

水俣湾における微量残留水銀動態に関する現地観測

矢野真一郎* ・多田 彰 秀** ・松 山 明 人***
押 川 英 夫**** ・富 安 卓 滋***** ・赤 木 洋 勝*****
中 村 武 弘***** ・Rudolf Rajar***** ・Milena Horvat*****

水俣湾内の底泥中に含まれる微量残留水銀が八代海へ流出し拡がっている。微量残留水銀の動態を把握するため、ADCP と後方散乱光式濁度計などを夏季の 47 日間にわたり海底設置し、SS、流速などの連続観測を行った。ADCP の反射強度分布から SS の鉛直分布を推定し、SS flux を推定した。また、観測期間中に水銀の鉛直分布の測定を行い、SS Flux から水銀 flux の算出を試みたところ、水俣湾から八代海へ向けて一年間に総水銀で 30 kg 程度、メチル水銀で 0.03 kg 程度流出していると見積もられた。

1. はじめに

九州南西部に位置する八代海の南にある水俣湾では、1930 年代から 1968 年までの間にアセトアルデヒドを製造していた化学工場からメチル水銀の排出が行われていた。湾内の生態系において生物濃縮が起こり、高濃度水銀が蓄積した食用魚や二枚貝を多量に摂取した結果として、中枢神経中毒症である「水俣病」が発生した。1977 年から 1990 年にかけて熊本県による環境修復事業として環境庁による暫定除去基準である総水銀 25 ppm (乾重量) 以上の残留水銀を含む底質を浚渫し、埋立により封入する工事が行われた。その後、継続されていた魚介類中の水銀モニタリングの結果から、1997 年には熊本県により安全宣言が出されている。しかし、現在でも未浚渫海域の底泥中には 10 ppm (乾重量) 以下の微量な総水銀が残留し、それらが水俣湾から八代海中央部および八代海南部にかけた東岸に沿って広がっているという調査結果が報告されている (Tomiyasu ら, 2000)。

微量メチル水銀の毒性については、多くの調査研究が進められているが、現在までに全体が解明されてはいない。しかし、以前よりマグロなどの大型魚類や鯨への生物濃縮が懸念されており、特にそれらを多量に摂取した妊婦からの間接的な曝露が胎児に神経障害を引き起こす可能性が指摘されていた。その様な中、我が国においても 2003 年 6 月に厚生労働省が「水銀を含有する魚介類等の摂食に関する注意事項」として、妊娠中、もしくはその可能性がある人について、特定魚介類等 (サメ、メカジキ、キンメダイ、ツチクジラ、バンドウイルカ、ゴビ

レゴンドウ、マッコウクジラ) の 1 週間当たり摂食量の安全基準が公開された。この発表は、一般市民の間にも大きな関心を生んだ。また、対象となった魚介類に比較的メチル水銀濃度の高いマグロ類 (インドマグロ、クロマグロ、メバチマグロ) が含まれていなかったため議論を生んだ。

この様に、微量であるが沿岸域や海洋に放出された水銀の動態に関心が高まって来ている。その様な中、矢野ら (2003) は、水俣湾における微量残留水銀の動態を把握するため、2002 年冬季に 40 日間に渡って超音波ドップラー流速計 (以下、ADCP) と後方散乱光式濁度計を併用して、底質 flux の連続観測を実施した。既存の底質中水銀残留濃度のデータを利用して、一年間当たりの水俣湾から八代海への流出量を粗く見積もったところ、55~77 kg という値が得られた。また、Rajar ら (2004) は、八代海全体の流動シミュレーション結果と水俣湾における水銀のマスバランスから、最大 150 kg 程度流出している可能性があるとして推定した。しかしながら、これらの解析では観測と同期した水銀濃度の測定や、水俣湾内の詳細な流動シミュレーションが行われておらず、オーダーを推定したレベルに留まっている。

