

ウンシュウミカン ‘青島温州’ 栽培圃場における夏期のバイオエタノール蒸留廃液の施用が土壌からの温室効果ガス発生に与える影響

当真 要¹⁾・井上 恭佑¹⁾・永田 修²⁾・山内 孝志¹⁾
大久保 直樹¹⁾・河野 貴幸¹⁾・加藤 也寸彦³⁾・上野 秀人¹⁾

Effects of summer application of distilled silage waste on soil greenhouse gas emissions in *Citrus unshiu* Marcow. ‘Aoshima-unshu’ field.

Yo Toma¹⁾, Kyosuke Inoue¹⁾, Osamu Nagata²⁾, Naoki Ohkubo¹⁾,
Takashi Yamauchi¹⁾, Takayuki Kouno¹⁾, Hideto Ueno¹⁾

Summary

We investigated the effect of distilled silage waste application on soil greenhouse gas emission in ‘Aoshima-unshu’ satsuma mandarin. This study was conducted in satsuma mandarin orchard from July to December 2012 in experimental farm of Faculty of Agriculture, Ehime University. Three trees for each of unfertilized control (C) and distilled silage waste application (DSW) plots were selected. On 27 June, 10 times diluted distilled silage waste (39 L) of 150 kg N ha⁻¹ was applied to DSW. In C, same volume of tap water was also applied. Under the tree canopy, carbon dioxide (CO₂), methane (CH₄), and nitrous oxide (N₂O) were measured, and N₂O emission factor was also estimated. Soil temperature at 5-cm depth was measured at the same time of gas flux measurement, and soil water content, water filled pore space (WFPS), pH, EC, and soil NH₄⁺ concentration, and soil NO₃⁻ concentration were also measured. CO₂ flux and soil NH₄⁺ concentration increased just after the application of distilled silage waste indicating it was decomposed and mineralized rapidly after the application. Difference in cumulative CO₂ emission between the plots was higher in distilled silage waste than in C. Distilled silage waste application may be able to grow the grasses under the tree canopy and that increase CO₂ emission by root respiration. There was no significant difference in CH₄ emission among the plots. Since CH₄ flux in DSW was relatively lower than in C, organic matter application might improve soil physical condition and enhance CH₄ oxidation in DSW. N₂O emission increased just after the application of distilled silage waste similar with CO₂ flux. Because we observed the existence of fungi on the surface of soil, N₂O might be produced by the denitrification process by fungi. In addi-

1) 愛媛大学農学部 (Faculty of Agriculture, Ehime University)

2) 農研機構北海道農業研究センター (NARO Hokkaido Agricultural Research Center)

3) 新日鉄住金エンジニアリング株式会社

tion, increase in N_2O flux two weeks after the application might be because of dry-wet cycle which enhanced soil mineralization and following N_2O production by nitrification process. Emission factor for N_2O was estimated to 1.5% which was higher than the reported of chemical fertilizer (1.0%). Since distilled silage waste was applied in summer in this study, the emission factor can be lower if it was supplied in winter as fertilization after the yield and basal fertilization.

結 言

愛媛県のミカン類の生産量は2014年には128,500トンであり、和歌山県に次ぐ全国2位となっている（農林水産省 2015）。生産されたカンキツ類の一部は果汁生産の原料として用いられている。この果汁生産の過程で生じる搾汁残渣は重量比で原料の5割を占め、廃棄物処理に係る費用の削減を目的として石灰を混合して脱汁し、脱汁残渣と脱汁液（シトラスモラセス）が得られる。脱汁残渣は家畜の飼料や堆肥の原料として利用されているが、シトラスモラセスについては有効な利用法がなかった。このシトラスモラセスには雑味となる様々な物質が多く含まれるため果汁の原料としては用いることはできないが、糖分を多く含むためにアルコール発酵によるバイオエタノール製造の原料となることが期待された。そこで、愛媛県ではシトラスモラセスからバイオエタノールを製造しカンキツ加工工場の燃料として利用する計画が進められた。その結果、バイオエタノールの製造と利用がなされるようになったが、同時にバイオエタノールの蒸留後に生じるバイオエタノール蒸留廃液（蒸留廃液）の処分に多額の費用が必要なことが問題となった。

蒸留廃液は硝酸と脱汁過程で添加されるカルシウム（Ca）を多く含む。そこで、蒸留廃液をカンキツ栽培へ利用することで、果汁生産コストの削減と資源の有効利用が期待される。さらに、収穫されたカンキツ果実に含まれる有機物や微量養分もカンキツ園へ還元されることから、土壤肥沃度の維持・向上による持続的なカンキツ栽培への貢献が期待される。一方で、蒸留廃液は晩柑類の収穫と加工が終了する3月まで製造される。一般的にカンキツ園においては、秋から冬にかけての収穫後の礼肥・基肥施用の他、萌芽直前頃の春肥や開花・結実後の6～7月に夏肥を施用する。これらの各時期における施肥の中で、夏肥の施用時期は蒸留廃液を施用可能なぎりぎりの時期と考えられる。したがって、蒸留廃液の夏肥としての効果が確認できれば、礼肥から夏肥までの長期間にわたり蒸留廃液の利用が可能となる。そこで本研究では、カンキツ園において蒸留廃液を夏肥として施用し、樹体の生長と果実の収量および品質に与える影響について調査を行った。

近年、全球的な気温上昇が報告されており、その主な原因が人為起源の温室効果ガス発生量の増加によるとされている（IPCC 2013）。前述のシトラスモラセスからのバイオエタノール製造・利用は果汁生産工場の化石燃料消費を抑制し、工場からの温室効果ガス排出量を削減する効果も期待できる。さらに蒸留廃液のカンキツ園への施用は土壤へ有機物を供給し土壤炭素の増加が期待できるが、一方で土壤からの温室効果ガス発生を助長する可能性がある。農業分野の特に畑地や果樹園から発生する温室効果ガスの主なものに一酸化二窒素（ N_2O ）があり、農業分野からの2014年の N_2O 発生量は日本の N_2O の全発生量の50%を占めている（環境省 2015）。さらに N_2O は二酸化炭素（ CO_2 ）の298倍強力な温室効果ガスである。圃場から発生する N_2O の主な生成プロセスは微生物による硝酸化成と脱窒である。硝酸化成は好気環境下においてアンモニウム（ NH_4^+ ）から硝酸（ NO_3^- ）が作られる過程であり、その過程の副産物として N_2O が生成・放出される。また、脱窒は嫌気環境下において NO_3^- から亜硝酸（ NO_2^- ）、一酸化窒素（NO）、 N_2O を経て最終的に窒素ガス（ N_2 ）が作られる過

