

九州大学大学院 学生員  
九州大学大学院 正会員

村井 聰 李 昇潤  
大石京子 フェロー 楠田哲也

### 1. はじめに

水域で生成される亜酸化窒素(N<sub>2</sub>O)は主に生物学的硝化、脱窒過程の中間産物であり、その生成速度は溶存酸素濃度(DO)、pH、温度などの影響を受けることが報告されている。

本研究では、水域の底質中におけるN<sub>2</sub>Oの生成速度に対するDO濃度の影響を明らかにするため、DO濃度を飽和濃度から無酸素まで6段階に変化させた場合の各濃度における定常状態でのN<sub>2</sub>Oフラックスと非定常状態におけるN<sub>2</sub>Oフラックスの変化を、ケモスタット型の実験装置を用いて室内実験により検討した。

### 2. 実験方法

実験試料には、多々良川感潮域において採取した底質(泥質)を用いた。図1に実験装置の概略を示す。反応槽(内径200mm、高さ110mm)に試料を5cmの厚さで敷き、その上に基質液を満たした。酸素供給槽(内径64mm、高さ200mm)、流出槽(内径24mm、高さ50mm)も同じ基質液で常に反応槽内の水位に等しくなるように維持した。反応槽内を底泥表面が巻き上がらない程度に常にマグネチックスターラーによって攪拌するとともに、DOコントローラにより常に反応槽内直上水中のDO濃度を設定濃度±10%以内になるよう制御した。基質液の装置内滞留時間は約3.3日である。

基質液はリン酸緩衝液(pH=7.5)に硝酸態窒素(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N)又はアンモニア態窒素(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N)を10mg/lになるように加えた。反応槽を水浴中暗条件下で30°C又は20°Cで培養した。各DO濃度条件下での定常状態が得られた後、それぞれDO濃度を6→2→1→0.5→0→4mg/l、6→4mg/lと順に変化させた。

実験開始後、1日1回、反応槽から直接基質液の一部を採水、濾過してNH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度を測定した。また、採水した液の一部をバイアルに注入しヘッドスペース法により基質液のN<sub>2</sub>O濃度を測定した。DO濃度を変化させた直後は2~8時間毎に採水分析した。

### 3. 実験結果及び考察

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nを基質として30°Cで培養した場合の反応槽内直上水のN<sub>2</sub>O濃度、N<sub>2</sub>O転換率及びDO濃度の経日変化を図2に示す。30°Cで培養した場合、DO濃度が6mg/l、2mg/l、1mg/lにおける定常状態でのNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-NからN<sub>2</sub>Oへの転換率は、それぞれ0.53%、0.82%、0.78%であった。DO濃度を6→2mg/l、2→1mg/lに変化させた1~3日後にN<sub>2</sub>Oへの転換率は、過渡的にそれぞれ7.0%、25.8%と最大を示した。このことよりDO濃度が急激に低下する時、一時的にN<sub>2</sub>Oへの転換率が大きくなることが分かる。この原因として以下のようなことが考

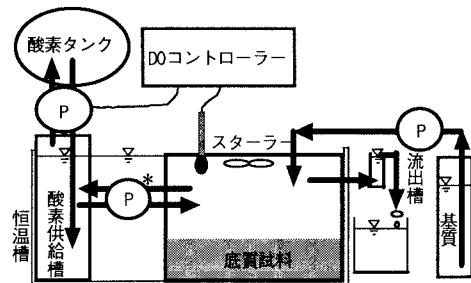


図1 実験装置概略図

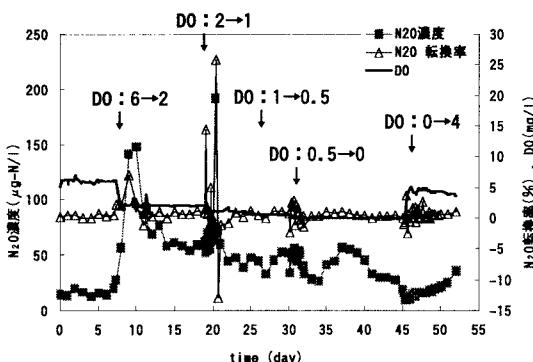


図2 硝酸態窒素を基質とした時の反応槽内直上水中的N<sub>2</sub>O濃度、N<sub>2</sub>O転換率及びDO濃度の経日変化(30°C)

キーワード：N<sub>2</sub>O、溶存酸素、底質、硝化、脱窒

連絡先：〒812-8581 福岡市東区箱崎6-10-1 九州大学大学院工学研究科 TEL092-642-3241 FAX092-642-3322

えられる。まず、DO濃度の急激な低下に伴い底質表面で好気状態から無酸素状態に変化する部分が生じるため、その部分の通性嫌気性菌が酸素呼吸から硝酸呼吸へと切り換える。しかし、その酵素の誘導が速やかに行われずに一時的に脱窒が不完全に行われる状態が生じる。そのため、一時的に中間産物であるN<sub>2</sub>Oの生成量が増加する<sup>1)</sup>。次に、DO濃度の変化に従い底質中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度の差（図3における斜線部）が生じる。この部分のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nを消費する間、過渡的に脱窒量が増加し、一時的にN<sub>2</sub>Oの生成量も増加すると考えられる。これらのことは、今後、実験により検討する予定である。

