

N₂O 生成・還元を考慮した底質モデルを用いた 水質変動による N₂O 生成挙動

ANALYSIS OF N₂O PRODUCTION IN CASE OF WATER QUALITY CHANGE BY A N₂O
PRODUCTION AND REDUCTION SEDIMENTS MODEL

今村 正裕¹・松梨 史郎²
Masahiro IMAMURA, Shiro MATSUNASHI

¹ 正会員 工修 (財) 電力中央研究所 環境科学部 (〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子 1646)

² 正会員 工博 (財) 電力中央研究所 環境科学部 (〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子 1646)

The estuary and its adjacent coastal area is a hot spot acting as filter as well as a reactor between land and ocean. The functions are associated with several processes such as biological, biochemical, geochemical and physical ones. As the biological process, nitrification and denitrification occur both near the surface of sediments and in water column. Nitrous oxide (N₂O), greenhouse effect gas, is one of the intermediates, in the nitrification and denitrification processes. The gassing the atmosphere is low in concentration, about 320ppbv at present it, however, has been increasing by 0.8ppbv annually.

We study that emission of N₂O from sediments in the bay obviously changed due to various change of sediment water quality, making use of sediment-water quality model, at Tokyo bay and Hakata bay. This model was simple layer model, consisted of nitrification, denitrification and oxidizing organic compound.

Simulation results showed that emission of N₂O from sediments were high rate due to upper water quality changing, not only nutrient concentration but water temperature and oxygen consumption. Emissions of N₂O from sediments at bay head of Tokyo bay were much more than other three stations of Hakata bay.

Key Words: N₂O, eutrophication, Nutrients, sediment-model, environmental effect

1. はじめに

富栄養化の進んでいる閉鎖性湾では、これまで流入負荷の削減により水質改善が進められてきた。この努力によって湾内の水質は徐々にではあるが回復している。しかし、過去 10 年以上における傾向を見ると湾内の平均的な COD・リン濃度の減少に対し、窒素濃度は逆に増加する傾向にある¹⁾。下水道の整備に伴い、近年処理水による河川への負荷が目立っている。特に、感潮域では下水処理水の放流水が一つの河川をになっている場合もある。下水処理場では有機物の酸化にとどまらず、窒素やリンを完全に還元するシステムを採用する処理場があるがその数は少なく、酸化過程の中間及び最終生成物である NH₄-N, NO₂-N, NO₃-N, N₂O-N が河川や湾への負荷として流入している。無機態窒素のなかでも、微量地球温暖化ガスとして注目されているのが N₂O-N である。N₂O-N の大気中濃度は現在約 320ppbv 程度ではあるが、大気中での寿命が長く、赤外線吸収能力も CO₂

よりはるかに高い。大気中の N₂O-N 濃度は年々増加傾向にあり²⁾、発生源は水田・湖・工場・焼却場・車・病院での麻酔と多様である^{3) 4) 5) 6)}。河川、湖、閉鎖的な湾における N₂O-N の挙動は、直接負荷だけではなく環境中に存在する無機態物質 (NH₄-N, NO₂-N, NO₃-N) の生物学的反応によっても生成される。例えば、底泥における N₂O-N の生成に関して Binnerup⁷⁾ は同位体を使うことで底泥内の脱窒特性について実験している。さらに、N₂O-N の生成・還元反応である硝化・脱窒からの N₂O の挙動については底泥表層の酸素濃度と NO₃-N 濃度によって決定されていることが実験的な観点から報告されている⁸⁾。一般的な底質モデル内の窒素循環は、最終的に窒素が脱窒でなくなるといった反応であり、脱窒が阻害された場合に生成される中間生成物 (N₂O, N₂) についてはあまり議論されていない。しかし、今後富栄養化防止策として湾への流入負荷削減により閉鎖性水域の水質が変動した場合に、その変動インパクトがどの程度底泥の物質循環、最終的には N₂O 生成に影響を与

