有害化学物質の環境汚染実態の解明と分析技術の開発に関する研究

―岡山県の河川における農薬類の環境実態調査―

吉岡敏行, 劒持堅志, 藤原博一, 中桐基晴, 前田大輔(水質第二科), 鷹野 洋, 藤田和男(水質第一科)

【調査研究】

有害化学物質の環境汚染実態の解明と分析技術の開発に関する研究

―岡山県の河川における農薬類の環境実態調査―

Environmental survey of pesticides in the river water of Okayama

吉岡敏行,劒持堅志,藤原博一,中桐基晴, 前田大輔(水質第二科),鷹野 洋,藤田和男(水質第一科) Toshiyuki Yoshioka, Katashi Kenmotsu, Hiroichi Fujiwara, Motoharu Nakagiri, Daisuke Maeda, Hiroshi Takano, Kazuo Fujita

要 旨

岡山県下の公共用水域における農薬類の実態調査を実施した。平成20年度の1年間,9地点で146農薬について調査を行ったところ,除草剤24種類,殺虫剤17種類,殺菌剤13種類,分解生成物2種類が検出された。急性毒性値を超過して検出された農薬は、甲殻類に対してフェニトロチオン(殺虫剤)、藻類に対してカフェンストロール(除草剤)とプレチラクロール(除草剤)であった。農薬類による水生生物へ生態影響評価を試みたところ、基礎的な生産者である藻類及び甲殻類に対して影響が強く現れていることが推測された。

[キーワード:農薬, 多成分分析, 水生生物, 生態影響, GC/MS]

[Key words: Pesticides, Simultaneous analysis, Aquatic creature, Ecological Effect, GC/MS]

1 はじめに

当センターでは従来から GC/MS を用いた農薬類の一 斉分析法を検討し、現在では、146 成分の同時分析を可 能としている ^{1),2)}。この分析方法は、毎年、公共用水域 での魚のへい死事故時等の原因究明に活用している。

岡山県下の公共用水域における農薬類の水環境中の濃度レベルは、昭和63年に児島湖及び流入河川で調査³⁾がなされている。しかし、農薬は、環境残留性や水生生物への影響等を考慮し、毒性や残留性が低く、分解されやすいものへと転換されている。

前回の調査から20年以上が経過し、新たな農薬類も使用されていることから、現在の水環境中の農薬類の濃度レベルを把握するため本調査を実施し、各農薬の検出濃度と急性毒性値から農薬の水生生物への生態影響評価を試みた。

2 調査方法

2.1 調査地点及び調査期間

調査地点は、図1に示す一級河川の高梁川(酒津堰)、 旭川(乙井手堰)、吉井川(鴨越堰)及び主要二級河川の笹 ヶ瀬川(笹ヶ瀬橋), 倉敷川(倉敷川橋), 砂川(新橋), 里 見川(鴨方川合流点), 児島湖(湖心), 用水(内尾用水)の 9地点とした。調査期間は, 平成20年4月から平成21年 3月で, 調査頻度は農薬類の散布時期等を考慮し, 児島 湖を除く地点は5月~9月は月2回, 4月及び10月~3月 は月1回とし, 児島湖は月1回採水を行った。



