

(34) 阿武隈川における河川底質の硝化・脱窒活性について

DETERMINATION OF NITRIFICATION AND DENITRIFICATION ACTIVITY IN THE ABUKUMA RIVER BED

高橋幸彦*・中村玄正*・松本順一郎**

Yukihiko Takahashi*, Michimasa Nakamura*, Jun'ichiro Matsumoto**

ABSTRACT; Our previous investigations had revealed that the gas composition of the tiny bubbles found on the Abukuma river bed were 99.8% of nitrogen.^{1), 2)} In this paper, nitrification and denitrification activities of the biomass on river bed stones at swift flowing area and sediments at where the water is stagnant, were determined by batch culture, during two months from March to April 1996.

The changes of nitrogen concentration with respect to time in the batch experiments were clearly explained by the Monod model. Nitrification rate in the biomass on river bed stones and sediment depth of 0~10mm were around 120~180 and 225~400mg/m²・day, respectively. On the other hand, denitrification rate were found to be around 35 and 350mg/m²・day, respectively.

Therefore nitrification and denitrification in surface sediment is considered to be an important process for nitrogen removal.

KEYWORDS: nitrification and denitrification activity, Monod model, river bed

1. はじめに

阿武隈川中流部のよどみ部では、一年を通して底質表面上に『気泡』が確認され、これらの気泡群は底質による脱窒によって生じた窒素ガスと推定される。気泡群が付着している底質の多くが茶褐色を呈し、特異な生物相構成が考えられる。前報で筆者ら^{1), 2)}は、河床で生じている窒素系自浄作用機構を明確にしていく第一段階として底質生物膜の成長と見かけの硝化・脱窒活性について検討を行い、さらに定量的な評価には動力学的な解析が必要であることを示した。一方、活性汚泥法では、既に汚泥中の硝化菌や脱窒菌の存在割合を考慮したモデル解析が行われている³⁾。気泡が付着している茶褐色部の底質表面では、硝化・脱窒細菌、付着性藻類等が複雑に絡み合っており、窒素循環に寄与していることが推測され、生物膜における硝化・脱窒量の推定は重要であると考えられる。

本研究は、窒素循環に関与する微生物の代謝特性を解明する一連の研究として、Monodの増殖動力学^{4), 5), 6), 7), 20)}に基づき底質における硝化・脱窒細菌濃度を推定し、阿武隈川で最も水質汚濁が著しい中流部において河川の浄化機能としての硝化・脱窒活性を定量的に評価することを目的とした。

2. 河川底質の状況

2.1 調査地点の状況

阿武隈川は、福島県中通り地方を北に貫流する流路延長239km、流域面積5400km²の全国有数の河川である。調査地点は、那須連峰旭岳に発する源より約100km下流地点の郡山市内日出山橋(図-1)である。調査地点の川幅は60m程度である。よどみ部は流心部と比較して流速が非常に遅く、低水時に郡山市日出山橋付近では左岸部にみられる。よどみ部は河床が泥、砂から構成されており、底質層が10cm程度堆積している。水深は5~10cmで流速は1~5cm/secである。一方、流心部は河床が礫から構成されており、水深は40~70cmで流速は30~60cm/secである。阿武隈川上流域の市町村は、下水道事業に着手してからの日が浅く普及率は高くない。このため調査地点の水質は、生活雑排水、畜産排水等の影響により、BOD濃度(3.7mg/l前後)、窒素濃度(2.0mg/l前後)、りん濃度(0.10mg/l前後)等が高い傾向にある。

2.2 調査方法

底質採集は平成8年3月下旬に行った。よどみ部の試料は、気泡が付着している茶褐色の河床部を対象として、内径1.6cmの塩化ビニールパイプを用いて深さ方向に5mm間隔で採取した。また流心部では、礫岩表面の付着物を採取した。底質層の窒素関連微生物の生物活性を検討するため、深さ方向における底質中のTS、VS、Chl-a、窒素、りん、有機物濃度および各種細菌数等を調べた。底質中の硝化細菌、脱窒細菌の成長過程に必要なと考えられる間隙水中の窒素、りん、有機物濃度は、スライスした底質を沈殿管にとり、3000rpm、20分間遠心分離した後、上澄液の水量をメスシリンダーではかり、アンモニア性窒素、

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

**元日本大学教授、東北大学名誉教授、東京大学名誉教授

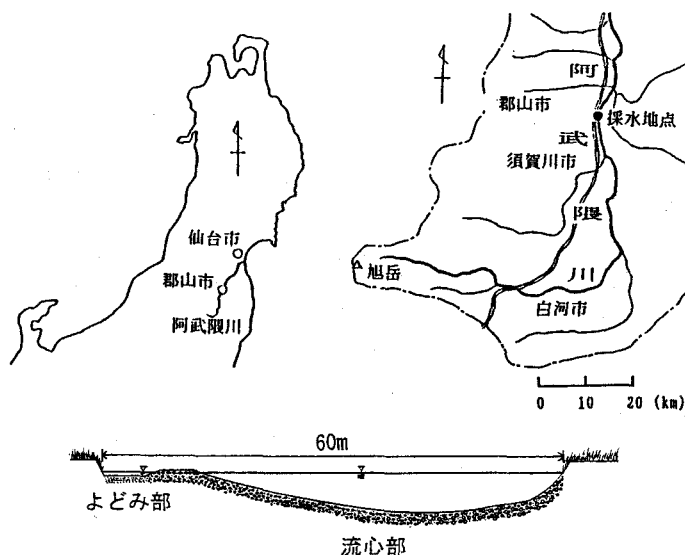


図-1 調査地点

亜硝酸性窒素、硝酸性窒素、 $T-N$ 、 $T-P$ および $CODcr$ 濃度について分析した。また各底質層での概略の細菌数は、スライスした底質を蒸留水300mlに加え、スターラーで30分間緩やかに攪拌し、アンモニア酸化細菌培地、亜硝酸酸化細菌培地、GILTA Yの培地(脱窒細菌)を用いて培養を行い、MPN法¹⁷⁾で測定した。濃度分析は、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)、 $T-N$ (紫外外部吸光度法)、 $T-P$ (高压分解法)については、上水試験方法¹⁸⁾に準じて行い、また $CODcr$ (ニクロム酸カリウム法)に関しては、下水試験方法¹⁹⁾に従い分析した。一方、懸濁物質に関しては、 TS 、 VS (遠心分離法)、付着藻類量の指標として $Chl-a$ (アセトン抽出法)の分析¹⁸⁾を行った。

