

多摩川下流域底泥における 有機物の嫌氣的分解

1986年

滝井 進

東京都立大学理学部生物学教室助教授

目 次

1. ま え が き	1
2. 調 査 地 点	2
3. 方 法	3
4. 結 果	
4-1 河川水質および底泥の性状	6
4-2 メタン生成活性	13
4-3 脱窒活性	23
4-4 硫酸還元活性	25
4-5 細菌数	26
5. 考 察	
5-1 メタン生成活性	29
5-2 脱窒活性	35
5-3 硫酸還元活性	35
5-4 嫌氣的分解過程の相対的重要性	36
5-5 細菌数	37
6. お わ り に	38
7. 要 約	38
8. 参 考 文 献	39

1. まえがき

河川の下流域では流速が小さいため、また河川水と海水の混合が起こる地点では塩析効果も加わり、河川水中の懸濁物質の多くは沈降し、河床に堆積する。多摩川のように有機物負荷の大きい水域では、堆積物の主成分は外来性あるいは自生性の有機物である。これらの有機物は一般に生物に分解されやすく、河川水中の溶存酸素を消費するため、底泥は、表面の極めて薄い層を除き、嫌氣的になる。したがって、底泥における有機物の分解では嫌氣的過程が優勢と考えられる。嫌氣的過程では種々の揮発性有機酸やアンモニア、アミン類、硫化水素、インドール、スカトール、メルカプタンなどの悪臭物質が生成されるため、環境上の問題となる。事実、昭和30年代には隅田川で活発な硫化水素の発生が悪臭、金属の腐蝕、気管支障害などを引き起こし、大きな社会問題となった（手塚，1974）。硫化水素はそれ自体強い毒性をもつ外、溶存酸素を消費して環境を嫌氣的にし、魚類をはじめ水生生物の生存を脅かし、また、水中の金属イオンと結合して、水に不溶の硫化物（主に硫化鉄）を形成して、河川水を黒濁化する。多摩川でも、昭和59年6月に府中市の小中学校で生徒の目の充血や痛みが多発し、近くの多摩川河床底泥からの有毒物質の生成が疑われ（朝日新聞夕刊昭和59年6月8日）、底泥（ヘドロ）の除去が行われた（読売新聞多摩版、昭和59年8月21日）。ただし、最終的には河川敷の花粉がその主犯とされた（朝日新聞、昭和59年6月28日）。

底泥有機物の嫌氣的分解過程は種々の代謝様式をもつ微生物の協同作用による複雑な過程である。最近10年間に主として欧米における活発な研究によって、嫌氣的分解過程と関与する細菌間の相互作用はかなり明らかとなってきた(Laanbroek & Veldkamp, 1982 ; Nedwell, 1984 ; Ward & Winfrey, 1985)。嫌氣分解過程の概要を図1に示す。まず、発酵細菌が有機物を分解して酢酸、水素、二酸化炭素

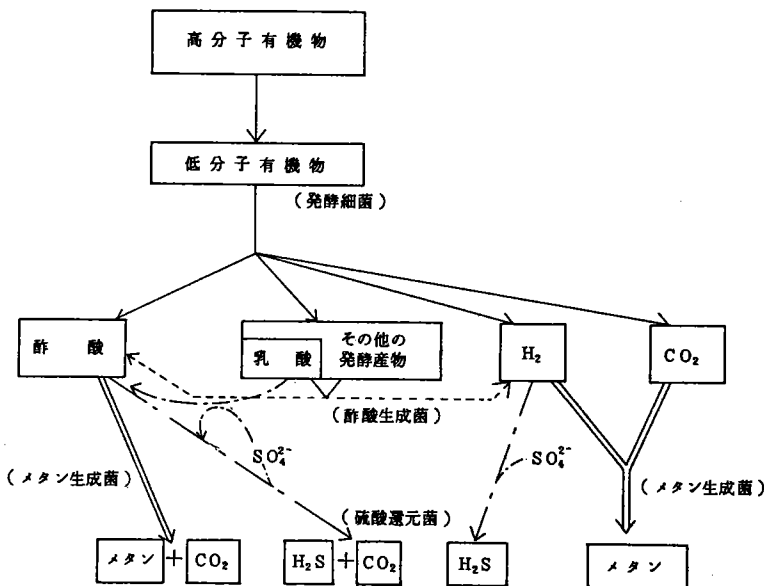


図1 嫌氣条件下における有機物の分解過程

素とアルコール類や非揮発性有機酸類を生成する。アルコールなど後者の発酵産物は偏性プロトン還元性、酢酸生成細菌 (obligate proton-reducing acetogens) により酢酸、水素および二酸化炭素に変換される。硫酸塩の少ない環境 (淡水域) では、これらの物質はメタン生成 (細菌) によりメタンに変換され、分解が完了する。また、硫酸塩の豊富な環境 (海域) では硫酸 (塩) 還元 (細菌) が最終段階を担い、酢酸を分解して二酸化炭素と硫化水素を生成する。海域では一般にメタン生成が抑制される事実は古くから知られていたが、その機構は近年の活発な研究によってほぼ解明されたといえよう。すなわち、硫酸塩の豊富な環境では、メタン生成菌と硫酸還元菌の共通な基質である酢酸や水素に対する基質親和性が、メタン生成菌よりも硫酸還元菌でより大きく (Kristjansson *et al.*, 1982; Schonheit *et al.*, 1982), また、生成エネルギーも硫酸還元反応がメタン生成反応より大きい (Isa *et al.*, 1986) ため、基質をめぐる両菌の競争において、硫酸還元菌が有利となり、メタン生成菌を排除するためと考えられている。

水圏堆積物の嫌氣的分解についての研究は、これまでほとんど湖沼や沿岸海域を対象として行なわれてきた。汚濁河川の下流域でも、メタンガスの発泡や悪臭の発生などにより活発な嫌氣的分解が起こっていると考えられるが、詳細な研究は行なわれていない。また、河川感潮域における水中の硫酸イオン濃度は、潮汐による海水の朔上の程度により河口から上流にかけて連続的に変化し、また同一地点での時間的変化も著しい。このような場でメタン生成と硫酸還元の相互関係が空間的、時間的にどのように変化するのは興味深い課題である。

本研究では、多摩川下流域の淡水域から感潮域にかけての3地点の河床底泥において、嫌氣的分解活性、すなわちメタン生成活性を中心とし、硫酸還元活性および脱窒活性の大きさと季節変化を明らかにし、これら過程の相対的重要性を評価すると共に、活性に及ぼす環境要因を解析することを目的とした。

2. 調査地点

多摩川下流域の3地点で調査を行なった。調査地点を図2に示す。

調査地点1 (St.1) は河口から約13.5 kmの調布取水堰から約200 m上流の右岸

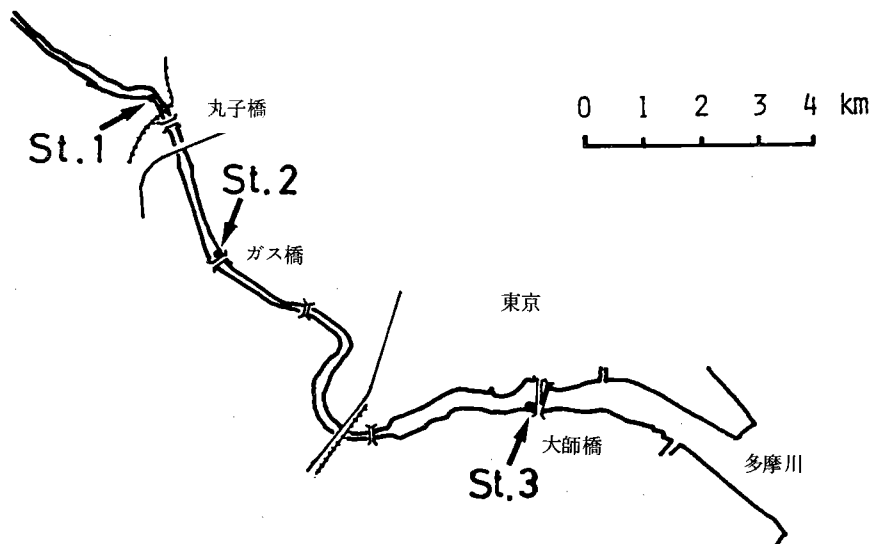


図2 多摩川下流域調査地点

で、通常の水位では流速は小さく、河床の礫上に懸濁物が沈降しやすい地点である。底泥は黒色腐泥で、表面にはしばしばアオミドロの繁茂がみられた。海水の朔上は堰により妨げられるため、St.1は淡水域である。水深30～50 cmの底泥を採取し、試料とした。

調査地点2 (St.2)は河口から約10.5 km上流のガス橋下左岸で、潮汐の影響によって水深は大きく変化する。砂質の河床上の堆積物は河川流量や懸濁物質の搬入量の変化などによって著しく変動した。底泥の採取は、おもに大潮の低潮時に水深10～30 cmの地点で行なった。

最下流の調査地点3 (St.3)は大師橋下の右岸で、河口から約2.5 kmの地点である。潮汐の影響を受けて水位は大きく変動するが、流速は極めて小さく、細砂を含む底泥堆積物の層は3地点のうち、最も厚く、安定していた。また、底泥には多数のゴカイの生息が認められた。底泥の採取は、大潮の干潮時に水深約50 cmの地点で行なった。

3. 方 法

3-1 サンプリング

底泥の採取は内径4 cm、長さ32.5 cmのアクリル樹脂製円筒を静かに垂直に底泥中にさし込み、上端をゴム栓で封じて引き上げる方法によった。底泥は実験室に持ち帰り、3～5時間以内に実験に供した。翌日に実験を行う時には、約5℃で保存した。底泥間隙水は、底に多数の小孔のある遠心管内筒に濾紙をしき、その上に底泥を詰めて、低温で遠心(10,000 rpm, 15分間)することにより採取した。

3-2 メタン生成活性

底泥コアより先端を切除した注射筒を用いて2 cmの深さ(2.3 ml)毎に底泥を採取し、窒素ガスで置換した100 mlまたは50 ml容のガラス容器に入れた。窒素ガスを噴射しながら、Vortex mixerで底泥を激しく攪拌し、気相のメタン濃度を十分低下させた後、ダブルゴム栓により密閉した。30℃と現場水温または20℃で数時間ないし、十数時間培養し、気相中のメタン増加量を測定した。1時間当たり、底泥乾量1 g当りのメタン生成量をメタン生成活性とした。なお、気相のメタンはほとんどの場合、24時間以内は直線的な増加を示した。同一深度の底泥について3～4本の試料容器について測定し、その平均値を求めた。

3-3 メタン生成活性に対する基質、阻害剤の添加および温度の影響

底泥のメタン生成活性の律速因子を明らかにする一手段として、底泥懸濁液を多数の容器に窒素ガス下で分注し、これに各種の添加物を加えて30℃または水温で培養後、気相のメタン濃度を測定し、比較した。St.1とSt.2の底泥では表層から5～6 cm層を約2倍量の脱酸素蒸留水に懸濁し、St.3の底泥は6ないし8 cm下の厚さ5 cmの層を等量の3%食塩水7.5%を含む脱酸素水に懸濁し、窒素ガスを通気下、スターラーで攪拌しながら窒素で置換した1.5 mlまたは2.0 mlの採血ビンに5 mlずつ分注し、ブチルゴム栓とアルミシールで密閉した。添加物溶液は脱酸素水で調製し、窒素ガス下で密閉した容器に入れた。その0.1 mlずつを注射器で底泥懸濁液に注入した。添加量は硫酸ナトリウム、モリブデン酸ナトリウムは最終濃度 $2.0 \text{ m mol} \cdot \ell^{-1}$ 、酢酸ナトリウム、メタノールは $1.0 \text{ m mol} \cdot \ell^{-1}$ である。水素

は気相を水素、炭酸ガス混合ガス ($H_2 : CO_2 = 20 : 80$) で置換することにより添加した。

採血ビンに入れた底泥懸濁液を温度勾配恒温器 (日本医化 TG 100 AD) を用いて各温度で培養し、メタン生成に対する温度の影響を調べた。

3-4 脱窒活性

アセチレンによって脱窒反応の最終段階を阻害し、蓄積する脱窒の中間産物、 N_2O を定量するアセチレン阻害法 (Yoshinari & Knowles, 1976) を用いた。底泥コアを 2 cm ずつの厚さで採取し、等量の脱酸素水に懸濁、攪拌しながら窒素ガス下で 1.5 ml 容の採血ビンに 4 ml ずつ分注し、密閉後、気相をアルゴン-メタン混合ガスで置換し、嫌気条件にした。気相に 10% 濃度となるようにアセチレンを添加し、さらに硝酸カリウム水溶液 (硝酸態窒素 $8.6\text{ mg N} \cdot \ell^{-1}$) 1 ml を加えて混合し、 23°C または現場水温で培養し、経時的に気相の N_2O を定量して脱窒速度を求めた。一試料につき三連で測定を行い、その平均を求めた。硝酸態窒素を添加しない場合についても測定を行なった。

3-5 硫酸還元活性

前記と同様に、窒素ガス下で底泥懸濁液 2 ml を採血ビンに分注し、ブチル栓、アルミシールで密閉した。放射性硫黄でラベルした硫酸ナトリウム ($Na_2^{35}\text{SO}_4$, アマジャム・ジャパン, $37\text{ m Ci} \cdot \text{m mol}^{-1}$) を蒸留水に溶解し、窒素ガス置換して $10\text{ m Ci} \cdot Na_2^{35}\text{SO}_4$ 水溶液をつくった。この水溶液 1.00 ml ずつを底泥懸濁液に注射器を用いて添加し、混合後、現場水温で一定時間培養した。反応の停止は $1\text{ mol} \cdot \ell^{-1}$ の酢酸亜鉛 1 ml を添加することにより行なった。測定は 1 試料について 3 連で行い、その平均値を求めた。 $Na_2^{35}\text{SO}_4$ 添加直後に反応を停止したものをブランクとした。生成された $H_2^{35}\text{S}$ の放射能を測定し、次式 (Jørgensen, 1978) から硫酸還元速度を求めた。

$$\frac{[\text{SO}_4^{2-}] \times [^{35}\text{S}] \text{H}_2\text{S} \times 1.06}{[^{35}\text{S}] \text{SO}_4^{2-} \times t \times g}$$

$[\text{SO}_4^{2-}]$ は試料中の硫酸イオン量 (n mol)、 $[^{35}\text{S}] \text{H}_2\text{S}$ および $[^{35}\text{S}] \text{SO}_4^{2-}$ は生成された硫化物および添加した硫酸塩の放射能、 t は培養時間、 g は底泥乾量を表わす。

3-6 ガス分析

メタンは水素炎イオン化検出器 (FID) 付きガスクロマトグラフ (島津 GC-8APF) を用いて定量した。内径 2.6 mm 、長さ 2 m のガラスカラムにポラパック Q ($80-100$ メッシュ) を充填し、カラム温度 70°C 、検出器温度 100°C 、水素ガス圧力 $0.7\text{ kg} \cdot \text{cm}^{-2}$ 、空気圧力 $0.5\text{ kg} \cdot \text{cm}^{-2}$ 、キャリアーガスとして窒素を圧力 $1.0\text{ kg} \cdot \text{cm}^{-2}$ で流し分析した。

亜酸化窒素は電子捕獲検出器 (ECD) 付きガスクロマトグラフ (島津 GC5A) により定量した。カラムは内径 3 mm 、長さ 2 m のガラスカラム、充填剤はポラパック Q ($80-100$ メッシュ)、カラム温度 80°C 、検出器温度 300°C 、キャリアーガスとしてアルゴン-メタン ($95:5$) 混合ガスを流速 $70\text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$ で流し、分析した。

3-7 ^{35}S -硫化水素の放射能の測定

生成した ^{35}S -硫化水素の放射能測定は Norqvist と Roffey (1983) の方法に準じて行なった。酢酸亜鉛を添加して反応を停止したバイアルに 6 N 塩酸 0.5 ml を加え、窒素ガスを 20 分間通気して硫化水素を追い出し、1 M の酢酸亜鉛溶液 5 ml に吸収させた。その 1 ml を液体シンチレーション用バイアル中の 10 ml シンチゾル 500 (同仁製薬) に添加し、液体シンチレーションカウンター (Beckman LS 7500) を用いて硫化水素の放射能を測定した。計数効率は放射能既知の硫化水素を用いて求めた。

3-8 河川水および底泥の分析

河川水の温度、電気伝導度は携帯用の測定器 (横河電気 SC51) を用いて測定した。溶存酸素はウィンクラー法によった。BOD は「下水試験方法」(日本下水道協会, 1974) に準じて行なった。

底泥の酸化還元電位は底泥コアに白金電極を挿入して 1 時間後の値を読み、温度補正を行なって求めた。pH はガラス電極により測定した。間隙水中の全有機炭素 (TOC) の測定には全有機炭素分析計 (Beckman Model 102D) を用いた。硫酸イオンはクロム酸バリウムを用いる比色法 (半谷, 1960)、硝酸イオンは硫酸ヒドラジンによる還元法 (西條, 1957) によって定量した。一部の試料ではこれら陰イオンの分析にイオンクロマトグラフ (Dionex QICII) を用いた。底泥硫化物の定量は「土壌養分分析法」(土壌養分測定法委員会, 1970) によった。

3-9 細菌数の計数

いずれも最確数 (MPN) 法により計数した。メタン生成菌数は以下の方法により求めた。底泥を深さ 2 cm ごとに先端を切除した注射筒でとり、窒素ガス噴射下、9 ml の滅菌稀釈液 (Dilution blanks : Holdeman & Moove, 1975) に添加し、ダブルゴム栓をした。激しく攪拌後、その 1 ml を同様に 10 倍稀釈した。この稀釈液 0.5 ml を滅菌注射器でとり、1.5 ml の採血ビン中、窒素ガスで封じ、滅菌した 4.5 ml の稀釈液に注入し、順次 10 倍ずつ稀釈した。同一稀釈液 0.5 ml を 3 本の培地 5 ml の入った 1.5 ml 採血ビンに滅菌注射器で接種し、30°C、1 か月間培養した。メタン生成菌の増殖は気相のメタンの生成をガスクロマトグラフによる検出によって判定した。培地は Cappenberg (1974) の培地にルーメン上清を 30% 添加 (Zaiss, 1981) して用いた。

硫酸還元菌の計数は Tezuka (1979) の培地を用いて行なった。30°C で 2 週間培養後、黒変試験管数から計数した。

St.3 の試料について予備実験を行った結果、メタン生成菌では塩化ナトリウム 2.3% を含む培地が含まない培地よりも若干高い計数値を与え、また硫酸還元菌でも海水培地が淡水培地よりも高かったので、前者の培地を用いた。St.2 では淡水用の培地の方が計数が高かったので、St.1 と同様、淡水用培地を用いた。

