

筑波台地における土壤中の有機物および 二酸化炭素の炭素安定同位体比

Carbon-13 Natural Abundances of Organic Matter and
Carbon Dioxide in Soil Profiles on Tsukuba Upland

濱田 洋平*・田中 正**

Yohei HAMADA* and Tadashi TANAKA**

Abstract

Natural abundances of carbon-13 of soil organic matter and soil carbon dioxide were measured and their origins and determining processes were discussed. Samples were collected from 1) a largely disturbed grassland soil, and 2) relatively natural soil under a planted pine forest adjacent to the grassland on Tsukuba Upland, Japan. Stable carbon isotope ratio of the organic carbon was generally -20 to -22 per mil, indicating intermediate values between C3 and C4 plants. This would result from continuous vegetation changes from forest to grassland and vice versa, probably due to the traditional land use in the study area. Carbon-13 abundance of carbon dioxide in the forest soil was low in summer and high in winter, and decreased with increasing depth, suggesting the mixing of atmospheric carbon dioxide that was rich in carbon-13. According to Keeling plot analysis, the source of carbon dioxide has a δ value of -27.8 per mil, a representative value of current C3 vegetation. Carbon isotope ratio of carbon dioxide in the grassland soil showed relatively complicated profiles, which reflect largely disturbed and compacted soil horizons. Contribution of the previous surface soil buried in the grassland to the total carbon dioxide, which means all carbon dioxide both in soil air and dissolved in soil water, was 61% in January and 14% in August.

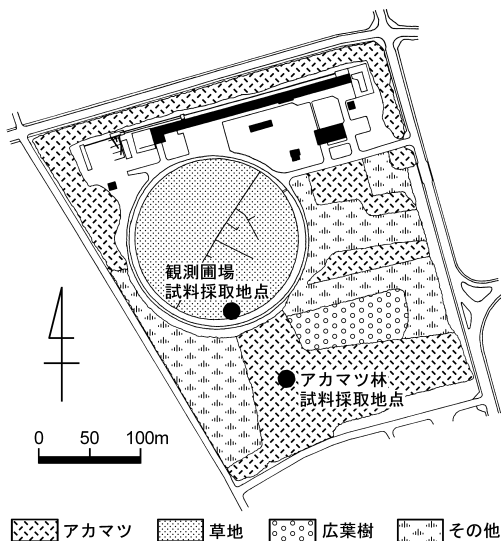
はじめに

筑波大学陸域環境研究センターの熱収支・水収支観測圃場（以下「観測圃場」；第1図）は、地表面における熱収支および水収支を長期継続観測によって明らかにすることを目的として、1975～77年にかけて造成された半径80mの円形の草地であ

る（井口ほか，1977）。当初はケンタッキーブルーグラスなどの牧草を中心とする，比較的均一な植生が維持されていたが，地力の低下に伴って雑草が侵入しやすくなりその駆除に要する労力が多大になってきたため，1988年に地力の回復を目的として土壤の天地返しと牧草の再播種が実施された。当時の施工計画書によれば，天地返し作業は9

* 長寿科学振興財団

** 筑波大学陸域環境研究センター



第1図 研究地域の概要と試料採取地点

トン級のブルドーザーで表土を 30 cm 程度すき取り、バックホーで中層部を掘削し表土を埋め戻した後、6トン級のブルドーザーで水平に整地するという大規模なものであった。著者らは、観測圃場における土壌の断面調査および物理特性の解明を通して、この大規模な攪乱が土壌の透水性・保水性に大きな影響を及ぼしていることを定量的に明らかにした（濱田ほか，1998）。

このような施工にもかかわらず、その後も雑草の侵入は続き、現在ではセイタカアワダチソウ（C3植物）やススキ・チガヤ（C4植物）の群落が各所に形成される不均一な草原になっている（田中・及川，1998；1999；横山・及川，2000；2001）。C3植物とC4植物は、その光合成回路の違いのために固定される炭素の安定同位体比（ ^{12}C と ^{13}C の比）が異なっており、その値は一般に標準物質（Pee Dee Belemnite, PDB）からの偏差の千分率（‰）で表され、それぞれ $-22 \sim -27\text{‰}$ および $-9 \sim -17\text{‰}$ である（米山，1996）。また、これらの植物を起源とする土壌有機物の同位体比は分解の過程でそれほど変化せず、供給源となった植物遺体の同位体比

を保存することが知られている（米山，1987；米山・笹川，1994）。観測圃場が造成される以前の植生は、観測圃場の南に現存するアカマツ（C3植物）の植栽林（以下「アカマツ林」；第1図）と同一であった可能性が高く、C4植物を含めた草原が成立することによって土壌中の有機炭素の同位体比が変化する可能性がある。

一方、天地返しによって埋積された表土中には新鮮な有機物が多く含まれており、土壌深層における CO_2 の主要な発生源となりうる。Hamada（1999）では、以前の表土が埋積された深度の土壌空気中において10%に迫る高 CO_2 濃度を観測しており、その理由として土壌の圧密と客土された粘土層（濱田ほか，1998）による CO_2 の拡散の抑制に加え、埋積された有機物の寄与を指摘している。この有機物の起源となった以前の植生と現生植生との間で炭素同位体比に差があれば、それを利用して CO_2 生産に対する両者の寄与を定量的に評価することが可能である。

このような経緯を踏まえ、本稿では大規模な改変を受けた観測圃場と、改変以前の状態を維持していると想定されるアカマツ林において、土壌有機物および土壌空気中の CO_2 （以下「土壌 CO_2 」）の炭素安定同位体比を測定し、これらの炭素の起源ならびに同位体比の形成過程を明らかにする。

