

(16) 下水道未普及地域における河川生物膜 による直鎖アルキルベンゼンスルホン酸 浄化作用の評価

田村 生弥¹・太田 美菜子²・関澤 純²・山本 裕史^{2*}

¹徳島大学大学院 人間・自然環境研究科 (〒770-8502 徳島県徳島市南常三島町一丁目一番地)

²徳島大学 総合科学部 自然システム学科 (〒770-8502 徳島県徳島市南常三島町一丁目一番地)

* E-mail: hiroshi@ias.tokushima-u.ac.jp

わが国の下水道人口普及率は現在全国平均で約70%となっているが、地域格差が大きく下水道未普及地域の中小河川では未だに水質汚濁が深刻である。河川の自浄作用についてはT-N・T-Pといった栄養塩全体の濃度やBODのような間接的な有機汚濁指標を用いて検討した例はあるが、具体的な化学物質を用いた研究例は少ない。そこで本研究では陰イオン界面活性剤の直鎖アルキルベンゼンスルホン酸(LAS)に着目し、下水道普及率の低い徳島市近郊6河川を対象に3つの季節で生物膜を回収し、自浄作用を検討した。その結果、LAS汚染度が高い河川ほど浄化作用が大きく、LASの浄化作用と $\text{NH}_4^+\text{-N}$ との間には弱い相関が見られた。また生物膜の浄化作用に対する寄与率を計算したところ、下水道未普及地域における中小河川のLAS浄化に対して大きな役割を果たすことが示唆された。

Key Words : anionic surfactant, biodegradation, biofilm, household effluent, urban streams

1. はじめに

河川等の水環境の自浄作用を調べる際はこれまで、間接的な有機汚濁指標であるBODやT-N、TPといった栄養塩全体の濃度を用いることがほとんどであった¹⁾。しかしながら、家庭用合成洗剤等に含まれる陰イオン界面活性剤の一種である直鎖アルキルベンゼンスルホン酸(Linear Alkylbenzene Sulfonate: LAS) (図-1) は、PRTR(環境汚染物質排出移動登録)法の第一種指定化学物質に分類されており、平成16年度の推計値によれば、水域への排出量が第一位の約19,000 tと非常に多く²⁾、その使用量や水環境中への排出量の多さから様々な調査が行われてきた。最近、わが国でおこなわれた例としては、真名垣らが冬季に全国18の一級河川中のLASの濃度をLCMSMSを用いて測定し、淀川や多摩川、石狩川などでは最大で6 $\mu\text{g/L}$ 程度であるのに対して、鶴見川や菊川などで最大60 $\mu\text{g/L}$ という比較的高濃度で検出されており³⁾、水棲生物への影響が見られる濃度レベルとも近い⁴⁾ため、その影響が懸念される。周辺の下水道整備状況や流量等さまざまな要素が関連している。また、河川中のLAS濃度も微生物の活動に伴う自浄作用が盛んである

と考えられる夏季は低く、逆に低温で活動が弱いと考えられる冬季の方が有意に高いという報告もある⁵⁾。さらに、兵庫県南東部を対象にした調査では、下水道普及率が高いほど河川中の陰イオン界面活性剤濃度が低くなるという調査結果も報告されている⁶⁾。

一方、徳島県は平成18年3月現在、下水道人口普及率が全国平均の70%を大きく下回る11.5%⁷⁾、合併浄化槽等普及率を合わせても38.4%とともに全国最下位である⁸⁾ことから、LASを含む家庭雑排水の一部が河川に未処理のまま放流されている可能性が高い。本研究では、LASの主成分 C_{12} -LASを対象物質として、河川微生物に

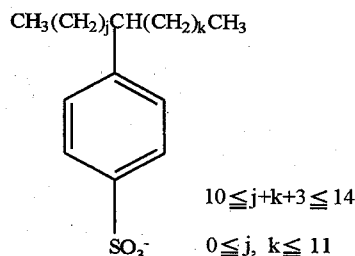


図-1 LASの化学構造

よる浄化能を調べることにした。これまで、行われた河川微生物によるLASの浄化能の定量化に関する検討は、Boeijeら⁹⁾のポリプロピレン担体を用いた水路実験や、Leeら¹⁰⁾の下水処理放流口の上流での反応速度定数比較が報告されているものの、いずれも季節による違いや河川の汚染度による違いを十分に検討していない。そこで、本研究では2006年8月から2007年1月にかけて徳島市周辺の下水道未普及地域を流域とする6河川を対象に、3度の季節で相対的比較を主な目的とした。それに加えてBOD、TOC、河川中LAS濃度、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の水質項目を生物膜採取中に測定し、LAS浄化能との相関を調べた。また、各河川におけるLAS負荷量をPRTR推計値や流域人口、流量、浄化槽普及率等をもとに推計するとともに、実験室内実験結果をもとに河川での単純なLAS浄化モデルに当てはめ、浄化率を算出した。