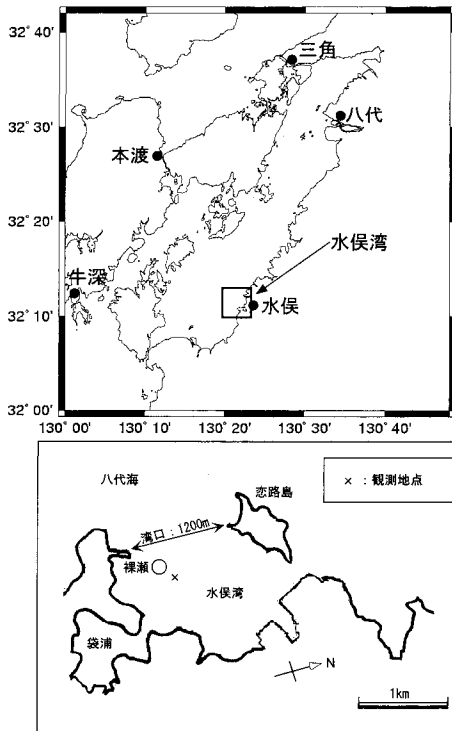
そこで、本研究では、2002 年冬季と同様に ADCP と濁度計を併用した観測手法を 2003 年夏季に水俣湾において再度適用し、観測期間中に水銀濃度の鉛直分布を測定することで、微量残留水銀の輸送をより正確に把握することを試みた。

2. 現地観測の概要

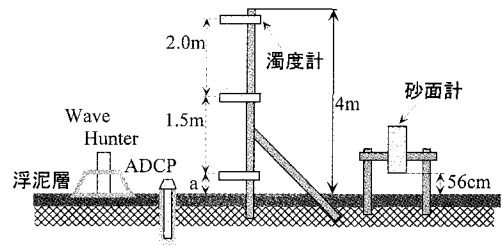
(1) 流動、濁度、波浪などの観測

2003 年 8 月 19 日~10 月 4 日の 47 日間に、図-1 に示す水俣湾内の裸瀬と呼ばれる常時干出した瀬から 100 m 程度離れた測点 (32°11'11"N, 130°22'06"E, 平均水深 16 m 程度) において、ADCP (Nortek 社製, Aquadopp Profiler 1000 kHz) 1 台、自記式波浪計 (アイオーテック社製, WaveHunter-99 Σ) 1 台、ワイパー付きの後方散乱光式クロロフィル濁度計 (アレック電子社製、

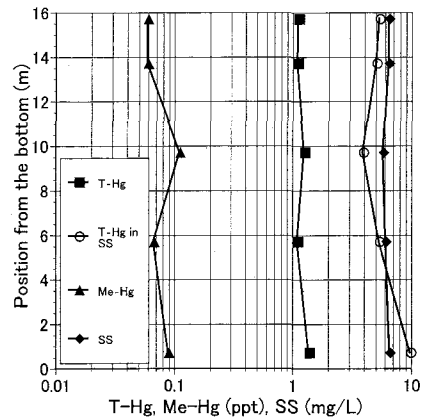
* 正会員 博(工) 九州大学学術研究員 大学院工学研究院環境都市部門
** 正会員 博(工) 長崎大学助教授 工学部社会開発工学科
*** 博(農) 環境省国立水俣病総合研究センター
**** 正会員 修(工) 九州大学助手 大学院工学研究院環境都市部門
***** 博(理) 鹿児島大学助教授 理学部
***** 兼 博 環境省国立水俣病総合研究センター
***** 正会員 博(工) 長崎大学教授 環境科学部環境科学科
***** 工 博 Ljubljana 大学教授 土木測地工学科
***** 化 博 Jozef Stefan 研究所部長 環境科学部



図一 観測地点 (上図: 水俣湾の位置, 下図: 水俣湾)



図二 観測機器設置状況の概略図



図三 水銀濃度とSSの鉛直分布 (水銀は、乾重量)

Compact-CLW) 3 台, 超音波式砂面計 (沿岸海洋調査社製, USR-10) 1 台を図-2 に示すように海底設置し, 連続観測を行った. なお, 設置地点は厚さ 10 cm 程度の浮泥層があり, 最下部の濁度計から浮泥層表面までの距離 a は, 設置時で 27 cm, 撤去時で 30 cm であった. 本研究では, 設置時における浮泥層表面を基準海底面として考えるので, 濁度計の観測位置はそれぞれ下から 27, 177, 377 cm となる. 各計測器のサンプリング時間は, ADCP: 20 分毎に 100 秒間, WaveHunter: 1 時間毎に 20 分間, 濁度計: 10 分毎に 30 秒間, 砂面計: 30 分毎に 1 回とした. ADCP の測定層厚, ブランクおよびヘッドの海底面からの高さは, それぞれ 50 cm, 40 cm, 16 cm と設定した. すなわち, 第 1 層 (最下層) の中心位置は海底面上 81 cm となる. 各観測機器は相互干渉を防ぐためにそれぞれ 5 m 程度離して設置された.

