

水田土壌中有機物の分解に由来する CO<sub>2</sub> および CH<sub>4</sub> の炭素同位体比の経時変化  
**Variations in carbon isotopic ratios of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> derived from rice paddy soil organic matter with progress of its decomposition**

森泉 純\*・森 嘉貴・江川紗矢香・山澤弘実

Jun MORIIZUMI, Yoshiki MORI, Sayaka EGAWA and Hiromi YAMAZAWA

名古屋大学・院・工 (Graduate School of Engineering, Nagoya University)

\*Correspondence to: Jun MORIIZUMI; E-mail: j-moriizumi@nucl.nagoya-u.ac.jp

**Abstract**

The characteristics of decomposition of soil organic matter (SOM) in a rice paddy have been studied in terms of cycling of carbon, especially radioactive <sup>14</sup>C, in a rice paddy. Production rate of CO<sub>2</sub> from incubated paddy soil under aerobic condition and that of CH<sub>4</sub> under anaerobic condition were measured for periods of more than 100 d. The incubations were undergone at warmer temperature than real condition of rice paddy to “accelerate” SOM decomposition several times faster than the real condition. Both production rates of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> showed rapid decrease to 10<sup>-10</sup> kg-C (kg-dry soil)<sup>-1</sup>s<sup>-1</sup> for 10 d just after starting the incubations, and then they decreased moderately. For CO<sub>2</sub> the variations in carbon isotopic ratios (δ<sup>13</sup>C, Δ<sup>14</sup>C) were also measured during the incubation. At first the δ<sup>13</sup>C of SOM-derived CO<sub>2</sub> was ca. -22 ‰, and it rapidly decreased to less than -28 ‰ to become close to that of SOM (-29.2 ‰). The variation in Δ<sup>14</sup>C of CO<sub>2</sub> also showed slightly higher value for the first several days than those for the period after 20 d. However, all of Δ<sup>14</sup>C measurements were less than 0, and this means their <sup>14</sup>C ages were older than 1960s, the era of atmospheric nuclear weapon testing, apparently. Since these apparent ages are inconsistent to the time scale of SOM decomposition measured in this study, older SOM as well as modern one might be attributed to source of the CO<sub>2</sub>.

*Keywords: soil organic matter decomposition; rice paddy; carbon dioxide; methane; turn over time*

キーワード：土壌有機物分解；水田；二酸化炭素；メタン；回転時間

1. はじめに

炭素 14(<sup>14</sup>C)は天然に普遍的に存在する半減期 5730 y の放射性核種であり、かつ炭素は主要な生体構成元素であることから、地上のあらゆる生物体は <sup>14</sup>C を含有する。従って生体は常に <sup>14</sup>C が放出するベータ線による内部被ばくを受け、その線量 (実効線量) は標準的なヒトで 1 年間に 0.01 mSv (ミリシーベルト) と評価される。これは自然放射線による年間実効線量の世界平均値 2.4 mSv (UNSCEAR, 2000) に対して非常に小さな寄与ではあるが、生体が生存する限り逃れられない被ばくである。一方、<sup>14</sup>C は人間活動によっても環境中に付与され、大気圏内核実験が停止された以降、主な人為的 <sup>14</sup>C 放出源は原子力発電に関連する施設である。従って原子力施設の安全評価において放出された <sup>14</sup>C の環境中の移行に関する知見は不可欠である。しかし未だ不確実な部分が多く、安全評価は過度に保守的 (安全側に評価するため、考えられるより危険性の高い条件を重ねる) にならざるを得ない。

日本人にとって主食とするコメは炭素の最も重要な経口摂取源であり、しかも国内の水田でほぼ

自給する。従って日本国内で操業する原子力施設の $^{14}\text{C}$ 放出の安全評価において、施設近隣の水田の炭素循環は最も重要な過程である。水田では稲の光合成によって大気中の $\text{CO}_2$ が固定され、稲わらのすき込みによって人為的に土壤に有機炭素が供給される。稲わらは分解される過程でその一部が土壤有機物を形成して水田土壤中に滞留する。 $^{14}\text{C}$ もこれらの過程によって移行すると考えるのが妥当であり、水田土壤有機物の分解過程の特性は、水田で固定された $^{14}\text{CO}_2$ の滞留、再放出、そして稲による再固定といった移行の把握のために不可欠である。

