

長期水田利用下で蓄積した土壌有機炭素の安定性
Stability of soil organic carbon accumulated under long term use as rice paddy

中原誌公^{1*}・Zou P.²・安藤 豊³・Fu J.²・Cao Z.⁴・渡邊 彰¹
Shiko Nakahara¹, Ping Zou², Ho Ando³, Jianrong Fu², Zhihong Cao⁴, Akira Watanbe¹

¹名古屋大学大学院生命農学研究科・²浙江省農業科学院・
³山形大学農学部・⁴中国科学院南京土壤研究所

¹Graduate School of Bioagricultural Sciences, Nagoya University
²Zhejiang Academy of Agricultural Sciences
³Graduate School of Agricultural Science, Yamagata University
⁴Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences

*Correspondence author. Email: jinsei.tanoshiku.egao@gmail.com

Abstract

The effect of long term use as a rice paddy field on the stability of soil organic C (SOC) was investigated using the plow layer soils collected from two series of rice fields distributed in Hangzhou Bay region, Zhejiang Province, China, which have the estimated periods of time under irrigated rice paddy ranging from 5 to 2000 years. Amount, C and N stable isotopic ratios ($\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{15}\text{N}$), and ^{14}C age were compared mainly for the silt/clay sized fractions of soils and their humin as representative soil organic matter (SOM) fractions with a relatively long residence times due possibly to the adsorption to clay minerals and insolubility in water. The degree of humification of humic acids in silt/clay was also determined. Total C and humin C in the silt/clay fraction increased with increasing estimated period under rice paddy up to 2000 years. The degree of humification of humic acids increased during the first 100 years, but did not change afterward, suggesting that the structural change to refractory substances was not responsible for the enhanced SOC accumulation. A gradual decrease in $\delta^{15}\text{N}$ suggested the increase in the contribution of organic N fixed recently or derived from fertilizer to total silt/clay N and humin N. The ^{14}C age of humin became younger with increasing estimated period under rice paddy, which suggested that the larger SOC in the soils used as rice paddy field for a longer time was owing to the enhanced accumulation of organic C recently assimilated.

Keywords: ^{14}C age; Humin; Irrigated rice paddy; Soil organic matter

はじめに

中国浙江省の杭州湾湾岸域では、西暦 800 年頃から数回にわたって堤防が築かれ、湾内の海底堆積物を母材とする各堤防の内側の土壌は、塩が洗い流された後、水田や畑として利用されてきた (Cheng *et al.*, 2009)。そのため、この地域には同じ母材、同じ気候条件、同じ地形のもとで発達し

た、水田としての利用年数が0~2000年以上にわたる土壌が分布しており、それらを比較することで水田としての利用年数と土壌の性質の変化を解析することが可能と考えられる。これまでに、堤防の建設年、公文書の記録、現在の土地利用と住民の記憶に基づいて水田利用年数を大まかに推定した土壌について研究が行われ、利用歴50年以上の水田土壌では非水田土壌よりも作土層の有機C含量が高いこと (Cheng *et al.*, 2009)、推定水田利用年数が長い土壌ほど無施肥栽培における水稻の生育がよい傾向を示すこと (Cao *et al.*, 2010)、推定水田利用年数が長くなるにつれて有機C含量は増大し、鉄およびマンガン含量は減少する傾向があること (Zou *et al.*, 2011) 等が報告されてきた。これらの結果は、水田として利用し続けることで、土壌有機物の蓄積が進み、肥沃度も増大する可能性を示唆しているが、どのような機構で有機物の蓄積が進むのかについては明らかになっていない。一般的に、土壌有機Cの分解速度は、土壌団粒の微細孔隙内への隔離や、粘土鉱物への強い吸着、有機C自身の構造およびその変化(腐植化の進行)によってもたらされる。いずれの場合でも、長期水田利用が土壌有機物の安定性(難分解性)を増大させているのであれば、推定利用年数が長い土壌ほど蓄積している有機Cの平均生成年代が古いと予想される。ただし、本研究が対象とする

