瀬戸内海における底質中重金属濃度の分布と変化

駒井幸雄* 古武家善成*
 清木徹** 永淵修***
 村上和仁† 小山武信†† 蛸灰谷 喬†††

Distribution of Heavy Metals and its Change in the Sediment of the Seto Inland Sea

Yukio KOMAI*, Yoshinari KOBUE*,
 Tohru SEIKI**, Osamu NAGAFUCHI***,
 Kazuhito MURAKAMI†, Takenobu KOYAMA†† and Takashi KAKIBAYA†††

* Hyogo Prefectural Institute of Environmental Science, 3-1-27, Yukihirocho, Suma-ku, Kobe 654-0037 Japan

** Hiroshima Prefectural Institute of Public Health and Environment, 1-6-29, Minamimachi, Minami-ku, Hiroshima 734-0007 Japan

*** Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences, 39, Mukaizono, Dazaifu, Fukuoka 818-0135 Japan

† Okayama Prefectural Institute for Environmental Science and Public Health, 739-1, Uchio, Okayama 701-0212 Japan

†† Wakayama Prefectural Research Center of Environment and Public Health, 3-3-45, Sunayamaminami, Wakayama 640-8277 Japan

††† Oita Prefectural Institute of Health and Environment, Yoshikawaradanchi, Magari, Oita 870-0946 Japan

Abstract

The bottom sediment in the Seto Inland Sea taken in the period 1981-1985 and 1991-1994 was investigated to evaluate the change of heavy metal concentrations of the elements, Cd, Pb, Cu, Zn, and Mn. The sea area which had higher concentrations of heavy metals in the 1980's showed a decrease in some area in the 1990's. The test of the difference on average values for Cd, Pb, Zn, and Mn indicated that it was significant at the 1% or 5% level in the entire Seto Inland Sea as well as for the concentration of Cu in the Sea of Hiuchi and Osaka Bay. These results suggest that the regulation of waste water and the decrease in pollutant loadings conducted since 1970's was related to the decline of the heavy metal concentrations in the bottom sediment of the entire Seto Inland Sea. In some sea areas, however, the concentrations of heavy metals in the bottom sediments were maintained at the same level, or became worse than in the 1980's. This shows that it is necessary to make more of an effort to rehabilitate the condition of the bottom sediment

Key words: Seto Inland Sea, bottom sediment, heavy metal, horizontal distribution, pollutant loadings

1. はじめに

1960年代以降の高度成長期を通じて、瀬戸内海沿岸部においては重化学工業を中心とした工場立地が急速に進められた結果、有機物や栄養塩類に加えて、重金属等の有害物質を含んだ排水が流入し、底質への汚濁物質の蓄積も大きな問題となった。その後、工場排水等に対する各種の規制などの政策が進められたことにより、底質汚染の防止や底質環境の改善に対して一定の成果があった

と思われるが、これに対する定量的な評価は少ない。瀬戸内海環境保全臨時措置法の制定(1973年)以来既に四半世紀を経ている今日、重金属からみた瀬戸内海の底質環境の現状と、過去の状態からの変化を評価することは、今後の環境保全対策を進める上でも重要と思われる。

瀬戸内海全域の底質中の重金属濃度については、水産庁による1971年の調査¹⁾や環境庁による1972年の調査²⁾があるものの、地点数は限られており、その採泥層も明確ではない。その後塩沢ら³⁾は、瀬戸内海の表層2 cmの

* 兵庫県立公害研究所 〒654-0037 神戸市須磨区行平町3-1-27

** 広島県保健環境センター 〒734-0007 広島市南区皆実町1-6-27

*** 福岡県保健環境研究所 〒818-0135 福岡県太宰府市向佐野39

† 岡山県環境保健センター 〒701-0212 岡山市内尾739-1

†† 和歌山県衛生公害研究センター 〒640-8277 和歌山市砂山南3-3-45

††† 大分県衛生環境研究センター 〒870-0946 大分市大字曲字芳河原団地

底質中の重金属の分布についてより詳細な報告しているが、有害物質のカドミウムや鉛の分析はしておらず、調査対象海域も瀬戸内海の大部分を網羅しているとはいえ、未調査海域の部分も多い。また、星加ら⁴⁾は、柱状試料を使い重金属の鉛直分布と年代測定結果から、瀬戸内海の重金属汚染の変化と要因について解析している。しかし、この場合も泥質堆積物の分布する海域が中心であり、各湾や灘の代表的な地点のデータが中心となっている。

