

戦-25 都市水環境における水質評価手法に関する調査

研究予算：運営費交付金（一般勘定）

研究期間：平 18～平 22

担当チーム：水環境研究グループ（水質）

研究担当者：南山瑞彦、平山孝浩、北村友一、村山康樹

鈴木穰、北村清明

【要旨】

本研究課題では、都市水環境における生態系の確保に寄与する水質評価手法の提案を目的に、都市河川を対象として、通常の水質項目に加えて、微量化学物質等の水質測定やバイオアッセイによる水生生物への影響評価を行い、水質特性のグルーピングを行った。また、河川中に形成された水生生物相を併せて調査し、水質特性との関係を解明した。さらに、本研究等で得られた成果を応用して、都市における水資源としての利用が期待されている下水処理水の、修景用水利用における付着藻類増殖を抑制する手法を検討した。

キーワード：河川水質、水生生態系、統計解析、バイオアッセイ、藻類増殖抑制

1. はじめに

近年、下水道普及率の向上等により、都市部の河川水質は改善の方向にある。しかし、水質環境基準を達成しても良好な水生生態系が形成されるとは限らず、水生生態系の保全を考慮した水質改善が求められている。

国土交通省は、平成 17 年に、住民や利水者の河川水質に対する要望の多様化と増加に対応する事を目的に、「今後の河川水質管理の指標について（案）」をとりまとめた（平成 21 年改訂¹⁾）。同案では、「豊かな生態系の確保」という視点を取り入れ、その評価指標として、アンモニア態窒素（ $\text{NH}_4\text{-N}$ ）や溶存酸素（DO）、水生生物の生息（指標種による簡易評価）等の項目を提示している。また、平成 15 年度には、水生生物の保全に係る環境基準が新たに設定され、亜鉛が環境基準項目に、クロロホルム、フェノール、ホルムアルデヒドの 3 物質が要監視項目に指定された。ノニルフェノール、直鎖アルキルベンゼンスルホン酸（LAS）他数物質についても検討が進められている²⁾。

しかし、水環境中の生態系に対しては、上記以外にも、微量汚染物質を含めた多種多様な物質が影響を与えていると考えられることから、生態影響を対象とした水質評価指標の開発が求められている。

本研究課題では、流域状況や污水处理状況の異なる複数の都市河川を対象として、一般的な水質項目に加えて、微量化学物質等の水質測定やバイオアッセイによる水生生物への影響評価を行い、水質特性

の把握を行った。また併せて、調査地点の底生生物相（藻類、底生動物）を調査し、水質特性と水生生物との関係について検討した。

さらに、本研究等で得られた成果を応用し、都市における水資源としての利用が期待されている下水処理水に対して好気条件での微生物保持担体処理を行う事で、放流先水路における付着藻類増殖を抑制する手法を検討した。

2. 河川における調査

2.1 調査方法

2.1.1 調査地点及び調査時期

本研究では、関東地方の利根川水系、多摩川水系及び四国地方の津田川水系の河川及び小水路に、計 66 箇所の調査地点を設定し、各地点において 1~3 回、延べ 131 試料の採水を行った。調査地点には、都市河川上流の山間部、農村地域、下水道整備途上の都市域、下水処理水が流量の過半を占める地域、下水処理水のみが流れるせせらぎ等、多様な水質の地点を選定した。底生生物試料の採取を行うため、原則として、水深が比較的浅く流速が確保されている地点を調査地点とした。

調査は、平成 19 年～22 年の、主に晩夏から初春にかけての時期に行った。

2.1.2 水質分析

調査地点、調査時期により測定項目が異なるが、最大で、水質一般指標 16 項目、及び金属類 30 元素、医薬品類 56 物質について、分析を行った。

1) 一般指標項目

水質一般指標として、水温、pH、溶存酸素濃度 (DO)、電気伝導度 (EC)、全残留塩素 (TRC)、遊離残留塩素 (FRC)、懸濁物質 (SS)、生物化学的酸素要求量 (BOD)、化学的酸素要求量 (COD_{Mn})、溶解性有機炭素 (DOC)、全窒素 (T-N)、アンモニア態窒素 (NH₄-N)、亜硝酸態窒素 (NO₂-N)、硝酸態窒素 (NO₃-N)、全りん (T-P)、りん酸態りん (PO₄-P) を分析した。

水温、DO、電気伝導度、全残留塩素は、調査地点において、携帯型水質測定器を用いて測定した。その他の項目は、ガラス瓶、またはポリビンに満水状態で採水し、冷蔵状態で試験室へ持ち帰った後、「下水試験方法³⁾」に準じた方法で分析を行った。DOC の測定には全有機炭素計 (TOC-5000A, (株) 島津製作所) を、各態窒素・りんの測定には、連続流れ分析装置 (TRAACS800, Bran+Luebbe, Inc) をそれぞれ用いた。

2) 金属類等

Li、Be、B、Al、Na、Mg、K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Se、Sr、Mo、Ag、Cd、In、Sn、Sb、Te、Ba、Tl、Pb、U の 30 元素を対象に分析を行った。

試料は、ポリビンに採水して氷冷状態で分析室へ輸送し、硝酸を添加した後、分析まで冷暗所に保管した。Na、Mg、K、Ca の 4 元素は誘導結合プラズマ発光分析 (ICP-AES) 法により、誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) 法により、一斉分析を行った。使用機器は、Optima3000 (Perkin-Elmer) 及び X7/CCT (THERMO[®] Electron) である。

3) 医薬品類

我が国において水環境での検出例が報告されている医薬品類を中心に 56 物質を選定し、その溶存態成分について分析を行った。対象物質には、解熱鎮痛薬、神経系作用薬、循環器薬、消化器薬、抗菌薬、動物用医薬品等様々な薬理作用の医薬品類が含まれている。

Thymol、Triclosan の 2 物質は、Nakada *et al.*⁴⁾の方法を参考に抽出、濃縮、アセチル化等の前処理を行った後、GC-MS を用いて測定し、絶対検量線法または同位体希釈法により定量した。その他の 54 物質は小西ら⁵⁾の方法を参考に抽出、濃縮等の前処理を行った後、LC-MS/MS を用いて測定し絶対検量線法により定量した。

2.1.3 バイオアッセイ

近年、内分泌かく乱物質や医薬品類等、水環境中に存在する様々な生理活性物質について、水生生態系に対する影響が懸念されているが、水生生物に対する影響については、十分明らかにされていない。また、環境中においては、多種多様な生理活性物質が共存していることから、その複合影響も懸念される。そこで本研究では、実際の河川水を対象に、バイオアッセイにより、その全毒性評価を試みた。

1) 前処理方法

わが国の河川においては、生態毒性は比較的低い地点が多く、短期間のバイオアッセイにおいて明らかな影響が検出されることは少ない。また、特に藻類生長阻害試験においては、河川水中に存在する窒素やりん等の栄養塩類の濃度が、毒性値に影響することが知られており⁶⁾、毒性がマスキングされてしまう可能性がある。本研究においても、前処理を行わない場合に、有意な影響を示した試料はなかった。

そこで本検討では、前処理として固相抽出による分画濃縮を行った。これにより、評価対象が固相に吸着、脱離される物質群に限定されるものの、原水より濃縮された状態でのばく露が可能となり、通常では明確にならない毒性を検出することが可能となる。固相カートリッジには、OASIS[®] HLB Plus Extraction Cartridge (Waters Corp.) を使用し、GF/B (Whatman, Inc.) で濾過した 1000 mL の試料を通水した後にメタノールで溶出を行い、溶出液を乾固後 100 μ L の DMSO に再溶解することで濃縮試料 (原水の 10000 倍濃度) を得た。濃縮試料は、ばく露溶液中の DMSO 濃度が 0.5%を超えないように最大ばく露濃度を原水の 50 倍以下に設定し、公比 2 で等比級数的に希釈した試験系列を作成して試験を行った。なお、各試験系における DMSO の最大無影響濃度 (NOEC) が 0.5%以上であることを、事前試験により確認している。

2) 細菌による試験

海洋性発光細菌 *Vibrio fischeri* を供試生物として使用する、市販の生体毒性試験システム Microtox[®] (Strategic Diagnostics, Inc.) を用い、細菌が発する光量の増減から細菌の代謝に対する阻害影響を評価した。試験は、システムに添付された急性毒性試験のプロトコルに従って行い、ばく露時間 5 分における半数影響濃度 (EC₅₀) を、附属の計算ソフトにより求めた。