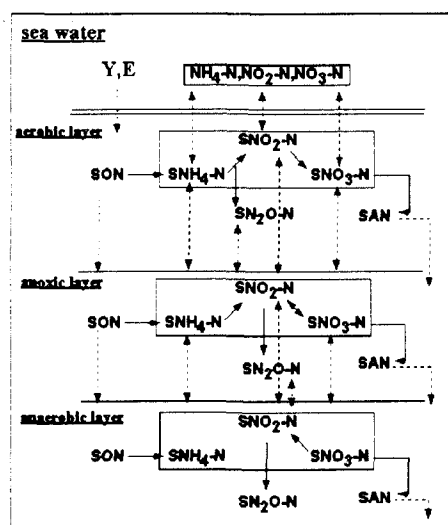


図-1 底質モデル概念図

えるかをモデルによって表現した例はほとんどない。さらに、沿岸環境のアセスメントを行うにあたって柔軟に対応するためにもこのようなモデルは有用であると考えられる。

本研究では、これまでの知見をもとに N_2O 生成・還元を考慮した底質モデルを作成し閉鎖性水域として代表的な2地点（東京湾・博多湾）について直上水質変動によってどのように底泥内物質と N_2O が挙動するかについて検討した。

2. モデル基礎式

底質モデルはこれまでさまざまな物質を対象にしているものが構築されている。堀江ら⁹⁾は底泥のリンを中心に、李ら¹⁰⁾は直上の溶存酸素とリンの関係を表現している。一方、窒素に関するモデルでは生物反応過程である硝化・脱窒まで考えているものはあるものの中間生成物である N_2O についてモデルに組み込んでいる例は少ない。

本底質モデルの構成要素は、底泥を構成する有機物 (SON)、間隙水中の無機態物質 (SNH_4-N , SNO_2-N , SNO_3-N , SN_2O-N)、底泥に吸着している無機態物質 (SAN) である。 N_2O 生成過程である窒素に関する反応は、無機態物質を NH_4-N , NO_2-N , NO_3-N , N_2O-N とし式を構築した。

さらに、底泥内の酸素濃度は表層の粒度組成がシルト質の場合は表層から5mm程度、砂分でもせいぜい2cm程度までしか存在しないことがわかっている(佐々木¹¹⁾, 中村¹²⁾)。そこで、本モデルでは、鉛直1次元多層モデルにより直上の溶存酸素濃度 (LDO) が低下した場合は1層 (1cm) のみ (下限値 $4g/m^3$)、増加した場合は2層 (2cm) までを好気層とした。それ以下は無酸素層・嫌気層とし上層から下層までを5層に分けた。無酸素層は、直上水中の溶存酸

素濃度の20%が存在するとし、硝化・脱窒両反応を考慮した層である。さらに嫌気層では、脱窒と有機物の分解のみの反応を考慮した層である。

本底質モデルでは、底泥を構成する有機物を直上から供給されるものとした。また、有機態窒素は好気層ではバクテリアによる酸化反応により、嫌気層では加水分解によって NH_4-N に変換されるとした。

無機態間の反応は、著者ら¹³⁾¹⁴⁾が構築したものを改良し使用した。 N_2O は窒素変換過程である硝化・脱窒の両過程において生成・還元される。これまでの研究で N_2O の生成はほとんどが脱窒起因であるが、硝化からの N_2O 生成も考慮し、硝化については無酸素層まで、脱窒は無酸素層から反応が始まるものと考えた。つまり、無酸素層では両反応が同時に起こるものとした。モデルの概念図を図-1に示す。

各反応式は基質・溶存酸素・温度の関数とし Monod 結合型の式を使用した。以下に各物質収支式を示す。

a) 底質を構成する有機態窒素 (SON)

$$\frac{\partial SON_k}{\partial t} = \frac{W_y \sigma_{Ny} Y_x + W_E E}{\Delta h(1 - \phi_k)} - \frac{W_{sed} SON_k}{\Delta h_k} - (a_1 - 1) \text{ or } (a_2 - 2)$$

