

公共用水域水質のダイオキシン類環境基準値超過原因に関する調査*

—かんがい期，非かんがい期との比較—

吉澤 正**・強口 英行***・石渡 康尊**・半野 勝正**
仁平 雅子**・小林 廣茂**・依田彦太郎**

キーワード ①ダイオキシン類 ②河川 ③水質 ④水田 ⑤かんがい期 ⑥環境基準値

要 旨

千葉県内公共用水域の水質の常時監視では環境基準値を超過する事例があり，その多くはかんがい期であった。その原因を把握するため，連続してかんがい期に環境基準値を超過した県北部の小河川，染井入落を対象として水質，底質のダイオキシン類等の調査を実施し，以下の結果を得た。

非かんがい期の水質のTEQは0.065から0.3pg-TEQ/Lと全域で低い値であった。しかし，かんがい期では1.0～4.2pg-TEQ/Lと高い値となり，流域全体が環境基準値以上の状態であった。非かんがい期と一変してかんがい期に高濃度状況になった主な原因は水田土壌流出，環境基準値を超過したかんがい用水流入，流量の増加による影響と考えられた。水田土壌が環境基準値の超過に大きく寄与していると推察された。底質のTEQは3.0から32pg-TEQ/gであり，その値は県内淡水域における底質の範囲内であった。対象流域において底質の著しい汚染は確認されなかった。

1. 目 的

ダイオキシン類による環境汚染はダイオキシン対策特別措置法が施行され，焼却施設からのダイオキシン類の排出量が大幅に削減されるに伴い，環境大気濃度はそれに追随するように改善されてきた¹⁾。しかし，千葉県では河川・湖沼などの公共用水域の水質は環境基準値(1pg-TEQ/L)を超過する事例が続いており，改善したとはいえ，とくに，かんがい期に超過することが多い傾向にあった²⁾。

その原因を把握するため，2001年から2003年度の

かんがい期に連続して環境基準値を超過した県北西部の手賀沼に流入する小河川，染井入落を対象水域としてかんがい期と非かんがい期にダイオキシン類の水質調査，底質調査等を実施したので報告する。

2. 方 法

2.1 調査水域および調査地点

調査水域は図1に示す手賀沼に流入する染井入落流域とした。これまでの染井入落(地点1)および周辺水域の測定結果を表1に示した。地点

*Study of Exceeding Environmental Standards Value of Dioxins of Water in Rivers and Lakes—Comparison between Irrigation Period and Non-irrigation Period—

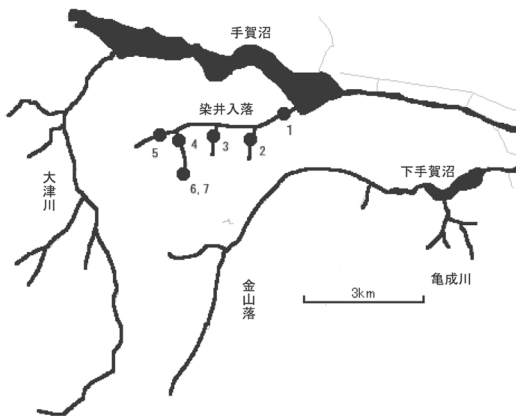
**Tadashi YOSHIKAWA, Yasutaka ISHIWATA, Katumasa HANNO, Noriko NIHEI, Hirosige KOBAYASHI, Hikotaro YODA (千葉県環境研究センター) Chiba Prefectural Environmental Research Center

