

多摩川下流域・河口域における石油化学物質  
の微生物分解による浄化能力に関する研究

1989年

村上昭彦

東京農工大学工学部教授

# 目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 実験方法 .....	1
2・1 分解浄化能力の評価に関する実験方法 .....	1
2・1・1 サンプリングの地点およびその方法 .....	1
2・1・2 水質および底質の分析方法 .....	2
2・1・3 試供石油化学物質 .....	3
2・1・4 分解能力評価実験の方法 .....	3
2・2 分解過程の検討に関する実験方法 .....	4
2・2・1 炭化水素の微細化実験 .....	4
2・2・2 馴化河川微生物による分解実験 .....	4
2・2・3 脂肪酸の測定 .....	4
2・2・4 表面張力の測定 .....	4
3. 実験結果および考察 .....	4
3・1 多摩川表層河川水の水質 .....	4
3・2 河川微生物による分解浄化能力の定量的評価 .....	5
3・2・1 表層河川水の分解浄化能力 .....	5
3・2・2 底質の分解浄化能力 .....	7
3・2・3 芳香族炭化水素の分解スクリーニング .....	7
3・3 河川微生物による炭化水素の分解過程 .....	8
3・3・1 未馴化河川微生物による分解過程の検討 .....	9
3・3・2 馴化河川微生物による分解過程の検討 .....	9
3・3・3 Biosurfactant と分解の関係 .....	10
4. 結 論 .....	10
引用文献 .....	11

# 1. 緒 言

近年、医療、農業、化学肥料から食品添加物に至るまで、あらゆる分野で化学物質は人間生活の中へ浸透してきている。現在、膨大な種類の化学物質が研究・開発され、人間生活に大きく貢献している。今日までに、約7万種以上の化学物質が実際に利用されており、年々、1000種以上が新たに参入しているという。この傾向は、わが国をはじめとするOECD諸国等先進工業社会において特に著しい。化学物質はこれらの諸国において工業生産され、貿易によって全世界に流通している。

しかしその反面、化学物質は生産・使用・廃棄の過程を通じて様々な形で環境中に放出されているため、生物や生態系、中でも人間生活になんらかの影響を与える危険性をはらんでいる。1950年、石鹼に代わり洗浄力抜群の合成洗剤が出現した。しかし合成洗剤の主成分は生分解されにくく、環境汚染の可能性が指摘され当時の社会問題にまでなった<sup>1)</sup>。その他の汚染例として、石油化学工業がめざましく発展するに伴い問題となってきた石油化学物質による汚染<sup>2)</sup>、最近では、LSIなどの先端技術工業で用いられるトリクレンやパークレンによる汚染<sup>3)</sup>があげられる。このような化学物質による水環境域の汚染が環境保全という観点から最も重大な問題の一つと認識されるようになり、近年環境中における化学物質の動態、生態系への影響などに大きな関心をもたれるようになってきた。

水環境域に流出した化学物質は、揮散、光分解、溶解、沈澱等の物理学的、化学的要因によって変化を受けるほか、水中に存在する生物、特に微生物により分解されることが知られている。物理学的、化学的過程は比較的速く終わるため、自然界中での化学物質の動態をみるには生物学過程を検討することが重要となる。すなわち微生物により分解されないものは底質中へ濃縮されたり、底生生物に濃縮されたりする。一方、分解されうる化学物質は必ずしも炭酸ガスと水まで分解されるとは限らず、一部は中間生成物として再び環境中に放出されることもあり、微生物による分解過程は化学物質の行方を判断するうえで非常に重要である。

本研究では、近年、その流域が開発されるにしたがって、水質汚濁が進み、特にその下流域・河口域には、多種多様な産業が立地し、その排水に様々な化学物質が含まれていることが予想される多摩川について、石油化学物質、特に炭化水素に着目し、微生物による分解能力を評価することを目的とする。

また本研究は、石油系炭化水素の中でも、微生物分解性の高い飽和炭化水素およびアルキルベンゼンをはじめとする比較的分子量の芳香族炭化水素、さらに発ガン・ガン促進物質と呼ばれる多環芳香族炭化水素についての微生物による分解浄化能力を検討した<sup>4)</sup>。

この様な多摩川河口域・下流域・中流域・上流域における石油化学物質の微生物による分解能力についての調査、研究は未だ実施されることがない。この分解能力が評価されると、多摩川水系に流入する石油化学物質の動向が明らかになると考えられる。

## 2. 実験方法

### 2.1 分解浄化能力の評価に関する実験方法

#### 2.1.1 サンプルの地点およびその方法

##### (a) 表層河川水のサンプリング

サンプリング地点はFig.1に示したように多摩川河口より6kmの範囲内で、感潮域である、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5カ所を採水地点として選んだ。さらに対照として, 中流域の関戸橋 (No.6), 多摩川上流の奥多摩湖小河内貯水池直下の中山橋 (No.7) の2カ所を選び, 計7地点の表層水を採取した。サンプリングはすべて川崎側の岸より行ない, 滅菌済みのポリボトルを河川水にて十分に共洗いをしたのち表層水を採取し持ち帰った。

(b) 底質のサンプリング

サンプリング地点は表層河川水の場合と同様に, 河口 (No.1), 大師橋 (No.2), 多摩川大橋 (No.5) の3カ所と, 中流域の関戸橋 (No.6), 多摩川上流の奥多摩湖小河内貯水池直下の中山橋 (No.7) の2カ所を選び, 計5カ所の底質を採取した。サンプリングに用いた採泥機は, 内径4cm, 高さが30cmの亚克力製のパイプにおもりと引き上げ用のロープの付いたアダプターを取り付けた柱状採泥機である。その採泥機の概要はFig.2に示す。

この重量約10kgの採泥機をサンプリング地点の水底から2~3m上方より落下させ先端の亚克力パイプ中の底質を採泥機とともに静かに引き上げ, カラム状に採取されている底質のうち表層(5cm程度)の画分を持ち帰り実験に供した。

2.1.2 水質および底質の分析方法

表層河川水の炭化水素の微生物分解は, 窒素やリンなどの無機栄養塩の濃度に大きく影響されるため, 水質の分析を行なった。分析項目は, リン酸性リン, アンモニア性窒素, 硝酸性窒素, 亜硝酸性窒素, 全有機炭素と塩化物イオン<sup>5)</sup>である。底質については乾燥重量および強熱減量を測定した。以下その分析方法を記す。

(a) リン酸態リン: モリブデン酸青(アスコルビン酸)吸光法

モリブデン酸アンモニウム溶液およびアスコルビン酸溶液で発色後, 710nmの吸光度を測定し定量した。

(b) アンモニウム態窒素: インドフェノール青法

フェノールニトロプルシッドナトリウム溶液と次亜塩素酸ナトリウム溶液で発色させた後, 520nmでの吸光度を測定した。

(c) 亜硝酸態窒素: N-(1-ナフチル)エチレンジアミン吸光法

スルファニルアミド溶液とナフチルエチレンジアミン溶液で発色後, 赤色を540nmにおける吸光度で測定した。

(d) 硝酸態窒素: Cd-Cu硝酸還元カラムで還元後, N-(1-ナフチル)エチレンジアミン吸光法

希釈溶液をまずCd-Cu硝酸還元カラムに通し硝酸態を亜硝酸態に還元する。還元後のサンプルを亜硝酸態と同様に, 発色させ吸光度を測定した。

(e) 塩化物イオン: チオシアン酸水銀(II)法


チオシアン酸水銀溶液と硫酸アンモニウム第II鉄溶液でオレンジ色に発色後, 460nmでの吸光度を測定した。

(f) 全有機炭素: 水中の全有機炭素をTOC (Total Organic Carbon) 計(島津製作所, Model TOC-500)にて測定した。

(g) 底質乾燥重量: 採取した底質から2g程度を十分乾燥させた重量既知のるつぽに測り取り, 120℃で2時間乾燥させた。デシケーター中で放冷した後るつぽの重量を測定し乾燥重量を算出した。

(h) 強熱減量<sup>6)</sup>：乾燥重量を測定したるつぼを電気炉を用いて600℃で2時間強熱した。デシケータ中で放冷したあとのつぼの重量を測定し強熱減量を算出した。

### 2.1.3 試供石油化学物質

本実験で用いた石油化学物質は、微生物分解性の高い飽和炭化水素であるn-アルカンとして、ペンタデカン( $nC_{15}H_{32}$ )、ヘキサデカン( $nC_{16}H_{34}$ )、オクタデカン( $nC_{18}H_{38}$ )、ノニルデカン( $nC_{19}H_{40}$ )、ヘルエイコサン( $nC_{21}H_{44}$ )、ヘプタコサン( $nC_{27}H_{56}$ )、トリアコンタン( $nC_{30}H_{62}$ )を用い、比較的分子量の芳香族炭化水素であるアルキルベンゼンとしてオクチルベンゼン( $nC_8H_{18}$ 、)を用いた。さらに、難分解性物質である多環芳香族炭化水素についてはTable 1 に示したものをを用いた。

### 2.1.4 分解能力評価実験の方法

#### (a) 表層河川水における分解実験

各地点にて採取した表層河川水は自然河川水(RW)とし、また $NH_4Cl$   $100mg \cdot l^{-1}$ 、 $K_2HPO_4$   $10mg \cdot l^{-1}$ を添加し栄養塩添加河川水(ERW)とした。RWまたはERWを500mlの容の振盪フラスコに100mlずつ分注した。これに炭化水素を所定の濃度に添加し、 $20 \pm 1^\circ C$ で毎分110回の往復振盪培養を行なった。一定期間培養した後全菌数は細菌計算室(Thomaの血球計算盤)を用いた検鏡法によって計数し、フラスコ内の残存炭化水素はヘキサソで抽出し、FID-ガスクロマトグラフ(島津製作所, GC-8A, 14A)にて定量した。その操作条件はTable 2 に示した。

#### (b) 底質における分解実験

採取した底質は滅菌した各地点のRWまたはERWで一定量混ぜ合わせ、振盪フラスコに分注し、炭化水素を $200mg \cdot l^{-1}$ となるように添加して、底泥が滅菌河川水に懸濁した状態で培養を行った。培養条件および残存炭化水素濃度の測定は表層河川水の場合と同様の方法で行なった。

#### (c) 分解性スクリーニング実験

表層河川水については、あらかじめ乾熱滅菌した共栓付試験管(2.5×20cm, 100ml容)にRWあるいはERWを無菌的に10mlずつ分注した。また底質においては、滅菌した試験管に底質1gずつ分注後、高圧滅菌した各採泥地点のRW, ERWを10mlずつ同様に分注した(SRW, SERW)。これに、芳香族炭化水素を $5000mg \cdot l^{-1}$ に調製したアセトン溶液を100μlずつ無菌的に添加後、試験管を30℃に傾け、 $20 \pm 1^\circ C$ で毎分110回、3週間往復振盪培養させた。ブランクは、自然河川水、底質を高圧滅菌した後、上記と同様の方法で行った。

#### (d) 分解特性実験

化学物質の微生物分解を判断する方法にはいくつか確立した方法がある<sup>7)</sup>。常温では固体のパラフィンワックスを微生物分解させる方法として微粒子にして添加する方法<sup>8)</sup>があるが、本研究では、 $nC_{18}$ 、 $nC_{21}$ 、 $nC_{27}$ 、 $nC_{30}$ のアルカンを調製溶液として加熱蒸留水を用いた方法で行なった。サンプル瓶(15ml容)に蒸留水を10ml分注し、n-アルカンを約 $5000mg \cdot l^{-1}$ になるように加えて湯浴中で加熱した。n-アルカンが熔融したのち超音波ソニケータ(大岳製作所, Model 5202 ZPT)で乳化させて安定したエマルジョンとしたのち、下層部から100μlまたは50μlずつ、あらかじめRWを10mlずつ加えた共栓付試験管に無菌的に添加した。これを同様に往復振盪培養して分析した。

## 2.2 分解過程の検討に関する実験方法

### 2.2.1 炭化水素の微細化実験

炭化水素の微生物分解は菌自体が分泌する界面活性物質 (biosurfactant) や炭化水素の滴径の大きさに影響されることが考えられる。本研究では炭化水素をそのまま添加した系の他に、人工の界面活性剤、ドデシル硫酸ナトリウム (SDS) を  $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  を加えた系、炭化水素の径を超音波ソニケータによって人為的にサブミクロン程度に微細化した系、SDSを加えた後に超音波をかけた系、ヘキサデカンの代謝中間体であり、biosurfactantと推定されるパルミチン酸を  $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  加えた系において分解実験を行なった。

### 2.2.2 馴化河川微生物による分解実験

採取した河川水に栄養塩 ( $\text{NH}_4\text{Cl}$   $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ,  $\text{K}_2\text{HPO}_4$   $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ) および炭化水素を添加し、誘導期間が過ぎたと思われる期間、ヘキサデカンの場合は2日間、1-メチルナフタレンの場合は7日間振盪前培養を行なった。この培養液を4000rpmで15分間冷却遠心分離し、菌体と培養液とに分離した。得られた菌体は炭化水素の分解活性をもつ菌とした。これに培地として採取した表層河川水をメンブレンフィルター (日本ミリポアー社, HA,  $0.45 \mu\text{m}$ ) を用いて濾過し、菌体を除去した河川水を用いた。接種菌濃度は検鏡法によって全菌数を測定し対照となる系列の菌濃度と一致させた。これを分解性活性の高い菌における炭化水素の分解実験に供した。一方、遠心分離して得られた培養液も同様に、メンブレンフィルターでろ過し、馴化していない菌を接種して、培養液中の界面活性剤の有無を検討した。

### 2.2.3 脂肪酸の測定

培養液にジクロロメタンを  $50 \text{ mL}$  加えた後、24時間往復振とうすることにより脂肪酸を培養液から抽出した。ジクロロメタン層を分液し、ロータリーエバポレーターで  $0.5 \text{ mL}$  まで200倍に濃縮した。この濃縮液中に含まれる脂肪酸をFID-ガスクロマトグラフ (島津製作所, GC-8A) によって定量した。ガスクロマトグラフィーの操作条件をTable 3に示した。

### 2.2.4 表面張力の測定

一定期間培養した後の振盪フラスコの底からスポイドを使って約  $10 \text{ mL}$  分取し、それをきれいに洗浄された小さなシャーレにいった。その液表面の張力をデュヌーイの表面張力計を用いて測定した。

## 3. 実験結果および考察

### 3.1 多摩川表層河川水の水質

多摩川下流域・河口域の6km以内の感潮域の5地点、住居地区の関戸橋そして山間部奥多摩湖直下の中山橋の計7地点で採取した表層河川水の窒素、リン、TOC、塩素イオン、菌密度を測定した。その結果をTable 4に示した。また、Table 5は $\#3$ 地点の測定結果であり、Table 6には底質の結果も示した。各々の濃度は季節、天候、サンプリング地点、潮の干満によって多少変化する<sup>9)</sup>が、概して $\#1$ の河口地点、 $\#2 \sim \#5$ の下流域の4地点では、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ が  $0.1 \sim 0.4$ ,  $\text{NH}_4^+\text{-N}$ が  $1.0 \sim 4.0$ ,  $\text{NO}_2^-\text{-N}$ が  $0.2 \sim 0.3$ ,  $\text{NO}_3^-\text{-N}$ が  $1.0 \sim 4.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  でほぼ同程度であった。関戸橋の $\#6$ 地点では $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ ,  $\text{NH}_4^+\text{-N}$ , TOCともに他の地点と比べて高かったことより、生活排水による汚濁が進んでいることが推察された。これとは逆に、山間部の中山橋の $\#7$ 地点では、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ が  $0.015 \sim 0.2$ ,

$\text{NH}_4^+ - \text{N}$ が0.05~0.3,  $\text{NO}_2^- - \text{N}$ が0.006~0.007,  $\text{NO}_3^- - \text{N}$ が0.01~0.08  $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  で関戸橋とは対照的に清澄であることが判った。

### 3.2 河川微生物による分解浄化能力の定量的評価

事故などにより水環境域に疎水性の石油化学物質が多量に流出した場合、ほとんどの炭化水素はまず水表面に拡散し、その後水中の浮遊性懸濁物質に吸着するなどして水表面から水中へ、水中から水底の底質へと沈降していく。炭化水素が水と接触している際と最終的に底質中に沈降した際の二つの場合を想定して分解浄化能力を評価した。自然河川環境中での挙動の一つの指標である極限的な結果として受けとめることができるであろう。

#### 3.2.1 表層河川水の分解浄化能力

多摩川の表層河川水中の微生物<sup>10)</sup>による石油化学物質の分解浄化能力を評価するため、微生物分解性の高い飽和炭化水素としてヘキサデカン、比較的分子の芳香族炭化水素であるオクチルベンゼン、難分解性の多環芳香族炭化水素として1-メチルナフタレンを用いて検討を行なった。

##### (a) ヘキサデカンおよびn-アルカン

ヘキサデカン77, 155, 387  $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  を各地点の自然河川水 (RW), 栄養塩添加自然河川水 (ERW) に加えて分解能力の評価を行った。Fig. 3に1986年6月27日に採水した77  $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  の場合を示した。自然河川水の場合河口地点で分解がやや遅いものの、下流域の各地点では分解浄化能はほぼ同程度であり、多摩川上流である $\#7$ 地点ではほとんど分解しなかった。

さらに155, 387  $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  添加した場合についても、多摩川下流域・河口域の各採水地点においてはほぼ同程度の分解浄化能をもち、7日間で100~120  $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  であった。しかしERWの場合にはさらに分解能が高かったことより、自然河川水中の栄養塩濃度によって分解が制限されることが明らかとなった。Fig. 4には大師橋付近の $\#2$ 地点の結果を示した。住居地区を流下する中流域の $\#6$ 地点では分解浄化能力は下流域・河口域のものより大きかったが、これはTable 4でみられるように河川中の窒素, リン, TOC濃度が高いことも関連していることと思われた。多摩川上流域の $\#7$ において10%未満しか分解されない原因として、河川水中には炭化水素分解菌が存在しないか、分解菌は存在するがその他の要因により分解が進まないかのいずれかが挙げられる。Fig. 5に示したように、 $\#7$ 地点においてRWとERWとで検討した結果、窒素, リンが添加されているERWでは分解が起こることより、 $\#7$ 地点において炭化水素分解菌は存在するが水中の栄養塩濃度が低いいため分解が制限されている<sup>11-14)</sup>ことが明らかとなった。Table 4に示したように上流の河川水中に含まれる栄養塩濃度はリン酸態リンで下流のもの10分の1程度、アンモニア態窒素では5分の1程度であった。以上の分析値はTable 7-1, 7-2に示した。

そこで、ヘキサデカンの分解にとまう河川培養液水中の栄養塩濃度の変化をERWについて検討した。その結果、 $\#5$ 地点においてFig. 6に示したように、分解に伴って栄養塩が消費されていることが明らかになった。Table 8にその分析値を示した。

つぎに、ヘキサデカンの分解浄化能の季節による変動を検討した。その結果多摩川下流の各地点においてともに夏季の方が冬季よりも分解能が高かった。これは河川の水温の差、それにとまう分解菌の種類や分布の差と推定された。Fig. 7に $\#2$ 地点の結果を示した。

そこでn-アルカンについて炭素数の偶数, 奇数, 鎖長の長短による分解特性を検討した。オク

チルデカン ( $nC_{18}$ ) を  $0.05 \text{ m mol} \cdot \text{l}^{-1}$ , ヘンエイコサン ( $nC_{21}$ ) を  $0.13 \text{ m mol} \cdot \text{l}^{-1}$ , トリアコンタン ( $nC_{30}$ ) を  $0.11 \text{ m mol} \cdot \text{l}^{-1}$  濃度で添加した。その結果, Fig. 8, 9 に示したように単独の場合短鎖のものは約 0.5 日, 長鎖のものは約 1 日誘導期間ののち急速に分解されることがわかった。偶数, 奇数それぞれの短鎖, 長鎖の混合の場合, いずれも短鎖のものは単独の場合と同様に分解したが, 長鎖のものは単独の場合に比べて分解が緩慢であった。また, 短鎖で偶数, 奇数の混合系および長鎖で偶数, 奇数の混合系について, Fig. 10 に示した。その結果, いずれも炭素数の偶数, 奇数では分解能には差が認められなかった。さらに 4 種混合で検討を行なった結果 Fig. 11 に示したように炭素鎖の偶数, 奇数には関係なく鎖長の短いものから順次分解されることが判った。分子量に大差ある混合系では, 長鎖炭化水素の分解が抑制されることがわかった。これは, 分子量の小さい短鎖炭化水素の方が, 比較的資化し易いため, 微生物が短鎖炭化水素の方から分解した結果と推定された。Table 9 にその分析値を示した。

#### (b) オクチルベンゼン

アルキルベンゼンとしてオクチルベンゼン  $86 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  を各地点の RW に添加し分解浄化能力を評価した。Fig. 12 に示したように, 自然河川水におけるオクチルベンゼンの分解浄化能力はヘキサデカンの場合と同様下流域の  $\#1 \sim \#5$  の各地点による大差はなく, 3 日間では  $40 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ , 7 日間で  $60 \sim 70 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  であった。 $\#6$ ,  $\#7$  地点についても河川水中の栄養塩濃度が分解能力に大いに影響を及ぼすことが明かとなった。すなわち, 中流域の  $\#6$  地点では下流域各地点より分解が速く進み 4 日間で完全に分解した。また,  $\#7$  地点ではほとんど分解しなかった。ところが,  $\#7$  地点の河川水に栄養塩を加えた ERW では 6 日間で  $60 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  程度分解された。Table 10 にその分析値を示した。

