

<報文>

浄化槽排水を主な水源とする水路での魚類等へい死事故の調査について*

富田比菜**・高橋紗希**・山下 浩**

キーワード ①アンモニア ②魚類へい死 ③浄化槽

要 旨

令和元年11月、水路及び水路が流入する小河川において、多種類の水生動物のへい死事故が発生した。事故現場の河水のpHは9前後と弱アルカリ性であった。また、流入する水路等の水において高いアンモニウムイオン (NH₄⁺) 濃度が確認された。NH₄⁺は、弱アルカリ性で毒性の高い遊離態アンモニア (NH₃) となることから、NH₃がへい死原因と考えられた。水路の水の主な供給源は、流通団地内の事業所から排出される浄化槽排水であり、浄化槽排水が排出される側溝の一部でNH₄⁺濃度が100 mg/Lを超えていた。アンモニアの毒性にはpHによる形態が大きく関わっていることから、アンモニア濃度を測定する場合はpH測定と併せて実施することが重要である。

1. はじめに

令和元年11月、高知県内の水路及び水路が流入する小河川において魚類等へい死事故が発生した。へい死区間は約1 kmにわたり、へい死生物はナマズ、ギンブナ、モツゴ、タナゴ、カエル、カメ、カニ、エビと多種類であった。

事故時及び事故後に採取した水からアンモニウムイオン (NH₄⁺) が高い濃度で検出された。また、事故現場の水のpHは9前後と弱アルカリ性であった。NH₄⁺は弱アルカリ性では毒性の高い遊離態アンモニア (NH₃) となることから、NH₃がへい死原因と考えられた。なお、へい死魚及び水から農薬や高濃度の重金属等は検出されなかった。

水路へ流入する主な水は、運送会社等の事務所が多く入る流通団地の浄化槽排水であり、流入水の一部のNH₄⁺濃度が高いことから浄化槽排水がNH₄⁺供給源と推測された。なお、当該地域は公共下水道が整備されていない地域であるため、汚水は浄化槽で処理されている。

アンモニアを原因とした魚類のへい死は沖縄県や岡山県で報告されている。沖縄県では遊離アンモニアによる呼吸障害を原因と推定する事例が例年起こっている¹⁾²⁾。岡山県では、富栄養化した溜め池の底質から溶出したアンモニアが、光合成で高pHとなっている表層に上がってきて、魚類にダメージを与えると推定している³⁾。本事例はこれらの他県事例には当てはまらず、当該水路でアンモニアの毒性が高くなっている原因を推定するのが困難であった。

今回、浄化槽排水を主な水源とする水路での魚類へい死事故において、アンモニアの挙動を中心に調査したので報告する。

2. 現場概況

へい死があった場所は、流通団地周辺を流れるA川及びB水路である。現場概況を図1に示す。

流通団地は小さな山の東側に位置する。B水路は小山に沿うように下り、A川へ合流する。A川のB水路流入地点より上流にはほとんど水はなく、流入地点付近からC橋にかけて流れはほぼなく水が貯まっている。C橋より下流では緩やかな流れがあり、水田地帯を流れていく。

B水路の水は、3つの水路の水から成っている。3つの水路のうち、1つは小山添いに水田地帯の中を流れてくる農業用水路である。この水路を「山側水路」とする。また、山側水路と並行して流れている水路があり、この水路は流通団地の駐車場横の側溝から始まっている。この水路を「団地側水路」とする。団地側水路には、流通団地からの排水の流入はほぼない。流通団地内の排水は南へと流れ、最終的に斜面を下ってグラウンドの北側を流れる水路に入る。この水路を「グラウンド北水路」とする。グラウンド北水路は、暗渠で団地側水路へ合流する。さらに、その約1 m下流で、団地側水路と山側水路が合流する。合流地点周辺では、水は貯まり、滞っている。合流地点付近の水深は50 cm程度である。

合流前の団地側水路及び山側水路の水量は少ない。特

*Investigation of Aquatic Animals kill Incident in the Watercourse Receiving Wastewater from Domestic Wastewater Treatment Tanks

**Hina TOMITA, Saki TAKAHASHI, Hiroshi YAMASHITA (高知県衛生環境研究所) Kochi Public Health and Environmental Science Research Institute

