

原著

矢矧川におけるBOD環境基準超過の要因

志水信弘・古賀敬興・中川修平・柏原学・秦弘一郎・石橋融子

矢矧川のBOD悪化要因を検討するため、公共用水域常時監視結果を基に水質推移の精査及び相関解析を行ったところN-BODの関与が示唆された。そこで、環境基準点の矢矧橋で調査したところ、N-BODは調査期間に0.1-6.7 mg/L検出され、BODへの寄与率は平均49%と高く、BOD悪化の要因と考えられた。また、NH₄-Nは平均6.4 mg/L検出され、T-Nの46-81%を占めることからNH₄-Nの硝化がN-BODの原因と考えられた。さらに負荷量調査の結果、NH₄-Nの排出源は環境基準点上流の下水処理場放流水であると考えられた。

[キーワード：水質環境基準、BOD、N-BOD、アンモニア態窒素]

1 はじめに

矢矧川(図1、太線)は、岡垣町の南西山間部を源とし、東部を北上して玄界灘に注ぐ河川延長7.6km、流域面積15 km²の二級河川である¹⁾。環境基準点は、矢矧橋(図1、○印)であり、環境基準類型(生活環境項目)はC類型(BOD基準値：5 mg/L)である。図2の矢矧橋のBOD75%値は、1980年代にBOD環境基準(以下、基準と略す。)を超過していたが、公共下水道(岡垣町浄化センター)の供用開始²⁾とともに低下し、1990-2000年代に基準以下又は、その

前後を推移した。しかし、2010年代以降、BOD75%値は頻繁に基準を超過するようになった。

先述のとおり矢矧川流域の岡垣町では、1991年に下水道の供用が開始され、図2に示すように下水道普及率は2018年度末に90%に達している³⁾。そのため、矢矧川のBOD悪化要因として生活排水による汚染は考えにくく、流域の発生源も少ないことから、BOD上昇の要因が不明であった。そこで、過去水質測定結果の精査により要因を推定し、現地の詳細な水質調査及び負荷量調査を行うことにした。



図1 矢矧川及び矢矧橋(環境基準点)の位置

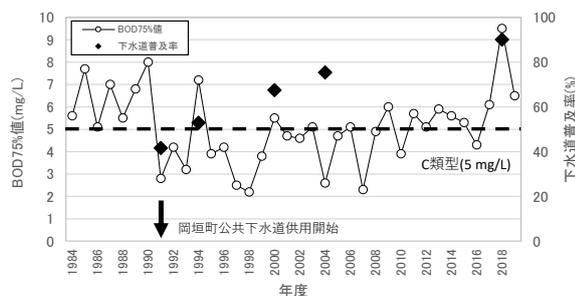


図2 矢矧橋のBOD75%と下水道普及率の推移

2 調査方法

2・1 水質データ

対象水質データは、福岡県の公共用水域測定結果管理システム³⁾に登録されている矢矧橋のBOD (n=408)、COD (n=392)、T-N (n=86) 及びT-P (n=86) とし、期間は1984年4月から2017年3月とした。なお、極端な異常値による統計上の偏りを防ぐため、統計処理にはGrubbs検定により危険率5%で外れ値を棄却したデータを使用した。

2・2 測定方法及び測定機器

試料水は、ポリプロピレン製容器に採取し、実験室に搬入後は分析まで冷蔵保存した。BODは、JIS K0102⁴⁾(以下、規格とする。)21に従い測定した。N-BODは同規格備考1に従い、N-アリルチオ尿素を試料に添加してC-BODを測定し、BODからC-BODを減じて算出した。CODは規格17、全窒素(T-N)は規格45.2、全リン(T-P)は規格46.3、アンモニア態窒素(NH₄-N)は規格42.2、硝酸態窒素(NO₃-N)は規格43.2.5及び、亜硝酸態窒素(NO₂-N)は規格43.1.2に従い測定した。有機態窒素濃度は、T-NからNH₄-N、NO₂-N及びNO₃-Nを減じて算出した。また、NO₂-Nが含まれている場合にCODへ正の誤差を与えることから⁵⁾、3・4におい

ては次式により補正CODを計算した。

$$\text{補正COD (mg/L)} = \text{COD (mg/L)} - \text{NO}_2\text{-N (mg/L)} \times 16 \div 14$$

