

多摩川河口域の底質中での石油化学物質の
微生物による分解浄化に関する研究

1 9 9 5 年

村 上 昭 彦

東京農工大学応用化学科教授

目 次

1. 緒 言	1
2. 実験方法	2
2-1 試料採取地点および採取方法	2
2-2 底泥状態の測定	3
2-3 底泥スラリーの調製	3
2-4 供試物質	3
2-5 基質分解実験	4
2-6 培養条件比較実験	7
2-7 コア実験	7
3. 結果および考察	8
3-1 単一系および共存系における振盪培養による分解	8
3-2 培養条件が分解に及ぼす影響	42
3-3 コアによる分解	55
3-4 河口域底泥の分解速度の評価	59
3-5 多摩川感潮域の好氣的底泥表層での石油系炭化水素の自浄作用の評価	63
4. 結 論	64
引用文献	66

1. 緒 言

人口・産業・情報の集中化が進み高密度化した都市域では、種々の活動の活性化に伴い、発生する汚染物質も急激に増加している。このため河川や湖沼、内湾や沿岸海域等の公共用水域の汚染が進行し、多くの問題を引き起こしてきた。

これらに対して、国や地方自治体による工場、事業所等からの排水規制や公共下水道の整備、廃棄物の処理が積極的に行われ、産業系や生活系などの特定汚染源からの、汚染物質の発生に関しては改善されている。しかし大気中の浮遊物質やばい煙、これらが雨水などに溶解した汚濁物質、都市内を移動する交通等によって排出される排気ガスや埃、タイヤやアスファルトのかすなど汚染源が特定できない、いわゆるノンポイント汚染源からの汚染物質による公共水域の汚染が、今後ますます増加していくものと予想される。

過去に自然界に放出された汚染物質やノンポイント汚染源から発生した汚染物質は、環境中に広範囲にしかも低濃度に存在しているため、人為的な浄化処理は難しく、その大部分を自然の持つ浄化作用に委ねられている。これら汚染物質の中には、太陽光、河川水や海水の成分と化学反応し、容易に分解する物質も存在するが、化学的に安定で残留性が問題となる物質や、生物に対して毒性を持つ物質も多く含まれており、生物濃縮による人体への影響が懸念されている¹⁾。

これらの汚染物質の中で、石油系化学物質の占める割合は高いと推測される。それは石油系化学物質の発生源が、自動車などの排気ガス、工場やゴミ焼却場の排ガスや排水および都市下水など多岐に渡って存在しているからである。また石油系化学物質の全排出量は $200\sim 600\times 10^4\text{ m}^3\cdot\text{year}^{-1}$ と推定され、これらが都市河川水に占める割合は30%に達すると報告されている^{2, 3)}。河川に流入した石油系化学物質は、河川水中の懸濁物質に吸着されやすく、河口域や内湾および湖沼のような流速が比較的穏やかになる水域において懸濁物質とともに沈降し、底泥に堆積する。特に河口域は、河川水と海水との接触、上流からの無機物や有機物の蓄積などのため、多様な生態系が成立し生物量も多い。底泥堆積した石油系化学物質は、ここに棲息する生物、特に微生物によって分解される。このように河口域底泥は、化学物質の蓄積と分解浄化の場であるといった特徴をもっている。

現在汚染された河口域の底泥の改善策として、底泥中有害物質の浚渫あるいは封じ込めによる処分方法が挙げられるが、多くの問題を抱えている。例えば、浚渫による底泥の攪乱や、これに伴う生態系への影響、浚渫した底泥の処分方法などが挙げられる。特に処分方法には、海洋投棄、陸地処分などがあるが、陸地処分では有害物質の漏出などの2次汚染が新たな問題になる。また莫大な費用がかかるといった問題もあるため、我国における事例は少ない。このため新たな浄化技術が検討されているが、極度に汚染された地域以外では、その処理は、もっぱら自然の生態系の中での自浄作用に委ねられたものとなっている。

2. 実験方法

2・1 試料採取地点および採取方法

2・1・1 試料採取地点

本研究で使用した多摩川河川域の底泥、河川表層水および底泥直上水は、図2・1・1に示した多摩川河口部大師橋付近の川崎市側の川岸より採取した。この地点は、東京湾から約4 km上流にあり、海水の干満によって、海水の流入のある感潮域に位置する。また京浜工業地帯を流下しているため、多くの工場や産業・幹線道路が隣接している。

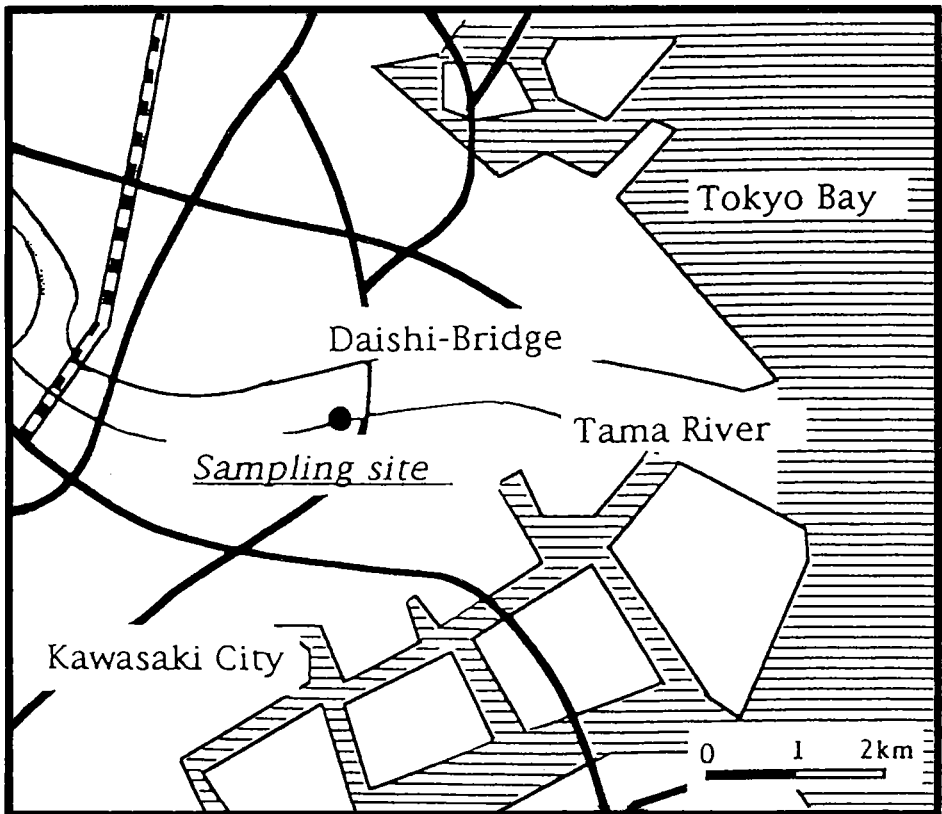


図2・1・1 試料採取地点

2・1・2 試料採取方法

底泥表層から深さ10cm程度までの底泥を、エクマンバージ型採泥器(KAIYO SOKKI CO., LTD.)で採取し、あらかじめオスバン液で滅菌した2 ℓ容のテフロンビンに入れた。河川表層水は直接採水し、底泥直上水はエクマンバージ内に含まれる河川水を採水し、それぞれオスバン液で滅菌したテフロンビンに入れた。底泥と河川表層水あるいは底泥直上水の試料の入ったテフロンビンは氷を詰めたクーラーボックス内で保存して、実験室に持ち帰った。持ち帰った試料は4℃で冷蔵保存した。

2・2 底泥状態の測定⁴⁾

2・2・1 乾燥減量

恒量した質量既知の磁性蒸発皿を試料乾燥用皿に用いた。この試料乾燥用皿に底泥を約10g取り(皿に薄く広がる程度)、この質量を測定した。その後110~120℃の乾燥器で約2時間乾燥し、デシケータ内で約40分間放冷した後に質量を測定した。次式により乾燥減量を算出した。

$$\text{乾燥減量 (\%)} = \frac{a - b}{a} \times 100$$

a : 分取した分取試料の質量 (g)

b : 乾燥後の分取試料の質量 (g)

2・2・2 強熱減量

乾燥減量の測定で用いた試料を電気炉で600±25℃で約1時間乾燥した後、デシケータで放冷し質量を測定した。次式により強熱減量を測定した。

$$\text{強熱減量 (\%)} = \frac{a - c}{a} \times 100$$

a : 分取した分取試料の質量 (g)

c : 強熱後の分取試料の質量 (g)

2・2・3 全リン

底泥中の全リン量は、硝酸一過塩素酸法で試験溶液を調製後、モリブデン青(アスコルビン酸)吸光光度法で定量した。波長は710nmに設定した。

2・3 底泥スラリーの調製

底泥スラリーを調製する前に、底泥については、篩い(mesh No.10 1.680m/m)を用いて底泥中の貝殻や葉などの大きなゴミを取り除き、河川表層水および底泥直上水については、ろ紙(TOYO No.2, 8 μm)でろ過し粗大なSSを取り除いた後、オートクレーブ滅菌(120℃, 2kg・cm⁻², 20min)した。この様にして得られた底泥と河川表層水あるいは底泥直上水を、1 : 1 (vol : vol)に混合して底泥スラリーを調製した。

2・4 供試物質

本実験で分解対象基質と用いた石油系化学物質には、直鎖型飽和炭化水素のヘキサデカン(Hexadecane)と、芳香族炭化水素のフェナントレン(Phenanthrene)、アントラセン(Anthracene)の2

種類3物質を用いた。ヘキサデカン是一般海域での炭化水素分解菌の計数によく用いられる指標基質であり、フェナントレンおよびアントラセンは、化石燃料の燃焼によって大気中に放出されており、多摩川河口域の河川底泥中においても比較的高濃度に存在する物質である。以下に各物質の化学構造と物性を示した。



表 2・4・1 供試物質の物性

	Hexadecane	Phenanthrene	Anthracene
Molecular weight	226	178	178
Melting point [°C]	4	99~101	216~218
Boiling point [°C]	274	340	340

2・5 基質分解実験

基質分解実験では、ヘキサデカン、フェナントレン、アントラセンの3物質をそれぞれ単独で底泥スラリーに添加して分解を行った単一系分解実験と、ヘキサデカンとフェナントレンあるいはヘキサデカンとアントラセンのように化学構造の異なる直鎖型飽和炭化水素とPAHsをそれぞれ混合して底泥スラリーに添加した共存系分解実験を設定した。

2・5・1 基質と底泥スラリーの添加

(1) 単一系分解実験

ヘキサデカン分解実験では、培養容器に500ml容振盪フラスコと100ml容共栓付試験管(φ30×200mm)の2種類を用いた。最初に行った実験('92.9)のみ振盪フラスコを用い、それ以後の実験では試験管を用いて実験を行った。

次に実験系列の調製方法を述べる。振盪フラスコおよび試験管とも150°C恒温槽内で2時間以上乾熱滅菌したものをを用いた。この滅菌した培養容器に底泥スラリーとヘキサデカンを添加するのであるが、振盪フラスコを用いた場合には、10μlマイクロシリンジ(伊藤製作所)を用いてヘキサデカンを7μl注入した後、底泥スラリーを100mlを添加し、試験管を用いた場合は、1μlマイクロシリンジ(HAMILTON)を用いてヘキサデカンを0.7μl注入した後、底泥スラリーを10mlを添加した。なお底泥スラリー内のヘキサデカン初期濃度は264μg・g⁻¹-乾泥(乾泥: dry sediment)に設定した。

フェナントレンおよびアントラセン分解実験では、培養容器に100ml容共栓付試験管を用いた。ヘキサデカンは常温で液体物質であるため、マイクロシリンジを用いて直接注入することが可能であったが、フェナントレンおよびアントラセンは常温で固体物質であるため、マイクロシリンジで直接注入することは不可能であった。そこで以下の方法で培養容器内への添加を行った。あらかじめ細かい粉末上の乾泥を用意した。この乾泥は、乳鉢に入れた底泥を150℃恒温槽内で12時間以上乾燥させ、乾燥後乳鉢内で細かく砕いて作った。この乾泥1gを試験管に入れ、酢酸エチルに溶解したフェナントレンおよびアントラセン溶液 ($500\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$) の1mlをホールピペットで取り、試験管内の乾泥上に注入した。その後80℃恒温槽内で約1時間乾燥させ酢酸エチルを揮発させた後、底泥スラリーを10mlを添加した。以上の操作によりフェナントレンあるいはフェナントレンの粒子は乾泥に付着し、底泥スラリーを加えて乾泥と混合することにより、底泥スラリーとフェナントレンあるいはアントラセンが混合された。なお底泥スラリー内のフェナントレンおよびアントラセンの初期濃度は $232\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ 乾泥に設定した。

なお全ての分解実験において、底泥スラリーに塩酸を加え、pHを3以下とし微生物の活性を抑制したものを対照系に設定した。

(2) 共存系分解実験

共存系分解実験では、同時に基質を底泥スラリーに添加することが必要と考え、単一系分解実験とは異なる方法で添加を行った。

底泥スラリーにヘキサデカンを添加する場合は、必要量を直接シリンジを用いて添加した。フェナントレンおよびアントラセンの場合は、固体物質であるため、一度ろ紙上でスパチュラで細かく砕いて粉末状にしてから必要量を添加した。このようにして各物質を底泥スラリーに添加した後、約12時間攪拌して、底泥スラリーと各物質を均一に混合した。この底泥スラリー10mlを試験管に注入した。なお各物質の初期濃度および対照系の設定は、(1)の場合と同様にして行った。

2・5・2 培養方法

基質の入った底泥スラリーは、好気状態あるいは嫌気状態で振盪培養を行った。好気状態では、培養容器内に滅菌した空気の流入を可能とするため、振盪フラスコには綿栓をした開放栓を付け、試験管にはシリコセンを付けた。一方嫌気状態では、基質の入った底泥スラリーを10分間窒素曝気した後、試験管の口にシリコングリスを塗布しガラス栓で密栓した。

このようにして好気状態あるいは嫌気状態に設定した振盪フラスコあるいは試験管を、 $20 \pm 1^\circ\text{C}$ 暗所恒温室内で往復振盪培養 ($110\text{回} \cdot \text{min}^{-1}$) した。なお試験管の場合は、底泥スラリーが流動するように傾斜台 (傾斜角 60°) に載せて往復振盪培養した。

2・5・3 抽出および定量方法

底泥スラリー中に残存した基質を定量するために、12N塩酸を振盪フラスコの場合は1.5ml滴下し、

試験管の場合は0.15ml滴下して微生物の活性を抑制した。この後酢酸エチルを抽出溶媒に用いて、振盪フラスコの場合は100ml、試験管の場合は10mlそれぞれ加えて約12時間回転抽出(160回・min⁻¹)した。回転抽出後に静置させ、上澄み液の酢酸エチルを約1~2ml引き抜き、ガスクロマトグラフ用試料とした。なおこの試料は、GF/Cフィルター(WATTMAN)で強制ろ過をしクリーンアップを行った。定量はFIDガスクロマトグラフ(Silicone OV-17, 液相量1.5%)を用いて行った。

2・5・4 底泥スラリー内の好気性従属栄養細菌および各基質分解菌数の測定

乾熱滅菌した試験管に、乾熱滅菌したピペットを用いて底泥スラリーを0.5~1.0gを取り出し、遠心分離(2000rpm, 3min)によって底泥と表層水を分離して表層水を取り除いた。オートクレイブ滅菌した生理食塩水を2ml加え、攪拌器によって底泥と生理食塩水を十分混合させた。この試験管を水の入ったビーカーに入れ、試験管の外側から超音波破砕器(70W, 1min)にかけて、底泥に付着している微生物を剥離した。剥離した微生物が含まれる懸濁液を生理食塩水で希釈して、培地上に植菌した。従属栄養細菌数は一般細菌用普通寒天培地(日水製薬)、基質分解菌数はAtlasら⁵⁾の方法による培地をもとに、それぞれの基質を唯一の炭素源として添加した培地をそれぞれ用い、平板培養法にてコロニーを計数して求めた。ヘキサデカン分解菌用培地は、シャーレ内の培地温度が50~60℃で液体状態となっている時点で、ヘキサデカンを10μl添加して、シャーレをよく回転振盪させることで、ヘキサデカンを培地内に均一に混合したものを用いた。またフェナントレンあるいはアントラセン分解菌用培地については、培地をシャーレに分注する前の広口耐熱ビンに入った液体状態の培地に、細かな粉末状にした各物質をそれぞれ添加して、よく攪拌してからシャーレに分注したものを用いた。なお培地内での各基質濃度は、それぞれ100mg・l⁻¹に設定した。また試験管内の底泥は乾燥重量を測定し、菌数は底泥スラリーの乾泥g当たりの菌体量[cells・g⁻¹乾泥]で表した。

表2・5・1 各種培地組成

従属栄養細菌用培地		基質分解菌用培地	
肉エキス	5.0g	(NH ₄) ₂ SO ₄	1.0g
ペプトン	10.0g	KH ₂ PO ₄	1.0g
NaCl	5.0g	K ₂ HPO ₄	1.0g
寒天	15.0g	NaCl	10.0g
蒸留水	1000ml	MgSO ₄ ・7H ₂ O	0.2g
		FeCl ₃	痕跡量
		各基質	100mg
		寒天	15.0g
		蒸留水	1000ml

*この条件は、超音波処理の最適値試験(超音波のW数と処理時間を数通り設定し、最も多く菌数を剥離できる条件を選定する試験)から求めたものである。

2・6 培養条件比較実験

底泥スラリーを振盪状態で培養した場合の分解様式と比較する意味で、底泥スラリーを静置状態で培養する実験を同時に行った。振盪培養の設定は、2・5・1の要領で行った。静置培養の設定について以下に述べる。

2・6・1 静置状態の調製

好気状態の設定は、2・5・1で調製した底泥スラリー約5 mlを乾熱滅菌したガラス製シャーレ(φ90mm)に広げて作り、滅菌直上水を30ml添加した。1日静置すると、厚さ約1mmの底泥と厚さ8～10mmの直上水の層が形成された。

嫌気状態は、2・5・1のように調製した試験管を振盪台に載せずに、試験管立てに立てて静置状態を作った。

2・6・2 抽出および定量方法

嫌気状態については、2・5・3で述べた方法で抽出を行った。

好気状態については、シャーレの底泥および直上水をろ紙上に移し、直上水と底泥を分離し、底泥が乾燥しないうちに、スパチュラでろ紙上の底泥を取り出して試験管に移した。この試験管に蒸留水5 mlを加えて攪拌しスラリー状になったところで、抽出溶媒である酢酸エチルを10ml添加して抽出を行った。

なお定量方法については、2・5・4と同様に行った。

2・7 コア実験

2・7・1 コアの調製および培養方法

シリコンチューブ(25×31mmφ タイガースポリマー製)を長さ約40cmに切り、一方をガラス栓で閉じオートクレーブ滅菌した。基質と底泥スラリーをビーカー内で約12時間攪拌して、基質が均一に混合した底泥スラリーを調製し、この底泥スラリーをチューブに注入した。このチューブをガラス栓の方を下にしてコンテナ内に立て、20±1℃恒温室内で培養した。なおコアの温度を変動を抑制するために、コンテナに水を入れ、チューブの外壁が水に浸るようにした。

なお対照系には、底泥スラリーをオートクレーブ滅菌したもの、および冷凍庫内でコアを冷凍し微生物の活性を抑制したものの2種類を設定した。

2・7・2 抽出および定量方法

抽出を行う前日にチューブを冷凍庫に入れコアを凍らせ、チューブにコア表層から1cm、5～6cm、10～11cmおよび15～16cmに目印を付け、チューブを切断した。切断したチューブから溶け出したコアを試験管に移し、2・5・3と同様にして抽出および定量した。この方法より、コアの形状を崩すことなく、任意の深さのコアを取り出し抽出することを可能にした。

3. 結果及び考察

3・1 単一系および共存系における振盪培養による分解

多摩川河口域の底泥より調整した底泥スラリーに、微生物の分解基質となるヘキサデカン、フェナントレンおよびアントラセンを、それぞれ単独で添加した単一系と、ヘキサデカンとフェナントレンあるいはヘキサデカンとアントラセンのように直鎖型飽和炭化水素とPAHsが共存した状態で添加した共存系をそれぞれ設定した。回分振盪培養から分解速度あるいは分解率、好気性の従属栄養細菌数および各基質の分解能力を有する分解菌数を把握したうえで、これら物質の微生物による分解様式を明らかにした。

3・1・1 単一系における分解

(1) ヘキサデカンの分解

ヘキサデカン単一系実験は、好気状態については '92.9., '93.6., 7., 11. の4回、嫌気状態については '92.9., '93.4. の2回行った。好気状態の '92.9., '93.6. の実験および嫌気状態の実験については、底泥スラリーのORP、pHおよび残存ヘキサデカン濃度の経日変化を図3・1・1～3・1・8に示し、好気および嫌気状態の全ての実験における残存ヘキサデカン濃度の経日変化について、図3・1・9と図3・1・10にそれぞれまとめた。

1) 好気状態における分解

図3・1・9より、微生物がヘキサデカンの分解開始までに要する誘導期間、初期ヘキサデカン添加量 ($290 \pm 50 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥) の50%を分解するのに要する日数 (以下半減期とよぶ)、およびグラフの傾きから求めた最大分解速度について表3・1・1にまとめた。

表3・1・1 ヘキサデカン分解実験 (好気状態) における
誘導期間、半減期および最大分解速度

実験開始時	誘導期間 [days]	半減期 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥 $\cdot \text{d}^{-1}$]
'92.9.	3	6	52
'93.6.	0	4.5	45
7.	0	2.5	36
11.	0	5	26

初夏から夏期にかけての結果 ('92.9., '93.6., 7.) と、冬期の結果 ('93.11.) を比較すると、誘導期間には0～3日間を要し、半減期は2.5～6.0日間となり、ともに季節による変動は認められなかった。一方分解速度については、夏期の方が冬期に比べて1.4～2倍程度高くなり、また夏期では、実験開始13～17日目までで分解率が90%以上となったのに対して、冬期では17日目

で76%の分解率であった。

また'93.6.の実験では、底泥スラリー内の従属栄養細菌およびヘキサデカン分解菌の測定を行い、その結果を図3・1・25に示した。0日目は採泥時の菌数分布を示したものであるが、従属栄養細菌は $6.8 \times 10^5 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥、ヘキサデカン分解菌数は $1.4 \times 10^6 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥となり、従属栄養細菌に占めるヘキサデカン分解菌の割合は21%であった。またこの割合について、'93.7.の実験結果からは11%であった。'93.6.と'93.11.の実験において、分解進行期のヘキサデカン分解菌数を比較すると、それぞれ 3.4×10^6 、 $1.3 \times 10^7 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥となり、夏期と冬期ではヘキサデカン分解菌数に大差はみられなかった。このことから夏期での分解能力が優れていたのは、底泥スラリーに棲息するヘキサデカン分解菌数が冬期より多く存在したからではなく、微生物の持つ分解能力が、冬期よりも高くなるからであると推測された。

'93.9.の実験(図3・1・1)では、pHは3日目以降7.4から6.4に急激に低下し、これはヘキサデカンの分解開始時期と一致した。pH低下の原因として、ヘキサデカンの分解過程で β 酸化によって酸が形成されたためと考えられた。また'93.6.の実験(図3・1・2)からも緩やかなpHの減少がみられた。

2) 嫌気状態における分解

'92.9.の実験(図3・1・6)では、分解は穏やかに進行し24日間で初期添加量の26%、59日間で43%が分解した。'93.4.の実験(図3・1・8)においては、20日間で49%、31日間で57%が分解したが、その後は分解は進行せず70日目においても57%であった。また両実験とも、好気系でみられたpHの減少は確認できなかった。

図3・1・10より最大分解速度について表3・1・2にまとめたが、その値はあまり差のないものであった。同時期('92.9.)の好気状態の値と比較すると約1/10の値であり、好気状態の'93.6.と嫌気状態の'93.4.を比較すると約1/6の値であった。

表3・1・2 ヘキサデカン分解実験(嫌気状態)
における最大分解速度

実験開始時期	最大分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥 $\cdot \text{d}^{-1}$]
'92.9.	5
'93.4.	8

(2) フェナントレンの分解

フェナントレン単一系実験は、好気状態について'93.2., 11.の2回、嫌気状態については'92.12., '93.4.の2回行った。好気状態の'93.2.と嫌気状態の実験については、底泥スラリーのORP、

pHおよび残存フェナントレン濃度の経日変化を図3・1・11～3・1・16に示した。また好気および嫌気状態の全ての実験における残存フェナントレン濃度の経日変化について、図3・1・17と図3・1・18にそれぞれまとめた。

1) 好気状態における分解

図3・1・17より、誘導期間、初期フェナントレン添加量 ($225 \pm 10 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥) に対する半減期および最大分解速度について表3・1・3にまとめた。

表3・1・3 フェナントレン分解実験(好気状態)における誘導期間、半減期及び最大分解速度

実験開始時	誘導期間 [days]	半減期 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥 $\cdot \text{d}^{-1}$]
'93. 2.	3	5	72
'93. 11.	6	8	49

'93. 2. の実験(図3・1・11、12)では、3日間の誘導期間の後、急激に分解し6日間で87%分解したが、以後これ以上分解は進まなかった。

またpHは6.4～6.9の範囲内で安定した。'93. 11. の実験では、誘導期間に6日間を要し、90%の分解率を得るのに16日間かかった。この結果より、誘導期間が短ければ、分解速度が速くなることが示唆された。

また'93. 2. の実験において、底泥スラリーに棲息する従属栄養細菌数とフェナントレン分解菌数の経日変化の結果を図3・1・26に示した。0日目は採取時の底泥の菌数分布を示したものであるが、従属栄養細菌数は $2.6 \times 10^6 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥、フェナントレン分解菌数は $1.6 \times 10^5 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥であり、従属栄養細菌中のフェナントレン分解菌の割合は6%程度であった。また'93. 9. の実験では、従属栄養細菌数が $1.5 \times 10^6 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥、フェナントレン分解菌数が $4.8 \times 10^4 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥となり、フェナントレン分解菌の割合は3%であった。

基質の分解がまだ始まっていないにも関わらず、培養開始2日目までに微生物は急激に増殖した。これは振盪培養により酸素が底泥スラリー内に十分に拡散移動し、好気性微生物にとって生育環境条件が向上し、底泥中に含まれていた栄養源を活発に摂取して増殖したためであり、必須栄養源である炭素は基質からではなく、底泥中に含まれていた物質から摂取したために、基質の分解は見られなかったと推測された。その後菌増殖定常期になると、従属栄養細菌数は $1.0 \sim 3.0 \times 10^9 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥、フェナントレン分解菌数が $1.0 \sim 4.0 \times 10^8 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥で一定となった。定常期でのフェナントレン分解数は、従属栄養細菌のおよそ30%を占めるようになった。

'93. 11. の実験における分解進行期のフェナントレン分解菌数は、 $4.4 \times 10^7 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥であり、'93. 2. の実験と比較すると、両実験において分解進行期におけるフェナントレン分解菌数

に差がみられなかったことから、'93. 11. の実験において分解率および分解速度が低くなったのは、分解菌数によるものではなく、分解菌の持つ分解能力の違いによると考えられた。このことから高い分解能力を有する微生物は、短い誘導期間で基質分解に対応できることが示唆された。

2) 嫌気状態における分解

'93. 12. の実験 (図 3・1・13、14) においては、58日間の実験期間では、コントロール系と比較して差はなく、分解はみられなかった。また、pHの変動もみられなかった。'93. 4. の実験 (図 3・1・15、16) では、42日目までは分解しなかったが、70日目では24%まで分解が進行した。今回もpHには7.0付近で安定した。'93. 12. の実験では、58日間の実験期間では、フェナントレンの分解は確認されなかったが、実験期間をより長い70日間に設定した'93. 4. の実験では、42日目では分解がみられなかったものの、70日目では24%分解していることから、フェナントレンは嫌気状態では2ヶ月程度の培養期間では微生物分解がみられないことがわかった。

(3) アントラセンの分解

アントラセンの単一系実験は、好気状態について'93. 2., 6. の2回、嫌気状態については'92. 12., '93. 4. の2回行った。好気状態の'93. 2. と嫌気状態の'93. 4. の実験について底泥スラリーのORP、pHおよび残存アントラセン濃度の経日変化を図3・1・19～3・1・22に示した。また好気および嫌気状態の全ての実験における残存アントラセン濃度の経日変化について、図3・1・23と図3・1・24にそれぞれまとめた。

1) 好気系における分解

図3・1・23から、誘導期間、初期アントラセン添加量 ($220 \pm 30 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥) に対する半減期および最大分解速度について表3・1・4にまとめた。

表 3・1・4 アセトラセン分解実験 (好気状態) における
誘導期間、半減期及び最大分解速度

実験開始 時期	誘導期間 [days]	半減期 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥 $\cdot \text{d}^{-1}$]
'93. 2.	13	14	46
'93. 6.	10	12	41

冬期 ('93. 2.) と夏期 ('93. 6.) の結果にはあまり差はみられなかった。また両実験とも実験期間中pHは7.0付近で安定した。

'93. 2. の実験において底泥スラリーに棲息する従属栄養細菌数とアントラセン分解菌数の経日変化の結果を図3・1・27に示した。0日目における従属栄養細菌数は $2.6 \times 10^8 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥、アントラセン分解菌数は $1.3 \times 10^5 \text{ cells} \cdot \text{g}^{-1}$ -乾泥であり、従属栄養細菌数に占めるア

ントラセン分解菌数の割合は5%であった。また'93.6.の実験では、従属栄養細菌数は 6.8×10^5 cells \cdot g⁻¹-乾泥、アントラセン分解菌数は 2.0×10^4 cells \cdot g⁻¹-乾泥となり、アントラセン分解菌の割合は3%であった。

アントラセンの分解進行期には、従属栄養細菌およびアントラセン分解菌ともに既に増殖定常期にあり、それぞれ 2.3×10^8 cells \cdot g⁻¹-乾泥、 6.0×10^8 cells \cdot g⁻¹-乾泥であった。従属栄養細菌に占めるアントラセン分解菌の割合は26%であった。

2) 嫌気状態における分解

図3・1・24より、'92.12.の実験においては、58日間の実験期間では、コントロール系と比較して差はなく分解はみられなかった。またpHの変動もみられなかった。'92.4.の実験では、70日間の実験期間でも分解はみられなかった。

