兵庫県下の水源別からみた水道原水中の農薬の濃度及び検出頻度の経年的変動

川元達彦,* 巻幡希子, 辻 英高, 寺西 清

兵庫県立衛生研究所

Annual Variation in the Concentration Levels and Frequency of Detection of Pesticides in Water Sources in Hyogo Prefecture

Tatsuhiko Kawamoto,* Nobuko Makihata, Hidetaka Tsuji, and Kiyoshi Teranishi

Hyogo Prefectural Institute of Public Health, 2-1-29 Arata-cho, Hyogo-ku, Kobe 652-0032, Japan

(Received June 4, 1999; Accepted August 27, 1999)

For the purpose of preserving the water quality, we investigated the annual variation in the concentration levels and frequency of detection of 36 kinds of regulated pesticides in water sources in Hyogo Prefecture before and after the enforcement of the new Water Quality Standard for drinking water revised by the order of Minister based on Water Works Law on December 1 in 1993. The samples measured consisted of 665 samples of water sources. In most of the samples analyzed, the concentration levels of pesticides were under one tenth of regulated values of supplied water. On the other hand, 3 kinds of pesticides, such as simazine, isoprothiolane and flutoluanil had especially high frequency of detection (over 15%) before the new Water Quality Standard enforced. However, after the new Water Quality Standard enforced, both the concentration levels and frequency of detection of three pesticides analyzed were decreasing annually. Distribution patterns of pesticides supplied from different water sources were analyzed and grouped as follows: Group 1: In river and lake (dam, reservoir) water, the frequency of detection of pesticides were higher than those in other water sources. The high frequency of detection of pesticides in lake (dam, reservoir) water are especially due to the closed systems. Group 2: In unconfined water such as the water from shallow well and river-bed water the several pesticides were observed at times. Group 3: In confined water such as the water from deep well and self-flowing water none of the pesticides were detected in every time.

Key words—— water quality, pesticide, concentration level, detection frequency, water source, the new Water Quality Standard

緒 言

環境中に放出された農薬がヒトの健康に影響を及ぼす危険性が指摘され、各国においてその実態調査が行われている。¹⁻⁴⁾ 特に、河川における農薬の汚染調査は重要と考えられているが、その理由として、飲料水として摂取した場合は直接的に、魚類から摂取した場合は間接的に、人の体内に吸収され、蓄積される可能性があることによる。^{5,6)}

また、最近では内分泌攪乱作用としての毒性が疑われている化学物質の中に、数多くの農薬が含まれていることから、農薬による環境汚染は社会問題として大きくクローズアップされてきている。⁷⁾

現在の日本は、世界的にも有数の農薬使用国であり、単位面積あたりの使用量は世界第1位となっている。⁸⁾ 農薬は、われわれの生活環境のさまざまな

場面で使用されるが、中でも水道水源に近接したゴルフ場及び農耕地等への農薬散布は、水源への影響が懸念される。兵庫県はゴルフ場等が多く水質監視は重要である。

厚生省では、ゴルフ場使用農薬による水道水源への影響を憂慮し、1990年5月に21農薬⁹⁾、1991年7月に9農薬¹⁰⁾の水道水中濃度での暫定水質目標値を設定した。このため、著者らはゴルフ場使用農薬等のモニタリング方法の検討^{11,12)}を行い、1990年度、1991年度分をまとめ、ゴルフ場に近接した水源では散布面積に比例して農薬が検出されたことを報告した。^{12,13)} その後、水道の水質基準が大幅に改正(1993年12月1日施行)され、基準項目にチオベンカルブ等の4農薬、監視項目にEPN等の11農薬が規制対象となり、水道水の基準が強化された。¹⁴⁾

そこで、今回、農薬に対する飲料水の水質保全・監視の目的から水道の水質基準改正以前の1992年度から改正後の1996年度の期間を対象として、厚生省が規制した36農薬(1,3-ジクロロプロペンを除く)の水道原水中の濃度レベル及び検出頻度について

*To whom correspondence should be addressed: Hyogo Prefectural Institute of Public Health, 2-1-29 Arata-cho, Hyogo-ku, Kobe 652-0032, Japan. Tel.: +81-78-511-6581; Fax: +81-78-531-7080