2層目以降

$$= \frac{W_{sed} SON_{k-1}(1 - \phi_k)}{\Delta h(1 - \phi_k)} - \frac{W_{sed} SON_k}{\Delta h_k} - (a_1 - 1) \text{ or } (a_2 - 2)$$

b) 底泥間隙水中 NH_4-N (SNH_4)

$$\begin{aligned} \frac{\partial SNH_4_k}{\partial t} = & -K_{NHK} \frac{SNH_4_k - NH_4}{\Delta h_k^2 / 2} \\ & + K_{NHK} \frac{SNH_4_{k+1} - SNH_4_k}{(\Delta h_{k+1} + \Delta h_k) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_{k+1} + \phi_k}{2} \right) \\ & + (a_1 - 1) \text{ or } (a_1 - 2) - a_2 - a_7 - K_{NADS1} SNH_4_k \end{aligned}$$

2層目以降

$$\begin{aligned} = & -K_{NHK} \frac{SNH_4_k - SNH_4_{k-1}}{(\Delta h_k + \Delta h_{k-1}) / 2 \cdot \Delta h_k \phi} \left(\frac{\phi_k + \phi_{k-1}}{2} \right) \\ & + K_{NHK} \frac{SNH_4_{k+1} - SNH_4_k}{(\Delta h_{k+1} + \Delta h_k) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_{k+1} + \phi_k}{2} \right) \\ & + (a_1 - 1) \text{ or } (a_1 - 2) - a_2 - a_7 - K_{NADS1} SNH_4_k \end{aligned}$$

c) 底泥間隙水中 NO_2-N (SNO_2)

表-1 各生物反応式

$$\begin{aligned} \frac{\partial SNO2_k}{\partial t} = & -K_{NO2K} \frac{SNO2_k - NO2}{\Delta h_k^2 / 2} \\ & + K_{NO2K} \frac{SNO2_{k+1} - SNO2_k}{(\Delta h_{k+1} + \Delta h_k) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_{k+1} + \phi_k}{2} \right) \\ & + a_2 - a_3 + a_4 - a_5 - K_{NADS2} SNO2_k \end{aligned}$$

2層目以降

$$\begin{aligned} = & -K_{NO2K} \frac{SNO2_k - SNO2_{k-1}}{(\Delta h_k + \Delta h_{k-1}) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_k + \phi_{k-1}}{2} \right) \\ & + K_{NO2K} \frac{SNO2_{k+1} - SNO2_k}{(\Delta h_{k+1} + \Delta h_k) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_{k+1} + \phi_k}{2} \right) \\ & + a_2 - a_3 + a_4 - a_5 - K_{NADS2} SNO2_k \end{aligned}$$

d) 底泥間隙水中 $NO_3-N(SNO3)$

$$\begin{aligned} \frac{\partial SNO3_k}{\partial t} = & -K_{NO3K} \frac{SNO3_k - NO3}{\Delta h_k^2 / 2} \\ & + K_{NO3K} \frac{SNO3_{k+1} - SNO3_k}{(\Delta h_{k+1} + \Delta h_k) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_{k+1} + \phi_k}{2} \right) \\ & + a_3 - a_4 - K_{NADS3} SNO3_k \end{aligned}$$

2層目以降

$$\begin{aligned} = & -K_{NO3K} \frac{SNO3_k - SNO3_{k-1}}{(\Delta h_k + \Delta h_{k-1}) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_k + \phi_{k-1}}{2} \right) \\ & + K_{NO3K} \frac{SNO3_{k+1} - SNO3_k}{(\Delta h_{k+1} + \Delta h_k) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_{k+1} + \phi_k}{2} \right) \\ & + a_3 - a_4 - K_{NADS3} SNO3_k \end{aligned}$$

e) 底泥間隙水中溶存 $N_2O-N(SN2O)$

$$\begin{aligned} \frac{\partial SN2O_k}{\partial t} = & -K_{N2OK} \frac{SN2O_k - N2O}{\Delta h_k^2 / 2} \\ & + K_{N2OK} \frac{SN2O_{k+1} - SN2O_k}{(\Delta h_{k+1} + \Delta h_k) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_{k+1} + \phi_k}{2} \right) \\ & + a_5 - a_6 + a_7 \end{aligned}$$

