

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 16 日現在

機関番号：21401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2014

課題番号：23780340

研究課題名(和文) 硫黄高含有生態系における硫黄脱窒による窒素循環と硫黄循環のリンク

研究課題名(英文) Linkage between nitrogen and sulfur cycles by sulfur denitrification in a sulfide rich ecosystem

研究代表者

早川 敦 (Hayakawa, Atsushi)

秋田県立大学・生物資源科学部・准教授

研究者番号：10450280

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：有機物を電子供与体とする一般の脱窒と異なり、還元型硫黄を電子供与体とする硫黄脱窒と呼ばれる過程がある。しかし、生態系の硫黄脱窒の報告例は限られる。本研究では、高硫黄含有生態系における硫黄脱窒の検出を目的とした。(1)秋田八幡平では、培養試験による硫黄脱窒のシグナルと細菌群集構造の解析による硫酸化細菌の存在を確認し、硫黄脱窒の証拠を得た。(2)流域レベルでは、脱窒は集水域の地形と電子供与体の分布に制御され、渓流水NO₃-濃度の空間分布をもたらした。八郎湖流域では硫化物が硫黄脱窒を促進し、NO₃-濃度の低下に寄与した可能性があった。(3)八郎潟干拓地内の堆積物からは硫黄脱窒のシグナルを確認した。

研究成果の概要(英文)：Most studies of denitrification have focused on organic carbon as an electron donor, but reduced sulfur can also support denitrification. Few studies have reported sulfur denitrification in ecosystems. The objectives of this study was to elucidate sulfur denitrification in sulfide rich ecosystems. (1) Both the signal of sulfur denitrification and the higher relative abundance of sulfur-oxidizing bacteria observed in the riverbed sediment in Akita Hachimantai clearly indicated that sulfur driven denitrification was occurred by sulfur-oxidizing bacteria. (2) Catchment topography and the distribution of electron donors in riverbed sediment explained the spatial variation in in-stream NO₃- concentration and, by inference, catchment denitrification. The results indicate that more NO₃- will be denitrified by sulfur-mediated denitrification as the abundance of sulfide in the catchment increases. (3) The signal of sulfur denitrification was also detected in the sediments in the Hachirogata polder.

研究分野：生物地球化学

キーワード：硫黄脱窒 微生物生態 パイライト 地質 窒素循環 硫黄循環 硫酸化細菌 生物地球化学

1. 研究開始当初の背景

人間活動の活発化に伴う地球規模の窒素循環量の増大は、硝酸イオン流出による水圏の富栄養化、亜酸化窒素放出による温暖化といった生態系への窒素負荷を増大させている。脱窒は、こうした生物に利用可能な窒素(反応性窒素)を反応性の乏しい窒素ガスに変換する反応性窒素除去プロセスであり、一般には従属栄養性の細菌が担っており、硝酸イオンと有機物をそれぞれ電子受容体と電子供与体として利用する嫌気呼吸によって進行する。これまで生態系の物質収支研究によって窒素循環に占める脱窒の量的重要性が明らかとなりつつある一方で、脱窒のホットスポットに関する情報はほとんど整理されていない現状があった。

生態系の窒素除去においては、これまで有機物を基質(電子供与体)とする従属栄養性の脱窒に焦点が当てられてきたが、還元型の硫黄を電子供与体とする独立栄養性の脱窒(硫黄脱窒)も存在する。硫黄脱窒を担う硫黄酸化細菌は独立栄養性の細菌であるため有機物を必要とせず、すなわち、有機物の乏しい生態系や地下圏でも豊富に存在する硫化物を利用した脱窒が積極的に起こっている可能性がある。研究開始当初では、 SO_4^{2-} 生成に伴う NO_3^- 除去が野外でも観察され、生態系規模での硫黄脱窒の窒素循環への寄与が無視できないことが示唆された(BurginとHamilton, 2008)が、知見は乏しい状況にあった。

黒鉱に代表されるように地層に硫化物を豊富に持つ秋田県は、生態系への窒素負荷に対する浄化能力が潜在的に高く、硫黄脱窒のホットスポットとなっている可能性がある。また、還元的な環境にある海底では硫酸イオンの還元が卓越するため、パイライト(FeS_2)が集積していると考えられる。新第三紀の大半が海の底であった八郎湖流域を含む秋田県西部では、その地層に脱窒の電子供与体となる硫化物が豊富に含まれ脱窒に関与しているかもしれない。

2. 研究の目的

本研究では、室内実験とフィールド調査を組み合わせ、生態系内における硫黄脱窒のシグナルを検出し、水質におよぼす影響を明らかにすることを目的とする。そのために、本研究では2つの硫黄高含有生態系を対象に調査を実施した。