水田の有機物分解は、好氣的条件下（水田の落水時）での分解により $\text{CO}_2$ が放出される過程と、嫌氣的条件下（水田の湛水時）での $\text{CH}_4$ が放出される過程との2つに大別される。特に、有機物分解が盛んな高温期は水稻の生育期でもあり、即ち湛水条件下であることが多い。従って $\text{CH}_4$ 放出を伴う嫌氣的分解の寄与が無視できない可能性がある。本研究では、好気・嫌気両条件下で分解される水田土壤有機物の分解速度と、その炭素同位体組成に関する特徴の解明を試みた。分解速度の温度依存性に着目し、分解の速い温度条件下で水田土壤を培養することで、本来年単位の有機物分解の速度と炭素同位体組成の変動の、より短期の実験期間での再現を試みた。

## 2. 実験方法

愛知県西部の濃尾平野に位置するあま市の水田にて、好気条件実験のために2009年7月および嫌気条件実験のために2010年6月に、水/土壤境界から深さ5 cmまでの土壤を採取した。これらを2 mmメッシュのふるいにかけて、稲わらの残留物や水稻の根など有形の有機物を除去し、培養に使用する実験試料とした。

好気条件下の分解実験では、湿潤土壤約1 kgを土壤質量含水率 $50\pm 5$  wt.%を保ちながら $35^\circ\text{C}$ で培養した。適宜培養容器を密封し、 $\text{CO}_2$ を含まない純空気で容器内部を置換した後、24 h後に容器内部の空気を採取した。内部の $\text{CO}_2$ 濃度上昇速度から乾燥土壤質量あたりの $\text{CO}_2$ の生成率を算出し、空気中 $\text{CO}_2$ を精製して炭素同位体比( $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\Delta^{14}\text{C}$ )を測定した。 $\text{CO}_2$ 濃度測定には非分散型赤外吸光測定器(LI-840, Li-Cor)を、炭素同位体比測定には名古屋大学年代測定総合研究センターの同位体比質量分析計(Finnigan MAT 252, Thermo Fisher Scientific)およびタンデム加速器質量分析計2号機(Tandemtron-2, HVEE)を用いた。

嫌気条件下での分解実験では、湿潤土壤約50 gに蒸留水約300 mLを加え、加振で容易に懸濁する状態で500 mLガラス容器に封入し、内部を $\text{N}_2$ ガスで置換して嫌氣的に保ち、 $40^\circ\text{C}$ で培養した。適宜容器に振動を加えながら内部を $\text{N}_2$ ガスで置換し、3 h後の内部空気の $\text{CH}_4$ 濃度をFID付きガスクロマトグラフ(GC-14A, 島津製作所)にて測定し、濃度上昇速度から乾燥土壤質量あたりの $\text{CH}_4$ の生成率を算出した。 $\text{CH}_4$ の炭素同位体比測定用として、同様の条件で大容量試料を並行して培養した。 $\text{CH}_4$ の炭素同位体比はシンポジウム発表時点で未測定である。

水田土壤の有機炭素の含有量と炭素同位体比を測定するために、乾燥した土壤を $\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2$ 流通下で $850^\circ\text{C}$ に加熱、燃焼し、燃焼ガスを回収した。回収したガスの $\text{CO}_2$ 濃度から燃焼した有機炭素含有量を算出し、ガス中 $\text{CO}_2$ を精製して $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\Delta^{14}\text{C}$ を測定した。

## 3. 実験結果と考察

### 3.1 $\text{CO}_2$ ・ $\text{CH}_4$ 生成率

測定に用いた水田土壤の有機炭素含有量は $0.025$  kg-C  $\text{kg}^{-1}$ であった。図1に示すように、 $\text{CO}_2$ 生成率(炭素量換算)は培養開始時に $9\times 10^{-10}$  kg-C  $\text{kg}^{-1}$   $\text{s}^{-1}$ を示した後、10 d以内に急激に1/3程度まで減少し、以降は緩やかに減少した。培養15 d以降の $\text{CH}_4$ 生成率(炭素量換算)は $10^{-10}$  kg-C

$\text{kg}^{-1} \text{s}^{-1}$ をやや下回る量で、同時期の  $\text{CO}_2$  生成率の 2/5 程度あり、土壤有機物の分解の総量に対して無視できない寄与を持つと示唆される。培養日数に伴う  $\text{CH}_4$  生成率の減少率は  $\text{CO}_2$  生成率のそれと同様であった。