3) 藻類による試験

96 ウェルマイクロプレート培養容器とし、吸光度から細胞濃度を求める Harada *et al.*⁷⁾の手法を参考に、藻類生長阻害試験 (Algal Growth Inhibition Test; AGIT) を行った。被験生物には、OECD 化学品テストガイドライン No.201⁸⁾の推奨種となっている、単細胞緑藻 *Pseudokirchneriella subcapitata* (NIES-35 株) を、試験培地には AAP 培地⁸⁾を用いた。1 試料に対して 1 枚の 96 ウェルマイクロプレート (Falcon 96-well Microtest™ Plate, Tissue-culture treated, flat bottom; Becton Dickinson, Inc.) を用い、2 倍希釈 10 段階 5 連、初期生物量 1×10^4 cells/mL の試験系列を作成した。試験条件は、温度 24°C、照度 4000 Lux、振とう速度 120 rpm とし、24 時間毎にマイクロプレートリーダー (WALLAC ARVO SX-1420, Perkin Elmer, Inc.) を用いて、各ウェルの吸光度 (波長: 450 nm) を測定した。毒性値の算出には EcoTox-Statics Ver.2.6d⁹⁾を用い、0-72 時間の生長速度とばく露濃度の関係から、probit 法により EC₅₀ を求めた。

2.1.4 生物調査

本研究では、河床の付着藻類および大型底生動物を対象に、生物相の調査を行った。付着藻類は一次生産者として、水生昆虫をはじめとする底生動物は一次消費者として、ともに河川生態系における重要な機能を担っている。

1) 付着藻類

水中から採取した石 (径 10 ~ 30 cm 程度) の表面に 5 × 5 cm の方形枠を当て、枠の範囲にある付着物をブラシで擦り取ることで、分析試料の採取を行った。この操作を 1 地点について 5 回行い、計 125 cm² 分を採取、混合した後、その半分 (62.5 cm² 分) を用いて種の定量分析を行い、残りの半分を用いてクロロフィル類 (Chlorophyll-*a/b/c*, Pheophytin-*a*) の分析を行った。種の定量分析用試料は、現地にてホルマリン (約 5% (v/v)) 固定を行って分析室へ輸送し、光学顕微鏡下で出現種の同定および計数を行った。クロロフィル分析用試料は、冷蔵状態で分析室へ輸送した後、「河川水質試験方法 (案)¹⁰⁾」に従ってクロロフィル類の定量を行った。

2) 底生動物

「河川水辺の国勢調査基本調査マニュアル [河川版]¹¹⁾」を参考に試料の採取を実施した。

調査地点の河床に 25 × 25 cm の方形枠を設定し、その下流側に採集ネットを受けて、枠内にある石表面や底質中に生息する生物を収集した。およそ径

表 2.1 一般水質指標の分析結果概要

	Max.	Min.	Median
pH	9.4	6.5	7.7
DO (mg/L)	16.2	1.2	10.8
EC (mS/m)	78	8.1	28
TRC (mg/L)	0.83	<0.05	<0.05
FRC (mg/L)	0.46	<0.05	<0.05
SS (mg/L)	22	<1	2
BOD ₅ (mg/L)	25	<0.5	1.4
COD _{Mn} (mg/L)	6.8	1.1	3.9
DOC (mg/L)	12	0.2	2.7
T-N (mg/L)	20	0.6	3.9
NH ₄ -N (mg/L)	11	<0.05	0.06
NO ₂ -N (mg/L)	1.1	<0.020	0.060
NO ₃ -N (mg/L)	16	0.24	3.2
T-P (mg/L)	2.1	<0.020	0.13
PO ₄ -P (mg/L)	1.8	<0.025	0.089

10cm 以上の石礫については、河川中で表面をブラシ等で擦ることで生物をネット中に洗い落とした。小石や砂泥については水中から取り出し、水を入れたバケツの中で生物を洗い落とした後にピンセット等で採集した。この作業を 4 回繰り返すことを基本として、採取した全ての試料を混合して分析用の試料とした。分析用試料は、現地にてホルマリン (約 5% (v/v)) 固定を行い、分析室へ輸送した後、出現種の同定および計数を行った。

2.2 調査結果

2.2.1 水質分析

1) 一般指標項目

一般指標項目の測定結果の概要について、表 2.1 に示す。各項目とも広い範囲の値を示し、清澄な地点から汚濁の進んだ地点まで、様々な水質条件の河川が含まれていたことが示された。

2) 金属類等

対象とした 30 元素のうち、Be、Ag、Cd、In、Te、Tl、U はいずれの地点においても検出されなかった。他の 23 元素について、分析結果の概要を表 2.2 及び表 2.3 に示す。各元素の検出率は、B、Al、Na、Mg、Ca、Fe、Zn、Sr、Ba の 9 元素が 100%、Li、K、Mn、Cu が 80%以上、V が約 50%、その他 9 元素は 30% 未満であった。また、水生生物保全の観点から環境

表 2.2 金属等元素の分析結果概要 (1)

	(mg/L)			
	Max.	Min.	Average	Median
Na	31	2.7	16	16
Mg	8.1	1.1	4.2	4.4
K	12	<1.0	5.1	5.1
Ca	39	12	23	22
Hardness (mg-CaCO ₃ /L)	130	34	75	73

表 2.3 金属等元素の分析結果概要 (2)

	(μg/L)			
	detected / tested	Max.	Min.	Median
Li	71 / 94	53	<1.0	1.7
B	109 / 109	220	5.4	34
Al	109 / 109	890	1.7	22
V	56 / 109	13	<1.0	<1.0
Cr	10 / 109	22	<1.0	<1.0
Mn	103 / 109	130	<1.0	6.6
Fe	109 / 109	520	4.7	33
Co	7 / 109	13	<1.0	<1.0
Ni	46 / 109	42	<1.0	<1.0
Cu	90 / 109	12	<1.0	2.0
Zn	109 / 109	120	1.3	8.1
As	12 / 109	2.6	<1.0	<1.0
Se	2 / 109	5.8	<1.0	<1.0
Sr	49 / 49	230	37	90
Mo	29 / 109	18	<1.0	<1.0
Sn	6 / 109	1.2	<1.0	<1.0
Sb	4 / 109	1.5	<1.0	<1.0
Ba	109 / 109	34	1.5	7.9
Pb	1 / 109	1.0	<1.0	<1.0

基準値が設定されている Zn については、淡水域における基準値 (30μg/L) を超過している地点も見られた (109 検体中 6 検体)。

3) 医薬品類

対象とした医薬品類 56 物質のうち、Ampicillin、Chlorpromazine、Dexamethasone acetate、Mefenamic acid、Novobiocin、Tolbutamide、Tolperisone は、全ての調査地点において、定量下限値未満であった。他の 49 物質について、分析結果の概要を表 2.4 に示す。検出率は Disopyramide (100%)、Crotamiton (95%)、Caffeine (92%)、DEET (91%)、Fenoprofen (89%)

表 2.4 医薬品類の分析結果概要

	(ng/L)			
	detected / tested	Max.	Min.	Med.
Acetazolamide	23/104	16	<0.17	0.6
Amitriptyline	26/104	1.5	<0.077	<0.098
Atenolol	15/44	37	<0.25	<0.51
Azithromycin	82/104	40	<0.062	0.55
Bezafibrate	79/104	300	<0.25	6.1
Caffeine	104/104	1700	1.6	70
Carbamazepine	90/104	49	<0.042	1.1
Chloramphenicol	16/104	4.6	<0.12	0.27
Chlortetracycline	16/60	420	<1.1	<1.1
Clarithromycin	89/104	150	<0.92	5.3
Crotamiton	104/104	710	0.3	22
Dexamethasone	38/44	1.6	<0.13	0.5
Dextromethorphan	28/104	4.3	<0.097	<0.16
Diclofenac	91/104	150	<0.11	1.8
Diethyltoluamide	104/104	54	0.4	3.2
Diltiazem	50/104	13	<0.12	<0.33
Diphenidol	39/104	9.9	<0.12	<0.36
Dipyridamole	36/104	3.8	<0.29	1.4
Disopyramide	60/60	130	0.3	5.1
Ethenzamide	17/44	9.7	<0.1	<0.21
Fenoprofen	44/44	1.8	0.2	1.0
Flufenamic acid	7/44	7.6	<0.13	<0.14
Furosemide	62/104	96	<0.13	0.70
Haloperidol	16/104	0.70	<0.025	<0.28
Ibuprofen	47/104	47	<0.055	<1.7
Ifenprodil tartrate	44/60	1.9	<0.049	0.15
Imipramine	23/104	0.9	<0.073	<0.1
Ketoprofen	84/104	140	<0.2	1.2
Levofloxacin	75/104	500	<0.91	3.9
Metoclopramide	5/44	5.4	1.4	0.21
Nalidixic acid	25/44	74	<0.17	0.37
Naproxen	48/104	13	<0.045	<0.11
Oxytetracycline	35/60	660	<1.4	2.1
Paracetamol	39/60	22	<0.89	1.3
Phenytoin	34/44	61	<0.16	1.5
Pirenzepine	10/44	18	<0.10	<0.20
Primidone	56/104	43	<0.25	1.3
Promethazine	54/104	0.7	<0.059	0.10
2-QCA	34/44	18	<0.17	1.6
Sotalol	1/44	1.4	<0.10	<0.20
Sulfamethoxazole	51/60	37	<0.30	9.3
Sulfamonomethoxine	47/60	59	<0.30	0.76
Sulpiride	100/104	2700	<0.45	11
Tetracycline	22/60	37	<5.8	<5.8
Theophylline	56/60	14	<0.25	2.6
Thymol	5/44	24	<0.66	<1.3
Triclosan	69/104	100	<4.7	9.4
Trimethoprim	51/60	19	<0.22	3.4
Verapamil	7/44	2.0	<0.17	<0.27