- (1) 秋田八幡平
- (2) 八郎湖流域

3. 研究の方法

(1) 秋田八幡平：秋田県北東部の十和田・八幡平国立公園特別地域内に位置する後生掛自然研究路の一面を調査対象とした。調査地周辺は秋田八幡平の後生掛地熱地帯内にあり、八幡平および焼山火山地帯の一部でほぼ全域が両火山の溶岩および火山砕屑物からなる。また、松尾・八幡平地域硫黄鉱床帯

の西端にも位置し、噴気孔の跡や噴気孔の末期にあるものが多数の小泥沼をなしている。粘土は硫黄分に富む。

事前の調査で河床堆積物の脱窒活性と NO_3^- の消長を調べた結果、高い脱窒活性と NO_3^- 濃度の低下に伴う SO_4^{2-} 濃度の上昇が確認されたため、硫黄脱窒が示唆された。本研究では硫黄酸化細菌の存在を確認するため、次世代シーケンサーによる細菌群集構造の解析を行った。

(2) 八郎湖流域：八郎湖流域は日本海に面した秋田県西部に位置し、流域面積は894 km^2 である(図1)。流域の年間降水量は1553 mm、年平均気温は10.8°Cである。流域東部には流域の45%を占める森林が分布し、スギ人工林を主体とする樹種構成となっている。八郎湖流域周辺は東北グリーンタフ地帯に属し、新第三紀中新世以降の堆積岩類および火山岩類からなる地層が広く分布している。特に秋田地域には前期中新世末から海水が浸入し、中期中新世前期の中ごろにはほぼ全域が沈水した状態が維持され、その結果、八郎湖周辺の新第三紀上半部を構成する堆積岩類は海成層で、厚い泥質岩からなる。

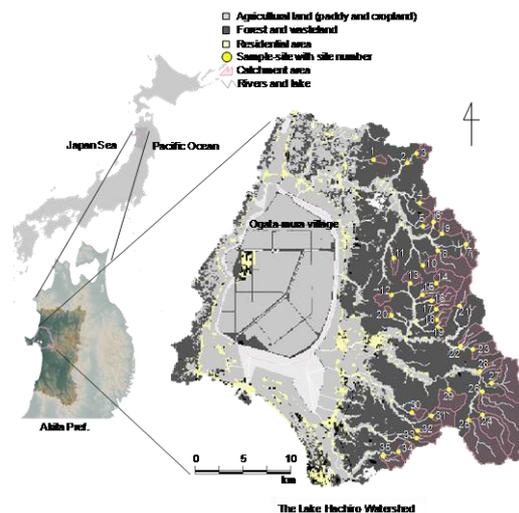


図1 八郎湖流域と渓流水の調査地点

八郎湖に流入する主要5河川の源流域に、流域を網羅するように合計35地点の採水地点を選定した。全ての集水域は人為汚染源を含まず、上流と下流の関係にない独立した集水域である。河川水の採取は2009年12月から2011年12月にかけて計9回実施した。2011年7月には、各採水地点の河床堆積物を採取し、脱窒活性を測定した。

(3) 八郎湖流域内八郎潟干拓地における脱窒能：パイライトを含有すると推定される八郎潟干拓地内において、2013年2月に30 m コア試料を採取し、深度別の脱窒能を測定し、硫黄脱窒の可能性を検討した。

4. 研究成果

(1) 秋田八幡平： NO_3^- を添加した河川堆積物の培養の結果、脱窒活性と NO_3^- 濃度の低下

に伴う SO_4^{2-} 濃度の上昇が確認され、硫黄脱窒が示唆された (図 2)。

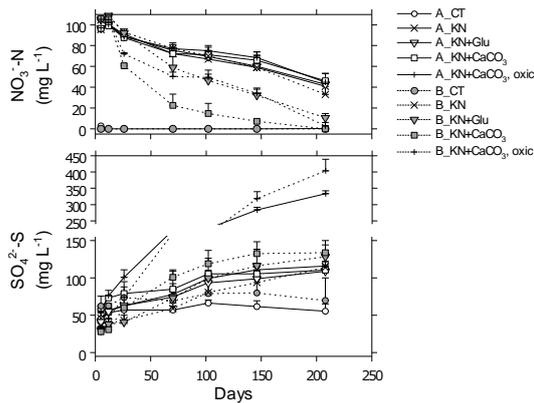


図 2 八幡平河川堆積物の長期培養による NO_3^- および SO_4^{2-} の消長。

細菌群集構造解析の結果、秋田八幡平の堆積物中の硫黄酸化細菌、鉄酸化細菌の相対存在量はそれぞれ 85.8、4.7% であり、細菌の 90% 以上が独立栄養性であることが明らかとなった (図 3)。このことから、硫黄酸化細菌が硫黄脱窒による NO_3^- 濃度の低下に大きく寄与していると考えられた。

