

## 市原港におけるダイオキシン類汚染調査Ⅱ(鉛直分布) \*

吉澤 正<sup>\*1</sup>・強口 英行<sup>\*2</sup>・石渡 康尊<sup>\*1</sup>・半野 勝正<sup>\*1</sup>  
 田中 崇<sup>\*3</sup>・依田彦太郎<sup>\*1</sup>・木村 満男<sup>\*2</sup>・原 雄<sup>\*1</sup>

### キーワード

①ダイオキシン類 ②PCP ③底質 ④市原港 ⑤鉛直分布 ⑥堆積年代 ⑦排出年代

### 要 旨

ダイオキシン類で高濃度汚染された市原港の鉛直方向の汚染実態および原因究明のための湾隣接の事業場に対するアンケート調査を実施した。

アンケート調査では隣接事業場がPCPを製造していたことが確認された。

鉛直方向の調査は8地点で柱状泥を採取し、ダイオキシン類、PCP等の測定などを実施した。湾口の2地点を除き、海底面から50cmの深さまですべて環境基準値を超過していた。

湾央のさらに深い柱状泥を採取した地点では築港時の海底面直上の堆積層にも汚染が及んでいた。表層と深い層に汚染層が確認されていることから、少なくとも2回のダイオキシン類の大量流入時期があったと考えられた。いずれもPCPと類似したTEQ組成や異性体組成であり、同じ汚染源に起因していると考えられた。H<sub>6</sub>CDDsの割合変化は排出してからの経過時間と関係しており、湾奥の地点が汚染源に最も近いと考えられた。

### 1. はじめに

2000年1月にダイオキシン類対策特別措置法(以後、ダイ特法という)が施行され、各地方自治体は公共用水域におけるダイオキシン類の常時監視を開始した。それに伴い、水域のダイオキシン類汚染が各地で明らかになってきた<sup>1), 2)</sup>。千葉県内では千葉港(八幡地区)(以後、市原港という)内の底質汚染が確認されおり、2001年1月に県と市は汚染の詳細を把握するために表層泥の分布調査(200m メッシュ間隔)を実施した<sup>3)</sup>。港内は広い範囲で高濃度(max 12,000 pg-TEQ/g, ave 2,000 pg

-TEQ/g)に汚染されていた。汚染はポリ塩化ジベンゾーパラジオキシン/ポリ塩化ジベンゾーフラン(PCDD/F)の7,8塩素化物(O<sub>8</sub>CDD/F, H<sub>7</sub>CDD/F)が主体で、ペンタクロロフェノール(PCP)中に不純物として含まれていたダイオキシン類の組成と非常に類似していた<sup>4)</sup>。汚染状況からダイオキシン類は湾に直接排出されたと考えられた。

ここでは今後の対策を実施するために必要なダイオキシン類の鉛直分布を把握するとともに、汚染底質の量や堆積年代等についての調査および原因究明のための湾隣接の事業場に対するアンケート

\* Dioxins Contamination in Sediment in Chiba Bay(Yawata Area)-Horizontal Distribution

\*<sup>1</sup> Tadashi YOSHIZAWA, Yasutaka ISHIWATA, Katumasa HANNO, Hikotaro YODA, Yuu HARA (千葉県環境研究センター廃棄物化学物質部化学物質研究室) Chiba Prefectural Environmental Research Center

\*<sup>2</sup> Hideyuki KOWAGUTI, Mituo KIMURA (環境生活部水質保全課) Water Quality Environmental and Social Affair Dept.

\*<sup>3</sup> Takashi TANAKA (千葉支庁) Chiba Branch Office

ト調査を実施したので報告する。

## 2. 調査方法

湾隣接事業場が非意図的生成物であるダイオキシン類を排出したと仮定すると、発生源には塩素と芳香族化合物を使用する工程等があったと考え、事業場に対してそれらに関するアンケートを実施した。また、柱状泥の分析結果を検討の際に、過去の浚渫を考慮する必要があると考え、浚渫に関する事項も含めた。

鉛直分布調査はダイオキシン類の排出時期、組成、排出量に関する知見を得るために、柱状泥を採取し、ダイオキシン類などの測定を実施した。また、汚染底質の量に関する知見を得るために、底質探査機および目視による底質の堆積状況の調査を実施した。