図1 調査地点

2.3 対象農薬及び分析方法

除草剤52種,殺虫剤67種,殺菌剤27種の合計146農

薬について分析を行った。分析法と対象農薬は既報のと おりである^{1),2)}。分析フローを図2に示す。

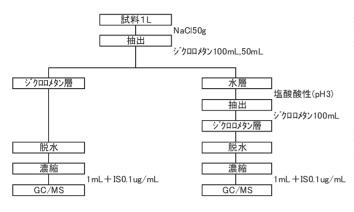


図2 分析フロー

表 1 検出農薬

農薬名	種類	主な用途	検出 回数	/	調査数	最大値 検出年月日	最大値 (μg/L)	地点名
Bentazone	除草剤	稲·畑地	131	/	148	H20.6.24	22	内尾用水
Isoprothiolane	殺菌剤	稲·果樹	94	1	148	H20.6.24	0.67	新橋
Bromobutide	除草剤	稲(初期・中期)	87	/	148	H20.6.24	8.6	新橋
Pyroquilon	殺菌剤	稲(いもち病)	82	/	148	H20.9.2	2.0	新橋
Flutolanil	殺菌剤	稲(紋枯病)	81	/	148	H20.9.16	7.4	内尾用水
Simetryn	除草剤	稲	66	1	148	H20.7.7	0.91	内尾用水
Dichlobenil(DBN)	除草剤	水田·果樹園	60	1	148	H20.6.24	0.10	内尾用水
Thiobencarb	除草剤	稲·畑地	60	/	148	H20.5.13	0.83	新橋
BPMC(fenobucarb)	殺虫剤	稲·野菜	57	1	148	H20.9.16	0.40	内尾用水
Oxadiazon	除草剤	稲	57	1	148	H20.6.9	0.33	笹ヶ瀬橋
MIPC(isoprocarb)	殺虫剤	稲	42	1	148	H20.4.22	1.6	新橋
Daimuron	除草剤	稲	38	7	148	H20.6.24	9.9	鴨方川合流点
IBP(iprobenfos)	殺菌剤	稲(いもち病)	37	/	148	H20.6.9	0.82	内尾用水
Pretilachlor	除草剤	稲(初期)	36	7	148	H20.6.24	2.0	倉敷川橋
Dimethametryn	除草剤	稲	34	7	148	H20.7.7	0.30	倉敷川橋
Mefenacet	除草剤	稲	33	7	148	H20.6.24	7.0	新橋
tricyclazol	殺菌剤	稲(いもち病)	32	1	148	H20.6.24	1.9	倉敷川橋
MEP(fenitrothion)	殺虫剤	稲·野菜·果樹	30	-	148	H20.5.13	4.2	笹ヶ瀬橋
Diazinon	殺菌剤	稲·野菜	29	7	148	H20.7.7	0.38	鴨方川合流点
Esprocarb	除草剤	稲(初期・中期)	29	7	148	H20.6.24	0.92	鴨方川合流点
Fipronil	殺虫剤	稲·野菜·果樹	27	7	148	H20.6.24	0.34	鴨方川合流点
Butachlor	除草剤	稲(初期)	27	7	148	H20.6.9	2.0	笹ヶ瀬橋
Pentoxazone	除草剤	稲	27	7	148	H20.6.24	0.33	新橋
Fthalide	殺菌剤	稲(いもち病)	26	7	148	H20.9.2	0.68	倉敷川橋
Simazine(CAT)	除草剤	畑地·芝	23	7	148	H20.7.22	0.08	内尾用水
Cafenstrole	除草剤	稲	22	-	148	H20.6.24	5.5	鴨方川合流点
Ferimzone	殺菌剤	稲	21	7	148	H20.6.9	1.6	笹ヶ瀬橋