等が高く、その他、60~80%未満が 12 物質、40~60% 未満が 6 物質、20~40%未満が 13 物質、20%未満が 13 物質であった。濃度については、Sulpiride（最大値 2700 ng/L、中央値 11 ng/L）、Caffeine（最大値 1700 ng/L、中央値 70 ng/L）、Crotamiton（最大値 710 ng/L、中央値 22 ng/L）等が高い値を示した。また、検出率の低い Oxytetracycline（検出率 28%、最大値 660 ng/L）や Tetracycline（検出率 10%、最大値 420 ng/L）についても高い濃度を示す地点がみられ、これらの物質では、地点特異的な負荷の存在が伺われた。

2.2.2 バイオアッセイ

海洋性発光細菌 *V. fischeri* に対する発光阻害をエンドポイントとしたバイオアッセイ（Microtox[®]試験）、および単細胞緑藻 *P. subcapitata* に対する生長阻害をエンドポイントとしたバイオアッセイ（藻類生長阻害試験）の結果について、概要を表 2.5 に示す。また、2 種類のバイオアッセイによる検出条件の比較を表 2.6 に、検出された毒性の強さの比較を図 2.1 に示す。毒性の強さの指標として、EC₅₀の逆数（毒性単位 Acute Toxicity Unit; TUa）を算出して用いた。

半数阻害濃度（EC₅₀）が最大ばく露濃度の 5000% 倍（原試料に対する濃縮倍率として 50 倍）を上回ったのは、Microtox[®]試験では 109 試料中 15 試料（14%）、藻類生長阻害試験では 112 試料中 29 試料（27%）であり、Microtox[®]試験に比べて藻類生長阻害試験の方が、検出率が高かった。また、図 2.1 から、Microtox[®]試験に比べて藻類生長阻害試験の方が、感受性が高い（毒性が強く評価される）傾向が見られる。しかし、その関係は明確ではなく、Microtox[®]試験では毒性が検出されたが藻類生長阻害試験では検出されなかった試料（15 試料中 6 試料；40%）、逆に藻類生長阻害試験では毒性が検出されたが Microtox[®]試験では検出されなかった試料（31 試料中 22 試料；71%）も多く見られた。一方の試験でのみ比較的高い毒性が検出される試料もあったことから、河川水が異なる生物種に与える影響の強さは一様ではなく、水生生態系に対する影響を評価する上で、複数のアッセイ系を用いる重要性が確認された。

2.2.3 生物相調査

1) 付着藻類
本研究では、55 地点で延べ 113 回の調査を行い、189 タクサの付着藻類が確認された。うち、珪藻類が 163 タクサ、緑藻類が 14 タクサ、藍藻類が 8 タク

表 2.5 バイオアッセイの結果概要（EC₅₀ [%]）

	detected / tested	Min.	Max.
Microtox	15 / 109	630	>5000
AGI test	31 / 114	120	>5000

*detected: EC₅₀<5000%

表 2.6 2 種類のバイオアッセイによる毒性の検出状況（n=109）

		Microtox	
		detected	n.d.
AGI test	detected	9	6
	n.d.	22	72

*n.d: not detected (EC₅₀>5000%)

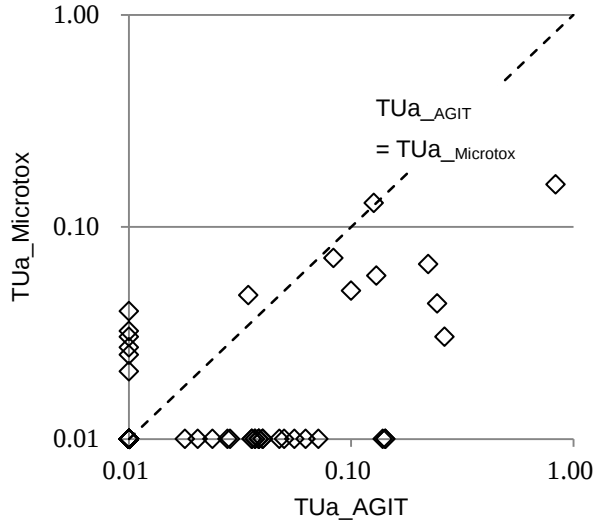


図 2.1 2 種類のバイオアッセイにより検出された毒性の強さ（n=109）

サ、紅藻類が 2 タクサ、褐藻類、黄金藻類が各 1 タクサである。出現頻度では、クサビケイソウ属 *Gomphonema parvulum*（79%）、ツメケイソウ属 *Achnanthes lanceolata*（77%）、コメツブケイソウ属 *Cocconeis placentula*（76%）、フネケイソウ属 *Navicula gregaria*（71%）が多く、多くの地点で普遍的に見られた。その他、出現頻度 50~70%未満であったのが 9 タクサ、30~50%未満が 12 タクサ、10~30%未満が 36 タクサ、10%未満が 128 タクサであった。

地点別の集約指標として、出現タクサ数、細胞密度、クロロフィル濃度、Shannon-Wiener の多様度指数 *H'*（数式 2.1）、Simpson の多様度指数 1-*D*（数式 2.2）、珪藻群集に基づく有機汚濁指数 DAIPo(Diatom

Assemblage Index to organic water pollution)¹²⁾について整理した結果を表 2.7 に示す。各指数は、調査地点によって大きな幅を示しており、本研究の調査地点には、付着藻類の生物相の点で多様な地点が含まれていたと考えられる。

2) 底生動物

本研究では、51 地点で延べ 108 回の調査を行い、246 タクサの底生動物が確認された。うち 187 タクサを昆虫綱が占め、その内訳は、ハエ目 63、カゲロウ目 40、トビケラ目 39、コウチュウ目 18、カワゲラ目 16、トンボ目 8、カメムシ目、ヘビトンボ目、チョウ目が各 1 であった。昆虫綱以外の出現タクサ数は、軟甲綱が 7、クモ綱が 3、環形動物門（ミミズ綱、ヒル綱）が 25、軟体動物門（腹足綱、二枚貝綱）が 13、扁形動物門が 4、苔虫動物門が 3、海綿動物門が 2、紐型動物門、線形動物門が各 1 であった。

タクサ別の出現頻度では、ミズムシ *Asellus hilgendorfi hilgendorfi* が最も多くの地点（出現頻度 63%）で確認され、H コカゲロウ *Tenuibaetis* sp. H、シロタニガワカゲロウ *Ecdyonurus yoshidae*、アカマダラカゲロウ *Uracanthella punctisetae*、ウルマーシマトビケラ *Hydropsyche orientalis*、モンユスリカ亜科（Tanipodinae）の各タクサが、半数以上の調査地点で確認された。その他、出現頻度 25~50%未満であったのが 13 タクサ、10~25%未満が 44 タクサ、5~10%未満が 47 タクサ、5%未満が 136 タクサであった。

また、地点別の出現タクサ数、個体密度、湿重量、Shannon-Wiener の多様度指数 H' 、Simpson の多様度指数 $1-D$ 、EPT 指数（E：カゲロウ目、P：カワゲラ目、T：トビケラ目の種数の和）、EPT 割合（EPT 種の個体数／全個体数）、スコア法¹³⁾による平均スコア ASPT について整理した。結果を表 2.8 に示す。各指数は、付着藻類同様に調査地点によって大きな幅を示し、底生動物の観点からも多様な生物相の地点が含まれていたといえる。

2.2.4 統計解析

各水質項目、バイオアッセイによる生態毒性、現地生物相の調査結果を用いて統計解析を行い、各調査地点の水質特性や、水質が水生生態系に与えている影響等について検討した。解析は、R Version 2.12.1 ~ 2.14.0（R Foundation for Statistical Computing）を用いて行った。

1) 水質項目の主成分分析

各調査地点における様々な水質項目において、各項目間には相互に強い相関があるため、主成分分析

$$H' = 1 - \sum_{i=1}^s p_i \ln p_i \quad \text{数式 2.1}$$

$$1 - D = 1 - \sum_{i=1}^s p_i^2 \quad \text{数式 2.2}$$

表 2.7 付着藻類調査結果概要（n=113）

	Max.	Min.	Median
Number of Taxa	48	6	22
Cell density (cells/mm ²)	4.8×10 ⁶	1.6×10	1.1×10 ⁴
Chl.a (μg/cm ²)	78	8.1	28
Shannon-Wiener's diversity index (H')	1.25	0.00	0.60
Simpson's diversity index ($1-D$)	0.93	0.00	0.57
DAIPo	95.4	9.7	56.6

