

# 底質からみた沿岸海域汚染の変遷

松本 英二 (海洋地質部)

## 1. はじめに

昭和47-48年にはじまるPCB・水銀による汚染魚問題は 広く社会の関心のまきおこし 海洋汚染が水俣湾等の特定海域に限ることなく 身近な海域にまで拡大されていることを明らかにした。

海洋汚染とは 海洋という環境の場における汚染のことである。環境汚染とは “自然過程による物質の分布量に対して 人為的放出量が環境中で明らかに認められる場合” を呼ぶ。自然界にまったく存在しない物質たとえば PCB BHC等の有機塩素化合物が環境中に見いだされるならば それは汚染と呼ぶことができよう。汚染が何らかの被害をもたらす場合 公害と呼ばれる。

汚染物質の多くは 各環境間を移動しつつ沿岸海域にもたらされる。沿岸海域に負荷された物質の一部は海水から除去され 海底に沈積する。沈積をまぬがれた物質は 外洋に運搬され 最終的には深海底に埋積すると考えられる。海水から取り除かれるのに要する時間を 滞留時間と呼んでいる。滞留時間は 元素や化合物の性質により著しく異なる。汚染物質の滞留時間が海水の交換時間にくらべて短い場合 汚染物質の大部分は 沿岸海域の海底に堆積する。堆積後の汚染物質の移動がなければ 海域汚染は堆積物中に記録されている。したがって 堆積物の年代を決定すれば 堆積物中での汚染物質の鉛直分布から 海域の汚染の推移を明らかにすることができる。また 現在の汚染度を非汚染時のバックグラウンド値と対比して評価することができる。本小論では 底質からみた沿岸海域汚染の変遷について述べる。

## 2. 堆積年代決定

堆積物の年代を求めることは 堆積量の決定や海洋汚染の変遷を追跡するうえで不可欠である。堆積物の年代決定のうち 放射壊変を時計として使う方法が最も信頼できる。放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) は 半減期5,700年で 数百年から3~4万年までの年代を決定することができる (木越 1965)。したがって 沖積世堆積物の年代を求めるために しばしば使われる。しかし 海洋汚染のように たかだか百年程度の年代を 放射性炭素法で求めることは不可能である。過去百年以内の堆積年代

を求める方法として 最近注目を集めているのは 放射性鉛 ( $^{210}\text{Pb}$ ) を用いる方法である (KRISHNASWAMI ら 1971)。 $^{210}\text{Pb}$  の半減期は22.2年であり 半減期の約5倍が年代決定の限度であるため 約百年までの堆積年代を求めることができる。この方法は 堆積物中での  $^{210}\text{Pb}$  の鉛直分布から堆積速度を求める方法である。年代決定の概略を述べる。

放射性元素の最初の放射能の強さを  $A(0)$  とし  $t$  年後の残っている放射能の強さを  $A(t)$  とすれば

$$A(t) = A(0)\exp(-\lambda t) \quad (2-1)$$

である。  $\lambda$  を放射壊変定数と呼ぶ。放射壊変にもとづく年代決定では  $A(0)$  と  $A(t)$  値から年代  $t$  を決める。底泥表面から深さ  $z(\text{cm})$  までの単位面積当りの堆積粒子の重量を  $W(\text{g}/\text{cm}^2)$  とすれば 深さ  $z$  における  $^{210}\text{Pb}$  の比放射能  $A(W)$  ( $\text{dpm}/\text{g}$ ) は

$$A(W) = \{A(0) - A(\infty)\}\exp(-\lambda W/w) + A(\infty) \quad (2-2)$$

で表わされる。ここで  $\lambda$  は  $^{210}\text{Pb}$  の壊変定数(0.0311/年)  $w$  は堆積速度 ( $\text{g}/\text{cm}^2/\text{年}$ ) および  $A(\infty)$  は堆積物中

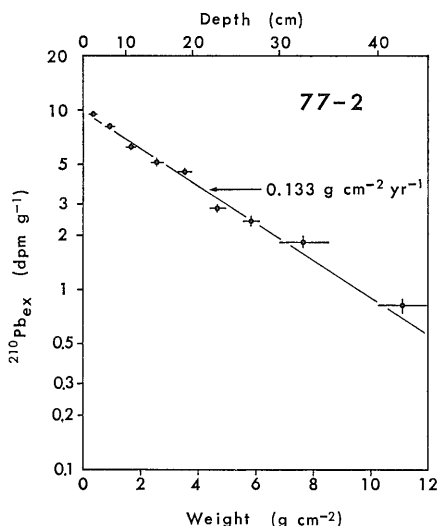


図1 東京湾湾奥部における  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  の鉛直分布 直線の傾きから  $0.133\text{g}/\text{cm}^2/\text{年}$  の堆積速度が得られる

