〈論文〉

多摩川下流域・河口域における石油化学物質の微生物分解

Microbial degradation of petrochemicals in the downstream and the estuary of the Tamagawa river

山根 晶子*
Akiko YAMANE岡田 光正*
Mitsumasa OKADA村上 昭彦*
Akihiko MURAKAMI

Abstract

In a tidal area at the estuary and the downstream of the Tamagawa river within 6km, five sampling sites were established. Moreover, two sites were established as reference, the Sekido bridge as nontidal area and the Nakayama bridge near the Lake Okutama as clean area.

The components of petrochemicals such as hexadecane, octylbenzene and 1-metylnaphthalene were added to each sample. Subsequently, they were cultivated at $20 \pm 1^\circ\text{C}$ for intervals.

In result, these components were degraded to same extend at the tidal area in warm season. Hexadecane was degraded about $80\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ for 2days and $110 \sim 120\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ for 7days in summer, while octylbenzene was about $40\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ for 3days and $60 \sim 70\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ for 7days in autumn. These were more degraded in warm season than cold.

And further, the biodegradation of these components were enhanced by addition of nutrients, which were constituted of NH_4Cl $100\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$, K_2HPO_4 $10\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ and yeast extract $10\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$.

In the existence of pentadecane, the way of biodegradation was different between octylbenzene and 1-metylnaphthalene.

Key words: Tamagawa river, biodegradation, petrochemicals

1. 緒言

河川、湖沼、海などの水環境における重金属、難分解性物質、有害物質等の化学物質の排出は、水質保全という観点からみて非常に重大かつ深刻な問題となってきた。

多摩川のような都市河川においては、雨水などによって大気や地表から人間の活動により生じた化学物質が洗い流され流入する場合、家庭からの排水、下水処理場からの排水が流入する場合のほかに、河口域・下流域に林立する種々の製造工場から多種多様にわたる化学物質が排出されている^{1)~4)}。そこで、これら多摩川に流入した化学物質の動態を調査、把握することは極めて必須となってきた。多摩川下流域・河口域のような淡水と海水の混合によって連続的に塩分濃度が増加している感潮域では、水中の有機物は自浄作用すなわち沈殿、拡散、堆積、希釈などの物理作用によっ

て、また粘土粒子などの懸濁物への吸着、塩分による荷電化合物の凝集などの化学作用によるほか、河川に生息する生物によっても取りこみ、分解、消失していく。

しかし、これまで多摩川について藻類や底生生物をはじめとする河川の生態系に有害な影響を与えている石油化学物質の微生物分解性に関する研究は見当らない。本研究では、これらの物質のうち特にパラフィン、アルキルベンゼンおよび多環芳香族化合物に着目し、多摩川の下流域・河口域における微生物分解による自浄能力について検討したので報告する。

2. 実験方法

多摩川河口より6kmの範囲で、河口(No.1)、大師橋(No.2)、中瀬(No.3)、六郷橋(No.4)、多摩川大橋(No.5)の感潮域5カ所の採水地点を選んだ。さら

* 東京農工大学工学部化学工学科 〒184 東京都小金井市中町2-24-16, Department of Chemical Engineering, Tokyo University of Agriculture and Technology, Nakamachi 2-24-16, Koganei, Tokyo 184, Japan

Fig. 10 Enhancement of the biodegradation of 1-methylnaphthalene by nutrients or pentadecane on the sampling point No. 5

1⁻¹であった。

- 4) 石油化学物質の分解浄化能は寒冷期に比べて温暖期の方が高かった。
- 5) オクチルペンゼンと1-メチルナフタレンとでは

ペンタデカンとの混合において分解様式が異なった。

- 6) 石油化学物質の分解浄化能は栄養塩によって大きく高められた。

謝 辞

本研究の研究費の一部はとうきゅう環境浄化財団の研究助成金によるものである。ここに記して厚く感謝の意を表します。また研究に協力をいただいた田中温子、長島一郎、森戸正直氏に心から御礼申します。

(原稿受理 昭和63年3月11日)

