

アジアの鳥類分布データベース「BirdBase」の開発

高田 雅之 佐竹 聖一 神山 和夫* 北川 理恵**

要 約

独立行政法人科学技術振興機構の研究情報データベース化事業において、平成12年～15年の3年間で、科学技術振興機構と北海道環境科学研究センターが共同して「アジアの鳥類分布データベース (BirdBase)」を開発した。本システムでは、北海道、日本、そしてアジアにおける鳥類分布情報、及び重要な生息地域についての情報を収集・統合し、850種、約32万5千件に及ぶデータベースを構築するとともに、インターネットGISを用いて種または地域を指定してデータ検索し地図上に表示することができる。また、野鳥観察団体などがユーザーズグループとなり、グループ内でインターネットを通してデータを入力し情報を共有するシステムを開発した。今後さらにデータの充実と機能の改善を図るとともに、アジア地域を含めて幅広い利用を促進し、生息地の消失などで脅かされている鳥類とその生息地を保全するための科学的及び政策的な情報基盤を提供し、アジア地域における生物多様性の保全に寄与していきたい。

Key Words: 鳥類、BirdBase、アジア、データベース、インターネットGIS

1 はじめに

動植物の分布と生息環境に関する情報は、生物種及び生態系の多様性を保全するための最も基本的なデータとして重要であるが、さまざまな機関や個人によって調査が行われるために、記録データが各所に分散し、データの入手が難しいだけでなく、ある地域でどのような調査が行われているのかさえ知られていないことがよく起きる。また調査データは一度報告書や論文にまとめられた後はしまい込まれてしまうことが多く、保全のための調査研究や政策立案に利用されにくいのが現状である¹⁾。

一方生態系の上位に位置する鳥類を考えると、アジア地域間が渡りを通じてつながっており、北海道のみならずアジアの空間スケールで生物多様性の保全を考える必要があるが、アジアの現状を見るに、必ずしも生物多様性保全を取り巻く環境が望ましい状況にあるとは言い難い²⁾。

そこで、北海道、日本、そしてアジアの鳥類の分布、及び生息地として重要な地域に関する様々な情報を統合してデータベース化し、インターネット上でGIS (地理情報システム) を通じて広くこれらの情報を提供するシステム「アジアの鳥類分布データベース: BirdBase (バードベース)」(<http://birdbase.hokkaido-ies.go.jp/>)を開発した。開発は、独立行政法人科学技術振興機構 (JST) の「研究

情報データベース化事業」において、平成12年10月から平成15年9月までの3年間で、科学技術振興機構と北海道環境科学研究センターが共同で行った。開発に当たっては、(財)日本野鳥の会などの協力を得るとともに、専門アドバイザー委員会を設置し専門家の助言を得た。

このデータベースを普及させるとともに、データ量をさらに増やしていくことにより、生息地の消失などで脅かされている鳥類とその生息地を保全するための科学的及び政策的な情報基盤を提供し、ひいてはアジア地域における生物多様性の保全に寄与しようとするものである。

2 BirdBaseの概要

BirdBaseのシステムと機能は、データベース、インターネットGIS (WebGIS)、そしてユーザーズグループによるデータ共有の大きく3つに分けることができる。以下にその概要を述べる。

① データベース

複数の調査機関に分散して所蔵されているアジア地域の鳥類分布及び生息環境等に関するデータを、同一のフォーマットに変換統合し、Oracleをベースとしたリレーショナルデータベースシステムを構築した。

② インターネットGIS (WebGIS)

WebGISソフト (ArcIMS) を使用してユーザーインターフェースを作り、クライアントはインターネット上でWebブラウザを用いて種名や地域を指定し、データベースから該

*財団法人日本野鳥の会

**独立行政法人科学技術振興機構

表1 データ源別のデータ件数一覧^{注1}

データの種別	種・亜種数	データ件数
日本とアジアの鳥類レッドデータブック ^{注2}	304	20,000
日本とアジアの重要自然環境地域 (IBA) ^{注2}	301	3,600
日本野鳥生息地モニタリングデータ ^{注3}	50	250
第2回自然環境保全基礎調査 (動物分布調査報告書(鳥類)) ^{注4}	223	41,000
第3回自然環境保全基礎調査 (動物分布調査報告書(鳥類)) ^{注4}	316	67,000
東アジア地域ツル類重要生息地ネットワーク ^{注3}	107	250
衛星追跡調査 ^{注3}	4	16,000
ガン・カモ・ハクチョウ類一斉調査 ^{注3}	66	50,000
北海道の重要湿地データ ^{注5}	111	600
北海道の鳥類分布データ ^{注5}	324	126,650
合計	850	325,350

注1 データ件数は平成16年11月末のものである。種(亜種)名、調査地、調査日の異なる鳥類観察データを1件とした。
 注2 バードライフ・インターナショナルの提供による。
 注3 (財)日本野鳥の会提供による。
 注4 環境省の提供による。
 注5 北海道による。

当する情報を検索して地図表示ができるシステムを開発した。

③ ユーザーズグループによるデータ共有

鳥類の分布調査などを行っている地域の活動団体や学校のサークルなどがひとつのユーザーズグループとなり、グループ内のメンバー間で、インターネット上でデータを入力し情報を共有するシステムを開発した。各ユーザはGeoBeans Liteをもとに開発したWindows用のGISソフトウェア (BirdBase for Windows) をインターネットから無償でダウンロードして使用する。

本システムの利用者としては、鳥類研究者、鳥類調査関係者 (コンサルタントを含む)、野鳥観察団体及び野鳥保護活動団体といった鳥類に関する専門家や、関係行政担当者、さらには野鳥に関心のある一般の人々まで幅広く対象として考えている。また、英語版を同時に作成しており、海外の専門家や行政官なども利用可能である。

従来、野鳥についての情報は「いるいない」「見た見ない」に留まりがちであり、北海道、日本、さらにはアジアという広い視野から「分布」「移動」「生息環境」「変化」といった時間的または空間的に野鳥を捉える視点を提供するとともに、野鳥を通して関係する地域の相互連携を促すことでアジアの野鳥保護に寄与したいと考えている。

3 データ源と件数

これまでに整備したデータは、環境省、(財)日本野鳥の会、国際的なNGOであるバードライフ・インターナショナル、そして北海道の4機関が有する異なった形式のものを同一のフォーマットに変換し統合して作成した。このう

ち北海道が有するデータとは、主に既存の文献資料をもとにまとめたものである。表1に平成16年11月末現在のデータ源別のデータ件数を示した。合計で約32万5千件を越えており、野鳥の分布情報に関するデータ件数としては世界でも他に例を見ない規模であると言える³⁾。

データの統合に当たり、位置情報がデータ源によって、点、面、メッシュコードなどさまざまな形態であった点について、できるだけ元データの記載のままに表現されるようGISデータベース上で一元化を行った。また、機関・団体によって鳥類の種名リスト (分類や呼び名) が異なっている問題については、相互に関連づけられた横断検索機能を構築することにより、どのリストを元にしても連携検索が可能となる構造とした。さらに、データ源ごとにメタデータ (データの属性や概要に関する情報) を作成し、環境省生物多様性センターが取り組んでいるクリアリングハウスメカニズムに対応できるような配慮も行った。

今後、まとまったデータとしては、「日本とアジアの重要自然環境地域 (IBA: Important Bird Area)」(バードライフ・インターナショナル提供) 及び「第5回自然環境保全基礎調査 (鳥類生息分布調査)」(環境省提供) に係るデータが2005年に公表される見込みであり、その後にBirdBaseに追加していく予定としている。また、北海道の鳥類分布データについても、今後、調査・研究・事業などの様々な機会を通じて、毎年5,000~10,000件程度を目標にしてデータを増やしていくとともに、後述するBirdBase for Windows で集積されたユーザーズグループのデータを加えていくなど、さらなる件数の増加を図り、それに伴ってデータベースの質と利用価値も高まるものと考えている。

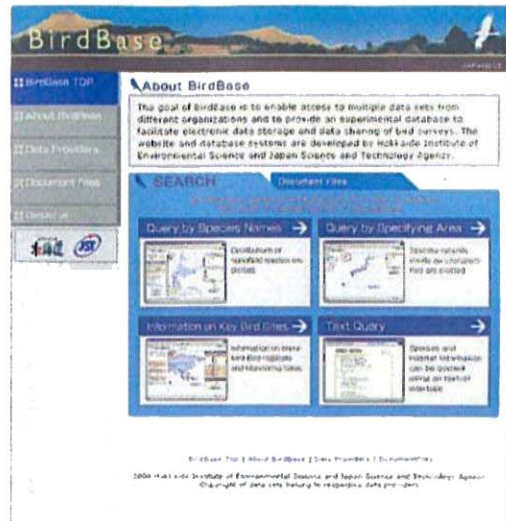


図1 インターネットのトップ画面（日本語版及び英語版）

4 データベースの機能

インターネット上から利用可能なデータベース機能としては、大きくWebGISによるデータ検索及び表示機能と、ユーザーズグループによるデータ共有機能の2つがある。

4.1 WebGISによるデータ検索及び表示機能

インターネットのトップ画面（図1）に示しているように、「種名から検索する」「地域から検索する」「生息地の情報を見る」「分布地の一覧を見る」の4つの検索機能がある。

「種名から検索する」では、検索対象とするデータ源及び使用する種名リストを選択し、種名と検索期間を指定して検索を行うと該当するデータが地図上に表示される。図2にコジュケイの日本国内の分布を例示した。期間の指定については、季節に着目して各年のある期間を指定する機能も備えている。同時に表示できるのは4回検索分までで、同じ種で季節を分けて重ね合わせるなど、多様な表現力を備えているといえる。

「地域から検索する」では、矩形または多角形を指定すると、その範囲内の鳥類分布データが地図上に表示される。検索したい地域を探しやすくするため、市町村名を指定してそこにジャンプする機能も備えている。

「生息地の情報を見る」では、画面上に表示された地域ポイントから、鳥類の生息環境として重要な地域に関する説明情報をPDFまたはhtml形式で見ることができる。図3に北海道の重要湿地及び日本とアジアの重要自然環境地域（IBA）の表示例を示した。

最後に「分布地の一覧を見る」では、種名からの検索と同様の条件指定により、地図ではなくテキストの一覧情報



図2 種名による検索結果の例（コジュケイ）



図3 重要生息地に関する情報表示の例

として検索結果を見ることができる。

以上の検索機能に加えて、支援情報として希少種に関する説明情報も見ることができる（図4）。また地図表示の

背景として、アジア地域ではESRI社のDCW (Digital Chart of the World) データ及び国土地理院の地球地図を、日本については国土地理院作成の国土数値情報及び財団法人地図センターが提供している20万分の1地図画像を、そして北海道については、これらに加えて土地利用図(国土数値情報)並びに北海道が作成した自然公園区域及び湿原区域を使用することができ、自分が重ねたいものを自由に選択して表示することができる。

このように、鳥類の分布図に加えて、生息地や保護の状況などを見ることができ、背景図などの情報を組み合わせることで表示することができるといった多面的な情報発信が実現することにより、自然環境の保全に向けた高い潜在的有用性が期待される。

また、WebGIS上の最大の課題と思われた検索速度についても、技術的な検討と試行錯誤を重ねて解決することができた。その結果として、データ量の膨大さにも関わらず、平易な操作性とコンパクトなシステムにまとめることができたものと考えている。今後ともさらなる操作性の向上に努めていきたい。

4.2 ユーザーズグループによるデータ共有機能

この機能は、野鳥観察団体や地域の活動グループなどが、インターネットを通じてユーザーズグループとして登録し、BirdBase for Windowsをダウンロードして、グループ内のメンバー間でネット上でデータの入力及び地図上での共有化を行うものである。

BirdBase for WindowsはBirdBase Note及びBirdBaseMapの2つのソフトウェアで構成されており、BirdBase Noteは観察データ(観察位置、種類、観察地の状況など)を入力するためのソフト、BirdBase Mapは緯度経度やメッシュ番号といった位置情報を取得しこれを地図に表示

するためのソフトであり、どちらもダウンロードして使用する(図5及び図6)。このうちBirdBase NoteはAccessをもとに組んだもので、ユーザーが独自にカスタマイズすることができる形となっている。

グループの各メンバーが入力したデータはサーバーに集められ、グループのメンバーのみが閲覧できる仕組みとなっている。現在のところ、運用試験的に利用してもらっている状況であるが、今後、多くの団体に利用してもらい、ユーザーの意見をもとに必要な改良を加えていくとともに、(財)日本野鳥の会やNPO法人EnVision環境保全事務所などの民間団体と連携して、GISソフトであるBirdBase Mapの改良や応用にも取り組んでいく考えである。

また、ユーザーズグループによって蓄積されたデータについては、個々のグループと相談の上で、可能なものからWebGISのデータベースに組み入れ、インターネットを介して多くの人々に利用してもらおうこととしていきたいと考えている。



図5 BirdBase for Windows のダウンロードページ

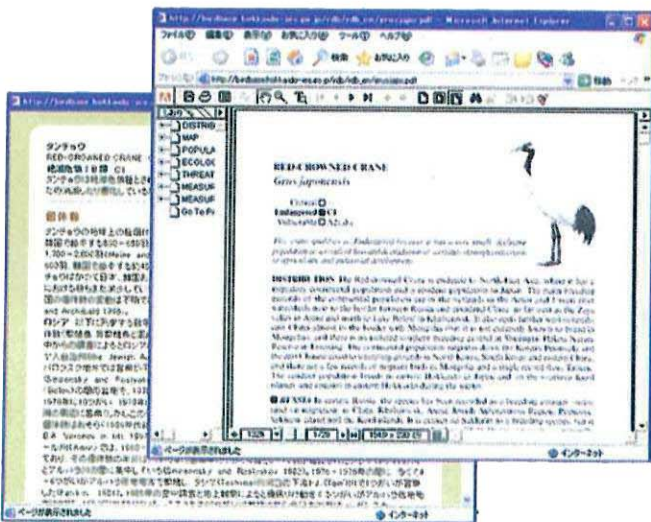


図4 種に関する支援情報の例(タンチョウ)

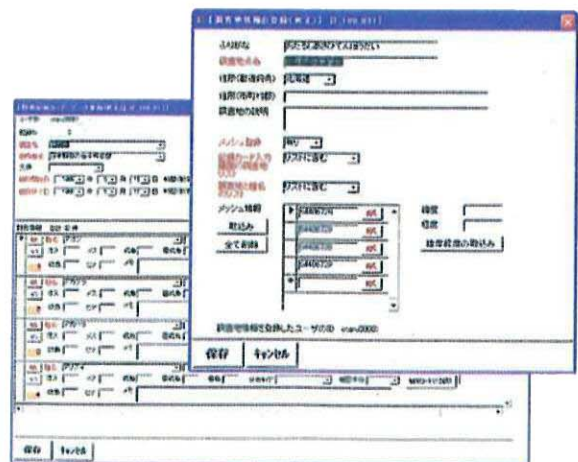


図6 BirdBase for Windowsのデータ入力画面

5 運用と利用の促進

BirdBaseがその目指す使命であるアジア地域における生物多様性の保全に貢献していくためには、データの質と量を高め、システムを持続的に発展させていくことが必要である。そのためには、システムの保守、セキュリティの確保、データの追加と管理、ユーザーに対する技術的ケアといった運用体制をしっかりとつことが基本であると同時に、より多くの人々やユーザーズグループに利用してもらうための営業努力と、さらには自然環境保全のための研究や政策検討、各種の活動に生かすための取り組みを推進していくことが重要と考える。

そのためには、当センターにおける環境情報システム全体の枠組みの中で取り組んでいくことはもちろん、(財)日本野鳥の会をはじめとする他の機関や団体との機能的な連携も行いつつ効率的な運用体制を維持していく必要があると考えている。

特に利用の促進については、様々な機会を利用して取り組むという不断の努力が不可欠である。本システムが公開された平成15年10月から平成16年9月までの1年間のBirdBaseアクセス数はおよそ8,600件と推定され、その多くは、鳥類調査関係者、在野の鳥類専門家、鳥類研究者、及び鳥類に関心のある一般による、「分布」や「生息環境」といった視点からの利用が主であると分析している。浅く広く利用してもらうことと、多少限られたユーザーであっても深く利用してもらうこととの兼ね合いは難しいところであるが、潜在的な利用を掘り起こす、または利用の可能性についてより広く動機付けを行うという観点から、一層の利用促進を図っていくとともに、質（データ量、操作性、精度、表示バリエーション）の充実に取り組んでいく必要があるものと考えている。

具体的な利用促進の方法としては、報道機関等を通じたPR、2004年4月に作成したパンフレットの活用、各種団体及び会員に対する働きかけ、検索エンジンでヒットされやすい工夫の検討、小中学生や初心者など幅広い利用を進めるための取り組みなどが考えられる。

現在、NPO法人バードリサーチと連携して、バードリサーチが独自に行っている参加登録型の野鳥観察データベースづくりにBirdBaseのツールを提供するとともに、集まったデータを、BirdBaseにフィードバックしようという取り組みが始められている。このような様々な機会を柔軟に活用していくことも大いに進めていきたいと考えている。

6 BirdBaseに期待される役割

アジア地域の自然環境を取り巻く状況は、絶滅する種が絶えないなど依然として厳しい状況にあり²⁾、今後BirdBase

においてアジア地域のデータ充実と利用促進を図ることを通じて、アジアの生物多様性保全の情報基盤になり得るものと期待される。日本に生息する鳥類のうちかなりの種が東南アジアで越冬したり、中国や朝鮮半島を中継したり、ロシアで繁殖するなど総じて日本との関わりが深いといえ、例えば、近年北海道で激減が指摘されているシマアオジ⁴⁾について、今後アジアを視野においた他国との研究連携などの機会が生まれれば、BirdBaseが情報支援の立場から寄与できる可能性があると考えられる。

加えて、近年の鳥インフルエンザの流行等により、渡り鳥の移動経路などに注目が集まってきており、今後これらに関する研究プロジェクトに対して、鳥類の分布情報を提供する立場から、BirdBaseが貢献できることも期待される(図7)。

アジアという広い視点と同時に、地域における野生生物の生息環境保全というスケールで研究、政策に貢献することも重要であり、これまで取り組んでいる研究⁶⁾をさらに進めて、地域の野生生物の生息環境保全に向けて、BirdBaseのデータベースを用いて、種の多様性評価や潜在生息地に関する解析などにも取り組み、政策に生かしていきたい考えである。

また環境教育に関して、平成15年に北海道が作成した、小中学生向けに動植物分布の情報を発信する「北の生き物たち」⁶⁾、及び希少動植物に関する情報発信を行う「北海道レッドデータブック」⁷⁾の両ホームページについて、当センターがデータ管理の一部を担っており、これらと連携することによって、目的や個人レベルに応じて効果的な利用促進を図っていくことができるものと考えている。

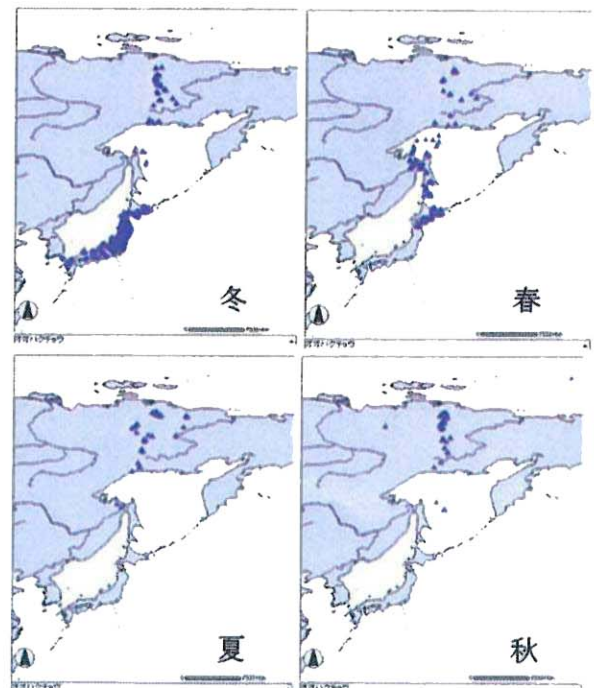


図7 BirdBaseによるオオハクチョウの季節移動の例

前述したように、これまで野鳥に関する情報は、「いるいない」「見た見ない」という利用がほとんどであり、分布として広い視野で利用されることは少なかったといえる。今後、野鳥を空間的（分布）・時間的（移動）に広い視点から捉えるニーズが高まるものと想定され、将来に対しての潜在的有用性は高まっていくものと思われる。その観点から、より密なデータが整備され、それをもとに地域から北海道、そして日本、アジアへと広い視点で地球環境を見ていく土台と道具を今回整備したことは、地球環境問題が深刻化するなかで、将来に向けて意義深いものといえ、一層のデータベースの充実を図ることが求められると考える。

7 今後の課題と展望

今後の課題としては、以下の5点があげられる。

① データの充実

様々な機会を活用してデータを増やすなど、恒常的な追加と更新を行う。

② 機能の一層の改善

ユーザーからの意見を反映しつつ、他機関・団体との連携協力を通じて改善能力を確保する。

③ 利用のプロモーション

「多くの関心ある人々による広い利用」と「専門家による反復的利用」の両面で利用促進を図る。

④ 「保護」の視点

BirdBaseのデータを用いた研究事例や評価事例を重ねて、活動事例や政策利用事例を得るとともに、それ自体を利用促進にも生かす。

⑤ 「アジア」の視点

アジア地域に生かすべく、地道な宣伝活動と調査研究連携の機会などを通じて、データの充実と利用の広がりを図る。

有限な運用資源の中で、これらの課題に取り組みつつ、データベースという基盤的な立場から、アジアの各地とネットワークを広げ、生物多様性の保全に寄与することを目指していきたい。そしてこのBirdBaseが、他の生き物への応用発展へつながり、またこれからの「参加型」自然環境調査のモデルになっていくことを期待するものである。

謝 辞

本システムの開発において、共同開発者である独立行政法人科学技術振興機構（JST）、多大な技術支援をいただいた財団法人日本野鳥の会、データを快く提供いただいた環境省（生物多様性センター）及びバードライフ・インターナショナル、多くの有用な助言をいただいた専門アドバイザー委員会の方々の各委員の方々、そして開発全般で支援をい

ただいた、NPO法人EnVision環境保全事務所、株式会社GIS北海道、富士通エフ・アイ・ピー株式会社、ほか全てのご協力いただいた方々に対して心より御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 高田雅之, 神山和夫, 佐竹聖一, 金子正美: 鳥類を指標生物としたアジア生物多様性保護データベースの構築, 第40回情報科学技術研究会(INFORUM 2003)予稿集, pp107-109, 2003
- 2) 日本環境会議: アジア環境白書 2003/04, 東洋経済新報社, 2003
- 3) 神山和夫: 鳥類分布データベースを作成して分布情報を共有する, 遺伝, Vol.56, No.5, pp80-83, 2002
- 4) 環境省自然環境局生物多様性センター: 生態系多様性地域調査(湿原生態系調査)報告書, 2004
- 5) 富沢昌章: 鳥類におけるGap分析—陸鳥と水鳥を例に—, 北海道におけるギャップ分析研究報告書, 北海道ギャップ分析研究会, pp130-131, 2002
- 6) <http://kankyo.hokkaido-ies.go.jp/html/index.html>
- 7) <http://rdb.hokkaido-ies.go.jp/index.html>

The Development of BirdBase

Masayuki TAKADA, Seiichi SATAKE,
Kazuo KOHYAMA, Rie KITAGAWA

Abstract

'BirdBase', Biodiversity Information and Research Database, was jointly developed by Japan Science and Technology Agency (JST) and Hokkaido Institute of Environmental Sciences between 2000 and 2003, as a Database Development Program of Research Information by JST. This database of 850 species with over 325,000 cases is a collection and integration of information on the bird distribution and important habitats in Hokkaido, Japan and Asia. This system also enables to search the data by specifying the species or the area with the WebGIS and show the result on a map. In addition, the data entry and share system through the Internet by user groups such as bird-watching groups has been developed. Further effort will be made to enrich the data and improve the functions, as well as to promote wider use over Asia, to provide fundamental scientific and political information for the conservation of threatened species and their habitats, and to contribute to the biodiversity conservation in Asia.

土壌試料中ダイオキシン類迅速抽出法の基礎的検討 — 高温還流抽出法の条件検討とソックスレー抽出法との比較 —

大塚 英幸 姉崎 克典 山口 勝透 岩田 理樹

要 約

土壌試料中のダイオキシン類の抽出方法として、高温還流抽出法による抽出率の経時変化を観察し、公定法のソックスレー抽出法（トルエンにより16時間抽出）との比較検討を行った。また、抽出溶媒にトルエン及びアセトンを用いた場合についても比較検討した。その結果、トルエンを溶媒とした場合、高温還流抽出法では、6時間で公定法と同等以上の抽出率が得られ、より短時間でダイオキシン類を抽出できることが分かった。この代替法の採用によりダイオキシン類の分析時間の短縮が可能である。

Key Words: PCDDs、PCDFs、Co-PCBs、高温還流抽出、迅速抽出法

1 はじめに

ダイオキシン類の分析に必要な抽出操作及び前処理は煩雑な上、有機溶媒を加熱する抽出工程に長時間を要し、危険を伴う。ダイオキシン類の抽出工程の迅速化は分析従事者にとって緊急かつ重要な課題である。

土壌試料中ダイオキシン類の抽出方法については、公定法¹⁾として16時間のトルエンソックスレー抽出法（Soxhlet Extraction, 以下「SE法」と略する。）が規定されている。それに代わる方法として、自動ソックスレー抽出法、高圧

液体抽出法、超音波環流抽出法、マイクロ波加熱抽出法などが提案され、検討されている^{2, 3, 4)}。この中で高温還流抽出法（Hot Extraction、以下「HE法」と略する。）は、SE法における抽出部を加温し一定の速度で抽出部の溶媒の一部を溶媒容器に排出する方法であり、抽出時間の短縮及び安全性の面から有用な代替抽出法であると考えられる。

今回、我々は土壌中ダイオキシン類抽出の迅速化を図る目的で、SE法に代わる迅速抽出法としてのHE法の抽出率を、2種類の溶媒を用い、抽出時間を変えることによる変化について比較検討したので報告する。

表 1 GC/MSの分析条件

	Te~HxCDD/Fs	Hp~OCDD/Fs	Co-PCBs
GCカラム	SP2331 (60m, 0.25mm, 0.2 μm)	DB17 (30m, 0.32mm, 0.25 μm)	HT8-PCB (60m, 0.25mm)
オープン温度	100°C (1min) - 20°C/min - 200°C (0min) - 2°C/min	100°C (1min) - 20°C/min - 280°C (10min)	120°C (1min) - 20°C/min - 180°C (0min) - 2°C/min - 260°C (0min) - 5°C/min - 300°C (13min)
注入口温度	260°C	280°C	280°C
キャリアガス流量	1.5 ml/min	1.5 ml/min	1.0 ml/min
注入法	スプリットレス	スプリットレス	スプリットレス
分解能	10000以上	10000以上	10000以上
測定モード	EI (電子衝撃型)	EI (電子衝撃型)	EI (電子衝撃型)
ポーラリティ	+	+	+
イオン源温度	260°C	260°C	260°C
イオン化電圧	40V	40V	40V
イオン化電流	500 μA	500 μA	500 μA
加速電圧	10kV	10kV	10kV
GCインターフェース温度	280°C	280°C	280°C
インレットパイプ温度	280°C	280°C	280°C
PFKインレット温度	70°C	70°C	70°C
イオンマルチ電圧	1.2kV	1.05kV	1.2kV
データ採取方法	SIM (ロックマス)	SIM (ロックマス)	SIM (ロックマス)

なお、本稿内でダイオキシン類とはポリ塩素化ダイベンゾダイオキシン（以下「PCDDs」と略する。）、ポリ塩素化ダイベンゾフラン（以下「PCDFs」と略する。）及びコプラナーPCB（以下「Co-PCBs」と略する。）の総称であり、個々の化合物をコンジェナーと呼び、塩素数が同じコンジェナーを総称して同族体と呼ぶ。

抽出操作及び前処理にあたっては、紫外線によるダイオキシン類の分解を避けるため^{5, 6)}、抽出時及び試料を保管する間は抽出容器やフラスコ類の全体をアルミホイルで巻き、分析室内の照明には紫外線カットの蛍光管を用い、窓に紫外線カットフィルムを貼るなど、できる限りの遮光条件下で操作を行った。

2 方法

2.1 抽出

本検討に用いた試料は、平成15年度環境測定分析統一精

表2 HE法による抽出率の経時変化（SE法（トルエンで16時間抽出）に対する百分率）

溶媒		トルエン				アセトン				
抽出時間		2h	4h	6h	12h	2h	4h	6h	12h	
		%	%	%	%	%	%	%	%	
PCDDs	4塩素化物	2,3,7,8-TeCDD	97	107	110	119	41	45	47	52
	5塩素化物	1,2,3,7,8-PeCDD	86	94	97	106	38	42	44	47
	6塩素化物	1,2,3,4,7,8-HxCDD	86	94	97	105	48	52	54	58
		1,2,3,6,7,8-HxCDD	88	95	98	105	53	57	59	62
		1,2,3,7,8,9-HxCDD	88	96	100	108	44	48	50	54
	7塩素化物	1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	90	97	99	105	67	71	73	76
	8塩素化物	OCDD	100	103	104	109	90	97	101	109
	PCDFs	4塩素化物	2,3,7,8-TeCDF	85	91	93	100	51	57	59
5塩素化物		2,3,4,7,8-PeCDF	84	89	92	98	51	55	57	61
6塩素化物		1,2,3,4,7,8-HxCDF	94	100	103	109	57	61	63	67
		1,2,3,6,7,8-HxCDF	92	98	100	106	54	58	60	64
		2,3,4,6,7,8-HxCDF	90	96	98	104	59	62	64	68
7塩素化物		1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	93	99	101	106	62	66	67	71
		1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	96	104	106	112	58	63	65	69
8塩素化物		OCDF	105	109	110	114	67	72	74	78
PCDD同族体	4塩素化物	TeCDDs	98	104	106	113	59	65	67	72
	5塩素化物	PeCDDs	89	96	99	107	48	52	54	58
	6塩素化物	HxCDDs	88	94	97	104	53	57	58	62
	7塩素化物	HpCDDs	91	98	100	106	70	74	76	80
	8塩素化物	OCDD	100	103	104	109	90	97	101	109
	計	PCDDs	98	101	103	108	83	89	92	99
PCDF同族体	4塩素化物	TeCDFs	90	95	98	104	56	62	64	68
	5塩素化物	PeCDFs	85	89	92	97	56	60	62	66
	6塩素化物	HxCDFs	94	99	101	106	60	64	66	70
	7塩素化物	HpCDFs	96	101	103	107	65	69	70	74
	8塩素化物	OCDF	105	109	110	114	67	72	74	78
	計	PCDFs	93	98	100	105	60	64	66	70
同族体の合計		PCDDs+PCDFs	97	101	102	108	78	84	87	93
ノンオルト	4塩素化物	3,4,4',5'-TeCB (#81)	97	102	104	110	70	76	79	84
		3,3',4,4'-TeCB (#77)	98	103	105	110	69	74	77	82
	5塩素化物	3,3',4,4',5'-PeCB (#126)	91	95	97	102	68	73	75	80
	6塩素化物	3,3',4,4',5,5'-HxCB (#169)	91	94	96	99	72	76	78	82
		Total Non-ortho PCBs	96	100	102	107	69	74	77	82
モノオルト	5塩素化物	2',3,4,4',5'-PeCB (#123)	95	98	100	104	76	83	85	90
		2,3',4,4',5'-PeCB (#118)	100	104	106	110	84	90	93	98
		2,3,3',4,4'-PeCB (#105)	96	99	101	105	81	87	89	94
		2,3,4,4',5'-PeCB (#114)	100	103	105	109	85	90	92	96
	6塩素化物	2,3',4,4',5'-HxCB (#167)	94	97	98	101	88	93	96	100
		2,3,3',4,4',5'-HxCB (#156)	102	105	106	110	89	94	96	101
		2,3,3',4,4',5'-HxCB (#157)	101	105	106	109	91	96	98	102
	7塩素化物	2,3,3',4,4',5,5'-HpCB (#189)	93	95	97	99	80	84	86	90
	計	Total Mono-ortho PCBs	98	102	104	108	84	90	92	97
	Co-PCBの合計		Total Coplanar PCBs	98	102	104	108	82	88	90

度管理調査で配布された土壌試料Aである。この試料は、関東ローム土を採取後50℃で乾燥し、100メッシュのふるいを通過したものを、混合・均質化したものである。この試料を精秤後、SE法とHE法の2つの抽出法により抽出した。抽出装置にはBüchi社製B-811を使用し、SE法についてはトルエンを用い、また、HE法については、抽出用溶媒による違いを見るために、トルエンとアセトンを用いた。なお、HE法による抽出に際しては、抽出開始から2時間後、4時間後及び6時間後に一旦抽出を止め、溶媒を新たに交換してさらに抽出を続け、最終的に12時間経過後抽出を終了した。このことにより抽出開始から2時間後まで、2時間経過後から4時間後まで、4時間経過後から6時間まで、6時間経過後から12時間までの4つの抽出液を得、それぞれを分析に供した。これらの試料の分析結果を足し合わせることによって、抽出開始から2時間後、4時間後、6時間後、及び12時間後の抽出率を観察した。それぞれの操作についての繰り返しは試料量に限りがあったため、n = 2とした。

2.1.1 SE法

抽出部は加温せず、溶媒容器のみ加熱し、抽出部上部まで溶媒が溜まるたびにすべて排出するソックスレー抽出モードで、16時間抽出した。

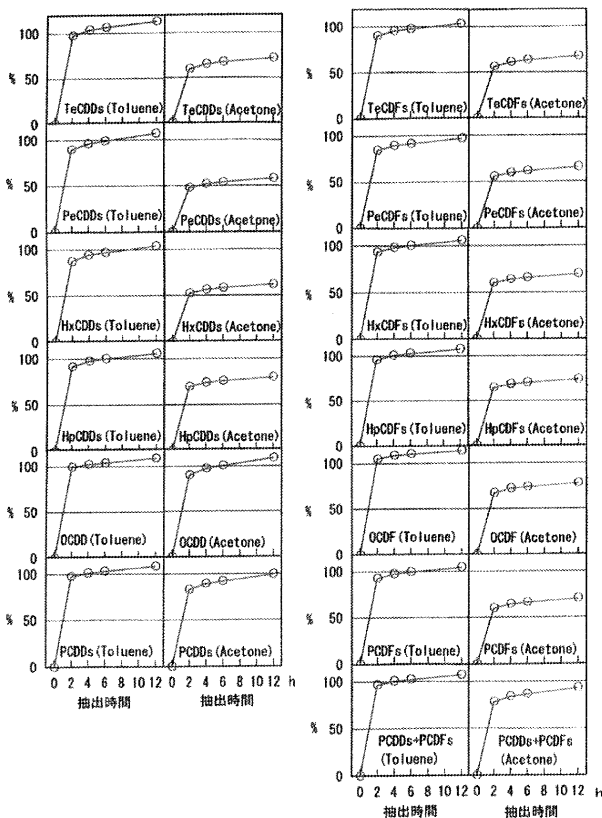


図 1-1 HE法による抽出率の経時変化 (SE法 (トルエンで16時間抽出) に対する百分率)

2.1.2 HE法

溶媒容器及び抽出部を加温して抽出部に溜まった溶媒を数mlずつ溶媒容器に排出しながら一定時間還流抽出した。抽出部の実測温度は、トルエンで約80℃、アセトンで約50℃であった。

2.2 クリーンアップ及び分画

粗抽出液をヘキサンに転溶後、クリーンアップスパイクを添加し、多層シリカゲルカラムでクリーンアップを行った。分画は活性炭分散シリカゲルカラムによって行った。各カラムの条件は次のとおりである。

(1) 多層シリカゲルカラム (充填材は和光純薬社製)

コンディショニング : n-ヘキサン150ml

展開溶媒 : n-ヘキサン190ml

(2) 活性炭分散シリカゲルカラム (充填材は関東化学社製)

コンディショニング : なし

展開溶媒 :

Fr.1 n-ヘキサン40ml

Fr.2 25 % (v/v)ジクロロメタン-n-ヘキサン100ml

Fr.3 トルエン250ml

なお、活性炭分散シリカゲルカラムのFr.3通液時はカラムを使い捨てカイロにより30℃程度に保温した。

2.3 濃縮

分画後の試料溶液は、濃縮後スピッツ管に移し、0.5ml程度まで濃縮し、さらにシリンジスパイク添加後最終的に50µl程度に濃縮し、測定バイアルに移して測定に供した。

2.4 測定

測定に際し、高分解能ガスクロマトグラフ (HR-GC) にアジレント社製6890plus、高分解能質量分析計 (HR-MS) には日本電子社製JMS-700Dを用いた。HR-GC/HR-MSの分析条件は表1のとおりである。

なお、今回のカラム条件では1,2,3,7,8-PeCDF と1,2,3,7,

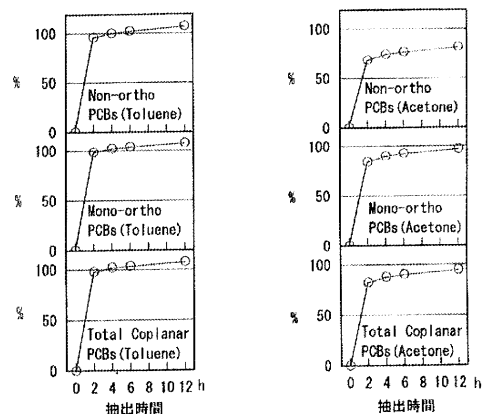


図 1-2 HE法による抽出率の経時変化 (SE法 (トルエンで16時間抽出) に対する百分率)

8,9-HxCDFはピークの分離が不十分であったため欠測とした。

3 結果と考察

3.1 HE法による抽出率の経時変化

表2及び図1に、SE法（トルエンで16時間抽出）により抽出した場合の定量値を基準とした、HE法によるダイオキシン類抽出率の経時変化を示す。

トルエンで抽出した場合、抽出開始から2時間でPCDDs

+PCDFsは97%、トータルCo-PCBsは98%抽出された。4時間抽出では、PCDDs+PCDFsが101%、トータルCo-PCBsが102%であり、概ねSE法と同等の抽出率が観察された。なお、同族体の抽出率を見ると、PeCDFsの抽出率は89%にとどまった。

6時間抽出で個々のコンジェナーについて見るとTe-及びPe-CDFが92~93%と若干低めではあるが、同族体組成は92~110%の範囲であり、さらに全体的に見るとPCDDs+PCDFsが102%、トータルCo-PCBsが104%であり、SE法と同等以上の抽出率が観察された。

表3 SE法とHE法との抽出率比較（土壌試料）

				SE法（トルエン）		HE法（トルエン）	
				16h	6h	SE法(16h)に対する百分率	
				pg/g	pg/g	%	
PCDDs	4塩素化物	2,3,7,8-TeCDD	3.7	4.1	110		
	5塩素化物	1,2,3,7,8-PeCDD	33	32	97		
	6塩素化物	1,2,3,4,7,8-HxCDD	41	40	97		
		1,2,3,6,7,8-HxCDD	62	61	98		
		1,2,3,7,8,9-HxCDD	69	68	100		
	7塩素化物	1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	420	420	99		
	8塩素化物	OCDD	7000	7300	104		
	PCDFs	4塩素化物	2,3,7,8-TeCDF	18	16	93	
5塩素化物		2,3,4,7,8-PeCDF	40	37	92		
6塩素化物		1,2,3,4,7,8-HxCDF	55	57	103		
		1,2,3,6,7,8-HxCDF	57	57	100		
		2,3,4,6,7,8-HxCDF	80	79	98		
7塩素化物		1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	270	270	101		
		1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	33	35	106		
8塩素化物		OCDF	290	320	110		
PCDD同族体	4塩素化物	TeCDDs	280	300	106		
	5塩素化物	PeCDDs	390	380	99		
	6塩素化物	HxCDDs	710	690	97		
	7塩素化物	HpCDDs	750	750	100		
	8塩素化物	OCDD	7000	7300	104		
	計	PCDDs	9200	9400	103		
PCDF同族体	4塩素化物	TeCDFs	480	460	98		
	5塩素化物	PeCDFs	570	520	92		
	6塩素化物	HxCDFs	660	670	101		
	7塩素化物	HpCDFs	510	530	103		
	8塩素化物	OCDF	290	320	110		
	計	PCDFs	2600	2500	100		
同族体の合計		PCDDs+PCDFs	12000	12000	102		
ノンオルト	4塩素化物	3,4,4',5-TeCB (#81)	8.4	8.7	104		
		3,3',4,4'-TeCB (#77)	110	110	105		
	5塩素化物	3,3',4,4',5-PeCB (#126)	48	46	97		
	6塩素化物	3,3',4,4',5,5'-HxCB (#169)	14	13	96		
		Total Non-ortho PCBs	180	180	102		
モノオルト	5塩素化物	2',3,4,4',5-PeCB (#123)	28	28	100		
		2,3',4,4',5-PeCB (#118)	520	550	106		
		2,3,3',4,4'-PeCB (#105)	300	300	101		
		2,3,4,4',5-PeCB (#114)	12	13	105		
	6塩素化物	2,3',4,4',5,5'-HxCB (#167)	75	74	98		
		2,3,3',4,4',5-HxCB (#156)	140	150	106		
		2,3,3',4,4',5'-HxCB (#157)	53	56	106		
	7塩素化物	2,3,3',4,4',5,5'-HpCB (#189)	30	29	97		
		Total Mono-ortho PCBs	1200	1200	104		
Co-PCBの合計		Total Coplanar PCBs	1300	1400	104		

12時間抽出では、PCDDs + PCDFs が108%、トータルCo-PCBsが108%であった。

抽出時間を延長することによって抽出率が向上したのは、腐植質のような土壤粒子の微細構造中に存在している、抽出されにくいダイオキシン類が少しずつ抽出されていること等が推測されるが、公定法と比較して同等以上という条件は、6時間で十分満たされると思われる。

一方、アセトンを経済とした場合、6時間での抽出率はPCDDs + PCDFs が87%、トータルCo-PCBsが90%であり、12時間でもPCDDs + PCDFs が93%、トータルCo-PCBsが95%にとどまり、SE法と同等の抽出率は得られず、特に低塩素数のPCDDs、PCDFsの抽出率が低かった。これは、抽出部温度がトルエンの約80°Cに比べ、アセトンが約50°Cと低温であること等が要因と考えられる。

3.2 抽出法による比較

SE法（トルエンにより16時間抽出）によるダイオキシン類の定量値と、HE法（トルエンにより6時間抽出）による定量値との比較を表3に示す。SE法による定量値は平成15年度統一精度管理調査結果7)での（平均値）±（標準偏差）の範囲内であった。HE法による定量値のSE法による定量値に対する百分率は、個々のコンジェナーで見ると92から110%の範囲内にあり、前述した全体的な抽出率の比較検討とあわせてSE法と同等以上の抽出率を得られることが確認できた。

4 まとめ

土壤中ダイオキシン類抽出の迅速化を図る目的で、ソックスレー抽出法に代わる迅速抽出法としての高温還流抽出法の抽出率を、2種類の溶媒や抽出時間の観点から比較検討した。その結果、溶媒にトルエンを用いたHE法では6時間抽出することにより、公定法として定められているSE法（16時間）により抽出するのと同等以上の抽出率が得られ、迅速抽出法として採用可能であることを確認した。一方、アセトンを経済としたHE法では、多くの同族体について十分な抽出率が得られず、代替法としては難しいと考えられた。

謝辞

本研究は、宮城県、新潟県、千葉県、東京都、長野県、岐阜県、広島県、統計数理研究所及び国立環境研究所との共同研究の一部として試料の提供及び助言を受けて行いました。関係各位に深謝いたします。

参考文献

- 1) 環境庁水質保全局土壤農薬課, ダイオキシン類に係る土壤調査測定マニュアル (2000)
- 2) 中村朋之, 大塚英幸, 佐々木啓行, 半野勝正, 鈴木貴博, 小澤秀明, 村瀬秀也, 大原俊彦, 柏木宣久, 橋本俊次, ダイオキシン類分析における高圧液体抽出法の問題点と運用方法の最適化, 第31回環境保全・公害防止研究発表会講演要旨集 (2004)
- 3) ダイオキシン類による地域環境汚染の実態とその原因解明に関する研究, 橋本俊次, 伊藤裕康 (環境研), 環境省 総合環境政策局, 環境保全研究成果集, Vol. 2002, No.3, P.84.I.1-84.I.17 (2004)
- 4) 種岡裕, 高井透, 茨木剛, 村山等, 斎藤真一, 自動ソックスレー抽出法, 高速溶媒抽出法のダイオキシン類への適用, 全国環境研究会誌, 27, 154-163 (2002)
- 5) 下田喜則, 山岡誠司, 竹井秀夫, 松木司, 矢野泰正, 今村光徳, 実験室内の蛍光灯によるダイオキシン類の分解傾向及び分解抑制対策, 広島市衛研年報, 22, 79-85 (2003)
- 6) 鈴木慈, 中村朋之, 清野陽子, 加藤謙一, 高橋正弘, 橋本俊次, 伊藤裕康, 森田昌敏, PCDDs, PCDFs分析過程での光分解による内標準法の問題点, 環境化学, Vol.13, 705-718 (2003)
- 7) 環境省環境管理局総務課環境管理技術室, 平成15年度環境測定分析統一精度管理調査結果 (2004) (<http://www.seidokanri.jp/pdf/report15.pdf>)

Basic study on Rapid Extraction of Dioxins in Soil Sample

OTSUKA Hideyuki, ANEZAKI Katsunori,
YAMAGUCHI Katsuyuki, IWATA Riki

Abstract

Comparison of the extraction rate of the Hot Extraction Method (HE Method) as a quick process replaced with the Soxhlet extraction Method (SE Method) was carried out in order to attain speeding up of the dioxin extraction in soil sample. Consequently, the HE Method extracted with toluene for 6 hours showed the rate of extraction more than equivalent compared with the SE Method extracted for 16 hours with toluene. By adoption of this substituting method, shortening of the analysis time of dioxin is possible.