このように、これまで文字どおりの瀬戸内海全域を対象とした統一的な底質中重金属のデータが得られていないことを考えると、限られた項目とはいえ、瀬戸内海全域の表層底質中の重金属濃度と水平分布状況を調査する意義は大きい。加えて異なる時期における瀬戸内海全域の表層底質中の重金属濃度を比較することは、瀬戸内海の環境変化について評価する上で重要である。

以上の観点から、環境庁によって実施された1980年代前半の瀬戸内海環境情報基本調査⁵⁾および、1990年代前半の瀬戸内海環境管理基本調査⁶⁾の、ほぼ10年を隔てた2つの調査時に採取された瀬戸内海の表層底質試料を使い、重金属の水平分布と時間的な変化の特徴から瀬戸内海の底質環境について考察を行った。

2. 調査方法

調査地点は、瀬戸内海全域を約5 km メッシュに区切った格子の中央部である。本報では、Fig. 1 に示すように、2つの調査で共通して採泥された概ね一区画おきに定めた計425地点の底質試料を使用した。調査は、瀬戸内海の各湾および灘ごとに年次計画にしたがって実施されたために、同一の調査の中で、初年度に調査された海域と最終年度に調査された海域とでは最大5年間の差が生じ、2つの調査における調査間隔も海域によっては10年を多少前後した例も見られた。そこで、1980年代前半(1981年～1985年採泥、以後第1回目)、および1990年代前半(1991年～1994年採泥、以後第2回目)の調査結果を、概ね10年間の間隔で行われたデータとしてまとめ、考察した。

底質試料については、スミスマッキンタイヤ型採泥器により採泥し、アクリルパイプを挿入して採取した表層底質を下部より押し出して、その表層10 cm 層から2 cm 刻みの計5試料を得、実験室に持ち帰った後、風乾保存した。本報では、このうちの表層0～2 cm 層の底質試料を分析対象とした。

重金属の分析については、瀬戸内海沿岸の11府県の公害関係試験研究機関が、それぞれの担当海域内の第1回目と第2回目の底質試料を同時に行うこととし、1995年度には播磨灘と燧灘について、1996年度は残りの海域について測定した。

測定項目は、カドミウム(Cd)、鉛(Pb)、銅(Cu)、亜鉛(Zn)、およびマンガン(Mn)の5項目とし、分析方法は、底質調査法⁷⁾に準じた。前処理法の概要は、次の通りである。風乾試料に濃硝酸と濃塩酸を加えて加熱抽出し、汙過後定容した。有機物の分解のため、抽出液の適量を分取し、濃硝酸と過酸化水素を加えて加熱乾固したのち、濃塩酸または濃硝酸に溶かして定容後、分析に供した。測定は、原子吸光法(フレーム、フレームレス法)、ICP/AES法、またはICP/MS法で行ったが、予め

各測定法についてのクロスチェックを実施した。

なお、本報でいう瀬戸内海とは瀬戸内海環境保全特別措置法とその政令で定めた範囲であり、湾および灘の区分は環境庁に従った⁸⁾。また、調査結果の詳細については、報告書⁹⁾を参照されたい。

3. 結果

3.1 1990年代前半における重金属濃度の分布の特徴

瀬戸内海の底質(表層5 cm)の粒度組成¹⁰⁾をFig. 2に示す。含泥率が80%以上の泥質物が広く分布する海域は、大阪湾、播磨灘、広島湾、備後灘、燧灘、周防灘、および別府湾である。一方、含泥率が20%以下の砂質は、紀伊水道、備讃瀬戸、安芸灘、伊予灘、豊後水道、および響灘などのように、外洋に面したり、流れの速い海域を中心に広範囲に分布している。

第1回目の重金属の水平分布と第2回目の結果を比較すると、2つの調査の間で分布傾向に大きな変化は認められなかった⁹⁾。そこで、5つの重金属の水平分布図としては、第2回目の結果を代表させて、Fig. 3～Fig. 7に示した。Fig. 8は、2つの調査間で重金属の濃度が3項目以上増加、あるいは減少した地点を表しているが、これについては3.2.1で詳述する。Fig. 9は、2つの調査における5項目の重金属濃度について、瀬戸内海全域と各湾・灘ごとの濃度範囲と平均値を示したものである。

