

港湾における底質中の内分泌攪乱化学物質の全国調査

細川 恒史*・安井 誠人**・吉川 和身***
田中 裕作****・鈴木 幹夫*****

1. 調査の目的

近年、外因性内分泌攪乱化学物質（環境ホルモン）の問題は緊急に対応すべき課題として注目されている。環境ホルモンはヒトを含む生物の生殖機能に重大な影響を及ぼす恐れのある物質と考えられ、界面活性剤やプラスチックの可塑剤などに含まれることが分かっている。これらは河川を経由する等により港湾に流入・沈殿している可能性があり、底質中に蓄積されていることは否定できない。また、船舶の船底塗料として使用されてきたトリプチルスズも環境ホルモンの一つと考えられている。

国土交通省港湾局は、今後の対策検討のための基礎資料とすることを目的として、他省庁と連携を取りながら、平成 11 年度に全国の 39 港湾を対象として、底質中の環境ホルモン 12 物質の実態把握調査を行った。さらに、平成 12 年度はそのうち 7 港湾を対象として、港湾区域内での環境ホルモンの平面分布およびダイオキシン類の年代別蓄積状況を求める調査を行った。

2. 全国分布の把握

(1) 調査方法

a) 調査対象港湾

全国の重要な港湾のうち 39 港湾を対象として、底質に含まれる環境ホルモンの実態把握調査を実施した。

調査対象港湾：

稚内、留萌、釧路、苫小牧、函館、青森、八戸、塩釜、小名浜、川崎、横浜、秋田、酒田、新潟、伏木富山、金沢、清水、三河、衣浦、名古屋、四日市、津松阪、大阪、堺泉北、和歌山下津、神戸、鳥取、小松島、高松、三島川之江、高知、広島、宇部、北九州、長崎、八代、宮崎、那覇、中城湾港

港湾内の調査地点は 1 港湾あたり 2ヶ所とし、St. 1 は比較的高濃度で、St. 2 は比較的低濃度で検出されるであろうと予測される地点を選定した。なお、最近浚渫工事

表一 全国分布調査対象物質

物質名
ノニルフェノール
4-n-オクチルフェノール、4-t-オクチルフェノール
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル
フタル酸ブチルベンジル
フタル酸ジ-n-ブチル
アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル
ビスフェノール A
ステレン 2, 3 量体
17 β-エストラジオール
ダイオキシン類（コブラナ PCB 類を含む）
トリプチルスズ
トリフェニルスズ

を行った地点は避けた。

b) 調査対象物質

基本となる調査対象物質は、環境庁が「内分泌攪乱化学物質戦略計画 SPEED '98」（平成 10 年 5 月）の中示した、内分泌攪乱作用が疑われている 67 物質から、生産量と環境中の検出状況を考慮して 8 物質を選定した。さらに、船舶塗料として使用されていたトリプチルスズおよびトリフェニルスズ、非意図的生成物であるダイオキシン類、人畜由来の 17 β-エストラジオールを加えた合計 12 物質（表一）を調査対象物質とした。

なお、閉鎖性が高く、都市活動、生産活動、港湾活動が活発な三大湾に位置する港湾においては 12 物質に加えて、生産量等を勘案し 14 物質を追加した計 26 物質を調査対象物質とした。

c) 現地採泥方法および分析方法

分析に供する底質は調査船上からエックマンバージ式採泥器を用いて採取した。採泥にあたっては、調査対象物質が非常に低濃度で存在する上、プラスチックの可塑剤など身の回りの製品に広く使用されている物質であるため、周辺からの混入に細心の注意を払う必要がある。このため事前に現地採泥における注意事項を作業指針として取りまとめ、すべての港湾での採泥作業に適用した。

分析方法は、環境庁の「外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル」および「ダイオキシン類に係わる底

