

港湾における底質汚染 —その2—

堀 口 孝 男*

1. 序 論

Pesticides と称せられる有害化学物質のなかには、水銀化合物、有機リンとならんで、有機ハロゲン化合物が含まれる。有機ハロゲン化合物のうちでは、塩素と結びついた化合物の比重が圧倒的に高く、DDT, BHC, Dieldrin, Endrin, Aldrin など殺虫剤として、広く用いられてきたものである。これらは主として、空中から散布することによって環境に入り込み、空中もしくは水中の微小粒子に対する強い吸着性をもつ結果、粒子とともに土壤あるいは河川に流れ込み、その一部は終局的に海域へ流出している。

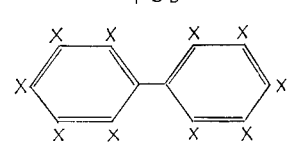
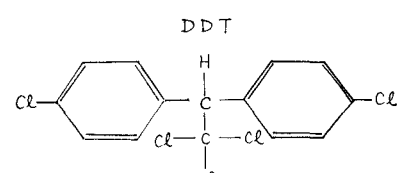
有機塩素化合物は30年以上にわたって使用されてきたものであるが、その毒作用の明確な分析は、必ずしも充分ではなかったようである。しかし、神経の中樞機構に影響を与え、特に伝達の機能に障害を起こすことは一般に認められている。水産生物に対しては、鋭い毒性を示すことは以前から知られており、なかでも甲殻類は非常に敏感に反応し、DDT 濃度 0.003 ppm で Shrimp は致命的となることが明らかにされている。人体に対する影響は、有機塩素化合物の使用に際しても、あるいはそれに汚染された魚介類を食用とした場合であっても、明確な徴候は現われていない。ところが鳥類に対しては高い残留値を示しており、亜急性もしくは長期的な緩慢な毒性の影響が現われている。米国の報告では、明らかに DDT の影響とみなされる事件が、若干あげられている。

PCB は、通常分類では Pesticides の範ちゅうに属してはいないが、有機の塩素化合物であることにはかわりないので、慣習上、有機塩素化合物と同様に扱われている。PCB の環境に対する影響は DDT の場合とよく似ており、土砂粒子に吸着し、水産生物とそれを捕食する鳥類に高い残留性を示している。ただ、DDT などは農地、山村などで使用している場合が多いのに対して、PCB は工業材料として利用しているため、工業地帯や都市の周辺に排出されており、化学工業の大半が臨海部に立地していることから、直接的に港湾の底質汚染に結びついてきている。PCB の毒性は、後述するように長

期にわたった緩慢な経過をたどることが明らかにされている。したがって、PCB の生産や排出は1971年に全面的に禁止されたとはいえ、既に排出された PCB で港湾の底質が汚染されているときには、PCB の吸着したベントス、有機物、プランクトンなどの捕食、食物循環による蓄積、底質から分離した PCB の蓄積などにより、魚介類の PCB 汚染は依然として継続することとなり、長期にわたるほど芳しくない結果となる。このため、底質に含まれる PCB 濃度がいかなる値以上ならば、早急に底質を除去して状況を改善しなければならないか、その決定が迫られるのである。

前回は、水銀によって汚染された底質の除去基準について説明を試みたが、今回は PCB のそれについて考察を加えることにする。

2. PCB の毒性と汚染状況

PCB は Polychlorinated biphenyls の略称で、日本名はポリ塩化ビフェニールである。一名、塩化ジフェニール (Chlorinated diphenyls) ともいわれる一連の化合物に属し、に示すビフェニールの X の位置が、1~10 個の塩素で置換されたものである。数多くの異性体が存在することになり、一つの製品のなかでも、それらが混在している。なお、参考のために DDT の構造式も に示しておく。