脱窒細菌は Nakajima (1982) の方法により計数し、そのとき同時に濁度から従属栄養細菌数も計数した。

なお、用いた窒素ガスは加熱した還元銅カラムを通して微量の酸素ガスを除去した。

4. 結 果

4-1 河川水質および底泥の性状

調査結果を表1にまとめた。また、東京都水道局の資料による調布取水堰における多摩川の日平均流量を図3に示した。

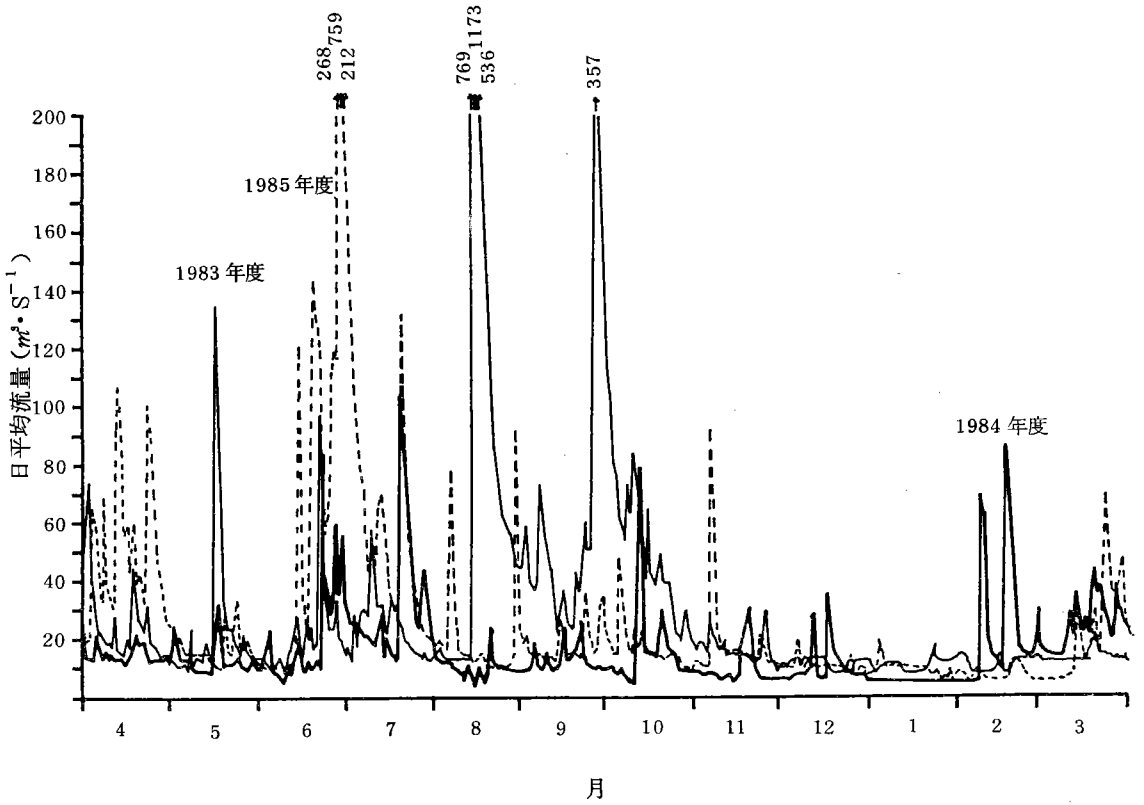


図3 多摩川調布堰本流流量の季節変化(東京都水道局資料)

表1-1 St.1における河川水質および底泥の性状

調査月日	河川水				底泥					
	水温 (°C)	電導度 ($m s \cdot cm^{-2}$)	DO ¹⁾ ($mg \cdot l^{-1}$)	BOD ($mg \cdot l^{-1}$)	深度 (cm)	灼熱減量 ²⁾ (%)	TOC ³⁾ ($mg \cdot l^{-1}$)	硫酸イオン ($m mol \cdot l^{-1}$)	硫化物 ⁴⁾ ($mg \cdot g^{-1}$)	Eh ⁵⁾ (mV)
1984. 4. 9	11.9	0.282	6.51	—	0-2	4.25	49.6	4486.3	260	(0) - 24.8
					2-4	3.81	28.0	623.2	210	(1) - 23.8
5. 15	16.5	0.340	—	—	0-2	10.16	30.1	191.4	449	(0) - 48.9
					2-4	5.66	32.7	183.8	488	(1) - 63.9
6. 19	25.0	0.400	—	—	0-2	10.21	24.0	314.7	187	(0) - 38.0
					2-4	5.74	42.0	233.3	198	(1) - 68.0
7. 19	25.8	0.381	6.33	4.1	0-2	5.72	18.4	464.1	234	(0) - 29.8
					2-4	5.77	17.5	409.5	498	(1) - 74.8
					4-6	3.45	—	505.8	379	(2) - 103
8. 16	29.2	0.357	4.94	4.5	0-2	8.67	15.7	255.8	107	(0) + 87.4
					2-4	8.26	22.9	252.9	203	(1) - 72.4
					4-6	8.91	—	503.3	196	(2) - 105
9. 12	24.2	0.377	—	2.6	6-8	7.78	—	505.4	—	(4) - 108
					0-2	7.42	16.1	638.4	100	(0) + 215
					2-4	6.96	15.1	642.5	95.9	(1) + 86.6
10. 23	17.5	0.267	6.01	5.7	4-6	4.47	19.1	1095	—	(2) + 49.6
					6-8	7.15	—	1106	—	(4) + 20.6
					0-2	10.70	12.6	221.5	149	(0) + 140
11. 24	15.0	—	—	—	2-4	8.11	15.3	624.2	170	(1) - 15.7
					4-6	8.40	14.5	934.0	212	(2) - 34.7
					6-8	8.36	35.5	949.4	—	(4) - 58.5
12. 11	11.5	0.348	3.56	6.1	8-10	—	29.0	424.3	—	(6) - 109
					0-2	9.32	16.0	233.4	—	(0) - 42.8
					2-4	7.65	21.3	287.9	—	(1) - 49.5
12. 11	11.5	0.348	3.56	6.1	4-6	7.31	17.4	230.9	—	(2) - 83.8
					6-8	6.28	14.8	185.9	—	(4) - 89.2
					0-2	8.28	7.2	185.9	147	(0) + 14.5
1985. 1. 9	7.5	—	—	—	2-4	7.51	9.7	439.9	238	(1) - 26.4
					4-6	8.20	—	336.0	251	(2) - 55.2
					7-9	4.32	26.6	320.2	522	(4) - 80.9
2. 12	9.8	—	—	7.7	0-2	9.22	28.4	1101	—	—
					2-4	8.47	10.9	758.3	—	—
					7-9	8.45	4.9	380.6	—	—
3. 28	10.1	0.202	—	10.1	0-2	7.43	20.2	180.9	212	(0) + 67
					2-4	5.02	12.1	209.7	131	(1) - 75
					4-6	5.52	15.5	130.3	190	(2) - 97
5. 20	19.7	—	—	11.6	6-8	2.73	15.1	93.7	—	(4) - 108
					0-2	13.63	67.7	74.2	89.9	(0) + 45.3
					2-4	10.83	28.9	886.0	119	(1) - 57.7
8. 1	25.9	0.321	—	3.7	4-6	9.41	24.5	830.1	—	(2) - 74.7
					8-10	5.56	34.3	347.1	—	(4) - 83.7
					0-2	7.89	31.8	385.5	269	(0) - 33.3
9. 9	26.0	—	—	5.2	2-4	6.02	38.3	802.7	354	(1) - 62.6
					4-6	5.51	37.4	70.5	—	(2) - 91.0
					6-8	5.64	45.1	823.4	—	(4) - 104
12. 24	10.0	0.961	—	4.3	8-10	4.60	—	—	—	(6) - 120
					0-2	5.65	24.5	22.1	—	(0) - 53
					2-4	3.16	37.6	58.6	—	(1) - 115
12. 24	10.0	0.961	—	4.3	0-2	7.35	19.9	333.1	94.6	(0) - 139
					2-4	7.08	27.9	110.2	82.2	(1) - 149
					4-6	5.24	12.3	107.5	97.7	(2) - 145
12. 24	10.0	0.961	—	4.3	6-8	4.32	7.8	167.5	—	(4) - 144
					0-2	5.31	19.0	264.5	72.2	(0) - 82
					2-4	5.75	20.3	187.5	116	(1) - 109
12. 24	10.0	0.961	—	4.3	4-6	3.18	18.1	117.2	84	(2) - 105
					6-8	4.08	18.4	289.9	—	(4) - 125

1) 溶存酸素 2) 間隙水中の全有機炭素 3) 間隙水中の硫酸イオン 4) 湿重1g当りの硫化物
5) 酸化還元電位

表1-2 St.2における河川水質および底泥の性状

調査月日	河川水				底泥					
	水温 (°C)	電導線 ($ms \cdot cm^{-2}$)	DO ($mg \cdot l^{-1}$)	BOD ($mg \cdot l^{-1}$)	深度 (cm)	灼熱減量 (%)	TOC ($mg \cdot l^{-1}$)	硫酸イオン ($m \cdot mol \cdot l^{-1}$)	硫化物 ($mg \cdot g^{-1}$)	Eh (mV)
1984. 4. 9	15.6	0.598	-	-	0-2	4.16	29.5	1.36	138	(0)+119
					2-4	7.13	52.0	1.89	196	(1)+65
					4-6	8.55	31.4	0.756	-	(2)+40
5. 15	18.3	2.20	-	-	0-2	15.40	78.0	0.536	674	(0)-109
					2-4	19.00	58.5	0.328	604	(1)-119
					4-6	1.75	30.7	-	454	(2)-126
6. 15	25.8	2.64	4.04	5.8	0-2	16.00	23.8	0.845	1289	(0)-70
					2-4	16.50	27.1	0.285	955	(1)-118
					4-6	2.50	30.7	0.355	177	(2)-148
7. 11	27.7	0.759	9.05	3.0	0-2	2.65	20.4	1.22	374	(0)+73
					2-4	5.53	44.5	0.658	494	(1)-57
					4-6	1.71	32.1	0.645	223	(2)-73
8. 16	31.5	1.27	2.29	-	0-2	7.54	10.6	0.483	266	(0)-65
					2-4	3.96	11.7	0.423	300	(1)-113
					4-6	3.12	16.8	1.084	203	(2)-131
9. 12	27.3	3.53	9.04	3.7	0-2	6.14	15.6	2.09	116	(0)+215
					2-4	4.29	12.9	2.35	83.8	(1)+87
					4-6	3.64	16.8	2.43	-	(2)+50
10. 23	19.6	1.98	8.92	5.1	0-2	4.41	0.0	-	-	(4)+21
					2-4	11.47	14.5	1.32	308	(0)-28
					4-6	7.72	15.5	0.82	337	(1)-37
11. 28	10.1	6.60	7.93	4.2	0-2	7.14	13.2	0.585	572	(2)-63
					8-10	3.05	22.5	0.890	-	(4)-63
					0-2	4.74	8.0	3.45	285	(0)+230
1985. 2. 8	10.4	7.08	-	4.2	2-4	5.11	8.6	3.21	517	(1)+176
					4-6	3.90	8.7	3.14	607	(2)+139
					6-8	4.19	7.9	2.68	654	(4)+97
3. 28	11.5	0.206	7.75	9.5	0-2	7.30	14.3	8.24	664	(0)-19
					2-4	10.80	28.1	7.81	999	(1)-38
					4-6	12.50	34.6	7.75	1172	(2)-53
5. 7	17.7	0.350	5.84	11.3	6-8	6.31	23.4	8.33	-	(4)-69
					8-9.5	7.03	30.3	9.94	-	(6)-88
					0-2	7.95	72.3	0.078	371	(0)+45
8. 1	27.1	0.948	-	1.1	2-4	4.34	48.9	0.362	984	(1)-60
					4-6	3.41	39.0	0.403	1181	(2)-95
					8-10	5.28	30.0	0.590	-	(4)-107
8. 29	31.6	0.609	-	1.5	0-2	4.07	42.5	2.46	-	(0)-26
					2-4	6.02	28.1	0.676	-	(1)-75
					4-6	6.24	34.9	0.430	-	(2)-103
10. 28	18.0	4.35	7.76	4.8	0-2	1.71	15.9	0.515	-	(0)+325
					2-4	1.70	14.9	0.526	-	(1)-33.4
					0-2*	7.82	16.6	0.086	-	(2)-42
12. 24	10.1	11.21	-	2.3	0-2	2.20	12.5	0.244	-	(0)+38.9
					2-4	3.27	22.1	0.235	-	(1)-68.4
					4-6	2.52	13.5	0.085	-	(2)-100
8. 1	27.1	0.948	-	1.1	0-2	4.55	11.0	5.10	103	(0)+67
					2-4	3.77	10.3	5.53	164	(1)+2
					4-6	5.49	9.6	5.16	60.9	(2)-41
8. 29	31.6	0.609	-	1.5	6-8	3.75	9.5	5.18	-	(4)-65
					0-2	5.54	13.3	10.1	279	(0)+86
					2-4	4.62	11.2	10.5	450	(1)-8.0
10. 28	18.0	4.35	7.76	4.8	4-6	3.55	11.8	10.5	266	(2)-46
					6-8	2.10	10.8	10.4	-	(4)-109

* 岸より干出部底泥

表1-3 St.3における河川水質および底泥の性状

調査月日	河川水				底泥						
	水温 ($^{\circ}\text{C}$)	電導度 ($\text{ms}\cdot\text{cm}^{-2}$)	DO ($\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$)	BOD ($\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$)	深度 (cm)	灼熱減量 (%)	TOC ($\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$)	硫酸イオン ($\text{mmol}\cdot\text{l}^{-1}$)	硫化物 ($\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$)	Eh (mV)	
1984. 4.17	15.4	15.35	5.60	4.8	0-2	6.41	28.5	11.08	189	(0)+215	
					2-4	5.95	37.6	8.46	175	(1)+127	
					8-10	12.90	26.9	14.79	307*	(2)+103	
					12-14	9.54	30.2	14.00	1045	(4)+79.9	
5.16	17.9	14.75	-	-	0-2	7.17	32.9	9.06	240	(0)+171	
					6-8	6.86	28.5	14.11	799	(1)+154	
					12-14	6.90	15.6	13.93	946	(2)+136	
					18-20	10.63	14.9	13.19	803	(4)+104	
7. 2	25.2	7.67	4.13	2.2	27-29	8.04	13.9	9.97	-	(8)-24.8	
					0-2	4.87	11.5	6.60	86.3	(0)+174	
					4-6	4.89	28.2	10.12	204	(1)+121	
					8-10	8.24	19.6	8.98	732	(2)+80.6	
8.29	28.2	16.83	3.81	3.2	12-14	7.65	-	10.33	966	(4)+51.0	
					16-18	3.52	-	-	-	(6)-63.9	
					0-2	5.28	21.6	15.00	19.9	(0)+135	
					4-6	5.92	49.5	16.31	81.7	(1)+94.2	
10.30	18.1	18.43	6.08	2.0	6-8	5.79	-	-	-	(2)+49.7	
					8-10	5.58	24.5	14.21	509	(4)-40.5	
					12-14	5.52	22.3	6.49	265	(6)-69.8	
					16-18	4.75	-	-	-	(8)-101	
12.24	11.2	18.79	4.51	2.2	0-2	-	49.2	13.09	6.92	(0)+267	
					4-6	4.37	41.0	13.51	8.18	(1)+219	
					8-10	4.02	38.5	15.27	31.5	(2)+196	
					12-14	4.37	31.5	15.01	53.4	(4)+177	
1985. 2.26	10.4	13.24	8.46	3.6	0-2	2.45	13.6	16.91	30.5	(0)+375	
					4-6	2.03	20.4	16.50	95.1	(1)+287	
					8-10	2.29	24.4	16.67	51.8	(2)+236	
					12-14	2.55	22.9	15.84	170	(4)+170	
8.15	27.9	13.70	-	-	0-2	5.88	23.3	12.92	25.5	(0)+335	
					4-6	7.39	13.2	16.68	40.1	(1)+272	
					8-10	9.84	18.0	17.36	809	(2)+234	
					12-14	8.57	22.9	12.08	630	(4)+166	
1985. 8.15	27.9	13.70	-	-	0-2	7.28	16.6	8.89	94.3	(0)+158	
					4-6	6.98	21.7	10.81	212	(1)+83.5	
					8-10	7.80	38.1	10.74	354	(2)+46.9	
					12-14	8.25	17.9	9.34	856	(4)+7.0	
1986. 2.10	6.0	18.62	-	3.3	14-16	10.46	-	6.02	-	(6)-67.6	
					0-2	5.83	23.1	17.46	41.8	(0)+331	
					4-6	5.53	16.9	16.58	107	(1)+244	
					8-10	6.72	16.9	15.40	44.9	(2)+202	
1986. 2.10	6.0	18.62	-	3.3	12-14	13.36	13.1	19.62	272	(4)+179	
					14-16	13.55	12.9	-	-	(6)+50.1	

(* 4-6 cm)

調査時の水温はSt.1では7.5℃から29.2℃、St.2では10.1℃から31.5℃、St.3では6.0℃から28.0℃の範囲で変化した。溶存酸素は一部の試料で測定しているにすぎないが、St.1で3.6～6.5 mg O₂ · ℓ⁻¹、St.2で2.3～9.1 mg O₂ · ℓ⁻¹、St.3で3.8～8.5 mg O₂ · ℓ⁻¹であり、季節的な傾向は認められなかった。電導度はSt.1で0.202～0.400 mS · cm⁻²、St.3で14.8～18.8 mS · cm⁻²（7月2日の7.67 mS · cm⁻²を除く）と比較的変化が小さいが、St.2では0.206～7.08と大きな変動を示した。淡水域のSt.1で低く、海水の朔上する下流ほど高い電導度を示すのは当然であるが、St.2の大きな変動は調査時の河川流量、潮汐の様子の違いによるものである。1985年10月、12月のSt.2における高い電導度は、この時期の河川流量がかなり少ないこと（図3）も一因と考えられる。BODはSt.1で2.6～11.6 mg O₂ · ℓ⁻¹、St.2で3.0～11.3 mg O₂ · ℓ⁻¹、St.3で2.0～4.8 mg O₂ · ℓ⁻¹であり、平均的にはSt.3で最も低く、St.1で最も高かった。

底泥の有機物含量の指標としての灼熱減量についてみると、St.1では、3試料を除き、垂直的には表層0～2 cm層が最も高く、深度と共に減少を示した。0～2 cm層の季節変化は、図4に示すように、4.25%から13.6%の範囲で変動した。1984、1985年度では調布取水堰における日平均流量は晴天時で5～15 m³ · 秒⁻¹程度である。1985年度の流量は著しく安定であり、100 m³ · 秒⁻¹をこえるピークは7月21日の103.5 m³ · 秒⁻¹のみであった。1985年度では、7月1日の759 m³ · 秒⁻¹をピークとする増水のほか、143 m³ · 秒⁻¹以下のピークが数回あった。1984年6月から7月の灼熱減量の急減は6月下旬の比較的小さな増水により底泥の一部が流出したた