* 正会員 国土交通省国土技術政策総合研究所沿岸海洋研究部長

** 正会員 国土交通省港湾局環境整備計画室長

*** 国土交通省港湾局環境整備計画室専門官

**** (財)港湾空間高度化環境研究センター調査役

***** 國境環境(株)環境調査本部副本部長

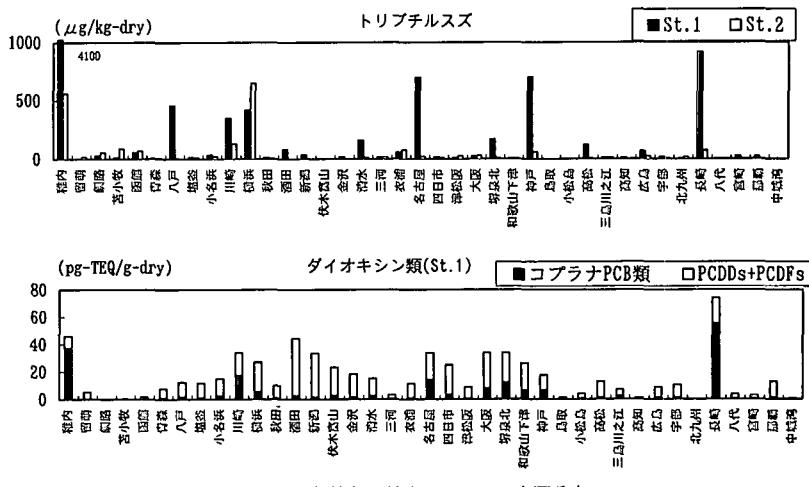


図-1 底質中の環境ホルモンの全国分布

質調査暫定マニュアル」に定める方法を原則とした。また、本調査の対象物質は極めて低濃度で存在するため、底質中に含まれる他の物質が妨害物質として分析精度に影響を与えるおそれがある。このため分析作業の実施に当たっては、クロスチェックや二重分析の実施などの精度管理指針を作成し、分析精度の確保を徹底した。

(2) 調査結果

調査の結果、港湾における底質中の環境ホルモンの分布の概要および濃度のレベルが把握できた。39港(78地点)で調査した12物質のうち、ノニルフェノール、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル、17 β -エストラジオール、ダイオキシン類、トリプチルスズ、トリフェニルスズは半数以上の地点で検出された。4-t-オクチルフェノール、フタル酸ジ-n-ブチル、ビスフェノールA、スチレン2・3量体は78地点の3~4割で検出された。フタル酸ブチルベンジル、アジピン酸ジ-2-エチルヘキシルは、1割以下の検出状況であった。なお、4-n-オクチルフェノールはどの地点でも検出されなかった。

調査結果のうち、トリプチルスズおよびダイオキシン類の全国分布を図-1に示す。

ただし、調査対象物質は、搅乱作用の強弱やそのメカニズムについては必ずしも明らかになっておらず、また、環境中での挙動についても明確な知見がないのが現状であるため、今回の分析値によって港湾の底質の状況を評価できる段階ではない。本調査の目的は、環境ホルモンに対する今後の対策を検討するための基本的なデータを得ることであり、今後調査データを蓄積することによって評価が可能になっていくという認識が重要である。

3. 港湾内の平面分布

(1) 調査方法

a) 調査対象港湾

前章で述べた全国分布状況の把握調査を行った39港湾のうち新潟、横浜、名古屋、大阪、堺泉北、長崎、那覇の7港湾において環境ホルモンの平面分布を求める調査を実施した。

各港湾において6地点を設定し、前章の2地点を合わせて8地点の調査結果から港湾内の平面分布を求めた。

b) 調査対象物質

調査対象物質は全国分布調査の対象物質のうち、概ね半数以上の地点で検出された7物質とした。表-2に調査対象物質を示す。

c) 採泥方法および分析方法

採泥および分析は全国分布調査に準じて行った。ただし、ダイオキシン類については「ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル」に準拠した。

(2) 調査結果

各港湾において調査物質毎に港湾内の平面分布の傾向を概ね把握できた。全体としては、各物質とも港奥部お

表-2 港湾内の平面分布調査対象物質

物質名
ノニルフェノール
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル
ビスフェノールA
17 β -エストラジオール
ダイオキシン類 (コプラナ PCB類を含む)
トリプチルスズ
トリフェニルスズ