### 2.1 アンケート調査

アンケート調査は2001年3月に水質汚濁防止法(以後、水濁法という)またはダイオキシン類対象事業場の13社に対して実施した。内容は操業以来、原料・製品の芳香族有機塩素化合物の名称および量(年毎、総量)、芳香族有機化合物の塩素化工程、排水処理方法および隣接海域における浚渫の実施状況などに関する事項とした。

### 2.2 ダイオキシン類等鉛直分布調査

#### 2.2.1 試料採取

底質試料採取および堆積状況の調査は2001年11月7~9日および15日に行った。図1の8地点では内径20cm、長さ1mのコアサンプラーを用い、海底面から約80cmの柱状泥(以後、柱状泥Iという)を採取した。柱状泥Iは上部に海水が入った状態で密封し、実験室に搬入・静置後、海底面から2cmごとの層に切り分けた。

地点dとgではさらに深部を調べるために、ピストンコアサンプラー(有田式大口径重力採泥器(地質調査所型)、内径114mm、長さ5m)による柱状泥の採取も行った(以後、柱状泥IIという)。なお、市原港は1950年代後半からの築港の時期に船舶通行のために港内全体が現在のように深い水深(平均12m)に浚渫されており、その当時の海底面以深を以後、在来層という。

#### 2.2.2 ダイオキシン類

柱状泥Iは海底面から0~2、8~10、18~20、28



図1 調査地点

- : 柱状泥I採取地点(ダイオキシン類測定(50cmまで)と堆積年代)
- : 柱状泥I, II採取地点(ダイオキシン類測定(50cm以深含む)と堆積年代)
- : 堆積状態の確認地点

-30, 38~40, 48~50cmの6層をダイオキシン類用試料とした。柱状泥IIは在来層までを試料とし、50cm以深の試料(地点dは100cm、地点gは80cmまでの底質を使用)を4等分してダイオキシン類分析用試料とした。なお、地点dについては柱状泥IIの採泥時に在来層も含めて、外観の異なる堆積層ごとに柱状泥の中心部を深さ方向に2~4cmの幅で採取・保存しておいた試料を用い、170cmの深さまでの堆積層について、H<sub>7</sub>CDD/FおよびO<sub>8</sub>CDD/Fの分析を実施した。

ダイオキシン類分析、強熱減量(Ig.loss)と含水率は公定法に準拠して行った<sup>5), 6)</sup>。ただし、ダイオキシン類の抽出は湿泥を高速溶媒抽出装置(ASE)で行い、抽出溶媒はアセトンとトルエンを用いた<sup>7)</sup>。

#### 2.2.3 PCP

汚染がPCP中のダイオキシン類組成の類似していたことから、PCP分析を行った。

地点b, c, e, f, hは柱状泥Iの表層泥に相当する部分(0~2, 8~10, 18~20cm)の等量混合試料、地点dは表層泥の等量混合試料とTEQが極大値であった柱状泥IIの75~87.5cm層の2試料、地点gはTEQが極大値を示した18~20cm層とその

上下の0~2cm層と38~40cm層の3試料を分析用試料とした。PCPの分析は「外因性内分泌搅乱化学物質調査暫定マニュアル」に準拠して行った<sup>8)</sup>。

#### 2.2.4 堆積年代

堆積年代測定用の試料は前述の2cmごとの層に切り分けた柱状泥Iの約80cmまでを用い、鉛210の値から堆積年代を求めた(以後、算定方法①という)<sup>9)</sup>。

可能性がないと判断した地点(地点e, h)を除き、地点a, b, c, d, f, gの6地点について測定を行った。

築港時の掘削により、堆積年代測定で必要な100年前の鉛210の値(バックグラウンド値)が実測できなかったため、文献値を使用した<sup>10), 11)</sup>。また、比較のために、採取した地点の堆積厚の重さ(積算重量深度)を築港から現在までの年数(もしくは後述の水銀汚染に伴う浚渫年(1975年)から現在までの年数)で割り、平均重量堆積速度を求め、この値からも堆積年代を求めた(以後、算定方法②という)。

#### 2.2.5 底泥堆積量

2波長型(200kHz, 7~12kHz)の底質探査機(千本電気製PDR-501型, SH-10型)により、現在の海底面と在来層までの深さをそれぞれ測定し、その差から築港以後の堆積厚を算出した。図1の16地点で採取した柱状泥を目視により堆積厚の確認も行った。