ポリ塩化ビフェニル全コンジェナー分析への 迅速抽出法の検討

姉崎 克典 山口 勝透 大塚 英幸 岩田 理樹

要 約

土壌・底質・フライアッシュなどの媒体からのポリ塩化ビフェニル（PCBs）の迅速かつ精確な抽出を目的として、高温還流抽出法（HE法）と高圧液体抽出法（PLE法）の検討を行い、また、従来法であるソックスレー抽出法（SE法）の定量値やPCBsの一部のコンジェナー及び同族体毎の濃度について認証されている標準物質の認証値との比較を行った。この結果、HE法とPLE法でのPCBsの全コンジェナー毎及び同族体毎の定量値は、SE法での定量値や標準物質の認証値とほぼ同等の結果が得られた。また、HE法とPLE法とは定量値に大きな差は認められなかった。一方、HE法やPLE法はPCBsの抽出をそれぞれ約7時間及び40分の短時間で完了し、通常16時間を要するSE法に比べより迅速に抽出を行うことができた。

Key Words: PCBs、高温還流抽出、高圧液体抽出、PCBs全コンジェナー分析

1 はじめに

ポリ塩化ビフェニル（以下「PCBs」と略す。）は、その化学的安定性と有用性から、第二次大戦期から1970年代前半にかけて大量に生産され、多岐にわたる分野で使用されてきた。しかし、難分解性の有機塩素化合物であることによる環境での残留及び拡散、生物濃縮の実態が明らかとなり、さらに、カネミ油症事件に代表される人体への毒性、そして、近年においては内分泌攪乱物質としての作用が指摘されるなど、暴露による人体への影響が懸念されている¹⁾。

一般にPCBsはKanechlorやAroclorといったPCBs製品に大量に存在しているが、ごみ焼却施設の排ガスや焼却灰にも含まれていることが知られている^{2) 3)}。PCBsには209種類のコンジェナーが存在する。燃焼由来の非意図的に生成されたPCBsは、工業的に生産されたPCBs製品とはコンジェナーの出現パターンが異なり、ダイオキシン類の一種であるコプラナーPCBs（以下「co-PCB」と略す。）が顕著に検出される傾向がある。

このような実状から、環境中のPCBsを測定する場合において、co-PCBを含む各コンジェナーの濃度と出現パターンを把握し、また、ダイオキシン類の濃度やそのコンジェナーパターンと比較検討し、総合的に発生源や汚染の由来の推定や毒性評価を行うことが重要であり、そのためには試料からのPCBsの精確な抽出と高分解能ガスクロマトグラフ／高分解能質量分析計（以下「HRGC／HRMS」と略

す。）による、高精度な定量が不可欠である。

現在、試料からのPCBsの抽出法としては、超音波抽出法やソックスレー抽出法（以下「SE法」と略す。）が一般的に行われており、米国のEPA Method⁴⁾においてもSE法が規定されている。しかし、超音波抽出法は抽出率に問題があること、そして、SE法は大量の有機溶媒を長時間加熱する必要があり、安全面や環境面、分析効率の向上など改善されるべき課題は多い。このことから、近年では高温還流抽出法（以下「HE法」と略す。）や高圧液体抽出法（以下「PLE法」と略す。）が注目されている。HE法やPLE法はSE法に比べ、抽出溶媒量が少なく済み、抽出時間も短く、また、装置に安全装置が備わっているため、異常時には自動停止するなど利便性が高い。抽出率に関する研究も数多くなされておられ、特にダイオキシン類の分析においては、SE法と同等以上の抽出率が得られることが確認されている⁵⁾⁻⁸⁾。PCBsの検討例はあまりないが、槍田ら⁹⁾が底質中のPCBsをSE法とPLE法でそれぞれ抽出し、4種のPCBsコンジェナーをHRGC／HRMSで測定し比較した研究がある。

本研究では、PCBsの全コンジェナー分析にHE法とPLE法の適用を試み、各抽出法の抽出率を比較検討するとともに、コンジェナー及び同族体の定量値とSE法による定量値や標準物質に値付けされた認証値との比較検討を行った。

表1 PCBs標準溶液*

	IUPAC number	カタログNo.
Native	# 3, # 15, # 28, # 52, # 101, # 114, # 138, # 153, # 180, # 194, # 206, # 209	BP-MXM
¹³ C ₁₂ -labeled (クリーンアップスパイク用)	# 3, # 15, # 28, # 60, # 101, # 114, # 141, # 178, # 194, # 208, # 209	NK-MBP-MXC
	# 77, # 81, # 105, # 114, # 118, # 123, # 126, # 156, # 157, # 167, # 169, # 170, # 180, # 189	MBP-MXS
¹³ C ₁₂ -labeled (シリジンスパイク用)	# 70	MBP-70-0.1
Native and ¹³ C ₁₂ -labeled (検量線用)	# 77, # 81, # 105, # 114, # 118, # 123, # 126, # 156, # 157, # 167, # 169, # 170, # 180, # 189	PCB-CVS-JQ

*全てノナン溶液

2 方法

2.1 試薬

PCBsの標準物質はWellington社製のものを使用した(表1)。なお、本稿では各PCBsコンジェナーの名称は、全てIUPAC numberで表記した。アセトン、トルエン、ヘキサンは和光純薬工業社製及び関東化学薬品社製のダイオキシン類分析用のものを使用した。

2.2 装置

高速液体クロマトグラフ(以下「HPLC」と略す。)は、島津社製LC-10ATvpを使用した(表2)。HRGC/HRMSは、Agilent社製6890シリーズ及び日本電子社製JMS-700Dをそれぞれ使用した(表3)。PCBsコンジェナーの同定は、松村ら¹⁰⁾の報告を参考にした。

表2 高速液体クロマトグラフの装置条件

カラム	SHANDON hypercarb S		
カラムサイズ	100 mm(length) × 4.6 mm(i.d.)		
検出器	UV-VIS detector(254 nm)		
分画条件	Fraction1	Fraction2	Fraction3
分画対象	other-PCBs	co-PCBs	PCDD/Fs
展開溶媒	ヘキサン	トルエン/ ヘキサン (3:7)	トルエン
流速	1.0 ml/L	2.0 ml/L	2.0 ml/L
流量	11 mL	20 mL	30 mL
カラム温度	35°C	35°C	50°C
note			流向反転

2.3 測定試料

標準物質は、日本分析化学会海域底質標準物質JSAC0452(高濃度)、同土壌標準物質JSAC0422(森林土表層)、同フ

表3 高分解能ガスクロマトグラフ/高分解能質量分析計の装置条件

ガスクロマトグラフ	
カラム	HT8-PCB (長さ60 m×内径0.25 mm)
注入口温度	280°C
カラム温度	120°C(1 min)→20°C/min →180°C(0 min)→2°C/min →260°C(0 min)→5°C/min →300°C(13 min)
注入量	1 µl
注入方法	スプリットレス
キャリアガス	He
キャリアガス流量	1.0 ml/min
質量分析計	
分解能	10,000以上
イオン化法	EI
イオン化電圧	38 eV
イオン化電流	500 µA
加速電圧	10 kV
イオン源温度	260°C
GCインターフェース温度	280°C
検出方法	ロックマス方式によるSIM
質量校正物質	PFK

ライアッシュ標準物質JSAC0501を使用した。なお、これらの標準物質の認証値の値付けに用いられた抽出法は、トルエンによる16時間以上のSE法である。

2.4 操作

2.4.1 高温還流抽出(HE法)

HE法はBüchi社製B-811を「Hot Extraction」モードで使用した。抽出条件は表4のとおりである。この方法は、ソックスレー抽出法と基本的な原理は同じであるが、ヒータ

表4 高温還流抽出法の抽出条件

抽出溶媒	トルエン	
抽出溶媒量	220 ml	
抽出プログラム	STEP1	STEP2
時間	360 min	30 min
ヒーター温度 上部	6 (60°C)	—
下部	13 (130°C)	13 (130°C)

一で抽出部の溶媒を加熱し、さらにその溶媒の一部を1~2分程度で還流させることにより、試料が常に高温の溶媒に浸されるように改良されたものである。Büchi社の資料では、ダイオキシン類については概ね4時間程度で抽出は完了するとされているが、本検討では6時間とした。

2.4.2 高圧液体抽出法 (PLE法)

PLE法はDIONEX社製ASE300を使用した。抽出条件は表5のとおりである。なお、抽出条件はDIONEX社の推奨条件¹³⁾を参考とした。この方法は金属性の抽出容器、いわゆるセルに試料を入れ、ここに溶媒を満ちし高温高圧下で抽出する方法であり、抽出時間がSE法よりも圧倒的に短く、使用溶媒量も少ないため、急速に広まりつつある方法である。

表5 高圧流体抽出法の抽出条件

抽出溶媒	トルエン
抽出溶媒量	60~180 ml†
温度	150°C
圧力	1,500 psi
静置時間	15 min
フラッシュ	100~150%
サイクル	2
ページ時間	60 s
総抽出時間	40 min

†使用セルの大きさ (33, 66, 99 ml) により変動する。

2.4.3 ソックスレー抽出 (SE法)

SE法はHE法で使用したB-811を「Soxlet Standard」モードで使用して実施した。抽出溶媒はトルエンを使用し、抽出時間は16時間とした。

2.4.4 前処理・測定

各抽出法で得られた抽出液は、それぞれの試料におけるダイオキシン類の分析マニュアル¹²⁾⁻¹⁴⁾に準拠して前処理を行った。すなわち、抽出液にクリーンアップスパイク内標準物質を加え、ヘキサンに転溶し、硫酸処理→多層シリカゲルカラムクロマトグラフ操作→HPLCによる分画→シ

リンジスパイク内標準物質の添加→HRGC/HRMSの順で処理した。検出下限値は、上記のマニュアルに準拠して算出した。各試料におけるPCBsコンジェナーの検出下限値は、海域底質試料で0.3~1 pg/g、森林土壌試料で0.2~0.8 pg/g、フライアッシュ試料で0.8~4 pg/gであった。

2.4.5 抽出法の比較

HE法及びPLE法の比較は、SE法での定量値や認証値と各PCBsコンジェナー及び各同族体毎に行った。比較するコンジェナーは、原則として定量値の平均が検出下限値の10倍以上の定量値が得られたものとした。種岡ら⁶⁾の報告を参考に、SE法の定量値及び認証値の±20%程度を比較の目安とした。すなわち、±20%なら同等、+20%以上なら高い、-20%以下なら低い抽出率と評価した。

2.4.6 空試験

各標準物質を用いずに、同工程の抽出・前処理を行う空試験を行い、ブランク値が各コンジェナーの定量値に影響しないことを確認した。

3 結果と考察

3.1 海域底質試料

3.1.1 測定結果の概要

測定に用いた海域底質試料は、ある港湾のダイオキシン類濃度が特に高いと確認された地点から採取されて調製された底質試料である。認証値は12種のco-PCB及び10種の同族体、全PCBsにそれぞれ設定されている。各PCBsコンジェナー及び各同族体の濃度範囲は、それぞれN.D.~70 ng/g、1~200 ng/g程度であった。主に3~5塩素化体のPCBsを多く含有しており、特にKanechlorに起因するコンジェナーが高い割合で存在していた。また、10塩素化体のPCBsである#209も多く含まれており、全コンジェナーの中で最も高い濃度 (約70 ng/g) であった。一方、ほとんど検出されない、若しくは他の高濃度のコンジェナーの妨害によって定量できなかったコンジェナーが10数種あった。

3.1.2 抽出法による比較

表6及び7に各抽出法における各PCBsコンジェナーの定量値、図1にSE法を基準としたHE法とPLE法の相対濃度を示した。また、図2には認証値が設定されているco-PCB及び同族体の認証値との比較結果を示した。

HE法とPLE法は、共にほとんどのコンジェナー及び同族体でSE法より0~20%程度高い定量値を示し、ほぼ同等の抽出率であると考えられた。著しく高い若しくは低い定量値を示したものは認められなかった。

表6 海域底質試料における各PCBsコンジェナー（コプラナーPCBsを除く）の濃度 その1

IUPAC number	SE	HE	PLE	IUPAC number	SE	HE	PLE
	n=3*	n=4*	n=4*		n=3*	n=4*	n=4*
	ng/g				ng/g		
#1	2.1	2.1	2.2	#60	6.8	6.7	6.6
#2	2.0	2.3	2.5	#62	0.056	0.056	0.066
#3	1.4	1.6	1.7	#63	1.2	1.2	1.3
#4	1.4	1.6	1.6	#64	10	11	11
#5, #8	1.5	16	15	#65, #75	0.39	0.46	0.43
#6	3.1	3.2	3.3	#66	30	31	31
#7	0.60	0.67	0.64	#67	0.92	0.93	0.96
#9	2.2	2.3	2.2	#68	0.16	0.17	0.17
#10	0.20	0.22	0.20	#70	30	31	31
#11	0.97	1.1	1.0	#71	5.6	6.0	5.9
#12, #13	5.5	5.8	5.6	#74	16	16	16
#14	0.47	0.38	0.50	#76	0.24	0.25	0.26
#15	4.0	4.2	4.1	#78	0.24	0.23	0.23
#16	2.4	2.8	2.7	#79	0.16	0.16	0.16
#17	3.3	3.8	3.8	#81	0.17	0.18	0.18
#18	7.3	8.5	8.3	#82	1.5	1.5	1.5
#19	0.40	0.48	0.47	#83	0.57	0.60	0.55
#20, #33	12.0	14	13	#84	2.2	2.4	2.2
#21	0.12	0.12	0.12	#85	2.90	3.0	2.9
#22	7.7	8.4	8.5	#87, #115	4.7	4.9	4.6
#23	0.24	0.27	0.26	#88	0.036	0.035	0.034
#24	0.52	0.60	0.59	#89	0.2	0.2	0.2
#25	1.4	1.7	1.7	#90	0.4	0.5	0.5
#26	2.9	3.3	3.3	#91	1.9	2.0	1.9
#27	0.57	0.67	0.65	#92	1.6	1.7	1.6
#28	24	27	26	#93, #95, #98	6.5	6.6	6.2
#29	0.40	0.45	0.43	#94	0.090	0.096	0.090
#30	0.12	0.14	0.15	#96	0.19	0.21	0.20
#31	21	23	23	#97, #117	4.8	5.0	4.7
#32	3.2	3.5	3.5	#99	7.6	8.0	7.5
#34	0.15	0.17	0.18	#100	0.079	0.080	0.080
#35	0.62	0.63	0.63	#101	12	13	12
#36	0.41	0.45	0.47	#102	0.58	0.61	0.58
#37	7.4	8.2	8.0	#103	0.17	0.19	0.18
#38	0.061	0.061	0.070	#107, #109	1.3	1.4	1.3
#39	0.17	0.18	0.18	#108	0.17	0.16	0.16
#40	2.1	2.2	2.2	#110	16	16	15
#41	0.92	1.1	1.1	#112, #119	0.58	0.59	0.56
#42	4.7	4.9	4.9	#113	0.058	0.073	0.052
#43	0.22	0.26	0.27	#116, #125	0.23	0.24	0.23
#44	11	12	12	#122	0.23	0.24	0.22
#45	1.6	1.7	1.7	#124	0.53	0.55	0.52
#46	0.76	0.82	0.82	#128	1.6	1.5	1.5
#47, #48	9.7	10	10	#129	0.42	0.41	0.36
#49	13	13	14	#130	0.47	0.49	0.45
#50	0.10	0.11	0.11	#131	0.097	0.10	0.087
#51	0.65	0.68	0.69	#132	2.3	2.3	2.2
#52, #69	15	16	16	#133	0.11	0.12	0.11
#53	1.9	2.1	2.0	#134	0.31	0.31	0.30
#54	0.049	0.051	0.053	#135	0.83	0.83	0.81
#55	0.45	0.46	0.46	#136	1.1	1.1	1.1
#56	14	15	15	#137	0.45	0.43	0.43
#57	0.15	0.16	0.15	#138	7.0	7.0	6.7
#58	0.14	0.15	0.14	#139, #149	6.4	6.4	6.3
#59	1.5	1.5	1.5	#140	0.062	0.064	0.063

表6 海域底質試料における各PCBsコンジェナー（コプラナーPCBsを除く）の濃度 その2

IUPAC number	SE	HE	PLE	IUPAC number	SE	HE	PLE
	n=3*	n=4*	n=4*		n=3*	n=4*	n=4*
	ng/g				ng/g		
#141	1.2	1.2	1.2	#180	4.9	5.0	4.8
#143	0.058	0.062	0.064	#181	0.022	0.024	0.023
#144	0.38	0.40	0.40	#182, #187	3.0	3.1	3.0
#146	1.4	1.4	1.3	#183	1.3	1.4	1.4
#147	0.20	0.19	0.19	#184	0.088	0.093	0.088
#150	0.046	0.050	0.047	#185	0.20	0.21	0.21
#151	1.4	1.4	1.4	#188	0.022	0.023	0.024
#153	9.2	9.3	8.9	#190	0.55	0.54	0.54
#154	0.17	0.17	0.16	#191	0.11	0.11	0.11
#155	0.20	0.21	0.20	#193	0.22	0.22	0.24
#158	1.2	1.3	1.2	#194	0.79	0.84	0.81
#162	0.056	0.048	0.054	#195	0.28	0.31	0.31
#163, #164	3.0	3.1	2.9	#196	0.45	0.47	0.48
#166	0.053	0.056	0.055	#197	0.080	0.079	0.077
#170	1.7	1.8	1.7	#198	0.031	0.026	0.032
#171	0.56	0.59	0.58	#199	0.82	0.86	0.84
#172	0.30	0.30	0.31	#200	0.14	0.14	0.14
#173	0.034	0.034	0.039	#201	0.17	0.19	0.19
#174	1.9	1.9	1.9	#202	0.24	0.25	0.25
#175	0.097	0.097	0.10	#203	0.55	0.59	0.58
#176	0.37	0.40	0.38	#205	0.058	0.057	0.058
#177	1.1	1.1	1.1	#206	0.34	0.38	0.37
#178	0.41	0.42	0.41	#207	0.20	0.25	0.24
#179	1.1	1.2	1.1	#208	0.24	0.28	0.28

*nは検討回数を表す。以下同。

連記されているコンジェナーは分離不能のため合算値を示した。また、標準偏差は省略した。以下同。

表7 海域底質試料における各コプラナーPCBsコンジェナー及び各同族体の濃度*

IUPAC number /同族体	SE	HE	PLE	認証値
	n=3	n=4	n=4	
	ng/g			
#77	3.5 ± 0.25	3.7 ± 0.29	3.8 ± 0.24	3.740 ± 0.15
#81	0.17 ± 0.015	0.18 ± 0.017	0.18 ± 0.030	0.1526 ± 0.0089
#105	6.4 ± 0.15	6.8 ± 0.35	6.6 ± 0.55	7.150 ± 0.440
#114	0.46 ± 0.038	0.49 ± 0.047	0.48 ± 0.025	0.467 ± 0.023
#118	14 ± 1.2	15 ± 1.3	14 ± 1.3	15.340 ± 0.760
#123	0.33 ± 0.015	0.34 ± 0.040	0.35 ± 0.029	0.350 ± 0.031
#126	0.14 ± 0.021	0.13 ± 0.0082	0.13 ± 0.015	0.1252 ± 0.0040
#156	1.2 ± 0.12	1.2 ± 0.082	1.2 ± 0.10	1.209 ± 0.025
#157	0.28 ± 0.020	0.29 ± 0.024	0.28 ± 0.022	0.320 ± 0.035
#167	0.45 ± 0.057	0.5 ± 0.035	0.5 ± 0.024	0.493 ± 0.033
#169	0.052 ± 0.020	0.059 ± 0.0088	0.053 ± 0.0047	0.0387 ± 0.00016
#189	0.11 ± 0.0	0.11 ± 0.013	0.11 ± 0.0075	0.1003 ± 0.0051
MoCBs	5.6 ± 0.058	6.1 ± 0.99	6.3 ± 0.058	8.00 ± 0.82
DiCBs	33 ± 0.0	35 ± 4.6	35 ± 2.7	42.1 ± 5.3
TrCBs	97 ± 3.1	110 ± 10	100 ± 10	145 ± 19
TeCBs	180 ± 5.8	190 ± 16	190 ± 5.0	210 ± 14
PeCBs	88 ± 4.2	91 ± 6.1	87 ± 3.2	94.4 ± 6.0
HxCBs	42 ± 2.9	42 ± 2.8	41 ± 1.3	43.0 ± 3.9
HpCBs	18 ± 1.0	19 ± 1.7	19 ± 1.0	16.4 ± 1.7
OcCBs	3.6 ± 0.15	3.8 ± 0.22	3.8 ± 0.17	4.00 ± 0.49
NoCBs	0.79 ± 0.059	0.90 ± 0.038	0.89 ± 0.083	1.00 ± 0.12

*DeCBs (#209) は他のコンジェナーに比べ高濃度であり、検量線範囲を逸脱したため定量せず。

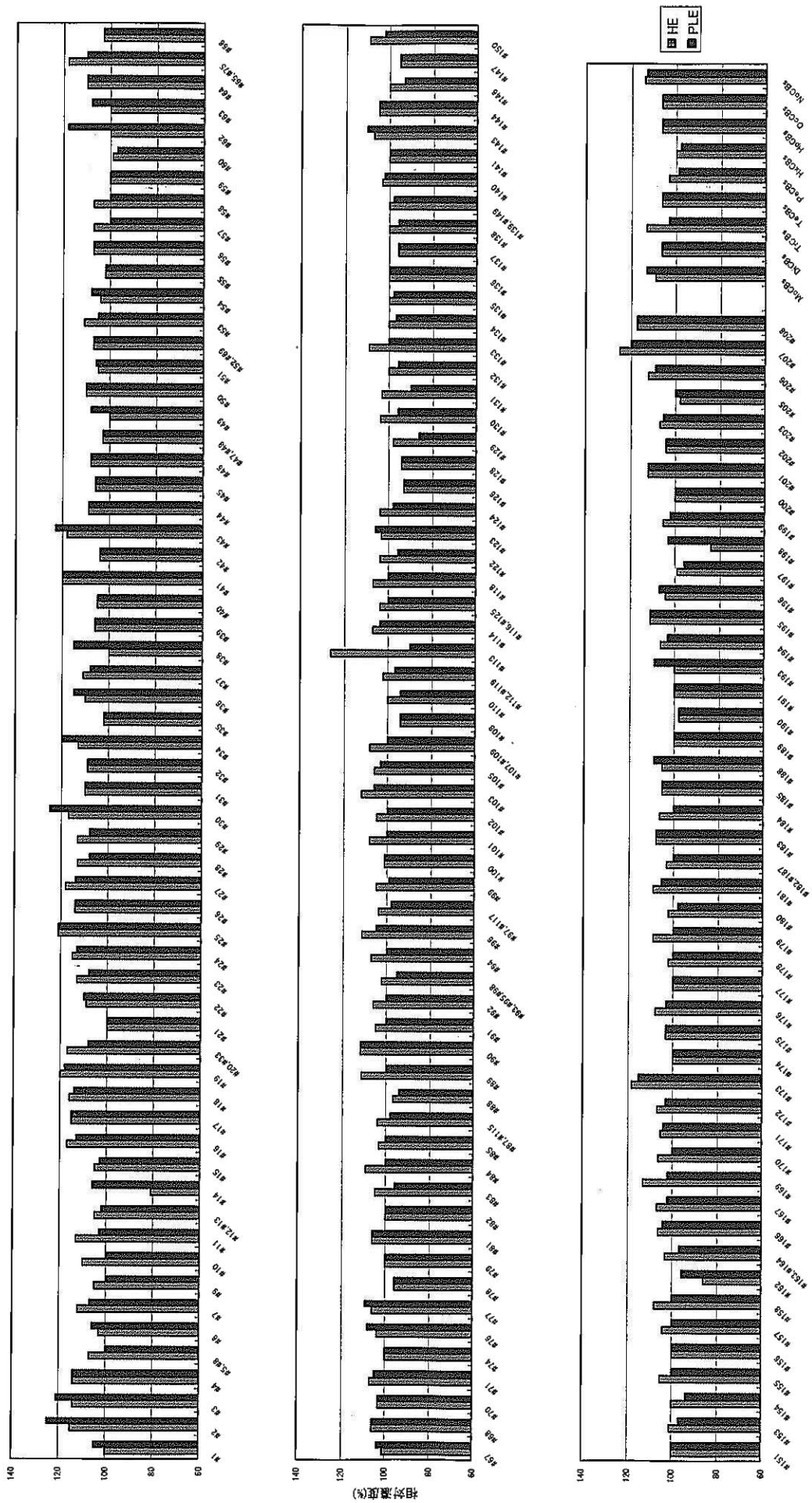


図1 SEにおける定量値を100とした時の各POBsコンジェナー及び同族体の相対濃度(海成底質試料)

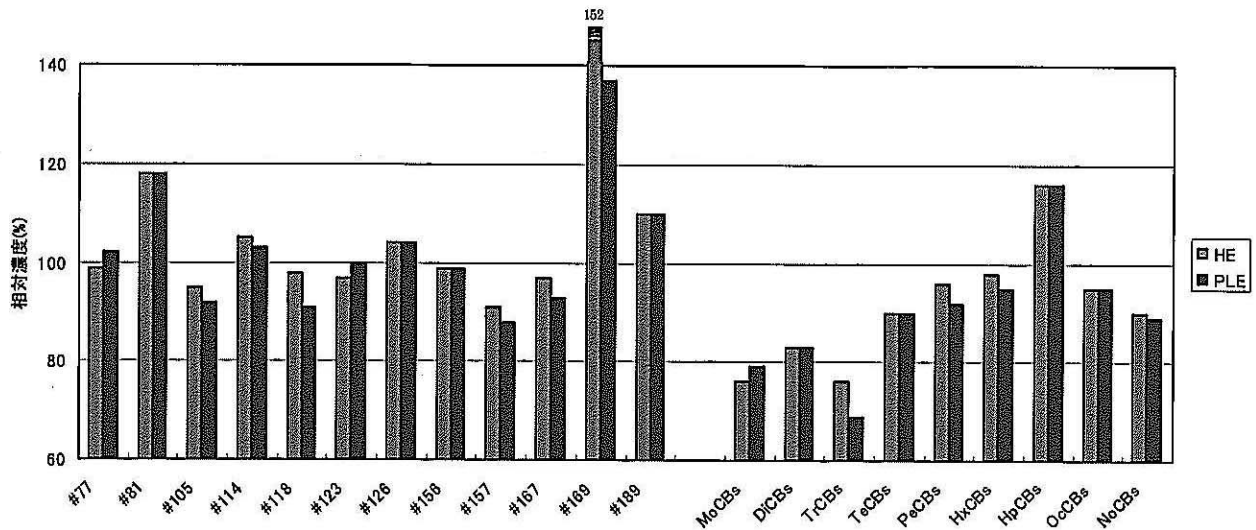


図2 認証値を100とした時の各PCBsコンジェナー及び同族体の相対濃度（海域底質試料）

認証値との比較で、co-PCBの#169がHE法で52%、PLE法で37%高い値となったが、その他のコンジェナーについてはHE及びPLE法とも認証値の±20%の範囲に入っていた。同様に同族体についても4塩素化以上のPCBsでは±20%の範囲に入っていたが、低塩素化PCBsで認証値よりも20~30%程度低い値となった。

抽出過程における低塩素化PCBsの揮散・分解による損失の可能性も考えられたため、クリーンアップスパイク内標準物質の添加を抽出前に行い、抽出後に添加した場合と比較した。その定量結果を表8に示した。抽出前添加については検討回数が1回のみであるが、HE法及びPLE法とも4塩素化体以上のPCBsについては、ほぼ同等の結果となった。さらに、1~3塩素化PCBsではクリーンアップスパイク内標準物質を抽出前に添加した方が10~20%程度低い定量値となっており、少なくとも抽出過程におけるPCBsの損失は認められなかった。

また、抽出後に添加した場合においても、SE法、HE法及びPLE法で低塩素化PCBsの定量値に大きな差はないこと（表6、7）から、抽出率による認証値との差であるとも考えにくく、その他の要因によるものと推測されるが、詳細は不明である。一方、HE法とPLE法との定量値はほぼ同等であり、これらの迅速抽出法に抽出率の差は認められなかった。

3.2 森林土壌試料

3.2.1 測定結果の概要

測定に用いた森林土壌試料は、ある焼却施設の周辺の山林からその表層の土を採取して調製された土壌試料である。認証値は12種のco-PCBにそれぞれ設定されている。各

表8 海域底質におけるクリーンアップスパイクの添加時期によるPCBs各同族体の濃度

	抽出前添加		抽出後添加	
	HE	PLE	HE	PLE
	n=1	n=1	n=4	n=4
	ng/g			
MoCBs	4.9	5.3	6.1	6.3
DiCBs	30	31	35	35
TriCBs	98	100	110	100
TeCBs	170	190	190	190
PeCBs	87	83	91	87
HxCBs	40	39	42	41
HpCBs	18	17	19	19
OcCBs	3.5	3.6	3.8	3.8
NoCBs	0.93	0.81	0.90	0.89

PCBsコンジェナー及び各同族体の濃度範囲は、それぞれN.D.~1,000 pg/g、100~6,000 pg/g程度であった。主に5,6塩素化体のPCBsが含有しており、Kanechlorに起因するコンジェナーが中心のプロファイルであったが、co-PCBも他の主要コンジェナーと同程度含まれており、燃焼由来の影響も示唆される試料であった。また、海域底質試料と同様に定量できなかったコンジェナーが10数種あった。

3.2.2 抽出法による比較

表9及び10に各抽出法における各PCBsコンジェナーの定量値、図3にSEを基準としたHE法とPLE法の相対濃度を示した。また、図4には認証値が設定されているco-PCB

表9 森林土壌試料における各PCBsコンジェナー（コプラナーPCBsを除く）の濃度 その1

IUPAC number	SE	HE	PLE	IUPAC number	SE	HE	PLE
	n=2	n=3	n=3		n=2	n=3	n=3
	pg/g				pg/g		
#1	13	11	16	#83	19	17	19
#2	55	60	79	#84	51	45	48
#3	57	61	78	#85	200	190	210
#4	7.2	7.2	7.9	#87, #115	250	240	260
#5, #8	49	48	59	#90	27	25	29
#6	8.9	9.7	11	#91	57	50	57
#11	83	77	83	#92	98	90	100
#12, #13	50	52	62	#93, #95, #98	210	200	210
#15	63	63	78	#97, #117	140	130	130
#16	16	16	18	#99	400	380	400
#17	18	18	19	#101	530	510	550
#18	42	42	51	#107, #109	120	110	120
#20, #33	72	72	81	#108	11	11	10
#22	45	46	54	#110	640	630	690
#25	11	9.9	11	#111	5.6	4.8	6.0
#26	19	18	21	#112, #119	19	18	20
#28	115	110	130	#113	5.4	5.2	6.00
#31	115	110	130	#121	17	18	20
#32	16	16	19	#122	26	27	29
#35	23	25	27	#124	67	64	68
#36	5.9	4.7	5.1	#128	350	330	360
#37	170	170	200	#129	70	66	74
#38	14	13	17	#130	90	91	98
#39	41	43	48	#131	10	8.8	10
#40	13	12	15	#132	230	220	230
#41	9.0	9.3	9.9	#133	21	22	23
#42	28	27	32	#134	33	32	34
#44	71	69	77	#135	96	92	98
#45	9.4	9.6	11	#136	62	59	62
#47, #48	97	98	100	#137	90	87	95
#49	94	93	100	#138	1300	1300	1300
#51	3.8	4.0	4.6	#139, #149	580	570	610
#52, #69	130	120	130	#140	7.2	7.8	7.7
#53	10	10	12	#141	170	170	180
#55	12	11	12	#144	25	23	23
#56	120	120	120	#146	190	190	210
#59	9.6	10	12	#147	27	26	28
#60	60	60	64	#151	110	110	120
#63	8.0	8.2	9.1	#153	1400	1300	1400
#64	54	52	58	#158	210	200	210
#66	270	270	290	#159	8.3	9.5	10
#67	6.7	7.3	7.3	#162	17	22	23
#68	56	55	55	#163, #164	480	480	500
#70	350	340	360	#166	14	14	15
#71	31	31	29	#170	340	320	330
#74	100	110	110	#171	88	85	90
#78	13	13	13	#172	69	65	71
#79	34	33	33	#173	14	15	15
#80	11	13	11	#174	230	230	240
#82	45	42	46	#175	15	14	15

表9 森林土壌試料における各PCBsコンジェナー（コプラナーPCBsを除く）の濃度 その2

IUPAC number	SE	HE	PLE	IUPAC number	SE	HE	PLE
	n=2	n=3	n=3		n=2	n=3	n=3
	pg/g				pg/g		
#176	26	26	27	#195	63	64	65
#177	150	150	160	#196	71	77	75
#178	57	57	60	#197	14	14	15
#179	100	100	110	#198	11	13	12
#180	620	610	660	#199	130	140	140
#181	9.3	8.0	9.6	#200	23	24	24
#182, #187	320	320	340	#201	23	23	25
#183	140	140	140	#202	34	34	36
#184	6.8	4.2	4.1	#203	87	88	94
#185	28	29	27	#205	39	41	44
#190	130	110	130	#206	140	130	140
#191	33	30	34	#207	59	57	60
#193	46	43	40	#208	48	50	52
#194	140	150	150	#209	250	290	240

表10 森林土壌試料における各コプラナーPCBsコンジェナー及び各同族体の濃度

IUPAC number /同族体	SE*	HE	PLE	認証値
	n=2	n=3	n=3	
pg/g				
#77	290	290 ± 15	300 ± 31	226 ± 28
#81	32	31 ± 2.1	32 ± 1.2	31.4 ± 3.1
#105	570	570 ± 45	580 ± 42	520 ± 48
#114	38	35 ± 26	36 ± 4.6	24.0 ± 3.6
#118	1400	1300 ± 100	1400 ± 58	1249 ± 84
#123	56	52 ± 5.1	53 ± 2.6	45.6 ± 4.7
#126	160	140 ± 5.8	150 ± 15	110 ± 11
#156	240	240 ± 15	260 ± 21	261 ± 15
#157	92	93 ± 6.1	100 ± 8.5	100.4 ± 6.8
#167	130	130 ± 15	130 ± 15	130.6 ± 8.3
#169	36	35 ± 2.1	35 ± 5.9	34.5 ± 1.5
#189	57	57 ± 4.0	58 ± 3.5	60.3 ± 5.0
MoCBs	120	130 ± 3.7	170 ± 16	±
DiCBs	270	270 ± 11	310 ± 7.2	±
TrCBs	730	740 ± 16	850 ± 53	±
TeCBs	1900	1900 ± 86	2000 ± 42	±
PeCBs	5100	4900 ± 250	5300 ± 110	±
HxCBs	6000	6000 ± 180	6300 ± 120	±
HpCBs	2500	2400 ± 120	2600 ± 110	±
OcCBs	640	670 ± 33	680 ± 3.6	±
NoCBs	240	240 ± 11	250 ± 3.6	±
DeCB	250	290 ± 75	240 ± 15	±
PCBs	18000	18000 ± 550	19000 ± 190	±

*SEはn=2のため、標準偏差は算出せず。

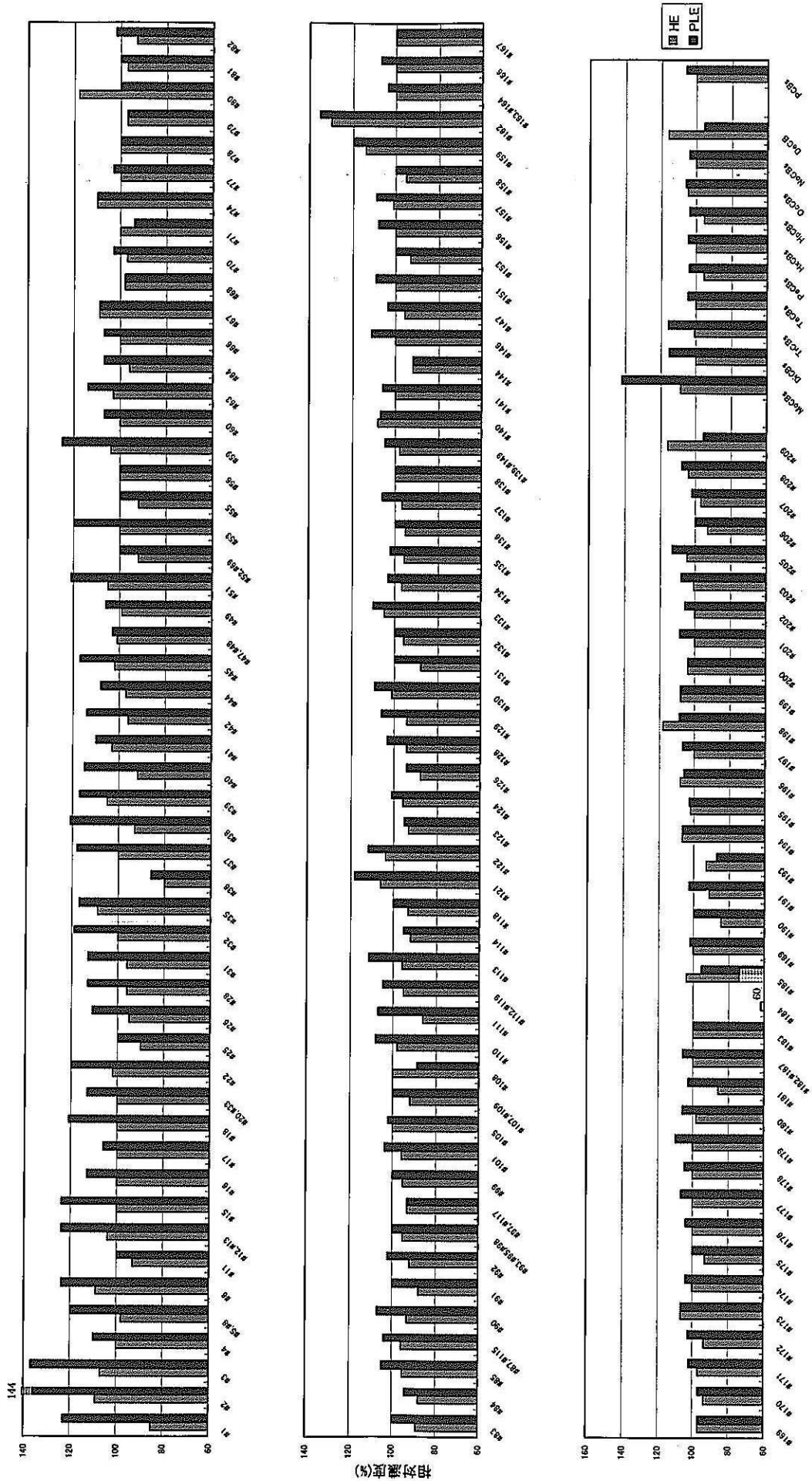


図3 SEにおける定量値を100とした時の各PCBsコンジェナー及び同族体の相対濃度 (森林土壌試料)

の認証値及び同族体濃度の比較結果を示した。HE法は、#184がSE法の-38%の定量値となったが、その他のほとんどのコンジェナー及び同族体でSE法の±10%程度の定量値を示し、SE法とほぼ同等の抽出効率であると考えられた。PLE法についても#184がSE法の-40%の定量値となったが、その他のコンジェナーもほぼSE法と同等かそれ以上であった。特に低塩素化のPCBsでは10~30%程度高い定量値を示し、特にMoCBsでは40%高い定量値となった。認証値との比較では、HE法及びPLE法共に#77、#114、#126が認証値の+20%を超える値を示したが、その他のコンジェナーは±20%の範囲に入っていた。

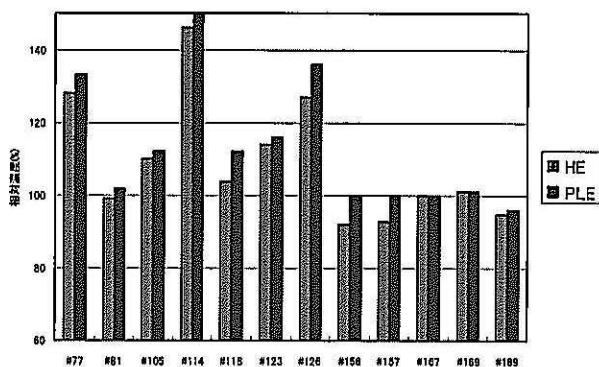


図4 認証値を100とした時の各PCBsコンジェナーの相対濃度 (森林土壌試料)

3.3 フライアッシュ試料

3.3.1 測定結果の概要

測定に用いたフライアッシュ試料は、ある都市ごみ焼却施設の集塵機で捕集されたばいじんを採取して調製されたフライアッシュ試料である。認証値は12種のco-PCBにそれぞれ設定されている。各PCBsコンジェナー及び各同族体の濃度範囲は、それぞれ10~500 pg/g、1.0~1.5 ng/g程度であった。全てのPCBsコンジェナーがほぼ同程度の濃度で存在していたが、co-PCBが他のコンジェナーに比べ高い割合で含まれている特徴があった。

3.3.2 抽出法による比較

表11及び12に各抽出法における各PCBsコンジェナーの定量値、図5にSE法を基準としたHE法とPLE法の相対濃度を示した。また、図6には認証値が設定されているco-PCBの認証値及び同族体濃度の比較結果も示した。HE法とPLE法は、#11や#62、#71のように一部のコンジェナーでSE法の約-30%の定量値となったが、ほとんどのコンジェナー及び同族体でSE法の±20%程度の定量値を示し、SE法とほぼ同等の抽出率であると考えられた。ただし、HE法は全体的にSE法よりも10%程度低くなっており、PLE法は0~10%高くなる傾向が見られた。認証値との比較では、HE法及びPLE法ともに#105、#118、#156、#167

が認証値の約-20%以下の低い値を示したが、そのほかのコンジェナーは概ね±20%の範囲に入っていた。この#105、#118、#156、#167はSE法でもHE法とPLE法の定量値と同程度の値を示しており、抽出率による差であるとは考えにくく、その他の要因によるものと推測されるが、詳細は不明である。

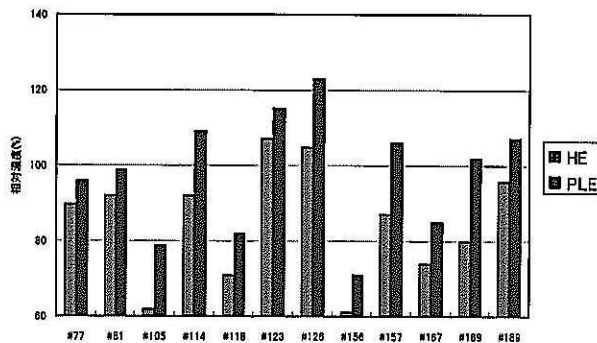


図6 認証値を100とした時の各PCBsコンジェナーの相対濃度 (フライアッシュ試料)

4 まとめ

HE法やPLE法による環境試料からのPCBsの抽出効率について、3種の標準物質を用いてSE法での定量値や認証値と比較することにより検討した。HE法やPLE法は、ほぼ全てのPCBsコンジェナー及び同族体について従来法であるSE法とほぼ同等の抽出能力を持つことが確認され、抽出時間もHE法で約7時間、PLE法では40分程度で完了することから、極めて実用性が高い方法であることがわかった。抽出溶媒の選択や抽出条件の検討によって、さらに抽出率が上がる可能性は残されているものの、本研究で行ったHE法及びPLE法の抽出条件は、少なくとも従来法であるSE法の代替抽出法としての利用が可能であると考えられる。これらの迅速抽出方法は、環境大気試料における石英繊維濾紙とポリウレタンフォームや水試料における捕集剤である固相ディスクからのPCBsの抽出など、他の媒体におけるPCBs分析への適用も期待される。

表11 フライアッシュ試料における各PCBsコンジェナー（コプラナーPCBsを除く）の濃度 その1

IUPAC number	SE*	HE	PLE	IUPAC number	SE*	HE	PLE
	n=2 or 3	n=4	n=4		n=2 or 3	n=4	n=4
	pg/g				pg/g		
#1	51	50	50	#78	84	76	84
#2	340	320	380	#79	86	77	85
#3	390	370	450	#80	24	21	23
#5, #8	100	85	120	#82	30	26	32
#6	31	27	39	#85	20	18	25
#7	28	26	32	#87, #115	47	41	51
#9	30	29	36	#93, #95, #98	41	37	40
#11	130	91	95	#97, #117	26	23	31
#12, #13	470	420	520	#99	25	23	27
#14	110	100	130	#101	50	47	52
#15	130	110	130	#106	40	36	43
#16	22	20	23	#107, #109	64	56	68
#17	25	23	28	#108	29	26	29
#18	57	52	63	#110	57	55	61
#20, #33	94	83	99	#112, #119	24	22	25
#21	37	34	41	#116, #125	22	21	23
#22	37	33	44	#122	32	29	36
#25	27	25	28	#124	25	23	28
#26	39	39	45	#127	85	74	88
#28	82	68	88	#128	45	46	52
#29	22	20	25	#129	38	35	39
#31	96	88	110	#130	26	26	29
#32	23	20	23	#132	23	25	25
#35	130	120	140	#137	25	24	28
#36	45	43	49	#138	48	48	51
#37	190	180	210	#139, #149	54	57	56
#38	240	230	280	#141	27	28	30
#39	61	60	69	#146	25	24	27
#44	30	26	31	#153	55	56	52
#47, #48	32	28	29	#158	68	67	76
#49	29	27	31	#159	30	30	37
#52, #69	61	50	60	#160	21	20	22
#55	29	28	30	#162	40	33	45
#56	52	47	61	#163, #164	61	59	66
#60	37	34	41	#166	24	22	27
#61	63	60	67	#170	150	150	170
#62	24	19	19	#171	56	60	64
#64	29	24	35	#172	55	61	66
#66	64	61	68	#174	45	49	48
#67	23	22	24	#175	35	41	41
#68	31	27	29	#176	42	48	47
#70	72	70	84	#177	28	32	31
#71	47	35	33	#178	20	22	22
#74	41	39	47	#179	26	29	28
#76	24	23	24	#180	110	110	120

表11 フライアッシュ試料における各PCBsコンジェナー（コプラナーPCBsを除く）の濃度 その2

IUPAC number	SE*	HE	PLE	IUPAC number	SE*	HE	PLE
	n=2 or 3	n=4	n=4		n=2 or 3	n=4	n=4
	pg/g				pg/g		
# 181	22	23	24	# 198	66	59	68
# 182, # 187	53	59	60	# 199	92	87	93
# 183	51	57	58	# 200	83	74	80
# 184	24	27	26	# 201	110	100	115
# 185	22	23	26	# 202	31	30	30
# 190	100	110	120	# 203	95	83	92
# 191	83	86	96	# 204	41	37	40
# 192	26	29	31	# 205	160	150	180
# 193	32	38	40	# 206	570	550	570
# 194	210	200	220	# 207	540	510	530
# 195	96	90	100	# 208	300	290	290
# 196	170	170	190	# 209	1100	990	1000
# 197	110	100	110				