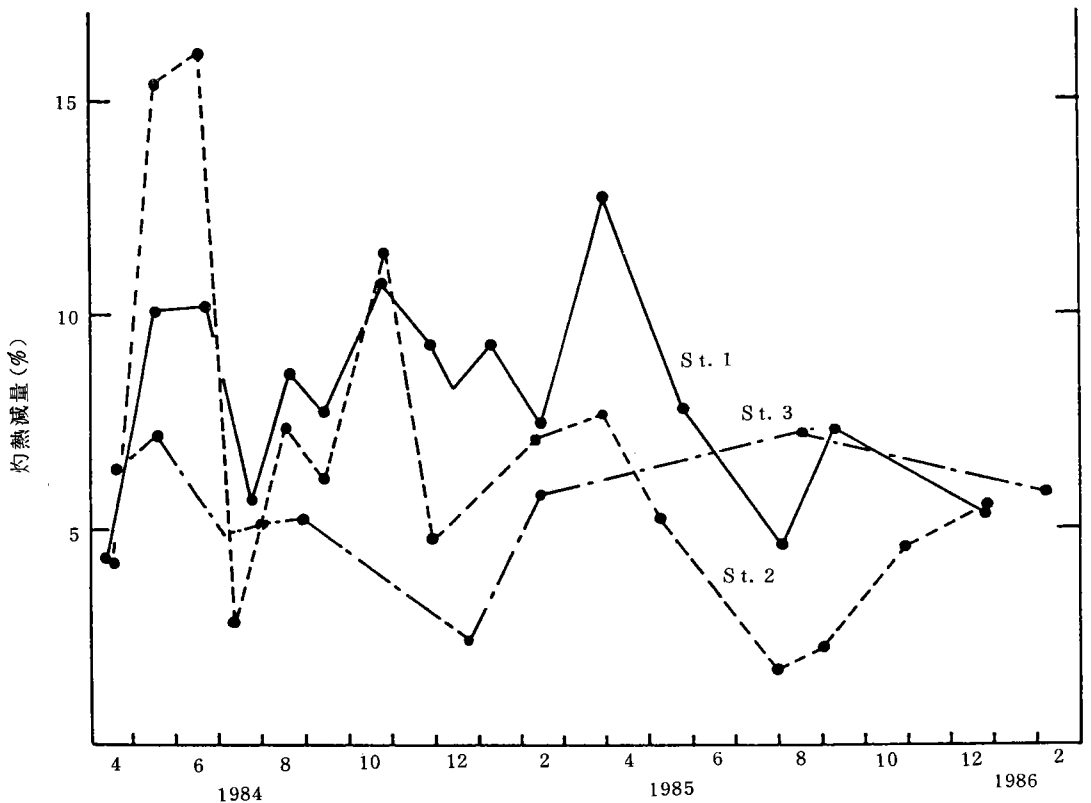


図4 底泥表層（0～2 cm層）の灼熱減量の季節変化

めと考えられる。1985年3月から8月にかけての減少は、4月と6月の $100\sim 140\text{m}^3\cdot\text{秒}^{-1}$ の数回の増水と7月21日を中心とする大きな増水がその原因であろう。St.2底泥の灼熱減量の垂直分布は時期により様々なパターンを示した。2～4 cm層で最大となる場合が多いが、表層0～2 cm層で最大となる場合もかなりある。0～2 cm層の灼熱減量の季節変化はSt.1とほぼ等しく、かつより激しい傾向がみられた(図4)。これは堰上で底泥の堆積しやすいSt.1に比べて、St.2の底泥は河川流量の影響をより受けやすいためであろう。St.3の灼熱減量は垂直的にみると、8～10 cm層ないしそれ以深でピークを示す場合が多いが、表層から下層までほぼ一定の場合もみられた。表層の灼熱減量は5～7%程度(1985年12月を除く)でSt.1, St.2に比べて比較的安定である(図4)。これは、St.3では河川流量の変動が海水の湧上により緩和されることがおもな要因と考えられる。8 cm以深の層の灼熱減量はより変化が大きい、この変化は底泥堆積状態の水平的な不均一性によるのか、検討が必要である。海水の影響を受ける底泥では炭酸塩を含むため、灼熱減量を有機物量とみなすと過大評価となる。そこで、St.2とSt.3の22試料について塩酸処理により炭酸塩を除いた後に灼熱減量を測定したが、無処理のもの15%減程度であったので、ここでは無処理の値を用いた。

底泥の酸化還元電位(Eh)は3地点とも表層から下層にかけて急激に減少を示した。表層のEhはSt.1が最も低く、次いでSt.2であり、この両地点は表層で負の値になることが多かった。St.3のEhは最も高く、表層は常に正の値を示した。図5は深度1 cmのEhの季節変化を示したものである。St.1, St.2ではEhの季節的な周期はみられず、底泥の有機物量(灼熱減量)との明瞭な相関も認められなかった。St.3ではEhは夏期に比較的低く、冬期に高い一般的傾向がみられた。

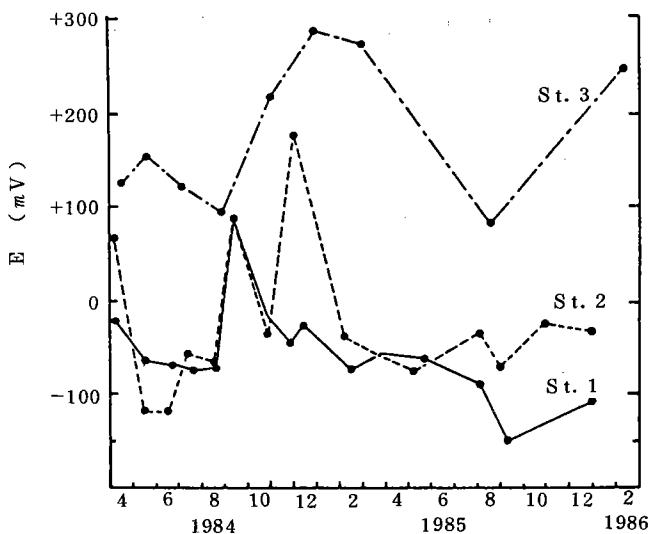


図5 底泥深度1 cmにおける酸化還元電位の季節変化

表層0～2 cmの硫化物含量はSt.2で高く、次いでSt.1, St.3の順であった。0～2 cmの硫化物含量の季節変化を図6に示した。St.2で変動が大きく、1985年8月、9月に3地点とも低い値を示したが、季節的な特徴は認められなかった。垂直的には下層で増加する場合が多くみられた。

底泥間隙水中の硫酸イオン濃度についてみると、St.1では表層で $1\text{ m mol}\cdot\ell^{-1}$ を超えることはほとんどなく、垂直的な変化も一定の傾向は示さなかった。St.2では表層で $1\text{ m mol}\cdot\ell^{-1}$ 以上の場合が多いが、時には $5\text{ m mol}\cdot\ell^{-1}$ になることがあり、1985年12月では $10\text{ m mol}\cdot\ell^{-1}$ にも達した。間隙水中

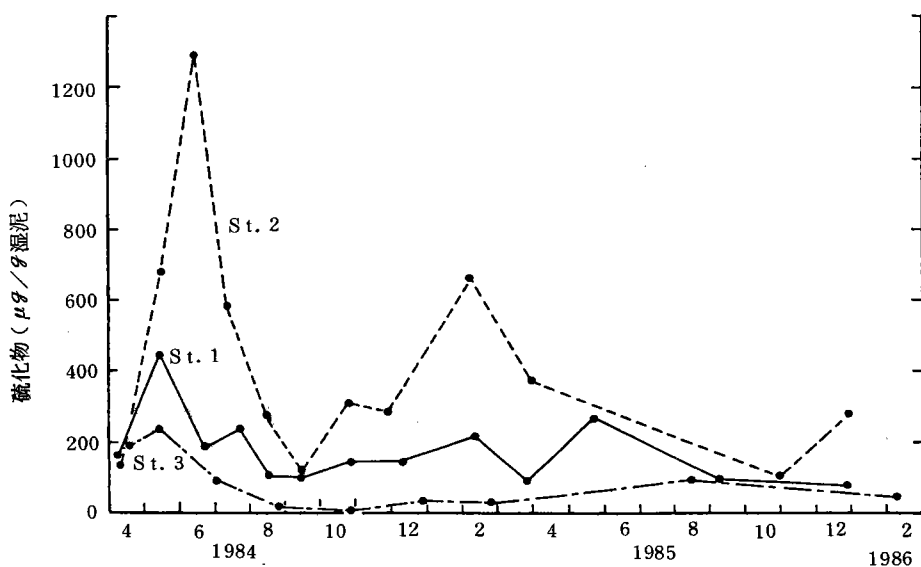


図6 底泥表層(0~2cm層)の硫化物含量の季節変化

の硫酸イオン濃度が高いときには、河川水の電導度も高いことから、河川水と間隙水はすみやかに交換するものと考えられる。St.3では河川水中の海水の混合率が常に大きいため、間隙水中の硫酸イオン濃度も常に高い値を示した。硫酸イオンの垂直分布には明瞭な傾向がみられなかったが、季節的には、とくに12~14cm層において、夏に低く、冬に高い傾向が認められた(図7)。これは硫酸還元による硫酸イオンの消費速度の季節変化を反映したものと考えられる。

底泥間隙水中の全有機炭素は、0~2cm層で、St.1の7.2~67.7 mg C・ℓ⁻¹；St.2の8.0~78.0 mg C・ℓ⁻¹；St.3の11.5~49.2 mg C・ℓ⁻¹の範囲であり、変化が大きかった。3地点とも、全有機炭素の垂直的、季節的な傾向は認められず、また、0~2cm層の全有機炭素は灼熱減量との相関も認められなかった。

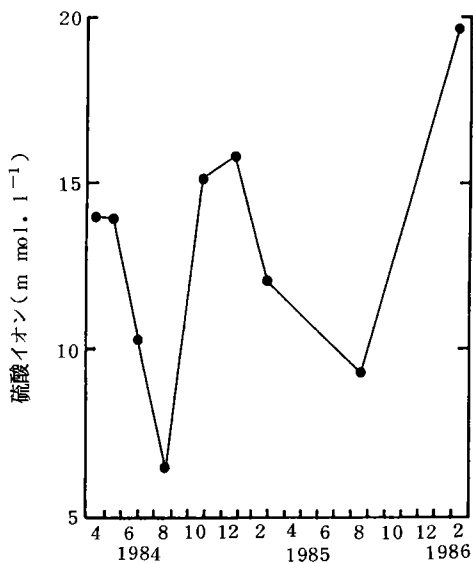


図7 St.3底泥12~14cm層間隙水硫酸イオン濃度の季節変化

4-2 メタン生成活性

メタン生成活性の測定結果を表2にまとめた。

表2-1 St.1におけるメタン生成活性

調査月日	水温(℃)	深度(cm)	メタン生成活性 (n mol・g ⁻¹ ・時 ⁻¹)	
			30℃培養	水温培養
1984. 4. 9	11.9	0-2	121 ± 47*	21.4
		2-4	54.5 ± 4.6	9.65
5. 15	16.5	0-2	387 ± 31	56.9
		2-4	215 ± 46	31.6
6. 19	25.0	0-2	450 ± 202	323
		2-4	258 ± 111	185
7. 19	25.8	0-2	153 ± 36	101
		2-4	122 ± 5	80.5
		4-6	103 ± 18	68.0
8. 16	29.2	0-2	77.6 ± 32.2	75.9
		2-4	133 ± 10	130
		4-6	127 ± 13	124
		6-8	116 ± 7	114
9. 12	24.2	0-2	59.6 ± 26.8	40.8
		2-4	32.1 ± 8.6	22.0
		4-6	43.1 ± 16.9	29.5
		6-8	131 ± 47	89.9
10. 23	17.5	0-2	138 ± 67	63.0
		2-4	58.3 ± 19.1	26.6
		4-6	68.7 ± 19.2	31.4
		6-8	92.9 ± 44.0	42.4
		8-10	90.3 ± 2.8	42.7
11. 24	15.0	0-2	138 ± 55	58.8
		2-4	53.7 ± 10	22.9 ± 0.9
		4-6	42.6	18.1 ± 4.8
		6-8	19.6	8.3 ± 3.5
12. 11	11.5	0-2	62.7 ± 8.5	16.5 ± 5.1
		2-4	40.8 ± 13.2	10.4 ± 4.0
		4-6	43.8	11.2 ± 2.9
		7-9	16.4	4.2 ± 2.0
1985. 1. 9	7.5	0-2	180 ± 25	34.2 ± 9.3
		2-4	151	28.5 ± 8.4
		7-9	147	27.8 ± 4.0
2. 12	9.8	0-2	175 ± 27	18.9 ± 4.2
		2-4	53.5 ± 0.6	8.8 ± 3.8
		4-6	91.9	15.1 ± 5.9
		6-8	27.8	4.56 ± 0.85
3. 28	10.1	0-2	558 ± 124	65.1 ± 23.7
		2-4	305 ± 194	93.2 ± 35.8
		4-6	61.6	18.8 ± 1.6
		8-10	36.3	11.1 ± 9.4
5. 20	19.7	0-2	422 ± 115	34.7 ± 6.3
		2-4	370 ± 49	22.6 ± 7
		4-6	234	14.3 ± 3.7
		6-8	92.0	5.63 ± 1.57
		8-10	71.0	4.34 ± 8.2
8. 1	25.9	0-2	176	10.6 ± 8
		2-4	116	6.92 ± 3.50
9. 9	26.0	0-2	117	10.2 ± 1.3
		2-4	275	23.8 ± 1.3
		4-6	180	15.6 ± 7.4
		6-8	75.6	6.55 ± 10.6
12. 24	10.0	0-2	165	5.59 ± 17.9
		2-4	220	3.29 ± 16.2
		4-6	229	3.42 ± 14.9
		6-8	109	1.63 ± 3.2

* 標準偏差。平均値のみの値は他の温度で測定したものから計算で求めた。

表 2-2 St.2におけるメタン生成活性

調査月日	水温(°C)	深度(cm)	メタン生成活性 ($\mu\text{mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{時}^{-1}$)			
			30°C 培養		水温 培養	
1984. 4. 9	15.6	0-2	0.220	± 0.273*	0.0470	
		2-4	2.06	± 0.97	0.439	
		4-6	1.68	± 1.33	0.360	
5. 15	18.3	0-2	225	± 54	209	
		2-4	882	± 186	822	
		4-6	270	± 28	251	
6. 15	25.8	0-2	196	± 29	126	
		2-4	288	± 76	185	
		4-6	7.57	± 2.29	4.86	
7. 11	27.7	0-2	9.08	± 5.63	7.36	
		2-4	158	± 3	128	
		4-6	3.37	± 3.40	2.73	
8. 16	31.5	0-2	45.9	± 7.4	49.2	
		2-4	37.5	± 11.3	40.2	
		4-6	25.5	± 10.6	27.3	
9. 12	27.3	0-2	0.367	± 0.636	0.311	
		2-4	0.413	± 0.204	0.351	
		4-6	1.38	± 1.28	1.18	
		6-8	0.985	± 0.546	0.837	
10. 23	19.6	0-2	219	± 94	20.0	
		2-4	59.7	± 28.5	5.45	
		4-6	40.1	± 10.4	3.66	
		8-10	10.2	± 8.9	0.930	
11. 28	10.1	0-2	0.109	± 0.014	0.0279 ± 0.0142	
		2-4	0.0869	± 0.0137	0.0487 ± 0.0056	
		4-6	0.0626	± 0.0326	0.0460 ± 0.0118	
		6-8	0.0332		0.0244 ± 0.0087	
1985. 2. 8	10.4	0-2	0.370		0.189 ± 0.045	
		2-4	0.978		0.187 ± 0.077	
		4-6	0.851		0.163 ± 0.035	
		6-8	0.301		0.0576 ± 0.0197	
3. 28	11.5	8-9.5	0.155		0.0297 ± 0.0085	
		0-2	33.5		3.32 ± 3.82	
		2-4	16.4		2.03 ± 0.42	
		4-6	29.3		2.90 ± 0.42	
5. 7	17.7	8-10	13.5		1.33 ± 0.69	
		0-2	28.6		5.97 ± 2.67	
		2-4	58.8		15.2 ± 2.2	
		4-6	51.6		13.4 ± 4.6	
8. 1	27.1	0-2	0.466		0.394 ± 0.153	
		2-4	2.17		1.83 ± 2.16	
8. 29	31.6	**0-2	39.1		33.0 ± 5.39	
		0-2	6.47		7.45 ± 2.53	
		2-4	46.1		53.1 ± 10.4	
10. 28	18.0	4-6	22.7		26.2 ± 2.15	
		0-2	0.209		0.0654 ± 0.0333	
		2-4	0.307		0.0962 ± 0.0191	
		4-6	0.346		0.108 ± 0.080	
12. 24	10.1	6-8	0.191		0.0597 ± 0.0282	
		0-2	0.700		0.502 ± 0.045	
		2-4	0.701		0.431 ± 0.033	
		4-6	0.376		0.249 ± 0.035	
		6-8	0.239		0.158 ± 0.022	

* 標準偏差. 平均値のみの値は他の温度で測定したものから計算で求めた。

** 岸より干出部底泥

表2-3 St.3におけるメタン生成活性

調査月日	水温(℃)	深度(cm)	メタン生成活性 ($n \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{時}^{-1}$)		
			30℃培養	水温培養	
1984.	4. 17	15.4	0-2	0	0
			2-4	0.159	0.0065
			8-10	0.418 $\pm 0.115^*$	0.0173
			12-14	0.491 ± 0.232	0.0203
	5. 16	17.9	0-2	0.452	0.124
			6-8	0.470	0.129
			12-14	0.206	0.0564
			18-20	1.41	0.387
			23-25	1.13	0.309
	7. 2	25.2	27-29	0.400	0.109
			0-2	0.207 ± 0.045	0.139
			4-6	0.300 ± 0.155	0.201
			8-10	0.281 ± 0.014	0.188
			12-14	0.179 ± 0.088	0.120
	8. 29	28.3	16-18	0.0688 ± 0.0238	0.0461
			0-2	0	0
4-6			0	0	
6-8			0.0404 ± 0.0131	0.0354	
8-10			0.0640 ± 0.0229	0.0561	
12-14			0.180 ± 0.033	0.158	
10. 30	18.1	16-18	0.189 ± 0.119	0.165	
		0-2	0	0	
		4-6	3.51 ± 3.55	0.974	
		8-10	5.18 ± 3.89	1.44	
12. 24	11.2	12-14	2.66 ± 2.10	0.738	
		0-2	0.486	0.0428 ± 0.0105	
		4-6	0.541	0.0476 ± 0.0313	
		8-10	0.377	0.0332 ± 0.0164	
1985.	2. 26	10.4	12-14	0.552 ± 0.032	0.0487 ± 0.0156
			0-2	0.202	0.0857 ± 0.0155
			4-6	0.124	0.0526 ± 0.0513
			8-10	0.142	0.0604 ± 0.0574
	8. 15	27.9	12-14	0.476 ± 0.041	0.202 ± 0.072
			0-2	0.560	0.479 ± 0.435
			4-6	0.175	0.175 ± 0.156
			8-10	0.615	0.526 ± 0.386
1986.	2. 10	6.0	12-14	0.533	0.456 ± 0.189
			14-16	0.458	0.392 ± 0.093
			0-2	3.17	0.476 ± 0.093
			4-6	8.70	1.31 ± 0.28
			8-10	10.5	1.58 ± 0.90
			12-14	16.7	2.50 ± 0.42
			14-16	12.9	1.94 ± 0.52

