

ISSN 1341-6480

CODEN: KHKKF8

熊本県 保健環境科学研究所報

平成 11 年度

Annual Report
of
Kumamoto Prefectural Institute
of Public-Health and Environmental Science

No. 29 1999



熊本県保健環境科学研究所

目 次

1 運 営	
1・1 施設及び主要備品	3
1・2 組織機構	5
1・3 職員の構成	5
1・4 職員一覧表、人事異動等	6
1・5 平成11年度決算額	7
1・6 会議・研修等	8
1・7 購入雑誌	13
2 業 務 概 要	
2・1 微生物科学部	17
2・2 生活化学部	21
2・3 大気科学部	25
2・4 水質科学部	28
2・5 水質科学部地下水科学室	30
3 調 査 研 究	
3・1 報文	
1) 食用植物油中の残留農薬一斉分析法の検討	35
2) キャピラリーGC/MSを用いた農産物中残留農薬分析における試料マトリックスの影響	40
3) 熊本県における大気中重金属濃度	47
4) 熊本県内河川20年間(1978-1997)の水質変化と近年の水質状況	52
5) 八代地域における地下水塩水化調査	58
3・2 資料	
1) 熊本県における腸管出血性大腸菌感染症発生状況(平成11年度)	63
2) 日本脳炎調査(1999年度)	65
3) インフルエンザの流行調査(1999年度)	66
4) ウイルス性眼疾患の流行調査	68
5) 熊本県宇土市におけるA領域及びB領域紫外線量(平成11年度)	71
6) 熊本県下の酸性雨について(第18報)	74
- 荻北町及び八代市における一降水全量採取結果 -	
7) 熊本県下の酸性雨について(第19報)	79
- 阿蘇町及び人吉市におけるろ過式一括採取結果 -	
8) 熊本県下における放射能調査(平成10年度)	82
9) 流域形態に伴う水温の差異と指標生物の群集構造	84
10) 寺池の水質特性	86
11) SPMD(半透膜捕集装置)による海域中の極微量化学物質モニタリングの可能性	90
12) 宮野河内湾における微量金属調査	93
13) 荒瀬ダム(球磨川)の水質調査	96
3・3 誌上発表論文抄録	100
3・4 学会・研究会発表抄録	101
4 抄 読 会	105
5 熊本県保健環境科学研究所報編集要綱	107
6 保健環境科学研究所運営協議会設置要項	108

**Annual Report of Kumamoto Prefectural Institute
of Public Health
and Environmental Science**
No. 29 1999
Contents (Research)

Regular Articles

1) Simultaneous Determination of Pesticide Multiresidue in Vegetable Oils by Capillary GC/MS

Toshiaki TOBINO, Sejiro YANAI* and Tuyosi MATUSITA

*Present Address : Department of Health, Social Services & Environment, Kikuchi Regional Promotion Bureau

2) Effect of Co-extractives from Agricultural Products on Capillary GC/MS Response in Pesticide Multiresidue Analysis

Toshiaki TOBINO, Tuyosi MATUSITA and Sejiro YANAI*

*Present Address : Department of Health, Social Services & Environment, Kikuchi Regional Promotion Bureau

3) Concentration of Heavy Metal in Air Samples Collected by Low Volume Sampler

Hajime UEKI and Kazunori UENO

4) Changes of Water Quality and Recent Conditions of Rivers in Kumamoto Prefecture

**Taishi ODA, Toshihiko MURAOKA*, Yoshitomo YAMASAKI, Osamu IMAMURA,
Takeshi YUKI, Kiyoshi KUBO and Kouichi KYUMA**

*Present Address : Kumamoto Prefectural Fisheries Research Center

5) Salt Water within the Yatsushiro Area

Yasuhito OZASA, Hiroshi MATSUSHITA* and Masaaki HIROHATA**

*Present Address : Department of Health, Social Services & Environment, Ashikita Regional Promotion Bureau

**Present Address : Environmental Protection Division, Department of Health & Social Services, Kumamoto Prefectural Government

Reports

1) Epidemiological Surveillance of Enterohemorrhagic E.Coli Infection in Kumamoto Prefecture

Jiro MIYASAKA, Yuji ARAHIRA*, Megumi IDEGUCHI and Kazuko KATSUKI**

*Present Address : Waste Disposal Regulation Division, Department of Environment & Social Services, Kumamoto Prefectural Government

**Present Address : Department of Health, Social Services & Environment, Ashikita Regional Promotion Bureau

2) Surveillance of Japanese Encephalitis Virus Infection in Kumamoto Prefecture

**Koji TABATA, Yuji ARAHIRA*, Koichi NISHIMURA, Jiro MIYASAKA,
Megumi IDEGUCHI** and Kazuko KATSUKI**

*Present Address : Waste Disposal Regulation Division, Department of Environment & Social Services, Kumamoto Prefectural Government

** Present Address : Department of Health, Social Services & Environment, Ashikita Regional Promotion Bureau

3) Epidemiological Surveillance of Influenza Virus Infection in Kumamoto Prefecture

Koji TABATA, Koichi NISHIMURA , Yuji ARAHIRA* and Kazuko KATSUKI

*Present Address : Waste Disposal Regulation Division, Department of Environment & Social Services, Kumamoto Prefectural Government

4) Epidemiological Surveillance of Viral Disease of the Eye in Kumamoto Prefecture

Yuji ARAHIRA*, Koichi NISHIMURA, Koji TABATA, Ryuichi NAKASHIMA,
Toshiaki YANO**, Makoto MATSUI*** and Kazuko KATSUKI**

*Present Address : Waste Disposal Regulation Division, Department of Environment & Social Services, Kumamoto Prefectural Government

** Present Address : Department of Health, Social Services & Environment, Tamana Regional Promotion Bureau

*** Present Address : Kumamoto Prefectural Meat Inspection Center

5) Ultraviolet Radiaton (UV-A, UV-B) Survey Data in Uto City, Kumamoto Prefecture (1999)

Hajime UEKI and Hironobu FUKUSHIMA

6) Studies on Acid Rain in Kumamoto Prefecture (18)

—Samples Collected from Each Rain Fall—

Kazunori UENO, Hiromichi KITAOKA*, Ryoichi KOBA and Hajime UEKI

*Present Address : Waste Disposal Regulation Division, Department of Environment & Social Services, Kumamoto Prefectural Government

7) Studies on Acid Rain in Kumamoto Prefecture (19)

—Samples Collected using Filtrating Bulk Sampler—

Kazunori UENO, Hiromichi KITAOKA*, Ryoichi KOBA and Hajime UEKI

*Present Address : Waste Disposal Regulation Division, Department of Environment & Social Services, Kumamoto Prefectural Government

8) Radioactivity Survey Data in Kumamoto Prefecture (1998)

**Ryoichi KOBA, Kazunori UENO, Hiromichi KITAOKA*, Hironobu FUKUSHIMA
and Hajime UEKI**

*Present Address : Waste Disposal Regulation Division, Department of Environment & Social Services, Kumamoto Prefectural Government

9) Differences of Water Temperature due to Changes of River Basins and Community Structures of Indicator Taxa

Taishi ODA and Kiyoshi KUBO

10) Water Quality of Tera Pond

Osamu IMAMURA, Taishi ODA, Takeshi YUKI, Toshihiko MURAOKA*, Yoshitomo YAMASAKI, Toshio SAKU, Seiji UEMOTO , Seiki KINO*** and Kiyoshi KUBO**

*Present Address : Kumamoto Prefectural Fisheries Research Center

**Present Address : Pharmaceuticalaffairas Division, Department of Health & Social Services, Kumamoto Prefectural Government

***Present Address : Department of Health, Social Services & Environment, Amakusa Regional Promotion Bureau

11) Possibility of Monitoring Trace Organic Contaminants in Sea Water by SPMD(Semipermeable Membrane Device)

Toshihiko MURAOKA* and Kiyoshi KUBO

*Present Address : Kumamoto Prefectural Fisheries Research Center

12) Monitoring of Heavy Metals for Miyanokawachi Bay

Toshihiko MURAOKA*, Yoshitomo YAMASAKI and Kiyoshi KUBO

*Present Address : Kumamoto Prefectural Fisheries Research Center

13) Water Quality of the Arase Reservoirs in the Kuma River

Yoshitomo YAMASAKI, Taishi ODA, Osamu IMAMURA, Takeshi YUKI, Toshihiko MURAOKA* and Kiyoshi KUBO

*Present Address : Kumamoto Prefectural Fisheries Research Center

3 調査研究

3・1 報文

1) 食用植物油中の残留農薬一斉分析法の検討

飛野 敏明 柳井 誠二郎* 松下 豪

要旨

食用植物油中の残留農薬一斉分析法を検討した。n-ヘキサン・アセトニトリル分配-GPC精製-SAX/PSAミニカラム精製-ENVI-Carbミニカラム精製-GC/MS (SIM) 測定の組み合わせにより、ごま油3種、オリーブオイル2種を用いて124農薬の添加回収試験を行った。

ごま油で77~82農薬、オリーブオイルで96、102農薬で70%以上の回収率が得られた。食用植物油の一斉分析法として十分使用できるものと考える。

キーワード：ごま油、オリーブオイル、残留農薬、一斉分析法

はじめに

加工食品である食用植物油は、食品衛生法による農薬残留基準や分析法が規定されておらず、農薬残留の実態を把握するための試験方法が明確でない。また、分析に関する報告も非常に少なく、28種の農薬に関するNiessnerらの報告¹⁾や、9種のピレスロイド系農薬に関する深沢らの報告²⁾があるが、農薬残留の実態を把握するための分析法としては、対象農薬数及び検出感度が十分とは言えない。

そこで、ごま油とオリーブオイルを試験材料として、124農薬の一斉分析法を検討した。その結果について報告する。

実験方法

1 試料及び試薬

1.1 試料

ごま油：製造時の煤煎状態が異なる3種類

a : この3種のごま油のうち、最も煤煎の強いもの

b : aに次いで煤煎の強いもの

c : 無煤煎のもの

オリーブオイル：2種類 d, e

以上を試料として用いた。

1.2 試薬

アセトン、酢酸エチル、アセトニトリル、n-ヘキサン、ベンゼン：残留農薬分析用

トルエン：試薬特級

SAX/PSAミニカラム：パリアン社製 1g 6cc

グラファイトカーボンミニカラム：スペルコ社製

ENVI-Carb 0.5g 6ml

農薬標準原液：表1に示す農薬各200μg/ml アセ

トン溶液、α-; β-CVPはシクロヘキサン溶液

農薬中間標準液：各農薬標準原液を混合し、1.0μg /ml アセトン溶液としたもの

2 装置及び測定条件

2.1 GC/MS

GC/MS : HP5890/5972MSD (Hewlett Packard社製)

カラム : HP-5 MS, 0.25mm×30m 膜厚0.25μm

昇温条件: 80°C(2min)→30°C/min→180°C(5min)

→3°C/min→260°C(10min)

キャリアガス圧力プログラム : 40psi(1.5min)→99 psi/min→13psi(3 min)

注入口温度 : 250°C

注入口ライナー : 不活性化処理済(石英ウール入り)を使用

MS温度 : 180°C

注入量 : 3 μl (ページドスプリットレス)

測定モード : SIM (メソッドI及びII)

メソッドI : 表1に示す69農薬測定用

メソッドII : 表1に示す55農薬測定用

2.2 GPC

カラム : バイオビーズSX-3, 200~400メッシュ約

28gを内径20mm長さ300mmのステンレスカラム

(GLサイエンス社製)に湿式充填したもの

* 現熊本県菊池地域振興局保健福祉環境部

ポンプ：島津LC-10AS
 インジェクター：レオダイン7725i, 2 ml ループ
 付注入量：2.0ml
 移動相：ベンゼン, 流速：5 ml/min
 農薬画分：9～17.5分 (42.5ml)

3 試験方法

3.1 試験液の調製

オリーブオイル10.0g又はごま油5.0gをn-ヘキサン30mlに溶解し、n-ヘキサン飽和アセトニトリル90ml×3回で分配を行う。アセトニトリル層を合わせ、アセトニトリル飽和n-ヘキサン30mlで洗浄する。次いで、アセトニトリル層を濃縮、窒素気流中で乾固し、ベンゼン5mlに溶解する。0.45μmのフィルターでろ過し、2mlをGPCで精製、乾固する。残渣を5%アセトン・n-ヘキサン2mlでSAX/PSAミニカラムに負荷し、同液2ml×4回で容器を洗浄し、洗液をカラムに加え、さらに同液10mlで溶出する。全溶出液20mlを捕集し、濃縮、窒素気流中で乾固する。残渣をアセトニトリル・トルエン(3:1)2mlでENVI-Carbミニカラムに負荷し、容器を同液2ml×4回で洗浄し、洗液をカラムに加える。さらに同液10mlで溶出する。全溶出液20mlを捕集し、濃縮、乾固しアセトン2mlに溶解し試験液とする。な

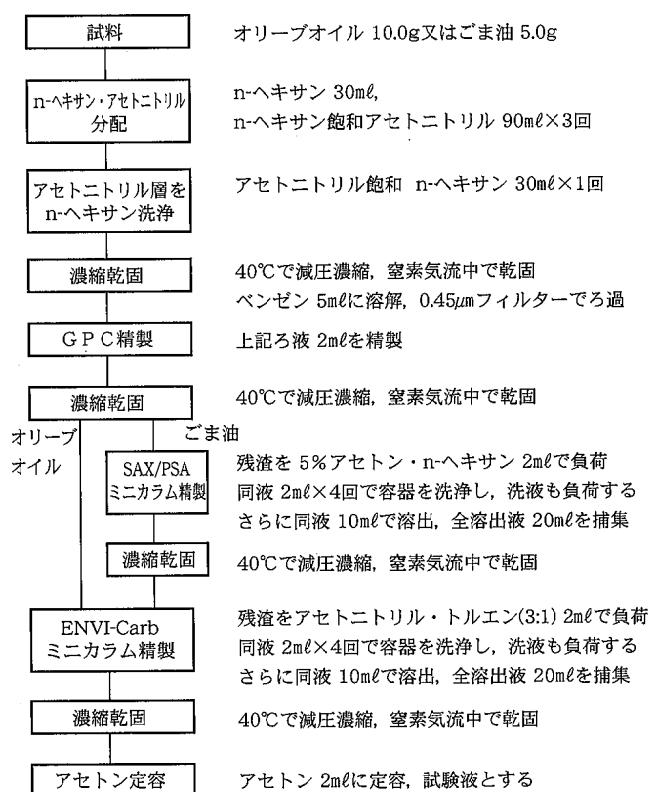


図1 分析操作フロー

お、SAX/PSAミニカラムによる精製操作はごま油についてのみ実施した。分析フローを図1に示す。

3.2 検量線用標準液の調製

農薬中間標準液をアセトンで希釈し、0.01～0.5 ppmの標準液を数点調製する。次に、試験液0.5mlを標準液の点数だけ分取し、これを窒素気流中で乾固後、標準液0.5mlを加え溶解して検量線用標準液とする。

3.3 検量線の作成

検量線用標準液及び試験液をGC/MSに3 μl注入する。試験液から農薬が検出された場合は、検量線用標準液の同農薬のレスポンスから試験液のレスポンスを差し引いて検量線（以下、「マトリックス検量線」という。）を作成する。

3.4 添加回収試験

オリーブオイル10.0g又はごま油5.0gに農薬中間標準液をn-ヘキサンに転溶したもの1mlを添加（各農薬とも1.0 μg）し、以下前項の試験液調製に従って処理した。

結果及び考察

1 抽出法の検討

本分析法は検出下限値を0.01ppmに設定したため、油をGPC溶媒で希釈してGPCで直接抽出精製する方法は以下の理由で断念し、n-ヘキサン・アセトニトリル分配法を採用した。

- ①GPCへの油の負荷量が増えると、油の溶出範囲が広がり、分子量の大きなピレスロイド系農薬との分離が困難となること。
- ②油の希釈倍率を大きくすると、1回のGPC精製では目標検出下限値が得られないこと。

また、n-ヘキサン・アセトニトリル分配では、農薬の回収量を低下させることなく抽出し、多少の油が残存しても次のGPC精製で油を除去できることから、溶媒の比を通常より大きくn-ヘキサン1に対しアセトニトリル3、回数も3回とした。

2 SAX/PSAミニカラム精製法の検討

n-ヘキサン・アセトニトリル分配-GPC精製-ENVI-Carbミニカラム精製-濃縮・乾固の操作で、ごま油を処理した場合に油状の残渣が残存し、煤煎が強く色の濃い油ほど残存量が多かった。この油状物は、n-ヘキサン10ml程度には溶解せず、また、水にも溶解しなかった。この残渣を除去するために、SAX/PSAミニカラム精製法を採用した。最も煤煎が強く色の濃いごま油aのGPC精製液に標準液を添加後、SAX/PSAミニカラムで精製し、その溶出液10ml×2を捕集し

た。この捕集液中の農薬回収量をGC/MSで測定したことろ、通常用いられる5%アセトン・n-ヘキサン10mLでは回収が十分でなく、次の10mLにもかなりの農薬が回収された。また、溶出液20mLでも回収量が不十分な農薬もあったが、精製効果を考慮して溶出液量は20mLとした。

3 添加回収試験結果

試料の違いを図2及び図3にTIC(SIM測定モード)で示す。

マトリックス検量線が作成できなかった農薬は以下のとおりであった。

ごま油では、プロパニル、シンメチリン、ペンシク

ロンで妨害ピークがあり、トラロメトリンではピークが確認できなかった。

オリーブオイルでは、モノクロトホス、メトリブジン、シンメチリン、プロメトリン、ジコホル、ペルメトリンでピークは認められるものの妨害ピークのため積分できず、シメトリン、トリシクラゾール、ビテルタノール、プロメトン、アメトリン、ベンタゾンで妨害ピークのためピークが確認できなかった。また、メタミドホス、イミベンコナゾール、ミクロブタニル、ペンシクロン、フルシラゾールで妨害ピークは認められなかつたものの、農薬そのもののピークを確認することはできなかった。

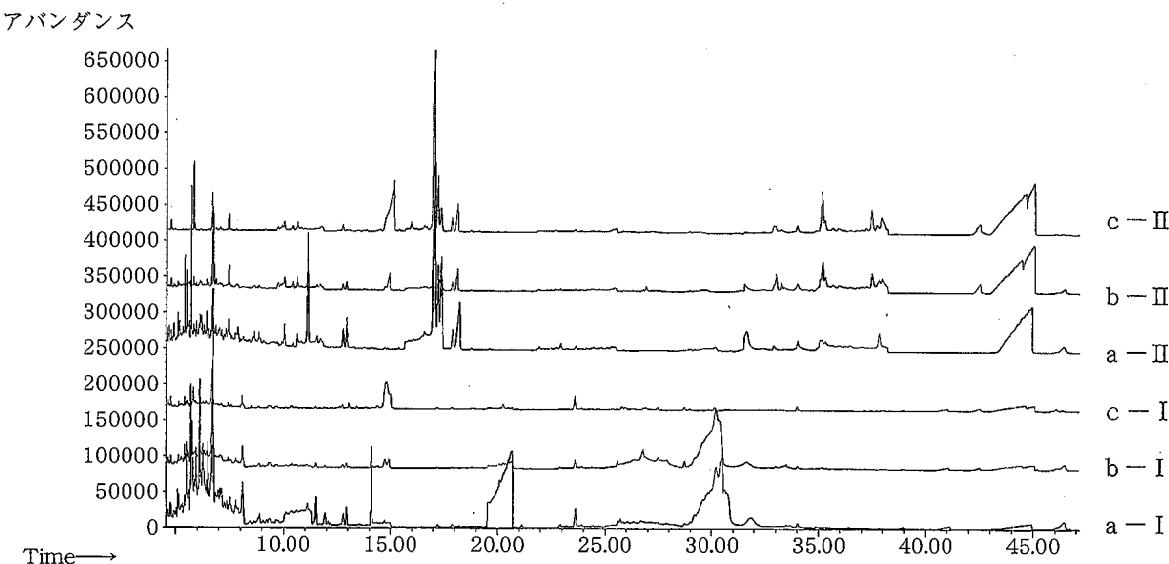


図2 ごま油3種のTIC(SIMモード)

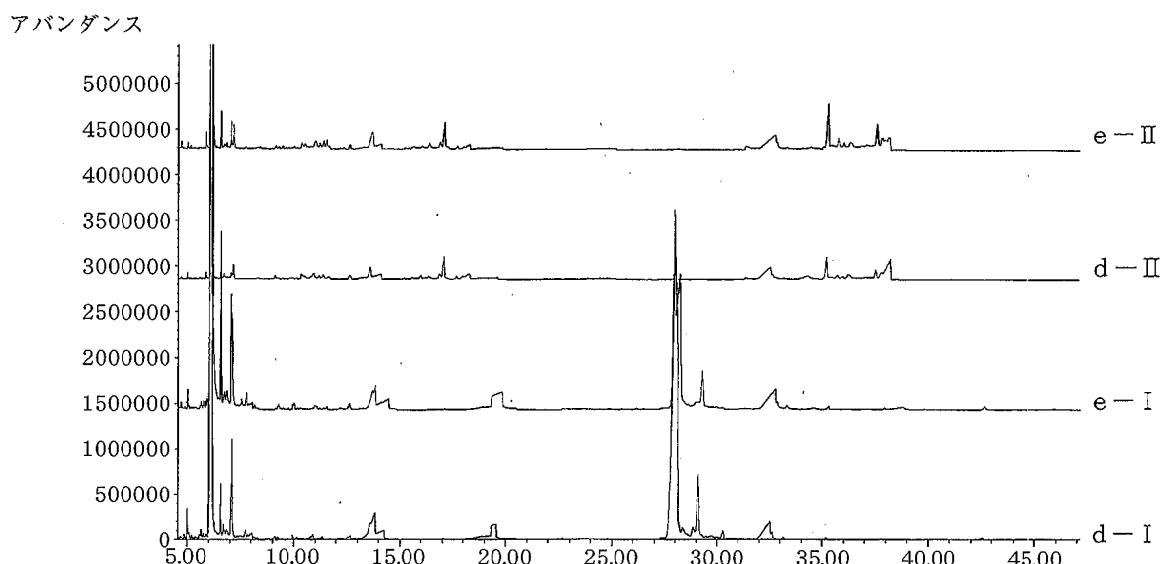


図3 オリーブオイル2種のTIC(SIMモード)

表1 ごま油及びオリーブオイルの添加回収試験結果（回収率%）

番号	農薬名	系	測定メソッド	ごま油		オリーブ油		番号	農薬名	系	測定メソッド	ごま油		オリーブ油			
				a	b	c	d					a	b	c	d		
1	α-BHC	CL	I	93.1	93.9	94.7	96.6	113.1	42	メビンホス	P	II	2.9	26.1	22.9	100.8	107.0
2	β-BHC	CL	I	92.9	97.3	100.6	99.3	114.6	43	モノクロトボス	P	I	0.0	2.2	0.0		
3	γ-BHC	CL	I	96.1	95.9	101.8	95.5	114.4	1	アトラジン	N	II	94.1	95.9	97.1	106.6	103.1
4	δ-BHC	CL	I	93.0	97.9	102.8	98.0	106.8	2	アメトリリン	N	II	97.1	100.0	95.2		
5	c,p'-DDT	CL	I	85.8	84.7	89.0	90.2	131.3	3	イプロジオン	N	I	20.2	31.5	49.6	98.9	111.4
6	p,p'-DDD	CL	I	95.3	95.6	99.5	97.6	123.5	4	イミベンコナゾール	N	I	0.0	0.0	0.0		
7	p,p'-DDE	CL	II	81.8	88.5	80.5	81.3	88.2	5	ジフェノコナゾール*	N	II	0.0	0.0	0.0	105.1	120.8
8	p,p'-DDT	CL	I	96.0	97.0	93.2	95.5	109.5	6	ジフルベンズロン	N	II	0.0	0.0	0.0	100.9	106.8
9	アルドリン	CL	II	63.1	68.9	68.6	66.8	82.3	7	シマジン	N	I	16.8	38.7	54.0	101.9	53.5
10	エンドリン	CL	II	91.7	95.5	97.2	94.4	110.6	8	ジメタメトリリン	N	II	88.6	99.7	95.2	97.6	97.1
11	カブタホール	CL	II	0.0	0.0	0.0	91.8	73.9	9	シメトリリン	N	I	56.0	57.0	87.8		
12	キャブタン	CL	II	21.6	48.7	28.9	87.8	—	10	テニルクロール	N	II	101.1	100.2	99.7	100.5	109.7
13	キントゼン	CL	II	94.9	86.7	88.4	91.0	105.6	11	チブフェンピラド	N	II	97.2	98.7	94.9	99.6	114.7
14	クロメトキシニル	CL	I	99.0	93.8	97.5	100.8	113.0	12	トリアジメノール*	N	II	0.0	0.0	0.0	74.5	94.4
15	クロルニトロフェン	CL	II	101.4	94.1	94.5	99.0	116.4	13	トリシクラゾール*	N	I	0.0	0.0	0.0		
16	クロルベンジレート	CL	II	100.4	97.6	99.4	103.5	114.1	14	パクロブトラゾール	N	II	0.0	0.0	0.0	100.5	121.0
17	ジクロフルアニド	CL	II	0.0	20.7	4.1	61.1	103.7	15	ビテルタノール*	N	I	0.0	0.0	0.0		
18	ジコホル	CL	I	99.2	101.2	102.7			16	ビリダベン	N	II	94.0	89.7	93.4	96.7	112.2
19	デイルドリン	CL	II	94.7	100.5	97.1	94.9	110.4	17	フェナリモル	N	II	0.0	0.0	0.0	100.0	116.9
20	ハルフェンプロックス	CL	I	89.7	87.8	92.8	89.0	103.9	18	ブロフェジン	N	I	93.8	95.1	98.9	98.3	—
21	ピリフェノックス*	CL	II	92.8	96.1	97.7	91.1	106.7	19	フルシラゾール	N	I	0.0	0.0	0.0		
1	EPN	P	II	98.0	98.1	94.7	102.3	105.8	20	フルトランニル	N	I	0.0	0.0	0.0	98.3	126.0
2	α-CVP	P	I	103.2	95.3	103.7	100.6	120.0	21	プレチラクロール	N	II	94.4	100.6	101.0	97.7	114.1
3	β-CVP	P	I	96.4	96.2	102.7	101.2	110.9	22	プロバジン	N	I	86.2	95.0	98.0	101.2	96.6
4	アジンホスメチル	P	I	0.0	26.5	18.6	92.2	63.2	23	プロバニル	N	I				101.2	123.5
5	アセフェート	P	II	0.0	0.0	0.0	75.8	20.3	24	プロビコナゾール*	N	I	47.6	55.3	67.6	101.1	125.8
6	イソキサチオニ	P	II	97.6	98.2	98.0	102.2	124.7	25	プロメトリリン	N	II	109.5	97.6	97.9		
7	イソフェンホス	P	I	101.2	96.5	101.0	96.9	113.9	26	ベンシクロロン	N	II					
8	イプロベンホス	P	II	91.2	101.4	97.6	102.5	111.3	27	ベンタゾン	N	II	95.8	99.3	100.6		
9	エチオン	P	I	94.6	97.0	100.4	96.7	107.2	28	ベンディメタリン	N	I	101.4	96.0	99.0	96.5	118.9
10	エディフェンホス	P	II	95.5	89.7	94.9	97.8	84.9	29	ミクロブタニル	N	I	0.0	0.0	0.0		
11	エトプロホス	P	I	86.2	94.8	105.0	98.1	117.2	30	メトリブジン	N	I	10.0	24.1	45.3		
12	エトリムホス	P	II	93.3	101.2	94.3	97.3	117.9	31	メフェナセット	N	I	4.4	30.5	30.3	98.9	109.7
13	カズサホス	P	II	97.1	96.5	92.9	97.8	114.6	32	メプロニル	N	II	71.6	66.5	94.4	101.5	117.3
14	クロルビリホス	P	II	101.0	96.7	93.1	96.1	106.2	33	リニュロン	N	I	90.7	83.7	97.7	102.8	85.8
15	クロルビリホスメチル	P	II	96.1	98.8	96.1	96.3	111.8	34	レナシル	N	I	0.0	0.0	0.0	95.7	111.0
16	シアノフェンホス	P	I	99.7	100.0	107.0	98.4	115.2	1	MPMC	CA	I	50.9	48.0	87.3	99.3	110.6
17	シアノホス	P	II	102.5	100.7	97.5	101.9	115.9	2	swept	CA	II	72.6	70.9	95.4	100.5	119.2
18	ジクロルボス	P	I	55.4	55.0	54.2	88.8	97.9	3	イソプロカルブ	CA	I	92.1	89.0	101.1	97.0	112.8
19	ジメチルビンホス	P	I	58.6	53.9	89.2	106.7	88.8	4	エスプロカルブ	CA	I	93.4	92.4	100.2	93.0	109.6
20	ジメトエート	P	I	0.0	0.0	0.0	100.6	110.3	5	カルパリル	CA	II	0.0	1.8	0.0	104.5	110.3
21	ダイアジノン	P	I	94.2	97.1	100.6	94.7	110.9	6	クロルプロファム	CA	II	101.4	103.8	101.9	100.5	117.4
22	テルブホス	P	II	90.4	89.0	78.9	36.6	58.8	7	ジエトフェンカルブ	CA	I	95.2	102.4	—		
23	トルクロホスメチル	P	II	98.1	100.1	99.5	99.7	120.0	8	ビリミカーブ	CA	II	94.4	99.5	103.1	100.0	121.8
24	バラチオン	P	II	104.5	98.4	99.8	104.4	107.1	9	フェノブカルブ	CA	I	90.1	99.1	105.7	100.2	107.7
25	バラチオンメチル	P	II	100.0	97.5	98.3	103.0	116.2	10	プロボクスル	CA	II	0.0	26.3	11.3	90.3	—
26	ピラクロホス	P	I	91.5	86.4	94.2	95.8	84.7	11	ベンダイオカルブ	CA	II	0.0	11.8	0.0	107.9	96.2
27	ピリダフェンチオニ	P	I	0.0	5.9	0.0	99.3	111.9	12	メトルカルブ	CA	I	46.5	51.8	92.3	99.8	103.3
28	フェニトロチオニ	P	I	100.9	95.8	103.3	101.2	110.5	1	エトフェンプロックス	PR	II	99.7	92.8	88.2	89.9	0.0
29	フェンスルホチオニ	P	I	0.0	0.0	0.0	101.6	120.8	2	シハロトリリン*	PR	II	86.1	89.9	91.7	95.1	113.8
30	フェンチオニ	P	I	93.1	89.3	77.5	25.9	38.7	3	シフルトリリン*	PR	I	99.0	95.2	96.1	94.2	109.9
31	フェントエート	P	I	95.4	98.4	101.1	109.3	141.3	4	シペルメトリリン*	PR	I	105.0	97.4	93.0	94.3	109.3
32	ブタミホス	P	I	96.9	95.7	97.7	96.2	110.7	5	テフルトリリン	PR	I	84.2	88.0	90.2	91.8	109.0
33	プロオホス	P	I	91.8	88.7	95.0	92.7	103.1	6	トラメトリリン	PR	II				97.4	104.3
34	プロモホス	P	I	93.0	96.3	101.6	94.8	107.2	7	フェンバレート*	PR	I	125.4	100.0	76.5	98.7	101.4
35	ベンフレセート	P	I	99.6	99.7	103.5	101.6	122.9	8	フルシリネート*	PR	II	99.2	88.6	79.3	94.7	110.9
36	ホサロン	P	I	94.0	91.9	101.5	98.0	103.0	9	フルバリネート*	PR	I	107.6	82.2	80.5	87.8	93.3
37	ホスチアゼート*	P	I	0.0	0.0	0.0	102.7	103.6	10	ペルメトリリン*	PR	I	92.6	93.3	96.5		
38	ホスファミドン	P	I	0.0	0.0	0.0	99.4	—	11	イソプロチオラン	AP	II	101.0	100.2	101.4	101.9	130.2
39	ホスマット	P	I	0.0	29.4	30.8	97.4	77.5	12	ジメチビン	AP	II	0.0	0.0	0.0	103.5	86.7
40	マラチオン	P	II	95.6	97.3	101.6	100.5	116.1	13	シンメチリン	AP	I					
41	メタミドホス	P	I	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	14	プロメトン	AP	I	40.9	62.5	95.3		

CL：有機塩素系農薬 P：有機りん系農薬 N：含窒素農薬 CA：カーバメイト系農薬 PR：ピレスロイド系農薬

AP：その他農薬 *：付した農薬：異性体回収率の平均値 空欄：妨害ピーク又は不検出のため検量線が作成できなかったもの —：検量線は作成できたが、妨害ピークにより定量できなかったもの

添加回収試験の結果は、124農薬中70%以上の回収率が得られた農薬数は、ごま油aで78, bで77, cで82, オリーブオイルではdで102, eで96であった。この農薬数は、当所で実施している農産物中の残留農薬分析における農薬数と大差なく、以上のことから、食用植物油中残留農薬の定量分析に十分適用できるものと考えられる。また、スクリーニング法として回収率50%以上を有効とすれば、ごま油で83~86農薬、オリーブオイルで98~104農薬の存在を確認できた。

ま　と　め

食品の中でも残留農薬分析が困難である食用植物油について、一斉分析法を検討した。

食用植物油からn-ヘキサン・アセトニトリル分配で農薬を抽出し、さらに、GPC精製、SAX/PSAミニカラム精製及びENVI-Carbミニカラム精製を行いGC/MS (SIM) で測定する方法で、124農薬中ごま油で77~82農薬、オリーブオイルで96~102農薬を定量分析することができた。また、本法をスクリーニング試験

法として用いた場合、ごま油で83~86、オリーブオイルで98~104農薬の存在を確認できる。SAX/PSAミニカラム精製操作は、ごま油では必要であったが、オリーブオイルでは省略できた。以上、本法は、市販されている食用植物油中の残留農薬の定量分析又はスクリーニング試験に十分適用できるものと考える。

生鮮農産物については、食品衛生法により農薬の残留基準値が定められていることから、十分とは言えないまでもある程度の残留実態が把握されているが、原材料の多くが輸入されている冷凍野菜や食用植物油等の加工食品については、分析法及び基準値が設定されておらず、調査もほとんど実施されていない現状にある。このことから、今後の調査に役立つものと考える。

文　献

- 1) Niessner G., Buchberger, Eckerstorfer R. :
J. Chromatogr. A., 846, 341 (1999).
- 2) 深沢透, 青山稔, 丸山武紀, 新谷勲, 堤崇史, 東海林茂, 菊原紘：日本油化学会誌, 48, 885(1999).