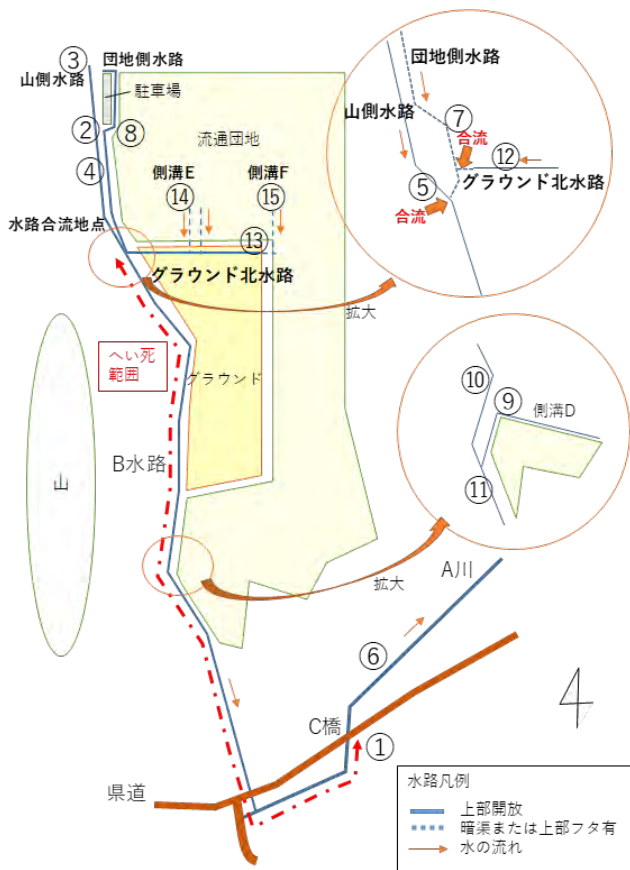


図1 現場概況図及び調査地点

に団地側水路では、合流地点から離れていくと約30 mのところまで水深5 cm程度になり、底が露出しているところもある。

グラウンド北水路は幅2 m、水深4 cm～20 cmで、流れは緩やかである。団地内側溝からの水は3カ所（東端1カ所、中央2カ所）から流入する。水は西向きに流れており、西端から団地側水路へ暗渠で合流する。水路の底質については、東端から2/3程度は概ね砂だが、西端付近は落ち葉やヘドロが溜まっており、泥になっている。

令和元年11月は、降雨がない状態が19日間続いていたが、事故通報日未明にはまとまった降雨（合計21 mm）があった。

3. 調査

3.1 へい死現場調査及び試料採取

へい死は、B水路（水路合流地点から河川への流入地点にかけて全ての範囲）及びA川（水路流入地点からC橋付近の範囲）にて確認された。

原因究明のため、事故の確認後から約1ヶ月間に数回調査を行い、B水路及びA河川の水を採取した。水は、金属のひしゃくで採取し、ポリエチレン瓶で保存した。原因究明のための調査であるため、調査日によって調査地点は異なる。調査地点は図1中に番号を示した。以降、地点

番号は図1中の番号とする。

また、事故確認から3ヶ月後に、底質及び水のウレアーゼ（尿素分解）活性を確認するため、底質、周辺の土壌及び水を採取した。底質及び土壌はスコップで採取後、滅菌した葉さじにてポリエチレンチューブに入れて保存した。水は滅菌済みチューブに入れて保存した。

3.2 事故時及び事故後調査項目

現地で、pH測定（電極法）及びアンモニアパックテスト（共立理化学研究所）を実施した。また、溶存酸素（DO）の測定を行う場合は、現場でDOの固定を行った。

採取した水試料について、全窒素（TN）・全りん（TP）及びイオン成分（ SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 F^- 、 NO_2^- 、 PO_4^{3-} 、 NH_4^+ 、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} ）の濃度を分析した。TN・TPは、自動化学分析装置（ビーエルテック、SWAAT）を用い、TNについては銅・カドミウムカラム還元法（流れ分析法）、TPについてはペルオキシ二硫酸カリウム分解法（流れ分析法）により測定した。イオン濃度は、イオンクロマトグラフ法（Thermo Scientific, Dionex Integrion）により測定した。得られた NO_3^- 、 NO_2^- 、 NH_4^+ の濃度からそれぞれ硝酸態窒素（ NO_3-N ）、亜硝酸態窒素（ NO_2-N ）、アンモニア態窒素（ NH_4-N ）の濃度を計算し、それらの合計（ $NO_2-N+NO_3-N+NH_4-N$ ）を無機態窒素濃度とした。同様に PO_4^{3-} 濃度からリン酸態リン（ PO_4-P ）濃度を計算した。DOはよう素滴定法により測定した。