* 標準偏差・平均値のみの値は他の温度で測定したものから計算で求めた。(84.5.16 30℃培養をのぞく)

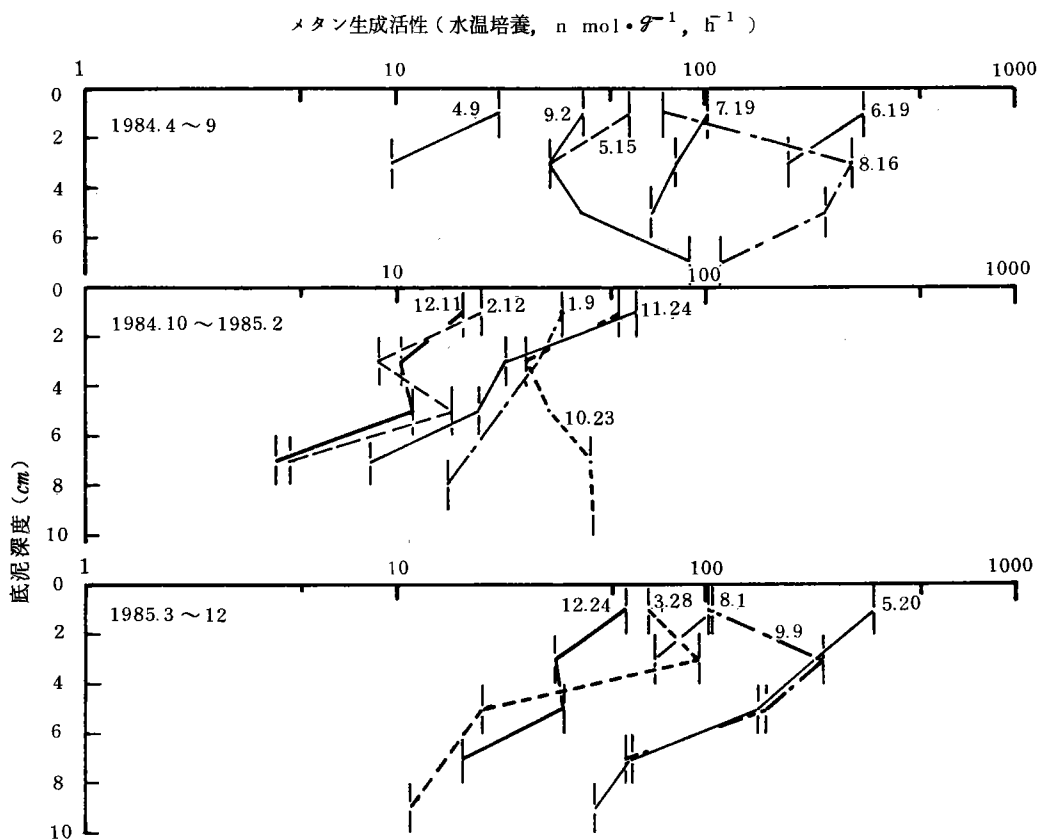


図8 St.1におけるメタン生成活性の垂直分布

St.1のメタン生成活性の垂直分布は、図8に示すように、0～2cmで最大となる場合が多かった。そこで、0～2cm層の30℃培養および水温培養のメタン生成活性の季節変化を図9および図10に示した。

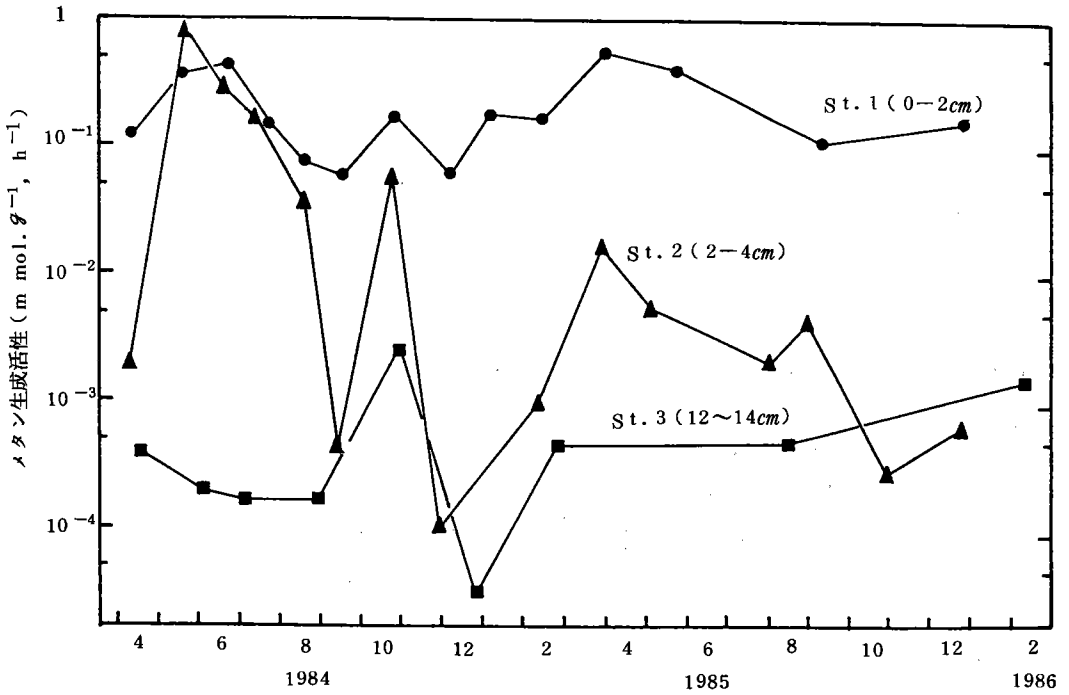


図9 St.1(0～2cm層), St.2(2～4cm層), St.3(12～14cm層)の30℃培養メタン生成活性の季節変化

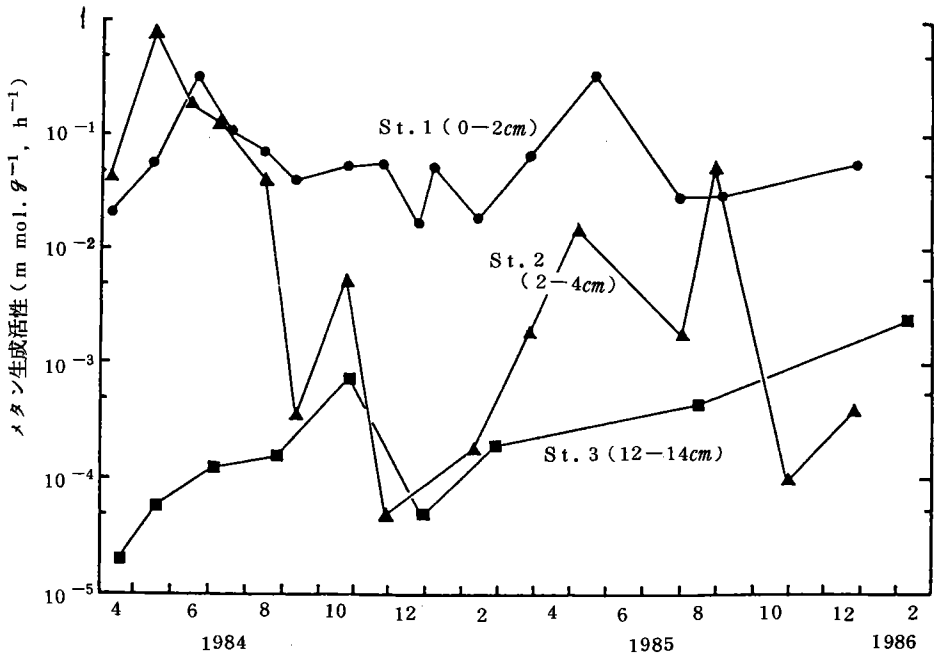


図10 St.1(0～2cm層), St.2(2～4cm層), St.3(12～14cm層)の水温培養メタン生成活性の季節変化

30℃培養活性は $59.6 \mu\text{mol}\cdot\text{g}^{-1}$ (乾量) $\cdot\text{時間}^{-1}$ から $558 \mu\text{mol}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{時間}^{-1}$ の範囲で変化し、1984年、85年とも春に高い値を示し、夏では比較的lowかった。水温培養活性は、 $16.5 \mu\text{mol}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{時間}^{-1}$ から $347 \mu\text{mol}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{時間}^{-1}$ の範囲で変化し、30℃培養活性と同様の季節変化を示した。

St.2のメタン生成活性の垂直分布は、図11に示すように、2～4 cm層で最大となる場合が多かった。また、6 cm以深の層は砂質の場合が多く、測定した限りでは、その活性は上層に比べてかなり低かった。2～4 cm層の30℃培養および水温培養のメタン生成活性の季節変化(図9、10)は、30℃培養活性で $0.31 \text{ n mol}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{時間}^{-1}$ から $882 \mu\text{mol}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{時間}^{-1}$ まで、水温培養活性で $0.05 \text{ n mol}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{時間}^{-1}$ から $822 \mu\text{mol}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{時間}^{-1}$ までと、St.1に比べて激しい変動を示したが、1984年5月を除くと、St.1に比較してかなり活性は小さかった。

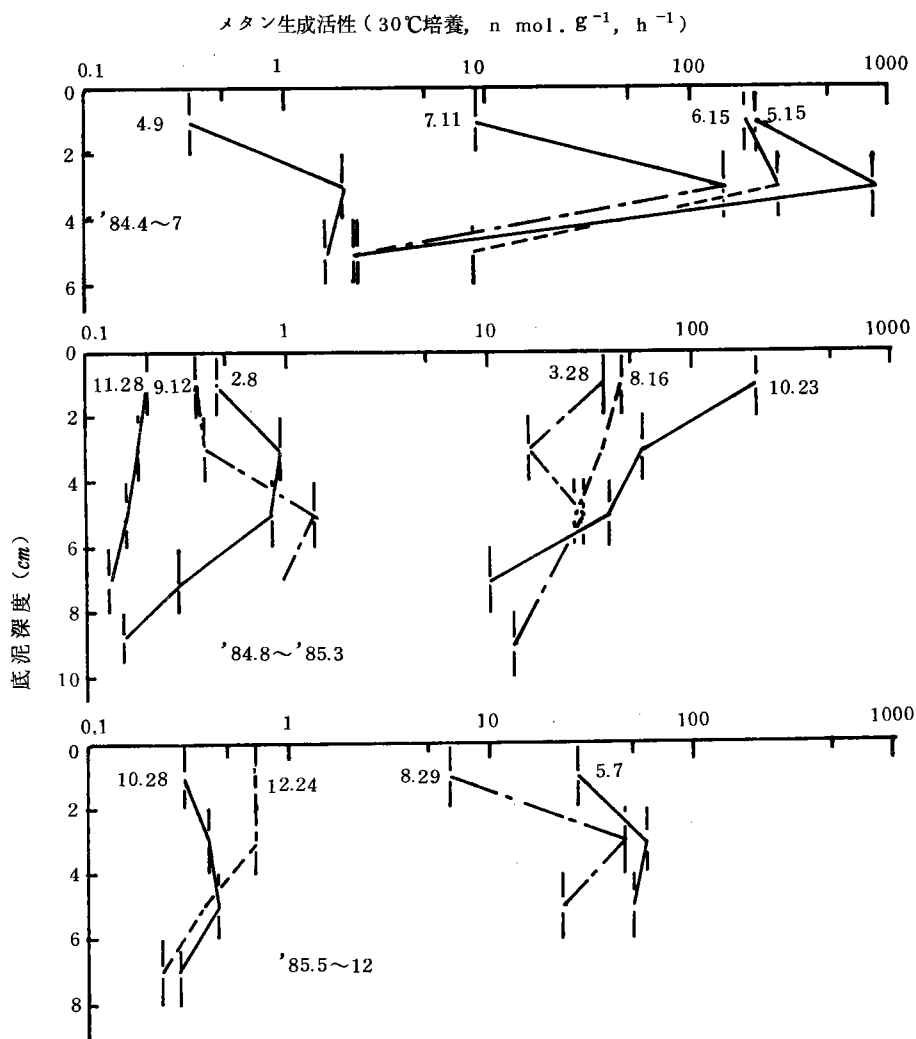


図11 St.2におけるメタン生成活性の垂直分布

St.3では、活性の垂直分布は表面に近い層で小さく、深い層、とくに12~14cm層でピークとなる例が多かった(図12)。12~14cm層の季節変化を図9, 10に示す。30℃培養活性は1984年10月と1986年2月を除くと0.6 $\text{n mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{時間}^{-1}$ 以下と極めて低く、水温培養活性ではその値はさらに小さく、3例を除くと、0.2 $\text{n mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{時間}^{-1}$ 以下にすぎなかった。

水温培養活性を河床面積当りに換算した結果を表3および図13にまとめた。測定を行なわなかった層の値はその上、下層の平均として計算した。サンプリング時の底泥の堆積状態によって、測定した底泥深度はSt.1

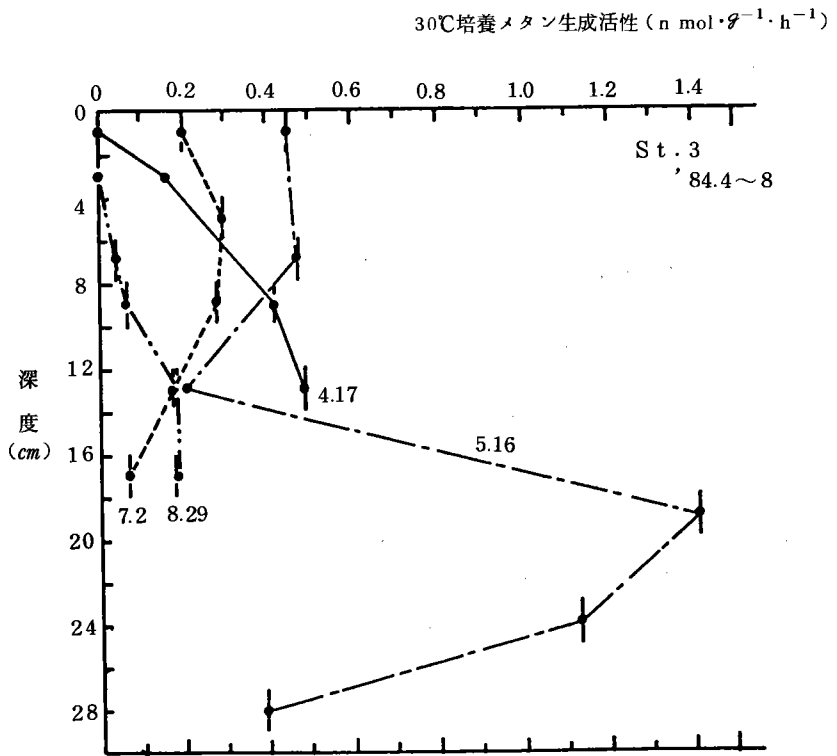


図12-1 St.3におけるメタン生成活性の垂直分布

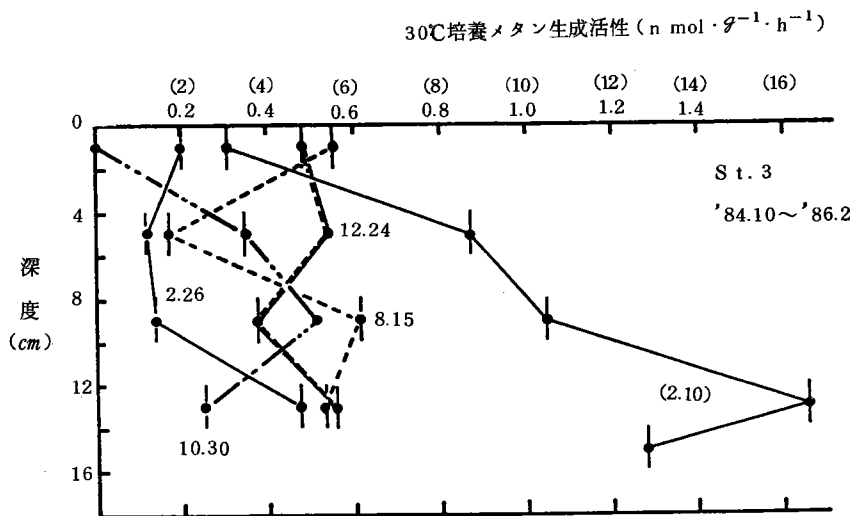


図12-2 St.3におけるメタン生成活性の垂直分布

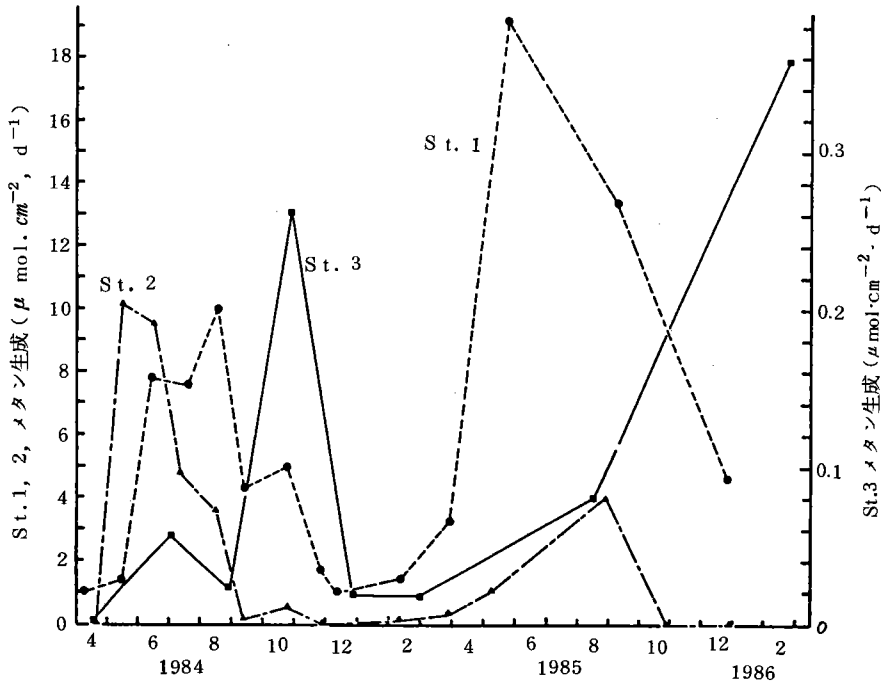


図 13. 河床面積当りのメタン生成活性 (水溫培養) の季節変化

表 3. 河床面積当りのメタン生成活性 ($\mu\text{mol}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{日}^{-1}$)

