瀬戸内海における石油廃水の漁場に及ぼす影響 に関する研究—II.

海底上の廃油の分布

杉本仁弥・鈴木正也・竹内 脩

(1964 年 10 月 29 日受理)

STUDIES OF THE OIL POLLUTION ON THE FISHING GROUND IN SETO INLAND SEA—II. DISTRIBUTION OF OILY WASTES IN THE MUD OF SEA BOTTOM

Hitomi SUGIMOTO, Masaya SUZUKI and Osamu TAKEUCHI*

The present work deals with the pollution of sea bottom by wastes from oil factories, as indicated by ether-extractable substances, ignition loss, COD and sulfide in the bottom mud.

The distributions of ignition loss and ether-extractable substances are shown in Figs. 1 and 2, and the relation between their values presented in Fig. 3. The marked correlations between them were observed in the regions of Osaka and Shimotsu, both of which have semi-closed geographical features. The appearance of visible spots or odour of oily waste was observed on the mud which contained ether-extractable substances more than 4 mg/g, and located within the limits of 1 km from the out-fall of oily waste.

The distributions of sulfide and COD are shown in Figs. 4 and 5. The relations between ether-extractable substances and sulfide or COD in the mud are given in Figs. 6 and 7, respectively. Both sulfide amounts and COD values increased with increment of ether-extractable substances. This tendency observed in the Shimotsu area, where oily wastes are mainly discharged, may indicate that the oil pollution brings about the increases of sulfide amounts and COD values in the mud.

廃油による海底の汚染について、廃油は大干潮線以浅の岩礁、砂浜に付着し、生物の生息に影響を及ぼすことが報告¹⁾²⁾され、また大干潮線以深の海底における廃油の分布については、三重県四日市地先海域についての報告³⁾がある。しかしこの調査は四日市港内にかぎられ廃油の分布限界は明確でない。一方廃油を含有した泥質上で飼育された魚類は油臭を帯びることも報告⁴⁾されていて、海底上の廃油の分布範囲を明確にして置くことは廃油の漁場に及ぼす影響を知る上に必要である。著者らは前報⁵⁾において、懸濁させた浮泥が海水中に分布する廃油の一部を吸着して沈降し、海底を汚染することを予報したが、その後おが屑、繊維屑の廃油吸着量についてさらに実験を行なった。また瀬戸内海の岩国、水島、大阪、下津各水域について現地調査を行ない、海底上の廃油の分布範囲について調査したのであわせ報告する。

実験方法

浮泥、おが屑、セルローズ粉末による廃油およびB重油の吸着量：前報で浮泥に対する廃油の吸着量を調べたが、今回は有機性の懸濁物の代表として、おが屑とセルローズ粉末について調べた。浮泥、おが屑は

* 内海区水産研究所 (Naikai Regional Fisheries Research Laboratory)

内海区水産研究所業績 第 108 号

ソックスレー中、エーテルで 16 時間脱脂し、風乾後篩別し、浮泥は 100~200 mesh, おが屑は 30~50 mesh のものを 105°C で 1 時間乾燥し試料とした。セルローズ粉末は市販品 (100~200 mesh, 東洋汙紙 K. K. 製) を 105°C で 1 時間乾燥し試料とした。

海水 1000 ml 中に前報と同じ廃油および B 重油を各々加え、ミキサーに掛けエマルジョンにした後、上述の懸濁物を各々 50 mg および 100 mg 加え、振盪器で 30 分間振盪した。ついで遠心分離機で懸濁物と海水に分け、双方をそれぞれ 3 回エーテル抽出後、前報で述べた方法で乾燥秤量した。沈澱管などに付着した油はエーテルで洗滌し海水を抽出したエーテルに加えた。

採泥地点ならびに採泥方法： 採泥は Fig. 1 の丸印の位置で行ない、調査月日は Fig. 1 に記載した日に廃油の分布調査と同時に実施した (大阪, 下津, 水島)。採泥はエックマンバージ型の採泥器 (15 cm 平方) を用いて行ない、泥質の臭気および泥質上に浮上してくる廃油の存否を観察した後、水質汚濁調査指針⁶⁾に準拠して試料の採取を行なった。