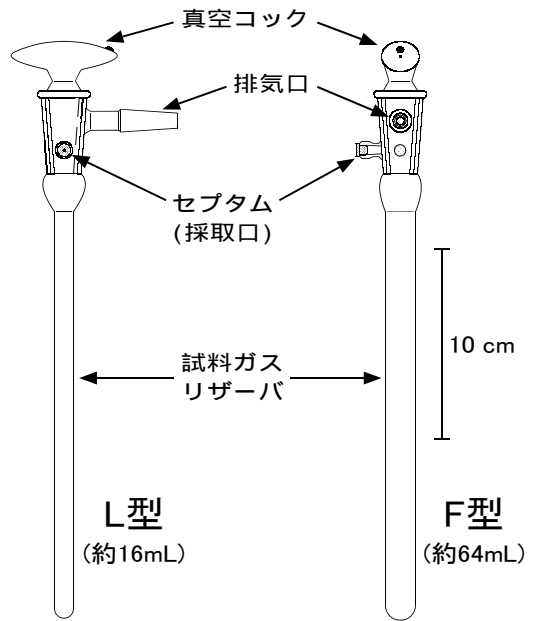
方法

（1）土壌の採取および土壌有機炭素の分析

土壌有機炭素の含有量および安定同位体比の分析に供する土壌試料の採取を、1996年4月に行った。第1図に示した試料採取地点において、観測圃場では2ヶ所（AおよびBとする）、アカマツ林では1ヶ所で、濱田ほか（1998）に記した方法によって 100 cm^3 の不攪乱土壌試料コアを地表面から深度1.2 mないし1.4 mまで10 cm間隔で採取した。採取した土壌試料は各種土壌物理試験に供した後、炉乾し、ハンマーで軽く粉砕したものを 0.5 mm

メッシュのふるいにかき、通過した分を乳鉢ですり潰して粉末状にした。リターや細根などの粗大な有機物はできるだけ取り除き、20 mL のバイアルに 15 ~ 20 mg の土壤粉末を入れて有機炭素分析用の試料とした。なお、分析の際の深度間隔は 20 cm とし、その間隔に含まれる 2 つの土壤コアを 1 つにまとめた上で上記の処理を施した。

土壤有機炭素の含有量と安定同位体比の分析は、(株)地球科学研究所に委託して行った。含有量は、酸処理によって無機成分を除去した後、C/N コーダー法により定量した。同位体比は、同様に酸処理を行った後、CuO 封管酸化法によって有機炭素を CO₂ ガスに変換し、質量分析計によって測定した。分析された試料数は観測圃場で 13 点、アカマツ林で 7 点の合計 20 点である。



(2) 土壤 CO₂ の採取および分析

土壤 CO₂ の濃度および炭素同位体比を測定するため、土壤空気採取を 1998 年 1 月 ~ 8 月にかけて数回行った。土壤コア採取地点の近傍に、濱田・田中 (1995) で製作した土壤空気採取管を、深度 10 ~ 100 cm にかけての数深度に各深度 1 本ずつ埋設した。この採取管からシリンジを用いて土壤空気を吸引し、あらかじめ内部を排気しておいた真空コック付きのガラス管 (光信理化学製作所・特注; 第 2 図) に採取した。このガラス管にはゴム製のセプタムを取り付けることができ、注射針を用いることでセプタムを通してシリンジ内の空気のみをガラス管に捕集することができる。ガラス管は、濃度測定用には L 型を 1 本、同位体比測定用には分析に必要な CO₂ 量が得られるように、容量の大きい F 型を含めて CO₂ 濃度に応じて 1 ~ 4 本を各深度について使用した。

CO₂ 濃度の測定はガスクロマトグラフィーにより行った。ガラス管に捕集した土壤空気を、再度セプタムを通してボタン式バルブを備えたガスタイトシリンジ (A-2 型 PS シリンジ, ジーエルサイエンス) に取り、熱伝導度式の検出器を備えたガ

第 2 図 ガス採取用ガラス管の概要
両者の違いは容量のみ、L 型はセプタムを、F 型は排気口を正面向きに描いてある。

スクロマトグラフ分析装置 (GC-14B, 島津製作所) に正確に 1 mL 注入し、出力されたクロマトグラムのピーク面積を既知濃度の標準ガスのピーク面積と比較して試料ガスの濃度を算出した。カラムには Porapak Q の充填カラムを使用し、高純度ヘリウムをキャリアーガスとして使用した。

炭素同位体比の測定は、まず油拡散ポンプを備えたガラス真空ラインを用いて前処理を行った。真空ラインの U 字トラップを液体窒素 (-196 °C) に浸した状態でガラス管の真空コックを開き、試料ガス中の CO₂ と水蒸気をトラップした後に窒素と酸素を排気した。その後液体窒素に代えて -100

前後に調整した液体窒素アルコール (またはドライアイスアルコール) に浸し、隣り合ったもう一つのトラップを液体窒素に浸すことで、水蒸気をトラップしたまま CO₂ のみを次のトラップに捕集した。この操作を 2 段階繰り返す。土壤空気から CO₂ のみを分離・精製した。精製した CO₂ ガス

第 1 表 土壌有機炭素の含有量および同位体比 (TOC : Total Organic Carbon)

深 度 (cm)	TOC (重量%)			TOC (g/100 cm ³)			δ ¹³ C (‰ vs PDB)		
	圃場A	圃場B	林地	圃場A	圃場B	林地	圃場A	圃場B	林地
0-20	1.64	1.38	3.44	1.52	1.22	1.93	-19.8	-21.5	-23.4
20-40	3.87	0.84	1.52	3.42	0.88	0.74	-21.1	-21.8	-20.3
40-60	6.09	4.08	1.14	3.78	2.60	0.48	-20.3	-20.0	-20.5
60-80	4.36	1.64	1.33	2.28	1.07	0.67	-20.1	-20.1	-20.4
80-100	2.50	0.63	1.39	1.37	0.63	0.82	-20.3	-21.0	-21.2
100-120	1.52	0.77	0.75	0.89	0.78	0.58	-22.2	-21.3	-21.1
120-140	2.26	—	0.42	1.57	—	0.37	-21.0	—	-22.5

を、筑波大学地球科学系の Dual-inlet 方式の同位体質量分析計 (MAT-252, サーマエレクトロン) に導入し、炭素同位体比を同定した。標準ガスとして、あらかじめ RM8543 (- 5.04 ± 0.06‰, NBS18 に相当) および RM8544 (+ 1.95‰, NBS19 に相当) で同位体比を決定しておいた炭酸カルシウムの特級試薬をリン酸でガス化し、試料ガスと同じラインで分離・精製した CO₂ ガス (- 11.05‰) を使用した。

