

# 沖縄県におけるクロルデン調査

大見謝辰男

## Environmental Survey of Chlordene Levels in Okinawa

Tatuo OMIJA

### I はじめに

現在、シロアリの防除または駆除剤としてクロルデンが使用されている。沖縄県におけるクロルデンによる環境汚染は、昭和56年に大城<sup>1)</sup>によって報告され問題提起がなされた。環境庁も昭和57年度にクロルデン類に関する精密環境調査を全国規模<sup>2)</sup>で実施しており、また、宮崎県においても斉藤ら<sup>3), 4)</sup>によりシロアリ防除のためのクロルデン散布で地下水が汚染された事例が報告されている。これからも、クロルデンによる環境汚染の実態は年々明らかになり、報告等も増加するものと思われる。

ところで、当県では定期的な環境監視の一環として公共用水域や米軍基地排水に関する水質や底質、および事業場排水中のPCBの検査を実施しており、昭和58年度はのべ172検体を分析した。この、公定法によるPCB検査では、検体中に含まれるクロルデンを除去することができず、ガスクロマトグラム上でPCBの妨害ピークとなって現われる。大城<sup>1)</sup>は逆にこのことを利用して、クロルデンをPCBと同時定量することを考案している。昭和58年度は、前述の行政依頼のPCB検査の傍ら、大城の方法によりクロルデンを同時定量し若干の知見を得たのでここに報告する。

### II 実験法

#### 1 試料

検水容器は昭和58年4月から6月中旬の間は5ℓのポリ容器を使用した<sup>5)</sup>が、後述するようにポリ容器へはクロルデンの吸着が著しいため、以後、原則として3ℓのガラス容器を使用し、3ℓ分取した。底質は底質調査法に基づき10g分取した。

#### 2 装置、操作等

装置や操作等は大城のPCBとの同時測定法<sup>1)</sup>をほぼそのまま踏襲し、テクニカルクロルデン含有量として算出した。

### 3 検出(定量)限界

ブランクテストにおけるクロルデン類のピーク高総和は10回のテストで1~3.5で、3.5が最も多く4回であった。定量限界を便宜的にブランク値の3倍として設定すると、水質試験では0.006ppb、底質試験では乾重量換算で3ppbとなる。

### III 結果及び考察

#### 1 ポリ容器のクロルデンの吸着

通常検水のサンプリングに使用している、洗剤で洗浄済の5ℓポリ容器3本をとり、それぞれに水1ℓとn-ヘキサン80mlを10分間振とうした後、n-ヘキサン層を常法により分析した。その結果、最高572ngのクロルデンが検出され、またDDEやKC-300と思われるPCBのピークも確認した(表1)。環境庁告示のPCB分析法では試料容器の内壁をn-ヘキサンの洗剤で洗い検水に加えることになっているが、仮にこのポリ容器の内壁に吸着していたクロルデンがすべて3ℓの検水内に洗い落とされた<sup>1)</sup>とすると、+0.19ppbの誤差を与える。大城によると、昭和54年の県内公共用水域の検水からクロルデンが検出された地点の平均値は0.09ppbなので、ポリ容器はこれの採取容器としては不適當である。このため、この結果が得られた後は、採水を担当する各機関の協力を得て、PCB(クロルデン)の採水は原則として3ℓガラスびんを使用している。

表1 5ℓポリ容器のクロルデンの吸着量

ポリ容器の外観	クロルデン吸着量(ng)	備考
かなり古い	572	PCB(KC-300) DDE 検出
普通	52	
比較的新しい	353	

表2 水質中クロルデン濃度の分布

範 囲 (ppb)	公共用水域 河川水	基地関係排水で民 間影響が強いもの	計
<0.003	12	3	13
~0.006	4	2	6
~0.010	2		2
~0.020	3	4	6
~0.030	2	1	3
~0.040	2	1	3
~0.050		1	1
~0.060		2	2
~0.070			
~9.080			
~0.090		1	1
~0.100	2		2
~0.110		1	1
~0.120			
~0.130	1		1
計	28	16	41

また、<sup>3)</sup> 齊藤らも、ポリ容器使用時のクロルデンの回収率は24時間後で45.5%、48時間後で34.7%であり、採水容器としてはガラスびんが良いと報告している。