Thenvichlor	除草剤	稲	20	-/	148	H20.6.24	0.50	鴨方川合流点
Prometrin	除草剤	畑地	16	7	148	H20.7.7	0.18	新橋
Buprofezin	殺虫剤	稲·野菜·果樹	15	7	148	H20.9.16	0.33	内尾用水
Methidathion	殺虫剤	果樹・花き類	14	7	148	H20.5.13	0.12	新橋
Malathion	殺虫剤	稲·野菜	10	-	148	H20.10.7	0.18	内尾用水
Pyributicarb	除草剤	稲・芝	10	7	148	H20.6.24	0.20	鴨方川合流点
NAC(carbaryl)	殺虫剤	稲·野菜·果樹	6	7	148	H20.4.22	0.06	鴨方川合流点
MBPMC(Terbucarb)	除草剤	萝	5	7	148	H20.5.27	0.01	新橋
MPP-sulfoxide	分解生成物	~	4	7	148	H20.9.16	0.08	内尾用水
Pencycuron	殺菌剤	稲·野菜	2	- /-	148	H20.9.2	0.03	新橋
Metalaxyl	殺菌剤	稲·野菜	2	7	148	H20.10.7	0.14	内尾用水
Mepronil	殺菌剤	稲·野菜·果樹	2	-	148	H20.8.4	0.02	鴨方川合流点
Shilafluofen	殺虫剤	稲·野菜	2	-/	148	H20.9.16	0.01	新橋
PHC	殺虫剤	稲・野菜	2	7	148	H20.9.16	0.33	内尾用水
CYAP(cyanophos)	殺虫剤	果樹·野菜	2	7	148	H20.7.7	0.09	鴨方川合流点
DCPA(propanil)	除草剤	稲・畑地	2		148	H20.5.27	0.11	新橋
chlorfenapyr	殺虫剤	野菜・花き類	2	-/-	148	H20.6.24	0.01	笹ヶ瀬橋
Trifluralin	除草剤	畑地	1	7	148	H20.12.17	0.03	倉敷川橋
Dimethoate	殺虫剤	ミカン・野菜	i i	7	148	H20.9.16	0.03	倉敷川橋
Chlorpyriphos-methyl	殺虫剤	稲·野菜	i	- /-	148	H20.12.2	0.01	児島湖湖心
MPP(fenthion)	殺虫剤	稲·野菜·果樹	i	1	148	H20.5.13	0.01	新橋
Procymidone	殺菌剤	野菜・果樹	i	7	148	H20.4.22	0.04	新橋
MPP-sulfon(fenthion)	分解生成物	77 77 18	i	7	148	H20.5.13	0.02	鴨方川合流点
cis-permethrin	殺虫剤	果樹·野菜	1	7	148	H20.4.22	0.02	鴨方川合流点
trans-permethrin	殺虫剤	果樹・野菜	i	7	148	H20.4.22	0.02	鴨方川合流点
Ethofenprox	殺虫剤	稲 野菜 果樹	i	7	148	H20.6.9	0.03	新橋
chlolopropham (IPC)	除草剤	畑地·芝	1	' /	148	H20.12.17	0.17	内尾用水
ACN(quinoclamine)	除草剤	稲・公園	1	/	148	H20.6.24	0.06	鴨方川合流点
fenarimol	殺菌剤	野菜・果樹	l i	7	148	H20.5.27	0.03	新橋
	100 = 1711	-1 -1 - 1 1 1 H		,				921 199