*SEにおける#1～#39はn=2

表12 フライアッシュ試料における各コプラナーPCBsコンジェナー及び各同族体の濃度

IUPAC number ／同族体	SE*	HE	PLE	認証値
	n=2 or 3	n=4	n=4	
	pg/g			
# 77	160 ± 23	160 ± 26	170 ± 15	178 ± 18
# 81	130 ± 17	120 ± 12	130 ± 12	131 ± 9
# 105	90 ± 10	72 ± 5.9	93 ± 14	117 ± 31
# 114	46 ± 6.4	42 ± 5.2	50 ± 1.9	45.7 ± 7.4
# 118	85 ± 12	77 ± 8.2	89 ± 14	108 ± 18
# 123	31 ± 3.5	29 ± 3.0	31 ± 1.7	27.0 ± 3.1
# 126	280 ± 30	240 ± 30	280 ± 13	228 ± 14
# 156	120 ± 12	120 ± 22	140 ± 14	198 ± 47
# 157	80 ± 5.8	77 ± 15	94 ± 11	88.4 ± 8.4
# 167	54 ± 6.9	52 ± 12	60 ± 6.2	70.3 ± 9.8
# 169	170 ± 15	150 ± 14	190 ± 5.0	187 ± 1.7
# 189	160 ± 20	170 ± 36	190 ± 20	178 ± 13
MoCBs	770 ±	740 ± 180	870 ± 50	±
DiCBs	1000 ±	900 ± 180	1200 ± 180	±
TrCBs	1300 ±	1200 ± 220	1500 ± 200	±
TeCBs	1300 ± 180	1200 ± 140	1500 ± 280	±
PeCBs	1300 ± 200	1200 ± 170	1400 ± 110	±
HxCBs	1200 ± 90	1200 ± 140	1400 ± 97	±
HpCBs	1200 ± 120	1300 ± 110	1300 ± 110	±
OcCBs	1300 ± 120	1200 ± 130	1300 ± 74	±
NoCBs	1400 ± 72	1300 ± 81	1400 ± 160	±
DeCB	1100 ± 58	990 ± 14	1000 ± 63	±
PCBs	12000 ±	11000 ± 1300	13000 ± 700	±

*SEにおけるMoCBs, DiCBs, TrCBs, PCBs はn=2のため、標準偏差は算出せず。

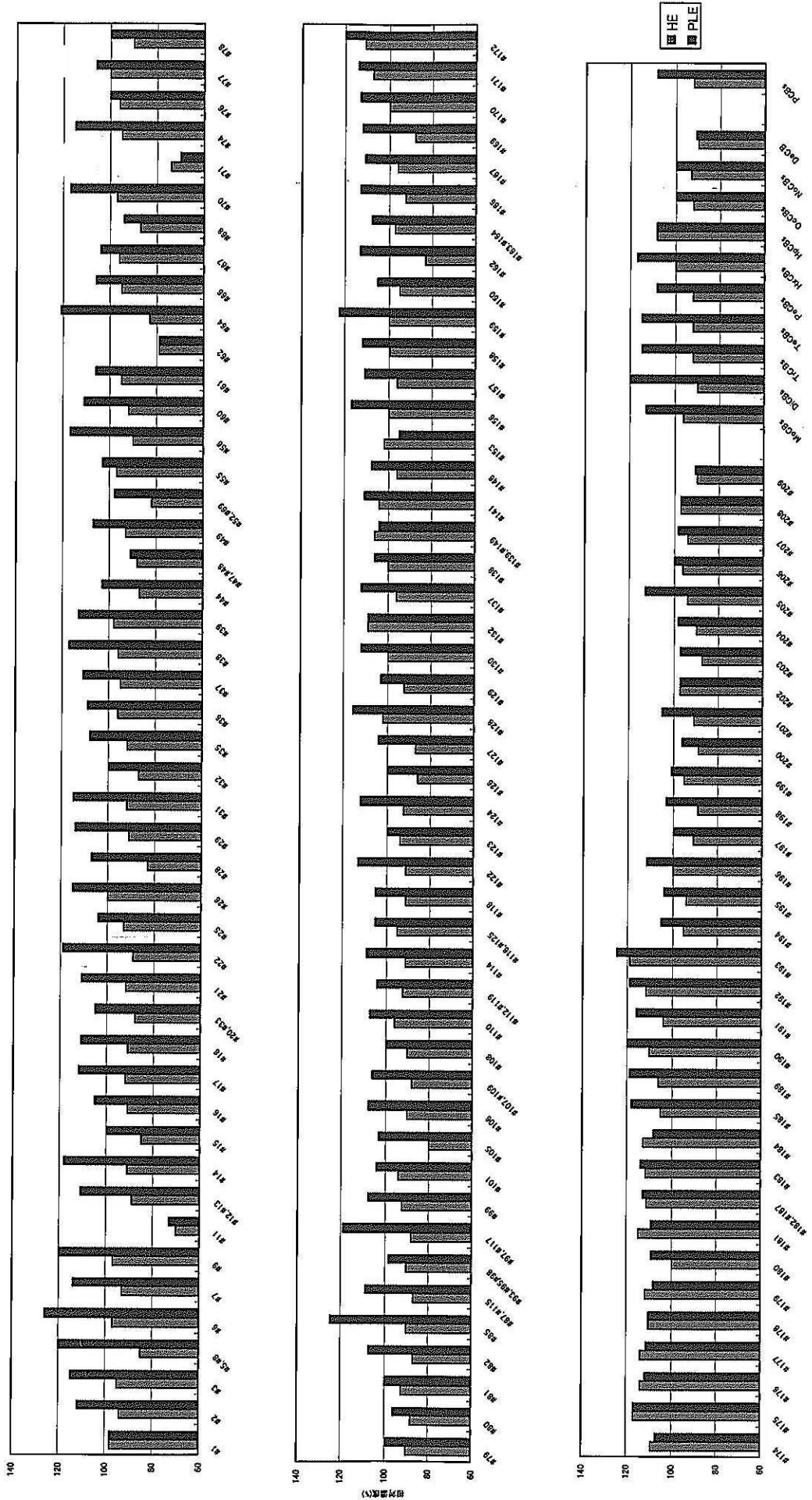


図5 SEにおける定量値を100とした時の各PCBsコンジェナー及び同族体の相対濃度(フライアッシュ試料)

5 参考文献

- 1) 日本化学会「PCB」, 丸善, 東京, 1980
- 2) 高管卓三, 井上毅, 大井悦雅: 各種クリーンアップ法とHRGC/HRMSを用いたポリ塩化ビフェニル (PCBs) の全異性体詳細分析法, 環境化学, Vol.5, No.3, pp.647-675, 1995
- 3) Kim, K. S., Hirai, Y., Kato, M., Urano, K., Ma-sunaga, S.: Detailed PCB congener patterns in incinerator flue gas and commercial PCB formulations (Kanechlor), Chemosphere, 55, pp.539-553, 2004
- 4) Chlorinated Biphenyl Congeners in Water, Soil, Sediment and Tissue by HRGC/HRMS: US EPA Method 1668, Revision A, 1999
- 5) 東野和雄, 佐々木裕子, 吉岡英俊, 蒔田茂穂: ダイオキシン類分析における迅速化の検討について, 東京都環境科学研究所年報, pp.187-193, 2000
- 6) 種岡裕, 高井透, 茂木剛, 村山等, 斉藤真一: 自動ソックスレー抽出法, 高速溶媒抽出法のダイオキシン類への適用, 全国環境研会誌, Vol.27, No.3, pp.154-163, 2002
- 7) 大塚英幸, 姉崎克典, 山口勝透, 岩田理樹, 藤本啓: ダイオキシン類の迅速抽出法及び前処理法の基礎的検討—ソックスレー抽出法, 高温還流抽出法, 高压液体抽出法の比較と活性炭分散シリカゲルリバースカラムによる分画の検討—, 北海道環境科学研究センター所報, 30, pp.29-33, 2003
- 8) K. Saito, M. Takekuma, M. Ogawa, S. Kobayashi, Y. Sugawara, M. Ishizuka, H. Nakazawa, Y. Matsuki: Extraction and cleanup methods of dioxins in house dust from two cities in Japan using accelerated solvent extraction and a disposable multi-layer silica-gel cartridge, Chemosphere, 53, pp.137-142, 2003
- 9) 鎗田孝, 仲間純子, 沼田雅彦, 青柳嘉枝, 山崎美佐子, 高津章子: 加圧流体抽出法及び同位体希釈—ガスクロマトグラフィー/質量分析法による底質中ポリクロロビフェニルの定量, 分析化学, Vol.52, No.11, pp.1011-1017, 2003
- 10) 松村千里, 鶴川正寛, 中野武, 江崎達哉, 大橋眞: キャピラリーカラム (HT8-PCB) によるPCB全209異性体の溶出順位, 環境化学, Vol.12, No.4, pp.855-865, 2002
- 11) ダイオネクスASEレポート「高速溶媒抽出 (ASE) による環境試料中からのポリ塩素化ジベンゾ-p-ジオキシンおよびポリ塩素化ジベンゾフランの抽出」, 2001
- 12) 環境庁水質保全局水質管理課「ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル」, 2000
- 13) 環境庁水質保全局土壌農薬課「ダイオキシン類に係る土壌調査測定マニュアル」, 2000
- 14) 厚生省「特別管理一般廃棄物及び特別管理産業廃棄物に係る基準の検定方法」, 厚生省告示第192号, 1992

Study of Rapid Extraction for All PCB Congeners Analysis

Katsunori ANEZAKI,
Katsuyuki YAMAGUCHI,
Hideyuki OTSUKA,
Riki IWATA

Abstract

Hot Extraction (HE) and Pressurized Liquid Extraction (PLE) were applied with the purpose of extracting polychlorinated biphenyls (PCBs) from the mediums such as soil, sediment, and fly ash quickly and precisely. In addition, we conducted the comparison of the quantitative values derived from the conventional method, Soxhlet Extraction (SE), and the authorization values of the authorized reference materials regarding the congener of a part of PCBs and the concentration of each homolog. As a result, it was observed that the quantitative values for each congener and each homolog of PCBs obtained by HE and PLE were the same to the quantitative values derived from SE and the authorization values of the reference materials. In addition, a significant difference in quantitative value between HE and PLE was not recognized. On the other hand, the experiments of extracting PCBs by HE and PLE were finished in about 7 hours and 40 minutes respectively. Compared with SE, which costs 16 hours to complete extraction in general, HE and PLE allow more quick and precise extraction.

北海道における有機性廃棄物の 資源化システム構築に関する研究

阿賀 裕英 井上 雄三*

要 約

北海道における有機性廃棄物資源化システム構築の第一段階として、モデル地域を選定して有機性廃棄物需給データベースの構築を試み、課題の抽出を行った。その結果、入手した統計資料は、一部の細分データが不足していたり、秘匿値が存在するなど、的確なデータベースを構築するためには不十分であることが分かった。作物ごとの有機肥料使用可能割合が不明であることも、大きな課題であった。本研究では、リサイクル利用を有機肥料に限定し、窒素のみに基づくデータベースを構築した。しかし、飼料やエネルギー原料、及び工業原料などへの利用も含めた包括的な資源化システムを構築するためには、事業種別に有機性廃棄物ごとの組成データベースを整備する必要がある。

Key Words: 有機性廃棄物、リサイクル、資源化、需給構造

1 はじめに

北海道においては、一般廃棄物と産業廃棄物が合わせて4000万トン程度排出されており、そのうち家畜ふん尿を中心とした有機性廃棄物が半分以上を占める¹⁾。しかし、これら有機性廃棄物は十分にリサイクル利用されておらず、生ごみ等の埋立による最終処分場の逼迫、家畜ふん尿の放置等による水源の硝酸性窒素汚染などに深く関わっている。このような未利用資源としてのバイオマスの宝庫である北海道において、有機性廃棄物の適切な資源化システムを構築し、環境負荷の削減と新産業の創出を図ることは、平成14年12月に閣議決定されたバイオマス・ニッポン総合戦略²⁾の重要な柱ともなる。そこで本研究は、北海道における有機性廃棄物の適切な資源化システムを構築することを将来的な目標とし、モデル地域を選定して有機性廃棄物需給データベースの構築を試み、課題の抽出を行って今後の研究に資することを目的とした。

2 方法

2.1 モデル地域の選定

北海道は広大で、全体の有機性廃棄物需給データベースを構築することは容易ではないため、本研究ではモデル地域を選定してデータベースの構築を試み、課題の抽出を行っ

た。

モデル地域の選定にあたっては、家庭系生ごみが直接埋立されており、かつ人口の多い地域に未利用有機性廃棄物の潜在量が比較的多いと考えられるため、そのような地域を選出した。

選定手順は、まず環境省のホームページ上に公開されている一般廃棄物処理実態調査結果（平成12年度分）³⁾から家庭系生ごみの処理状況を判断した。このデータは、一般廃棄物全体についての数値なので、その一部である家庭系生ごみの処理状況は明確ではないが、焼却処理も高速堆肥化処理も行われていない市町村は、生ごみの直接埋立の可能性が高いと判断し、候補市町村としてピックアップした。続いて各支庁の廃棄物対策係に問い合わせ、ピックアップした市町村を中心に、生ごみの直接埋立が行われているうえ今後の処理法変更計画も定まっていない市町村の確認を行い、その中でも人口の多い地域をモデル地域に選定した。

2.2 有機性廃棄物需給データベース（窒素ベース）の構築と課題の抽出

有機性廃棄物需給データベースの構築にあたっては、供給種を、発生原単位の研究事例が多い家庭系生ごみと家畜ふん尿、需要種を、農地への施肥標準値が定められている肥料に限定し、研究情報が少ない事業系食品廃棄物や耕種系廃棄物（ともに供給種）、飼料（需要種）などは今回、対象から除外した。需要種を農地への有機肥料に限定したため、有機質資材に豊富に含まれ、過剰施肥になると作物品質の低下や環境汚染を招く窒素に基づいてデータベース

* (独) 国立環境研究所 循環型社会形成推進・廃棄物研究センター 最終処分技術研究開発室

を作成した。また、対象とする各種統計データは市町村単位で得られるので、市町村単位でデータベースの作成を行った。

家庭系生ごみ由来窒素発生量は、一般廃棄物処理実態調査結果（平成13年度分）³⁾ の生活系ごみ量に、平均的な生ごみ比率と生ごみ中窒素比率を乗じて試算した。生ごみ比率は、北海道環境生活部が平成15年度末に行った家庭ごみ質調査（道央）から35%、生ごみ中窒素比率は、国立環境研究所最終処分技術研究開発室の分析データから0.7%を採用した。

$$\begin{aligned} & \text{家庭系生ごみ由来窒素発生量} \\ & = \text{生活系ごみ量} \times 0.35 \times 0.007 \end{aligned}$$

家畜ふん尿由来窒素発生量は、2000年世界農林業センサス⁴⁾ の家畜頭羽数データに、表-1に示した家畜ふん尿由来窒素発生原単位⁵⁾ を乗じて試算した。

$$\begin{aligned} & \text{家畜ふん尿由来窒素発生量} \\ & = \text{家畜頭羽数} \times \text{家畜ふん尿由来窒素発生原単位} \end{aligned}$$

農地の窒素需要量は、2000年世界農林業センサスの耕種別作付面積に、北海道施肥ガイド⁶⁾ の施肥標準値を乗じて試算した。施肥標準は、作物によっては土壌種ごとに分けて設定されているため、市町村全体平均としての施肥標準値が不明なケースがあるが、その場合は低い方の施肥標準値を採用して試算した。なお、作物ごとの有機肥料使用可能割合が不明であり、全て50%を目標とした試算例⁷⁾ もあるが、ここでは全て控えめに30%と仮定して試算した。

$$\begin{aligned} & \text{農地の有機肥料中窒素受け入れ可能量} \\ & = \text{耕種別作付面積} \times \text{施肥標準値} \times 0.30 \end{aligned}$$

試算にあたっては、花き類・花木は品種ごとではなくトータルの作付面積データしかないため、該当種全体の施肥標準平均値を、およそ15kg/10aと仮定して試算した。牧草も同様であり、およそ10kg/10aと仮定して試算した。施設園芸作物に関しては、野菜のほか、花き類・花木もそれぞれトータルの作付面積データしかないが、これらの作付面積はいずれも1万ha以上と非常に大きいため、精度の高い試算の必要性が高いと考えられ、仮定値による計算は行わずに今回は試算から除外した。施肥標準が設定されておらず試算不可能である作物についても試算から除外した。

3 結果および考察

3.1 モデル地域の選定

調査の結果、一般廃棄物処理実態調査結果（平成12年度）では可燃ごみが焼却処理されているにもかかわらず、平成14年12月のダイオキシン類規制強化により焼却施設が廃止となり、直接埋立処理に変更となった市町村が存在することが分かった。生ごみの直接埋立を行い、今後の処理法変更計画も定まっていない市町村が多いのは、ごみ処理の広域化計画に基づく道内24広域ブロックのうち、南空知ブロック（夕張市、岩見沢市、美唄市、三笠市、北村、栗沢町、月形町）、道央ブロック（恵庭市、北広島市、長沼町、由仁町、南幌町、栗山町）の隣接する2ブロック内であることが分かった。両ブロックを総合すると人口も30万人余りと比較的多いことから、両ブロックを合わせた地域をモデル地域に選定した。

モデル地域内13市町村の概要として、市町村ごとの人口、生活系ごみ量や家畜頭羽数と、全道に占める割合を表-2に示した。表中のxは、農家が2戸以下のために秘匿されたデータであり、-は、事実のないものである。対象地域の総人口は全道の5.8%で、これと対比すると、生活系ごみはほぼ同様な比率であり、家畜数は豚のみが7.3%でやや高めであるほかは低い比率となっている。

3.2 有機性廃棄物需給データベース（窒素ベース）の構築と課題の抽出

モデル地域内市町村ごとの、耕種別作付面積、窒素施肥標準、およびそれらに乗じて算出した窒素需要量を表-3(1)、(2)に記す。

以上のデータを利用して、窒素ベースの需給構造を試算した結果を表-4に示すとともに、それを地図上に視覚化して図-1から図-4に示す。家庭系生ごみや家畜ふん尿の窒素発生量は、恵庭市をはじめ南部で多くなっている一方、農地の有機肥料中窒素受け入れ可能量は、美唄市や岩見沢市といった北部で多くなっており、窒素需給バランスは、南部で供給過剰、北部で供給不足となっている。だがモデル地域全体で見れば需給はかなり均衡し、117t/年のやや供給過剰となっている。しかし農地の有機肥料中窒素受け入れ可能量は、施設園芸作物など、品種ごとの作付面積データがないものをかなり試算から除外したため、大幅な過小評価になっており、実際には供給不足で、家庭系生ごみや家畜ふん尿の農地への受け入れ可能量には余裕があると見られる。また、秘匿値は微量であるケースが多いと考えられるが、これを試算に含めることが不可能なことも過小評価につながっており、今後の検討課題である。

表-1 家畜ふん尿由来窒素発生原単位⁶⁾

畜種		窒素量 (gN/頭/日)	
		ふん	尿
乳牛 ^{注1)}	搾乳牛	152.8	152.7
	乾・未經産	38.5	57.8
	育成牛	85.3	73.3
肉牛 ^{注2)}	2歳未満	67.8	62.0
	2歳以上	62.7	83.3
	乳用種	64.7	76.4
豚	肥育豚	8.3	25.9
	繁殖豚	11.0	40.0
採卵鶏 ^{注3)}	雛	1.54	—
	成鶏	3.28	—
ブロイラー		2.62	—

注1) 2000年世界農林業センサス⁴⁾のデータは、全頭数と2歳以上の頭数のみであることから、2歳以上に搾乳牛、2歳未満に育成牛の発生原単位を対応させた。

注2) 2000年世界農林業センサス⁴⁾のデータによると、全道では約半数が乳用種であり、その発生原単位は2歳未満と2歳以上の中間になっていることから、肉牛全頭に乳用種の発生原単位を対応させた。

注3) 2000年世界農林業センサス⁴⁾のデータは、雛と成鶏の区分がなされていないので、全羽に成鶏の発生原単位を対応させた。

表-2 モデル地域内市町村の概要(人口と生活系ごみは、一般廃棄物処理実態調査結果(平成13年度分)⁹⁾、家畜頭羽数は、2000年世界農林業センサス⁴⁾より引用)

市町村名	人口 (人)	生活系 ごみ (t/年)	乳用牛			肉用牛 全頭数 (頭)	豚			採卵鶏 飼養羽数 (羽)	ブロイラー 出荷羽数 (羽)
			全頭数 (頭)	2歳以上 (頭)	2歳未満 (頭)		全頭数 (頭)	繁殖豚 (頭)	肥育豚 (頭)		
夕張市	15115	8625	—	—	—	—	—	—	—	—	—
岩見沢市	84786	21568	408	352	56	×	—	—	—	—	—
美瑛市	30832	13489	×	×	×	19	—	—	—	—	—
三笠市	13456	4229	283	212	71	×	×	×	×	×	—
恵庭市	65590	19570	2176	1492	684	460	4392	412	3980	—	—
北広島市	58743	16928	1182	940	242	96	5400	555	4845	—	—
北村	3914	455	788	479	309	34	×	×	×	—	—
栗沢町	7378	1899	288	169	119	45	×	×	×	×	—
南幌町	9937	2034	×	×	×	—	352	51	301	×	—
由仁町	7091	1024	1304	843	461	×	648	43	605	×	—
長沼町	12876	2805	1035	692	343	×	6156	637	5519	2900	—
栗山町	15151	4063	295	204	91	—	×	×	×	×	—
月形町	4441	1339	127	85	42	324	×	×	×	×	—
地域合計	329310	98028	7886	5468	2418	978	16948	1698	15250	2900	0
全道合計	5715499	162574	800868	524765	276103	261248	232455	22241	210214	742400	115260
地域合計/全道合計×100(%)	5.8	6.0	1.0	1.0	0.9	0.4	7.3	7.6	7.3	0.4	0

表-3 (1) モデル地域内市町村ごとの耕種別作付面積、窒素施肥標準、および窒素需要量

市町村名	施肥ガイド 該当 地帯 番号	牧草			水稲			小麦			大麦・裸麦			ビール麦(二条大麦)		
		作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)
夕張市	8	68	10	6.8	47	6	2.6	-	9	0	-	6	0	-	6	0
岩見沢市	7	106	10	10.6	3659	7	237.8	928	9	78.9	-	6	0	-	6	0
美唄市	8	21	10	2.1	5667	7	368.4	1835	9	156.0	X	6	X	-	6	0
三笠市	8	64	10	6.4	317	7	20.6	108	9	9.2	-	6	0	-	6	0
恵庭市	2	83	10	8.3	1275	6	70.13	339	9	30.5	-	5	0	-	5	0
北広島市	7	191	10	19.1	193	6	10.6	17	9	1.4	-	6	0	-	6	0
北村	7	275	10	27.5	4019	6	241.1	936	9	79.6	-	6	0	-	6	0
栗沢町	7	106	10	10.6	2636	6	158.2	393	9	33.4	X	6	X	-	6	0
南幌町	7	1	10	0.1	3162	6	173.9	1324	9	112.5	X	6	X	X	6	X
由仁町	7	118	10	11.8	2677	6	147.2	637	9	54.1	X	6	X	-	6	0
長沼町	7	287	10	28.7	5078	6	279.3	1050	9	89.25	7	6	0.4	-	6	0
栗山町	7	13	10	1.3	2648	6	145.6	773	9	65.7	-	6	0	-	6	0
月形町	7	199	10	19.9	1596	6	95.8	61	9	5.2	X	6	X	-	6	0
合計		1532		153	32974		1951	8401		716		7	0.4		0	0
備考 (施肥標準)		種によって施肥標準は異なるが、およその平均値を10と仮定			泥炭土、全層施肥の値を採用			地帯番号2は火山性土、他は低地土の値とし、春まきと秋まきの平均値を採用			えん麦(二条大麦)の値で、地帯番号2は火山性土、他は台地土の値を採用			えん麦(二条大麦)の値で、地帯番号2は火山性土、他は台地土の値を採用		

市町村名	施肥ガイド 該当 地帯 番号	そば			ばれいしょ			大豆			小豆			いんげん豆		
		作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)
夕張市	8	-	3	0	3	8	0.2	0	2	0	1	3	0.03	1	7	0.1
岩見沢市	7	4	3	0.1	24	8	1.9	150	2	2.25	223	3	6.69	0	7	0
美唄市	8	211	3	5.28	6	8	0.5	79	2	1.2	113	3	3.39	0	7	0
三笠市	8	-	3	0	11	8	0.9	1	2	0.02	8	3	0.2	-	7	0
恵庭市	2	19	3	0.48	165	9	14.9	259	2	5.18	132	4	5.28	-	7	0
北広島市	7	X	3	X	59	8	4.7	X	2	X	24	3	0.72	X	7	X
北村	7	6	3	0.2	7	8	1	85	2	1.3	201	3	6.03	X	7	X
栗沢町	7	6	3	0.2	80	8	6.4	29	2	0.44	59	3	1.8	2	7	0.1
南幌町	7	13	3	0.33	3	8	0.2	49	2	0.74	249	3	7.47	X	7	X
由仁町	7	-	3	0	253	8	20.2	196	2	2.94	322	3	9.66	12	7	0.84
長沼町	7	15	3	0.38	102	8	8.16	705	2	10.6	309	3	9.27	1	7	0.1
栗山町	7	21	3	0.53	252	8	20.2	117	2	1.76	174	3	5.22	0	7	0
月形町	7	15	3	0.38	23	8	1.8	12	2	0.18	58	3	1.7	-	7	0
合計		310		8	988		81	1682		27	1873		58	16		1
備考 (施肥標準)		地帯番号2は火山性土、他は低地土の値を採用			生食用の値を採用。地帯番号2は火山性土、他は低地土の値を採用			地帯番号2は火山性土、他は低地土の値を採用			地帯番号2は火山性土、他は低地土の値を採用			さやいんげんのつるなしの値を採用		

市町村名	施肥ガイド 該当 地帯 番号	てんさい			トマト			きゅうり			かぼちゃ			なす		
		作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)
夕張市	8	-	14	0	0	13	0	0	30	0	4	8	0.3	0	19	0
岩見沢市	7	-	14	0	1	13	0.1	0	30	0	54	8	4.3	1	19	0.2
美唄市	8	-	14	0	2	13	0.3	1	30	0.3	24	8	1.9	1	19	0.2
三笠市	8	-	14	0	1	13	0.1	2	30	0.6	50	8	4.0	2	19	0.4
恵庭市	2	131	16	21.0	1	13	0.1	0	30	0	120	10	12.0	0	19	0
北広島市	7	X	14	X	0	13	0	0	30	0	44	8	3.5	1	19	0.2
北村	7	-	14	0	X	13	X	0	30	0	81	8	6.5	1	19	0.2
栗沢町	7	X	14	X	1	13	0.1	2	30	0.6	52	8	4.2	1	19	0.2
南幌町	7	30	14	4.2	2	13	0.3	0	30	0	14	8	1.1	0	19	0
由仁町	7	387	14	54.2	1	13	0.1	X	30	X	56	8	4.5	1	19	0.2
長沼町	7	155	14	21.7	11	13	1.4	3	30	0.9	69	8	5.5	1	19	0.2
栗山町	7	67	14	9.4	2	13	0.3	2	30	0.6	96	8	7.7	1	19	0.2
月形町	7	-	14	0	3	13	0.4	0	30	0	47	8	3.8	0	19	0
合計		770		110	25		3	10		3	711		59	10		2
備考 (施肥標準)		地帯番号2は火山性土、他は低地土の値を採用			トマトとミニトマトの平均値を採用			追肥回数は2回で試算			地帯番号2は火山性土、他は低地土の値を採用			露地早熟、追肥は2回で試算		

市町村名	施肥ガイド 該当 地帯 番号	結球はくさい			キャベツ			ほうれんそう			ねぎ			たまねぎ		
		作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)
夕張市	8	0	22	0	0	20	0	3	14	0.4	X	14	X	-	15	0
岩見沢市	7	1	22	0.2	9	20	2	4	14	0.5	16	14	2.2	1236	15	185.4
美唄市	8	1	22	0.2	1	20	0.2	4	14	0.5	5	14	0.7	72	15	11
三笠市	8	1	22	0.2	0	20	0	1	14	0.1	X	14	X	202	15	30.3
恵庭市	2	5	22	1	78	20	16	4	14	0.5	1	14	0.1	-	15	0
北広島市	7	3	22	0.7	28	20	5.6	1	14	0.1	8	14	1	0	15	0
北村	7	26	22	5.7	9	20	2	2	14	0.3	15	14	2.1	76	15	11
栗沢町	7	6	22	1	2	20	0.4	2	14	0.3	32	14	4.5	168	15	25.2
南幌町	7	0	22	0	77	20	15	3	14	0.4	32	14	4.5	20	15	3.0
由仁町	7	4	22	0.9	20	20	4.0	4	14	0.5	6	14	0.8	117	15	17.6
長沼町	7	44	22	9.7	18	20	3.6	3	14	0.4	95	14	13	244	15	36.6
栗山町	7	4	22	0.9	6	20	1	8	14	1	55	14	7.7	342	15	51.3
月形町	7	X	22	X	1	20	0.2	X	14	X	-	14	0	X	15	X
合計		95		21	249		50	39		5	265		37	2477		372
備考 (施肥標準)		春まき露地を採用			春まき露地を採用			露地栽培部門として、春夏まきに50%増の値を採用			春まき秋どりの値を採用					

表-3 (2) モデル地域内市町村ごとの耕種別作付面積、窒素施肥標準、および窒素需要量

市町村名	施肥ガイド 該当 地帯 番号	だいこん			にんじん			レタス			ピーマン			アスパラガス		
		作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)
夕張市	8	2	5	0.1	0	12	0	-	12	0	X	20	X	9	20	2
岩見沢市	7	2	5	0.1	23	12	2.8	X	12	X	0	20	0	6	20	1
美唄市	8	1	5	0.1	0	12	0	X	12	X	1	20	0.2	38	20	7.6
三笠市	8	1	5	0.1	X	12	X	-	12	0	X	20	X	X	20	X
恵庭市	2	104	6	6.24	59	12	7.1	11	12	1.3	2	20	0.4	4	20	0.8
北広島市	7	127	5	6.35	77	12	9.2	26	12	3.1	3	20	0.6	11	20	2.2
北村	7	6	5	0.3	3	12	0.4	8	12	1	2	20	0.4	5	20	1
栗沢町	7	2	5	0.1	59	12	7.1	1	12	0.1	X	20	X	8	20	2
南幌町	7	3	5	0.2	1	12	0.1	X	12	X	2	20	0.4	0	20	0
由仁町	7	9	5	0.5	20	12	2.4	X	12	X	1	20	0.2	8	20	2
長沼町	7	14	5	0.70	13	12	1.6	8	12	1	1	20	0.2	2	20	0.4
栗山町	7	7	5	0.4	2	12	0.2	2	12	0.2	1	20	0.2	1	20	0.2
月形町	7	0	5	0	-	12	0	-	12	0	-	20	0	X	20	X
合計		278		15	257		31	56		7	13		3	92		18
備考 (施肥標準)		地帯番号2は火山性土、他は低地土の値を採用			地帯番号2は火山性土、他は低地土の値を採用			春夏まきの値を採用			追肥は2回で試算			定植2年目以降の値を採用		

市町村名	施肥ガイド 該当 地帯 番号	すいか			いちご			露地メロン			未成熟とうもろこし			花き類・花木		
		作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)
夕張市	8	2	9	0.2	1	13	0.1	58	10	5.8	1	12	0.1	X	15	X
岩見沢市	7	0	9	0	1	13	0.1	2	10	0.2	47	12	5.6	14	15	2.1
美唄市	8	0	9	0	1	13	0.1	5	10	0.5	5	12	0.6	43	15	6.5
三笠市	8	9	9	0.8	-	13	0	11	10	1.1	11	12	1.3	-	15	0
恵庭市	2	X	9	X	-	13	0	2	10	0.2	38	12	4.6	28	15	4.2
北広島市	7	X	9	X	2	13	0.3	X	10	X	3	12	0.4	7	15	1
北村	7	1	9	0.1	-	13	0	4	10	0.4	9	12	1	1	15	0.2
栗沢町	7	0	9	0	3	13	0.4	3	10	0.3	18	12	2.2	20	15	3.0
南幌町	7	X	9	X	X	13	X	-	10	0	3	12	0.4	5	15	0.8
由仁町	7	1	9	0.1	5	13	0.7	1	10	0.1	39	12	4.7	4	15	0.6
長沼町	7	0	9	0	1	13	0.1	2	10	0.2	71	12	8.5	51	15	7.7
栗山町	7	1	9	0.1	1	13	0.1	16	10	1.6	12	12	1.4	18	15	2.7
月形町	7	21	9	1.9	X	13	X	35	10	3.5	4	12	0.5	97	15	15
合計		35		3	15		2	139		14	261		31	288		43
備考 (施肥標準)		トンネル早熟(露地)の値を採用			露地の値を採用						スイートコーンの値を採用			種全体の平均はおおよそ15くらいと仮定		

市町村名	施肥ガイド 該当 地帯 番号	果樹(ha)			ぶどう			日本なし		
		りんご 作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)	作付面積 (ha)	N施肥標準 (kg/10a)	N需要量 (t/年)
夕張市	8	-	7	0	-	11	0	-	16	0
岩見沢市	7	14	7	1.0	4	11	0.4	1	16	0.2
美唄市	8	-	7	0	-	11	0	-	16	0
三笠市	8	X	7	X	4	11	0.4	-	16	0
恵庭市	2	-	7	0	-	11	0	-	16	0
北広島市	7	-	7	0	X	11	X	-	16	0
北村	7	-	7	0	-	11	0	-	16	0
栗沢町	7	7	7	0.5	1	11	0.1	X	16	X
南幌町	7	-	7	0	-	11	0	-	16	0
由仁町	7	6	7	0.4	-	11	0	X	16	X
長沼町	7	12	7	0.84	X	11	X	-	16	0
栗山町	7	-	7	0	-	11	0	-	16	0
月形町	7	-	7	0	-	11	0	-	16	0
合計		39		3	9		1	1		0.2
備考 (施肥標準)		つがるの成木や若木の値を採用			生食用ぶどうの成木の値を採用			成木の値を採用		

表-4 モデル地域内市町村ごとの窒素ベース需給バランス推算結果

市町村名	①生活系ごみ中(家庭系) 生ごみ由来 N量 (t/年)	②家畜ふん尿由来 N量 (t/年)	③有機肥料中N 受け入れ可能量 (t/年)	N需給バランス (①+②-③) (t/年)
夕張市	21	0	5.6	16
岩見沢市	53	42	164	-69
美唄市	33	1.0	170	-136
三笠市	10	28	23	15
恵庭市	48	287	63	272
北広島市	41	195	21	215
北村	1.1	73	117	-43
栗沢町	4.7	28	79	-46
南幌町	5.0	4.7	98	-88
由仁町	2.5	129	102	29
長沼町	6.9	181	162	26
栗山町	10	28	98	-60
月形町	3.3	29	45	-13
地域合計	240	1026	1148	117
全道合計	3984	92982		
地域合計/全道合計×100(%)	6.0	1.1		

家庭系生ごみ由来窒素発生量 (t / 年)

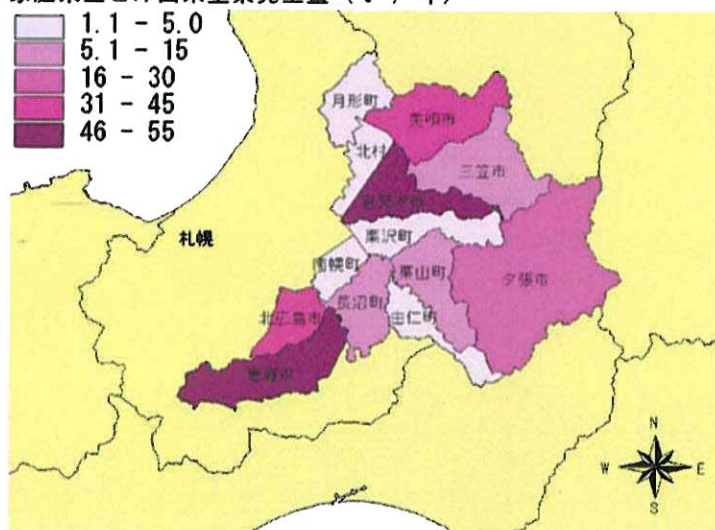


図-1 家庭系生ごみ由来窒素発生量の分布

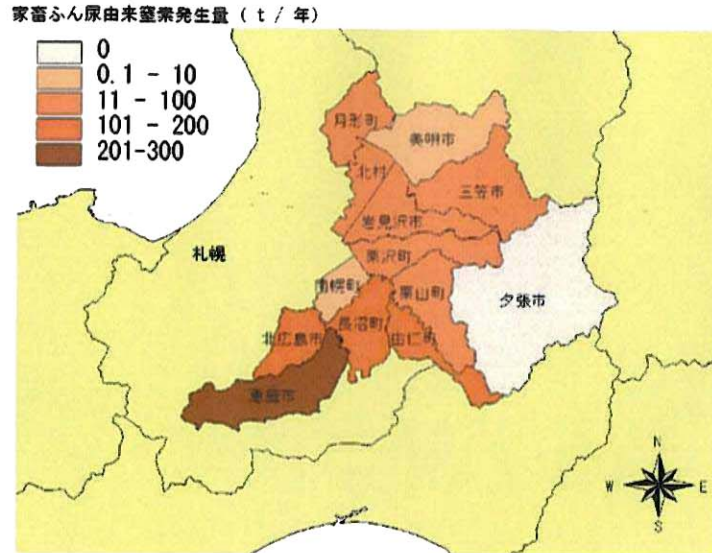


図-2 家畜ふん尿由来窒素発生量の分布

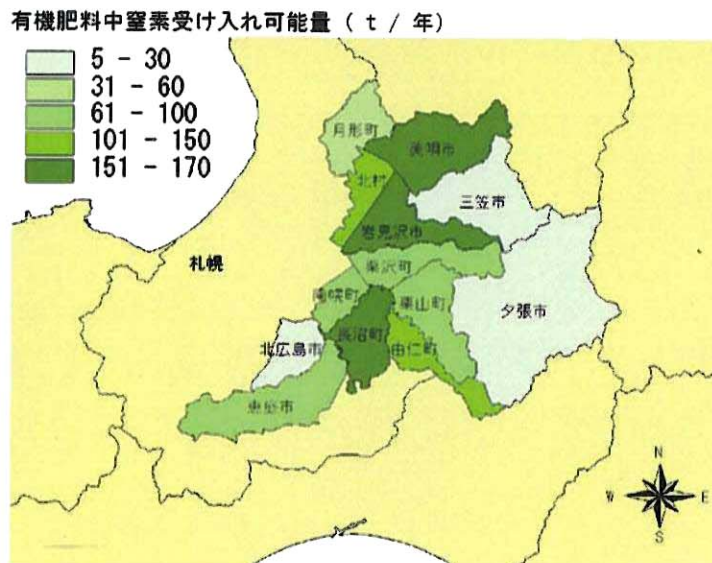


図-3 農地の有機肥料中窒素受け入れ可能量の分布

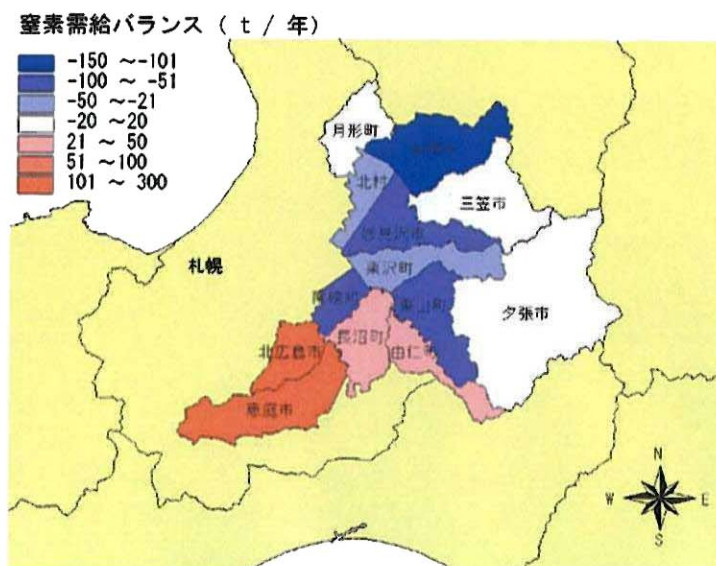


図-4 家庭系生ごみ、家畜ふん尿、農地への有機肥料の窒素需給バランス

4 まとめ

有機性廃棄物資源化システム構築の第一段階として、供給種を家庭系生ごみと家畜ふん尿、需要種を農地への肥料に限定し、窒素ベースの有機性廃棄物需給データベース構築を試みた結果、農地の窒素需要量試算にあたり、今回利用した農業統計データの2000年世界農林業センサスは、施設園芸作物など、品種別データの不足が多いほか、統計資料に特有の秘匿値もあり、これらについての試算が出来ない分、過少評価となってしまう問題点が明らかとなった。また、作物ごとの有機肥料使用可能割合が不明であり、今回は全て30%という仮定を立てて試算を行ったものの、精度の高い適切なデータベースを構築するためには多くの検討を要する課題である。

今回は、窒素ベースのデータベースを構築したが、需要種として飼料やエネルギー原料、及び工業原料も含めた包括的な資源化システムを構築していくためには、事業種別の有機性廃棄物ごとに成分組成データを整備する必要がある。国立環境研究所では、この部分の研究も進められており、今後も連携を取りながら本研究を継続していく予定である。

5 謝辞

本研究にあたり、本庁環境生活部環境室循環型社会推進課および各支庁地域政策部環境生活課廃棄物対策係の方々には、お忙しい中、情報収集に多大なご協力を頂きました。この場をお借りして深謝いたします。

参考文献

- 1) 北海道環境生活部「ごみゼロ・プログラム北海道」第3章, 2000.
- 2) 農林水産省ホームページ内: <http://www.maff.go.jp/biomass/index.htm>
- 3) 環境省ホームページ内: http://www.env.go.jp/recycle/waste_tech/ippan/index.html
- 4) 農林水産省統計情報部「2000年世界農林業センサス」第1巻 北海道統計書(農業編), 2002.
- 5) 西尾道徳 監修「環境保全と新しい畜産」p15-29, 築城幹典、原田靖生: 我が国における家畜排泄物発生の実態と今後の課題, (社)農林水産技術情報協会, 1997.
- 6) 北海道農政部 編「北海道施肥ガイド」, 2002.
- 7) 有機質資源化推進会議 編「有機廃棄物資源化大事典」p85, 1997.

Research for the construction of organic waste recycling system in Hokkaido.

Hirohide AGA and Yuzo INOUE.

Abstract

As the first step of the construction of organic waste recycling system in Hokkaido, we selected a model area and tried making the demand and supply database for organic waste to extract the problems. As a result, it was cleared that the obtained statistics was insufficient to construct an accurate database because it lacked some fractionated data and contained some closed data. It was also a significant problem that the possible maximum ratios of organic fertilizer for each crop were unclear. In this study, we focused only organic fertilizer among various recycling uses and made the database based on only nitrogen. However, in order to construct the comprehensive recycling systems containing feed, energy or industrial materials etc. as recycled products, the composition database of each organic waste should be made for every kind of business.