2層目以降

$$\begin{aligned} = & -K_{N2OK} \frac{SN2O_k - SN2O_{k-1}}{(\Delta h_k + \Delta h_{k-1}) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_k + \phi_{k-1}}{2} \right) \\ & + K_{N2OK} \frac{SN2O_{k+1} - SN2O_k}{(\Delta h_{k+1} + \Delta h_k) / 2 \cdot \Delta h_k \phi_k} \left(\frac{\phi_{k+1} + \phi_k}{2} \right) \\ & + a_5 - a_6 + a_7 \end{aligned}$$

f) 吸着されている無機態窒素 (SAN)

a1(有機物の酸化分解)	
$(a_1 - 1) = K_{SON1} \cdot SON \cdot \frac{LDO}{k_{DON} + LDO} \cdot \theta_{SON1}^{T-20}$	
a1-2(有機物の嫌気分解)	
$(a_1 - 2) = K_{SON2} (SON_k - SON_0) \theta_{SON2}^{T-20}$	
a2(硝化 $NH_4-N \rightarrow SNO2-N$)	
$a_2 = K_{nit20} \cdot \frac{SNH4}{k_{SNH} + SNH4} \cdot \frac{LDO}{k_{LDONH} + LDO} \cdot \theta_{nit20}^{T-20} \cdot SNH4$	
a3(硝化 $SNO2-N \rightarrow SNO3-N$)	
$a_3 = K_{nit20} \cdot \frac{SNO2}{k_{SNO2} + SNO2} \cdot \frac{LDO}{k_{LDONO} + LDO} \cdot \theta_{nit20}^{T-20} \cdot SNO2$	
a4(脱窒 $SNO3-N \rightarrow SNO2-N$)	
$a_4 = D_{DNT1} \cdot \frac{SNO3}{k_{SNO3} + SNO3} \cdot \frac{k_{LDONO3}}{k_{LDONO3} + LDO} \cdot \theta_{DNT1}^{T-20} \cdot SNO3$	
a5(脱窒 $SNO2-N \rightarrow SN2O-N$)	
$a_5 = D_{DNT2} \cdot \frac{SNO2}{k_{SNO2} + SNO2} \cdot \left(\frac{k_{LDONO2}}{k_{LDONO2} + LDO} \right)^2 \cdot \theta_{DNT2}^{T-20} \cdot SNO2$	
a6(脱窒 $SN2O-N \rightarrow SN2$)	
$a_6 = D_{DNT3} \cdot \frac{SN2O}{k_{SN2O} + SN2O} \cdot \left(\frac{k_{LDON2O}}{k_{LDON2O} + LDO} \right)^2 \cdot \theta_{DNT3}^{T-20} \cdot SN2O$	
a7(硝化 $SNH_2OH \rightarrow SN2O$)	
$a_7 = a_2 \cdot \frac{k_{LDON2O}}{k_{LDON2O} + LDO}$	