て経年的調査を実施した。

なお、水道の水質基準改正前に未規制農薬であったジクロロボス等の6農薬についての1992年度の結果は、トータルイオンクロマトグラムデータの再解析及び凍結保存試料の再分析によって得た。

兵庫県下の水道水源の特徴として、水源の種類が多いこと、かつ広範囲に位置することから、水源種別毎における農薬の分布及び経年変化についても検討を行った。

実 験

1. 調査地点、水源の種類、数及び測定対象農薬 1992年度から1996年度までの期間に採水した地点

(神戸市を除く)をFig.1に示した。水源の種類及び地点数は河川水56地点、湖沼水(ダム水、貯水池)13地点、伏流水10地点、浅井戸(不圧地下水を取水する井戸で、粘土層の不透水層まで達していないもの)36地点、深井戸(被圧地下水を取水する井戸で、不透水層を通過したもの)6地点及び湧水4地点であった。湖沼水、ダム水及び貯水池は閉鎖系水源として1つのグループとし、各年度毎の水源別測定数をTable1に示した。

採水は農薬散布の多い春から秋の間に、原則として同一地点につき1回以上行い、検体数は延べ件数として計上した。これらの測定総数は5年間で665検体、23940項目であった。1995年度のみ測定数が若干少ないが、これは阪神淡路大震災のため一部の地点で測定を実施していないためである。

Fig. 1. Location of Sampling Sites in Hyogo Prefecture

The marks represent as follows: □, river; ■, lake, dam, reservoir; ○, river-bed water; ●, self-flowing water; ▽, shallow well; ▼, deep well.

Table 1. The Number of Samples Investigated in Water Sources

Year	All samples	River	Lake, Dam, Reservoir	River-bed water	Shallow well	Deep well	Self-flowing water
1992.4—1993.3	147	57	14	18	48	6	4
1993.4—1994.3	150	70	13	10	45	6	6
1994.4—1995.3	127	66	12	13	25	7	4
1995.4—1996.3	95	44	8	7	25	7	4
1996.4—1997.3	146	65	13	14	41	6	7
Total	665	302	60	62	184	32	25