Terra/ASTERマルチスペクトル (VNIR, SWIR & TIR) データを用いた湿原環境評価に関する基礎的研究 (サロベツ湿原を例として)

布和敖斯尔 高田 雅之

要 約

ASTERは可視から熱赤外までの14バンドを有する高性能の光学センサであり、産業、環境、資源など様々分野で利用されている。本研究は北海道のサロベツ湿原を対象に、ASTERデータを用いて、主成分分析、最適指数(OIF)、各種の定量化指数(NDVI, NDSI, NDWI, OWI)などの手法を用いてそれぞれに空間分布を図化し、各結果を比較及び相互連関して考察することにより、湿原環境(植生環境及び水文・土壌・熱などの物理環境)について空間的視点からの特徴を明らかにし、ASTERを用いた湿原環境評価への実用可能性を示すことができた。さらに、湿原植生を脅かすおそれのあるササ草原の分布及び動態についてASTERを用いて評価できる可能性が得られたとともに、今後の湿原環境評価のための統合的手法の確立に向けた基礎的知見を得た。

Key Words: Remote sensing, ASTER, Sarobetsu mire, wetland, PCA, OIF, NDVI, NDWI, OWI, NDSI

1 はじめに

ASTER (Advanced Spaceborne Thermal Emission and Reflection Radiometer) とは、可視域・近赤外域 (VNIR) から、中間赤外域 (SWIR)、熱赤外域 (TIR) までの波長帯域をカバーする14バンドを有する高性能光学センサであり、NASA (米国航空宇宙局) が1999年12月18日に打ち上げたTerra衛星に搭載されている。地上分解能は最大で15mであり、農林水産業、環境、資源探査などの分野で主に利用されている。

北海道における、衛星を利用した環境モニタリング技術の研究において、ASTERのもつバンド数の多さ、解像度の高さ、及び入手コストの低さは、応用可能性及び実用性ともに高いと考えられることから、本研究ではASTERを用いた環境モニタリング技術研究の一環として、近年乾燥化による植生変化が懸念されるとともに、周辺の土地利用との共生を目指した自然再生に取り組まれているサロベツ湿原を対象に、湿原環境(植生環境及び水文・土壌・熱などの物理環境)の空間分布及び特性に関する評価を試みた。

その結果をもとに、ササ草原の動態に関わる定量的・定性的知見が衛星から得られるかについて考察し、今後の湿原環境評価手法の確立に向けたASTERの応用可能性について基礎的な検討を行った。

2 サロベツ湿原の概要

サロベツ湿原は北海道北部に位置し(Fig. 1)、豊富町及び幌延町にまたがって南北約27km、東西5~8kmにわたって広がる湿原で、面積約23,000ha (うち泥炭地約14,600ha)を有し、釧路湿原と並んで日本を代表する湿原のひとつである¹⁾。ミズゴケ湿原の発達著しいのが本湿原の特徴のひとつである一方、近年、耕地への土地改変による面積減少や、乾燥化の進行によるササ侵入などの植生変化が指摘されている²⁾。天塩川の支流であるサロベツ川が湿原を取り囲むように流れており、湿原内にはパンケ沼、パンケ沼などの湖沼が点在している。

植生は大きく湿原域の北部、中部、南部の3つに区分でき、国立公園ビジターセンターを中心とした北部は主にツルコケモモ・ミズゴケ群落及びササ草原、パンケ沼周辺の中部は主にヤナギ等の湿地林及びヨシ・イワノガリヤス群集等、パンケ沼から天塩川にかけての南部は主にヨシ群落、ヌマガヤ群落及びササ草原となっている^{2) 3)}。このうち北部において、湿原植生へのササの侵入が特に問題視されている状況にある。

3 方法

3.1 ASTERデータのリサンプリング

今回使用した衛星データは2002年6月30日AM10:00に撮影したASTERの可視域から熱赤外域までの14バンドのデー

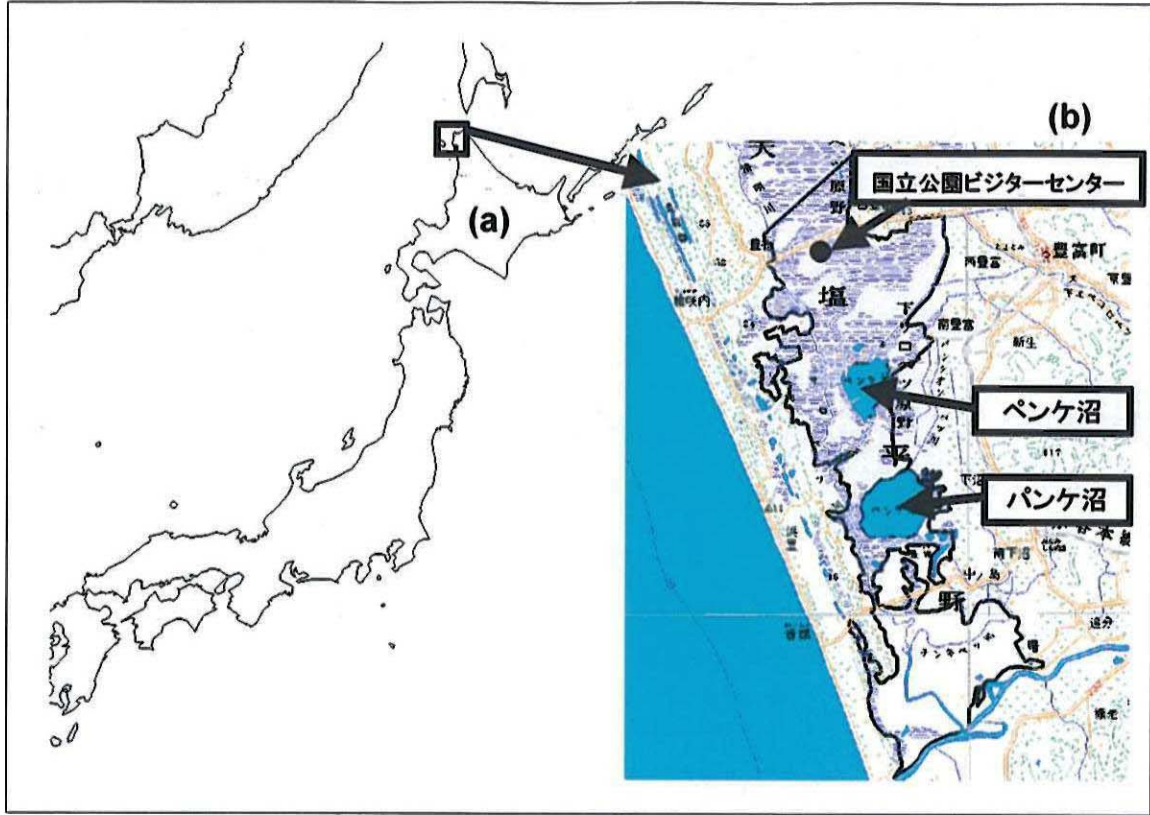


Fig. 1 調査地の位置 (a)北海道, (b)サロベツ湿原

タで、大気モデルを使って大気上層 (TOA) の輝度値 (radiance) と地表面の輝度値からエアロゾル及び水蒸気等の影響を取り除いた大気補正処理済の標準プロダクト (地表面反射率 (surface reflectance)) に精密幾何補正を施して使用した。

次にバンド間の相関計算や主成分分析などを行うためには、全てのバンドの空間解像度を同じ値にする必要があることから、リサンプリングを行った。リサンプリングは、オリジナルASTERデータのスペクトルを変化させずにレイヤースタッキング (layer stacking) を行い、ASTERオリジナルのVNIR (15m×15m)、SWIR (30m×30m) 及びTIR (90m×90m) データを全て同じピクセルサイズ (15m×15m) に変換して行った (Fig. 2)。これによってバンド間の計算が可能となった⁴⁾。

3.2 主成分分析

マルチスペクトル衛星画像データの主成分分析 (Principal component analysis, PCA) は画像の圧縮以外に画像分類、データフュージョンなどにも幅広く使われている^{5) 6)}。主成分分析は、各ピクセルのスペクトル値が、線形式を使用して再計算され、n次元のスペクトル空間の軸を楕円の軸に対してシフトし回転させて求めるものであり、nバンド画像データのi-主成分に対する値は次の式から求められ

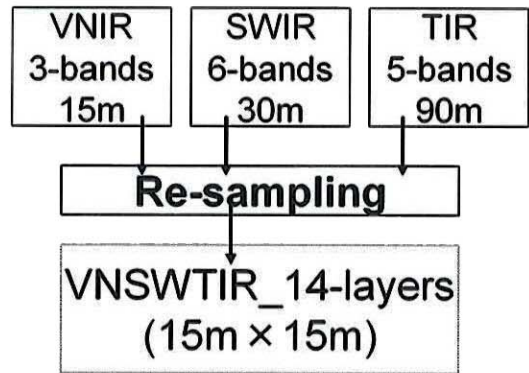


Fig. 2 ASTERデータのリサンプリング

る⁷⁾。

$$PC_i = \sum_{b=1}^n x_b a_{bi} \quad (1)$$

ここで、 PC_i は主成分バンドiの主成分の値、bは特定の入力バンドで、 x_b は入力バンドbのピクセル値、 a_{bi} は固有ベクトル要素である。主成分分析によって、マルチスペクトル衛星のすべてのバンドから、対象物に対する情報の90%以上を占める新たな成分を求めることができ、これを利用して対象物の特徴を顕著にするRGBカラー画像を作成することが可能となる。

3.3 最適指数 (OIF)

最適指数 (Optimum Index Factor ; OIF) は、マルチバンド衛星画像のカラー合成に際して、できるだけ互いに独立した3バンドを選定する手法で、対象物が有する反射または放射に関する特徴を最大に保有した形でRGBカラー画像の作成を可能にする技術である。ASTERの場合、14のバンドからRGBに当てはまる最適な3つのバンドを選択することが可能となる。OIFは次式のように定義され、バンド間の相関係数が低い (独立性が高い) ほど大きい値となる。すなわち、OIFが最も大きいバンドの組み合わせが、最も互いに独立であり、保有する情報が大きいことを示していると言える^{7) 8)}。

$$OIF = \frac{\sum_{i=1}^3 \sigma_i}{\sum_{i,j=1}^3 ABS(r_{ij})} \quad (2)$$

ここで、 σ_i はバンド i の標準偏差であり、 r_{ij} は選ばれた3バンドの各バンド間の相関係数の和である。例えば、RGBにバンド2, 3, 4を選んだ場合、バンド2, 3, 4に対するOIFは次のとおり計算される。

$$OIF_{band2,3,4} = \frac{(\sigma_2 + \sigma_3 + \sigma_4)}{|r(2,3)| + |r(2,4)| + |r(3,4)|} \quad (3)$$

3.4 植生指数ほか各種の定量化指数

衛星データのマルチバンドの情報を用いて、これまで対象物の特徴を引き出す多くの指数が提起され利用されている。今回は湿原環境の特徴を有効に引き出す可能性が高いものとして、植生指数、水指数、開放水域指数、土壌指数の4つの指数を用いた。

植生指数 NDVI (Normalized Difference Vegetation Index) は植生の被覆率、バイオマス、植生の違いを表す指数として広く用いられており、次の式から求めることができる^{9)~11)}。

$$NDVI = \frac{NIR - RED}{NIR + RED} \quad (4)$$

水指数 NDWI は (Normalized Difference Water Index) は植物体特に葉内の水分含有量あるいは湿度を表す指数として、次の式から求めることができる^{12) 13)}。

$$NDWI = \frac{NIR - SWIR}{NIR + SWIR} \quad (5)$$

開放水域指数 OWI (Open Water Index) は植生の被覆のない開放水面を表すものとして、次の式から求めることができる。

$$OWI = \frac{GREEN - SWIR}{GREEN + SWIR} \quad (6)$$

土壌指数 NDSI (Normalized Difference Soil Index) は土壌からの反射を定量化する指数として、次の式から求めることができる¹³⁾。

$$NDSI = \frac{SWIR - NIR}{SWIR + NIR} \quad (7)$$

以上の式中で、GREEN、RED、NIR、SWIRはそれぞれ緑域、赤域、近赤外域、中間赤外域の反射率である。なお、SWIRバンドについて、本研究ではバンド4を用いて計算した。

3.5 表面温度

ASTERのTIR (90m×90m) データから作成された地表面温度プロダクトを用いて表面温度を計算し、熱環境に関する評価のための表面温度分布画像を作成した。

4 結果と考察

Table 1 にVNIR及びSWIRの各バンド間の反射率の相関係数を示した。これを見るとSWIRのバンド4~9の相関は非常に高く、各バンドとも湿原の中間赤外反射を同様に表しているといえる。最も相関係数が低かったのはバンド3とバンド2であった。これは、バンド3 (近赤外域) はクロロフィルによる太陽光の反射を示すのに対して、バンド2 (赤域) は吸収を示しているためと考えられる。

Table 2 に前記9バンドに係る反射率の最大値、最小値、中央値及び標準偏差を示した。中央値が最も高いのはバンド3であり、次いでバンド4であった。一方中央値が最も低いのはバンド2であり、これらは植生に対する一般的な分光特性の分布パターンと一致している。

次にTable 1 及び2より、最適指数 (OIF) を計算した結

果、最大となったのはバンド4、3、6の組み合わせであり、OIFは0.1107となった。これをそれぞれRGBに当てはめてカラー合成した結果をFig. 3(a)に示した。

Table 3に主成分分析の固有ベクトル (Eigenvectors (EV)) を示した。これを見ると、EV-1 はバンド全体の状況を表

し、EV-2 は植生の反射 (バンド3) 及び吸収 (バンド2) を示し、EV-3 は中間赤外 (バンド4～9) に特徴づけられる土壌の反射を示していると考えられる。これをもとに、第1～第3主成分 (PC1, 2, 3) をそれぞれRGBに当てはめてカラー合成した結果をFig. 3(b)に示した。なお、第1～

Table 1 VNIR及びSWIRの各バンド間の反射率の相関係数

	ASTER VNIR			ASTER SWIR					
	Band 1	Band 2	Band 3	Band 4	Band 5	Band 6	Band 7	Band 8	Band 9
Green	1.000	0.929	0.930	0.978	0.969	0.964	0.968	0.951	0.964
Red	0.929	1.000	0.743	0.896	0.932	0.934	0.935	0.946	0.937
NIR	0.930	0.743	1.000	0.933	0.880	0.870	0.875	0.836	0.865
Band 4	0.978	0.896	0.933	1.000	0.987	0.985	0.985	0.968	0.977
Band 5	0.969	0.932	0.880	0.987	1.000	0.998	0.998	0.992	0.994
Band 6	0.964	0.934	0.870	0.985	0.998	1.000	0.998	0.994	0.994
Band 7	0.968	0.935	0.875	0.985	0.998	0.998	1.000	0.994	0.995
Band 8	0.951	0.946	0.836	0.968	0.992	0.994	0.994	1.000	0.994
Band 9	0.964	0.937	0.865	0.977	0.994	0.994	0.995	0.994	1.000

Table 2 VNIR及びSWIRの各バンドの反射率に係る統計量

Bands	Band 1	Band 2	Band 3	Band 4	Band 5	Band 6	Band 7	Band 8	Band 9
Min	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Max	0.404	0.462	0.848	0.567	0.613	0.618	0.783	0.769	0.999
Mean	0.050	0.026	0.189	0.112	0.055	0.058	0.054	0.044	0.056
Stdev	0.047	0.031	0.174	0.106	0.055	0.058	0.054	0.046	0.057

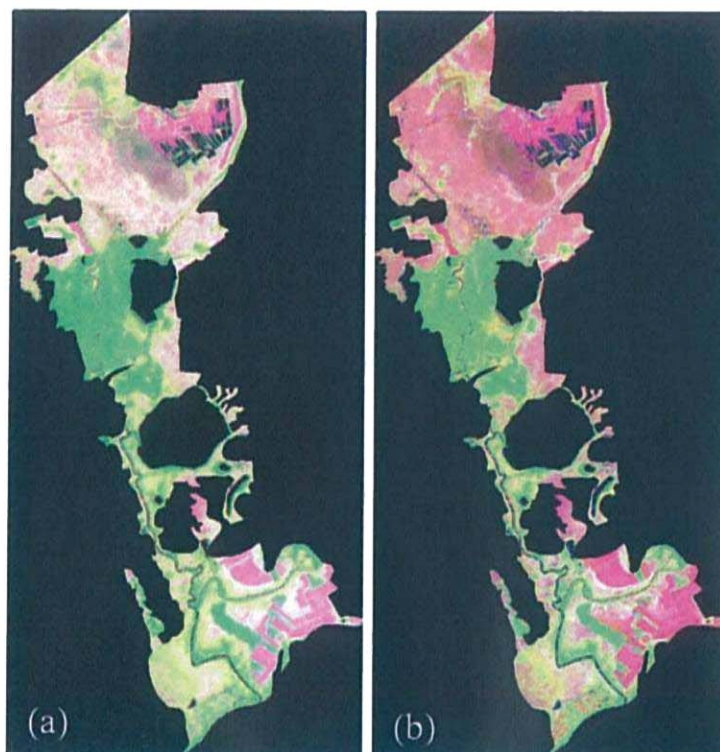


Fig. 3 サロベツ湿原のRGBカラー画像 ■ OIF画像 (RGB=Band4:3:6), ■ PCA画像 (RGB=PC123)

Table 3 VNIR及びSWIRの9バンドを用いた主成分分析の固有ベクトル (EV)

EV	Band 1	Band 2	Band 3	Band 4	Band 5	Band 6	Band 7	Band 8	Band 9
1	0.336	0.321	0.308	0.338	0.340	0.339	0.340	0.337	0.339
2	0.155	-0.500	0.780	0.186	-0.059	-0.096	-0.081	-0.222	-0.117
3	-0.471	-0.675	-0.196	0.135	0.214	0.250	0.218	0.261	0.205
4	-0.118	0.117	-0.164	0.609	0.138	0.297	-0.012	-0.235	-0.642
5	0.627	-0.330	-0.458	0.220	0.092	-0.044	-0.077	-0.375	0.289
6	0.462	-0.254	-0.126	-0.162	-0.111	-0.073	0.184	0.590	-0.529
7	-0.073	0.040	-0.063	0.560	-0.708	-0.189	-0.079	0.286	0.226
8	-0.089	-0.046	-0.030	0.072	-0.008	-0.498	0.815	-0.261	-0.051
9	-0.086	0.039	-0.019	0.261	0.542	-0.659	-0.345	0.275	-0.006

第3主成分の累積寄与率は99.8%となった。

Fig. 3 (a)及び(b)に示したOIF画像とPCA画像を比べると、ほぼ同様の空間分布傾向が見られた。すなわち、紫色となっている北部のミズゴケ湿原及びササ草原、緑色となっている中部の湿地林及びヨシ湿原、そしてその中間的な色となっている南部のヌマガヤ湿原及びヨシ湿原である。これらは、西川ほか²⁾及び宮脇ほか³⁾で作成されているサロベツ湿原の植生図における区分と概ね一致するものであり、地表面の植生を反映しているものと考えられる。植生分布をよりわかりやすく表示するために、一例としてOIF画像を用いた教師付き画像分類結果をFig. 4に示した。

なお、PCA画像の方がOIF画像に比べて色調がより強調されているが、これは、累積寄与率の高いPCA画像で、より多くのバンド情報が反映され、OIF画像に比べて植生や土壌の違いが顕著に表現されているものと解釈される。

Fig. 5にサロベツ湿原におけるNDVI、NDWI、OWI、NDSIを、またFig. 6に表面温度分布を示した。これをもとに、湿原の北部、中部、南部ごとに指数の大小の傾向を判別し、Table 4にまとめた。これを見ると、北部のミズゴケ湿原及びササ草原、中部の湿地林及びヨシ湿原、南部のヌマガヤ湿原及びヨシ湿原の区分が明瞭に示された。すなわち、北部は貧栄養植生で、表流水の影響を受けにくく、植物からの蒸散が低い傾向を反映した可能性が示されたのに対して、中部は富栄養植生で、表流水の影響を受け、植物からの蒸散が高い可能性が読みとれ、また南部は両者の中間的なレベルを示した。

これらはそれぞれに、いわゆる従来の湿原区分における高層湿原、低層湿原及び中間湿原の水文気象特性及び植物社会学的な群落特性をよく反映しているものと推察され、ASTERを通じて広域的にそれらの特性と空間的傾向を定量化する手法を確立する可能性を示唆したものであると言える。

このうち、ササ草原の広がり方が問題視されている北部のミズゴケ群落とササ草原 (Fig. 4 参照) に着目すると、

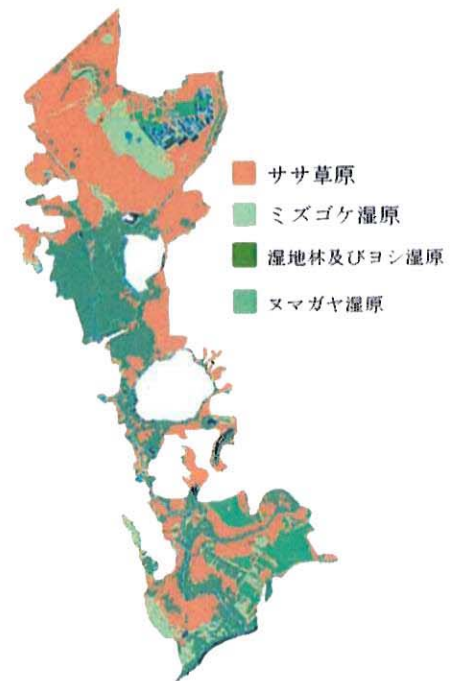


Fig. 4 サロベツ湿原の植生分類 (例)

NDWI及びOWIに関して、全体としてはササ草原に比べてミズゴケ湿原で水分環境 (植物体内及び土壌内) が高い傾向が読みとれた。しかしながら、Fig. 4でミズゴケ湿原と区分された区域の南半分 (泥炭採取跡地南側) に着目すると、NDWI及びOWIともにササ草原と同様のレベルを示しており、今後ササが侵入しやすい環境の存在が示唆された。今後現地調査等でこれを検証することにより、ASTERを用いてササ草原の分布及び動態特性の把握と侵入ポテンシャルの高い地域を広域的に予測する手法につながり得るものと考えられる。

また、NDVI、NDWI、OWI、NDSI及び表面温度の5つの指標を統合的に組み合わせることにより、より有効で実用的な湿原環境評価手法の確立に向けた可能性が示唆され、そのための基礎的知見が得られたものと考えられる。

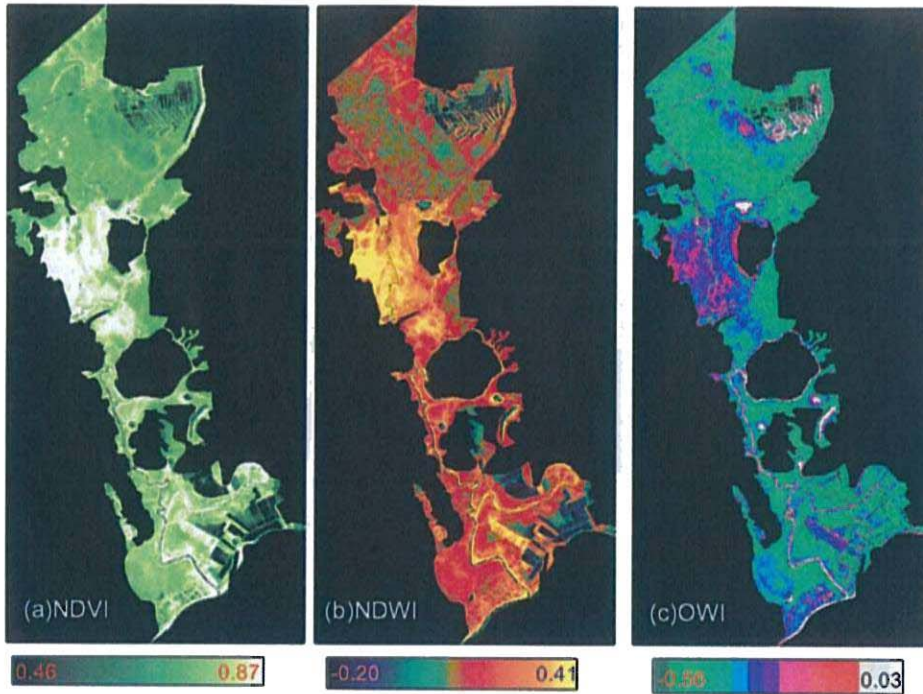


Fig. 5 サロベツ湿原における定量化指数 ■ NDVI 画像, ■ NDWI 画像, ■ OWI 画像.

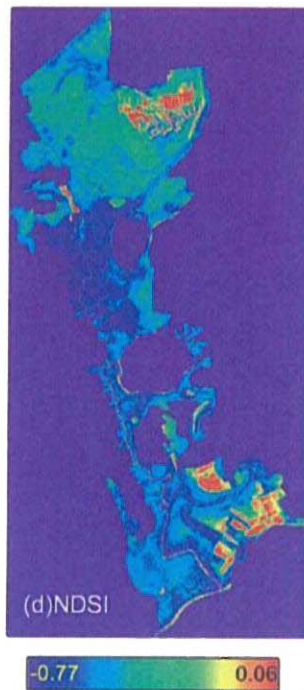


Fig. 5 ■ NDSI 画像

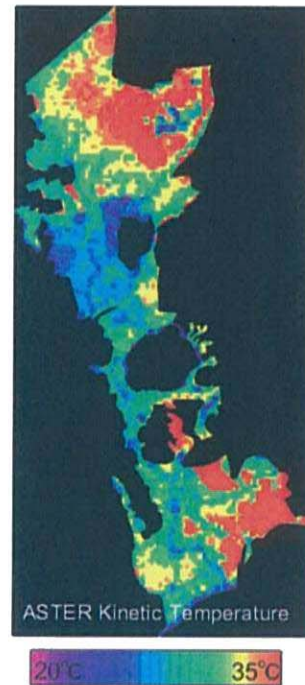


Fig. 6 サロベツ湿原の表面温度分布

Table 4 サロベツ湿原におけるNDVI, NDWI, OWI, NDSI 及び地表面温度の分布特性

	NDVI	NDWI	OWI	NDSI	地表面温度
北部	low	low	low	high	high
中部	high	high	high	low	low
南部	medium	medium	medium	medium	medium

なお、衛星画像はある日のある時刻における状況を反映したものであり、植生や物理環境の時間的変動スケールに留意しながら、今後解析を進めていく必要がある。

5. おわりに

ASTERは、水や植生からの反射特性を反映する可視域～近赤外域 (VNIR)、土壌の反射特性を反映する中間赤外域 (SWIR) 及び表面の熱環境を反映する熱赤外域 (TIR) のあわせて14のスペクトルバンドを持ち、地表面被覆のみならず、水文環境や蒸発散などの微気象環境を含む物理環境についても検知できるものと期待される。本研究の対象とした湿原は生物環境と物理環境がミックスされた生態系であり、これらが環境傾度をもって連続する空間でもある。

今回はサロベツ湿原全域を対象に、広域的な評価を試みたが、これらを裏付けるためには、現地観測データ等による検証が必要であることから、今後これらを含めて検討を行い、ササの侵入に関わる環境条件の解明や、湿原保全のためのより有効な湿原環境モニタリング手法の確立に向けて引き続き研究を進めていきたい。

参考文献

- 1) 羽山早織, 中津川誠: サロベツ湿原の研究経過について, 北海道開発土木研究所月報, 589, pp.32-43, 2002.
- 2) 西川洋子, 宮木雅美, 堀繁久: 25年間におけるサロベツ湿原の変化と保全対策, 北海道環境科学研究センター所報, 23, pp.58-65, 1996.
- 3) 宮脇昭, 奥田重俊, 藤原一絵, 井上香世子: サロベツ原野の植生, 財団法人観光資源保護財団, 1976.
- 4) Buhe Aosier, K. Tsuchiya, M. Kaneko and S. J. Sung: Comparison of image data acquired with AVHRR, MODIS, ETM + and ASTER over Hokka-ido Japan, *Advances in Space Research*, 32(11), pp.2211-2216, 2003.
- 5) Jansen, J. R.: *Introductory Digital Image Processing: A Remote Sensing Perspective*. 2d ed. Engle-wood Cliffs, New Jersey: Prentice-Hall, 1996.
- 6) Faust, N. L.: *Image Enhancement*. Vol.20, Supplement 5 of *Encyclopedia of Computer Sciences and Technology*. Ed. A. Kent and J. G. Williams. New York: Marcel Dekker, Inc, 1989.
- 7) Buhe Aosier, K. Tsuchiya and M. Kaneko: Oases and Forest in Xinjiang, China Retrieved From ASTER Data, *Advances in Space Research*. (accepted; 2004)
- 8) Chavez G. L.: Statistical method for selecting LANDSAT MSS ratios, *Journal of Applied Photographic Engineering*, 8(1), pp.23-30, 1982.
- 9) Huete, A. R.: A Soil-Adjusted Vegetation Index (SAVI), *Remote Sensing of Environment*. 25, pp.295-309, 1988.
- 10) Tsuchiya, K. and Y. Suga: Development of a method for assessing the variation of desert and development of data base, *Studies for Production of Fundamental Datasets for Earth Science and Technology Res.*, pp.82-97, NASDA, Japan, 1998.
- 11) Tsuchiya, K.: Vegetation indices derived from re-motely sensed data from satellites, *J. Arid Land Studies*, 10(2), pp.137-145, 2000.
- 12) Gao, X., Huete, A. R., NiW. and Miura, T.: Optical-biophysical relationships of vegetation spectra without background contamination, *Remote Sensing of Environment*. 74(3), pp.609-620, 2000.
- 13) 布和敖斯尔, 金子正美, 高田雅之, 土屋清, 福間博史: 湿原植生分類のためのリモートセンシング手法の研究—北海道釧路湿原の場合—, 北海道環境科学研究センター所報, pp.55-58, 2003.

The basic research on wetlands environmental evaluation using Terra/ASTER satellite data BUHE Aosier, Masayuki TAKADA

Abstract

ASTER (Advanced Spaceborne Thermal Emission and Reflection Radiometer) aboard NASA's satellite Terra is a high resolution multispectral radiometer of 14 bands. In this study, ASTER multi-spectral data are used to analyze the spatial characteristics of the wetland environment (vegetation, hydrology, micrometeorology and so forth) of the Sarobetsu mire, with such techniques as principal component analysis, Optimum Index Factor (OIF), NDVI, NDSI, NDWI and OWI. Furthermore, the distribution and dynamics of the bamboo grass (sasa) invading the wetland vegetation are considered, which has led to acquisition of fundamental knowledge for integrated techniques for wetland environmental evaluation using ASTER.

北海道における積雪成分の分布 (1988、1992、1996、2000 及び 2004年)

環境保全部	野口 泉	酒井 茂克	岩田 理樹	秋山 雅行	大塚 英幸
	有末 二郎	濱原 和広	山口 勝透	姉崎 克典	加藤 拓紀
環境科学部	阿賀 裕英	田中 敏明			
北海道大学	飛澤 拓也	深澤 達矢	橋 治国		

要 約

1988、1992、1996、2000及び2004年に北海道全域における積雪中のイオン成分について調査を行った。その結果からpH（水素イオン）、非海塩由来硫酸、硝酸、アンモニウム及び非海塩由来カルシウムの各イオンについての濃度及び積雪水量分布図を、また2004年の調査については、さらに溶存金属16成分及び海塩由来等のイオン成分についての濃度分布図をKriging法（Spherical model）を用いて作成した。

積雪水量はいずれの年も日本海側で多く、水素及び非海塩由来硫酸イオンも日本海側で濃度が高く（pHは低く）、蓄積量が多かった。また、2000、2004年は硝酸及びアンモニウムイオンも日本海側で濃度が高く、蓄積量が多い傾向が明らかであった。これらの成分は地域の発生源状況、冬期の主風向などから長距離輸送された汚染物質の影響によるものと考えられた。またスパイクタイヤの使用禁止以降のアスファルト粉じん（アルカリダスト）の減少により、pHの分布ではpH 5.0以下の地域が1988年に20%であったのが、1992、1996、2000及び2004年は50-80%となったことが認められた。さらに、非海塩由来硫酸イオン濃度が1988、1992、1996年と減少してきたが、2000、2004年は横ばいまたは微増となった。これは1990年代に進められた軽油中の硫黄分削減効果及びその後の使用量の増加の影響と考えられた。また2004年の積雪成分から新たに解析を行った金属成分では、ストロンチウムが海塩由来の、砒素が化石燃料等の燃焼由来の成分と考えられた。

Key Words: 酸性雪、長距離輸送、Kriging、イオン成分、金属成分

1 はじめに

酸性雨は国境を越える問題、いわゆる地球環境問題の一つに挙げられる。そのため、関東地方などと比べて発生源のそれほど多くない北海道においても酸性雨の実態を把握し、その影響を検討することは重要である。北海道などの積雪寒冷地では、雪が降る期間が長く、その量も多いため、雨のみではなく酸性雪についても検討する必要がある。雪の場合は、落下速度が遅いため、大気中の汚染物質を取り込みやすいこと¹⁾、春先まで積雪として蓄えられ、また、春先の雪解け時期には、濃縮された酸性度の強い雪解け水が短期間に流出することが報告されている²⁾。そのため、北海道と同様に積雪寒冷地である北欧では、雪解け水中の酸性物質の負荷による陸水生態系への影響（アシッドショックと呼ばれる）が見られ、魚類の減少などを引き起こしたことが報告されている³⁾。また、我が国でも、積雪中の酸性物質によって広葉樹とその菌根が影響を受け、森林の枯損が起こる可能性が示唆され、⁴⁾北海道においては、日本海側小湖沼で酸性化の兆候がみられるとの報告がある⁵⁾。

酸性雪の調査研究は、降水調査として多くのデータが蓄積されてはいるが、融雪水として流出する積雪成分は、降雪に含まれる成分のみならず、晴れた日に積雪表面に沈着するガスやエアロゾル成分も含んでいる。そのため、融雪水の生態系に対する影響を検討する上では、まず積雪中に蓄積している成分の空間的及び時間的変動傾向を解析し、その発生源についての情報を得る必要がある。

国内における積雪中の酸性物質の広域分布としては、荒木ら（1987）、石井ら（1992）及び全国環境研協議会北海道東北支部（2000）などが報告しているが⁶⁻⁹⁾、長期にわたる報告は筆者らによる報告のみである⁹⁾。また、金属などの微量物質は食物連鎖を介して濃縮されることが知られており、生態系への影響が懸念される上、金属の自然環境へのインプットは大気からの寄与が大きいことが報告されているが¹⁰⁾、国内では積雪中に蓄積された金属成分の広域分布図についての報告は少ない。

我々は、長期的変動も含めた積雪成分の分布状況を明らかにし、さらにその原因について考察するとともに、積雪中溶存金属成分の広域分布についても検討を行った。

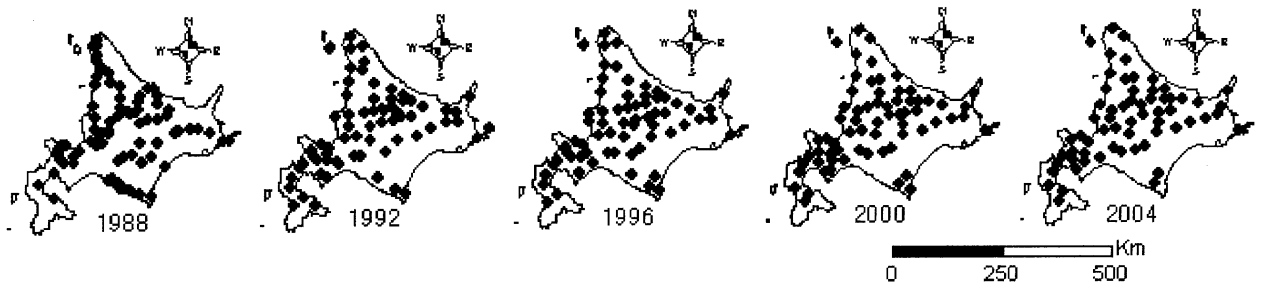


図1 調査地点

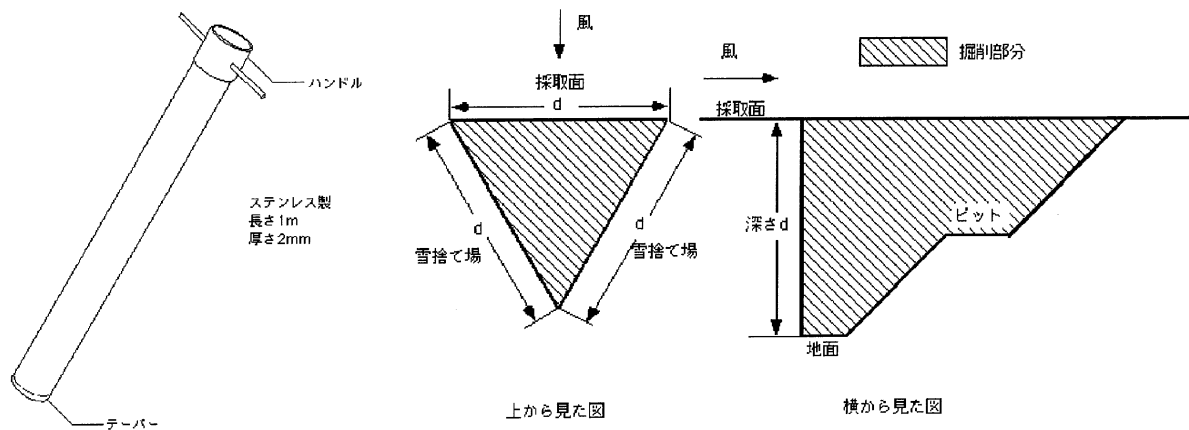


図2 採取装置及び採取方法

2 調査及び解析方法

1988、1992、1996、2000及び2004年の主に2月に積雪成分の分布調査を行った。調査地点を図1に示す。調査地点は、広域分布に偏りをもたらす可能性の高い都市部を除き、田園地域、都市後背地などを選択した。

積雪試料は、ステンレスパイプ（断面積20cm²）を用い（図2参照）、全層を一括採取した^{8,9)}。積雪試料は純水で洗浄したビニールパックに入れクーラーボックスにて持ち帰り、重量測定後、実験室内で融解し、電気伝導率、pHを直ちに測定した。イオン成分測定用試料はメンブランフィルター（ポアサイズ0.2μm）でろ過を行い、一部は金属成分分析用に硝酸を約1%の濃度になるように添加して、分析まで冷蔵庫で保存した。化学分析の項目及び方法は、pH[ガラス電極法]、電気伝導率[電気伝導率計による方法]、硫酸イオン、硝酸イオン、塩化物イオン（以下SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻と表す。）[イオンクロマトグラフ法]、アンモニウムイオン（以下NH₄⁺と表す。）[イオンクロマトグラフ法またはオートアナライザーによる方法]、カルシウムイオン、マグネシウムイオン、ナトリウムイオン、及びカリウムイオン（以下Ca²⁺、Mg²⁺、Na⁺、K⁺と表す。）[イオンクロマトグラフ法または原子吸光法]である。

Na⁺は、Cl⁻、Mg²⁺と非常に相関が高く（いずれも相関係数 $r > 0.99$ ）、またCl⁻/Na⁺及びMg²⁺/Na⁺比の全平均値はそれぞれ1.15、0.21と海塩組成比（1.17、0.24）に近いことから、Na⁺を海塩由来の代表的イオン成分として、非海塩由来成分の算出に用いた。算出方法は、Na⁺を基準に海塩組成比を用いて海塩由来の割合を算出し、残りを非海塩由来成分（以下nss-と表す。）とした。

2004年の試料については、リチウム、アルミニウム、チタン、バナジウム、マンガン、銅、亜鉛、ガリウム、砒素、セレン、ルビジウム、ストロンチウム、カドミウム、バリウム、タリウム及び鉛の金属16成分（以下Li、Al、Ti、V、Mn、Cu、Zn、Ga、As、Se、Rb、Sr、Cd、Ba、Tl及びPbと表す。）をICP/MSにより分析した¹⁰⁾。

積雪水量は、山田ら（1982）の報告に従い¹¹⁾、7日間の移動日平均気温がはじめて0℃を超えた日を融雪開始日として、根雪開始日から融雪開始日までの積算降水量を道内93~153局の気象観測所のデータを用いて算出した。

積雪水量及びH⁺、NO₃⁻、nss-SO₄²⁻、NH₄⁺、nss-Ca²⁺濃度の分布図作成に当たっては、空間解析ソフトGS+により、Kriging法を用いた。また、地理情報システムであるArc Viewを用いて地域ごとの集計や時間的変化の解析を行った。なお、成分蓄積量は、メッシュ毎に各成分濃度と積雪水量

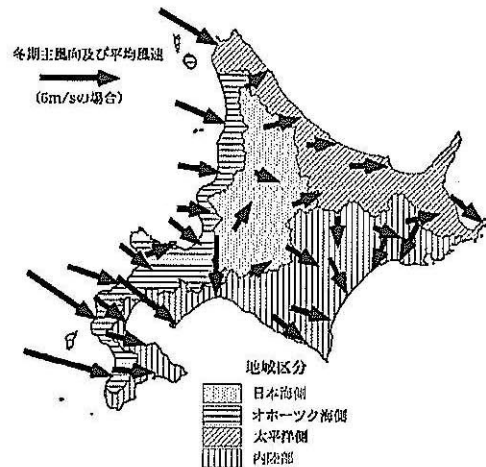


図3 地域区分と冬期の主風向及び平均風速（白黒に変更予定）

表1 成分蓄積量及び濃度の地域別変動傾向

Accumulated amounts : meq/m²/winter, Concentration: meq/ml

Year	H ⁺				nss-Ca ²⁺				nss-SO ₄ ²⁻				NH ₄ ⁺				NO ₃ ⁻			
	IL	PO	OH	JS	IL	PO	OH	JS	IL	PO	OH	JS	IL	PO	OH	JS	IL	PO	OH	JS
1988	3.72	0.39	0.71	4.87	9.10	10.11	8.89	7.89	9.02	5.51	5.04	10.77	3.28	3.03	1.85	5.66	3.91	2.04	1.84	3.56
	(9.70)	(2.29)	(3.55)	(12.36)	(23.75)	(58.64)	(44.43)	(20.04)	(23.54)	(31.96)	(25.21)	(27.35)	(8.55)	(17.61)	(9.27)	(14.38)	(10.20)	(11.85)	(9.22)	(9.04)
1992	4.43	1.31	1.91	5.98	4.80	1.97	2.70	5.92	6.55	2.26	3.43	9.27	3.61	1.11	1.94	4.08	3.47	1.02	1.33	3.28
	(15.63)	(13.86)	(12.50)	(20.44)	(16.94)	(20.89)	(17.74)	(20.24)	(23.12)	(23.93)	(22.50)	(31.67)	(12.74)	(11.75)	(12.75)	(13.93)	(12.24)	(10.84)	(8.73)	(11.21)
1996	3.12	1.47	1.38	4.59	1.48	0.96	0.95	2.05	4.49	2.59	2.70	7.65	2.05	0.96	1.08	2.40	2.32	1.35	1.09	2.87
	(12.94)	(11.63)	(9.24)	(15.47)	(6.14)	(7.61)	(6.34)	(6.91)	(18.61)	(20.48)	(18.09)	(25.77)	(8.49)	(7.58)	(7.23)	(8.09)	(9.61)	(10.66)	(7.28)	(9.67)
2000	6.49	2.99	2.82	7.41	1.51	0.79	0.72	1.85	5.18	2.52	3.22	7.86	3.30	1.65	2.31	4.57	4.15	1.88	1.69	4.03
	(17.63)	(11.93)	(11.18)	(19.43)	(4.10)	(3.16)	(2.87)	(4.85)	(14.07)	(10.06)	(12.77)	(20.61)	(8.96)	(6.58)	(9.15)	(11.98)	(11.27)	(7.50)	(6.70)	(10.56)
2004	5.04	2.31	3.01	5.43	1.44	0.91	1.08	1.78	5.73	3.39	4.40	7.16	3.79	2.04	2.62	4.18	4.82	2.29	2.57	4.13
	(14.42)	(8.98)	(9.97)	(16.19)	(4.10)	(3.53)	(3.59)	(5.31)	(16.37)	(13.17)	(14.57)	(21.36)	(10.84)	(7.93)	(8.69)	(12.46)	(13.78)	(8.88)	(8.51)	(12.32)

IL : Inland, PO: Pacific Ocean, OH: Okhotsk, JS: Japan Sea, (): concentration.