St. 1		St. 2		St. 3	
調査日	(0-測定深度)* (0-4cm)	調査日	(0-測定深度)* (0-6cm)	調査日	(0-測定深度)* (0-14cm)
1984		1984		1984	
4. 9	1.04	4. 19	— 0.0250	4. 17	— 0.00214
5. 15	1.41	5. 15	— 10.2	5. 16	— 0.0244
6. 14	7.83	6. 15	— 9.57	7. 2	(0-18) 0.0660 0.0558
7. 19	(0-6)** 7.58 4.60	7. 11	— 4.82	8. 29	(0-18) 0.0433 0.0221
8. 16	(0-8) 10.1 4.23	8. 16	— 3.62	10. 30	— 0.282
9. 12	(0-8) 4.30 1.26	9. 12	(0-8) 0.109 0.0736	12. 24	— 0.0188
10. 23	(0-10) 4.94 1.63	10. 23	(0-10) 0.502 0.453	1985	
11. 24	(0-8) 1.76 1.11	11. 28	(0-8) 0.00534 0.00408	2. 26	— 0.0182
12. 11	(0-9) 1.01 0.465	1985	(0-9.5) 0.0131 0.0102	8. 15	— 0.0802
1985		2. 8	(0-10) 0.341 0.225	1986	
1. 9	— 0.998	3. 28	— 1.07	2. 10	(0-16) 0.396 0.358
2. 12	(0-8) 1.43 0.648	5. 7	— 4.02		
3. 28	(0-10) 3.26 2.03	8. 1			
5. 20	(0-10) 19.4 11.2	8. 29			
8. 1	— 7.66	10. 24	(0-8) 0.0157 0.0123		
9. 9	(0-8) 13.3 5.66	12. 24	(0-8) 0.0520 0.0425		
12. 24	(0-8) 4.63 2.19				

* 測定した最深深度までの積算値 **はその深度 この欄が空白の場合は右の欄の深度まで測定した。

では0~4 cmから0~10cmまで、St.2では0~6 cmから0~10cmまでと異なる。St.3では、一部試料を除き、0~14cmまでとした。St.1ではメタン生成は春から夏に高く、晩秋から冬にかけて減少した。0~2 cm層のメタン生成活性が夏に著しく減少するのにかかわらず、面積当りの活性が低下しないのは、2 cm以深の活性が夏期に上昇する(図8)ためである。最大値を示した1985年5月では、0~10cmの底泥から1日1cm²当り19.4 μモルのメタンが生成されることになり、炭素に換算すると1日1 m²当り2.3 gに達する。St.2の0~6 cm層では、1984年5、6月を除き、St.1に比べてメタン生成はかなり低く、とくに9月から3月にかけては0.5 μ mol·cm⁻²·日⁻¹以下にすぎなかった。St.2の最大値は1984年5月の10.2 μ mol·cm⁻²·日⁻¹、炭素として1.2 g·m⁻²·日⁻¹であった。St.3の0~12cm層では、ほとんどが0.06 μ mol·cm⁻²·日⁻¹以下で、St.1、St.2に比べて著しく活性が低いが、1984年10月と1986年2月だけは他より1桁高い値となった。この2試料を除いた平均を炭素に換算すると、メタン生成は3.2 mgC·m⁻²·日⁻¹にすぎなかった。

メタン生成の基質および硫酸還元によるメタン生成の抑制作用を推定するために、底泥懸濁液にメタン生成の基質である酢酸塩、H₂+CO₂、メタノールや硫酸還元の特異的阻害剤であるモリブデン酸塩、および硫酸塩を添加して、メタン生成に及ぼす影響を調べた。その結果を調査地点別に表4にまとめた。

表4 メタン生成に対する基質、阻害剤の添加の影響(対照を100%とする)

場所	採取日	培養温度	培養時間	添 加 物					
				酢酸塩	メタノール	水素	硫酸塩	モリブデン酸塩	
St.1	83. 7. 4	30 ℃	17.2 h	196%	148%	136%	77%	125%	
	84. 8. 16	30	14.3	191	133	—	48	120	
	10. 23	30	18.8	558	—	135	48	160	
	12. 11	11.5	16	141	—	204	26	98	
	85. 2. 12	10	14	102	—	27	95	124	
	3. 29	11.4	16	94	—	98	102	103	
	"	"	44.5	1008	104	101	97	111	
	9. 9	26	14	193	—	88	48	100	
	St.2	83. 6. 15	30	13.4	115	109	—	29	143
84. 8. 16		30	14.5	5914	2589	—	3.6	175	
10. 23		30	18.5	208	—	63.1	40	101	
11. 28		10	13	235	—	138	105	275	
85. 2. 8		10	14	237	—	256	70	410	
3. 29		11.4	16	489	—	181	103	177	
"		"	43.5	3150	—	151	39	143	
5. 8		17.7	15	1750	654	193	100	456	
10. 28		18	15	1056	—	1099	103	207	
12. 25	10	13.4	213	97	—	87	179		
			976	532	—	108	573		
St.3	83. 6. 25	30	17.1	519	320	—	111	320	
	84. 8. 29	30	19.5	261	230	476	99	230	
	10. 30	30	18	158	141	62	42	141	
	12. 24	11.2	15.9	151	194	267	106	194	
	85. 2. 26	10.0	11.3	154	—	486	109	—	
	"	"	35	110	109	1006	129	109	
	86. 2. 10	6.0	18	96	121	—	102	102	
			57	268	180	89	76	180	

St.1では、最もメタン生成を増加させた添加基質は、1試料を除き、酢酸塩であった。硫酸塩の阻害効果は夏から秋の試料（26℃または30℃培養）で5割強、2、3月（10℃、11.4℃培養）ではほとんど影響がなかった。ただし、12月（11.5℃培養）では75%と最大の阻害を示した。モリブデン酸塩の促進効果は10月の試料を除くと2割以下であった。この結果から、St.1では酢酸が主なメタン生成の基質であり、硫酸還元との競争は、硫酸イオンの不足によって、それほど厳しくないと考えられる。

St.2でも酢酸塩が H_2+CO_2 、メタノールよりもメタン生成の促進効果が大きい場合が多かった。間隙水中の硫酸塩の少ない8月、10月の試料では、硫酸塩の添加がメタン生成を90%以上阻害するが、モリブデン酸塩添加による促進効果はほとんどないか、75%増加（8月）と比較的小さかった。逆に、間隙水中の硫酸塩の多い11月、2月、5月、10月、12月では硫酸塩添加による阻害は全くないか、わずかである（最大は1985年2月の30%）が、モリブデン酸塩添加による促進は2.7倍以上と大きかった。この結果から、St.2では間隙水中の硫酸イオン濃度の変動によって硫酸還元活性が変化し、それによってメタン生成活性が大きな影響を受けることが示唆された。しかし、3月の試料では間隙水中の硫酸塩の濃度が低いにもかかわらず、16時間培養では硫酸塩の添加による阻害は認められず、モリブデン酸塩による促進が77%増であったが、43.5時間培養後では硫酸の阻害効果が増し、モリブデン酸塩の促進効果が減少した。

間隙水中の硫酸イオンが常に多いSt.3では硫酸塩の添加がメタン生成を阻害する結果は、1983年10月の試料以外にみられなかった。モリブデン酸塩の添加はメタン生成を40%以上促進した。ただし、低温（6.0℃）で培養した2月10日の試料ではこの促進はみられず、低温により硫酸還元が抑制されたものと考えられた。また、St.3では、基質として酢酸塩よりも H_2+CO_2 の方が促進効果が大きい場合が多い点は、他の2地点と異なっている。

メタン生成に及ぼす温度の影響について秋～冬を中心に調べた結果を表5に示した。30℃培養の活性

表5 メタン生成に対する温度の影響

場所	採取日	培養時間	5℃	10℃	20℃	30℃	40℃
St.1	1984.10.23	18.8h		30%	91%	100%	318%
	12.11	16	12%	38 (11.5℃)	48 (22.5℃)	100	
	1985. 2.12	14	2.2	5.7	18	100	
		3.29	16		11 (11.4℃)	66	100
	"	44.5	3.6	12	65	100	
	9.10	14			47	100	
St.2	1984.10.23	18.5		7.9	34	100	192
	11.28	13.4	1.4	14	27	100	
	1985. 2. 8	14		16	20	100	
		3.29	16	0.7		23	100
	"	43.5	1.3	5.3 (11.4℃)	55	100	
	5. 8	15			30	100	
St.3	1984.10.30	18		13	31	100	
	12.24	15.9	4.7	8.3	39	100	
	1985. 2.26	11		38	70	100	
	1986. 2.10	18	15 (6.0℃)			100	
		56.7	19			100	

を100%とすると、20℃培養の活性はSt.1では18~48%、St.2では20~30%(3月の55%を除く)、St.3では31~70%で、低温時の試料で低い値となる場合が多かった。

4-3 脱窒活性

アセチレン阻害法により十分量の硝酸塩を添加して水温培養により測定した脱窒活性をポテンシャル活性とよび、その測定値を表6および図14に示した。亜酸化窒素の生成は硝酸塩を添加しないと検出さ

表6 脱窒ポテンシャル活性 ($\mu\text{mol}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}$)

St.1			St.2			St.3			
調査日	深度(cm)	活性	調査日	深度(cm)	活性	調査日	深度(cm)	活性	
1985.9.10	0-2	0.278 ± 0.099	1985.8.29	0-2	0.159 ± 0.022	1985.8.15	0-2	0.176 ± 0.007	
	2-4	0.301 ± 0.049		2-4	0.133 ± 0.042		2-4	0.114 ± 0.013	
	4-6	0.0487 ± 0.0057		4-6	0.0976 ± 0.0165		4-6	0.0757 ± 0.0059	
12.24	0-2	0.333 ± 0.064	10.28	0-2	0.589 ± 0.072	1986.2.10	0-2	0.0120 ± 0.0027	
	2-4	0.233 ± 0.022		2-4	0.505 ± 0.042		2-4	0.00460 ± 0.0009	
	4-6	0.0407 ± 0.0124		4-6	0.0883 ± 0.0158		4-6	0.00281 ± 0.00095	
			12.24	0-2	0.105 ± 0.015	8-10	8-10	0.00107 ± 0.00046	
				2-4	0.0883 ± 0.0158				
				4-6	0.0679 ± 0.0036				

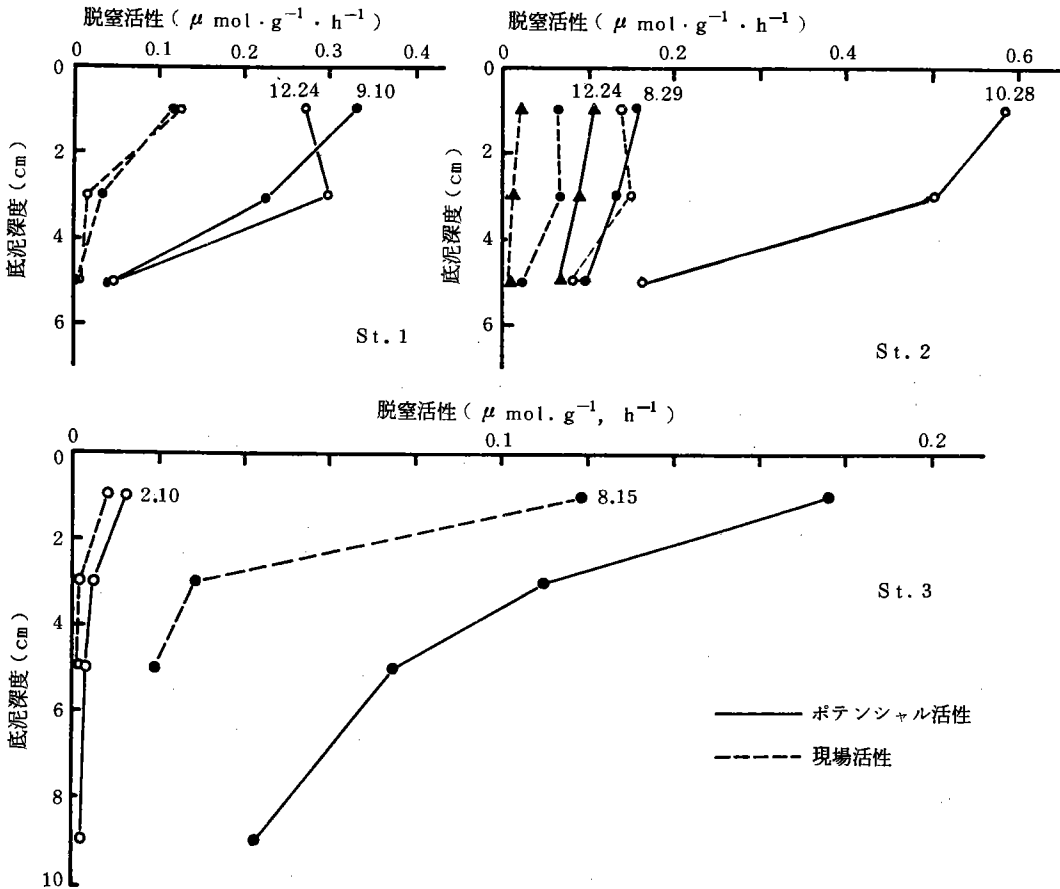


図14 脱窒活性の深度分布

れず、硝酸イオンの供給が現場の脱窒活性を支配していると考えられた。ポテンシャル活性は、St.2の10月を除き、表層で最も大きく、深度と共に減少した。St.1とSt.2では夏期と冬期の活性に大きな差は認められず、St.1では9月より12月の方が高い活性を示した。しかし、St.3では8月の活性は2月の活性より1桁大きかった。また、8、9月の活性を比較すると3地点とも大きな差はみられないが、12月、2月ではSt.3の活性が他の2地点より1桁低かった。

硝酸濃度と脱窒速度の関係を、1985年1月25日のSt.1、0~1cm層の底泥について調べた結果を図15に示す。硝酸態窒素濃度の上昇と共に脱窒速度は上昇し、4.5 mg N · ℓ⁻¹以上では脱窒速度はほぼ一定となった。この結果から Lineweaver-Burk プロットによって求めたKm(半飽和濃度)は1.6 mg N · ℓ⁻¹であった。

3地点の脱窒速度が Michaelis-Menten の式にあてはまり、3地点ともどの時期においても、Km=1.6 mg N · ℓ⁻¹であると仮定して、間隙水中の硝酸塩濃度から脱窒速度を推定した。その結果を表7にまとめた。また、その結果をポテンシャル活性の図(図6)にプロットした。St.1とSt.3では、ポテンシャル活性の傾向と同様に、脱窒速度は表層で

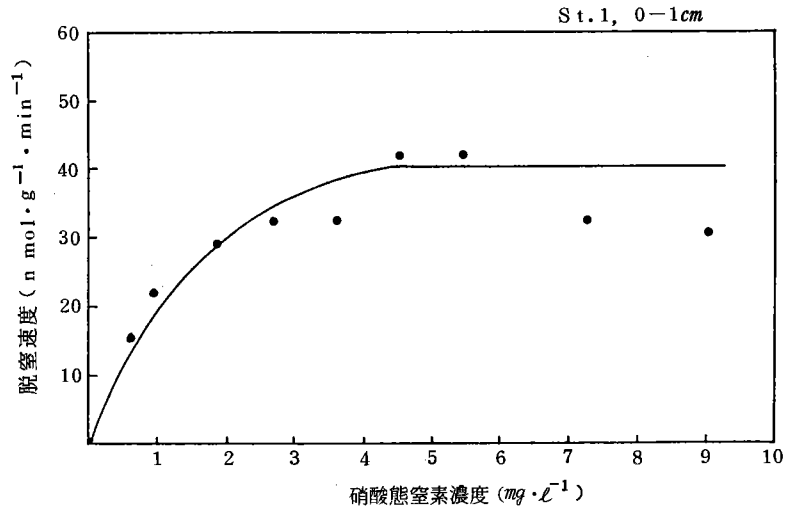


図15 脱窒速度と硝酸濃度の関係

3地点の脱窒速度が Michaelis-Menten の

式にあてはまり、3地点ともどの時期においても、Km=1.6 mg N · ℓ⁻¹であると仮定して、間隙水中の硝酸塩濃度から脱窒速度を推定した。その結果を表7にまとめた。また、その結果をポテンシャル活性の図(図6)にプロットした。St.1とSt.3では、ポテンシャル活性の傾向と同様に、脱窒速度は表層で

表7 脱窒現場活性

St.1			St.2			St.3		
調査日	深度 (cm)	活性 (μmol · g ⁻¹ · hr ⁻¹)	調査日	深度 (cm)	活性 (μmol · g ⁻¹ · hr ⁻¹)	調査日	深度 (cm)	活性 (μmol · g ⁻¹ · hr ⁻¹)
		0~6 cm 面積当りの活性 (μmol · cm ⁻² · 日 ⁻¹)			0~6 cm 面積当りの活性 (μmol · cm ⁻² · 日 ⁻¹)			0~6 cm 面積当りの活性 (μmol · cm ⁻² · 日 ⁻¹)
1985			1985			1985		
9.10	0-2	0.119	8.29	0-2	0.0658	8.15	0-2	0.000594
	2-4	0.0314		2-4	0.0655		2-4	0.000145
	4-6	0.00856		4-6	0.0230		4-6	0.0000959
		2.66			7.35			0.0157
12.24	0-2	0.125	10.28	0-2	0.139	1986	0-2	0.0000405
	2-4	0.0174		2-4	0.150		2-4	0.00000583
	4-6	0.00765		4-6	0.164		4-6	0.00000356
		3.78			20.7			0.00151
			12.24	0-2	0.0219			
				2-4	0.0147			
				4-6	0.00902			
					1.63			

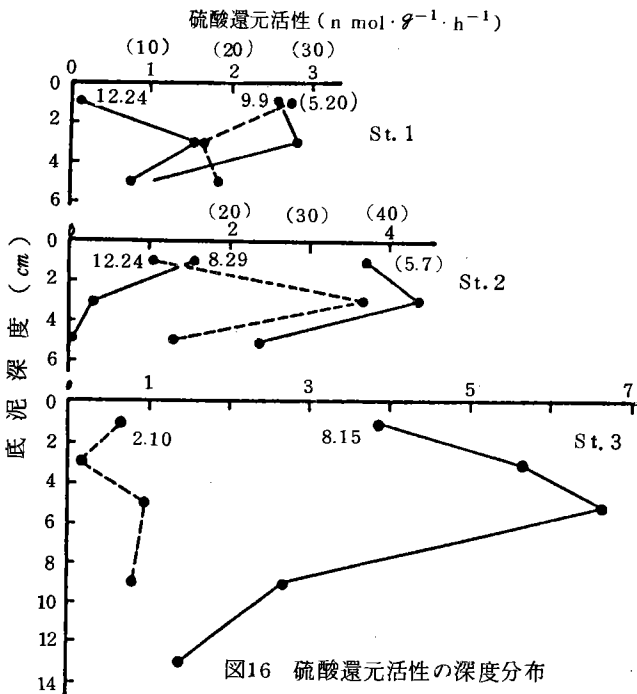
最も大きく、深度が増すにつれて急激に減少したが、St.2ではその減少は比較的小さく、10月では深度が増すとやや増加を示した。St.2とSt.3では、夏期の脱窒速度は冬期の値に比べて著しく高いが、St.1ではほとんど差がなかった。また、St.2の10月の値は3地点のどの時期よりも高かった。これらの値から底泥0~6 cm層の1cm²、1日当りの脱窒量を求めると(表7)、その値はSt.1とSt.2で比較的高く、St.3ではそれより2桁以上小さな値を示した。

4-4 硫酸還元活性

³⁵S-硫酸塩添加により測定した硫酸還元活性の深度分布を表8と図16に示した。St.1では5月で表層

表8 硫酸還元活性

St.1				St.2				St.3			
調査日	深度 (cm)	活性 (n mol · g ⁻¹ · h ⁻¹)	面積当りの活性 (μ mol · m ⁻² · d ⁻¹)	調査日	深度 (cm)	活性 (n mol · g ⁻¹ · h ⁻¹)	面積当りの活性 (μ mol · m ⁻² · d ⁻¹)	調査日	深度 (cm)	活性 (n mol · g ⁻¹ · h ⁻¹)	面積当りの活性 (μ mol · m ⁻² · d ⁻¹)
1985				1985							
5.20	0-2	27.5	14.6	5.7	0-2	36.8	34.3				
	2-4	16.5			2-4	43.3					
	4-6	18.5			4-6	23.9					
9.9	0-2	2.60	1.24	8.29	0-2	1.56	0.916	1985	8.15	0-2	3.90
	2-4	2.84			2-4	0.324			2-4	5.65	8.05
	4-6	1.05			4-6	0.0368			4-6	6.63	
12.24	0-2	0.160	0.933	12.24	0-2	1.07	2.22		8-10	2.61	
	2-4	1.60			2-4	3.66			12-14	1.40	
	4-6	0.765			4-6	1.26		1986	2.10	0-2	0.672
									2-4	0.136	1.82
									4-6	0.972	
									8-10	0.812	



が、9月と12月で2~4 cm層が最も活性が高かった。St.2において最大の活性がみられた深度は、5月と12月では2~4 cm層、8月では表層であった。St.3では8月、2月とも4~6 cm層が最大を示した。これら深度をメタン生成活性が最大を示す深度と比較すると、St.1とSt.2では、St.2の12月を除き、一致したが、St.