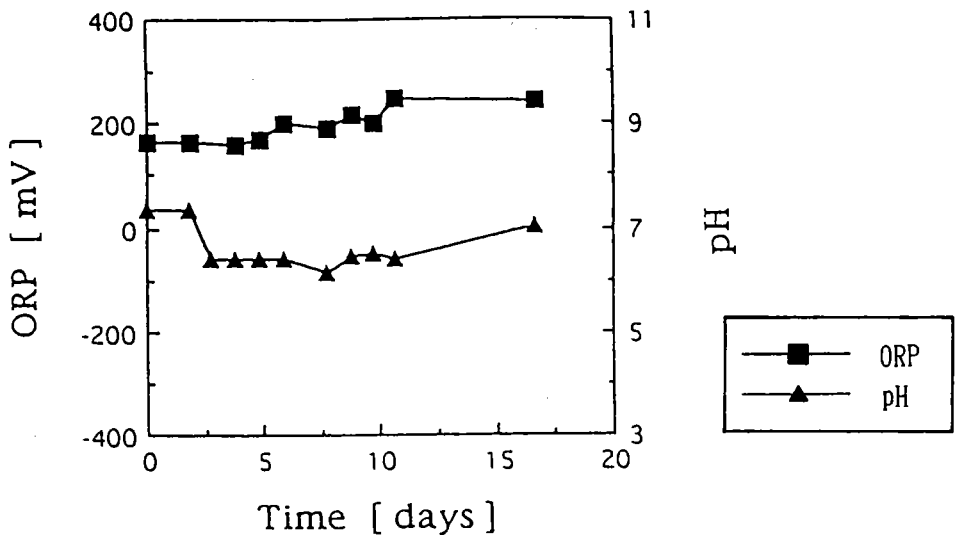


図3・1・1 好気状態でのヘキサデカン単一系分解実験 ('92.9.)
におけるpH、ORPの経日変化

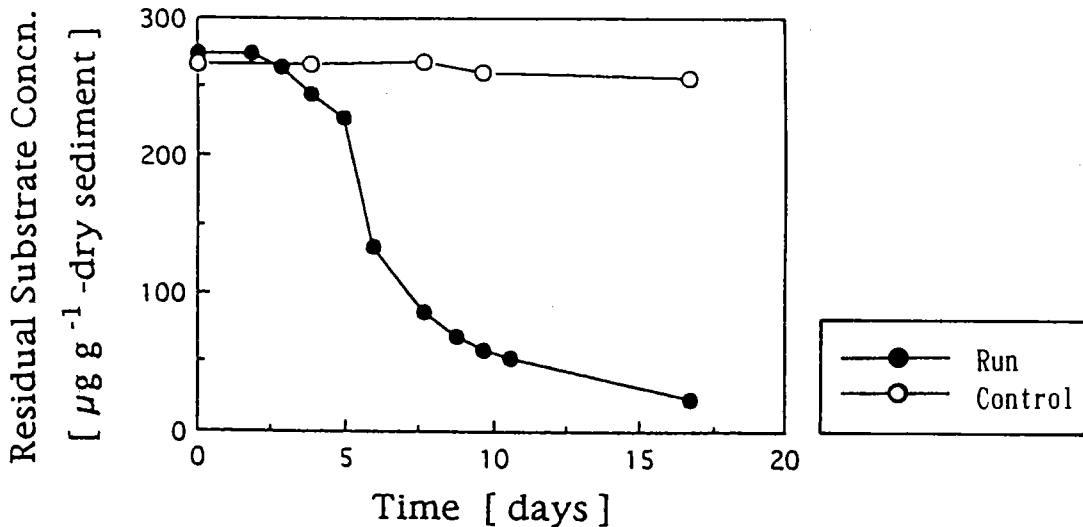


図 3・1・2 好気状態でのヘキサデカン単一系分解実験 ('92.9.)
 における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

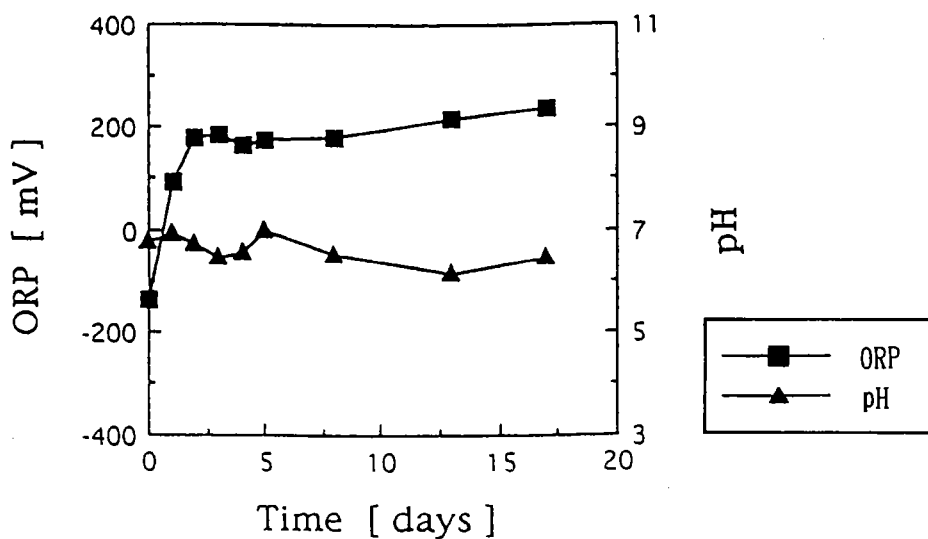


図 3・1・3 好気状態でのヘキサデカン単一系分解実験 ('93.6.)
 における pH、ORP の経日変化

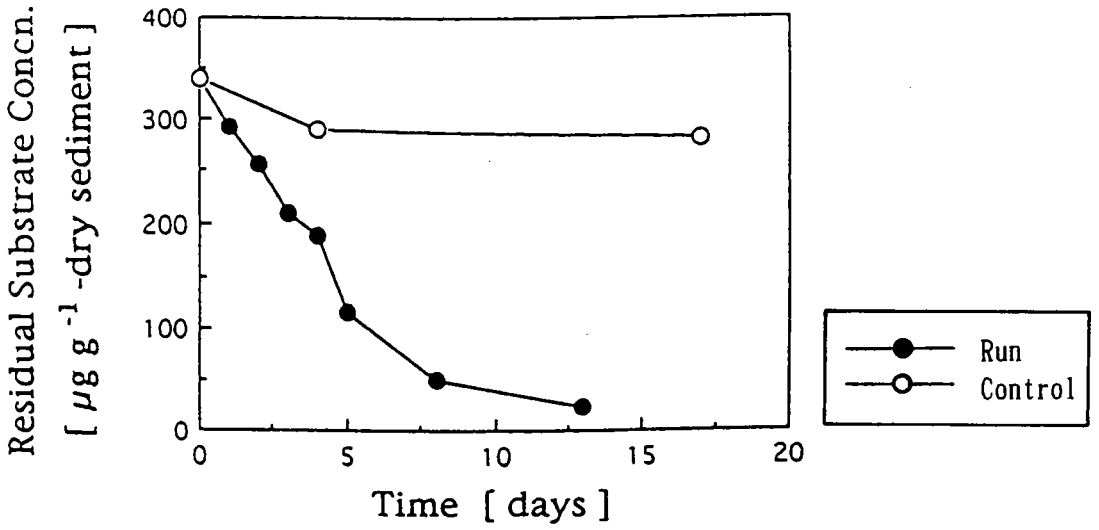


図3・1・4 好気状態でのヘキサデカン単一系分解実験 ('93.6.)
における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

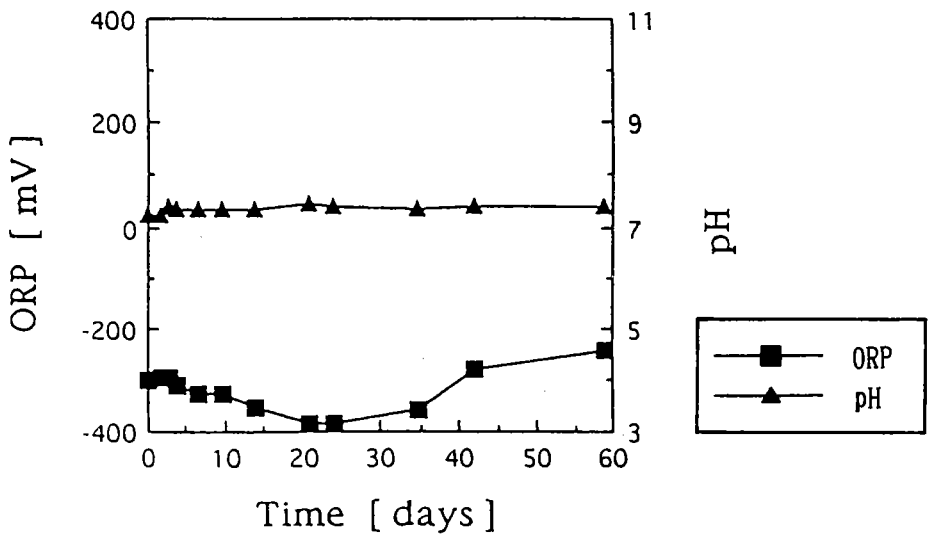


図3・1・5 嫌気状態でのヘキサデカン単一系分解実験 ('92.9.)
におけるpH、ORPの経日変化

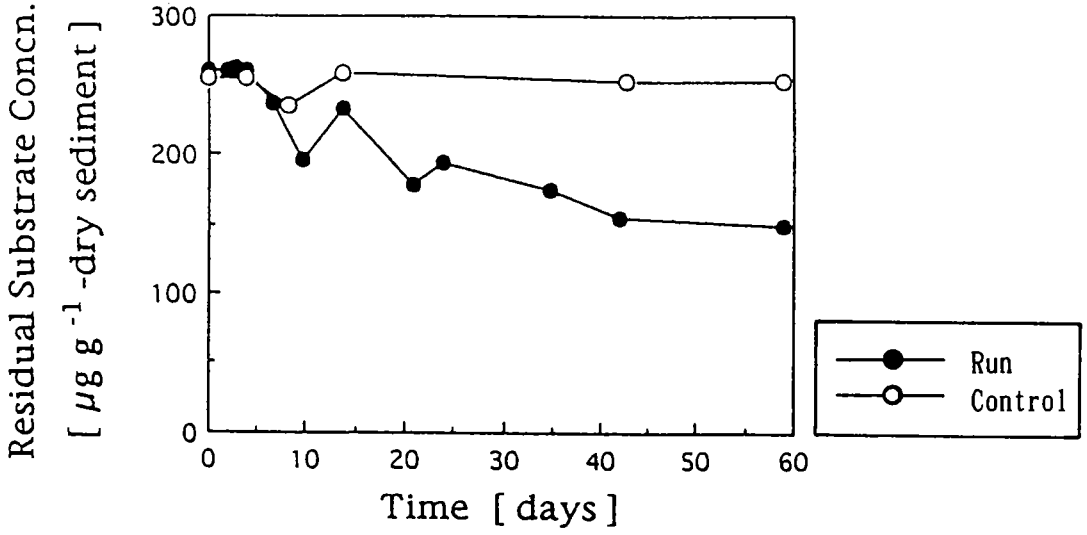


図3・1・6 嫌気状態でのヘキサデカン単一系分解実験 ('92.9) における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

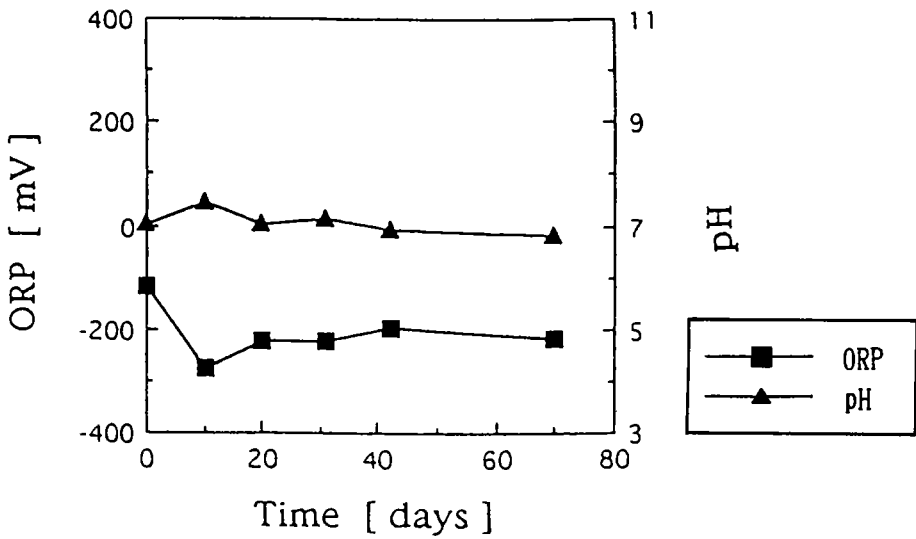


図3・1・7 嫌気状態でのヘキサデカン単一系分解実験 ('93.4) におけるpH、ORPの経日変化

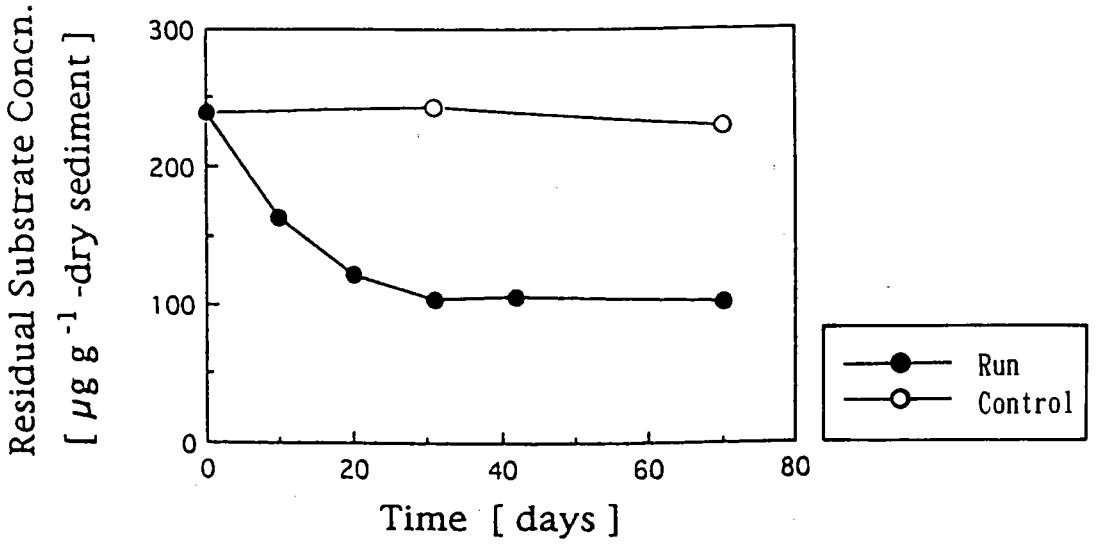


図 3・1・8 嫌気状態でのヘキサデカン単一系分解実験 ('93. 4.)
 における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

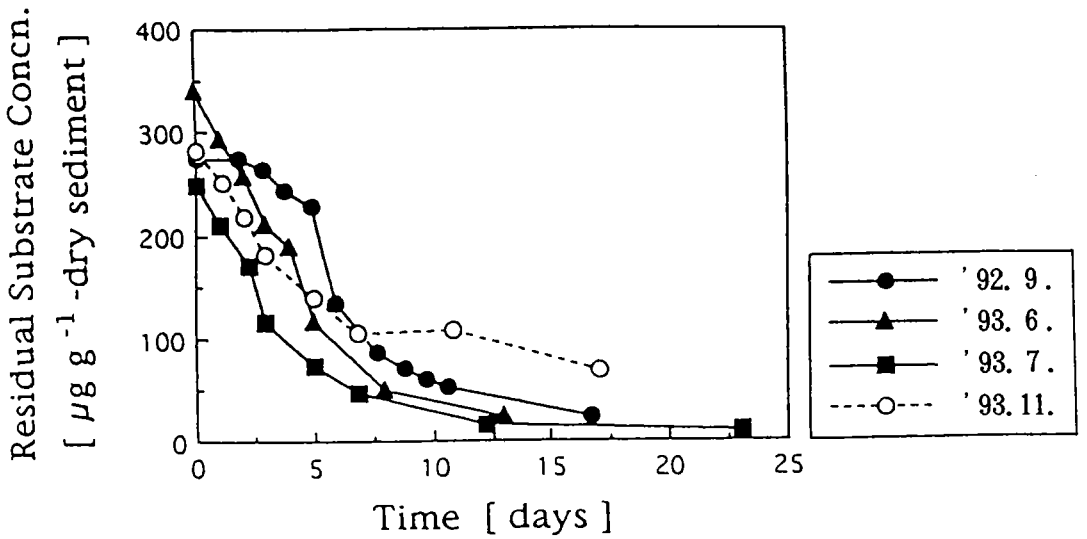


図 3・1・9 好気状態での各ヘキサデカン単一系分解実験
 における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

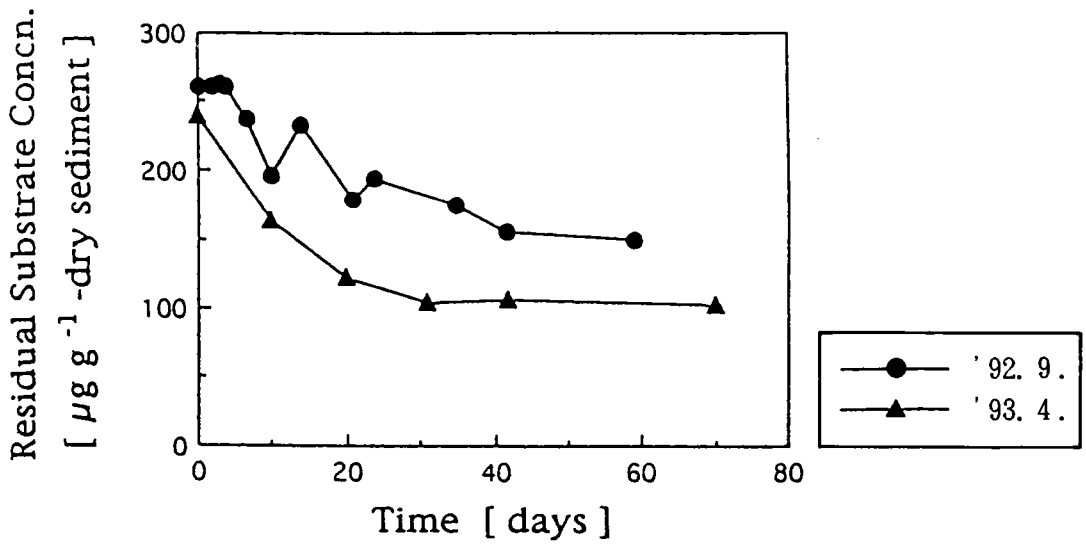


図 3・1・10 嫌気状態での各ヘキサデカン単一系分解実験
における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