つぎにオクチルベンゼンの分解浄化能の季節による変動を検討した。その結果, ヘキサデカンと同様各地点とも採水時の水温が  $21.9^\circ\text{C}$  の秋季の方が水温  $8.9^\circ\text{C}$  の春季に比べて分解能が高かった。Fig. 13 に  $\#3$  地点の結果を示した。秋季の場合には各地点で同程度の分解をしたが, 冬季においては分解浄化能が幾分異なった。これは季節の変化によって水温が変動し, それに伴って分解菌の微生物相が変化したためと推察された。

さらにペンタデカン  $45 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  とオクチルベンゼン  $45 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  と全炭素数を先の実験とはほぼ一致させて同時に添加して, その分解過程を検討した。Fig. 14 に中瀬の  $\#3$  地点における経日変化を示した。オクチルベンゼンは単独の場合 RW では 7 日間で初期量の 23% が分解されずに残存したが, ペンタデカンを同時に加えるとこれと並行して分解が進み, 7 日間でほぼ完全に分解した。これは, オクチルベンゼンがペンタデカンの存在によって表面張力が低下したために微生物との接触面積が高まったのか, あるいは co-oxidation<sup>15)</sup> が起きたと推測された。この結果は  $\#1 \sim \#7$  の各地点で同様の傾向を示した。Table 11-1, 11-2 にその分析値を示した。

#### (c) 1-メチルナフタレン

多環芳香族炭化水素の分解の検討に先立って, プライオリテイリスト<sup>16)</sup> に記載されている 1-メチルナフタレンを用いてその分解能力を検討した。Fig. 15 に 1-メチルナフタレン  $52 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  を各地点の RW に添加した結果を示した。河口の  $\#1$  地点で分解がやや遅い傾向を示したが, その他の地点では 4~7 日間のラグの後, 分解は急激に進み 10 日間で  $60 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  程度は分解浄化可能であることがわかった。 $\#6$  の分解は若干速く起こり 6 日間で完全に分解された。 $\#7$  において分



解は全く起こらず2週間たっても90%以上が残存した。ここでもやはり栄養塩の影響は大きくERWでは分解が2~4日早まった。Table 12にその分析値を示した。

つぎに、1-メチルナフタレン  $52 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  とペンタデカン  $40 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  を同時に添加してその分解過程を調べた。その結果Fig. 16に示したようにこの場合オクチルベンゼンとは挙動が異なり、一旦オクチルベンゼンが分解した後に1-メチルナフタレンが分解された。この傾向は各地点で一致しており、n-アルカンの分解特性結果と同様に、異種の炭化水素混合物の場合、石油分解菌は分解しやすい成分から分解することが推測された。Fig. 16に多摩川大橋 $\#$ 5地点の結果を示した。Table 13-1, 13-2にその分析値を示した。

### 3.2.2 底質の分解浄化能力

底質中の微生物がどの程度分解浄化能力をもつかを評価するために、河川水の場合と同様にヘキサデカン、オクチルベンゼン、1-メチルナフタレンをそれぞれ  $200 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  添加して滅菌河川水との懸濁状態で培養分解実験を行ない次のような浄化能力の値を得た。

#### (a) ヘキサデカン

Fig. 17に $\#$ 2地点の底質1gに滅菌自然河川水を混合したもの(SRW)、あるいは滅菌栄養塩添加自然河川水を混合したもの(SERW)あるいは底質を滅菌してRWを混合したもの(Blank)にヘキサデカンを添加し、懸濁状態で培養した場合の結果を示した。さらにFig. 18には各採泥地点のSRWの結果を示した。下流域および中流域各地点の分解に顕著な差はみられず7日間での分解浄化の能力は河川水の値とほぼ同程度の  $100 \sim 130 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  であった。 $\#$ 7の地点においては河川水の場合ほとんど分解されないのに対し、底質では7日間で  $50 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  分解された。これは滅菌河川水中のリンや窒素などの栄養塩濃度は非常に低いのであるが、懸濁させることで底質に吸着している栄養塩が水中に溶出したためと考えられた。Table 14にその分析値を示した。

#### (b) オクチルベンゼン

$\#$ 2地点の底質1gにおけるオクチルベンゼンのSRW, SERWの分解の結果をFig. 19に、各採泥地点のSRWの場合をFig. 20に示した。この結果から下流域、中流域の各地点の分解浄化能力は  $100 \sim 170 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  程度となった。全体的にオクチルベンゼンの場合、ヘキサデカンに比べ地点により若干差があることがわかった。これについて、底質中の初期分解菌数、底質の炭化水素による曇り状況の違いなど考えられ、今後さらに深い検討が必要であると考えられた。Table 15にその分析値を示した。

#### (c) 1-メチルナフタレンの分解と底質量関係

以上は底質1gを滅菌した河川水100mlに添加して分解能を検討したが、1-メチルナフタレンにおいては懸濁する底質量を変化して分解能を検討した。その結果をFig. 21に示す。懸濁させる底質量を0.5gから3gまで変化させた場合、底質の量に比例して分解率が高くなった。これは分解菌や有機物、リンや窒素などの栄養塩が底質の表面や粒子間に吸着した形で存在しているためと考えられた。Table 16にその分析値を示した。

### 3.2.3 芳香族炭化水素の分解スクリーニング

#### (a) 表層河川水の分解能力

$\#$ 1,  $\#$ 5,  $\#$ 7の各地点における表層河川水の芳香族炭化水素分解能力を検討した結果をFig.

22に示した。どの地点においても対照として行なったノニルデカンはかなり分解されたが他の芳香族炭化水素はほとんど分解されていない。そのほか№1地点ではフルオレンが12%、フェナントレンが13%分解された。№5地点では、2-メチルフェナントレンが6.4%、フェナントレンが2.6%、4-メチルビフェニルが1.9%分解された。№7地点ではノニルデカンが2.4%分解されたのみであった。このことより、表層河川水は芳香族炭化水素をほとんど分解しないことが明らかとなった。Table 17にその分析値を示した。

#### (b) 底質の分解能力

№1, №5, №7の各地点における底質の芳香族炭化水素分解能力を検討した結果をFig. 23に示した。その結果表層水と同様、対照のノニルデカンは採水・採泥地点のSRWでかなり分解された。№1地点では、フェナントレンが3週間で完全に分解されたほか、2-メチルフェナントレン80.5%、4-メチルビフェニル42.0%が分解された。№5地点では、フェナントレンが完全に分解されたほか、2,3-ベンゾフルオレン57%、2-メチルフェナントレン41%が分解された。他の芳香族炭化水素も10%以上は分解した。№7地点ではSRWでフェナントレンは完全に分解し、2-メチルフェナントレンは96%分解した。またアントラセンや2-ベンゾチオフェンが対照のノニルデカンと同程度に分解された。このことは、底質には分解菌や窒素、リンなどの栄養塩が吸着していることを示唆しており、表層水では全く分解しない№7地点の底質が最もよく分解能を示したことをよく説明している。Table 17にその分析値を示した。

### 3.3 河川微生物による炭化水素の分解過程

自然河川水中の微生物による炭化水素の分解過程を検討するため、まず各地点の河川水にヘキサデカン、オクチルベンゼン、1-メチルナフタレンをそれぞれ77, 86,  $52 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ を加えて比較した。Fig. 24に№2地点の結果を示した。ヘキサデカンは0.5~1日程度の誘導期（以下ラグと記す）の後分解が急激に起こり3日間で完全に分解された。オクチルベンゼンは1.5~2日間のラグの後急速な分解が起こった。1-メチルナフタレンでは6~8日のラグののち急速に分解した。以上のように炭化水素の分解には物質の種類によって長さの異なるラグがあり、急速に分解が進行することが明らかとなった。同様なことがその他の4地点についても確認された。ラグの長さを比較すると、アルカン、アルキルベンゼン、多環芳香族の順で長くなることがわかった。

このような特徴的な炭化水素の分解過程は、既応の単純な速度式では河川環境中の微生物分解を表現することはできない<sup>12)</sup>。特に事故時のように突発的に流出した場合、炭化水素の運命を知るため、河川微生物によりどの様に分解されるかを速度論的に検討するには、後におこる急激な分解とともに、その前段階であるラグの期間が非常に重要となる。下流域各地点間の分解過程は顕著な差がなかったことから採水地点として№5地点を選び、炭化水素にはラグの短いヘキサデカンと長い1-メチルナフタレンの2種類で検討を進めた。

一般にラグは水溶性基質の場合、馴化の期間として理解されているが、炭化水素のような非水溶性の物質の場合、ラグの要因として馴化のみならず疎水性基質の形状、培地中に含まれる界面活性物質の影響<sup>17)</sup>などを考える必要がある。

そこで、物質によりラグが異なる原因として、それぞれの炭化水素と水との界面張力が関係することが考えられる。つまり界面張力が高いと菌体は炭化水素に接触しにくく長いラグとなることが予測され

る。この推定の真偽をみるためにそれぞれの炭化水素と水との界面張力をデュ・ヌーイの界面張力計（島津製作所）によって測定した。その結果、ヘキサデカンと水との界面張力が  $53.3 \text{ dyn} \cdot \text{cm}^{-1}$  と最も高くオクチルベンゼン ( $42.3 \text{ dyn} \cdot \text{cm}^{-1}$ )、1-メチルナフタレン ( $41.5 \text{ dyn} \cdot \text{cm}^{-1}$ ) の順で小さくなった。すなわち、界面張力の小さい1-メチルナフタレンが最も長いラグを取っており炭化水素の水に対する界面張力とラグの長さとは相関はなかった。よって分解過程にラグが存在しその期間が物質により異なるのは、その他の複雑な要因<sup>18-20)</sup>によるものと考えられる。

### 3.3.1 未馴化河川微生物による分解過程の検討

炭化水素は疎水性であり、資化されるには菌体と炭化水素の接触がなければならず、炭化水素の状態が分解に関係することが考えられた<sup>21, 22)</sup>。そこで培養期間中の炭化水素の状態をみる一つの指標として炭化水素の滴径を測定した。Fig. 25 に培養期間中のヘキサデカン滴径の経時変化を残留濃度および全菌数変化とともに示した。培養開始後のラグの期間、平均ヘキサデカンの滴径は  $8 \mu\text{m}$  程度であったが、分解が開始されると  $1 \mu\text{m}$  程度に小さくなった。これがミセル状態か否かは定かでないが、微生物が界面活性物質 (biosurfactant) を分泌するといわれていること<sup>23-26)</sup>、分解時に炭化水素の滴径が小さくなることから、ラグは炭化水素の滴径に起因することが推定される。すなわち微生物は滴径が非常に微細な炭化水素を分解するため、ラグの期間で界面活性物質を分泌し炭化水素を微細化することが推測された。そこで超音波ソニケータで人為的に滴径をサブミクロンオーダーにまで微細にした炭化水素を添加した系 (US) と、既存の合成界面活性剤、ドデシル硫酸ナトリウムを  $10 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  になるように添加した系 (SDS) についてヘキサデカンの分解実験を行なった。比較のため何等処理をしていない ERW, ERW で 2 日間前培養した後に集菌し、新たに ERW で培養した系 (AC), さらに ERW 2 日間前培養した後の培養液を滅菌ろ過し、新たに菌を接種した系 (NAC) も同時に行なった。その結果を Fig. 26 に示した。SDS, US のラグは 1~1.5 日で ERW のものと違いはみられずその後の分解にも顕著な変化はなかった。Table 18 にその分析値を示した。

同様な実験を 1-メチルナフタレンについても行なった。その結果を Fig. 27 に示した。界面活性剤を添加した系、滴径を微細化した系ともにラグの期間やその後の分解に顕著な変化はなく、ヘキサデカンの場合と同様な結果となった。Table 19 にその分析値を示した。すなわち、環境中の微生物による炭化水素の分解過程は滴径は直接には関与せず、人為的に界面活性剤や超音波ソニケータで微細化しても分解性が促進されない、あるいは分解菌は界面活性物質の特異性をもっており菌自体に有利な界面活性物質、例えばその菌の分泌する biosurfactant でなければ有効に働かない可能性のあることが予測された<sup>27)</sup>。

### 3.3.2 馴化河川微生物による分解過程の検討

菌に馴化の期間があることにより微細化された滴径や界面活性物質の効果がかき消されていることを想定し、馴化済みの河川微生物によるヘキサデカンの分解過程を検討した。馴化した河川微生物での系 (AC), AC に微細化した炭化水素を添加した系 (AU), ドデシル硫酸ナトリウムを添加した系 (AS), それら両方の処理した系 (ASU) の 3 系列で行なった。対照として馴化をしていない系 (ERW), ERW で 2 日間培養してヘキサデカンをほぼ分解させた後に、新たに等量のヘキサデカンを加えた系 (ERW2) についても行なった。その結果を Fig. 28 に示す。未馴化河川微生物の場合と同様、AS, AU, ASU の 3 系列と AC とは分解過程において顕著な差はみられず、へ

キサデカンは最初から速やかに分解された。Table 20 にその分析値を示した。

1-メチルナフタレンについてもAC, AS, AU, ASUの4系列で分解実験を行なった。その結果をFig. 29 に示したように、1-メチルナフタレンにおいても4系列の分解に顕著な違いはみられず、分解は最初から速やかに進んだ。Table 21にその分析値を示した。これらの結果より、炭化水素の分解過程は人為的にその油滴を微細化しても促進されないが、結果的には分解と微細化が並行して行なわれることが確認された。

以上、河川環境中の微生物による炭化水素の分解においては、石油発酵の分野で言われているような界面活性物質の添加や炭化水素滴径を微小にすることによる資化性の促進といったことは認められず、微生物自体の馴化さえ行なわれれば炭化水素の状態如何に関わらず分解されることが明かとなった。また、炭化水素の種類によってラグの期間が異なるのは、微生物による分解性の難易と関係することから、炭化水素に対する分解酵素の誘導や、細胞内に炭化水素のプール（小胞）をもった特異な細胞構造<sup>28)</sup> になるための難易によるものと推測された。

### 3.3.3 Biosurfactant と分解の関係

河川微生物の炭化水素の分解において、これまでの結果から界面活性剤を添加しても分解過程に影響しないことが明かとなった。しかしながら、炭化水素分解菌が界面活性剤に対して特異性をもっており、分解菌はbiosurfactantを分泌すること<sup>29-32)</sup> から、分解菌自身が分泌したbiosurfactantによって初めて有効に作用すると予測し、ヘキサデカンについて検討した。末端の炭素の酸化が最初にかかるmonoterminal oxidationによりヘキサデカンが分解された場合<sup>33)</sup>、中間生成物として生成されbiosurfactantになりうる高級脂肪酸<sup>34)</sup>がFig. 30 に示したように培養7日目の培養液中に検出された。そこでn-アルカンの代謝経路のうち最も可能性が高いと思われるパルミチン酸を $10\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 添加（AP系列）し、馴化河川微生物による分解を行なった。対照としてのAC系列を共に行なった。その結果、Fig. 31に示したように分解にラグはなく速やかに進んだが、双方の分解過程に顕著な差はみられなかった。Table 20 にその分析値を示した。Biosurfactantとしてパルミチン酸の他、ポリサッカライドやリン脂質、糖脂質などが見いだされているが、ドデシル硫酸ナトリウムとパルミチン酸を比較する上では界面活性物質による特異性はないと考えられた。

## 4. 結 論

- (1) 多摩川下流域・河口域の約6Kmの感潮域区間の5地点と、住居地帯を流れる関戸橋、山間部の奥多摩湖下流の中山橋の計7地点において、疎水性の石油化学物質の微生物による分解浄化能力を検討した結果、温暖期においては感潮域の各地点ではほぼ同程度の分解浄化能をもち、窒素、リンを多量に含む関戸橋が最も高く、山間部の清澄な中山橋では最も低かった。
- (2) ヘキサデカンの生分解浄化能は、表層水において夏季では2日間で約 $80\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、7日間で $110\sim 120\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。一方、底質1gあたりの分解浄化能は秋季では表層水とはほぼ同程度であった。
- (3) オクチルベンゼンの微生物による分解浄化能力は、表層水において秋季では3日間でほぼ $40\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、7日間で $60\sim 70\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。一方、底質1gあたりの分解浄化能力は秋季では3日間でほぼ $70\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、7日間で $100\sim 140\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。

- (4) 1-メチルナフタレンの生分解浄化能は、表層水において春季では8日間で $60\sim 70\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。一方、多摩川下流域の底質1gあたりの分解浄化能力は、冬季では10日間ではほぼ $80\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ であり、底質の量に比例して分解能力は高まった。
- (5) 表層水におけるオクタルベンゼンと1-メチルナフタレンの生分解は、ペンタデカンとの混合において分解様式が異なった。
- (6) 多摩川下流域の表層水の飽和直鎖炭化水素の分解においては、炭素数の偶数、奇数に関わらず鎖長の短いものから順次分解していくことが明かとなった。
- (7) 多環芳香族炭化水素の分解浄化能力は、表層水では検討したほとんど物質において分解能が低かったが、底質ではどの地点においてもフェナントレン、2-メチルフェナントレンの分解能が高かった。
- (8) 石油化学物質の微生物による分解浄化能力は栄養塩によって大きく高められた。
- (9) 石油化学物質の生分解浄化能は、寒冷期に比べて温暖期の方が高かった。
- (10) 多摩川下流域の表層河川水の微生物による炭化水素分解過程は、一定期間のラグを経たのちに急速に分解が起こった。このラグ期間は炭化水素の種類によって異なり、ヘキサデカンでは1～1.5日間、オクタルベンゼンでは1.5～2日間、1-メチルナフタレンでは6～8日間であった。
- (11) 表層水の微生物によるヘキサデカンの分解は、ヘキサデカンの油滴が微細化して乳化するのと並行して急速に進んだ。
- (12) ヘキサデカン、1-メチルナフタレンの分解は biosurfactant の生成とは直接関係なく、酵素の適応により進行した。

## 引用文献

- 1) 井上ら(1977)界面活性剤の毒性と生分解性, 水処理技術, 18, 119-132 (1977).
- 2) 徳田(1976)石油汚染と水産生物, 60-76, 日本水産学会編, 恒星社厚生閣.
- 3) 多喜田(1987)先端技術産業における公害対策の実例, 42-51, 第11回水質汚濁研究協会セミナー講演資料集.
- 4) 山根晶子, 岡田光正, 村上昭彦(1988)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, 水質汚濁研究, 11, 355.
- 5) 日本分析化学会北海道支部編(1981)水の分析 第3版, 化学同人.
- 6) 日本水質汚濁研究協会編(1982)湖沼環境調査指針, 公害対策技術同友会.
- 7) OECD Guidelines for testing of chemicals (1986).
- 8) 飯塚廣ら(1968), 日本農化学会大会講演集, 367.
- 9) 落合正宏, 岡沢剛(1986)多摩川下流域におけるアミノ態化合物, 水処理技術, 27, 825.
- 10) 門司正三, 高井康雄編(1984)陸水と人間活動, 東京大学出版会.
- 11) A. Nishimura *et al.* (1981) Nutrient limitations on biodegradation of n-hexadecane by *Bacillus* sp., A candidate organism in seeding, *J. Chem. Eng. of Japan*, 14, 474.
- 12) J. J. Cooney *et al.* (1985) Factors influencing hydrocarbon degradation in three freshwater lakes, *Microb. Ecol.*, 11, 127.

- 13) L.E. Azoulay *et al.* (1983) The Relationship between hydrocarbons and bacterial activity in Mediterranean sediments: Part 2 Hydrocarbon degrading activity of bacteria from sediment, *Mal. Environ.*, **9**, 19.
- 14) R.M. Atlas *et al.* (1972) Degradation and mineralization of petroleum in seawater: Limitation by nitrogen and phosphorous, *Biotechnol. Bioeng.*, **14**, 309.
- 15) 蓑田泰治 (1974) 炭化水素の微生物酸化, 石油学会誌, **17**, 824-829.
- 16) 化学物質調査検討会ブライオリティリスト分科会編 (1987) 第2次化学物質環境安全性 総点検調査のためのブライオリティリスト, 環境庁資料.
- 17) E. Rosenberg, C. Rubinovity, A. Gottlieb, S. Rosenhak and E. Z. Ron (1988) Production of biodispersant by *Acinetobacter calcoaceticus* A2, *Appl. Environ. Microbiol.*, **54**, 317.
- 18) J.H. Paul and W. H. Jeffery (1985) The effect of surfactants on the attachment of estuarine and marine bacteria to surfaces, *Can. J. Microbiol.*, **31**, 224.
- 19) J. E. Zajic and R. J. Neufeld (1984) The surface activity of *Acinetobacter calcoaceticus* sp. 2CA2, *Biotechnol. Bioeng.*, **26**, 1108.
- 20) D.G. Cooper, S.N. Liss, R. Longay and J.E. Zajic (1981) Surface activity of *Mycobacterium* and *Pseudomonas*, *J. Ferment. Technol.*, **59**, 97.
- 21) S. Aiba *et al.* (1969), *J. Ferment. Technol.*, **47**, 211.
- 22) A. E. Humphrey (1967), *Biotechnol. Bioeng.*, **9**, 3.
- 23) D. G. Cooper and J. E. Zajic (1980) Surface-active compounds from microorganisms, *Adv. Appl. Microbiol.*, **26**, 230.
- 24) E. Rosenberg, C. Rubinovity, R. Legmann and E. Z. Ron (1988) Purification and chemical properties of *Acinetobacter calcoaceticus* A2 biodispersant, *Appl. Environ. Microbiol.*, **54**, 323.
- 25) Z. Zosim, D. Gutnick and E. Rosenberg (1982) Properties of hydrocarbon-in-water emulsions stabilized by *Acinetobacter* RAG-1 Emulsan, *Biotechnol. Bioeng.*, **24**, 281.
- 26) A. Persson, E. Osterberg and M. Dostalek (1988) Biosurfactant production by *Pseudomonas fluorescens* 378: growth and product characteristics, *Appl. Microbiol. Biotechnol.*, **29**, 1.
- 27) R. M. Atlas (1984) *Petroleum Microbiology*, Macmillan Publishing Company, New York.
- 28) C. C. L. Scott and W. R. Finnerty (1976) Characterization of intraplasmic hydrocarbon inclusions from the hydrocarbon-oxidizing *Acinetobacter* sp. HO1-N, *J. Bacteriol.*, **127**, 481.