流量は水質調査方法⁹⁾に従い、水深と測定幅から断面積を計算し、流速を乗じて算出した。負荷量は、測定地点の流量に各水質項目の濃度を乗じて算出した。

DO計はザイレムジャパン(株)製 YSI5000 を、吸光光度計は(株)島津製作所製 UV-1280 を、イオンクロマトグラフはサーモフィッシャーサイエンティフィック(株)製 Thermo Scientific Dionex INTEGRION HPIC をそれぞれ使用した。流速計は(株)東邦電探製 TK-106X を使用した。

3 結果と考察

3・1 矢矧川の水質の経年変化

図3に、矢矧橋の1984-2017年度の公共用水域常時監視調査結果(BOD、COD、T-N及びT-P)を示す。なお平均値は、1980年代から10年毎の相乗平均値を図3に赤破線で示した。以降の年代の表記は、西暦の下二桁で略する。

80年代のBODは、5 mg/L 超の値が多く、平均値は3.7 mg/L であった。80年代と比較し90及び00年代にBODは若干低下し、平均値は2.7 mg/L 及び2.9 mg/L となった。10年代にはBODが上昇し、平均値も4.1 mg/L と80年代と同程度であった。80-90年代のCODは6 mg/L 前後を推

移し、00年代以降、10 mg/L 超の値が減少し、変動幅も縮小した。平均値は、6.4 mg/L (80年代)、6.0 mg/L (90年代)、5.7 mg/L (00年代)、6.8 mg/L (10年代)であった。T-Nは一貫して上昇し、平均値は2.9 mg/L (80年代)、3.8 mg/L (90年代)、5.6 mg/L (00年代)及び5.8 mg/L (10年代)であった。また、年代を経るに従い値の変動が大きくなっていた。T-Pの平均値は、0.20 mg/L (80年代)から0.38 mg/L (90年代)及び0.46 mg/L (00年代)と上昇し、10年代に0.15 mg/L へ低下した。

これらの矢矧川の水質変のうち90年代と00年代のBOD平均値の低下は、1991年の公共下水道の供用開始と時期を同じくし、下水道普及による汚濁負荷量減少が一つの要因と考えられる。また、同時期のT-N及びT-Pの上昇は、流域外に搬出されていたし尿等の負荷量が下水道普及により河川へ放流されたことが一つの要因と考えられる。このように90及び00年代の矢矧川水質には、下水道の影響を示唆する変化があるが、10年代にはこれらと異なるBODの上昇やT-Pの減少が見られ、この時期にこれまでと異なる変化を引き起こした要因の存在が示唆された。

