

(1) 河床生物膜の組成と水質浄化能

—都市内河川で例として—

COMPOSITION AND ITS WATER PURIFICATION ABILITY
OF BIOFILM ON RIVER BED.

— EXAMINING URBAN RIVERS FOR INSTANCE —

橘 治 国^{*1}, 森 口 明 彦^{*2}

Harukuni TACHIBANA^{*1}, Akihiko MORIGUCHI^{*2}

井 上 隆 信^{*3}, 木 村 直 人^{*4}, 大 室 敏^{*5}

Takanobu INOUE^{*3}, Naoto KIMURA^{*4}, Satoshi OMURA^{*5}

ABSTRACT ; Our research object is to show water purification ability of biofilm attached to river bed. we report the findings of our reserch on chemical and biological composition and formation condition of biofilm on river bed of the urban rivers of Sapporo city. We summarize the findings as follows;

- (1) The average chemical composition of biofilms attached to cobbles is carbon, about 60%, and nitrogen, about 7%. It is close to the composition of ordinary micro-organisms.
- (2) The algae with diatoms and green algae as the main constituents are dominant on biofilm on river bed. The proportion of aerobic bacteria shows an increasing tendency as the amount of biofilm gains more in quantity.
- (3) The water velocity and water quality have much influence on removal rate of nutrients.
- (4) We could confirm the removal of nutrients by biofilm on river bed as one way of water purification.
- (5) The removal rate of nitrogen by algae is the largest under light condition. In the case of phosphorus, there is no difference under light and dark conditions, and it seems to have a removing system besides biological activities.
- (6) The concentration of phosphorus in water controls the removal rate of nutrients of biofilm on river bed.
- (7) Others.

KEYWORDS ; Biofilm, River bed, Water purification, Nutrients

1. 緒 言

昭和30年から40年代の有機汚濁が著しい時代から設定された環境基準をほぼ満足できるようになった現在、栄養塩による富栄養化の防止対策が今後の水管理上の大きな課題となっている。そこで河川における水質の浄化作用の一つとして、河床生物膜による水中栄養塩の摂取すなわち除去をとりあげることができる。反応性に富む栄養塩を短時間で生物体構成成分に変換し、下流の水棲生物に対し利用可能性の低い状態にしてしまうわけである。生物膜構成生物の増殖は一次生産物つまり汚濁負荷の増加にもなるが、例えば文献^{1), 2), 3)},

*1 北海道大学工学部 Department of Sanitary Engineering, Hokkaido University.

*2 水産庁漁港部 Fishing Port Department, Fisheries Agency of Japan.

*3 国立公害研究所水質土壌環境部 Water and Soil Environment Division, the National Institute for Environmental Studies.

*4 荏原インフィルコ Ebara-Infilco Co., Ltd.

*5 安田信託銀行 Yasuda Trust and Banking Co., Ltd.

これらが海域を含めて藻類を中心とした良質な餌の生産と考えることもできるし、蓄積した栄養塩が主に増水時に剥離流出するとすれば、例えば文献⁴⁾、その河川浄化への期待は大きくなる。(以上の点については、筆者が文献⁵⁾で纏めた。)生物膜の機能に対して以上のような仮定を設定し、まず河川の生物膜の組成や栄養塩摂取の実態の把握を試みた。今回は、都市内河川を対象に、河床礫に付着した生物膜の組成とその組成に影響を与える環境因子について調査し、また現場生物膜の栄養塩摂取速度の測定結果から、水質浄化の可能性について検討した結果について報告する。研究の結果を利用して河川浄化能力の計算が可能であるが、水理条件の差によって浄化率の値に変動が大きいことや河床の生物膜存在量の分布が正確に予測できないため、ここでは現象の記述に留める。

2. 研究方法

2・1 対象河川と調査期間

札幌市内を貫流する豊平川を主たる対象河川とした。豊平川は流域面積904.8 km²、流路延長72.5kmで、我国の中規模河川である。上流部は森林地帯を流下して清澈であるが、周囲に人家が多い中流部は生活排水などの流入により汚染され栄養塩濃度が高い。礫付着生物膜の化学あるいは生物組成については、一般的特徴を整理するため、豊平川上流部の支流薄別川や都市排水で汚濁した札幌市内伏古川、さらにパルプ工場排水で著しく汚濁した石狩川支流牛朱別川も調査対象として加えた。また後述する小型循環水路を用いた浄化速度測定の際には、付着藻類の発生が認められた札幌市内の発寒川も対象とした。発寒川は、石狩湾に注ぐ新川に合流する流路延長17.0kmの小河川で、水道水源として利用されているため都市排水流入による汚染の影響は少い。調査河川の概況を、豊平川、薄別川、伏古川および発寒川についてはFigure 1、牛朱別川についてはFigure 2に示す。調査地点は、図中に示すとおり合計10地点で、研究目的に対応して選択した。以下に主な調査の目的と対象河川および期間を記す。

◇ 生物膜組成調査：(調査河川) 豊平川(T1～T4)、薄別川(流域面積64.3km²、流路延長14.8km)(U1)、伏古川(流域面積39.0km²、流路延長14.8km)(F1)、牛朱別川(流域面積470.6km²、流路延長39.0km)(P1～P3) [1983年10月22日～11月5日]

◇ 礫付着生物膜栄養塩摂取実験：(生物膜採取河川) 豊平川(T2～T4)、薄別川(U1) [1984年9月22日、23日]

◇ 小型循環水路を用いた付着生物膜の栄養塩摂取速度の測定実験：(生物膜採取河川) 豊平川(T3) [1985年9月14日生物膜採取用塩化ビニール板設置12月9日回収、1986年11月1日設置12月23日回収]、発寒川(H2)(流域面積100.6km²、流路延長16.6km) [1985年7月20日設置10月4日回収]

2・2 生物膜採取方法

組成分析に供した生物膜は、大礫(20～30cm)の水面側を対象とした。付着生物膜は、現場でブラシで剥き取ったのち、冷凍や凍結乾燥あるいはホルマリン固定によって保存した。膜面積は、市販のアルミ箔で礫の生物膜該当部分を覆い、覆った部分のアルミ箔重量をアルミ箔単位面積重量から換算して求めた。