3 結果及び考察

3.1 検出農薬

本調査で検出された農薬類を表1に示す。除草剤24種類、殺虫剤17種類、殺菌剤13種類、分解生成物2種類が検出された。用途別に見ると水稲に使用される農薬がほとんどであった。検出頻度が高い上位5農薬は、ベンタゾン(除草剤)、イソプロチオラン(殺菌剤)、ブロモブチド(除草剤)、ピロキロン(殺菌剤)、フルトラニル(殺菌剤)の順で、検出率は50%以上であった。各農薬の最大値は、水田に近い用水(内尾用水)や比較的規模の小さい1mL+IS0.1ug/mL 二級河川の砂川(新橋)や鴨方川(里見川合流点)で検出されることが多かった。

種類別の季節変動を図3に示す。除草剤の種類数は,

田植え時期の5月下旬から増加し始め、6月に最大となり、8月以降は減少した。殺虫剤の種類数は、4月から9月にかけてあまり明瞭な変動は示さなかったが、5月と9月に若干増加する傾向が見られた。殺菌剤の種類数は最も少なく、年間を通してあまり変動は明瞭でなかった。

3.2 検出濃度

3.2.1 地点別の積算値の季節変動

各河川における農薬の検出状況を比較するため、調査地点別に検出された農薬濃度の積算値を図4に示す。積算値はいずれの地点でも6月下旬に最大のピークが見られ、9月にも小さなピークが見られた。6月は水田除草剤、9月は稲への殺虫剤や殺菌剤によるものと推察された。各調査地点の積算濃度の最大値は、6月24日の砂川(新橋)で45/1g/Lであり、一級河川の3地点でも3.7~6.1/1g/Lであった。11月以降は、全地点で積算値は1/1g/Lを下回った。

3.2.2 主要な農薬の季節変動

主要な農薬の検出濃度を図5と図6に示す。除草剤のベンタゾン,ブロモブチド,カフェンストロール,プレチラクロール,シメトリン,ペントキサゾンは、水田の灌水期の6月から7月

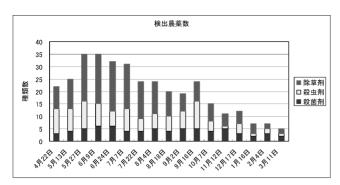


図3 検出農薬数

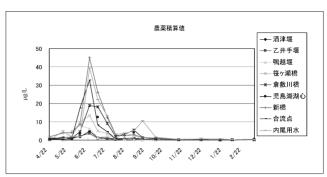
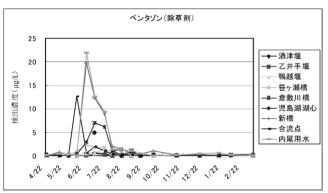
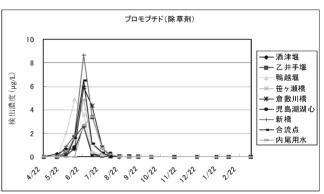
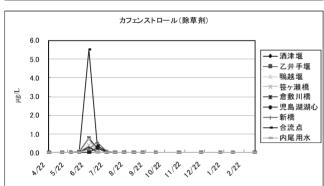
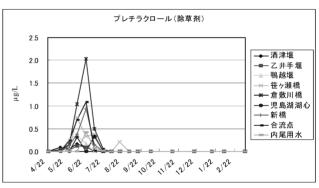


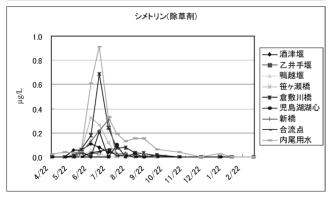
図 4 検出農薬積算値











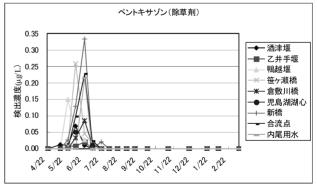


図5 除草剤の検出状況

にピークが見られ、その後、急速に濃度は低下した。種類によって検出濃度や検出時期に若干違いが見られるが、使用量や施用方法の違いを反映しているものと考えられた。全試料の最高濃度は、6月24日の用水におけるベンタゾンが22μg/Lであった。

殺菌剤のピロキロンとフルトラニルは9月にピークを示し、稲のいもち病や紋枯病の防除に施用されたものと考えられた。ピロキロンは6月にも小さなピークがあり、フルトラニルとの施用方法が異なるものと考えられた。また、同じ稲のいもち病の防除剤であるイプロベンホス

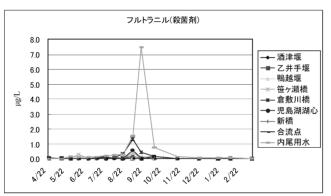
は、ほとんどの地点では7月にピークが見られ、ピロキロンと施用時期が異なっていた。殺菌剤の最高濃度は、9月2日の砂川(新橋)におけるピロキロンで2.0ょg/Lであった。