試料中の強熱減量, 硫化物, COD の定量： 水質汚濁調査指針記載の方法によつた。

試料中のエーテル可溶物の定量： 室温で風乾した試料を乳鉢に入れ良く碎き、90°C で 30 分間乾燥し、その約 10 g をソックスレーに入れて 16 時間エーテルで抽出し、エーテルを溜去後、残渣を 70°C で 1 時間乾燥し、デシケーター中で 30 分間放冷して秤量、エーテル可溶物量とした。

結果ならびに考察

浮泥, おが屑, セルローズ粉末による廃油および B 重油の吸着量： 実験の結果は Table 1 に示した。海水に廃油あるいは重油を懸濁させるとき油がミキサーの器壁に付着して油の濃度を一定にそろえることができなかったが、懸濁物の種類によつて吸着量の異なることが明らかに認められた。表にも見られるようにセルローズ粉末が最も多くの油を吸着し、浮泥, おが屑の約 1.5 倍前後で、浮泥とおが屑の吸着量はほぼ同程度であつた。前回の浮泥についての実験では、浮泥量の 10~15 % の吸着がみられた、本実験では 5~

Table 1. Adhesion of oily substances to the suspended matters.

	Oil in water mg/1000 ml	Suspended matters mg		Oil adhered to suspended matters mg
Oily waste*	27.6	Defatted mud with ether (mesh, 100~200)	50	2.9
			100	3.7
	36.6	Cellulose powder (mesh, 100~200)	50	5.2
			100	4.5
	38.2	Defatted sawdust (mesh, 30~70)	50	4.5
			100	7.2
Fuel oil	26.4	Defatted mud	50	7.9
			100	3.6
	45.8	Cellulose powder	50	4.2
			100	3.9
	44.4	Defatted sawdust	50	2.7
			100	5.6
			50	6.1
			100	4.5

* cf. The footnote of Table 3 in the previous paper.

10 %程度にすぎなかった。これは今回乾燥した浮泥を直接用いたこと、および粒子を一定にしたことによるものと考えられる。また懸濁物の重量を変えても表にみられるように、単位重量あたりの吸着量はほぼ等しかった。

海底の強熱減量とその分布: 岩国、水島、大阪、下津地先水域における強熱減量の分布状況は Fig. 1 に示した。この図は測定値から、10.0~12.9 %, 13.0~19.9 %および 20.0 %以上の地域を推定図示したもので、10.0 %以下の測定点については測定値を数字で示した。

Fig. 1. Ignition loss of the sea bottom mud adjacent to oil factories.

瀬戸内海の一般泥の強熱減量は 13 %以下である⁷⁾といわれているが、岩国水域、大阪港内、丸善石油下津工場排水口の周辺部の底質は 13 %以上の強熱減量を示し、有機物が異常に多いことを示している。一方水島水域では港内でもこのような高い値は認められなかった。各水域の海底への沈降物の供給源には次のような特徴が認められる。すなわち岩国水域には隣接する S パルプ工場がパルプ繊維などの懸濁物をこの水域に排出し⁸⁾⁹⁾、また小瀬川の 2 km 上流にある N 製紙工場などから流入する懸濁物が考えられる。大阪水域には多くの各種工場からの廃水ならびに都市廃水が排出されていてその汚染度は高い¹⁰⁾¹¹⁾。下津水域では丸善石油下津工場の廃水が排出されている小川の河口から約 1 km 上流にある水門付近で都市の廃棄物が投棄

されていた。一方水島水域には油脂工場、火力発電所などがあるが、産業都市として港湾工事が大がかりに実施されていて、海底自体が大きく変動している時期で、上述の三水域とは条件が異なっていた。以上各水域とも海底の沈降物の種類および量には多少の相違のあることが十分に推測される。

エーテル可溶物量の分布： 底質に含まれているエーテル可溶物量の分布は Fig. 2 に示した。この図は測定値から、1.0~1.9 mg, 2.0~4.9 mg, 5.0~9.9 mg, 10.0~19.9 mg および 20.0 mg 以上の地域を推定図示したもので、1.0 mg 以下の測定点については測定値を数字で示した。

Fig. 2. Distribution of ether-extractable substances in the sea bottom mud adjacent to oil factories.