- 29) A.Tanaka, H.Maki and S.Fukui (1967), *J. Ferment. Technol.*, **45**, 1156.
- 30) S.Aiba *et al.*(1969), *J. Ferment. Technol.* **47**, 203.
- 31) R.Tsugawa and S.OKumura (1969) Fermentation of n-paraffins by Yeast, II Keto-glutarate productivity in various culture media of *Candida lipolytica*, *Agric. Biol. Chem*, **33**, 676.
- 32) T. Suzuki *et al.*(1969) Trehalose lipid and branched- $\alpha$ -hydroxy fatty acid formed by bacteria grown on n-alkane, *Agr. Biol. Chem.*, **33**, 1619.
- 33) J.E.Stewart *et al.*(1959) Bacterial hydrocarbon oxidation, I Oxidation of n-hexadecane by a gram-negative Coccus, *J. Bacteriol.*, **78**, 441.
- 34) J.W.Heringa, R.Huybregtse and A.C.Van der Linden (1961) n-Alkane oxidation by a *Pseudomonas*. Formation and  $\beta$ -oxidation of intermediate fatty acids, *Antonie von Leeuwenhoek, J. Microbiol. Serol.*, **27**, 51.

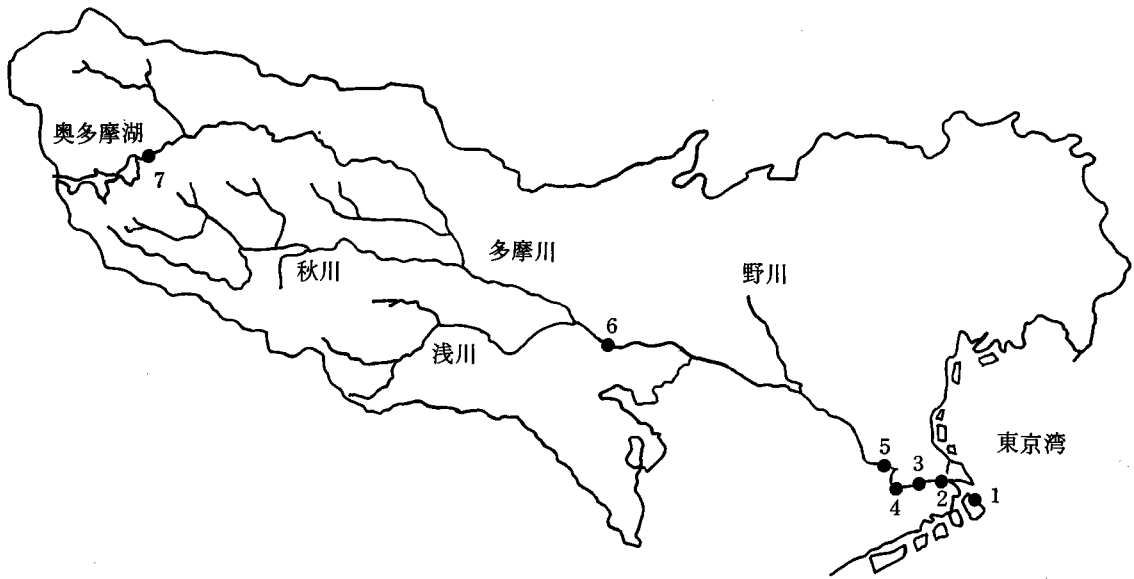


Fig.1 サンプルング地点

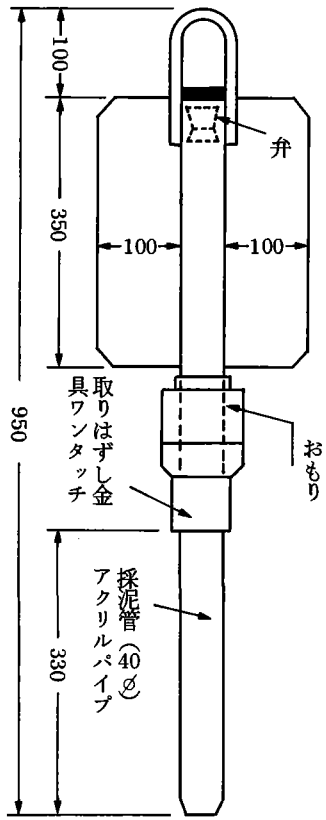


Fig.2 柱状採泥器



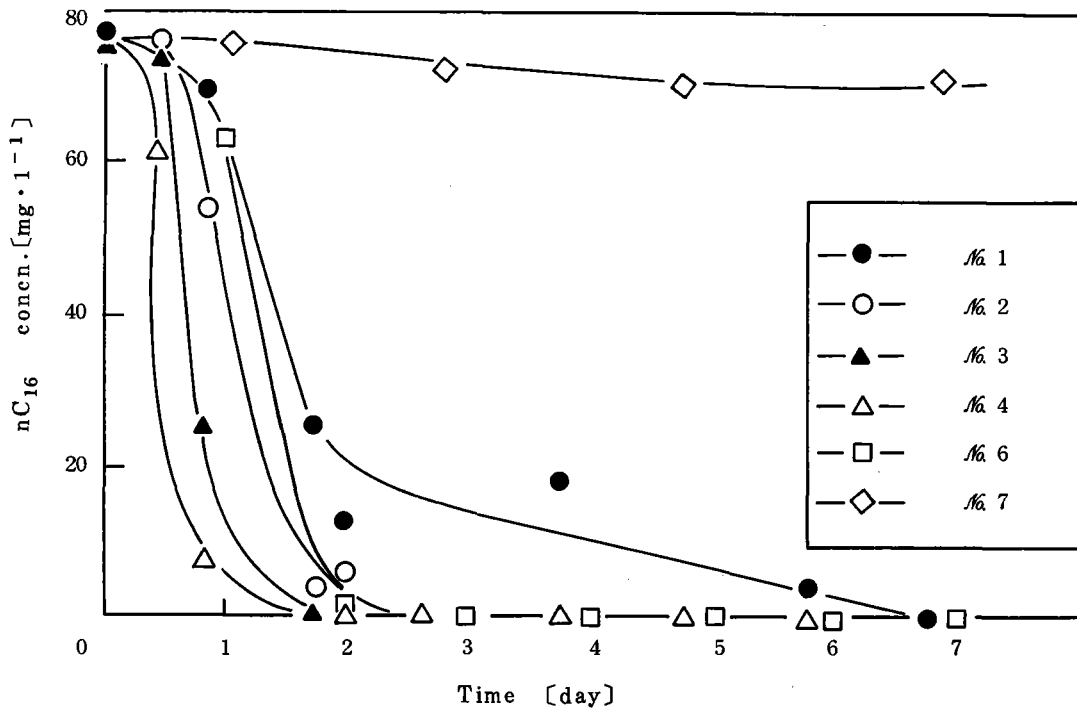


Fig. 3 各採水地点におけるヘキサデカンの分解  
 採水日: No. 1 ~ No. 4 1986年6月27日  
 No. 6 1987年5月8日  
 No. 7 1987年6月4日

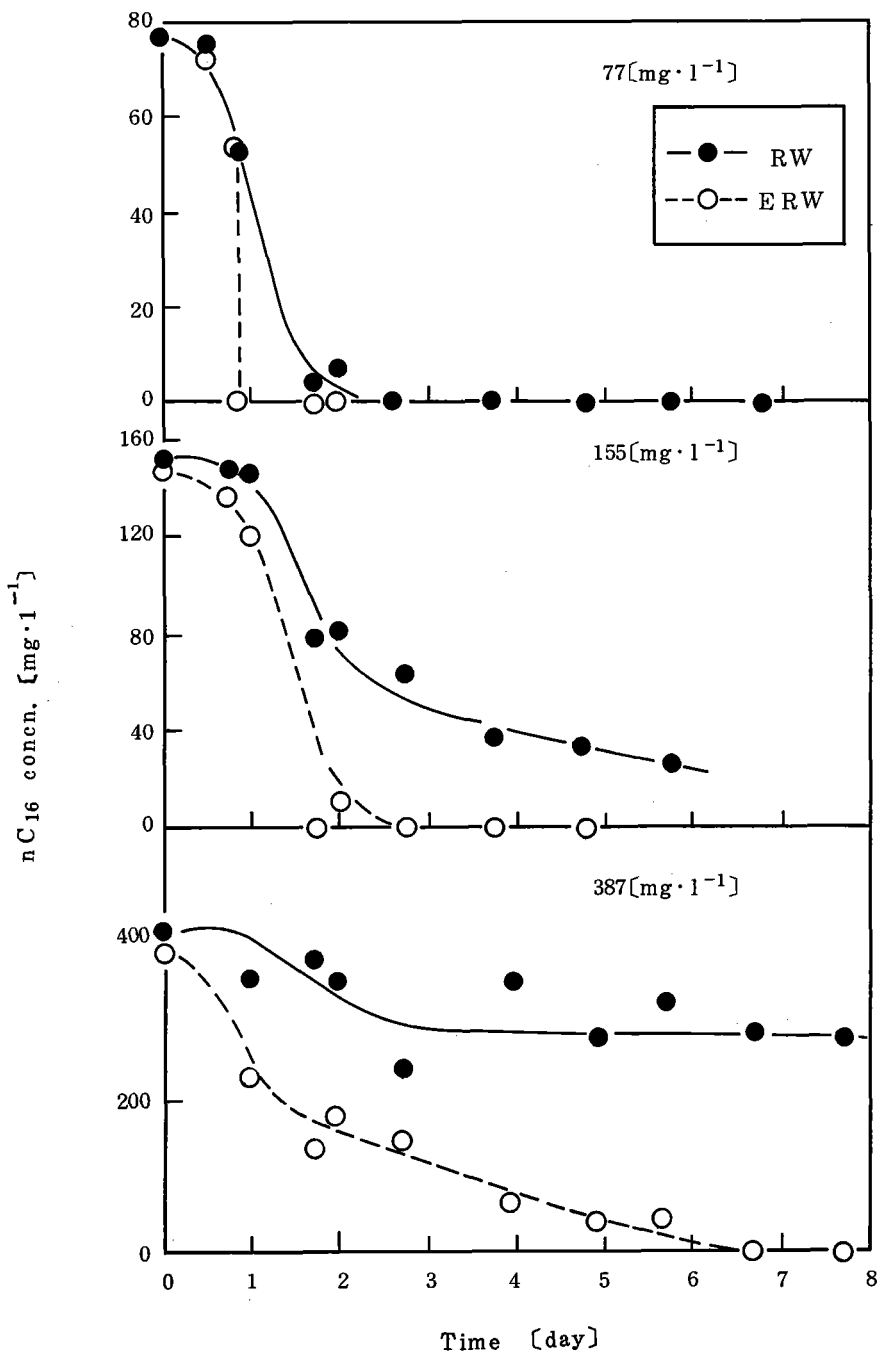


Fig.4 採水地点No.2におけるヘキサデカンの分解

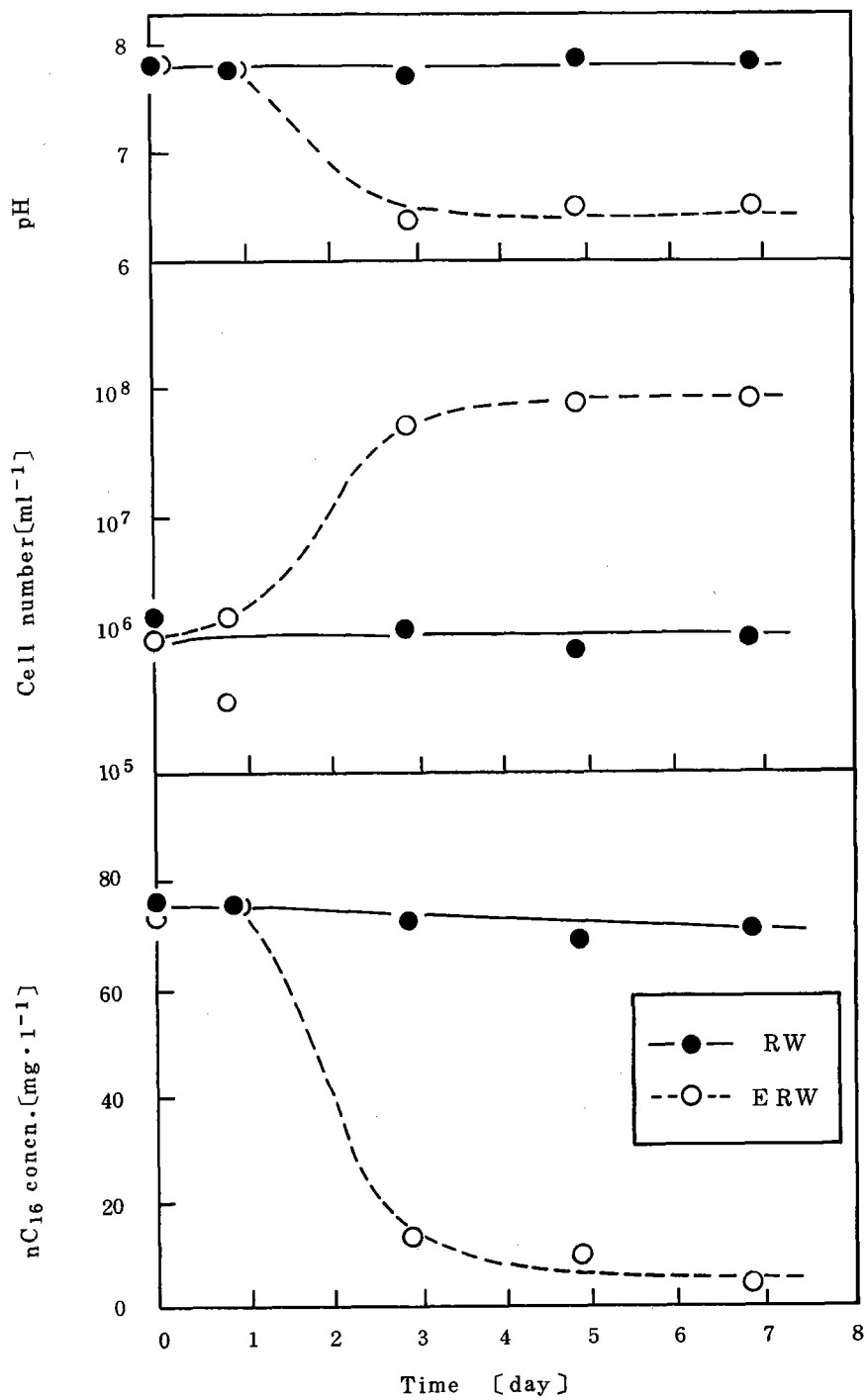


Fig. 5 ヘキサデカンの分解における栄養塩の影響  
(採水地点No.7)

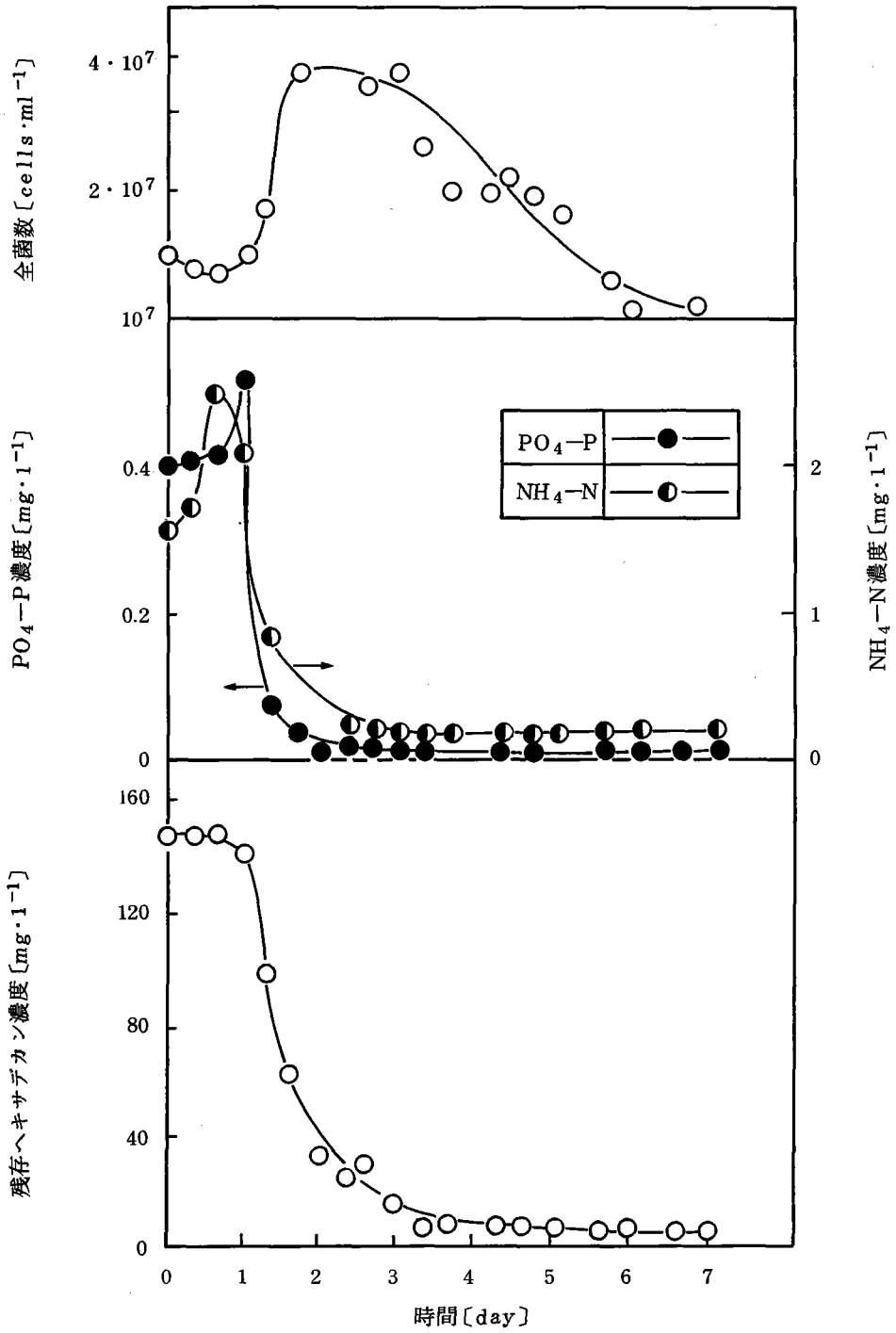


Fig. 6 ヘキサデカンの分解にともなう栄養塩濃度の変化  
採水地点 №5

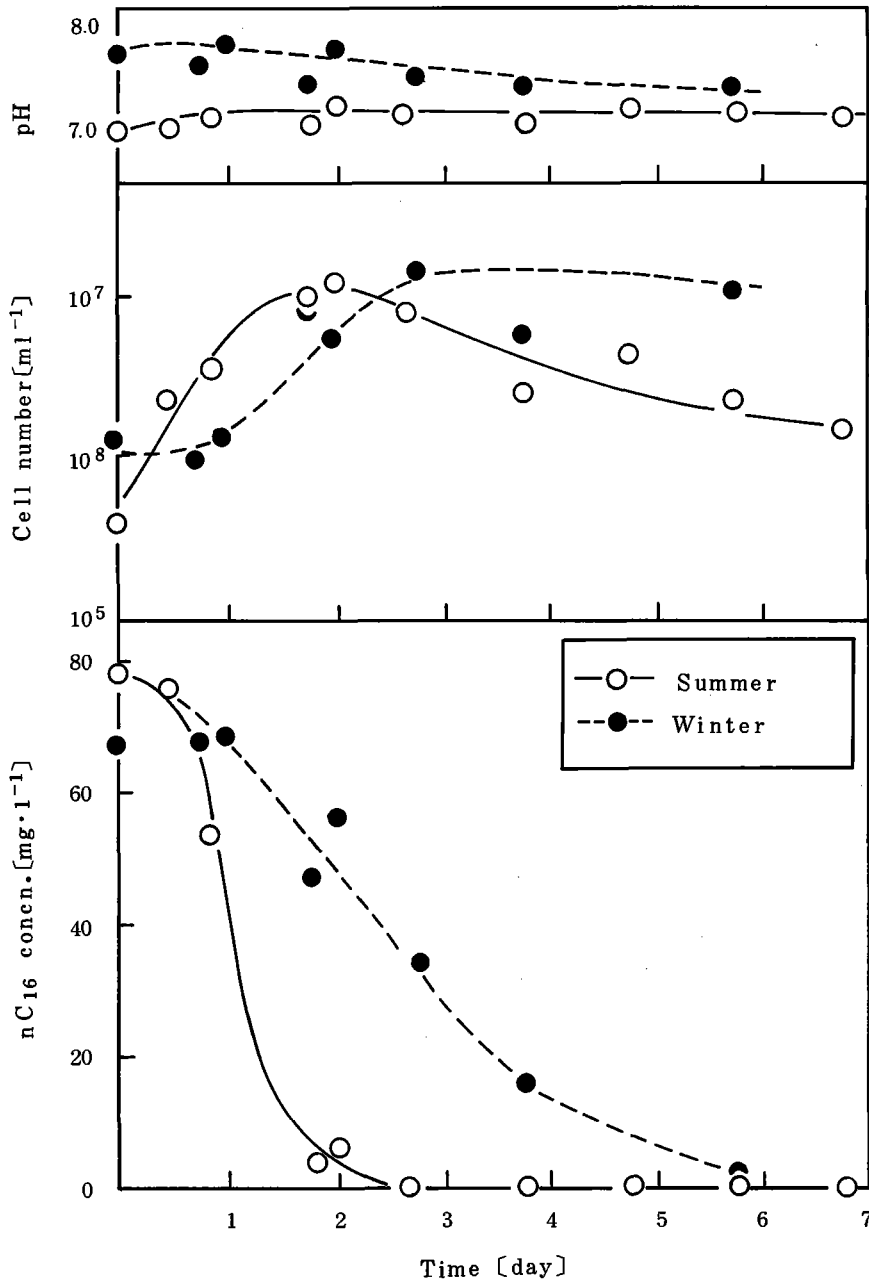


Fig.7 季節の変化に伴うヘキサデカンの生分解の差異  
 ヘキサデカン 77mg·l<sup>-1</sup>、採水地点 №2  
 夏季：1986年6月27日、水温 22.5℃  
 冬季：1987年1月16日、水温 8.2℃