PCB の物理的・化学的性状としては、絶縁性が高く電気的特性に優れており、低揮発性で接着性、伸展性に

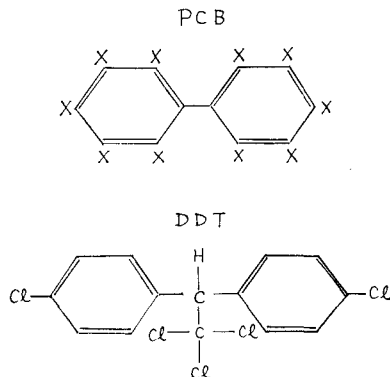


図-1 PCB, DDT の構造式

* 正会員 東京都立大学教授 工学部土木工学科

富むことがあげられる。また化学的には不活性で、耐熱性、耐酸化性に優れ、酸やアルカリにも侵されない。さらに水には難溶であるが、油脂や有機溶媒にはよく溶けることが特色としてあげられる。このように優秀な性質をもつため、工業材料として広く用いられ、絶縁油、熱媒体、機械油、塗料、複写紙などに用いられている。その結果、わが国では国土面積に比較すると PCB 使用量が極めて高くなり、PCB による汚染も諸外国に比して同様な傾向を示すようになった。PCB の汚染は、その製造過程からの漏出、廃棄物としての処理の不完全なための排出、ノンカーボン紙を含む紙再生工場の廃水からの流出などを通じて広まっている。海域で PCB 汚染の著しいところは、東京湾、瀬戸内海があげられ、その他上記の PCB に関連する工場を周辺にもつ港湾でも、多かれ少なかれ底質の汚染が見出されている。たとえば、田子浦港、高砂港、徳山湾、敦賀港がその例である。

PCB による中毒事件は、1968年2月～3月において、100万羽をこえる鶏が北九州で中毒にかかり、約半数が斃死、生き残ったものも産卵率が低下するという、家鶏飼料原料のダーク油事件があり、さらに同年3月以降、いわゆるカネミライスオイル事件が発生して、認定患者1000名をこえる中毒事件となったことは広く知られている。いずれも、熱媒体として用いられた PCB—KC 400 が、パイプの腐蝕孔から混入したものである。もっとも、PCB の生産はわが国では1954年頃から開始されており、1950年代の後半から、PCB を扱う作業員に皮膚の炎症や肝臓障害が現れていた模様である。このようなことから、PCB の生体におよぼす作用については、このカネミライスオイル中毒事件の人体に対する事例と、動物に対する慢性毒性の実験的研究から検討を加えることとなった。この実験的研究は、数年にわたる長期の研究で、これらの結果から、PCB に対する生体反応のうちでもっとも鋭敏なものは、肝臓の異常であることが明らかにされている。

最少量のライスオイルによる中毒発症事例としては、体重 59 kg の男性が、120 日間にわたって PCB 総量 0.5 g を摂取した事例があり、この場合には、PCB の

摂取量は 70 μg/kg/day ということになる。また 表—1 に示すように、PCB の動物に対する悪急性毒性、慢性毒性、次世代に及ぼす影響などの研究のうち、ラットに対する2年間の長期毒性研究で、0.5 mg/kg/day の水準では、肝臓に影響を及ぼさないことが判明している。人の健康の重要性からして、100 倍の安全率を見込むと、0.005 mg/kg/day すなわち、5 μg/kg/day となる。この値は、ライスオイル中毒発症例の最小値に対して 10 倍

表—1.1

PCB による生体反応 (1)

動物	検体	投与量 mg/kg/day	日数	所見	備考
ラット	KC—400	5	3	酵素誘導 (+)	1
"	"	1	3	" (-)	1
"	KC—500	2	3	" (+)	1
"	"	0.5	3	" (-)	1
"	"	0.4	15	" (-)	1
"	KC—400	300	6	末梢神経伝導速度遅延 (+)	1
"	"	100	12	" (-)	1
"	"	100	3	女性ホルモン増強作用	1
"	"	6~12	30	皮膚脂質代謝異常	1
"	Aroclor 1242	0.05	730	—	2
"	"	0.5	"	—	2
"	"	5	"	—	2
"	"	1254	0.05	—	2
"	1260	0.5	"	—	2
"	"	5	"	オス肝重量増加、組織変化なし	2
イヌ	"	1,10,100 ppm	"	異常なし	2