図からわかるように、Cd、Pb、Cu、およびZnの濃度が高い海域は、大阪湾、播磨灘、広島湾、燧灘、周防灘、および別府湾であり、特に大阪湾奥部、播磨灘北部、および広島湾奥部には高濃度域が存在している。これらの海域の後背地には、重化学工業地帯が広がり、人口も多く、流入汚濁負荷量も大きい。底質についても泥質物が分布し、TOC、T-N、T-Pなどの有機物や栄養塩の濃度も高い¹⁰⁾という特徴がある。濃度が低い海域は、安芸灘、伊予灘、豊後水道、および響灘のように流れも速く、砂質物が広く分布するところである。これらの海域の平均濃度は、いずれの重金属も高濃度を示す大阪湾に比べ、数分の1から10分の1と低く、最大値も大阪湾の平均値と同レベルまたはそれ以下の海域が多い。

各項目間の相関行列をTable 1に示す。Cd、Pb、Cu、およびZnは濃度分布の傾向が類似しており、相関係数もCdとPbが0.58とやや小さいことを除くと、全体に良い相関関係が認められる。Mnは、必ずしも泥質物の分布とは対応しておらず、砂質地点であっても高濃度の地点が多く見られるなど、他の4つの重金属とは異なる分布を示し、相関係数も0.18～0.39と小さい値となっている。

3.2 1980年代前半と1990年代前半における重金属濃度の変化

3.2.1 水平分布からみた変化の特徴

Fig. 9からわかるように、第1回目と第2回目の重金属濃度を比べると、瀬戸内海全体では、Mnを除く4項目の最大値はいずれも第2回目では減少し、平均値も小さい値となっている。また、水平分布の変化としては、各湾・灘における相対的な濃度分布に大きな違いは認められない⁹⁾が、詳しく見ると、第1回目において大阪湾奥部、播磨灘北部、広島湾奥部、周防灘西部におけるCd、Pb、Cu、およびZn、紀伊水道東部のCdとPb、および燧灘南部のCuなどの重金属が高濃度を示した地点は、

Fig. 1 Map of sampling sites of the Seto Inland Sea in the period 1991-1994

Fig. 2 Distribution of mud contents in the bottom sediment (0-5cm layer) of the Seto Inland Sea in the period 1991-1994

Fig. 5 Distribution of copper concentrations in the bottom sediment of the Seto Inland Sea in the period 1991-1994

Fig. 6 Distribution of zinc concentrations in the bottom sediment of the Seto Inland Sea in the period 1991-1994

Fig. 7 Distribution of manganese concentrations in the bottom sediment of the Seto Inland Sea in the period 1991-1994

Fig. 8 Sites where concentrations of heavy metals in the bottom sediment of the Seto Inland Sea decreased or increased during the first half of 1980's and the first half of 1990's
 ● : site where heavy metals concentrations decreased more than three kinds of heavy metals.
 × : site where heavy metals concentrations increased more than three kinds of heavy metals.
 Changes of less than 5% of heavy metals concentrations were excluded as "field error".

Fig. 9 Range and average value of heavy metal concentrations in the bottom sediment of the Seto Inland Sea in the first half of 1980's and the first half of 1990's

A; the Sea of Hibiki, B; Bungo Channel C; the Sea of Suo D; Beppu Bay, E; the Sea of Iyo, F; Hiroshima Bay, G; the Sea of Aki, H; the Sea of Bingo, I; the Sea of Hiuchi, J; Bisan Seto, K; the Sea of Harima, L; Osaka Bay, M; Kii Channel, N; the entire Seto Inland Sea. Dotted line shows the first half of 1980's. Solid line shows the first half of 1990's. Cross bar shows the average value. *: In calculating the average value of the cadmium concentration all values less than $0.05\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ were given the value $0.01\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$.