程である。脱窒は嫌気呼吸のため、エネルギー源として有機物が必要であり、酸素が少ない条件下で N_2O や N_2 が多く生成される。従って、畑地や果樹園からの N_2O 発生は主に窒素 (N) 肥料や N を含む有機物および有機肥料の施用に起因する。このことから、有機物や硝酸を多く含む蒸留廃液は土壤からの N_2O 発生を助長する可能性がある。通常用いられる化学肥料に代わって蒸留廃液を施用した場合に多くの N_2O が発生することになれば、蒸留廃液の施用は従来の施肥法よりも環境への負荷が高くなることを意味する。一方で、蒸留廃液に含まれる有機物中の炭素は土壤に施用されると一部が難分解性物質に変化し、長期間土壤に留まる可能性がある。このことは光合成により大気中の CO_2 から合成された有機物中の炭素が土壤中に隔離されることを意味し、大気中の温室効果ガス濃度低下に寄与する。そこで、本研究では夏肥としての蒸留廃液の施用が土壤からの温室効果ガス発生に与える影響について調査した。

材料および方法

調査地

本研究は愛媛県松山市の愛媛大学農学部附属農場のカンキツ園（北緯33度57分、東経132度47分、標高約23 m）にて2012年に行った。調査地域の年平均気温は16.5℃、年間降水量は1,315 mmである。月平均気温は最も暑い8月で27.8℃であり、降水量は梅雨の6月に最も多く平均で224 mmとなっている。試験圃場は2008年から無施肥で管理されている圃場であり、2011年12月の収穫以降も肥料は施用されていない。土壤タイプは褐色森林土に分類され、表層土壤（0–10 cm）の土壤化

Table 1. Soil chemical characteristics in citrus orchard in Ehime, Japan.

		Unit	Value
Particle size distribution	Sand	(%)	66.0 ± 0.48
	Silt	(%)	11.6 ± 0.44
	Clay	(%)	22.4 ± 0.32
Soil texture			Sandy clay loam 砂質植壤土
pH			5.75 ± 0.12
EC		($\mu S cm^{-1}$)	50.6 ± 4.13
NH_4^+ concentration		($mg N kg^{-1}$)	4.99 ± 0.33
NO_3^- concentration		($mg N kg^{-1}$)	14.1 ± 0.48
Total C concentration		(%)	2.04 ± 0.10
Total N concentration		(%)	0.22 ± 0.01
Available P_2O_5		($mg P_2O_5 kg^{-1}$)	536 ± 47.0
Exchangeable K		($mg K kg^{-1}$)	284 ± 7.40
Exchangeable Na		($mg Na kg^{-1}$)	150 ± 1.40
Exchangeable Ca		($g Ca kg^{-1}$)	1.37 ± 106
Exchangeable Mg		($mg Mg kg^{-1}$)	269 ± 18.5
Cation exchange capacity		($cmolc kg^{-1}$)	15.7 ± 0.39

All values represent mean ± standard error.
Data was measured in 26 July, 2012.

学性はTable 1に示される通りである。細土 (< 2 mm) の66%を砂が占める砂質植壤土であり、C含量が約2%、陽イオン交換容量 (Cation exchange capacity, CEC) が $15.7 \text{ cmolc kg}^{-1}$ となっている。表層土壌の仮比重は 1.17 g cm^{-3} であり、0–10 cmまでの土壌C量は $2,387 \text{ g C m}^{-2}$ 、および土壌窒素量は 257 g N m^{-2} である。

試験圃場の栽培品種はカラタチ台16年生のウンシュウミカン (*Citrus unshiu* Marcow.) の‘青島温州’で、栽植密度は 640 tree ha^{-1} である。

試験区の設置と圃場管理

本試験では夏期に蒸留廃液を施用する蒸留廃液 (Distilled silage waste, DSW) 区と、肥料無施用の無施肥 (Control, C) 区をそれぞれ3反復で圃場にランダムで設けた。それぞれの処理区の1区画につき樹を1本とし、樹勢が比較的同程度の樹を選別して用いた。

Table 2. Chemical characteristics of distilled silage water.

	Unit	Value
Specific gravity	(g cm^{-3})	1.30
pH		4.52
Total C concentration	(g C L^{-1})	117
Total N concentration	(g N L^{-1})	15.2
C : N ratio		7.68
Total P concentration	(g P L^{-1})	1.91
Total K concentration	(g K L^{-1})	20.7
NO_3^- concentration	(g N L^{-1})	13.0

2012年の7月27日にDSW区に蒸留廃液を施用した。蒸留廃液はTable 2に示される成分のものを使用した。この蒸留廃液は約10倍に濃縮されており、施用時は10倍に希釈して用いた。また、希釈時に水酸化カルシウムを加えてpHを6.5に調整した。施用時にはDSW区の各樹の幹を中心に樹冠下の 4 m^2 の範囲に均一に散布した。蒸留廃液の施用量はNで 150 kg N ha^{-1} 相当量の約3.9 Lであり、希釈後の量は39 L (降雨 9 mm d^{-1} 相当)であった。また、蒸留廃液施用により施用された炭素は $1,152 \text{ kg ha}^{-1}$ であった。また、C区にも同量の水道を散布した。

CO₂、CH₄、N₂Oフラックス測定

土壌から発生するCO₂、N₂Oおよびメタン (CH₄) のフラックスをクローズドチャンバー法を用い、7月20日から12月9日までの142日間で計17回測定した。具体的な測定方法および使用機材は、Toma *et al.* (2016) に記載されている水田の冬期のガス測定方法に従った。7月18日にチャンバーベースを設置し、施肥1週間前の7月20日と施肥前日にガス発生を測定した後、施肥の翌日から6回の測定は2・3日に1回、その後5回は週に1回程度、その後は2週間に1回の間隔で実施した。ガスフラックスの測定は原則午前中に実施した。CO₂発生量測定用のサンプルはチャンバーを密閉後0、6、12分後にチャンバー内部のガスサンプルをそれぞれ約160 mL採取し、赤外線CO₂コントローラー (ZFP9, Fuji Electric, Tokyo, Japan) でガスサンプルのCO₂濃度を分析した。CH₄およびN₂O発生量測定用のサンプルはチャンバーを密閉後0、30、60分後にチャンバー内部のガスサンプルを20 mL採取し、CH₄とN₂O濃度をそれぞれFID付きガスクロマトグラフィー (GC-8A,