図 1 の  $\text{CO}_2$  生成率  $S(t)$  の変化は培養初期 10 d 以内に急激に減少する成分（以後、易分解性成分と称する）とそれ以降緩やかな減少を担う成分（中分解性成分）の 2 つの和で表され、 $\text{CO}_2$  の生成量は原料となる有機炭素量に比例する(1 次反応)と仮定すると、次式で表される。

$$S(t) = S_{o,1} \exp(-t/T_1) + S_{o,2} \exp(-t/T_2) \quad (1)$$

ここで、成分  $i$  の初期生成率を  $S_{o,i}$ 、回転時間を  $T_i$  とする。 $T_i$  は成分  $i$  の平均滞留時間に相当する。式(1)を  $\text{CO}_2$  生成率の測定結果に当てはめ、 $S_{o,i}$  と  $T_i$  を決定した。図 1 に示す  $\text{CH}_4$  生成率の測定結果は式(1)の右辺第 2 項（中分解性成分）に相当すると仮定し、 $S_o$  と  $T$  を算出した。培養温度  $35^\circ\text{C}$  での  $\text{CO}_2$  生成即ち好氣的有機物分解において易分解性成分、中分解性成分の回転時間はそれぞれ 0.88 d、108 d であった。培養は分解速度が速い条件下であるので、 $16^\circ\text{C}$  の分解速度に換算すると回転時間はそれぞれ 5.3 d、650 d である。好氣的有機物分解での中分解性成分は現実の水田で 2~3 y の回転時間を持つ。培養温度  $40^\circ\text{C}$  での  $\text{CH}_4$  生成即ち嫌氣的有機物分解での中分解性成分の回転時間は 111 d であった。これは  $20^\circ\text{C}$  の分解速度に換算すると 980 d であり、嫌氣的有機物分解の中分解性成分も好氣的有機物分解と同様の 3 y 程度の回転時間を持つ。

式(1)の右辺の各項を  $t = \infty$  まで積分すると、生成する  $\text{CO}_2$  あるいは  $\text{CH}_4$  の各成分の総量が得られる。分解された有機物はすべて  $\text{CO}_2$  あるいは  $\text{CH}_4$  となると仮定すると、好氣的有機物分解の易分解性成分および中分解性成分有機炭素の総量はそれぞれ全土壤有機炭素の 0.4%、14.4% であった。残りの 85% はより分解されにくく実験期間では顕わに  $\text{CO}_2$  生成への寄与が見えなかった成分（難分解性成分）と見なせる。易分解性成分有機炭素の存在割合はごくわずかである。嫌氣的有機物分解の中分解性成分有機炭素の総量は全土壤有機炭素の 5.1% であった。これは好氣的分解の中分解性成分の 1/3 であり、嫌氣的分解の分解効率が好氣的分解より低い可能性を示す。