にバックグラウンドとして含まれている  $^{210}\text{Pb}$  の比放射能で 通常  $^{210}\text{Pb}$  の比放射能が一定値に達する深さでの値をとる. いま  $\{A(W) - A(\infty)\}$  の値を  $A_{\text{ex}}(W)$  とすれば 2-2 式は

$$A_{\text{ex}}(W) = A_{\text{ex}}(0) \exp(-\lambda W / w) \quad (2-3)$$

となり  $W$  に対して  $\log A_{\text{ex}}(W)$  をプロットすれば直線の傾きより堆積速度  $w$  が求まる.

第1図は 東京湾湾奥部の地点 77-2 における  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  の鉛直分布を示した. ここで  $A_{\text{ex}}(W)$  値を  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  と表わした. 直線の傾きから  $0.133\text{g}/\text{cm}^2/\text{年}$  の堆積速度が得られる. 東京湾の湾奥・湾央の6地点での堆積速度は  $0.099 \sim 0.144\text{g}/\text{cm}^2/\text{年}$  であり 平均  $0.122\text{g}/\text{cm}^2/\text{年}$  であった. すなわち 東京湾では 年間  $1\text{cm}^2$  当り平均して  $120\text{mg}$  の沈積物があることを意味している. これは  $0.76\text{cm}$  の表層堆積物の厚さに相当する.

放射性鉛法は 表層堆積物中における  $^{210}\text{Pb}$  の鉛直分布から堆積速度を決定するため 表層堆積物を不攪乱で採取しなければならない. 不攪乱採泥器の開発が不可欠である. 第2図に円筒および箱式採泥器を掲げた. 軟弱な底泥を乱さずに採取するには

- (1) 泥中に採泥管をゆっくり貫入すること
- (2) 採泥管の口径を大きくしその口径に等しい水抜口を作ること
- (3) 底泥試料の保持装置をつけること

が重要である.

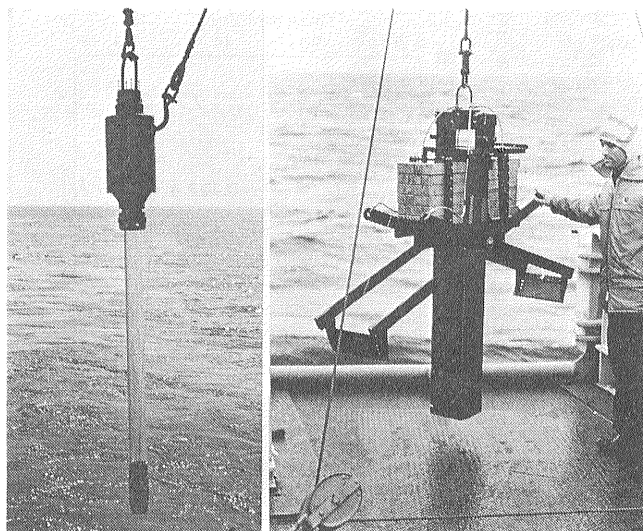


図2 海底の堆積物を不攪乱で採取するための装置 (右)は円筒型(松本・青木式)で(左)は箱型(Soutar式)

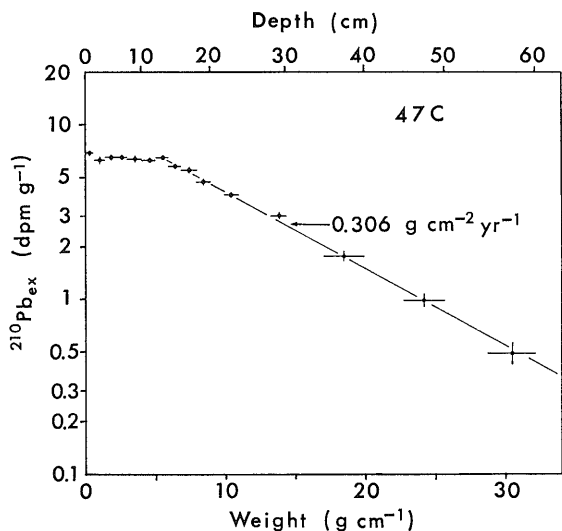


図3 大阪湾湾央部における  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  の鉛直分布 表層における  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  の一定値は底生動物の混合による 混合層の下で  $0.306\text{g}/\text{cm}^2/\text{年}$  の堆積速度が求められる