2. 河川水質調査及び実験方法

(1) 選定河川

対象は下水道未普及地域を流域とする河川に限定した。また家庭用界面活性剤が直接排出されているおそれの高い流域人口の比較的多い河川と、流域人口が比較的小さい河川の両方を選定することにした。各河川のサンプリングポイントの水深、川幅、流量は冬季に測定しており、それぞれ田宮川が20 cm、2.7 m、0.28 m^3/s 、冷田川が25 cm、6.5 m、0.18 m^3/s 、多々羅川が60 cm、8.3 m、0.18 m^3/s 、打樋川が5 cm、5.3 m、0.027 m^3/s 、芝生川が60 cm、10 m、1.2 m^3/s 、正法寺川が75 cm、14 m、1.8 m^3/s であった。各河川の位置を図-2に示す。



図-2 対象河川と採取地点の周辺地図

(2) 生物膜回収装置

試験管立てに5 mm×20 mm×75 mmのスライドガラスを設置し、漂流物や河川に生息する大型の動物に影響を受けないよう防護ネットで覆った。スライドガラスの向きが河川の流れと平行になるように約3週間川岸から約30 cm離れた川底に重石を付けて沈設し、生物膜を回収した。

(3) 添加回収実験

100 mL三角フラスコに試験水を入れ、図-1に示すLASのうちその主成分として知られる C_{12} -LAS（東京化成製標準品）を初期濃度1.0 mg/Lになるように添加した。試験水の量は超純水のみ、河川水のみ、河川水をそれぞれスライドガラスが完全に浸るように130 mLとした。超純水のみ、河川水のみ、河川水に採取した生物膜付着スライドガラスを1枚入れたものの3種類を2連ずつ用意し、河川水はOECDテストガイドラインにおける生分解試験¹¹⁾を参考にメンブレンフィルター（孔径=3 μm ）でろ過したものをを用いた。夏季25 $^{\circ}\text{C}$ 、秋季20 $^{\circ}\text{C}$ 、冬季15 $^{\circ}\text{C}$ に設定、90 rpmで往復振とうして0、2、6、24、48、72、120時間に蛍光・吸光検出器付HPLCで溶液中の C_{12} -LAS濃度を測定した。また、実際の河川では光分解の影響は生分解に比べて影響は小さいと考えられること¹²⁾、さらに実験系の単純化のために光分解の影響を避け、暗所で振とうした。なお、付着した生物膜量は各季節、各河川ごとに別のスライドガラスを3枚用意し、1枚当たりの乾燥重量を測定した。

(4) 水質項目測定

各季節ごとの生物膜回収装置の沈設期間中で、降雨による影響を大きく受けないと考えられる日を選び、2回ずつ水質を測定した。以下にそれぞれの測定方法を示す。

a) 河川水中の C_{12} -LAS濃度測定¹³⁾

2006/8/17および8/25（夏季）、10/20および11/8（秋季）、12/18および2007/1/11（冬季）の計6回測定した。河川水は採取後4 $^{\circ}\text{C}$ で保存しながら速やかに実験室内に持ち帰った。ガラス繊維ろ紙（孔径=1.0 μm ）でろ過後、Sep-Pak Plus C18カートリッジに通水したものをメタノールで溶出し、蛍光・吸光検出器付HPLC（島津製作所製LC-10ADVP）で測定した。

b) BOD測定¹⁴⁾

2006/8/1および8/28（夏季）、10/20および11/9（秋季）、12/18および2007/1/11（冬季）の計6回測定した。採取後速やかに実験室内に持ち帰った河川水に緩衝液、硫酸マグネシウム溶液、塩化カルシウム溶液、塩化鉄溶液を加え、101 mLふらん瓶3連にわけた。一つは15分後、残り

は、5日後にDO計（堀場製作所製）によってDOを測定し、その差をBODとした。

c) TOC 測定

2006/8/1 および 8/28（夏季）、10/20 および 11/9（秋季）、12/18 および 2007/1/11（冬季）の計 6 回測定した。採取した河川水にアジ化ナトリウムを入れ、有機物の分解を阻害し、速やかに実験室内に持ち帰った。これをガラス繊維ろ紙（孔径=0.7 μm）でろ過し、島津製作所社製 TOC-5000 で測定した。

d) NH₄-N測定¹⁶

2006/10/20 および 11/9（秋季）、12/18 および 2007/1/11（冬季）の計 4 回測定した。採取後速やかに実験室内に持ち帰った河川水をガラス繊維ろ紙（孔径=1.0 μm）でろ過し、インドフェノール青法を用いて測定した。