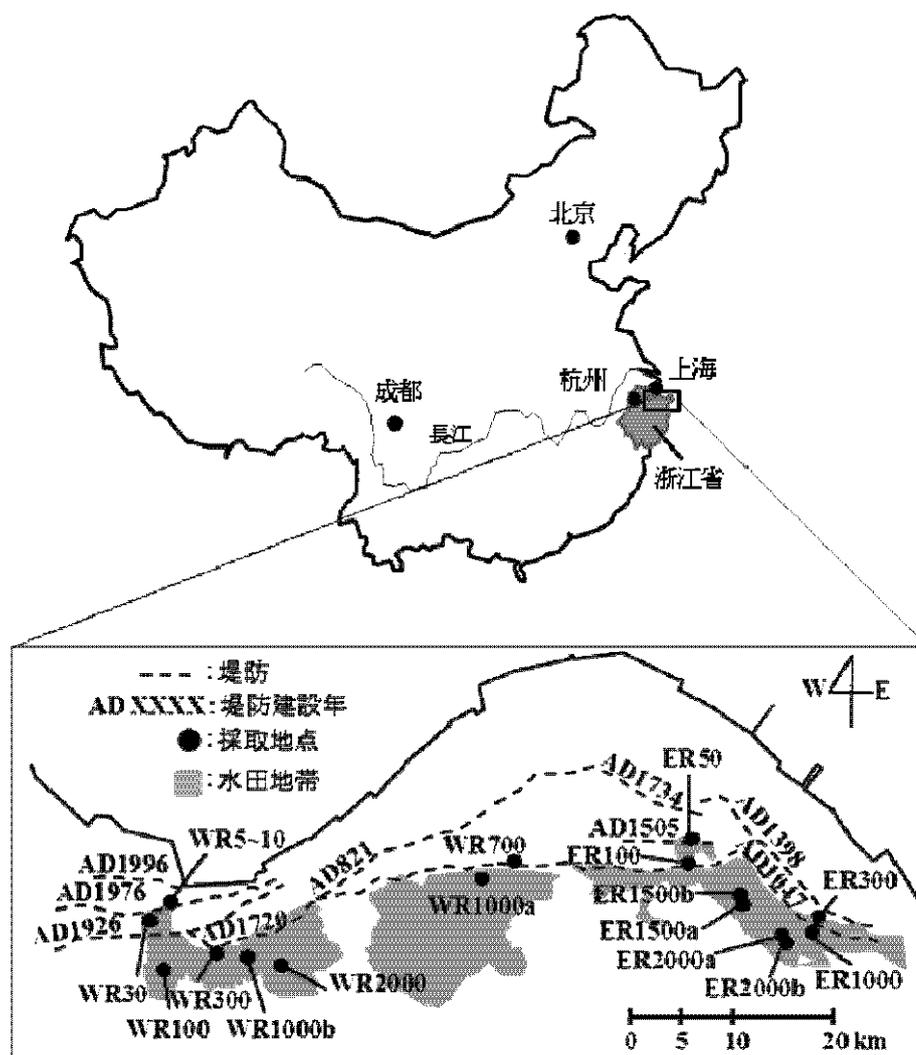


図1 中国全土と杭州湾湾岸域の土壌採取地点

Fig. 1. Maps of China (upper) and soil sampling sites in Hongzhou Bay area (lower).

土壌は、現在も水稻栽培が続けられている水田の作土であるため、原水爆実験によって大気 ^{14}C 濃度が増大した 1950 年代以降に同化された有機物の影響を免れない。そこで本研究では、最表層土壌の使用を避けるとともに、植物残さに加え、有機物の更新速度が大きい砂 (Balesdent, 1996) やアルカリ可溶腐植 (フルボ酸、フミン酸) を除去することで、土壌有機 C の中でも更新速度の遅い画分であると考えられるシルト・粘土画分中の不溶性腐植物質ヒューミン (Pessenda, 2001) の量、炭素および窒素自然安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$) および ^{14}C 年代を比較することとした。また、有機 C の構造的安定性を示す指標の一つとしてフミン酸の黒色度と推定水田利用年数との関係を調べた。

試料および方法

供試土壌には、中国浙江省杭州湾南岸域に分布している推定水田利用年数 5~2000 年 (Cheng *et al.*, 2009) の圃場において、深さ 5~15 cm から採取した作土 16 点を用いた (図 1)。ここでは、対象地域の西部 (慈溪市) から採取した推定水田利用年数 5~10 年、30 年、100 年、300 年、700 年、1000 年 (2 圃場)、および 2000 年の土壌試料を WR5~10 ~ WR700、WR1000a、WR1000b、WR2000 とし、東部 (余姚市、上虞市) から採取した推定水田利用年数 50 年、100 年、300 年、1000 年、1500 年 (2 圃場)、および 2000 年 (2 圃場) の土壌試料を ER50 ~ ER1000、ER1500a、ER1500b、ER2000a、ER2000b と記載する。また、母材に近い組成を持つと考えられる杭州湾岸堆積物を併せて供試した。