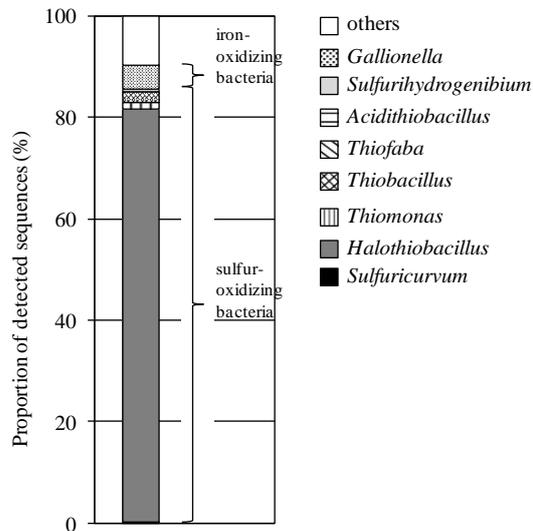


図 3 八幡平河川堆積物中における硫黄酸化細菌および鉄酸化細菌の相対存在量。

(2) 八郎湖流域：渓流水の NO_3^- 濃度は大きな空間的不均質性を持ち ($0.06\text{--}0.52 \text{ mg N L}^{-1}$)、10 m の解像度の数値標高モデルを用いて算出した各集水域の地形指数 (Topographic wetness index) と有意な負の相関 ($r = -0.576$, $P < 0.01$) が認められた (図 4(a))。このことは、勾配が緩やかな集水域で NO_3^- 濃度が低下したことを意味する。河川堆積物の脱窒能 (図 4(b)) や溶存 N_2O 濃度、水溶性有機炭素 (WESOC) 含量は地形指数と正の相関にあ

った (勾配の緩やかな集水域で高い)。このように水文プロセスを制御する地形と脱窒を制御する諸要素が相関していたことから、地形のもたらす水環境 (水分リッチな嫌気環境) によって促進された脱窒が NO_3^- 濃度の空間分布の制御要因であると考えられた。

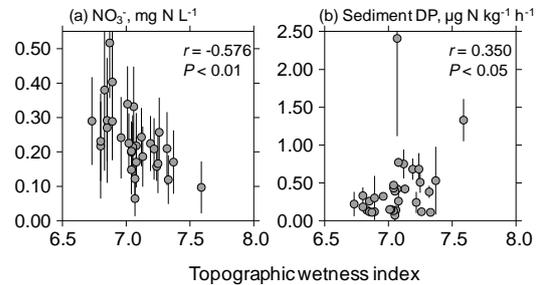


図 4 地形指数 (Topographic wetness index) と (a) NO_3^- -N 濃度、(b) 堆積物の脱窒能 (Sediment DP) の関係。

一方、易酸化性硫黄 (EOS) 含量の分布は地形指数に依存しなかった ($P = 0.92$) が、 $\log(\text{EOS})$ の増加とともに SO_4^{2-} 濃度は上昇 ($P < 0.01$) し NO_3^- 濃度は低下する傾向 ($P = 0.106$) にあったことから (図 5(a), (b))、還元型の硫黄を電子供与体とする脱窒も示唆された。集水域の地形と脱窒の電子供与体の分布を反映した脱窒能の大小が、渓流水 NO_3^- 濃度の空間的不均質性をもたらす要因となっていたと考えられた。

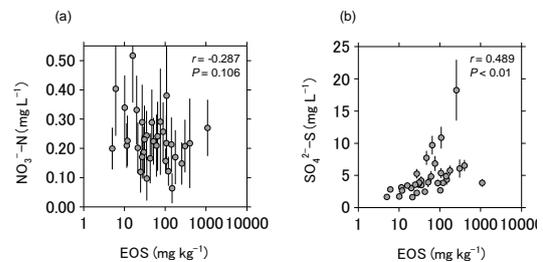


図 5 河川堆積物中の易酸化性硫黄 (EOS) 含量と河川水中 (a) NO_3^- -N 濃度、(b) SO_4^{2-} -S 濃度の関係。

そこで、堆積物の EOS 含量の高かった地点において、河川バンク土壌の深度別の含量を測定した。その結果、WESOC 含量は表層 ~ 50 cm で高く下層ほど減少した一方、EOS 含量は表層で低く、河川水面に近い下層 180-210 cm で増加した。このことから、河川堆積物中の EOS の起源は河川バンクや河畔域の下層の可能性があった。河川バンクおよび河畔域内の下層の EOS が脱窒におよぼす影響を今後詳細に調べる必要があるだろう。