を乗じて算出した。また地域ごとの積雪成分濃度及び蓄積量の変動傾向を把握し、発生源との関係を検討するために図3に示すように日本海側、内陸部、オホーツク海側及び太平洋側の4地域に区分し、それぞれの地域における平均値を算出した。

3 結果及び解析

3.1 イオン成分の長期的変動

各年における積雪水量及び積雪中のH⁺、NO₃⁻、nss-SO₄²⁻、NH₄⁺、nss-Ca²⁺の濃度分布をそれぞれ図4に、成分蓄積量及び濃度の地域別変動傾向を表1に示す。一般に降水成分濃度は、降水量の多い場合は低いといわれているが、本調査では、いずれの年においても積雪水量の多い日本海側の地域で、H⁺、nss-SO₄²⁻濃度が高く、蓄積量が多かった。さらに2000及び2004年にはNO₃⁻及びNH₄⁺も日本海側の地域で濃度が高く、蓄積量が多い傾向がみられた。これらの地域では汚染物質排出量が少ない地域にもかかわらず、成分濃度が高く、蓄積量が多いこと¹²⁾また、図3に示すように冬期の主風向は北西であるため内陸の他地域からの発生源の影響を受けにくいことなどから、長距離輸送

された大気汚染物質の影響が考えられた。このことは、地域は異なるが北村(1991)、藤田(1996)及びNoguchi *et al.* (1996)も同様の結論を導いている¹³⁻¹⁶⁾。

成分濃度及び蓄積量の長期的変動傾向をみると、1992年以降は1988年に比べてH⁺濃度及び蓄積量はいずれも増加している。一方、nss-Ca²⁺濃度及び蓄積量はかなり減少しており、その減少割合は地域、年によって異なるが、日本海側及び内陸部よりオホーツク海側及び太平洋側で大きかった。積雪中のnss-Ca²⁺濃度及び沈着量の減少とH⁺濃度及び沈着量の増加は、スパイクタイヤの使用禁止によって大気中のアスファルト粉じん(アルカリダスト)が減少したことに起因していると考えられる。1990年以前は、北海道ではほぼ100%の割合でスパイクタイヤが使用され、高濃度のアスファルト粉じんが観測されていた。アスファルト舗装には約11%の石灰が添加されており、この石灰は道路表面では大気中のCO₂によりCaCO₃に変わる。道路近傍のアスファルト粉じんは、3%程度の炭酸カルシウムを含んでおり、溶出試験による水溶性成分の90~96%は炭酸カルシウムである。そのため、札幌などでは1988年当時はアスファルト粉じんによる降水中的酸性物質の中和が起こっていたが、スパイクタイヤの使用が規制され始めた1990年以降、

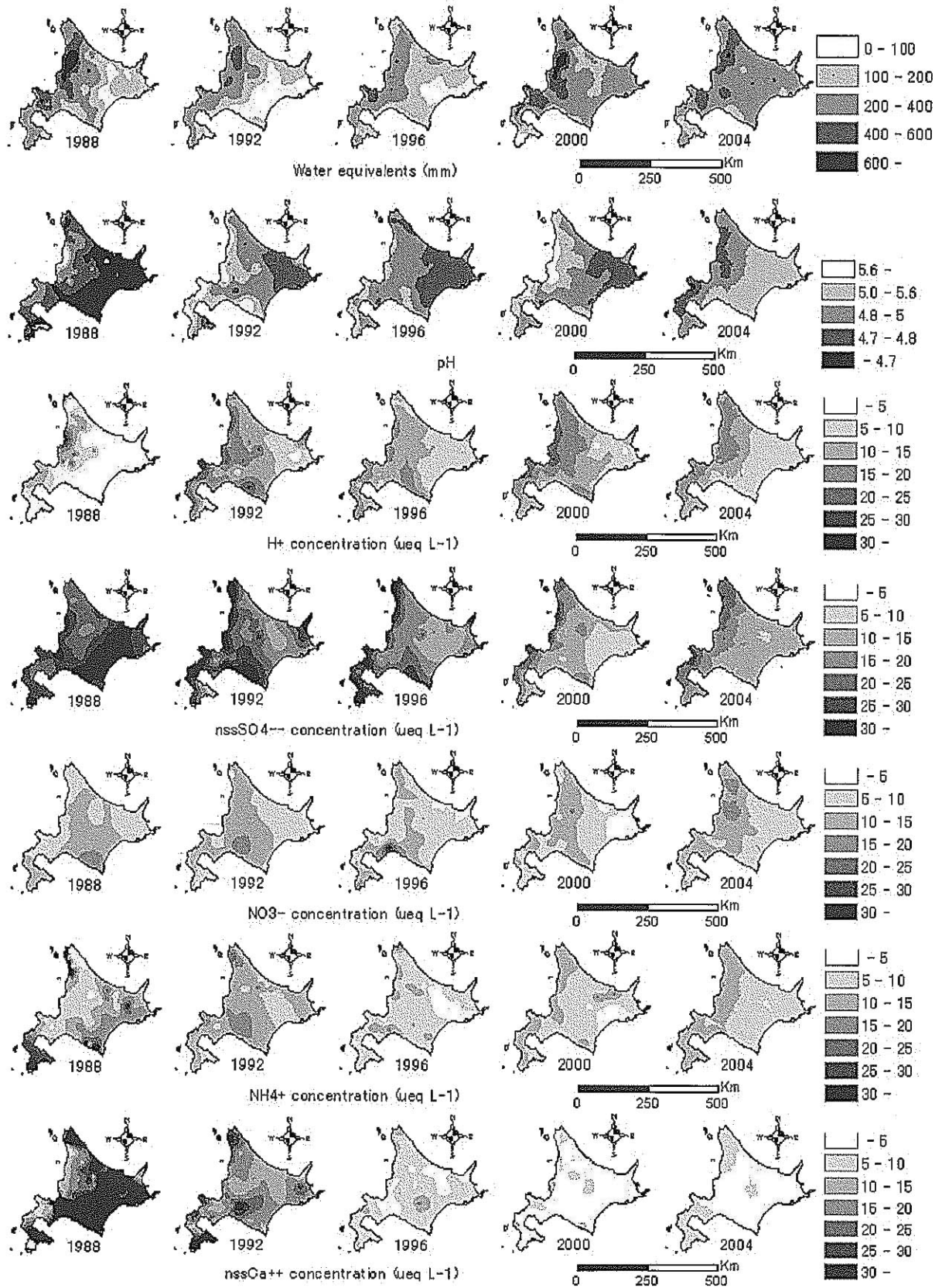


図4 積雪水量、pH及び成分濃度分布の長期変動

表 2-1 各成分濃度間の相関 (西)

	Li	Al	Ti	V	Mn	Cu	Zn	Ga	As	Se	Rb	Sr	Cd	Ba	Tl	Pb	H'	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	nss-Ca ²⁺	Cl ⁻	Na ⁺	Mg ²⁺	K ⁺
Li				##	##			##	##		##	##		##		##		##			##	##	##	##	##
Al	0.26			##		##	##	##						##											
Ti	0.37	0.28							##		##														
V	0.75	0.50	0.41		##		##	##	##		##	##	##	##	##	##		##		##	##	##	##	##	##
Mn	0.78	0.37	0.37	0.80				##	##		##	##	##	##	##	##		##		##	##	##			##
Cu	-0.06	0.72	0.17	0.41	0.13		##							##											
Zn	0.18	0.57	0.11	0.57	0.42	0.78							##	##		##									
Ga	0.72	0.57	0.45	0.80	0.81	0.29	0.47		##		##	##	##	##	##	##		##		##	##	##			
As	0.60	0.03	0.48	0.68	0.67	-0.13	0.20	0.50		##	##	##			##	##	##	##	##	##	##	##	##	##	##
Se	0.15	0.15	0.46	0.17	0.09	0.00	-0.15	0.03	0.45		##							##		##	##				
Rb	0.68	0.37	0.58	0.65	0.64	0.11	0.24	0.56	0.78	0.66				##				##		##	##				
Sr	0.66	-0.12	0.15	0.66	0.59	-0.13	0.25	0.44	0.62	-0.11	0.32			##			##	##	##	##	##	##	##	##	##
Cd	0.30	0.21	0.13	0.60	0.51	0.37	0.73	0.51	0.48	-0.20	0.35	0.54				##	##	##	##	##	##			##	##
Ba	0.55	0.80	0.42	0.73	0.72	0.60	0.65	0.78	0.31	0.26	0.60	0.12	0.30												
Tl	0.44	0.14	0.17	0.50	0.53	-0.08	0.18	0.62	0.40	0.09	0.37	0.42	0.42	0.38											
Pb	0.58	0.36	0.21	0.74	0.69	0.17	0.55	0.80	0.55	-0.07	0.46	0.61	0.71	0.52	0.81			##		##	##	##	##	##	##
H'	0.30	-0.32	0.02	0.30	0.33	-0.32	0.18	0.20	0.64	-0.04	0.30	0.55	0.62	-0.19	0.31	0.46		##	##	##	##	##	##	##	##
nss-SO ₄ ²⁻	0.59	0.00	0.19	0.64	0.68	-0.18	0.32	0.54	0.81	0.03	0.53	0.75	0.62	0.20	0.46	0.70	0.79		##	##	##	##	##	##	##
NO ₃ ⁻	0.08	-0.15	0.13	0.18	0.27	-0.14	0.10	0.09	0.56	0.35	0.46	0.14	0.45	0.00	0.20	0.26	0.62	0.42		##					
NH ₄ ⁺	0.47	0.21	0.29	0.71	0.63	0.03	0.34	0.49	0.86	0.34	0.66	0.55	0.56	0.36	0.42	0.64	0.61	0.82	0.56		##				##
nss-Ca ²⁺	0.62	0.14	0.15	0.57	0.75	-0.08	0.30	0.62	0.59	0.04	0.49	0.63	0.46	0.40	0.38	0.62	0.37	0.74	0.35	0.57					##
Cl ⁻	0.53	-0.22	0.04	0.54	0.41	-0.16	0.18	0.27	0.49	-0.18	0.15	0.97	0.48	-0.05	0.32	0.50	0.54	0.65	0.07	0.45	0.46		##	##	##
Na ⁺	0.53	-0.22	0.04	0.54	0.41	-0.16	0.18	0.27	0.50	-0.17	0.16	0.97	0.47	-0.05	0.32	0.50	0.54	0.65	0.06	0.46	0.46	1.00		##	##
Mg ²⁺	0.54	-0.22	0.05	0.55	0.43	-0.16	0.18	0.28	0.52	-0.16	0.18	0.97	0.49	-0.04	0.34	0.51	0.57	0.68	0.10	0.48	0.48	1.00	1.00		##
K ⁺	0.55	-0.06	0.08	0.65	0.49	-0.01	0.33	0.37	0.55	-0.16	0.24	0.96	0.61	0.09	0.36	0.60	0.56	0.71	0.12	0.55	0.53	0.97	0.97	0.97	

##:99%の検定で有意性が認められた項目 : 相関係数0.70以上

表 2-2 各成分濃度間の相関 (東)

	Li	Al	Ti	V	Mn	Cu	Zn	Ga	As	Se	Rb	Sr	Cd	Ba	Tl	Pb	H'	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	nss-Ca ²⁺	Cl ⁻	Na ⁺	Mg ²⁺	K ⁺	
Li		##		##	##			##	##							##										
Al	0.71				##			##						##		##										
Ti	0.06	0.00																								
V	0.68	0.53	-0.33									##											##	##	##	##
Mn	0.56	0.74	0.04	0.47			##	##	##				##	##	##	##			##		##					
Cu	0.21	0.36	0.32	0.15	0.28																					
Zn	0.33	0.29	0.04	0.40	0.59	0.49			##				##		##		##		##							
Ga	0.62	0.82	0.21	0.25	0.76	0.32	0.31		##					##		##										
As	0.57	0.48	-0.02	0.46	0.70	0.30	0.79	0.61					##		##	##	##		##							
Se	0.24	-0.21	0.36	0.05	0.03	0.17	0.26	-0.13	0.21																	
Rb	0.29	0.30	0.54	-0.07	0.46	0.05	0.12	0.64	0.35	0.05				##												
Sr	0.52	0.08	-0.07	0.74	0.19	-0.02	0.23	-0.11	0.19	0.37	-0.08											##	##	##	##	
Cd	0.27	0.21	0.10	0.29	0.62	0.54	0.89	0.33	0.79	0.34	0.18	0.13			##		##	##	##							
Ba	0.31	0.56	0.31	-0.03	0.59	0.11	0.00	0.80	0.17	-0.27	0.68	-0.20	0.05													
Tl	0.38	0.36	-0.33	0.40	0.63	0.06	0.62	0.46	0.76	-0.14	0.17	0.09	0.65	0.25		##			##							
Pb	0.65	0.78	-0.23	0.53	0.72	0.25	0.51	0.80	0.80	-0.19	0.30	0.00	0.49	0.44	0.78				##							
H'	0.14	-0.15	0.18	0.24	0.23	0.40	0.63	0.08	0.64	0.47	0.18	0.26	0.77	-0.16	0.43	0.23		##	##							
nss-SO ₄ ²⁻	0.24	-0.04	-0.15	0.48	0.37	0.12	0.52	-0.04	0.48	0.47	-0.04	0.45	0.64	-0.23	0.41	0.19	0.68		##							
NO ₃ ⁻	0.18	0.17	0.02	0.23	0.61	0.33	0.77	0.40	0.79	0.19	0.27	0.03	0.88	0.18	0.74	0.54	0.74	0.54		##						
NH ₄ ⁺	0.36	0.17	-0.17	0.50	0.45	-0.12	0.51	0.15	0.50	0.34	0.08	0.38	0.49	0.01	0.47	0.33	0.38	0.61	0.55							
nss-Ca ²⁺	0.18	0.20	-0.03	0.19	0.71	0.10	0.41	0.29	0.38	0.14	0.20	0.21	0.53	0.37	0.49	0.26	0.24	0.52	0.54	0.26						
Cl ⁻	0.44	-0.01	-0.16	0.71	-0.01	-0.05	0.15	-0.24	0.10	0.32	-0.22	0.96	0.01	-0.36	0.00	-0.06	0.22	0.35	-0.11	0.26	0.01		##	##	##	
Na ⁺	0.43	-0.02	-0.17	0.71	-0.04	-0.07	0.14	-0.26	0.08	0.32	-0.23	0.96	-0.01	-0.37	-0.01	-0.08	0.21	0.34	-0.12	0.27	-0.02	1.00		##	##	
Mg ²⁺	0.42	-0.03	-0.14	0.70	-0.01	-0.03	0.15	-0.25	0.09	0.33	-0.19	0.96	0.03	-0.36	-0.03	-0.09	0.25	0.40	-0.11	0.24	0.03	0.99	0.99		##	
K ⁺	0.51	0.05	0.00	0.69	0.13	0.06	0.35	-0.10	0.29	0.44	0.00	0.92	0.21	-0.26	0.06	0.02	0.37	0.41	0.06	0.39	0.06	0.93	0.92	0.92		

##:99%の検定で有意性が認められた項目 : 相関係数0.70以上

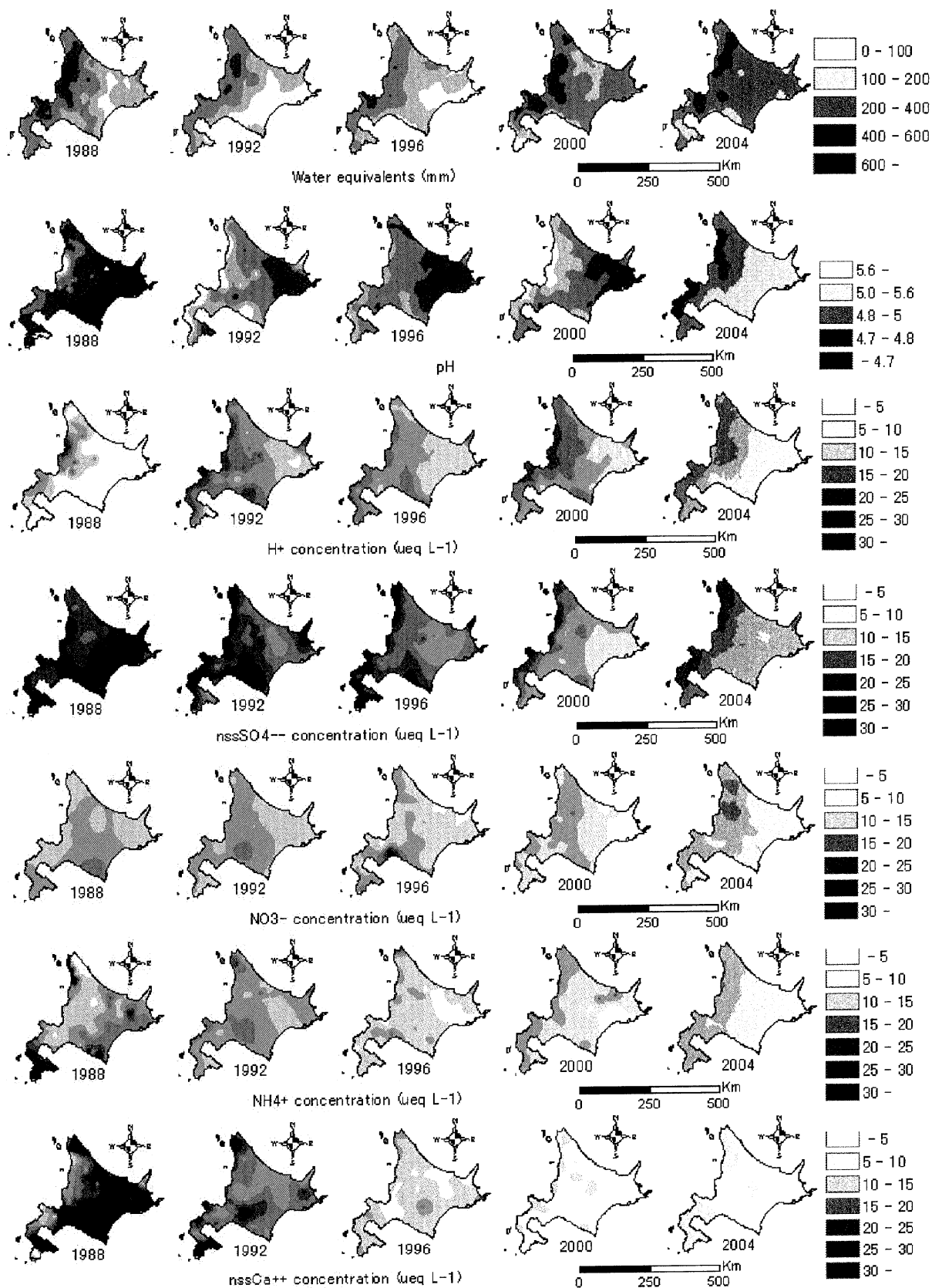


図4 積雪水量、pH及び成分濃度分布の長期変動

特に冬季に降雪のnss-Ca²⁺濃度の減少及びpHの低下が進行していることをNoguchi *et al.* (1995) は報告している¹⁶⁾。またアスファルト粉じんは10 μm以上の粗大粒子の割合が多いが、スパイクタイヤの使用規制後に浮遊粒子状物質濃度が大きく減少したことから分かるように、微小粒径側においてもその寄与は大きかった (Noguchi *et al.*, 1995)。一般的に、微小粒子は大気中での滞留時間が長いので、粉じんの発生が顕著な都市部だけでなく、都市郊外にも輸送されていたと考えられ、その影響によりアスファルト粉じんが発生していた1988年、及びアスファルト粉じんが残留していた1992年には、自動車台数が多い道央部や内陸部の風下側で積雪のnss-Ca²⁺濃度が高い傾向がみられたと考えられた。

また、日本海側及び内陸部に比べて、オホーツク海側及び太平洋側でnss-Ca²⁺濃度及び蓄積量が大きく減少したのは、これらの地域が主風向の風下側の地域に位置しており、近隣の発生源だけでなく、他の道内地域から運ばれた粒子の影響を少なからず受けていたため、道内の発生源の変動による影響(減少)が顕著に現れたものと考えられた。

一方、nss-SO₄²⁻は1988、1992、1996年と減少傾向にあったが、2000及び2004年は横ばいから微増傾向となった。これは1990年代に進められた軽油中のS分削減(2%~0.5%~0.05%)による効果及びその後の使用量の増加の影響と考えられた。このことは、Noguchi *et al.* (2000) も日本全国の降水成分の変動について報告している¹⁷⁾。また1990年代におけるnss-SO₄²⁻の減少が日本海側より他の地域、特に太平洋側で著しかったのは、日本海側では長距離輸送された割合が多く、結果的に道内の発生源の寄与が小さかったのに対し、主風向の風下側の地域では、道内の発生源による影響がより大きく、発生量の減少が顕著に観測されたためと考えられた。

3.2 2004年の金属及びイオン成分

積雪中には前述の主要なイオン成分だけでなく、長距離輸送された汚染物質や近隣の都市の発生源の影響を示唆する金属成分も含まれており、これらの金属成分についての知見を得ることにより、より多くの発生源の影響についての情報が得られると考えられた。本報では、前段として分解や濃縮などの前処理をせずに測定可能であった金属16成分(Li、Al、Ti、V、Mn、Cu、Zn、Ga、As、Se、Rb、Sr、Cd、Ba、Tl及びPb)の分析を行い、その濃度分布図を作成した。なお、積雪試料の採取はステンレスパイプで行っており、鉄、コバルト、ニッケル及びクロムについては測定対象から除外している。

2004年の積雪中の海塩由来を含むイオン成分及び金属成分の濃度分布を図5に示す。また各成分濃度間の相関については、長距離輸送される成分の影響を受けやすい日本海

側に近い西地域(35地点)と道内の影響が比較的大きいと考えられる道東側の東地域(27地点)を、海塩成分の分布を参考に雄武と鶴川を結ぶラインで分けて解析を行った。結果を表2-1及び表2-2にそれぞれ示す。

(1) 海塩由来成分

西・東のいずれの地域においても、海塩由来の代表的イオン成分であるNa⁺と極めて高い相関を示したのは前述のCl⁻、Mg²⁺の他、K⁺及びSr(0.96-0.97)であり、これらの成分間の相関も極めて高かった。またその分布は日本海側で濃度が高いなど、良く似ていた。Sr/Na⁺比の平均は0.15%(西地域:0.11%、東地域0.21%)と海塩成分比(0.075%)から考えるとややSr過多であり、有珠山、樽前山及び十勝岳などの主風向の風下における地点で比が大きい傾向にあった。しかしながら、約70%の地点ではSr/Na⁺比は0.13%以下であり、積雪に覆われた冬期の北海道では溶存性のSrは海塩由来の影響を強く受けていると考えられた。また、Asは海塩由来の寄与も考えられたが、ここでは、Na⁺などの海塩由来成分との相関からその寄与は小さいものと考えられた。

(2) 化石燃料の燃焼由来成分

nss-SO₄²⁻及びNO₃⁻はいずれも化石燃料の燃焼由来成分であり、nss-SO₄²⁻は前述したように長距離輸送された大気汚染物質の寄与が大きいと考えられる成分である。西地域においては、nss-SO₄²⁻と比較的高い相関を示した成分はAs、Sr、Pb、H⁺、NH₄⁺、nss-Ca²⁺及びK⁺(r=0.81、0.75、0.70、0.79、0.82、0.74及び0.71)で、これらの西地域内の分布はよく似ていた。nss-SO₄²⁻は海塩由来成分とも相関が高いが、これは両成分とも冬期の季節風により、運ばれてくるためである。一方、NO₃⁻は0.70以上の高い相関係数を示した項目はなく、Srは海塩の寄与が、nss-Ca²⁺は黄砂などの寄与がそれぞれ大きいと考えられ、As、Pb及びNH₄⁺は化石燃料等の燃焼に由来する1次物質、あるいは(NH₄)₂SO₄などの2次粒子として長距離輸送される割合の大きい成分と考えられた。

東地域においては、nss-SO₄²⁻と0.70以上の高い相関係数を示した項目はなかったが、NO₃⁻と比較的高い相関を示した成分はZn、As、Cd、Tl及びH⁺(r=0.77、0.79、0.88、0.74及び0.74)で、これらの東地域内の分布はよく似ていた。このことから、これらの成分は化石燃料等の燃焼などに由来する道内の発生源の寄与が大きい成分と考えられた。

As及びH⁺は西地域でnss-SO₄²⁻と、東地域でNO₃⁻と相関が高いことからAsは長距離輸送される汚染物質及び道内の発生源由来の汚染物質としても、化石燃料等の燃焼由来の割合が大きい成分と考えられた。また、nss-SO₄²⁻及びNO₃⁻は酸として寄与する場合と塩として取り込まれる場合が考えられるが、H⁺との相関から、西地域では硫酸が、東地域では硝酸がH⁺濃度の増加(積雪の酸性化)により寄与して

いると考えられた。このことは、長距離輸送された汚染物質の影響をより受けている西地域、道内の発生源の影響が大きい東地域の特徴とも合致する。

(3) 土壌由来成分

Alは土壌中に多く含まれ、一般的に土壌由来成分の指標として考えられる。一方、黄砂に多く含まれる $nss-Ca^{2+}$ も土壌成分の指標である。

西地域でAlと比較的高い相関を示した成分はCu及びBa ($r=0.72$ 及び 0.80)で、 $nss-Ca^{2+}$ との相関は低かった。一方、 $nss-Ca^{2+}$ と比較的高い相関を示した成分はMn及び $nss-SO_4^{2-}$ ($r=0.75$ 及び 0.74)で、これらは前述したように長距離輸送される成分と考えられた。

東地域では、Alと比較的高い相関を示した成分はLi、Mn、Ga及びPb ($r=0.71$ 、 0.74 、 0.82 及び 0.78)で、東地域と同様に $nss-Ca^{2+}$ との相関は低かった。一方、 $nss-Ca^{2+}$ と比較的高い相関を示した成分はMn ($r=0.71$)であった。

Alの分布を見ると日本海側北部と道南および室蘭から襟裳岬にかけての海岸で濃度が高いことがわかる。これらの成分の挙動は海塩や化石燃料由来の成分とは異なっており、その原因としては、Alの濃度が高い地域は比較的温暖な地域、あるいは風により積雪が飛散しやすい地域であり、冬期でも地表面が露出している期間が多いことなどが考えられた。しかしながら、同じく土壌起源であるTiとは高い相関が認められず、今回のように溶溶性を中心とした分析では十分でない可能性がある。今後は不溶性を含めた全分析により、さらに検討する必要があると考えられた。

(4) Seの分布

Seは他のいずれの元素の分布とも相関が低く(最大でRbの $r=0.486$)、道北で濃度が高く、低緯度になるほど濃度が低くなるという独特の分布傾向を示した。土壌中にSeを多く含む地域では住民の尿中に高濃度のSeが検出され、放牧家畜に中毒を生ずるとする報告¹⁰⁾もある。しかしながら、Seの分析については、不溶性成分も含めて、さらに検討を要すると考えられた。

(5) その他の成分

西・東のいずれの地域においても、Ti-Pb、Ga-Pb、Ga-Ba、Zn-Cd及びGa-Mnの間には比較的高い相関が見られ、これらの発生源などについては今後の検討課題と考えている。

また、いずれの成分においても今後は不溶性を含めた全分析により、さらに検討する必要があると考えられた。

4 結論

積雪水量はいずれの年も日本海側で多く、水素及び非海塩由来硫酸イオンも日本海側で濃度が高く、蓄積量が多かった。2000、2004年は硝酸及びアンモニウムイオンも日本

海側で濃度が高く、蓄積量が多い傾向が明らかであった。これらの成分は地域の発生源状況、冬期の主風向などから長距離輸送された汚染物質の影響によるものと考えられた。また、スパイクタイヤの使用禁止以降のアスファルト粉じん(アルカリダスト)の減少により、pHの分布ではpH5.0以下の地域が1988年に20%であったのが、1992、1996、2000及び2004年は50-80%となったことが認められた。さらに、 $nss-SO_4^{2-}$ 濃度は1988、1992、1996年と減少してきたが、2000、2004年は横ばいあるいは微増となったこと、この現象が日本海側を除く地域で顕著だったことから軽油中のS分削減の効果及びその後の使用量の増加の影響と考えられた。

また、2004年の金属成分を含めた結果では、Srが海塩由来の、Asが化石燃料等の燃焼由来の成分と考えられた。

参考文献

- 1) Takahashi, T., Endoh, T., Muramoto, K., Nakagawa, C. and Noguchi, I.: Influence of The Growth Mechanism of Snow Particles on Their Chemical Composition, *Atmospheric Environment*, 30, 1683-1692, 1996.
- 2) Johannessen, M. and Henriksen, A.: Chemistry of Snow Meltwater: Changes in Concentration During Melting, *Water Resource Research*, 14, 615-619, 1978.
- 3) Likens, G. E., Wright, R. F., Galloway, J. N. and Butler, T.: Acid Rain, *Sci. Am.*, 241, 4, 39-47, 1979.
- 4) 小川 真: ナラ類の枯死と酸性雪, *環境技術*, 25, 603-611, 1996.
- 5) 阿賀裕英, 坂田康一: 酸緩衝能の低い日本海側小湖沼での酸性化モニタリング(投稿中)
- 6) 荒木邦夫, 加藤拓紀, 田淵修二, 野口 泉, 高橋英明, 坂田康一, 青井孝夫: 酸性雪に関する研究(III)、北海道公害防止研究所報, 15, 73-80, 1988.
- 7) 石井吉之, 秋田谷英次, 野村 睦: 北海道内の広域積雪調査-1992年2月-, *低温科学 物理編*, 51, 資料集, 9-22, 1992.
- 8) 全国環境研協議会北海道・東北支部酸性雨調査研究専門部会: 積雪成分合同調査報告書-5年間のまとめ-, 2002など.
- 9) Noguchi, I., Kato, T., Sakai, S., Iwata, R., Akiyama, M., Otsuka, H., Sakata, S., Aga, H. & Matsumoto, Y.: Snowcover Components in Northern Japan, *Water, Air and Soil Pollution*, 130, 421-426, 2001.
- 10) 飛澤拓也, 深澤達矢, 橋 治国, 大塚英幸, 野口 泉: 北海道における積雪中成分の分布, 第12回衛生工学シンポジウム, 2004.
- 11) 山田知充, 若浜五郎: 北海道の山岳地帯における積雪

- 分布特性, 昭和54-56年度北海道大学特定研究経費研究成果報告書, 29-41, 1982.
- 12) 財団法人 計量計画研究所: 大気汚染物質排出量グリッドデータ整備業務報告書, 2000.
- 13) 北村守次: 北陸地区における酸性雨現象の実態, 公害と対策, 27, 150-153, 1991.
- 14) 藤田慎一: 日本列島における硫黄化合物の収支, 環境科学会誌, 9, 185-199, 1996.
- 15) Noguchi, I., Oshio, T., Matsumoto, M., Morisaki, S., Oohara, M., Tamaki, M., Hiraki, T., Fukuzaki, N. & Kamiyama, K.: Distributions of Precipitation Components in Japan, Proceeding of International Conference on Acid Deposition in East Asia, Taipei, Taiwan, 194-203, 1996.
- 16) Noguchi, I., Kato, T., Akiyama, M., Otsuka, H. & Matsumoto, Y.: The Effect of Alkaline Dust Decline on The Precipitation Chemistry in Northern Japan, Water, Air and Soil Pollution, 85, 2357-2362, 1995
- 17) Noguchi, I., Ohizumi, T., Seto, S., Oishi, O., Tabata, T., Kitamura, M., Mori, A., Iitoyo, S. & Hara, H. (2000) Temporal Trends of Non-sea Salt Sulfate and Nitrate in Precipitation in Japan: 1988-1998, Acid rain 2000, Tsukuba, Japan, 53.
- 18) World Health Organization : Health Hazards of the Human Environment. 翻訳 : 鈴木武夫監訳, 人間環境と健康障害, p.198 日本公衆衛生協会, 1975.

Distribution of Snow cover Components in Hokkaido.

— 1988, 1992, 1996, 2000 and 2004—

**Izumi NOGUCHI, Hideyuki OTSUKA,
Shigekatsu SAKAI, Masayuki AKIYAMA,
Riki IWATA, Jiro ARISUE,
Kazuhiro HAMAHARA,
Katsuyuki YAMAGUCHI,
Katsunori ANEZAKI, Hirohide AGA,
Toshiaki TANAKA**

(Hokkaido Institute of Environmental Sciences)

**Takuya TOBISAWA, Tatsuya FUKAZAWA,
Harukuni TACHIBANA**
(Hokkaido University)

and

Takunori KATO
(Hokkaido Institute of Environmental Sciences)

Abstract

Snowcover surveys were carried out in Hokkaido, northern Japan, in 1988, 1992, 1996, 2000 and 2004. Spatial distribution maps of water equivalents and of the concentrations of hydrogen, non-sea-salt sulfate, nitrate, ammonium and non-sea-salt calcium ion of the snowcover drawn by Kriging method are discussed. In addition, it was also drawn the distribution maps of the concentrations of 16 soluble metal components and other ion components derived from sea salt and so on in 2004.

The distribution maps show that water equivalents and the concentrations of hydrogen and non-sea-salt sulfate in all the sample years were largest in the Japan Sea region, as were the accumulated amounts of hydrogen and non-sea-salt sulfate (pH values were lower.). The concentrations and the accumulated amounts of nitrate and ammonium were largest in the Japan Sea region in 2000 and 2004. It was estimated these were caused by air pollutants transported from a great distance. The ratio of areas below pH 5.0 increased temporally from 1988 (20%) to 1992, 1996, 2000 and 2004 (50-80%). This trend was estimated to be affected by a decline of non-sea-salt calcium concentrations derived from alkaline road dust. In addition, it was recognized that the concentrations of non-sea-salt sulfate was decreased during 1988-1996, and was stable or slightly increased during 1996-2004, and that this variation was remarkable in the areas except Japan Sea region. It was estimated that decreasing trend during 1990s was caused by the effect of reduction of sulfur in light oil and that increasing trend after 1996 was affected by the increasing of light oil consumption. Concerning distribution maps of soluble metal components in 2004, it was recognized that most of strontium was derived from sea-salt and that most of arsenic was derived from fossil fuel combustion.

Key words: acid snow, long-range transport, kriging, ion, metal.

河川に発生したミズワタ状物質の同定結果

石川 靖 高野 敬志* 佐々木 幸一** 北村 浩樹***

要 約

道内の2河川(福島川(福島町)、天塩川水系豊栄川)において白いミズワタ状の物質が多量に発生したことから、その成分を明らかにするための同定を実施した。結果、1件は生物体、もう1件は非生物体であった。

Key Words: ミズワタ、同定、スフェロチルス(Spherotilus)、工場排水

1 はじめに

河川の水質環境は、公共用水域のBOD環境基準達成率から見るとほぼ90%前後で推移している¹⁾。河川はその特性上、人間活動の影響による水質変化を受けやすい。また、都市部には多くの河川の本支流が貫流している場合が多く、河川環境は多くの目目にさらされている。

このように人々の身近にある河川では、水質悪化の具体的な現象として、魚類の斃死がある。その原因として、酸欠、有毒物質による中毒死、感染症・寄生虫等による病死、外傷等があげられ、その対応に関するマニュアルについても作成されている²⁾。また、今日の地域住民の環境意識の高まりから河川の些細な異変にも反応し関係機関への通報、連絡等がある。

2002年に渡島支庁福島町内の福島川と2004年に上川支庁の天塩川水系豊栄川において、河川内に「白いミズワタ」状の物質が発生した。その成分等を明らかにするために同定を行った。

2 現地状況と水質

2.1 福島川(福島町)

2002年9月頃にミズワタが見られ始めた(写真-1、2)。当地点に関する発生前後の水質データはない。同定のために採取した時期(2002年9月13日)には写真-2で示したように若干の油膜が浮遊していた。

2.2 天塩川水系豊栄川

当該河川におけるミズワタの発生は、過去10年以上前から指摘されていたが、2004年は夏期に渇水の影響で、河岸

で目立って見られるようになった(写真-3、4)。8月に2回水質調査を豊栄川の恵名大橋で行った。その結果を表-1aと1bに示す。同定用の試料の採取は9月7日であった。水質調査のうち、pHはハンディタイプ(YOKOGAWA PH-81)のもの、溶存酸素(DO)、BOD、SSは、JIS-K0102に従った。

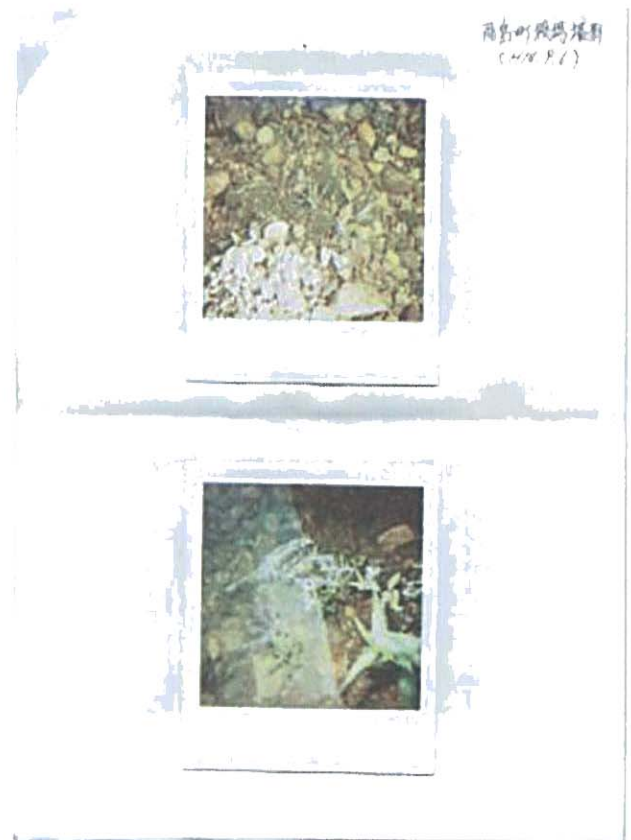


写真-1 河床に浮遊しているミズワタ

*衛生研究所生物科学部

**渡島支庁地域政策部環境生活課

***上川支庁地域政策部環境生活課

表-1 a 現地調査結果

調査日	気温	水温	透視度	色・臭気
8月3日	26.0	24.4	22	褐色・パルプ臭
8月25日	25.5	23.0	>30	無・下水臭

温度単位:°C、透視度単位:cm

表-1 b 水質調査結果

調査日	pH	DO	BOD	SS	大腸菌群数
8月3日	6.5	2.3	38	29	22000
8月25日	6.5	3.0	7.6	7	3500

DO、BOD、SS単位:mg/L、大腸菌群数単位:MPN/100mL

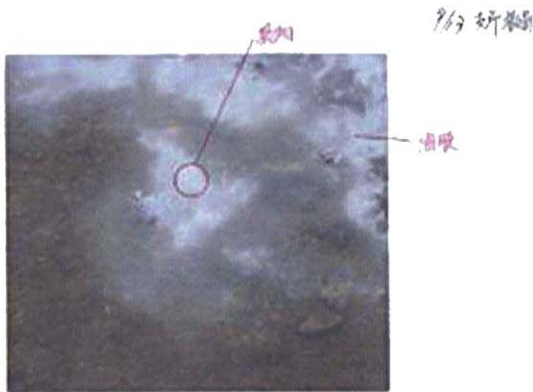


写真-4 河川沿岸にあるミズワタ

3 同定結果

3.1 福島川 (福島町)

同定を行ったところ、生物としての核が確認されず、富栄養化した河川で生物が増殖したものではないと推察した。しかし、ミズワタを乾燥し、焼却してみたところ、蛋白臭(髪の毛を燃やしたにおい)がしたため、生物等の組織であると考えられた。

このミズワタは工場排水由来の可能性が考えられたために、同定依頼をしてきた関係機関に周辺の人為活動状況を検討してもらった。その結果、調査地点より上流部にイカの処理を行っている工場があり、洗浄による汚水がほぼ未処理のまま排水として河川に直接流入していた可能性があることが分かったため、後日関係機関を通じて指導を行った。

3.2 天塩川水系豊栄川

ミズワタとして見られた物質は、写真-5のとおりスフェロチルス(Spherotilus)とそれに付着したゴミが主成分であった。

Harrison³⁾によると、本生物に関与している微生物は極めて限られた菌種と報告していることから、本種は、この1種に限られると思われる。Spherotilusは、細菌類に属し有鞘細菌のグループに分類される。その大きさはほぼ、 $0.8 \times 2.5 \mu\text{m}$ とされるが、 $2,000 \mu\text{m}$ 以上となることもある。これは、パルプ、澱粉、甜菜糖工場等の排水が流入する河川に発生することが知られている⁴⁾。また、低酸素濃度状態時に出現するとされており、大発生するとバルキング状態となる。

過去に、北海道において発生したミズワタに関しては、井上らが多数報告しているが、石狩川水系の優占種は、*Geotrichum candium*であったことを報告している。また、発生環境はパルプ排水が流入する河床に発生⁵⁾したとして



写真-2 河川水中に浮遊しているミズワタ



写真-3 河川水中に浮遊しているミズワタ

いるが、種は今回とは違っている。*G. candidum*の生理学的性状を調べたところ⁶⁾、至適生育温度が20～25℃の範囲で、5℃の低温でもかなりの生育が見られつつも、30℃以上では逆に生育が完全に阻害されたとしている。今回、水温は23～24℃と*G. candidum*の適温であったが、*Sphaerotilus*が優占した理由は不明である。

この河川に排水を排出する施設としては、水質汚濁防止法の規定に基づく特定事業場(排水量の平均50m³/日以上)が2カ所あるが、このミズワタ発生との因果関係は不明である。しかし、過去の報告事例としては、*Sphaerotilus*は污水处理施設の稼働が、不十分になった場合(例えば、汚泥が膨化するとき出現するなど)に出現することが知られており、これまでにパルプ工場等の有機物を多く含む排水が流入する河川においてその出現が報告されている¹⁵⁾。今後の発生時の原因解明には、これらの事業場とともに豊栄川に流入している排水の実態を確認し、検討することが必要と思われる。これらの排水が原因の場合、その制御に有効な事例報告^{15,17)}は多数あり、処理施設が小規模である場合は、対策用の薬剤も多数開発済みである。今後の発生で環境悪化に直接影響する場合は、上述のことを踏まえて、発生抑制に向けた対策に取り組むことが望まれる。



写真-5 スフェロチルス：細長いもの、その他はゴミ

4 ミズワタ発生時の簡易対応マニュアル

河川に発生するミズワタは、他にデンプン工場や製糖工場、パルプ工場などの有機物排水口の下流の水中で「あく」がカルシウム(Ca)やマグネシウム(Mg)によって凝集して何かに付着して、発生する「ヌル」と言われるものもある。これは細菌のZoogloeaが付着物に付くと房状になり、下水溝の中等にも認められる。また、硫酸イオン濃度が高い休廃止鉱山流域でも、写真-6の様な硫黄細菌によるミズワタも見られる。

今回、関係機関からの要請で、ミズワタの成分組成を明らかにすることに主眼を置いたために、その原因解明や対



写真-6 旧常磐松鉱山湧水A(硫酸イオン濃度:370mg/L)

策に資するような水質データ等を得ることは出来なかった。今後の対応として、ミズワタ発生に伴う現地での方法を以下に提案する。

①発生時の現場対応

水温、におい、pH、EC(電気伝導度)の測定を行う。特に生物由来の場合は、温度が発生条件を左右するので、発生地点に加えて上流のデータの取得が望ましい。また、現場写真を多めに取っておくことも必要である。

②検体の採取

良く洗浄したポリビンに、河川水と合わせてミズワタを採取する。採取後、なるべく直ちに顕微鏡で同定を行う。

③水質データ

窒素、リンと言った栄養塩類及びCODに加えて、硫酸イオンについても分析を行うことが望ましい。

④同定の対応と現地状況の検討

同定は核の有無が、生物非生物の目安となる。生物の場合は、なるべく専門家の意見を求める。

非生物の場合は、臭いにより検討が可能であり、乾燥後焼くと分かりやすい。無臭の場合は糖、蛋白臭は産業、生活系排水由来、硫黄臭は鉱山廃水等が目安となる。

また、排水等による非生物の可能性が示唆される場合は、ミズワタ発生時と工場の稼働時期を検討すること。蛋白系の場合は、水産、食品加工場等の排水由来が考えられるが、これらは、春期、秋期に活発化する傾向がある。糖質系の場合は、でんぷん等の工場排水由来が考えられるが、これは秋期に活発化する。本対応方法を参考に、ミズワタ発生源の検討を行い、可能であれば専門家の意見を得ることが望ましい。

謝辞

豊栄川の水質分析については、上川保健福祉事務所保健福祉部試験検査課の方々にご協力を得ましたことを感謝申し上げます。

引用文献

- 1) 北海道環境白書'01 (2001) 北海道, 90-103.
- 2) 魚へい死事故対応マニュアル (2002) 山口県環境保健研究センター水質部編 (CD-ROM版)
- 3) M.E.Harrison, H.Heukelekian (1958) Sewage and Ind. Wastes, 30, 1278.
- 4) Amber, H. R and Cormack, J. F (1960) Pulp and Paper Magazine of Canada, Technioal Section.
- 5) J. J. Mckeown (1963) Industrial Water and Wastes.
- 6) 井上勝弘, 千葉善昭, 中村俊男(1964)河川に発生した“みずわた”に関する研究, 道立衛生研究所報, 14, 122-126.
- 7) 井上勝弘, 千葉善昭, 中村俊男 (1968) 河川に発生した“みずわた”に関する研究 (その7), 水質汚濁に関する研究集報, 第3集, 北海道企画部公害課, 109-114.

Identification of the riparian water cotton substances.

**Yasushi ISHIKAWA, Keishi TAKANO
kohichi SASAKI and Hiroki KITAMURA**

Abstract

The water cotton substances were observed quite frequently in many rivers during summer to autumn in Hokkaido. In the case of Horai River, these substances were identified as Spherotilus, a kind of microbe, in 2002 and in the case of the brook lies in Fukushima town assumed as inorganic materials in 2004.