***Hideyuki KOWAGUTI (千葉県産業廃棄物課) Chiba Prefectural Industrial Waste Management Division

表 1 染井入落と周辺水域のこれまでの測定結果

調査日	染井入落	調査日	大津川	調査日	金山落	調査日	亀成川	調査日	手賀沼	調査日	下手賀沼
	TEQ		TEQ		TEQ		TEQ		TEQ		TEQ
2001/8/1	1.1	2000/7/13	1.3	2000/7/13	1.5	2000/7/13	0.95	2000/7/3	0.58	2003/6/5	2.1
2001/11/21	0.13	2000/11/20	0.35	2000/11/20	0.68	2001/8/1	0.42	2001/8/1	0.52	2003/10/16	2.0
2002/5/1	2.1	2001/8/1	0.42	2001/8/1	1.0	2002/6/24	0.11	2001/12/3	0.14		
2002/9/26	0.31	2001/12/3	0.11	2001/12/3	0.42	2003/6/5	1.1	2002/5/1	0.61		
2002/11/5	0.23	2002/8/21	0.80	2002/6/24	0.95	2003/10/16	0.42	2002/11/5	0.51		
2003/2/27	0.16	2003/6/5	1.0	2003/6/5	2.1			2003/6/5	1.4		
2003/5/28	1.3			2003/10/16	0.5						
2003/11/4	0.47										

調査日の斜体はかんがい期, TEQ の斜体は基準値超過



数値は調査地点番号

図 1 調査対象周辺水域

1のダイオキシン類の毒性等量(以後, TEQ という)はかんがい期の平均値と非かんがい期とで5倍以上と大きな差があることが特徴であった。そこで, 両時期に本川および支川(以後, 農業排水路という)について水質調査を行った。底質についても同様に調査を実施するとともに, 汚染原因との関係が懸念された水田土壌については粒度分布を測定し, 河川水との関係を検討した。

調査地点は図1に示す7地点とし, 地点6と地点7はかんがい期のみ水田の状況を把握するために調査地点とした。本川は上流(地点5)と最下流の地点1の2地点とした。地点2から地点4は右岸側から流入している主な農業排水路の採水地点であり, 本川に流入する直前とした。地点6は地点4の最上流の水田に流入するかんがい用水を採水する地点, 地点7はその水田から農業排水路への排水を採水する地点である。なお, 地点6

表 2 分析方法

項目	測定方法
ダイオキシン類(水質)	JIS K0312
ダイオキシン類(底質)	ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル
SS	環告 第59号 付表8 GFP法
濁度	積分球式濁度計(カオリンによる校正) (日本精密科学製 SEP-PT-201)
糖度分布	レーザー回折式粒度分布計 (HORIBA LA-500)
lg.loss	環水管127号
含水率	環水管127号
chl-a	DMF抽出一吸光度法
流量	環水管30号

では暗きよで供給されるかんがい用水を直接採水した。

2.2 水質調査

非かんがい期の採水は2003年2月27日, かんがい期の採水は2003年5月27, 28日に実施した。測定項目はダイオキシン類, 懸濁態物質(SS), 濁度, 懸濁態物質の粒度分布, 流量であり, 測定方法は表2のとおりであり, クロロフィル-a(chl-a)はプランクトンの指標としてかんがい期にのみ測定した。

2.3 底質調査

底質は地点1~5でエクマンバージ型採泥器もしくはシャベルで採取した。

測定項目はダイオキシン類以外に含水率, 強熱減量(lg.loss), 粒度分布とし, 分析方法は表2のとおりとした。

2.4 水田土壌の沈降実験

水田土壌は流域内の2カ所の水田(地点1と地点5付近)の表層土壌を採取した。水田土壌約10gを純水に懸濁後、1mmのフルイでゴミやわらくずを除去し、純水で11とした。懸濁した水を10分間振とう機で振とう後、その50mlを純水に加えて500mlとしたものを測定試料とした。混合後静置して、経時的に濁度および粒度分布を表2の方法で測定した。

3. 結 果

3.1 非かんがい期水質調査

表3に非かんがい期の調査結果を示した。

SSはすべて6mg/l以下と低く、濁度も6度未満であった。懸濁態物質の中央粒径は流速がかなり低下する地点1で6.98 μ mと小さくなるが、それ以外は10~12.3 μ mの範囲であった。

TEQは0.065から0.30pg-TEQ/Lと低く、表1に示したこれまでの非かんがい期の値と同程度であった。最大値でも環境基準値の1/3以下であり、非かんがい期の水質は流域全体で低い値であった。

毒性等価係数(TEF)を持つ各異性体は検出下限値以下のものが多く、TEQに占める異性体の割合は一定の傾向を示さなかった。

3.2 かんがい期水質調査

表4にかんがい期の調査結果を示した。

かんがい期の流量は非かんがい期とは異なり、最下流の地点1に次いで地点2の流量が多く、地点1の63%に相当した。他の地点のかんがい期と非かんがい期の流量を比較すると、地点4ではほぼ同量、地点5で微増、土地改良事業の工事のため水田耕作の行われていなかった地点3で倍量であった。

