

主要成果

窒素・酸素安定同位体自然存在比を用いた

地下水中の硝酸イオンの起源推定と脱窒過程の評価

[要約]

脱窒による硝酸イオンの窒素と酸素の同位体濃縮係数の精度の高い推定に成功し、これに基づいて、硝酸イオンの窒素・酸素安定同位体自然存在比の測定から、農業集水域における地下水中の硝酸イオンの起源と脱窒の進行程度を同時に明らかにしました。

[背景と目的]

流域内での硝酸イオンの起源や形態変化の解明には、これまで窒素安定同位体自然存在比 ($\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^-$) を用いた手法がよく使われてきましたが、 $\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^-$ 値は起源によって異なるだけでなく、脱窒などの形態変化によっても変化するため、起源と形態変化を同時に明らかにするのは困難でした。そこで、農業集水域における地下水中の硝酸イオンの起源と脱窒の進行程度を同時に明らかにするために、硝酸イオンの濃度と $\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^-$ に加えて酸素安定同位体比 ($\delta^{18}\text{O}\text{-NO}_3^-$) も同時に測定し、評価を行いました。

[成果の内容]

硝酸イオンの安定同位体自然存在比 ($\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^-$ および $\delta^{18}\text{O}\text{-NO}_3^-$) は起源によって異なる値をとると同時に、脱窒による濃度減少にしたがってレイリー・モデルで表される関係を保ちながら上昇することが知られています (表 1)。なお、 $\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^-$ および $\delta^{18}\text{O}\text{-NO}_3^-$ は、脱窒菌法 (Casciotti et al., 2002) を用いることにより、従来よりも微量の試料について測定が可能です。

土壌カラムを用いた培養実験では、土壌溶液中の硝酸イオン濃度の対数と $\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^-$ および $\delta^{18}\text{O}\text{-NO}_3^-$ の間に直線関係がありました (図 1 a, b)。この変化はいずれもレイリー・モデルと合致し、脱窒による同位体比の変化が確認されました。これらの傾きから、脱窒による窒素および酸素の同位体濃縮係数 (ϵ) を世界で初めて精度よく求めることに成功しました (図 1 a, b)。これにより、脱窒による窒素・酸素安定同位体比の増加比 ($\Delta\delta^{18}\text{O}\text{-NO}_3^-/\Delta\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^- = 18\epsilon/15\epsilon$) が精度良く求められました (図 1 c)。

台地畑-谷津田連鎖系の地下水調査 (図 2) では、流域上部の畑地の $\delta^{18}\text{O}\text{-NO}_3^-$ は硝化由来の硝酸イオンの $\delta^{18}\text{O}\text{-NO}_3^-$ に近い値をとっていることから、脱窒があまり起こっておらず、結果として流域上部の畑地の $\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^-$ は起源の異なる硝酸イオンの同位体比を反映していると考えられます。また、化学肥料を起源とする硝酸イオンの $\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^-$ と $\delta^{18}\text{O}\text{-NO}_3^-$ は直線的に変化しており、流域上部の畑地から下部の谷津田へと至る過程で脱窒を受けていることが確認されました。

リサーチプロジェクト名：栄養塩類リスク評価リサーチプロジェクト

研究担当者：物質循環研究領域 中島泰弘、尾坂兼一 (現：滋賀県立大学)、江口定夫、加藤英孝、
土壌環境研究領域 藤原英司、松森堅治 ((独) 農業・食品産業技術総合研究機構農村工学研究所)

発表論文等：中島泰弘ら、日本土壌肥料学会講演要旨集、54: 17 (2008)

表1 レイリー・モデル

$\delta^{15}\text{N-NO}_3^- = \delta^{15}\text{N}_0\text{-NO}_3^- + {}^{15}\epsilon \ln(C/C_0)$	$\delta^{18}\text{O-NO}_3^- = \delta^{18}\text{O}_0\text{-NO}_3^- + {}^{18}\epsilon \ln(C/C_0)$
$\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$: 試料の窒素安定同位体比 $\delta^{15}\text{N}_0\text{-NO}_3^-$: 脱窒前の試料の窒素安定同位体比 ${}^{15}\epsilon$: 窒素安定同位体濃縮係数	$\delta^{18}\text{O-NO}_3^-$: 試料の酸素安定同位体比 $\delta^{18}\text{O}_0\text{-NO}_3^-$: 脱窒前の試料の酸素安定同位体比 ${}^{18}\epsilon$: 酸素安定同位体濃縮係数
C : 試料の濃度 C ₀ : 脱窒前の試料の濃度	

