

多摩川の水質環境の変化に対応した新たな
微生物・化学指標による現状把握と指標評価

2005年

小堀 洋美
武蔵工業大学環境情報学部 教授

目 次

第1章. 研究の背景と目的	2
1-1. 研究背景	2
1-2. 研究目的	2
第2章. 多摩川の調査対象地点と調査時期	4
2-1. 調査対象河川	4
2-2. 調査時期	6
第3章. 多摩川における微生物の分布と季節変動	7
3-1. 調査対象の概要	7
3-1-1. 微生物試験	
3-2. 調査方法	8
3-2-1. 一般細菌の計数方法	
3-2-2. 大腸菌群数の定量的計数法	
3-2-3. 糞便性大腸菌群数の定量的計数法	
3-3. 調査結果	9
3-3-1. 一般細菌の分布と季節変動	
3-3-2. 大腸菌群の分布と季節変動	
3-3-3. 糞便性大腸菌群の分布と季節変動	
3-3-4. 天候による微生物の変化	
3-3-5. 統計解析による「一般細菌」「大腸菌群数」、「糞便性大腸菌群」、の関係性	
3-4. 考察	24
3-4-1. 一般細菌について	
3-4-2. 大腸菌群について	
3-4-3. 糞便性大腸菌群について	
3-4-4. 天候による微生物の変化	
3-4-5. 糞便性大腸菌群を指標とすることの有効性	
第4章. 多摩川における薬剤耐性菌の出現頻度と耐性パターン	26
4-1. 研究の背景と目的	26
4-2. 調査対象の概要	26
4-2-1. 抗生物質	
4-3. 調査方法	27
4-3-1. 大腸菌の単離と同定	
4-3-2. 薬剤耐性試験	
4-4. 調査結果	30
4-4-1. 薬剤感受性試験の結果	
4-4-2. 薬剤耐性の割合	
4-4-3. 地点別の多剤耐性菌の割合	
4-4-4. 大腸菌の抗生物質耐性パターン	
4-4-5. 天候による薬剤耐性の割合の変化	
4-5. 考察	40
4-5-1. 耐性菌の出現頻度	
4-5-2. 抗生物質別の耐性菌出現頻度	
4-5-3. 耐性菌の耐性パターン	
4-5-4. 天候による薬剤耐性の割合の変化	
4-5-5. 薬剤耐性菌による新たなリスク評価	
第5章. 水質測定とイオン分析	42
5-1. 研究背景・目的	42

5-2. 調査方法	42
5-2-1. 現地での水質測定項目と測定方法	
5-2-2. イオン分析	
5-3. 多摩川水系における水質測定とイオン分析の結果	43
5-3-1. 月別の気温と水温の変化	
5-3-2. 月別 pH 変化	
5-3-3. 月別の電気伝導度 (EC) 変化	
5-3-4. 月別溶存酸素 (DO) 変化	
5-3-5. 月別無機物陰・陽イオン類の変化	
5-4. 考察	55
5-4-1. 月別の気温と水質変化について	
5-4-2. 月別 pH 変化について	
5-4-3. 月別電気伝導度 (COND) 変化について	
5-4-4. 月別溶存酸素 (DO) 変化について	
5-4-5. 無機物質陰・陽イオンについて	
5-4-6. 塩化物イオンの指標性について	
第 6 章. 多摩川における N-BOD の挙動に与える下水処理水の影響	61
6-1. 研究背景	61
6-2. 水質調査の方法	61
6-2-1. 測定日	
6-2-2. 測定地点	
6-3. 測定項目	62
6-4. 分析方法	62
6-4-1. 現地における測定方法	
6-4-2. 研究室における分析手順	
6-4-3. BOD 測定方法	
6-4-4. 残留塩素除去した BOD 測定方法	
6-4-5. サリチル酸法による NH ₄ -N 分析方法	
6-5. 下水処理水と河川水の水質変換速度試験 (バッチテスト)	63
6-5-1. 水質変換速度試験の測定項目および目的	
6-5-2. 測定方法	
6-5-3. 硝化細菌の初期菌体濃度の算出方法	
6-6. 測定結果	65
6-6-1. 測定項目の流下方向分布	
6-6-2. BOD と TOC との関係	
6-6-3. N-BOD と NH ₄ -N との関係	
6-6-4. 下水処理場における塩素消毒による BOD 濃度変化	
6-6-5. 見かけの BOD と残留塩素除去した BOD との関係	
6-6-6. 下水処理水と河川水における水質変換速度試験結果	
6-7. まとめ	81
第 7 章. 多摩川における C-BOD の有機物汚濁指標としての有効性の検討	82
7-1. 研究の背景と目的	82
7-2. BOD、C-BOD および N-BOD の層別分析	82
7-3. BOD、C-BOD、N-BOD の関係性の解析	83
Summary : Resarch Outline and Future Applications	87
参考文献	89
謝辞	90

共同研究者執筆分担

1章 研究の背景と目的	長岡・高砂子・小堀
2章 多摩川の調査対象地点と調査時期	小堀
3章 多摩川における微生物の分布と季節変動	小堀
4章 多摩川における薬剤耐性大腸菌の出現頻度と耐性パターン	小堀
5章 水質測定とイオン分析	高砂子・小堀
6章 多摩川における N-BOD の挙動に与える下水処理水の影響	長岡
7章 C-BOD の有機物汚濁の指標としての有効性の検討	長岡・小堀

共同研究者リスト

研究代表	小堀 洋美	武蔵工業大学	環境情報学部
研究分担者	長岡 裕	武蔵工業大学	工学部 都市基盤工学科
	高砂子 昌久	武蔵工業大学	工学部 教育研究センター
研究協力研究者	後藤 正幸	武蔵工業大学	環境情報学部
研究協力者	伊藤 彰	武蔵工業大学	環境情報学部
	岡谷 圭吾	武蔵工業大学	環境情報学部
	星 貴人	武蔵工業大学	環境情報学部
	飯野 道代	武蔵工業大学	環境情報学部
	松崎 隆行	武蔵工業大学	環境情報学部
	菱沼 貴政	武蔵工業大学	工学部研究科 都市基盤工学科
	大野 愛利	武蔵工業大学	工学部研究科 都市基盤工学科
	奥津 健太郎	武蔵工業大学	工学部 都市基盤工学科
	馬場 ひとみ	武蔵工業大学	工学部 都市基盤工学科

第1章 研究の背景と目的

1-1. 研究背景

日本は第二次世界大戦後の経済発展に伴い、急激な都市化が進み、人々の生活様式は大きく変化してきた。その結果、1960年代には河川においても、飲料水や工業用水など取水による水量の減少、家庭廃水や産業廃水などの流入による水質の悪化など、多様な河川への悪影響が顕在化した。これらの諸問題を改善するために、行政は1980年代から河川の水質環境を改善するために、下水道の整備、河川の環境基準に関する法律の改正などを進めてきた。その結果、現在では1980年代よりも水質は改善に向かっている。しかし、1997年の河川法の改正による河川環境の保全への関心の高まりや、河川への社会のニーズの変化により、最近では河川の水環境の安全策や河川の親水空間やアメニティ機能が見直され、多くの人が河川へアクセスする機会が増えている。そのため、水質環境に対する配慮がより一層必要となり、河川の水環境の改善、保全、安全性に対するより厳しい基準、新たな評価項目の検討、総合的な評価手法の開発などが求められている。

現在、環境省では、河川の環境基準として「生活環境の保全に関する環境基準」を規定しており、4つの物理化学的評価項目と大腸菌群数の5項目からなる評価基準を用い、各河川の利用目的に応じた基準値を定めている（東京都環境局、2004）。また、国土交通省や東京都、神奈川県などの地方公共団体もこれらの項目に関する調査を行っている。しかし、これら従来からの河川の水質環境の基準の中には、河川環境の変化や社会の河川環境へのニーズに合わなくなった項目や新たな水質環境項目として追加する必要がある項目もある。

1-2. 研究目的

本研究では、環境省の「生活環境の保全に関する環境基準」の5項目のうち、BOD、大腸菌群数の2項目について日本の代表的な都市河川である多摩川を対象として、現状を把握し、その結果に基づいて新たな水環境指標としての糞便性大腸菌、C-BOD、N-BODの妥当性について検討することを目的とする。

また、水環境への人為的な影響を示す代表値としてのナトリウムイオン、塩化物イオン、の指標としての妥当性についても検討する。さらに、現在の環境省の「生活環境の保全に関する環境基準」には含まれていない新たな安全性の評価基準として抗生物質が効かない薬剤耐性菌の河川水中の出現頻度を指標に用いる妥当性について検討する。

以下にこれら新たな水質環境基準について検討するにいった経緯や必要性について各項目別に述べる。

1) 病原性細菌の指標としての糞便性大腸菌群数

大腸菌群数の調査は、河川の病原性細菌の指標として用いられてきた。しかし、行政で一般的に用いられている大腸菌群数は、河川の病原性指標として最も望ましいかどうかについては議論がある。大腸菌群数には、人糞由来だけでなく土壌など自然由来のものも含まれるため、河川中の病原性細菌の指標としては、大腸菌群数より糞便性大腸菌群数の方が、より指標性が高いと考えられている（中央環境審議会、2002）。そこで本研究では、病原性の指標として現在用いられている大腸菌群より正確な糞便性大腸菌群を指標として用い、その多摩川での分布特性を明らかにするとともに、大腸菌群数と糞便性大腸菌群数の相関関係を明らかにし、糞便性大腸菌群数の新たな指標としての有効性を明らかにすることを目的とした。また、多摩川では河川に流入する下水処理水（再生水）の割合が50%以上を占めるため、下水処理水が河川に及ぼす影響を調べるために下水処理場内の塩素消毒前処理水、塩素消毒後放流水の微生物調査を行ない、下水処理場が微生物に及ぼす影響についても検討した。

2) 新たなリスク評価指標としての薬剤耐性菌の出現頻度

今日、抗生物質に対して、耐性を示す薬剤耐性菌は、医療現場では急速な広がりを見せており、耐性菌による感染症や院内感染は深刻な医学的、社会的な問題となっている。一方、抗生物質はヒトの治療目的以外にも家畜や養殖魚の病気予防や成長促進など多様な目的に用いられており、大量な抗生物質の使用による耐性菌のさらなる増加が懸念されて

いる (Bell et. al., 1983 ; 荒川, 1998 ; 宮本, 2000)。

抗生物質の投与に起因する耐性菌がヒトにもたらす影響については、一部の抗生物質についてはリスク評価が行われている。しかし、水環境中での微生物リスク評価では、抗生物質の耐性はリスク評価項目として、取り上げられて来なかった。しかし、水環境の抗生物質耐性菌がもたらすリスク評価は、今後、評価項目として検討することが必要である。水環境における抗生物質耐性リスクに関する評価を行うためには、第一に耐性菌の水環境中での分布と出現頻度に関する知見を得ることが必要である。

本研究では、多摩川の河川水中の大腸菌の広範囲な抗生物質に対する耐性頻度を調査すると共に、その耐性パターンを調査することを目的とした。その結果に基づき、リスク評価としての利用の可能性について検討した。

3) 塩化物イオンの人為的な水質悪化の指標としての有効性

多摩川の水質環境の現状を把握するために、河川中の無機物の陽・陰イオン類および栄養源イオン類の定量分析を試みた。これらのイオン類中で、生活廃水等に混入している塩化物イオンは下水処理場でも除去されず、河川中でも自然浄化されないため、塩化物イオンの定量値は河川の水質悪化を評価する有効な指標となりえるのではないかと考え検討した。

4) 多摩川における N-BOD の挙動に与える下水処理水の影響

多摩川の N-BOD の挙動を定量的に示すことで、代表的な都市河川の河川水質に与える下水処理水の影響を評価した。N-BOD および C-BOD を利用して河川水中の残留塩素濃度のモニターに使用できる可能性について検討した。また、N-BOD は、河川水中のアンモニア性窒素濃度および硝化菌量の指標としての有効性についても検討した。

5) 河川の有機汚濁の指標としての C-BOD

我国では BOD (生物化学的酸素要求量) の測定は、汚濁防止法および公害対策基本法の水質汚濁に係る環境基準で採用されて以来、河川の有機汚濁の程度を示す最も一般的な指標として用いられてきた。近年では、全国の河川での BOD 基準値の達成率は 80% を超え、河川の有機汚濁は改善されてきているが、一部の都市河川では BOD の急速な低下が見られていない。その原因として、下水処理場や下水処理水 (再生水) が流入する河川では、BOD 値には有機汚濁由来の C-BOD のほかにアンモニア性窒素に由来する N-BOD が含まれていることが指摘されている (亀田, 2000)。本研究では、下水処理場の放流水が流入する多摩川において、本流、支流、下水処理場を対象として BOD, C-BOD, N-BOD 値を測定すると共に、C-BOD の指標としての有効性の検討を行った。

なお、研究背景と目的の詳細については、以下の各章に記述した。

第2章 多摩川の調査地点と調査時期

2-1. 多摩川の調査地点と調査時期

本研究の多摩川の調査地点は、図 2-1 に示す本流の 7 地点 (St. 1~10)、支流は城山川 (St. 4 五反田橋)、浅川 (St. 5 中央道北浅川橋)、残堀川 (St. 7 立川橋) の 3 地点および A 下水処理場 (多摩川上流水再生センター) 内の塩素消毒前処理水 (St. 11) と塩素消毒後放流水 (St. 12) の 12 地点である。表 2-1 に 12 地点における河川名、地点名を示す。また、調査地点の各々の景観は図 2-2 に示す。調査地点の選択にあたっては、行政のデータとの比較を可能にするために行政での調査地点と同一の地点を含め、選定した。

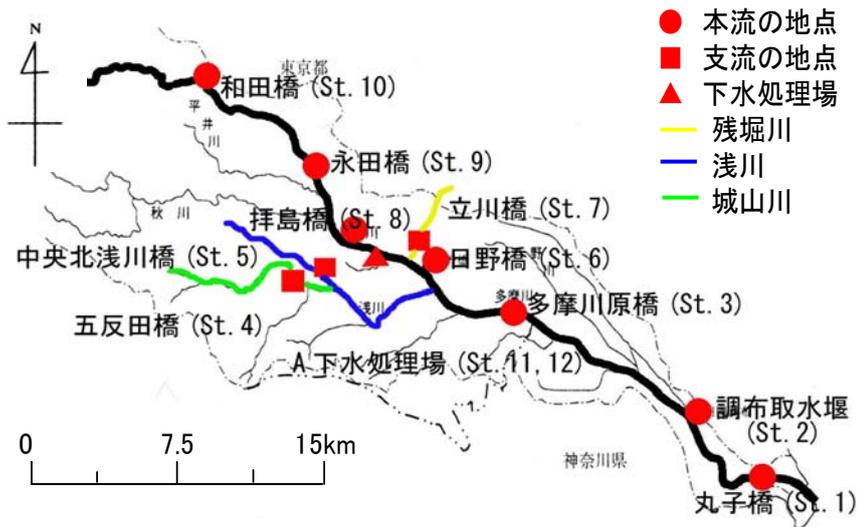


図 2. 1 多摩川水系の調査地点と調査地点名



図 2.2 調査地点の景観

2-2. 調査時期

調査期間は2003年6月から2005年1月までの1年半の期間で毎月1回、行った。

表 2-1 多摩川水系調査地点リスト

地点番号	河川名	地点名
St.1	多摩川	丸子橋
St.2	多摩川	調布取水堰
St.3	多摩川	多摩川原橋
St.4	城山川	五反田橋
St.5	浅川	中央道北浅川橋
St.6	多摩川	日野橋
St.7	残堀川	立川橋
St.8	多摩川	拝島橋
St.9	多摩川	永田橋
St.10	多摩川	和田橋
St.11	多摩川	A 下水処理場の塩素消毒前処理水
St.12	多摩川	A 下水処理場の塩素消毒後処理水

第3章 多摩川における微生物の分布と季節変動

3-1. 調査対象の概要

3-1-1. 微生物試験

水質の指標としての微生物調査は、環境水等の規制により、環境基準、水浴場水質判定基準、公衆浴場水質基準、遊泳用プール水質基準、水質汚濁防止法による廃水基準、浄水方法選定の目安等に用いられている。これらの微生物試験の意義は、有機汚濁指標、病原性の有無の判定、微生物学的衛生状態の把握である(宮本, 2000)。

コレラ菌、サルモネラ菌、赤痢菌などの病原性微生物は、外界に放出されてからの生存能力が大腸菌群、糞便性大腸菌群、大腸菌よりも劣ると考えられるが、日和見感染を生じる微生物の中には下水処理施設に侵入した後一部定着し、通過する場合も十分考えられる。このため、下水処理場における衛生的作業環境の確保はもとより、今後、下水処理水の再利用を進めるにあたって、これらの衛生障害を引き起こし得る微生物の実態把握は不可欠である(橋本, 2000)。

1) 一般細菌について

一般細菌は、従属栄養細菌のうち、温血動物の体温前後で比較的短時間に集落を形成する細菌をいう。本研究では、標準寒天培地(栄研)によって主に河川などの自然環境の平均気温に近い温度である20℃で、5日間培養したとき、培地に集落を形成するすべての細菌を一般細菌とした。

一般細菌として検出される細菌の多くは、病原菌ではないが、一般細菌が多数検出される水は、糞便によって汚染されていることを疑わせるものである。地下水では一般細菌の急増は汚染の可能性を強く示しているが、表流水では水温の変化や降雨によって著しく影響を受けるので、経時的に菌数が多い値を示したからといって必ずしも新たな糞便による汚染を示しているとはいえない。

一般細菌数は、河川において有機物が多いほど増加する。また、一般細菌は水中に大腸菌群より遥かに多く存在し、その一部は塩素に対して大腸菌群より強い抵抗性をもっているため、塩素消毒後の水中には、一般細菌が大腸菌群より遥かに高い確率で存在する。このため、消毒効果を確認するには、一般細菌のほうが好ましい。また、配水システムにおいて汚染が生じる機会も、一般細菌のほうが遥かに多いと考えられるので、汚染を検出する目的としても大腸菌群よりも有利である(宮本, 2000)。

2) 大腸菌群について

大腸菌群は、わが国では1932年(昭和7年)から糞便性の病原細菌を含む汚染などによって水が汚染されている疑いを示す指標として利用されてきた。消化器系病原細菌の指標菌としての理想的な条件として、以下の7つの条件を挙げることができる。

- ①病原細菌が存在するときには必ず存在する。
- ②水界で顕著に増減しない。
- ③病原細菌よりも多数存在する。
- ④病原細菌よりも消毒剤に対して抵抗性がある。
- ⑤比較的簡単な培地で容易に増殖し、菌群の判定が明確にできる単純な反応を示す。
- ⑥検査すべき試料中にランダムに分布している。
- ⑦人工培地に接種したとき、他の細菌が存在することによって著しく増殖が抑制されない。

大腸菌群はこれらの条件に比較的良好に満たした菌群である。また、大腸菌群は乳糖を分解して酸とガスを産生するという単純な反応を利用し、簡単な方法で検出できる。このため、消化器系病原細菌による汚染の指標菌として広く利用されている。この菌群には、温血動物の腸管に常在している大腸菌(*Escherichia coli*)、*Citrobacter*属、*Enterobacter*属、*Klebsiella*属等が含まれ、一般にはグラム陰性、無胞子の短桿菌で、大腸菌群の菌

種を同定することにより、糞便由来か環境由来か判断することができる（橋本,2000）。

3) 糞便性大腸菌群について

糞便性大腸菌群とは、大腸菌群のうち $44.5 \pm 0.2^\circ\text{C}$ で培養したときに乳糖を分解してガスを発生させる細菌をいう。*Escherichia coli*（大腸菌）のほか、一部の *Klebsiella* 属の菌種を含む。*E. coli* は哺乳動物類及び鳥類の糞便に多量に存在する菌であり、糞便による汚染を知る指標として、最も好ましいが、簡便性と衛生学的な配慮により、糞便性大腸菌群を検査することがある。この試験は通常の大腸菌群試験方法に比較して、培養温度を高くすることで菌種の選択性を高くすることを主な原理としている（橋本,2000）。

大腸菌以外の糞便性大腸菌群は温血動物の糞便以外にも、工場廃水又は植物や土壌に由来するものも含まれ、糞便汚染を受けていない水中から検出した例も報告されているが、大部分の環境下では、糞便性大腸菌群の濃度は、水中の大腸菌濃度に密接に関連することが知られている。大腸菌群試験は、土壌等の自然界由来の細菌も陽性と判定するため、温血動物由来の細菌だけを判別することは出来ない。それに対し、糞便性大腸菌群は、よりの確に糞便汚染を把握することができる。糞便性大腸菌群は、糞便汚染の指標として大腸菌より信頼性に薄い、それらの濃度が水中の大腸菌濃度に密接に関連し、また、健康への影響に関しては、糞便性大腸菌群は糞便由来の大腸菌群であるために、人へ影響影する可能性は大腸菌群よりも高いと言える（宮本,2000）。

4) 大腸菌について

大腸菌 (*Escherichia coli*) は、人及び動物の腸管内や糞便中に多数存在し、新しい糞便では約 10^9 細胞/g に達する。一方、大腸菌以外の大腸菌群は、合計して 10^6 細胞/g を超えることはほとんどない。大腸菌は、人、家畜、又は野生生物や鳥類によって最近汚染された下水、下水処理水、及びすべての自然水や土壌中に認められるが、糞便で汚染されていない水、土壌、植物などに存在することはまれである。

大腸菌は多くの環境下において、グラム陰性菌の中で糞便汚染を高度に特定できる指標として用いられてきた。糞便性大腸菌群による糞便汚染の判定では、他の細菌種が混在することが知られているため、大腸菌はより直接的に糞便汚染を指し示す必要がある場合に用いられてきた。大腸菌は、腸管内の正常菌叢、大部分の菌株は非病原性である。しかし、一部の血清型には、下痢に関連する下痢病原性大腸菌が存在することが知られている（宮本,2000）。大腸菌は、単独な菌種であるばかりでなく、他の糞便指標細菌と比較すると自然界では生存期間が短いため、糞便汚染指標としてより特異的である（三橋ら,1985）。

3-2. 調査方法

3-2-1. 一般細菌の計数法

河川水の一般細菌の計数は、標準寒天培地を用いた平板培養法によった。

河川の各調査地点において、流心の表層水をあらかじめガス滅菌された採水ボトル 100ml に試水を取り、 4°C 以下で一定に保ち、実験室に持ち帰り、 20°C にて 5 日間培養後、培地上に形成された全コロニー数を計数した。

3-2-2. 大腸菌群数の定量的計数法

大腸菌群の計数はデソキシコール酸塩平板培養法によった。本法は、デソキシコール酸塩平板培地（表 3-1）上に出現する大腸菌群特有の定型的紅色集落を計数する選択培地法である。紅色集落は大腸菌群が乳糖を分解して増殖する際に生じる酸によって、培地中の pH 指示薬のニュートラルレッドが赤変する原理を利用している。デソキシコール酸塩を添加することにより、大腸菌群の選択性を強化している。デソキシコール酸塩は人間の体内で精製させる胆汁の成分と同じため、大腸菌群以外の菌を死滅させるため、生下水など直接糞便に汚染された試料に適している。

塗沫したシャーレはインキュベーター（IS-2000, アドバンティック社製）にて、 $36 \pm 1^\circ\text{C}$

で18～20時間培養した。培養後、培地上に形成されたコロニー集落のうち直径0.5mm以上の赤～深紅色である定型的集落(円形状又は米粒状)を計数し、大腸菌群数とした(工場廃水試験方法(JIS K 0102)1998年に準拠)。集計後、菌数がプレートで20～200コロニー得られたデータのうち、できるだけ希釈倍率の高いデータを平均し、それらの平均値を大腸菌群数(c.f.u./ml)とした。

表3-1 デソキシコール酸塩培地の組成

培地(45g)中の組成	
ヘプトン	10g
乳糖	10g
デソキシコール酸ナトリウム	1g
塩化ナトリウム	5g
リン酸二カリウム	2g
クエン酸鉄アンモニウム	2g
中性紅	0.033g
カンテン	15g
D.W	1,000ml
pH7.2±0.1	

3-2-3. 糞便性大腸菌群数の定量的計数法

44.5±0.2℃で18～20時間培養後、培地上に形成された赤色定型集落は主に大腸菌(*Escherichia coli*)であることから、これらを糞便性大腸菌群として計数した。本法は下水道試験方法(1984、1997)に準拠したが、混釈法は用いていない。集計後、プレート上の菌数がプレート上で20～200コロニー得られたデータのうち、できるだけ希釈倍率の高いデータを平均し、それらの平均値を糞便性大腸菌群数(c.f.u./ml)とした。

3-3. 調査結果

3-3-1. 一般細菌の分布と季節変動

図3.1に2003年6月～2004年11月の調査における、多摩川の地点ごとの一般細菌の平均値を示す。また、図3.2に2003年6月～11月、図3.3に2003年12月～2004年5月、図3.4に2004年6月～11月における多摩川の各調査地点の一般細菌数の変化を示す。

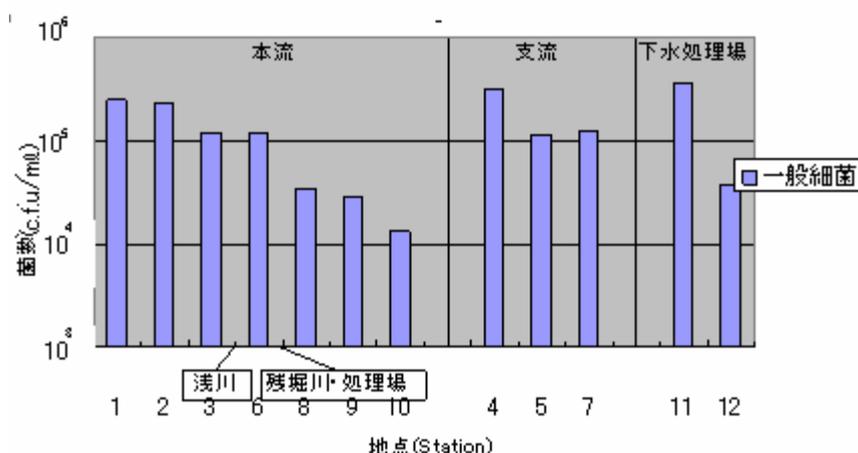


図3.1 2003年6月～2004年11月、調査地点ごとの一般細菌数の平均値

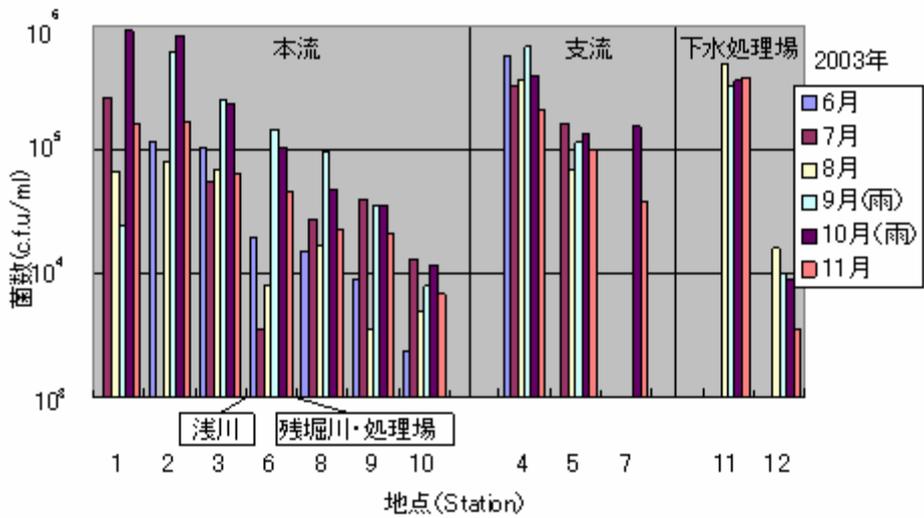


図 3.2 2003 年 6 月～11 月における多摩川の各調査地点の一般細菌数の変化

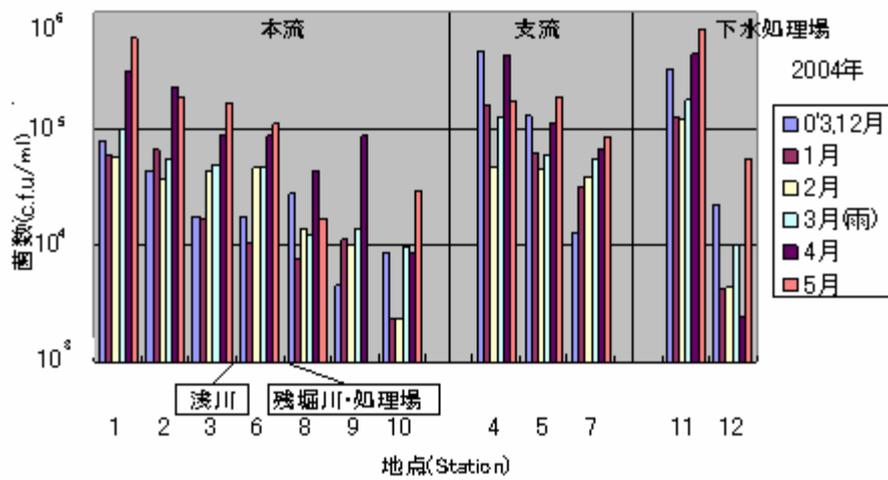


図 3.3 2003 年 12 月～2004 年 5 月における多摩川の各調査地点の一般細菌数の変化

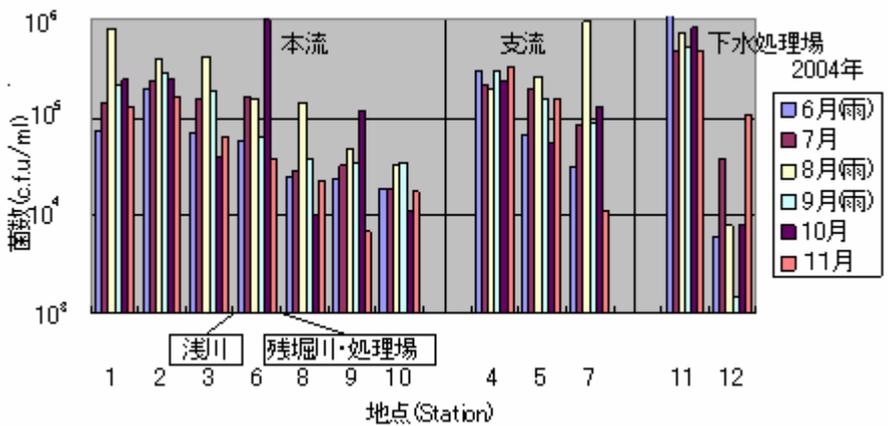


図 3.4 2004 年 6 月～11 月における多摩川の各調査地点の一般細菌数変化

多摩川の一般細菌は、全期間の平均値を示した図 3.1 から、上流から下流に流下するに従って、漸次増加する明瞭な傾向が見られた。また、調査地点中で最上流に位置する St. 10 の平均は 1.3×10^3 c. f. u/ml と最も低い値を示した。支流、特に St. 4. 5 は本流と比較して高い値を示した。この二つの支流は、St. 6 と St. 3 の間で本流に流入するが、本流の値が流下に従って増加するのは支流での高い一般細菌数に起因すると考えられた。これらは図 3.2 からも認められた。本流の St. 1. 2 と支流の城山川 St. 4 は、調査全体を通して比較的高い値を示した。調査当日、前日、前々日いずれか 2 日が雨天であった調査のうち、2004 年 3 月、6 月を除き、2003 年 9 月、2004 年 8 月、9 月 3 回の調査では、2003 年 9 月 8 地点、2004 年 8 月、9 月では全ての地点において春季、夏季の値は冬季の値より高くなっており、菌数の分布には季節変動の影響があることが示唆された。下水処理水には、季節変動による菌数の変化は見られなかったが St. 11 (塩素消毒前未処理下水) では、平均すると 3.6×10^5 c. f. u/ml と高い値を示し、St. 12 (放流水) は塩素消毒後のため、菌数は平均 3.8×10^4 c. f. u/ml と低かった。

3-3-2. 大腸菌群の分布と季節変動

図 3.5 に 2003 年 6 月～2004 年 11 月の調査における、多摩川の地点ごとの大腸菌群数の平均値を示す。また、図 3.6 に 2003 年 6 月～11 月、図 3.7 に 2003 年 12 月～2004 年 5 月、図 3.8 に 2004 年 6 月～11 月における多摩川の各調査地点の大腸菌群数の変化を示す。

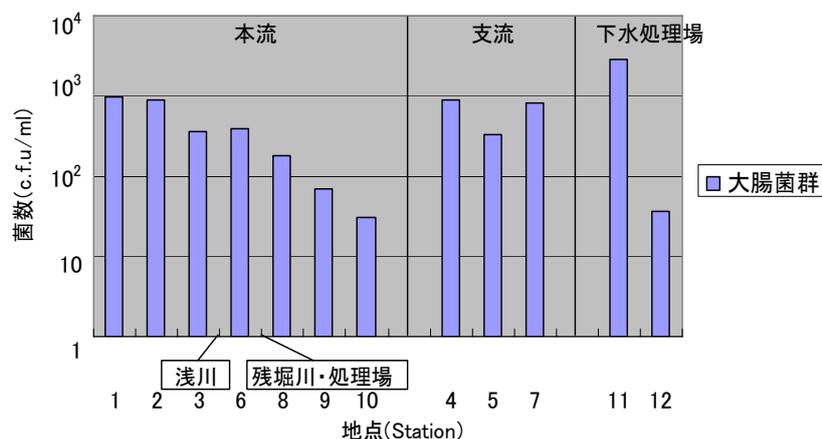


図 3.5 2003 年 6 月～2004 年 11 月の調査における地点別の大腸菌群数の平均値

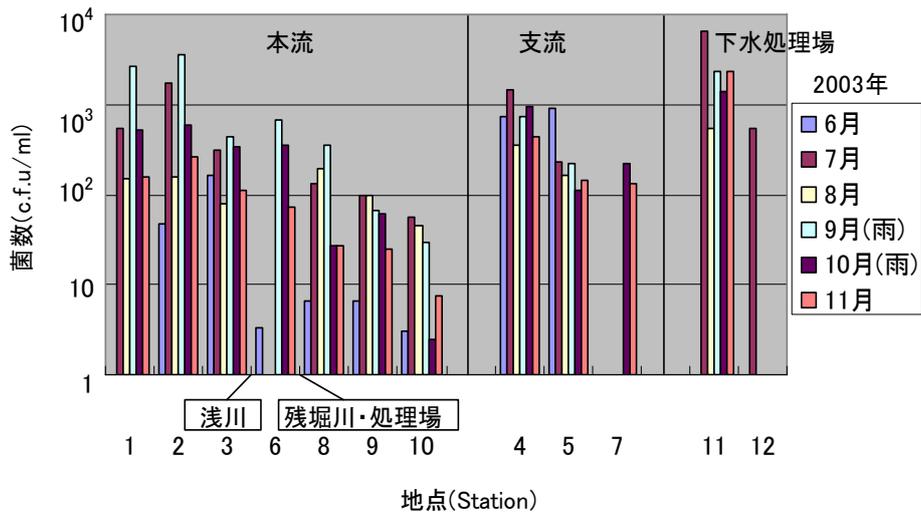


図 3.6 2003 年 6 月～11 月における多摩川の各調査地点別の大腸菌群数変化

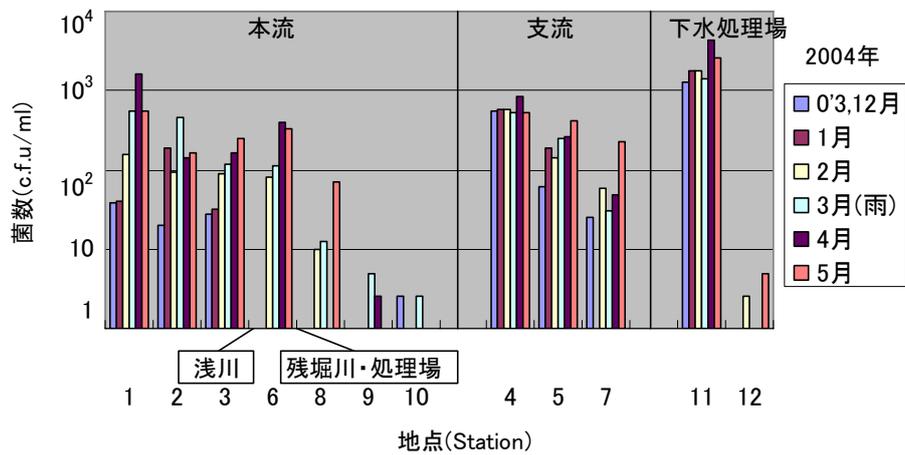


図 3.7 2003 年 12 月～2004 年 5 月における多摩川の各調査地点の大腸菌群数変化

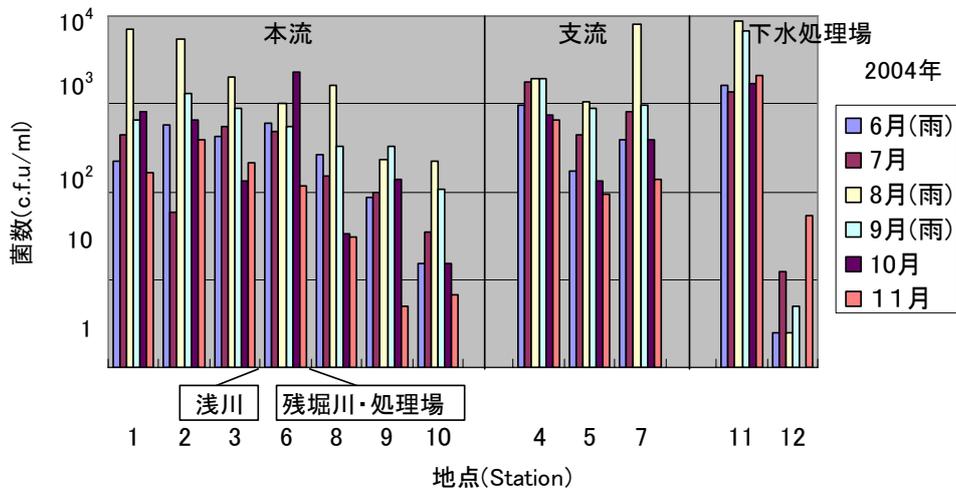


図 3.8 2004 年 6 月～11 月における多摩川本流各調査地点の大腸菌群数変化

多摩川本流において、大腸菌群数は一般細菌と同様、上流から下流へ、流下するに従い、高い値を示した。特に下流部のSt. 1, 2および、支流であるSt. 4において高い値を示した。その中で、St. 1で最も高く 10^3 c. f. u/ml 程度の値を示し、最も低いSt. 10と30倍もの差があった。一般細菌同様、本流、および支流では、春季、夏季の値は平均すると、566 c. f. u/ml 冬季の値98 c. f. u/mlより6倍も高くなっており、特に上流域のSt. 8, 9, 10においては、夏季と比べて、約1/10の値であった。以上から、菌数の分布には季節変動の影響があることが、示唆された。一方、下水処理水に関しては、St. 11ではどの季節においても 10^3 c. f. u/ml で一定しており、顕著な差は見られなかった。

