

溶存硝酸の同位体組成をトレーサーに用いた富山県地下水中の窒素循環解析 Tracing the source and fate of nitrate in groundwater using ^{15}N , ^{17}O and ^{18}O

中川 書子^{1*}, 大山 拓也¹, 小松 大祐¹, 角皆 潤¹, 木戸 瑞佳², 溝口 俊明²

NAKAGAWA, Fumiko^{1*}, OHYAMA, Takuya¹, KOMATSU, Daisuke¹, TSUNOGAI, Urumu¹, Mizuka Kido², Toshiaki Mizoguchi²

¹ 北海道大学大学院理学研究院, ² 富山県環境科学センター

¹Fac. Sci., Hokkaido Univ., ²TESC

硝酸などの結合態窒素は植物の必須元素であり、制限元素であることが多い。地下水中における結合態窒素の起源や挙動を明らかにすることは、地下水系と陸上生態系の相互作用を明らかにする上で重要である。また、近年東アジア域を中心に大気中への人為的固定態窒素 (NO_x 等) の放出量が増大しており、これがもたらす硝酸沈着量の増大が陸上生態系に与える影響について関心が集まっている。Tsunogai et al.(2010) では、大気沈着硝酸だけが自然発生源で唯一 0 以外の値を示し、かつ一般の反応過程において値が変化しない、硝酸の三酸素同位体組成に着目し、それが大気から沈着する硝酸と陸上生態系間の相互作用を定量化するのに優れた指標であることを利尻島の調査結果で示した。そこで本研究では、利尻島に比べて大気からの窒素沈着量が大きい富山県において、地下水および降水 (湿性沈着) 試料中の硝酸の三酸素・窒素同位体組成を定量することにより、その起源や挙動の解析を試みた。

降水試料の採取は、富山県環境科学センターの小杉局において、2010年4月から2011年3月までの1年間、週毎に行った。地下水試料の採取は、2011年の9月と11月に行った。地下水試料は黒部、常願寺、庄川扇状地を中心とした富山県全域より採取した。採取した水試料は、直ちに0.2 μm のフィルターでろ過し、分析するまで冷蔵または冷凍保存した。硝酸の各同位体組成の測定には、McIlvin and Altabet (2005) が開発し、Tsunogai et al. (2008) が改良した化学法 (Chemical Conversion 法) を使って試料中の硝酸を一酸化二窒素に変換し、これを連続フロー型の質量分析システム (Komatsu et al. 2008) で定量を行った。

採取した地下水試料は、硝酸濃度が0.1 μM 以下のものから100 μM 以上の高濃度の硝酸を含むものまであり、地下水の起源となる水が経過してきた陸上生態系の違いを反映していると考えられる。硝酸の D^{17}O 値は平均+1.4 ‰ (最小+0.4 ‰から最大+4.0 ‰) となり、全試料において有意な D^{17}O 異常が見られるものの、大気沈着硝酸 (富山県小杉局の降水の平均 D^{17}O 値 = +26.8 ‰) に比べて小さい値をとることが確認された。特に、硝酸濃度が高い (50 μM 以上) 地下水試料の硝酸の D^{17}O 値は全て+1.5 ‰以下 (平均+0.9 ‰) であり、かつ硝酸の窒素同位体組成 (d^{15}N 値) が比較的高いことから、水田地帯の土壤に蓄積された再生硝酸が溶脱して地下水に加わり、大気沈着硝酸の寄与を5%以下と小さくしていると考えられる。これに対し、硝酸濃度が50 μM 未満の地下水試料については、硝酸の D^{17}O 値が+1 ‰から+4 ‰まで変動し、最大15%まで大気沈着硝酸の寄与があることが分かった。特に、硝酸の D^{17}O 値が+2 ‰以上を示す大気沈着硝酸の寄与が比較的高い地下水試料については、水の同位体組成 (d^{18}O 値=-12.3 ‰, dD 値=-78 ‰) がそれ以外の地下水試料の同位体組成 (d^{18}O 値=-9.8 ‰, dD 値=-59 ‰) に比べて低いことから、比較的標高が高く、植生に乏しい生態系を経由した地下水であることが考えられた。

< 謝辞 >

地下水試料の採取は、(株)ウエノの宮腰英幸氏および富山県環境科学センター水質課・生活環境課の職員の協力のもとに行われた。また、地下水試料の一部は日本黒部学会より提供されたものである。

キーワード: 三酸素同位体組成, 窒素同位体組成, 硝酸, 地下水, 窒素循環

Keywords: triple oxygen isotopes, nitrogen isotope, nitrate, groundwater, nitrogen cycle