

ノート

鹿児島県における環境中のダイオキシン類濃度特性について

清原 拓二 實成 隆志 荒川 浩亮
 四反田 昭二 岩田 治郎 宮田 義彦

要 旨

鹿児島県において、環境中のダイオキシン類の常時監視調査を2000年度から2004年度にかけて実施した。大気、公共用水域水質・底質、地下水質及び土壌中のダイオキシン類濃度の年平均値は、それぞれ、 $0.017 \sim 0.027 \text{pg-TEQ/m}^3$, $0.033 \sim 0.10 \text{pg-TEQ/L}$, $0.69 \sim 1.0 \text{pg-TEQ/g}$, $0.032 \sim 0.072 \text{pg-TEQ/L}$, $0.30 \sim 1.4 \text{pg-TEQ/g}$ を示し、すべての媒体において環境基準を超える結果は見られなかった。地下水質は全国平均値とほぼ同様のレベルを示したが、その他の環境媒体は全国平均値比が4～32%の低いレベルを示した。

大気中においては夏季に、Co-PCBs濃度の上昇に伴い、組成比が64%に達した。また、同族体ではTeCDDsの組成比が春季～夏季にかけて全PCDDs濃度の50～70%を示した。公共用水域水質・底質、地下水質及び土壌中においては、各環境媒体ともPCDDsの組成比が高く、それぞれ65%、86%、41%、91%を示した。

キーワード：ダイオキシン類 (PCDDs, PCDFs, Co-PCBs), 環境媒体, 濃度組成, 同族体

1 はじめに

鹿児島県では、ダイオキシン類対策特別措置法に基づき、ダイオキシン類の環境中における汚染状況を把握するため、大気、公共用水域の水質・底質、地下水質、土壌の常時監視調査を2000年度から行っている。

本稿では、過去5年間に鹿児島県が実施した調査結果を用いて、各環境媒体の濃度レベルや同族体組成等を調べ、本県の環境中のダイオキシン類の汚染状況等の特徴についてとりまとめたので報告する。

2 調査方法

2.1 調査対象地域

鹿児島県全域 (鹿児島市を除く。)とする。

2.2 測定データ

2000年度から2004年度までに鹿児島県が実施したダイオキシン類常時監視調査の測定結果を用いた。測定データ数を表1に示す。

2.3 調査項目

ダイオキシン類対策特別措置法に規定するダイオキシン類 (ポリ塩化ジベンゾ-パラ-ジオキシン (以下、「PCDDs」という。), ポリ塩化ジベンゾフラン (以下、

「PCDFs」という。), コプラナーポリ塩化ビフェニル (以下、「Co-PCBs」という。))とする。

なお、以下PCDDs及びPCDFsの同族体は、塩素数を表す頭文字 (テトラ=Te, ペンタ=Pe, ヘキサ=Hx, ヘプタ=Hp, オクタ=O) により表記する。

表1 ダイオキシン類常時監視調査のデータ数

環境媒体	データ数
大気	184
公共用水域水質	120
公共用水域底質	120
地下水	173
土壌	107

3 調査分析方法

3.1 大気

大気中のダイオキシン類の調査分析については、年度に応じて以下の方法によった。

2000年度：ポリウレタンフォームを装着した採取筒をろ紙後段に取り付けたエアサンプラーにより採取した試料を高分解能ガスクロマトグラフ質量分析計により測定する方法 (1999

環境庁)

2001年度：ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル (2000 環境庁)

2002～2004年度：ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル (2001 環境省)

3. 2 水質, 地下水質

JIS K0312 工業用水・工場排水中のダイオキシン類及びコプラナーPCBの測定方法 (1999) によった。

3. 3 底質

ダイオキシン類に係る底質調査マニュアル (2000 環境庁) によった。

3. 4 土壌

ダイオキシン類に係る土壌調査マニュアル (2000 環境庁) によった。

4 結果及び考察

4. 1 本県におけるダイオキシン類の濃度レベル

各環境媒体ごとの年度別の濃度 (毒性等量) の平均値と濃度範囲を表2に示す。大気は年平均値が0.017～0.027pg-TEQ/m³, 公共用水域水質は年平均値が0.033～0.10pg-TEQ/L, 公共用水域底質は年平均値が0.69～1.0pg-TEQ/g, 地下水質は年平均値が0.032～0.072pg-TEQ/L, 土壌は年平均値が0.30～1.4pg-TEQ/gとなっており, いずれも環境基準を達成していた。また, 本県の環境媒体中のダイオキシン類濃度の年平均値と全国平均値¹⁾を比較すると, 大気で15～25%, 公共用水域水質で14～32%, 公共用水域底質で7～13%, 土壌で4～23%の値を示し, 非常に低い濃度で推移していた。一方, 地下水質では43～78%を示し, 他の環境媒体と比べると, 全国平均値に近い値であった。

4. 1. 1 大気

調査区分の一般環境, 発生源周辺, 沿道ごとに2000～2004年度の年平均値を見ると, 一般環境が0.017～0.025pg-TEQ/m³, 発生源周辺が0.013～0.037pg-TEQ/m³, 沿道が0.016～0.019pg-TEQ/m³となっており, 調査区分間で有意な差は見られなかった。また, 継続調査を行った7地点 (一般環境5地点, 沿道2地点) における経年変化を見ると (図1), 規則的な季節変動は見られなかった。また, 測定条件によってやや高いレベルを示した地点もあるが, 全体としては地域間変動は見られなかった。

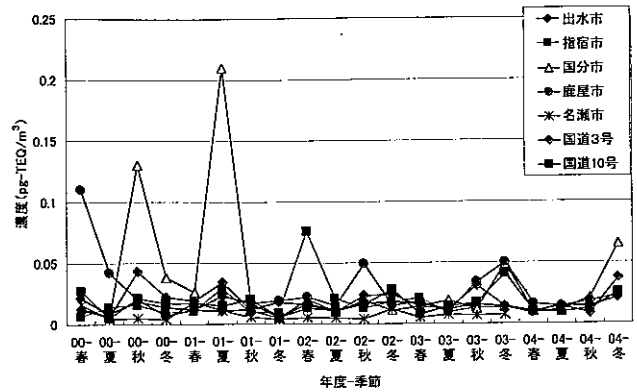


図1 大気中のダイオキシン類濃度の経年変化

4. 1. 2 公共用水域水質

調査区分の河川, 湖沼, 海域ごとに2000～2004年度の年平均値を見ると, 河川が0.038～0.13pg-TEQ/L, 湖沼が0.025～0.076pg-TEQ/L, 海域が0.026～0.068pg-TEQ/Lとなっており, 河川がやや高い値を示した。継続調査を行った10地点 (河川5地点, 湖沼1地点, 海域4地点) における経年変化を見ると, 湖沼及び海域は0.04pg-TEQ/L前後で推移し比較的安定しているのに対し, 河川の場合, 0.029～0.30pg-TEQ/Lで変動し, 年度によるばらつきが大きかった。河川の場合, 流域からの影響を受けていることが窺えた。

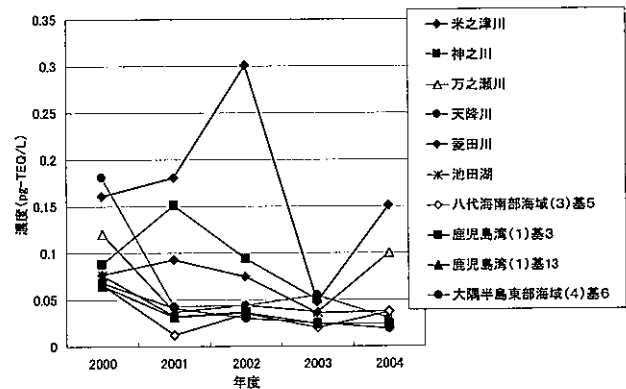


図2 公共用水域水質中のダイオキシン類濃度の経年変化

4. 1. 3 公共用水域底質

調査区分の河川, 湖沼, 海域ごとに2000～2004年度の年平均値を見ると, 河川が0.23～0.61pg-TEQ/g, 湖沼が0.43～2.5pg-TEQ/g, 海域が0.93～1.7pg-TEQ/gとなっており, 公共用水域水質の場合と異なり, 湖沼及び海域が高い値を示した。また, 継続調査を行った10地点 (河川5地点, 湖沼1地点, 海域4地点) における経年変化を見ると, 湖沼及び海域は0.086～3.8pg-TEQ/g, 河川は一部を除き, 1pg-TEQ/g未満で推移している。

表2 鹿児島県におけるダイオキシン類常時監視調査結果

環境媒体	調査区分	2000年度	2001年度	2002年度	2003年度	2004年度	環境基準
大気 (pg-TEQ/m ³)	一般環境	平均 濃度範囲 (地点数) 0.025 0.0040~0.13 (5)	0.024 0.0039~0.21 (5)	0.018 0.0041~0.075 (5)	0.017 0.0051~0.050 (5)	0.019 0.0079~0.065 (3)	年平均値 0.6以下
	発生源周辺	平均 濃度範囲 (地点数) 0.037 0.0060~0.14 (3)	0.018 0.0060~0.034 (3)	0.013 0.0060~0.031 (3)	0.015 0.0061~0.038 (3)	0.024 0.0068~0.062 (1)	
	沿道	平均 濃度範囲 (地点数) 0.019 0.0052~0.043 (2)	0.016 0.0049~0.034 (2)	0.018 0.010~0.028 (2)	0.019 0.0078~0.041 (2)	0.016 0.0082~0.037 (2)	
	全体	平均 濃度範囲 (地点数) 0.027 0.0040~0.14 (10)	0.020 0.0039~0.21 (10)	0.017 0.0041~0.075 (10)	0.017 0.0051~0.050 (10)	0.019 0.0068~0.065 (6)	
	全国平均	平均 濃度範囲 (地点数) 0.15 0.0073~1.0 (920)	0.13 0.0090~1.7 (979)	0.093 0.0066~0.84 (966)	0.068 0.0066~0.72 (913)		
公共用水域 水質 (pg-TEQ/L)	河川	平均 濃度範囲 (地点数) 0.13 0.076~0.18 (14)	0.075 0.022~0.18 (14)	0.076 0.028~0.30 (14)	0.038 0.026~0.063 (14)	0.053 0.025~0.15 (11)	年平均値 1以下
	湖沼	平均 (地点数) 0.076 (1)	0.045 (1)	0.032 (1)	0.025 (1)	0.037 (1)	
	海域	平均 濃度範囲 (地点数) 0.068 0.065~0.083 (10)	0.026 0.012~0.041 (10)	0.033 0.014~0.060 (10)	0.026 0.020~0.039 (10)	0.028 0.019~0.037 (8)	
	全体	平均 濃度範囲 (地点数) 0.10 0.065~0.18 (25)	0.054 0.012~0.18 (25)	0.057 0.014~0.30 (25)	0.033 0.020~0.063 (25)	0.042 0.019~0.15 (20)	
	全国平均	平均 濃度範囲 (地点数) 0.31 0.012~48 (2116)	0.25 0.0028~27 (2213)	0.24 0.010~2.7 (2207)	0.24 0.020~11 (2126)		
公共用水域 底質 (pg-TEQ/g)	河川	平均 濃度範囲 (地点数) 0.23 0.0088~0.79 (14)	0.40 0.057~1.4 (14)	0.39 0.070~1.2 (14)	0.61 0.090~3.3 (14)	0.59 0.14~2.1 (11)	150以下
	湖沼	平均 (地点数) 0.43 (1)	2.5 (1)	2.5 (1)	1.1 (1)	2.1 (1)	
	海域	平均 濃度範囲 (地点数) 1.4 0.022~3.1 (10)	1.7 0.15~3.9 (10)	0.93 0.074~2.9 (10)	1.5 0.14~3.8 (10)	1.1 0.094~2.2 (8)	
	全体	平均 濃度範囲 (地点数) 0.69 0.0088~3.1 (25)	1.0 0.057~3.9 (25)	0.69 0.070~2.9 (25)	0.99 0.090~3.8 (25)	0.86 0.094~2.2 (20)	
	全国平均	平均 濃度範囲 (地点数) 9.6 0.0011~1400 (1836)	8.5 0.012~540 (1813)	9.8 0.0087~640 (1784)	7.4 0.057~420 (1825)		
地下水質 (pg-TEQ/L)	一般環境	平均 濃度範囲 (地点数) 0.072 0.065~0.14 (25)	0.032 0.016~0.057 (37)	0.048 0.011~0.31 (37)	0.031 0.023~0.047 (32)	0.033 0.024~0.070 (17)	1以下
	発生源周辺	平均 濃度範囲 (地点数) 0.072 0.066~0.085 (15)	0.034 0.030~0.037 (3)	0.040 0.039~0.040 (3)	0.17 0.037~0.31 (3)	0.026 (1)	
	全体	平均 濃度範囲 (地点数) 0.072 0.065~0.14 (40)	0.032 0.016~0.057 (40)	0.047 0.011~0.31 (40)	0.042 0.023~0.31 (35)	0.033 0.024~0.070 (18)	
	全国平均	平均 濃度範囲 (地点数) 0.092 0.00081~0.89 (1479)	0.074 0.00020~0.92 (1473)	0.066 0.011~2.0 (1310)	0.059 0.00032~0.67 (1200)		
土壌 (pg-TEQ/g)	一般環境	平均 濃度範囲 (地点数) 0.53 0.053~1.2 (5)	1.0 0.11~10 (17)	0.69 0.0037~2.9 (17)	1.1 0.00066~18 (22)	0.39 0.018~2.0 (21)	1000以下
	発生源周辺	平均 濃度範囲 (地点数) 0.23 0.0013~1.0 (15)	3.6 0.37~8.2 (3)	0.50 0.057~1.0 (3)	0.029 0.0016~0.054 (3)	0.51 (1)	
	全体	平均 濃度範囲 (地点数) 0.30 0.0013~1.2 (20)	1.4 0.11~10 (20)	0.66 0.0037~2.9 (20)	0.98 0.00066~18 (25)	0.39 0.018~2.0 (22)	
	全国平均	平均 濃度範囲 (地点数) 6.9 0~1200 (3031)	6.2 0~4600 (3735)	3.8 0~250 (3300)	4.4 0~1400 (3059)		

(注1) 大気試料については、各測定地点において年4回ずつ測定を行った。

(注2) 大気試料以外の媒体については、1地点につき年1回測定を行った。

(注3) 大気試料の調査区分の沿道は、いずれも国道沿いをさす。

(注4) 発生源周辺は、廃棄物処理施設の周辺の地域をさす。

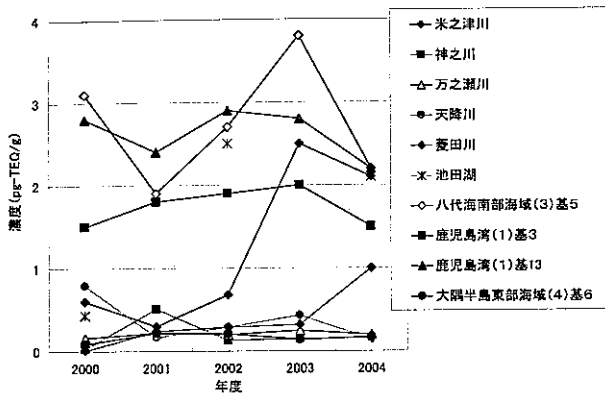


図3 公共用水域底質中のダイオキシン類濃度の経年変化

4. 1. 4 地下水質

調査区分の一般環境，発生源周辺ごとに2000～2004年度の年平均値を見ると，一般環境が0.031～0.072 pg-TEQ/L，発生源周辺が0.026～0.17pg-TEQ/Lとなっており，それぞれほぼ横ばいで推移している。また，調査区分による明確な差は見られなかった。

4. 1. 5 土壌

調査区分の一般環境，発生源周辺ごとに2000～2004年度の年平均値を見ると，一般環境が0.39～1.1pg-TEQ/g，発生源周辺が0.029～3.6pg-TEQ/gとなっており，それぞれほぼ横ばいで推移している。また，調査区分による明確な差は見られなかった。

4. 2 PCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度の組成特性

各環境媒体中のPCDDs, PCDFs及びCo-PCBsの実測濃度組成から，本県における特性を見つめる。

4. 2. 1 大気

季節ごとのPCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度及び濃度組成比の平均値を図4に示す。PCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度の組成比の変動を見ると，Co-PCBs濃度が冬季に減少し，夏季に増加する（冬季の約30%に対し，夏季は約64%）傾向にあり，服部ら²⁾や橋本³⁾の報告と同様の結果となった。一方，PCDDs及びPCDFs濃度ほぼ横ばいで推移しており，大気中のダイオキシン類濃度（実測濃度）の季節変動は，Co-PCBsが支配的であった。

4. 2. 2 公共用水域水質

調査区分の河川（34地点），湖沼（3地点），海域（32地点）のPCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度組成の平均値を図5に示す。河川では，PCDDsの組成比が約80%を占めたが，湖沼ではCo-PCBsの組成比が約60%を占めた。

海域ではPCDDsとCo-PCBsの組成比はほぼ同レベルで，それぞれ50%，45%を示した。

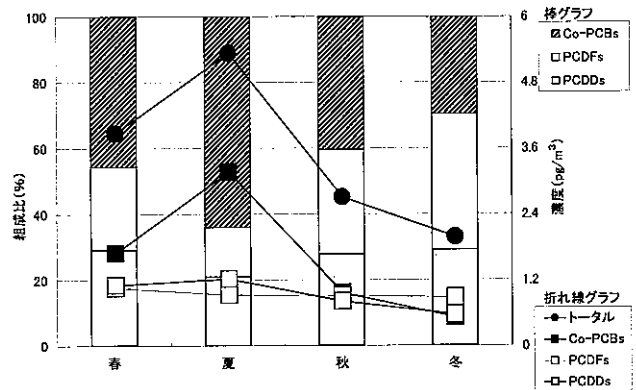


図4 大気中PCDDs, PCDFs及びCo-PCBsの濃度及び組成の季節変化

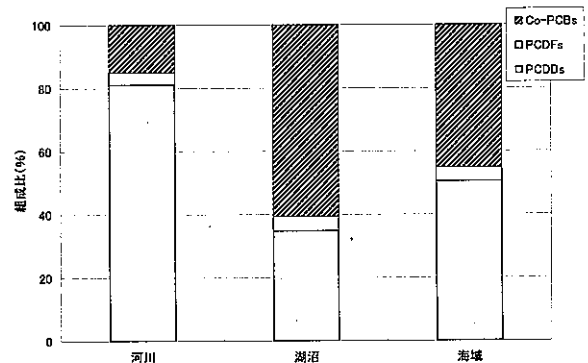


図5 調査区分による公共用水域水質中PCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度組成の比較

4. 2. 3 公共用水域底質

調査区分の河川（34地点），湖沼（3地点），海域（32地点）のPCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度組成の平均値を図6に示す。いずれの調査区分でも，PCDDsの組成比が80～90%を占めた。Co-PCBs濃度の組成比は，河川中（約6%）よりも湖沼及び海域中（13～15%）が高かった。

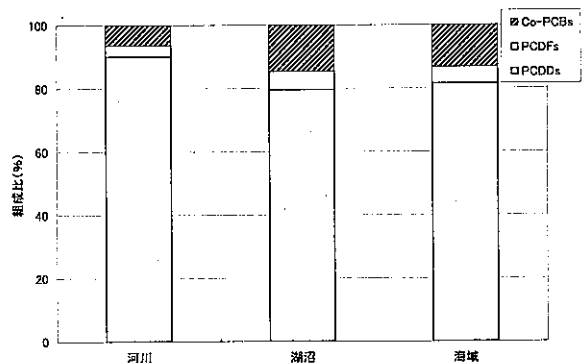


図6 調査区分による公共用水域底質中PCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度組成の比較

4. 2. 4 地下水質

調査区分の一般環境，発生源ごとのPCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度の組成を図7-1に示す。調査区分による比較をすると，いずれもPCDDs : PCDFs : Co-PCBs ≒ 4 : 1 : 5程度の割合を示し，明確な差は見られなかった。

また，鹿児島県を4つの地域に区分し，それぞれの地域区分の結果を図7-2に示す。大隅地方の濃度組成が若干異なっているが，明確な差は認められなかった。

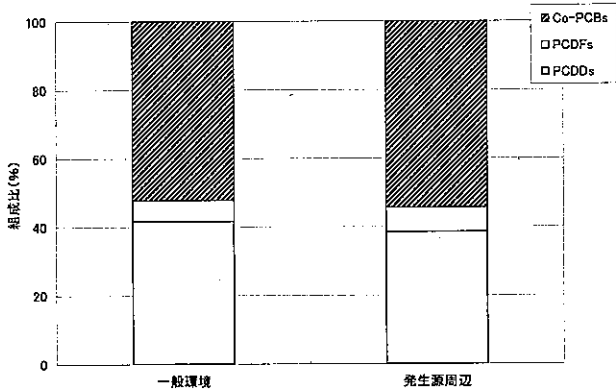


図7-1 調査区分による地下水質中PCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度組成の比較

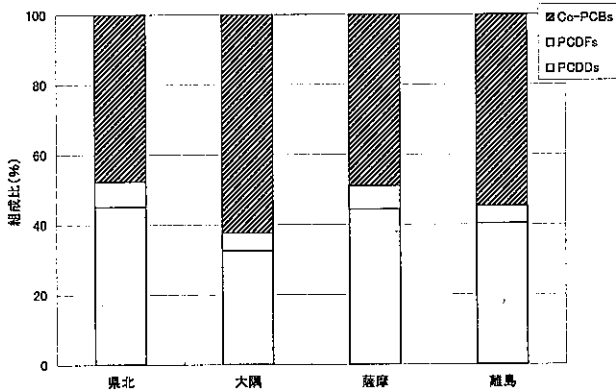


図7-2 地域区分による地下水質中PCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度組成の比較

注) 大隅半島の財部町，隼北町以南の地域を「大隅」，薩摩半島の東市来町，鹿児島市以南の地域を「薩摩」，市来町，薩摩川内市，瀬生町，給良町，加治木町，国分市以北の地域（長島，鹿島を含む）を「県北」，上記3地域を除く薩摩地域を「薩摩」と区分した。

4. 2. 5 土壌

調査区分の一般環境，発生源ごとのPCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度の組成を図8-1に示す。調査区分による明確な差は見られず，両区分ともPCDDsがダイオキシン類濃度の約90%を占めていた。

地域区分別の結果を図8-2に示す。いずれもPCDDsが90%以上の値を示し，調査区分と同様，明確な差は認められなかった。

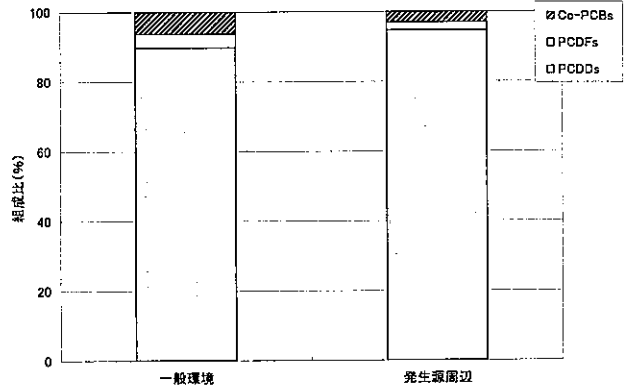


図8-1 調査区分による土壌中PCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度組成の比較

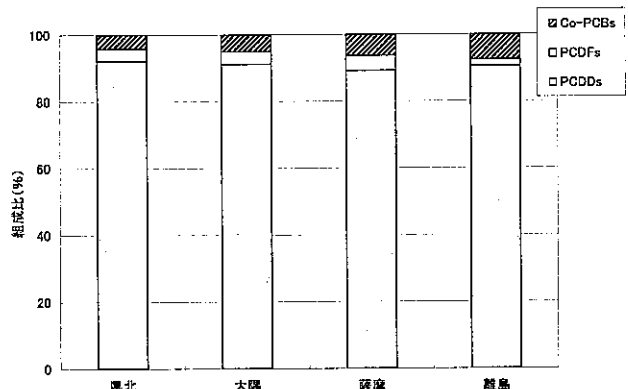


図8-2 地域区分による土壌中PCDDs, PCDFs及びCo-PCBs濃度組成の比較

4. 3 PCDDs及びPCDFs同族体組成の特性

4. 3. 1 公共用水域水質・底質，地下水質，土壌

4. 2で，大気以外の環境媒体において，PCDDsの組成比が極めて高い（公共用水域水質で約65%，公共用水域底質で約86%，地下水質で約41%，土壌で約91%）ことから，各環境媒体のPCDDs同族体組成比を比較した（図9）。全環境媒体でOCDDが最も多くを占め（公共用水域水質で約60%，公共用水域底質で約70%，地下水質で約66%，土壌で約88%），土壌で最も高い割合を示した。OCDDは過去に使用された水田除草剤の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るとの報告⁹⁾があり，その影響を窺わせた。

4. 3. 2 大気

大気中PCDDs, PCDFs同族体組成を図10-1，図10-2に示す。TeCDDsとTeCDFsの組成比は，春季と夏季に増加する傾向にあった。他の同族体は年間を通じてほぼ横ばいで推移した。上記の現象は，蒸気圧が高い異性体濃度が夏季に増加するという清家ら⁹⁾の報告と一致していた。

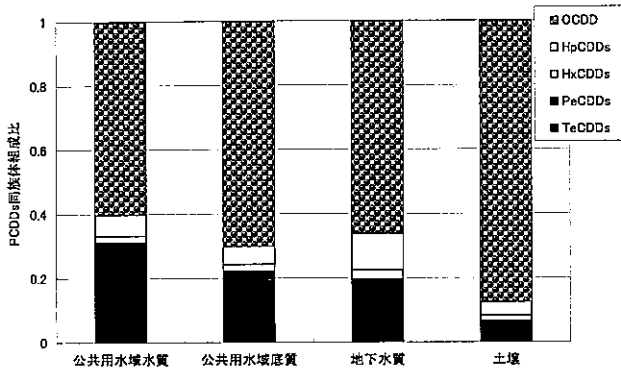


図9 公共用水域水質・底質、地下水質、土壌中PCDDsの同族体組成

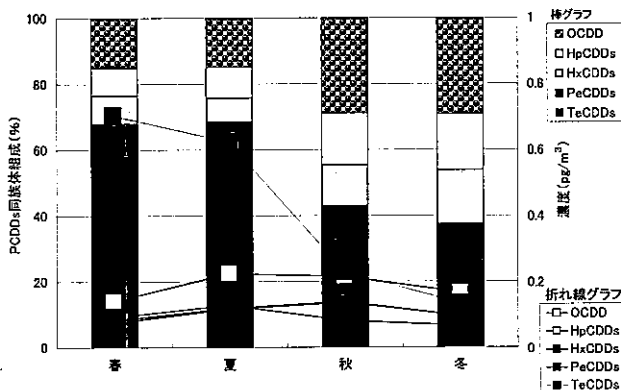


図10-1 大気中PCDDsの同族体濃度及び組成

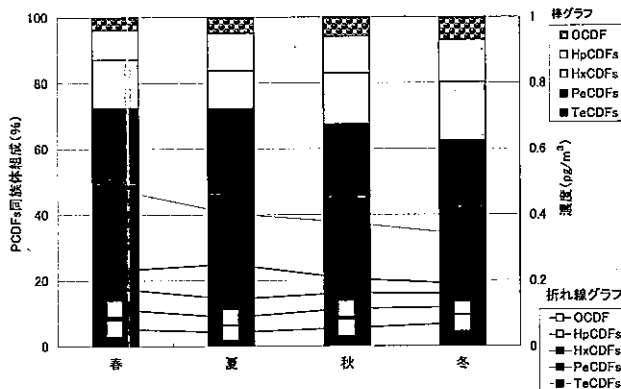


図10-2 大気中PCDFsの同族体濃度及び組成

5 まとめ

- 1) 2000年度から2004年度まで、鹿児島県の環境中ダイオキシン類濃度は、すべての環境媒体において環境基準を満足していた。
- 2) 地下水質は全国平均値と同様のレベル（全国平均値比43～78%）であったのに対し、その他の環境媒体では全国平均値比4～32%であり、非常に低い濃度で水準を維持していた。
- 3) 各環境媒体とも、濃度（毒性等量）の経年変化は見られなかった。
- 4) 大気では、相対的に蒸気圧の高いCo-PCBs, TeCDDs及びTeCDFsの実測濃度が冬季に減少し、夏季に増加しており、濃度変動に最も影響を与えているのはCo-PCBs濃度であった。
- 5) 公共用水域水質・底質、地下水質、土壌中のダイオキシン類では、PCDDs濃度がそれぞれ65%、86%、41%、91%を占めた。またOCDDがPCDDsに占める割合はそれぞれ60%、70%、66%、88%と非常に高いことから、既報と同様、水田除草剤の影響が窺えた。

参考文献

- 1) 環境省；平成15年度ダイオキシン類に係る環境調査結果（平成16年9月）
- 2) 服部幸和，山本仁史，他；大阪府公害監視センター所報，22，63-70（2002）
- 3) 橋本俊次；統計学的手法によるダイオキシン類の発生源推定のための基礎検討，環境化学，14，263-285，日本環境化学会（2004）
- 4) 益永茂樹，中西準子；日本の農薬中のダイオキシン類，第8回環境化学討論会講演要旨集，212-213（1999）
- 5) 清家伸康，吉田雅司，他；大気環境におけるダイオキシン類の季節変動，環境化学，11，455-465，日本環境化学会（2001）

Concentrations and Homologue Compositions of Dioxins in Environment in Kagoshima Prefecture

Takuji KIYOHARA, Takashi MINARI, Hiroaki ARAKAWA

Shoji SHITANDA, Jiro IWATA, Yoshihiko MIYATA

(Kagoshima Prefectural Institute for Environmental Research and Public Health, 18,
Jonan-cho, Kagoshima-shi, 892-0835, JAPAN)

Abstract

Dioxins (PCDDs, PCDFs, and Co-PCBs) in environmental media in Kagoshima Prefecture have been monitored from FY 2000. The ranges of average values of dioxins concentration of total TEQ in the air, water in public water areas, sediment in public water areas, groundwater, and soil showed 0.017-0.027pg-TEQ/m³, 0.033-0.10pg-TEQ/L, 0.69-1.0pg-TEQ/g, 0.032-0.072pg-TEQ/L, and 0.30-1.4pg-TEQ/g, respectively between FY 2000 and FY 2004. There was no result in excess of ambient environmental quality standards in all media. The average values of dioxins concentration in groundwater showed levels almost similar to values nationwide, other environmental media showed lower levels with 4-32% compared with values nationwide.

When compositions of dioxins in each environmental medium were seen in concentration-base, the constituent ratio of Co-PCBs in air rised in summer, reached 64% to total dioxins cocentration. The constituent ratio of TeCDDs to total PCDDs in the air ranged from 50 to 70% in spring and summer. These materials with a high vapor pressure relatively were likely to volatilize into the air from another media by the rise of the temperature in summer.

The constituent ratios of PCDDs in water and sediment in public water areas, groundwater, and soil were the highest, 65%, 86%, 41% and 91%. Especially, OCDD was the highest (60-88% to all PCDDs). The influence of pentachlorophenol that had been used in the past was shown.

Key Words : Dioxins (polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins (PCDDs), polychlorinated dibenzofurans (PCDFs), coplanar polychlorinated biphenyls (Co-PCBs)), environment, constituent ratio, homologue