2) キャピラリーGC/MSを用いた農産物中残留農薬分析における試料マトリックスの影響

飛野 敏明 松下 豪 柳井誠二郎*

要　旨

23種の農産物における残留農薬分析時の試料マトリックスの影響を134種の農薬について検討した。大部分の農薬で正の影響、いわゆる増感効果が認められた。マトリックス影響の程度は、キャピラリーカラム等ガスクロマトグラフ部の状態により同一農産物でも大きく変動する。一方、ガスクロマトグラフ部の状態がほぼ同じと考えられる同一日における分析では、異なる農産物種間でもマトリックス影響の程度の差は小さい。このことから、マトリックス影響の排除に、試料そのもののマトリックスでなく代用マトリックスの利用の可能性が示唆された。

キーワード：残留農薬、マトリックス影響、キャピラリーGC/MS

は　じ　め　に

農産物中残留農薬分析時の添加回収試験で、その回収率が100%を大きく越える農薬が存在する。これは、農産物から農薬とともに抽出され、精製過程でも除去できない試料由来の成分（以下、「マトリックス」という。）が、GC/MS測定時に注入口ライナーやキャピラリカラムでの吸着・分解を押さえるためと考えられる^{1~3)}。

定量に際してマトリックス影響を排除するためには、検量線用標準液の調製用希釈液として試料抽出液を用いる方法が最適ではあるが、多種類の農産物を同時に分析する場合には農産物の種類ごとに検量線を作成する必要があり、非常に煩雑で分析時間も長時間を必要とし実用的ではない。

そこで、23種の農産物134農薬を試験材料として、農産物の種類によるマトリックスの影響の違いを把握し、代用マトリックスを用いた1種類の検量線での分析の可能性について検討した。

実験方法

1 試料及び試薬

1.1 試料

玄米、いちご、ブルーベリー、みかん、なつみかん（甘夏の実）、なつみかん（甘夏の皮）、はっさく、すいか、メロン、日本なし、かんしょ、ばれいしょ、やまいも、たかな、はくさい、キャベツ、きゅうり、だいこん（根）、にんじん、たまねぎ、ほうれんそう、レタス、なたねを試料とした。

1.2 試薬

アセトン、酢酸エチル、アセトニトリル、ベンゼン：残留農薬分析用

トルエン：試薬特級

多孔性ケイソウ土カラム：メルク社エクストレルート20

グラファイトカーボンミニカラム：スペルコ社
ENVI-Carb 0.5g 6ml

農薬標準原液：図3に示す農薬各200μg/ml アセトン溶液、α-；β-CVPはシクロヘキサン溶液

農薬中間標準液：各農薬標準原液を混合し、1.0μg/ml アセトン溶液としたもの

2 装置及び測定条件

2.1 GC/MS

GC/MS : HP5890/5972MSD (Hewlett Packard社製)

カラム：HP-5 MS, 0.25mm×30m 膜厚0.25μm

分析日ごとに注入口側10~20cmをカットした。

昇温条件：80℃(2min)→30℃/min→180℃(5min)→

3℃/min→260℃(10min)

キャリアガス圧力プログラム：40psi(1.5min)→99psi/min→13psi(3 min)

注入口温度：250℃

注入口ライナー：不活性化処理済（石英ウール入り）を使用、分析日ごとに交換した。

MS温度：180℃

注入量：3 μl (ページドスプリットレス)

測定モード：SIM

2.2 GPC

カラム：バイオビーズSX-3 200~400メッシュ約28gを内径20mm長さ300mmのステンレスカラム(GLサイエンス社製)に湿式充填したもの

* 現熊本県菊池地域振興局保健福祉環境部

ポンプ：島津LC-10AS 流速：5 ml/min
インジェクター：レオダイン7725i 2 ml ループ付
注入量：2.0ml 移動相：ベンゼン
農薬画分：9～17.5分 (45.0～87.5ml, 42.5ml)

3 試料抽出液の調製

均一化した試料20.0g(秤量後、含水量の少ない試料には水分量が15～20mlになるよう適宜水を加える。玄米は、水20mlを加え1夜放置した)にアセトン100mlを加え高速ホモジナイズ抽出し、ガラス纖維ろ紙を用いてろ過する。残渣をアセトン50mlで洗浄し、ろ液を合わせ減圧濃縮し、残液が15～20mlになるまでアセトンを留去する。残液に食塩5gを加え溶解させる。この溶液を多孔性ケイソウ土カラムに負荷後10分間放置し、酢酸エチル150mlで溶出させる。この溶出液を濃縮乾固し、ベンゼン5mlに溶解する。このベンゼン溶液を0.45μmのフィルターでろ過し、2mlをGPCで精製する。GPCの農薬画分を濃縮、窒素気流中で乾固し、アセトニトリル・トルエン(3:1)2mlに溶解する。次いで、あらかじめアセトニトリル・トルエン(3:1)10mlで洗浄したグラファイトカーボンミニカラムに負荷し、容器を同液2

ml×4回で洗浄し洗液も負荷する。さらに同液10mlで溶出する。全溶出液20mlを捕集し濃縮、窒素気流中で乾固する。残渣をアセトン2mlで溶解し、これを試料抽出液とする。

図1に操作フローを示す。

4 試験液の調製

標準溶液：農薬中間標準液をアセトンで希釀し、

0.2μg/ml溶液を調製した。

マトリックス標準液：試料抽出液0.5mlを分取し、窒素気流中で乾固後、標準溶液0.5mlで溶解して0.2μg/ml溶液を調製した。

5 試験方法

標準液、試料抽出液及びマトリックス標準液の各3μlをGC/MSに注入し、ピーク高法で積分した。マトリックス標準液の各農薬のレスポンス(Rm)から試料抽出液で検出された農薬のレスポンス(R0)を差し引いたものと標準溶液の各農薬のレスポンス(Rs)比(R)を求めた。

$$R = (R_m - R_0) / R_s$$

結果及び考察

平成10年度及び平成11年度に試験した農産物のマトリックス影響を図2-1, 2及び図3に示す。これは、R平均値を農産物ごと(図2-1, 2)及び農薬ごと(図3)にプロットしたものである。図2-1, 2, 図3から明らかなように、大部分の農薬で正の影響、いわゆる増感効果が認められた。

農薬の系統別にそのR値をみてみると、有機塩素系では、最も大きな影響を受けているテクロフタラムでRの範囲は0.04～28.9、Rの幾何平均値(以下、「GM」と略す。)は8.9で最大であった。その他の有機塩素系農薬(15/16農薬)のGMは0.92～2.1であった。

有機りん系では、平成11年度の玄米(n=4)及びきゅうり(n=4)でバミドチオノン(それぞれ0.2, 0.4), にんじん(n=2)でホスチアゼート(0.2)に負の影響がみられたが、GMをみてみると、5を越えるピラクロホス(5.8), 3～5の範囲にEPN(3.3), アジンホスメチル(3.8), アセフェート(4.8), イソキサチオン(4.7), ピリダフエンチオノン(3.2), フェナミホス(3.2), フェンスルホチオノン(4.2), ブタミホス(3.8), ホサロン(3.4), ホスマット(3.0)が大きな正の影響を受けていることがわかった。その他農薬(33/46農薬)は1.1～2.9であった。

カーバメイト系では、調査した全ての農産物でジエトフェンカルブに負(0.03～0.78, GM0.19)の影響がみられた。その他農薬(12/13農薬)のGMは1.2～

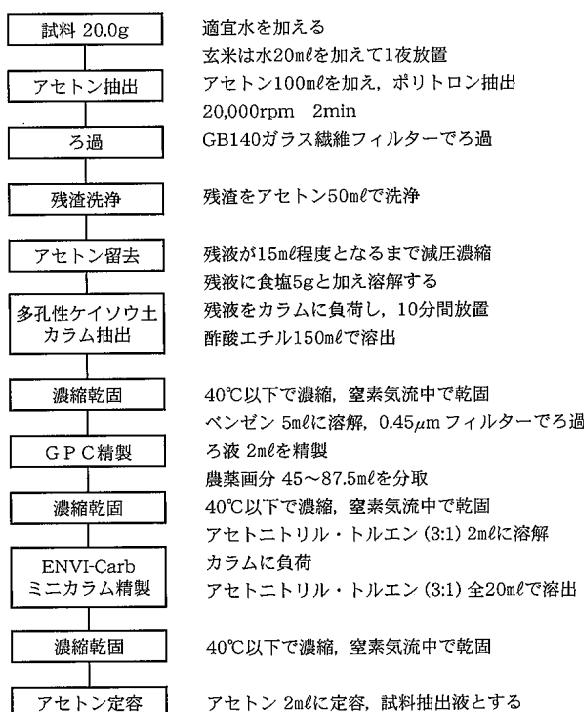


図1 試料抽出液調製フロー

2.0であった。

ピレスロイド系では、テフルトリンはマトリックスの影響が小さく、その範囲は1.0~1.9、GMは1.3であった。他のピレスロイド系農薬(9/10農薬)は、GMが3.7~5.6でマトリックスの大きな影響が認められた。

トリアジン系では、メトリブジンがたまねぎ(0.7)を除き正の影響が比較的大きく、そのGMは1.8であ

った。アトラジンはたかな(0.06)、いちご(0.21)、きゅうり・メロン(0.13)で、アメトリンは、たかな(0.06)、甘夏(皮)(0.16)で、プロメトリンは、キヤベツ(0.31)、かんしょ(0.20)で大きな負の影響が認められた。他の農産物では影響は小さくそのGMは0.7~1.4であった。

トリアゾール系では、GMが2.6~4.8と大きく、全ての農産物で正の大きな影響があった。

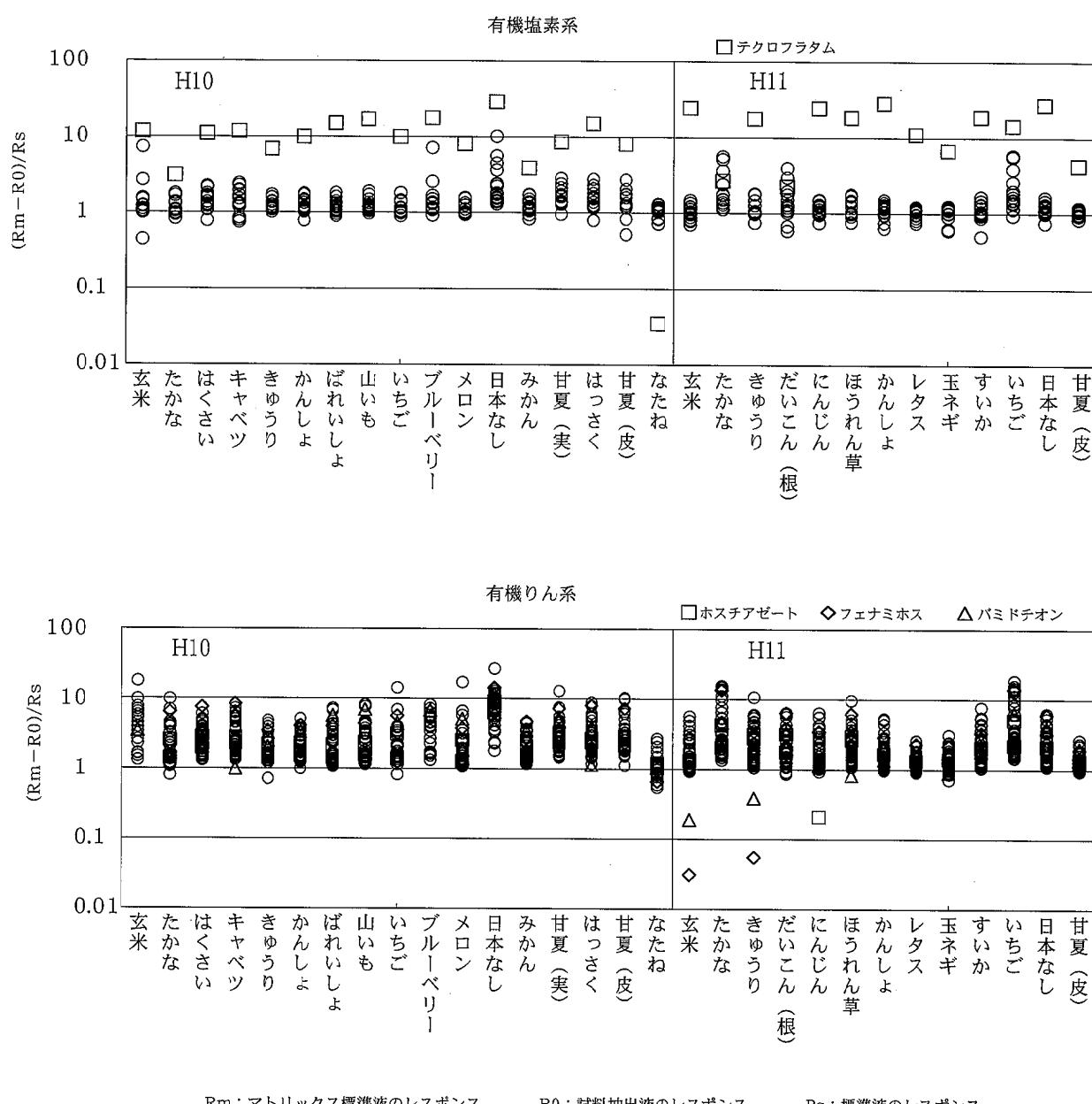
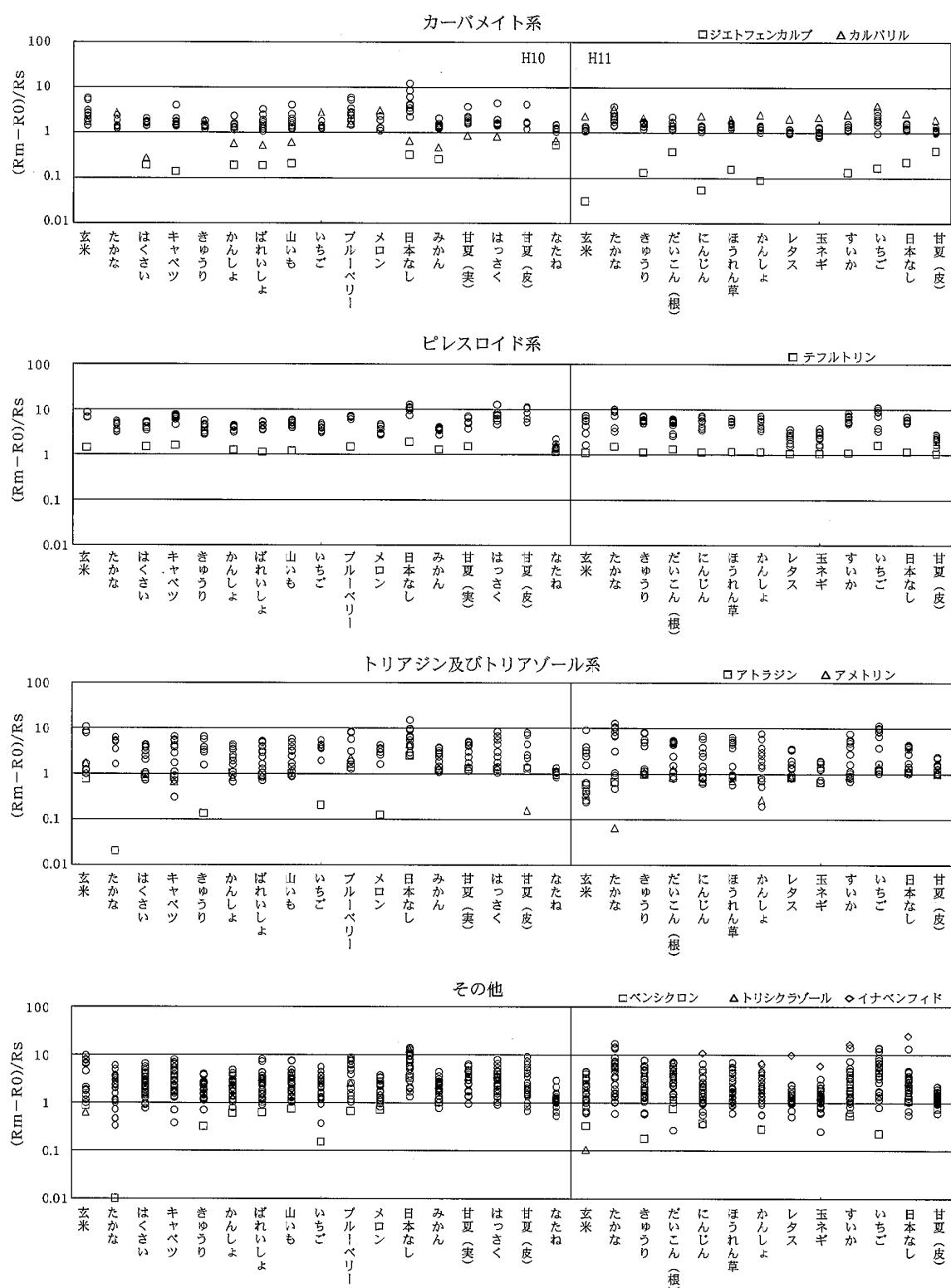


図2-1 農産物におけるマトリックス影響



Rm：マトリックス添加標準液のレスポンス

R0：試料抽出液のレスポンス

Rs : 標準液のレスポンス

図 2-2 農産物におけるマトリックス影響

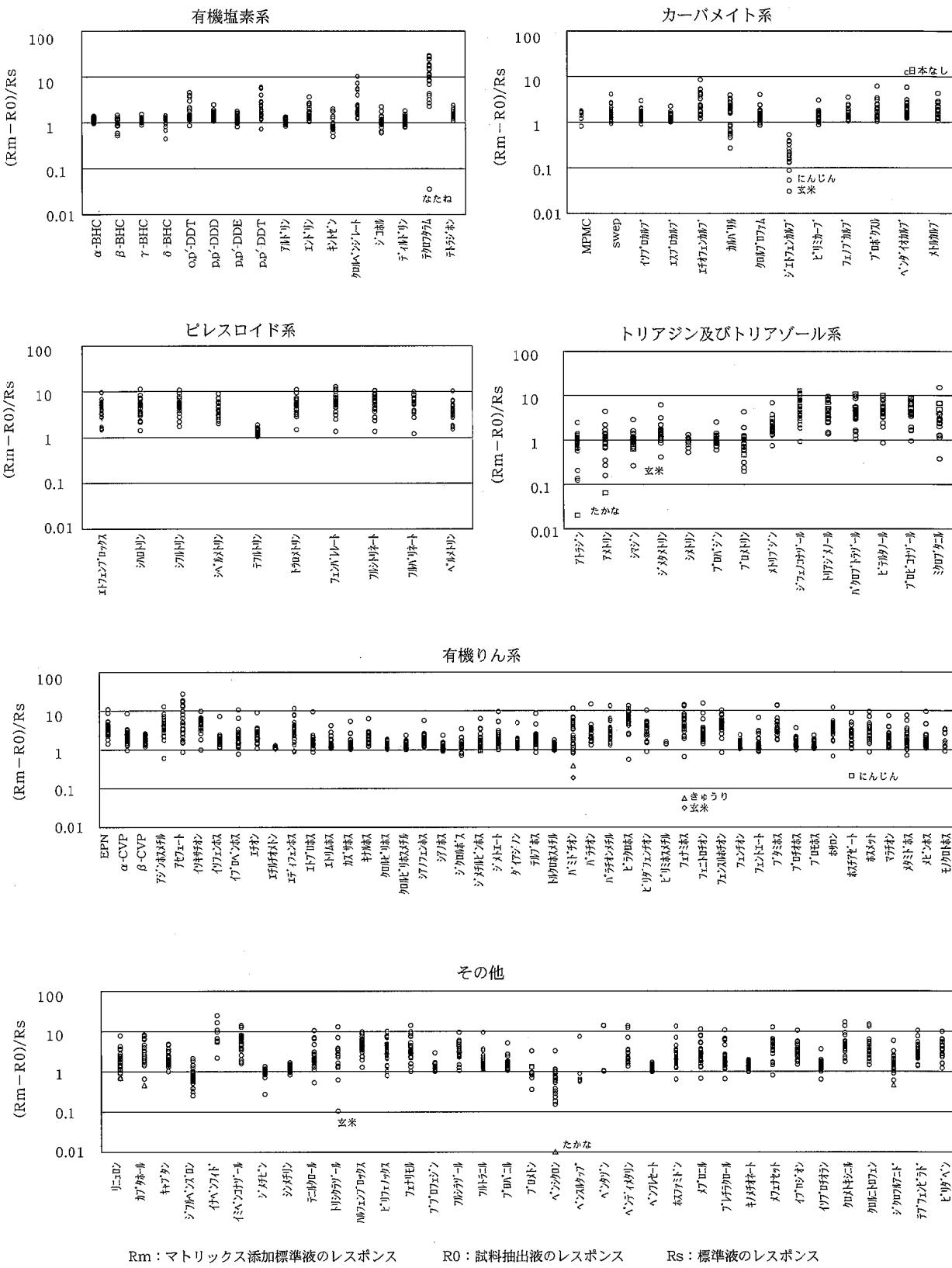


図3 各農薬に及ぼす農産物マトリックスの影響

その他農薬では、ジフルベンズロンとペンシクロンで負の影響が大きいが、他農薬では正の影響がみられた。

以上のこととは、農産物中残留農薬の定量に際しマトリックス効果により、農薬の濃度を過大に評価する恐

れがあることを示唆する。

また、図3より大部分の農薬において、農産物の種類でそのマトリックス効果が非常に異なっていることがわかる。しかし、マトリックスの影響は、ガスクロマトグラフ部分、特に注入ロライナー(インサート)や

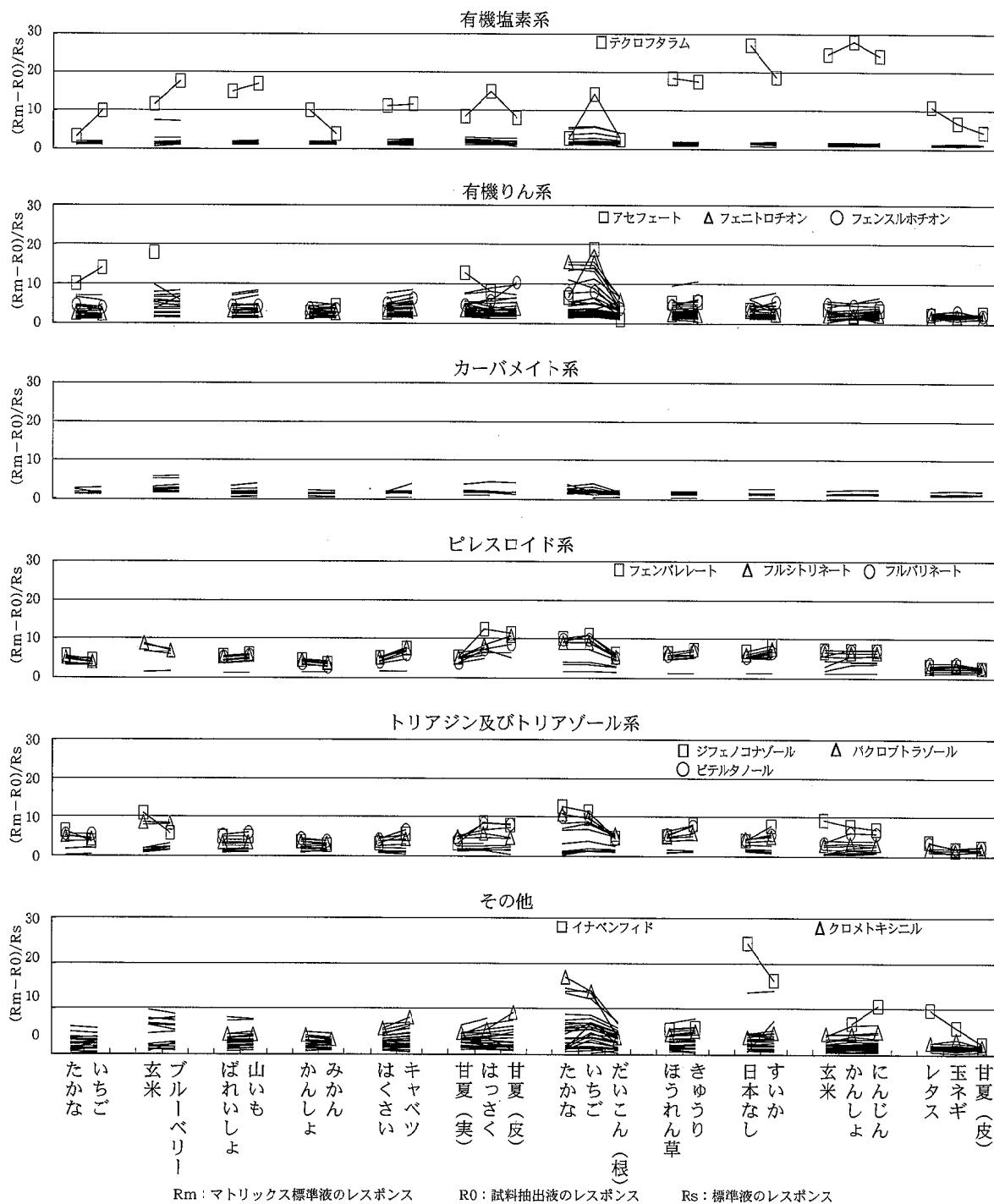


図4 同じ日に分析した農産物グループにおけるマトリックス影響

キャピラリーカラムの状態で異なると考えられる^{4),5)}。そこで、これらの条件がほぼ同等であると考えられる同一日に分析した試料について、2種類以上の農産物を分析した分析日ごとにその影響を検討した。図4に、横軸に分析日ごとの検査農産物、縦軸にRをとった折れ線図を示す。

図4からテクロフタラム、アセフェート、イナベンフィド等の吸着されやすい農薬を除いて、全般的にR値の差は小さかった。

農薬の系統別にみてみると、有機塩素系農薬では、同一分析日の全く異なる種類の農産物において、その比はテクロフタラムを除きよく一致していることが分かった。

有機りん系農薬では、アセフェート、イソキサチオン、フェンスルホチオン、フェニトロチオン、パラチオン、パラチオンメチル、ブタミホス、フェナミホス、ピラクロホス、EPNが、農産物の種類でそのマトリックス影響が異なる場合があるが、他の農薬ではよく一致していた。

カーバメイト系農薬では、よく一致していた。

ピレスロイド系では、柑橘類やだいこんでのマトリックス影響が大きく異なるが、他の農産物ではそれほどの差は認められなかった。

トリアジン系では同一日の分析では大きな差は認められないが、トリアゾール系では、農産物の種類により受ける影響が異なることが分かった。

その他農薬では、イナベンフィドやクロメトキシル、クロルニトロフェン、イミベンコナゾール、ペンドイメタリンがだいこんや柑橘で他とは大きく異なることが分かった。

また、図4から平成10年度と平成11年度に分析した同一種の農産物について比較してみると、R値がかなり異なりながらも同一日に分析した他の農産物種との差が小さいことから、ガスクロマトグラフ部分の状態がマトリックス影響を増強することが分かった。

以上のことから、ほとんどの農薬で試料マトリックスの影響を受け、農産物ごとに、また、分析日ごとにR値は非常に大きな変動を示したが、同一日の分析では異なる農産物種間のマトリックス影響の差はそれほど

大きくなく、農産物それぞれのマトリックス添加標準液による検量線の代りに1種類のマトリックス添加標準液による検量線が利用できる可能性が示唆された。また、ポリエチレングリコール200と300、200と400の混合液を代用マトリックスとして使用した場合、正の影響が認められる農薬と負の影響が現れる農薬があることが根本らにより報告されている⁶⁾が、実試料のマトリックスでも同様の結果が得られた。

ま と め

キャピラリーGC/MSを使用した農産物中残留農薬分析において、ほとんどの農薬が試料マトリックスの影響を受けるが、ガスクロマトグラフ部の注入口ライナー及びキャピラリーカラムの状態がマトリックス影響を増強することが明らかとなった。

また、ガスクロマトグラフ部の状態がほぼ同一と考えられる分析では、マトリックス影響の差は異なる農産物種間でも小さいことから、試料そのもののマトリックスの代りに、ポリエチレングリコール等の代用マトリックスが利用できる可能性が示唆された。

今後は、ガスクロマトグラフ部の状態をできるだけ一定に保ち、さらに多種類の農産物種についてそのマトリックスの影響を検討するとともに、ポリエチレングリコールや植物成分等の代用マトリックスについて検討する予定である。

文 献

- 1) 荒井香陽子、近藤亮子、木川寛：第30回全国衛生化学技術協議会年会講演集, p. 124 (1993).
- 2) 園田要、廣中博見、西田政司：日本食品衛生学会第74回学術講演会要旨集, p. 40 (1997).
- 3) 石動政直、小松雅美、酒井洋：第33回全国衛生化学技術協議会年会講演集, p. 76 (1996).
- 4) 荒井香陽子、近藤亮子、木川寛：第28回全国衛生化学技術協議会年会講演集, p. 36 (1991).
- 5) 荒井香陽子、近藤亮子、木川寛：第29回全国衛生化学技術協議会年会講演集, p. 22 (1992).
- 6) 根本了、佐々木久美子、豊田正武：第35回全国衛生化学技術協議会年会講演集, p. 56 (1998).

3) 熊本県における大気中重金属濃度

植木 肇 上野 一憲

要 旨

平成元年度から10年度までに、熊本県内21市町41地点で採取（ローボリウムエアサンプラーを使用），測定された大気中浮遊粒子状物質に含まれる重金属（Cd, Pb, Zn, Cu）の挙動を検討した。

調査地点を調査目的（道路沿線地点と一般大気環境地点）で区分した場合、重金属濃度の相違は明瞭でなかった。粉じん量が増加するとPb, Zn, Cuは増加する傾向が認められた。熊本県の重金属濃度は、火山活動の影響を受けた一時的な濃度増加を除き、いずれも低濃度であった。

キーワード：大気，重金属，浮遊粒子状物質，ローボリウムエアサンプラー，火山活動

は じ め に

大気汚染防止法の改正（平成8年5月公布、平成9年4月施行）により、有害大気汚染物質の優先取組物質として有機化合物のほか、ニッケル、ベリリウム、マンガン、クロム、ヒ素及びそれらの化合物等を対象とした調査が開始された。これに伴い、熊本県でも平成9年10月から毎月1回県内2地域3定点（一般環境、発生源周辺、道路沿道）で調査を開始した。今後本県の大気環境の状況を知る上での貴重なデータが蓄積されるものと考えられる。

吸入による健康影響との関連で、大気中の粉じん量とともに、それに含まれるカドミウム（Cd）、鉛（Pb）、銅（Cu）、亜鉛（Zn）などの有害重金属の調査がこれまで全国各地で行われてきた。熊本県においても大気中の重金属濃度に関する調査を、発生源対策、環境監視等の目的に応じて、多年にわたって実施している。本報では平成元年度から同10年度までに熊本県内で実施した重金属調査の結果を基に、熊本県における重金属濃度の挙動について検討したので、その概要を報告する。

方 法

今回解析に用いた測定値は、毎年度熊本県が発行している「大気・騒音調査報告書」^{1), 2)}に掲載の報告値を用いた。これらの調査試料は、大気環境調査の一環として、各地で調査運行する大気環境測定車に搭載したローボリウムエアサンプラー（サイクロン式分粒装置付き：愛知時計電機（株）製、新宅機械製作所製）で採取したものである。採取期間は通常約1ヶ月間であり、この間大気中の浮遊粒子状物質を連続吸引した。測定は、JIS K 0097³⁾等に準じて行った。すなわち、試料採取後研究所に持ち帰ったろ紙（直径11cmの石

英繊維ろ紙又はメンブランフィルター）を硝酸-過酸化水素水法による酸分解等の前処理を行った後、フレームあるいはフレームレス原子吸光光度法により各重金属の定量分析を行った。

本報での対象項目は粉じん量のほか、Cd, Pb, Zn, Cuの4金属である。

10年間で、44地点で調査が行われ、そのうち3地点で一部に欠測があり、測定値が得られていない。そのため、今回は21市町41地点の測定値を用いた。内訳は10市23地点、11町18地点である。これを調査目的別に分類すると、自動車排出ガス等の影響を把握するための道路沿線での調査、一般大気環境その他の状況を把握する調査の二つに分類できる。前者が22地点、後者が19地点（うち4地点は阿蘇火山活動期前後の調査）であった。

結果及び考察

表1に10年間の調査結果^{1), 2)}を示した。また、図1に調査地点ごとの粉じん量及び重金属濃度を示した。平成元年に調査した高森町で、粉じん量、Cd, Zn, Cuがいずれも極めて高濃度であった。これは当時活動中であった阿蘇中岳の降灰等の火山活動の影響によるものと考えられた。この地点の結果を除く40地点の濃度範囲は次のとおりであった。すなわち粉じん量は9.6～60.7 μg/m³、CdはND～0.0013 μg/m³、PbはND～0.050 μg/m³、Znは0.004～0.34 μg/m³、Cuは0.002～0.029 μg/m³であった。図1に示すように、熊本県における大気中の粉じん量は20～40 μg/m³、重金属濃度はCdがND～0.001 μg/m³、Pbが0.02 μg/m³程度、Znが0.05～0.1 μg/m³、Cuが0.01 μg/m³程度の濃度範囲であると考えられた。この結果を環境庁の国設10局の測定結果⁴⁾（採取方法が異なる）と比較すると、粉じ

表1 熊本県における大気中重金属濃度 (平成元年度～平成10年度)

(単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

No	区分	調査地点	調査期間			粉じん量	Cd	Pb	Zn	Cu	
			年	月	日～						
1	環境	大津町	1.	5.	10～	6. 9	23	ND	ND	0.099	0.012
2	環境	大津町	1.	11.	27～	12. 26	30	ND	0.023	0.12	0.023
3	環境	山鹿市	2.	1.	18～	2. 16	24	ND	ND	0.099	0.018
4	環境	高森町	1.	10.	16～	11. 15	116	0.0022	0.023	0.77	0.19
5	環境	高森町	2.	11.	13～	12. 12	16.6	ND	0.014	0.048	0.0093
6	環境	高森町	3.	1.	24～	2. 18	29.5	ND	0.014	0.08	0.012
7	環境	阿蘇町	2.	5.	21～	6. 20	26.6	ND	0.019	0.013	0.029
8	環境	松島町	3.	7.	1～	7. 31	9.6	ND	0.023	0.004	ND
9	環境	城南町	4.	1.	10～	2. 12	31.3	ND	0.033	0.05	ND
10	環境	人吉市	4.	2.	17～	3. 18	27.4	ND	0.023	0.043	ND
11	環境	水俣市	5.	8.	13～	8. 31	15.9	ND	0.011	0.015	0.004
12	環境	熊本市	7.	5.	25～	6. 26	30	ND	0.025	0.054	0.009
13	環境	玉名市	8.	9.	4～	10. 3	26.5	ND	0.021	0.046	0.0062
14	環境	益城町	9.	7.	24～	8. 25	20.8	0.0002	0.011	0.025	0.0045
15	環境	益城町	10.	1.	16～	2. 16	32.4	0.0006	0.023	0.053	0.0099
16	環境	牛深市	10.	3.	3～	3. 31	26.7	0.0005	0.027	0.028	0.003
17	環境	牛深市	10.	4.	1～	4. 28	31	0.0002	0.012	0.017	0.002
18	環境	牛深市	10.	4.	28～	6. 5	23.8	0.0003	0.018	0.022	0.003
19	環境	菊池市	10.	10.	28～	11. 30	28.3	0.0007	0.033	0.039	0.005
20	沿道	宇土市	2.	2.	27～	3. 26	42	0.0013	0.033	0.34	0.028
21	沿道	宇土市	4.	7.	20～	8. 21	27.5	0.001	0.013	0.073	0.007
22	沿道	宇土市	6.	1.	18～	2. 18	42.3	ND	0.022	0.086	0.012
23	沿道	荒尾市	4.	5.	13～	6. 15	43.5	0.001	0.037	0.092	0.011
24	沿道	山鹿市	4.	12.	2～	12. 18	44.3	0.001	0.039	0.081	0.006
25	沿道	八代市	5.	1.	21～	2. 22	38.7	ND	0.029	0.056	0.008
26	沿道	八代市	9.	11.	19～	12. 19	23.4	0.0005	0.02	0.047	0.01
27	沿道	富合町	5.	7.	13～	8. 9	34.8	ND	0.02	0.066	0.018
28	沿道	富合町	10.	7.	23～	8. 26	30.6	0.0004	0.021	0.044	0.027
29	沿道	大津町	5.	9.	7～	10. 7	31	ND	0.025	0.081	0.012
30	沿道	嘉島町	5.	10.	15～	11. 15	39.5	ND	0.025	0.071	0.014
31	沿道	植木町	6.	8.	25～	9. 26	37.5	ND	0.019	0.061	0.008
32	沿道	菊陽町	6.	10.	13～	11. 14	39.9	ND	0.032	0.073	0.016
33	沿道	西合志町	7.	7.	19～	8. 21	29.5	ND	0.014	0.029	0.011
34	沿道	菊陽町	7.	9.	12～	10. 13	36.6	ND	0.035	0.056	0.011
35	沿道	玉名市	7.	10.	24～	11. 24	46.3	0.001	0.043	0.11	0.012
36	沿道	菊池市	9.	1.	17～	2. 17	37.2	0.0007	0.028	0.055	0.0093
37	沿道	熊本市	6.	11.	18～	12. 16	58.4	0.001	0.05	0.11	0.025
38	沿道	熊本市	7.	2.	7～	3. 10	46.1	ND	0.034	0.088	0.022
39	沿道	熊本市	8.	2.	7～	3. 11	60.7	ND	0.041	0.077	0.014
40	沿道	熊本市	9.	2.	21～	3. 24	40.3	0.0008	0.035	0.069	0.01
41	沿道	熊本市	9.	10.	9～	11. 10	49	0.0009	0.043	0.093	0.024

ん量は同程度であったが、Pb, Zn 及び Cu はいずれも低濃度であり、10局平均濃度の1/2～1/3程度の濃度であった。

図2に粉じん量と Pb, Zn 及び Cu 濃度との関係を示した。これらの重金属濃度は粉じん量と正の相関関係が認められ、その相関係数はそれぞれ0.469, 0.818,