PCB による生体反応 (2)

動物	検体	投与量 mg/kg/day	日数	所見	備考
イヌ	Aroclor 1254	1,10,100 ppm	730	100ppm 成長抑制 3,6,12 ヶ月での組織検査 (-)	2
"	"	1260	"	"	"
マウス	KC—400	75	90	成長抑制、肝重量↑↑↑ 組織所見 ++、機能変化 +	1
"	"	15	"	成長抑制、肝重量↑↑ 組織所見 +	1
"	"	3	"	メスのみ肝重量↑	1
"	"	1 (mg/B)	98	肝重量増加、潜面小胞体増加	3
"	"	2 (")	"	皮脂腺膨大	3
サル	"	5.8~29	40~84	脂肪変性皮脂腺変化	3

表—1.2 次世代におよぼす影響

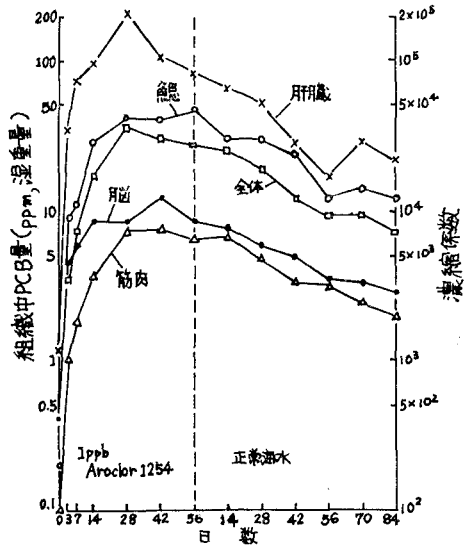
動物	検体	投与量 mg/kg/day	日数	所見	備考
ラット	Aroclor 1242	5		F _{1a} F _{1b} 離乳率低下	2
"	"	0.5		異常なし	2
"	"	1254	5	F _{1b} F _{1c} 同腹仔数減少	2
"	"	0.5		異常なし	2
マウス	KC—400	75		離乳率 F ₁ , F ₂ ↓ 胎仔平均体重 F ₁ F ₂ ↓ 外表異常 F ₁ (2/147) F ₂ (1/58)	1
"	"	15		離乳率 F ₁ ↓ 胎仔平均体重 F ₂ ↓ 外表異常 F ₂ (1/136)	1
"	"	3		離乳率 F ₁	1
"	"	1 (mg/B)		異常なし	3
ラット	"	25, 75		死産仔増加、外表異常なし	3
	(Monsanto)	35, 65		催奇形なし	2

備考: 1) PCB 毒性研究班 (科学技術庁特調費)
2) 米国 Industrial Bio Test Laboratories
3) 油症研究班

表—2 母乳中の PCB と農薬

場所 (年度)	例数	(ppm 全量)			
		PCB	β -BHC	総 DDT	ディルドリン
大阪(1972.2)	15	0.26 (0.1 ~0.7)	0~0.47	0.043	0.002
(1972.3)	9	0.03~0.24			
京都(1972)	10	0.12 (0.06 ~0.31)	0.14	0.148	
愛知(1972)	5	0.06 (0.041~0.091)			
富山(1972)	30	0.034 (0.008~0.103)			
高知(1972)	26	0.03 (0.001~0.05)	0.122	0.07	0.006
福岡(1972)	5	0.01 (0.004~0.02)			
西ドイツ(1970)	43	0.103	0.018	0.112	
スウェーデン(1970)	22	0.016			
米 国(1969)	9	0.06			

注: 磯野・藤原による



図—2 PCB の濃縮

以上の安全率を有することになり、食品の安全基準を考察するうえで、 $5 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ を人体の許容摂取量ととりあえず定めることができよう。したがって標準値として、体重 50 kg の成人の場合、1日あたり $250 \mu\text{g}$ が許容量となる。