SSは全地点で10mg/l以上であり、非かんがい期の各地点に比べ、それぞれ3.6~12倍高くなっ

表3 非かんがい期調査結果(2003.2.27)

地点名	SS(mg/l)	濁度	中央粒径	TEQ	流量
地点1	4.6	5.1	6.98	0.16	0.06
地点2	6.0	4.1	11.6	0.13	0.0048
地点3	3.2	3.4	10.0	0.065	0.012
地点4	2.8	2.6	12.3	0.30	0.073
地点5	1.1	4.9	11.2	0.23	0.015

単位：濁度：度、TEQ：pg-TEQ/L、中央粒径： μ m、流量： m^3 /sec

ていた。

中央粒径は地点2がもっとも大きく、次いで、地点3、地点6の順であった。地点2、3、6は非かんがい期と比べ、粒度分布から50 μ m以上の粒子の割合がかなり増加していた。地点1と地点7で50 μ m以上の粒子がなくなっているが、上流の影響を受けて20 μ m以上50 μ m未満の粒子は残存していた。地点4、5では20 μ m以上の粒子はごく少なく、中央粒径は非かんがい期より小さかった。

クロロフィル-aは地点2がかんがい用水(地点6)と同程度、地点3、7が半分程度であった。

地点1から地点5のTEQは1.0~4.2pg-TEQ/Lの範囲であった。非かんがい期の状況から一変して、TEQはすべてで環境基準値以上であった。かんがい用水自体のTEQも1.9pg-TEQ/Lと環境基準値を超えていた。水田からの排水のTEQは5.3pg-TEQ/Lとさらに高くなり、水田からダイオキシン類が流出していた。しかし、下流の地点4では他の農業排水路や本川の地点と同程度のTEQとなり、この地点までに20 μ m以上の粒子が沈降していた。

TEQに占める異性体割合の特徴点はすべての地点で1,2,3,7,8-P₅CDDがほぼ20%以上と最も高い割合を占め、次いで、1,2,3,4,6,7,8-H₇CDDおよび2,3,4,7,8-P₅CDFが10%台を占めていた。水田の影響をもっとも受けてTEQが上昇していた地点7を含め、どの地点のTEQ組成も類似しており、同じ汚染源であると推察された。

3.3 底質調査

表5に底質の結果を示した。

底質はすべての地点で砂質が主体であり、TEQは3.0~32pg-TEQ/gであった。測定値は底質の環

表4 かんがい期調査結果(2003.5.27-28)

地点名	SS(mg/l)	クロロフィル-a	濁度	中央粒径	TEQ	流量
地点1	21	49	15	8.25	1.3	0.38
地点2	64	123	45	16.0	4.2	0.24
地点3	24	70	20	11.9	1.2	0.025
地点4	10	26	6.4	8.15	1.1	0.073
地点5	14	24	9.0	7.63	1.0	0.020
地点6	34	135	31	9.82	1.9	—
地点7	16	76	16	9.25	5.3	—

単位、chl_a：mg/l、濁度：度、TEQ：pg-TEQ/L、中央粒径： μ m、流量： m^3 /sec

境基準値(150pg-TEQ/g)と比べて低い値であった。もっとも高い地点1ではTEQに占める異性体の割合はかんがい期の水質と類似していた。

3.4 水田土壌の沈降性

図2に濁度の経時変化を示した。

測定した2試料はほぼ同様な挙動をした。濁度は1時間後に約35%，12時間後に約90%減少し、その後はかなり緩やかな減少となった。

粒度分布は静置後1時間で20μm以上の粒子がほとんど沈降し、その後は12時間で6μm以上、48時間で5μm以上の粒子がほぼ沈降した。濁度の初期の減少は20μm以上の粒子の沈降に対応していた。このような20μm以上の比較的大きな粒子の沈降は流下過程でも起こっており、地点7から地点4や地点2の流下過程でSSや濁度の減少として認められた。