3ではメタン生成層よりも上層であった。

上記のデータから面積当りの硫酸還元活性を求めた結果を表8に示す。春ではSt.2とSt.1の活性が高いが、夏には低下し、St.3の活性が3地点で最も高かった。冬ではSt.2が最も高い値を示した。

4-5 細菌数

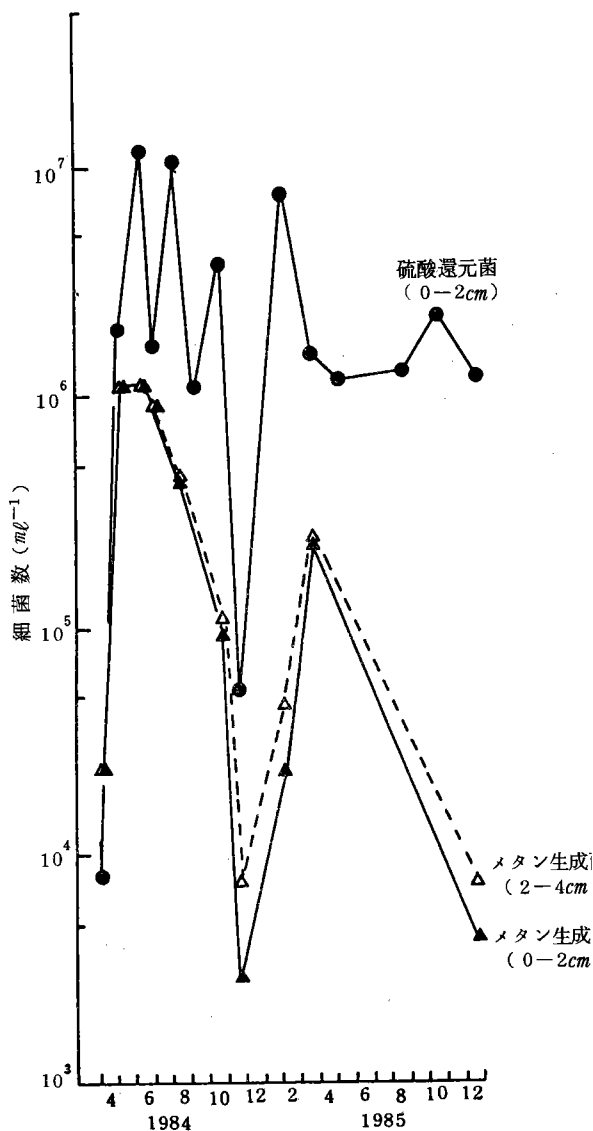
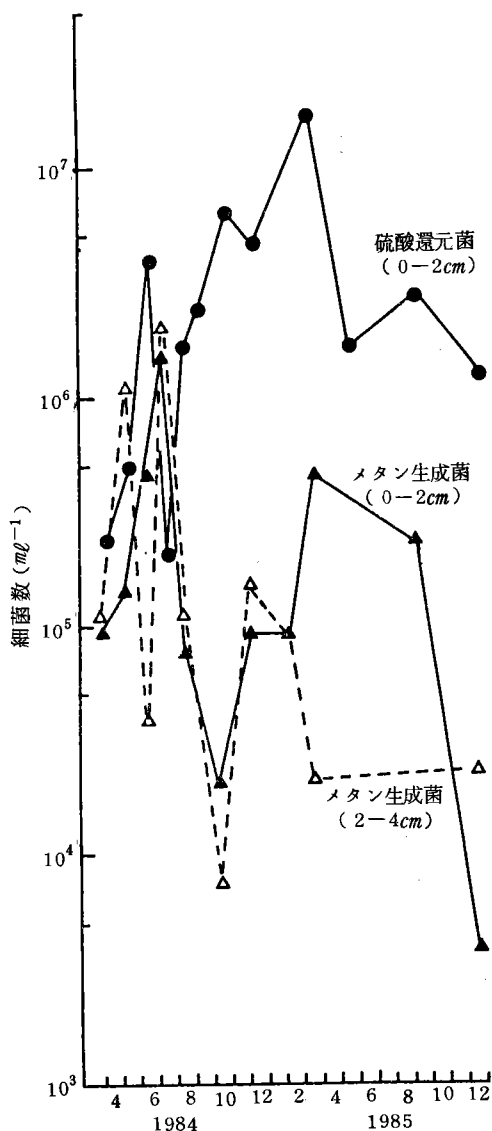


図17 St.1におけるメタン生成菌数と硫酸還元菌数の季節変化 図18 St.2におけるメタン生成菌と硫酸還元菌の季節変化

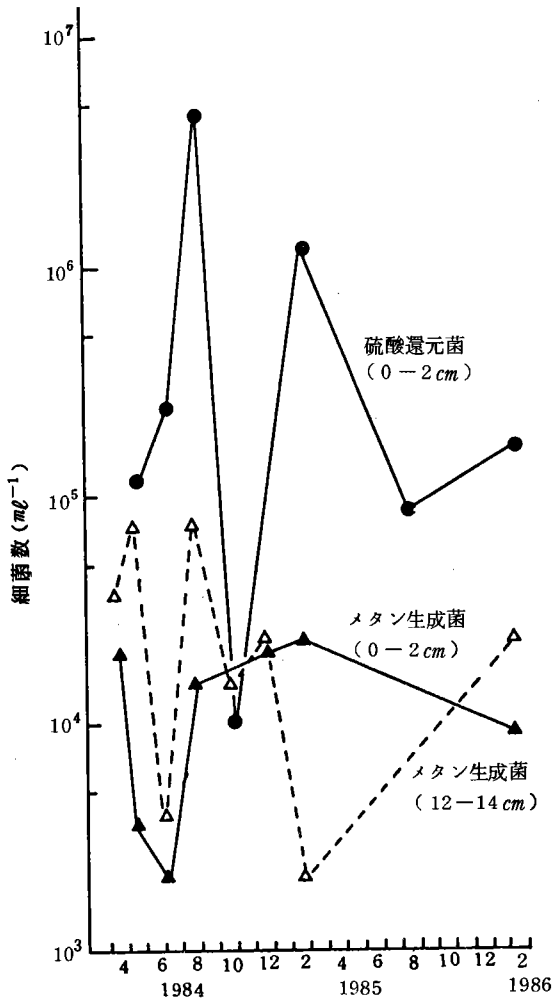


図19 St.3におけるメタン生成菌数および硫酸還元菌数の季節変化

メタン生成菌数についてみると、St.1では0~2 cm層よりも2~4 cm層の方が多い傾向がみられ、この2層では $10^3 \sim 10^6$ 細胞・底泥 ml^{-1} の範囲であった。季節変化は、図17に示すように、0~2 cm層では春から初夏にかけて増加した後、秋、冬に低下したが、2~4 cmでは変動が激しく、明瞭な傾向は認められなかった。St.2も、菌数の範囲はSt.1とほぼ等しいが、0~2 cm層と2~4 cmの菌数の差は非常に少なかった。St.2の季節変化は図8に示すように、St.1と同様の傾向であった。

St.3の菌数は $10^3 \sim 10^4$ 細胞・ ml^{-1} の比較的狭い範囲を変動し、他の2地点に比較して少なかった(図19)。St.3の垂直的な菌数の変化も比較的小さいが、表層よりも下層で増加するケースが多くみられた。

硫酸還元菌数は3地点とも表層(0~2 cm層)で最も多く、深度と共に減少するケースが多かった。表層の菌数は、図17~19に示すように、St.1で $10^5 \sim 10^7$ 細胞・ ml^{-1} ；St.2で $10^4 \sim 10^7$ 細胞・ ml^{-1} 。St.3では $10^3 \sim 10^6$ 細胞・ ml^{-1} であった。硫酸還元菌数も、メタン生成菌数と同様、St.3はSt.1、St.

2に比べて低い値を示した。菌数の季節変化は、メタン生成菌のそれとほぼ一致するが、St.2とSt.3とともに10、11月に著しい低下が認められた。

脱窒菌は、St.1とSt.3で1985年2月にのみ計数した。菌数はメタン生成菌、硫酸還元菌と同様に、St.1がSt.3より高かった。垂直分布は、図20に示すように、両地点とも表層に多く、深度と共に減少した。好気性細菌に対する脱窒菌の割合をみると、St.1では1~2cm層で94%、他の層も13%以上と高かったが、St.3では3~4cm層の12%が最高で、8~10cm層では2.6%、20~23cm層では0.1%に減少した。

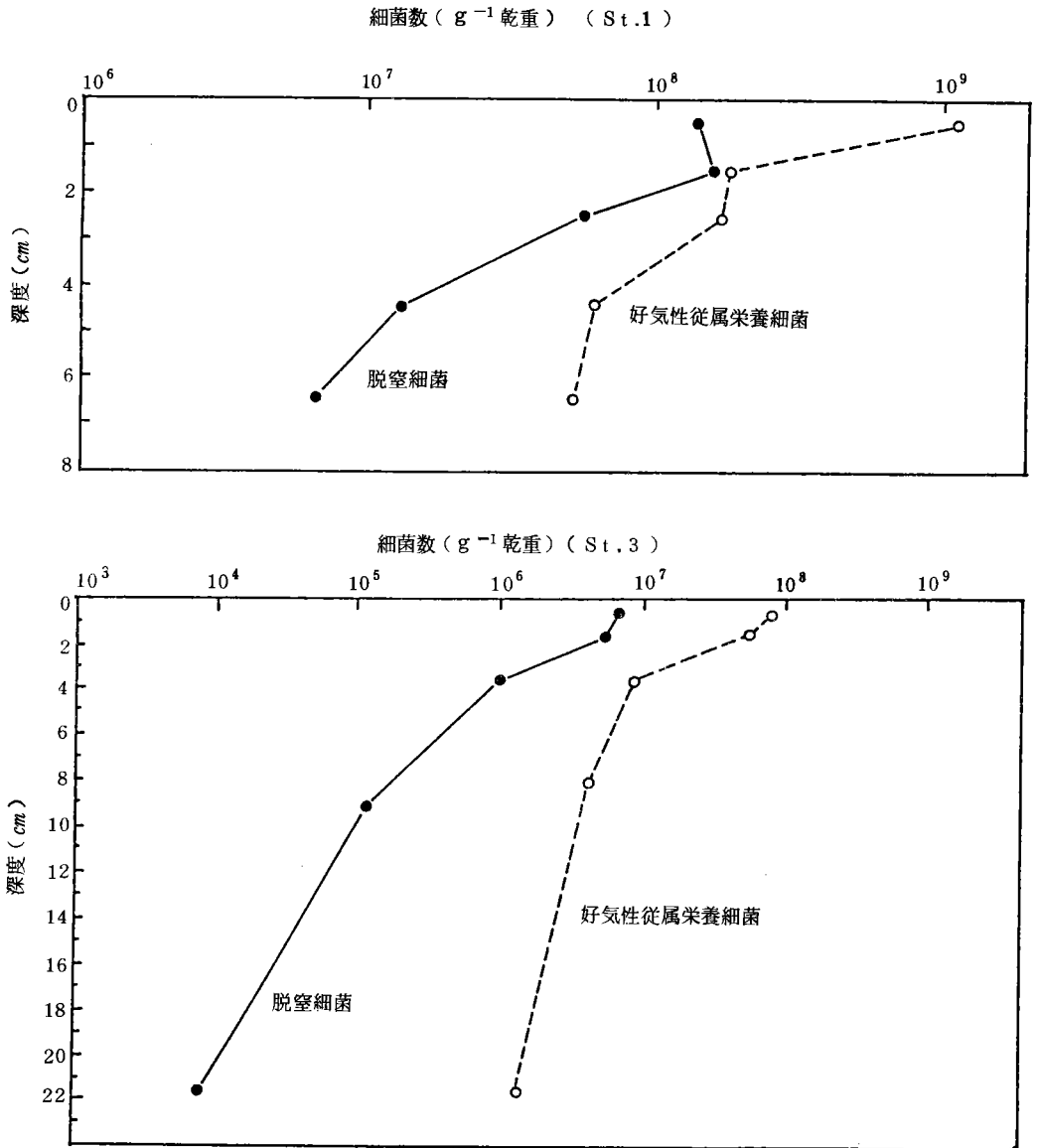


図20 脱窒細菌と好気性従属栄養細菌数の垂直分布 (St.1・St.3)

5. 考 察

5-1 メタン生成活性

多摩川下流域3地点のメタン生成活性を比較すると、淡水域のSt.1が最も高く、下流ほど低いことが明らかとなった。St.1のメタン生成活性は、1984年6月表層0~2cmの最大値で、 $0.32 \mu \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{時間}^{-1}$ に達した。St.1の単位面積あたりのメタン生成量 $162 \sim 3120 \text{ mgメタン} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$ であった。今まで報告されている水圏のメタン生成の文献値の主なものを表9にまとめた。これらと比較すると、St.1の最高値は報告された最高値（Erie湖）の2倍に近い。河床堆積物からのメタン生成に関する報告は極めて限られているが、Zaiss（1981）はSaar川の中流Enseldorfの汚染された停滞部で夏期に $3.5 \mu \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{日}^{-1}$ の値を、左山（1982）は七北田川河口域河川部で夏期に最高 $5.44 \text{ mg-at C} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{時間}^{-1}$ の値を報告している。これらの値はSt.1の最高値の半分および十分の一程度にすぎない。St.2では1984年5月に2~4cm層で $0.82 \mu \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{時間}^{-1}$ の最高値を記録し、このとき0~6cm層では $1630 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$ に達した。St.2の年平均（1984年4月~1985年3月）メタン生成量は $470 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$ と大きな値を示したが、5~6月を除くと、とくに9月以降はSt.1より著しく少なかった。St.3では、メタン生成量は、St.2よりもさらに一段と小さく、0~14cm層の最高値は1986年2月の $57 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$ 、年平均値（1984年4月~1985年2月）は $15 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$ にすぎなかった。

メタン生成活性の各地点における季節的変動および各地点間の差がどのような要因に支配されているのかを推定するために、メタン生成活性と環境要因の関係について解析を行なった。3地点のほぼ最もメタン生成活性の高い深度（St.1, 0~2cm; St.2, 2~4cm; St.3, 12~14cm）について活性と環境要因の相関係数を求めた結果を表10~12に示した。また、3地点の測定した全層について、活性と若干の環境要因との相関を表13にまとめた。

表9 水圏におけるメタン生成の文献値

場 所	メ タ ン 生 成	文 献
淡水湖沼		
Blelham Tarn (英国)	$39 \text{ mgメタン} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$	Jones & Simon (1980)
Erie湖(米国)	1600	"
Lake 227 (カナダ)	16 ~ 160	"
河 川		
Saar川(西ドイツ)	$3.5 \mu \text{ mol} \cdot \text{g}^{-1}$	Zaiss (1981)
七北田川河口域(日本)	$174 \text{ mgメタン} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$	左山(1982)
海 域		
Hamilton港(カナダ)	157	Jones & Simon (1980)
Cape Loohovt Bight (米国)	17 ~ 1000	Crill & Martens (1983)
水 田		
Vercelli (イタリア)	18 ~ 34	Holzapfel-Pschorn <i>et al.</i> (1985)

表10 St.1, 0~2cm層のメタン生成活性と環境因子の相関マトリックス

	水温活性	水温	電導度	Eh	灼熱減量	TOC	硫酸イオン
30℃活性	0.57068*	-0.15927	0.02356	-0.18194	0.60006*	0.66555**	-0.30070
水温活性		0.40164	-0.00344	-0.20658	0.13463	0.06899	0.12120
水温			-0.42489	-0.10459	-0.12218	-0.33630	0.27902
電導度				-0.42380	-0.29659	-0.08785	-0.18941
Eh					0.14038	-0.04743	0.51796*
灼熱減量						0.27117	-0.41546
TOC							-0.12666

n=15, ** 危険率1%で有意, * 危険率5%で有意.

表11 St.2, 2~4cm層のメタン生成活性と環境因子の相関マトリックス

	水温活性	水温	電導度	Eh	灼熱減量	TOC	硫酸イオン
30℃活性	0.99273***	0.07239	-0.15853	0.42067	0.81591***	0.56326*	-0.30308
水温活性		0.06488	-0.13662	-0.37936	0.76974***	0.56194*	0.26970
水温			-0.60584*	-0.36970	-0.14093	-0.14645	-0.59690*
電導度				0.35270	0.03241	-0.41252	0.91619***
Eh					-0.36256	-0.28456	0.29745
灼熱減量						0.50396*	-0.10513
TOC							-0.35163

n=15, *** 危険率0.1%で有意, ** 危険率1%で有意, * 危険率5%で有意.