PCB の生体に対する蓄積は、一般的にみれば植物中の残留値は低く、動物の場合、陸生生物や家畜の値は低く、水生生物と鳥類が高い値をもつことが知られている。また人体に対する蓄積は、欧米よりもわが国で高く、そのなかでも瀬戸内海の周辺地区で高い値を示すといわれている。恐らくこの現象は、PCB の蓄積性が高い魚介類を多食する結果生じてきたものとみなされよう。表—2 に示すように、1972年2月に調査した大阪の例では、母乳の PCB 濃度が $0.1 \sim 0.7 \text{ ppm}$ という結果を得ている。乳児の1日当りの母乳量は、体重 1 kg につき 150 ml 程度とみなされており、かりに 0.7 ppm の PCB 濃度の場合を例にとるならば、これだけでカネミライスオイルの最少中毒発症量を大きくこえてしまうことになる。また同年3月の調査例で、母乳中の濃度を 0.2 ppm としても、 $30 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ の摂取量となり、最少中毒発症量の半分に近い値となる。これはまことに由々しき事態であると認識されよう。

3. 底質の除去基準をめぐる問題

PCB の生体に対する蓄積は、種々の実験から検討されており、図—2 はその一つとして、有名な Hansen の実験結果を示したものである。難溶性といわれる PCB も、機械的な作用を加えれば、ppb から ppm の小さい値までの範囲で水と混合する。図—2 の例では魚種としてイシモチ (Spot) を用い、 1 ppb の PCB を含む海水で8週間生活させ、その後、正常な海水で生活させたとき、

イシモチの各部に蓄積した PCB 濃度を示したものである。右側の縦軸は濃縮係数を示したもので、いずれの部分も 10^3 より大きく、全般的な傾向からみれば 10^4 のオーダーに近いものとみなすことができる。これらの結果から、他の事例も参考にして魚介類の可食部の濃縮係数を 10000 と定め、後述するように、沿岸における魚介類の PCB 規制値が 3 ppm であることから、環境水中の PCB 濃度は 0.3 ppb 、水質汚濁防止法に基づく排水基準は、10 倍の希釈率をみて 3 ppb と決定されたのである。

いうまでもなく魚介類に対する蓄積は、水銀の場合であれ、PCB の場合であれ、環境水中に汚染物質が溶解もしくは混入しているときに効果的であることは、つとに示されてきたところである。したがって、上述のような値を定めるならば、PCB の微量汚染は継続すると考えられる。しかしながら、たとえば故紙再生業の現場で、大量の故紙のなかに1枚のノンカーボン紙、あるいは1枚の PCB を含むインキの印刷物があった場合、それだけで排水の PCB 濃度は、数 ppm のオーダーになることが指摘されている。このようなことから、故紙の分別作業がいかにも徹底を期せない以上、現段階ではやむを得ずとせざるを得ないのである。

PCB に汚染された底質の除去基準を考える場合、水に対する難溶性のために、水銀などの可溶性物質と同様な Sediment-water exchange の論理は使えない。このため、以下に述べるような統計的な相関性の観点から、暫定的な除去基準を定める手段をとっている。それにはまず現実の事例から出発しなければならない。