3.3 追加調査項目

3.3.1 ウレアーゼ活性確認

渡部らの報告に準じ⁴⁾、底質、周辺土壌及び水のウレアーゼ活性の確認を行った。底質及び土壌については、検体をミクロスパーテルで採取し1 mLの生理食塩水に懸濁したもの10 μL、また、水については採取した検体10 μLを、0.5 mLの尿素培地（栄研化学）3本に摂取し37℃、20℃及び6℃で培養した。赤変したものを陽性とし、1週間後及び2週間後に判定した。

3.3.2 BODおよびN-BOD

BOD及びN-BODを測定した。N-BODは、アリルチオ尿素を添加し、硝化反応を抑制させ培養したBODをC-BODとし、BODからC-BODを差し引くことで算出した。

4. 結果及び考察

4.1 pH, DO, イオン濃度及びTN・TP

イオン成分は SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 F^- 、 NO_2^- 、 PO_4^{3-} 、 NH_4^+ 、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} を分析したが、本件の試料の NH_4^+ 濃度は他成分よりかなり高く、 NH_4^+ が分析可能な濃度に希釈したため、イオン成分によっては希釈の影響により検出できなかった可能性がある。結果については、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 PO_4^{3-} 、 NH_4^+

について報告する。なお、本報告でNH₄⁺と記載した場合はイオンクロマトグラフの結果であり、アンモニアと記載した場合はNH₄⁺とNH₃の形態を区別せずに論ずる。

イオン成分は採取当日または翌日に分析を行っているが、TN・TPは採取から約3週間後に測定した値である。

以下、結果を時系列順に記す。

4.1.1 1日目（事故通報当日）（表1）

事故発生場所を管轄する福祉保健所（以下、保健所）へ事故について通報があった。保健所職員が現場調査を行い、A川のC橋（地点1）及び山側水路（地点2及び3）で検体採取を行った。へい死発見現場であるC橋ではへい死魚のほか、弱っている魚を確認した。採取したナマズ2匹のうち1匹はまだエラが少し動いている状態だった。このことから、調査時には水質異常が継続していたと考えられる。また、ナマズののどには捕食されたブルーギルが入っており、事故直前まで活動していた様子がうかがえたことから、水質異常は突然起こったと推測した。

C橋のNH₄⁺濃度は130 mg/L、pHは9.1であった。NH₄-N濃度としては100 mg/Lであり、これは淡水域における水産用水基準0.26 mg/L（pH 9.0、水温12℃のとき）を大きく超えていた⁵⁾。また、玉城らは、「DOが7.0 mg/L前後の値をとる時は、NH₄-N濃度が12 mg/L以上でないと事故の発生オッズは高くならないが、DOが4 mg/L以下に減少したり、10 mg/L以上の過飽和になると、低濃度のNH₄-Nの水質下でも事故が発生することが示唆された。」と報告している⁶⁾。本検体ではDOの測定は行ってはいないものの、NH₄-N濃度は12 mg/Lと比較しても高く、事故が発生しやすい状況だったと考えられる。

アンモニアは弱アルカリ性では非解離のアンモニア（NH₃）として存在し、毒性が高くなる⁵⁾。C橋の水質は弱アルカリ性でNH₄⁺濃度が高く、へい死が発生しうる状態であった。一方、へい死場所上端より上流である山側水路の2地点については、pHはやや高めであるもののNH₄⁺濃度は低かった。

4.1.2 2日目（表2）

へい死の状況を確認するため、現地調査を行った。C橋のNH₄⁺濃度は高く、かつ、弱アルカリ性の状態を保持していた。これは、事故のあったA川に流れがほとんどなく、流入する水も少ないためと考える。DOは4.6 mg/Lとへい死が起こる程ではないがやや低かった。