### 3. 調査結果

#### 3.1 アンケート調査

芳香族有機塩素化合物はPCP、ペンタクロロベンジルアルコールを1事業場で製造、テトラクロロ無水フタル酸を1事業場で使用していた。塩素化工程はp-ターシャリーブチルフェノールを1事業場で行っていた。なお、PCPの製造期間は1962~1970年度、総生産量は約15,000トン、年間最高生産量2,755トン(1965年度)、製法は塩化アルミニウムを触媒としたフェノールの直接塩素化法であった<sup>12)</sup>。この製造ではPCP-Na塩とする過程で反応残渣の生成が記載されていた。

浚渫関係では水銀濃度の暫定除去基準値(10mg/kg)超過のため、1975年に湾奥の約46.4万m<sup>3</sup>の浚渫が行われていた<sup>13)</sup>。浚渫土量から算出すると

平均93cmの深さまでの底泥が除去されたことになり、築港時からの堆積泥がほぼすべて除去されたと考えられた。

#### 3.2 ダイオキシン類の鉛直分布

##### 3.2.1 毒性等量(TEQ)

(1) 50cm以深まで採取した地点(地点d, g)

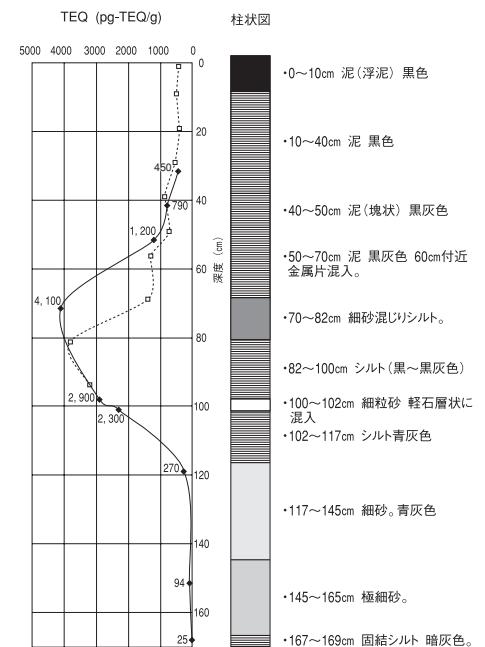
###### ① 在来層までのTEQ変化

図2, 3に地点dとgの柱状図およびTEQ鉛直変化を示した。

両地点で環境基準値未満であった層は地点gの65~72.5cm層のみであり、汚染は在来層の上にある堆積層のほぼすべてに及んでいた。

地点dにおけるTEQの鉛直変化は75~87.5cm層で極大値3,800pg-TEQ/gを示した。地点dにおける在来層と築港以後の堆積層の境は100~102cmの軽石を含む砂層と考えられ、築港後まもなくダイオキシン類の大量流入が始まったと考えられた。

地点dは前報<sup>3)</sup>で最高値12,000pg-TEQ/gを示した地点の近傍であり、付近の表層には強く汚染された底質があることが確認されている。



170cmまでの測定はTEQ=0.018\*1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-H<sub>7</sub>CDD濃度の相関式からTEQを算出

破線: 100cmまでの柱状泥

実線: 170cmまでの柱状泥の測定結果

図2 地点d 柱状図およびTEQ鉛直分布

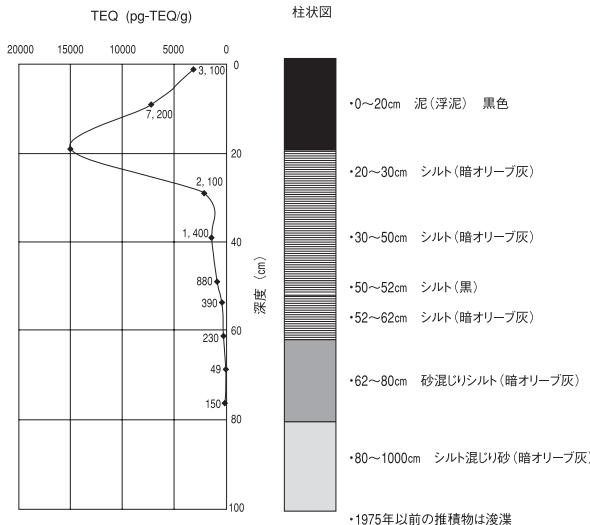


図3 地点g 柱状図およびTEQ鉛直分布

表層付近と在来層直上の汚染の存在から、間隔をおいて2度以上に渡り多量のダイオキシン類が流入したと考えられた。

地点gの18-20cm層は最高値15,000pg-TEQ/gを示し、表層泥の平均値8,400pg-TEQ/gは前報の値(7,400pg-TEQ/g)と同程度であった。この地点は1975年の浚渫区域内であり、この表層付近の汚染は1975年以降(水濁法施行後)で、しかも表層に近いことから近年に流入したものと考えられた。また、地点gの地点dの極大値を示した層に相当する層は浚渫により除去されたと考えられた。