3・2 矢矧川の水質項目間の関係の変化

年代毎の水質変化の要因を考察するため、80年代から10年毎にBOD、COD、T-N及びT-Pの間で相関係数(R)を計

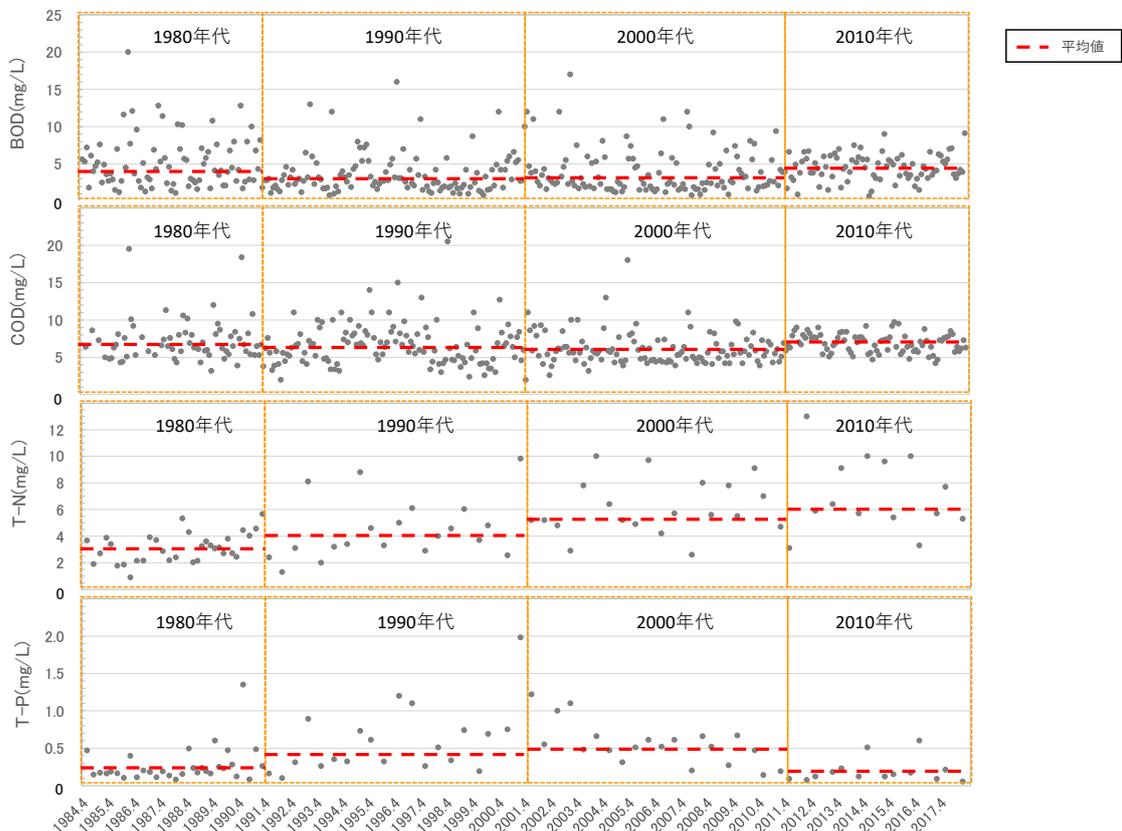


図3 1984-2017年度のBOD、COD、T-N及びT-Pの推移

表1 年代別の水質項目間の相関係数 (R)

| 年代 (n) | 1980 (29) | 1990 (15) | 2000 (16) | 2010 (11) |
|-----------|--------------|--------------|--------------|--------------|
| BOD-COD | 0.433 * | 0.394 | 0.645 * | 0.373 |
| BOD-T-N | 0.446 * | 0.699 * | -0.099 | 0.890 * |
| BOD-T-P | -0.086 | 0.589 * | -0.079 | -0.123 |
| COD-T-N | -0.081 | -0.025 | 0.063 | 0.360 |
| COD-T-P | 0.210 | -0.142 | 0.104 | -0.095 |
| T-N-T-P | 0.406 * | 0.759 * | -0.084 | -0.234 |

*: p<0.05

算した。その結果を表1に示す。なお対象データは、前述の4項目の値が揃っているものとした。また、図4にBODとCOD、BODとT-N及びT-NとT-Pの散布図、回帰直線、回帰式及び決定係数 (R²) を示す。

有意な相関 (R>0.4, p<0.05) は、80年代にBODとCOD、BODとT-N及びT-NとT-P、90年代にBODとT-N、BODとT-P及びT-NとT-P、00年代にBODとCOD、10年代にBODとT-Nの間にあった。特に、10年代のBODとT-NではR=0.890と強い相関があり、散布図も回帰直線と非常に良く一致した。

これら年代毎に変化する相関関係は、3・1で示した矢矧川の水質変化やその要因を反映したものと考えられる。80年代や90年代にBODは、COD、T-N及びT-Pに相関があり、矢矧川流域では上中流域の市街地以外に大きな排出源が無いことから²⁾、80-90年代には前記の水質項目間に相関がある未処理生活排水⁷⁾の河川水質への影響が示唆された。00年代にはBODとCODに相関があるが、3・1に前述した00年代のT-N及びT-Pの上昇がここではBODと相関がないことから、下水道普及によりBOD負荷は増加せず、T-N及びT-P負荷が増加したことが示唆された。10年代には、BODがT-Nとのみ強い相関を持ち、窒素成分によるBODへの影

響が示唆された。これは3・1で議論した10年代の矢矧川水質の変化要因の一つと考えられ、窒素成分によるBODへの代表的な影響の例は、硝化による酸素消費量 (N-BOD) が挙げられる⁸⁻¹¹⁾。下水処理場放流口の下流などでNH₄-Nが存在すると、硝化反応 (N-BOD) がBODを上昇させる事例が多く報告されている⁸⁻¹¹⁾。矢矧橋 (矢矧川の環境基準点) の上流にも下水処理場放流口があり、条件が整えばN-BODが検出される可能性は高いと考えられた。これらのことから、10年代のBOD上昇要因として、N-BODによるBODへの上乗せが可能性の一つとして挙げられた。