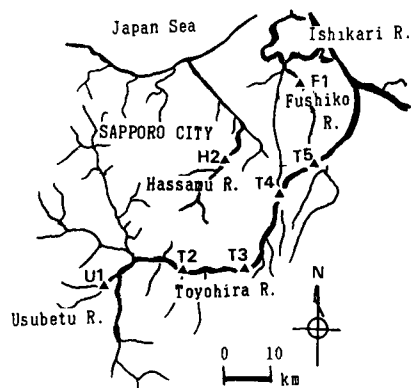


Figure 1 Toyohira River basin



Figure 2 Lower part of Ushubetsu River

2・3 分析項目

水質については、栄養塩の形態分画を中心とし、塩化物イオン、硫酸イオンなど一般成分についても分析した。生物膜については乾燥重量、強熱減量、クロロフィル（Chl-a）、元素分析等の化学分析に加え、好気性および嫌気性従属栄養細菌の計数を行った。河床礫上の流速は、直上3 cmを電磁流速計で測定した。

2・4 水質浄化能の測定

生物膜の付着した礫を実体保存のまま実験室に持ち帰り、水槽（28×15×20cm）の底に固定後、水槽に満たした礫採取地点の河川水（約5l）の水質の経時変化から、浄化能を推定した。実験は、明条件（通常の藻類培養方法⁶⁾を参考に水槽中央部で約4,000Luxとした。）と暗条件で、いずれもエアーポンプで曝気し、温度25℃で実施した、

2・5 小型循環水路による栄養塩除去速度の測定

栄養塩除去速度を、生物膜を付着させた塩化ビニール板（幅50mm長さ0.75mで4枚直列）を設置した。Figure 3に示すような小型循環水路を用いて測定した。塩化ビニール板に形成される生物膜が河床礫の組成に近くなるには、1～2ヶ月を要した。循環水の平均流速は0.2m/s、流入水の平均滞留時間を約1時間とした。運転時間は、濃度が安定し平衡に達したものとみなされる16時間とした。照度については明条件（4000±100Lux）と暗条件で、温度については高温

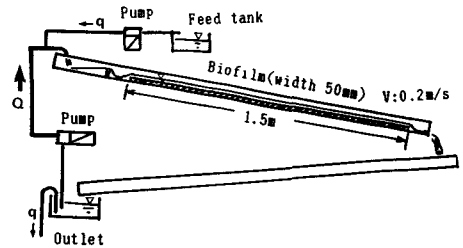


Figure 3 Schematic diagram of experimental apparatus.
(Continuous-flow unit of biofilm)

（25±1℃）と低温（10±1℃）として、それぞれの組合せで実験を行った。試水については、リン濃度の影響の解析に重点をおいたので、窒素濃度を1 Nmg/l 増加するようNaNO₃を添加し、リンについてはK₂HPO₄を0～0.2 Pmg/l まで8段階に設定した濃度になるよう添加し、無添加条件のもを加えそれぞれのケースについて除去速度を算出し検討した。リン除去に及ぼす照度の影響を明らかにするために補足実験を行ったが、試水中のリン濃度が低かったため、窒素に対し約10分の1となるようK₂HPO₄を添加したのも試水として用意した。

3. 結果および考察

3・1 河床生物膜の組成と水環境

河床礫に付着した生物膜の一般的組成を、物理的あるいは化学的環境との関連に注目して調査した。流速や気温そして照度などの河川環境は流況や気象条件によって絶えず変化している。生物膜の付着した礫を取り巻く環境を表現することは難しい。ここでは流況が調査前約1週間安定して、測定した流速データが局所的な礫周囲の流れ環境を説明できると思われる豊平川での1983年10月22日の調査と気象条件の影響が少い牛朱別川および

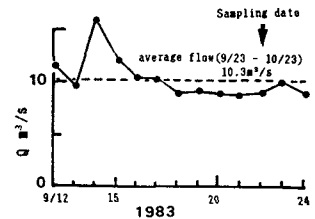


Figure 4 Changes of flow at St. 5 (Kariki, Toyohira R.)

茨戸湖河口伏古川の11月4～5日の調査結果に基づいて解析する。Figure 4に、豊平川下流雁木地点（T5付近）の調査前の流量変化（北海道開発局の資料による。）を示したが、徐々に減水して流況の安定している状態にあることがわかる。調査前1ヶ月の平均流量は10.3 m³/sで、時刻流量の最大は22.2，最小は7.7 m³/sである。Table 1にはこの時期の各調査地点における水質分析結果の一例を示してある。

（A）生物膜付着量について

礫付着生物膜の乾燥重量（DW）と強熱減量（IL）およびIL/DW（%）などと、礫面上3 cmの流速（Vb）の関係をFigure 5—1～3に示した。各調査地点においてDWとILが共に流速すなわち剪断力の増加とともに減少することがわかる。DWにこの傾向が著しいため、流速の増加とともにIL/DWが増加し有機物の割合が増加する。礫面流速が1 m/s程度になると有機物が約60%占めることがわかる。これ

らのことは、浄化と関連した生物膜量を維持する場合参考となろう。パルプ工場排水の流入によってBODが高い牛朱別川での付着量が極めて多いことなど地点間の付着量の差は水質と関連すると推測されるが、この点については後述する。なお伏古川（F1）では流速の増加とともにDWやILが増加し、通常と逆の傾向が認められるが、この地点の流速が地理的に日本海の潮汐の影響を受け、調査時の流速に代表性がなかったものと推測できる。

(B) 化学組成について

ILと炭素（C）、窒素（N）含量との関係をFigure 6—1～2に示したが、いずれも高い相関関係にあり、生物膜の形成状況にかかわらず元素組成には大差ないことがわかる。回帰直線から生物膜のC、N含量が、それぞれ約60、7%となる。C/Nは8～9で、これは通常の微生物の値

Table 1 Chemical analysis of sampling waters.