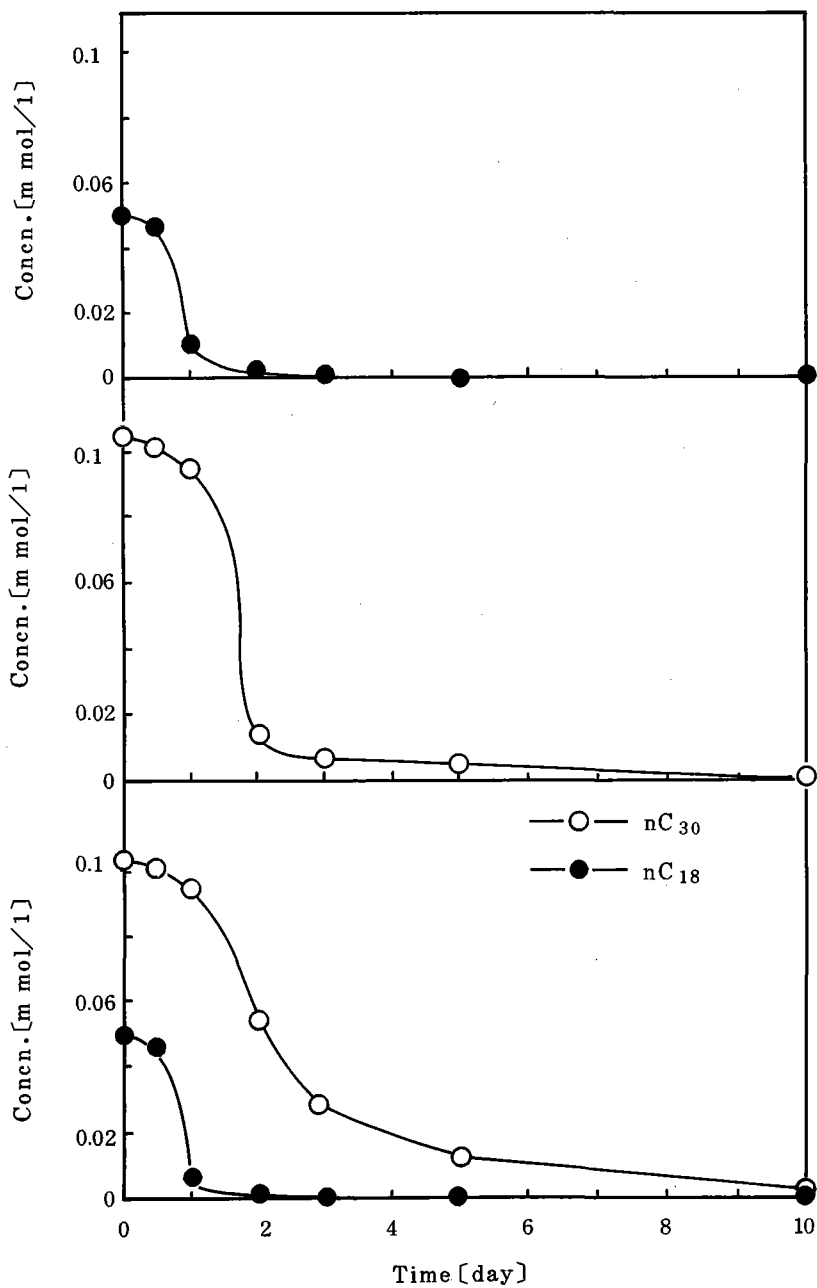


Fig.8 鎖長による炭化水素の分解特性  
(偶数の場合)

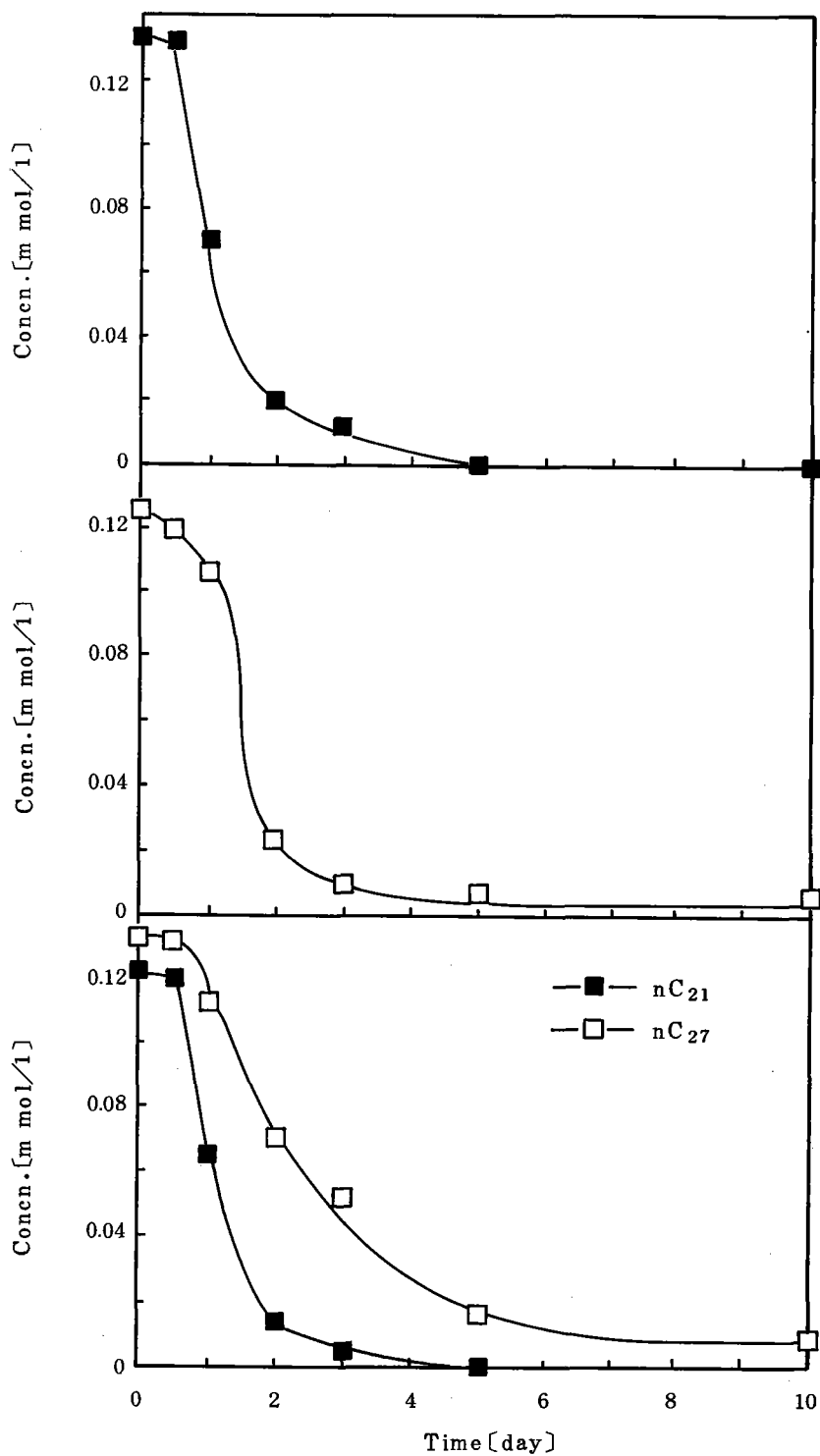


Fig. 9 鎖長による炭化水素の分解特性  
(奇数の場合)

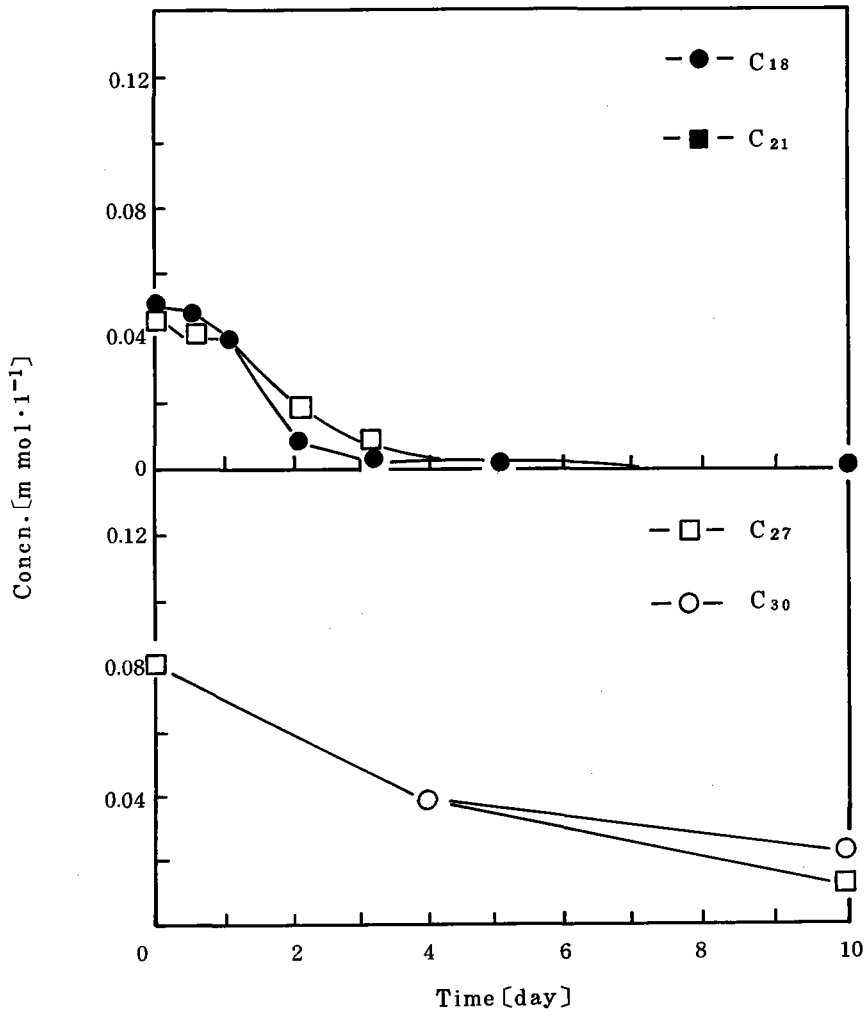


Fig.10 偶数、奇数による炭化水素の分解特性



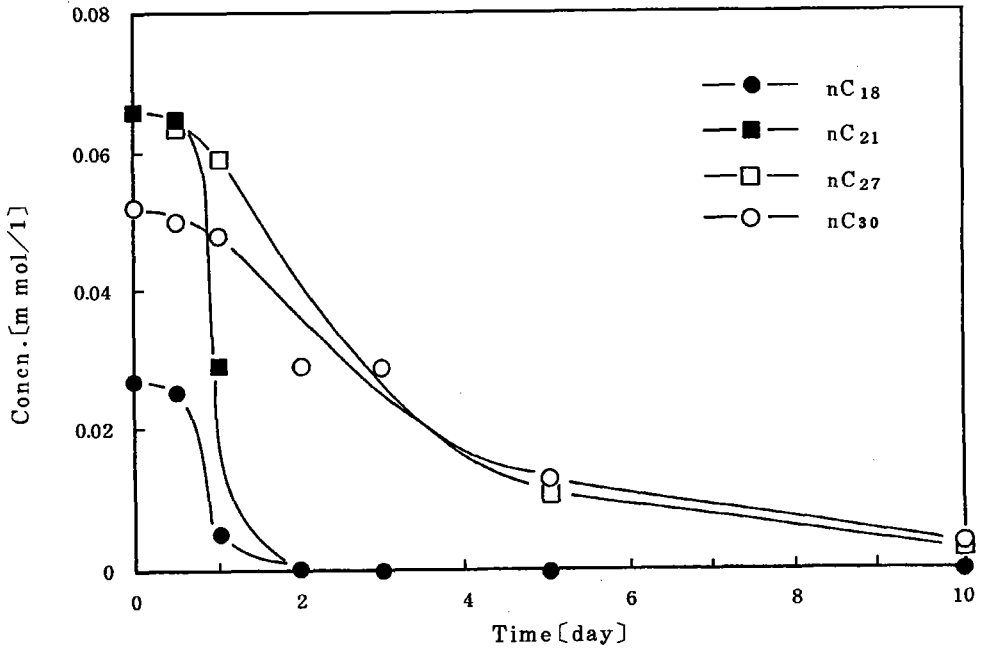


Fig. 11 多摩川下流河川水の炭化水素の分解特性

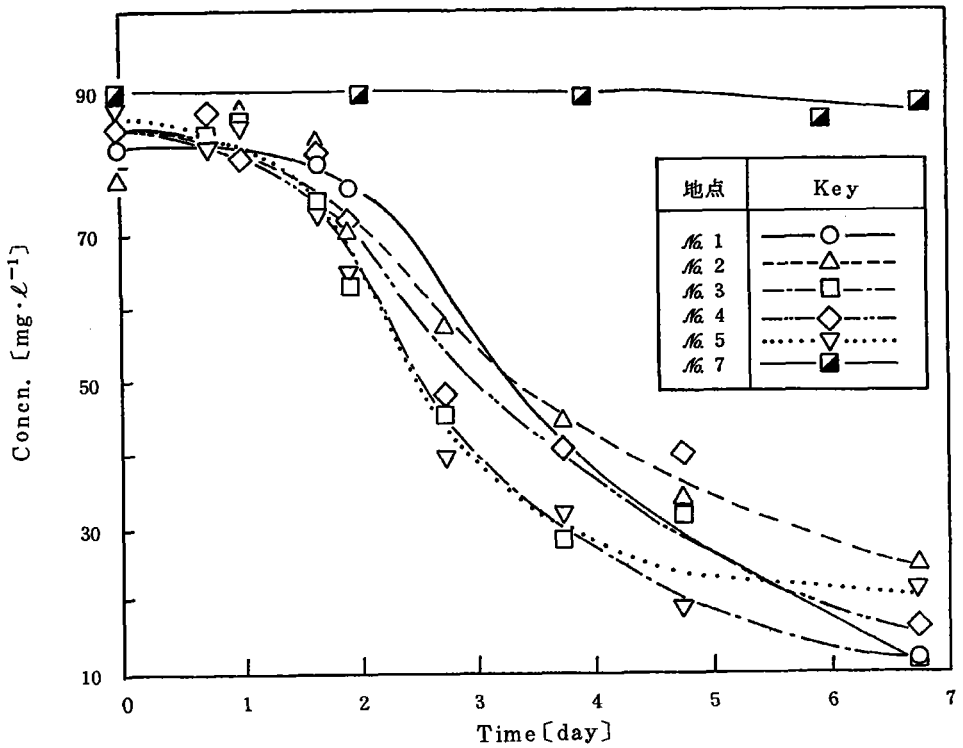


Fig. 12 nC<sub>8</sub> 濃度の各地点の経日変化

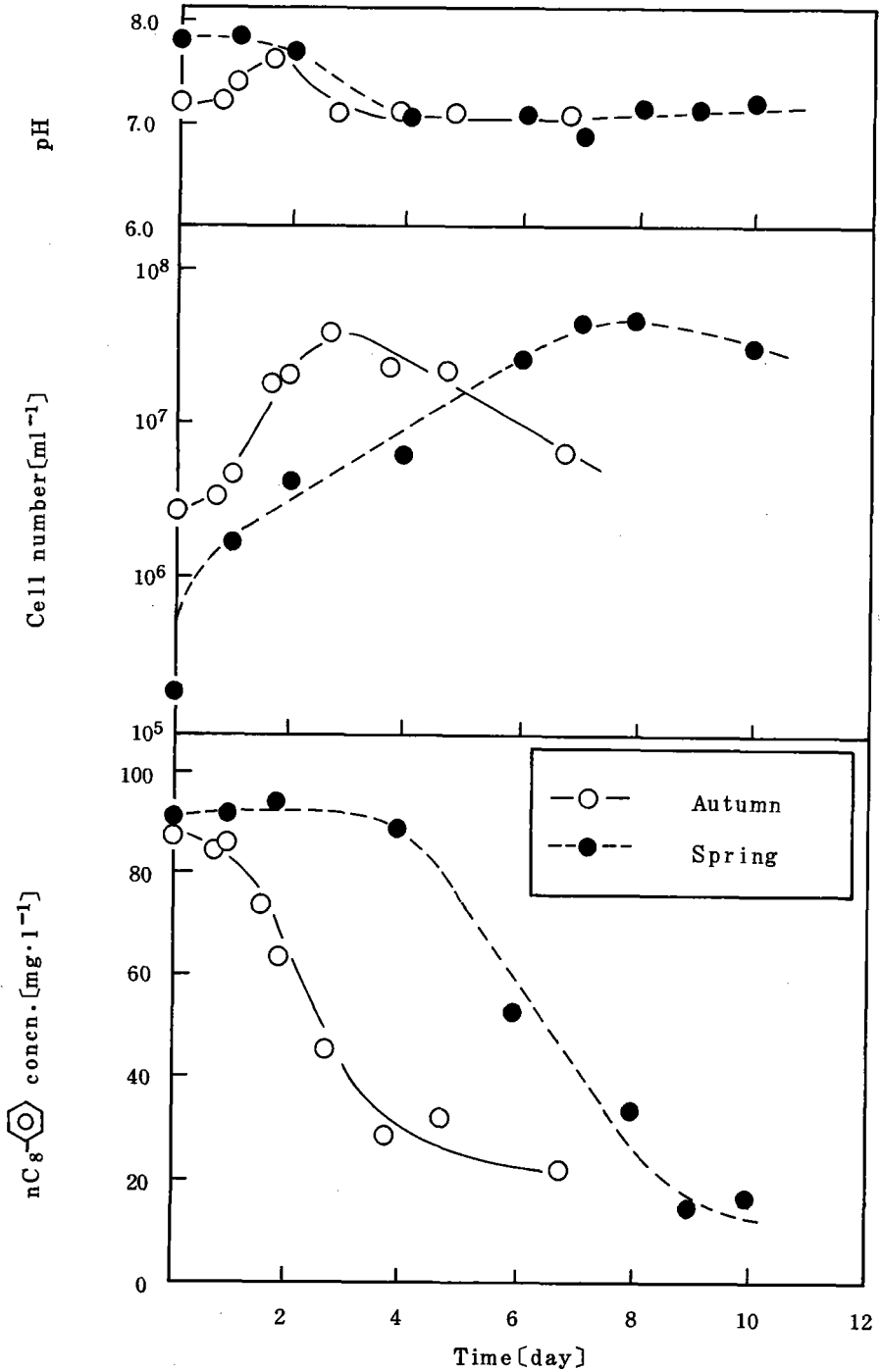


Fig. 13 季節の変化に伴うオクタルベンゼンの生分解の差異  
 オクタルベンゼン  $86 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、採水地点 №3  
 秋季：1986年9月11日、水温  $21.9^\circ\text{C}$   
 春季：1987年3月3日、水温  $8.9^\circ\text{C}$