2.3 結果と考察

(1) 底質層の VS および $Chl-a$ 量

よどみ部は河床が泥、砂から構成されており、底質層が10cm程度堆積している。底質層を深さ方向0~5mm、次の深さ5~10mm、続いての深さ10~15mm、15mm~20mm、20mm~25mm、25mm~30mm、30mm~35mm、35mm~40mm、40mm~45mm、45mm~50mmを採取し、 VS および $Chl-a$ 量を測定した。

図-2に底質層の VS 量を示す。深さ方向0~5mmで最も高く14.5mg/cm²、5~10mmで11.7mg/cm²、その他の深さでは5.6~9.9mg/cm²の範囲にあり、 VS の高い底質層0~10mmは茶褐色を呈している。筆者ら²⁾は、前報で見かけの硝化・脱窒活性について検討を行い、底質による見かけの硝化活性は0~5mm、見かけの脱窒活性は5~10mmで最も高く、この時の底質層は茶褐色を呈していることを報告しており、このような茶褐色部領域では硝化-脱窒現象が速やかに進行する部位と推測される。

図-3に底質層の $Chl-a$ 量を示す。付着藻類の一部は分解してアンモニア性窒素の供給源となっている可能性が推測されることから、底質層における硝化活性を検討する際には付着藻類の現存量を調べるのが重要である。深さ方向0~5mmで最も高く5.6μg/cm²、5~10mmで4.5μg/cm²、10~15mmで2.6μg/cm²、15~20mmで0.7μg/cm²である。下層では $Chl-a$ 量は0.2~0.4μg/cm²の範囲にある。 $Chl-a$ 量は VS 量の約1/2600である。上記の VS と対応してみると深さ方向0~10mmにおいて、藻類を含めた有機物や各種細菌が複雑に絡み合って河床表面を構成していることが考えられる。本研究の対象とした阿武隈川河川水中の窒素濃度、りん濃度が、それぞれ1.0~6.5mg/l(平均2.0mg/l)、0~0.8mg/l(平均0.1mg/l)の範囲にあり、付着藻類が増殖しやすい環境であると推測される。

(2) 間隙水中の窒素、有機物濃度および存在量

脱窒の行われている底質層においては、硝化・脱窒細菌、付着性藻類等が複雑に関与し合っていることが考えられるので、特に硝化・脱窒細菌の基質となるアンモニア性窒素、亜硝酸性窒素、硝酸性窒素、 $CODcr$ 等の間隙水中濃度および存在量を調べた。なお、各底質層の間隙率が異なると水量が違うために、存在量を濃度と上澄液の水量の積で求めた。

図-4に間隙水中の窒素濃度および存在量を示す。間隙水中の窒素濃度は、アンモニア性窒素では0.1~2.4mg/l、亜硝酸性窒素では0mg/l、硝酸性窒素では0~11.8mg/l、 $T-N$ では13.3~136.6mg/lの範囲にある。一方存在量は、アンモニア性窒素では0~0.6μg/cm²、亜硝酸性窒素では0μg/cm²、硝酸性窒素では0~2.1μg/cm²、 $T-N$ では2.3~12.3μg/cm²の範囲にあり、間隙水中のアンモニア性窒素、亜硝酸性窒素

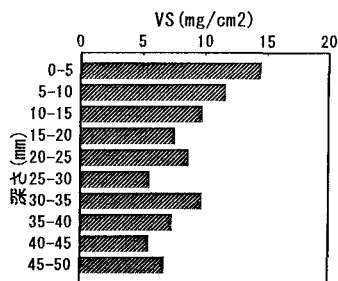


図-2 底質層のVS量

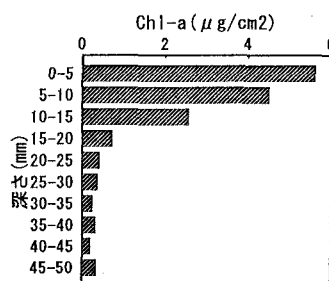


図-3 底質層のChl-a量

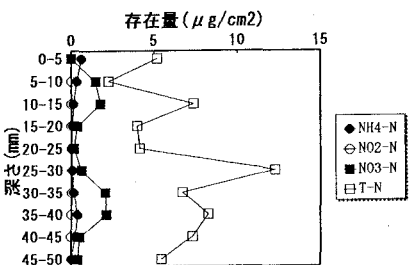
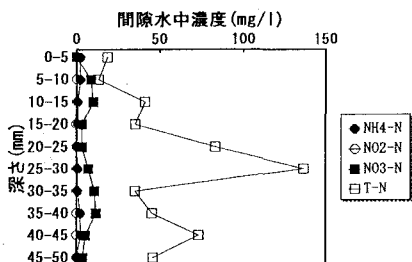


