

(12) 阿武隈川における河川底質による窒素系自浄作用機構について

SELF-PURIFICATION OF NITROGEN BY RIVER BED IN ABUKUMA RIVER

高橋幸彦^{*}・中村玄正^{*}・松本順一郎^{*}

Yukihiko Takahashi^{*}, Michimasa Nakamura^{*}, Jun'ichiro Matsumoto^{*}

ABSTRACT: The quality of water in Abukuma River has been deteriorating and resulting in problems such as water pollution, increasing eutrophication and decreasing of water clarity. We found tiny air bubbles about 5mm diameter on the river bed which are believed to be the products of metabolic processes in the attached biofilm. The air bubbles were collected directly from the river bottom and were analyzed. The composition of the gas in the bubbles were Nitrogen gas of 99.8% and others of H_2 and CO_2 . In this research, the conditions of the biofilm was also observed, and the activities of microorganisms and the nitrogenous reactions which took place were studied. The numbers of bacteria which were taken from the biofilm in the river bed were also estimated. The flow velocities of the water near the river bed were found to be very low, such as 1-5 cm/sec. At the river bed where bubbles were seen, the VSS/SS value range was from 0.23 to 0.28, but at places where bubbles were not seen, the VSS/SS value range was from 0.10 to 0.14. From this research, it can be concluded that the river bed where the bubbles were found contained a lot of nitrogenous micro-organisms.

KEYWORDS: Air bubbles, Nitrogen gas, Biofilm, Nitrogenous reaction, River bed, Flow velocity, VSS/SS value

1. はじめに

公共用水域は貴重な水資源であり、利水、親水その他の面からも質的に高く保全されるほど価値は高いものと考えられる。しかし昨今の環境白書⁵⁾などに見られるように都市河川の汚濁改善はあまり進んでいないのが現状である。河川などの汚濁は自然固有の浄化能力を上回る有機物の流入に起因するものであるが、さらに底質の悪化も同時に進行する。ことに下水道の普及していない地域などにおいては、生活雑排水の河川への継続的流入などのため、夏季低水時には富栄養化現象が生じたりすることもあり、水資源としての価値を低下させている。

河川の水質特性を考えると、流域の季節的な負荷の質的变化、低水時、高水時の流入・流下特性の相違、その他の条件により汚濁負荷量は大きく変化し、さらに自浄作用に関与する細菌相の変化や代謝活性、微生物群によって構成される生物膜の形成、剝離等もあり、河川の浄化能力やその結果としての水質は1年を通じかなりの変動がみられる。一方河川底質は、常時変化する水質を比較的長いスパンで対応しているとも考えられる。

本報告は、阿武隈川における水質汚濁や富栄養化に関わる現象を工学的に把握しようとする一連の研究の一つである。すなわち、阿武隈川における河川底質による窒素系自浄作用機構について、底質を構成する生物膜を含む底泥と各態窒素の変化、さらに水質に関与する細菌相の関係を検討し明らかにしようとするものである。

^{*} 日本大学工学部土木工学科 (Dept. of Civil Engineering, College of Engineering, Nihon Univ.)

2. 阿武隈川の水質特性

阿武隈川は、奥羽山系那須旭岳に源を有する本川延長239kmの河川であるが、既に上流から約 40kmの地点で人口約4万6千人の白河市を貫流し、福島県内中通り地方以降田園地帯やいくつかの市域を流下し、宮城県岩沼地点で太平洋に注いでいる。この間多くの支川を通じて生活雑排水、工場排水、畜産排水などの流入を受け、地点によっては BOD、全窒素、アンモニア性窒素、硝酸性窒素などが高く、都市河川の様相を帯びているところもある。