引用文献

- 1) 小倉紀雄, 半谷高久ほか(1975) 多摩川水中の有機化合物の化学組成, *Jap. J. Limnol.* **36**, 23-30.
- 2) 余 順(1987) 多摩川および東京湾内部における表層堆積物中の多環芳香族炭化水素, 水処理技術, **28**, 379-385.
- 3) Sheldon, L.S., Hites, R.A. (1979) Sources and Movement of Organic Chemicals in the Delaware River, *Amer. Chem. Soc., Environ. Sci. & Technol.*, **13**, 574-579.
- 4) Lopetz-Avilla, V., Hites, R.A. (1980) Organic Compounds in an Industrial Wastewater, Their Transport into Sediments, *Amer. Chem. Soc., Environ. Sci. & Technol.*, **14**, 1382-1390.
- 5) 「水の分析」(日本分析化学会北海道支部編), 176, 210, 214, 216, 220, 354, 1981, 化学同人, 京都.
- 6) 落合正宏, 岡沢剛(1986) 多摩川下流域におけるアミノ酸態化合物, 水処理技術, **27**, 825-831.
- 7) McDonald, C.R., Cooper, D.G., Zajic, E.J. (1981) Surface-Active Lipids from *Nocardia erythropolis* Grown on Hydrocarbon, *Appl. Environ. Microbiol.*, **41**, 117-123.
- 8) 養田泰治(1974) 炭化水素の微生物酸化, 石油学会誌, **17**, 824-829.

〈論 文〉

河川における底生動物群の DO 日最低値と BOD に対する指標性について

Significance of the benthic animals as the indicators of BOD and the daily minimum DO in stream

安 田 郁 子* 井 山 洋 子**
Ikuko YASUDA Yôko IYAMA

Abstract

The study was carried out in order to know the significance of the benthic animals as the indicator of water quality in stream. BOD and the diurnal change of DO were measured in the streams of Toyama prefecture and benthic animals were collected at the same time.

The benthic animals could be divided into two groups, namely group A and B. Group A includes Ephemeroptera, Plecoptera and Trichoptera, and indicates oligosaprobic level. Group B includes *Physa fontinalis*, Tubificidae, *Erpobdella lineata*, *Asellus hilgendorfii* and etc., and indicates α -mesosaprobic level. But in β -mesosaprobic level the species in group A and B were found together.

The daily minimum DO was shown to be above 70% in summer or above 80% in autumn in the station in which the species of group A were found. And also BOD was above $1.0\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ in summer or above $1.3\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ in autumn in the station where those of group B were found.

The relation between BOD and the daily minimum DO was discussed and the diagrams about the ranges of the values of both the daily minimum DO and BOD in each of α -ms and β -ms were shown in summer and autumn respectively.

Key words: benthic animals, biological indicator, the daily minimum DO, BOD, saprobic levels.

1. はじめに

一般に、河川等の水域では有機汚濁に伴って、そこに生存する生物の種類構成が変化することが知られている。このような生物の種類構成の様相から有機汚濁度を推定しようとしたものが、生物学的水質判定である。一方、水質の理化学的要因と生物とは、作用、反作用の関係にあってお互いに影響しあっており、したがって、理化学的要因と生物学的水質階級との間には、密接な関連性があると考えられる。実際に、BOD や COD などいくつかの要因と生物学的水質階級との間には相関性が認められている^{1),2)}。しかしながら、水質の理化学的要因に対する各種生物の指標性については、現在までのところ明らかになっている種類数は少

なく、生物学的水質判定をより一層充実させていくためには、判定資料となる生物種あるいは生物群集の知見を蓄積していくことが必要であると考えられる。

そこで、本研究は、底生動物群集を対象にして、それらの存在と河川での水質環境要因との関連性を明らかにすることを目的としている。

理化学的水質要因としては、本研究では、生物学的水質階級との間ですでに統計的に相関の認められている要因のうち^{1),2)}、BOD と DO について検討した。DO については、生物学的水質階級との間に、全体的傾向としては相関が認められているが、貧腐水性と β 中腐水性との間では差が認められていない^{1),2)}。この理由として、DO の日周変化が考えられる。すなわち、DO は

* 富山県立技術短期大学 〒939-03 富山県射水郡小杉町黒河, Toyama Prefectural College of Technology, Kurokawa Kosugi-machi, Toyama prefecture, 939-03 Japan.