各土壌は凍結乾燥後、ピンセットで粗大植物残さを、水中での篩別により砂 ($> 53 \mu\text{m}$) を、さらに重液処理 (比重 1.6) により微小生物残さを、酸洗浄により炭酸塩を、それぞれ除去することで、シルト/粘土画分を得た。その後、NAGOYA 法 (Ikeya and Watanabe, 2003) にしたがって腐植

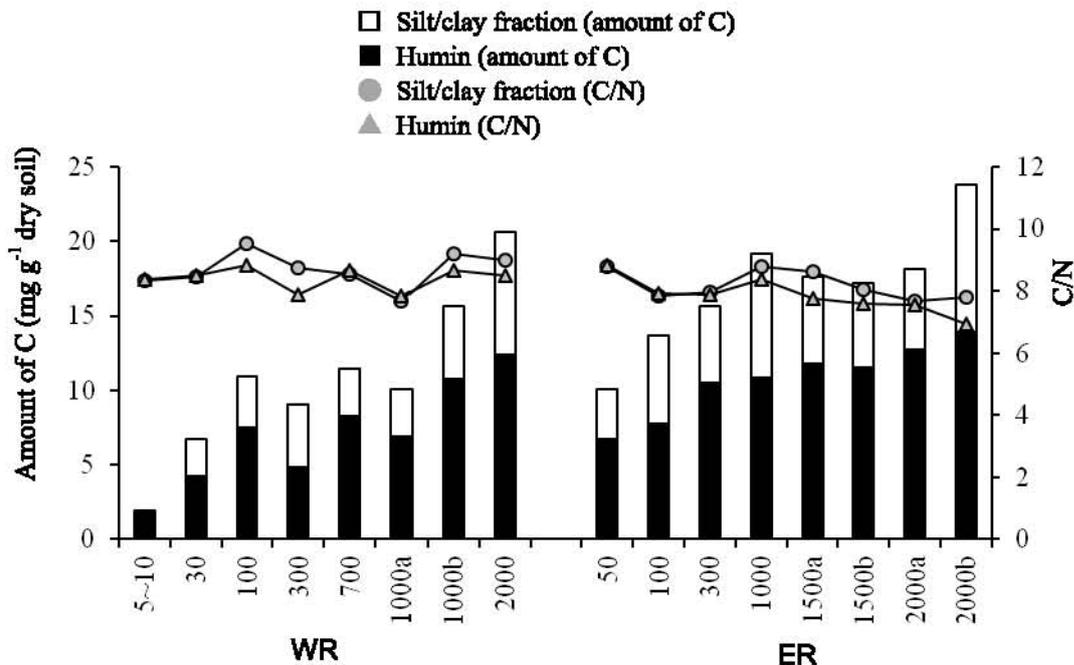


図 2 単位土壌重量あたりのシルト/粘土中の全 C 量およびヒューミン C 量と C/N 比

Fig. 2. Total C content and C/N in silt/clay fraction and humin.

WR, Rice fields in west area; ER, Rice fields in east area.

物質の分画を行い、フミン酸とヒューミンを回収した。シルト/粘土画分とヒューミンについては、収量、全C含量、全N含量、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および ^{14}C 年代(300年~2000年のみ)を測定し、フミン酸については収量と黒色度を測定した。なお、土壌pHが >7 であったWR5~10、WR30、WR700、ER50のシルト/粘土画分については、後述するように炭酸塩の除去が不十分であると考えられたため、再度酸洗浄を行った。

結果および考察

図2に、シルト/粘土中の全C量およびヒューミンC量をシルト/粘土およびヒューミンのC/N比とともに示す。試料間の比較より、杭州湾南岸域に分布する水田土壌は、東部、西部それぞれにおいて推定利用年数が長くなるほど作土中に粘土鉱物に収着する形で有機Cの蓄積が進んでいることが示唆された。同様の傾向はNについても見られ、そのため、C/N比についてはほとんど変化がなかった。フミン酸の黒色度は多くの化学的性質との間に有意な相関を示すことが知られており、高いほど環境中で難分解性であることを示唆する(渡邊・池谷, 2013)。しかしながら、杭州湾南岸域の水田土壌では、フミン酸の黒色度は推定水田利用年数約100年まで増大した後、2000年までほぼ一定であったため、腐植化の進行による安定性の増大は起こっていないと推定された。