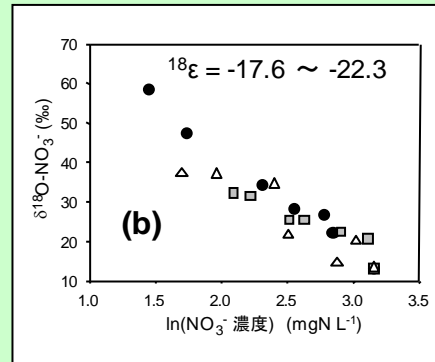
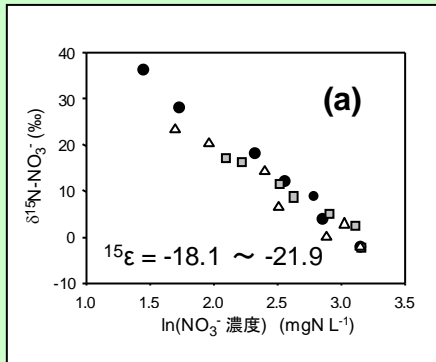


図1 カラム実験（3反復）における硝酸イオン濃度の自然対数と $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ (a)、 $\delta^{18}\text{O-NO}_3^-$ (b)の関係と、 $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ と $\delta^{18}\text{O-NO}_3^-$ の関係(c) NO_3^- 濃度の対数と安定同位体比のプロットの傾きから同位体濃縮係数が求められました (a、b)。また、 $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ と $\delta^{18}\text{O-NO}_3^-$ の関係から ($\Delta \delta^{18}\text{O-NO}_3^- / \Delta \delta^{15}\text{N-NO}_3^- = {}^{18}\epsilon / {}^{15}\epsilon$) が精度良く求められました (c)。

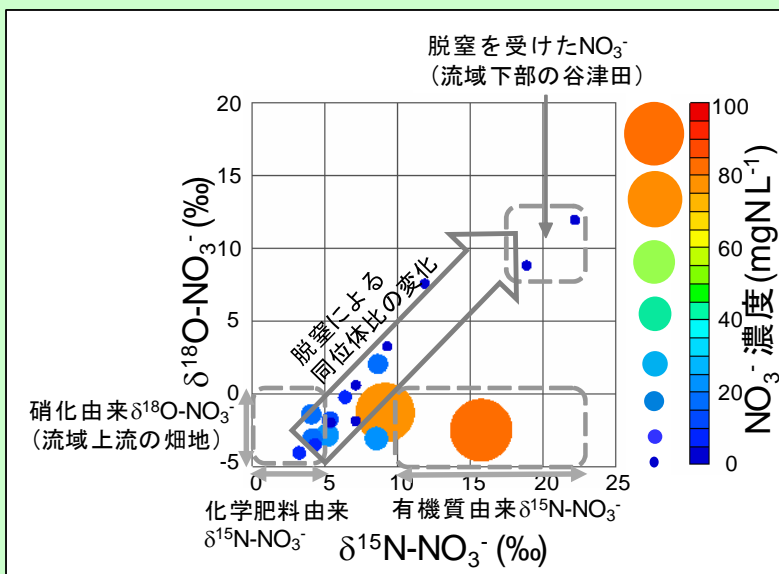
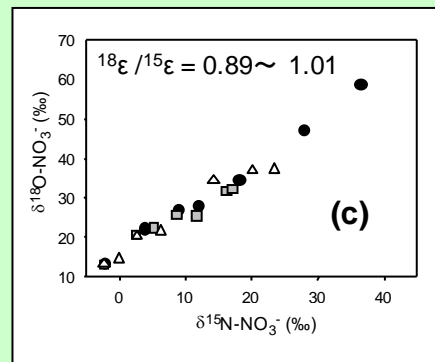


図2 台地畑－谷津田連鎖系(茨城県石岡市)における浅層地下水の硝酸イオン濃度および窒素・酸素安定同位体自然存在比の空間分布

流域上部の畑地では起源の異なる硝酸イオンが存在していること、また流域上部の畑地から下部の谷津田にかけて NO_3^- 濃度の低下および $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ と $\delta^{18}\text{O-NO}_3^-$ の上昇がみられ、脱窒がさかんに起こっていることがわかります。