4. 考 察

4.1 流域の特徴

表6に流域のフレームを示した³⁾。流域面積は約800haで、谷津はほぼ水田、丘陵部はねぎなどを作る畑として多く利用されていた。流域人口は約3,000人で近年減少気味であり、染井入落は都市化がそれほど進んでいない北総地域の典型的な

表5 底質調査結果

地点名	地点1	地点2	地点3	地点4	地点5
TEQ (pg-TEQ/g)	32	6.2	3.0	7.0	5.7
泥色	オリーブ 黒色	オリーブ 黒色	オリーブ 黒色	暗褐色	オリーブ 黒色
性状	砂状	砂状	砂状	砂状	砂状
臭気	泥臭	腐敗臭	泥臭	無臭	無臭
Ig.loss (%)	20	10	4.3	8.7	6.1

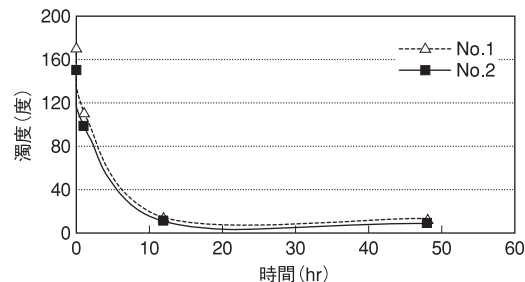


図2 水田土壌の濁度変化

小河川である。2002年度の水質常時監視結果で生物的酸素要求量(BOD)年平均値は4.4mg/lであり、水質の有機汚濁も軽度であった⁴⁾。

かんがい期には手賀沼への流入地点から約300m右岸側にある泉揚水機場でかんがい用水が取水され、本流域以外にも、隣接した大津川流域および金山落流域と沼直接流入水域の一部に暗きよで供給されていた。図3に2003年度の月別揚水量を示した。非かんがい期の染井入落の流量は0.1~0.2m³/sec程度であり、数倍の水量が取水されていた⁵⁾。なお、かんがい用水は使用後に農業排水路から再取水されることはない。

4.2 ダイオキシン類の非かんがい期とかんがい期との比較

染井入落においてかんがい期と非かんがい期でTEQに大きな差があった原因としては①水田土壌の流出、②環境基準値を超過したかんがい用水の流入、③かんがい用水による流量増加による影響が主であると考えられた。かんがい期には水が水田を経由するため、水田土壌が流出し、大きな塊はすみやかに再沈降し、細かい粒子は本川まで流下していた。大きな塊が流下している地点(地点2, 7)ではTEQは4pg-TEQ/L以上と高く、それ以外の1~2pg-TEQ/Lの地点では細かい粒子が環境基準値を超過するのに寄与していると考えられた。水田土壌は過去に使用していた除草剤(CNP, PCP)に不純物としてダイオキシン類が含まれていることが報告されており、環境省の調査結果によれば、水田土壌中ダイオキシン類濃度は5.3~180pg-TEQ/g(平均44pg-TEQ/g)であった⁶⁾。

水田土壌の流出の影響は地点7で認められた。かんがい用水のTEQ(1.9pg-TEQ/L)は水田の出口(地点7)で5.3pg-TEQ/Lへと大幅に上昇していた。地点7では目視できるような土壌の塊の流出が断続的に認められた。表4のようにSSは水田

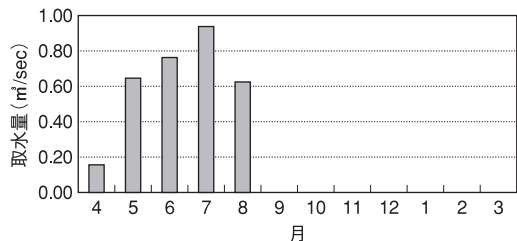


図3 泉揚水機場月別取水量(m³/sec)