2.1 採水地点と調査日程

採水地点は、上流より約 100km地点の郡山市内日出山橋（図-1）であり、1993年5月から1994年4月の間毎週 1回水質調査を行った。

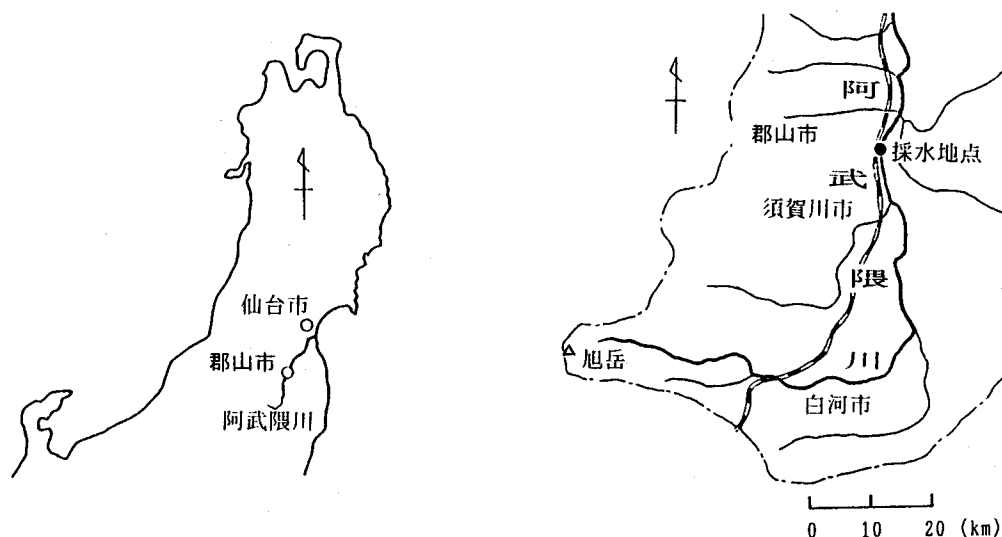


図-1 採水地点

2.2 試料および実験方法

採水試料は、上記対象地点の河川流況表層水を採集した。同地点で河床の泥も採集した。現場では、水温と透視度を測定しDO固定を行った。持ち帰った採水試料は、室内でpH、ORP（ガラス電極法）、DO、BOD（ウィンクラー法）、COD（過マンガン酸カリウム法）、アンモニア性窒素（インドフェノール法）、亜硝酸性窒素（スルファニルアミド・ナフチルエチレンジアミン法）、硝酸性窒素（ブルシンスルファニル酸法）、T-N（紫外吸光度法）、リン酸イオン（モリブデン青法）、T-P（高圧分解法）、SS、VSS（ガラスフィルターろ過法）、クロロフィルa（アセトン抽出法）について、上水試験方法⁴⁾に準じて分析した。

2.3 主要水質項目の経日変化

(1) 水温、流量

図-2に水温の経日変化を示す。図に示されるように、水温は夏季では25℃前後になり、冬季では0℃前後になり季節的な水温変動が大きい。

図-3に流量の経日変化を示す。流量は低水時には30～40m³/secの範囲にあり、増水時には最高1300m³/secであった。

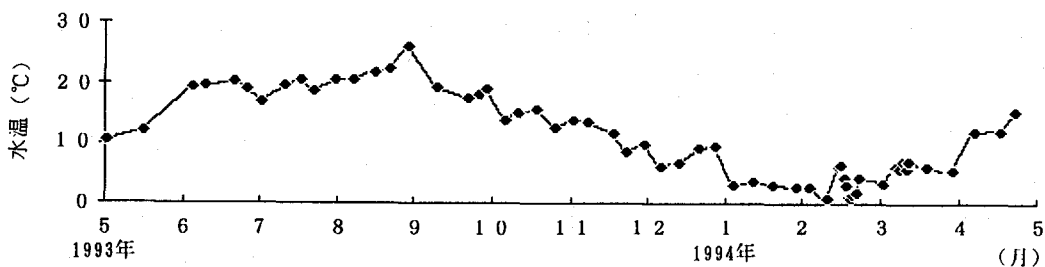


図-2 水温の経日変化

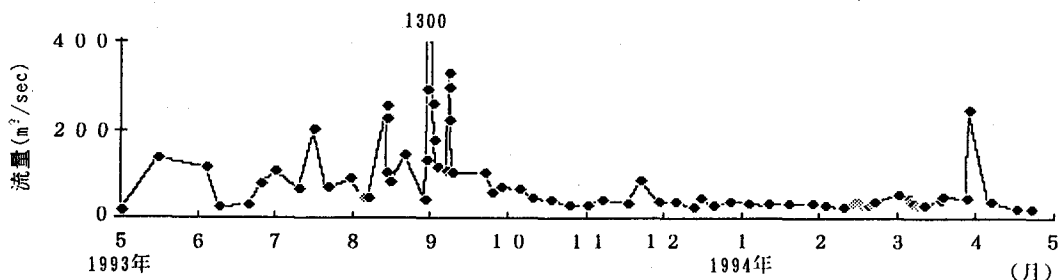


図-3 流量の経日変化

(2) 各態窒素

図-4にアンモニア性窒素の経日変化を示す。アンモニア性窒素濃度は、0～0.7mg/lの範囲にあり、水温が低い冬期には濃度は0.5mg/l程度と高く、高い夏期には濃度が低い傾向がみられた。