結 果

(1) 土壌有機炭素の含有量および同位体比

土壌有機炭素の含有量および同位体比を第 1 表に示す。測定された含有量は粉末にした試料についての重量%であったため、土壌コアの乾燥重量を乗じて土壌 100 cm³ 当たりの炭素重量に換算した値を併せて示した。なお、採取した土壌の固相率や乾燥密度は先に著者らが提示した観測圃場およびアカマツ林における一般的な傾向とほぼ同様であった (濱田ほか, 1998; 第 2 図 ~ 第 4 図)。

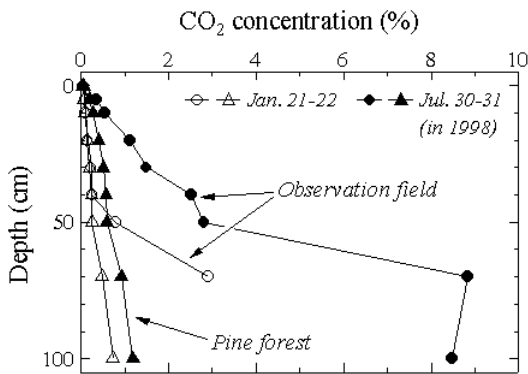
アカマツ林における有機炭素量が、深度とともに減少するという一般的な傾向を示しているのに対し、観測圃場では 2ヶ所とも、また重量%と単位体積当たりのいずれにおいても深度 40-60 cm で最大となった。この深度は天地返しの際に以前の表土が埋積された深度に相当し、著者らが以前に報告した土壌の真比重から予測された結果 (濱田ほか,

1998; 第 5 図) と一致する。表層 1 m に含まれる有機炭素量を計算すると、観測圃場 A, B およびアカマツ林でそれぞれ 24.7, 12.8 および 9.3 kgC · m⁻² となり、観測圃場の有機炭素密度がかなり高くなった。観測圃場 B とアカマツ林では重量%の平均値がほぼ同じであることから、表土の埋積だけではなく圧密による土壌の乾燥密度自体の増加が、炭素密度の増加に寄与していることが分かる。観測圃場 A の炭素密度は B の 2 倍、深度によっては 4 倍近くに達しており、これは土壌改変が極めて不均一に行われたことを示唆するものである。

土壌有機炭素の同位体比は、アカマツ林の最表層部を除いてほぼ - 20 ~ - 22‰ という、C3 植物と C4 植物の中間の値を示した。アカマツ林の深度 0 ~ 20 cm では - 23.4‰ と、C3 植物起源の影響を示す値が得られた。また、いずれの地点においても 60 cm 以深で深度とともに若干軽くなる傾向が見られた。このような同位体比のプロファイルが形成された要因については後ほど議論する。

(2) 土壌 CO₂ 濃度

1998 年の 1 月および 7 月に観測した、土壌 CO₂ 濃度のプロファイルを図 3 に示す。CO₂ 濃度は深度が増すにつれて上昇し、夏季に高く冬季に低い傾向を示した。アカマツ林では、地表面から深度 1 m まで緩やかに増加し、夏季には最大で 1% を超える値を示した。この傾向は、同一林分におけ

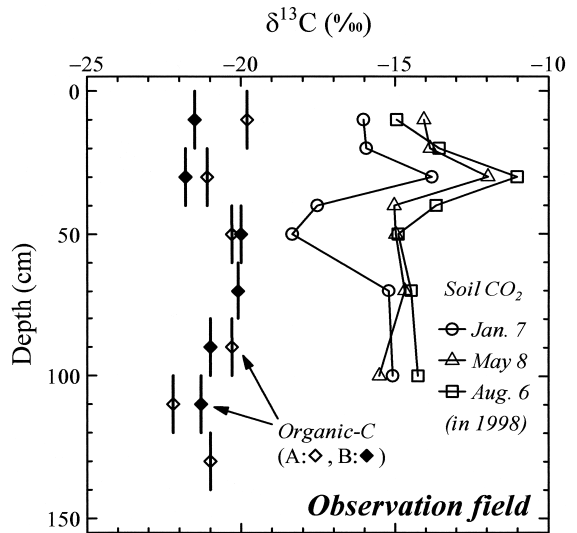


第3図 土壌 CO₂ 濃度のプロファイル
観測圃場を丸, アカマツ林を三角で示す.

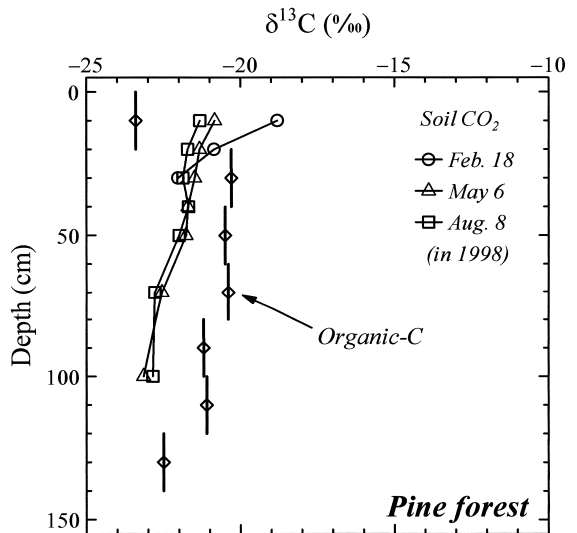
る過去の測定事例(濱田・田中, 1995, 1997; Uchida, 1995) とほぼ同様であった。一方の観測圃場においては, 50 cm 以深で CO₂ 濃度が急激に上昇し, 夏季には 9% 近くの高濃度に達した。Hamada (1999) では, 土壌呼吸速度がアカマツ林と観測圃場あまり差が見られなかったことから, 観測圃場における高 CO₂ 濃度は土壌中の CO₂ 総生産量自体の大きさではなく, 表土の埋積によって CO₂ 生産量の分布が深い方へシフトしていることと, 圧密された土壌による CO₂ 拡散の抑制とによるものと結論づけている。