篠津川の水質環境

石川 靖 今泉 晴夫* 佐古 委子** 菅原 薫***

要 約

公共用水域のA類型に指定されている篠津川において近年、BODが環境基準未達成となっている。この原因を検討するために2003年に詳細な調査を行った。その結果、調査中は超過しなかったために原因を明らかにすることが出来なかった。また、過去のデータを解析してBODに影響を与える要因の検討も行ったが、その原因となる要素を見いだせず、超過原因は環境変化による要因とは考えにくかった。

Key Words: 篠津川、BOD、栄養塩類、稲作地帯

1 はじめに

ここ数年、公共用水域のAA又はA類型に指定されている上流域や比較的流域面積の小さい河川においてBODが環境基準を超過（正確には75%値の超過で、以下未達成）する傾向が認められる¹⁾。このため、その原因の解明と水質保全対策が求められている。

近年、その傾向が見られる篠津川を対象として、2003年に環境基準点（篠津橋）に加えて補足調査地点を設定し、水質、流量などの詳細な調査を行った。

2 調査地点の概要と方法

2.1 調査地域概況

調査対象河川とした篠津川は、環境基準値が設定されている篠津橋（A）において、1998年から2002年までBODが未達成となっている。流域の北西に篠津運河（流域面積：111.7km²）が流れており、篠津川の右岸が運河流域、左岸が篠津川流域となっている。篠津川流域は67.2km²であり、すべて平地とされ²⁾、新篠津村及び江別市の各区域から形成されている。当該流域における汚濁負荷の概況を表-1に示す。

当流域は稲作地帯であることから、河川から時期により灌漑目的で取水がなされている。新篠津村管内では、土地改良区による13件、江別市管内では土地改良区による9件、個人等1件の水利権設定されている。新篠津村の畜産系の活動についてみると家畜排せつ物管理法の基準が適用され

る農家はなく、人口、畜産系、面源系の汚濁源のほぼ全ての項目で5年前と比較して減少している。一方、江別市で家畜排せつ物管理法の基準が適用される農家は、牛が10戸（3戸が整備済み）、豚と鶏で各1戸ずつあり、いずれも未整備（2003年3月31日現在）であるが、法律の猶予期間終了までに全て整備される予定となっている。同様に汚濁源のほとんどの項目が5年前と比較して減少かほぼ横這いとなっている。両市村とも工業系による特定事業所排水はない。

表-1 概況調査による流域の汚濁源状況

(平成15年3月31日現在)

	汚染源	新篠津村	江別市
生活系	下水道終末処理施設、農業・漁業集落排水処理施設	2,400(1,485)人	当該河川流域に左記施設なし
	し尿浄化槽(500人以下):合併	1,762(1,445)人	88(22)人
	し尿浄化槽(500人以下)	なし	98(101)人
畜産系	牛	0頭	1,176(1,124)頭 (775(738)頭)
	(うち 乳牛)		(401(401)頭)
	(うち 肉牛)		
	豚	0(150)頭	586(748)頭
	馬	13(13)頭	3(8)頭
面源系	鶏	3,350(3,750)羽	10,450(9,300)羽
	水田	4,951(4,964)ha	1,200(1200)ha
	畑(果樹園を含む)	189(199)ha	1,406(1,343)ha
	牧草・草地	38(38)ha	(畑と牧草・草地合算)
	山林・その他	695(713)ha	118(106)ha
	市街地(含公園)	177(174)ha	

括弧内は5年前(1998年3月31日時点)の数値

2.2 調査地点

調査地点は篠津橋より、上流に向かって東雲橋、軌道橋、31線橋、32線橋、35線橋、篠津川橋、南沼川1号橋までの8地点を設定し、支流として篠津川橋下部の右岸から流入する篠津川側溝と軌道橋上部の右岸から流入する軌道橋側溝を合わせて計10地点で調査を行った。流域と調査地点を

*石狩支庁環境生活課環境保全係

**環境生活部環境室環境保全課大気環境グループ
(前石狩支庁環境生活課環境保全係)

***江別保健所生活衛生課試験検査係

図-1に示す。

2.3 調査方法等

下記の項目を測定した。

現地では、水温、気温、pH、電気伝導度（以下EC）、流速、色相、臭気、透視度を調査した後、化学成分用の採水を行った。採水した試料水は、BODとSS用には1Lのポリ瓶、栄養塩関係用に250mLのポリ瓶にそれぞれ充填した。溶存酸素（DO）は現場で固定処理をし、いずれも冷蔵保存して、試験室に持ち帰った後、直ちに分析を行った。

試験室において、BOD、糞便性大腸菌群数（m-FC）、全有機態炭素（TOC）、硝酸態窒素（NO₃-N）、亜硝酸態窒素（NO₂-N）、アンモニア態窒素（NH₄-N）、全窒素（TN）、リン酸態リン（PO₄-P）、全リン（TP）、塩化物イオン（Cl）の項目について分析を行った。

分析方法は、JIS K 0102等の既存の方法によるか、または既報に従った³⁾。

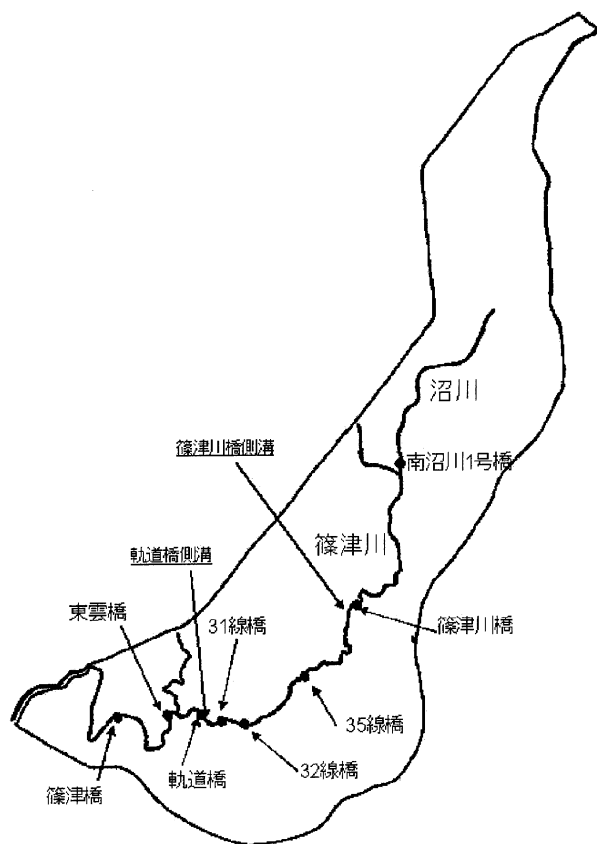


図-1 篠津川における調査地点と流域界

3 調査結果

調査は6月25日、8月27日、10月15日、11月25日の午前中に行った。水田用の利水期間は、5月1日～8月31日まで設定されているが、2003年は、8月20日をもって灌漑揚

水を停止しており⁴⁾、8月以降の調査時においては、河川流量、水質は稲作活動の影響がないと考えられる。

3.1 気象条件

いずれの月も調査当日の降雨は無く、調査日前7日間における降雨量は、6月は4～5日前に1～12mm、8月は2日前に9mm、4日前に1mm、10月は前日に2mm、11月は2～4日前に2～6mmと7日前に5mmの降雨があった。

3.2 水温と流量

水温は、6月から11月において、それぞれ17.9～18.7℃、21.0～23.5℃、9.8～11.0℃、4.1～6.6℃の範囲にあったが、地点の流下に伴い水温が大きく変動することはなかった。側溝の水温は近接地点より1℃程度高い傾向があった。

流量は、6月と10月の調査において全地点で測定を行った。その結果を図-2に示す。

6月の調査時は、南1号沼川橋から35線橋までは1.3m³/sec前後で推移し、35線橋から32線橋にかけて約3.1m³/sec、32線橋から31線橋では約4.9m³/secになり、これより下流側では若干の変動があるものの篠津橋まで、ほぼ一定であった。10月の調査時は、35線橋から低水量ながら篠津橋まで増加傾向を示していた。篠津橋における6月と10月の流量は12倍の差があった。

側溝では、篠津川の近接地点の流量に対して10%以下であった。10月の流量2～6L/secが自然由来で、6月と10月の流量の差が、河川から取水し水田を経由してきた水量と考えられる。このような側溝、排水路が35線橋と31線橋間にあったと見られる。また、この時期の干満時刻は、6月の満潮11時41分、10月の満潮4時25分、干潮12時07分で6月の調査時には、満潮の影響を受けた可能性がある。

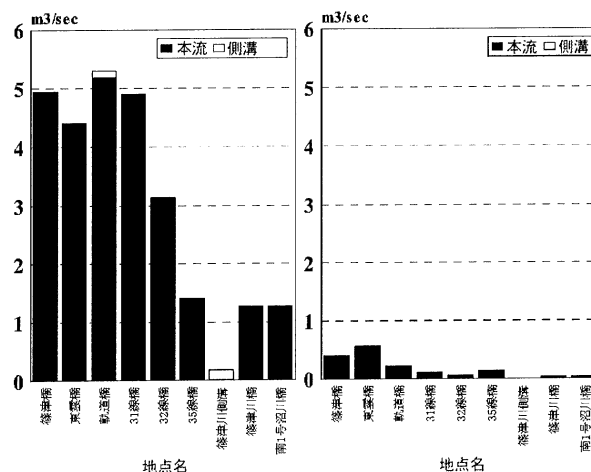


図-2 篠津川における上流から下流までの流量変化 (左図: 6月、右図: 10月)

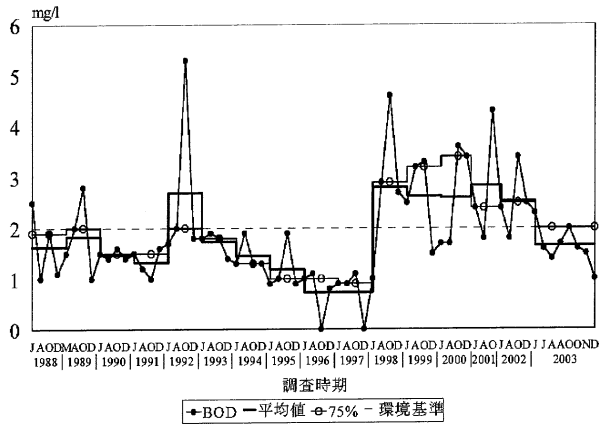


図-3 1988年から2003年までの篠津橋におけるBOD濃度の変動
J: 6月、A: 8月、O: 10月、N: 11月、D: 12月

3.3 BOD

1988年から2003年までの公共用水域の測定結果に今回の調査結果を加え図-3に示す。

本調査の75%値は2.0mg/L、公共用水域監視調査は1.6mg/Lと、双方において環境基準は達成されており、篠津川は良好な環境を維持している。調査した上流から篠津橋までのBODの変動はほとんどなく、概ね基準値である2mg/L以下を示し、2つの側溝も同様に環境基準値以下を示すことが多かった。また、8月以降の調査で、篠津橋を対象に調査の開始と終了の時間差でBODの変動を検討したが、1.7mg/L（2時間後：1.6以下同）mg/L、1.6（1.9）mg/L、1.5（1.1）mg/Lと大きな変化はなく、環境基準値も超過していなかった。

1998年以前では、BODの環境基準が未達成となったことが3回ある。図-3に示すように1989年10月はSS:81mg/

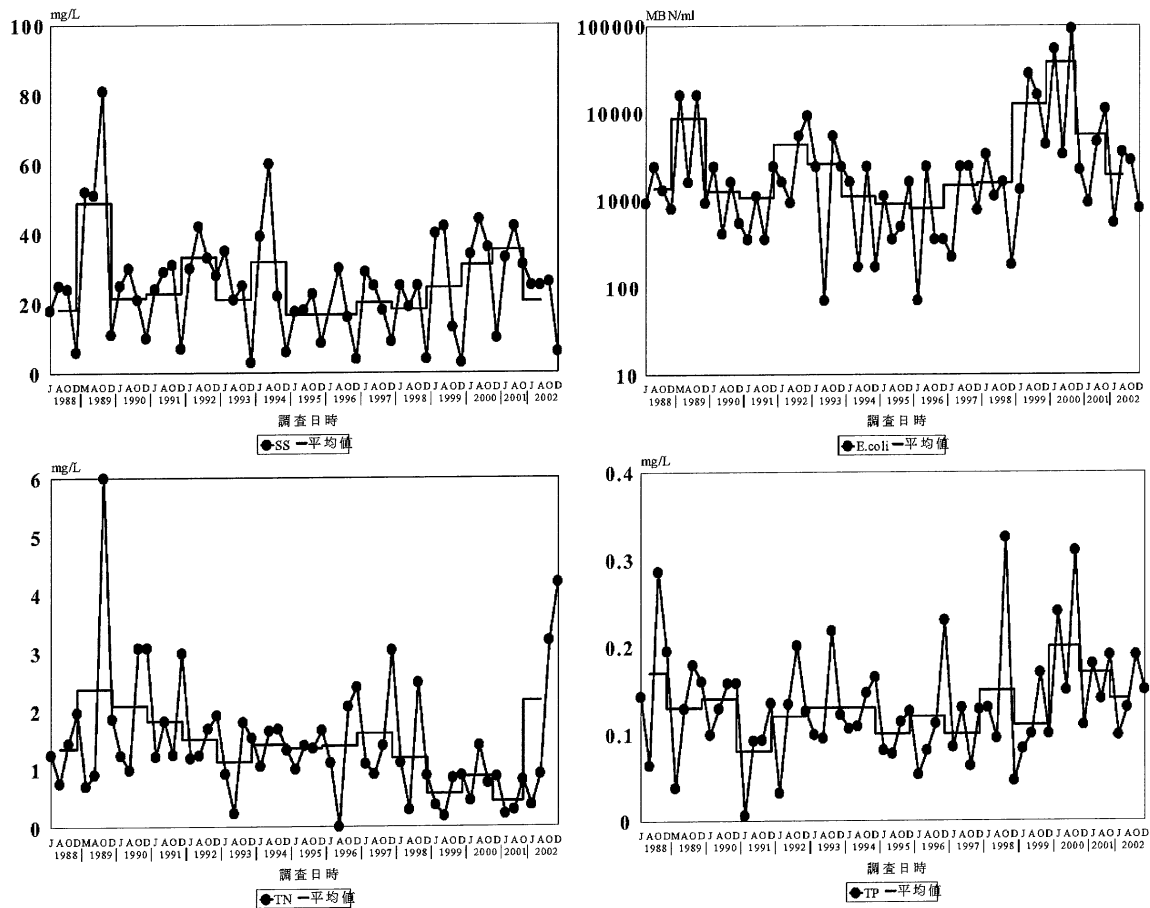


図-4 1988年から2003年までの篠津橋におけるSS、E. coli、TN、TPの濃度変動 J: 6月、A: 8月、O: 10月、D: 12月

表-2 過年のBOD濃度のM、75、Lの出現パターン

調査年	1	2	3	4
1988	M	L	75	
1989	L	75	M	
1990	75	L	M	L
1991	75		L	M
1992	L	75	M	
1993	75	M	75	L
1994	75	M	75	75
1995	75	M	75	75
1996	M	75	L	
1997	75	75	M	L
1998	L	75	M	
1999		75	M	L
2000	L	L	M	75
2001	75	L	M	
2002		L	M	75

L、大腸菌群数 (E.coli) 16000 MPN/100mLと前後より突出して高い値を示し、水質悪化の影響を反映したと考えられるが、他の2回は前後と比較して、これらの値はその様な傾向はなかった。図-3では1992年から1997年までは平均値と75%値は減少していたが、1998年を境に急激に増加し2002年までは、その状態が続いた。

年4回においてBOD変動を検討するために、各年の値を最大値(表中M以下同)、75%値(75)、最低値(L)と分類して出現したパターンを表-2に示す。若干の調査日時のずれはあるものの、1回目は6月、2回目は8月、3回目は10月、4回目は12月に設定された調査と考えると良い。各年においてBODが最大値を示した時期は1997年以前では6、8、10月が各3回、12月が1回なのに対して、1998年から2002年までは、いずれも10月である。1997年以前は、3つの特徴値の出現パターンは不規則であるが、1998年以降のMは、10月のみに出現している。この時のSS、E.coli、TN、TPは前後の値と比較して必ずしも高いものではなく、3.4で述べるようにこの期間の、それぞれの値は1997年以前より全体的に高くなっておらず、過去のデータからBOD増加の原因を検討することは困難である。

3.4 栄養塩類等の傾向

図-4に1988年から2002年までのSS、E.coli、TN、TPの変動を示す。

4項目とも平均で見るとBODのような1998年を境にした増加傾向はない。E.coliを除いた項目の1997年以前の平均値、25.3mg/L(SS)、1.60mg/l(TN)、0.122mg/L(TP)に対して1998年以後は、それぞれ25.4mg/L、1.07mg/L、0.155mg/LとTPがやや高い値を示したほかは、横這いか減少している。E.coliは、1997年以前と比較して、10000 MPN/100mL以上の値が多く見られる。E.coliでは、土壌由来のものも含まれていることから、本調査ではm-FCの測定を行ったが、一部区間で上下する傾向が見られたものの、調査時期による変動の方が大きかった。地域人口や家畜数が

5年前と比較して横這い又は減少していることから、BOD変動との関連性はほとんどないと考えられる。

図-5に今回調査した、栄養塩の傾向を窒素とリンを形態別に示す。上図4つの図は窒素成分の変動を示し、上左6月、上右8月、下左10月、下右11月である。下図4つの図はリン成分の変動で、図配置の時期は窒素と同様である。窒素成分は、8月を除くと上流から下流まで濃度、形態別に大きな変動はない。8月は、南1号沼川橋のNH₄-Nが篠津橋まで流下につれて減少し続け、半分以下の0.28mg/Lとなっていた。他の項目の増減がほとんどないことや灌漑揚水が終了していることから、水田の除去機能⁶⁾ではなく、河床中の水生植物等による除去があったと考えられる。

リン成分は、窒素と異なり流下による変動は大きい。11月に流下に伴いPO₄-Pが減少する傾向がみられた。また、2つの側溝については、各項目、各月で前後の調査地点と比較してほぼ低い濃度を示した。

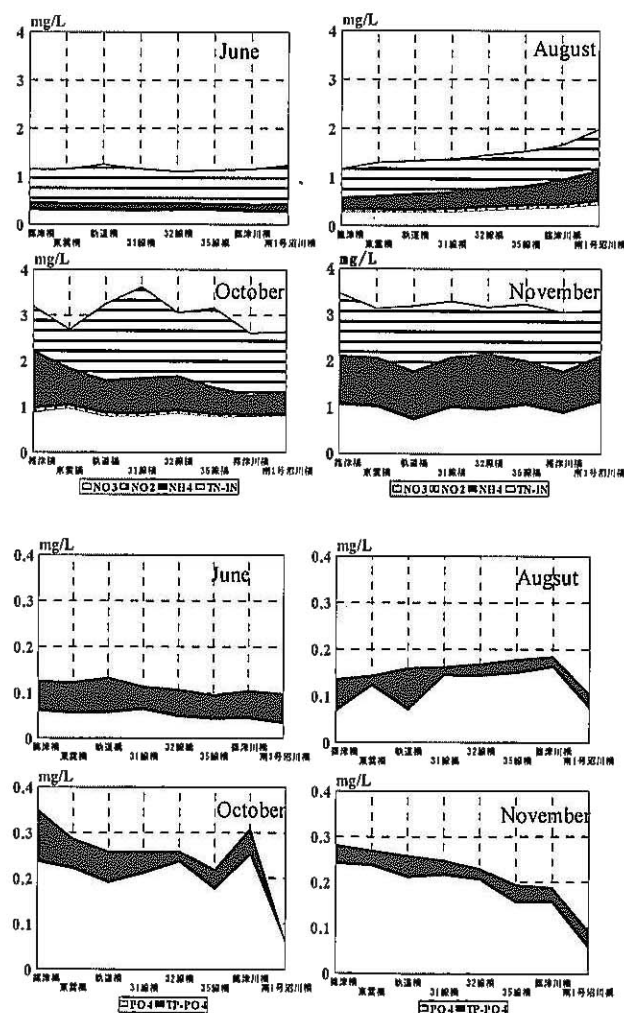


図-5 調査月別の上流点から篠津橋までの窒素成分とリン成分の濃度変動 上段4図:窒素成分、下段4図リン成分

3.5 負荷量変動

流量データが6月と10月の2回のみであるので、この2回のBOD、TN、TPについて、上流から下流までの負荷変動を図-6に示す。

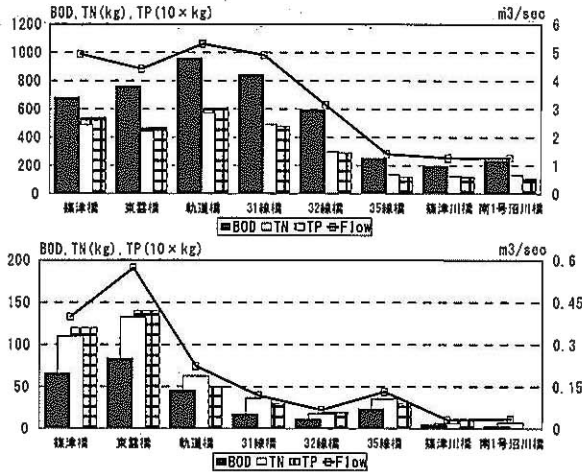


図-6 BOD、TN、TPの負荷変動(上段:6月,下段:10月)

BOD、TN、TPとも下流に向かって増加する傾向を示し、6月は軌道橋が、10月は東雲橋が最大であった。これは流量も同様であった。側溝の負荷は前後の篠津川測定点と比較すると、6月の軌道橋側溝は、3項目で2.0~2.4%、篠津川橋側溝は12~20%、10月はそれぞれ、0.3~0.6%、5.5~19%であり、篠津川橋側溝の方が高いが、基準点における両者の寄与は、6月は2.2~3.3%、2.6~6.0%、10月は0.2~0.3%、0.4~1.4%となり、濃度、流量と合わせてみるとこれらの側溝からの負荷が大きな要因とは言えない。

3.6 BODとTOC

BODは、水中の微生物の呼吸作用による酸素消費量を測定して、有機物質の量を推測する経験的な測定法⁷⁾であるのは知られている。一方で、有機物消費以外の酸素を消費する反応もその値に影響するので、一定の約束や範囲内に限定して、その値の意味を考える必要がある。今回、有機物質の指標としてTOC測定も行ったので、その比較検討を行った。

4回の調査で上下流地点間のTOCに差はなかったが、月別平均濃度は8.7、13.2、18.4、15.5mg/Lとなり、灌漑揚水期の方が低かった。また、いずれの調査でも軌道橋側溝が平均値と同程度以下を示したのに対して篠津川側溝は平均値の1.5倍程度の値であった。

BODが有機物消費(糖分解)のみによると仮定し、炭素量換算して、濃度におけるBOD/TOC比の検討をした。6月の8地点の平均比は8.7%に対して灌漑終了時以後の3回は、それぞれ5.5%、3.7%、3.8%とBODとして消費された炭素量は少ない。図-7に負荷量で検討したものを示す。ほぼ一

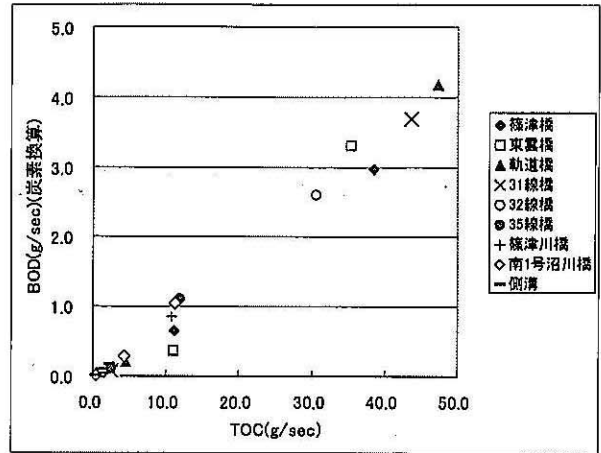


図-7 BODとTOCの負荷比

定の比率に見えるが月別にBOD/TOC比は、6月 8.6%、10月 3.4%と濃度平均値と差がない。

BODの月別平均濃度は、2.0、1.9、1.8、1.6mg/Lと漸減している。8月以降のTOC濃度の増加がBODに反映されていないこと、図-7で散布図がほぼ直線になり、比が一定であることから推定して、表-2の10月に最大値が多い原因としては生物が利用し易い有機物増加とは考え難い。

4. 結果

2003年の調査では、BODの環境基準は達成され未達成の要因を見いだすことは出来なかった。3.3と3.4で明らかになったように、BODと他の項目で相関性がほとんど見られないことから、人為活動に由来した負荷量が増加したとは言いがたい。過去5年間超過した10月は流域の人為活動が少なくなっている期間にあたることから支持される。

2003年は良好な環境にあったが、過去の5年間は環境基準が未達成であった経緯を踏まえると、今後も引き続き監視業務の継続により変動を把握することが望まれる。

環境は気象的な条件や周辺の利用状況等に応じて影響を受けやすいため、単年で原因説明を行うことは、特にAやAA類型のような一般的に清浄と見られる環境では困難を伴うため、このような調査に当たっては十分な知見を得るためにも複数年(最低3年)の調査が必要と考えられる。

謝辞

現地の採水に関しては前環境生活部環境室環境保全課水環境グループ石垣友伯主任、石狩支庁環境生活課環境保全係佐藤一秀主任、木村雅暢主任にご協力頂き感謝申し上げます。現地概況につきましては、新篠津村住民課、江別市市民部環境課より資料の提供を受けましたこと、各機関の調整については環境生活部環境室環境保全課水環境グルー

プ菊谷光洋主査が行いましたことを記して感謝申し上げます。

引用文献

- 1) 北海道環境白書'03(2003)北海道, 90-91.
- 2) 北海道河川一覧 河川番号編 (1995) (社) 北海道河川協会.
- 3) 石川靖, 斉藤修, 三上英敏, 今泉晴夫 (2002) 常呂川・網走川の河川水質汚染の特性 その1 - 全域調査全域調査結果 -, 北海道環境研所報 Vol. 28, 63-79.
- 4) 石狩支庁環境保全係調べ, 新篠津村土地改良区私信
- 5) 田淵俊雄, 久保田健蔵 (1995) 灌水土壤系における窒素除去量に及ぼす硝酸態窒素濃度と植生の影響, 土壤の物理性, 72. 3-8.
- 6) 田淵俊雄, 黒田久雄, 志村もと子 (2001) 休耕田を活用した長期窒素除去試験, 土壤の物理性, 87. 27-36.
- 7) 新訂分析技術者のための明解環境分析技術手法 (1991) 社団法人, 日本環境測定分析協会編, しらかば出版, 317-328.

The water environment of Shinotsu River in 2003

**Yasushi ISHIKAWA, Haruo IMAIZUMI,
Tomoko SAKO and Kaoru SUGAWARA**

Abstract

For the preservation of water environment in the Shinotsu River, the environmental standard (This point is A pattern) has been set at the Shinotsu Bridge which was located in the downstream. Because of Biological Oxygen Demand (BOD) 75% value in recently years was shown in excess of environmental standard, we were thought that the water quality was become worse.

In order to elucidate the cause of this, we were investigated river water in 2003. BOD wasn't over the environmental standard in this period. This result was shown that water quality has been kept clean. The data (Total Nitrogen, Total Phosphorus, E.Coli, BOD) were acquired form 1988 to 2002 was analyzed. The cause of the water quality change was not proven from this data. We were concluded that the reason in over BOD 75% value water is not caused with the environmental change.

畜産活動に伴う汚水流出機構の解明

石川 靖 齊藤 修 木内 康之* 茂原 靖浩* 小林 正幸** 奥山 則男***

要 約

近年、畜産由来のふん尿による環境汚染が問題化してきている。ふん尿は窒素やリンを大量に含んでいて未処理のまま環境に放置されると工場排水や生活排水同様に河川、湖沼の富栄養化現象や地下浸透に伴い地下水中の硝酸性窒素増大をもたらすので2004年からふん尿の処理を適切に行うための法律が施行される。施行以前の環境におけるふん尿の挙動を把握する目的で2002年と2003年に酪農が盛んな網走支庁管内の置戸町と滝上町で調査を行った。その結果、環境対策が未実施な酪農場がある河川や排水路ではふん尿由来と見られるふん便性大腸菌群やアンモニア態窒素が高く検出され、降雨時には多量に排出される傾向もあった。一方で対策済みの畜産農家からもこれらの成分が排出されている地点もあり、整備に加えてその運用についても適切に行われることが必要であることが示唆された。

Key Words: 乳牛、ふん尿、m-F C、ふん便性大腸菌群、栄養塩類、降雨流出

1 はじめに

河川は生活や生産に必須の水資源やレクリエーションの場としての機能を有しているものの、富栄養化等による環境悪化が懸念されている。原因として従来の工場・事業場等や生活活動由来の排水に加えて、畜産由来のふん尿の流入¹⁾による影響が指摘され始めている。

2004年から家畜排せつ物の管理の適正化及び利用の促進に関する法律（以下排せつ物法をいう）の管理基準²⁾が適用され、罰則規定も伴うことから畜産農家は家畜ふん尿処理施設整備を設置しなければならない。

網走支庁管内は全道的に見ても地下水の硝酸性窒素等による汚染地域が多く³⁾、一部河川では寄生性原虫の指標菌が発見されるなど水環境への影響が懸念されている。また、各種の排水が河川を通じて湖沼や海域へ流入することで富栄養化による漁業への影響も問題となっている。

家畜ふん尿による環境汚染を把握する目的でこれまでに、窒素やリンによる栄養塩の流出機構⁴⁾や、栄養塩やアルカリ金属等の成分⁵⁾及び大腸菌群の現存量⁶⁾について報告されているが、ふん尿が流入した後の河川水質の挙動や月別、気象条件を考慮した調査研究例は少ない。

排せつ物法の施行前に酪農が盛んな網走支庁管内の置戸町と滝上町内にある河川、排水路を対象に恒久対策の有無によるふん尿流出機構の差や降雨時における流出等を、栄養塩とふん便性大腸菌を指標とした環境負荷を比較するた

めに調査を行った。その結果をもとに環境に放出される負荷量等を把握するとともに、畜産事業場における各種ふん尿処理対策の効果を検証した。

2 調査地点概要と方法

調査は、2002年に置戸町、2003年に置戸町と滝上町を対象に行った。

2.1 調査地点概要

2000年と2002年に置戸町の畜産農家に対して飼養頭数・家畜ふん尿対策等についてアンケート調査を行った。町内52戸のうち乳用牛飼養農家数は50戸、肉用牛育成と両用飼養が各1戸で、乳用牛総数は3981頭、肉用牛総数は457頭であった。肉用牛は飼養戸数が少ないので解析から除き、両方飼養している1戸については乳用牛（以下乳牛）のみを対象として解析を行った。図-1に2002年におこなった滝上町のアンケート結果と合わせた1戸当たり飼養頭数分布を示す。1戸当たりの飼養頭数は8～340頭までの幅があり、50頭未満、50頭以上100頭未満、100頭以上と戸数分布が3分化している。

排水対策は恒久と緊急の2つに大別し、恒久対策は堆肥舎、堆肥盤、尿溜め、液肥化施設の有無とその規模(m²)、緊急対策は火山灰土盛り又は簡易尿溜めの対策の実施の有無を質問した。火山灰土盛りの緊急対策は、1戸を除外して実施されていた。恒久対策は、過半数の27戸で実施されていた。図-3の戸数分布の3分類で検討すると、恒久対策済みは50頭未満では10戸のうち2戸、100頭未満では31戸のうち18戸、100頭以上が10戸のうち7戸である。未対

*網走支庁地域政策部環境生活課環境保全係

**前網走支庁地域政策部環境生活課環境保全係

***網走支庁農業振興部農務課

策の畜産農家の飼養頭数は、1戸当たり8～31頭と小規模であるが、340頭を飼養する町内最大の畜産農家も含まれていた。恒久対策済み1戸当たりの乳牛数は85.7頭、未対策では69.4頭と乳用牛家畜規模の大きい所で対策が進んでいる傾向がみられた。

滝上町の2002年度畜産概況は、馬74頭（2000年飼養台帳：76頭）、乳牛 3,471頭（同：3,469頭）、肉牛 1,570頭（同：1,517頭）、黒毛和種 447頭（同：420頭）となっている。牧草面積当たりの飼養頭数は2.76頭/haである（データ出典、滝上町HP <http://www2.ohotoku26.or.jp/takinoue/>）。2年間でいずれの家畜頭数にも変動はなかった。家畜は他に七面鳥七面鳥（ターキー）が育成されている。ふん尿が環境へ大きく影響するのは1頭当たりの排泄量が多い乳牛である。滝上町は、置戸町と比較して肉牛数も多いので、両方合わせて傾向の検討を行った。

滝上町には乳牛飼養農家数は38戸、肉牛飼養農家数は11戸であり、うち両飼養農家数は5戸があった。乳牛の1戸当たりの飼養頭数は7頭から208頭の幅があり、平均頭数は91.3頭であり、同様に肉牛では3～550頭、平均頭数は155.2頭であった。7頭と数の少ない畜産農家は哺育・育成に限っており、他は経産と哺育・育成を合わせた数である。図-1では、100頭以上が17戸と半数近くを占めており、置戸町に対して滝上町では飼養規模の拡大が進んでいる傾向がうかがえた。滝上町による統計調査の結果、全畜産農家に堆肥盤と尿溜めの恒久対策が実施済みであり、ほとんどの畜産農家は堆肥化後に草地や畑地に散布しているとのことであるから、排せつ物法施行2年前の対策状況としては滝上町が進んでいた。

2000年度の全道1戸当たり乳牛は82.7頭、肉牛は76.2頭である（2000年世界農林業センサス調査結果の概要 <http://www.pref.hokkaido.jp/skikaku/sk-kctki/index.html>）が、置戸町内の1戸当たりの乳牛頭数、滝上町は両種ともそれを上回っていた。

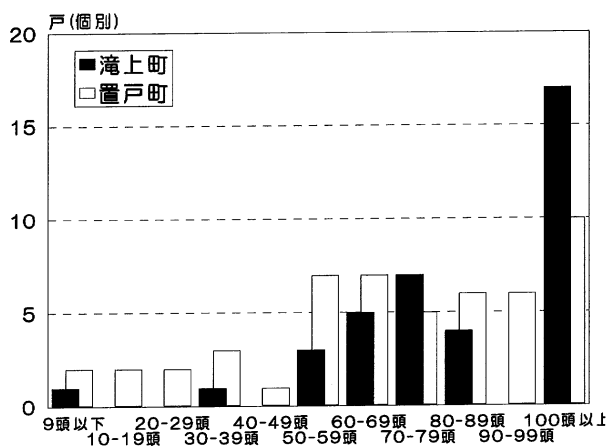


図-1 1戸当たりの乳牛飼養頭数分布

2.2 調査項目

調査項目を表-1に示す。分析方法は、これまでと同様であり⁷⁻⁹⁾、DT-N、DT-PはGF/Fフィルターで濾過した試料水を分析に供した。

本調査の実施にあたっては、次の5つ調査を設定し、状況に応じて調査項目を減じた。また、滝上町は恒久対策が進んでいることから一部の調査を省略した。

- ① 概況調査（実施町：置戸町、滝上町）は、恒久対策済みと未対策畜産事業場のうち、飼養頭数等の規模に応じて7～8戸程度を選定し、畜産場付近の小河川の排水流入前後の各1点で行うことを原則として行った。
- ② 降雨時流出調査（置戸町）は、累計20mm以上が5時間以上降った場合行うことを目安として、①により得られたより得られた結果をもとに数点程度を対象に24～36時間程度継続して自動採水を行う調査とした。

表-1 調査項目

調査項目	略号	調査項目	略号
天候		アンモニア態窒素	NH ₄ -N
水温	W.T	リン酸態リン	PO ₄ -P
流量	Flux	全窒素	T-N
pH	pH	全溶存窒素	DT-N
電気伝導度	EC	全リン	T-P
懸濁物質	SS	全溶存リン	DT-P
化学的酸素要求量	COD	大腸菌群数(BG-LB培地)	BG-LB
全有機態炭素	TOC	大腸菌群数(DES0培地)	DES0
硝酸態窒素	NO ₃ -N	糞性大腸菌群数(m-FC培地)	m-FC
亜硝酸態窒素	NO ₂ -N	塩素	Cl

③ 河川水質調査（置戸町、滝上町）は、本流河川（置戸町：常呂川、滝上町：渚滑川）に対する影響を把握するため①の地点の排水が流入する支流と各本流河川とで調査を行った。

④ 冬期・融雪時調査（置戸町、滝上町）は、放牧等による畜産活動が低下している同時期における水質調査を③に準じた地点で行った。

⑤ 底質調査（置戸町）は、河川底質中のふん尿汚染を調査する目的で本流河川流入直前の支流終末点で行った。

3 結果及び解析

3.1 概況調査

3.1.1 置戸町

2002年6月に調査を行った9戸の状況を表-3に示す。畜産農家の特定を避けるため、地点はアンケート番号を使用した。

表-3 調査地点の飼養乳牛数と対策の状況

地点番号	飼養数	対策*	m ² /頭
107	64	×	—
105	340	×	—
92	28	×	—
110	63	舎、尿	5.43, 1.41
111	119	盤、液	2.11, —
101	65	盤	4.46
103	58	尿	5.16
115	30**	盤	4.00
75	95	盤、尿	9.21, —

* 盤：堆肥盤、舎：堆肥舎、尿：尿溜め、液：液肥化施設、×：未対策
 **他に肉牛7頭

a) 大腸菌

図-2に100mL当たりのm-FC、図-3にDESOに対するm-FCの割合を示す。

m-FCは、未対策畜産農家の3地点が130~113,000個/100mL、対策済み畜産農家の6地点が0~1,230,000個/100mLと広範囲にわたっていた。未対策の3地点ではいずれも検出されたのに対し、堆肥盤設置の2地点では不検出であるのは堆肥盤によるふん尿の流出抑制効果と考えられる。一方で、地点101と地点115を除いて、未対策と対策済み畜産農家における1頭当たりのm-FCや検出数を比較しても大きな差は認められなかった。地点75は堆肥盤、尿溜めの両方を設置してもm-FCが100万個を超えておりふん尿管理や運用面の啓蒙普及も求められる。

図-3に示したように地点107は、m-FCがDESOより高く検出されたが、頭数や飼育環境の特徴はなかった。

m-FCとDESOの関係は、

$$Y=17.74 X 0.874 \quad Y:DESO \quad X:m-FC$$

の式で表現され、相関係数0.77と相関が見られた。この式によるとDESOに対するm-FCの割合は10%程度と表せる。

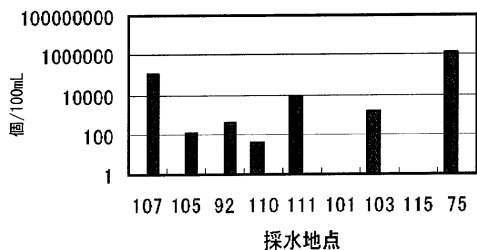


図-2 各地点のm-FC

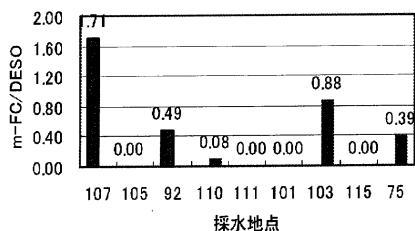


図-3 DESOに対するm-FC割合

b) 栄養塩類

ふん尿に多量に含まれているNH₄-Nの濃度範囲は0~10.2 mg/Lであり、うち3地点(107,111,103)で1 mg/L以上を示した。また、全溶存無機態窒素(DI-N=NO₃-N+NO₂-N+NH₄-N)中のNH₄の比率は、NH₄濃度が1 mg/L以上あった3地点では、72~99%に達していたのに対して、他6地点のうち4点は5%以下と3地点と対照的な比率を示した。また、負荷量で見ると、0~23kg/dayと濃度同様に変動幅が広がった。m-FCとNH₄-N、m-FCとPO₄-Pの日負荷量間には、いずれも相関はなかった。しかし、NH₄-NとPO₄-Pの濃度間の相関係数は0.64であった。

3.1.2 滝上町

5月に調査を行った9地点名(1つの排水は2戸分の合計)の乳牛数を表-5に示す。

表-5 調査地点の飼養乳牛数の状況

地点番号	飼養数	地点番号	乳牛(頭)	地点番号	飼養数
39	115	31*	63*	45	100
35	82	5	170	46*	107
27	78	2**と3	70.50	50	102

*肉牛のみ、**は他に肉牛が22頭

a) 大腸菌

3戸はm-FCが不検出であり、検出された地点でも10~1,330個/100mLと置戸町に比してかなり低かった。

図-4に、両町の牛飼養頭数とm-FCとの関係を示す。滝上町はデータ数が少ないこともあるが傾きは緩い。置戸町は頭数が増えるに従って検出数が高くなっている。これは、置戸町では恒久対策が進んでいない畜産農家もあり、表面流出に加えて地下浸透により環境汚染の可能性も考慮する必要があるのに対して、滝上町では全ての畜産農家で堆肥盤と尿溜めが設置されていることから、流出条件が比較的安定しているためと考えられた。

調査結果から明らかになったことは、現在整備されている堆肥盤規模では、100頭前後の牛が排出するふん尿の一時的な貯留にしかならない可能性を示すものである。100頭以上の乳牛飼養における環境対策は、堆肥盤等の大規模化やふん尿を溜めずに早めに堆肥化センターへ持ち込むことなどを考慮すべきである。

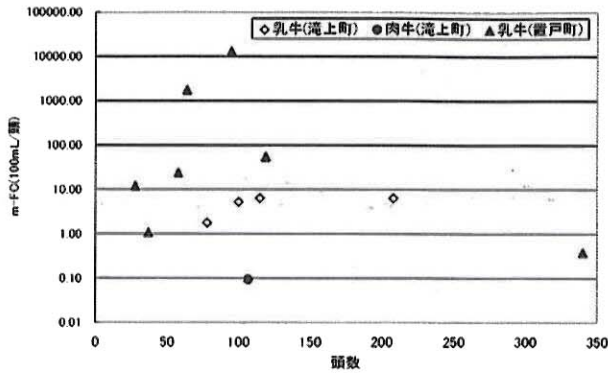


図-4 m-FCと牛の飼養頭数の関係

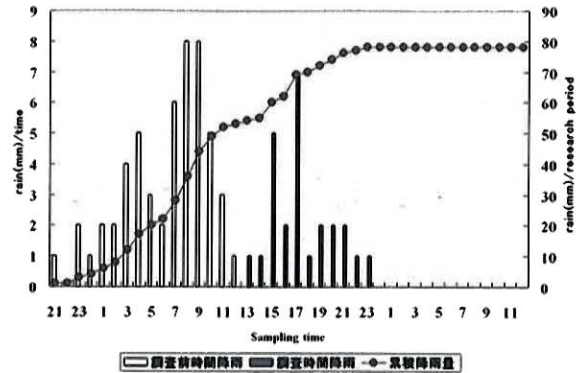


図-6 降雨量の変動

b) 栄養塩類

9地点の NH_4 の変動は、ND~8.5mg/Lであり、うち2地点(5,27)で1mg/L以上を示した。地点5は8.5mg/Lと最も高い濃度を示し、m-FCは1330個/100mLと調査した中では最も高かった。DI-N中の NH_4 の比率は、 NH_4 -Nが1mg/L以上あった2地点では、95~99%に達していたのに対して、他7地点のうち5地点は置戸町同様にほぼ5%以下であった。 NH_4 -N 1mg/L以上の地点の PO_4 -Pは、0.1mg/L以上と自然河川に比して高濃度⁸⁾でありふん尿との相関が考えられた。

3.2 降雨時流出調査

2002年7月に2地点において調査を行った。調査地点の概況を模式図で図-5に示す。地点92は11日15時~翌日の11時まで2時間毎に計11回、地点111は同日14時より翌日10時まで約3時間毎に計7回の採水を行った。流量測定は地点111の調査時に合わせて6回調査した。

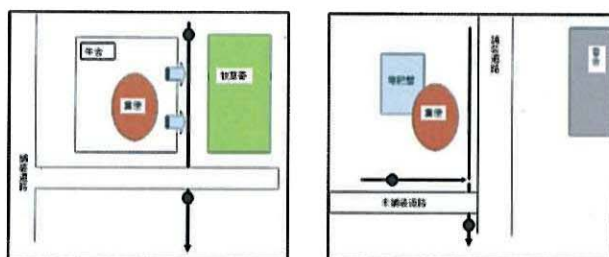


図-5 地点92(左図)と地点111(右図)の調査地点模式図(●は採水点)

a) 降雨状況

図-6に1時間当たりの降水量と積算量を示す。降雨は10日21時から翌日23時までであり、11日は日量が74mmに達したが、調査開始前の13時までに53mm(累積降雨の68%)に達していた。また、2日前までに3日間、一降水量17mmの降雨があった。

b) m-FC

図-7にm-FCの時刻変化を示す。調査時間内での最大検出数と時間は、地点111は19時(2.05×10⁷)、地点92は15時(7.50×10⁴)で、両地点とも降雨がやむ前から低下傾向を示した。負荷量として検出数を見ると最大に至る時間は、地点111が同じであったのに、地点92は17時と違いがあった。一方、調査開始前までに降雨全体の6割以上降ったこと、時間最大降雨が8時~9時であったこと、降雨時初期は流出の影響が大きいこと¹⁰⁾等から考えると最大流出は本調査期間内にあったとは言えない。

調査時間末期のm-FCは概況調査と比較して、各調査時の野積みふん尿の量が一定とは言えないものの、地点111で49倍、地点92で6倍であった。調査後2日後は同様に、地点111は9.2倍、地点92は0.3倍であった。

地点92の上流部では、m-FCは検出されなかった。地点111へ右岸から流入する河川末端点は2回調査で130~180個/100mLで検出されたが、この数は合流後の地点111に対して1%にも達しなかった。この地点は2日後には不検出となり、この支流を通じてのふん尿の流入はほとんどないと考えられた。DESO変動はm-FCと同様であった。

図-8に採水時間毎のm-FC/DESOの変動を示す。地点111は調査期間中、0.06~0.23の範囲があったのに対し、地点92は0.13~0.83と範囲が広く山型であり、降雨終了直後が最も高く、以後は低下した。地点111は降雨後の適当時間経過までDESOとm-FCの割合がほぼ安定してふん尿から流出して来たことを示している。地点111と地点92で比による挙動差があった理由としては、ふん尿の野積み時間によるDESO、m-FCの死滅の差や河川までの流達率が影響したと見られる。2日後のこの比は、地点111は0.09と降雨時と差がないのに対して、地点92は0.05と6月の0.08より低い値を示した。

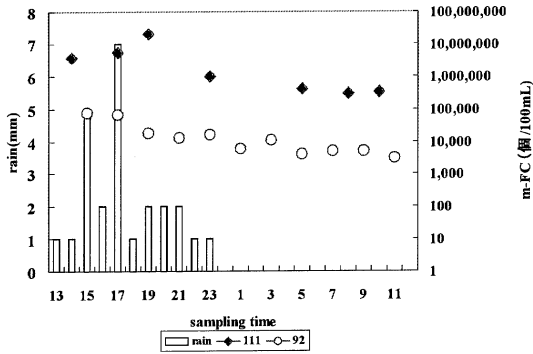


図-7 m-FCの地点別の時間変動(7月10日~11日)

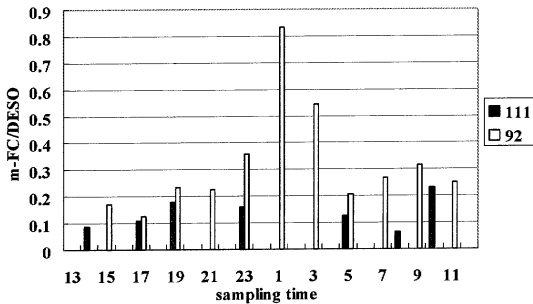


図-8 採水時間毎のm-FC/DES0比の変動

c) 栄養塩

図-9にNH₄-NとPO₄-Pについて濃度変動と負荷変動を地点別に示す。m-FCとは異なり、時間経過とともに濃度が減少し、特にNH₄の変動が大きかった。地点92のアンモニア態窒素は、4時間以後調査終了まで検出限界値未満であった。リン酸態リンは地点111やNH₄-Nの挙動違い、降雨終了前後の時間帯で高くなる傾向が示された。負荷量は降雨中でほぼ一定であったNH₄-NとPO₄-Pは、終了後徐々に低下し、NH₄-Nは10分の1、PO₄-Pは30分の1程度になった。

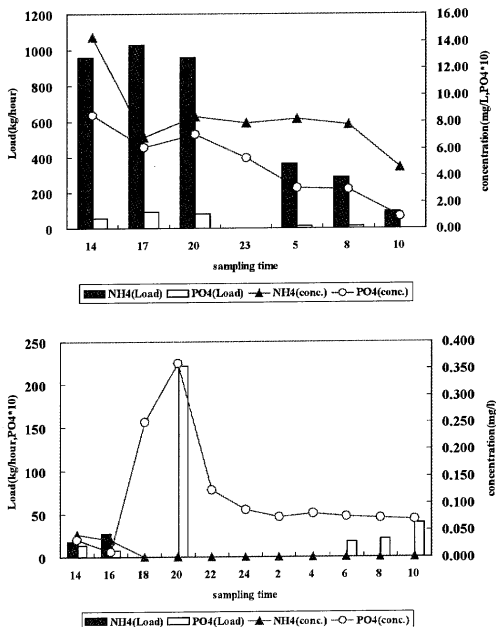


図-9 地点111(上図)と地点92(下図)における時間経過後のNH₄-NとPO₄-Pについての濃度変動と負荷変動

地形的な特徴は、地点92は排水路を挟むようにパドックがあり、乳牛が往来するために河川壁に坂路がある。ふん尿は通常でもこの坂路を経由して流入するが、乳牛が対岸に渡る時に足に付着したものが河川水で洗い出される影響も無視できない。野積みふん尿から排水路まで距離が18.5mあった。一方、地点111は坂の中腹に堆肥盤が設置されており、盤からはみ出したふん尿から常に汚水が流出している環境にある。ふん尿の位置から近接の小河川まで、最も近い距離が10.5m、最も奥まった地点では55.5mであった。このような地形的な特徴と管理の差は流出機構に対して大きな影響を与えるが両地点の排水路までの到達率は明らかに出来ていない。地点111の方がm-FC数や栄養塩の流出量が大きい理由の1つは飼養規模数であり、地点111は地点92の4倍以上の飼養牛数であることからふん尿量の差が大きかったと考えられる。

調査期間の総負荷量を求めた。変動傾向から調査開始(14時)~降雨終了時(23時)までは3回の平均、それ以後から調査終了時(10時)まで一次式に従い減少するとして求めた。その結果、地点111は、NH₄-Nは15kg、PO₄-Pは1.1kgと計算された。地点92は、NH₄-Nは3時間程度流出があったとして6.4kg、PO₄-Pは0.5kgと計算された。概況調査した9地点の1日当たりの合計量に対して、NH₄-Nは90%、PO₄-Pは80%がこの調査期間内に2地点より放出されたと見積もられた。それ以前に多くの降雨があったことや降雨初期のファーストフラッシュが大きいことを考慮すると懸濁態成分も含めてさらに多量の窒素とリンが環境に放出されたと考えられる。

3.3 河川水質調査(含む冬期融雪時の挙動)

3.3.1 m-FCの挙動

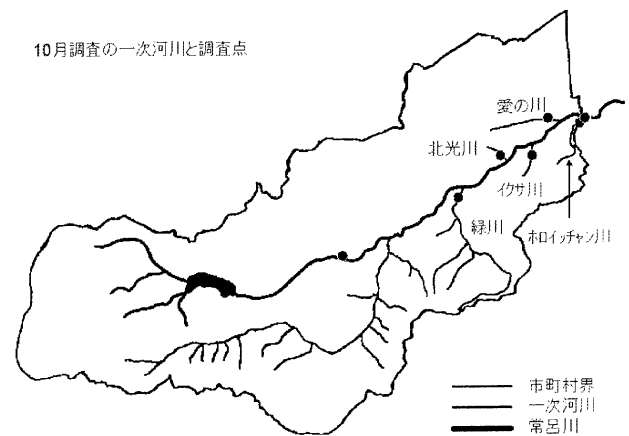


図-10 河川名と採水採泥地点(●)

2002年に調査を行った地点を図-10に示す。

図-11に概況調査に準じた発生地点と支流末流、常呂川の上流・下流地点におけるm-FCを示す。上流地点は農用

地の上流部であり、下流地点は町の境界である。発生源と下流のm-FCの変動は、下流に向かって増加する（北光川、ホロイッチャン川、イクサ川）、下流に向かって減少する（緑川）、ほぼ一定の傾向（愛の川）の3タイプあった。DESOもm-FC同様に、発生地点から下流に向かうに連れて、増加、減少、ほぼ一定の3タイプに分けられたが、その挙動はm-FCと同様ではなかった。