エーテル可溶物量を 1 mg/g 以上含む底質の範囲は、大阪水域では本調査の範囲を越えたが、岩国水域では距岸約 3 km, 水島水域では約 0.7 km, 下津水域では約 2.5 km で、水域によつて相当の差が認められた。しかし五官観察で廃油の認められた範囲はさらにかぎられていて大阪水域が最も広いが、河口から約 1 km の範囲にかぎられ、前報で述べた海面の廃油の分布範囲よりも狭かつた。

Fig. 3. Relation between amounts of ether-extractable substances and ignition loss in the mud.

エーテル可溶物量と強熱減量との関連: 両者の関係は Fig. 3 に示した。図にみられるように四水域とも強熱減量の大きい底質ほどエーテル可溶物量が多い傾向がみられ、大阪、下津兩水域では両者はかなりの相関性を示し、Fig. 3 の A 直線 (相関係数 0.7809, $\log y = 2.42 \log x - 1.5217$) で示され、一方岩国、水島兩水域ではその関係はかなりのばらつきを示して一応 Fig. 3 の B 直線 (相関係数 0.2967, $\log y = 0.439 \log x - 0.4495$) で表示したが、両者の相関性は顕著でなく二つのグループに区分できる。この違いは上述のように、前の二水域が閉鎖的な地形であるのに対し、後の二水域は開かつな地形であるため、廃油の分布もやや広範囲に点在し (前報) また懸濁物の沈降の範囲も広いと推察される。

底質のエーテル可溶物量と油臭および油の斑点との関係: 採泥時の観察で、油臭または油の斑点の認められた試料のエーテル可溶物量はつぎの例外を除いて 4 mg/g 以上であつた。すなわち三菱石油水島工場排水口の直前で採取した試料ではエーテル可溶物量が 1 mg/g であるにもかかわらず油臭のみが認められた。試料中のエーテル可溶物量は廃油のみでないにしても、その含有量の高い試料では廃油がその主体をなすと考えて差しつかえないであろう。

海底のエーテル可溶物量と他の汚染指標との関係: 底質の汚染は硫化物、COD によつて表示できると報告^{8) 6) 12)} されている。

各水域における硫化物量および COD の示す海底汚染の状況は Fig. 4 および 5 に示すとおりであつた。著者らはさきにパルプ製紙工場地先の海底で COD 20 mg/g, 硫化物量 0.5 mg/g 以上を示す底質では底生生物の組成割合が変動してくることを報告⁷⁾ した。本調査ではこれらの値を示す範囲は、大阪水域で河口から約 5 km, 岩国、水島、下津水域では排水口から約 1~1.5 km の範囲であつて、いずれも廃油の水面上の分布範囲よりも狭いであつた。

つぎに本調査で認められたエーテル可溶物量と硫化物量および COD との関係はそれぞれ Fig. 6 および 7 に示すとおりである。エーテル可溶物量が増加するにつれて、硫化物量、COD 共に増加の傾向を示す。しかし上述のように各水域ともパルプ廃水、都市廃水などが同一水域に排出されていて、これらの廃水に由来する有機物による汚染を十分に考慮しなければならないが、やや開かつな地形にある岩国、水島兩水域では

Fig. 4. Distribution of total sulfide in the sea bottom mud adjacent to oil factories.

