



東京学芸大学リポジトリ

Tokyo Gakugei University Repository

理化学性の異なる3種類の水田土壌のメタン生成

メタデータ	言語: 出版者: 東京学芸大学教育実践研究推進本部 公開日: 2023-12-07 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 前田, 旅人, 山本, 昭範, 常田, 岳志 メールアドレス: 所属: 東京学芸大学, 東京学芸大学, 農業・食品産業技術総合研究機構
URL	http://hdl.handle.net/2309/0002000146

理化学性の異なる 3 種類の水田土壌のメタン生成

前田 旅人^{*1}・山本 昭範^{*2}・常田 岳志^{*3}

環境科学分野

(2023年5月31日受理)

MAEDA, T., YAMAMOTO, A. and TOKIDA, T.: Methane Production in Three Types of Rice Paddy Soils With Different Physicochemical Properties. Bull. Tokyo Gakugei Univ. Div. Nat. Sci., 75 : 205-211. (2023) ISSN 2434-9380

Abstract

Rice paddy is the major source of anthropogenic methane (CH₄) emission. The elucidation of the relationship between soil CH₄ production and environmental factors in rice paddy field is needed to evaluate the accurate CH₄ emission from rice paddy in agricultural ecosystems. This study aims to elucidate the effects of soil physicochemical properties on spatio-temporal variations in CH₄ production of rice paddy soils. We conducted a soil incubation experiment using three types of rice paddy soils; Andosol, Gray lowland soil, Brown lowland soil. The cumulative soil CH₄ production over 120 days and the temporal change in soil CH₄ production differed among the soil types. The cumulative soil CH₄ production over 120 days decreased with increase in cumulative soil Fe²⁺ production. These results suggest that the more electrons have been used for Fe³⁺ reduction process than that for CH₄ production process in the soil with high reducible Fe³⁺ content. Moreover, the differences in cumulative soil NH₄⁺-N production and soil CO₂ production among the soil types suggest that the difference in availability of electron donor among the soil types also affect soil CH₄ production. Furthermore, the timing of increase in soil CH₄ production was faster in the Gray lowland soil in the incubation, in which the increase of Fe²⁺ production occurred soon after the start of soil incubation compared to other soil types. Soil CH₄ production apparently initiated after at least 50% of reducible Fe³⁺ was reduced in each soil type. In addition, the reducible Fe³⁺ of each soil tended to increase with increase in the surface area of soil. These findings revealed that differences in the soil Fe²⁺ content and its temporal change, and the other soil physicochemical properties relating the magnitude of soil reducible Fe³⁺ content among the soil types are important determinants of soil CH₄ production.

Keywords: Andosol, Brown lowland soil, Gray lowland soil, Methane, Rice paddy, Soil physicochemical property

Department of Environmental Sciences, Tokyo Gakugei University, 4-1-1 Nukuikita-machi, Koganei-shi, Tokyo 184-8501, Japan

* 1 東京学芸大学 教育学部 (184-8501 東京都小金井市貫井北町 4-1-1)

* 2 東京学芸大学 広域自然科学講座 環境科学分野 (184-8501 東京都小金井市貫井北町 4-1-1)

* 3 農業・食品産業技術総合研究機構 農業環境研究部門 (305-8604 茨城県つくば市観音台 3-1-3)

要 旨

水田土壌のメタン生成メカニズムの解明は、人為由来メタンの主要な発生源である水田からのメタン発生量の正確な評価に不可欠である。本研究は、水田土壌のメタン生成と理化学性の関係を解明するため、3種類の水田土壌（黒ボク土、灰色低地土、褐色低地土）を用いて培養実験を行った。その結果、積算メタン生成量（120日間）は土壌タイプによって異なり、積算二価鉄生成量の増加に伴い減少した。これは、被還元性鉄量の高い土壌ほど多くの電子が二価鉄生成作用に利用されたことでメタン生成量が減少したためと考えられた。また、積算アンモニア態窒素生成量と積算二酸化炭素生成量が土壌タイプで異なったことから、電子供給力の差もメタン生成量の土壌間差に影響を与えたと考えられた。加えて、メタン生成量の時間変化も土壌タイプで異なり、培養開始後すぐに二価鉄含有量が増加した灰色低地土におけるメタン生成量の増加のタイミングが他の土壌よりも早かった。本研究は、各土壌で被還元性鉄量の少なくとも50%以上が還元された後にメタン生成量が大きく増加し始めることを明らかにした。さらに、被還元性鉄量は土壌の比表面積と対応関係が見られた。これらの結果は、二価鉄含有量やその時間変化、また、被還元性鉄量に関する土壌理化学性が各土壌のメタン生成に影響を与える重要な要因であることを示唆している。