図-5に亜硝酸性窒素の経日変化を示す。亜硝酸性窒素濃度は、0～0.2mg/lの範囲にあり、季節的変動は少ないようであった。

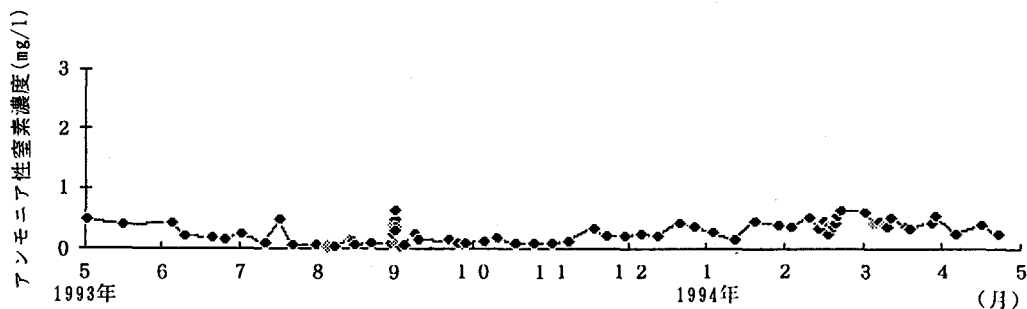


図-4 アンモニア性窒素濃度の経日変化

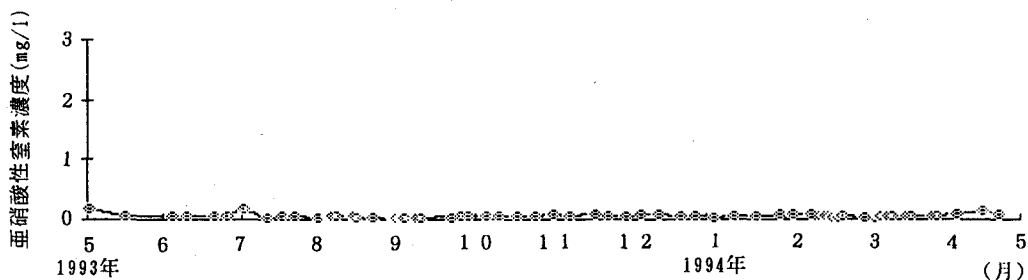


図-5 亜硝酸性窒素濃度の経日変化

図-6に硝酸性窒素の経日変化を示す。硝酸性窒素濃度は、 $0.8 \sim 2.1 \text{ mg/l}$ の範囲にあり、7月から10月にかけて硝酸性窒素濃度が高く、水温が低くなる11月頃から低下する傾向がみられた。

図-7にT-Nおよび有機性窒素濃度の経日変化を示す。T-N濃度は、 $1.4 \sim 3.0 \text{ mg/l}$ の範囲であり一般の河川に比べ高い値を示し、家庭排水その他の排水が影響したものと考えられる。有機性窒素濃度は $0 \sim 1.5 \text{ mg/l}$ の範囲であった。図-4、図-5、図-6と併せてみると、水温が 15°C 以下の時期には、アンモニア性窒素は高く亜硝酸性窒素、硝酸性窒素が低い傾向がみられている。一方水温の上昇と共にアンモニア性窒素が低下し硝酸性窒素濃度が高くなっている。これより阿武隈川の本地点では、水温の高い時期（8月～10月）に硝化作用がかなりみられることが推測された。T-Nとアンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、硝酸性窒素の和である無機性窒素との差である有機性窒素は、概ね $0 \sim 1 \text{ mg/l}$ の範囲にあり水温が高い時期にはT-Nの大部分が硝酸性窒素であることがわかった。これより水温が高い時期には有機性窒素は分解され、アンモニア性窒素として蓄積される間もなく硝化作用を受けて硝酸性窒素へ移行していることが推測された。すなわち河川において窒素の酸化を中心とする浄化作用が機能していたものと考えられる。