(3) 土壌 CO₂ の炭素同位体比

1998 年 1 月 (アカマツ林では 2 月)・5 月・8 月に測定された, 観測圃場およびアカマツ林における土壌 CO₂ の炭素同位体比のプロファイルを図 4 および図 5 に示す。第 1 表に示した有機炭素の同位体比も併せてプロットした。アカマツ林における土壌 CO₂ の炭素同位体比は, 少なくとも表層において夏季に軽く冬季に重くなる傾向が見られる。また, 深度が増すにつれて軽くなる傾向を示し, 特に 2 月には深度 30 cm までのデータしか得られていないものの, 明瞭な勾配が認められる。これに対して観測圃場のプロファイルは大きく異なっており, 季節的な傾向はアカマツ林とは反対に夏季に重く, 冬



第4図 観測圃場における土壌中の炭素同位体比のプロファイル



第5図 アカマツ林における土壌中の炭素同位体比のプロファイル

季に軽い値を示す。深度方向には一定の傾向が認められず, 深度 30 cm で重い方にずれ, 冬季にはその下の 40 ~ 50 cm で逆に軽い方に大きくずれる複雑なプロファイルを示している。

土壌 CO₂ の炭素同位体比の δ 値は, アカマツ林でほぼ -21 ~ -23‰ と, 同じ深度の有機炭素の δ

値に比べて1～2%軽い値を示す場合が多い。観測圃場においては、全体では-11～-19%と幅広い分布を示すが、多くの場合-14～-16%程度の値を示す。この値は同じ深度の有機炭素に比べて5%前後重く、アカマツ林の土壌CO₂と比べると6～8%も重い値である。これらの結果は、観測圃場およびアカマツ林における土壌CO₂の起源となる植生のタイプと、土壌有機物のCO₂生産に対する寄与の違いを強く示唆するものである。

考 察

(1) 土壌有機炭素の同位体比の形成過程

第1表および第4図・第5図に示したように、土壌有機炭素の同位体比は多くの場合、-20～-22%というC3植物とC4植物の中間の値を示す。この傾向が観測圃場とアカマツ林で共通していること、また深度1m以深まで及んでいることから、この同位体比が観測圃場の造成に伴う土壌の攪乱や植生変化といった短期的な要因ではなく、はるかに長期間に渡る過程を経て形成されたものであることが分かる。

筑波台地における伝統的な土地利用についての記録によると、近世においてこの地域は江戸で消費される松薪の産地となっており、アカマツの二次林が広く分布していた(守山, 1997, p.3～12)。また守山(1998)によれば、つくば市周辺の台地では1970年代までアカマツ林が切り替え畑として利用されてきた。切り替え畑とは、林を切り拓いて2～3年耕作した後に再び林に戻す耕作形態であり、火入れをしない点が焼畑と異なる。この過程で台地の土壌には、種々の作物や有機肥料から様々な同位体比を持つ有機炭素が供給されたと考えられる。畑を林に戻す際には人の手でアカマツの苗が植えられたが、わが国では裸地を放置すると数年でススキの草地に移行するため(守山, 1997, p.90; 林, 1990, p.202)、そのまま放棄された畑など場所によってはススキが入り込んだ可能性

もある。このような形に限らず、ススキは萱葺き屋根を葺くための材料として必要とされたことから、台地の所々では毎年火入れをすることによって広い草地が維持されていた(守山, 1997, p.9～10)。崎山・糸賀(1994)は、筑波台地南方の稲敷台地における土地利用について、近世においてはむしろ原野が多く広がっており、防風林・薪炭林としてアカマツの植林が盛んに行われたのは明治以降であることを指摘している。

このように、筑波台地においてはアカマツを中心とした林(C3)やススキ(C4)などの草本、さらに様々な畑作物や有機肥料など、多種多様な有機物が土壌に供給される環境が古くから人為的に維持されてきた。この伝統的な土地利用形態が、C3にもC4にも属さない土壌有機炭素の同位体比が形成された理由の一つと推察される。

わが国における同様の研究事例として、石塚ほか(1999)は-18～-20%の炭素同位体比を示す八甲田山南山麓の黒色土中の腐植の起源として、ススキなどのC4植物遺体が約5割を占めることを報告している。彼らはまた、人為的な影響の有無については述べていないものの、地表面から1m以深まで続くこの同位体比が過去4,000年間に渡る草原植生からの有機物供給の結果であるとしている。

本研究地域の土壌は淡色黒ボク土であるが、黒ボク土の形成に対する草原植生の寄与はよく知られており、またわが国における黒ボク土の分布と縄文期の遺跡等の分布が似通っていることから、黒ボク土の形成に対する縄文期以降の人間活動の影響も指摘されている(三枝, 1989; 河室, 1990)。筑波台地周辺を見ると、例えば霞ヶ浦沿岸一帯では300近い縄文時代の貝塚が発見されており(筑波大学貝塚調査チーム, 1995)、桜川の沿岸地域では弥生時代～古墳時代の遺跡が10以上確認されている(赤坂, 2001)。これらのことから、本研究地域における人間活動に伴う草原の成立とその植生からの¹³Cに富む有機炭素の供給は、歴史時代以前まで遡るのかもしれない。

アカマツ林の最表層部では例外的に、 -23.4‰ という C3 植物寄りの値が得られた。宇佐美・及川 (1993) はこの林分のアカマツの樹齢を約 30 年としており、本研究の時点まで少なくとも 35 年程度の間、アカマツから土壌へのリター供給が継続されていることになる。なお、この林分は 1980 年に下刈りが中止されて以降、シラカシやヒサカキの侵入が進んでいるが (飯田ほか, 2001, 2003)、これらの樹木植生はすべて C3 植物である。これらのことから、アカマツ林土壌表層の有機炭素の同位体比は、樹木からの継続的なリター供給、また最近では枯死したアカマツの樹体からの有機炭素の供給により、C3 植物寄りの軽い値にシフトしてきていると考えられる。観測圃場においては、土壌表層の有機炭素に対する現生植生の影響は明瞭には認められない。これは、大規模な土壌改変から 10 年程度しか経過していないこと、また C3・C4 両方の草本種の群落がパッチ状に分布していることがその理由であろう。

