

酸素濃度制御下における河川底質からの N_2O フラックス

九州大学工学部 学生員 ○村井 聡 九州大学大学院 学生員 李 昇潤
九州大学大学院 正会員 大石京子 九州大学大学院 フェロー 楠田哲也

1. はじめに

現在、地球温暖化ガスである亜酸化窒素(N_2O)の生成抑制が急がれている。 N_2O は主に硝化、脱窒過程の中間産物として生成され、水域においてはその役割を主に底質が担っている。硝化、脱窒両過程の N_2O の発生速度は溶存酸素(DO)濃度の影響を大きく受けることが報告されている。

本研究では、あるDO濃度における N_2O フラックス及び連続的にDO濃度を変化させた場合における N_2O フラックスの変化を、ケモスター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。採取時には、底質を表層(露呈面から2cm深さまで)と下層(2cmから5cmまで)に分けて、それぞれ数ヶ所から採取して混合した。図1に実験装置の概略を示す。内径200mm、高さ110mmの反応槽に下層試料を3cm、上層試料を2cmの厚さで敷き、その上に、基質液を満たした。内径64mm、高さ200mmの酸素供給槽、内径24mm、高さ50mmの流出水貯水槽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。反応槽内を表面が巻き上がらない程度に常にマグネティックスターラーによって十分に攪拌するとともに、DOセンサーにより常に反応槽内直上水中のDO濃度を制御した。反応槽内と酸素供給層内の基質液を約300ml/hrで循環させ、設定DO濃度条件幅以下になると酸素供給層内の基質液を酸素タンク内の純酸素により補給した。反応槽に約720ml/dayで基質液を供給した。基質液の装置内滞留時間は約3.3日である。

基質液のpHをリン酸緩衝液により常に7.4~7.6に保ち、基質として10mg/lの硝酸態窒素(NO_3^- -N)を用いた。

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、濾過してアンモニア態窒素(NH_4^+ -N)、亜硝酸態窒素(NO_2^- -N)、硝酸態窒素(NO_3^- -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_2O 濃度を測定した。各DO濃度条件下での定常状態が得られた後、DO濃度を6→2→1→0.5→0→4 mg/lと変化させた。DO濃度を変化させる場合には、採水時間の間隔を2~8時間に変え各窒素濃度を測定した。

3. 実験結果及び考察

図2に反応槽内の直上水の NH_4^+ -N、 NO_2^- -N、 NO_3^- -N濃度とDO濃度の経時変化を、図3に反応槽内直上水の N_2O 濃度、 N_2O 転換率及びDO濃度の経時変化を示す。DO濃度が低下するにつれ反応槽内直上水の NO_3^- -N濃度、 N_2O 濃度は低下した。これはDO濃度が低いほど底泥内の還元力が増し脱窒が促進されたためと考えられる。

また、DO濃度が6 mg/l、2 mg/l、1 mg/lにおける定常状態での NO_3^- -Nから N_2O への転換率は、それぞれ0.53%、0.82%、0.78%であったが、DO濃度を6→2 mg/l、2→1 mg/lに変化させた1~3日後にそれぞれ NO_3^- -Nから N_2O への転換率は、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_2O への転換率が大きくなることが分かる。これは、DO濃度が低下するに従い底質表層で好気から嫌気になる部分があるが、そこでは変化する過程において好気状態であったために還元力が緩和され N_2 まで還元されずに中間産物である N_2O が一時的に蓄積されたと考えられる。しかし、逆にDO濃度が低濃度から高濃度へと変化する場合、本実験においてはDOを0→4 mg/lに

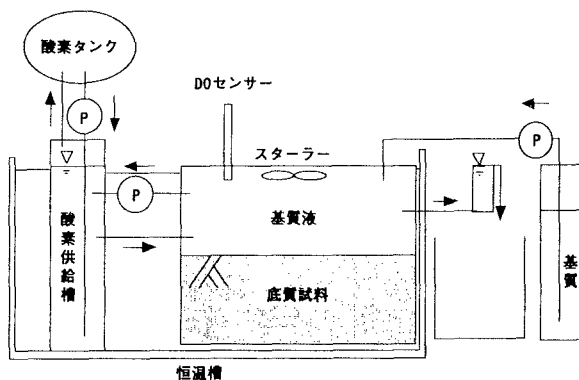


図1 実験装置概略図

変化させた場合、 N_2O のピークは確認されなかった。これについては、今後、再現性を検討する必要がある。

図4に各DO濃度における定常状態での NO_3^- -Nの除去速度と N_2O フラックスを示す。DO濃度が低い程、 NO_3^- -Nの除去速度は大きくなる傾向にある。また、 N_2O フラックスもDO濃度が低い程大きくなる傾向にある。

