衛生化学
EISEI KAGAKU
25(2) 75-79 (1979)

京葉工業地帯地先の海域汚濁調査研究 (第2報)
汚濁指標項目の地点別, 季節的変動と赤潮発生時の挙動

山根靖弘, 坂井和男, 吹野秀亀, 小泉利明¹⁾
千葉大学薬学部¹⁾

Studies on the Survey of Sea Water Pollution along
the Seashore of Kei-yo Industrial Area. II.
Variations of Pollution Indicators at Each Sampling Station, with
the Lapse of Four Seasons and Behaviors of Them in Akashio

YASUHIRO YAMANE, KAZUO SAKAI,
HIDEKI FUKINO and TOSHIKI KOIZUMI¹⁾
Faculty of Pharmaceutical Sciences, University of Chiba¹⁾

(Received September 12, 1978)

Survey of sea water pollution along the seashore of Kei-yo industrial area (Chiba Prefecture) was carried out during 12 years from 1965 to 1976. Variations of pollution indicators at each sampling station with the lapse of four seasons and their behavior in Akashio (red tide), were examined. Maximum of sea water pollution was observed in the northeast Kei-yo industrial area. Seasonally, at summer, maximum of pH, COD, and SS, and minimum of $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, and $\text{PO}_4\text{-P}$, were observed. In Akashio, the value of COD increased remarkably and $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, and $\text{PO}_4\text{-P}$, decreased extremely.

Keywords—water pollution; pH; pollution indicator; COD; $\text{NH}_4\text{-N}$

緒 言

前報²⁾において, 昭和40年度より51年度までの12年間における京葉工業地帯海域の汚濁に関する調査研究のデータを提示し, 主として経年変化を観察して, 過去から現在までの汚濁の推移と将来の予測を行った. 本報告では, 微視的に地点別の特徴と, 季節的な変動について考察すると共に, 測定項目のCOD, $\text{NH}_4\text{-N}$ および $\text{NO}_2\text{-N}$ を中心にそれぞれの相関性を求め, さらに赤潮発生中の汚染物質の挙動についても検討したので報告する.

1. 実験方法

1-1. 試料の採取方法と測定地点³⁾

第1報に示すとおりである.²⁾

1-2. 分析方法

第1報に示すとおりである.²⁾

2. 結果および考察

2-1. 地点別汚濁の特色

各地点別におけるCOD, $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ および $\text{PO}_4\text{-P}$ の12年間の総平均を比較し, Fig. 1のA-Dに示した.

ついで各項目別に説明を加える.

1) COD CODの各地点別の総平均をFig. 1のAに示した. すなわち, 総平均で最も高い値を示したのはSt. 2で昭和電工旭硝子湾であり, 総平均5.10 ppmである. この湾の沿岸は最も早く工場が立地された地域で, 化学工場が多く, その汚濁物質の排出量が多いためと推定される. つぎにCODの総平均値が高いのはSt. 3の4.58 ppmである. 最低はSt. 7の3.37 ppmである. 第1報²⁾に示したとおり, 51年度にはほとんどの地点が

1) Location: Yayoi-cho, Chiba-shi (千葉市弥生町1-33).

2) 山根靖弘, 坂井和男, 吹野秀亀, 小泉利明, 衛生化学, 24, 340 (1978).

3) St. 1: 村田川河口, St. 2: 昭電・旭硝子間, St. 3: 東電五井火力沖, St. 4: 養老川河口, St. 5: 宇部興湾, St. 6: 三井石油湾, St. 7: 出光湾, St. 8: 吾嬬製鋼湾.

Fig. 1. Mean Value at Each Sampling Station for 12 Years

A: COD, B: NH₄-N, C: NO₂-N, D: PO₄-P.