表-2 パラメーター

記号	単位	値	文献	文献番号
水質パラメータ				
クロロフィルa・有機態窒素	Y・E	g/m ³		
沈降速度	W_s, W_E	m/day	0.5	0.1-3.0 9, 10
底質パラメータ				
土粒子の密度	ρ_s	g/m ³	2.4×10^4	-
堆積速度	W_{SD}	m/day	0.0001	$10^{-5} \sim 10^{-4}$ 9, 10
NH_4-N の拡散係数	K_{NH4}	m ² /day	2.0×10^{-5}	
NO_3-N の拡散係数	K_{NO3}	m ² /day	1.9×10^{-5}	
NO_2-N の拡散係数	K_{NO2}	m ² /day	1.5×10^{-5}	
N_2O-N の拡散係数	K_{N2O}	m ² /day	2.5×10^{-5}	
プランクトンに関する底質から底質への換算係数	ϕ	—	10	7.0-12 21
閉鎖率	ϕ	—	0.9	仮定値
有機物窒素の分解				
有機物酸化分解速度	K_{SON1}	day ⁻¹	0.008	0.1~0.004 15, 18
有機物嫌気分解速度	K_{SON2}	day ⁻¹	0.002	0.1~0.004 15, 18
酸化分解速度における直上DO半飽和定数	k_{DON}	gN/m ³	3	0.5~5 15, 18
分解可能な有機態窒素	SON_0	gN/m ³	0.0017	
硝化				
● NH_4-N の硝化分解($NH_4-N \rightarrow NO_2-N$)				
20℃における硝化速度	K_{nit20}	day ⁻¹	0.003	0.0004~0.003 15, 18
硝化速度における NH_4-N の半飽和定数	k_{SNH}	gN/m ³	2	0.06~15 17, 18
硝化速度における直上DO半飽和定数	k_{LDONH}	gN/m ³	0.2	0.3~2.0 17, 18
硝化による N_2O 生成における直上DO半飽和定数	k_{LDON2O}	gN/m ³	0.8	仮定値
● NO_2-N の硝化分解($NO_2-N \rightarrow NO_3-N$)				
20℃における硝化速度	K_{nit20}	day ⁻¹	0.003	0.0003~0.003 18
硝化速度における NO_2-N の半飽和定数	k_{SNO}	gN/m ³	2	0.06~15 18
硝化速度における直上溶存酸素の半飽和定数	k_{LDONO}	gN/m ³	0.2	0.3~2.0 18
脱窒				
● NO_3-N 還元				
脱窒速度($NO_3-N \rightarrow NO_2-N$)	D_{DNT1}	day ⁻¹	0.002	0.002~0.012 15, 16, 17
脱窒速度における NO_3-N 半飽和定数	k_{SNO3}	gN/m ³	2	0.15~88 18
脱窒速度における直上DO半飽和定数	k_{LDON3}	gN/m ³	0.001	0.06~8.4 17, 18
● NO_2-N 還元				
脱窒速度($NO_2-N \rightarrow N_2O$)	D_{DNT2}	day ⁻¹	0.004	0.002~0.012 16
脱窒速度における NO_2-N 半飽和定数	k_{SNO2}	gN/m ³	0.1	0.01~3.7 16
脱窒速度における直上DO半飽和定数	k_{LDON2}	gN/m ³	0.001	0.06~8.4 16
● N_2O 還元				
N_2O 分解速度(脱窒: $N_2O \rightarrow N_2$)	D_{DNT3}	day ⁻¹	0.004	0.002~0.012 19
N_2O 分解速度における N_2O の半飽和定数	k_{SN2O}	gN/m ³	0.4	0.01~3.7 19
N_2O 分解速度における直上DO半飽和定数	k_{LDON2O}	gN/m ³	0.001	0.06~8.4 19
吸着速度				
NH_4-N の吸着速度	K_{NADS1}	day ⁻¹	0.4-0.05	実験値
NO_3-N の吸着速度	K_{NADS2}	day ⁻¹	0.02-0.01	実験値
NO_2-N の吸着速度	K_{NADS3}	day ⁻¹	0.02-0.01	実験値

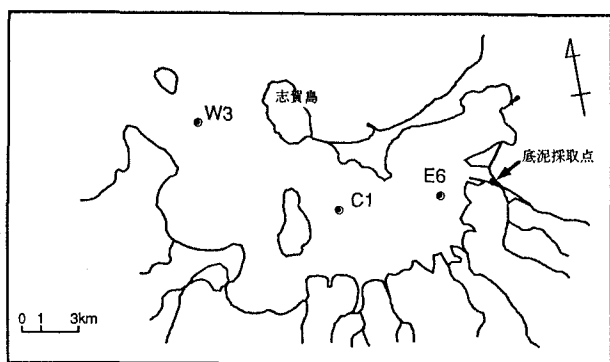


図-5 博多湾観測点

N2O が低下する傾向にあることが示された。

図-4 に SNH4-N の直上水への溶出速度を示す。夏場の東京湾湾奥では、SNH4-N が底質から溶出することが知られている¹³⁾。SNH4-N に関し、同じ底泥柱状試料による実験結果と計算結果を比較すると季節的傾向はほぼ一致していた。東京湾での溶出速度が表現できたことは、このモデルの妥当性を示すものと考ええる。さらに、このような簡易的なモデルによって底泥での窒素形態挙動が把握できるものと考ええる。