St.	Date	O m/z	Ta ℃	Tw ℃	pH	Cond. μg/cm	DO %	SS mg/l	BOD mg/l	TOC mg/l
U 1	10/22/83	1 97	10 2	4 8	6 4	87 0	95	1	1 5	2 2
T 2	"	0 066	6 8	6 9	7 0	206	109	1	1 9	3 1
T 3	"	0 603	9 2	6 3	7 1	1050	99	2	"	3 2
T 4	"	6 17	4 9	6 0	7 5	222	99	2	3 9	1 8
P 1	11/ 4/83	—	7 5	7 2	7 1	128	109	3	2 7	3 1
P 2	"	3 40	7 5	15 4	6 7	1010	76	85	80 1	74 5
P 3	11/ 5/83	7 55	2 9	6 2	6 6	374	77	25	22 2	27 7
F 1	11/ 5/83	0 745	13 0	10 4	6 7	679	78	25	5 2	13 9

St.	Date	TN mg/l	TIN(NH ₄ ⁺ -N) mg/l	TP mg/l	DP(DRP) mg/l	Chl-a μg/l	Aerobic bac n/ml	Cl ⁻ mg/l
U 1	10/22/83	0 19	0 05 (0 00)	0 012	0 007 (0 004)	0 4	2 8 E 2	4 7
T 2	"	0 78	0 44 (0 00)	—	—	2 8	2 1 E 3	9 7
T 3	"	6 94	0 54 (0 13)	0 026	0 013 (0 003)	2 8	2 5 E 3	30 3
T 4	"	0 31	0 15 (0 00)	0 011	0 008 (0 004)	1 3	1 4 E 3	23 8
P 1	11/ 4/83	1 12	0 72 (0 06)	0 031	0 009 (0 006)	2 5	1 3 E 4	7 4
P 2	"	3 33	1 90 (0 02)	0 235	0 043 (0 023)	5 6	1 3 E 5	163
P 3	11/ 5/83	1 97	0 60 (0 02)	0 085	0 015 (0 010)	3 8	8 0 E 4	127
F 1	11/ 5/83	—	— (1 06)	0 200	0 029 (0 010)	2 8	3 2 E 4	154

に近い（文献^{7), 8)}等）か、若干低い程度である。ILと植物色素クロロフィルa（Chl-a）の関係をFigure 7に示したが、有機汚濁を呈するP2、P3を除くと、回帰直線式（P2、P3を除くと相関係数0.95、 $Y(\text{Chl-a } \mu\text{g/cm}^2) = 28.2 \times 10^3 X^{1.31}$ （X: IL g/cm²）の指数部が1.31となるように、ILの増加に伴って、Chl-aの割合が増し藻類の優占してくることがわかる。藻類のChl-a/ILを0.01～0.02と仮定すると（文献^{7), 8)}等から）、ILが0.01g/cm²で35～70%が藻類と推察できる。Chl-a/ILが0.5%程度のことも観察されるので、藻類の割合がより高い場合も多いだろう。P2、P3地点は、Table 1に示すようにBOD濃度がそれぞれ80.1、22.2、と極めて高く、腐敗によって細菌類が優占種になっていることは明らかである。Figure 8は、調査地点の藻類組成を藍藻類はChl-aのみ、緑藻類のChl-a/

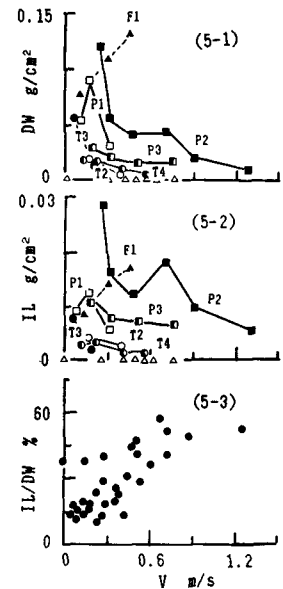
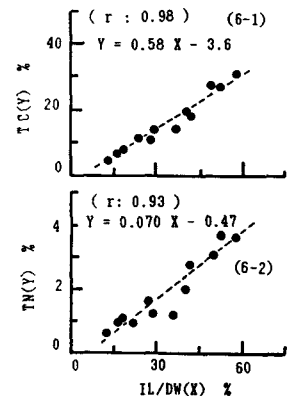


Figure 5 Relationship between V(velocity, m/s, 3cm up over cobble) and DW(dry weight: g/cm²)(5-1), IL(ignition loss: g/cm²)(5-2), IL/DW(%) (5-3)



[r (Correlation coefficient)]
Figure 6 Relationship between IL/DW(%) and TC(total carbon : %)(6-1). TN(total nitrogen : %)(6-2)

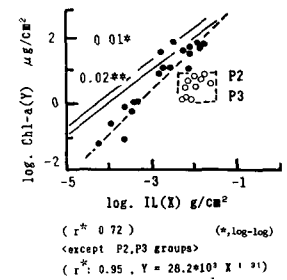


Figure 7 Relationship between IL(g/cm²) and Chl-a(chlorophyll-a : μg/cm²)

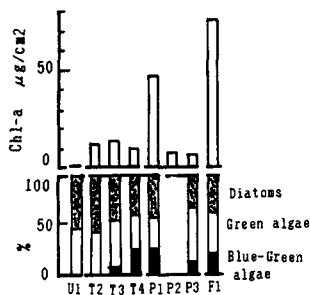


Figure 8 Algal densities (Chl-a: $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) and compositions(%)

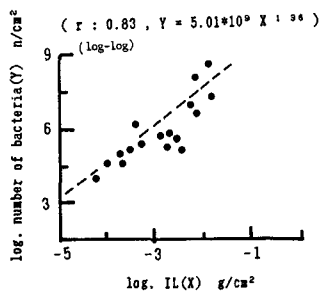


Figure 9 Relationship between IL(g/cm^2) and number of aerobic bacteria (n/cm^2)

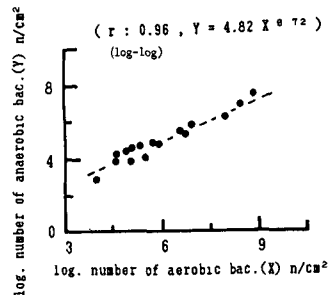


Figure 10 Relationship between numbers of aerobic bacteria (n/cm^2) and anaerobic bacteria (n/cm^2)

Chl-bを3, 珪藻類のChl-a/Chl-cを2と仮定し(文献¹⁰⁾を参考), Chl-a, b, cの濃度分布から計算したものである。薄別川U1や豊平川T2, T3など清澄な地点では緑藻・珪藻類が優占し, その他の汚濁した地点では藍藻類の割合の高くなるのがわかる。

(C) 生物膜の細菌数について

Figure 9に明らかなようにILの増加とともに従属栄養細菌数が増加し, 有機物量が細菌の現存量を支配していることがわかる。Figure 10に認められるように従属栄養細菌数Xと嫌気性細菌数Yの関係式($Y = 4.82X^{0.72}$)の指数係数が1より小さく, 河床においては細菌数の増加とともに好気性細菌数が増し, その働きが重要になってくるようである。藻類濃度と対応し増殖するのかもしれない。