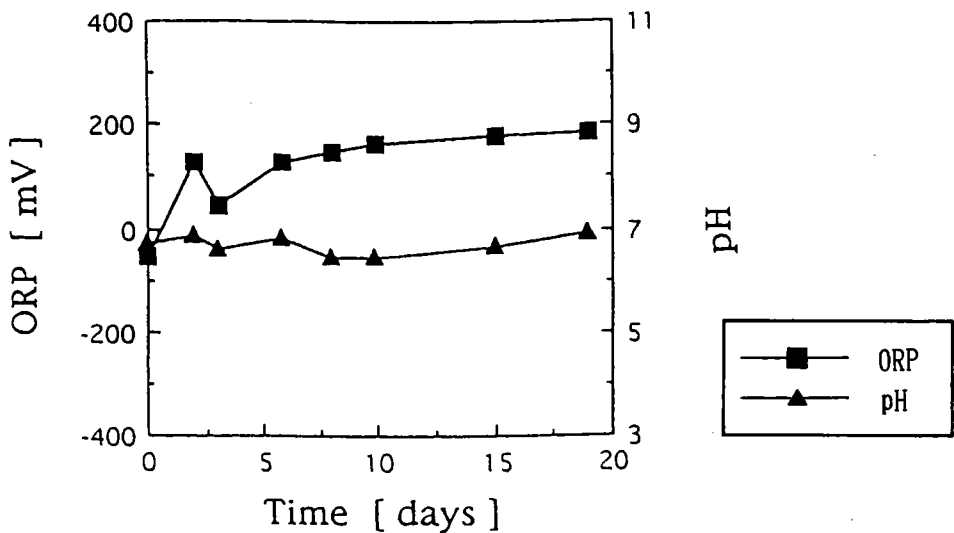


図 3・1・11 好気状態でのフェナントレン単一系分解実験 ('93. 2.)
における pH、ORP の経日変化

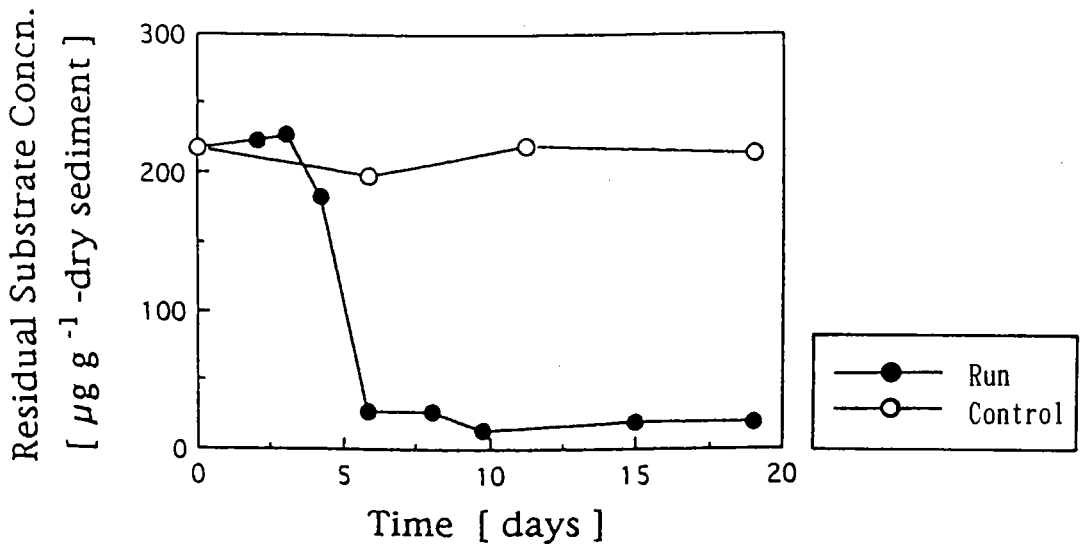


図 3・1・12 好気状態でのフェナントレン単一系分解実験 ('93.2.)
 における残存フェナントレン濃度の経日変化

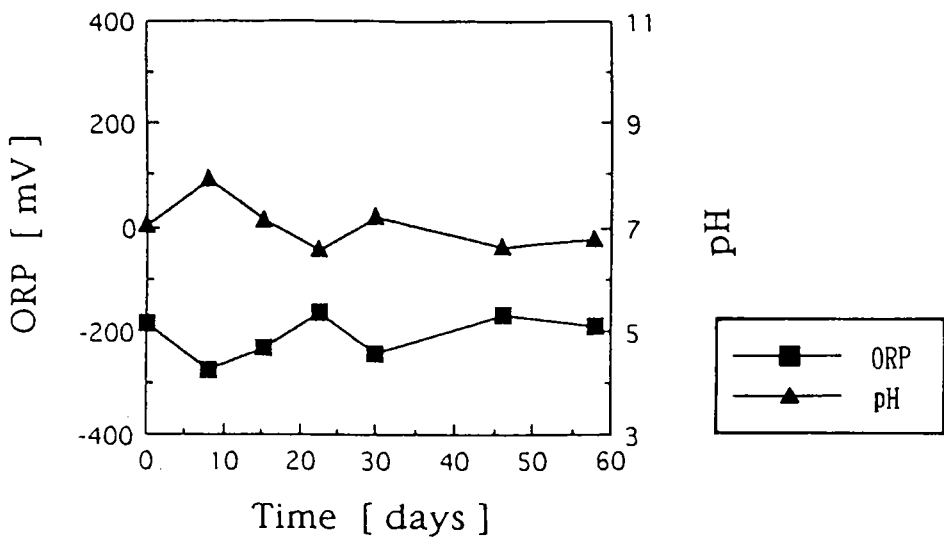


図 3・1・13 嫌気状態でのフェナントレン単一系分解実験 ('92.12.)
 における pH、ORP の経日変化

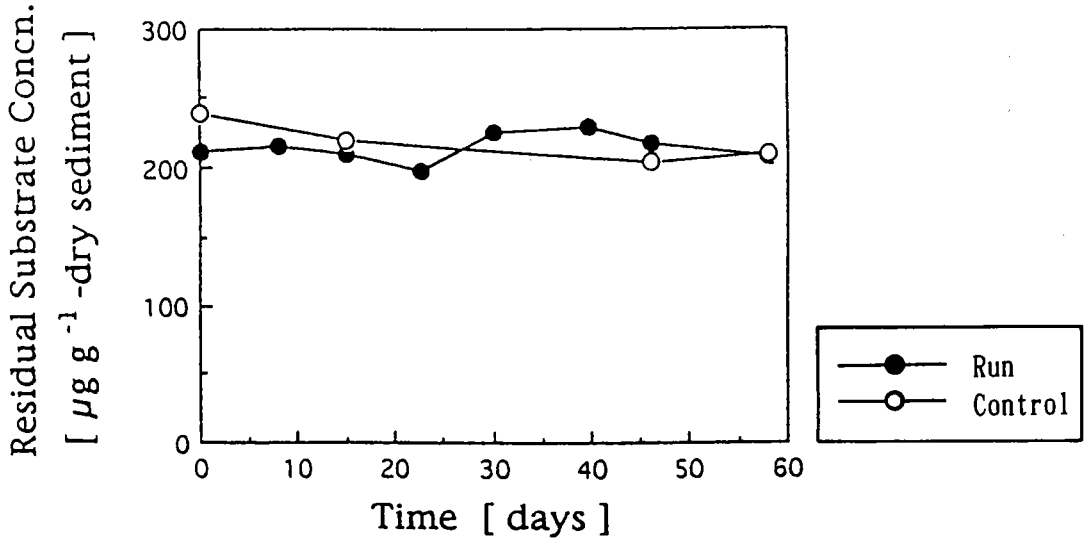


図 3・1・14 嫌気状態でのフェナントレン単一系分解実験 ('92.12.)
 における残存フェナントレン濃度の経日変化

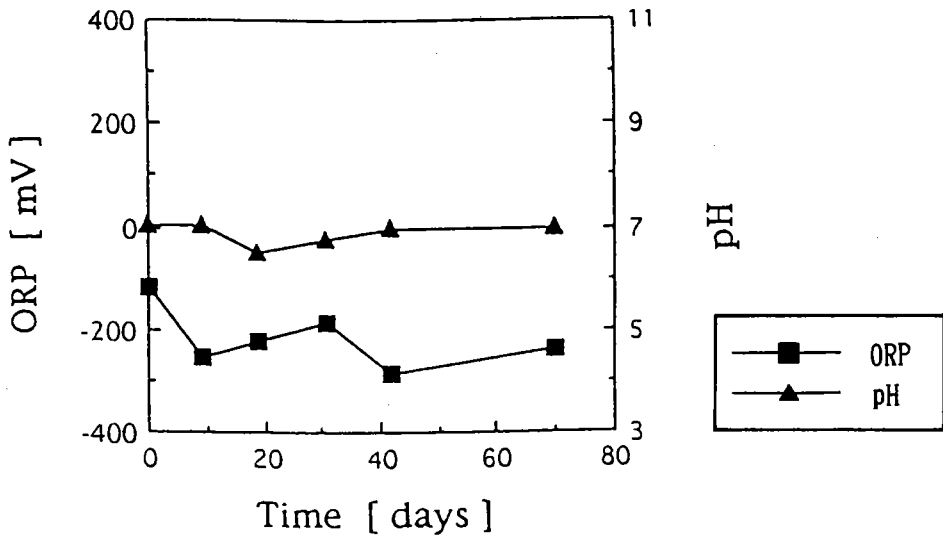


図 3・1・15 嫌気状態でのフェナントレン単一系分解実験 ('93.4.)
 におけるpH、ORPの経日変化

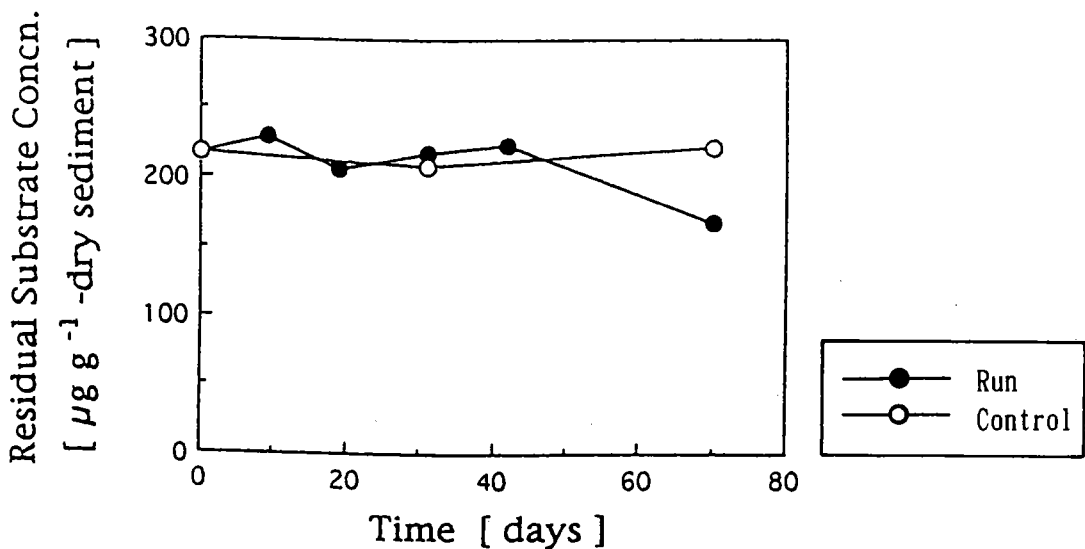


図3・1・16 嫌気状態でのフェナントレン単一系分解実験 ('93.4.)
における残存フェナントレン濃度の経日変化

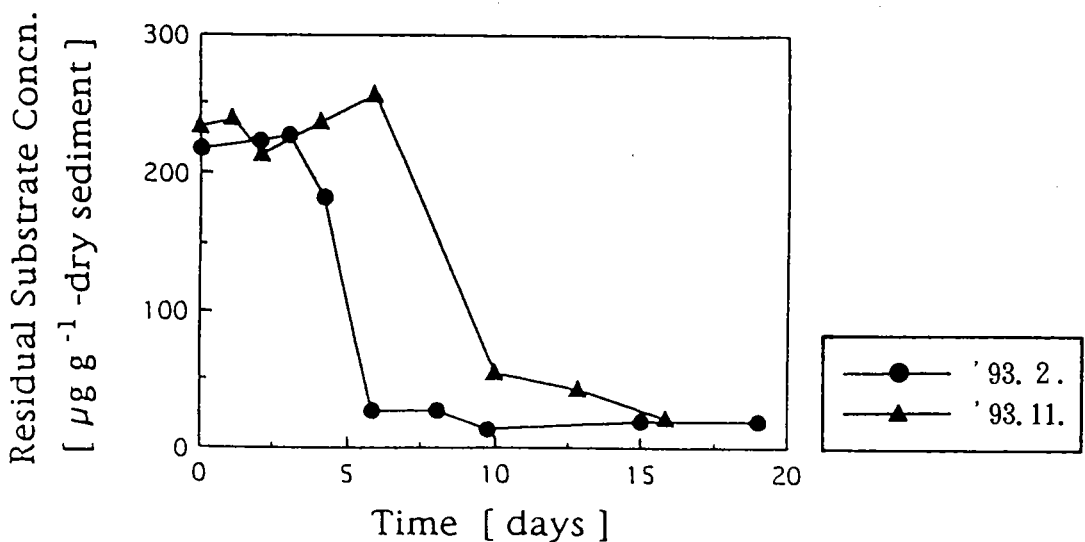


図3・1・17 好気状態での各フェナントレン単一系分解実験
における残存フェナントレン濃度の経日変化

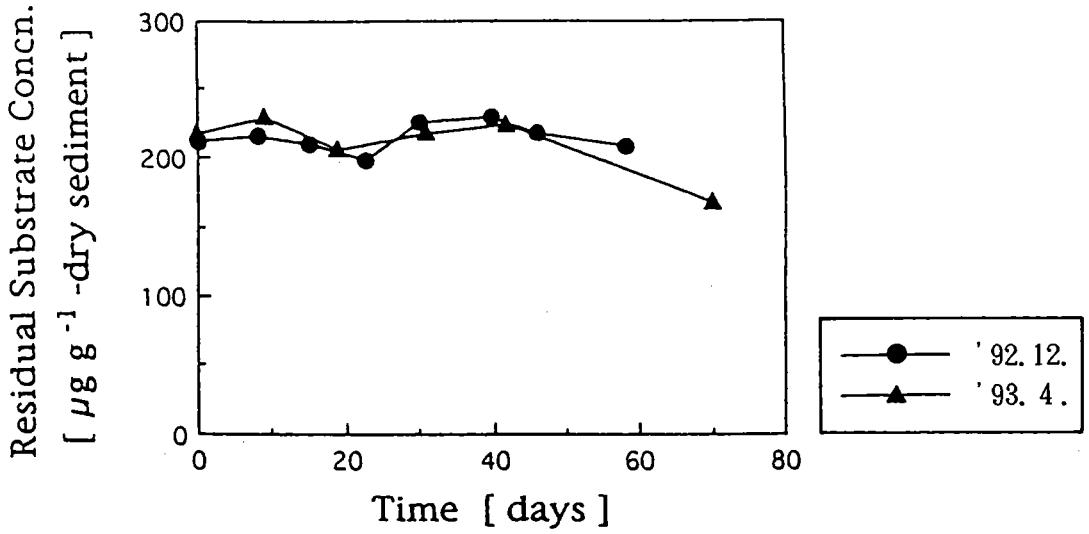


図3・1・18 嫌気状態での各フェナントレン単一系分解実験における残存フェナントレン濃度の経日変化

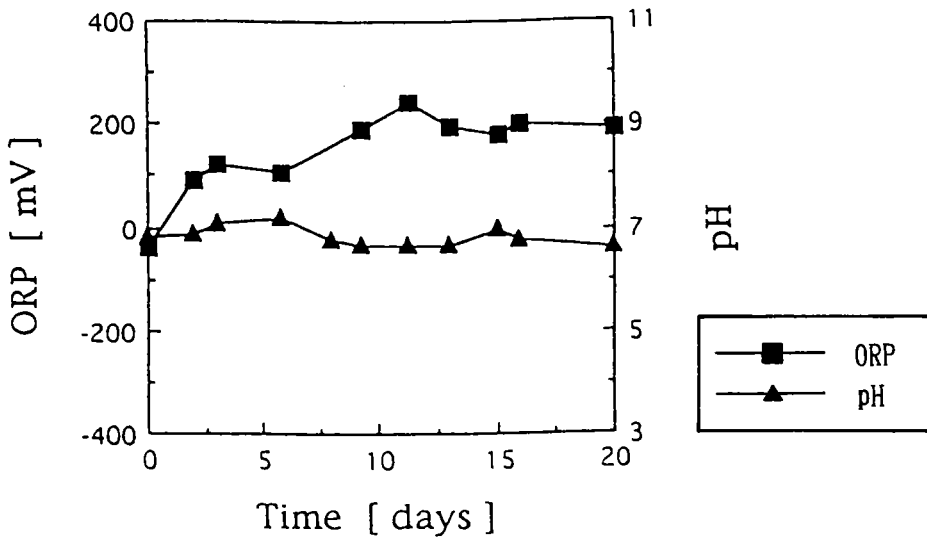


図3・1・19 好気状態でのアントラセン単一系分解実験 ('93.2.)におけるpH、ORPの経日変化

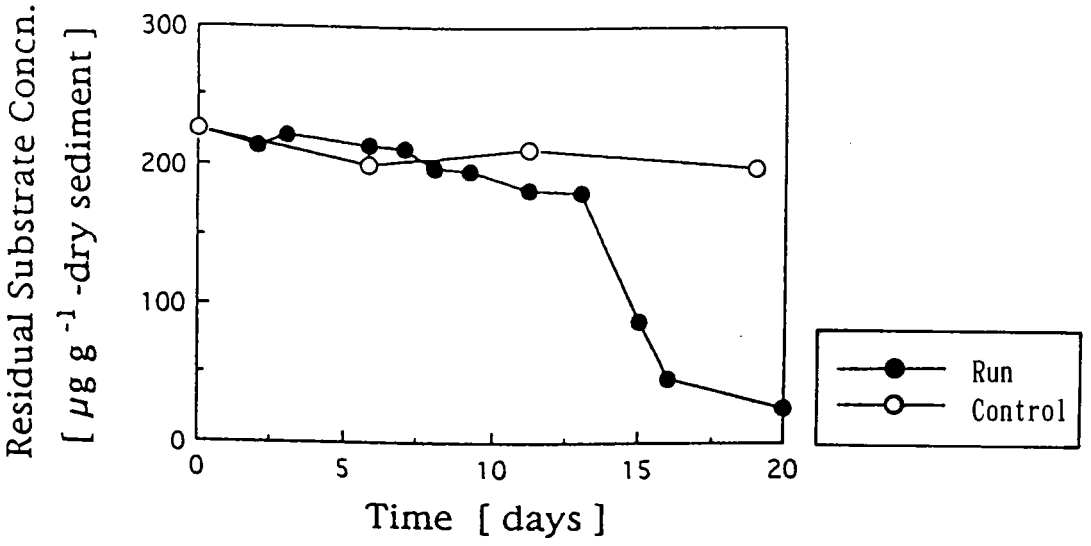


図 3・1・20 好気状態でのアントラセン単一系分解実験 ('93.2.)
 における残存アントラセン濃度の経日変化

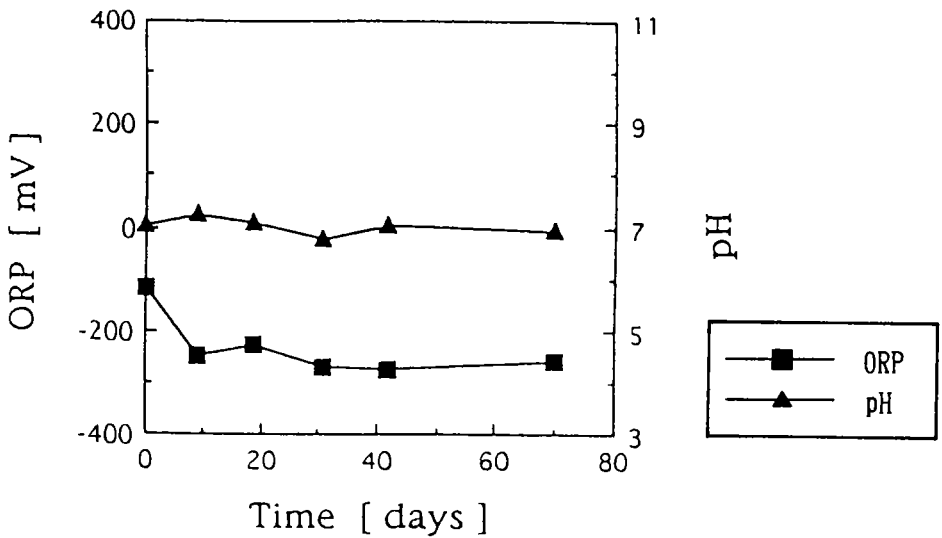


図 3・1・21 嫌気状態でのアントラセン単一系分解実験 ('93.4.)
 における pH、ORP の経日変化

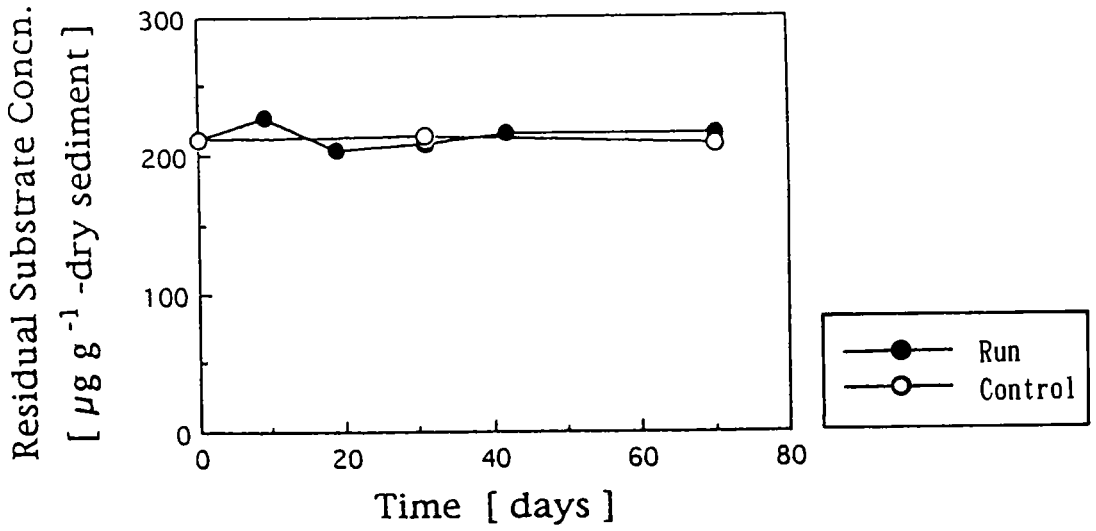


図 3・1・22 嫌気状態でのアントラセン単一系分解実験 ('93. 4.)
 における残存アントラセン濃度の経日変化

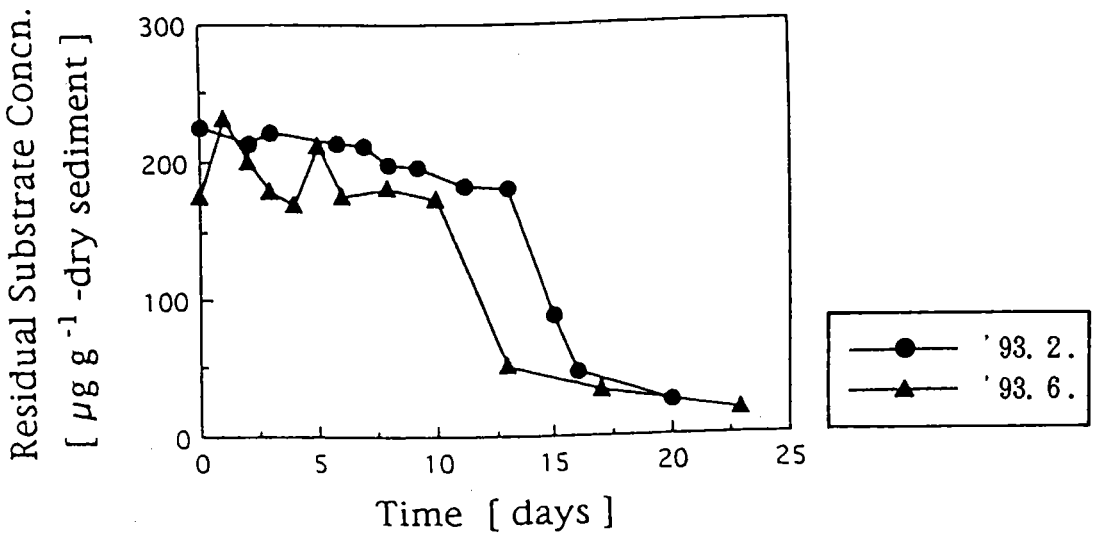


図 3・1・23 好気状態での各アントラセン単一系分解実験
 における残存アントラセン濃度の経日変化

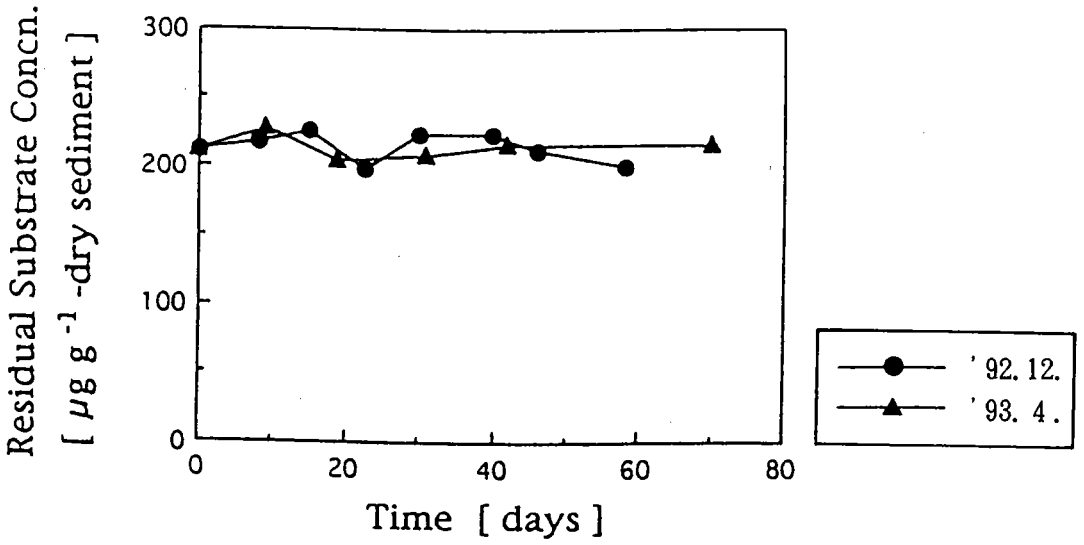


図 3・1・24 嫌気状態での各アントラセン単一系分解実験における残存アントラセン濃度の経日変化

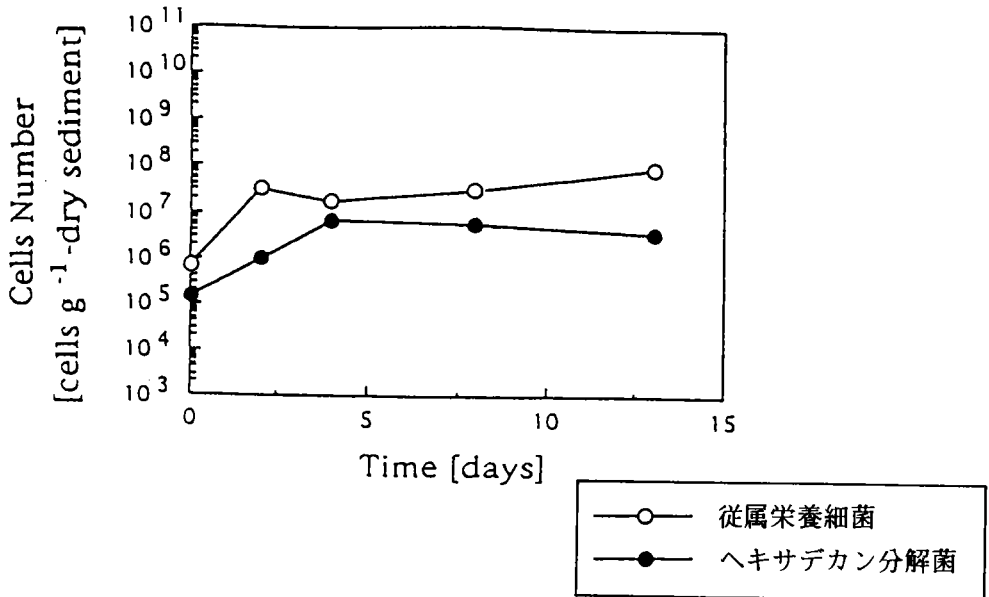


図 3・1・25 好気状態でのヘキサデカン単一系分解実験 ('93. 6.) における従属栄養細菌およびヘキサデカン分解菌の経日変化

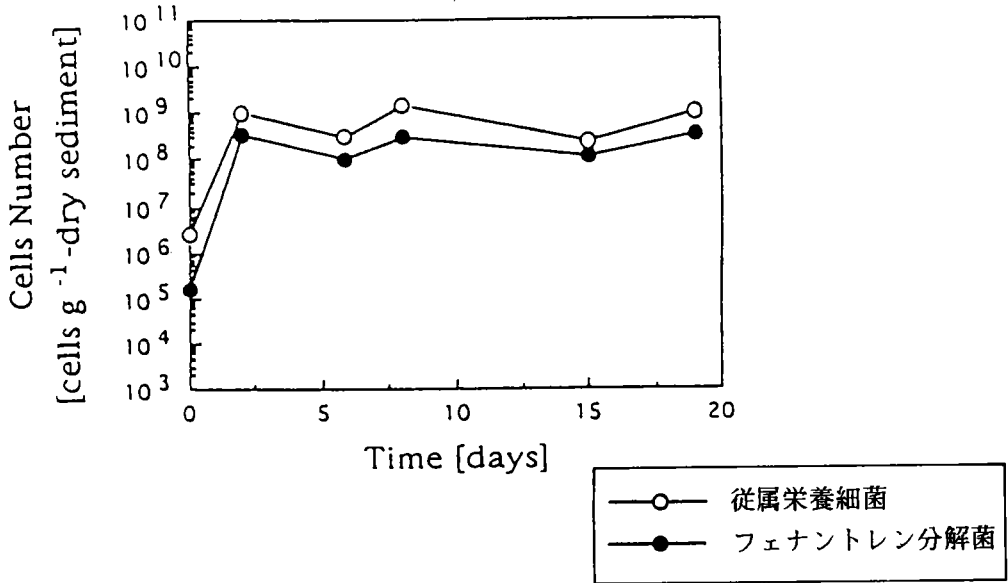


図3・1・26 好気状態でのフェナントレン単一系分解実験（'93.2.）における従属栄養細菌およびフェナントレン分解菌の経日変化

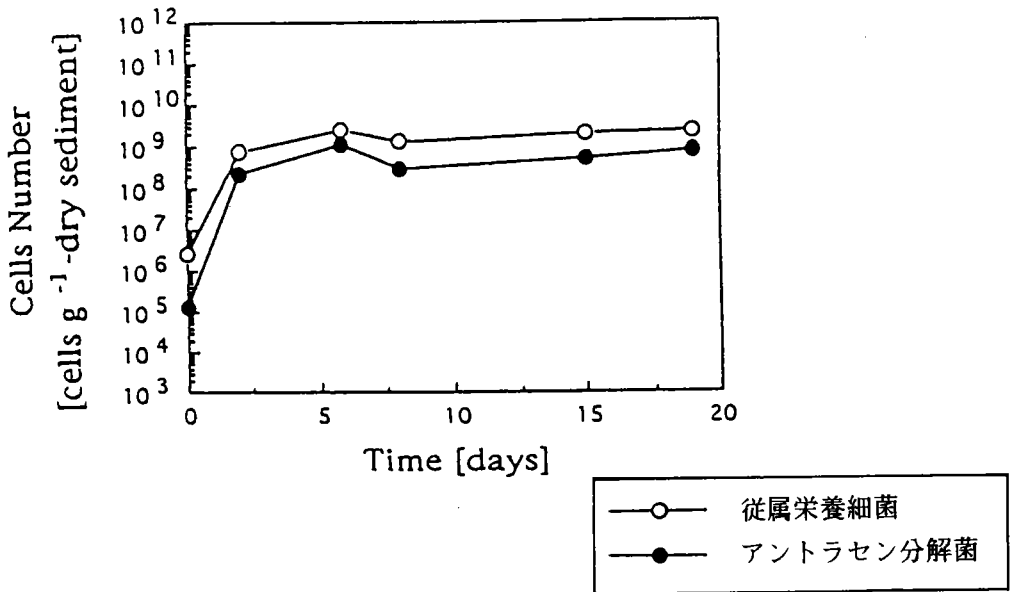


図3・1・27 好気状態でのアントラセン単一系分解実験（'93.2.）における従属栄養細菌およびアントラセン分解菌の経日変化

3・1・2 共存系における分解

3・1・1で単一系における各物質の分解様式を明らかにした。実際の河口域底泥の状態は、様々な化学物質が混合した状態にあり、微生物による分解作用において、これら化学物質が相互に影響を及ぼしている可能性は高い。単一系の実験では、このことについては明らかにすることが不可能であるため、共存系の実験を行い、直鎖型飽和炭化水素のヘキサデカンと多環芳香族炭化水素のフェナントレンあるいはアントラセンが共存した場合における、各物質の分解様式の相違あるいは微生物に及ぼす影響について考察した。

(1) 嫌気状態におけるヘキサデカンと、フェナントレンあるいはアントラセンの共存系における分解

嫌気状態におけるヘキサデカンとフェナントレン、あるいはヘキサデカンとアントラセンを同時に添加した共存系での分解実験を'93.4.に行った。なおヘキサデカン、フェナントレンおよびアントラセンの単一系の分解実験も同時に行い、その結果は、3・1・1で述べた。

底泥スラリーのORPとpHおよび残存基質濃度の経日変化について、ヘキサデカンとフェナントレンの共存系を図3・1・28、29に、ヘキサデカンとアントラセンの共存系を図3・1・30、31にそれぞれ示した。

ヘキサデカンとフェナントレンの共存系では、両物質とも41日目までは分解がみられなかったが、71日目においてヘキサデカンは21%、フェナントレンは15%が分解した。またヘキサデカンとアントラセンの共存系においては、ヘキサデカンはヘキサデカンとフェナントレンの共存系と同様に、31日目までは分解がみられなかったものの、71日目には32%が分解したが、一方アントラセンは71日間の培養期間では分解がみられなかった。なお各系とも、pHは7.0付近で安定していた。

単一系と共存系における各物質の分解様式の相違をみるために、残存基質濃度の経日変化についてヘキサデカンを図3・1・32に、フェナントレンおよびアントラセンを図3・1・33にそれぞれ示した。図3・1・32から、共存系のヘキサデカンの分解開始時期が、単一系のヘキサデカンに比べて遅れ、また分解速度も低下するという結果が得られた。このことは、フェナントレンやアントラセンが存在すると、ヘキサデカンの微生物分解が遅延されるということを示唆するものであった。一方図3・1・33より、フェナントレンとアントラセンについては、単一系および共存系を比較しても分解に差はみられなかったことから、ヘキサデカンの存在は、フェナントレンとアントラセンの微生物分解には無関係であることがわかった。

(2) 好気条件下におけるヘキサデカンとアントラセンの共存系における分解

嫌気状態における共存系実験の結果から、フェナントレンおよびアントラセンの存在がヘキサデカンの微生物分解を遅延すること、フェナントレンおよびアントラセンの分解がヘキサデカンとは独立して行われることが示唆された。今回は好気状態での共存系実験を行い、嫌気状態の結果との比較を試みた。

'93.6.に行ったヘキサデカンとアントラセンの共存系について、底泥スラリーのORP、pHおよ

び残存基質濃度の経日変化について図3・1・34、35に示した。なお同時期に平衡して行ったヘキサデカンおよびアントラセン単一系における結果については、3・1・1で記載した。単一系と共存系におけるヘキサデカンおよびアントラセンの残存濃度の経日変化をヘキサデカンは図3・1・36に、アントラセンは図3・1・37にそれぞれまとめた。また誘導期間、半減期および最大分解速度についてヘキサデカンを表3・2・1に、アントラセンを表3・2・2にまとめた。

表3・2・1 単一系と共存系における
ヘキサデカン分解様式の比較

実験系	誘導期間 [days]	半減期 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{乾泥} \cdot \text{d}^{-1}$]
単一系	0	4.5	45
共存系	0	7	21

表3・2・2 単一系と共存系における
アントラセン分解様式の比較

実験系	誘導期間 [days]	半減期 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{乾泥} \cdot \text{d}^{-1}$]
単一系	10	12	41
共存系	10	12	38

ヘキサデカンについては、単一系と共存系共に誘導期間はみられないものの、共存系の分解速度は単一系のものに比べて1/2に減少した値であった。しかし共存系においても実験終了時の23日目には、単一系とほぼ等しい分解率(93%)まで分解した。このことから、好気状態においても、アントラセンの存在によってヘキサデカンの分解が遅延されることが確認された。しかし、共存系においても、分解速度が低下するために分解に時間を要するが、単一系と同程度まで分解可能なことが確認できた。このことから、(1)の嫌気状態における共存系のヘキサデカンも、さらに培養時間を延長すればさらに分解が進行したのではないかと考えられた。

アントラセンについては、誘導期間、半減期および分解速度とも単一系と共存系では相違はみられなかった。このことは嫌気条件下の場合と同様に、ヘキサデカンの存在に関わらず、アントラセンの分解は進行することを確認できた。

なお各系とも、pHは6.8付近で安定し、またORPから好気状態が確認できた。

以上の結果より、好気および嫌気状態での単一系と共存系における3物質の分解様式は、①共存系においてヘキサデカンの最終的な分解率は変わらないが、微生物分解作用が遅延する、②フェナ

ントレンおよびアントラセンはヘキサデカンの存在に関係なく（独立して）分解される、ことが明らかになった。

(3) フェナントレンおよびアントラセンの濃度変動とヘキサデカンの分解への影響

共存するフェナントレンやアントラセンの濃度とヘキサデカンの分解への影響を明らかにする目的で、様々な濃度に設定したフェナントレンあるいはアントラセンとヘキサデカンの共存系における分解を試みた。

実験系 ヘキサデカン (HEX) とアントラセン (ANT) の共存系

HEX+ANT (1/5) (46) (93.7.)

HEX+ANT (1) (232)

HEX+ANT (2) (1160)

ヘキサデカン (HEX) とフェナントレン (PHE) の共存系

HEX+PHE (1/5) (46) (93.9.)

HEX+PHE (1) (232)

HEX+PHE (5) (1160)

() : アントラセン、フェナントレン初期濃度 [$\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ -乾泥]

なお並列して行った各物質の単一系実験の結果は3・1・1で記した。

ヘキサデカンとアントラセンの共存系およびヘキサデカンとフェナントレンの共存系における残存ヘキサデカン濃度とその分解率の経日変化を同じ時期に行った単一系の結果と合わせて図3・1・38、39、図3・1・40、41にそれぞれ示した。

また誘導期間、半減期および最大分解速度についてヘキサデカンとアントラセンの共存系について表3・2・3、ヘキサデカン+フェナントレン共存系については表3・2・4にそれぞれまとめた。

表3・2・3 単一系、ヘキサデカンとアントラセンの共存系におけるヘキサデカン分解様式の比較

実験系	誘導期間 [days]	半減期 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ -乾泥 $\cdot\text{d}^{-1}$]
HEX単一系	0	2.5	36
HEX+ANT(1/5)	3	6	33
HEX+ANT(1)	3	9	21
HEX+ANT(2)	3	6	28

表 3・2・4 単一系、ヘキサデカンとフェナントレンの
共存系におけるヘキサデカン分解様式の比較

実験系	誘導期間 [days]	半減期 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{乾泥}\cdot\text{d}^{-1}$]
HEX単一系	0	1	8.1
HEX+PHE(1/5)	2	4.5	4.7
HEX+PHE(1)	5	7	4.9
HEX+PHE(5)	4	6	6.5

両共存系において、単一系と比較してアントラセンあるいはフェナントレンの濃度によらずヘキサデカンの分解が遅延する傾向がみられ、共存系のみ誘導期間が存在した。なお今回設定した共存系での濃度レベルの範囲内においては、ヘキサデカンの微生物分解に与える影響は同様であることが示唆された。

また最大分解速度については、ヘキサデカンとアントラセンの共存系では、単一系と共存系では大差はみられなかったが、ヘキサデカンとフェナントレンの共存系においては、共存系では単一系に比べて低下した。しかしどちらも最終的な分解率は、単一系と共存系には差がみられなかった。

一方共存系におけるアントラセンの残存濃度および分解率の経日変化について図 3・1・42、43 にそれぞれ示した。共存系のアントラセンの誘導期間は、HEX+ANT(1/5)系が7日間、HEX+ANT(1)系が9日間、そしてHEX+ANT(2)系では15日間となり、初期添加量が増加するとともに誘導期間も増加した。またこの誘導期間が、初期添加量の15~30%を分解するまでの期間と一致することが明らかになった。共存系におけるフェナントレンについても残存濃度と分解率の経日変化を図 3・1・44、45に示したが、誘導期間にみられたHEX+PHE(1)系およびHEX+PHE(2)系についてみると、初期添加量の5~10%を分解するまでの期間と誘導期間が一致した。誘導期間と分解率の関係については、3・1・1で述べたフェナントレンおよびアントラセンの単一系の結果にも一致がみられた。

またヘキサデカンとフェナントレンの共存系において、それぞれの系における従属栄養細菌数、ヘキサデカン分解菌数およびフェナントレン分解菌数の経日変化を図 3・1・46~48に示した。共存系では単一系と比較すると、従属栄養細菌数が高くなっているが、これは微生物の基質となる炭素について、共存系ではフェナントレンの量だけ底泥スラリー内の総炭素量が多くなることが影響していると思われる。ヘキサデカン分解菌の増殖速度および安定期の菌数について、単一系と共存系を比較しても有意な差は認められなかった。一方フェナントレン分解菌数については、フェナントレン濃度が高いほど菌数も多くなり、濃度と菌数の間には相関がみられた。

3・1・3 再添加系における分解

フェナントレンあるいはアントラセンの及ぼすヘキサデカンの分解を遅延させる影響が、一時的なものなのか、あるいは持続可能なものなのかを明らかにするために、培養期間中のある時点でアントラセンを添加し、その後のヘキサデカンの分解がどのような挙動を示すかを明らかにした。具体的には、ヘキサデカン単一系において、3日目にアントラセンのみ、あるいはヘキサデカンとアントラセンの混合、これと同炭素に匹敵するヘキサデカンをそれぞれ添加して行った。

アントラセンを添加した系については図3・1・49に、ヘキサデカンとアントラセンを共存状態で、また対象としてヘキサデカンのみを添加した系を図3・1・50にそれぞれ示した。図3・1・9からアントラセンを添加しても、ヘキサデカンの分解には全く影響がでないことが明らかになった。また図3・1・50においても、再添加したヘキサデカンの分解速度に差はみられなかった。もしアントラセンを添加したことによってヘキサデカンの分解速度が低下するようなことがあれば、アントラセンがヘキサデカンの微生物分解に対して、何らかの影響を及ぼしたことになるが、ヘキサデカンの分解が変化しないという結果を得たことから、一旦微生物がヘキサデカン分解能力を獲得すれば、アントラセンが存在しても、ヘキサデカン分解過程に影響は現れないことが示唆された。

なお同様な結果は、フェナントレンとヘキサデカンの組み合わせにおいても確認された。

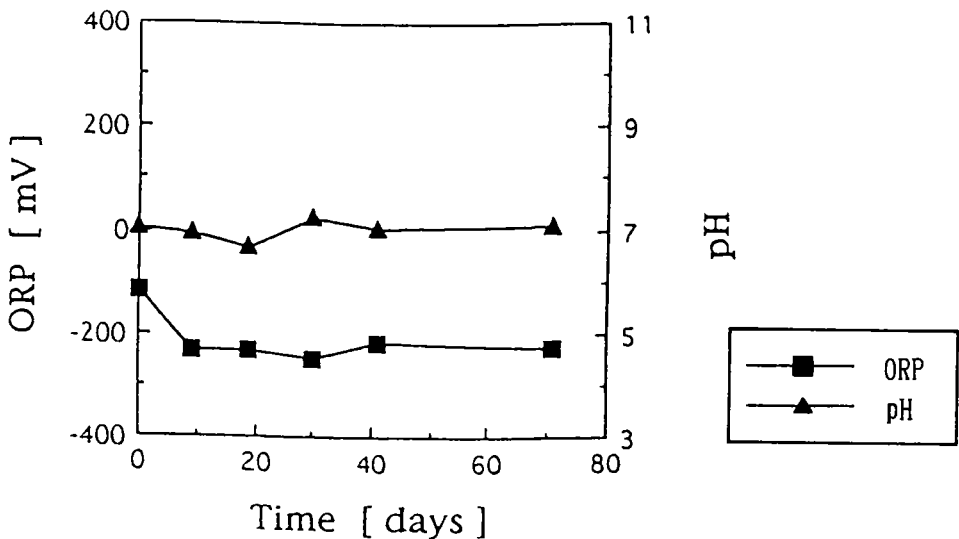


図3・1・28 嫌気状態でのヘキサデカン+フェナントレン共存系分解実験（'93.4.）におけるpH、ORPの経日変化

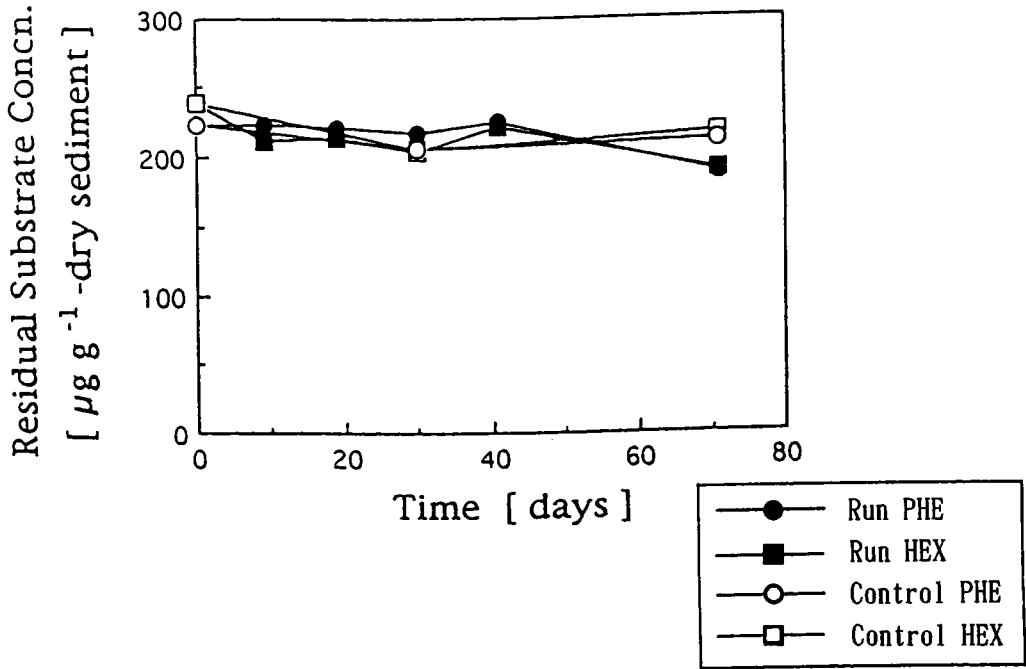


図 3・1・29 嫌気状態でのヘキサデカン+フェナントレン共存系分解実験 ('93.4.)
 における残存ヘキサデカンおよびフェナントレン濃度の経日変化

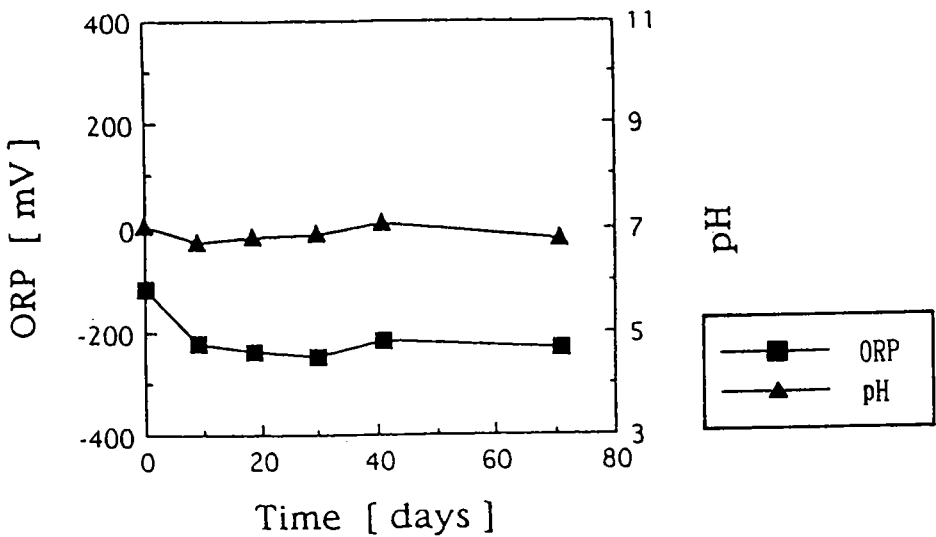


図 3・1・30 嫌気状態でのヘキサデカン+アントラセン共存系分解実験 ('93.4.)
 における pH、ORP の経日変化

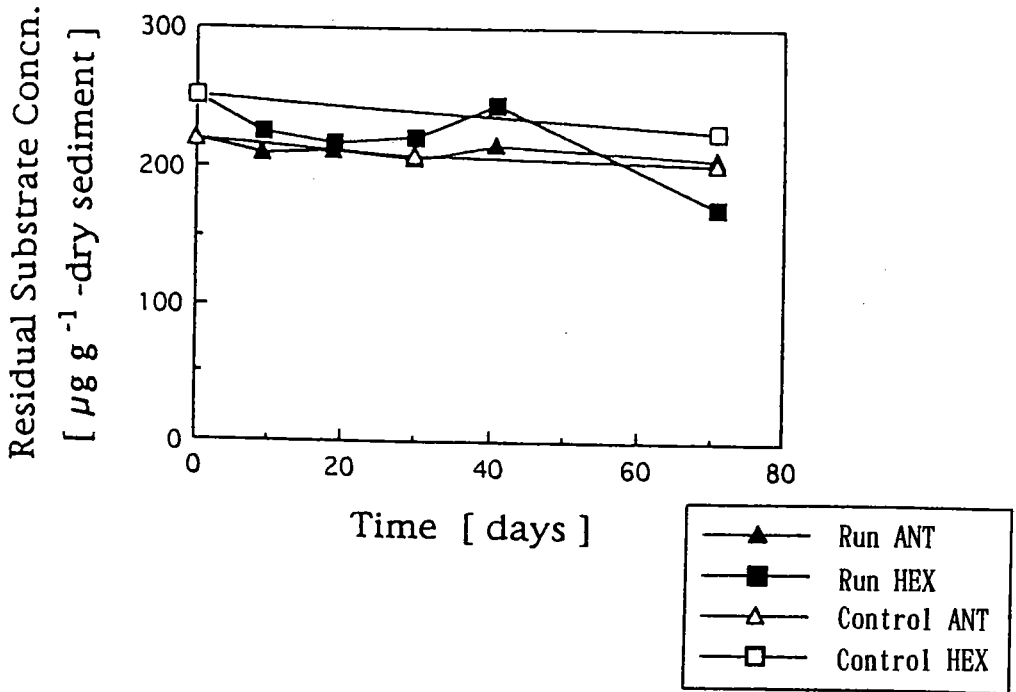


図 3・1・31 嫌気状態でのヘキサデカン+アントラセン共存系分解実験 ('93. 4.)
 における残存ヘキサデカンおよびアントラセン濃度の経日変化

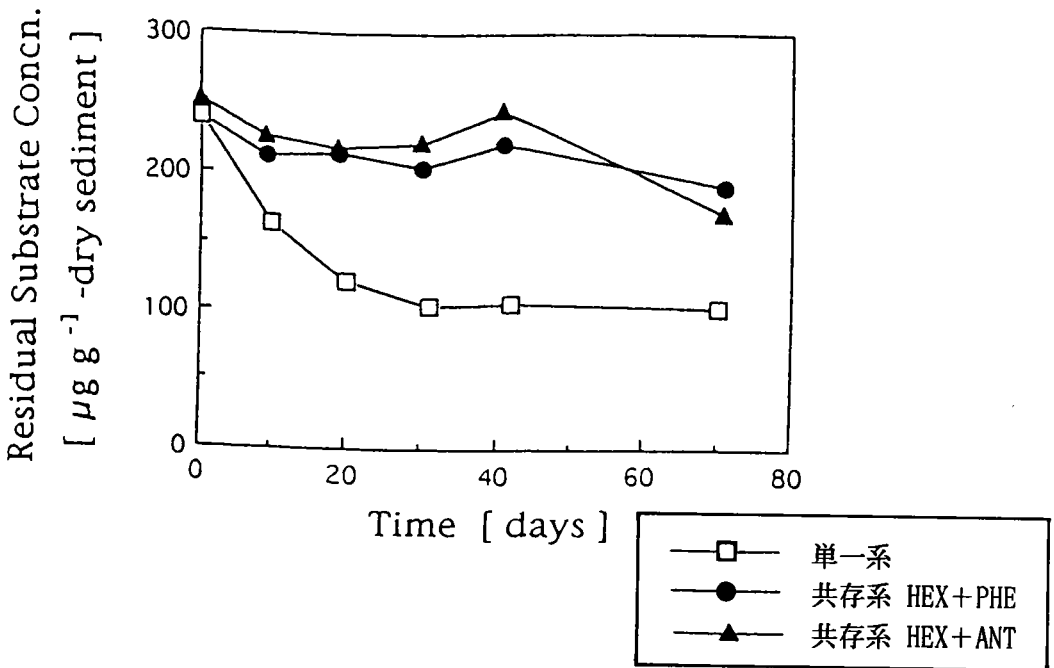


図 3・1・32 嫌気状態での単一系および共存系分解実験 ('93. 4.)
 における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

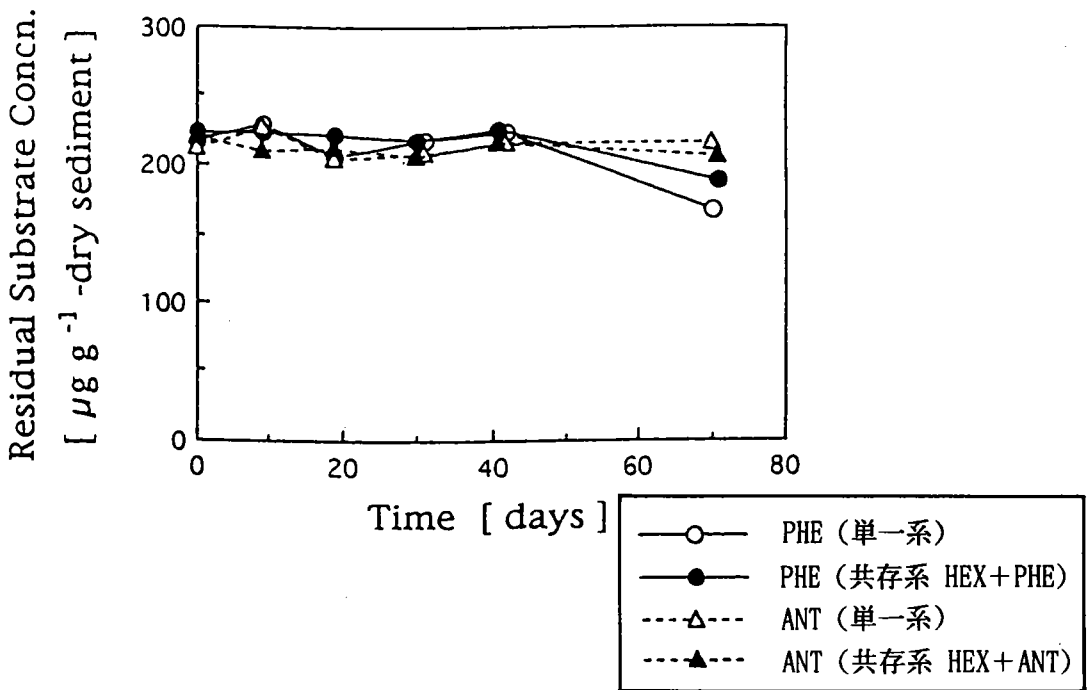


図 3・1・33 嫌気状態での単一系および共存系分解実験（'93.4.）における残存フェナントレンおよびアントラセン濃度の経日変化

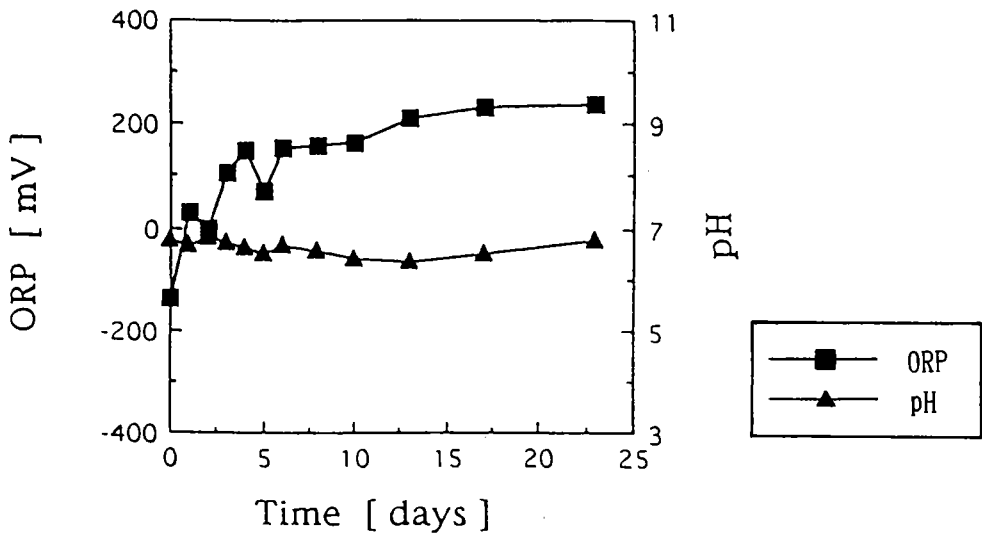


図 3・1・34 好気状態でのヘキサデカン+アントラセン共存系分解実験（'93.6.）における pH、ORP の経日変化

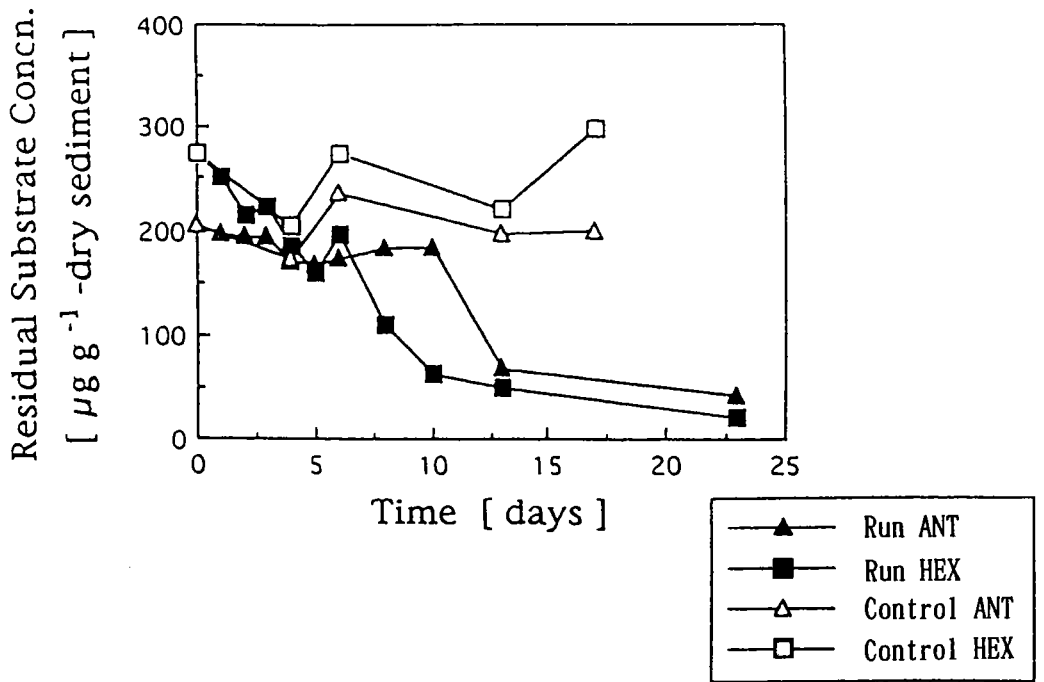


図 3・1・35 好気状態でのヘキサデカン+アントラセン共存系分解実験 ('93.6.)
 における残存ヘキサデカンおよびアントラセン濃度の経日変化

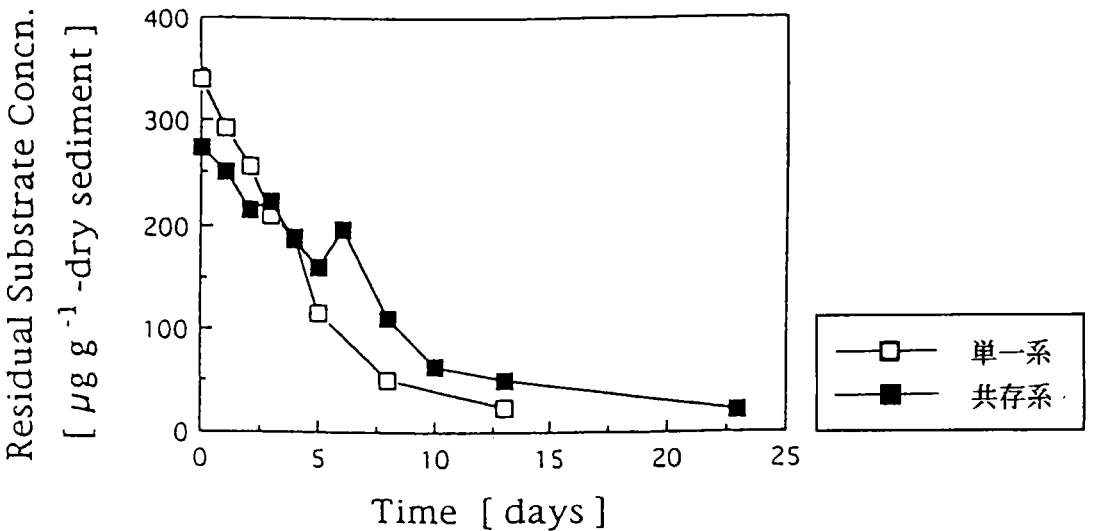


図 3・1・36 好気状態での単一系および共存系分解実験 ('93.6.)
 における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

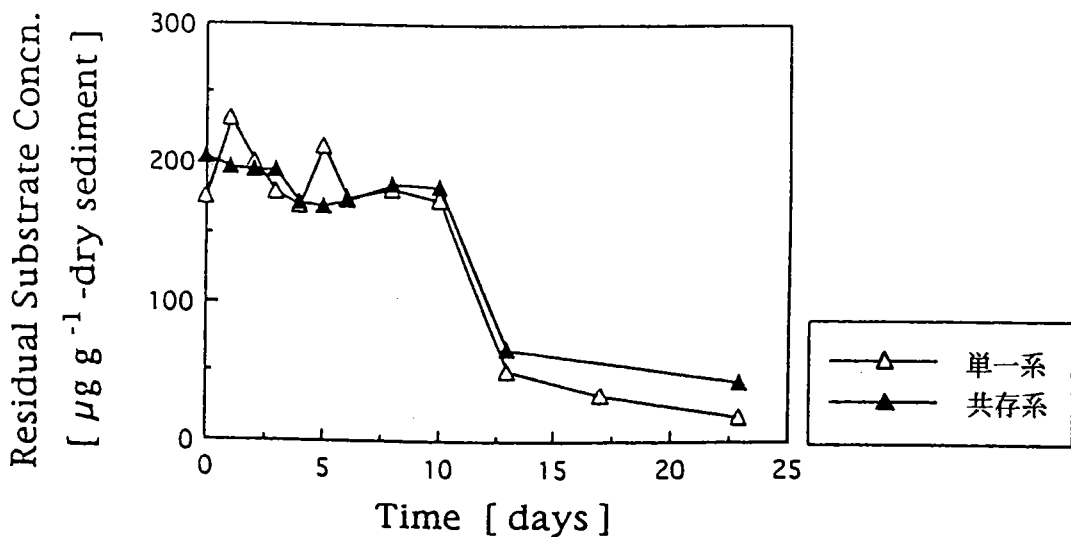


図 3・1・37 好気状態での単一系および共存系分解実験 ('93.6.)
 における残存アントラセン濃度の経日変化

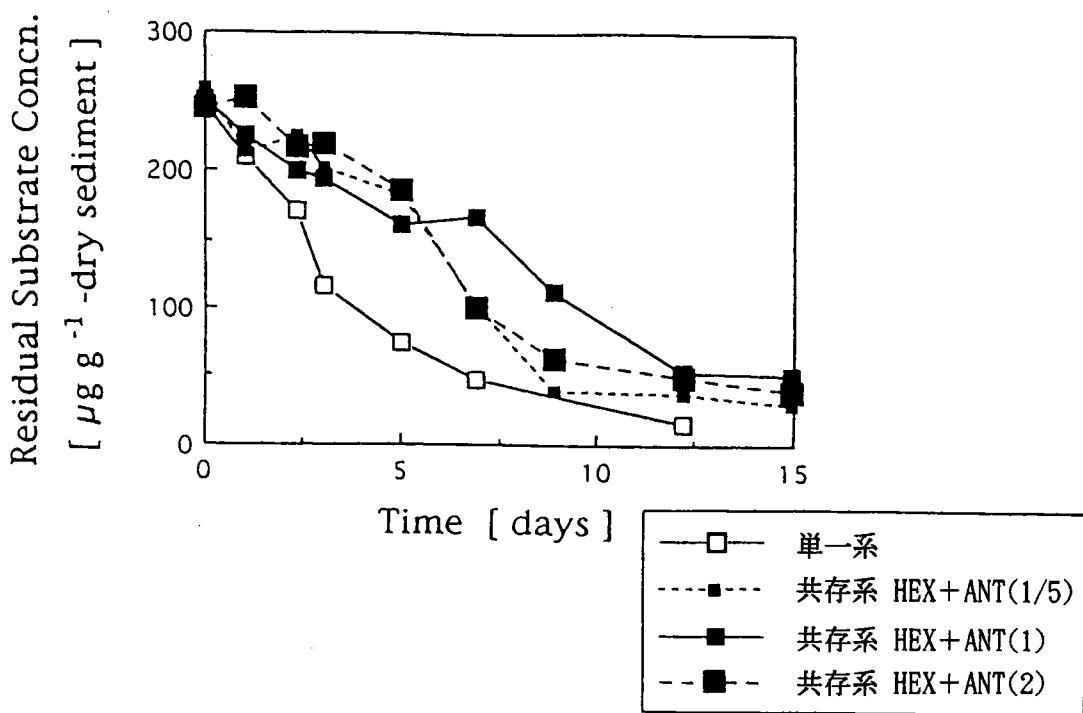


図 3・1・38 好気状態での単一系および共存系分解実験 ('93.7.)
 における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

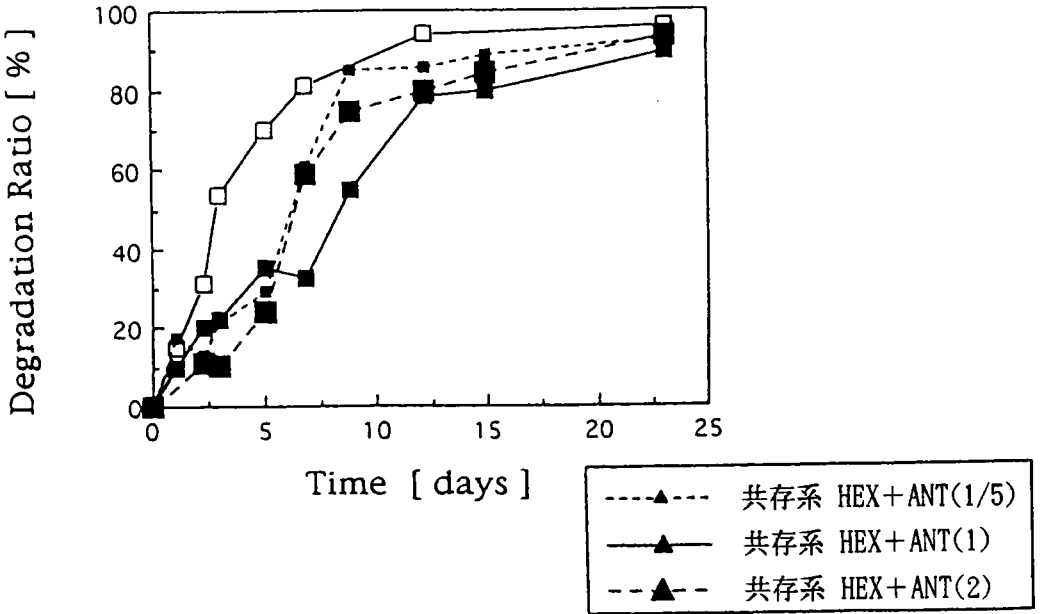


図3・1・39 好気状態での単一系および共存系分解実験 ('93.7.)
 におけるヘキサデカン分解率の経日変化

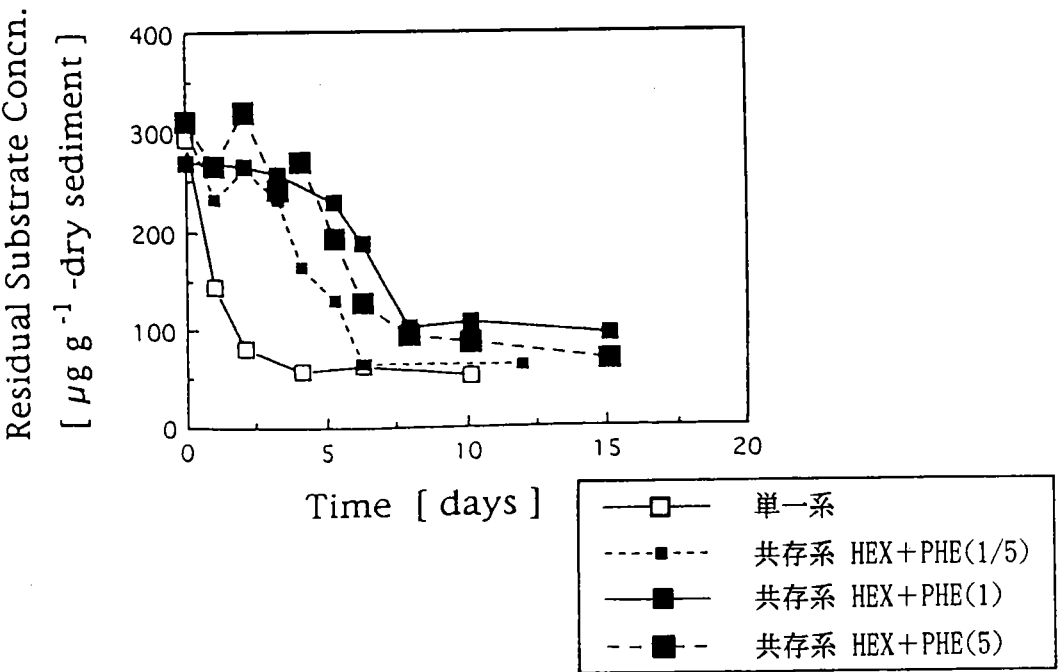


図3・1・40 好気状態での単一系および共存系分解実験 ('93.9.)
 における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

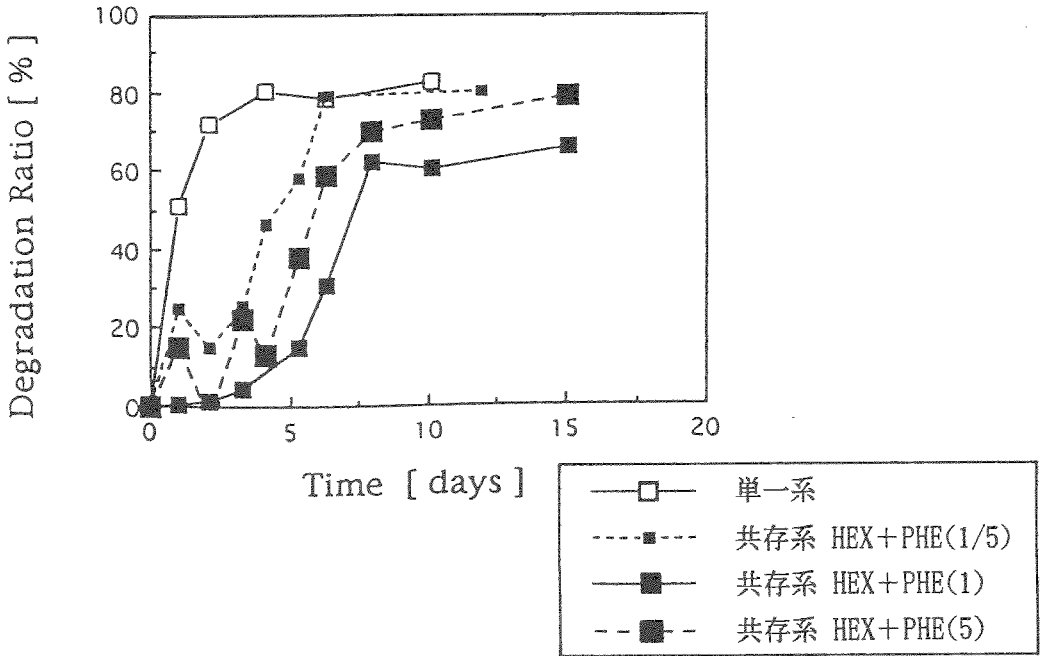


図 3・1・41 好気状態での単一系および共存系分解実験（'93.9.）
におけるヘキサデカン分解率の経日変化

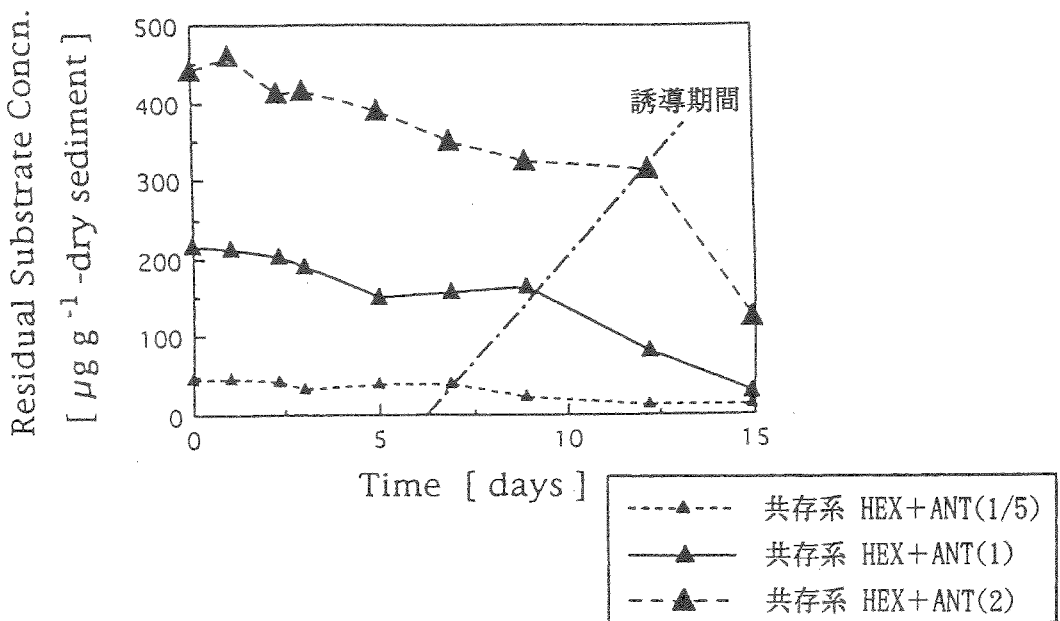


図 3・1・42 好気状態での共存系分解実験（'93.7.）における
残存アントラセン濃度の経日変化

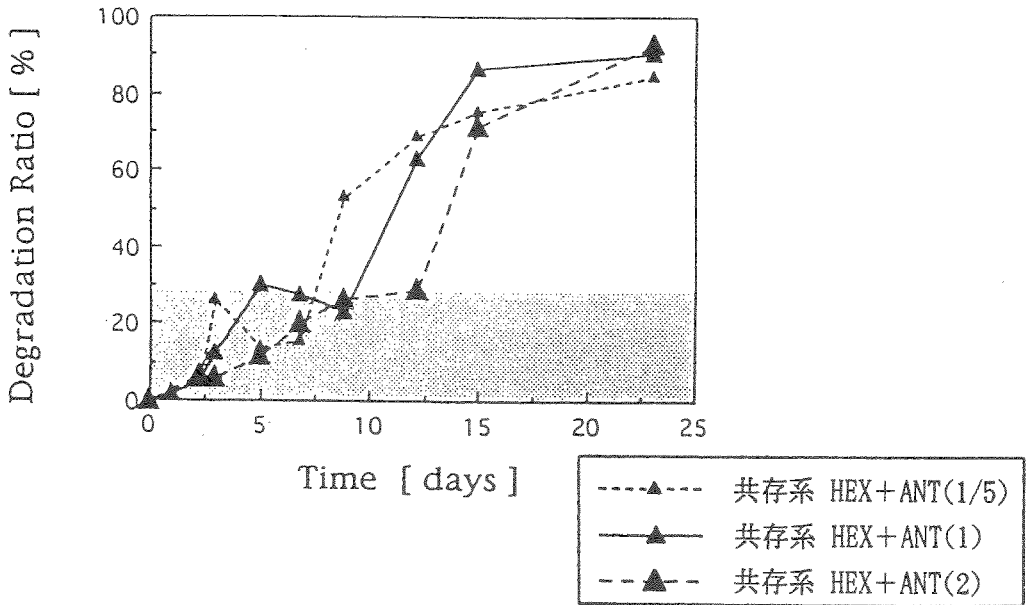


図3・1・43 好気状態での共存系分解実験（'93.7.）における
アントラセン分解率の経日変化

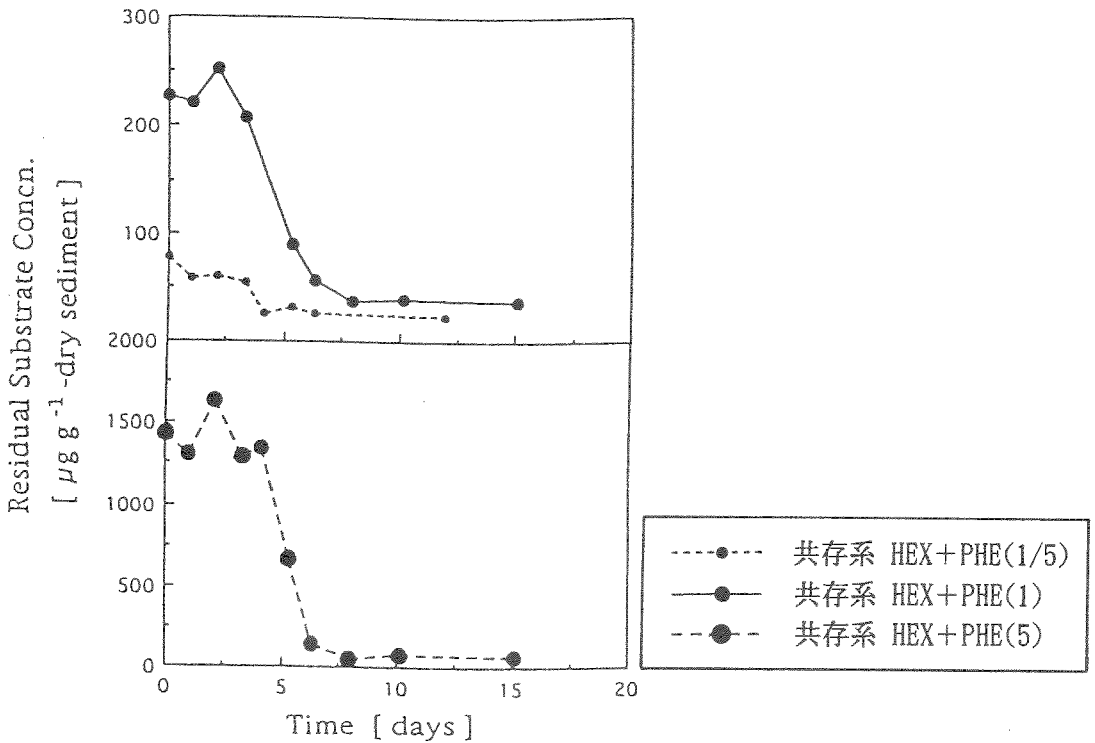


図3・1・44 好気状態での共存系分解実験（'93.9.）における
残存フェナントレン濃度の経日変化

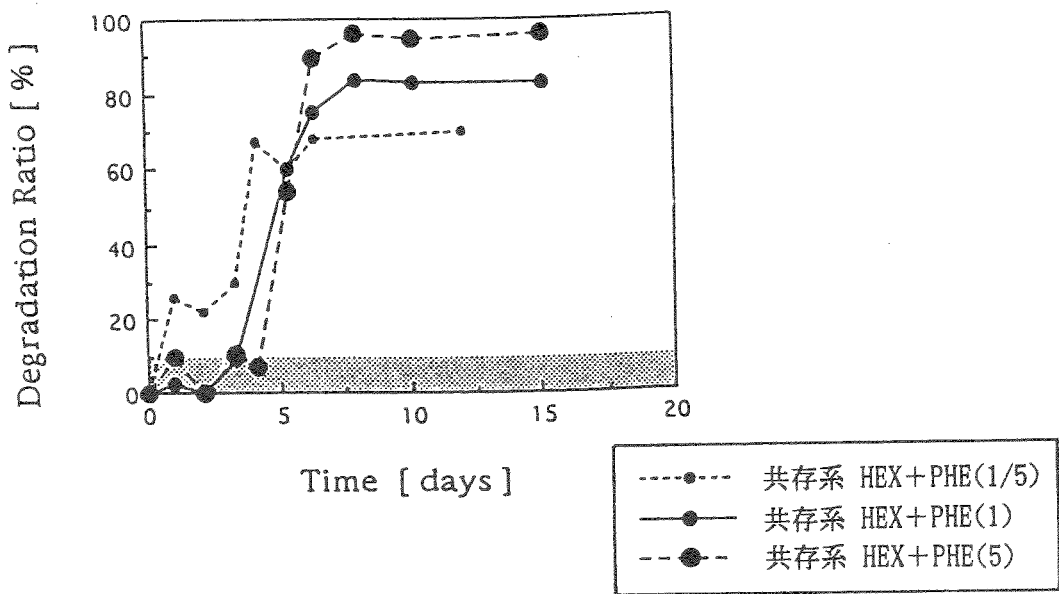


図3・1・45 好気状態での共存系分解実験 ('93.9.) におけるフェナントレン分解率の経日変化

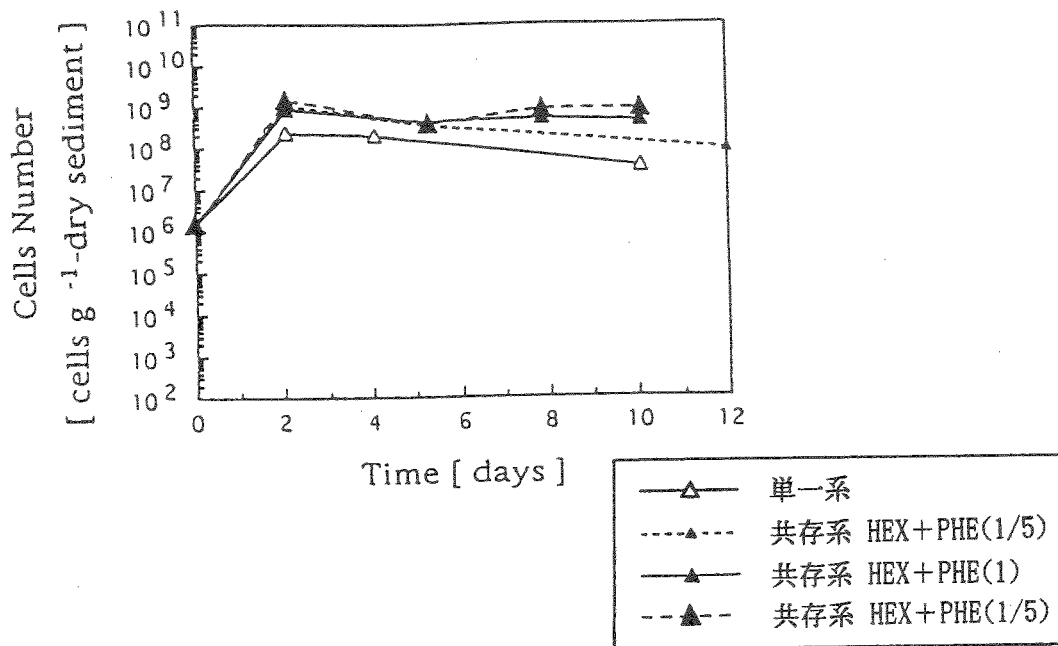


図3・1・46 好気状態での共存系分解実験 ('93.9.) における従属栄養細菌の経日変化

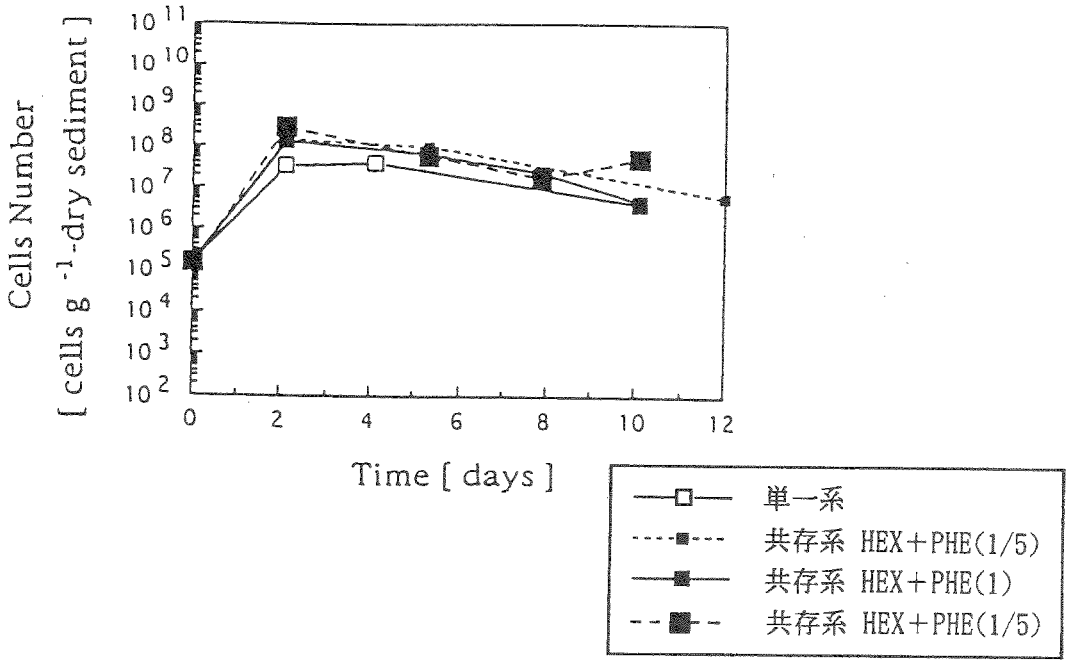


図 3・1・47 好気状態での共存系分解実験 ('93.9.) におけるヘキサデカン分解菌の経日変化

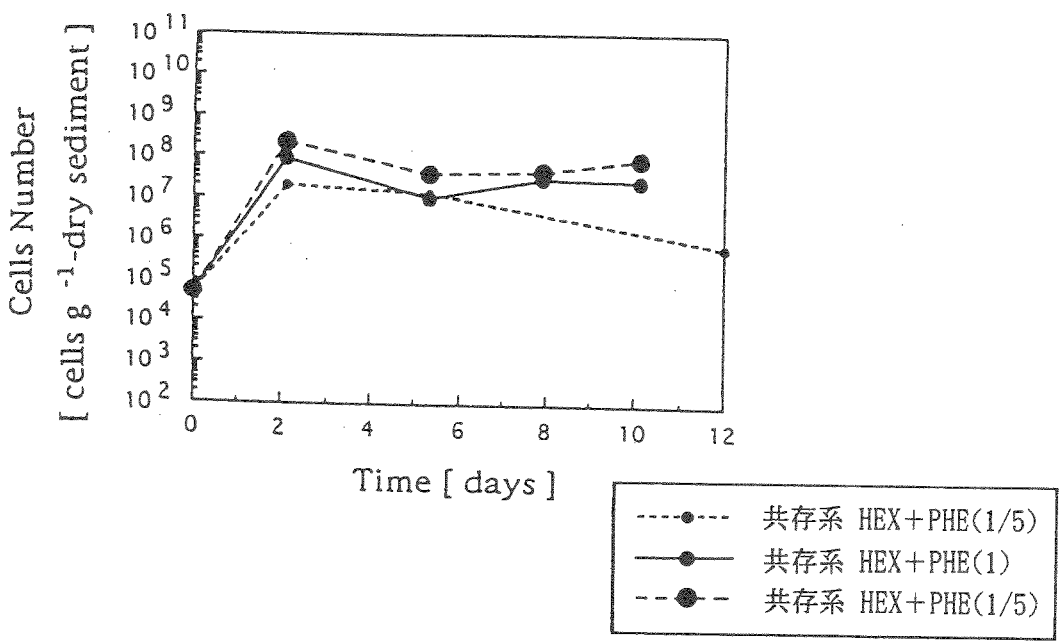


図 3・1・48 好気状態での共存系分解実験 ('93.9.) におけるフェナントレン分解菌の経日変化

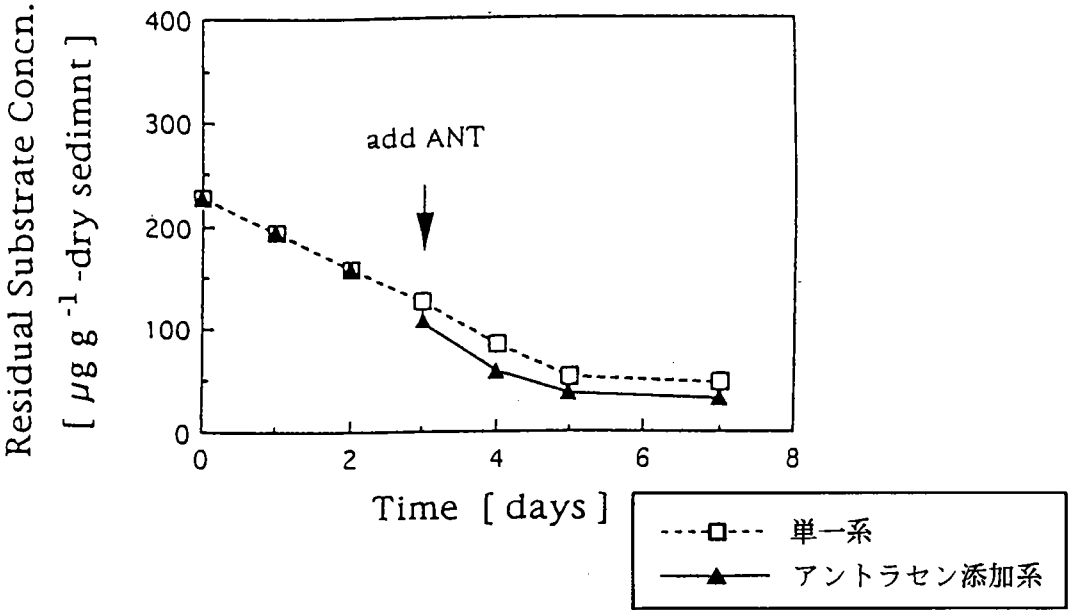


図 3・1・49 好気状態でのアントラセン再添加系分解実験 ('93.11.)
における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

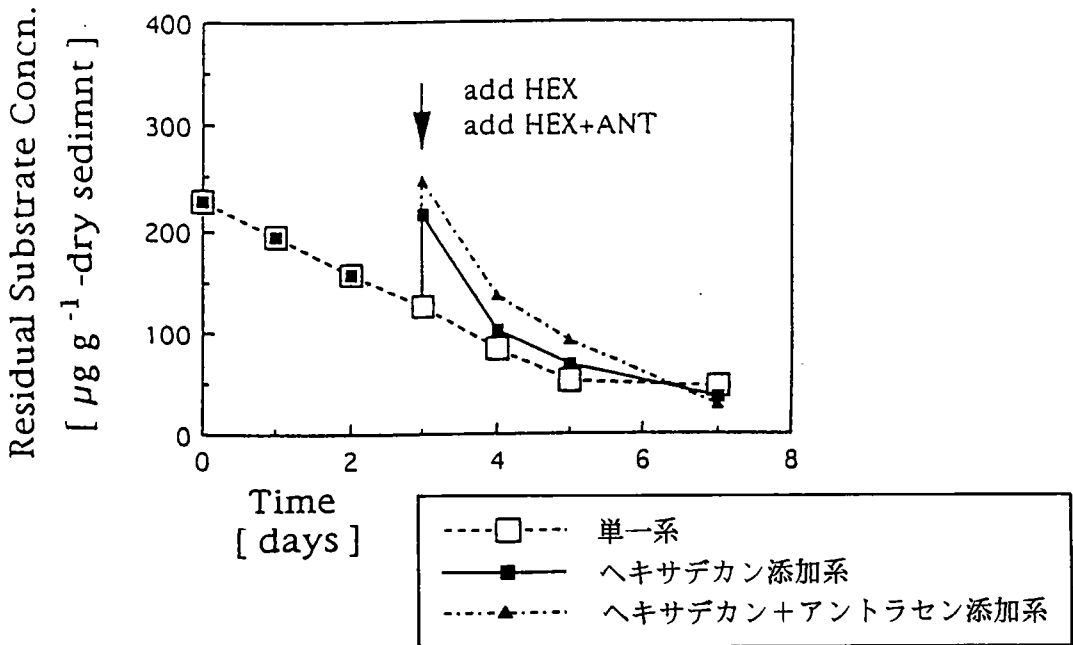


図 3・1・50 好気状態でのアントラセンおよび
ヘキサデカン+アントラセン再添加系分解実験 ('93.11.)
における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

3・2 培養条件が分解に及ぼす影響

3・2・1 塩分濃度が分解に及ぼす影響

河口域の底泥において、微生物分解に影響を及ぼす環境因子としては、底泥の温度、酸素濃度、栄養塩濃度、塩分濃度などの因子が挙げられるが、特に他の水域と比較して河口域でのみ現れる特徴としては、塩分濃度の変化が挙げられる。このため河口域に棲息する微生物と塩分濃度の間には、特異的な関係が存在すると思われる。そこで塩分濃度をパラメーターとした、微生物の分解様式への影響について調べた。

(1) 河口域での塩分濃度および水位の経時変化

'93.11.17.の干潮から満潮までの、底泥直上水（底泥表層より約5cm上部の河川水）の塩化物イオン濃度および水位の経時変化を図3・2・1に示した。なお当日以前の3日間にかけては降雨はなく天候は安定しており、また潮見表によると当日は中潮であった。測定結果、底泥直上水の塩化物イオン濃度は、満潮時付近で $13,300\text{mg-Cl}\cdot\ell^{-1}$ で最高となり、干潮時付近で $7,400\text{mg-Cl}\cdot\ell^{-1}$ で最低となった。また水位は満潮時で2.3m、干潮時で1.7mであった。

いくつかの報告の中には、河口底泥内部の塩分濃度の潮時変化を調べ、上水中の塩分濃度が朝夕に応じて大きく変化する場合においても、底泥内部の塩分濃度はあまり変化しないという結果もある⁹⁾。このことから、河口域での河川水中の塩分濃度変化による影響を直接受けるのは、底泥表層部に棲息する微生物であることが示唆された。

(2) 塩化物イオン濃度と微生物分解

3・2・1の結果をもとに、底泥スラリー間隙水の塩化物イオン濃度を5,000、10,000、15,000 $\text{mg-Cl}\cdot\ell^{-1}$ の3つの系に設定し、ヘキサデカン、フェナントレンおよびアントラセン3物質の単一系における好気状態の回分振盪培養を行い、その残存基質濃度の経日変化を図3・2・2～3に示した。また各系における誘導期間および最大分解速度を表3・2・1に示した。

表3・2・1 塩分濃度をパラメーターとした分解実験における誘導期間および最大分解速度

物質	塩分濃度 [$\text{mg-Cl}\cdot\ell^{-1}$]	誘導期間 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}\cdot\text{d}^{-1}$]
HEX	5,000	0	2.6
	10,000	0	2.8
	15,000	0	2.1
PHE	5,000	6	4.9
	10,000	6	4.1
	15,000	6	4.5
ANT	5,000	1.2	2.5
	10,000	1.2	2.5
	15,000	1.2	1.9

各物質とも、塩分濃度による誘導期間および分解速度に有意な差はみられなかった。このことから、好気状態での3物質の微生物分解において、塩分濃度は分解に影響を及ぼさないことが明らかになった。

また各系において、実験開始時と分解終了時の従属栄養細菌数と各基質分解菌数の測定結果を図3・2・5～7にそれぞれ示した。従属栄養細菌数は、塩分濃度が高くなるほど減少する傾向がみられるものの、大差は無くほぼ一定の値となり、実験開始時で $3.0\sim 9.0\times 10^8$ cells \cdot g $^{-1}$ -乾泥、分解終了時では3物質とも $2.0\times 10^7\sim 2.0\times 10^8$ cells \cdot g $^{-1}$ -乾泥であった。一方基質分解菌数は、塩濃度が増加すると減少し、特に3物質とも塩分濃度が15,000mg-C1 \cdot l $^{-1}$ の系では、減少が顕著にみられた。このことから、底泥スラリー内の従属栄養細菌は、塩分濃度に関係なく一定菌数が維持されているが、従属栄養細菌の中で基質の資化能力を有する菌数は、塩分濃度の増加とともに減少することが明らかになった。

そこで低塩分濃度系底泥スラリーの菌を高塩分濃度の培地で、逆に高塩分濃度系底泥スラリーの菌を低塩分濃度の培地でそれぞれ培養することで、塩分濃度と菌数の関係について、さらに詳しい検討を行った。具体的には、アントラセン系列において、5,000、15,000mg-C1 \cdot l $^{-1}$ 系の底泥スラリーに棲息する菌を、それぞれ15,000、5,000mg-C1 \cdot l $^{-1}$ の培地で培養した。この結果を、従属栄養細菌については図3・2・8に、アントラセン分解菌については図3・2・9にそれぞれ示した。5,000mg-C1 \cdot l $^{-1}$ 系の菌を15,000mg-C1 \cdot l $^{-1}$ の培地で培養すると、従属栄養細菌およびアントラセン分解菌数がともに減少することから、高塩分濃度の環境になれば、菌数が減少することが確認できた。一方15,000mg-C1 \cdot l $^{-1}$ 系の菌を5,000mg-C1 \cdot l $^{-1}$ の培地で培養すると、従属栄養細菌数およびアントラセン分解菌数がともに増加した。このことは低塩分濃度環境のみで活性を示すアントラセン分解菌が存在し、この分解菌は、高塩分濃度環境では死滅してしまうのではなく、休止状態にあり、環境条件が低塩分濃度に変われば、再び活性を戻すような性質を持つものと推測された。また両系とも15,000mg-C1 \cdot l $^{-1}$ の培地のアントラセン分解菌数は、5,000mg-C1 \cdot l $^{-1}$ の培地のそれと比べると、約10%減少しているが、この減少部分が、高塩分濃度環境では休止状態になる菌数を表していたと考えられた。

河口域の河川水中の微生物による、合成洗剤の成分であるニトリロトリ酢酸 (nitrilotriacetic :NTA) の分解について、塩分濃度が増加するとNTAの分解が減少し、微生物種の多用性も減少することが報告されている^{7, 8)}。本研究とは用いた基質が異なるものの、この報告と比較して、本研究では塩分濃度が増加しても分解速度が低下しなかったことについて、河口域における河川水と底泥との環境条件の違いが影響しているものと考えられた。すなわち約12時間サイクルでおこる干潮満潮による海水の影響は、河川水に比べて底泥の方がより大きいために、底泥中の特に表層部に棲息する微生物は、短時間に大きく変動する塩分濃度に対して十分な適応能力を獲得しており、塩分濃度変動しても分解能力には影響が及ばないと考えられたからである。

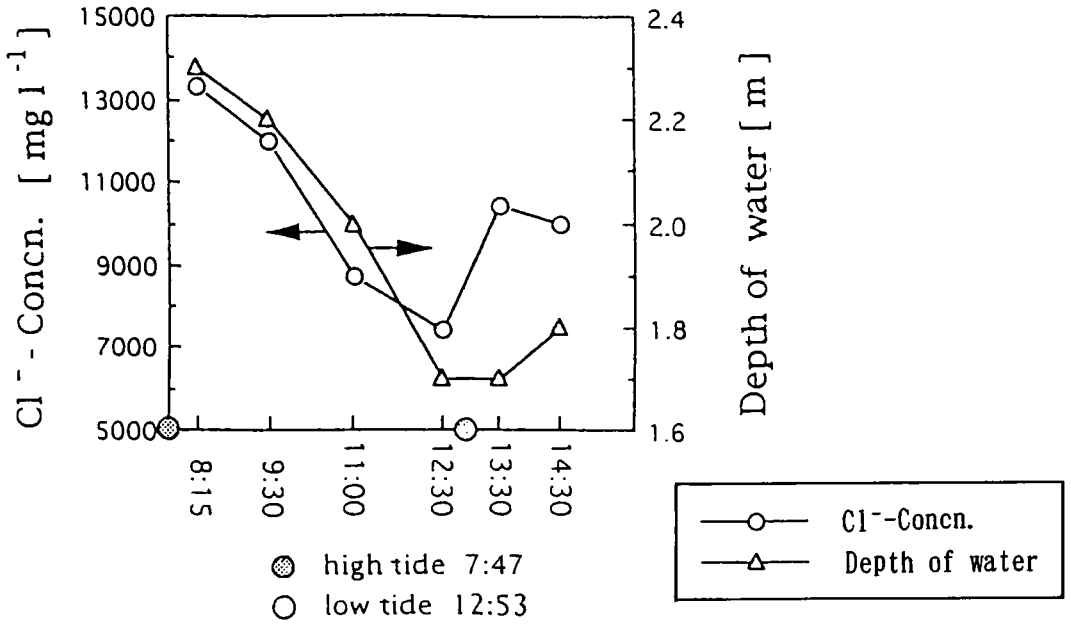


図3・2・1 多摩川河口域における底泥直上水の塩化物イオン濃度および水位の経日変化 ('93.11.17.)

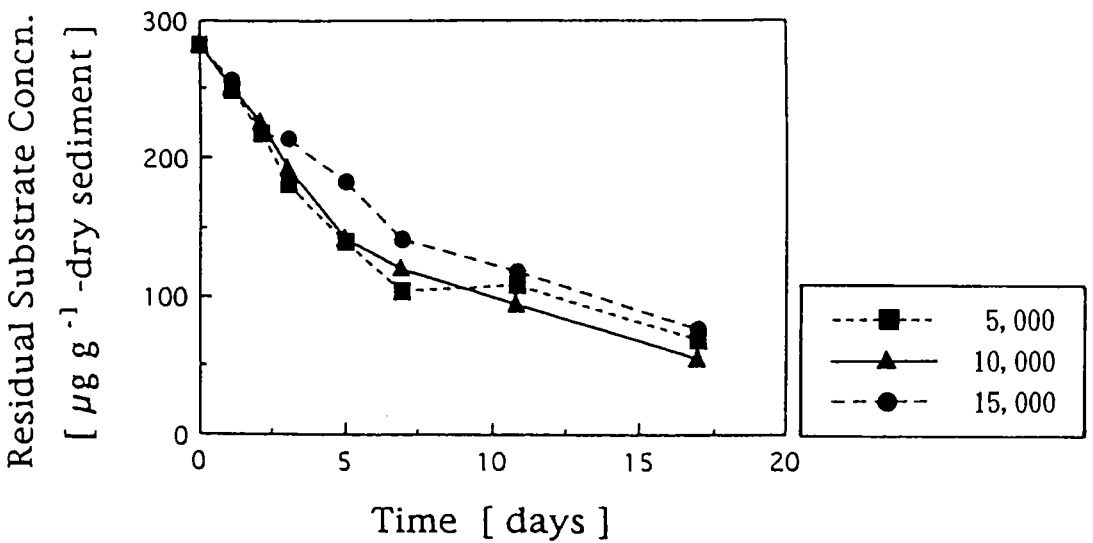


図3・2・2 各塩分濃度でのヘキサデカン単一系分解実験における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

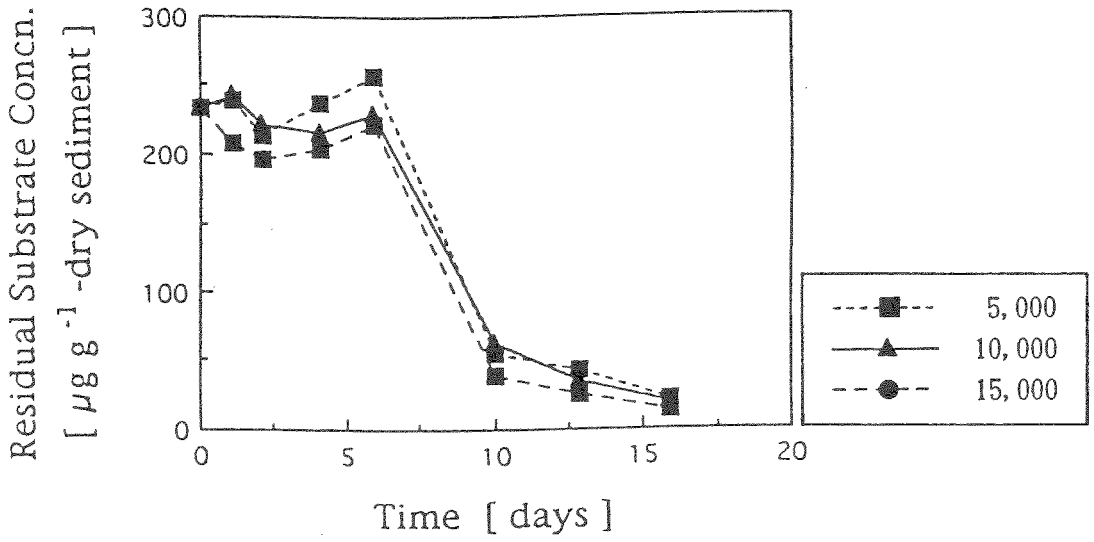


図3・2・3 各塩分濃度でのフェナントレン単一系分解実験における残存フェナントレン濃度の経日変化

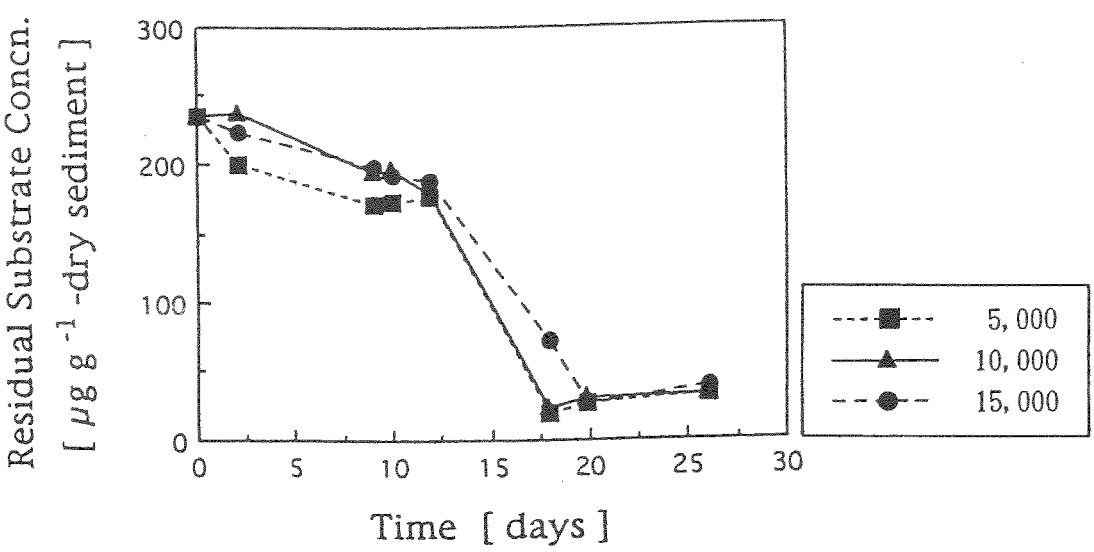


図3・2・4 各塩分濃度でのアントラセン単一系分解実験における残存アントラセン濃度の経日変化

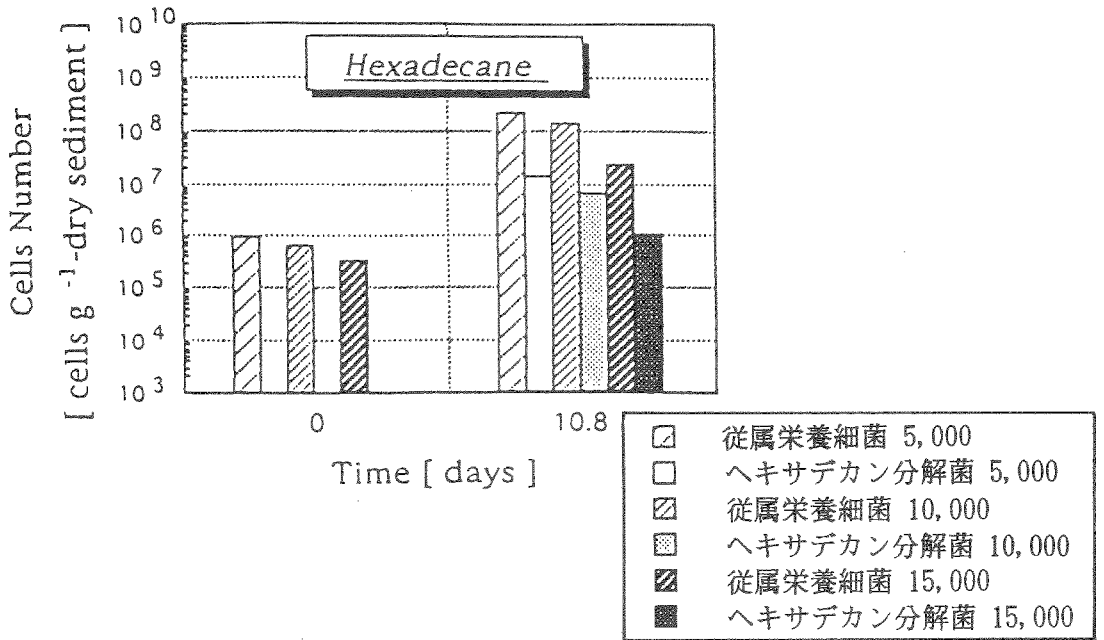


図3・2・5 各塩分濃度でのヘキサデカン単一系分解実験における
0日目と10.8日目の従属栄養細菌数およびヘキサデカン分解菌数

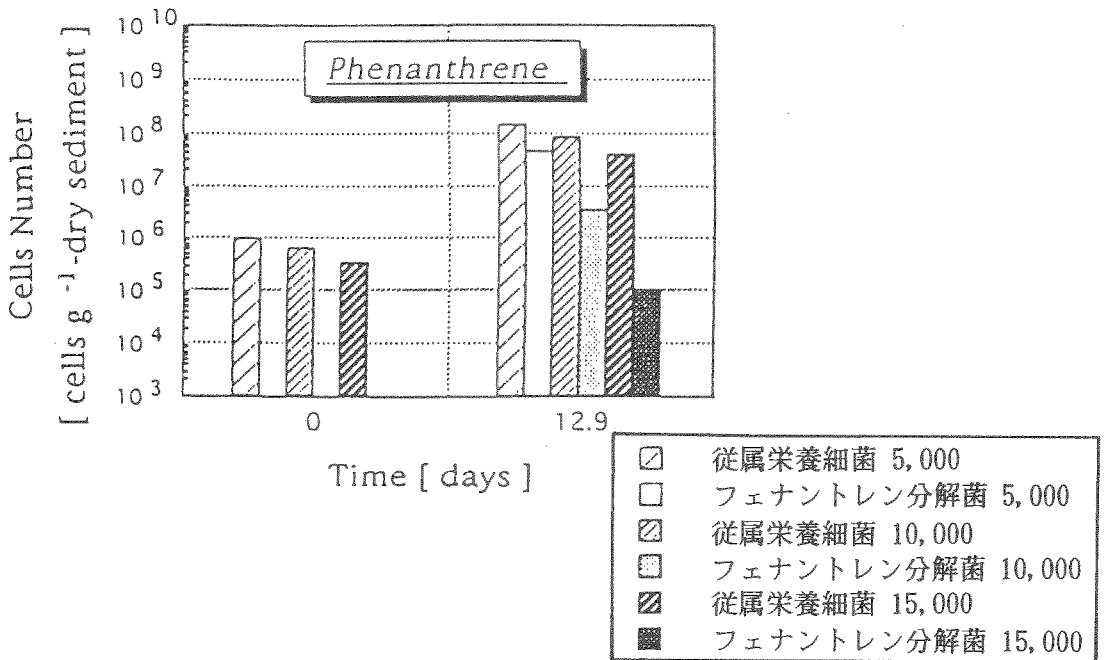


図3・2・6 各塩分濃度でのフェナントレン単一系分解実験における
0日目と12.9日目の従属栄養細菌数およびフェナントレン分解菌数

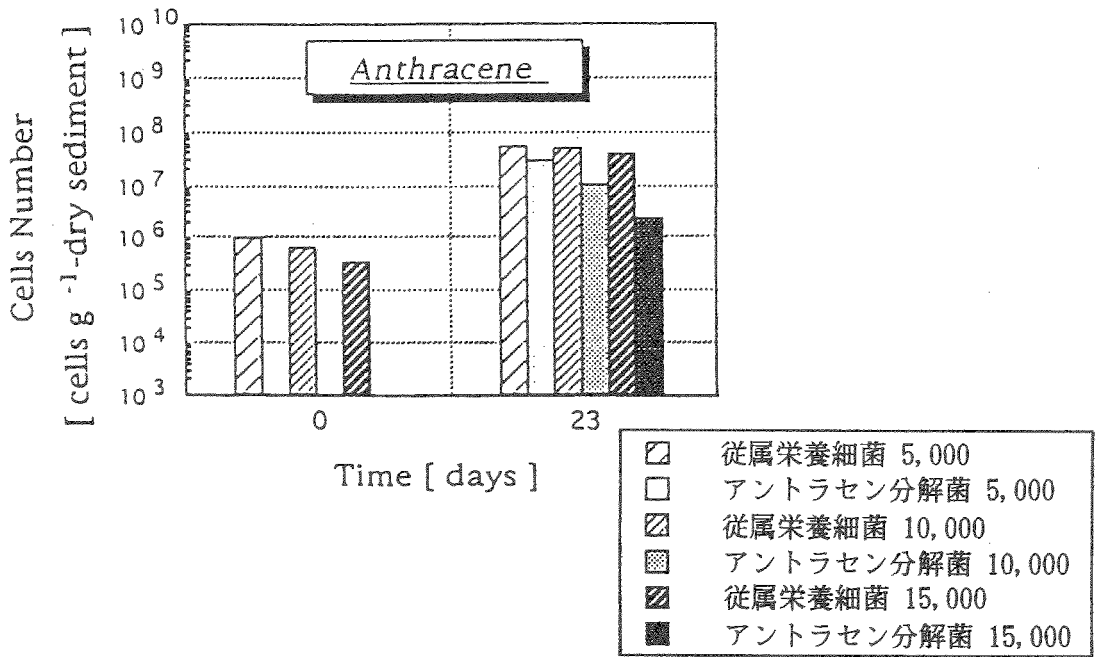


図 3・2・7 各塩分濃度でのアントラセン単一系分解実験における
0 日目と23日目の従属栄養細菌数およびアントラセン分解菌数

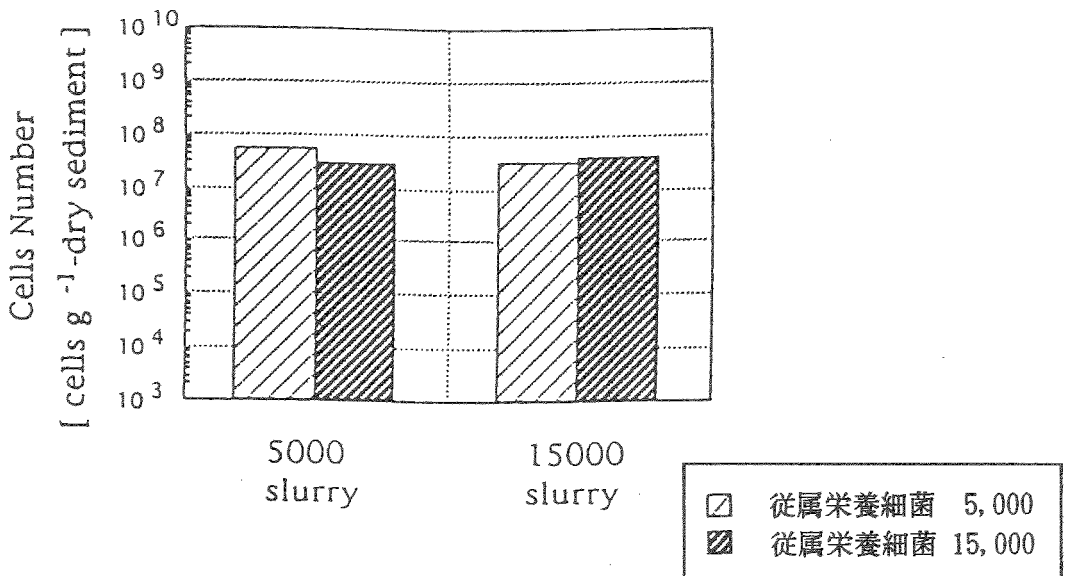


図 3・2・8 アントラセン単一系分解実験における
塩分濃度に対する従属栄養細菌の影響

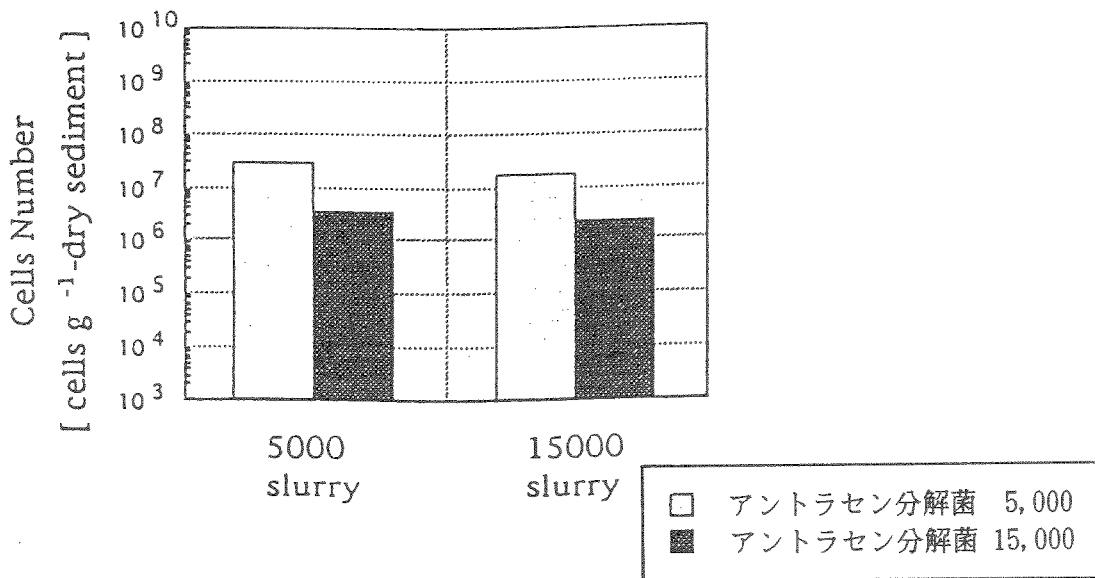


図 3・2・9 アントラセン単一系分解実験における
塩分濃度に対するアントラセン分解菌の影響

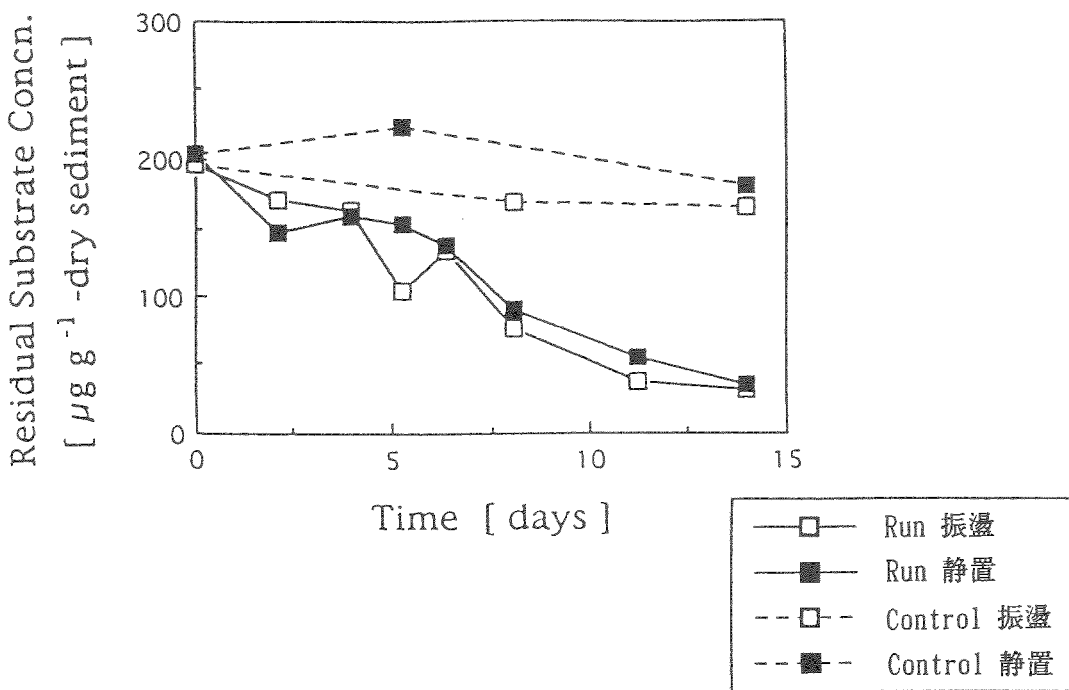


図 3・2・10 好気状態での振盪および静置培養のヘキサデカン分解実験 ('94.1.)
における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

3・2・2 振盪培養および静置培養が分解に及ぼす影響

これまでの3・1と3・2・1において、好気および嫌気状態における様々な条件下での分解速度(率)、誘導期間あるいは各種菌数を求めてきたが、これらは底泥スラリーを、振盪状態で培養した場合における結果であった。しかし、自然の河口域底泥は常にこのような振盪状態にあるわけではなく、表層部で底泥の舞い上がりや、新たな土壌粒子などの堆積がある以外は安定した状態にある。

そこで、底泥スラリーを流動させない静置した状態における分解の様子を明らかにし、振盪培養で得られた結果と比較しながら、底泥内での微生物による浄化能力、浄化プロセスについて考察した。

(1) 好気状態における2つの培養条件(振盪、静置)での分解

好気状態での振盪培養および静置培養による結果を、3物質について図3・2・10~12にそれぞれ示した。また、誘導期間、半減期および最大分解速度について表3・2・2~4にそれぞれ示した。なおこの実験は'94.1.に行った。

表3・2・2 ヘキサデカン分解実験(好気状態)における誘導期間、半減期および最大分解速度

培養条件	誘導期間 [days]	半減期 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}\cdot\text{d}^{-1}$]
振盪	4	7.5	21
静置	5	7.5	28

表3・2・3 フェナントレン分解実験(好気状態)における誘導期間、半減期および最大分解速度

培養条件	誘導期間 [days]	半減期 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}\cdot\text{d}^{-1}$]
振盪	4	4	101
静置	4	4.5	119

表3・2・4 アントラセン分解実験(好気状態)における誘導期間、半減期および最大分解速度

培養条件	誘導期間 [days]	半減期 [days]	最大分解速度 [$\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}\cdot\text{d}^{-1}$]
振盪	—	19	6
静置	—	—	2

ヘキサデカンにおいては、振盪培養系と静置培養系を比較しても、誘導期間、半減期および最大分解速度に相違はなかった。また培養終了時の分解率を比較しても、振盪培養系では84%、静置培養系では82%となったことから、ヘキサデカンについては、培養状態による分解様式には違いがないことが明らかになった。

一方、フェナントレンでは誘導期間および半減期に大差はみられないものの、培養終了時の分解率は振盪培養系で97%に達したのに対して、静置培養系では69%に留まった。なお測定期間に開きがあったために、最大分解速度の値が高くなってしまった。またアントラセンについては、誘導期間が不明瞭な状態で分解が進行し、培養終了時の分解率が振盪系は68%であったの 비해、静置培養系では30%であった。またヘキサデカンとアントラセンについては、底泥スラリー内の従属栄養細菌数と基質分解菌数について、0日目と14日目に測定を行い、この結果を図3・2・13、14にそれぞれ示した。両物質とも振盪培養と静置培養における微生物数には有意な差がみられなかった。

以上から分解様式について、ヘキサデカンでは培養状態による差がみられなかったが、フェナントレンおよびアントラセンでは、振盪培養系での分解の優位が確認された。

(2) 嫌気状態における2つの培養条件(振盪、静置)での分解

嫌気状態での振盪培養および静置培養による結果を、各物質について図3・2・15、16にそれぞれ示した。この実験は'93.11.に行った。

ヘキサデカンについて、各培養条における最大分解速度を表3・2・5に示した。振盪培養に比べて、静置培養の方が明らかに分解が進行し、分解終了時の分解率は、振盪培養系で45%、静置培養系では89%に達した。

表3・2・5 ヘキサデカン分解実験(嫌気状態)における最大分解速度

培養条件	最大分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{乾泥} \cdot \text{d}^{-1}$]
振盪	4
静置	12

一方フェナントレンおよびアントラセンに関しては、振盪培養および静置培養を比較しても差はみられなかった。

好気および嫌気状態における、振盪培養と静置培養による培養条件の違いによる3物質の分解作用を比較すると、ヘキサデカンでは、好気状態では、培養条件の違いによる分解作用に相違はなかったものの、嫌気状態においては、明らかに静置培養において分解が進行した。一方フェナントレンおよびアントラセンについては、嫌気状態では、培養条件による相違はみられなかったが、好気状態においては、振盪培養での分解率が静置培養を上回った。

振盪培養と静置培養における、微生物による基質分解性を比較した場合に、一般的には、①基質と微生物との接触頻度が増加する、②好気状態の場合には、底泥スラリー内への酸素の供給量が増加する、などの要因により、振盪培養の方が有利になると考えられる。しかし、ヘキサデカンの分解結果からでは、これらの有効性は確認できなかった。そこで静置状態で、なぜ振盪状態以上の分解性を示したのかについて考察を試みた。

微生物と基質が接触した後分解終了までには、分解酵素の誘導、分解酵素による菌体外での基質の分解、菌体内への基質の取り込みなどがあり、これらの一連の過程は瞬時に起こるのではなく、ある程度の時間を要するものと思われる。ゆえに基質と微生物との接触頻度よりもむしろ接触時間の方が分解に影響を及ぼしているのではないかと考える。振盪状態の場合は、振盪による物理的な作用によって、一旦微生物と接触した基質が、すぐに微生物から離れてしまい基質の分解まで進行しないが、静置状態の場合には、微生物や基質の移動は、間隙水内あるいは間隙水と土壌粒子界面での濃度差による基質の拡散移動や、微生物の吸脱着などによるものであり、振盪による外的な物理作用による移動に比べれば微々たるものであると考えられ、一度微生物に接触した基質は、離れることなくほぼ完全に分解されると思われる。特に嫌気性微生物のように分解反応に時間を要する場合は、静置培養の分解により顕著に現れると思われる。

一方、好気状態でのフェナントレンおよびアントラセンの分解では、振盪培養の優位がみられたことについては以下のように考察した。

ヘキサデカンは液体状態で底泥スラリーに添加したため、底泥スラリー内では、ヘキサデカンは細かな分子レベルに近い状態で均一に混同されているが、フェナントレンおよびアントラセンについては、粉末状の個体で添加したために、ヘキサデカンに比べれば大きな粒子状態で底泥スラリーに混合した状態にあり、微小空間でみれば、かなり不均一な状態で存在しているものと考えられる。このことから、フェナントレンおよびアントラセンに関しては、静置培養での接触時間より振盪培養での接触頻度が、微生物分解のファクターとして大きく寄与したため、振盪培養での分解の優位がみられたものと思われた。

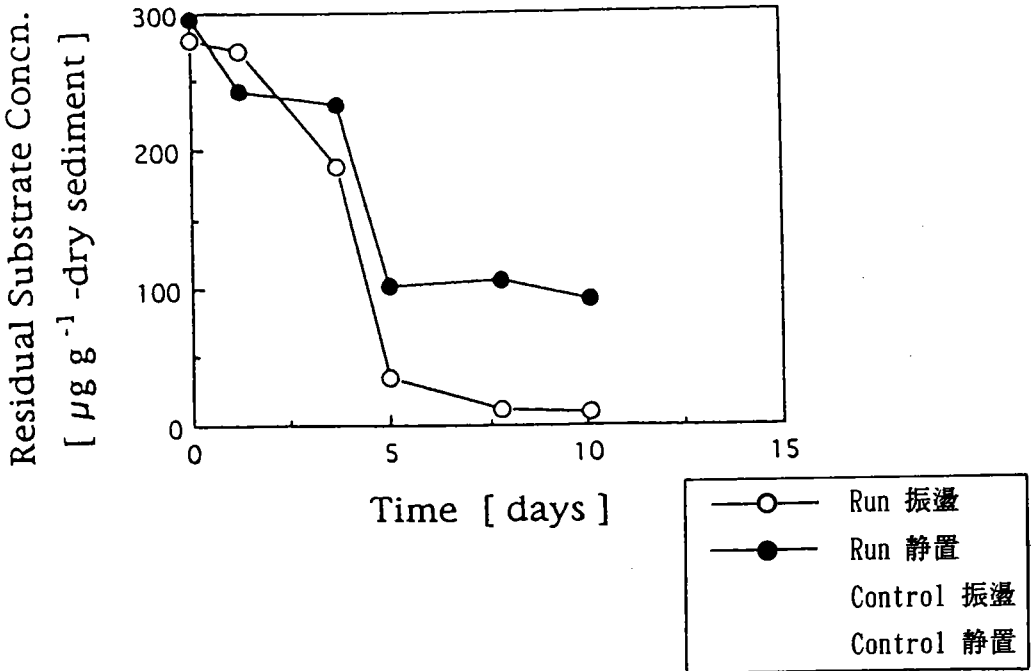


図 3・2・11 好気状態での振盪および静置培養のフェナントレン分解実験 ('94.1.)
における残存フェナントレン濃度の経日変化

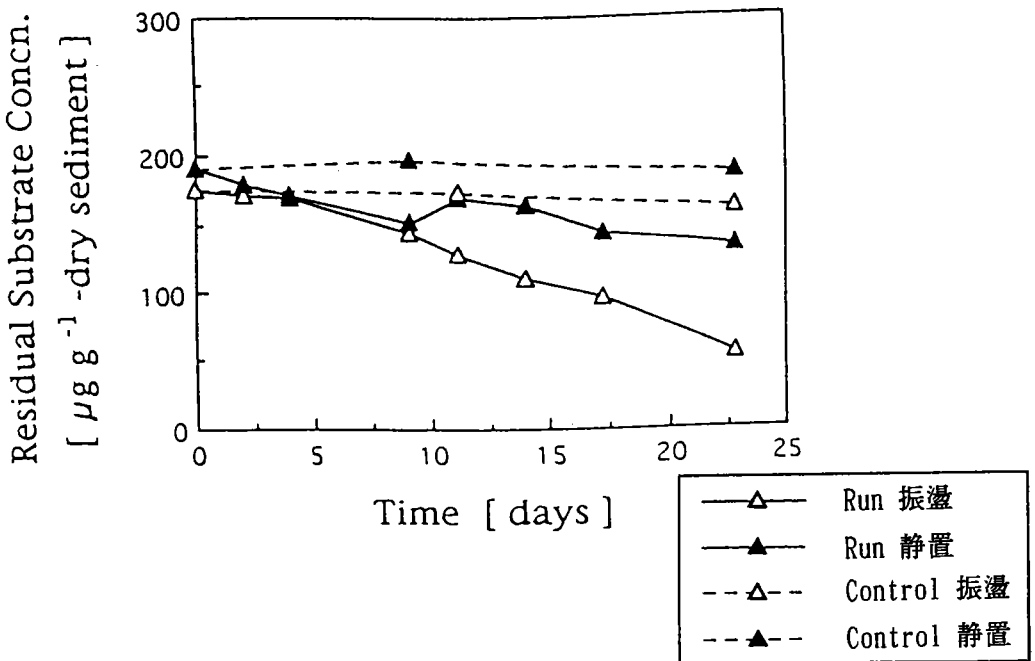


図 3・2・12 好気状態での振盪および静置培養のアントラセン分解実験 ('94.1.)
における残存アントラセン濃度の経日変化

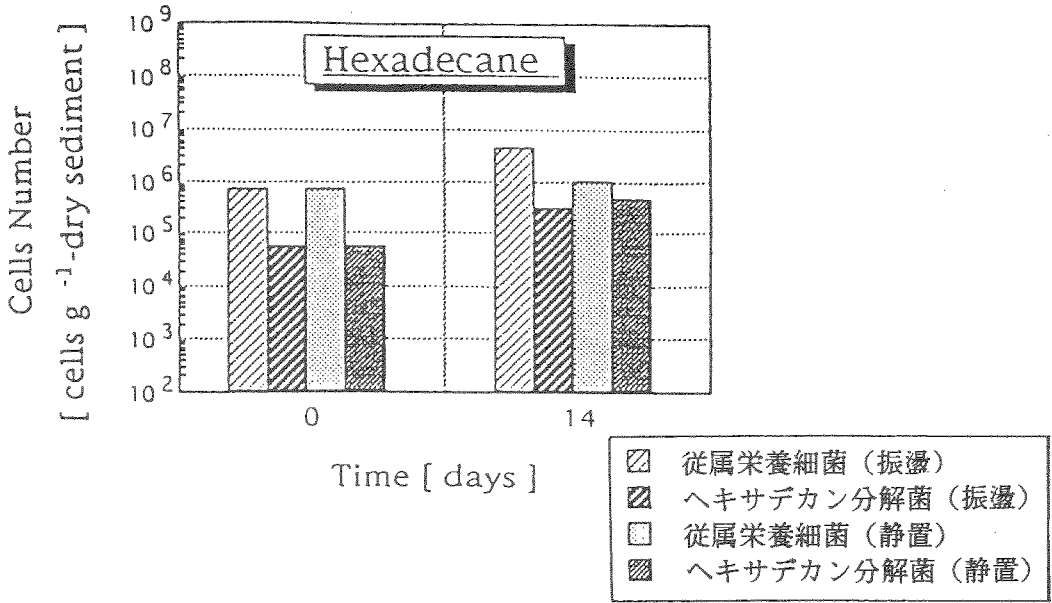


図 3・2・13 振盪および静置培養でのヘキサデカン分解実験 ('94.1.) における 0 日目と14日目の従属栄養細菌数およびヘキサデカン分解菌数

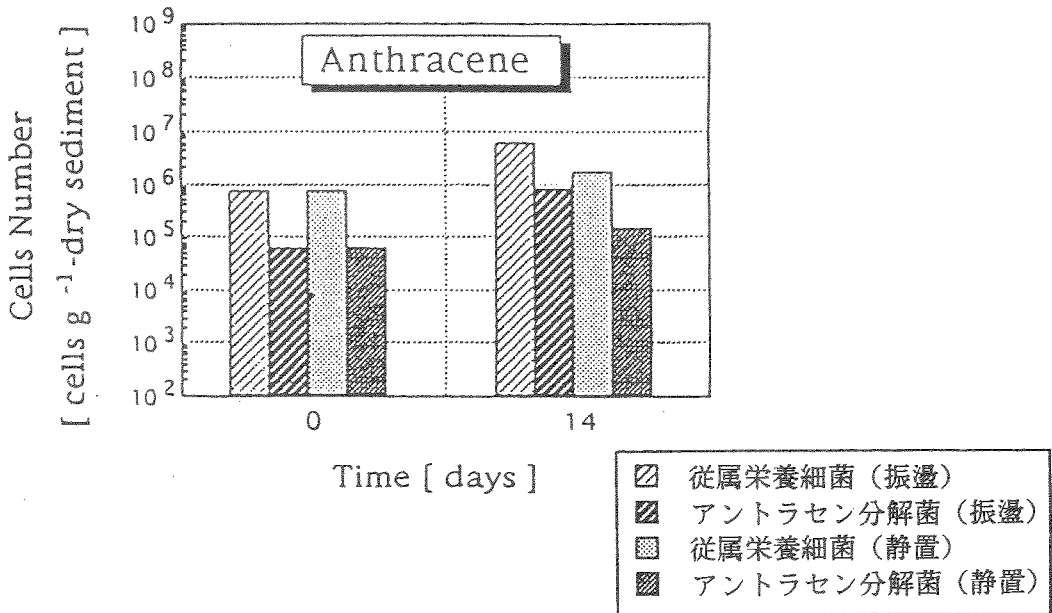


図 3・2・14 振盪および静置培養でのアントラセン分解実験 ('94.1.) における 0 日目と14日目の従属栄養細菌数およびアントラセン分解菌数

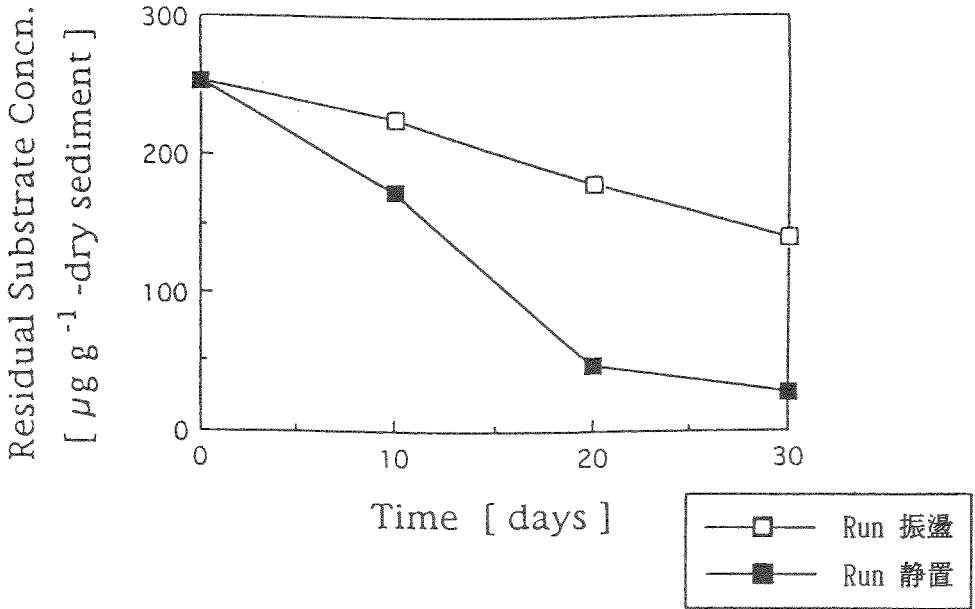


図 3・2・15 嫌気状態での振盪および静置培養のヘキサデカン分解実験 ('93.11.)
 における残存ヘキサデカン濃度の経日変化

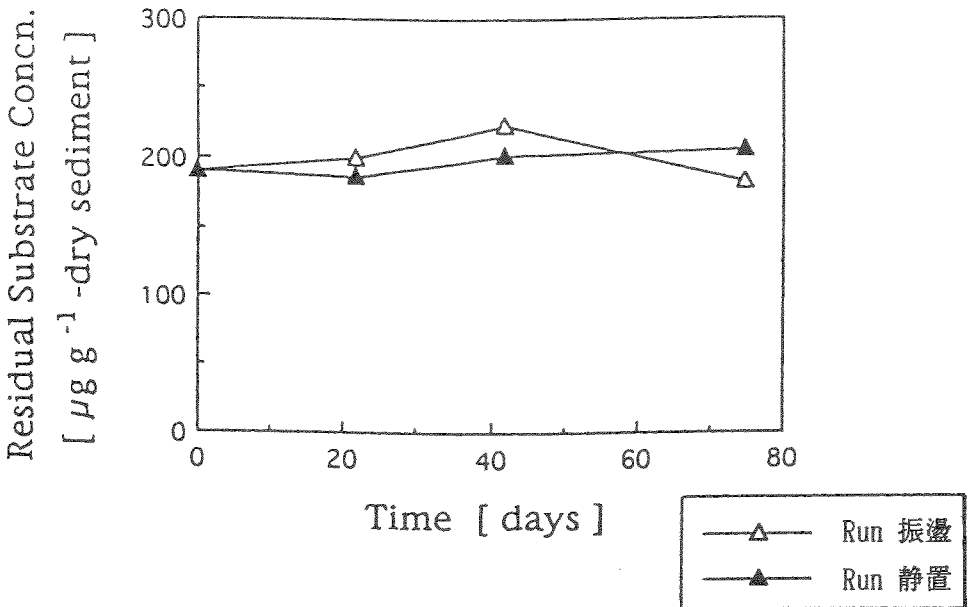


図 3・2・16 嫌気状態での振盪および静置培養のアントラセン分解実験 ('93.11.)
 における残存アントラセン濃度の経日変化

3・3 コアによる分解

これまでに、底泥スラリーを用いた振盪培養および静置培養による分解を試みてきた。自然界での浄化能力を評価する上で、これまで実験で得られた結果が、自然界での浄化能力をどの程度反映しているのか確かめる必要がある。そこで、基質が均一に混合した底泥を柱状（コア）に詰めて培養し、実験室内でより自然状態に近い培養状態を想定した。

今回の実験では、データの信頼性を高めるためにA～Eの5系列を用意し、一回の測定に各系列から一本を抽出し5つのデータが得られるようにした。この5つのデータから平均値を求める際には、統計的処理を行い、信頼限界が95%に収まるデータのみを用いた。またt検定により、各測定日毎のデータの差が、誤差であるのかあるいは分解による減少であるのかを確認した。

ヘキサデカンおよびアントラセンのコアについて、各層のORPと残存基質濃度の経日変化をそれぞれ図3・3・1、図3・3・2に示した。

ヘキサデカンおよびアントラセン両系において、0～1 cmの層では、データのばらつきが大きくなっているが、この原因として、抽出に用いた試料の含水量がまちまちであり、このことが抽出率に影響したためと考えられた。また0～1 cmの層では、好気状態の部分と嫌気状態の部分の共存した状態になっているが、大部分が嫌気状態の層が占めているために、分解率および分解速度に好気層における分解作用が反映できなかった。好気状態との比較には、3・3で述べた好気状態での静置培養の結果を用いた。

なおコア表層部のORPについては、好気状態の層が1 mmと非常に薄く、ORP電極の微妙なずれによって値が大きく変動するために一定値を得ることはできなかったが、-100～+100mVの範囲の値であった。

3・3・1 コアによるヘキサデカンの分解

図3・3・1から、各層におけるORPの変動はあまりみられないことが確認できた。各層における各測定日における平均分解率および最大分解速度を表3・3・1に示した。

表3・3・1 ヘキサデカンのコア実験結果

層 [cm]	分 解 率 [%]			最大分解速度 [$\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}\cdot\text{d}^{-1}$]
	9 days	20days	30days	
0～1	2 3	8 0	8 8	1 0
5～6	2 2	8 4	8 7	1 2
10～11	1 2	8 3	8 9	1 2
15～16	1 8	8 4	8 9	1 2

各層とも実験開始9日目までは、あまり分解が進行していないが、その後分解が開始し、20日目には各層とも80%以上分解が進行した。

また各層における分解速度は $10\sim 12\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}\cdot\text{d}^{-1}$ となった。なおコアの深さ方向に対してORPの変動がみられなかったため、各層における分解率および最大分解速度に差がみられなかった。

今回得られた実験値と、3・2で述べた好気および嫌気状態における静置培養での最大分解速度の結果をまとめて表3・3・2に示した。なおコア実験と嫌気状態での静置培養実験はともに、同一時期に採取した('93.11.)底泥を用い、好気状態での静置培養実験は'93.12.を用いて行った。

表3・3・2 コアと静置培養の比較

	最大分解速度 〔 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}\cdot\text{d}^{-1}$ 〕
静置好気状態	28
静置嫌気状態	12
コア	12

この表より、嫌気状態でおこなった静置培養における結果と、コア実験の結果が一致したことが確認できたことから、静置培養実験から得られた分解速度が、河口域底泥での分解速度と近似した値であることが示唆された。また好気状態の分解速度は、嫌気状態の2.3倍であり、振盪培養で得られた値(約6~10倍)と比較すると(3・1・1)、その差は小さいものであった。振盪培養の結果が、春から夏にかけての結果であったことから、季節による温度変化の影響があると考えられた。

3・3・2 コアによるアントラセンの分解

ヘキサデカンの結果と比較すると、アントラセンでの分解は緩やかであった。60日目の分解率をみると、0~1cmの層で36%、5~6cmの層で23%、10~11cmの層で13%、15~16cmの層で15%であり、コア深さ方向への分解率の減少は、ORPの分布と関係があるものと思われた。

3・2に記した、嫌気状態での静置培養実験の結果では、75日間の培養期間において分解は確認できなかったが、コア実験の結果と一致はみられなかった。

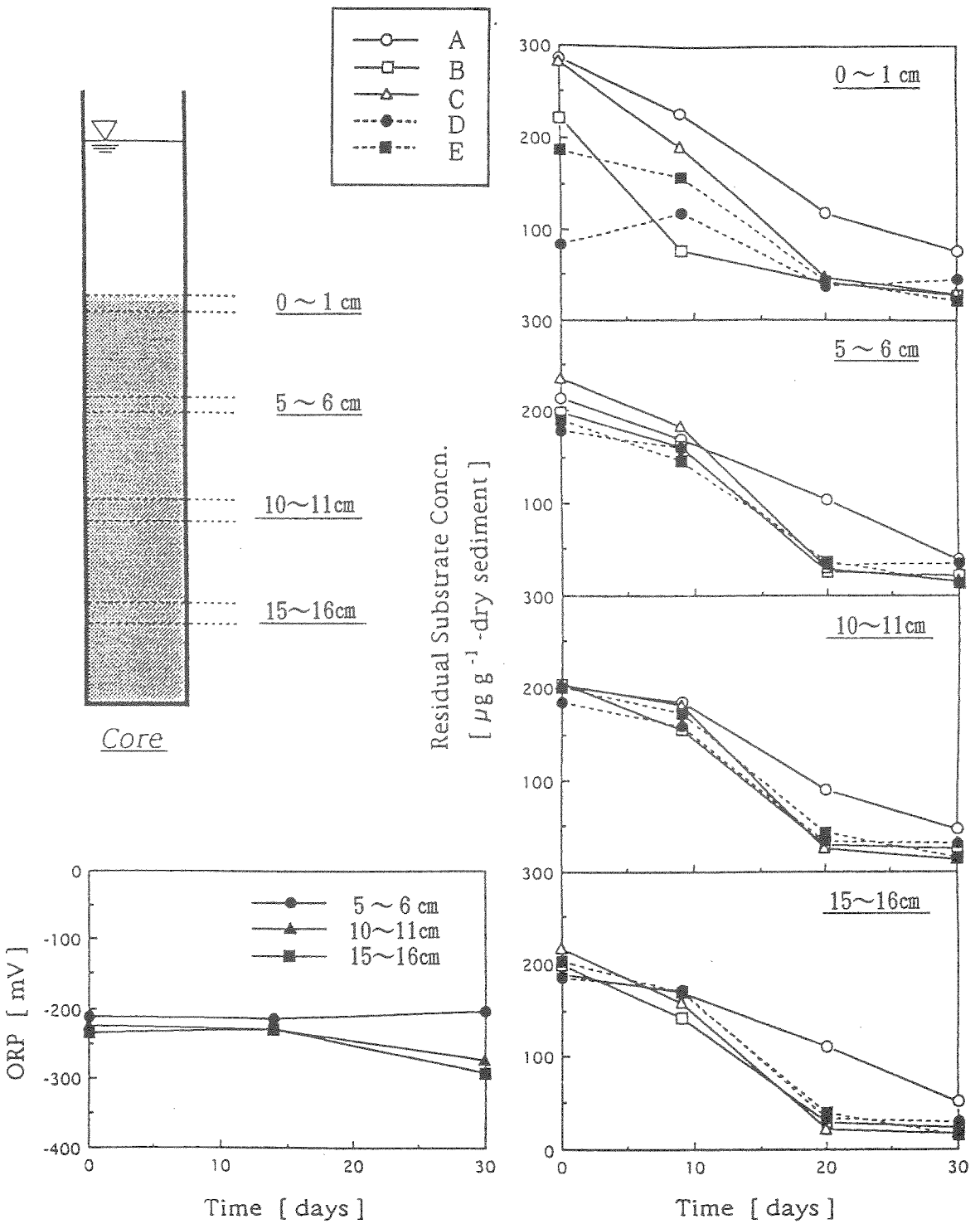


図3・3・1 ヘキサデカンのコア実験での各層におけるORPおよび残存ヘキサデカン濃度の経日変化

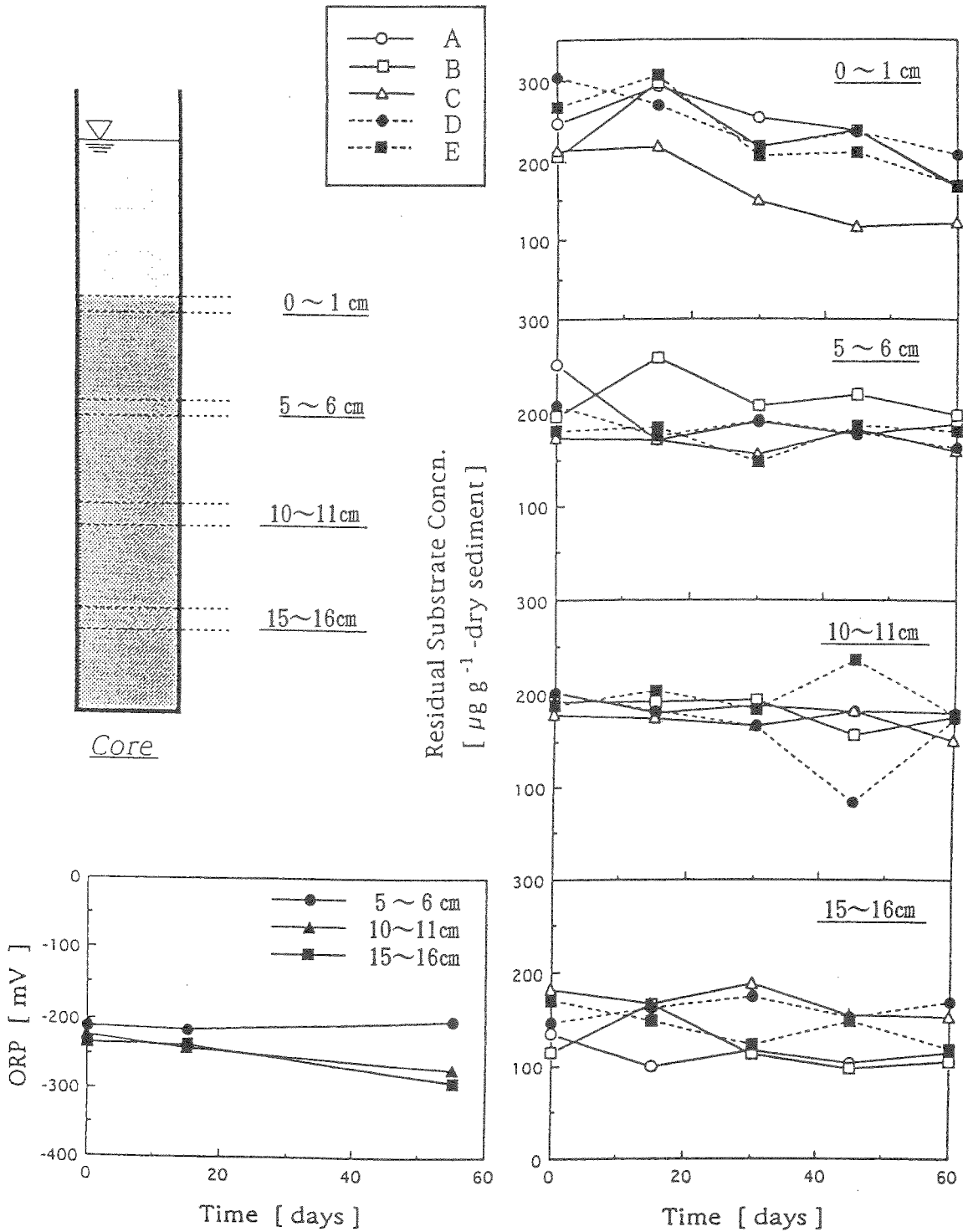


図3・3・2 アントラセンのコア実験での各層におけるORP および残存アントラセン濃度の経日変化

3・4 河口域底泥の分解速度の評価

これまで得られた結果より、河口域底泥においては、石油系炭化水素の分解は、共存する他の炭化水素によって影響されることなく、潮の干満によっても変動することがないことを導き出した。

また、底泥スラリーに栄養塩を添加しても、石油系炭化水素の分解には影響はないことが報告されている^{9, 10)}。

そこで、単一系での分解速度および分解菌数をもとに、多摩川河口域底泥中の分解菌1個当りの分解速度と底泥1g当りの分解速度を以下の方法で評価することにした。

分解菌1個体当たりの分解速度の算出は次式で行なった。

$$R_c = T_m / X_c$$

R_c : 分解菌1個体当たりの分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{cell}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$]

T_m : 最大分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}\text{-乾泥} \cdot \text{day}^{-1}$]

X_c : 分解進行時の基質分解菌数 [$\text{cells} \cdot \text{g}^{-1}\text{-乾泥}$]

その結果、表3・4・1に示したように分解菌1個体当たりの分解速度について各物質で比較すると、ヘキサデカンでは $7.3 \times 10^{-6} \sim 3.4 \times 10^{-5} \mu\text{g} \cdot \text{cell}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ 、フェナントレンでは $2.6 \times 10^{-7} \mu\text{g} \cdot \text{cell}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ およびアントラセンでは $9.1 \times 10^{-8} \mu\text{g} \cdot \text{cell}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ となり、ヘキサデカンの微生物分解性がフェナントレンおよびアントラセンよりも高いことが示された。

そこで、従来著者らによって得られた分解菌1個体当たりの分解速度^{9, 11)}と、本研究で得られた結果を表3・4・2に示し比較した。海洋環境や感潮域では、純粋培養系より混合培養系の方が石油系炭化水素の分解速度が早く、多摩川河口域底泥中の石油系炭化水素の分解菌1個あたりでは、海洋石油分解菌と同程度の分解能力をもつことが確認された。

河口域底泥の分解速度の推定評価は次式で計算した。

$$R_s = R_c \cdot X_c$$

R_s : 河口域底泥の分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}\text{-乾泥} \cdot \text{day}^{-1}$]

R_c : 分解菌1個体当たりの分解速度 [$\mu\text{g} \cdot \text{cell}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$]

X_c : 自然環境に存在する底泥中の分解菌 [$\text{cells} \cdot \text{g}^{-1}\text{-乾泥}$]

ここで得られた分解速度は、河口域底泥中の分解菌が本実験条件下の場合と同等の分解能力を獲得していると仮定して求めたものであり、多摩川河口域底泥表層における最大分解速度とみなすことができる。

河口域底泥における分解速度について各物質について比較すると、ヘキサデカンでは $1.0 \sim 3.5 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}\text{-乾泥} \cdot \text{day}^{-1}$ 、フェナントレン $4.2 \times 10^{-2} \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}\text{-乾泥} \cdot \text{day}^{-1}$ 、アントラセンでは $1.2 \times 10^{-2} \sim 9.4 \times 10^{-1} \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}\text{-乾泥} \cdot \text{day}^{-1}$ となった。

Shiarisは、ボストン湾河口域底泥表層でのフェナントレンの分解速度は、採泥地点によって $0.03\sim 3.2\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}\cdot\text{day}^{-1}$ となった。特に多摩川河口域でのフェナントレン存在量 ($447\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}$)¹²⁾ と同程度の存在量 ($665\pm 178\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}$) がある地点においては、その分解速度は $7.9\times 10^{-2}\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}\cdot\text{day}^{-1}$ であると報告している¹³⁾。しかし、この分解速度は自然環境中に存在する分解菌のことには考慮にいれておらず、同一平面内には比較できないかも知れないが、暴露履歴からはほぼ同レベルの分解速度が得られ、河口域底泥での石油系炭化水素の分解速度は、 $10^{-2}\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\text{-乾泥}\cdot\text{day}^{-1}$ レベルにあることが推測できた。

表 3・4・1 微生物の分解能力の評価および河口域底泥での分解速度の予測

		底泥中の分解菌数 [cells g ⁻¹ -D.S.]	分解進行時の分解菌数 [cells g ⁻¹ -D.S.]	最大分解速度 [μgg ⁻¹ -D.S. d ⁻¹]	分解菌1個体当たりの分解速度 [μg cell ⁻¹ d ⁻¹]	河口域底泥における分解速度 [μgg ⁻¹ -D.S. d ⁻¹]
Hexadecne	'93.6.	1.4 × 10 ⁵	6.2 × 10 ⁶	45	7.3 × 10 ⁻⁶	1.0
	'94.1.	5.8 × 10 ⁴	6.1 × 10 ⁵	21	3.4 × 10 ⁻⁵	2.0
		5.8 × 10 ⁴	4.6 × 10 ⁵	28	6.1 × 10 ⁻⁵	3.5
Phenanthrene	'93.2.	1.6 × 10 ⁵	2.8 × 10 ⁸	72	2.6 × 10 ⁻⁷	4.2 × 10 ⁻²
	'93.2.	1.3 × 10 ⁵	5.1 × 10 ⁸	46	9.1 × 10 ⁻⁸	1.2 × 10 ⁻²
Anthracene	'93.6.	2.5 × 10 ⁴	4.3 × 10 ⁷	41	9.5 × 10 ⁻⁷	2.3 × 10 ⁻²
		6.1 × 10 ⁴	8.1 × 10 ⁵	6	7.4 × 10 ⁻⁵	4.5 × 10 ⁻¹
	'94.1.	6.1 × 10 ⁴	1.3 × 10 ⁴	2	1.5 × 10 ⁻⁵	9.4 × 10 ⁻¹

表 3・4・2 石油系炭化水素および原油の生分解速度

Microorganism	Substrate	Blodegradation Rate ($\mu\text{g} \cdot \text{cell}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$)	Reference
Mixed culture (Sediment)	Hexadecane	$7.3 \times 10^{-6} \sim 3.4 \times 10^{-5}$	(1)
	Phenanthrene	2.6×10^{-7}	
	Anthracene	9.1×10^{-8}	
Mixed culture (Sediment)	Asphaltene fraction (Murban crude oil)	$8.7 \times 10^{-6} \sim 1.8 \times 10^{-5}$	(2)
Mixed culture (Surface seawater)	Arablan light crude oil	1.4×10^{-5}	(3)
	Berri crude oil	9.3×10^{-6}	
	Murban crude oil	3.9×10^{-6}	
<i>Flavobacterfums</i> p.	n-Paraffine	$1.2 \times 10^{-7} \sim 8.2 \times 10^{-7}$	
<i>Caulobacters</i> p.	n-Paraffine	$7.9 \times 10^{-8} \sim 4.8 \times 10^{-7}$	
<i>Caulobacters</i> p.	Arablan light crude oil	5.5×10^{-6}	
	Berri crude oil	2.0×10^{-7}	
	Murban crude oil	1.7×10^{-7}	
<i>Pseudomonass</i> p.	Arablan light crude oil	3.8×10^{-6}	
	Berri crude oil	1.0×10^{-6}	
	Murban crude oil	6.7×10^{-7}	

引用文献

- (1) 山根晶子、村上昭彦ら；多摩川河口域底泥表層における石油化学物質の微生物による分解浄化、水環境学会誌、17、632-640 (1994)
- (2) 山根晶子、村上昭彦ら；東京湾底質中の微生物による原油系難分解性成分の分解、海の研究、2、161-168 (1993)
- (3) 村上昭彦ら；海水培地中での *Pseudomonas* sp. による原油分解、日本海洋学誌、41、337-344 (1985)

3・5 多摩川感潮域の好氣的底泥表層での石油系炭化水素の自浄作用の評価

晴天時の多摩川河口域底泥において、石油系炭化水素の定常の流達量に対する底泥の自浄作用能力を、3・4で予測した分解速度から評価した。

すなわち、ここで検討した石油系炭化水素が時間の経過と共に蓄積の方向にあるのか、あるいは分解浄化されているのかを分解速度から推測してみる。

そのためには、多摩川河口域に流域あるいは上流から石油系炭化水素がどれくらい流入するのか、具体的なデータが必要になってくるが、明確に報告された例はない。そこで、筆者らの多摩川河川水の濃度とMatsushima¹⁴⁾の報告を基に以下の仮定の下に推算した。

1. 突発的な事故や降雨による流出がない、正常水位の感潮域を対象とする。
2. 多摩川感潮域の平均流量は $968 \times 10^3 \text{ m}^3 \cdot \text{day}^{-1}$ ¹⁵⁾で、河川幅200m、感潮域の長さ6 kmとする。
3. 底泥の好気状態は底泥表層下1 mmまでとする。
4. 多摩川感潮域の河川水中の浮遊懸濁物質（以下SSと略す）濃度は $12 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ とする¹⁶⁾。
5. Matsushimaの報告¹⁴⁾にしたがって、多摩川河口域の河川水中のSSに吸着したフェナントレンとアントラセンの総量を $7.1 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}\text{-SS}$ とする。
6. 感潮域河川水中の全ての浮遊懸濁物質が、感潮域の底泥上に沈降堆積するとする。
7. 底泥表層の乾燥減量を85%とする。
8. 底泥表層部の見かけ上の密度を $1.3 \text{ g} \cdot \text{ml}^{-1}$ とする。

ヘキサデカンの場合、多摩川河口域の河川水中の濃度 ($0.12 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)¹⁷⁾で、流入する感潮域河川水中のヘキサデカンがすべて底泥表層に吸着されるとすると、仮定2より1日あたり $116 \text{ g} \cdot \text{day}^{-1}$ と算出された。

ヘキサデカンの分解速度を、本研究から推算した $1.0 \sim 3.5 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}\text{-乾泥} \cdot \text{day}^{-1}$ を用いて、感潮域好氣的底泥表層での1日当りの分解量を、仮定2、仮定3、仮定7と仮定8から求めた。その結果、感潮域好氣的底泥量は $2.34 \times 10^8 \text{ g} \cdot \text{day}^{-1}$ と算出され、感潮域での1日の分解量が $234 \sim 817 \text{ g} \cdot \text{day}^{-1}$ とみなされた。

ついで、フェナントレンとアントラセンにおいては、仮定2、仮定4、仮定5と仮定6から、フェナントレンとアントラセンの1日当りの沈降量は、 $82.5 \text{ g} \cdot \text{day}^{-1}$ と算出された。

また本研究から推算した分解速度は平均 $1.2 \times 10^{-2} \sim 9.0 \times 10^{-1} \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}\text{-乾泥} \cdot \text{day}^{-1}$ であるから、感潮域好氣的底泥での1日当りの分解量は、ヘキサデカンの場合と同様、仮定2、仮定3、仮定7と仮定8から、感潮域好氣的底泥量を算出し、感潮域での1日の分解量が $2.8 \sim 210 \text{ g} \cdot \text{day}^{-1}$ とみなされた。

したがって、多摩川感潮域の好氣的底泥層において、突発的な事故や降雨による流出がない正常水位時には、ヘキサデカン、フェナントレンとアントラセンの堆積量に対して同程度に分解浄化がなされていることが推察された。

4. 結 論

本研究は、多摩川河口域の底泥から調製した底泥スラリーを用い、石油系化学物質（ヘキサデカン、フェナントレン、アントラセン）の微生物分解を行った。この微生物分解特性を、分解速度（率）、半減期あるいは分解菌数などから明らかにし、多摩川河口域底泥における石油系化学物質に対する分解浄化能力の評価を試みた。

- (1) 石油系化学物質の微生物分解には誘導期間が存在し、それぞれヘキサデカンは0～3日間、フェナントレンは3～6日間、アントラセン10～13日間であった。また分解速度は、 $20\sim 80\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ の値となり、フェナントレン \geq ヘキサデカン \geq アントラセンの関係がみられた。
- (2) 冬期と比較して夏期において、分解速度あるいは分解菌の分解能力の増加が確認された。（ヘキサデカン、フェナントレンの分解より）このことは、夏期における底泥温度の上昇による微生物の分解活性の上昇に関係があると示唆された。
- (3) 底泥に棲息する好気性従属栄養細菌は、一年間を通じて $10^5\sim 10^6$ オーダーで存在し、一定菌数が維持されていることが確認された。また好気性従属栄養細菌に占める各基質分解菌数は、ヘキサデカン分解菌が10～20%、フェナントレンあるいはアントラセン分解菌数が3～6%となった。
- (4) ヘキサデカンの嫌気分解速度は、好気状態の $1/6\sim 1/10$ の値であり、 $5\sim 8\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ であった。フェナントレンは2ヶ月間の誘導期間の後に分解が開始し、アントラセンは最高70日間の培養期間においても分解は起こらなかった。
- (5) ヘキサデカンの分解においてフェナントレンあるいはアントラセンが共存すると、ヘキサデカンの分解が遅延される傾向が確認された。しかし最終的には、ヘキサデカン単一系の場合と同程度にまで分解は進行した。また、一旦微生物がヘキサデカン分解能力を獲得すれば、フェナントレンやアントラセンによるヘキサデカン分解の遅延という影響はあらわれないことが確認された。
- (6) 塩分濃度をファクターとした3物質の分解速度は、塩分濃度の変動によらず一定であった。また従属栄養細菌数も一定であったことから、河口域底泥に棲息する微生物は、塩分濃度の変動に対応できる能力を保持していると推測された。
- (7) 基質分解菌の中には、高塩分濃度の環境中では、活性が消失し休止状態になる微生物が10%程度存在する。