キーワード：黒ボク土、灰色低地土、褐色低地土、メタン、水田、土壌理化学性

1. はじめに

メタンは二酸化炭素（CO₂）の27.2-29.8倍の地球温暖化係数を持つ強力な温室効果ガスである¹⁾。嫌気条件の土壌はメタンの主要な生成場所であり、メタンは微生物（メタン生成菌）作用により生成される²⁾。特に、水田は人為由来メタンの重要な発生源であり、水田からのメタン発生量は全球メタン発生量の約8.7%を占める¹⁾。日本においては、人為由来メタン発生量の約42%が水田からのメタン発生である³⁾。そのため、水田土壌におけるメタン生成量やその時空間変動に関する知見は、人為由来メタン発生量評価の精緻化に必要不可欠である。

水田土壌におけるメタン生成は、土壌の温度や有機物量、肥料タイプ、栽培管理などの影響を受ける^{4) 5)}。特に、水田の水管理による土壌の湛水状態や水位、酸化還元電位の変化は、微生物によるメタン生成作用や水田からのメタン発生量に影響する重要な要因である⁶⁾。湛水後の水田土壌では、脱窒や二価鉄（Fe²⁺）生成などの酸化還元反応が逐次的に進行し、その最終段階としてメタン生成作用が生じる⁷⁾。また、土壌のメタン生成量は、被還元性鉄量や易分解性有機物量などの土壌理化学性によっても異なることが知られている^{8) 9)}。

さらに水田では、土壌タイプによってメタン生成量が増えることが報告されている^{10) 11)}。それぞれの土壌タイプでは、土壌の理化学性やその時間変化パターンも異なる^{4) 12)}。そのため、水田土壌のメタン生成量やその時間変化の特徴は、各土壌の理化学性に

よって異なる可能性が高い。しかし、複数の水田土壌を対象として、水田土壌の理化学性の時間変化とメタン生成の時間変化の関係を詳細に明らかにした研究は限られている。

以上から、本研究の目的は異なるタイプの水田土壌を用いた培養実験により、1. 土壌タイプ毎のメタン生成量やその時間変化を明らかにすること、2. メタンの生成量や時間変化に与える土壌理化学性の影響を解明することである。供試土壌は、日本の主要な水田土壌である黒ボク土、灰色低地土、褐色低地土を用いた¹³⁾。

2. 材料と方法

2. 1 土壌

本研究の土壌は、黒ボク土（Andosol）、灰色低地土（Fluvisol, Gray lowland soil）、褐色低地土（Fluvisol, Brown lowland soil）（FAO/UNESCO, soil classification system 1992, 表1）である。黒ボク土は筑波大学農林技術センターの水田圃場（茨城県つくば市、採取日：2016年3月2日）、灰色低地土は愛媛大学（愛媛県松山市、採取日：2016年2月23日）の水田圃場、褐色低地土は鹿児島県農業開発総合センターの水田圃場（鹿児島県南さつま市、採取日：2016年2月19日）から作土層（0-15cm）をそれぞれ採取した。採取した土壌は風乾後に2 mmメッシュを通した。以降、各水田圃場の土壌を筑波土壌、愛媛土壌、鹿児島土壌と示す。

表1 土壌の物理化学性

処理	土壌タイプ	採取場所	pH (H ₂ O)	全炭素 (g kg ⁻¹)	全窒素 (g kg ⁻¹)	仮比重 [†] (g cm ⁻³)	比表面積 (m ² g ⁻¹)	粒径組成 [‡]		
								砂 (%)	シルト (%)	粘土 (%)
筑波土壌	黒ボク土	茨城県つくば市	6.43	34.3	3.2	0.59	75	21	41	38
愛媛土壌	灰色低地土	愛媛県松山市	5.46	13.1	1.4	1.19	13	61	23	16
鹿児島土壌	褐色低地土	鹿児島県南さつま市	6.45	9.3	1.0	1.15	22	59	27	14