(D) 生物膜組成と水質

(A) 項で述べたように, 各地点の付着生物膜量とその組成は, その水質に支配される。水中の全窒素

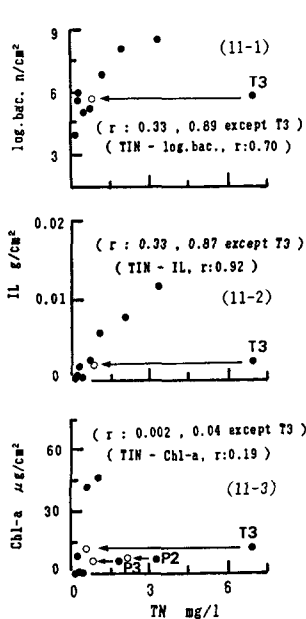


Figure 11 Relationship between TN(mg/l) and number of aerobic bacteria(n/cm^2)(11-1), IL(g/cm^2)(11-2), Chl-a($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)(11-3)
(o: TIN(total inorganic nitrogen replaced TN))

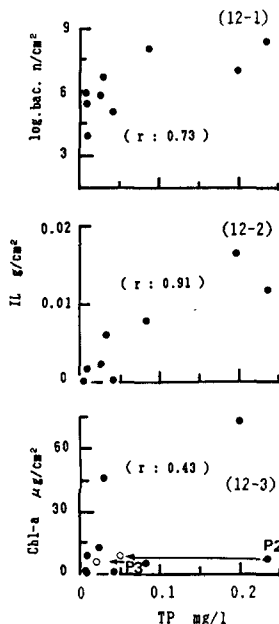


Figure 12 Relationship between TP(total phosphorus: mg/l) and number of aerobic bacteria(n/cm^2)(12-1), IL(g/cm^2)(12-2), Chl-a($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)(12-3)
(o: DP(dissolved phosphorus replaced TP))

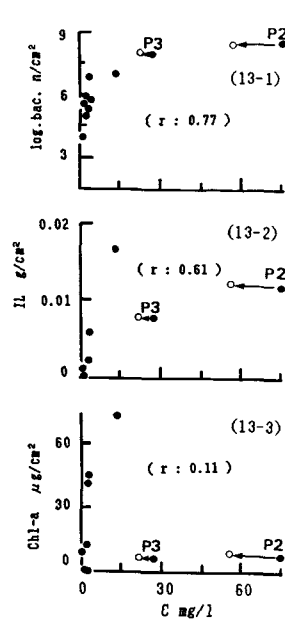


Figure 13 Relationship between TOC(mg/l) and number of aerobic bacteria(n/cm^2)(13-1), IL(g/cm^2)(13-2), Chl-a($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)(13-3)
(o: TOC_F(dissolved TOC))

(TN), 全リン (TP), 全有機炭素 (TOC) を生物膜に棲息する生物の増殖を支配する水質成分とし、それぞれの濃度と生物膜中の従属栄養細菌数, IL, Chl-a 濃度について, その相関性の高い順に関係を示したのが, Figure 11, Figure 12, Figure 13—1~3 である。TN, TP については, 一部を除くと相関性が認められる。水質が安定し, 平均的なものであるならば, 生物膜付着量は水質成分濃度変化に支配されるものといえる。図中の点のばらつきも小さいので地域性も少ないものと思われる。豊平川 T 3 地点は, Table 1 の水質からわかるように, 有機態窒素濃度が極めて高いために, TN 濃度に対して生物膜の各成分濃度が著しく低い。T 3 については, 無機態窒素 (TIN) を横軸にとると, 全体の傾向とほぼ一致する。P 2, P 3 地点での水質成分濃度に対する Chl-a 濃度の低下は, この地点がパルプ排水によって着色し, そのため光透過率の低下による藻類の成育阻害があったためといえる。TOC に対しても, 栄養塩の場合と同様に濃度に対応した付着量の変化がみられたが, P 2, P 3 で著しく濃度が高いなど濃度分布に偏りがあるためあまり明確ではなかった。なお P 2, P 3 地点については, IL での対応にみられるように, TOC 濃度に対し他の例より付着量が少なくなる傾向になる。この地点に排出されるパルプ排水中の窒素, リン濃度が炭素に比較して少いため, これらが制限因子となっているためと思われる。

3・2 礫付着生物膜による水質浄化能について

薄別川 (U 1), 豊平川 (T 2, T 3) で採取した大礫付着生物膜の水質浄化能を, 水槽を用いた回分試験による栄養塩除去速度から推定してみた。(2・1と2・4参照) 礫採取地点の水質と生物膜の組成の概略を Table 2 に示す。T 3 では, 礫上流速の異なる 3 地点から採取したが, 3・1(A)に述べたような, 流速に対応した DW, IL の差は少なかった。これは調査の約 10 日前の降雨による一時増水によって, 河川の流速が相当大きくなり, 採取位置の持つ礫生物膜の性状の差が小さくなったためと推測される。Figure 14 に豊平川 T 3—A 地点の生物膜付着礫を用いた場合の水質変化の例を明・暗条件について示した。Table 3 は,

Table 2 Chemical analyses sampling waters and biofilms for batch tests.

(Water)												
St	Date	Q m/s	Ta ℃	Tw ℃	pH	Cond μg/cm	DO %	SS mg/l	TOC mg/l	TIN(NH ₄ ⁺ -N) mg/l	TP(DP) mg/l	Cl ⁻ mg/l
U 1	9/22/84	0.39	24.1	15.2	5.8	136	94	1	1.0	0.10 (0.03)	0.005 (0.003)	4.3
T 2	"	0.09	24.2	19.1	9.4	212	153	1	2.4	0.19 (0.02)	0.012 (0.006)	10.3
T 3	"	0.42	24.8	21.8	8.4	1165	121	1	3.1	0.76 (0.15)	0.035 (0.022)	37.9
											DRP 0.019	