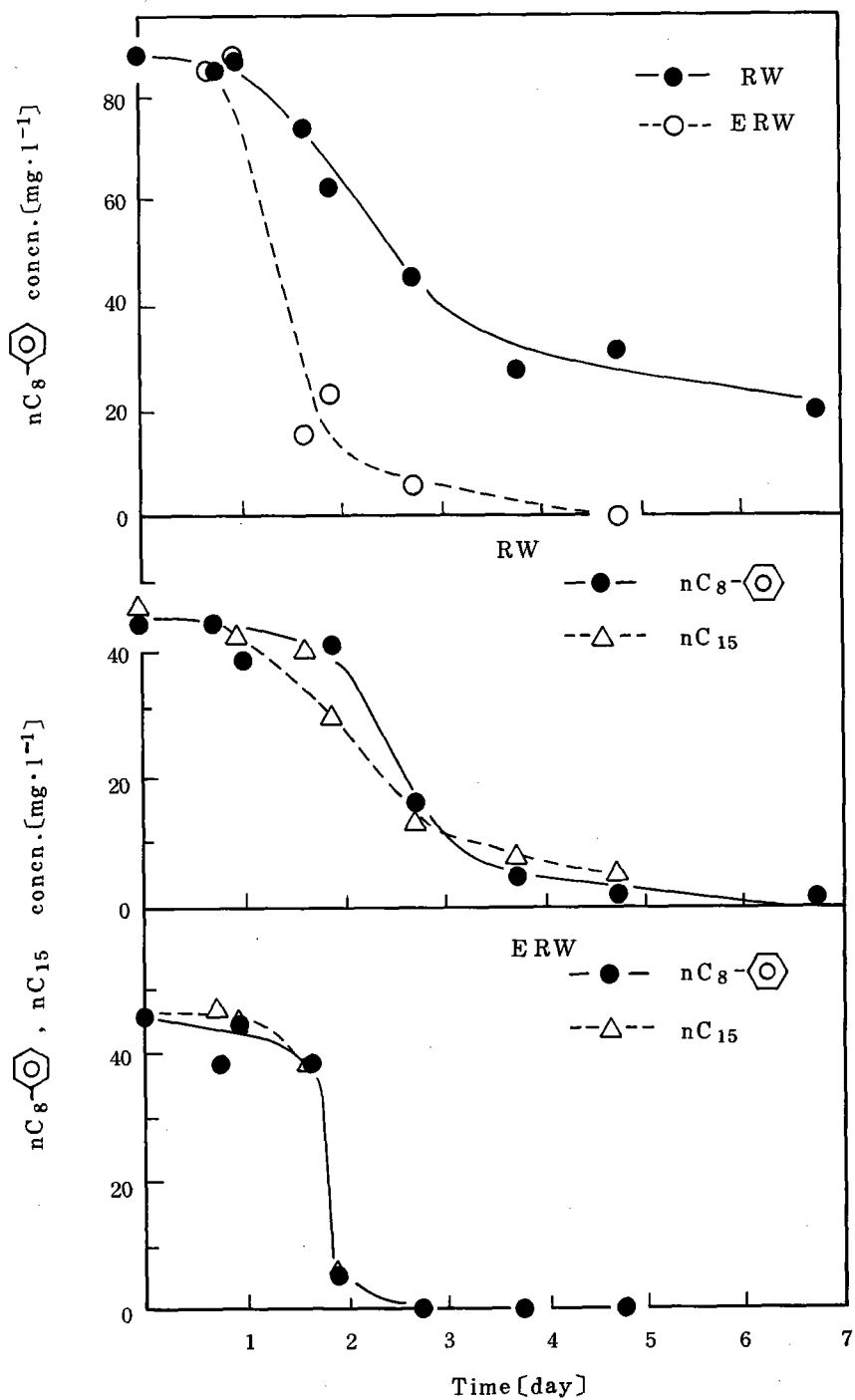


Fig. 14 栄養塩あるいはペンタデカンによるオクチルベンゼン分解の促進 (採水地点: №2)

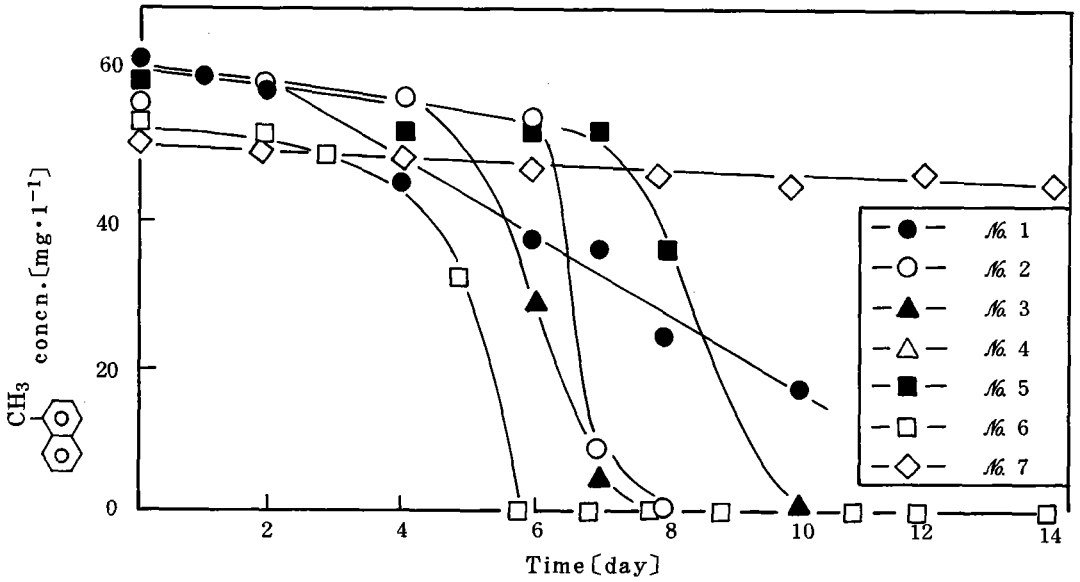


Fig. 15 各採水地点における1-メチルナフタリンの分解

採水日: No. 1 ~ No. 5 1987年3月3日

No. 6 1987年5月8日

No. 7 1987年6月4日

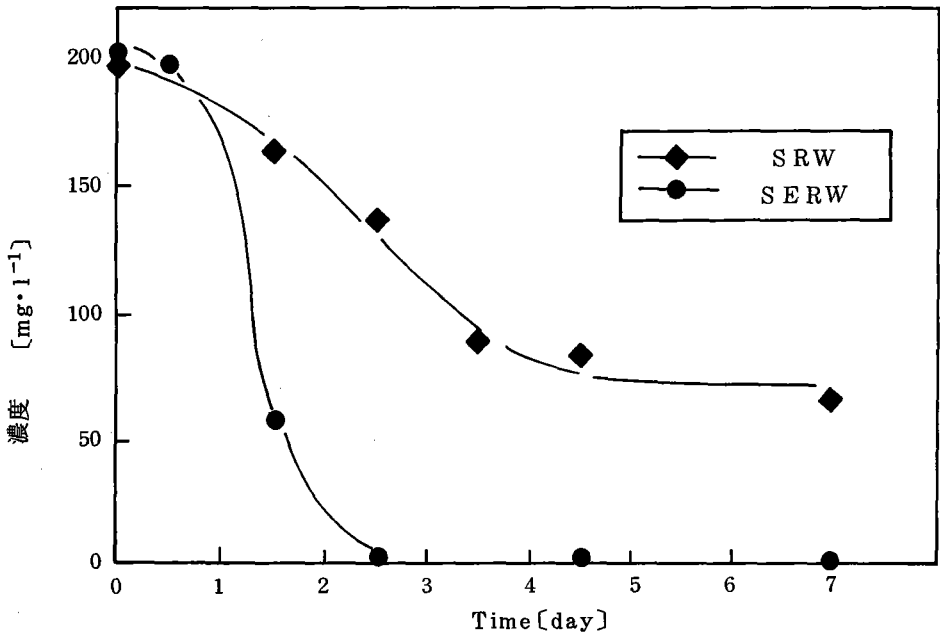


Fig. 17 底質におけるnC<sub>16</sub>濃度の経日変化

採泥地点: No. 2

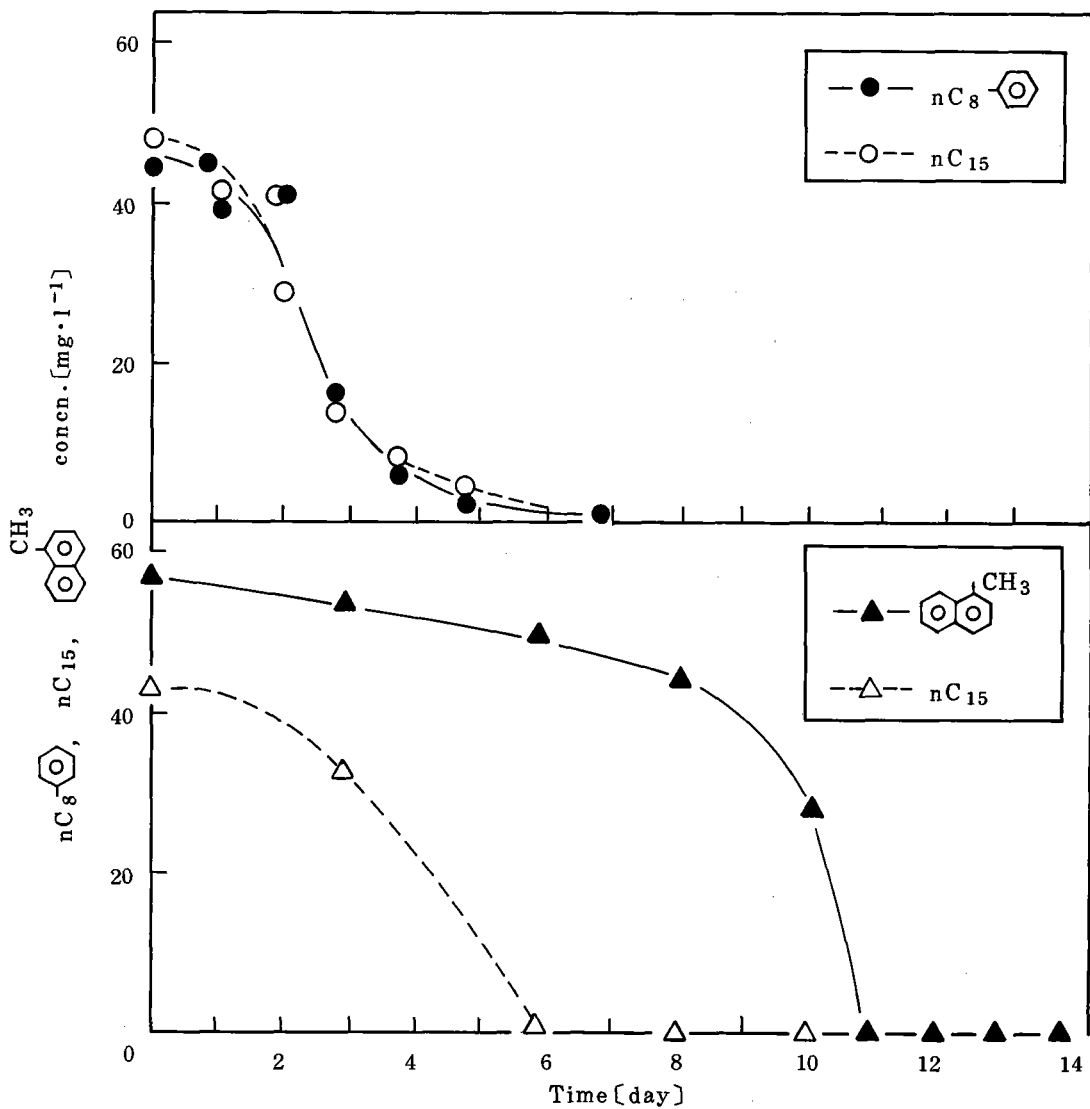


Fig. 16 ペンタデカン共存下でのオクチルベンゼンと1-メチルナフタリンの分解 (採水地点 麻3)