[†], [‡]黒ボク土, 灰色低地土, 褐色低地土の仮比重と粒径組成は, 各土壌を採取した圃場における先行研究 (Minamikawa et al. ²²⁾, Toma et al. ²³⁾, Itoh et al. ¹²⁾) による

2. 2 土壌培養実験

各水田圃場の風乾土壌10gを培養ビン(125ml)に入れ, 超純水で飽水度40%に調整した。培養ビンをブチルゴム栓で密閉し, プレ培養(温度30℃, 6日間, 暗条件)した。プレ培養後, 土壌:水が1:2.5(w/v)の割合(湛水条件)になるように超純水を加え, ブチルゴム栓とアルミキャップで密閉した。密閉後, ガス置換装置(GR-16, 三紳工業株式会社)を用いて培養ビンのヘッドスペースを純窒素で置換し, 30℃で120日間(暗条件)培養した。実験サンプルは土壌毎に63個(合計189個)作成した。

2. 3 土壌のメタンとCO₂の生成量

培養開始1, 7, 14, 28, 58, 90, 120日後にマノメーター(PG-100-102AP, 日本電産コバル電子)で培養ビン内の圧力の測定後, ヘッドスペースガスを15mlの真空バイアルビンに採取した(反復3)。ガスサンプルは, 水素炎イオン化型検出器と熱伝導度型検出器付きのガスクロマトグラフィー(GC-14A, 島津製作所)によりメタンとCO₂の濃度を分析した。メタンとCO₂の生成量は, ヘンリーの法則に基づいた各成分の溶存量を考慮して算出した¹⁴⁾。

2. 4 土壌理化学性

培養開始1, 7, 14, 28, 58, 90, 120日後に土壌のpH, アンモニア態窒素(NH₄⁺-N)含有量, Fe²⁺含有量を測定した(反復3)。土壌pHは培養ビン(土壌:水が1:2.5(w/v))を軽く振とうし, pHメーター(FE20, Mettler Toledo AG)で測定した。土壌NH₄⁺-N含有量は, 土壌:10%KCl溶液が1:10(w/v)になるようにKCl溶液を培養ビンに加え, 50分間振とう後に濾紙(ADVANTEC 5C)で濾過し, オートアナライザー(QuAAtro 2HR, BLTEC)で分析した。土壌Fe²⁺含有量は, 土壌2g(湿重量)にpH 3.0酢酸塩緩衝液(50ml)を加えて5分間振とう後にメンブレンフィルター(0.22μm, Merck)で濾過し, 紫外可視分光光度計(波長:510nm, UV-1800, 島津製作所)で分析した。

土壌の全炭素含有率と全窒素含有率は元素分析計(NCH-22F, 住化分析センター), 比表面積はガス吸着量測定装置(Autosorb-1, Quantachrome instruments)で分析した。

2. 5 統計解析

統計解析はIBM SPSS statistics (SPSS ver.22, IBM Corp., Chicago, IL, USA)を用いた。土壌のメタン生成量, CO₂生成量, NH₄⁺-N含有量, Fe²⁺含有量, pHについて分散分析を行った。土壌タイプ間の差は多重比較検定(Tukey法)により統計解析を行った。本研究では, 培養開始120日後の土壌のメタン生成量, CO₂生成量, NH₄⁺-N含有量, Fe²⁺含有量を, それぞれ積算メタン生成量, 積算CO₂生成量, 積算NH₄⁺-N生成量(可給態窒素量), 積算Fe²⁺生成量(被還元性鉄量)とした。

3. 結果

3. 1 土壌理化学性

筑波土壌は, 他の土壌よりも全炭素含有率, 全窒素含有率, 比表面積が高く, 仮比重は他の土壌より低かった(表1)。各土壌のpHは5.46-6.45の範囲で, 愛媛土壌の土壌pHが他の土壌よりも低かった。

土壌Fe²⁺含有量の時間変化は土壌タイプによって異なった(図1a)。筑波土壌と鹿児島土壌の土壌Fe²⁺含有量は, 実験期間を通して緩やかに増加し, 培養120日目に最大となった。愛媛土壌の土壌Fe²⁺含有量は, 培養28日目に最大となり, その後の期間に大きな変化はなかった。積算Fe²⁺生成量は土壌間で有意に異なった($P < 0.05$)。