B水路系統については、水路合流地点から約1 m程度上流である山側水路合流前（地点5）では、やや高い濃度（26 mg/L）で検出された。しかし、さらに上流である地点4でNH₄⁺は低濃度であったことから、山側水路以外の2水路からのNH₄⁺流入が疑われた。いずれの地点もpHは中性よりやや高かった。DOの測定は行っていない。

4.1.3 3日目（表3）

2日間の調査から、へい死の原因は弱アルカリ性での高アンモニア状態であることが疑われたため、NH₄⁺流入の継続の有無及び流入源の確認を行うため追加調査を行った。

C橋のNH₄⁺濃度は2.8 mg/Lとへい死が起こらない程度に低くなっていた。pHは中性であり、DOも8.8 mg/Lであった。しかし、水路合流地点付近の山側水路合流前（地点5）及び団地側水路合流前（地点7）において、NH₄⁺がそれぞれ750 mg/L及び1000 mg/Lで検出された。山側水路合流前は、前日の26 mg/Lから大きく増加した。pHは、山側水路で9.1と弱アルカリ性であったが、団地側水路では6.7と中性であった。DOは山側水路で2.8 mg/L、団地側水路で1.2 mg/Lと低かった。この2地点ではPO₄³⁻濃度も高くなっていた。両地点のTN/TP比はそれぞれ16、17とほぼ同じであり、この2地点の汚染源は同じであると考えられる。なお、この水質異常による新たなへい死は発生していない。これは先のへい死でB水路の生物がほぼ全滅したためと考える。この調査で、水路合流地点付近へ新たにNH₄⁺成分が流入していることが疑われた。団地側水路の上流地点である駐車場横の集水枡（地点8）のNH₄⁺濃度は0.2 mg/Lと低く、この経路からの流入ではないと考えられた。地

表1 pH、イオン濃度及びTN・TP（1日目）

地点名	番号	pH	(mg/L)								
			NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂ -N+NO ₃ -N+NH ₄ -N	TN	PO ₄ ³⁻	PO ₄ -P	TP	TN/TP比
C橋	①	9.1	6.0	1.2	120	99	120	14	4.7	5.1	25
山側水路 上流1日目	②	7.4	2.9	0.15	0.97	1.4	1.8	0.43	0.14	0.27	7
山側水路 最上流	③	8.4	2.6	0.14	0.34	0.9	1.5	0.92	0.30	0.49	3

表2 pH、DO、イオン濃度及びTN・TP（2日目）

地点名	番号	pH	DO	(mg/L)								
				NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂ -N+NO ₃ -N+NH ₄ -N	TN	PO ₄ ³⁻	PO ₄ -P	TP	TN/TP比
C橋	①	9.2	4.6	6.5	1.3	120	95	86	13	4.1	4.1	21
山側水路 上流	④	8.8	-	1.7	n.a.	0.40	0.71	0.87	5.9	1.9	0.26	3
山側水路 合流前	⑤	8.5	-	4.8	1.3	26	21	23	4.3	1.4	1.3	18
C橋下流	⑥	8.9	-	7.3	1.2	30	25	27	3.5	1.1	1.1	24

表3 pH, DO, イオン濃度及びTN・TP (3日目)

(mg/L)

地点名	番号	pH	DO	NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂ -N+NO ₃ -N+NH ₄ -N	TN	PO ₄ ³⁻	PO ₄ -P	TP	TN/TP比
C橋	①	7.5	8.8	7.4	0.10	2.8	3.9	3.8	0.36	0.11	0.20	19
山側水路 上流	④	8.1	11.6	3.9	0.10	0.10	1.0	1.2	0.50	0.16	0.19	7
山側水路 合流前	⑤	9.1	2.8	14	3.3	750	590	2800	530	170	170	16
団地側水路 合流前	⑦	6.7	1.2	17	3.9	1000	820	4400	770	250	260	17
団地側水路 集水橋	⑧	8.4	6.4	2.7	0.049	0.2	0.78	-	0.036	0.011	-	-

表4 pH, イオン濃度及びTN・TP (5日目)

(mg/L)