Table 2. Annual Variation in the Concentration of Pesticides in Water Samples

Pesticides	Regulated values	1992.4—1993.3 Range, (Mean)	1993.4—1994.3 Range, (Mean)	1994.4—1995.3 Range, (Mean)	1995.4—1996.3 Range, (Mean)	1996.4—1997.3 Range, (Mean)
Herbicides						
Terbucarb	0.02	ND—0.0155,(0.0022)	ND—0.0002,(0.0001)	ND	ND	ND
Pendimethalin	0.05	ND—0.0004,(0.0002)	ND—0.0026,(0.0002)	ND	ND	ND
Methyl dymron	0.03	ND	ND	ND	ND	ND
Butamifos	0.004	ND	ND	ND	ND	ND
Napropamide	0.03	ND—0.0001,(0.0001)	ND	ND	ND	ND
Chlornitrofen	0.005 ^{a)}	ND	ND	ND	ND	ND
Bensulide	0.1	ND	ND	ND	ND	ND
Propyzamide	0.008	ND—0.0003,(0.0002)	ND—0.0003,(0.0002)	ND—0.0001,(0.0001)	ND	ND
Benfluralin	0.08	ND—0.0001,(0.0001)	ND—0.0001,(0.0001)	ND	ND	ND
Simazine	0.003	ND—0.0075,(0.0006)	ND—0.0001,(0.0001)	ND—0.0001,(0.0001)	ND—0.0001,(0.0001)	ND
Thiobencarb	0.02	ND	ND	ND—0.0022,(0.0005)	ND—0.0001,(0.0001)	ND
Asulam	0.2	ND	ND	ND	ND	ND
Mecoprop	0.005	ND—0.0003,(0.0003)	ND	ND	ND	ND
Fungicides						
Tolclophos-methyl	0.08	ND—0.0003,(0.0002)	ND—0.0004,(0.0002)	ND	ND	ND
Captan	0.3	ND	ND	ND	ND	ND
Flutoluanil	0.2	ND—0.0019,(0.0004)	ND—0.0136,(0.0029)	ND—0.0001,(0.0001)	ND—0.0003,(0.0001)	ND
Isoprothiolane	0.04	ND—0.0007,(0.0002)	ND—0.0022,(0.0003)	ND—0.0005,(0.0002)	ND—0.0002,(0.0002)	ND
Mepronil	0.1	ND—0.0003,(0.0002)	ND—0.0042,(0.0011)	ND—0.0001,(0.0001)	ND—0.0002,(0.0001)	ND
Iprodione	0.3	ND	ND	ND	ND	ND
Chlorothalonil	0.04	ND	ND	ND	ND	ND
Iprobenphos	0.008	ND	ND	ND—0.0002,(0.0002)	ND	ND
Pencycuron	0.04	ND—0.0021,(0.0012)	ND	ND	ND	ND
Etridiazole	0.004	ND	ND	ND	ND	ND
Chloroneb	0.05	ND	ND	ND	ND	ND
Thiram	0.006	ND—0.0005,(0.0005)	ND	ND	ND	ND
Oxine copper	0.04	ND—0.0003,(0.0003)	ND	ND—0.0033,(0.0033)	ND	ND
Insecticides						
Fenitrothion	0.003	ND—0.0002,(0.0002)	ND—0.0004,(0.0003)	ND—0.0002,(0.0001)	ND—0.0001,(0.0001)	ND
Chlorpyrifos	0.004	ND—0.0001,(0.0001)	ND	ND	ND	ND
Isofenphos	0.001	ND	ND	ND	ND	ND
Isoxathion	0.008	ND	ND	ND	ND	ND
Pyridaphenthion	0.002	ND	ND	ND	ND	ND
EPN	0.006	ND	ND	ND	ND	ND
Diazinon	0.005	ND—0.0001,(0.0001)	ND—0.0003,(0.0002)	ND	ND—0.0001,(0.0001)	ND
Dichlorvos	0.01	ND—0.0011,(0.0011)	ND	ND	ND	ND
Trichlorfon	0.03	ND—0.0050,(0.0028)	ND	ND	ND	ND
Fenobucarb	0.02	ND	ND	ND—0.0003,(0.0002)	ND—0.0001,(0.0001)	ND

a) 0.0001 mg/l, revised value on March 8, 1994. ND, not detectable. Units, mg/l.

また、定期的に農薬調査を実施している水質監視地点¹⁵⁾のうち代表的な6地点 (Fig. 7) については、農薬が頻繁に散布される時期¹⁶⁾ (5—6月, 9—11月の年2回) について、経年的な濃度レベルの調査を実施した。

測定を行った農薬の種類は、除草剤13種類、殺菌剤13種類及び殺虫剤10種類の計36種類であった (Table 2)。

なお、上記除草剤のクロロニトロフェン (CNP) は胆のうガンとの関連性が疑われたため、1994年3月8日に厳しい暫定水質管理指針値0.0001 mg/l以下が設定されている。¹⁷⁾

2. 農薬標準溶液 ガスクロマトグラフ質量分析計 (GC-MS) で分析する農薬はアセトン、フォトダイオードアレイ検出器付き高速液体クロマトグラフ (DAD-HPLC) で分析する農薬はアセトニトリルで標準品を溶解し、50—1 000 mg/lの濃度のものを標準原液として調製した。標準混合溶液は、標準原液から一定量を採取し適宜 *n*-ヘキサンまたはアセトニトリルで希釈し調製した。

農薬標準品 (純度97%以上) は和光純薬工業 (株) またはジーエルサイエンス (株) 製のものをを用いた。

有機溶媒のアセトン、アセトニトリル、*n*-ヘキサン、塩化メチレン及びメタノール等は残留農薬分析用1 000, 和光純薬工業 (株) 製のものをを用いた。

3. 分析方法 農薬の分析方法は、1993年度までは既報^{11,12,18)}により測定し、1994年度からは上水試験方法¹⁹⁾に準拠して行った。分析に供したサンプルの溶媒は、標準溶液を調製した溶媒と同じ *n*-ヘキサンを用いた。