3・3 BOD及びT-Nの構成とBOD悪化の要因

ここまでの議論で矢矧川のBODは、N-BODの影響が示唆された。そこで、2020年10月から2021年10月まで毎月1回、環境基準点の矢矧橋で河川水を採取し、BOD (C-BOD及びN-BOD)、T-N、NH₄-N、NO₂-N及びNO₃-Nを測定した。その結果を図5にBOD関係を、図6に窒素関係を示す。

濃度範囲は、BODが1.8-7.7 mg/L、有機物酸化に伴うC-BODが0.9-5.5 mg/L、硝化に伴うN-BODが0.1-6.7 mg/Lであり、規則的な傾向等は見られなかった。N-BODのBODへの寄与率は、5.6-87%であり、平均すると約49%であった。またN-BODの検出は不規則であるが、これはN-BODが試料中の硝化細菌数に依存する⁴⁾ことが知られており、採水時の細菌構成の差異によるためと考えられる。

調査期間のBODは、13回の内5回は基準値を上回ったが、C-BODはほぼ基準値以下であった。C-BODが基準値を上回った試料 (2021年9月) は、降水後の濁水であったため、

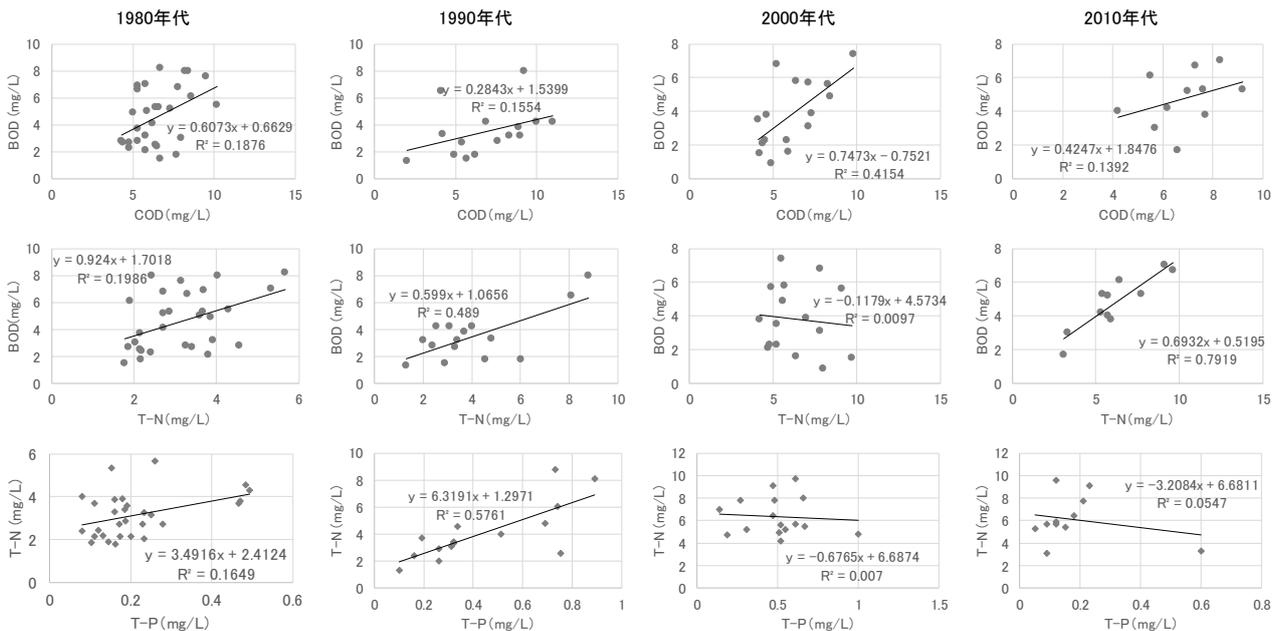


図4 1980-2010年代のBOD-COD、BOD-T-N及びT-N-T-Pの散布図

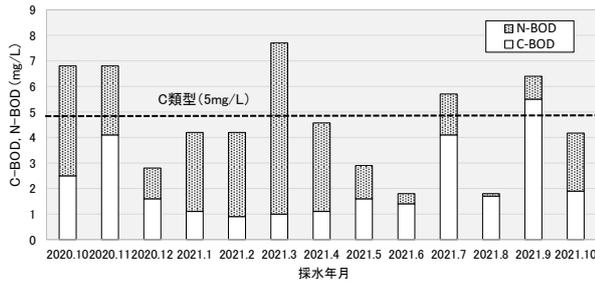


図5 調査期間のBOD、C-BOD及びN-BODの構成

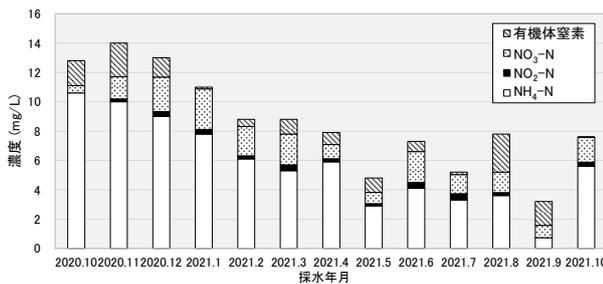


図6 調査期間の無機態及び有機態窒素の構成

その影響を受けたと考えられる。この結果を除き、C-BODは毎月基準値以下であることから矢矧川の有機物による汚濁は限定的であり、岡垣町の高い下水道普及率に矛盾しない結果であった。BODが基準値を上回った5回の内4回は、C-BODにN-BODが上乘せされていた。また、他の月も多寡はあるがN-BODがC-BODへ上乘せされていた。この事例を県内の他河川と比較するため、2020年11月に38試料及び2021年1月に34試料の県内河川水のN-BOD測定を行った。その結果、0.5 mg/L以上のN-BODが検出されたのは1試料（2021年1月の真如寺川 吾妻橋：BOD 2.8 mg/L、N-BOD 0.5 mg/L、その他地点のデータ不掲載）であり、N-BODによりBODが影響を受ける河川はほぼ無かった。