5. 博多湾への適用

次に、上記のモデルを用い博多湾への適用を試みた。最初に底泥内の N_2O について観測を行っている点を対象に検証を行った。底質の観測点は図-5 に示すように、博多湾に流れ込む河川の中でもっとも流量が大きな河川感潮域で、1994 年 6・9 月に採取した試料結果²⁵⁾を対象にした。

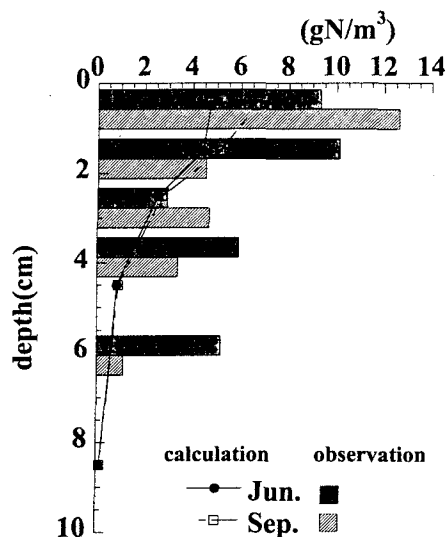
図-6 に SNH4-N、SN20-N の底泥内濃度鉛直分布の計算結果と観測結果を示す。

博多湾の観測結果をみると、東京湾と異なる傾向をみせる。SNH4-N の鉛直分布は、東京湾で下層にいくほど増加するのに対し、博多湾では表層がもっとも高濃度でそれ以層では減少する傾向をみせる。計算結果もこの分布形状、さらに 9 月の増加傾向を表現できている。

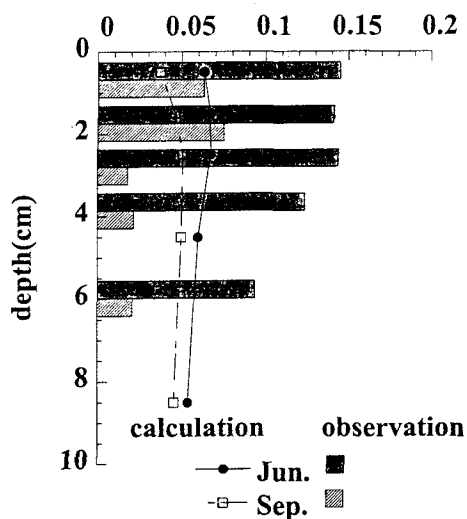
SN20-N は 2~4cm で高い傾向を表現できている。しかし、観測値が高く計算値とは若干異なっている。検証用とした底泥の観測地点は干潮時に露呈したものを採取しており、さらに下水処理場の処理水から直接 NO_3-N や N_2O が供給される場であるため、短時間に表層を這う水の N_2O ・ NO_3-N 濃度が高い傾向にある。短い時間ステップで直上水のインプット条件を変化することで対応できると考えるが、本計算では年間変動の把握を目的としており、中層での N_2O 蓄積を評価できていることが重要と考える。

6. 水質変動による N_2O 生成挙動

閉鎖的な湾では流入負荷量の変動により湾内の水



(a)底泥中のアンモニア態窒素 (SNH4-N) (gN/m^3)



(b)底泥中 N_2O (SN20-N)

図-6 底泥内物質濃度鉛直分布 (博多湾)