GC-MSはHewlett Packard (HP) 社製で、GC部はHP5890シリーズII, MS部はHP5971Aであった。DAD-HPLCはHP社製1090シリーズIIを用いた。

農薬の抽出は、1993年度までは溶媒抽出法と固相抽出法を併用し、1994年度からは固相抽出法により行った。

試料量は1 lとし、農薬の定量下限値はDAD-HPLCにより分析するアシュラム、チウラムは0.0004 mg/l, メコプロップ、オキシシン銅は0.0002 mg/lで、それ以外のGC-MS分析の農薬は0.0001 mg/lであった。

結果及び考察

1. 水道原水中における農薬の検出濃度範囲及び検出率の経年変化

すべての水道原水における農薬の検出濃度範囲及び検出値の平均値をTable 2に示した。水道の水質基準改正前の1992年度において、多くの種類の農薬が検出 (19/36種類) された。シマジンは1地点で1

回、原水中に水道水の規制値0.003 mg/lを超えて検出 (0.0075 mg/l) されたが、1993年度以降は0.0001 mg/l以下の濃度となった。この他の検出された農薬の濃度レベルは、5年間の調査期間において、水道水の基準値、指針値及びゴルフ場使用農薬の暫定水質目標値以下であり、かつ大部分の農薬は規制値の1/10未満のレベルであった。また、これら検出された農薬の濃度は水道の水質基準改正を境に

Fig. 2. Annual Variation in the Frequency of Detection of Pesticides in All Water Sources

The number of samples are shown in Table 1.

減少し、1996年度調査では全く検出されなかった。

次に、すべての水源における水道原水の農薬検出率の経年変化を Fig. 2 に示した。15%以上の高い検出率を示したのがシマジン（1992年度16%）、イソプロチオラン（1992年度22%、1993年度34%）及びフルトラニル（1992年度16%、1993年度26%）の3農薬であった。また、イソプロチオランまたはフルトラニルが検出された水源のうち、この2農薬が同時に検出される割合が約60%を占め、かつ類似した経年の検出率及び減少パターンを示した。兵庫県ゴルフ場では、これら2農薬の混合剤^{16,20}が使用されているため、このような検出パターンに少なからず関与しているものと推察された。しかし、これらの農薬の検出率も水道の水質基準改正を境に経

年的に減少した。

また、高頻度に検出された3農薬の濃度分布の経年変化を Fig. 3（Fig. 3-1：すべての水源、Fig. 3-2：河川水）に示した。その結果、すべての水源における農薬の濃度分布は、大部分が定量下限値近傍の低いレベルであり、その濃度は水道の水質基準改正を境に減少し、河川水の場合も同様に経年的減少傾向を示した。

この他、水道の水質基準改正前の検出率が2～10%であったテルブカルブ、プロピザミド、トルクロホスメチル、ペンシクロン、フェニトロチオン及びダイアジノン等の農薬についても、濃度分布の経年変化は上記3種の農薬と同様に減少傾向を示した。

Fig. 3. Annual Variation in the Concentration of Simazine, Isoprothiolane and Flutoluanil in Water Samples

1: left panel shows all water sources. 2: right panel shows river water. The number of samples are shown in Table 1.

2. 水源の種類別からみた農薬の分布

2-1) 河川水 表流水中農薬の検出率の経年変化を Fig. 4 (Fig. 4-1: 河川水) に示した. シマジン, イソプロチオラン及びフルトラニルは, 他の農薬に比べて高い検出率を示した. その検出率は, 1992 年度調査でシマジンは 21%, イソプロチオランは 39%, フルトラニルは 21% であった. この 3 農薬が 1992 年度に高い頻度で検出されたことは, 辻ら²¹⁾が

1990 年度に調査した結果とよく一致していた. しかし, いずれの 3 農薬の検出率も水道の水質基準改正を境に減少した.

2-2) 湖沼水 表流水中農薬の検出率の経年変化を Fig. 4 (Fig. 4-2: 湖沼水, ダム水, 貯水池) に示した. シマジン (1992 年度 29%), イソプロチオラン (同, 64%) 及びフルトラニル (同, 50%) が著しく高い検出率で検出され, 1994 年度以降は経年

Fig. 4. Annual Variation in the Frequency of Detection of Pesticides in Surface Water

1: left panel shows river water. 2: right panel shows lake (dam, reservoir) water. The number of samples are shown in Table 1.