(2) 水銀濃度の観測

水銀濃度の鉛直分布を明らかにするために, 2003 年 10 月 3 日の 08:30~09:30 の間に, 観測地点において海水のサンプリングを行った. 今回のサンプリングでは, 採水水深を精度良く抑えるために, ポンプ式採水器の採水ホース先端に水深計 (Eijkkelkamp 社製, Diver 30 m 用, 精度 FS 0.1%) を取り付け, 観測船上のパソコンで採水位置をモニタリングしながら採水作業を行った. 採水前

に水深計の気圧補正を行った後, 底質の巻き上げを防ぐために表層より順番に水面下 0 m, 2 m, 6 m, 10 m, 15 m の水深で採水を行った. なお, 採水時の水深は 15.6 m であった.

採水したサンプルは, 直ちに国立水俣病総合研究センターの実験室へ運ばれ, 濾過後に溶存態の総水銀 (T-Hg), 溶存態のメチル水銀 (Me-Hg), 懸濁態の総水銀 (T-Hg in SS), ならびに浮遊懸濁物質濃度 (SS) を測定した. 各項目の測定法は, 総水銀が還元気化原子吸光度法 (循環式一改良型), メチル水銀がジチゾン抽出-ECG-GLC 法を採用した. (財団法人日本公衆衛生協会, 2001)

3. 観測結果と考察

(1) 水銀濃度の鉛直分布

水銀濃度 (単位重量海水当たり) と SS の測定結果を表-1 に, 鉛直分布を図-3 に示す. 溶存態について総水銀はほぼ一定であるが, メチル水銀は中層と底層にピークがある. 一方, 懸濁態の総水銀は, 中層が極小で底層にピークがある. また, SS についてはほぼ一定であった. 懸濁態の総水銀濃度と SS より, SS 成分に付着した総水銀濃度を計算すると, 表-1 に示した通りになった. 矢野ら (2003) は, 水俣湾の水銀 flux の評価に, 既存の底質

表-1 水銀, SS の測定結果, ならびに SS 付着分濃度 (水銀は, 乾重量)

海底からの位置 m	溶 存 態		懸 濁 態 T-Hg (ppt)	SS mg/L	SS 付着分 T-Hg (ppm)
	T-Hg (ppt)	Mg-Hg (ppt)			
15.7	1.12	0.0595	5.36	6.45	0.83
13.7	1.10	0.0595	5.05	6.45	0.78
9.7	1.26	0.1116	3.92	5.8	0.68
5.7	1.10	0.0670	5.35	6.1	0.88
0.7	1.38	0.0893	9.82	6.6	1.49

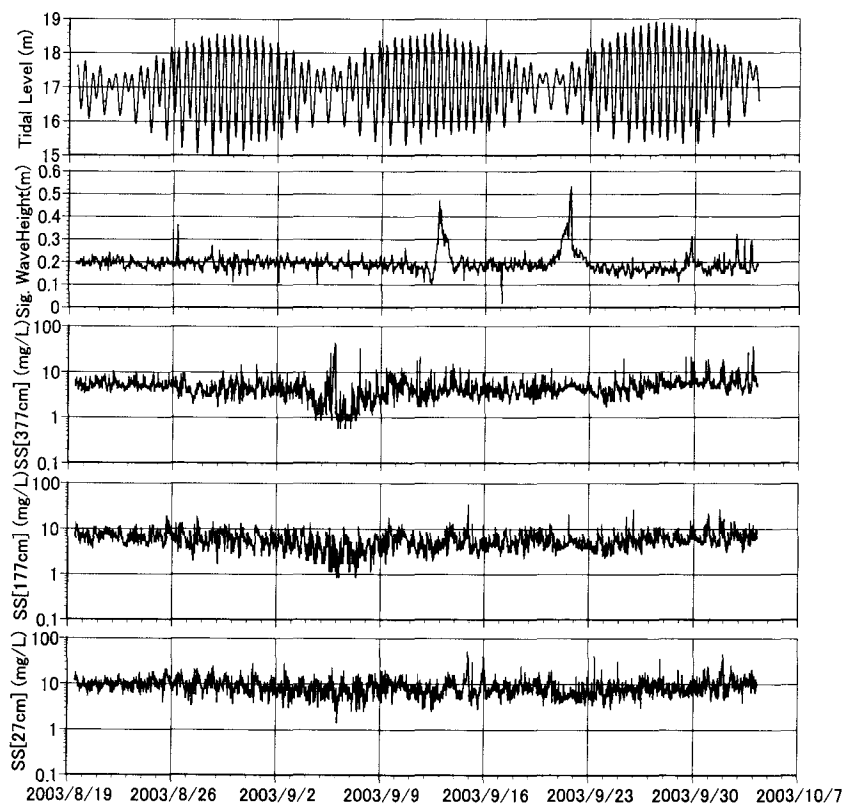


図-4 観測結果の時系列 (上段より潮位, 有義波高, SS (底面より 377, 177, 27 cm 層))