表 6 流域フレーム

年 度	総人口(人)	下水道 普及率(%)	牛(頭)	豚(頭)	馬(頭)	山林(ha)	水田(ha)	畑(ha)	市街地等(ha)
1985	2506	0	13	91	0	240	111	167	298
1986	2627	0	13	142	0	240	109	167	300
1987	2652	0	11	132	0	239	109	167	301
1988	3554	0	9	492	0	239	109	167	301
1989	3652	0	9	136	0	239	109	167	301
1990	3638	0	10	0	0	239	109	167	301
1991	3692	0	10	0	0	239	109	167	301
1992	3783	0	0	0	0	206	102	173	335
1993	3841	0	0	0	0	205	102	173	336
1994	3943	0	0	0	0	195	102	167	347
1995	3950	0	0	0	0	193	101	169	290
1996	3687	0	0	0	0	168	93	158	334
1997	3239	0	0	0	0	165	93	159	336
1998	3239	0	0	0	0	165	93	159	336
1999	3098	0	0	0	0	158	91	160	344

内で約半分に減少していた。これは土壌の流出は断続的であったため、土壌流出はSS増加としては現われず、chl-a濃度の半減に反映しているプランクトンの補足による減少によると考えられた。さらに、地点7から下流の地点4への流下過程でTEQは5.3pg-TEQ/Lから1.1pg-TEQ/Lへと減少するとともに、20 μ m以上の粒子も沈降していた。地点4と地点7ではTEQ組成も類似しており、いずれも水田土壌に由来すると考えられた。

かんがい用水(地点6)は水田に供給される段階で1.9pg-TEQ/Lとすでに環境基準値を超過していた。表1のように、染井入落は3年間連続、周辺他河川では2000年度もしくは2003年度のかんがい期に環境基準値を超過していた。とくに2003年度は、大津川が1.0pg-TEQ/Lである以外は環境基準値を超過していた。この年度はかんがい用水の供給源である手賀沼および下手賀沼も環境基準値を超過しており、周辺河川では本調査の染井入落と同様の状態であったと考えられた。2000年度は手賀沼が0.58pg-TEQ/Lと環境基準値を超過していないにもかかわらず、周辺河川は2003年度と類似の状況にあり、かんがい用水からの負荷以外に水田からもダイオキシン類が付加されるためと考えられた。2001、2002年度ではかんがい期であるにもかかわらず低い河川もあり、年度により、また時期によりかんがい期でもかなり濃度が変動していることがうかがえた。

流量の影響が顕著に出ているのは地点2であつ

た。地点2では流量が非かんがい期より約5,000倍増加していた。これはかんがい用水量が現状の送水管の能力以上のため、越流した水(以後、余剰越流水という)が最上流部で多量に流入していたためであった。chl-a濃度はかんがい用水とほぼ等しいため、かんがい用水からのSSの増加分は流況から農業排水路、水田およびのり面などからの土壌流出により付加されたものと考えられた。地点2とかんがい用水(地点6)とのTEQ差を土壌由来とすると、それから推定される土壌のTEQは約77pg-TEQ/gとなった。求めたTEQは前述の環境省調査結果と比べてその範囲内であり、この地域の水田土壌はとくに強く汚染されているわけではないと推察された。地点2におけるダイオキシン類流下量はTEQとして1,000pg-TEQ/secであり、地点1の494pg-TEQ/secの倍以上の量であった。地点2以外の上流からの流下量(地点3~5の流下量の合計)は130pg-TEQ/secであり、それを地点1での流下量から差し引いた量を地点2経由の農業排水路からの流入下量とすると、地点1までの間に約1/3に減少していた。地点2では50 μ m以上の土壌粒子が多く、本川流入に伴う流速低下で速やかに沈降していると考えられた。

図4に千葉県内公共用水域の水質ダイオキシン類測定の結果(海域は除く)をかんがい期と非かんがい期のTEQ平均値で示した。かんがい期のTEQ平均値が非かんがい期より2割以上高い地点は50地点中35地点であり、逆は7地点のみで

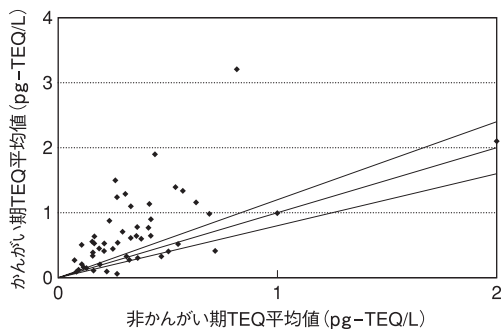


図4 かんがい期と非かんがい期のTEQ平均値(2000～2003年度)

