

三酸素同位体組成で探る森林小集水域における渓流水中の硝酸の起源

Accurate quantification of atmospheric nitrate in stream water eluted from a small forested watershed using triple oxygen isotopic composition

*小幡 祐介¹、安藤 健太¹、大山 拓也¹、中川 書子¹、角皆 潤¹、山下 尚之²、齋藤 辰善²、佐瀬 裕之²

*Yusuke Obata¹, Kenta Ando¹, Takuya Ohyama¹, Fumiko Nakagawa¹, Urumu Tsunogai¹, Naoyuki Yamashita², Tatsuyoshi Saito², Hiroyuki Sase²

1.名大院環境、2.アジア大気汚染環境センター

1.Graduate school of Environmental Studies, Nagoya University, 2.Asia Center for Air Pollution Research

森林生態系は一般に NO_3^- や NH_4^+ などの窒素栄養塩（窒素）が欠乏していることが多いが、窒素負荷量が慢性的に多い森林生態系などでは、多量の窒素が NO_3^- の形で渓流水などを通じて流出する窒素飽和と呼ばれる現象が見られる。高 NO_3^- 濃度渓流水の流出は、下流域の湖沼や沿岸海域の生態系に対して、深刻な影響をもたらす可能性があるため、 NO_3^- に富んだ渓流水中の NO_3^- の起源や挙動を明らかにすることは極めて重要である。特に大気から森林生態系に沈着し、吸収や分解を受けずに直接流出する NO_3^- （大気 NO_3^- ）は、森林生態系内の窒素循環の活発さを反映して流出量が決まる可能性が高く、その定量化は極めて重要である。

これまで渓流水中の NO_3^- の起源や挙動の解析には $\delta^{15}\text{N}$ や $\delta^{18}\text{O}$ が用いられてきたが、一般の化学反応で変化しない三酸素同位体組成（ $\Delta^{17}\text{O}=\delta^{17}\text{O}-0.52\times\delta^{18}\text{O}$ ）指標を合わせて用いることで、より有用な起源や挙動の解析ができる可能性がある。そこで本研究では、大気からの窒素沈着量が比較的多く、流出する渓流水中の NO_3^- 濃度も高い加治川試験地（新潟県）において、 $\Delta^{17}\text{O}$ を主要な指標に用いて渓流水中の NO_3^- に占める大気 NO_3^- を定量化した。またこれをもとに渓流水中の NO_3^- が高濃度化している原因を調べた。具体的には、環境省越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング事業を通じて、降水、渓流水、土壌水（深さ20cm~60cm）をひと月程度の間隔で2年間に渡って採取した。

各試料中の NO_3^- 濃度はイオンクロマトグラフを用いて定量し、 NO_3^- の各同位体組成（ $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\Delta^{17}\text{O}$ ）はChemical Conversion法を用いて NO_3^- を N_2O 化または O_2 化した後、連続フロー型質量分析システムで定量した。土壌水中の NO_3^- の $\Delta^{17}\text{O}$ は+0%から+6%までの大きな季節変化を示すものの、 NO_3^- 濃度で加重平均した $\Delta^{17}\text{O}$ 値（+0.8%）は、同じく渓流水中の NO_3^- 濃度で加重平均した $\Delta^{17}\text{O}$ 値（+1.3%）とほぼ一致していた。これは土壌水が浸透し地下水となり、ある程度平滑化されたうえで渓流水として流出していることを反映するもので、渓流水の主要供給源は地下水であることを示すものと考えられる。

さらに、加治川試験地に沈着するすべての NO_3^- のうち何割が直接大気 NO_3^- として渓流水に流出するか、 $\Delta^{17}\text{O}$ を指標に用いて見積もった。その結果、 $9.2\pm 4.4\%$ という値を得た。これは、Roseら（2015）が窒素飽和が起きている集水域で報告している値と整合的であった。さらに、Tsunogaiら（2014）は、伐採地から流出する渓流水では、この大気 NO_3^- の直接流出率が30~40%に達することを報告している。これらの観測値は、渓流水などを通じた大気 NO_3^- の直接流出率は、森林生態系内の窒素循環が活発か否かを反映していることを示している。

これまで欧米では、渓流水中の NO_3^- 濃度の絶対値以外に、 NO_3^- の季節変動の有無が窒素飽和の指標として用いられてきた（Stoddard, 1994）。しかし日本では窒素飽和の起きていない健全林であっても季節変動が喪失することをMitchellら（1997）が報告している。つまり日本では、渓流水中の NO_3^- 濃度の季節変化の喪失を窒素飽和の指標として用いることはできず、日本における窒素飽和の指標は NO_3^- 濃度だけであった。 $\Delta^{17}\text{O}$ を用いて算出される大気 NO_3^- の直接流出率は季節変化の喪失に代わる新たな窒素飽和の指標となる可能性が高い。

キーワード：窒素飽和、三酸素同位体組成、森林生態系

Keywords: nitrogen saturation, triple oxygen isotopic composition, forest ecosystem