表 2.8 底生動物調査結果概要（n=108）

	Max.	Min.	Median
Number of Taxa	58	3	21
Population density (individuals/m ²)	8.0×10 ⁴	6.0×10	2.0×10 ³
Biomass(wet-g/m ²)	9.5×10 ⁴	7.1×10	1.1×10 ⁴
Shannon-Wiener's diversity index (H')	1.31	0.01	0.94
Simpson's diversity index ($1-D$)	0.95	0.01	0.80
EPT index	31	0	10
EPT ratio (%)	95	0	44
ASPT	8.00	6.09	1.00

により変数の集約を行った。測定頻度を考慮し、一般指標 9 項目、金属等元素 19 項目、医薬品類 28 項目の計 55 項目、96 地点のデータを用いた。検出下限値以下のデータについては検出下限値の 1/2 で代用し、pH 以外の項目については対数変換を行った後、正規化した。結果を表 2.9 に示す。

表 2.9 水質項目の主成分分析

	PC1	PC2	PC3	PC4	PC5	PC6	PC7	PC8	PC9
Eigenvalue	20.76	7.17	6.90	2.71	1.80	1.59	1.42	1.27	1.12
Cumulative contribution	0.38	0.51	0.63	0.68	0.72	0.74	0.77	0.79	0.81
Pearson product-moment correlation coefficient with original items (plain: $P < 0.05$, bold: $P < 0.01$)									
<i>General Items</i>									
pH	-0.39			-0.58				-0.27	
DO		0.24	0.36	-0.56	0.35				-0.21
EC	0.76		-0.37			-0.21			
TRC	0.20	-0.48		0.29	-0.27			-0.33	-0.42
DOC	0.69		-0.28				-0.39		
NH4_N	0.38		-0.42	-0.50	-0.23		-0.28		
NO2_N	0.53	-0.24	-0.43	-0.38		-0.22			
NO3_N	0.72	-0.38	-0.24						-0.25
PO4_P	0.81	-0.23							
<i>Elementals</i>									
Be		0.52	-0.78						
B	0.53	-0.43	-0.44						-0.33
Al		-0.90							
V		-0.70	-0.28					0.23	
Cr	0.43		-0.43		0.57				
Mn	0.42	-0.61			-0.31		-0.24		0.21
Fe		-0.82	-0.21						0.24
Co	0.36		-0.73		0.27			-0.21	
Ni	0.67	-0.32		0.24	0.27		-0.25		
Cu	0.77		-0.36						
Zn	0.69		-0.45					-0.21	
As		-0.71	0.22						
Se	0.47		-0.30		0.46				
Mo	0.69			0.50			-0.30		
Cd		0.53	-0.74						
Sn	-0.21	0.33	-0.52		-0.22	0.61			
Sb		0.63	-0.29			0.46			
Ba			-0.49			0.55		0.23	-0.36
Pb	0.37		-0.55					-0.50	0.27
<i>PPCPs</i>									
Acetazolamide	0.59		0.29	0.33	-0.21		-0.40		
Amisriptyline	0.80	0.39	0.27						
Azithromycin	0.85	0.34							
Bezafibrate	0.85			-0.22					
Caffeine	0.31	-0.52	-0.25	-0.56					
Carbamazepine	0.85		0.20				0.27		
Chloramphenicol	0.57		0.52					-0.26	
Chlorpromazine		0.40	-0.64		-0.29	-0.23			
Clarithromycin	0.92	0.24					0.22		
Crotamiton	0.91								
Dextromethorphan	0.80	0.46	0.22						
Diclofenac	0.92	0.23							
Diethyltoluamide	0.71	-0.26		0.26			0.37		
Diltiazem	0.90	0.21	0.29						
Diphenidol	0.68	0.63							
Dipyridamole	0.37			-0.45	-0.34				
Furosemide	0.87								
Haloperidol	0.44	-0.32	0.66				-0.21		
Ibuprofen	0.75			-0.34					
Imipramine	0.77	0.34	0.33		-0.21				
Ketoprofen	0.70				-0.26			-0.31	-0.28
Levofloxacin	0.85		0.39						
Naproxen	0.74		0.34		0.25				
Primidone	0.83		0.28						
Promethazine	0.32	0.62	-0.42		-0.31	-0.24			
Sulpiride	0.93		0.23						
Triclosan	0.72		0.45						

固有値が 1 以上の合成変数(主成分)は 9 つ作成され、この 9 変数の寄与率の合計は 81%であった。この中で、第 1 主成分 (PC1) は、有機汚濁や栄養塩類を含む多くの水質項目と高い相関があることから、一般的な水質汚濁の状況を指標している変数だと考えられた。また、医薬品類等の生活関連微量化学物質 (PPCPs) に関してもほとんどの物質が PC1 と正の相関を示した。これらの多くは、一般家庭等から排出され、一部が下水道等を経由した後、水環境に放出される化学物質である。本研究の調査地点には、汚濁負荷に対する生活系の寄与が比較的高いと考えられる都市河川が多く含まれていることから、有機汚濁や栄養塩類等と PPCPs との間に存在実態に類似性が見られたものと考えられる。一方で、金属等の元素に関しては。

2) 水質項目とバイオアッセイ結果の相関

1) で分析した水質項目の主成分 (PC1~PC9) と、バイオアッセイの結果 (Microtox[®]、藻類生長阻害試験) との相関解析を行った。バイオアッセイの結果については、TUa (EC₅₀ の逆数) を用いた。検出下限値未満のデータの比率が大きいことから、検出下限値以下のデータを検出下限値の 1/2 で代用した後、Spearman の順位相関係数を求めた。結果を表 2.10 に示す。

Microtox[®]では、PC1、PC3、PC5 及び PC8 との間の相関が有意 ($P < 0.05$) となったが、相関係数の絶対値は 0.28~0.38 と大きくなかった。一方、藻類生長阻害試験では、PC1 及び PC3 との間に有意な正の相関 ($P < 0.05$) が見られ、特に PC1 とは強い相関を示した ($\rho = 0.74$)。PC1 は、分析対象とした多くの水質項目と高い相関があるが、バイオアッセイに供した試料は OASIS[®] HLB Plus により固相抽出を行った試料であることから、試料中の溶解性有機成分が藻類に対する毒性を示したものと考えられた。TUa_{AGIT} と DOC 及び主成分分析に用いた PPCPs 28 物質 (表 2.9 を参照) との間の相関解析を行った結果、Caffeine と Chlorpromazine を除く項目と有意な正の相関が見られ、11 物質では相関係数が 0.7 を上回った。この中には、藻類に対して強い毒性を示すことが報告されている抗生物質の Clarithromycin^{14,15,16,17,18)}や Levofloxacin^{14,15,18,19)}等も含まれており、これらの物質 (群) による影響が考えられたが、各 PPCPs 間での相関が強いため、原因物質を特定することは出来なかった。

表 2.10 水質とバイオアッセイとの相関

	(μg/L)			
	Microtox [®]		AGIT	
	ρ	P-value	ρ	P-value
PC1	0.28	0.007	0.74	0.000
PC2	0.10	0.362	0.18	0.075
PC3	-0.38	0.000	0.23	0.023
PC4	-0.15	0.155	0.12	0.251
PC5	-0.30	0.003	-0.14	0.187
PC6	-0.08	0.430	0.08	0.421
PC7	-0.19	0.078	0.03	0.754
PC8	0.28	0.008	0.13	0.209
PC9	0.16	0.131	0.08	0.418

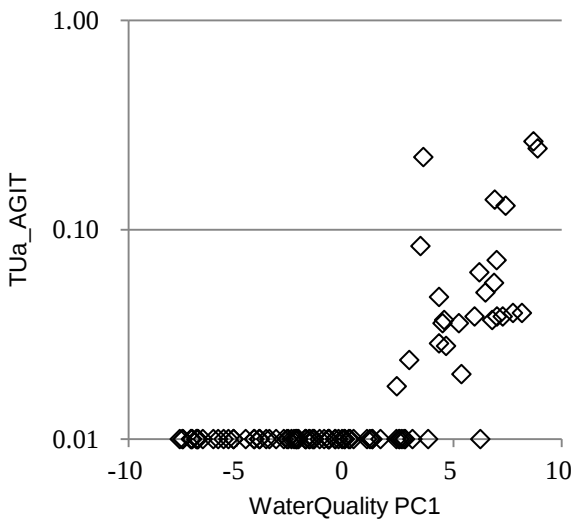


図 2.2 水質と藻類生長阻害試験の毒性値の関係

3) PPCPs の生態リスクとバイオアッセイの比較

河川水中に存在する微量汚染物質が、環境中の水生生物に対してどの程度の影響を与えているかを検討するため、水質分析の結果から予想される生態リスク評価値と、バイオアッセイによる毒性値との比較を行った。本研究でバイオアッセイに供した試料は、OASIS[®] HLB Plus により固相抽出を行った試料であり、主に溶解性有機成分が毒性因子となっていると考えられることから、PPCPs を対象にリスク評価を行った。また、環境試料からの毒性値の検出状況及び対象物質に関する毒性値の情報量の観点から、本検討では藻類に対する生長阻害影響について評価することとした。評価は、河川水中から検出された