第3図は 大阪湾湾央部47Cから採取された堆積物中の  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  の鉛直分布である. 表層  $14\text{cm}$  中における  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  の値は一定である. この均一層下では  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  は対数的に減少し  $0.306\text{g}/\text{cm}^2/\text{年}$  の堆積速度が得られる. この均一層の堆積するのに 深層での堆積速度からみて19年要する. この均一層は底生動物による上下混合によってもたらされた結果と考えられる(松本 横田 1978). 一般に 海底と接する底層水中の溶存酸素量が多い海域では 底生動物による底質の攪乱があるとみてよい. このような堆積物では汚染物質が再移動されているので 海域汚染の記録が乱されている.

### 3. 海域汚染の歴史

“行く川の流れば絶えずして しかも もとの水にあらず” と方丈記を引用するまでもなく 水は絶えまなく混合し流れ去る. 海域の水質に関する過去のデータの蓄積はほとんどなく 海域の水質汚染の変遷を詳しく知ることは不可能に近い. 重金属濃度に関する過去のデータは皆無に等しい.

汚染物質の多くは 海水から取り除かれて海底に堆積するため 堆積物中に海域汚染が記録されている. カルフォルニア大学の Chow ら (1973) は 南カルフォルニア沿岸堆積物中における鉛の含量が表層に高いことを見出した. 放射性鉛法で堆積年代を求めたところ1910年頃より鉛含量の増加がはじまり 1970~1971年に

表 1 東京湾湾奥（地点77-2）における元素の1977年の堆積速度 元素を自然および人為起源にわけ汚染度を明らかにした

起 源	堆 積 速 度 (μg/cm <sup>2</sup> /年)							
	亜鉛 (Zn)	銅 (Cu)	鉛 (Pb)	クロム (Cr)	鉄 (Fe)	水銀 (Hg)	炭素 (C)	窒素 (N)
自 然	13	4.1	2.9	10	5,250	0.015	2,500	210
人 為	64	6.3	8.2	15	—	0.12	3,200	470

1910年以前の2.1~6.5倍にまで増えていることを見いだした。彼等はその原因をガソリン添加物である四エチル鉛の燃焼によって大気中に放出された鉛が海域を汚染するまでに至っていると結論した。著者らは1972年から放射性鉛法による年代測定に関する仕事に着手していたが Snow らの論文に非常に刺激されかつ PCB や水銀による汚染魚問題が国民的関心事であったことも関係し 東京湾や大阪湾の汚染に本腰を入れて取り組みはじめた(松本・横田 1976 1977 1978)。堆積物の採取 堆積年代測定 重金属元素・有機物元素の分析と夢中で仕事をし 多くの知見を得ることができた。ここで それらの一部を紹介したい。

第4図は 前述の放射性鉛による年代決定が行われた東京湾湾奥部 77-2 における重金属元素および炭素・窒素の鉛直分布である。図の右側に堆積年代を記入した。亜鉛 (Zn) 銅 (Cu) 鉛 (Pb) クロム (Cr) および水銀 (Hg) の微量元素の含量は 40cm の深さより徐々に増え 20cm の深さから急増して 5cm の深さで極大となっている。これを年代的にみると 明治末期の

1900年頃より重金属汚染がはじまり 戦後の1950年頃より急激に汚染度が高くなり 1972年をピークにそれ以降は減少して今日に至っている。鉄 (Fe) のような主要金属元素は 深さに対して変化がみとめられず 人為的影響はみとめられない。炭素および窒素は微量元素と同様に 深さ 40cm の1900年頃より増加の一途をたどって表面に至っている。堆積物中の炭素や窒素の大部分は有機態のもので 産業・生活排水による栄養塩の負荷→富栄養化→植物プランクトンの異常増殖(赤潮)という水質有機汚濁化による炭素・窒素の堆積量の増加であるといえる。図4から明らかのように 40cm 以深の堆積物中の元素含量は一定値であり これは自然供給量とみることができる。40cm 以浅では 自然供給量に人為供給量が上積みされている。堆積物の表層すなわち1977年における底泥への自然および人為供給量を計算して 表1に示した。亜鉛 銅 鉛およびクロムの重金属元素については 自然供給量の1.5~4.8倍の人為供給量がある。水銀の場合 人為供給量は 自然のそれの8倍にも達している。炭素は1.3倍 窒素は2.2倍の人為供給量がある。

