構成	会 長	長 堀 金造 (岡山大)
	副 会 長	東 順三 (神戸大)
	会計幹事	島田 清 (岡山大), 赤江 剛夫 (岡山大)
	庶務幹事	三野 徹 (岡山大)
	編集幹事	三浦 健志 (岡山大), 千家 正照 (岐阜大)
編集委員会	委 員 長	足立 忠司 (岡山大)
	委 員	井上 光弘 (鳥取大), 木村 真人 (名大), 高木 東 (中国農試)
		逸見 彰男 (愛媛大), 宮内 定基 (愛媛大)

発行 土壌物理研究会 〒700 岡山市津島中1-1-1 岡山大学農学部農地整備学研究室

TEL 0862-52-1111 (EXT. 8359) FAX 0862-54-0714

郵便振替口座 東京 5-17794

銀行口座 中国銀行津島支店 口座番号 普1223273

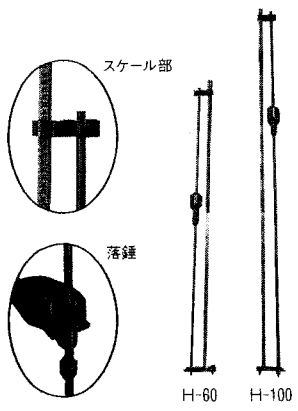
印刷 西尾総合印刷(株) 〒701-11 岡山市横井上90

TEL 0862-54-9001(代) FAX 0862-55-4656

現場式水分計器
 科学技術庁長官により
 第50回注目発明に選定される
 日本道路公団と
 共同出願

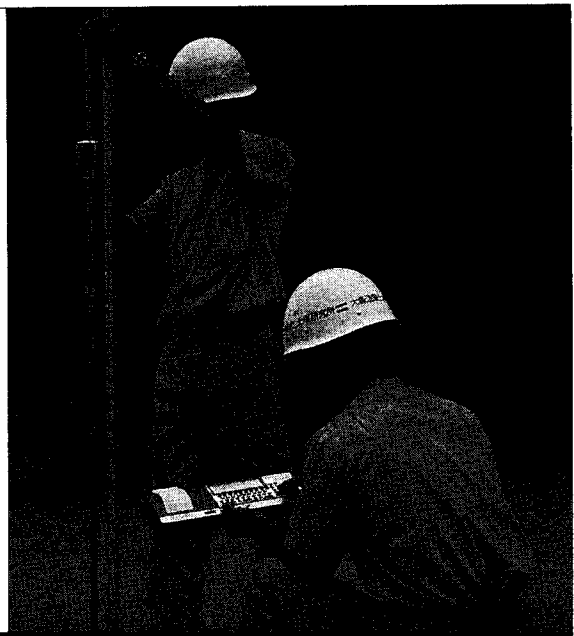
土壌調査器具(長谷川式)

土壌貫入計(硬度計)



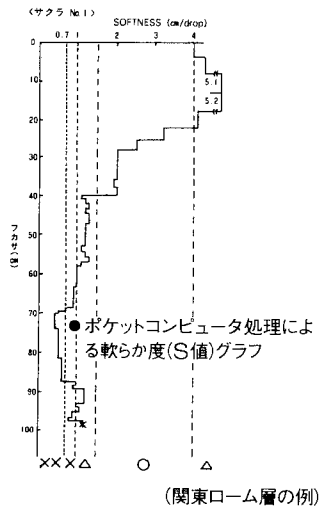
※山中式土壌硬度計や土研式貫入計と相関関係があり、数値の換算可能。

土壌貫入計及びデータ処理機作業風計



ポケットコンピュータ利用

土壌貫入計データ処理機

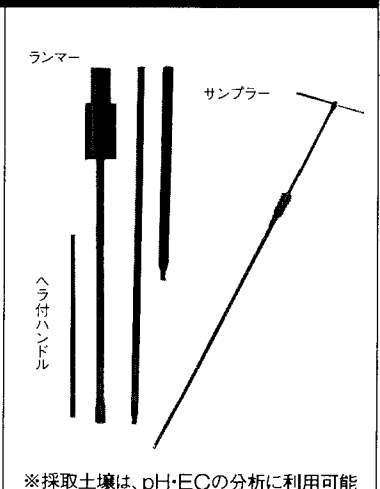
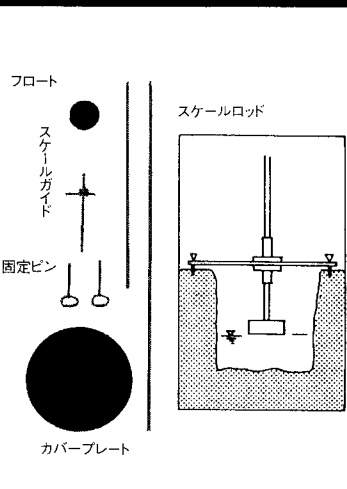


液体土壌が現場で容易に測定可能

精度の高い土壌調査が少量でも可能

簡易現場透水試験器

大型検土杖



※採取土壌は、pH・ECの分析に利用可能

開発・製造元



大島造園土木(株) 緑化・土壌研究所

OHSIMA LABORATORY OF GREEN ENVIRONMENT TECHNOLOGY

販売元 **ダイトウ・グリーン株式会社**

〒194 東京都町田市原町田2丁目4番1号
 TEL:0427-21-1703 FAX:0427-21-0844

緑の環境を総合的に科学する

Soil Physical Conditions and Plant Growth, Japan

No. 65

July 1992

Contents

Foreword	K. SATOH	1
Originals		
Measurements of Turbulent Transport of Carbon Dioxide in the Atmospheric Boundary Layer	E. OHTAKI	3
Dynamics of CO ₂ and CH ₄ in Paddy Soils and Their Fluxes to the Atmosphere	M. KIMURA, J. MURASE	11
Potential of Soil and Sediment for the Reduction of Nitrous Oxide	N. YOSHIDA, T. YAMAZAKI	21
Emission of Biogenic Sulfur Gases from Agricultural Land	K. MINAMI	29
Chemical Alteration of Humic Substances as Revealed by Component Analysis Using Adsorption Chromatography.....	K. YONEBAYASHI	35
Comments for 33 rd. Symposium	H. SASAKAWA	43
.....	T. MITSUNO	45
General Discussion of 33 rd. Symposium		47
Explanation		
Measurement of Soil Volumetric Water Content and Electrical Conductivity Using Time Domain Reflectometry	H. HORINO, T. MARUYAMA	55
Book review	N. TORIDE	62
.....	S. SIBUSAWA	63
Announcement		66

Research Association of Soil Physics, Japan
c/o Laboratory of Land Consolidation,
Agricultural Department, Okayama University
Tsusima Naka 1-1-1, Okayama, 700, Japan
President Kinzou NAGAHORI