SHIMAZU, Kyoto, Japan) と ECD 付き ガスクロマトグラフィー (GC-14B, SHIMAZU, Kyoto, Japan) で分析した。各ガスフラックスの算出は下記の式を用いた。

$$F = \rho \times V/A \times 2 \times (C_1 - C_2) / \{t \times (2 \times C_1 - C_2 - C_0)\} \times \ln\{(C_1 - C_0)/(C_2 - C_1)\} \times 273/T$$

F はフラックス (CO₂-C : mg C m⁻² hr⁻¹、CH₄-C : μg C m⁻² hr⁻¹、N₂O-N : μg N m⁻² hr⁻¹)、 ρ はガス密度 (CO₂-C : 0.539、CH₄-C : 0.538、N₂O-N : 1.259 mg m⁻³)、V はチャンバー内のヘッドスペースの体積 (m³)、A はチャンバーベースの底面積 (m²)、C₀、C₁、C₂ はそれぞれの時間で採取したガス濃度 (10⁶ m³ m⁻³)、t は測定間隔 (hr)、T は 2 回目のガスサンプル採取時の気温 (K) を示す。調査期間中 (142 日) の各ガスの積算発生量は台形法にて算出した。施用した C および N から発生する CO₂、CH₄ および N₂O の排出係数 (Emission factor, EF) をそれぞれ下記の式で算出した。

$$EF_{CO_2} \cdot EF_{CH_4} (\%) = \{DSW \text{ 区積算 } CO_2 \cdot CH_4 \text{ 発生量} - C \text{ 区積算 } CO_2 \cdot CH_4 \text{ 発生量 (kg C ha}^{-1})\} \\ \div \{蒸留廃液中の炭素量 (kg C ha}^{-1})\} \times 100$$

$$EF_{N_2O} (\%) = \{DSW \text{ 区積算 } N_2O \text{ 発生量 (kg N ha}^{-1}) - C \text{ 区積算 } N_2O (kg N ha}^{-1})\} \\ \div \{蒸留廃液中の N 量 (kg N ha}^{-1})\} \times 100$$

EF_{CO₂}、EF_{CH₄}、EF_{N₂O} はそれぞれ CO₂、CH₄、N₂O の排出係数を示す。

その他の測定

ガスフラックス測定時の 2 回目のガスサンプル採取時 (CO₂ : 6 分、CH₄・N₂O : 30 分) に深さ 5 cm の地温を地温計で測定した。

10 月 27 日に容積 100 cm³ (直径 5 cm、高さ 5.1 cm) のステンレス製コアを用いて表層土壌 (0 - 5 cm) の不攪乱土壌を各区画から 3 反復 (1 処理区 9 反復) で採取し、仮比重と固相率を測定した。また、ガス調査実施日に移植ごてを用いて表層 (0 - 10 cm) の攪乱土壌を各区画の 3 地点から採取し、それをよく混合して 1 サンプルとし、各処理区で攪乱試料を 3 反復で採取した。攪乱試料は実験室に持ち帰り、水分含量、pH、EC、アンモニウム態窒素含量、硝酸態窒素含量を測定した。土壌水分含量と不攪乱土壌の固相率から water filled pore space (WFPS) を求めた。pH は土壌と脱塩水を重量比 1 : 2.5 で混合後、1 時間振とうした土壌懸濁水の pH を pH メーター (Twin-pH-B-212, Horiba, Kyoto, Japan) で測定した。電気伝導度 (Electric conductivity, EC) は土壌と脱塩水を 1 : 5 で混合後、1 時間振とうした土壌懸濁水の EC を EC メーター (Conductivity meter, Horiba, Kyoto, Japan) で測定した。土壌アンモニウムおよび硝酸態窒素含量は、土壌と 1 M の塩化カリウム溶液を重量比 1 : 10 で混合後に 1 時間振とうした土壌懸濁液をろ紙でろ過したろ液について、アンモニウム態窒素含量をインドフェノール青法、硝酸態窒素含量を塩化バリウム III を用いた比色定量法を用いて測定した。

測定期間中の気象データ (日平均気温、日降水量) は松山地方気象台 (<http://www.jma-net.go.jp/matsuyama/>) の観測データを用いた。

統計解析手法

全ての統計解析にはフリーソフト “R” (var. 3.2.2) を用いた。CO₂、CH₄、N₂O 積算発生量の処理区間の差の検定には *t* 検定を用いた。重回帰分析について、CO₂ フラックスを独立変数にした場合、従属変数を地温、土壌水分含量、WFPS、土壌 pH、土壌 EC、土壌 NH₄⁺ 含量、および土壌 NO₃⁻ 含量とした。CH₄ または N₂O フラックスを独立変数とした場合は、上記の従属変数に CO₂ フラックス

を加えて解析を行った。

結 果

CO₂、CH₄、N₂Oフラックスの季節変化、積算発生量および排出係数

CO₂フラックスの推移をFigure 1bに示した。CO₂フラックスは施肥前にはC区とDSW区で275~384 mg C m⁻²hr⁻¹で両区共に同程度であったが、施肥直後にはDSW区で1,662 mg C m⁻²hr⁻¹まで上昇した。DSW区のCO₂フラックスはその後再びC区と同程度で推移したが、8月11日および16日はC区でそれぞれ373、334 mg C m⁻²yr⁻¹であったのに対し、DSW区ではそれぞれ568、511 mg C m⁻²hr⁻¹で比較的高かった。8月後半以降はC区とDSW区のCO₂フラックスは同程度で推移し、12月まで緩やかに低下した。調査期間中のC区とDSW区のCO₂積算放出量はそれぞれ6.42 Mg C ha⁻¹ period⁻¹および8.27 Mg C ha⁻¹ period⁻¹であり、DSW区がC区よりも有意にCO₂発生量が高かった(Table 3)。EF_{CO2}は160 ± 52.2%であり、施用した蒸留廃液中に含まれる炭素の1.6倍の炭素がCO₂として放出していた。