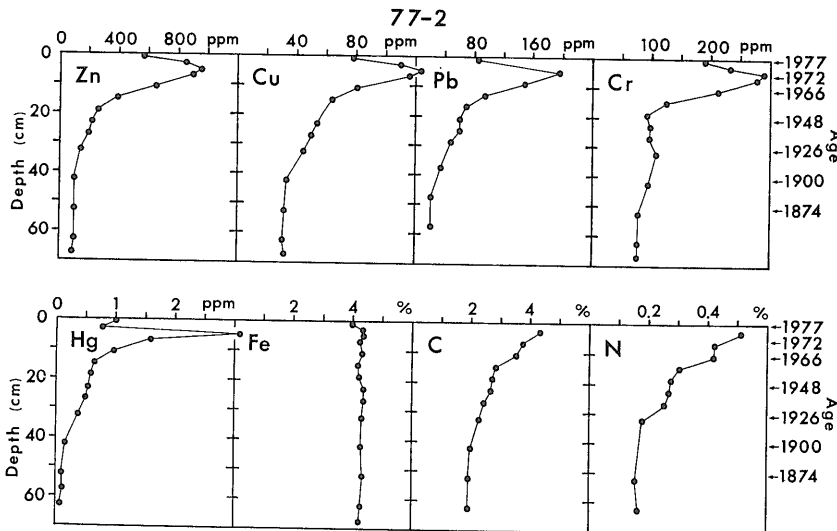


図 4 東京湾湾奥部の堆積物中の重金属元素および炭素・窒素含量の鉛直分布 図の右側の数字は堆積速度から推定した堆積年代をあらわす 深さ 40cm の 1900 年頃より汚染がはじまった。

微量元素は 主要金属元素とことなり 自然による風化過程での移動量が少ないので 人為的な微量元素の利用と環境への放出が 明らかにみとめられる。水銀のように 海水中の濃度が  $n \times 10^{-5}$  ppm 底泥中の含量が 0. n ppm と極微量である元素の人為的利用は 容易に環境を汚染し公害にまで至るといえる。水銀 カドミウム鉛および銅

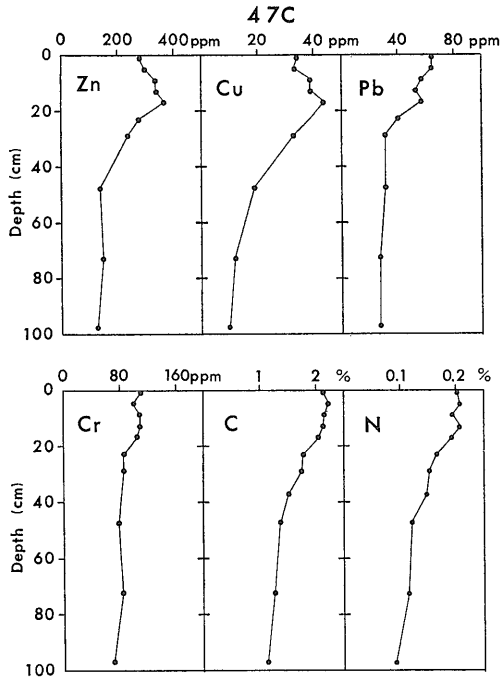


図5 大阪湾湾央部の堆積物中の重金属元素および炭素・窒素含量の鉛直分布 表層14cm(19年分に相当)は底生動物によって混合されている

等の元素が かつて被害をもたらしたということは これらの元素の環境濃度が著しく低いということと関係があるといえる。

東京湾湾奥の堆積物にみられるように 東京湾では

現在 重金属元素の汚染については改善がみとめられるが 炭素をはじめとする有機汚濁については依然として悪化の方向をとっている。東京湾では 有機物の激増の結果 海水 底質中の溶存酸素が消費され 貧・無酸素化をもたらし 底生生物を激減させている。

第5図は 前に述べた大阪湾湾央部 47C における重金属元素と炭素・窒素含量の測定結果である。重金属元素および炭素・窒素含量は 40cmの深さより浅くなるにつれて増加し 表層17cmにおいて高原状態となっている。放射性鉛法によれば 表層14cmは底生動物によって攪拌されているので 元素含量の一定値は 生物攪乱の結果であるといえる。したがって 元素の鉛直分布から大阪湾の汚染の変遷を直接に読みとることはできない。