図—3 は敦賀港の調査結果である。同港は旧笹ノ川からの産業廃水により、高濃度に PCB で汚染されたため、

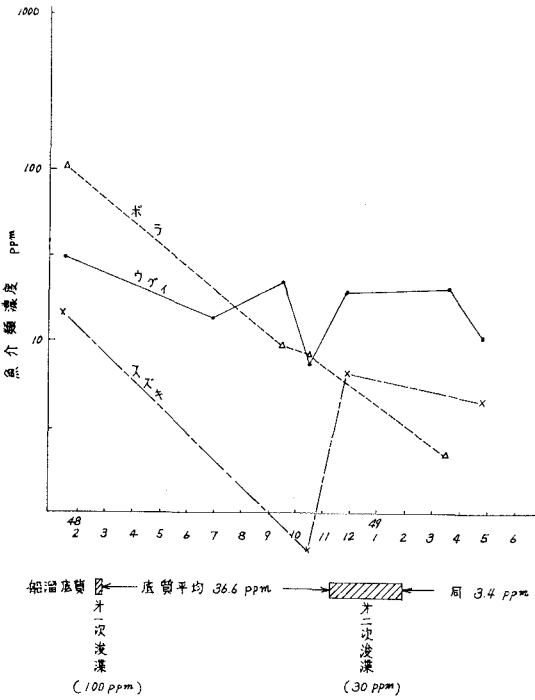


図-3 敦賀港内 PCB 汚染魚の経年変化
(注) 47.10.28 排出中止再入れ

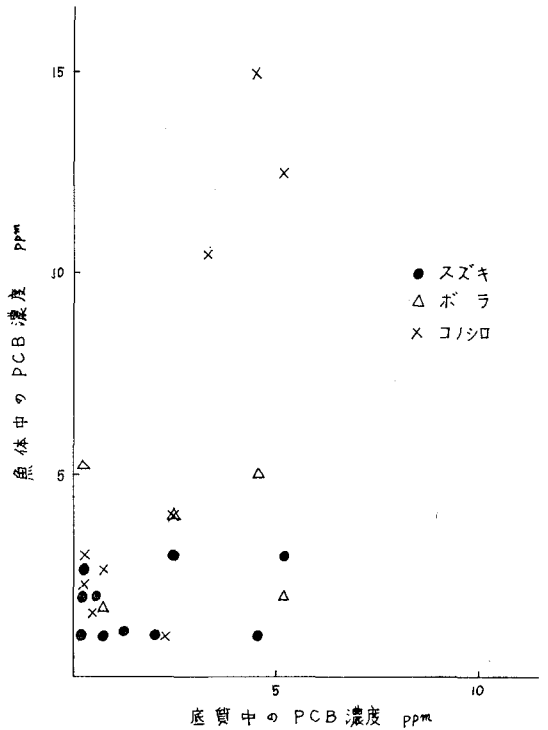


図-5 魚体と底質との PCB 濃度の相関

まず、昭和48年2月～3月に環境庁の通達により、100 ppm 以上の PCB を含む底質を除去した。これが第1次浚渫である。第1次浚渫以後、港内における魚介類の PCB 濃度は明らかに減少してきている。この場合、底質の PCB 濃度は、平均的にみて 36 ppm 程度となっている。さらに第2次浚渫を48年11月から行って、底質の PCB を平均値で 3.4 ppm、最大値で 7.0 ppm に低

下させた。図からみるように、魚介類の PCB 濃度は依然として減少の傾向を保っている。これを港内だけでなく、敦賀湾の湾奥部という広い面積から採取した魚介類について調査すると、図-4 のようになり、これら両者の図から傾向的にみれば、底質の除去によって魚介類に蓄積した PCB は徐々に減少してきていることがわかる。PCB の性格からして、油脂に溶けやすく水に溶けにくいということで、生体の脂肪中に蓄積し、なかなか体外に排泄しないことを考えると、多少の時間は必要とするといえども、底質の除去はかなり効果があるとみられるわけである。