## ② 在来層内のTEQ変化(地点dの深さ170cmまでの結果)

図2に示したように、在来層内におけるTEQの鉛直変化はシルト層下部(96-100cm)、細粒砂層(100-102cm)ともに2,000pg-TEQ/gを超える非常に高い値で、細砂層上部(117-121cm)でも270pg-TEQ/gと環境基準値を超過していた。極細砂層(150-153cm)で94pg-TEQ/gと環境基準値以下にまで減少したものの、築港時の海底面との境から少なくとも20cmも深くまで環境基準値を超過しており、50cmも深くまでも汚染の影響が及んでいた。試料採取時における目視観察では在来層の堆積状態には大きな乱れはなく、攪乱や混合したような形跡も認められず、原因は現在のところ不明である。

## (2) 50cmまで採取した地点

図4に地点d, g以外の6地点のTEQ鉛直変化を示した。

地点cより湾奥の地点は50cmまでのすべての層のTEQが環境基準値以上であった。地点dと同様に、地点c, fでは深くなるとTEQが高くなる傾向があり、地点cより湾奥側では汚染が表層から深い層まで及んでいると考えられた。

地点aでは表層のすべての層が環境基準値を超過しており、湾口部で高濃度地点が初めて確認された。地点b以外のすべての地点で0-2cm層のTEQはすべて環境基準値を大幅に超過していた。

なお、地点eとhについては堆積状態に乱れがあり、そのTEQ鉛直変化は堆積時期の汚染状況を正確に反映していないと考えられた。

## 3.3 ダイオキシン類の組成とPCP

### (1) PCP中のダイオキシン類との類似性

PCPに含まれているダイオキシン類の異性体の特徴は①  $O_8CDD$ 濃度が最も高い②  $H_7CDDs$ の異性体間の比が約1:3③  $H_6CDDs$ の主要異性体は3異性体(1,2,3,6,7,8-,1,2,3,6,8,9-,1,2,4,6,7,9- $H_6CDD$ )④  $H_7CDFs$ の主要異性体1,2,3,4,6,7,8-と1,2,3,4,6,8,9- $H_7CDF$ の比は約1:3であることの4点が指摘されている<sup>4)</sup>。

$O_8CDD$ 濃度はいずれの地点、深さとも最も高濃度であり、1,2,3,4,6,7,9-と1,2,3,4,6,7,8- $H_7CDD$ および1,2,3,4,6,7,8-と1,2,3,4,6,8,9- $H_7CDF$ の異性体比はいずれも平面分布調査時の傾きとほぼ一致した。図5に前者の関係を示した。 $H_6CDDs$ の主要異性体については地点bの表層で多少のみだれがあるものの、ほぼ上述の3異性体が主要異性体であった。なお、 $H_6CDDs$ は同