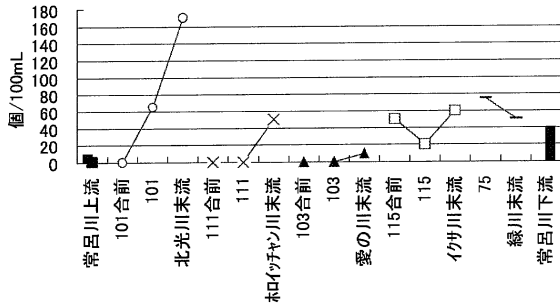


図-11 支流と発生源におけるm-FC比較

負荷量として計算すると地点115は末流に対して6%程度、地点75は末流に対して1%以下の負荷となっていた。また、常呂川上流とホロイッチャン川、愛の川、イクサ川、緑川の合計は、常呂川下流より1桁高い値となり、その収支はバランスがとれていない。このような細菌は、パッチ状に分布している確率が高いので、サンプリング箇所によって誤差が生じ、細菌数が多い底泥の巻き上がりなどでもかなり影響を受けることも知られている。また流下に伴って死滅、10月は野外放牧を行わなくなる時期であることから、m-FCの野積みや放牧地に放出されるふん尿量が夏期にほとんどなかった可能性も考慮すべき点がある。

NH₄-NとPO₄-Pの負荷量の支流河川毎の挙動を検討したが、地点間や項目間の違いが大きく、m-FCの挙動と一致しなかった。

2003年も7月と10月に調査を行った。7月は地点111と101でm-FCが10,000個/100mL以上検出されたが、10月はいずれの地点も7月より低かった。ふん尿の野積み量に差があったためと見られる。

河川中m-FCは7月 0~3,500個/100mL、10月 10~355個/100mLの範囲にあり、2002年10月と比較すると2003年10月は、ほぼ同様の検出数を示した。

野外の放牧、野積みの影響を受けないバックグラウンドを把握する目的で2003年2月に調査を行った。当日は河川表面全体が凍結下にあったので、採水可能な常呂川の勝山橋、中里大橋、林友橋、4号橋、境野頭首工の各点と北光川末流とホロイッチャン川末流で行った。m-FCは勝山橋、境野頭首工、北光川で10~30個/100mL検出された以外は不検出であった。

3月にホロイッチャン川、イクサ川、緑川、北光川、愛の川、山北川排水溝の各末流で採水を行った。これらの支

流のうち採水が出来た排出源は地点92、101、103であった。河川水m-FCは、0~2,200個/100mLの範囲にありホロイッチャン川、イクサ川、緑川は10月より検出数が低く、北光川と愛の川は逆に高く検出された。ここの発生源である地点101と103も10月の調査に比して高かった。両地点も処理施設設置済みであるが、管理を適切に行わないと融雪に伴い、洗い出されて河川水を汚染することが示された。

a) 滝上町

調査は2003年7、9、10月に行い、渚滑川8地点、モセカルシュナイ川1地点、20線川2地点、サクルー川3地点、北線川1地点、オシラネップ川2地点、52線沢4地点の計21地点を設定して行った。図-12に調査地点模式図とm-FC、地点までの流域内の牛飼養頭数を示した。

渚滑川や支流においても、酪農地を経た後に、m-FCが増加しており、ふん尿が流出している傾向がうかがえる。巽橋から滝上橋までに町内全体の乳牛、肉牛総計の7割近くに当たる3700頭超が育成されているが検出されない時期もあることから、流出量は必ずしも多くないと考えられる。蛟龍橋は調査期間中でm-FCは常に高かった。サクルー川には幸橋までに牛数は1200頭を超えるが、八重檜橋と比較してm-FCは増加するような傾向はない。幸橋より下流に位置する北線川でも測定したが、7頭と少ないこともあり不検出であった。

滝上町内の下水道の接続率は8.2%¹⁰⁾である。2月の調査でも、ほぼ町内に位置している蛟龍橋では3,500個/100mLと他地点と突出して高かったことから、この地点は人為的な影響によると推測された。

オシラネップ川は1戸が酪農を営んでおり、調査時により検出数が滝上橋等より高いこともあった。

52線沢沿いは、乳牛371頭と肉牛123頭、大滝橋より下流は乳牛のみが161頭育成されている。m-FCは大雄橋前と比較しても大きな差はない。

町内のターキー数の総計は3500羽程度と把握されている。鳥類がもたらす排泄量は乳牛の200分の1程度¹²⁾であるから、乳牛17.5頭分の排泄量に相当する。これは町内総牛数の0.3%であり排出量はほとんど無視できる。

また、開明橋は2月の調査結果で20個/100mLと検出されていることから、蛟龍橋の検出と相関が考えられる。

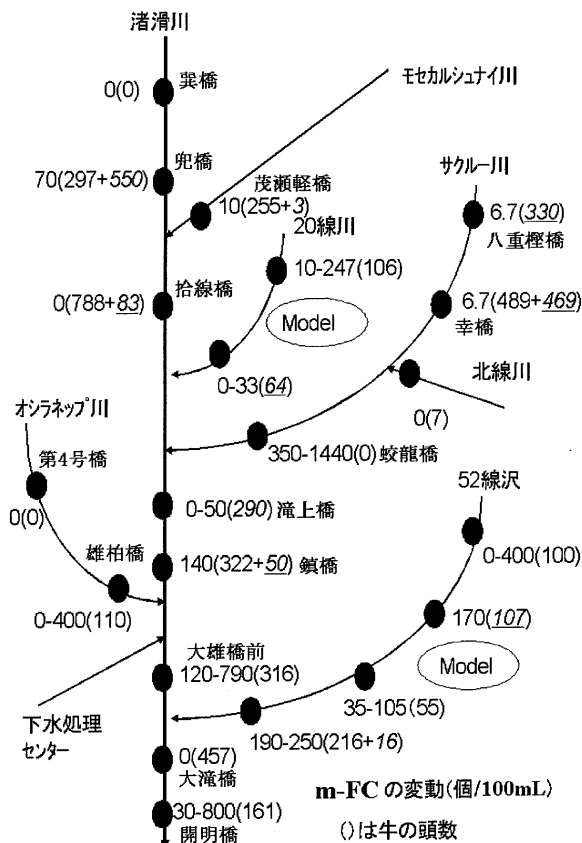


図-12 採水地点間の飼養頭数分布 (斜体字は肉牛、他は乳牛) とm-FC

3.3.2 栄養塩類の挙動

a) 窒素成分

平成13年6月の水質汚濁防止法施行令等の改正により、アンモニア、アンモニア化合物、亜硝酸化合物及び硝酸化合物が有害物質として新たに排水基準に加えられた。その基準は100mg/Lであり、換算式 ($\text{NH}_4\text{-N} \times 0.4 + \text{NO}_2\text{-N} + \text{NO}_3\text{-N}$ (以下: 換算値)) により求められた値が適用され、畜産農業に対しても1500mg/Lの暫定基準が設定されている。

排水基準と環境基準は、その項目は対策に伴う施策上からほぼ同様である。環境基準値は排水基準値の10分の1であることが多いので、今回採取した地点において、上記換算式で窒素系物質濃度を求めて、それぞれ10分の1の値(以下、仮想環境基準値)と比較検討を行った。

滝上町は5月に畜舎近辺で採水を行っている。その換算した値は0.028~3.4mg/Lの範囲にあり、最大でも仮想環境基準値に対して2.3%である。T-Nは0.24~9.1mg/Lの範囲あり、うち4地点で1mg/Lを超えていた。1mg/Lを超えるT-N中のDI-N比率は77~93%であったのに対して、1mg/L未満の場合は、11~77%と1mg/L以上検出された場合より低かった。

置戸町でも2003年の結果をもとに換算すると、7月は0.27~26mg/L、10月は0.37~4.3mg/Lにあり、最大でも仮

想環境基準値の17%であり、滝上町より全体的に高い値を示すことが多かった。T-N中のD-IN比率は、1mg/L以上で50~100%、1mg/L未満は4.2~72%の範囲にあり、滝上町の方が、頭数が多いにもかかわらずD-IN比率が低い傾向が見られた。

b) リン成分

リン(以下P)は、窒素成分と同様にふん尿中に多量に含まれているが、排水、環境共にPについて明確な基準はない。窒素成分同様に、Pについて滝上町、置戸町について同様の時期で検討を行った。

滝上町の PO_4 濃度は0.002~0.350mg/L、T-P濃度は0.016~2.7mg/Lの範囲にあった。T-P中の PO_4 比率は8.7~63%の範囲にあり、T-Pが0.1mg/Lを超えるような濃度であっても、 PO_4 比率が高くはならなかった。これは、一般的に高濃度のT-Pは、懸濁態成分のリン含有量の影響が大きいことによる。

置戸町の PO_4 -P濃度は2回の調査で0.011mg/L~15.5mg/L、T-P濃度は0.022~16mg/Lの範囲にあった。T-P中の PO_4 -P比率は36~100%の範囲あり、11サンプル中1サンプルを除くと他は50%以上に達していた。滝上町と違い高濃度の PO_4 -PとT-Pの間には相関が見られた。

T-NとT-Pの比(以下N/P)を取ることで、その由来を検討することも可能である。ふん尿中のT-N、T-Pは多数報告されている。今回、高木¹⁰⁾による報告データを用いて(乳用牛のふん尿混合:T-N160g/頭・日、T-P43g/頭・日、N/P=3.7)検討を行った。その結果、滝上町は0.5~23の範囲にあり、2地点で3.7を下回る値を示した。N/P比=0.5の地点は、T-Pが1.64mg/Lに対して、T-Nが0.85mg/Lの濃度であったが、T-P中の PO_4 -P濃度は0.064/Lとその比率は低いものであった。N/P比=3.4の地点は、T-Pが2.7mg/Lに対して、T-Nが9.1mg/Lの濃度といずれも全調査地点中で最大値であった。比が3.7に近いことや各濃度が高濃度であることから、この地点は、堆肥盤からふん尿が流出してきていると思われる。

置戸町のN/P比、3.7以下は0.5(T-N:8.8mg/L、T-P:16.4mg/L)を示した1つであった。しかしながら、T-Nは12サンプル中10サンプルで1mg/L以上であり、m-FCの結果を合わせても、ふん尿の流出による影響は滝上町より大きいと考えられる。

3.3.3 頭数からみたふん尿と負荷量

牛由来のふん尿の量やその中のN、Pについては、乳肉別や年齢別など細く分類されて、これまで多数報告されている^{12,13)}。ここでは中央畜産会¹⁴⁾によって報告されている排泄量、T-N、T-Pのデータを用いて算出した。滝上町で年間の牛由来のふん尿の量は、約60000t、T-N580t、T-P110

t、置戸町は同様に、78000t、470t、87t程度と見積もられた。

根釧農試は、試験場内を1戸の酪農場として見立て、窒素の収支から表面流出3%、地下浸透10%が環境に放出されると見積¹⁵⁾もった。不明分15%¹⁵⁾を加えると、最大で総流入の3割弱が環境に負荷を与えることになる。

天北農試では一酪農場内を、採草地を含む放牧地、牛道・飲水場を含む放牧地、牛舎・堆肥盤などの施設の三つに分け、これらを通過する小河川のT-N負荷寄与を検討したところ、それぞれ20%、22%、58%と報告している¹⁶⁾。また、別の場内でも採草地の寄与が10%あったことから、草地から周辺河川水系への面的な環境負荷は無視できないとしている。

本調査の結果として滝上町の下流にある渚滑川開明橋の水量3.3~5.6t/sec、置戸町の下流にあたる常呂川4号橋^{7,8)}の水量、4.5~10t/secが平常値と見込まれる。根釧農試での見積りと本調査から、年間表面流出を4.5%程度として、その半分が本流までに到達すると仮定した場合、開明橋での河川水に対してT-Nは0.076~0.12mg/L、4号橋は同様に0.034~0.063/L程度の濃度上昇の影響を与えることが見積られる。それぞれ人為影響のない地点の水質^{7,8)}と比較すると0.19mg/L、0.22~0.60mg/Lと置戸町の方が流出や流達率が仮定より高い可能性を示している。

3.4 底質調査

水中のm-FCが高く検出されたことから置戸町で2002年10月に底質調査を行った。試料は採泥後、ポリビンに入れ分析するまで冷蔵保存した。分析方法は底質調査方法に準じた¹⁰⁾。また、湿試料中のm-FCとDESOの分析は日野らの方法⁹⁾に準じた。結果を表-6に示す

北光川は河川水中のDESO、m-FCいずれも他と比較して高い。この理由は、流量に対して流域全体における飼養頭数や野積みのふん尿の量、対策の有無等が大きく影響していると考えられる。

表-6 河川底質中の大腸菌群数

乾燥重量当		北光川	ホロイッチャン川	愛の川	イクサ川	緑川
流路延長		3.7	4.6	8.8	6.1	9.0
概観		砂, 小石	砂, 小石	砂, 小石	シルト, 小石	砂石
水分含量(%)		125	5.0	9.0	22.1	7.0
DESO	個/g	877	485	335	230	87
m-FC	個/g	131	4	4	5	3

m-FCがDESOより検出率が低いことについては、石狩川の調査でも指摘されている⁶⁾。しかし、石狩川底質中のm-FCは全く検出されなかったのに対し、本調査では、3~131個/g検出されている。石狩川は、本流に至るまでにふん便性大腸菌群が死滅するため検出されないと考えられて

いるが、本調査河川は流路延長が石狩川と比較して短く、近距離にふん尿の発生源が多数存在するため検出されたと考えられる。

4. まとめ

滝上町と置戸町における本支流や排水路中のm-FCや栄養塩を比較した場合、堆肥盤と尿溜め施設が全て整備されている滝上町が、各測定値とも低い傾向が認められた。一方で、堆肥盤整備済みであってもそれに積み上げたふん尿が盤からはみ出し表面流出している場所も見られたので、整備済みであってもその管理と運用は重要である。また、堆肥盤の規模と飼養頭数によるふん尿流出の差については明らかにすることは出来なかった。

置戸町で降雨流出の調査を行ったところ平常時と比較して多量の大腸菌が検出され、栄養塩類も平常時に比較して多量に流出したものと考えられた。変動は時間降雨量の大小を反映した傾向が見られた。底質中のm-FCは、石狩川の調査結果と同様で、ほとんどないか不検出であり、一部高い値を示したものは、発生源が近いためにふん尿由来の大腸菌が完全に死滅しないためと考えられた。

冬期のm-FCはほとんどの地点で不検出であったものの、一部の発生源や支川で通常時の調査時より高い検出数を示した。これは融雪に伴う影響が大きいと見られた。

堆肥盤設置済みであっても、規模に応じたふん尿管理を行うことが重要であり、同時に降雨時は、雨による流出をさけるために管理を平時より厳重に行う必要があることが裏付けされた。

ふん尿処理地として草地と裸地を比較した場合、草地の方で流出量が少ないと指摘⁹⁾されている。各種の設備の充実よりさらなる流出抑制と堆肥盤周辺を草地で囲み草地による吸収と言った複合的な対策を展開し、ふん尿排出制御により環境への負荷が低下することを期待したい。

引用文献

- 1) 北海道中央試験場環境保全科 (1980) 酪農地帯を集水域とする小河川の実態調査, 昭和62年度北海道中央農業試験場年報, 113-115.
- 2) 家畜排せつ物の管理の適正化及び利用の促進に関する法律 (1999) 農林水産省. 平成11年法律第112号.
- 3) 北海道環境白書'03 (2003) 北海道環境生活部環境室環境政策課編. 96.
- 4) 大村邦男、黒川春男 (1992) 水質環境からみた牛糞尿の許容限界量, 北海道立農試集報, 64, 1-12.
- 5) 尾形保、菅間道博、畠中哲哉、阿江教治、小山田昭三 (1978) 傾斜草地における牛ふん尿成分の地表流出に

ついて、草地誌研報, 12:106-124.

- 6) 日野修次、棗庄輔 (1990) 河川水中のふん便性大腸菌群と総大腸菌群の挙動およびその汚濁指標性, 全国公害研誌, 15. 1. 30-36.
- 7) 石川靖, 齊藤修, 三上英敏, 今泉晴夫 (2001) 常呂川・網走川の河川水質汚染の特性 その1, 北海道環境研報, 28.63-79.
- 8) 石川靖, 齊藤修, 金子正美, 小林正幸, 木内康之 (2002) 常呂川・網走川流域の土地利用差に伴う一次河川水質の変動, 北海道環境研報, 29.46-52.
- 9) 石川靖, 齊藤修, 三上英敏, 今泉晴夫 (2001) 常呂川・網走川の河川水質汚染の特性 その2, 北海道環境研報, 29. 73-84.
- 10) 国松ら, (1989) 河川汚濁のモデル解析, 技報堂出版.
- 11) 網走支庁環境保全係私信 (市町村課調べ, 平成12年度)

参考文献

- 12) 高木兵治 (1985) 農村集落における畜舎排水の処理, 用水と排水, 27. 365-372.
- 13) 原田靖生・山口武則 (1997) 家畜排泄物堆肥の品質の実態と問題点, 環境保全と新しい畜産, (社) 農林水産技術情報協会, 229~246.
- 14) 中央畜産会 (1987) 堆肥化施設設計マニュアル, 1-228. 中央畜産会.
- 15) 家畜ふん尿処理・利用の手引き2004 (2004) 北海道立農業・畜産試験場家畜ふん尿プロジェクト研究チーム編.
- 16) 底質調査方法 (1988) 環境庁水質保全局編.

謝 辞

現地の採水に関しては網走支庁地域政策部環境生活課環境保全係阿部隆主査、中森力主任、小峰健一技師、島村崇志技師の方々にはご多忙中にもかかわらずご協力頂き感謝申し上げます。現地概況につきましては、置戸町町民課環境衛生係菅原嘉仁主事、同農林商工課畜産係菅野博敏係長、滝上町住民生活課生活環境係岩橋辰哉係長、同農政課振興野尻仁勝係長より資料の提供を受けましたここに記して感謝申し上げます。

The mechanism of the sanitary sewage runoff to be an origin with feces and urine of the livestock

Yasushi ISHIKAWA, Yasuyuki KIUCHI,
Yasuhiro MOBARA Masayuki KOBAYASHI and
Norio OKUYAMA

Abstract

The nitrogen and phosphorus compounds and pathogenic microorganism of feces and urine of the livestock runoff from a dairy farm were surveyed in the river and a spill way in Oketo town and Takinoue town, Hokkaido, Japan, from 2002 to 2003. The environmental pollution based those of the livestock have been recently become a problem in Hokkaido. These substances were caused to the eutrophication and water pollution in natural water. The countermeasure which stops the runoff of those to the field must be done with the dairyman. These of the livestock are becomes possible as a fertilizer that it is utilized by made to change in the compost. The law which imposes this action is enforced from October 2004. The dairy industry is popular in the branch government office of Abashiri.

The result of research was shown that there was a difference in comparison with the dairy farm of the countermeasure finished and un-countermeasure for runoff of the livestock feces and urine. The high concentration ammonium and the feces coli form were detected in river waters and drainage pipe which was located near and/or neighborhoods at the dairy farm. In rainy days, these substances were largely runoff to compare with the fair weather. In order to suppress these materials runoff from dairy farm, we were concluded to be necessary to the countermeasure for runoff control of the livestock feces and urine was certainly done, and the dairyman severely executes the manual of runoff control.

酸緩衝能の低い日本海側小沼湖での酸性化モニタリング

阿賀 裕英

要 約

日本海側の多雪地帯に位置し、酸緩衝能の低いコックリ湖と当丸沼で酸性化モニタリング調査を行ってきた。その結果、当丸沼では酸性化の兆候は認められないが、コックリ湖では酸性化の兆候が認められつつある。コックリ湖は当丸沼に比べるとアルカリ度がかなり低く、より酸性化の懸念される湖沼でもあることから、現在は調査対象をコックリ湖に限定してモニタリングを継続している。

Key Words: 酸性雨、湖沼、酸性化

1 はじめに

酸性雨による湖沼の酸性化は、北欧や北米で被害が深刻化したが、日本では今のところ深刻な影響は認められていない。しかし今後も酸性雨が降り続けば、被害が深刻化する可能性が考えられる。このため、影響を受けやすい、すなわち影響が出るとすれば、早期に顕在化すると思われる湖沼のモニタリングを行い、変化の兆候を監視しておくことが重要である。

冬季の日本海側では、降雪中の酸性物質濃度が高く、pHが低い傾向があり^{1,2,3,4)}、積雪中の酸性物質の大半は融雪初期に溶出する⁵⁾ことから、日本海側の多雪地帯に位置し、湖水の酸緩衝能に乏しい湖沼が融雪期を中心に影響を受けやすいと考えられる。特に湖沼水の緩衝能が同じでも、小さい湖沼ほど湖沼水全体の総緩衝能は小さく、滞留時間は一般に短くなるため、小湖沼が影響を受けやすいと考えられる。

以上の観点から、コックリ湖と当丸沼における酸性化の危険性を指摘し、モニタリング調査を開始していることを既に報告している^{6,7)}。ここではこれまでに得られた結果について報告する。

2 湖沼の概要と調査方法

湖沼の位置を図-1に示す。

コックリ湖や当丸沼周辺の平均最深積雪は、それぞれ100cm、200cm近くに達し⁸⁾、積雪のpHは1996年～1999年の4年間平均で、ともに4.6～4.7程度である⁴⁾。

2.1 コックリ湖

蘭越町の山中にあり、北東の雷電岳を背に高度557mに位置する。最大水深8.0m、平均水深3.2m、面積0.04 km²の

浅い小さな淡水湖で、流入河川は特に見られないが、流出水は森別川に注ぐ⁹⁾。集水域は全て山林で、地形図より概算した集水域面積は0.10km²である。

2.2 当丸沼

積丹半島にある当丸岬の神恵内村側にあり、高度610m、最大水深1.5m、平均水深1.2m、面積0.01km²の非常に小さな浅い淡水湖である。流入河川は特に見られないが、流出水はトーマル川に注ぐ⁹⁾。集水域は全て山林で、地形図より概算した集水域面積は0.098km²である。

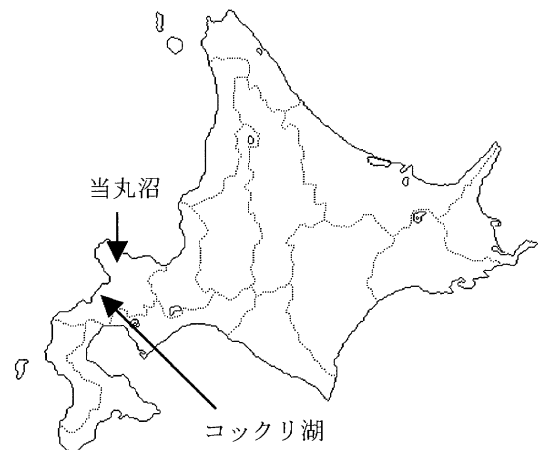


図-1 湖沼位置図

2.3 調査方法

両湖沼ともに、ボートを利用した調査を2000年の10月から始めており、2001年以降は年間4回(積雪期を除く)の頻度で調査を行ってきた。

コックリ湖における調査地点は図-2に示した湖東北部(最深地点よりやや南西側)で、採水は表層と深層(6m層)から行った。

当丸沼における調査地点は図-3に示した湖北部と南部

の2地点だが、南部の調査は2001年の5月から開始した。当丸沼の水深は1m前後と浅いので、採水は両地点とも表層からのみ行った。



図-2 コックリ湖における調査地点



図-3 当丸沼における調査地点

電気伝導度 (EC)、pHは現地測定し、持ち帰った水試料について、pH4.8アルカリ度 (アルカリ度) を硫酸滴定法 (HIRANUMA, COMTITE-101)、Cl⁻, SO₄²⁻を濾過 (ADVANTEC, DISMIC-25cs 0.20 μm) 後にイオンクロマトグラフ (DIONEX, DX-100) により測定した。現地で採水直後に濾過 (Whatman, GF/F) しておいた試料について、Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺を原子吸光度計 (varian, SpectrAA 220FS)、溶存態アルミニウム (D-AI) を電気加熱原子吸光度計 (varian, SpectrAA-800)、NO₃⁻, SiO₂をそれぞれカドミウム-銅カラム法、モリブデン青法 (ともにBRAN LUEBBE, AACs-II)、DOCを全有機体炭素計 (SHIMADZU, TOC-5000A) により測定した。クロロフィル-a (Chl-a) は、メタノール抽出-蛍光光度法 (TURNER DESIGNS, 10-AU) により測定した。

3 結果

3.1 コックリ湖

図-4および図-5に、表層および深層 (6m層) の水質変化をそれぞれ示す。

両図から、僅かながらも経年的にpHやアルカリ度が低下し、ECやSO₄²⁻が増加して酸性化している兆候が認められる。しかし今のところ、生物に有害なD-AIの増加傾向までは認められていない。

次に融雪期に着目すると、2001年や2002年は融雪終了後間もない5月中旬の調査であり、NO₃⁻やSO₄²⁻などの酸性化原因物質の増加やこれに伴うpHの低下がやや顕著となっており、融雪のピーク時にはこれより酸性化している可能性がある。

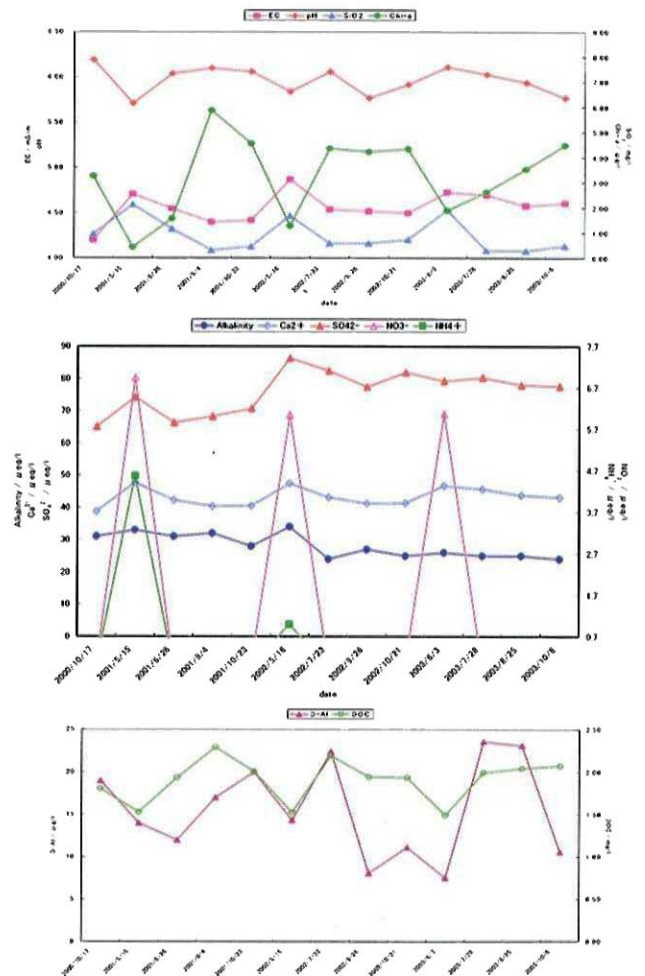


図-4 コックリ湖表層の水質変化
NO₃⁻, NH₄⁺の定量下限値: 0.7 μeq/l

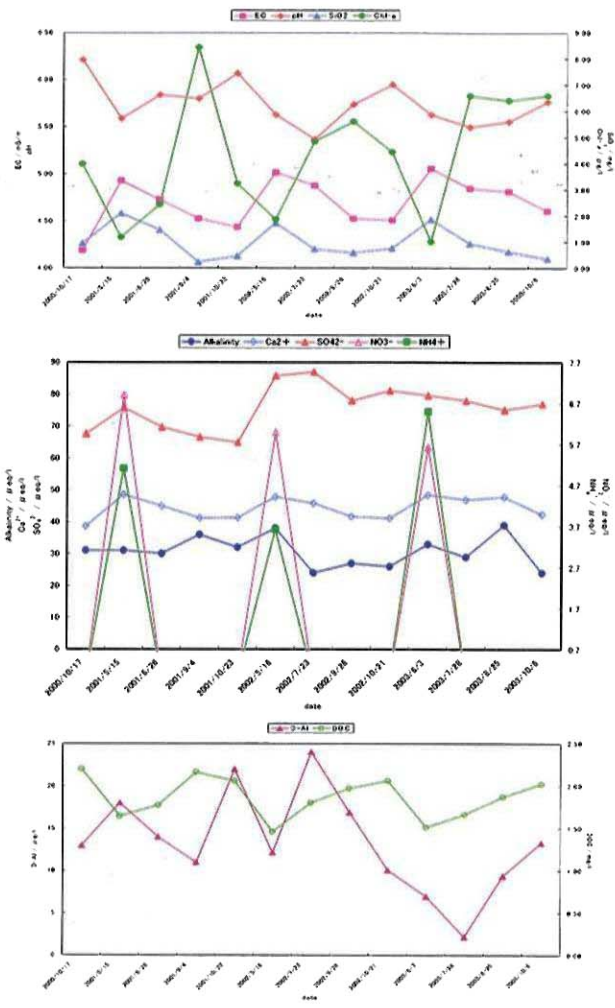


図-5 コックリ湖深層（6m層）の水質変化
NO₃、NH₄の定量下限値：0.7μeq/l

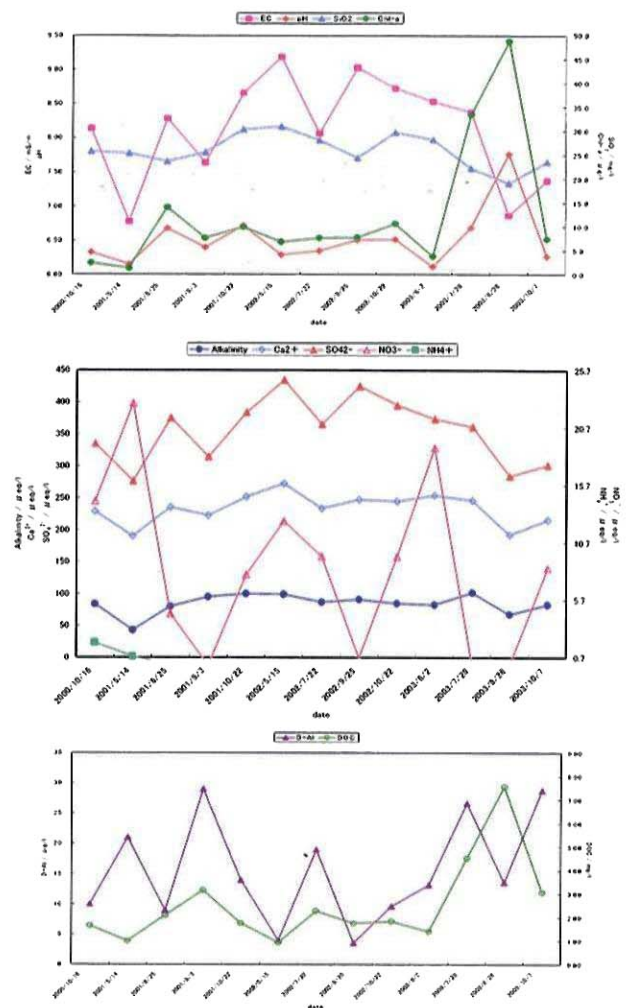


図-6 当丸沼北部の水質変化
NO₃、NH₄の定量下限値：0.7μeq/l

3.2 当丸沼

図-6および図-7に、沼の北部および南部の水質変化をそれぞれ示す。

経年的変化としては、pHやアルカリ度の低下、ECやSO₄の増加といった酸性化の兆 5月中旬の調査においても、pHは6以上を維持していた。

当丸沼では、2003年夏季にはDOCが8 mg/l前後という高い値が観測された。水は褐色を帯びている点と合わせ、腐植栄養湖であると考えられる。2003年夏季はChl-aも40.0 μg/l前後の高い値を示し、pHが7.5以上まで上昇している状況が観測された。アルカリ度もコックリ湖に比べればかなり高いので、コックリ湖よりは酸性雨の影響を受けにくいと考えられる。

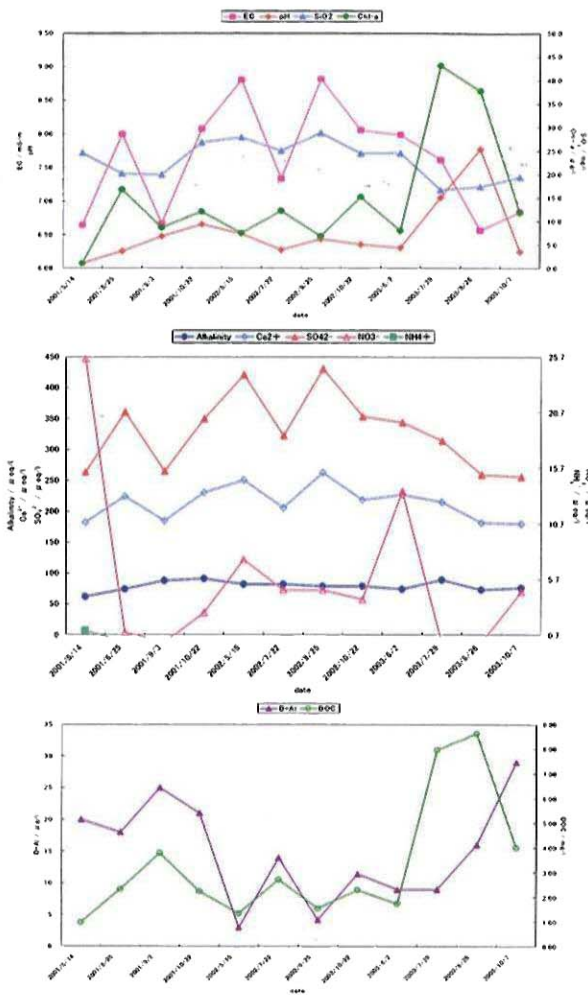


図-7 当丸沼南部の水質変化
NO₃⁻, NH₄⁺の定量下限値 : 0.7 µeq/l

4 まとめ

コックリ湖では経年的に酸性化している兆候を示すデータが得られつつある。一方、当丸沼では経年的な酸性化の兆候は認められず、融雪後の調査においてもpHは6以上を維持していた。当丸沼は腐植栄養湖と考えられ、酸緩衝能の指標となるアルカリ度はコックリ湖と比べればかなり高いことから、コックリ湖よりは酸性雨の影響を受けにくいと考えられる。これより、平成16年度(2004年)調査は対象をコックリ湖に限定し、積雪調査も行って酸性化の兆候を詳細に継続監視することとした。

5 謝 辞

現地調査においては、これまでに当センターの多くの方々よりご協力をいただき、後志森づくりセンター、神恵内村役場の方々にもご支援いただきました。この場をお借りして感謝いたします。

参考文献

- 1) 全国公害研協議会・酸性雨調査研究部会：全国公害研究会誌, vol.23 (1998) 186.
- 2) 村野健太郎：環境技術27 (1998) 771.
- 3) Izumi Noguchi et al.:Water, Air, and Soil Pollution, vol. 130 (2001) 421.
- 4) 全国公害研協議会北海道・東北支部酸性雨調査研究専門部会：積雪成分合同調査報告書－5年間のまとめ－(2002).
- 5) 大喜多敏一監修：新版 酸性雨－複合作用と生態系に与える影響－(博友社, 1996) p190.
- 6) 阿賀裕英, 野口泉, 三上英敏, 五十嵐聖貴, 藤田隆男, 坂田康一：北海道環境科学研究センター所報27 (2000) 46.
- 7) 阿賀裕英, 野口泉, 藤田隆男, 坂田康一：北海道環境科学研究センター所報28 (2001) 112.
- 8) 財団法人日本気象協会北海道本部：1991年版北海道の気候 (1992) 340.
- 9) 北海道公害防止研究所：北海道の湖沼 (1990).

Acidification monitoring for the small lake or swamp with low acid neutralizing capacity on the Japan Sea side.

Hirohide Aga

Abstract

We worked on the acidification monitoring for Lake Kokkuri and Swamp Toumaru with low acid neutralizing capacity on the Japan Sea side where is snowy in winter.

As a result we found that Lake Kokkuri was tend to be acidified although Swamp Toumaru was not. So, we are now continuing monitoring for only Lake Kokkuri which is thought to be more easily acidified than Swamp Toumaru due to its quite small alkalinity compared with the latter.

達古武川上流部における湿地帯からのリンの負荷

三上 英敏 石川 靖 上野 洋一

要 約

釧路湿原達古武沼の最大流入河川である達古武川の上流部は、人為的発生源が皆無であるにもかかわらず、リンの負荷が大きい事がわかった。その要因として、湿地帯の中から高濃度のリンを含む水が浸みだし徐々に小河川を形成して、達古武川やその支流に流入するものが、多数存在するためであった。

Key Words: 達古武沼、達古武川、湿地、リン、窒素

1 はじめに

釧路湿原内湖沼群は、近年富栄養化の進行による環境悪化が懸念されている。その中の一つである、達古武沼も水生植物の衰退、アオコの大発生などの環境悪化が問題視されている¹⁾²⁾。富栄養化の根本的な原因は、周囲からのリンや窒素といった栄養塩類の負荷量が過大であることによる。達古武沼の場合、周囲からの栄養塩類の負荷要因として、酪農などの農業活動によるもの、釧路川の逆流水によるもの³⁾、高濃度の栄養塩を含む温泉の流入によるもの他、湿地帯からの負荷も示唆されている。

酪農などの農業活動による水系への栄養塩負荷は、リンよりも窒素に関して、硝酸態窒素汚染に代表されるように顕著に影響を及ぼす。特に、集水域の牛の飼育密度と河川の硝酸性窒素や全窒素濃度との間には、正の相関関係があることは、多くの地域で報告されている⁴⁾⁵⁾⁶⁾。一方、リンに関しては、複雑であり、必ずしも窒素のように牛の飼育密度と河川のリン濃度との間には正の相関関係になるとは限らない場合も多く、農業活動によるリンの負荷に関しては、集水域の様々な特性に大きく影響を受けていると思われる。

一方、達古武沼最大流入河川である達古武川は、酪農などによる人為影響をほとんど受けていない上流域であっても、既にリンの負荷の大きいことがわかっている⁷⁾。この達古武川上流部の特徴として、勾配が緩い河道部に、湿地に涵養された小さな小河川が幾つも流入していることが上げられる。

そこで、我々は、これらの湿地涵養域からの栄養塩類、特にリンの負荷影響を調べるために、集水域に人為的活動の全く無い達古武川上流部の3号川に、河道300m程のモデル区間を設定して、現地調査を行った。

2 調査地域と調査方法

2-1. 調査地域の概要

図-1に調査地点の位置を示した。Sta.1は、達古武川の最下流にかかる国道391号線達古武橋の直下の地点である。ここの集水域の面積は、15.39km²であり、達古武沼全体の集水域の面積の64.7%を占めている。達古武川の中、下流部には、酪農を営む農家が点在している。

一方、達古武川支流3号川のSta.2より上流部は、集水域に人為的な発生源を全く持たない地域である。我々は、3号川Sta.2と、3号川Sta.3とその支流の2号川Sta.4の合流点との間の、3号川河道約300mの区間に、湿地涵養域栄養塩負荷調査のモデル区間を設定した。このモデル区間付近の流れは、緩やかな勾配上を蛇行しながら流下しており、かつ河床は岸から1m程ほぼ垂直に彫り込まれている形で流れている。岸沿いには、湿地帯が所々分布しており、その中を浸透しながら3号川に流れ込む小河川が幾つも存在する。モデル区間内においても数本確認されたが、そのうち、主な3小河川について地点を設定した。ここでは、地点を設定した湿地涵養域小河川を下流から便宜上、A川、B川、C川とする。3つの小河川とも共通していることは、春から夏にかけて、水芭蕉が繁茂していることであり、河川の姿も水芭蕉で隠れる所も多い。特にA川は、河道に沿って、水芭蕉が繁茂していた。また、それら小河川付近の土壌は、水分を多く含んでおり、所々深さ1m程ぬかるんだ状態になっており、河道まで近寄るのが容易ではない。さらに、これら小河川の源流部は、明瞭なものでなく、乾いた土壌が徐々に水分を多く含んだ土壌になって、湿地帯になり、小河川が生じてくるという状況を呈している。

モデル区間に流入する小河川の採水地点に関して、A川においては、3号川流出口にSta.A-out、その上の水芭蕉が繁茂している所にSta.A-1、そして、A川支流の水を含んだスポンジ状の源流部にSta.A-2を設定した。B川において

は、3号川流出口にSta.B-out、そのすぐ上は二股になっているが、右俣方向の湿地帯の中のごく浅い水たまりにSta.A-B-1を設定した。C川においては、3号川流出口にSta.C-outを設定した。ここもB川と同様にすぐ上で二股になっており、右俣方向からは泥炭の中を浸みだしてきている様な極度に褐色に着色した水が流下してきており、Sta.C-1を設定した。一方、左俣方向から流れてくる水は、右俣方向のとは大きく異なり、比較的透明感のある水である。それが流下している所をSta.C-2に、さらにその上流の源流部にSta.C-3を設定した。

これらの地点のうち、3本の小河川の流出口以外の6地点 (Sta.A-1、A-2、B-1、C-1、C-2、C-3) を“湿地涵養域地点”とした。それらは、はっきりとした流路が無く、底泥と水界の区別があいまいであり、流量の把握が困難であることと、試料に底泥をまきこんでしまうことから、底泥-水界間の水質相互作用の基礎データとなる溶存成分の濃度を把握することとした。

一方、それ以外の達古武川、3号川、2号川及び3本の小河川流出口の7地点 (Sta.1、2、3、4、A-out、B-out、C-out) を“河川地点”とした。それらでは、通常の河川調査と同様に、各栄養塩の全負荷量を把握するため、溶存成分の他、懸濁成分の把握と流量測定を実施した。

ところで、C川源流部のSta.C-3のすぐ上に、まだ水分を多く含んでいる土壌地域が存在していたが、その付近2地点を“土壌間隙水調査地点”として設置した (Sta.C-31、Sta.C-32)。

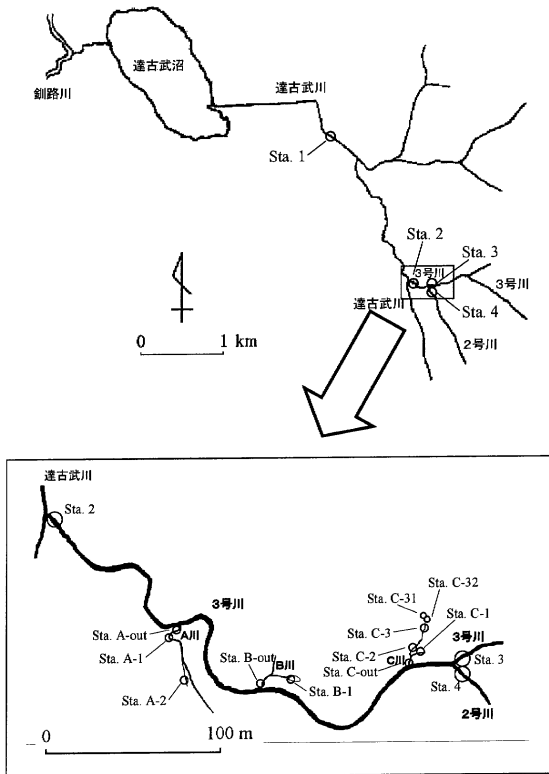


図-1 調査地点

2-2. 調査の方法

表-1に、調査地点の一覧と現地調査日について示した。調査は、2004年5月12日、6月6日、10月5日の3回実施した。

採水は、土壌間隙水調査地点 (Sta.31、32) 以外の湿地涵養域地点と河川地点の総てにおいて、ポリエチレン製の取って付きビーカーを用いて行った。採水と同時に水温、電気伝導度及び溶存酸素を測定した (YSI model 85)。採水後できるだけ早く450℃で熱処理をしたワットマンGF/Fにて濾過し、濾液を得た。さらに、河川地点のみ、採水と同時に広井式流速計を用いて流量を測定した。また、それら河川地点においては、フィルターサンプルを懸濁態の試料とした。

土壌間隙水調査地点では、Daiki製のファイバー式採取器を用いて、土壌間隙水を採取し、試料を5 mL程度得た。湿地涵養域地点、河川地点及び土壌間隙水調査地点の総ての地点において、リン酸態リン (PO₄-P) の分析を行い、溶存無機態リン (DIP) とした。土壌間隙水調査地点を除く、湿地涵養域地点及び河川地点において、DIPの他に、各溶存態の栄養塩類 (溶存態全リン; DP、硝酸態窒素; N O₃-N、亜硝酸態窒素; NO₂-N、アンモニア態窒素; NH₄-N、

表-1 調査地点一覧と調査日
調査を行った地点を○印で示した

	2004年		
	5月12日	6月6日	10月5日
達古武川 下流			
Sta. 1	○		○
湿地涵養域 モデル区間			
Sta. 2	○	○	○
Sta. 3	○	○	○
Sta. 4	○	○	○
Sta. A-out		○	○
Sta. A-1		○	○
Sta. A-2			○
Sta. B-out		○	○
Sta. B-1		○	
Sta. C-out	○	○	○
Sta. C-1	○	○	○
Sta. C-2	○	○	○
Sta. C-3			○
Sta. C-31			○
Sta. C-32			○

溶存態全窒素；DN）を分析し、NO₃-N、NO₂-N、NH₄-Nの和を溶存無機態窒素（DIN）とし、DP及びDNとDIP及びDINの差をそれぞれ溶存有機態リン（DOP）及び溶存有機態窒素（DON）とした。また、7つの河川地点においては、各懸濁態の栄養塩類（懸濁態リン；PP、懸濁態窒素；PN）も分析した。そして、DPとPPの和を全リン（TP）、DNとPNの和を全窒素（TN）とした。各項目の分析方法は表-2に示した。

表-2 分析方法

水質項目	測定方法
PO ₄ -P	ブランル-ベ製 AACS-IIによる測定
DP	アルカリ性過硫酸カリウム分解法の後、PO ₄ -Pの測定
PP	アルカリ性過硫酸カリウム分解法の後、PO ₄ -Pの測定
NO ₃ -N	ブランル-ベ製 AACS-IIによる測定
NO ₂ -N	ブランル-ベ製 AACS-IIによる測定
NH ₄ -N	ブランル-ベ製 AACS-IIによる測定
DN	アルカリ性過硫酸カリウム分解法の後、NO ₃ -Nの測定
PN	ヤナコ製 CHNコーダー MT-5型による測定

3 結果と考察

3-1. 流量

表-3に、各地点の流量の結果を示す。モデル区間の出

表-3 各地点の流量

(単位：×1000m³/day)