T-Nは、2020年10月（13 mg/L）から2021年4月（7.9 mg/L）にかけて低下し、その後6 mg/L前後を推移した。T-Nの多くはNH₄-Nであり、T-Nと同様に低下し（2020年10月 10 mg/L、→2021年4月 5.9 mg/L）、その後4 mg/L前後を推移した。降水の影響を受けた2021年9月の結果を除くとNH₄-Nは、T-Nの46-81%を占めており、平均で6.4 mg/Lと県内の他河川の値（<0.1-0.6mg/L、2021年1月の34検体の結果、データ不掲載）より1桁高い値を示した。

これまでに河川中にNH₄-Nが存在する場合、硝化によるN-BODを原因とするBODの悪化事例⁸⁻¹¹⁾が他県では報告されている。矢矧川でもN-BODによるBODの上乗せと県内他河川より高いNH₄-Nが観察され、報告と同様な現象を示した。これらのことから、矢矧川のBOD悪化は、NH₄-Nの存在とその硝化によるN-BODが主要因と考えられた。

3・4 負荷量調査

ここまでに矢矧川のBOD悪化要因としてNH₄-Nの影響が推定されたが、その由来は不明であった。そこで、負荷量調査によりそれらの発生源を明らかにすることとした。

調査日は、農業取水の少ない2021年3月24日及び12月15日とした。調査地点は、図7に示すように矢矧橋（地点⑥）、その約1.7 km上流の下水道放流口（地点②）、放流口上流（地点①）と放流口下流（地点③）、その約600 m下流の右岸流れ込み（地点④）とし、流量及び水質（BOD、C-BOD、N-BOD、COD、T-N、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-N）を測定した。なお、3月24日の右岸流れ込みの流量が少なかったため、測定しなかった。また、矢矧橋での流量測定が危険なため、約600 m上流の橋（上流橋、地点⑤）で調査した。また、放流口流量の測定が困難であったため、放流口下流から放流口上流の流量を減じて算出した。その結果を表2に示す。

流量を見ると、3月では放流口上流（7,100 m³/日）と放流口（7,300 m³/日）はほぼ同量であり、12月では放流口（12,000 m³/日）が放流口上流（4,020 m³/日）の約3倍と放流口から下流の河川流量の多くが放流水であった。また、放流口下流と上流橋の流量比は、1.1及び0.88とほぼ収支が合い、右岸流れ込み以外の流入及び流出は無いと考えられた。

