

II-413 ^{15}N を用いた土壌内脱窒素の研究

広島大学工学部
 〃
 関係日本電気ソノタマ

山口 登志子
 寺西 靖谷
 白本 加代

1. はじめに

土壌内急速浸透処理法においては、汚水中の窒素は主として脱窒素により除去される。したがって、急速浸透法の条件下で土壌内脱窒素がどの程度進行するかを把握することが必要である。筆者らの従来の研究においては好氣的条件と考えられる不飽和浸透流域でも土壌内脱窒素はある程度進むことがわかった¹⁾。しかしながら、前報においては $\text{NO}_3\text{-N}$ の減少を脱窒素とみなしたもので、 N_2 ガスの確認はできなかった。そこで、本研究では窒素の安定同位体である ^{15}N を用いて、 $^{15}\text{N}_2$ ガス発生を確認し、 N_2 ガス発生量を測定して脱窒過程の N 収支を明らかにする。また、土壌カラム内の N 成分分布を経時的に測定し、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の実測データから脱窒速度の時空分布を求め、考察を加える。

2. 実験方法

実験に用いた土壌カラムは図-1に示すような内径10cm、長さ45cmの塩化ビニルパイプにマサ土を充填したものである。土壌カラムは2本作成し、カラム番号をH-1、H-2とした。カラム上端より、 KNO_3 溶液を供給し、カラム内の N 成分($\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$)分布を経時的に測定した。実験条件を表-1に示す。 KNO_3 溶液には、有機炭素源としてメタノールを添加し、カラムH-1、H-2にそれぞれ、 $\text{C/N} = 1.0$ および2.0で供給した。温度は 30°C である。充填したマサ土には、脱窒活性を高めるために粗土を2%添加した。充填量は3.4kg、間隙率は35%である。

カラム内各深さの試料溶液(真空ポンプで採水)については、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ を分析し、流出水についてはその他に pH 、 TN 、 TOC を測定した。土の脱窒菌分布、脱窒活性を実験前後に測定した。土壌間隙内のガス組成はガスクロにより、測定した。カラムH-2では土壌内脱窒素がほぼ定常に至った53日目から、カラムを密閉し、供給液を ^{15}N でラベルした KNO_3 溶液に切り換えて、MASSにより $^{15}\text{N}_2$ 定量した。また、カラムにマンメーターとガスビュレットを接続し、ガス発生量を測定した。 $^{15}\text{N}_2$ ガス発生実験は53日~73日の21日間で行った。

3. 結果と考察

3-1 N 成分のカラム内分布 図-2にカラムH-2の N 成分分布の経時変化を示す。実測濃度 C は供給 N 濃度を C_s として相対濃度 C/C_s で表わす。H-2では40日目より、脱窒素が急速にすすみ、46日~50日、深さ10~20cmで $\text{NO}_3\text{-N}$ はほとんど0となっている。H-2ではその後53日~73日の間、カラムを密閉して ^{15}N による N_2 ガス確認実験を行った。 $\text{C/N} = 1.0$ のカラムH-1では、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の減少率が0~20%の間で変動し、

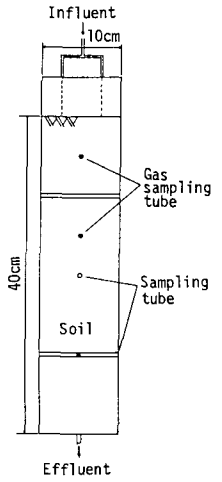


Fig.1 SOIL COLUMN.

Table 1 Data of experiment

Column	Concentration of $\text{NO}_3\text{-N}$ (mg/l)	C/N	Application rate(mm/day)	Temp. ($^\circ\text{C}$)
H-1		1.0		
H-2	20	2.0	140	30

Period of experiment=74days

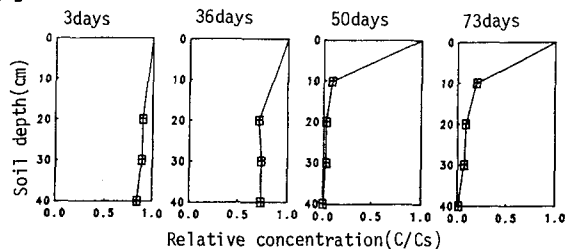


Fig.2 CONCENTRATION PROFILE OF $\text{NO}_3\text{-N}$ (H-2).