有機炭素の同位体比はまた、深度 60 cm 以深で深度とともに軽くなる傾向が見られた。米山 (1987) によれば、土壌有機物が分解される過程で炭素同位体比はわずかに重い方にシフトするため、むしろ深度とともに重くなるプロファイルが一般的である。先に議論した炭素同位体比の δ 値と同様、このプロファイルもまた、この地域における伝統的な土地利用の影響を示している可能性がある。

筑波台地をはじめとする関東平野一帯の潜在植生は暖温帯常緑樹林であり (林, 1990, p.184)、人の手が加わる以前は C3 植物起源の有機炭素が蓄積されてきたと考えられる。そこに人の手が入り、前述したような C3 と C4 が入り混じった植生が維持され、従来より重い同位体比を持つ有機炭素が供給されるようになった。この過程で、C3 植物起源の軽い有機炭素が土壌表層から順次新しい、より重い炭素に置き換えられてゆき、その結果として深度とともに軽くなるプロファイルが形成された

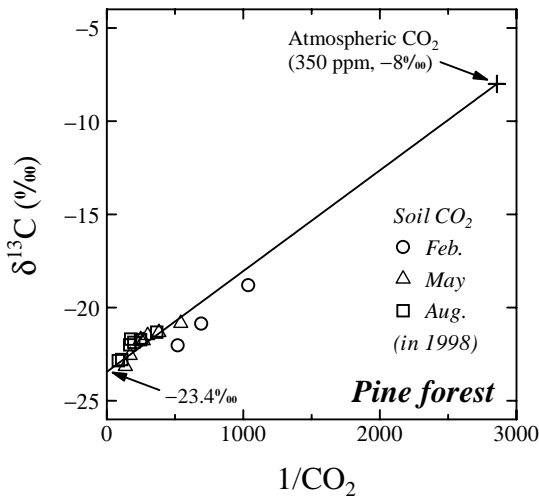
ものと予想される。

(2) アカマツ林における土壌 CO₂ の起源とその炭素同位体比

アカマツ林の土壌 CO₂ の炭素同位体比は、夏季に軽く冬季に重くなり、また深度が増すにつれて軽くなる傾向を示す (第 5 図)。この傾向および測定された δ 値は、本林分における過去の研究事例 (Uchida, 1995) とほぼ同様であった。Cerling *et al.* (1991) は簡易な数値モデルを用いて、土壌呼吸速度が小さいほど大気中の CO₂ (約 -8‰) の土壌中への拡散が増加し、土壌 CO₂ の同位体比が重くなることを示している。地表面に近いほど、特に土壌呼吸速度が低下する冬季において重い (= 大気 CO₂ に近い) 同位体比を示すのはこのためと考えられる。

有機炭素の同位体比との比較では、地表面付近を除いて土壌 CO₂ の方が $1 \sim 2\text{‰}$ 軽い場合が多い。これに対して過去の研究事例では、土壌 CO₂ がその発生源となった有機炭素より $4 \sim 5\text{‰}$ 重くなる結果が数多く報告されている (例えば Dörr and Münnich, 1980; Hendry *et al.*, 1993)。これは、¹²CO₂ と ¹³CO₂ との拡散係数の比が 1.0044 であることから、拡散による CO₂ 輸送が卓越する条件下では、土壌 CO₂ の炭素同位体比は発生源のそれに対して理論上 4.4‰ 重くなるためである (Cerling *et al.*, 1991; Cerling and Wang, 1996; Nordt *et al.*, 1996)。逆に言えば、本研究で得られた土壌 CO₂ より重い有機炭素の同位体比は、発生源の同位体比を代表していないことを意味する。そこで、アカマツ林における土壌 CO₂ の発生源の炭素同位体比の推定を試みた。

アカマツ林における土壌 CO₂ の濃度と炭素同位体比との関係を第 6 図に示す。横軸を CO₂ 濃度の逆数で表すと、データがおおむね一つの直線上にプロットされることが分かる。このダイアグラムは一般に Keeling プロットと呼ばれるもので、大気中の CO₂ に関してこの関係を見出した Charles D. Keeling の先駆的な研究 (Keeling, 1958; 1961) に

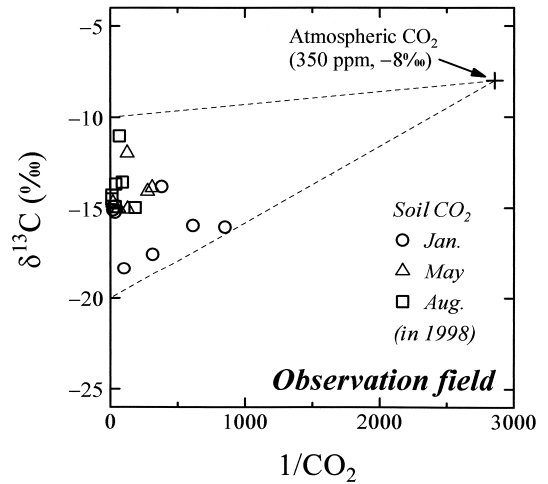


第 6 図 アカマツ林における土壌 CO₂ の濃度と炭素同位体比の関係

由来する。この手法は群落内 CO₂ の起源の推定などに広く用いられており（例えば Pataki *et al.*, 2003）、土壌 CO₂ において試みられた事例としては Parada *et al.* (1983) や Cerling *et al.* (1991) などがある。

アカマツ林の土壌 CO₂ の起源が、大気 CO₂（ここではその濃度を 350 ppm、炭素同位体比を -8‰ とした）とある一定の同位体比を持つ土壌中の有機炭素の 2 つのみである場合、土壌 CO₂ のデータは第 6 図において大気 CO₂ をプロットした点を通る直線上に並ぶ。そこで、大気 CO₂ の点を通る条件を与えて回帰直線を求めたところ、切片として -23.4‰ を得た。この値から、前述した拡散係数の違いに起因する同位体効果 4.4‰ を差し引くと -27.8‰ となり、これがアカマツ林における土壌 CO₂ の発生源の炭素同位体比を代表する値であると考えられる。