第2回目ではいずれも濃度が低下し、高濃度域の範囲も小さくなる傾向にあることが指摘される (Fig. 3~7を参照)。大阪湾の例でみると、第1回目にCdで $1\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 以上、Pbで $100\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 以上、Cuで $90\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 以上、Znで $500\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 以上を示した湾奥部の地点は、第2回目には全てそれ以下の濃度を示している。

Mnの場合は、最大値の変化で見ると、第1回目の $2,580\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ から第2回目には $4,400\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ と増加しており、この点では他の4つの重金属とは異なっている。しかし、瀬戸内海全体のMnの平均値は低くなり、コンターでは大阪湾や播磨灘の中央部に分布していた $1,500$

Table 1 Correlation matrix of heavy metal concentrations in the bottom sediment of the Seto Inland Sea in the first half of 1990's

It was calculated by using data from the same sites to two surveys.

	Cd	Pb	Cu	Zn	Mn
Cd	1	0.68	0.58	0.81	0.18
Pb	...	1	0.70	0.81	0.33
Cu	...	...	1	0.75	0.28
Zn	...	...	...	1	0.39
Mn	...	...	...	...	1

N=424

$\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 以上の高濃度を示す部分の範囲が明らかに小さくなる変化も認められ⁹⁾、濃度レベルの低下をうかがわせている。

各調査地点における重金属濃度の増減を、Fig. 8に示す。なお、図示にあたっては、サンプリング時の 'field error'⁽¹¹⁾が、泥質の分布する海域でも項目によって5%程度となる¹²⁾ことから、濃度変化をより明確にするために5%以内の濃度変化を示した地点は除外した。Fig. 8から明らかなように、3項目以上の重金属濃度が減少した地点は、大阪湾、播磨灘、備後灘、燧灘、広島湾、および周防灘に多くみられる。一方、増加した地点は全体では少ない。まとめてみられるのは、大阪湾西部、播磨灘北部と西部、備讃瀬戸南部沿岸、備後灘から燧灘にかかる海域、広島湾口から安芸灘および伊予灘にかけての海域、別府湾、周防灘の北西部と南西部、および響灘である。底質中の重金属濃度の増減がみられる海域の多くは泥質域と対応しており、砂質域では変化する地点は少ない。しかし、響灘では、砂質域であるにも関わらず重金属濃度が全体に増加する傾向にあり、環境の悪化を示唆している。また、別府湾は、泥質物が分布している海域であるが、大阪湾などとは異なり重金属濃度が減少する地点は認められない。

3.2.2 統計的手法による検討

第1回目と第2回目の重金属濃度の関係を検討するために、Pbの散布図をFig. 10に示す。大部分の地点は、 $y=x$ の直線周辺もしくは下の部分に分布し、回歸直線の傾きも0.65であり、第2回目の重金属濃度が横這いまたは減少していることを示唆している。他の4項目の散布図も、Pbと良く似たパターンであった。第1回目と第2回目の濃度間の相関係数をTable 2にまとめて示す。Mnが0.68とやや低い相関係数であることを除くと、他の4つの重金属は、 $0.84\sim 0.93$ であり、両者の間には良い相関関係が認められる。Fig. 11に重金属の中で水平分布の異なるPbとMn濃度のヒストグラムを代表例として示す。いずれも低濃度側にピークをもち、高濃度に長く尾を引く対数正規分布に近いパターンとなっている。第1回目と第2回目におけるヒストグラムの分布型はほぼ一致しているが、高濃度側の頻度が少なくなり、低濃度側の頻度が多くなっている。

次に濃度変化を統計的に検討するために、対応する2組の平均値の差の検定 (以下平均値の差の検定) を行った。瀬戸内海全体と各海域ごとの結果をまとめてTable 3に示す。瀬戸内海全体では、Cd、Pb、Zn、Mnのいずれも1%または5%の危険率で濃度の減少が認められる。Cu

Fig. 10 Relationship between lead concentrations in the bottom sediment of the Seto Inland Sea in the first half of 1980's and the first half of 1990's

Table 2 Correlation matrix of heavy metal concentrations in the bottom sediment of the Seto Inland Sea between the first half of 1980's and the first half of 1990's

It was calculated by using data from the same sites in two surveys.

Cd	Pb	Cu	Zn	Mn
0.84	0.90	0.93	0.93	0.68

N=404

Fig. 11 Histogram of lead and manganese concentrations in the bottom sediment of the Seto Inland Sea in the first half of 1980's and the first half of 1990's

Y-axis shows relative frequency (%).