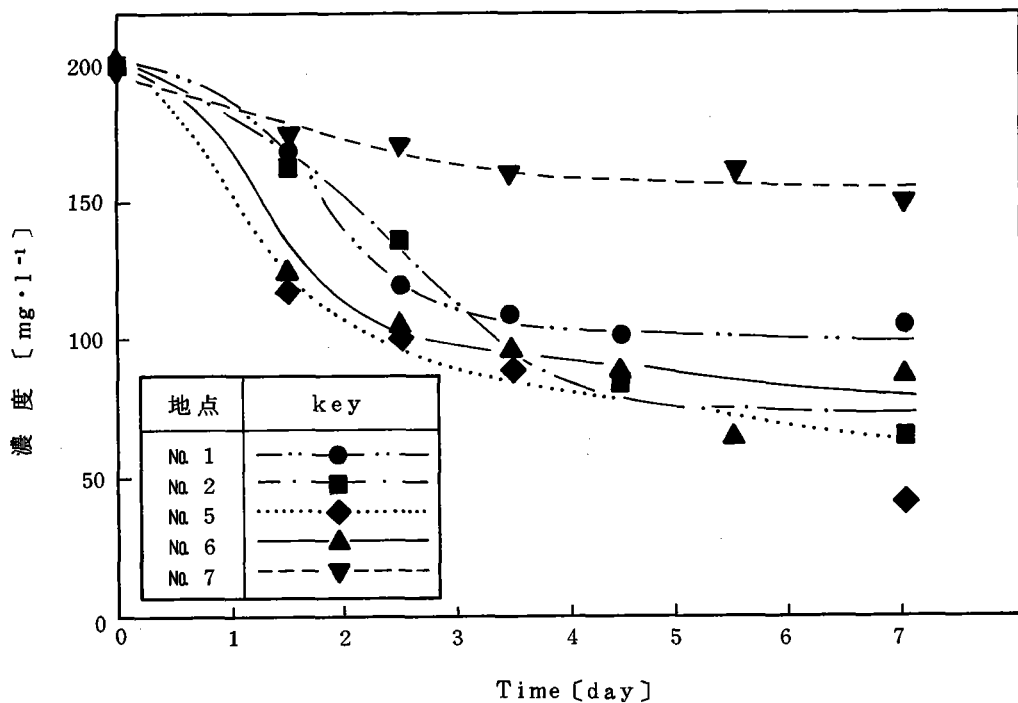


Fig. 18 各地点の底質における  $nC_{16}$  濃度の経日変化

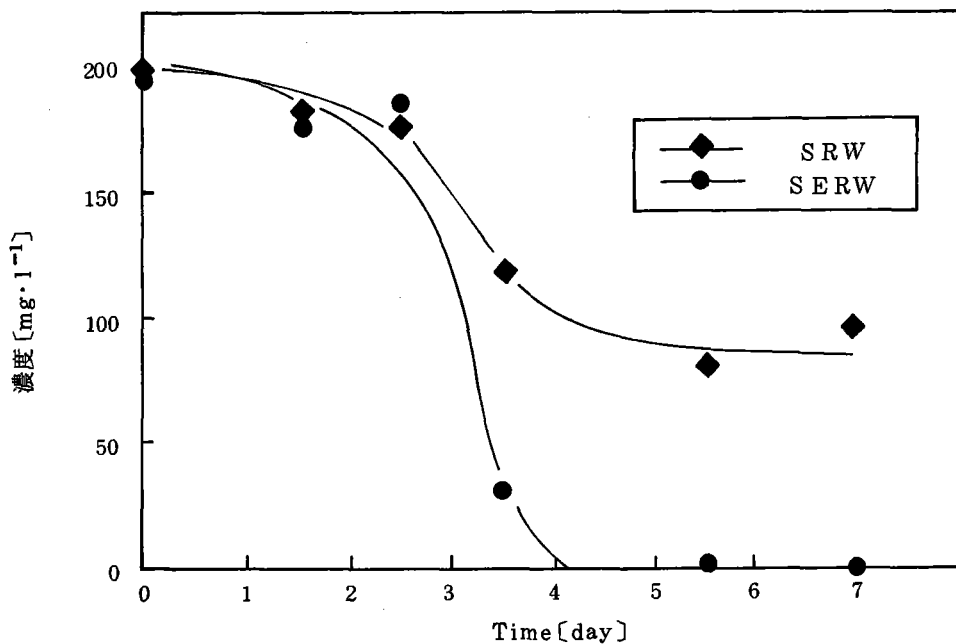


Fig. 19 底質における  $nC_8$  濃度の経日変化  
採泥地点: No. 2

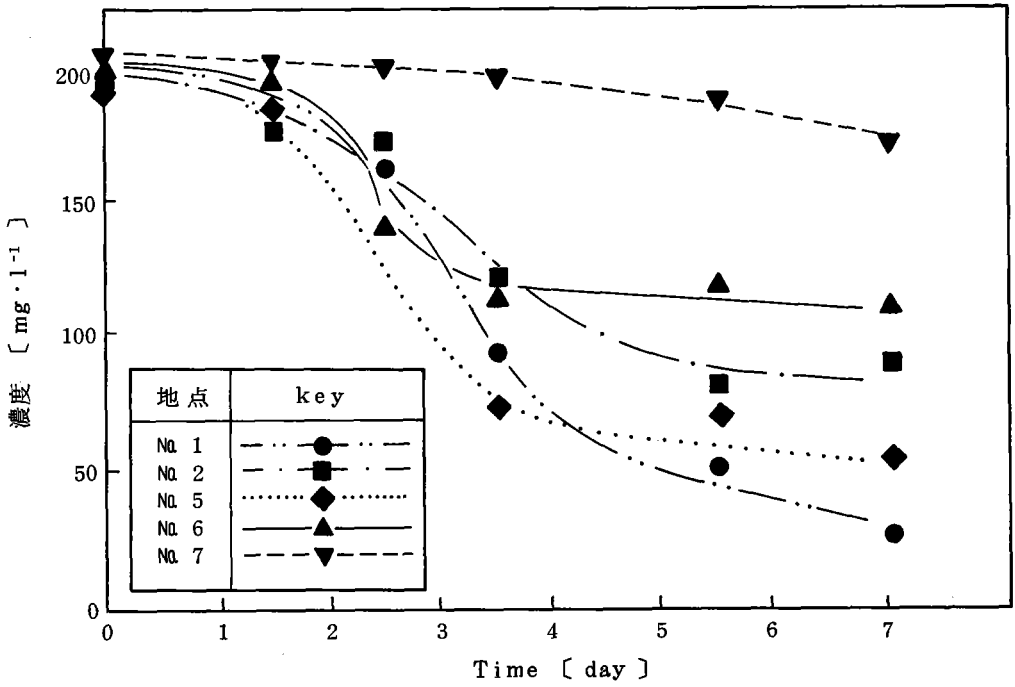


Fig. 20 各地点の底質における  $nC_{10}$  濃度の経日変化

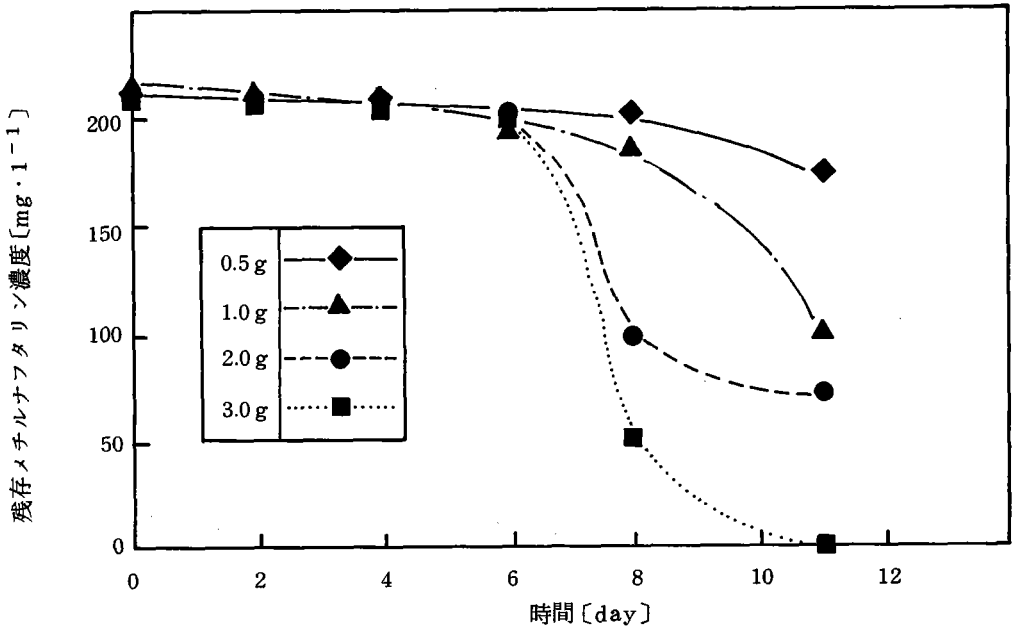
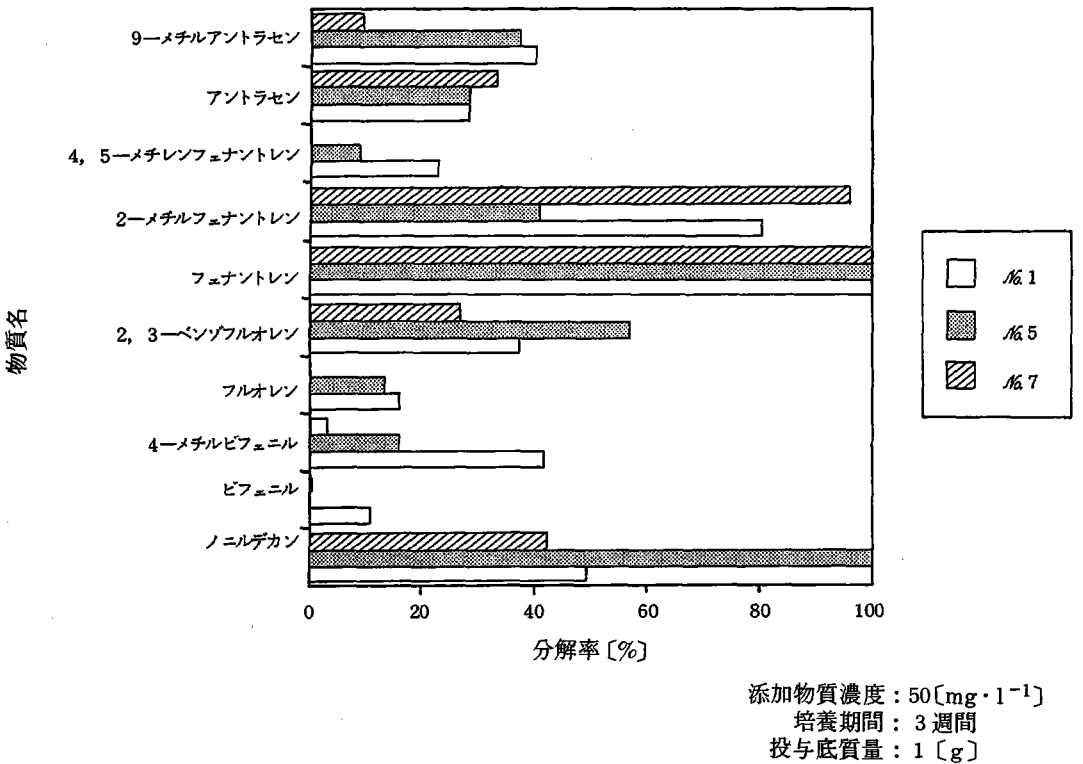
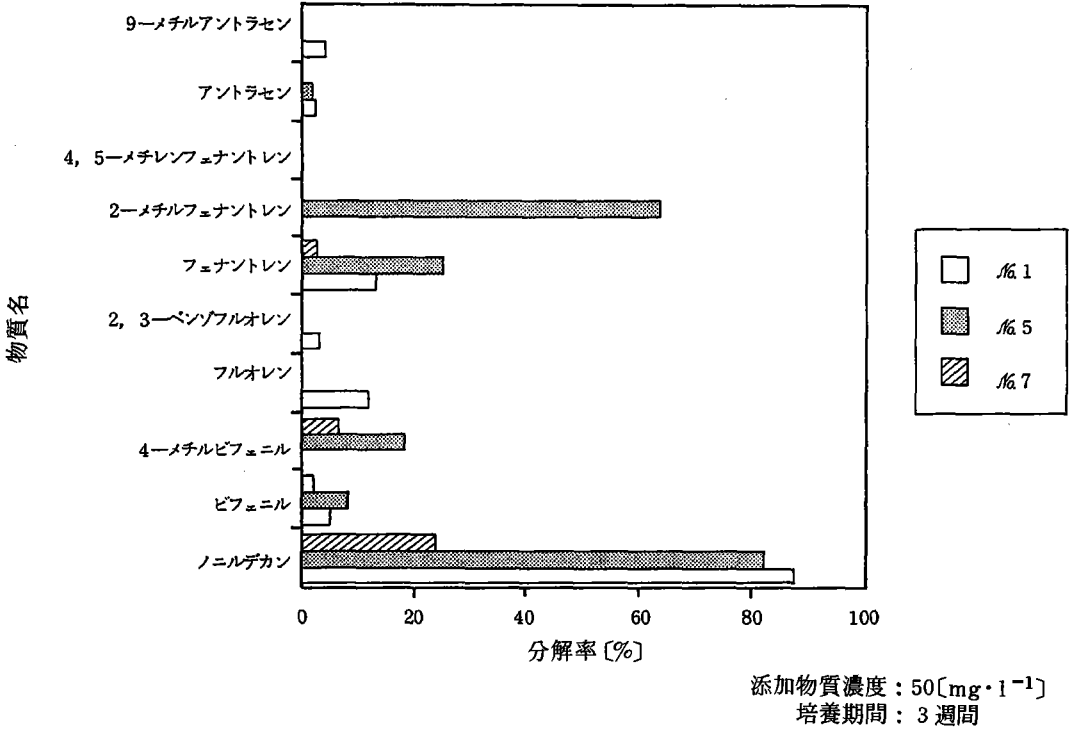


Fig. 21 底質量を変化させた場合の1-メチルナフタリンの分解  
採泥地点: No. 5





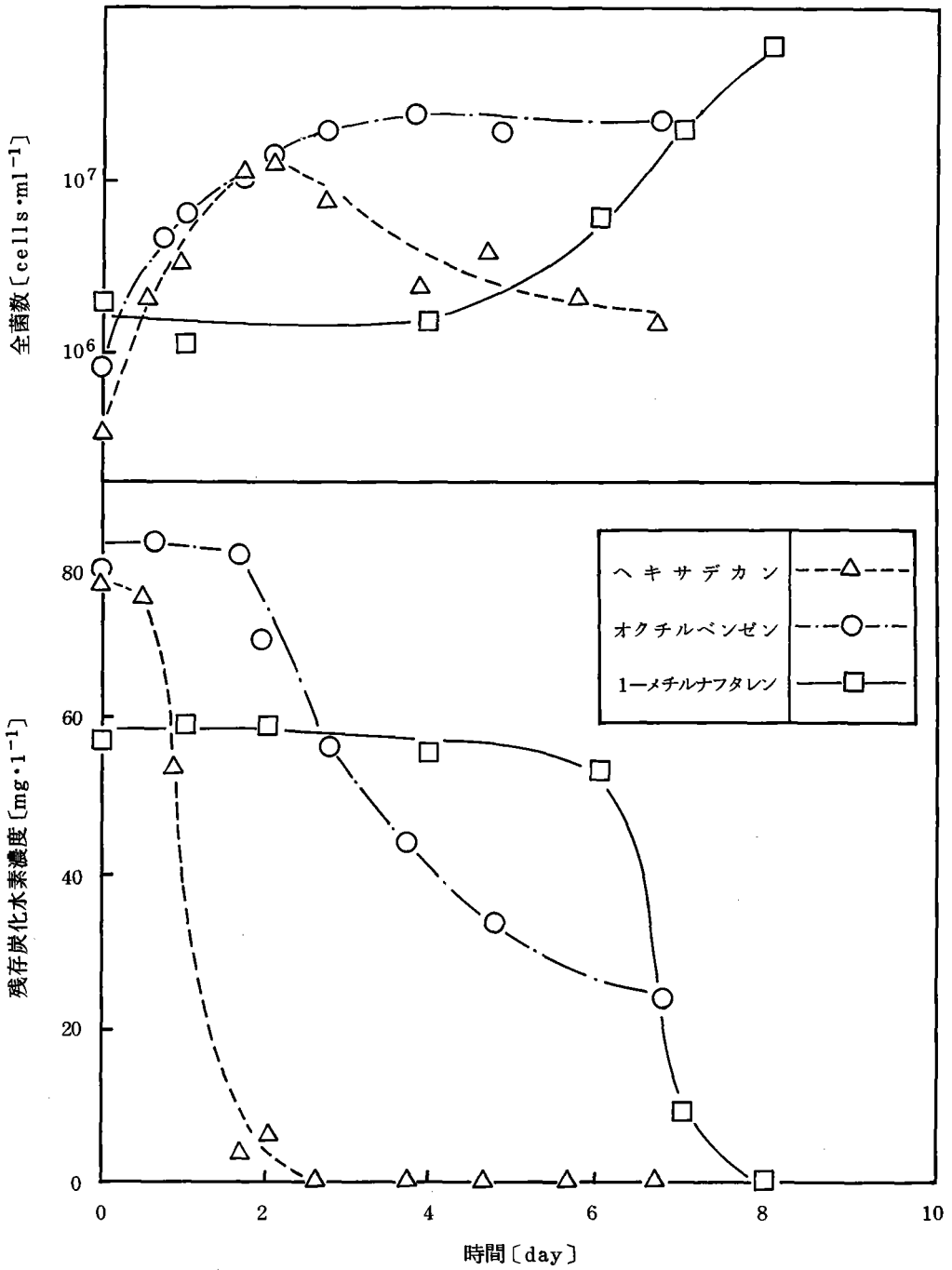


Fig. 24 炭化水素の種類の違いによる分解過程の比較  
採水地点：№2

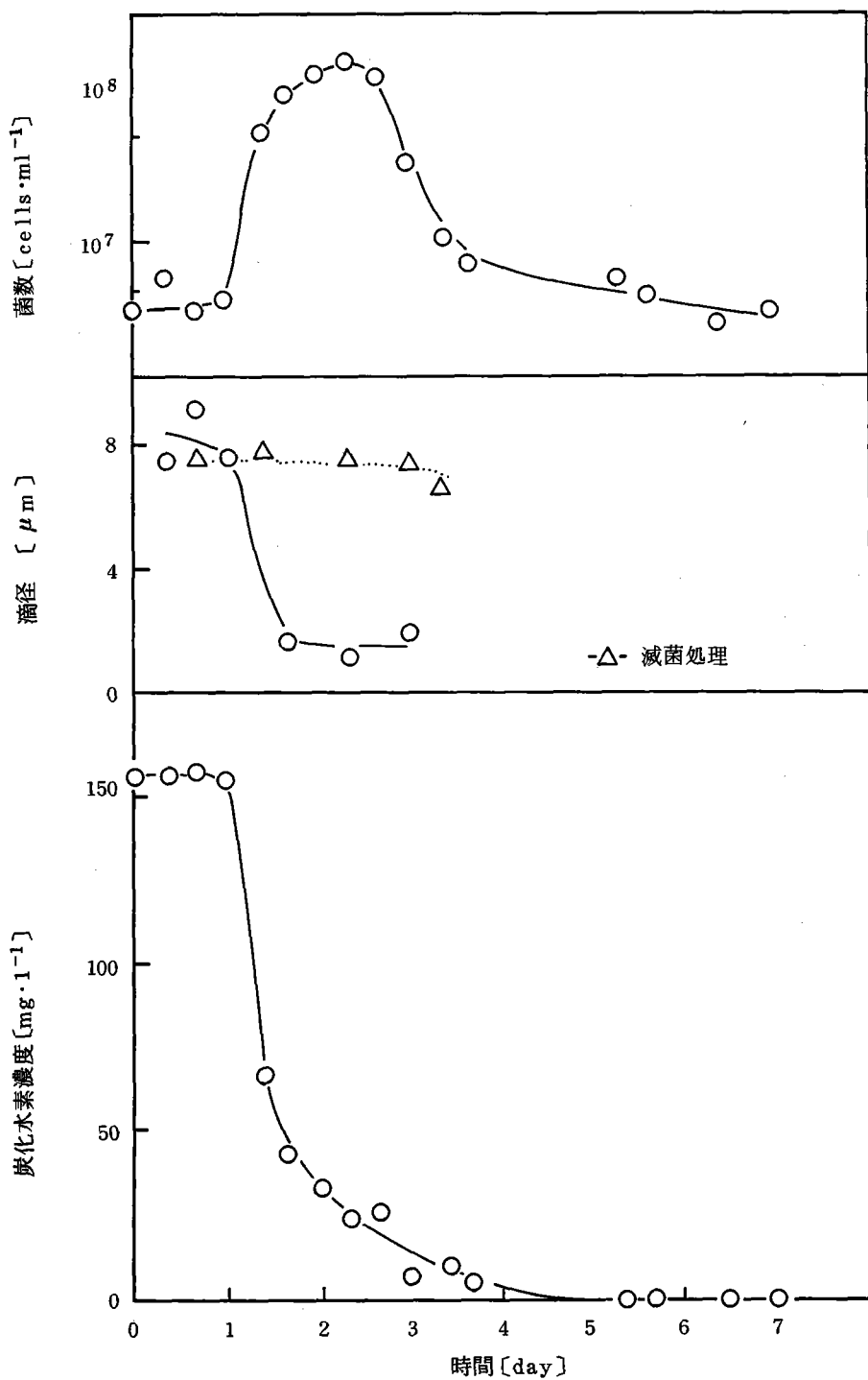


Fig. 25 ヘキサデカンの分解に伴う菌数および滴径の変化

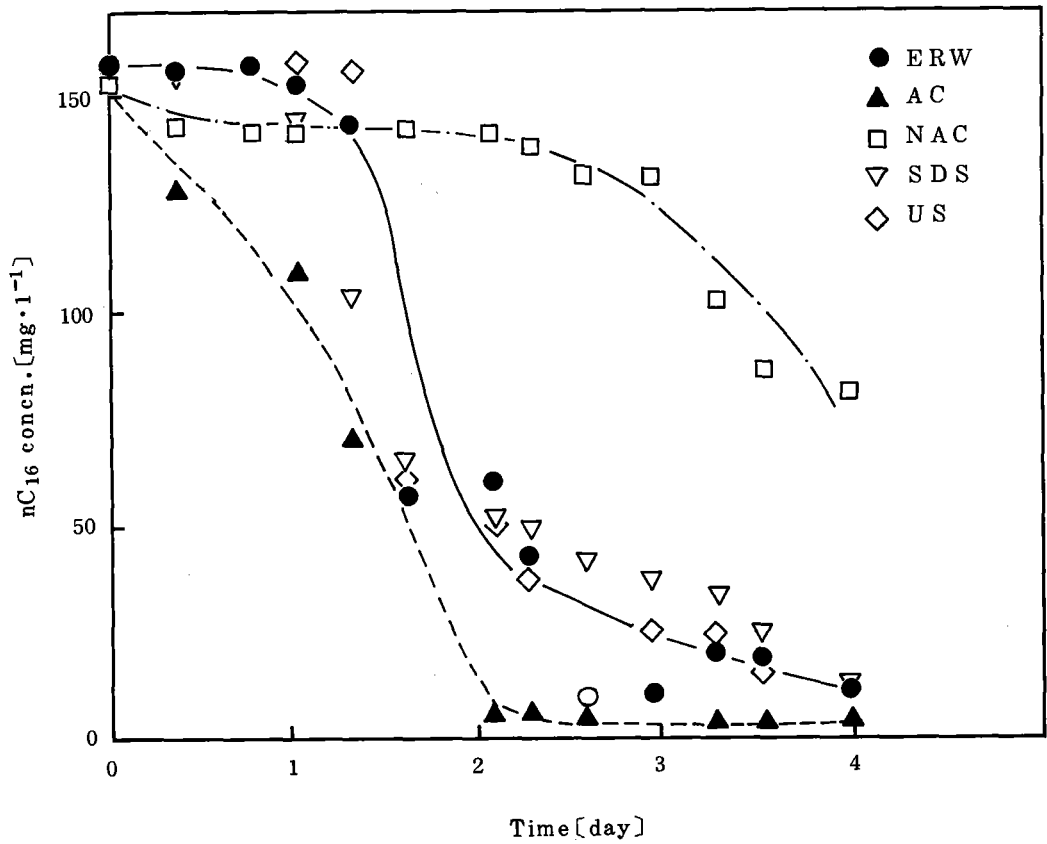


Fig. 26 ヘキサデカンの分解機作の検討  
(未適応微生物の場合)

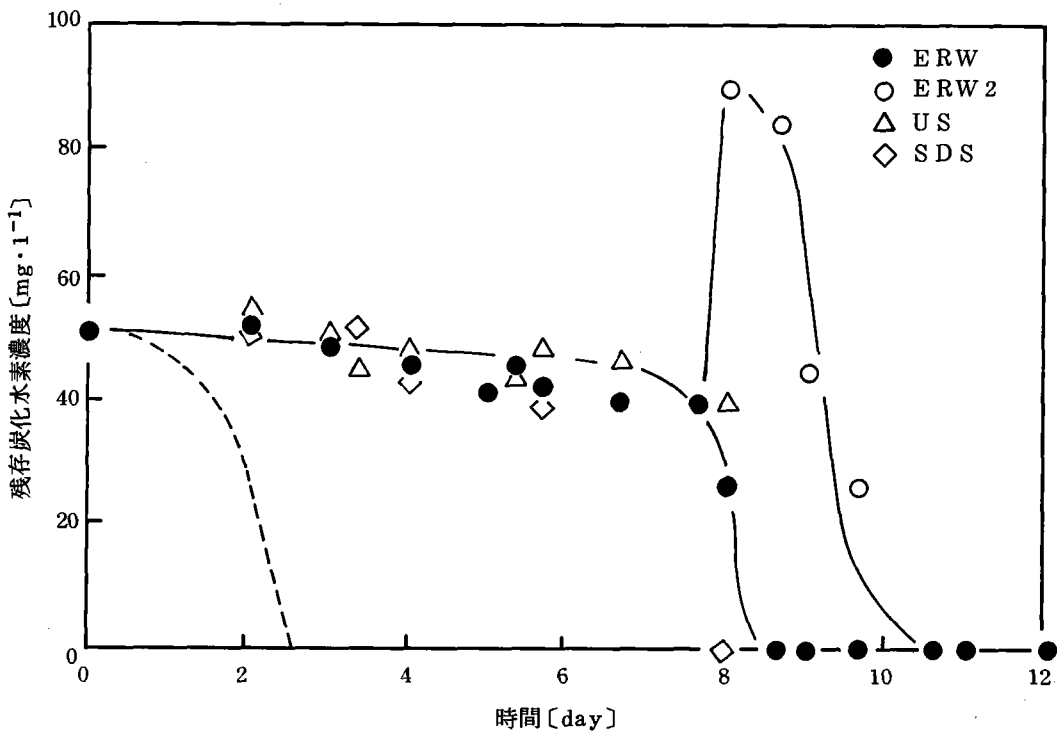


Fig. 27 1-メチルナフタレンの分解機作の検討

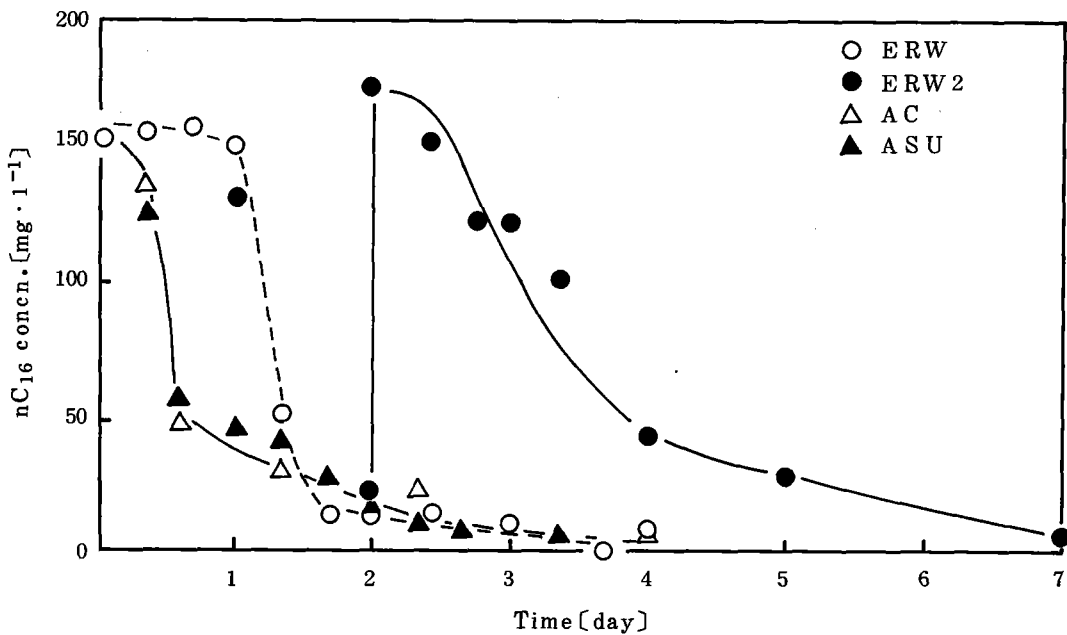


Fig. 28 ヘキサデカンの分解機作の検討 (適応微生物の場合)

