

氏 名	ナリン ブンタノン Narin Boontanon
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	理 博 第 2343 号
学位授与の日付	平成 13 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	理 学 研 究 科 生 物 学 専 攻
学位論文題目	Biogeochemical and Ecological Studies of Dissolved Nitrous Oxide in Several Aquatic Ecosystems (さまざまな水系における溶存態亜酸化窒素に関する生物地球化学的および生態学的研究)
論文調査委員	(主 査) 教 授 和 田 英 太 郎 教 授 清 水 勇 教 授 山 岸 哲

論 文 内 容 の 要 旨

亜酸化窒素 (N_2O) は炭酸ガス, メタンと並んで現在注目を浴びている温室ガスの一つである。自然生態系においては有機態窒素が好氣的に分解される際, アンモニアが亜硝酸に酸化される段階 ($\text{NH}_4^+ \rightarrow \text{N}_2\text{O}^- \rightarrow \text{N}_2\text{O}$) でバイプロダクトとして, あるいは嫌気下において脱窒 ($\text{NO}_3^- \rightarrow \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2$) が駆動する際, 中間物として生成される二つのプロセスがある。本研究はタイ国南部熱帯湿地林及び琵琶湖における溶存亜酸化窒素の動態とその分子内同位体分布 ($\delta^{18}\text{O}$, $\delta^{15}\text{N}$) の季節変化を詳細に調査研究し, その動態と生成機構を明らかにすることを目的とした。

東南アジアにはかつて浅海があり, 現在湿地林となっている場所が広く分布している。マレーシアとの国境に位置するナラチワ州トゥデン湿地林はタイ国最大の面積 (23,300ha) を有する原生林であり, この中をバンナラ河が貫流している。30年間に及ぶ平均降水量は 2,530mm/年で, 雨季は毎年11月と12月である。この雨季の初期 (11月初旬から中旬) にバンナラ河の溶存 N_2O は 10nM に及ぶするどいピークを示すことが2年間に渡って見出された。この N_2O のピークの $\delta^{15}\text{N}$, $\delta^{18}\text{O}$ の値は低下し, 硝化系によって生成したことが確認され, この動態を示す $\delta^{18}\text{O}-\delta^{15}\text{N}(\text{N}_2\text{O})$ 二次元グラフを作成することに成功した。熱帯湿地林では乾季—雨季のサイクルが, 亜酸化窒素の生成に重要な因子となること, また主として硝化系によることを明らかにした。この河川では有機物の酸化によって溶存酸素が減少し, 亜酸化窒素のピークの後に (雨季の中ごろ) メタンのピークが出現することも明らかにした。

琵琶湖は我国最大の湖で, 1月に 100m までの全層が混合する亜熱帯湖である。近年は汚濁がゆっくりと進行し, 中栄養湖となっている。申請者はこの湖の北湖深度 70m の地点で, 1997年から1998年の2年間に渡って隔月に溶存 N_2O とその分子内同位体分布に関する調査研究を行った。その結果は次のようにまとめられる。

1) 溶存亜酸化窒素の分子内同位体分布から, 溶存酸素の十分存在する 50m 以浅の水柱では硝化系によって亜酸化窒素が生成しており,

$$\delta^{18}\text{O}(\text{N}_2\text{O}) = 1.17\delta^{15}\text{N}(\text{N}_2\text{O}) + 38.3$$

の直線関係を与えることができた。この正の相関は4月の成層化以降, 琵琶湖中深層において有機物の分解が進んでゆくが, 窒素同位体効果が植物プランクトンによる取込みの時ならびに分解過程の時に起り, 時間とともに有機態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ が高くなること, 平行して有機物の分解によって溶存酸素の $\delta^{18}\text{O}$ も高くなってゆくことの二つがあわさって, この正の相関が成立することを示した。この関係式は申請者が始めて明らかにした成果であり, これまでの数少ない海洋のデータも解析することによって, 硝化系と脱窒系では直線の勾配に有意の差があることを示した。

2) 底層付近の 70m の底層では溶存 N_2O の値は有意に高く,

$$\delta^{18}\text{O}(\text{N}_2\text{O}) = -\alpha\delta^{15}\text{N}(\text{N}_2\text{O}) + b$$