土壌NH₄⁺-N含有量は全ての土壌タイプで同様の時間変化を示し, 実験期間を通して緩やかに増加した(図1b)。積算NH₄⁺-N生成量は, 愛媛土壌が他の土壌よりも高い傾向を示したが, 土壌間に統計的有意差はなかった。

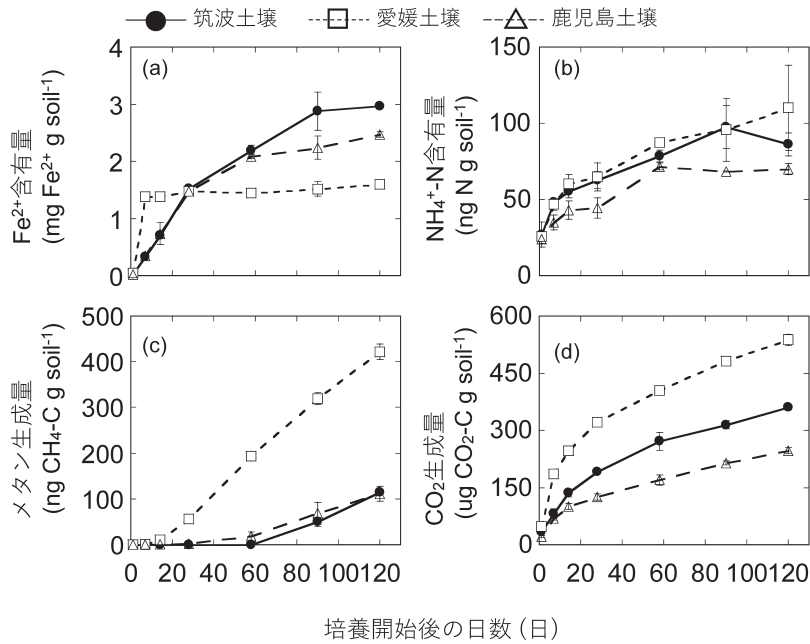


図1 土壌の Fe^{2+} 含有量 (a)、 NH_4^+-N 含有量 (b)、メタン生成量 (c)、 CO_2 生成量 (d) の時間変化
エラーバーは標準偏差を示す (n = 3)

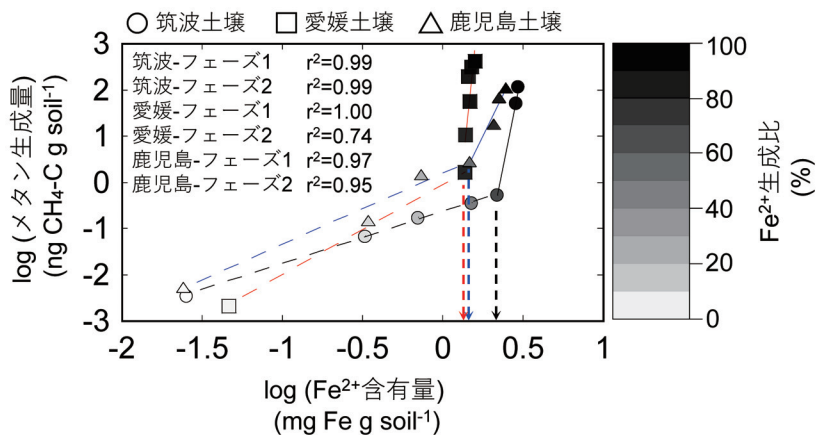


図2 土壌のメタン生成量と Fe^{2+} 含有量の関係

各プロットは平均値 (n = 3) を示す。矢印は実験期間を2つのフェーズに分けた基準とした測定日の土壌 Fe^{2+} 含有量を示す (黒; 筑波土壌、赤; 愛媛土壌、青; 鹿児島土壌)。フェーズ1はメタン生成量が $10\ ng\ CH_4-C\ g\ soil^{-1}$ を超える前の測定日までの期間、フェーズ2はメタン生成量が $10\ ng\ CH_4-C\ g\ soil^{-1}$ 以上となった測定日以降の期間である。プロットの濃淡とカラーバーは各測定日における Fe^{2+} 含有量の積算 Fe^{2+} 生成量に対する割合 (Fe^{2+} 生成比、%)を示す。