図3にシルト/粘土とヒューミンの $\delta^{13}\text{C}$ および $\delta^{15}\text{N}$ を示す。水田利用年数が短く、土壌pHが >7

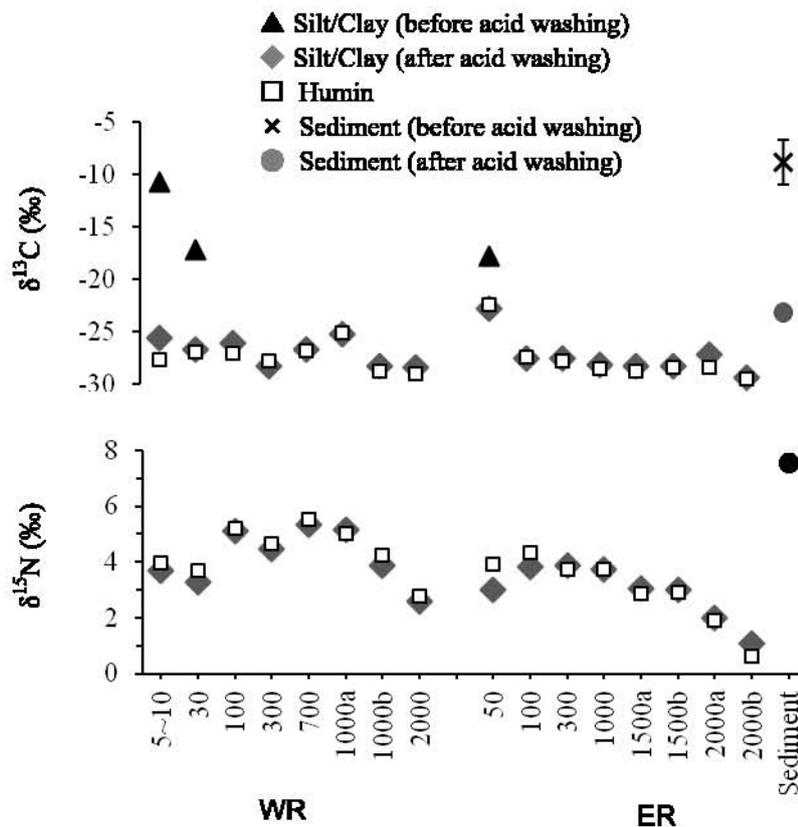


図3 シルト・粘土画分、ヒューミンおよび湾内堆積物の $\delta^{13}\text{C}$ (a) および $\delta^{15}\text{N}$ (b)

Fig. 3. $\delta^{13}\text{C}$ (a) and $\delta^{15}\text{N}$ (b) of silt/clay fraction, humin, and sediments.

WR, Rice fields in west area; ER, Rice fields in east area.

であった WR5~10、WR30、ER50 のシルト/粘土は、当初高い $\delta^{13}\text{C}$ 値を示したが、2 度目の酸洗浄によってヒューミンと類似した値まで低下したことから、炭酸塩が残存していたと推察された。再洗浄後は、ER50 を除いていずれも酸洗浄後の堆積物の $\delta^{13}\text{C}$ (-23~-24%) よりも低く、 C_3 植物の平均値 (-27%; Boutton, 1996) に近い値を示したため、陸地化とそれに続く水田利用開始後に蓄積した有機 C が主要な C 成分になっていると考えられた。