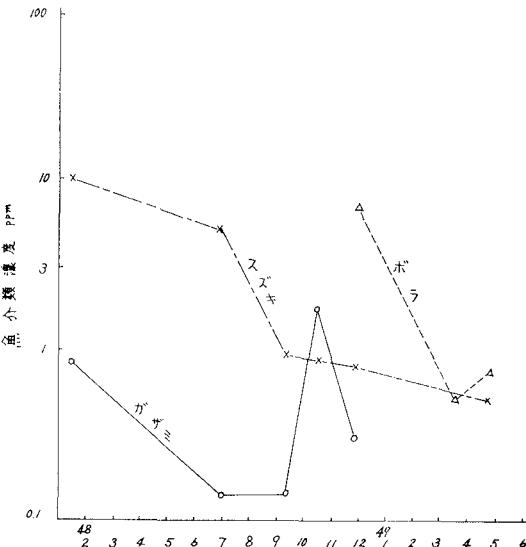


図-4 敦賀湾奥部 PCB 汚染魚の経年変化

これをさらに一歩進めて、底質の濃度とそこに棲息する魚介類の濃度との関係を調べてみると、図-5 のようになる。図-5 は水産庁の調査によるもので、過去に PCB が排出した高濃度汚染地区を対象としている。横軸に示す底質の PCB 濃度は、高濃度汚染底質の平均値をとり、縦軸の魚介類の濃度は、その地区を中心とする水域で採集した魚介類の PCB 濃度である。

食品衛生調査会が検討した結果によれば、1日1人あたり各食品別の摂取量は表-3 のようになる。また実態調査による食品中の PCB 含有量と食品の摂取量との関係は、表-4 のようになる。各食品ごとの PCB の暫定規制値は、魚介類以外の食品について、現在までに得られた測定値の最高値を勘案して、表-5 のように定められている。魚介類については、前に述べた人体許容摂取

表—3 食品別摂取量

(1日当たり)

食品名	最低	最高	平均	備考
牛乳	32.2g	108.4g	65.2g	
乳製品	2.7	12.1	10.4	
肉類	17.5	62.2	37.9	
卵類	26.5	51.7	37.9	
魚介類	75.9	130.9	86.3	
米	264.7	405.0	308.3	
麦、雑穀	77.3	90.0	72.7	
野菜	186.1	260.0	246.9	
果実	51.8	135.0	79.9	
いも類	32.9	65.0	44.9	
豆類	64.6	90.0	73.9	
計	832.2	1 410.3	1 064.3	

〔昭和43年国民栄養調査〕より

- 注: 1) 最低および最高の値は、農家世帯、非農家世帯別、支出階層別、市郡別、地域ブロック別の平均値の最低および最高の値をとったものである。
2) 平均の値は全国の平均値である。

表—6 魚介類摂取量の内訳

(1日1人当りの可食部分)

水産物計 (g)	魚介類計 (g)	生鮮魚介類				加工魚介類	海藻類		
		計	鮮魚					貝類	
			小計	多獲魚	中高級魚				
85.7	82.7	27.6	25.6	9.5	16.1	4.0	53.1	1.9	1.1

- 注: ① 加工魚介類は、ねり製品、フィッシュソーセージ、罐詰、塩干くん製品で、その原料はスケソウダラその他の遠洋底魚類、サケ、マス、カニ、サバ、サンマ、マグロ等の遠洋水産物で内海内湾さんのものは殆んどない。
② 鮮魚のうち、多獲性魚はサバ、サンマ、スルメイカ等でいずれも遠洋沖産のものである。
③ 鮮魚のうち、中高級魚は上記の多獲魚以外の魚種でこれにはカツオ、マグロの他遠洋のものタイ、イカ等が一応全部を内海内湾産のものとしみなす。
④ 貝類も一応全部を内海内湾産のものとしみなす。
⑤ このようにして、魚介類を遠洋、沖産のものとし内海内湾産のものに区別するとつぎのようにその摂取割合はほぼ3対1である。

水産物計 86g (遠洋沖産のもの(海藻類を含む) 65.6g + 内海内湾のもの 16.1g + 4.0g = 20.1g (生鮮中高級魚) (貝類))

表—4 実態調査による食品中の PCB 濃度 (平均値) から推定される PCB の体内摂取量

食品名	PCB 濃度 (平均値) (ppm)	食品摂取量 (g/日)			PCB 摂取量 (μg/日)		
		最低	最高	平均	最低	最高	平均
牛乳	0.02	32.2	108.4	65.2	0.664	2.169	1.304
乳製品	0.06	2.7	12.1	10.4	0.162	0.726	0.624
肉類	0.04	17.5	62.2	37.9	0.700	2.488	1.516
卵類	0.03	26.5	51.7	37.9	0.795	1.551	1.137
魚介類	0.5	75.9	130.9	86.3	37.95	65.45	43.15
計		154.8	365.3	237.7	40.27	72.38	47.73