3. 2 土壌メタン生成量

土壌メタン生成量は土壌タイプによって異なる時間変化を示した (図1c)。筑波土壌のメタン生成量は培養開始から培養58日目まで低く、その後大きく増加した。一方、愛媛土壌と鹿児島土壌のメタン生成量は、それぞれ培養7日目以降と培養28日目以降に明らかな増加が見られた。実験期間を通して愛媛土壌のメタン生成量は他の土壌よりも高い傾向を示し、培養7日目以降は他の土壌よりも有意に高かった ($P < 0.05$)。全ての土壌において、土壌メタン生成量は土壌 Fe^{2+} 含有量の増加に伴い増加する傾向を示した (図

2)。さらに土壌メタン生成量と土壌 Fe^{2+} 含有量の関係を解析するため、120日間の実験期間を各土壌でメタン生成量が $10\ ng\ CH_4-C\ g\ soil^{-1}$ 以上となった測定日を基準に2つのフェーズに分けた (フェーズ1: メタン生成量が $10\ ng\ CH_4-C\ g\ soil^{-1}$ を超える前の測定日までの期間、フェーズ2: メタン生成量が $10\ ng\ CH_4-C\ g\ soil^{-1}$ 以上となった測定日以降の期間)。フェーズ分けの基準とした測定日は筑波土壌が培養58日目、愛媛土壌が培養7日目、鹿児島土壌が培養28日目であった。土壌 Fe^{2+} 含有量の変化に対する土壌メタン生成量の増加傾向はフェーズ間で異なった。特に愛媛土壌で

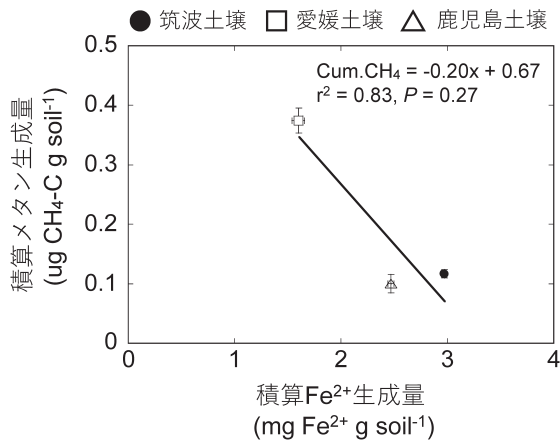


図3 土壌の積算メタン生成量と積算Fe²⁺生成量の関係
エラーバーは標準偏差を示す (n = 3)

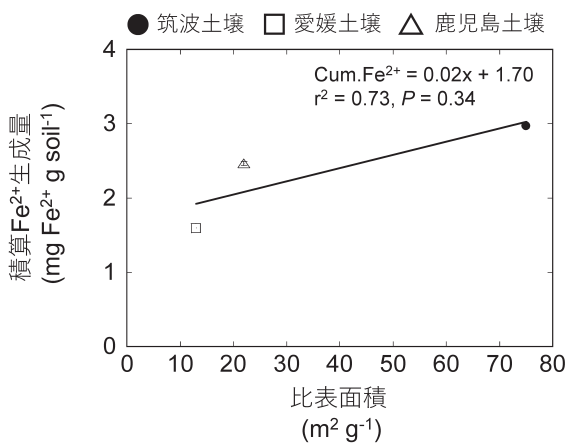


図4 土壌の積算Fe²⁺生成量と比表面積の関係
エラーバーは標準偏差を示す (n = 3)

は、フェーズ間の増加程度の違いが他の土壌より大きかった (図2)。また、フェーズ分けの基準日における筑波土壌のFe²⁺含有量は他の土壌よりも高い傾向があった (図2の矢印)。各測定日のFe²⁺含有量の積算Fe²⁺生成量に対する割合 (Fe²⁺生成比) を算出した結果、フェーズ分けの基準とした測定日では筑波土壌が51.1%、愛媛土壌が86.3%、鹿児島土壌が59.6%であった (図2のプロット濃淡とカラーバー)。

積算メタン生成量は土壌間で異なり、愛媛土壌は他の土壌よりも有意に高かった ($P < 0.05$)。積算メタン生成量は、積算Fe²⁺生成量の増加に伴い減少する傾向を示した (図3)。また、積算Fe²⁺生成量は、土壌の比表面積の増加に伴い増加する傾向を示した (図4)。