-27.8‰ という値は、アカマツなどの C₃ 植物についての代表的な値である一方、有機炭素の同位体比に比べて約 7‰ も軽い値である。このことから、アカマツ林の土壌 CO₂ は、現生植生の根の呼吸や供給されたばかりの新鮮で分解されやすいリターなど、C₃ 植物起源の有機炭素を主要な発生源としていていると考えられる。長期間に渡って蓄積さ



第 7 図 観測圃場における土壌 CO₂ の濃度と炭素同位体比の関係

れた、C₃ と C₄ の中間の同位体比を持つ有機炭素は、すでに腐植化が進み難分解性のものも多く、現在の土壌 CO₂ 生産に対する寄与は低くなっていると思われる。

(3) 観測圃場下層に埋積された有機物の土壌 CO₂ への寄与

観測圃場における土壌 CO₂ の炭素同位体比は、アカマツ林とは反対に夏季に重く冬季に軽くなる傾向を示し、そのプロファイルは極めて複雑である（第 4 図）。土壌呼吸速度の低下する冬季に、大気 CO₂ の同位体比から離れる方向に変化していることから、土壌 CO₂ の季節変化は大気 CO₂ の混入では説明できない。大気 CO₂ の寄与が小さいことは、土壌断面調査および土壌物理特性（濱田ほか、1998）から示された通気性の低さや、第 3 図に示した土壌深層における高 CO₂ 濃度からも類推できる。また、観測圃場の土壌 CO₂ についての Keeling プロットを第 7 図に示す。プロットされた点は季節や深度によって大きくばらつき、直線上に並ぶことはない。これは、土壌中における CO₂ の発生源として、同位体比の異なる複数の起源があることを意味している。そこで、天地返し以前の表土

が埋積されており、また最も大きな同位体比の季節変化が観測された、深度 40 ~ 50 cm における土壌 CO₂ の起源について、以下の通り推定を行った。

まず、土壌 CO₂ の起源として、埋積された有機物と現生植生の 2 つを想定した。大気 CO₂ の寄与はなく、拡散による同位体効果も無視できるものとする。埋積された有機物の炭素同位体比は、深度 20 - 40cm および 40 - 60cm の測定値から - 21‰ とした（第 1 表および第 4 図）。現生植生の同位体比は、C₄ 植物の代表的な値として - 13‰ を仮定した。試料採取地点の近傍ではススキ群落が優占しており、セイタカアワダチソウはほとんど見られない。草丈の低い草本種については不明であるが、土壌深層における CO₂ 生産への寄与は小さいと考えられるため、この仮定は妥当と思われる。

次に、測定した土壌空気中の CO₂ の濃度および同位体比から、土壌水中に存在する溶存炭酸種の濃度および同位体比を計算した。土壌空気および土壌水に含まれるすべての炭酸物質（以下「全 CO₂」）の同位体比は、次式で与えられる。

$$\delta^{13}C_T = (\delta^{13}C_G \cdot M_G + \delta^{13}C_A \cdot M_A + \delta^{13}C_B \cdot M_B) / M_T$$

ただし $M_T = M_G + M_A + M_B$

ここで、 M_i は単位バルク土壌体積当たりの含有量 ($\text{mol} \cdot \text{cm}^{-3}$)、添字の T・G・A・B はそれぞれ全 CO₂、空気中の CO₂ (CO₂(g))、溶液中の炭酸 (CO₂(aq) + H₂CO₃) および重炭酸イオン (HCO₃⁻) を表す。 M_G は土壌空気中の CO₂ 濃度に気相率を乗じて求めた。 M_A および M_B は、まず溶液中における濃度を CO₂ 濃度・地温・pH の関数として計算した後、体積含水率を乗じて求めた。観測圃場の土壌は極めて保水性が高く、三相分布の季節変化が小さいため、気相率および体積含水率には濱田ほか (1998; 第 3 図) で示した土壌コア採取時の値を適用した。地温は陸域環境研究センターのルーチン観測データの値を利用し、測定されていない深度の値は直線補間により求めた。土壌水の pH は、

Hamada (1999) において 1997 年 7 月 ~ 1998 年 6 月にかけて測定された値の平均値を用いた。この手法は、埋設型テンシオメーターを用いて高 CO₂ 濃度条件下の土壌水の pH を測定するもので、その詳細および妥当性に関する議論は濱田・田中 (2002) に記載している。なお、溶存炭酸濃度の計算の詳細は濱田 (2001) を参照されたい。

空気中の CO₂ と溶液中の炭酸物質との間には、炭素同位体比の分別が生じる。分別係数は温度の関数であり、15 °C のときに空気中の CO₂ に対して炭酸は 1.10‰ 軽く、重炭酸イオンは 9.02‰ 重くなる。Mook *et al.* (1974) によって示されたこの関係を温度 t (°C) の指数関数として回帰したところ、以下に示す関数で良好に近似された。

$$A = - 1.1765 \exp(- 0.0042 t), R^2 = 0.9965$$

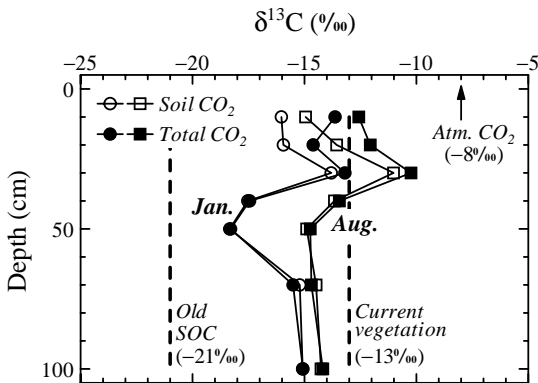
$$B = 10.875 \exp(- 0.0127 t), R^2 = 0.9994$$