注: 上表から、国民の平均的 PCB 摂取量は 72.38 μg となるが、これらの PCB 測定値は、汚染地域の例が多いとみられるので実際にはこれよりも低いと考える。

表—5 暫定的規制値と PCB 摂取量 (推定)

食品名	規制値 (ppm)	摂食量 (g/日)			PCB 摂取量 (μg/日)		
		最小	最大	平均	最小	最大	平均
牛乳	0.1	32.2	108.4	65.2	3.22	10.84	6.52
乳製品	1	2.7	12.1	10.4	2.7	12.1	10.4
肉類	0.5	17.5	62.2	37.9	8.75	31.1	18.95
卵類	0.2	26.5	51.7	37.9	5.3	10.34	7.58
魚介類							
遠洋魚	0.5	57.0	98.2	64.7	28.5	49.1	32.35
内海魚	3	18.9	32.7	21.6	56.7	98.1	64.8
計		154.8	365.3	237.7	105.17	211.58	140.6

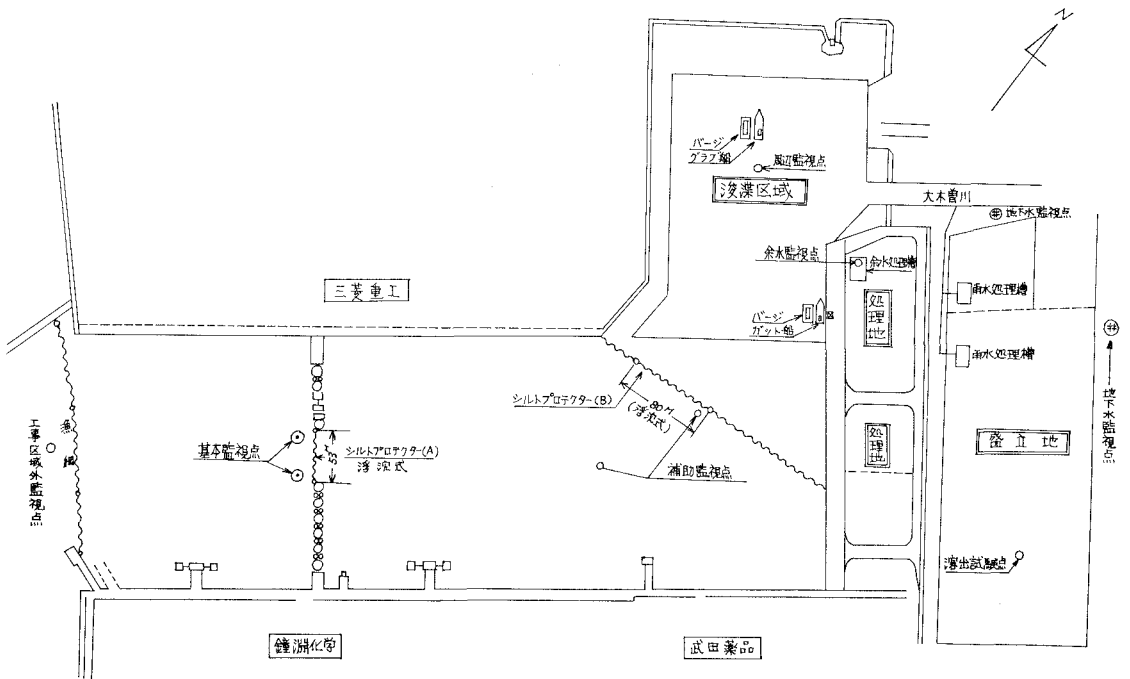
量 250 μg のうち、魚介類以外の食品に由来する PCB 摂取量が約 70 μg となるところから、魚介類に由来する PCB を 180 μg 以下におさえれば、前記 250 μg をこえることはない。そこで、魚介類の最大摂取量 (表—4 参照) における PCB 濃度を逆に算出すると 1.41 ppm となる。したがって安全側をみて、これを 1 ppm 以下としている。ここで水産庁の調査によると、遠洋沖合魚介類と内海内湾魚介類との摂取量の比率は表—6 のようになり、3:1 とみなされる。これから、遠洋沖合魚介

