

河口部底泥における窒素変換機能

九州大学工学部 大石京子

同 古米弘明

同 楠田哲也

同 二渡 了

1. はじめに

河口部では河川から流入する懸濁物質が流速の低下及び潮汐の作用により沈降し、集積する傾向にある。この集積した懸濁物質は、潮汐によって浮上、堆積を河口部付近で周期的に繰り返しているためこの付近の河床には、流速の大きいときに容易に浮上する層（浮泥層）とそのような条件下でも容易に、浮上しない比較的安定な層（底泥層）とが存在している。浮泥層の形成によって浮泥層内で溶存酸素は急速に消費されるため、底泥表層は上層水が好氣的であっても嫌氣的になりうる可能性を有している。そこで本研究では、このような条件下にある底泥層での微生物による窒素変換機能を明らかにするために、底泥を好気層、無酸素層、嫌気層に分けて酸素消費速度、硝化速度、脱窒速度、脱アミノ活性を実験的に求め、若干の知見を得たので報告する。

2. 試料及び実験方法

(1) 供試底泥

試料の採取は1988年10月11日（大潮）六角川河口約4 kmの地点で、干潮時に露呈している底泥を採取した。採取地点を図-1に示す。底泥層を乱さないようにコアサンプラーで約10 cm厚さに採取した結果、表面より3 cm以下が黒く
なっていたため、底泥を0-1 cm
（以下表層と表す）、1-3 cm
（以下黒くなるまでの層と表す）、3-5 cm、5-7 cm、7-9 cm
と区分けして採取した。採取場所による性状の分布を考慮して、1 m四方内で数カ所同様に採取して集めたものをコンボジットサンプル化した。潮汐により浮上、流動する浮泥を別途採取した。

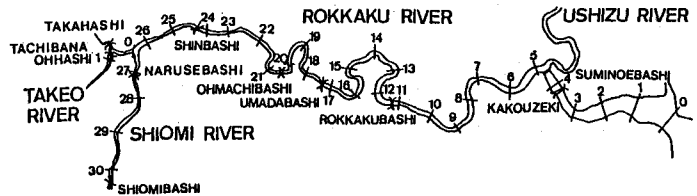


図-1 the Rokkakku River

(2) 底泥の分析

採取試料について、含水比、強熱減量を測定した。さらに、各泥を3000 rpmで10分間遠心分離し、間隙水中の各態窒素、硫酸イオン、塩素イオン濃度を各々オートアナライザー、イオンクロマトグラフ、硝酸銀滴定法により測定した。

(3) 酸素消費活性

浮泥、表層、黒くなるまでの層の各泥を採水時の河川水を0.45 μmメンブレンフィルターで濾過したもので再懸濁（各々SSとして75 g/l, 71 g/l, 58 g/l）させ、容量100 mlのフランビンに注入した後DOメーターでDOの変化を連続測定した。ATUを1 mg/lになるように添加し同様にDO変化を測定した。河川水の塩素イオン濃度は3200 mg/lであった。

(4) 硝化活性

浮泥、表層、黒くなるまでの層の各泥を、各々SSとして24 g/lに再懸濁し、基質としてNH₄-N

あるいは $\text{NO}_2\text{-N}$ のいずれかを 10mg/l になるように添加し、暗条件下で好気培養して経時的にサンプリングし各態窒素濃度変化を測定した。

(5) 脱窒活性

全ての層の底泥をSSとして 52g/l に再懸濁しATUを 5mg/l 、基質として $\text{NO}_2\text{-N}$ 、あるいは $\text{NO}_3\text{-N}$ のいずれかを 10mg/l になるように添加して溶存酸素を窒素ガス曝気で置換した。静置して時々振とうして経時的にサンプリングし各態窒素及びTN濃度を測定した。基質と系のTNの減少量を脱窒量とした。

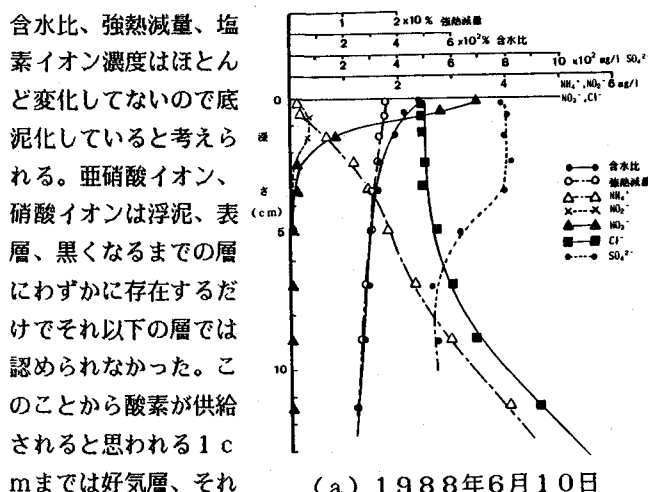
(6) 脱アミノ活性

全ての層の底泥をSSとして 50g/l に再懸濁させ、ATUを 5mg/l になるように添加した後、好気あるいは嫌気条件下で培養し経時的にサンプリングして各態窒素濃度変化を測定した。