#### 4. 堆積海域

湾内水から元素が除去され 海底に堆積するが 海水から除去された元素は 海底に水平的に一樣に堆積するわけではない。海底は 堆積域 無堆積域および浸食域にわけられる。人為的に負荷された汚染物質を含む汚染底質は 堆積域にのみ見いだされる。したがって 海域汚染を問題とする場合 海底を堆積という観点から区分することは きわめて重要である。堆積域とは 現在明らかに堆積作用がみとめられる海域のことである。

約1万年前の最終氷河末期に海水準は現在より45m低かった。それ以降海水準は急激に上昇して今日に至っており その間の堆積物を沖積世堆積物(または現世堆積物)と呼んでいる。沖積世堆積物が分布している海域は 現在 堆積域である可能性が大きい。第6図は 地層音波探査 海底ボーリングおよび放射性炭素年代測定によって求められた大阪湾および播磨灘における沖積世堆積物の地層の厚さの分布である(大嶋・松本 1975)。大阪湾の中央部には 40mにも達する軟弱な泥質の沖積世堆積物が分布して

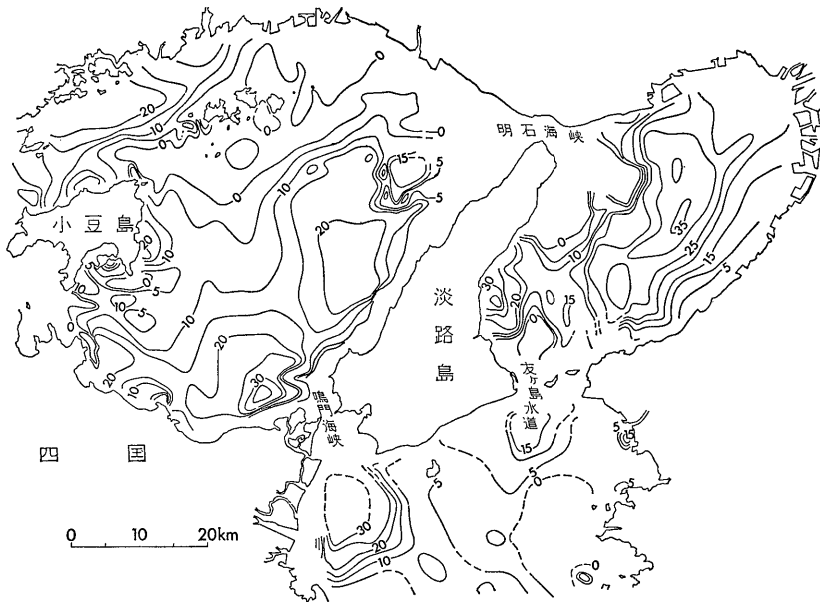


図6 大阪湾および播磨灘における沖積世堆積物の地層の厚さ 単位はmである

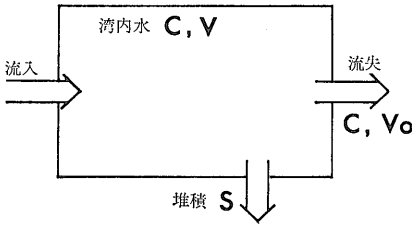


図7 内湾における物質の動き 湾内水の元素の濃度(C)は元素の流入 流出および堆積(S)によって支配されている

おり 大阪湾における堆積の中心と考えられる。播磨灘では 淡路島西側と四国側の沖合に厚い沖積層がみとめられる。沖積世堆積物の分布域では 放射性鉛法によって堆積速度が求められており 堆積物の表層には重金属汚染が明らかにみとめられる(松本・横田 1978)。それに反して 明石海峡や友ヶ島水道域には 沖積世堆積物はみとめられない。氷河期終了による海水準上昇とともに海峡・水道部が形成され その形成時に浸食され残存した砂礫や化石が海底に露出している。この海域は 現在は無堆積域と考えることができる。

堆積速度は 堆積粒子の海底への供給量と供給された粒子の再移動量との差として与えられる。供給量は 粒子の供給地からの距離 粒子の運搬経路である海流等に支配されている。再移動量は 主に海底直上の流れの速さに依存している。供給量が大ききとも 再移動量が同様に大きければ堆積速度は大きな値とはならない。