3. LAS浄化モデル

(1) 河川水や付着微生物膜によるLAS浄化作用の定量化

添加回収実験における河川水中の浮遊微生物やスライドガラス表面への付着微生物膜の量は、実験期間内は一定であると仮定した。この仮定は理論的には正確性に欠けるものの、採取した微生物膜量が基質であると考えられるC₁₂-LASなどの量より過剰であること、実験実施中に生物膜量の時間変化を調べるのが困難であること、この単純化により溶液中のC₁₂-LAS減少を擬似的に下式のように一次反応に当てはめることができるなどの理由による。

$$C/C_0 = \exp(-kt) \quad (1)$$

ここで、C₀はC₁₂-LASの初期濃度、Cは時間t(h)後のC₁₂-LAS濃度、k(1/h)は一次反応速度定数である。本研究ではこのC₁₂-LAS除去の反応速度定数kを算出することで、各河川の各季節でのLAS浄化作用を相対的に比較することとした。本研究では河川水のみk_wと河川水+生物膜のk_{tr}の両方を算出した。

(2) 反応速度定数を用いた河川中LAS浄化モデル

まずはじめに、単純に河川水+生物膜の系での反応速度定数k_{tr}から河川水のみでの反応速度定数k_wを差し引くことで、生物膜のみによる反応速度定数を求めた。さらに、実験系での河川水量(V_L=130 mL)と生物膜付着面積（スライドガラスの表面積A_L≈16 cm²）の比率（V_L/A_L≈8.1 cm）を計算し、実際の河川での実測した水深Dおよび川幅Wから河床が平面であると仮定して得られた水量（V_R）と河床面積（A_R）の比（V_R/A_R≈

DW/(2D+W))を計算した。この両者の比によって実験系での付着生物膜のみによる反応速度定数k_bを実際の河川での付着生物膜のみによる反応速度定数k_{tr}に換算した。

$$k_{br} = k_b \frac{V_L A_R}{A_L V_R} \quad (2)$$

そして、河川水のみでの反応速度定数k_wとこのk_{tr}をもとに、流量や流速など実測データと合わせて生物膜採取地点から1 km先までの浄化率を試算した。ここでは、追加的なLAS負荷や流量・流速の変化、生物膜量（および質）の時間的変化がなく、速度定数k_wとk_w+k_{tr}による分解のみを考慮した簡易な押し出し流れモデル（拡散なし）を仮定した。つまり、完全混合槽と考えられる微小区間でのマスバランスは以下のように仮定した。

$$V \frac{dC_{out}}{dx} = (C_{in} - C_{out})Q - kC_{out}V \quad (3)$$

なお、ここでVは微小区間の体積、C_{in}とC_{out}はそれぞれC₁₂-LAS流入および流出濃度、Qは流量、kはk_wもしくはk_w+k_{tr}である。

4. 結果・考察

(1) 各河川・各季節のLAS浄化作用の相対比較

最初に添加回収実験における代表的なC₁₂-LAS濃度の時間変化の例を図-3に示す。図に示すように、初期濃度に対する相対濃度C/C₀は超純水のみでは減少は緩やかで120時間後でも初期濃度の約7割程度が残存していたのに対して、河川水を入れると120時間後には初期濃度の10%未満に、さらに生物膜付スライドガラスを入れると48時間後までに初期濃度の10%未満になった。

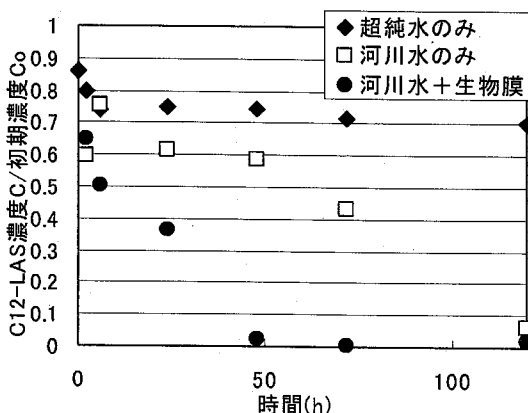


図-3 C₁₂-LAS 濃度時間変化(冬季 田宮川)

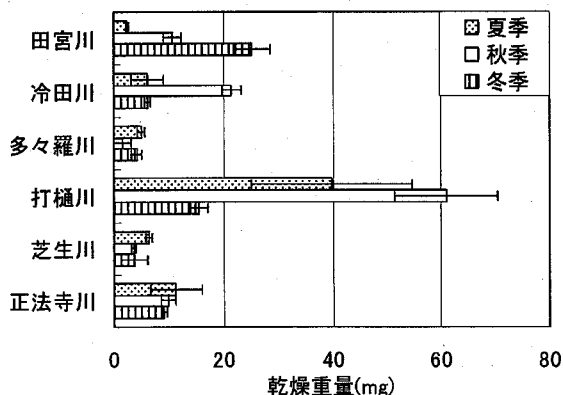


図-4 採取した生物膜量の平均値

そのため、この時間変化を元に一次反応速度定数である k_w や k_b をフィッティングにより推定した。なお、生物膜を導入した場合の濃度減少は早く、2、6、24時間での測定では反応速度定数が不正確になることも推測される。しかし、2連で複数河川を同時に実施している上、HPLCでの測定を速やかに実施するにはこれ以上測定を増やすことはできないので、本研究では複数河川、季節の相对比较が主な目的であることから全て同様の測定時間とすることにした。