水質を見ると、放流口下流は放流口上流より悪化しており、これは放流口下流流量の半分以上を占める放流口水質（BODが<0.5-5.1 mg/L、補正CODが11 mg/L、T-Nが11-14 mg/L、NH₄-Nが4.3-11 mg/L、NO₂-Nが1.0-3.8 mg/L、NO₃-Nが1.5-2.5 mg/L）の影響と考えられた。放流口下流、上流橋及び矢矧橋では、BODを除く補正COD、T-N、NH₄-N、NO₂-N及びNO₃-Nがほぼ同様の水質であった。また、放流口下流以降のBODは、3月では放流口下流（0.6 mg/L）から上流橋（2.2 mg/L）にかけて上昇し、矢矧橋では（1.1 mg/L）に低下していた。この時の上流橋では、N-BOD（1.2 mg/L）によりBODが上昇していた。12月では、放流口下流でN-BOD（3.0 mg/L）によりBOD（5.7 mg/L）が高く、上流橋（2.7 mg/L）にかけて低下し、矢矧橋では再びN-BOD（1.6 mg/L）によりBOD（3.4 mg/L）が上昇した。一方、放流口

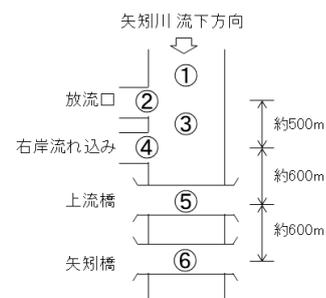


図7 調査地点模式図

表2 各調査地点の流量及び水質の結果

| 調査日 | 地点名 | 流量 (m ³ /日) | BOD (mg/L) | C-BOD (mg/L) | N-BOD (mg/L) | COD (mg/L) | 補正COD* (mg/L) | T-N (mg/L) | NH ₄ -N (mg/L) | NO ₂ -N (mg/L) | NO ₃ -N (mg/L) |
|------------|----------|---------------------------|---------------|-----------------|-----------------|---------------|------------------|---------------|------------------------------|------------------------------|------------------------------|
| 2021/3/24 | ① 放流口上流 | 7100 | <0.5 | <0.5 | <0.5 | 2.3 | 2.3 | 0.8 | <0.1 | <0.2 | 0.6 |
| | ② 放流口 | 7300 | <0.5 | 0.9 | <0.5 | 12 | 11 | 14 | 11 | 1.0 | 1.5 |
| | ③ 放流口下流 | 14400 | 0.6 | 1.1 | <0.5 | 7.6 | 6.9 | 8.6 | 6.0 | 0.6 | 1.2 |
| | ④ 右岸流れ込み | - | 0.8 | 0.8 | <0.5 | 5.1 | 5.1 | 0.7 | <0.1 | <0.2 | 0.4 |
| | ⑤ 上流橋 | 16000 | 2.2 | 1.0 | 1.2 | 5.3 | 5.0 | 5.8 | 3.4 | 0.3 | 1.4 |
| | ⑥ 矢矧橋 | - | 1.1 | 0.8 | <0.5 | 6.8 | 6.4 | 8.3 | 6.0 | 0.4 | 1.5 |
| 2021/12/15 | ① 放流口上流 | 4020 | 1.1 | 1.0 | <0.5 | 1.9 | 1.9 | 1.0 | <0.1 | <0.2 | 0.6 |
| | ② 放流口 | 12000 | 5.1 | 2.6 | 2.5 | 15 | 11 | 11 | 4.3 | 3.8 | 2.5 |
| | ③ 放流口下流 | 16000 | 5.7 | 2.8 | 3.0 | 9.0 | 6.6 | 7.4 | 2.1 | 2.1 | 2.1 |
| | ④ 右岸流れ込み | 429 | 2.0 | 2.1 | <0.5 | 4.3 | 4.3 | 1.4 | <0.1 | <0.2 | 0.7 |
| | ⑤ 上流橋 | 14100 | 2.7 | 2.4 | <0.5 | 7.7 | 6.6 | 7.5 | 2.7 | 1.0 | 2.1 |
| | ⑥ 矢矧橋 | - | 3.4 | 1.8 | 1.6 | 7.2 | 6.1 | 8.3 | 3.1 | 1.0 | 3.4 |