図-4 間隙水中の窒素濃度および存在量

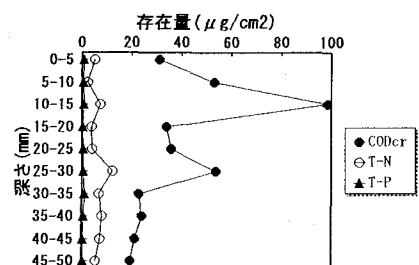
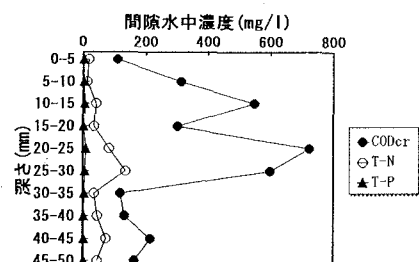


図-5 間隙水中のCODcr、T-N、T-P濃度および存在量

の存在はほとんどみられない。一方硝酸性窒素は多く存在する部分とそうではない部分が認められた。好気的な河川環境においても、懸濁粒子内部あるいは河床堆積物中の微小嫌気領域において脱窒過程が進行することが報告されており^{8)、9)}、一部脱窒が行われた可能性が推察された。

図-5に間隙水中のCODcr、T-N、T-P濃度および存在量を示す。間隙水中のCODcr、T-N、T-P濃度は、CODcrでは110~724mg/l、T-Nでは13.3~136.6mg/l、T-P濃度は、2.6~10.2mg/lの範囲にある。一方存在量は、CODcrでは19.6~98.6μg/cm²、T-Nでは2.3~12.3μg/cm²、T-Pでは0.4~1.0μg/cm²の範囲にある。

(3)底質層の各種細菌数

図-6に面積当たりの各種細菌数を示す。流心部では、アンモニア酸化細菌は 3.1×10^8 MPN/m²、亜硝酸酸化細菌は 2.6×10^{10} MPN/m²、脱窒細菌は 7.2×10^6 MPN/m²である。一方よどみ部ではアンモニア酸化細菌は $5.1 \times 10^6 \sim 2.5 \times 10^8$ MPN/m²、亜硝酸酸化細菌は $2.5 \times 10^9 \sim 1.7 \times 10^{10}$ MPN/m²、脱窒細菌は $1.9 \times 10^7 \sim 1.0 \times 10^9$ MPN/m²の範囲にある。

図-7にVS当たりの各種細菌数を示す。流心部では、アンモニア酸化細菌は 5.0×10^6 MPN/g-VS、亜硝酸酸化細菌は 4.1×10^8 MPN/g-VS、脱窒細菌は 1.2×10^5 MPN/g-VSである。一方よどみ部ではアンモニア酸化細菌は $2.2 \times 10^4 \sim 1.0 \times 10^6$ MPN/g-VS、亜硝酸酸化細菌は $1.5 \times 10^7 \sim 8.7 \times 10^8$ MPN/g-VS、脱窒細菌は $8.4 \times 10^4 \sim 5.3 \times 10^6$ MPN/g-VSの範囲にあり、底質表層部で各種細菌数が多いことがわかる。

3. 付着生物膜の成長過程

3.1 実験目的

阿武隈川よどみ部底質上においては冬季でも(水温1~3℃)直径5mm程度までの気泡が無数付着しており、硝化-脱窒現象に関する細菌活性はかなり高いと考えられる²⁾。そこで生物膜の成長過程を調べるために、低水温時の冬季から春季(2~3月、4~5月)にかけて当該水域で生物膜付着実験を行った。ブロックは、よどみ部および流心部の河床表面上に設置した。

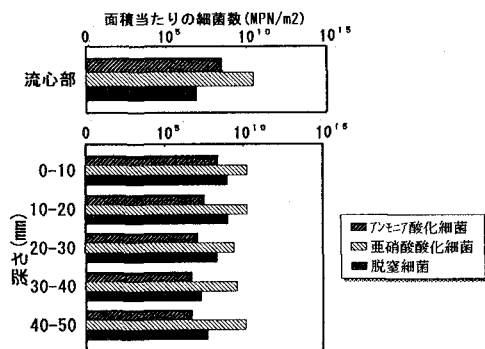


図-6 面積当たりの各種細菌数

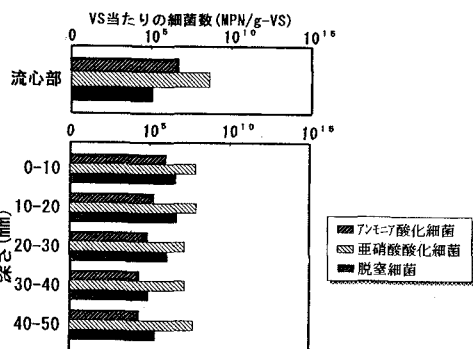


図-7 VS当たりの各種細菌数

3.2 実験方法

底質生物膜の成長過程を検討するために、#150のサンドペーパーで表面を処理した塩化ビニル製の板(19cm×39cm)を建設用ブロックの上面に固定し、流心部とよどみ部の河床上に設置した。生物膜の成長過程は単位面積当たりのVSS、Chl-a密度として評価した。

3.3 結果と考察

図-8にVSSの経日変化を示す。2～3月にかけて降雨による流量増加はほとんど見られなかったため、VSSはよどみ部、流心部に問わず設置日数とともに増加する傾向が認められた。一方、4月下旬にはかなりの降雨があり流量が増加したため、生物膜の剥離によるVSSの減少傾向が見られた。

図-9にChl-aの経日変化を示す。設置後20日間では、よどみ部、流心部に問わず、2月～3月のChl-aに比べ4月～5月のChl-aが高いことがわかるが、これは水温の影響によるものと考えられる。2～3月の水温は3.5～10.6℃、4～5月の水温は11.5～19.8℃の範囲であった。このように水温が高くなるにつれて生物膜を構成する付着藻類の現存量が高くなり、硝化活性に与える影響が多分にあることが推測される。