中総水銀濃度 6.5~9.0 ppm (底質中メチル水銀濃度は 2~13.5 ppb) を使用していたが, 今回測定された濃度は底層を除き 1 オーダー低かった。また, Haraguchi ら (2000) の報告では, 1998 年 6 月の水俣湾内における底質中の総水銀濃度は, 表面から 5 cm までの層で 1.1~9.0 ppm (平均値 4.0 ppm, 標準偏差 2.6 ppm), 5 cm から 10 cm までの層で 1.0~8.3 ppm (平均値 3.8 ppm, 標準偏差 2.7 ppm) の範囲にあった。したがって, 海水中に浮遊していた懸濁物質は水俣湾内の底質起源以外のものが含まれていたと推定される。

(2) 流れ, 濁度などの観測結果

図-4 に, ADCP に付属の水位センサーから得られた潮位, WaveHunter より得られた有義波高, 濁度計から

得られた SS の時系列を示す。今回使用した濁度計は, ホルマジン標準液にて濁度の校正が行われているため, 10 月 3 日に採水した現場海水を用いて各濁度計について SS へのキャリブレーションを行ったところ, 相関係数 0.99 以上の検量線が得られた。観測期間には 4 度の小潮期と 3 度の大潮期が含まれていた。また, 観測期間中の波浪条件は, 9 月 11~12 日にかけて台風 0314 号が, 9 月 19~20 日にかけて 0315 号が九州に接近したが, 比較的穏やかであり著しい暴浪はなかった。観測地点の水深は約 16 m 程度であり, 2002 年の観測と同様に SS の上昇と有義波高には顕著な相関性は認められなかった。2 回目の小潮期を挟む 9 月 3 日~7 日の期間において, 377 cm と 177 cm の SS が減少し, 変動幅が大きくなってい

るが、アメダス水俣のデータによるとこの期間中には降雨もなく穏やかな天候であったので、現段階で原因は不明である。また、砂面計により得られた底面の変位(図は省略)は1~2 cm 程度の振幅で振動していたが、今回の観測条件では潮汐や波浪との相関性は見られなかった。

次に、ADCP から得られた反射強度 RL (ADCP の受波レベル) から SS への変換を、以下に示す矢野ら (2003) と同様の手順で行った。まず、体積後方散乱強度 SV を dB 表記されたソナー方程式

$$SV = RL - SL + TL - A \dots \dots \dots (1)$$

で表す。ここで、 SL : 送波レベル, TL : 球面拡散と海水の吸収による伝搬損失, A : ADCP のトランスデューサーにより決定される定数である。 TL に含まれる海水の吸収係数を Francois・Garrison (1982) の実験式より, $pH=8$, 水深を 16 m, 水温は ADCP の水温センサーより得られたデータより $24 \sim 27^{\circ}C$ の範囲, 塩分は別途 2003 年 7 月 29 日に実施した成層調査結果より $29 \sim 33$ psu の範囲にあると仮定し推定したところ, 0.309 dB/m を得た。次に, $(SL+A)$ の値はセンサーの特性により決定されるが, 本観測では ADCP の設定条件を 2002 年観測と同じにしているため, その際に得られている $(SL+A) = 49.2$ dB を使用した。また, ADCP の反射強度を dB へ変換するためのファクターは 0.45 dB/counts とし, 反射強度は 3 つのトランスデューサーの平均値を用いた。これらより, 受波レベル RL より SV を推定した。最後に, 懸濁態粒子の粒度分布に大きな変化がないと仮定し, 体積後方散乱強度 SV と濁度計から得られる SS 濃度との相関から回帰式を求めたところ,

$$SS = 4.9 \exp(0.1 SV) \dots \dots \dots (2)$$

相関係数 $r=0.90$ となり, 比例定数は 2002 年冬季の 1.3 とは異なる値が得られた。これらより, ADCP の反射強度データから SS 濃度の推定を行った。なお, ADCP のサイドローブ干渉域として各時刻における全水深の 15% 程度を表層から削除して解析した。