表 2.11 水質主成分と底生生物相との相関

	Principal Components of Water Quality								
	PC1	PC2	PC3	PC4	PC5	PC6	PC7	PC8	PC9
Periphyton community									
No. of taxa				-0.58			-0.25		
Cell density				-0.33			-0.28		
Chl-a		0.42					-0.35		
Simpson's 1-D				-0.38					
Shannon's H'				-0.41					
DAIpo	-0.47								
Macro invertebrate community									
No. of taxa	-0.32	0.55			0.25			-0.47	
Individual density		0.35				-0.33		-0.43	
Wet Weight	-0.25			-0.46	0.24	-0.26		-0.40	
Simpson's 1-D	-0.34							-0.32	
Shannon's H'	-0.34	0.31			0.24			-0.39	
EPT index	-0.50	0.38			0.32			-0.34	
EPT ratio	-0.31	-0.49					0.32		
ASPT	-0.51		0.26				0.29	-0.24	

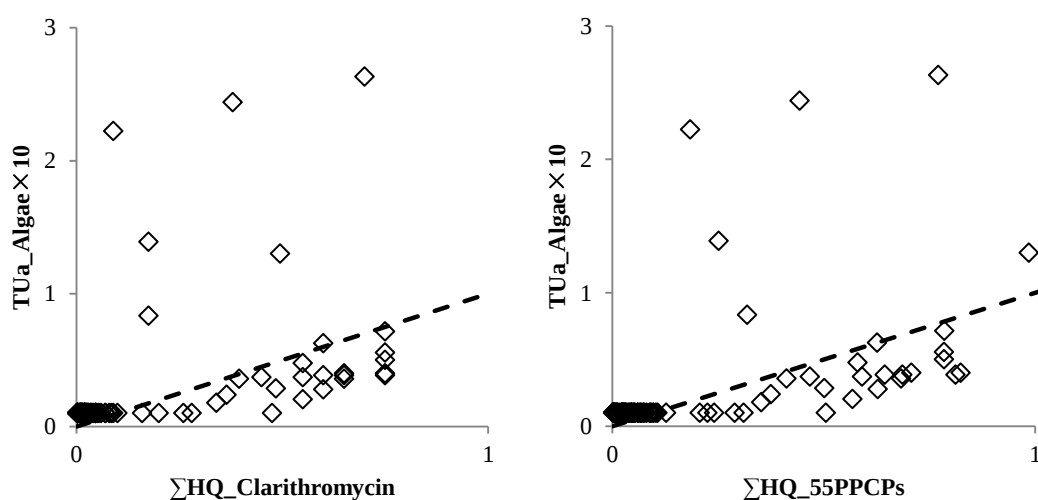
plain; $P < 0.05$, bold; $P < 0.01$ 

図 2.3 藻類生長阻害試験による毒性値(TUa)と PPCPs のリスク評価値 (HQ) の比較
(左 : Clarithromycin、右 : PPCPs55 物質の和)

PPCPs の濃度 (Measured Environmental Concentration; MEC) を、対象物質の藻類生長阻害毒性値 (EC_{50} または NOEC) で除することにより、ハザード比 (HQ) を算出した。本研究で対象とした PPCPs に関しては Dexamethasone acetate を除く 55 物質について、他の研究課題において実施した毒性試験及び文献調査により、毒性値が把握されている。(詳細は、本報告書の 14「生理活性物質の水環境中での挙動と生態系影

響の評価方法に関する研究」に記載。) 本検討では、同じ生物種 (緑藻 *P. subcapitata*) を用いたバイオアッセイ結果との比較を行うことから、生物種間及び試験室/実環境間の不確実係数は適用せず、急性毒性/慢性毒性間のみ係数 10 を適用した。ハザード比が 1 を上回った場合、その試料には *P. subcapitata* に対して慢性毒性値 (NOEC) が検出される濃度レベルの PPCPs が存在していることを意味する。

対象とした PPCPs の測定を行った 104 地点において、環境中濃度から算出したハザード比が 1 を上回った物質はなかったが、抗生物質の Clarithromycin (30 地点、HQ の最大値 0.20) と Chlortetracyclin (1 地点、最大値 0.21)、及び殺菌剤の Triclosan (2 地点、最大値 0.45) の 3 物質ではハザード比が 0.1 を上回る地点があった。特に Clarithromycin は、検出頻度だけでなく、ハザード比が 0.1 以上となった地点の割合も高く、実環境中での生態影響について特に詳細な検討が必要な物質であると考えられる。

また、PPCPs55 物質のハザード比の和 ($\sum HQ_{55PPCPs}$) についても、1 を上回った地点はなかったものの、34 地点で 0.1 を上回り、最大値は 0.99 であった。藍藻類等を中心に *P. subcapitata* よりも感受性の高い (PPCPs に対する耐性の弱い) 藻類種も存在することから、河川中に存在する PPCPs が藻類の群衆構造に影響を及ぼしている可能性は否定できず、今後は、より詳細な調査、検討が必要である。

さらに、上記で算出した Clarithromycin のハザード比 ($HQ_{Clarithromycin}$) 及び PPCPs 55 物質のハザード比の和 ($\sum HQ_{55PPCPs}$) と、藻類生長阻害試験により算出した河川水の毒性単位 TU_{algae} との比較を行った。ここで、 TU_{algae} は急性毒性値を基に算出されていることから、リスク評価の不確実係数と同様に 10 をかけた値を比較に用いた。結果を図 2.3 に示す。多くの試料において、Clarithromycin の検出濃度から予測された毒性は、バイオアッセイで検出された毒性値とほぼ同程度かやや強い程度であった。また、55 物質の和に関してもその大半が Clarithromycin の寄与で占められていることもあり、同様の結果となった。このことから、都市河川の河川水が持つ生体毒性に対して Clarithromycin 等の抗生物質の寄与は大きいことが予想される。また一方で、PPCPs の存在濃度から予測されるよりも強い毒性を示す試料も見られた (図中、点線の左上)。予測値を大きく上回る 6 試料のうち 4 試料は、下水処理場の放流直下や下水処理再生水のみが流れるせせらぎ等下水処理水寄与の大きい地点であり、他の 2 地点はコミュニティプラントや浄化槽の影響の大きい地点であった。研究対象とした水質項目に関しては他の地点と比べて大きな差異は見られなかったが、生活排水処理水中に何らかの毒性因子が含まれていた可能性が考えられる。

これらの結果からも、水生生態系に対するリスクを適切に把握、管理するために個別物質の分析とバ

イオアッセイ等による全毒性評価を組み合わせる行う事の重要性が示された。

4) 水質項目と底生生物相との相関

現地の底生生物相 (付着藻類、底生動物) の指標として、2.2.3 で整理した集約指標を用い、水質項目の主成分 (PC1~PC9) との相関解析を行った。付着藻類の細胞密度とクロロフィル濃度、底生動物の個体密度と湿重量については対数変換したデータを用いた。結果を表 2.11 に示す。付着藻類の集約指標と底生動物の集約指標とでは、水質主成分との相関関係に差が見られた。

付着藻類では、有機汚濁指標である DAI_{po} のみが PC1 との間に負の相関を示した。PC1 は DOC を含めた多くの水質項目と正の相関を示す主成分であり、一般的な水質汚濁の程度を代表していると考えられることから、本研究で行った調査の範囲においても DAI_{po} が適切に河川の汚濁状況を指標していることが示された。一方、タクサ数、細胞密度、多様度指数 ($1-D$ 、 H') は、PC4 と負の相関を示した。PC4 は、pH、DO、 NH_4-N 、Caffeine 等と負の相関を示す水質主成分である。 NH_4-N や Caffeine は生物処理により比較的容易に除去される物質であり、pH や DO との関係を踏まえると、PC4 は下水処理水等、生物処理された排水の影響を表していると考えられる。従って、生物処理された後の下水処理水等であっても、付着藻類の生物群集に対して負の影響を及ぼしている可能性が示唆される。

底生動物においては、多くの集約指標が PC1 及び PC8 と負の相関を示した。PC1 は、上記の通り一般的な汚濁を代表していると考えられる主成分であり、底生動物の生物相は、種数、多様度、現存量等様々な面で水質汚濁の影響を受けている可能性がある。また、PC8 は、残留塩素や Ketoprofen²⁰⁾等環境中での減衰が比較的早い物質と負の相関を示す主成分であることから、下水処理水等の都市排水の流入地点からの近さを指標していると考えられる。従って、これらの排水の流入は、場合によっては水温や流速等の物理的影響も含めて、底生動物群衆に大きな影響を与えている一方で、その影響は流下に伴い減少している可能性が示唆される。一方、PC2 に対して正の相関を示す指標が多く見られた。PC2 は、金属類を中心に比較的多くの水質項目と相関を示す水質主成分であるが、正の相関は示す項目、負の相関を示す項目のいずれもあり、明確に特徴付けることが出来なかった。