については有意な差は認められないが、瀬戸内海の中で最も高い平均濃度を示す燧灘とそれに次ぐ大阪湾では、1%の危険率で有意に減少している。また、大阪湾、播磨灘、燧灘、および周防灘では、3項目以上の重金属に有意な減少が認められる。一方、別府湾ではCuを除く4項目が、紀伊水道ではMnが、豊後水道ではPbが、および響灘ではCdとMnがいずれも有意に増加している。

以上のように、1980年代前半と比べて1990年代前半における瀬戸内海底質中の重金属濃度は、海域や重金属の種類によって増減はあるものの、全体としては減少する傾向にあることが認められる。

4. 考察

4.1 流入負荷量の変化

本報で示した表層底質中重金属の全体の分布は、1975

Table 3 Results of the test of the difference on average values for Cd, Pb, Cu, Zn, and Mn concentrations in the bottom sediment of the Seto Inland Sea between the first half of 1980's and the first half of 1990's

It was calculated by using data from the same sites in two surveys. Figure shows t-value.

Φ is the degree of freedom. * shows significantly at the 5% level. ** shows significantly at the 1% level.

cf. $t(6, 0.10) = 1.94$; $t(6, 0.02) = 3.14$, $t(9, 0.10) = 1.83$; $t(9, 0.02) = 2.82$, $t(14, 0.10) = 1.75$; $t(14, 0.02) = 2.62$, $t(30, 0.10) = 1.70$; $t(30, 0.02) = 2.46$, $t(304, 0.10) = 1.65$; $t(304, 0.02) = 2.33$

name	Φ	Cd	Pb	Cu	Zn	Mn
the entire Seto Inland Sea	403	-2.20*	-3.46**	-0.44	-2.60**	-4.36**
Kii Channel	27	-0.83	-0.16	0.87	0.77	2.87*
Osaka Bay	30	-4.24**	-3.32**	-3.04**	-3.29**	-2.60**
the Sea of Harima	64	-1.95*	-2.73**	-0.13	-2.86**	-2.49**
Bisan Seto	27	-0.46	-0.15	0.23	0.36	-1.68
the Sea of Hiuchi	31	-4.13**	-3.48**	-3.62**	-0.62	-3.12**
the Sea of Bingo	14	-2.14*	-1.82*	1.06	-0.19	-0.62
the Sea of Aki	14	0.20	-1.16	0	0.91	-0.16
Hiroshima Bay	21	0.77	-1.43	0.22	0.05	-3.09**
the Sea of Iyo	41	-4.58*	-1.62	-0.94	0.17	0.40
Beppu Bay	6	4.80**	5.24**	1.34	2.23*	2.09*
the Sea of Suo	87	-0.52	-4.37**	-0.63	-2.13*	-7.00**
Bungo Channel	20	0.21	2.40*	0.80	-0.95	-0.81
the Sea of Hibiki	9	1.84*	1.21	1.67	1.61	1.91*

年～1977年に調査された塩沢ら³⁾の結果とも良く似ており、本報の第2回目の調査までの約20年間での瀬戸内海の堆積環境に大きな違いはないと考えられる。そのため、重金属濃度の変化は、流入負荷量の削減が底質濃度に反映された結果と推察されるが、この点について以下に検討する。

瀬戸内海流域における重金属の流入負荷量の変化を示す直接のデータはない。そこで、兵庫県を例にとって調べると、河川水質の常時監視において、健康項目のうち重金属の濃度が環境基準に適合している地点の割合¹³⁾は、Pbの98.6%を除くと100%である。また、Fig. 12から判るように、河川水中の重金属濃度は長期的に見て減る方向にある。下水道普及率の増加との対応関係や、特にCuの場合には、降雨量変動との相関も認められることから、原因として人為的要因と自然的要因の関与¹⁴⁾が指摘される。こうした結果は、河川への流入負荷の減少を示唆するものである。

発生源からの重金属濃度の減少に関わるデータも見られないが、排水に含まれているCODの発生負荷量は、瀬戸内海環境保全臨時措置法(1973年)の施行や、総量規制(1980年度)が実施される下で減少しており、その中でも重金属の排出に大きく関わる産業系の減少割合が大きい¹³⁾。実際、兵庫県内の水質テレメータ監視システム対

Fig. 12 Yearly changes of heavy metal concentrations (geometric mean) at 59 sampling sites of the rivers, the percentage of sewage disposal, and precipitation in Hyogo Pref.