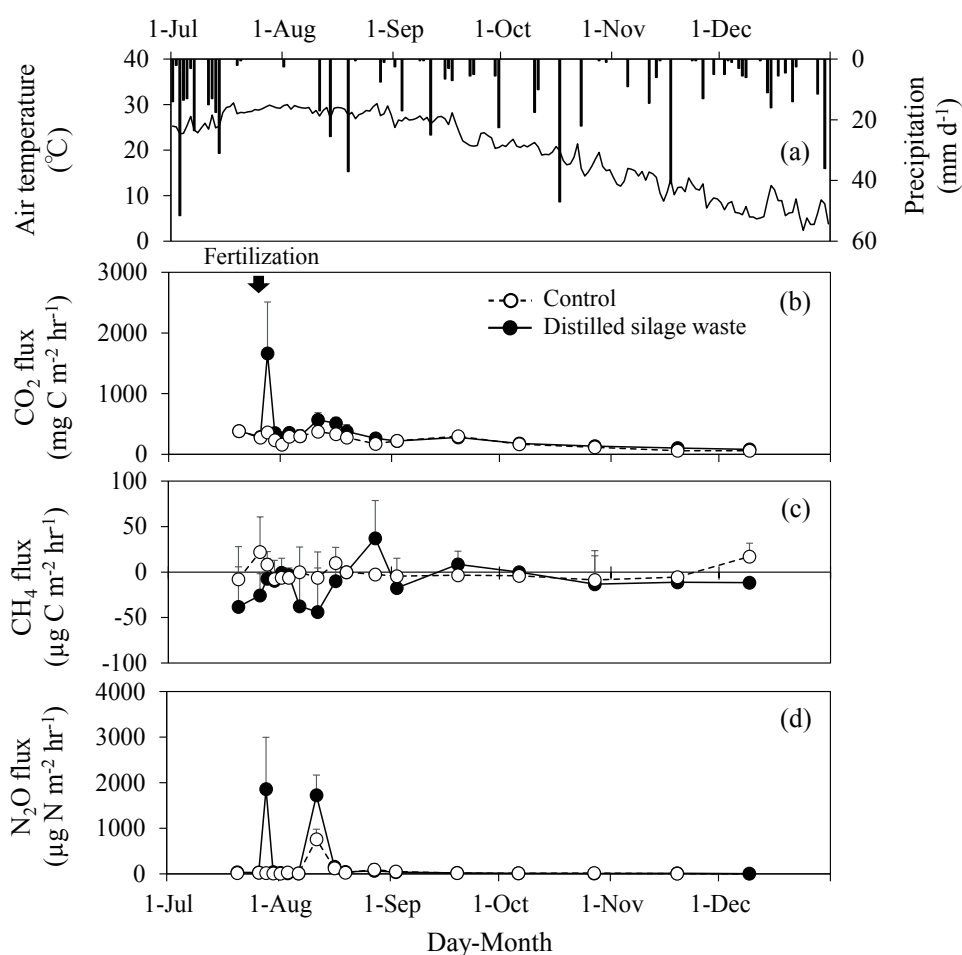


Figure 1. Seasonal variation of air temperature and precipitation (a), CO₂(b), CH₄(c), and N₂O (d) fluxes in citrus orchard in Ehime, Japan.

CH₄フラックスの推移をFigure 1cに示した。CH₄フラックスはC区およびDSW区共に明確な傾向は見られなかった。しかしながらC区ではCH₄フラックスは0 μg C m⁻²hr⁻¹程度で推移し、DSW区では負のCH₄フラックス (CH₄吸収) が測定されることが多かった。調査期間中のC区とDSW区のCH₄積算放出量はそれぞれ-0.07 kg C ha⁻¹ period⁻¹ および-0.27 kg C ha⁻¹ period⁻¹であり、有意差はないがDSW区がC区よりもCH₄発生量が低かった (Table 3)。EF_{CH₄}は-0.017 ± 0.024%であった。C区とDSW区のCH₄発生量に有意差がなかったため蒸留廃液の影響は明確ではないが、蒸留廃液の施用によりCH₄発生量が低下する傾向にあった。

N₂Oフラックスの推移をFigure 1dに示した。施肥前のN₂OフラックスはC区とDSW区で同程度 (14.1~32.2 μg N m⁻²hr⁻¹) であったが、施肥後DSW区では1,858 μg N m⁻²yr⁻¹まで上昇し、測定期間中の最高値を示した。一方で、施肥時に水道水を施用されていたC区の施肥直後のN₂Oフラックスは14.3 μg N m⁻²yr⁻¹であった。施肥4日目以降にはDSW区のN₂Oフラックスは36.2 μg N m⁻² yr⁻¹とC区とほぼ同程度まで低下した。その後DSW区では8月11日にN₂Oフラックスが再度上昇し、1,722 μg N m⁻²hr⁻¹まで上昇した。C区においても同日に756 μg N m⁻²yr⁻¹まで上昇し、調査期間中の最高値を示した。調査期間中のC区とDSW区のN₂O積算放出量はそれぞれ1.60 kg N ha⁻¹ period⁻¹ および3.69 kg N ha⁻¹ period⁻¹であり、DSW区がC区よりも有意にN₂O発生量が高かった (Table 3)。EF_{N₂O}は1.40 ± 0.83%であり、施用した蒸留廃液中に含まれるNの1.4%がN₂Oとして放出していた。

Table 3. Cumulative emissions of CO₂, CH₄, and N₂O during the study period.

Treatment	CO ₂ emission (Mg C ha ⁻¹ period ⁻¹)	CH ₄ emission (kg C ha ⁻¹ period ⁻¹)	N ₂ O emission kg N ha ⁻¹ period ⁻¹
Control	6.42 ± 0.75	-0.072 ± 0.36	1.60 ± 0.31
Distilled silage water	8.27 ± 0.36	-0.27 ± 0.14	3.69 ± 0.94
<i>P</i> value	<0.05	0.45	<0.05

All values represent mean standard ± deviation.