表12 St.3, 12~14cm層のメタン生成活性と環境因子の相関マトリックス

	水温活性	水温	電導度	Eh	灼熱減量	TOC	硫酸イオン
30℃活性	0.98147***	-0.69982*	-0.51183	0.03730	0.96897***	-0.43160	0.16944
水温活性		-0.59953	-0.53230	-0.01521	0.93313***	-0.40971	0.10629
水温			-0.03815	-0.63982	-0.67269*	0.14781	-0.64933
電導度				0.49330	-0.63030	0.63436	0.49845
Eh					0.01182	0.25386	0.51751
灼熱減量						-0.52924	0.06130
TOC							0.27488

n=9, *** 危険率0.1%で有意, ** 危険率1%で有意, * 危険率5%で有意

表13 多摩川下流域3地点における底泥全層のメタン生成活性と環境要因の相関

調査地点	メタン生成活性	水温	灼熱減量	TOC	硫酸イオン
St.1	30℃培養	-	◎	◎	-
	水温培養	◎	-	-	-
St.2	30℃培養	-	◎	◎	-
	水温培養	-	◎	◎	-
St.3	30℃培養	-◎	-	-	◎
	水温培養	-◎	○	-	○

◎: 危険率0.1%で有意の相関あり.

○: 危険率1%で有意の相関あり.

○: 危険率5%で有意の相関あり.

-: 有意の相関なし.

-: 負の相関.

St.1の0～2 cm層では、30℃培養活性は間隙水中のTOC（危険率1%）および底泥灼熱減量（危険率2%）と有意の相関を示したが、水温培養活性では検討したいずれの因子とも相関がみられなかった。St.1の全層についてみた結果（表13）、30℃活性はやはりTOCおよび灼熱減量と高い相関が認められた（図21、22）。一方、水温培養活性では水温とのみ高い相関がみられた。また、0～2 cm層の水温活性

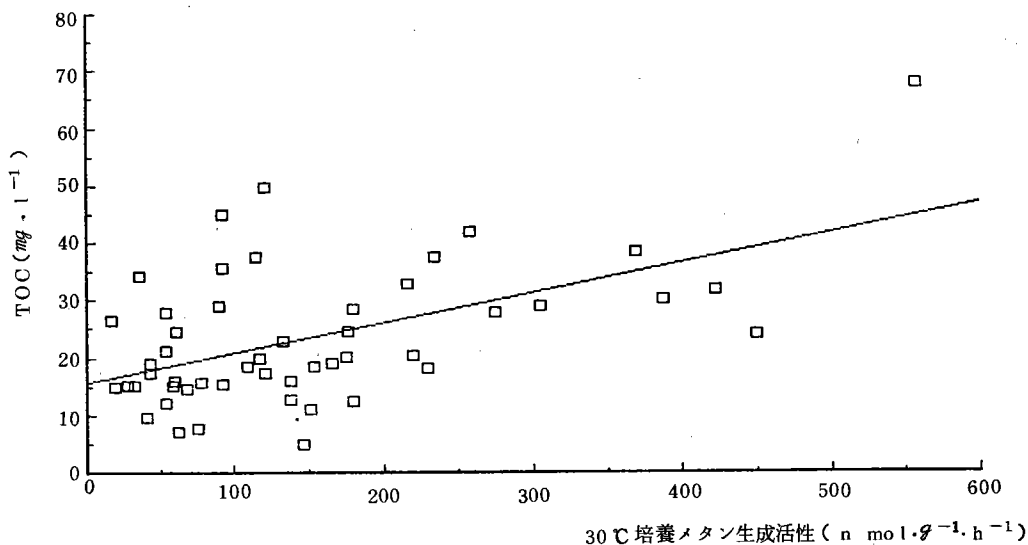


図21 St.1全層のメタン生成活性（30℃）とTOCの関係

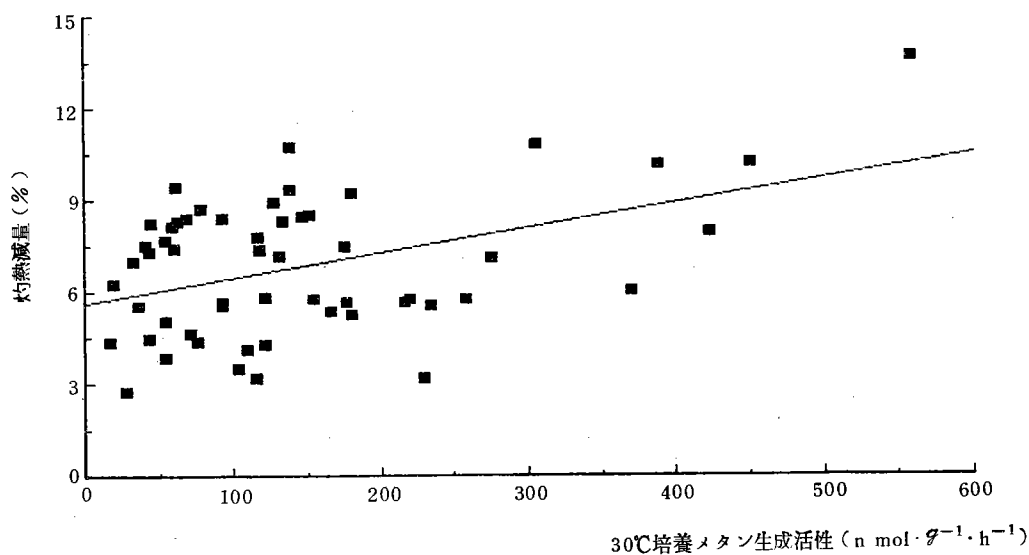


図22 St.1全層のメタン生成活性（30℃）と灼熱減量の関係（ $n=55$ ）

($Y_1 \cdot t$)と環境因子の間の重回帰分析を試み、変数増減法で水温(X_t)のみを変数とする重回帰式 $Y_1 \cdot t = 5.80X_t - 10.70$ を得た。しかし、分散分析の結果、回帰は有意(危険率5%)ではなかった。したがって、St.1では、水温が一定ならば、メタン生成は底泥有機物含量に支配される可能性があるが、調査期間中比較的有機物含量が高かったため、現場活性は有機物量よりも水温の影響の方が大きいと思われるが、さらに調査検討が必要である。

St.2の2~4 cm層では、30℃活性と水温活性は、ともに、灼熱減量と高い相関(危険率0.1%)を示し、間隙水TOCとも有意の相関(危険率5%)がみられたが、他の因子とは相関を示さなかった。St.2全層についてみると(表13)、30℃活性、水温活性とも灼熱減量、TOCとは同様の相関が認められた(図23, 24)。St.2、2~4 cm層の水温活性($Y_2 \cdot t$)と環境因子間について重回帰分析を行った結果、変数増

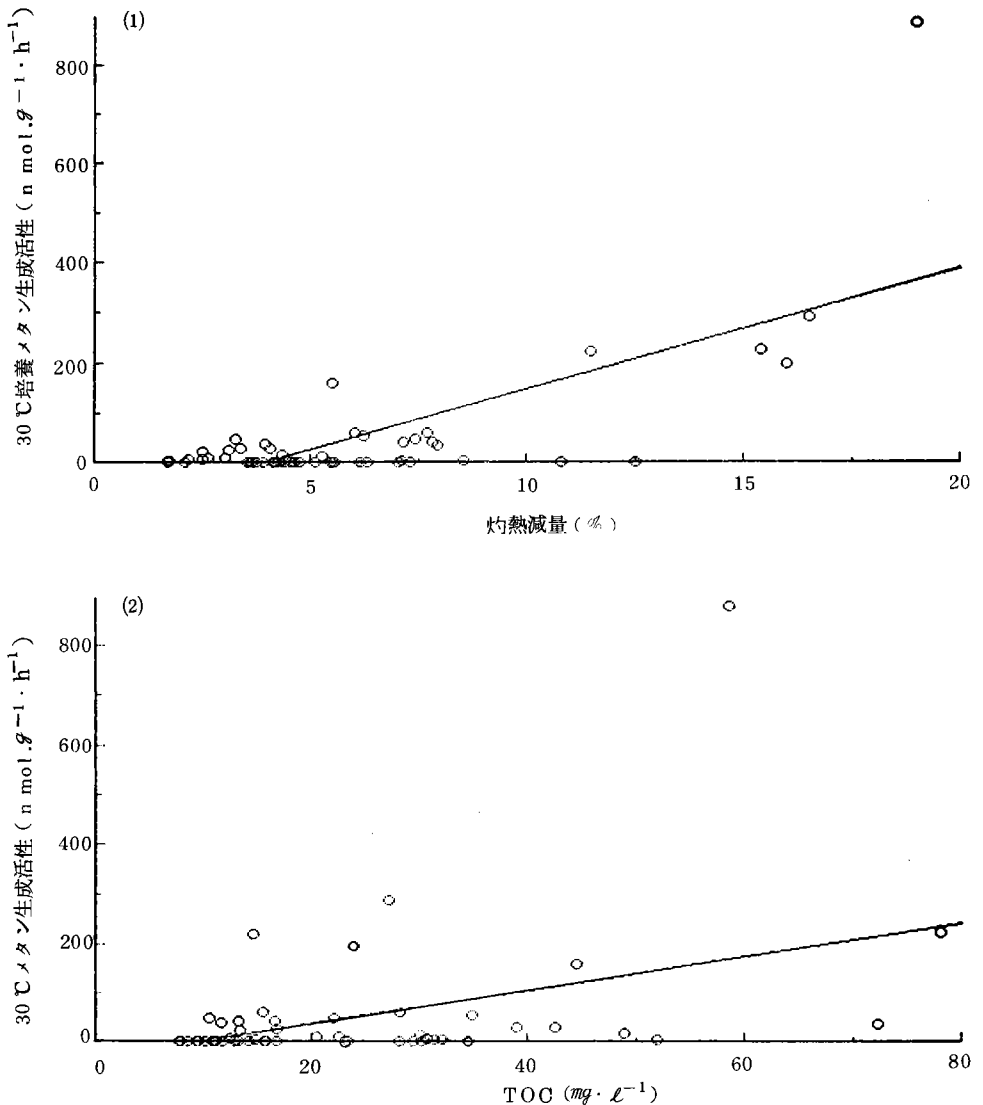


図23 St.2の全層におけるメタン生成活性(30℃培養)と灼熱減量(1)およびTOC(2)との関係

減法で灼熱減量 (X_i) のみを変数とする有意 (危険率 5%) の回帰式 $Y_2 \cdot t = 33.2X_i - 145.7$ が得られた。また、変数減少法により灼熱減量の外、硫酸イオン (X_s)、水温 (X_t) を変数とする有意 (危険率 5%) の回帰式 $Y_2 \cdot t = 33.1X_i - 8.9X_s + 2.5X_t - 175.7$ も第一段階で得られた。変数のおちる順序、偏相関係数から、St.2のメタン生成活性は灼熱減量によって大きく支配されること、それに比べると影響はかなり小さいが、硫酸イオン、さらに水温の順で影響を受けると考えられる。St.2全層におけるメタン生成活性と硫酸イオンとの相関は認められないが、硫酸イオンが $2.5 \text{ m mol} \cdot \ell^{-1}$ 以上では、 30°C 活性は $1 \text{ n mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{時}^{-1}$ 以下の低い値であった。また、間隙水中の硫酸イオンは河川水の電導度と高い相関 (危険率 0.1%) が認められた。これは間隙水が河川水と速みやかに交換することを示唆している。潮汐による短い周期で河川水の硫酸イオンが変動する場合があります (神奈川県水質年報: 昭和60年

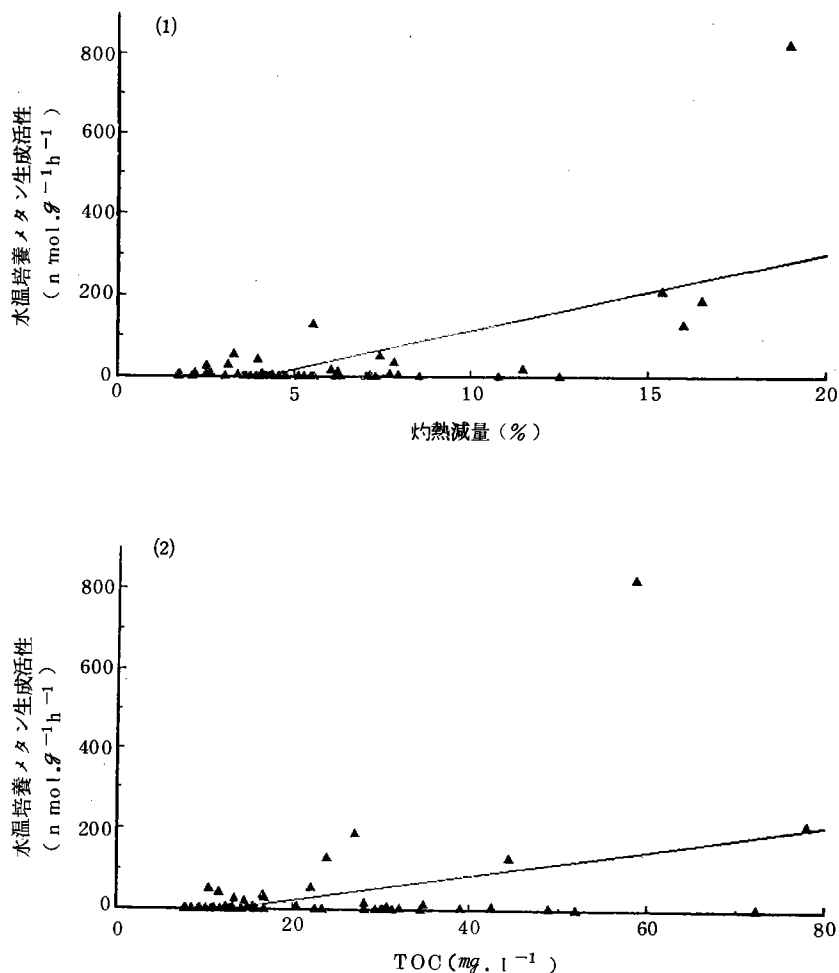


図24 St.2の全層におけるメタン生成活性 (水温培養) と灼熱減量(1)およびTOC(2)との関係

度)メタン生成と硫酸還元の関係に大きな影響を与えるものと考えられる。これについて今後さらに詳細に検討する必要がある。これに関連して、基質、阻害剤添加実験の結果(表4)によれば、間隙水の硫酸イオン濃度が高い試料では、メタン生成が硫酸還元の特異的阻害剤であるモリブデン酸塩の添加によって著しく促進されるが、硫酸塩添加による阻害はみられなかった。逆に、間隙水の硫酸イオン濃度の低い試料では、モリブデン酸塩によるメタン生成の促進はわずかで、硫酸塩の添加により著しく阻害される場合が多かった。このことは、メタン生成菌と硫酸還元菌がともに潜在的活性の高い状態にあり、短時間の硫酸イオン濃度の変動によってメタン生成と硫酸還元の現場活性の優占性が交代すると考えられよう。ただし、低温時には両活性の温度に対する感受性の差が、この関係を修正する場合もあるかもしれない。

St.3の12~14cm層のメタン生成活性は、30℃活性、水温活性とも灼熱減量と高い相関(危険率0.1%)があり、また30℃活性は水温とも有意の相関(危険率2%)を示した。St.3全層についてみると、30℃活性は硫酸イオンと相関(危険率1%)があり、水温活性は硫酸イオンおよび灼熱減量と有意の相関(危険率5%)がみられた。硫酸還元活性の高いとき、硫酸イオンが減少すると考えられるので、そのときのメタン生成活性は、基質に対する競争のため、硫酸還元により抑制されるものと考えられる。そのためメタン生成は硫酸イオンと正の相関がみられるのであろう。また、30℃および水温活性とも水温と負の高い相関を示したが、これは夏に硫酸還元活性が高くなることも一因と考えられる。St.3の12~14cm層における水温活性($Y_3 \cdot t$)と環境要因の重回帰分析を行ったところ、変数増減法では灼熱減量(X_i)のみを変数とする有意(危険率5%)の回帰式 $Y_3 \cdot t = 0.051 X_i - 0.121$ が得られた。変数減少法では、最も変数の多い有意の回帰式では灼熱減量の外、硫酸イオン(X_s)、水温(X_t)が変数として取り込まれた($Y_3 \cdot t = 0.062 X_i + 0.067 X_s + 0.029 X_t - 1.554$)が、変数のおちる順序、偏相関係数から、これらの因子の影響は、灼熱減量に比べると極めて小さいと考えられた。

St.1の0~2cm層、St.2の2~4cm層、St.3の12~14cm層のデータを一緒にして統計処理を行なった。その相関マトリックスを表14に示す。30℃活性はTOCと高い相関(危険率0.1%)を示し、硫酸イオンとも負のかなり高い相関(危険率1%)がみられた。他に電導度、Ehとも有意(危険率5%)の負の相関を示した。水温活性は1%の危険率でTOCと相関を示した外、Eh、硫酸イオンと有意(危険率5%)の負の相関がみられた。重回帰分析を行なった結果、30℃活性($Y_t \cdot 30$)、水温活性($Y_t \cdot t$)とも、変数

表14 St.1(0~2cm層)・St.2(2~4cm層)・St.3(12~14cm層)のメタン生成活性と環境因子の相関マトリックス

	水温活性	水温	電導度	灼熱減量	硫酸イオン		
30℃活性	0.86248***	0.00213	-0.38864*	-0.38859*	0.24446	0.54933***	-0.43907**
水温活性		0.15319	-0.26625	-0.35072*	0.21821	0.39746*	-0.31885
水温			-0.23345	-0.39132*	-0.40071*	-0.15192	-0.31237
電導度				0.52688***	-0.04036	-0.14803	0.92880***
Eh					0.02101	-0.15949	0.51616
灼熱減量						0.05645	0.17833
TOC							-0.16954

n=39, *** 危険率0.1%で有意, ** 危険率1%で有意, * 危険率5%で有意

増 増減法、変数減少法の両方から、硫酸イオン(X_s)、灼熱減量(X_i)を変数とする有意(危険率5%)の回帰式 $Y_i \cdot 30 = -17.70 X_s + 8.16 X_i + 121.63$, $Y_i \cdot t = -10.27 X_s + 5.44 X_i + 63.06$ が得られた。3地点全体でみると、偏相関係数などからメタン生成活性に最も影響を与える要因は硫酸イオン濃度と、次いで、底泥の有機物含量の2つといえよう。

底泥で生成されたメタンは全て空中へ放出されるわけではなく、一部は好気的な底泥表面、あるいは水中でメタン酸化細菌により消費される。水田では、生成されたメタンの最高80%までが、おもにイネの根圏において消費されるとの報告もある(Holzappel-Pschorn, *et al.*, 1985)。多摩川底泥の場合は、水生植物がないので、メタンの酸化はそれほど大きくはないと考えられる。