これらの結果から、都市河川の水質はそこに生息する水生生物に対して影響を与えていることが改めて確認された。実環境中の水生生態系は多様な水質項目に加えて環境要因によっても影響を受けている

と考えられるが、DOC 等で指標可能な水質汚濁や、下水処理場の放流水等の大規模な都市排水の流入等の寄与が大きい可能性が示唆された。

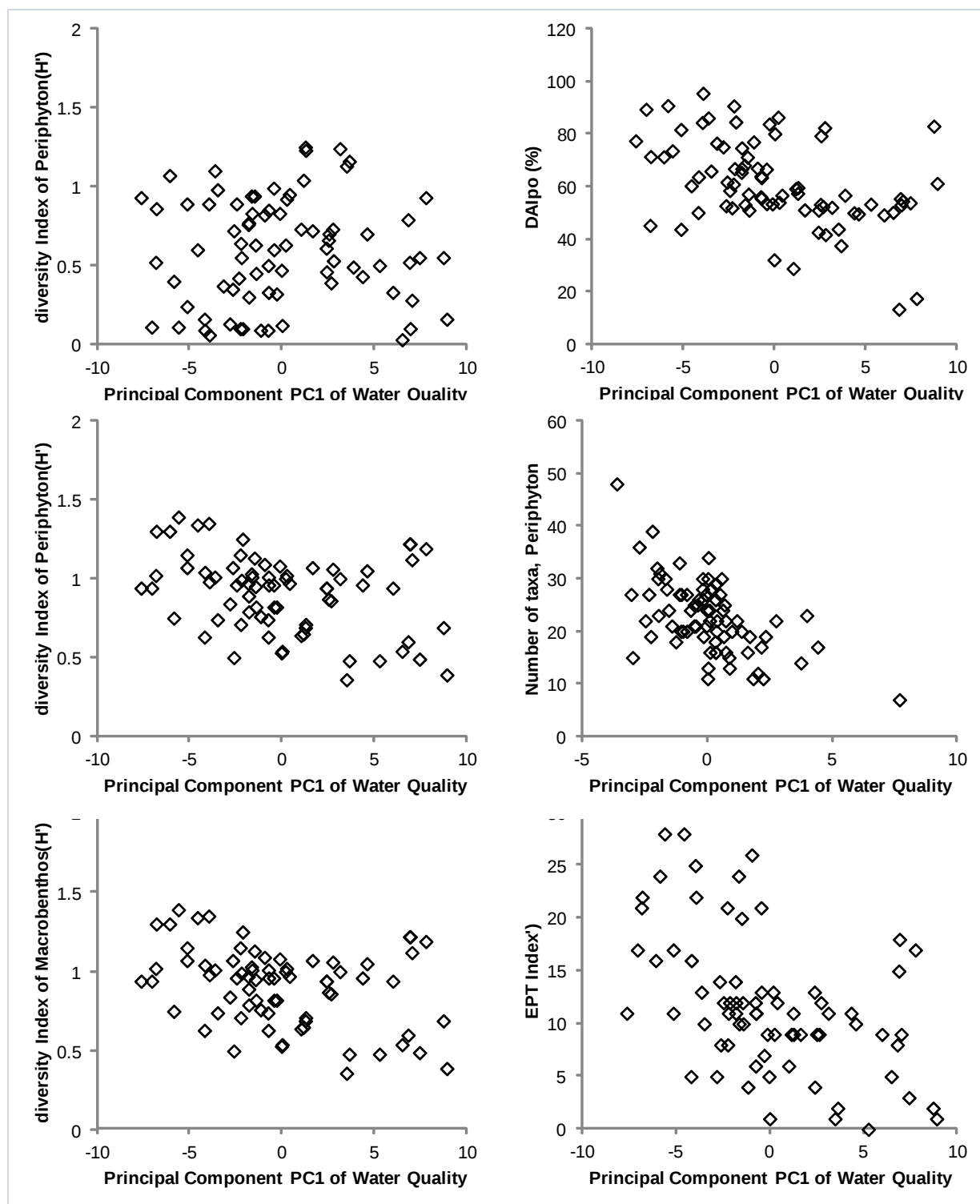


図 2.4 底生生物相と水質との相関

左上：主成分 1-付着藻類の多様度指数(H')

右上：主成分 1-付着藻類の DAIpo

左中：主成分 4-付着藻類の多様度指数(H')

右中：主成分 4-付着藻類の出現タクサ数

左下：主成分 1-底生動物の多様度指数(H')

右下：主成分 1-底生動物の EPT 指数

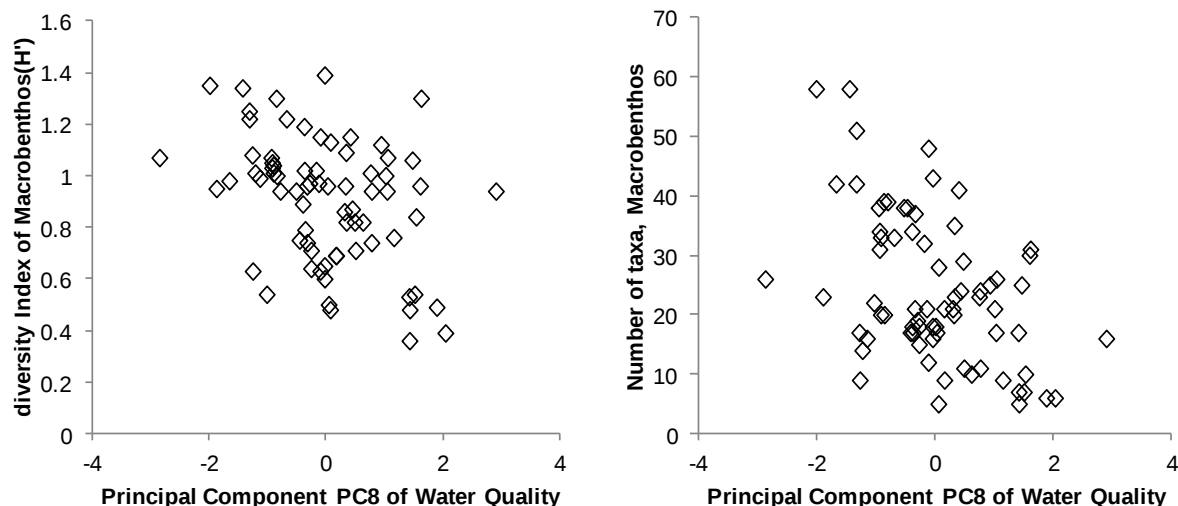


図 2.4 底生生物相と水質との相関（続き）

左：主成分 8—底生動物の多様度指数(H')

右下：主成分 8—底生動物の出現タクサ数

3. 下水処理水の高度処理による藻類増殖抑制

3.1 研究方法

3.1.1 担体処理実験

担体処理連続実験は、夏季の7月初旬より開始し9月第2週目までの約2ヶ月間実施した。図3-1に示すように、凝集剤添加循環式硝化脱窒法および急速砂ろ過法により処理された茨城県霞ヶ浦流域下水道事務所霞ヶ浦浄化センターの下水処理水を、微生物保持担体(JFE エンジニアリング株式会社製 Bio-Tube、ポリプロピレンを基材とした中空円筒状の固体、 $4\text{mm}^{\text{OD}} \times 3\text{mm}^{\text{ID}} \times 5\text{mm}^{\text{L}}$)が添加された円筒形の反応槽(大阪水交株式会社製、材質ポリエチレン、内径64cm、有効水深87cm、有効容量 0.28 m^3 、水理的滞留時間(HRT)2時間)に導入し、下部より曝気を行い、担体表面に自然発生的に付着した生物膜により高度処理を実施した。なお、反応槽における担体添加率は30%とした。さらに、反応槽流出水は下向流式急速砂ろ過装置(内径10cm、アンスラサイト層厚62.5cm、砂層厚37.5cm、ろ過速度=300m/日)を通過させ、余剰生物膜を分離除去し担体処理水を得た。下向流式急速砂ろ過装置の洗浄は、担体処理水を用いて、3時間に1回の頻度で、1m/分の速度で、2分間/回、逆流洗浄した。

水質測定は、微生物保持担体上の生物膜の馴致期間として1ヶ月程度確保した後、8月上旬から実施した。週1回の頻度で、下水処理水および担体処理水について、現地にて、水温、pH、溶存酸素(DO)濃度を観測するとともに、スポット採水試料中の浮