(Biofilm)							
St	Water depth m	Velocity (average) m/s	Velocity* DW m/s	IL <mg/cm>	Chl-a μg/cm	Aerobic bac n/cm	
U 1	0.14	0.37	0.31	0.94	0.20	0.041	1.5E4
T 2	0.10	0.32	0.21	6.6	0.75	5.03	2.2E5
T 3 A	0.44	0.50	0.29	7.6	1.55	14.6	3.7E5
T 3 B	0.15	0.32	0.11	7.2	2.86	18.0	3.1E7
T 3 C	0.10	0	0	4.9	1.32	11.6	1.4E7

* 3 cm up over cobble

栄養塩除去速度を面積当り, 乾燥重量当りそして Chl-a 含量当りで整理したものである。試水そのものについての水質変化は小さく, 若干変化の認められたリンについてのみ, その変化分を補正した。除去速度は実験開始初期に安定しない例があったので 8 時間の平均値として計算した。4 時間平均値のほうが幾分大きいようである。表から, まず明条件での面積当り栄養塩除去速度について

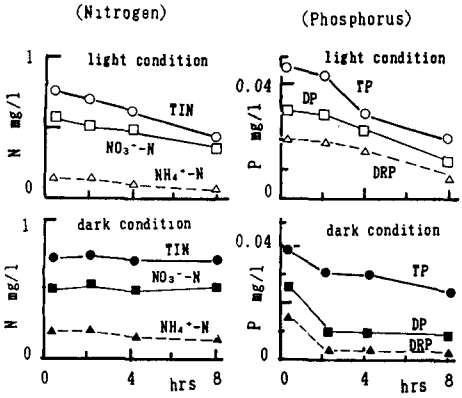


Figure 14 Changes nutrients(mg/l), using bio-film attached to cobble in experimental tank (25°C)(St.T3-A, Toyohira R.)

ては、清澄部（U1）で小さく、栄養塩濃度が高い都市部（T3）で大きい傾向にあることがわかる。水質濃度に対応して生物膜重量が増加するとする3・1(D)の見解と矛盾しない。なおU1では、計算データがすべて低濃度のため、信頼性に劣るようである。3・1で述べたように、優占生物である藻類の濃度（Chl-aとして）当たりとしてもとめると、窒素についてはT2とT3-A, B, C（T3地点では、流況の異なる3地点を調査箇所とした。Table 2参照。）では、0.013~0.035 $\mu\text{g}/\mu\text{g}(\text{Chl-a})/\text{hr}$ と差が小さく、河床生物膜組成が比較的均質であることと同様に単位藻類当りの除去（摂取）能力にも差がないことがわかり、このような地点では優占生物である藻類による浄化を通常的に期待できることがわかる。U1のような清澄部では、試水濃度が低いためあるいは浄化に寄与する生物相が少いため効果が小さいものと考えられる。明・暗条件での値を比較すると、その差は窒素で大きく、リンでは小さい。窒素における明・暗条件の差は明らかに藻類の光合成活動と関連して、明条件での除去速度が大きいものといえる。暗条件では、T2にみられるようにマイナスとしても大きい値で、ときとしては微生物自身あるいは微生物による分解溶出も無視できないようである。T3の暗条件では $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の減少と、

$\text{NO}_3^-\text{-N}$ の増加が認められるが、礫付着細菌による硝化作用も河川での浄化として認めることができよう。リンについては、地点差が窒素より少ないこともあり、その除去が必ずしも生物作用だけでないのかもしれない。U1, T2の明条件で逆にマイナスになることがある。これは生物代謝と関連するのであろうがはっきりしない。なおT3地点の流速の異なる3箇所A, B, Cの比較については、礫上流速（平均流速）で、0.42(0.50), 0.11(0.32), 0(0) m/sと異なったものの、その差異はA地点での無機態窒素（TIN）の除去速度でB, Cの2倍程度大きくなったことにしか表れなかった。これは前述のように、調査前の降雨の影響によって、河床全体の生物膜が比較的均質に近くなったためと考えられる。A地点でのTIN除去効果は、B, C地点より細菌数が2オーダー少ないため付着する藻類が効果的に機能したものと推測できる。A地点の早い流れが細菌類を掃き流し、好気的な環境を維持したためであろう。

以上のような浄化能実験でも、生物膜の栄養塩除去機構の存在と特徴を確認できた。本実験は、大きな河川数の1ヶの礫上のものであるので、全体を論ずるには無理がある。しかし例えば、T3-AでのTIN, DP浄化能を、採水時に近い条件（水質が同じ、水深0.3m, 流速0.4m/s）にあてはめると、1km下流で、それぞれ明条件で15.24%除去、暗条件で1%負荷、61%除去と計算できる。上記の知見を参考に、都市内河川であれば、流速や水深の制限など3・1での検討内容を参考にした適当な河川環境の実現によって栄養塩の浄化は期待できそうである。

3・3 小型循環水路による栄養塩除去速度の測定と生物膜の機能特性

生物膜による栄養塩除去を中心とした水質浄化速度を、塩化ビニール板に付着した生物膜を用いて測定した。生物膜は、3・2で示したように浄化の効果が認められた豊平川T3地点および河床での藻類発生が間

Table3 Removal rates of nutrients by biofilm attached to cobble. (batch test)

(mg/㎡/hr)					
St.	DP	DRP	TIN	$\text{NH}_4^+\text{-N}$	$\text{NO}_3^-\text{-N}$
U1- L C	-0.084	-0.006	-1.60	-0.28	-1.25
- D C	0.10	-0.028	0.904	-0.13	1.03
T2- L C	-0.038	0.054	1.47	0.22	1.25
- D C	0.28	0.17	-2.30	-0.23	-2.04
T3A-L C	0.32	0.25	5.04	1.82	2.82
- D C	1.00	0.92	-0.33	3.39	-3.88
T3B-L C	0.17	0.017	2.37	1.69	0.55
- D C	0.39	0.36	-0.81	0.51	-1.64
T3C-L C	0.25	0.24	2.24	1.67	0.28
- D C	0.25	0.20	-0.13	0.51	-0.82

($\mu\text{g}/\mu\text{g}(\text{Chl-a})/\text{hr}$)					
St.	DP	DRP	TIN	$\text{NH}_4^+\text{-N}$	$\text{NO}_3^-\text{-N}$
U1- L C	-0.0084	-0.0006	-0.171	-0.030	-0.133
- D C	0.011	-0.0030	0.097	-0.014	0.111
T2- L C	-0.0006	0.0008	0.022	0.0034	0.019
- D C	0.0045	0.0026	-0.034	-0.0034	-0.031
T3A-L C	0.0042	0.0032	0.067	0.024	0.037
- D C	0.013	0.012	-0.0044	0.045	-0.051
T3B-L C	0.0060	0.0011	0.033	0.024	0.0077
- D C	0.0055	0.0050	-0.011	0.0071	-0.023
T3C-L C	0.0050	0.0049	0.046	0.034	0.0057
- D C	0.0050	0.0040	-0.0026	0.010	-0.017