3-3-3. 糞便性大腸菌群の分布と季節変動

図3.9に2003年6月～2004年11月の調査における、多摩川の地点ごとの糞便性大腸菌群数の平均値を示す。また、図3.10に2003年6月～11月、図3.11に2003年12月～2004年5月、図3.12に2004年6月～11月における多摩川の各調査地点の糞便性大腸菌群数の変化を示す。

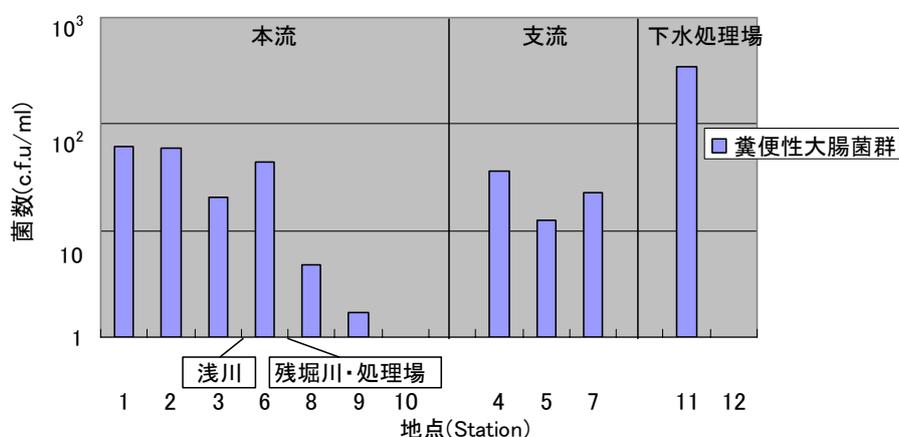


図3.9 2003年6月～2004年11月の地点別の糞便性大腸菌群数の平均値

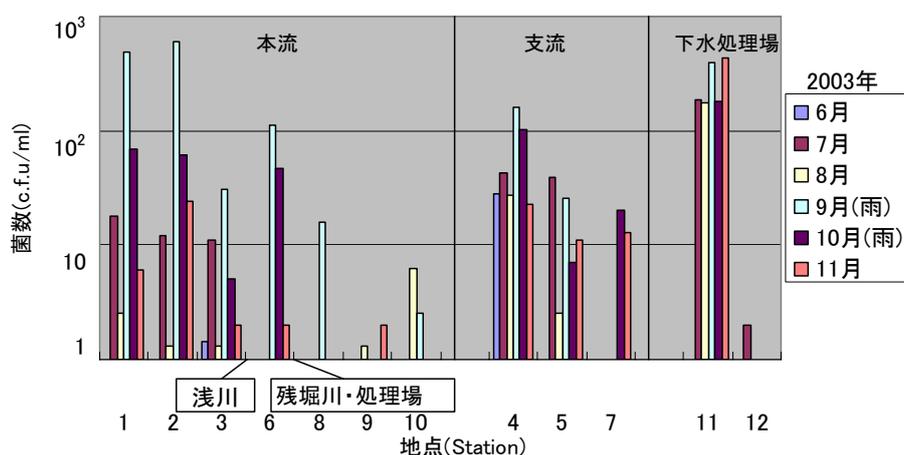


図3.10 2003年6月～11月における調査地点別の大腸菌群数変化

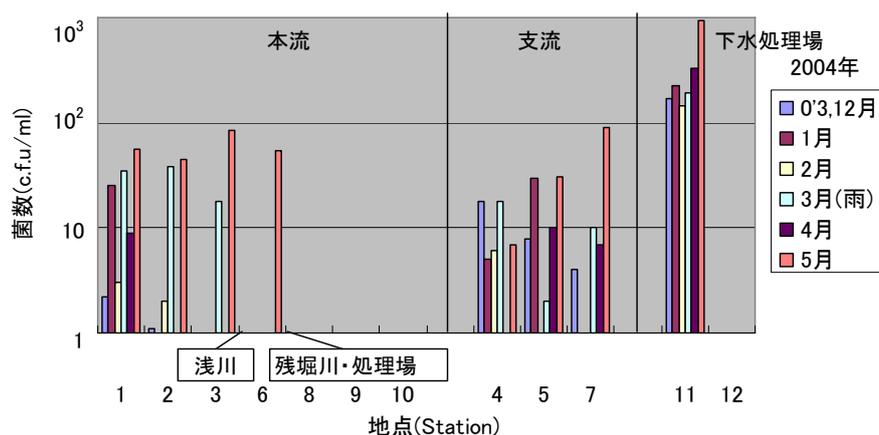


図 3.11 2003 年 12 月～2004 年 5 月における地点別の糞便性大腸菌群数変化

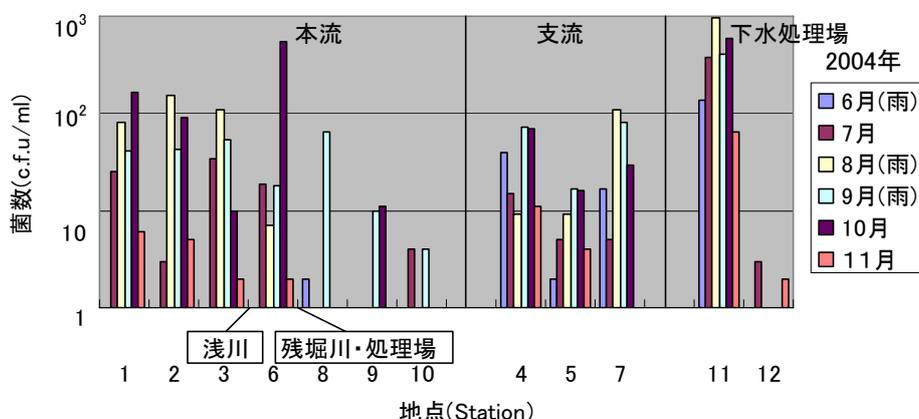


図 3.12 2004 年 6 月～11 月における地点別の糞便性大腸菌群数の変化

多摩川本流において、糞便性大腸菌群においても、一般細菌、大腸菌群同様、上流から下流へ流下するに従い、高い値を示した。また、本流の St. 8 より上流域では、ほとんど検出されなかった。この結果は多摩川の汚染を考える上で大変重要である。本流の下流域である St. 1, 2 と支流の St. 4 では高い値を示した。その中で、St. 1 で最も高く 6.0×10^2 c.f.u./ml 近い値を示し、最も低い St. 10 とは 60 倍もの差があった。

調査当日、前日、前々日いずれか 2 日が雨天であった 2003 年 9 月、2004 年 3, 8, 9 月の調査において、2003 年 9 月では 6 地点、2004 年 3, 8 は 5 地点、2004 年 9 月では 10 地点で比較的高い値を示し、一般細菌、大腸菌群における雨天時と晴天時の差より、顕著にその差がみられた。降雨により河川の水量は増加しているにもかかわらず、糞便性大腸菌群の濃度が高いことは、降雨時にそれらが大量に河川に流入しているものと考えられる。また、以上のことから、降雨によって糞便性大腸菌群数に起因する生活廃水が、下水処理場および支流から本流に流入する可能性が示唆された。

3-3-4. 天候による微生物の変化

図 3.13 に各地点における雨天時と晴天時の大腸菌群数の比較、図 3.14 に各地点における雨天時と晴天時の糞便性大腸菌群数の比較を示す。また、図 3.15 に地点別の糞便性/大腸菌群の割合を示す。

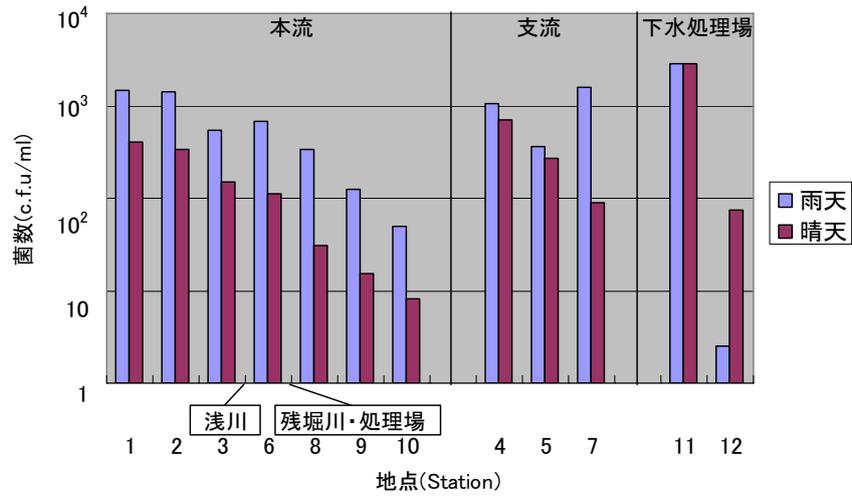


図 3.13 各地点における雨天時と晴天時の大腸菌群数の比較

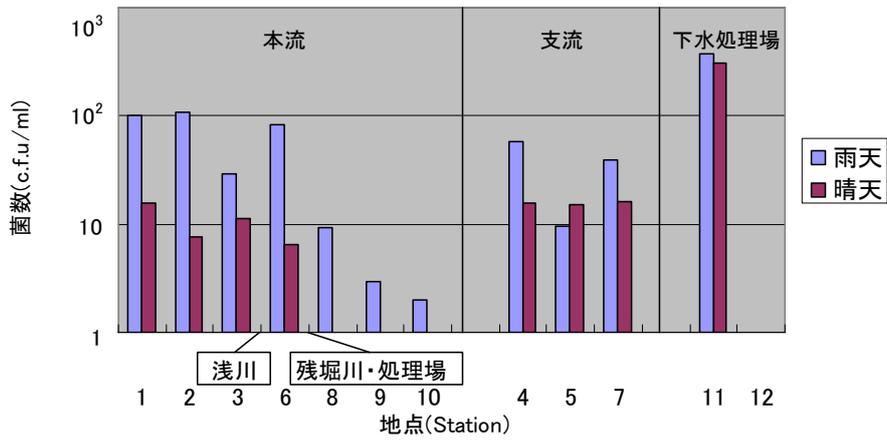


図 3.14 各地点における雨天時と晴天時の糞便性大腸菌群数の比較

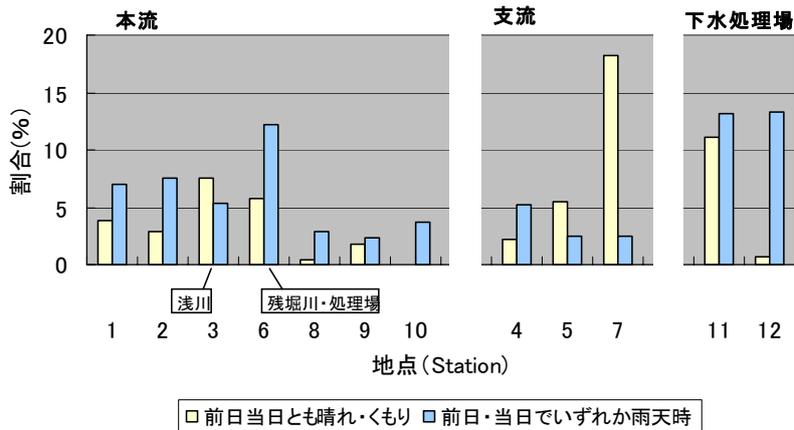


図 3.15 地点別の糞便性大腸菌群/大腸菌群の割合

多摩川において、雨天の時であっても上流から下流に流下するに従って菌数が多くなる傾向が見られた。大腸菌群について、雨天の方が値は高いが、特に本流の St. 8 では雨天時においては、晴天時の 8 倍、St. 9 では 10 倍、そして支流の St. 7 では 17 倍もの高い値が見られた。St. 12 の下水処理場放流水では、雨天の方が低いという特徴的な結果が得られた。糞便性大腸菌群について、大腸菌群と同様に、雨天の方が値は高い。特に、St2 では 14 倍、St6 では 13 倍、St8 では 9 倍という非常に大きな違いが見られた。支流の St. 5 では雨天の方が低いという逆の結果が得られ、St. 7 では大腸菌群で 17 倍の違いが見られたが、糞便性大腸菌群では 2 倍であった。また、図 3. 15 より、大腸菌群中の糞便性の割合が、雨天時の方が、晴天時より多くの地点で 5%~10%高くなっていたが、St. 4 では 20%も増加していた。また、St. 3, 9, 7 では顕著な差は見られなかった。

3-3-5. 統計解析による「一般細菌」「大腸菌群数」、「糞便性大腸菌群」、の関係性

1) 変数処理をしない場合（元データ）の分析

全調査期間・全観測地点のデータ全体での 3 変数間の相関係数行列を表 3-2 示す。

「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」に相関係数で 0.642 と正の相関関係が見られた。

表 3-2. 全データに対する相関係数行列（サンプル数 240）

変数名	大腸菌群	糞便性大腸菌群	一般細菌
大腸菌群	1	0.642+	0.354
糞便性大腸菌群	0.642+	1	0.310
一般細菌	0.354	0.310	1

図 3.16 に「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」間の傾向を把握するために、図 3.16 に両者の散布図を示す。

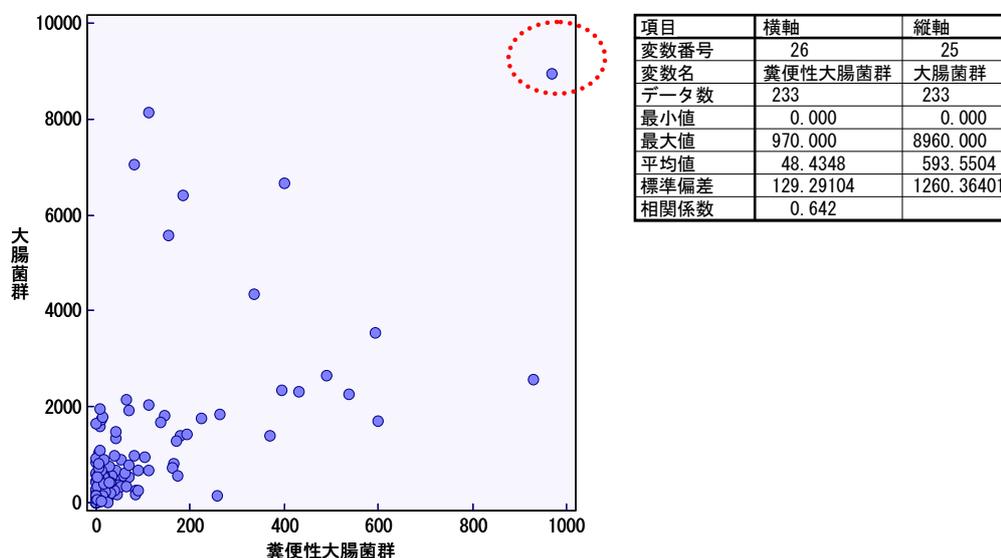
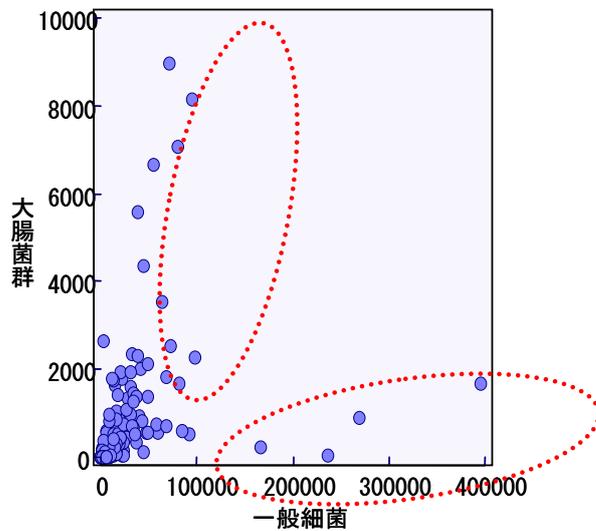


図 3.16 全データに対する「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」の散布図

散布図を見ると、原点付近にデータが集中しており、両者の値がかなり大きな観測データが 1 点右上に存在する（外れ値）ことが分かる。全体的な傾向を見れば、右上がりの強い直線傾向は見られない。この外れ値の影響で、正の相関係数が算出された可能性がある。「大腸菌群」と「一般細菌」については、相関係数で 0.354 と高い相関は得られなかつ

た。その傾向をみるために図 3.17 に散布図を示す。



項目	横軸	縦軸
変数番号	27	25
変数名	一般細菌	大腸菌群
データ数	231	231
最小値	25.000	0.000
最大値	395875.000	8960.000
平均値	1.9×10^5	5.6×10^2
標準偏差	39784.48716	1203.61260
相関係数	0.354	

図 3.17 全データに対する「大腸菌群」と「一般細菌」の散布図

「大腸菌群」と「一般細菌」については、相関係数では強い相関は示していないが、上の散布図をみると、傾きの異なる2つの直線関係が混合されたような傾向がみられる。大まかには一般細菌が増加すると大腸菌群も増加する傾向が見受けられる反面、一般細菌が非常に多いにも関わらず、大腸菌群がそれほど増加していない観測データが右下に4点ほど点在する。ここでは、これ以上の考察はできないが、層別や対数変換などによってさらに詳細に議論できる可能性がある。

次に、これらの関係に影響を与える可能性のある「季節」と「本流・支流・下水処理場」で層別して分析を行った結果を表 3-3 から 3-6 に示す。

表 3-3. 季節で層別したときの相関係数行列（3月～5月：サンプル数36）

変数名	大腸菌群	糞便性大腸菌群	一般細菌
大腸菌群	1	0.696+	0.704+
糞便性大腸菌群	0.696+	1	0.702+
一般細菌	0.704+	0.702+	1

表 3-4. 季節で層別したときの相関係数行列（6月～8月：サンプル数72）

変数名	大腸菌群	糞便性大腸菌群	一般細菌
大腸菌群	1	0.672+	0.249
糞便性大腸菌群	0.672+	1	0.202
一般細菌	0.249	0.202	1

表 3-5. 季節で層別したときの相関係数行列（9月～11月：サンプル数72）

変数名	大腸菌群	糞便性大腸菌群	一般細菌
大腸菌群	1	0.780+	0.559
糞便性大腸菌群	0.780+	1	0.635+
一般細菌	0.559	0.635+	1

表 3-6. 季節で層別したときの相関係数行列（12月～2月：サンプル数60）

変数名	大腸菌群	糞便性大腸菌群	一般細菌
大腸菌群	1	0.758+	0.594
糞便性大腸菌群	0.758+	1	0.653+
一般細菌	0.594	0.653+	1

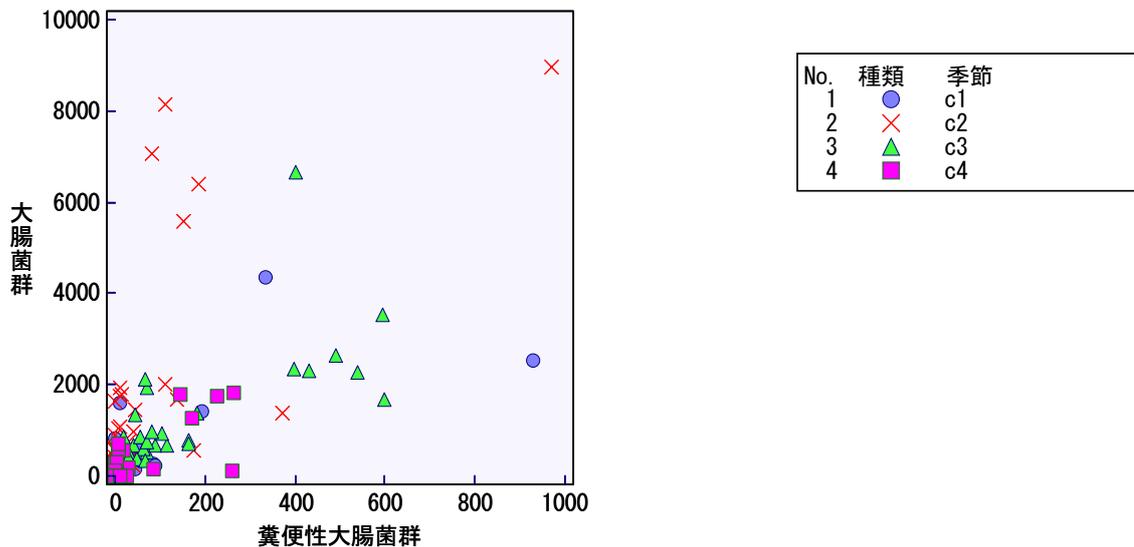


図 3.18 季節で層別したときの「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」の散布図

これらの結果から、季節によって「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」の関係が異なることが示唆された。

図 3.18 の○は3月～5月、×は6月～8月、△は9月～11月、□は12月～2月を表している。各カテゴリのサンプル数は、36, 72, 72, 60となっており、十分なサンプル数を保持できていると考えられる。9月～11月、12月～2月において、若干相関が強まる傾向が見て取れる。

ただし、データの分布傾向として、多くの点が値の小さな原点付近に集中して分布しており、「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」の双方が大きいサンプル点が散見される特徴を持つ。主に相関関係を生み出している関係性は、原点から離れた値の大きいサンプル点であることが分かる。「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」は、平常では少数安定しているが、雨天などの原因によって急激に増加する場合があります、その際には双方共に増加する傾向があるといえる。ただし、その増加関係については、季節によって差が生じている。

次に、図 3.19 に「大腸菌群」と「一般細菌」の関係について、季節で層別した散布図を示す。

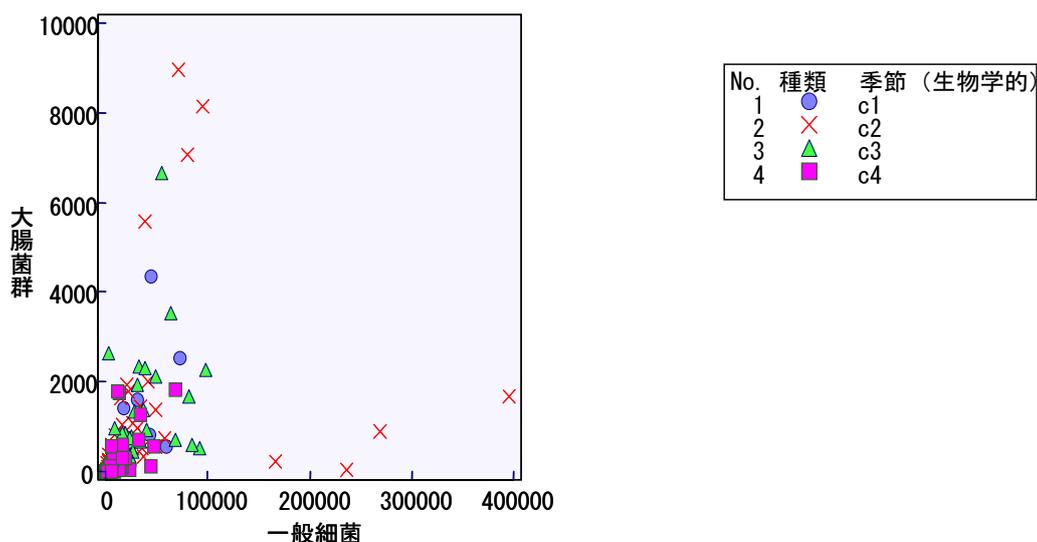


図 3.19 季節で層別したときの「大腸菌群」と「一般細菌」の散布図

これより、6月～8月において特徴的な傾向が見受けられた。図中で×が6月～8月のデータを表しており、大腸菌群のみが急激に増加している場合と一般細菌のみが急激に増加している場合の両方が混在している。そのため、全体としてみると、相関係数で 0.249 とあまり大きな相関係数が得られていない。一方、3月～5月は相関係数 0.704、9月～11月は相関係数 0.559、12月～2月は相関係数 0.594 と若干正の相関が見られる。

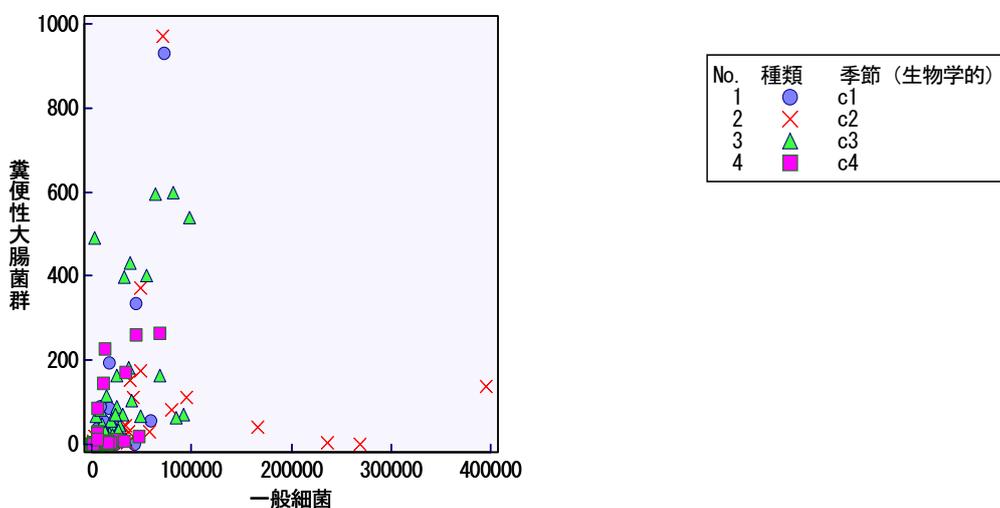


図 3.20 季節で層別したときの「糞便性大腸菌群」と「一般細菌」の散布図

「糞便性大腸菌群」と「一般細菌」の関係については、「大腸菌群」と「一般細菌」の関係よりも強い相関関係が見られた。6月～8月では強い直線の関係があるとはいえないが、2つの別々の相関データが混合されている可能性がある。しかしながら、このような特異な関係を示すのは6月～8月の1季のみであり、3月～5月は相関係数 0.702、9月～11月は相関係数 0.635、12月～2月も相関係数 0.635 と、1時期を除いて正の相関関係が見られる。すなわち、6～8月以外の季節では、ある程度の安定した相関関係が見られる。6月～8月は調査の前々日から調査日までには降雨があったた

め、降雨が相関関係に影響を及ぼしている可能性が高い。
次に、本流・支流・処理場での層別した場合の相関係数行列を示す。

表 3-7. 採水地点で層別したときの相関係数行列 (本流)

変数名	大腸菌群	糞便性大腸菌群	一般細菌
大腸菌群	1	0.567	0.387
糞便性大腸菌群	0.567	1	0.348
一般細菌	0.387	0.348	1

表 3-8. 採水地点で層別したときの相関係数行列 (支流)

変数名	大腸菌群	糞便性大腸菌群	一般細菌
大腸菌群	1	0.459	0.298
糞便性大腸菌群	0.459	1	0.213
一般細菌	0.298	0.213	1

表 3-9. 採水地点で層別したときの相関係数行列 (処理場)

変数名	大腸菌群	糞便性大腸菌群	一般細菌
大腸菌群	1	0.715+	0.293
糞便性大腸菌群	0.715+	1	0.296
一般細菌	0.293	0.296	1

本流・支流・処理場での層別した場合については、処理場において「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」の相関が高いことが特徴的である。その他については、それ程、高い相関は得られなかった。この結果、「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」の関係性については、主に下水処理場における関係性が全体にも影響を及ぼしている可能性が高い。

次に、「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」の層別散布図を示す。図中、○が本流、×が支流、△が処理場を表す。

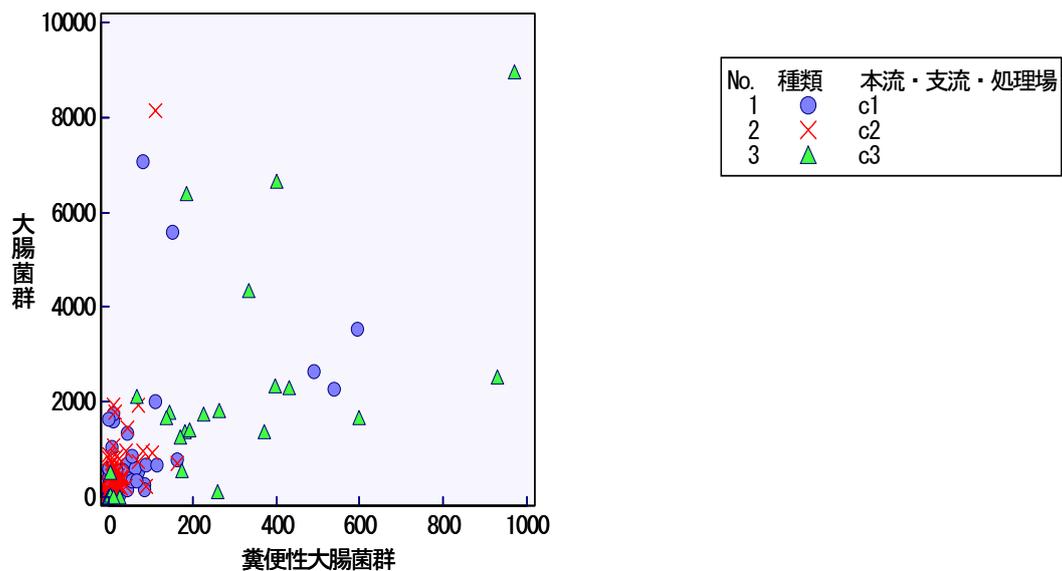


図 3.21 「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」の層別散布図

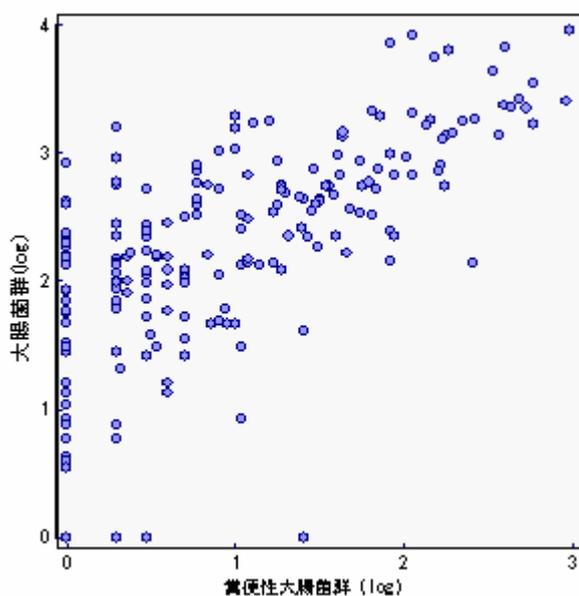
以上の結果から、やはりデータに指数関数的な傾向も部分的に見られることから、対数変換を施した後の分析により、さらに強い関係性が抽出できる可能性がある。この対数変換後のデータ間の分析については次に述べる。

2) 対数変換による分析

以上の分析でみられたように、「大腸菌群」、「糞便性大腸菌群」、「一般細菌」については、多くの観測値が0に近い値を取り、値の大きな数値が混ざる傾向が見られたことから、これらは対数変換の上で分析する必要があると考えられる。以下に、底を10とした常用対数変換を施した後の相関係数、散布図を示す。

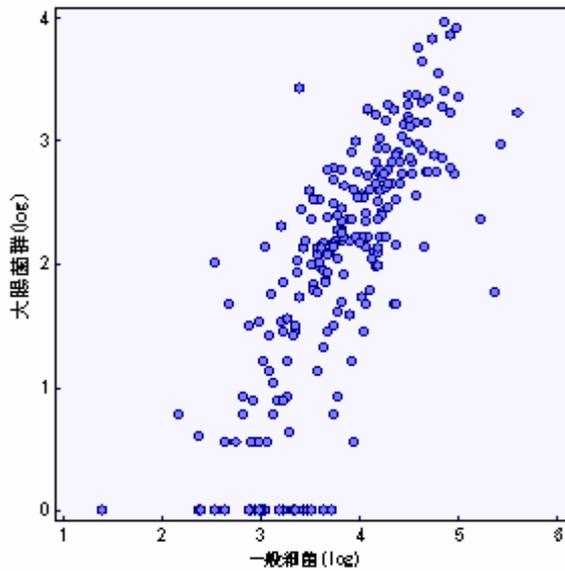
表 3-10. 全データに対する対数変換後の相関係数行列 (サンプル数 240)

変数名	大腸菌群 (log)	糞便性大腸菌群 (log)	一般細菌 (log)
大腸菌群 (log)	1	0.735+	0.792+
糞便性大腸菌群 (log)	0.735+	1	0.699+
一般細菌 (log)	0.792+	0.699+	1



項目	横軸	縦軸
変換番号	32	31
変換名	糞便性大腸菌群 (log)	大腸菌群 (log)
データ数	239	239
最小値	0.000	0.000
最大値	2.987	3.952
平均値	0.8340	1.9396
標準偏差	0.82371	1.08298
相関係数	0.735	

図 3.22 全データに対する対数変換後の「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」の散布図



項目	横軸	縦軸
変換番号	33	31
変換名	一般細菌(log)	大腸菌群(log)
データ数	231	231
最小値	1.398	0.000
最大値	5.998	3.952
平均値	3.8181	1.9783
標準偏差	0.87490	1.04482
相関係数	0.792	

図 3.23 全データに対する対数変換後の「大腸菌群」と「一般細菌」の散布図

これらの対数変換後の相関関係を見ると、相関係数でも 0.7 以上とかなり強い関係がみられた。また、散布図を見ても、変数変換前よりも直線関係が強くみられることが分かる。次に季節と本流・支流・処理場の流域別で層別した散布図を示す。

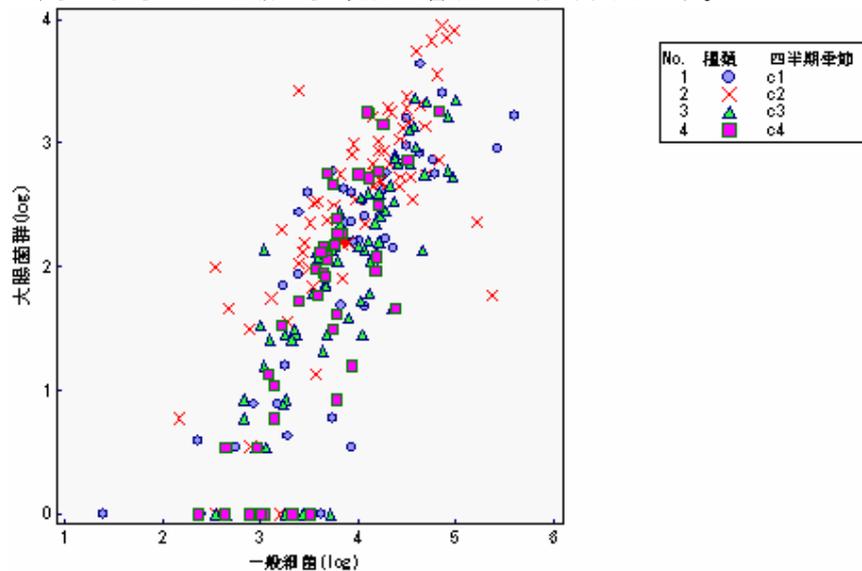


図 3.24 対数変換後の「大腸菌群」と「糞便性大腸菌群」の季節による層別散布図

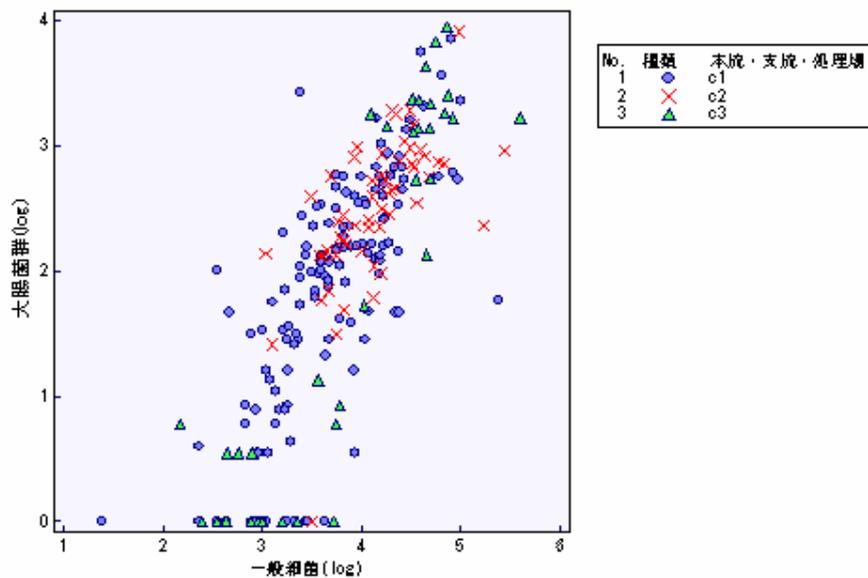


図 3.25 対数変換後の「大腸菌群」と「一般細菌」の本流・支流・処理場による層別散布図

これらの層別分析の結果、対数変換後のデータについては、季節や流域（本流・支流・処理場）別で相関関係の大きな差異は見受けられないことが分かった。適切な対数変換を施せば、これらには 0.7 以上の相関関係があるため、一方の観測で他方についても大まかに予測することが可能である。

具体的な数値として、本流・支流・処理場別で計算した相関係数行列を以下に示す。

表 3-11. 本流に対する対数変換後の層別相関係数行列（サンプル数 140）

変数名	大腸菌群(log)	糞便性大腸菌群(log)	一般細菌(log)
大腸菌群(log)	1	0.688+	0.745+
糞便性大腸菌群(log)	0.688+	1	0.641+
一般細菌(log)	0.745+	0.641+	1

表 3-12. 支流に対する対数変換後の層別相関係数行列（サンプル数 60）

変数名	大腸菌群(log)	糞便性大腸菌群(log)	一般細菌(log)
大腸菌群(log)	1	0.629+	0.624+
糞便性大腸菌群(log)	0.629+	1	0.432
一般細菌(log)	0.624+	0.432	1

表 3-13. 処理場に対する対数変換後の層別相関係数行列（サンプル数 40）

変数名	大腸菌群(log)	糞便性大腸菌群(log)	一般細菌(log)
大腸菌群(log)	1	0.923++	0.891++
糞便性大腸菌群(log)	0.923++	1	0.881++
一般細菌(log)	0.891++	0.881++	1

この結果、1) の対数変換処理前の分析においても示唆されていたことであるが、下水処理場においてこれらの変数間の関係が強く現れることがわかる。対数変換後ではその関係性は強く現れており、相関係数で 0.9 前後と、処理場においては、どれか 1 つの変数の値で他についても精度の高い予測が可能であることが分かる。本流と支流においては、その相関係数の数値が 0.6~0.7 とやや低下しているが、これは流量・雨量・天

候など他の様々な要因によっても影響を受けるためと考えられる。
次に、表 3-14 から表 3-17 に季節によって層別した相関係数行列を示す。

表 3-14. 季節による対数変換後の層別相関係数行列（3～5月：サンプル数 36）

変数名	大腸菌群(log)	糞便性大腸菌群(log)	一般細菌(log)
大腸菌群(log)	1	0.713+	0.801++
糞便性大腸菌群(log)	0.713+	1	0.597
一般細菌(log)	0.801++	0.597	1

表 3-15. 季節による対数変換後の層別相関係数行列（6～8月：サンプル数 72）

変数名	大腸菌群(log)	糞便性大腸菌群(log)	一般細菌(log)
大腸菌群(log)	1	0.716+	0.758+
糞便性大腸菌群(log)	0.716+	1	0.687+
一般細菌(log)	0.758+	0.687+	1

表 3-16. 季節による対数変換後の層別相関係数行列（9～11月：サンプル数 72）

変数名	大腸菌群(log)	糞便性大腸菌群(log)	一般細菌(log)
大腸菌群(log)	1	0.882++	0.845++
糞便性大腸菌群(log)	0.882++	1	0.806++
一般細菌(log)	0.845++	0.806++	1

表 3-17. 季節による対数変換後の層別相関係数行列（12～2月：サンプル数 60）

変数名	大腸菌群(log)	糞便性大腸菌群(log)	一般細菌(log)
大腸菌群(log)	1	0.618+	0.791+
糞便性大腸菌群(log)	0.618+	1	0.672+
一般細菌(log)	0.791+	0.672+	1

この季節別による相関係数行列では、9月～11月の秋において、強い相関関係が見取れる。この時期の水質においては、「大腸菌群」、「糞便性大腸菌群」、「一般細菌」の相関性に安定した傾向がみられることを意味する。

以上の分析から、水質評価の指標として、これらの3つの指標はお互いにある程度の効果が効くものであり、季節や流域で分類して考えるとさらに効果的である。結果として処理場においては非常に強い相関関係があり、また季節では9月～11月の秋には強い相関関係がみられた。

3-4. 考察

3-4-1. 一般細菌について

多摩川では上流から下流に流下するに従い、一般細菌数は高い値を示した。一般に河川では、下流に流下するに従って、人為的影響、支流の流入による影響を受けるため、一般細菌が多い。また、流下に伴い、有機物も多くなる。多摩川で、下流域において高い値を示したことは、支流が多摩川下流域と同様あるいはそれよりも高い値を示していることから、支流の影響を受けていることが考えられる。また、一般細菌の増減は、水温にも依存し、増減するが、調査月ごとの値の変動は、雨天時の値が顕著に増加していたことから、天候の影響によっても、菌数が増加したためと考えられる。

3-4-2. 大腸菌群について

各調査地点における月別の大腸菌群数は、下流域は上流域に比べ高い値を示した。その原因は、一般細菌の分布と同様に、多摩川では、上流から下流に流下するに従い人為的影響を受け、汚染が進行しているためと考えられる。汚染の原因としては、下水処理場を介さず、生活廃水などの人為的影響を顕著に受けている支流からの流入によることが考えられる。季節変動の面から見てみると、夏期に比べ、冬期の菌数の減少が見られるが、水温の低下によると考えられる。しかし、雨天時には菌数が増加していることから、水温の影響よりも雨天が菌の増減に関係していると考えられる。

3-4-3. 糞便性大腸菌群について

各調査地点における調査月別の糞便性大腸菌群数は、一般細菌数、大腸菌群数と同様に上流から下流に流下するに従い高い値を示した。季節変動から見ると、気温、水温共に高い、6月～11月の夏期にかけて高く、12月～4月の冬期は低かった。しかし、雨天時であった、月の菌数は高い値を示したことから気温水温による影響より、天候による影響のほうが菌数に顕著な差が見られた。

3-4-4. 天候による微生物の変化

前日および当日の天候が雨天である、2003年9、10月、2004年6～10月において、細菌数が顕著に増加している傾向がみられた。その原因として、多摩川支流における下水道未整備と、合流式下水道が考えられる。合流式下水道の特徴として、大量に雨が降り、下水処理場での一定以上の処理能力を超えた場合、生活廃水が処理されずに、直接河川へと流れ込む。その結果、処理されなかった、生活廃水により水が汚染され、河川中の大腸菌群などの値が高くなることが一般に知られている。本調査でも下水処理場の影響を受ける、St.6より流下の地点から大腸菌群数、糞便性大腸菌群数が著しく高くなっていることが明らかとなった。

3-4-5. 糞便性大腸菌群を指標とすることの有効性

本研究で対象とした多摩川の調査地点のほとんどで大腸菌群数は環境基準を満たさなかった。そのため、多摩川流域全体を対象とした、十分な微生物に関するモニタリングを行い、その結果に基づいて、環境基準を満たせない原因をどこにあるのかを明らかにしていくことが重要である。環境基準に達しない原因としては、①下水処理場がない支流における生活廃水の本流への流入、②降雨時における合流式下水道から下水未処理水が河川へ流入する可能性が考えられる。

病原性の指標としての正確さから、今後は大腸菌群数に代わって、糞便性大腸菌群数を計数することが必要である。しかし、本研究での統計解析の結果から、糞便性大腸菌群数は、対数表示、季節や流域などの階層分類を行うと一般細菌数、大腸菌群数との相関性は高く、相互に代用が可能であることが明らかとなった。したがって、今後は指標として、糞便性大腸菌群数を用い、過去のデータとの比較には従来の大腸菌群の利用が可能であることを明らかにした。

第4章 多摩川における薬剤耐性大腸菌の出現頻度と耐性パターン

4-1. 研究の背景と目的

日本では、医療現場で大量な抗生物質が用いられた結果、抗生物質が効かない耐性菌による感染や院内感染は深刻な医学的、社会的な問題となっている。しかし、医療現場で治療目的に用いられている抗生物質の数倍の量の抗生物質が、家畜や養殖魚の病気予防や成長促進など多様な目的に用いられている。そのため、大量な抗生物質の使用による耐性菌のさらなる増加が懸念されている。

抗生物質の投与に起因する耐性菌がヒトにもたらす影響については、一部の抗生物質についてはリスク評価が行われているが、水環境中での微生物リスク評価では、抗生物質の耐性はリスク評価項目として、取り上げられて来なかった。しかし、水環境の抗生物質耐性菌がもたらすリスク評価は、今後、評価項目として検討することが必要であろう。その理由の第一は、水環境は、大気、土壌などの自然環境と比較して、水（液体）を媒介とした細菌の接合、それに伴う薬剤耐性因子の授受が容易に行われるため、自然界での耐性菌の温床や出現頻度を高める場として機能する可能性が高い。第2に、河川、特に都市河川では、河川の水量の減少を補うために下水処理水の再利用（再生水）や河川水の高度利用などが盛んとなり、新たな水循環系が形成されつつある。その結果、河川水のフレッシュ度は低下し、耐性菌が河川中に長時間滞留することによって、耐性菌の出現頻度を増加させる可能性が高い。

抗生物質の耐性は水環境の新たな潜在的なリスク評価項目として位置づけることができる。その環境中での挙動に注目することにより、リスクを予測することが可能となる。水環境における抗生物質耐性リスクに関する評価を行うためには、第一に耐性菌の水環境中での分布に関する知見を得ることが必要である。しかし、国内の河川をはじめとする水環境中での抗生物質耐性の分布調査事例はきわめて少ない。仙台市、大阪市、東京都の多摩川での調査事例があるに過ぎない(岩根ら, 2003 ; 森下ら, 1984 ; 大羽ら, 1999)。

本研究では、多摩川の河川水中の大腸菌の広範囲な抗生物質に対する耐性頻度を調査すると共に、その耐性パターンを調査することを目的とした。その結果に基づき、リスク評価としての利用の可能性について検討した。薬剤感受性試験に大腸菌を選んだ理由としては、第一に、大腸菌がサルモネラと並んでR因子による耐性の伝達という点で公衆衛生上重要なためであり、第二に、大腸菌が人や動物の腸内細菌として常在し、また、分離同定手法も確立しているためである(日本下水道協会, 1997)

4-2. 調査対象の概要

4-2-1. 抗生物質

抗生物質とは微生物によって生産され、他の微生物の生育、機能を阻止する物質であり、感染症を直すための薬である。感染症には、ペスト、結核、コレラ、腸チフス、赤痢、梅毒など様々なものがある。抗菌薬が発見されるまで、人類はこうした感染症に対して無力であった。ペストやコレラなどの世界的流行をもたらす細菌によるもののほかにも、簡単な手術や出産の際や、世界大戦など、戦争で負傷した多数の兵士も傷口から細菌が入り込み、感染症にかかって命を落とした。

はじめての抗菌薬（抗生物質）であるペニシリンは1928年フレミングによって発見され、第二次世界大戦時に連合国の多くの負傷兵の命を救った。また、ストレプトマイシンは結核を「死の病」から「治る病気」へと変化させた。その後の様々な病気を治す抗菌薬が開発されていったが、それらの使用に伴い、抗菌薬の効かない耐性菌の蔓延が進行している。薬剤耐性菌はそれぞれの抗菌薬を使えば使うほど出現してくる。そのため、新しい抗菌薬が開発されても細菌は耐性を獲得してしまう(荒川, 1998.)。

薬剤耐性の獲得は、細菌自身が本来持つ染色体における変異か、即成の耐性遺伝子を他の菌からもらう水平遺伝によって起こる。変異によるものとしては、薬剤を分解・修飾する方法、量的あるいは質的な変化により薬剤の作用点である酵素が阻害作用を受けなくする方法、薬剤を細胞膜の中に入れない、もしくは入っても汲み出すといった薬剤を作用点に近づけな

い方法がある。水平遺伝では、水平遺伝の中でもっとも頻度の高く行われる、生きて菌同士を接合させる因子の働きで遺伝子が移行する「接合」という現象、与える側の菌（供与菌）から受け取り側の菌（受容菌）へ、裸の遺伝子 DNA がそのまま移行する「形質転換」という現象、供与菌で増えた細菌ウイルス、つまりファージが菌体内で増殖するとき、その殻の中に誤って菌の遺伝子を取り込み、それを受容菌に注入するという「形質導入」という現象がある。また一つの菌体内で、染色体とプラスミドとを問わず、ある部分から他の部分へ遺伝子が高率に移行するトランスポゾンやインテグロンという領域もある。このような仕組みにより、細菌は様々な抗菌薬へ耐性を持つ（菅野, 1999 ; 院内感染対策研究会, 1999.）。

現在、抗菌薬は人間に対して使われる他に、牛・豚・鶏などの家畜や魚類などの養殖に使われている。家畜に抗菌薬を与えるのには、治療・予防・成長促進の目的がある。成長促進に用いられるのは、抗菌薬を餌に混ぜることで、家畜の胃腸中の細菌を殺すため、養分の吸収が良くなり、成長が早まるという考えからである。前述したように、抗菌薬は使いすぎると必ずといってよいほど耐性菌が生まれることから、医療の現場でしばしば適切でない抗菌薬の使われ方がなされることや、家畜や養殖などへ大量に抗菌薬が使われることが問題となってきた。そういった様々な要因により、実際にメチシリン耐性黄色ブドウ球菌 MRSA (Methicillin-resistant *Staphylococcus aureus*)、バンコマイシン耐性腸球菌 VRE (Vancomycin-resistant enterococci)、ペニシリン耐性肺炎球菌 PRSP (Penicillin-resistant *Streptococcus pneumoniae*)、基質特異性拡張型 β -ラクタマーゼ ESBL (Extended-Spectrum β -lactamase)、 β -ラクタマーゼ非産生アンピシリン耐性ヘモフィルス BLNAR (β -lactamase non-producing ampicillin-resistant *Haemophilus* spp) 等、多くの薬剤耐性菌が発見されている。それら薬剤耐性菌が問題となりつつある背景を列挙すると、①病院における抗菌薬の効かない院内感染菌のみならず、伝染病起因菌、食中毒菌、性感染症起因菌等あらゆる種類の細菌に薬剤耐性菌が出現していること、②多剤耐性菌、高度耐性菌の出現と蔓延、③新規抗菌薬の開発の停滞、④高度医療、先端医療の推進に伴う易感染者の増加、⑤高齢化人口の増加に伴う易感染者の増加、⑥抗菌薬への過信による「感染症・化学療法の専門家」の減少等がある（平松, 2002）。

4-3. 調査方法

4-3-1. 大腸菌の単離と同定

3章で述べた方法によって平板上で検出された糞便性大腸菌群を1調査地点あたり3~6個、合計で30~50個単離し、さらに純粋分離操作を行った。単離した菌を表4-1に示す組織の合成発色酵素基質培地 (LMX ブイヨン-10 関東化学株式会社) を用いて培養後、溶液が青色に発色したものを大腸菌群陽性とし (大腸菌群実験の再確定)、さらに暗所にて波長366nmの紫外線ランプを照射し、青色の蛍光を発した試験管を大腸菌陽性とし、これを大腸菌として同定した。なお、純粋分離した大腸菌株は標準寒天培地にて斜面培養し、その試験管は冷蔵庫にて保管した。継代培養は3ヶ月毎に行った。

表 4-1 合成発色酵素基質培地の (LMX プイオン-10) 組成

培地 (17 g) 中の組成	
トリプトース	・ ・ ・ ・ ・ 5.0 g
塩化ナトリウム	・ ・ ・ ・ ・ 5.0 g
りん酸二水素カリウム	・ ・ ・ ・ ・ 2.0 g
りん酸水素二カリウム	・ ・ ・ ・ ・ 2.7 g
X-GAL 混合物 (5-プロモ-4-クロロ-3-インドリル-β-D-ガラクトピラノシド)	・ ・ ・ ・ ・ 0.18 g
ラウリル硫酸ナトリウム	・ ・ ・ ・ ・ 0.1 g
トリプトファン	・ ・ ・ ・ ・ 1.0 g
ソルビトール	・ ・ ・ ・ ・ 1.0 g
D. W	・ ・ ・ ・ ・ 1,000ml
MUG (4-メチルウンベリフェリル-β-グルコロニド)	・ ・ ・ ・ ・ ・ 0.05 g

4-3-2. 薬剤耐性試験

細菌感受性試験

本来自然環境である河川中に薬剤耐性菌は存在しない。すなわち、耐性菌が河川中に存在するということは、何らかの人為的影響がおよび、汚染されているということである。本研究では河川水中の薬剤耐性菌の存在を調べる為に、ディスク法による半定量的な薬剤耐性試験法を用い、新たなリスク評価としての検討を行った。

1) 薬剤の選定

本研究で抗生物質の耐性試験に用いた薬剤は、KB ディスク栄研と昭和ディスクを用いて、その中でも腸内細菌に効き、異なる作用機序をもつ薬剤から選択した。また、実際に医療現場で感受性試験を行った論文を参考に、耐性菌が多く存在し、問題のある薬剤にも考慮した (東京都環境局, 2002 ; 環境 GIS ; 並木博, 1999)。なお、KB ディスク栄研は直径 6.35mm の円形ろ紙に規定濃度の薬剤を無菌的に含有させ、乾燥させたものである。昭和ディスクも同様、薬剤を規定濃度含有させた直径 8mm の円形ろ紙である。表 4-2 に示す 8 系統、全 12 種類の薬剤を用いた。

表 4-2 大腸菌の薬剤耐性試験に用いた 8 系統、全 12 種類の抗生物質のリスト

系統 (分類)	ディスク名	ディスク記号	薬剤含有量
ペニシリン系	アンピシリン(栄研)	A B P C	10µg(力価)
	クラブラン酸 ・アモキシシリン(栄研)	A C V	20µg(力価) 10µg(力価)
	経口セフェム系	セフィキシム(栄研)	C F I
アミノグリコシド系	カナマイシン(栄研)	K M	30µg(力価)
テトラサイクリン系	テトラサイクリン(栄研)	T C	30µg(力価)
	ミノサイクリン(栄研)	M N O	30µg(力価)
クロラムフェニコール系	クロラムフェニコール(栄研)	C P	30µg(力価)
キノロン系	ナリジスク酸(栄研)	N A	30µg
	オフロキサシン(栄研)	O F X	5 µg
	シプロフロキサシン(栄研)	C I P	5 µg
アミドグリコシド系	ストレプトマイシン(昭和)	S M	50µg(力価)
その他の合成抗菌薬	スルファトキサゾール ・トリメトプリム(栄研)	S T	23.75µg(力価) 1.25µg(力価)

2) 試験法

(1) 培地および被検菌液の調整

薬剤耐性試験を実施する培地として標準寒天培地(栄研)を一般細菌に用いた方法と同様に作成した。次に、2.3 で大腸菌と同定された単離コロニーを内径 1mm の白金耳を用いて 1 白金耳量とり、ブドウ糖リン酸塩培地(表 2-6) 4.0ml に懸濁した。ブドウ糖リン酸塩培地の作成方法は以下に述べる。被検菌液の濃度が約 10^4 c. f. u. /cm² になるよう 35°C で 2~6 時間培養を行う。なお、本実験では 2.5~3.5 時間が適当という結果がでたため、本研究では 3 時間で培養した。

ブドウ糖リン酸塩培地 (100ml の作成法)

表 4-3 に示した組成のブドウ糖リン酸塩培地と精製水 100ml および攪拌子を、スターラー (ADVANTEC 社製) にかけて、混ぜるため、200ml のビーカーに入れ、よく溶かした後、pH を 6.9 に調整、試験管に 4ml ずつ分注し、121°C で 20 分間高圧蒸気滅菌した。

表 4-3 ブドウ糖リン酸塩培地の組成

ヘプトン0.7 g
ブドウ糖0.5 g
リン酸二水素カリウム0.5 g
D. W1,000ml
pH	6.9

(2) 被検菌の接種

標準寒天培地上に(1)で培養した被検菌液 0.1ml を標準寒天培地上にコンラージを使って均一に塗抹した。

(3) ディスクの設置と培養

(2)で被検菌を塗抹した寒天平板培地を 3~5 分静置した後、15 分以内に平板上に KB ディスク栄研、昭和ディスク(細菌感受性試験剤)の 1 濃度ディスクを置いた。その際

ディスク間の距離が 24mm 以上になるようにした。平板は、インキュベーター (IS-2000, アドバンテック社製) に移し 35°C で 16~18 時間培養した。

(4) 判定法

完全に菌の発育が阻止されている阻止円の直径をシャーレの裏側から定規を使いミリ単位まで測定した。阻止円の形が変形しているものに対しては平均を出し、小数点以下は四捨五入した。計測した阻止円の直径を 3 段階(耐性、中間、感受性)または 4 段階(一、+、++、+++) 区分で判定基準 (表 4-4) と照合し、感受性、中間および耐性または一、+、++、+++ で判定した。

表 4-4 阻止円直径の判定基準

ディスク名 (栄研)	適応菌種	阻止円の直径 (mm) と判定基準			
		耐性	中間	感受性	
アンピシリン (栄研)	腸内細菌	≤13	14-16	≥17	
クラブラン酸・アモキシシリン (栄研)	腸内細菌	≤13	14-17	≥18	
セフィキシム (栄研)	腸内細菌	≤15	16-18	≥19	
カナマイシン (栄研)	腸内細菌	≤13	14-17	≥18	
テトラサイクリン (栄研)	腸内細菌	≤14	15-18	≥19	
ミノサイクリン (栄研)	腸内細菌	≤14	15-18	≥19	
クロラムフェニコール (栄研)	腸内細菌	≤12	13-17	≥18	
ナリジスク酸 (栄研)	腸内細菌	≤13	14-18	≥19	
オフロキサシン (栄研)	腸内細菌	≤12	13-15	≥16	
シプロフロキサシン (栄研)	腸内細菌	≤15	16-20	≥21	
スルファトキサゾール・トリメトプリム (栄研)	腸内細菌	≤10	11-15	≥16	
ディスク名	E. coli	-	+	++	+++
ストレプトマイシン (昭和)	21-25	≤9	10-14	15-20	≥21

4-4. 調査結果

4-4-1. 薬剤感受性試験の結果

図 4.1 には多摩川から単離した大腸菌の薬剤感受性試験の結果を示す。全耐性菌に占める薬剤別の耐性割合を示す。全大腸菌に対する耐性菌の割合は、37.6%と高い値を示した。全大腸菌に対する薬剤別の耐性割合は ABPC、ST、TC の耐性菌の割合がそれぞれ 17.7、12.3、9.1%、ついで NA、KM が 3.7、3.2%であった。

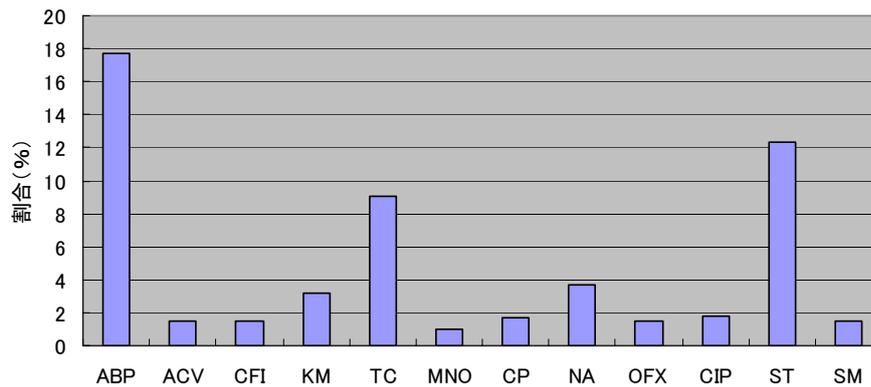


図 4.1 多摩川から単離した全大腸菌の薬剤別の耐性菌の出現比率

表 4.1 に多摩川から単離した大腸菌の薬剤感受性試験の結果を示す。

また、図 4.2 より全耐性菌に対する薬剤別の耐性割合は ABPC、ST、TC がそれぞれ 31.6、21.5、16.2% と高い値を示し、ついで NA、KM が 6.6、5.7% であった。

表 4-5 多摩川から単離した大腸菌の薬剤感受性試験結果

抗生物質名	大腸菌の感受性			大腸菌数
	耐性	中間	感受性	
ABPC	72	4	297	407
ACV	6	3	346	397
CFI	6	1	348	397
KM	13	128	224	407
TC	37	5	326	407
MNO	4	32	323	399
CP	7	3	355	407
NA	15	7	343	407
OFX	6	1	351	399
CIP	7	22	330	399
ST	49	50	245	397
SM	—	+	++	407
	3	31	112	

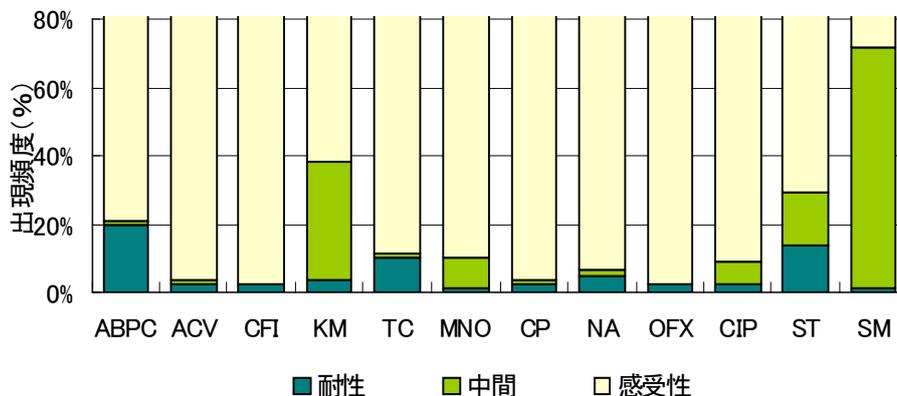


図 4.2 全耐性菌に対する薬剤別の耐性割合

4-4-2. 薬剤耐性の割合

図 4.3 には多摩川の河川水から単離した大腸菌に占める耐性割合を、図 4.4 には多摩川の下水処理水から単離した大腸菌に占める耐性割合をそれぞれ示す。河川水と下水処理水で耐性菌の出現割合を比較してみると、河川水では ABPC、ST、TC が各々 16.7%、8.96%、8.7%、下水処理水では、各抗生物質は 20%、20.34%、10%であった。また河川水と下水処理水で耐性菌の出現パターンを比較すると、河川水が 12 剤全てに対する耐性菌が存在し、薬剤ごとの耐性割合の差が比較的小さいのに対し、下水処理水の耐性菌の耐性割合は ABPC、TC、ST に集中しており、相違がみられた。

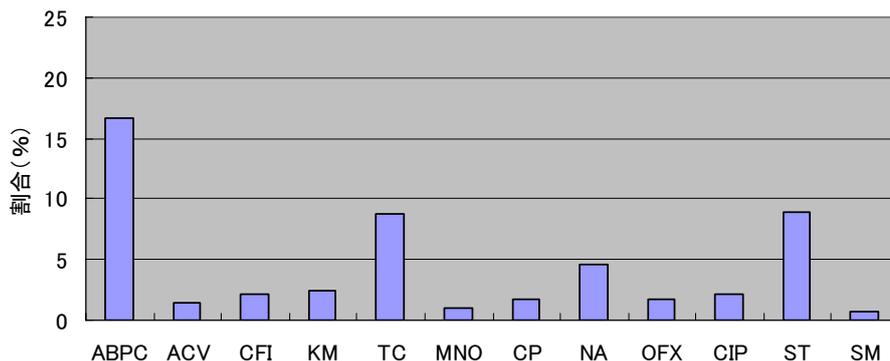


図 4.3 多摩川の河川水から単離した大腸菌に占める耐性割合

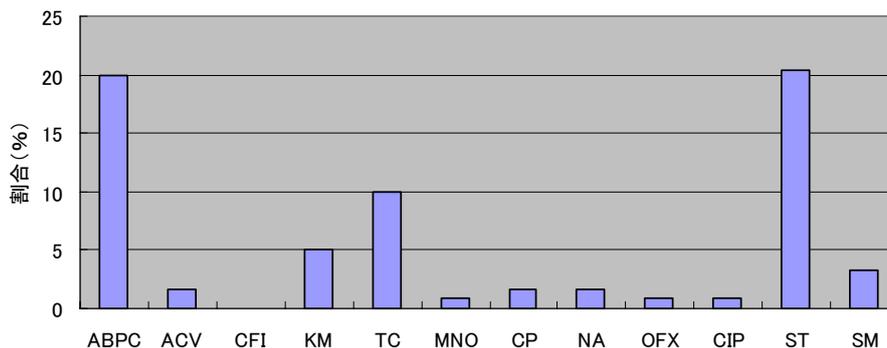


図 4.4 多摩川の下水処理水から単離した大腸菌に占める耐性割合

図 4.5 には多摩川から単離した地点別の大腸菌に占める耐性割合を示す。下水処理場内の St. 11 で 11.7%と最も高く、ついで支流の St. 4、St. 5 でそれぞれ 8.7、4.2%であった。本流においては St. 10 で 1.7%を示したが、下流のほうが耐性割合が高くなる傾向にあると考えられる。

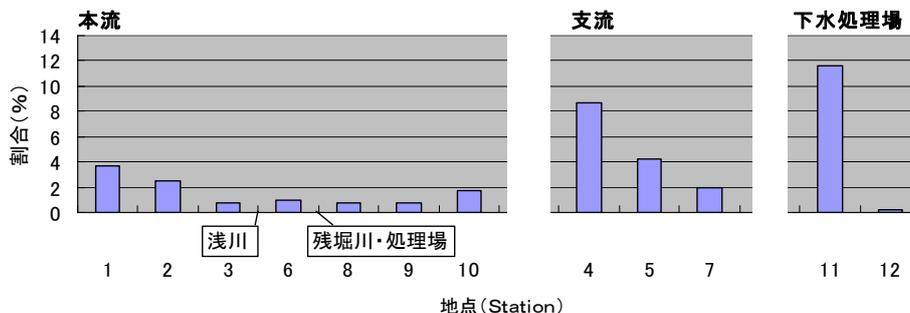


図 4.5 多摩川から単離した地点別の大腸菌に占める耐性割合

4-4-3. 地点別の多剤耐性菌の割合

多摩川から単離した大腸菌中の全耐性菌に占める地点別の多剤耐性菌の割合(地点別の多剤耐性菌/全耐性菌)は下水処理場内の St. 11 で 10.5%と最も多く分布していた。ついで支流の St. 4、5、7、本流の St. 1 でそれぞれ 4.6、4.6、3.9、3.9%を示した。本流において、St. 8、10 の多剤耐性菌の割合が 0.7%、1.3%であるのに対し、St. 1、2 では 3.9%、3.3%を示しており、上流域よりの下流域の多剤耐性菌の割合が高かった。

図 4.6 に地点別の耐性菌に占める多剤耐性菌の割合(地点別の多剤耐性菌/地点別の耐性菌)を示す。耐性菌に占める多剤耐性菌に占める割合は St. 7 で最も高く 75%、ついで St. 6、St. 2 が同じく 50%であった。本流において上流域である St. 9、10 では 4 剤耐性菌、2 剤耐性菌の割合が 33%、29%であるのに対し、下流域である St. 1、2 においては 3~6 剤耐性菌が 50%、40%含まれており、下流域のほうが多くの種類の薬剤に耐性のある菌が比較的高い割合で含まれていた。なお、塩素処理後の放流水 (St. 12) には大腸菌が少ないため、耐性菌株は 1 株であった。

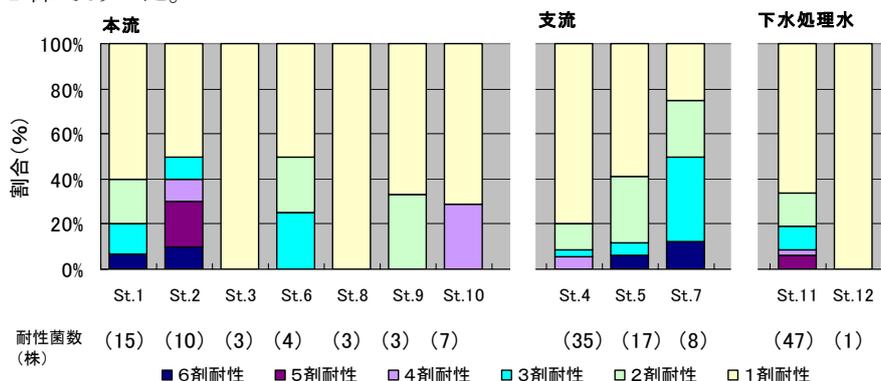


図 4.6 地点別の耐性菌に占める多剤耐性菌の割合

4-4-4. 大腸菌の抗生物質耐性パターン

表 4-6 に多摩川調査全体の多剤耐性パターンを示す。2 剤の耐性パターンで最も多かったのは、ABPC、ST で 4 株だった。3 剤の耐性パターンで多かったのは、ABPC、ST、TC で 4 株だった。4 剤の耐性パターンで多かったのは、ABPC、ST、ACV、CFI で 2 株、6 剤の耐性パターンで多かったのは、ABPC、ST、TC、NA、CIP、OFX で 3 株であった。また 4 剤、5 剤、6 剤の耐性パターンでは ABPC、ST、TC、CP を含む共通した特徴がみられた。また、2 剤、3 剤の耐性菌においては、河川水中から単離されたものと処理水から単離されたものとで一致しているパターンも多くみられたが、4 剤、5 剤、6 剤の耐性パターンにおいては、ほとんど一致していなかった。このことから、多摩川河川水中には、下水処理場由来の耐性菌と、それ以外から由来する耐性菌とが含まれていることが示唆された。

表 4-6 多摩川調査全体の多剤耐性パターン

薬剤数	耐性菌数	薬剤名
2剤	1	TC,NA
	1	SM,ABPC
	2(2)	TC,ABPC
	2(1)	TC,ST
	1	ABPC,ACV
	2	NA,ST
	2(1)	TC,KM
	4(1)	ABPC,ST
	1	TC,MNO
	1	ABPC,CFI
	1	TC,CIP
	1	KM,ST
	1	ABPC,MNO
3剤	2(2)	KM,ST,TC
	1	ABPC,TC,MNO
	4(3)	ABPC,TC,ST
	1	ACV,ABPC,TC
	1	ABPC,ST,NA
	1	ABPC,CFI,ACV
	1	TC,NA,ST
	3	ABPC,ST,KM
4剤	1	ABPC,ST,TC,CP
	2	ABPC,ST,ACV,CFI
	1	ST,TC,KM,ABPC
	1	ABPC,ST,CP,KM
	1	ABPC,ST,CP,MNO
5剤	1	ABPC,TC,SM,KM,ACV
	1	ABPC,ST,TC,CP,KM
	1	ST,NA,SM,OFX,CIP
	1	TC,MNO,NA,OFX,CIP
	1	ABPC,ST,CP,TC,SM
6剤	1	ABPC,ST,CP,NA,CIP,OFX
	3	ABPC,ST,TC,NA,CIP,OFX

(菌数)	河川水中から単離された耐性菌
	処理水から単離された耐性菌

表 4-6 に調査地点別の薬剤耐性パターンを示す。2003 年 6 月、2004 年 8 月を除く全ての調査日において 2 剤以上の多剤耐性菌が存在した。また、調査日による耐性パターンに特徴的な差異はみられず、多様なパターンがあることから、河川中の耐性菌は様々な起源に由来すると考えられた。

表 4-7 には調査地点別の薬剤耐性パターンを示す。全ての地点において耐性菌が存在していることがわかった。特に処理水においては、耐性菌数、多剤耐性菌数ともに多く出現していた。また、多摩川水系地点と薬剤耐性パターンとに関連性はほとんどみられなかった。

表 4.7 調査日別の薬剤耐性パターン

調査日	耐性菌数	耐性の薬剤種	調査日	耐性菌数	耐性の薬剤種
2003年 6月21日 (14株)	11	ABP	3月25日 (6株)	1	ST
	3	ST		1	TC,ST
7月31日 (14株)	3	NA		1	ABP,ST,TC
	3	TC		1	ABP,TC,MNO
	3	ST		1	ABP,TC,ACV
	1	ABP		1	ABP,ST,NA,CP,CIP,OFX
	1	NA,ST	4月3日 (8株)	3	ABP
	1	TC,KM		1	TC
1	KM,ST	1		SM	
8月26日 (17株)	1	KM,CP,ABP,ST	1	ABP,ACV	
	3	ABP	1	ST,NA	
	10	ST	1	ABP,TC,NA,CIP,OFX,CFI	
	1	ABP,MNO	5月28日 (3株)	1	ST
2	ABP,ST	2		ABP,ST,TC,NA,CIP,OFX	
9月26日 (17株)	1	CP,ABP,MNO,ST	6月29日 (6株)	1	ABP
	1	ABP		2	ST
	14	ST		1	TC,KM
	1	KM,ST		1	ABP,ST,NA
10月23日 (4株)	1	KM,ABP,ST	7月27日 (6株)	1	ABP,ST,TC,CP
	1	TC		1	ST
	2	ST		1	KM
11月27日 (17株)	1	TC,SM,CP,ABP,ST		1	ABP,ST
	1	ABP	2	ABP,ST,ACV,CFI	
	7	ST	1	ABP,ST,TC,CP,KM	
	1	TC,ST	8月31日 (5株)	2	ST
	1	ABP,ST		1	CP
	1	KM,TC,ST		1	ABPC
	12月22日 (9株)	2	KM,ABP,ST	1	ST,TC,NA
1		ABP,CFL,ACV	9月29日 (3株)	1	ABP
3		TC,ABP,ST		1	TC,MNO
3		ABP	1	ST,NA,SM,OFX,CIP	
3		ST	10月27日 (12株)	7	ABP
1	TC	1		TC	
1	TC,NA	1		CFI	
1	KM,TC,ST	1		ABP,CFI	
2004年 1月29日 (9株)	1	KM,TC,ST		1	TC,CIP
	3	ABP	1	ABP,ST,TC	
	1	ST	11月17日 (4株)	1	TC
	1	NA		1	SM
	1	TC		1	ABP,ST,TC,KM
	1	ABP,TC		1	TC,NA,MNO,CIP,OFX
2月26日 (3株)	1	ABP,SM			
	1	ABP,TC,SM,KM,ACV			