象の38事業場（ただし下水処理場を除く）の、COD 排出負荷量の日平均値の合計は、下降傾向にある（Fig. 13）。Fig. 14¹⁵⁾に示すように、COD 濃度の減少に付随して排水中の Cu および Zn の重金属濃度もまた低下しているので、事業場からの COD 処理対策の進展に伴い、いくつかの重金属の排出量も減少していると考えられる。また、Fig. 13 の結果は、総量規制の下で事業者による排水の管理が、全体としては順調に行われていることを示唆している。このことは、別個に行われている重金属の排水規制もまた全体として有効に機能していることをうかがわせ、その結果として、事業場からの重金属排出負荷量も減少していることを推察させる。

次に、重金属と関わりの大きい鉄鋼業をみると、近年の産業構造の転換の中で生産活動の停止あるいは減産も行われている影響も無視できない。兵庫県内における鉄鋼の工場出荷額は、1982年の2兆574億円をピークに1994年の1兆2149億円へと減少しており¹⁶⁾、それに伴って重金属の排出負荷量も低減していると思われる。また、臨海部における大気中の浮遊粉塵中の Cd, Pb, Zn, および Mn 濃度は、少なくとも1980年頃より漸減傾向にある¹⁷⁾ことから、大気由来の流入負荷もまた減少していると見られる。以上のことは、兵庫県から瀬戸内海への重金属流入負荷量の減少を示唆するものである。

瀬戸内海の流域各府県においても、COD 発生負荷量は緩やかとはいえ概ね減少傾向を示し、産業系の減少割合が大きい¹⁸⁾ことも共通している。従って、兵庫県の例の様に COD の削減に伴って、重金属の流入負荷量の減少も生じているであろうことは十分予想される。また、流域各府県における鉄鋼の工場出荷額¹⁶⁾も1980年代前半を境に減少しており、瀬戸内海に対する鉄鋼業の重金属流出負荷量もまた少なくなっていると推察される。さらに、全国の河川水質の測定地点における人の健康に関わる項目の環境基準の不適合率¹⁹⁾は、Pb の場合1971年度の1.4%弱から1992年度の0.01%に減少しており、Cd などの他の重金属についても同じ傾向が認められる。瀬戸内海流域の府県の各測定地点についても全国と同じ傾向にあると推察され、重金属流入負荷の減少をうかがわせている。

4.2 流入負荷量と底質濃度との関係

星加ら²⁰⁾は、瀬戸内海への Cu と Zn 負荷量のうち、それぞれの70%と80%は短時間のうちに堆積物へ移行すると

Fig. 13 Average value of COD loadings from waste water of 38 factories in Hyogo Pref.

Fig. 14 Concentrations of COD, Cu and Zn in inflow and outflow of a sewage disposal in Hyogo Pref. Cross bar shows average value.

している。Cd と Pb の場合も、その水平分布傾向は Cu や Zn とほぼ一致し、相互に正の相関関係を示す（Table 1）ことから、海域における沈降・堆積過程としては、Cu や Zn に近い挙動をしていると推察される。そのため、流入負荷量に変化があった場合は、底質中の濃度に比較的に早くに反映されると考えられる。また、瀬戸内海の泥質物が分布する海域底質の堆積速度は、星加らの結果⁴⁾に基づいて計算すると、平均 $0.42 \sim 2.11 \text{ cm} \cdot \text{year}^{-1}$ となる¹⁰⁾。したがって、表層 0-2 cm 層を対象としてほぼ10年間の間隔で採泥して比較した場合、この間に重金属の流入負荷量が減少したとすれば、それは底質の濃度の違いとして十分に検出されるであろう。これに対して、砂質域の場合は一般に堆積速度が遅いので、負荷量の変化は底質濃度に反映されにくく、10年間という時間スケールでは濃度変化を評価することは難しい。しかし、本報の結果は、堆積速度の遅い砂質の地点も含めた広い範囲において濃度の減少が見られることを示すものであった。