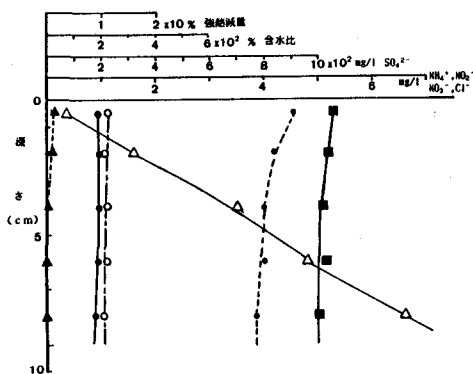
以上の実験は、室温 20°C の恒温室内で行った。また懸濁物質液中の塩素イオン濃度は採泥時の間隙水中の塩素イオン濃度に等しくなるように調整した。実験時のpHの範囲は7.4から7.6であった。基質としての $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ には NH_4Cl 、 NaNO_2 、 NaNO_3 を使用した。これらの分析にはオートアナライザーを使用した。

3. 実験結果及び考察

流速の速いときに巻き上げられ浮上する浮泥層と、浮上しにくい底泥層との境界が明確ではないので、まず小潮から大潮へと移行する中間日の1988年6月10日、干潮時に底泥をコアサンプラーで採泥し、表層より0-0.5cm, 0.5-1cm, 1-2cm, 2-3cm, 3-4cm, それ以下12cmまで2cm間隔でサンプルを切断し、各層の含水比、強熱減量、間隙水中の各態窒素、硫酸イオン、塩素イオン濃度を測定した。その結果、図-2(a)に示すように表層より2.5cm付近で含水比が大きく変化したため、この層は潮汐によって浮上、堆積を繰り返す浮泥層と推定した。そこで、浮泥層が浮上していると思われる大潮の干潮時のものを底泥として今回の採泥を行った。採泥時の底泥及び浮泥の含水比、強熱減量、間隙水中の各態窒素、塩素イオン、硫酸イオンの垂直分布を図-2(b)に示す。表面以下9cmの深さまで



(a) 1988年6月10日



(b) 1988年10月11日

含水比、強熱減量、塩素イオン濃度はほとんど変化してないので底泥化していると考えられる。亜硝酸イオン、硝酸イオンは浮泥、表層、黒くなるまでの層にわずかに存在するだけでそれ以下の層では認められなかった。このことから酸素が供給されると思われる1cmまでは好気層、それ以下亜硝酸態窒素、硝酸態窒素の存在が認められ泥が黒くなるまでの層は無酸素層、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素が認められずしかも泥が黒色を呈している層は嫌気層と考えられる。アンモニア態窒素は下層ほど高濃度で存在した。酸化還元電位は1cm深さで318mV, 5cm深さで237mV, 9cm深さで165mVであった。3カ所とも同一電極で測定したが、電極挿入時間が30分と短かったため平衡に達しておらず高い値を示したのではないかと考えられる。

各層の硝化、脱窒、酸素消費、脱アミノ活性を表-1に示す。

酸素消費速度は1次反応で表され、浮

表-1 浮泥及び底泥の物質変換速度

泥、表層、黒くなるまでの層で各々4.
 $0 \times 10^{-3} / \text{min} \cdot \text{gSS}$ 、 $1.2 \times 10^{-2} / \text{min} \cdot \text{gSS}$ 、 $2.1 \times 10^{-2} / \text{min} \cdot \text{gSS}$ であり、浮泥に比べ表層や黒くなるまでの層では消費速度が1桁大きかった。ATUを $1 \text{ mg} / \ell$ になるように添加した場合も添加しない場合と有差は認められず1時間以内での硝化による酸素消費は非常に小さいと考えられる。

アンモニア酸化は0次反応であり、亜硝酸酸化は $3 \text{ mg} / \ell$ 以上まで0次反応を示し両方とも約 $3 \times 10^{-3} \text{ mgN} / \text{hr} \cdot \text{gSS}$ であった。