シルト/粘土およびヒューミンの $\delta^{15}\text{N}$ (図 4b) は、杭州湾の海底堆積物の $\delta^{15}\text{N}$ (7.8‰) より明らかに低く、陸地化後に蓄積した有機 N が数年で主体となっていることが示唆された。特に、WR5~10、WR30 および ER50 (シルト/粘土のみ) は、推定水田利用年数 100~700 年の土壌と比較して、 $\delta^{15}\text{N}$ が低い傾向があり、0‰に近い $\delta^{15}\text{N}$ をもつ化学肥料 (Shearer *et al.*, 1974) 等の影響を受けている可能性が考えられた。また、Bannert *et al.* (2011) が、杭州湾湾岸域の推定水田利用年数 50 年の土壌は、より利用年数が長い土壌や海底堆積物と比較して、N 固定酵素 (ニトロゲナーゼ) をコードする遺伝子のコピー数が多かったと報告していることから、水田利用年数の短い土壌では新たに固定された N (0~-2‰; Hoering and Ford, 1960) を多く含んでいた可能性も考えられた。一方、 $\delta^{15}\text{N}$ は推定水田利用年数 1000 年から 2000 年にかけて再び低下する傾向が見られた。そこで、それらの土壌についてシルト/粘土 N の量と $\delta^{15}\text{N}$ 、ヒューミン N の量と $\delta^{15}\text{N}$ との関係をそれぞれ調べたところ、両者の間にはいずれも有意 ($P < 0.005$) な負の相関が認められた。このことから、有機 N 蓄積過程で化学肥料に由来するあるいは最近固定された $\delta^{15}\text{N}$ の低い有機 N の全 N に占める割合が増大していることが推察された。また、Bannert *et al.* (2011) や Jiang *et al.* (2013) は、推定水田利用年数 300 年以上の土壌について、推定利用年数が長いほどアンモニア酸化酵素 *amoA* をコードする遺伝子数が少ないと報告している。硝化速度が遅ければ、それに続く脱窒と脱窒に伴う $\delta^{15}\text{N}$ の増大が抑制される一方、水稻による N 吸収率が増大するため、水稻根や稲ワラとして土壌に還元される N 量も増大する。これらの機構も水田利用年数が長い土壌において $\delta^{15}\text{N}$ が低いことに寄与しているかもしれない。

シルト/粘土画分中のヒューミンの ^{14}C 年代は、シルト/粘土全体の ^{14}C 年代よりも古く、粘土鉱物

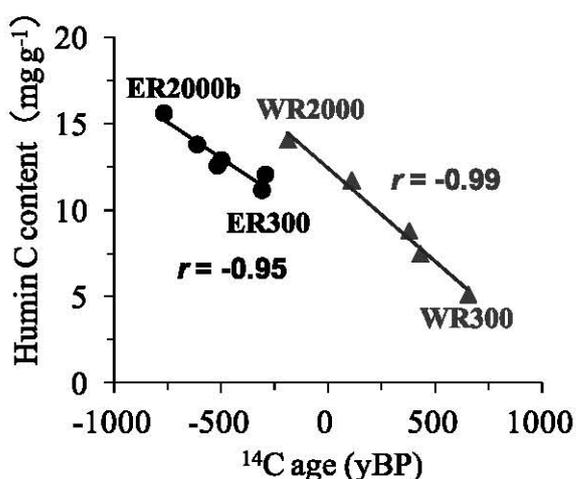


図 4 ヒューミン C 蓄積量とヒューミンの ^{14}C 年代との関係

Fig. 4. Relationship between amount of humin C in soil and ^{14}C age of humin.

WR, Rice fields in west area; ER, Rice fields in east area.

に収着して存在している有機 C の中でもヒューミン C はより安定であることが確認された。しかしながら、ヒューミンの ^{14}C 年代 (図 4) は、西部では WR300 が最も古く、WR2000 が最も新しく、東部でも ER300 と ER1000 が最も古く、ER2000b が最も若い値を示し、推定水田利用年数の時系列順とは対応しなかった。そこで、ヒューミン C の蓄積量と ^{14}C 年代との関係をみたところ (図 4)、両者の間には東部 ($r = -0.97; P < 0.005$)、西部 ($r = -0.99; P < 0.005$) それぞれにおいて高い負の相関が認められた。これらの結果から、推定利用年数が長い水田土壌でより有機 C 含量が高かったのは、古い時代に生成した腐植が長期間安定に蓄積し続けてきたためではなく、近年大気から固定された比較的新しい有機物の蓄積が進んだためであると推察された。このことは、 $\delta^{15}\text{N}$ に基づく、有機 N の蓄積に関する先の考察と矛盾しない。一方、西暦 1720 年に建設された堤防のすぐ内側に位置する (図 1) 圃場から採取した WR300 の ^{14}C 年代が 654 yBP であったことや、推定水田利用年数が同じでも東部と西部で ^{14}C 年代が 600~900 年異なったことから、今後母材となっている堆積物の ^{14}C 年代の測定等を行って推定水田利用年数あるいは圃場間の時系列についても検証を進める必要があると考えられた。

謝辞

本研究は JST SICP 杭州湾沿岸地帯に分布する年代の異なる水田 (30~2,000 年の栽培来歴) の土壌有機炭素プールの安定性と土壌炭素の増減に関する研究の一部として行われました。また、 ^{14}C 年代測定は名古屋大学年代測定総合研究センターにて行われました。同センター中村俊夫教授、池田晃子氏に謝意を申し上げます。