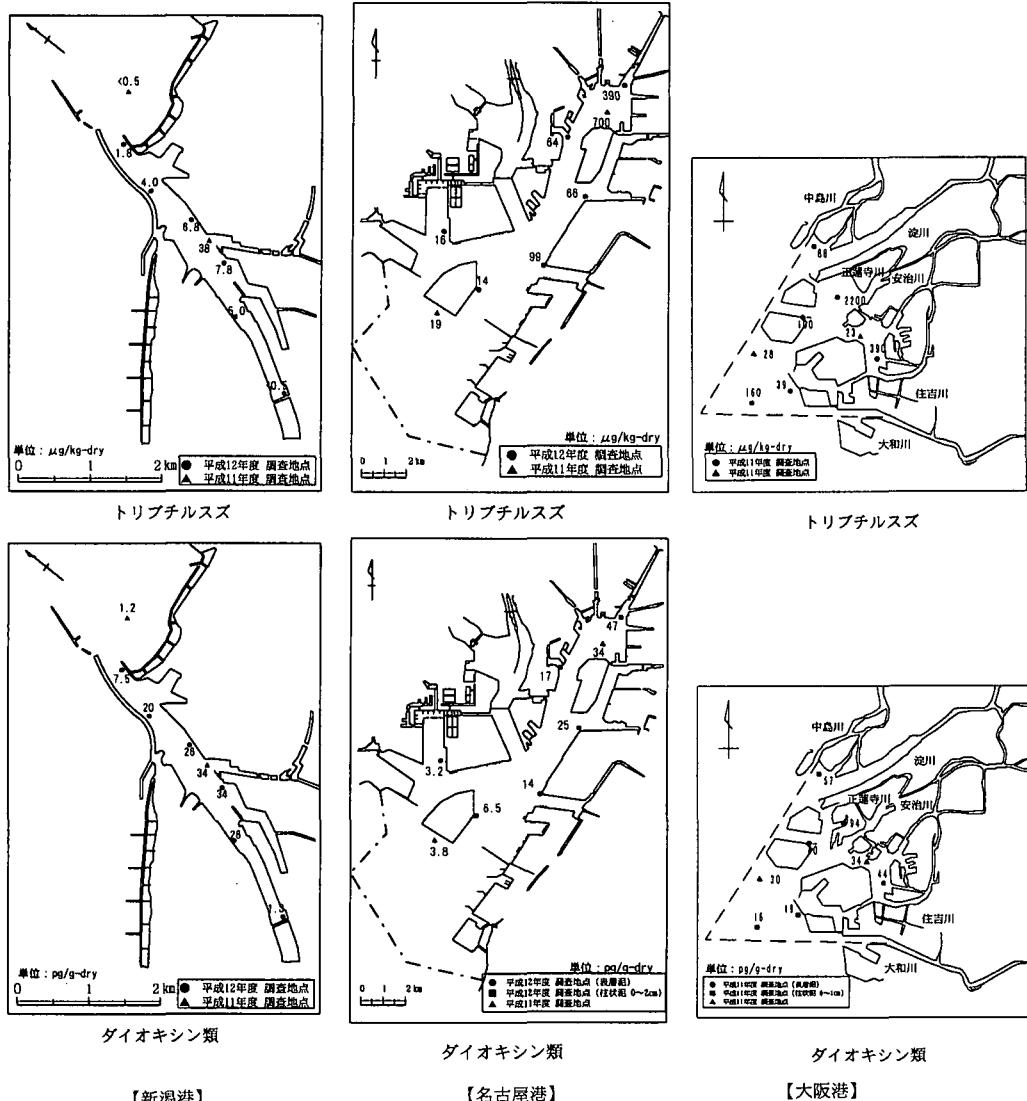


図-2 トリプチルスズ、ダイオキシン類の平面分布

より河川の流入部において高い値を示す傾向が見られた。調査結果のうち、例として3港湾におけるトリプチルスズおよびダイオキシン類の平面分布を図-2に示す。

4. ダイオキシン類の年代別蓄積状況

(1) 調査方法

a) 調査対象港湾

港湾区域内の平面分布調査を行った7港湾のうち、底質の堆積年代測定が困難であると判断した2港湾を除外し、横浜、名古屋、大阪、堺泉北、長崎の5港湾においてダイオキシン類の年代別蓄積状況を調査した。

底質の堆積年代測定を行うためには以下の条件を満足

していることが必要である。

- ①測定法の制約から土質が粘性土であること
 - ②人為的な底質除去などによって底質がかく乱されていないこと
 - ③ダイバーによる採泥作業の安全が確保されること
- 調査地点はこれらを満足していることを条件として、港湾毎に4地点設定した。ただし長崎港は1地点とした。
- b) 現地採泥方法および分析方法
- 各港4地点において、ダイバーにより、長さ100cm、内径20cmのコアサンプラーを用いて採泥を行った。1地点当たりコアを2本採取し、目視観察によりそのうちの1本を分析用試料として選定した。コアを2cm厚で分割した上で各々を均一に攪拌して試料とした。

各地点において、2 cm 厚で分割した試料のうちの 20 層を選定し、鉛-210 法により堆積年代を測定した。また、20 層のうち 6 層を選定し、ダイオキシン類の分析試料とした。