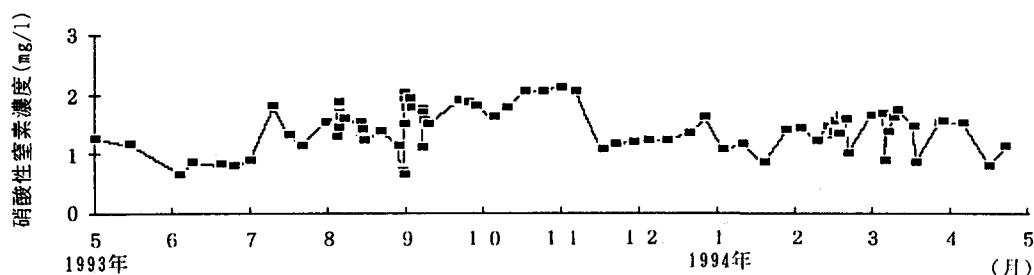


図-6 硝酸性窒素濃度の経日変化

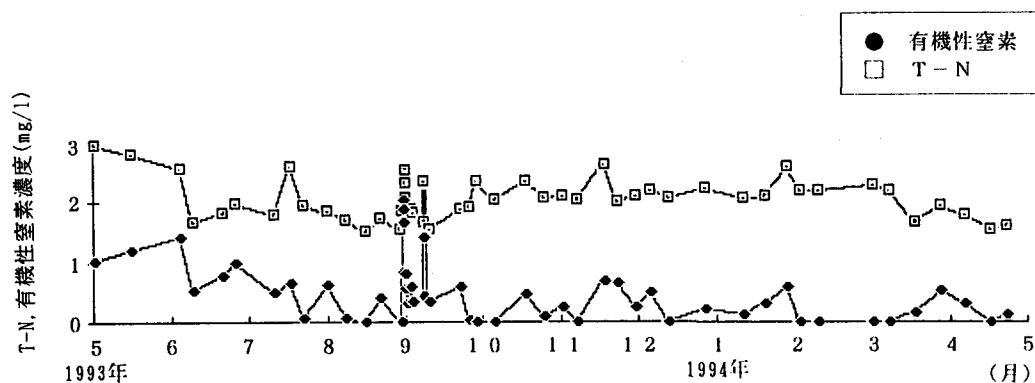


図-7 T-N、有機性窒素濃度の経日変化

(3) BOD

図-8にBODの経日変化を示す。BOD濃度は、 $1.1 \sim 7.0 \text{ mg/l}$ の範囲にある。本地点のBODの環境基準値は 3 mg/l であり、冬季などには基準値を越える傾向が見られている。夏季には好気性細菌などの微生物の働きが活発になりBODは低下するが、冬季には水温の影響で有機物を分解する微生物の活性が低下しBOD濃度が高くなったものと推測される。また、図-4のアンモニア性窒素と対応させてみると、BODはアンモニア性窒素とほぼ同時的に増減を繰り返していることがわかる。この地点の場合BOD:T-N= $2:1 \sim 1:1$ の程度でみられ、ことにアンモニア性窒素が混在するような汚染源からの汚濁物質の流入すなわち家庭排水や畜産排水の流入が考えられる。

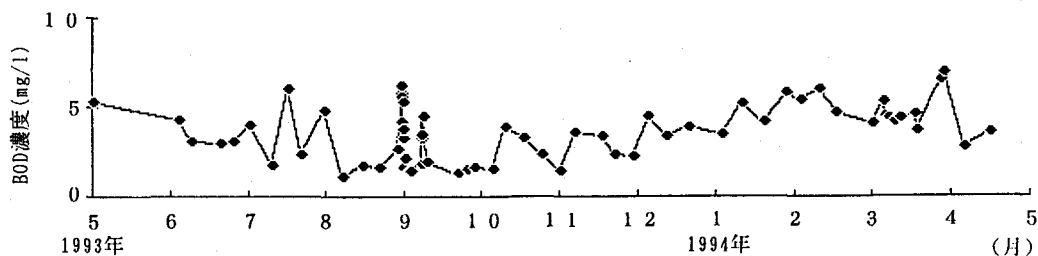


図-8 BOD濃度の経日変化

3. 底質と各態窒素の変化

(1) 採水地点の対象底質の状況

図-9に底質採集地点の平面図を示す。よども部は、渇水時に郡山市日出山橋付近では左岸部にみられる。冬季の低水時本川流心では流速は25cm/secであったが、この時よども部の流速は1~5cm/secであった。よども部の底質状況は底凹部に茶褐色膜が形成されるが、底凸部上には茶褐色膜が形成されていなかった。底質状況は①底凹部気泡付着あり、②底凹部気泡なし、③底凸部底泥、④砂礫に分類できる。色相は底凹部では茶褐色を呈し、また底凸部底泥、砂礫では灰色を呈していた。