地点名	番号	pH	NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂ -N+NO ₃ -N+NH ₄ -N	TN	PO ₄ ³⁻	PO ₄ -P	TP	TN/TP比
C橋	①	8.0	7.1	0.078	1.2	2.5	2.5	0.36	0.11	0.15	16
山側水路 合流前	⑤	9.4	7.0	4.1	400	310	480	78	25	29	17
団地側水路 合流前	⑦	9.1	n.a.	2.6	270	210	300	25	8.3	20	15
浄化槽排水流入側溝D	⑨	6.2	410	1.1	85	150	160	56	18	17	9
B水路 D側溝水流入前	⑩	9.2	5.1	2.5	330	260	300	46	15	16	19
B水路 D側溝水流入後	⑪	9.4	13	2.3	320	250	310	42	13	14	21

点8と団地側水路合流前の間で大量に水が流入する地点はなく、NH₄⁺はグラウンド北水路から流入していると推察した。

4.1.4 5日目 (表4)

4日目の夕方、住民から管轄保健所へ同水路周辺の異臭についての通報があった。保健所職員が検知管を用いて大気中アンモニア濃度を測定したところ2 ppmであった。翌日(5日目)、保健所が異臭のあった地点周辺の水についてアンモニアパックテストを実施したところ、周辺団地内の1つの浄化槽排水から80 mg/Lで検出されたため、当所において保健所が採取した周辺の水の検査を行った。

3日目に高いNH₄⁺濃度を示した2地点については、310 mg/L及び210 mg/Lと低下はしていたものの依然高い濃度であった。団地側水路合流前のpHは、3日目の6.7から9.1へ上昇していた。

浄化槽排水が流入する側溝D(地点9)のNH₄⁺濃度は85 mg/Lとアンモニアパックテストどおりであったが、側溝の水が流入した前後(地点10及び11)でのB水路のNH₄⁺濃度に変化はなかった。また、側溝D水のTN/TP比は9であり、B水路の水のTN/TP比の2分の1程度であった。これらから、側溝DとB水路の水質は異なり、B水路全体の高NH₄⁺状態はこの浄化槽排水によるものではないと考えられた。

4.1.5 10日目 (3日目採取水の性状変化)

3日目採取水を、採取から7日後に冷蔵室(6℃)から取り出したところ、山側水路合流前及び団地側水路合流前の検体の性状が変化していた。保存していた容器のフタを開けると強いアンモニア臭があり、ヘッドスペースのアンモニア濃度を測定したところ検知管の最高濃度200 ppm以上であった。また、団地側水路合流前のpHは採取時には6.7であったが、7日後には9.6に変化していた。当検体について、採取から3週間後に再度イオン成分を測定し、採取時の値と比較した(表5)。NH₄⁺濃度が5倍に増加し、PO₄³⁻以外の陰イオンとNa⁺が減少していた。無機態窒素濃度は820 mg/Lから4000 mg/Lに増加した。TNは変化しないと仮定すると、採取時はNのうち約18%が無機態窒素として、残り82%が有機態窒素で存在していた。変化後は約91%が無機態窒素として、残り9%が有機態窒素で存在していた。団地側水路合流前の検体では、冷暗で貧酸素の環境下で有機態窒素が分解しNH₄⁺が増加していたということになる。一方、NO₃⁻及びNO₂⁻は減少していた。

一般的に有機物は微生物等により分解されて尿素等の有機態窒素となり、さらにNH₄⁺となる。NH₄⁺は好氣的条件下で、硝化菌によってNO₂⁻になり、さらにNO₃⁻になる(硝化)。また、嫌氣的条件下で、NO₃⁻は還元されてN₂となる(脱窒)。本検体においては、有機物及び有機態窒素は

表5 事故3日目採取水の採取日及び保管3週間後のイオン成分

(mg/L)

測定日	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	F ⁻	NO ₂ ⁻	PO ₄ ³⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺
採取日	38	17	28	2.2	3.9	770	1000	260	n.a.	n.a.	n.a.
3週間経過後	5.5	n.a.	15	n.a.	n.a.	810	5100	160	n.a.	n.a.	n.a.