引用文献

- Balesdent, J. 1996. The significance of organic separates to carbon dynamics and its modeling in some cultivated soils. *Eur. J. Soil Sci.*, 47, 485–493.
- Bannert, A., Kleineidam, K., Wissing, L., Mueller-Niggemann, C., Vogelsang, V., Welzl, G., Cao, Z.H., and Schloter, M. 2011. Changes in diversity and functional gene abundances of microbial communities involved in nitrogen fixation, nitrification, and denitrification in a tidal wetland versus paddy soils cultivated for different time periods. *Appl. Environ. Microb.*, 77, 6109–6116.
- Boutton, T.W. 1996. Stable carbon isotope ratio of soil organic matter and their use as indications of vegetation and climate change. *In Mass Spectroscopy of Soils* (eds. Boutton, T.W. and Yamasaki, S.), p. 47–82, Marcel Dekker, New York.
- Cao, Z.H., Fu, J., Zou, P., Huang, J., Lu, H., Weng, J., and Ding, J.L. 2010. Origin and chronosequence of paddy soils in China. *Proceedings of the 19th IUSS Meeting, Soil Solutions for a Changing World*, 1–6 August 2010, Brisbane, Australia.
- Cheng, Y.Q., Yang, L.Z., Cao, Z.H., Ci, E., and Yin, S. 2009. Chronosequential changes of selected pedogenic properties in paddy soils as compared with non-paddy soils. *Geoderma*, 151, 31–41.
- Hoering, T.C. and Ford, H.T., 1960. The Isotope Effect in the Fixation of Nitrogen by Azotobacter. *J. Am. Chem. Soc.*, 82, 376–378.
- Ikeya, K. and Watanabe, A. 2003. Direct expression of an index for the degree of humification of humic

acids using organic carbon concentration. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 49, 47–53.

Jiang, X., Liu, W., Liu, Q., Jia, Z., Wright, A.L., Cao, Z. 2013. Soil N mineralization, nitrification and dynamic changes in abundance of ammonia-oxidizing bacteria and archaea along a 2000 year chronosequence of rice cultivation. *Plant Soil*, 365, 59–68.

Pessenda, L.C.R., Gouveia, S.E.M., Aravena, R., 2001. Radiocarbon dating of total soil organic matter and humin fraction and its comparison with ^{14}C ages of fossil charcoal. *Radiocarbon*, 43, 595–601.

Shearer, G.B., Kohl, D.H., and Commoner, B. 1974. The precision of determinations of the natural abundance of nitrogen-15 in soils, fertilizers, and shelf chemicals. *Soil Sci.*, 118, 308–316.

渡邊 彰・池谷康祐 2013. 腐植物質の中の縮合芳香環, 土と炭化物—炭素の隔離と貯留 (日本土壌肥料学会編), p. 103–132, 博友社, 東京.

Wissing, L., Kolbl, A., Vogelsang, V., Fu, J.R., Cao, Z.H., and Kögel-Knabner, I. 2011. Organic carbon accumulation in a 2000-year chronosequence of paddy soil evolution. *CATENA*, 87, 376–385.

Zou, P., Fu, J., and Cao, Z. 2011. Chronosequence of paddy soils and phosphorus sorption-desorption properties. *J Soil Sediment*, 11, 249–259.

日本語要旨

中国浙江省の杭州湾湾岸域に分布する推定水田利用年数 5～2000 年の土壌を用いて、長期的な水田利用が土壌有機炭素の安定性に与える影響を調べた。相対的に粘土鉱物への吸着と不溶性であることから相対的に滞留時間が長いと考えられるシルト/粘土画分およびそのヒューミン画分に着目して蓄積量、炭素および窒素自然安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$) および ^{14}C 年代を比較した。また、フミン酸の黒色度と推定水田利用年数との関係も調べた。シルト/粘土に蓄積している全 C 量およびヒューミン C 量は推定水田利用年数が長い土壌ほど高い傾向を示した。フミン酸の黒色度は推定水田利用年数 100 年まで増大したが、それ以降は変化が無く、腐植化の進行による難分解構造への変化が有機 C 蓄積量の増大の原因ではないことを示唆した。一方、 $\delta^{15}\text{N}$ は水田利用年数 1000 年から 2000 年にかけて低下し、肥料由来 N や固定されてからの年数が短い有機 N の蓄積が進んでいる可能性を示唆した。同様にヒューミンの ^{14}C 年代は推定水田利用年数が長い土壌ほど若く、新しい有機物の蓄積量の増大が全 C 量の増大に寄与していることが示された。