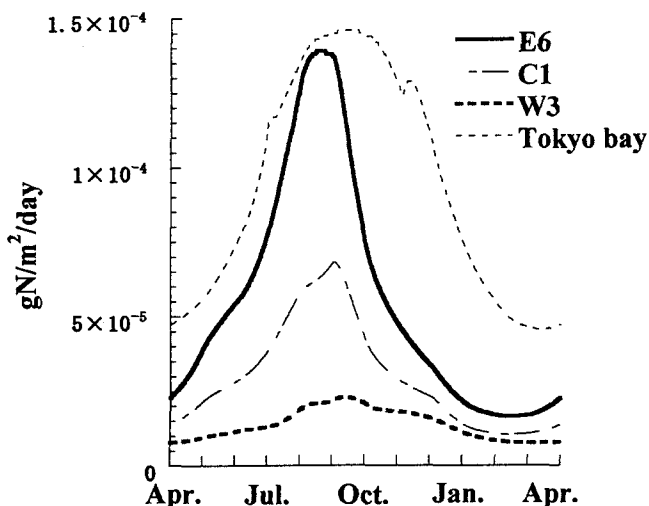


図-7 各地点での底泥中 N_2O (SN20) の溶出速度

質が大きくかわる。特に局所的な気象変化（降雨等）によって湾内での水質環境も大きく変化をみせる。環境変化に対する、特定物質の挙動を把握することは今後の環境影響評価においても重要であると考えられる。

そこで、簡易的に直上の水質が季節的・場所的に変化した場合、対象とする底泥内物質がどのような挙動をみせるかについて N_2O を中心に検討した。

計算は、博多湾の湾奥・湾中央・湾口を対象に、代表する地点の水質データを用い計算を行った（湾奥 E6, 湾中央 C1, 湾口 W3）。博多湾の公共水域データ²³⁾²⁴⁾をもとに直上水の水質を年間に渡って変動させた場合の底泥内 N_2O-N の変動を算出した。

図-7 に東京湾を含めた底泥から直上水への N_2O flux の変動を示す。すべての地点で、季節的に夏から秋にかけて N_2O flux が増加する傾向にある。大きさをみると東京湾がもっとも大きく、ついで博多湾の湾奥、湾中央、湾口の順であり、湾口ではかなり小さく季節の変動も小さい。このような N_2O の増減は、多くは直上水の栄養塩とくに NO_3-N に起因すると言われている。しかし、実際にインプットとして与えた直上水の NO_3-N 濃度が高くても、冬場といった水温の著しく低下する時期には生物反応活性の低下によって生成は抑えられていると考えられる。また、東京湾奥ではそれでも NO_3-N や NH_4-N が年間を通じて高いことから全体として高くなったと考えられる。

7. 結論

一般的なモデル内の窒素循環は、脱窒が阻害された場合に生成される中間生成物についてあまり議論されていない。しかし、近年観測結果から N_2O が底泥に多く存在することがわかり、底泥内での物質循環を考える上で、脱窒や硝化からの N_2O をきちんと表現できるモデルの必要性がでてきたと言える。

本論文では、 N_2O の反応を考慮した底質モデルによって底泥内の N_2O を中心にした窒素形態物質濃度の表現が可能になった。本計算では、東京湾及び博多湾を対象に、無機態窒素の鉛直分布の傾向をあらわすことができた。さらに、直上水の水質変動による底泥内物質濃度の変動について検討を行った。その結果、底泥からの N_2O flux は直上水の溶存酸素、さらには窒素形態の変動によって大きく影響を受けていることがわかった。ただ、本モデルで底泥の組成や底生生物の働きといった項については考慮しておらず、さらに実証データが少ないことから今後さらなる検討が必要と考える。

参考文献

- 1) Kawabe M. and M. Kawabe: Factors determining chemical oxygen demand in Tokyo Bay. *J. Oceanogra.*, 53, 443-453, 1997
- 2) Intergovernment Panel on climate change, Scientific Assessment of Climate Change, 1990
- 3) Dasch, M.J., Nitrous oxide emission from vehicles, *J. Air*