3. 3 土壌CO₂生成量

土壌CO₂生成量の時間変化は土壌タイプで差は見られなかったが、各測定日の生成量は土壌間で異なった (図1d)。実験期間を通して土壌CO₂生成量は、各測定日において愛媛土壌 > 筑波土壌 > 鹿児島土壌の順に

高かった ($P < 0.05$)。積算CO₂生成量は土壌間で有意に異なった ($P < 0.05$)。

4. 考察

4. 1 土壌メタン生成量に与える土壌理化学性の影響

愛媛土壌では、積算メタン生成量が他の土壌と比べて有意に高く、積算Fe²⁺生成量は他の土壌よりも有意に低かった (図1a, 1c)。また、各土壌の積算メタン生成量は、積算Fe²⁺生成量 (被還元性鉄量) の増加に伴い減少する傾向を示した (図3)。水田土壌においてメタンは微生物作用により生成されるが²⁾、嫌気条件の土壌ではメタンだけでなくFe²⁺や硫化水素なども微生物作用により生成される¹⁵⁾。特に、微生物のFe²⁺生成作用とメタン生成作用の間では、電子の競合によりメタン生成が抑制されることが報告されている¹⁶⁾。土壌間の被還元性鉄量の差から、このような電子の競合の程度の違いが積算メタン生成量の土壌間差に影響を与えた要因の一つと考えられる。

本研究における微生物のメタン生成作用の基質は主に土壌有機物である。しかし、本研究では、全炭素含有率の土壌間差の傾向とメタン生成量の土壌間差の傾向は一致しなかった (表1, 図1c)。先行研究では、土壌の易分解性炭素量が水田のメタン生成量に影響することが報告されている¹¹⁾。また、Cheng et al.⁴⁾によると、土壌の可給態窒素量と易分解性炭素量には対応関係が見られる。そこで、この関係を用いて本研究における各土壌の易分解性炭素量を推定すると、愛媛土壌の易分解性炭素量が他の土壌よりも高いと考えられた (data not shown)。これらを考慮すると、土壌の全炭素量に対する易分解性炭素量の割合が土壌タイプによって異なり、この割合の高い愛媛土壌では他の土壌よりも多くの土壌有機物由来の電子供与体の供給が起きていたと推測される。そのため、愛媛土壌では、Fe²⁺生成作用とメタン生成作用の間において、電子の競合の影響 (程度) が筑波土壌や鹿児島土壌と比べて小さくなり、積算メタン生成量が他の土壌よりも高くなったと考えられる¹¹⁾。

さらに本研究は、可給態窒素量と積算メタン生成量の対応関係が筑波土壌と他の土壌で異なることを示した。筑波土壌は鹿児島土壌に比べ可給態窒素量が高いが、積算メタン生成量に顕著な差はなかった (図1b, 1c)。この結果は、筑波土壌の高い被還元性鉄量に起因する可能性が高い (表1, 図1a)。つまり、筑波土壌では、メタン生成微生物の基質利用性が十分な条件にあっても、多くの電子がFe²⁺生成作用に利用された

ことでメタン生成作用が抑制されたと考えられる。このようなメタン生成作用に対する Fe^{2+} 生成作用の影響は、筑波土壌と同じ種類の土壌（黒ボク土）を用いた先行研究でも報告されている⁸⁾。また、Yagi and Minami¹¹⁾は、グライ土や泥炭土と比べて、黒ボク土は有機物含有量が高い一方でメタン生成量は低いことを報告している。加えて、黒ボク土においては、メタン生成作用に対する透水性などの土壌の物理的性質の関与も指摘されている¹²⁾。今後、より多くの土壌タイプの物理化学性とメタン生成の関係に着目した研究が必要である。

4. 2 土壌メタン生成量の時間変化と土壌理化学性 の関係

土壌メタン生成量と土壌 Fe^{2+} 含有量の時間変化は土壌タイプによって異なった（図 1a, 1c）。筑波土壌と鹿児島土壌は実験期間を通して土壌 Fe^{2+} 含有量が増加したが、愛媛土壌は培養28日目以降ほとんど変化しなかった。また、土壌 Fe^{2+} 含有量と土壌メタン生成量との関係において、フェーズ分け（フェーズ1とフェーズ2）の基準とした測定日が土壌間で明らかに異なり、愛媛土壌は他の土壌よりもメタン生成量増加のタイミングが早かった。このようなメタン生成量の時間変化の土壌間差は、嫌気的な土壌環境の形成と土壌 Fe^{2+} 含有量の増加（土壌の被還元性鉄の還元）に要した期間が関係していると考えられる。