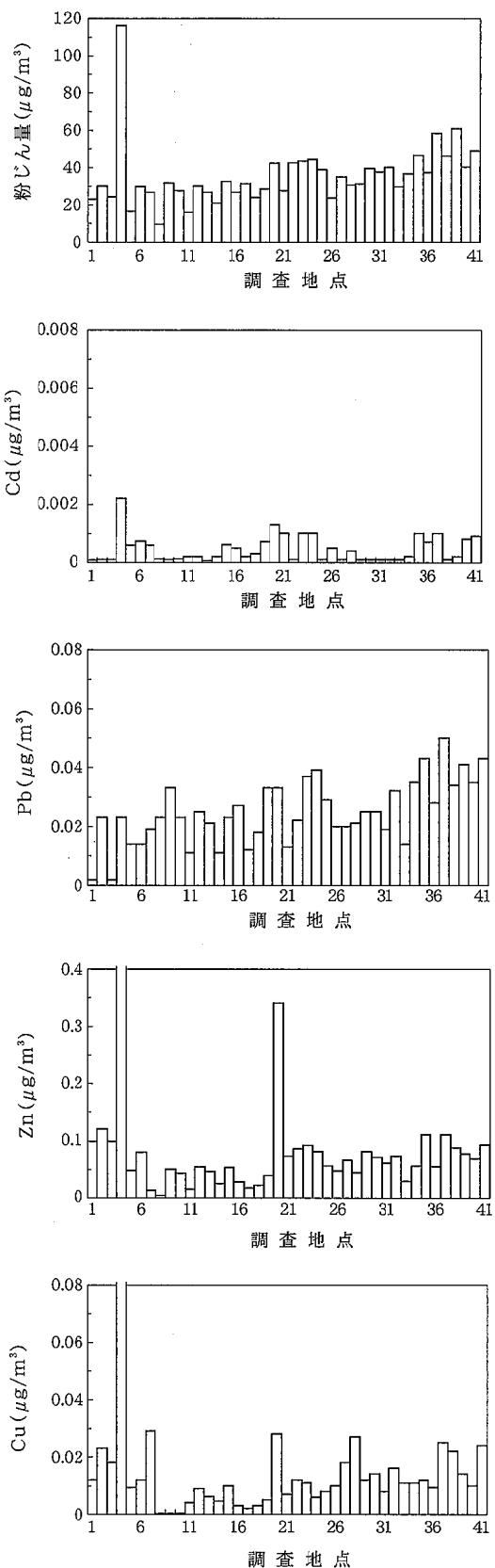


図1 調査地点別粉じん量及び重金属濃度

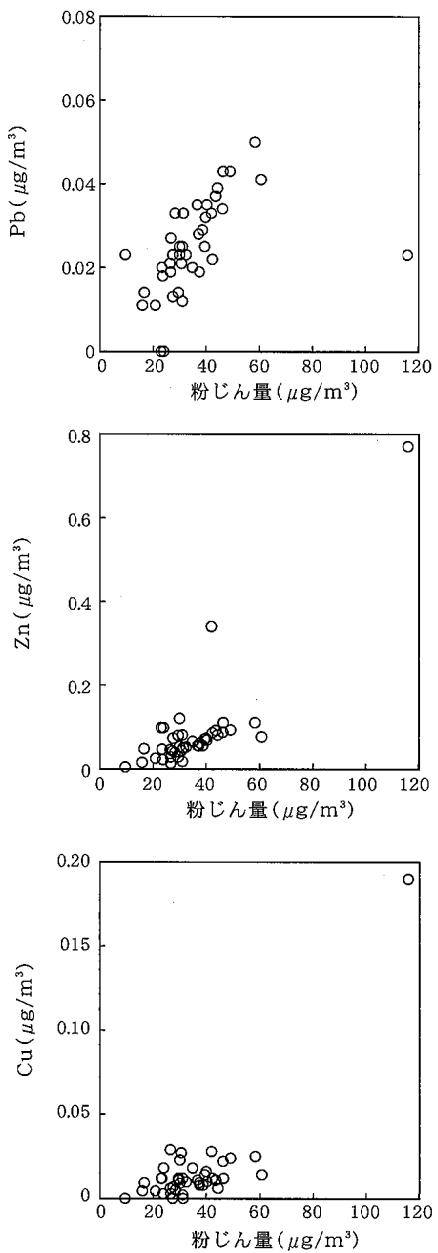


図2 粉じん量と重金属濃度との関係

0.817であった。

図3に重金属濃度を単位粉じん量に換算した結果を、各調査地点ごとに示した。Cd, Pb, Zn 及び Cu の算術平均値はそれぞれ $12.6 \mu\text{g/g}$ (幾何平均値 $8.5 \mu\text{g/g}$, 以下同じ), $745 \mu\text{g/g}$ ($652 \mu\text{g/g}$), $2110 \mu\text{g/g}$ ($1760 \mu\text{g/g}$), $380 \mu\text{g/g}$ ($246 \mu\text{g/g}$)であった。また、Cdは $40 \mu\text{g/g}$ 以下, Pbは $1000 \mu\text{g/g}$ 以下, Znは $1000 \sim 4000 \mu\text{g/g}$, Cuは $600 \mu\text{g/g}$ 以下の範囲にほとんどの調査地点が含まれる結果であった。現在熊本県における大気中の重金属濃度がどの程度であるかは十分議論されていないが、ここに示した数値より高濃度の地点について

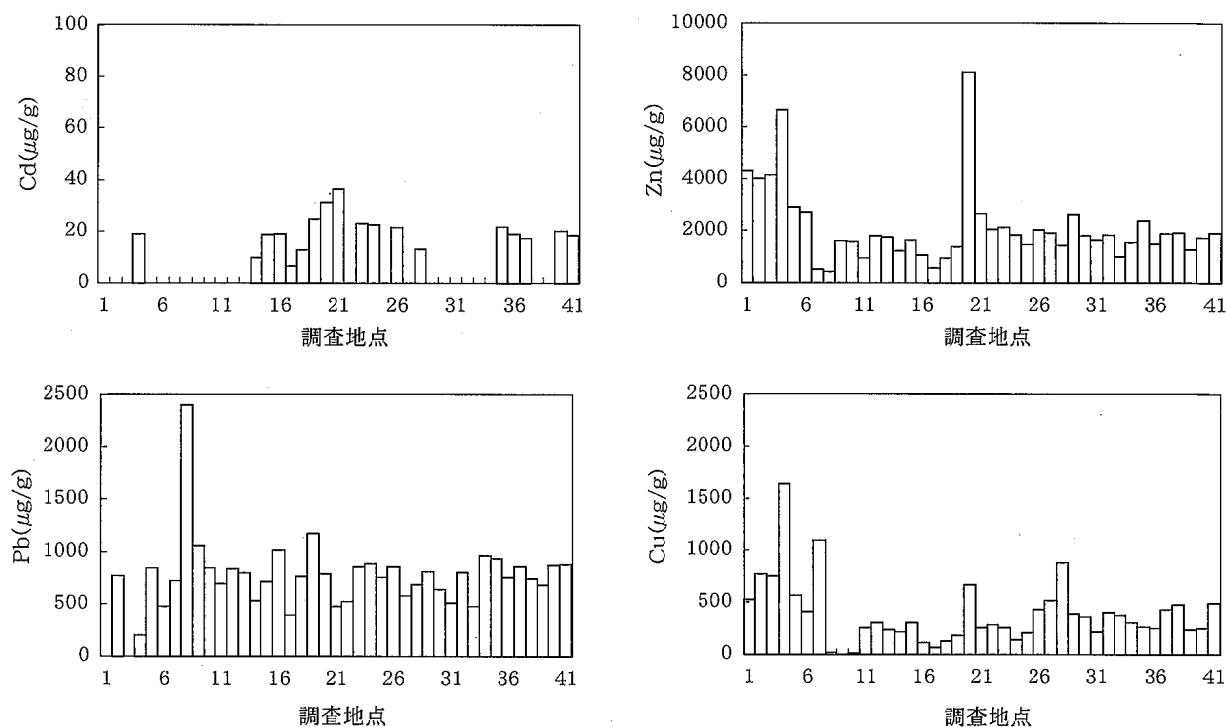


図3 調査地点別重金属濃度

表2 一般環境地点、道路沿線地点での重金属濃度の比較

(単位: $\mu\text{g/g}$)

調査地点	粉じん量 ($\mu\text{g/m}^3$)	Cd	Pb	Zn	Cu
一般環境 (n=19)	X _A ±SD X _G	30.0±21.7 26.3	12.7±9.4 9.3	753±503 578	2100±1640 1600
道路沿線 (n=22)	X _A ±SD X _G	40.0±9.1 39.0	12.6±10.8 7.9	739±151 722	2110±1400 1910

(注1) 定量下限値未満の値については、定量下限値の1/10の値を代入して平均値等を算出した。

(注2) X_A±SD: 算術平均値±標準偏差, X_G: 幾何平均値

では、今後原因等を引き続き検討する必要がある。

調査地点を調査目的別に区分し、その平均濃度を見ると表2のとおりであった。算術平均値で比較すると、粉じん量は道路沿線が一般環境の約1.3倍であった。また、Pb, Zn 及び Cu濃度では両地点間の相違は明らかでなかった。熊本県内では調査地点をいずれかに明確に区分することが困難な場合が多く、両者が混在していることが一因である。

前述したように、阿蘇中岳の活動が活発であった平成元年10月から11月に調査した高森町(表1のNo.4)での粉じん量、Zn 及び Cuの濃度はいずれも極めて高濃度であり、他の地点より1桁大きかった。しかし

Pbでは予想に反して顕著な増加は認められなかった。同地点では、1年後の平成2年11月及び平成3年1月(表1のNo.5 及び No.6)に再度調査を行っているが、粉じん量、Zn 及び Cuの濃度はいずれも著しく減少しており、ほぼ他の地点と同程度の濃度であった。このことから火山活動中には、周辺環境中に火山灰等が放出される。それらの影響を受け、粉じん量の増加に伴い、重金属量も増加したと考えられる。大気環境に及ぼす火山活動の影響が大きかったことは明らかである。

高森町のほかにも、同一地点で調査時期を違えて調査した例が3例あったので、それらについても重金属

表3 複数回調査地点での重金属濃度の変化

(単位：上段 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、下段 $\mu\text{g}/\text{g}$)

調査地点	調査期間	粉じん量	Cd	Pb	Zn	Cu
富合町小岩瀬	5. 7. 13~5. 8. 9	34.8	ND	0.020	0.066	0.018
		—	—	575	1900	517
益城町	9. 7. 24~9. 8. 25	30.6	0.0004	0.021	0.044	0.027
		13	—	686	1440	882
牛深市	10. 1. 16~10. 2. 16	20.8	0.0002	0.011	0.025	0.0045
		10	—	529	1200	216
牛深市	10. 3. 3~10. 3. 31	32.4	0.0006	0.023	0.053	0.0099
		19	—	710	1640	306
牛深市	10. 4. 1~10. 4. 28	26.7	0.0005	0.027	0.028	0.003
		19	—	1010	1040	112
牛深市	10. 4. 28~10. 6. 5	31.0	0.0002	0.012	0.017	0.002
		6	—	387	548	65
牛深市	10. 4. 28~10. 6. 5	23.8	0.0003	0.018	0.022	0.003
		13	—	756	924	126

濃度の増減等について検討した。その結果を表3に示した。同一時期である7月に年度を変えて(平成5年度と平成10年度)調査した富合町の例では、粉じん量、重金属濃度のいずれも大きな違いはなかった。また、同一年度の夏季と冬季に調査した益城町の例では、冬季に粉じん量が1.5倍に増加しているのに対し、重金属の濃度はいずれも2倍程度の濃度となっていた。単位粉じん量換算の重金属濃度では1.3倍であった。連続して3ヶ月間調査した牛深市の例では、大きな濃度の違いは認められなかった。

このほか、熊本市内の熊本城内(表1のNo.12)及び玉名市内のゴルフ場敷地内(表1のNo.13)でも調査を行ったが、他の調査地点とほぼ同程度の濃度であった。このことは、熊本県における大気中の重金属濃度がまだ著しい汚染の影響を受けていないものと考えられた。

まとめ

熊本県内21市町41地点で、平成元年度から10年度までに、採取、測定された大気中浮遊粒子状物質試料に含まれる重金属(Cd, Pb, Zn, Cu)の挙動を検討した。その結果、次のことが明らかとなった。

1) 道路沿線のPb濃度は一般環境に比べてやや高濃度であった。しかし単位粉じん量換算で見ると、Pb, Zn及びCu濃度ではその相違は明瞭でなかった。

2) 粉じん量の増加に伴い、Pb, Zn, Cuの濃度は増加する傾向が認められた。

3) 熊本県内の重金属濃度は、火山活動の影響を受け、一時的に急増する特別な例を除き、国設10局の平均濃度より、いずれも1/2~1/3程度の濃度であった。

本論文を著すにあたり、終始貴重なご助言をいただきました当研究所生活化学部飛野敏明研究参事に深謝します。

文 献

- 1) 熊本県環境公害部：“大気・騒音調査報告書(第25報～第31報)”，(1990～1996).
- 2) 熊本県環境生活部：“大気・騒音調査報告書(第32報～第34報)”，(1997～1999).
- 3) 日本規格協会：JIS K 0097-1979
- 4) 一國雅巳：“地球環境ハンドブック(不破敬一郎編著)”，p.36(1994)，(朝倉書店).

4) 熊本県内河川20年間（1978-1997）の水質変化と近年の水質状況

小田 泰史 村岡 俊彦* 山崎 文雅 今村 修
幸 健 久保 清 久間 公一

要　旨

河川の20年間の水質データを用い、その経年変化と流入するBOD汚濁負荷量及び生活排水処理率の経年変化との関係から河川水の質の変化を考察した。更に、工場・事業場排出水の水質も考察に加え、近年の河川の水質状況を解析した。その結果、河床礫付着藻による河川での内部生産の増加や閉鎖性水域での富栄養化に伴うCOD負荷量の増加が懸念された。

キーワード：河川水、生活環境項目、経年変化、内部生産、富栄養化

はじめに

全国の各自治体では毎年水質調査計画を策定し、公共用水域の水質調査を実施し、結果は水質調査報告書にて公表している。河川の場合、生活環境項目の有機性汚濁指標であるBODの75%値による環境基準達成率のみで、汚濁の動向を評価している。

この水質調査結果のデータを用い解析した報告は比較的少なく、主成分分析による総合水質指標：WQI (Water Quality Index) などにより汚濁を評価したもののが多い^{1~4)}。いずれも、一般的な水質汚濁の現状を客観的に統一して評価しようとするもので、主成分の持つ意味合い（人為汚濁）をスコアとして算出し、地点間の比較や経年変化として報告している。しかし、経年変化から河川水の質の変化や事業場排出水の影響を論じた報告は少ない。

有機性汚濁排水処理の多くは活性汚泥法を基にした生物学的処理であり、多くの事業場で設置されている。活性汚泥法で分解できる有機物には限界があり、難分解性有機物として疎水性の芳香族炭化水素や不飽和結合、イミノ基、ニトロ基、ハロゲン基などを有する化合物は処理水に残留し、CODを構成する有機物として存在することが知られている⁵⁾。

本報では、1978年～1997年の20年間のデータを用い、その経年変化から河川水の質の変化と近年の河川の水質状況を事業場排出水の水質も考察に加え報告する。

解析に用いたデータ

解析に用いたデータは環境保全課水保全対策室より提供していただいた。現在、河川の水質調査を行っている地点は環境基準点が54地点、補助点36地点と類型

指定のない24地点の計114地点であるが、1978～1997年までデータが継続している地点は、環境基準点及び補助点が74地点、指定無しが19地点の計93地点で、これらの地点のデータを用いて解析した。なお、検出下限値以下の値については、下限値の1/10の値を用いて解析した。

1 20年間の類型別水質経年変化

この解析ではAA類型8地点、A類型40地点、B類型15地点、C類型5地点及びD類型4地点の計72地点、20年間のデータを用いた。各地点の年平均値を求めた後、類型ごとの年平均値を用いて解析を行った。

なお、E類型は井芹川の2地点のみであることから経年変化の解析からはずした。

2 BOD汚濁負荷量及び生活排水処理率と河川のBOD、COD及びT-Nの経年変化

河川に流入するBOD汚濁負荷量は、県内の工場数、土地利用状況や世帯数などの基礎データを基に、また生活排水処理率は公共下水道、農業集落排水処理施設などの供用人口（実処理人口）を基に熊本県環境基本計画進行管理ワークシート（環境政策課）より算出した値を用いた。

河川水のデータは、先に用いた72地点に類型指定のない19地点を加えた計91地点の各年度の平均値を用いて解析を行った。

なお、T-Nは1988年から分析を始めていることから10年間のデータである。

3 近年の河川水の水質状況

河川のデータは1996年と1997年の2年間について、T-NとT-Pを測定している59地点の年平均値を用いた。また、工場・事業場排出水の水質として、同2年間でT-N、T-Pを測定した延べ459事業場の水質調査結果を解析に加えた。

* 現熊本県水産研究センター

結果及び考察

1 20年間の類型別水質経年変化

環境基準点及び補助点、計72地点の年度別平均値を用い、類型ごとの年度別生活環境項目などの平均値を算出し、20年間の年平均値による類型別水質状況を表1に示した。pHを除く各項目は下位の類型になるに従って汚濁の傾向を示すことから、川の流下に伴ってより下流域で汚濁していることが明らかである。

各類型の年度別平均値でpH、DO及びSSを見ると、この3項目については20年間環境基準値内の良好な状況であった。BODの各類型の最大値はB類型を除いて、それぞれの環境基準を超過した。さらに、大腸菌群数は最小値でAA、A及びB類型の基準値を超過した。なお、大腸菌群数の公共用水域における基準超過率が高いのは全国的な傾向であって、試験方法や類型の再考を示唆する報告もある^{6), 7)}。

次に、河川の生活環境項目として最も重要視されているBODについて類型別年平均値による20年間の推移をCODと併せて図1にAAとA類型、図2にBとC類型及び図3にD類型を示す。

図1に示すAA類型のBODの経年変化は1978年から徐々に減少し、おむね1mg/l以下と環境基準を達成している。CODは1.0~1.5mg/lの範囲でBODと類似した推移をするが、あまり減少しない。

A類型のBODの経年変化は1978年の1.9mg/lから徐々に減少し、1997年には1.2mg/lまで減少した。CODの推移はBODに類似して減少するが、濃度は約2.0~2.5mg/lで常にBODより高い値であった。特に、1995年以降のCOD/BOD比は1.6以上と大きくなるこ

表1 生活環境項目による20年間の類型別水質状況 ('78~'97)

類型	pH	DO	BOD	COD	SS	大腸菌	T-N	T-P
	N	20	20	20	20	20	10	10
AA 平均値	7.7	9.8	0.8	1.1	4	2880	0.66	0.040
AA 最小値	7.5	9.5	0.3	0.8	2	1510	0.45	0.019
AA 最大値	7.8	10.0	1.3	1.6	11	4330	0.88	0.051
A 平均値	7.7	9.5	1.6	2.2	10	16900	1.56	0.101
A 最小値	7.5	8.8	1.2	1.7	6	7350	1.41	0.069
A 最大値	7.8	9.7	2.1	2.5	18	49700	1.76	0.166
B 平均値	7.7	9.0	2.2	3.4	20	18500	1.70	0.134
B 最小値	7.5	8.4	1.7	2.6	12	8610	1.45	0.096
B 最大値	7.9	9.5	2.8	4.5	27	34200	2.28	0.211
C 平均値	7.5	6.5	4.9	6.9	24	475000	3.38	0.243
C 最小値	7.2	5.4	3.6	6.0	18	120000	2.23	0.100
C 最大値	7.6	7.4	6.6	7.7	32	1080000	6.16	0.416
D 平均値	7.5	6.0	8.0	10.3	25	236000	3.01	0.708
D 最小値	7.3	4.6	4.6	8.9	11	114000	1.74	0.451
D 最大値	8.0	8.1	14.5	13.3	50	589000	4.70	1.092

注1) T-N, T-Pは'88~'97の10年間の値

注2) C類型の大腸菌は'92~'93及び'95~'96を除く16年間の値

注3) D類型の大腸菌は'78~'92の15年間の値

とから、難分解性有機物量が増加していると考えられる。なお、1994年にBODが1.9mg/l, CODが2.5mg/lと増加したが、これは全国的な渇水による影響と考えられる。

図2に示すB類型のBODは約2.0~3.0mg/l, CODは約3.0~4.5mg/lの範囲でよく類似して推移する。なお、1994年の渇水の影響はBOD, CODとも現われている。

C類型のBODの変動は大きいが、1987年の6.4mg/lに対し相対的に減少する傾向が見られる。一方、CODは1982~1993年までは約6.7~7.4mg/lの範囲で、あまり変動なく推移し、1994年以降BODに付随して減少傾向がみられる。しかし、BODに比べ減少率は小さい。なお、1994年の渇水の影響は見られるが、BODは次年度に6.6mg/lと更に高濃度となった。

図3に示すD類型のBODの経年変化は1978年の10

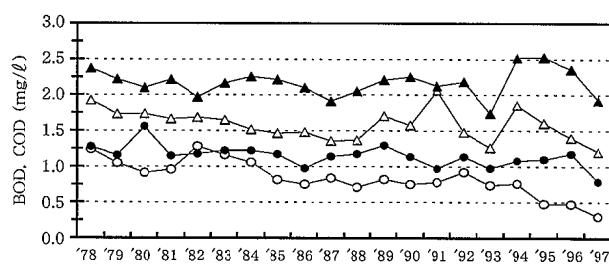


図1 AA類型とA類型のBODとCODの経年変化

○：AA類型BOD, △：A類型BOD
●：AA類型COD, ▲：A類型COD

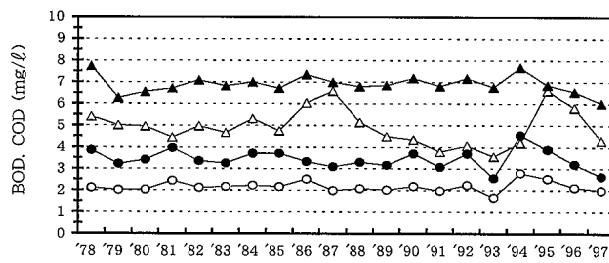


図2 B類型とC類型のBODとCODの経年変化

○：B類型BOD, △：C類型BOD
●：B類型COD, ▲：C類型COD

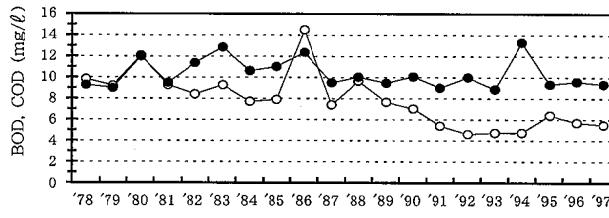


図3 D類型のBODとCODの経年変化

○：BOD, ●：COD

mg/l から徐々に減少し、1997年には 5.5mg/l まで減少した。一方、CODには減少傾向は見られず、濃度は約 $9.3\sim 13.3\text{mg/l}$ の範囲であった。このことから、COD/BOD比は1987年以降徐々に大きくなる傾向を示し、1991年以降は約 $1.6\sim 2.8$ の範囲で推移しており、活性汚泥処理では処理できない難分解性有機物量の増加が考えられる。

図4に各類型ごとの大腸菌群数による経年変化を示した。AA類型は約 $1.5\sim 4.3\times 10^3$ の範囲で推移し、1992年までは減少傾向を示すが、その後多少増加している。A類型とB類型は $4.9\times 10^4\sim 7.3\times 10^3$ の範囲で推移し、類似した経年変化を示す。A類型は1980年以降、B類型は1981年以降減少し、共に1992年以降は安定的に減少している。C類型とD類型は変動はあるが、1982年以降類似した推移で減少している。これらの類型に環境基準は設定されていないが、特にC類型は $8.2\times 10^5\sim 1.2\times 10^5$ まで減少した。

以上のように各類型ごとのBOD、COD及び大腸菌群数は、この20年間で減少する傾向を示した。しかし、各類型のCODは常にBODよりも高濃度であり、減少率も小さいことから、難分解性有機物量はあまり減少しないと考えられる。

この難分解性有機物は活性汚泥処理後のCODとして残留する有機物であると考えられること⁵⁾、大腸菌群数がAA類型を除く各類型で減少している⁷⁾ことからも処理施設からの排出水が河川水に影響を与えていくと考えられる。

2 BOD汚濁負荷量及び生活排水処理率と河川のBOD、COD及びT-Nの経年変化 ('78~'97)

河川に流入するBOD汚濁負荷量と河川水のBOD濃度及びCOD濃度の経年変化を図5に示した。BOD汚濁負荷量は熊本県環境基本計画進行管理ワークシートより算出した値、河川水のBOD、CODは、先に用い

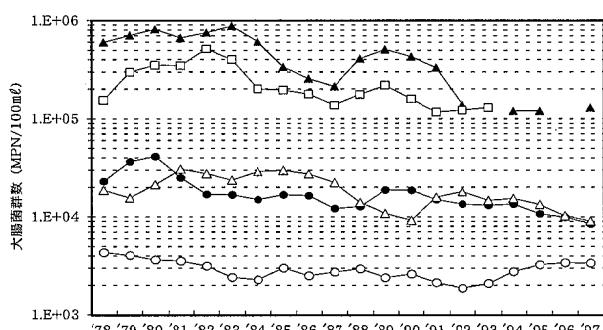


図4 各類型の大腸菌群数の経年変化

○：AA類型, ●：A類型, △：B類型
▲：C類型, □：D類型

た72地点に類型指定のない19地点を加えた計91地点の各年度の平均値を用いた。

河川に流入するBOD汚濁負荷量は1980~1990年にかけて変動しながら増加するが、生活排水の処理率の向上により1990年の $113.9\text{m}^3/\text{日}$ を境に減少し、1997年には $97.5\text{m}^3/\text{日}$ まで減少した。

河川水のBODとCOD濃度の推移は流入BOD汚濁負荷量と一致しないが、BODは1978~1988年までは $3.6\sim 5.1\text{mg/l}$ の範囲で推移した後、1988年以降は変動しながらも減少し、1997年には 2.7mg/l まで減少した。このことから、県内河川の20年間のBOD濃度は確実に減少しており、流入するBOD汚濁負荷量の減少が、河川水のBOD濃度に反映したものと考えられる。CODは常にBODよりも高濃度であり、1994年に 6.3mg/l と最高値を示した後、BOD汚濁負荷量及びBODと連動して減少傾向を示すが、1978~1996年までは約 4.5mg/l 程度で推移し、20年間で見た河川のCOD濃度はあまり減少していない。

1994年は渇水で河川水が減少している状況において、

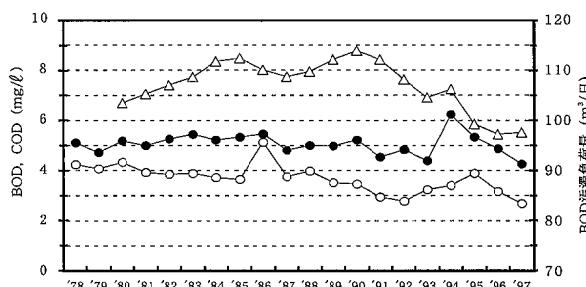


図5 BOD汚濁負荷量と河川水のBOD及びCOD濃度（平均値）の経年変化

BOD汚濁負荷量は熊本県環境基本計画進行管理ワークシートより算出した推計値
△：BOD汚濁負荷量、○：BOD、●：COD

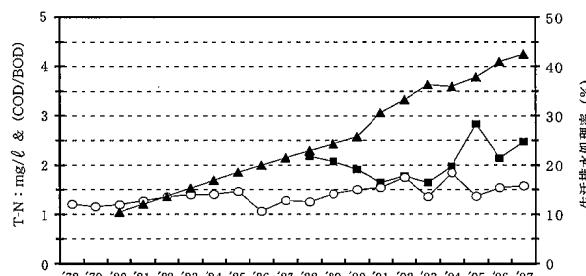


図6 生活排水処理率と河川水のT-N濃度及びCOD/BOD比（平均値）の経年変化

生活排水処理率は熊本県環境基本計画進行管理ワークシートより算出した推計値
▲：生活排水処理率、■：T-N、○：COD/BOD

BOD汚濁負荷量が $106.2\text{m}^3/\text{日}$ と増加した影響はBODよりも、CODに強く現われた。これらは、CODに残留する難分解性有機物と考えられることから、処理水が河川水に与える影響は大きい。なお、この年に環境保全課水保全対策室では、水質汚濁防止法第18条（緊急時の措置）に準じて、県内の排出量が $50\text{m}^3/\text{日}$ 以上の事業場に対し、用水及び排水量を減らすよう努めることを依頼したが、図1～3に示した各類型のBODの経年変化からはあまり効果がなかった。ちなみに、この年の川の環境基準達成率は50%と例年の70%以上に比べかなり悪くなかった。

河川水のCODがBODよりも高濃度であることは、処理水のCODに残留する難分解性有機物と考えられることから、生活排水処理率とCOD/BOD比及びT-N濃度の経年変化を図6に示した。生活排水処理率は熊本県環境基本計画進行管理ワークシートより算出した値を用いた。COD/BOD比は図5の値より算出し、T-Nは1988年から10年間の各年度の平均値を用いた。

生活排水処理率は1980年の10.4%から1997年の42.5%まで、毎年確実に向上している。COD/BOD比は1978年の1.21から1985年の1.47まで増加を続け、その後変動するが1990～1997年まで約1.5程度で推移している。この様に、COD/BOD比が1985年まで増加し、その後約1.5程度で推移し減少傾向を示さないことから、生活排水処理率の向上はCOD/BOD比の減少には結びつかない。従って、1994年の様に渴水時に川の自流水が少なくなった場合、COD/BOD比は1.84と大きくなることから、生活排水処理率の向上は難分解性有機物の増加につながることを示唆している。

さらに、図6に示すように10年間のT-Nの経年変化は1988～1993年までは減少傾向を示すが、BOD汚濁負荷量の変化（図5）と相反して1994年以降は変動するが増加傾向にある。一方、生活排水処理率の変動とも一致していないが、都市下水の2次処理水のT-Nは $10\sim20\text{mg/l}$ ⁵⁾と比較的濃度が高いことから、1994年以降増加傾向を示すのは有機性汚濁排水処理水の影響が考えられる。

3 近年の河川水の水質状況

1994年の渴水時には川の自流水が少なくなり、COD/BOD比は1.84と大きくなった（図5）。今後、河川水に対して処理水の割合が大きくなると、前述の理由で難分解性有機物や栄養塩の濃度が増加し閉鎖性のダム湖や海域の水質に影響を与えることが考えられる。本県には富栄養化のおそれのある海域（閉鎖性の高い海域）として有明海、八代海及び羊角湾の3海域が定められている。

そこでこれらの観点から、近年の河川の水質について検討した。河川のデータはT-NとT-Pを測定している59地点の1996年と1997年の2年間の年平均値を用いた。近年の県内河川の水質状況として、BOD、COD、SS、T-N及びT-Pの平均値、平均値の±95%信頼値、最小値及び最大値を図7に示す。

これらの成分の中で最も高濃度の値を示すのはSSで、平均値は 10mg/l であった。河川のSSの主な成分は粘土などの無機物で、見かけの“きれいさ”を決める最大の因子である⁸⁾。また、PO₄-PはSS成分に吸着して懸濁態となって川底に沈降したり⁹⁾、SS成分が河床礫付着藻の間隙に詰まり河床の汚濁が進めば、川のイメージは悪くなるばかりか、下流域に影響を及ぼし、底生動物の群集構造が崩れたりする¹⁰⁾。

図8に示すように全体の約80%の地点でCODがBODよりも高濃度であった。このことは、流下に伴う自浄作用で生物分解されにくい有機物がCODとして残るため、CODはあまり減少せず¹¹⁾、流達率もBODよりも大きいことが考えられる¹²⁾。類型ごとにもCOD/BOD比が近年増加傾向を示しているのは処理水の増加が起因しているものと考えられる。

T-Nの平均値は 1.85mg/l 、T-Pは 0.147mg/l で、そのT-N/T-P比は約12であった。湖沼において正常な生育をする植物プランクトンが要求するN/P比は10～20の範囲であり、25以上の磷制限ではクロロフィルaでの内部生産は少ないと考えられている¹³⁾。図8に示すようにT-N/T-P比が、10～20の範囲にある地点は42.4%で、10以下の窒素制限の地点は15.3%であった。この様なT-N/T-P比が20以下の水が閉鎖性水域に流入すると植物プランクトンの内部生産を増大させ、COD濃度を高くすることになる。瀬戸内海のCOD総負荷量は陸水の約20倍になると試算されている¹⁴⁾。東京湾の夏期のCOD値は冬期の2.2～2.5倍高くなり、内部生産に窒素が消費されるためT-N/T-P比は夏期が8.6～8.9、冬期は18.7～20.6と季節変動する¹⁵⁾。

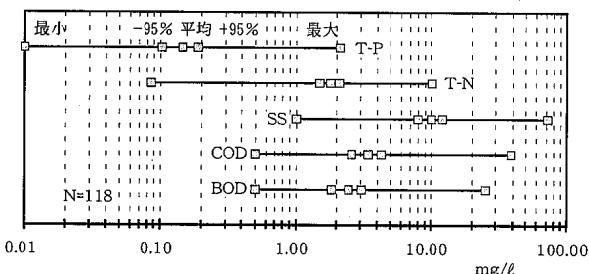


図7 熊本県内河川の近年の水質状況 ('96～'97)

従って、閉鎖性水域に流入するCOD及び窒素・磷の削減が必要となる。図5, 6に示した様にBOD汚濁負荷量は近年減少傾向を示し、生活排水処理率は年々向上しているが、COD/BOD比は20年間で徐々に大きくなり、T-Nは1994年以降増加傾向にあることから今後閉鎖性水域への影響が懸念される。

なお、東京湾では水質汚濁防止法に基づく総量削減計画によりCODの削減がなされ、関係七都県市は工場・事業場等の排水に係るリン・窒素の水質管理目標値を設定して、富栄養化防止対策が図られている¹⁵⁾。

この様なことから、1996年と1997年にT-NとT-Pを測定した延べ459工場・事業場排水の水質基本統計量を表2に示す。また、COD/BOD比とT-N/T-P比の関係を図9に示す。

工場・事業場のCODは84.7%がBODより高濃度であった。排水処理の多くが活性汚泥法による生物処理であることから、生物分解されにくく有機物はCODに残ったまま河川などの公共用水域に放流されることになる。従って、図6に示すように生活排水などの処理率が高くなると、河川水中のCODは常にBODより高濃度になると考えられる(図1~3, 5)。

工場・事業場のT-N/T-P比は図9に示すように、10以下と窒素制限の状態の排水が61.4%を占め、10~20の範囲が19.2%であった。平均値で11.0mg/l程度のT-Nが放流され、河川水で1.85mg/l(図7)と約1/10になるが、近年、河川水のT-N濃度が増加していることは(図6)工場・事業場の影響が考えられる¹⁵⁾。

また、河川においてT-N, T-P濃度が約1/10程度に

減少していることは、単に希釈効果だけではなく栄養塩として付着藻等に利用されている。また、T-N/T-P比は工場・事業場排水で61.4%が10以下であるのに対し、河川水では15.3%に減少しているのは、T-Pが底質に吸着されていることを意味する。

球磨川の坂本橋では1996年頃から礫付着藻の繁茂が毎年のように繰り返されている(生物調査時に確認)ことから、河川の富栄養化が危惧される状況になっている。河床の礫付着藻は河川の内部生産であり、剥離して流下する藻は閉鎖性水域のCOD負荷となる。

工場・事業場のBOD, COD, T-N及びT-Pの非超過率を三点法により算出して図10に示す。これらの日間平均の排水基準は、それぞれ120mg/l, 120mg/l, 60mg/l及び8mg/lで、基準達成率を図10から求めると75.5%, 70.3%, 71.8%及び93.8%となる。

BOD又はCODについては、上乗せ排水基準を定め(50m³以上), 熊本都市圏, 球磨川, 八代地先, 有明北部, 菊地川及び白川坪井川上流の6水域に適用区域を設け、公共用水域の汚濁防止に努めている。しかし、汚濁排出負荷とは別に礫付着藻による河川での内部生

表2 工場事業場排水の水質基本統計量 ('96~'97)