図-10にVSSとChl-aの関係を示す。全体的にVSSとChl-aの間には相関性が見られVSSの主な構成成分は藻類であることが推測された。一方4～5月の期間中に降雨があり、よどみ部においてVSSに含まれるChl-a量が減少していることがわかる。なお生物膜を顕微鏡で観察した結果、生物膜中の藻類は主に珪藻であることが確認された。

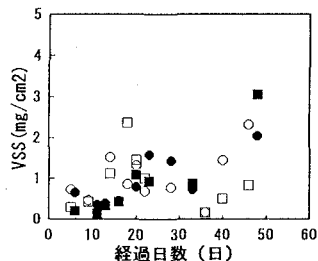


図-8 VSSの経日変化

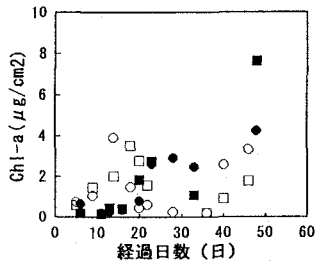


図-9 Chl-aの経日変化

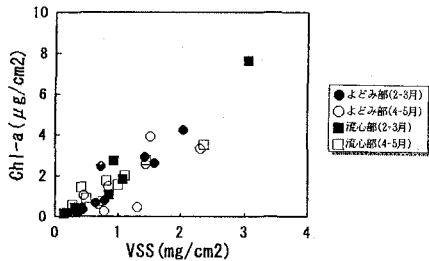


図-10 VSSとChl-aの関係

4. 底質生物相による生物活性

4.1 実験目的

阿武隈川よどみ部においては、硝化・脱窒と思われる現象が進行し無数の窒素ガスが底質表面に付着している。前報²⁾では、基質濃度に速度が比例していると考え、1次反応に従うものとして整理した。本実験では、生物量の増殖過程について基質濃度の変化を無視することができないと考え、Monodの増殖動力学を用いて整理した。

4.2 実験装置と実験方法

(1)硝化活性試験

硝化活性試験は、平成8年4月上旬に行った。底質中の硝化細菌による窒素の代謝等を明らかにするために、アンモニア性窒素添加試験と亜硝酸性窒素添加試験を行った。実験に供した試料は、よどみ部では、気泡が付着している茶褐色の河床部から、底質を内径5cm、長さ20cmの塩化ビニルパイプを用いて採取し、深さ方向に0～10mm、10～20mmの間隔でスライスした。また流心部では、河床を構成している礫岩の表面積の約半分が太陽光に当たっているものを実験室に持ち帰り、蒸留水をかけながらハブラシを用いて付着生物膜を剥がし取った。その後これらを沈殿管にとり、3000rpm、20分間遠心分離し蒸留水を取り除き、固形物を試料とした。実験装置は反応容積1lのポリシリンドーに、空気による曝気攪拌を行えるようにした回転実験装置を用い、底質をポリシリンドーの底に厚さが均一になるように設置した。また光合成を防止す

るために黒いビニールを被せて各態窒素濃度の経日変化を調べた。なお、みかけの硝化活性試験を行った結果、培養期間中に生物膜の分解によると考えられるアンモニア性窒素の供給がかなりみられたことから、硝化抑制剤（ATU）を添加した実験と比較し検討を行った。

培地調整は、河川水を5℃のろ紙でろ過した河川水を用いて、アンモニア性窒素および亜硝酸性窒素の初期基質濃度が20mg/lになるように濃縮基質を加えた。また硝化作用を抑制する目的でアリルチオ尿素を2mg/lの割合で添加した実験も行った。水温は20℃に制御した。

(2)脱窒活性試験

脱窒活性試験は、平成8年4月中旬に行った。底質中の脱窒細菌による窒素の代謝等を明らかにするために、硝酸性窒素添加試験を行った。実験に供した試料は、上記の硝化活性試験に用いた試料と同じ地点で採集した。よどみ部では底質を深さ方向に0～10mm、10～20mm、20～30mm、30～40mm、40～50mmの間隔でスライスした。実験装置は反応容積1lの広口栓栓ピンにゴム栓で密栓の後、気相を窒素ガスで置換し硝化活性実験同様、黒いビニールを被せて、脱窒活性に対する電子供与体添加の有無を比較検討し各態窒素濃度の経日変化を調べた。

培地調整は、河川水を5℃のろ紙でろ過した河川水を用いて、硝酸性窒素の初期基質濃度が10mg/lになるように濃縮基質を加えた。また有機物脱窒に関しては、脱窒活性に対する電子供与体として、酢酸濃度が40mg/lになるように酢酸ナトリウムを添加した。水温は20℃に制御した。

(3)細菌類増殖パラメータの推定

実験に供した試料中のアンモニア酸化細菌、亜硝酸酸化細菌、脱窒細菌の菌体濃度を推定するために動力学的な方法を用いて解析した。Monodの増殖動力学に基づき回分培養での窒素濃度変化式から初期菌体濃度を推定した。初期基質濃度が飽和定数より十分に大きい場合には式は簡略化され、基質濃度と反応時間は以下になる。

$$\frac{dX}{dt} = \mu_m \frac{S}{K_s + S} X \quad (1)$$

$$X = Y(S_0 - S) + X_0 \quad (2)$$

$$t = \frac{1}{\mu_m} \ln \left\{ \frac{X_0 + Y(S_0 - S)}{X_0} \right\} \quad (3)$$

ここに、 μ_m :最大比増殖速度(1/hr),
X:菌体濃度(mg/l), S:窒素濃度(mg/l),
Ks:飽和定数(mg/l), Y:増殖収率(mg/mg),
t:経過時間(hr),添え字oは初期を意味する。
パラメータ μ_m , X_0 はカーブフィッティングにより決定した。シミュレーションに用いたアンモニア酸化細菌、亜硝酸酸化細菌、脱窒細菌の μ_m ,Yの値を表-1に示す。式(3)において、初期菌体濃度 X_0 は経過時間tと窒素濃度Sの実験値へのカーブフィッティング法により推定することができ、底質における単位面積当たりのアンモニア酸化速度、亜硝酸酸化速度、脱窒速度を算出した。