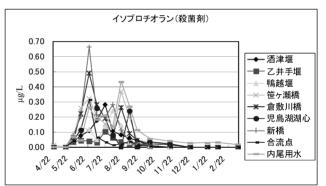
イソプロチオラン(殺菌剤)とフェノブカルブ(殺虫剤)は6月から9月にかけて調査地点ごとに異なったピークが見られたが、稲の苗から穂が出る時期までの長い期間にわたって施用されていると考えられた。殺虫剤のフェニトロチオンは、他の農薬とは異なり5月にピークが見られた。その用途は、水田だけでなく畑や森林、家庭菜園まで幅広く使用されており、検出時期から考えると稲の苗段階での施用によるものや畑、果樹へ施用されたものと考えられた。また、フェニトロチオンは公共用水域の水質汚濁に係る水質要監視項目に指定され、指針値が3個/Lであるが、5月13日の笹ヶ瀬川(笹ヶ瀬橋)の試料

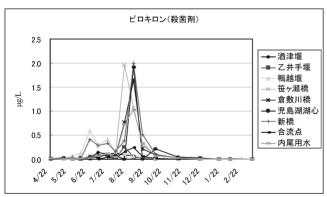
からは4.2µg/Lと指針値を超過して検出された。

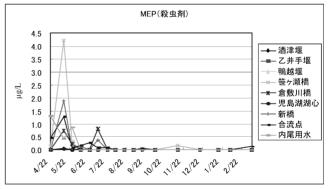
過去の児島湖流域での農薬調査において、検出された主要な農薬は、オキサジアゾン(除草剤)やチオベンカルブ(除草剤)、シメトリン(除草剤)、イプロベンホス(殺菌剤)、イソプロチオラン(殺菌剤)等であったが、検出濃度を比較すると、今回の調査のほうがより低濃度であった。また、過去には検出されたが、登録失効により検出されなくなった農薬は、XMC(殺虫剤)やメトルカルブ(殺虫剤)等であった。

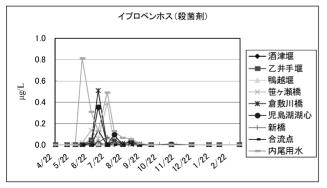
また,近年の河川水中の農薬調査の結果^{4~7)} と比較して,高い濃度で検出された農薬は,フルトラニル(殺菌剤),ブタクロール(除草剤),メフェナセット(除草剤)等であり、5倍以上の高い濃度で検出された。その他の調査された農薬類は、既存の調査結果の範囲内であった。











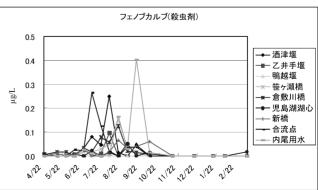
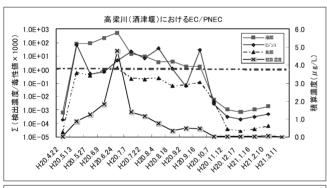
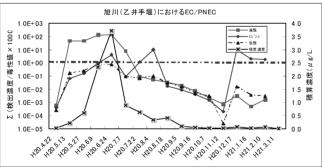


図6 殺菌剤及び殺虫剤の検出状況

3.3 農薬類の水生生物への影響

本調査で検出された農薬類の水生生物への影響を検討した。評価方法は、魚類、ミジンコ、藻類の各急性毒性値 $^{8\sim10}$)をアセスメント係数(1000)で割った値を予測無影響濃度(Predicted No Effect Concentration:PNEC)とし、各農薬の検出濃度(Environmental Concentration:EC)をPNECで割った値を計算し、EC/PNECが1を越えれば各水生生物に何らかの影響を与えている可能性があると判断した $^{11.12}$ 。なお、毒性値が不明なものは除外し、複数の値がある場合は、最も小さい値を採用し、できるだけ安全側で評価を行った。また、化学物質の環境リスク初期評価では、一般的には予測環境中濃度(Predicted Environmental Concentration:PEC)/PNEC比を用いるが、PECが不明であることから、ここではECを用いることとした。