各河川で回収したスライドガラスの乾燥重量による生物膜量の平均値 ($n=3$) を図-4に示す。ここで、エラーバーは標準偏差を表している。図からわかるように、打樋川を除き各スライドガラスあたり約10 mg程度の生物膜が付着しており、河川、季節ごとに多少のバラつきがあることがわかる。やはり、河川による気候条件、流量や水深などの違いにより、付着微生物膜の量や質にも変化があることが示唆される。また、相対標準偏差も50%程度あるものもあり、設置場所する場所のわずかな違いによって生物膜付着量が異なることから、添加回収実験に使用するスライドガラス (2連で実施) に対する生物膜量にも多少のバラつきがあり、結果の解析を慎重に行うことが求められる。

次に、図-3のような溶液中の C_{12} -LAS濃度の減少から算出した一次反応速度定数 k (各2連) の平均値と標準偏差 (エラーバー) を図-5、6に示す。河川水のみ の図-5では概して温度が高い夏季の方が秋季や冬季よりも速度定数が大きく、LASの分解に関わる河川水中の浮遊微生物の活動も高いと考えられる。一方、生物膜を加えた図-6では秋季が最も大きかった。これは生物膜が多く付着したことに起因すると考えられるため、速度定数を各スライドガラスに付着した微生物の乾燥重量 (図-4) で除した値を比較した (図-7)。

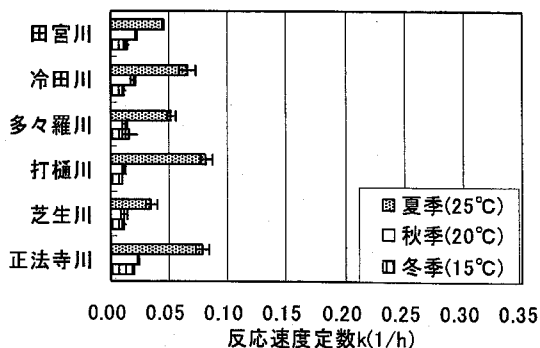


図-5 C_{12} -LAS 減少の一次反応速度定数 k_w

$n=2$ (河川水のみ)

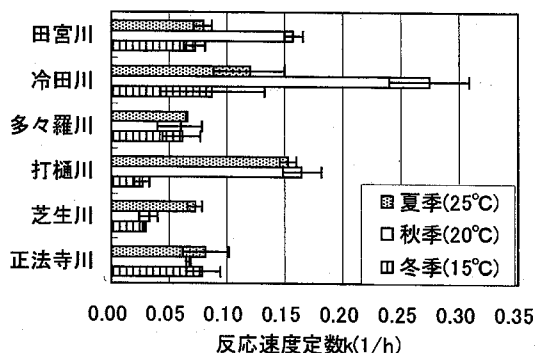


図-6 C_{12} -LAS 減少の一次反応速度定数 k_b

$n=2$ (河川水+生物膜)

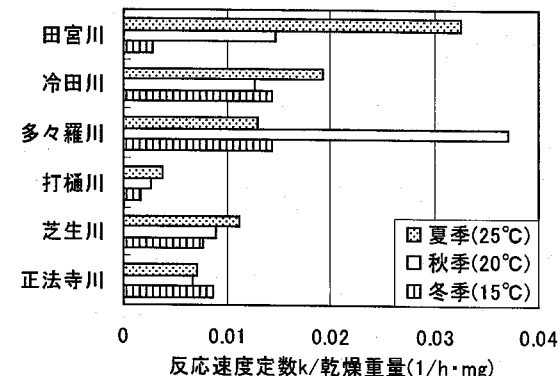


図-7 各河川の生物膜量あたりの反応速度定数

図-7では図-5の河川水のみの場合と同様に非常に汚染度が高く、下流部の水門の開閉によって水深の変化が激しかった打樋川を除いて夏季>秋季>冬季と温度が高い方が浄化が進みやすい傾向が見られ、これまでの様々な研究結果²¹⁾と一致する。そのため、浮遊微生物同様に付着微生物についても温度が高いほどLASの分解に関わる活動が活発になるものと考えられる。また、表-1に示す河川水質測定値において、汚染度の高い田宮川、冷田川、