本実験では上記代表点を次のように区分し底質の泥表面を採取分析した。

A点: 流速のおそい地点で、気泡の付着した茶褐色底泥表面

B点: 流速のおそい地点で、気泡の付着していない茶褐色底泥表面

C点: 流速のおそい地点で、気泡の付着していない灰色底泥表面

D点: 流速の速い地点では河床は砂で構成された底泥表面

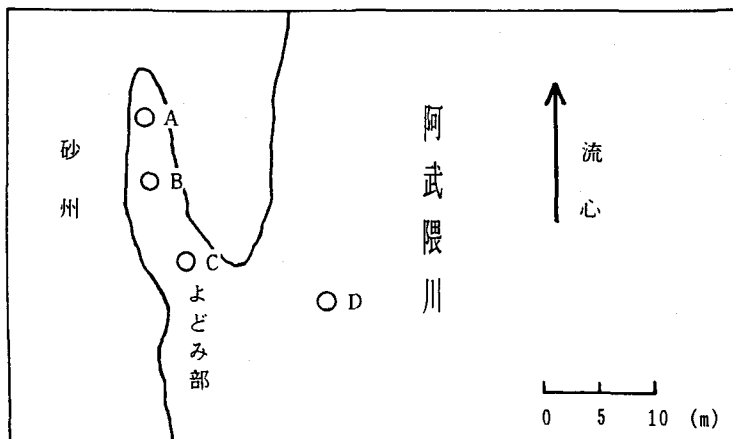


図-9 底質採集地点の平面図

日出山橋地点では、図-8に示すようにBOD濃度は水温の高い夏季には低くなる傾向にあり水質良好であるが、冬季にはBOD濃度が高くなり悪化する。これは多分に浄化に關与する微生物の活性によるものと考えられる。このため河川水質は水温が低下し、低水時となる10月以降からアンモニア性窒素濃度、BOD濃度は上昇する傾向がみられている。また低水温時にSS成分はほぼ全量VSSとなる。そのため河川の流速がおそい所つまりよども部においては河床表面に有機物が堆積すると推測される。よどもの凹部には有機物の多いところが存在し微生物分解に多く寄与するものと考えられる。

(2) 実験・分析方法

採泥試料は、阿武隈川日出山橋の対象地点の底質表層を採集したものであり、これらの泥表面、砂表面の微生物相の細菌構成を最確値(MPN)法で調べた。特に硝化細菌、脱窒細菌、好気性従属栄養細菌の構成をみるためにアンモニア酸化細菌培地、亜硝酸酸化細菌培地、GILTAYの培地(脱窒細菌)、桜井の培地(好気性従属栄養細菌)を用いて培養を行い、MPN法で菌数を測定した。手順として、河床表面の泥4.5mlと同地点での阿武隈川水約75.5mlの混合液約80mlをスターラーで30分間緩速攪拌し、これを1次検水として細菌培養を行い、1gSS、1gVSS中の菌数を求めた。また同1次検水30mlを蒸留水500mlに加え、泥表面の生物膜様膜中、砂表面の膜中のアンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、硝酸性窒素、全窒素の存在量を知るために水質分析を行い、1gSS、1gVSS中の存在量として求めた。

呉ら¹⁾は、多摩川水系野川の研究で付着泥の脱窒活性は表層(0~2cm)で高く、堆積物断面1~3cmまでは茶褐色であったと報告している。このことを考慮し、採水場所と同地点で底泥表面の泥を長さ約3cm、幅約3cm、厚さ約5mmで採取した。河床表面は、流速によりかなり性状が異なり、流速が1~5cm/secでは生物膜らしき茶褐色の膜が形成されるところが多く、灰色を呈するところも存在した。しかし流速が25cm/sec前後の流れのある河床表面には、茶褐色の膜が形成される場合は殆どなかった。一般に硝化細菌が存在する生物膜は、茶褐色を呈しているといわれている。

(3) 流速分布

冬季よどみ部の河川底質の表面において直径5mm前後のあわが付着しているのがみられたので、川岸から3m離れた当該よどみ部で河床表面上1cmの流速を電磁流速計で測定した。河床表面の流速は0.5~3.5cm/secの範囲であり、この時の全体水深は5~10cmであった。

底質表面には、冬季水温が5℃前後でも、幾多の付着『気泡』がみられた。この時の水深は8cm前後、表面水の溶存酸素濃度は、13.2mg/lであり、溶存酸素濃度は過飽和であった。川島ら²⁾は河床付着性生物膜による脱窒について、二層モデルを作成し、付着性生物膜による脱窒速度を主に支配するものは、生物膜中における溶存物質の拡散速度と脱窒菌の単位体積あたりの存在密度であり、上層水中のDO濃度、また界面における境膜厚などは、脱窒速度にあまり大きな影響を与えないことを報告している。これに対して気泡は、流れの緩やかなよどみに存在し、特に生物膜らしき茶褐色の膜表面で多くみられた。しかし流速が25cm/sec前後の流れのある底質表面には、茶褐色の膜が形成される場合は少なかった。またよどみ部では、膜表面に気泡を付着したまま水面を浮遊するフロックが確認された。

(4) 発生気泡の分析

膜表面に付着した『気泡』を試験管に採取し実験室に持ち帰り、TCDガスクロマトグラフィーでガス組成を調べた。ガス組成割合は平均してN₂:99.8%, CO₂:0.1%, H₂:0.1%であった。このことから底質表面に付着する気泡の主成分は、脱窒によって生じた窒素ガスと推定された。後述するように茶褐色膜中には、硝化細菌その他多種の細菌が確認され、微生物を多く含んだ底質であると思われる。この底泥中ではアンモニア性窒素が硝化細菌、脱窒細菌の両細菌の働きで窒素ガスになり大気中に放出されると考えられる。このことから河川では、窒素系自浄作用が細菌の働きにより活発に行われていると推測される。今後河床付着性生物膜による脱窒の機構や速度を検討する必要がある。