	N=459					
	pH	BOD mg/l	COD mg/l	SS mg/l	T-N mg/l	T-P mg/l
平均値	7.17	12.32	18.65	10.7	11.02	1.958
標準偏差	0.61	20.79	22.60	22.1	14.19	2.990
変動係数	0.08	1.69	1.21	2.1	1.29	1.527
最小値	3.8	0.5	0.5	1	0.01	0.005
最大値	9.3	21.5	238	315	111	24.3

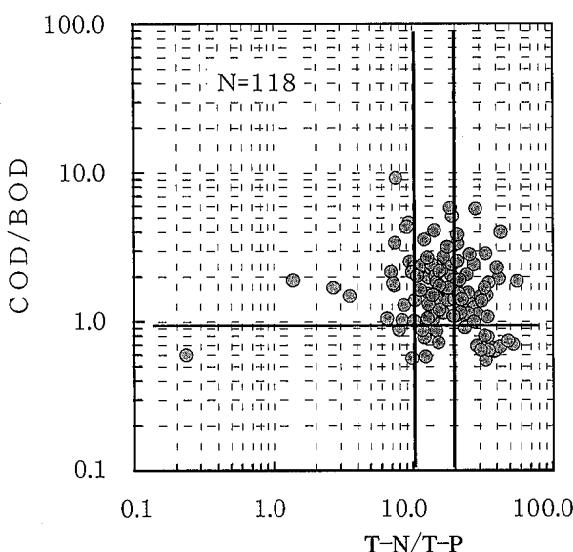


図8 河川のCOD/BODとT-N/T-P

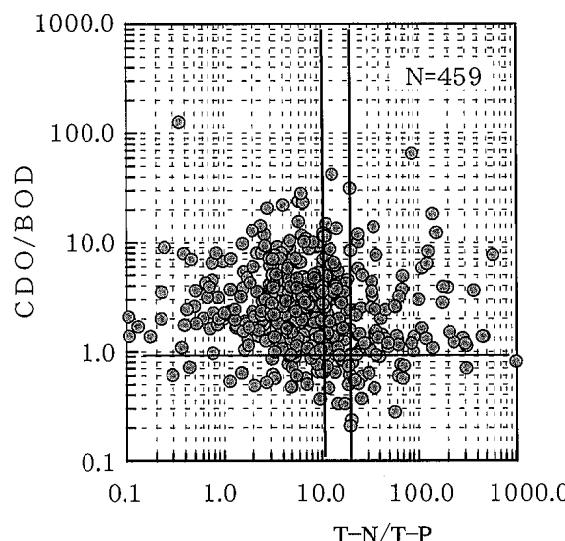


図9 工場事業場排水のCOD/BODとT-N/T-P

産の増加や閉鎖性水域での富栄養化に伴うCOD内部生産負荷量の増加などが懸念される。これらのことから、工場・事業場等の排水の窒素・磷について東京湾の様に水質管理目標値を設定し、河川での内部生産量の削減と閉鎖性水域の富栄養化防止対策が必要な時期に来ている。

なお、標準活性汚泥法による古いし尿処理施設、原材料などの影響を受ける食品製造業及び化学工場は、日間平均での許容限度を超過する場合がある。これらの工場・事業場に対する指導及び特定施設の設置届出に係る処理施設の設計はBOD（又はCOD）だけでなく総窒素と総磷の設計計算が必要となる。

ま と め

河川の20年間の水質データを用い、その経年変化とBOD汚濁負荷量及び生活排水処理率の経年変化との関係、事業場排出水の水質の現状から近年の河川の水質などについて解析した。

- 1) 河川の各類型ごとのBOD、COD及び大腸菌群数は、この20年間で減少する傾向を示した。しかし、CODは常にBODより高濃度で減少率も小さい。
- 2) BOD汚濁負荷量が1990年以降減少し、BODとCODが連動して推移することから、BOD汚濁負荷量の削減はCODの増加を押さえるのに寄与している。しかし、COD/BOD比が1985年以降約1.5程度で推移し減少しないことから、生活排水処理率の増加はCOD/BOD比の増加につながり、CODには難分解性有機物が残留していると考えられる。
- 3) 河川水のT-Nは1.85mg/lとほぼBODに匹敵する濃度で近年増加傾向を示した。T-N/T-P比が10以下の窒素制限の地点は15.3%で、10~20の範囲の地点は42.4%であった。
- 4) 工場・事業場のCODは84.7%がBODより高濃度であった。T-N/T-P比は10以下の排水が61.4%を占め、10~20の範囲が19.2%であった。

以上の結果から河床礫付着藻による河川での内部生産の増加や閉鎖性水域での富栄養化に伴うCOD負荷量の増加が懸念され、COD、T-N及びT-Pの削減率を具体化する時期にあるといえる。

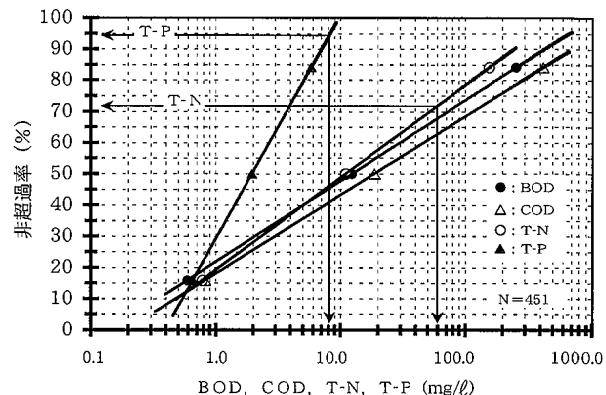


図10 工場事業場排水のBOD、COD、T-N及びT-Pの非超過率（三点法）

文 献

- 1) 岡啓一、吉見洋、井口潔、小森谷廣子：水質汚濁研究、6, 407 (1983).
- 2) 吉見洋：用水と廃水、27, 247 (1985).
- 3) 結城多門：用水と廃水、27, 253 (1985).
- 4) 飯村晃：平成6年度千葉県水質保全研究所年報, p.69 (1995).
- 5) 田井慎吾：用水と排水、22, 1136 (1980).
- 6) 上野英世：用水と排水、19, 555 (1977).
- 7) 村瀬秀也、加藤邦夫、下川洪平：用水と排水, 19, 567 (1977).
- 8) 半谷高久、小倉紀雄：第3版水質調査法, p.223, 丸善(株), (1995).
- 9) 海老瀬潜一、井上隆信：水環境学会誌、16, 469 (1993).
- 10) 中島重旗、小田泰史、松並裕子：陸水学雑誌、45, 220 (1984).
- 11) 飯村晃、小倉久子、相坂清子：平成8年度千葉県水質保全研究所年報, p.75 (1997).
- 12) 飯村晃：平成9年度千葉県水質保全研究所年報, p.49 (1998).
- 13) 門田元編：淡水赤潮, p.129, 恒星社厚生閣, (1987).
- 14) 青木徹、駒井幸雄、小山武信、永淵修、日野康良、村上和仁：水環境学会誌、21, 780 (1998).
- 15) 古橋美一：第24回日本水環境学会セミナー講演資料集, p.18 (1994).

5) 八代地域における地下水塩水化調査

小 笹 康 人 廣 畑 昌 章 * 松 下 裕 **

要 旨

地下水塩水化調査を八代地域（八代市、松橋町、小川町、竜北町、鏡町、宮原町、千丁町）において実施した。調査地域を拡大したことにより、新たに塩素イオン濃度が飲用水基準の 200mg/l を超える（最大 $\text{Cl}^- 1,410\text{mg/l}$ ）地下水の存在が確認された。地下水中の溶存成分のイオン当量を基に水質を多角的に区分し、地質資料とともに塩水化の評価の検討を行った。塩水化の影響を受けている井戸の多くが、干拓地に分布しており、塩水化の原因が海水の侵入によることが推察された。

キーワード：地下水調査、塩水化、八代平野、溶存成分

は じ め に

「熊本県地下水の採取に関する条例」で指定されている八代地域の地下水採取量は、昭和63年度の7,859万m³/年から平成10年度の5,809万m³/年と減少しているが、地下水への依存度が高い地域である。当該地域の多くは、江戸時代（1600年代中頃）から昭和42年まで、盛んに繰り返された大規模な干拓事業でできた八代平野¹⁾として、県内有数の農業地域である。

以前より、一部臨海部では塩水化傾向が見られ、地下水調査が実施されてきた^{2), 3)}。平成6年の異常渴水により、地下水位の異常低下と共に臨海部の一部地域では、地下水の塩分濃度が高くなつたため、水稻が枯れる塩害が発生した。このため、県は塩水化の状況把握と今後の地下水管理の資料収集を目的として、八代地域において、地下水塩分（塩素イオン）濃度調査を平成7年度から平成11年度まで5年間実施した。その結果、塩素イオンが高濃度で含まれる塩水化現象が認められた。

当研究所では、平成11年度試料の一部について、別途溶存成分等の分析を行い、そのイオン当量を基に水質を多角的に区分・検討を加え、地質データと共に塩水化の評価の検討を行ったので報告する。

調 査 方 法

平成11年6月（1回目）は、これまで継続的に調査している井戸を、平成12年1月（2回目）は補足的に調査井戸を追加選定し、次の項目について測定を行った。

なお、測定結果については、重複調査井戸について

は1回目の結果を、それ以外は2回目の結果を用い、図1に示した1市6町の平野部における113井戸（八代市20、松橋町19、小川町13、竜北町24、鏡町22、宮原町2、千丁町13）について検討した。

測定項目：pH、EC（電極法）、 HCO_3^- （硫酸滴定法）、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 F^- 、 Cl^- 、 NO_2^- 、 NO_3^- 、 Br^- 、 PO_4^{3-} 、 SO_4^{2-} （イオンクロマト法）。

選定井戸の諸元調査及び採水は採水週を設定し、当該市町にお願いした。

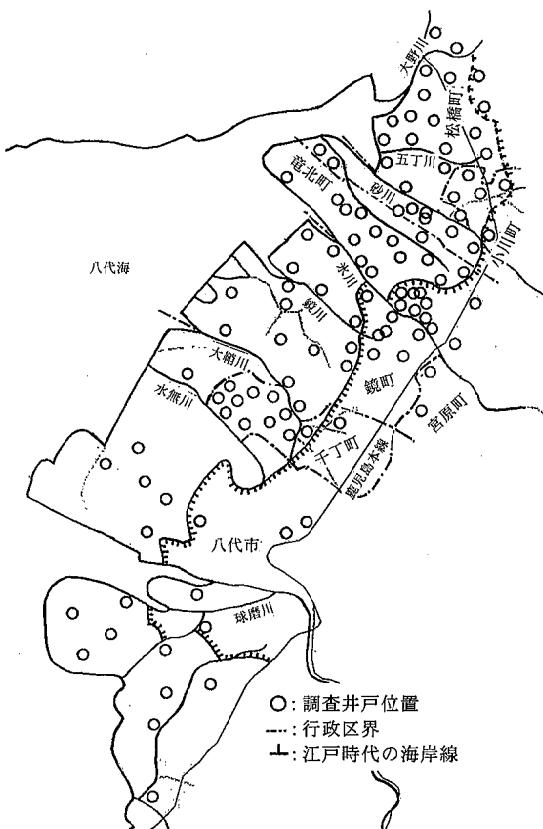


図1 調査地域図

* 現熊本県環境生活部環境保全課

** 現熊本県芦北地域振興局保健福祉環境部

なお、比較資料として、前回平成3年度八代地域地下水基礎調査（熊本県企画開発部水資源対策室）結果を用いた。これは、八代市～竜北町間を 2 km^2 （東西2km南北1km）に区分し、区分ごとに1～2井戸を選定し合計75の井戸について水質調査を実施。その他137井戸の水位調査、ボーリング資料による水理地質構造解析を行ったものである。

地下水中の塩素イオン濃度分布、当量値による陰陽各イオン総量と Na^+ , HCO_3^- , Cl^- 相互の関係から、海水による地下水への影響の有無、及びその度合いを分類した。

結果及び考察

調査地域の地下水流动を図2に示した。

球磨川及び氷川流域では地下水位が高く、しかも当該地域には地質が透水性の良い砂礫層の氾濫源堆積物層が分布しているため、地下水流动もその影響を反映している。

図3に地下水中の塩素イオン濃度分布を示した。塩素イオンの飲用水基準値 200mg/l を超える地下水が海岸沿いに見られたほか、 500mg/l を超える地下水が鹿児島本線以西の砂川、大野川に囲まれた地域（最高 $1,410\text{mg/l}$ ）に、さらに海岸沿いではないが、氷川の県道14号線より下流の地域（最高 740mg/l ）に集中して見られた。

調査井戸の井戸深度またはストレーナ深度は、全く不明な井戸を除き $5\sim100\text{m}$ であったが、井戸深度による塩素イオン濃度の違いは見られなかった。これは、井戸深度及びストレーナの位置が、ほとんど聞き取りによるものであること、及び複数の帶水層からの取水による可能性がその一因として考えられた。

しかし、図4に示すように海岸から離れるに従って塩素イオン濃度が減少する傾向が見られた。また、継続調査井戸における塩素イオン濃度の経年変化は、臨海部、河川沿いの一部の井戸で濃度上昇が見られるものの、多くの調査井戸の地下水が横這いか緩やかな減少・増加傾向を示した。これは八代市の調査報告⁴⁾でも同様の結果であった。

次に、地下水中的溶存成分量を基にイオン比による地下水質の区分を行った。まず、調査井戸の地下水質をキーダイヤグラムで表現・区分した。結果を図5で示した。

一般的な地下水質を示す炭酸カルシウム型①の水質が、八代市の臨海部を除いた球磨川を中心とした広い地域に分布していた。さらに、鏡川、氷川の鹿児島本線付近の狭い範囲に見られた。

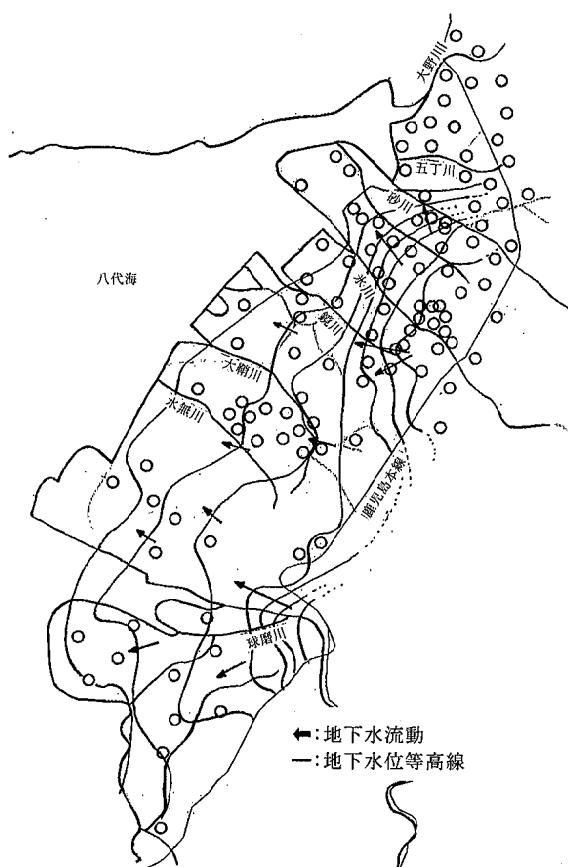


図2 地下水流動図

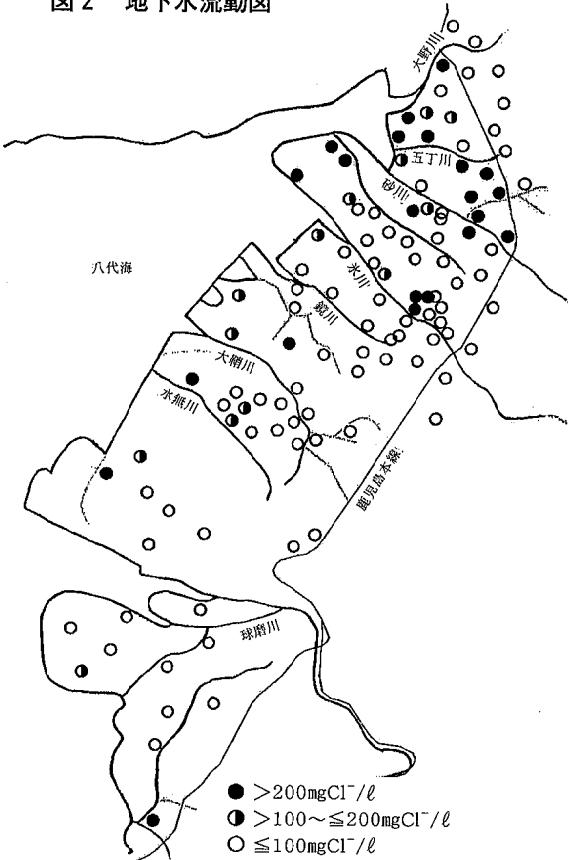


図3 塩素イオン濃度分布

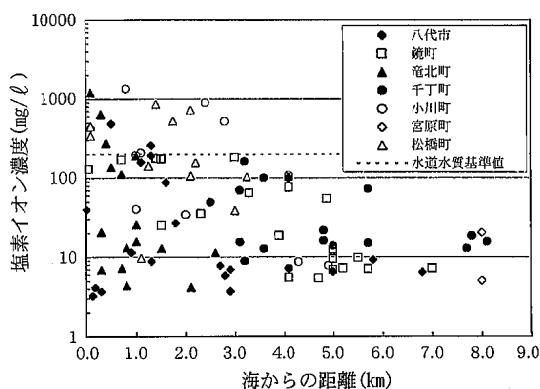


図4 海からの距離と塩素イオン濃度の関係

これは、図2の地下水流动の影響を表しているもの、その河川流量の違いが反映されていると考えられる。ほかにも水質区分の分布に地域的に偏りが見られた。すなわち八代地域の南部では非炭酸カルシウム型③が少ない。北部では非炭酸カルシウム型③（塩化カルシウム型）の地下水が集中して分布し、炭酸ナトリウム型②が少なかった。また、海水またはそれと同じ性質を示す非炭酸ナトリウム型④（塩化ナトリウム型）は、竜北町、小川町の3井戸を除き、干拓地部分に分布していた。

地下水は、その成因、周囲の状態によって溶存成分の組成に違いが生じる^{5), 6)}。すなわち、雨水及び地表水が、地下水として地下水面上に達するまでに種々の物質を溶解し、その溶存成分及び比は地質及び滞留時間によって変化する。

さらに、地下水が地中を移動する過程において、その溶存成分は酸化から還元、溶出、イオン交換により「被圧地下水の化学的進化」と呼ばれる成分の変化を生じる。また、海水の侵入により影響を受けた場合も、

表1に示す反応過程によりその水質組成が変化する⁶⁾。これらの反応過程からイオン比 ($\text{Na}^+/\Sigma\text{Cation}$, $\text{HCO}_3^-/\Sigma\text{Anion}$) により水質区分を行った。その区分領域及び各領域に属する井戸分布を図6に示した。図中Aは地上汚染（表流水侵入）型、B, C, Dは純陸水被圧型、Eは海水汚染（侵入）型に区分されている⁷⁾。

海水汚染（侵入）型のE領域に含まれた地下水も、竜北町の3地点を除き干拓地部分に分布していた。E領域の分布は主に3地域に見られた。

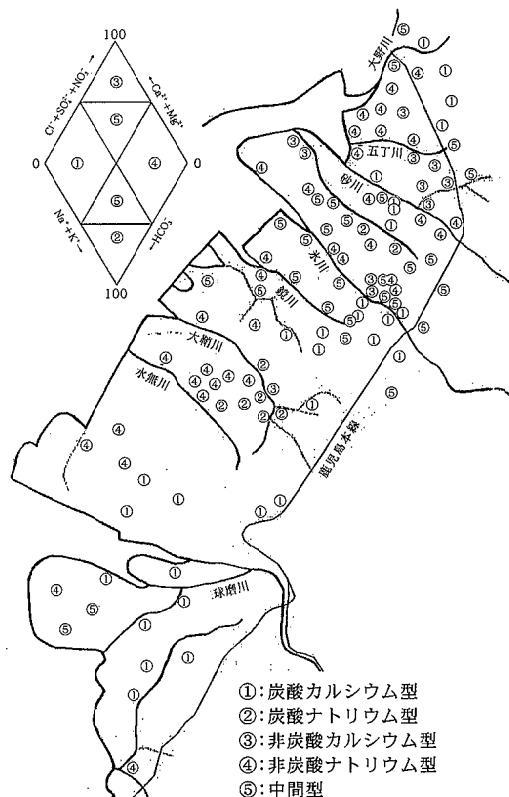


図5 キーダイヤグラムによる水質分布

表1 地下水の化学的進化及び海水影響における水質組成の変化

酸化還元	溶存酸素による地中有機物分解で HCO_3^- を生成 被圧地下水は還元状態となり、 SO_4^{2-} と NO_3^- の還元反応起す
溶出	地下水が移動し地質からの溶出で全陽イオン及び HCO_3^- が増加 HCO_3^- /全陰イオンの増加、 Cl^- /全陰イオンの減少傾向
イオン交換	土壤中の Ca^{2+} , Mg^{2+} と Na^+ の置換作用で Na^+ /全陽イオンの増加
海水影響	粘土の間隙水から硫酸塩が溶出し、 HCO_3^- を分解、pHが一時的に低下 海水と粘土鉱物との Na^+ , K^+ : Ca^{2+} の間で可逆的な陽イオン交換 海水侵入初期は Ca^{2+} が多い組成 侵入進行で Cl^- 濃度が高く、 Ca/Cl は小さくなる。

(村下敏夫著：“改著地下水学要論”⁶⁾より引用作成)

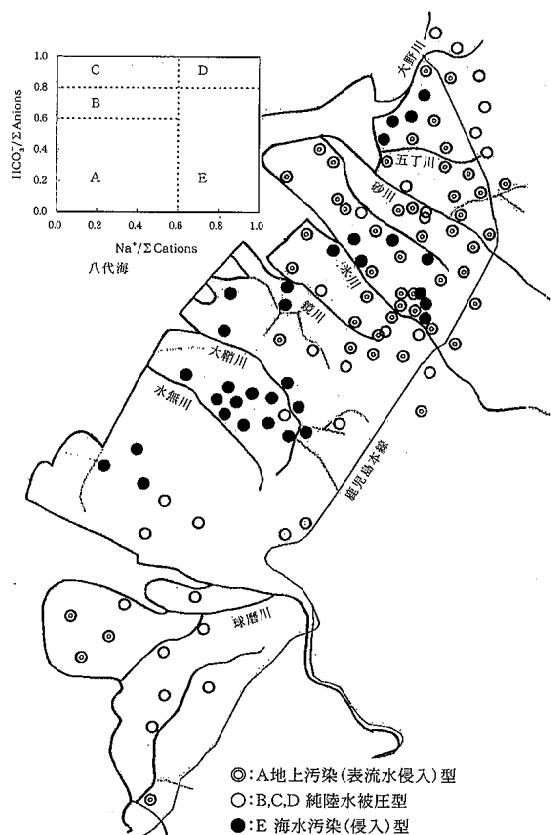


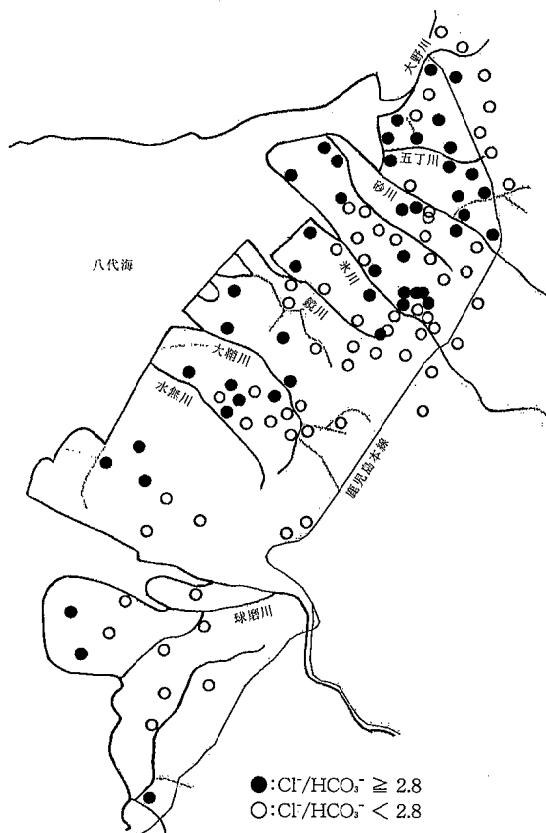
図6 イオン比による水質分布

松橋町の大野川と五丁川に挟まれた地域、竜北町の氷川河口から鹿児島本線までの右岸一帯、そして最も広範囲に分布したのが、八代市郡築から千丁町までの一帯であった。

松橋町のE領域は塩素イオン濃度が高い地域の一部と重複していた。竜北町のE領域は高濃度塩素イオン分布と少しずれていた。八代市郡築から千丁町一帯のE領域は数地点を除き塩素イオン濃度は 100mg/l 以下であった。

次に、 $\text{Cl}^- / (\text{HCO}_3^- + \text{CO}_3^{2-})$ の当量比⁶⁾ (ここでは HCO_3^- とした) を用いて、海水から影響を受けている程度を $\text{Cl}^-/\text{HCO}_3^- \geq 2.8$ を中程度以上として区分した。その分布を図7に示した。これから、主に塩素イオン濃度が高い井戸及び海水汚染(侵入)型、あるいはその一方に属した地下水が、海水の影響(汚染)が中程度以上の地下水として含まれ、これらのほとんどが干拓地に分布していた。

八代市郡築から千丁町一帯は、地下水涵養があまり行われていない地区であることが報告³⁾されている。さらに、八代市及び千丁町の地下水における Na^+ と Cl^- の相関係数は、それぞれ 0.94, 0.91 と高かった。ヘキサダイヤグラムでは、この一帯の地下水は塩化

図7 $\text{Cl}^-/\text{HCO}_3^-$ による水質分布

ナトリウム型と炭酸ナトリウム型の地下水であり、その境界はほぼ海岸線に平行して分布していた。

小川町では、 Na^+ と Cl^- との相関係数は0.37であり、 Ca^{2+} と Cl^- との相関係数は0.97であった。特に、氷川以北では塩化カルシウム型、塩化ナトリウム型の水質が多く分布していた。

八代地域における帶水層分布は、球磨川、氷川の氾濫によつてもたらされた氾濫源堆積物層の不透水層(深度10数mで河川周辺に分布)、その下の難透水層である不知火粘土層とASO-4に挟まれた砂礫層を主体とした島原海湾層の被圧帶水層(深度20, 30~50, 60mに分布)及びASO-4と基盤岩に挟まれた未区分洪積層の被圧帶水層(臨海部で深度50~60mに分布)がある。井戸諸元の聞き取りでは、井戸深度またはストレーナ深度は5~100mであったが、多くは10~50mであることから、これらの帶水層から取水していると考えられる。

このことから、当該地域の高濃度塩素イオンの起源は化石水及び温・鉱泉水等は考えられず、海水の侵入による汚染と推察された。

さらに、海水の侵入は海からだけでなく、一部地域では潮の影響を受ける河川からの侵入が推察された。

ま　と　め

大部分が干拓地である1市6町の八代地域の平野部において、塩素イオン濃度が飲用水基準を超える井戸は臨海部のほか、鹿児島本線、砂川、大野川に囲まれた地域及び氷川の県道より下流の地域に多く分布していた。

また、溶存成分の組成比及び海水侵入によって起こる水質組成の変化に基づいて、イオン当量比率による水質区分を行った。この結果、平成3年度の調査における区分結果とほぼ同様の結果を示したが、小川町、松橋町まで調査範囲を広げることにより、新たに松橋町の一部で海水侵入型の地下水分布が明らかになった。

$\text{Cl}^-/\text{HCO}_3^-$ の当量比から、海水による影響が中程度以上の地下水分布を表した結果、多くが干拓地部分に分布し、主に塩素イオン濃度が高い井戸、海水汚染型の井戸が含まれた。

八代地域の高濃度塩素イオン濃度は、化石水または

鉱泉水によるものではなく海水の侵入による塩水化が推察された。

文　　献

- 1) 熊本県八代郡竜北町教育委員会：“八代の干拓”
- 2) 久保清、塘岡穰、永山賛平、宮田謙治：昭和50年度熊本県衛生公害研究所報, p. 56 (1975).
- 3) 熊本県企画開発部水資源対策室：平成3年度八代地域地下水基礎調査 (1991).
- 4) 八代市・八代市地下水利用対策協議会：“八代市の地下水調査報告書”, 28, 128 (1990).
- 5) 吉岡龍馬：地下水学会誌, 32, 147 (1990).
- 6) 村下敏夫著：“改著地下水学要論”, p. 159 (昭和51年), (昭晃堂).
- 7) 地下水ハンドブック編集委員会編：“地下水ハンドブック”, p. 366 (昭和54年), (建設産業調査会).

3・2 資 料

1) 熊本県における腸管出血性大腸菌感染症発生状況（平成11年度）

宮坂 次郎 荒平 雄二* 井手口 恵美** 甲木 和子

はじめに

本県では、平成3年に出血性大腸炎の患者から初めてO157が検出されてから、腸管出血性大腸菌(*enterohemorrhagic E.coli*; EHEC)の発生状況調査と分離株の解析を行って報告してきた^{1~5)}。

平成11年度は、熊本市を含めて53名の感染者が確認されたので、その疫学情報と、EHEC O157の解析を行った結果について報告する。

材料及び方法

1 検査材料

平成11年度に、EHEC O157の疑い、あるいはEHEC O157として本所に搬入され、Vero毒素(Verotoxin; VT)が確認された表1に示す菌株18株を検査材料として解析を行った。

2 検査方法

2.1 細菌学的性状検査

VTの検出・型別、血清型別及び薬剤耐性試験はすべて既報^{1~3)}と同様の方法で実施した。

O157の生物型別は、ズルシトール、シュクロース、ラムノース、β-グルクロニダーゼ、ソルビトール、ラフィノースの醸酵性に基づき11型に分類したAlecsicらの方法⁶⁾で実施した。

2.2 パルスフィールド電気泳動法(Pulsed Field Gel

Electrophoresis; PFGE法)による染色体DNAのRFLP(Restriction fragment length polymorphism)解析

BIO-RAD社の“Gene Path Group 6 Reagent Kit”を用いてDNA切断パターンを比較した。

結 果

1 EHEC感染症の発生状況

平成11年度は、53名(熊本市を含む)のEHEC感染者が確認された。発生時期は、一般的の食中毒と同様夏場が多かった。発生地域は熊本市(16名)が最も多く、ついで鹿本郡(7名)であり、県内5市8郡で患者

表1 解析に用いたEHEC O157リスト

No	血清型		毒素型	住所	性別	年齢	症状	備考
	O	H						
1	157	7	1,2	球磨郡	男	4	患者	
2	157	7	1,2	鹿本郡	男	4	患者	
3	157	7	1,2	鹿本郡	男	2	患者	
4	157	7	1,2	鹿本郡	男	32	保菌者	
5	157	7	1,2	鹿本郡	女	63	保菌者	家族
6	157	7	1,2	鹿本郡	女	32	保菌者	
7	157	7	1,2	鹿本郡	男	4	保菌者	
8	157	7	1,2	鹿本郡	女	3	患者	3,7と同施設
9	157	7	2	荒尾市	男	57	患者	
10	157	7	2	八代市	女	50	保菌者	
11	157	7	1,2	天草郡	女	77	患者	
12	157	7	1,2	玉名郡	女	7	患者	
13	157	NM	1,2	天草郡	男	37	患者	
14	157	NM	1,2	天草郡	女	1	保菌者	家族
15	157	NM	1,2	天草郡	女	4	保菌者	
16	157	NM	1,2	天草郡	女	2	患者	14,15と同施設
17	157	7	2	阿蘇郡	女	31	保菌者	
18	157	7	1,2	球磨郡	女	4	患者	

が確認された。

感染様式別の感染者数は、散発事例が25件25名、集団事例(家族内を含む)10件28名であった。EHEC感染者の年齢別では、図1のとおり2歳から5歳の感染者が最も多く21名であった。

血清型及び毒素型分類は、図2に示したとおりVT1, VT2両毒素産生性のO157が31株、VT2単独産生性O157が12株、VT1単独産生性O157が0株で合計43株であった。その他に、O26, O111, O型別不能株が合せて10株あった。

2 解析結果

2.1 薬剤耐性試験

ストレプトマイシン(SM), テトラサイクリン(TC), アンピシリン(ABPC), カナマイシン(KM), クロラムフェニコール(CP), シプロフロキサシン(CPFX), セフォタキシム(CTX), スルファメトキサゾール

* 現熊本県環境生活部廃棄物対策課

** 現熊本県芦北地域振興局保健福祉環境部

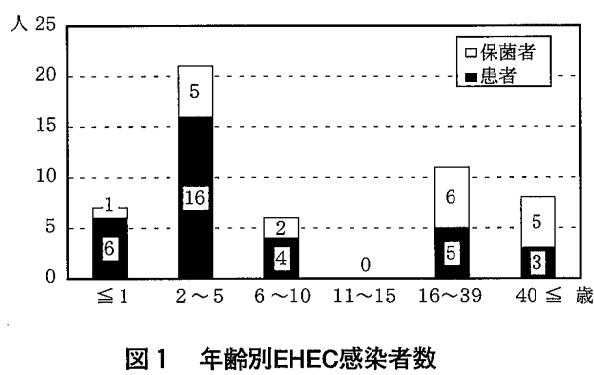


図1 年齢別EHEC感染者数

表2 EHEC O157の薬剤耐性パターン

薬 剤	株数
A B P C, S M	1
A B P C, S M, T C	7
K M	1
感受性	9
計	18

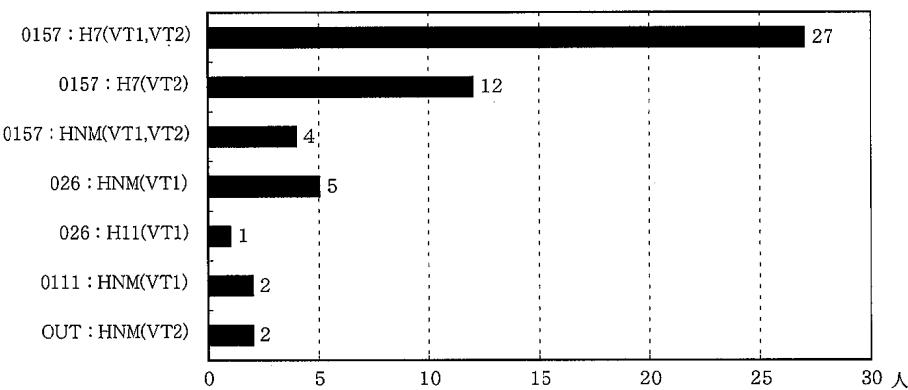


図2 EHECの血清型及び毒素型分類

(SXT), トリメトプリム (TMP), ゲンタマイシン (GM), ナリジクス酸 (NA), ホスホマイシン (FOM) の12剤を用いて実施した結果は表2に示すとおり4つのパターンに分類された。

2.2 AlecsicらのO157生物型別分類

検査したすべての株が3型であった。

2.3 PFGE法による解析

制限酵素Xba I切断によって、肉眼的には7パターンに分類されたが、集団事例毎にはほぼ同一のパターンが観察された。

文 献

1) 原田誠也, 中島龍一, 戸上献也, 中川敬一, 高浜

美奈子, 木村みゆき, 追口和美: 熊本県衛生公害研究所報, 21, 25 (1991).

2) 原田誠也, 古賀由恵: モダンメディア, 39, 331 (1993).

3) 原田誠也, 古賀由恵: 熊本県保健環境科学研究所報, 24, 21 (1994).

4) 原田誠也, 井手口恵美, 甲木和子: 熊本県保健環境科学研究所報, 27, 38 (1997).

5) 荒平雄二, 井手口恵美, 甲木和子: 熊本県保健環境科学研究所報, 28, 73 (1998).

6) Alecsic,S., Karch,H. and Bockemuhle,J.: Zbl. Bakt., 276, 221 (1990).