打樋川では速度定数は大きく、汚染度の低い多々羅川、芝生川では小さい値となった。

なお、上述したように、本研究では複数河川の同時測定による相対比較を優先したため、0、2、6、24時間で測定するのが技術上限界であり、そのため比較の除去が速い $k=0.2$ を越えるような場合は正確性に欠けるという問題点があった。今後、より正確な値を求める場合は特に除去速度が速い場合は測定間隔を狭める工夫が必要である。また、初期濃度で設定した1 mg/Lという値は、実際の河川中の濃度影響を避けることと、測定感度上の問題から実際に存在する濃度よりもかなり高かった。そのため、実環境中に近い低濃度にそのまま当てはめることはできないことを留意する必要がある。さらに、暗所での実験だったが光の影響についても検討する必要があるなど、今後より詳細な実験条件の検討も課題として残る。

(2) 生物膜量や各水質指標と反応速度定数との相関

表-1に対象河川の各水質項目の各季節を通して測定した値の最大値、最小値、ならびに中央値を示す。概してLAS濃度は流域面積に対して人口が多い河川で濃度が高く、LAS濃度が高い河川ではBODやTOC、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の値も高かった。なお、本研究で測定された C_{12} -LAS濃度はあくまでも蛍光検出器付HPLCでの測定であり、詳細な同定作業を経ていない予備的なデータである。しかしながら、試行的に最近の全国一級河川でのLAS検出濃度報告³⁾と比較すると、芝生川、多々羅川、正法寺川では数 $\mu\text{g/L}$ で淀川・多摩川などと同程度、冷田川、田宮川、打樋川では菊川や鶴見川と同程度か1から2オーダー程度高い値であることがわかった。LAS濃度とBOD、TOC、

$\text{NH}_4^+\text{-N}$ 濃度を総合して考えると、田宮川、冷田川、打樋川の3河川はともに汚染度が高く、次いで正法寺川、多々羅川、芝生川という順であった。

図-7とは視点を変えて、各季節における付着微生物膜量の平均値と生物膜付スライドガラスを導入した際の反応速度定数との相関を調べた(図-8)。図-8に示すように、打樋川はやや例外であったが、その他の5河川については正の相関($r=0.93$)が見られ、付着微生物膜量がLAS浄化作用の大小に大きく影響を与えることが示唆される。

次に、秋季2回の測定の河川中LAS濃度、BOD、TOC、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ の平均値と河川水のみでの反応速度定数 k_w 、ならびに生物膜を加えた際の反応速度定数 k_t との相関を調べた。

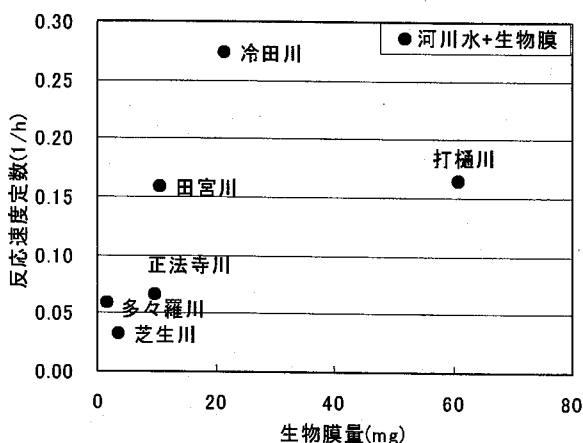


図-8 付着生物膜量と反応速度定数 k_t の相関(秋季)

表-1 河川の水質測定結果と流域人口・面積・污水处理普及率

	田宮川	冷田川	多々羅川	打樋川	芝生川	正法寺川
LAS(mg/L)	0.0023-0.16 [0.080]	0.015-0.084 [0.035]	N.D.-0.010 [0.0046]	0.12-0.49 [0.25]	N.D.-0.0094 [0.0017]	0.0060-0.0815 [0.0089]
BOD(mgO ₂ /L)	1.5-4.7 [3.7]	0.92-3.0 [2.2]	N.D.-1.1 [0.75]	1.8-4.1 [3.6]	N.D.-1.1 [0.20]	1.7-6.8 [2.2]
TOC(mgC/L)	0.96-8.6 [4.9]	1.2-5.9 [4.3]	0.43-3.6 [2.5]	4.5-10 [7.1]	1.8-4.5 [2.2]	2.6-6.3 [3.7]
$\text{NH}_4^+\text{-N}$ (mgN/L)	1.6-3.8 [2.9]	0.44-1.3 [0.84]	0.11-0.25 [0.18]	2.8-5.5 [3.7]	N.D.-0.46 [0.095]	0.57-1.01 [0.74]
推定流域面積(km ²)	2.7	2.7	5.5	1.0	1.6	3.0
推定流域人口(人)	8,400	12,000	5,000	2,000	2,400	5,200
流域合併浄化槽普及率 ^{a)}	31.8%	31.8%	31.8%	31.8%	16.8%	29.7%
流量(m ³ /s) ^{b)}	0.28	0.18	0.18	0.027	1.2	1.8