湛水後の土壌では、酸化還元反応が逐次的に進行し⁷⁾、徐々に嫌気環境が形成される。本研究において、培養開始後7日間の1日あたりの土壌 CO_2 生成量は、愛媛土壌が他の土壌に比べて有意に高かった（図 1d, 愛媛土壌： $34.2 \pm 0.9 \text{ ng CO}_2\text{-C g soil}^{-1} \text{ d}^{-1}$, 筑波土壌： $13.6 \pm 3.2 \text{ ng CO}_2\text{-C g soil}^{-1} \text{ d}^{-1}$, 鹿児島土壌： $11.9 \pm 0.5 \text{ ng CO}_2\text{-C g soil}^{-1} \text{ d}^{-1}$, 平均 \pm 標準偏差, $P < 0.05$ ）。この結果は、愛媛土壌では培養初期に他の土壌よりも多くの土壌有機物の分解が進行したことを示している。このような有機物分解は、酸素消費を通して土壌の嫌気環境の形成を促進する¹⁷⁾。そのため、愛媛土壌は他の土壌と比べて土壌の嫌気環境の形成に要する期間が短くなり、メタン生成量増加のタイミングが実験期間の初期に見られたと考えられる。

また、先行研究において、土壌 Fe^{2+} 含有量の増加はメタン生成量の時間変化に影響する要因の一つであり、土壌 Fe^{2+} 含有量は土壌タイプによって異なることが報告されている¹⁸⁾。本研究において、フェーズ分け基準日の Fe^{2+} 生成比は、筑波土壌が51.1%、愛媛土壌が86.3%、鹿児島土壌が59.6%であった（図 2）。この

結果は、各土壌の被還元性鉄量の少なくとも50%以上が還元された後にメタン生成が大きく増加し始めることを示唆している。また、土壌の比表面積の増加に伴い被還元性鉄量が増加する傾向を示し（図 4）、これはRoden¹⁹⁾の報告と一致した。さらに、土壌 Fe^{2+} 含有量は被還元性鉄量が高いほど高くなる傾向がある²⁰⁾。これらを考慮すると、土壌の比表面積は、土壌 Fe^{2+} 含有量やその増加に要する期間の違いを通して各土壌タイプのメタン生成量の時間変化に影響を与えたと考えられる。加えて、Qu et al.²⁰⁾やWenjing et al.²¹⁾は、土壌タイプ間での Fe^{2+} 生成期間の違いに与える鉄還元菌の還元能や鉄の結晶度による影響を指摘している。

謝辞

供試土壌の採取に関して、筑波大学の林久喜 教授、愛媛大学の当真要 准教授（現、北海道大学教授）、鹿児島県農業開発総合センターの上蘭一郎 研究員、農業・食品産業技術総合研究機構農業環境研究部門（農研機構・農環研）の須藤重人 博士に感謝申し上げる。土壌の二価鉄濃度分析と比表面積測定に関して、農研機構・農環研の麓多門 博士、和穎朗太 博士、梶浦雅子 博士（現、農研機構・農業情報研究センター）に感謝申し上げる。

引用文献

- 1) Masson-Delmotte V, Zhai P, Pirani A, Connors SL, Péan C, Berger S, Caud N, Chen Y, Goldfarb L, Gomis MI, Huang M, Leitzell K, Lonnoy E, Matthews JBR, Maycock TK, Waterfield T, Yelekçi O, Yu R, Zhou B: Climate change 2021: the physical science basis: contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press, Cambridge, 2021.
- 2) Stams, AJM, Plugge, CM: The microbiology of methanogenesis. In: Reay, D, Smith, P, Van Amstel, A (eds) Methane and Climate Change, pp 14-26. Earthscan, London, 2010.
- 3) NIES (National Institute for Environmental Studies) : National greenhouse gas inventory report of Japan. Ministry of the Environment, Japan, 2022.
- 4) Cheng, W, Yagi, K, Akiyama, H, Nishimura, S, Sudo, S, Fumoto, T, Hasegawa, T: An empirical model of soil chemical properties that regulate methane production in Japanese rice paddy soils. Journal of Environmental Quality, 36, 1920-1925, 2007.