	2004年		
	5月12日	6月6日	10月5日
達古武川下流			
Sta. 1	26.9		20.4
モデル区間出口 流出			
Sta. 2	7.3	5.8	5.0
モデル区間入口 流入			
Sta. 3 ①	3.7	2.9	3.0
Sta. 4 ②	3.3	2.6	1.7
計(①+②)	7.0	5.5	4.7
モデル区間内			
Sta. A-out ③		0.16	0.10
Sta. B-out ④		0.01	0.02
Sta. C-out ⑤	0.04	0.03	0.07
計(③+④+⑤)		0.20	0.19

口であるSta.2の流量は、5000～7300m³/dayで、達古武川下流部のSta.1の流量の約4分の1程度を占めていた。モデル区間の入口であるSta.3とSta.4の合計流量は、4700～7000m³/dayとわずかにモデル区間の出口流量より小さいがほぼ同程度であり、モデル区間内に湿地涵養域から入り込む流量は、3号川流量よりかなり小さい計算になる。モデル区間内の調査した3本の湿地涵養小河川の実測流量の合計値は、約200m³/day程度であり、最も流量が大きかったのはA川であった。また、3本の小河川実測流量の合計値は、モデル区間出口流量の3～4%程度に過ぎなかった。

3-2. 溶存態の濃度

図-2に、各調査における、湿地涵養域地点と河川地点の全地点の形態別溶存態栄養塩類濃度を示した。

リンに関して、モデル区間に流入する各湿地涵養小河川の流出口および湿地涵養域内の全地点とも、達古武川、3号川及び2号川に比べて極端に高濃度を示し、しかもそのほとんどDIPであることがわかった。達古武川全体的には、モデル区間入口（Sta.3、4）からモデル区間出口（Sta.2）、そして達古武川下流（Sta.1）に向かって、湿地涵養域に比べるとわずかではあるが、濃度的にやや上昇傾向が見られた。

Sta.C-3付近の土壌間隙水であるSta.C-31とC-32のDIP濃度は図示していないが、それぞれ、0.51と1.16mg/Lであり、Sta.C-3に比べてさらに高濃度のDIPを含んでいることがわかった。

地点毎に詳細に見ると、C川においては、右俣および左俣双方ともにDIP濃度が高いが、特に泥炭色の濃い右俣（Sta.C-1）より透明感のある左俣（Sta.C-2）の方が、DIP濃度が高かった。

B川においては、流出口（Sta.B-out）より右俣上流（Sta.B-1）の方が、DIPが低濃度であることから、左俣からより高濃度のDIPを含む水が供給されていると考えられた。A川は水量が小河川の中では最も大きい、濃度は他の2河川（B川、C川）より低かった。しかしながら、3号川に比べると、極端にDIPが高濃度であり、大きな負荷を与えていると考えられる。

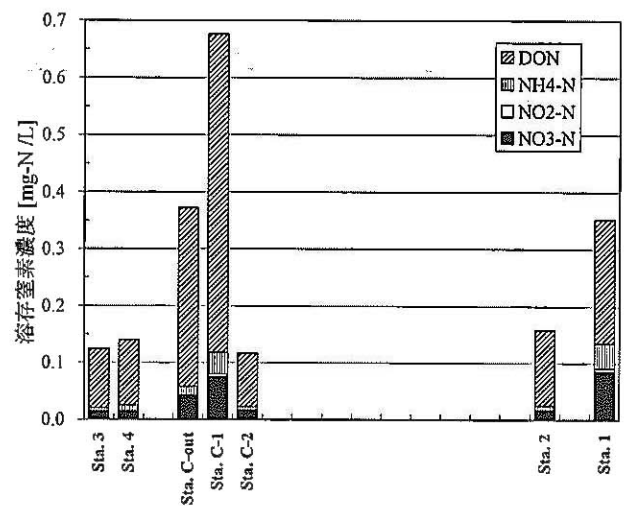
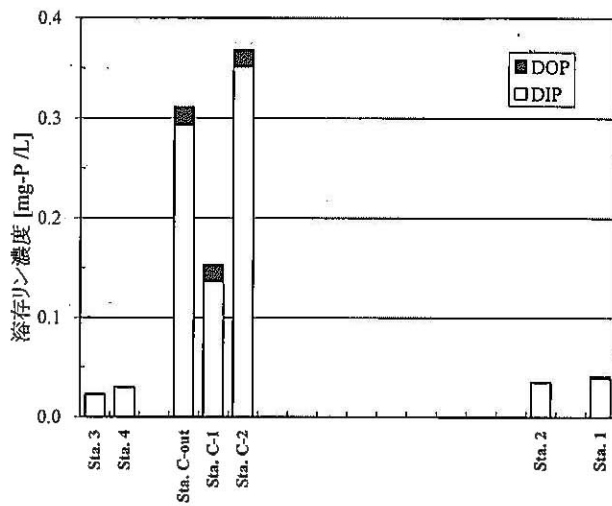
これらの結果から、湿地涵養域から水が浸みだしてくる際、DIP成分が大量に溶解するメカニズムがあると考えられた。土壌あるいは底泥中のリンは、様々な形態で存在するが、Feと結合しているリンの割合も大きいことが知られている⁷⁾。一般に、DIPは水酸化鉄（Ⅱ）などにより吸着されやすく、酸化的環境では水中に溶出されにくいと言われている。しかし、過度の酸素消費による還元的環境の出現に伴って、水酸化鉄（Ⅱ）が還元溶解されると同時に、リンも溶出することが知られている⁸⁾。

湿地涵養域の水界は、非常に有機物に富んでいるので、

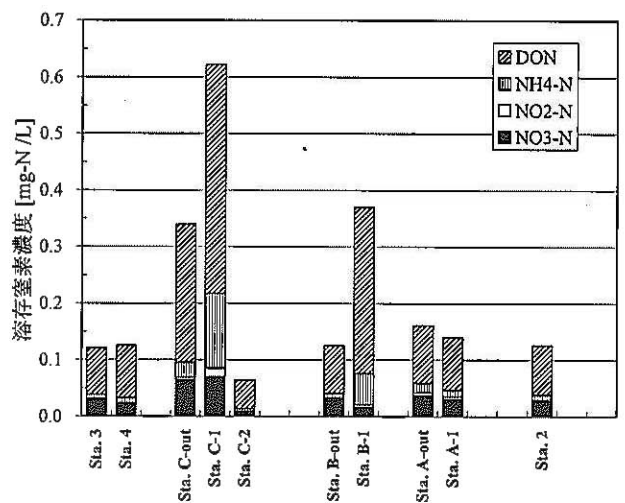
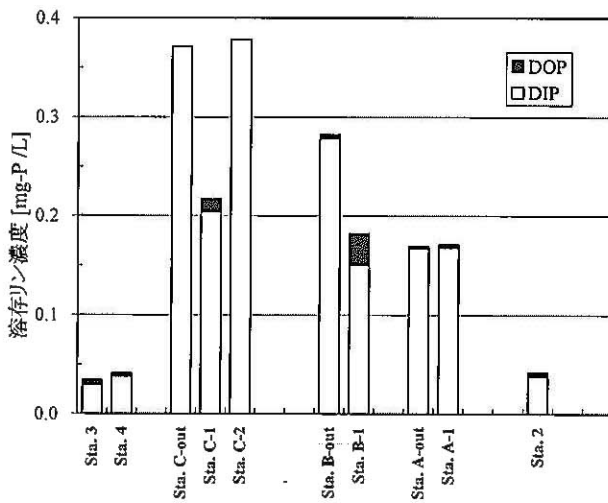
還元的环境が生じやすい。本調査における、溶存酸素の結果は示していないが、湿地涵養域地点では、3号川に比べ

て溶存酸素濃度が大幅に低く、地点によっては無酸素に近いものも存在していた。大気降水物や野生動物など様々な

a) 2004年 5月 12日



b) 2004年 6月 6日



c) 2004年 10月 5日

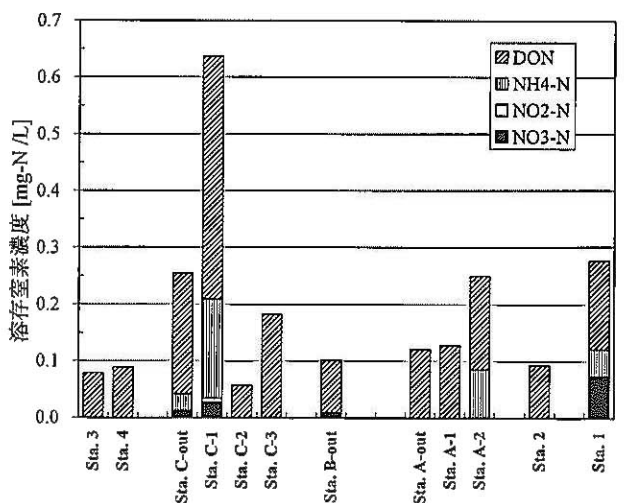
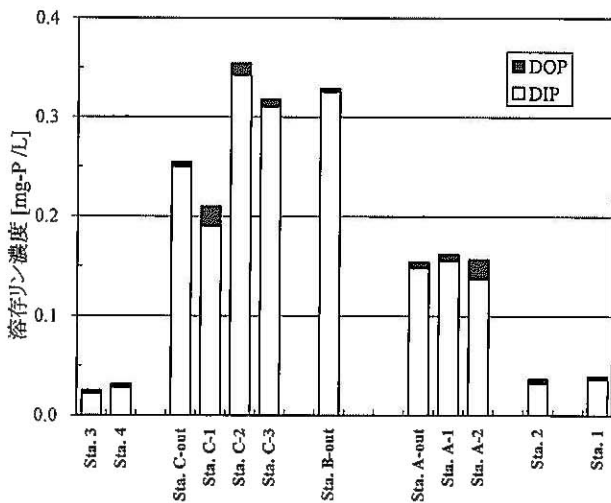


図-2 溶存性の形態別リンおよび窒素の濃度

要因によって外部から供給されたリンは、いずれ分解され無機化されるが、湿地涵養域では、還元的環境が出現しやすいため、その無機化されたDIPは土壌や底泥に吸着されにくいと思われる。そのことが、湿地涵養域における、DIPが水中に溶出しやすい理由の一つと考えられた。

一方、窒素について、モデル区間入口から出口の間に、5月はわずかに濃度増加傾向が見られたが、その他の調査においては、顕著な増加傾向は見られなかった。しかし、モデル区間出口から下流部に向かって、各成分とも大きく濃度が増加していた。モデル区間出口 (Sta.2) のより上流の集水域は農業活動が全くないが、それより下流の集水域から酪農を中心とした農業活動が展開されていることを合わせて考えると、窒素は農業活動により大きく影響を受けることが、本調査でも明らかとなった。

モデル区間内の湿地涵養小河川流出口と湿地涵養域内における各態窒素濃度について、地点により大きくばらつきがある結果となった。河川の濃度レベルと大きく変わらない地点 (Sta.A-out、A-1、Sta.B-out) もあれば、高濃度であった地点 (Sta.C-1、C-out、B-1、A-2) もあった。高濃度であった地点に共通して言えたことは、それらは強い褐色を呈し腐植物質の影響を受けていると思われる地点であった。また、それらは特にDON成分が顕著に高い傾向が見られ、硝化の進行の度合いの影響と考えられるが、DINの成分構成に様々なパターンが見られた。全体的に、窒素においては、脱窒の作用の影響もあつてか、リンよりは遙かに湿地涵養域からの河川水質への影響は小さいと考えられた。

3-3. 懸濁態濃度

図-3に、7つの河川地点の総ての結果がそろっている10月の調査における、懸濁態のリンと窒素について、それぞれ溶存態とともに示した。

リンに関して、3号川及び2号川のPP濃度について、DPに比べて大幅に低かった。モデル区間出口から達古武川下流部に向かってPP濃度の増加が若干見られた。モデル区間の湿地涵養小河川においては、ばらつきがあるものの、C川で極端にPP濃度が高かった。C川の3号川への流出口付近は底泥を巻き上げながら流下していることがその理由であると思われた。A川やB川については、DPに比べて大幅にPP濃度は低かったが、3号川に比べては濃度が高かった。また、特徴として、A川とC川において、SSに対するPPの比率が平均0.0125mg-P/mg-SSと、3号川や2号川のそれ (平均0.0037mg-P/mg-SS) と比べて、顕著に高いことであった。湿地涵養域においては、水中のDIPだけでなく、所によっては懸濁物そのものにもPが高比率で含まれており、大きな負荷影響を与える可能性が示唆された。

窒素に関して、リンと同様に、モデル区間の3号川及び

2号川のPN濃度について、DNに比べて大幅に低かった。また、達古武川下流部ではPN濃度の増加が見られた。モデル区間内の湿地涵養小河川においては、リンと同様に、ばらつきがあるものの、C川で極端に濃度が高かった。しかし、リンと異なる傾向を示しているのは、A川とC川において、SSに対するPNの比率は平均0.017mg-N/mg-SSと、3号川や2号川のそれ (平均0.021mg-N/mg-SS) と比べて、顕著な違いは見られなかった。

3-4. 負荷量

地点的に結果がそろっている10月のデータを用いて、各態のリンと窒素に関して、モデル区間入口、モデル地域出口、モデル区間内流入、及び達古武川下流の負荷量について算出し、表-4に示した。

モデル区間内における、3本の湿地涵養小河川から供給されたリンの実測合計負荷量は、DIPで0.040kg/day、DOPで0.001kg/day、PPで0.047kg/day、TPで0.088kg/dayであった。それらはそれぞれ出口負荷量の25%、5%、114%、40%であった。PPに関しては湿地涵養河川からの負荷量の方が出口負荷量より大きい結果になった。懸濁態成分の

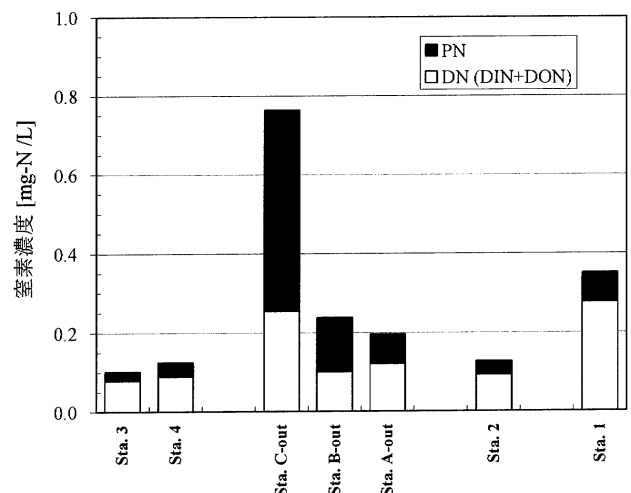
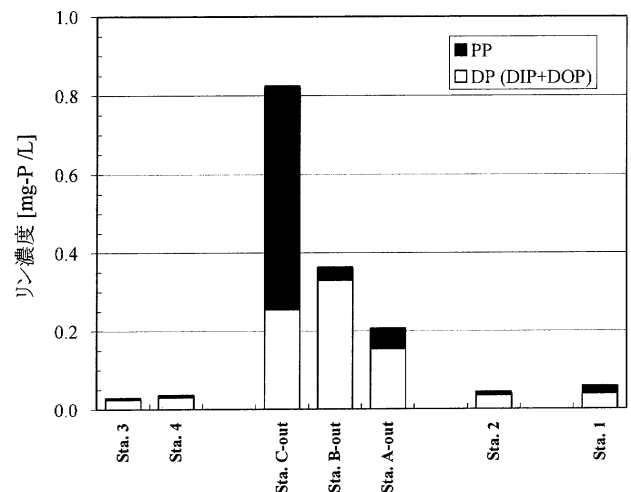


図-3 懸濁態及び溶存態のリンと窒素濃度

一部は、3号川のモデル区間の流下過程で、一部沈降除去されていると考えられた。また、DIPについては、湿地涵養域からの負荷量実測値と、モデル区間出入口間の負荷量差である計算値と、ほぼ一致した。これらのことから、わ

ずか300m程のモデル区間において、流量の寄与が4%程しかない湿地涵養域から、大量のリンが供給されていることが明らかとなった。

表-4 リンと窒素における各態の負荷量

	DIP [kg/day]	DOP [kg/day]	PP [kg/day]	TP [kg/day]	DIN [kg/day]	DON [kg/day]	PN [kg/day]	TN [kg/day]	TN/TP
モデル区間入口									
Sta.3, 4 合計 ①	0.115	0.014	0.022	0.151	0.000	0.391	0.133	0.524	3.5
モデル区間出口									
Sta. 2 ②	0.160	0.020	0.041	0.221	0.000	0.465	0.170	0.635	2.9
モデル区間内流入									
計算値 ②-①	0.045	0.006	0.019	0.070	0.000	0.074	0.037	0.111	
実測 3小河川合計*	0.040	0.001	0.047	0.088	0.003	0.030	0.048	0.081	0.9
達古武川下流									
Sta. 1	0.74	0.06	0.39	1.19	2.47	3.17	1.53	7.17	6.0

* Sta.A-out、Sta.B-out、Sta.C-out の合計負荷量

一方、モデル区間内における、3本の湿地涵養小河川から供給された窒素の実測合計負荷量は、DINで0.003kg/day、DONで0.030kg/day、PNで0.048kg/day、TNで0.081kg/dayであった。また、TNに関して、モデル区間出口負荷量に対する、モデル区間内湿地涵養域から供給される負荷量の割合は13%と計算され、TPの40%に比べてはるかに小さかった。

次に、達古武川下流部 (Sta.1) から見たモデル区間出口 (Sta.2) の負荷割合を見てみると、TPで19%、TNで9%であった。リンは、集水域に人為的影響の全く無いSta.2より上流部で既に、2割の負荷を持っていることがわかった。さらに、モデル区間内の湿地涵養域のごく小さな3本の小河川から実際に供給されたTPの負荷量は、Sta.1の7%以上にもおよんでいた。湿地涵養小河川は、モデル区間より上流部でも下流部でも多数流入していることから、達古武川全体への湿地帯からのリンの負荷割合は、かなり高いと考えられる。一方、窒素は達古武川下流部に向かって、酪農の影響を大きく受けることとなり、特に溶存成分の負荷がSta.2より下流部に向かって急速に増加してくるものと考えられた。

TN/TP比について、モデル区間入口では、3.4と湖沼のN/P比を検討する上で重要なレッドフィールド比の7.2に比べると遙かに低く、モデル区間内から入る3本の小河川合

計負荷量のTN/TP比は0.9とさらに低く、湿地涵養域からの負荷は達古武沼の植物プランクトンに対して窒素よりリンの供給影響を強く与えることを示していた。一方、達古武川下流部のSta.1では、TN/TP比は6.1と上昇し、集水域に酪農家が点在する中流から下流部にかけて、徐々に窒素の負荷影響が強められていく傾向が見られた。

本調査の結果から、達古武沼の様な湿原内の湖沼は、集水域に人為的活動がなくても、湿地涵養域から染み出す水によってリンが負荷されていることが明らかとなった。また、湿地状況を呈した集水域に酪農由来などの人為的なリンの発生負荷があるとき、湿地状況でない集水域に比べて、さらにリンが水界に溶出しやすくなることも考えられる。達古武沼以外の湿原内湖沼である塘路湖や天塩パンケ湖においても、リン濃度が高い流入河川が存在することが報告されている^{6),9)}。窒素固定型の藍藻類 (アナベナやアフアニゾメノン) によるアオコの発生は、DINが枯渇しリンが十分にあるときに発生しやすいと考えられている^{10),11)}。湿地涵養域から供給されるN/P比の低い栄養塩の負荷は、湿原内湖沼において、これらの種によるアオコを発生させやすい条件を有していると言え、実際に、これら種によるアオコの発生が、達古武沼や塘路湖あるいは天塩パンケ湖などにおいて認められている^{2),6),9)}。

湿原内湖沼の環境問題を検討するとき、酪農などによる

硝酸態窒素の顕著な負荷影響に加えて、湿地涵養域が生み出すリンの負荷影響についても、十分考慮する必要がある。

Limnology, Vol.3, pp. 97- 105, 2002.

4 謝 辞

本調査を実施するにあたり、現地調査の準備や試料の調整の際、株式会社環境コンサルタントの分析室をお借り致しました。記して謝意を表します。

5 参考文献

- 1) Takamura, N., Kadono, Y., Fukushima, M., Nakagawa, M. and Kim, B.: Effects of aquatic macrophytes on water quality and phytoplankton communities in shallow lakes, *Ecological Research*, Vol. 18, pp. 381- 395, 2003.
- 2) 環境省東北海道地区自然保護事務所, 株式会社野生物総合研究所編: 釧路湿原東部湖沼自然環境調査業務報告書, 2004.
- 3) 三上英敏, 石川靖, 上野洋一, 高村典子, 若菜勇: 釧路湿原達古武沼における釧路川からの逆流水について, *日本陸水学会第69回大会講演要旨集*, p109, 2004.
- 4) 志村もと子, 田淵俊雄: 養牛地域における畜産と河川水窒素濃度との関係 (畜産主体の集水域における窒素流出に関する研究(IV)), *農業土木学会論文集*, Vol.189, pp.45- 50, 1997.
- 5) 三上英敏, 坂田康一, 藤田隆男, 阿賀裕英, 五十嵐聖貴, 永洞真一郎: 酪農地域における河川の窒素、リン環境について, *第34回日本水環境学会年会講演集*, pp. 5, 2000.
- 6) 北海道環境科学研究センター, 北海道立水産孵化場, 北海道立衛生研究所, 山形大学理学部: 塘路湖における環境保全と漁獲の安定化に関する研究, 2002.
- 7) 犬伏和之, 安西徹朗 編: *土壌学概論*, 朝倉書店出版, p. 112, 2001.
- 8) Peddy, K. R., Diaz, O. A., Scinto, L. I., and Agami, M.: Phosphorus dynamics in selected wetlands and streams of the lake Okeechobee Basin, *Ecological Engineering*, Vol. 5, pp. 183- 207, 1995.
- 9) 安富亮平, 今田和史: 天塩パンケ沼のアオコについて, *北水試だより*, Vol. 66, pp. 34- 36, 2004.
- 10) Tezuka, Y.: Phosphorus as possible factor stimulating the appearance of Anabaena bloom in the south basin of Lake Biwa, *Japan Journal Limnology*, Vol. 49, pp. 201- 204, 1988.
- 11) Mikami, H., Hino, S., Sakata, K. and Arisue, J.: Variations in environmental factors and their effects on biological characteristics of meromictic Lake Abashiri,

Title

Phosphorus loading from wetland in upper part of Takkobu River

Abstract

Takkobu River is maximum inflowing river of Lake Takkobu in Kushiro Moor. We found that phosphorus loading was biggish in upper part of the river without artificial and agricultural pollutant including much nutrient. This reason was that the water with high concentration of phosphorus exuded from wetland, collected and formed small stream, then discharged into Takkobu River and its branch rivers.

達古武沼における釧路川からの逆流量の観測

三上 英敏 石川 靖 上野 洋一

要 約

達古武沼への釧路川からの逆流量は、1年間の実測データから、年間626,000m³/yと算出され、それは達古武沼から釧路川への年間流出量の約2%に過ぎなかった。

Key Words: 達古武沼、釧路川、逆流

1 はじめに

達古武沼は、塘路湖やシラルトロ湖と同様に釧路湿原東側に存在している釧路川水系の浅い富栄養湖である。達古武沼の流出河川は、塘路湖やシラルトロ湖のそれと同様に、約1 kmで湿原を流下する釧路川下流部に合流している。釧路川の流量が増加し水位が上昇した時に、釧路川の河川水が、それらの流出河川の水路を介して、各湖沼に逆流することが知られている^{1,2)}。そこで、我々は、釧路川からの逆流による栄養塩類の負荷影響を検討するために必要な年間の逆流量について、実測を試みた。

2 方 法

達古武沼の流出河川の木道橋直下に、電磁流速計 (ALE C電子 model ACM-3D) を設置し、その出力信号をデータロガー (KADEC-UV) に連結して10分間隔で記録した。測定期間は、2003年11月26日から2004年11月25日までの1年間であり (ただし、4/21,0時~5/11,15時の間、5/24,21時~6/5,14時の間、8/13,19時~8/23,16時の間はバッテリー不足のため欠測)、10分毎のデータから1時間単位で流量を算出した。

3 結果と考察

表-1に観測された逆流イベントを示し、図-1に1年間の観測期間中の流量の時間変動について示した。図-1の流量の負値が逆流量であり、正値が沼からの流出量を示している。バッテリー不足による欠測時間を除いた全測定時間は、7771時間 (323日19時間)であった。その内、逆流のイベントが観測されたのは、表-1に示した通り、20イベント、合計269時間である。しかし、各イベント間の逆流停止期間が1日以内であるものをまとめ、逆流3と4、逆流6~8、逆流9と10、逆流11~16を、それぞれ一つの

逆流イベントと考えると、大きく11のイベントが観測されたことになる。

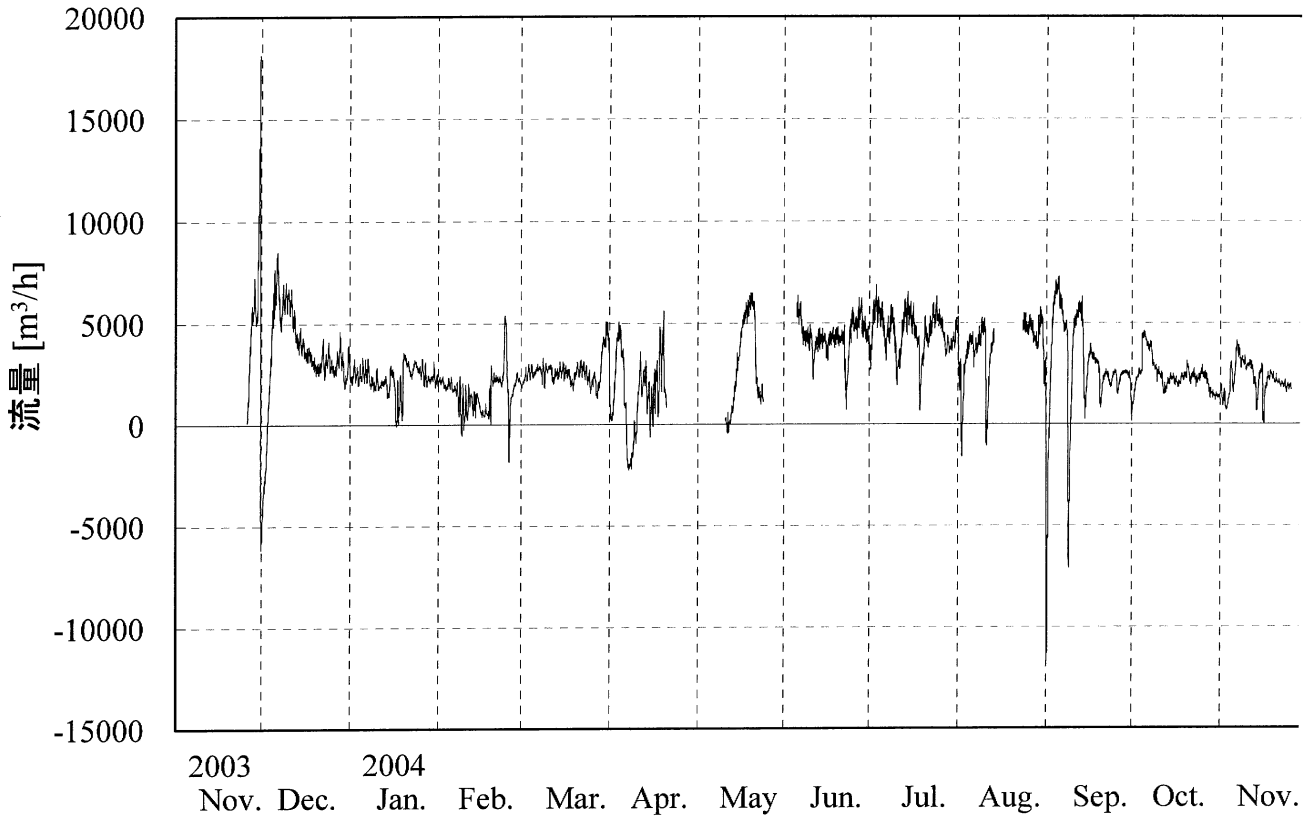
釧路川からの逆流は、その流域に降雨があったり、融雪が促進されたりして、釧路川の水位が上昇し達古武沼の水位を超えたときに観測される。

本調査の全測定時間内における、順流すなわち流出の総流量に対する総逆流量の割合は2.3%と、小さかった。達古武沼内での蒸発量を加味すると、達古武沼に流入する全水量に対する釧路川からの逆流水の寄与率は、2.3%以下ということになる。次に、欠測期間中も測定期間中と同じ

表-1 各逆流イベントの逆流時間と逆流量

番号	逆流開始日時 日 時	逆流終了日時 日 時	逆流時間 h	逆流量 m ³
(2003年 11/26 観測開始)				
1	2003年 11/30 16	12/3 4	60	192000
2	2004年 1/17 5	1/17 11	6	285
3	2/8 23	2/9 9	10	3600
4	2/9 22	2/10 1	3	531
5	2/25 14	2/26 2	12	13600
6	4/6 20	4/9 14	66	109000
7	4/9 17	4/9 18	1	222
8	4/9 19	4/10 14	19	9700
9	4/15 3	4/15 7	4	1980
10	4/16 5	4/16 6	1	97
(4/21 0時 ~ 5/11 15時 欠測)				
11	5/12 0	5/12 2	2	65
12	5/12 3	5/12 4	1	40
13	5/12 6	5/12 10	4	837
14	5/12 11	5/12 12	1	451
15	5/12 15	5/12 20	5	726
16	5/13 8	5/13 9	1	21
(5/24 21時 ~ 6/5 14時 欠測)				
17	8/2 4	8/2 15	11	10700
18	8/10 23	8/11 10	11	6450
(8/13 19時 ~ 8/23 16時 欠測)				
19	8/31 23	9/2 4	29	129000
20	9/8 15	9/9 13	22	74800
(2004年 11/25 観測終了)				

* 逆流が停止した段階で各イベントを区切った。また、逆流区別のために、便宜状、各逆流イベントに番号をつけた。



時間割合で流出と逆流が起こったと仮定して、実測期間である2003年11月26日から1年間の流出量と逆流量を見積もって見ると、年間流出量は26,475,000m³/y、年間逆流量は626,000m³/yと算出された。

本調査期間中の降水量は、アメダス観測地点「標茶」のデータから814mmであり、例年よりかなり少ない傾向にあった。この地域はもともと冬期間の降水量が少ない地域であるが、本調査期間内の2004年の春から秋にかけても、例年になく少雨傾向であった。特に、2004年の6月、7月及び10月は雨が少なく、これらの月では逆流が観測されていない。今回の調査結果は、例年より少雨傾向のため、逆流量が小さく見積もられている可能性がある。

次に、各逆流のイベント毎に見てみると、逆流2から逆流5までは、冬期間の釧路川流域が雪氷で覆われている時の逆流である。冬期間の流出と逆流の特徴として、釧路川に降水があっても、雪の場合、極端な釧路川の増水につながらず、逆流は観測されなかった。しかし、暖かな日で雨になった場合は、冬期でも降雨による釧路川の増水と達古武沼への逆流が観測された。また、冬期間においては、好天で日中暖かく、夜間に気温が氷点下になる日は、達古武沼の流出流量に、正午から夕方にかけて大きくなり夜中から明け方にかけて小さくなる、日周変動が見られた。達古武沼やその流域の雪氷が日中に融解流出し、夜間に融解が停止するという影響を受けていると考えられた。また、そのような日が続いた時に、達古武沼流出流量が小さくな

る夜中から明け方にかけて、釧路川流域に降雨が無くても、逆流が観測された。それは、釧路川の流量も融雪によって増加したことに加えて、流域が大きいので夜間でもその流量が減少しないことが原因と考えられた¹⁾。

この地域の本格的な融雪は、3月から始まる。本調査では、その時期は釧路川の水位も上昇するが、達古武沼を覆っていた氷も溶け出し沼自体の水位も上昇するため、逆流には至らなかった。4月に入って気温が高くなる日が続出した時、釧路川の水位も急上昇し、大きな逆流イベント(逆流6~8)が確認された。このイベントは途中から降雨の影響も加わり、大きな逆流量となった¹⁾。

冬期や融雪期以外のその他の時期における逆流イベントは、全て1~2日前に釧路川流域に14mm以上の降雨があった時におこっていた。さらに、達古武沼周辺に降雨が無くても、釧路川上流部の弟子屈地方のみに強い降雨があった時でも、逆流17のように、逆流が観測された。しかし、14mm以上の雨が釧路川の流域にあった時全てにおいて、必ずしも逆流が観測されるとは限らなかった。雨が有ると、達古武川の流出流量はまず一時的に増加し、その後、釧路川の水位上昇に合わせて流出流量は減少する。しかし、全ての降雨イベントが、その次の段階である逆流にまで至らせるわけではなく、逆流に至らない降雨イベントもかなり多かった。

しかしながら、塘路湖の場合、同様な降雨イベントの度に逆流があり、さらに逆流量は降雨量に比例していた²⁾。

このことから、達古武沼は塘路湖より逆流しにくい環境にあることが示唆された。それは、流出路の形状など、様々な要因の影響を受けていると考えられる。

4 謝 辞

本調査を実施するにあたり、環境省自然保護局東北北海道地区自然保護事務所の渡辺綱男前所長、藤森貞明公園保護科長には、測定機器設置の申請等に関してご協力を頂きました。また、釧路町産業経済課中野正人課長、山崎淳課長補佐には、測定機器の設置場所等に関して、ご助言とご協力を頂きました。記して謝意を表します。

5 参考文献

- 1) 三上英敏, 石川靖, 上野洋一, 高村典子, 若菜勇: 釧路湿原達古武沼における釧路川からの逆流水について, 日本陸水学会第69回大会講演要旨集, p109, 2004.
- 2) 北海道環境科学研究センター, 北海道立水産孵化場, 北海道立衛生研究所, 山形大学理学部: 塘路湖における環境保全と漁獲の安定化に関する研究, 2002.

Title

Observation of flow rate of backwater from Kushiro River into Lake Takkobu

Abstract

From observational data, annual flow rate of the backwater from Kushiro River to Lake Takkobu was estimated at 626,000m³/year. The flow rate was only 2 % of annual outflow rate from the lake to the river.

北見幌別川の水質について

三上 英敏 坂田 康一

要 約

北見幌別川水系の水質について調査した結果、集水域の牛の飼育密度が高くなる中流部や下流部において、有機物や栄養塩類などの濃度が若干高くなる傾向が見られたが、流域全体を見るとほぼ良好な水質を保っていた。

Key Words: 北見幌別川、河川、集水域、水質、牛

1 はじめに

北見幌別川は、宗谷管内の歌登町と枝幸町に集水域をもつ、流路延長46.5km、全集水域面積426.4km²の2級河川である¹⁾。本河川は、歌登町本幌別地区、そして同町中心部を流下し、枝幸町市街中心部よりやや南側の岡島付近にてオホーツク海に注ぐ。全集水域の80.3%である、342.7km²が歌登町に属しており、所々で酪農が営まれている。

我々は、2003年に、北見幌別川の水質調査とその集水域の土地利用を調査する機会を得たので、調査結果について報告する。

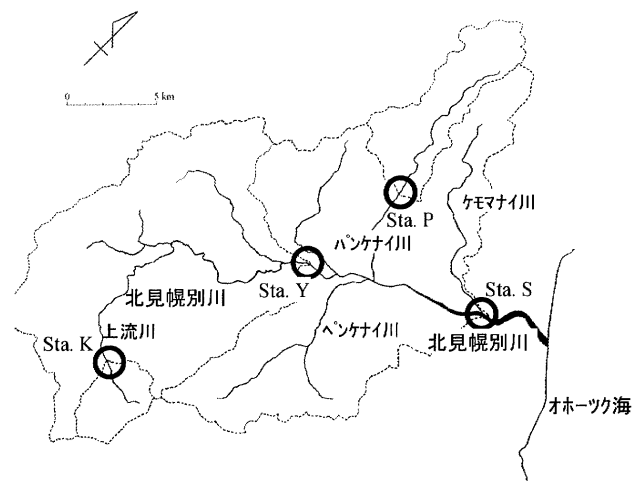


図-1 調査地点図（点線は各地点の集水域界を示す。）

2 調査地域の概要と方法

水質調査は、図-1および表-1に示した通り、4地点で行った。Sta.S（下幌別橋）及びSta.Y（弥生橋）は、北見幌別川本流の公共用水域の採水地点である。Sta.K（菊池橋）は、北見幌別川上流部の上流川の採水地点であり、また、Sta. Pはペンケナイ川とともに大きな支流であるペンケナイ川の採水地点である。

採水と流量観測の現地調査は、2003年11月4日に行った。採水はステンレス採水缶を使用し、pHメータを用いて水温とpHを測定した。また、採水時に電磁流速計を用いて、流量測定も行った。

表-1 調査地点位置

地点名	緯度	経度
Sta. S (下幌別橋)	N 44° 52' 32"	E 142° 34' 46"
Sta. Y (弥生橋)	N 44° 49' 54"	E 142° 27' 40"
Sta. K (菊池橋)	N 44° 43' 28"	E 142° 24' 32"
Sta. P (ペンケナイ川)	N 44° 53' 24"	E 142° 28' 13"

表-2 分析方法

水質項目	測定方法
SS	ワットマンGF/Fによる重量法
DO	ウインクラー・アジ化ナトリウム変法
BOD	ウインクラー・アジ化ナトリウム変法
TOC	全有機炭素計(島津製作所製 TOC-5000)による測定
NO ₃ -N	ブランレー・ベ製 AACs-IIによる測定
NO ₂ -N	ブランレー・ベ製 AACs-IIによる測定
NH ₄ -N	ブランレー・ベ製 AACs-IIによる測定
TN	アルカリ性過硫酸カリウム分解法の後、NO ₃ -Nの測定
PO ₄ -P	ブランレー・ベ製 AACs-IIによる測定
TP	アルカリ性過硫酸カリウム分解法の後、PO ₄ -Pの測定
アルカリ度	N/100による滴定(pH4.8)
Cl ⁻	イオンクロマトグラフ法(ダイオネクス製 DX-100)
SO ₄ ²⁻	イオンクロマトグラフ法(ダイオネクス製 DX-100)
Na ⁺	原子吸光法(ハリアン製 SpectrAA 200FS)
K ⁺	原子吸光法(ハリアン製 SpectrAA 200FS)
Ca ²⁺	原子吸光法(ハリアン製 SpectrAA 200FS)
Mg ²⁺	原子吸光法(ハリアン製 SpectrAA 200FS)

採水後ただちに、ハンディー濾過器を用いて、ワットマンGF/Fにて、一部のサンプルを濾液試料とフィルター試料に分別した。試料は、冷蔵環境で持ち帰り、直ちに分析を行った。水質分析項目とその方法については、表-2に示した。

また、各採水地点の集水域の状況を把握するために、歌登町と枝幸町から資料を提供して頂き、地点毎に集水域面積や集水域土地利用等について、解析を行った²⁾。

3 結果と考察

表-3に、各地点の土地利用別集水域面積、牛の飼育頭数、人口について示した。全地点的に、集水域に田畑は存在しなく、農用地は牛飼育のための牧草地のみである。さらに、Sta.KとSta.Pは、集水域に人の居住や牛の飼育がなく、総てが山林などの自然地である。Sta.KからSta.Yに至る間に、集水域に酪農家が点在し、Sta.Yの集水域に牛の飼育と牧草地が存在するようになる。さらに、Sta.Sまで流下する間、歌登町中心部を流下することにより、牛の飼育頭数が少し増加するに比べて、人口が大きく増加する。牛と人の河川への水質影響に関して、有機物や栄養塩類の原単位が牛由来の方が人由来より1オーダー以上高いことに加えて、人口よりも牛の飼育頭数の方が大きいこと、人の生活に係わる排水は下水処理や浄化槽などの処理が行われている一方で牛の排泄物の処理は基本的に行われていないこと、などから考えて、人の生活に係わる汚濁負荷の水質影響は、牛の飼育によることに比べて無視できる。

集水域の牛の飼育密度に関して、北見幌別川上流部のSta.Kやパンケナイ川のSta.Pでは、集水域に牛が存在しないため零であり、酪農活動の影響を受けない地点である。一方、中流部のSta.Y及び下流部のSta.Sは、それぞれ牛の飼育密度が14.06及び8.98頭/km²と、若干酪農活動の影響を受けていると思われる。

表-4に水質調査の結果を示した。集水域に牛のいない地点 (Sta.K、Sta.P) より、牛が存在する地点 (Sta.Y、Sta.S) の方が、濃度が高くなっている水質項目は、BODやTOCの有機物指標関連の項目と、栄養塩類の項目 (NO₃-N、NH₄-N、TN、PO₄-P、TP) そして、陰イオンの塩化物イオン (Cl⁻) と陽イオンのNa⁺、K⁺である。NO₃-NあるいはTNの濃度に関して、集水域の牛の飼育密度と正の相関関係が強いことは、多くの事例の通りである^{2),3),4),5),6)}。一方リン濃度に関しては、懸濁態の挙動影響を強く受けるため、集水域の牛の飼育密度と関連性がない地域も多い^{2),3)}。しかし、北見幌別川と同じ南宗谷地区である、クッチャロ湖の流入河川では、リンも集水域の飼育牛密度と正の相関関係が見られている⁹⁾。北見幌別川においても、集水域の牛の飼育がある地点の方が、若干リン濃度も高くなっているのは、

表-3 各地点の集水域面積および土地利用状況

	Sta. S	Sta. Y	Sta. K	Sta. P
全集水域面積 [km²]	398.25	178.68	13.88	32.21
田・畑 [%]	0.0	0.0	0.0	0.0
牧草地など [%]	8.8	13.7	0.0	0.0
山林・その他 [%]	91.2	86.3	100.0	100.0
牛の飼育頭数 [頭]	3578	2513	0	0
乳牛 [頭]	2978	1913	0	0
肉牛 [頭]	600	600	0	0
牛の飼育密度 [頭/km²]	8.98	14.06	0.00	0.00
人口 [人]	2352	245	0	0
下水処理 [%]	76.2	0.0	—	—
合併浄化槽 [%]	4.3	35.9	—	—
単独浄化槽 [%]	2.5	4.5	—	—
尿処理 [%]	17.0	59.6	—	—
人口密度 [人/km²]	5.91	1.37	0.00	0.00

表-4 水質調査結果 (2003年11月4日調査)

	Sta. S	Sta. Y	Sta. K	Sta. P
流量 [m ³ /sec]	10.37	4.82	0.56	1.21
水温 [°C]	7.0	7.0	6.7	6.9
pH	7.10	7.31	7.34	7.43
SS [mg/L]	2.4	2.4	1.2	0.3
DO [mg/L]	10.5	11.0	11.4	11.6
BOD [mg/L]	0.8	0.6	0.2	0.4
TOC [mg-C/L]	3.4	3.6	2.5	1.6
NO ₃ -N [mg-N/L]	0.165	0.196	0.131	0.082
NO ₂ -N [mg-N/L]	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001
NH ₄ -N [mg-N/L]	0.035	0.042	0.008	0.006
TN [mg-N/L]	0.386	0.470	0.236	0.141
PO ₄ -P [mg-P/L]	0.011	0.015	0.011	0.001
TP [mg-P/L]	0.021	0.022	0.011	0.001
アルカリ度 [meq/L]	0.431	0.386	0.273	0.437
Cl [meq/L]	0.243	0.234	0.178	0.195
SO ₄ [meq/L]	0.105	0.112	0.107	0.066
Na [meq/L]	0.305	0.303	0.257	0.228
K [meq/L]	0.042	0.042	0.026	0.012
Ca [meq/L]	0.314	0.277	0.208	0.354
Mg [meq/L]	0.190	0.162	0.160	0.187

この南宗谷地区特有の土地条件や気象条件のためかもしれない。また、集水域に牛の飼育がある方が、K⁺濃度が高くなるのは、他の水域でも確認されている現象であり⁹⁾、牛の糞尿に特異的に多く含まれるK⁺に起因する可能性が考えられる。

北見幌別川の水質を全般的に見て、酪農活動の影響が若干見られるものの、水質は良好に保全されており、全体的

に清澄であると言って良い。それは、下流部のSta.Sや中流部Sta.Yにおいても、集水域にはまだ山林などの自然地域が高い割合で保全されているためと言える。今後も、集水域の保全に心がけることによって、この良い環境が末永く維持されるものと思われる。

4 謝 辞

本調査を実施するにあたり、宗谷支庁環境生活課環境保全係の皆様には、地元との連絡や現地調査などご協力を頂きました。歌登町環境衛生係の皆様、及び枝幸町生活安全係の皆様には、集水域の土地利用資料の提供についてご協力を頂きました。特に、宗谷支庁環境保全係の三浦光雄主任と歌登町の安田慶隆環境衛生係長には、現地調査や集水域解析に際し、多大なるご協力を頂きました。記して、謝意を表します。

5 参考文献

- 1) 北海道土木協会, 北海道河川一覧
- 2) 三上英敏, 藤田隆男, 五十嵐聖貴, 永洞真一郎: クッチャロ湖の流入河川の水質について, 北海道環境科学研究センター所報, Vol.30, p112- 120, 2003.
- 3) 三上英敏, 坂田康一, 藤田隆男, 阿賀裕英, 五十嵐聖貴, 永洞真一郎: 酪農地域における河川の窒素, リン環境について, 第34回日本水環境学会年会講演集, pp. 5, 2000.
- 4) 北海道環境科学研究センター, 北海道立水産孵化場, 北海道立衛生研究所, 山形大学理学部: 塘路湖における環境保全と漁獲の安定化に関する研究, p.15-23, 2002.
- 5) 志村もと子, 田淵俊雄: 養牛地域における畜産と河川水窒素濃度との関係 (畜産主体の集水域における窒素流出に関する研究(IV)), 農業土木学会論文集, Vol. 189, pp.45- 50, 1997.
- 6) Ekholm, P., K. Kallio, S. Salo, O.-P. Pietilainen, S. Rekolainen, Y. Laine and M. Joukola: Relationship between catchment characteristics and nutrient concentrations in an agricultural river system, Water Research, Vol.34, pp.3709-3716, 2000.
- 7) 大村邦男: 北海道の畑作・酪農地帯における物質循環と水質保全, 北海道立農業試験場報告, Vol.86, p.4, 1995.

Title

Water qualities of Kitami-Horobetsu River

Abstract

Kitami-Horobetsu River was altogether kept clear, though concentrations of organic carbon and nutrients inclined increasing at downer part of the river with biggish bred cattle density of its basin.