Waste Manage. Assoc., Vol.42, pp.63-67, 1992

- 3) Eichner, M., Nitrous Oxide emission from fertilized soils: Summary of available data, *J. Environ. Qual.*, Vol.19, pp.272-280, 1990
- 4) Khalil, M.A.K. and Rasmussen, R.A., The global sources of nitrous oxide, *J. Geophys. Res.*, Vol.97, No.D13, pp.14651-14660, 1992
- 5) Robertson, K., Emission of N_2O in Sweden-natural and anthropogenic sources, *Ambio*, Vol.20, No.3-4, 1991
- 7) Binnerup, S.J., Jensen, N.P., Revsbech, M.H., Jensen, and J. Sorensen., Denitrification, dissimilatory reduction of nitrate to ammonium, and nitrification in a bioturbated estuarine sediment as measured with ^{15}N and microsensor techniques, *Appl. Environ. Microbiol.*, Vol.58, No.1, pp.303-313, 1992
- 8) Rysgaard, S., N. Risgaard-Petersen, N.P. Sloth, K. Jensen, and L.P. Nielsen, Oxygen regulation of nitrification and denitrification in sediments, *Limnol. Oceanogr.*, Vol.39(7), pp.1643-1652, 1994
- 9) 堀江 毅・細川恭史: 海底下底泥のリン挙動モデルについて、港研報告, 第23巻, 第2号, pp.49-74, 1984
- 10) 李 寅鉄, 浮田正夫・関根雅彦, 中西 弘: 底質モデルによる瀬戸内海の水管理に関する研究, 土木学会論文集, No.545/II-36, pp.101-112, 1996
- 11) 佐々木克之: 内湾及び干潟における物質循環と生物生産 {13} -一色干潟における脱窒素反応による窒素の消失-, 海洋と生物, Vol.17, No.1, pp.16-23, 1995
- 12) 中村由行・井上徹教・Fatos K.・左山幹雄: 微小電極を用いた濃度境界層の微細構造の把握, 海岸工学論文集, Vol.43, pp.1081-1085, 1995
- 13) 今村正裕・松梨史郎: 都市河川の流入する湾奥部における水-底質モデルの開発, 電中研報告, U97050, 1997
- 14) 松梨史郎・今村正裕: 湾奥水域における水-底質予測と負削減に伴う水質および栄養塩溶出フラックスの応答, 土木学会論文集, No.608/VII-9, pp.31-47, 1998
- 15) Foster R.C.: Microenvironments of soil microorganisms, *Biology and Fertility of soils*, Vol.6, pp.189-203, 1988
- 16) Hallberg R.O.: Some factors of significance in the formation of sedimentary metal sulphides, *Stockholm Contribution in Geology*, Vol.14, pp.39-69, 1967
- 17) Currie J.: Gaseous diffusion in the aeration of aggregated soils, *Soil Science*, Vol.92, pp.40-45, 1962
- 18) Leffelaar P.A.: Simulation of partial anaerobiosis in a model soil in respect to denitrification, *Soil Science*, Vol.128, pp.110-120, 1979
- 19) Smith K.A.: A model of the extent of anaerobic zone in aggregated soils, and its potential application to estimates of denitrification, *Journal of Soil Science*, Vol.49, pp.886-891
- 20) 真鍋武彦: 海産珪藻 *Skeletonema co.* の元素組成とそれから導かれる理論組成式, *Bulletin of plankton society of Japan*, Vol.36, No.1, pp.44-46, 1989
- 21) Nishio, T., Koike, I., and Hattori, A.: Denitrification, nitrate reduction and oxygen consumption in coastal and estuarine sediments. *Applied Environmental Microbiology*, Vol.43, pp.648-653, 1982
- 22) Hashimoto, S., K. Gojo, S. Hikota, N. Sendai, and A. Otsuki.: Nitrous oxide emissions from coastal waters in Tokyo bay, *Marine Environ. Research*, Vol.47, pp.213-223, 1999
- 23) 福岡市環境局環境保全部水質課: 福岡市水質測定結果報告 (1994 年度)
- 24) 福岡市環境局環境保全部水質課: 福岡市水質測定結果報告 (1995 年度)
- 25) 今村正裕・楠田徹也: 閉鎖性湾および沿岸における N_2O の挙動, 環境システム研究, Vol.26, pp.151-156, 1998 (1999.9.30 受付)