類については 0.5 ppm とし、内海内湾魚介類については 3 ppm 以下とすることが定められた。

いま 図—5 から底質濃度との相関をみると、沿岸産の魚介類規制値 3 ppm という許容限界に対処するには、高濃度汚染底質の平均値として、少なくとも 5 ppm 以下に底質濃度を低下させなければならない。

現段階における浚渫の技術水準は、このような要求に対応できるか、これが PCB 汚染底質の除去問題でもっとも困難な点となる。PCB に汚染された底質は、通称、ヘドロと称せられる単位容積重量の小さい微粒子の泥土で構成されており、浚渫にあたっては、機械部分のヘッドに特殊な装置をほどこす必要がある。この面での研究は続行されているが、現在用いられている方法は、密閉グラブ方式、シルシ型ポンプ方式である。この場合には、ヘッドが底質と接することにより、軽い微粒子の底質は多かれ少なかれ拡散され、何回浚渫しても 5 ppm 以下とならない汚染底質が散在することになる。これを防ぐ手段としては、直接的に海底のヘドロを固化化することが考えられる。これには固型用化学剤を用いることが試みられているが、軟弱地盤を固結する石灰工法を利用することも考えられている。しかし実用化の段階までは達していない。

図—6 は、昭和 49 年末から 50 年にかけて、PCB の汚染底質を処理した高砂港の工事概要図である。密閉グラブ方式によって浚渫し、処理地で脱水と同時に固型剤を加えて固結させ、盛立地に埋立てている。二次汚染防止の対策と監視の方法も、同時に示されている。高砂港で処理しなければならない土砂は約 280 000 m³ で、工事費で約 50 億円と見積られているが、とりあえず 80 000 m³ をこのように処理したものである。工費は 1 m³ あたり 6 000 円に相当している。この浚渫によって汚染底



図—6 高砂港汚泥処理概要図

質の濃度は数 ppm のオーダーに低下したかといえ、
ともそれに到達し得ず、浚渫後の凹凸面によって、凸
面で高く、凹面で低い値という結果を得ている。このた
め、私見とすれば、ポケットに類する局部浚渫を行ない、
このなかへ底ならし船で土砂を集めて、さらに浚渫をす
ることが必要とみなされよう。

このようなことから、敦賀港の浚渫例でみるように、
2回の浚渫でサンプルの最高値 7.0 ppm まで低下させ
た実績をもとに、除去基準としては暫定的に 10 ppm と
し、この 10 ppm を下回るよう極力努めることに決定を
みたのである。

4. 結 語

以上論じてきたように、早急に処理が要求される PCB
の汚染底質の除去問題は、その基準の設定に問題点が多
く、充分なものとはいえない。もちろん、汚染された底

質はその全てを除去するのが理想とするところである
が、現在の技術水準と汚染域の広さを考えれば、費用は
天文学的な数字となり現実性を失う。この意味で、上述
の除去基準は段階を一步一步進める現実的な立場にた
ったものといえる。

参 考 文 献

- 1) 環境庁水質保全局：PCBに係る水質の環境基準、排水基準および底質の暫定除去基準ならびにその分析方法の設定について、1974。
- 2) 食品衛生調査会：食品中に残留するPCBの規制について、1972。
- 3) 磯野直邦・藤原邦達：PCBによる汚染 I, II, 科学, Vol. 42, No. 6, No. 7, 岩波書店, 1972。
- 4) Hansen, D.J. et al.: Bull. Environ. Contam. Toxicol, 6, 1971。
- 5) 兵庫県高砂西港汚泥処理工事施工概要、鐘淵化学工業高砂工業所他, 1974。