## 2 濃度分布

クロルデン濃度の統計量を求める際、生データと対数値のどちらを用いればよりの確な結果が得られるのか解析した。

一測定点で継続的にクロルデンを測定するようなデータの積み重ねがないので、公共用水域河川水の測定値 (n=28) を用いて分布を調べた。定量限界は0.006ppbであるが、0.003ppbまでは読取り可能なのでここでの検出限界は0.003ppbとした(表2)。また、この分布状況が、真にクロルデンによるものか、それとも測定点間の差によるものか判断するため、対象としてこれらの検水と同時に採取され分析されたBODとSSの値の分布も調べた。その結果、これらの累積度数値は、正規確率紙では3項目とも直線性が得られなかった(図1)。一方、対数確率紙ではクロルデンがかなり良い直線を示したのに対し、BOD、SSとも曲線を示した。(図2) さらに、クロルデン測定値のnの数を大きくするため、基地排水関係の測定点で民間からの影響を強く受けている地点を抜き出し、これらのクロルデンの測定値を前述のデータに加

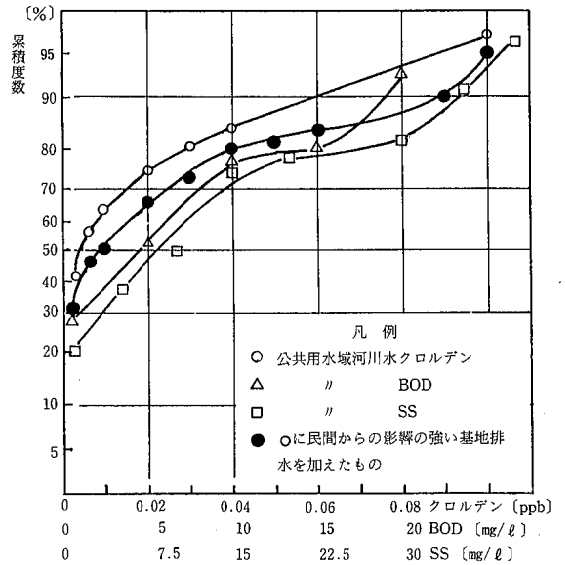


図1 正規確率紙におけるクロルデン、BOD、SSの濃度分布

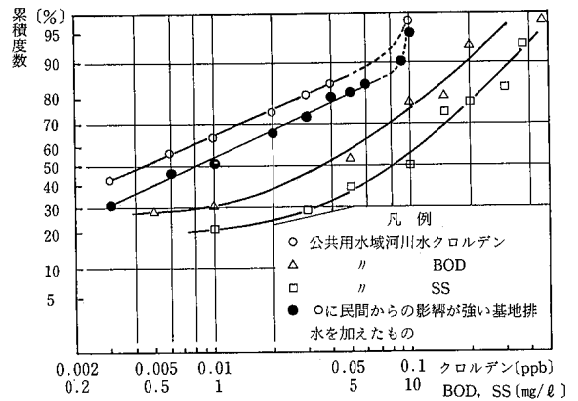


図2 対数確率紙におけるクロルデン、BOD、SSの濃度分布

え、一つの母集団と見なして分布を調べた。その結果、対数確率紙で直線となった(図2)。

以上のことから、クロルデン測定値の統計解析には、その対数値を用いたほうがより適確な結果が得られると思われる。このため、以後の平均値は幾何平均による。

## 3 公共用水域(河川)(別表1)

28地点の検水のうち、12件からクロルデンが検出された。検出されなかった16地点のうちわけは、

沖縄本島北部の全14地点と中南部がそれぞれ1地点ずつである。県内におけるクロルデンの用途はほとんどが住宅への散布だと思われ、人口の集中している中南部のほうが北部よりクロルデンの使用量がかなり多いと推定される。これと対応して、河川水からの検出率も中南部のほうが北部よりも圧倒的に高くなっているものと思われる。中杉らによると、クロルデン類と社会・自然条件との相関係数を求めると最も高い相関を示したものは測定地点に面した地域の人口密度であり、当県における状況を良く説明し得る。なお、最高値はNo.4比謝川ヨナバル川合流点の0.122ppbで、これは主として沖縄市から流出してきたものと思われる。この下流のNo.3トニー橋、No.2比謝ポンプ場では自浄作用により0.018ppb、0.022ppbに減少している。その他の高濃度地点としては、No.100枚港川取水点(0.100ppb)、No.102宇地泊川取水点(0.098ppb)が挙げられる。