Water filled pore space、土壌pH、EC、NH₄⁺含量、NO₃⁻含量の推移

WFPSおよび土壌pHの季節変化をFigure 2aおよび2bに示した。施肥時に降雨9 mm相当量の蒸留廃液または水道水を施用したが、C区およびDSW区共にWFPSはそれぞれ4.7%および8.4%しか上昇しなかった。一方で、8月1日に2.5 mm d⁻¹、8月11日に17 mm d⁻¹の降雨後にはC区とDSW区共に約8%および22%上昇していた。その後10月までにWFPSは30%にまで低下し、12月まで30~60%で推移した。C区の土壌pHは調査開始から9月中は5~6で推移していた。一方で、DSW区では施肥前は6前後であったが施肥後5.2まで低下し、その後8月1日の降雨後に6.6まで上昇した後9月にかけて約5まで低下した。10月から12月にかけては両区共に緩やかに上昇し、12月には5.8~6程度に上昇した。

土壌ECとNH₄⁺およびNO₃⁻含量の推移をFigure 2c、2d、2eに示した。土壌ECは両区共に施肥前は55~82 μS cm⁻¹であったが、施肥後3日目にはDSW区で204 μS cm⁻¹まで上昇した。C区は水道水施肥後に上昇は見られずほぼ一定の値で推移し、DSW区は施肥後の上昇の後には徐々に低下し8月19日にはC区と同程度になった。8月後半以降は顕著な変化は観察されず、両区共の差もほとんどなく推移した。土壌NH₄⁺含量も施肥後はDSE区で上昇し、その後2週間程度は8.4~16 mg N kg⁻¹

で推移していた。C区のNH₄⁺含量は施肥や8月3日と11日の降雨後に一時的に上昇する傾向が見られた。9月には両区の差がほとんどなくなり、以降は4 mg N kg⁻¹以下で推移していた。C区とDSW区の土壌NO₃⁻含量は施肥前に9~16 mg N kg⁻¹であったが、DSW区では蒸留廃液施用後急激に上昇し8月11日には203 mg N kg⁻¹の最大値を示した。C区では8月1日の降雨後に一時的に上昇し約72 mg N kg⁻¹の最大値を示したが、以降は36 mg N kg⁻¹で推移した。DSW区では8月中旬以降徐々に低下し、9月19日にはC区の値とほぼ同程度まで低下した。両区共に9月以降はNO₃⁻含量は緩やかに低下していた。

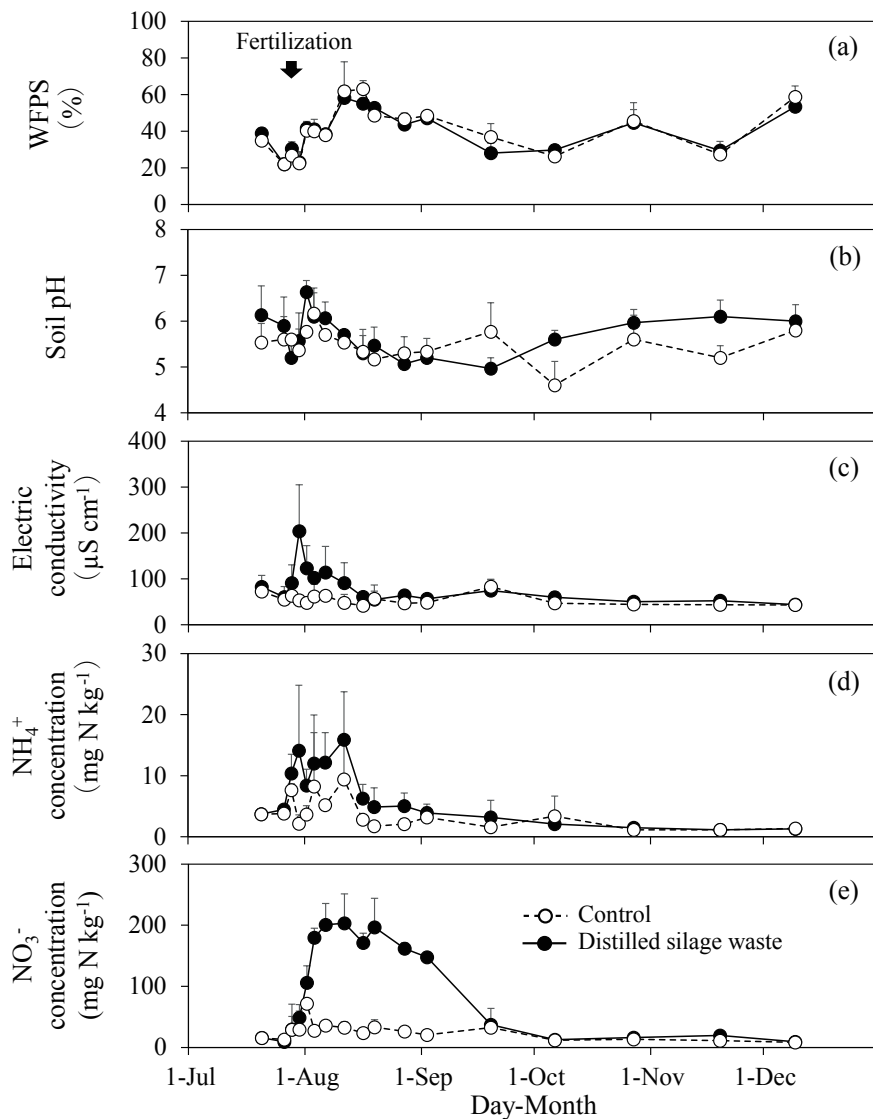


Figure 2. Seasonal variation of water filled pore space (WFPS) (a), soil pH(b), electric conductivity(c), NH₄⁺ concentration(d), and NO₃⁻ concentration (e) in citrus orchard in Ehime, Japan. Error bars represent standard deviations.

Table 4. Multiple regression analysis between CO₂, CH₄, and N₂O fluxes and soil chemical properties in citrus orchard in Ehime, Japan.