図5にDO濃度と N_2O 転換率の関係を示す。DO濃度が0.5mg/lの時、 N_2O への転換率が0.94%と最も大きいことが分かる。DO濃度が0mg/lの場合は、直上水中の酸化還元電位が約350mV、底質表面の酸化還元電位が約60mVであり、還元力が大きいため N_2O から N_2 までの還元が進みDO濃度が0.5mg/lの場合よりも小さな N_2O 転換率となったと考えられる。

4. 結論

DO濃度制御下における硝酸態窒素を基質とした場合の泥質試料からの N_2O フラックス、 NO_3^- -Nの除去速度及び N_2O への転換率を室内実験により検討した。その結果、 N_2O フラックスと NO_3^- -Nの除去速度はともにDO濃度が低くなるにつれて大きくなった。また、 N_2O への転換率はDO濃度が0.5mg/lの時、最も大きくなった。

DO濃度を高濃度から低濃度へと急激に変化させた場合、一時的に N_2O の生成フラックスが大きくなった。

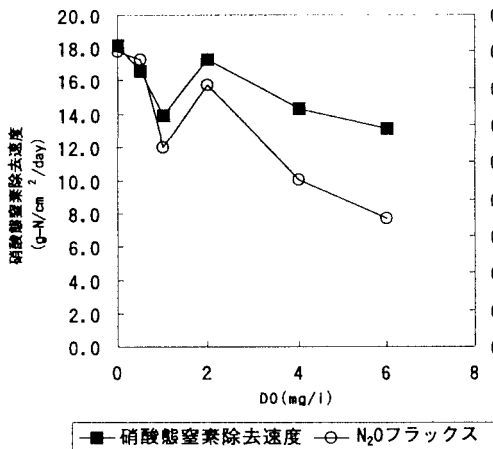


図4 各DO濃度における定常状態での硝酸態窒素の除去速度と N_2O フラックス

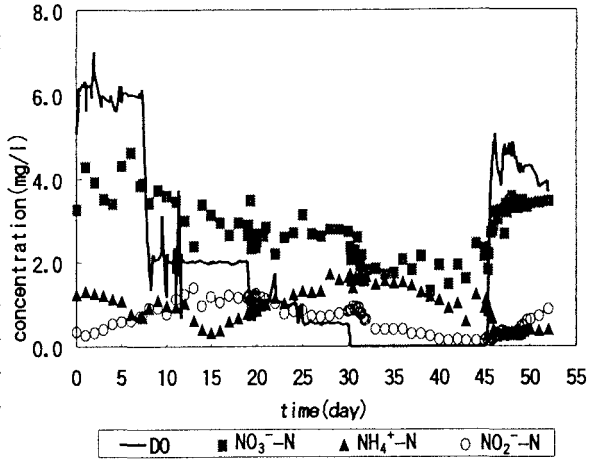


図2 反応槽内直上水中の三態窒素 (NH_4^+ -N, NO_2^- -N, NO_3^- -N) 濃度とDO濃度の経時変化

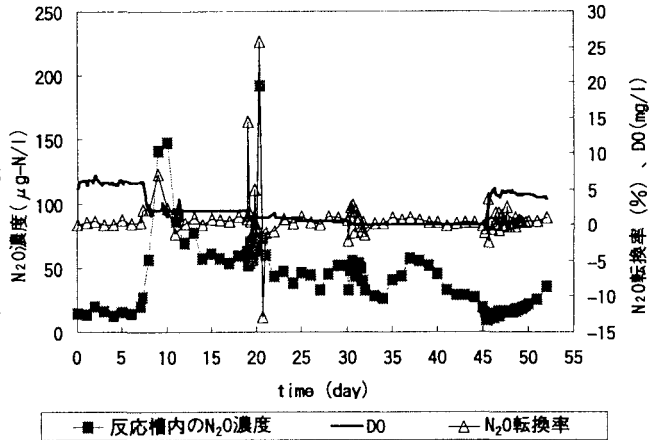


図3 反応槽内直上水中の N_2O 濃度、 N_2O 転換率及びDO濃度の経時変化

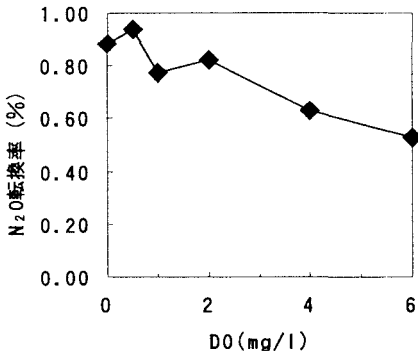


図5 硝酸態窒素除去速度と N_2O フラックスが定常状態である場合におけるDO濃度と N_2O 転換率の関係 (30℃, pH7.5)