両者の関係は、かなりのばらつきを示すが、閉鎖型の地形にある大阪港、下津両水域では両はかなりの相関性を示し、Fig. 6 の C 直線 (相関係数 0.6765, $\log y = 0.6605 \log x - 0.1892$), D 直線 (相関係数 0.8222, $\log y = 0.5611 \log x - 0.7011$), Fig. 7 の E 直線 (相関係数 0.8633, $\log y = 0.6530 \log x + 0.8092$), F 直線 (相関係数 0.7849, $\log y = 0.4677 \log x + 0.6887$) で表示できる。

上述の結果および Fig. 3 に示した結果を総合して、半鎖型の地形をした水域では、海底上に沈降した有機物の量およびエーテル可溶物量と硫化物量あるいは COD は相関性があることがわかった。しかし各水域には他種廃水が流入しているため、油関係の廃水のみでこのような汚染の状態をもたらすものとは断言できないが、他種廃水の流入の少ない下津水域でエーテル可溶物量の増加につれて、硫化物量および COD が増加していることは、油関係の廃水によっても他種有機廃水と同様に硫化物量や COD で示される底質汚染を起こすものと考えられる。

摘 要

- 1) 油関係工場地先では底質の強熱減量が増加するにつれて、底質に含有されているエーテル可溶物量も

Fig. 5. Distribution of COD of the sea bottom mud adjacent to oil factories.

増加の傾向を示す。特に半閉鎖型の地形の大阪，下津水域では両者の相関性は顕著であるが，開かつな地型の岩国，水島両水域ではかなりのばらつきを示した。

2) エーテル可溶物を 1 mg/g 以上を含む底質の範囲は，大阪水域では本調査の範囲を越えたが，岩国水域では距岸約 3 km，水島水域約 0.7 km，下津水域では約 2.5 km であった。

3) 採泥時に油臭または廃油の斑点の存在が認められた底質のエーテル可溶物は 4 mg/g 以上で，エーテル可溶物が 1 mg/g で油臭を感じた一つの例外があった。

4) 油臭または廃油の斑点の認められた底質の範囲は極くかぎられていて，廃油の海面上の分布よりも狭いであつた。

5) 底質のエーテル可溶物が増加するにつれて，硫化物量，COD 共に増加の傾向にある。特に半閉鎖型の地形である大阪，下津両水域の両者の相関性は顕著である。各水域ともパルプ廃水などの他種廃水が同一水域に流入していて，硫化物量あるいは COD で示される底質の汚染の主要因が石油廃水によるのか，他種廃水によるのか判然と区分しがたい。しかし他種廃水の流入の少ない下津水域でエーテル可溶物量の増加につれ，硫化物量および COD が増加していることは，石油廃水は他種有機廃水と同様に硫化物量，COD で

Fig. 6. Relation between amounts of ether-extractable substances and total sulfide in the mud.

Fig. 7. Relation between amounts of ether-extractable substances and COD values in the mud.

示される底質の汚染を起こすことを示しているものと考えられる。

文 献

- 1) 農林省水産局：水質保護に関する調査 (1932).
- 2) M. GEORGE: Oil Pollution of Marine Organisms. *NATURE* **192**, 1209 (1961).
- 3) 伊勢湾汚水調査対策推進協議会：伊勢湾汚水調査報告書第1報 (1961).
- 4) 新田忠雄：瀬戸内海水質汚濁の事例とその対策，内海区水研 (1964).
- 5) 杉本仁弥・鈴木正也・竹内 脩：瀬戸内海における石油廃水の漁場に及ぼす影響に関する研究—I，
廃油の分布，本誌，**30** (7)，(1964).
- 6) 松江吉行編：水質汚濁調査指針 (1961).
- 7) 荒川 清・新田忠雄：海底泥の分析法に関する研究，内海区水研究報告，**3** (1953).
- 8) 前川兼佑：瀬戸内海，特に山口県沿海における漁業の調整と資源培養に関する研究，山口県内海水
試報告，**11** 巻1号 (1961).
- 9) 杉本仁弥・鈴木正也・竹内 脩：瀬戸内海におけるパルプ，製紙廃水の漁業に及ぼす影響に関する
調査結果，内海区水研刊行物，C. No. 1 (1964).
- 10) 新田忠雄：大阪市周辺の水質汚濁に関する検討，大阪府 (1962).
- 11) 大阪府：大阪市周辺の水質汚濁に関する検討，大阪府 (1961).
- 12) 富山哲夫・神崎嘉瑞夫：底土に含まれる硫化物の少量定量法，本誌，**17** (5)，(1951).