** 富山県衛生研究所 〒939-03 富山県射水郡小杉町中太閤山, Toyama Institute of Health, Nakataikôyama Kosugi-machi, Toyama prefecture, 939-03 Japan.

Fig. 2 Diurnal changes of DO and COD(Mn) at stations 14, 17 and 12. (Jul.~Aug. '79)

Table 2 Benthic fauna at stations 14, 17 and 12. (Jul.~Aug. '79)

sp.	st.14	st.17	st.12
Turbellaria <i>Dugesia</i> sp.	1	1	1
Gastropoda <i>Physa fontinalis</i>			1
Oligochaeta Tubificidae			1
Hirudinea <i>Glossiphonia</i> sp.			11
			<i>Erpobdella lineata</i>
			7
Crustacea			
Isopoda <i>Asellus hilgendorffii</i>			2
Aquatic Insects			
Ephemeroptera <i>Choroterpes trifurcata</i>		5	
		<i>Baëtis</i> spp.	1
		<i>Ephemerella japonica</i>	1
		<i>E. crytomeria</i>	15
		<i>E. setigera</i>	3
		<i>Potamanthus kamonis</i>	6
Trichoptera		<i>Stenopsyche sauteri</i>	1
		<i>Cheumatopsyche brevirineata</i>	1
		<i>Goera japonica</i>	1
		<i>Apatania</i> sp.	1
		Hydropsychinae	2
Coleoptera <i>Mataeocephalus japonicus</i>	3	3	1
Diptera <i>Antocha</i> sp.	1	3	

The figures show the number of individuals sampled at random.

の DO は, st.14, 17で各々96%, 92%であるが, st.12では74%であった。ただし, この時には, 日没時から日の出直前時までの間の DO 変化を測定していないので, 日の出直前時の値が日最低値であるとは限らない。しかし, 日最低値が日の出直前時の値と比べて同じ位か, あるいはより小さい値であることは明らかである。以上のことから, これらの st.14, 17と st.12との間では, DO 日最低値において少なくとも20%位あるいはそれ以上の差があると推測される。

したがって, 以上の Fig. 2 と Table 2 の結果から, 底生動物相の違いは DO の日最低値と関連があるのではないかとということ, また, DO の日周変化において14

時から日没までの DO 変動量が DO 日最低値と反比例的な関係にあるのではないかとということが, 推測された。

3.2 DO の日周変化, および DO 変動量と DO 日最低値との関係

前節の結果から, まず DO 日周変化についてより詳細に検討するため, 夏季, 秋季各々5地点について調査を行った。調査地点には, os, β ms, α ms の各水域を含むようにしたが, それらの結果のうち, β ms と α ms の1例を Fig. 3, 4 に示した。

Fig. 3 は夏季の例である。st. 4 では, DO 日最低値は23~24時にみられ, その時点から日の出時までに1~2%ほど DO が上昇する。st.12では, 日最低値は23時から2時まで続き, 2時から日の出時までに5%ほど DO が上昇する。一方, Fig. 4 に示した秋季の例では, st. 5 で DO 日最低値が20時から1時まで約5時間続いたが, st. 2 のように, 19時から6時頃まで11時間にわたって続く例もあった。

夜間は, DO に影響する生物の働きとしては呼吸のみであるので, 日の出時まで DO は消費され続けるはずである。実際, 止水域の例では, 日の出時頃に DO 日最低値が記録されている⁴⁾。しかし, たとえば Fig. 4 に示した st. 5 では, 午前1時以後日の出時にかけて10%程度 DO が上昇していた。このことは, st. 5 では水の流れによって DO が補充されており, 午前1時以後は呼吸量よりも補充量の方が多かったことを示している。また一方で, st. 2 のように日の出時頃まで最低値

Fig. 3 Diurnal changes of DO at stations 4 and 12, in summer.

Fig. 4 Diurnal changes of DO at stations 2 and 5, in autumn.