5-2 脱窒活性

多摩川の脱窒活性については、中流域の石面付着物膜についてNakajima(1979)が、河口堆積物についてはNishioら(1983)のともに ^{15}N トレーサー法による報告がある。前者によると脱窒速度は30°Cで $70 \sim 230 \text{ mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$ であり、後者では $13.3 \sim 55.5 \text{ ng N} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{時}^{-1}$ ($3.2 \sim 13.3 \text{ mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$)であった。また、左山(1982)は七北田川河口域の脱窒をアセチレン阻害法で測定し、 $6 \sim 90 \text{ mg at N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{時}^{-1}$ の値を報告している。これらの値と本報告の値を比較すると、St.1とSt.2の脱窒速度は多摩川中流域および河口域より大きい、七北田川河口域よりは小さかった。St.3の値は夏季でもNishio(1983)の値より若干低いが、このときのポテンシャル活性(硝酸塩添加活性)はSt.1, St.2と比べても大差が認められず、硝酸イオンの供給が少ないのが現場活性が低い原因であろう。

脱窒反応の硝酸イオン濃度に対するKm値は、St.1で $1.6 \text{ mg N} \cdot \ell^{-1}$ であった。今まで報告されているKm値は、土壌で $1.8 \sim 170 \text{ mg} \cdot \text{N} \cdot \ell^{-1}$ (Yoshinari *et al.*, 1977)、湖水で $0.1 \text{ mg N} \cdot \ell^{-1}$ (Koike *et al.*, 1972)、湖底泥で $0.5 \text{ mg N} \cdot \ell^{-1}$ (中島, 相崎, 1981)、海底泥で $0.7 \text{ mg N} \cdot \ell^{-1}$ (Oremland *et al.*, 1984)および $4.8 \text{ mg N} \cdot \ell^{-1}$ (Oren & Blackburn, 1979)と広い範囲にわたっている。

間隙水中の硝酸イオン濃度は3地点の全層ともKm値より低く、脱窒に対する制限要因として硝酸塩イオン濃度が考えられる。ポテンシャル活性は、St.2の10月とSt.3の2月を除くと、 $10 \sim 19 \text{ n mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$ の比較的狭い範囲にある。しかし、Km値は有機物濃度(Yoshinari & Knowles, 1977)や脱窒細菌の種類によっても異なるので、他の時期や地点に同一のKm値を用いたことは問題であろう。現場の脱窒速度を求めるためには、より現場に近い条件で測定する方法を用いる必要であろう。

5-3 硫酸還元活性

河川の硫酸還元活性を測定した例は極めて少ない。Zaiss(1981)はSaar川中流Ensdorfの底泥について ^{35}S を用いて硫酸還元速度を測定し、最大 $3.6 \text{ mmol S}^{-2} \cdot \text{Kg}^{-1} \cdot \text{日}^{-1}$ 、多くは $0.5 \text{ mmol S}^{-2} \cdot \text{Kg}^{-1} \cdot \text{日}^{-1}$ 以下の値を報告し、活性は硫酸イオンの供給量によって制限されると考察した。左山(1982)は七北田川河口域底泥の硫酸還元速度を同様の方法で測定し、 $1.6 \sim 3.8 \text{ mg at S} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{時}^{-1}$ と報告した。多摩川の測定値はSaar河より低いが、七北田川より高い値が多く、Nedwell & Abram(1978)がイギリスの塩沢地で報告している範囲($0.0017 \sim 0.315 \text{ mmol} \cdot \ell^{-1} \cdot \text{日}^{-1}$)に入る。

3地点を比較すると、夏期は硫酸イオンの豊富なSt.3で最も硫酸還元速度が大きいが、冬期ではSt.2が最も高かった(表8)。冬期のSt.3の低い活性は、他の地点よりも調査時の水温が低かったことも原因であろう。St.2の活性が低いときは、硫酸イオン濃度が低く、St.2では硫酸還元活性は硫酸イオンの供給量によって支配されているようである。このことは、St.2におけるメタン生成と硫酸還元の関係について前述した点と一致する。ただし、測定数が少ないので今後さらに詳細に調査する必要がある。

5-4 嫌氣的分解過程の相対的重要性

多摩川下流域3地点の1985年夏と冬(St.3は1986年2月)のメタン生成、硫酸還元、脱窒の相対的重要性を評価するため、左山(1982)の引用したAller(1980)の換算計数により、3過程の合計を100%として、各過程の占める割合(寄与率)を計算した。その結果を表15に示す。

淡水域のSt.1ではメタン生成の寄与が大きく、夏に80%、冬でも50%近くを占めた。脱窒の寄与も、冬には50%近くと大きいが、硫酸還元の寄与は2%以下にすぎなかった。St.2では硫酸イオン濃度の低かった夏の測定時にはメタン生成が30%を占め、硫酸還元は1%にすぎなかったが、硫酸イオン濃度の高かった冬では硫酸還元が20%弱を占めたのに対し、メタン生成は2%にすぎなかった。脱窒は70~80%とSt.2で最も大きな寄与を示した。St.3では夏に硫酸還元が94%と圧倒的に優勢であったが、冬には約50%に低下し、メタン生成が50%近くを占めた。脱窒の寄与は夏、冬とも1%以下であった。

左山(1982)は七北田川河口域の河川部と干潟部で、嫌氣的CO₂生成過程に対する発酵を含めた4過程の寄与率を計算している。その結果によれば、発酵が河川部で97%、干潟部で76%と圧倒的であるが、他の3過程のうちでは、脱窒が極めて高い寄与率(80%以上)を示した。また、Sørensenら(1979)はデンマークの沿岸海底泥で酸素呼吸、脱窒、硫酸還元の活性を比較し、夏、冬とも酸素呼吸が大部分を占めるが、嫌気呼吸では硫酸還元が、とくに夏に、寄与が大きいと報告している。淡水域では、Jones & Simon(1981)がイギリスの富栄養湖Blelham Tarnで研究を行い、深底部と沿岸部の底泥において、

表15 メタン生成、硫酸還元、脱窒の相対的比率*

	St.1		St.2		St.3	
	(調査日)		(調査日)		(調査日)	
	生成速度 ($\text{m mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$)(%)	比率	生成速度 ($\text{m mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$)(%)	比率	生成速度 ($\text{m mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{日}^{-1}$)(%)	比率
	(1985. 9. 9)		(1985. 8. 29)		(1985. 8. 15)	
メタン生成	133	79.0	40.2	30.0	0.802	4.7
硫酸還元	1.24	1.5	0.916	1.4	8.05	94.2
脱窒	26.6	19.7	73.5	68.6	0.157	1.1
	(1985. 12. 24)					
メタン生成	46.3	48.5		2.1	3.58	49.5
硫酸還元	0.933	2.0	2.22	17.5	1.82	50.3
脱窒	37.8	49.5		80.4	0.0151	0.3

* メタン生成速度×1、硫酸還元速度×2、脱窒速度×1.25として3者の合計を100%として比率を求めた。

共に酸素呼吸が最も重要であるが、嫌気呼吸では深底部でメタン生成が、沿岸部で脱窒が重要であると述べている。このように、場所によって嫌気分解の各過程の寄与率が異なるのは、硝酸イオン、硫酸イオンなどの電子受容体の供給量や、有機物負荷、温度などの差によるものと考えられる (Jones & Simon, 1981; Sørensen, 1984)。これは多摩川の3地点間の大きな差の原因でもあろう。環境の変動の大きい感潮域では、同一地点でも嫌気代謝過程の寄与率は大きく変動する。とくに、St.2で予想されるように、潮汐による短時間の周期をもつ硫酸イオン濃度の変動が、嫌気分解各過程の寄与率を短時間で著しく変動させると考えられる。

各嫌気分解過程の“現場”活性を測定するためには、より現場に近い条件で測定する必要があり、測定法の検討を要する。また、ここで得られた結果は底泥のごく小部分について測定した結果であり、底質の不均一な河川では、河床全体の物質代謝を評価するにはデータが極めて不十分と思われる。しかし、今まで研究が著しく少ない河床底泥の嫌気分解について、本研究の結果はその重要性を示しえたといえよう。

5-5 細菌数

自然水域におけるメタン生成菌数の測定例はわが国にはほとんど見当たらないが、外国では湖沼、河川、海域での調査結果が報告されている。湖底泥では、オランダのVechten湖で $10^2 \sim 10^6$ 細胞・ ml^{-1} (Cappenberg, 1974)、ソ連のChernyi湖、Kuznechikha湖で $2.5 \times 10^2 \sim 6 \times 10^3$ 細胞・ ml^{-1} (Belayaov & Ivanov, 1975) などの値がある。河川では、Zaiss (1981) がSaal川中流底泥で $10^4 \sim 10^5$ 細胞・ g^{-1} の値を報告している。多摩川のSt.1とSt.2におけるメタン生成菌数はVechten湖、Saal川と同程度かやや高いと云える。海域では塩沼の水草帯で $10^2 \sim 10^7$ 細胞・ g^{-1} の高い値が報告されており (Jones, 1975)、St.3の $10^3 \sim 10^4$ 細胞・ g^{-1} よりも高い。

メタン生成菌数と環境因子の相関関係をSt.1の0~2cm, St.2の2~4cm, St.3の12~14cmでみると (表16)、St.1ではいずれの環境因子とも相関を示さないが、St.2ではメタン生成活性 (30℃培養と水温培養とも) および灼熱減量と有意 (危険率5%) の相関を示した。St.3では、この3因子とさらに高い相関がみられた。

硫酸還元菌数はSt.1で $10^4 \sim 10^7$ 細胞・ ml^{-1} 、St.2で $10^3 \sim 10^7$ 細胞・ ml^{-1} 、St.3で $10^2 \sim 10^6$ 細胞・ ml^{-1} であった。淡水域のSt.1が硫酸イオンの豊富なSt.3よりも菌数が多いのは、有機物量の差によると考えられる。多摩川下流域底泥の硫酸還元菌数は、Tezuka (1979) によれば、St.2付近およびSt.3

表16 メタン生成菌数とメタン生成活性、環境因子との相関

場所	深 度	サン プ ル 数	メタン生成活性		水 温	Eh	灼熱減量	TOC	硫酸イオン
			30℃培養	水温培養					
St.1	0-2	11	—	—	—	—	—	—	—
St.2	2-4	9	○	○	—	—	○	—	—
St.3	12-14	7	◎	◎	—	—	◎	—	—

◎：危険率1%で有意，○：危険率5%で有意，—：相関なし

付近とも $> 10^5$ 細胞 $\cdot ml^{-1}$ であり、今回の値と同程度と思われる。これらの値は Zaiss (1981) による Saal 川中流底泥の値 ($10^5 \sim 10^6$ 細胞 $\cdot g^{-1}$) に相当する。

表層 0 ~ 2 cm 層の硫酸還元菌数と環境要因との関係を見ると、St. 1 では灼熱減量と高い相関 (危険率 0.5%) があり、硫酸イオンと負の相関 (危険率 5%) がみられた。しかし、他の 2 地点ではどの因子とも有意の相関を示さなかった。St. 2 では 2 ~ 4 cm 層でも硫酸還元菌数と環境因子の相関は認められないが、St. 3 の 12 ~ 14 cm 層では水温および灼熱減量と有意 (危険率 5%) の相関があった。

脱窒細菌数は多摩川 St. 1 の上流の石面付着層で $10^6 \sim 10^8$ 細胞 $\cdot cm^{-2}$ の値が報告されている (Nakajima, 1979)。この値は St. 1, St. 3 の表層 0 ~ 1 cm 層の値に相当する。St. 1 の脱窒細菌数は従属栄養細菌の大きな割合を占めていたのが特徴的である。

6. おわりに

多摩川下流域の底泥ではメタン生成、硫酸還元、脱窒など有機物の嫌氣的分解が活発に起こっていることが明らかとなり、これらの過程が河床に堆積した有機物の無機化に大きく寄与していると考えられる。しかし、嫌氣的分解過程では硫化水素などの有害、悪臭物質が発生し、環境上問題がある。これらの物質の生成を防ぐためには河床に有機物が過剰に堆積しないようにする必要がある。堆積しやすい懸濁態有機物は河川に直接放流されるもの他、溶存有機物が河川中で無機化される際に生成される微生物 (ミズワタなど) や、豊富な栄養塩類によって増殖が促進される付着藻類が大きな割合を占めると考えられる。したがって、有害、悪臭物質の発生を防止するためには、河川への有機物負荷を削減するのはもちろんであるが、リンや窒素など栄養塩類の負荷も減少させる必要がある。

おわりに、現場調査、サンプリングおよび化学分析には当研究室の大学院生福井学、学部学生高橋直樹、国府方絵里子の諸君の協力を得た。とくに、硫酸還元活性の測定法の検討は福井君が行なったものであり、脱窒の一部のデータは高橋君の卒業研究の一部である。重回帰分析は当研究室研究生草野晴美博士に尽力して頂いた。以上の諸君に感謝する。

7. 要 約

多摩川下流域の淡水域から感潮域の 3 地点の底泥において嫌氣的分解活性を調査した結果、次のことが明らかとなった。

1. 淡水域の調布取水堰上 (St. 1) の底泥では、メタン生成活性が大きく、河床面積当りの値は報告されている湖沼、河川の値よりも大きかった。
2. 潮汐によって河川水の海水混合率が大きく変動するガス橋 (St. 2) の底泥では、メタン生成は底泥間隙水中の硫酸イオンが少ない (約 $2.5 \text{ mol} \cdot l^{-1}$ 以下) ときに高いが、硫酸イオンが多いと硫酸還元による阻害のため著しく減少した。
3. 常に海水の混合率の高い大師橋 (St. 3) の底泥では、メタン生成は底泥下層で比較的小さな活性し

か示さなかった。

4. メタン生成活性を支配する環境因子は、地点によっても異なるが、底泥の有機物含量(灼熱減量)、間隙水中の硫酸イオン濃度、水温が重要であると考えられた。
5. 夏期の硫酸還元活性は硫酸イオンの豊富なSt.3で大きかったが、淡水域のSt.1でもかなり大きな活性が認められた。
6. St.1とSt.2の底泥における脱窒活性は今まで報告された多摩川中流の石面付着層や河口底泥より大きかったが、St.3では比較的小さかった。
7. メタン生成、硫酸還元、脱窒の3つの嫌氣的代謝の相対的重要性は地点や季節により異なるが、夏季ではSt.1でメタン生成が、St.3では硫酸還元が大きな比重を占めたが、中間地点のSt.2では脱窒の割合が最も大きかった。
8. 細菌数はメタン生成菌、硫酸還元菌、脱窒菌とも、底泥の有機物含量の多いSt.1で最も大きく、St.3で最も小さな値を示した。

8. 参考文献

- Aller, R. C. 1980. *Adv. Geophys.* 22 : 237 - 350.
- 朝日新聞 . 昭和59年6月8日夕刊。
- 朝日新聞 . 昭和59年6月28日。
- Belayaev, S.S. & M.V. Ivanov 1975. *Microbiology* 44 : 140 - 142.
- Cappenberg, Th.E. 1974. *Antonie van Leeuwenhoek J. Microbiol. Serol.* 40, 285 - 295.
- Crill, P.M. & C.S. Martens 1983. *Limnol. Oceanogr.* 28 : 1117 - 130.
- 土壤養分測定法委員会 1970 . 土壤養分分析法. p.74 - 76. 養賢堂.
- 半谷高久 1960 . 水質調査法 . p.238 - 239. 丸善.
- Holdeman, L.V. & W.E.C. Moore (ed) 1975. *Anaerobe Laboratory Manual*, 3rd.ed.p.124.
Virginia Polytechnic Institute and State University.
- Holzappel -Pschorn, A. et al. 1985. *FEMS Microbiol, Ecol.* 31 : 345 - 35.
- Isa, Z. et al. 1986. *Appl. Environ. Microbiol.* 51 : 580 - 587.
- Jones, W. J. 1975. *Ecology of methanogenesis in salt marsh and estuarine sediments.*
Ms thesis, Clemson Univ. Clemson, S. C. 78 pp.
- Jones, J.G. & B.M. Simon 1980. *J. Ecol.* 68 : 493 - 512.
- Jones, J.G. & B.M. Simon 1981. *J. gen. Microbiol.* 123 : 297 - 312.
- Jørgensen, B.B. 1978. *Geomicrobiol. J.* 1 : 11 - 26.
- Koike, I. et al. 1972. *Arch. Hydrobiol.* 69 : 508 - 520.

- Kristjansson *et al.* 1982. *Arch. Microbiol.* 131 : 278 — 282.
- Laanbroek, H.J. & H. Veldkamp, 1982, *Phil. Trans. R. Soc. London, B.* 297 : 533 — 550.
- Nakajima, T. 1979. *Hydrobiologia.* 66 : 57 — 64.
- Nakajima, T. 1982. *Jpn. J. Limnol.* 43 : 17 — 26.
- 中島拓男, 相崎守弘 1981, 国立公害研究所研究報告第22号 : 89 — 97。
- Nedwell, D.B. 1984. *Adv. Microb. Ecol.* 7 : 93 — 131.
- Nedwell, D.B. & J.W. Abram 1978. *Microb. Ecol.* 5 : 67 — 72.
- Nishio, T. *et al.* 1983. *Appl. Environ. Microbiol.* 45 : 444 — 450.
- 日本下水道協会 1974. 下水試験方法. p.92-100. 日本下水道協会.
- Norqvist, A. & R. Roffey 1983. *J. gen. Appl. Microbiol.* 29 : 335 — 344.
- Oren, A. & T. Blackburn 1979. *Appl. Environ. Microbiol.* 37 : 174 — 176.
- Oremland, R.S. *et al.* 1984. *Appl. Environ. Microbiol.* 47 : 1106 — 1112.
- 西條八束 1957. 湖沼調査法, p.116 — 118. 古今書院.
- 左山幹夫 1982. 東北大学学位論文, pp.131。
- Schonheit, P. *et al.* 1982. *Arch. Microbiol.* 132 : 285 — 288.
- Sørensen, J. 1984. *Current perspectives Microbial Ecology* (King, M.J. & C.A. Reddy, eds) p.447 — 453. Am. Soc. Microbiol.
- Sørensen, J. *et al.* 1979. *Microb. Ecol.* 5 : 105 — 115.
- 手塚泰彦 1974. 河川の汚染, p.87 — 90. 築地書館.
- Tezuka, Y. 1979. *Jpn. J. Ecol.* 29 : 95 — 102.
- Ward, P.M. & M.R. Winfrey. 1985. *Adv. Aquat. Microbiol.* 3 : 141 — 179.
- 読売新聞多摩版. 昭和59年8月21日.
- Yoshinari, T. & R. Knowles, 1976. *Biochem. Biophys. Res. Commun.* 69 : 705 — 710.
- Yoshinari, T. *et al.* 1977. *Soil Biol. Biochem.* 9 : 177 — 183.
- Zaiss, U. 1981. *Zbl. Bakt. Hyg. I. Abt. Orig. C2*, 76 — 89.