Dependent variables	Period	Treatment	n	Selected independent variables						P value	
				Factor 1 PRC	sPRC	Factor 2 PRC	sPRC	Intercept	R ²		
CO ₂ flux (mg C m ⁻² hr ⁻¹)	BF	7/20-7/26	6	ST	66.7	0.94		-1526	0.85	<0.01	
	AF1	7/28-8/3	12	NH ₄ ⁺	14.8	0.71	WFPS	-5.56	0.51	<0.05	
	AF2	8/6-9/2	18	NS							
	AF3	9/19-12/9	15	WFPS	10.8	0.56	ST	8.1	0.55	<0.05	
	BF	7/20-7/26	6	NS							
	AF1	7/28-8/3	12	pH	-681	-0.71	EC	-4.80	-0.46	0.57	<0.01
	AF2	8/6-9/2	17	WFPS	10.8	0.56				0.26	<0.05
	AF3	9/19-12/9	15	ST	10.7	0.82				0.66	<0.001
		BF	7/20-7/26	6	NS						
CH ₄ flux (μg C m ⁻² hr ⁻¹)	AF1	7/28-8/3	12	NS							
	AF2	8/6-9/2	18	NS							
	AF3	9/19-12/9	15	WFPS	0.64	0.53			-25.8	0.22	<0.05
	BF	7/20-7/26	6	NS							
	AF1	7/28-8/3	12	NS							
	AF2	8/6-9/2	17	NH ₄ ⁺	-4.25	-0.54			24.2	0.25	<0.05
	AF3	9/19-12/9	15	NS							
		BF	7/20-7/26	6	NS						
		AF1	7/28-8/3	12	NH ₄ ⁺	3.36	0.94			-4.90	0.88
N ₂ O flux (μg N m ⁻² hr ⁻¹)	AF2	8/6-9/2	18	Water content	30.5	0.50	NH ₄ ⁺	33.60	0.42	0.47	<0.01
	AF3	9/19-12/9	15	NS							
	BF	7/20-7/26	6	NS							
	AF1	7/28-8/3	12	CO ₂ flux	1.32	0.97			-384	0.94	<0.001
	AF2	8/6-9/2	17	NH ₄ ⁺	62.9	0.55	WFPS	42.6	0.49	0.62	<0.001
	AF3	9/19-12/9	15	NO ₃ ⁻	0.91	0.82			-6.93	0.65	<0.001
		BF	7/20-7/26	6	NS						
		AF1	7/28-8/3	12	NS						
		AF2	8/6-9/2	17	NS						

BF: Before the application, AF1: After the application 1, AF2: After the application 2, AF3: After the application 3

PRC: Partial regression coefficient, sPRC: Standardized partial regression coefficient

NS: Not selected, ST: Soil temperature, NH₄⁺: Soil NH₄⁺ concentration, NO₃⁻: Soil NO₃⁻ concentration

CO₂、CH₄、N₂Oフラックスと地温、土壤含水率、WFPS、土壤pH、EC、NH₄⁺含量、NO₃⁻含量との関係

CO₂、CH₄、およびN₂Oフラックスと土壤特性との重回帰分析の結果をTable 4に示した。CO₂フラックスに関して、C区で地温やWFPS、土壤NH₄⁺含量が選択されていた。それらは水施用後1週間のWFPSを除いてCO₂フラックスに対し正の影響を及ぼしていた。また、DSW区において水施用後1週間はpHやECが正の影響を及ぼしており、8月以降はWFPSや地温がCO₂フラックスに対し正の影響を及ぼしていた。

CH₄フラックスに関して、C区およびDSW区共に一貫した傾向は見られなかった。9月19日以降はC区でWFPSがCH₄フラックスに対し正の影響を及ぼしており、DSW区では蒸留廃液施用1週間以降は土壤NH₄⁺含量が負の影響を与えていた。

N₂Oフラックスに関して、C区では水施用直後から1ヶ月程度の間については土壤NH₄⁺含量が正の影響を与えており、加えて土壤含水率も正の影響を示した。DSW区においては蒸留廃液施用直後にCO₂フラックスが正の影響を及ぼしており、施用後1週間以降は土壤NH₄⁺含量およびWFPSが正の影響を及ぼしていた。調査後半では土壤NO₃⁻含量が正の影響を及ぼしていた。

考 察

CO₂発生に対する蒸留廃液の施用の影響

本研究で測定したCO₂は、蒸留廃液蒸中の炭素が分解して生じるCO₂と、土壤中の有機態炭素が微生物などにより分解して生じるCO₂、植物の根呼吸によるCO₂が含まれている。蒸留廃液施用直後のDSW区でのCO₂フラックスの上昇は、C区でも同量の水分が添加されていることから、水添加による微生物や根の活性化ではなく、蒸留廃液中の炭素の分解により生じたものと考えられる。一般的に、施用された有機物はC:N比が低いほど分解されやすい(Toma and Hatano 2007)。蒸留廃液のC:N比は約7.7と低く、施用直後に易分解性の有機物が急激に分解されたと推察される。施用直後は重回帰分析の結果から、WFPSが低く好気的な環境下でCO₂フラックスと土壤NH₄⁺含量が上昇しており、このことも蒸留廃液施用後に有機物の無機化が顕著であったことを示唆している。一方でDSW区とC区との積算CO₂発生量の差(1.85 Mg C ha⁻¹)は蒸留廃液で施用した炭素量(1.15 Mg C ha⁻¹)よりも大きい。一般的に施用された有機態炭素の一部は土壤中に難分解性有機態炭素として残ることが考えられ、有機物施用に伴うCO₂発生は施用炭素より小さくなる。本研究で観察されたDSW区における施用有機態炭素量を上回るCO₂放出は、蒸留廃液の施用により植物の根呼吸もしくは土壤有機物の分解が活性化したためと考えられる。本調査圃場では除草剤などによる下草の処理はされていないため、蒸留廃液の施用により下草類の生長促進と根呼吸の増加が考えられ、さらに有機物と水分の投入により土壤中の微生物活性が活発になった可能性がある。実際に調査地では施用直後の土壤表面にカビの繁殖が確認されていた。下草生長の促進は下草による大気中のCO₂吸収と土壤への炭素蓄積の増加が考えられることから、蒸留廃液の施用による土壤炭素貯留効果と見なすことが可能かもしれない。このことについては、実際に下草類の炭素固定量や土壤への蓄積量等を測定し、今後評価していく必要がある。

CH₄発生に対する蒸留廃液の施用の影響

畑地においては一般的にCH₄の吸収が生じる事が報告されている(Le Mer and Roger 2001)。土壤中では酸化的環境下でメタン酸化菌によるCH₄吸収とCO₂放出が生じており、また嫌気的環境下で