Mn は、岩石の主要成分の一つであり、自然界に広く存在し他の重金属に比べて濃度も高く、酸化還元条件の変化に伴って溶出あるいは沈積を繰り返すなどの挙動を示す²¹⁾。そのため、見かけ上濃度の増加があったとしても、それは環境条件の改善に伴う現象であるケースも指摘²²⁾されている。しかし大阪湾の例で言えば、夏季の底層 DO 飽和度の平均値は、1988年以降も横這いもしくは増加傾向にあり²³⁾、底質の酸化還元電位もプラス側にある¹⁰⁾、と示されるように、1980年代以降の大阪湾の水質環境は改善傾向にある²²⁾。こうした中で、先に述べたような中央部にある高濃度域の範囲は小さくなり、統計的にみても有意な濃度の減少が認められたことは、水質環境の変化の状態にかかわらず底質中の Mn 濃度が減少していることを示すものと考えられる。また、瀬戸内海の下層の DO 濃度は少なくとも悪化を示していない⁶⁾ことから、播磨

灘、燧灘、広島湾、周防灘のような泥質物が広く分布している海域における Mn 濃度の減少も大阪湾と同様に、流入負荷量と関係して変化したと推察される。

瀬戸内海の柱状堆積物試料の濃度分布と堆積速度からみて、瀬戸内海への Cu と Zn の負荷は、1970年前後を境に横這いまたは減少傾向にあり、底質は改善あるいは現状維持の傾向にあることが指摘されている²⁰⁾。本報においても、底質中の重金属濃度は項目によってその分布に違いはあるものの、全体としては減少傾向にあり、特に高濃度であった海域では顕著な結果となっており、重金属からみた瀬戸内海の底質環境は、全体としては改善の途上にあることを示していると考えられる。このことは、これまで進められてきた排水規制や処理対策の進展が、重金属の流入負荷量の減少につながり、瀬戸内海の広い範囲の底質濃度に反映したことを示している。しかし、一部の海域または重金属によっては、濃度変化が認められなかったり、増加傾向を示すケースも見られることから、さらに瀬戸内海の環境改善を進めていくためには流入負荷量削減への一層の努力が求められる。

5. ま と め

1980年代前半と1990年代前半のほぼ10年の間隔をもつ2つの調査時に採取された瀬戸内海の計425地点の表層底質試料を使い、Cd, Pb, Cu, Zn, Mnの水平分布と時間的な変化の特徴から、瀬戸内海の底質環境について考察を行った。

- 1) 2つの調査における重金属濃度の水平分布を比べると、大阪湾奥部、播磨灘北部、広島湾奥部、燧灘南部、周防灘西部では、Cd, Pb, Cu, Znが高濃度を示す地点やその分布範囲は減少する傾向にあり、分布の異なるMnも大阪湾や播磨灘中央部などのように高濃度を示す範囲は小さくなっていた。
- 2) 統計的な手法による検討を行ったところ、散布図およびヒストグラムの分布も減少傾向を示唆し、対応する2組の平均値の差の検定結果は、Cd, Pb, Zn, Mnについては瀬戸内海全体で、Cuは平均濃度が高かった燧灘と大阪湾で有意な減少が認められた。また、大阪湾、播磨灘、燧灘、および周防灘では、3項目以上の重金属に有意な減少が認められた。一方、別府湾のCd, Pb, Zn、およびMn、紀伊水道のMn、豊後水道のPb、および響灘のCdとMnは、いずれも有意に増加していた。
- 3) 重金属の汚濁負荷に関わる諸要因は、流入負荷量の減少を示唆するものであり、これまでの排水規制や処理対策の進展による重金属の流入負荷量の減少が瀬戸内海の底質に反映した結果と考えられ、重金属からみた瀬戸内海の底質環境は全体として改善されつつあることを示していた。しかし、一部の海域または重金属によっては、濃度変化が認められなかったり、増加傾向を示すケースも見られることから、さらに瀬戸内海の環境改善を進めていくためには流入負荷量削減への一層の努力が求められる。