注) 図中の補助線は上から $Y=1.2 \times X$, $Y=X$, $Y=0.8 \times X$

あった。また、非かんがい期のTEQ平均値が環境基準値を超過したのは下手賀沼のみであったのに対し、かんがい期は11地点と多かった。かんがい期のTEQ平均値は非かんがい期より一般的な傾向としてもかなり高く、環境基準値を超過する地点数も多かった。染井入落の手賀沼への流入地点は機場まで約300mと近く、流下した水の一部が再度取水されて循環することや余剰越流水のため、染井入落はとくにかんがい期に環境基準値を超過する頻度が高いと考えられた。

4.3 底質との関係

本調査結果および2002年度の千葉県内公共用水域底質調査結果のうち淡水域(河川・湖沼)のIg.lossとTEQの関係を図5に示した。県内の淡水域でTEQとIg.lossは正の関係があった。地点1は32pg-TEQ/gと県内の底質としては高いグループであるものの、Ig.lossとの関係から著しくはずれておらず、特定の汚染源(点源)による極端な汚染を受けていないと考えられた。また、地点1のTEQに占める異性体の割合はかんがい期の水質と類似しており、水田土壌を起源とする同じ汚染源であると推察された。

5. ま と め

千葉県内公共用水域の水質の常時監視では環境基準値を超過する事例がかんがい期に多く、その原因を把握するため、連続してかんがい期に環境基準値を超過した県北部の小河川、染井入落を対象として水質、底質のダイオキシン類等の調査を実施し、以下の結果を得た。

- ・非かんがい期の水質調査結果ではTEQは0.065

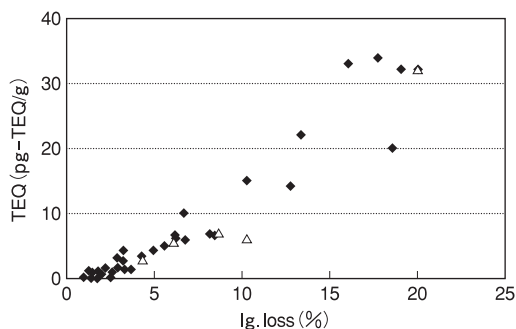


図5 Ig.loss(%)とTEQ(2002年度海域を除く)

△印:本調査結果

～0.3pg-TEQ/Lと全域で低い値であった。しかし、かんがい期の結果では1.0～4.2pg-TEQ/Lと高い値となり、流域全体で測定値が環境基準値以上の状態となっていた。非かんがい期と一変してかんがい期に高濃度状況になった主な原因は水田土壌流出、環境基準値を超過したかんがい用水流入、流量の増加による影響と考えられた。どの地点でもTEQに占める異性体割合の特徴は類似しており、水田土壌を起源とする同じ汚染源と推察された。また、このようなかんがい期に高いTEQを示す傾向は県内河川の一般的な傾向であった。

・底質のTEQは3.0～32pg-TEQ/gであり、調査対象流域において底質の著しい汚染は確認されなかった。底質測定結果からもかんがい期の環境基準値超過の原因となるような点源の存在は考えられず、最高値を示した地点1のTEQに占める異性体割合の特徴はかんがい期の水質と類似していた。

—参考文献—

- 1) 仁平雅子, 依田彦太郎, 原 雄, 吉澤 正, 半野勝正, 石渡康尊: 千葉県内における大気環境中のダイオキシン類分布, 586-587, 第13回環境化学討論会, 静岡, (2004)
- 2) 吉澤 正, 山本 実, 石渡康尊, 半野勝正, 仁平雅子, 依田彦太郎: 県内公共用水域ダイオキシン類常時監視結果の特徴と問題点, 投稿中, 千葉県環境研究センター (2004)
- 3) 千葉県環境生活部水質保全課: 印旛沼・手賀沼に係る湖沼水質保全計画資料(2002)
- 4) 千葉県環境生活部: 平成14年度公共用水域水質測定計画結果及び地下水の水質測定結果(2003)
- 5) 千葉県手賀沼土地改良区資料
- 6) 環境省: 平成12年度農用地土壌及び農作物に係るダイオキシン類実態調査結果