は土壌中の有機態炭素を炭素源とした嫌気呼吸により CH_4 が生成されている。土壌と大気における CH_4 ガスの動態は土壌中の CH_4 酸化と CH_4 生成のバランスで決定され、 CH_4 酸化が CH_4 生成を上回ると大気から土壌へ CH_4 が流入し、 CH_4 酸化が CH_4 生成を下回ると土壌から大気へ CH_4 が流出する。本研究では調査期間中の積算 CH_4 発生量は両区で負の値を示していたことから、基本的には CH_4 酸化が CH_4 生成を上回っている状態であったと考えられる。統計的な差はなかったが、DSW区の CH_4 発生量がC区の CH_4 発生量よりも低かったことは、蒸留廃液の施用により CH_4 酸化が増加したか、 CH_4 生成が低下したか、もしくはその両方が同時に生じた可能性が考えられる。蒸留廃液施用後の CH_4 フラックスの推移を見ると、特に施用後1週間程度経過した後の8月6日から16日の間にDSW区の CH_4 フラックスがC区のフラックスを大きく下回っていた。同じ時期、WFPSはDSW区で38%から58%に上昇していたが、C区はさらに高く63%まで上昇しており、DSW区の土壌環境が CH_4 よりも比較的好氣的であった。一方で、DSW区の土壌 NH_4^+ 含量や NO_3^- 含量はC区の値より明らかに上回っており、 CH_4 フラックスも土壌 NH_4^+ 含量に負の影響を受けていた。アンモニウム肥料の施用は土壌の CH_4 酸化を抑制することが報告されている (Hu et al. 2002)。これは CH_4 酸化菌が CH_4 の代わりに NH_4^+ を取り込むことによるためとされる。従って、DSW区においてC区よりも土壌 NH_4^+ 含量が高いことは、DSW区で CH_4 酸化が抑制される環境下にあった可能性を示している。このような環境下においてDSW区の CH_4 フラックスがC区よりも低かったことは、DSW区における土壌の好氣的環境下における CH_4 酸化が NH_4^+ 存在による CH_4 酸化抑制より影響が強かったためと考えられる。さらにDSW区では CH_4 生成の基質となる有機態炭素が施用されていることから、本研究地においては好氣的環境の形成による CH_4 酸化能の上昇は、有機物施用による炭素源の供給や土壌 NH_4^+ 含量上昇による CH_4 酸化抑制や CH_4 生成の上昇を上回っていたと考えられた。蒸留廃液施用による土壌の好氣的環境の形成メカニズムについては、本研究では明確な説明が可能なデータを得ることができていない。一般的に有機物の施用は土壌の団粒形成を促進する効果がある。また、蒸留廃液中の有機物の施用はカビ類の繁茂が確認されたことから、カビ類だけでなくそれを食する土壌動物が増えることが考えられる。それら土壌動物の活動も土壌の団粒化を促進するだけでなく、土壌中を移動することで土壌中の粗大孔隙を多くする効果もある。これらの事が土壌を好氣的な環境の形成に貢献し、結果として CH_4 吸収が増加したと考えられた。

N_2O 発生に対する蒸留廃液の施用の影響

蒸留廃液の施用により N_2O 発生量が有意に増加したことは、蒸留廃液中の窒素や有機物が N_2O の生成を助長したことを示唆している。特に蒸留廃液施用直後において、DSW区のみで N_2O フラックスと CO_2 フラックスに有意な正の相関があることから、有機物の分解に伴う N_2O の生成であることは明らかである。蒸留廃液の施用後には、DSW区の土壌表面で白いカビが多く発生していたことが確認されており、これらカビ類による N_2O 生成が考えられた。これまでに、培養実験により糸状菌脱窒による N_2O 生成が報告されている (Yanai et al. 2007)。一般的に硝酸を窒素源とする N_2O 生成過程には脱窒が考えられる。本研究で用いた蒸留廃液中の硝酸態窒素は全窒素の約86%を占めるが、硝酸を電子受容体、有機物を電子供与体とする脱窒過程における N_2O 生成ではなかった可能性がある。土壌 NO_3^- 含量は、蒸留廃液施用後直後に両区で約 29 mg N kg^{-1} まで上昇していた。このことはDSW区で蒸留廃液の施用が土壌中の硝酸含量の上昇に直接的に寄与しなかったことを示している。この理由としては、蒸留廃液の施用時に10倍に希釈して施用しているため、蒸留廃液中の硝酸濃度が1/10になったことがあげられる。30cmまでの土壌に硝酸が全て留まったと仮定すると、DSW区

では蒸留廃液施用直後に計算上 $36.5 \text{ mg N kg}^{-1}$ 程度の土壤 NO_3^- 含量の上昇が期待される。本調査の結果は蒸留廃液の施用時にかなりの量の硝酸が下層に流出した可能性を示唆している。

本研究では、蒸留廃液施用 1 週間後以降にも N_2O フラックスの上昇が確認され、同様な上昇は C 区でも見られた。この時期は調査期間中で最も暑い期間に相当し、また N_2O フラックスの上昇前 9 日間は雨が降らず、フラックスが上昇した 8 月 11 日には測定の前に 17 mm の降雨があった。重回帰分析の結果から C 区では土壤含水率と土壤 NH_4^+ 含量、DSW 区では NH_4^+ 含量と WFPS それぞれが N_2O フラックスに対し正の影響を与えていたことから、暑い時期の乾燥と湿潤という循環から乾土効果によって土壤の無機化が促進され、それに伴う硝化によって N_2O が突発的に生成されたと推測された。両区共に土壤 NO_3^- 含量が 8 月中に高く推移していたこともこのことを支持している。この時期に C 区よりも DSW 区で N_2O フラックスが高かったことについては、施用した有機物のために DSW 区でより無機化が進んだことが原因と考えられた。

本研究で見積もられた蒸留廃液の $\text{EF}_{\text{N}_2\text{O}}$ は 1.4% であり、この値は Akiyama *et al.* (2006) が報告した日本の畑土壤の $\text{EF}_{\text{N}_2\text{O}}$ (0.62%) よりも高い。Bouwman (1996) によると、有機入り化学肥料の $\text{EF}_{\text{N}_2\text{O}}$ は 1.5% であり、硝酸アンモニウム (0.3%) や尿素 (0.3%) よりも高かった。本研究で用いた蒸留廃液は有機物と硝酸を多量に含むため、有機入り化学肥料と分類される。その様な資材では、本研究で観察されたカビの発生による N_2O 生成の他、有機物の分解過程で CO_2 が生成することによる硝化の促進や、有機物を炭素源として脱窒が促進される可能性があり、これらのことが蒸留廃液等の有機物と無機窒素を多く含む資材の $\text{EF}_{\text{N}_2\text{O}}$ が他の化学肥料と比較して高くなる原因と考えられる。一方で、本研究で蒸留廃液を施用した時期は夏であり、ウンシュウミカン栽培で主要な施肥にあたる礼肥や基肥の時期とは異なる。これらの施肥は収穫直後の 11 月～12 月、または新梢が伸長を開始する直前の 2 月～3 月に実施され、気温が低い時期に当たる。これらの時期においては一般的に土壤中の微生物活性が低く、有機物を施用してもカビなどの繁殖が夏の時期よりも少ないと考えられるため、礼肥や基肥に蒸留廃液を用いる場合は $\text{EF}_{\text{N}_2\text{O}}$ の値は本研究で観察された値よりも低くなることが推察される。地球温暖化へ与える影響を考慮すると、蒸留廃液の施用は冬期に施用することがより適切かもしれない。このことについては今後の検討課題である。