※ NH₄⁺に合わせて500倍希釈で測定しているため、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺は希釈により測定できていない可能性がある。

表6 pH, DO, イオン濃度及びTN・TP (16日目)

地点名	番号	pH	DO						(mg/L)	
				NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂ -N+NO ₃ -N+NH ₄ -N	PO ₄ ³⁻	PO ₄ -P	
山側水路 合流前	⑤	8.3	9.9	3.1	0.056	0.10	0.8	0.32	0.10	
団地側水路 合流前	⑦	8.2	5.7	9.6	1.0	15	14	3.1	1.0	
グラウンド北水路 西端	⑫	8.1	5.8	23	1.8	31	30	7.5	2.4	
グラウンド北水路 東端	⑬	7.5	8.9	30	1.2	4.8	11	4.2	1.3	

表7 pH, イオン濃度及びTN・TP (18日目)

地点名	番号	pH						(mg/L)				
			NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂ -N+NO ₃ -N+NH ₄ -N	TN	PO ₄ ³⁻	PO ₄ -P	TP	TN/TP比	
C橋	①	-	4.1	0.140	0.39	1.2	1.9	0.49	0.16	0.25	7	
山側水路 合流前	⑤	8.3	11	2.2	12	13	14	3.5	1.1	1.3	11	
グラウンド北水路 西端	⑫	8.4	0.36	0.42	17	13	16	3.2	1.0	1.3	13	
グラウンド北水路 東端	⑬	7.1~8.1	25	1.6	2.8	8.4	8.6	3.7	1.2	1.2	7	
浄化槽排水流入側溝E	⑭	7.6	1.5	1.1	180	140	130	30	9.8	8.0	16	
浄化槽排水流入側溝F	⑮	7.1	0.088	0.13	0.0050	0.065	2.7	n.a.	n.a.	0.40	7	

分解されてNH₄⁺となったが、DOが消費されて貧酸素となっていることから、NO₂⁻及びNO₃⁻に酸化されず、また、わずかに存在していたNO₂⁻及びNO₃⁻は嫌気的条件下でN₂となり減少したと推測する。脱窒過程ではOH⁻が放出されてpHが上昇するため、当検体においてもpHが上昇したと考えられる。

4日目に現場大気中でアンモニアが検出されたことから、現場のB水路でも同様の変化が起こっていたと推測した。

これは、へい死が起こった後(3日目)に確認された水質異常であるため、このことがへい死の原因とは言えない。しかし、事故通報以前にも同様のことが発生したとすると、B水路に生息していた多種類の生物をへい死に至らせた可能性がある。また、B水路のアンモニア汚染が、通報日未明の降雨によりA川に広がったことでへい死範囲が広がったのではないかと考えた。

4.1.6 16日目 (表6)

14日目に日量65.5 mmの降雨があり、保健所が現場にてアンモニアパックテストを実施したところ、全地点でNH₄⁺濃度1 mg/L以下となっていた。しかし、これまでの調査から再流入の恐れがあったため16日目に再調査したところ、NH₄⁺濃度が団地側水路合流前(地点7)では15.7 mg/Lに上昇していた。また、流入源として疑われたグラウンド北水路の東端では4.8 mg/Lであったが、西端では31.3 mg/Lであったことから、この水路の途中で窒素源が供給されている可能性が高いと考えた。なお、pHは全地点において、弱アルカリ性ではなく、DOも十分にあることから、へい死が起こる状態ではなかった。

4.1.7 18日目 (表7)

NH₄⁺は、グラウンド北水路→団地側水路→B水路という流れで流入している可能性が考えられたため、グラウンド北水路への流入水を調査した。

グラウンド北水路西端のNH₄⁺濃度は17 mg/Lであるのに対し、東端は2.8 mg/Lであり、推測どおりグラウンド北水路の途中で高いNH₄⁺濃度の水が流入していることがわかった。実際、グラウンド北水路の中頃で合流する側溝(浄化槽排水流入側溝E, 地点14)の検体のNH₄⁺濃度が180 mg/Lと高値であった。TN/TP比は16とグラウンド北水路西端のTN/TP比に近い値であり、この側溝の水がグラウンド北水路西側の水質に影響を与えていると推測された。浄化槽排水流入側溝EのpHは7.6と中性であったが、グラウンド北水路西端のpHは8.4とやや高かった。