### 5. 内湾における元素の収支

東京 大阪 名古屋等の大都市は 閉鎖的な湾に面して発達している。都市部から排出される汚染物質が湾内に負荷され 内湾汚染を引きおこしている。内湾に負荷された物質の挙動の解明は 汚染機構を解明し 海域浄化の指針となるであろう。ここでは湾内に負荷された元素の 海水中での滞留時間と収支について述べる。

湾内水中の元素の濃度(C)は 湾への流入 湾からの流出および湾内での堆積によって支配されている(図7)。湾内水の体積をV 湾口からの海水の流出速度をV<sub>0</sub> 湾内での元素の堆積速度をSとすれば 元素の滞留時間(τ<sub>e</sub>)は

$$\tau_e = \frac{CV}{S + CV_0} \quad (5-1)$$

で与えられる。海水の滞留時間は 簡単に V/V<sub>0</sub> である。

東京湾は面積 1,000km<sup>2</sup> 平均水深 17m で 富津崎と

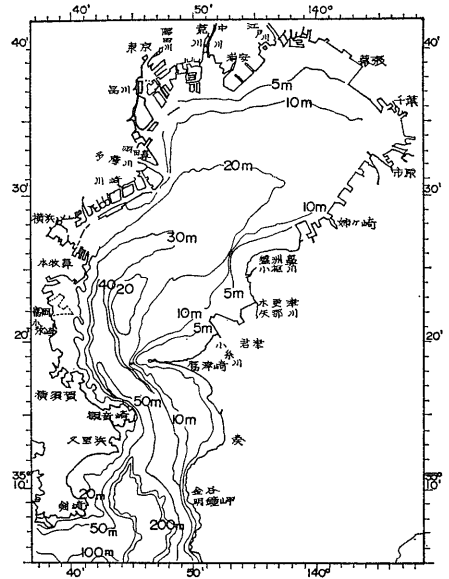


図8 東京湾の海底地形 富津崎と観音崎をむすぶ湾口部は 6km である

観音崎をむすぶ湾口部は 6km と狭く 閉鎖性の強い内湾である(図8)。宇野木・岸野(1977)によれば 湾口を通して湾内水が外洋水と交換するのに0.13年(1.6ヵ月)要する。湾内での堆積速度は 前に述べた放射性鉛年代法によって求めた。元素の年間堆積量は 堆積速度(g/cm<sup>2</sup>/年)に元素含量(μg/g)を掛けることにより求められる。得られた東京湾における1977年の元素の堆積速度(年間堆積量)を表2に示した。湾内水中の元素の濃度は 多くの測定値が報告されているが そのうち最近の報告値を表3に与えた。重金属濃度の測定値は 測定者によって著しく違っている。これは 海水中の重金属の濃度が著しく低いことと 海水中における元素の存在状態が複雑であることに起因している。海水中の重金属の濃度は 極めて低いので 通常の採水や分析装置では 試料海水を汚染させてしまう。重金属濃度の測定に際しては 採水法 試料水の保存法 化学分析室の設備 化学分析法についての十分な配慮がなされなければ 正しい値を得ることができない。表3の値のうち信頼度の高いと考えられる値を計算に用いた。これらの値を表4に採水年時および報告者とともに記した。湾内水の採水年時における元素の堆積速度は 放射性鉛年代測定と元素分析から知ることができる(表4)。これらの値と東京湾内水の滞留時間(0.13年)とから 5-1式を使って 各元素の湾内水中での滞留時間を算出して 表4に掲げた。

表 2 東京湾における1977年の元素の堆積速度

元 素	堆 積 速 度 ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{年}$ )	
	範 囲	平 均
亜鉛 (Zn)	50 — 85	70
銅 (Cu)	8.2 — 15	11
鉛 (Pb)	8.1 — 12	10
クロム (Cr)	15 — 24	20
水銀 (Hg)	0.13— 0.14	0.14
鉄 (Fe)	4,200 —6,100	5,200
炭素 (C)	4,400 —5,800	5,100
窒素 (N)	440 — 680	560

表 4 東京湾内水における元素の滞留時間

元 素	湾内水中の濃度 ( $\mu\text{g}/\text{l}$ )	堆 積 速 度 ( $\text{g}/\text{cm}^2/\text{年}$ )	滞 留 時 間 (年)
Zn	32 (1)	76	0.11
Cu	2.7 (2)	10	0.10
Pb	0.26 (3)	9.8	0.033
Hg	0.17 (4)	0.33	0.11
N	760 (4)	490	0.12