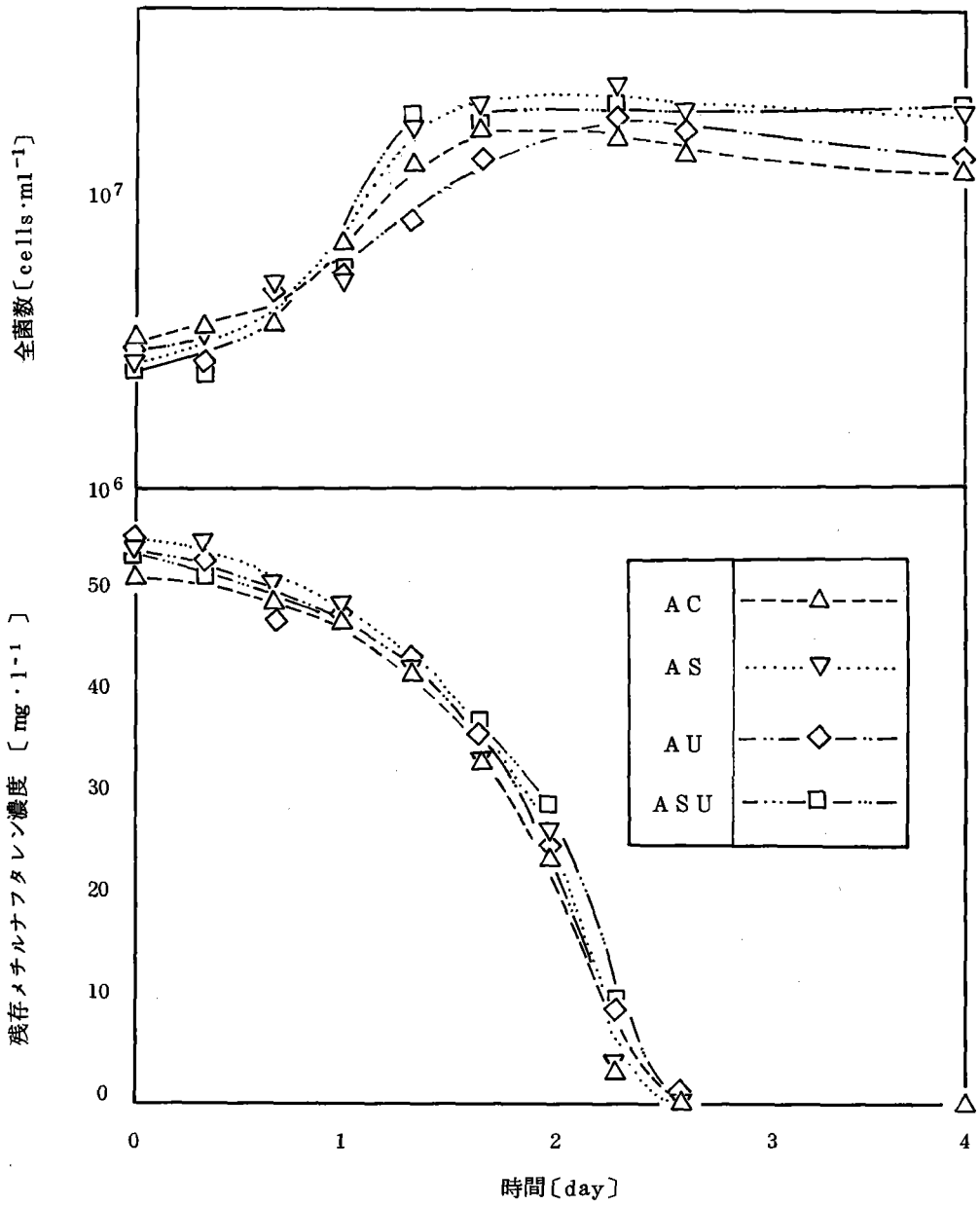


Fig. 29 界面活性剤，微細化1-メチルナフタレン滴径が  
馴化微生物の分解過程に及ぼす影響

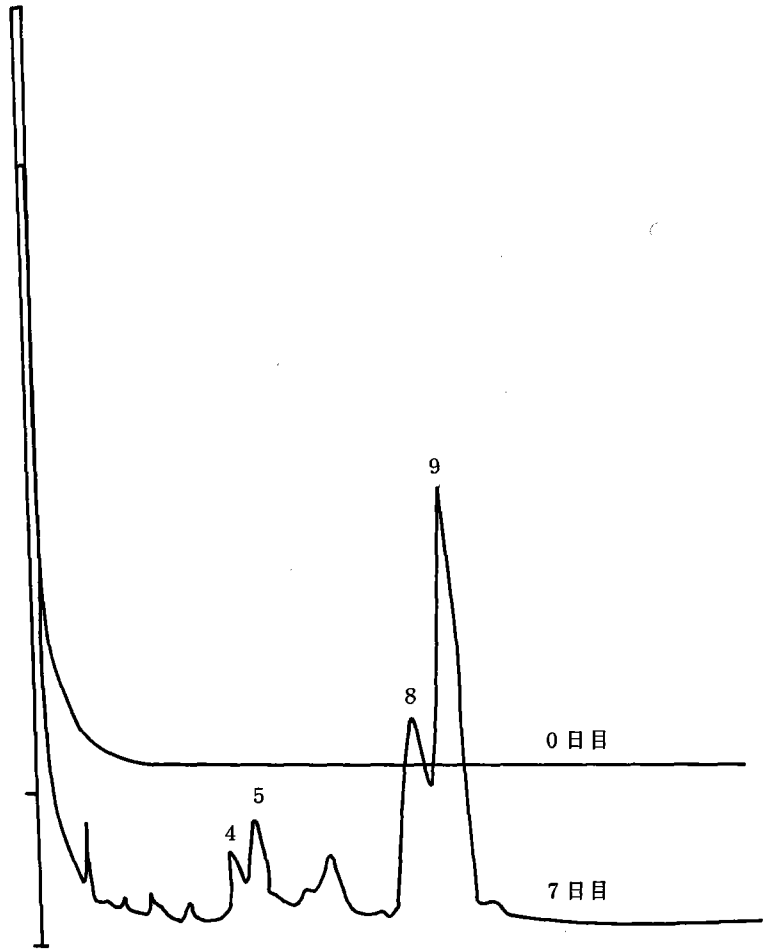


Fig. 30 培養液中の高級脂肪酸  
5 : パルミチン酸

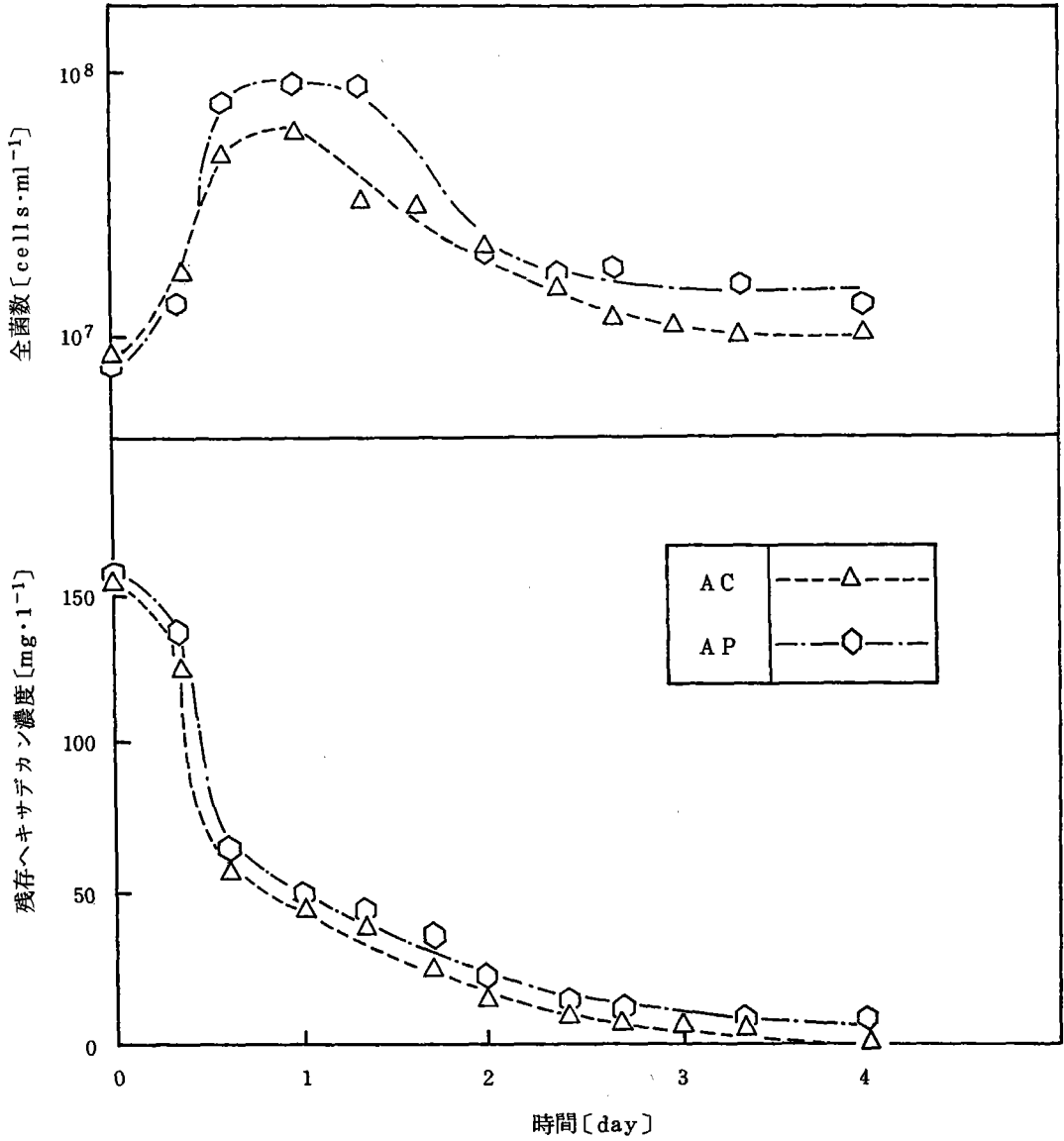


Fig. 31 パルミチン酸が馴化微生物による  
ヘキサデカンの分解過程に及ぼす影響

Table 1 使用化学物質

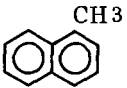
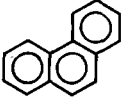
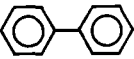
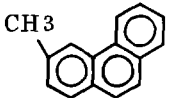
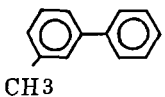
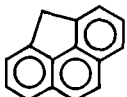
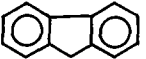
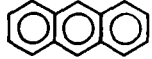
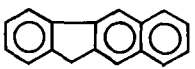
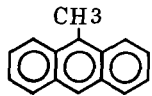
添加物質	構造	添加物質	構造
1-メチルナフタレン		フェナントレン	
ビフェニル		2-メチルフェナントレン	
4-メチルビフェニル		4,5-メチレンフェナントレン	
フルオレン		アントラセン	
2,3-ベンゾフルオレン		9-メチルアントラセン	



Table 2 炭化水素分析におけるガスクロマトグラフィーの条件

Instrument	SHIMAZU GC-8A	SIMAZU GC-14A
Column length	2[m]	25[m]
Column inside diameter	3[mm]	0.25[mm]
Column temperature	145~240[°C]	240[°C]
Liquid phase	OV-17	ULBON HR-101
% Liquid phase	5[%]	
Support material	celite 545	
Support mesh size	60~80 [mesh]	
Carrier gas	nitrogen	herium
Detector	FID	FID
Detec/Injec temperature	300/300[°C]	320/320[°C]
Integrator & Recorder	SHIMAZU CROMATOPAC C-R1B	SHIMAZU CHROMATOPAC C-R6A
Method of quantification	Internal Standard	Internal Standard

Table 3 脂肪酸分析におけるガスクロマトグラフィーの条件

Instrument	SHIMAZU GC-8A
Column length	2 [m]
Column inside diameter	3 [mm]
Column temperature	250 [°C]
Liquid phase	thermon 1000
% Liquid phase	5 [%]
Support material	Shinchrom A
Support mesh size	80~100 mesh
Carrier gas	nitrogen
Attenuation X Range	1X 10 <sup>2</sup>
Detector	F. I. D
Detec/Injec temperature	300/300 [°C]
Sample size	0.8 [μl]
Integrator & Recorder	SHIMAZU CROMATOPAC C-R6A
Method of quantification	External Standard

Table 4 各採水地点の採水条件

[mg·l<sup>-1</sup>]

Site	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> -P	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N	Cl <sup>-</sup> **	TOC	Cell**
No. 1	0.070	1.89	0.619	0.093	14.8	12.3	3.8×10 <sup>5</sup>
No. 2	0.123	2.44	2.23	0.208	8.2	8.6	1.33×10 <sup>6</sup>
No. 3	0.098	3.44	2.35	0.244	6.8	8.3	5.70×10 <sup>5</sup>
No. 4	0.147	2.76	2.66	0.244	6.1	8.9	5.70×10 <sup>5</sup>
No. 5	0.225	2.19	3.28	0.270	1.4	8.4	3.80×10 <sup>5</sup>
No. 6	1.01	4.29	2.62	0.323	1.3	10.5	3.62×10 <sup>6</sup>
No. 7	0.015	0.12	0.017	0.007	0.8	3.0	1.90×10 <sup>5</sup>

Sampling date : No. 1~No. 5 ; 1986.10.23

No. 6 ; 1987.5.8, No. 7 ; 1987.6.4

\* : [g·l<sup>-1</sup>]\*\* : Initial cell number [ml<sup>-1</sup>]

Table 5 No. 3地点における採水条件

[mg·l<sup>-1</sup>]

Run No.	Date	WaterTemp*	PO <sub>4</sub> <sup>3+</sup> -P	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N	Cl <sup>-</sup> **	Cell***
1	1986.6.6	-	0.338	2.52	1.05	0.354	-	2.48×10 <sup>5</sup>
2	1986.6.27	22.5	0.792	3.86	1.18	0.314	-	9.50×10 <sup>5</sup>
3	1986.7.26	23.4	0.155	1.53	0.82	0.290	-	5.70×10 <sup>5</sup>
4	1986.9.11	21.9	0.181	0.93	2.70	0.171	-	2.67×10 <sup>6</sup>
5	1986.10.23	7.1	0.098	3.44	2.35	0.244	6.8	5.70×10 <sup>5</sup>
6	1986.11.13	13.6	0.391	1.34	3.96	0.296	6.1	5.70×10 <sup>5</sup>
7	1986.12.10	8.6	0.435	-	3.97	0.220	5.4	6.10×10 <sup>6</sup>
8	1987.1.16	8.2	0.185	4.79	1.80	0.100	12.5	9.50×10 <sup>5</sup>
9	1987.3.3	8.9	0.220	3.75	-	-	7.0	1.90×10 <sup>5</sup>

\* : [℃]

\*\* : [g·l<sup>-1</sup>]\*\*\* : Initial cell number [ml<sup>-1</sup>]

Table 6 採泥条件

採泥日	定 点	平均水温 (℃)	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> -P濃度 (mg·l <sup>-1</sup> )	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N濃度 (mg·l <sup>-1</sup> )	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N濃度 (mg·l <sup>-1</sup> )	Cl <sup>-</sup> 濃度 (g·l <sup>-1</sup> )	乾燥重量 [mg·g 湿泥 <sup>-1</sup> ]	強熱減量 [mg·g 乾泥 <sup>-1</sup> ]
1987年 9月26日	No. 1	25.0	0.148	3.146	0.170	19.3	481.0	41.6
	No. 2	25.0	0.212	2.639	0.223	15.8	579.3	43.0
	No. 5	24.0	0.289	1.823	0.298	9.9	499.5	51.0
1987年 11月7日	No. 6	15.0	0.398	0.383			758.1	27.0
	No. 7	12.5	0.352	0.111			741.7	39.2

Table 7-1 多摩川下流域・河口域におけるn-ヘキサデカンの微生物分解による残存量〔 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 〕および分解率〔%〕

	定 点									
	NO. 1		NO. 2		NO. 3		NO. 4		No. 5	
	RW	ERW	RW	ERW	RW	ERW	RW	ERW	RW	ERW
採水日	1986年 6月 27日									
初期量	77.3	77.3	77.3	77.3	77.3	77.3	77.3	77.3		
20.5[hr]	69.7	71.1	53.9	0	25.1	1.0	7.6	6.1		
48	13.5	0	6.3	0	0	0	0	0		
90	18.8	0	0	0	0	0	0	0		
114	0	0	0	0	0	0	0	0		
162	0	0	0	0	0	0	0	0		
分解率(%)	100	100	100	100	100	100	100	100		
採水日	1986年 7月 26日									
初期量	154.7	154.7	154.7	154.7	154.7	154.7	154.7	154.7	154.7	154.7
24 [ hr]	152.8	150.5	147.1	120.6	149.8	145.9	151.7	60.2	116.6	50.0
48	120.0	37.7	80.3	11.4	93.4	0	73.5	0	91.9	7.1
90	69.6	0	38.3	0	71.7	0	71.3	0	41.0	0
114	55.5	0	33.8	0	39.9	0	60.9	0	54.2	0
138	47.6		25.8		43.5		54.6		51.6	
分解率(%)	69.2	100	83.3	100	71.9	100	64.7	100	66.7	100
採水日	1986年 6月 6日									
初期量	386.7	386.7	386.7	386.7	386.7	386.7	386.7	386.7		
23.3 [hr]	385.8	373.3	356.3	233.9	376.4	275.7	171.2	131.4		
47.8	380.7	44.7	357.2	180.6	347.1	26.0	196.2	115.4		
70.5	293.0	7.9	354.9	65.7	352.1	23.3	215.7	80.7		
113	262.0	0	333.7	46.2	276.2	0	263.4	12.0		
161	146.4	0	284.9	0	259.0	0	167.5	6.8		
分解率(%)	62.1	100	26.3	100	33.0	100	56.7	98.2		

RW : 自然河川水

ERW : 栄養塩添加河川水

( $\text{NH}_4\text{Cl}$  100  $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ ,  $\text{K}_2\text{HPO}_4$  10  $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ , 酵母エキス 10  $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$  を添加)

Table 7-2 多摩川下流域・河口域におけるn-ヘキサデカンの微生物分解による残存量〔mg・l<sup>-1</sup>〕および分解率〔%〕

	定 点									
	No. 6						No. 7			
	RW	ERW	RW	ERW	RW	ERW		RW	ERW	
採水日	1987年4月8日						同年6月4日			
初期量	77.3	77.3	154.7	154.7	386.7	386.7	初期量	77.3	77.3	
24 [hr]	63.1	1.4	134.3	56.0	375.6	397.1	20.2hr	75.5	75.8	
48	1.8	0	7.6	1.5	246.9	133.3	68.2	73.0	14.1	
72	0	0	10.0	0	105.4	42.8	116.2	69.4	10.7	
96	0	0	0	0	196.3	17.5	164.2	71.7	5.2	
120	0	0	0	0	-	13.2				
分解率(%)	100	100	100	100	49.2	65.9		8.7	93.3	

	定 点				
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5
	RW	RW	RW	RW	RW
採水日	1987年1月16日				
初期量	77.3	77.3	77.3	77.3	77.3
18 [hr]	72.3	68.3	67.9	72.2	66.5
24	73.9	69.6	72.0	71.8	58.4
42	71.3	47.8	34.7	23.4	15.9
48	65.6	57.0	28.0	13.6	12.7
66	63.6	34.3	15.7	11.2	8.8
90	56.5	16.2	12.2	2.4	5.4
138	67.7	2.3	5.5	0	1.4
分解率(%)	12.4	97.0	92.9	100	98.2

RW : 自然河川水

ERW : 栄養塩添加河川水

(NH<sub>4</sub>Cl 100 mg・l<sup>-1</sup>, K<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> 10 mg・l<sup>-1</sup>, 酵母エキス 10 mg・l<sup>-1</sup> を添加)

Table 8 ヘキサデカンの分解にともなう栄養塩濃度の変化

培養時間 [hr]	残存濃度 [mg · l <sup>-1</sup> ]	菌数 [10 <sup>6</sup> /ml]	PO <sub>4</sub> -P [μg/l]	NH <sub>4</sub> -N [μg/l]	NO <sub>2</sub> -N [μg/l]	表面張力 dyn/cm <sup>2</sup>
0	147.8	14.0	317.3	2021	364	77.1
7.9	146.9	12.9	347.6	2022	349	74.5
15.6	148.2	12.3	501.0	2063	397	75.4
24.0	141.7	14.3	420.3	2641	368	78.0
31.9	99.7	18.0	174.0	380	355	77.4
39.8	64.7	36.9	34.8	160	305	78.2
48.0	31.7		16.8	42	299	
55.9	21.1	28.9	36.2	30	8	77.4
63.8	32.5	32.3	41.8	88	42	74.5
72.0	15.2	39.1	36.2	96	19	78.0
80.0	6.0	24.3	30.7	45	5	77.4
87.8	7.4	18.9	40.4	0	7	75.2
103.9	9.4	21.1	44.6	45	8	78.1
111.8	8.5	19.4	37.6	45	6	75.4
120.0	8.2	18.0	33.4	16	6	74.9
135.8	4.3	11.7	39.0	48	7	74.6
144.0	4.9	9.7	44.6	68	6	77.5
159.8	4.3	10.3	112.8	32	9	
168.0	5.0	17.1	30.7	64	5	76.0

Table 9 多摩川下流域におけるn-アルカンの分解特性  
 -微生物分解による残存量[ $\mu\text{mole}\cdot\text{l}^{-1}$ ]

[day]	単 独				4 種 混 合			
	C18	C21	C27	C30	C18	C21	C27	C30
初期量	50	133	125	104	27	66	66	52
0.5	47	132	120	101	25	65	63	50
1	11	7	107	95	5	29	59	48
2	2	2	24	14	1	0	29	29
3	1	12	10	8	0	0	29	29
5	0	0	7	6	0	0	11	13
10	0	0	6	1	0	0	3	4
	2 種 混 合							
[day]	C18	C21	C21	C27	C27	C30	C18	C30
初期量	50	46	123	133	81	51	49	103
0.5	48	39	120	133			46	102
1	40	40	65	112			7	95
2	8	18	14	70			2	54
3	2	6	5	52	38	39	0	30
5	2	0	0	16	(40)	(40)	0	12
10	0	0	0	9	12	22	0	2

(採水日：1988年8月29日，11月9日，12月15日)

Table 10 多摩川下流域・河口域におけるオクチルベンゼンの微生物分解による残存量〔 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 〕および分解〔%〕