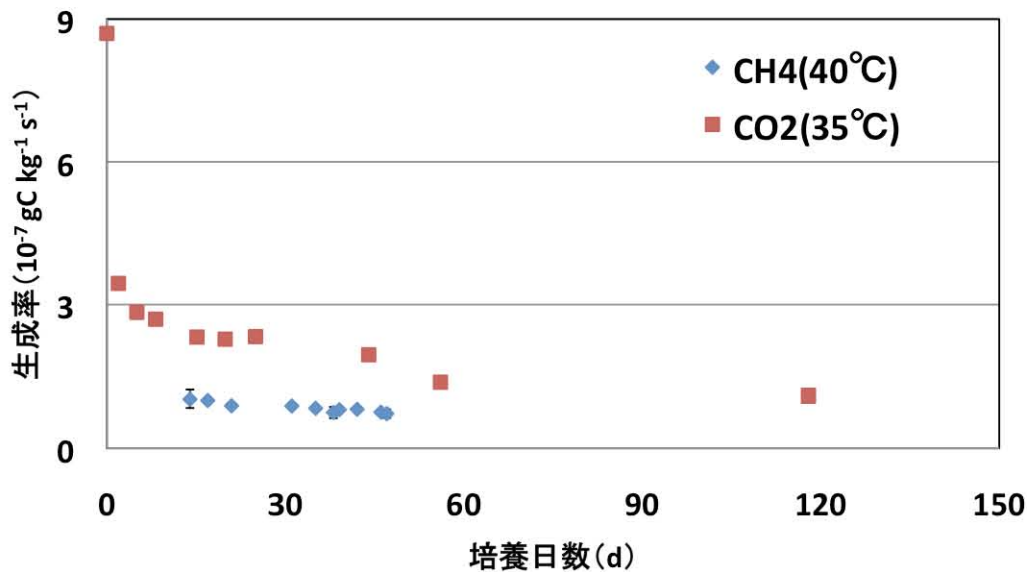


図 1 培養期間中の  $\text{CO}_2$  および  $\text{CH}_4$  の生成率の経時変化

Fig. 1 Variations in the production rates of  $\text{CO}_2$  and  $\text{CH}_4$  for their incubation periods.

### 3.2 生成 CO<sub>2</sub> の炭素同位体比

図2に培養日数に伴う CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  値の変化を示す。培養開始直後の -22‰ から 10~20 d までに -28‰ まで減少し、以降は緩やかに減少した。一方土壌有機炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  に大きな変動はなく、平均 -29.2‰ で一定と見なせる。培養日数が進むにつれ、生成する CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  値は土壌有機炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  値に漸近した。

図2の  $\delta^{13}\text{C}$  値の変化は 3.1 節で導入した易分解性成分と中分解性成分の混合比率の変化によると考えられる。即ち、

$$(\delta^{13}\text{C})_{\text{CO}_2} = [(\delta^{13}\text{C})_1 S_1(t) + (\delta^{13}\text{C})_2 S_2(t)] / [S_1(t) + S_2(t)] \quad (2)$$

ここで、 $(\delta^{13}\text{C})_{\text{CO}_2}$  は生成する CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  値、 $(\delta^{13}\text{C})_i$ 、 $S_i(t)$  はそれぞれ成分  $i$  の生成率と  $\delta^{13}\text{C}$  値であり、 $S_i(t) = S_{0,i} \exp(-t/T)$  である。式(2)を生成 CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  値測定結果に当てはめ、 $(\delta^{13}\text{C})_i$  を算出した。CO<sub>2</sub> と原料となる有機炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  値が等しいと仮定すると、易分解性成分、中分解性成分有機炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  値はそれぞれ -19.7‰、-28.2‰ であった。質量保存から、難分解性成分の  $\delta^{13}\text{C}$  値は -29.4‰ であった。これらの安定炭素同位体比の特徴は、複雑な組成を持つ土壌有機物の分解特性を推定する上で重要な束縛条件となる。菌類や微生物の  $\delta^{13}\text{C}$  値は植物体よりも大きい傾向が報告されていることから (Tu and Dawson, 2005)、易分解性成分は培養等による条件変化により死滅した土壌中の菌類や微生物の分解に相当する可能性がある。

図3に培養日数に伴う CO<sub>2</sub> の  $\Delta^{14}\text{C}$  値の変化を示す。培養開始時より  $\Delta^{14}\text{C}$  値は 0‰ を下回り、培養 20 d までわずかに減少した。 $\Delta^{14}\text{C} = 0$  は <sup>14</sup>C 年代で 1950 年 (大気圏内核実験以前) に相当する。従って生成した CO<sub>2</sub> の原料となった有機炭素は見かけ上、1950 年以前、即ち現在より 60 y 以上前に大気から固定されたことを意味する。しかし 3.1 節での解析結果では中分解性成分の回転時間 (土壌中の平均滞留時間) が 2~3 y であり、60 y 以上を経た現在まで残留する割合はごくわずかである。即ち、分解時間と見かけの <sup>14</sup>C 年代は整合しない。従って、中分解性成分は最近固定された有機炭素と、より古い年代の有機炭素の複数の起源を持つ可能性が考えられる。後者は数 10 y 以上 CO<sub>2</sub> に分解されずに残ったことから本研究では「難分解性」に分類されるとするならば、各分解性成分間での有機炭素の交換の可能性が示唆される。