A グループの生物は DO 日最低値が80%以上の地点に出現しており、70%位の地点にはみられなかった。このように夏季と秋季とで A グループの生物が出現する DO 日最低値に違いが生じる理由については、現在のところ未解明であるが、水生昆虫の低 DO に対する耐性以外にも、複雑な河川生態系では、水生昆虫の存否に対して、その種類の違いや個体の生理条件の違い⁷⁾、生息河川状況の違いなど諸々の要因が影響している可能性がある。底生動物の DO に対する指標性を、これらの諸要因による影響を含めたものとして検討すると、A グループの生物の出現は、その地点の DO 日最低値が約70%以上(夏季)、あるいは約80%以上(秋季)であることを示すものと考えられる。

一方、B グループの生物は、DO に対して日最低値が夏季に56~91%、秋季には73~98%と広い範囲に出現しており、実用的には DO に対する指標性をほとんどもたないと考えられる。

3.4 底生動物と BOD の関係

各種底生動物のみられた地点の BOD の分布範囲について、夏季の調査結果を Fig. 8 に、秋季の調査結果を Fig. 9 に示した。A、B 各グループの構成は前節と同様である。

Fig. 6 The range of the variation in DO (from 14:00 to sunset time) in which each of the benthic animals was found, in summer. others*: Megaloptera---*Protohermes grandis*, Diptera---*Antocha* sp., *Amika infusca infusca*, *A. infusca minor*, *philorus* sp., *Similium* sp., *Atherix ibis*. others**: Hirudinea---*Glossiphonia* sp., *Helobdella stagnalis*, *Batrachobdella smaragdina*.

夏季についてみると、B グループの生物は BOD が $1.0\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以上の地点に出現しており、A グループの生物は BOD が $1\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 未満の値から $4.5\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 付近までの範囲に出現している。また、秋季においては、B グループの生物は BOD $1.3\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以上の地点に出現しており、A グループの生物は BOD $1.0\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 未満の値から $3.5\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 付近まで出現している。しかし、 $3.5\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以上の所にはみられなかった。

これらのことから、B グループの生物の出現は、その地点の BOD が $1.0\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以上(夏季)、あるいは $1.3\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以上(秋季)であることを示す指標となり得ると考えられる。一方、A グループの生物は、秋季では BOD $3.5\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以下の地点に出現可能であるが、夏季では $4.5\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以下となり秋季よりも広い範囲に出現している。このことから、本調査の os~ams の水域内では、A グループの生物を BOD に対する指標生物にすることは困難であると考えられる。

これらの結果は富山県内の河川の場合であるが、九州地方の河川の夏季の例においても⁸⁾、本調査で B グループとした生物群は、BOD 約 $1.5\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以上の所に出現している。このように、地域によって BOD の下限値に多少の差があるが、B グループの生物はある一定の BOD 値以上の所に出現するという指標性をもつものと考えられる。

以上、3.3および3.4における検討結果をまとめると、Table 4 のようになる。

Fig. 7 The range of the variation in DO (from 14:00 to sunset time) in which each of the benthic animals was found, in autumn.

行い、各水質階級における DO 日最低値と BOD について、その範囲の呈示を試みた。

すでに3.3で述べたように、A グループとした生物群は $os \sim \beta ms$ の出現種とされている種類が含まれ、B グループの生物群には $\beta ms \sim \alpha ms$ 、あるいは $\alpha ms \sim \beta ps$ の出現種とされている種類が含まれていることから、A グループの生物のみが出現する所を os 、A グループと B グループの生物が同時に出現している所を βms 、B グループの生物のみが出現している所を αms とすることができる。これによる判定結果は、前述の津田³⁾による結果と全く同様である。

そこで、前節までの結果から各水質階級の特徴をまとめると次のようになる。 os 水域は A グループの生物が出現し、B グループの生物が出現しない所であるので、3.4の Fig. 8 および Fig. 9 からわかるように、夏季には $BOD 1.0 mg \cdot l^{-1}$ 未満、秋季には $BOD 1.3 mg \cdot l^{-1}$ 未満の所に相当する。その場合の DO 日最低値は3.5で述べたように、夏季でも秋季でも約91%以上になる。したがって、DO 日最低値が約91%以上で、かつ BOD が $1.0 \sim 1.3 mg \cdot l^{-1}$ 未満の所が os 水域である。同様に、 βms 水域は、A グループの生物も B グループの生物も出現するので、夏季には Fig. 8 から BOD が $1.0 mg \cdot l^{-1}$ 以上、Fig. 6 から DO 変動量が28%以下すなわち DO 日最低値に換算すると約70%以上であり、秋季には Fig. 9 から BOD が $1.3 mg \cdot l^{-1}$ 以上、Fig. 7 から DO 変動量が22%以下すなわち DO 日最低値に換算すると約80%以上の所に相当する。また、 αms 水域は、B グループの生物が出現し、A グループの生物が出現しない。したがって、夏季には BOD が $1.0 mg \cdot l^{-1}$ 以上、

Fig. 10 Relation between BOD and the variation in DO (from 14:00 to sunset time). Open circles and filled circles represent values in autumn and summer, respectively.