炭酸および重炭酸イオンの炭素同位体比は次式で表されるため、これらの同位体比は土壌 CO₂ の同位体比と地温の関数として求めることができる。

$$\delta^{13}C_A = \delta^{13}C_G + A, \delta^{13}C_B = \delta^{13}C_G + B$$

これらの式を最初の式に代入することによって、全 CO₂ の炭素同位体比が求められる。

以上の手順によって推定した、観測圃場の土壌中における全 CO₂ の炭素同位体比の 1998 年 1 月および 8 月のプロファイルは、土壌 CO₂ の実測値と併せて第 8 図に示す。両者のプロファイルには結果として、地表面付近を除いて大きな差は見られなかった。これは、炭酸と重炭酸イオンについて、炭素同位体の分別係数の比がおおよそ - 1:10 であったのに対し、存在比はほぼ 10:1 となったため、両者による分別効果が相殺されたことによる。深度 40 ~ 50 cm における全 CO₂ の同位体比は、1 月に - 17.9‰、8 月に - 14.1‰ となった。この値をもとに、埋積された有機物の土壌 CO₂ への寄与率を計



第 8 図 観測圃場における土壌 CO₂ および全 CO₂ の炭素同位体比のプロファイル (SOC : Soil Organic Carbon)

算すると、1 月および 8 月でそれぞれ 61% および 14% となり、約 10 年前に埋積された以前の表土中に含まれる有機炭素が、特に冬季において土壌 CO₂ の主要な発生源となっていることが示された。

観測圃場では深度 40 ~ 50 cm 以外においても、土壌 CO₂ の炭素同位体比が特異な傾向を示す深度がいくつか見られた。深度 30 cm では、同位体比が季節によらず重い方に大きくシフトしていた。この理由として、この深度に埋積された灰白色の粘土層の影響が考えられる。この粘土の物性および出所は明らかになっていないが、土壌生成作用を受けた形跡は見られず、未風化の炭酸塩鉱物を多く含むと予想される。炭酸塩鉱物中の炭素同位体比は、一般に 0‰ 前後の重い値を取ることが知られており、この鉱物起源の重い炭素が風化反応を通して土壌 CO₂ に寄与した可能性が考えられる。深度 70 ~ 100 cm にかけては、その上方で見られた大きな季節変化が及んでいない。この深度は季節によっては地下水面下になることもあり、地下水中の溶存炭酸種がバッファーとなって同位体比の変動を抑制していることが考えられる。

まとめ

筑波大学陸域環境研究センターの観測圃場およ

びアカマツ林において、土壌中の有機物および土壌 CO₂ の炭素安定同位体比を測定し、その起源と形成過程について議論した。得られた結果は以下のとおりである。

- 1) 土壌有機炭素の同位体比は概して -20 ~ -22‰ という、C3 植物と C4 植物の中間の値を示した。この原因として、筑波台地における伝統的な土地利用形態が重要な役割を果たしており、またこの人為的な影響が歴史時代以前にまで遡る可能性が示された。アカマツ林最表層部の同位体比は、C3 植物起源の有機炭素の供給のために軽くなってきており、また両地点の土壌深層には、人為的な影響が及ぶ以前の古い有機物の同位体比が保存されている可能性が示唆された。
- 2) アカマツ林における土壌 CO₂ の炭素同位体比は、夏季に軽く冬季に重くなり、また深度とともに軽くなる傾向を示した。Keeling プロットにおいては、大気 CO₂ の点を通る直線上にプロットされた。これらことから土壌 CO₂ に対する大気 CO₂ の寄与が示された。Keeling プロットを用いた解析の結果、土壌中における CO₂ の発生源の同位体比は -27.8‰ と推定され、C3 植物である現生植生が土壌 CO₂ の主要な起源であることが示された。
- 3) 観測圃場における土壌 CO₂ の炭素同位体比は、アカマツ林とは反対に夏季に重く冬季に軽くなり、複雑なプロファイルを示した。同位体比が大きな季節変化を示した深度 40 ~ 50 cm について、全 CO₂ の同位体比を計算してその起源を推定したところ、埋積された以前の表土中の有機物の寄与が 1 月および 8 月でそれぞれ 61% および 14% となり、冬季における主要な発生源となっていた。

謝 辞

本研究における不攪乱土壌試料の採取は、筑波大学第一学群自然学類の水文学実験の授業において、受講された学生の方々のご協力のもとに行わ

れました。筑波大学陸域環境研究センターのスタッフの方々には、同センターを利用するに当たり様々なご便宜を頂きました。熊本大学理学部の嶋田 純教授には、ガス採取用ガラス管の製作ならびに同位体分析全般に関して有益なご助言を賜りました。科学技術特別研究員(当時)の南 浩史氏には、同位体分析のための前処理の手順をご教授頂きました。海洋科学技術センターの内田昌男氏には、ガスクロマトグラフィーによる CO₂ 濃度の測定法およびアカマツ林における土壌 CO₂ の同位体比に関する情報をご提供頂きました。ここに記して感謝申し上げます。