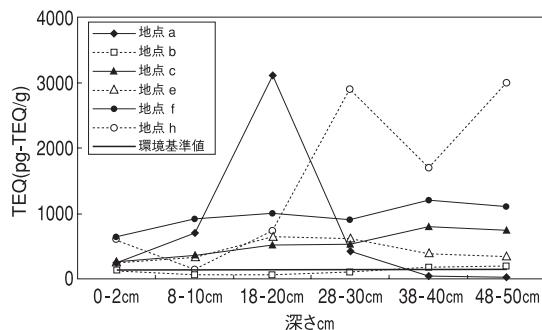


図4 TEQの鉛直変化

族体内の構成比が地点や深さによって変化していた。

図6に地点dの75-87.5cm層のTEQ組成を示した。

すべての地点および深さで1,2,3,4,6,7,8-H<sub>7</sub>CDDのTEQに占める割合がもっとも高く、地点cより湾奥側ではTEQ全体の5割前後を占めていた。次いで、1,2,3,4,6,7,8-H<sub>7</sub>CDFもしくは1,2,3,6,7,8-H<sub>6</sub>CDDの割合が高かった。O<sub>8</sub>CDDの占める割合は1,2,3,6,7,8-H<sub>6</sub>CDDのおよそ半分であった。PCPの製法はヘキサクロロベンゼンの水酸化とフェノールの塩素化の2方法に大別され、TEQ組成に違いがあることが報告されている<sup>14)</sup>。前者ではO<sub>8</sub>CDD>1,2,3,6,7,8-H<sub>6</sub>CDDで、後者は逆の関係があるとされており、本汚染では後者に類似していた。これまでの東京湾における鉛直分布調査の結果ではPCPが多量に使用された時期で1,2,3,4,6,7,8-H<sub>7</sub>CDDの割合が高い場合でも40%以下であった<sup>10), 15)</sup>。

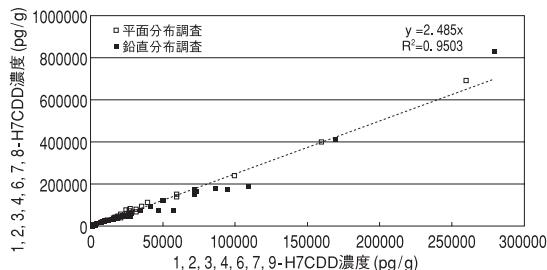


図5 1,2,3,4,6,7,9-と1,2,3,4,6,7,8,H<sub>7</sub>CDD濃度

注)破線は鉛直分布調査データの回帰式

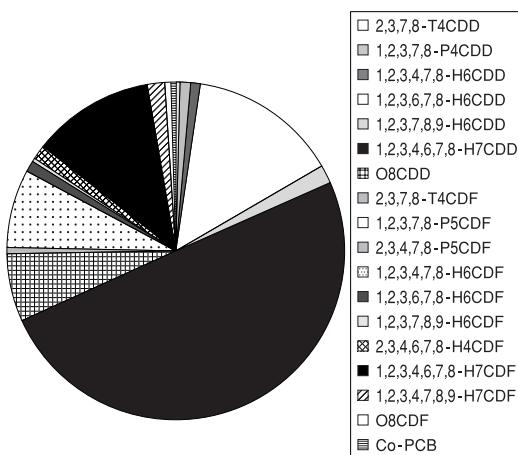


図6 TEQ組成(地点d 75-87.5cm)

以上のように異性体組成やTEQ組成はPCP中のダイオキシン類の組成と類似しており、間隔をおいてダイオキシン類の多量流入があったにもかかわらず、同じ汚染源に起因していると考えられた。

### (2) PCP濃度

図7にPCPとTEQの関係を示した。

両者には正の関係がみられた。最高値は地点g 18-20cm層の440ng/gであり、PCPが使用されなくなった時期の堆積物にもかかわらず、昭和49年度の環境庁の底質調査(80~360ng/g)における最高値以上であり、かつ、この層はTEQも最高値であった<sup>16)</sup>。そのため、PCPとダイオキシン類に関係があると考えられた。

### (3) H<sub>6</sub>CDDsの鉛直変化と排出年代

地点a, c, d, gの1,2,4,6,7,9-と1,2,4,6,8,9-H<sub>6</sub>CDD濃度の和が同族体に占める割合(以後、この項では割合と略す)は深くなるほど大きくなる傾向があった。このような同族体の比率の変化はH<sub>6</sub>CDFsやH<sub>7</sub>CDFsでは見られなかった。

図8, 9には地点aとdの積算重量深度と割合の関係を示した。地点aとd以外に地点cとgにおいても同様の直線関係があり、①式のように表せた。重量堆積速度がそれぞれ一定と仮定すると、②式のように時間の関数として表せた。

$$R = a * S + b \quad ①$$

$$= a * k * t + b \quad ②$$

$$= 1.4 * t + b \quad ③$$

$$= 1.4(2001 - T) + 30 \quad ④$$

R:割合(%)、S:積算重量深度(g/cm<sup>2</sup>)、t:時間、T:排出年、k:重量堆積速度g/cm<sup>2</sup>/y, a, b:定数