底質は15地点で21回採取し、12地点で検出された。乾重量比濃度平均値が100ppbを越えたのは、No.81久茂地川泉崎橋(344ppb)、No.85安里川蔡温橋下流200mの橋(110ppb)、No.8国場川真玉橋(108ppb)等の都市河川であった。

#### 4 公共用水域(海域)(別表2)

検水は11海域の27地点より採取した。そのうち16地点はポリ容器を使用した。検出されたのは、ポリ容器採取ではNo.35那覇港海域の泊港内の0.015ppb、ガラス容器採取ではNo.120糸満海域の潮平地先の0.020ppb及びNo.42名護湾の部間海岸の0.007ppbの3地点であった。

底質は8海域、13地点より採取し、うち2海域の4地点から検出された。那覇港海域からは、No.35泊港内の310ppbを筆頭にNo.33那覇港内の49ppb、No.38安謝川河口沖の35ppbが検出されたが、この地点はそれぞれ安里川、久茂地川と国場川、安謝川という都市河川の河口部になっており、これらの河川からクロルデンが流入し堆積したものと思われる。また、No.108羽地内海の内海中央から都市河川なみの82ppbが検出された。

#### 5 米軍基地排水(別表3)

昭和58年度の基地排水監視調査は10基地、26地点でそれぞれ1~2回実施した。この26地点は、クロルデンに関しては基地流入前等、ほとんど民

表3 基地排水のクロルデン負荷形態別濃度比較

	民間型	半民間半基地型	基地型
測定回数*	3	13	21
検出数	3	9	8
検出率(%)	100	69	38
最大値(ppb)	0.102	0.052	0.046
平均値**(ppb)	0.078	0.022	0.015

\* ガラスビンで採取されたものに限る

\*\* 検出されたものの相乗平均値

間の影響だけを受けているのが2地点(以下、民間型と称す)、民間地域の影響も強く受けていると思われるのが10地点(以下、半民間半基地型と称す)、ほとんどが基地の影響と判断されるもの14地点(以下、基地型と称す)に分類される。これら3グループを比較すると、クロルデン検出率、平均値、最高値とも基地型が最も低く、民間型が最も高かった(表3)。また、嘉手納飛行場ではクラサク川(比謝川支流)で、キャンプ・瑞々覧では普天間川で、基地流入前と基地の下流に測定点を設け基地の影響を調査している。両河川とも、沖縄市や宜野湾市の住宅密集地からクロルデン濃度が比較的高い河川水が基地内に流入しているが、基地から流出する時点では濃度が半分以下になっている。

#### 6 基地周辺海域(別表4)

6基地(海域)の10地点で採水し、K-35キャンプ瑞々覧の石川原川河口海岸で0.009ppb、K-33嘉手納飛行場の大道川河口海岸で0.006ppbが検出された。これら2地点はいずれも半民間半基地型である。

底質は9地点で採取し5地点で検出された。最高値は水質と同じくK-35で、16ppbの値を示した。

#### 7 事業場排水(別表5)

事業場排水の監視のためのPCB検査として古紙再生工場3ヶ所(計7回)下水処理場5ヶ所(計11回)の採水を実施した。このうち、クロルデンは古紙再生工場からは検出されなかったが、下水処理場の全検体から都市河川なみかそれよりもやや低い濃度で検出された。濃度範囲は0.009~0.051ppbで、平均は0.024ppbである。

#### 8 底質中クロルデン濃度の4年前との比較

昭和53、54の両年に大城<sup>1)</sup>が県内における底質

表4 底質中クロルデン濃度平均値\*比較

		昭和54(53)年**	58年度	減少率
公 共 用 水 域 河 川		134 ppb	31 ppb	約 1/4
" 海 域		210	81	約 1/3
基地周辺 海 域	半民半基地型	316	9	約 1/35
	基 地 型	627	7	約 1/90
	平 均	477	8	約 1/60

\* 昭和54(53)年と58年度の両方とも検出された地点の相乗平均値

\*\* 大城の測定による。

中のクロルデン濃度を測定している。54年（データがないものは53年）と今回（58年度）のどちらもクロルデンが検出されたものは、公共用水域河川が12、同海域が3、基地周辺海域が5地点である。これらの地点について平均値を比較検討した（表4）。