的に減少した。また、ペンディメタリンは1992年度に、プロピザミド、チオベンカルブ、メプロニル及びフェニトロチオンは1994年度に、フェノブカルブは1995年度に多く検出され、検出率は20%を超えていた。これらの水源における農薬の検出率は河川と比べて著しく高く、検出される農薬の種類も数多く認められた。これは湖沼（ダム、貯水池）が河川の場合とは異なり、閉鎖系の水源であるため農薬が

滞留し、検出されやすいものと考えられた。

2-3) 伏流水, 浅井戸 不圧水中農薬の検出率の経年変化を Fig. 5 (Fig. 5-1: 伏流水, Fig. 5-2: 浅井戸) に示した。これらの水源における農薬の検出率は河川及び湖沼の場合と比べて低く、検出される農薬の数も少ないのが特徴的であった。伏流水においては、シマジンとイソプロチオランが1992年度、1993年度に、チウラムは1992年度に、チオベン

Fig. 5. Annual Variation in the Frequency of Detection of Pesticides in Unconfined Water

1: left panel shows river-bed water. 2: right panel shows shallow well water. The number of samples are shown in Table 1.

カルブは1995年度に検出された。伏流水とは、砂利層を潜流となって流れる水であるため、河川の水質の影響を受けやすい。事実、河川で高頻度で検出されたシマジンとイソプロチオランが、この水源でも検出された。しかし、河川水に高頻度で検出されたフルトラニルは全く検出されず、この農薬については、物性、地質的要因、採水地点の地理的な状況、

時期等を含めて検討が必要である。一方、浅井戸については、テルブカルブ、イソプロチオランが1992年度、1993年度に、メブロンル、チウラムが1992年度に、フェノブカルブが1994年度に、シマジンとフルトラニルが1992年度、1993年度及び1995年度に検出された。これらの農薬の検出率はすべて10%以下であった。また、浅井戸に検出された農薬の種類

Fig. 6. Annual Variation in the Frequency of Detection of Pesticides in Confined Water

1: left panel shows deep well water. 2: right panel shows self-flowing water. The number of samples are shown in Table 1.

は伏流水と比べて多く、表流水で高頻度に検出された3農薬も認められた。しかし、伏流水と浅井戸の両水源に検出されたシマジン、イソプロチオラン、チウラムの検出率を比較すると、浅井戸が伏流水に

比べて低いことが分かった。これについての正確な理由は明らかではないが、大部分の伏流水は河川の近傍に位置する水源であるのに対し、浅井戸は河川のみならず圃場等の近傍にも位置することから

Fig. 7. Annual Variation in the Concentration of Pesticides in Monitoring Points for Water Quality

The marks represent as follows: □, river; ■, lake; ○, river-bed water; ▽, shallow well; ▼, deep well. Upper panel shows the concentration of 3 kinds of pesticides at the monitoring points by season (May–June), from 1992 to 1996. Lower panel shows the concentration of 3 kinds of pesticides at the monitoring points, by season (September–November), from 1992 to 1996.

(Fig. 1), 伏流水の多くは河川の影響を直接受けるのに対し, 浅井戸は河川の影響に加えて水源の周囲の環境, 特に地質的な要因により農耕地等へ散布された農薬が浸透するものと推察された。

2-4) 深井戸, 湧水 被圧水中農薬の検出率の経年変化を Fig. 6 (Fig. 6-1: 深井戸, Fig. 6-2: 湧水) に示した。いずれの水源, いずれの時期においても農薬は全く検出されなかった。深井戸の構造は, 被圧帯水層で上下を粘土層等の不透水層により囲まれた水源であることから, 農薬の侵入を受け難いものと考えられた。兵庫県下の浅井戸は不圧水で, 第1不透水層から上部の水源であり, 大部分は地上から10 m 未満の深さのものである。一方, 深井戸は数十から数百 m 級の深さのものである。Bagnati ら²²⁾は井戸の深度と農薬の検出濃度は反比例することを報告している。今回の調査結果は, 深井戸と浅井戸の地質の相違が特に反映しているものと考えられたが, 地上からの深度も少なからず関与しているものと推察された。さらに, 湧水の場合も農薬は全く検出されず, 良好な水質が維持されていたが, この水源も深井戸と同じく被圧水であり, 地下の水源までの深さがあることから, 農薬の侵入を受け難いものと考えられた。