*: NO₂による影響を補正をしたCOD

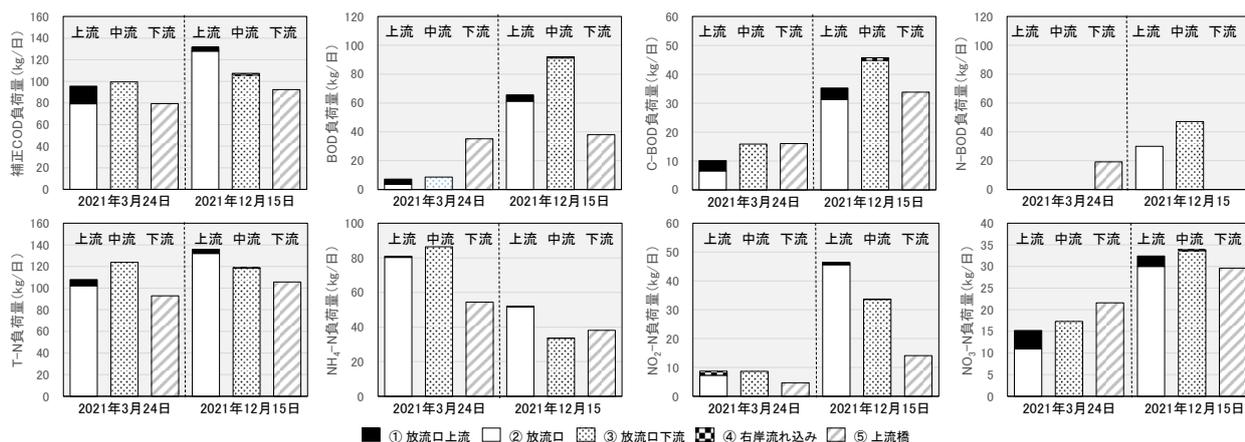


図8 各水質項目の上流から下流における日負荷量の比較

下流以降のC-BODは、ほぼ同程度であり、N-BODの上乗せによりBODが変化していた。

次に負荷量を放流口上流と放流口を加えたもの（以降、上流負荷量とする。）、放流口下流と右岸流れ込みを加えたもの（以降、中流負荷量とする。）及び上流橋のもの（以降、下流負荷量とする。）にまとめ、棒グラフとして図8に示し、各地点の負荷量を考察した。なお、計算は、BOD及びC-BODの下限値未満の値は下限値とし、N-BODの下限値未満の値は0とした。

上流、中流の負荷量は、補正CODで3月が95.7→99.6 kg/日、12月が135→107 kg/日、T-Nで3月が108→123 kg/日、12月が136→119 kg/日及びNO₃-Nで3月が15.2→17.3 kg/日、12月が32.4→34.0 kg/日であり、中流負荷量に対する上流負荷量の比は0.79-1.1とほぼ収支が均衡した。また、C-BOD（3月 10.1→15.8 kg/日、12月 35.2→45.8 kg/日）は、上流負荷量に対し中流負荷量が1.2-1.5倍であるが、流量やBODの測定誤差を勘案すると収支は均衡していると考えられた。また、感潮域である上流橋では海水による希釈の影響のため下流負荷量が小さい傾向があるが、前記4成分の中流と下流の負荷量比は0.74-1.2とほぼ収支が均衡した。これらのことから、調査地点以外の負荷の出入りはなく、ほぼ全負荷量を把握できたと考えられた。なお、流下過程でNH₄-N及びNO₂-Nの収支は均衡しなかったが、これらが硝化、脱

窒、揮散及び希釈等の影響を受けるためと考えられた。

BODを見ると、3月では下流負荷量が上流、中流負荷量の4倍に、12月では0.4倍になり、調査地点以外の負荷の出入りが無いにも関わらず収支が均衡しなかった。また、N-BODは、3月で下流負荷量（19.2 kg/日）のみ、12月では上流（30 kg/日）及び中流負荷量（47.3 kg/日）のみ存在し、負荷量収支が均衡しなかった。また、その原因としては3・3で述べたように、採水時の細菌構成の差異等が考えられる。このようにN-BOD負荷量は、収支が均衡せず、これがC-BOD負荷量に上乗せされるためBOD負荷量の収支も均衡しないことが分かった。

これまでの議論で矢矧川ではBOD、N-BOD、NH₄-N及びNO₂-N以外の項目の上流、中流及び下流の各負荷量収支は均衡し、基本的に上流からの負荷量が単純に流下することが分かった。つまり、中流及び下流負荷量は上流負荷量に依存するため、それらの負荷量に寄与するのは上流負荷量を構成する排出源であることを示している。そこで放流口負荷量の上流負荷量に対する比を見てみると、補正CODで0.80-0.94、T-Nで0.83-0.97、NO₂-Nで0.85-0.98及びNO₃-Nで0.63-0.93であり、負荷量のほぼ全量が放流口負荷量により供給されていた。C-BODは、放流口上流及び放流口のBODが低かった3月を除くと前述の比は0.89であり、他4成分と同様であった。このように上流負荷量は、そのほとんどを