算定方法②から求めた平均重量堆積速度を代入

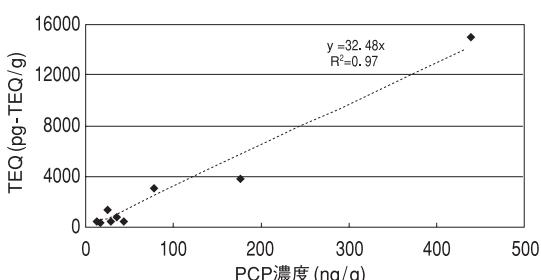


図7 ダイオキシン類TEQとPCP

し求めた傾きは1.4, 1.2, 1.4, 1.1とほぼ一定であり, ③式のように各地点で定数項bのみが異なった式となった。

諏訪湖底質を用いたダイオキシン類の嫌気的生物分解実験でO<sub>8</sub>CDD濃度の直線的減少とそれに伴う低塩素化物の増加が報告されており<sup>17)</sup>, 割合が一定速度で増加する原因として生物による還元的脱塩素が考えられた。割合の変化を生分解と仮定すると, 排出時の割合は同じであり, 時間は排出されてからの経過時間となる。排出時の割合がわかれば④式から排出年代が算出できる。ここでは最も小さい地点gの0-2cmの割合30%を使用した。この式から求めた各地点の各層の排出年代を表1に示した。なお, 図9の地点dの75cm(積算重量深度で22.34g/cm<sup>2</sup>)以深で割合が減少するなど, ダイオキシン類が高濃度の地点で低めになる傾向があった。これは排出時に高濃度であったと予想されるPCPなどによる生物阻害と考えられた。

平面分布調査でも割合は湾奥から湾口へ向かって増加する傾向もあった。しかし, 割合および割合の増加量は本調査に比べて小さく, その原因は抽出溶媒によると考えられた<sup>18)</sup>。

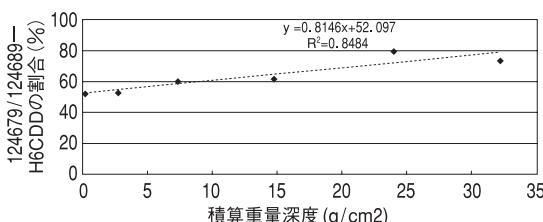


図8 1, 2, 4, 6, 7, 9-, 1, 2, 4, 6, 8, 9-H<sub>6</sub>CDDの割合と積算重量深度(地点a)

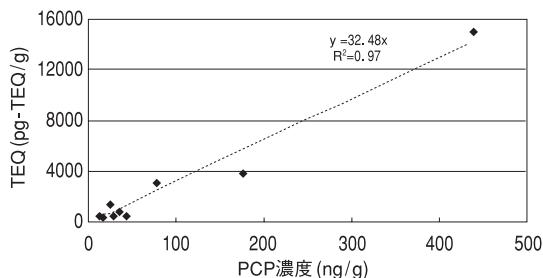


図9 1, 2, 4, 6, 7, 9-, 1, 2, 4, 6, 8, 9-H<sub>6</sub>CDDの割合と積算重量深度(地点d)

□: 傾きの算出からは除く

#### 4. 堆積年代と排出年代

地点a, d, gの堆積年代の結果を表1に示した。地点aでは堆積速度の傾きが得られず算定方法①は測定不能であった。

地点gの極大値の層(18-20cm層)は算定方法①, ②とも推定堆積年代が1997年であったが, 地点dの75-80cm層の推定堆積年代は算定方法①と②では10年程度の差があった。深い層ほど差が大きく, 正確な堆積年代の特定は困難であった。しかし, 地点dとgの極大値を示す層の堆積年代には少なくとも20年以上差があった。地点dの下層の汚染は在来層との境界からすでに始まっており, 築港後まもない1960年代前半からダイオキシン類の大量流入が始まり, 表層近くの汚染は比較的新しく1990年代に堆積したと考えられた。

推定堆積年代と排出年代の差は地点gでほとんどなく, 地点dでは4~8年, 地点aでは13~21年であり, 各地点で同程度の値であった。この差は排出されてから堆積するまでの移動・拡散に要する時間であり, 地点gがもっとも汚染源に近