(1) MORITA, 1971 (2) MAEDA & TANAKA, 1974  
 (3) HIRAO, 1977 (4) Itto-sanken, 1972

鉛 (Pb) の滞留時間は 0.033 年と湾内水の滞留時間 (0.13年) に比べて著しく短く 短時間のうちに海水から取り除かれ 海底に沈積することを示している。窒素 (N) の滞留時間は 海水の滞留時間とほぼ等しくその大部分が湾口から外洋に運搬される。銅 (Cu) 亜鉛 (Zn) および水銀 (Hg) の滞留時間は 鉛と窒素の値の間に入る。

各元素の湾内における堆積速度と湾口からの流出速度を表5に示し 元素の東京湾内での収支を計算した。鉛の場合 1977年において 98トンが湾内に堆積し 34トンが湾口から流出した。湾に負加された鉛の約74%が堆積するといえる。1972年の水銀の場合22トンが流出し 3.3トンが堆積したといえる。窒素は 富栄養化 赤潮発生と関連して重要であるので 窒素の収支を詳しく述べてみる。

一都三県公害防止協議会報告書 (1972 1973) によれば 東京湾への窒素化合物 (窒素ガス  $\text{N}_2$  は除く) の河川を通

じての流入負荷量は 窒素にして  $1.1 \times 10^5$  トン/年である。これに降水による負荷と東京湾内水および海底表層に生息する窒素固定生物による窒素固定 ( $\text{N}_2 \rightarrow \text{NH}_3$ ) 量が負荷量として考慮されなければならない。降水による負荷は 1977年の小倉・五十嵐 (1978) の降水の測定値から  $8.4 \times 10^3$  トンと計算される。窒素固定量については資料がないので 一応上記の  $1.1 \times 10^5$  トン/年を負荷量の下限と考えることにする。湾口から湾外に流出する窒素量は表4に示したように  $9.9 \times 10^4$  トン/年で 湾内には  $4.9 \times 10^3$  トンが年間堆積する。服部 (1976) は湾内水と海底土表層での脱窒生物による脱窒活性を報告している。この値を用いると  $2.0 \times 10^4$  トン/年の窒素が脱窒反応 ( $\text{NO}_3^- \rightarrow \text{N}_2$ ) によって 窒素ガスとして大気に戻される。これらを図9に示した。脱窒 堆積および湾口流出量の合計は  $1.2 \times 10^5$  トン/年で ほぼ負荷量に匹敵する。

東京湾の汚濁は 富栄養化による植物プランクトンの異常増殖 (赤潮) によるといわれている。植物プランクトンによる粒状物生成量は 基礎生産量 ( $\text{g}$  炭素/ $\text{m}^2/\text{日}$ )と

表 3 東京湾内水中の元素の濃度

元 素	採 水 年	分析試料集	濃 度 ( $\mu\text{g}/\text{l}$ )		文 献
			範 囲	平 均	
亜鉛 (Zn)	1971	3	15.1 — 53.4	32	MORITA (1973)
	1974	1		34	
銅 (Cu)	1971	3	3.4 — 9.2	5.6	MAEDA & TANAKA (1977)
	1974	5		2.7	
鉛 (Pb)	1971	3	2.0 — 5.1	3.3	MAEDA & TANAKA (1977)
	1977	1		0.26	
水銀 (Hg)	1971	14	0.1 — 1.8	0.72	TSUBOTA (1973)
	1972	9		0.17	
窒素 (N)	1972	153	0.07— 0.36	0.17	HIRAO (1978)
				250 —1600	
					Itto-Sanken (1973)
					Itto-Sanken (1973)

表5 東京湾における元素の収支

元 素	年 時	堆積速度 (トン/年)	流出速度 (トン/年)
亜鉛 (Zn)	1971	760	4,200
銅 (Cu)	1974	100	350
鉛 (Pb)	1977	98	34
水銀 (Hg)	1972	3.3	22
窒素 (N)	1972	4,900	99,000