の関係を認めた。2ソースモデルを示唆するこの関係式は琵琶湖の底質表層では沈降する有機物粒子のフラックスに応じて, 酸化還元境界層が極表層に位置する場合と底質内に存在する二つの脱窒サイトを考えることによって説明されるモデルを提

示した。

論文審査の結果の要旨

通常、同位体効果はアイソプマーの統計熱力学的な性質の差異によって全ての非生物的、生物学的プロセスで起る。このため、自然生態系の物質循環に組み込まれている全ての生物起源物質は、異なる同位体組成を有しており、その組成比を精密に測定することによって、その物質の生成経路や問題となる反応の動態などに関する知見が得られる。

温室効果ガスとして注目をあびている亜酸化窒素は $\text{N}\equiv\text{N}=\text{O}$ の形をとっており、分子内に酸素と窒素の同位体を持っている。この分子内同位体比を測定することによって、 $\delta^{18}\text{O}(\text{N}_2\text{O})-\delta^{15}\text{N}(\text{N}_2\text{O})$ の二次元グラフをつくり、 N_2O の生成経路（硝化系あるいは脱窒系）を知ること、さらには反応に関与する微生物の生育生理を知る試みがここ10年に渡って行われている。本研究はタイ国熱帯湿地林及び琵琶湖において、それぞれ2年間に渡って調査研究を行い以下の項目に渡る成果をあげている。

1. 熱帯湿地林では雨季の初期、大量の有機物が熱帯湿地集水域から河川に輸送され、急速な分解が起り、河川中の溶存酸素が減少する過程で雨季の開始後ほんの一週間のみ亜酸化窒素さらには引き続いてメタンの放出が行われる現象を見出した。この N_2O のピークは硝化系（ $\text{NH}_4^+ \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NO}_3^-$ ）によって生成することを分子内同位体分布の $\delta^{18}\text{O}-\delta^{15}\text{N}$ 二次元グラフ上での変化から解析した。
2. 琵琶湖の15m~50mの中層における N_2O の生成は硝化系によることと、さらには、申請者によって見出された硝化系での $\delta^{18}\text{O}(\text{N}_2\text{O})=1.17\delta^{15}\text{N}(\text{N}_2\text{O})+38.3$ の関係式は有光層における植物プランクトンが硝酸を同化する時、並びに有機態沈降粒子が分解するときの窒素同位体効果、酸素に関しては成層化後の有機物の分解による溶存酸素の減少による $\delta^{18}\text{O}$ の昇によって説明できることを提示した。
3. 底層70m（底質の直上付近）では沈降粒子フラックスの大小による堆積物表層における酸化還元境界層の位置の差による二つの脱窒サイトの存在によって、 $\delta^{18}\text{O}(\text{N}_2\text{O})=-a\delta^{15}\text{N}(\text{N}_2\text{O})+b$ の混合直線が得られるというモデルを提示した。
4. 現在の琵琶湖においては堆積物表層で起っている脱窒系が N_2O の生成に大きく関与していることを明らかにした。
5. N_2O の分子内同位体分布が、その生成経路並びに堆積物表層の酸化還元微小部位の研究に有効なパラメーターとなる可能性を提示した。
6. 硝化と脱窒系の際の $\delta^{18}\text{O}(\text{N}_2\text{O})$ と $\delta^{15}\text{N}(\text{N}_2\text{O})$ の二種類の直線関係を示し、この二次元グラフの使い方に対する新しい方法を提示した。

以上、本研究は温室効果ガスの一つであり、今後地球温暖化に対して大きな問題となる亜酸化窒素の水界生態系における動態とその生成機構に関する解析法を提示した。また、亜酸化窒素の分子内同位体分布が通常測定が困難である、微子的部位の酸化還元状態を解析し、関与する微生物の動態を研究するための有効なパラメーターとなりうることを示した。

よって審査委員会は本論文が博士（理学）の学位基準を十分に満たしているものと判断した。なお、平成13年1月16日に論文内容とそれに関連した口頭試問を行った結果、合格と認めた。