結 論

カンキツ園土壤への蒸留廃液の施用は N_2O 発生量を有意に増加させ、これは蒸留廃液中の有機物が施用後に急激に分解された結果と推察された。 CH_4 発生に与える影響は明確にはされず、投入した炭素よりも多い CO_2 が発生していた原因については、下草類の根呼吸の増加によるものか、土壤有機物分解の増加によるものかは明らかではなかった。 N_2O の排出係数は 1.5% と化学肥料の排出係数よりも高く、化学肥料を用いた慣行の施肥体系と比較して蒸留廃液の施用は N_2O 発生量を増加させる可能性がある。

適 要

ウンシュウミカン‘青島温州’の栽培圃場において、カンキツ加工廃液に由来するバイオエタノール蒸留廃液（蒸留廃液）を施用し、土壤からの温室効果ガス発生に与える影響について調査を行った。調査は 2012 年 7 月から 12 月にかけて、愛媛大学農学部附属農場のカンキツ園にて実施した。無施肥の

対照区（C区）、蒸留廃液を施用する蒸留廃液区（DSW区）としてランダムに選んだ各3本の樹を供試した。DSW区には7月27日に全窒素で150 kg N ha⁻¹相当の蒸留廃液を10倍希釈（39 L）し樹冠下に施用し、C区にも同量の水を散布した。各区3本において二酸化炭素（CO₂）、メタン（CH₄）、一酸化二窒素（N₂O）フラックスを測定し、N₂Oの排出係数も算出した。フラックス測定時には5 cmの地温を測定し、また表層0 - 10 cmの土壌含水率、pH、EC、土壌NH₄⁺含量、土壌NO₃⁻含量を測定した。また、土壌含水率と仮比重からwater filled pore space（WFPS）も求めた。

CO₂フラックスと土壌NH₄⁺含量がDSW区で施用直後に急激に上昇していたことから、蒸留廃液中の有機物の急速な分解・無機化が生じていた。DSW区とC区の積算CO₂発生量の差は蒸留廃液で施用された炭素量よりも多かったが、蒸留廃液の施用により下草類の生長が促進し根呼吸が増加した可能性があり、この理由は明確ではなかった。CH₄は両処理区に明確な差はなかったが、DSW区でC区よりもCH₄フラックスが低い傾向があり、蒸留廃液中の有機物が土壌物理性を改善したことでCH₄酸化が促進された可能性がある。N₂OフラックスはDSW区で施用直後に上昇し、CO₂フラックスの同様な上昇と調査地の観察から、カビ類による脱窒でN₂Oが生成された可能性がある。また、蒸留廃液施用後1週間以降には両処理区で明確なフラックスの上昇が見られ、乾燥と湿潤による乾土効果で土壌の無機化が促進し、それに伴う硝化でN₂Oが生成したと推測された。N₂Oの排出係数は1.5%で一般的な化学肥料の値よりも高かった。しかしながら、本試験は真夏に実施されており、冬期の礼肥や基肥に用いることでN₂O排出係数がより低くなる可能性があり、N₂O排出を少なくするための施用時期の検討が今後必要と考えられた。

引 用 文 献

- 1) Akiyama H · Yan X · Yagi K (2006) Estimations of emission factors for fertilizer-induced direct N₂O emissions from agricultural soils in Japan: Summary of available data. *Soil Science and Plant Nutrition*. 52. 774-787.
- 2) Bouwman AF (1996) Direct emission of nitrous oxide from agricultural soils. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*. 46. 53-72.
- 3) Hu R · Hatano R · Kusa K · Sawamoto T (2002) Effect of nitrogen fertilization on methane flux in a structured clay soil cultivated with Onion in Central Hokkaido, Japan. *Soil Science and Plant Nutrition*. 48. 797-804.
- 4) Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) (2013) The Physical Science Basis: Anthropogenic and Natural Radiative Forcing. In Myhre G. et al. (eds) *Climate Change 2013*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, U.K. and New York, USA.
- 5) 環境省 (2015) 2014年度 (平成26年度) 温室効果ガス排出量. 日本の温室効果ガス排出量の算定結果. (<http://www.env.go.jp/earth/ondanka/ghg/>)
- 6) Le Mer J · Roger P (2001) Production, Oxidation, emission and consumption of methane by soils: A review. *European Journal of Soil Science*. 37. 25-50.
- 7) 農林水産省 (2015) 平成26年産果樹生産出荷統計. 平成26年産都道府県別の結果樹面積・10 a 当たり収量・収穫量・出荷量. 統計情報. (<http://www.e-stat.go.jp/SG1/estat/List.do?lid=000001139363>)
- 8) Toma Y · Hatano R (2007) Effect of crop residue C:N ratio on N₂O emissions from Gray lowland soil in Mikasa, Hokkaido, Japan. *Soil Science and Plant Nutrition*. 53. 198-205.

- 9) Toma Y · Oomori S · Maruyama A · Ueno H · Nagata O (2016) Effect of the number of tillages in fallow season and fertilizer type on greenhouse gas emission from a rice (*Oryza sativa* L.) paddy field in Ehime, southwestern Japan. *Soil Science and Plant Nutrition*. 62. 69-79. doi: 10.1080/00380768.2015.1109999
- 10) Yanai Y · Yoyota K · Morishita T · Takakai F · Hatano R · Limin HS · Darung U · Dohong S (2007) Fungal N₂O production in an arable peat soil in Central Kalimantan, Indonesia. *Soil Science and Plant Nutrition*. 53. 806-811.