3—4 ppm となり、浄化の傾向にある。なお、対照地点の白浜では約 1 ppm である。

2) **NH₄-N** NH₄-N の地点別の総平均を Fig. 1 の B に示した。総平均で最も高いのは COD と同様に St. 2 であり、2.34 ppm である。つぎに高値を示している地点は St. 1 の 1.45 ppm、ついで St. 3 の 0.92 ppm である。これも市原市北東部において高い。全測定値の中で最も高いのは St. 5 における 19.20 ppm であり、異常に高い値が出たが、その原因は明らかでない。NH₄-N の汚染源は、一つは工場排水であろう。アンモニアとその関連化合物製造における排液が問題となる。St. 2 においては工場排水が考えられる。また、他方、生活排水、し尿中にも窒素化合物が多く、その分解産物としての NH₄-N も汚染源として挙げられる。St. 1 は村田川などの生活排水およびその処理排水なども考えられよう。なお、対照地点の白浜では NH₄-N は約 0.05 ppm である。

3) **NO₂-N** NO₂-N の地点別の総平均を Fig. 1 の

C に示した。NO₂-N は St. 1 と St. 2 が最も高値を示した。すなわち、総平均値はそれぞれ 0.042 および 0.040 ppm であり、他の 6 地点は 0.027 と 0.031 ppm の間である。したがって、NH₄-N と同じように St. 1 および St. 2 が最も高い地点であった。このことから、NO₂-N と NH₄-N との相関はあるように思われる。NO₂-N の全測定値の中で最も高いのは St. 2 の 0.20 ppm であった。なお、対照地点白浜の NO₂-N は 0.003 ppm である。

4) **PO₄-P** PO₄-P の地点別の総平均を Fig. 1 の D に示した。PO₄-P は 48 年度からの測定値のみで、4 年間の総平均であるが、これも最も高いのは St. 2 の 0.54 ppm であり、ついで St. 3 の 0.41 ppm、St. 5 の 0.38 ppm である。St. 6、St. 7、St. 8 は 0.17—0.20 ppm でやや低い。PO₄-P も COD、NH₄-N などと同じように、St. 2 など北東部地域の方が多い。なお、白浜では 0.05 ppm 程度である。

地点別の汚濁の状況を観察すると、各項目で共通して言えることは、St. 2 がこれらの海域において最も汚濁度が高いことである。開発がこの方面から開始されているが、立地してから 10 年以上も経過しているので、今後の浄化対策が一段と望まれるわけである。

2—2. 季節的変動

PH、COD、NH₄-N、NO₂-N、PO₄-P および SS の季節的変動について Fig. 2 および Fig. 3 に示した。

1) **pH** 水質汚濁に係る環境基準値のうち、海域における pH の基準値の上限は 8.3 であるが、本海域ではこの値を上回することはしばしばである。とくに夏期に多い。pH の低い時期は秋期である。Fig. 2 に示したように、各地点での pH 総平均でみると、夏期に高いことが示されている。これは石井ら⁴⁾による報告の大阪湾内の傾向と一致した。平均で最も高い地点は St. 8 の pH 8.6 である。最も低い傾向にある地点は St. 2 であり、年間を通じて他の地点より低い。なお、St. 4 は年間の変動は少ないが、養老川の河川水の流入が原因であろうと推定される。

2) **COD** 各季節毎の COD の総平均を Fig. 3 の A に示したが、夏期に最も高くなる傾向がある。これは中井⁵⁾の報告による広島湾西部水域の傾向と一致した。また、橋口ら⁶⁾の報告によると鹿児島湾西部では春に最も高い傾向にあるようである。しかし、本調査では他の

4) 石井隆一郎、宇野源太、小田国雄、細川 守、福永 勲、大阪市立衛生研究所研究所報告、28, 101 (1966)。

5) 中井美代子、広島県衛生研究所同附属公害研究所業務年報、150 (1975)。

6) 橋口俊照、荒牧繁一郎、郡山宗晏、国生 保、奥園和光、中内孝雄、稲本信隆、川島月夫、鹿児島県公害衛生研究所報、10, 127 (1974)。

季節はいずれも同程度の値を示した。

3) $\text{NH}_4\text{-N}$ $\text{NO}_2\text{-N}$: 各季節毎の $\text{NH}_4\text{-N}$ および

Fig. 2. Seasonal Variation of pH at Each Sampling Station

○—○: St. 1, △—△: St. 2, △—△: St. 3, □—□: St. 4,
○—○: St. 5, △—△: St. 6, ▲—▲: St. 7, ■—■: St. 8,

Fig. 3. Seasonal Variations of Pollution Indicators

A: COD, B: $\text{NH}_4\text{-N}$, C: $\text{NO}_2\text{-N}$, D: $\text{PO}_4\text{-P}$, E: SS.