($\mu\text{g}/\text{mg}(\text{DW})/\text{hr}$)					
St.	DP	DRP	TIN	$\text{NH}_4^+\text{-N}$	$\text{NO}_3^-\text{-N}$
U1- L C	-0.205	-0.013	-3.94	-6.83	-3.07
- D C	0.213	-0.069	1.92	-0.271	2.54
T2- L C	-0.0006	0.0009	0.025	0.0038	0.021
- D C	0.0051	0.0029	-0.039	-0.0039	-0.035
T3A-L C	0.0022	0.0017	0.035	0.012	0.019
- D C	0.0069	0.0063	-0.0023	0.023	-0.027
T3B-L C	0.0010	0.0005	0.013	0.0094	0.0031
- D C	0.0022	0.0020	-0.0045	0.0028	-0.0090
T3C-L C	0.0021	0.0021	0.019	0.014	0.0024
- D C	0.0021	0.0017	-0.0011	0.0044	-0.0070

LC : light condition DC : dark condition

題となっている札幌市内寒寒川H2地点で採取した。採取地点の水質および生物膜組成をTable 4に示した。生物膜の機能特性を明らかにするため試水に栄養塩を添加したが、これらの条件と水路の概況は、2・5で述べた。

(A) 小型循環水路による栄養塩除去速度の測定結果

Figure 15に、豊平川T3地点で1985年11月17日に採取した生物膜を用いた場合の水質の経時変化を栄養塩無添加明条件の例について示した。16時間経過後には水質が安定したため、この時点で循環水と膜との物質交換が平衡状態にあるとみなした。生物膜付着塩化ビニル板を設置しないコントロール実験の結果を窒素成分での明条件を例に、Figure 16に示したが、循環水と流入試水との濃度差が小さく時間的変動も無い。循環水中での水質変化は無視できるものとし除去速度を求めることとした。Figure 17には、10℃条件下でT3地点で12月9日に採取した生物膜を用いて行った実験結果を、窒素成分を例に示した。生物膜との接触による濃度低下はわずか

で、低温による除去能の低下が明らかである。以上のことを含めて総括するために栄養塩除去速度の一覧をTable 5に整理した。(栄養塩除去速度の算定方法は文末に記す。) 2・5で述べたように試水へのリン添加は8段階としたが、ここではその一部を栄養塩無添加の明・暗条件のものも含め、豊平川T3地点を中心に呈示した。まず栄養塩無添加条件で除去速度を比較すると、明条件での窒素除去、明・暗条件でのリン除

Table 4 Chemical analysis of waters and biofilms before tests.
(Continuous-flow unit of biofilm)

	Hassamu R (H2) (10/ 4/85) 25℃	Toyohira R.(T3) (11/17/85) 25℃	Toyohira R (T3) (12/ 9/85) 10℃
= Water =			
TOC mg/l	4.2	6.0	4.8
TN	0.33	1.76	1.67
TIN	0.05	0.40	0.52
NH ₄ ⁺ -N	0.04	0.28	0.42
TP	0.008	0.011	0.024
DP	0.004	0.005	0.011
DRP	0.001	0.002	0.001
= Biofilm =			
DW mg/cm ²	1.36	3.45	11.34
IL	0.31	0.62	1.50
Chl-a μg/cm ²	0.99	4.20	7.40

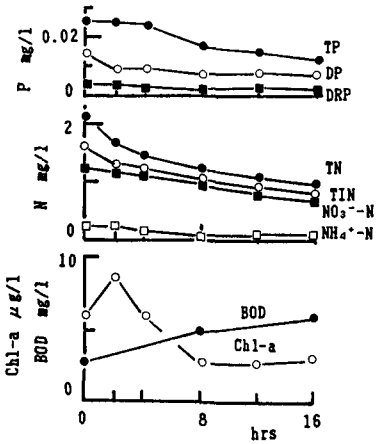


Figure 15 Changes of nutrients (mg/l), BOD(mg/l) and Chl-a (μg/l), using biofilm attached to polyvinyl chloride plates sampled at St.T3-A, Toyohira R.) (Continuous-flow unit of biofilm, 25°C, light condition)

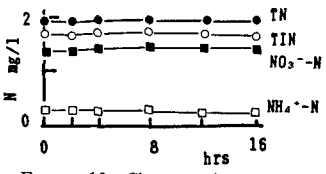


Figure 16 Change of nutrients (mg/l) (Continuous-flow unit of biofilm, 25°C, light condition, no biofilm.) (Water was sampled at St.T3)

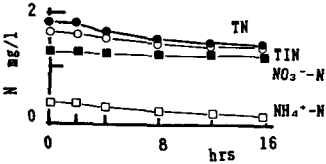


Figure 17 Changes of nutrients (mg/l), using biofilm attached to polyvinyl chloride plates sampled at St.T3-A, Toyohira R. (Continuous-flow unit of biofilm, 10°C, light condition)

Table 5 Removal rates of nutrients by biofilm. (Continuous-flow unit of biofilm)

added P concentration	Hassamu R. (25℃)				Toyohira R (25℃)				Toyohira R. (10℃)	
	0	L.C	0 1	L.C. no	D C added P	0	L.C.	0 2	0	L.C.
		0 04					0 1			0 1
Chl-a (μg/㎡/hr)	1 23	-0 13	-1 73	-14 5	-31 1	-24 5	-18 0	-22 0	-4 9	-7 6
BOD (mg/㎡/hr)	-8.0	2 7	2 0	-21 0	13 8	-21 6	-0 5	-0 2	-5 3	-12 4
DRP (mg/㎡/hr)	0 007	0 165	0 363	0 002	-0 002	-0 040	0 422	1.093	-0 002	0 823
DP (mg/㎡/hr)	0 004	0 226	0 497	-0 010	-0 016	-0 074	0 404	1 060	0 016	0.797
TP (mg/㎡/hr)	0 000	0 163	0.481	0 003	-0 022	-0 080	0 404	0 962	0 071	0 862
NH ⁺ ₄ -N(mg/㎡/hr)	0 153	-0 033	0 012	1 524	0 132	1 58	1 54	1 68	1 20	1 78
NO ⁻ ₃ -N(mg/㎡/hr)	2 13	2 22	3 16	3 06	0 57	3 05	2 06	4 11	0 12	0 12
TIN (mg/㎡/hr)	2 21	2 17	2 67	4 58	0 204	3 99	5 68	5 65	1 33	1 76
TN (mg/㎡/hr)	2 27	2 17	2 25	5 75	0 033	3 68	4 39	7.39	2 39	2 05