[] 内は中央値、N.D.: 検出限界 (LAS 0.0012 mg/L、BOD DO変化率10%未満、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 0.08 mgN/L) 未満

^{a)}合併浄化槽普及率は環境省の水処理人口資料¹⁰⁾をもとに正法寺川は藍住町、芝生川は小松島市、その他4河川は徳島市の下水道未普及地域の平均値を採用、^{b)}流量は冬季に2回測定した平均値

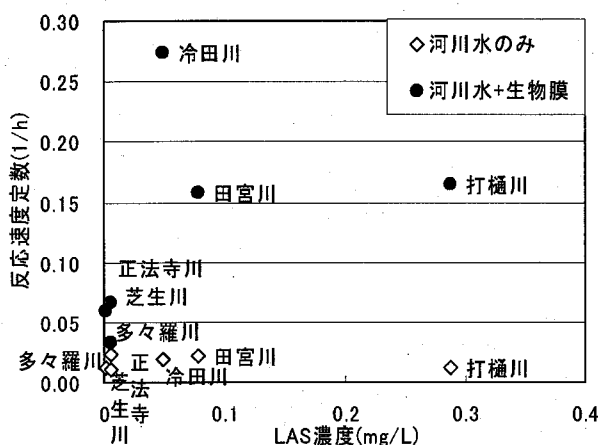


図-9 LAS 濃度と反応速度定数の相関 (秋季)

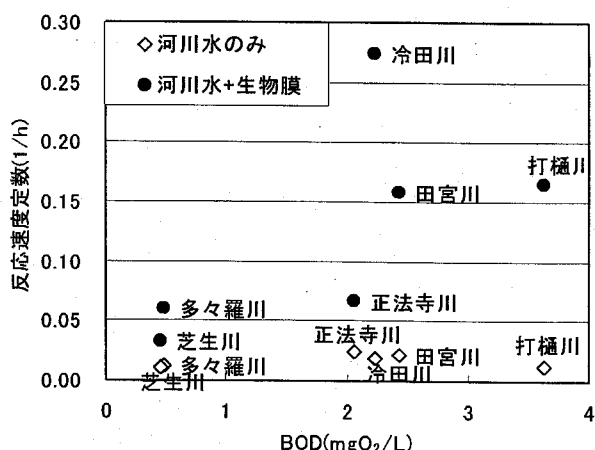


図-10 BOD と反応速度定数の相関 (秋季)

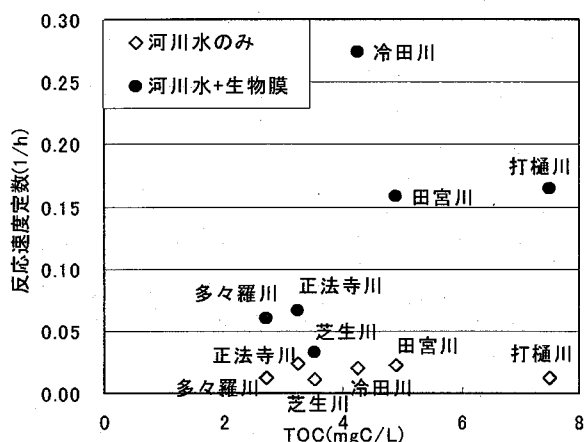


図-11 TOC と反応速度定数の相関 (秋季)

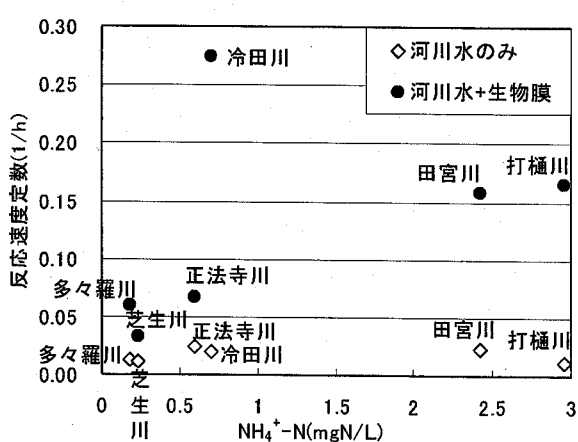


図-12 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ と反応速度定数の相関 (秋季)

その結果をそれぞれ図9から12に示す。

図-9より汚染度の特に高い打樋川を除いてはLAS濃度と反応速度定数に弱いながら正の相関($r=0.73$)が見られた。LAS濃度が高い河川では微生物群が馴化されることでLASを分解する微生物種が増殖しやすい状態になっていると考えられ、これまでの研究結果¹⁰⁾とほぼ一致している。図-10、11に関しても、打樋川を除いて弱い正の相関($r=0.70$ 、 0.68)が見られた。図-12については汚染度の高い打樋川、田宮川を除き相関($r=0.74$)が見られた。これは一定量の $\text{NH}_4^+\text{-N}$ はLASの分解を促進するという報告¹⁷⁾とほぼ一致した。LASが微生物の炭素(エネルギー)源としてはたらく一方で、ある程度の $\text{NH}_4^+\text{-N}$ は窒素源としてLASの分解に不可欠であると考えられる。