2) 日本脳炎調査 (1999年度)

田端 康二 荒平 雄二* 西村 浩一

宮坂 次郎 井手口 恵美** 甲木 和子

はじめに

わが国の日本脳炎（以下、「日脳」と略す。）患者は1966年度をピークに1972年度から2桁台に減少し、1992年度以降は10名以下で推移している。本県においても、患者は1991年度以降毎年1名以下である。本県の日脳予防対策事業及び厚生省の流行予測事業として、1999年度に実施した豚の赤血球凝集抑制（以下、「H I」と略す。）抗体保有状況調査等について報告する。

調査方法

豚のH I抗体検査は、伝染病流行予測調査検査術式¹⁾に従って行った。6月下旬から8月にかけて毎週1回、熊本市とその周辺7町の日脳ワクチン接種地区及び熊本県内産の同非接種地区から熊本県食肉衛生検査所に搬入された豚の放血液を採取し、検査に供した。日脳抗原はJaGAr01株（デンカ生研製）を使用した。

結果

(1) 豚のH I抗体保有状況

ワクチン接種及び非接種地区豚のH I抗体保有状況を表1、2及び図1に示した。50%以上の抗体保有率を示したのは、接種地区豚が7月下旬（26日）の1回のみ、非接種地区豚は8月下旬の2回（23, 30日）で、双方とも調査期間中100%には達しなかった。2ME感受性抗体は接種地区豚では7月下旬に60.0%，8月中旬に0%となったものの、8月下旬には33.3%と、再び確認された。非接種地区豚では8月上旬に66.7%，下旬41.7%と下降した。

(2) 患者発生数

熊本市で1名の発生があった（男、62才）。

まとめ

豚のH I抗体の上昇は、接種地区豚の方が早かったものの、全体としては非接種地区豚との差は例年に比べて少なかった。また、両地区的豚とも陽性率が昨年²⁾よりも低かった。患者発生は1名のみであった。ヒトが日脳ワクチンを接種して免疫獲得をすることが最良であろうが、今後も豚の抗体保有状況を調査して日脳

* 現熊本県環境生活部廃棄物対策課

** 現熊本県芦北地域振興局保健福祉環境部

ウイルスの浸淫状況を監視していくことは、予防対策上必要であると考える。

表1 豚のH I抗体保有状況
(ワクチン非接種地区豚)

採血月日	検査頭数	H I抗体価						陽性率(%)	2ME感受性抗体陽性率(%)
		<10	10	20	40	80	160		
6/28	10	10						0.0	
7/5	10	10						0.0	
7/12	10	10						0.0	
7/19	10	10						0.0	
7/26	10	6	1	2			1	40.0	0.0
8/2	10	9		1				10.0	
8/9	10	6	1	1	1	1		40.0	66.7
8/16	10	10						0.0	
8/23	10	3			1	5	1	70.0	57.1
8/30	10	4		1		1	3	1	60.0
									20.0

表2 豚のH I抗体保有状況
(ワクチン接種地区豚)

採血月日	検査頭数	H I抗体価						陽性率(%)	2ME感受性抗体陽性率(%)
		<10	10	20	40	80	160		
6/28	10	8	2					20.0	
7/5	10	8	2					20.0	
7/12	10	10						0.0	
7/19	10	6	1	3				40.0	
7/26	10	5			1	1	2	1	50.0
8/2	10	7	2	1					30.0
8/9	10	6	1	2	1			40.0	0.0
8/16	10	7		1	1	1		30.0	0.0
8/23	10	7				3		30.0	33.3
8/30	10	7		1	2			30.0	33.3

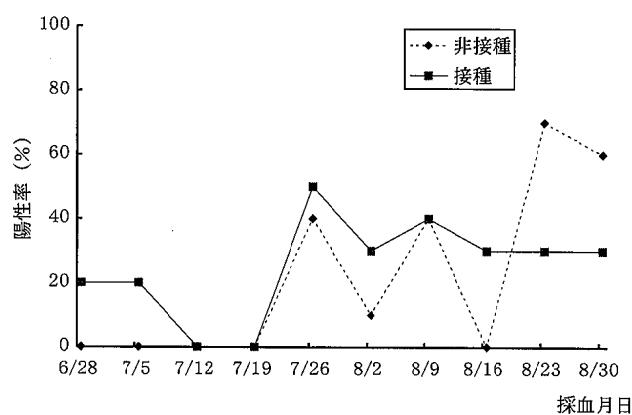


図1 豚のH I抗体保有状況

文献

- 厚生省：伝染病流行予測調査検査術式 (1986.5).
- 熊本県健康福祉部健康増進課：日本脳炎報告書 (平成10, 11年度), (2000).

3) インフルエンザの流行調査 (1999年度)

田端 康二 西村 浩一 荒平 雄二* 甲木 和子

はじめに

熊本県では、例年1月から3月にかけて、主に小中学校でインフルエンザ様疾患の流行があるが、本年度も前年度¹⁾同様、1月中旬に集団発生の初発報告があつた²⁾。

熊本県下の流行状況を把握するため、集団発生状況、患者からのウイルス分離と同定及び急性期、回復期の患者血清抗体測定等の調査を実施したので、その概要を報告する。

材料と方法

1 ウイルス分離・同定

各保健所から依頼された集団発生施設の患者咽頭ぬぐい液をMDCK細胞に接種してウイルス分離を行った。分離株は、国立感染症研究所（以下、「感染研」と略す。）から分与された抗血清を用いて中和法で同定した。

2 血清抗体の測定

集団発生患者の急性期及び回復期のペア血清について、感染研から分与された抗原を用いてH I抗体を測定した。

結果及び考察

本年度のインフルエンザ様疾患の初発は1月8日で、熊本市内の小学校から学級閉鎖の届出があった。その後、集団発生は第3週（1/30～2/5）にピークに達し、3月8日に終息した³⁾。表1、図1にそれぞれ本県における施設別集団発生状況及び週別集団発生患者数を示した。本年度の流行の特徴として、初発から終息までの期間は8週と短く、患者発生数も全体として

表1 施設別集団発生状況

	休校数	学年閉鎖	学級閉鎖	患者数
幼稚園	5	0	1	372
小学校	28	42	140	7,186
中学校	15	18	23	4,922
その他	0	0	2	219
計	48	60	166	12,689

* 現熊本県環境生活部廃棄物対策課

昨年度の約30%と小規模な流行であったといえる。

表2に、集団発生校9校の罹患者の咽頭ぬぐい液からのウイルス分離・同定及び血清抗体測定結果を示した。患者の咽頭ぬぐい液37検体から15株のウイルスが分離された。感染研から分与された抗血清で同定を行った結果、すべてAソ連型（H1N1）であった。

上記患者のペア血清について感染研から分与されたウイルス抗原であるA/Beijing/262/95 (H1N1), A/Sydney/05/97 (H3N2), B/山梨/166/98及びB/山東/07/97を用いて抗体を測定した結果、21名がAソ連型（H1N1）に、2名がA香港型（H3N2）に対して有意の上昇を示した。

また、感染症発生動向調査における検査定点の検体からは12月にA香港型（H3N2）が1株、1月にAソ連型（H1N1）が16株、A香港型（H3N2）が5株、2月は各21株、11株、3月は各10株と3株が分離された。

これらのことから、本県における本年度のインフルエンザの流行型はAソ連型とA香港型によるものと考えられた。

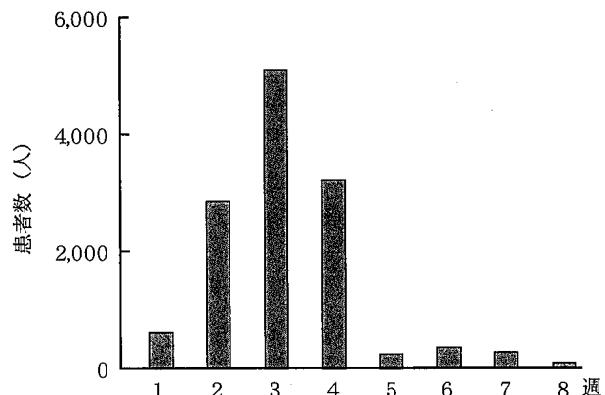


図1 週別集団発生患者数

文 献

- 1) 西村浩一、松井真、田端康二、甲木和子：熊本県保健環境科学研究所報、28, 78 (1998).
- 2) 厚生省：インフルエンザ様疾患患者発生報告、第10報 (2000).
- 3) 厚生省：インフルエンザ様疾患患者発生報告、第20報 (2000).

表2 集団発生におけるウイルス分離・同定及び抗体検査

発生地域	発生年月日	ウイルス分離		抗体検査		備考
		分離数／検体数	分離ウイルス	抗体上昇数／検体数		
東陽村	2000/1/13	4/5	A (H1N1) 型	5/5	A (H1N1), A (H3N2) 型に対する抗体上昇	
岱明町	2000/1/14	2/5	A (H1N1) 型	2/5	A (H1N1) 型に対する抗体上昇	
一の宮町	2000/1/19	1/3	A (H1N1) 型	2/3	A (H1N1) 型に対する抗体上昇	
植木町	2000/1/20	2/5	A (H1N1) 型	3/5	A (H1N1) 型に対する抗体上昇	
錦町	2000/1/22	0/5		0/5		
三角町	2000/1/26	2/5	A (H1N1) 型	4/5	A (H1N1) 型に対する抗体上昇	
本渡市	2000/1/31	1/4	A (H1N1) 型	3/4	A (H1N1) 型に対する抗体上昇	
益城町	2000/2/1	0/1		0/1		
御船町	2000/2/2	3/4	A (H1N1) 型	3/4	A (H1N1), A (H3N2) 型に対する抗体上昇	
合計		15/37		22/37		

4) ウィルス性眼疾患の流行調査

荒平 雄二* 西村 浩一 田端 康二 中島 龍一**
 矢野 俊昭** 松井 真*** 甲木 和子

はじめに

ウィルスに起因する眼疾患には、急性出血性結膜炎（以下、「AHC」と略す。）、流行性角結膜炎（以下、「EKC」と略す。）、咽頭結膜熱（以下、「PCF」と略す。）等がある。我々は、熊本県結核・感染症サーベイランス事業によって行った眼からのウイルス分離成績をすでに報告し¹⁾、その後も1989年度から1999年度までウイルス分離を続けてきたので、その結果を報告する。

材料及び方法

1 検査材料

1989年度から1999年度までに、眼科定点でAHC、EKC、PCF患者から採取された眼結膜擦過物をVeal Infusion 培地に保存した液1,137本を検体とした。

2 検査方法

ウイルス分離はHeLa, HEp-2, Vero, RD-18Sの4細胞を用いてマイクロプレート法で実施し、細胞変性効果（cytopathic effect : CPE）が見られたものは、さらに次代へ接種して増殖させ同定用ウイルスとした。アデノウイルス（以下、「Ad」と略す。）の同定は、CPEが著明に現れた細胞で、国立感染症研究所（以下、「感染研」と略す。）から分与された抗血清又はデンカ生研の抗血清を用いて中和法で行った。ヘルペスウイルス（以下、「HSV」と略す。）の同定は、Syva社製Micro Trak HSV 1 / HSV 2 Direct Specimen Identification / Typing Testキットを用いて行った。コクサッキーA24変異株（以下、「CA24V」と略す。）は、感染研から分与された抗血清を用いて同定した。

結果

熊本市内の感染症発生動向調査眼科定点からの検体搬入を年別に見ると、表1に示すように1993年度から1995年度にかけて減少したもの、毎年100検体以上のEKC患者検体の搬入があった。AHC患者検体は、1998年度と1999年度に多かった。PCF患者の検体は、1989年度から1992年度に搬入されたが、その後は非常

表1 3疾患の年度別検体数

年度	AHC	EKC	PCF	合計
1989	3	74	7	84
1990	5	106	6	117
1991	5	125	14	144
1992	2	139	10	151
1993	3	32		35
1994		12		12
1995		63		63
1996	5	117		122
1997	2	81	1	84
1998	16	154	2	172
1999	24	127	2	153
合計	65	1,030	42	1,137

に少なくなっている。

月別の検体数を表2に示した。AHC及びPCFでは月によってあまり変化はないが、EKCは7月から11月に多くなっていることが分る。

表2 3疾患の月別検体数

	AHC	EKC	PCF
1月	5	61	
2月	4	46	
3月	6	52	1
4月	4	63	
5月	5	79	3
6月	2	57	1
7月	3	94	9
8月	9	155	9
9月	4	113	13
10月	12	136	2
11月	9	120	4
12月	2	54	
合計	65	1,030	42

また図1に示すとおり、男性の患者がやや多く、年齢別では30歳代が最も多く、次いで20歳代、60歳代以上順であった。

用いたHeLa, HEp-2, Vero, RD-18Sの4細胞のうち、分離できたウイルス全てが、HeLa細胞に著明なCPEを現した。Ad 3, 4型及びHSV 1は初代ないし2代でCPEが現れることが多かったが、Ad 8, 11, 19, 37型は、2ないし3代で、たまには、5代と長くかかったことあった。

* 現熊本県環境生活部廃棄物対策課

** 現熊本県玉名地域振興局保健福祉環境部

*** 現熊本県食肉衛生検査所

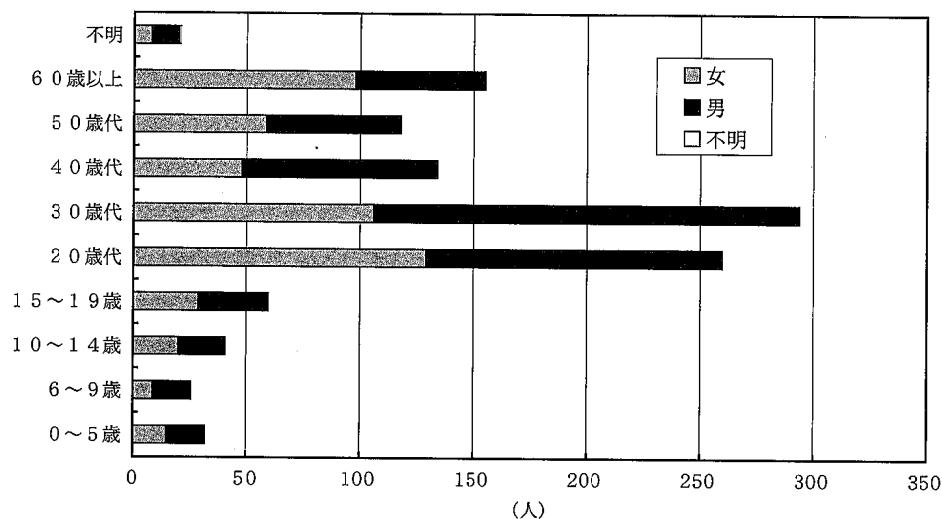


図1 年代別の検体数

表3 年度別ウイルス分離状況

年度	Ad1	Ad2	Ad3	Ad4	Ad5	Ad7	Ad8	Ad11	Ad19	Ad34	Ad37	CA24V	HSV1	同定不能	分離数	分離率 (%)	陰性	合計	
1989			11	1		1	3	2	11	1	11		1	42	50.0	42	84		
1990			2	16			4	1	1		13		2	39	33.3	78	117		
1991			2	54	1		1		3		18		2	81	56.3	63	144		
1992			25	19	1			4	1		9		6	65	43.0	86	151		
1993			1					3	1				1	6	17.1	29	35		
1994													1	2	16.7	10	12		
1995		1	2					3				11	1	1	3	22	34.9	41	63
1996				1				5	5	1		10	1	1	24	19.7	98	122	
1997			3					4		20		1	2		30	35.7	54	84	
1998	1	1	3					5	2	13			2	5	1	33	19.2	139	172
1999			1	3				7	2	23			5	1	42	27.5	111	153	
合 計	1	2	50	94	2	1	35	17	73	1	74	6	25	5	386	33.9	751	1,137	

表4 月別ウイルス分離状況

月	Ad1	Ad2	Ad3	Ad4	Ad5	Ad7	Ad8	Ad11	Ad19	Ad34	Ad37	CA24V	HSV1	同定不能	分離数	分離率 (%)	陰性	合計	
1月		1	2	1				1	1	4		12	2		24	36.4	42	66	
2月			1	2				3		3		2		3	14	28.0	36	50	
3月			1	2	1			2	1	1		4		2	14	23.7	45	59	
4月	1			3				2		9		5		1	21	31.3	46	67	
5月			5	3				1	2	6		10		2	29	33.3	58	87	
6月			2	2				1		4		2		3	14	23.3	46	60	
7月	1	6	14				4	1	9		3			1	1	40	37.7	66	106
8月	8	18		1	7	2	13	1	3	3		1	1	1	58	33.5	115	173	
9月	11	23	1				1	2	7		5	2	3		55	42.3	75	130	
10月	3	19					8	4	7		4	1	4		50	33.3	100	150	
11月	5	5					5	3	7		22		1	1	49	36.8	84	133	
12月	6	2						1	3		2		2	2	18	32.1	38	56	
合 計	1	2	50	94	2	1	35	17	73	1	74	6	25	5	386	33.9	751	1,137	

表5 疾患別ウイルス分離状況

	Ad 1	Ad 2	Ad 3	Ad 4	Ad 5	Ad 7	Ad 8	Ad11	Ad19	Ad34	Ad37	CA24V	HSV 1	同定不能	分離数	分離率 (%)	陰性	合計
AHC			1				2				1	2	2		8	12.1	58	66
EKC	1	2	37	79	1	1	33	16	73	1	72	4	22	5	347	33.7	682	1,029
PCF			12	15	1			1			1		1		31	73.8	11	42
合計	1	2	50	94	2	1	35	17	73	1	74	6	25	5	386	33.9	751	1,137

表3に年別ウイルス分離状況を示した。1989年度から1992年度にかけて、Ad 3, 4, 37型が良く分離された。

しかし、1997年度からはAd19の分離が多くなった。これは1996年7月を境に、EKCの起因ウイルスが19型に交替したという全国情報に一致している²⁾。Ad19と37は、それぞれの免疫血清に対して交差がみられ、判定が容易ではなかった。

表3に示すようにCA24Vは、1995, 1996年度にはEKCから各1株、1997年度にはAHCから2株³⁾、1998年度にはEKCから2株分離された。HSV 1は、1992, 1998及び1999年度に多いが、毎年数件ずつは分離されている。

表4に示すように、Ad 3, 4型は5月から9月にかけて多く分離されているが、他のウイルスについても時期的なものはないように思われる。

表5に疾患別のウイルス分離状況を示した。EKC患者からは、Ad 3, 4, 8, 11, 19, 37, CA24V, HSV 1等の各種のウイルスが分離されており、分離率も33.8%を示した。PCF患者からは、Ad 3, 4型が大部分で分

離率も73.8%と非常に高い値を示したが、AHC患者ではウイルス分離率が低かった。

ま と め

分離されたウイルスは、Adが最も多く11の血清型にわたっていた。年別にみるとことにより流行した血清型の推移が分った。Adの型が分ることにより、治療にも役立つといわれている。

今後は、熊本県の特定区域に片寄ることなく県下全域を見渡せる発生動向調査を行い、本調査の更なる充実を図り、より詳細なデータの蓄積及び還元に努めていきたい。

文 献

- 1) 中島龍一, 村川弘, 渡辺邦昭, 甲木和子, 道家直: 熊本県衛生公害研究所報, 17, 26 (1987).
- 2) 国立感染症研究所, 厚生省: 病原微生物検出情報, 21, 24 (2000).
- 3) 国立感染症研究所, 厚生省: 病原微生物検出情報, 18, 8 (1997).

5) 熊本県宇土市におけるA領域及びB領域紫外線量 (平成11年度)

植木 肇 福島 宏暢

はじめに

近年、フロンガス等の大気中濃度上昇に伴い成層圏でオゾン層の破壊が進行している。国内の観測点においても成層圏オゾン全量の減少が観測されている¹⁾。

太陽光線のうち、波長が100~400nmの部分は紫外線(UV)²⁾と呼ばれ、長波長側からUV-A(400~320nm), UV-B(320~280nm), UV-C(280nm以下)に分類される^{2~4)}。このうちUV-Cは、オゾン層での吸収、対流圏内での散乱等により地表に達しない。また、UV-Aはオゾン層での吸収がないため地上到達量に変化がないとされる。一方、UV-Bはオゾン層で吸収されたため、オゾン層の破壊が進行しオゾン全量が減少すると、地表に達するUV-B量が増加する。UV-Bは有害であり、皮膚ガンの増加、免疫機能や生態系への悪影響をもたらすと言われている^{3), 4)}。また、UV-Bの増減はオゾン層の状態だけでなく、地域の緯度、地形、気象特性、大気汚染の状況の違い等にも影響される。わが国でのUV-Bの継続的な測定は、気象庁が平成2年度からつくばで、平成3年度から札幌、鹿児島、那覇の合計4地点で開始している¹⁾にすぎない。

本研究所においても、平成7年3月の宇土市への新築移転を契機に気象観測装置を設置した際、UV-A量、UV-B量の測定機器を整備し、平成7年6月から観測を開始した。平成10年3月までの観測結果はすでに報告^{5~7)}したが、経年変化を検討する過程で一部に妥当でない点が明らかとなり、その経緯については前報で述べた⁸⁾。本報では平成11年4月から平成12年3月までの1年間のUV-A量、UV-B量の観測結果を中心に報告する。

測定方法

UV-A量、UV-B量及び全日射量の測定機器は、英弘精機(株)製A領域紫外線計(P-MS-210A型:測定対象波長315~400nm)、英弘精機(株)製B領域紫外線計(P-MS-210W型:測定対象波長280~315nm)及び英弘精機(株)製日射計(P-CM-6E型:測定対象波長300~2800nm)をそれぞれ用いた。

いずれも熊本県宇土市の本研究所(北緯32度40分、東経130度40分、海拔20m)の3階建て庁舎の屋上に設置している。

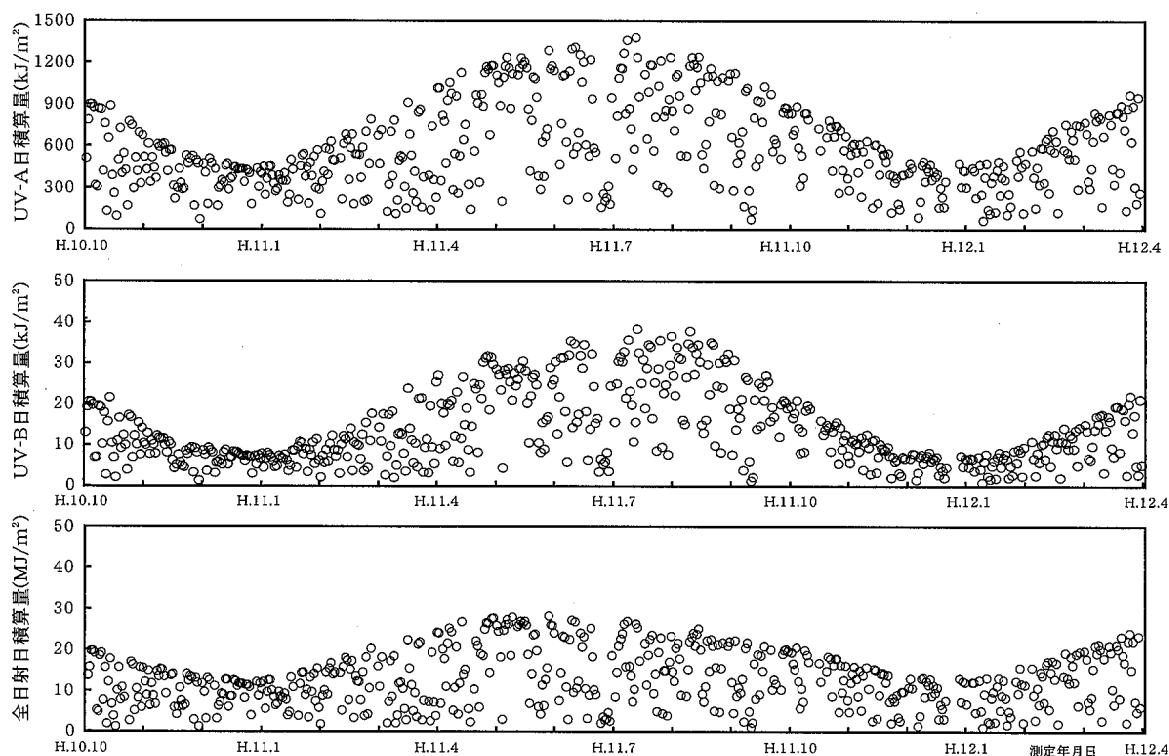


図1 UV-A, UV-B及び全日射日積算量の推移 (平成10年10月~平成12年3月)

表1 宇土市における紫外線量及び全日射量の日積算量^{*)} 月平均値及び年平均値
(観測地点：保健環境科学研究所屋上)

測定年月	測定日数	UV-A (kJ/m ²)	UV-B (kJ/m ²)	UV-A+UV-B (kJ/m ²)	UV-B/UV-A	全日射 (MJ/m ²)
平成11年	4月	30	768.9	18.9	787.8	0.0246
	5月	31	930.8	22.5	953.3	0.0241
	6月	30	715.8	19.4	735.1	0.0270
	7月	31	890.2	25.2	915.4	0.0283
	8月	31	895.4	26.1	921.5	0.0292
	9月	27	670.6	17.7	688.3	0.0264
	10月	26	633.2	13.8	647.0	0.0218
	11月	30	430.5	7.9	438.4	0.0183
	12月	23	355.9	5.8	361.7	0.0163
	平成12年 1月	30	331.2	5.5	336.7	0.0166
	2月	26	522.7	9.5	532.2	0.0182
	3月	31	624.2	13.2	637.4	0.0212
年平均値		(346)	656.9	15.8	672.7	0.0240
						14.1

*) 日積算量：0時から24時までの時積算量の累積量。

測定結果と考察

1 紫外線量及び全日射量の推移

図1にUV-B測定センサー交換並びに信号回路修復後⁸⁾の平成10年10月から平成12年3月までのUV-A, UV-B及び全日射の日積算量の推移を示した。いずれの量も夏期に高く、冬期に低い季節変動を示した。このような季節的な変動は気象庁が測定している4地点でのUV-Bの観測結果でも報告されている⁹⁾。つぎに平成11年度（平成11年4月から平成12年3月）の各日積算量を整理し、UV-A, UV-B及び全日射の日積算量月平均値等を求めた結果を表1に示した。期間中のUV-A, UV-B及び全日射の日積算量年平均値は、それぞれ656.9kJ/m², 15.8kJ/m²及び14.1MJ/m²であった。UV-A及びUV-Bの日積算量の月平均値の最低値はいずれも1月であり、それぞれ331.2kJ/m²及び5.5kJ/m²であった。一方最高値はUV-Aが5月の930.8kJ/m²であり、UV-Bが8月の26.1kJ/m²であった。UV-Bの最高値は最低値の約5倍であった。UV-A日積算量月平均値に対するUV-B日積算量月平均値の比（UV-B/UV-A）は、0.0163～0.0292であった。また、全日射の日積算量の月平均値の最低値は1月の8.1MJ/m²、最高値は5月の20.1MJ/m²であった。これまでには7月又は8月の夏期に最高値を示し、5月に最高値を示す例はなかったが、平成11年は5月の日照時間が年平均の127%であり、逆に8月は天候不順で雨が多く、日照時間が78%とかなり少なかったことから、このような結果になったものと考えられ、このためUV-Aも影響を受けたと考えられた。

図2にUV-AとUV-Bとの各日積算量の関係を示した。両者間には相関係数 0.964 (n=346) の極めて密接な正の相関関係が認められた。また、紫外線（UV-A+UV-B）量と全日射量との間でも、相関係数 0.993 (n=346) という正の相関関係が認められた。明らかに毎日の全日射量の変化が紫外線量に影響を及ぼしている。

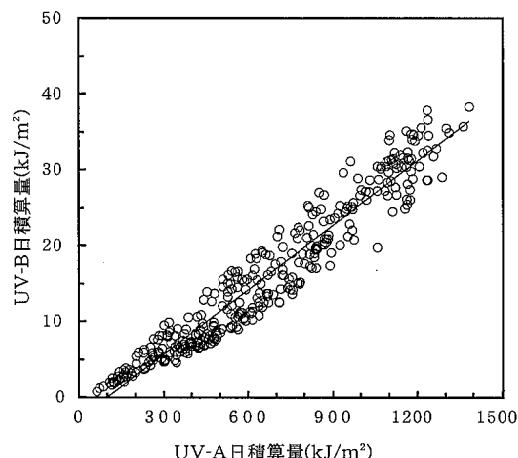


図2 UV-AとUV-Bとの関係（日積算量）

2 UV-B時積算量の時間変化

つぎに、UV-B時積算量の各測定時間ごとの変化を検討した。その結果、1日の最大時積算量の出現時間は、各月とも12～13時であり、この1時間で日積算量の16.1%（6月）～22.1%（1月）を占めていること

がわかった。図3に平成11年4月、7月、10月及び12年1月の各測定時間の時積算量（月平均値）の変化を示した。12～13時の時積算量は各月の日積算量のそれぞれ17.8%，16.7%，18.8%，22.1%を占めていた。また、図3で明らかなように、夏期の7月の8～9時の時積算量は冬期の1月の時積算量の最高値に匹敵する量であった。

図4にUV-Bの各月の日積算量平均値及び日積算量に占める10～14時までの4時間の時積算量の割合を示した。各月の10～14時までの4時間の時積算量が日積算量に占める割合は、58.0%（6月）～74.8%（12月）であった。12～13時あるいは10～14時における時積算量が日積算量に占める割合は、いずれも夏期に小さく、冬期に大きくなる傾向が見られた。これは夏期には時積算量も増加するが、この期間の日照時間も6～20時と大きくなるため、相対的に比率が小さくなると考えられた。

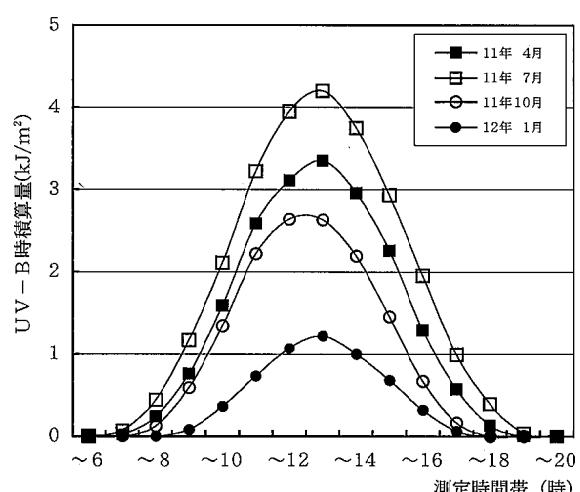


図3 UV-B時積算量の時間帯別変化

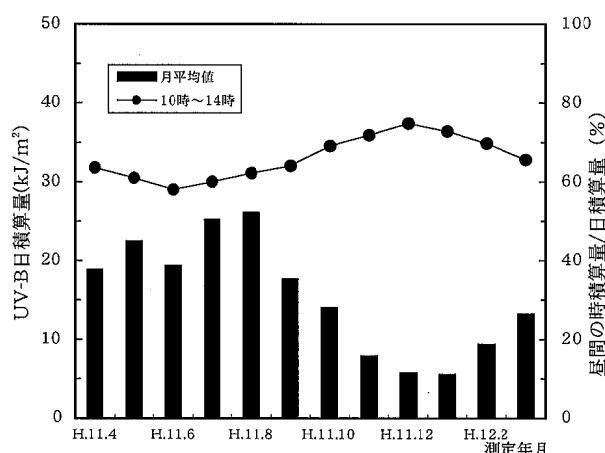


図4 UV-B日積算量の推移

ま と め

熊本県宇土市でA領域及びB領域紫外線量を測定している。その結果、次のことが明らかとなった。

平成11年4月から平成12年3月までのUV-A, UV-B及び全日射の日積算量の年平均値は、それぞれ656.9 kJ/m², 15.8kJ/m²及び14.1MJ/m²であった。また、UV-A, UV-B及び全日射の日積算量は夏期に高く、冬期に低くなる季節変動が認められた。UV-B/UV-Aは、0.0163～0.0292であった。また、UV-AとUV-B間、紫外線(UV-A+UV-B)量と全日射量間にいずれも正の相関関係が認められた。

UV-Bの1日の最大時積算量の出現時間帯は、各月とも12～13時であり、日積算量の16～22%を占めている。また、UV-Bの10～14時までの4時間の時積算量の日積算量に対する割合は、年間を通して58～75%の範囲で変化していた。これらの比率は冬期に高くなり、夏期に低くなる傾向を示した。

今後さらにデータの蓄積を図り、経年的変化及び季節的消長、更には他の観測地点との比較について検討していく予定である。

文 献

- 日本気象協会編：“気象年鑑（1994年版）”，p.91 (1994).
- 荒木 峻ほか編著：環境科学辞典，p.312(1985)，(東京化学同人).
- 滝沢行雄：“環境保健入門（小泉明、村上正孝編），からだの科学・臨時増刊”，p.96(1990)，(日本評論社).
- 環境庁環境保健部保健調査室訳：“WHO環境保健クライテリア 14 紫外線”，p.1(1980)；{WHO : “Environmental Health Criteria 14 Ultraviolet Radiation”, (1979). Geneve}.
- 木野世紀，植木 肇：熊本県保健環境科学研究所報，25, 71(1995).
- 植木 肇，木野世紀：熊本県保健環境科学研究所報，26, 82(1996).
- 植木 肇，北岡宏道：熊本県保健環境科学研究所報，27, 97(1997).
- 植木 肇：熊本県保健環境科学研究所報，28, 80 (1998).
- 気象庁編：“気候変動監視レポート 1999”，p.40 (2000).