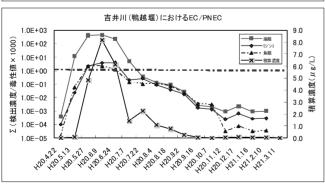
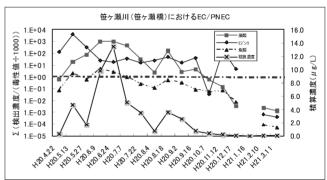


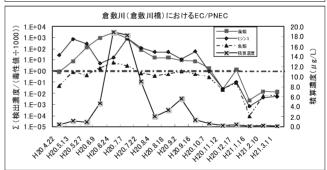
図7 一級河川における農薬類の水生生物への影響

3.3.1 地点別の季節変動

各調査地点のEC/PNEC比の積算値の季節変動を図7 ~図9に示す。一級河川の3地点では,藻類への影響が最も強く見られ,高梁川で5月~9月,旭川および吉井川で5月~7月に影響が現れていると推察された。ミジンコを代表する甲殻類への影響は季節的な傾向は見られず,河川によってスポット的な影響が見られた。魚類に対する影響は,比較的小さく,影響が懸念されたのは5月27日の吉井川におけるブタクロール(除草剤)だけであった。

二級河川の笹ヶ瀬川や倉敷川、砂川、里見川では、藻類と甲殻類に対して影響が強く見られ、EC/PNEC比の積算値が1を超過する期間が地点によって異なるが、4月から11月頃までの長期間であり、その値も一級河川に比較して高い値を示した。特に、甲殻類に対する影響が顕著で、4月22日に用水路で、5月13日に笹ヶ瀬川、砂川、





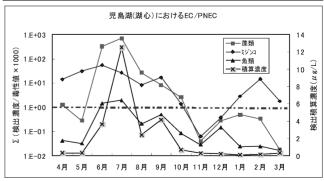
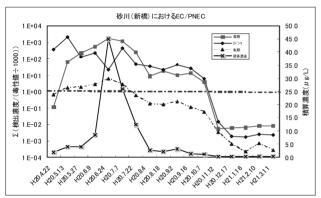
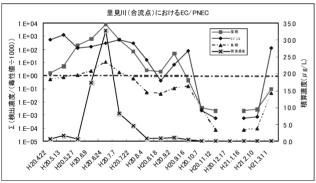


図8 児島湖及び流域河川における農薬類の水生生物への影響

里見川でEC/PNEC比の積算値が1,000を超過した。また、除草剤のEC/PNEC比の積算値が1,000を超過したのは、6月22日に倉敷川、砂川、里見川及び用水路で、7月7日に砂川であった。

児島湖は笹ヶ瀬川と倉敷川が流入し、二つの河川水の影響を強く受けているが、EC/PNEC比の積算値は両河川ほど高くなく、試料採取のタイムラグを考慮しても、農薬類が児島湖(湖心)に達する前に、分解や沈降等により水中の農薬濃度が減少していると推察された。最も水田に近い用水路は、二級河川よりさらに長期間にわたって除草剤の影響が強く見られ、EC/PNEC比の積算値が1を下回ったのは3月だけであった。





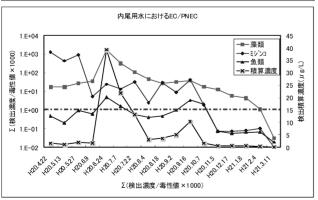


図9 その他の河川における農薬類の水生生物への影響

3.3.2 顕著な影響を示す農薬類

各農薬類の最大検出濃度から算出した EC/PNEC 比を図 10 ~図 12 に示す。魚類に対する影響が最も強く見られたのはカフェンストロール(除草剤)であり、広い範囲で影響が見られたのはブロモブチド(除草剤)とブタクロール(除草剤)であった。カフェンストロール(除草剤)は、1996年に登録された農薬で、水稲用は他剤との混合剤として、芝用として単剤で使用され、コイ96 時間 LC_{50} が 0.95 mg/L である 3 。

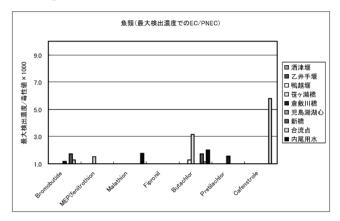


図10 魚類への影響(最大検出濃度)

甲殻類に対する影響が最も顕著な農薬は、フェニトロチオン(殺虫剤)であり、笹ヶ瀬川や砂川、里見川、用水では急性毒性値を超過した濃度が検出された。広範囲で影響の見られたのは、イソプロカル(殺虫剤)、フェノブカルブ(殺虫剤)、ダイアジノン(殺菌剤)であった。フェニトロチオン(殺虫剤)は、1961年登録された農薬で、稲や果樹、野菜などの害虫に広く使用され、ミジンコ EC_{50} が $0.001 \, \text{mg/L}$ である 8,9 。また、児島湖周辺の河川水を用いてミジンコ遊泳阻害試験をした結果、6月から9月にかけて顕著な影響が確認された報告 13 0 があり、殺虫剤が原

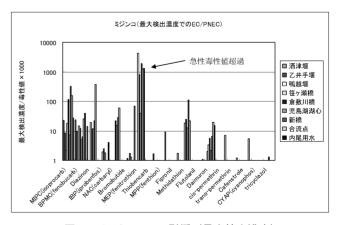


図11 ミジンコへの影響(最大検出濃度)

因であることが強く疑われている。今回の調査でも9地点のうち4地点で急性毒性値を上回る濃度でフェニトロチオンが検出されており、今後も継続的なモニタリングが必要と考えられた。

藻類に対する影響が顕著な農薬は、カフェンストロー ル(除草剤)とプレチラクロール(除草剤)であり、それぞ れ里見川、倉敷川で急性毒性値を超過して検出された。 すべての地点で影響が見られたのは、ペントキサゾン(除 草剤)やメフェナセット(除草剤)、シメトリン(除草剤)、 ブロモブチド(除草剤)であった。カフェンストロール(除 草剤)の藻類成長阻害 72 時間 EC50 は 0.00078 mg/L であ る⁸⁾。プレチラクロール(除草剤)は、1984年に登録され た農薬で、水稲用初期除草剤として使用され、藻類72時 間 EbC₅₀ が 0.0012 mg/L である 8)。また、児島湖流域にお ける植物プランクトンの調査14)では、笹ヶ瀬川河口や倉 敷川河口、児島湖において、6月から7月の時期には植物 プランクトンの細胞数が減少する傾向が見られており、 水中の除草剤が影響している可能性が示唆されている。 今回の調査で、除草剤は種類数と検出率が他の農薬と比 較して高く, 検出濃度も高いことから, 河川の水生生物 への影響が最も懸念された。

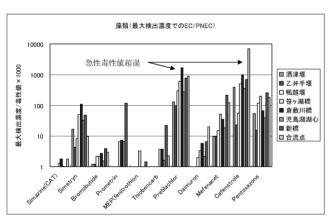


図12 藻類への影響(最大検出濃度)

以上のことから、検出された農薬類のうちのいくつかは、藻類や甲殻類に対して明らかになんらかの影響を及ぼしていると推察され、増殖抑制や汚染に強い種類しか生存できない可能性があった。また、農薬類は魚類に対して直接、影響を及ぼす懸念はあまり高くなかったが、魚類の幼魚期の餌となる藻類や甲殻類に対しては、特に、魚の繁殖時期に当たる5月から9月頃に影響が強く現れており、間接的に魚類の再生産等に影響を及ぼしている可能性があった。近年、下水道の整備や各種水質浄化対