いずれにせよ、本研究では各水質項目との間に弱い相関が見られたものの、各季節の測定回数は2回に過ぎず、生物膜回収装置を沈設している3週間絶えず変化している水質を代表しているとは限らない。また、河川水のみと生物膜を加えたものを同時に解析するために、生物膜

量あたりの反応速度定数に換算するべきであるという考え方もある。さらに、3週間の中には降水の影響で生物膜が剥離して質的にも量的にも変化した可能性もある。以上の理由から、これらの水質指標や乾燥重量と反応速度定数の相関関係を深く議論するには十分な結果とは言えず、今後経時的なきめ細かい水質測定や生物膜の質・量的な把握など詳細な検討を要する。

(3) PRTR推計値によるLAS負荷推定

次に、対象とした河川の流域が下水道未普及であることから、PRTRの水系への排出量推計値から下水道や合併浄化槽普及地域では処理によって排出量がゼロと仮定して未普及地域一人当たりの排出量を算出した。この値に表-1に示した合併浄化槽普及率、炭素鎖の違う同族体のうち C_{12} の比率を30%⁸⁾と仮定し、それぞれの河川への C_{12} -LAS負荷量を算出した。2007年1月に実測した流量を合わせて家庭等から排出後に分解がないと仮定して C_{12} -LAS濃度推計値を求め、冬季の実測値と比較した(表-2)。

表-2 河川中 LAS 濃度の実測値と推計値の比較(冬季)

	C ₁₂ -LAS 実測値(mg/L)	C ₁₂ -LAS 推計値(mg/L)
田宮川	0.0023-0.16	0.75
冷田川	0.038-0.071	0.17
多々羅川	0.0050-0.010	0.072
打樋川	0.22-0.49	0.18
芝生川	0.0019-0.0028	0.0081
正法寺川	0.022-0.081	0.011

表-3 採取地点から 1 km 流下する際の
推計 LAS 浄化率(冬季)

	河川水+生物膜	河川水のみ
田宮川	24%	13%
冷田川	6.2%	2.7%
多々羅川	14%	11%
打樋川	6.7%	2.7%
芝生川	1.7%	1.5%
正法寺川	3.8%	3.2%

その結果、打樋川を除くすべての河川で推計値の方が高かった。これは各家庭等から排出後に河川を流下する過程で C₁₂-LAS の一部が分解を受けていることが主な原因であり当然の結果と考えられる。また、同じ流域面積であるが流域人口が多い冷田川の方が田宮川より LAS 濃度が低いのは、上流部で別の河川から取水しており流量が多い冷田川の方が希釈効果が大きいためであると推察される。

(4) 反応速度定数による河川中での LAS 浄化率推定

最後に、最も浄化率が低く汚染が深刻であると考えられる冬季の反応速度定数 k を用いて、上述した LAS 浄化モデルに当てはめて試行的に算出した浄化率を表-3 に示す。汚染度の高い田宮川、打樋川、冷田川で浄化率はそれぞれ 24%、6.7%、6.2% と比較的高く、生物膜を考慮すると河川水のための 2 倍以上になった。河川での LAS の分解には浮遊微生物ではなく付着微生物の作用の方が大きいことが示唆される。しかしこの 3 河川は他の河川に比べ、連続的な LAS 負荷量が多いと考えられるため、この浄化率では十分であるとはいえない。また、このモデルは非常に単純で河川形状や付着生物膜量の変化を考慮していないため正確とはいえない。今後、実測値との比較やより実際に近づけるためのパラメーター設定などが必

要であることは言うまでもない。

5 結論

汚濁負荷が高いと考えられる田宮川、冷田川、打樋川で C₁₂-LAS 分解の一次反応速度定数が大きく、汚濁負荷の少ない多々羅川、芝生川では反応速度は小さかった。河川水のみでも河川水に生物膜を加えたものでも、概して温度が高いほうが反応速度が大きい傾向が見られた。河川水中の浮遊微生物に加え、付着微生物も C₁₂-LAS の分解に対する寄与率が高いと考えられる。生物膜量、河川中 LAS 濃度、TOC、BOD、NH₄⁺-N にはそれぞれ反応速度定数と弱い正の相関が見られた。