は、きりした定常状態がみられなかった。いずれのカラムでも NO_2-N 、 NH_4-N はほとんど検出されなかったが、H-2で脱窒素が急速に進み始める直前に NO_2-N が $C/C_0 = 0.26$ 程度、検出された。

3-2 $^{30}N_2$ ガス発生量 カラムH-2の土壌間隙内のガス組成を表-1に示す。脱窒素が進みはじめた45日以降のガス組成は空気に比べて、明らかに N_2 分圧が高くなっている。表-2で0cmのデータはカラム上部の空間部分のもので、この部分のガス組成は空気とかわらない(53日)。したがって土壌内部からのガスの拡散は小さいと考えられる。73日ではカラムを密閉しているため、上部空間と土壌内部のガス組成はほぼ等しい。カラムH-1では実験期間を通して、ガス組成は空気と大差がなかった。

H-2に ^{15}N でラベルした KNO_3 溶液を供給してMASS(質量分析計)により $^{30}N_2$ を分析し、ガスクロにより N_2 ガス分圧を測定して求めた $^{30}N_2$ ガスの発生量は15~18cc/日である。ガスビュレットにより測定した総ガス発生量から求めた値は、18cc/日となる。供給した NO_3-N が、すべて N_2 ガスに変換された場合、1日当りの N_2 ガス発生量は19ccとなり、実測値はこの値にほぼ一致する。(N_2 ガスの水への溶解を考慮すると、17cc/日となる。)

3-3 脱窒速度と脱窒菌分布 カラムH-2における NO_3-N の実測データをもとに、反応物流分散方程式の逆問題として、反応項(脱窒速度)の時空分布を求めた。 NO_3-N の実測データを $\Delta x = 5\text{cm}$ 、 $\Delta t = 1$ 日でスプライン補間し、次式に示す差分化した反応物流分散方程式により、脱窒速度(Φ_i^n)を計算した。

$$\Phi_i^n = \frac{C_i^{n+1} - C_i^{n-1}}{2\Delta t} + u \frac{C_{i+1}^n + C_{i-1}^n}{2\Delta x} - D \frac{C_{i+1}^n - 2C_i^n + C_{i-1}^n}{(\Delta x)^2}$$

ここに、 C : 基質濃度、 u : 間隙内平均流速、 D : 分散係数、 z : 土壌内距離、 t : 時間、 Φ : 反応項(基質変換速度)である。 Δz 、 Δt は距離および時間方向の格子間隔で Δx 、 $n\Delta t$ における基質濃度を C_i^n 、反応項を Φ_i^n とする。土壌内脱窒速度の時空分布を図-3に示す。約40日以降、深さ5~15cmで脱窒素が進んでいるのわかる。えられた脱窒速度は0~180 mg/l.dayであった。カラムH-2で実験開始後45日以降に定常期とみなし、定常期での脱窒速度と、脱窒菌分布(実験終了後分析)は、図-4に示すように、いずれもほぼ、指数函数的に減少している。

参考文献

1) 山口・寺西, "不飽和浸透流における土壌内脱窒過程", 土木学会中国四国支部講演概要集 p.67~68 (1985)

Table 2 Composition of gas in soil(%) (H-2)

Depth (cm)	45days		53days		73days	
	N_2	O_2	N_2	O_2	N_2	O_2
0*			79	21	90	2
5	93	4	89	3		
15	95	2	90	2	90	1
30	90	3	86	4		

*above the soil surface

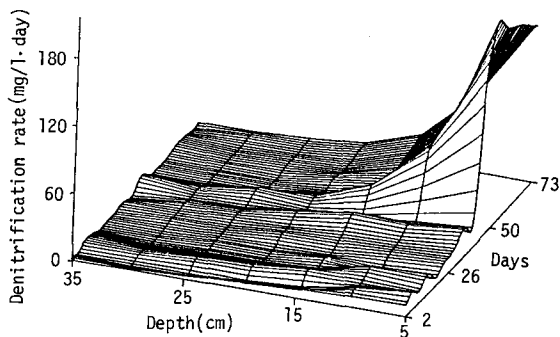


Fig.3 Evolution of denitrification rate(H-2).

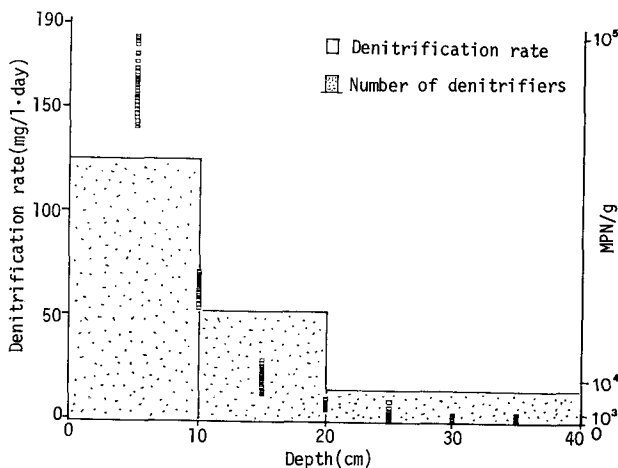


Fig.4 Distribution of denitrification rate and denitrifiers(H-2).