$\text{NO}_2\text{-N}$ の総平均を Fig. 3 の B, C に示した。いずれも冬期に最も高く、夏期は最も低かった。伊達⁷⁾によれば広島湾海域では $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NH}_4\text{-N}$ とともに秋期に最も高く、前者は春に最も低く、後者は冬に低い傾向を示した。

4) $\text{PO}_4\text{-P}$ 各季節毎の $\text{PO}_4\text{-P}$ の総平均を Fig. 3 の D に示した。夏期に最も低値を示し、春期は最も高い値を示した。伊達⁷⁾によれば広島湾海域では春に最も低い値を示す傾向にある。

5) SS 各季節毎の SS 値を Fig. 3 の E に示した。SS は夏期に最も高く、冬期がこれに次ぎ、秋、春はほとんど差はない。石井⁸⁾による報告の堺港のデータにおいても夏に高い傾向を示している。

以上、各項目について季節的変動を検討したが、pH, COD, SS が夏期最も高く、 $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ および $\text{PO}_4\text{-P}$ は夏期最も低い傾向を示した。

2-3. 汚濁指標項目間の相関性

汚濁指標項目間の相関性を検討することは、汚濁源をさぐることに、また、物質循環を知る上においても必要であるので、これらの相関性を検討した。

1) 地点別の相関性 各地点別における COD : $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$: COD および $\text{NO}_2\text{-N}$: $\text{NH}_4\text{-N}$ の相関性を Table I に示した。

St. 1 から St. 8 において、比較的相関性のあるのは、 $\text{NO}_2\text{-N}$: $\text{NH}_4\text{-N}$ である。

COD : $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$: COD に関しては同程度の相関である。地点別に相関性を比較すると、St. 8 では上記の3つの組合せともかなりの相関性を示している。ついで、St. 2 が高く、St. 7 では COD : $\text{NH}_4\text{-N}$ および $\text{NO}_2\text{-N}$: $\text{NH}_4\text{-N}$ の相関係数は負の値を示し、他の地点とは異なった傾向を示した。

TABLE I. Correlation of Pollution Indicators at Each Sampling Station

St. No	Item		
	COD : $\text{NH}_4\text{-N}$	$\text{NO}_2\text{-N}$: COD	$\text{NO}_2\text{-N}$: $\text{NH}_4\text{-N}$
1	0.35	0.22	0.43
2	0.42	0.46	0.58
3	0.31	0.56	0.56
4	0.35	0.35	0.58
5	0.11	0.45	0.39
6	0.03	0.08	0.12
7	-0.33	0.23	-0.14
8	0.65	0.57	0.77

7) 伊達悦二, 広島県衛生研究所同附属公害研究所業務年報, 1975, p. 153.

Fig. 4. Correlation of Total Hardness and Cl^-

全般的に相関性より観察すると, St. 1 から St. 5 までと St. 8 においては汚濁の性質が類似しているように思われるが, St. 6 と St. 7 は石油系の工場の影響が強い所であり, 他の地点の汚濁とは異なり, 汚濁指標に相関性が見られなかった。

2) 全測定値の相関性 第1報⁸⁾に示した12年間のすべてのデータについて項目毎の相関性を検討した。

総硬度と塩素イオンの相関性について Fig. 4 に示した。

Fig. 4 から明らかなように, 最も良い相関性を示し, 相関係数はほとんど1に近かった。その他の項目間ではあまり相関性がみられず, たとえば $\text{NO}_2\text{-N}$ と $\text{NH}_4\text{-N}$ では河口部 (St. 1 と St. 2) で相関係数 0.29, 河口部以外で 0.18 であり, $\text{PO}_4\text{-P}$ と $\text{NH}_4\text{-N}$ では河口部 (St. 1 と St. 4) で 0.48, 河口部以外で 0.26 であった。

2-4. 赤潮発生時の汚濁指標項目の挙動

海域における汚濁の進行にともない, すなわち, 富栄養化が進むにつれて発生する赤潮は漁業に対して甚大な被害を与えている。しかし, その発生の原因については現在でもまだ完全には明らかにされていないが, 水域の富栄養化により, 次第に赤潮発生回数も増加を示し, 栄養塩類の豊富な供給が第1の原因であろうと考えられている。⁸⁾ また, 村上⁹⁾あるいは安達ら¹⁰⁾も近年の赤潮の多発は産業, 生活, 家畜, 農業排水等による窒素, リンあるいは COD などの増加にともない, 水域の富栄養化が進行しているためであろうと述べている。そこで当海

Fig. 5. Variation of COD in Akashio

○—○: St. 1, ▲—▲: St. 2, △—△: St. 3, ▲—▲: St. 7.