謝辞: 本研究は徳島大学研究連携推進機構に対する徳島大学学長裁量経費の助成を受けて実施いたしました。また、TOC 測定等でご協力いただいた徳島大学ソシオテクノサイエンス研究部上月康則教授にもこの場を借りて感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 須藤隆一, 環境浄化のための微生物学, 講談社サイエンティフィック, 2000
- 2) エコケミストリー研究会 HP, 各物質の水域への排出源別排出量平成 16 年度
(<http://env.safeteng.bsk.ynu.ac.jp/eccochemi/PRTR2004/prtr-index.html>)
- 3) 真名垣聡, 小嶋早和香, 原田新, 中田典秀, 田中宏明, 高田秀重, 高速液体クロマトグラフィー質量分析計による直鎖アルキルベンゼンスルホン酸塩および分解産物の分析方法の開発と環境試料への応用, 水環境学会誌, 28, 621-628, 2005
- 4) 新エネルギー・産業技術開発機構, 直鎖アルキルベンゼンスルホン酸およびその塩(アルキル基の炭素数が 10 から 14 までのもの及びその混合物に限る), 化学物質の初期リスク評価書 ver. 1.0, No. 5
- 5) 西山真宏, 都島康彦, 池田祐三, 河川水中アルキルベンゼンスルホン酸塩濃度の現状, 衛生化学, 41, 234-237, 1995
- 6) Kobuke Y. LAS in urban rivers and factors contributing to reduction of their concentrations, Wat. Sci. Technol., 50, 355-361, 2004
- 7) 社団法人 日本下水道協会, 下水道の普及率と実施状況 2006 (http://www.jsww.jp/05_arkore/07_fukyu/index.html)
- 8) 環境省 記者発表資料, 平成 17 年度末の汚水処理人口普及状況について, 2006
- 9) Boeije, G. M., Schowank, D. R., Vanrolleghem, P. A., Incorporation of biofilm activity in river biodegradation modeling, a case study for linear alkylbenzene sulphonate (LAS), Wat. Res., 34, 1479-1486, 2000
- 10) Lee, C., Russell, N. J., White, G. F., Modeling the kinetics of

- biodegradation of anionic surfactants by biofilm bacteria from polluted riverine sites: A comparison of five classes of surfactant at three sites, *Wat. Res.*, 29, 2491-2497, 1995
- 11) OECD Test guidelines for chemicals No. 301, 1995
- 12) Matsuura, T. Smith, J. M., Kinetics of photodecomposition of dodecyl benzene sulfonate, *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 9, 252-260, 1970
- 13) 環境省環境管理局水環境部企画課：要調査項目等調査マニュアル, 2000
- 14) 日本分析化学会北海道支部編, 水の分析, 化学同人, pp.307-311, 2005
- 15) Prats, D., López, C., Vallejo, D., Varó P, León V. M.L., Effects of temperature on the biodegradation of linear alkylbenzene sulfonate and alcohol ethoxylate, *J. Surf. Det.*, 9, 69-75, 2006
- 16) 環境省, 徳島県水洗化人口, 平成 17 年度一般廃棄物処理実態調査, 2006. (http://www.env.go.jp/recycle/waste_tech/ippan/h17/data/shori/city/36/03.xls)
- 17) Deksis, T., De Pauw, D., Vanrolleghem, P. A., Dynamic in-stream fate modeling of xenobiotic organic compounds: a case of linear alkylbenzene sulfonates in the Lambro River, Italy *Environ. Toxicol. Chem.*, 23, 9, 2267-2278.
- 18) Cavalli, L., Divo, C., Giuffrida, G., Pellizzon, T., Radici, P., Valtorta, L., Zatta, A., Producing linear alkyl benzene (LAB) from $AlCl_3$ catalyst, *Spec. Chem.*, August, 228-231, 1993

(2007.5.25 受付)

Biodegradation of linearalkylbenzensulfonate by riverine biofilm in the area of no sewage service coverage

Ikumi TAMURA¹, Minako OHTA¹, Jun SEKIZAWA¹ and Hiroshi YAMAMOTO¹

¹University of Tokushima

Although the recent sewage service coverage in Japan is approximately 70% based on national population, regional variance is still large and water pollution is still public concern in small rivers and streams in no sewage service coverage area. Since details of biodegradation in urban streams have long been focused on indirect water quality indices such as T-N, T-P, and BOD, few studies have been focused on individual pollutants. In this research, therefore, linear alkylbenzensulfonate (LAS), a popular anionic surfactant, was selected as a target compound. Tokushima Prefecture is known as the lowest sewage coverage in Japan, and we selected six streams of suburban Tokushima city with little sewage coverage, and collected biofilm in three seasons, and the biodegradation rate was investigated. As results, the riverine biofilm sampled from the highly LAS- or NH_4^+ -N contaminated streams showed relatively higher biodegradation rate.. In addition, our estimation of the contribution of biofilm to the biodegradation of LAS is relatively higher than suspended bacteria, which suggests the biofilm plays important role in the degradation of LAS in the highly contaminated urban streams with no sewage service coverage.