- (8) ヘキサデカン分解実験において、静置培養での分解の優位性が明らかになった。底泥内部における土壌粒子、微生物、基質の3成分の状態を考慮すると、静置培養における微生物と基質との接触時間の十分な確保が、微生物分解に効果的に作用することが示唆された。
- (9) コア実験において、嫌気層における分解様式が、嫌気状態における静置培養実験の結果と一致した。
- (10) 最大分解速度、分解菌数の結果より予測した分解速度は、ヘキサデカンでは $1.0\sim 2.8\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ 、フェナントレンおよびアントラセンでは $4.2\times 10^{-2}\sim 8.1\times 10^{-1}\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ となり、ヘキサデカンの分解速度が、年間を通じて常に高くなることが明らかになった。
- (11) 多摩川河口域において、ヘキサデカン、フェナントレンおよびアントラセンについては、正常水位時で突発的な事故がない場合、これら物質の堆積速度と予測した分解速度には大差がないことが明らかになった。

引用文献

- 1) 和田安彦 (1990) ノンポイント汚染源のモデル解析、技報堂出版。
- 2) 日本水質汚濁研究協会、昭和60年度底質汚濁改善対策調査 (総合報告書)。
- 3) 日本水質汚濁研究協会、昭和61年度底質汚濁改善対策調査 (総合報告書)。
- 4) 環境庁水質保全局水質管理課編 (1975) 底質調査方法とその解説、丸善株式会社。
- 5) 門田元、多賀信夫 (1985) 海洋微生物研究法、学会出版センター。
- 6) 栗原康 (1988) 河口・沿岸域の生態学とエコテクノロジー、東海大学出版会。
- 7) M. HUNTER, T. STEPHENSON, P. W. W. KIRK, R. PERRY and J. N. LESTER (1986) Effect of Salinity Gradients and Heterotrophic Microbial Activity on Biodegradation of Nitrilotriacetic Acid in Laboratory Simulations of the Estuarine Environment, APPLIED AND ENVIRONMENTAL MICROBIOLOGY, 51, 5, 919-925.
- 8) A. W. BOURQUIN, V. A. PRZYBYSZEWSKI (1977) Distribution of Bacteria with Nitrilotriacetate-Degrading Potential in an Estuarine Environment, APPLIED AND ENVIRONMENTAL MICROBIOLOGY, 34, 5, 411-418.
- 9) M. A. HEITKAMP and C. E. CERNIGLIA (1987) Effects of Chemical Structure and Exposure on the Microbial Degradation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Freshwater and Estuarine Ecosystems, ENVIRONMENTAL TOXICOLOGY AND CHEMISTRY, 6, 535-546.
- 10) J. A. CALDER and J. H. LADER (1976) Effect of Dissolved Aromatic Hydrocarbons on the Growth of Marine Bacteria in Batch Culture, APPLIED AND ENVIRONMENTAL MICROBIOLOGY, 32, 1, 95-101.
- 11) M. A. HEITKAMP and C. L. E. CERNIGRIA (1988) Mineralization of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons by a Bacterium Isolated from Sediment below an Oil Field, APPLIED AND ENVIRONMENTAL MICROBIOLOGY, 54, 6, 1612-1614.
- 12) G. A. HAMBRICK III, R. D. DeLAUNE and W. H. PATRICK, JR. (1980) Effect of Estuarine Sediment pH and Oxidation-Reduction Potential on Microbial Hydrocarbon Degradation, APPLIED AND ENVIRONMENTAL MICROBIOLOGY, 40, 2, 365-369.
- 13) 篠原亮太 (1989) 底質中の多環芳香族炭化水素の分布および挙動、水質汚濁研究、12、279-284。
- 14) H. MATUSHIMA (1979) Distribution of Dissolved and Particulate Forms of Polynuclear Aromatic Hydrocarbons in Tama River Water, THE JAPANESE JOURNAL OF LIMNOLOGY, 40, 74-80.
- 15) 土屋隆夫、味村昭、古井戸良夫、田辺孝、梶沼孟彦、横島章、川原浩、牧野宏 (1970) 多摩川の総合調査結果について、用水と廃水、12、1094-1108。
- 16) 東京都環境保全局 (1992) 平成3年度公共用水域の水質測定結果 (資料編)、東京、490pp。
- 17) 未発表データ。

Appendix

Hexadecane 単一系分解実験 (嫌気状態)

実験期間 1992. 9. 14~11. 13

Date	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
92. 9.14	0.0	-300	7.26	261.7	254.4
16	1.8	-294	7.26	261.7	
17	2.8	-297	7.39	262.6	
18	3.8	-313	7.34	261.7	254.4
21	6.6	-326	7.35	237.4	
22	8.1				234.5
24	9.7	-328	7.32	195.6	
28	13.8	-351	7.33	233.0	259.2
10. 5	20.8	-383	7.47	178.6	
8	23.8	-384	7.37	193.2	
19	34.8	-359	7.35	173.8	
26	41.8	-281	7.41	155.8	
27	42.8				252.9
11.13	58.8	-244	7.37	148.1	252.9

Hexadecane 単一系分解実験 (嫌気状態)

実験期間 1993. 4. 12~6. 21

Data	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.4.11	0.0	-116	7.02	239.5	239.5
4.21	10.0	-276	7.42	163.4	
5. 1	20.0	-224	7.01	121.5	
5.12	31.0	-220	7.13	103.4	243.4
5.23	42.0	-195	6.94	105.8	
6.21	70.0	-218	6.81	102.8	228.7

Hexadecane 単一系分解実験 (好気状態)

実験期間 1992. 9. 14~10. 1

Date	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
92. 9.14	0.0	164	7.35	274.8	267.5
16	1.8	164	7.35	274.8	
17	2.8		6.41	264.1	
18	3.8	160	6.39	244.2	267.5
19	4.9	169	6.41	228.2	
20	5.9	199	6.40	133.0	
22	7.7	191	6.15	85.4	269.4
23	8.8	219	6.44	69.4	
24	9.7	199	6.50	59.7	261.7
25	10.6	249	6.41	52.4	
10. 1	16.7	241	7.01	22.8	256.3

Hexadecane 単一系分解実験 (好気状態)

実験期間 1993. 6. 9~6. 26

Date	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.6. 9	0.0	-138	6.78	341.1	341.1
6.10	1.0	89	6.94	293.8	
6.11	2.0	180	6.70	255.0	
6.12	3.0	187	6.43	210.3	
6.13	4.0	166	6.55	187.9	289.4
6.14	5.0	177	6.99	114.5	
6.17	8.0	182	6.50	49.6	
6.22	13.0	216	6.16	24.8	
6.26	17.0	236	6.44		282.4

Phenanthrene 単一系分解実験 (嫌気状態)

実験期間 1992. 12. 13~1993. 2. 9

Date	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
92.12.13	0.0	-188	7.05	211.0	238.4
21	8.0	-277	7.93	215.7	
28	15.1	-235	7.12	210.1	219.4
93. 1. 5	22.7	-163	6.54	198.0	
1.11	30.0	-242	7.17	225.4	
22	39.8	-249	7.09	229.1	
28	46.0	-171	6.60	217.1	204.1
2. 9	58.0	-189	6.78	206.9	210.1

Phenanthrene 分解実験 (嫌気状態)

実験期間 1993. 4. 12~6. 21

Date	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.4.12	0.0	-116	7.02	218.0	218
4.21	9.0	-254	7.04	228.9	
5. 1	19.0	-224	6.51	206.3	
5.13	31.0	-187	6.76	217.2	207.8
5.24	42.0	-283	6.99	224.2	
6.21	70.0	-236	6.97	166.6	221.2

Phenanthrene 単一系分解実験 (好気状態)

実験期間 1993. 2. 9~2. 28

Date	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [μg/g-D.S.]	Control Conc. [μg/g-D.S.]
93.2. 9	0.0	-57	6.69	218.4	218.4
11	2.0	128	6.85	224.5	
12	3.0	43	6.61	227.7	
13	4.2			183.2	
15	5.8	127	6.84	27.4	197.1
17	8.0	149	6.46	27.4	
19	9.8	163	6.44	13.9	
20	11.2				219.8
24	15.0	179	6.65	19.5	
28	19.0	187	6.91	20.4	212.9

Anthracene 単一系分解実験 (嫌気状態)

実験期間 1992. 12. 13~1993. 2. 9

Date	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [μg/g-D.S.]	Control Conc. [μg/g-D.S.]
92.12.13	0.0	-184	7.06	211.0	181.3
21	8.0	-239	7.85	218.4	
28	15.1	-229	7.12	225.4	215.2
93. 1. 5	22.7	-250	7.12	198.0	
11	30.0	-246	7.02	224.5	
22	39.8	-265	6.92	224.5	
28	46.0	-256	7.00	212.4	
2. 9	58.0	-262	6.89	199.4	205.5

Anthracene 単一系分解実験 (嫌気状態)

実験期間 1993. 4. 12~6. 21

Date	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [μg/g-D.S.]	Control Conc. [μg/g-D.S.]
93.4.12	0.0	-116	7.02	211.9	211.9
4.21	9.0	-247	7.22	227.8	
5. 1	19.0	-226	7.09	203.0	
5.13	31.0	-270	6.78	208.2	214.4
5.24	42.0	-274	7.03	215.4	
6.21	70.0	-259	6.90	216.2	207.8

Anthracene 単一系分解実験 (好気状態)

実験期間 1993. 2. 9~2. 28

Date	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.2. 9	0.0	-38	6.83	225.9	224.9
11	2.0	90	6.87	214.3	
12	3.0	123	7.08	221.2	
15	5.8	108	7.19	214.3	200.9
16	7.0			211.5	
17	8.0	-19	6.74	198.5	
18	9.2	192	6.64	195.3	
20	11.2	242	6.65	183.2	211.1
22	13.0	196	6.64	180.4	
24	15.0	183	7.00	87.7	
sub	16.0	199	6.78	46.8	
28	19.0				198.6
sub	20.0	189	6.62	26.0	

Anthracene 単一系分解実験 (好気状態)

実験期間 1993. 6. 9~7. 2

Date	Time [days]	ORP [mV]	pH	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93. 6. 9	0.0	-138	6.78	173.9	173.9
6.10	1.0	74	6.95	232.3	
6.11	2.0	-22	7.37	200.2	
6.12	3.0	187	6.78	178.3	158.9
6.13	4.0	147	6.80	168.2	
6.14	5.0	114	6.86	211.3	
6.15	6.0	152	6.86	175.2	178.1

Hexadecane & Phenanthrene 共存系分解実験 (嫌気系)

実験期間 1993. 4. 12~6. 23

Data	Times [days]	ORP [mV]	pH	Hexadecane		Phenanthrene	
				Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.4.12	0	-116	7.02	239.1	239.1	222.7	222.7
4.21	9	-231	6.92	212.0		223.3	
5. 1	19	-234	6.68	212.8		221.1	
5.12	30	-248	7.22	204.0	205.1	218.5	205.39
5.23	41	-219	7.04	222.3		225.6	
6.23	71	-225	7.07	189.7	217.7	188.6	211.35

Hexadecane & Anthracene 共存系分解実験 (嫌気系)

実験期間 1993. 4. 12~6. 23

Data	Times [days]	ORP [mV]	pH	Hexadecane		Anthracene	
				Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.4.12	0	-116	7.02	250.4	250.4	219.1	219.1
4.21	9	-224	6.69	226.2		210.2	
5. 1	19	-238	6.82	217.8		211.5	
5.12	30	-247	6.87	217.8		205.2	207.6
5.23	41	-217	7.08	245.1		215.3	
6.23	71	-235	6.79	171.4	226.3	205.4	201.1

Hexadecane 単一系分解実験菌数測定 (好気状態)

実験期間 1993. 6. 9~6. 26

Time [days]	乾泥重量 [g]	一般培地 菌数 [cfls/g-D.S.]	HEX培地 菌数 [cfls/g-D.S.]
0.0	0.5853	6.8E+05	1.4E+05
2.0	0.3175	3.1E+07	9.4E+05
4.0	0.1777	1.7E+07	6.2E+06
8.0	0.5336	3.0E+07	5.6E+05
13.0	0.3434	9.4E+07	3.4E+06

Phenanthrene 単一系分解実験菌数測定 (好気状態)

実験期間 1993. 2. 9~2. 28

Time [days]	乾泥重量 [g]	一般培地 菌数 [cfls/g-D.S.]	PHE培地 菌数 [cfls/g-D.S.]
0.0	0.6164	2.6E+06	1.6E+05
2.0	0.4302	1.0E+09	3.6E+08
5.8	0.6644	3.0E+08	1.1E+08
8.0	0.4768	1.4E+09	3.0E+08
15.0	0.8133	2.3E+08	1.2E+08
19.0	0.7526	1.0E+09	3.5E+08

Anthracene 単一系分解実験菌数測定 (好気状態)

実験期間 1993. 2. 9~2. 28

Time [days]	乾泥重量 [g]	一般培地 菌数 [cfls/g-D.S.]	ANT培地 菌数 [cfls/g-D.S.]
0.0	0.6164	2.6E+06	1.3E+05
2.0	0.7309	8.1E+08	2.4E+08
5.8	0.6664	2.7E+09	1.1E+09
8.0	0.5527	1.3E+09	3.1E+08
15.0	0.4394	2.1E+09	4.8E+08
19.0	0.2645	2.4E+09	7.2E+08

Hexadecane 単一系分解実験 (好気状態)

Initial C-concn. = 210.7

実験期間 1993. 7. 14~8. 6

Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	HEX deg. ratio [%]
0.0	248.0	0.0
1.0	210.1	15.3
2.3	170.5	31.3
3.0	115.8	53.3
5.0	74.4	70.0
6.9	47.5	80.8
12.2	15.2	93.9
23.1	10.5	95.8

Hexadecane & Anthracene(1/5) 共存系分解実験 (好気状態)

Initial C-concn. = 43.8(ANT) + 219.7(HEX) = 263.5

実験期間 1993. 7. 14~8. 6

Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	HEX deg. ratio [%]	ANT Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	ANT deg. ratio [%]
0.0	258.5	0.0	46.4	0.0
1.0	212.8	97.1	45.2	2.6
2.3	224.8	92.9	44.1	5.0
3.0	202.1	80.7	34.3	26.1
5.0	182.9	91.4	40.0	13.8
6.9	101.3	95.0	39.0	16.0
8.9	39.4	88.9	21.8	53.0
12.2	37.6	86.2	14.6	68.5
14.9	28.7	85.6	11.5	75.2
23.1	18.5	84.7	7.3	84.3

Hexadecane & Anthracene(1) 共存系分解実験 (好気状態)

Initial C-concn. = 202.7(ANT) + 212.5(HEX) = 415.2

実験期間 1993. 7. 14~8. 6

Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	HEX deg. ratio [%]	ANT Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	ANT deg. ratio [%]
0.0	250.0	0.0	214.8	0.0
1.0	225.4	9.8	211.0	1.8
2.3	199.2	20.3	204.0	5.0
3.0	194.2	22.3	188.8	12.1
5.0	160.9	35.6	149.8	30.2
6.9	167.6	33.0	156.4	27.2
8.9	112.0	55.2	165.0	23.2
12.2	53.5	78.6	80.1	62.7
14.9	51.1	79.6	29.7	86.2
23.1	25.7	89.7	21.4	90.0

Hexadecane & Anthracene(2) 共存系分解実験 (好気状態)

Initial C-concn. = 415.2(ANT) + 208.1(HEX) = 623.3

実験期間 1993. 7. 14~8. 6

Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	HEX deg. ratio [%]	ANT Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	ANT deg. ratio [%]
0.0	244.8	0.0	439.9	0.0
1.0	253.0	-3.3	461.7	-5.0
2.3	217.6	11.1	410.6	6.7
3.0	219.6	10.3	415.0	5.7
5.0	185.9	24.1	388.1	11.8
6.9	100.4	59.0	350.5	20.3
8.9	62.0	74.7	324.3	26.3
12.2	49.2	79.9	314.0	28.6
14.9	39.0	84.1	125.7	71.4
23.1	15.8	93.5	31.2	92.9

Hexadecane & Anthracene(2) 共存系分解実験 (好気状態)

実験期間 1993. 6. 9~7. 2

Data	Times [days]	ORP [mV]	pH	Hexadecane		Anthracene	
				Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Run Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	Control Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.6. 9	0.0	-138	6.78	273.8	273.8	204.4	204.4
6.10	1.0	28	6.65	252.1		195.6	
6.11	2.0	-3	6.81	215.0		193.8	
6.12	3.0	105	6.71	222.9		194.4	
6.13	4.0	151	6.60	184.9	204.6	170.3	172.4
6.14	5.0	70	6.52	160.1		168.0	
6.15	6.0	156	6.67	196.8	274.5	172.8	235.4
6.17	8.0	161	6.54	109.4		183.8	
6.19	10.0	166	6.42	61.7		182.3	
6.22	13.0	211	6.37	49.0	220.3	67.0	196.9
6.26	17.0	231	6.49		298.9		199.5
7. 2	23.0	237	6.74	21.4		42.5	

Hexadecane 単一系分解実験 (好気状態)

実験期間 1993.11.13~11.20

Date	Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.13	0.0	227.8
11.14	1.0	192.5
11.15	2.0	157.3
11.16	3.0	126.6
11.17	4.0	82.6
11.12	5.0	53.0
11.20	7.0	47.8

Hexadecane add Hexadecane 分解実験 (好気状態)

実験期間 1993.11.13~11.20

* add HEX

Date	Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.13	0.0	227.8
11.14	1.0	192.5
11.15	2.0	157.3
11.16	3.0	214.1
11.17	4.0	101.8
11.12	5.0	68.2
11.20	7.0	37.2

Hexadecane add Anthracene 分解実験 (好気状態)

実験期間 1993.11.13~11.20

* add ANT

Date	Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.13	0.0	227.80
11.14	1.0	192.50
11.15	2.0	157.30
11.16	3.0	104.10
11.12	5.0	36.90
11.20	7.0	30.70

Hexadecane add Hexadecane + Anthracene

分解実験 (好気状態)

実験期間 1993.11.13~11.20

* add HEX + ANT

Date	Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.13	0.0	227.80
11.14	1.0	192.50
11.15	2.0	157.30
11.16	3.0	245.80
11.17	4.0	135.50
11.12	5.0	90.30
11.20	7.0	27.90

Hexadecane 単一系分解実験 (好気状態)

Initial C-concn. = 210.7

実験期間 1993. 9. 9~9. 19

Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	HEX deg. ratio [%]
0.0	293.5	0.0
1.0	144.5	50.8
2.1	82.3	72.0
4.1	57.7	80.3
6.3	63.2	78.5
10.1	51.9	82.3

Hexadecane & Phenanthrene(1/5) 共存系分解実験 (好気状態)

Initial C-concn. = 78.4(PHE) + 310.5(HEX) = 388.9

実験期間 1993. 9. 9~9. 21

Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	HEX deg. ratio [%]	ANT Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	ANT deg. ratio [%]
0.0	310.5	0.0	78.4	0.0
1.0	233.1	24.9	58.0	26.0
2.1	264.5	14.8	61.2	21.9
3.3	231.9	25.3	55.0	29.9
4.1	165.5	46.7	25.6	67.3
5.3	130.0	58.1	31.3	60.1
6.3	65.8	78.8	25.1	68.0
12.0	63.8	79.5	23.4	70.2

Hexadecane & Phenanthrene(1) 共存系分解実験 (好気状態)

Initial C-concn. = 227.2 (PHE) + 258.4 (HEX) = 485.6

実験期間 1993. 9. 9~9. 24

Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	HEX deg. ratio [%]	PHE Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	PHE deg. ratio [%]
0.0	270.5	0.0	227.2	0.0
1.0	268.5	0.7	220.6	2.9
2.1	266.2	1.6	252.6	-11.2
3.3	258.7	4.4	206.9	8.9
4.1				
5.3	229.0	15.3	90.8	60.0
6.3	188.2	30.4	56.1	75.3
7.9	101.9	62.3	37.3	83.6
10.1	108.4	59.9	38.7	83.0
15.1	93.9	65.3	38.2	83.2

Hexadecane & Phenanthrene(5) 共存系分解実験 (好気状態)

Initial C-concn. = 1444.3 (PHE) + 312.4 (HEX) = 1756.7

実験期間 1993. 9. 9~9. 24

Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	HEX deg. ratio [%]	PHE Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]	PHE deg. ratio [%]
0.0	312.4	0.0	1444.3	0.0
1.0	265.5	15.0	1302.9	9.8
2.1	320.8	-2.7	1634.5	-13.2
3.3	242.8	22.3	1293.5	10.4
4.1	270.8	13.3	1342.5	7.1
5.3	193.0	38.2	662.6	54.1
6.3	128.6	58.8	150.3	89.6
7.9	93.2	70.2	57.5	96.0
10.1	85.9	72.5	74.4	94.8
15.1	67.1	78.5	58.9	95.9

Date	Time [days]	PHE Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.27	0.0	233.0
11.28	1.1	239.3
11.29	2.1	214.1
12. 1	4.1	238.0
12. 3	5.9	257.8
12. 7	10.0	55.5
12.10	12.9	42.4
12.13	15.9	21.5

Phenanthrene 単一系分解実験

塩分濃度 5,000mg/l-Cl

実験期間 1993. 11. 27~12. 13

Date	Time [days]	PHE Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.27	0.0	233.0
11.28	1.1	242.5
11.29	2.1	221.6
12. 1	4.1	214.8
12. 3	5.9	229.8
12. 7	10.0	61.9
12.10	12.9	34.9
12.13	15.9	19.4

Phenanthrene 単一系分解実験

塩分濃度 10,000mg/l-Cl

実験期間 1993. 11. 27~12. 13

Date	Time [days]	PHE Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.27	0.0	233.0
11.28	1.1	207.7
11.29	2.1	196.5
12. 1	4.1	203.5
12. 3	5.9	222.1
12. 7	10.0	38.5
12.10	12.9	25.1
12.13	15.9	13.3

Phenanthrene 単一系分解実験

塩分濃度 15,000mg/l-Cl

実験期間 1993. 11. 27~12. 13

Date	Time [days]	HEX Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.27	0.0	282.6
11.28	1.1	249.7
11.29	2.1	217.3
11.30	3.0	181.0
12. 2	5.0	139.0
12. 4	6.9	104.1
12. 8	10.9	107.6
12.14	17.0	68.1

Hexadecane 単一系分解実験
 塩分濃度 5,000mg/l-Cl
 実験期間 1993. 11. 27~12. 14

Date	Time [days]	HEX Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.27	0.0	282.6
11.28	1.1	251.5
11.29	2.1	225.1
11.30	3.0	193.0
12. 2	5.0	140.5
12. 4	6.9	118.8
12. 8	10.9	94.0
12.14	17.0	55.5

Hexadecane 単一系分解実験
 塩分濃度 10,000mg/l-Cl
 実験期間 1993. 11. 27~12. 14

Date	Time [days]	HEX Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.27	0.0	282.6
11.28	1.1	256.9
11.29	2.1	218.1
11.30	3.0	213.5
12. 2	5.0	181.5
12. 4	6.9	140.3
12. 8	10.9	117.3
12.14	17.0	76.9

Hexadecane 単一系分解実験
 塩分濃度 15,000mg/l-Cl
 実験期間 1993. 11. 27~12. 14

Hexadecane 培養条件 (振盪、静置) 比較実験 (好気系)
 実験期間 1994. 1. 1~1. 15

培養条件 : 振盪培養

Date	Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
94.1. 1	0.0	195.3
1. 3	2.1	170.2
1. 5	4.0	163.4
1. 7	5.3	104.4
1. 8	6.4	132.7
1. 9	8.1	76.9
1.12	11.2	36.7
1.15	14.0	30.6

培養条件 : 静置培養

Date	Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
94.1. 1	0.0	204.7
1. 3	2.1	146.7
1. 5	4.0	158.6
1. 7	5.3	152.4
1. 8	6.4	137.9
1. 9	8.1	89.5
1.12	11.2	55.8
1.15	14.0	36

Date	Time [days]	ANT Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.26	0.0	235.4
11.28	2.1	200.8
12. 5	9.0	170.1
12. 6	10.0	171.6
12. 8	11.9	176.2
12.14	18.0	19.8
12.16	19.9	27.3
12.22	26.0	34.2

Anthracene 単一系分解実験
 塩分濃度 5,000mg/l-Cl
 実験期間 1993. 11. 26~12. 22

Date	Time [days]	ANT Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.26	0.0	235.4
11.28	2.1	236.9
12. 5	9.0	195.0
12. 6	10.0	196.4
12. 8	11.9	177.8
12.14	18.0	23.8
12.16	19.9	30.5
12.22	26.0	32.6

Anthracene 単一系分解実験
 塩分濃度 10,000mg/l-Cl
 実験期間 1993. 11. 26~12. 22

Date	Time [days]	ANT Conc. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.26	0.0	235.4
11.28	2.1	222.7
12. 5	9.0	198.5
12. 6	10.0	191.7
12. 8	11.9	187.5
12.14	18.0	73.0
12.16	19.9	27.7
12.22	26.0	39.7

Anthracene 単一系分解実験
 塩分濃度 15,000mg/l-Cl
 実験期間 1993. 11. 26~12. 22

Anthracene 培養条件 (振盪、静置) 比較実験 (好気系)
 実験期間 1994. 1. 1~1. 24

培養条件 : 振盪培養

Date	Time [days]	ANT Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
94.1. 1	0.0	174.0
1. 3	2.1	170.0
1. 5	4.0	168.0
1.10	9.1	143.9
1.12	11.2	127.6
1.15	14.0	109.8
1.18	17.2	96.9
1.24	22.8	55.5

培養条件 : 静置培養

Date	Time [days]	ANT Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
94.1. 1	0.0	189.5
1. 3	2.1	177.9
1. 5	4.0	170.6
1.10	9.1	150.5
1.12	11.2	168.3
1.15	14.0	161.8
1.18	17.2	143.0
1.24	22.8	133.1

Phenanthrene 培養条件 (振盪、静置) 比較実験 (好気系)
 実験期間 1994. 1. 15~2. 1

培養条件：振盪培養

Date	Time [days]	PHE Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
94.1.15	0.0	280.3
1.17	2.1	273.2
1.20	3.7	188.7
1.21	5.0	34.4
1.24	7.8	11.5
1.26	10.1	9.0
1.30	13.8	5.2
2. 1	15.9	6.5

培養条件：静置培養

Date	Time [days]	PHE Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
94.1.15	0.0	295.1
1.17	2.1	243.7
1.20	3.7	232.8
1.21	5.0	101.3
1.24	7.8	106.7
1.26	10.1	91.6
1.30	13.8	88.8
2. 1	15.9	55.3

Hexadecane コア実験

Time [days]	Depth [cm]	ORP [mV]	A	B	C	D	E
0	0~1	-95~+41	286.8	222.3	281.7	84.5	186.0
	5~6	-213	214.1	198.5	235.4	177.7	190.7
	10~11	-225	201.8	204.0	204.6	183.9	199.6
	15~16	-236	187.9	197.5	215.1	185.1	201.4
9	0~1	-144	227.8	75.6	189.5	117.2	157.7
	5~6	-214	168.3	160.6	182.6	159.1	144.5
	10~11	-230	184.3	154.0	180.2	159.3	172.8
	15~16	-230	168.5	140.8	156.6	170.4	168.5
20	0~1		116.9	41.5	46.7	37.6	42.3
	5~6		103.1	26.0	30.3	32.9	37.4
	10~11		91.0	28.6	26.4	33.1	43.8
	15~16		108.9	29.7	22.3	34.0	39.3
30	0~1	92	76.1	28.1	30.0	45.1	21.5
	5~6	-104	39.8	21.6	16.6	34.4	13.6
	10~11	-275	46.2	24.8	13.6	31.6	16.0
	15~16	-293	50.5	23.3	17.5	29.9	15.6

Hexadecane 培養条件 (振盪、静置) 比較実験 (嫌気系)
 実験期間 1993. 11. 12~12. 12

培養条件 : 振盪培養

Date	Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.12	0	252.3
11.22	10	225.9
12. 3	20	170.9
12.12	30	138.5

培養条件 : 静置培養

Date	Time [days]	HEX Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.12	0	252.3
11.22	10	172.4
12. 3	20	47.8
12.12	30	27.9

Anthracene 培養条件 (振盪、静置) 比較実験 (嫌気系)
 実験期間 1993. 11. 12~1994. 1. 24

培養条件 : 振盪培養

Date	Time [days]	ANT Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.12	0	190.1
12. 2	22	199.4
12.21	42	223.7
94. 1.24	75	182.8

培養条件 : 静置培養

Date	Time [days]	ANT Concn. [$\mu\text{g/g-D.S.}$]
93.11.12	0	190.1
12. 2	22	185.9
12.21	42	202.8
94. 1.24	75	205.3

Anthracene コア実験

Time [days]	Depth [cm]	ORP [mV]	A	B	C	D	E
0	0~1	-95~+41	248.0	205.4	212.4	303.8	268.0
	5~6	-213	250.0	196.0	171.6	206.9	179.7
	10~11	-225	202.3	192.7	178.7	201.9	188.2
	15~16	-236	134.9	114.8	183.1	146.1	171.5
16	0~1	-140	292.4	296.6	217.4	269.9	307.5
	5~6	-216	170.4	259.3	170.7	174.8	184.9
	10~11	-243	180.2	193.0	174.3	181.9	203.1
	15~16	-237	100.0	165.9	167.0	163.2	149.7
30	0~1		253.8	216.4	149.8	216.7	207.0
	5~6		190.8	208.4	154.2	192.5	147.7
	10~11		189.1	194.6	167.1	166.4	183.5
	15~16		118.0	112.8	187.3	174.9	122.6
45	0~1		237.3	237.7	116.0	235.2	211.2
	5~6		175.5	219.2	181.5	178.6	186.0
	10~11		182.1	156.7	181.5	84.3	237.5
	15~16		104.5	98.7	154.6	153.4	149.8
60	0~1	72	169.2	166.1	120.2	208.4	168.9
	5~6	-204	187.9	197.5	158.1	162.7	181.0
	10~11	-275	180.2	176.6	151.1	173.6	179.2
	15~16	-293	115.5	105.3	152.8	169.3	120.1