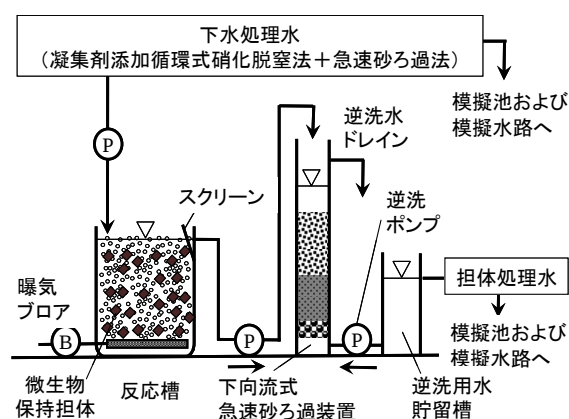


図 3-1 担体処理実験の概要

遊物質(SS)、有機性浮遊物質(VSS)、溶解性有機性炭素(DOC)、総窒素(T-N)、アンモニア性窒素($\text{NH}_4^+\text{-N}$)、亜硝酸性窒素($\text{NO}_2^-\text{-N}$)、硝酸性窒素($\text{NO}_3^-\text{-N}$)、総りん(T-P)、オルトリン酸態りん($\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$)の各濃度を測定した。また、2週間に1回の頻度で、スポット採水試料中の総鉄(T-Fe)、総マンガン(T-Mn)の測定を実施した。

3.1.2 模擬水路実験

担体処理実験における微生物保持担体上の生物膜の馴致期間として1ヶ月程度確保した後、8月上旬から、霞ヶ浦浄化センターの下水処理水と、3.1.1で述べた担体処理実験で得られた担体処理水を、それぞれ、屋外に設置された同一形状の循環式試験水路(塩化ビニール製、長さ400cm、幅10cm)に通水し、水深8cm、流速15cm/secになるように流量を調整し

た。また、水路および循環配管内水の水理学的滞留時間(HRT)は約 22 分となるように設定した。また、水路上に発生する付着藻類等の固形物の状況を把握するために、実験開始時に水路内の壁面および底面に 9cm×9cm×0.5cm の素焼き板を三面張り状に敷き詰めた。

水質測定は、週 1 回の頻度で、下水処理水および担体処理水を通水した模擬水路の表層水について、現地にて、水温、pH、溶存酸素(DO)濃度を観測するとともに、右岸側、底面、左岸側の素焼き板を各 3 枚ずつ採取し、素焼き板表面上の固形物をポリエチレン製歯ブラシにて掻き取り、純水に転溶し、5L にメスアップ、均質化した後の水試料中の SS、VSS、T-N、T-P、Chl.-a の各濃度を測定し、素焼き板の単位面積当たりの付着物量として整理した。なお、採取した素焼き板の後には、新たな素焼き板を補充して設置した。また、試料採取は 14:00 に実施した。

3.2 実験結果

3.2.1 担体処理実験

表 3-1 に、実験期間中の霞ヶ浦浄化センターの下水処理水、担体処理水の水質測定結果を示す。下水処理水に比べて、微生物保持担体による好気性生物膜処理および急速砂ろ過処理を行った担体処理水では、曝気による、酸素と炭酸ガスの交換による pH、DO の上昇がみられた。また、他の富栄養化関連項目については大きな差が見られない一方、T-Fe 濃度はわずかに、また、T-Mn 濃度は大きく低下していた。反応槽前後の Mn の形態は、担体上のマンガン酸化細菌等の活動により、溶解性から懸濁態へ変化しており、それが、後段の急速砂ろ過装置でろ過され、除去されていると考えられる。

3.2.2 模擬水路実験

表 3-2 に、実験期間中の霞ヶ浦浄化センターの下水処理水を通水した模擬水路と、担体処理水を通水した模擬水路の水質測定結果を示す。

下水処理水を通水した模擬水路では、実験期間を通じて壁面から糸状藻類が繁茂し、水路の水面上を覆う光景が見られたが、担体処理水を通水した模擬水路では、糸状藻類の繁茂は顕著に抑えられていた。水質測定結果を比較すると、固形物量や藻類の現存量を表す、SS、VSS、T-N、T-P、Chl.-a について 1.6～2 倍の差が見られた。

表 3-1 担体処理実験における水質測定結果
(SS 以降は平均値)

項目	単位	下水処理水	担体処理水
水温	°C	26.4～27.3	25.7～28.1
pH	—	7.1～7.2	8.0～8.2
DO	mg/L	2.7～3.4	4.9～6.8
SS	mg/L	1.2	1.0
VSS	mg/L	0.9	0.5
DOC	mg/L	3.6	3.7
T-N	mg/L	5.8	6.0
NH ₄ ⁺ -N	mg/L	0.1	0.0
NO ₂ ⁻ -N	mg/L	0.0	0.0
NO ₃ ⁻ -N	mg/L	4.7	4.7
T-P	mg/L	0.19	0.19
PO ₄ ³⁻ -P	mg/L	0.15	0.16
T-Fe	μg/L	24.1	20.0
T-Mn	μg/L	7.2	0.4

表 3-2 模擬水路実験における水質測定結果
(SS 以降は平均値)

項目	単位	下水処理水を 通水した 模擬水路	担体処理水を 通水した 模擬水路
水温	°C	27.7～35.1	28.1～35.2
pH	—	7.6～9.7	8.3～10.0
DO	mg/L	5.5～8.1	7.0～8.5
SS	g/m ²	76.6	37.6
VSS	g/m ²	45.0	19.5
T-N	g/m ²	2.6	1.4
T-P	g/m ²	0.35	0.21
Chl. a	mg/m ²	505	298

表 3-3 藻類、下水処理水、
担体処理水中の P、Mn の組成

項目	クロレラ	アオコ	下水 処理水	担体 処理水
T-P	1.7%	0.89%	0.19 mg/L	0.19 mg/L
T-Mn	69±5 mg/kg	39±3 mg/kg	7.2 μg/L	0.4 μg/L
T-P/T-Mn	246	228	26	475

3.3 考察

ここでは、担体処理水を通水した模擬水路で、藻類の増殖が抑制される要因について考察する。

Chetelat ら²¹⁾が、カナダの南オンタリオと西ケベックの 13 河川について夏場に藻類量と藻類群集に及ぼす栄養塩類濃度と流速の影響を検討した結果によると、藻類量は T-P 濃度と強い相関があり、0.006～0.082mg/L の範囲において T-P 濃度と正の相関があることが示されている。本研究で使用した霞ヶ浦浄化センターの下水処理水および担体処理水では、T-P 濃度は通常の下水処理水に比べて低減されていたが、そのレベルは 0.2mg/L 程度であり、T-P 濃度が藻類増殖の律速になっているとは考えられない。

そこで、担体処理水において特徴的に低減されている T-Mn に注目する。表 3-3 は国立環境研究所²²⁾が販売している環境標準試料のクロレラ及びアオコの T-P、T-Mn の含有率と、下水処理水、担体処理水中の T-P、T-Mn の濃度を示したものである。クロレラとアオコのデータから、T-P/T-Mn が 228～246 を上回る場合には、T-Mn が水中での藻類増殖の制限因子になると考えられる。実際の模擬池や模擬水路では多種多様な藻類が出現しており、一概にクロレラとアオコのみデータを以て判断することは難しいが、本研究で得られた担体処理水中の T-P/T-Mn は 475 であり、T-Mn が藻類増殖の制限因子となっている可能性が高いと考えられる。

4. まとめ

本研究課題では、流域状況や污水处理状況の異なる複数の都市河川、延 100 地点以上を対象として、微量化学物質等も含めた水質分析や、バイオアッセイによる水生生物への影響評価を行い、水質特性の把握を試みた。また併せて、調査地点の底生生物相（藻類、底生動物）を調査し、水質特性と水生生物との関係について検討した。さらに、下水再生水を、修景用水や親水用水として水路等に利用した際に、付着藻類が増殖する事例が報告されており、この原因として、下水再生水の水質や水路における諸条件(水温、水深、流速等)の影響が考えられていることから、本研究では水質に焦点を当て、下水再生水放流先の池や水路における付着藻類増殖を低減することを目的とした調査を行った。本研究で得られた主な知見は以下のとおりである。

(1) 多様な水質項目について分析を行い、主成分分析を行った結果、本研究で対象とした都市河川等に

おいては、重金属や医薬品類等の微量汚染物質も、有機物や栄養塩類等の一般的な汚濁指標と類似した存在実態を示していることが確認された。

(2) 河川水を対象に、Microtox[®]試験及び藻類生長阻害試験の 2 種類のバイオアッセイ手法により、総合的な毒性評価を試みた。河川水を直接試験した場合には毒性が検出された試料はなかったため、固相抽出カートリッジによる濃縮を行いアッセイに供した結果、Microtox[®]試験では 14%、藻類生長阻害試験では 27%の試料から毒性値 ($EC_{50} < 5000\%$; 現試料に対する濃縮倍率 50 倍) が検出された。

(3) 両試験系間での比較では、藻類生長阻害試験のほうが検出率、感受性ともに高い傾向が見られたものの、その関係は明確ではなく、一方の試験でのみ比較的高い毒性が検出される試料もあったことから、河川水が水生生態系に与える影響を評価するためには、複数の生物種を用いてアッセイを行う重要性が確認された。