6) 熊本県下の酸性雨について (第18報)

— 苓北町及び八代市における一降水全量採取結果 —

上野 一憲 北岡 宏道* 木庭 亮一 植木 肇

はじめに

熊本県では1988年10月から熊本県下における酸性雨の状況を把握するため、天草郡苓北町と八代市において分割採取による調査を開始した¹⁾。1989年度からは、1年間を通して両地点で降水ごとの分割採取（1994年度からは5, 8, 11及び2月の4ヶ月間）及び一降水全量採取調査を行った。これらの結果についてすでに報告した^{2~10)}。本報では1998年度の両地点における一降水全量採取試料（以下、「一降水全量」と記す。）の結果について報告する。

調査方法

1 調査地点及び降水採取方法

苓北町及び八代市の調査地点と降水の採取は、前年度までと同様に苓北町立志岐小学校及び八代市役所で行い、既報^{1), 7)}の装置及び方法を用いた。

2 分析方法

pH測定及び導電率（以下、「EC」と記す。）測定は既報⁵⁾のとおりである。

イオン成分分析はDionex4040iを用い、イオンクロマトグラフ（以下、「IC」と記す。）法で行った。IC

法の分析条件は、カチオンではCG-12AとCS-12Aのカラムを用いた。溶離液として20mMメタンスルホン酸溶液を用い、1.0ml/minの流速で分析を行った。

一方、アニオンではAG-12AとAS-12Aのカラムを用いた。溶離液として2.7mM Na₂CO₃/0.3mM NaHCO₃の混合溶液を用い、1.5ml/minの流速で分析を行った。

調査結果及び考察

1 一降水全量の調査結果

表1に1998年度の一降水全量中のイオン成分濃度等を示した。

1998年度における降水の採取回数は、苓北町で57回八代市で77回であった。両地点とも、前年度に比べて採取回数及び調査期間中の採取降水量のいずれも減少した。

pHの年間平均値は、苓北町で4.86、八代市で4.58であり、ほぼ横ばいで推移していた。またpH 4未満の降水が苓北町で1回、八代市で3回観測され、両地点とも前年度の1/4の回数であった。ECの平均値は、苓北町で16.8μS/cm、八代市で20.0μS/cmであった。

表1 一降水全量中のイオン成分総括表 (1998年度)

調査地点	pH μS/cm	EC μS/cm	イオン成分濃度, μg/ml								年間降水量 mm	
			Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺		
苓北町 (n=57)	平均	4.86	16.8	2.05	0.52	1.30	0.01	1.14	0.23	0.13	0.14	0.16
	4.90	18.1	2.83	0.43	1.19	0.01	1.55	0.17	0.11	0.19	0.12	2108.6
	最高	7.18	342.0	87.57	7.81	14.93	0.11	46.58	2.65	5.27	5.58	7.78
	最低	3.96	4.9	0.17	0.13	0.36	0.00	0.07	0.01	0.02	0.00	0.00
八代市 (n=77)	平均	4.58	20.0	0.89	0.93	2.32	0.03	0.39	0.54	0.05	0.06	0.27
	4.67	16.8	0.90	0.75	1.72	0.02	0.43	0.39	0.04	0.06	0.14	2411.5
	最高	6.89	354.0	81.60	22.28	52.45	0.14	43.36	7.14	1.82	4.88	17.81
	最低	3.86	6.9	0.17	0.21	0.91	0.00	0.06	0.12	0.00	0.01	0.02

* イタリック体は1997年度の成分濃度平均値及び降水量合計である。

表2 低pH出現時のイオン成分濃度 (1998年度)

調査 地点	降水採取日	pH μS/cm	EC μS/cm	イオン成分濃度, μg/ml								降水量 mm
				Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	
苓北町	4月29日～4月30日	3.96	59.5	1.09	2.61	7.25	0.27	1.57	0.14	0.12	0.75	3.0
八代市	9月22日～9月24日	3.86	109.4	6.30	5.73	11.00	1.98	2.09	0.32	0.31	1.88	10.0

* 現熊本県環境生活部廃棄物対策課

苓北町は前年度より低い値を、また八代市では前年度より高い値を示した。イオン成分濃度については、前年度と同様に海洋由来による Na^+ , Cl^- 及び Mg^{2+} の濃度は苓北町で高く、 NO_3^- , SO_4^{2-} 及び NH_4^+ の濃度は八代市で高かった。

苓北町及び八代市の両地点で最も低いpHを観測した時のイオン成分濃度を表2に示した。苓北町の最低のpHは、4月29日から4月30日のpH3.96であり、降水量は3.0mm, ECは $59.5\mu\text{S}/\text{cm}$ であった。この時の各イオン成分濃度を年間平均値(表1)と比較すると、 SO_4^{2-} が6倍、 NO_3^- が5倍などと多量であり、これらがpHを下げる原因と考えられた。また、 Ca^{2+} も5倍の量であったが、こちらは中和成分として寄与したと考えられた。

また、八代市では9月22日から9月24日のpH3.86が最も低く、降水量は10.0mm, ECは $109.4\mu\text{S}/\text{cm}$ であった。この時のイオン成分濃度を年間平均値(表1)と比較すると、すべてのイオン種について年間平均値より4倍から13倍量であった。通常、低pHは降水量が少ない時に発生することが多いのに比べ、このように比較的降水量が多い時に低pH、高ECを示したことについては、今後その原因について検討する。

2 一降水全量中の成分濃度及び経月変化

苓北町と八代市における一降水全量中の月別成分濃度を表3及び表4に、両地点の各月のイオン成分降下量を表5にそれぞれ示した。pHは、両地点とも10月を除いた9月から2月にかけて低い傾向にあった。特に、冬季は SO_4^{2-} や NO_3^- が他の季節と比較して数倍高

表3 苓北町における月別平均イオン成分濃度(一降水全量) (1998年度)

月	降水量 mm	試料数	pH	EC $\mu\text{S}/\text{cm}$	イオン成分濃度, $\mu\text{g}/\text{m}\ell$									
					Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	H^+	Na^+	NH_4^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	
4月	221.1	9	平均	4.93	15.9	1.12	0.83	1.82	0.01	0.62	0.44	0.17	0.10	0.51
			最高	7.18	186.7	34.09	7.34	14.44	0.11	18.22	1.95	5.27	2.55	7.78
			最低	3.96	6.2	0.29	0.26	0.52	0.00	0.12	0.13	0.02	0.03	0.05
5月	205.8	6	平均	4.81	11.6	0.87	0.44	1.04	0.02	0.46	0.20	0.13	0.06	0.05
			最高	5.88	27.6	2.56	2.99	3.28	0.03	1.43	0.82	0.34	0.24	1.46
			最低	4.60	5.5	0.23	0.14	0.50	0.00	0.09	0.07	0.02	0.01	0.00
6月	731.0	7	平均	4.95	7.7	0.76	0.23	0.53	0.01	0.40	0.07	0.08	0.04	0.02
			最高	5.21	37.0	5.47	1.92	2.48	0.03	3.06	0.22	0.54	0.36	0.37
			最低	4.47	4.9	0.17	0.13	0.36	0.01	0.07	0.01	0.02	0.00	0.00
7月	346.4	7	平均	4.91	10.6	0.50	0.58	1.08	0.01	0.27	0.34	0.05	0.03	0.03
			最高	5.74	57.0	5.52	3.58	3.77	0.07	2.94	1.70	0.31	0.38	0.38
			最低	4.15	5.8	0.23	0.20	0.54	0.00	0.12	0.06	0.02	0.01	0.00
8月	73.7	5	平均	4.85	14.4	1.15	0.59	1.25	0.01	0.63	0.28	0.08	0.08	0.04
			最高	5.33	42.0	4.56	2.57	3.53	0.04	2.15	1.76	0.34	0.29	0.27
			最低	4.36	11.7	0.80	0.34	0.98	0.00	0.44	0.14	0.06	0.06	0.02
9月	91.0	4	平均	4.58	21.8	1.17	0.95	2.16	0.03	0.59	0.39	0.10	0.09	0.16
			最高	5.12	59.3	1.58	4.94	7.97	0.09	0.77	2.65	0.33	0.27	1.16
			最低	4.03	17.8	0.33	0.42	1.80	0.01	0.12	0.22	0.02	0.04	0.03
10月	190.0	2	平均	4.96	46.6	9.63	0.32	2.17	0.01	5.81	0.14	0.22	0.69	0.23
			最高	5.09	51.0	10.71	0.79	2.32	0.01	6.46	0.35	0.24	0.77	0.25
			最低	4.95	9.2	0.45	0.27	0.86	0.01	0.25	0.11	0.05	0.04	0.03
11月	50.0	2	平均	4.64	21.7	1.86	0.59	1.85	0.02	0.88	0.20	0.21	0.12	0.31
			最高	5.20	21.8	2.73	0.93	2.08	0.03	1.17	0.40	0.87	0.16	0.41
			最低	4.57	21.4	1.64	0.50	1.79	0.01	0.81	0.15	0.05	0.11	0.29
12月	0.0	0	平均	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
			最高	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
			最低	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
1月	42.7	4	平均	4.61	38.4	4.18	1.76	3.95	0.02	2.17	0.55	0.30	0.30	0.77
			最高	5.33	156.2	23.96	7.81	12.57	0.06	13.38	2.04	1.21	1.68	2.09
			最低	4.20	11.9	0.64	0.47	2.06	0.00	0.21	0.12	0.05	0.04	0.26
2月	40.2	5	平均	4.40	86.5	15.20	1.72	6.09	0.04	8.05	0.68	0.55	1.03	0.85
			最高	4.83	342.0	87.57	3.58	14.93	0.07	46.58	1.05	2.74	5.58	3.06
			最低	4.13	16.9	1.30	0.51	1.57	0.01	0.70	0.23	0.09	0.12	0.24
3月	116.7	6	平均	4.99	18.3	2.33	0.77	1.30	0.01	1.04	0.31	0.34	0.14	0.39
			最高	5.89	130.9	25.18	3.73	6.56	0.07	8.45	1.65	0.64	1.44	3.12
			最低	4.18	7.1	0.42	0.30	0.48	0.00	0.18	0.12	0.05	0.03	0.08

表4 八代市における月別平均イオン成分濃度 (一降水全量) (1998年度)

月	降水量 mm	試料数	pH $\mu\text{S}/\text{cm}$	EC $\mu\text{S}/\text{cm}$	イオン成分濃度, $\mu\text{g}/\text{ml}$									
					Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺		
4月	276.4	9	平均	4.51	25.8	1.30	1.34	3.02	0.03	0.55	0.76	0.08	0.10	0.52
			最高	6.89	113.8	12.47	7.43	12.95	0.05	5.25	4.82	0.42	0.89	7.40
			最低	4.26	6.9	0.17	0.36	1.01	0.00	0.07	0.21	0.02	0.02	0.09
5月	338.9	9	平均	4.63	15.2	0.55	0.69	1.73	0.02	0.24	0.38	0.03	0.04	0.19
			最高	4.87	67.5	2.34	7.21	12.26	0.06	0.96	5.09	0.29	0.28	2.15
			最低	4.23	8.0	0.23	0.21	0.93	0.01	0.06	0.16	0.01	0.01	0.12
6月	806.1	9	平均	4.60	13.0	0.39	0.46	1.41	0.03	0.19	0.25	0.02	0.03	0.09
			最高	4.76	82.5	7.48	8.99	9.99	0.09	4.14	3.95	0.50	0.80	2.27
			最低	4.06	9.0	0.18	0.24	0.91	0.02	0.08	0.12	0.00	0.01	0.02
7月	165.5	9	平均	4.43	25.6	0.78	1.23	2.90	0.04	0.31	0.69	0.06	0.05	0.18
			最高	4.89	87.0	3.79	5.59	14.67	0.09	2.79	2.12	0.34	0.51	1.28
			最低	4.05	9.8	0.24	0.63	1.05	0.01	0.12	0.27	0.02	0.02	0.04
8月	118.6	8	平均	4.78	16.1	0.91	0.94	1.64	0.02	0.49	0.39	0.06	0.07	0.17
			最高	4.97	32.9	2.51	4.94	0.26	0.03	1.35	1.41	0.33	0.27	1.16
			最低	4.56	10.9	0.28	0.52	1.34	0.01	0.14	0.28	0.04	0.03	0.09
9月	97.1	5	平均	4.20	40.5	1.49	1.45	4.11	0.06	0.41	0.69	0.06	0.06	0.30
			最高	4.55	109.4	14.05	14.62	24.57	0.14	6.76	5.97	1.55	1.33	5.61
			最低	3.86	20.2	0.73	0.65	2.06	0.03	0.14	0.46	0.02	0.02	0.07
10月	302.5	6	平均	4.92	12.2	0.81	0.46	1.29	0.01	0.37	0.37	0.03	0.05	0.07
			最高	5.07	140.0	7.11	1.83	3.15	0.13	3.67	1.44	0.18	0.39	0.32
			最低	3.90	8.7	0.36	0.25	0.96	0.01	0.11	0.24	0.01	0.02	0.04
11月	37.3	3	平均	4.54	40.7	2.50	2.58	5.06	0.03	1.05	1.54	0.13	0.17	1.00
			最高	4.56	107.8	7.97	8.72	14.34	0.05	3.50	4.17	0.57	0.58	2.94
			最低	4.31	31.9	1.79	1.55	3.91	0.03	0.76	1.09	0.08	0.12	0.71
12月	3.5	2	平均	4.81	72.7	5.14	6.16	10.62	0.02	2.75	2.64	0.22	0.50	3.53
			最高	4.82	190.3	21.72	15.55	21.12	0.02	12.04	7.00	0.87	1.65	6.21
			最低	4.81	61.6	3.58	5.28	9.63	0.02	1.87	2.23	0.16	0.39	3.28
1月	44.2	4	平均	4.37	60.5	4.09	3.69	7.75	0.04	1.79	2.12	0.20	0.29	1.41
			最高	4.85	126.5	9.79	10.63	16.95	0.06	5.28	4.51	0.59	0.78	3.34
			最低	4.25	41.6	2.74	2.07	5.31	0.01	0.85	1.41	0.10	0.15	0.81
2月	57.5	5	平均	4.39	49.5	3.99	2.08	5.63	0.04	2.00	1.33	0.18	0.26	0.63
			最高	4.84	354.0	81.60	5.39	23.14	0.06	43.36	2.50	1.82	4.88	6.40
			最低	4.20	31.4	1.36	1.30	3.82	0.01	0.64	0.98	0.09	0.09	0.34
3月	163.9	8	平均	4.76	26.3	0.92	1.59	4.13	0.02	0.38	1.18	0.11	0.10	0.82
			最高	5.70	133.9	9.73	22.28	52.45	0.11	10.44	7.14	1.47	1.70	17.81
			最低	3.97	13.9	0.38	0.95	1.88	0.00	0.14	0.64	0.05	0.04	0.27

くなつており、これらが降水の酸性化に影響を及ぼしたと考えられた。

月別にイオン成分の降下量を比較すると、一般に降水量の多い月に降下量が多くなるが、降水量の少ない1、2月でも降下量の差はそれほど生じなかつた。このことは、冬季における各イオン成分濃度が高いためと考えられた。これについては、非降雨時の乾性沈着のデータも加えて検討する必要がある。

表6に1989年から1998年までの各年度のpH、EC及びイオン成分降下量等の推移を示した。調査期間中のpHは、1993年を除き苓北町で4.6から4.9台、八代市で4.5から4.7台にあり、八代市が苓北町よりやや酸性の傾向にあつた。また、ECも台風の影響が大きかつた苓北町の1991、1992年度を除き、いずれも10~30

$\mu\text{S}/\text{cm}$ の範囲内で推移していた。両地点のイオン成分降下量を比較すると、苓北町ではNa⁺、Cl⁻、Mg²⁺等が高く、八代市ではNO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺が高い結果であった。前者では海洋由来、後者は工業、商業活動の影響に由来すると考えられた。

本調査において、多大なご協力をいただいた苓北町企画課、八代市環境課、熊本県天草地域振興局保健福祉環境部、熊本県八代地域振興局保健福祉環境部並びに熊本県環境生活部環境保全課担当者の皆様に深謝いたします。

文 献

- 今村 修、久保 清：熊本県衛生公害研究所報, 19, 53 (1989).

表5 荻北町及び八代市における月別イオン成分降下量（一降水全量）(1998年度)

調査 地点	月	降水量 mm	試料数	イオン成分降下量, mg/m ²									合計
				Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	
荻北町	4月	221.1	9	247	183	403	3	137	97	37	23	113	1241
	5月	205.8	6	178	91	213	3	94	41	26	13	10	671
	6月	731.0	7	555	168	390	8	291	50	59	30	17	1568
	7月	346.4	7	173	200	373	4	94	118	18	10	10	1001
	8月	73.7	5	84	43	92	1	46	21	6	6	3	303
	9月	91.0	4	107	86	197	2	54	35	9	8	15	512
	10月	190.0	2	1830	62	412	2	1103	26	42	132	43	3651
	11月	50.0	2	93	29	92	1	44	10	11	6	16	302
	12月	0.0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	1月	42.7	4	178	75	169	1	93	23	13	13	33	597
	2月	40.2	5	611	69	245	2	324	27	22	42	34	1375
	3月	116.7	6	272	89	152	1	121	36	40	17	45	774
八代市	4月	276.4	9	359	371	836	9	151	210	23	27	144	2131
	5月	338.9	9	188	235	587	8	81	128	11	13	65	1316
	6月	806.1	9	311	368	1133	20	150	200	15	23	69	2287
	7月	165.5	9	129	204	480	6	51	114	10	8	29	1031
	8月	118.6	8	107	112	194	2	58	46	7	9	20	555
	9月	97.1	5	145	141	399	6	40	67	6	6	29	838
	10月	302.5	6	245	139	391	4	113	113	8	14	23	1049
	11月	37.3	3	93	96	189	1	39	58	5	6	37	525
	12月	3.5	2	18	21	37	0	10	9	1	2	12	110
	1月	44.2	4	181	163	343	2	79	94	9	13	62	945
	2月	57.5	5	229	120	324	2	115	77	10	15	36	928
	3月	163.9	8	151	261	677	3	62	194	17	16	135	1689

表6 降水中のイオン成分年間降下量の推移 (1989~1998年度)

調査 地点	年 度	pH	EC μg/cm	イオン成分降下量, g/m ²								年間降水量 mm
				Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	
荻北町	1989	4.60	21.6	4.74	1.29	3.82	2.33	0.46	0.12	0.32	0.42	2358.7
	1990	4.61	28.3	8.19	1.32	4.18	4.24	0.42	0.19	0.58	0.44	2215.1
	*1991	4.58	55.2	29.11	1.78	7.94	16.08	0.62	0.65	2.19	0.98	2678.1
	*1992	4.64	33.6	10.97	1.44	4.60	5.57	0.61	0.26	0.76	0.69	1928.4
	*1993	4.95	19.5	9.48	1.19	3.84	4.90	0.42	0.32	0.72	0.65	2961.8
	1994	4.62	23.5	2.05	0.89	2.04	1.01	0.31	0.11	0.14	0.36	928.8
	1995	4.73	20.1	3.56	1.11	2.56	1.81	0.39	0.12	0.23	0.29	1557.6
	1996	4.72	27.6	6.65	1.08	2.96	3.66	0.40	0.33	0.44	0.40	1520.0
	1997	4.90	18.1	6.45	0.99	2.70	3.52	0.39	0.25	0.43	0.28	2276.3
	1998	4.86	16.8	4.33	1.10	2.74	2.40	0.49	0.28	0.30	0.34	2108.6
八代市	1989	4.50	22.2	2.11	1.36	4.71	0.77	0.93	0.09	0.15	0.49	2112.2
	1990	4.48	25.2	2.57	1.25	4.63	1.02	0.86	0.12	0.14	0.38	1789.4
	*1991	4.51	24.1	4.92	2.08	6.98	2.08	1.30	0.02	0.03	0.56	3004.9
	1992	4.50	25.2	2.85	1.63	5.32	1.21	1.04	0.14	0.17	0.49	1960.6
	*1993	4.74	18.9	8.75	2.62	7.79	4.05	1.38	0.45	0.62	0.89	4424.5
	1994	4.50	28.1	1.96	1.57	3.76	0.80	0.85	0.08	0.12	0.49	1136.1
	1995	4.54	23.7	4.09	2.58	6.79	1.82	1.38	0.19	0.28	0.69	2594.6
	1996	4.53	25.2	3.67	2.45	5.85	1.69	1.48	0.15	0.25	0.68	2148.6
	1997	4.67	16.8	2.61	2.18	5.01	1.24	1.12	0.13	0.17	0.41	2907.3
	1998	4.58	20.0	2.16	2.23	5.59	0.95	1.31	0.12	0.15	0.66	2411.5

*台風が影響したと考えられる降水試料を含めて計算した結果

- 2) 今村 修, 久保 清: 熊本県衛生公害研究所報, **20**, 57 (1990).
- 3) 今村 修, 矢澤吉邦: 熊本県衛生公害研究所報, **21**, 59 (1991).
- 4) 今村 修, 植木 肇: 熊本県衛生公害研究所報, **22**, 41 (1992).
- 5) 今村 修, 植木 肇: 熊本県衛生公害研究所報, **23**, 43 (1993).
- 6) 木庭亮一, 今村 修, 植木 肇: 熊本県保健環境科学研究所報, **24**, 50 (1994).
- 7) 木庭亮一, 今村 修, 植木 肇: 熊本県保健環境科学研究所報, **25**, 65 (1995).
- 8) 木庭亮一, 今村 修, 上野一憲, 植木 肇: 熊本県保健環境科学研究所報, **26**, 76 (1996).
- 9) 上野一憲, 木庭亮一, 植木 肇: 熊本県保健環境科学研究所報, **27**, 91 (1997).
- 10) 上野一憲, 木庭亮一, 植木 肇: 熊本県保健環境科学研究所報, **28**, 82 (1998).

7) 熊本県下の酸性雨について (第19報)

—阿蘇町及び人吉市におけるろ過式一括採取結果—

上野 一憲 北岡 宏道* 木庭 亮一 植木 肇

はじめに

熊本県では1988年10月から熊本県下における酸性雨の状況を把握するため、天草郡苓北町と八代市において分割採取による調査を開始した¹⁾。また、1991年4月からは阿蘇郡阿蘇町と人吉市で1週間ごとのろ過式による酸性雨調査を開始した²⁾。これらの結果についてはすでに報告した^{3~8)}。本報では1998年度の両地点におけるろ過式採取による調査結果について報告する。

調査方法

1 調査地点及び降水採取方法

降水の採取は1998年3月30日から1999年3月29日まで、熊本県阿蘇保健所（現熊本県阿蘇地域振興局保健福祉環境部。以下、「阿蘇町」と記す。）及び熊本県人吉保健所（現熊本県球磨地域振興局保健福祉環境部。以下、「人吉市」と記す。）においてろ過式による降水採取を行った。両調査地点の概要は既報²⁾のとおりである。

2 試料採取及び分析方法

採取口径20cmのろ過式雨水採取器（柴田科学製）を使用し、1週間ごとに降水を回収した。

分析項目及び分析方法は既報^{1), 2)}のとおりである。

調査結果

表1及び表2に阿蘇町及び人吉市における各月の降水量、pH、EC及びイオン成分降下量をそれぞれ示した。また、表3に両地点におけるpH、ECの年平均値及び年間イオン成分降下量の推移を示した。

以下、各項目ごとの主な結果を述べる。

1 降水量

年間降水量は、阿蘇町で2494.8mm、人吉市で2374.8mmであり、平年並みであった。

2 pHとEC

pHの年平均値は、阿蘇町で4.76、人吉市で4.85であった（表3）。pHの最高値は阿蘇町で6.09（11月）、人吉市で5.37（1月）、また最低値は阿蘇町で4.49（9月）、人吉市で4.63（11月）であった。最近の5年間の結果では、両調査地点とも横ばいで推移していた。

ECの年平均値は、阿蘇町で12.6μS/cm、人吉市で10.7μS/cmであった（表3）。ECの最高値は、阿蘇町で43.8μS/cm（12月）と、人吉市で31.8μS/cm（2月）であり、冬季に高くなる傾向にあった。また最低値はいずれも10月に、阿蘇町で5.7μS/cm、人吉市で5.3μS/cmであった。

表1 ろ過式採取のろ液によるイオン成分降下量（阿蘇町、1998年度）

採取期間 ^{a)} 年月日 年月日	降水量 mm	pH μS/cm	EC μS/cm	イオン成分降下量, meq/m ²								月間 合計
				H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	
98 3 30~98 4 27	271.3	4.84	12.4	3.89	2.75	5.95	0.47	5.45	0.95	2.76	3.47	9.45 35.14
98 4 27~98 6 1	259.0	4.86	9.8	3.60	2.03	3.85	0.33	2.05	0.67	2.29	2.32	6.41 23.55
98 6 1~98 6 29	917.8	4.65	10.0	20.35	4.60	7.40	0.67	1.49	0.70	6.03	5.41	19.89 66.54
98 6 29~98 8 3	276.8	4.73	14.7	5.10	2.45	6.62	0.33	1.38	0.85	3.02	4.13	9.50 33.38
98 8 3~98 8 31	112.1	4.69	18.9	2.31	1.80	3.17	0.24	1.88	0.68	2.14	2.02	5.26 19.51
98 8 31~98 9 28	169.1	4.49	20.3	5.41	1.21	2.12	0.25	2.88	0.98	2.14	1.80	7.95 24.74
98 9 28~98 11 2	237.5	5.66	5.7	0.52	2.27	1.36	0.33	2.00	0.97	2.09	1.34	3.01 13.90
98 11 2~98 11 30	12.0	6.09	42.3	0.01	0.88	0.65	0.41	1.28	0.38	1.25	0.53	1.53 6.93
98 11 30~98 12 28	1.8	5.89	43.8	0.00	0.19	0.07	0.05	0.21	0.06	0.18	0.09	0.24 1.09
98 12 28~99 2 1	40.5	4.91	29.7	0.49	2.28	1.43	0.21	2.58	0.83	2.85	1.04	3.44 15.15
99 2 1~99 3 1	49.3	4.94	32.9	0.57	3.68	2.32	0.31	2.81	1.07	4.31	1.39	4.69 21.15
99 3 1~99 3 29	147.6	5.16	13.9	1.02	1.50	4.82	0.44	4.51	0.91	1.71	2.21	6.80 23.92
年間合計	2494.8			43.27	25.64	39.76	4.05	28.52	9.05	30.77	25.75	78.20 285.01

a) 毎週月曜日午前9時に交換

* 現熊本県環境生活部廃棄物対策課

表2 ろ過式採取のろ液によるイオン成分降下量(人吉市, 1998年度)

採取期間 ^{a)} 年月日	降水量 mm	pH	EC $\mu\text{S}/\text{cm}$	イオン成分降下量, meq/m ²								月間 合計
				H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	
98 3 30~98 4 27	340.9	4.78	11.7	5.63	2.63	5.71	0.39	4.24	1.03	3.99	3.11	9.90 36.63
98 4 27~98 6 1	314.7	4.64	12.0	7.27	1.73	3.53	0.27	2.36	0.90	2.94	2.25	8.80 30.06
98 6 1~98 6 29	793.6	4.93	6.0	9.32	4.06	4.35	0.41	0.80	0.73	4.73	3.59	9.09 37.07
98 6 29~98 8 3	181.6	4.88	11.0	2.39	1.46	2.72	0.26	1.33	0.49	1.64	1.59	4.85 16.73
98 8 3~98 8 31	26.0	4.78	14.6	0.43	0.49	0.09	0.18	0.38	0.18	0.37	0.24	1.01 3.37
98 8 31~98 9 28	112.0	4.82	14.4	1.68	1.44	2.05	0.27	1.10	0.54	2.19	0.85	3.98 14.12
98 9 28~98 11 2	258.2	5.35	5.3	1.17	2.01	1.14	0.20	1.34	0.88	2.06	0.90	2.81 12.49
98 11 2~98 11 30	41.8	4.63	27.4	0.98	1.71	1.18	0.20	1.70	0.61	2.21	0.86	2.80 12.23
98 11 30~98 12 28	27.5	5.13	13.1	0.20	0.60	0.65	0.08	1.19	0.33	0.65	0.45	1.45 5.60
98 12 28~99 2 1	35.9	5.37	30.8	0.15	2.03	1.26	0.18	3.78	0.73	2.55	0.97	3.64 15.30
99 2 1~99 3 1	56.8	4.68	31.8	1.18	3.59	2.23	0.27	2.99	1.33	4.14	1.33	4.81 21.86
99 3 1~99 3 29	185.8	4.82	16.2	2.79	1.58	4.39	0.37	4.42	0.96	2.07	2.32	9.00 27.90
年間合計	2374.8			33.19	23.32	29.30	3.06	25.63	8.72	29.55	18.46	62.14 233.38

a) 毎週月曜日午前9時に交換

表3 降水中の年間イオン成分降下量の推移

地点 年度	降水量 mm	pH	EC $\mu\text{S}/\text{cm}$	イオン成分降下量, meq/m ²								年間 合計
				H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	
阿蘇町	1991	3729.9	4.61	18.4	90.58	47.35	70.02	8.62	31.31	11.47	77.10	34.00 160.30
	1992	1861.2	4.55	24.4	52.42	39.08	41.04	5.42	58.36	13.51	72.71	21.88 104.14
	1993	4452.6	4.75	13.7	79.80	49.56	45.48	5.76	48.36	15.00	93.00	32.04 138.00
	1994	1190.8	4.71	18.9	22.92	22.20	27.12	5.40	30.60	7.92	32.88	16.92 64.80
	1995	2637.2	4.89	14.3	34.22	39.53	68.74	7.34	37.54	13.95	56.69	29.55 101.49
	1996	2540.6	4.75	14.6	45.64	39.14	52.83	4.60	30.38	12.17	52.57	28.15 91.86
	1997	3383.9	5.02	10.0	32.45	41.50	49.80	8.51	37.18	18.49	52.19	31.00 83.70
	1998	2494.8	4.76	12.6	43.27	25.64	39.76	4.05	28.52	9.05	30.77	25.75 78.20
人吉市	1991	2968.0	4.59	18.6	76.26	46.87	42.45	5.58	32.93	10.69	83.45	22.06 114.05
	1992	1791.1	4.75	16.8	31.54	37.28	30.99	6.30	31.72	10.01	50.73	15.51 71.79
	1993	4076.3	5.15	8.5	28.80	57.24	38.52	5.28	39.96	15.00	75.36	22.80 80.16
	1994	1337.5	4.94	14.8	15.48	39.96	23.16	5.04	22.20	9.72	44.52	15.24 51.00
	1995	2842.4	4.92	13.6	34.38	60.69	50.74	6.09	41.64	12.82	76.91	24.94 92.83
	1996	2233.3	5.01	13.9	21.98	68.33	50.01	9.36	29.86	13.36	76.51	24.41 70.00
	1997	2889.7	4.87	11.1	38.86	44.24	32.90	4.27	28.36	13.68	50.59	23.55 71.15
	1998	2374.8	4.85	10.7	33.19	23.32	29.30	3.06	25.63	8.72	29.55	18.46 62.14

3 イオン成分降下量

イオン成分の年間降下量は、阿蘇町で285.01meq/m²、人吉市で233.38meq/m²であった。

各イオン成分降下量の多い時期をみると、阿蘇町では6月が66.54meq/m²と最も多く、次いで4月、7月の順であった。また人吉市では6月が37.07meq/m²と最も多く、次いで4月、5月の順であった。

8年間の年間降下量を比較すると、1998年度は阿蘇町のH⁺を除いて少ない傾向を示した。

4 イオン成分間の相互関係

両調査地点における各イオン成分間の相関係数(以下、「r」と記す。)は表4に示すとおりであった。rが

0.9以上のイオン成分対は、阿蘇町においてNa⁺とCl⁻(r=0.968), NH₄⁺とNO₃⁻(r=0.965), NO₃⁻とSO₄²⁻(r=0.945), H⁺とSO₄²⁻(r=0.942)であった。また、人吉市においてNH₄⁺とSO₄²⁻(r=0.973), Na⁺とCl⁻(r=0.953), NO₃⁻とSO₄²⁻(r=0.951), NH₄⁺とNO₃⁻(r=0.942), NH₄⁺とK⁺(r=0.915), NO₃⁻とH⁺(r=0.904)であった。これより、H⁺降下量に対して、阿蘇町ではSO₄²⁻が、また人吉市ではNO₃⁻が高い相関性を示した。

本調査において、多大なご協力をいただいた熊本県阿蘇保健所、熊本県人吉保健所、並びに熊本県環境生活部環境保全課の皆様に深謝いたします。

表4 阿蘇町と人吉市におけるイオン成分間の相関係数

	H ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
H ⁺		0.652	0.696	0.692	-0.096	0.076	0.755	0.831	0.942
Na ⁺	0.567		0.642	0.669	0.212	0.549	0.968	0.713	0.731
NH ₄ ⁺	0.783	0.544		0.724	0.354	0.380	0.638	0.965	0.872
K ⁺	0.750	0.647	0.915		0.340	0.330	0.668	0.747	0.777
Ca ²⁺	0.059	0.251	0.546	0.394		0.672	0.126	0.213	0.187
Mg ²⁺	0.307	0.712	0.571	0.545	0.693		0.494	0.358	0.323
Cl ⁻	0.677	0.953	0.692	0.733	0.379	0.759		0.734	0.802
NO ₃ ⁻	0.904	0.677	0.942	0.896	0.380	0.510	0.772		0.945
SO ₄ ²⁻	0.841	0.561	0.973	0.895	0.545	0.601	0.713	0.951	

右上：阿蘇町 左下：人吉市 (n=2, r=0.708 (p<0.01), r=0.576 (p<0.05), r=0.494 (p<0.10))

文 献

- 1) 今村 修, 久保 清: 熊本県衛生公害研究所報, **19**, 53 (1989).
- 2) 今村 修, 植木 肇: 熊本県衛生公害研究所報, **22**, 46 (1992).
- 3) 今村 修, 植木 肇: 熊本県衛生公害研究所報, **23**, 48 (1993).
- 4) 木庭亮一, 今村 修, 植木 肇: 熊本県保健環境科学研究所報, **24**, 54 (1994).
- 5) 木庭亮一, 今村 修, 植木 肇: 熊本県保健環境科学研究所報, **25**, 69 (1995).
- 6) 木庭亮一, 今村 修, 上野一憲, 植木 肇: 熊本県保健環境科学研究所報, **26**, 80 (1996).
- 7) 上野一憲, 木庭亮一, 植木 肇: 熊本県保健環境科学研究所報, **27**, 95 (1997).
- 8) 上野一憲, 北岡宏道, 植木 肇: 熊本県保健環境科学研究所報, **28**, 87 (1998).

8) 熊本県下における放射能調査（平成10年度）

木庭 亮一 上野 一憲 北岡 宏道* 福島 宏暢 植木 肇

はじめに

熊本県では平成元年度より科学技術庁の委託を受け環境放射能水準調査を実施している¹⁾。平成10年度の調査結果を取りまとめたので報告する。

調査方法

調査対象は前年度と同様である²⁾。測定方法は「放射能測定調査委託実施計画書（平成10年度）」（科学技術庁）及び既報¹⁾に基づいて行った。測定装置は次のとおりである。全β放射能はGM式β線測定装置（アロカJDC-163），ガンマ線核種分析装置はGe半導体検出器（EG&G ORTEC GEM-15180P）及び波高分析装置（SEIKO EG&G MCA7700），空間線量率はモニタリングポスト（アロカMAR-15）及びシンチレーション式サーベイメータ（アロカTCS-151）をそれぞれ用いた。

調査結果

平成10年度は1683.0mmの降水（定時降水）があり，81試料の全β放射能を測定した。降水試料中の全β放射能調査結果を表1に示した。全β放射能濃度はND～1.9Bq/ℓ，全β放射能月間降下量はND～11MBq/km²であり，過去3年間と同程度であった。

ゲルマニウム半導体検出器による核種分析測定を9試料31検体について行った。測定結果を表2に示した。人工放射性核種としては降下物，茶，土壤及び日常食から¹³⁷Csが検出された。降下物は平成4年度以来の検出であったが，全国で測定されている値と同レベル内にあった³⁾。他の茶，土壤及び日常食については過去3年間の値と同程度であった。

モニタリングポスト及びサーベイメータによる空間放射線量率測定結果を表3に示した。結果は過去3年間の値と同程度であった。

表1 定時降水中の全β放射能調査結果（調査地点：宇土市）

採取年月	降水量 (mm)	測定数 (回)	放射能濃度		月間降下量 (MBq/km ²)
			最低値 (Bq/ℓ)	最高値 (Bq/ℓ)	
平成10年 4月	212.9	13	ND	ND	ND
5月	163.1	9	ND	ND	ND
6月	567.3	12	ND	1.9	11
7月	170.7	8	ND	ND	ND
8月	39.3	4	ND	ND	ND
9月	109.3	5	ND	ND	ND
10月	183.5	11	ND	ND	ND
11月	12.8	1	ND	ND	ND
12月	25.2	3	ND	ND	ND
平成11年 1月	23.5	4	ND	ND	ND
2月	35.7	5	ND	ND	ND
3月※	139.7	6	ND	ND	ND
年間値	1683.0	81	ND	1.9	ND～11
前年度までの過去3年間の値	266		ND	4.6	ND～21

（注）ND：不検出（測定値が計数誤差の3倍未満）

※：3月19日～3月30日までGM管交換のため欠測

* 現熊本県環境生活部廃棄物対策課

表2 ゲルマニウム半導体検出器による核種分析測定結果

試料名	調査地点	採取年月	検体数	¹³⁷ Cs		前年度までの過去3年間の値		単位
				最低値	最高値	最低値	最高値	
大気浮遊じん	宇土市	10年4月～11年3月	4	ND	ND	ND	ND	mBq/m ³
降下物	宇土市	10年4月～11年3月	12	ND	0.11	ND	ND	MBq/km ²
陸水(上水 蛇口水)	宇土市	10年6月及び10年12月	2	ND	ND	ND	ND	mBq/ℓ
土壤(0～5cm)	西原村	10年7月	1	58 (1300)	57 (1700)	78 (1900)	Bq/kg乾土 (MBq/km ²)	
(5～20cm)	西原村	10年7月	1	17 (1200)	9.6 (640)	19 (1300)	Bq/kg乾土 (MBq/km ²)	
精米	合志町	10年10月	1	ND	ND	ND	Bq/kg精米	
野菜(大根)	合志町	10年6月	1	ND	ND	ND	Bq/kg生	
(ホウレン草)	合志町	10年6月	1	ND	ND	ND	Bq/kg生	
茶	御船町、上村	10年5月*	2	ND	0.27	ND	0.58	Bq/kg乾物
牛乳	合志町	10年8月及び11年2月	2	ND	ND	ND	ND	Bq/ℓ
日常食	熊本市、富合町	10年6月及び10年12月	4	ND	0.067	ND	0.055	Bq/人・日

(注) ND: 不検出(測定値が計数誤差の3倍未満), *: 御船町は4月

表3 空間放射線率測定結果

測定年月	モニタリングポスト (cps)			サーベイメータ (nGy/h)
	最低値	最高値	平均値	
平成10年4月	9.2	17.6	10.0	46
5月	9.2	13.1	9.9	41
6月	9.0	16.2	10.2	44
7月	9.0	19.0	9.9	38
8月	9.1	12.6	9.8	38
9月	9.3	13.4	10.2	41
10月	9.3	14.3	10.1	42
11月	9.4	14.4	10.3	45
12月	9.4	13.1	10.2	44
平成11年1月	9.3	15.3	10.2	46
2月	9.3	17.8	10.2	45
3月	9.2	15.5	10.2	42
年間値	9.0	19.0	10.1	38～46
前年度までの過去3年間の値	8.9	19.8	10.1	39～46

測定地点: 宇土市(モニタリングポスト), 合志町(サーベイメータ)

まとめ

平成10年度の熊本県における放射能調査結果は、環境試料中の放射能及び空間線量率とともに全国で測定されている値と同レベル内にあった³⁾。また、過去3年間の値と同程度であった。

本調査にあたり、試料提供に御協力いただきました熊本県農業センターの農産園芸研究所、茶業研究所、球磨農業研究所及び畜産研究所、並びに熊本県こころの医療センターの関係各位に深謝いたします。

文 献

- 1) 上野一憲、塘岡穰、久保清: 熊本県衛生公害研究所報, 20, 55 (1990).
- 2) 木庭亮一、塘岡穰、上野一憲、北岡宏道、植木肇: 熊本県保健環境科学研究所報, 28, 90 (1998).
- 3) 科学技術庁: 第41回環境放射能調査研究成果論文抄録集(平成10年度).