4.3 実験結果および考察

(1)硝化活性試験

図-1 1にアンモニア性窒素添加試験（流心部）における各態窒素の経時変化を示す。培養後96.5hr前後までアンモニア性窒素の変化は見られず、その後急激に減少傾向が認められた。この時亜硝酸性窒素の蓄積は見られたが、硝酸性窒素の蓄積は見られず2～3mg/lの範囲にある。このように空気による曝気攪拌を行い、好気状態で培養を行ったものの底質中の有機物を利用して、脱窒が起こったものと推測される。図-1 3に示すATU添加試験結果と対応してみると、培養後96.5hr前後までに生物膜の分解等によりアンモニア性窒素が9.7mg/l溶出しており、このためアンモニア性窒素添加試験においてはアンモニア性窒素濃度に変化が見られなかったものと考えられる。その後アンモニア性窒素の溶出がなくなり、濃度が急激に減少したと推測される。このためアンモニア酸化細菌の初期菌体濃度を推定する時には、アンモニア性窒素濃度はアンモニア性窒素添加試験値からATU添加試験値を差し引いた値を用いた。

図-1 2に亜硝酸性窒素添加試験（流心部）における各態窒素の経時変化を示す。培養後96.5hr前後までに亜硝酸性窒素は急激に減少したにも関わらず、硝酸性窒素の蓄積が見られないことから底質中の有機物を利用して、脱窒が起こったものと推測される。その後193hr前後から硝化によると考えられる亜硝酸性窒素の蓄積が認められた。

図-1 4にアンモニア性窒素添加試験（よどみ部0～10mm）における各態窒素の経時変化を示す。培養後243hr前後までにアンモニア性窒素は減少し、亜硝酸の蓄積が見られた。また硝酸性窒素の蓄積が見られ

表-1 シミュレーションに用いた定数値

パラメータ		シミュレーション値	単位	文献値	文献番号
μ_m	アンモニア酸化細菌	0.014	1/hr	0.015～0.092	10
	亜硝酸酸化細菌	0.025	1/hr	0.012～0.060	10
	脱窒細菌	0.06	1/hr	0.10～0.69	11, 12
Y	アンモニア酸化細菌	0.098	mg/mg	0.03～0.13	5
	亜硝酸酸化細菌	0.017	mg/mg	0.02～0.08	5
	脱窒細菌	0.36	mg/mg	0.37～0.79	13, 14

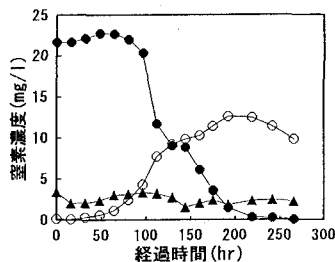


図-1 1 アンモニア性窒素
添加試験（流心部）

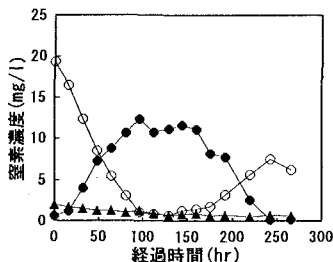


図-1 2 亜硝酸性窒素添加
試験（流心部）

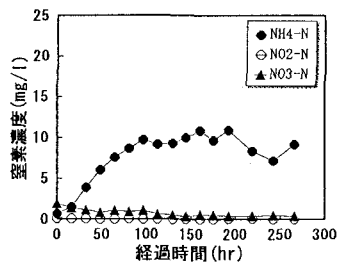


図-1 3 A T U 添加試験
（流心部）

ないことから、脱窒が同時に進行していることが考えられる。図-1 6 に示す A T U 添加試験結果と対応してみると、培養中にアンモニア性窒素が溶出していないことがわかる。このように流心部とよどみ部では、生物膜を構成する附着藻類の現存量や吸着態無機窒素、有機態窒素含有量の相違等が、硝化活性に与える影響が多分にあることが推測される。

図-1 5 に亜硝酸性窒素添加試験（よどみ部0~10mm）における各態窒素の経時変化を示す。培養後266 hr前後でも亜硝酸性窒素は6.2mg/l程度存在している。よどみ部10~20mmの各々の添加試験結果は、図-1 7、図-1 8、図-1 9 に示すとおりであり、上記のよどみ部0-10mmの試験結果と同様な傾向が示された。ただし、培養後266hr前後でも硝酸性窒素が9mg/l程度蓄積されており、これは有機物の不足等により脱窒作用が進行しなかったものと考えられる。

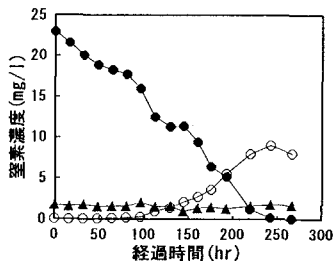


図-1 4 アンモニア性窒素
添加試験(0~10mm)

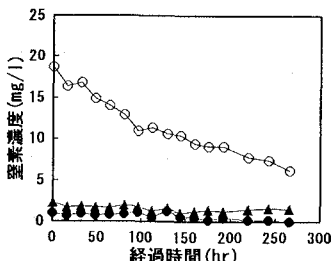


図-1 5 亜硝酸性窒素添加
試験(0~10mm)

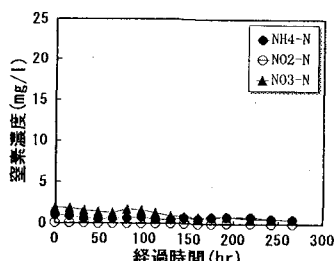


図-1 6 A T U 添加試験
(0~10mm)

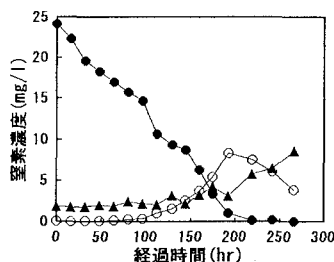


図-1 7 アンモニア性窒素
添加試験(10~20mm)

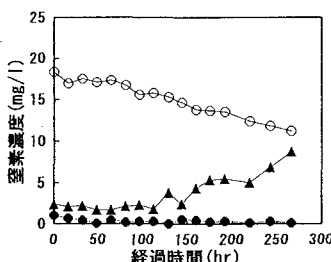


図-1 8 亜硝酸性窒素添加
試験(10~20mm)

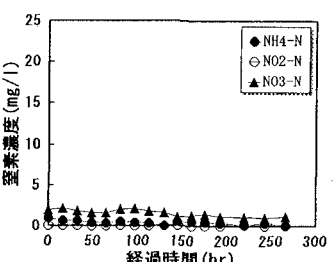


図-1 9 A T U 添加試験
(10~20mm)

図-2 0 に初期菌体濃度の推定結果の例を示す。これらの結果をもとに硝化細菌濃度の推定を求めたものが表-2 である。

(2)脱窒活性試験

図-2 1 に有機物脱窒試験におけるNOx-Nの経時変化を示す。培養後NOx-Nは流心部で48hr、よどみ部0~10mmで120hrでほとんど見られない。よどみ部の底質層における脱窒菌濃度は、反応速度の大小から判断すると表層で最も高く、下層に進むにつれて低くなる傾向があることがわかる。

図-2 2 に内生脱窒試験におけるNOx-Nの経時変化を示す。培養後NOx-Nは流心部で48hrでほとんど見られない。流心部では有機物脱窒と内生脱窒での脱窒活性は同程度であるが、よどみ部の底質層では有機物がかなり不足していることがわかる。

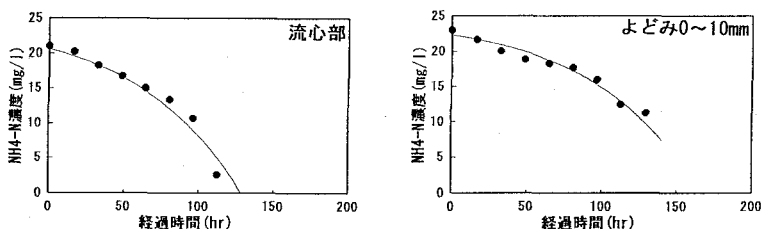


図-20 アンモニア酸化細菌量の推定 (流心部、0~10mm)

表-2 硝化細菌濃度の推定

地点		V S 濃度 (mg/l)	アンモニア酸化細菌 Xo(mg/l)	亜硝酸酸化細菌 Xo(mg/l)
流心部	礫岩の表面	628	0.40	0.060
	よどみ部			
よどみ部	0-10mm	602	0.24	0.013
	10-20mm	392	0.35	0.002

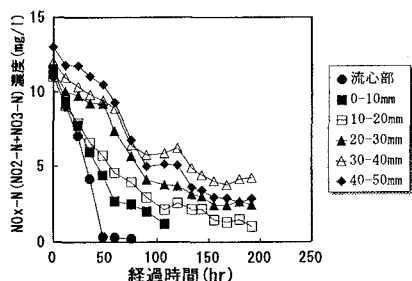


図-21 有機物脱窒試験

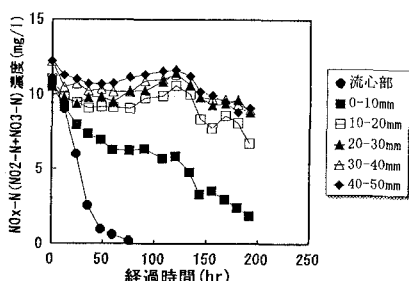


図-22 内生脱窒試験

表-3に脱窒細菌濃度の推定(有機物脱窒試験)を示す。よどみ部における脱窒細菌濃度は、底質表層部で最も高い値を示し、深さ方向に深くなるにつれて低くなっていることがわかる。このことから底質表層部から深くなるにつれて、河川水中からの有機物や硝酸性窒素の供給速度が制限されていることが推測され、このため茶褐色を呈している底質表層部が脱窒活性の高い領域であると考えられる。なお、本実験系内では窒素ガスにより均一無酸素状態が確立されていることから、脱窒細菌の最大比増殖速度は一定と仮定できるとし、一方深さ方向における脱窒細菌の初期菌体濃度が異なるものとして Monod 式を適用した。

(3)面積当たりの活性菌密度、V S 当たりの活性菌体量

推定されたアンモニア酸化細菌、亜硝酸酸化細菌、脱窒細菌の菌体濃度を懸濁液中の存在量に換算し、流心部では採取した礫岩の表面積の1/2の値、よどみ部では採取した底質の表面積の値を用いて、面積当たりの活性菌密度、V S 当たりの活性菌体量を算出した。

図-23に面積当たりの活性菌密度を示す。アンモニア酸化細菌密度は流心部では34.6mg/m²、よどみ部では117.6~171.6mg/m²の範囲にある。亜硝酸酸化細菌密度は流心部では5.2mg/m²、よどみ部では0.8~6.4mg/m²の範囲にある。脱窒細菌密度は流心部では8.8mg/m²、よどみ部では14.7~88.2mg/m²の範囲にある。