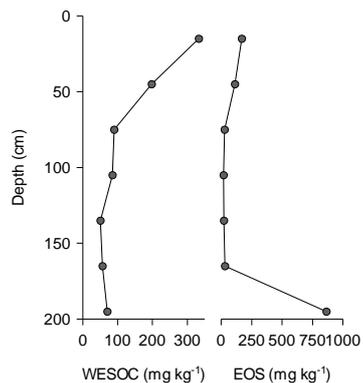


図 6 河川バンク土壤中の水溶性有機炭素 (WESOC) 含量と易酸化性硫黄 (EOS) 含量の鉛直分布。

(3) 八郎湖流域内八郎潟干拓地における脱窒能：深度別の脱窒能には 3 つのピーク (表層-5 m、10-15 m、21-26 m) が認められた。このうち 1.5-5 m、10-15 m 付近では、N+S 処理 (チオ硫酸) で N+C 処理 (グルコース) よりも脱窒能が上昇したことから、還元型硫黄を電子供与体とする脱窒が卓越している可能性があった。

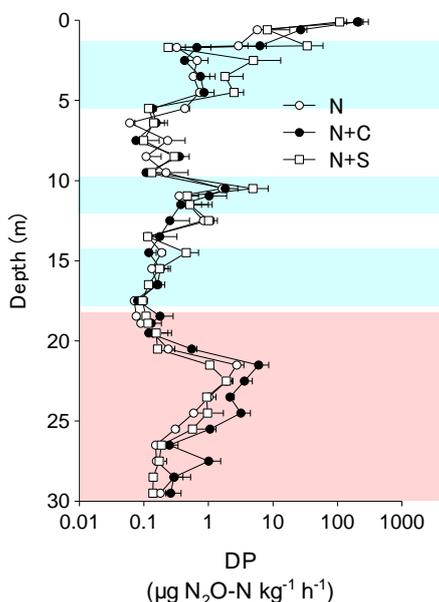


図 7 八郎潟干拓地堆積物の脱窒能の鉛直分布. N; KNO₃ 処理、N+C; KNO₃+グルコース処理、N+S; KNO₃+チオ硫酸処理

<引用文献>

Burgin, A.J. and Hamilton, S.K. NO₃⁻-driven SO₄²⁻ production in freshwater ecosystems: Implications for N and S cycling. *Ecosystems*, 11:908-922. 2008

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

① Hayakawa, A., Hatakeyama, M., Asano, R., Ishikawa, Y., Hidaka, S. Nitrate reduction coupled with pyrite oxidation in the surface sediments of a sulfide-rich ecosystem, *Journal of geophysical research: Biogeosciences*, 査読有, 118, 1-11, 2013, doi:10.1002/jgrg.20060

[学会発表] (計 5 件)

① 早川敦、船木優、渡邊慎太郎、石川祐一、日高伸 (2012) 地形が溪流水硝酸濃度と堆積物の脱窒を制御する、日本地球惑星科学連合、千葉、2012.5.23.

② Hayakawa A., Funaki Y., Sudo T., Watanabe S., Ishikawa Y., Hidaka S. (2012) Catchment topography and distribution of electron donors for denitrification control stream NO₃⁻ concentration in the Lake Hachiro watershed, Akita, Japan, AGU fall meeting, San Francisco, USA, 2012.12.2-6.

③ 早川敦、池田里美、石川祐一、日高伸 (2013) 八郎湖流域における流入河川河口の栄養塩と微量元素濃度の時空間変動、日本土壤肥料学会、名古屋、2013.9.11-13

④ Hayakawa, A., Ikeda, S., Tsushima, R., Ishikawa, Y., Hidaka, S. (2014) Biogeochemical processes of river sediments control a spatio-temporal variation of nutrient concentration at river mouths in the Lake Hachiro watershed, Japan, 20th world congress of soil science, ICC Jeju, Korea, 2014.6.8-13

⑤ 早川敦、浅野亮樹、阿部美里、石川祐一、日高伸 (2014) 八郎潟干拓地土壌における硫黄脱窒-30 m コア試料から見た脱窒能と細菌群集構造の鉛直分布-、日本土壤肥料学会、東京農工大学、東京、2014.9.9-11

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：

出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等
<http://www.akita-pu.ac.jp/stic/souran/scholar/detail.php?id=267>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

早川 敦 (HAYAKAWA, Atsushi)
秋田県立大学・生物資源科学部・准教授
研究者番号：10450280

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：