図4にNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-NまたはNH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Nを基質とした時の各DO濃度における定常状態での基質の除去速度及びN<sub>2</sub>Oフラックスを、図5にその時のDO濃度とN<sub>2</sub>Oへの転換率の関係を示す。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nを基質とした場合、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nの除去速度、N<sub>2</sub>Oフラックス及びN<sub>2</sub>Oへの転換率は、培養温度に関わりなくDO濃度が低い程大きくなる傾向にあつた。また、20℃よりも30℃で培養した方が、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nの除去速度、N<sub>2</sub>Oフラックス及びN<sub>2</sub>Oへの転換率は大きくなつた。これより、本実験の滞留時間では定常状態において、DO濃度が低い程脱窒が促進され、N<sub>2</sub>Oフラックスが増加した。また、DO濃度が6mg/lの場合、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-NよりもNH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Nを基質とした方がN<sub>2</sub>Oフラックス及びN<sub>2</sub>Oへの転換率が小さくなつた。これより、DO濃度が高い場合でもN<sub>2</sub>OフラックスはNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N由来である。

#### 4. 結論

水域の底質で生成されるN<sub>2</sub>Oに対するDO濃度の影響を明らかにするため、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-NまたはNH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Nを基質とした場合の泥質試料からのN<sub>2</sub>Oフラックス、基質の除去速度及びN<sub>2</sub>Oへの転換率を室内実験により検討した。以上の研究により得られた結果は以下の通りである。

(1) NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N基質の場合、N<sub>2</sub>Oフラックス、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nの除去速度及び

N<sub>2</sub>Oへの転換率はDO濃度が低くなるにつれて大きくなつた。

(2) NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N基質の場合、20℃よりも30℃で培養した方が、N<sub>2</sub>Oフラックス、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nの除去速度及びN<sub>2</sub>Oへの転換率は大きくなつた。

(3) DO濃度が6mg/lの場合、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-NよりもNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nを基質とした方がN<sub>2</sub>Oフラックス及びN<sub>2</sub>Oへの転換率は大きかつた。

(4) NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nを基質とし30℃で培養した場合、DO濃度を高濃度から低濃度へ急激に変化させると一時的にN<sub>2</sub>Oの生成フラックスが大きくなつた。

#### <参考文献>

- Mary K. Firestone and James M. Tiedje(1979): Temporal Change in Oxide and Denitrogen from Denitrification Following Onset of anaerobiosis. *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 38, p. 673-679

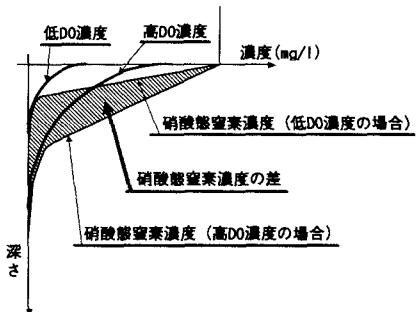


図3 DO濃度が低濃度及び高濃度状態における底質中の硝酸態窒素濃度の分布想像図

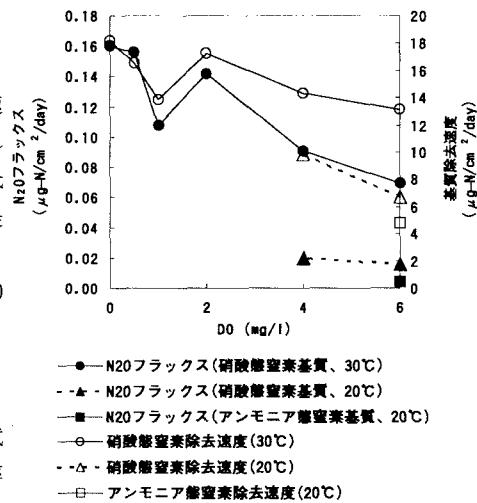


図4 各DO濃度における定常状態での基質の除去速度とN<sub>2</sub>Oフラックス

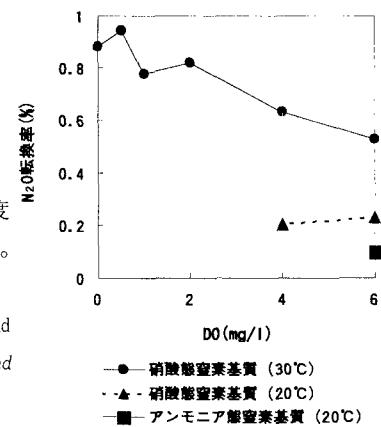


図5 各DO濃度における定常状態での基質からN<sub>2</sub>Oへの転換率 (%)