Fig. 6. Variation of $\text{NH}_4\text{-N}$ in Akashio

○—○: St. 1, ▲—▲: St. 2, △—△: St. 3, ▲—▲: St. 7.

域でも本調査研究の際, 赤潮が発生したので赤潮発生時前後の COD, $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ の挙動について検討した。Fig. 5 に COD, Fig. 6 に $\text{NH}_4\text{-N}$, Fig. 7 に $\text{NO}_2\text{-N}$ の挙動を示した。

それぞれ代表的な地点4ヶ所 (St. 1, St. 2, St. 3, St. 7) を選び示してある。赤潮が発生したのは48年7月であり, この時調査地点の海域すべてにわたって発生した。

Fig. 5 に示すように COD は赤潮の発生中に高くな

8) 柳田友道, “赤潮,” 講談社, 東京, 1977, p. 58—99.

9) 村上彰男, 海洋科学, 4, 255 (1972).

10) 安達六郎, 富永裕之, 水産科学, 17-2 (1972).

Fig. 7. Variation of $\text{NO}_2\text{-N}$ in Akashio

○—○: St. 1, △—△: St. 2, ▽—▽: St. 3, ▲—▲: St. 7.

り, 例えば St. 3 では 5 月に約 3 ppm であったものが発生中には 41.0 ppm にも達している. それぞれの地点での発生前の挙動について検討すると 2 ヶ月前までは大きな変動はない.

$\text{NH}_4\text{-N}$ の場合, 赤潮発生前には増加の傾向があるが赤潮になると COD とは対称的に極端に減少し, 赤潮が終ると発生前のレベルまで戻っている.

$\text{NO}_2\text{-N}$ については $\text{NH}_4\text{-N}$ と同様の傾向がみられるが, $\text{NH}_4\text{-N}$ ほどのバラツキはなく, 発生前 2 ヶ月には 0.05 ppm 前後の一定の値となっている.

また, 50 年 7 月にも赤潮が局部的に発生した. Fig. 8 に, その時の COD 値を, Fig. 9 に $\text{PO}_4\text{-P}$ をそれぞれ示した.

発生した地点では COD (Fig. 8), $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ とともに 48 年度と同様の傾向がみられた. この時, $\text{PO}_4\text{-P}$ の挙動について検討すると Fig. 9 のような結果が得られた. 発生前 2 ヶ月まで増加がみられ発生中には減少している. $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ と同様の傾向にあると言える.

以上, 昭和 40 年度より 51 年度までの 12 年間の京葉工業地帯海域の汚濁に関する調査を行い, 地点別の特徴と季節による変動および赤潮発生時の汚濁指標などについて検討した. 地点別では, St. 2 を中心とした北東部の地帯の汚濁が目立った. 季節的には, 夏期において pH, COD および SS が最も高く, $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ および $\text{PO}_4\text{-P}$ は最も低かった. 汚濁指標相互間の相関性については, 総硬度と塩素イオンとの間に最も良い相関性がみられ, その相関係数はほとんど 1 に近かった.

赤潮発生時における汚濁指標の挙動は顕著であった.

Fig. 8. Variation of COD in Akashio

○—○: St. 1, △—△: St. 2, ▽—▽: St. 3, ▲—▲: St. 7.

Fig. 9. Variation of $\text{PO}_4\text{-P}$ in Akashio

○—○: St. 1, △—△: St. 2, ▽—▽: St. 3, ▲—▲: St. 7.

すなわち, COD は発生以前には大きな変動はなく推移しているが, 赤潮中には異常に高くなる. $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{PO}_4\text{-P}$ は発生以前に増加の傾向があり, 発生中には極端に減少する. $\text{NO}_2\text{-N}$ は発生以前は余り変動はないが, 発生中には減少する. COD, $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ および $\text{PO}_4\text{-P}$ の挙動と赤潮の関係に関するこの種の研究はほとんどないので, これらの現象は非常に興味のある現象であると思われる.

謝辞 本調査研究は千葉大学薬学部衛生化学教室の学生諸君の大いなる協力のもとに行なわれ完成したことに深謝するとともに, サンプルングその他懇切な協力を頂いた千葉県市原市環境部の諸氏に厚く感謝するものである.

なお, 本調査研究は市原市の受託研究費によった.