公共用水域河川では58年度は54年の約4分の1、同海域では約3分の1に減少している。一方、県業務課調べのクロルデン使用量の年次別推移は、54年の約60tをピークに56年まで横ばいを続けた後、57年は約3分の1の約23tに減少している。58年は未調査であるが、関係者の話では約20t程度であろうということである（図3）。この使用量の減少は、大城の問題提起後の行政指導や業者の自主規制によるものであるが、底質中の濃度の減少傾向もこれと強い関連性があると考えられる。

基地周辺海域の底質中クロルデン濃度はらさに

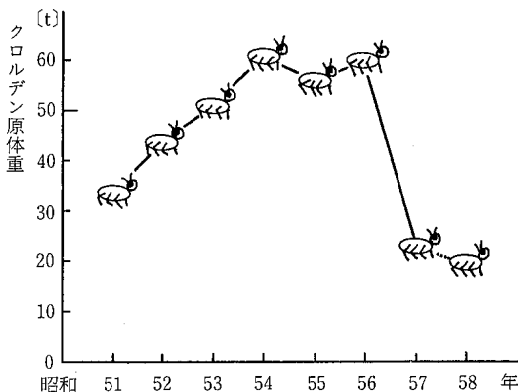


図3 シロアリ防除剤（クロルデン）使用中の年次推移（県業務課調べ）

変動が著しく、半民半基地型で約35分の1、基地型で約90分の1、平均で約60分の1に減少している。この基地型の3地点はいずれも牧港補給地区周辺海域に含まれる。同基地はベトナム戦争時は極東随一の米陸軍の総合補給基地であり、昭和48年には過去20年余にわたる同基地からの廃油や薬物のたれ流しによる海岸の汚染が大きな社会問題となり、翌49年、汚染された6,000tもの沿岸底質を米軍に除去させた。その後も度々同基地内の野積されたドラム缶が腐食し、薬剤等が流出して死魚事例となったりしたが、関係者の話では現在ではかなり改善され、新たな流出等は確認できないとのことである。この地域のクロルデン濃度は、長期的にみて減少していくものと思われる。

#### IV まとめ

1. クロルデン検水の採取容器としては、ポリ容器は不適當である。
2. 水質中のクロルデンの濃度分布は対数正規分布すると思われるが、今後検討を要する。
3. 水質中クロルデン濃度は、本島北部よりも、人口（住宅）の密度の高い中南部が著しく高い。また、基地関係排水をグループ別けて比較すると、基地そのものよりも、民間住宅地域からの負荷が大きい。
4. 底質中クロルデン濃度は、4年前と比較して全体的に減少傾向が著しいが、那覇市及びその周辺の都市河川では依然として比較的高濃度で検出された。
5. 県内におけるクロルデン使用量は昭和54年のピーク時の約3分の1に減少している。一方、公共用水域底質中のクロルデン濃度も全体的にみて

3～4分の1に減少しており、使用量との関連が深いと思われる。また、牧港補給地区海域底質のクロルデン濃度は4年前の90分の1に減少しているが、基地から新たなクロルデン汚染がない限り、長期的にみて減少の一途をたどるものと予想される。

## V 参考文献

- 1) 大城善昇. “クロルデンと環境汚染(1)分析法と環境汚染の実態”. 沖縄県公害衛生研究所報. 第14号, p.1-16 (1980).
- 2) 環境庁環境保健部保健調査室. “昭和58年版化学物質と環境”. 保健調査室レポートシリーズ. No.9, (1983).
- 3) 斉藤和洋他. “クロルデンによる井戸水汚染例について”. 第8回九州衛生公害技術協議会抄録集. P.29-32 (1983).
- 4) 斉藤和洋他. “環境および魚介中のクロルデンについて”. 第9回九州衛生公害技術協議会抄録集. p.3-5 (1984).
- 5) “底質調査方法”. 昭和50年10月28日環水第120号. p.2-4
- 6) 沖縄県環境保健部. “昭和58年度沖縄県における公共用水域の水質測定結果”. 公害対策資料No.59, 1984. p.73-235.
- 7) 沖縄県総務部知事公室. “沖縄の米軍基地”. 1983. p. 98.
- 8) 沖縄県渉外部. “沖縄の米軍基地”. 1975. p125-128.
- 9) 沖米環境汚染合同調査委員会. “沖縄県浦添市牧港補給地区, 環境汚染調査報告書”. 沖縄県公害衛生研究所報. 第8号, p45-71 (1975).
- 10) 沖縄タイムス. “中部西海岸の米軍基地による主な汚染”. 1975. 8月24日.