図-24にV S 当たりの活性菌体量を示す。アンモニア酸化細菌量は流心部では0.64mg/g-VS、よどみ部では0.40~0.89mg/g-VSの範囲にある。亜硝酸酸化細菌量は流心部では0.096mg/g-VS、よどみ部では0.004~0.022mg/g-VSの範囲にある。脱窒細菌量は流心部では0.31mg/g-VS、よどみ部では0.11~0.39mg/g-VSの範囲にある。以上の結果より面積当たりの活性菌密度、V S 当たりの活性菌体量は、アンモニア酸化細菌が非常に高いことがわかる。また亜硝酸酸化細菌量がアンモニア酸化細菌量にくらべ低いのは、増殖収率の低さによるものと考えられる。

表-3 脱窒細菌濃度の推定

地点		V S 濃度 (mg/l)	脱窒細菌 Xo(mg/l)
流心部	礫岩の表面	783	0.25
	よどみ部		
よどみ部	0-10mm	463	0.18
	10-20mm	531	0.12
	20-30mm	278	0.03
	30-40mm	283	0.03
	40-50mm	280	0.03

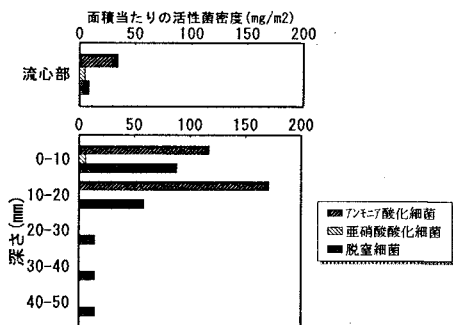


図-23 面積当たりの活性菌密度

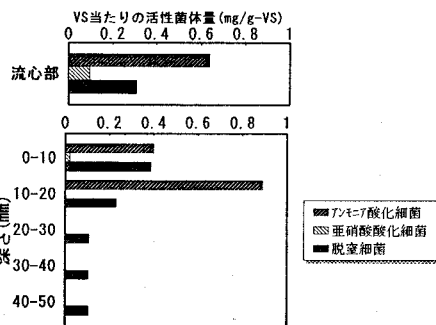


図-24 VS当たりの活性菌体量

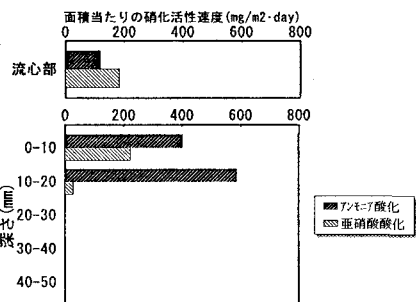


図-25 面積当たりの硝化活性速度

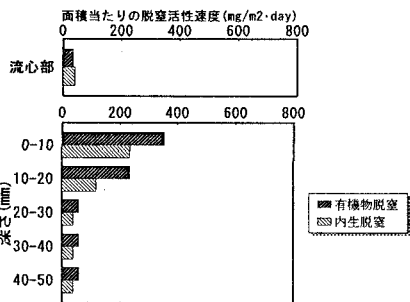


図-26 面積当たりの脱窒活性速度

(4) 面積当たりの硝化、脱窒活性速度

面積当たりの硝化、脱窒活性速度は、 μ_m 、 Y 、 X_0 を用いて算出した。

図-25に面積当たりの硝化活性速度を示す。アンモニア酸化速度は流心部では $119\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ 、よどみ部では $99\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ であった。一方、亜硝酸酸化速度は流心部では $184\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ 、よどみ部では $254\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ であった。古米ら⁶⁾は潤沼川で硝化活性を測定し、アンモニア酸化速度は瀬では $36\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ 、淵では $48\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ であり、亜硝酸酸化速度は瀬では $29\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ 、淵では $62\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ であったと報告しており、阿武隈川の硝化速度はかなり高いものと考えられる。阿武隈川は生活雑排水、畜産排水等の影響により窒素濃度が高い傾向を示しており、河川内で活発な硝化現象が起きたものと推測される。

図-26に面積当たりの脱窒活性速度を示す。内生脱窒試験に共した試料は、有機物脱窒試験に共した試料と同じ地点で採集しているため、有機物量、生物量は同等含まれていると仮定し、脱窒速度をそれぞれ推定した。有機物脱窒による脱窒速度は、流心部では $35\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ 、よどみ部では $765\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ であった。一方、内生脱窒による脱窒速度は、流心部では $41\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ 、よどみ部では $470\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ であった。川島ら¹⁵⁾は、脱窒速度を数理モデル化し、汚染された流れがゆるやかなよどみ域を想定した場合、脱窒速度は $639.4\text{mg/m}^2\cdot\text{day}$ 程度であることを報告しており、本研究で求めた有機物脱窒による脱窒速度とほぼ等しい値であった。

阿武隈川中流部のよどみ部では、一年を通して底質表面上に直径5mm程度までの気泡が無数付着しているのが見られ、これは脱窒によって生じた窒素ガスと推定される。調査期間中の阿武隈川河川水中の溶存酸素濃度は 10mg/l 程度であったことから、溶存酸素濃度が現場の脱窒活性にあまり大きな影響を与えないことが考えられる。

以上の結果より、阿武隈川の川幅を50m、流下距離を1000m、流心部とよどみ部の面積比を9:1と仮定した場合、底質調査地点付近における硝化・脱窒能力を概算すると、一日当たり約10.0kgの窒素が硝化され、約4.2~5.4kgの窒素が脱窒する能力があることがわかる。また筆者らは、1993年5月から1995年4月の間毎週1回水質調査を行っており、年間を通じて流量の平均値は $60\text{m}^3/\text{sec}$ 、各態窒素濃度の平均値は、アンモニア性窒素で 0.38mg/l 、亜硝酸性窒素で 0.05mg/l 、硝酸性窒素で 1.19mg/l であった。これを負荷量に換算すると、アンモニア性窒素で 1.97ton/day 、亜硝酸性窒素で 0.26ton/day 、硝酸性窒素で 6.17ton/day であり、阿武隈川の負荷に対する硝化量は約0.5%、脱窒量は約0.1%であることがわかった。古米ら⁶⁾は、対象とした瀬と淵の概略面積をそれぞれ 1000m^2 、 500m^2 と考え、全体で一日当たり約60gの窒素が硝化されたと報告している。