	定 点									
	No. 1		No. 2		No. 3		No. 4		No. 5	
	RW	ERW	RW	ERW	RW	ERW	RW	ERW	RW	ERW
採水日	1986年 9月 11日									
初期量	85.8	85.8	85.8	85.8	85.8	85.8	85.8	85.8	85.8	85.8
24 hr	85.8	83.9	87.5	85.8	86.4	88.1	80.9	82.7	85.2	82.6
46 hr	75.9	47.8	70.5	41.0	63.1	23.4	72.0	13.9	64.7	9.1
90 hr	39.8	5.3	44.7	5.0	28.4	15.6	40.6	3.7	31.6	0
114 hr	33.6	0	33.7	0	31.7	0	39.9	0	18.7	0
162 hr	11.7		24.5		21.0		16.1		20.6	
分解率(%)	86.4	100	71.4	100	75.5	100	81.2	100	76.0	100

	定 点						定 点			
	No. 6		No. 7				No.1	No.2	No.3	No.5
	RW	ERW		RW	ERW		RW	RW	RW	RW
採水日	1987年5月8日		1987年6月4日			採水日	1987年3月3日			
初期量	85.8	85.8	初期量	85.8	85.8	初期量	90.8	90.8	90.8	90.8
19.9 hr	84.5	81.9	44.2 hr	89.6	88.9	47 hr	91.8	87.6	93.7	89.2
43.9 hr	—	32.5	92.2 hr	88.4	73.4	96 hr	85.8	74.0	88.4	23.8
67.9 hr	11.8	6.1	140.2 hr	85.7	24.6	144 hr	78.1	34.0	51.8	2.5
91.9 hr	3.6	0	164.2 hr	88.2	0	168 hr	72.3	25.7	10.3	0.6
115.9 hr	2.6	0				192 hr	58.9	5.8	32.5	1.9
139.9 hr	0	0				240 hr	58.7	3.0	15.9	2.5
分解率(%)	100	100	分解率	0	100	分解率	35.4	96.7	82.5	97.2

RW : 自然河川水

ERW : 栄養塩添加河川水

( $\text{NH}_4\text{Cl}$  100  $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ ,  $\text{K}_2\text{HPO}_4$  10  $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ , 酵母エキス 10  $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$  を添加)



Table 11-1 多摩川下流域・河口域におけるペンタデカノンとオクタルベゾン混合液の微生物分解による残存量[ $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ ]および分解率[%]

1986年10月23日															
採水日	No. 1			No. 2			No. 3			No. 4			No. 5		
	RW	ERW	Chemical	RW	ERW	Chemical	RW	ERW	Chemical	RW	ERW	Chemical	RW	ERW	Chemical
初期量	45.0	45.0	$\text{nC}_{15} : \text{C}_8$	45.0	45.0	$\text{nC}_{15} : \text{C}_8$	45.0	45.0	$\text{nC}_{15} : \text{C}_8$	45.0	45.0	$\text{nC}_{15} : \text{C}_8$	45.0	45.0	$\text{nC}_{15} : \text{C}_8$
24 hr	45.8	47.0		45.4	45.8		41.4	38.5		42.7	44.2		47.5	42.1	
46 hr	32.4	54.2		30.5	51.1		29.0	40.6		10.1	22.5		8.5	4.6	
66 hr	31.1	34.5		9.3	17.4		13.0	16.5		14.6	18.9		9.8	5.5	
90 hr	34.0	19.9		6.6	15.1		7.8	5.0		5.1	2.8		8.0	2.7	
114 hr	26.0	20.2		6.7	6.8		5.4	2.3		2.5	1.1		8.0	1.1	
162 hr	21.8	14.4		2.9	1.6		1.5	1.5		1.0	0		2.4	0	
分解率(%)	43.2	66.4		92.4	96.3		96.1	96.5		97.4	100		93.8	100	

RW : 自然河川水

ERW : 栄養塩添加河川水

( $\text{NH}_4\text{Cl}$   $100 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ ,  $\text{K}_2 \text{HPO}_4$   $10 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ , 酵母エキス  $10 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$  を添加)

Table 11-2 多摩川下流域・河口域におけるペンタデタンとオクチルベンゼン混合液の微生物分解による残存量〔mg・l<sup>-1</sup>〕および分解率〔%〕

採水日	1987年5月8日				1987年6月4日				
	No. 6				No. 7				
	RW		ERW		RW		ERW		
	nC <sub>15</sub>	<chem>C8</chem>	nC <sub>15</sub>	<chem>C8</chem>		nC <sub>15</sub>	<chem>C8</chem>	nC <sub>15</sub>	<chem>C8</chem>
初期量	45.0	45.0	45.0	45.0	初期量	45.0	45.0	45.0	45.0
20 hr	38.4	38.3	42.3	40.9	20 hr	39.4	44.4	38.5	43.1
44 hr	18.8	4.9	0	0	68 hr	37.3	42.0	12.5	3.5
68 hr	0	0	0	0	116 hr	35.3	38.4	0	0
92 hr	0	0	0	0	164 hr	37.0	29.3	0	0
116 hr	0	0	0	0					
140 hr	0	0	0	0					
分解率(%)	100	100	100	100	分解率	17.8	34.9	100	100

RW : 自然河川水









ERW : 栄養塩添加河川水

(NH<sub>4</sub>Cl 100mg・l<sup>-1</sup>, K<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> 10mg・l<sup>-1</sup>, 酵母エキス 10mg・l<sup>-1</sup>を添加)

Table 12 多摩川下流域・河口域における1-メチルナフタレンの微生物分解による残存量〔mg・l<sup>-1</sup>〕および分解率〔%〕





	定 点							
	No.1	No.2	No.3	No.5	No.6	No.7		
採水日	1987年3月3日				5月8日	6月4日		
初期量	62.6	56.5	62.8	63.7	初期量	53.0	初期量	50.9
2 [day]	58.2	60.1	59.6	60.2	1.8day	51.6	1.8day	49.8
4	45.2	56.5	57.2	52.2	2.8	48.9	3.8	48.2
6	37.3	54.4	28.9	52.2	3.8	47.9	5.8	47.5
7	36.4	9.3	4.1	52.3	4.8	32.4	7.8	46.4
8	24.4	0	0.8	36.1	5.8	0	9.8	45.0
10	17.5	-	0.1	0.1	6.8	0	14	44.9
分解率(%)	72.0	100	99.8	99.8	分解率	100	分解率	11.8

Table 13-1 多摩川下流域・河口域におけるペンタデカノンと1-メチルナフタレン混合液の微生物分解による残存量〔mg・l<sup>-1</sup>〕および分解率〔%〕

1986年12月10日														
採水日	No. 1		No. 2		No. 3		No. 4		No. 5					
	RW	ERW	RW	ERW	RW	ERW	RW	ERW	RW	ERW				
定 点														
初期量	42.5	55.5	42.0	56.2	43.8	56.6	43.0	56.6	44.8	55.9	44.6	53.8	45.6	55.7
1.75[day]	42.5	20.4	0	54.0	10.3	53.8	33.1	53.2	8.9	44.7	2.7	53.2	4.3	50.9
2.75														
3.75	21.1	0	0	51.4	0	33.6	1.4	49.9	0	49.9	0	42.8	0	0
5.75	41.4	0	0	0	0	15.5	0	43.9	0	0	0	0	0	0
7.75														
8.75														
9.75	31.8	0	0	0	0	0	0	28.1	0	0	0	0	0	0
10.75	30.9	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
11.75	32.4	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
12.75	33.4	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
13.75	33.0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
分解率(%)	14.1	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100

RW : 自然河川水  
 ERW : 栄養塩添加河川水  
 (NH<sub>4</sub>C1 100mg・l<sup>-1</sup>, K<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> 10mg・l<sup>-1</sup> 酵母エキス 10mg・l<sup>-1</sup> を添加)

Table 13-2 多摩川下流域・河口域におけるペンタデカンと1-メチルナフタレン  
混合液の微生物分解による残存量〔 $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 〕および分解率〔%〕

採水日	1987年5月8日				1987年6月4日			
定 点	No. 6				No. 7			
	RW		ERW		RW		ERW	
	$n\text{C}_{15}$		$n\text{C}_{15}$		$n\text{C}_{15}$		$n\text{C}_{15}$	
初期量	43.9	54.0	42.9	52.4	38.2	50.5	38.0	51.4
1.8 day	41.5	50.8	43.4	53.4	38.7	50.2	37.7	50.4
2.8 day	35.8	50.2	4.2	48.3				
3.8 day	40.0	50.4	0	38.4	38.2	50.1	37.8	50.3
4.8 day	0	41.2	0	36.5				
5.8 day	0	26.1	0	0	38.1	52.0	32.7	49.5
6.8 day	—	3.0	0	0				
7.8 day	0	0	0	0	37.3	49.6	27.7	49.1
8.8 day	0	0	0	0				
9.8 day	0	0	0	0	35.8	48.9	21.9	44.4
11.8 day	0	0	0	0	36.3	47.1	16.2	45.2
13.8 day	0	0	0	0	36.8	48.2	10.4	43.7
分解率(%)	100	100	100	100	3.7	4.6	72.6	15.0

RW : 自然河川水

ERW : 栄養塩添加河川水

( $\text{NH}_4\text{Cl}$   $100\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ ,  $\text{K}_2\text{HPO}_4$   $10\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ , 酵母エキス  $10\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  を添加)

Table 14 多摩川下流域・河口域の底質におけるヘキサデカンの微生物分解による残存量〔 $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 〕および分解率〔%〕

採泥日	1987年9月26日						1987年11月7日					
	No. 1		No. 2		No. 5		No. 6		No. 7			
	SERW	SRW	SERW	SRW	SERW	SRW	SERW	SRW	SERW	SRW		
初期値	202.1	203.4	204.5	202.7	196.3	202.4	195.3	205.4	197.6	195.0		
0.5 day	196.3		199.3		194.6							
1.5 day	164.7	169.7	57.6	164.2	151.5	117.2	94.8	121.9	101.0	174.5		
2.5 day	23.5	118.1	2.6	135.8	41.5	102.7	63.3	103.3		171.2		
3.5 day		107.9		91.0		90.3	77.1	94.2	100.4	160.4		
4.5 day	0.5	99.4	0	84.3	0	96.9			87.9			
5.5 day							3.2	64.6	37.6	163.8		
6.5 day												
7.0 day	0	104.7	0	66.2	0	35.2	0	86.5	44.5	147.0		
分解率(%)	100	48.9	100	67.3	100	82.6	100	57.9	77.5	24.6		

S R W : 底質 + 減菌河川水

S E R W : 底質 + 減菌栄養塩添加河川水

Table 15 多摩川下流域・河口域の底質におけるオクテルベンゼンの微生物解による残存量  
〔mg・l<sup>-1</sup>〕および分解率〔%〕

採泥日	1987年9月26日						1987年11月7日			
	No. 1		No. 2		No. 5		No. 6		No. 7	
定 点	SERW	SRW	SERW	SRW	SERW	SRW	SERW	SRW	SERW	SRW
初期量	197.1	196.0	192.9	196.2	179.5	189.9	200.5	201.1	200.3	202.8
1.5 day	169.4	160.2	174.7	176.7	171.9	183.9	132.1	193.8	198.3	200.1
2.5 day		161.2		174.4		61.1		140.7		198.8
3.5 day	112.3	90.7	185.1	118.1	122.2	74.8	22.8	116.1	177.2	196.6
4.5 day	47.4		28.8		65.3		3.8		14.9	
5.5 day	0	50.7	1.5	79.5	0.7	74.2	0	120.9	10.4	189.7
7.0 day	0	23.5	0	94.0	0	56.0	0	108.6	3.3	170.2
分解率(%)	100	88.0	100	52.1	100	70.5	100	46.0	98.4	16.1

SRW : 底質+滅菌河川水

SERW : 底質+滅菌栄養塩添加河川水

Table 16 多摩川下流のNo. 5地点の底質における1-メチルナフタレンの  
微生物分解による残存量〔mg・l<sup>-1</sup>〕および分解率〔%〕  
(採水日: 1987年12月16日)

	0.5 g	1.0 g	2.0 g	3.0 g
初期量	212.1	215.2	213.5	210.5
2 day	207.6	210.5	210.8	209.3
4 day	210.5	206.9	207.1	203.4
6 day	205.5	192.9	203.5	200.9
8 day	203.8	186.4	98.0	52.0
11 day	174.0	100.0	73.7	0
分解率(%)	18.0	53.5	65.5	100

Table 17 多摩川流域の水質と底質における芳香族炭化水素の分解 (採水日: 1987年9月16日)

物質名	No. 1						No. 5					
	水質			底泥			水質			底泥		
	アラック	RW	ERW	アラック	SRW	SERW	アラック	SRW	SERW	アラック	SRW	SERW
ニトロベンゼン	49.1	6.0(87.8)	0.0(100)	30.4	15.3(49.6)	4.8(84.1)	47.9	8.4(82.5)	0 (100)	32.1	0 (100)	0 (100)
ヒフェニル	59.1	56.1( 5.0)	54.9( 7.0)	62.9	55.9(11.1)	62.1( 1.2)	56.5	52.0( 8.0)	47.7(15.5)	59.6	62.7( 0 )	0 (100)
4-メチルフェニル	50.1	51.0( 0 )	46.7( 6.8)	60.2	35.0(42.0)	10.5(82.6)	58.3	47.6(18.5)	33.3(42.9)	59.2	49.8(16.0)	11.4(80.8)
ナフタレン	50.6	44.5(12.0)	41.7(17.5)	39.6	33.2(16.1)	32.7(17.3)	46.9	46.6( 0.6)	41.3(11.9)	38.7	33.5(13.5)	35.6( 8.1)
2,3-ベンゾナフタレン	45.4	43.4( 3.5)	35.8(21.0)	32.6	20.3(37.8)	18.7(42.6)	43.9	42.2( 0.6)	37.3(15.0)	33.6	14.4(57.1)	19.6(41.5)
フェナントレン	56.2	48.6(13.6)	44.1(21.6)	48.8	0 (100)	0 (100)	46.5	45.0(25.6)	21.1(65.0)	45.1	0 (100)	0 (100)
2-メチルフェナントレン	55.2	58.4( 0 )	40.4(26.8)	28.3	5.5(80.5)	0.3(98.9)	55.8	20.0(64.1)	0 (100)	29.0	17.0(41.3)	16.0(44.9)
4,5-メチルフェナントレン	33.6	35.4( 0 )	30.5( 9.2)	39.4	30.3(23.0)	32.7(17.1)	32.4	36.1( 0 )	32.9( 0 )	39.8	36.3( 8.8)	27.1(31.9)
アントラセン	36.8	35.7( 2.9)	31.4( 3.9)	37.0	26.4(28.6)	25.9(30.0)	36.9	36.1( 2.3)	35.5( 3.9)	48.0	34.2(28.8)	31.4(34.5)
9-メチルアントラセン	43.8	41.8( 4.5)	33.1(15.6)	5.5	15.1(10.5)	15.8(37.8)	39.9	45.6( 0 )	33.7(15.6)	28.7	17.9(37.6)	12.8(55.5)

物質名	No. 7					
	水質			底泥		
	アラック	RW	ERW	アラック	SRW	SERW
ニトロベンゼン	47.9	36.3(24.1)	0 (100)	48.4	28.0(42.2)	0 (100)
ヒフェニル	59.3	57.9( 2.3)	55.9( 5.7)	56.0	55.5( 0.8)	62.5( 0 )
4-メチルフェニル	50.6	47.3( 6.6)	41.1(18.9)	53.4	51.6( 3.2)	0 (100)
ナフタレン	47.2	49.0( 0 )	46.7( 0.9)	37.1	40.3( 0 )	45.0( 0 )
2,3-ベンゾナフタレン	45.2	45.4( 0 )	41.0( 9.2)	33.7	24.5(27.2)	27.5(18.3)
フェナントレン	62.1	60.3( 2.9)	55.8(10.2)	43.2	0 (100)	0 (100)
2-メチルフェナントレン	50.4	59.0( 0 )	52.7( 0 )	29.8	1.1(96.3)	0 (100)
4,5-メチルフェナントレン	34.5	37.5( 0 )	35.8( 0 )	42.2	46.4( 0 )	47.3( 1.1)
アントラセン	36.9	38.2( 0 )	31.1(15.7)	42.5	28.3(33.4)	29.3(30.0)
9-メチルアントラセン	34.4	35.8( 0 )	34.4( 0 )	28.8	26.1( 9.4)	26.5( 7.9)

初期添加濃度: 50mg・l<sup>-1</sup>  
 底泥投与量: 1.0mg・10ml<sup>-1</sup>  
 栄養塩: NH<sub>4</sub>Cl 100mg・l<sup>-1</sup>, K<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> 10mg・l<sup>-1</sup>  
 培養期間: 3週間  
 カッコ内は分解率(%)

Table 18 ヘキサデカンの分解における分解菌と油滴の関係〔mg・l<sup>-1</sup>〕

培養時間	ERW	AC	NAC	SDS	US
0 [hr]	157.6	156.7	154.1	153.3	149.8
9	156.3	128.2	143.0	154.9	154.9
19	158.5	127.4	141.3	157.9	157.4
25	153.0	108.4	141.1	144.0	157.5
31	143.5	70.0	142.9	103.0	155.4
39	57.4	72.0	142.3	66.0	61.1
50	61.8	5.6	140.9	52.4	52.2
55	44.0	6.2	138.1	50.7	37.4
62	8.3	6.2	131.0	42.1	43.7
71	10.0	32.9	131.1	38.1	25.2
79	20.8	3.5	101.9	34.1	25.5
85	20.6	3.7	85.2	24.9	13.8
96	10.3	4.4	83.6	11.0	11.8

ERW : 栄養塩添加河川水で通常に培養

AC : ERWで2日間前培養した後に集菌し新たにERWにて培養

NAC : ERWで2日間前培養した後に培養液を滅菌ろ過し, 新たに菌を接種

SDS : ERWにドデシル硫酸ナトリウムを10mg・l<sup>-1</sup>添加

US : ヘキサデカンを超音波で微細化



Table 19 1-メチルナフタレンの分解における分解菌と油滴の関係  
 [mg · l<sup>-1</sup>]

培養時間	ERW	ERW2	SDS	US
0[hr]	52.1	52.1	51.5	51.0
48	52.2	52.2	51.1	54.1
72	48.4	48.4	50.6	51.8
96	45.2	45.2	52.3	44.8
120	41.2	41.2	43.4	48.5
128	46.0	46.0	42.4	43.5
136	42.2	42.2	39.6	49.0
160	39.7	39.7		47.3
184	39.3	39.3	40.9	39.7
192	26.2	89.3	0	40.2
208	0	84.2	0	0
216	0	45.1	0	0
232	0	26.1	0	0
256	0	0	0	0
288	0	0	0	0

ERW : 栄養塩添加河川水で通常に培養

ERW2 : ERWで2日間前培養した後さらに1-メチルナフタレンを等量添加

SDS : ERWにドデシル硫酸ナトリウムを10mg · l<sup>-1</sup> 添加

US : 1-メチルナフタレンを超音波で微細化

Table 20 ヘキサデカンの分解における分解菌と油滴の関係〔 $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 〕

培養時間	ERW	AC	AS	AU	ASU	AP	ERW2	
0 [hr]	152.8	156.1	159.0	160.0	158.7	159.0	0 hr	154.6
8	156.7	124.8	132.8	115.2	136.5	122.2	24	131.0
16	157.8	56.9	60.5	90.6	47.1	62.2	48	21.5
24	151.3	46.1	25.3	50.2	44.7	50.7	48	174.6
32	50.4	40.4	28.2	35.4	29.4	45.4	58	153.1
41	12.6	26.7	18.1	29.3	26.2	35.3	66	122.5
48	13.3	16.6	11.9	18.4	15.7	20.0	72	122.3
58	12.9	10.0		13.4	22.5	10.6	81	101.0
72	10.5	7.2	14.5	10.6	6.5	9.0	96	43.6
88	0.0	6.1	0.0		4.6	7.4	120	28.4
96	7.4	0.0	1.8	4.6	2.5	12.6	168	5.1

ERW : 栄養塩添加河川水で通常に培養

ERW2 : ERWで2日間前培養した後さらにヘキサデカンを等量添加

AC : ERWで2日間前培養した後に集菌し新たにERWにて培養

AS : ACにドデシル硫酸ナトリウムを  $10 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  添加

AU : ACでヘキサデカンを超音波で微細化

ASU : ACにドデシル硫酸ナトリウムを  $10 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  添加し、ヘキサデカンを超音波で微細化

AP : ACにパルミチン酸を  $10 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  添加

Table 21 1-メチルナフタレンの分解における分解菌と油滴の関係〔 $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 〕

培養時間	AC	AS	AU	ASU
0[hr]	51.2	54.3	54.6	54.0
8		51.3	52.9	54.3
16	48.9	49.5	46.7	50.2
24	46.8	48.5	47.8	48.1
32	41.7	43.2	43.8	42.9
40	33.2	36.9	35.9	33.5
48	23.8	29.4	25.4	27.1
56	3	10.1	9.7	4.4
64	0	0	0	0
96	0	0	0	0

AC : ERWで2日間前培養した後に集菌し新たにERWにて培養

AS : ACにドデシル硫酸ナトリウムを  $10 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  添加

AU : ACで1-メチルナフタレンを超音波で微細化

ASU : ACにドデシル硫酸ナトリウムを  $10 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$  添加し、1-メチルナフタレンを超音波で微細化