別表1 公共用水域（河川）のクロロデン測定結果

水 域 名	番 号	採 取 地 点	類 型	水質クロロデン濃度 (ppb)	底質クロロデン濃度 (ppb)			
					1 回 め	2 回 め	相乗平均値	54(53)年*
比 謝 川	2	比 謝 川 ポ ン プ 場	B	0.022	10	5	7	20
〃	3	ト ニ ー 橋	C	0.018				
〃	4	ヨ ナ バ ル 川 合 流 点	D	0.122	34			60
〃	5	ヨ ナ バ ル 川 上 流			ND			<10
国 場 川	7-ロ	那 覇 大 橋	C	0.016	49	48	48	110
〃	8	真 玉 橋	E	0.016	45	260	108	30
溝 名 川	25	渡 久 地 橋	B	ND	5			60
〃	26	伊 野 波 川 合 流 点	A	ND				
漢 名 川	44	合 流 点	A	ND				
羽 地 大 川	46	名 護 市 取 水 点	A	ND				
我 部 祖 河 川	47-イ	奈 佐 田 川 合 流 点 から 上 流 100m	D	ND				
〃	48	同 合 流 点 から 支 川 上 流 100m	A	ND				
〃	51	石 橋	A	ND				
安 波 川	54	安 波 大 橋	B	ND				
〃	55	安 波 小 中 校 後 方	A	ND				
普 久 川	56	御 拝 橋	B	ND				
〃	57	御 拝 橋 から 上 流 420m の 沢	A	ND				
汀 間 川	58	嘉 手 苅 橋 から 上 流 200m	B	ND				
〃	60	三 原 小 中 校 上 流 50m の 橋	A	ND				
天 願 川	73	河 口	C	ND	ND			<10
〃	75-イ	昭 和 製 紙 前 場			6			420
〃	76-ロ	取 水 場			6			<10
〃	77	合 流 点 下 流 100 m	B	0.009				
久 茂 地 川	81	泉 崎 橋	E	0.039	320	370	344	20
安 里 川	85	蔡 温 橋 下 流 200m の 橋	E	0.035	76	160	110	1380
饒 波 川	89	石 火 矢 橋		0.007	40			230
安 謝 川	92	安 謝 橋	E	0.025	56	57	56	500
報 得 川	96	川 尻 橋			3			220
〃	97	水 位 計 設 置 点	E	0.005				
牧 港 川	99	宇 地 泊 川 合 流 点			97			470
〃	100	牧 港 川 取 水 点	C	0.100				
〃	102	宇 地 泊 川 取 水 点	C	0.098				
辺 野 喜 川	113	辺 野 喜 橋	C	ND				

\* 大城の測定による（検出限界10ppb）

（注）底質は乾重量比で表示。水質のNDは&lt;0.006、底質のNDは&lt;3

別表2 公共用水域（海域）のクロロデン測定結果

水 域 名	番号	採 取 地 点	類型	水質クロロデン濃度 (ppb)	底質クロロデン濃度 (ppb)	
					58年度	54(53)年*
中 城 湾	11-ロ	当 添 海 岸	A	ND**		
〃	13	湾 内 (日本石油東)	A	ND**	ND	<10
〃	15	湾 内 (知念半島北)	A	ND**		
与 勝 海 域	16	埋 立 地 西 海 岸	A	ND**		
金 武 湾	20-ハ	暁 製 紙 前 海 岸			ND	<10
〃	20-ニ	天 願 川 河 口	A	ND**	ND	120
〃	21-ロ	石 川 ビ ー チ 沖	A	ND**		
〃	24	湾 口 中 央	A	ND**		
那 覇 港	31	那 覇 港 沖	A	ND**		
〃	32-ロ	那覇下水処理場前海域			ND	10
〃	33	那 覇 港 内	A	ND**	49	90
〃	34	那 覇 新 港 入 口	A	ND**		
〃	35	泊 港 内	A	0.015**	310	330
〃	36	自 謝 加 瀬 東	A	ND**		
〃	38	安 謝 川 河 口 沖			35	310
名 護 湾	40	名 護 海 岸	A	ND	ND	10
〃	41	湾 内	A	ND		
〃	42	部 間 海 岸	A	0.007		
宮古海域 平良港	62-ハ	第3阜頭北端から北へ300m	A	ND**	ND	10
〃 与那覇湾	65-イ	沖繩製糖旧さん橋北端		ND**		
八重山海域 石垣港	68	新栄町地区南西端から西へ300m	A	ND**	ND	<10
〃 川平湾	71	小島の南先端と双葉地境とを結ぶ線上の中心点	A	ND**		
羽地内海	104	仲尾次漁港地先	B	ND		
〃	106	呉我地地先	B	ND		
〃	108	内海中央	A	ND	82	
〃	111	内海北水路南端	A	ND		
糸満海岸	119	糸満漁港		ND	ND	
〃	120	潮平地地先		0.020		
〃	121	西防波堤中央		ND	ND	
〃	122	埋立地北端		ND		
〃	124	糸満漁港沖		ND		