- 5) Win, TA, Toyota, K, Ito, D, Chikamatsu, S, Motobayashi T, Takahashi, N, Ookawa, T, Hirasawa, T: Effect of two whole-crop rice (*Oryza sativa* L.) cultivars on methane emission and Cu and Zn uptake in a paddy field fertilized with biogas slurry. *Soil Science and Plant Nutrition*, 62, 99-105, 2015.
- 6) Conen, F, Smith, KA, Yagi, K: Rice Cultivation. In: Reay, D, Smith, P, van Amstel, A (eds) *Methane and Climate Change*, Earthcan, London, pp115-135, 2010.
- 7) Ponnampertuma, FN: The chemistry of submerged soils. *Advances in Agronomy*, 24, 29-96, 1972.
- 8) Inubushi, K, Wada, H, Takai, Y: Easily decomposable organic matter in paddy soil. *Soil Science and Plant Nutrition*, 30, 189-198, 1984.
- 9) Watanabe, A, Kimura, M: Influence of chemical properties of soils on methane emission from rice paddies. *Communications in Soil Science and Plant Analysis*, 30, 17-18, 1999.
- 10) Mohanty, SR, Nayak, DR, Babu, YJ, Adhya, TK: Butachlor inhibits production and oxidation of methane in tropical rice soils under flooded condition. *Microbiological Research*, 159, 193-201, 2004.
- 11) Yagi, K, Minami, K: Effect of organic matter application on methane emission from some Japanese paddy fields. *Soil Science and Plant Nutrition*, 36, 599-610, 1990.
- 12) Itoh, M, Sudo, S, Mori, S, Saito, H, Yoshida, T, Shiratori, Y, Suga, S, Yoshikawa, N, Suzue, Y, Mizukami, H, Mochida, T, Yagi, K: Mitigation of methane emissions from paddy fields by prolonging midseason drainage. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 141, 359-372, 2011.
- 13) Takata, Y, Obara, H, Nakai, M, Kohyama, K: Process of the decline in the cultivated area with land use changes in Japan. *Japanese Journal of Soil Science and Plant Nutrition*, 82, 15-24, 2011 (in Japanese with English abstract).
- 14) Wilhelm, E, Battino, R, Wilcock, RJ: Low-pressure solubility of gases in liquid water. *Chemical Reviews*, 52, 219-262, 1977.
- 15) Fageria, NK, Carvalho, GD, Santos, AB, Ferreira, EPB, Knupp, AM: Chemistry of lowland rice soils and nutrient availability. *Communications in Soil Science and Plant Analysis*, 42, 1913-1933, 2011.
- 16) Achnich, C, Bak, F, Conrad, R: Competition for electron donors among nitrate reducers ferric iron reducers, sulfate reducers, and methanogens in anoxic paddy soil. *Biology and Fertility of Soils*, 19, 65-72, 1995.
- 17) Azam, F, Müller, C, Weiske, A, Benckiser, G, Ottow, JCG: Nitrification and denitrification as sources of atmospheric nitrous oxide - role of oxidizable carbon and applied nitrogen. *Biology and Fertility of Soils*, 35, 54-61, 2002.
- 18) Yao, H, Conrad, R, Wassmann, R, Neue, HU: Effect of soil characteristics on sequential reduction and methane production in sixteen rice paddy soils from China, the Philippines, and Italy. *Biogeochemistry*, 47, 269-295, 1999.
- 19) Roden, EE: Geochemical and microbiological controls on dissimilatory iron reduction. *Comptes Rendus Geoscience*, 338, 456-467, 2006.
- 20) Qu, D, Ratering, S, Schnell, S: Microbial reduction of weakly crystalline iron (III) oxides and suppression of methanogenesis in paddy soil. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 72, 1172-1181, 2004.
- 21) Wenjing, LU, Hongtao, W, Huang, C, Reichardt, W: Aromatic compound degradation by iron reducing bacteria isolated from irrigated tropical paddy soils. *Journal of Environmental Sciences*, 20, 1487-1493, 2008.
- 22) Minamikawa, K, Sakai, N: The practical use of water management based on soil redox potential for decreasing methane emission from a paddy field in Japan. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 116, 181-188, 2006.
- 23) Toma, Y, Oomori, S, Maruyama, A, Ueno, H, Nagata, O: 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, 2016.