一方、脱窒量に関しては、Christensenら¹⁶⁾はデンマークのGelbaek川で脱窒活性を測定し、1000m区間の中で窒素負荷量の約1%が脱窒により除去されたと報告しており、阿武隈川の負荷に対する脱窒量より高い値を示した。また川島ら¹⁵⁾は、多摩川支流野川全域における脱窒による窒素除去率を3~4%と推定して

いる。本調査は春季に行ったものであり、今後季節間の硝化・脱窒活性を定量的に評価し、阿武隈川の窒素循環に関する浄化機能を明らかにするつもりである。

5. まとめ

本研究では、阿武隈川中流部の流心部とよどみ部の窒素系自浄作用機構を解明する一連の研究として、主に河床生物膜の成長と硝化、脱窒活性について検討を行った。その結果、次のようなことが明らかになった。

- (1)水温が高くなるにつれて生物膜を構成する付着藻類の現存量が高くなり、硝化活性に与える影響が多分にあることが推測される。
- (2)生物膜を顕微鏡で観察した結果、藻類は主に珪藻であった。
- (3)よどみ部の底質層における脱窒菌濃度は、反応速度の大小から判断すると表層で最も高く、下層に進むにつれて低くなる傾向がある。
- (4)阿武隈川の川幅を50m、流下距離を1000m、流心部とよどみ部の面積比を9:1と仮定して、底質調査地点付近における硝化・脱窒能力を概算すると、一日当たり約10.0kgの窒素を硝化し、約4.2~5.4kgの窒素を脱窒する能力がある。
- (5)本調査は春季に行ったものであり、阿武隈川の負荷に対する硝化量は約0.5%、脱窒量は約0.1%であった。

謝辞

本研究についてご支援ご助言を頂きました茨城大学古米弘明先生に深く感謝いたします。また本研究をまとめるにあたりご協力頂いた大学院博士前期課程2年黒澤幸二氏、AKASHAH BIN MAJIZAT氏、卒業研究生、赤木英治君、阿部まき子さん、資料を提供頂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) 高橋幸彦, 中村玄正, 松本順一郎: 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, 環境工学研究論文集, Vol. 31, pp. 107-115, 1994
- 2) 高橋幸彦, 中村玄正, 松本順一郎: 阿武隈川におけるよどみ部底質による窒素系自浄作用機構について, 環境工学研究論文集, Vol. 32, pp. 179-190, 1995
- 3) Henze, M.: Theories for Estimation of the Fraction of Denitrifiers in Combined Nitrifying-Denitrifying Treatment Plants, Water Research, Vol. 21, No. 12, pp. 1521-1524, 1987
- 4) 二渡了, 大石京子, 古米弘明, 楠田哲也: 強混合河川感潮部における硝化・脱窒過程に関する研究, 土木学会論文集, No. 479/II-25, pp. 101-110, 1993
- 5) 二渡了, 金元圭, 楠田哲也, 古米弘明: 強混合河川感潮部における硝化・脱窒過程のシミュレーション, 土木学会論文集, No. 479/II-25, pp. 111-120, 1993
- 6) 古米弘明, 谷口佳生: 瀬と淵における河床付着物および堆積物の硝化活性について, 環境システム研究, Vol. 23, pp. 488-493, 1995
- 7) 古米弘明, 楠田哲也, 大石京子: 河川底泥中の硝化菌存在量の推定法について, 第22回水質汚濁学会講演集, pp. 103-104, 1988
- 8) Nakajima, T.: Denitrification by the sessile microbial community of a polluted river, Hydrobiologia, Vol. 66, pp. 57-64, 1979
- 9) Hill, A.R.: Denitrification in the nitrogen budget of a river ecosystem, Nature, Vol. 281, pp. 291-292, 1979
- 10) Bhavender Sharma and R.C. Ahlert: NITRIFICATION AND NITROGEN REMOVAL, Water Research Vol. 11, pp. 897-925, 1977
- 11) Chang, J.P. and Morris, J.G.: Studies on the Utilization of Nitrate by Micrococcus Denitrifications, J. Gen Microbiol Vol. 29, pp. 301-310, 1962
- 12) Chiu, S.Y., L. T. Fan, I. C. Kao and L. E. Erickson: Kinetic Behavior of Mixed Populations of Activated Sludge, Biotechnology and Bioengineering, Vol. 14, pp. 179-199, 1972
- 13) Painter, H.A.: A Review of Literature on Inorganic Nitrogen Metabolism in Microorganisms, Water Research Vol. 4, pp. 393-450, 1970
- 14) 荒木宏之, 楠田哲也, 古賀憲一, 井前勝人, 栗谷陽一: 間欠曝気式オキシデーションディッチ法のモデル化に関する研究, 九州大学工学集報, 第61巻第4号, pp. 365-370, 1988
- 15) 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
- 16) Christensen, P.B. and Soresen, J.: Denitrification in sediment of lowland stream: regional and seasonal variation in Gelback and Rabis Baek, Denmark, FEMS Microbiol. Ecol. Vol. 53, pp. 335-344, 1988
- 17) 土壤微生物研究会、土壤微生物実験法, 養賢堂, 1981
- 18) 日本水道協会, 上水試験方法, 日本水道協会, 1985
- 19) 日本下水道協会, 下水試験方法, 日本下水道協会, 1984
- 20) 土木学会衛生工学委員会編, 環境微生物工学研究法, 技報堂出版, 1993