9) 流域形態に伴う水温の差異と指標生物の群集構造

小田 泰史 久保 清

はじめに

水温は水生生物の生理的要因として最も重要な生息要因である。しかし、川の底生動物の分布域と水温との関係についての報告は少ない。その理由として、多地点の水温を比較するためには同時測定が原則となる。更に、日変化や季節変動を知るためにには多大な労力が必要となる。古くはブユの分布域のあらゆる生息環境を調査する目的で加茂川の多地点同時調査が行われている¹⁾。河川に生息する底生動物は流下に伴う水質(栄養条件)と密接に関係し、流程に対する分布域を持っている^{2), 3)}。

すなわち、底生動物の基本的な分布域を決定する要因は、生理的要因として最も重要な水温、溶存酸素及び栄養条件を規定する流域形態であり、流域の起伏によって確立していると考えられる^{3), 4)}。この流域形態「起伏」に伴う水温差と指標生物の群集構造との関係について、1990年より1999年までの10年間のデータを用いて考察したので報告する。

調査方法

1 底生動物

「川の水環境調査」として環境基準点など33地点について、1990年より1999年までの10年間、毎年1回10月下旬から11月上旬にかけて調査した結果を用いて解析を行った⁴⁾。この解析に用いた底生動物の分類群は特定の25種の指標生物^{4), 5)}、群集構造には多様性指数として下記に示すShannonの指数を用いた。

$$DI(H') = -\sum (ni/N) \log_2 (ni/N)$$

ni：個々の指標種の個体数、N：総個体数

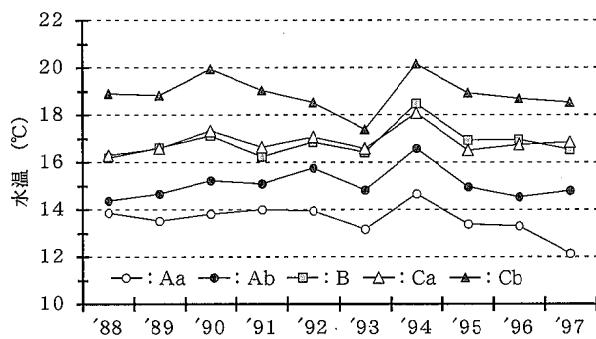


図1 流域形態ごとの水温の経年変化

2 流域形態

底生動物の調査を実施した地点の流域に関連する地形的要因として、本川長、全河川長、流域面積、流域高度、地点高度及び流域平均勾配の6変量を地図上から算出し、流域形態の本質的な質量を抽出する手段として主成分分析を用いて解析した結果を用いた⁶⁾。この解析結果から得られた流域形態は下記の5区分で、その特徴を示す⁴⁾。

Aa：渓流域

Ab：山間流域

B：山間流域から平地流域

Ca：流域規模の大きい平地流域

Cb：流域規模の小さい平地流域

3 水温

現在、河川の水質調査を行っている環境基準点など計93地点のデータを環境保全課水保全対策室より提供していただいた。このうち生物調査を実施している地点、流域形態でAa：5地点、Ab：6地点、B：9地点、Ca：5地点及びCb：8地点の計33地点の1988～1997年までの10年間のデータを用いた。

結果及び考察

1 流域形態別水温の経年及び季節変化

各地点の年平均水温を求めた後、流域形態別に平均値を算出し、流域形態ごとの水温の経年変化を図1に示した。また、各地点の10年間の月別平均水温を求めた後、流域形態別に平均値を算出し、流域形態ごとの水温の月変動を図2に示した。

流域形態Aaの年平均水温は12.1～14.7°Cの範囲で推移した。月別変動は1月が最も低く7.5°C、8月が

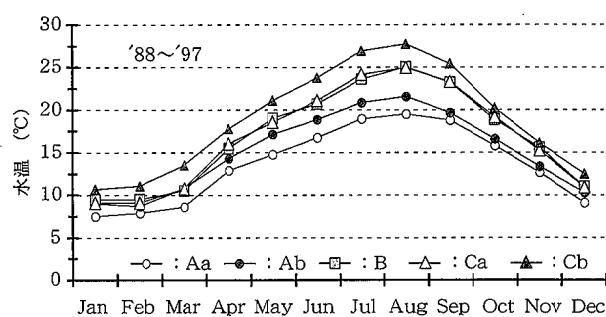


図2 流域形態ごとの水温の月変動

最も高く19.5°Cであった。他の流域形態と比較して明らかにAa: 溪流域の水温は低く、10年間の平均水温は13.6°Cであった。

Abの年平均水温は14.4~16.6°Cで推移し、月別変動は2月が最も低く8.7°C、8月が最も高く21.9°Cで、10年間の平均水温は15.1°Cであった。

BとCaの経年変化及び月別変動の水温差は小さく、年平均水温は16.2~18.5°Cの範囲で推移し、月別変動は1,2月が最も低く、それぞれ9.5, 9.1°C、8月が最も高く25.0°Cであった。BとCaの10年間の平均水温は、それぞれ16.8, 16.9°Cと差はなかった。

Cbの年平均水温は17.4~20.2°Cで推移し、月別変動は1月が最も低く10.7°C、8月が最も高く27.7°Cであった。他の流域形態と比較してCb: 流域規模の小さい平地流域、すなわち上流域に溪流域を有しない小河川の平地の水温は明らかに高く、10年間の平均水温は18.9°Cであった。

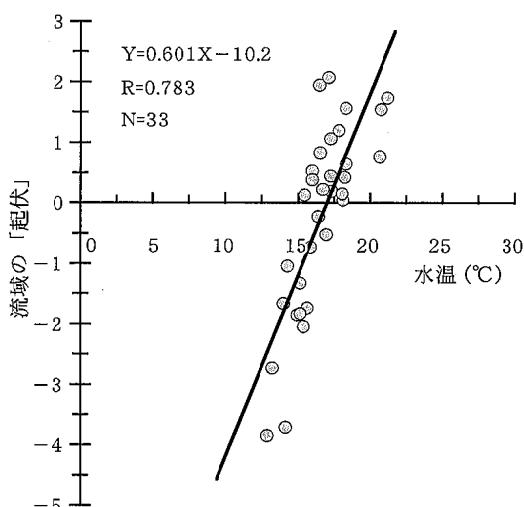


図3 流域の起伏と水温の関係

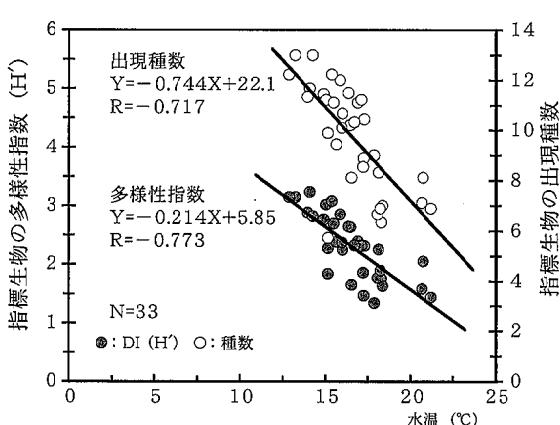


図4 水温と指標生物の出現種数・多様性との関係

また、底生動物の分布域は流域の「起伏」と水質の2軸の環境傾度に関係していることから⁵⁾、流域の「起伏」と水温との関係を図3に示した。「起伏」は地形的要因として6変量を用いて主成分分析の結果得られたスコアを用い⁶⁾、水温は各地点の10年間の平均値を用いた。流域の「起伏」は水温との相関係数がR = 0.783と良いことから、底生動物の水温での分布域を明らかにすることは可能と考えられる。

この様に流域形態に伴って川の水温には差があることが明らかになった。流域形態「起伏」は人間活動を制約する³⁾。すなわち、流域の土地利用は森林、田畠、市街地など状況が異なるので、この水温の差には水質汚濁の影響も加味されていると考えられる。

ちなみに、図1に示すように1994年の全国的な渇水はAaの溪流域の水温にも影響を与えていた。

2 生物学的指数と水温との関係

水温と指標生物の出現種数及び多様性指数との関係を図4に示した。出現種数と多様性指数⁴⁾及び水温は各地点の10年間の平均値を用いた。

水温と指標生物の出現種数、多様性指数との相関係数は、それぞれR = -0.717, R = -0.773と良い結果が示された。したがって、水温がより低く、流域の「起伏」がより激しい溪流域で出現種数が多くなり、群集の多様度が大きくなることが明らかとなった。

まとめ

- 各流域形態の10年間の平均水温はAaが13.6°C, Ab 15.1°C, B16.8°C, Ca16.9°C及びCb18.9°Cと水温に差があることが明らかになった。
- 水温がより低く、流域の「起伏」がより激しい溪流域で出現種数が多く、群集の多様度が大きくなることが明らかとなった。

文 献

- 可児藤吉：可児藤吉全集全一巻, p.405, (株)思索社, (1970).
- 渡辺直：香川生物, 13, 1 (1985).
- 小田泰史, 杉村継治：全国公害研会誌, 16, 141 (1991).
- 小田泰史, 久保清：全国公害研会誌, 25, 62 (2000).
- 小田泰史, 杉村継治, 久保清：用水と廃水, 34, 10 (1992).
- 小田泰史, 杉村継治：全国公害研会誌, 15, 169 (1990).

10) 寺池の水質特性

今村 修 小田 泰史 幸 健 村岡 俊彦* 山崎 文雅
 策 俊郎** 上本 清次*** 木野 世紀*** 久保 清

はじめに

球磨郡須恵村にある寺池は、近隣の人々に親しまれた湧水池であった。しかし、近年生活排水や農業排水が流入し、水質の悪化や土砂の堆積、葦の繁茂など環境の悪化が目立つようになったことから、須恵村は隣接する免田町との共同事業で、国の補助を受け浄化対策を行ってきた。

寺池における浄化対策の効果を確認するとともに、寺池の水質特性について調査を行った。平成10年度から調査を実施しているが、ここでは主として11年度の調査結果について報告する。

調査地点の概要

調査地点概略図を図1に示す。寺池は、上池と下池に分かれているが、上池の水は湧水のみで、排水の直接流入ではなく、直径27cmの管を通して下池に流下している。下池では、湧水のほか須恵村からの排水の一部が接触酸化水路を通して下池に流入しており、さらに、須恵村及び免田町側水路からの漏水も認められる。また、下池の水は、生活用水路に流入するようになっている。免田町からの排水の一部は接触酸化水路を通

り、側水路を通ってきた水と一緒に排水路に流入する。

上池には砂利が敷かれていて、珪藻類や緑藻類が繁茂している。一方、下池は土砂が堆積しており、主として緑藻類が繁茂し、オグラコウホネなどの水草が生育し、魚が放流されている。

調査及び分析方法

調査時期は、球磨地区農業用用水路管理目安による田植え期、中干し期から間断灌漑期にかけての期間並びに落水期にあたる時期を選定し、平成10年度、平成11年度ともに年3回実施した。採水は、図1に示す採水地点において、それぞれ1日3回(昼、夕、朝)行い、pH、EC、DO、COD、BOD、SS、T-N、T-P、chl.aを分析した。

pHは東亜電波工業HM-60V、ECは堀場製作所DS-60、chl.aはアセトン抽出・吸光法で、その他の項目は、JISに準じて分析した。

また、平成11年度は、下池においてYSI製水質自動測定器Model6920(以下、「水質モニター」と記す。)を設置し、12時から翌日の11時まで1時間ごとにpH、EC、DO、濁度、水温の24時間連続測定を行った。

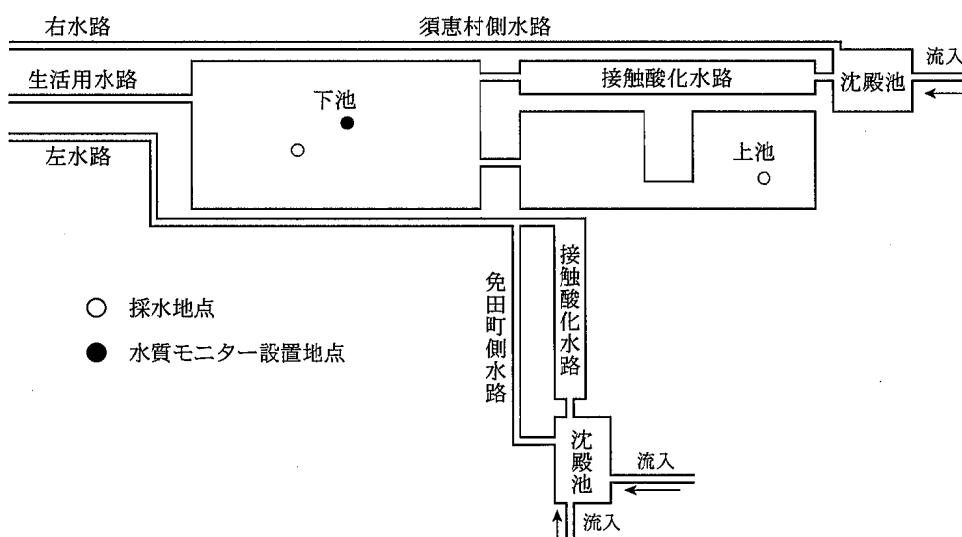


図1 調査地点概略図

* 現熊本県水産研究センター

** 現熊本県健康福祉部薬務課

*** 現熊本県天草地域振興局保健福祉環境部

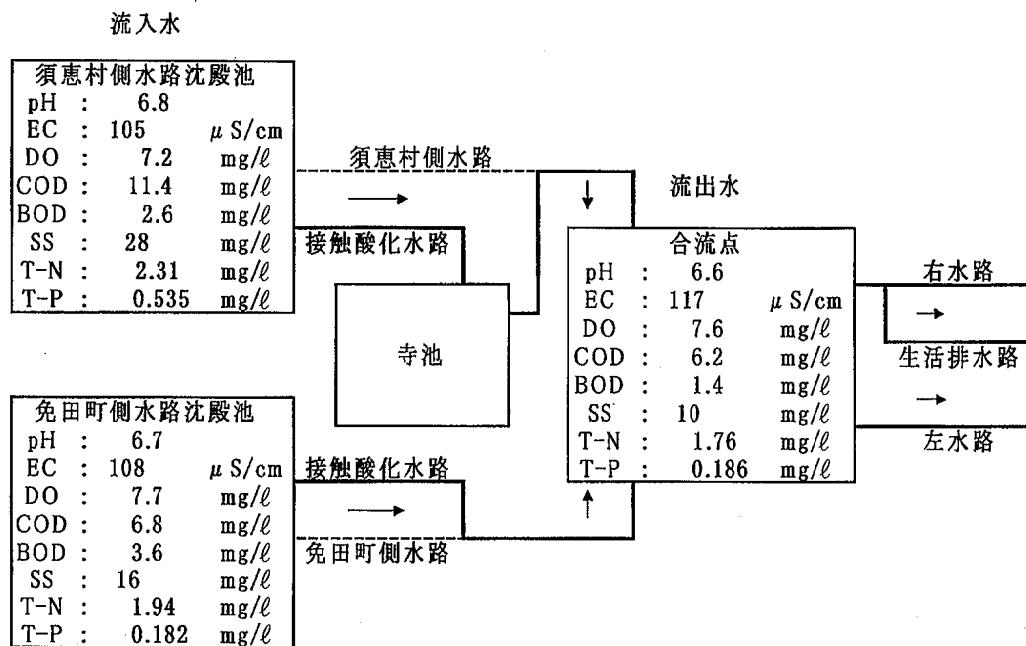


図2 流入水と流出水の平均水質 (平成10年6月)

表1 水質調査項目の基本統計量

	気温 ℃	水温 ℃	pH	EC $\mu\text{S}/\text{cm}$	Cl^- mg/ℓ	DO mg/ℓ	COD mg/ℓ	BOD mg/ℓ	SS mg/ℓ	T-N mg/ℓ	T-P mg/ℓ	Chl.a $\mu\text{g}/\ell$
平均	21.3	19.6	6.2	131	4.6	4.8	0.93	0.21	0.4	1.21	0.030	0.90
中央値	23.0	20.0	6.1	130	4.6	4.4	0.80	0.05	0.1	1.23	0.023	0.15
標準偏差	5.2	0.7	0.1	3	0.1	0.9	1.03	0.33	0.7	0.11	0.026	1.35
上池 変動係数%	24.2	3.7	2.0	2.3	2.7	19.5	110.1	162.0	162.0	9.0	86.5	150.0
最小	12.8	18.5	6.0	127	4.4	3.5	0.05	0.05	0.1	1.04	0.017	0.001
最大	27.5	20.5	6.4	136	4.8	6.6	3.5	1	2	1.42	0.099	3.70
標本数	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9

	気温 ℃	水温 ℃	pH	EC $\mu\text{S}/\text{cm}$	Cl^- mg/ℓ	DO mg/ℓ	COD mg/ℓ	BOD mg/ℓ	SS mg/ℓ	T-N mg/ℓ	T-P mg/ℓ	Chl.a $\mu\text{g}/\ell$
平均	21.3	21.8	6.3	131	5.3	7.3	1.4	0.32	3.2	1.35	0.053	2.42
中央値	22.0	22.2	6.3	131	4.9	7.9	1.4	0.05	2.0	1.35	0.033	2.09
標準偏差	5.2	2.0	0.1	5	0.8	1.1	1.1	0.44	2.9	0.22	0.053	1.78
下池 変動係数%	24.6	9.3	1.1	3.7	15.8	14.6	77.3	136.2	88.8	16.2	99.7	73.5
最小	12.8	19.2	6.3	126	4.6	5.7	0.05	0.05	1.0	1.11	0.016	0.52
最大	27.5	24.5	6.5	137	7.3	8.3	4.0	1.1	10	1.82	0.187	5.14
標本数	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9

調査結果及び考察

平成10年6月調査時の寺池における流入水と流出水の平均水質を図2に示す。なお平成10年度は須恵村側水路、寺池からの流出水、免田町側水路が一旦合流していたため、図1の概略図とは少し異なっている。

pHは、須恵村及び免田町からの流入水の平均がそれぞれ6.8及び6.7であったのに対し、合流後は6.6と低くなった。ECは、流入水がそれぞれ108 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 、105 $\mu\text{S}/\text{cm}$ だったものが、流出水で117 $\mu\text{S}/\text{cm}$ と高くなった。COD、BOD、SS、T-Nについては、流出水

でそれぞれ低下がみられた。これらの水質を、採取時期は異なるが後述する下池の水質と比較すると、流出水の各成分濃度は流入水と下池の濃度の中間的な値になっている。

このことから、流出水の水質には接触酸化水路による浄化作用とともに寺池の湧水による希釈も大きく影響しているものと思われる。

平成11年の上池及び下池における水質調査結果の基本統計量を表1に示す。なお、定量下限値未満の値については、定量下限値の1/10を用いて計算を行った。

表2 水質調査項目間の相関係数

上池									
	水温	pH	EC	Cl ⁻	DO	COD	T-N	T-P	
pH	-0.73								
EC	0.76	-0.73							N = 9 R = 0.65 (p = 0.05)
Cl ⁻	0.38	-0.50	0.21						R = 0.78 (p = 0.01)
DO	-0.60	0.91	-0.69	-0.53					
COD	-0.31	0.59	-0.07	-0.42	0.58				
T-N	-0.79	0.77	-0.77	-0.22	0.70	0.57			
T-P	-0.40	0.69	-0.17	-0.34	0.67	0.95	0.66		
Chl.a	0.80	0.91	-0.65	-0.49	0.91	0.64	0.79	0.75	

下池									
	水温	pH	EC	Cl ⁻	DO	COD	SS	T-N	T-P
pH	0.80								
EC	0.32	-0.33							N = 9 R = 0.65 (p = 0.05)
Cl ⁻	-0.08	0.17	0.04						R = 0.78 (p = 0.01)
DO	0.44	-0.22	-0.04	0.05					
COD	-0.56	0.85	-0.27	-0.11	-0.45				
SS	-0.38	0.73	-0.20	0.44	-0.43	0.79			
T-N	-0.65	0.83	0.21	0.06	-0.38	0.79	0.64		
T-P	-0.62	0.93	-0.28	0.24	-0.35	0.93	0.90	0.80	
Chl.a	-0.76	0.85	-0.67	0.17	-0.33	0.73	0.70	0.54	0.80

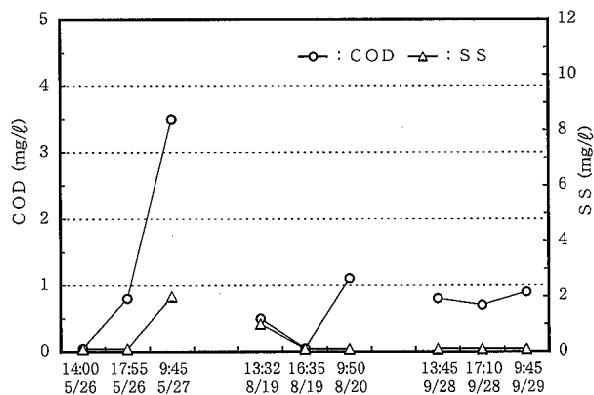


図3 上池におけるCOD, SSの変化

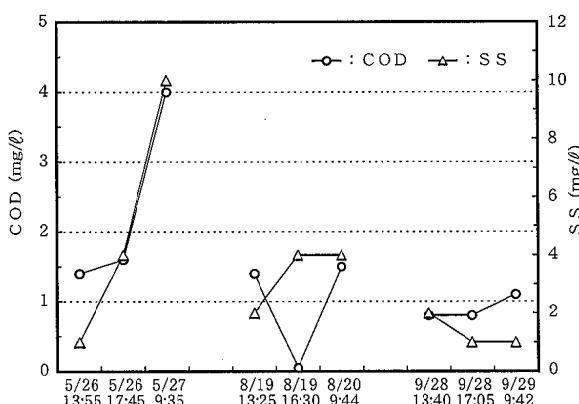


図4 下池におけるCOD, SSの変化

上池の水温は、平均19.6°Cと低く、また変動も極めて少ないことから、湧水の影響を強く受けているものと思われる。一方、下池では、変動も大きく、気温や流入水等の影響を受けているものと考えられる。pHは、上池で平均6.2（最低6.0～最高6.4、以下、同様に示す。）と低い値を示すとともに、変動も少なかった。下池でも上池と同様低い値を示し、変動も少なかった。ECは、上池、下池とも平均131 μS/cmを示し、変動もほぼ同様であった。

DOは、上池と比較して下池で高い値を示した。藻類や水草の光合成により一般的に日中はDOが高くなることが考えられる。上池においては光合成の影響を受けるものの比較的湧水の影響が強いのに対し、下池では上池でのDO上昇に加え、下池でもさらに光合成がおこることなどからDOが高くなったものと思われる。COD、BOD、T-Pは、上池に比べ下池でやや高いものの、その値自体は低いものであった。T-Nは、上池で平均1.21mg/l (1.04~1.42mg/l), 下池で平均1.35mg/l (1.11~1.82mg/l) と下池でやや高い値を示したが、すべて農業用水基準である1 ppm (1 mg/l) を超えるものであった。SSは上池で平均0.4mg/lと低い値を示した。下池では平均3.2mg/lと上池と比較して高く、下池においては堆積している底泥の影響を受けているものと思われる。chl.aは、上池で0.90mg/l であったのに対し、下池で2.42mg/lと高く、上池で剥離した藻類の影響や内部生産によるものと思われる。

表2に、上池及び下池における各測定項目間の相関

表3 水質モニターによる24時間連続測定結果の概要 (下池, N=24 平成11年9月)

	水温 ℃	pH	EC $\mu\text{S}/\text{cm}$	DO mg/ℓ	濁度 NTU
最大	22.2	6.33	132	9.2	8.2
最小	19.0	6.29	125	4.6	2.6
平均	19.9	6.31	126	6.1	3.6

表4 水質モニターによる24時間連続測定結果間の相関係数 (平成11年9月)

	水温	pH	EC	DO
pH	0.27		N=24	R=0.65 (p=0.05)
EC	0.44	0.38		R=0.51 (p=0.01)
DO	0.97	0.16	0.35	
濁度	0.05	-0.27	-0.08	0.10

係数を示す。なお、上池のBOD及びSS、並びに下池のBODについては定量下限値以下の値が多かったため、解析の対象から外している。

pHとDOについては、上池で高い相関を示しているのに対し、下池では相関が見られなかった。上池では光合成によるCO₂の消費及びDOの増加がおこり、pHも高くなったものと思われる。一方、下池では、上池及び下池の湧水と接触酸化水路を通った須恵村側からの流入水が混入しているほか、須恵村及び免田町側水路からの漏水も含まれているため、相関が低かったと考えられる。図2に示すように、平成10年度の調査で、須恵村側流入水のpHは平均6.8、DOは平均6.7mg/l、免田町側流入水のpHは平均6.6、DOは平均6.5mg/lとなっており、流入水のpH及びDOは上池の値より高くなっている。

下池においては、SSとCOD、SSとT-P、CODとT-N及びCODとT-P間の相関が高くなっている。下池では流入水のSSに伴ってCOD、T-N、T-Pが変動しているものと思われる。このことから水質浄化にはSS除去対策が重要で、接触酸化水路の管理とともに沈殿池に堆積した土砂の抜き取りなどが必要と考えられる。

図3に上池の、図4に下池の平成11年度におけるCODとSSの日変化を示す。上池、下池とも5月の調査時に日変動が大きく、8月及び9月調査時の日変動は小さかった。上池への直接的な排水流入はないが、5月の代かき、田植え期には降雨が重なったこともあり、水稻耕作作業の影響が多少あったものと思われる。下池では、須恵村側の接触酸化水路処理水が流入するため、さらに影響が大きく、SSが大きく変動したものと考えられる。

調査期間中晴天の続いた平成11年9月の下池における水質モニターによる測定結果の概要を表3に、同測

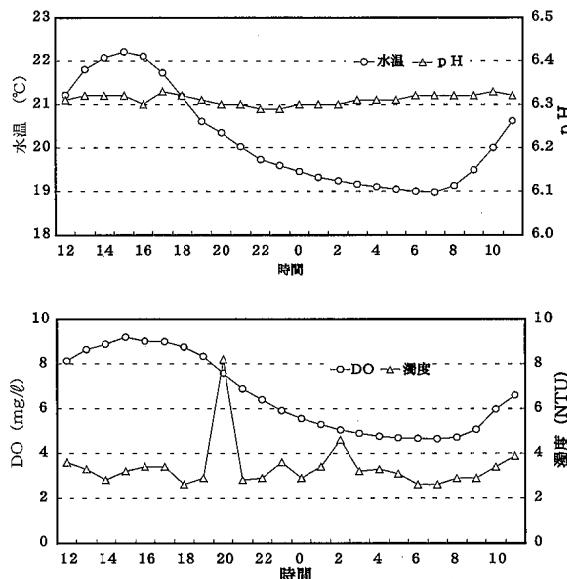


図5 水質モニターによる24時間連続測定結果の時間変化 (平成11年5月)

定項目間の相関係数を表4に、同測定結果の時間変化を図5に示す。

水温は、15時に最高の22.2°Cを示した後次第に低くなり、夜明け期の7時に最低の19.0°Cとなっている。pH及びECの変動は少なかったが、DOは水温と同じく15時に最高の9.2mg/lを示し、朝の7時に4.6mg/lの最低を示し、両者間の相関係数も0.97と高かった。これは、日中太陽光が強くなると水温が上昇するとともに藻類などは光合成を起こし、酸素を発生してDOが高くなり、逆に、夜は水温は低下し、光合成が起こらないことから藻類などの呼吸作用により酸素が消費され、DOも低下したものと思われる。

また、濁度は20時の8.2NTUを除けば、2.6~4.6NTUと低く安定していた。5月及び8月の調査時は、濁度の変動が大きかったが、これは調査途中に雨が降ったため流入水の影響を受けたことによるものと思われる。

まとめ

接触酸化水路による水質浄化能力については、寺池の湧水による希釈もあり、はっきりとは分からぬ状況であった。しかし、SSの除去対策を徹底すれば、COD、T-P等の水質浄化が期待され、接触酸化水路を含め沈殿池の管理が重要と思われる。

上池、下池ともpHが低く、変動が少なかった。また、T-Nは、上池、下池とも農業用水基準を超えており、これらは上池の湧水の特性を表したものと思われる。pHが低いことから起る金属類の溶出等も含め、今後湧水そのものの調査も必要と思われる。

11) SPMD（半透膜捕集装置）による海域中の極微量化学物質モニタリングの可能性

村岡 俊彦* 久保 清

はじめに

過去30年近くにわたって、行政機関による河川、湖沼、海域等水環境の水質モニタリングが継続的に行われてきた。これら長期的なモニタリングデータは、水環境の現状と今後の課題を把握する上での基礎となるものである。

海域における有害化学物質に関しても同様のモニタリングが行われてきたが、海水中の濃度が極微量であるために多くの場合、検出限界以下で報告されおり、海域環境の現状・課題の把握という観点からすると現状では不十分である。特に、日本人の場合海産物を摂食する割合が高いことから、海域における有害化学物質の濃度レベルには関心が払われるべきである。

以上のような観点から、海域における有害化学物質濃度レベルの地域的・経年的濃度変動を可能な限り把握しておくことが望ましい。しかし、極微量濃度の分析は、分析機関にかなりの労力とコストを要求するものである。このことから、モニタリングの負担を軽くするため、簡便・低コストかつ有効に海水中の極微量有害物質を監視できるモニタリング手法が求められる。

そこで、これらの問題点を解決する手法として、パッシブサンプラーによるモニタリングについて検討を行った。パッシブサンプラー（以下、「サンプラー」と省略する。）を用いた場合、極微量濃度の有害化学物質モニタリングが簡便に行えることに加えて、通常の水質分析と異なりその地点の累積濃度を測定しているため、濃度の時間的平均値が得られる利点がある。さらに、生物濃縮の簡易モデルとなり得る可能性も期待される。

Huckin等により開発されたSPMD¹⁾ (semipermeable membrane devices: 半透膜捕集装置) は脂溶性の化学物質を簡便に捕集できるサンプラーである。

我が国ではSPMDに関する報告例は未だ見られていないが、米国等では新規なモニタリング手法としてかなり検討されており^{2~7)}、化学物質モニタリング用のサンプラーとして最も有望なものである。

今回、実際にSPMDを作成し、海水中に極微量濃度レベル pg/ℓ で存在するポリ塩化ビフェニル(PCB)を対象としたモニタリングを行い、SPMDによるPCB濃縮能力、捕集PCB濃度の経時変化について検討した

ので報告する。

方 法

1 SPMDの作成方法及び設置条件

$40\mu\text{m}$ の低密度ポリエチレンの袋 ($34\text{cm} \times 5\text{cm}$) にトリオレン 0.4g を注入した。袋全体にトリオレインを行き渡らせた後、両端をシールした。Huckin等が用いたSPMD¹⁾ は長さが 80cm もあるために取り扱いづらい点があり、また低密度ポリエチレンの厚みが $80\mu\text{m}$ であるために捕集速度が遅い³⁾ため、今回は、 $1/3$ 程度の長さとし、膜厚も $1/2$ のものを作成した。

作成したSPMDはジクロロメタン中での約24時間振とうを2回繰り返すことで低密度ポリエチレン中の不純物を除去した。SPMD中に浸透したジクロロメタンをドライフラット中で揮散させた後、乾燥器中約 30°C にて乾燥させた。

SPMDの装置図を図1に示した。網袋（網目約 $3 \times 3\text{mm}$ ）にナイロン糸で約 8cm 間隔の仕切を作り、各仕切の間にSPMDを1ヶずつ入れた。網袋中のSPMDは計5~6個とした。この網袋をさらに浮き付きの網袋（網目約 $1\text{cm} \times 1\text{cm}$ ）に3袋入れ、浮き付き網袋の一端はロープを用いてアンカーに繋いだ。次いで、このモニタリング装置を海水中に設置した。この際、アンカーはロープを用いて沿岸に固定した。設置場所の水深は満潮時で $5 \sim 7\text{m}$ 程度である。

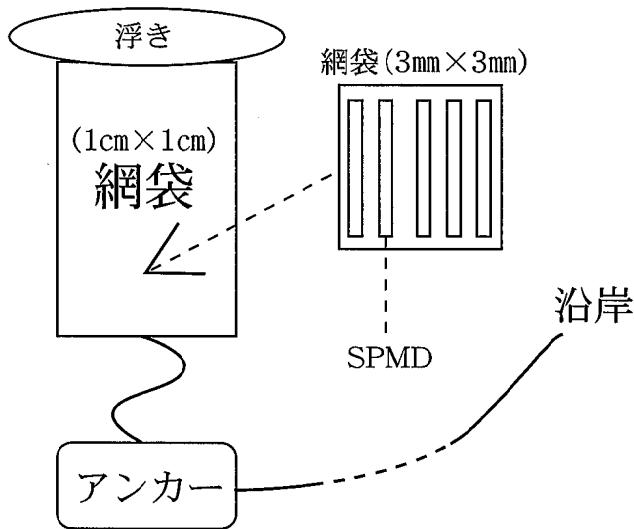


図1 SPMD装置図

* 現熊本県水産研究センター

2 SPMDに捕集されたPCBの分析方法

回収後、SPMD表面の付着物をメタノール/水(1:1)を浸したキムワイプによりふき取った。ジクロロメタン100mlに3個のSPMDを浸し、約24時間振とう抽出を行った。この操作を2回繰り返した。抽出液をエバポレーターで濃縮後、窒素気流下で溶媒を揮散させた。残渣はヘキサン5mlに溶解させた。以降の操作はほぼ底質調査方法と同様に、加熱アルカリ分解を行った後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより抽出液をクリーンアップした。ただし、カラムにはシリカを10g詰め、50~450mlのヘキサン分画を分取し、最終的には0.2mlのヘキサン溶液とした。

測定は2重収束型のGC/MS(JMS600)を使用し、SIMモードで行った。GC及びMS条件は表1及び表2に示した。標準液としてKC-300, 400, 500, 600等量混合液であるPCB混合標準液0.1mg/l(トータル濃度)を使用した。定量はCB%⁸⁾の大きな(0.7%以上、9塩素化物のみ0.2%)43本のピークについて行った。本来はサロゲート化合物を添加して補正を行うことが望ましいが、今回は行っていない。結果は、サンプラー1個当たりに換算したPCB濃度ng/個とした。

3 モニタリング地点・期間

1999年11月に大矢野町1号橋付近にSPMDを設置した。その後、10日、37日、107日間毎にSPMDを3個ずつ回収した。

表1 GC条件

・注入温度: 250°C
・イオン源、インターフェイス温度: 240°C
・カラム昇温条件: 70°C (2 min) - 30°C/min - 170°C - 5°C/min - 300°C (10min)
・キャビラリカラム: HP-5 (30m, 0.32mm, 0.25μm)
・キャリヤガス流量: 1.985ml/min

表2 MS条件

塩素数	定量イオン	確認イオン
2	222.0	224.0
3	256.0	258.0
4	289.9	291.9
5	325.9	323.9
6	359.8	361.8
7	393.8	395.8
8	429.8	427.8
9	461.7	463.7

結果及び考察

1 SPMDのPCB濃縮能力

10, 37, 107日間設置したSPMDに濃縮されたPCBの異性体毎の濃度を図2に示した。この場合、GC/MS測定時の液量0.2mlに濃縮した際の濃度として表示している。また、比較のためにPCB0.1mg/l標準液の各異性体濃度を示した。設置後10日の短期間でSPMDによる試料液濃度は既に標準液と同等以上であった。このことからSPMDは、1週間程度の設置により、十分測定可能な濃度レベルまでPCBを濃縮する能力を有することが分かった。

2 SPMDにより捕集されたPCBの異性体分布

図3に各設置期間の間にSPMDが捕集したPCB及び標準液0.1mg/lの異性体分布を示した。設置日数が長くなるほど、より高塩素化物の割合が高くなる傾向が見られ、107日間設置後の異性体分布は、標準液に概ね近いものの、より高塩素化物の割合が多い分布となっていた。これは、高塩素化物の方がオクタノール/水分配係数が大きいため、SPMD捕集濃度が高くなることによるものであり、実際の海水中PCB濃度は、理論上SPMDの結果をオクタノール/水分配係数で割った値に相当する³⁾。従って、実際の海水中の異性体分布は、SPMDの結果よりも低塩素化物の割合が多いと考えられる。

3 SPMDにより捕集されるPCB濃度の経時変化

図4にSPMDにより捕集されたPCB濃度の経時変化を示した。3, 4塩素化物は37日目までに、ほぼ一定濃度に到達した。一方、5, 6, 7塩素化物の場合は、107日目においても一定値に到達する傾向が見られず、設置期間中、ほぼ直線的に濃度が増加した。結果として、トータルPCB濃度も、設置期間中直線的な増加を示した。理論上、SPMDの捕集速度の律速段階²⁾は、低密度ポリエチレン中を分子が透過する際の速度である。そこで、塩素数による経時変化の挙動の差は、塩素数が増すにつれ分子サイズが大きくなり、透過速度が低下する^{1), 2)}ことに起因するものと推察された。

今回の結果から、全塩素数のPCB濃度が一定値に到達するには、かなりの長期間を要することが分かった。このような長期間設置は実用的ではないため、実際にモニタリングを行う場合は一定値到達前にSPMDを回収することになるであろう。この場合、潮の流れ、温度等の条件により、各塩素数のPCBに対するSPMDの捕集速度が、どの程度変化するのかを室内実験等で把握する必要がある。

まとめ

今回の結果から、10日間程度の設置により、SPMDは十分分析可能なレベルまで海水中のPCBを濃縮する能力があることが分かった。今後は、適切な設置期間の検討を行い、定量的なモニタリング方法を確立していく必要がある。また、SPMDはPCB以外の化学物質についても十分な捕集能力を有しているため、より幅広い化学物質についてモニタリングの可能性を検討することが望まれる。

謝辞

本研究において、地下水科学室小笠康人研究参事には、GC/MSの操作に関して多大なるご指導、ご協力を頂きました。ここに深謝致します。

文 献

- 1) Huckin, J.N., Tubergen, M.W. : Chemosphere., 20, 533 (1990).
- 2) Huckin, J.N., Manuweera, G.K. and Lebo, J.A. : Environ. Sci. Technol., 27, 2489 (1993).
- 3) Hofelt, C.S. and Shea, D. : Environ. Sci. Technol., 31, 154 (1997).
- 4) Peven, C.S. and Querzoli, F.J. : Environmental Toxicology and Chemistry, 15, 144 (1996).
- 5) Meadows, J.C. and Huckin, J.N. : Environ. Sci. Technol., 32, 1847 (1998).
- 6) Gale, R.W. : Environ. Sci. Technol., 32, 2292 (1998).
- 7) Wang, Y., Wang, Z., Liu, J. and Ma, M. : Chemosphere Chem. Biol. Toxicol. Relat. Environ. Probl., 39, 113 (1999).
- 8) 環境庁水質保全局水質管理課：外因性内分泌擾乱化学物質調査暫定マニュアル（水質、底質、水生生物），p.1 (1998).