DO 変動量が28~42%すなわち DO 日最低値が56~70%，秋季には BOD が $1.3 mg \cdot l^{-1}$ 以上、DO 変動量が22~30%すなわち DO 日最低値が73~80%の所に相当する。

これらの結果をまとめて図示したのが、Fig. 11 と Fig. 12 である。

なお、これらは富山県内の河川で、しかも $os \sim \alpha ms$ の水域を対象にした調査から得られたものである。したがって、他の地方で流速が異なる場合などでは、BOD 値や DO 日最低値に多少の違いが生じるかもしれない。しかし、3.3で述べたように A グループの生物群が DO 日最低値を指標し、また3.4に示したように B グループの生物群が BOD を指標するという点については同様であると考えられる。また、 ps 水域については、今後さらに資料を集めて検討しなければならないと思われる。

Fig. 11 BOD and the daily minimum DO for the saprobic levels (Oligosaprobic, β -Mesosaprobic and α -Mesosaprobic), in summer.

Fig. 12 BOD and the daily minimum DO for the saprobic levels (Oligosaprobic, β -Mesosaprobic and α -Mesosaprobic), in autumn.

論文要旨

多摩川下流域・河口域における石油化学物質の微生物分解

山根 晶子* 岡田 光正* 村上 昭彦*

* 東京農工大学工学部化学工学科

〈水質汚濁研究 Vol.11 No.6 (1988) pp.355~361〉

多摩川下流域・河口域の感潮域区間、約 6 km において 5 カ所、感潮域をはずれた関戸橋、奥多摩湖近辺の比較的清澄な中山橋の計 7 カ所を採水地点に設定し、採水した河川の石油化学物質の分解浄化能を検討した。

その結果、温暖期においては各地点における石油化学物質の分解浄化能はほぼ同程度であり、対照点の中山橋のみほとんど分解しなかった。すなわち、ヘキサデカンは夏季において 2 日間で約 $80\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、7 日間で $110 \sim 120\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であり、オクチルベンゼンは秋季において 3 日間で $40\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、7 日間で $60 \sim 70\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。これらの石油化学物質は寒冷期に比べて温暖期の方が分解浄化能が高かった。

また、オクチルベンゼンと 1-メチルナフタレンとはペンタデカンとの混合において分解様式が異なり、石油化学物質の多摩川感潮域での分解浄化能は栄養塩を添加することによって大きく高められた。

河川における底生動物群の DO 日最低値と BOD に対する指標性について

安田 郁子* 井山 洋子**

* 富山県立技術短期大学衛生工学科 ** 富山県衛生研究所

〈水質汚濁研究 Vol.11 No.6 (1988) pp.362~370〉

河川における底生動物の有機汚濁に対する指標性の解明を目的として、特に DO の日周変化と BOD に着目して、 α ms, β ms, α ms の水域を対象に調査、検討を行った。調査水域は富山県内の数河川である。その結果以下のような知見が得られた。(1)底生動物は、DO 日最低値を指標できる生物群 (A グループ) と BOD を指標できる生物群 (B グループ) に分けられる。A グループの生物の出現は DO 日最低値 70% 以上 (夏季)、80% 以上 (秋季)であることを示し、B グループの生物の出現は BOD $1.0\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以上 (夏季)、 $1.3\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以上 (秋季)であることを示す。(2) A グループの生物が出現する水域を α ms, A, B 両グループの生物が共存する水域を β ms, B グループの生物が出現する水域を α ms とする生物学的な水質判定において、各水質階級に対応する BOD と DO 最低値の相関図を呈示し、指標としてこの意義を明らかにした。