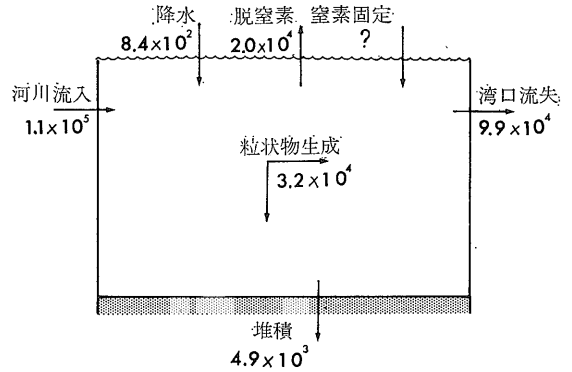


図9 東京湾における窒素収支 数字の単位はトン/年である

して表わされる。東京湾における基礎生産量  $0.5\text{g}/\text{m}^2/\text{日}$  と植物プランクトンの平均元素組成比 (C : N : P = 106 : 16 : 1) から粒状有機窒素の生成速度  $3.2 \times 10^4$  トン/年 が得られる。一方表層堆積物中の窒素の大部分は有機態窒素であり粒状有機態窒素が海水から沈積したものと考えられる。堆積速度  $4.9 \times 10^3$  トン/年は植物プランクトンによる粒状有機態窒素生成量の約15%を占めている。残りの85%は分解して水圏に回帰するか湾外に流出するといえる。

6. おわりに

海洋汚染防止 環境保全が呼ばれて久しい。その間多くの環境学者や海洋学者がこの問題を取り上げてきた。東京湾を例にとっても多くの調査・研究が行われてきたが汚染の実態が十分にわかっているとはいえない。それは海洋における現象が物理・化学・生物・地質学の多岐にわたって複雑にからみあっていることもあるが調査・研究の明確な視点の欠如が大きいのではないだろうか。“物質の動き”という視点の掘り下げへの執着と発展こそが海洋汚染の防止と海域浄化への私の期待を持たせてくれる。水銀等の微量元素の動きと収支を科学的に究明することは大きなドラマが終演したあとの落ち穂拾いではない。将来再び同じ誤ちをくり返さないための環境学者の使命であると同時に海洋における錯綜した現象をときほぐす糸口を与えてくれるのではないだろうか。

参 考 文 献

CHOW, T.J., BRULAND, K.W., BERTINE, K., SOUTAR, A., KOIDE, M. and GOLDBERG, E.D. (1973): Lead pollution: Record in Southern California coastal sediments, Science, 181 551-552.  
 服部明彦(1976): 海洋における窒素循環 地球化学 10 3-6.  
 堀部純男(1972): 文部省特定研究I. 東京湾の汚染物質の生

物地球化学的研究 28pp.  
 堀部純男・坪田博行(1972): 堀部(1972)中に引用。  
 平尾良光(1978): 私信。  
 一都三県公害防止協議会(1972): 昭和46年度東京湾総合調査報告書 446pp.  
 一都三県公害防止協議会(1973): 昭和47年度水質汚濁共同調査報告書(東京湾総合調査) 266pp.  
 木越邦彦(1965): 年代測定法 紀伊国屋 222pp.  
 KRISHNASWAMI, S., LAL, D., MARTIN, J.M. and MEYBECK, M. (1971): Geochronology of lake sediments, Earth Planet. Sci. Lett., 11, 407-414.  
 前田 勝・田中英夫(1977): 東京湾海水中の銅の状態別定量 東京水産大学研報 63 173-179.  
 松本英二・横田節哉(1976): 東京湾・大阪湾における重金属汚染の歴史 科学 46 182-184.  
 松本英二・横田節哉(1977): 底泥からみた東京湾の汚染の歴史 地球化学 11 51-57.  
 松本英二・横田節哉(1978): 大阪湾底泥の堆積速度と重金属汚染 日本海洋学会誌 34 108-115.  
 森田良美(1973): 海水中の銅および亜鉛含量 坪田・関(1973)中に引用。  
 小倉紀雄・五十嵐公文(1978): 降水起源の栄養塩および有機物 日本地球化学会年会講演要旨集 p. 35.  
 大嶋和雄・松本英二(1975): 汚染底質の調査技術 産業公害防止技術 昭和50年度版 211-218.  
 坪田博行(1973): 海水中の鉛含有量 坪田・関(1973)中に引用。  
 坪田博行・関 文威(1973): 東京湾の汚染物質の生物地球化学的研究 沿岸海洋研究ノート 11 13-22.  
 宇野木早苗・岸野元彰(1977): 大局的に見た内湾の海水交流 第24回海岸工学講演会論文集 486-490.