また、pHについては、東端で最初に測定した時は7.1であったが、その1時間後には流入水の影響により8.1に上昇していた。このことから、グラウンド北水路の水質は側溝から流入する水の影響を直接的に受け、NH₄⁺濃度やpHが時により変化する可能性が示唆された。

高pHの水が、NH₄⁺濃度の高い水路へ流入すると毒性の高いNH₃の存在比が高くなると考えられ、流入水によるpHの上昇もへい死を引き起こす原因の一つとなった可能性がある。

4.2 追加調査

4.2.1 ウレアーゼ活性確認試験 (表8)

培養温度は、夏期から冬期までを想定した37, 20, 6℃の一定温度とした。培養後、強く赤変したものを++、やや赤変したものを+とした。

底質については、培養1週間後のグラウンド北水路西端

及び中央並びに山側水路の検体で、37℃及び20℃の培養温度で陽性であった。また、これらの検体では2週間後には6℃においても陽性となった。周辺土壌は37℃で1週間後に陽性となり、20℃で2週間後に陽性となった。6℃での反応は認められなかった。

水の検体では、グラウンド北水路全ての水及び山側水路合流前の水が2週間後に20℃で陽性となった。山側水路の上流の水は37℃でのみ陽性であった。浄化槽排水流入側溝Eの水は1週間後に20℃で強く赤変し、2週間後には37℃でも強く赤変した。また、当所で保管していた事故3日目採取水でも同様の検査を行ったところ、全ての温度で陽性であった。なお、対照として実施した一般家庭の浄化槽排水においては、いずれの温度でも陽性とならなかった。

以上から、グラウンド北水路及び山側水路合流前の底質には、土壌とは異なり6℃という低温でもウレアーゼ活性をもつ微生物が存在することが考えられた。また、同地点の水には、20℃でウレアーゼ活性をもつ微生物が存在し、これは浄化槽排水流入側溝Eの水と同様であった。このことから、側溝からグラウンド北水路へ20℃でウレアーゼ活性をもつ微生物が供給されている可能性が示唆された。

グラウンド北水路では、NH₄⁺が側溝から供給されるのに加え、6℃から37℃と幅広い温度で尿素が分解され、アンモニアが産生されており、これらが当該水路を平常時からアンモニア濃度の高い水路としていると推察する。

4.2.2 BOD及びN-BOD (表9)

代表地点6カ所のBOD及びN-BODを測定した。

表9 BOD及びN-BOD

地点名	pH	DO	(mg/L)		
			BOD	C-BOD	N-BOD
C橋	7.4	6.3	4.3	4.1	0.1
山側水路 合流前	7.7	6.1	14.5	13.6	0.9
グラウンド北水路 西端	8.1	5.7	51.2	45.0	6.1
グラウンド北水路 東端	7.5	9.2	1.4	1.2	0.1
浄化槽排水流入側溝E	-	2.7	142.3	105.2	37.1
浄化槽排水流入側溝F	7.2	6.4	61.9	66.1	-4.1

NH₄⁺濃度が高かった浄化槽排水流入側溝E（地点14）において、全BODのうちN-BODの割合は26%であり、他の地点より硝化菌による硝化活性が高かった。グラウンド水路西端でもN-BODの割合が12%であり、当該地点にも硝化菌が存在すると考えられ、平常時から硝化菌が繁殖できる環境であることが示唆された。

5. まとめ

今回、へい死が起こったA川、B水路及びB水路へ流入するグラウンド北水路で高いNH₄⁺濃度が確認された。グラウンド北水路への水の供給源は、団地内の事業所から排出される浄化槽排水であった。浄化槽排水が排出される側溝の一部で100 mg/Lを超える高濃度が確認され、この側溝が主なNH₄⁺供給源と考えられた。しかし、この側溝水のpHは中性であり、その状態では魚類へい死を起こす状態のNH₃にはなっていないようだった。

調査中、B水路及び当所で保存していた水のpHが中性から弱アルカリ性に変化したことが観察された。これは、有機物が多い水の内部変化によると推察され、この状態ではNH₄⁺は毒性の高いNH₃になっていると考えられた。しかし、グラウンド北水路のpHは流入してくる側溝の水の