策により河川の水質改善が見られているが、魚をはじめとする水生生物が増えているという実感はあまりない。この原因は、水質だけでないさまざまな要因が考えられるが、本調査により農薬類が水生生物へ何らかの影響を及ぼしている可能性が判明したことから、農薬類の河川への流出削減対策の強化が望まれる。また、今後も、水生生物への生態影響を評価するためには、農薬をはじめ化学物質のモニタリング調査を継続する必要があると考えられる。

4 まとめ

平成20年度に岡山県下の公共用水域における農薬類の 実態調査を実施したところ,以下のことが判明した。

- 1)9調査地点から除草剤24種類,殺虫剤17種類,殺菌剤13種類,分解生成物2種類が検出された。
- 2) 検出された農薬類は、ほとんどが水田に施用される ものと推察され、除草剤は6月、殺菌剤は9月、殺 虫剤は6月と9月にピークが見られた。
- 3) 殺虫剤のフェニトロチオン(殺虫剤)が笹ヶ瀬川の笹ヶ瀬橋から要監視項目の指針値を超過して検出された。
- 4) 検出濃度と急性毒性値から水生生物への生態影響を 検討したところ、藻類と甲殻類に対しては全地点で 影響が懸念されるレベルであり、魚類に対しては高 梁川と旭川を除く7地点で影響が懸念されるレベル であった。
- 5) 急性毒性値を超過して検出された農薬は、甲殻類に対してフェニトロチオン(殺虫剤)、藻類に対してカフェンストロール(除草剤)とプレチラクロール(除草剤)であった。

文 献

- 1)浦山豊弘, 劒持堅志, 藤原博一, 杉山広和, 鷹野洋: 環境中微量有害化学物質の分析, 検索技術の開発に 関する研究 — GC/MSによる農薬の多成分同時分 析法の検討— 岡山県環保センター年報, 第29号, 55-65, 2005
- 2) 吉岡敏行, 劒持堅志, 藤原博一, 中桐基晴, 浦山豊 弘:環境中微量有害化学物質の分析, 検索技術の開 発に関する研究 — GC/MSによる底質中の農薬多

- 成分同時分析法の検討— 岡山県環保センター年報, 第32号,47-57,2007
- 3) 岡山県環境保健センター: 児島湖における水質汚濁 物質の挙動に関する調査研究, 平成元年12月, 43-47
- 4) (社) 日本植物防疫協会:平成18年度農薬残留対策総合調査結果,平成19年3月30日
- 5) 酒井学: 鶴見川における農薬調査について, 横浜市 環境科学研究所報, 第30号, 2006
- 6) 吉田光方子,鄭小萍,藤森一男:加古川下流域における農薬の濃度変動,兵庫県立健康環境科学研究センター年報,第2号,162-167,2003
- 7) 吉田光方子,藤森一男:水田地域における河川水中 農薬調査,兵庫県立健康環境科学研究センター年報, 第2号,28-36,2005
- 8) 農薬ハンドブック:日本植物防疫協会,東京,2005
- 9) 田中良二:水生生物と農薬 急性毒性資料編,サイ

- エンティスト社, 東京, 1995
- 10) 西内康浩:続・水生生物と農薬 急性毒性資料編Ⅱ, サイエンティスト社,東京,1992
- 11) 日本環境毒性学会監修, 畠山成久: 化学物質の生態 リスク評価と規制―農薬編―, 259-348, アイピー シー, 東京, 2006
- 12) 日本環境毒性学会編:生態影響ハンドブック―化学 物質の環境リスク評価―,314-318 朝倉書店,東 京,2004
- 13) 岡村秀雄, 大森元子, 羅栄, 青山勲:農業地帯における河川水がミジンコ遊泳に及ぼす影響, 環境技術, Vol.25, No.3, 1996
- 14) 村上和仁, 吉岡敏行, 鷹野洋, 荻野泰夫: 植物プランクトンを指標とした児島湖流域の水質評価, 全国公害研会誌, Vol.23, No.4, 94-100, 1998