(5) 底質のVSS/SS

河床表面を観察すると底凹部に茶褐色を呈する生物膜泥が多くみられ、それ以外のところでは灰色の泥がみられた。前述のA、B、C、D地点の異なる河床表面上のVSS/SS値を求め、有機物の存在割合を検討した。茶褐色底泥表面であるA、B地点ではVSS/SS値に殆ど違いはなく0.23~0.28の範囲であり、灰色底泥表面であるC地点、砂で構成された底泥表面であるD地点は0.10~0.14の範囲である。よって底凹部には有機物が

多く存在する。このことで茶褐色を呈する生物膜では、微生物の活性が高く、硝化-脱窒が速やかに進行すると推測された。C地点、D地点では有機物の存在割合が小さいことがわかる。

(6) 底泥の細菌相

図-10にA、B、C、D地点ごとのアンモニア酸化細菌数(MPN/gSS)、図-11に亜硝酸酸化細菌数(MPN/gSS)を示す。A点では、アンモニア酸化細菌数は 2.46×10^2 MPN/gSS, 1.85×10^3 MPN/gVSSと少ないが、これは図-14に示すようにアンモニア性窒素が存在しないためだと考えられる。一方B点は、A点同様茶褐色を呈する生物膜がみられるが、膜に泡が付着していないことから脱窒はまだ起きていないと考えられ、硝化中であると推定される。そのためアンモニア酸化細菌数が 9.30×10^5 MPN/gSS, 5.16×10^6 MPN/gVSSと多いと考えられる。またC点、D点では、アンモニア酸化細菌数はほぼ同数存在し、C点で 6.31×10^3 MPN/gSS, 5.84×10^4 MPN/gVSS、D点で 7.59×10^3 MPN/gSS, 5.88×10^4 MPN/gVSSであった。本図に示されるように、VSS/SSの相違によりアンモニア酸化細菌数や亜硝酸酸化細菌数に違いがみられた。

図-12に脱窒細菌数(MPN/gSS)、図-13に好気性従属栄養細菌数(MPN/gSS)を示す。脱窒細菌数や好気性従

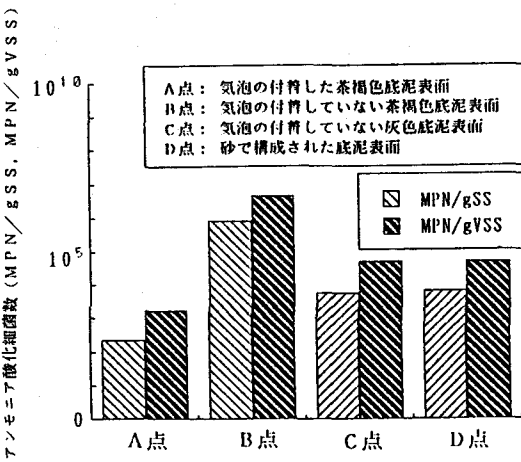


図-10 アンモニア酸化細菌数

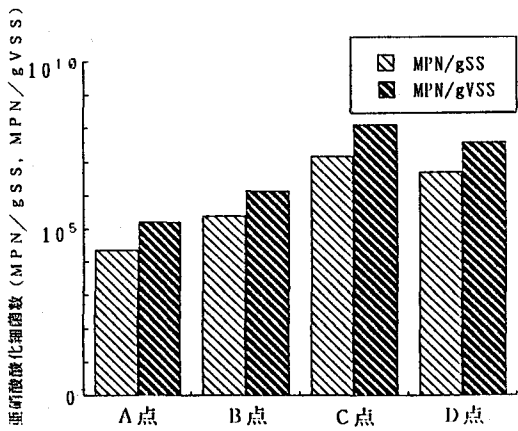


図-11 亜硝酸酸化細菌数

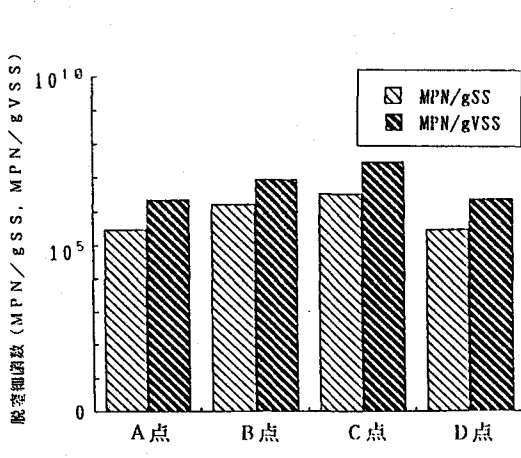


図-12 脱窒細菌数

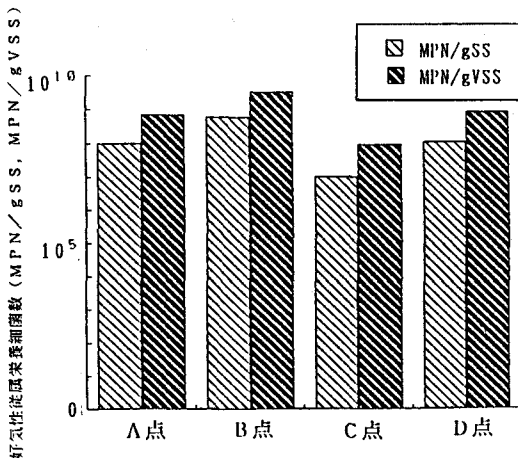


図-13 好気性従属栄養細菌数

属栄養細菌数は底質表面の違いに影響されず、脱窒細菌は $3.12 \times 10^5 \sim 3.46 \times 10^6$ MPN/gSS, $2.39 \times 10^6 \sim 3.20 \times 10^7$ MPN/gVSS存在していた。また好気性従属栄養細菌は、 $1.03 \times 10^7 \sim 6.57 \times 10^8$ CFU/gSS, $9.59 \times 10^7 \sim 3.65 \times 10^9$ CFU/gVSS存在していた。これは両細菌の活性に必要な有機物は河床表面上に存在していたことによるものと考えられる。

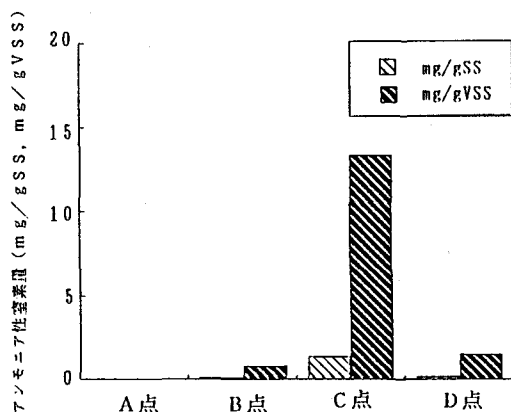


図-14 アンモニア性窒素量

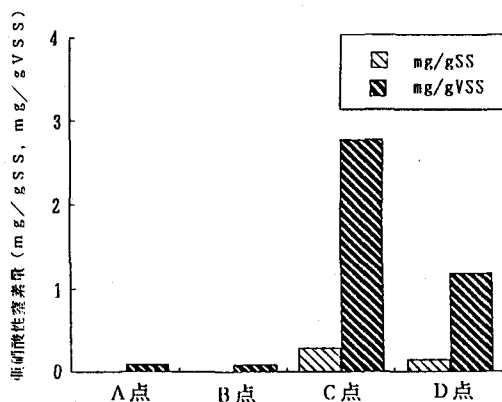


図-15 亜硝酸性窒素量

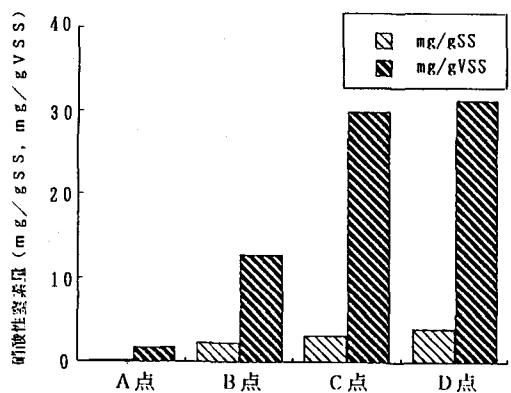


図-16 硝酸性窒素量

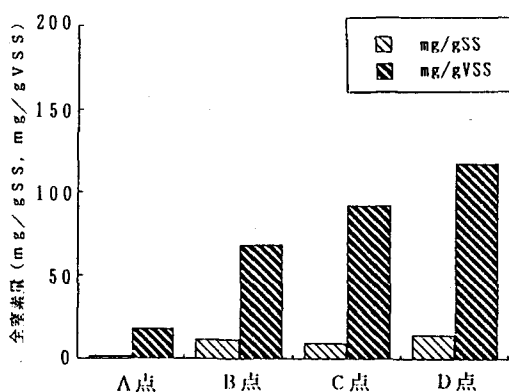


図-17 全窒素量

図-14にアンモニア性窒素量(mg/gSS)を示す。gSS当りでみるとA点では0mg/gSS、B点では0.16mg/gSS、C点では1.45mg/gSS、D点では0.21mg/gSSであるのに対し、gVSS当りでみるとA点では0mg/gVSS、B点では0.88mg/gVSS、C点では13.42mg/gVSS、D点では1.59mg/gVSSであった。A点では、アンモニア性窒素は存在しないことから、ある量のアンモニア性窒素が存在したとしてもかなり速く硝化が進んだものと推測される。一方C点では、アンモニア性窒素が存在していることから、今後硝化が生じると推測される。

図-15に亜硝酸性窒素量(mg/gSS)を示す。これは図-14のアンモニア性窒素量と同じ傾向が示されている。

図-16に硝酸性窒素量(mg/gSS)を示す。gSS当りでみるとA点では0.24mg/gSS、B点では2.33mg/gSS、C点では3.25mg/gSS、D点では4.06mg/gSSであった。一方gVSS当りでみるとA点では1.79mg/gVSS、B点では12.94mg/gVSS、C点では30.11mg/gVSS、D点では31.48mg/gVSSであった。A点では、硝酸性窒素がみられないこ

とから脱窒が起きたと考えられる。またC点とD点においてgSS、gVSS当りの硝酸性窒素量はほぼ同量存在した。

本図に示されるように、気泡の付着した茶褐色膜中にはアンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、硝酸性窒素はみられなかった。また、気泡が付着していない茶褐色膜中には、硝酸性窒素が存在していることから、今後脱窒が起き始めるものと考えられる。

以上の結果より硝化や脱窒が生じていると考えられる茶褐色生物膜中には、アンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、硝酸性窒素は殆ど含まれていなかった。これは底質中における硝化-脱窒工程で除去されたものと考えられる。一方同じ生物膜中でも気泡が生じていない場では硝酸性窒素が検出され、まだ脱窒が生じていないものと考えられた。

図-17に全窒素量(mg/gSS)を示す。これは図-16の硝酸性窒素量と同じ傾向が示されている。全窒素量は、気泡の付着した茶褐色膜中で少ないことがわかる。このことは膜中の細菌の活性が盛んであると考えられ、硝化細菌、脱窒細菌、好気性従属栄養細菌などにより除去されたものと考えられる。

なお、阿武隈川の底泥中に存在する硝化細菌、脱窒細菌による反応速度については現在、実験的検討を進めている。今後、河床付着性生物膜による脱窒速度を把握し窒素と底泥との相互関係を明らかにするつもりである。

4. おわりに

阿武隈川における河川底質による窒素とその変化に関して重要な働きを示す硝化細菌、脱窒細菌について実験的に検討を進め、また阿武隈川の水質特性と比較検討した。その結果以下のような結果が得られた。

- (1) 水質には、季節変化が見られる。特に窒素の消長から、水温の高い時に硝化作用がかなりあることが推測される。なお、浄化に関与する微生物群の活性や存在量が水温や日照量、流量変化に左右されることによることと考えられる。
- (2) 気泡が付着している河床表面の流速は0.5~3.5cm/secの範囲であり、有機物がVSS/SS値で0.23~0.28の範囲であった。気泡の主成分は、脱窒によって生じた窒素ガスと推定された。
- (3) 脱窒が生じていると考えられる河床表面の茶褐色生物膜中には、アンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、硝酸性窒素は殆ど含まれていなかった。一方脱窒が生じていないと考えられる河床表面の茶褐色生物膜中には、アンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、硝酸性窒素が存在していた。

謝辞：本実験を進めるにあたり御協力頂いた大学院博士後期課程2年 小木曾直行氏、前期課程1年 成田勝君、千葉県庁 鈴木友徳氏、プロファ設計 田村由明氏、研究生 AKASHAH BIN MAJIZAT氏、阿部和輝君 卒業研究生 黒沢幸二君、森浩喜君に謝意を表します。また流量の資料を提供して下さいた建設省福島工事事務所の方々に謝意を表します。

参考文献

- 1) 呉鍾敏, 上田真吾, 小倉紀雄: 自然浄化機能としての野川における脱窒過程の役割, 水環境学会誌, Vol.15, pp.909-917, 1992
- 2) 川島博之, 鈴木基之: 河床付着性生物膜による脱窒, 水質汚濁研究, Vol.9, pp.225-230, 1986
- 3) 土壤微生物研究会, 土壤微生物実験法, 養賢堂, pp.193-200, 1981
- 4) 日本水道協会, 上水試験方法, 日本水道協会, pp.205-532, 1985
- 5) 環境庁, 環境白書, 大蔵省, pp.24-27, 1992
- 6) 日本河川協会編, 日本河川水質年鑑, 山海堂, pp.129-137, 1991
- 7) 福島県, 水質年報, 福島県, pp.33-41, 1991