表8 底質、土壌及び水のウレアーゼ活性

種類	地点名	1週間後			2週間後		
		培養温度			培養温度		
		37℃	20℃	6℃	37℃	20℃	6℃
底質	グラウンド北水路 西端	++	++	-	++	++	++
	グラウンド北水路 中央	++	++	-	++	++	+
	グラウンド北水路 東端	-	-	-	-	++	+
	山側水路 合流前	++	++	-	++	++	+
土壌	グラウンド	-	-	-	-	-	-
	グラウンド北水路横 土手	++	-	-	++	+	-
	山側水路横 山	++	+	-	++	++	-
水	山側水路横 水田	++	+	-	++	++	-
	グラウンド北水路 西端	-	-	-	-	+	-
	グラウンド北水路 中央	-	-	-	-	+	-
	グラウンド北水路 東端	-	+	-	-	++	-
	山側水路 合流前	-	-	-	-	+	-
	山側水路 上流	+	-	-	++	-	-
	浄化槽排水流入側溝E	+	++	-	++	++	-
一般家庭浄化槽排水	-	-	-	-	-	-	
水	(参考)事故3日目採取水	++	++	++	++	++	++

pHに影響されていることも確認しており、外部の影響によりpHが高くなることでNH₄⁺がNH₃になる可能性も考えられた。今回の調査ではどちらが原因でへい死が起こったかは判明できなかった。

また、グラウンド北水路に供給される水には、NH₄⁺とともにウレアーゼ活性を持つ微生物及び硝化菌が含まれていた。さらに、当該水路の底質は、幅広い温度でウレアーゼ活性を示すことを確認した。このことから、水路においても、尿素的分解によりアンモニアが増加している可能性が考えられた。

その後の調査においても、グラウンド北水路西端ではアンモニアパックテストで10 mg/L程度検出されている。しかし、へい死は起こっておらず、この状態がこの水路の平常状態と考える。

高知県汚水処理人口普及状況は、下水道整備率40%、農業集落排水施設等3%、浄化槽人口普及率が31% (H31. 3. 31時点) となっており、下水道の整備されていない地域では浄化槽が使用されていることが多い。今回は、事務所の浄化槽からの排水が原因と考えられる事例であったが、県内のどこでも起こりうる事例と考える。

高知県では、魚類へい死事故が発生すると、事故発生場所を管轄する保健所が現場調査を行い、その際にはpH、DO、水温の測定や必要なパックテスト等を行うこととしている。これまで高知県ではアンモニアを原因としたへい死が確認されたことはなく、アンモニアパックテストは実施してこなかった。しかし、今回の事例でアンモニア濃度の確認も必要であることがわかった。また、アン

モニアの毒性にはpHによる形態が大きく関わっていることからpHを同時に測定することが重要である。さらに、アンモニア濃度及びpHが上昇した原因を推測するためDOを把握しておくことが望ましい。

へい死調査時は、通報者等の思い込み等に捕らわれず事実や各種測定結果から原因を探っていくことが必要であるため、これまでの初動調査で行ってきたとおり、pH、DO、水温等の基本項目の測定は重要であることを改めて感じた。

6. 引用文献

- 1) 藤崎菜津子, 塩川敦司, 當間龍一, 小渡亜紗美: 沖縄県の公共用水域におけるへい死魚調査事例—2014年度—。沖縄県衛生環境研究所報, **49**, 110-112, 2015
- 2) 藤崎菜津子, 塩川敦司: 沖縄県の公共用水域におけるへい死魚調査事例—2015年度—。沖縄県衛生環境研究所報, **50**, 96-97, 2015
- 3) 斎藤直己, 北村雅美, 藤田和男: 魚のへい死事象における水質調査—とくにため池での事例について—。全国環境研会誌, **30**, 33-39, 2005
- 4) 渡部正弘, 斎藤紀行: 低温下の尿素系融雪剤分解による魚毒性。水環境学会誌, **25**, 93-96, 2002
- 5) 公益社団法人日本水産資源保護協会: 水産用水基準 2018年版 (第8版), 2020
- 6) 玉城不二美, 仲宗根一哉, 宮城俊彦: 水質指標を用いたロジスティック回帰モデルによる魚類のへい死事故の要因判別。全国環境研会誌, **36**, 178-186, 2011