\* 大城の測定による

\*\* ポリ容器で採取

(注) 底質は乾重量比で表示。水質のNDは<0.006、底質のNDは<3。

別表3 米軍基地排水のクロルデン測定結果

基地名	番号 K-	採取地点	水質クロルデン濃度(ppb)		分類*
			1回め	2回め	
北部訓練場	1-イ	新川川上流	ND	ND	基
〃	1-ロ	排水口	0.024		基
キャンプ・シュワープ	2	屎尿処理施設	ND		基
キャンプ・ハンセン	3	県道104号線下排水溝	ND	ND	基
〃	4	屎尿処理施設	ND	ND	基
キャンプ・コートニー	5	屎尿処理施設	ND		基
陸軍貯油施設	6	具志川市在貯油施設	ND	ND	基
キャンプ・マクトリアス	7	天願川流入口	0.046	0.007	基
嘉手納飛行場	8	クラサク川上流(基地流入前)	0.089	0.052	民
〃	9	クラサク川下流(基地流出後)	0.014	0.026	半
〃	10	大工廻川	0.015	0.009	基
〃	11	沖縄酸素横排水溝	ND	ND	半
〃	12	県道74号線下排水溝	ND	0.010	基
〃	13	兼久在排水溝	ND	0.018	半
〃	14	国和舗道K・K横排水溝	0.013**	0.019	半
〃	15	大道川	0.004**	0.006	半
キャンプ・桑江	16	シカゴ通り横排水溝	0.017**	0.017	半
〃	17	軍病院前排水溝	ND**	ND	半
キャンプ・瑞ヶ覧	18	白比川上流	定性**	0.039	半
〃	19	北谷発電所横排水溝	定性**	0.044	基
〃	20	普天間川上流(基地流入前)	ND**	0.102	民
〃	21	普天間川下流(基地流出後)	ND**	0.050	半
〃	22	石川原川	定性**	0.052	半
牧港補給地区	23	st 8・9	0.007		基
〃	24	st 10	ND		基
〃	25	st 11	ND		基

\* 分類型 クロルデンの負荷が { ほとんど基地からと判断されるもの → 基  
 { ほとんど民間からと判断されるもの → 民  
 { 両方からと判断されるもの → 半

\*\* ポリ容器で採取

(注) 底質は乾重量比で表示。NDは<0.006。



別表4 米軍基地周辺海域のクロルデン測定結果

基地名	番号 K-	採取地点	水質クロルデン濃度 (ppb)	底質クロルデン濃度 (ppb)		分類型**
				58年度	54(53)年*	
キャンプ・シュワブ	31	海中排水口周辺	ND	ND		基
キャンプ・コートニー	32	処理施設排水口周辺	ND			基
嘉手納飛行場	33	大道川河口海岸	0.006	5	1000	半
キャンプ・桑江	34	軍病院前地先海岸	ND	ND		半
キャンプ・瑞ヶ覧	35	石川原川河口海岸	0.009	16	100	半
〃	36	ハンビー飛行場跡地先	ND	ND		半
牧港補給地区	37	st 8.9	ND	14	1070	基
〃	38	st 10	ND	ND	1150	基
〃	39	st 11	ND	9	390	基
〃	40	ランバーヤード	ND	3	590	基

\* 大城の測定による

\*\* 分類型は別表3参照

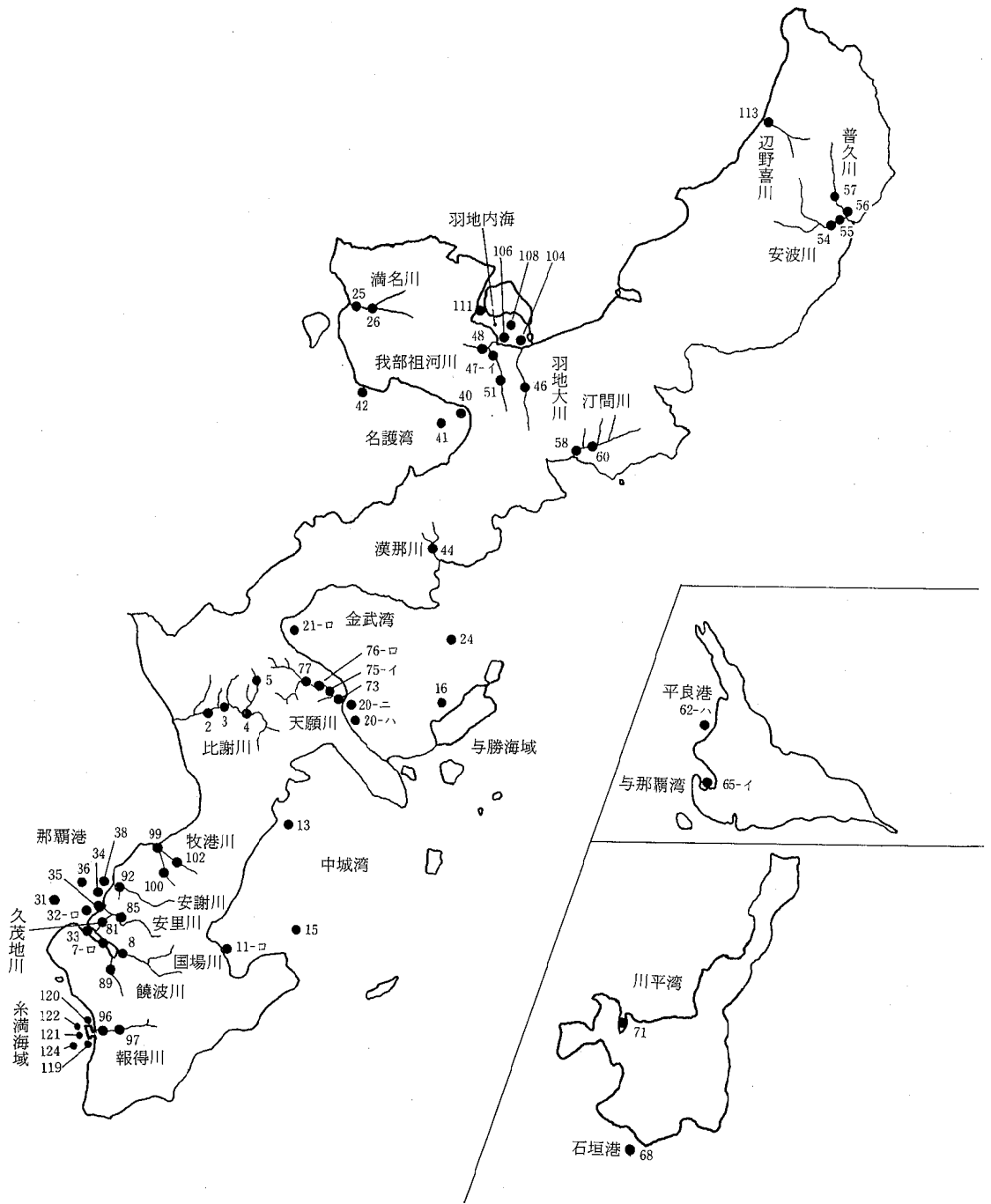
(注) 底質は乾重量で表示。水質のNDは &lt; 0.006、底質のNDは &lt; 3

別表5 事業場排水のクロルデン測定結果

業態	事業場名	クロルデン濃度 (ppb)		
		1回め	2回め	3回め
古紙再生	A 製紙	ND*	ND	ND
	B 製紙	ND*	ND	ND
	C 製紙	ND		
下水処理	D 下水処理場	0.009	0.025	
	E 終末処理場	定性*	0.018	
	F 下水道終末処理場	定性*	0.026	0.051
	G 下水処理場	定性*	0.029	
	H 下水処理場	定性*	0.032	

\* ポリ容器採取 (注) NDは &lt; 0.006

別図1 公共用水域採取地点



別図2 米軍基地排水採取地点