脱窒活性を調べる際、基質として NO_2-N あるいは NO_3-N を各々 $10 \text{ mg} / \ell$ になるように添加したが高濃度域と低濃度域では速度が異なった。 NO_2-N の濃度が $1 \text{ mg} / \ell$ 以上 $4 \text{ mg} / \ell$ 以下では1次反応であり、表層で $2.7 \times 10^{-4} / \text{hr} \cdot \text{gSS}$ 、嫌気層で $3.5 \times 10^{-4} / \text{hr} \cdot \text{gSS}$ の値を示し嫌気層での活性が若干高いことが解った。対象としている河口部の NO_2-N 濃度は $1 \text{ mg} / \ell$ 以下であるので、低濃度での検討がさらに必要である。 NO_3-N の還元は対象域の濃度 $3-4 \text{ mg} / \ell$ では1次反応であり表層で $1 \times 10^{-4} / \text{hr} \cdot \text{gSS}$ 、嫌気層で $2.5 \times 10^{-4} / \text{hr} \cdot \text{gSS}$ であった。清家らは¹⁾汽水湖である中海の底泥表層での脱窒速度を $0.03-6.0 \mu \text{gN} / \text{day} \cdot \text{gSS}$ と推定している。彼らは現場の NO_2-N 、 NO_3-N 濃度、 $1 \text{ mg} / \ell$ 以下について求めており、このような低濃度において脱窒速度はミカエリス-メンテン式に近似できるとしている。本実験での脱窒速度は浮泥、表層、黒くなるまでの層で $9 \mu \text{gN} / \text{day} \cdot \text{gSS}$ 、嫌気層で $21.6 \mu \text{gN} / \text{day} \cdot \text{gSS}$ であり中海の底泥表層と近い値を示している。

有機分解による脱アミノ反応は好気状態では認められなかった。しかし嫌気状態では0次反応でアンモニア生成があり、表層で他の層より若干活性が高かった。浮泥及び全ての層の底泥は同じ脱アミノ活性を有しているが環境条件によってその活性は変化する。したがって、硝化の場である表層、浮泥などの好気層において脱アミノ化はほとんど無視でき、また浮泥の堆積によって一時的に嫌気状態になっても表層のアンモニア態窒素の生成速度は $0.36 \text{ mgN} / \text{m}^2 \cdot \text{hr}$ 程度と見積られる。よってアンモニア態窒素の供給源は直上水や、図-2に示したように嫌気層ほどアンモニアが高濃度で存在することから嫌気層にあり、ここで生成された後、底泥上層部へ輸送されると考えられる。

対象域での浮泥濃度が $10 \text{ g} / \ell$ 、溶存酸素濃度を $8 \text{ mg} / \ell$ とし、仮にこれが全部沈降したとすれば30分後には表層の溶存酸素はほとんど消費され嫌気状態になる。硝酸態窒素濃度を $3 \text{ mg} / \ell$ とし、次の潮汐で浮泥が巻き上がるまで1時間とすると溶存酸素がなくなってから次の30分間に $0.6 \text{ mgN} / \text{m}^2$ が脱窒されることになる。しかし、浮泥が沈降し次に巻き上げられるまでの時間は約30分と推定されることからSSが $10 \text{ g} / \ell$ 以下では表層での脱窒は小さいと考えられる。

参考文献

- 1) 清家 泰・近藤邦男・伊達善夫・石田祐三郎：汽水湖・中海における窒素代謝Ⅱ
 Japan J. Limnol., vol.47, pp269-278 (1986)

深さ(cm)	浮泥	好気層	無酸素層	嫌気層			備考
		0-1	1-3	3-5	5-7	7-9	
酸素消費 ¹⁾ ATU無添加 ATU添加	0.4 0.4	1.2 1.2	2.1 2.0	- -	- -	- -	1次反応
硝化 ²⁾ NH ₄ 酸化 NO ₂ 酸化	3.6 3.2	3.3 2.5	3.2 3.0	- -	- -	- -	0次反応 1<NO ₂ -N<3mg/l
脱窒 ³⁾ NO ₃ 還元 NO ₂ 還元	2.7 1.0	2.7 1.0	2.7 1.3	3.7 2.4	3.4 2.4	3.5 2.8	1次反応 1<NO ₂ -N<4mg/l 1<NO ₂ -N<4mg/l
脱アミノ化 ⁴⁾ 好気条件 嫌気条件	0 4.1	0 8.2	0 5.3	0 4.5	0 4.4	0 6.8	0次反応

※1: $\times 10^{-2} / \text{min} \cdot \text{gSS}$

※2: $\times 10^{-3} \text{ mgN} / \text{hr} \cdot \text{gSS}$

※3: $\times 10^{-4} / \text{hr} \cdot \text{gSS}$

※4: $\times 10^{-5} \text{ mgN} / \text{hr} \cdot \text{gSS}$