(4) 水質分析で検出された濃度から各試料中における PPCPs の藻類に対するハザード比を算出した結果、本研究の範囲では、抗生物質 Clarithromycin、Chlortetracyclin、殺菌剤の Triclosan 等で比較的高いハザード比が見られた。特に Clarithromycin はハザード比が 0.1 を超える試料が多く見られたことから、都市水環境において、特に注意すべき PPCPs の一つであると考えられる。

(5) 上記で算出した Clarithromycin のハザード比と、藻類生長阻害試験から算出された毒性値とを比較すると、良く整合していることが確認されたことから都市河川水の藻類に対する生態毒性において Clarithromycin 等の抗生物質の寄与は大きいことが予想される。一方で、PPCPs の存在濃度から予測されるよりも強い毒性を示す試料も見られたことから、水生生態系に対する化学物質のリスクを適切に把握、管理するためには、個別物質の分析とバイオアッセイ等による全毒性評価を組み合わせる行う事の重要性が示された。

(6) 河川中の底生生物相に対する水質の影響について、統計手法を用いた検討を行った結果、本研究で調査対象とした都市河川等 (概ね BOD 1~5mg/L 程度) の範囲においても、汚濁耐性の低い種を中心に、水質の影響を受けていることが確認された。また、付着藻類と底生動物群集とでは、異なる水質項目の影響を受けている傾向も見られた。

(7) 付着藻類では、珪藻類の汚濁耐性に基づく有機

汚濁指標 **DAIpo** が水質汚濁全般を指標する水質主成分との間に負の相関を示した。一方、タクサ数、細胞密度、多様度指数は、生物処理された都市排水の影響を指標していると考えられる水質主成分との相関を示したことから、生物処理後であっても下水処理水等の都市排水が、付着藻類の生物群集に対して負の影響を及ぼしている可能性が示唆された。

(8) 底生動物においては、多くの集約指標が **DAIpo** と同様に水質汚濁全般を指標する水質主成分との間に負の相関を示した。加えて、残留塩素や鎮痛消炎剤 **Ketoprofen** 等、環境中での減衰が比較的速い物質との負の相関があることから、都市排水の流入は、水質以外の要因も含め、底生動物群衆に対して大きな影響を与えていることが確認された一方で、その影響は流下に伴い減少している可能性も示唆された。

(9) 凝集剤添加硝化脱窒法により **T-N** 濃度が **6mg/L** 以下、**T-P** 濃度が **0.2mg/L** 以下程度にまで低減された下水処理水に対して、さらに結合法微生物固定化担体を添加した反応槽における好気処理および急速砂ろ過を行うことにより、有機物や微量金属の酸化・不溶化除去を行い、下水処理水放流先の水路付着藻類増殖を低減することを試みた。下水処理水および担体処理を付加した処理水を、屋外模擬水路に連続的に通水した結果、担体処理を付加することにより、付着藻類増殖が抑制されることが確認された。また、藻類増殖の制限因子は、担体処理により効率的に除去される **T-Mn** であると考えられた。

参考文献

- 1) 国土交通省河川局河川環境課：「今後の河川水質管理の指標について（案）」の改訂について，
<http://www.mlit.go.jp/common/000046619.pdf>（2011 年 3 月時点）
- 2) 中央環境審議会水環境部会：水生生物の保全に係る水質環境基準の項目追加等に係る検討事項について，水生生物保全環境基準専門委員会（第 1 回），資料 4，
<http://www.env.go.jp/council/09water/y094-08b.html>（2011 年 3 月時点）
- 3) 建設省都市局下水道部，厚生省生活衛生局水道環境部：下水試験方法 1997 年版，社団法人日本下水道協会，1997
- 4) Nakada, N. *et al.*: Pharmaceutical chemicals and endocrine disrupters in municipal wastewater in Tokyo and their removal during activated sludge treatment, *Water Res.*, **40**, pp.3297-3303, 2006
- 5) 小西千絵ら：水環境中医薬品の LC-MS/MS による一斉分析法の検討，環境工学研究論文集，**43**，pp.73-82, 2006
- 6) 野見山晴美ら：ミジンコおよび藻類を用いた市内河川水のバイオアッセイ（2005），平成 17 年度福岡市保健環境研究所報，**31**，pp.57-64, 2006
- 7) Harada, A. *et al.*: Biological effects of PPCPs on aquatic lives and evaluation of river waters affected by different wastewater treatment levels, *Water Sci. Technol.*, **58**, 1541-1546, 2008
- 8) OECD: *Test No. 201: Alga, Growth Inhibition Test*, OECD Guidelines for the Testing of Chemicals, Section 2: Effects on Biotic Systems, OECD Publishing, 2006
- 9) 吉岡義正: Ecotox-Statics ver.2.x, 環境毒性学会誌，**4**(2), p.113, 2001
- 10) 建設省河川局 監修：河川水質試験方法（案）1997 年版 試験方法編，pp.916-928, 1997
- 11) 国土交通省河川局河川環境課：III 底生動物調査編，平成 18 年度版 河川水辺の国勢調査基本調査マニュアル [河川版]，<http://www3.river.go.jp/system/manual.htm>（2011 年 3 月時点）
- 12) 渡辺仁治：淡水珪藻生態図鑑 群集解析に基づく汚濁指数 **DAIpo**, pH 耐性能, 2005
- 13) 緒方健、谷田一三：水生昆虫から河川環境を判定する --日本版平均スコア法の紹介，昆虫と自然，**41**(8), pp.20-23, 2006
- 14) 南山瑞彦ら：生理活性物質の水環境中での挙動と生態系影響の評価方法に関する研究，土木研究所資料，**4157**，pp.131-413, 2009
- 15) 福永彩ら：藻類生長阻害試験を用いた医薬品の毒性評価，環境工学研究論文集，**43**，pp.57-63, 2006
- 16) Yang, L.H. *et al.*: Growth-inhibiting effects of 12 antibacterial agents and their mixtures on the freshwater microalga *Pseudokirchneriella subcapitata*, *Environ. Toxicol. Chem.*, **27**(5), pp.1201-1208, 2008
- 17) Isidori, M. *et al.*: Toxic and genotoxic evaluation of six antibiotics on non-target organisms, *Sci. Total Environ.*, **346**(1-3), pp.87-98, 2005
- 18) Yamashita, N. *et al.*: Effects of antibacterial agents, levofloxacin and clarithromycin, on aquatic organisms, *Water Sci. Technol.*, **53**(11), pp.65-72, 2006

- 19) Robinson, A.A.: Toxicity of fluoroquinolone antibiotics to aquatic organisms, *Environ. Toxicol. Chem.*, **24**(2), pp.423-430, 2005
- 20) 花本征也ら：都市河川における医薬品類の減衰, *環境工学論文集*, **48**(7), pp.III_179-III_185, 2011
- 21) J. Chetelat, F.R. Pick, A. Morin and P.B. Hamilton: Periphyton biomass and community composition in rivers of different nutrient status, *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, **56**, pp.560-569, 1999
- 22) 国立環境研究所：
<http://www.nies.go.jp/labo/crm/index.html>

RESEARCH ON WATER QUALITY EVALUATION METHOD FOR URBAN WATER ENVIRONMENT

Budged: Grants for operating expenses, General account

Research Period: FY2006-2010

Research Team: Water Environment Research Group (Water Quality)

Author: MINAMIYAMA, Mizuhiko, HIRAYAMA, Takahiro,
KITAMURA, Tomokazu, MURAYAMA, Kouki,
SUZUKI, Yutaka, KITAMURA, Kiyooki

Abstract: In recent years, physiological active substances (e.g., pharmaceuticals) resident in the water environment have become an emerging public concern. However, limited knowledge is available on the significance of their occurrence in the water environment from the viewpoints of biological adverse effects. We tried the first approach of risk evaluation for pharmaceuticals in rivers onto aquatic organisms. The objectives of this research were to determine the occurrence of selected pharmaceuticals in river water and to evaluate the impacts of physiological active substances onto aquatic organisms.

In recent years, water quality in urban rivers has been restored corresponding to improvement of sewage and wastewater treatment systems, however,

The purpose of this study was to propose the water quality evaluation method which contributes to reservation of the ecosystem in city water environment, in addition to the usual water quality item, water quality measurement of a very-small-quantity chemical substance etc. and impact evaluation to the aquatic life by a bioassay were performed for the municipal river, and the grouping of the water quality characteristic was performed.

Moreover, the aquatic life phase formed all over the river was investigated collectively, and the relation with the water quality characteristic was solved.

Furthermore, the result obtained by this research was applied and the technique of controlling the adhesion seaweed multiplication in 修景 city water use of the sewage disposal water in which the use as water resources in a city is expected was examined.

Key words: river water quality, aquatic ecosystem, statistical analysis, bioassay, control of algal growth