(2) 調査結果

a) 堆積年代の測定結果

5 港湾、17 地点において堆積年代測定を行った結果、採取したコア全長にわたって堆積年代が推定できたのは 4 地点、表層からコアの途中まで推定できたのが 5 地点であった。その他の 9 地点では堆積年代は推定できなかつた。その結果を表-3 に示す。

b) ダイオキシン類の年代別蓄積状況

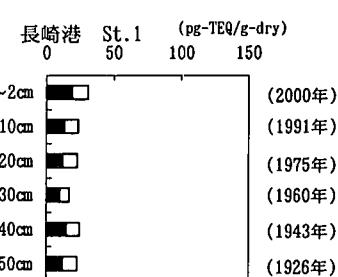
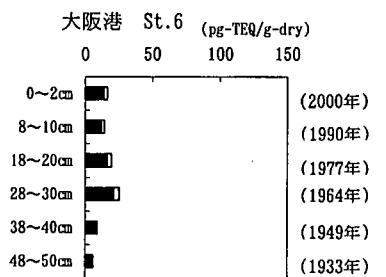
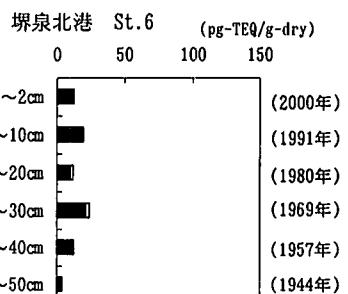
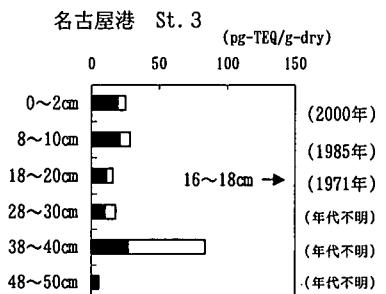
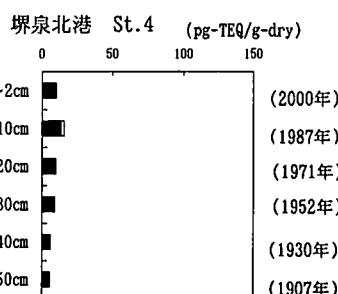
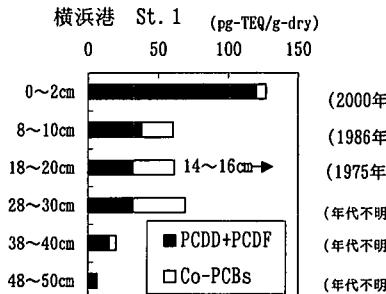
堆積年代が推定された地点のうち各港湾から 1 地点づつ選び(堺泉北港は 2 地点)、ダイオキシン類の年代別蓄積状況を図-3 に示す。

図において、グラフ右側に記した年数がその層の堆積

表-3 堆積年代の測定結果

地点名	判定	堆積速度 (cm/年)	堆積年代の 得られた層	得られた堆積 年代(年)
横浜港	St. 1 ○	0.774	0~16 cm	2000~1975
	St. 3 ×	—	—	—
	St. 4 ○	0.976	0~14 cm	2000~1986
	St. 5 ×	0.213	—	—
	St. 1 ×	—	—	—
名古屋港	St. 2 ×	—	—	—
	St. 3 ○	0.759	0~18 cm	2000~1971
	St. 5 ×	—	—	—
	St. 1 ○	1.425	0~26 cm	2000~1981
	St. 4 ×	—	—	—
大阪港	St. 5 ×	—	—	—
	St. 6 ○	1.047	0~70 cm	2000~1901
	St. 1 ○	0.464	0~12 cm	2000~1966
	St. 2 ×	—	—	—
	St. 4 ○	0.811	0~54 cm	2000~1898
堺泉北港	St. 6 ○	1.242	0~74 cm	2000~1911
	St. 1 ○	0.464	0~12 cm	2000~1966
	St. 2 ×	—	—	—
	St. 4 ○	0.811	0~54 cm	2000~1898
	St. 6 ○	1.242	0~74 cm	2000~1911
長崎港	St. 1 ○	2.180	0~60 cm	2000~1906