表1 堆積年代と排出年代

地点	層(cm)	堆積年代(年)		排出年代	差 (算定方法② - 排出年代)	
		算定方法①	算定方法②			
a	0-2			2001	1985	16
	8-10			1999	1985	14
	18-20	測定不能		1997	1980	17
	28-30			1993	1978	15
	38-40			1987	1966	21
	48-50			1983	1970	13
d	0-2	2001	2001	1993	8	
	8-10	1998	1999	1995	4	
	18-20	1994	1996	1990	6	
	28-30	1989	1992	1987	5	
	38-40	1983	1988	1982	6	
	48-50	1976	1983	1979	4	
	50-62.5	1967~1975	1976~1982	1974	5	
	62.5-75	1958~1966	1970~1976	1967	6	
g	75-80	1966~1958	1968~1970		—	
	0-2	2001	2001	2001	0	
	8-10	2000	2000	2000	0	
	18-20	1997	1997	(2003)	(-6)	
	28-30	1995	1994	1996	-2	
	38-40	1992	1990	(1998)	(-8)	
	48-50	1988	1987	(1998)	(-11)	
	50-57.5	1986~1988	1985~1986	1988	-2	
	57.5-65	1983~1986	1981~1984	1982	1	
	65-72.5	1981~1983	1979~1981		—	
	72.5-80	1979~1981	1976~1978		—	

いと考えられた。地点gの負の値は生物阻害のためと考えられた。

## 5. 高濃度汚染泥量の概算

目視観察で地点1～地点16の表層には3～42cmの黒色の浮泥が見られ、その下層にはシルトもしくは砂混じりシルトの地点がほとんどであり、目視と底質探査機による堆積状況はほぼ一致していた。築港後の堆積厚は一部で2.0mを超える場所もあったが、ほとんどが1.0から1.5mの堆積厚であった。

環境基準値を超過した底質は地点cより湾奥側の区域で、在来層の上の全堆積層であるとした場合、汚染底質の平均層厚1.2mで、汚染泥量は約170万m<sup>3</sup>と概算された。在来層の汚染も考慮した場合、その量は更に増加する。

この汚染底質の平均TEQは約2,000pg-TEQ/gであり、汚染底質中にはTEQ換算値で8.5kg-TEQのダイオキシン類があると概算された。PCP中のダイオキシン類を平均1,400ng-TEQ/gとすると<sup>19)</sup>、汚染底質中のダイオキシン類量はPCPとして $6.1 \times 10^3$ トンに相当すると試算された。その量は湾隣接事業場のPCP総生産量の約半分に相当する量であった。製造工程でPCP中のダイオキシン類と同様な組成をもつ可能性のあるものは排水や反応残渣が考えられるが、それらに関する情報は現在のところ得られていない。しかし、残渣が原因の汚染例もこれまでに報告されている<sup>20)</sup>。

## 6. 今後の対応

今後、市原港底質の修復を行うことになるが、本調査結果から今後の対応に影響を与えると考えられる以下の結果が得られた。

- ・ 地点b以外の0-2cm層のTEQはすべて環境基準値を大幅に超過しており、汚染が現在も継続している可能性も考えられた。その確認のためには港内に排出している排水口のダイオキシン類測定データが必要と考え、現在、調査を実施している。
- ・ 防波堤内側の地点aに高濃度の汚染が確認され、付近の沿岸域でも千種海岸沖(470pg-TEQ/g)と五井南海岸沖(710pg-TEQ/g)で組成の類似した環境基準値超過地点が確認された<sup>21), 22)</sup>。そのため、湾からの拡散が懸念され、今後、汚染の拡散防止という視点から市原港付近の沿岸海域の調査や流況・巻き上げなどの調査が必要と考えられた。

似した環境基準値超過地点が確認された<sup>21), 22)</sup>。そのため、湾からの拡散が懸念され、今後、汚染の拡散防止という視点から市原港付近の沿岸海域の調査や流況・巻き上げなどの調査が必要と考えられた。

## 7. まとめ

ダイオキシン類により高濃度に汚染した市原港底質の鉛直分布、堆積量、堆積年代等に関する調査および原因究明のための湾隣接13事業場に対するアンケート調査を実施した。

アンケート調査から製品・原料の芳香族有機塩素化合物はPCP等の3物質があった。底質が浚渫された事例は1975年に湾奥の約46.4万m<sup>3</sup>で行われていた。

湾中央の地点では75-87.5cmの層で極大値3800pg-TEQ/gが検出された。この付近の表層泥は1,000pg-TEQ/g以上の汚染泥の存在が確認されており、上層と下層とも強く汚染されていることが確認された。築港時の海底面よりさらに20cm以上も深い堆積層まで環境基準値を超過していた。

湾奥の地点では最高値15,000pg-TEQ/g(18-20cm)で表層が強く汚染されていた。この地点では湾中央の地点のような深い汚染層は1975年の浚渫により除去されたと考えられた。

湾口に近い2地点を除く、港内6地点では採取した50cmまでのすべての層で環境基準値以上であった。

これまで確認された主要な汚染区域から離れた防波堤内側の地点では表層の平均値が1,300pg-TEQ/gと環境基準値を超過していた。

全ての地点及び層でダイオキシン類はPCP中に不純物として含まれるものと組成や異性体の特徴が類似していた。PCP濃度とTEQの間には関係が認められた。H<sub>6</sub>CDDs中の1,2,4,6,7,9-と1,2,4,6,8,9-H<sub>6</sub>CDDの占める割合は下層ほど大きくなり、排出からの経過時間に比例しており、それから求めた排出時期と堆積年代の差から湾奥の地点が最も汚染源に近いと考えられた。

底質の鉛210を用いた堆積年代測定からも市原港にダイオキシン類が多量に流入した時期が間隔をおいて2回以上あったことが推定された。

## —引用文献—

- 1) 飯村文成, 池田広数, 佐々木裕子, 津久井公昭, 吉岡秀俊: 東京都の運河におけるダイオキシン類の堆積状況, 第11回環境化学討論会要旨集, 258-259(2002)
- 2) 永島裕久: 綾瀬川水系ダイオキシン汚染問題への対応について, 七都県市ダイオキシン類対策講演会, 3-6(2001)
- 3) 吉澤 正, 木村満男, 石渡康尊, 半野勝正, 田中崇, 依田彦太郎: 千葉県市原港におけるダイオキシン類汚染調査 I—平面分布—, 全国環境研会誌, 28(2) 105-112(2003)
- 4) Shigeki Masunaga, Takumi Takasuga Junko Nakanishi: Dioxin and dioxin-like PCB impurities in some Japanese agrochemical formulations, Chemosphere, (44)873-885(2001)
- 5) 環境庁: ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル(平成12年3月)
- 6) 環境庁告示第127号(昭和63年9月)
- 7) (株)国土環境: 詳細は未公表
- 8) 環境省: 外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル(水質, 底質, 生物)(平成10年10月)
- 9) 日本海洋学会編: 沿岸環境調査マニュアル(底質・生物編)(1986)
- 10) 環境庁: 平成10年度ダイオキシン類コアサンプリング調査
- 11) 国立環境研究所: 平成12年度東京湾, 伊勢湾, 大阪湾底質コア試料の採取及び年代測定, 未公表データ
- 12) 古賀光雄, 小林敏郎: ベンタクロロフェノールナトリウム塩(PCP-Na), 化学と工業, p.115-123(1968)
- 13) 千葉県環境部: 底質調査—水銀等汚染対策環境調査—昭和51年10月
- 14) 清家伸康, 大谷 卓, 上路雅子, 高菅卓三, 都築伸幸: 水田土壤中ダイオキシン類の起源と推移, 環境化学, 13, 117-131(2003)
- 15) 交通エコロジー・モビリティ財団: 湾内におけるダイオキシン類分布調査報告書, 日本財団図書館(2001)
- 16) 環境庁: 昭和49年度化学物質と環境, (1974年)
- 17) 平石 明, 二又裕之, 蔡内英子, 鈴木晋一郎, 川原一芳, 加藤憲二: 生物学的ダイオキシン分解技術の開発研究, 第2回廃棄物処理科学研究発表会(2002)
- 18) 飯村文成, 佐々木啓行, 津久井公昭, 吉岡秀俊, 佐々木裕子: 高速溶媒抽出法を応用したダイオキシン類の簡易迅速分析法の検討, 東京都環境研究所報(2003)
- 19) 農林水産省: 農薬に含まれるダイオキシン類の調査結果(平成14年4月12日)
- 20) 石黒靖尚: ダイオキシン類による環境汚染一大牟田川の事例—: 福岡県保健環境研究所年報第28号 p.110(2000)
- 21) 石渡康尊, 吉澤 正, 強口英行, 依田彦太郎, 半野勝正, 田中 崇, 仁平雅子: 千葉県千葉港沿岸における底質中のダイオキシン類, 416-417, 第12回環境化学討論会(2003)
- 22) 平成14年度市原市ダイオキシン類調査