以上の水源別の調査結果から, 河川水, 湖沼水(水源)は他の水源に比べて散布された農薬の影響を最も受けやすく農薬の検出率は高いこと, 伏流水, 浅井戸では一部の農薬が検出され, 深井戸, 湧水においては全く検出されないことが明らかとなった。

3. 監視地点における経年的濃度変化

兵庫県下の水質監視6地点(水源: 河川2, 湖沼1, 伏流水1, 浅井戸1及び深井戸1地点)について, 特徴的に検出率の高かったシマジン, イソプロチオラン及びフルトラニル3農薬の経年的濃度変化を Fig. 7 に示した。これら6地点は1992—1996年度の期間のうち, 農薬が頻繁に使用される時期(5—6月, 9—11月)にサンプリングを実施している地点であるが, 結果及び考察の1. 項の水源調査結果と同様に, 農薬濃度レベルは経年的に減少していることが分かった。

また, 同じ水系にある河川A地点と湖沼水を比較すると, 湖沼における農薬濃度の減少が河川Aに比べて緩慢であった。これは, 湖沼における農薬の蓄積と分解が反映されたものと推察された。このような湖沼における特徴が2-2)項で示した高い検出率の要因の1つになっているものと考えられた。

一方, 河川A地点とB地点の測定結果からは, 同じ採水時期であっても河川流域によっては, 農薬の濃度レベル, 減少パターンは大きく異なり, 使用農薬の種類等に地域特性があるものと考えられた。

本研究結果から, 水道の水質基準改正前に検出された多くの農薬の濃度レベル及び検出率は, 水道の

水質基準改正を境に経年的に減少し, 1996年度調査では全く検出されないことが分かった。また, 1997年度以降のすべての水源調査及び1998年5月から12月の期間に, Fig. 7の地点で毎月, 同日にサンプリングを行った結果においても, ほとんど検出されなかった。一方, CNP代替農薬²³⁾と考えられるプレチラクロール, メフェナセット, シメトリン等が水源で検出されてきていること, 最近の著者らの兵庫県下への農薬出荷量の調査結果²⁴⁾を勘案すると, 未規制農薬の使用量が増加する傾向にあり, 今後は未規制農薬のモニタリングが特に重要と考えられた。

まとめ

兵庫県下の水源(河川, 湖沼, 伏流水, 浅井戸, 深井戸及び湧水)を対象として, 農薬調査を実施した結果, 以下の知見が得られた。

1. 1992年度, 1993年度調査においてシマジン, イソプロチオラン及びフルトラニルが15%以上の検出率で検出されたが, 検出された濃度の多くは規制値の1/10未満のレベルであった。検出率及び濃度レベルは水道の水質基準改正を境に減少し, この傾向は他の農薬についても同様であった。

2. 水源別では, 湖沼及び河川における農薬の検出率は, 他の水源の検出率と比べて高い傾向を示し, 散布農薬の影響を受けやすいことが示唆された。特に, 湖沼は閉鎖系であるため, 検出率は他の水源と比べて顕著に高い傾向を示した。不圧水である伏流水, 浅井戸では, わずかではあるが農薬の侵入を受けていた。一方, 深井戸は構造的に不透水層により囲まれた被圧帯水層(被圧水)であることから, 農薬の汚染を受け難いこと, また湧水においても地質的に汚染されにくい水源であることが分かった。

3. 1996年度調査以降, 規制対象農薬はほとんど検出されなくなったことから, 規制対象農薬に代わって未規制の農薬の使用が考えられた。今後は, 規制農薬はもとより未規制農薬のモニタリング調査が特に重要と考えられた。