放流口負荷量が占めており、主要な排出源であることが分かった。また、NH₄-Nの放流口負荷量の上流負荷量に対する比は0.93-0.99であり、他の物質同様に放流口負荷量の寄与が著しく大きかった。このことから矢矧橋水質におけるNH₄-Nは、上流で流入する下水処理場放流水由来であると考えられた。

4 まとめ

矢矧川のBODの悪化要因を検討するため、公共用水域監視調査結果を基に水質推移の精査及び相関解析を行い、N-BODの関与が示唆された。そこで環境基準点においてN-BODの調査を行った結果、C-BODはほぼ基準を下回るが、N-BODが上乘せされ基準を超過することがあった。また、N-BODは0.1-6.7 mg/Lの範囲で検出され、BODへの寄与率は平均49%と高いことから、N-BODによるBODへの上乗せがBOD悪化の要因と考えられた。同時期に河川中のNH₄-Nの平均値は6.4 mg/Lであり、T-Nの46-81%を占めることからNH₄-Nの硝化によりN-BODが検出されると考えられた。さらに負荷量調査の結果、NH₄-Nの排出源は環境基準点上流の下水道放流水であると考えられた。これらのことから、矢矧川でのBOD環境基準達成にはNH₄-N負荷の削減が重要であるが、岡垣町浄化センターでは段階的な施設改修が行われており、NH₄-N負荷の改善が見込まれている。このため、矢矧橋におけるBOD値についても今後改善されていくものと予想される。

謝辞

本研究に際し、ご協力いただきました福岡県環境部環境

(英文要旨)

Factors that caused BOD in Yahagi River to exceed the environmental standards

Nobuhiro SHIMIZU, Takaoki KOGA, Shuhei NAKAGAWA, Manabu KASHIWABARA
Koichiro HATA and Yuko ISHIBASHI

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

We studied about BOD increase at Yahagi Bridge in the Yahagi River using water quality data of a public water monitoring program. We then estimated the factors that were causing the changes in the BOD using correlation analysis. The results showed that N-BOD influenced the BOD at the sampling site. At Yahagi Bridge, the N-BOD ranged from 0.1 to 6.7 mg/L, contributed 49% to BOD, and was considered to be related to the increases in BOD. We also found that the NH₄-N concentration averaged 6.4 mg/L, and accounted for 46%-81% of the T-N. Therefore nitrification of NH₄-N was considered the source of N-BOD. Furthermore, we carried out load analysis and found that sewage effluent that was discharged upstream of Yahagi Bridge was the main source of the NH₄-N.

[Key words ; BOD, Environmental standard, N-BOD, Ammonia nitrogen]

保全課及び宗像・遠賀保健福祉環境事務所職員に対して深く感謝いたします。

文献

- 1) 福岡県土木部河川課：河川調書，平成26年6月.
- 2) 福岡県建築都市部下水道課：福岡県の下水道，平成29年3月.
- 3) 福岡県環境部：公共用水域測定結果管理システム，(2021/12/14アクセス).
- 4) 工場排水試験方法 (JISK0102:2016)，2019.
- 5) 林伸行：し尿処理水等について無規制窒素がCOD_(Mn)値に及ぼす影響，廃棄物学会誌，4(1)，84-89，1993.
- 6) 環境庁：水質調査方法 (環水管第30号)，昭和46年9月30日.
- 7) 矢橋毅ら：生活排水の水質特性の解析と処理水における水質変化，水環境学会誌，23，584-589，2000.
- 8) 岩淵美香，丸山朝子，酒井泰：川崎市内河川の水質調査-麻生川を中心に-，川崎公害研究所年報，32，79-84，2005.
- 9) 小市佳延，福嶋悟，下村光一郎：河川における環境基準達成のための要因に関する研究 (第3報)-鶴見川水系-，横浜市環境科学研究所年報，29，11-19，2005.
- 10) 吉川信治，松瀬紀子，北島淳二：轟木川の水質調査結果について (第2報)，佐賀県環境センター所報，18，77-80，2006.
- 11) 岩佐美紀子ら：大淀川上流域における水環境に関する研究-汚濁原因調査-，宮崎県衛生環境研究所年報，22，125-137，2010.