謝 辞

本報は、環境庁が実施した瀬戸内海環境管理基本調査の補完調査として実施された結果に基づいたものであ

り、同ワーキンググループのメンバーとして分析および報告書のまとめに参加された大阪府公害監視センター 東 義仁氏、香川県環境研究センター日野康良氏、徳島県保健環境センター牛川 務氏（現徳島県環境生活部）、愛媛県環境保全センター高松公子氏、山口県衛生公害研究センター今富幸也氏、および事務局として各種の便宜を計って頂いた(株)瀬戸内海環境保全協会には、記してお礼申し上げます。また、中国工業技術研究所星加 章博士には、瀬戸内海の底質の堆積速度および重金属濃度の変遷について御教示を頂き、兵庫県立公害研究所梅本 諭氏には、事業場排水に関して議論して頂いたことを深く感謝いたします。

(原稿受付 1998年6月8日)

(原稿受理 1998年9月22日)

引 用 文 献

- 1) 漁場汚染対策研究競技会編 (1972) 瀬戸内海漁場汚染対策研究報告 (昭和46年度), 231pp, 南西海区水産研究所, 水産大学校。
- 2) 環境庁水質保全局 (1973) 昭和47年度瀬戸内海水質汚濁総合調査データ表 (その1), 531pp。
- 3) 塩沢孝之, 川名吉一郎, 星加章, 谷本照巳, 滝本脩 (1979) 瀬戸内海の底質, 中国工業技術試験所報告, 4, 1-24。
- 4) 例えば Hoshika, A. and Shiozawa, T. (1985) Heavy metals and accumulation rates in Osaka Bay, *Journal of Oceanographical Society of Japan*, 41, 115-123。
- 5) 瀬戸内海環境保全協会 (1988) 昭和62年度瀬戸内海環境情報基本調査 (総合解析編), 156pp。
- 6) 瀬戸内海環境保全協会 (1995) 平成8年度瀬戸内海環境管理基本調査 (総合解析編), 286pp。
- 7) 環境庁 (1988) 底質調査法, 環水管第127号環境庁水質保全局長通知。
- 8) 環境庁水質保全局監修 (1997) 瀬戸内海の環境保全平成8年度, 159pp, 瀬戸内海環境保全協会。
- 9) 瀬戸内海環境保全協会 (1995) 平成8年度瀬戸内海環境管理基本調査 (底質重金属解析編), 193pp。
- 10) 永淵修, 東義仁, 清水徹, 駒井幸雄, 村上和仁, 小山武信, (1998) 最近10年における瀬戸内海底質の変動評価, 水環境学会誌, 21, 797-804。
- 11) Krumgalz, B. S., Fainshtein, G., Sahler, M. and Golfunkel, L. (1989) "Field Error" Related to Marine Sediment Contamination Studies, *Marine Pollution Bulletin*, 20, 64-69。
- 12) 駒井幸雄 (1995) 海域底質のサンプリング誤差について, 兵庫県立公害研究所研究報告, No. 27, 16-21。
- 13) 兵庫県 (1996) 環境白書平成7年度版, 387pp。
- 14) 古武家善成, 深田哲右 (1992) 河川における重金属濃度の長期変動パターン, 第26回日本水環境学会講演要旨集, 302-303。
- 15) 財兵庫県下水道公社 (1990) 平成2年度管理年表, 259pp。
- 16) 勅矢野恒太郎記念会編 (1997) 日本国勢図録 CD-ROM 1997/1998。
- 17) 兵庫県保健環境部環境局大気課, 兵庫県立公害研究所 (1996) 兵庫県における金属物質による大気汚染一現状と過去20年間の濃度推移—(金属物質監視測定結果1975-1994), 112pp。
- 18) 清水徹, 駒井幸雄, 小山武信, 永淵修, 日野康良, 村上和仁 (1998) 瀬戸内海における汚濁負荷量と水質の変遷, 水環境学会誌, 21, 780-788。
- 19) 環境庁編 (1995) 環境白書平成7年版総説, 460pp。
- 20) 星加章, 塩沢孝之 (1990) 瀬戸内海における重金属元素および懸濁物の収支, 中国工業技術試験所報告, 34, 77-87。
- 21) 水野篤行 (1972) 水質底質調査法入門, 150pp, ラテイス。
- 22) 星加章 (1991) 大阪湾における底質汚染—1977年と1988年の調査結果から—, 中国工業技術試験所報告, 37, 51-57。
- 23) 大阪府立水産試験場 (1996) 平成6年度大阪府立水産試験場事業報告, 1-10。