## 4. まとめ

6~7 月に採取した水田土壌中の有機炭素の内、5~15% は 2~3 y の回転時間 (平均滞留時間) で分解され、水田の落水時には CO<sub>2</sub> として、湛水時には CH<sub>4</sub> に変換される。水田土壌中の有機物分解特性を評価するためには好気、嫌気条件とも同等の重みを持つ。好气的条件において、この回転時間を持つ有機物に由来する CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  値は -28‰ 程度であるのに対し、数 d の回転速度を持つ有機物に由来する CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  値は -20‰ 程度と大きい。生成される CO<sub>2</sub> の  $\Delta^{14}\text{C}$  値は見かけ上、大気圏内核実験以前の年代を持ち、本研究で示された回転時間と整合しない。分解性の異なる成分間での有機炭素の交換の可能性が示唆される。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたり、名古屋大学年代測定総合研究センターの中村俊夫教授、池田晃子様、太田友子様には炭素同位体比測定で大変御支援頂きました。水田土壌の採取にあたり、日本原子力研究開発機構の太田雅和博士に御協力頂きました。深く感謝の意を表します。

参考文献

- Tu K. and Dawson T., "Stable isotopes and biosphere-atmosphere interactions-processes and biological controls." Ed. by Flanagan, L. B., Ehleringer, J. R., Pataki, D. E. and Mooney, H. A., Academic Press, London (2005).
- United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation (UNSCEAR), "Sources and effects of ionizing radiation. UNSCEAR 2000 report." United Nations (2000).

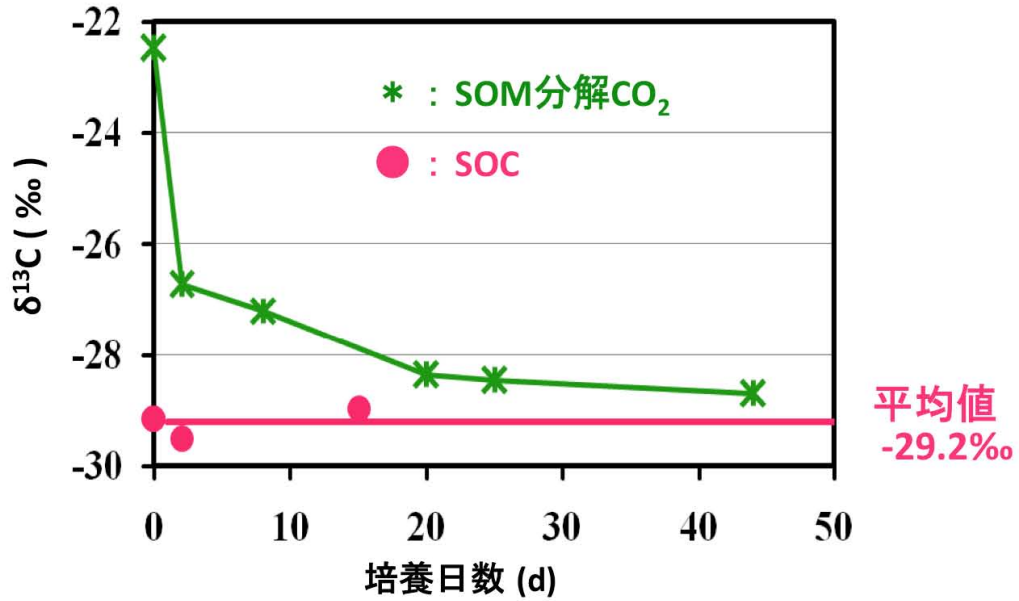


図2 培養期間中の SOM 由来  $\text{CO}_2$  および SOM の  $\delta^{13}\text{C}$  値の経時変化  
 Fig. 2 Variation in the  $\delta^{13}\text{C}$  of SOM-derived  $\text{CO}_2$  and SOM for the incubation period.