文 献

- 赤坂 享(2001):つくば市上境発見の弥生時代土器棺墓。筑波大学先史学・考古学研究, 第 12 号, 89-102.
- 飯田真一・濱田洋平・安部 豊・田中 正(2003):筑波大学陸域環境研究センターに隣接するアカマツ林の下層植生について。筑波大学陸域環境研究センター報告, 4, 1-9.
- 飯田真一・濱田洋平・田中 正(2001):筑波大学陸域環境研究センターに隣接するアカマツ林の胸高直径と立木密度の変化について。筑波大学陸域環境研究センター報告, 2, 1-6.
- 石塚成宏・河室公康・南 浩史(1999):黒色土および褐色森林土腐植の炭素安定同位体比分析による給源植物の推定 八甲田山南山麓における事例。第四紀研究, 38, 85-92.
- 井口正男・池田 宏・林 陽生・佐倉保夫(1977):雑報(「水理実験センターの概要」ほか)。筑波大学水理実験センター報告, 1, 77-91.
- 宇佐美哲之・及川武久(1993):アカマツ林内の光微環境とシラカシ稚樹の成長特性。筑波大学水理実験センター報告, 17, 79-89.
- 河室公康(1990):縄文人がつくった黒い土。日本林業技術協会編:『土の100不思議』東京書籍, 38-39.
- 三枝正彦(1989):黒ボク土。日本化学会編:『土の化学』学会出版センター, 148-154.
- 崎山夏子・糸賀 黎(1994):稲敷台地における原野の変遷。筑波の環境研究, 15, 29-44.
- 田中克季・及川武久(1998):筑波大学水理実験センター内円形圃場草原における C3・C4 植物の LAI の季節変化(1996, 1997)。筑波大学水理実験センター報告, 23, 87-89.
- 田中克季・及川武久(1999):C3/C4 植物が混生した水理実験センター内円形草原圃場におけるバイオマスと LAI の季節変化特性。筑波大学水理実験センター報告, 24, 121-124.
- 筑波大学貝塚調査チーム(1995):茨城県出島村八幡貝塚の測量・調査報告。筑波大学先史学・考古学研究, 第 6 号, 115-127.
- 濱田洋平(2001):土壌中の CO₂ 生産に対する埋積された有機質土壌の寄与～炭素安定同位体組成を用いた推定～。2001 年度日本水文科学会学術大会発表要旨集, No.15, 52-55.
- 濱田洋平・田中 正(1995):ガス検知器を用いた簡易な土壌空気中の CO₂ 濃度の測定法。ハイドロロジー, 25, 123-130.
- 濱田洋平・田中 正(1997):森林土壌空気における二酸化炭素濃度の時空間分布。日本水文科学会誌, 27, 3-16.
- 濱田洋平・田中 正(2002):tensionic 法を用いた土壌水の pH 測定。水文・水資源学会誌, 15, 594-604.
- 濱田洋平・A. R. Indra F.・田中 正(1998):筑波大学水理実験センター内アカマツ林および熱収支・水収支観測圃場における土壌の物理特性。筑波大学水理実験センター報告, 23, 1-10.
- 林 一六(1990):『植生地理学』大明堂, 269p.
- 守山 弘(1997):『むらの自然をいかす』岩波書店, 128p.
- 守山 弘(1998):不均一性と攪乱 - 農村環境を特徴づける要因のもとでの生物多様性。日本生態学会第 45 回大会自由集会『里と生態学～田舎の自然の現状と将来』要旨。

- 横山智子・及川武久 (2000) : 水理実験センター圃場における 1999 年の C3/C4 混生草原の LAI とバイオマスの季節変化 . 筑波大学陸域環境研究センター報告 , **1** , 67-71.
- 横山智子・及川武久 (2001) : 陸域環境研究センター圃場における 2000 年の C3/C4 混生草原の LAI とバイオマスの季節変化 . 筑波大学陸域環境研究センター報告 , **2** , 37-39.
- 米山忠克 (1987) : 土壌 - 植物系における炭素 , 窒素 , 酸素 , 水素 , イオウの安定同位体自然存在比 : 変異 , 意味 , 利用 . 日本土壌肥科学雑誌 , **58** , 252-268.
- 米山忠克 (1996) : 土壌有機物の $\delta^{13}\text{C}$ 値から植生の変化を読む . *Radioisotopes* , **45** , 57-58.
- 米山忠克・笹川英夫 (1994) : 土壌 - 植物系における炭素 , 窒素 , 酸素 , 水素 , イオウの安定同位体自然存在比 : 1987 年以降の研究の進歩 . 日本土壌肥科学雑誌 , **65** , 585-598.
- Cerling, T. E., Solomon, D. K., Quade, J. and Bowman, J. R. (1991): On the isotopic composition of carbon in soil carbon dioxide. *Geochimica et Cosmochimica Acta* , **55**, 3403-3405.
- Cerling, T. E. and Wang, Y. (1996): Stable carbon and oxygen isotopes in soil CO₂ and soil carbonate: Theory, practice, and application to some prairie soils of upper Midwestern North America. Boutton, T. W. and Yamasaki, S. eds., *Mass Spectrometry of Soils*. Marcel Dekker, 113-131.
- Dörr, H. and Münnich, K. O. (1980): Carbon-14 and carbon-13 in soil CO₂. *Radiocarbon*, **22**, 909-918.
- Hamada, Y. (1999): Production and transport processes of carbon dioxide in soil profiles at a coniferous forest and an adjacent grassland. Doctoral thesis, University of Tsukuba.
- Hendry, M. J., Lawrence, J. R., Zanyk, B. N. and Kirkland, R. (1993): Microbial production of CO₂ in unsaturated geologic media in a mesoscale model. *Water Resources Research*, **29**, 973-984.
- Keeling, C. D. (1958): The concentration and isotopic abundances of atmospheric carbon dioxide in rural areas. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **13**, 322-334.
- Keeling, C. D. (1961): The concentration and isotopic abundances of carbon dioxide in rural and marine air. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **24**, 277-298.
- Mook, W. G., Bommerson, J. C. and Staverman, W. H. (1974): Carbon isotope fractionation between dissolved bicarbonate and gaseous carbon dioxide. *Earth and Planetary Science Letters*, **22**, 169-176.
- Nordt, L. C., Wilding, L. P., Hallmark, C. T. and Jacob, J. S. (1996): Stable carbon isotope composition of pedogenic carbonates and their use in studying pedogenesis. In: Boutton, T. W. and Yamasaki, S. eds., *Mass Spectrometry of Soils*. Marcel Dekker, 133-154.
- Parada, C. B., Long, A. and Davis, S. N. (1983): Stable-isotopic composition of soil carbon dioxide in the Tucson Basin, Arizona, U.S.A. *Isotope Geosciences*, **1**, 219-236.
- Pataki, D. E., Ehleringer, J. R., Flanagan, L. B., Yakir, D., Bowling, D. R. Still, C. J., Buchmann, N., Kaplan, J. O. and Berry, J. A. (2003): The application and interpretation of Keeling plots in terrestrial carbon cycle research. *Global Biogeochemical Cycles*, **17**, 1022.
- Uchida, M. (1995): Determination of CO₂ flux from forest soil using ²²²Rn and diffusion process of soil CO₂ to the atmosphere. Master of Environmental Sciences thesis, University of Tsukuba.
- (2003 年 6 月 6 日受付 , 2003 年 7 月 7 日受理)