堆積年代が得られた層 ○: 全層 ○: 上層のみ ×: 得られなかった



大きい上下混合を受けながら堆積したと考えられる

図-3 ダイオキシン類の年代別蓄積状況

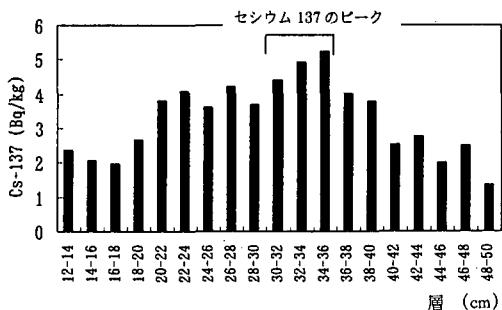


図-4 セシウム 137 による測定結果（長崎港 St. 1）

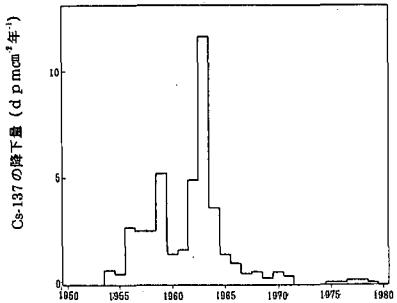


図-5 東京におけるセシウム 137 の年間降下量の変化

年代である。横浜港 St. 1 および名古屋港 St. 3 ではともに鉛-210 の放射線量の一定減衰傾向が表層から数十 cm の層のみであったため、1970 年代までしか堆積年代が推定できなかった。コア全層にわたって堆積年代が推定された地点のうち大阪港 St. 6 および堺泉北港 St. 6 では共通した傾向を示した。1950 年頃を境としてそれ以深の層ではダイオキシン類の蓄積が小さく、特にコプラナ PCB はほとんど検出されていない。また、それより浅い層では極端な濃度の差はないが、概ね 1960 年～1990 年の層で比較的高い値を示している。これは、1960 年～1980 年頃にかけて農薬 PCP や CNP が使用されていたこと、PCB が 1960 年に本格的な製造が始まったことと一致している。また、堺泉北港 St. 4 では全体に濃度が低いため、顕著な傾向は見られなかった。

c) セシウム 137 法による堆積年代の検証

長崎港 St. 1 では、表層から 1926 年の最下層にわたってダイオキシン類、コプラナ PCB ともほぼ同じ値で検出されている。1950 年以前の堆積層からこれらが検出されたことはダイオキシン類の環境への放出量の経緯と矛盾が生じる。そこで、この地点のみ、堆積年代の推定を別途セシウム 137 を用いた方法により検証した。

セシウム 137 は、大気圏水爆実験により地球上に放出された放射性物質である。1954 年のビキニ環礁に始まり、1963 年まで行われた水爆実験により、この間大量の

放射性物質が地表に降下してきた。測定結果を図-4 に示す。深さ 30-36 cm 層にセシウム-137 のピークがみられるうことより、この層が 1955 年から 1965 年を含む層であると考えられる。鉛 210 法による測定では、この層の堆積年代は 1950 年から 1957 年と推定されており、セシウム 137 法での堆積年代とのずれは数年であり、概ね合っているといえる。

一方、松本の研究より 1950 年から 1980 年にかけての東京における降下物中のセシウム 137 濃度の経年変化を図-5 に示す。これによると、1963 年をピークとしてその前後約 15 年間セシウム 137 が検出されているが、それ以前及びそれ以降はほとんど検出されていない。特に 1954 年以前は全く検出されていないのが特徴である。

しかし、今回の長崎港での分析結果においては、1954 年以前の堆積層からもセシウム 137 が検出されている。このことから、この地点は大きい上下混合を受けながら堆積したと推察される。その原因としては、底生生物によるバイオオーバーショーンの影響、底曳漁業による底質表層のかく乱などが可能性として挙げられるが、本調査では特定できなかった。

5. 結 論

①全国の港湾における底質中に含まれる環境ホルモン 12 物質の分布の概要および濃度のレベルを把握した。

②7 つの港湾において底質中の港湾内の環境ホルモンの平面分布を求めた結果、各物質とも港奥部および河川の流入部において高い値を示す傾向が見られた。

③底質中のダイオキシン類の年代別蓄積状況を求めた。そのうち、大阪港と堺泉北港の各 1 地点においては、1950 年頃を境としてそれ以前の層ではダイオキシン類の蓄積が小さく、特にコプラナ PCB はほとんど検出されていなかった。また、それより浅い層では、概ね 1960 年～1990 年の層で比較的高い値を示していた。これは、1960 年～1980 年頃にかけて農薬 PCP や CNP が使用されていたこと、PCB が 1960 年に本格的な製造が始まったことと一致している。しかし、その他の地点では明確な知見は得られなかった。

謝辞：本調査を実施するに当たり、港湾底質環境研究会（委員長：東洋大学工学部松尾友矩教授）において有意義な審議をいただいた。あらためて謝意を表します。

参 考 文 献

- 日本海洋学会編 (1986): 沿岸環境調査マニュアル [底質・生物編] p. 42 (松本英二)。
- 環境庁 (1998): 外因性内分泌擾乱化学物質調査暫定マニュアル。
- 環境庁 (1998): ダイオキシン類に係る底質調査暫定マニュアル。
- 環境庁 (2000): ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル。