

未規制発生源からのダイオキシン類流入河川における 汚染機構について

一年間濃度変動と各汚染源寄与割合の推定—

熊谷宏之・藤井幸雄・神戸真暁

Yearly Change of Concentration on the River of Dioxins from
Unregulated Generation Source in Law in Fukui

Hiroyuki KUMAGAI, Yukio FUJII, Tadaaki KANBE

これまで、福井県内の一部河川でダイオキシン類が高濃度で検出される要因として、事業場系未規制発生源（染色排水）の関与を指摘してきたが、平成 17 年度は、染色排水が流入する中小河川で詳細に調査して年間濃度変動を把握した。その結果、染色排水が濃度上昇に寄与するケースが非灌漑期で顕著に認められ、4 年連続で環境基準を超過した馬渡川下流における染色由来の汚染寄与割合は、毒性等量（TEQ）ベースで灌漑期では 50% を下回るものの、非灌漑期では 60~80% 程度と試算され、時期によって農業由来の汚染寄与割合と逆転することが確認された。

1 はじめに

福井県では、これまで本県特有の事業場系未規制発生源（染色排水）や過去に使用された農薬（CNP、PCP）由来^{1,2)}によって、一部の河川ではダイオキシン類濃度が高くなる傾向が認められ、環境基準超過の要因となる可能性があることを指摘した³⁻⁶⁾。また、同時に特異的な異性体組成が認められる特殊な染色系水試料を取り扱うにあたっては、さまざまな分析上の問題点も確認され、毒性等量（TEQ）濃度の精度確保を図るための注意点などについても併せて報告してきた^{3,4)}。

しかしながら、これまでの調査は年 2~3 回のため、特に流入負荷変動が大きく汚染源の影響を受けやすい中小河川では正確な年間評価が困難であり、年間を通して染色系未規制発生源がどの程度寄与しているかなど、汚染状況を十分把握できているとは言い難い面があった。

そこで今回、染色排水が流入する中小河川で詳細な調査を行い、特に今回の調査を含めて 4 年連続で環境基準を超過している馬渡川を中心に、年間濃度変動や染色系未規制発生源の寄与割合などを把握したので報告する。

2 調査方法

2.1 調査地点

染色排水が流入する九頭竜川水系の中小河川のうち、過去にダイオキシン類が比較的高濃度で検出されている 4 河川を対象とし、特に馬渡川と磯部川を中心に、上流、農業（水田）排水路、中流（染色排水流入前）、下流（染色排水流入後）で、冬季降雪時を除く年 4~11 回水質調査（一部、日内変動調査も含む。）を行った。調査地点のイメージは図 1 に示すとおりである。

また、同採水地点で年 1 回の底質調査と、同地域内の 2 地点で年 4 回の大気調査も行った。

<調査地点>

①大気（2 地点、年 4 回）

福井局、衛生環境研究センター

②水質（4 河川 12 地点、年 4~11 回）

馬渡川（上流；経田排水 7 号合流点、農業排水路；灯明寺川明新小学校付近、中流；明新歩道橋下、下流；末端（黒丸新橋））

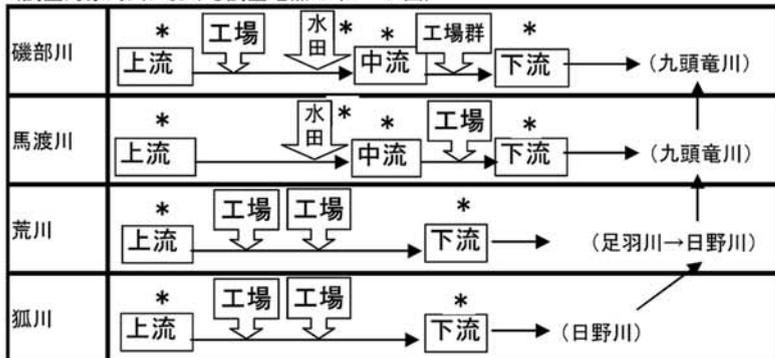
磯部川（上流；染色排水流入前、農業排水路；千本木橋前、中流；松木橋付近、下流；安沢橋）

荒川（上流；東今泉橋、下流；水門（吉野橋））



図 1 調査地点(位置関係)

(調査対象河川における調査地点のイメージ図)



(備考) * の地点で調査

表1 分析前処理操作の概略

媒体	試料量	抽出	精製・分画操作
大気	1000m ³	QMF：ソックスサーム (トルエン抽出) PUF：アセトンソックスレー抽出	(PUF:液液抽出 (ヘキサン-水)) →多層シリカゲルクロマトグラフラフィー →活性炭HPLC (Fr2:Co-PCB, Fr3:DD/DF)
河川水質	24~27L	固相抽出→ソックスサーム (トルエン抽出)	(硫酸処理) →多層シリカゲルクロマトグラフラフィー→活性炭分散シリカゲル クロマトグラフラフィー (Fr2:mono-PCB, Fr3:non-PCB, DD/DF)
河川底質	40g	トルエンソックスレー抽出	(硫酸処理) →多層シリカゲルクロマトグラフラフィー→活性炭分散シリカゲル クロマトグラフラフィー (Fr2:mono-PCB, Fr3:non-PCB, DD/DF)

表2 HRGC-HRMSの測定条件

ガスクロマトグラフ		Agilent HP6890			
質量分析装置		JEOL JMS700D			
測定対象物質	TeCDDs,TeCDFs	PCDDs (4~8Cl)	PCDDs (4~8Cl)	PCDDs (4~8Cl)	
	PeCDDs,PeCDFs	PCDFs (4~8Cl)	PCDFs (4~8Cl)	PCDFs (4~8Cl)	
	HxCDDs,HxCDFs	<4ヶルビツク>	<5ヶルビツク>	<5ヶルビツク>	
GC条件	使用カラム	Supelco製 SP-2331 長さ 60m 内径 0.32mm 膜厚 0.20 μ m	J&W製 DB-17 長さ 30m 内径 0.32mm 膜厚 0.25 μ m	関東化学 HT8-PCB 長さ 60m 内径 0.25mm 膜厚 -	Inventx RH12ms 長さ 60m 内径 0.25mm 膜厚 -
	オープン温度	140°C(1.5min) ↓10°C/min 200°C(0min) ↓2.5°C/min 255°C(30min)	120°C(1.5min) ↓20°C/min 160°C(0min) ↓3°C/min 280°C(12min)	100°C(1.5min) ↓20°C/min 180°C(0min) ↓2°C/min 240°C(0min) ↓4°C/min 320°C(7min)	130°C(1.5min) ↓15°C/min 210°C(0min) ↓3°C/min 310°C(0min) ↓5°C/min 320°C(17min)
	キャリアガス流量 (He)	1.8ml/min (Constant Flow)	1.5ml/min (Constant Flow)	1.5ml/min (Constant Flow)	180kPa (Constant Pressure)
	注入量	1 or 2 μ l	1 μ l	1 μ l	1 μ l
	注入口温度	260°C	280°C	290°C	300°C
	注入方式	スプリットレス	スプリットレス	スプリットレス	スプリットレス
	MS条件	分解能10000以上、イオン化電圧38eV、イオン化電流500 μ A、SIM測定			

狐川 (上流；木田橋通交差付近、下流；狐橋)

- ③底質 (4河川12地点、年1回)
水質と同地点

2. 2 測定方法

環境媒体ごとの測定マニュアル (環境省通知) ^{7,8)} および JIS K 0312 ⁹⁾ に準拠し、試料採取、前処理操作、高分解能ガスクロマトグラフ質量分析計 (HRGC-HRMS) による測定を行った。表1に分析前処理操作の概略を、表2にHRGC-HRMSの測定条件を示した。

従前 ⁵⁾の方法と異なる点については、前処理操作のうち、分画は大気試料以外すべて活性炭分散シリカゲルで行った。また、HRGC-HRMSでは、概ね従前 ⁵⁾と同じであるが、特に染色排水が流入する下流地点においては、GCカラムにRH-12msを追加し、これまで採水地点によっては同定・定量にやや難があった異性体(1,2,3,7,8-PeCDF、#123、#126)の精度向上を図るなど、4種類のGCカラム(SP-2331、DB-17、HT8-PCB、RH-12ms)でクロスチェックを行い、一層の分析精度の確保に努めた。

3 結果および考察

3. 1 ダイオキシン類濃度 (TEQ濃度)

大気、底質については、すべて環境基準を下回っていた。しかし、水質については、馬渡川 (中流) で 1.1pg-TEQ/L、馬渡川 (下流) で 1.2 pg-TEQ/L、狐川 (下流) で 1.4 pg-TEQ/L (いずれも年平均値) となり、環境基準を超過した。

なお、代掻き、田植え時の最高濃度データを年間評価の対象として不適当と考えて除外すると、馬渡川 (中流) では 0.60pg-TEQ/L、狐川 (下流) では 0.46pg-TEQ/L と環境基準以下となったが、馬渡川 (下流) では 1.1 pg-TEQ/L と 4月下旬データの有無に関係なく環境基準を超過した。

分析結果の詳細は表3のとおりである。

3. 2 河川の汚染機構

3. 2. 1 年間濃度推移

馬渡川と磯部川におけるダイオキシン類濃度 (TEQ) の年間推移を図2に示す。2河川とも、灌漑期では中流と下流は同濃度レベルか、中流の方が濃度が高くなるケースもみられるが、非灌漑期では中流より下流の方がすべて濃度が高くなっている。特に馬渡川では、代かき時 (4月下旬) の最高濃度データを除外しても、年間評価で 1.1

表3 ダイオキシン類分析結果(水質、底質、大気)

調査河川	地点	水質												底質	
		4月	4月-2	5月	6月	7月	8月	9月	10月	10月-2	11月	12月	2月	年平均	(6,7月)
磯部川	上流			0.84	0.45	0.35		0.16						0.45	10
	農排			0.69	0.40	0.093		0.11						0.32	10
	中流	0.29		0.73	0.47	0.33	0.69	0.14	0.12		0.13	0.15	0.34	20	
	下流	0.59		0.72	0.50	0.32	0.43	0.23	0.24		0.53	0.99	0.51	1.7	
馬渡川	上流			0.24	0.46	0.31		0.15					0.29	9.5	
	農排			0.57	0.67	1.9		0.63					0.94	87	
	中流	0.29	6.0	0.64	0.97	0.76	0.96	0.49	0.63	0.23	0.64	0.36	1.1	7.4	
	下流	0.75	2.7	0.64	0.76	0.94	1.4	1.6	1.1	0.91	1.1	1.4	1.2	17	
荒川	上流			0.47		0.15			0.10		0.13		0.21	0.21	
	下流			0.60		0.39			0.14		0.21		0.34	1.3	
狐川	上流			0.53		1.0			0.29		0.23		0.51	13	
	下流			4.4		0.97			0.19		0.23		1.4	7.6	
大気	福井局	0.034					0.042		0.040			0.027	0.036	—	
	衛環研C	0.045					0.035		0.058			0.040	0.045	—	

(注1)単位は、水質の場合pg-TEQ/L、底質の場合pg-TEQ/g、大気の場合pg-TEQ/m³
 (注2)10月-2と11月の馬渡川および磯部川のデータは日内変動調査の平均値を記載(下記参照)

○日内変動調査

河川	地点	10月28日			11月9日		11月17日		11月18日
		9:00	13:00	17:00	9:00	15:00	15:30	9:30	
馬渡川	中流	0.24	0.27	0.18	0.90	0.38			
	下流	1.2	0.86	0.67	1.1	1.0			
	磯部川	中流	0.14	0.12					
	下流	0.62	0.44						

<参考>河川水のSS濃度(mg/L)および底質の含水率(%)と強熱減量(%)

調査河川	地点	水質(SS:mg/L)												底質	
		4月	4月-2	5月	6月	7月	8月	9月	10月	10月-2	11月	12月	2月	含水率(%)	強熱減量(%)
磯部川	上流			20	11	10		5						30.3	2.3
	農排			21	12	2		<1						31.8	9.3
	中流	13		19	16	18	21	18	6		3.3	6		66.1	7.1
	下流	16		17	20	13	10	10	8		10.9	12		31.2	2.5
馬渡川	上流			5	9	5		11						39.5	2.4
	農排			10	8	13		8						64.4	3.6
	中流	4	26	8	7	12	17	13	27	4,15,4	12,4	4		28.9	2.0
	下流	16	28	16	20	19	35	42	28	21,19,17	21,23	27		43.1	15.8
荒川	上流			10		5			2		4			53.8	7.9
	下流			28		16			2		4			28.8	2.5
狐川	上流			23		44			10		7			41.6	6.7
	下流			192		27			4		6			36.5	4.5

pg-TEQ/Lと環境基準を超過し、個々のデータの半数が環境基準値を超えている。CNP由来の指標でもある1,3,6,8-TeCDDなどの異性体濃度は、各月とも下流は中流に比べて概ね同レベル以下となっており、異性体によっては染色排水による希釈効果もあるとみられるが、トータル的には染色排水が濃度上昇に寄与しているケースが多くみられ、特に非灌漑期で顕著に認められる。

3.2.2 各汚染源寄与割合の推定

(1) 馬渡川

環境基準を超過した馬渡川において、中流および下流地点の濃度から染色排水由来の汚染負荷割合を推定してみた。染色由来の寄与がないと推察される異性体について、下流で濃度上昇が認められない場合は染色排水以外の影響はないものとし、一部で算定上無視できないレベルの濃度上昇や低下が認められる場合は、中流から下流地点到達(約1km区間)までに、底質からの巻き上がり、浮遊物質(SS)の沈降や他の流入水等による濃度変化があるとして、排水合流直前地点におけるトータルTEQ濃度を中流地点の濃度組成から補正した。河川流量に対する染色排水量の割合を約20%程度と仮定した場合¹⁰⁾、TEQベースでの染色排水の汚染負荷割合は、4月下旬～8月は50%を下回るが、代掻き前の4月と9月～2月は60～80%程度

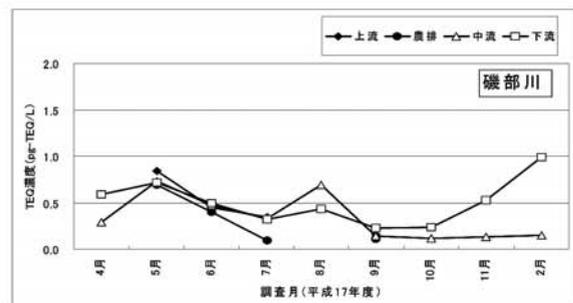
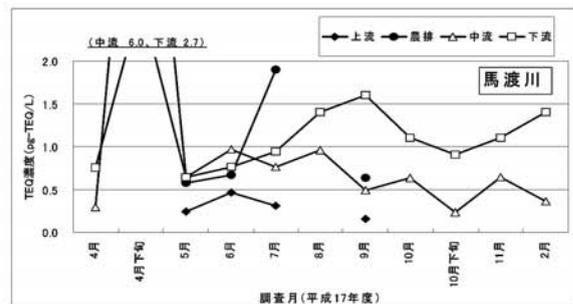


図2 河川中のダイオキシン類濃度推移(平成17年度:馬渡川、磯部川)

になると試算された。次に、上流～中流までは染色排水由来特有の特異的な同族体・異性体組成パターンは認められないことから、農業および燃焼由来が主な汚染源とみられ、2,3,4,7,8-PeCDFはすべて燃焼由来と仮定し、当センター屋上で調査した降下物の濃度組成を考慮して、図3に示すように各汚染源のTEQベースでの寄与割合を試算した。ちなみに、大気濃度の組成を考慮しても同程度の試算結果となった。以上の試算結果をもとに、下流地点における各汚染源からのTEQベースでの寄与割合を試算すると図4のとおりとなり、灌漑期では農業由来が、非灌漑期では染色由来が大きなウエートを占めていると考えられる。

また、下流地点における主要異性体の構成比を図5に示すが、この汚染源指標となる異性体の構成割合は、前述で試算した各汚染寄与割合の推察結果(図4)の傾向と比較的一致しており、その推察結果の妥当性が示唆される。

(2) 磯部川、荒川、狐川

馬渡川以外の3河川について、馬渡川と同様な試算方法で汚染寄与割合を算定するには、かなり無理があるが、参考までに試算した。

染色由来分のTEQベースでの汚染寄与割合を概算すると、磯部川下流地点では、灌漑期で10～20%程度、非灌漑期で50～80%程度と、馬渡川と同様の傾向がみられた。また、年4回調査した荒川下流においては20～40%程度、狐川下流においては10～20%程度と50%を下回った。ただし、実測ベースでみると、馬渡川と磯部川はTEQベースと同様の傾向がみられるものの、荒川と狐川では、特に非灌漑期で大きく異なる点もみられ、逆に実測ベースでは染色由来が50%を超えるのではないかとみられた。

馬渡川は、流路延長も4.2kmと短く、調査した中流と下流間に県内最大の繊維染色工場が1工場ある単純な系であり、汚染寄与割合の算定が比較的容易である。しかし、磯部川では、上流と中流間で染色排水の流入が一部みられるなど単純ではなく、上流と下流のみで調査した荒川と狐川は、染色排水の流入地点から下流調査地点までかなりの距離があり、異性体濃度組成もかなり変化している可能性がある。したがって、馬渡川以外の3河川については、調

査地点をさらに細分化するか、別の試算方法を考える必要がある。

前報⁵⁾で、染色由来の異性体濃度組成が必ずしも一様でない面があることから、ケミカルバランス法(CMB法)¹⁾など統計的手法を用いて発生源寄与率を推定することには限界があるのではないかと述べた。しかし、柏木ら¹²⁾がCMB法による発生源寄与率の推定方法として、未確認発生源分を算定でききる方法を開発しており、これによって染色由来分を算定できるものか興味を持たれる。

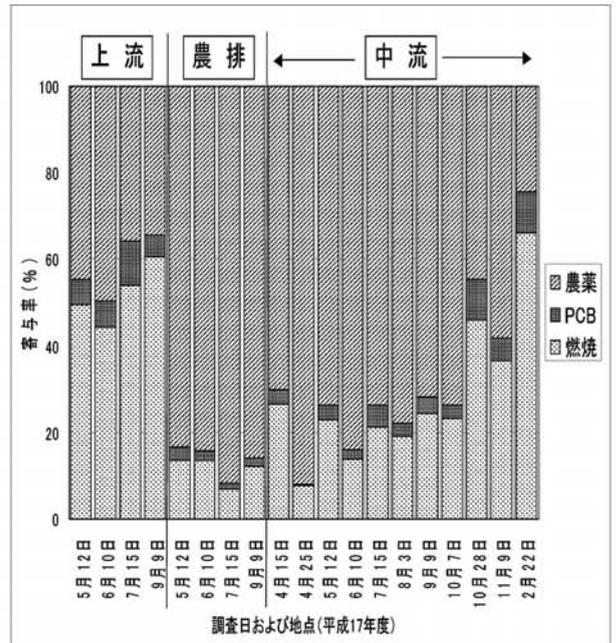


図3 馬渡川上流～中流における各汚染源寄与の推定結果 (TEQベース)

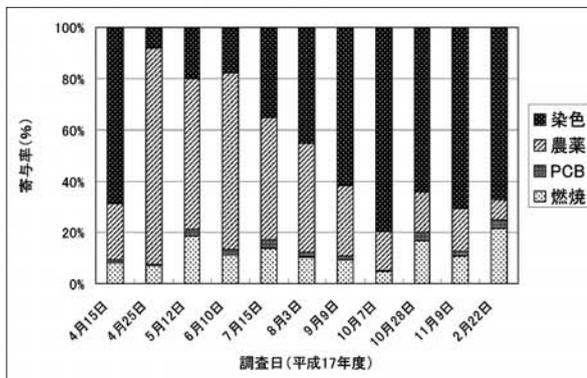


図4 馬渡川下流における各汚染源寄与の推定結果 (TEQベース)

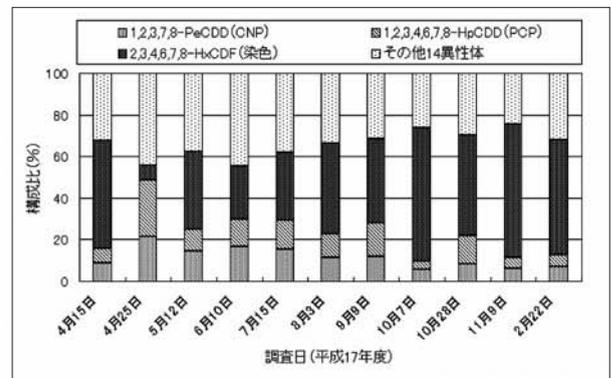


図5 馬渡川下流における主要異性体の構成比 (TEQベース)

3.2.3 日内変動

馬渡川においては10月と11月に、磯部川においては11月に日内変動調査(1日に2~3回採取)を行ったが、このうち馬渡川の10月の日内変動調査に着目した。中流と下流の同族体組成を図6に、農薬(CNP、PCP)および染色由来と指標とみられる中流と下流の主な異性体濃度比を表4に示す。図6をみると、中流では組成パターンにほとんど違いがないのに対し、下流では最も濃度が高かった9時時点だけ組成パターンが異なり、PCP由来にやや類似した構成となっている。しかし、農薬由来(CNP、PCP由来)の指標となるいくつかの異性体について、中流と下流の濃度比(下流/中流)を比較すると、表4に示すように9時時点においては、1,2,3,4,6,7,8-HpCDDが8.7、OCDDが14と濃度比が大きくなるのに対し、その他の異性体では1.5~2.5程度であることから、中流~下流間でPCP由来の影響を受けたとは言いがたい。むしろ、HpCDDとOCDDの濃度が比較的高い染色排水の流入があったものと推察される。これと類似した結果は前報^{5,6)}でも指摘しており、染色排水では濃度組成に大きな変動が生じる可能性を示したものと見える。

3.2.4 汚染メカニズムと今後の対策

上流~下流地点における年間濃度変動や各汚染寄与割合の推定結果などから、環境基準を超過した馬渡川では以下のような汚染メカニズムが考えられる。

- ①農薬由来の影響については、代掻き、田植え時の一過性のデータを除けば、農薬由来のみで環境基準を超過する可能性は低いと考えられる。しかし、農薬由来と燃焼由来によって全国平均濃度(平成16年度環境省集計;河川0.25 pg-TEQ/L)¹³⁾を常に上回る水準にあると考えられる。
- ②染色排水からの影響については、合流直前地点より高濃度で1pg-TEQ/L以上の染色排水が流入しているケースが比較的多いのではないかと推察され、最高5pg-TEQ/L程度と逆算される。これは、平成15年度に磯部川と荒川流域の2事業所で調査した排水濃度と同レベルであり、当該事業所には適用されないが、排水基準(10 pg-TEQ/L)は概ね下回るのではないかと推察される。しかし、合流直前までの河川水質濃度レベルと河川流量では希釈しきれないものと考えられる。
- ③農業排水路の底質濃度が87 pg-TEQ/gと比較的高く、水田土壌を調査した他の報告^{14,15)}でも平均数十pg-TEQ/gで検出されることから、水田土壌そのものの影響を顕著に受けている可能性は否定できない。馬渡川では水深も比較的浅いため、水質は底質からの巻上げの影響を受けやすいと考えられる。
なお、下流での底質濃度は農業排水路に比べやや低く、下流における底質の異性体組成は水質ほど顕著に染色由来パターンを示さない。したがって、水田土壌粒子などとは異なり、染色由来では水中に分散した状態でさらに下流へ流下しやすいのではないかと推察される。
今後の対策として、以下のことが考えられる。
- ①導水による河川流量の確保で染色排水の流量割合を約10%程度にし、さらに合流直前の濃度を0.5pg-TEQ/L以下にできれば、仮に染色排水の濃度が5 pg-TEQ/Lであっても、合流後の下流地点は1 pg-TEQ/L以下と試算できる。しかし、流量確保は濃度を下げるだけで汚染負荷を低減させる根本的な対策とはならない。

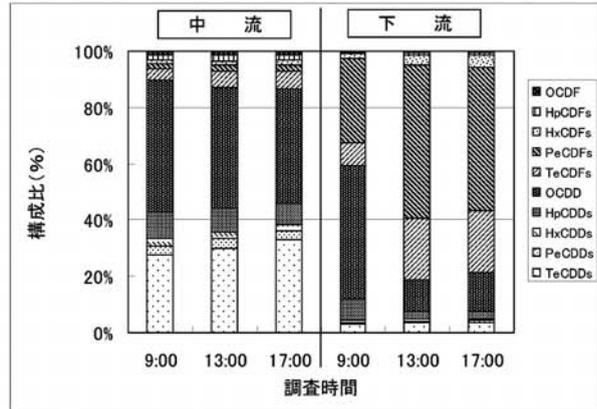


図6 馬渡川(中流、下流)における同族体構成比(日内変動調査;10月28日)

表4 馬渡川における中流と下流の異性体濃度比(10月日内変動調査)

	汚染源	異性体	TEF	濃度比(下流/中流)		
				9:00	13:00	17:00
TeCDD	CNP	1368	—	1.53	1.06	0.83
		1379	—	1.81	1.19	0.97
TeCDF	CNP	2468	—	1.63	1.06	0.89
PeCDD	CNP	12468, 12479	—	1.92	1.60	1.24
		12368	—	1.74	1.32	1.16
		12379	—	1.89	1.53	1.21
		12378	1	1.67	1.75	1.67
PeCDF	CNP	12468	—	2.17	2.01	1.59
HxCDF	PCP	124689	—	2.45	1.71	1.44
HpCDD	PCP	1234678	0.01	8.71	2.78	2.39
HpCDF	PCP	1234689	—	2.68	1.87	1.78
OCDD	PCP	12346789	0.0001	13.8	2.30	2.48
TeCDF	染色	1368	—	400	329	337
PeCDF	染色	13678	—	1307	1373	797
HxCDF	染色	123479	—	212	524	424
		234678	0.1	52.2	35.5	48.8

(注)検出下限未満は検出下限の1/2として算出

- ②農薬由来対策としては、凝集剤を用いて水田土壌からの流出を抑制させる報告例¹⁶⁾もみられるが、実用性に疑問もある。今後、微生物分解などが実用的になればとも期待するが、現時点では、面源汚染対策は難しい。
- ③現時点では、点源汚染対策として、染色排水からのダイオキシン類を低減させることが最も効果的と考えられる。十分に低減できれば逆に染色排水が希釈効果となって河川水中のダイオキシン類濃度を低下してくれる側面もあるだろう。

このためには、染色排水からのダイオキシン類の生成・排出機構を解明する必要があり、平成18年度から本格的に調査研究に取り組む。解明できれば、原材料や染色工程の見直しなどによって低減化の道が開けるのではないかと考えられる。

4 まとめ

今回、染色排水が流入する九頭竜川水系の中小河川のう

ち、4河川を対象に詳細に調査を行い、環境基準を超過した馬渡川を中心に、各汚染源からの汚染寄与割合を試算するなど解析を行った。その結果、次のことが明らかとなった。

- (1) 馬渡川と磯部川の調査結果をみると、灌漑期では、中流と下流は同濃度レベルもしくは中流の方が濃度が高くなるケースもみられるが、非灌漑期では、下流の方がすべて濃度が高くなっている。
- (2) 特に馬渡川では、年間評価で中流 1.1pg-TEQ/L および下流 1.2pg-TEQ/L と環境基準を超過した。なお、代掻き時(4月下旬)の最高濃度データを除外すると、中流は 0.60pg-TEQ/L と環境基準以下となるが、下流は 1.1pg-TEQ/L と変化なく環境基準超過であり、下流では染色系未規制発生源が濃度上昇に寄与しているケースが多くみられる。
- (3) また、馬渡川では、河川流量に対する染色排水量の割合を約 20%と仮定した場合、TEQ ベースでの染色排水の汚染負荷割合は、4月下旬～8月は 50%を下回るが、9月～2月は 60～80%程度になると試算され、灌漑期と非灌漑期で農薬由来の汚染負荷割合と逆転することが確認された。

参考文献

- 1) 益永茂樹他：農薬のダイオキシン不純物，廃棄物学会誌，13(5)，247-254 (2002)
- 2) 清家伸康他：水田土壤中ダイオキシン類の起源と推移，環境化学，13(1)，pp.117-131 (2003)
- 3) 熊谷宏之他：未規制発生源からのダイオキシン類による河川への影響について—特異的な異性体組成と染色系未規制発生源との関係—，福井県衛生環境研究センター年報，2，88-97 (2003)
- 4) 熊谷宏之他：福井県内の河川におけるダイオキシン類組成の特徴と汚染由来について—特異的な異性体組成と未規制発生源との関係—，第 13 回環境化学討論会講演要旨集，608-609 (2004)
- 5) 熊谷宏之他：山間部および高濃度水域におけるダイオキシン類の汚染実態と特徴—汚染由来の推定と都市部および沿岸部との比較—，福井県衛生環境研究センター年報，3，93-107 (2004)
- 6) 熊谷宏之他：福井県における未規制発生源からのダイオキシン類による河川水への影響度について，第 14 回環境化学討論会講演要旨集，36-37 (2005)
- 7) 環境省環境管理局総務課ダイオキシン対策室大気環境課：ダイオキシン類に係る大気環境調査マニュアル (平成 13 年 8 月)
- 8) 環境庁水質保全局水質管理課：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)
- 9) 日本工業規格：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) (2005.6.20 改正)
- 10) 福井県：馬渡川水質保全計画，平成 8 年 3 月
- 11) 柏木宣久他：関数関係解析による Chemical Mass Balance，応用統計学，Vol.31，No.1，59-74 (2002)
- 12) 柏木宣久他：環境汚染に対する未確認発生源の寄与率の推定，第 15 回環境化学討論会講演要集，254-255
- 13) 環境省：平成 16 年度ダイオキシン類に係る環境調査結果，平成 17 年 11 月
- 14) 環境省：水田等農用地を中心としたダイオキシン類の排出実態調査結果，平成 14 年 12 月
- 15) 加藤陽一他：水田土壤中のダイオキシン類残留量及び流出量の推計，第 15 回環境化学討論会講演要集，18-19
- 16) 牧野知之他：凝集剤による水田からのダイオキシン類の放出抑制，第 13 回環境化学討論会講演要集，250-25