L.C. : light condition D.C. : dark condition

去が明らかである。Table 6 には、無機態窒素（TIN）に対し、約10倍の $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ (K_2HPO_4 として）を添加した場合の実験例を示したが、この場合も添加後に除去速度は大きくなるが、リンについては明・暗条件の差異は無いようである。3・2で推察したように、藻類での窒素除去、生物膜全体としてのリン除去が確認できる。窒素除去に関連して、発寒川H2地点で $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の除去速度が小さいが、これは水中にほとんど含まれないためである。栄養塩添加条件（窒素は $\text{NO}_3^-\text{-N}$ として1 mg/l 増加するように添加してある。）で比較すると、リン濃度とともに除去速度が大きくなる。リンが栄養塩の摂取速度を律速していることがわかるが、この点については(B)項で解析する。豊平川T3地点で水温の影響をこの表からみると、低水温（10℃）時は、乾燥重量および強熱減量で3倍、Chl-a含量で2倍程度多いにもかかわらず、窒素（TIN）については高水温（25℃）時より除去速度がかなり小さく、低温が質的变化を含め代謝活性を低下させることがわかる。いいかえればこのことはまた冬期は、藻類自身の分解も低下し、現存量が多くなることを意味している。リンについては温度による除去効率の低下ははっきりしない。温度の影響は窒素ほどではないようである。

(B) 生物膜の栄養塩除去機能特性

栄養塩添加条件での結果について検討した。Table 7 には、除去速度と平衡濃度との相関係数を示した。Figure 18には、両者の関係を豊平川T3地点を例に、高温時（25℃）では $\text{NO}_3^-\text{-N}$ について、低温時（10℃）では $\text{NH}_4^+\text{-N}$ について示した。高温時について*印を付けた点は、リン添加濃度の順序にしたがわず、予想より平衡濃度が高くなったものである。このケースでは、循環水へのBOD負荷が高く、細菌の活性が高くなるなど、運転に問題があったものと推測される。Table 7 にはこれらのケースを除いたものも示した。表から、全般的には栄養塩除去速度は各態リン平衡濃度との相関が高く、リン濃度が窒素に対し相対的に低い都市河川においては、リンが栄養塩摂取すなわち除去能を支配している可能性を認めることがで

Table 7 Correlative coefficients between removal rates and concentrations (steady state) of nutrients.

removal rate	BOD	DRP	DP	TP	$\text{NH}_4^+\text{-N}$	$\text{NO}_3^-\text{-N}$
concentration (steady state)						
(Hassamu R. 25°C, n = 8)						
DRP	0.75	0.95				
DP	0.66	0.92	0.91			
TP	0.73	0.98	0.98	0.99	-0.48	0.53
(Toyohira R. 25°C, n = 8)						
DRP	0.24	0.24				
DP	0.39	0.44	0.38			
TP	0.10	0.63	0.63	0.54	0.35	0.51
(Toyohira R. 25°C, n = 5 (except * in figure 18-1))						
DRP	0.63	0.95				
DP	0.60	0.93	0.93			
TP	0.75	0.95	0.95	0.95	0.10	0.92
(Toyohira R. 10°C, n = 5)						
DRP	-0.79	0.98				
DP	-0.79	0.98	0.98			
TP	-0.82	0.99	0.99	0.99	0.96	-0.31

Table 6 Influence of Phosphorus added on removal rate of nutrients.

Chemical analyses of used water (mg/l)
 (TOCT)2.8, TOC(F)1.2, TN1.60, TIN($\text{NH}_4^+\text{-N}$)1.23(0.41),
 TP0.023, DP(DRP)0.011(0.001))

	P no addition		P addition(N/P=10)	
	L.C.	D.C.	L.C.	D.C.
	(mg/m ² /hr)			
TN	0.001	0.001	0.010	0.001
TP	<0.000	<0.000	0.003	0.003

L.C.: light condition D.C.: dark condition

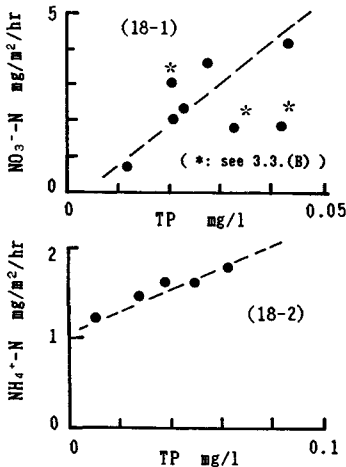


Figure 18 Relationship between TP (steady state condition: mg/l) and removal rate of inorganic nitrogen
 (18-1) TP- $\text{NO}_3^-\text{-N}$, 25°C, light condition.
 (18-2) TP- $\text{NH}_4^+\text{-N}$, 10°C, light condition.

きる。豊平川 T 3 地点高温時の特異点を除くと両者の相関関係はより明確で、TP 濃度の NO_3^- -N 除去速度に対しては、相関係数は 0.51 から 0.92 となった。したがって栄養塩除去速度が濃度に依存する、すなわち一次反応に近いことも推定できる。夏期に NH_4^+ -N の除去速度との相関性が低いのはその存在割合が低いこと、冬期での NO_3^- -N との関係については存在割合の高い NH_4^+ -N が選択に利用されたことが原因と考えられる。参考として示した BOD で、夏に正、冬に負の相関が明瞭であるが、これは剥離浮遊性物質や代謝産物の分解が低温のため低下したものと見える。冬期の現存量の増加と対応している。Table 8 には、

Table 8 Removal rates of nutrients(mg/m²/hr) and concentrations of TP
(steady state condition)(mg/l)

Removal rate(mg/m ² /hr)	TP (C mg/l)	NH_4^+ -N (C mg/l)	NO_3^- -N (C mg/l)
Hassamu R. (25°C) (n = 8)	25.3 C - 0.24 {0.99}	not consumed	84.0 C + 0.33 {0.53}
Toyohira R. (25°C) (n = 5)	28.0 C - 0.22 {0.95}	consumed before experiment	108.0 C - 0.20 {0.92}
Toyohira R. (10°C) (n = 5)	16.0 C - 0.15 {0.99}	10.7 C + 1.13 {0.93}	not consumed

{ } : correlation coefficient

窒素・リン除去速度と全リン平衡濃度の関係を示した。T 3 地点の高温時では、特異点を除いた。係数を比較すると、窒素およびリン双方の除去速度に対し、同じ温度条件（この場合 25°C）では 2 河川の値に差が無いこと、低温になると小さくなるのがわかる。高水温時の豊平川 T 3 地点で生物膜付着量が多いので、除去速度が等しいということは、生物活動を活性化させる光条件が一次生産すなわち浄化能を支配しているといえる。すなわち表層部の藻類の活動が影響すると推察できる。低温での低下は、生物活動の低下にはかならない。

4. 結 論

河川における水質の浄化作用については、様々な見解がある。そのなかで、筆者らは、河床生物膜による栄養塩の除去によって、除去に伴う一次生産量の増加を差し引いても、全体的には浄化効果が期待でき、さらには一次生産物そのものも魚類飼料としての資源として考える立場をとった。今回の現状調査からは、生物膜の組成とその水環境との関係について一般的特徴を明らかにし、都市内河川においては水質浄化（栄養塩除去）についてその効果のあることの見当をつけた。このことは従来の汚濁した水質の状態では提案できなかったものである。今後は、実河川での今回の知見の確認とより正確な実態把握に務め、さらにシミュレーションによって効果の有無・有効性を検討したい。以下に結果を要約する。

（河床生物膜の組成と水環境）

- 河床生物膜は、流速と共にその付着量を減ずるが、有機物の割合は増加する。
- 河床生物膜の組成は約 C 60%, N 7% で、通常の微生物の組成に近い。
- 一般都市内河川では、珪藻や緑藻を中心とした藻類が優占的生物で、付着量（有機物量）の増加に伴ってその割合が増す。従属栄養細菌類も、付着量の増加とともにその割合を増す。この傾向は好気性細菌で著しい。
- 光条件や栄養塩のアンバランスがなければ、一般には、栄養塩を中心とした水質成分濃度も付着量を支配しているものとみなせる。

（河床生物膜の水質浄化能）

- 都市内河川の通常の河床生物膜には、栄養塩に対する除去機能を認めることができる。窒素については明条件下での優占種の藻類による働きが効果を持つようであるが、リンについては明・暗条件の差が無い。生物活動以外の効果もあるようである。清澄河川では、生物膜の浄化効果は少い。
- 付着藻類による窒素除去能力は水温の影響を受け、低温時にはかなり低下する。低温条件では分解作用も低下するため、現存量はかえって増加するようである。

- 都市河川ではリン濃度が，浄化能を支配する可能性がある。
- 生物膜付着量の差は，栄養塩除去速度にあまり影響しない。光条件が，浄化能を支配するようである。

〔謝 辞〕

本研究は，文部省の総合研究（Ａ）「水質環境保全にはたす付着微生物の浄化能力の再評価とその効率化に関する総合的研究」の自然水系班として調査・研究した結果を纏めたものである。ご指導をいただいた代表研究者 東大松尾友矩教授はじめ共同研究者の方々に厚くお礼申し上げます。また北海道大学工学部の三井田秀夫，高木五月，中野正博各氏には連日の調査・実験をお願いいたしました。日水コン 小島貞男博士ならびに同僚の井上雄三氏には貴重なアドバイスをいただきました。ここに記して感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) 相崎守弘 「多摩川における付着性微生物群集の現存量と生産量の季節変化」，日本生態学会誌，Vol.28, p123, 1978
- 2) 田中庸央 「都市近郊河川における富栄養化（１）」，水处理技術，Vol.16, p345, 1975
- 3) 桜井善雄 「千曲川中流域における河床 Periphyton による有機物生産とその河川水質への寄与」，信州大学環境科学論集，Vol.7, p25, 1985
- 4) 海老瀬潜一，宗宮 功，大桑尚史 「市街地河川流達負荷量変化と河床付着性微生物群（２）」，用水と排水，Vol.20, p183, 1979
- 5) 橋 治国 「付着微生物としての藻類の特徴」，水質環境保全にはたす付着微生物の浄化能力の再評価とその効率化に関する総合的研究（土木学会衛生工学委員会付着微生物委員会報告書〔代表松尾友矩〕），p29, 1986
- 6) 須藤隆一，田井慎吾，八木修身，岡田光正，細見正明，山根敦子「藻類の増殖試験法によるAGPの測定」，国立公害研究所研究報告，26号，1981
- 7) T. R. パーソンズ，高橋正征（市村俊英訳）「生物海洋学」，三省堂，1974
- 8) H. E. ALLEN & J. R. KRAMER：NUTRIENTS IN NATURAL WATER, WILEY, 1972
- 9) 高村義親，野村和輝，萩原富司，平松 昭，八木修身，須藤隆一「霞ヶ浦に発生するアオコとMicrocystis aeruginosaの化学組成」，国立公害研究所研究報告，25号，p31, 1981
- 10) 田宮 博，渡辺 篤「藻類実験法」（3.4 生体物質の取扱法（p274）），南江堂，1965

〔生物膜による基質（栄養塩）除去速度算定方法〕

本小型循環水路を用いた実験条件では，下記の物質収支が成り立つ。

$$V(dC/dt)=F(C_i-C)-R_bAb$$

V：循環水容量（L³）， C：循環水基質濃度（ML⁻³）

t：時間（T）， F：流入・流出水量（L³T⁻¹）

C_i：流入水基質濃度（ML⁻³）

R_b：単位面積当り生物膜基質除去（摂取）速度（ML⁻²T⁻¹）

A：生物膜面積（L²）

実験水路が運転によって，水質が平衡状態になると，

$$dC/dt=0$$

となり，したがって，生物膜基質除去速度（R_b）は

$$F(C_i-C_s)/Ab \quad C_s：基質平衡速度（ML^{-3}）$$

となる。