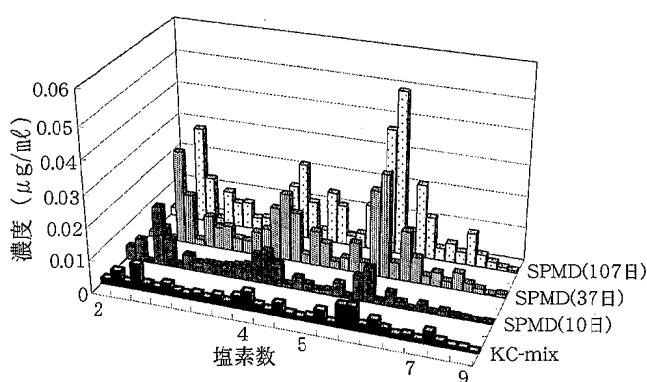


図2 SPMDにより捕集されたPCB濃度

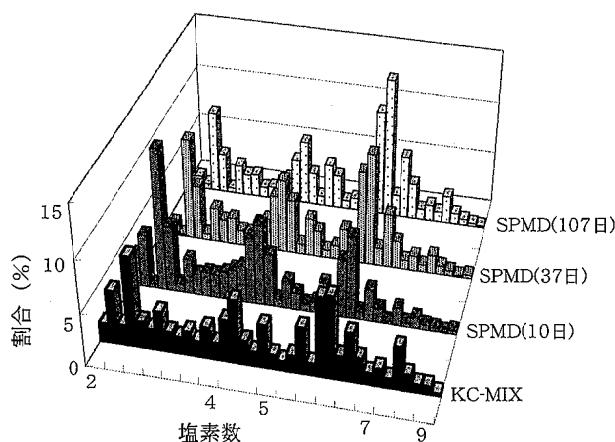


図3 SPMDにより捕集されたPCBの異性体分布

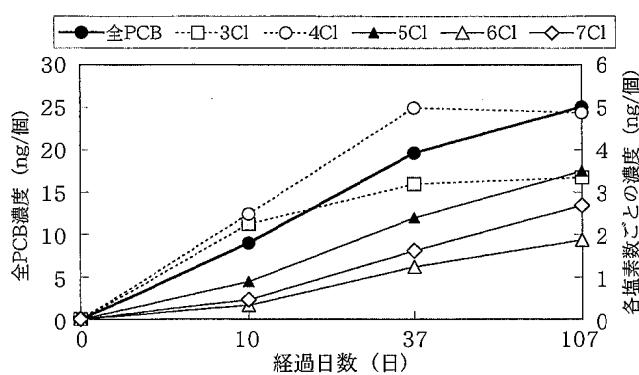


図4 SPMDにより捕集されるPCB濃度の経時変化

12) 宮野河内湾における微量元素調査

村岡 俊彦* 山崎 文雅 久保 清

はじめに

宮野河内湾では近年貝毒プランクトン（渦鞭毛藻類 *Gymnodinium catenatum*, *Alexandrium catenella*）が発生し、これによるマガキ等二枚貝の毒化が確認されている。Fe, Mn, Co等の海水中の溶存態微量元素は、植物プランクトンの種類によっては増殖促進作用が認められており¹⁾、赤潮発生条件の要因となる可能性も指摘されている。このため、通常行われている窒素、リン等の栄養塩類の調査に加えて、溶存態微量元素濃度を調査することは貝毒プランクトンの発生原因を解明する上で必要と考えられる。

しかし、これら海水中の溶存態微量元素濃度は極めて低濃度であり、採水容器や分析過程からのコンタミネーション等のためその分析はかなり困難を要する。この様な理由で、1998年度から微量元素用パッシブサンプラー（以下、「サンプラー」と呼ぶ。）を検討してきた²⁾。このサンプラーの中には、微量元素捕集機能を有する高分子樹脂が入っており、調査地点に約2ヶ月程度設置しておくことで捕集された金属量からその地点の溶存態微量元素濃度を評価することができる。サンプラーを用いた場合、潮汐、潮流等により時間的に変動する溶存態微量元素濃度の時間平均値に対応した海水中の溶存態微量元素モニタリング結果が得られる等の利点がある。

そこで、今回このサンプラーを用いて宮野河内湾の溶存態微量元素濃度調査を実施した。

方 法

1 サンプラーによるモニタリング方法

サンプラーは5×3 cmのプランクトンネットNXX 13（オープニング98 μm）の袋にキレート樹脂（20～50メッシュ）約0.1gを封入したものを作成した。これを網袋（編み目約2×2 cm）にいれロープで海水中に固定した。設置約2ヶ月後にサンプラーを回収し、既報²⁾に従って分析を行った。

測定した元素はPb, Cd, Zn, Cu, Ni, Co, Fe, Mn, Alの9元素である。測定機器はジャーレルアッシュ社製ICP発光・質量分析装置POEMSを用いた。

測定結果は最終的に樹脂乾燥重量当たりの微量元素

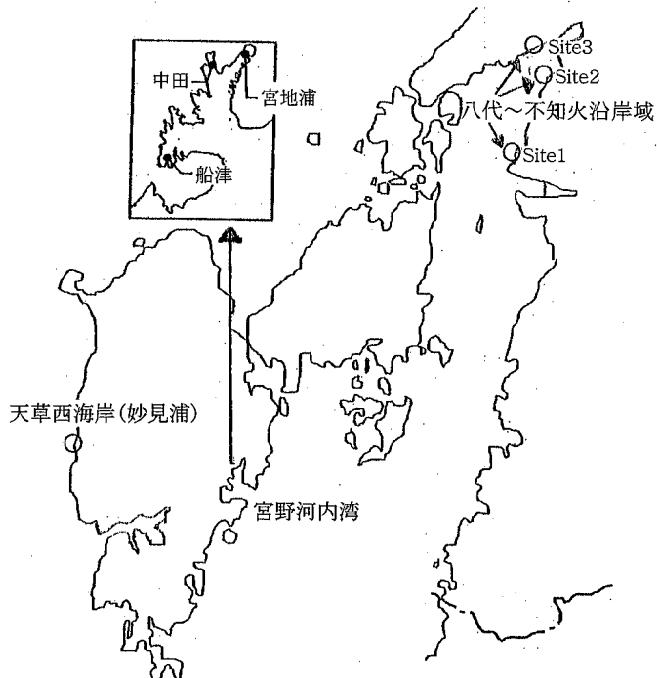


図1 調査地点

捕集量 $\mu\text{g/g dry}$ に換算した。調査は各地点につき3個のサンプラーを設置・回収し、その平均値を調査結果とした。

2 調査地点及び時期

図1に示した宮野河内湾の中田、船津、宮地浦の3地点にて調査を行った。サンプラーは各地点の海面下約3 mの表層に設置した。宮地浦についてはこれに加えて海底より約2 m上の底層にも設置した。

第1回調査は1999年10月12日から12月13日にかけて、第2回調査は12月13日から2000年2月16日にかけて実施した。また、今回の宮野河内湾における調査結果と比較するために、図1に示した八代～不知火沿岸域及び天草西海岸において1998年7月から約2ヶ月間にかけて実施したサンプラーによる調査結果を用いた。ただし、八代～不知火沿岸域のデータは図1のsite 1, 2, 3の調査結果の平均値である。

* 現熊本県水産研究センター

結果及び考察

1 他海域と比較した宮野河内湾の溶存態微量元素濃度

図2に宮野河内湾及び他海域の調査結果を示した。調査結果は、八代～不知火沿岸域のデーターを1として、他の結果はこれに対する比（規格値）として表示している。宮野河内湾の結果は第1回、2回調査の平均値である。

Pbを除くすべての溶存態微量元素で八代～不知火沿岸域より低い結果を示している。Cd, Cu, Ni, Coは、外洋の影響を受け溶存態微量元素濃度が低いと考えられる天草西海岸よりもさらに低い値を示しており、特にNi, Coが低かった。以上の結果から、宮野河内湾の微量元素濃度は他海域と比較して特に高くなではなく、むしろ幾つかの溶存態微量元素については他海域よりも低くなっている可能性が高い。宮野河内湾はかなり閉鎖的な湾であることから、河川・降雨等による微量元素の供給が少ない場合、吸着等による懸濁態への移行により、その海水中溶存態濃度が他海域と比較して低くなることが可能性の一つとして推測された。また、周辺地質の微量元素含有量及びその形態の影響も考えられる。

ただし、今回比較に用いた八代～不知火沿岸域及び天草西海岸における調査結果は夏期に実施したものであることから、今回の調査結果は次の2で述べるように溶存態微量元素濃度の季節変動等の他の因子の影響を受けている可能性がある。また、八代～不知火沿岸域及び天草西海岸の調査では、サンプラーを沿岸の石に直接固定することで設置した。よって、宮野河内湾で今回行った調査とはサンプラーの設置状況が異なるため、これにより何らかの影響を受けていることも可能性の一つとして考えられる。以上より今回の調査結果が宮野河内湾の地域特性であるかどうかの最終的な結論を得るためににはさらに調査データーの積み重ねが必要である。

Pb濃度が八代～不知火沿岸域よりも1.2倍（中田）～2.2倍（船津）程高くなっている。天草西海岸でも同様である（2.5倍）ことから、これは宮野河内湾の溶存態Pb濃度が高いことを意味するものではないものと考えられる。むしろ、河川水が流入し、底質の影響の可能性もある八代～不知火沿岸域は宮野河内湾及び天草西海岸とは溶存態Pbの存在状態が異なっており、これがサンプラーのPb捕集に影響しているものと推測される²⁾。

2 宮野河内湾の各地点における溶存態微量元素濃度の比較及び季節変動

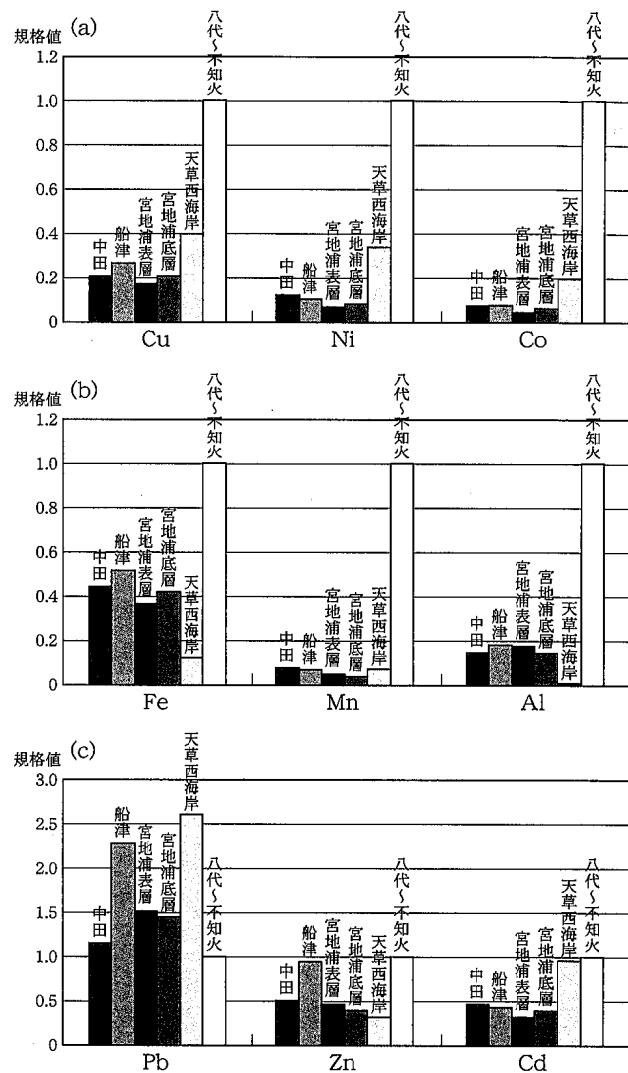


図2 他地域と比較した宮野河内湾内の溶存態微量元素濃度

図2より宮野河内湾において調査を実施した3地点中田、船津、宮地浦（表層）を比較するとほとんどの元素で地点間による大きな差は見られなかった。しかし、Feを中心とする多くの元素で宮地浦の調査結果がやや低くなる傾向が認められた。宮地浦の閉鎖性及び微量元素の供給量が他地点と異なっていることを反映しているものと推測された。各地点の調査結果の季節変動を示した図3から、多くの元素で第1回よりも第2回の調査結果の方が低くなる傾向が見られた。特にCoではすべての調査地点において第2回調査の方が1/2以下の結果を示しており明らかな季節変動が認められ、宮地浦の表層では1/10以下まで低下していた。

サンプラーで使用されているキレート樹脂の微量元素

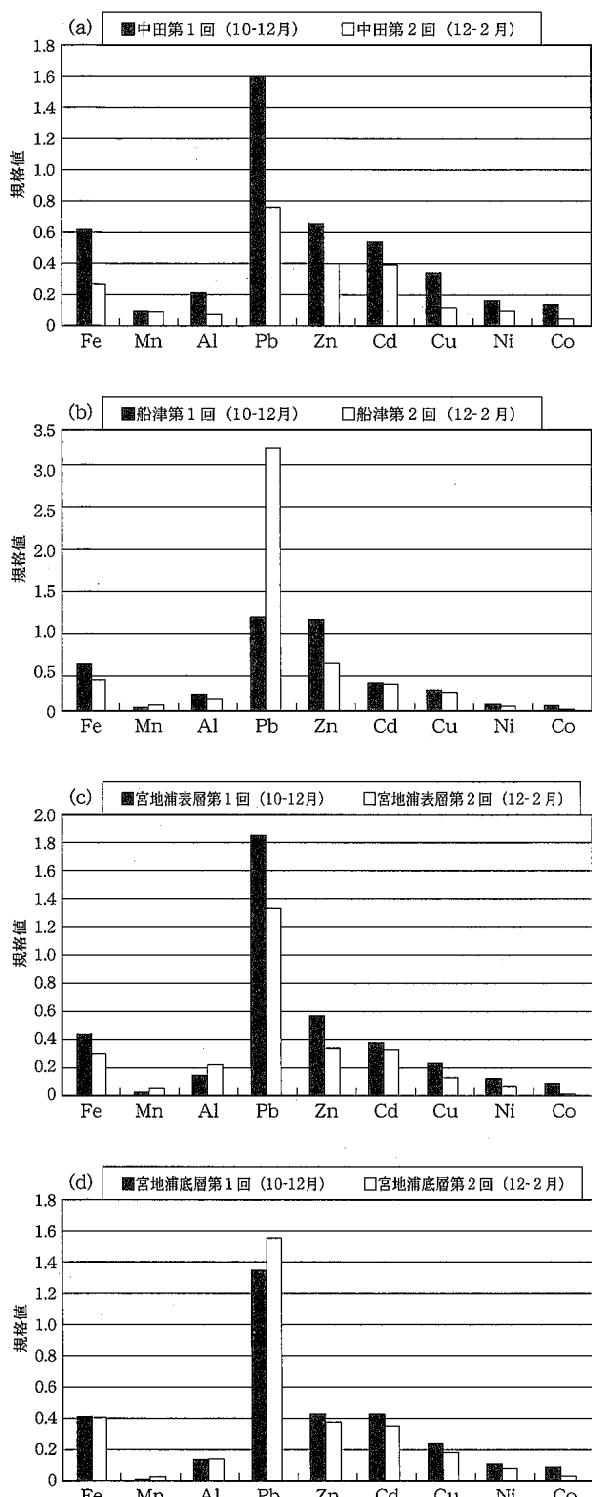


図3 宮野河内湾各調査地点の溶存態微量元素濃度の季節変動

捕集能力の温度依存性が影響していることも原因として考えられるが、この温度依存性は小さいことが報告³⁾されており、さらに一般的なキレート試薬の性質から考えるとキレート樹脂の捕集能力は温度の低下

によりむしろ向上することが予想される。これらのことから、今後の検討が必要ではあるが、宮野河内湾の各地点の溶存態微量元素濃度は恐らく季節変動をしており、特にCoではこの傾向が著しい可能性があるものと推測された。この様な季節変動の要因としては季節的な微量元素の供給量の変動そして閉鎖性水域であることからこの供給量の変動が直接影響しやすいこと及び水温低下により溶存態から懸濁態へ移行しやすくなることが考えられる。ただし、先に述べたようにこれが宮野河内湾の地域特性であるかは今後他海域の季節変動との比較を行って判断する必要がある。

3 表層、底層における溶存態微量元素濃度の違い

宮地浦については表層、底層の2ヶ所にサンプラーを設置し、水深による溶存態微量元素濃度の違いについて調査した。設置地点の水深は満潮時で約13mである。

図2、3より水深の違いによる影響は今回ほとんど認められなかった。これは、成層が解消し水深による水温差が小さくなる10～2月にかけて調査を行っていることによるものと考えられた。

まとめ

今回のサンプラーを用いた調査により、宮野河内湾の溶存態微量元素濃度は他海域と比較して特に高くはないものと考えられた。

なかでも、Ni、Co等の幾つかの元素では天草西海岸よりも低いという興味深い結果が得られた。ただし、今回の結果は宮野河内湾の閉鎖性及び微量元素供給源に起因することが可能性の一つとして考えられるが、溶存態微量元素濃度の季節変動及びサンプラーの設置方法の影響も考えられるため、他海域も含めた調査を更に行い、これが宮野河内湾の地域特性であるかを確認する必要がある。

宮野河内湾で調査を行った3地点のうち、宮地浦においてFe等の多くの元素で他の2地点よりも低い結果となる傾向が認められた。宮地浦の閉鎖性及び微量元素の供給量が他地点と異なっていることを反映しているものと考えられた。

文 献

- 日本地球化学編：“水汚染の機構と解析”，p.230 (1978)，(産業図書)。
- 村岡俊彦、久保清：熊本県保健環境科学研究所報，28, 50 (1998)。
- Wu, R.S.S. and Lau, T.C. : Marine Pollution Bulletin, 32, 391 (1996).

一般的にT-N/T-P比が10以下のT-N制限の状況でChl.a量は増加するが、荒瀬ダム湖の秋季～冬季において、T-Pは0.006～0.042mg/lと比較的少なく、淡水赤潮を形成する藍藻類など植物プランクトンを増殖させる状況にはないと考えられる。しかし、図3に示すように9月調査時のSt. 3とSt. 4では、低濃度ではあるがT-N/T-P比が10以下であること、10月にSt. 4でChl.aが22.4～23.4mg/lと増加したことから、春季～夏季に水温が上昇した場合St. 3, 4で淡水赤潮が発生する可能性があると考えられる。

また、プランクトンの調査において、St. 3, St. 4 でアオコ形成種で有毒化合物を生成する藍藻類の

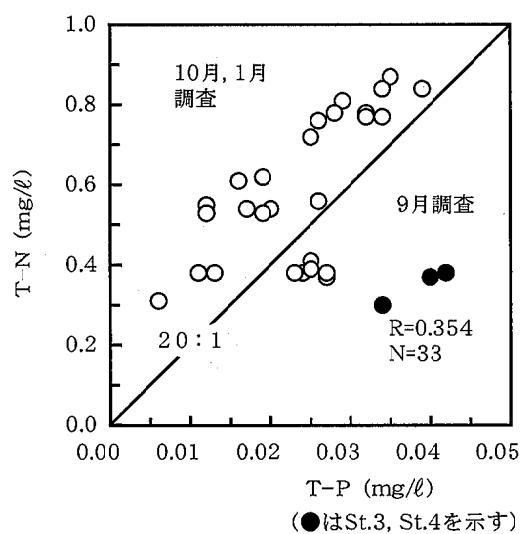


図2 荒瀬ダム湖におけるT-NとT-Pとの関係

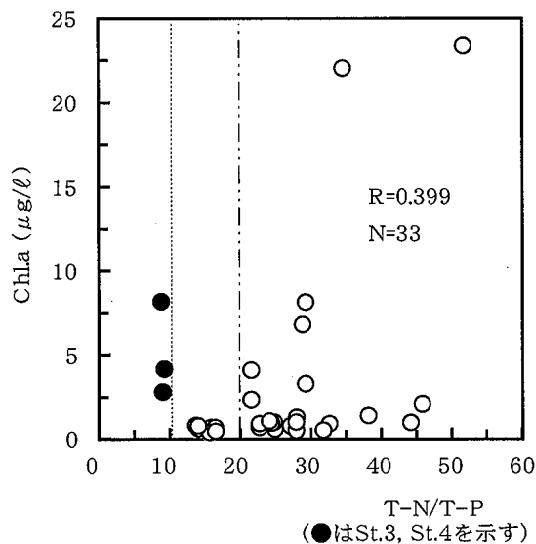


図3 荒瀬ダム湖におけるT-N/T-P比とChl.aとの関係

*Anabena*属や*Microcystis*属を確認したが、淡水赤潮の代表種である*Uroglena*属や*Perdinium*属は出現しなかった。

3 水質モニターによる調査地点の水質鉛直分布

9月における水質モニターによる水温鉛直分布を図4に示す。St. 1とSt. 2の表層と底層の水温差は各調査時とも1°C以内と鉛直方向にほぼ均一であることから、St. 1とSt. 2は、水質が均一化されていると考えられる。

また、St. 3 と St. 4 を約 2 m の水深で比較すると、St. 4 の水温が 0.4°C 低いことから St. 4 から St. 3 の底層の方に流入し、5 m の水深で St. 3 と St. 2 を比較すると St. 2 の方が 0.2°C 高いことから St. 2 から St. 3 の表層の方へ流入していたと思われる。また 9 月における EC 鉛直分布を図 5 に示す。この図からも St. 3 に比べ水温が高く EC の低い球磨川の流入水は表層に移動し、St. 3 に比べ水温が低く EC の高い St. 4 からの流入水は、底層に入り込んでいると思われた。また、12 月の調査からも同様の傾向が見られる。

図6に濁度鉛直分布を示す。St. 3に比べ水温の低いSt. 4からの流入水がSt. 3の底層に流れ込むことにより、微細な底泥が巻き上げられ水深が深くなると共に濁度の増加が見られたものと思われる。

10月の水温鉛直分布を図7に示す。St. 3とSt. 4を約2mの水深で比較するとSt. 4が0.4℃高いことからSt. 4からSt. 3の表層に流入し、St. 2とSt. 3を5mの水深で比較すると温度差がなく、温度差による流れは見られない。しかし、ECの測定結果よりSt. 3の表層はECが $121\mu\text{S}/\text{cm}$ 、底層では、 $85\mu\text{S}/\text{cm}$ と低い値であることから、ECの低い球磨川の水はSt. 3の底層に流入し、ECの高いSt. 4からの水はSt. 3の表層に流入したと考えられる。この事から、St. 3における水の動きは9月の調査とは逆になった。同様に、St. 3

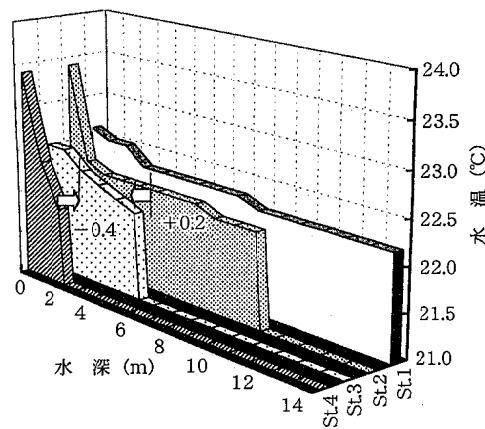


図4 荒瀬ダム湖水温鉛直分布（9月調査）

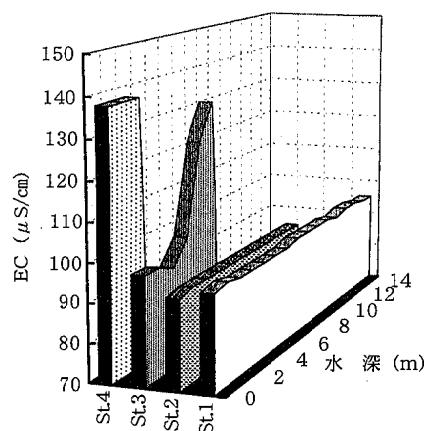


図5 荒瀬ダム湖EC鉛直分布（9月調査）

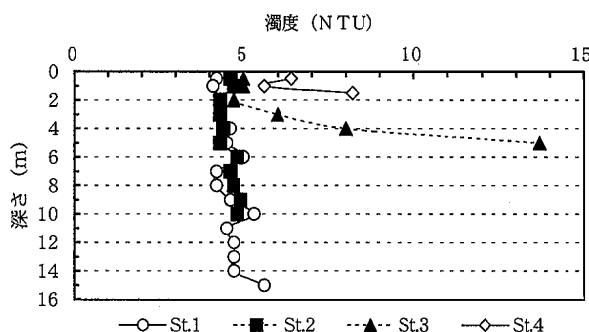


図6 荒瀬ダム湖濁度鉛直分布（9月調査）

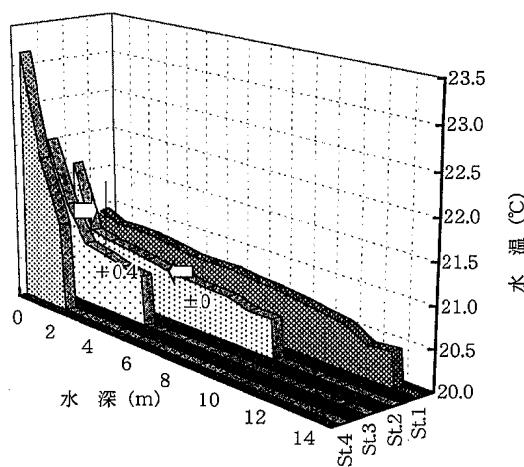


図7 荒瀬ダム湖水温鉛直分布（10月調査）

におけるECの鉛直分布も9月の調査とは逆のパターンとなった。

まとめ

- 秋季から冬季における荒瀬ダムのT-N/T-P比は10以上とT-P制限の状態である。T-Pは0.006~0.042 mg/lと比較的少なく、淡水赤潮を形成する藍藻類など植物プランクトンを増殖させる状況ないと考えられる。しかし、9月調査時のSt.3とSt.4では、低濃度ではあるがT-N/T-P比が10以下であること、10月にSt.4でChl.aが22.4~23.4 μg/lと増加したことから、春季~夏季に水温が上昇した場合、淡水赤潮が発生する可能性が考えられる。
- 流入河川のChl.aの濃度範囲は0.01~1.16 μg/lであるのに対して、荒瀬ダム湖St.1, St.2は0.28~4.12 μg/l, St.3, St.4は0.8~23.4 μg/lであり、植物プランクトンによる内部生産が確認された。その内部生産量はSt.4の方がかなり大きい。
- St.1とSt.2の表層と底層の水温差は各調査時とも1°C以内と鉛直方向にほぼ均一であることから、St.1, St.2の水循環は良好であり、水質が均一化されていると考えられる。St.3は球磨川のSt.2と百済来川のSt.4の水温の差によって、表層と底層の水の流れが異なり、その影響を受けてSt.3, 4では水の停滞と巻き上げ現象が生じ、水質の悪化が見られる巻き上げ時に植物プランクトンの異常発生が生じる可能性がある。
- 荒瀬ダムに流入する負荷量はBODで約4,690kg/日、SS, T-N及びT-Pは、それぞれ11,331, 3,575及び206kg/日となる。このように、有機物などが供給され、富栄養化などの水質悪化が懸念されるため、水質監視や富栄養化に伴う赤潮の発生状況調査は今後も必要であると考えられる。

謝辞

本報告書をまとめるのにあたり、ご助言・ご指導をいただきました東京農工大学大学院農学研究科 小倉紀雄教授、並びにダム湖のプランクトンの同定をしていただきました四日市大学環境情報学部 田中正明教授に深謝致します。

文献

- 古賀憲一、井前勝人、荒木宏行、久場隆宏、栗谷陽一、楠田哲也：用水と廃水, 30, 222 (1998).
- 中島淳：千葉県水質保全研究所年報(平成6年度), 51 (1994).
- 元田元：淡水赤潮、恒星社厚生閣, p.129 (1987).

3・3 誌上発表論文抄録

熊本県における放射能調査

木庭 亮一, 上野 一憲, 北岡 宏道*, 福島 宏暢, 植木 肇

科学技術庁：第41回環境放射能調査研究論文抄録集（平成10年度）

科学技術庁委託として平成10年度に実施した環境放射能水準調査結果について報告した。降水, 大気浮遊じん降下物, 陸水(蛇口水), 土壌, 精米, 茶, 牛乳, 野菜(大根及びホウレン草), 日常食及び空間放射能線量率について調査した結果, 環境試料中の放射能及び空間線量率ともに前年度と同程度のレベル内にあり, 特に異常は認められなかった。

* 現熊本県環境生活部廃棄物対策課

熊本県U町の硝酸性窒素による地下水汚染機構

廣畠 昌章*, 小笠 康人, 松崎 達哉*, 藤田 一城**, 松岡 良三, 渡辺 征紀***

日本地下水学会誌, 41, 291~306 (1999)

1989~94年に熊本県が行った地下水水質調査の結果, U町に地下水中の硝酸性窒素濃度の高い地点が多くみられた。このため, 1995~96年度に原因究明のための調査を行った結果, 調査地点を4つのグループに分類することができた。硝酸性窒素の供給源について考察した結果, 調査地点の大部分が含まれたグループの汚染は化学肥料の溶脱に起因すると考えられた。土地利用別土壌溶出液中の三態窒素濃度調査の結果, ハウス及び露地畑土壌により多くの硝酸性窒素が残留し, 地下深層まで達していた。U町の各窒素供給源からの地下への窒素浸透量を試算したところ, 畜産及び施肥からの窒素浸透量が大きく, 特に畑作物への施肥の影響が大きいものと推察された。

* 現熊本県環境生活部環境保全課, ** 現熊本県八代地域振興局保健福祉環境部,

*** 元保健環境科学研究所職員

ダイヤルインシステムによる
各部室への直通電話のご案内

(市外局番 0964)

総務課 (代) 23 - 5771

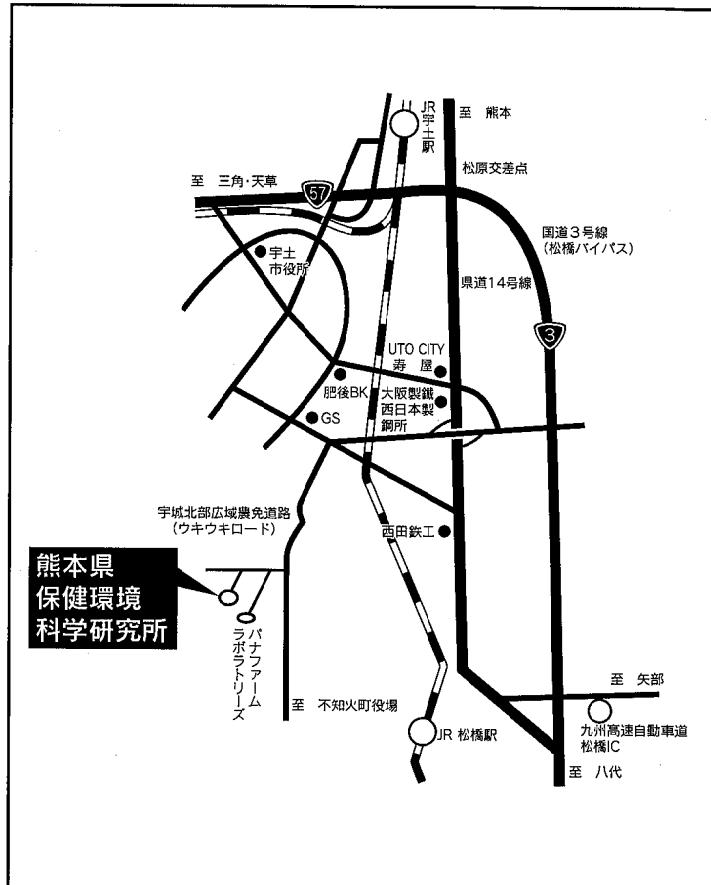
微生物科学部 23 - 5794

生活化学部 23 - 5795

大気科学部 23 - 5924

水質科学部 23 - 5936

地下水科学室 23 - 5948



平成11年度版 所報編集委員

委員長 橋本 朗

副委員長 山隈 憲二郎 久間 公一

委員 田中 ミチ子 田端 康二 杉村 千佳夫

上野 一憲 今村 修 永村 哲也

熊本県保健環境科学研究所報

平成11年度 第29号

1999

平成12年10月31日発行

編集発行 熊本県保健環境科学研究所

〒869-0425

熊本県宇土市栗崎町1240-1

TEL (0964) 23-5771 (代)

FAX (0964) 23-5260

印刷所 株式会社

熊本県上益城郡益城町古閑106

TEL (096) 286-2221