図-5 に ADCP の反射強度から推定した海底上 181 cm 層と 381 cm 層の SS 濃度と 177 cm 層と 377 cm 層の濁度計から得られた SS 濃度を 8 月 26 日~29 日の大潮期について時系列にして示す。ADCP からの推定値が 50 cm の厚さの層における平均値であるのに対して, 濁度計はセンサー前面での点計測であるので完全に対応することは期待できないが, ADCP は比較的良好に SS の変動を捉えていた。

(3) SS と水銀の輸送について

大潮期である 8 月 26 日~29 日の期間について, 図-6 に潮位の時系列図と総水銀 flux (T-Hg flux) のスティックダイアグラムを示す。 SS 中に含まれる総水銀濃度の鉛直分布は, 表-1 に示した測定結果より海底面から 0.7

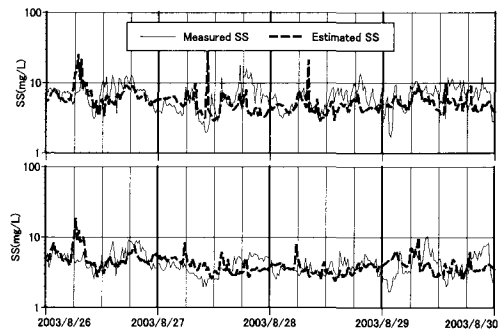


図-5 SS の推定値と観測値の比較 (上段: 181 cm 層, 下段: 381 cm 層)

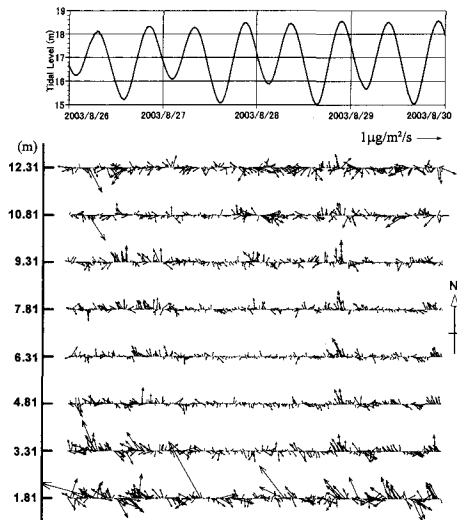


図-6 大潮期の潮位変動と T-Hg flux のスティックダイアグラム

m までを 1.49 ppm, 5.7 m より上層は測定値の平均をとり 0.8 ppm とし, 0.7 m~5.7 m の間は線形的に補間した分布を仮定した。日潮不等により, 底層付近は潮差の大きさで輸送量が変動していることが分かる。また, 表層付近は水銀の輸送量が比較的大きいが, これは反射強度が大きく, SS が高く評価されていたためである。表層付近の植物プランクトンの増殖に起因する反射強度の増大や密度躍層での超音波の屈折による干渉などの原因も考えられるが詳細は不明である。

図-7 に海底面上 181 cm, 831 cm, 1231 cm の各層について, 観測期間の単位幅 (1 m) 当たりの SS 総輸送量 (net) の 16 方位分布を示す。2002 年冬季の結果と較べて, 下層では卓越方向が分散していた。また, 水深により卓越方向が異なり, 上層ほど輸送量は大きくなっていった。