謝辞 本研究をまとめるにあたり, ご助言を頂いた東京理科大学薬学部小野寺祐夫先生に御礼申し上げます。また, 試料の収集等にご協力頂いた兵庫県生活衛生課並びに各市町水道事業体の皆様に深謝致します。

REFERENCES

- 1) Maguire R.J., Tkacz R.J., *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, **25**, 220—226 (1993).
- 2) Pillai M.K.K., *Sci. Total Environ.*, **55**, 321—327

- (1986).
- 3) Rapaport R.A., Urban N.R., Capel P.D., Baker J. E., Looney B.B., Eisenrich S.J., Gorham E., *Chemosphere*, **14**, 1167—1173 (1985).
 - 4) Tanabe S., Tatsukawa R., Kawano M., Hidaka H., *J. Oceanogr. Soc. Jpn.*, **38**, 137—148 (1982).
 - 5) Wu T.L., *Water, Air, and Soil Pollution*, **15**, 173—184 (1981).
 - 6) Wakatsuki S., Sumii S., Ando M. (eds.), “Syokuhinosen,” Junposya, Tokyo, pp. 80—84, 1989.
 - 7) Colborn T., Dumanoski D., Myers J.P. (eds.), “Our Stolen Future,” Spieler Agency, New York, 1996.
 - 8) Tanimura A., Toyokawa H. (eds.), “Syokuhineiseigaku,” Nankoudo, Tokyo, pp. 140—142, 1998.
 - 9) Notification No.152 of Water Supply and Environmental Sanitation Department, Environmental Health Bureau, Ministry of Health and Welfare, dated May 30, 1990.
 - 10) Notification No.192 of Water Supply and Environmental Sanitation Department, Environmental Health Bureau, Ministry of Health and Welfare, dated July 30, 1991.
 - 11) Tsuji H., Henmi N., Kaneda Y., Proceeding of the 28th Zenkoku Eiseikagaku Gijutsu Kyougikai Nenkai, Hiroshima, pp. 120—121, 1991.
 - 12) Tsuji H., Henmi N., Yamamoto J., Teranishi K., Kaneda Y., *Bull. of the Hyogo Pref. Institute of Public Health*, **27**, 45—53 (1992).
 - 13) Tsuji H., Henmi N., Ichihashi K., Tsukidani N., *Yousui To Haisui*, **34**, 1032—1035 (1992).
 - 14) Notification No. 264 of Water Supply and Environmental Sanitation Department, Environmental Health Bureau, Ministry of Health and Welfare, dated December 21, 1992.
 - 15) Public Health and Sanitation Division of Health and Welfare Department of Hyogo Prefectural Government, “Management of Water Quality in Tap Water of Hyogo Prefecture,” 1994.
 - 16) Agriculture, Forestry and Fisheries Department, Hyogo Prefectural Government, “Management Guide for Turfs on Golf Course,” 1998.
 - 17) Notification No.56 of Water Supply and Environmental Sanitation Department, Environmental Health Bureau, Ministry of Health and Welfare, dated March 8, 1994.
 - 18) Tsutiya Y., *Kougyo Yousui*, **409**, 50—57 (1992).
 - 19) Water Supply and Environmental Sanitation Department, Environmental Health Bureau, Ministry of Health and Welfare, “Standard Method for the Examination of Water,” Japan Water Works Association, Tokyo, pp. 325—356, 1993.
 - 20) Plant Protection Division, Agricultural Production Bureau, Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries, “Noyaku Yoran,” Japan Plant Protection Association, Tokyo, 1992—1996.
 - 21) Tsuji M., Nakano T., Okuno T., *Kankyo Kagaku*, **1**, 71—75 (1991).
 - 22) Bagnati R., Benfenati E., Davoli E., Fanelli R., *Chemosphere*, **17**, 59—65 (1988).
 - 23) Nakagawa J., Oki K., Kazi S., Shimagaki J., Takagi H., Takahashi K., Terashima K., Nishimura T., Ando M., *Suidoukyoukaizasshi*, **66**, 29—33 (1997).
 - 24) Makihata N., Kawamoto T., Teranishi K., *Bull. of the Hyogo Prefect. Institute of Public Health*, **32**, 188—195 (1997).