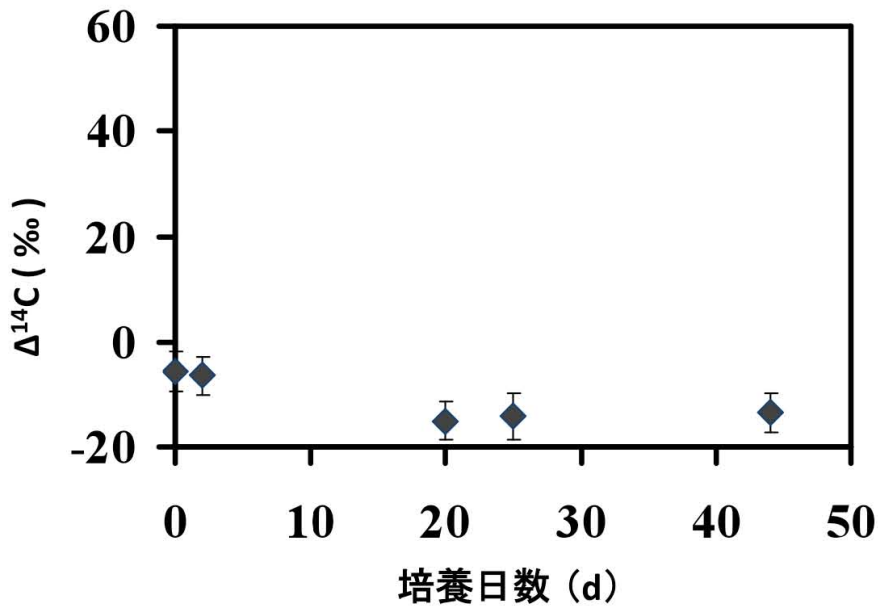


図3 培養期間中の SOM 由来  $\text{CO}_2$  の  $\Delta^{14}\text{C}$  値の経時変化  
 Fig. 3 Variation in the  $\Delta^{14}\text{C}$  of SOM-derived  $\text{CO}_2$  for the incubation period.

## 日本語要旨

水田の土壌有機物(SOM)の分解特性を水田における炭素、特に放射性的の $^{14}\text{C}$ の循環の観点で研究した。好氣的条件下で培養した水田土壌からの $\text{CO}_2$ 生成率、および嫌氣的条件下での $\text{CH}_4$ 生成率を100 d以上の期間にわたり、測定した。培養はSOM分解を数倍速く「加速」するため、実際の水田の条件に比べて高い温度で行った。 $\text{CO}_2$ および $\text{CH}_4$ 共に生成率は培養開始から10 d程度で急激に減少し $10^{-10} \text{ kg-C (kg-dry soil)}^{-1} \text{ s}^{-1}$ 程度となり、その後緩やかに減少した。培養中の $\text{CO}_2$ の炭素同位体比( $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\Delta^{14}\text{C}$ )の変化も測定した。当初、SOMに由来する $\text{CO}_2$ の $\delta^{13}\text{C}$ 値は約-22‰で、急激に-28‰いかに減少し、SOMの $\delta^{13}\text{C}$ 値(-29.2‰)に近づいた。 $\text{CO}_2$ の $\Delta^{14}\text{C}$ 値も初期の数日では20 d以降よりわずかに大きかった。しかし全ての $\Delta^{14}\text{C}$ 測定値は0‰を下回り、これは見かけ上1960年代(大気圏内核実験の時代)よりも古い $^{14}\text{C}$ 年代を示す。この見かけの年代は本研究で測定されたSOM分解の時間スケールと整合しないため、最近のSOMだけでなくより古いSOMの $\text{CO}_2$ 生成への寄与が示唆される。

## 関連する学会発表

蜂谷真史、森泉 純、山澤弘実

「安定炭素同位体比を用いた森林土壌呼吸中の根呼吸量の評価」  
第43回日本保健物理学会 ポスター発表学生部 2009年6月3～4日  
大阪

蜂谷真史、森泉 純、山澤弘実

「炭素同位体比を用いた森林土壌呼吸中の根呼吸量の評価」  
日本地球化学会第56回年会 口頭発表 2009年9月15～17日  
広島大学

蜂谷真史、森泉 純、山澤弘実

「炭素同位体比を用いた森林床根呼吸の評価」  
炭素14の環境中移行挙動評価専門研究会 口頭発表 2009年11月5～6日  
京都大学原子実験所、大阪府熊取

森 嘉貴、江川紗矢香、森泉 純、山澤弘実

「 $^{14}\text{C}$ 移行評価のための水田土壌中有機物分解による $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ 生成率および同位体比の測定」  
日本原子力学会中部支部第42回研究発表会 口頭発表 2010年12月14日～12月15日  
名古屋大学

渡邊和嵩、森泉 純、山澤弘実

「森林土壌及びリターの $\text{CO}_2$ 生成率の経時変化」  
日本原子力学会中部支部第42回研究発表会 口頭発表 2010年12月14日～12月15日  
名古屋大学