最後に, 図-8 にサイドローブ干渉域を除く範囲で水深積分された観測期間の単位幅当たり総水銀輸送量

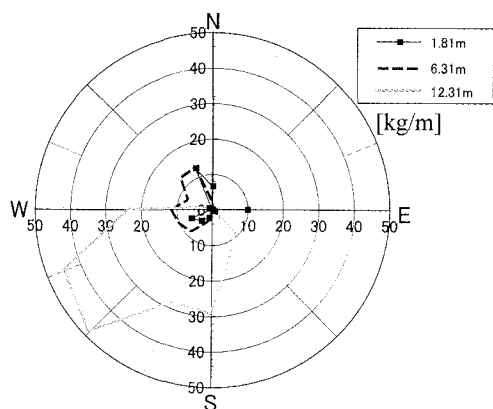


図-7 netのSS輸送量の方位分布

(net)の16方位分布を示す。卓越方向は、2002年冬季の北北西と異なり、南南西となっていた。得られた各方向の総水銀輸送量について西向き成分を算出し、そのまま引き延ばして1年間に水俣湾西側湾口から八代海へ流出する総水銀の量を見積もると、約30 kgとなった。2002年冬季の観測結果より見積もられた値は55~77 kgであったが、使用したSS中の総水銀濃度が高かったため、今回の測定結果より1 ppm程度と見なし再計算を行うと約8.5 kgが得られた。したがって、夏季と冬季では水銀の輸送量に3倍程度の違いが生じていたことになる。メチル水銀の輸送量については、今回測定を行っていないのでHaraguchiら(2000)のデータより総水銀の0.1%程度がメチル水銀と仮定すると、0.03 kg程度が年間流出量として見積もられた。

4. まとめ

夏季の水俣湾において、底泥中に残留する微量水銀の輸送を把握するために、流れや濁度などの連続観測と水銀濃度の鉛直分布の測定を実施した。冬季と同様、八代海への流出傾向が見られたが、流出量や卓越方向は変化していた。2度の観測より、沿岸域における底質中に残留した水銀輸送を把握するための基本的観測システムが構築できたと考えられる。ただし、柳瀬ら(2004)による水俣湾全体の流況観測結果より明らかなように、湾内に地形性渦が発生するなど流況は複雑であるので、より正確な輸送量の把握には湾口部での連続観測や多点での同時連続観測が必要である。

今後は、水銀濃度分布の季節変化や一潮汐間での変化の測定や、SS中水銀濃度の粒度分布依存性の把握など水銀に関する情報を増やすことや、SSの組成や粒度分布の

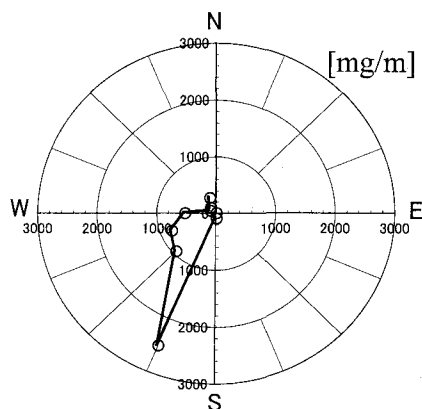


図-8 netの総水銀輸送量の方位分布

把握などが求められる。

謝辞：本研究は、日本学術振興会の平成14年度日欧科学協力事業(共同研究)の援助により実施された。また、観測にあたり、水俣市漁業協同組合(岩崎巧組合長)に多大なご協力を頂いた。ここに記して深甚なる感謝の意を表する。

参考文献

- 財団法人日本公衆衛生協会(2001): 水銀汚染対策マニュアル, 89 p.
- 柳瀬夏樹・多田彰秀・矢野真一郎・中村武弘・押川英夫・赤木洋勝(2004): 水俣湾の流動構造に関する現地観測, 第59回土木学会年次講演会概要集, II, CD-ROM.
- 矢野真一郎・多田彰秀・押川英夫・中村武弘・赤木洋勝・松山明人・富安卓滋・Rudolf Rajar・Milena Horvat(2003): 水俣湾における底泥動態の現地観測, 海岸工学論文集, 第50巻, pp. 1006-1010.
- Francois, R. E. and G. R. Garrison (1982): Sound absorption based on ocean measurements. part II: Boric acid contribution and equation for total absorption, J. Acoust. Soc. Am., Vol. 72, No. 6, pp. 1879-1890.
- Haraguchi, K., T. Ando, M. Sato, C. Kawaguchi, T. Tomiyasu, M. Horvat and H. Akagi (2000): Detection of localized methylmercury contamination by use of the mussel adductor muscle in Minamata Bay and Kagoshima Bay, Japan, Sci. Total Environ., Vol. 261, pp. 75-89.
- Rajar, R., D. Zagar, M. Cetina, H. Akagi, S. Yano, T. Tomiyasu and M. Horvat (2004): Application of three-dimensional mercury cycling model to coastal seas, Ecological Modelling, Vol. 171, pp. 139-155.
- Tomiyasu, T., A. Nagano, N. Yonehara, H. Sakamoto, Rifardi, K. Oki and H. Akagi (2000): Mercury contaminant in the Yatsushiro Sea, south-western Japan: spatial variations of mercury in sediment, Sci. Total Environ., Vol. 257, pp. 121-132.