表 4.8 調査日及び調査地点別薬剤耐性パターン

調査地点	耐性菌数	耐性の薬剤種	調査日	調査地点	耐性菌数	耐性の薬剤種	
五反田橋	11	ABPC	2004年 1月29日 (9株)	中央北浅川橋	1	ABPC	
	3	ST				1	ST
中央道北浅川橋	3	TC			丸子橋	1	ABPC
	1	TC,KM				1	ABPC
五反田橋	3	NA,ST				1	TC
	1	NA			処理水	1	NA
丸子橋	1	KM,ST				1	ABPC,TC
処理水	1	ABPC				1	ABPC,SM
	1	KM,CP,ABPC,ST				1	ABPC,TC,SM,KM,ACV
和田橋	2	ST	2月26日 (3株)	処理水	2	ABPC	
中央道北浅川橋	1	ABPC,ST			1	ABPC,TC	
五反田橋	3	ST	3月25日 (6株)	永田	1	ST	
	1	CP,ABPC,MNO,ST		中央北浅川橋	1	ST,TC	
調布取水堰	1	ABPC		五反田橋	1	ABPC,TC,MNO	
	2	ABPC		立川橋	1	ABPC,ST,CP,NA,CIP,OFX	
処理水	5	ST		丸子橋	1	ABPC,TC,ST	
	1	ABPC,MNO	処理水	1	ABPC,TC,ACV		
	1	ABPC,ST	4月3日 (8株)		1	ABPC	
永田	1	ST		中央北浅川橋	1	SM	
中央道北浅川橋	2	ST			1	ST,NA	
	1	KM,ABPC,ST			1	ABPC,TC,NA,OFX,CIP,CFI	
五反田橋	1	ABPC		立川橋	1	ABPC,ACV	
	2	ST		丸子橋	1	ABPC	
拝島	1	ST			1	TC	
日野	1	KM,ST		処理水	1	ABPC	
多摩川原	1	ST	5月28日 (3株)	調布取水堰	1	ABPC,ST,TC,NA,CIP,OFX	
調布取水	1	ST		丸子橋	1	ABPC,ST,TC,NA,CIP,OFX	
丸子	4	ST		処理水	1	ST	
処理水	2	ST	6月29日 (6株)	拝島橋	1	ABPC	
五反田橋	1	ST		立川橋	1	ABPC,ST,NA	
多摩川原橋	1	TC		五反田橋	1	ABPC,ST,TC,CP	
調布取水堰	1	ST			2	ST	
	1	TC,SM,CP,ABPC,ST		1	TC,KM		
永田	1	ST	7月27日 (6株)	和田橋	2	ABPC,ST,ACV,CFI	
拝島	1	ST		中央北浅川橋	1	ABPC,ST	
日野	1	TC,ABPC,ST		五反田橋	1	KM	
	1	ST		処理水	1	ABPC,ST,CP,TC,KM	
立川	1	ABPC,ST		放流水	1	ST	
	1	KM,TC,ST	8月31日 (5株)	立川橋	1	CP	
五反田橋	1	ABPC		丸子橋	1	ABPC	
	1	ST			1	ST,TC,NA	
丸子	1	ST	処理水	2	ST		
調布取水堰	1	ABPC,CFI,ACV	9月29日 (3株)	和田橋	1	ABPC	
	2	ST		丸子橋	1	TC,MNO	
処理水	1	TC,ST		処理水	1	ST,NA,SM,CIP,OFX	
	1	KM,TC,ST	10月27日 (12株)	永田橋	1	ABPC	
	2	TC,ABPC,ST			1	TC,CIP	
中央北浅川橋	1	ST		五反田橋	1	ABPC	
	1	ABPC		日野橋	1	CFI	
五反田橋	1	ST		多摩河原橋	1	ABPC	
	1	TC,NA		立川橋	1	ABPC,ST,TC	
	2	ABPC		調布取水堰	1	ABPC	
処理水	1	ST			1	TC	
	1	TC	丸子橋	1	ABPC,CFI		
	1	KM,ST,TC	処理水	3	ABPC		
			11月17日 (4株)	日野橋	1	TC	
				調布取水堰	1	ABPC,ST,TC,KM	
				処理水	1	TC,NA,MNP,CIP,OFX	
				1	SM		

4-4-5. 天候による薬剤耐性の割合の変化

図 4.7 に多摩川から単離した大腸菌中の耐性菌に占める地点別の耐性割合を示す。ただし、天候パターンを当日、前々日ともに晴れの場合と当日、前日、前々日でいずれかに雨天であった場合の2つに分け、天候別の大腸菌（ともに晴天：132 株、いずれか雨天：273 株）に占める天候別の耐性割合を地点別に示した。

本流においては St. 1 を除く全ての地点において、当日、前日、前々日でいずれか雨の場合の耐性割合が高く、St. 10、St. 2 において晴天時の耐性割合が 0.8%、0.8%であるのに対し、いずれか雨天時の場合の割合は 2.6%、3.3%であった。特に St. 9 から St. 3 においては当日、前日、前々日でいずれかが雨天の場合にのみ耐性菌が出現していた。しかし、本流の St. 1、支流の 3 地点、下水処理場では当日、前日、前々日ともに晴れの場合の割合がいずれか雨天の場合の割合より高く、St. 1、St. 4、St. 5、St. 7、St. 11 において晴天時の耐性割合が 3.8%、16.0%、8.4%、1.5%、13.7%であるのに対し、いずれか雨天時の場合の割合は 3.7%、5.1%、2.2%、0.3%、10.6%であった。

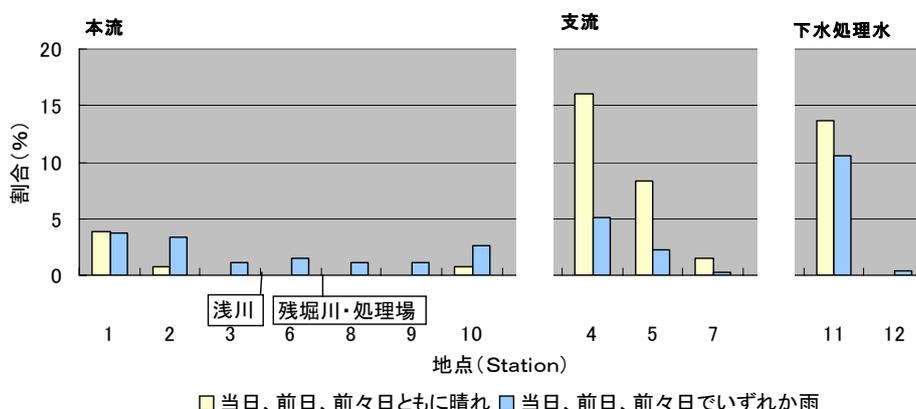


図 4.7 多摩川から単離した大腸菌中の耐性菌に占める地点別の耐性割合

図 4.8 に多摩川から単離した大腸菌中の耐性菌に占める地点別の多剤耐性割合を示す。ただし、図 3.3-7 同様、天候パターンを2つに分け、天候別の耐性菌（ともに晴天：59 株、いずれか雨天：96 株）に占める多剤耐性割合を地点別に示したものである。多剤耐性菌の割合は、本流においては全ての地点で雨を含む天候条件下での高い割合を示した。しかし、耐性菌同様、支流と下水処理場では St. 7 を除く全ての地点で晴天時の割合がいずれか雨天の場合の割合より高く、St. 1、St. 4、St. 5、St. 7、St. 11 において晴天時の耐性割合が 3.8%、16.0%、8.4%、1.5%、13.7%であるのに対し、いずれか雨天時の場合の割合は 3.7%、5.1%、2.2%、0.3%、10.6%であった。

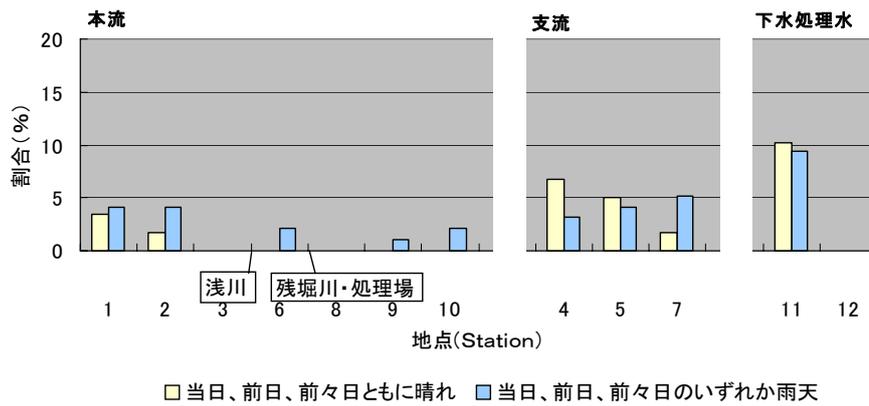


図 4.8 多摩川から単離した大腸菌中の耐性菌に占める地点別の多剤耐性割合

図 4.9 には、当日、前日、前々日ともに晴天時の河川水から単離した大腸菌に占める薬剤別の耐性割合を、図 4.10 には、当日、前日、前々日ともに晴天時の下水処理水から単離した大腸菌に占める薬剤別の耐性割合を、図 4.11 には、当日、前日、前々日いずれか雨天時の河川水から単離した大腸菌に占める薬剤別の耐性割合を、図 4.12 には、当日、前日、前々日いずれか雨天時の下水処理水から単離した大腸菌に占める薬剤別の耐性割合をそれぞれ示す。晴天時の割合が、河川水、下水処理場ともに ABPC が最も高い割合を示し、23.8%、23.5%であり、つぎに ST が 14.1%、16%、TC が 10.7%、11.8%であったのに対し、いずれか雨天時の割合は、河川水、下水処理水ともに ST が最も高い割合を示し、21.8%、30.9%であり、つぎに ABPC が 13.7%、17.4%、TC が 7.8%、8.7%であった。河川水と下水処理水の両方において、晴天時、雨天時の耐性菌の出現パターンに明瞭な違いがみられたことから、両者の違いには雨の影響があることが示唆された。

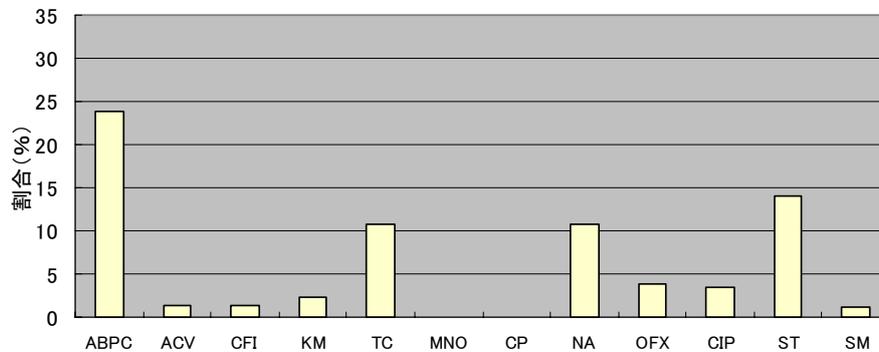


図 4.9 当日、前日、前々日ともに晴天時の河川水から単離した大腸菌に占める薬剤別の耐性割合

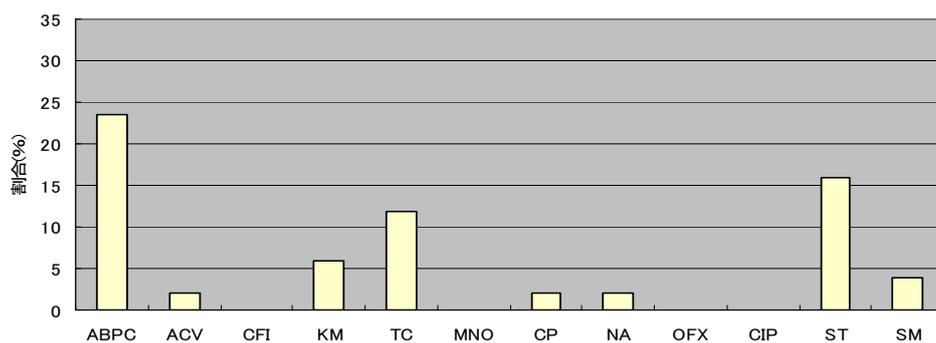


図 4.10 当日、前日、前々日ともに晴天時の下水処理水から単離した大腸菌に占める薬剤別の耐性割合

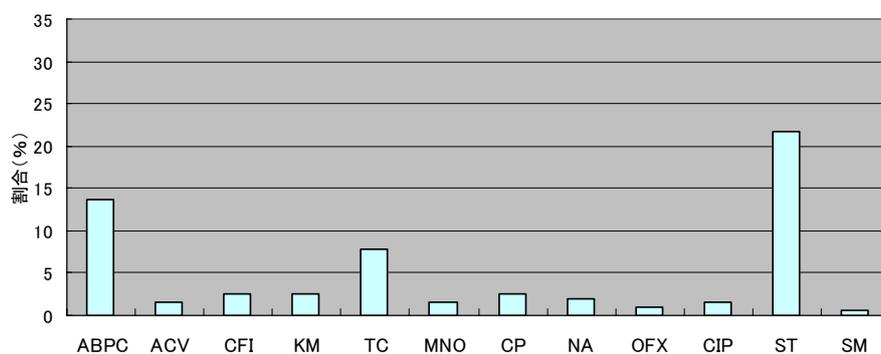


図 4.11 当日、前日、前々日いずれか雨天時の河川水から単離した大腸菌に占める薬剤別の耐性割合

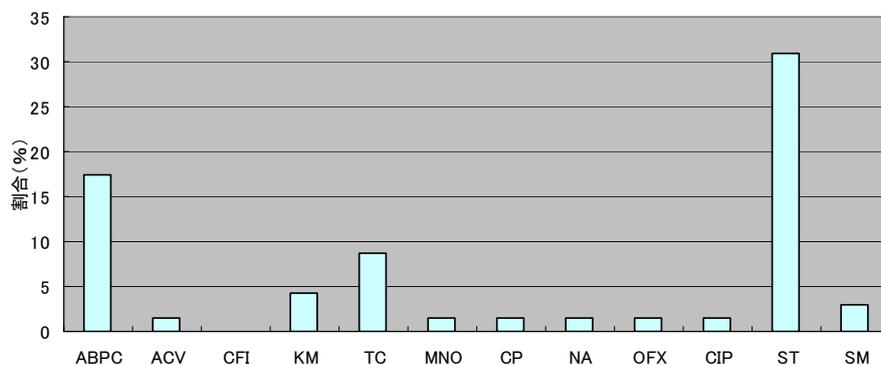


図 4.12 当日、前日、前々日いずれか雨天時の処理水から単離した大腸菌に占める薬剤別の耐性割合

4-5. 考察

4-5-1. 耐性菌の出現頻度

調査した全大腸菌(403株)中で、抗生物質が効かない薬剤耐性菌の出現頻度(耐性菌/被験菌)は38%(153株/403株)と高い値を示した。単離した全大腸菌に対する多剤耐性菌(2~6剤)、および全耐性菌に対する多剤耐性菌の出現頻度は各々12.2%(49株/403株)、32%(49株/153株)であった。また、6剤耐性は4株で全耐性菌の2.6%、5剤耐性菌は5株で同3.7%、4剤耐性は6株で同3.9%、3剤耐性は14株で同9.2%、2剤耐性は20株で13.1%であった。2004年清野らが報告した多摩川から分離した大腸菌のうち40%が耐性菌であり、2~5剤耐性菌も検出されており(横浜市公害研究所,1989)、ほぼ同様の結果となった。自然環境である河川水中に約40%もの耐性菌が存在し、さらに5・6剤耐性菌が検出されたことは注目に値する。

4-5-2. 抗生物質別の耐性菌出現頻度

河川水から単離した大腸菌に占める耐性割合、下水処理水から単離した全大腸菌に占める耐性割合の両者においてABPC、TC、STに対する耐性大腸菌の割合が共通して高かった。多摩川河川水から単離した大腸菌株の薬剤耐性傾向と下水処理水から単離した大腸菌株の薬剤耐性が類似していることから、河川中の耐性菌において下水処理場由来のものが多く含まれ、すなわち、多摩川河川中に含まれる耐性菌が人由来であることが示唆された。また、厚生労働省の院内サーベイランスによって行われている薬剤耐性菌の動向の調査を元にした、人臨床検体(血液)から分離された大腸菌株の耐性率(横浜市環境保全局水質地盤課,2001)において、ペニシリン系のABPC耐性が最も高い割合を示しており、本研究結果における多摩川河川の薬剤耐性と類似した傾向がみられた。さらに、ABPC、TC、STは比較的古くから医療目的などに利用されており(日本水道協会,2001)、このことから、多摩川河川中に含まれる耐性菌に人由来である可能性が高い。

また、注目すべきは、処理場内からは検出されなかった6剤耐性菌が河川水においてみられたことである。上流域の養豚場など、下水処理場経由ではない抗生物質耐性菌の温床があるのではないかと考えられる。

4-5-3. 耐性菌の耐性パターン

多摩川における耐性菌の耐性パターンにおいて、3剤以上の耐性菌のほとんどがABPC、ST、TC、CPのいずれかを含む共通した特徴を含んでいた。これらの耐性菌については起源が同一である可能性が示唆された。また、1980年代以降に比較的新しく使用されるようになった(日本水道協会,2001)OFXに耐性を示す菌は5・6剤耐性であった。耐性パターンの調査日や調査地点による特徴的な相違、関連性はほとんどみられず、多様なパターンがあることから河川中の耐性菌は様々な起源に由来することが示唆された。

4-5-4. 天候による薬剤耐性の割合の変化

多摩川から単離した天候別の大腸菌中に占める天候別の耐性割合は、当日、前日、前々日ともに晴れの場合が171株中65株で38%、当日、前日、前々日でいずれか1日雨の場合が159株中59株で37%、当日、前日、前々日でいずれか2日雨の場合が74株中29株で39%であった。3つの天候パターンにおいて、明確な大差は認められなかったが、当日、前日、前々日でいずれか2日雨の場合が最も高い耐性割合を示した。

また、多摩川から単離した天候別の耐性菌に占める天候別の多剤耐性菌の耐性割合は、当日、前日、前々日ともに晴れの場合が65株中20株で30.8%、当日、前日、前々日でいずれか1日雨の場合が59株中22株で37.3%、当日、前日、前々日でいずれか2日雨の場合が29株中10株で34.5%であった。多剤耐性菌の割合については、3つの天候パターンにおいては雨の影響がある天候パターンの割合が雨の影響がない天候パターンの割合より高い値を示した。

森下らの報告によると大阪市内河川において底泥中から耐性菌および多剤耐性菌が検出

されており、特に 5 剤以上に耐性を示す多剤耐性菌は河川水からは検出されず、底泥中のみで検出された（日本下水道協会, 1997）。このことから本調査で検出された 6 剤に耐性をもつ多剤耐性菌は、雨の影響により底泥中の多剤耐性菌が巻き上げられ、河川中に拡散されたことが示唆された。

4-5-5. 薬剤耐性菌による新たなリスク評価

多摩川における、薬剤耐性の存在は約 40% 近く存在している。2004 年清野らが報告した多摩川から分離した大腸菌のうち 40% が耐性菌であり（横浜市公害研究所, 1989）、ほぼ同様の結果となった。この結果は、病院などの医療現場ではなく、自然の河川中に高頻度で耐性菌が存在すること、人間の体内に普遍的に存在する大腸菌の耐性割合が高いことを示している。現在河川では、親水空間として、「触れ合える水辺」として、安全な環境が求められている。そのような状況の中で、早急に解決を迫られた問題であるといえる。

大腸菌の薬剤耐性頻度は、河川の安全性を評価する上で、新たな有効な微生物指標であることを明らかにした。しかし、環境省や都道府県の河川の生活環境項目には取り上げられていないため、新たな環境基準として提案したい。

第5章 水質測定とイオン分析

5-1. 研究背景・目的

多摩川流域の開発に従い、宅地や下水処理施設の増加等が多摩川の環境変化にどのような影響を及ぼしているか、河川水に溶存している塩化物イオンを指標として新たな検討を試みる。河川中における塩化物イオンで自然界を起源とするものは微量であり、主に海洋からの風送塩および降水と考えられている。木曾川上流における自然起源の塩化物イオン濃度は古田の報告(愛知県環境センター,2002)によると、ほぼ一定で微量の1.05mg/lと見積もられており、多摩川上流の値に近似している。河川中に溶存した塩化物イオンは自然界では浄化されない(東京工業高等専門学校,1984)。そのため、河川上流で放流された塩化物イオンは下流でも検出され、その濃度は人為的生活排水等の混入により増加する。生活排水はいったん下水処理場に集められるため、塩化物イオンをはじめ種々の無機物イオン類、および有機態窒素、有機態リン等が高濃度の状態になり、これらが種々の処理過程を経て河川本流に放流されている。

処理場では、BODの改善、浮遊物の除去、また塩素消毒により病原性微生物の殺菌をして、常に安全性を確認して放流している。しかし、処理場では安全性の高いイオン類は除去されることはない。例えば、塩素消毒前後の水質を調査すると、塩化物イオン濃度にほとんど相違ないことが確認されている。生活廃水中の高濃度の塩化物イオンは、処理場では処理されないまま河川に放流されることが多い。現在、河川水の水質を調査する場合分析項目が多いため、調査報告の作成に長時間を要する。多摩川本流の水質調査の歴史は古く、この種の調査結果は多く発表されている。しかし、分析項目を極力絞り、この値により河川の総合評価が即座に判明できるようになると考えられる。今回は塩化物イオンを追跡して、河川汚染を解釈する新たな評価基準づくりを目的とした。

日本の河川水には、種々の無機物陽イオン(カルシウムイオン、ナトリウムイオン、マグネシウムイオン、カリウムイオンなど)や陰イオン(塩化物イオン、硝酸イオン、亜硝酸イオン、リン酸イオン、硫酸イオンなど)が溶存している。これらのイオン類は、自然界起源のものが多いが、人為的な要因によるものも多い。窒素、リン、カリウムなどに関する栄養源イオン類などの分析もおこない、その上で、塩化物イオン濃度を基準にして、各種イオン類濃度との相関性をみて、塩化物イオンが指標になりうるかどうかを検討する。特に、河川水中の塩化物イオンと電気伝導度との相関性については、すでに報告された例がある³⁾。

那須らは(1995)茨戸湖およびそれに流入する3河川の化学化学的研究で、塩化物イオンを主要成分にすることを試みているが、その妥当性について詳細な報告はされていない³⁾。また、Kameyamaらは(Prog Water Pollut Control Jpn,1998)横浜市内の数河川について河川水の塩類・塩類構成イオンを調査し、指標性について検討している⁴⁾。しかし、多摩川の水質調査に応用した報告はほとんどない。各種イオン類の定量分析値には季節変動が考えられるため、採水分析は月1回行い、1年半継続することとした。下水処理水が流入していない和田橋および永田橋を基準として、その下流である拝島橋から丸子橋までの各ポイントについて採水分析をおこなった。また、A下水処理場の塩素処理前後に採水して分析を行い、塩化物イオンをはじめ各種イオンが多摩川本流に与える影響について調査した。多摩川支流の浅川、残堀川についても各1ポイントずつ決め本流への影響の有無等について検討した。

5-2. 調査方法

5-2-1. 現地での水質測定項目と測定方法

水温、pH、電気伝導度、DO(溶存酸素量)は携帯用マルチ水質測定装置(Sension156,HACH社)を用いて、現場で測定した。

5-2-2. イオン分析

河川中の無機物陽イオン、および陰イオンはイオンクロマトグラフィーで定量分析を行った。分析機種および分析条件は下記の通りである。

機種：パーソナルイオンアナライザーPIA-1000（島津製作所）

	陰イオン	陽イオン
分析対象イオン	Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻	Na ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺
カラム	Shim-pack IC-A3	Shim-pack IC-C3
移動層	ホウ酸、マンニトール トリス（ヒドロキシル） アミノメタン混合水溶液	シュウ酸
流量	1.0ml	0.3ml
カラム圧	54kg/cm ²	44kg/cm ²
測定温度	35℃	35℃
注入量	100 μl	10 μl
検出器	電気伝導度	電気伝導度

なお、亜硝酸イオン（NO₂⁻）、およびリン酸イオン（PO₄³⁻）は、高感度イオンクロマトグラフィーで行った。機種および分析条件は下記の通りである。また、アンモニウムイオンの定定量分析は DR890(HACK 社製)を使用した。採水試料水はすべてミリポアフィルター(0.45 μm)でろ過して使用した。

機種：イオンクロマトグラフ DX-100

対象イオン	NO ₂ ⁻ , PO ₄ ³⁻
移動層(溶離液)	1.8mM Na ₂ CO ₃ /1.7mM NaHCO ₃
移動層の流量	1.5ml/min.
注入量	25 μl
検出器	電気伝導度

5-3. 多摩川水系における水質測定とイオン分析の結果

5-3-1. 月別の気温と水温の変化

表 5.1 には、調査日当日、前日、前々日の天気を示す。当日、前日、前々日ともに晴れの調査日は 2003 年 6 月、7 月、12 月、2004 年 1 月、2 月、4 月、5 月の 7 日、当日、前日、前々日です。いずれか 1 日が雨天であった調査日は 2003 年 8 月、10 月、11 月、2004 年 7 月、10 月、11 月の 6 日、当日、前日、前々日です。いずれか 2 日が雨天であった調査日は 2003 年 9 月、2004 年 3 月、6 月、8 月、9 月の 5 日であった。天候による微生物の変化、天候による薬剤耐性割合の変化については、後の項目で記述する。

表 5-1 調査日、前日、前々日の天気

調査日	2003.6.21	2003.7.29	2003.8.26	2003.9.25	2003.10.23	2003.11.27	2003.12.22
前々日	曇り	晴れ	晴れ	晴れのち曇り	曇り	雨	晴れ
前日	晴れ	曇りのち晴れ	晴れ	曇りのち雨	雨	晴れ	晴れ
当日	晴れ	曇り	曇りのち雨	雨	晴れ	曇り	晴れ
調査日	2004.1.29	2004.2.26	2004.3.25	2004.4.3	2004.5.28	2004.6.29	2004.7.27
前々日	曇り	晴れ	雨のち曇り	晴れ	曇りのち晴れ	雨のち曇り	晴れのち曇り
前日	晴れ	曇り	曇りのち雨	曇りのち晴れ	曇り	雨のち晴れ	雨のち曇り
当日	晴れ	晴れ	曇り	晴れ	曇りのち晴れ	霧のち晴れ	曇りのち晴れ
調査日	2004.8.31	2004.9.29	2004.10.27	2004.11.17			
前々日	雨	雨	曇りのち晴れ	雨のち霧			
前日	雨のち曇り	曇りのち晴れ	雨	晴れ			
当日	曇りのち晴れ	雨	晴れのち曇り	晴れ			

図 5.1 には、調査日の全調査地点の気温と多摩川本流と支流の水温の平均値を示す。ただし水温に関しては、下水処理場内の 2 地点を除いた。水温は、2003 年 6 月～2004 年 11 月の調査において 1.0～29.2℃の範囲内で変化を示した。気温の季節的変動と水温の季節的変動は同じ傾向を示していた。2003 年 11 月の値は、調査動向内で最も低い値を示し、また、2004 年 2 月の値は 2003 年 12 月、2004 年 1、2 月より高い値を示したが、これらの値は月の平均値ではなく月 1 回の調査日の値であるため、このような変動がみられた。

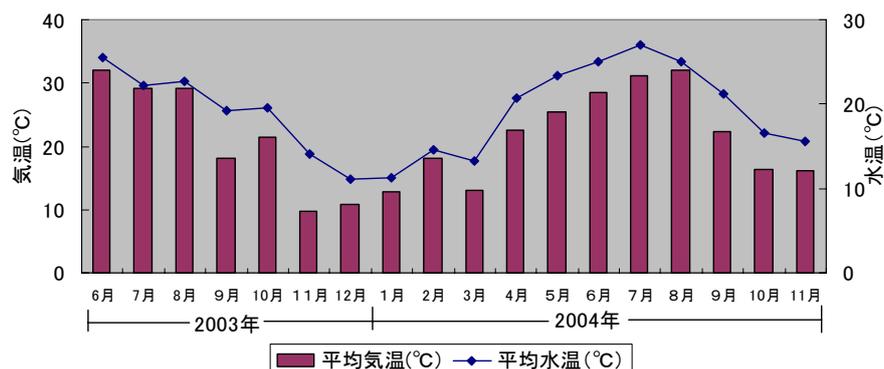


図 5.1 調査日の気温（平均）と水温（平均）

図 5.2 には多摩川の 12 の調査地点の地点別の水温の変化を示す。ただし、3～6 月を春、7～9 月を夏、10～11 月を秋、12～2 月を冬とした。本流において、上流から下流へ流下するに従って（地点番号が小さくなる）、水温は上昇を示しており、上流域の St. 9、St. 10 と下流域 St. 1、St. 2 の 2003 年 6 月～2004 年 11 月の平均水温を比較すると、下流域のほうが約 3.9℃も高くなっていた。特に冬季においては St. 8 から St. 3 にかけて約 8.8℃という急激な温度上昇がみられた。冬季において St. 8 が約 6.9℃であるのに対し、下水処理場内の St. 12 では約 19℃、St. 11 では約 19.3℃と高い水温を示した（図 5.2）さらに年間を通じて処理水は高い水温を示すことを、図 5.2 に示した。

また、St. 8 から St. 3 にかけては支流の流入があり、残堀川の調査地点である St. 7 と浅川の調査地点である St. 5 において、冬季の水温は約 13℃を示しており、いずれも St. 8 より約 6℃高くなっているため、特に放流水の流入がない St. 6 から St. 3 における温度上昇には支流の流入も影響していることが示唆された。

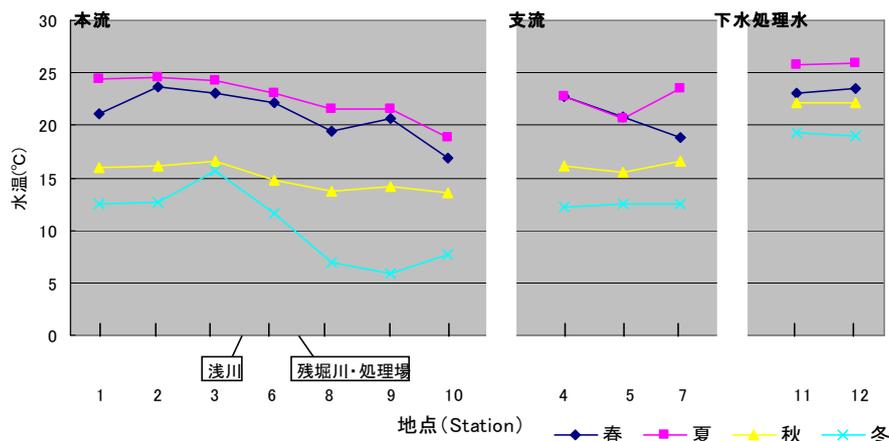


図 5.2 多摩川における調査地点別の水温変化

図 5.3 に下水処理水場地点からの距離と水温の変化を示す。下水処理放流場 (St. 12) を 0 km とし、本流において処理場より上流に向かう距離を負の数で、下流に向かう距離を正の数でそれぞれ示した。2003 年 6 月～2004 年 4 月の St. 11 の平均水温は約 23.1°C と全ての調査地点で最も高く、放流水の流入後の日野橋地点の水温は、流入以前の拝島橋地点と比較して約 2.3°C 高くなっている。このことから ST.6 より下流の本流の水温の上昇には放流水が影響していると考えられた。

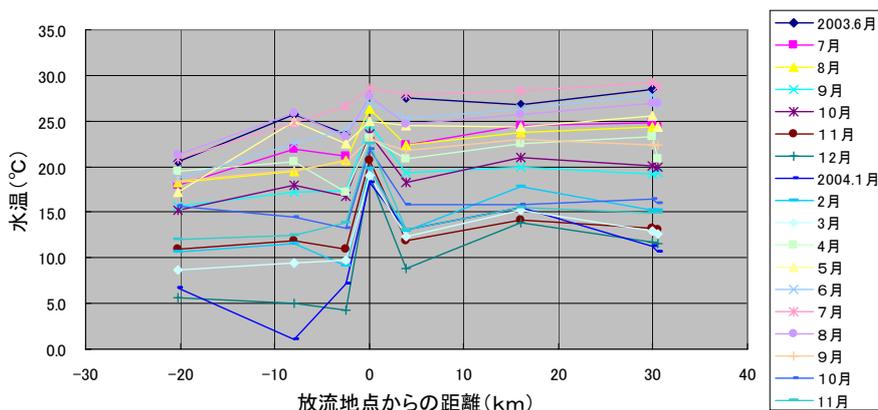


図 5.3 下水処理場からの距離と水温の変化

図 5.4 に季節別の水温の変化と下水処理放流地点からの距離を示す。ただし、図 5.2 同様、3～6 月を春、7～9 月を夏、10～11 月を秋、12～2 月を冬とした。放流水流入前の地点である St. 8 における季節別の平均気温は、春季が約 19°C、夏季が約 22°C、秋季が約 14°C、冬季が約 7°C であったのに対し、St. 12 では、春季が約 24°C、夏季が約 26°C、秋季が約 22°C、冬季が約 19°C であった。放流水流入前の地点である St. 8 と St. 12 とで季節別の水温の温度差を比較すると、春季が約 5°C、夏季が約 4°C、秋季が約 8°C、冬季が約 12°C であり、冬季の温度差が最も大きかった。

また、放流水流入後の地点である St. 6 においては、春季が約 22°C、夏季が約 23°C、秋季が約 15°C、冬季が約 12°C であった。放流水流入前の地点である St. 8 と流入後の地点である St. 6 とで季節別の水温の温度差を比較すると、春季が約 3°C、夏季が約 1°C、秋季が約 1°C、冬季が約 5°C であった。これらのことから、水温において最も放流水の影響を受けるのは冬季であることがわかる。

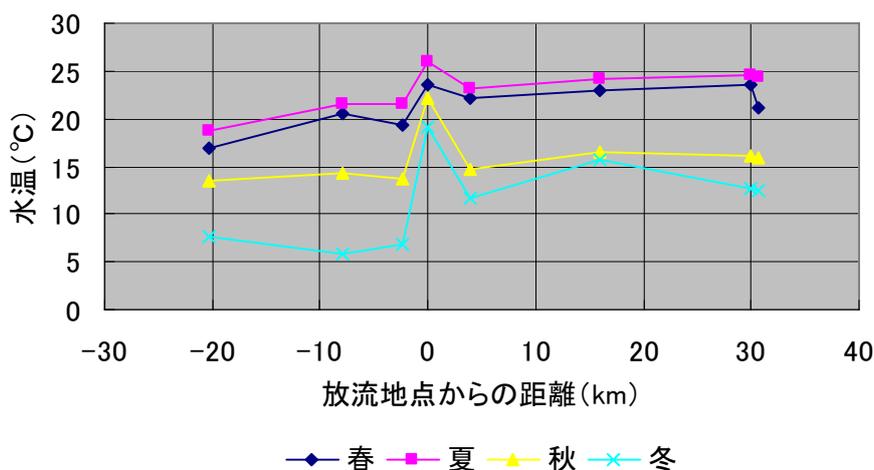


図 5.4 季節別の水温の変化と下水処理場からの距離

5-3-2. 月別 pH 変化

図 5.5 に月別の各調査地点における pH 変化を示した。2003 年 6 月～2004 年 11 月の調査における調査地点ごとの pH の平均値を示した。St. 8 における 2003 年 6 月～2004 年 11 月の pH の平均値は 8 であるのに対し、St. 6 では 6.63 となり、2 地点の間で急激な減少がみられた。St. 12 において 6.33 と低い値を示しており、St. 6 と同じく中流域で下水処理場の放流水の影響を受けない支流にある St. 4、5、7 では、約 7.5 と比較的高い pH 値を示していることから、St. 8 から St. 6 の間に見られた pH 値の変化は、2 つの地点の間にある下水処理場から流入する放流水の影響があると考えられる。この変化は、図 5.6 の月別の各調査地点における pH 変化からも読み取れた。

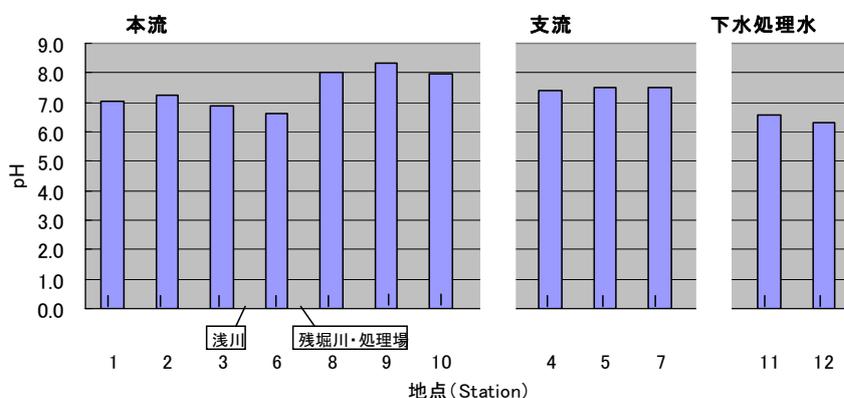


図 5.5 2003 年 6 月～2004 年 11 月の調査における調査地点ごとの pH の平均値

図 5.6 に月別の各調査地点における pH 変化を示した。pH は全調査において 6.00～11.40 の範囲内であった。全ての調査日において St. 8 から St. 6 にかけて約 1.4 減少しており、St. 12 の値が St. 8 より約 1.7 低い値を示していることから、下水処理場の低い pH が処理水放流口より流下にある調査地点の pH を下げている傾向が読み取れる。さらに下水処理場および放流水の河川への影響を明確に示すために図 3.1-8 に pH の変化と下水処理場からの距離を示す。

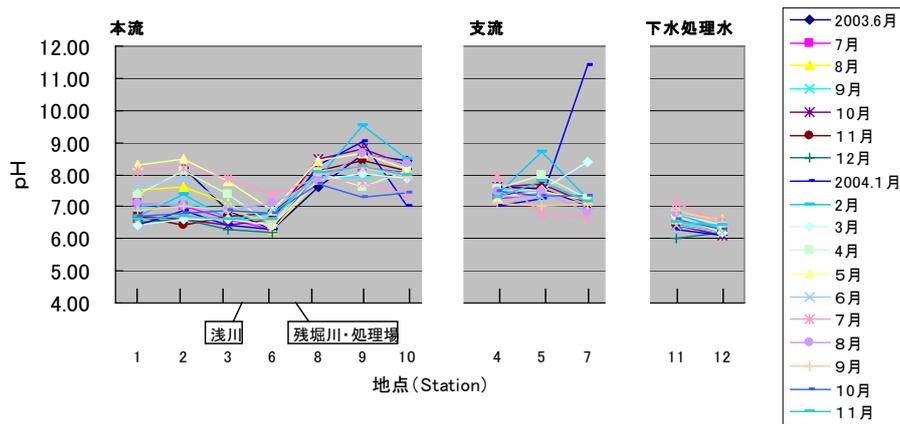


図 5.6 月別の各調査地点における pH 変化

図 5.7 に pH の変化と下水処理水放流地点からの距離を示す。放流水流入前の地点である St. 8 の pH 値と比較して放流地点以降である St. 6 の値は顕著に低くなっており、このことから、St. 8 より下流にみられる pH の低下には放流水が影響していると考えられる。

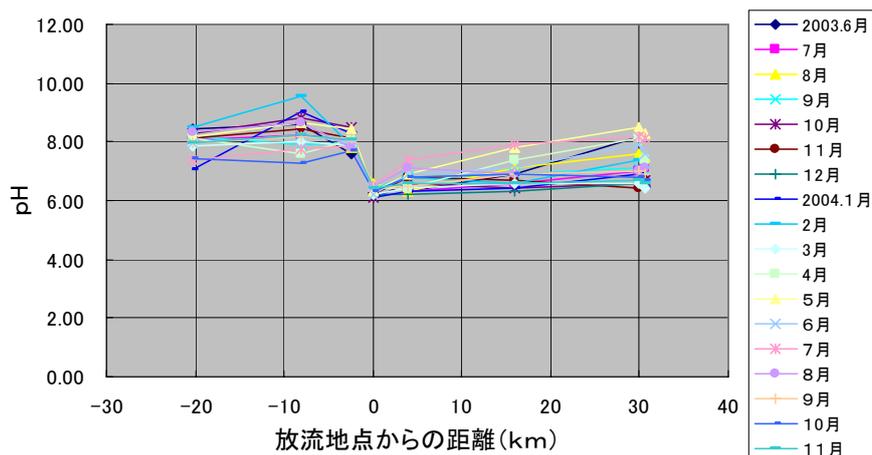


図 5.7 pH の変化と下水処理場からの距離

図 5.8 に季節別の pH の変化と下水処理場からの距離を示す。ただし、3～6 月を春、7～9 月を夏、10～11 月を秋、12～2 月を冬とした。放流水流入前の地点である St. 8 における季節別の平均 pH 値は、春季が約 7.98、夏季が約 7.94、秋季が約 8.09、冬季が約 8.08 であったのに対し、放流地点においては、春季が約 6.28、夏季が約 6.5、秋季が約 6.25、冬季が約 6.2 であった。放流水流入前の地点である St. 8 と放流地点とで季節別の pH 値の差を比較すると、春季が約 1.7、夏季が約 1.44、秋季が約 1.84、冬季が約 1.88 であり、冬季の pH 値の差が最も大きかった。

また、放流水流入後の地点である St. 6 においては、春季が約 6.58、夏季が約 6.73、秋季が約 6.7、冬季が約 6.43 であった。放流水流入前の地点である St. 8 と流入後の地点である St. 6 とで季節別の pH 値の差を比較すると、春季が約 1.31、夏季が約 1.21、秋季が約 1.39、冬季が約 1.65 であった。これらのことから、水温において最も放流水の影響を受けるのは冬季であることがわかる。

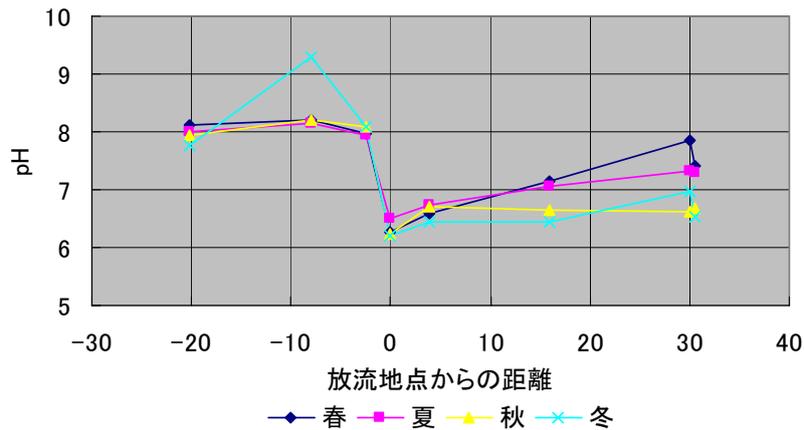


図 5.8 季節別の pH の変化と下水処理水放流地点からの距離

5-3-3. 月別の電気伝導度 (EC) 変化

図 5.9 に月別の各調査地点における電気伝導度の変化を示し、電気伝導度は 6.5～168.2ms/m の範囲内にあった。本流において全ての調査日において St. 8 から St. 6 の間には急激な減少がみられた。また 2004 年 8 月～11 月の調査日については、2004 年 8 月～11 月と比較して、本流の St. 10～St. 6 においては約 81ms/m、支流の St. 7、St. 5 においては約 50ms/m の差が生じていたが、通年では、電導度は下流のほうが高くなる傾向にあると考えられる。

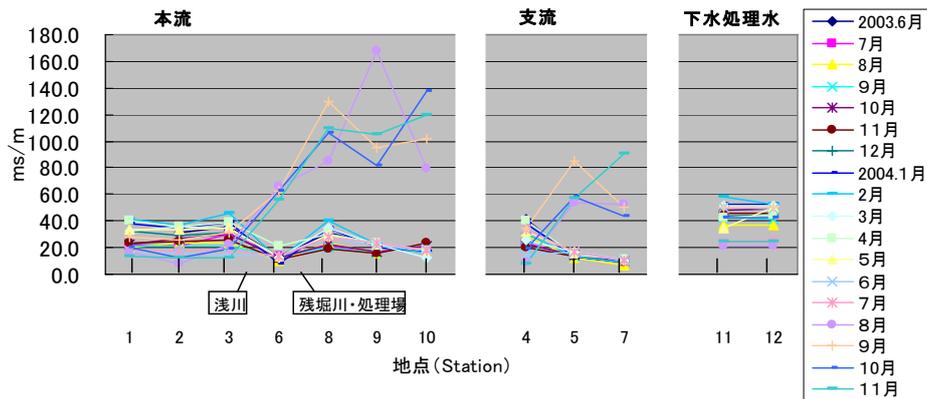


図 5.9 月別の各調査地点における電導度変化

図 5.10 に 2003 年 8 月～11 月の調査における各調査地点の電気伝導度変化を、図 5.11 に 2004 年 8 月～11 月の調査における各調査地点の電気伝導度変化を示した。本流の St. 6～St. 10 と支流の St. 7、St. 5 において、2003 年 8 月～11 月の値が 6.5～23.7 の範囲であるのに対し、2004 年 8 月～11 月の値は 43.7～168.2 であり、顕著な差がみられた。このため 2003 年 6 月～2004 年 11 月の電導度平均の記述は記載しなかった。

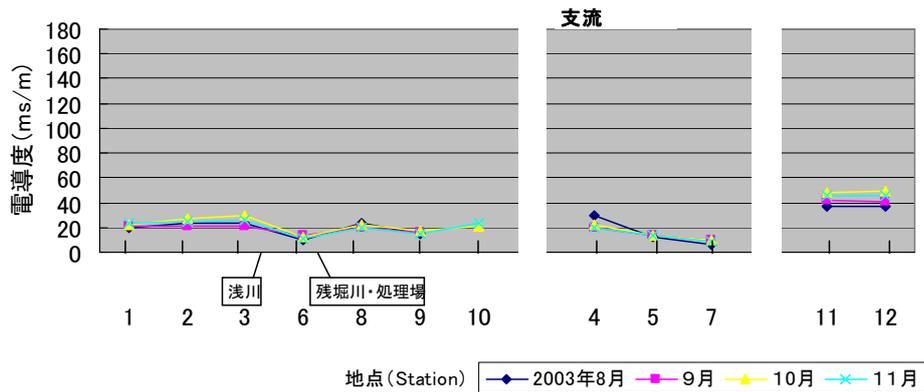


図 5.10 2003年8月～11月の調査における各調査地点の電気伝導度変化

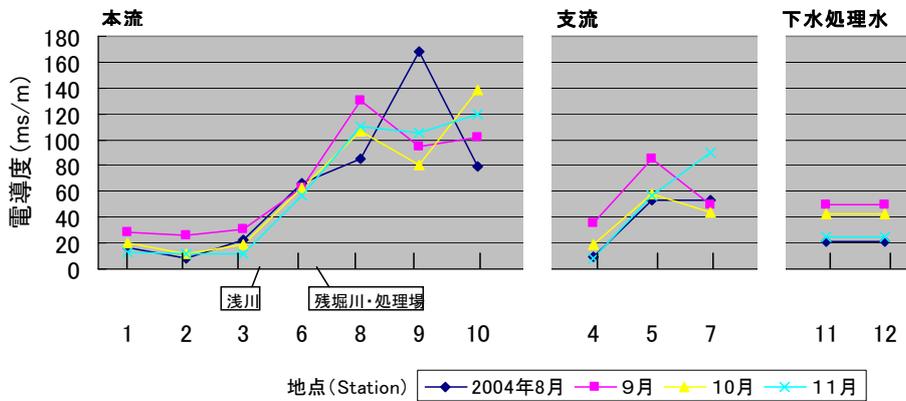


図 5.11 2004年8月～11月の調査における各調査地点の電気伝導度変化

図 5.12 には電気伝導度の変化と下水処理放流地点からの距離を示す。放流地点の電導度は高い値を示したにもかかわらず St. 6 では低い値を示していた。

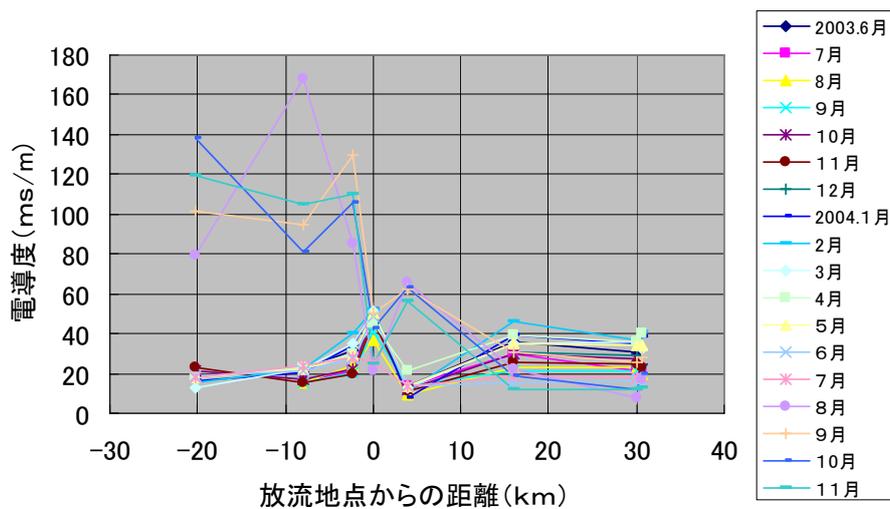


図 5.12 電導度の変化と下水処理水放流地点からの距離

5-3-4. 月別溶存酸素 (D0) 変化

図 5.13 に月別の各調査地点における D0 変化を示す。D0 は 3.51~15.90 (mg/L) の範囲内であった。本流において値にばらつきはあったが、上流から下流に向かうにしたがって高い値を示した。溶存酸素量は光合成が盛んな日中には低くなるため、サンプリング時間による D0 の変動が値のばらつきの一因とも考えられる。

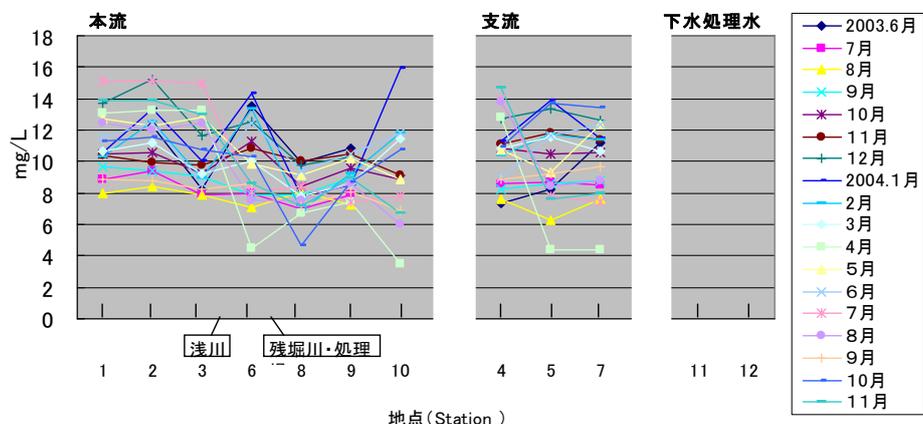


図 5.13 月別の各調査地点における D0 変化

5-3-5. 月別無機物陰・陽イオン類の変化

1) 塩化物イオン

多摩川河川中の塩化物イオン量と採水月日との関係について、採水地点別に図 5.14 に示した。A 下水処理場から多摩川本流に放流している水に含まれる塩化物イオンを同図に示した。

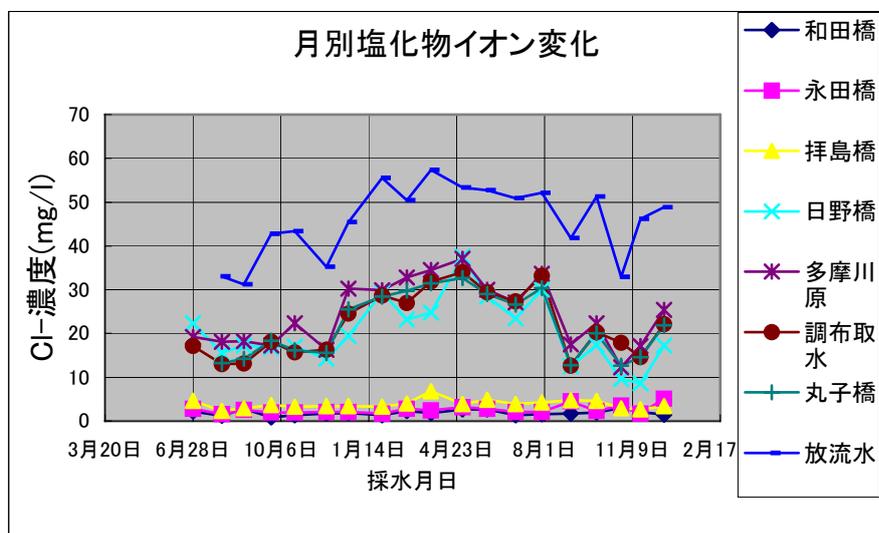


図 5.14 多摩川 7 地点の河川水および下水処理場放流水中の塩化物イオン濃度

採水地点は、和田橋 (St. 10、河口からの距離 64.2 km)、永田橋 (同 51.7km, st. 9) , 拝島橋 (同 46.6 km, St. 8)、日野橋 (同 40.0km, St. 6)、多摩川原橋 (同 27.7km, St. 3)、調布取水せき (同 13.6km, St. 2) および丸子橋 (同 12.4km, St. 1) である。下水場放流水採水地点 (同 44.2km, St. 12) は、日野橋から約 4 Km 上流のところである。

採水および分析は 2003 年 6 月~2005 年 1 月の期間中、月 1 回の割合で行った。これによると、和田橋、永田橋、拝島橋採水試料の塩化物イオンの濃度は、数 mg/l と少ない

領域（これを**低濃度領域**とする）であり、また、季節変動がほとんどないことがわかった。これに対して、日野橋、多摩川原、調布取水せきおよび丸子橋採水試料中の塩化物濃度は4地点とも10数mg/l～30数mg/lの範囲で変動する領域（これを**中濃度領域**とする）であった。また、2月～4月の期間中は、その他の月に比べて多く、季節変動があることがわかった。下水処理場放流水中の塩化物イオン濃度は、30数mg/l～50数mg/lと最も多い領域（これを**高濃度領域**とする）で、特に、上記と同様に2月～4月の期間中は多く検出された。

支流の採水地点である、五反田橋 (St. 4)、中央北浅川橋 (St. 5) および立川橋 (St. 7) の塩化物イオン濃度は、それぞれ5～12mg/l、5～14mg/l および 4～12mg/l であり、上記の低～中濃度領域に相当する濃度であった。これらの支流は、日野橋近辺で本流に流れ込んでいるが、本流中の塩化物イオン濃度を高くなることはほとんどないと考えられる。

下水処理場の放流水が、本流に流れ込む地点の前後の塩化物イオン濃度を、河口からの距離を横軸にとり図 5.15 に示した。ただし、2003年6月～2004年5月の期間中（1年間）データについて示した。

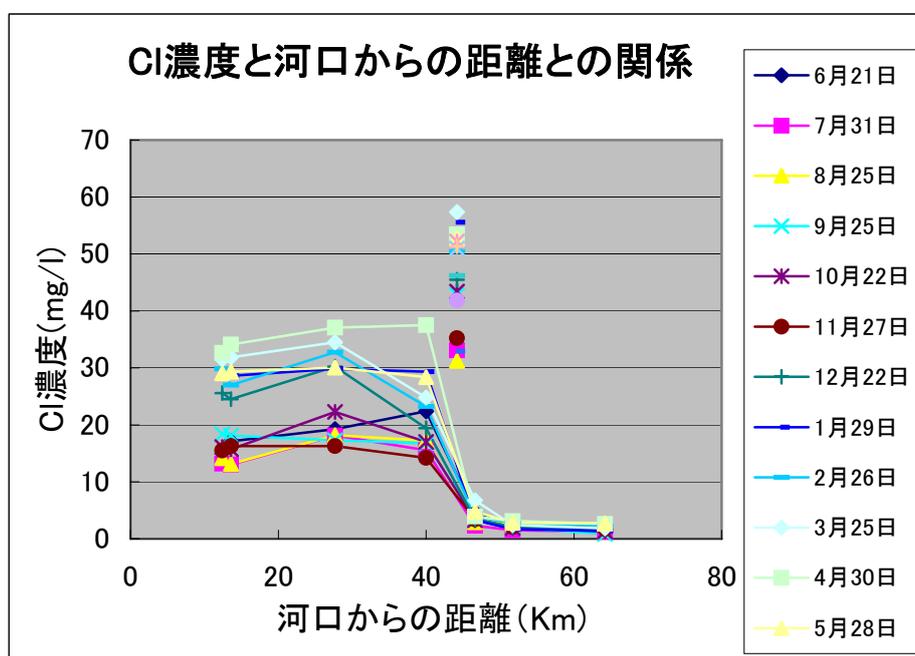


図 5.15 下流4地点の河川水中の塩化物イオン濃度と河口からの距離との関係および下水処理場放流水中の塩化物イオン濃度

これによると、河口からの距離47km以上の地点St. 8, 9, 10は、塩化物イオン濃度数mg/lで、大きな変動もない**低濃度領域**である。しかし、河口から44km地点で下水処理場の放流水が本流に流れ込むため、急激に塩化物イオン濃度が上昇した。その後、河口からの距離が40kmから12kmに近くなっても、塩化物イオン濃度が高いまま大きな変動もなく流下した。この間支流川水および小処理場の放流水等から少量の塩化物イオンが本流へ流れてくることも予想されるが、上記の結果からは大きな影響がないことがわかった。

2) ナトリウムイオンおよびカリウムイオン

多摩川河川中のナトリウムイオン量およびカリウムイオン量と採水月日との関係を、採水地点別に図 5.16, 5.17 に示した。A 処理場から多摩川本流に放流している水に含まれるナトリウムイオン、カリウムイオン量もそれぞれの同図に示した。

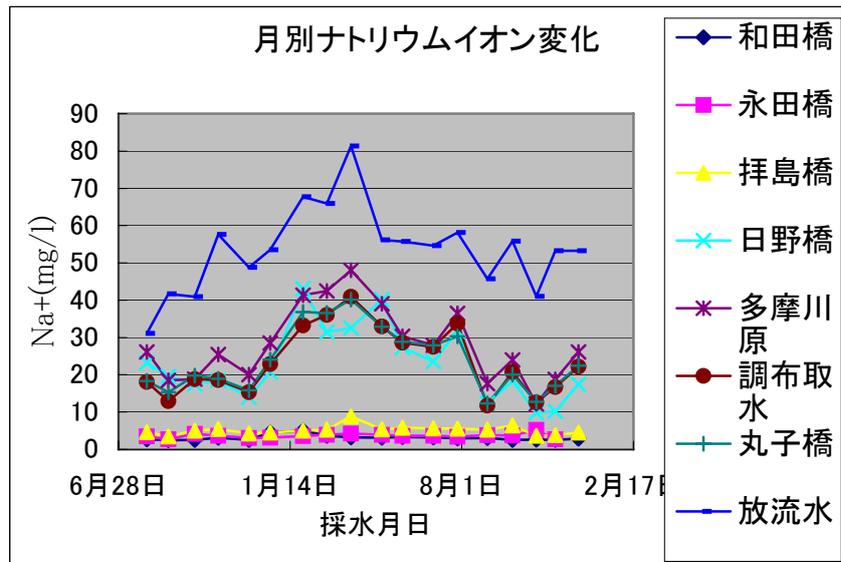


図 5.16 多摩川 7 地点の河川水および下水処理場放流水中のナトリウムイオン濃度

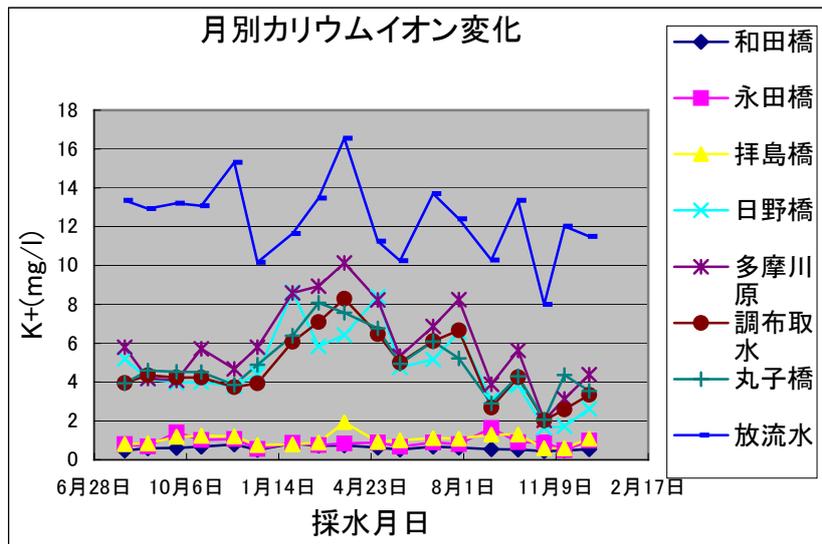


図 5.17 多摩川 7 地点の河川水および下水処理場放流水中のカリウムイオン濃度

これによると、ナトリウムイオン濃度は、St. 10, 9, 8 (和田橋、永田橋、拝島橋) では数 mg/l と少なく、季節変動もほとんどないことがわかった。図 5.15 に示した塩化物イオンと同様に、この領域を**低濃度領域**とする。これに対して、St. 6, 3, 2, 1 では、ナトリウムイオン濃度は 10 数 mg/l～50 数 mg/l の範囲で変動する**中濃度領域**であり、このうち 2～4 月が高い濃度を示した。この季節変動は塩化物イオンの場合と同じ傾向を示した。また、下水処理場放流水中のナトリウムイオン濃度は 30 数 mg/l～80 数 mg/l と最も多い領域 (これを**高濃度領域**とする) で、2月から4月の期間中に多く検出された。

支流の採水点である St4(五反田橋)、St5 (中央北浅川橋)、St7 (立川橋) のナトリウムイオン濃度は、それぞれ、9～27mg/l, 8～17mg/l, 6～11mg/l であり、上記の低～中濃度領域に相当する濃度であった。これらの濃度は本流中のナトリウムイオン濃度を高くすることはないと思われる。

カリウムイオンについても、各試料水ともナトリウムイオン濃度の五分の一以下であっ

たが、それらの濃度は、ナトリウムイオンの場合と同様に、**低濃度領域** (St8, 9, 10), **中濃度領域** (St1, 2, 3, 6), **高濃度領域** (St12) の3領域に分かれた。支流の St4, St5, St7 の濃度は、それぞれ 0.8~5mg/l, 1~3mg/l, 1~3mg/l であり、本流への影響はほとんどないと思われる。

3) マグネシウムイオンおよびカルシウムイオン

多摩川河川水中のマグネシウムおよびカルシウムイオンと採水月日との関係について、採水地点別に図 5.18, 5.19 に示した。A 下水処理場から多摩川本流に放流している水に含まれるマグネシウムイオンおよびカルシウムイオン量を各図に示した。

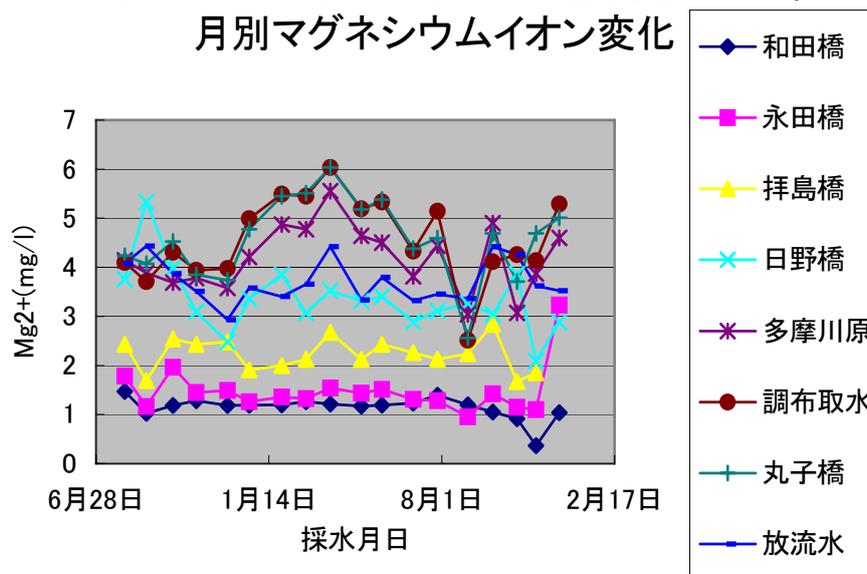


図 5.18 多摩川 7 地点の河川水および下水処理場放流水中のマグネシウム濃度

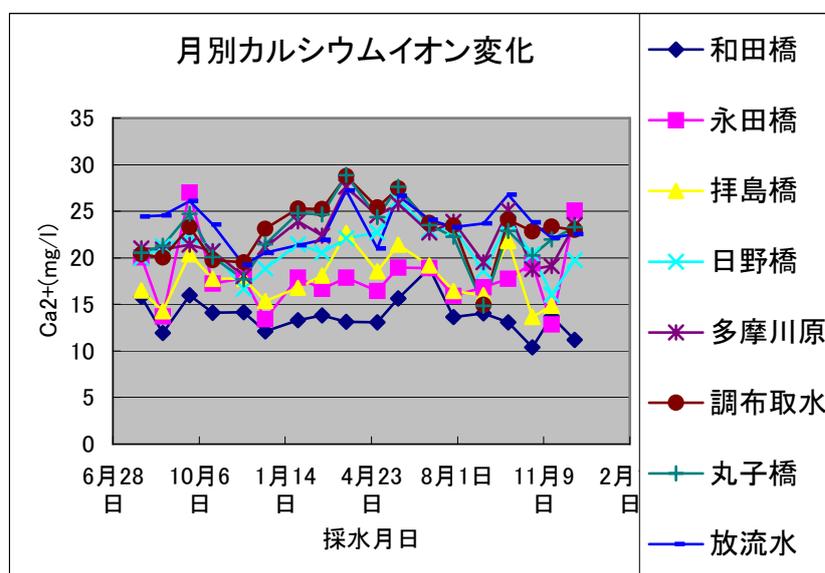


図 5.19 多摩川 7 地点の河川水および下水処理場放流水中のカルシウムイオン濃度

これによると、マグネシウムイオン濃度は、St10, 9 では 2mg/l 以下の低濃度領域であるが、St8 は 2mg/l~3mg/l の範囲で変動しながらこの低領域から離れて中濃度領域に移動しつつあることがわかった。

また、St1, St2, St3, St6 のマグネシウムイオンは、3mg/l～6mg/l の範囲にあり、この中濃度領域内に St12 の放流水の同濃度を示すカーブが存在した。従って、塩化物イオン、ナトリウムイオンおよびカリウムイオンで見られた高濃度領域がなかった。また、マグネシウムイオン濃度に季節変動が見られなかった。支流である St4, 5, 7 のマグネシウムイオン濃度は、それぞれ 4～6mg/l, 2～5mg/l, 2～7mg/l であり、ほぼ、中濃度領域内で変動していることがわかった。

カルシウムイオン濃度は、上流から順に、すなわち St10, 9, 8 の順に 10mg/l～25mg/l に増加しているが、その下流の 4 つの地点 (St1, 2, 3, 6) では、20mg/l～28mg/l の範囲で変動した。放流水の濃度カーブはこの変動範囲内に存在しており、カルシウムイオン場合は、低、中、高濃度領域の区分はほとんど見られなかった。支流の St4, 5, 7 のカルシウムイオン濃度は、それぞれ 16～22mg/l, 15～21mg/l, 17～25mg/l 内にあり本流への影響はほとんどないと思われる。

4) 栄養塩イオン (硝酸イオン、亜硝酸イオン、リン酸イオン)

多摩川]河川中の硝酸イオンと採水月日との関係について、採水地点別に図 5.20 に示した。A 下水処理場からの放流水中の硝酸イオン量も同図に示した。

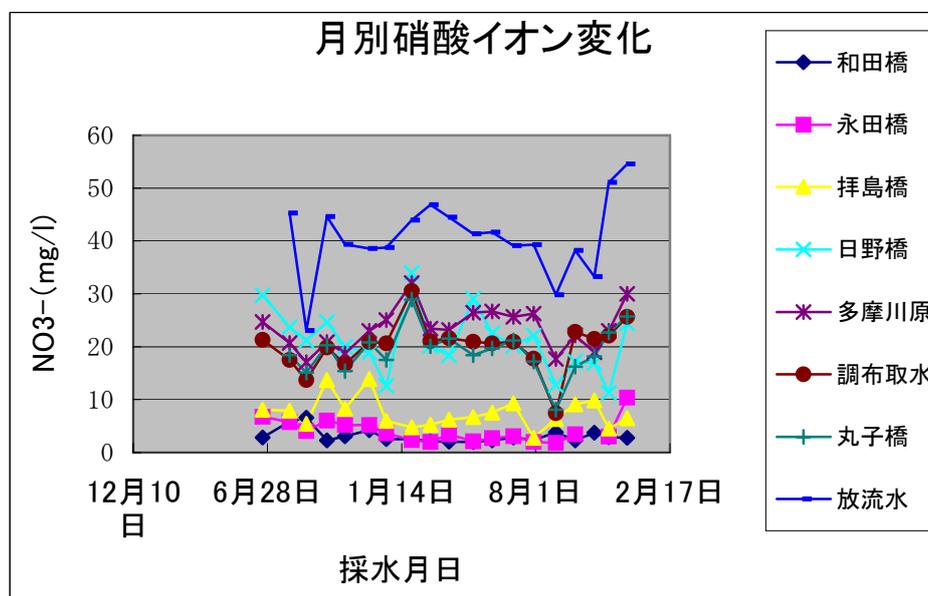


図 5.20 多摩川 7 地点の河川水および下水処理場放流水中の栄養塩イオン濃度

これによると、硝酸イオン濃度は、St10, 9 では 2mg/l～5mg/l の範囲で小変動していた。St8 は 10 数 mg/l の濃度を示すことがあったが、全体的に St10, 9 のグループ (低濃度領域) と思われる。St1, 2, 3, 6 グループの硝酸イオン濃度は、10 数 mg/l から 30 数 mg/l の範囲内で変化した。この領域は中濃度領域と思われる。放流水の硝酸イオン濃度は、30 数 mg/l～40 数 mg/l と中濃度領域よりさらに高く、高濃度領域として区分した。支流の St4, 5, 7 の硝酸イオンは、それぞれ 13～22mg/l, 15～21mg/l, 17～25mg/l と高い濃度を示したが、いずれも中濃度領域の範囲内にあり、本流への大きな変動を引き起こす要因にはならなかった。

亜硝酸イオンは、St10, 9, 8 の上流ではほとんど検出されなかった。下流では 0.09mg/l～0.25mg/l、放流水では 0.1mg/l～0.5mg/l で少なかった。いずれの地点でも、亜硝酸イオン濃度は、硝酸イオンと比べて非常に低く、流下中に酸化されて硝酸イオンに変化したと思われる。リン酸イオンは上流の St10, 9, 8 ではほとんど検出されず、下流の St1, 2, 3, 6 では 0.1mg/l～3mg/l、また、放流水の St12 では 1mg/l～4mg/l であった。支流の、St4, 5, 7 では 0.1mg/l～1mg/l であり、いずれも微量のため十分な検討はできなかった。

5-4. 考察

5-4-1. 月別の気温と水質変化について

一般に水温は気温によって影響を受ける。本調査においても同様の結果が得られた。水温は、水中の溶存酸素量などに関係し、また、細菌、生物等の消長に関与するもので、下水の生物学的処理と重要な関係がある。高水温期に、細菌や微小藻類の増殖は活発になり、低水温期に細菌や微小藻類の増殖や活動は低下する（宮本, 2000; 橋本, 2000）。このことは、本研究の結果でも、一般細菌数、大腸菌群数、糞便性大腸菌群数などでその傾向が見られた。すなわち、11月以降に水温が漸次低下するのに伴い、一般細菌数、大腸菌群数、糞便性大腸菌群数は低下した。下水処理場と河川水の水温を比較してみると、下水処理場からの放流水の水温は一般に河川水よりも高いといわれている。本研究でも、多摩川下水処理場の水温のほうが高い値を示した。月別調査で、河川の平均水温と比べ、下水処理場の放流水は約4.6°C高くなっている。この温度差は、夏期から冬期にかけて大きくなっていく。

また、夏期と冬期の上流から下流への流下に伴う温度差を比べてみると、上流 (St. 10) と下流 (St. 1, 2) で夏期には約1.5°Cの差があり、冬期には約4.8°Cの差があった。つまり、夏期のほうが格差は大きかった。

5-4-2. 月別 pH 変化について

一般に天然水の pH 値は 5.0~9.0 の範囲にある。しかし、水源の違いにより広い範囲の値を示す。河川水について、特に夏季には日光のある昼間に水温が上昇し、藻類の光合成が盛んになり、その結果、藻類が水中の微酸性の炭酸を吸収し、pH 値の上昇が見られる。本調査での pH の範囲は 6.0~11.4 であった。

下水の pH は、一般に 7 前後であるが、特殊な工場廃水などの混入によって著しく変動することがある（橋本, 2000）。日野橋地点で急激に低くなっているのは、拝島橋から日野橋の間に 3 つの下水処理場（多摩川上流処理場、八王子処理場、錦町処理場）があり、3 つの処理場から 240600m³/日もの水が放流されており、さらに下水処理場の放流口に近いため、下水放流水の影響のためであると考えられる。それは、下水放流水である St. 12 と近い値を示していることで裏付けられた。

5-4-3. 月別電気伝導度 (COND) 変化について

溶液の電気伝導率は、溶液中のイオンの移動によるもので、水素イオン及び水酸化物イオンを除いては、同じ当量のイオンによる電気伝導率の値は大きな差はない。従って、電気伝導率は、水中のイオンの全濃度の程度を表している（Okamoto, 1990）。清澄な河川では低い値を示し、汚濁が進んだ場合には高い値を示すことから、汚濁指標として用いられる。本研究でも、人為的影響（汚染源）が少ない上流部で低い値を示し、下流にいくに従って、河川は汚染されていき、高い値を示していると考えられる。また、結果でも述べたように、St. 8 から St. 6 の間には急激な上昇がみられたのは、pH 値と同様に両調査地点間の下水処理場の放流水 (St. 12) の値が極めて高いことから、下水処理放流水の影響と考えられる。St. 1, 2 で電気伝導率の値が低くなっているのは、St. 1, 2, 3 付近で下水処理放流水が少ないため、河川水によって薄まったからであると推測できる。また、調査地点ごとに季節的变化はほとんど見られなかった。

5-4-4. 月別溶存酸素 (DO) 変化について

溶存酸素は、水域の自浄作用に不可欠である。一般に、水域の溶存酸素は、水が清純であるほど、その温度における飽和量に近い量が含まれ、場合によっては過飽和となる。また、藻類の著しい繁殖によっても過飽和となることがある。水中の好気性微生物の作用によって消費されて溶存酸素が不足すると、魚介類などの生育に悪影響を与える。さらに、溶存酸素がなくなると、嫌気状態となって有機物の分解により、硫化水素等が発生し、悪臭を放つようになる。そのために、溶存酸素は河川、湖沼、海域等の水域の汚濁指標とし

て用いられる(橋本, 2000)。温度が高いと DO 値は低くなる。本研究でも夏期には冬期よりも値が小さくなっている。しかし、値にはばらつきが見られた。その理由として、溶存酸素量は光合成により変動するため、試水のサンプリング時間が異なったことが、ばらつきの一因として考えられる。

5-4-5. 無機物質陰・陽イオンについて

多摩川河川中の月別無機物イオン類について調べた結果、塩化物イオン(図 5. 14, 15)およびナトリウムイオン(図 5. 16)が、St. 10(和田橋), St. 9(永田橋), St. 8(拝島橋)の上流水からはわずか数 mg/1 しか検出されなかった。この領域(低濃度領域)には下水処理水がほとんど流入していないためと考えられる。これに対して、St6(日野橋)で急激に増加した。St6(日野)の下流 St3(多摩川原), 2(調布取水せき), 1(丸子橋)では、St6 の濃度と大きな変動がなかった。St6 の急増の要因は、約 4km 上流で下水処理水を大量に放流しているためと考えられる。特に、生活廃水等に混入している高濃度の塩化物イオンがほぼそのままの濃度で処理場を経由して河川に放流されていると予想される。実際処理場における塩素処理前後の水質調査で塩化物イオン濃度に差が認められた。またこの塩化物イオンは河川に混入しても自然浄化されないため、下流の各地点で放流時前後の濃度で検出されたものと考えられる。この傾向はナトリウムイオンにも見られた。すなわち、塩化物イオンとナトリウムイオンは食塩が起源と思われ、他のイオン種と結合しない限りこの 2 つのイオンは陰・陽の対イオンとして溶存していることが予想される。

カリウムイオンは、月別変化(図 5. 17)でも見られるように、その検出量はナトリウムイオン量に比し少ないが、各地点の検出パターンは塩化物イオンの場合と同じような傾向を示した。すなわち、上流の 3 地点は低濃度領域、下流の 4 地点は中濃度領域、そして下水処理場の放流水が高濃度領域であり、この場合も中濃度領域に大きな影響を及ぼしていると思われる。

しかし、マグネシウムイオンおよびカルシウムイオンの月別変化(図 5. 18, 19)によると、上流から下流になるに従いイオン量は増加したが、上記のように 3 つの領域に区分されなかった。また、下水処理場の放流水中のイオン量も多くないことから、これら両イオンは岩石等の風化によって自然発生したものと考えられる。

栄養源イオンである硝酸イオンは、上流の 3 地点からは数 mg/1 検出されたが、下流の 4 地点からは、水道水基準以上の量(10 数 mg/1~30mg/1)が検出された。検出パターンは塩化物イオンと同様に、低濃度領域、中濃度領域および高濃度領域に区分することができた。すなわち、この場合も下水処理場の影響がその下流に影響を与えていることがわかった。アンモニアおよび亜硝酸イオンは、上流の 3 地点からはほとんど検出されなかったが、その下流水での微量な増量は放流水の影響と思われる。両イオンはともに酸化されて硝酸イオンに変化する物質であり、予測どおり多くは検出されなかった。

5-4-6. 塩化物イオンの指標性について

河川中の水質検査の指標として塩化物イオンを取り上げ、その妥当性を検討した。

(1) 塩化物イオン濃度とナトリウムイオン濃度との相関性について

塩化物イオンの対イオンは、多くはナトリウムイオンと思われる。すなわち、生活廃水中の食塩が要因と思われる。塩化物イオン量とナトリウムイオン量との関係を図 5. 21 に示した。月別塩化物イオンの変化(図 5. 14)で述べた通り上流の 3 地点の含有量は微量であったため、これらの地点は除いた。図には下水処理場の放流水地点を含めその下流の 5 地点について示した。

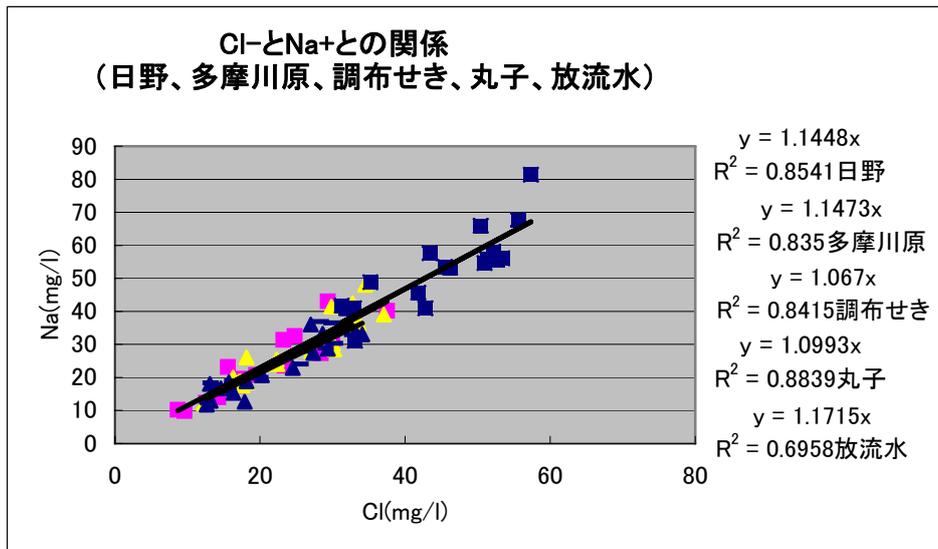


図 5.21 多摩川の 4 地点の河川水および下水処理放流水中の塩化物イオン濃度とナトリウムイオン濃度の関係

これによると、5 地点とも塩化物イオンが増加すると、ナトリウムイオンがほぼ直線的に増加することが確かめられた。回帰分析からみると

$$y = a x \quad (y = \text{Na}^+ \text{量}, x = \text{Cl}^- \text{量})$$

$a = 0.70 \sim 0.88$ であり、また、 R^2 は 4 地点では $0.84 \sim 0.88$ と両イオンに相関性があることがわかった。なお、放流水では同値が 0.7 であった。これらの値から両イオンの当量比を算出すると、塩化物イオン 1 当量に対してナトリウムイオンは $1.07 \sim 1.36$ 当量に相当し、ナトリウムイオンの方がわずか ($0.07 \sim 0.36$ 当量) に多いことがわかった。これは塩化ナトリウム以外にもナトリウム塩がわずか存在するためと考えられる。このことより、塩化物イオンの発生源は、主に生活廃水中の食塩と思われる。

(2) 塩化物イオン濃度とカリウムイオンとの相関性について

塩化物イオン量とカリウムイオン量との関係を、下流 4 地点 (St6,3,2,1) について図 5.22 に示した。

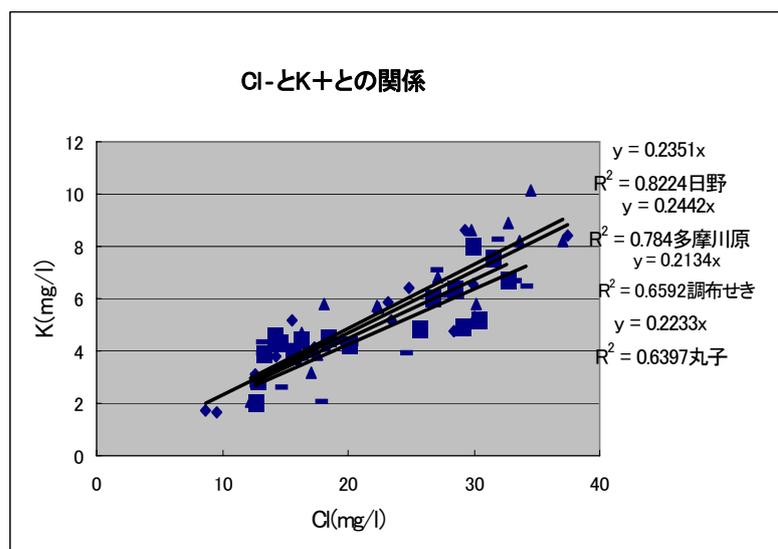


図 5.22 多摩川の 4 地点の河川水中の塩化物イオン量とカリウムイオン量との関係

これによると、塩化物イオン量とカリウムイオン量との間に、ほぼ直線関係があることがわかった。R2 は平均 0.73 であり両者間に相関性があることがわかった。上記の塩化物イオン-ナトリウムイオン間の関係で示したと同様に、当量比を算出すると、塩化物イオン1 当量に対して、カリウムイオンは 0.18~0.21 当量に相当した。

(3) 塩化物イオン濃度と硝酸イオン量との相関性

塩化物イオン量と硝酸イオン量との関係を、下流4地点 (St6, 3, 2, 1) について図 5.23 に示した。

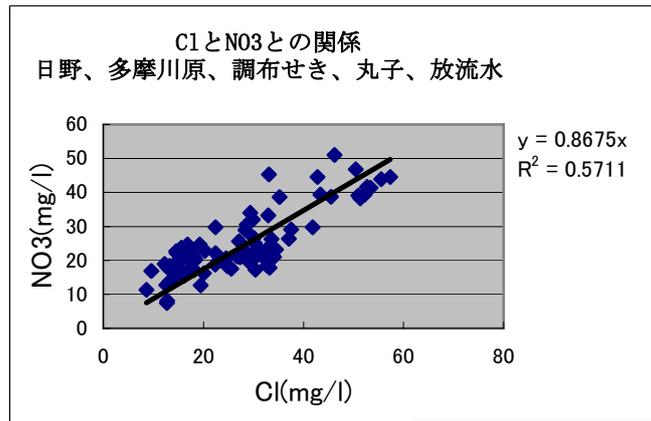


図 5.23 多摩川4地点の河川水中の塩化物イオン量と硝酸イオン量との関係

これによると、塩化物イオン量が増加するに従い、硝酸イオン濃度が増える傾向を示した。回帰分析によると $R^2=0.57$ で高い相関性はない。グラフ上に切片=0 をとおる2本の補助直線(a), (b)を引くと、(a)の直線の傾き=0.7, (b)の直線の傾き=1.2となり、この範囲内に、ほぼすべての点が収まることがわかった。

(4) 塩化物イオンおよびナトリウムイオン濃度と電気伝導度との相関性

多摩川水系における水質測定結果のうち、電気伝導度の結果を 5-1-3 に述べた。電気伝導度は、pH および溶存している無機物イオン類量に依存する。図 5.24 に試料水中に溶存している塩化物イオンおよびナトリウムイオンの合計当量数と電気伝導度の関係を示した。試料水は本流の St1, 2, 3, 6, 8, 9, 10 の7地点から採水したものである。

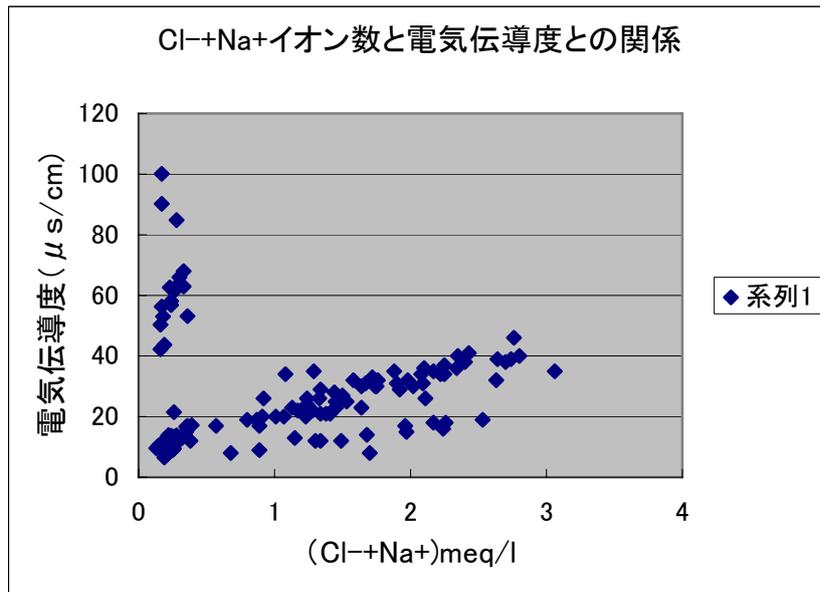


図 5.24 多摩川 7 地点の河川水中の塩化物イオン量と電気伝導度との関係

伝導度は試料水に含まれる塩類組成により大きく異なることが予想される。本研究では、塩化物イオンの指標性に注目してきたが、塩化物イオンだけでは伝導度との間により相関性が得られなかったため、ナトリウムイオンも合わせて検討した。

この図からは読み取ると、両者の関係は 2 つのパターンに分かれた。一つ目は、塩化物イオンおよびナトリウムイオンの合計当量数が 3meq/l に増加するに従い電気伝導度が 40 μ s/cm 前後まで徐々に増えていく傾向を示した。那須らは茨戸湖水、また、佐野らは豊川流域河川で、塩化物イオン濃度と電気伝導度間に比例関係があることを報告している。

二つ目は、合計イオン数が 0.5meq/l 以内の少ない領域で、電気伝導度が異常に高い領域 (40~100 μ s/cm) が現れている。この伝導度の高い領域について検討した結果、測定地点は St10, 9, 8 に限定された。また月別の測定結果から 9, 10, 11, 12 および 1 月であり、特に、雨天時に集中していることがわかった。該当する月別の pH との相関性も検討したが、いずれも pH が 7, 8, 9 の中性近辺であり関連性はほとんどないと思われる。電気伝導度が高くなる要因は、降水中に含まれる塩化物イオン、ナトリウムイオン以外に、雨水に含まれる他のイオン類の影響と考えられる。または雨天時に河川水中に分散した電荷をもった懸濁物質によることも考えられる。塩化物イオンとナトリウムイオンの合計量が大きいにもかかわらず電気伝導度が低い (10 μ s/cm 付近) のは、測定当日を含め、その 2 日または 3 日前までは晴れの天候であり、懸濁物質がほとんどない状態であった。

これらの結果から、塩化物イオンとナトリウムイオンの溶存量は電気伝導度と相関性があることがわかった。ただし、雨天時には、特に塩化物イオンおよびナトリウムイオンの少ない上流地点では電気伝導度の測定に注意が必要である。

(5) 下水処理場放流水中の塩化物イオン濃度と、その下流水中の塩化物イオン濃度との相関性について

下水処理場から多摩川水系に塩化物イオンが高濃度で放流されていることがわかった (図 5.14, 15)。放流水中の塩化物イオン濃度が、その下流地点 (St6.3, 2, 1) の濃度にいかなる影響を及ぼすのか図 5.25 を用いて検討した。

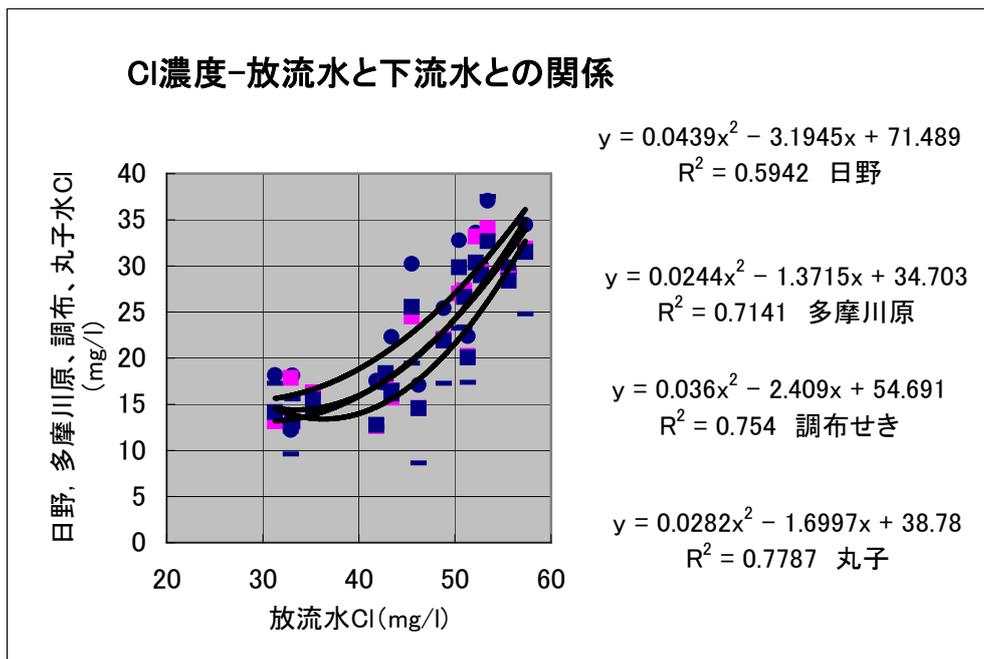


図 5.25 A 下水処理場放流水中の塩化物イオン濃度が、その下流河川水の濃度を与える影響

これによると、下水処理場からの放流水には、塩化物イオン濃度(図5-14)が30数mg/l～50数mg/lと多く、これが下流の各地点 (St6, 3, 2, 1) の濃度を高めている。

放流水中の塩化物イオン量(これを y とする)が、St6(日野橋)の濃度(これを x とする)と、図5-13に示したような多項式が見出された。St3(多摩川原橋), St2(調布取水せき), St1(丸子橋)でも、同様な関係式になった。すなわち、

$$y = ax^2 - bx + c$$

$a = 0.024 \sim 0.044$
 $b = 1.4 \sim 3.2$
 $c = 34 \sim 74$

R^2 値は、日野橋では 0.59, 多摩川原では 0.71, 調布取水せきでは 0.75, 丸子橋では 0.78 であり、下流ほど多項式の信頼性が増大した。これは日野橋付近では放流水と河川水が、まだ十分混合されていないため、採水ポイントを複数設定するなどの配慮が求められる。

以上のことより、多摩川河川水中の塩化物イオンの発生起源は、主に生活廃水と考えられる。この廃水中の塩化物イオンは、ほとんど濃度をかえることなく下水処理場を通過して河川に放流されること、河川に放流された溶存塩化物イオンは自然浄化されないこと、また河川の汚濁調査項目である電気伝導度と相関性が見出されたこと、などから塩化物イオンは多摩川の水質環境をみる一つの指標になりえるものと考えられる。

6章 多摩川における N-BOD の挙動に与える下水処理水の影響

6-1. 研究背景

BOD は今日まで河川水質指標として広く用いられている。しかし、BOD には微生物による有機物分解に伴う酸素消費である C-BOD の他に、硝化細菌によるアンモニア性窒素の硝化に伴う酸素消費である N-BOD も含まれる。近年、都市河川では下水処理水が河川水中に占める割合が高く、下水処理水特有の水質として水温の季節変動が少ない事、塩素消毒による残留塩素が含まれている事、栄養塩濃度が高い事などが挙げられ、これらの特性により河川環境へ少なからず影響を与えていると考えられる。その影響の一つとして、し尿などの生活廃水の流入によりアンモニア性窒素が下水処理水には多く含まれているために、都市河川では BOD 中に占める N-BOD の割合がかなり高いことが挙げられる。

下水処理水は塩素消毒後に放流されるため、塩素消毒に伴う下水処理水中に存在している硝化細菌の死滅により、下水処理水による河川水への BOD 負荷の正確な評価が困難になっている。また、N-BOD の挙動は、硝化細菌量と NH_4^+ 濃度に寄与し、また残留塩素にも影響している。N-BOD 挙動を正確に把握するためには、残留塩素が N-BOD にどのように影響するのかを明確にする必要がある。

本研究では、都市河川の代表的な例として多摩川を取り上げ、特に処理過程で行われる塩素消毒と硝化細菌の動向に注目し N-BOD の挙動を定量的に示すことで下水処理水が河川水質に及ぼす影響を評価することを目的とする。

6-2. 水質調査の方法

6-2-1. 測定日

測定日は 2004 年 3 月 25 日、4 月 30 日、5 月 28 日、6 月 29 日、7 月 27 日、8 月 31 日、9 月 29 日、10 月 27 日、11 月 18 日、12 月 15 日および 2005 年 1 月 31 日である。

6-2-2. 測定地点

測定地点は、図 6-1 に示すように主に多摩川の本流河口より感潮流域の影響のある地点 (Pt. 1)、下水処理水の影響のある地点 (Pt. 2, Pt. 3, Pt. 4) 下水処理水の影響のない地点 (Pt. 5, Pt. 6, Pt. 7) 以上 7 箇所とした。また、A 下水処理場 (多摩川上流水再生センター) より塩素消毒前、塩素消毒後の処理水を採水した。

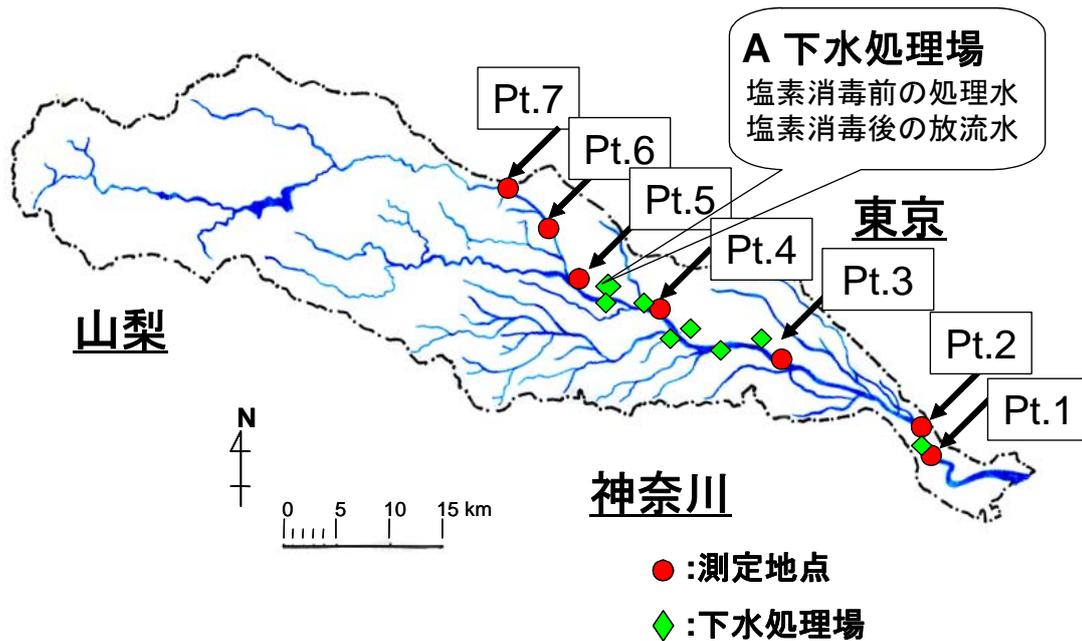


図 6.1 多摩川における測定地点および流域図

6-3. 測定項目

現地調査の測定項目は、気温、水温、DO、pH、残留塩素（全塩素、遊離塩素）、電気伝導度の6項目である。

多摩川およびA下水処理場から採水した試料を研究室において分析を行った。その測定項目は、BOD、C-BOD、N-BOD、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-Nの7項目である。

6-4. 分析方法

6-4-1. 現地における測定方法

- (1) 河川に入り川底の砂等の混入を避け、流速のある地点において水をバケツで汲み取り、残留塩素、電気伝導度、pHを測定。ここで、残留塩素は遊離塩素、全塩素ともに測定する。
- (2) 河川の中央に入り流速のあるところでDO計により河川水中のDOおよび水温を測定する。
- (3) 試料1リットルを空気が入らないようボトルに入れ、クーラーボックスに保冷し研究室に持ち帰る。
- (4) A下水処理場の塩素消毒の前後のサンプルにおいて残留塩素、電気伝導度、pHを測定し各2リットルをクーラーボックスに保冷して研究室に持ち帰る。1リットルはBOD測定用、あとの1リットルは水質変換速度試験（バッチテスト）用である。

6-4-2. 研究室における分析手順

- (1) BOD測定用のサンプルを測定地点ごとにフラン瓶6本分作り20℃に保たれてある恒温器で5日間培養した。
- (2) サンプルを膜孔径0.45μmの膜でろ過し、イオン計にてNO₂⁻NO₃⁻、サリチル酸法(方法は3.2.4で説明)により携帯式分光光度計を用いてNH₄-Nを測定した。
- (3) ろ過したサンプルをTOC計でTOC濃度を測定した。
- (4) 5日後に各フラン瓶のpHを測定し、また、DOを測定し、BOD、C-BOD、N-BODを算出した。

6-4-3. BOD 測定方法

(1) 希釈水の作成

緩衝液（りん酸水素二カリウム 21.75g, りん酸二水素カリウム 8.5g, りん酸水素二ナトリウム十二水和物 44.6g, 塩化アンモニウム 1.7g を蒸留水に溶かして 1 リットルとしたもの), 硫酸マグネシウム溶液（硫酸マグネシウム七水和物 22.5g を水に溶かして 1 リットルとしたもの), 塩化カルシウム溶液（塩化カルシウム 27.5g を水に溶かして 1 リットルとしたもの), 塩化鉄（Ⅲ）溶液（塩化鉄（Ⅲ）六水和物 0.25g を水に溶かして 1L としたもの）を作り, 予め 20℃ 近くでエアレーションした溶存酸素飽和蒸留水 1 リットルにそれぞれを 1mL ずつ加えたものを希釈水とする。

(2) BOD 測定用試料の作成

持ち帰った河川水および下水処理水を各 500mL と希釈水 500mL をフラスコで混ぜ合わせたのち, フラン瓶 4 本に気泡が入らないよう静かに流し入れ密栓する。そのうち 1 本を DO 測定用とする。3 本は BOD 測定用とする。あまりのサンプル 500mL をフラスコに取り, 硝化抑制を目的とする N-アリルチオ尿素溶液（N-アリルチオ尿素 0.1mg を蒸留水に溶かして 100mL としたもの）を 1mL 加える。これを C-BOD 測定用としフラン瓶 3 本に流し入れる。作成した測定用サンプルを 20℃ に保たれてある恒温器で 5 日間培養した。

(3) 5 日後の測定

測定用試料すべての DO を DO 計により測定し, BOD 測定用の 3 本の DO 値の平均に希釈率の 2 倍を掛けたものを BOD とした。また C-BOD 測定用の 3 本の DO 値の平均に希釈率の 2 倍を掛けたものを C-BOD とした。BOD から C-BOD を引いたものを N-BOD とした。ただし, 11 月の測定より河川水において希釈をしないで行った。

6-4-4. 残留塩素除去した BOD 測定方法

試料に 100ml にアジ化ナトリウム 0.1g とよう化カリウム 1g を加えて振り混ぜた後, 塩酸を加えて酸性（pH 約 1）とし, 暗所に数分間放置し, 遊離したようそをでんぷん溶液の指示薬として, 亜硫酸ナトリウム溶液（0.0125mol/L）で青色が消えるまで滴定する。しかし, 塩素濃度が少ないと青色の判定が難しく, 今回は亜硫酸ナトリウムを 2 滴ほどフラン瓶に入れて残留塩素除去を行った。以下, 3. 2. 3 と同様の測定方法である。

6-4-5. サリチル酸による NH₄-N 分析方法

(1) 測定法の要約

アンモニアは塩素と結合してモノクロラアミンを生成し, モノクロラアミンはサリチル酸塩と反応して 5-アミノサリチル酸を生成する。5-アミノサリチル酸はニトロプルシド・ナトリウム触媒の存在下で酸化されて青色の化合物を生成する。この青色は, 試薬の余分な黄色にマスクされ, 最終的には緑色の溶液になる。

(2) 分析手順

サンプルセルに 10ml の蒸留水を入れ, 2 本目のサンプルセルに 10ml の試料を入れる。各セルにアンモニア・サリチル酸試薬パウダーピロー 1 包をセルに添加し, 溶解させ 3 分待つ。その後, アンモニア・シアヌール酸試料パウダーピロー 1 包を添加し 15 分待ち, 反応させたものを携帯式分光光度計にかける。

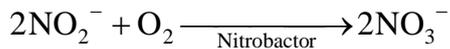
6-5. 下水処理水と河川水の水質変換速度試験（バッチテスト）

6-5-1. 水質変換速度試験の測定項目および目的

水質変換速度試験は, サンプル中の NH₄-N, NO₂-N, NO₃-N を 1 日ごとに測定すること

によってその硝化反応の動向を示すものであり、下水処理水の塩素消毒前と後を比較することによって塩素消毒の影響を評価する。また、初期菌体濃度を算出するのが水質変換速度試験の目的である。

下に、硝化反応式を示す。アンモニアが硝化細菌 (Nitrosomonas) によって亜硝酸になり、亜硝酸は硝化細菌 (Nitrobacter) によって硝酸になる。これを硝化という。



6-5-2. 測定方法

水質変換速度試験 (バッチテスト) は、1000ml フラスコに下水処理水の塩素消毒前と塩素消毒後の試料を入れ、スターラーで攪拌する (図 6-2 に示す)。また、11 月より 500ml フラスコに河川水 (日野橋, 多摩川原橋, 調布取水堰, 丸子橋) を入れ、同様にバッチテストを行った。硝化反応の動向を読み取り易くするために、予め $\text{NH}_4\text{-N}$ 標準液を加えて濃度を十分 (約 5mg/L) に与えてから行った。



図 6.2 水質変換速度試験

6-5-3. 硝化細菌の初期菌体濃度の算出方法

硝化細菌の初期菌体濃度は、以下の (4) 式を用い、経過日数と水質変換速度試験で得たアンモニア性窒素の実験値へのカーブフィッティング法により算出した。ただし、(4) 式は硝化細菌の飽和定数に比べ十分な基質濃度条件の場合に適用できる。

$$dX / dt = (\mu - K_d)X \quad \dots(1)$$

$$X = X_0 + Y(S_0 - S) \quad \dots(2)$$

$$\mu = \frac{\mu_{\max} \cdot S}{K_s + S} \quad \text{Monod式} \quad \dots(3)$$

$$t = \frac{1}{\mu_{\max}} \cdot \ln \left\{ \frac{X_0 + Y(S_0 - S)}{X_0} \right\} \quad \dots(4)$$

X : 菌体濃度(mg/L), S : 窒素濃度(mg/L), μ : 比増殖速度(1/day), K_d : 死滅係数(1/day), μ_{\max} : 最大比増殖速度(1/day), K_s : 飽和定数(mg/L), Y : 増殖収率(mg/mg), t : 経過日数(day), 添字 $_0$: 初期値

温度条件： $\mu_{\max}=0.18\exp\{0.116(T-15)\}$ T:水温
 アンモニア酸化細菌の Y：0.098mg/mg

6-6. 測定結果

6-6-1. 測定項目の流下方向分布

(1) 水温の流下方向分布

図 6-3 に各測定日における水温の流下方向分布を示す。また、図 6-4 に A 下水処理場の放流水の測定日ごとの水温を示す。

図 6-4 より、下水処理場の水温は夏場 25～30℃、冬場約 20℃と河川水と比較して年間通して変動は小さい。

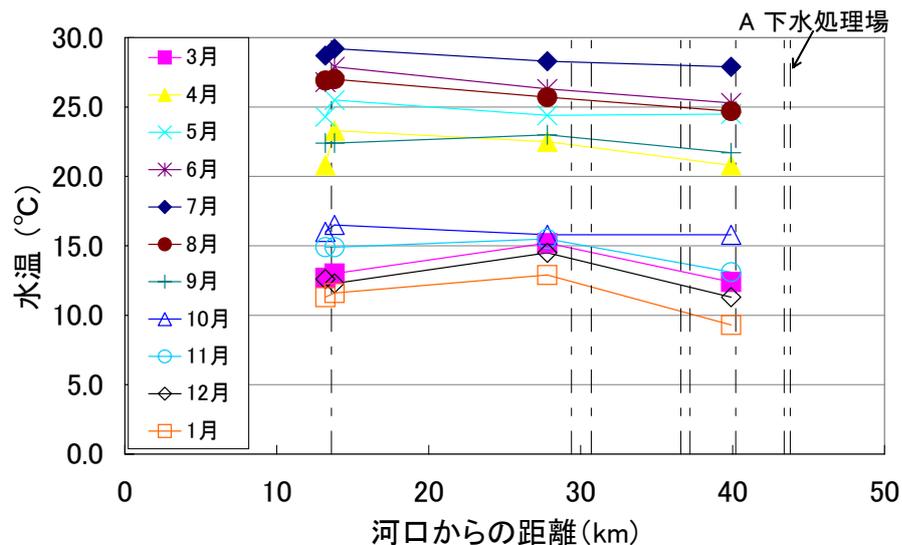


図 6.3 多摩川の水溫流下方向分布

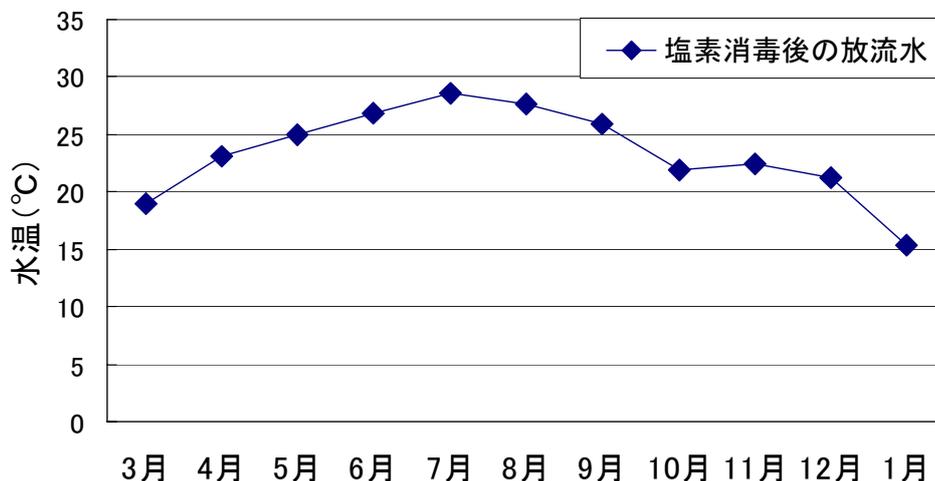


図 6.4 測定日における下水処理水の水温

(2) pHの流下方向分布

図 6-5 に各測定日における pH の流下方向分布を示す。また図 6-6 に A 下水処理水の塩素消毒前・後の処理水の測定日ごとの pH を示す。

図 6-5 より水温の高い夏場において河口に從うにつれて pH が上昇する傾向にある。これは、水温が上がり日光のある昼間において藻類の活性が盛んになるためである。

図 6-6 より塩素消毒前の処理水のほうが 0.3 程度高い値となった。

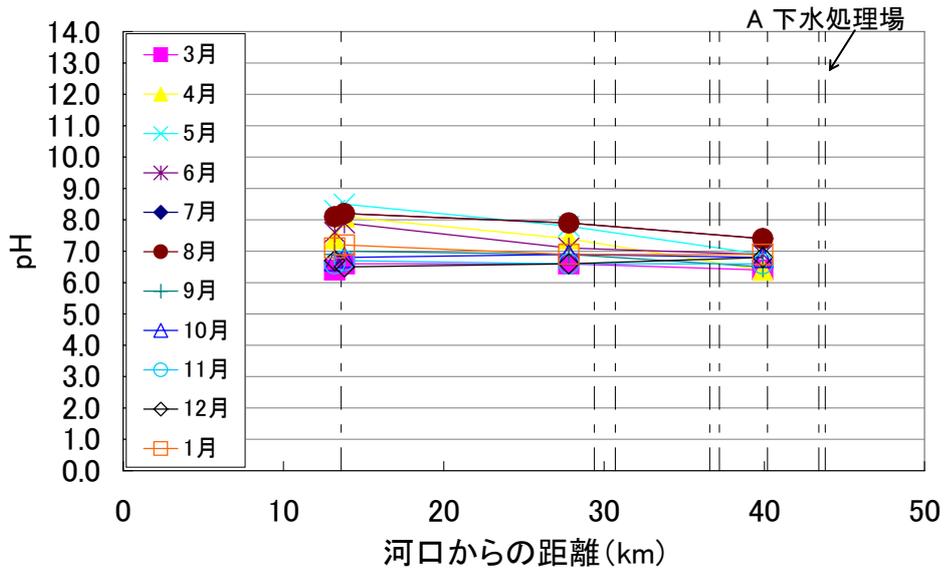


図 6.5 多摩川の pH 流下方向分布

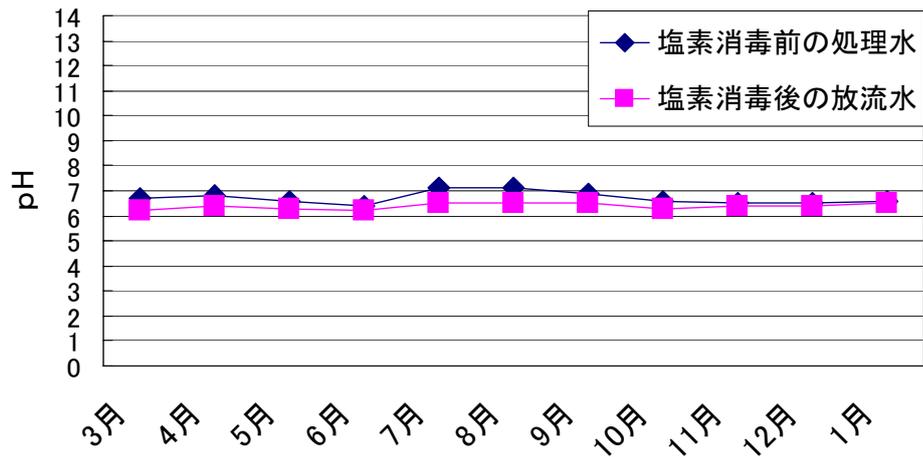


図 6.6 測定日における下水処理水の pH 濃度

(3) 残留塩素の流下方向分布

図 6-7, 図 6-8 に測定日ごとの残留全塩素濃度, 残留遊離塩素濃度の流下方向分布を示す. また図 6-9, 図 6-10 に A 下水処理水の塩素消毒前・後の処理水の測定日ごとの残留全塩素濃度を示す。

図 6-7, 図 6-8 より, 3月~7月の残留塩素濃度が8月~1月の濃度と比較すると極端に高い値となっている. これは, 残留塩素計を古いもの(3月~7月)から新しいもの(8月~1月)へと換えたことによる測定誤差であり, 旧残留塩素計では校正が出来なかったため3月~7月においてその値は信頼性にかける。

図 6.9, 図 6.10 より, 塩素消毒後に残留塩素が検出されることを確認できる。

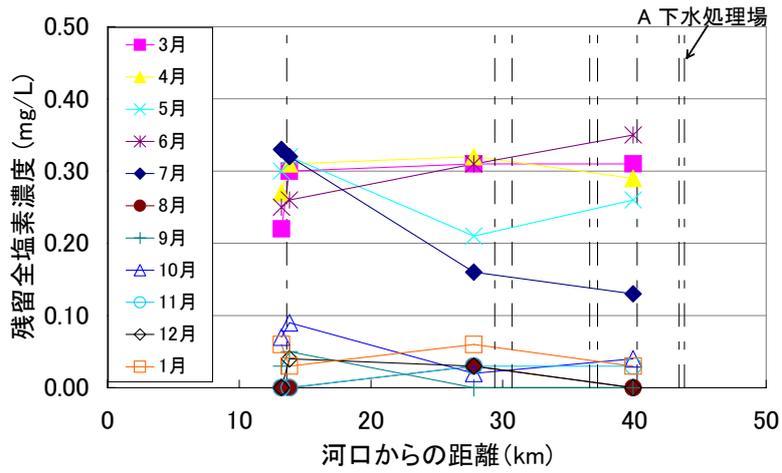


図 6.7 多摩川の残留全塩素濃度流下方向分布

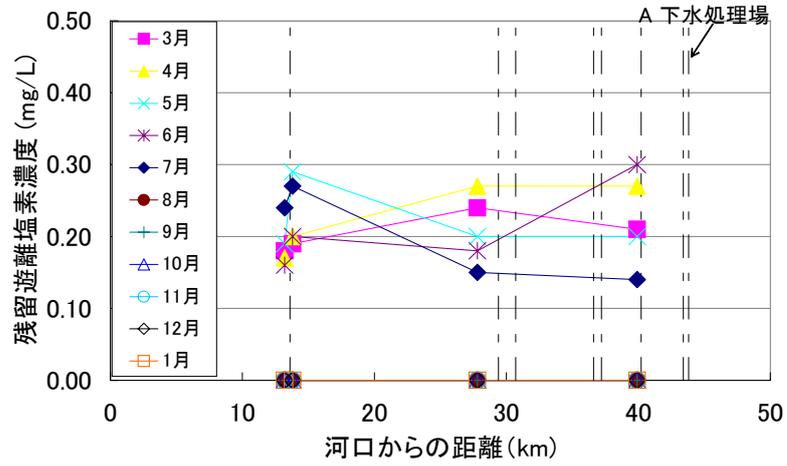


図 6.8 多摩川の残留遊離塩素濃度流下方向分布

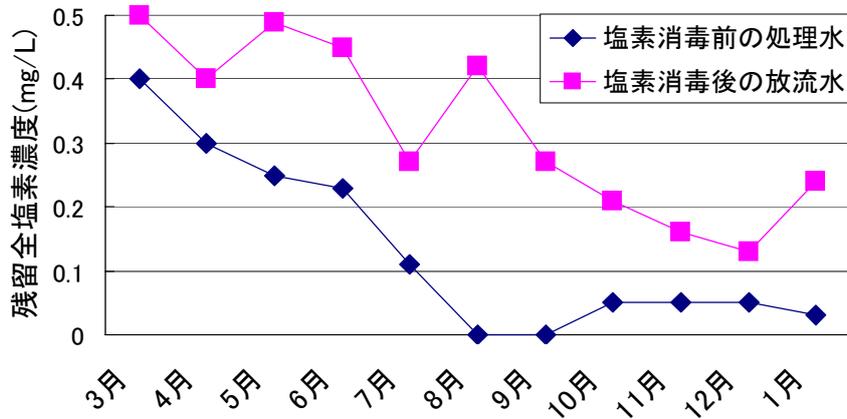


図 6.9 測定日における下水処理水の残留全塩素濃度

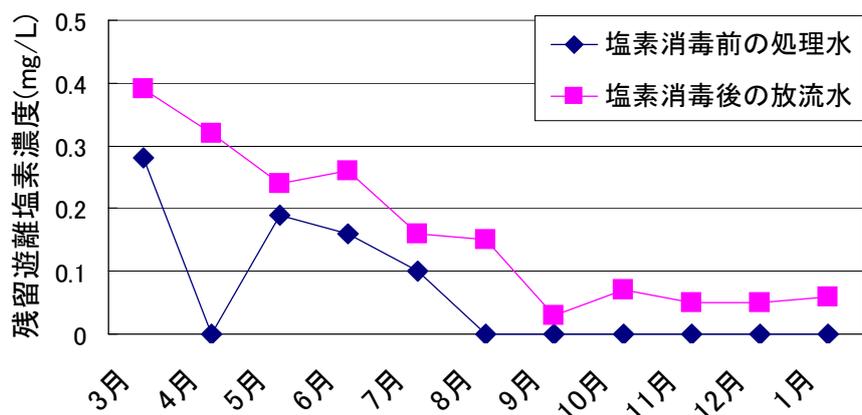


図 6.10 測定日における下水処理水の残留遊離塩素濃度

(4) DO および BOD 濃度の流下方向分布

図 6-11～図 6-21 に測定日ごとの DO および BOD の流下方向分布を示す。3 月と 4 月において N-BOD 濃度が高く Pt. 3 で 2mg/L を示し、下水処理水の混入に伴い N-BOD の濃度が高くなることが確認できる。これは、下水処理施設からの放流水が多いため下水処理水由来の微生物、アンモニア性窒素が多く存在し、有機物分解に加え硝化反応による酸素消費が増加したと考えられる。8 月以降の BOD 濃度は 2mg/L 程度と低く、N-BOD 濃度は 0.5mg/L 程度であり、低濃度であることが示された。また DO は高い濃度を維持しておりいずれも過飽和であった。

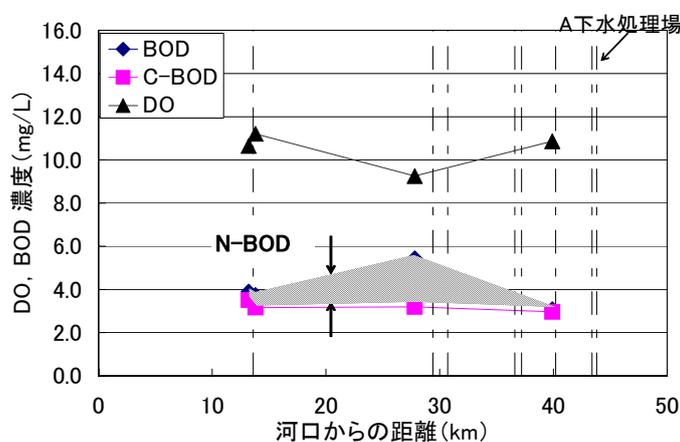


図 6.11 多摩川の DO, BOD 流下方向分布 (2004 年 3 月 25 日)

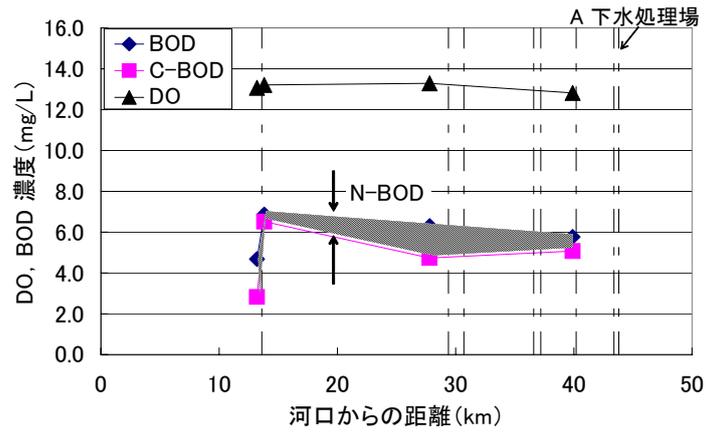


図 6.12 多摩川の DO , BOD 流下方向分布(2004 年 4 月 30 日)

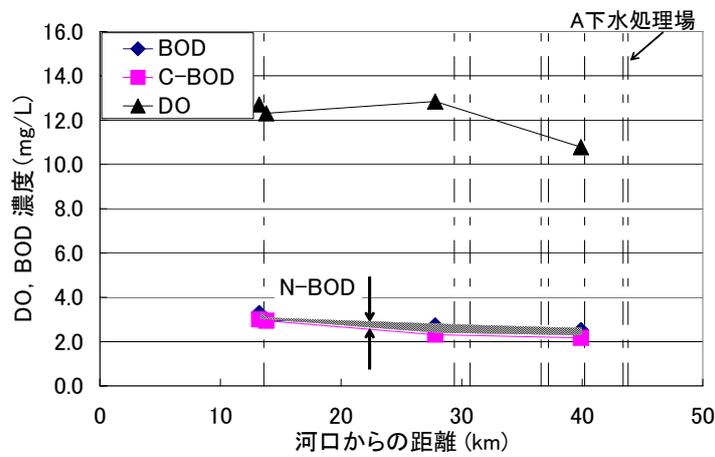


図 6.13 多摩川の DO , BOD 流下方向分布(2004 年 5 月 28 日)

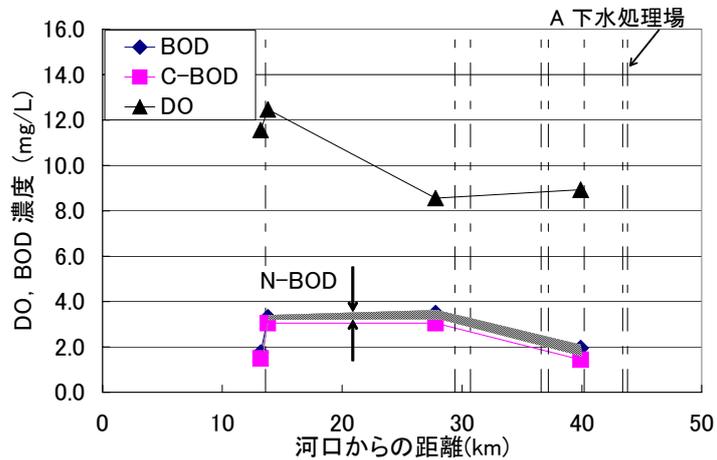


図 6.14 多摩川の DO , BOD 流下方向分布(2004 年 6 月 29 日)

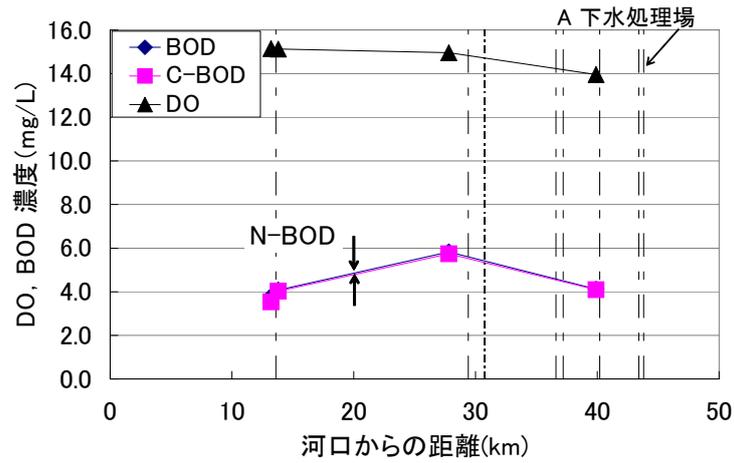


図 6.15 多摩川の DO , BOD 流下方向分布(2004 年 7 月 27 日)

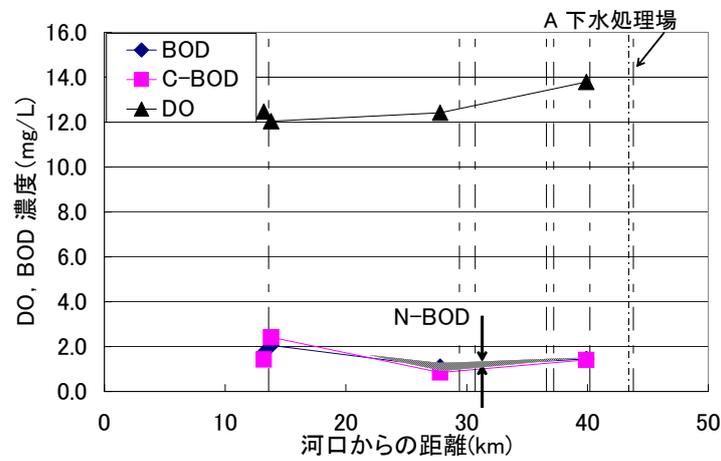


図 6.16 多摩川の DO , BOD 流下方向分布(2004 年 8 月 31 日)

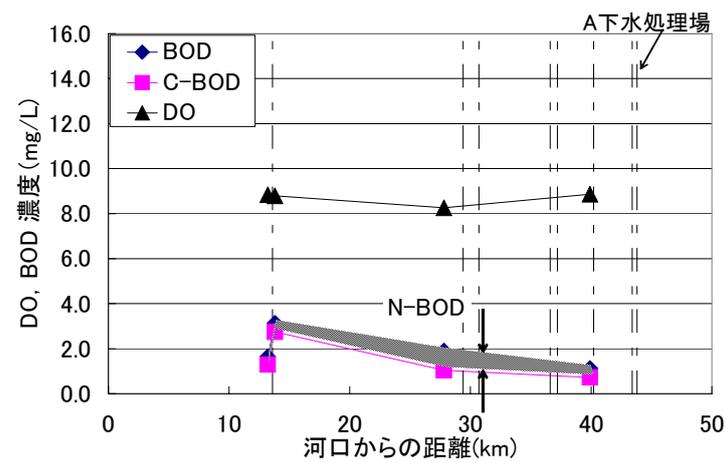


図 6.17 多摩川の DO , BOD 流下方向分布(2004 年 9 月 29 日)

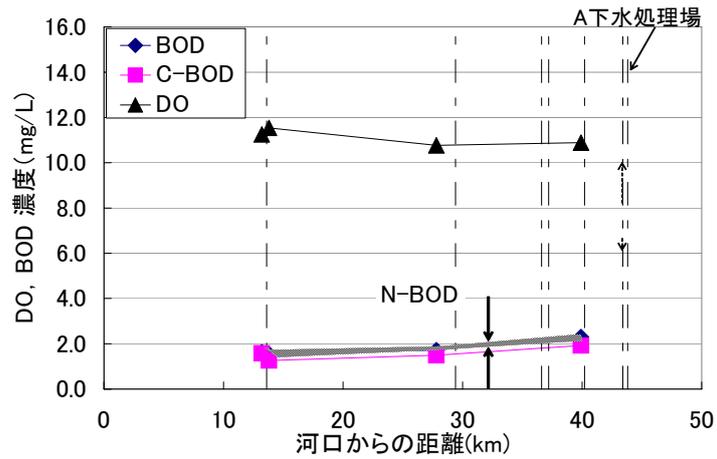


図 6.18 多摩川の DO , BOD 流下方向分布 (2004 年 10 月 27 日)

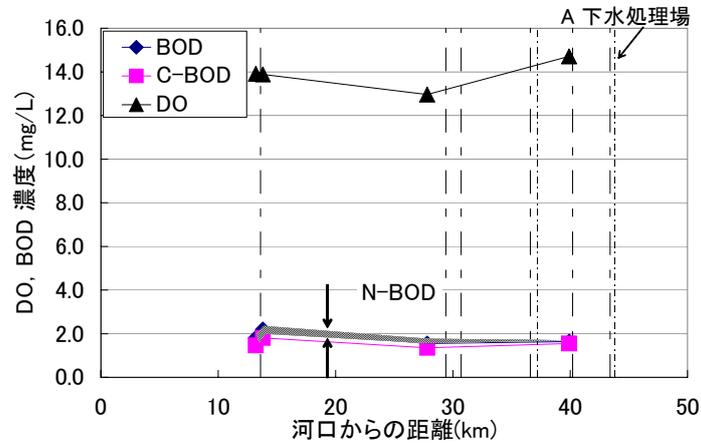


図 6.19 多摩川の DO , BOD 流下方向分布 (2004 年 11 月 18 日)

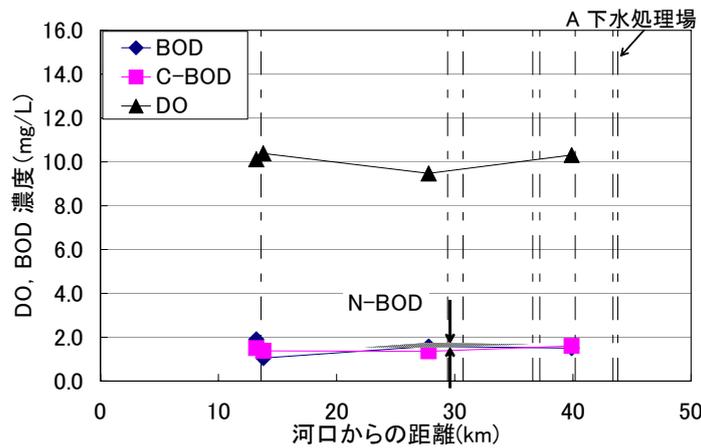


図 6.20 多摩川の DO , BOD 流下方向分布 (2004 年 12 月 15 日)

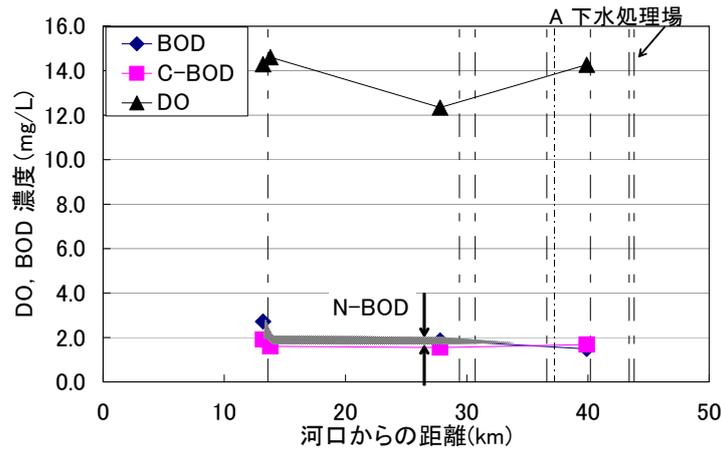


図 6.21 多摩川の DO , BOD 流下方向分布(2005 年 1 月 31 日)

(5) NH₄-N の流下方向分布

図 6-22 に測定日ごとの NH₄-N 濃度の流下方向分布を示す。また図 6-23 に A 下水処理水の塩素消毒前・後の処理水の測定日ごとの NH₄-N 濃度を示す。

図 6-22 より、上流側 (Pt. 5~Pt. 7) はほとんど NH₄-N は検出されず、下水処理場の放流水の影響のある (Pt. 5~Pt. 3) において NH₄-N 濃度は増加することが読み取れる。Pt. 1 は処理水の放流口がすぐ上流側にあるため、その放流量が NH₄-N の濃度に依存していると考えられる。

図 6-23 より、下水処理水の NH₄-N 濃度は平均して 0.4 程度の濃度である。また、4 月と 10 月が高い濃度を検出した。

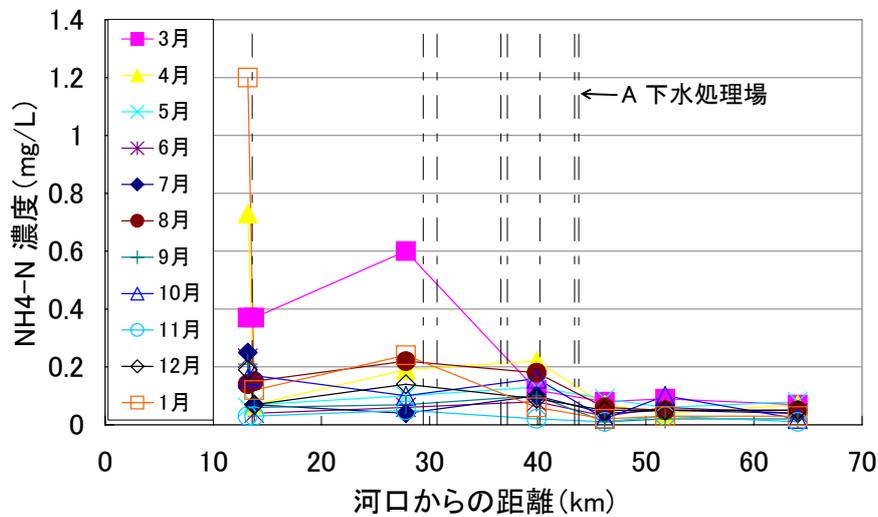


図 6.22 多摩川の NH₄-N 濃度流下方向分布

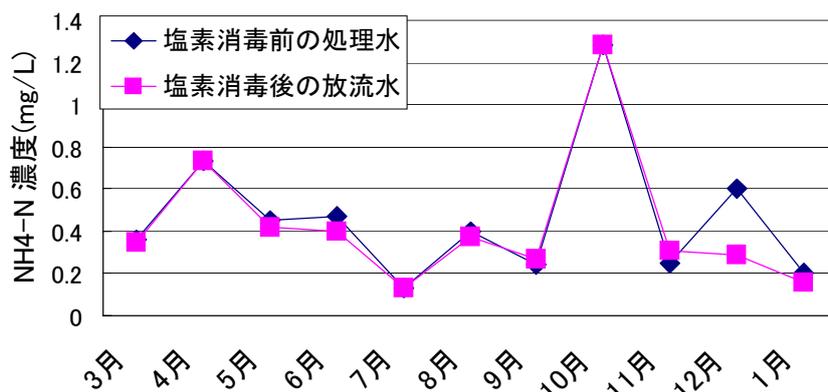


図 6.23 測定日における下水処理水の NH4-N 濃度

(6) TOC の流下方向分布

図 6.24 に測定日ごとの TOC 濃度の流下方向分布を示す。また図 6-25 に A 下水処理水の塩素消毒前・後の処理水の測定日ごとの TOC 濃度を示す。

図 6.24 , 図 6.25 より, 下水処理水の放流水の TOC は平均 9ppm 程度であり, 河川に放流することによって TOC は増加する (Pt. 5~Pt. 4) ことが読み取れる。

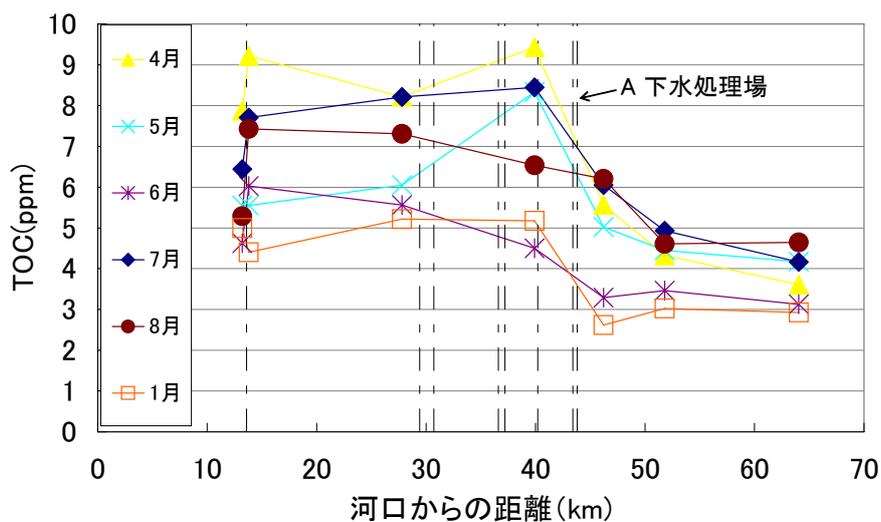


図 6.24 多摩川の TOC 流下方向分布

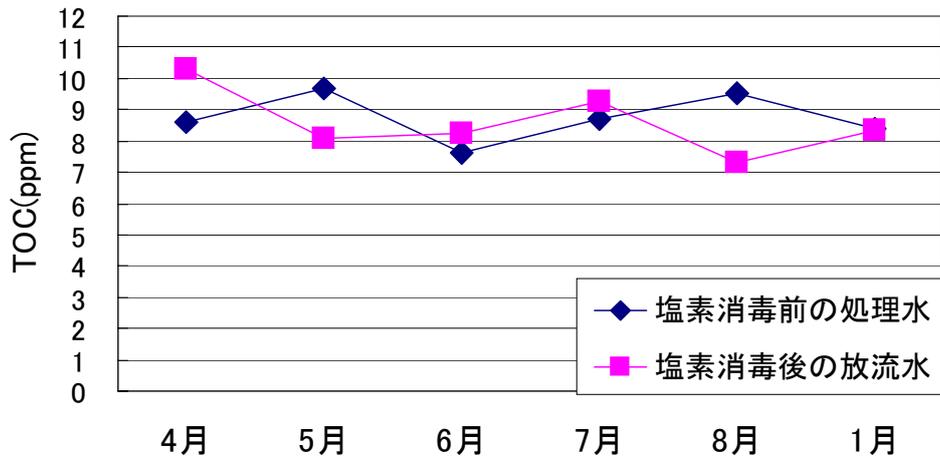


図 6.25 測定日における下水処理水の TOC 濃度

6-6-2. BOD と TOC との関係

図 6-26 に C-BOD (見かけ) と TOC の関係を下水処理水の塩素消毒前、塩素消毒後、下水処理水の影響のある河川 (Pt. 1, 2, 3, 4), 下水処理水の影響のない河川 (Pt. 5, 6, 7) の 4 つに分けて示した。河川水中では TOC 値が高いと C-BOD 濃度も高い傾向にある。しかし、下水処理水の塩素消毒前と塩素消毒後に注目すると、TOC は高いが C-BOD は 2mg/L 程度と低い値ではほぼ一定である。下水処理水は有機物処理されているので C-BOD は必然的に低い値となったと考えられる。また、下水処理水は難分解性の有機物が多く混入していると考えられる。

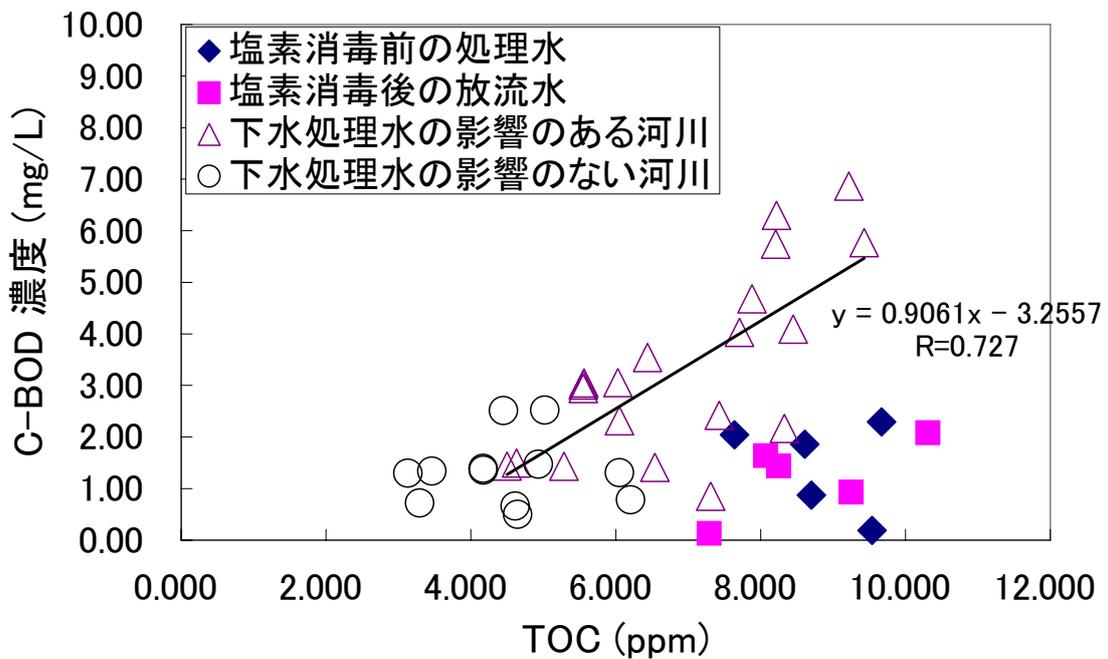


図 6.26 C-BOD と TOC の関係

6-6-3. N-BOD と NH₄-N との関係

図 6-27 に N-BOD（見かけ）と NH₄-N の関係を下水処理水の塩素消毒前，塩素消毒後，下水処理水の影響のある河川（Pt. 1, 2, 3, 4），下水処理水の影響のない河川（Pt. 5, 6, 7）の 4 つに分けて示す。グラフ全体を見ると，例外もあるが NH₄ が高いと N-BOD も高いことが確認された。N-BOD の理論計算値は，NH₄-N 濃度 1mg/L に対し 4.57mg/L である。

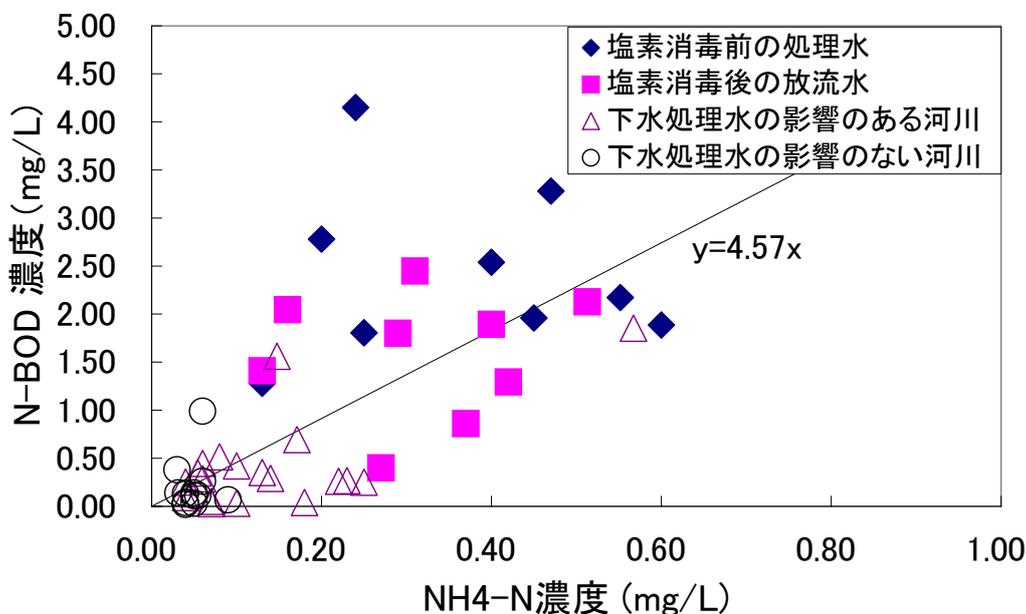


図 6.27 N-BOD と NH₄-N の関係

6-6-4. 下水処理場における塩素消毒による BOD 濃度変化

図 6-28 ， 図 6-29 に測定日ごとの A 下水処理場の塩素消毒前・後の処理水の BOD 濃度変化を示す。また表 6.1 に塩素消毒前に対する塩素消毒後の BOD 濃度比率を示す。

8, 9 月において最も塩素消毒後に BOD は減少している。これは，8, 9 月において残留塩素濃度が高い（4. 1. 1-③に参照）ことより，塩素消毒によって有機物が多く死滅したからである。また，N-BOD は，4 月，7 月以外の測定日において塩素消毒後に減少している。これは，塩素消毒によって遊離塩素がアンモニア性窒素と結合し，クロラミンとなり処理水に存在する硝化細菌の基質が減少したからと考えられる。

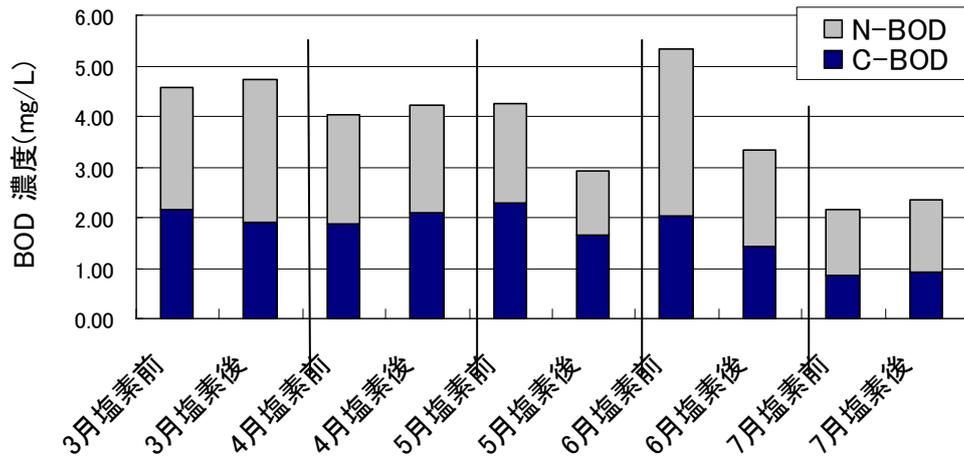


図 6.28 測定日における塩素消毒前・後の下水処理水の BOD 濃度 (2004年3月～2004年7月)

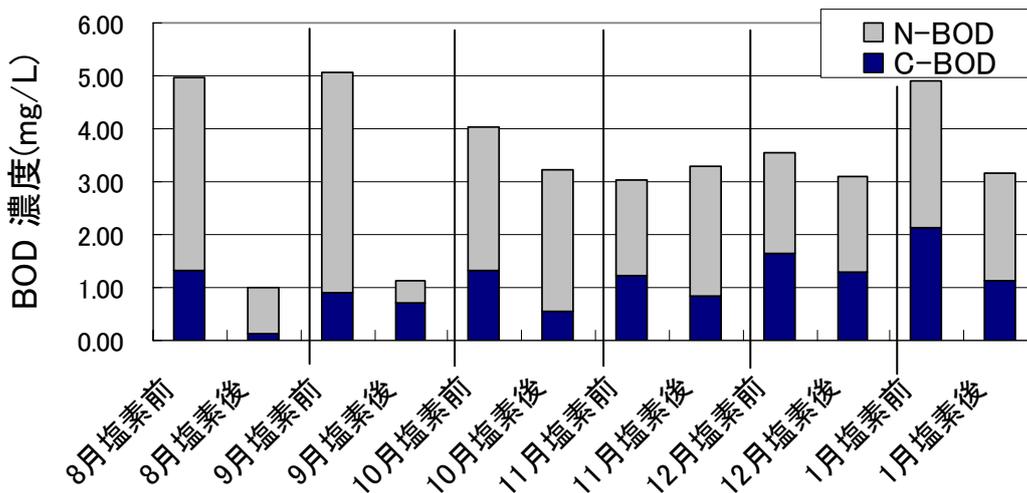


図 6.29 測定日における塩素消毒前・後の下水処理水の BOD 濃度 (2004年8月～2005年1月)

表 6-1 BOD 濃度減少率(塩素消毒前の処理水/塩素消毒後の放流水)

after/before	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月
BOD	1.04	1.04	0.69	0.63	1.09	0.20	0.22	0.79	1.09	0.87	0.65
C-BOD	0.89	1.12	0.72	0.71	1.07	0.10	0.80	0.41	0.69	0.78	0.53
N-BOD	1.17	0.98	0.66	0.58	1.10	0.24	0.10	0.98	1.35	0.95	0.74

6-6-5. 見かけの BOD と残留塩素除去した BOD との関係

図 6-30 に残留塩素除去した C-BOD と見かけ (無処理) の C-BOD との関係, 図 6-31 に残留塩素除去した N-BOD と見かけの N-BOD との関係を示す。図 6-30 より塩素消毒前の処理水と河川水において特質した値がある。これは, 残留塩素濃度が低いため残留塩素除去の測定誤差と言える。全体的に見ると残留塩素除去した C-BOD と見かけの C-BOD の誤差は小

さい。図 6-31 も同様な結果である。よって、下水処理場の塩素消毒による N-BOD の抑制効果は見られなかった。

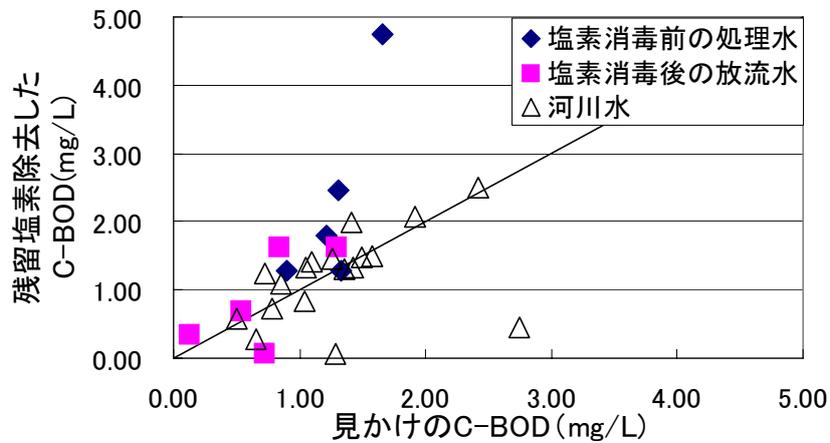


図 6.30 残留塩素除去した C-BOD と見かけの C-BOD の関係

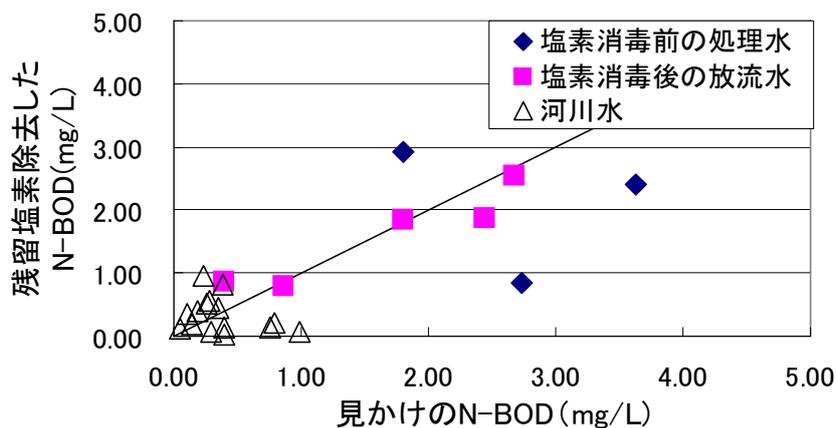


図 6.31 残留塩素除去した N-BOD と見かけの N-BOD の関係

6-6-6. 下水処理水と河川水における水質変換速度試験結果

(1) 硝化態窒素の経過日数変化

図 6-32, 図 6-33 に 7, 8 月の下水処理水 (塩素消毒前・後) における水質変換速度試験の結果を示す。ここで, Total-N は NH₄-N, NO₂-N, NO₃-N の合算である。

図 6-32, 図 6-33 より NH₄-N が NO₂-N になり, 次いで NO₃-N となる硝化反応の様子が読み取れる。また, 他の月においても塩素消毒後の処理水は硝化反応速度が抑制される結果となり, 塩素消毒の影響を確認できた。

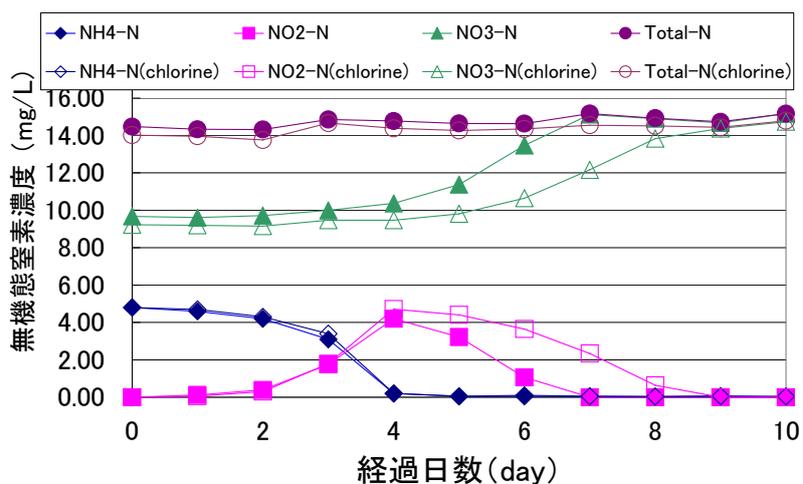


図 6.32 水質変換速度試験 (2004年7月27日)

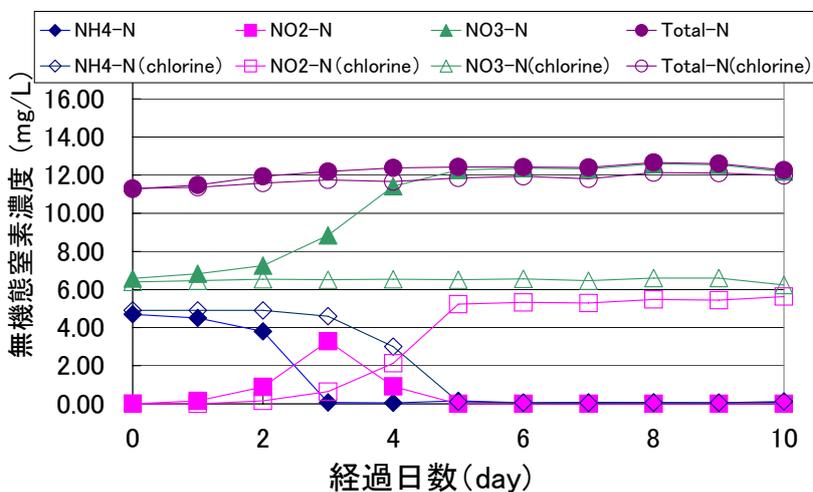


図 6.33 水質変換速度試験 (2004年8月31日)

(2) 硝化細菌の菌体濃度

図 6.34 にバッチテストより算出した測定日ごとの硝化細菌の初期菌体濃度の流下方向分布を示す。また、図 6.35 に A 下水処理水の塩素消毒前・後の処理水の測定日ごとの初期菌体濃度を示す。

図 6.34 より下水処理水が放流されることによって硝化細菌が増加することが確認 (Pt. 4~Pt. 3) できる。また図 6.35 より、塩素消毒によって硝化細菌は死滅することが示され、残留塩素濃度が高いことより、8月、9月において極端に塩素消毒後の菌体濃度が減少したといえる。

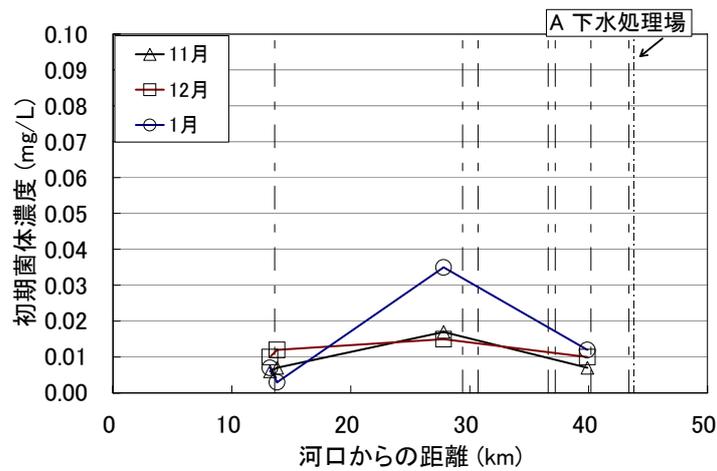


図 6.34 硝化細菌の初期菌体濃度流下方向分布

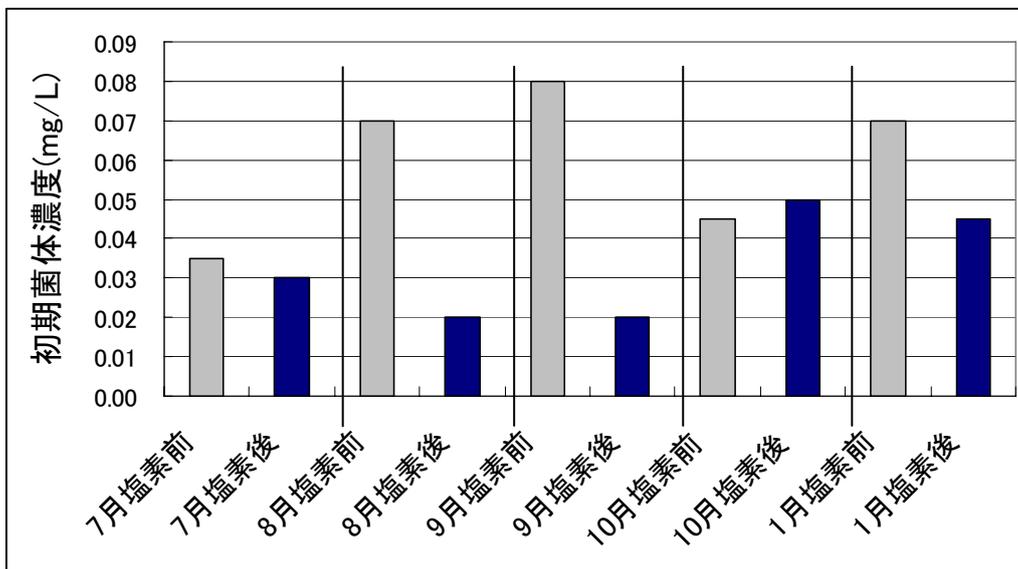


図 6.35 測定日における下水処理水の初期菌体濃度 (2004年7月～2005年1月)

(3) 硝化細菌と残留塩素の関係

図 6.36 塩素消毒前の処理水、塩素消毒後の放流水と河川水における硝化細菌の初期菌体濃度 X_0 と残留塩素濃度の関係を示す。塩素消毒によって下水処理水の初期菌体濃度は、回帰に示すように残留塩素濃度が高いほど減少する傾向と読み取れる。また、塩素消毒前に対する塩素消毒後の硝化細菌濃度の月ごとによる平均減少率は、37%となった。よって、塩素消毒により硝化細菌が死滅し菌体濃度は減少したと考えられる。

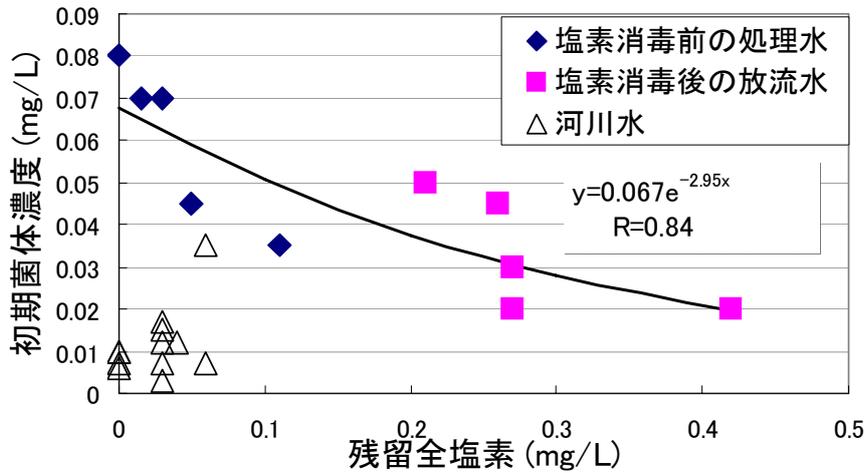


図 6.36 硝化細菌の菌体濃度と残留塩素濃度の関係

(4) 処理水に存在する硝化細菌の河川放流後の動向

図 6.37 に 1 月の河口からの距離に対する硝化細菌の初期菌体濃度を示す。

表 6.2 より 1 月のデータより下水処理場の放流水 (A 下水処理場, B 下水処理場, C 下水処理場) の Cl^- 濃度と拝島橋の Cl^- 濃度を足した値と日野橋の Cl^- 濃度より, 下水処理水の河川放流後の希釈率を算出した。ただし, 拝島橋から日野橋までに現地調査を行っていない 2 箇所 B, C の下水処理場があり, これらの下水処理場の放流水の Cl^- と硝化細菌の濃度は, A 下水処理場と同じ濃度と仮定して算出した。その希釈率は, 塩素消毒後の放流水の Cl^- 濃度 1 に対し日野橋の濃度 0.14 となった。図 6.37 より塩素消毒後の放流水の菌体濃度 (A 下水処理場, B 下水処理場, C 下水処理場) を 1 に対し日野橋の初期菌体濃度 0.09 となり, Cl^- 濃度より求めた 0.14 の希釈率と一致しない結果となった。よって, 下水処理水の硝化細菌は河川放流後に 35% 死滅したと考えられる。

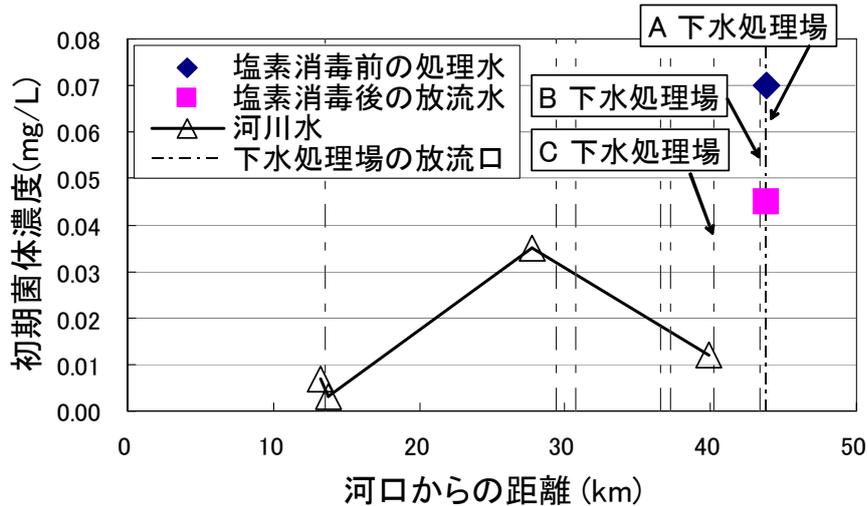


図 6.37 硝化細菌の菌体濃度流下方向分布 (2005 年 1 月 31 日)

表 6-2

	Pt.4日野橋	A下水処理場の放流水	Pt.5拝島橋
Cl ⁻ (mg/L)	21.1	49.5	4.8
菌体濃度(mg/L)	0.012	0.045	—

6-7. まとめ

本研究の結果として、以下の結論を得た。

- (1) 残留塩素除去した N-BOD と見かけの N-BOD を比較した結果より、下水処理場の塩素消毒による残留塩素濃度では、多摩川放流後に残留塩素濃度が 0~0.07mg/L と低い値であるため、残留塩素による N-BOD の抑制効果を確認できなかった。
- (2) 下水処理水の残留塩素が増加すると硝化細菌の濃度は減少する傾向にあり、塩素消毒によって硝化細菌が死滅していることが示された。また、拝島橋から日野橋間において下水処理場から放流された硝化細菌は、河川放流後に 35%程度死滅することがわかった。
- (3) N-BOD 試験を用いることにより、河川水中の残留塩素など下水処理水の影響を評価する河川指標とすることが可能であることが示唆された。

7章 多摩川における C-BOD の有機物汚濁指標としての有効性の検討

7-1. 研究の背景と目的

我国では河川水質環境の改善を目的として、昭和 45 年に公共用水域および地下水を対象として、汚濁防止法が制定された。昭和 46 年には、汚濁防止法に BOD（生物化学的酸素要求量）が新たな測定項目として追加されるとともに、公害対策基本法の水質汚濁に係る環境基準にも BOD が採用されることとなった。それ以降、BOD は河川の有機汚濁の程度を示す最も一般的な指標として用いられ、これらの法規制や下水道の整備などの施策により、昭和 30 年代の高度成長期に見られた深刻な河川の汚濁は、昭和 50 年代には抑制され、近年では、全国の河川での BOD 基準値の達成率は 80% を超え、河川の有機汚濁は改善されてきている。しかし、一部の都市河川では BOD の急速な低下が見られていない。その原因として、下水処理場や下水処理水（再生水）が流入する河川では、BOD 値には有機汚濁由来の C-BOD のほかにアンモニア性窒素に由来する N-BOD が含まれていることが指摘されている（亀田, 2000）。したがって N-BOD 値の高い河川では、BOD 値（C-BOD+N-BOD）は有機汚濁の指標とは言えない状況が生じている。アンモニア性窒素（NH₃-N）の増加の要因としては、下水処理場の二次処理過程での硝化細菌の増殖、し尿などのアンモニア性窒素を含む生活廃水の下水処理水への流入などが挙げられ、BOD に対する正確な評価を困難なものとしている。有機汚濁の現状や BOD のさらなる改善のためには、下水処理場および下水処理場の放流水が、BOD にどのような影響を与えているかについて、多くの都市河川で評価することが必要である。しかし、これらの評価がされている水域は少ない。本研究では多摩川の本流、支流、下水処理場を対象として BOD, C-BOD, N-BOD 値を測定すると共に、C-BOD 指標性について有効性の検討を行った。

7-2. BOD、C-BOD および N-BOD の層別分析

本研究の全期間を通じ、全調査地点で得られたデータの BOD, C-BOD, N-BOD に関する基本統計量について、本流、支流、処理場の 3 つの階層に分けて層別分析を行った（表 7-1、7-2、7-3）。

表 7-1. 本流（7 地点）の基礎統計量

変数名	データ数	平均値	標準偏差	変動係数	ひずみ	とがり
BOD	137	2.057	1.4919	0.7253	-0.051	3.733
C-BOD	137	1.7717	1.34358	0.7584	-0.013	4.38
N-BOD	137	0.2849	0.41223	1.447	0.186	12.624

表 7-2. 支流（3 地点）の基礎統計量

変数名	データ数	平均値	標準偏差	変動係数	ひずみ	とがり
BOD	18	3.1228	2.22987	0.7141	1.832	4.528
C-BOD	18	2.7672	2.11524	0.7644	1.689	3.854
N-BOD	18	0.3578	0.20919	0.5847	1.342	1.495

表 7-3. 下水処理場（2 地点）の基礎統計量

変数名	データ数	平均値	標準偏差	変動係数	ひずみ	とがり
BOD	38	3.0145	1.33367	0.4424	-0.212	-0.78
C-BOD	38	1.0553	0.8954	0.8485	-0.406	-0.114
N-BOD	38	1.9592	1.01302	0.5171	0.663	0.564

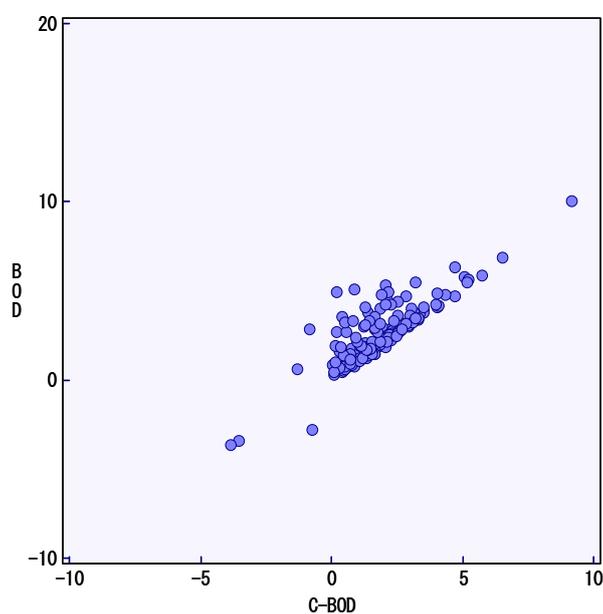
BODの本流での平均値は2.06 mg/mlで、支流と処理場と比較して低い値を示した。支流のBODの平均値は3.12 mg/mlで、下水処理場よりもやや高い値を示した。BODに占めるC-BODの値は本流の平均で86.1%、支流で88.6%、下水処理場ではわずかに35.5%であった。本来、BODは、微生物による有機物分解に伴う酸素消費であり、BOD値はC-BODと等しいとの前提にたっていたため、有機物の汚濁指標として用いられてきた。しかし、本研究からも、多摩川では、硝化細菌によるアンモニア性窒素の硝化に伴う酸素消費であるN-BODも含まれていることが明らかにされた。特に、下水処理場では、BODに占めるC-BODの割合は著しく低下しており、N-BODが65.5%を占めた。このことから、下水処理場および処理水が放流される流下では、BODを有機物の汚濁の指標として用いると誤った評価を与えることになると言える。したがって、多摩川では、従来のBOD値に代わって、有機物の汚濁の指標としてはBOD値からN-BOD値を差し引いたC-BODを用いるのが妥当であると結論された。

7-3. BOD、C-BOD、N-BODの関係性の解析

全データに対する相関係数行列と散布図を以下に示す。

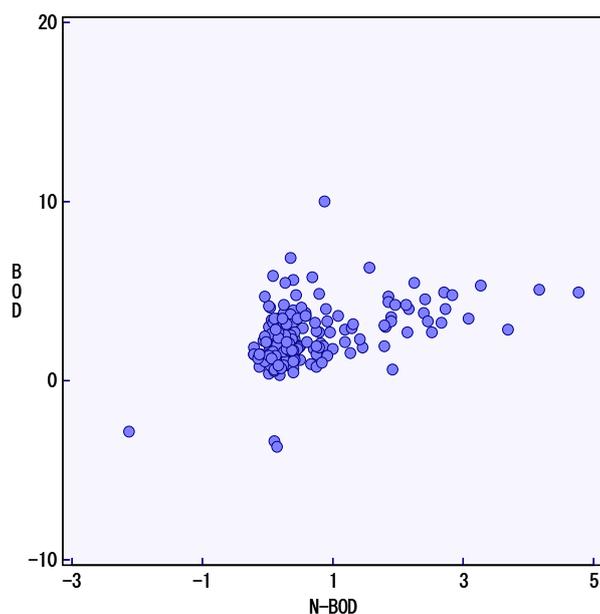
表 7-4. 全データに対する相関係数行列

変数名	BOD	C-BOD	N-BOD
BOD	1	0.839++	0.467
C-BOD	0.839++	1	-0.088
N-BOD	0.467	-0.088	1



項目	横軸	縦軸
変数番号	29	28
変数名	C-BOD	BOD
データ数	193	193
最小値	-3.810	-3.670
最大値	9.150	10.020
平均値	1.7235	2.3449
標準偏差	1.42180	1.60131
相関係数	0.839	

図 7.1 全データの「BOD」と「C-BOD」の散布図



項目	横軸	縦軸
変数番号	30	28
変数名	N-BOD	BOD
データ数	193	193
最小値	-2.110	-3.670
最大値	4.770	10.020
平均値	0.6213	2.3449
標準偏差	0.87380	1.60131
相関係数	0.467	

図 7.2 全データの「BOD」と「N-BOD」の散布図

上記の結果から、BOD と C-BOD は、相関係数で 0.839 と、かなり強い正の相関関係があることがわかる。しかしながら、BOD と N-BOD については強い相関は見られない。相関係数でも 0.467 程度である。

そこで、相関関係があまり強く見られなかった BOD と N-BOD についてさらに詳細に分析し、その結果を以下の層別した散布図に示す。

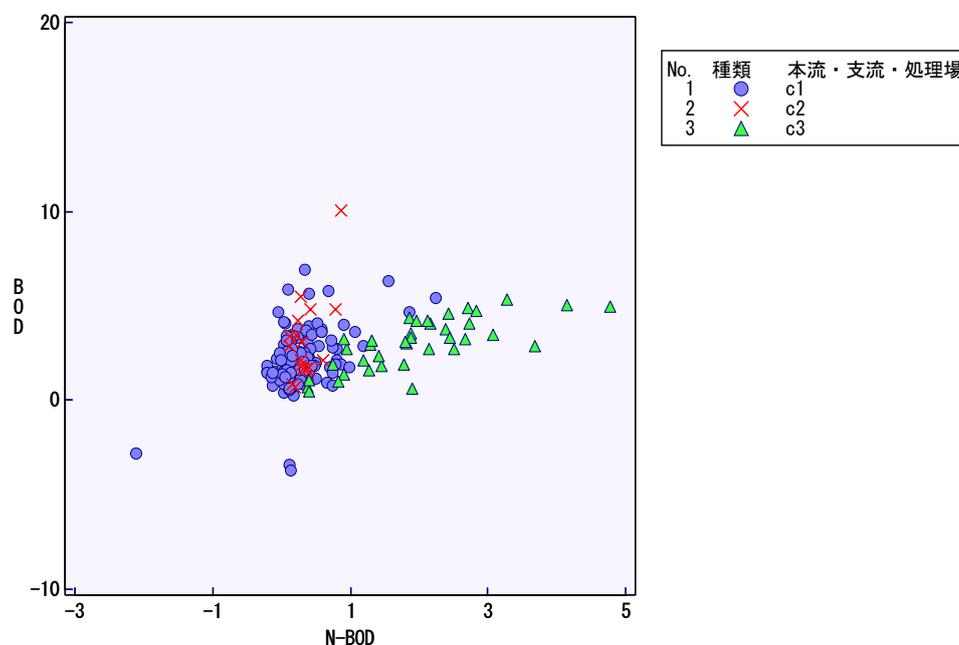


図 7.3 本流・支流・処理場別による層別散布図

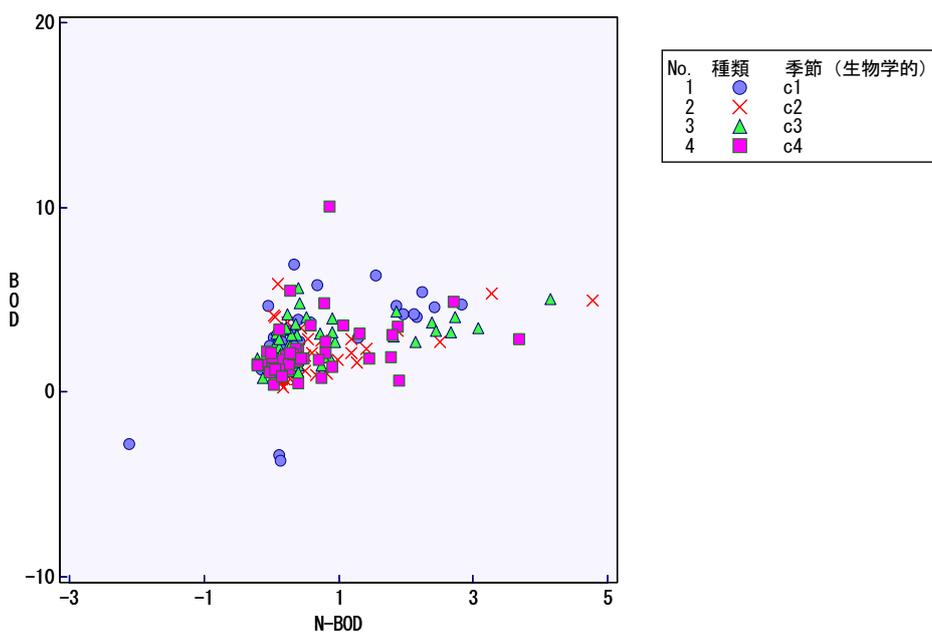


図 7.4 季節別による層別散布図

以上の結果から明らかなように、季節による関係性の変化が見られないが、本流・支流・処理場別に見ると、とくに△の処理場において BOD と N-BOD に正の相関関係があることが見て取れる。すなわち、全体の散布図において相関性が見られなかったのは、本流と支流、処理場において、傾向の異なる 3 つの相関関係が混合された結果、全体として傾向が見えなくなっていたことが伺える。これを検証するために、層別後の相関係数行列を示す。

表 7-5. 流域による層別した相関係数行列 (本流：データ数 140)

変数名	BOD	C-BOD	N-BOD
BOD	1	0.963++	0.48
C-BOD	0.963++	1	0.227
N-BOD	0.48	0.227	1

表 7-6. 流域による層別した相関係数行列 (支流：データ数 60)

変数名	BOD	C-BOD	N-BOD
BOD	1	0.997++	0.58
C-BOD	0.997++	1	0.513
N-BOD	0.58	0.513	1

表 7-7. 流域による層別した相関係数行列 (処理場：データ数 40)

変数名	BOD	C-BOD	N-BOD
BOD	1	0.651+	0.742+
C-BOD	0.651+	1	-0.027
N-BOD	0.742+	-0.027	1

この結果、BOD と C-BOD については、本流と支流において相関係数 0.9 以上の非常に強い相関関係があることがわかった。しかし、処理場においては、その関係性は低下する (相関係数 0.651)。したがって、本流と支流では、今後、C-BOD 値を有機物の汚濁指標に用いても過去の BOD 値との比較が可能であると言える。

一方、BOD と N-BOD については、逆に処理場において相関関係が高まる傾向がある。このように、本流と支流では BOD と C-BOD、処理場では BOD と N-BOD にそれぞれ強い相関があり、流域別で見た時の関係性の差異に特色が見られた。

同様に、季節別でも層別して相関係数行列を求めたが、季節による大きな関係性の差異は見られなかった。

以上の分析から、水質評価の指標として、BOD と C-BOD の 2 指標はお互い相関性が高いため、両者の値の比較が可能であり、従来の BOD でもある程度 C-BOD の代用として用いることも可能であり、とくに本流と支流においては、非常に強い正の相関関係が認められた。しかし、処理場においてはその関係性は下がり、代わって BOD と N-BOD の相関関係が強まった。処理場では高い N-BOD による BOD が高い値に引き上げられているため、BOD を C-BOD の代用として用いることはできないことが明らかになった。

下水処理水への影響指標としての N-BOD これまで有機汚濁の指標として用いられてきた BOD の水質評価をより正確にするためにも、下水処理場のある河川および再生水を利用している河川では、今後 C-BOD と N-BOD を指標として用いることを提案したい。

Summary : Resarch Outline and Future Applications

Using New Microbial and Chemical Indicators to Measure the Tama River Water Quality and an Evaluation of these Indicators' Validity

Hiromi kobori, Hiroshi Nagaoka and Masahisa Takasago

Research Outline: The water flowing through Japan's urban centers is undergoing major changes as a result of human activity. Therefore, new indicators for monitoring microorganisms and chemicals are needed to assess water quality before taking measures to address the situation. In our study, in order to analyze the Tama River's water quality, we selected the following five microbial and chemical indicators: 1. Counting fecal coliform to assess presence of disease causing bacteria; 2. Monitoring frequency of drug-resistant *E. coli* to assess potential risks to public health; 3. Using N-BOD as an indicator to monitor residual chlorine concentrations of water released from sewage treatment plants; 4. Using C-BOD as an indicator of organic pollutants present in river water; 5. Analyzing chloride and sodium ions to assess the overall impact of human-caused pollutants on the river system.

Using the above indicators, we monitored water quality at twelve stations in the Tama River. From June 2003 to January 2004, we took samples once a month at each of the stations. The effectiveness of each indicator was then evaluated.

Future Applications:

Each of the indicators we studied showed great potential for future use.

1. As fecal coliform counts are more accurate than total coliform counts, and there is no correlation between results of the two, fecal coliform counts should be used to assess risks to public health caused by bacteria.
2. The frequency of drug-resistant *E. coli* among isolates taken from the Tama River is extremely high (55.5%). Because this phenomenon—a direct result of human activities—is a potential risk to human health, monitoring the frequency of drug-resistant *E. coli* can be used to assess water safety.
3. After comparing N-BOD values of water containing residual chlorine with water where residual chlorine was removed before testing, it was concluded that N-BOD is a useful indicator to monitor residual chlorine in water released by sewage plants. It has

been said that the activity of nitrifying bacteria influences many chemical compounds; therefore, we anticipate the development of new water quality indicators utilizing N-BOD for monitoring the influence of sewage treatment facilities' emissions on their surrounding environment.

4. BOD is currently used as an indicator of organic pollutants; however, because of the presence of N-BOD resulting from sewage treatment plant emissions, BOD is not a precise indicator of organic pollutants. C-BOD, a figure obtained after subtracting N-BOD from BOD, is a more precise indicator of organic pollution in rivers.

5. A quantitative analysis of various inorganic anions and cations, including nutrient salt ions, was carried out. Looking at the results, it became clear that the concentration of chloride ions in contaminated sewage water is a useful indicator of inorganic water pollution. The chloride ion is considered to be an effective indicator, as it cannot be removed during sewage treatment and does naturally dissipate after entering a river.

参考文献

- 荒川宣親(1998), 薬剤耐性菌の出現と蔓延 p. 49-51 平成 10 年度食品保健特殊技術講習会
Akira Ishii, I. Kichiji Ishii., Kenichi Kameyama., and Izumi Yamauchi. 1998. Effect
of Treated Wastewater on Rivers Prog Water Pollut Control Jpn Vol. 1998. Page76
~96.
- Bell, J. B., C. E. Elliott, and D. W. Smith (1983) Influence of treatment and
urbanization on selection of multiple resistance in fecal coliform populations
E. Ishitobi., Okamoto. K., and J. Amemiya. 1990. Epidemiological Survey of
Drug-resistant *Escherichia coli* Isolated from the River Water in Kagoshima
Prefecture, *Mem. Fac. Agr. Kagoshima Univ.*, 26, pp. 69-76.
- 古田 正次 2002. 木曾川水質データの時系列解析. 愛知県環境センター所報
30、37~43.
- 平松啓一. 2002. 耐性菌感染症の理論と実践~耐性菌感染症への対応~, 医薬ジャーナル社.
橋本一 2000. 薬はなぜ効かなくなるか, 中央公論新社.
- 岩根泰蔵、山本和夫、川本尋義、福土謙介、島崎大(2003), 河川中および下水中におけるア
ンピシリン耐性大腸菌の分布ならびに大腸菌群および腸内細菌科細菌を対象とした測定
結果との比較 No. 727/VII-26, p. 1-12 土木学会論文集
- 市川新 1997. 多摩川: そのエコバランス, pp. 21, 58-72, 87-95. ソフトサイエンス社.
院内感染対策研究会. 1999. 抗生物質感受性状況調査報告 1999, (財)医療情報システム開
発センター.
- 伊藤 正幸・伊藤 光男・小野内隆英・坂部 孝夫・佐野 方昂・鶴田 藤作・ 1984.
窒素・リンからみた豊川流域河川の特徴. 愛公セ所報 No12、41~47.
宇井 卓二・平田 房雄 1977. 浅川水系湯殿川の水質調査. 東京工業高等専門学校
研究報告書第 9 号 (1977) .
- 菅野治重 1999. 薬剤感受性検査法の手引き, pp. 1-17. 株式会社メディカルアシスト.
環境 GIS <http://www-gis.nies.go.jp/>
- 亀田泰武, 渡部春樹, 金井重夫, 野村充伸 (2000) 新版下水処理
- 宮本英樹(2000), 細菌の逆襲が始まった 河出書房新社
- 三橋進・五島瑛智子・清水喜八郎編 1985. 薬剤耐性菌による環境汚染, 学会出版センター.
森下日出旗、川合真一郎、藁科宗博、北野雅昭、江川文雄. 1984. 大阪市内における汚染と
バクテリアの挙動. 大阪市立環境科学研究所報告 調査・研究年報. No. 47 p. 108-119
- 並木博. 1999. 詳解 工場排水試験方法[改訂 3 版]. 日本規格協会.
日本下水道協会. 1997. 下水道試験法 (上巻), pp. 93, 110, 127, 693, 696-720.
日本水道協会. 2001. 上水試験法解説編, pp. 157, 192, 198, 221, 822-827, 836-838,
846-848.
- 大羽美香、奥昭伸、小林信之、鈴木照之、長井雅人、阿部晋吾、斉藤卓弥、斉藤孝市、江成
敬次郎、伊崎和夫(1999), 仙台市の河川中の糞便性大腸菌群数と薬剤耐性大腸菌の存在
第 22 巻 第 7 号 p. 608-612. 水環境学会誌
- 高橋義人・平田 房雄 1982. 浅川水系の水質調査. V. 東京工業高等専門学校研究報
告書第 16 号 65~68.
- 東京都環境局環境評価部広域監視課編. 2002. 平成 13 年度公共用水域及び地下水の水質測
定結果, p. 40.
- 横浜市環境保全局水質地盤課編. 2001. 横浜の川と海の生物. p. 5.
- 横浜市公害研究所. 1989. 水域生物指標に関する研究報告書. pp. 35-39.
- 財団法人河川環境管理財団 2001. 多摩川水系河川整備計画読本, pp. 12, 28, 70.

謝辞

本研究は、財団法人・とうきゅう環境浄化財団の助成を受け、当初の研究目標を達成することが可能となった。心より感謝の意を表す。

3章の3-3-5および7章の統計解析は後藤正幸助教授（武蔵工業大学環境情報学部）にお引き受けいただいた。また、フィールド調査および分析は以下の武蔵工業大学工学部および環境情報学部の修士課程学生および学部学生に助力をいただいた。厚くお礼を申し上げる。

研究協力研究者 後藤正幸助教授（武蔵工業大学環境情報学部）

研究協力者（学生） 伊藤彰、岡谷圭吾、星貴人、飯野道代、松崎隆行、近祥晴、近藤美穂
（武蔵工業大学 環境情報学部）
菱沼貴政、大野愛利（武蔵工業大学工学部研究科・都市基盤工学科）
奥津健太郎、馬場ひとみ（武蔵工業大学工学部 都市基盤工学科）

「^{た ま がわ}多摩川の^{すいしつかんきょう}水質環境の^{へんか}変化に^{たいおう}対応した^{あら}新たな

^{びせいぶつ}微生物・^{かがくしひょう}化学指標による^{げんじょうはあく}現状把握と^{しひょうひょうか}指標評価」

(研究助成・学術研究 VOL. 34-NO. 257)

著 者 ^{こぼり}小堀 ^{ひろみ}洋美

発行日 2006年3月31日

発行者 財団法人 とうきゅう環境浄化財団

〒150-0002

東京都渋谷区渋谷1-16-14 (渋谷地下鉄ビル内)

TEL (03) 3400-9142

FAX (03) 3400-9141